

核燃料部会セッション

「溶融事故における核燃料関連の課題検討ワーキンググループ最終報告」

溶融燃料サブワーキンググループ活動報告

電中研 尾形孝成

背景

- ◆ 1F1～3号機からの燃料デブリの取出しに向けて、格納容器内部の観察や炉内状況の推定など様々な現地作業や研究開発が進められている。
- ◆ シビアアクシデント(SA)解析コードの開発・改良や模擬試験など、SA対策に関する新たな研究開発が国内でも始められつつある。
- ◆ これらを効率的に進めるためには、SAに関する既往研究の成果を十分に活用することが重要。

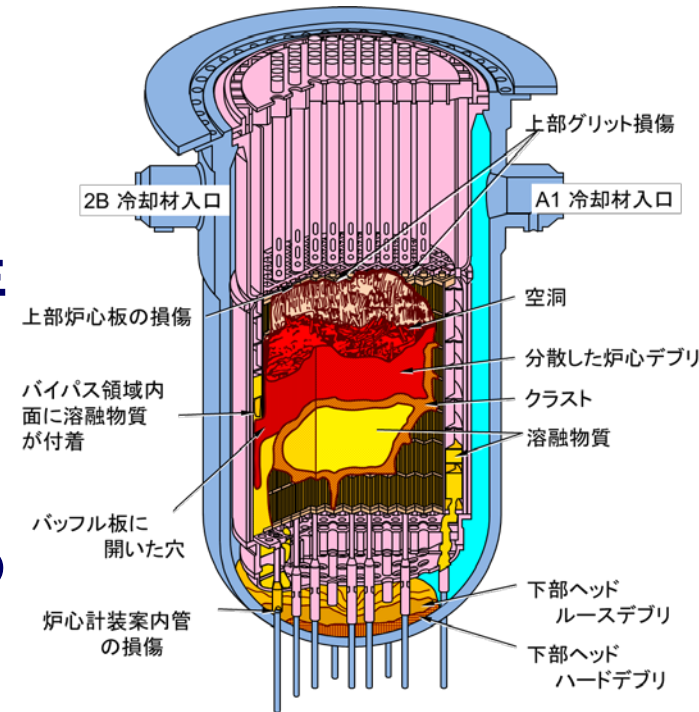
目的と活動計画

- ◆ 1F1～3号機の廃止措置や今後のSA対策に関する研究開発に対して基礎データを提供することを目的とする。
- ◆ SAに関する国内外の既往研究を調査し、SA事象進展、熔融燃料の生成過程と特性(組織、組成、物性など)、これらに影響を与える因子、およびモデリングの現状等について取りまとめる。
- ◆ 調査活動は2012年7月に開始、現在調査結果を取りまとめ中。
- ◆ 国内の専門家によるレビューを受け、必要に応じて追加調査。
- ◆ SAに関する種々の研究に調査結果が活用されるように、報告書を公刊物として発行する計画。

SA事象推移の概要

◆シビアアクシデントの事象推移は、プラントや起因事象によって若干の違いがあるものの概ね次の通り。

- ① 崩壊熱により燃料棒の温度が上昇し、燃料棒、制御棒およびその他炉内構造材が相互に反応し、一部が溶融
- ② ジルカロイ被覆管と水蒸気との反応によって水素が発生するとともに、反応熱によって炉内の温度が急上昇
- ③ 構造材や被覆管の融点を超え、さらには燃料ペレットの溶解、溶融に至る。
- ④ 損傷が拡大して初期の形状を保持できなくなった炉心の内部では一定規模の溶融物のプールが形成
- ⑤ 溶融物が圧力容器底部に移行し、熱的・化学的な損傷によって圧力容器が破損すると、破損孔を通じて溶融物が流下、格納容器底部のコンクリートと反応

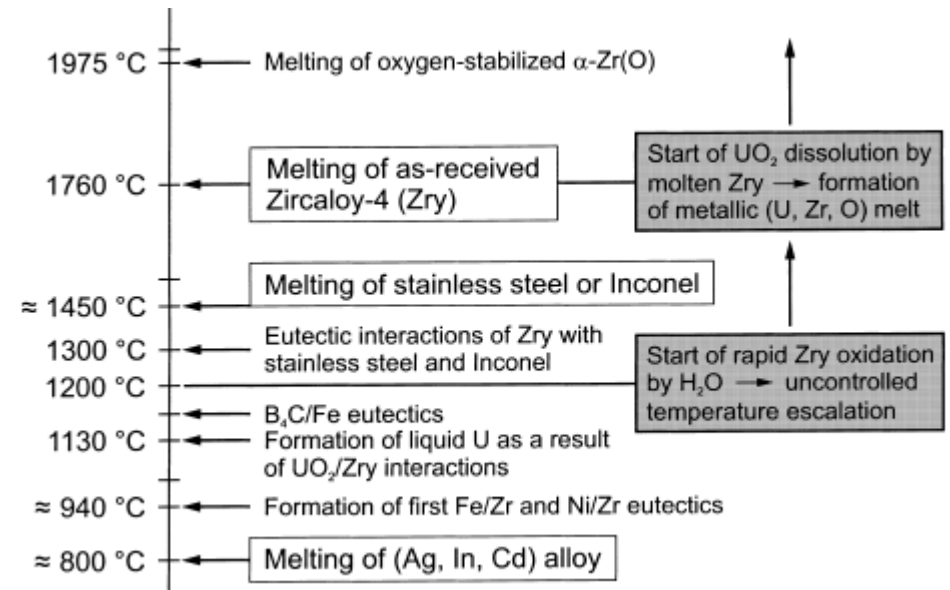
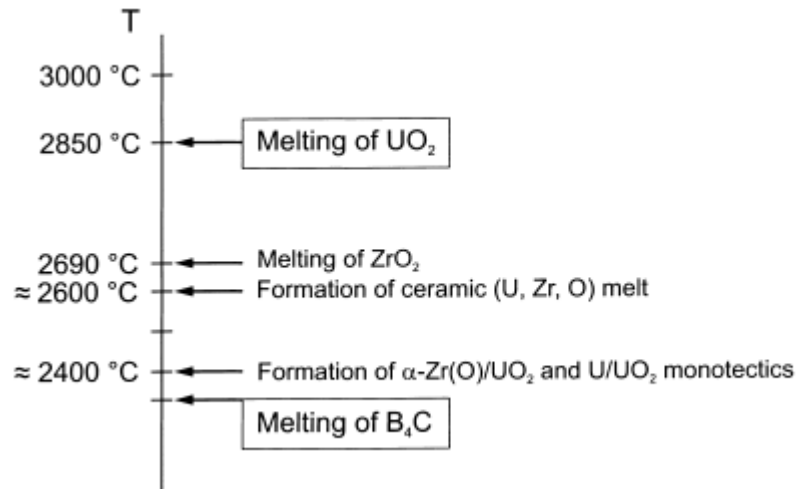


下部ヘッドへのリロケーション事象 (224分) 後の TMI-2炉心状況図

R.K. McCardell, Nucl. Eng. Des. 118(1990) 441

SA事象推移の概要

◆炉心構成材料の間の反応温度



P. Hofmann, J. Nucl. Mater. 270 (1999)194.

調査対象

◆シビアアクシデント事象進展に関する既往研究

- ① TMI-2事故： 事象進展、炉内物質の特徴、FPの挙動、炉内物質の取出しなど
- ② 炉内総合試験： STEP、ACRR-ST、ACRR-DF、PBF-SFD、FLHT、LOFT-FP、Phebus-SFD、Phebus-FP
- ③ 炉外加熱試験： NIELS、CORA、SANDIA-XR、CODEX、QUENCH
- ④ FP放出に関する試験： ORNL-HI/VI、Heva、Vercors、VEGA
- ⑤ 溶融燃料挙動試験： RASPLAV、MASCA、MCCI関連試験、FCI関連試験
- ⑥ 材料間の反応試験： Zry/水蒸気、Zry/UO₂、Zry/構造材、Zry/制御材、UO₂/構造材、UO₂/制御材、UO₂/水蒸気、制御材/構造材、制御材/水蒸気、構造材/水蒸気
- ⑦ SA総合解析コードおよび詳細解析コード： MELCOR、SCDAP

◆SWGメンバーで分担して調査

調査結果－炉内総合試験の概要

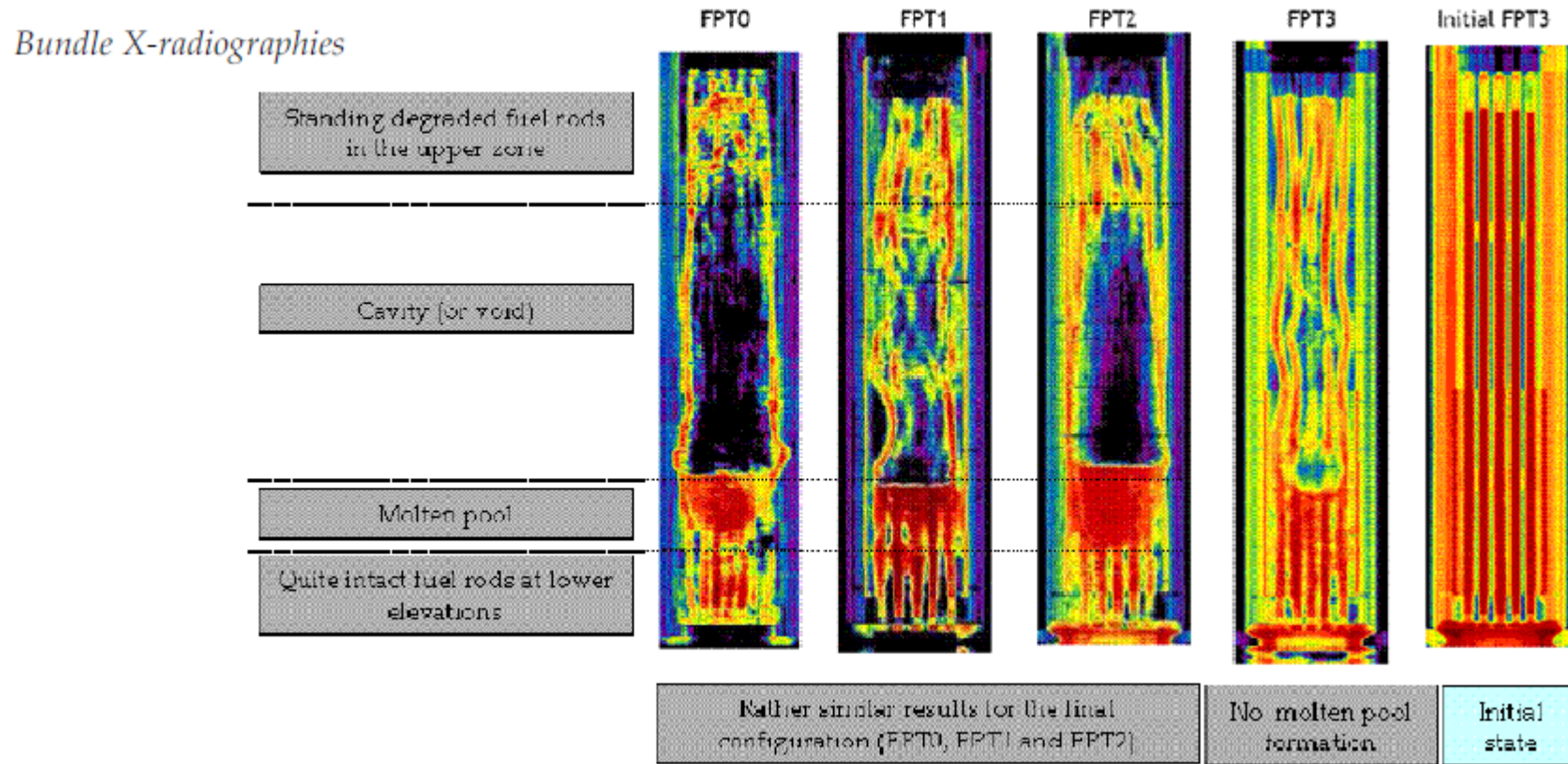
- ◆ SA時の燃料破損・熔融進展過程やFP放出挙動などを調べるため、照射済燃料棒または集合体を炉内で加熱
- ◆ SA時の事象進展の理解に寄与
- ◆ TMI-2事故後の1980年代に多く、CEAのPhebus-FP試験を最後に現在は実施されていない
- ◆ PWRを模擬した試験が多く、B₄C制御棒を使用した試験は2例のみ
 - ◆ ACRR DF-4試験では、鉄とホウ素との共晶反応(～1450K)のため、ステンレス鋼の融点より低い1520～1570Kで制御棒ブレードの破損が確認された。
 - ◆ Phebus-FP-FPT3では、試験集合体にB₄C制御棒を組み入れた結果、炉心損傷の様相は他と似ているが、ホウ素と構造材との反応により、低融点物質が形成され、集合体の損傷が加速されることが示された。

調査結果－炉内総合試験の概要

試験名	TMI-2	PBF-SFD	STEP	ACRR-DF	ACRR-ST	NRU-FLHT	LOFT-FP	Phebus-SFD	ACRR-MP	Phebus-FP
施設	発電炉	PBF/INEL	TREAT/ANL	ACRR/SNL	ACRR/SNL	NRU/AECL	LOFT/INEL	Phebus/CEA	ACRR/SNL	Phebus/CEA
年代	1979	1982-1985	1984-1985	1984-1986	1985-1989	1985-1987	1984-1985	1986-1989	1989-1992	1993-2004
目的	-	燃料破損過程、 FP放出	FP放出	燃料破損過程	還元雰囲気下 でのFP放出	実長の 燃料破損過程	初期の 炉心損傷過程	初期の 炉心損傷過程	後期の 溶融進展過程	後期の 溶融進展過程、 FP放出
試験回数	-	4	4	4	2	4	2	6	2	5
燃焼度	0.9 GWd/t	0-38 GWd/t	31-36 GWd/t	未照射	47 GWd/t	0-28 GWd/t	0.4-1.4 GWd/t	未照射	未照射	0-38 GWd/t
燃料棒 本数	全炉心	28~32	4	9~14	4	11~12	11x11	21	UO ₂ /ZrO ₂ デブ リベット~3kg	20 (FPT4はデ ブリベット試験)
燃料棒 長さ	3.6 m	0.914 m	1 m	0.50 m	0.15 m	4 m	1.67 m	0.8 m	-	1 m
制御棒	Ag-In-Cd	Ag-In-Cd	Ag-In-Cd	Ag-In-Cd/B ₄ C	なし	なし	Ag-In-Cd	Ag-In-Cd	Ag, In	Ag-In-Cd/B ₄ C
圧力	5-15 MPa	6.8-7.0 MPa	0.16-8MPa	0.7-2.0	0.2-2.0 MPa	1.4 MPa	0.3-1.4 MPa	0.5-3.5 MPa	0.1 MPa	0.2 MPa
最高温度	>3000 K	>2800 K	~2900 K	~2700 K	~2500 K	2300-2600 K	2400-3000 K	~2750 K	~3400 K	>2800 K

調査結果－炉内総合試験の概要

(例)Phebus-FP試験の状況



M. Barrachin, International Seminar on Fuel Degradation Methodology in Severe Accidents - Tokyo, Japan, 26 October 2012.

調査結果－炉外加熱試験の概要

- ◆未照射の燃料棒または集合体を電気ヒータで加熱して、熔融進展挙動を調べる試験
- ◆B₄C制御棒を組み入れた試験も比較的多く実施
- ◆CODEX試験とQUENCH試験では、空気浸入の影響も調査
- ◆CORA試験の後継としてQUENCH試験(被覆管のみ)が実施中

Consequences of air ingress for cladding



1 hour at 1200°C in steam



1 hour at 1200°C in air

M. Steinbrück, International Seminar on Fuel Degradation Methodology in Severe Accidents - Tokyo, Japan, 26 October 2012.

調査結果－炉外加熱試験の概要

試験名	NIELS	CORA	SANDIA-XR	CODEX	QUENCH
実施機関	KfK	KfK	SNL	KFKI (Hungary)	KIT (FZK)
年代	1982-1986	1987-1992	1993-1996	1995-2002	1997-
目的	初期の溶融進展過程	初期の溶融進展過程	BWRの金属溶融物の 排出挙動	初期の溶融進展過程 空気侵入の影響	注水時の水素発生、 空気侵入の影響、B ₄ C
試験回数	23	19	3	7	16(継続中)
燃焼度	未照射UO ₂	未照射UO ₂	未照射UO ₂	未照射UO ₂	被覆管のみ
燃料棒本数	1~9	25~59	64	7~9	~20
燃料棒長さ	0.4 m	1.0 m	1.0 m	0.6 m	1.0 m
制御棒	Ag-In-Cd	Ag-In-Cd/B ₄ C	B ₄ C	B ₄ C	Ag-In-Cd/B ₄ C
圧力	0.1 MPa	0.2-1.0 MPa	0.1 MPa		
最高温度	2523 K	2300~2500 K	~2300 K	~2000 K	1800~2400 K

調査結果－FP放出に関する試験

◆SA時のFP放出挙動を詳細に調べるため、照射済燃料のセグメントを炉外で加熱

◆主なパラメータ:

温度、雰囲気(水蒸気/空気/水素/He)、圧力等、他

試験名	HI	VI	HEVA	VERCORS	VERCORS HT-RT	VEGA
実施機関	ORNL	ORNL	CEA	CEA	CEA	JAERI
目的	燃料からのFP放出挙動	縦置き、雰囲気の影響	雰囲気の影響	雰囲気の影響	高燃焼度、高温(溶融)	圧力、MOX、雰囲気の影響
試験回数	6	7	8	6	8	10
燃焼度	10~40 GWd/t	40~47 GWd/t	19~37 GWd/t	28~55 GWd/t	37~72 GWd/t	43~56 GWd/t
セグメント長さ	152~203 mm	152 mm	(ペレット3個)	(ペレット3個)	(ペレット3個)	-
最高温度	1675~2275 K	2300~2720 K	1900~2370 K	2130~2620 K	2423~2970 K	2773~3123 K
圧力	0.1 MPa	0.1 MPa	0.1 MPa	0.1 MPa	0.1 MPa	0.1~1 MPa
雰囲気ガス	水蒸気	水蒸気、水素、水素+水蒸気、空気+水蒸気	水蒸気、水蒸気+水素	水蒸気、水素、水素+水蒸気、空気+水蒸気	水蒸気、水素、水素+水蒸気、空気	He、He+水蒸気

調査結果－照射済燃料の炉外加熱試験

◆これまでに得られているデータ(例)

- ✓希ガス、Cs、Iは同様の放出速度を示す。Te、Sbは揮発性と見なせるが、未酸化被覆管に一旦保持され、被覆管酸化時に放出される。これらの揮発性物質は約2600K以上ではほぼ全量が燃料から放出される。
- ✓中揮発性のFPであるMo、Rh、Baの放出率は、揮発性物質の約半分となるが、雰囲気(酸化性/還元性)に影響されやすい。Moの放出率は酸化雰囲気では増加するが、BaとRhの放出率は還元雰囲気が増加する。
- ✓低揮発性物質のRu、Ce、Np、Eu、Srは、放出率は低いが、3～10%が放出。
- ✓非揮発性のZr、Nb、La、Ndは2600K以下では放出されない。
- ✓これら知見のほか、燃料熔融の影響、雰囲気による放出挙動の違いなどについて低揮発性FPも含めてデータが得られている

◆種々のFP放出モデルも開発され、SA解析コードに組み込み

CORCOR-M、CORSOR-O、CORSOR-BOOTH、ORNL-BOOTHなど

調査結果－熔融燃料の挙動に関する試験

- ◆ 熔融燃料(コリウム)の下部ヘッドにおける挙動、冷却材との相互作用(FCI)、圧力容器との相互作用、コンクリートとの相互作用(MCCI)についても多くの研究例
- ◆ RASPLAV、MASCA、他：
コリウムと圧力容器との相互作用、下部ヘッドにおけるコリウムの熱流動・成層化などに関する試験
- ◆ FARO、KROTOS、TROI、他
コリウムが冷却材に注入された時の冷却・凝固挙動、水蒸気爆発の条件、凝固物の粒径などに関する試験
- ◆ SURC、ACE、MACE、COTELS、MCCI-1/2、VULCANO、他：
コリウムとコンクリートとの反応生成物、コンクリートの種類、注水の影響、コリウムからの冷却速度、など

調査結果－溶融燃料の挙動に関する試験

◆(例)コリウムの成層化 －MASCA試験

- ✓U酸化物とZr酸化物との溶融物(コリウム:酸化物層)とFeを主成分とする金属層は分離して成層化する。
- ✓酸化物層と金属層の上下関係は、酸化物層の酸素量(酸化割合)によって変わる。
- ✓酸素が少ない場合、金属Uが生成し、金属層に移行するため、金属層の密度が上がり、金属層が下になる。

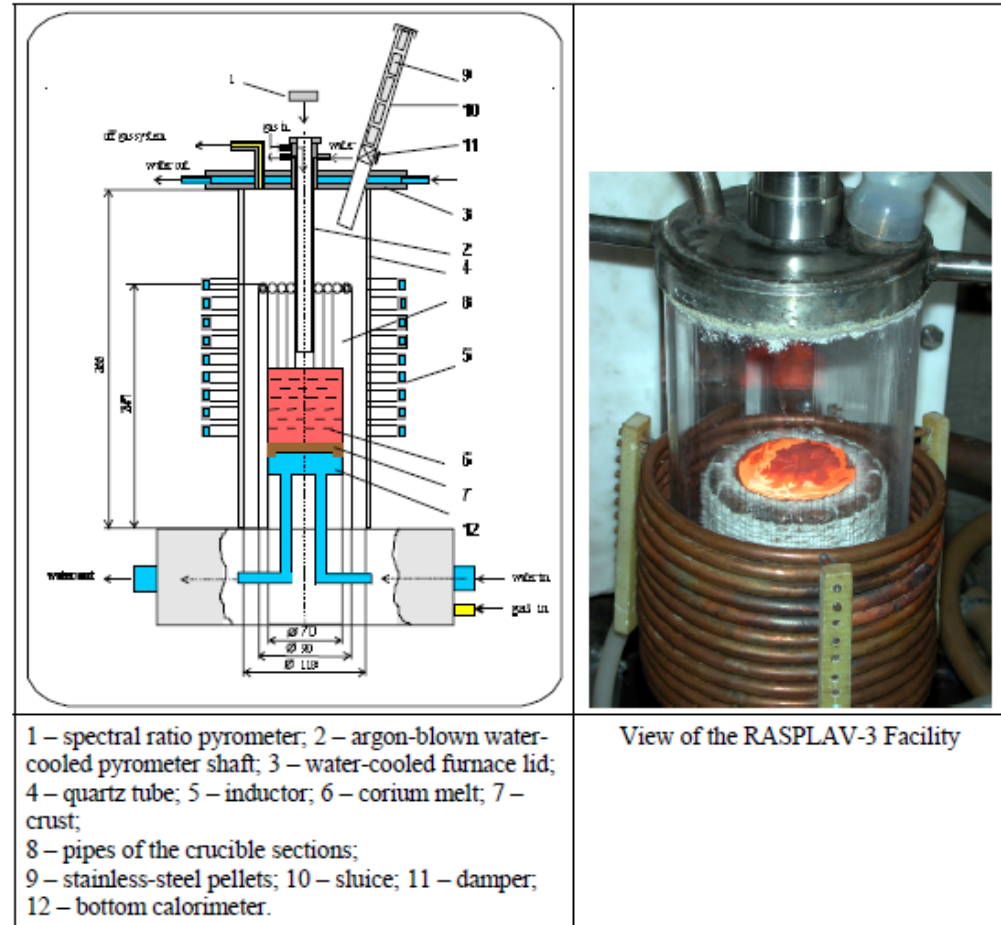


Figure 3.2. RASPLAV-3 facility

D. F. Tsurikov, et al., "Main Results of the MASCA1 and 2 Projects", Russian Research Centre "KURCHATOV INSTITUTE" OECD MASCA Project (2007).

調査結果－熔融燃料の挙動に関する試験

◆(例)コリウムとコンクリートとの反応

多くの複雑な現象が強く関連

- ✓コンクリートの高温挙動と分解
- ✓熔融物プールのガスバブルによる攪拌、熱流動
- ✓コンクリートの熔融と熔融物への混合、熔融物の凝固に伴う熔融物組成の変化
- ✓熔融物プールの上面および熔融物-コンクリート界面に形成されるクラスト層の挙動(クラック、伝熱など)
- ✓金属成分の酸化および酸化反応に伴う発熱

コンクリートの種類による違い

珪質系Siliceous / 玄武岩系Basaltic / 石灰質系Calcareous /
石灰岩系Limestone / Silico-calcareous /

調査結果－熔融燃料の挙動に関する試験

◆(例)コリウムとコンクリートとの反応 －OECD/NEA MCCI試験

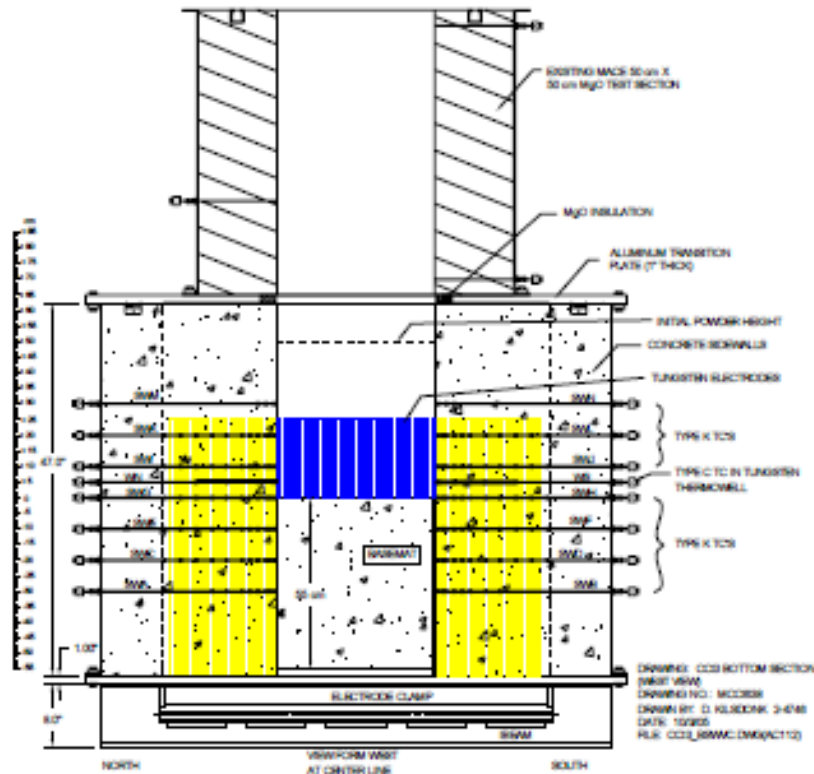


Figure 3-3. Side View of Lower Test Section.

M.T. Farmer, et al., "OECD MCCI Project Final Report",
OECD/MCCI-2005-TR06 (2006).



(a)



(b)

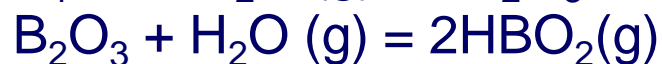


(c)

Figure 3-9. Axial Debris Morphology for Test:
(a) CCI-1, (b) CCI-2, and (c) CCI-3.

調査結果－材料間の反応試験

- ◆UO₂、ジルカロイ、構造材(SS、インコネル)、制御材(Ag-In-Cd、B₄C、Hf)および水蒸気との反応は、SAの現象理解の基礎
- ◆各組合せに対して多くの研究が行なわれており、反応速度がアレニウス型の式で整理されている。
- ◆高温におけるUO₂とジルカロイとの反応を説明するため、2950℃までのU-Zr-O系の三元系状態図が得られている。
- ◆1990年代にはB₄CとSSおよびB₄Cとジルカロイとの反応、2000年代からB₄Cと水蒸気との反応に関する研究
- ◆B₄Cと水蒸気との反応は複雑でガス発生を伴う



調査結果－SA解析コード

- ◆SA時の熱水力、溶融進展挙動、FPの環境への放出などを総合的に解析する総合解析コード：MAAP、MELCOR、THALES等
- ◆限定された現象を機構論的に解析する詳細コード：SCDAP/RELAP、ICARE、SAMPSON等
- ◆燃料破損挙動、溶融・リロケーション・凝固挙動、化学反応(発熱と生成物)、デブリベットの挙動、燃料-冷却材反応、溶融燃料の圧力容器からの漏洩、FPの挙動などについて、現象の取扱い方(モデリング)、根拠となっている実験データ、改良の余地(課題)などを整理

今後の課題

◆ 1F事故の事象進展把握のニーズ、規制やSA研究の動向を踏まえて、これまでの研究で不足する点を抽出

項目	TMI-2(PWR)	福島第一(BWR)	溶融燃料の特性・性状への予想される影響	
燃料・構造材	燃料構造	スペーサグリッド	チャンネルボックス	炉内にジルカロイ量が多く、 溶融燃料中のZr濃度が高い。
	制御棒	Ag-In-Cd/SS被覆	B ₄ C/SS被覆	ホウ素とFeとの共晶反応 が貴金属FPの挙動に影響？ B₄Cと水蒸気との反応 によるCO ₂ やH ₂ ガス発生の影響は？
	燃料	UO ₂	Gdを含有、一部にMOX	MOXやGdは燃料デブリの性状等には大きく影響しない？
	燃焼度	運転開始後3ヶ月	新燃料～高燃焼度	溶融燃料中のFP量が多く、水の放射線分解に要配慮。
構炉造内	炉容器下部構造	炉心支持板、計装案内管など	炉心支持板、制御棒案内管/駆動軸など	炉容器下部構造の鋼材の量が多く、 下部ヘッ드의溶融燃料のFe濃度が高い。 貴金属FPを多く取り込んでいる？
事象進展	溶融継続時間	1～2時間	数時間	炉内の溶融領域の割合 が大きい？ 揮発性FPの放出 が大？ 燃料デブリの一部が緻密化？ 溶融燃料の一部は圧力容器の下に落下、 コンクリートと反応。
	圧力	>50気圧	大気圧～数気圧	圧力は冶金学的な反応には大きくは影響しない？
	海水注入	なし	炉心溶融後	海水成分の挙動 は不明だが、冷却時や保管時のFPの浸出挙動や保管容器の腐食等に影響？ 溶融燃料の性状への影響は？
取出までの期間	事故発生から取出し完了までに10年	取出着手までに10年程度を想定	冷却期間が長期化すると燃料デブリの性状に変化？ FPの浸出に影響？	

今後の課題－1F事故の事象進展把握のニーズを踏まえて

- ◆ 1F事故の事象進展把握のニーズから、BWR特有の事象進展の研究、1F事故事象特有の事項に関する評価が重要。
- ◆ BWR特有の事象進展は、炉内総合試験や炉外加熱試験で試験例はあるが、十分ではないため、次の研究が望まれる：
 - B4C制御棒、チャンネルボックス、燃料棒の相互作用、再配置
 - 高Zr、高Fe組成の溶融燃料の下部ヘッドへの再配置、成層化
 - 貫通孔の多い下部ヘッドの破損挙動、溶融燃料の圧力容器外への流下、MCCI、FP放出挙動
- ◆ 1F事故事象特有の事項については、これまで研究例がなく、試験や解析による推定や評価が必要：
 - 数時間の長期にわたる事象が溶融燃料の組成やFP放出に及ぼす影響
 - 海水注入が溶融燃料の特性に与える影響
 - MCCI
- ◆ 1F事故プラント内部の観察やサンプリングが可能となれば、これらの詳細な分析が不可欠

今後の課題—SA研究動向を踏まえて

- ◆ SA対策の強化に伴い、SAにおける各現象の理解の深化、現象のモデリングと解析コードの高度化が重要。
- ◆ SAの各現象については、多くの炉内総合試験、炉外加熱試験、熔融燃料挙動試験が実施されたが、燃料・材料の化学的挙動について理解を深め、炉内外での各種試験およびモデリングを行うことが望ましい。
 - 熔融前の燃料破損とペレット分散挙動、FP放出挙動(特に高燃焼度)
 - 制御棒破損・熔融挙動
 - ステンレス、ジルカロイ、制御材、UO₂等の材料間の反応の進展
 - 熔融プールの成層化挙動およびFP放出挙動(雰囲気の影響、熔融コリウムの組成の影響など)
 - MCCl: 広がり方、ガス発生量(H₂, CO, CO₂)、反応速度、冷却性、雰囲気の影響、熔融コリウムの組成の影響など

今後の課題—SA研究動向を踏まえて

- ◆ 格納容器の損傷防止対策、停止中の原子炉や使用済燃料貯蔵プールにおける燃料損傷防止などに関しても、各現象の理解の深化、現象のモデリングと解析コードの高度化が重要。
- ◆ 格納容器の損傷防止対策については、溶融燃料の圧力容器からの流下、分散挙動の研究やコアキャッチャ概念の検討などが考えられる。
- ◆ 停止中の原子炉や使用済燃料貯蔵プールにおける燃料損傷防止については、崩壊熱が低いこと、これまでの多くの研究は空気雰囲気を想定していないこと、などを考慮して、次の研究が重要：
 - 空気雰囲気での燃料破損・溶融挙動
 - 空気雰囲気でのステンレス、ジルカロイ、UO₂等の材料間の反応の進展
 - 空気雰囲気での溶融燃料の流動および構造材との反応、FP放出挙動

今後の課題—材料試験など

- ◆ UO₂、ジルカロイ、構造材(SS、インコネル)、制御材(Ag-In-Cd、B₄C、Hf)および水蒸気の間反応は、SA現象理解の基礎であり、これらの組み合わせについて多くの研究が行われてきた。今後は、UO₂-ジルカロイ-SS、ジルカロイ-SS-B₄Cなど3つ以上の組み合わせに関する研究が課題

熔融燃料SWGメンバー

鈴木嘉章(MNF)

工藤保・柴田裕樹(JAEA原科研)

三輪周平・浅賀健男(JAEA大洗)

草ヶ谷和幸(GNF-J)

木戸俊哉(NDC)

宇根勝巳(NFD)

大脇理夫(原燃工)

小澤正明(JNES)

大石佑治(阪大)

尾形孝成・中村勤也・園田健・太田宏一(電中研)

(順不同、敬称略)