

# 熔融燃料の形態及び特性



永瀬 文久

日本原子力研究開発機構  
安全研究センター

日本原子力学会 2012年春の年会 核燃料部会セッション  
「福島第一原子力発電所事故を踏まえた核燃料分野の課題と展望」

平成24年3月19日



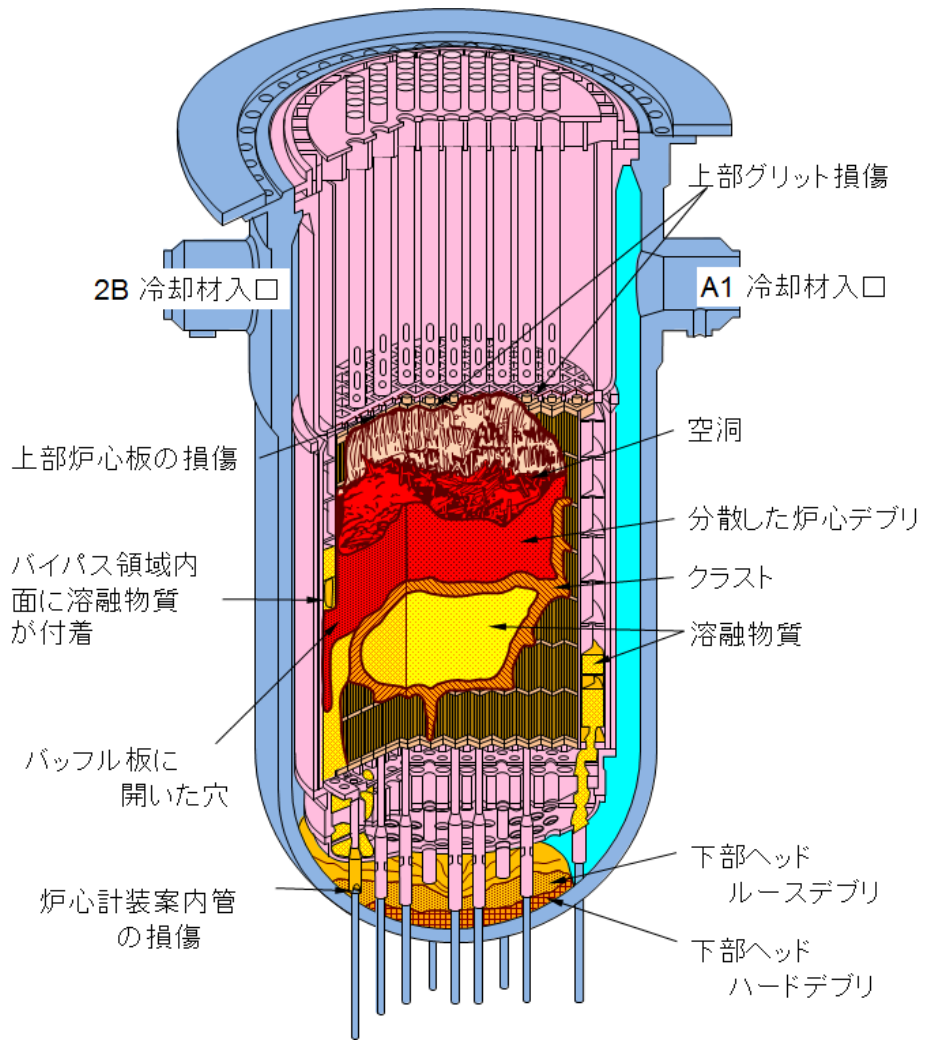
# はじめに

---

- ▶ 福島第一原発では、シビアアクシデントに至り、燃料の溶融が起こった。
  - ▶ 燃料がどのような形で原子炉施設のどこにあるのかを推定する上で、また事故解析を行う上で、溶融し炉心材料と混合した燃料の特性は重要である。
  - ▶ スリーマイル島2号機(TMI-2)とチェルノブイリ4号炉での事故、その後の研究により溶融燃料の特性に関する知見が取得されている。
  - ▶ 本講演においては、原子力機構がTMI-2から採取した試料に対して行った試験及び分析の結果評価を中心に、溶融燃料(デブリ)の特性について紹介する。
-

# TMI-2での事故

- 米国のスリーマイル島原発2号機 (PWR)で1979年3月28日に起きた事故。機器の故障と人為的ミスがいくつも重なり、圧力容器内から冷却材が流失し、炉心の約3分の2が露出する状態になった。
- 炉心中央上部で燃料集合体の溶融が始まり、炉心の約45%(62t)が溶融した。溶融物は集合体下部で一旦固化したが、再び溶融し約19tが圧力容器下部ヘッド上に流れ落ちた。



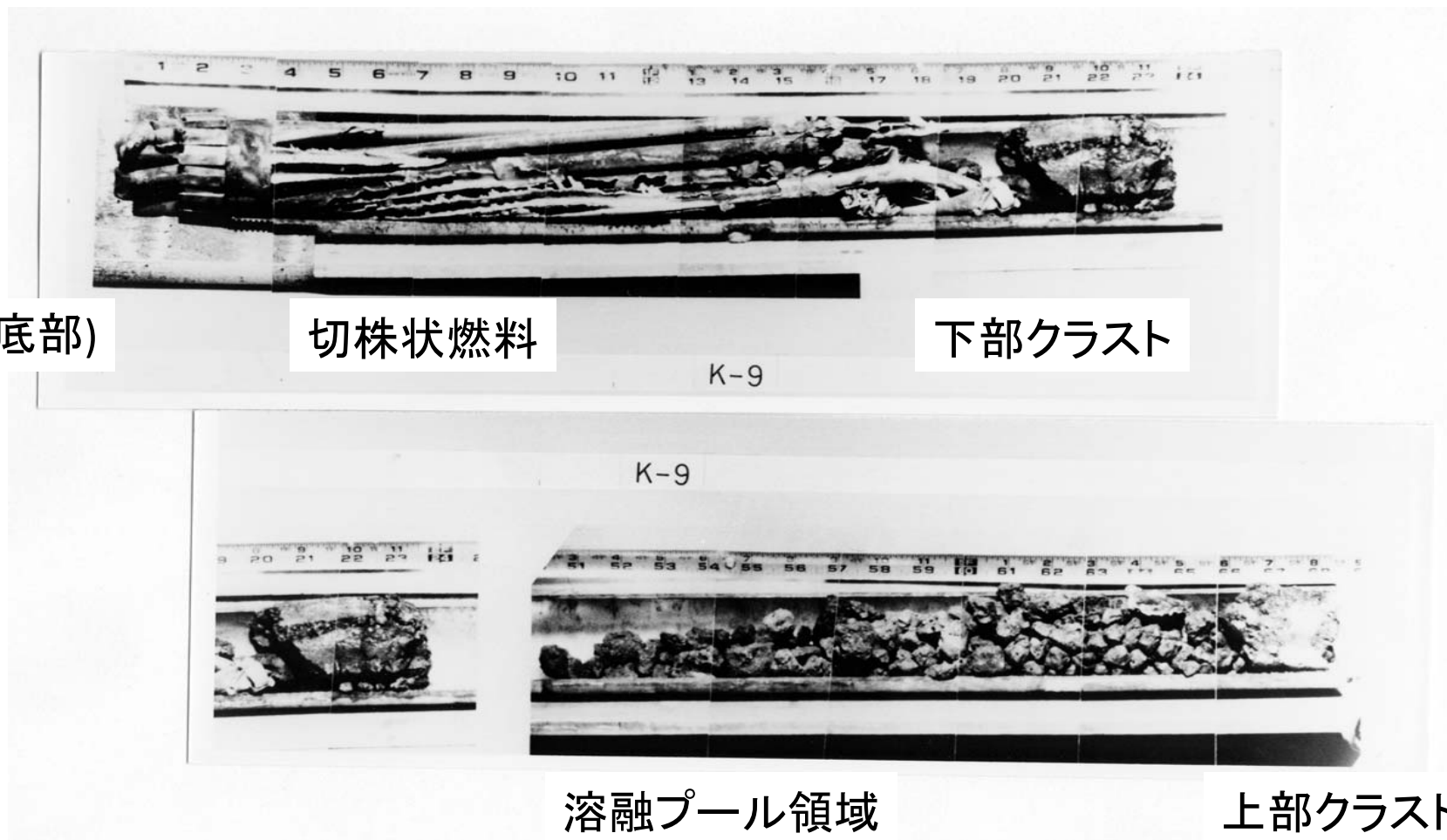
# TMI-2デブリの試験計画

- TMI-2 R&D計画(1980～1991年)
  - 米国DOE、NRC、産業界がGEND計画を実施。日本は、産業界が中心となりDOEとの共同研究(R&D計画)として参加。
  - 事故の原因とシナリオを解明するため、除染及び損傷燃料の移動を含むプラントの復旧、及び廃棄物処理技術の開発を実施。
- OECD/NEA/CSNIタスクとして、溶融炉心物質(デブリ)の試験と分析がアイダホ国立研究所及び欧州のCSNIの参加国で実施。(～1992年)。
- TMI-2 Vessel Investigation Project (TMI-VIP)(1988～1993年)
  - USNRC提案のOECD/NEA国際共同研究。高温の溶融物落下による圧力容器下部ヘッドへの影響を評価することが目的。
  - 圧力容器下部ヘッドの観察、容器から鋼材、ノズル、案内管の採取試料の試験、容器の温度／応力の解析を行って損傷の程度と破損までの裕度を推定。
  - 下部ヘッドに堆積したデブリの分析を日本も担当。他の炉心位置から採取したデブリも含め約60個を日本に輸送(1991年)。日本原子力研究所(現日本原子力研究開発機構)において各種分析を実施。

デブリの物理特性、化学組成、熱特性、FPガス放出に関するデータ取得。  
＝ 炉心溶融進展の推定、ソースターム評価に対する基礎知見の提供

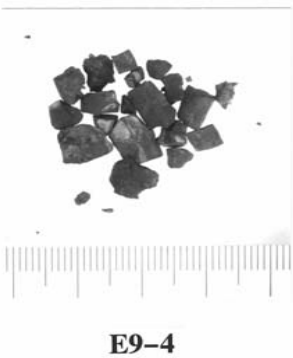
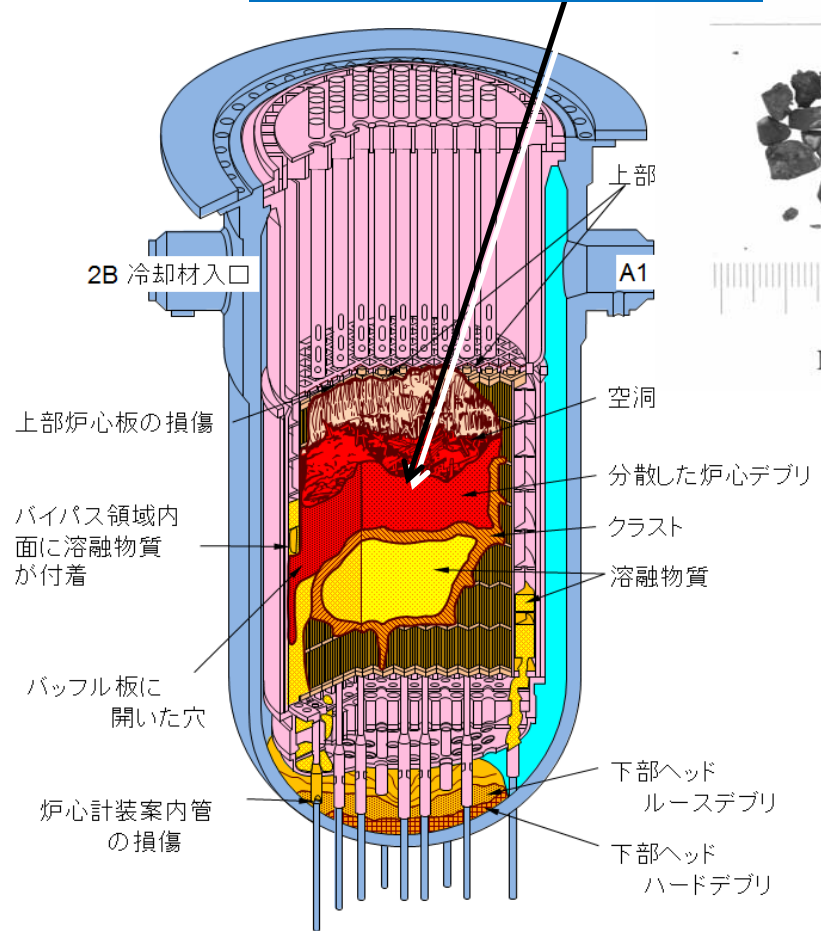


# ボーリングによりTMI-2炉心から取り出した試料



# 炉心上部のデブリの性質

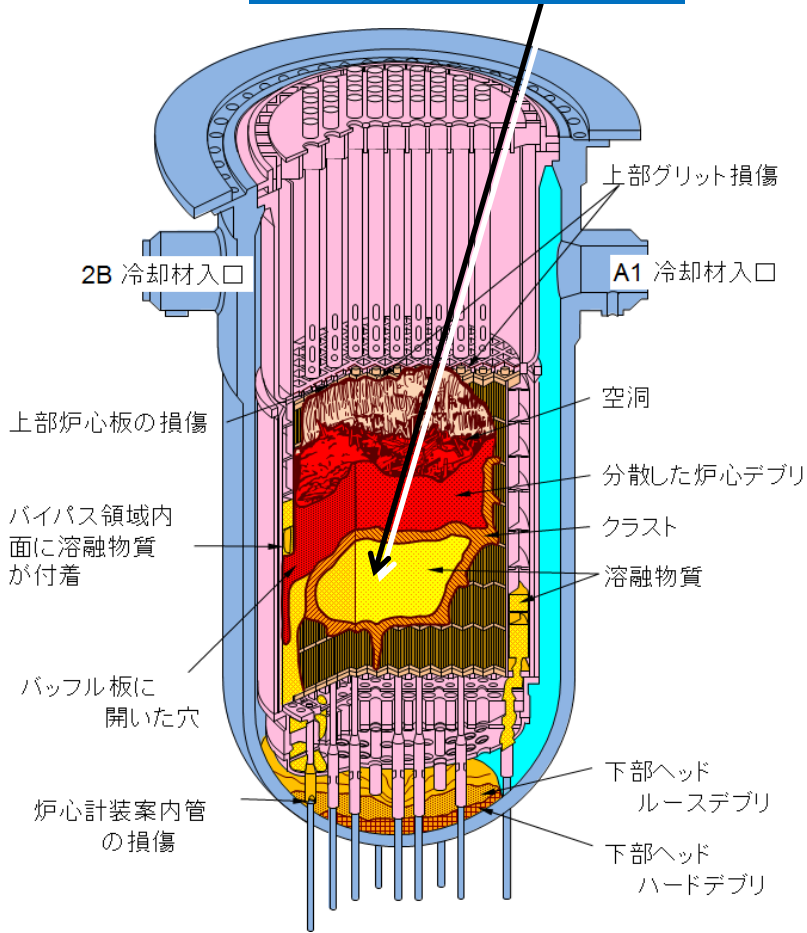
ルースデブリ  
(上部プレナムデブリ)



- ルースデブリは、破砕したまたはそのままの燃料ペレット、制御棒上部構造や再固化した物質を含有(合計約26400 kg)
- デブリのほとんどは、溶融した(U,Zr)O<sub>2</sub>を含む再固化した物質。
- 溶融した純粋なUO<sub>2</sub>も。
- 推定される到達最高温度は2700～3100K (大部分は～2000K)
- Ag、In、ジルカロイ及び構造物がほとんど存在せず  
→ 燃料と反応せずにそれらの物質が溶融、移動したことを示唆

# 溶融プールデブリの性質

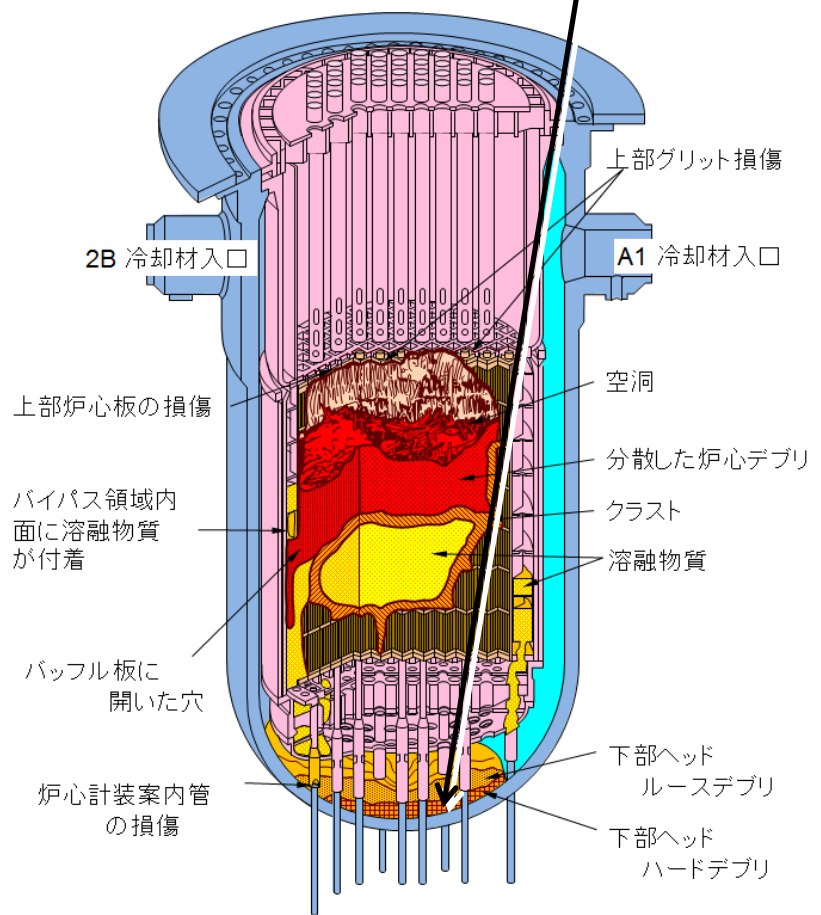
## 溶融プールデブリ



- 溶融プール領域(直径約3 m, 中央部分厚さ1.5 m) は構造材、制御棒、燃料物質の混合物で構成 (合計約 32700 kg)
- セラミックスと金属との混合物(主に鉄と銀)、セラミックスまたは金属の粒子が存在
- 最高温度は2700~3100K
- 炉心上部より金属が多い。
- 「クラスト」により囲まれている。  
下部クラストは主にジルコニウム、銀、鉄。  
上部クラストは主に鉄と銀。

# 下部ヘッドデブリの性質

## 下部ヘッドデブリ



- 炉心の45%(約62t)が溶融し、そのうち約19tが下部ヘッド上に流下。
- 下部ヘッドデブリは、0.75から1 mの厚さで堆積
- 粒径は大きい”岩状”(<0.2 m)から”顆粒状” (<0.1 mm)まで様々であった。粒子は溶融したセラミックス((U,Zr)O<sub>2</sub>)で、均質的で多孔質
- 上部デブリベット及び溶融プール領域デブリのセラミックス粒子と、成分が類似。



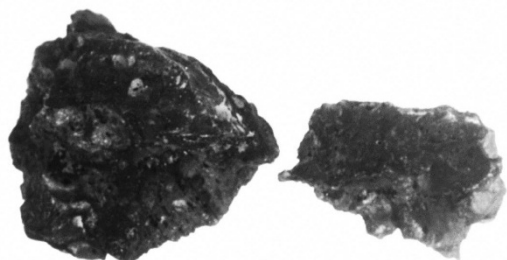
# 原子力機構におけるTMI-2デブリ分析

- 原子力科学研究所(旧原研東海)・燃料試験施設にて実施。
  - 外観観察、重量測定、密度測定などの非破壊検査
  - ミクロ組織観察、元素分析、気孔率測定、ガンマ線分析  
(燃焼度、残留FP、 $UO_2$ 含有割合を評価)
  - 模擬デブリを活用した熱拡散率、熱伝導率、比熱、熱膨張、溶融温度といった熱特性の評価



# 下部ヘッドデブリの外観とマイクロ組織の例

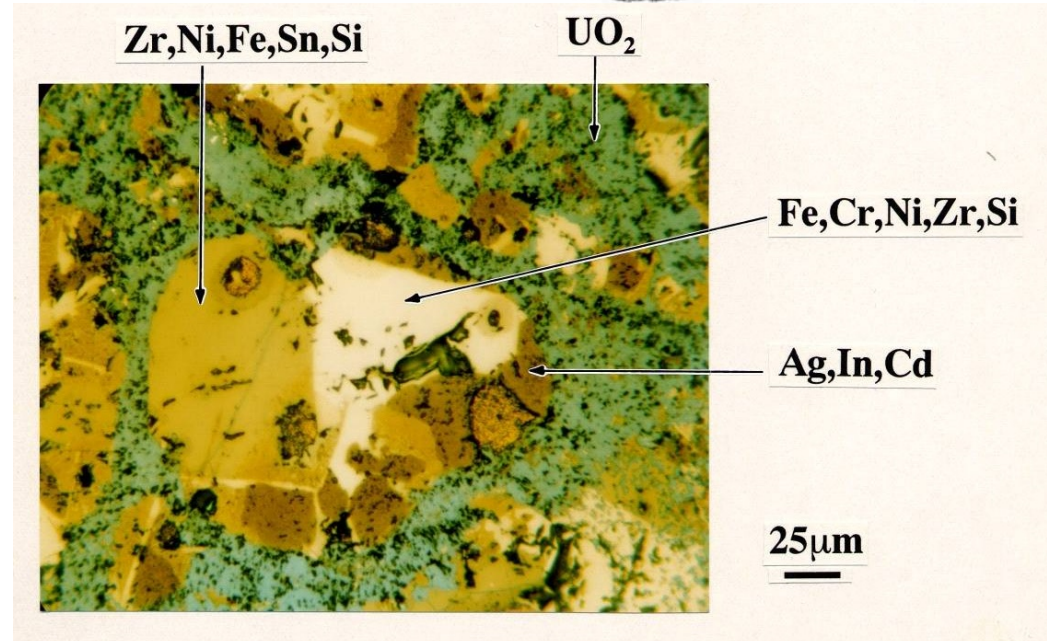
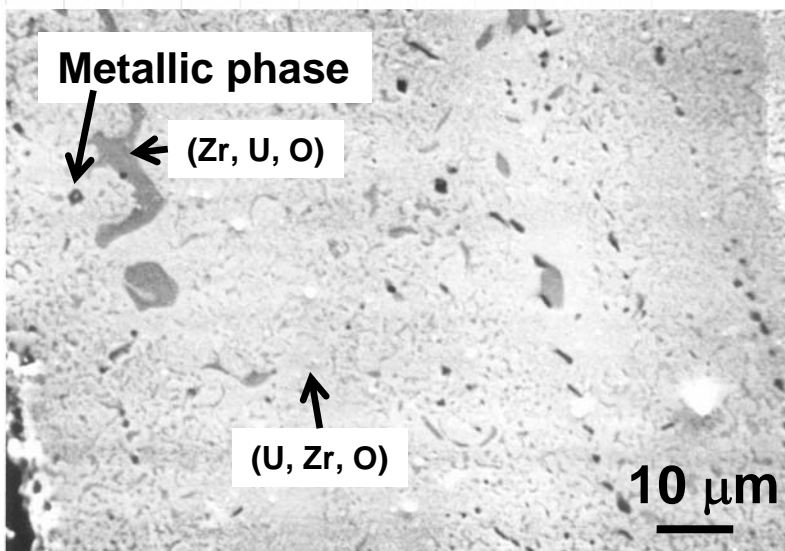
VIP-12A



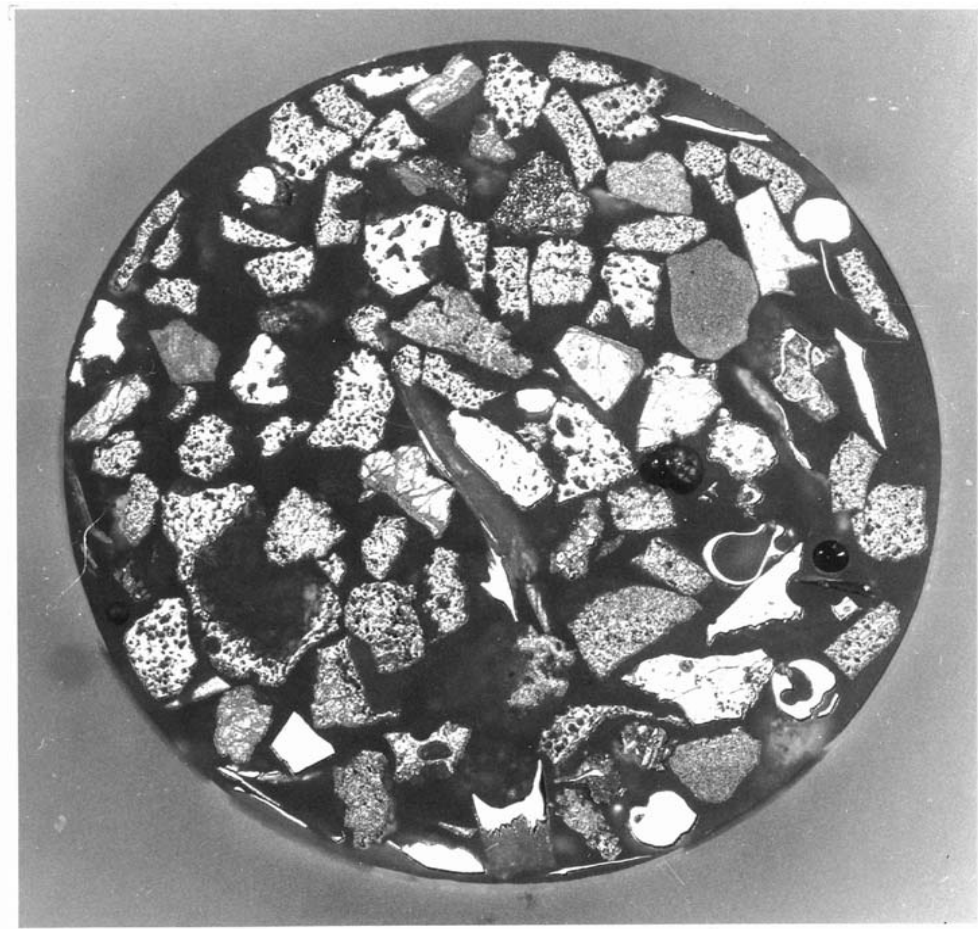
VIP-11A



10 mm



# 下部ヘッドデブリの断面マイクロ組織の例



サンプルNo.  
VIP-10C

1 mm

# TMI-2デブリの密度

採取場所	測定数	合計重量 (g)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )			
			最小値	最大値	平均値	加重平均
上部炉心	4	3.4	7.70	10.23	8.52	8.79
クラスト	5	1777.4	7.59	8.57	7.98	7.65
溶融プール	8	174.1	7.66	10.49	8.62	8.00
下部ヘッド (ルース)	1	0.4	-	-	8.08	8.08
下部ヘッド (ハード)	14	736.0	6.32	8.77	7.67	7.38
合計	32	2691.2	6.32	10.49	8.08	7.60

(参考) UO<sub>2</sub>: 10.95、ZrO<sub>2</sub>: 5.56 g/cm<sup>3</sup> (いずれも理論密度)

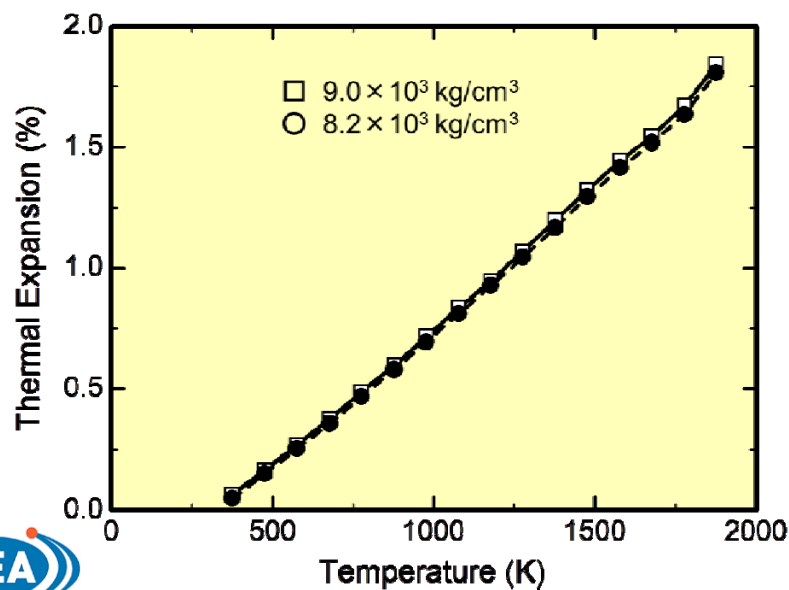
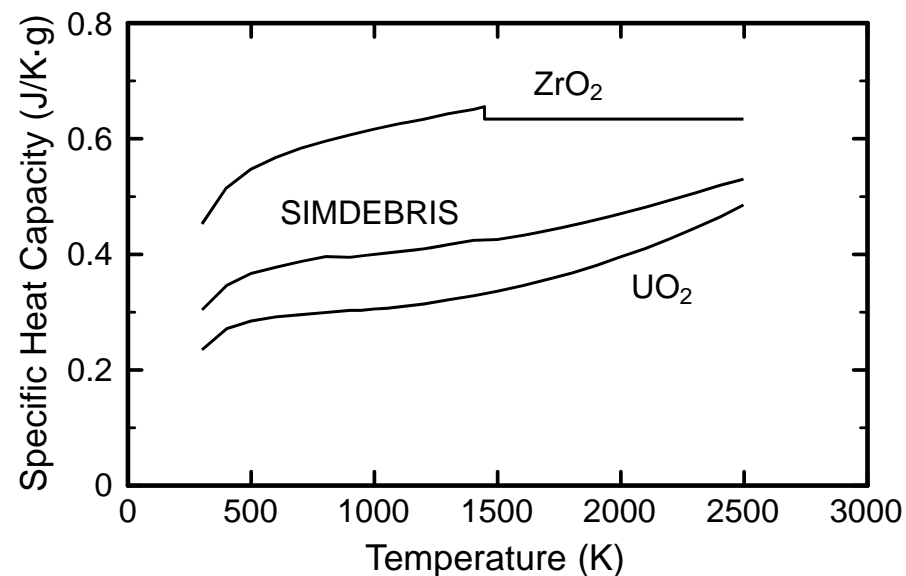
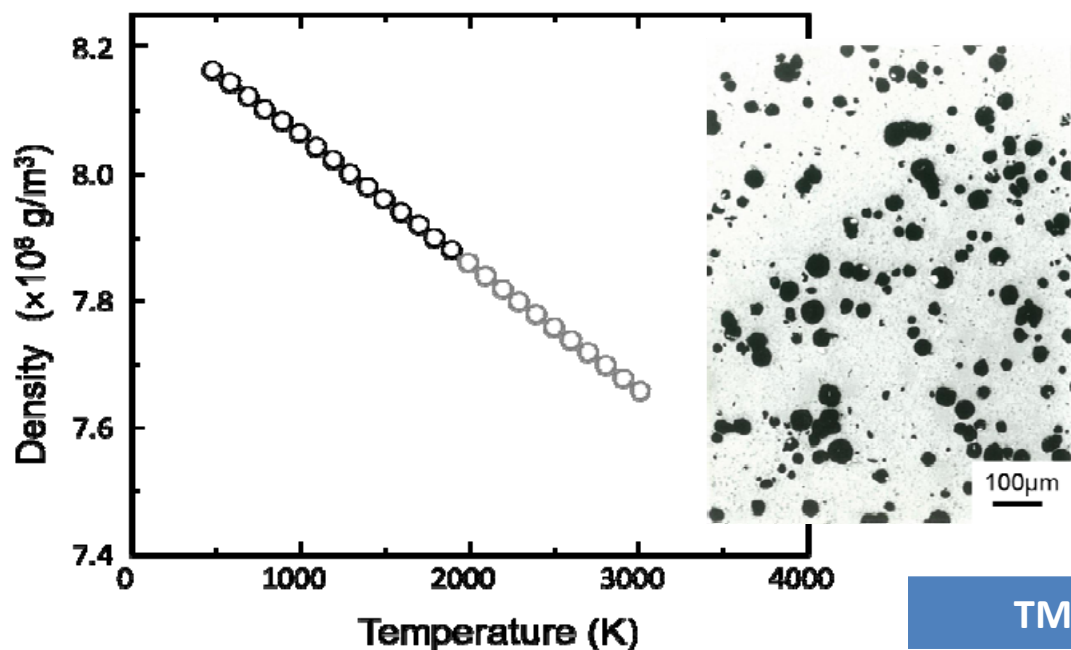


# ガンマ線分析の結果

採取位置	試料番号	燃焼度 (MWd/t)	残留Cs (%)	UO <sub>2</sub> が占める 重量割合(%)
溶融プール	O7-P1A2-a	3,200	100*	100
	O7-P1-A2-b	3,030	100*	100
上部炉心	E9-4	3,300	0.4	64.5
	H8-1	3,700	4.2	72.5
下部ヘッド	VIP-9H-a	3,500	5.3	79.4
	VIP-9H-b	3,500	3.3	83.3
	VIP-10C-a	3,600	3.0	76.7
	VIP-10C-b	3,600	5.9	73.9

\*温度が上昇した形成がないことからCs放出がなかったと仮定

# SIMDEBRISの熱特性



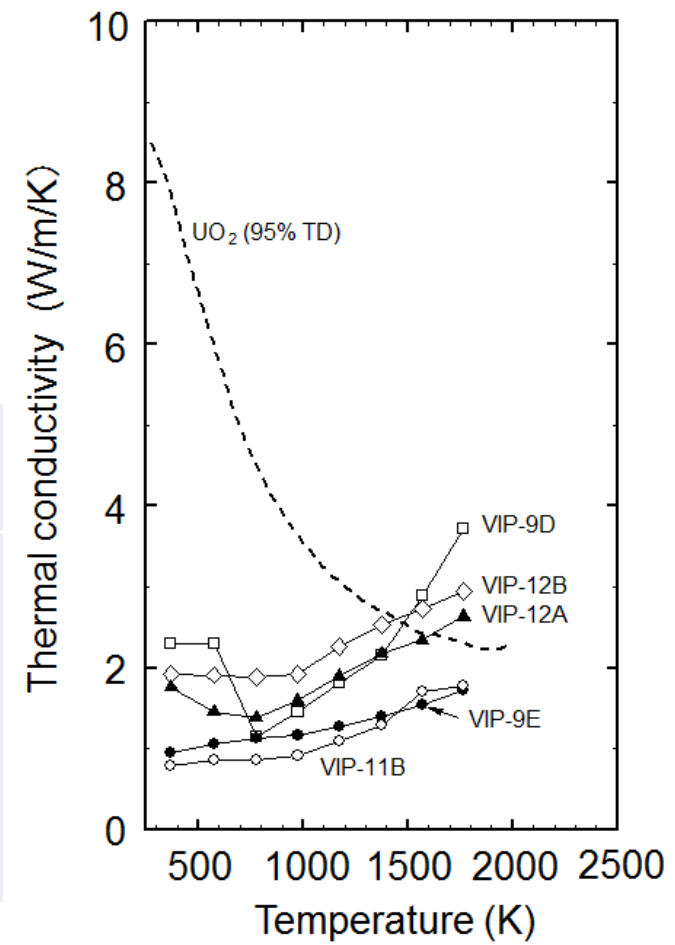
TMI-2 初期装荷量		模擬デブリ	
材料	重量(kg)	原料	重量割合(%)
UO <sub>2</sub>	93,100	UO <sub>2</sub>	72.1
ジルカロイ	23,000	ZrO <sub>2</sub>	20.5
ステンレス304鋼	4,640	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	3.4
インコネル718	1,210	Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.3
Ag-In-Cd	2,750	NiO	1.0
		Ag	1.7



# TMI-2デブリの熱拡散率

- セラミックスデブリの熱拡散率は、室温においてUO<sub>2</sub>の10~25%の低い値だが、1500K以上ではほぼ同等。

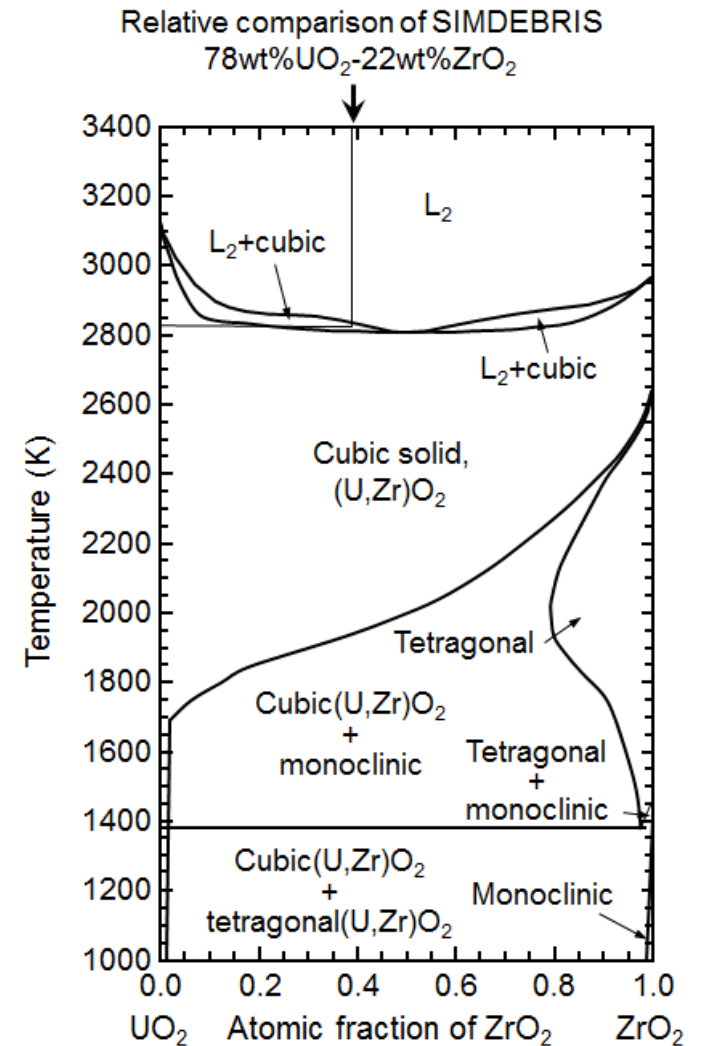
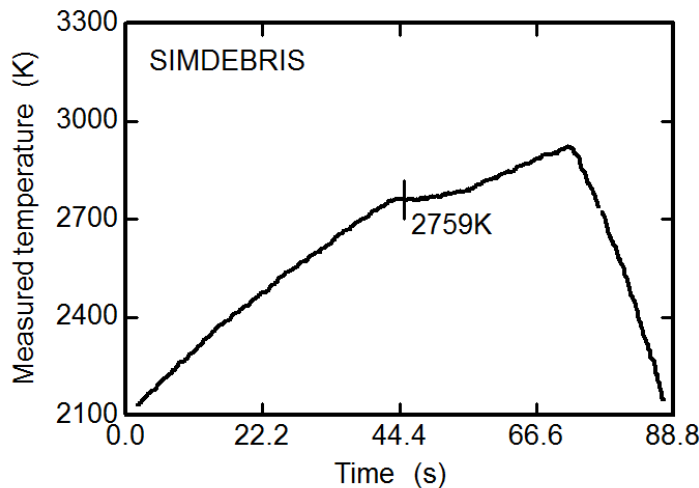
試料番号	重量 (g)	密度 (×10 <sup>6</sup> g/m <sup>3</sup> )	空孔率 (%)	主要成分
VIP-9D	21.9	7.80	32.1	(U, Zr)O <sub>2</sub>
VIP-9E	15.4	7.64	38.0	(U, Zr)O <sub>2</sub>
VIP-11B	387.3	7.82	4.6	(U, Zr)O <sub>2</sub>
VIP-12A	33.5	8.25	18.8	(U, Zr)O <sub>2</sub>
VIP-12B	46.3	7.93	13.6	(U, Zr)O <sub>2</sub>



F. Nagase and H. Uetsuka, "Thermal properties of TMI-2 core debris and SIMDEBRIS", J. Nucl. Sci. & Tech., Vol. 49 (1), 96-102(2012).

# 模擬デブリの溶融温度

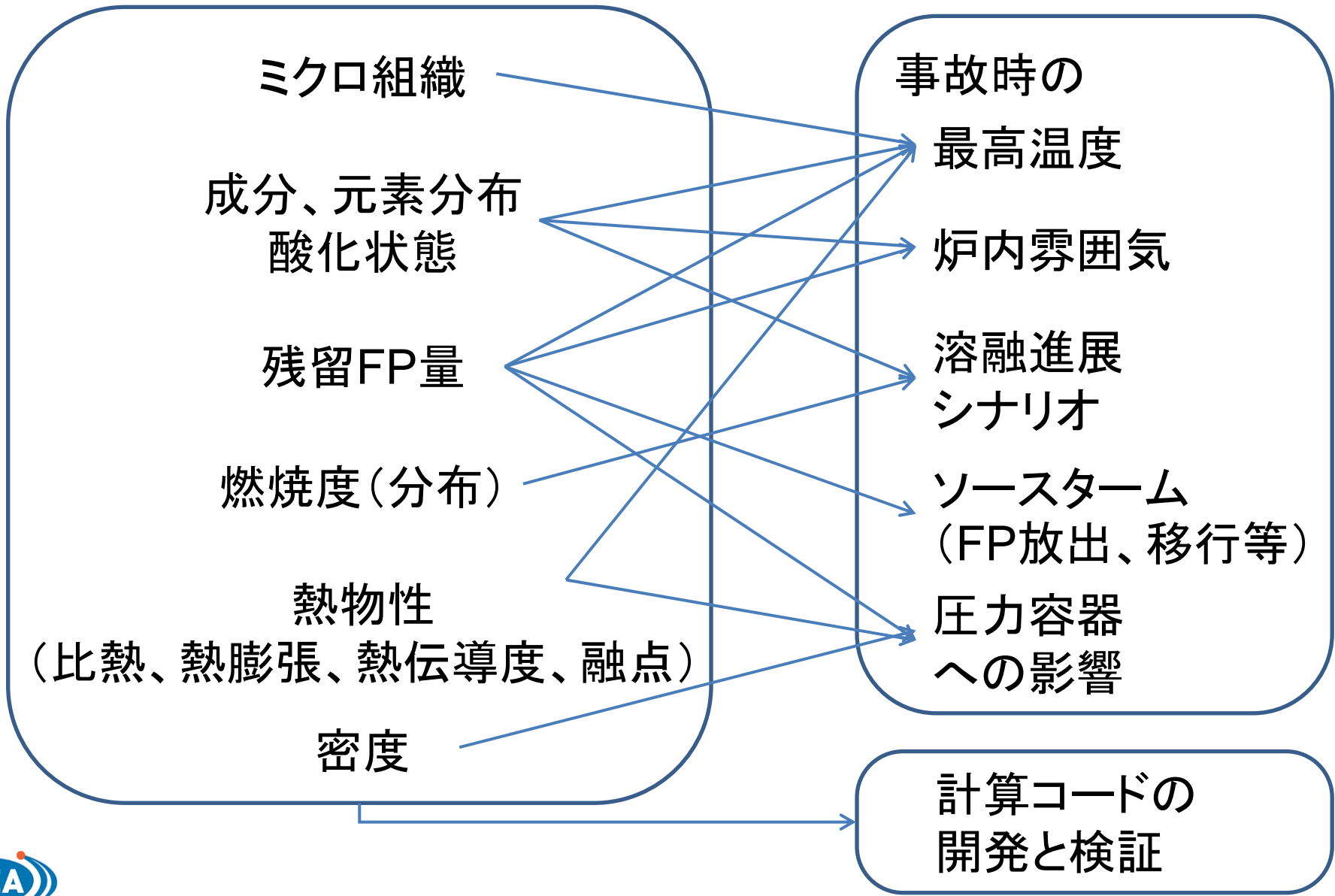
- 模擬デブリの溶融温度は約2840Kであった。
- この温度は同様のZrO<sub>2</sub>/UO<sub>2</sub>比を持つ(U, Zr)O<sub>2</sub>の液化温度と同等である。
- 若干の構造材の混入が溶融温度に及ぼす影響は小さい。



F. Nagase and H. Uetsuka, "Thermal properties of TMI-2 core debris and SIMDEBRIS", J. Nucl. Sci. & Tech., Vol. 49 (1), 96-102(2012).



# TMI-2デブリ分析データの反映



# 福島第一原発事故とTMI-2事故の主な違い

- 圧力容器内及び集合体構造の違い。
- 初期インベントリーの違い。
  - $UO_2$ に対するジルカロイの重量が大きい。
  - 制御材として $B_4C$ とステンレス鋼からなる制御棒(ブレードが)使われている。
- 事故シナリオの違い。
  - 過熱や冷却の条件
  - 雰囲気(酸素ポテンシャル)
- 冷却材の残存量の違い。
- 事故進展度合いの違い。



# 炉心溶融進展及び放射性物質放出に関する 炉内実験等(1/2)

## 炉内実験

- ▶ TREAT Source Term Experiments Project (STEP 1,2,3,4)  
FP放出及びエアロゾル化学
- ▶ PBF Severe Fuel Damage Tests (SFD ST, 1-1, 1-3, 1-4)  
燃料バンドル、FP移行及び沈着、水素発生
- ▶ Loss-of-Fluid Test Facility Fission Product Test (LOFT FP-2)  
FP放出の大規模試験、水蒸気供給/再冠水
- ▶ ACRR Source Term tests (ST-1,2)  
照射済燃料からのFP放出(還元条件)
- ▶ ACRR Damaged Fuel (DF-1,2,3,4) relocation experiments  
冷却材流速、系/燃料棒圧力、被覆管初期酸化量
- ▶ ACRR Melt Progression (MP-1,2) experiments  
セラミックプール挙動

# 炉心溶融進展及び放射性物質放出に関する 炉内実験等(2/2)

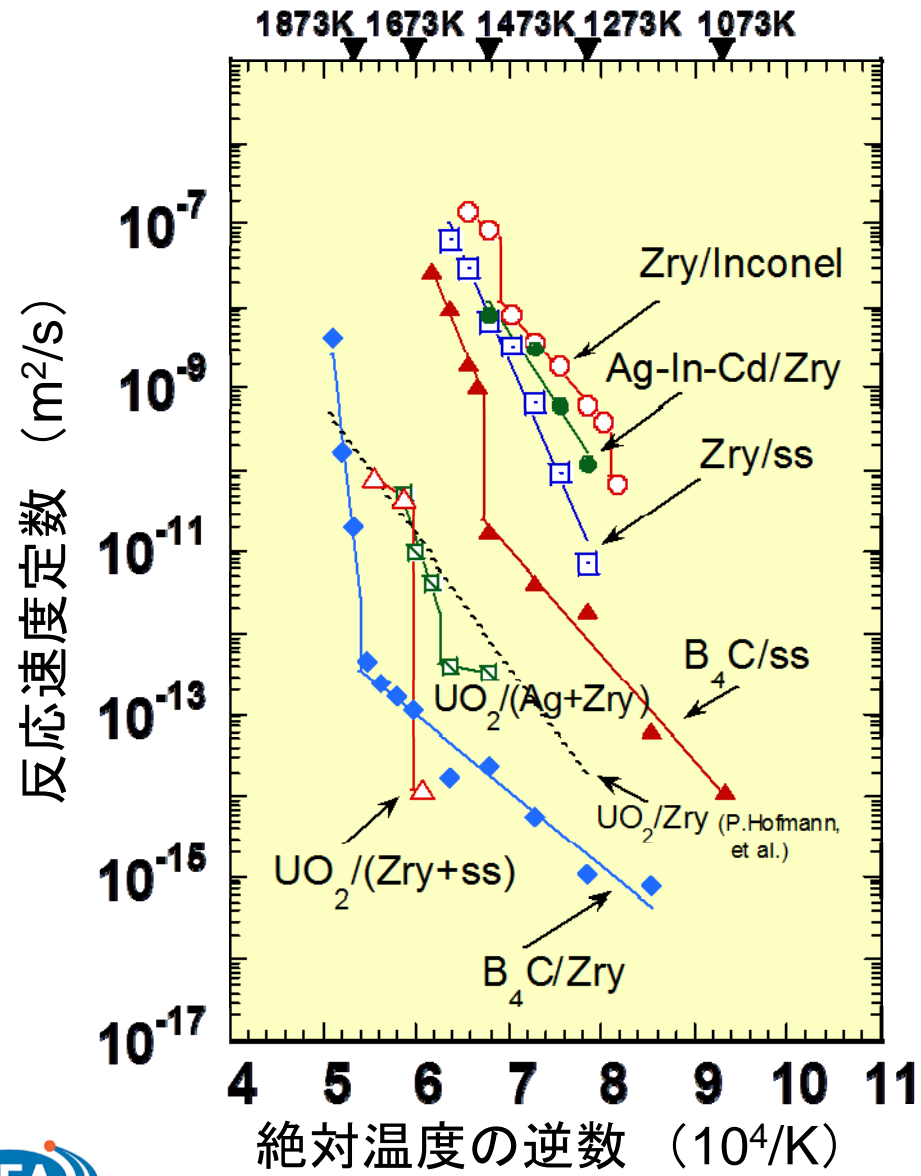
## 炉内実験(続き)

- ▶ NRU Full Length High Temperature Tests (FLHT 1,2,4,5)  
実長燃料の酸化及び水素発生
- ▶ NRU Blowdown Test Facility (BTF-104, -105A, -105B, -107)  
CANDU燃料、FP放出
- ▶ Phebus SFD ➡ Phebus Fission Product Tests (FPT-0,-1,-2,-3-4)  
炉心冷却系、FP移行/沈着を含む格納容器挙動  
UO<sub>2</sub>/ZrO<sub>2</sub>破片からの揮発性及びアクチニドの放出

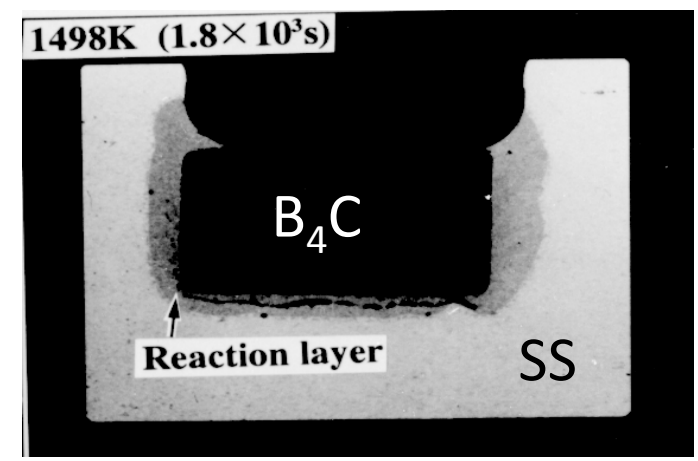
## 炉外実験(電気加熱)

- ▶ CORA and Quench at KfK, FZK  
炉心溶融進展及び再冠水における温度挙動
- ▶ PARAMETER at NPO “LUTCH”, Podolsk  
UO<sub>2</sub>ペレット及びVVER被覆管 (1% Nb)

# 炉心構成材料間の反応



- 炉心構成材料間の相互作用は、UO<sub>2</sub>の融点より大幅に低い温度で開始する
- 共晶(液相)形成により反応速度は顕著に増加する。
- 液相の形成は、UO<sub>2</sub>の溶解を促進すると考えられる。



# まとめ

- シビアアクシデント解析を行う上で、溶融し炉心材料と混合した燃料の特性は重要である。
- 1979年のスリーマイル島2号機(TMI-2)事故後に炉心から取り出された溶融燃料(TMI-2デブリ)に対する外観観察、密度測定、ミクロ組織観察、元素分析、熱特性評価等を原子力機構において行った。
- TMI-2デブリの組成は様々であり、金属を多く含むもの、セラミックスを多く含むものがあり、密度は $6.3 \sim 10.5 \text{g/cm}^3$ であった。
- セラミックスデブリの主成分は $(\text{U,Zr})\text{O}_2$ であり、熱拡散率は室温では $\text{UO}_2$ の10～25%であったが、1500K以上では同等であった。
- デブリに近い組成を持った模擬デブリの融点は約2840Kであり、同じ $\text{ZrO}_2/\text{UO}_2$ 比を持つ $(\text{U,Zr})\text{O}_2$ の液相形成温度とほぼ同じであった。
- 福島第一においては、炉形や事故条件等の違いから、異なる特性を有するデブリの生成も予想される。