

添付資料 2

「崩壊熱とジルコニウム-水反応に関する検討」

1. 目的

NHK スペシャル「メルトダウン File.5 知られざる大量放出」では、下記に述べるような内容が放送された。

＊「ジルコニウムの発熱量結構大きいので、燃料は急速にはないんだけど、ゆっくりと溶け続ける。高温の持続時間が長引いた、そしたら FP が出る時間もどんどん長引く」

＊今回明らかになった全体の 75%を占める大量放出、3 月 15 日の午後からおよそ 2 週間続いていました。その間、原子炉内部では消防車による注水が原因で放射性物質が出つづけていました。それが格納容器の隙間からじわじわ漏れ出し、長時間の放出につながったと見られています。

本資料で述べる検討内容は、放送されたような内容が正しいかどうかを検証するために行ったものである。

2. 崩壊熱とジルコニウム-水反応熱

3 号機は 13 日の未明に炉心の冷却ができなくなり、危機的な状況に陥った。そこで同日 9 時頃に圧力容器の減圧と格納容器のベントを行い、消防車からの炉心への注水を開始した。しかし、注水系統に幾つもの分岐管があったために炉心への注水が少なくなり、そのために事故が長引く結果となった。電源が復旧して本格的な注水が始まったのは 23 日頃である。

そこで〈13 日から 22 日までの 10 日間〉に注目して、この期間の放射性物質から出る崩壊熱量とジルカロイ-水反応による発熱量を比較する。

(1) ジルコニウム-水反応による発熱量

3 号機のジルカロイ（ジルコニウム合金）装荷量：約 50t

〈内訳〉被覆管（0.86mm 厚さ）：30t

チャンネルボックス（2mm 厚さ）：16t

その他（ウォーターロッド、スペーサ）：4t

ジルコニウム - 水反応による発熱量



高温のジルコニウムは蒸気と反応して酸化ジルコニウムになり、水素が発生する。この反応は発熱反応である。

50t のジルコニウムが全て反応した場合の総反応熱量 $Q_{\text{Zr}} = 3.2 \times 10^8 \text{ kJ}$

50t の Zr を酸化させるに必要な水量 = 20t

(2) 3月13日～22日(10日間)の崩壊熱量

3号機の定格熱出力：2,381MWth

13日～22日の平均崩壊熱出力比：0.0025

当該期間の総崩壊熱量：

$$Q_D = 5.1 \times 10^9 \text{ kJ}$$

(3) Zr-水反応熱と崩壊熱との比較

$$\text{総反応熱量} / (\text{総反応熱量} + \text{総崩壊熱量}) = Q_{Zr} / (Q_{Zr} + Q_D) = 0.06$$

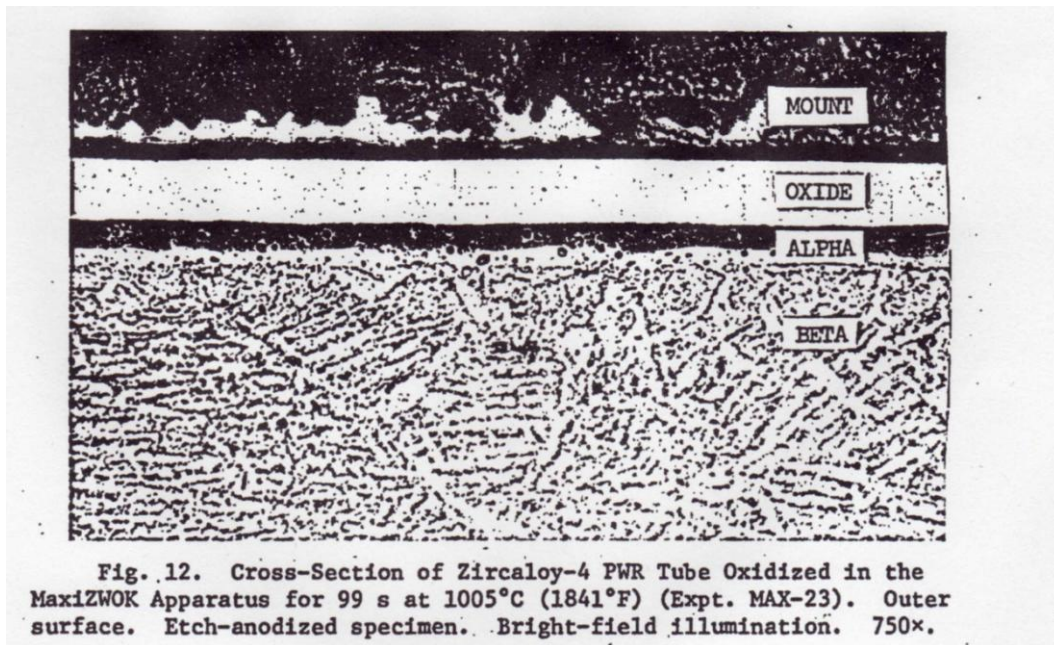
3号機の炉心の温度を高め、放射性物質の放出の原因となったのは、崩壊熱が94%、ジルコニウム-水反応による発熱が6%の寄与であったことがわかる。

2. ジルカロイ(ジルコニウム合金)の酸化速度

(1) ジルカロイの酸化

写真1はジルカロイ-4燃料被覆管を1005℃で水蒸気に99秒間さらした後、試料外表面近くの横断面を顕微鏡観察した写真(NUREG-17、p47より引用)である。外表面にOXIDE(酸化物： ZrO_2)が形成され、その内側に酸素濃度が高いALPHA相(α 金属)が形成され、その下にBETA相(β 金属)が残っている。酸化物および α 金属の厚さは時間の経過と共に成長し、 β 金属の厚さは減少する。⁽¹⁾

写真1 燃料被覆管外表面の顕微鏡写真(1005℃で水蒸気と99秒間反応)



(2) ジルカロイ-水（水蒸気）反応速度式

軽水炉の安全性評価のために 1960 年代から 1980 年代にかけて、ジルカロイと水蒸気との反応に関して多くの研究者によって精力的な研究が行われた。現在、軽水炉の安全性評価のために広く使われているのが下記の 2 つの式である。

1,000℃～1,550℃の温度範囲（Cathcart 等の式） ⁽¹⁾

$$(\Phi_{Zr})^2 = 1.73 \cdot t \cdot \exp(-151,000/RT) \quad \dots (1)$$

1,550℃～1,852℃（ジルカロイの融点）（Baker-Just の式） ⁽²⁾

$$(\Phi_{Zr})^2 = 77.6 \cdot t \cdot \exp(-191,000/RT) \quad \dots (2)$$

ここで、 Φ_{Zr} ：酸化するジルカロイの厚さ（mm）

t：反応時間（秒）

((1)式、(2)式共にオリジナルの式を“酸化するジルカロイの厚さ”および“S I 単位への換算（cal⇒J）”へ変換して示した。）

Baker-Just の式は 1962 年に発表されて広く使われたが、1,550℃以下の温度では酸化量を大きく見積もりすぎることが分かり、1,000℃から 1,550℃では Cathcart 等の式が使われるようになった。この原因はジルカロイが 1,550℃で正方晶系から立方晶系へ変態するためと考えられている。

(3) 解析結果

解析結果を表 1 に示す。燃料被覆管の厚さは 0.86mm であり、内部には燃料が入っているので、外面が蒸気と反応して酸化被膜ができる。燃料集合体の流路を形成しているチャンネルボックスの厚さは 2mm であり、この場合は両面が蒸気と反応して酸化被膜ができる。従って、〈酸化するジルカロイが厚さ 1mm に達する（ $\Phi_{Zr}=1\text{mm}$ ）に要する時間（ $t_{Zr}(1)$ ）がジルカロイが全て酸化してしまう時間と考えられる〉。

表 1 には酸化するジルカロイが厚さ 0.5mm、1mm、1.5mm に達する時間を示した。

Cathcart 等は上述の(1)式を求めるに当たって広範囲かつ綿密な実験を行っており、次のように述べていることを付記する。

- * 蒸気流速を 1m/s から 18m/s に変えても、酸化速度は殆ど変化しない。川崎らも 1,000℃で蒸気流速を 0.2~1.6m/s の範囲で変化させた実験を行い、酸化速度は変化しなかったと報告している。
- * 蒸気温度を 150℃から 1,000℃以上の温度に変化させても、酸化速度は殆ど変化しない。
- * 実験には Sandvic 製の Zry-4 被覆管を用いたが、PWR 用の仕様範囲で化

学成分が若干異なる他メーカ製品の場合でも、その影響はごく僅かである。

- * 水蒸気に 10mole%の N₂、10mole%の O₂、または 5mole%の H₂ を加えた蒸気を用いた実験を行ったが、その影響もごく僅かだった。

表 1 ジルカロイー水蒸気反応に関する解析結果

温度(°C)	ZrO ₂ の結晶系	Φ _{Zr} (酸化するジルカロイ厚さ)に至る時間(t _{Zr} (x))		
		Φ _{Zr} =0.5mm (t _{Zr} (0.5))	Φ _{Zr} =1mm (t _{Zr} (1))	Φ _{Zr} =1.5mm (t _{Zr} (1.5))
1,000	正方晶系	62h(2.6日)	246h(約10日)	553h(23日)
1,100	"	22h	87h(3.6日)	196h(8日)
1,200	"	9h	36h(1.5日)	81h(3.4日)
1,300	"	4h	16h	36h
1,400	"	2h	8h	18h
1,500	"	1.1h	4.4h	10h
1,600	立方晶系	12分	46分	1.7h
1,700	"	6分	25分	56分
1,800	"	3.5分	14分	32分
1852(MP)	"	3分	11分	25分

3. 3号機炉心でのジルカロイー水反応

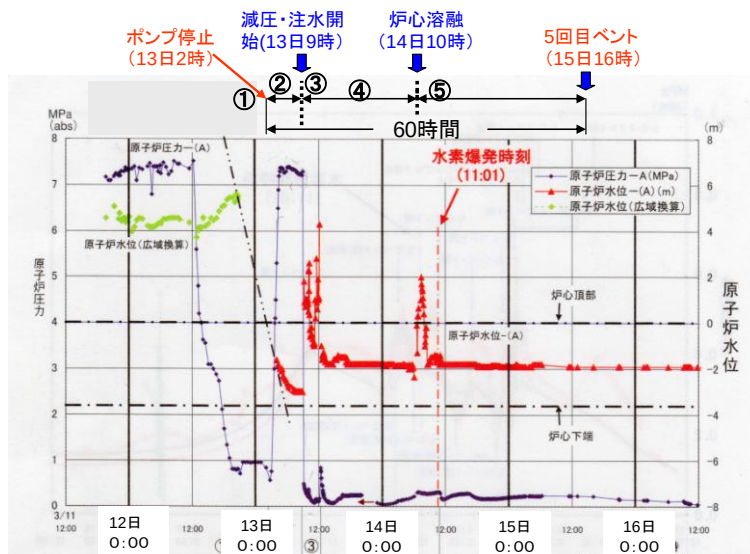
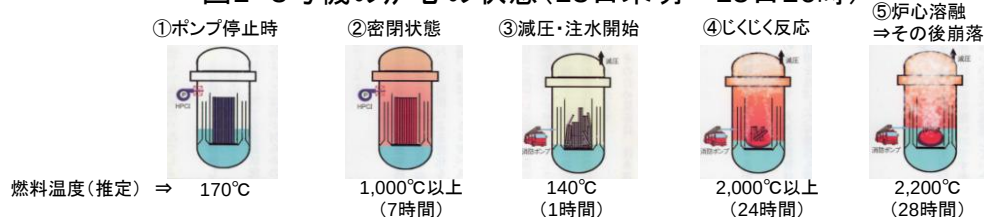
福島「考証」⁽³⁾に基づいて 13 日未明から 15 日 16 時まで(約 60 時間)の 3 号機の炉心燃料の状況を振り返ってみる。図 1 に炉心燃料が時間経過と共に変化した状態を模式図①、②、③、④、⑤で示した。

- ① 13 日 2 時頃、3 号機では炉心冷却ポンプはヨタヨタ状態だった。炉心燃料の上部は水面上に出てはいたが、その温度は 170°C 程度であった。
- ② 13 日 2 時頃、炉心冷却ポンプを手動停止した。その時点から圧力容器は蒸気の出口を失って密閉状態となり、温度・圧力が急上昇した。炉心燃料温度は 1,000°C を超えたと推定され、この状態が約 7 時間続き、〈その間に炉心のジルカロイは蒸気と相当量反応〉したと推定される。
- ③ 13 日 9 時頃、消防車からの注水を行うために圧力容器の減圧と格納容器の 1 回目のベント行い、9 時半頃から注水が開始された。炉心は減圧と注水に

よって 1,000℃以上の温度から 140℃まで急冷され、部分的に炉心の崩落が生じた可能性がある。消防車からの注水で炉心を短時間の内に水で満たすことが出来ていれば、この時点で事故は終息したはずである。

- ④ しかし、注水ラインに分岐管があったために炉心への注水量は少なかった。そのため炉心の大部分は水面上に置かれ、崩壊熱によって再び温度は上昇した。図 1 の水位計の値が 12 時頃まで激しく上下しているのは、高温になったジルカロイと消防車からの注水による蒸気が激しく反応して生じたものと推定される。その後水位計の変動は収まったものの、注水量が少なかったために炉心は 2,000℃を超える高温になったままジルカロイと水蒸気との反応は着実に進行したと推定される。この間のジルカロイと水蒸気との反応の状態を福島「考証」では“じくじく反応”と表現しており、この状態が約 24 時間続いた。
- ⑤ そして消防車からの注水によって水位が次第に上昇し、炉心燃料の下部が水で浸される状態になった 14 日 10 時頃に崩壊熱にジルカロイと水との反応熱が加わって、炉心燃料の一部が溶融（約 2,200℃）したと推定される。その 1 時間後（14 日 11 時頃）、3 号機は水素爆発を起こした。その後、炉心は高温に保持されて崩落したと推定されるが、このような状況が続いたまま 15 日 16 時の 5 回目のベントまでに約 28 時間が経過している。

図1 3号機の炉心の状態(13日未明～15日16時)



ここで表 1 の解析結果と図 1 の 3 号機の炉心燃料の状態を合わせて推察すると下記の結論となる。

- * 13 日 10 時頃までに炉心に装荷されていたジルカロイは殆ど全て水蒸気と反応して酸化ジルコニウムになっていたと推定される。
- * その時点で若干のジルカロイが残っていたと仮定しても、15 日 16 時までには全て反応し尽くしていたと推定される。

4. 放送内容に関する検討

【映像 30】専門家の指摘およびナレーション

15 日午後以降の状態を指摘していると推定されるが、この時点ではジルカロイの全量が酸化ジルコニウムになっており、全て間違っている。SAMPSON にこのような仮定モデルが組み込まれているとすると、修正の必要がある。

【映像 33】映像、専門家の指摘およびナレーション

【映像】で灼熱した燃料棒が弾性的に膨らんで破裂し、放射性物質が噴き出す状態が示された。しかし、15 日の午後以降においてはジルコニウムの殆どが酸化して燃料棒は崩落していたと推定され、このような状態は起こらない。冷却水喪失事故時に生じる現象からの誤推定ではないか。

実験結果の説明を除いて専門家の指摘およびナレーションの内容は間違っている。特に、“高温の持続時間がかなり長引いた、そしたら FP が出る”と理解は誤りである。15 日午後以降にはジルカロイの酸化反応の寄与は殆どないこと、また、ジルカロイが残っていたと仮定しても、燃料温度をやや高める効果はあるが、持続時間を長引かせることはない。

【映像 34】大量放出の原因を総括したと推定されるナレーション

【映像 35】「あの当時ですね、消防車による注水を期待して見ていたんですけども。今見ますと、注水が結果として裏目に出てしまったということだったんですね。」「そうですね、そもそも原発が全ての電源を失って原子炉に注水ができなくなるという事態は想定をされていませんでした。消防車による注水も、吉田所長が考え出したいわば苦肉の策でした。しかし、まさかこれほどの水が別の場所に抜けるとは思ってもみなかったわけです。さらに僅かな水がですね原子炉の状態をこれほど悪化させる、そのことも考えていなかったんです。」

【映像 36】想定外のことが次々と起きて対応がその場しのぎにならざるをえなかったという、そのことが放射性物質の放出に拍車をかけていたわけです。「つまり消防車による注水がこの 75%の大量放出につながったというわけなんですか。」

消防車による注水は「吉田所長が考え出した苦肉の策」ではない

電力会社では、全ての電源を失う重大事故を想定して、消防車を緊急炉心冷却系統に接続する対策を 2003 年頃までに準備していた。更に、中越地沖地震後に消防車が配備され、消防車のホースの接続口も追設されていた。「想定されていなかった」、「吉田所長が考え出した」は誤りである。また、「苦肉の策」だけでできるものでもない。

「消防車による注水がこの 75%の大量放出につながった」とする放送内容は事実ではない

この結論は、先に述べた多くの誤りに基づいたもので、視聴者に事実をゆがめて伝えたり、誤解を招く放送と判断される。そして「今回の津波のような事象が起きても電源を確保し、重大事故時にはベントを確実にを行い、最悪の場合は消防車で確実に注水できること」を目指している国および関連企業原発安全の高度化方針や社会に与える影響は甚大である。速やかな訂正が必要である。

以上

参考文献

- (1) “Zirconium Metal-Water Oxidation Kinetics IV. Reaction Rate Studies”
J. V. Cathcart, R. E. Pawel, R. A. McKee, R. E. Druschel, G. J. Yurek,
J. J. Cambell, ORNL/NUREG-17 (1977)
- (2) ” Studies of metal-water reactions at high temperatures,
III. Experimental and theoretical studies of the zirconium-water
reaction” , L. Baker and L. C. Just, ANL-6548 (1962)
- (3) 石川迪夫「考証 福島原子力事故“炉心溶融・水素爆発はどうおこったか”」
日本電気協会新聞部、(2014 年 3 月 28 日)