

本資料は非公開情報であり、  
 適切な管理への留意を  
 しないよう願います。

# デブリ特性の把握と処置方策の検討 (概況報告)

第6回 溶融事故における核燃料関連の課題検討WG  
 日本原子力学会 核燃料部会

平成24年10月15日 (月)

日本原子力研究開発機構  
 東海研究開発センター 核燃料サイクル工学研究所  
 核燃料部会 核燃料部会 特別チーム  
 燃料デブリ取扱技術開発グループ

矢野 公彦

## 目次

1. 研究開発計画
2. デブリ特性の把握
3. 処置方策の検討
4. まとめ (これまでの進捗状況)

## 1. 研究開発計画

- 1.1 背景・目的及び平成24年度における事業目標
- 1.2 研究開発スケジュールと現場ニーズ
- 1.3 研究開発実施体制

### 1.1 背景・目的及び平成24年度における事業目標

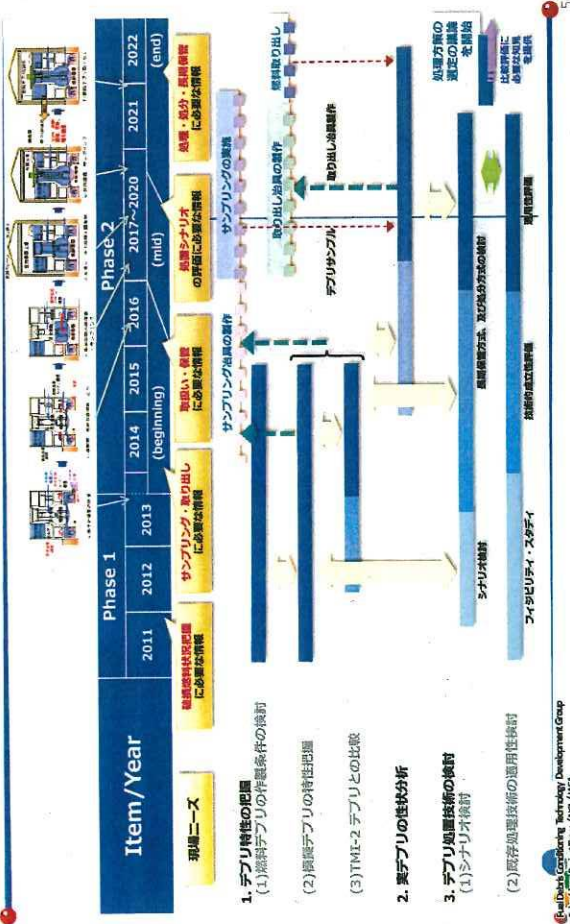
#### ● 背景・目的

- 福島原発の燃料デブリはTMI-2と異なると想定。燃料取出し時には、その特性に応じた方法や治具等を準備する必要がある。また、取出し後の処置（長期保管や処理処分）についてもその見通しを得る必要がある。
- 本プロジェクトの目的は、廃炉作業における現場ニーズを捉えて、**サンプリング・燃料取出し等に必要なたんぱく質情報を提供すると共に、取出し後の処置方策の検討に資する。**
  - 成果の反映先
    - > サンプリング/燃料取出し方法の策定
    - > 臨界安全、計量管理方法の検討
    - > 炉心損傷進展の検討
    - > 炉内燃料取出後の燃料デブリ処置方策の選定
- なお、本研究はTMI-2事故や各国のSA研究等の知見を結集して効果的に実施する。

#### ● 平成24年度における事業目標

- デブリ特性の把握
  - 福島情報を調査・整理し、デブリ生成状況の推定を進める。
  - サンプリング・取出し等に必要なたんぱく質デブリ条件の検討および特性把握を行う。
  - 収集した情報や特性評価試験の結果を踏まえて、実デブリ特性の推定に着手する。
  - TMI-2デブリとの比較評価に備え、実施内容や施設検討に着手する。
  - 海外のコリウムデータベースへのアクセスおよび情報交換会議を開催する。
- デブリ処置技術の開発
  - シナリオ検討に向けた技術的要件を整理、既存処理技術の適用可能性を検討する。

## 1.2 研究開発スケジュールと現場ニーズ



## 2. デブリ特性の把握

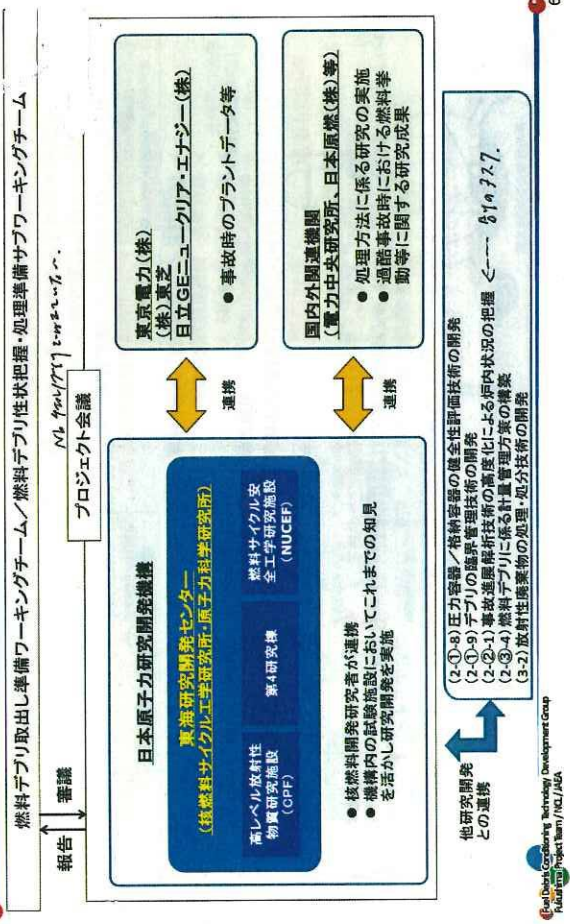
### 2.1 全体概要

#### 2.2 1Fに特有な反応の把握

#### 2.3 生成が推測されるデブリの物性評価

- (1) 取り出し等の検討に必要なデブリ特性の調査 — 概要
  - 取り出し法の推測
  - デブリ特性の整理
- (2) 熱特性の把握

## 1.3 研究開発実施体制



## 2.1 全体概要

炉内状況の推定、燃料デブリの取り出し等に向けて、必要なデブリの基礎物性データを取得する。

**1F事故における特有な反応の把握**

⇒ 事故進展の経緯を考慮しつつ、B4Cや海水塩等の福島特有現象が生成している溶融燃料の特性に与える影響の範囲を推定する。

＜取得する基礎データ＞

- ・ 燃料成分の反応性データ (B4C, 海水塩、等)

**生成が推測されるデブリの物性評価**

⇒ 溶融燃料の内部状況 (温度分布、密度分布、偏析、クラック、相安定性、組織変化など) の理解につなげる。

＜取得する基礎データ＞

- ・ 機械的物性、熱的物性等の物性データ

**成果の反映先:**

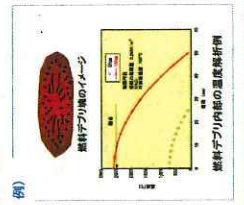
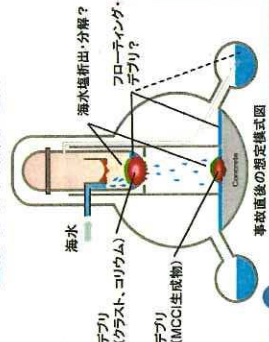
「炉内状況の推定」

⇒ 生成しているデブリ特性の理解。

**成果の反映先:**

「現状の燃料デブリ状況の推定」

⇒ 取り出し方法、一時保管、輸送など





## 2.2 1F事故に特有な反応の把握



（電力中央研究所との共同実施項目を含む）

### 【目的及び必要性】

- 燃料デブリ取出しに向けたデブリ性状・特性把握を目的とし、未経験のU-Zr-O系燃料デブリ試験を用い、以下を実施する。
  - 生成条件（組成、速度履歴、酸素分圧）と性状（相、組織、密度等）の相関に関するマッピングデータの構築。
  - 炉内炉外材料（海水塩、BzC-耐腐蝕、鉄、コンクリート）との反応生成物性状評価。
  - 炉内炉外材料（海水塩、BzC-耐腐蝕、鉄、コンクリート）との反応生成物性状評価。

これは、取出し技術の開発（工具等設計）、保管時の冷却性状評価に必要な他、臨界評価、計量管理技術開発、炉内炉外性状評価等に貢献する。

### 【H24年度の実施内容】

- U-Zr-O系燃料デブリの調製方法の確立（アーク溶接法、粉末法）
- 海水塩と燃料デブリとの高温反応生成物の性状評価
- BzC (sUS) と燃料デブリとの高温反応生成物の性状評価
- コンクリートと燃料デブリとの高温反応生成物性状評価
- デブリ生成条件（組成、速度履歴、酸素分圧）と性状（相、組織、密度、OM等）の相関データ（マッピング）構築

### 【見込まれる成果】

- 圧力容器内外に分布する様々な形状の燃料デブリ性状の推測データ（相状態の評価）



1. 炉内炉外材料との反応生成物評価  
2. 取出し、保管に係る性状データ取得  
3. 組成、比較、熱伝導率、電気伝導率

海水塩:  $\text{NaCl} + \text{MgCl}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O} + \text{MgSO}_4 \cdot y\text{H}_2\text{O}$   
 塩酸分液で濃縮した気体 (HCl, SO<sub>2</sub>) 発生、MgO堆積  
 U/LU内部への気液は認められない (U/LU内部の気液) CaとMgの一部が堆積することを確認 (炉内炉外系)

## 2.3 生成が推測されるデブリの物性評価

### (1) 取り出し等の検討に必要なデブリ特性の調査

#### TM1-2情報整理と1Fでの取り出し作業の推測

TM1-2で用いられた主な機器：  
 カッタデブリング用ツール、吸引システム、コア・ポーリング装置、燃料回収用ツール、圧力容器取出し(吸引等)の5種類。

取出し工程	主成分	形状	取出し機器
① 炉内炉外材料の除去	構造材料: SUS	棒状デブリ	カッタデブリング用ツール、燃料回収用ツール、吸引システム
② 圧力容器内部の燃料デブリの取出し	燃料: U-Zr-Fe-Alloy	燃料棒デブリ	燃料回収用ツール、吸引システム
③ 燃料棒取出後の残渣の除去	燃料: U-Zr-Fe-Alloy	燃料棒取出後の残渣	燃料回収用ツール、吸引システム
④ 燃料棒取出後の残渣の除去	燃料: U-Zr-Fe-Alloy	燃料棒取出後の残渣	燃料回収用ツール、吸引システム
⑤ MCCCI生成物の取出し	MCCI生成物: $\text{SiO}_2, \text{Fe}_2\text{SiO}_4, \text{U}_2\text{ZrFeO}_7, \text{U}_2\text{ZrFe}_2\text{O}_{14}$	MCCI生成物	カッタデブリング用ツール、燃料回収用ツール、吸引システム
⑥ アニメクス部に堆積したデブリの取出し	アニメクス部堆積物: $\text{U}_2\text{ZrFeO}_7, \text{U}_2\text{ZrFe}_2\text{O}_{14}, \text{Zr-Fe-Alloy}$	アニメクス部堆積物	カッタデブリング用ツール、燃料回収用ツール、吸引システム
⑦ 炉内炉外材料の除去	炉内炉外材料	炉内炉外材料	カッタデブリング用ツール、燃料回収用ツール、吸引システム

※カッタデブリング用ツールは、(A)カッタデブリング用ツール、(B)吸引システム、(C)コア・ポーリング装置の3種類に分類した。

1Fでの作業において考慮されるべき主要なTM1-2との違い  
 上部構造物の存在、(蒸気乾燥機等)  
 下部構造物の存在、(炉心支持格、制御棒案内管等)  
 作業台からの高さ約20 m。  
 1号機では大部分の燃料がペダスタルに落下。  
 ⇒ MCCCI生成物の生成  
 ⇒ 炉内の塩よりZrやFeの含有量が多い。  
 ⇒ TM1-2よりも特にくいデブリ層の存在

## 2.3 生成が推測されるデブリの物性評価

### (1) 取り出し等の検討に必要なデブリ特性の調査

#### 取り出し工法や装置などの開発・選定に影響を与える物性値を整理(暫定)

取出し機器	主な対象	形状	粒径	密度	硬さ	粘性	曲げ強さ	動摩擦係数	融点	熱伝導率	熱膨張係数
① カッタデブリング用ツールA (標準装置)	塊状デブリ	塊状	○	○	○	○	○	○	○	○	○
② カッタデブリング用ツールB (せん断)	棒状デブリ	棒状	○	○	○	○	○	○	○	○	○
③ カッタデブリング用ツールC (筒状切取)	筒状の棒状物	筒状の棒状物	○	○	○	○	○	○	○	○	○
④ 燃料棒取出ツール (筒状切取)	燃料棒	燃料棒	○	○	○	○	○	○	○	○	○
⑤ 吸引システム (筒状切取)	燃料棒	燃料棒	○	○	○	○	○	○	○	○	○
⑥ コア・ポーリング装置 (研削)	塊状デブリ	塊状	○	○	○	○	○	○	○	○	○

注) 本表は現時点での暫定値であり、今後の新しい知見により変更が生じる可能性があります。

6種の取出し装置について、その原理から影響する物性値を抽出。  
 ●: 機器設計に大きな影響を与える物性値。(電子デブリハンダにおける測定は可能な限り考慮)  
 ○: その他の物性値で代替可能なまたは推定が困難なため、ハズメータとして取り扱う物性値。

TM1-2事故時にCore Drilling Unitのモックアップに使用された燃料棒



## 2.2 1F事故に特有な反応の把握



（電力中央研究所との共同実施項目を含む）

### 【目的及び必要性】

- 燃料デブリ取出しに向けたデブリ性状・特性把握を目的とし、未経験のU-Zr-O系燃料デブリ試験を用い、以下を実施する。
  - 生成条件（組成、速度履歴、酸素分圧）と性状（相、組織、密度等）の相関に関するマッピングデータの構築。
  - 炉内炉外材料（海水塩、BzC-耐腐蝕、鉄、コンクリート）との反応生成物性状評価。
  - 炉内炉外材料（海水塩、BzC-耐腐蝕、鉄、コンクリート）との反応生成物性状評価。

これは、取出し技術の開発（工具等設計）、保管時の冷却性状評価に必要な他、臨界評価、計量管理技術開発、炉内炉外性状評価等に貢献する。

### 【H24年度の実施内容】

- U-Zr-O系燃料デブリの調製方法の確立（アーク溶接法、粉末法）
- 海水塩と燃料デブリとの高温反応生成物の性状評価
- BzC (sUS) と燃料デブリとの高温反応生成物の性状評価
- コンクリートと燃料デブリとの高温反応生成物性状評価
- デブリ生成条件（組成、速度履歴、酸素分圧）と性状（相、組織、密度、OM等）の相関データ（マッピング）構築

### 【見込まれる成果】

- 圧力容器内外に分布する様々な形状の燃料デブリ性状の推測データ（相状態の評価）



1. 炉内炉外材料との反応生成物評価  
2. 取出し、保管に係る性状データ取得  
3. 組成、比較、熱伝導率、電気伝導率

海水塩:  $\text{NaCl} + \text{MgCl}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O} + \text{MgSO}_4 \cdot y\text{H}_2\text{O}$   
 塩酸分液で濃縮した気体 (HCl, SO<sub>2</sub>) 発生、MgO堆積  
 U/LU内部への気液は認められない (U/LU内部の気液) CaとMgの一部が堆積することを確認 (炉内炉外系)

## 2.3 生成が推測されるデブリの物性評価

### (1) 取り出し等の検討に必要なデブリ特性の調査

#### 取り出し工法や装置などの開発・選定に影響を与える物性値を整理(暫定)

取出し機器	主な対象	形状	粒径	密度	硬さ	粘性	曲げ強さ	動摩擦係数	融点	熱伝導率	熱膨張係数
① カッタデブリング用ツールA (標準装置)	塊状デブリ	塊状	○	○	○	○	○	○	○	○	○
② カッタデブリング用ツールB (せん断)	棒状デブリ	棒状	○	○	○	○	○	○	○	○	○
③ カッタデブリング用ツールC (筒状切取)	筒状の棒状物	筒状の棒状物	○	○	○	○	○	○	○	○	○
④ 燃料棒取出ツール (筒状切取)	燃料棒	燃料棒	○	○	○	○	○	○	○	○	○
⑤ 吸引システム (筒状切取)	燃料棒	燃料棒	○	○	○	○	○	○	○	○	○
⑥ コア・ポーリング装置 (研削)	塊状デブリ	塊状	○	○	○	○	○	○	○	○	○

注) 本表は現時点での暫定値であり、今後の新しい知見により変更が生じる可能性があります。

6種の取出し装置について、その原理から影響する物性値を抽出。  
 ●: 機器設計に大きな影響を与える物性値。(電子デブリハンダにおける測定は可能な限り考慮)  
 ○: その他の物性値で代替可能なまたは推定が困難なため、ハズメータとして取り扱う物性値。

TM1-2事故時にCore Drilling Unitのモックアップに使用された燃料棒





## 2.2 生成が推測されるデブリの物性評価

### (2) 熱特性の把握

#### 【目的及び必要性】

- 溶融燃料の取出し方法を検討するために、液層及び燃料から生成される溶融燃料の内部の状態解析を行うために必要な熱特性を測定する。測定は、OMを用いたイメージングと、燃料サンプルの物理特性、融点、熱伝導率、比熱、密度、相変態温度などのデータに基づいて行われる。取得したデータを用いて、溶融燃料中の温度分布、密度分布、組成変化などの評価を可能とする技術を開発する。

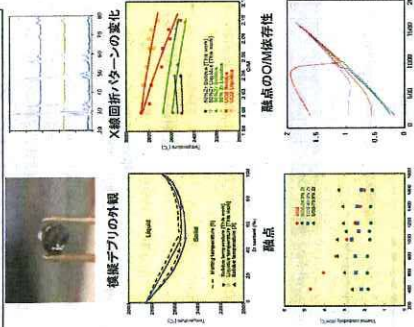
#### 【H24年度の実施内容】

- MOXデブリの調整試験
  - H23年度にラン燃料ZrO<sub>2</sub>を用いたデブリ調整試験を実施し、水素水分子の付着を用いたOM調整技術を開発した。H24年度は、フルサーマル燃料のデブリ調整を、P4含有率、Zr含有率、OMH比(ラメータ)をパラメータとしてMOX-ZrO<sub>2</sub>系で実施する。
- UO<sub>2</sub>、MOXデブリの熱特性(相変態性、融点、熱伝導率、熱膨張率など)
  - これまでに、UO<sub>2</sub>燃料の模擬デブリを調整し、融点、熱伝導率などのデータを取得した。今年度は、ZrO<sub>2</sub>デブリを評価し、OMH比依存性を中心として、各特性の変化を評価する。また、MOX燃料のデブリについて試験を進める。

#### 【見込まれる成果】

- 取得した熱特性を式化することにより、溶融燃料内部の温度分布、密度分布、相状態、組成変化を評価する。

事項	H24	H25	H26	H27
1. 熱特性の把握	UO <sub>2</sub> デブリ	MOXデブリ	調整デブリ	
				(相変態性評価)
				(相変態性評価)



## 3.1 デブリ処置シナリオの検討

#### 【目的及び必要性】

- 燃料デブリの処置方法に関する議論が2021年度から実施されるものと想定し、それまでに各シナリオの比較評価に用いる情報を収集・整理し、比較評価の進め方を定める必要がある。評価項目はコスト、蒸発物重量、多核種に由来する放射性物質の移行、評価に用いるデータは現在生データである。
- また、取出時の燃料デブリ等の別種とサイズについては、処理・処分・保管の作業と密接に関連することから、取出し方法が決定される2010年代中頃までには方針を決定する必要がある。したがって、これらの検討は早期から着手しておく必要がある。

#### 【H24年度の実施内容】

- 後処理のデータ集大成
  - 既往の文献と進行中のR&D成果をもとにシナリオ検討に必要な物性値等のデータを整理する。
- 処理対象物の検討
  - 処理対象物の分類・位置・形態等を、現在の情報や適切な仮定により検討・評価を実施する。
- 処置シナリオ案の比較評価(デブリの取出装置・貯蔵・輸送装置の概念検討含む)
  - 処置シナリオ案の比較評価、評価指標の検討をもとにそれぞれの得失を評価する。

#### 【見込まれる成果】

- デブリ処理検討に必要な物性値データベースを作成する。不足項目は以後のR&D計画へ反映する。
- 処理対象物の評価結果をまとめ、次年度以降の検討用データベースとして整理する。
- 比較評価項目の設定、評価指標の整理の検討をもとに各シナリオ案(1次)についての得失を整理した報告書を作成・提示する。

事項	H24	H25	H26	H27
1. 処置シナリオの検討	処置シナリオの検討	技術的成立性検討		
2. 既 覧				デブリ貯蔵、輸送装置の設計・評価



## 3.2 各種処理技術の適用性検討

### (1) 分析前処理技術の検討

#### 【目的及び必要性】

- 燃料デブリは、TIMにおける回収燃料の例から溶解性があると予想され、分析前処理による溶解性を持つ完全溶解できる手法は見出されていない。
- 平成29年度に予定されているデブリ燃料の採取時に必要となる分析手法について、分析前処理としての溶解法の検討が必要である。
- U濃度デブリを用いた溶解基礎試験を実施し、難溶性性燃料の溶解手法(従来の加熱溶解による溶解法に加え、難溶性性燃料の溶解法として知られるアルカリ溶解法、アンモニア溶解法、オートクレーブ溶解法等)の適用性評価を実施する。これにより、デブリの分析手法及び濃度処理法の検討のための基礎データを取得する。

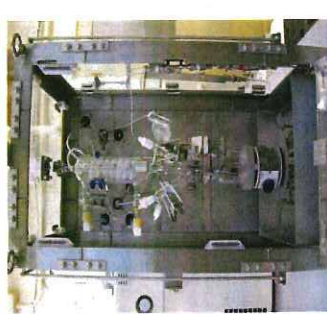
#### 【H24年度の実施内容】

- 従来の加熱溶解に加え、難溶性性燃料の溶解法として知られるアルカリ溶解法、アンモニア溶解法、オートクレーブ溶解法等の難溶性性燃料の溶解手法について、ZrO<sub>2</sub>、ZrSiO<sub>4</sub>を用いたコントロール試験による予備試験を実施する。
- 上記結果を反映して、U-Zr-O系模擬デブリによる溶解基礎試験に着手する。

#### 【見込まれる成果】

- ZrO<sub>2</sub>、ZrSiO<sub>4</sub>を用いた各種溶解手法の適用性についての基礎データを取得する。

事項	H24	H25	H26	H27
1. 分析前処理(溶解)基礎試験	コントロール試験	U-Zr-O模擬デブリ試験		
				MCCI及び含有模擬デブリ試験



ガラス製小形溶解槽

## 3. 処置方策の検討

### 3.1 デブリ処置シナリオの検討

### 3.2 各種処理技術の適用性検討

#### (1) 分析前処理技術の検討

#### (2) 湿式処理技術の検討

#### (3) 乾式処理技術の検討



### 3.2 各種処理技術の適用性検討

#### (2) 湿式処理技術の検討

##### 【目的及び必要性】

- 燃料プールの取り出し後の処理について多面的な議論を行い決定されること想定され、それまでにその議論に際するデータ取得が必要となる。
- PUREXを基礎とした湿式処理は用済燃料再処理と同様の飛灰体としての処分が可能となるため先行の取組に対する整合性が高く、その点が処理オプションのひとつが得ると考えられる。湿式技術適用に關しては、難溶性と量られるプールの種類への溶解が技術的成立性を示す上で最も重要な項目のひとつとなるため、その点に絞って基礎データの取得を行う。
- 福島第一原子力発電所事故における燃料プールの成分については未だ詳細が確認されていないため、当面はこれまでのSA研究結果や過去のSA事例から主成分のひとつと考えられる(U,Zr)を中心として、検討を進める。

##### 【H24年度の実施内容】

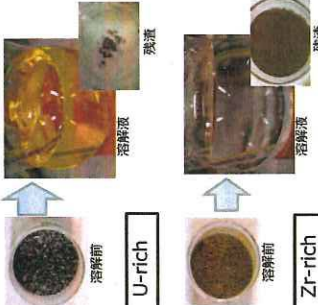
- ウラン濃縮デブリ溶解試験 (U,Zr)において、U/Zr比として明確への溶解度の違いを試験的に確認する。
- MOX濃縮デブリ溶解試験
- MOX由来のプールの成分についてU,Zr,Puについて溶解試験を行い、Puの影響を評価する。

##### 【見込まれる成果】

- (U,Zr)系デブリについてU/Zr比が溶解速度に及ぼす影響に関するデータ取得。
- (U,Zr)系デブリについてPuが溶解速度に及ぼす影響に関するデータ取得。

項目	H24	H25	H26	H27
1. ウラン濃縮デブリ溶解試験	電気伝導率等	化学反応式決定に向けたデータ取得		
・ (U,Zr)の溶解性評価	U/Zr比影響評価			
・ その他のデブリ成分の溶解性評価	機械的成分	溶解成分	混合成分	
2. MOX濃縮デブリ溶解試験		Pu影響評価 (U/Pu/Zr比)		
3. TMI-2デブリ溶解試験			測定・吸入	溶解試験

図 U/Zr比の違いによる溶解性の差異 (6N HNO<sub>3</sub>, 80°C, 4hr溶解)



### 4. まとめ (これまでの進捗状況)

#### ● デブリ特性の把握

- 1F事故に特有な反応の把握
  - ウラン系濃縮デブリを用いて、海水塩との高温反応に関する基礎データを取得中。
  - TMI-2のデブリ取り出し関連情報をもとに、取り出し等の検討に必要な物性値を洗い出した。
  - ウラン系濃縮デブリを用いた機械的物性の測定を準備中。
  - ウラン系濃縮デブリ及びMOX系濃縮デブリを用いて熱物性を取得中。
- 生成が推測されるデブリの物性評価

#### ● 処置方策の検討

- シナリオ検討
  - 取り出しからその後の処置 (貯蔵、処理、処分等) について、処置シナリオ案を作成した。
  - それぞれのシナリオについて定性的な得失評価を実施中。
- 各種処理技術の適用性検討
  - 分析前処理の検討として、ZrO<sub>2</sub>やZrSiO<sub>4</sub>に適用可能な溶解技術を検討。
  - 湿式処理技術の検討として、ウラン系濃縮デブリを用いた硝酸溶液への溶解性に関する基礎データを取得中。
  - 乾式処理技術の検討として、ウラン系濃縮デブリを用いて、電解還元、塩素化溶解、Mo酸塩溶解に関する基礎データを取得中。

### 3.2 各種処理技術の適用性検討

#### (3) 乾式処理技術の検討

##### 【目的及び必要性】

- 炉心燃料溶解物(プールの取り出し)は、炉心に向けて数年後に炉心から取り出し、保管あるいは適切に処置を行う必要があるが、デブリの詳細な形状や特性は把握されておらず、炉心からの取り出しの際の必要性が生じる可能性がある。この場合、取り出し後に炉心で保管を行うためには、それまでに処置技術を開発しておく必要がある。処置の候補となる乾燥系溶液による溶解はデブリの難溶性が懸念されており、この点もデブリの不溶解残物の処置には、電気化学的処理やUO<sub>2</sub>ガスによる燃料溶解を基本とする乾式再処理技術が適用できる可能性がある。従って、種々の形態及び特性を有する燃料プールの溶解性について乾式再処理技術の適用性検討を行い、実際の処置技術を確立することを目的とする。

##### 【H24年度の実施内容】

- 乾式再処理技術の適用性検討 (仮称)
  - Li-Zr複合酸化物の特性評価
  - (U,Zr)系濃縮デブリを用いた電解還元試験
  - (U,Zr)系濃縮デブリを用いた電解還元試験による全量溶解条件の確立
  - MOX濃縮デブリを用いた電解還元試験による全量溶解条件の確立
  - MOX濃縮デブリを用いた電解還元試験による全量溶解条件の確立
- 上記各前処理の終了プロセダ(固定)の構築と物質収支の把握検討
- 新技術処理技術の開発 (原料研)
  - 電解還元によるU,Zrの溶解性評価
  - 電解還元によるU,Zrの溶解性評価
  - 電解還元によるU,Zrの溶解性評価

##### 【見込まれる成果】

- 乾式再処理技術の適用性評価
- 乾式再処理技術の適用性評価
- 乾式再処理技術の適用性評価

項目	H24	H25	H26	H27
1. 乾式再処理技術の適用性検討(仮称)				
・ 複合酸化物の特性評価				
・ 電解還元による全量溶解条件の確立				
・ MOX濃縮デブリを用いた電解還元試験による全量溶解条件の確立				
・ MOX濃縮デブリを用いた電解還元試験による全量溶解条件の確立				
2. 新技術処理技術の開発(原料研)				
・ 電解還元によるU,Zrの溶解性評価				
・ 電解還元によるU,Zrの溶解性評価				
・ 電解還元によるU,Zrの溶解性評価				

