

東京電力(株)福島第一原子力発電所の  
廃止措置技術に係る  
原子力機構の取組み  
2012年版



# はじめに



2011年3月11日に発生した未曾有の大震災により、原子力機構の主要な研究開発を担う茨城県内の拠点、東海研究開発センター（原子力科学研究所、核燃料サイクル工学研究所）、大洗研究開発センター及び那珂核融合研究所は大きな被害を受けました。幸い、放射性物質などが管理区域外に放出されるような事態には至りませんでした。多くの研究施設・設備は機能不全の状態に陥りましたが、このような状況下ではありましたが、震災に伴って発生した東京電力㈱福島第一原子力発電所（1F）事故に対して、原子力機構は、事故発生直後から経営トップの強いリーダーシップにより様々な活動を開始しました。

事故により損壊した原子炉の廃止措置等に向けた取り組みは、「やるべきこと、やれることを積極的に提案して欲しい」という経営トップの呼び掛けに積極的に応じた研究者・技術者の発案をベースに手探り状態でスタートしました。その後、順次、取り組み体制を整備・強化して今日に至っています。

2011年12月に、政府・東京電力中長期対策会議が、中長期ロードマップを決定し、同時に研究開発計画を策定してオールジャパン体制での長期に亘る廃止措置を成し遂げるための活動が開始されました。研究計画は以下の4分野に分類されています。

- ・ 使用済燃料プール燃料取り出しに係る研究開発
- ・ 燃料デブリ取り出し準備に係る研究開発
- ・ 放射性廃棄物処理・処分に係る研究開発
- ・ 遠隔操作機器に係る技術開発

1F事故は史上最大規模の原子力事故であり、現時点でも循環注水冷却によって冷温停止状態を維持している状況にあります。当面は炉心冷却が必要であり、炉内状況を把握できる迄には相当の時間を要すると思われれます。水素爆発や炉心溶融により著しく損壊・汚染した4基の原子炉施設を解体し、高線量かつ膨大な量の燃料を含む放射性物質を除去・安定保管するまでの道程は長く、解決すべき技術課題も数多く多岐に亘ります。このため、研究開発には、高度な専門性、総合性に加えて現場のニーズや進捗状況を踏まえて適時・的確に対応する柔軟性が求められます。

多岐に亘る研究開発には、①課題あるいは現場ニーズが明確であり短期間に答えを出すべきもの、②数年後以降に想定される現場作業に必要な情報あるいは新技術・改良技術を提供する中長期的研究、③作業効率や測定精度を飛躍的に向上させる可能性のあるチャレンジングな技術開発、④新たな廃棄物処理・処分の法制化に必要な知見を提供する研究、などがあり、原子力機構が果たすべき役割は極めて大きいと考えています。

原子力機構は、2012年度における経営上の最優先課題として福島第一原子力発電所の廃炉に関する業務を掲げ、2012年4月1日に、原子力科学研究所、核燃料サイクル工学研究所及び大洗研究開発センターに、それぞれ福島技術開発特別チームを設置しました。爾来原子力機構が実施する中長期ロードマップに沿った研究開発・技術開発の中心的役割を福島技術開発特別チームが担っています。

1Fの廃止措置等に向けた取り組みは、今後30~40年は続くと思定されており、人材の確保、育成が欠かせません。原子力機構には、現状で炉物理、核工学、炉工学、放射線化学、核燃料工学など原子力分野の経験豊かな研究者・技術者、ホットラボ施設の運転技術者など福島技術開発に貢献できる人材が相当数いますが、その中心となっている世代は40歳代、50歳代です。したがって、原子力機構では若手人材の確保と育成に留意した取り組みを行うことにしていますが、この点においても大学や産業界との連携などオールジャパンでの取り組みが必要です。

また、既に一部では実施されていますが、原子力施設の事故処理やシビアアクシデント研究などに実績・実力のある米国を始めとする海外諸国及び国際機関との協力を積極的に進めることも必要です。

我が国における唯一の総合的原子力研究開発機関であり、多くの原子力専門家と研究施設を有する原子力機構が、1F廃止措置に最大限の貢献をなすことは当然のことであり、十分な貢献ができないようであれば存在する価値はないと考えています。本冊子は、予備的検討段階にある活動を含め、福島技術開発特別チームのメンバーが短い期間の中で実施した研究開発の概要を纏めたものです。1F廃止措置に尽力されている関係各位のご参考になれば幸いです。

2012年11月

独立行政法人

日本原子力研究開発機構 福島技術本部

本部長代理 上塚 寛



## 研究開発体制と取組みの概要

### I. 燃料デブリの取出しに向けて

#### 1 原子炉の状況を知る

—遠隔除染技術・内部調査技術・事故進展解析技術—	5
1-1 汚染の状況・性状を評価し除染方法を立案する(1)	
—模擬の床材への汚染の浸透に関する基礎試験—	7
1-2 汚染の状況・性状を評価し除染方法を立案する(2)	
—非放射性Csを使用した除染基礎試験—	9
1-3 原子炉の内部を覗き状況を把握する(1)	
—研究炉の計測・検査技術を応用した内部調査技術開発—	11
1-4 原子炉の内部を覗き状況を把握する(2)	
—炉内レーザーモニタリング・内部観察技術開発—	13
1-5 炉内で起きたことを実験・計算により評価する(1)	
—燃料溶融や圧力容器破損等の推定に関する技術開発—	15
1-6 炉内で起きたことを実験・計算により評価する(2)	
—海水と燃料の化学反応の評価—	17
1-7 炉内で起きたことを実験・計算により評価する(3)	
—燃料損傷時の放射性物質放出及び圧力容器下部ヘッド破損挙動評価試験—	19
1-8 炉内で起きたことを実験・計算により評価する(4)	
—燃料溶融開始時の放射性物質放出挙動評価試験—	21

#### 2 燃料デブリの取り出しとその後

—燃料デブリ性状把握・取り出し工法・臨界防止・計量管理・処置技術—	23
2-1 燃料デブリとはどのようなものを理解する(1)	
—燃料デブリ性状に係る既存の知見と推定—	25
2-2 燃料デブリとはどのようなものを理解する(2)	
—模擬デブリと材料の反応生成物の性状—	27
2-3 燃料デブリとはどのようなものを理解する(3)	
—燃料デブリの特性に及ぼす酸素分圧の影響—	29
2-4 燃料デブリとはどのようなものを理解する(4)	
—(U, Pu, Zr)O <sub>2</sub> の融点測定—	31
2-5 燃料デブリとはどのようなものを理解する(5)	
—燃料取出しに向けた燃料デブリ物性の検討—	33
2-6 原子炉から燃料デブリを取り出す	
—燃料デブリ及び炉内構造物の切断技術に係る研究開発—	35
2-7 燃料デブリの再臨界を防ぐ	
—溶融した燃料とコンクリートが混合した体系の臨界特性—	37
2-8 燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築(1)	
—燃料デブリ中核物質の非破壊測定法の基礎技術開発—	39
2-9 燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築(2)	
—小石状・切出し燃料デブリ中核物質の計量管理・非破壊測定法の基礎技術開発—	40
2-10 燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築(3)	
—粒子状燃料デブリ中核物質の計量管理・非破壊測定法の基礎技術開発—	41



2-11	燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築(4)	
	—随伴FPガンマ線測定法による核物質定量性評価—	42
2-12	燃料デブリを取出した後どうすべきか(1)	
	—化学溶解と還元・塩素化技術の開発—	43
2-13	燃料デブリを取出した後どうすべきか(2)	
	—燃料デブリの処置シナリオの検討—	45
2-14	燃料デブリを取出した後どうすべきか(3)	
	—湿式処理技術の適用性検討—	47
2-15	燃料デブリを取出した後どうすべきか(4)	
	—溶融塩技術の適用性検討(溶融塩中ZrO <sub>2</sub> 化合物の還元挙動評価)—	49

## Ⅱ. 放射性廃棄物の処理・処分にに向けて

<b>3</b>	<b>長期間の安定保管・処分のために</b>	
	—性状調査・長期保管・処理・処分検討—	53
3-1	水処理二次廃棄物の性状を調べる	
	—廃ゼオライトの熱特性と放射能吸着量—	55
3-2	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(1)	
	—セシウム吸着塔内での水素の発生と拡散—	57
3-3	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(2)	
	—セシウム吸着塔内に残留する塩分の影響—	59
3-4	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(3)	
	—フェロシアン化ニッケルのガンマ線照射試験—	61
3-5	水処理二次廃棄物の処理方法を調べる	
	—廃ゼオライトのガラス固化試験—	63
3-6	効率的な汚染水処理技術を目指して	
	—CsやCoなどを一括除染する沈殿法—	65
3-7	ガレキ等廃棄物の処理・処分にに向けて	
	—性状の把握と従来処分法の適用性検討—	67

## Ⅲ. 事故時に海水が注入された影響を知る

<b>4</b>	<b>海水注入の影響把握とその対策に向けて</b>	
	—原子炉の構造材料・燃料集合体等への影響把握—	71
4-1	海水と放射線が材料に与える影響を評価する(1)	
	—燃料集合体および燃料プール材料の腐食特性の把握—	73
4-2	海水と放射線が材料に与える影響を評価する(2)	
	—原子炉格納容器・圧力容器材料の腐食特性の把握—	75
4-3	海水等の影響を受けた燃料集合体の処理に向けて	
	—プール内損傷燃料等の処理検討—	77

# 研究開発体制と取組みの概要

福島技術本部 復旧技術部 船坂英之

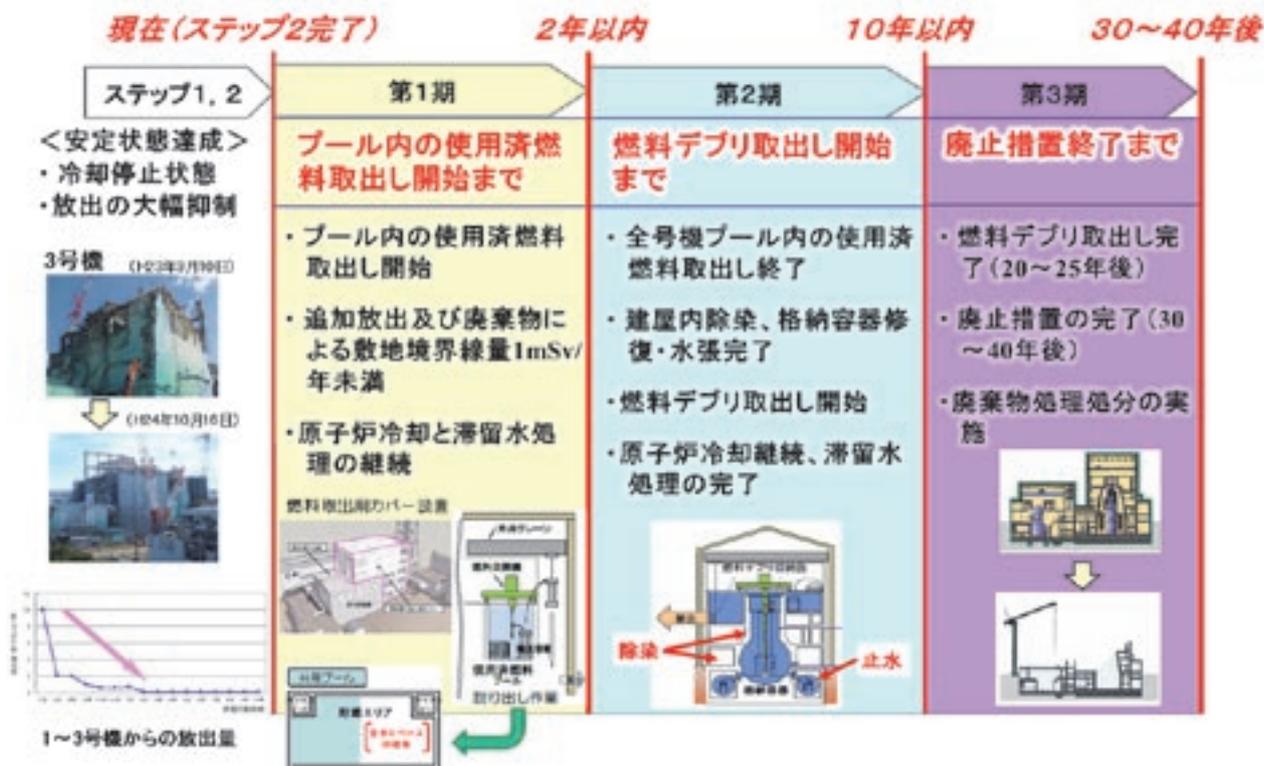


図1 東京電力(株)福島第一原子力発電所1~4号機の廃止措置等に向けたロードマップ

東京電力(株)福島第一原子力発電所1~4号機は、冷温停止状態を達成し、放射性物質の放出が抑制されていますが、廃止措置終了までには長期間を要するとともに、その完了までにはこれまでに経験したことのない課題を解決していく必要があります。

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震及びその後襲来した津波により、東京電力(株)福島第一原子力発電所(1F)では、炉心冷却機能が停止し、原子炉圧力容器、格納容器の一部が損傷するとともに、原子炉建屋が水素爆発により大きく損傷し、原子炉内に装荷されていた燃料から大量の放射性物質が発電所施設内及び環境に放出するなどの事故が発生し、甚大な原子力災害に発展しました。

現在は、冷温停止状態になるなど安定状態を達成しましたが、溶融固化した大量の燃料、いわゆる燃料デブリが炉内に残って発熱しているため、水で冷却し続けなければなりません。この大量の冷却水からセシウムなどの放射性物質を取り除き、再度注入するという循環冷却システムをとっていますが、大量の汚染水が発生し、これを貯蔵せざるを得ない状況となっています。また、放射性物質を吸着させたゼオライトなどの放射能レベルの高い廃棄物がたまってきていることから、これらを安定に保管するための技術開発等も必要です。原子炉内に残る燃料もいずれ取り出して安全に保管し、最終的には原子炉施設全体を解体しなくてはならず、これらの経験したことのない様々な課題を解決する必要があります。

こうした課題を解決していくため、2011年12月16日に原子力災害対策本部の下に政府・東京電力中長期対策会議が設置され、「東京電力(株)福島第一原子力発電所1~

4号機の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」(中長期ロードマップ)と、その達成に必要な研究開発をまとめた「東京電力(株)福島第一原子力発電所1~4号機の廃止措置等に向けた研究開発計画について」(研究開発計画)を決定しました。また、これらの進捗管理を行う場として「運営会議」と「研究開発推進本部」が、2011年12月21日に設置され、原子力機構も構成員として参画しています。

研究開発計画は、使用済燃料プールからの燃料取り出しに係る研究開発、燃料デブリ取り出し準備に係る研究開発、放射性廃棄物処理・処分に係る研究開発、及び遠隔操作機器に係る技術開発に分類され、それぞれの研究計画が策定されています。2012年7月には、「中長期ロードマップ」、「研究開発計画」が一部改訂され、これに基づき、19の個別プロジェクトなどが進められています。

これらのプロジェクトをマネジメントするために、使用済燃料プール対策、燃料デブリ取り出し準備、放射性廃棄物処理・処分に係るワーキングチーム及び遠隔技術に関するタスクフォースが設置されています。

原子力機構では、事故の直後から、様々な面で福島での事故に係る活動を行ってきました。2011年5月6日には、鈴木篤之理事長を本部長とした「福島技術本部」を設置して、1F事故の収束に向けた取組み(復旧技術部)や環境修復に向けた取組み(企画調整部、福島環境安全



図 2 原子力機構における廃止措置等に向けた研究開発体制

原子力機構では、理事長を本部長とする「福島技術本部」を設置して、1F 事故の収束に向けた取組を「復旧技術部」及び各拠点の「福島技術開発特別チーム」を中心に、取り組んでいます。

センター）を行っています。

さらに原子力機構は、1F 事故対応活動を 2012 年度における経営上の最優先課題に掲げ、2012 年 4 月 1 日に原子力科学研究所（原科研）、核燃料サイクル工学研究所（核サ研）、及び大洗研究開発センター（大洗研）に、それぞれ福島技術開発特別チームを設置し、中長期ロードマップのプロジェクトに係る研究開発・技術開発のうち、燃料デブリの取り出し準備に係る研究開発や放射性廃棄物の処理・処分に係る研究開発を中心に、これまでに蓄積してきた知見と研究ポテンシャルを活用した研究開発を福島技術開発特別チームの下で一体的に実施しています。

また、1F サイト内の汚染状況の調査、汚染水、がれき試料等の採取、分析、輸送等を的確に実施するために、福島第二原子力発電所内に拠点を置く「現地対応グループ」を 2012 年 6 月 1 日に設置して現場対応力の向上も図りました。

2012 年 10 月 1 日には、原科研及び核サ研のホットラボ施設などの一部組織を改組して福島技術開発試験部を、大洗研でも同様に福島燃料材料試験部を設置し、各拠点においてより効果的な研究開発が展開できる体制を整えました。

原子力機構では、こうした体制のもと、福島技術開発特別チームを中心に、1F 廃止措置等に向けた研究開発を推進しています。原科研、核サ研、及び大洗研の福島技術開発特別チームは、それぞれの専門性と経験に基づいて、得意分野の研究開発・技術開発を実施するグループで構成されています。

原科研福島技術開発特別チームは、主に、原子力基礎

工学研究部門、安全研究センター等から、炉物理・炉工学、燃料・材料、分離、放射化学などの高い専門性を持つ約 80 名の研究員等で構成されています。

核サ研福島技術開発特別チームは、MOX 燃料の技術開発や使用済燃料の再処理など、研究室レベルの開発だけでなく、プラントレベルでの開発や運転を行ってきた実績を有する約 50 名のメンバーで構成されています。

大洗研福島技術開発特別チームは、高速増殖炉サイクルの研究開発、原子力用燃料・材料の照射試験研究、原子力による水素製造技術の研究開発などの分野から約 30 名のメンバーで構成されています。

各福島技術開発特別チームは、3 つの拠点に分かれて設置されていますが、テーマごとに、他拠点の関連グループや研究開発部門と連携、協力しながら、研究開発・技術開発に取り組んでいます。

本冊子は、1F 廃止措置技術に係る福島技術開発特別チームの研究開発について、計画・検討中のものやチャレンジングな取組みを含めて、短期間に実施した成果等を取りまとめたものです。この活動内容を広く皆様にご紹介することが編集の目的ですが、今後の研究開発活動を、より効率的・効果的なものとするため、皆様からのご批判、ご提案を賜ることができれば幸いです。

【引用文献】 [1] 原子力災害対策本部 政府・東京電力中長期対策会議 東京電力（株）福島第一原子力発電所 1～4 号機の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ、2012 年 7 月 30 日

## I. 燃料デブリの取出しに向けて

<b>1</b>	<b>原子炉の状況を知る</b>	
	—遠隔除染技術・内部調査技術・事故進展解析技術—	5
1-1	汚染の状況・性状を評価し除染方法を立案する(1)	
	—模擬の床材への汚染の浸透に関する基礎試験—	7
1-2	汚染の状況・性状を評価し除染方法を立案する(2)	
	—非放射性Csを使用した除染基礎試験—	9
1-3	原子炉の内部を覗き状況を把握する(1)	
	—研究炉の計測・検査技術を応用した内部調査技術開発—	11
1-4	原子炉の内部を覗き状況を把握する(2)	
	—炉内レーザーモニタリング・内部観察技術開発—	13
1-5	炉内で起きたことを実験・計算により評価する(1)	
	—燃料溶融や圧力容器破損等の推定に関する技術開発—	15
1-6	炉内で起きたことを実験・計算により評価する(2)	
	—海水と燃料の化学反応の評価—	17
1-7	炉内で起きたことを実験・計算により評価する(3)	
	—燃料損傷時の放射性物質放出及び圧力容器下部ヘッド破損挙動評価試験—	19
1-8	炉内で起きたことを実験・計算により評価する(4)	
	—燃料溶融開始時の放射性物質放出挙動評価試験—	21
<b>2</b>	<b>燃料デブリの取り出しとその後</b>	
	—燃料デブリ性状把握・取り出し工法・臨界防止・計量管理・処置技術—	23
2-1	燃料デブリとはどのようなものを理解する(1)	
	—燃料デブリ性状に係る既存の知見と推定—	25
2-2	燃料デブリとはどのようなものを理解する(2)	
	—模擬デブリと材料の反応生成物の性状—	27
2-3	燃料デブリとはどのようなものを理解する(3)	
	—燃料デブリの特性に及ぼす酸素分圧の影響—	29
2-4	燃料デブリとはどのようなものを理解する(4)	
	—(U, Pu, Zr)O <sub>2</sub> の融点測定—	31
2-5	燃料デブリとはどのようなものを理解する(5)	
	—燃料取出しに向けた燃料デブリ物性の検討—	33
2-6	原子炉から燃料デブリを取り出す	
	—燃料デブリ及び炉内構造物の切断技術に係る研究開発—	35
2-7	燃料デブリの再臨界を防ぐ	
	—溶融した燃料とコンクリートが混合した体系の臨界特性—	37
2-8	燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築(1)	
	—燃料デブリ中核物質の非破壊測定法の基礎技術開発—	39
2-9	燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築(2)	
	—小石状・切出し燃料デブリ中核物質の計量管理・非破壊測定法の基礎技術開発—	40
2-10	燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築(3)	
	—粒子状燃料デブリ中核物質の計量管理・非破壊測定法の基礎技術開発—	41
2-11	燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築(4)	
	—随伴FPガンマ線測定法による核物質定量性評価—	42
2-12	燃料デブリを取出した後どうすべきか(1)	
	—化学溶解と還元・塩素化技術の開発—	43
2-13	燃料デブリを取出した後どうすべきか(2)	
	—燃料デブリの処置シナリオの検討—	45
2-14	燃料デブリを取出した後どうすべきか(3)	
	—湿式処理技術の適用性検討—	47
2-15	燃料デブリを取出した後どうすべきか(4)	
	—溶融塩技術の適用性検討(溶融塩中ZrO <sub>2</sub> 化合物の還元挙動評価)—	49

# 1 原子炉の状況を知る

## —遠隔除染技術・内部調査技術・事故進展解析技術—

大洗研福島技術開発特別チーム 燃料材料特性解明グループ 逢坂正彦  
大洗研福島技術開発特別チーム 検知機器技術開発グループ 伊藤主税  
核サ研福島技術開発特別チーム 遠隔操作技術開発グループ 福嶋峰夫  
原科研福島技術開発特別チーム 炉内状況解析技術開発グループ 永瀬文久

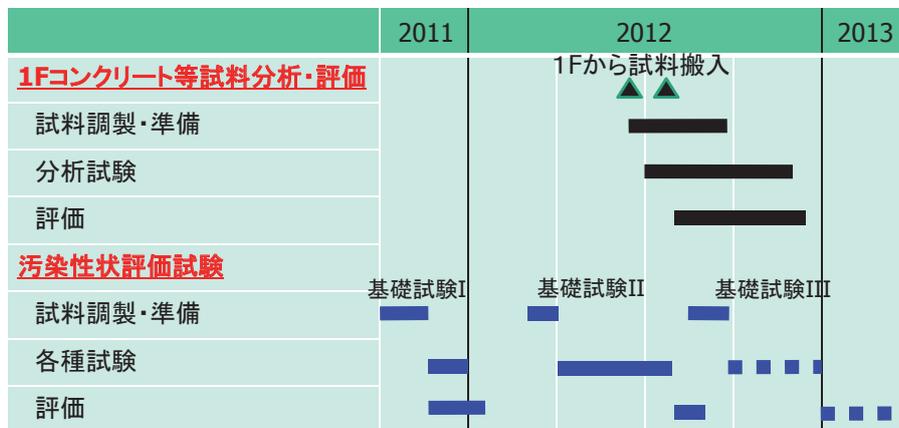


図1 原子力機構における汚染性状評価に係る試験実施スケジュール

大洗研究開発センターのホットラボを用いて、1～3号機原子炉建屋の壁・床面から採取したコンクリート等の試料を受け入れ、汚染状況の分析及び評価を実施中です。また、建屋床面を模擬した試料を用いた汚染状況の解明や浸透メカニズムを検討するための模擬試験を適宜実施中です。

東京電力(株)福島第一原子力発電所(1F)の1号機から3号機においては多くの燃料が溶融した可能性が高く、溶融した燃料(燃料デブリ)の一部は圧力容器を貫通し格納容器内に落下していると考えられますが、その状況は良く分かっていません。1F廃止措置に向けたロードマップにおいては、これら燃料デブリの取出しを20～25年後に完了する計画となっています。

原子炉建屋内は内部が放射性物質で高濃度に汚染されているため放射線量が高く、人が容易に内部に立入ることはできません。そこで、まずは原子炉建屋内の除染を遠隔操作で行って放射線量を下げ人が立入れられるようにした上で、遠隔操作により格納容器内部の燃料デブリ等の様子を観察し、それらの結果等を基にして燃料デブリの分布を含む炉内状況を推定することにより、燃料デブリの取出しを効率的かつ確実に行う必要があります。

### (1) 汚染の状況や性状を評価し除染方法を立案する

東京電力(株)、メーカー3社(東芝、日立GE、三菱重工)、ゼネコン及び原子力機構により建屋内の遠隔除染技術の開発プロジェクトが進められています。

事故で放出された放射性物質により建屋内部が汚染されているため、建屋内で作業を行う作業員の被ばくを低減するためには汚染された場所の除染が重要となります。特に、格納容器及び圧力容器内部等の調査を行うため、調査を行う場所まで人がアクセスするルートを除染することが喫緊の課題です。除染方法の選定にあたっては、性能、適用性、除染作業を行うことによって発生する二次廃棄物の発生量及び二次廃棄物処理に関わる課題等を総合的に評価する必要があります。これらの評価には建屋内の汚染状態(汚染の程度、広がり、核種等)を把握

するとともに、候補となる除染方法毎に除染性能等のデータを取得することが不可欠です。加えて、高放射線量かつ狭隘な環境の下で作業を行う必要があることから、ロボット等の遠隔操作型装置の開発が必要となり、格納容器内部調査のためのアクセスルートや周辺エリアをはじめとした場所での遠隔操作型装置の適用性を評価することも必要になります。

原子力機構は高放射性物質の取扱技術を有していることから、除染方法選定に必要な評価のうち、主に建屋内の汚染状態の把握(汚染調査)と除染性能データ取得(模擬汚染試験)に係る研究開発を行っています。これを受け、図1に示すスケジュールに従い、大洗研究開発センターのホットラボ(照射燃料集集体験施設及び照射燃料試験施設)を用いて、1～3号機原子炉建屋の壁・床面から採取したコンクリート等の試料を受け入れ、汚染状況の分析及び評価を実施中です。また、建屋床面を模擬した試料を用いて汚染状況の解明や浸透メカニズムを検討するための基礎試験を実施中です。これらの結果については適時プロジェクトに報告しており、除染技術の選定や遠隔除染装置設計等に活用されています。

### (2) 原子炉の内部を覗き状況を把握する

燃料デブリの取り出しに向けた格納容器・圧力容器内の燃料デブリや炉内の損傷・汚染機器の状況調査のためには、高線量、狭隘、水中又は高湿度の環境下で適用可能で、かつ、格納容器の外側から遠隔でアクセス可能な遠隔検知技術を開発する必要があります。

そのニーズに対し、これまで我々が基盤的な技術として開発を進めてきた研究開発の成果の融合と展開を図ることにより、ファイバースコープによる観察技術とレーザ

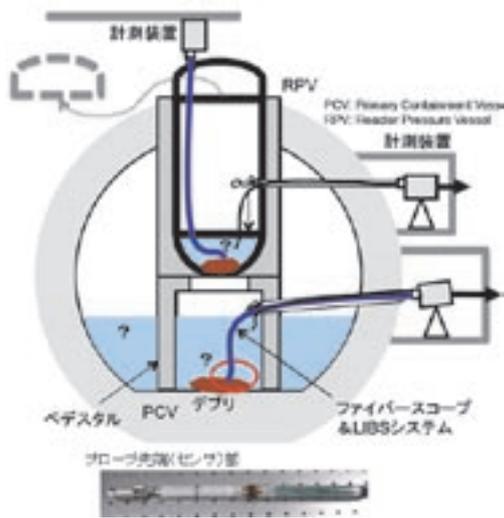


図 2 複合型光ファイバプローブシステム

ファイバースコープとレーザー分光による元素分析技術を組み合わせ、光ファイバの耐放射線性を高めたモニタリング装置を開発します。

一誘起ブレークダウン分光 (LIBS) による元素分析技術を組み合わせ、光ファイバの耐放射線性を向上させた複合型光ファイバプローブによる遠隔観察・分析技術 (図 2)、宇宙線ミュオンを用いた非破壊検査技術、JMTR の炉内照射試験で開発実績のある計測技術を活用した自己出力型ガンマ線検出器を開発する計画を立案し、2012 年度より研究開発に着手しました。

政府・東京電力中長期対策会議研究開発推進本部が策定した研究開発計画において、格納容器内部調査技術の開発については、調査装置等の技術を公開募集して「技術カタログ」が作成され、これに基づき、2012 年度中に事前調査装置開発、2013 年度には本格調査装置開発の開発を行うベンダー (メーカー) の公募が計画されています。また、圧力容器内部調査技術の開発は 2013 年度に開発計画を立案する計画で、その中で技術の調査が行われます。これより、本研究開発については、1~2 年間を目途に短期間で成果を示し、政府・東京電力が実施する「格納容器・格納容器内部調査技術の開発」に本研究開発の成果を反映させていきます。

### (3) 原子炉内で起こったことを実験や計算により評価する

燃料デブリの分布を含む炉内状況を推定するため、シビアアクシデント (SA) 解析コードの高度化をはじめとする技術開発が、政府・東京電力中長期対策会議の下に設置された研究開発推進本部を中心に行われています。SA に関する研究は、1979 年に起こった米国・スリーマイル島原子力発電所 2 号炉 (TMI-2) での事故の後広く行われました。しかし、一定の精度をもって SA を予測するためには関連する知見が十分ではありません。そこで、従来知見とそれらの 1F 事故評価への応用性、最近の解析及び実験技術の進歩を考慮し、冷却材である水や熱の事故時の流れ (熱水力挙動)、燃料損傷及び溶融進展、圧力容器下部ヘッド破損、解析コードを用いた事故の解

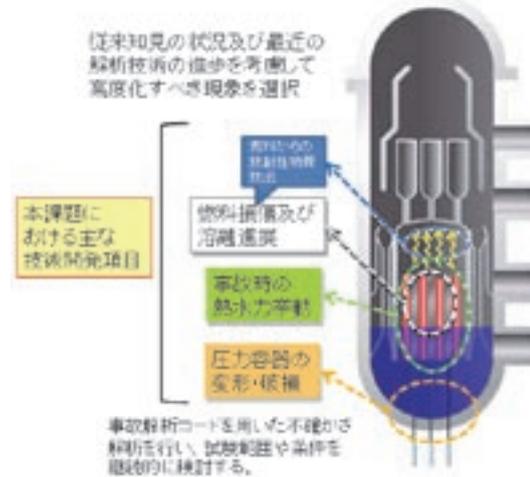


図 3 原子炉機構における事故進展解析技術の高度化による炉内状況の把握に係る研究開発項目

原子炉機構では、SA 模擬試験等として、事故時の熱水力挙動、燃料損傷及び溶融進展、圧力容器下部ヘッド破損挙動並びに解析コードを用いた事故の解析に係る研究開発を行っています。

析について研究開発を行っています。図 3 に政府・東電プロジェクト「事故進展解析技術の高度化による炉内状況の把握」についての研究開発項目を示しますが、原子炉機構では主に以下に示す四つの研究開発を実施しています。

事故時の熱水力挙動に関する研究開発においては、1F タイプの原子炉 (沸騰水型軽水炉: BWR) を模擬した装置等を製作し、事故時の炉内温度分布や溶融した燃料の落下の様子、落下した燃料の冷却性に関するデータの取得、またこれらを精度良く評価するための解析手法の整備を進めています。さらに、圧力容器から高温のガスが格納容器に噴出した時の格納容器内の温度分布や、格納容器からの放射性物質を含むエアロゾルの移行挙動などの知見を取得します。

燃料損傷及び溶融進展に関する研究開発においては、燃料棒及び燃料集合体の損傷や溶融において重要な現象に関する基礎試験及び解析モデル作成、研究炉等を用いた燃料溶融試験、放射性物質の放出挙動を調べるためのホットラボを利用した燃料加熱試験等を行っています。

圧力容器の変形・破損に関する研究開発においては、炉心から落下した溶融した燃料が圧力容器下部ヘッドのどの部分を貫通しているのか、いつ貫通したのかを把握するために、計算機によるシミュレーションと構造物試験を行います。

解析コードを用いた事故の解析においては、1F での事故進展を明らかにすること、上に述べた模擬実験等の課題抽出や試験条件の選定に反映すること、さらに事故進展評価解析コードの改良に役立てることを目的としています。このため、事故解析に基づいた 1F の調査・分析、SA 進展解析コードの整備、事故進展や環境への影響において最も重要な現象の抽出と不確かさの評価、SA 時における炉心溶融進展と放射性物質挙動の評価等を行っています。

# 1-1 汚染の状況・性状を評価し除染方法を立案する(1)

## —模擬の床材への汚染の浸透に関する基礎試験—

大洗研究開発センター 福島燃料材料試験部 燃料試験課 佐藤勇

1Fの廃炉に向けて、原子炉格納容器内部調査や補修等、炉心の燃料デブリ取出し準備に向けた研究開発及び作業が行われています。これらの作業のためには原子炉建屋内に作業員が立ち入る必要がありますが、建屋内の放射線量が高いため遠隔操作による除染が必要であり、遠隔除染技術の開発は緊急かつ重要な課題となっています。除染技術の開発においては、汚染部位に応じた適切な技術を選定する必要があり、汚染源となる放射性核種組成、汚染の量、汚染の浸透状況等の汚染性状を評価する必要があります。汚染性状を評価するためには、基本的な除染技術を有することに加えて、様々な試料に対する分析が必要となることから、放射性物質の取扱技術が必須です。

### (1) 実施内容

原子力機構大洗研究開発センターの照射後試験施設では、照射済燃料を用いて長年各種の試験を実施してきていることから、高度な放射性物質の取扱技術を有しています。また、施設管理を通じて基本的な除染技術を培ってきました。これらの施設と技術を活用して、1F建屋内からサンプルリングした試料の分析や、放射性物質を用いた基礎的な試験による汚染性状評価に関する研究を行っています。

上述した基礎的な試験研究の一環として、1F建屋内で発生した事象を想定し、建屋内の床、壁等の各部位における汚染を模擬した試料に対して、放射能測定等の各種分析を行うことにより、汚染性状を評価するための基礎試験を実施中です。これらの評価結果は、東京電力(株)とメーカー3社(東芝、日立GE、三菱重工)が主体で進めている「建屋内の遠隔除染技術の開発」プロジェクトにおける遠隔除染装置の設計や除染条件設定のための基礎データとして役立てられています。本稿では、汚染の床

材等への浸透の様子を調べた試験をご紹介します。

### (2) 実験方法

床材・壁材に浸透させるための模擬的な汚染源を含む溶液として、原子炉で燃焼させた燃料の硝酸による溶解、UとPuの除去、液性の調整等により、放射性のCs、Eu、Am等を含む模擬の汚染水を調製しました。

模擬の汚染水を浸透させるための試料として、図1に示すように、床面塗装用エポキシ系塗料を模擬したエポキシ樹脂と劣化コンクリートを用意し、固定用樹脂でアクリル管の中に固定しました。

このようにして調製した試料に対して、図2に示すよ

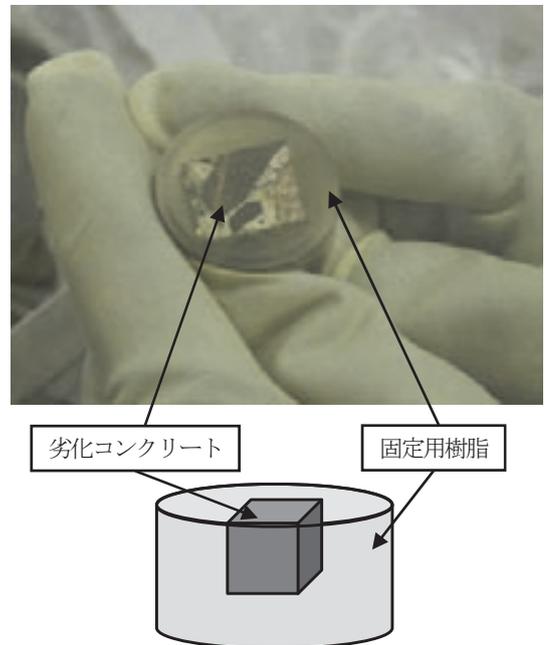


図1 汚染の浸透に関する基礎試験に供した試料  
均一に汚染を浸透させるため、床材・壁材を模擬した試料を樹脂に固定して表面を研磨しました。

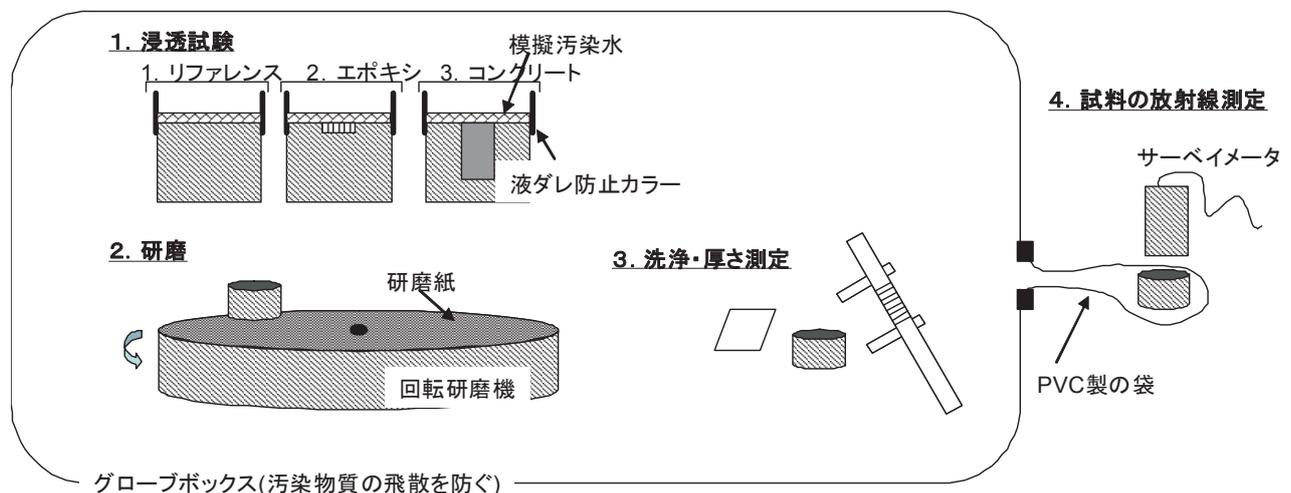


図2 汚染の浸透に関する試験の手順

模擬汚染水を浸透させ、浸透面の放射線量率を電離箱で測定しました。浸透の度合いを測定するため、0.1~0.3 mmの表面研磨、放射線量率の測定、汚染箇所を映像化するイメージングプレートによる測定を繰り返しました。

うに模擬の汚染水をそれぞれ3日、16日及び58日間浸透させ、乾燥後の浸透面の放射線量率を電離箱で測定しました。浸透の度合いを測定するため、0.1~0.3 mmの表面研磨、放射線量率の測定、汚染箇所を映像化するイメージングプレートによる測定を繰り返しました。また、表面研磨粉の $\gamma$ 線スペクトロメトリ測定により、浸透した汚染の核種分析を行いました。

### (3) 実験結果

本試験に関して、これまでに以下のような結果が得られています。

- 劣化コンクリート試料においては、浸透期間58日間の場合、浸透深さ1mmにおいて放射線量率は表面の約100分の1となりました(図3(a))。
- エポキシ樹脂の場合、58日間の浸透期間経過後において、汚染は表面のみで検出され、浸透は最大でも0.3mm以下であることが分かりました(図3(b))。
- 汚染は、粗骨材部(コンクリート中の石等)より

もモルタル部(セメントと砂等の細骨材)に多く浸透していることが分かりました(図4)。

- 研磨粉の $\gamma$ 線スペクトロメトリ測定の結果、Eu、Am等の核種についてもCsと同様の浸透度合いであることが分かりました。

汚染の浸透に関しては、床材・壁材の種類、経年劣化、経験した事故事象、さらには汚染水の接触状況や時間等により様相が大きく異なることが予想されます。汚染性状評価、並びに各種汚染性状に適した除染技術提言のための基礎データ提供に向けて、試験条件の拡大・最適化等を行っていく予定です。

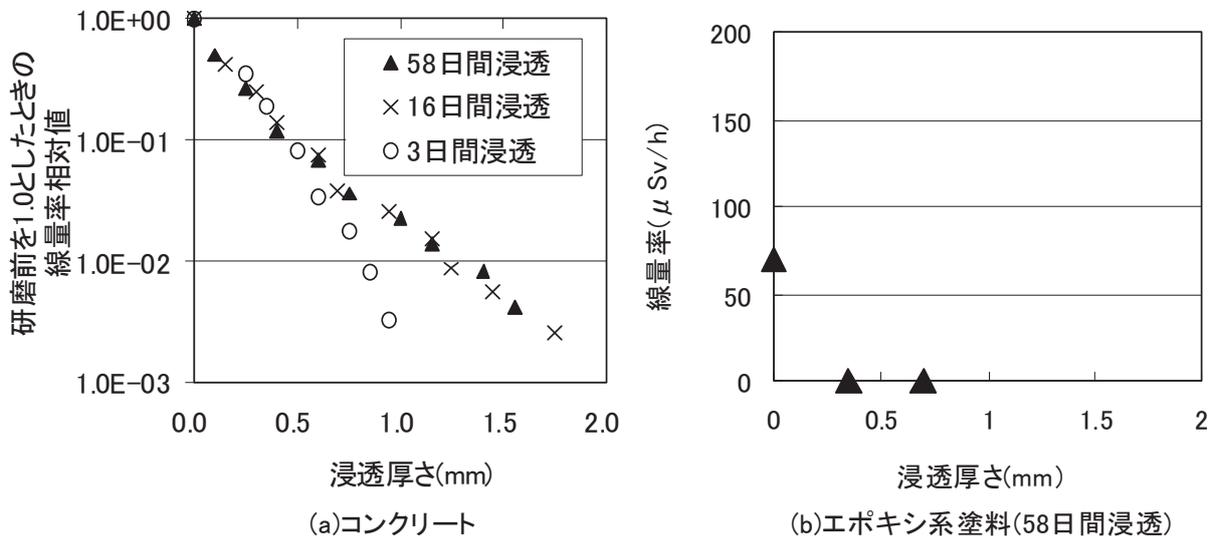
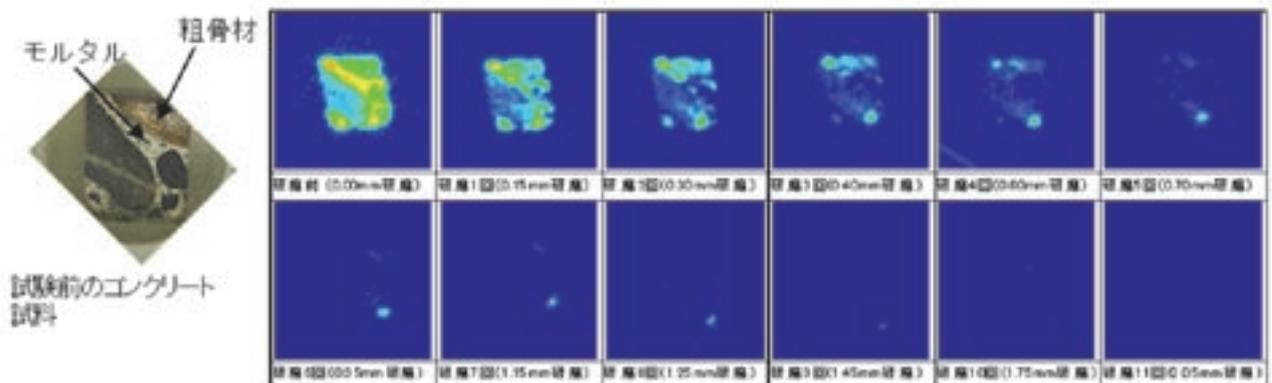


図3 汚染の浸透の様子

- (a) 劣化コンクリート試料においては、浸透深さに対して対数的に放射線量率が低下しました。  
 (b) エポキシ樹脂においては、汚染は表面のみで検出されました。



青→水色→緑→黄→赤の順番で放射線量率が高いことを示しています。モルタル部(細骨材+セメント)における放射線量率は、粗骨材部より高くなる傾向が観察されました。

《参考文献》 ・ 白杵 俊之他、「福島第一原子力発電所原子炉建屋床面を想定した除染試験 (2)模擬汚染水の床材・壁材に対する浸透挙動評価」,日本原子力学会 2012年秋の大会 D05

# 1-2 汚染の状況・性状を評価し除染方法を立案する(2)

## —非放射性 Cs を使用した除染基礎試験—

核サ研福島技術開発特別チーム 遠隔操作技術開発グループ 金山文彦、福嶋峰夫  
大洗研究開発センター福島燃料材料試験部 佐藤勇、林長宏  
福島技術本部 復旧技術部 川妻伸二



図 1 JAEA-2号

高圧洗浄機による除染が可能な遠隔操作ロボット。電子部品を極力少なくし、耐放射線性を向上。スプレーガンをブラシに換装し、ブラッシングによる除染も可  
重量:約35kg

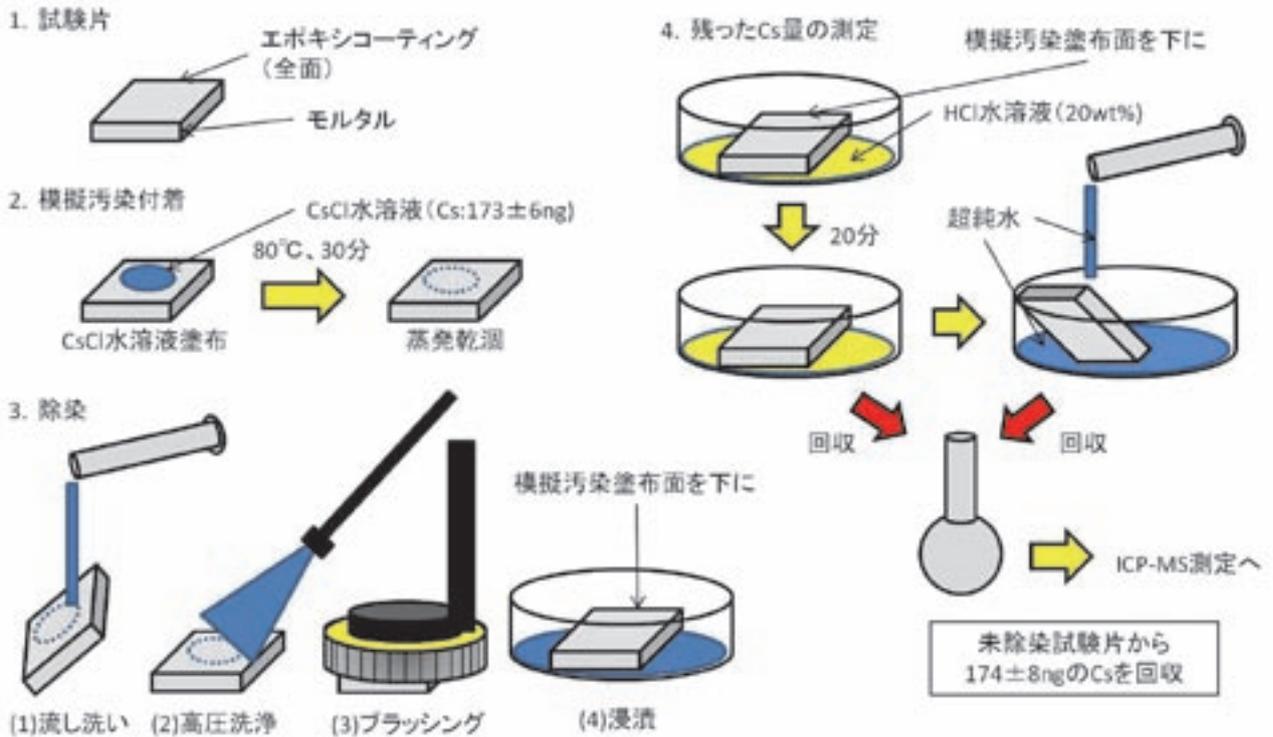


図 2 除染試験手順

1. モルタル片に全面エポキシ塗装を施した試験片を使用。
2. CsCl 水溶液を試験片上に塗布し、乾涸させることによって、試験片に CsCl を付着。
3. 各種除染の実施。
4. 試験片を塩酸に浸漬し、Cs を溶出させ、塩酸を回収。試験片とシャーレを超純水で洗浄し、超純水を回収。回収した溶液を ICP-MS で測定

原子炉建屋内は、主として放射性物質の Cs によって汚染され、放射線量が高い環境になっており、今後の作業のため放射線量の低減が課題となっています。放射線量の低減策には遮へいと放射線源を除去する除染の方法がありますが、ここでは原子炉建屋内床面を想定した適切な除染方法を検討するため、非放射性 Cs を使用した湿式除染試験を行いました。

原子力機構は高圧洗浄機を搭載した屋内除染作業用遠隔ロボット JAEA-2 号 (図 1) による遠隔除染を提案しており、この高圧洗浄機による床面等への除染効果を確認

する模擬試験を行いました。また、後処理が比較的容易な除染剤を使用し、除染効果を確認する模擬試験を行いました。

以下に試験の概要を記します。

### (1) 汚染の想定

除染試験を行う前に、汚染経緯を想定し、原子炉建屋内の汚染形態・汚染レベルについて検討しました。

まず炉心溶融が進行することにより、揮発した Cs が燃料より放出され、水蒸気や水素と共に压力容器から Cs

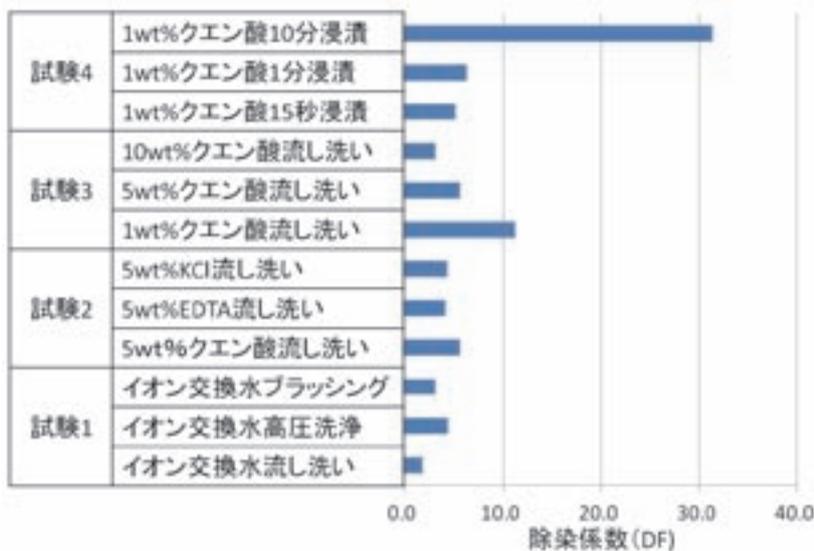


図 3 各除染法における DF

- 試験1: 流し洗いに比べ、高圧洗浄、ブラッシングによる DF 大。
- 試験2: イオン交換水に比べ、除染剤による DF 大。クエン酸による DF が比較的大。
- 試験3: 最も濃度の低いクエン酸で DF が大。
- 試験4: 浸漬時間を十分にとることによって DF が大。

が漏えいし、原子炉建屋内に拡散したと想定しました。

拡散した Cs が水蒸気や炉心冷却のために放水された水（海水等）に溶解し、水溶液が乾燥して CsCl 等の塩の状態ですべて表面に付着した汚染形態を想定しました。また、Cs が収着したコンクリート粉塵（水素爆発による）が床表面に堆積した汚染形態や、コンクリートへの Cs の浸透による汚染形態も想定しました。なお本試験では、湿式除染による除染効果を確認するため、特に Cs の表面付着の除染効果に着目した除染試験を行いました。Cs の付着量については床表面が均一に Cs-137 で汚染していると仮定し、1F-3 号機原子炉建屋内線量率（数十 mSv/h）をもとに、点減衰核コード QAD-CGGP2 を用い、Cs-137 の汚染密度を  $1.25 \times 10^5 \text{Bq/cm}^2$  と推定しました。

計算により求めた Cs-137 の汚染密度と Cs-137 の半減期より、原子炉建屋内床面の Cs 密度を  $2.84 \times 10^{-10} \text{mol/cm}^2$  と推定しました。

## (2) 試験及び結果

除染試験概要を図 2 に示します。原子炉建屋内は床面及び高さ 1.5m までの壁面はエポキシ系塗料により塗装されています。そのため、模擬試験片は原子炉建屋床面に使用されているエポキシ塗料をコンクリート片に塗布して調製しました。

模擬汚染として、非放射性 CsCl 溶液 ( $0.22 \mu\text{g/ml}$ ) を試験片上に滴定・塗布、乾燥させ模擬汚染試験片を調整しました。

試験片に対して、以下の 4 項目の試験を行いました。

- 試験1: 湿式除染方法（高圧洗浄、ブラッシング除染、流し洗い）影響確認試験
- 試験2: 除染剤（KCl 溶液、EDTA 溶液、クエン酸溶液）影響確認試験
- 試験3: 除染剤（クエン酸）の濃度影響確認試験
- 試験4: 除染剤（クエン酸）への浸漬時間影響確認試験

除染後の残存 Cs 量の測定は、試験片に残った Cs を 20wt%HCl で溶解して回収し、ICP-MS 分析により行いました。除染係数 (DF) は初期付着 Cs 量と試験片に残った Cs 量の比から求めました。

各除染方法における DF を図 3 に示します。高圧洗浄機による除染を行うことで、流し洗いに比べより大きな DF が得られました。除染剤を使用することにより、イオン交換水に比べ数倍大きな DF が得られました。その中でもクエン酸による DF が最も大きかったため、以降の試験では、クエン酸を使用しました。除染剤濃度については、当初除染剤の濃度と共に DF が増加すると予想しましたが、薄い濃度のものでも効果があることが分かりました。このことより、除染に適したクエン酸濃度があると思われる。浸漬時間については十分に時間を置くことで大きな DF が得られることが分かりました。

本試験により、湿式除染がエポキシ塗装面の Cs 表面付着に対して効果があることを確認できました。このことより JAEA-2 号に搭載されている高圧洗浄機で除染剤を散布し、適当な接触時間を置いた後、溶液を回収・除去することで、除染効果が期待できます。

本試験では汚染源を Cs と想定し、表面に付着している Cs 量を建屋内の線量率より推定して試験を行い、DF を求めましたが、一般に DF は汚染の初期付着量により大きく異なります。適切な除染方法を見出すためには、今後の現地調査において、汚染核種の分析及び Cs の表面付着量を正しく把握する必要があります。

これらの試験で得られた結果・知見については、国の研究開発推進本部下部プロジェクトである「建屋内の遠隔除染技術の開発」において報告しました。

《参考文献》 ・ 金山文彦、林長宏、佐藤勇、川妻伸二、福嶋峰夫、福島第一原子力発電所原子炉建屋床面を想定した除染試験(1) 非放射性 Cs を使用した除染基礎試験、日本原子力学会「2012 秋の年会」、(2012)

《引用文献》 [1] 東京電力、福島第一原子力発電所 3 号機原子炉建屋内の線量調査結果、記者会見配布資料 (2011-6-10)

# 1-3 原子炉の内部を覗き状況を把握する(1)

## —研究炉の計測・検査技術に応用した内部調査技術開発—

大洗研福島技術開発特別チーム 検知機器技術開発グループ 伊藤主税、高松邦吉  
大洗研究開発センター 照射試験炉センター 照射試験開発課 土谷邦彦



図 1 HTTRに設置したマルチ受光システム

副検出器の数を多くすることにより、計測方向数が増え、計測時間の短縮化が可能となります。

原子力機構大洗研究開発センターには、照射試験用の軽水炉である JMTR、ナトリウム冷却型の高速度炉である「常陽」、高温ガス炉である HTTR という炉型の異なる 3 基の試験研究炉があり、それぞれの炉において、炉内の計測・検査技術の研究開発実績を有しています。JMTR では、照射試験技術の開発を通じて、炉内放射線量率をはじめとした様々な炉内計装技術を開発してきました。「常陽」では、蓋を解放できない高速炉の原子炉容器内を観察するため、ファイバースコープの耐放射線性向上や炉内アクセス装置開発等の実績を有します。HTTR では、原子炉出口温度で 950°C もの高温となる炉内に装置を挿入せずに外部から観察する方法を検討し、宇宙線ミュオンを用いたトモグラフィによる非破壊検査技術の開発を進めてきました。これらの炉内観察技術を 1F 各号機の原子炉格納容器・圧力容器の内部調査に応用展開するための研究開発計画を立案し、2012 年から着手しました。

### (1) ミュオンを用いた非破壊検査技術の開発

宇宙線ミュオンを利用して、原子炉建屋外から燃料デブリの位置、状況を把握する革新的な非破壊検査技術を開発します。具体的には、HTTR に既存のマルチ受光システム (図 1) を設置して、内部構造の可視化予備試験を実施します。また、マルチ受光システムで得られるデータの解析モデルを作成し、可視化予備試験結果の解析を行います。最後に、可視化予備試験及び解析結果に基づき、1F の原子炉格納容器・圧力容器の内部調査 (図 2) に対する本非破壊検査手法の適用性を評価します。

上記の目標を達成するため、次に示す技術を開発しています。技術 1: 計測時間の短縮化 (3 ヶ月程度→1 週間程度まで短縮) を図ります。技術 2: 分解能の向上 (1m 単位→20cm 単位へ) の技術開発を行い、三次元・マルチ受光システム技術を確立します。技術 3: 受光画像とファイバースコープ等によるカメラ画像を連成させて、三次元

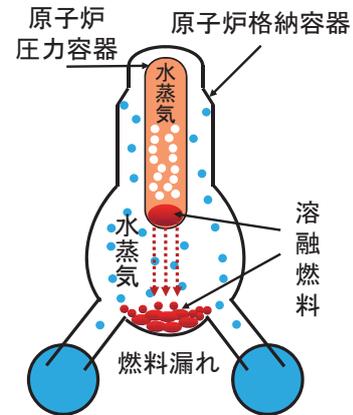


図 2 1F の炉心損傷予想図

宇宙線ミュオンにより溶融燃料の位置を特定し、その後、ロボットによる詳細測定を実施します。

のコンピュータ支援設計による図面化技術を確立し、両者を合わせて、燃料デブリの位置、状況の把握を可能とします。現地にて活用できるオンライン・モニタリングシステムを完成させます。

### (2) 自己出力型 $\gamma$ 線検出器の開発

試験研究炉を用いた照射試験では、燃料・材料は、照射温度、中性子照射量、照射環境等をパラメータにした多様な条件で照射されます。近年、中性子線のみならず材料への  $\gamma$  線照射効果に対する影響について注目が集まっています。このため、 $\gamma$  線による構造材料の照射効果に対する影響を調べるために、高い中性子環境下 ( $\phi_n: 10^{18} \text{ n/m}^2/\text{s}$ ,  $\phi_{th}: 10^{18} \text{ n/m}^2/\text{s}$ ) における  $\gamma$  線量率 ( $10^6 \text{ Gy/h}$  以上) を測定できる自己出力型  $\gamma$  線検出器 (SPGD) の開発を行ってきました。この技術に応用して、1F で長期に精度良く  $\gamma$  線を検出できる SPGD の開発に着手しました。試作した SPGD の構造図を図 3 に示します。

試作においては、エミッタ材は中性子放射化断面積が小さく原子番号の大きな材質に着目して、鉛 (Pb) を選定し、選定したエミッタ材と無機絶縁 (MI) ケーブル芯線との接合性の検討を行い、最適な接合方法を決定しました。次に、この SPGD をコバルト (Co) 照射施設に持ち込み、 $\gamma$  線量率に対する出力校正試験を行いました。試作した SPGD の校正曲線を図 4 に示します。この結果、 $10^2 \text{ Gy/h}$  以上の範囲で測定可能、かつ  $\gamma$  線量率に対する出力値のリニアリティを明らかにしました。また、 $\gamma$  線量率  $10^4 \text{ Gy/h}$  時の出力値がおよそ  $10^{-10} \text{ A}$  であることを明らかにしました。本結果を踏まえて、より低い  $\gamma$  線量率 ( $10 \text{ Gy/h}$ ) での測定を可能とするために、エミッタの長さ、直径などを変更させた SPGD を製作し、Co 照射施設にて出力校正試験を行い、1F で使用可能な SPGD の最適化を進めていきます。

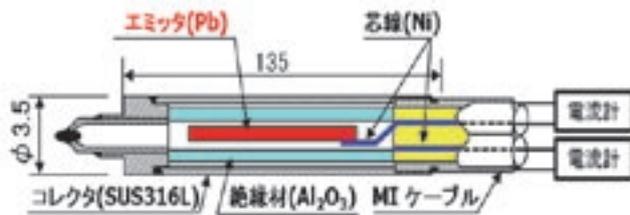


図 3 SPGD の構造図

γ線が照射された際にエミッタとコレクタの間に発生するコンプトン電子による微弱な電流を計測することでγ線量が得られます。

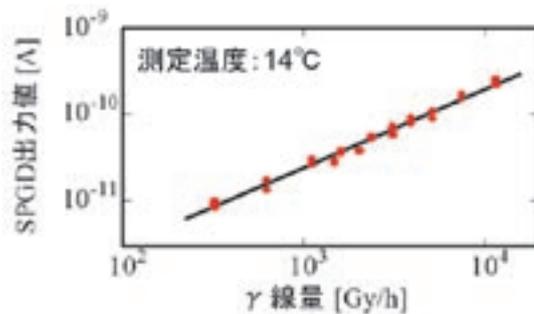


図 4 SPGD の出力校正試験結果

アラニン線量計で見積もったγ線量率と SPGD 出力電流値との関係をプロットしたところ両者は線形の関係にあることがわかりました。

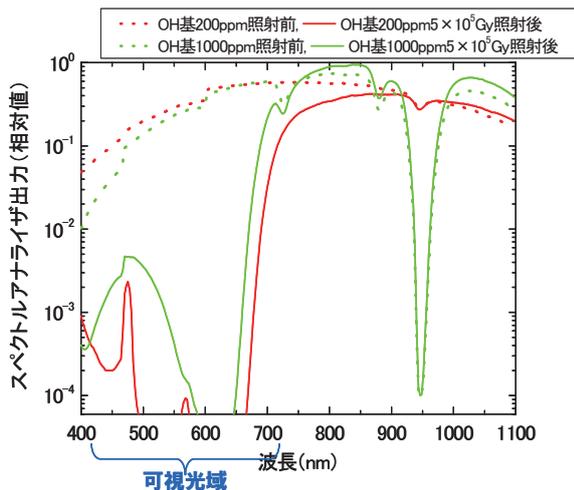


図 5 光ファイバ透過光量の波長依存性

OH 基含有量が多いと、945nm に OH 基の吸収ピークがみられますが、近赤外領域 (700~1100nm) は照射後も透過光量は低下しません。可視光領域は 630nm のピーク、紫外領域の吸収ピークの裾部により透過光量が低下します。

### (3) 光ファイバの耐放射線向上

光ファイバは片端に入った光を他端へ伝送するもので、信号を伝送する単芯ファイバのほか、多数本のファイバを束ね溶融一体化したイメージファイバにより画像の伝送も可能なため、遠隔操作が求められる格納容器・圧力容器の内部観察や燃料デブリの性状把握において有用な技術となります。光ファイバは放射線を浴びると、ガラス中に生成した欠陥に特定の波長の光が吸収され、透過光量が低下するため、高放射線下の使用では耐放射線性が求められます。これまでに実施した「常陽」の炉内観察のための耐放射線光ファイバの技術開発により、純粋石英コアファイバでヒドロキシ基 (OH 基) を 1000 ppm と多く含有させることで、可視光領域の伝送損失増加を抑制し、耐放射線性が向上することがわかっています。この技術を利用し、OH 基含有量を高めた光ファイバを用いた格納容器・圧力容器の遠隔検知技術の開発を目指します (イメージファイバによる観察及びレーザー伝送ファイバによるレーザー分光分析)。耐放射線性能は  $10^4$  Gy/h で一日以上の使用に耐えることを目標とします。また、近赤外領域は、特有の吸収ピークがほとんどなく、放射線による損失増加がほとんどないことが知られており (図 5)、近赤外域のイメージング性能についても検討

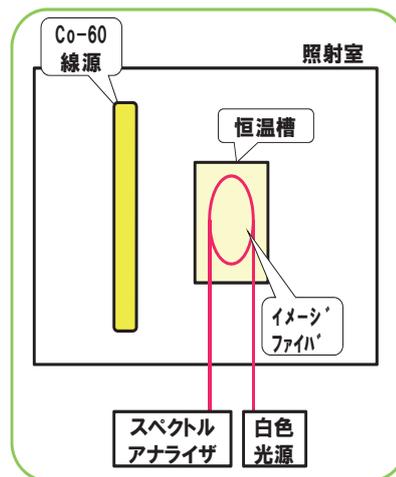


図 6 γ線照射試験の概要

Co-60 の γ線を照射します。ファイバ両端は照射室外でスペクトルアナライザ及び白色光源に接続し、照射中にオンラインで測定します。

します。

今後、イメージファイバ及びレーザー伝送用ファイバを試作し、γ線照射試験 (図 6) を実施してその耐放射線性 (限界性能) を評価します。

原子炉格納容器及び圧力容器内部の燃料デブリの位置分布や機器等の損傷の状況を把握するための調査に必要なセンシング技術について、大洗研究開発センターの各研究炉で培われてきた技術を応用展開した技術を提案し、適用性を評価するための研究開発に着手しました。燃料デブリ取り出し準備に係る工程の初期に位置する原子炉格納容器内部の予備調査は 2013 年にも予定され、本研究開発は迅速さが求められるテーマです。本研究開発では、早期に試験データを得て適用性を評価し、実用化像を示して、政府と東京電力が実施する研究開発へ当該技術を提案していきます。

# 1-4 原子炉の内部を覗き状況を把握する(2)

## —炉内レーザーモニタリング・内部観察技術開発—

大洗研福島技術開発特別チーム 検知機器技術開発グループ 伊藤主税、上地優  
量子ビーム応用研究部門 光子融合研究グループ 西村昭彦  
量子ビーム応用研究部門 レーザー量子制御研究グループ 大場弘則  
原子力基礎工学研究部門 遠隔・分光分析研究グループ 若井田育夫

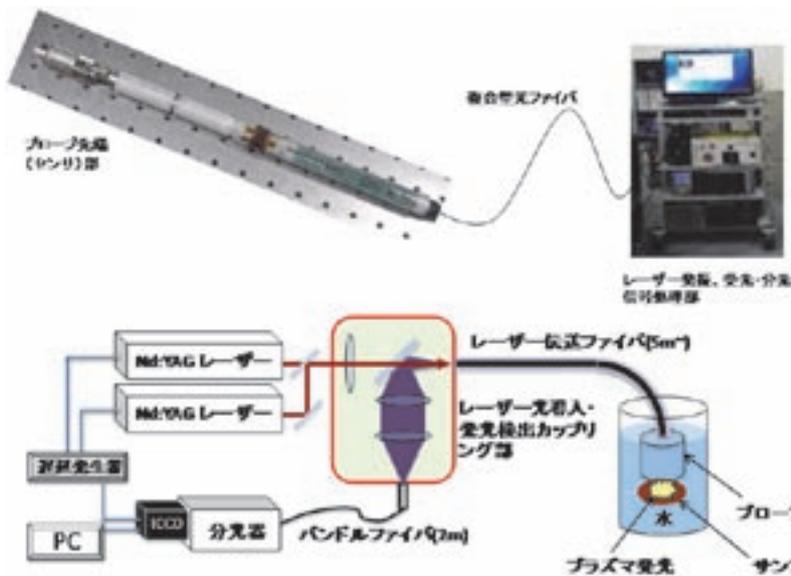


図1 複合型光ファイバプローブシステムの概念

耐放射線性(>10<sup>4</sup>Gy/h で 1 日以上)、耐水性(水中使用)、センサ先端から 1m 先の空間分解能 1mm、パルスレーザー照射による組成の概略評価ができることを目標とします。

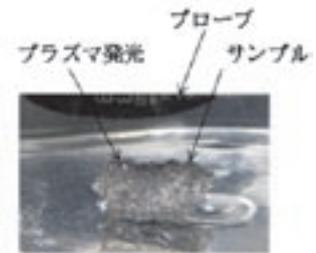


図2 試作したダブルパルスレーザー照射ファイバ LIBS システム

照射レーザーのダブルパルス化の採用により、水中に気相を形成して水中での LIBS の実現を目指します。

図3 水中でのサンプル状況

発光部は極めて小さく、水中 LIBS 実現のための技術開発が重要です。

複合型光ファイバスコープは、観察した映像の中心部分にレーザー光を照射できるファイバスコープです。原子力機構では、この複合型光ファイバスコープ技術を開発し、患部へのレーザー加熱による治療が可能なシステム(特許第 4521528 号)や高速増殖炉の伝熱管の内壁を観察して欠陥部を溶接補修する装置(2007~2009 年度文部科学省原子力システム研究開発事業、ICONE19-43948(2011))への応用展開を図ってきました。

今回、1F の原子炉格納容器・压力容器内部調査に適用可能な技術の提案を目的として、複合型ファイバスコープにレーザーを用いた元素分析をカップリングさせた複合型光ファイバプローブシステムを開発します。加えて、得られた映像から压力容器内、格納容器内の情報を三次元的に復元し、さらに、プローブの位置をも特定し、内部調査技術の高度化に資するソフトウェアも開発いたします。

### (1) 複合型光ファイバプローブシステム

複合型光ファイバプローブシステムには、従来開発してきた複合型光ファイバスコープを大きく超える性能が要求されます。具体的には、本技術開発において、1) パルスレーザーと光ファイバを用いた遠隔分光を実現し、ファイバスコープとカップリングする、2) プローブ先端(センサ部)部を小型化し、耐熱性、耐放射線性、耐水性を持たせる、3) 光ファイバを耐放射線性仕様にする、などの新たな課題に挑戦します(図 1)。

高放射線環境である格納容器、压力容器内部を貫通し、

光信号を確実に伝送する役割を担う光ファイバを耐放射線性仕様にすることは最重要課題の一つです。ここでは、純粋石英コア光ファイバにヒドロキシ基(OH基)を 1000 ppm まで含有させることにより光ファイバの構造欠陥を修復して放射線による透明度低下を抑制する技術を導入し、10<sup>4</sup> Gy/h 以上の高線量環境下で 1 日間以上連続使用できる性能を目指します

### (2) レーザー誘起ブレイクダウン分光による元素分析

レーザー誘起ブレイクダウン分光(LIBS)は、レーザー光を測定対象物に集光照射してプラズマを生成させてその発光スペクトルから対象物の成分を調べることができるので、原子炉格納容器・压力容器内高放射線量環境等人の近づけない場所で物質の成分を調べる「遠隔・その場分析」手段として有効です。

燃料デブリは水により冷却されていることから、水中で燃料デブリ等の性状を調べる必要があります。水中の固体を対象とした LIBS では、単一パルスレーザー照射した場合、生成プラズマ発光が短寿命であり十分な発光強度が得られず、また、プラズマと水分子との衝突によるスペクトルの広がりが大きく、化合物を測定対象とした場合に元素の同定が困難です。

上記の問題を解決する方法として、測定対象部近傍でのガスバージや照射レーザーのダブルパルス化があります。今回、我々は図 2 に示すようなダブルパルス照射するファイバ伝送 LIBS システムを試作し、予備試験を行いました。最初のレーザーパルスで水中の固体をアブレ

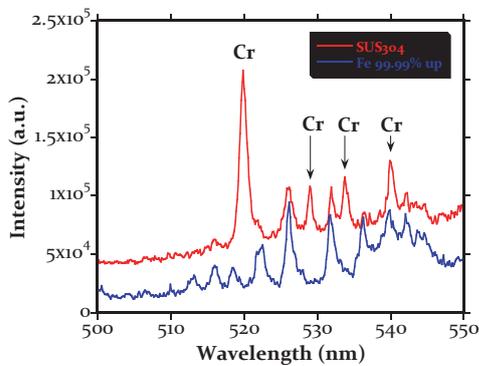


図 4 水中でのステンレス鋼と純鉄の LIBS 発光スペクトル観測例

Cr の発光スペクトルピークの有無を観測するにより、ステンレス鋼と純鉄を分別できます。

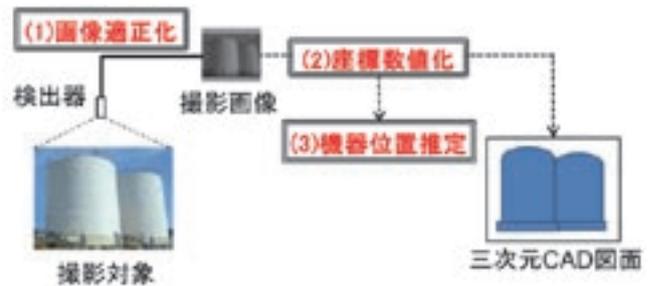


図 5 三次元図面作成フロー

開発内容を(1)画像適正化、(2)座標数値化、(3)機器位置推定に分類し、それぞれ開発を実施します。

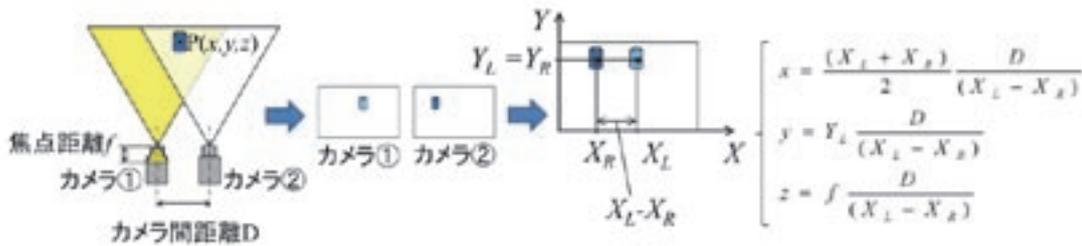


図 6 両眼視による三次元座標取得の原理(岡田ら, 高知工科大学紀要 2(1) 143-148 (2005))

炉内の過酷環境適用のため、シンプルな両眼視による座標取得を採用しました。

ーションさせると瞬間的に水中で気相が形成されるので、その瞬間を狙って次のレーザーパルスを照射すると、水中で大気中と同様の条件を作ることができると考えられます。これにより水中での LIBS が可能となります。本システムでは、2つのレーザー光を結合させて同軸集光しファイバに導入した後リレーレンズを介して水中の固体に集光照射しました。図 3 は水中での発光状況を示しており、大気中での発光に比べて発光部は極めて小さいです。固体からの発光はレーザー光集光系、レーザー伝送ファイバを通してカップリング部で発光検出光学系に分けて分光器に導いて時間分解分光計測します。

図 4 は水中でステンレス鋼(SUS304)、純鉄(>99.99%)の LIBS を行って得た発光スペクトルの例です。照射条件は、各レーザーのエネルギーは 5 mJ/pulse、パルス照射間隔は 20 μs, 1 Hz の繰り返し、分光システム測光条件は、測光時間幅 100 ns、レーザー照射からの測光開始時刻 150 ns で、10 ショット積算しました。SUS304 ではクロム (Cr) が 18%前後含まれており、この発光スペクトルピークの有無で鉄との分別が可能であることがわかりました。

燃料デブリは(U, Zr)O<sub>2</sub> やステンレス鋼との混合物であると推定されています。今後水中の酸化物の発光スペクトルの観測を行い、スペクトル出現特性を調べて燃料デブリ等の性状調査への本システムの適用可能性を評価します。

### (3) 三次元図面作成技術の開発

本技術開発では、複合型光ファイバプローブシステム

で取得した画像を元に三次元図面を作成する技術を開発することで、上記システムの内部状況の可視化・把握を高度化するとともに、画像による機器の位置推定手法を開発し、観察システムの高機能化を図ります(図 5)。

まず、観察対象の形状を適切にとらえるためには、ある程度の距離を保持し対象を一視野に収める必要があります。しかし、ファイバスコープ取得画像は低解像度となるため、分解能の低下が課題です。そこで、画像処理による高解像化を施し画像を適正化する手法を検討しプログラムに組み込むことにより解決を図ります。

次に、炉内では、高線量等の環境条件からシンプルな機器構成が必須です。そのため、両眼視による画像取得を採用し(図 6)、それぞれの 2 画像から各点における三次元座標を推定するプログラムを開発・作成します。

また、炉心が溶融した炉内では、既知のランドマークによる位置の同定は困難です。そこで、前述の三次元座標推定プログラムで取得した点群座標からデータベースを構築し、それをを用いた位置推定手法を開発します。

本技術開発は、他の格納容器・圧力容器内部調査技術開発と同様に、2013 年に格納容器内部の予備調査、その後本格調査装置の開発というオンサイトの進展に呼応してスピード感を持って進めており、燃料デブリ取出し準備のキーとなる格納容器・圧力容器内部調査に貢献していきます。

# 1-5 炉内で起きたことを実験・計算により評価する(1)

## —燃料溶融や圧力容器破損等の推定に関する技術開発—

原科研福島技術開発特別チーム 炉内状況解析技術開発グループ 永瀬文久

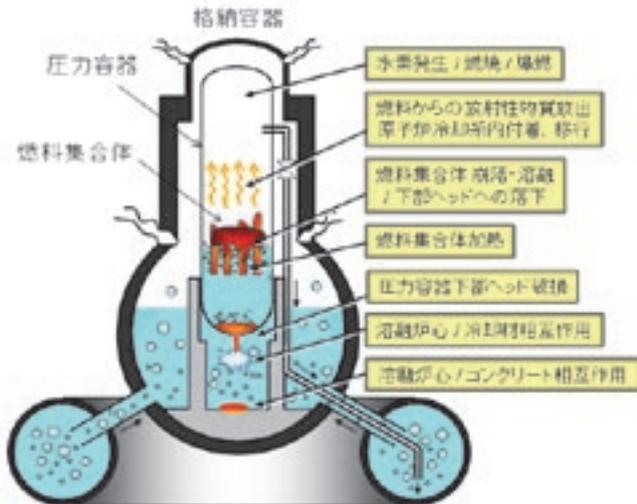


図 1 SA 時の原子炉内現象

SA 時には、原子炉内の温度が上昇し、燃料集合体が溶ける、圧力容器が破損するなどして、様々な現象が起こります。

1F での事故においては、燃料集合体が冷却材から露出してから注水が再開されるまでに約6時間から14時間を要したとされています。炉心の最高温度は二酸化ウラン(UO<sub>2</sub>)の融点以上の温度に達し、1号機から3号機において多くの燃料が溶融した可能性が高く、溶融した燃料の一部は圧力容器を貫通し格納容器内に落下していると考えられます。

政府と東京電力による中長期対策会議は、発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップを策定し、燃料デブリの取出しを20~25年後に完了する計画です。発電所内は線量が高く容易に内部に入ることにはできないため、燃料デブリの分布や原子炉炉心の破損など炉内の状況は把握できていません。燃料デブリの取出しを効率的かつ確実に行うためには、燃料デブリの分布を含む炉内状況の推定が必要であり、SA解析コードの高度化をはじめとする技術開発が、政府と東京電力による中長期対策会議の下に設置された研究開発推進本部を中心に行われています。

解析技術の高度化を通じた炉内状況把握をサポートするために、様々な研究開発を行っています。図1に示すように、SA時には原子炉内の温度は非常に高くなり、冷却材水位が低下して燃料集合体が長時間露出した場合には、燃料集合体が溶けるなどして様々な現象が起こります。SAに関する研究は、TMI-2での事故の後広く行われました。しかし、一定の精度をもってSAを予測するためには関連する知見が十分ではありません。そこで、従来知見とそれらの1F事故評価への応用性、最近の解析及び実験技術の進歩を考慮し、熱水力挙動、燃料損傷及び溶融進展、圧力容器下部ヘッド破損、解析コードを用

### 炉内状況把握・解析のための事故進展解析技術に係る研究開発

事故時の熱水力挙動評価  
・ 圧力容器内の温度分布評価、熱水力モデルと解析コードの開発  
・ 格納容器内挙動評価手法開発

事故時の燃料損傷及び溶融進展評価  
・ 燃料損傷及び溶融に関する基礎試験及び解析  
・ 研究炉等を用いた燃料溶融試験

圧力容器下部ヘッド破損挙動評価  
・ 変形・破損解析モデルの作成と解析  
・ 熱流動・構造連成シミュレーション  
・ 圧力容器挙動評価試験  
・ 熱損傷コンクリート構造材評価試験

事故の解析及び影響評価  
・ 事故進展解析コードの整備及び不確かさ解析等  
・ 放射化物やデブリ等の線源インベントリ評価  
・ 公衆・環境への影響評価

### 図 2 炉内状況把握に関し原子力機構が行う研究開発項目

1F 内の状況を把握し、燃料取出しなどの廃止措置に役立てるために、事故時の熱水力、燃料及び圧力容器挙動、事故解析などに関する研究開発を行っています。

いた事故の解析について研究開発を行っています(図2)。

#### (1) 事故時の熱水力挙動に関する研究開発

現在の炉内の状況を推定するには、1F事故の始まりからの進展に関する解析精度を向上させる必要があります。事故時の原子炉内状況は、熱水力挙動により大きな影響を受けるため、解析精度を向上させるためには、事故時の熱水力挙動に関する現象を把握し、温度分布やその時間的な変化などを精度良く評価する必要があります。そこで、BWRを模擬した装置を製作し、冷却材から露出した燃料集合体と冷却材との間の熱の移動や、溶融した燃料の落下の様子、落下した燃料の冷却性に関する実験による現象の把握、これらを精度良く評価するための三次元解析手法の整備を進めています。

圧力容器内の状況の推移を評価するためには、その外側にある格納容器内で起こる様々な現象を評価する必要があります。また、格納容器内の現象は、放射性物質の放出を知るためにも重要です。そこで、事故を模擬した試験条件での格納容器内熱水力挙動に関する実験を行い、圧力容器から高温のガスが格納容器に噴出した時の格納容器内の温度分布や、格納容器からの放射性物質を含むエアロゾルの移行挙動などの知見を取得します。

#### (2) 燃料損傷及び溶融進展に関する研究開発

原子炉炉心には、燃料(棒)だけでなく、制御棒や様々な構造材があり、その溶融過程は複雑です(図3)。溶融し崩れ落ちた燃料の現在の位置と状態に関する知見を得て燃料デブリとなった燃料の取出し等の廃止措置に貢献するためには、事故の進展にともなってどのように燃料

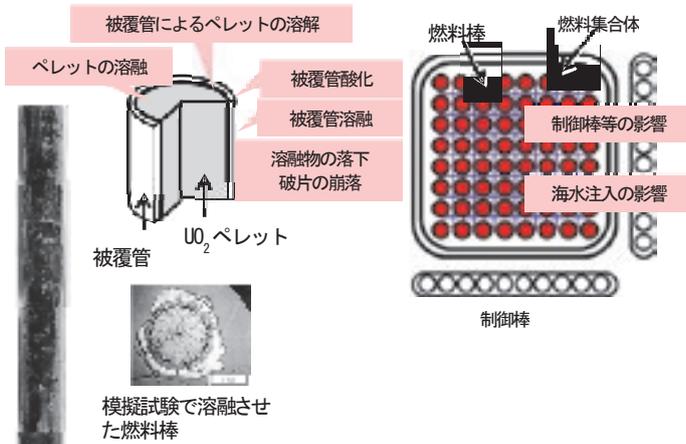


図 3 燃料棒及び燃料集合体の構造と溶融進展を評価するために重要な現象

燃料棒は、二酸化ウランペレットとジルコニウム合金製被覆管からなります。SA 時には燃料棒が損傷し、溶融しますが、溶融進展を評価するためには、燃料棒の溶融過程に加え、制御棒などの他の炉心構成材料の影響や炉内環境の影響を把握する必要があります。

(棒) が損傷を受け、溶融し、崩れ落ちていったかを知る必要があります。従来研究では、燃料棒の損傷や溶融が始まる条件、崩れ落ちの過程に関する知見及び関連する物性データが必ずしも十分ではありませんでした。また、破損した燃料棒からの放射性物質の放出に関するデータをさらに取得し、1F での放射性物質の放出状態を解明する必要があります。燃料棒及び燃料集合体の損傷や溶融において重要な現象に関する基礎試験及び解析モデル作成、研究炉等を用いた燃料溶融試験、放射性物質の放出挙動を調べるためのホットラボを利用した燃料加熱試験等を行っています。

### (3) 圧力容器下部ヘッド破損挙動に関する研究開発

炉心から落下した溶融した燃料が圧力容器のどの部分を貫通しているのか、いつ貫通したのかを把握するために、計算機によるシミュレーションと構造物試験により評価することを行っています。BWR の圧力容器の下部ヘッドには、制御棒や炉内の温度・圧力を測定するための多くの配管が貫通しています。これらの貫通配管や下部ヘッドにたまった冷却材の影響についても検討しています。シミュレーションによる検討では、三次元の BWR 圧力容器下部ヘッド部を模擬した解析モデルを構築します。次に、そのモデルを用いたシミュレーションを実施し、溶融した燃料が下部ヘッドの中をどの様に流動するのか、その状況に伴って貫通配管部や下部ヘッド自体がどの様に变形・破損するのかを検討しています。

図 4 は圧力容器挙動評価試験の概念図です。BWR 圧力容器下部ヘッドを模擬した試験装置を用い、シミュレーションの結果を検証するとともに、種々のシナリオにおける 1 号機から 3 号機における圧力容器下部ヘッドの破損状況(破損時間・場所、破損部の大きさ等)の推定及び格納容器内の燃料デブリ状況の推定のための知見を取

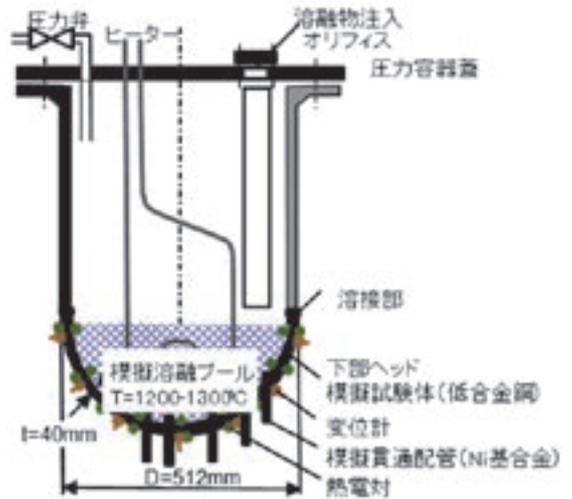


図 4 圧力容器挙動評価試験の概念図

1F の圧力容器下部ヘッドを模擬した試験装置を用いて、炉心から落下した溶融物により貫通が生じる位置やタイミングなどに関する知見を取得します。

得します。

### (4) 解析コードを用いた事故の解析

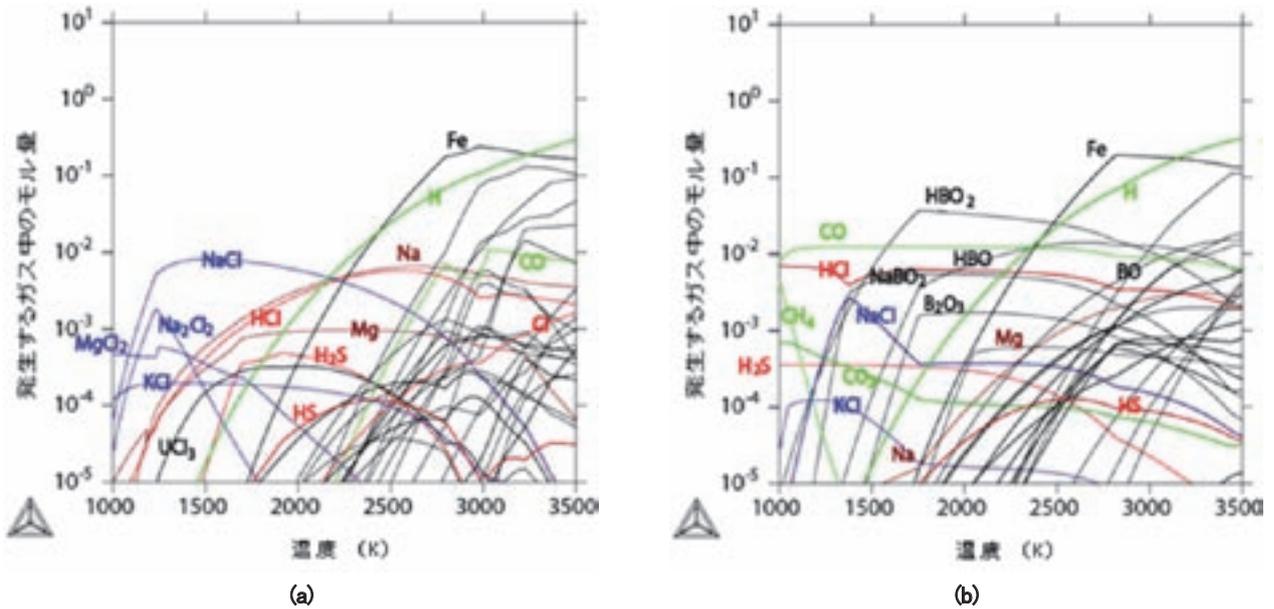
1F での事故進展を明らかにするため、上に述べた模擬実験等の課題抽出や試験条件の選定に反映するため、さらに事故進展評価解析コードの改良に役立てるため、事故解析に基づいた 1F の調査・分析、SA 進展解析コードの整備、事故進展や環境への影響において最も重要な現象の抽出と不確かさ評価、SA 時における炉心溶融進展と放射性物質挙動の評価等を行っています。

また、燃料デブリやがれき中の放射性物質含有量を解析及び非破壊測定で評価する技術開発、1F 事故初期における被ばく線量再構築、公衆・環境影響評価用データ及び解析コードの整備や環境影響評価結果の整理を行っています。

# 1-6 炉内で起きたことを実験・計算により評価する(2)

## —海水と燃料の化学反応の評価—

原科研福島技術開発特別チーム 炉内状況解析技術開発グループ 倉田正輝



(a) 高温に曝された炉内に海水を投入すると、腐食性ガスが発生する可能性があります。解析により考慮すべきガス成分を推定しました。SAの初期の比較的分圧(濃度)が低い条件での解析結果です。

(b) (a)と同様の解析を、SAの後期の比較的分圧(濃度)が高い条件で実施した結果です。(a)に比べて、より低い温度から、腐食性の塩化水素(HCl)や硫化水素(H<sub>2</sub>S)等が発生する可能性があったことがわかりました。

図1 海水投入による腐食性ガス発生解析結果

1Fでの事故においては、1号機から3号機の压力容器内で、破損した燃料が溶融し、その最高温度は二酸化ウラン(UO<sub>2</sub>)の融点以上の非常に高温に達していた可能性が高いと考えられています。これを冷却するため、事故当時、海水を投入しました。高温の破損燃料と海水が反応すると、海水中に存在する様々な成分が化学反応を起こしつつ、激しく蒸発すると考えられます。このような現象に関する知見は、これまでにほとんど得られていませんでした。事故が非常に高温で発生したことや、破損燃料中にも海水中にも数多くの成分が含まれていること、等により、直ぐに事故を再現した実験に着手することも困難です。そこで、熱力学的な手法を応用した解析により、海水投入で、具体的にどのような事象が懸念されるかの概略評価を進めています。得られた結果は、今後の試験計画策定に役立てる予定です。同様の手法は、もんじゅのナトリウム漏れ事故の評価・解析で、ナトリウムと構造材の化学反応解析にも用いられました。

図1(a)と(b)は、SAでの、压力容器内の酸素分圧(濃度)を推定し、その環境での腐食性ガス発生を解析した結果です。SAでは、事故の初期に燃料中に残留する崩壊熱により燃料温度が上昇します。これが、ある一定の温度(およそ1500℃と言われている)を超えると、燃料の被覆材(ジルコニウム合金)と水蒸気が激しく化学反応し始め、その反応熱で燃料の温度がさらに急上昇します。この温度上昇にともなって燃料集合体が溶ける等の様々な現象が起こります。SAの初期には、未反応のジルコニウム合金がまだ十分残留しているため、酸素分圧

(濃度)は比較的低く維持されると推定されています。他方、後期には、ジルコニウム合金の酸化が進み、それ以上酸素を吸収しなくなるために、酸素分圧(濃度)が上昇すると考えられます。

図に示すように、冷却材として海水を投入すると、様々なガス成分が生成されることがわかります。塩化水素(HCl)や硫化水素(H<sub>2</sub>S)のような腐食性の高いガスも一部発生します。事故の初期と後期では、ガス成分が大きく変化し、事故の後期に酸素濃度が上昇すると、腐食性ガスが低い温度でも発生しやすいと評価できます。これより、1Fでは、海水投入のタイミングがユニットごとに異なっていることから、炉内の腐食状態もユニットごとに異なっている可能性が高いことが指摘されました。今後は、事故を模擬した試験に着手すると共に、ユニットごとに詳細な条件を設定して解析し、炉内の腐食状態の推定に役立つ知見を整備する予定です。

表1と表2は、破損燃料中に存在する、燃料の主成分(U:ウラン)、被覆材の主成分(Zr:ジルコニウム)、主要な蒸発しやすい核分裂生成物元素(Cs:セシウム、I:ヨウ素、Sr:ストロンチウム、Te:テルル、Mo:モリブデン、Ru:ルテニウム)について、SAを模擬した条件での解析結果をまとめて表にしたものです。表1は、純水で冷却が行われたケースでの解析結果です。燃料主成分のウランや被覆管主成分のジルコニウムは、通常はほとんど蒸発しませんが、SAのように最高温度が2500℃を超えるような過酷な条件では無視できない量が蒸発する可能性があります。核分裂生成物元素のうち、セシウムとストロン

表 1 主要な元素の蒸発予想(純水冷却のケース)

元素	SA 初期を模擬した条件	SA 後期を模擬した条件
U	>3000K で無視できない量が蒸発	
Zr		
Cs	容易に蒸発	Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> 形成 蒸発やや抑制
I	CsI の蒸発と分解には、雰囲気の影響は小さい (既存の熱力学データベースでは、それ以上の評価はできない)	
Sr	>1500K で容易に蒸発	SrZrO <sub>3</sub> 形成 <2500K で蒸発抑制
Te	ZrTe <sub>2</sub> 形成 <1600K で蒸発抑制	>1100K で容易に蒸発
Mo	>3000K で無視できない量が蒸発	Mo 酸化物形成 蒸発促進
Ru	水との反応では酸化物は殆ど形成されない	

それぞれの元素の蒸発の様子が、SA の初期を模擬した雰囲気(低い酸素濃度)と SA の後期を模擬した雰囲気(高い酸素濃度)で、異なることがわかります。

チウムは、事故初期の条件でより蒸発しやすい傾向があります。一方、テルルやモリブデンは、事故後期に酸素濃度が上昇すると蒸発しやすくなると考えられます。SA 時に最も蒸発しやすく、被ばく評価で重要となるヨウ素に関しては、十分な物性データベースが整備されていないため、十分な評価を行うことができていません。ヨウ素はセシウムとの化合物(CsI)を作ると言われており、形成される CsI の蒸発や分解については、酸素濃度の影響が余り大きくないと言うことは推定することができました。また、ルテニウムは、大きな亀裂が入る等で圧力容器内に大量の空気が侵入するケースでは蒸発することがわかりました。ヨウ素やルテニウムの詳しい蒸発の様子は、フランスを始めとする欧州各国の研究機関で検討が進められており、これらと連携した詳細評価に着手する予定です。

表 2 には、海水を投入した場合の影響をまとめて示しています。ウランやジルコニウムは、海水中に塩素が存在すると、酸塩化物を形成し、さらに低い温度でも無視できない量が蒸発する可能性があります。核分裂生成物元素のうち、セシウム、ストロンチウム、テルルは、海水投入により蒸発が促進される可能性があることがわかります。特に、海水が SA の早い段階から投入されると蒸発が促進される可能性があることがわかりました。これは、海水中の成分(特に、副成分の Ca:カルシウム、K:カリウム、Mg:マグネシウム、S:硫黄等)と核分裂生成物元素が反応すると、化学的にガス成分の方が安定となりやすい化合物が形成されるためです。海水中の主成分である Na:ナトリウムより、これらの副成分の方が核分裂生成物元素の蒸発に与える影響が大きい事は、この解析で初めてわかりました。

従来の SA における核分裂生成物元素の放出量評価(ソ

表 2 主要な元素の蒸発予想(海水冷却のケース)

元素	SA 初期を模擬した条件	SA 後期を模擬した条件
U	>2500K で酸化物が一部蒸発	
Zr		
Cs	蒸発促進	蒸発やや抑制
I	CsI の蒸発と分解には、雰囲気の影響は小さい (既存の熱力学データベースでは、それ以上の評価はできない)	
Sr	蒸発促進	蒸発促進
Te	蒸発促進	影響は小さい
Mo	影響は小さい	蒸発抑制
Ru	水との反応では、酸化物はほとんど形成されない	

破損燃料と海水とが反応する場合、蒸発が促進される元素が多い事がわかりました。また、SA 時の被ばく評価で重要となるヨウ素に関しては、現在のデータベースでは、十分解析できないことが示されました。

ースターム)では、核分裂生成物元素の化学的な状態が蒸発に与える影響までは十分に評価していませんでした。1F 事故での核分裂生成物元素の蒸発の様子を詳しく評価できるように、現在、化学的な状態まで考慮した核分裂生成物元素の蒸発評価試験を計画しています。

《参考文献》 ・ M. Kurata, et al., Thermodynamic evaluation of chemical reaction between degraded fuel and sea-water, Proc. NuMat 2012: the Nuclear Materials conference, Osaka, Japan, Oct. 22-25 (2012)

# 1-7 炉内で起きたことを実験・計算により評価する(3)

## —燃料損傷時の放射性物質放出及び圧力容器下部ヘッド破損挙動評価試験—

大洗研福島技術開発特別チーム 燃料材料特性解明グループ 磯崎三喜男、三輪周平

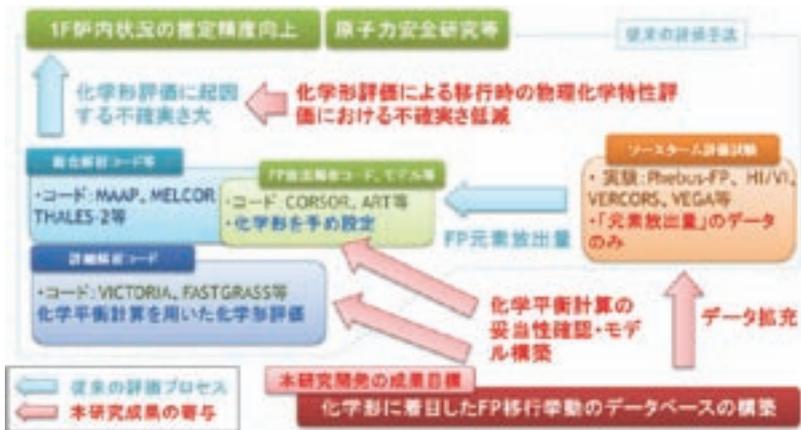


図1 化学形に着目した放射性物質放出評価試験の研究開発の位置付け

化学形に着目した放射性物質放出評価試験により、FP及びアクチニドの移行挙動データを一層拡充するとともに、移行時の化学形に関するデータを取得します。これにより、解析コード及びモデルにおいて従来推定されていた化学形を明らかにし、解析における不確かさを低減するとともに、移行挙動を明らかにすることで、1Fにおける炉内推定精度の向上等に資する知見を提供します。

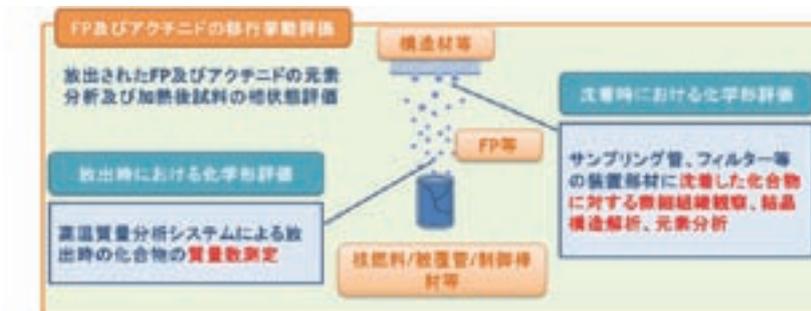


図2 研究開発実施概要

FP及びアクチニドの燃料からの放出時及び沈着時の化学形を測定することにより、放出から沈着に至る化学形変化を評価するとともに、放出速度やインベントリの評価等と合わせてFP及びアクチニドの移行挙動と、温度、雰囲気、被覆管等の有無の影響等との関係を明らかにします。

### (1) 放射性物質放出評価試験

#### 1) 目的

本研究開発では、事故時における燃料の破損により環境中に放出される放射性物質、すなわち、セシウムやヨウ素等の核分裂生成物（FP）及びプルトニウム等のアクチニド元素について、燃料破損時の燃料中における再分布及び放出から沈着に至る挙動（移行挙動）を評価します。

これまで、燃料から放出されたFP及びアクチニド（FP等）の移行挙動に関する知見は、様々な研究開発において得られていますが、移行時の物理化学特性を決定づける「化学形」については、その測定の困難さから直接的なデータはほとんど得られていません。従って、事故進展解析コード等においては、限定された元素放出量の測定データに基づいて推定した化学形を用いており、解析によるソースターム評価の不確かさの一因となっています。

また、1F事故において発生したと考えられる燃料と被覆管材、制御棒材、海水等との反応時におけるFP等の移行挙動に関する知見も少なく、1F事故でのFP等の移行挙動を評価するためには、これらのデータが必要となります。

そこで、本研究開発では、以下に示す実験研究により、FP等の移行時の化学形に関するデータを取得し、移行挙動データを一層拡充します。これらのデータにより、事故進展解析コード及びモデルを改良することで解析お

ける不確かさを低減させるとともに、FP等の移行挙動のメカニズムを明らかにすることを目指します（図1及び図2）。

#### 2) 実施内容

##### ・ 放出時における化学形評価

高温質量分析装置を用いた化学形測定技術を確立して、燃料からの放出時のFP等の化学形を明らかにします。また、これらの化学形と温度、被覆管等との反応、燃料の酸化等の関係を明らかにします。

##### ・ 沈着時における化学形評価

燃料から放出されたFP等の沈着時における化学形評価技術を確立して、沈着時のFP等化合物の化学形を明らかにします。また、これらの化学形と温度、雰囲気、被覆管等との反応等の関係を明らかにし、放出時の評価と合わせて、沈着に至るまでの化学形変化を化学平衡計算等により評価します。これにより、解析コード及びモデル等による従来の化学形評価の妥当性を確認し、解析技術の高度化に反映します。

##### ・ 移行挙動評価

放出時及び沈着時の化学形評価により得られた結果に加え、FP等の移行量等の評価により、解析コードの検証のための移行挙動データを取得するとともに、事故時におけるFP等の移行挙動メカニズムを明らかにします。

### (2) 圧力容器下部ヘッド破損挙動評価試験

#### 1) 目的

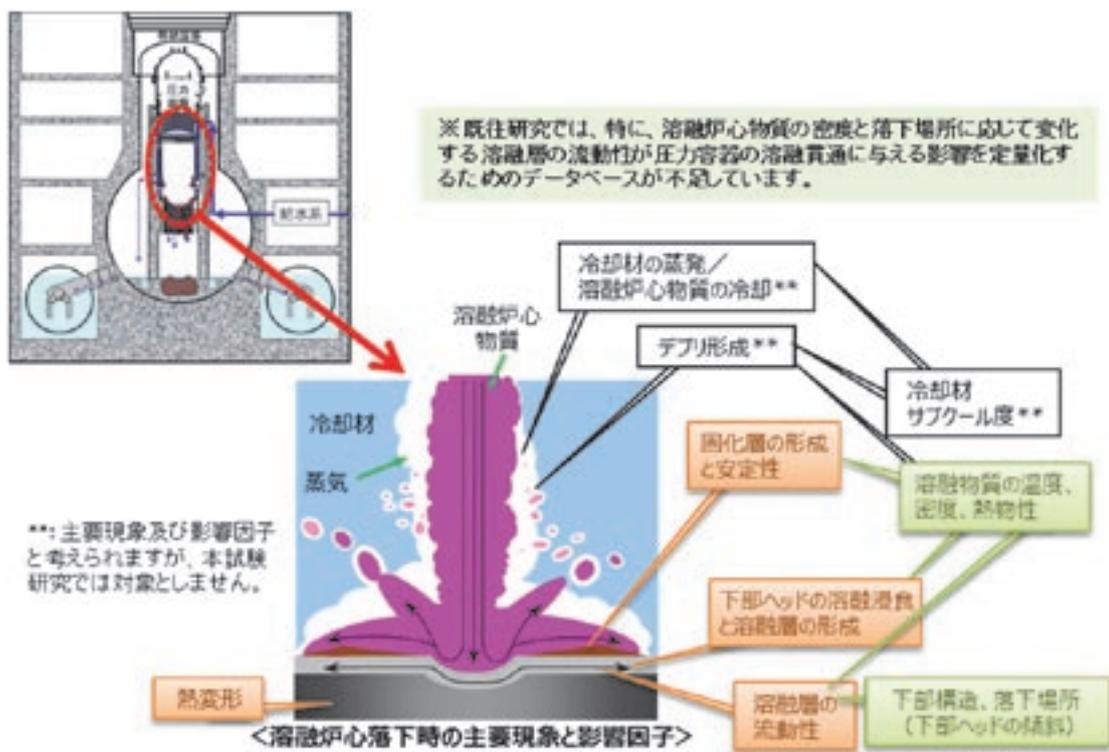


図 3 压力容器溶融浸食挙動評価試験の概要

高速増殖炉の炉心安全試験研究により蓄積された炉心溶融試験技術を活用して、溶融炉心落下時における压力容器下部ヘッドの伝熱挙動に係る試験を行い、压力容器の溶融侵食により貫通に至る条件を明らかにします。

1F の炉内状況把握のためには、溶融した燃料等の炉心物質（溶融炉心）との接触による压力容器の貫通部分や貫通までに要した時間等を予測することが重要となります。これらの予測は、压力容器内における溶融炉心の移動や压力容器下部ヘッドへの溶融炉心落下に伴う压力容器の破損などの進展状況によって大きく異なってきます。従って、压力容器下部ヘッドの破損挙動を精度良く評価するためには、1F 事故の進展状況において想定される様々なシナリオに対する压力容器下部ヘッドの破損挙動を調べることが必要になります。

そこで、本研究開発では、压力容器下部ヘッドへの溶融炉心落下を模擬した実験により、溶融炉心が落下する過程で压力容器下部ヘッドの溶融侵食により貫通に至る条件を明らかにし、1F 事故の進展評価のための事故進展解析コードの評価モデル構築に資する技術的知見を得ることを目的として、压力容器下部ヘッドの溶融浸食挙動評価試験を行います（図 3）。

压力容器の溶融浸食挙動は非常に複雑で、なおかつ、重畳的な現象となります。高融点物質である溶融炉心が構造材上に落下する状況では、構造材の溶融浸食面上に溶融炉心の冷却による固化層が形成され、これが断熱層となって構造材の溶融浸食が抑制されます。すなわち、固化層の安定性が压力容器下部ヘッドの溶融貫通に影響を与える因子になります。一方、この固化層の下側には構造材自身の溶融層が形成されるため、溶融炉心の密度や落下場所などに応じて変化する溶融層の流動性が固化層の安定性に影響を与える因子となります。これらは、溶融炉心から構造材への伝熱特性を決定することから、その挙動を把握することが重要となります。

## 2) 実施内容

本研究開発では、高速増殖炉の炉心安全試験研究で蓄積された炉心溶融試験技術を活用して、溶融炉心が構造材上に落下する状況の模擬実験を行います。これにより、溶融炉心の密度と落下場所に応じて変化する溶融層の流動性が構造材の伝熱特性に及ぼす影響を定量化し、压力容器下部ヘッドの溶融侵食により貫通に至る条件を明らかにします。

本試験により溶融炉心の落下時における压力容器下部ヘッドへの伝熱特性が定量化できれば、事故進展解析コード及びモデルを利用することで、1F 事故における压力容器下部ヘッドの破損時間、場所及び破損部の大きさなどの破損状態、並びに破損状態に応じた溶融炉心分布の推定が可能になり、破損燃料の取り出し開始に向けて大きく前進するものと期待されます。

# 1-8 炉内で起きたことを実験・計算により評価する(4)

## —燃料溶融開始時の放射性物質放出挙動評価試験—

大洗研究開発センター 福島燃料材料試験部 燃料試験課 田中康介

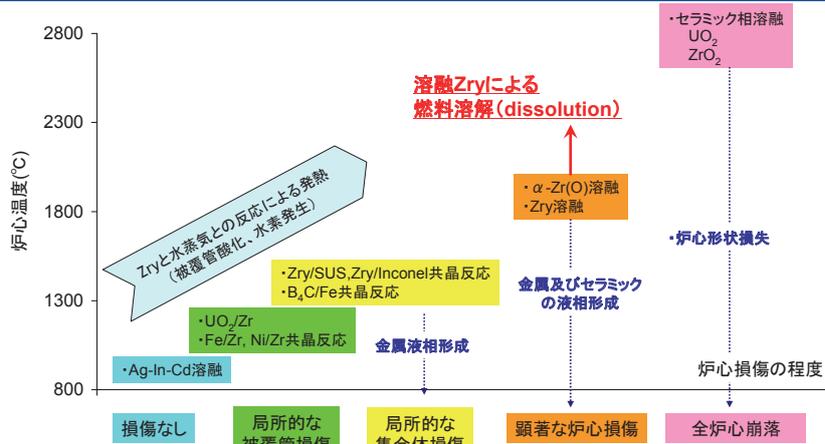


図1 炉心損傷過程の模式図

事故時において原子炉の温度が上昇すると、燃料、被覆管、制御棒などの炉心を構成する材料の溶融または異種材料間での化学反応などが発生します。特に、1800°Cを超える温度では、ジルカロイ(Zry)が溶融して炉心の損傷が顕著となり、燃料などのセラミックが溶融する2800°C付近では全炉心が崩落します。

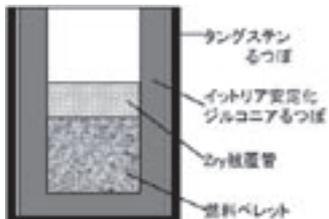


図2 加熱試験に供した試料体系

タングステンるつぼの内側にイットリア安定化ジルコニア製のるつぼを装荷し、その中に燃料ペレット片と被覆管を装填しました。



図3 加熱試験時の装置外観写真

加熱試験は、アルゴンガスの雰囲気において、過去の研究よりも高い温度の2100°Cで5分間保持する条件にて実施しました。

事故時における燃料の破損による放射性物質の放出挙動評価として、核分裂生成物(FP)及びプルトニウム等のアクチノイド元素(FP等)の移行挙動評価が実施されています。

### (1) 目的

これまでの研究から、事故時における炉心の温度と損傷程度の概略的な関係は図1のように整理されています。事故時においては、冷却材(水)が損失することにより原子炉の温度が上昇し、燃料、被覆管、制御棒などの炉心を構成する材料の溶融または異種材料間での化学反応などが発生します。800から1100°Cでは、各種材料の溶融や反応が開始しますが、炉心の損傷は局所的なものされています。1200°Cあたりから、被覆管の材料であるジルカロイ(Zry)と呼ばれる金属と水蒸気が反応することにより原子炉の温度がさらに上昇し、1400°C付近では、炉心損傷がさらに拡大します。1800°Cを超える温度では、Zryが溶融して炉心の損傷が顕著となり、燃料などのセラミックスが溶融する2800°C付近では全炉心が崩落します。

この事故進展過程のうち、燃料と溶融Zryの反応事象は燃料融点の1000°Cほど低い温度(1800°C)から開始し、その結果として高い放射能を有するFPが燃料から放出

されることから、事故時における放射性物質の放出挙動を理解するうえで重要な化学反応と考えられています。

そこで、FP等の移行挙動評価の一環として、炉心構成材料と燃料との反応時におけるFP等の移行挙動評価試験を行いました。本試験では、以下の二つの目的を設定しました。一つ目は、上記に示した事故時の化学反応を再現するための加熱試験技術の確立です。加熱中のFP等の放出挙動や加熱後試料の状態を先行研究結果と比較することで、被覆管と燃料を装荷した体系での加熱手法の妥当性を確認することとしました。二つ目は、新規データの取得です。先行研究と異なる新たな条件、例えば、過去の研究よりも加熱温度を高くするなど、反応が促進される条件を設定し、溶融Zryと照射済燃料の反応事象に関するデータの拡充を図ることとしました。また、加熱後試料について、特にプルトニウムやFPの分布状況に着目した分析を実施することで、加熱中におけるこれらの元素の移行挙動についての知見を得ることも試みました。

### (2) 実験方法

本試験に供した試料は、新型転換炉原型炉「ふげん」で照射されたMOX燃料(燃焼度:43GWd/t、製造時プルトニウム富化度:5.6%)です。「ふげん」は軽水炉では

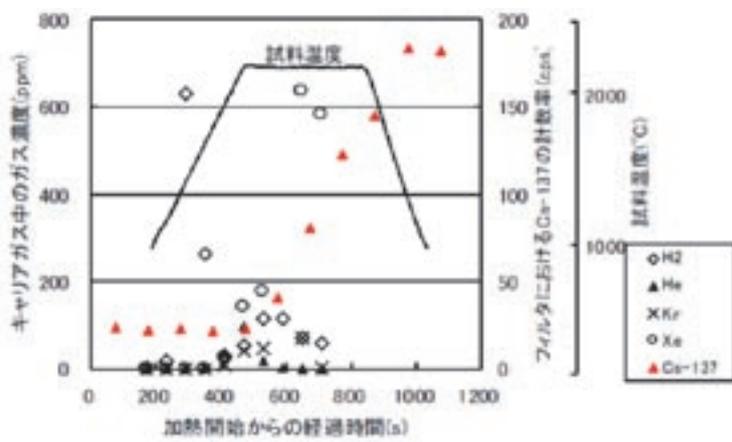


図 4 放出 FP の測定結果

加熱中におけるセシウム (Cs)、キセノン (Xe)、クリプトン (Kr)、ヘリウム (He) などの FP 及び水素 (H<sub>2</sub>) の放出開始時期は、従来の研究結果と同様の傾向を示しました。

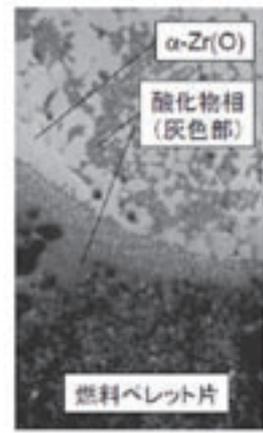


図 5 反応部における微細組織観察結果

燃料と溶融 Zry とが十分に反応している先行研究の結果と類似する組織形態が観察されました。

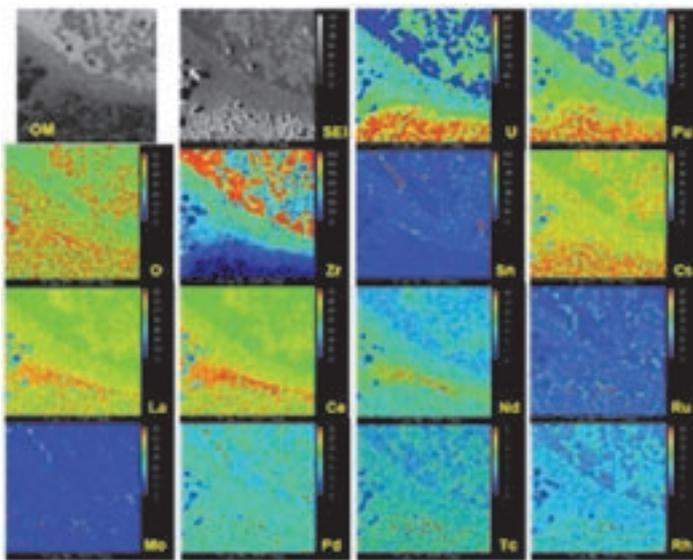


図 6 反応部における元素分布測定結果

赤い部分は相対的に濃度が高く、青色ほど濃度が低いことを示しています。  
OM: 光学顕微鏡による組織  
SEI: 電子顕微鏡による組織

ありませんが、燃料棒の仕様や使用環境は、BWR と近いタイプの原子炉であることから、この「ふげん」燃料を BWR 用 MOX 燃料の模擬材として使用することとしました。

加熱試験は、大洗研究開発センターの照射燃料試験施設 (AGF) に設置している FP 放出挙動試験装置を用いました。この装置は、高速炉における放出 FP 等の挙動に関する基礎データを取得するために設計・製作されたものであり、タングステンるつぼの中に燃料ペレット片を装荷して加熱試験を実施するものです。

本試験では、溶融した Zry とタングステンるつぼの反応を避けるために、タングステンるつぼの内側にイットリア安定化ジルコニア製のるつぼを装荷し、その中に燃料ペレット片と被覆管を装填する体系により加熱試験を実施しました (図 2)。加熱は、アルゴンガスフローの雰囲気において、先行研究よりも高い温度の 2100°C で 5 分間保持する条件にて行いました (図 3)。

### (3) 実験結果

加熱試験の結果、加熱中におけるセシウム、キセノン、クリプトン、ヘリウムなどの FP 及び水素の放出開始時

期は、従来の研究結果と同様の傾向を示しました (図 4)。また、セシウムの放出割合は、燃料の溶解を想定しない場合よりも高くなる結果が得られました。さらに加熱後試料では、燃料と溶融 Zry とが十分に反応している先行研究の結果と類似する組織形態が観察されました (図 5)。このような結果から、本加熱手法を適用することにより、燃料と溶融 Zry が反応する事象を加熱試験で再現できる見通しを得ました。

新規知見として、先行研究よりも高い温度での加熱試験により燃料と溶融 Zry の反応割合が増加することを確認しました。また、プルトニウムはウランに随伴している傾向があることが示され、溶融 Zry と MOX 燃料との反応におけるプルトニウムの移行挙動はウランと類似していることがわかりました。さらに、燃料ペレットと溶融 Zry の反応境界部では、セリウム、ランタン及びネオジムがわずかに高濃度化する傾向にあることがわかりました (図 6)。

今後は、本試験で得られた技術を用いた加熱試験を実施し、被覆管、制御棒材、海水等との反応時における FP 等の移行挙動を評価していく予定です。

《参考文献》 ・ 田中康介他, 日本原子力学会 2012 年秋の大会 予稿集 (F06)  
・ 佐藤勇他, 日本原子力学会 2012 年秋の大会 予稿集 (F07)

## 2 燃料デブリの取り出しとその後

—燃料デブリ性状把握・取り出し工法・臨界防止・計量管理・処置技術—

核サ研福島技術開発特別チーム 燃料デブリ取扱技術開発グループ 鷲谷忠博  
大洗研福島技術開発特別チーム 炉内解体技術開発グループ 福井康太  
原科研福島技術開発特別チーム 臨界管理技術開発グループ 外池幸太郎  
原科研福島技術開発特別チーム 計量管理技術開発グループ 堀啓一郎

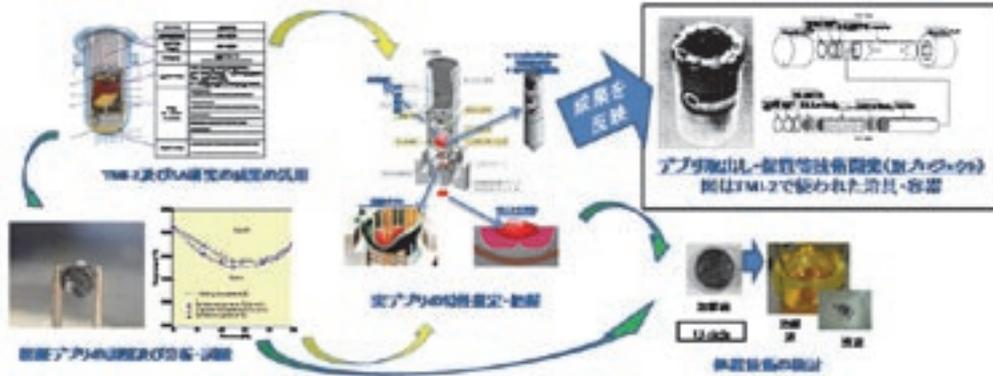


図 1 燃料デブリ性状把握及び処置技術開発の全体像

燃料デブリ性状把握及び処置技術開発で実施する研究開発内容の全体像(イメージ)を示しています。

東京電力(株)福島第一原子力発電所(1F)の事故対応においては、昨年12月の冷温停止状態の達成以降、プラントの安定化に向けたこれまでの取り組みから確実に安定状態を維持する取り組みへの移行と並行して、廃止措置に向けて必要な取り組みを中長期にわたって進めていく計画です。廃止措置に向けた対応は、1979年の米国・スリーマイル島原子力発電所2号炉(TMI-2)における炉心溶融事故対応を参考に進められますが、今回の事故においてはTMI-2と異なる状況がいくつかあるため、事故後の原子炉建屋内部の状態についても必ずしも同様ではないと考えられます。今後の廃止措置へ向けた対応として、大きく破損した燃料や燃料及び炉内構造物が溶融したのち冷えて固まったもの(燃料デブリ)を取り出し、これらを適切な方法により処置していくこととなりますが、高い線量率などにより人が立ち入って内部状況を詳細に調査することが難しい現状においては、これまでの原子炉におけるシビアアクシデント(SA)におけるデータや研究成果などの知見をもとに、現在明らかとなっている今回の事故データを加味しつつ内部の状況を推測し、対応を検討することが必要です。ここでは、これらの取り組みについての概要をご紹介します。また、個別の取組の詳細について2-1よりご紹介します。

### (1) 燃料デブリがどのようなものを理解する(図1)

今回の事故においては、炉の型式や事故の経緯(海水の注入や溶融継続時間等)など様々な点でTMI-2との違いがあることから、炉内で生成する燃料デブリについてもその性状が必ずしもTMI-2のそれと同様ではない可能性があります。本項目では、TMI-2の事例研究やSA解析研究の成果等を調査整理した上で、今回の事故における特有の状況を考慮して燃料デブリの生成条件や性状を推測しつつ、ウランやプルトニウムを含む模擬デブリを調製し、その性状に関するデータを取得していきます。

また、現在保有しているTMI-2で生成した燃料デブリのサンプルについても、同様に性状データを取得し比較することで、取出しやその後の処置の検討へ反映する事項を整理していきます。これらの実施に当たっては、SA研究等において実績を有する国内外の研究機関との協力・連携を図りその知見を反映します。

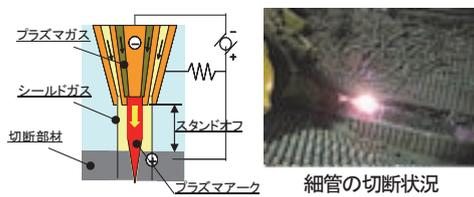
### (2) 原子炉内から燃料デブリを取り出す(図2)

今回事故があった原子炉は压力容器内部に多くの構造物がある沸騰水型軽水炉(BWR)であり、また燃料デブリの一部が溶融した压力容器の底を抜けて格納容器へ達したと考えられることから、取出し作業そのものについてもTMI-2と状況が異なるため、取出し工法に関して新技術が必要とする可能性があります。廃止措置に向けた対応においては、燃料デブリと炉内構造物の切断や回収などに必要な技術カタログの整理を実施した後、炉内調査に基づく取出し工法の立案、压力容器内の燃料デブリの取出し技術の開発、格納容器に到達した燃料デブリの取出し技術の開発、実用適用評価及び改善へと進められる計画です。

燃料デブリの取出しや事故後の原子炉の解体に対しては、ウォータージェット、レーザー、プラズマなどを用いた切断技術と、それに加えて遠隔操作に関する技術、燃料デブリの回収に関する技術が必要となります。これらに対して私たちがこれまで進めてきた原子力施設の廃止措置等に係る各種切断技術開発の成果をもとに燃料デブリや炉内構造物の取出しに必要な研究開発を進め、得られた成果を技術カタログとして提案します。

### (3) 燃料デブリの再臨界を防ぐ(図3)

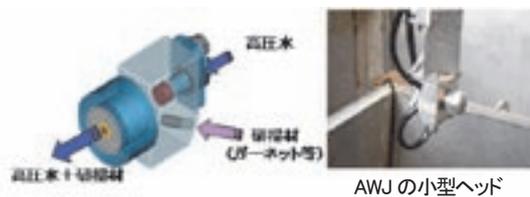
燃料デブリ性状について、連鎖反応を起こす核分裂性物質と中性子を吸収して連鎖反応を抑制する制御棒由来の物質の共存の様子、中性子の減速材として働く水に浸



1)プラズマアーク切断技術



細管の切断状況



2)アプレシブウォータージェット切断技術

図 2 各種切断技術の概要

図は 2 つの切断技術の原理を示し、写真は各切断技術による切断の状況を示しています。



図 3 燃料デブリ取出しから保管、輸送、処理・処分までの臨界管理

燃料デブリは性状が不確かなため、水中における取出し作業に際しては、未臨界を担保するための新たな特別な配慮が必要です。一方、取出し後の保管、輸送、処理・処分では、従来と同様の考え方で未臨界を担保しなければなりません。このため、取出し作業において性状を確認するための測定も必要になると考えられます。

かった燃料デブリの大きさなど、多くのことがまだ確認できていません。したがって、取出し作業等において燃料デブリが再び臨界状態となり連鎖反応が起きるリスクについて、慎重に評価・判断することが必要です。燃料デブリを切断し取り出す作業では、水中で状態が大きく変化することから、臨界状態にならないような確実な対策が求められます。

このため、震災直前までの炉の運転状況や燃料デブリ性状の想定に基づき燃料デブリの臨界量を計算により評価しつつ、再臨界になるシナリオの検討や連鎖反応の時間変化を計算するデブリ体系に適用可能な再臨界挙動解析コードの検討も進めています。

また、定常臨界実験装置 STACY を更新し、燃料デブリを模擬した材料で実際に臨界量等を測定することにより、計算の不確かさを確認することを計画しています。さらに、臨界になっていないことを非破壊測定により確認・監視する技術を燃料デブリ取り出し作業に適用することを目指し、実際の使用済燃料を用いた強放射線場における検出器の単体試験、臨界実験によるシステム試験を行うことも検討しています。

#### (4) 燃料デブリ中の核物質の計量管理方法構築に向け (図 4)

燃料デブリ中の核物質が平和利用目的以外に用いられないことを担保し国内・国際社会に対して示していくことが求められます。燃料デブリは燃料及び炉内構造物が部分的または全体的に溶融したのち冷えて固まったものであるため、燃料集合体を一つの単位とした通常の計量管理の方法を適用することができません。そこで、今後炉内燃料の取出し、貯蔵を行うまでの透明性を確保しつ

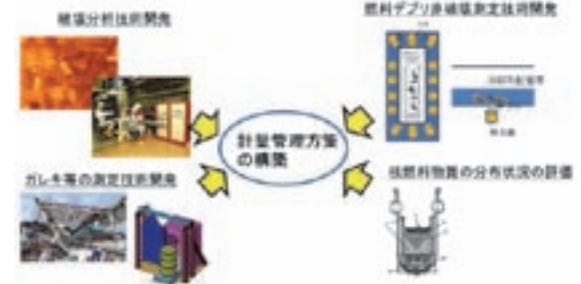


図 4 計量管理技術開発の全体イメージ

核燃料物質の非破壊測定技術開発を中心に、他のプロジェクトの成果を取り入れて燃料デブリの計量管理方法を構築していきます。

つ、合理的な計量管理・保障措置が実施できる方法を構築していきます。

これらを実施していく上で、TMI-2 とチェルノブイリ原子力発電所事故について文献調査や米国エネルギー省、米国原子力規制委員会、米国国立研究所、事業者等の関係者への聞き取り調査を行い、今回の事故との比較検討を行った上で、今回の事故の燃料デブリに対して適用する計量管理方法の構築に役立てる考えです。

核物質測定について、米国や日本が持っている技術等の中から利用できそうな技術の候補を選定し、計量管理や保障措置への適用性を米国国立研究所等と協力して検討し、具体化の可能性が考えられる候補技術を 2013 年度頃までに複数選定し、この候補技術について、米国国立研究所等と協力して技術開発を実施していく計画です。

なお、今後検討される燃料デブリの取り出し方等により、計量管理や保障措置の手法も変わってくることから、廃止措置対応に係る計画全体を見つつ研究開発を進めることが必要と考えています。

#### (5) 燃料デブリを取出した後どうすべきか

取出された燃料デブリは適切に処置されなければ、廃炉作業は終了には至りません。燃料デブリの取出し後の処置については、一時保管等の中間的取扱いも含めると様々な選択肢がありますが、その将来の選択に資するため、取りうる処置の組合せをシナリオとして整理し、フェージビリティの評価を行います。また、これと並行して、処置において必要となる分析技術の開発や既存技術である湿式、乾式の処理適用性の評価を行います。

〔参考文献〕 ・ 鷲谷忠博、日本原子力学会核燃料部会報、「東京電力(株)福島第一原子力発電所 1~4 号機の廃止措置等に向けた研究開発計画に係る国際シンポジウムにおける”燃料デブリの性状把握・処理に係る研究計画”の報告、2012 年 5 月報、p.6-10(1012)

# 2-1 燃料デブリとはどのようなものかを理解する(1)

## —燃料デブリ性状に係る既存の知見と推定—

核サ研福島技術開発特別チーム 燃料デブリ取扱技術開発グループ 池内宏知、矢野公彦、鍛冶直也

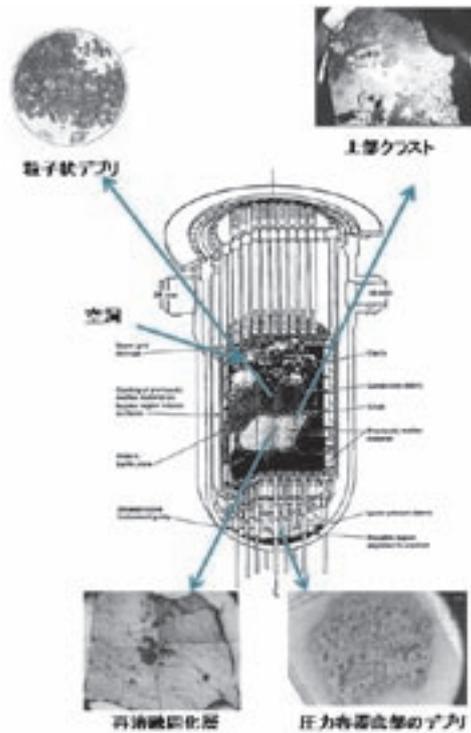


図 1 TMI-2 事故後の炉内における燃料デブリの分布

事故後の炉内は、炉内温度や組成に応じて、(U,Zr)O<sub>2</sub> や合金相など、様々な形態を取ったものと考えられます。

軽水炉 SA 時の燃料は、炉内温度、材料の種類、圧力、水蒸気発生量等に起因して様々な化学的振舞いを示します。破損燃料の取扱いにおいては、原子炉格納容器または圧力容器内部において生成していると考えられる破損燃料の化学的形態を推定・把握しておくことが必要です。破損燃料の性状については、TMI-2 における炉心熔融事故後の廃炉作業における分析や、国内外における原子力安全研究のフィールドを通して、その化学形、物性等に関する知見が蓄積されています。本節では、これらの知見に基づく燃料デブリの一般的性状と今回特有の性状に係る検討結果の概要を示します。

### (1) TMI-2 における燃料デブリの性状

TMI-2 は、二次系主給水ポンプの停止を起点とした冷却材喪失により炉心温度が上昇し、原子炉材料間で化学的な相互作用が起き、最終的に炉心熔融に至った事故です。1984 年から開始された燃料の取出し作業の進展とともに、炉内における燃料デブリの分布、およびその性状が徐々に明らかにされてきました。最終的には、カメラ等による炉内観察、取出した燃料デブリの分析等に基づき、事故終息時の炉内状況が図 1 のように推定されています。事故前には燃料棒領域であった炉心上端周辺は、燃料棒の熔融や落下により空洞と化し、その下部には粒子状(直径 1 ~ 5 mm 程度)の燃料デブリが堆積していることが分かりました。粒子状燃料デブリの直下には、

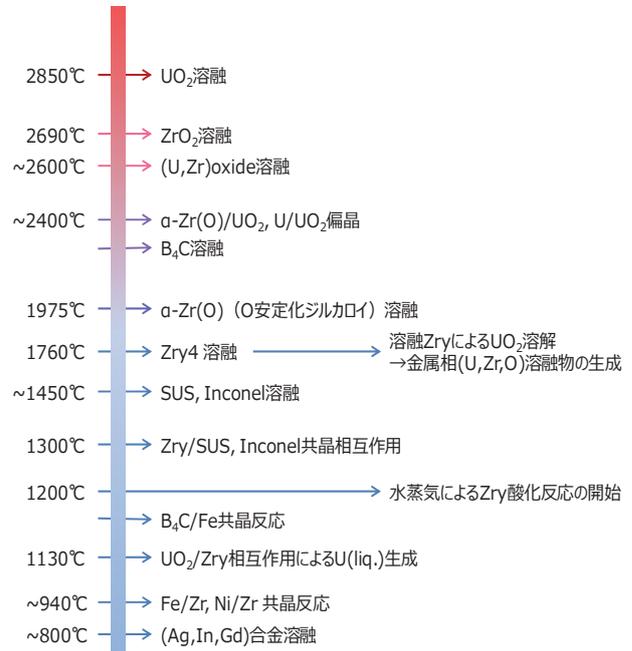


図 2 軽水炉 SA における材料間相互作用

SA においては、冷却材喪失等により温度が上昇し、原子炉材料の間で様々な反応が起きます。

硬い殻状の塊(クラスト)に取り囲まれるようにして、比較的均質な領域(再熔融固化層)が存在しています。また、圧力容器底部にも燃料デブリが一部、流下していることが分かります。TMI-2 事故で生じたこれら燃料デブリは、分析により、燃料(主成分:UO<sub>2</sub>)、被覆管(主成分:Zr)、制御棒(主成分:Ag, In, Cd)、および構造材(主成分:SUS, インコネル等)の破片や、これら材料同士の相互作用や水蒸気による酸化反応で生じる(U, Zr)O<sub>2</sub>、(Fe, Ni)酸化物、および合金等で構成されています。炉内の場所ごとに燃料デブリの種類には若干のバラつきが見られますが、これは温度の履歴が場所ごとに異なり、また図 2 に示すように、温度の違いにより材料間相互作用の種類が異なるためと考えられます。このように、TMI-2 事故による燃料デブリの分析結果を見ても、炉内温度の変化や材料間の反応に応じて、破損燃料が多様な形態を取りうるということが分かります。

### (2) 安全研究分野での燃料デブリの性状評価

安全研究の分野では、原子炉材料の熔融試験等を通して、SA における燃料の挙動が詳細に調べられてきました。その振舞いを概略的に述べると次のようになります。冷却材喪失等により炉心温度が上昇すると、その到達温度に応じて、図 2 に示すような各材料間相互作用が開始します。1F 等の BWR の場合、1000°C 以下の温度において、チャンネルボックスの主成分である Zr と、制御棒プレー

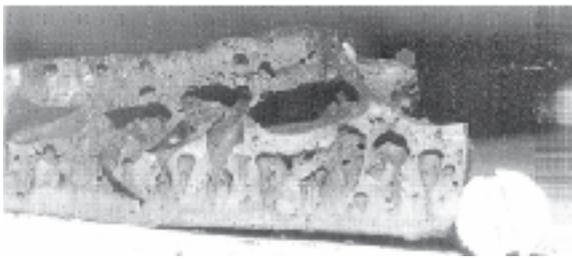


図 3 コアコンクリート反応で生じる燃料デブリの外観(一例)

フランスでは、コンクリート成分を含む燃料デブリを熔融させ、冷却時の組成が調べられています。左図は冷却時の燃料デブリの外観の一例です。

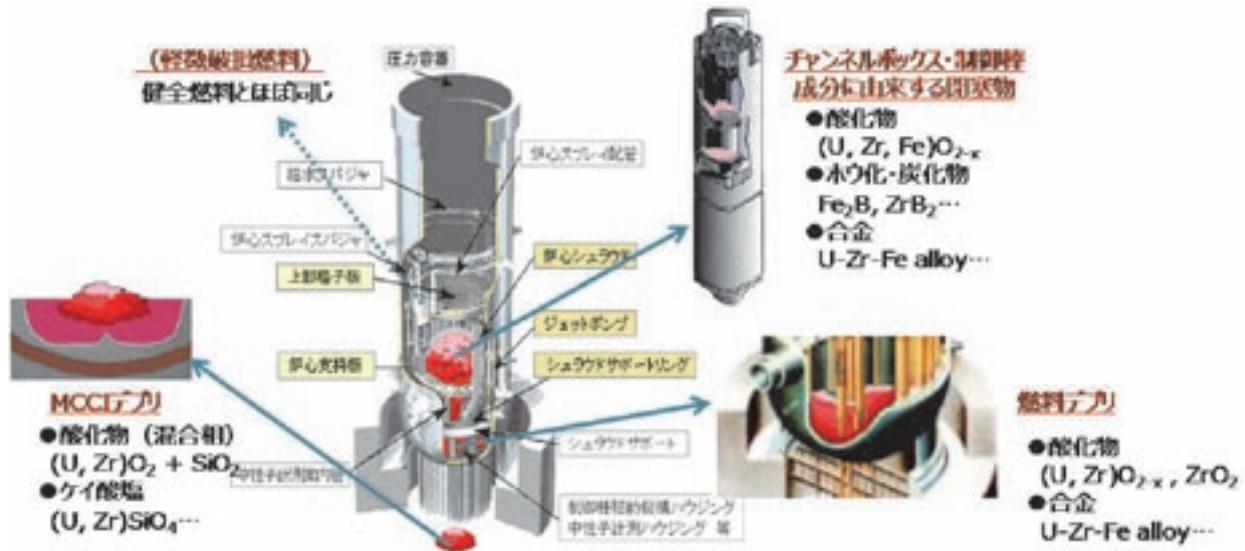


図 4 BWR SA時に想定される破損燃料形態のイメージ

圧力容器内部では、(U, Zr)O<sub>2</sub>、Fe や Zr のホウ化物等の生成が考えられます。格納容器床面でコアコンクリート反応が起きた場合は(U, Zr)O<sub>2</sub>とコンクリート成分の混合相や、ケイ酸塩等の生成が考えられます。

ドの材料であるステンレス鋼との相互作用が始まり、Fe-Zr を主とする合金の生成、および合金の熔融が始まると考えられます。1200°C付近では、制御棒として使用されている B<sub>4</sub>C と、制御棒被覆管の材料であるステンレス鋼との相互作用が始まり、Fe、Cr、Ni のホウ化物等が生成します。温度が燃料被覆管（ジルカロイ）の融点である約 1760°Cを超えると、熔融したジルカロイが燃料ペレットを部分的に溶解するため、U、Zr を含む金属相の生成が考えられます。また、被覆管の水蒸気酸化により生じる ZrO<sub>2</sub> と燃料ペレットとの相互作用により、(U,Zr)O<sub>2</sub> が生じます。炉内が長時間高温に維持され続けると圧力容器破損に至り、燃料デブリが圧力容器外に漏出し、格納容器の床面コンクリートと高温で相互作用すると考えられます。この反応は熔融炉心-コンクリート反応 (MCCI) と呼ばれ、反応の結果生じる燃料デブリ (外観の一例：図 3) は、熔融したコンクリートと燃料デブリの混合相や、これらの化学反応により生じるケイ酸塩等に分類されると考えられます。以上のような破損燃料形態のイメージを纏めると、図 4 のようになります。

器内部にある燃料デブリの大まかな種類については、TMI-2 の場合と大差ないことが考えられます。ただし、TMI-2 のような加圧水型軽水炉 (PWR) と比較すると、BWR では Zr の存在量が多く、また制御棒には B<sub>4</sub>C を用いているため、燃料デブリ中の Zr の割合やホウ化物、炭化物の割合がTMIの場合よりも多くなる可能性が考えられます。また、1Fにおいては原子炉冷却のため海水が投入されており、海水成分との相互作用を起こした可能性が考えられます。さらに1号機については、MCCIを考慮する必要があると考えられます。

今回の事故では、多量の Zr、海水注入、B<sub>4</sub>C と構造物との反応、MCCI 等の影響で、TMI-2 事故や従来の安全研究での燃料デブリの性状より一層複雑な性状を呈すると予想されます。今後はこれらの因子を考慮した燃料デブリの相状態・化学形を評価し、本技術開発における燃料デブリの物性測定や処置シナリオの検討等に反映していく予定です。

### (3) 今回の事故における燃料デブリの性状

今回事故を起こした原子炉は BWR ですが、炉心材料の組成は UO<sub>2</sub>、Zr、ステンレス鋼が主ですので、圧力容

《引用文献》 [1] McCardell, R.K. et al., Summary of TMI-2 core sample examinations, Nuclear Engineering and Design, 118, (1990), 441-449  
 [2] Hofmann, P., Current knowledge on core degradation phenomena, a review, Journal of Nuclear Materials, 270, (1999), 194-211  
 [3] Journeau, C. et al., Physico-chemical analyses and solidification path reconstruction of multi-component oxidic spread melts, Materials Science and Engineering, A299, (2001), 249-266

## 2-2 燃料デブリとはどのようなものを理解する(2)

### —模擬デブリと材料の反応生成物の性状—

原子力研究所福島技術開発特別チーム 燃料デブリ評価技術開発グループ 高野公秀

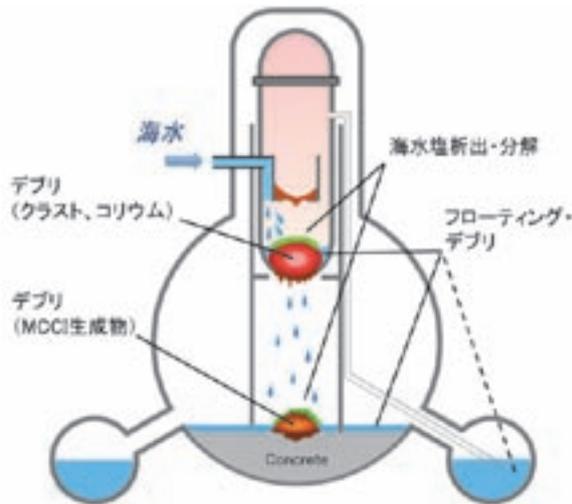


図 1 1F1~3号機事故経過中の炉内状況想定模式図

TMI-2 事故との特徴的な相違点として、高温熔融状態が長く続いたこと、Zr/UO<sub>2</sub> 比が大きいこと、緊急冷却のために海水が注水されたこと、主な制御材が B<sub>4</sub>C であること、ペDESTALで熔融燃料がコンクリートと反応していること等が挙げられます。

燃料デブリの基本的な成分は、燃料ペレットの UO<sub>2</sub> と、被覆管主成分の Zr が高温水蒸気で酸化した ZrO<sub>2</sub> からなる酸化物固溶体で、(U,Zr)O<sub>2</sub> と表すことができます。熔融時には構造材のステンレス鋼あるいは鉄、制御材の B<sub>4</sub>C、さらには緊急冷却のために注水した海水中の塩成分や格納容器下部（ペDESTAL）でのコンクリートと反応し、位置や温度履歴、雰囲気中の酸素濃度に応じて種々の化学形態を持つと予想されます（図 1）。

物理的形態の観点からも、熔融物がそのまま固化した岩石状の密な組織を持つ物から、多孔質の脆いもの、水による急冷で微細な粒状になったものまで広範囲に存在することが、TMI-2 事故の知見から推測されます。

燃料デブリの回収にあたっては、化学形、相、組織、密度、混在状態といった基本的な物理的・化学的性状を把握した上で、それぞれの性状に応じた回収方法・工具の検討に必要な、機械特性（硬度等）や熱物性（熱伝導率等）を評価することが必要です。実際の燃料デブリ（実デブリ）が採取されるまでには数年を要することから、それまでの間、ある程度特性を模擬できる「模擬デブリ」を作製し、その諸特性を評価することにしています。

これまでに模擬デブリの作製方法として、UO<sub>2</sub> と ZrO<sub>2</sub> 粉末を混合・粉砕してペレット状に成型し、1700℃以上の高温で加熱する「焼結法」により、気孔の少ない緻密な組織が得られる手法を確立しました。一方、被覆管が完全に酸化しないような条件下では、金属 Zr が残ります。そのような状況の模擬として、金属 Zr と UO<sub>2</sub> 粉末の混合物を「アーク溶解法」で完全に熔融後、冷却する手法も確立しました（図 2）。

本研究課題では、これらの未照射ウランを含有した模

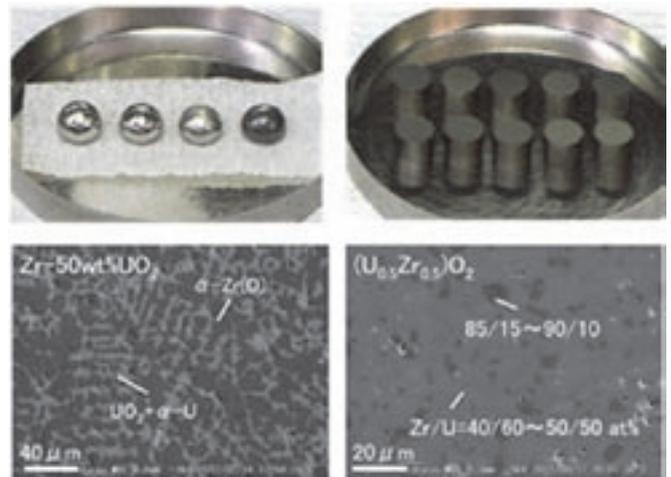


図 2 作製した模擬デブリの外観と組織観察像の一例

（左）金属 Zr と UO<sub>2</sub> 粉末をアーク溶解法により完全熔融後冷却。酸素が固溶した α-Zr に UO<sub>2</sub> が樹枝状に分散し、Zr に還元された金属ウランが析出。

（右）ZrO<sub>2</sub> と UO<sub>2</sub> 粉末から焼結法により作製。Zr/U 比の異なる立方晶（明るい部分）と正方晶（暗い部分）が分散。

擬デブリ試料を用いて、原子炉内の各種材料との高温反応試験を行い生成物の性状を把握するとともに、その特性を評価して燃料デブリ回収に役立てることを目的としています。

2012 年度には、これまで主に海水塩との高温反応生成物の性状を調べました。高温の燃料デブリ表面では、注水された海水が蒸発し塩成分が析出することが想定されるので、燃料デブリとの直接的な化学反応の有無に加えて、燃料デブリに付随して回収される塩由来成分も把握しておく必要があります。

実際に海水を蒸発させて得られる塩は、主成分の NaCl の他、Mg 塩化物と硫酸塩、Ca 硫酸塩、K 塩化物等から成っています。まず海水塩のみを高温に加熱した場合、Mg と Ca の塩は熱分解で最終的に酸化物になり、NaCl は約 800℃以上で徐々に揮発することがわかりました。また、これらの過程で HCl や SO<sub>x</sub> 等の腐食性ガスが発生します。

模擬デブリより単純な系での予備試験として、UO<sub>2</sub> 粉末と海水塩の混合物をアルゴン気流中 800℃から 1200℃の範囲で加熱し、生成物中の相と格子定数を調べたところ、NaCl は 1000℃までに揮発によりほとんど消失すること、塩由来成分の残渣として MgO が析出すること、及び UO<sub>2</sub> 相の格子定数は顕著に減少すること（図 3）がわかりました。生成物表面の X 線元素分析により、この格子定数減少は、塩由来の Ca 及び一部の Mg が UO<sub>2</sub> 中に溶解し、(U,Ca,Mg)O<sub>2</sub> で表される二酸化物固溶体生成に伴うものであることを明らかにしました。

模擬デブリと海水塩の高温反応では、焼結法で作製した 2 種類の組成（Zr/U モル比で 60/40 及び 85/15）の模

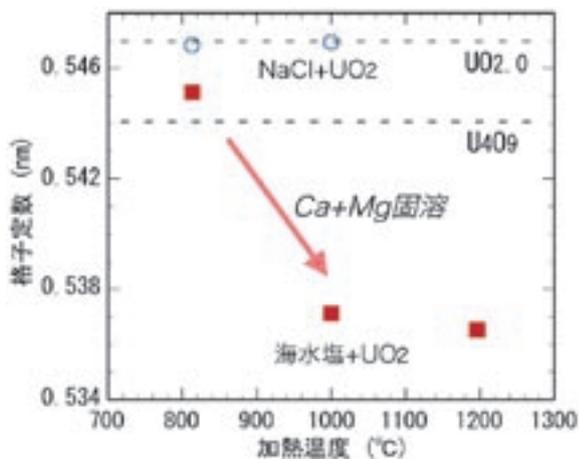


図 3 海水塩と加熱した  $UO_2$  粉末の格子定数変化

塩成分の Ca 及び Mg が固溶することで  $UO_2$  相の格子定数が顕著に減少します。NaCl との加熱では格子定数変化がなく、直接的な反応がないことが示唆されます。

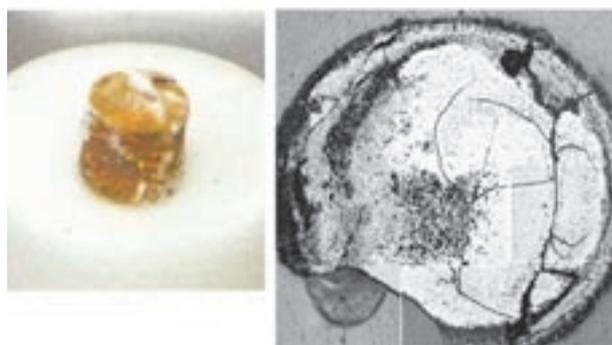


図 4 ペレット状模擬デブリと海水塩の空气中 1000°C加熱後の外観と断面観察像

ペレット表面の橙色はウラン酸塩の層形成、白い付着物は MgO が堆積したもの。ウラン酸化による立方晶から斜方晶への相変態及び  $U_3O_8$  生成等に伴う歪みのため、ペレット内には大きな亀裂が見られます。

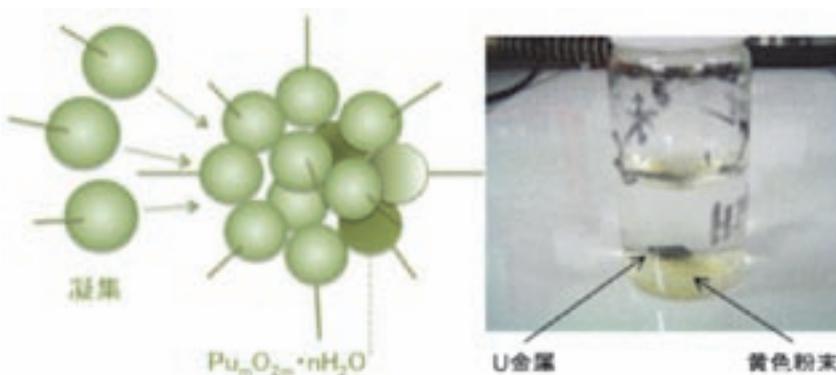


図 5 Pu 酸水和物のゲル化想定図(左)と金属 U を用いた予備試験の様子(右)

金属 U 片を長期間水中に浸漬することで、黄色の過酸化ウラン水合物と考えられる微細な沈殿が生成。

擬デブリを用いました。前者は  $UO_2$  と同じ立方晶、後者は  $ZrO_2$  の性質を反映した正方晶と単斜晶の混合相です。粉末状にした模擬デブリと海水塩の混合物を 800°C から 1400°C の範囲で加熱した結果、 $UO_2$  の場合と同様に、立方晶格子定数が減少し、Ca と一部の Mg が固溶するものの、Zr の比率が高い正方晶にはほとんど固溶しないことがわかりました。また、加熱温度が高くなるほど、析出している MgO の割合が減ることから、それに伴い模擬デブリへの MgO の固溶量が増大していると考えられます。

次にペレット状の模擬デブリを海水塩に浸した状態で高温加熱し、生成物の断面組織を電子顕微鏡と X 線元素分析で調べた結果、以下のことを明らかにしました。ペレット表面には微細な MgO が析出しているものの、アルゴン雰囲気下での Ca 及び Mg の固溶はごく表面にとどまっており、1200°C までの温度ではペレット内部深くまで拡散しません。一方、空气中 1000°C で加熱した際には、塩との反応により、ペレット表面に Na と Ca のウラン酸塩の緻密な相 (厚さ約 50  $\mu m$ 、橙色) を形成することを明らかにしました。いずれの雰囲気下でも、加熱中の酸素含有量の変化、相変化等の歪みにより、ペレット全体に渡ってクラックの発生が確認されました (図 4)。

以上の海水塩に関する試験に加えて、2012 年度後半に

は、模擬デブリと  $B_4C$  制御材及びステンレス鋼、さらに 2013 年度にはコンクリートとの反応生成物の性状を調べる予定です。

高温反応試験と並行して、いわゆる“フローティング・デブリ”の性状評価にも着手しました。微細な燃料デブリが長期間水中に浸漬することで、核燃料物質がコロイド (又はゲル) 状に分散している可能性が考えられます (図 5)。水中の溶存酸素、塩濃度、ホウ酸濃度等をパラメータとし、U 及び Pu 系コロイドの分散・凝集挙動を明らかにして行く予定です。これらのデータは、核燃料物質の計量管理及び回収作業時の臨界評価の観点からも重要な知見となります。

《参考文献》 ・ M. Takano, T. Nishi, M. Kurata et al., High temperature reaction between  $UO_2$  and sea salt deposit, in proc. 5th European Review Meeting on Severe Accident Research (ERMSAR-2012), Cologne, Germany, March 21-23, 2012, paper 7.2.

## 2-3 燃料デブリとはどのようなものを理解する(3)

### —燃料デブリの特性に及ぼす酸素分圧の影響—

核サ研福島技術開発特別チーム 燃料デブリ取扱技術開発グループ 廣岡瞬、加藤正人  
核燃料サイクル工学研究所 プルトニウム燃料技術開発センター 燃料技術部 燃料技術開発課 森本恭一

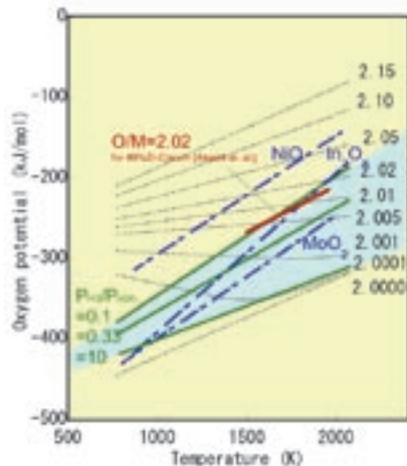


図1 U模擬デブリの酸素ポテンシャル

事故時の原子炉内の雰囲気は、水素/水分比は、0.1-10の範囲と推定されます。この範囲では、 $UO_2$ は、 $O/U=2.00-2.05$ 、約50%Zrを含む燃料デブリは $O/M=2.00-2.04$ と推定されます。

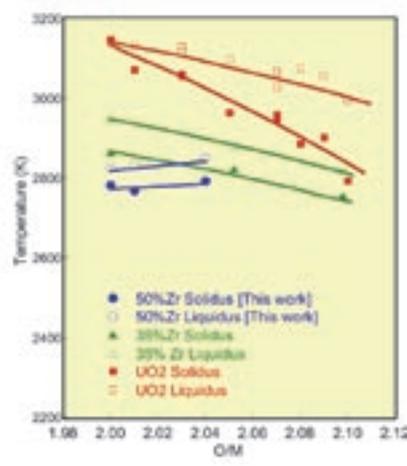


図2 U模擬デブリの融点

模擬デブリの融点の $O/M$ 依存性を測定した結果を示します。模擬デブリの融点は、 $O/M$ の増加で、大きく変化しないことがわかりました。

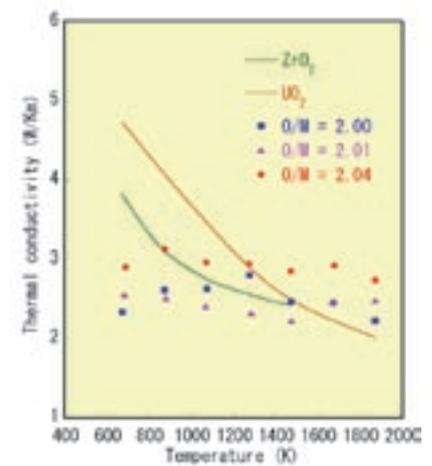


図3 U模擬デブリの熱伝導率

模擬デブリの熱伝導率は、2-3 W/kmの小さい値であり、温度依存性もほとんど観察されませんでした。

軽水炉の冷却水喪失事故では、原子炉内において、被覆管材のジルカロイと水分が反応し、水素が発生します。このような水素と水分が共存する雰囲気においては、水素と水分の比と温度によって、雰囲気中の酸素ポテンシャルが決定されます。酸素ポテンシャルは、熔融燃料の酸素含有率に影響するため、事故によって生成される熔融燃料の化学状態、微細組織及び熱物性は、雰囲気中の水素/水分比に依存することになります。

TMI-2における炉心熔融事故では、事故後に熔融燃料が取出されて分析が行われ、熔融燃料内の核分裂生成物(FP)の化学状態の分析結果から、炉内の酸素ポテンシャルは、水素/水分比が0.1-10の範囲と推定されました。図1に酸素ポテンシャルと $UO_2$ の酸素/金属( $O/M$ )比の関係を示します。また、水素/水分比=0.1-10の範囲を青色で示します。この範囲では、 $UO_2$ 燃料は、 $O/M=2.00-2.05$ であることがわかります。これまでに、熔融燃料の特性に関する報告は、 $UO_2$ 及び $ZrO_2$ を用いた試験結果が報告されていますが、 $O/M$ 比が2.00より高い領域の試験データは限られています。本試験では、 $UO_2$ とジルカロイ-2を出発原料として、ウラン燃料の熔融燃料を模擬した模擬デブリを調製し、その特性と $O/M$ の関係を調べました。

試料は、Uとジルカロイの金属成分が同量になるように $UO_2$ とジルカロイ粉末を混合し、水分加湿の水素/アルゴン混合ガスを用いて、ジルカロイのみが酸化する雰囲気中で熱処理を行うことによって $Zr/(U+Zr)=49$  at%の酸化物を得ました。試料は乳鉢による粉碎後、成型・焼結

しました。さらに、1600°Cで、水素/水分比=10、0.33、0.1の雰囲気中で熱処理を行い、 $O/M=2.00$ 、2.01、2.04の三種類の試料を調製しました。各試料は、タングステンカプセルに真空封入し、サーマルレスト法により融点測定を行いました。熔融試料は、酸素ポテンシャルと熱拡散率測定を行うとともに、X線回折、EPMA分析、密度測定、組織観察を行いました。

図1に模擬デブリの $O/M=2.02$ における酸素ポテンシャルを測定した結果を示します。 $UO_2$ に比べ、 $O/M$ 比が高い傾向であることがわかります。また、1473-1873 Kの範囲では、水素/水分比=0.1-10において、模擬デブリの $O/M$ 比は2.00-2.04の範囲であることがわかりました。

図2に、 $O/M=2.00-2.04$ の融点測定結果を示します。 $UO_{2+x}$ の融点は、 $O/M$ 比の増加で、低下することが知られています。また、 $(Zr_{0.35}U_{0.65})O_{2+x}$ においても低下することが報告されています。本研究で行った約50%のZrを含む模擬デブリの融点は、図2に示すように $O/M$ 比の増加でほとんど変化しないことが確認されました。

$O/M=2.00$ では、約50%Zrにおいて、融点が最も低い値をとるため、推定される事故時の炉内雰囲気における $O/M$ 比を考慮しても、模擬デブリの最も低い融点は約2773 Kと考えられます。

図3に、熱伝導率の測定結果を示します。熱伝導率は、レーザフラッシュ法による熱拡散係数と液浸法によって測定された密度、及びノイマン-コップ則で見積もられた比熱から算出しました。熱伝導率は、2-3 W/mKの小

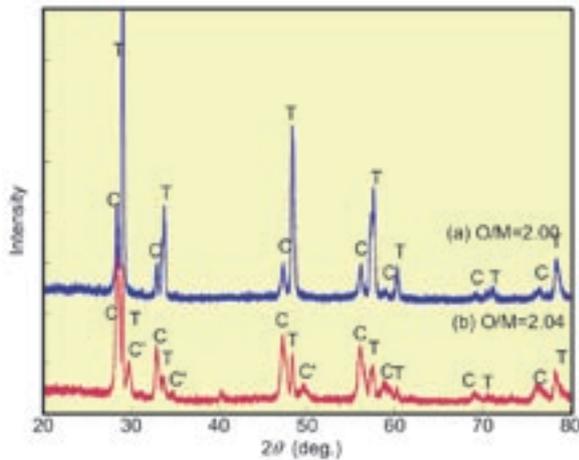


図 4 模擬デブリの X 線回折測定結果

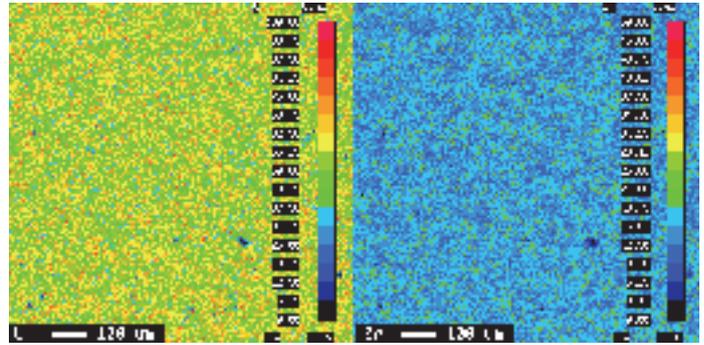
(a)O/M=2.00 の試料では、fcc 構造の立方晶(C)と正方晶(T)の 2 相が観察されました。(b)O/M=2.04 の試料には、さらに格子定数の小さい立方晶(C')が観察されました。

さい値であり、温度依存性もほとんど確認されませんでした。イオン半径及び質量数の大きく異なる U と Zr が固溶することによってフォノン散乱の増加により熱伝導が低下したためと考えられます。

図 4 及び図 5 に、融点測定後の凝固組織の X 線回折と EPMA 測定結果を示します。O/M=2.00 の試料には、面心立方晶(C)と正方晶(T)の 2 種類の回折パターンが観察されました。O/M=2.04 の試料では、さらに格子定数の小さい面心立方晶の回折ピーク(C')が確認でき、O/M 比が、2.00 より高い相が存在するためと考えられます。UO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub> 系の融点直下の相は、面心立方の単相であることが報告されていますが、X 線回折では、2 相及び 3 相の存在が確認されました。図 5 の EPMA 分析の結果、試料中には U と Zr の分布が観察されました。U は、結晶粒内の中心で、Zr は、結晶粒界近傍で濃度が高くなっていることが確認できます。これは、模擬デブリが溶液から凝固する場合、液相線近傍では、U リッチの組織が晶出しはじめ、固相線付近で Zr リッチの組織が晶出するためと考えられます。また、状態図から U リッチの相が面心立方で、Zr リッチの相が正方晶と考えられます。

UO<sub>2</sub> 及びジルカロイを原料として、模擬デブリを調製し、溶融試料の熱特性及び凝固組織について調べました。

(a) O/M=2.00



(a) O/M=2.04

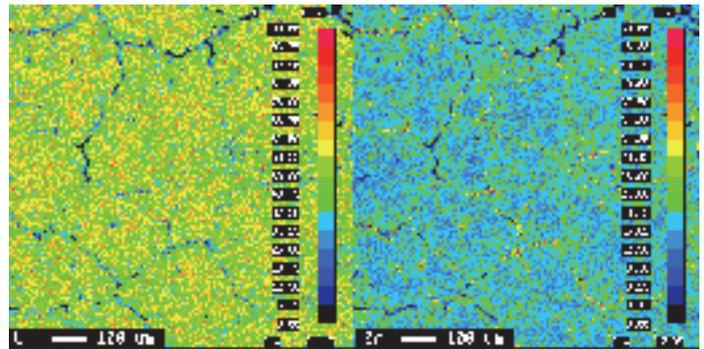


図 5 模擬デブリの凝固組織の EPMA 分析結果

(a)O/M=2.00 及び(b)O/M=2.04 の試料断面の U 及び Zr の分布を分析結果を示します。いずれの試料も、結晶粒内で U が、結晶粒界付近で Zr の濃度が高くなっていることが観察されます。

模擬デブリは、推定される炉内雰囲気において、O/M=2.00-2.04 範囲であり、溶融温度は最も低い場合で約 2773 K であることが確認できました。また、熱伝導率は、2-3 kW/mK と低く、温度依存性はほとんど観察されませんでした。また、溶融後の凝固組織には、凝固時の濃度変化に起因する U と Zr の分布が観察されました。

《参考文献》 ・ M. Kato, T. Uchida, S. Hirooka, M. Akashi, A. Komeno, K. Morimoto, submitted to MRS 2012 Spring meeting  
 ・ S. Hirooka, M. Akashi, M. Kato, T. Sunaoshi, H. Uno, K. Morimoto, submitted to MRS 2012 Spring meeting  
 ・ M. Akashi, S. Hirooka, T. Uchida, K. Morimoto, M. Kato, presented at E-MRS 2012 Spring meeting (2012)

《引用文献》 [1] R. R. Hobbins, D. A. Petti, D. J. Osetek and D. L. Hagerman, Nucl. Tech. 95, 287, (1991)  
 [2] D. Manara, C. Ronchi, M. Sheindlin, M. Lewis, M. Brikun, J. Nucl. Mater. 342 (2005)148-163  
 [3] M. Brrachin, P. Y. Cheynet and E. Fischer, J. Nucl. Mater. 375, 397(2008)

## 2-4 燃料デブリとはどのようなものを理解する(4)

### —(U, Pu, Zr)O<sub>2</sub>の融点測定—

核サ研福島技術開発特別チーム 燃料デブリ取扱技術開発グループ 内田哲平、加藤正人  
核燃料サイクル工学研究所 プルトニウム燃料技術開発センター 燃料技術部 燃料技術開発課 森本恭一

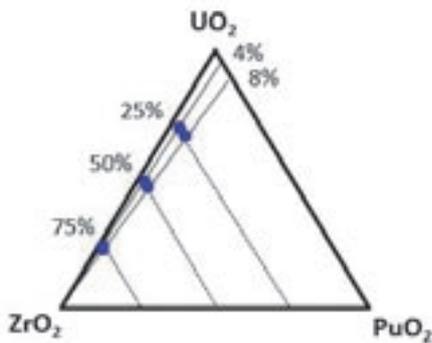


図 1 試料の組成

Pu 含有率が 4%と 8%の MOX 燃料に Zr 含有率が 25at%, 50at%, 75at%となるよう混合しました。

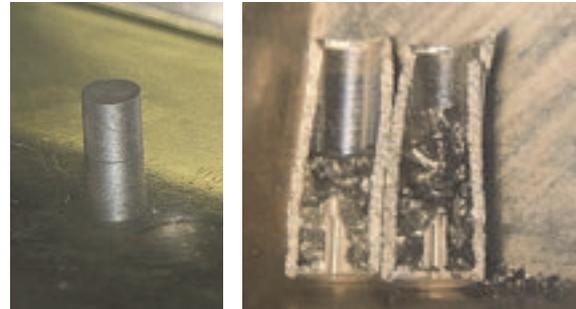


図 2 試料の外観

左:焼結後試料 右:溶解後試料

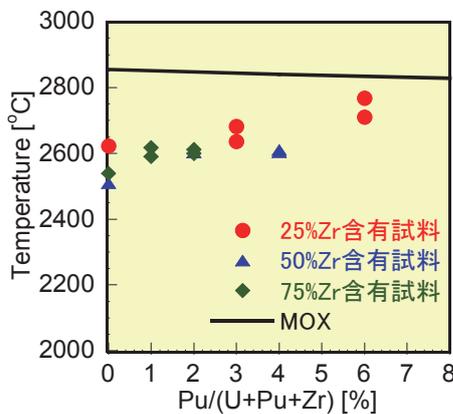


図 3 Pu 含有率に対する融点の変化

Pu 含有率の増加に伴い、融点が高くなる傾向が確認できます。

炉心冷却材喪失事故においては温度解析を通して、事故進展挙動の理解、及び炉内の状況を推定する必要があります。そのためには熔融燃料の相状態の評価やその熱物性の評価が重要となります。特に今回事故を起こした原子炉のうち、3号機ではプルサーマル計画が実施されており、燃料中に含まれるプルトニウムが熔融燃料の相状態や熱物性に与える影響を評価する必要があります。

本試験では炉心熔融時の燃料デブリの特性把握及び事故進展挙動の解析に反映するために、MOX 燃料と被覆管の反応による生成物の融点及び熔融後の組織に関する基礎データ取得を目的としました。

プルサーマル計画では Pu 含有率が 10%以下の MOX 燃料が使用されることになっているため、本試験では Pu 含有率が 4%と 8%の MOX 燃料を調製しました。また、被覆管にはジルカロイ-2 が使用されていますが、本試験は添加物の影響を考慮し、第一段階として基本となる系の評価を行うために ZrO<sub>2</sub>を使用しました。

調製した試料の組成を図 1 に示します。試料は 4%Pu

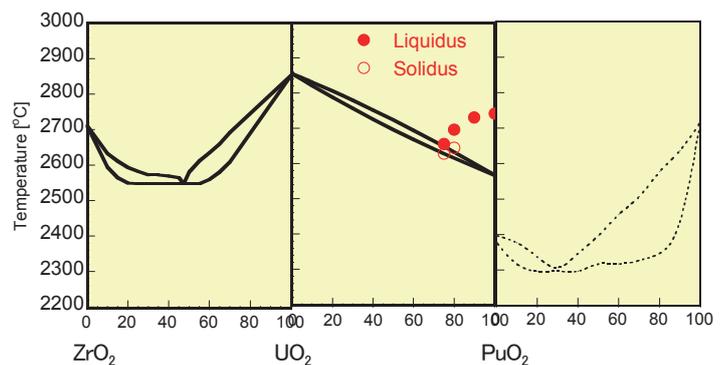


図 4 ZrO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>系状態図

PuO<sub>2</sub>の融点は不確かであり、ZrO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>系の融点はさらに高い可能性が考えられます。

含有 MOX 及び 8%Pu 含有 MOX に対して ZrO<sub>2</sub> を 25at%、50at%、75at%混合した混合酸化物を調製しました。調製した試料をタングステンカプセルに封入し、高周波加熱炉を用いて加熱して、サーマルアレスト法により融点の測定を行いました。焼結後及び溶解後の試料の外観を図 2 に示します。溶解後の試料はカプセル開封後に密度測定、金相観察、X 線回折測定を行いました。

融点の測定結果を図 3 に示します。Pu 含有率 0%のデータは過去に測定した UO<sub>2</sub> 模擬熔融試料のデータです。(U,Pu,Zr)O<sub>2</sub>の融点は Pu 含有率の増加に伴って上昇する傾向が確認できます。この結果から、UO<sub>2</sub>燃料及び MOX 燃料の冷却材損失事故における熔融温度は最も低い場合で、50%Zry-2 含有 UO<sub>2</sub>の約 2500°Cであると推察することができます。また、図 4 に ZrO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>系状態図を示します。Pu 含有率の増加に伴う融点の変化を評価するためには ZrO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>系状態図の融点が重要となります。図 4 に示した ZrO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>系状態図は熱力学計算により評価された状態図ですが、この計算では PuO<sub>2</sub>の融点と

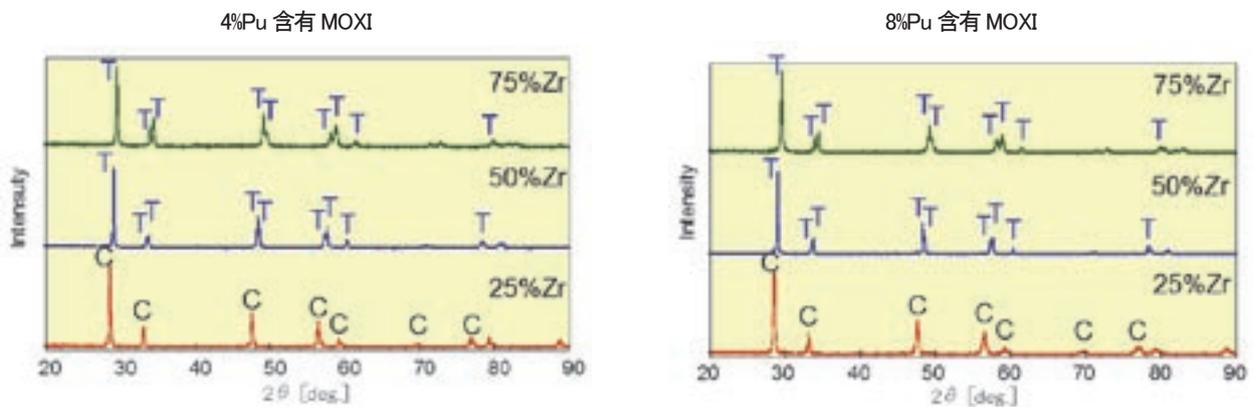


図 5 溶融試料の X 線回折パターン

Zr 含有率が 25%の試料では立方晶、50%及び 75%の試料では正方晶の X 線回折パターンが確認されました。これは  $UO_2$  模擬溶融デブリと同様の挙動です。

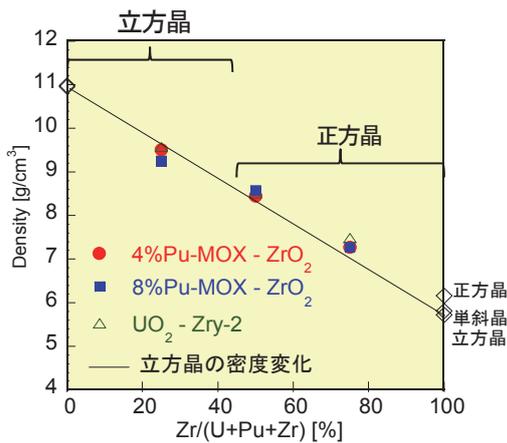


図 6 溶融試料の密度

Zr 含有率が 50%及び 75%の試料は正方晶であるため、立方晶より高い密度を示しました。

して 2380°Cを採用しています。一方で、近年  $PuO_2$  の融点として 2740°Cと高い融点が報告されています。前者は材料であるタングステンと  $PuO_2$  が反応して、融点を低く見積もっている可能性があります。後者は高温における  $PuO_2$  と材料の反応を抑制するためにレーザー加熱による測定手法を採用しています。 $PuO_2$  の融点は 2380°Cよりも高く、 $ZrO_2$ - $PuO_2$  系の融点は図 4 よりも高い可能性があります。この場合、 $UO_2$ - $PuO_2$  系、 $ZrO_2$ - $PuO_2$  系と比較して  $UO_2$ - $ZrO_2$  系の融点が低いいため、Pu 含有率の増加に伴って、融点が上昇していることが考えられます。

図 5 に溶融後試料の X 線回折パターンを示します。Zr 含有率 25%の 4%Pu 含有 MOX、8%Pu 含有 MOX の X 線回折パターンは立方晶の回折パターンを示し、Zr 含有率 50%及び 75%の試料は正方晶の X 線回折パターンを示していました。これは  $UO_2$  模擬溶融デブリと同様の挙動となっており、冷却中に安定する相は  $UO_2$  模擬溶融デブリと同様に立方晶と正方晶であることが分かります。

図 6 に液浸法で測定した溶融後試料の密度を示します。図中の直線は fcc- $UO_2$  と fcc- $ZrO_2$  の密度変化です。Zr 含有率 25%の試料は立方晶であり、この直線に近い密度を示しましたが、Zr 含有率 50%及び 75%の試料は正方晶で

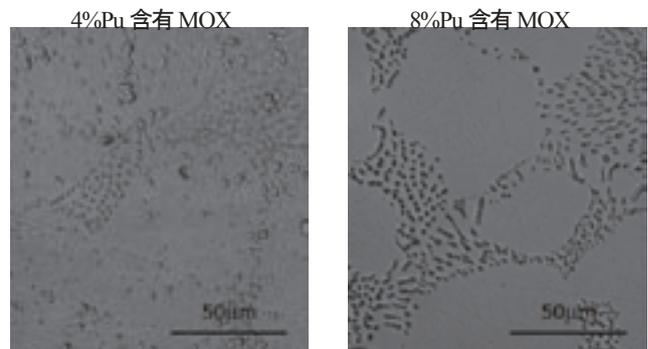


図 7 Zr 含有率 50%の試料の金相写真

Pu 含有率の増加に伴い、粗い組織が生成していることが確認されました。

あるため、立方晶よりも高い密度を示しました。さらに、Zr 含有率 50%の試料の金相写真を図 7 に示します。 $UO_2$  模擬溶融デブリは溶融後、非常に緻密な組織になっていましたが、Pu 含有率の増加に伴い、粗い組織が拡大していることが確認できました。この組織は組成の異なる相である可能性が考えられますので、今後、電子線マイクロアナライザーを使用して組織の元素分析を行うことにより各組織の組成の評価を行う予定です。

今回の試験から、Pu 含有率の増加に伴い、融点は上昇する傾向があること、また、冷却中に安定となる組織は立方晶と正方晶であり、これは  $UO_2$  模擬溶融デブリと同様の挙動であることが分かりました。今後は酸化させた  $ZrO_2$  と MOX の混合試料を調製し、特性評価を行う予定です。

【参考文献】 ・ M. Kato et al, J. Nucl. Mat. 373 (2008) 237

【引用文献】 [1] W.A. Lambertson and M. H. Mueller, J. Am. Ceram. Soc. 365 (11) (1953) 36

[2] NUCLEAR THERMODYNAMIC DATABASE <MOX-TDB> hal-00160137, ver.1-5 Jul 2007

[3] F.D. Bruycker et al, J. Nucl. Mat. 419 (2011) 186

## 2-5 燃料デブリとはどのようなものを理解する(5)

### —燃料取出しに向けた燃料デブリ物性の検討—

核サ研福島技術開発特別チーム 燃料デブリ取扱技術開発グループ 北垣徹

核燃料サイクル工学研究所 福島技術開発試験部 試験運転第3課 小泉健治、樋口英俊、涌井遼平

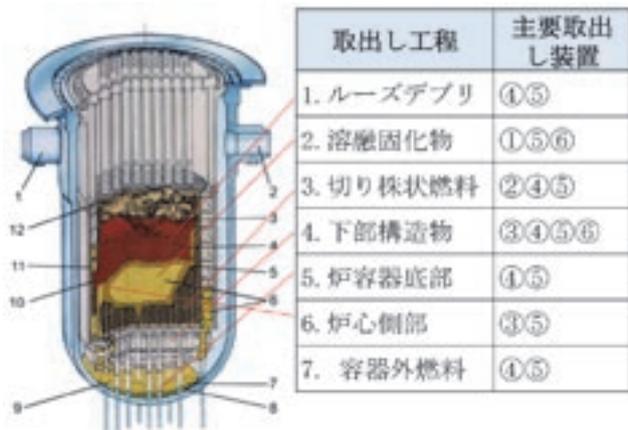


図1 TMI-2の燃料取出し手順の整理

取出し装置の記号:①切断ツールA(衝撃破壊)、②切断ツールB(せん断)、③切断ツールC(溶融切断)、④燃料回収用ツール(摘み取り)、⑤吸引システム、⑥コア・ボーリング装置

今回の事故の後処理において、燃料デブリの取出し作業は東京電力㈱とメーカーが主体で実施することとなっていますが、現時点では事故後の原子炉内の状況や燃料デブリの状態が把握できておらず、また、当面の目標である格納容器の冠水作業に注力しているため、現状では、本格的な取出し手順や取出し装置の検討には着手していない状況です。

一方で、燃料デブリの物理的な特性や化学的な特性の把握は、原子力機構が主体となって実施します。そこで、原子力機構はメーカーの燃料デブリ取出し装置開発に有用となる、燃料デブリ特性に関する情報を提供することとしました。以上の方針に従い、これまでに、有益な参考情報としてTMI-2の炉心溶融事故において実施された、燃料デブリの取出しに関する情報を整理し、想定される今回の燃料デブリの取出し手順及び取出し装置を推定、使用が想定される装置と物質との相互作用について調査、取得すべき燃料デブリの特性(機械的物性、熱的物性等)を明確化し、これらの検討結果を東京電力㈱やメーカーに提示しました。今後は、提示した情報を基に、メーカーの取出し装置開発時期を考慮の上、適宜データをメーカーに提供し、最終的にはメーカーが開発した取出し装置の性能評価に活用可能な燃料デブリ模擬物質(非放射性)を提供します。

#### (1) TMI-2の燃料取出し工法・装置の調査

TMI-2の燃料取出し作業の概要を説明します。TMI-2の燃料取出しは、炉心を冠水させた後、炉心上部に作業台を設置し、炉心上部に堆積した燃料デブリから順に下部方向の取り出しを行いました。

しかし、燃料デブリは場所によって小石状であったり、大きな塊状であったり、元の燃料ピンの形状を残したも

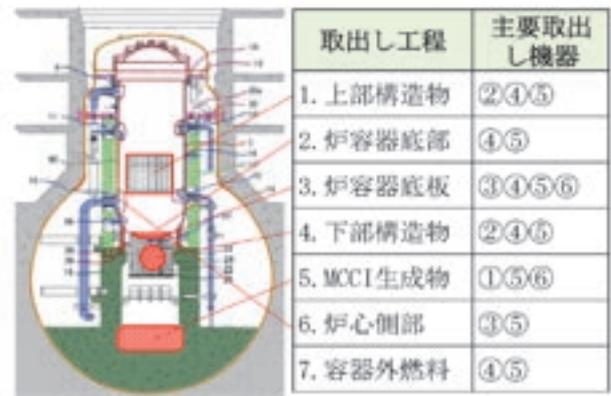


図2 TMI-2を参考とした1Fの燃料取出し手順の推定

取出し装置の記号は図1と同様であり、TMI-2と比較的構造が近いと思われる部位においては、TMI-2で使用された取出し装置が適用できると推定した。

のであったりと、形状が多種多様であったため、各部位に応じた様々な取出し装置が開発され、使用されました。我々は、文献情報をもとに、取出し作業に使用された取出し装置をその原理に応じて、①切断ツールA(衝撃破壊)、②切断ツールB(せん断)、③切断ツールC(溶融切断)、④燃料回収用ツール(摘み取り)、⑤吸引システム、⑥コア・ボーリング装置の6種類に分類しました。取出し作業完了後に明らかとなったTMI-2の炉心の内部状態、各場所で使用された取出し装置を図1に示します。

図から分かるように、小石状の燃料デブリは摘み取りや吸引システムを用いて取出され、塊状の燃料デブリは衝撃破壊やコア・ボーリング装置により砕いてから、小石状燃料デブリと同様に取り出しました。中でも、地質調査等で用いられるボーリング装置を改良したコア・ボーリング装置は、燃料が溶融して再固化した非常に硬い層を砕く唯一の装置として重宝されました。

#### (2) 今回の燃料取出し手順・装置の推定

TMI-2の知見を元に、今回の燃料取出し手順、取出し装置を推定しました。推定の前提条件として、燃料取出しはTMI-2と同様、冠水した状態で上部に作業台を設置し、上部から下部方向に向かって燃料を取り出すこととしました。また、炉心の内部状態は、東京電力㈱により公表されているシミュレーション結果を参考にしました。

図2は今回の1号機の内部状態、取出し手順、取出し機器について推定した結果です。シミュレーション結果による炉心の内部状態や、原子炉が作られた年代から、1号機と2、3号機の取出し手順は異なるものと推測されます。図2に示した1号機では、燃料が溶け落ち、元々燃料のあった場所に燃料はなく、格納容器内のコンクリート部まで落下しているものと考えられています。一方で、

表 1 取出し装置と燃料デブリの相互作用の推定結果(暫定版)

●:装置の性能を示す上で重要な物性、○:重要だが、測定が困難か他の物性で代替できるもの  
赤字:知見が少なく、新規に取得すべき物性、青字:過去の研究の知見を活用して取得する物性

取出し装置	主な対象	形状	粒径	密度	硬さ	弾性率	曲げ強さ	破壊じん性	動的破壊じん性	熱伝導度	比熱	融点	熔融潜熱
①切断ツールA (衝撃破壊)	塊状デブリ			○		○		●	○				
②切断ツールB (せん断)	ピン状構造物				●	●		●					
③切断ツールC (熔融切断)	板状の構造物			●						●	●	●	○
④燃料回収用ツール (摘み取り)	粒子状デブリ	○	○	●									
⑤吸引システム (固液輸送)	粒子状デブリ	○	○	●									
⑥コア・ボーリング装置 (研削)	塊状デブリ			●	●	●	○	●		●	●		

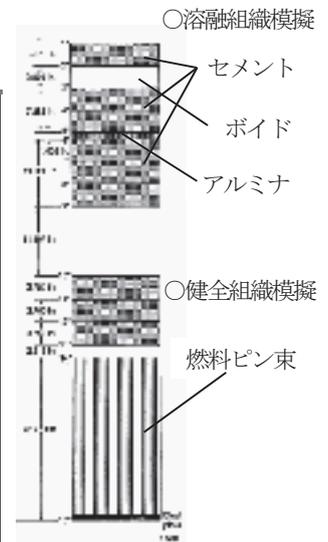


図 3 TMI-2のために開発されたコア・ボーリング装置の性能試験で使用された試験体の例

2、3号機の燃料は溶けてはいるものの、多くが元の場所に留まっていると解析されています。以上を考慮して、取出し手順、取出し装置を検討した結果、新たな装置開発は必要になるが、TMI-2で使用された実績のある取出し装置の多くは適用可能であり、その使用は非常に有益であると考えました。

### (3) 燃料取出技術開発に必要な燃料デブリ物性の検討

TMI-2で使用された取出し装置の多くが今回の取出しにも適用可能であると考え、TMI-2で使用された各取出し装置に影響する対象物の物性について整理しました。この物性の整理結果を基に、今後、サンプリングで入手予定の炉内燃料デブリと模擬物質となる材料の物性を比較し、装置開発に有益となる模擬材を提案します。

検討のプロセスとして、例えば、③切断ツールC(熔融切断)はTMI-2において原子炉下部構造物の切断に使用されたプラズマ・アーク装置を想定しています。プラズマ・アーク装置は、高温のプラズマで材料を熔融させ、熔融物をガスで吹き飛ばすことにより切断を行います。そのため、熱の伝わり方を表す熱伝導度や、熱の上がりにくさを表す比熱、何度で溶けるかを表す融点といった物性が重要となります。また、実デブリで想定されているポーラス状の物質では、その密度がこれらの熱特性に大きく影響します。また、⑥コア・ボーリング装置に必要な物性値の検討方法を示します。TMI-2で使用されたコア・ボーリング装置は硬い燃料デブリの層を削り取ることで、優れた効果を発揮しました。これは、原理的に硬いセラミックスの研削加工と類似していると思われます。研削加工では、研削時の抵抗が材料の硬さやどれだけ破壊しにくいかを表す破壊靱性と良い相関を示すことが知られており、また、研削時の摩擦で熱が発生するため、熱伝導度や比熱が重要となります。

この様に各装置に対して検討した結果を表1に整理しました。丸印で表したものが各装置に影響する物性ですが、○印で表した物性値は、形状作製が困難である等の理由から、実デブリでは測定が困難と考えられるため、●で示したものが重要と考えています。さらに、赤字で示した硬さ、弾性率、破壊靱性の機械的な物性値は過去の研究で測定された事例がほとんどないため、これらの物性値のデータを効率的に取得していくことが今後の重要な課題となっています。

これまでは今後重要となる物性について整理し、今後は、表1に示した物性値の効率的な取得計画の策定、データの取得を順次行い、最終的には図3に示す様な実作業時の装置性能を評価可能な試験体を提案予定です。

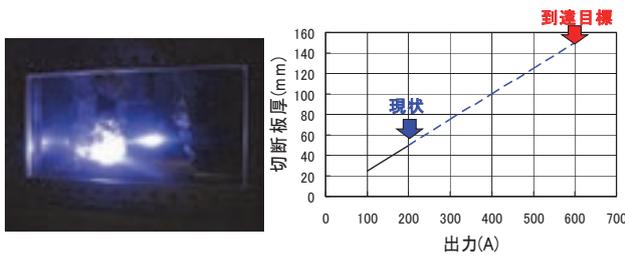
実際の燃料デブリはU、Zr、Fe、B等の多くの元素が様々な割合で混ざり合ったものと考えられるため、全てを網羅することは不可能であり、今後の検討において如何にその代表性を示すかが重要なポイントとなります。

〔引用文献〕 [1] R. Green, M. Ford, E. Bradley, Proc. GLOBAL 2011 PI-II-8 (2011)  
[2] “原子力プラントの機器搬出方法,” 特許番号: 4276808  
[3] E.L. Tolman, “TMI-2 Core Bore Acquisition Summary Report,” EGG-TMI-7385 Rev1 (1987)

## 2-6 原子炉から燃料デブリを取り出す

### —燃料デブリ及び炉内構造物の切断技術に係る研究開発—

大洗研福島技術開発特別チーム 炉内解体技術開発グループ 福井康太



(a)切断試験の状況 (b)出力と切断板厚の関係

図 1 プラズマアークによる切断試験

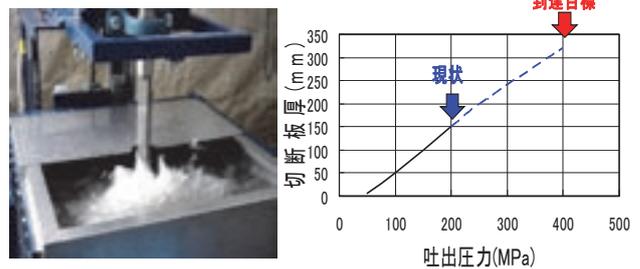
写真はプラズマアークで水槽の中で鋼材を切断している状況です。図はプラズマアークの出力と切断板厚の関係を示しています。

我々は、事業の合理化を図るため、試験研究の使命を終えた原子力施設の廃止措置等を進めており、これまでに、施設の解体に係る様々な技術や知見を蓄えてきました。1Fでは炉心溶融に至ったと考えられることから、通常の廃止措置とは異なり、燃料デブリを撤去する必要があります。過去に炉心溶融を起こしたTMI-2の事故復旧作業の経験から、燃料デブリの撤去作業は、信頼性のある工法を選定するとともに、モックアップ実証試験による性能確認が不可欠となります。また、1Fの炉内構造物は原形を留めておらず、燃料デブリと混在した状態となっていると想定されることから、燃料デブリや炉内構造物（燃料デブリ等）の取出に関しては、研究開発が必要と考えられます。

我々は、原子炉廃止措置研究開発センター（「ふげん」）、敦賀本部レーザー共同研究所（レーザー研）、大洗研究開発センター（大洗）において進めてきた各種切断技術の研究開発の成果を基に、1Fの燃料デブリ等の取出に必要な研究開発を2012年度から進めています。「ふげん」においては、プラズマアーク切断技術及びアブレイシブウォータージェット（AWJ）切断技術、レーザー研においてはレーザー切断技術、大洗においてはプラズマジェット切断技術に関する研究開発を実施し、得られた成果については、国のプロジェクトにおいて実施される2015年度の技術カタログに提案します。

#### (1) プラズマアーク切断技術の研究開発

現在廃止措置中の「ふげん」では、1F同様、材質にジルコニウム合金を使用していることから、発火防止対策等を考慮し、水中で解体する必要があります。プラズマアーク切断技術は、海外での実績もあり、「ふげん」の原子炉本体を水中で切断する技術の一つとして研究開発を進めているものです。これまでに、出力200Aで板厚50mmのステンレス鋼を水中で切断できること、切断対象物の形状が切断可能な板厚に影響を与えること等を確認しています。これらの知見に基づき、溶融再凝固により複雑な形状（表面が凹凸、多孔質等）になっていると想定さ



(a)切断試験の状況 (b)吐出圧力と切断板厚の関係

図 2 AWJによる切断試験

写真はAWJで水中で鋼材を切断している状況です。図はポンプの吐出圧力と切断板厚の関係を示しています。

れる燃料デブリ等を模擬した試験体の大気中及び水中での切断試験を実施します。また、出力を600Aに増加させた場合の切断可能な板厚や、複雑形状を模擬した試験体に対する切断性能を確認するとともに、出力、ガスの種類や流量及び先端部と切断対象物との距離（スタンドオフ）と切断性能との関係についても試験により確認します（図1）。

#### (2) AWJ切断技術の研究開発

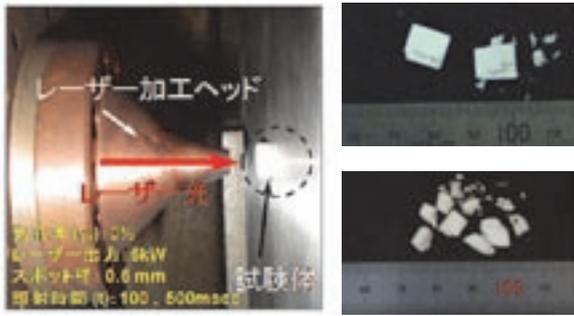
AWJ切断技術についても、プラズマアーク切断技術と同様に海外での実績があり、「ふげん」の原子炉本体を切断する技術として研究開発を進めているものです。これまでに、ポンプ吐出圧力200MPaで板厚150mmのステンレス鋼を大気中で切断できること、混合する研掃材（ガーネット）の最適な供給量等について確認しました。また、「ふげん」炉心部の特徴である狭隘な構造部分（内径φ117.8mmの圧力管）の切断が可能な小型切断ヘッドをメーカーとの共同研究で開発してきました。これらの知見に基づき燃料デブリ等を模擬した試験体の切断試験を実施し、吐出圧力に対する切断可能板厚の関係や複雑形状を模擬した試験体に対する切断性能、水圧と研掃材の粒径、供給量及びスタンドオフとの関係を調査し、切断対象物に対する適正な切断条件を確認します（図2）。

#### (3) レーザー切断技術の研究開発

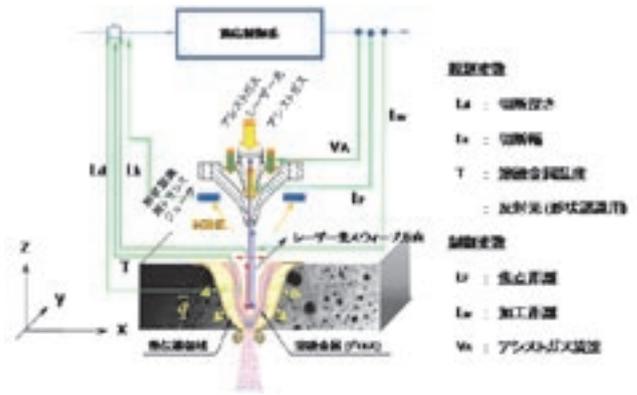
レーザー研では、原子力施設の廃止措置、使用済燃料集合体の解体等への適用を目指し、レーザー切断技術の研究開発を進めています。

レーザー切断は、直径1mm以下に集光したレーザー光を熱源とするため、二次廃棄物が少なく局所加工性に優れ、ファイバー伝送が可能なことから遠隔操作性にも優れています。また、照射条件の変更により、靱性の高い金属から靱性の低いセラミックスまで溶融、破碎することができます。

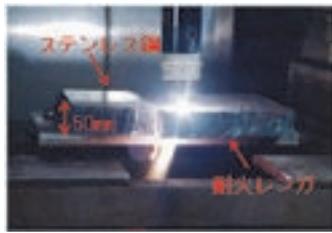
1Fへ適用する取出技術開発の予備的試験として、燃料デブリを模擬した試験体（アルミナペレット等）のレー



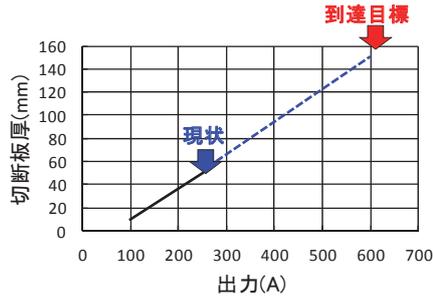
**図 3 アルミナペレットを対象としたレーザー照射破碎試験**  
 写真左は試験体のアルミナペレットにレーザー光を照射している状況です。写真右はレーザー照射により破碎した試験体です。



**図 4 ドロスを対象としたレーザー切断システムの概要**  
 レーザー照射により溶けたドロス流動の制御性を高める切断システムのイメージを示しています。



(a)切断試験の状況



(b)出力と切断板厚の関係

**図 5 プラズマジェットによる切断試験**

写真はプラズマジェットによるステンレス鋼と耐火レンガを切断している状況です。図はプラズマジェットの出力と切断板厚の関係を示しています。

レーザー照射破碎試験を実施し、レーザー出力：5kW、スポット径：0.6mm、照射時間：100～500msec の条件で、アルミナペレットを細かく破碎できることを確認しており、1Fへ適用できる見通しを得ました (図 3)。

今後、レーザー切断技術の開発においては、スタンドオフ、レーザー光の熱により生じる溶融物 (ドロス) を効率よく排出し切断効果をも高めるアシストガスの噴射、ドロスの流動、切断面にレーザー光を均一に照射するための制御特性 (ロバスト制御性) 等を定量化する必要があり、これらの特性を適切化したレーザー切断システムを構築するための試験を実施します (図 4)。また、レーザー加工プロセスシミュレーションコード (SPLICE) を用いた計算科学シミュレーションを行い、レーザー切断条件等に係る適切化を図るとともに、適切な条件下で燃料デブリ等を模擬した試験体の大気中及び水中での切断試験を実施し、切断性能の妥当性等を確認します。更に、最終的に設計・製作がメーカーなどにより行われることを想定し、システム要求仕様やレーザーの照射条件等を知識ベースとして集約します。

#### (4) プラズマジェット切断技術の研究開発

大洗では、核燃料物質等を取扱うセルの解体に適用する切断技術として、プラズマジェット切断技術の研究開発を実施してきました。プラズマジェットは、鋼材やコンクリートを切断することを目的に、高出力で使用できるよう開発したもので、トーチ先端部の形状、材質につ

いては特許を取得しています。前述のプラズマアーク切断とは異なり、トーチ内部の電極とトーチ先端部のチップとの間で放電させ、プラズマを発生させることから、金属のみならず導電性のない非金属でも切断が可能であり、出力 250A で 50mm 厚の切断性能を有しています。また、熱衝撃作用により、150mm 厚の耐火レンガ等も破碎することができます。しかし、大洗で開発したプラズマジェット切断装置は、大気中で使用することを想定していることから、水中で使用できるよう改良する必要があります。

今後は、水中使用への改良を施した後、前述のプラズマアーク切断同様、燃料デブリ等を模擬した試験体の大気中及び水中での切断試験を実施し、出力を 600A まで増加させることにより燃料デブリや 150mm 厚程度の炉内構造物切断への適用性を確認する他、ガスの種類や流量、スタンドオフ等と切断性能の関係について確認します (図 5)。

このように我々は、プラズマアーク切断技術、AWJ 切断技術、レーザー切断技術及びプラズマジェット切断技術に関する研究開発を実施しており、2012～2014 年度の 3 年間で切断試験や性能評価を行い、得られた成果を 2015 年度に整理される技術カタログに提案します。

## 2-7 燃料デブリの再臨界を防ぐ

### —溶融した燃料とコンクリートが混合した体系の臨界特性—

原科研福島技術開発特別チーム 臨界管理技術開発グループ 外池幸太郎

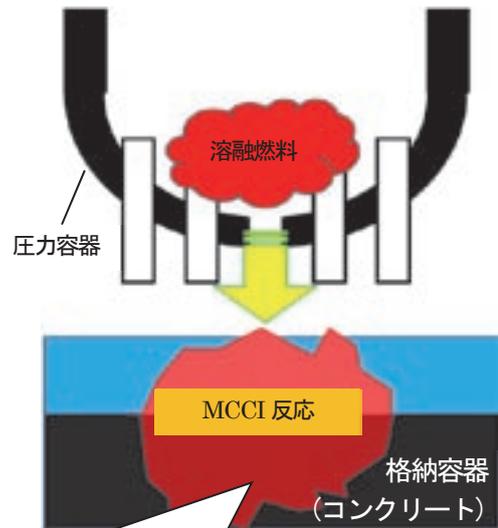
BWR が大規模な炉心溶融にみまわれると、溶融した燃料が压力容器から出て、格納容器のコンクリート製ペダスタルに達することがあります。図 1 に示すように、ここでは、溶融炉心—コンクリート反応 (MCCI) を経て溶融燃料とコンクリートの混合物 (MCCI 生成物) が生じると考えられます。

$^{235}\text{U}$  初期濃縮度が 5% 未満の BWR 燃料は、中性子の減速材 (例えば水) がなければ、どのような損傷の仕方をしても再臨界にはなりません。しかし、既報の研究で、コンクリートは中性子の吸収が比較的少ないこと、そして中性子反射体として水より大きな効果を持つ場合があることが知られています。これらの事実は、コンクリートが減速材として働き、その結果、MCCI 生成物についても再臨界防止の対策が必要となる可能性を示唆しています。このため、MCCI 生成物の臨界特性評価を進めています。

MCCI 生成物の計算モデルを作るにあたって、燃料の組成は  $\text{UO}_2$  新燃料 ( $^{235}\text{U}$  濃縮度 5%、可燃性毒物なし)、核分裂生成物 (FP) を考慮しない燃焼燃料 (燃焼度 12 GWd/t)、及び FP を考慮した燃焼燃料 (燃焼度同) の 3 種類を想定し、コンクリートの組成は普通コンクリート (結合水と自由水を含む) としました。また、燃料とコンクリートが混在する状況として、特に最小臨界量を求めるために、図 2 に示すように、コンクリート中に燃料球が非均質に存在する形態を想定しました。

その上で、1 次元球体系の中性子無限増倍率 ( $k_{\infty}$ ) を計算したところ、図 3 に示すように、広い範囲で  $k_{\infty}$  が 1 を超え、体系が臨界になり得ると言う結果が得られています。計算には、汎用核計算コードシステム SRAC (PIJ-PEACO) と核データライブラリー JENDL 3.3 を用いました。燃料体積 ( $V_m$ ) とコンクリート体積 ( $V_f$ )

の比  $V_m/V_f$  を一定に保ちつつ、燃料球の大きさを変化させています。燃料球半径が 1 cm の時に  $k_{\infty}$  が最大になっており、燃料球が小さく均質に近い状態では  $k_{\infty}$  が小さくなります。これは、 $^{235}\text{U}$  濃縮度が低い場合の特徴です。なお、図 3 に示した  $V_m/V_f = 7.0$  の条件は、 $\text{UO}_2$  とコン



#### ●MCCI 生成物

大規模な炉心溶融事故では、溶融した燃料が压力容器を貫通し、格納容器のコンクリートペダスタルと反応、燃料とコンクリートの混合物が生成される。1F では MCCI 生成物が発生していると考えられる。

図 1 溶融炉心—コンクリート反応 (MCCI)

無限増倍率が 1 を超え、体系が臨界になりうる条件が見出された。

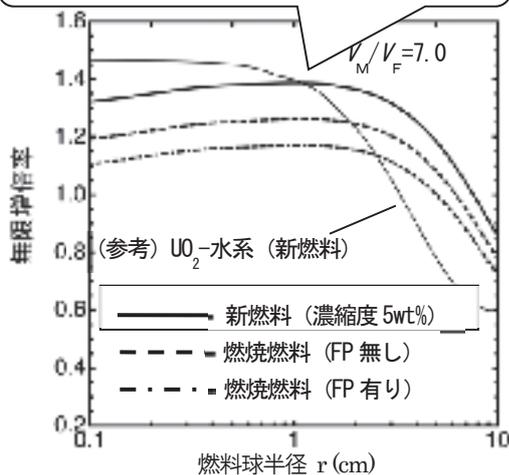
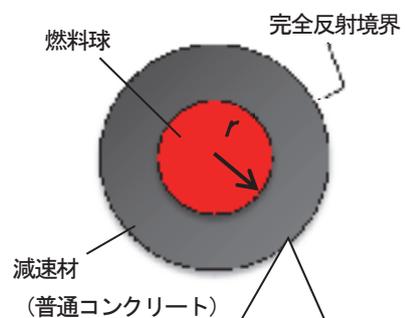


図 3 MCCI 生成物の無限増倍率

#### 1 次元球無限モデル

(PIJ-PEACO)



#### ●計算モデル

反射境界を設定することで、コンクリート中に燃料が分散した非均質無限体系を表現

図 2 MCCI 生成物の計算モデル

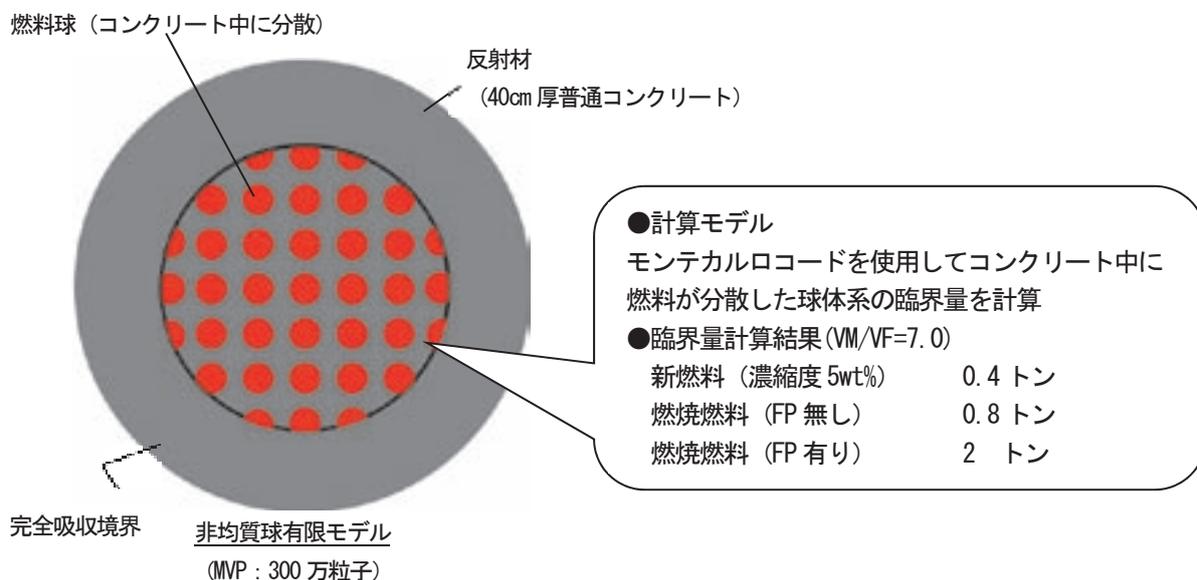


図 4 MCCI 生成物の臨界量

クリートからなる体系で $k_{\infty}$ が最大となるものを選びました。

このように  $k_{\infty}$  が最大となる条件において、有限の大きさの体系の臨界計算を連続エネルギーモンテカルロコード MVP を用いて行いました。核データライブラリーは同じく JENDL 3.3 です。計算モデルは、図 4 に示すように、コンクリート中に  $UO_2$  燃料球を非均質に配列したものを球形に切り取り、さらに厚さ 40 cm のコンクリート反射体で包んだものです。計算結果として、新燃料、FP なし燃焼燃料、及び FP あり燃焼燃料について、ウラン量がそれぞれ 0.4 t、0.8 t 及び 2 t で臨界になることがわかりました。

この値は、典型的な BWR 炉心のウラン量 (70 ~ 100 t) に比べて小さい数字です。したがって、大規模な炉心溶融にみまわれた BWR において、格納容器のコンクリート製ペDESTAL に存在する MCCI 生成物は臨界管理の対象になります。

本評価では燃焼度を 12 GWd/t としましたが、これは可燃性毒物を含む BWR 燃料が燃焼過程において最大の反応度を持つ燃焼度です。これは炉心全体の平均燃焼度 23 ~ 25 GWd/t に比べて小さいですが、しかし、上述のとおり臨界に必要なウラン量が相当に小さいことを考えれば、不合理な仮定ではありません。

一方で、今回の評価では、コンクリート以外の構造物が燃料と共存することを考慮していません。実際には制御棒由来の中性子毒物を含む可能性があり、もっと臨界になりにくいかもしれません。しかし、現時点では、BWR の炉心溶融の過程でどのように制御棒が壊れるか未解明です。溶融燃料が压力容器下部を貫通して格納容器に落下し、MCCI を経て固まる過程も不明点が多く、また、中性子毒物の偏析が起こり得るといった見もあります。したがって、燃料と中性子毒物の共存の確約はまだありません。

さらに、水分について、今回の評価では普通コンクリートの結合水と自由水を考慮しています。MCCI は極め

て高温の反応で、水分はすべて蒸発し、実際の生成物に水は含まれない可能性が高いと考えられます。水分を一切含まない MCCI 生成物について計算すると、臨界にはならないという結果が得られています。しかし、冷却水の注入により MCCI 生成物は水に浸されることから、MCCI 生成物が空隙を持てば、水が再び取り込まれると想定せざるを得ません。

いずれにせよ、臨界特性をより詳細に評価するためには、MCCI 生成物の実際の性状を把握することが重要です。今後、炉物理計算に加えて、MCCI 模擬実験を行っている研究機関との連携を通じて、より確からしい計算モデルの構築を目指します。

《参考文献》 ・ K. Izawa, Y. Uchida, M. Totsuka, K. Ohkubo, H. Sono and K. Tonoike, Infinite Multiplication Factor of Low-Enriched  $UO_2$ -Concrete System, J. Nucl. Sci. Technol., 49[11], (2012)

## 2-8 燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築(1)

### —燃料デブリ中核物質の非破壊測定法の基礎技術開発—

原子力基礎工学研究部門 原子力センシング研究グループ 呉田昌俊、大図章

J-PARC センター 中性子基盤セクション 曾山和彦、中村龍也

核不拡散・核セキュリティ総合支援センター 基盤整備支援室 瀬谷道夫

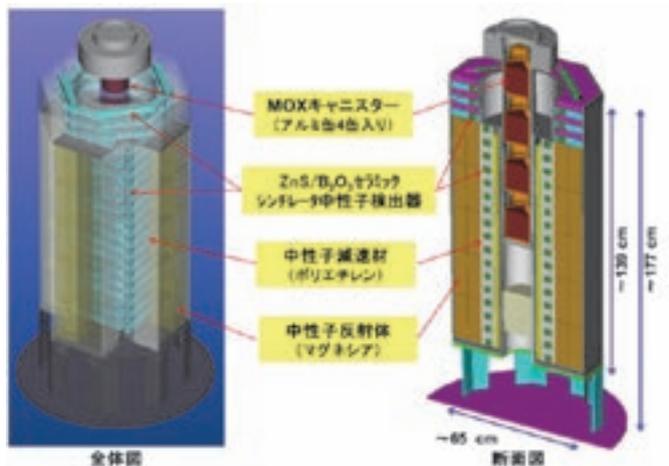


図 1 固体シンチレータ中性子検出器を組み込んだ非破壊検査装置 (基礎技術実証装置)

開発中の固体シンチレーション中性子検出器を組み込んだ非破壊検査装置を製作し、MOX 燃料を用いて基礎技術を実証します。また、He-3 中性子検出器を用いた既存の非破壊検査装置と性能を比較します。

測定が困難と考えられている状態の核物質を定量的に測定するための基礎的な技術開発を行うことにより、核不拡散・核セキュリティ強化に貢献することを目的としています。

燃料デブリ中の核燃料物質から放出される中性子を検知することにより核物質の量を非破壊で検査する方法が検討されています。しかし、世界的なヘリウム3 (He-3) の供給不足によりこれまでの He-3 を使う方法の適用が困難な状況になっており、代替中性子検出技術開発が求められています。この状況に対応するため、基礎的な技術開発として、固体シンチレータを用いる He-3 代替中性子検出技術開発を行っています。

本技術開発では、原子力機構が中性子散乱実験装置用や中性子イメージング用に開発・利用した実績がある ZnS 固体シンチレータ技術を基盤技術として、中性子を高い効率で検出することが要求される保障措置用途の非破壊検査装置に組み込んで使用できるように、新型の ZnS/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> セラミックシンチレータ中性子検出器を開発しています。核物質の測定原理は、非破壊検査装置内を飛び交う中性子と ZnS/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> とを反応させて発生する蛍光を光電子増倍管と新規開発中の電子回路を用いてカウントし、この情報と核物質から中性子が同時に複数個放出される特性を利用して核物質の量を測定します。

開発中の中性子検出器を組み込んだ非破壊検査装置の性能が、既存の He-3 中性子検出器と同等の性能となる事

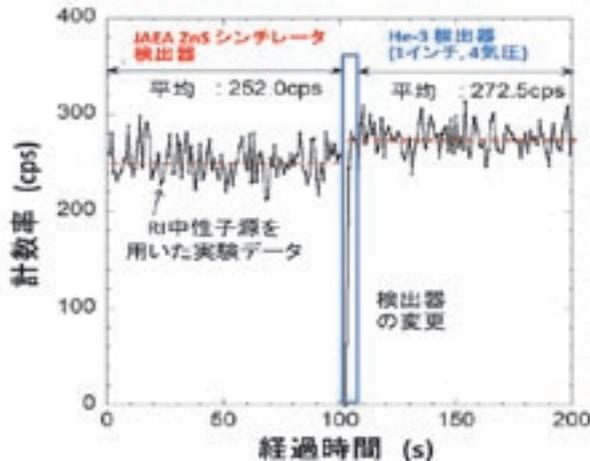


図 2 新しい ZnS シンチレータ中性子検出器(試作品)と既存の He-3 中性子検出器の比較結果

He-3 中性子検出器と比較して 73%の検出効率(体積補正後)であることを確認しました。現在、性能を向上させるため、最適な構造を研究中です。

を目標として、中性子モンテカルロ解析コード MVP を用いて図 1 に示すような基礎技術実証装置を設計し、現在、製作に着手しています。

図 1 に示す非破壊検査装置の製作と平行して、新型の固体シンチレータ中性子検出器を試作して、基本的な性能を確認したり、既存の He-3 中性子検出器と比較したりしています。図 2 に He-3 中性子検出器と比較した結果の一例を示します。この結果から、He-3 中性子検出器に近い性能(中性子検出効率)を示すことを確認しました。現在、He-3 中性子検出器と同等の性能となるように、光線追跡法コードを用いて構造の改良を研究したり、電気回路の改良を行ったりしています。なお、2013 年度には既存の He-3 中性子検出器利用装置との比較実証試験を行う計画を進めています。

本研究開発は、文部科学省「核セキュリティ強化等推進事業費補助金」(核不拡散・核セキュリティ総合支援センター総括)の「ヘリウム3 代替中性子検出技術開発」により実施しております。

## 2-9 燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築(2)

### —小石状・切出し燃料デブリ中核物質の計量管理・非破壊測定法の基礎技術開発—

量子ビーム応用研究部門 ガンマ線核種分析研究グループ 羽島良一、早川岳人、静間俊行、Christopher ANGELL  
核不拡散・核セキュリティ総合支援センター 基盤整備支援室 瀬谷道夫

10年後を目標に開始される燃料デブリの取り出しにあたっては、計量管理および保障措置のため、核物質の非破壊測定を高い精度で行うことができる技術が必要となります。そこで、レーザーと高エネルギー電子の衝突散乱により発生するレーザー・コンプトン散乱(LCS)ガンマ線を使った核物質の非破壊測定法を提案し、このための技術開発を進めています。

LCSガンマ線は、単色かつエネルギー可変の特長をもち、先端加速器であるエネルギー回収型リニアック(ERL)を用いることで高輝度かつ高フラックスのガンマ線発生が可能になります。一方、原子核は核種ごとに固有の励起準位を持っており、励起準位に等しいエネルギーのガンマ線と選択的に相互作用します(原子核共鳴蛍光散乱:NRF)。燃料デブリ中の測定すべき核種(例えばPu-239)の励起準位に等しいエネルギーを持ったガンマ線をLCSで発生し、これを燃料デブリに照射して、NRFを測定すれば、燃料デブリに含まれるPu-239の濃度を知ることができます。

このような測定法を実用化するには、高輝度かつ高フラックスのガンマ線源の開発が必要であり、また、燃料デブリの高い放射能バックグラウンド下でも高い精度で測定可能なシステム的设计も求められます。このため、以下の基礎技術開発を実施しています。

(1) ERLの試験実証機(コンパクトERL)において、LCSガンマ線の発生と利用の実証実験を高エネルギー加速器研究機構の協力を得て2013年度末までに行います。すでに、コンパクトERLの周回軌道を構成する電磁石の製作を行い、今年度は真空ダクトの製作、衝突用レーザーの開発などを進めています。

(2) 測定システム的设计評価に必要なシミュレーションコードの開発とベンチマーク研究を米国エネルギー省と共同で開始しています。共同研究は2012年1月から2年間の計画である。原子力機構が開発したNRFGeant4と米国のMCNP-X、二つのコードを比較し、コードの精度と信頼性を検証する。ベンチマークのためのU-238を用いたNRF実験をデューク大学のガンマ線施設HIGSにて昨年度実施しました。

(3) 燃料デブリのための測定システム的设计として、燃料デブリ放射能が測定に与える影響、測定に必要な時間と精度の評価を行っています。従来から提案されている試料からのNRFガンマ線を測定する方法(散乱法)、試

料で吸収されるガンマ線を下流で測定する方法(witness foil法)に加えて、二つの新しい測定法として、ガンマ線による光核分裂を用いる方法(光核分裂法)、微細な励起準位を積分して測定する方法(積分NRF法)を提案し、それぞれの測定法の比較検討を行っています。単純なモデル計算による評価によると、積分NRF法が最も優れた結果を与え、Pu-239濃度1%の燃料デブリでは、8分間の測定で統計誤差1%を得ることができるとわかりました。この研究結果を受けて、積分NRF法の実験的検証を含む新たな共同研究を米国エネルギー省から提案されており、米国側の予算措置を待っています。

本研究開発は文部科学省からの「核セキュリティ強化等推進事業費補助金(核不拡散・核セキュリティ総合支援センター総括)」の「レーザー・コンプトン散乱NDA技術開発」により実施しております。

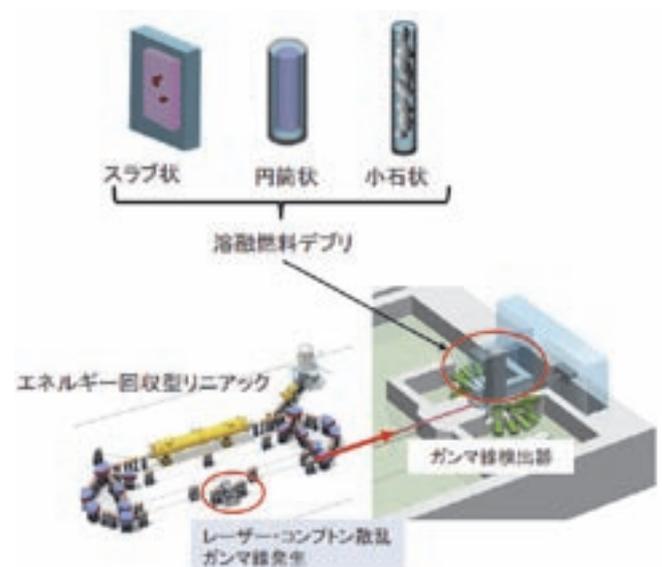


図1 燃料デブリ中の核物質の測定システム

ERLを用いたLCSガンマ線源により、単色かつエネルギー可変のガンマ線を得る。このガンマ線を燃料デブリに照射し、NRFを用いて核物質の濃度を非破壊で測定する。

【参考文献】 ・ 羽島良一他、単色 $\gamma$ 線による核種の非破壊測定：技術開発の現状、国際核物質管理学会日本支部年次大会論文集(2011)

【引用文献】 [1] C. Angell et al., Proc. The 53rd INMM Annual Meeting (2012)

## 2-10 燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築 (3)

### —粒子状燃料デブリ中核物質の計量管理・非破壊測定法の基礎技術開発—

原子力基礎工学研究部門 応用核物理研究グループ 原田秀郎、小泉光生、北谷文人、土屋晴文、飯村秀紀  
原子力基礎工学研究部門 原子力センシング研究グループ 呉田昌俊、高峰潤  
核不拡散・核セキュリティ総合支援センター 基盤整備支援室 瀬谷道夫

燃料デブリ中 U/Pu の全同位体を定量的に直接測定する技術は、過去の 2 つの SA (TMI-2 事故及びチェルノブイリ事故) 後も開発されておらず、世界的に未開発の技術分野です。

そこで、急速な冷却で破砕されて粒子状になった燃料デブリに着目し、この中に含まれる核物質を定量する非破壊測定法として、中性子共鳴濃度分析法を提案しました。この分析法は、中性子共鳴透過分析法 (NRTA) と中性子共鳴捕獲ガンマ線分析法 (NRCA) もしくは即発ガンマ線分析法 (PGA) の 2 つの手法を組み合わせたもので、加速器で発生させたパルス中性子を利用した飛行時間測定を行うものです。

図 1 に、中性子共鳴濃度分析法の概念を示します。ターゲットで発生した中性子は減速・反射材に幾度か衝突し、いろいろな運動エネルギーで飛び出てきます。燃料デブリのサンプルに到達した中性子は、捕獲されたり、散乱されたりします。中性子が捕獲されると、即発ガンマ線が放出されます。その放出されたガンマ線、および透過した中性子の量を検出器で測定します。Pu や U 同位体の中性子反応断面積には、1 から 30 eV のエネルギー範囲に特徴的な共鳴があるので、NRTA の測定により、図 2 のような中性子の透過スペクトルを得ることができ、この透過率のピークの大きさから物質量を定量することができます。

燃料デブリの核物質測定では、H、B、Cl や、Fe、Ni のような構造材の混入による影響が無視できません。これらの同位体の中には、大きな中性子反応断面積を持ったものがあり、こうした核種は中性子透過スペクトルを歪ませます。多くのこのような核種の断面積は、測定可

能な中性子エネルギーの範囲に共鳴がないため、NRTA で、それらの核種の同定・定量を行うことができません。そこで、ガンマ線エネルギーを高分解能で測定し、これらの核種の定量を行う NRCA/PGA の手法を導入します。放出されるガンマ線は、原子核によって異なるので、これを測定することにより、どの原子核がどのぐらい反応を起こしたのかを決定することができます。NRCA/PGA と NRTA で相補的な測定を行うことで、核物質の定量精度向上を目指しています。この中性子共鳴濃度分析法の基礎技術を確立するために、2012 年度からの 4 年間で技術開発を行うとともに、サンプル性状に起因する測定精度への影響を EC-JRC-IRMM との共同研究として進めています。

本研究開発は、文部科学省「核セキュリティ強化等推進事業費補助金 (核不拡散・核セキュリティ総合支援センター総括)」の「燃料デブリ中の核物質測定技術開発 (パルス中性子源利用中性子共鳴非破壊測定技術開発)」により実施しております。

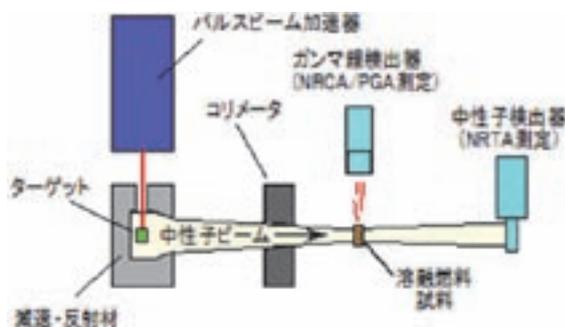


図 1 中性子共鳴濃度分析法の概念図

パルスビームをターゲットに照射し、そこで生じた中性子を減速・反射ビームラインへ送ります。溶融燃料で中性子が捕獲されるとガンマ線を放出します。透過した中性子は中性子検出器に到達します。

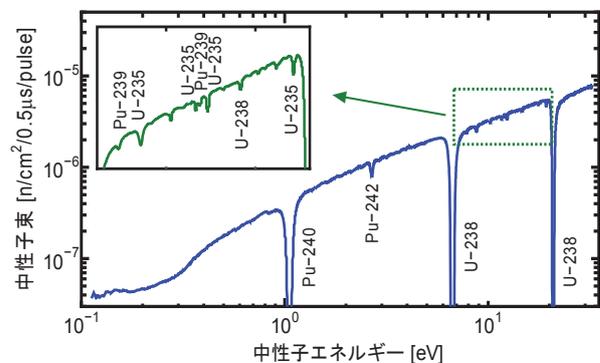


図 2 実際の核燃料を想定した中性子透過スペクトル

中性子の透過スペクトル。中性子のエネルギーは、パルスが発生してから中性子検出器に到達するまでの時間から求めます。試料は燃焼した  $UO_2$  に  $^{10}B$  が混入しています。U や Pu の同位体が中性子を共鳴吸収するので、へこみとなっています。

《参考文献》 Mitsuo Koizumi, et al., Proposal of Neutron Resonance Densitometry for Particle Like Debris of Melted Fuel using NRTA and NRCA, The proceedings of the INMM 53rd Annual Meeting, (July 15-19, 2012, Orlando, FL, USA)

## 2-11 燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築(4)

### —随伴 FP ガンマ線測定法による核物質定量性評価—

核物質管理科学技術推進部 技術開発室 相樂洋

原科研福島技術開発特別チーム 計量管理技術開発グループ 綿引優、富川裕文

大洗研福島技術開発特別チーム 燃料材料特性解明グループ 逢坂正彦、石見明洋

大洗研福島技術開発特別チーム 検知機器技術開発グループ 高崎浩司

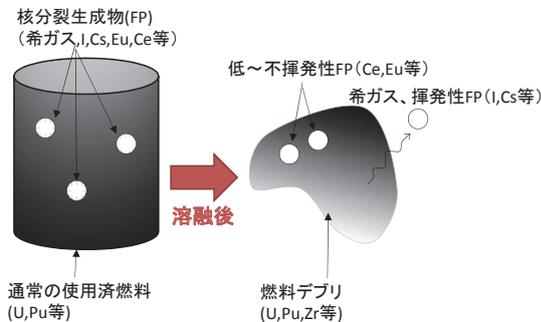


図1 燃料デブリ内の核分裂生成物(FP)

FP には燃料溶融時に放出されやすい希ガスや揮発性のヨウ素等に加え放出されにくい物質があります。

燃料デブリ中の核物質の測定技術開発により、核物質の計量管理、保障措置に貢献することを目的とし、TMI-2事故時の燃料デブリ内核物質定量に用いられた、パッシブγスペクトロメトリの適用性評価を行なっています。γスペクトロメトリ自体は既に原子力産業のみならず幅広く利用されている技術であり、その応用・延長での技術開発が見込めれば、様々な制約・不確実性のある1F敷地環境においても、柔軟性を以て運用・適用できることが期待されます。また、水の多い環境においても、高エネルギーγ線は透過性が高く影響を受けにくい利点があります。中性子が水により大きな影響を受けてしまうのとは対照的です。

U や Pu 自身もγ線を放出しますが、使用済燃料に含まれるFPに比べ強度が弱く、燃料デブリから直接測定することは困難です。そこで、U、Puと同様、SAの燃料溶融過程でも揮発性が小さく燃料デブリ内で随伴し、高強度・高エネルギーγ線を放出するFP核種に着目しました(図1)。候補FPであるセリウム(Ce)-144やユーロピウム(Eu)-154は、燃料デブリ内で低～不揮発性を示す傾向が知られ、1 MeVを超えるγ線を放出します。実際にTMI-2事故時において特にCe-144のγ線(2.184 MeV)測定により、U、Pu量を推定した実績があります。

TMI-2は加圧水型軽水炉(PWR)であったのとは異なり、1FはBWRであり、中性子のエネルギー、照射環境、装荷パターンが大きく異なります。そこでまずは核燃料内の核種重量に注目し、BWRにおけるFPとU、Pu重量の感度解析を実施しました。例えば<sup>154</sup>Euと<sup>239</sup>Puの生成比は照射位置、水のボイド率によらずきれいな燃焼度依存を示すことが分かりました。燃焼度の推定方法(<sup>154</sup>Eu/<sup>144</sup>Ceや<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs等)との組合せによるU、Pu量の推定可能性について検討を進めています。

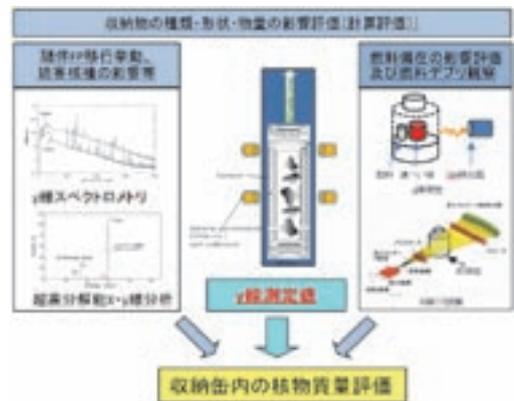


図2 随伴FPγ線測定法開発の概要

随伴FPγ線測定法の開発を進めるため、基礎試験を実施し本技術開発に資する実測データを取得します。

また、γ線測定における妨害核種の影響やFPの燃料中の移行挙動等の実測データを取得し、前述の随伴FPγ線測定法の開発のための基礎試験を実施しています。基礎試験では、γ線スペクトロメトリ及び超電導転移端マイクロカロリメータ(TES型検出器)を用いた随伴FP組成や妨害核種等の影響確認、γ線測定及びX線CT試験による燃料デブリの偏在影響確認や観察のための基礎データを取得しています(図2)。

随伴FP移行挙動の確認では、U、Puと同様、SAの溶融過程でも揮発性が小さく燃料デブリ内で随伴し、高強度・高エネルギーγ線を放出するFP核種を選定する基礎データを取得するため、加熱燃料及び未加熱燃料に対する高純度Ge半導体γ線スペクトロメトリを実施します。また、新しい放射線測定器として高分解能のTES型検出器について燃料デブリのγ線測定への適用を検討しています。

燃料デブリは原子炉内から取り出したのち収納容器に入れて保管されることが想定されていますが、核物質量を精度よく評価するためには、燃料デブリの収納状態によるγ線測定結果への影響を評価する必要があります。そのため、照射済燃料収納容器内に既存の照射済燃料を様々な状態で配置しγ線測定を実施し、γ線測定データの比較評価を行います。また、精度向上のためのオプションとして非破壊で容器内の観察が可能なX線CT装置を用いることも検討しています。そのため、溶融・固化させた物質のX線CT検査を実施し、燃料デブリ観察の基礎データを取得するとともに、X線CT技術の適用性を検討します。

《参考文献》 ・ H. Sagara, H. Tomikawa, M. Watahiki and Y. Kuno., "Feasibility Study of Gamma Spectroscopy of Low-Volatile FPs for Special Nuclear Material Accountancy in Molten Core Material," Proc. Institute Nucl. Mat. Manage. 53rd Ann. Mtg. (2012)

## 2-12 燃料デブリを取出した後どうすべきか(1)

### —化学溶解と還元・塩素化技術の開発—

原科研福島技術開発特別チーム 燃料デブリ評価技術開発グループ 松村達郎、林博和

1F 事故において燃料デブリの分析法及び処置法の検討が進められています。現在、燃料デブリの破壊分析の前処理として必要となる化学溶解法と、燃料デブリの処置に乾式処理法を適用するために必要となる還元・塩素化技術について、基盤データの取得を進めています。

精度の高い破壊分析を行うためには、試料を完全に溶解し一様な水溶液にすることが必要となります。対象となる燃料デブリは、その生成条件によっては非常に溶解しにくい相が生成することが知られていることから、使用済燃料を溶解するために従来から行われてきた加熱硝酸による方法を適用することができません。この難溶性の試料を溶解するため、反応性の高い溶融塩と高温で接触させることによって、酸に可溶性物質に分解することを試みています。

燃料デブリは、主成分がウラン (U)、ジルコニウム (Zr) 及び原子炉の構造材成分からなる酸化物であると考えられることから、試験の第 1 段階として、放射性物質を使用しない  $ZrO_2$  及び  $ZrSiO_4$  を使用した溶解試験を実施しています。試験では、溶融塩とする融剤に  $Na_2O_2$ 、 $NaOH$ 、 $Na_2CO_3$ 、 $NH_4HSO_4$  を使用し、これらの塩が完全に融解する温度まで加熱して、 $ZrO_2$  あるいは  $ZrSiO_4$  と混合しました。十分反応させた後、室温まで冷却し、塩酸にて溶解しました。溶解後の残渣の重量を測定し、溶解率を求めました。条件及び結果を表 1 に示した。融剤として  $Na_2O_2$  を使用し  $850^\circ C$  で処理することで可溶性物質に完全に分解することが可能であることがわかりました。また、 $NH_4HSO_4$  を使用する方法は、必要とされる温度条件が低く、 $ZrO_2$  に対する反応性も良好であることから、燃料デブリの生成条件及び組成によっては有効な手法となりうる事が明らかとなりました。現在、ウランを使用した模擬デブリによる試験の準備を進めており、これ

表 1 溶融塩と接触することによる分解とその生成物の塩酸による溶解率

$ZrO_2$  あるいは  $ZrSiO_4$  100mg に 10 倍以上の十分な量の融剤を加え、加熱、保持した後、放冷し、濃塩酸に溶解した。溶解後の残渣重量を測定し、溶解率を得た結果を示す。

溶解試料	融剤	温度 (°C)	時間 (分)	溶解率 (%)
$ZrO_2$	$Na_2O_2$	850	5	100
$ZrSiO_4$	$Na_2O_2$	850	5	100
$ZrO_2$	$NaOH$	500	90	75
$ZrSiO_4$	$NaOH$	500	90	100
$ZrO_2$	$Na_2CO_3$	1000	60	76
$ZrSiO_4$	$Na_2CO_3$	1000	60	0
$ZrO_2$	$NH_4HSO_4$	400	30	100
$ZrSiO_4$	$NH_4HSO_4$	400	30	14

までの試験の結果を踏まえて、さらに知見の蓄積を図り、破壊分析法の確立に資する計画です。

燃料デブリの処置法の検討では、候補の一つとして乾式による使用済燃料の再処理法が挙げられています。乾式再処理法のうち、使用済金属燃料の再処理法である金属電解法と、使用済酸化物燃料の再処理法である酸化物電解法は、準工学規模での実証試験まで開発が進んでおり、燃料デブリ処置への適用性を確認する上で適しています。一方、燃料デブリは酸化物相や金属相、その混合相など様々な相状態が存在しており、それぞれの単相に分離することは困難であるため、そのままでは金属電解法や酸化物電解法には適用できません。

金属電解法を燃料デブリに適用させるためには、酸化物を金属に変換する前処理工程が必要となります。金属カルシウム (Ca) は還元力が強く溶融塩化カルシウム中での二酸化プルトニウムの金属への還元已成功しています。しかし、このカルシウム還元法の燃料デブリへの適用性については調べられておらず、燃料デブリの乾式前処理工程の技術開発のためには、カルシウム還元法の基礎研究が必須です。

そこで、塩化カルシウム-塩化ナトリウム ( $CaCl_2-NaCl$ ) 混合溶融塩中での Ca による酸化物の全量還元の最適な条件を調べました。モル比 3:2 の  $CaCl_2-NaCl$  混合溶融塩中で白色粉末の酸化ジルコニウム ( $ZrO_2$ ) と Ca を約  $620^\circ C$  で約 13 時間加熱し還元反応させたところ、黒色粉末が得られました。粉末 X 線回折による黒色粉末の性状分析の結果、黒色粉末は金属ジルコニウム (Zr) と  $ZrO_2$  の混合物であることがわかりました (図 1)。 $ZrO_2$  と Ca の反応式は以下の通りです。

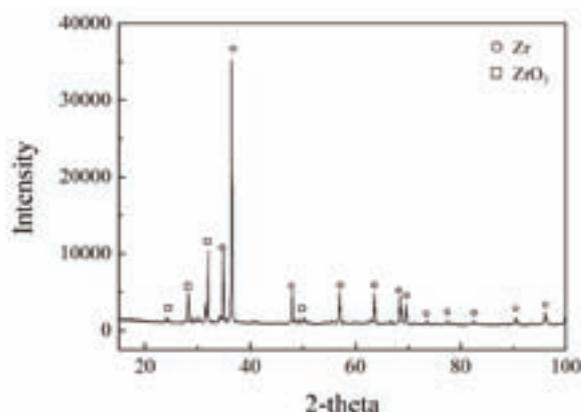


図 1 Caによる  $ZrO_2$  の還元試験後の生成物(黒色粉末)の粉末 X 線回折による分析結果

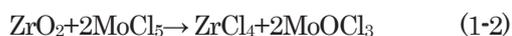
観測されたピークは、還元反応により生成した金属 Zr と未反応の  $ZrO_2$  と同定されました。

今回の条件では、大部分の  $ZrO_2$  は  $Zr$  に還元されましたが、一部未反応の  $ZrO_2$  が残ったと考えられます。また、SEM 観察より、生成物は細かい粒子が集まった多孔質状であることが明らかとなりました。よって、 $CaCl_2$ - $NaCl$  混合熔融塩中での  $Ca$  による酸化物の還元が出来ることを確認しました。また、加熱温度や時間、試薬量等の試験条件を最適化することで全量還元できる可能性が示唆されました。

一方、酸化物電解法を燃料デブリに適用させるためには、酸化物を塩化物に変換する前処理技術の開発が必要となります。五塩化モリブデン ( $MoCl_5$ ) は、従来の手法で塩素化剤として用いられてきた塩素ガスに比べて塩素化力が強く低温で反応が可能で、常温で固体であるため取扱いが容易であり、蒸気圧の高い反応副生成物 ( $Mo-O-Cl$ ) を蒸発分離可能であるという利点があります。 $MoCl_5$  を用いた塩素化法の燃料デブリへの適用性を確認するためには、 $UO_2$  及び模擬デブリの塩素化挙動の解明が必須です。

そこで、 $UO_2$  及び模擬デブリの塩素化試験の予備試験として、 $MoCl_5$  による  $ZrO_2$  の塩素化試験を行い、実験手法を確立しました。 $ZrO_2$  と  $MoCl_5$  をモル比およそ 1 : 2.1 で混合・成型してペレット状とし、ガラス管に真空封入して約  $300^\circ C$  で 5 時間加熱した結果、白色の生成物が得られ、ガラス管の低温部には反応副生成物である  $MoOCl_3$  と思われる茶色の固体が析出しました (図 2)。

粉末 X 線回折の結果、この生成物は  $ZrCl_4$  と  $ZrO_2$  の混合物であることが分かりました (図 3)。 $ZrO_2$  と  $MoCl_5$  の反応式は以下の通りです。



したがって、 $MoCl_5$  により、大部分の  $ZrO_2$  が  $ZrCl_4$  に塩素化されましたが、一部未反応の  $ZrO_2$  が残ったと考えられます。よって、 $MoCl_5$  によって  $ZrO_2$  が塩素化できることを確認し、 $UO_2$  及び模擬デブリの塩素化試験の実験手法を確立することができました。

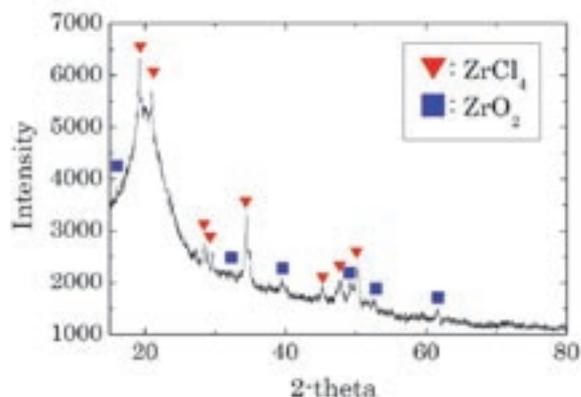


図 3  $MoCl_5$  による  $ZrO_2$  の塩素化試験後の生成物(白色粉末)の粉末 X 線回折による分析結果

観測されたピークは、塩素化反応により生成した  $ZrCl_4$  と未反応の  $ZrO_2$  と同定されました。

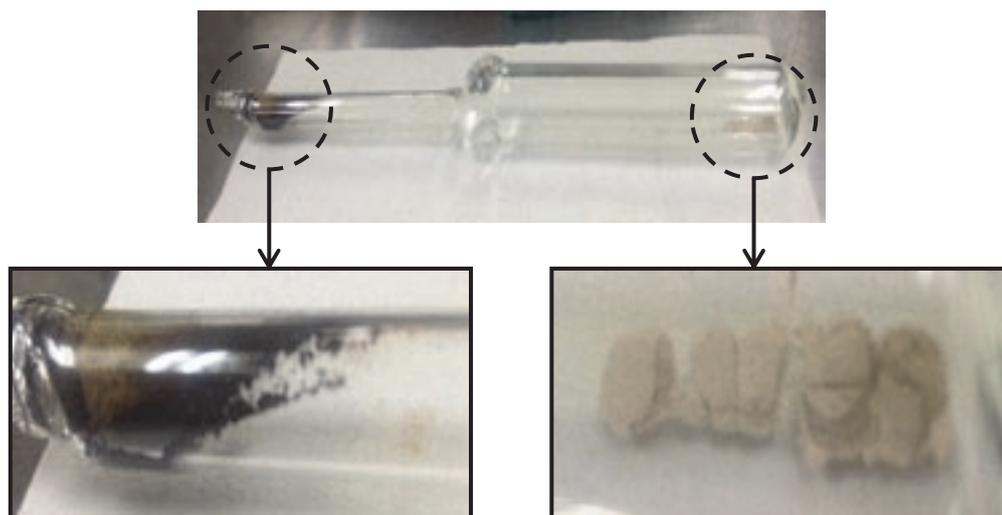


図 2  $MoCl_5$  による  $ZrO_2$  の塩素化試験後の試料外観

$ZrO_2$  の塩素化により白色の  $ZrCl_4$  が得られ(右側)、左側のガラス管の低温部には反応副生成物である  $MoOCl_3$  と思われる茶色の固体が析出しました。

## 2-13 燃料デブリを取出した後どうすべきか(2)

### —燃料デブリの処置シナリオの検討—

核サ研福島技術開発特別チーム 燃料デブリ取扱技術開発グループ 紙谷正仁、山田誠也、三本松勇二

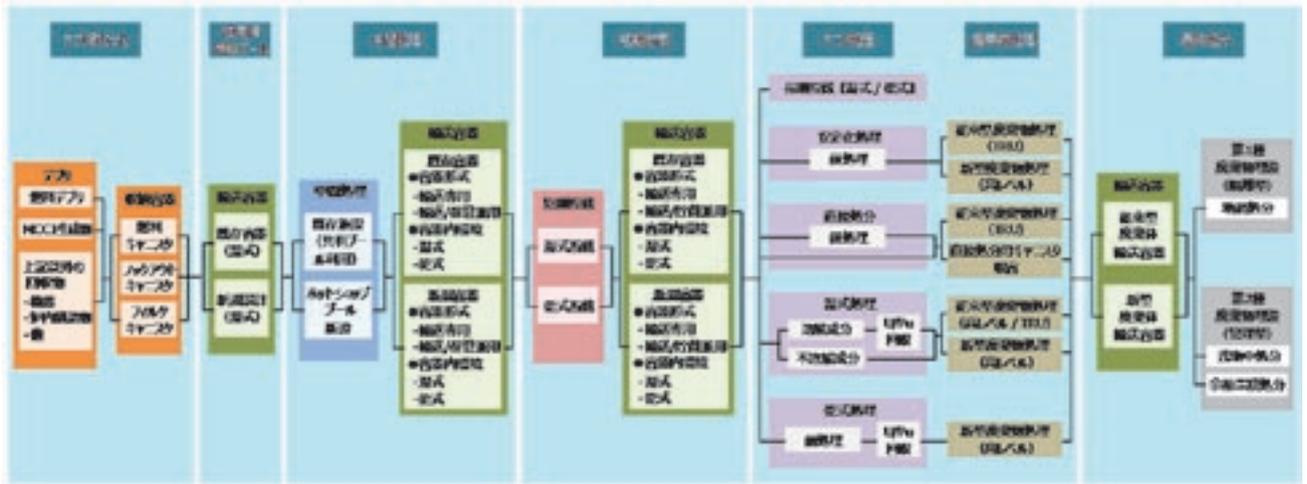


図 1 燃料デブリ取出し後から処分に至る全体工程

取出しから最終的な廃棄物の処分までには、多様なオプションが存在します。

燃料デブリの取出し後の処置（処理・処分方法）についてはステップ 2 完了後、20～25 年後に決定することとされており、その決定に至るプロセスは議論されていません。従って、燃料デブリ取出し開始時（2020 年頃）までには、燃料デブリの処置の選択・決定に係る一定の議論が必要になるものと想定し、それまでに各シナリオの比較評価に用いる情報や比較評価の進め方を決める必要があります。本検討では、想定される各種シナリオについてフィジビリティスタディを行い、今後のシナリオ比較評価の議論に備えることを目的とします。今年度のフィジビリティスタディにおける具体的な実施内容は、「処置シナリオ（案）の検討」とその「評価用データの調査・整理」です。

「処置シナリオ（案）の検討」では、シナリオ（案）を抽出し、各シナリオ案の得失を概略評価します。この評価は各シナリオの特徴を定性的に示すものとしてまとめ、次年度以降の検討の基礎とします。また、過去のフィジビリティスタディの例、1F 事故対応で考慮される事情をもとに比較評価項目・評価指標の考え方を整理します。

「評価用データの調査・整理」では、既往の文献および進行中の R&D 成果をもとに、シナリオ検討に必要な物性値、評価用の諸数値等を整理します。また、処置対象の分類・物量・形態等について、熔融状態の推定結果等を反映しつつ、不明なものは仮定を置くなどして検討・評価し、設計検討用の入力条件としてまとめます。

#### (1) 燃料デブリ取出後から処分に至るシナリオの概念

燃料デブリ取出し後から処分に至るシナリオ（全体工程）について、想定される複数の方式に基づく全体工程案を図 1 に示します。

まず、燃料デブリ収納缶への収納から短期貯蔵に至るまでの工程は TMI-2 における炉心熔融事故の対応を参考

としています。燃料デブリ収納缶として複数の収納缶（燃料キャニスタ、ロックアウトキャニスタ、フィルタキャニスタ）を準備し、燃料デブリ回収片の大きさにより、収納缶の種類を使い分けます。大型の破片は燃料キャニスタ、小型の破片はロックアウトキャニスタ、更に小さな微小粒子片はフィルタキャニスタに回収します。

次に、サイト内中間処理施設へ燃料デブリ収納缶を輸送するため、専用移送装置により燃料デブリ収納缶を炉内から既設使用済燃料プールへ移送し、プール内にて輸送容器に収納します。中間処理施設は、短期貯蔵前に燃料デブリ収納缶内容物の確認、及び事前処置（脱水、乾燥処理、不活性ガス充填、密封処置）を行うための施設で、処置完了後に、短期貯蔵施設への輸送のため燃料デブリ収納缶を輸送容器（輸送貯蔵兼用又は輸送専用）へ収納します。

短期貯蔵施設では、燃料デブリ収納缶を湿式または乾式にて貯蔵します。貯蔵方式は、湿式貯蔵（水プール貯蔵）、乾式貯蔵（金属容器（キャスク）貯蔵、コンクリートモジュール貯蔵、ボールト貯蔵等）の中から選択します。短期貯蔵は、処理・処分の方策を決定するまでの時間的な裕度を付与する機能を有します。

短期貯蔵以降の工程は、従来の再処理工程や廃棄物の処分工程等から、基本的に燃料デブリの処分工程と最終処分の工程で構成されます。処分工程は、最終処分に向けた安定な廃棄体を製造するための工程で、燃料デブリの処分、それにより発生する廃棄物の処理（廃棄体の製造）の各工程で構成されます。処分工程は従来の処分区分に基づく工程です。

燃料デブリ処分方式の選出は以下の各方針に基づいています。

- ① 具体的な処分方策が決定されるまで貯蔵
- ② 簡素な処置を前提とし、U/Pu を回収せず燃料デブリをそのまま処分

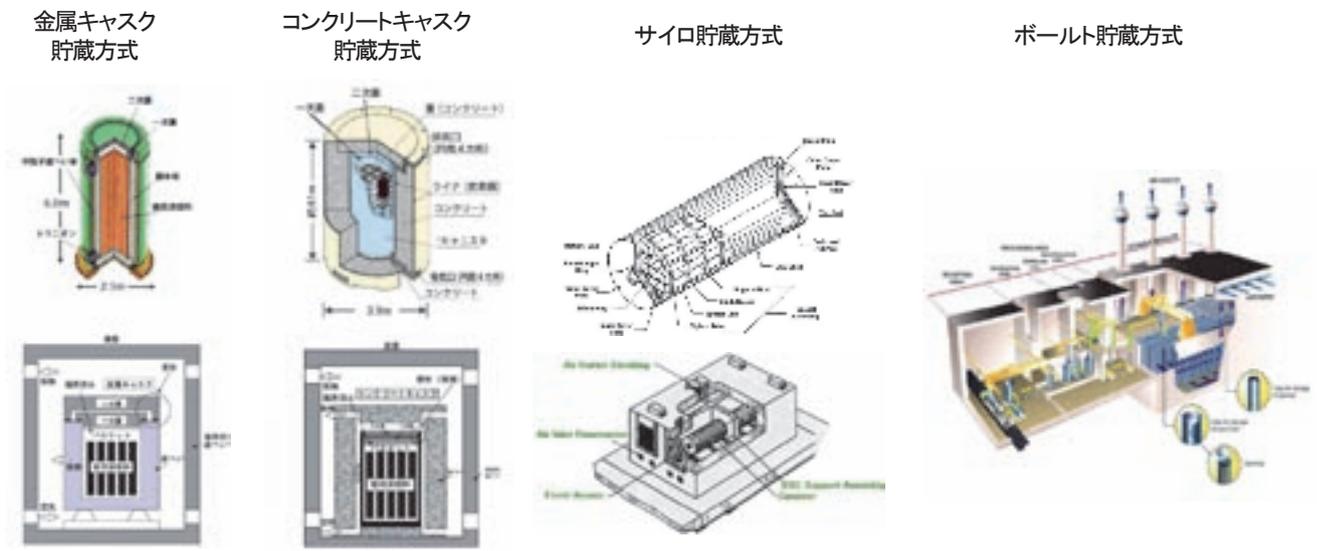


図 2 各種貯蔵方式の例

乾式貯蔵方法 1 つにも複数の選択肢があり、各々に利点/問題点があります。

- ③ 簡素な処置を前提とし、U/Pu を回収せず燃料デブリを安定な廃棄物として処分
- ④ U/Pu を回収し極力現行の処分体系の中で廃棄物を処分

上記の各方針に対応して、長期貯蔵、直接処分、安定化処理、処理（湿式、乾式）を燃料デブリの処置方式として選出しています。

## (2) 燃料デブリ短期貯蔵工程の得失比較

全体工程を構成する各工程の一部（燃料デブリ短期貯蔵工程）について、想定される複数の方式案の得失を整理しました。

湿式貯蔵方式と乾式貯蔵方式の比較の結果、安全性（冷却材喪失対策）、設備構成、経済性、今回の事故への適用性等の点で、乾式貯蔵方式に優位性があると考えられます。乾式貯蔵方式のメリットをまとめると以下となります。

- ・ 使用済燃料からの崩壊熱除去には、自然対流を利用しているため動的機器を必要としない。
- ・ 主要な設備は貯蔵容器と建屋（あるいは貯蔵容器のみ）で構成されており、基本的安全機能（閉じ込め、遮へい、臨界防止、除熱）をキャスクが自己完結的に有するので設備・施設構成が単純である。
- ・ キャスクの調達が可能のため、初期投資が小さい。静的な冷却となるため、非常用の電源や補給水系等の設置が不要となり、付帯設備費が小さい。また、運転コストも小さい。
- ・ 今回事故を起こした発電所内に新たに設置予定の乾式キャスク仮保管設備を流用できる可能性があり経済的メリットが大である。

乾式貯蔵方式（図 2）として、金属キャスク貯蔵方式、コンクリートモジュール貯蔵方式（コンクリートキャスク貯蔵方式、サイロ貯蔵方式）、ボルト貯蔵方式等が上げられます（TMI-2/INL のケースはサイロ貯蔵に該当すると考えられます）。各方式の比較の結果、安全性（収納

物の詰替えに伴う被ばくや落下リスクが低い）や国内実績の点で金属キャスク貯蔵方式（輸送貯蔵兼用）が、一方、経済性の点では、コンクリートモジュール貯蔵方式が優位と推定されます。今後シナリオ全体の総合的な評価による方式の選定が必要となります。

今後は、全体プロセスを構成する各工程において想定される複数の方式（技術的選択肢）の得失比較および絞り込みを行います。

更に、技術的選択肢の組み合わせで構成されるシナリオ選択肢案の選定および得失評価を行います。

検討課題としては、以下の 3 点が挙げられます。

- ① 燃料デブリの取出し開始までには、燃料デブリ収納缶や貯蔵設備の準備を完了する必要があるため、完了時期を考慮した方式の選定が必要です。
- ② 最終処分側から要求される安定な廃棄体仕様と整合のとれた燃料デブリ処理プロセスを構築する必要があるため、処理側と処分側の相互からの評価が必要です。
- ③ 今後、別途検討が進められている計量管理方策のシナリオへの反映が必要です。

《引用文献》 [1] 電中研レビューNo.52 p16,2006.2

## 2-14 燃料デブリを取出した後どうすべきか(3)

### —湿式処理技術の適用性検討—

核サ研福島技術開発特別チーム 燃料デブリ取扱技術開発グループ 矢野公彦  
核燃料サイクル工学研究所 福島技術開発試験部 試験運転第2課 星野貴紀、荻野英樹

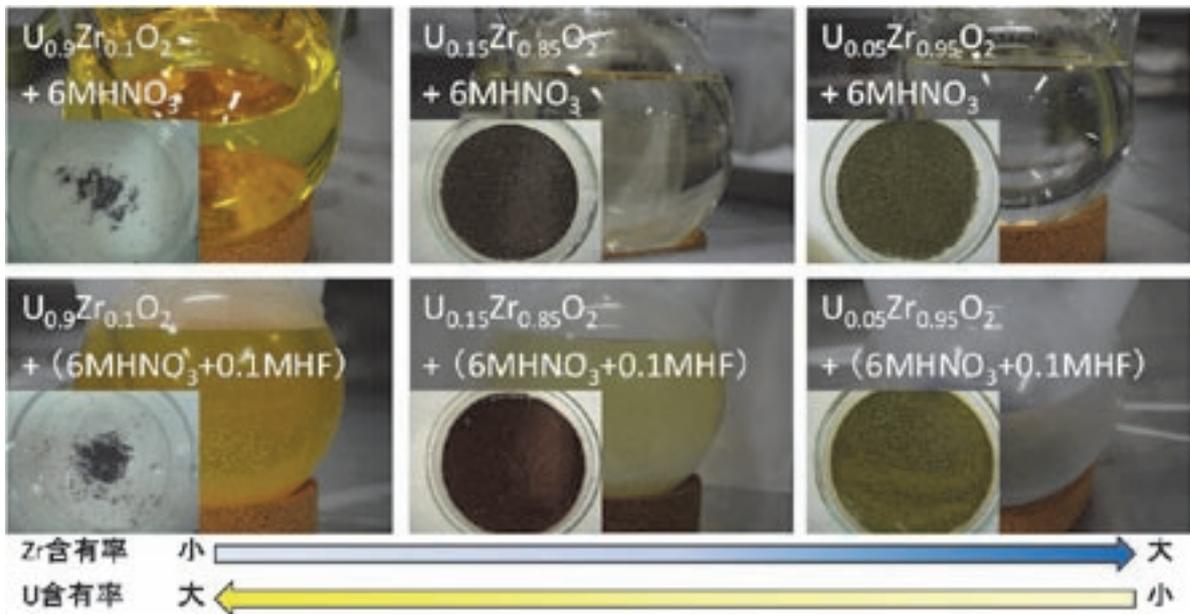


図1 模擬デブリ硝酸溶解時の溶液及び4時間後の残渣の外観

溶解液の色及び残渣の量から、UとZrの割合が溶解性に大きな影響を与えていることがわかります。

今回の1~3号機における炉心熔融事故では炉・建家内に燃料デブリが多量に存在すると考えられており、廃炉に向けて炉内から取り出し、その後安全な状態で処置されることとなります。取り出し後の処置については、長期保管や直接処分といった種々の処置方法から合理的な方法を選択するために、現在考えられる種々の選択肢について調査研究を行い、その得失を大まかに評価し議論することが必要であると考えられます。本件は、その種々の処置方法のうち、湿式処理技術を利用したものについて、得失を把握するための基礎データを蓄積することを目的としています。

湿式処理を利用した処置方法を採用する上でのメリットは、使用済燃料の湿式再処理技術(PUREX法)を基盤とした既存技術が最大限に利用可能になることが挙げられます。3機分の燃料デブリは合計で数百トン以上の量となることが想定され、これらを安全に処分できる状態に処理する場合、ある程度の規模の処理プラントが必要になります。それに対して湿式再処理技術を利用することにより、①従来の湿式再処理とほぼ同様な取り扱いができる製品(回収された核物質)や廃棄物を作製可能であること、②唯一の商用として採用されている使用済燃料の再処理技術であり、プラントの運転経験や機器の設計製作などの技術についても国内に知見があること、③そのため燃料デブリの処理について基本的なプロセスを実証すること、ができれば、大型化、プラント化に向けては、既存技術を利用することで比較的少ないR&Dとすることが可能であり、開発コストを抑えることができると、などがメリットになり得ると考えられます。

一方で、燃料デブリ処理の方法として湿式処理技術については、従来の健全な使用済燃料の再処理と最も異なる点のひとつである、燃料デブリを受け入れてから溶液化するまでのプロセスについて、十分に検討する必要があります。特に硝酸による溶解工程については、TMI-2の事故をはじめとした過去の事故事例やSAを対象とした安全研究の知見から、燃料デブリが硝酸に溶解しにくいことが言われており、この点について確認し、溶解方法を決定しておく必要があります。

過去の事故事例やSA研究の知見から、今回の事故においてもその主成分のひとつとして、ウラン・ジルコニウム酸化物固溶体、 $(U,Zr)O_2$ が生成しているものと考えられますので、今回はこれについて、その硝酸溶解性を実験的に確認しました。

まず、本試験で使用した燃料デブリの模擬体(模擬デブリ)は $(U,Zr)O_2$ を選定し、その組成比については、 $UO_2-ZrO_2$ 擬二元系状態図を参照し、比較的低い温度領域での生成相となる3つの相(立方晶、正方晶、単斜晶)における代表的な組成として、UとZrの合計の物質量を100mol%としたときのU含有率90mol%、15mol%、5mol%の3組成を選定しました。これらを水に通じて水分を含ませた水素100%の雰囲気中で1750℃にて、8時間焼成し、100-850 $\mu m$ の粒径に粉碎したものを出発物質としました。

溶解に使用した試薬は、6M硝酸溶液と、マスキングなど方法が過去のR&Dなどで検討されていたフッ酸を0.1M含んだ6M硝酸(フッ硝酸)を選定し、80℃におい

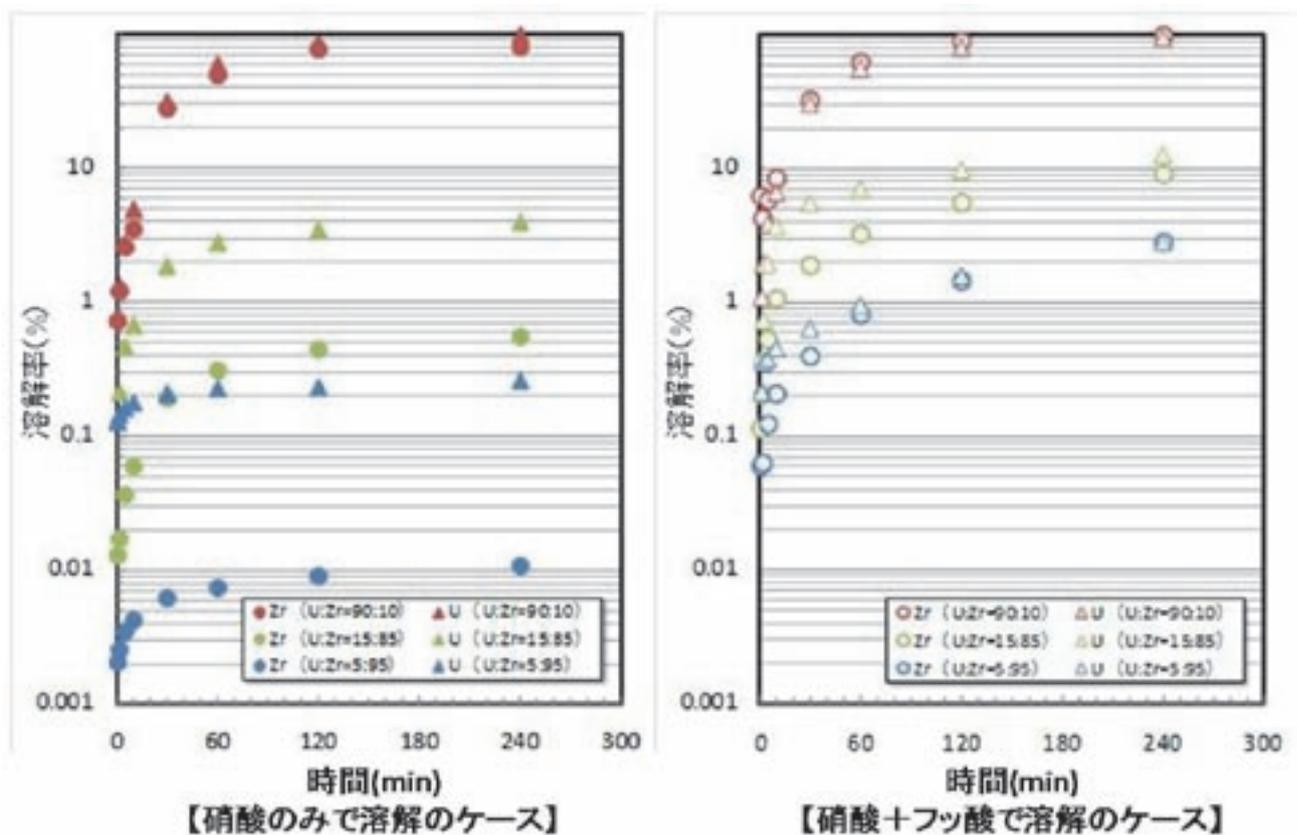


図 2 模擬デブリ溶解時の U 及び Zr 濃度の経時変化

U 含有率が低いほど溶解しづらいこと、フッ酸の添加により、特に Zr 溶解率が改善していることなどがこの結果から読み取れます。



図 3  $UO_2$  固溶化による燃料デブリの可溶化処理プロセス

ここで提案するプロセスは、難溶性の燃料デブリを可溶化するために PUREX 工程に付加する前処理工程に相当します。

て 4 時間、溶液中の U および Zr の濃度変化を測定しました。

試験の結果 (図 1 及び図 2)、U 含有率の低い (Zr 含有率の高い) 模擬デブリは硝酸でほとんど溶解できないこと、U 含有率の高い模擬デブリは硝酸にもほとんどの量溶解できることが確認できました。またフッ酸の添加効果としては、いずれの条件においても溶解性 (特に Zr) を向上させるものの、U 含有率の低い模擬デブリの溶解量は総量としては少ないことが分かりました。

本試験結果をもとにして、U 含有率の高い模擬デブリは硝酸で溶解できることから、湿式処理の前処理として  $UO_2$  を添加して燃料デブリを U 含有率の高いものへ調整することで燃料デブリを硝酸に溶解可能な状態とするプロセス (図 3) が考えられます。

U 含有率 5mol% の模擬デブリの硝酸溶解の残渣に対して、上記処理として U 含有率が 90% となるように  $UO_2$  を添加し、成型後に焼成したところ、処理前は溶解率 1% 未満であったものが、処理後において約 96% の溶解率を示し、飛躍的に溶解率を向上させる結果を得ました。

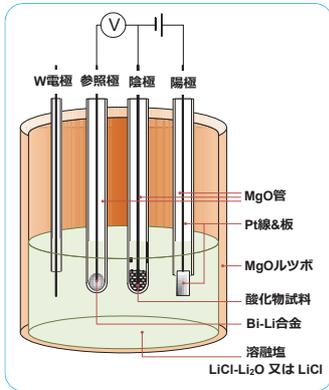
今後の予定としては、 $(U,Zr)O_2$  の硝酸溶解における反応メカニズムを実験的に検討しつつ、溶解性に関する基礎データの拡充を図ることとしています。また、燃料デブリの材質は多種多様なものであると考えられるため、これらについて明らかになった場合は、その材質についても溶解性を調査していくこととしています。

《参考文献》 ・ 星野貴紀、他、日本原子力学会 2012 年秋の大会 C20  
 ・ 矢野公彦、他、日本原子力学会 2012 年秋の大会 C21  
 《引用文献》 [1] I. Cohen et. al., J. Nucl. Mater. 9[1] (1963)18-52

# 2-15 燃料デブリを取出した後どうすべきか(4)

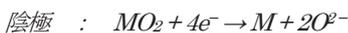
## —溶融塩技術の適用性検討（溶融塩中 ZrO<sub>2</sub> 化合物の還元挙動評価）—

核燃料サイクル工学研究所 福島技術開発試験部 試験運転第1課 北脇慎一、仲吉彬  
核サ研福島技術開発特別チーム 燃料デブリ取扱技術開発グループ 小藤博英  
電力中央研究所 原子力技術研究所 燃料サイクル領域 坂村義治、飯塚政利



### 【電解還元の原理】

陰極上の酸化物を電気化学的に金属に還元



陰極の電位が金属 Li 析出電位に達すると



図 1 試験装置概略と電解還元の原理

LiCl-Li<sub>2</sub>O 又は LiCl 溶融塩を電解質として、陰極に酸化物試料を装荷して電解を行う。陰極では酸化物が電子を受け取り金属に還元され、酸化物イオンが生成する。

原子力機構と電中研は、酸化物燃料を金属に還元して再処理する乾式法の共同研究を進めており、この技術を活用して乾式法による今回の事故で生じた燃料デブリの処理についての検討を開始しました。TMI-2 における炉心溶融事故の調査結果等から、燃料デブリは(U, Zr)O<sub>2</sub> の固溶体を主成分とする形態になっていると考えられており、この固溶体中の核燃料物質を還元することができれば、従来研究が進められてきた酸化物燃料の処理と同様に均質化溶解処理や核燃料物質のみを金属として回収できる可能性があります。

本研究では、破損燃料の前処理法として期待される手法として、ZrO<sub>2</sub> との固溶体を形成した UO<sub>2</sub> を電解により還元できることを明らかにすることを目的とした基礎実験を実施しました。

試験としては、(U,Zr)O<sub>2</sub> を用いた電解還元試験の他、電解還元により生じたリチウムジルコネート Li<sub>2</sub>ZrO<sub>3</sub> の特性を調べるための ZrO<sub>2</sub> を用いた実験も合わせて実施しました。その内容について紹介します。

(U,Zr)O<sub>2</sub> 試料としては、2600℃以上での溶融固溶化により調製された Zr 含有量の異なる 3 種の固溶体試料をそれぞれ粉碎して用いました。還元の対象となる ZrO<sub>2</sub>、Li<sub>2</sub>ZrO<sub>3</sub> は、市販の粉末状試料を用いました。

試験装置である電解槽の概念を図 1 に示します。電解

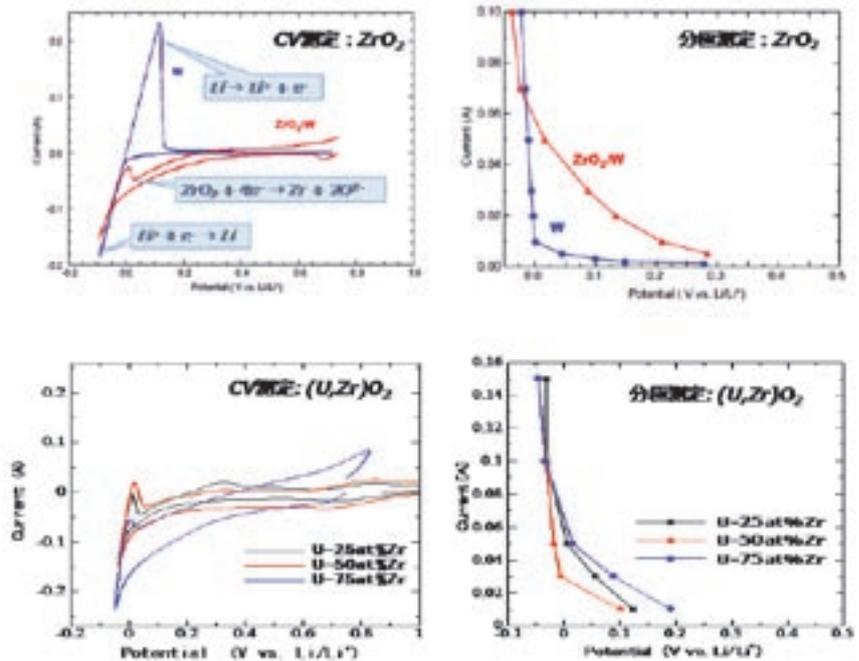


図 2 ZrO<sub>2</sub> 試料及び(U, Zr)O<sub>2</sub> 試料の CV と分極曲線(陰極)

電解還元前に測定した CV(左の上下)では 0.05V (vs. Li/Li+) 付近に還元反応を示す還元ピークが見られた。分極曲線(右の上)では、ZrO<sub>2</sub> の還元電流が観測され、(U,Zr)O<sub>2</sub> 試料においても同様の傾向が見られた。

還元の原理も合わせて示しています。試料として約 0.2g の酸化物を切り欠きを設けた MgO 管に装荷し、MgO 製ルツボ内の 650℃で溶融した溶融塩 (LiCl 又は LiCl-Li<sub>2</sub>O) に浸漬しました。電解前に測定したサイクリックボルタモグラム(CV) 及び分極曲線を図 2 に示します。CV では、0.05V(vs. Li/Li+) 付近に、ZrO<sub>2</sub> あるいは(U,Zr)O<sub>2</sub> の還元波が確認できます。

分極曲線を基に、初期電流値を 50mA として定電流電解を行いました。電解中は、陰極電位を連続的に測定し、過電圧による過剰な金属 Li の析出を抑制しました。

電解終了後に MgO 管から生成物を取り出し、X 線回折 (XRD) によって還元生成物の同定を行いました。

次に試験結果について紹介します。図 3 の①～③に、(U, Zr)O<sub>2</sub> 固溶体の U と Zr の比を変えた各ケースにおける電解還元後の試料の様子と電解前後の X 線回折パターンを示します。U 割合が大きい①では未還元の UO<sub>2</sub> が残るものの、還元された U 金属が観測されました。

Zr 割合を高くしていくと未還元の UO<sub>2</sub> は減少し、③では観測されなくなりました。一方、いずれのケースにおいても Zr 金属は観測されず、Zr と Li の複合酸化物であるリチウムジルコネート Li<sub>2</sub>ZrO<sub>3</sub> が観測されました。

電解還元によって生じる Li<sub>2</sub>ZrO<sub>3</sub> の生成及び還元挙動を図 3 の④及び⑤に示します。いずれにおいても電解後

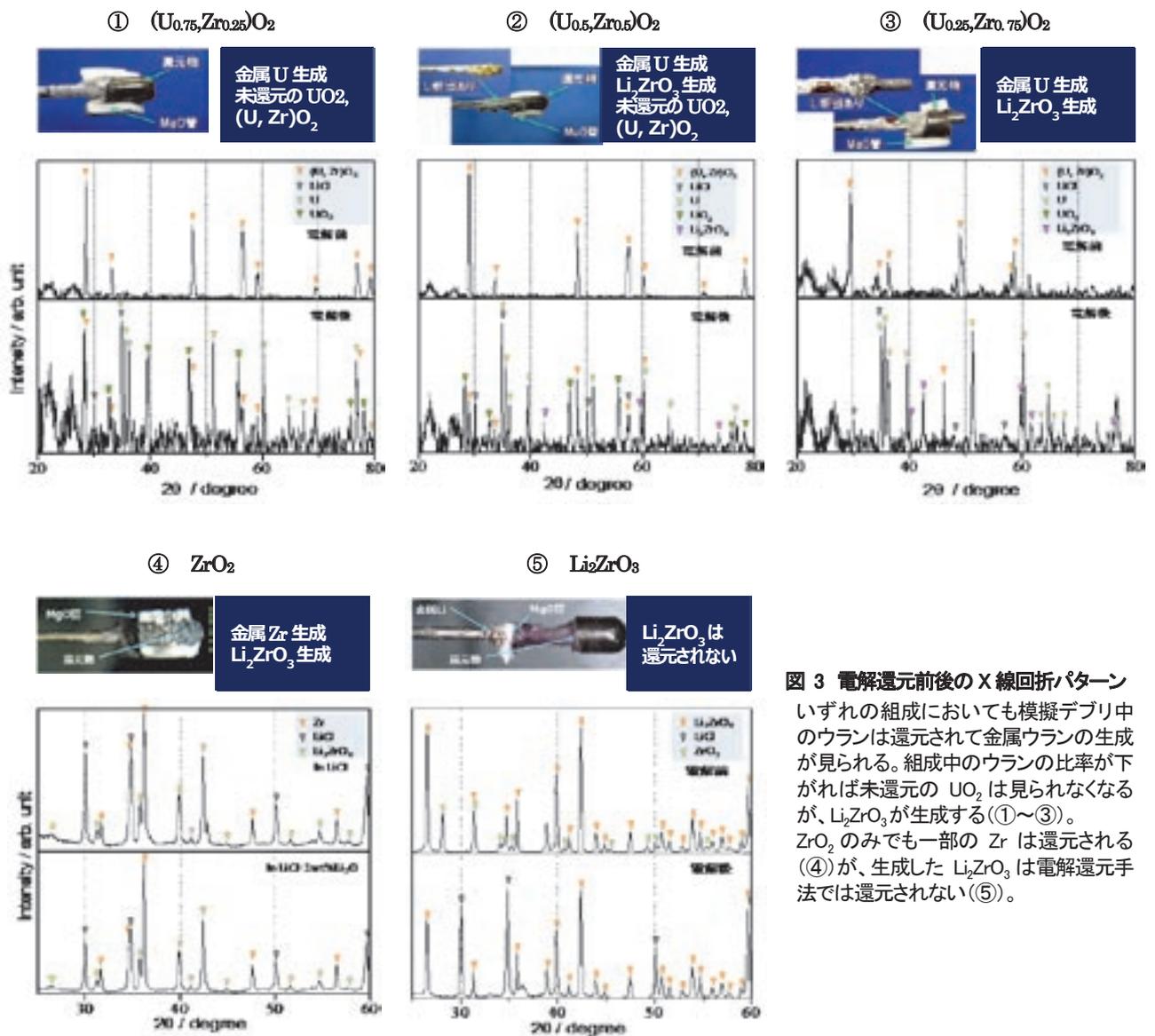
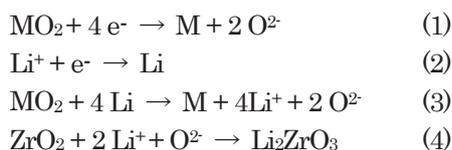


図 3 電解還元前後の X 線回折パターン  
 いずれの組成においても模擬デブリ中のウランは還元されて金属ウランの生成が見られる。組成中のウランの比率が下がれば未還元の  $UO_2$  は見られなくなるが、 $Li_2ZrO_3$  が生成する(①~③)。 $ZrO_2$  のみでも一部の  $Zr$  は還元される(④)が、生成した  $Li_2ZrO_3$  は電解還元手法では還元されない(⑤)。

に  $ZrO_2$  のピークは観測されず、金属  $Zr$  と  $Li_2ZrO_3$  の生成が確認できました。従って、 $ZrO_2$  は電気化学的な還元反応 ((1)式) 及び金属  $Li$  による還元反応 ((2)+(3)式) により金属  $Zr$  に還元され、その際に放出される  $O^{2-}$  イオンが未還元  $ZrO_2$  と反応して  $Li_2ZrO_3$  を生成する ((4)式) と推定できます。一方、 $Li_2ZrO_3$  を出発物質とした場合には生成物中に金属  $Zr$  は観測されなかったことから、一旦生成した  $Li_2ZrO_3$  は電解では還元し難いことがわかりました。



以上の結果から、 $LiCl-Li_2O$  中において電解還元により固体中の  $UO_2$  は金属に還元できますが、 $ZrO_2$  から生成した  $Li_2ZrO_3$  が付随し、還元生成物は、金属と酸化物の混合物として得られることがわかりました。

以上をまとめます。(U, Zr) $O_2$  についても、塩浴中で

の電解還元による金属  $U$  の生成が可能です。一方、 $ZrO_2$  は塩浴が  $LiCl$ ,  $LiCl-Li_2O$  中のいずれにおいても還元されますが、一部は  $Li_2O$  と反応して複合酸化物である  $Li_2ZrO_3$  が生成します。生成した  $Li_2ZrO_3$  は電解還元手法では  $Zr$  金属に還元されませんが、 $UO_2$  の還元を妨害しないと推察されます。生成した  $Li_2ZrO_3$  が電解精製工程に移行すると、電解槽の  $LiCl-KCl$  熔融塩中の  $UCl_3$  を  $UO_2$  として沈殿させる可能性があるため、電解精製槽への移行を避ける措置が必要です。

今後、 $Li_2ZrO_3$  の熔融塩中での挙動を把握すると共に、電解精製により  $U$  を回収して廃棄物の減容化を図る様なプロセスを構築する場合は、金属  $U$  と  $Li_2ZrO_3$  の分離方法を検討する必要があります。現状では、 $Bi$  や  $Cd$  等の液体金属により  $U$  を回収することによる分離等が候補として挙げられます。

〔引用文献〕 [1] R. K. McCardell, et al., Nucl. Eng. Des., 118, pp. 441-449(1990)

## II. 放射性廃棄物の処理・処分にに向けて

<b>3</b>	<b>長期間の安定保管・処分のために</b>	
	—性状調査・長期保管・処理・処分検討—	5
3-1	水処理二次廃棄物の性状を調べる	
	—廃ゼオライトの熱特性と放射能吸着量—	5
3-2	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(1)	
	—セシウム吸着塔内での水素の発生と拡散—	5
3-3	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(2)	
	—セシウム吸着塔内に残留する塩分の影響—	5
3-4	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(3)	
	—フェロシアン化ニッケルのガンマ線照射試験—	6
3-5	水処理二次廃棄物の処理方法を調べる	
	—廃ゼオライトのガラス固化試験—	6
3-6	効率的な汚染水処理技術を目指して	
	—Cs や Co などを一括除染する沈殿法—	6
3-7	ガレキ等廃棄物の処理・処分にに向けて	
	—性状の把握と従来処分法の適用性検討—	6



# 3 長期間の安定保管・処分のために

## —性状調査・長期保管・処理・処分検討—

核サ研福島技術開発特別チーム 廃棄物処理処分技術開発グループ 芦田敬

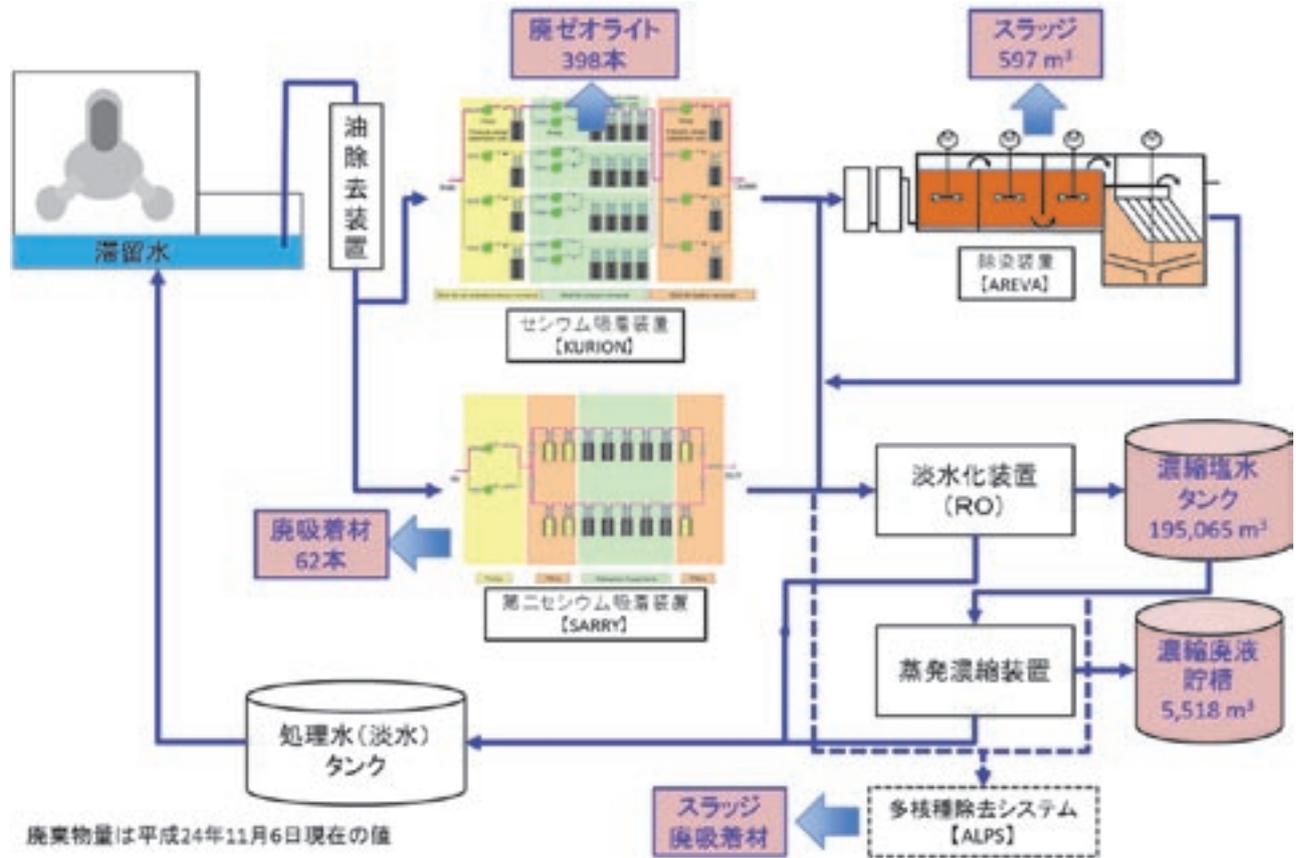


図 1 汚染水の浄化システム

原子炉建屋に滞留している放射性核種で汚染された水は、浄化した後に冷却水として再利用されます。油除去、セシウム吸着、淡水化などの処理によって淡水を得る一方で、ゼオライト、スラッジ等の廃棄物や濃縮塩水が生じています。

東京電力(株)福島第一原子力発電所(1F)では、事故に伴って原子炉等施設が損傷するとともに、敷地が汚染されました。燃料の安定な冷却、敷地内の線量の低減、原子炉の廃止措置等が必要であり、これらを行う過程で放射性廃棄物が発生しています。爆発等の異常事象に起因していることから、従来の原子力施設からの廃棄物とは性状が異なるものが多量に発生しており、その対策には技術開発を要します。原子力機構は、国の研究開発プロジェクトのうち「汚染水処理の廃棄物安定化」と「廃棄物の処理処分検討」のプロジェクト実施者として、廃棄物の処理・処分技術開発に取り組んでいます。現在、原子炉建屋等に滞留している放射性汚染水の処理に伴う二次廃棄物と敷地に散乱したガレキ等の廃棄物を対象として処理・処分に向けた対策を検討しています。本章ではそれぞれの概要を紹介します。

### (1) 汚染水処理からの二次廃棄物への対応

原子炉建屋等に貯留されている汚染水は、セシウムやストロンチウム等の放射性核種を除去して、燃料の冷却に再利用されています。汚染水の浄化システムは、図1に示すようにゼオライト等の吸着材を用いた複数の放射性核種吸着システム、数種の凝集沈殿システム及び淡水

化の組み合わせで構成されているため、その処理に伴って廃吸着材、スラッジ及び濃縮廃液等の二次廃棄物が発生します。この二次廃棄物について、中間貯蔵を経て廃棄物の処分に至るまでの一連の作業を安全かつ合理的に実施するためには、二次廃棄物の性状評価、安全性評価、廃棄物化検討及び処分最適化検討等の研究開発を行うことが重要です。実施工程を図2に示すように、4つの課題を設定しています。

#### 1) 吸着剤・スラッジ等の性状調査

長期保管可能な方策検討や処理・処分の開発に必要な処分対象物の性状を把握するため、放射能濃度分析等を実施する計画です。

これまでに、滞留水及びその処理水(9試料)の分析を終了し、この結果に基づき二次廃棄物中の放射性核種組成等の評価を進めています。さらに3試料を採取し、分析に着手しました。

また、ゼオライト廃棄物の性状を把握するため、ゼオライトの熱伝導率の測定、吸着塔内の放射能及び発熱分布を推定するための模擬試験及び吸着解析コード開発を進めています。その結果、処理液分析値から塔内のセシウム濃度分布を推定する見通しを得ました。



図 2 汚染水処理の廃棄物安定化に関する実施工程

2013 年までの第 1 期では、廃棄物の性状調査、長期保管方策や廃棄体化する処理技術の検討を進めます。

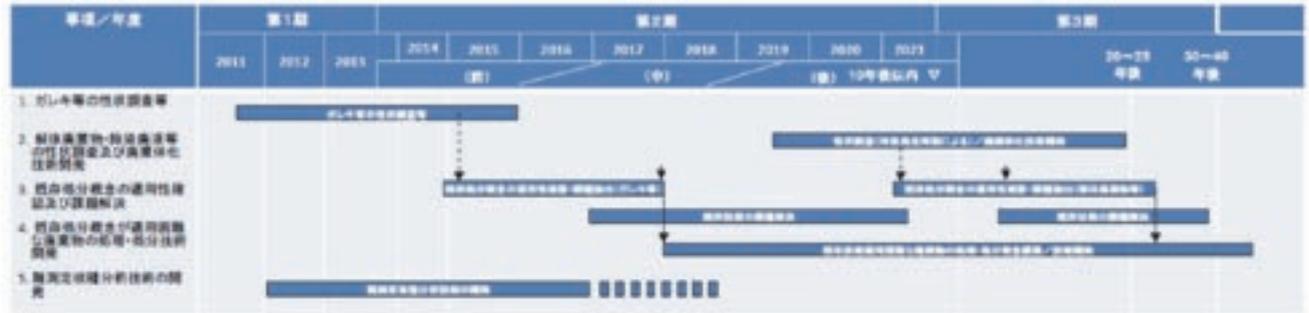


図 3 廃棄物の処理処分検討に関する実施工程

2013 年までの第 1 期では、ガレキ等廃棄物の性状調査と分析技術の開発を重点的に進めます。

2) 長期保管方策の検討

汚染水処理に伴う二次廃棄物は、処理・処分技術の確立まで安定に保管する必要があるため、水素発生、発熱及び腐食等、長期保管に向けた対策を検討する計画です。これまでに、ゼオライト吸着塔の水素発生、発熱及び腐食等に係わる基礎データを取得するとともに、水素拡散解析結果を実体系模擬試験により比較検証することを進めています。

スラッジ保管容器の腐食進展速度の評価のため、放射線、塩濃度、スラッジとの接触等の腐食因子を対象に、電気化学試験ならびに浸漬試験を進めています。

3) 廃棄体化技術の検討

既存の処理技術（廃棄体化技術）を基に、固型化等、廃棄体化に必要な技術を開発するとともに、廃棄体性能に関する調査を行う計画です。

現在、2012 年度末の廃ゼオライト及びスラッジの廃棄体化技術調査の取りまとめに向け、技術調査、整理、評価を進めています。また、技術調査の端緒として、ゼオライト及びスラッジに関して、既往の代表的な処理法であるセメント固化及びガラス固化の基礎試験を進めています。

4) 既存処分概念の適用性及び課題解決

上記 3) で得られた廃棄体化性能に関する知見を基に、既存の処分概念の適用性を確認し、処理・処分に必要な課題の抽出及び課題の解決を行う計画です。

今後、セシウム吸着装置、除染装置から発生する廃吸着剤、スラッジについて、2013 年度末までに性状調査、長期保管方策の検討結果についてまとめるため、調査・検討を継続します。また、2017 年度末までに廃棄物の性

状に応じた処分概念への適用性の確認に向け、技術開発を継続します。

(2) ガレキ等廃棄物への対応

汚染水処理の二次廃棄物以外の放射性廃棄物として、ガレキや除染廃液等があります。これらについても、汚染水処理に伴う二次廃棄物と同様、従来の原子力発電所で発生していた放射性廃棄物とはその性状が異なることが予想されるため、これらの放射性廃棄物を安全に処理・処分する見通しを得る上で必要な性状調査や技術開発を行います。以下の 5 つの課題について図 3 に示す実施工程に基づき進めています。

- ・ ガレキ等の性状調査等
- ・ 解体廃棄物等の性状調査及び廃棄体化技術開発
- ・ 既存処分概念の適用性確認及び課題解決
- ・ 既存処分概念が適用困難な廃棄物の処理・処分技術開発
- ・ 難測定核種分析技術の開発

このうち、ガレキ等の性状調査については、1F の敷地にあるガレキや伐採した木などの試料を採取し、東海研究開発センターに輸送、分析を進めています。

2017 年度末までに廃棄物の性状に応じた処分概念への適用性の確認に向け、技術開発を継続します。

《引用文献》 [1] 原子力災害対策本部 政府・東京電力中長期対策会議 東京電力(株) 福島第一原子力発電所 1~4 号機の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ, 2012 年 7 月 30 日

# 3-1 水処理二次廃棄物の性状を調べる

## —廃ゼオライトの熱特性と放射能吸着量—

原科研福島技術開発特別チーム 廃吸着材処理技術開発グループ 山岸功、森田圭介  
 原子力基礎工学研究部門 核変換工学技術開発グループ 西原健司  
 原子力基礎工学研究部門 湿式分離プロセス化学研究グループ 津幡靖宏

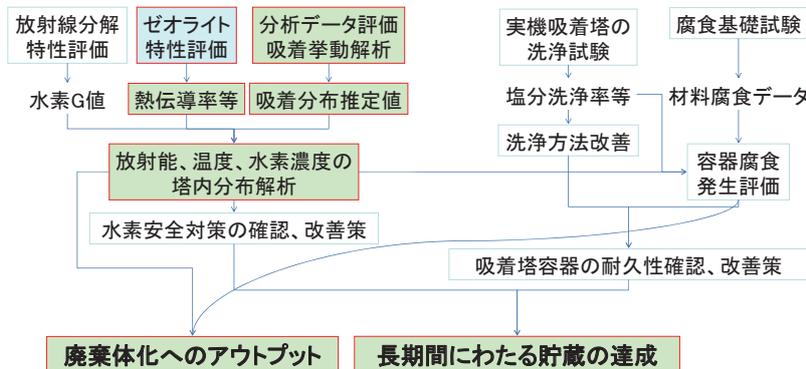


図1 廃ゼオライトの性状調査と保管対策

水処理で使用したゼオライト吸着塔は、セシウムを吸着して高線量となり、内部の性状確認が困難です。廃ゼオライトの性状を把握するため、熱伝導率等の特性評価、放射能分布を推定する手法の開発等を進めています。性状調査で得られた情報は、吸着塔保管時の水素発生や塩分腐食評価における条件の設定、廃棄体作製や処分時の評価へ活用されます。

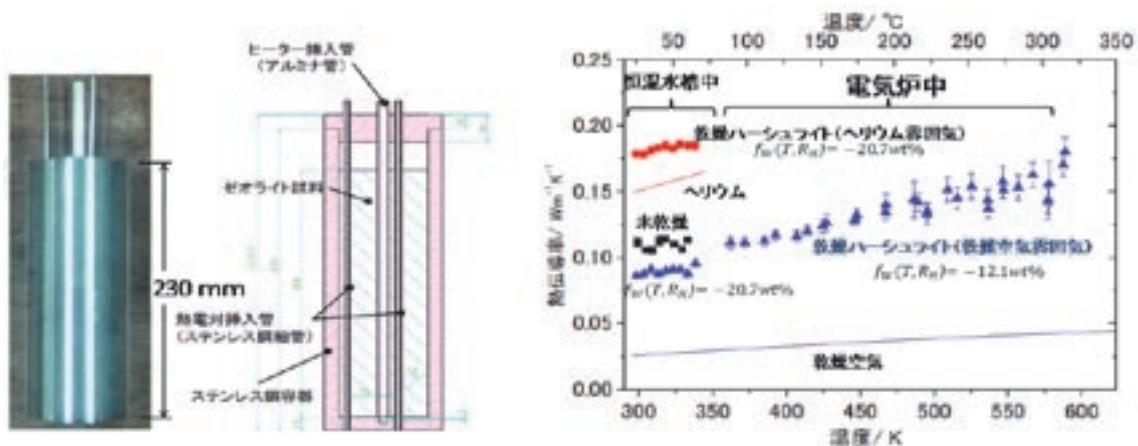


図2 ゼオライトの熱伝導率測定用セルの構成と測定結果

ゼオライト粒子を充填した円筒容器を大気圧下で恒温水槽または電気炉に入れ、中心ヒーターでゼオライトを加熱し、2本の熱電対間の温度差とヒーターの出力密度から熱伝導率を算出します。ゼオライトは吸湿性が高いため、室温相対湿度 80%におけるゼオライト重量を基準点  $f_w(T, R_h) = 0.0$  wt%とし、測定前に乾燥させた試料の水分減少率はマイナスで示しています。ゼオライトの熱伝導率は乾燥空気の数倍程度で、水分や雰囲気ガスの影響で変化します。

ゼオライトは、アルミノケイ酸塩のなかで結晶構造中に比較的大きな空隙を持つ鉱物の総称で、米国・スリーマイル島原子力発電所 2号炉 (TMI-2) 事故の汚染水処理で放射性セシウム等の除去に用いられました。1Fの水処理では、TMI-2で実績のあるゼオライト並びにこれらを改良した吸着剤を充填した吸着塔により放射性セシウムを浄化しています。汚染水から99%以上のセシウムを吸着した廃ゼオライトは、高放射能の二次廃棄物となるため、その性状を把握し、処理・処分に至るまでの期間、安定に保管することが重要となります。1F事故の汚染水の場合、海水が含まれている点がTMI-2事故と大きく異なります。海水中の塩分は、セシウムの吸着を阻害し、吸着塔容器の腐食促進や水の放射線分解による水素発生などに影響を及ぼすことが懸念されます。このため、放射能及び塩分濃度が高い汚染水を処理したセシウム吸着装置 (KURION社) から発生した廃ゼオライトに着目し、図1に示す試験・評価を進めています。このうち、廃ゼオライトの性状調査では、安定保管対策検討の基礎データとして、ゼオライトの特性 (含水率、熱伝導率及び熱的安定性) 並びに放射能及び化学的性状 (核種吸着量・

発熱量及びその分布、洗浄・乾燥方法の影響等) を分析、評価しています。

廃ゼオライトはセシウムの崩壊熱によって発熱しますが、吸着塔内部の温度を推定するには、ゼオライトの熱伝導率と放射能分布を知る必要があります。KURION社のハーシュライトについて、北海道大学と協力して熱伝導率を測定しています。測定装置の構成と熱伝導率測定結果を図2に示します。空気中のゼオライト熱伝導率は、断熱性のある乾燥空気 (計算値) の4~6倍程度で、熱を伝えにくいと言えます。ヘリウム雰囲気中や含水率の高い試料の測定では熱伝導率が上昇し、ガスを介した熱伝導が見られます。一方、雰囲気ガスだけの熱伝導率よりも、ゼオライトを含む試料の熱伝導率の方が高いという結果は、ゼオライト粒子を介した熱伝導の寄与も大きいことを示しています。ガスや粒子を介した熱伝導には、粒子径も関与することから、さらに解析を進めています。なお、熱伝導率が温度とともに上昇する傾向は、ゼオライトやガスの比熱、ガスの平均速度が温度とともに上昇するためと考えられます。

放射能及び化学的性状の分析/評価については、これま

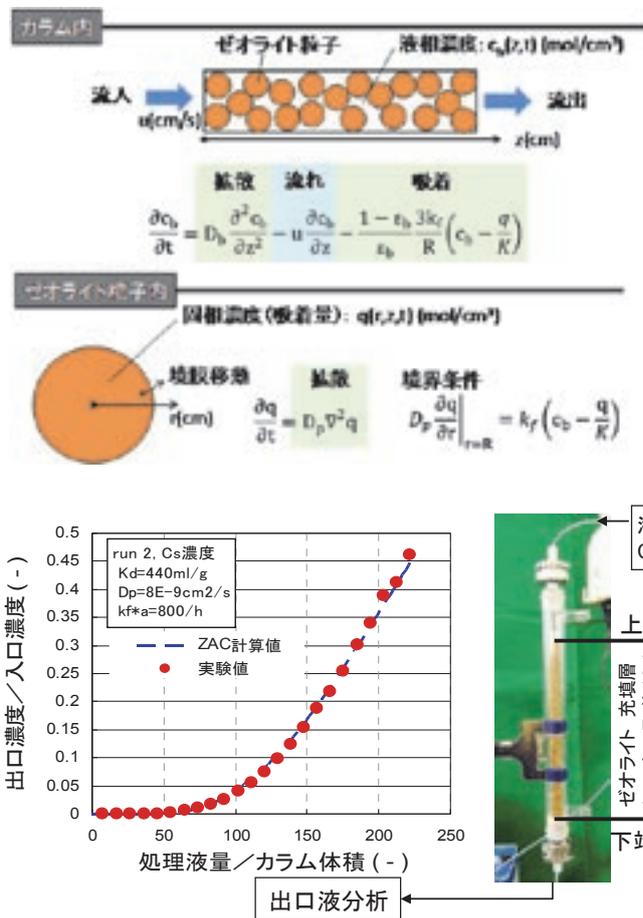


図 3 核種吸着解析コード ZAC のモデル

吸着塔内の放射能分布を推定する手法として開発している吸着解析コードのモデルです。ゼオライト粒子を詰めた吸着塔(カラム)に、セシウム溶液が流入すると、セシウムはゼオライト粒子表面の溶液膜(境界膜)内を移動して表面に吸着し、粒子内を拡散していきます。セシウム濃度が減少した溶液は、吸着塔出口から流出します。解析コードでは 1F で分析可能な出口濃度から、廃ゼオライト中の濃度を推定することを目的としています。

図 4 海水系セシウム吸着試験結果と吸着コード ZAC による解析結果の比較

小型カラム出口のセシウム濃度分析値(左図実験値)を ZAC コード(破線)によりフィッティングすることで最適パラメータ(分配係数  $K(=K_d)$ 、粒子内拡散係数  $D_p$ 、物質移動係数  $k_f$ )を算出します。同じパラメータを用いて推定したゼオライト充填層のセシウム濃度分布(破線)は、実験値(実線)を再現しました。

すでに公開されたセシウム吸着装置から発生する廃吸着塔の発生本数、処理量及びセシウム濃度分析結果から、吸着塔内に均一にセシウムが吸着していると仮定した平均放射エネルギーを評価しました。セシウムの吸着は時間とともに吸着塔の上部から下部へ進行し、ゼオライト中の濃度が均一となる平衡状態に至り、平衡に至る前に取り出された廃吸着塔では、セシウムが不均一に吸着した過渡状態となります。吸着塔内の放射能分布を推定するため、吸着解析コード (ZAC コード) を開発し、模擬試験による検証を進めています。

吸着解析で対象とするモデルは、図 3 に示す吸着のある移流・拡散方程式です。一定な大きさの小さな粒子状の吸着材を充填した管に、単一成分から成る溶液を注入したときに、吸着粒子に溶質が吸着していく過程を評価します。管の軸方向の流速は平均流速で代表でき、管の軸方向の拡散は一定とします。粒子への吸着は管の軸方向に対して一様に生じるとし、粒子表面への吸着及び粒子内部への拡散を仮定します。このとき粒子内部への拡散は実際には粒子内の細孔に沿って起こりますが、このモデルでは一様に拡散すると仮定します。

コードを検証するための模擬試験には、図 4 に示す小型カラムを用います。この試験では、10g のハーシュライトをカラムに充填し、人工海水にセシウム 0.89 ppm を添加した模擬溶液を約 4 リットル通液し、カラム出口のセシウム濃度を ICP-MS で定量し、入口セシウム濃度と

の比を求めます。これを処理流量とゼオライト充填層体積の比を横軸としてプロットすることで、図 4 の左に示すセシウム破過曲線が得られます。処理量が増えるにつれて出口セシウム濃度が増加し、入口濃度の半分程度に達した過渡状態で試験が終了したことがわかります。試験後のゼオライトについては、カラム上部から 10 分割で取り出し、熱濃硝酸によりセシウムを浸出させ、各ゼオライト層のセシウム濃度を測定しました。カラム上端から下端までのセシウム濃度分布を図 4 右図に示します。上端から中段のゼオライトは、セシウム濃度が一定であり、平衡分配係数  $K(=K_d)$  は 459 ml/g と算出されました。また、カラム下部では過渡的な分布が観察されています。実験で得たカラム出口液のセシウム濃度を ZAC コードでフィッティングしますと、図 4 左側の破線で示す最適パラメータ (分配係数 440 ml/g、等) を求めることができます。このパラメータから ZAC コードで計算したカラム内のセシウム濃度分布は図 4 右側の破線となり、ゼオライト分析結果をよく再現しています。実際の大型吸着塔内の推定を目指し、運転条件などを考慮したコードへの改良を進める予定です。

2013 年度には、セシウム吸着塔の廃ゼオライト性状調査及び保管方策検討についての報告を取り纏める予定で、得られた成果は 1F の設備更新計画策定に活用されます。

## 3-2 水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(1)

### —セシウム吸着塔内での水素の発生と拡散—

原科研福島技術開発特別チーム 廃吸着材処理技術開発グループ 永石隆二  
大洗研福島技術開発特別チーム 廃ゼオライト保管挙動評価グループ 寺田敦彦



図 1 ガンマ線照射室内の試料設置の様子

試料を 5-10mL 程度のバイアルに入れ、セプタム付きのキャップを閉めてから照射しました。試料が放射線のエネルギーを吸収した線量率(写真中の数字)はガンマ線源からの距離で、試料が吸収したトータルの線量は時間で調節して照射します。

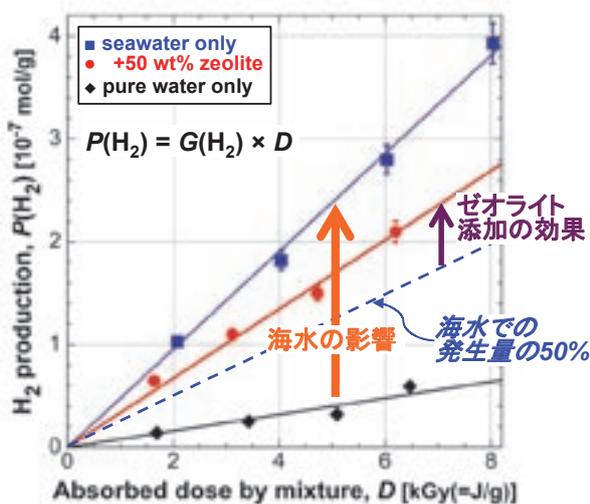


図 2 試料の水素発生量と吸収線量との関係

直線の傾きから水素発生収量(G 値)が求められます。純水のみと海水のみの試料の比較から海水の影響を、海水のみと混合物の試料の比較からゼオライトの添加効果を明らかにしました。

原子炉の冷却に使われた海水やセシウム等の放射性物質を含む汚染水が、1F で発生しました。この汚染水から放射性物質を除去するため、ゼオライト等の吸着材を充填した処理装置(吸着塔)が使われていますが、汚染水を処理している最中、さらに処理の終わった吸着塔(廃吸着塔)の保管中に、ゼオライトに吸着した放射性物質からの放射線で、水が分解して水素ガスが発生します。汚染水の処理は米国・スリーマイル島原子力発電所 2 号炉(TMI-2) 事故での経験がありましたが、海水が混入したケースは今回が初めてだったので、過去の知見だけで水素の発生を把握するのは困難でした。

そこで、海水やゼオライトを試料として、コバルト 60 ガンマ線による照射実験(図 1) を事故直後から進め、現在さらに、汚染水の処理状況や廃吸着塔の保管状況に対応した水素の発生量や挙動の評価を進めています。

実験結果の一例として、図 2 に水素発生量と試料が吸収したガンマ線エネルギーとの関係を示します。ここでまず、純水のみを試料(黒実線) に比べて、海水のみの試料(青実線) での発生量が大きいことがわかります。一般的に、水の分解で生成した水素は水中での反応のた

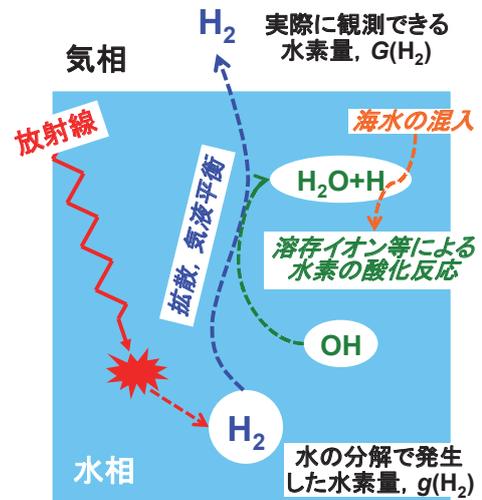


図 3 水素ガスの中での発生と気相への放出

水の放射線分解で生成した後、水素は拡散や気液平衡で気相に放出されますが、その途中、酸化反応が起きるため、気相への放出が抑えられます。ここに海水が混入すると、この酸化反応が阻害されて、水素の気相への放出が増加します。

めに気相への放出が抑えられます(図 3) が、海水中ではこの反応が阻害されて水中で生成した水素のほとんどが気相に放出されることを示しています。また、海水に汚染水処理の現場で使われているゼオライトを一对一で混ぜた試料では、海水のみの試料での半分の発生量が予想(青点線) されますが、実際はそれよりも大きい発生量(赤実線) をもつことを明らかにしました。これは水による放射線エネルギーの吸収だけでなく、ゼオライトによる吸収も水素の発生に関与していることを示し、TMI-2 事故の際には考慮されなかった事実です。

また、アルミノケイ酸塩であるゼオライトとは異なるケイチタン酸塩を吸着材とする処理装置も稼働しているように、多様な吸着材が使われています。現在、これらを試料とした実験を進めるとともに、その結果を廃吸着塔内での水素発生に反映させるため、吸着塔のサイズ(寸法、吸着材充填量等) や保管の状況(塔内の水洗、乾燥、水分量) を考慮した水素発生量の評価を進めています。

一方、吸着材に取り込まれた放射性物質から発生する放射線は水の分解だけでなく、吸着材自体の損傷も引き起こす可能性があり、廃吸着塔の長期間にわたる保管に

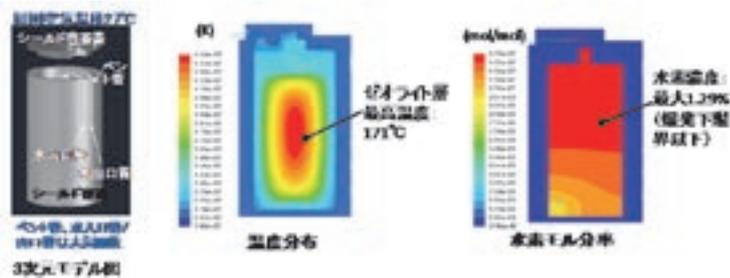


図 4 水素拡散解析結果

水入口管及び水出口管、上部ベント管バルブの開放が水素濃度低減に有効であること、またゼオライト層温度は、水素の自己着火温度(約 560°C)以下であることを解析的に明らかにしました。



水素混合ガス流動試験装置 水素混合ガス流動試験結果

図 5 水素混合ガスの流動可視化試験

レーザー可視化技術により、塔内の非常に微弱な対流の様相を可視化できます。

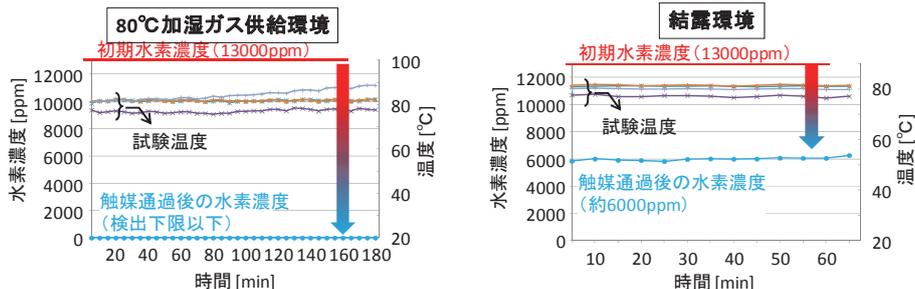


図 6 水素再結合触媒性能試験

自動車用モノリス型貴金属触媒は、80°C迄の加湿ガス供給環境で 100%の水素再結合、結露環境で 50%以上の水素再結合の特性を有することを明らかにしました。

よって放射性物質の吸着状態、吸着塔内の熱伝導特性、水素発生挙動等が変わってしまうことが懸念されます。このため、電子ビーム等を用いて高線量で照射した吸着材に対する、放射性物質の保持能力や水素発生挙動、表面構造等を調べる取り組みも併せて進めています。

さらに原子力機構では、高温ガス炉の核熱利用システム開発の一環として、熱化学法 IS プロセスによる水素製造技術の研究を進めており、その中で、水素ガスの漏洩、燃焼、爆発などに対する安全性評価、水素ガスの防爆対策、漏洩検知技術などの安全技術の検討、プロセスガス分解触媒の試験などを実施してきました。これらの工学的な知見、経験、技術を活用し、実際の廃吸着塔保管時の水素濃度挙動の解析に取り組んでいます。

具体的には、残留水及びゼオライト中の水分が放射線分解して発生する水素が、吸着塔内でどのように分布するかを解析的に評価します。この解析では、吸着塔の内部構造を圧力損失実験データ等をもとにしたモデル化処理を導入するとともに、KURION 吸着塔の内部構造を三次元 CAD システムによって図面化し、塔全体をカバーする微細な格子設定を行うことで、詳細な吸着塔内の流動状況の確認をできるようにしました。これを基に、水素発生量や発熱密度を入力条件として、吸着塔内での水素の詳細な拡散挙動を三次元解析しています。その結果、浮力や密度変化による微小な駆動力が一種のサイフォン現象を引き起こし、吸着塔付属の開放配管から空気が吸

着塔内に流入して水素濃度は爆発下限界以下に維持され、又、吸着材中心部は水素の自己着火温度よりも低い温度上昇にとどまることを解析的に明らかにしました(図 4)。

解析とあわせて、ベント管の接続する吸着塔登頂部を模擬したアクリル製容器を製作し、内部に不活性ガスとともに微量な水素を含む混合ガスを流入させて、そのガスの挙動を可視化する研究も行っています(図 5)。レーザー可視化技術を用いて、塔内の非常に微弱な対流の様相も可視化できることがわかり、これらの試験体系を用いて、解析結果の検証を実体系での実証試験により行っていきたいと考えています。

また、水素濃度の補助的な低減対策として動的機器を必要としない水素再結合触媒に注目して触媒性能試験を行っています。安価な自動車用モノリス型貴金属触媒が高湿度条件でも優れた再結合特性を有することを明らかにしました(図 6)。

これらの実験や解析によって得たデータは処理装置の稼働前から東京電力や吸着材供給メーカー等に伝えられ、現場の安全運用に活用されており、引き続き東京電力等と連携して進めてまいります。なお、水素発生に関する成果をまとめた学術論文や解説記事は、各誌のホームページ上で公開されています。

《参考文献》 ・ 熊谷友多, 永石隆二, 木村敦, 田口光正, 西原健司, 山岸功, 小川徹, 放射性汚染水処理に関わるゼオライト系吸着剤と海水との混合物からの水素発生量の測定と評価, 日本原子力学会和文論文誌, Vol. 10, No. 4, pp.235-239, 2011  
 ・ 永石隆二, ゼオライトによる汚染水処理での放射線効果の検討, 放射線化学, No.92, pp.15-21, 2011

### 3-3 水処理二次廃棄物の安定保管に向けて (2)

#### —セシウム吸着塔内に残留する塩分の影響—

原科研福島技術開発特別チーム 廃吸着材処理技術開発グループ 加藤千明  
大洗研福島技術開発特別チーム 廃ゼオライト保管挙動評価グループ 寺田敦彦

表 1 想定される腐食事象

腐食事象	局部腐食		
	孔食	すき間腐食	応力腐食割れ
発生可否	可能性あり	可能性あり	可能性あり
発生域	高 Cl イオン、高温、高酸素濃度で発生する	孔食よりも低 Cl イオン、低温領域でも発生する	孔食、すき間腐食発生部に高い引張応力がかかると発生する

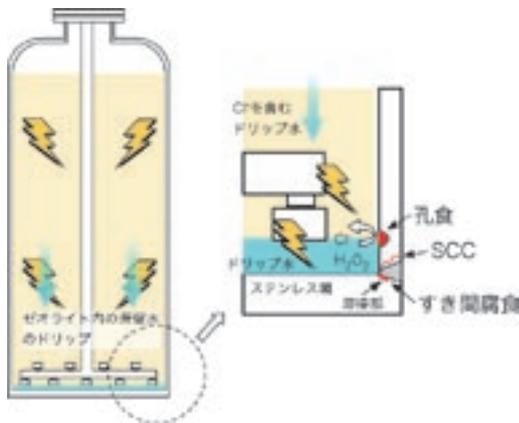


図 1 廃ゼオライト保管容器で想定される腐食事例

水処理装置においては、大量の海水を含んだ滞留水を処理する必要があります。一方で、海水に含まれる塩化物 (Cl イオン) は材料の腐食を加速することが知られていることから、保管容器材料の腐食損傷が問題となる可能性があります。Cs 吸着塔材料として用いられているステンレス鋼 (SUS316L) は、比較的塩化物に対して耐食性を有しています。しかし、高濃度の塩化物に対しては、表 1 に示すような局部腐食と呼ばれる腐食損傷が生じる可能性が報告されています。孔食は、孔状の腐食形態を有しており、材料の開放された表面で発生します。すき間腐食は、構造的な空隙 (ボルト接合部や合わせ板構造のすき間等) 内での水質が劣化することで生じる腐食であり、孔食より生じやすいことが知られています。応力腐食割れは孔食やすき間腐食の発生部に高い引張応力がかかると発生することが知られています。

図 1 に Cs 吸着塔の模式図と想定される腐食事例を示します。Cs 吸着塔は、円筒形形状をしており、塔下部において底板と円筒側板を溶接にて接合した構造体であり、内部に導水管を有しています。塔下部の溶接部には構造的なすき間が存在する可能性があり、さらに溶接部には高い応力が残留している可能性があることから、塔下部の溶接部近傍においてすき間腐食起因の割れが生じる可能性があると考えられます。塔下部の溶接部近傍での保管容器材料の割れは、保管容器内容部の漏洩につながる

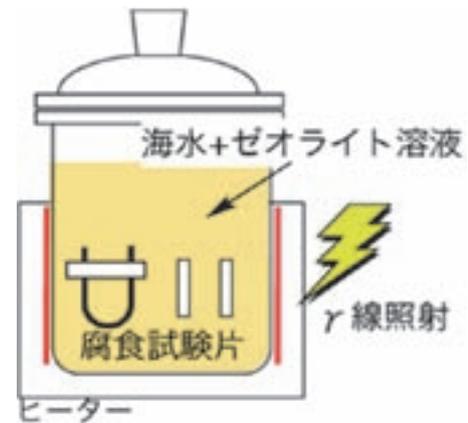


図 2 廃ゼオライト保管容器内環境を模擬した塩水浸漬試験の模式図

ことから、材料腐食評価は保管容器の長期保管において重要な課題の 1 つとなります。

廃ゼオライト保管容器においては、吸着した放射性 Cs によって発熱が生じる可能性があり、水の放射線分解によって過酸化水素等の酸化性物質が生成することから、廃ゼオライト保管容器内の腐食環境はより厳しくなると推定できます。そのような点を踏まえて、図 2 に示す様な廃ゼオライト保管容器内環境を模擬した塩水浸漬試験を実施しております。

ステンレス鋼の腐食に及ぼす塩化物の影響に関しては、従来より多くの研究が行われており、温度の影響、塩化物イオン濃度の影響、溶存酸素濃度の影響、電気化学的な評価法を用いてステンレス鋼の孔食や応力腐食割れの発生に関する腐食線図が多く報告されています。これらの腐食試験は、JIS 規格化されており、廃ゼオライト保管容器内環境を模擬した腐食試験の実施においてはこれらの規格に準拠した形で試験を実施しております。これらの腐食試験からゼオライトと放射線の共存による環境におけるステンレス鋼の局部腐食発生加速の可能性に関して検討していく予定です。

現在までの状況としては、図 3 に示す様な JIS 規格準拠の腐食試験片を用いて、大気飽和人工海水 (Cl 濃度:2 万 ppm) とモルデナイトを混在させた条件で局部腐食の評価中です。1000 時間後においても局部腐食は観察されておらず、容器材料の健全性が保たれています。今後は、より長時間の腐食試験と電気化学試験を用いた局部腐食評価を行う予定です。また、放射線の共存によってステンレス鋼の局部腐食が加速する可能性があることから、γ線照射下の腐食試験を実施予定です。照射条件等は、現在検討中ですが、非照射条件での腐食試験結果を参照しながら実施する予定です。

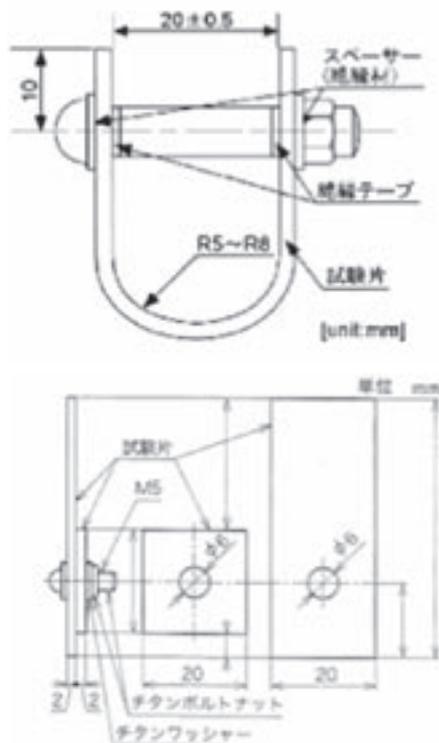


図 3 JIS 規格準拠の U ベンド試験片(上)と  
すき間付与試験片(下)

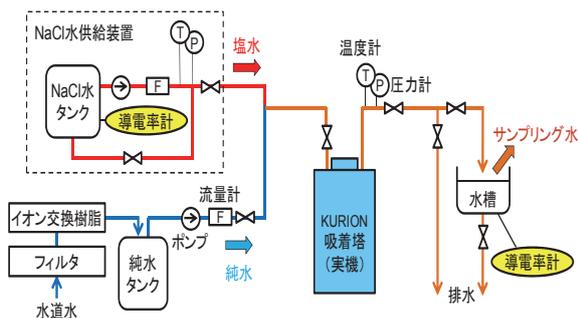


図 5 塩分洗浄試験装置の概略

廃ゼオライト保管容器の腐食低減を目的に真水での洗浄が行われています。廃ゼオライト保管容器内の腐食環境を推定する目的で、数 L 規模の吸着塔小型モックアップを用いて真水洗浄による残留塩分濃度の低減効果を確認しました。図 4 に小型モックアップを用いたベッセル内残留塩分濃度と塔内洗浄回数との関係を示します。洗浄によって残留塩分濃度は速やかに低下するのがわかります。これは、実機吸着塔においても十分な洗浄を行えば、塔内の塩化物イオン濃度を低減できる可能性があることを意味します。塔内の塩化物イオン濃度を低減出来れば、保管容器腐食の可能性を低減できることから、次のステップとして実機規模での塩分洗浄試験を実施予定です。

実機規模での塩分洗浄試験においては、KURION 吸着塔実機を用いて、ゼオライトに吸着された塩化物イオン濃度の真水洗浄による低減効果を確認します。このとき、吸着塔内部は複雑な配管構造を有していることから、ゼオライトに吸着された水分に加え、排出困難な少量の残留水が存在していると考えられます。吸着塔の長期保管に当たっては、容器健全性に影響する残留水の性状を確認しておく必要があります。

試験は、塩水 (1,000ppm) を満たした吸着塔実機に純水を流入させながら塩分洗浄操作を行い、洗浄水量と残留塩分濃度の関係を明らかにします。残留塩分濃度は排水の塩分濃度を導電率計で連続測定するとともに、その精度確認のため、一定時間毎に排水をサンプリングして成分分析を行います (図 5)。

原子力機構では、本試験に供用する水流動試験設備に加え、プラントスケールの水流動試験を実施できる設備を備えており、蓄積してきた試験及び計測に関わる技術と経験、知見を支援活動に積極的に役立てていく所存です。

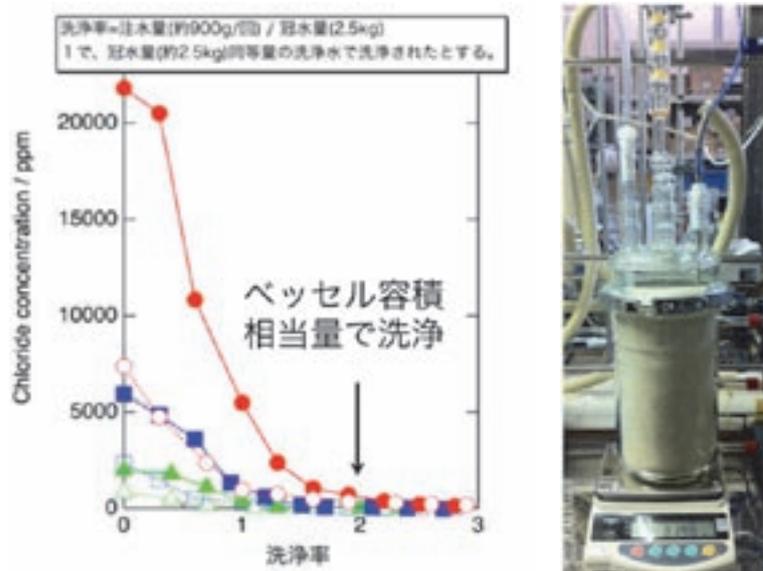


図 4 小型モックアップを用いたベッセル内残留塩分濃度と塔内洗浄回数との関係

## 3-4 水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(3)

### —フェロシアン化ニッケルのガンマ線照射試験—

核燃料サイクル工学研究所 福島技術開発試験部 試験運転第1課 荒井 陽一、渡部創、高島容子  
駒義和、野村和則、中島靖雄

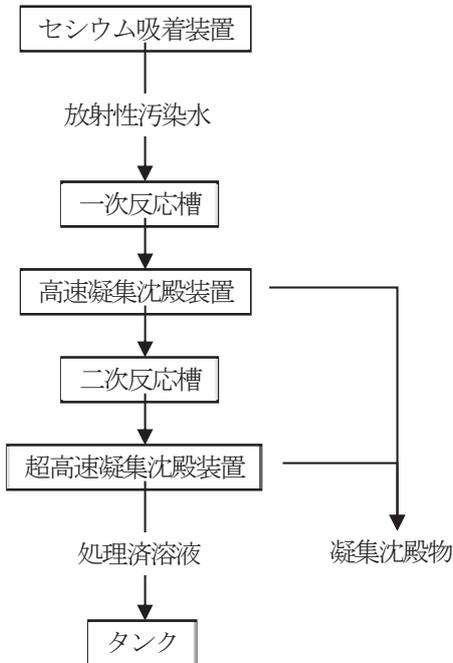


図1 除染装置における汚染水の処理

放射性汚染水の処理に伴い、除染装置から凝集沈殿物が発生します。この凝集沈殿物には放射性 Cs を吸着したフェロシアン化ニッケルが含まれます。

原子炉や廃棄物処理建屋に滞留している放射性汚染水は、水処理設備により処理されています。水処理設備のうち除染装置(図1)では、薬品を加えることにより凝集沈殿物を生成し、放射性Csなどを除去します。ここで使用される薬品の主要成分の一つは、フェロシアン化ニッケルです。放射性Cs除去により発生した凝集沈殿物は、当面の間スラリー状態で保管される予定です。安全に保管するために考慮すべき事項として、フェロシアン化ニッケルや水の放射線(ガンマ線)による分解が挙げられます。具体的には、水の放射線分解により発生する水素ガスの爆発、フェロシアン化ニッケルの放射線分解によるCsの再溶出、フェロシアン化ニッケルの放射線分解により発生するHCNの生物学的安全性について確認する必要があります。そこで、基礎データ取得のため、フェロシアン化ニッケルに対して<sup>60</sup>Co線源によりガンマ線を照射し、その特性を調べました。

フェロシアン化ニッケルは、0.5 M Ni(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>溶液と0.5 M K<sub>4</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>]を、NiとK<sub>4</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>]の物質量の比が4:1となるように混合することにより調製しました。調製したフェロシアン化ニッケルを、CsNO<sub>3</sub>溶液と混合することによりCsを吸着させました。Csを吸着したフェロシ



図2 調製したフェロシアン化ニッケル  
左:Cs吸着前 右:Cs吸着後



図3 照射試験の状況

<sup>60</sup>Co線源を用いてγ線を試料に照射しました。配置により線量率を調整します。

アン化ニッケルの組成はCsの吸着量の実測によりK<sub>1.15</sub>Cs<sub>0.12</sub>Ni<sub>1.43</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>]と推定しました。Cs吸着フェロシアン化ニッケル1gと水10mLを、容量100mLのガラスビンに入れて密封し、<sup>60</sup>Co線源によりガンマ線を照射しました。線量率は13.6 kGy/hで、38時間及び95時間照射したので、試料の吸収線量はそれぞれ0.52 MGy、1.3 MGyとなり、保管期間としてそれぞれ0.8年、2年程度に相当します。照射後に、各試料の気相、液相及び固相を採取しました。気相については、ガスクロマトグラフィーにより水素濃度を、液相については、比色法によりCN濃度を、原子吸光法によりFe及びCs濃度を測定しました。また、固相については、フェロシアン化ニッケルのFT-IR分析を行いました。

水素ガス発生放射線化学収率(G値)を気相中の水素濃度から算出しました。結果を表1に示します。Csが吸着することによって水素発生量が増加する傾向が見られ、Csを吸着したフェロシアン化ニッケルは水素発生量の増大に影響を与える可能性があることがわかりました。水素発生G値は、線量に対する依存性は認められませんでした。

Csの溶出がフェロシアン化ニッケルの分解により生

表 1 気相水素濃度分析結果と水素発生 G 値

吸収線量と気相水素濃度から水素発生 G 値を算出しました。また、各条件の比較のため、Cs 吸着前フェロシアン化ニッケルの 0.52 MGy を基準として相対比を求めました。

試料		吸収線量 [MGy]	気相水素濃度 [%]	水素発生 G 値 [n/100eV]	水素発生 G 値 相対比
固体	液体				
Cs 吸着前フェロシアン化ニッケル	水	0.52	1.6	0.11	1(基準)
		1.3	5.6	0.13	1.1
Cs 吸着後フェロシアン化ニッケル	水	0.52	3.0	0.21	1.9
		1.3	8.1	0.20	1.7

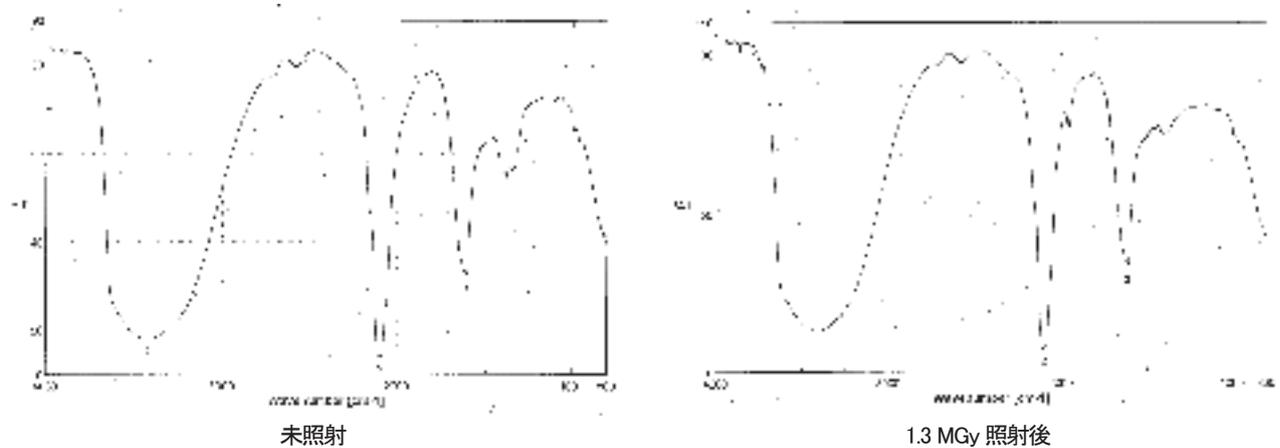


図 4 フェロシアン化ニッケル試料の FT-IR スペクトル

左:未照射、右:1.3 MGy 照射後。FT-IR 分析では、波長  $2,100 \text{ cm}^{-1}$  付近にフェロシアン化ニッケルの CN 結合の特徴的なピーク(図中の 2 を付したピーク)があります。フェロシアン化ニッケルが分解するとこのピークが小さくなると考えられますが、ピークに変化は認められませんでした。

じると考えられますが、液相中の Cs 濃度は検出下限値未満でした。検出下限値からフェロシアン化ニッケル分解の G 値を算出すると、値は最大でも  $6.1 \times 10^{-2}$  であり、1.3 MGy の照射ではフェロシアン化ニッケルの分解は 1.2%未満であると推定されます。HCN の発生量については、液相中の CN 濃度測定値を基に、気相中 HCN の最大濃度を算出しました。気温が  $10^\circ\text{C}$  の場合は 0.8 ppm、 $20^\circ\text{C}$  の場合は 1.1 ppm となり、労働衛生に係わる許容濃度の 5 ppm 未満であることから、作業環境上の問題は無いものと考えられます。フェロシアン化ニッケルの分解に関して、定性的な確認のために、固相の FT-IR 分析を行いました。FT-IR 分析では、波長  $2,100 \text{ cm}^{-1}$  付近に CN 結合に特徴的なピークがあり、このピークに着目しました。ガンマ線照射前後でこのピークに変化は認められず、1.3 MGy の照射ではフェロシアン化ニッケルのシアノ基は有意には分解されていないことがわかりました。

フェロシアン化ニッケルを含む水からの水素発生 G 値は、Cs の吸着により増加する傾向を確認しました。したがって、それに見合った水素ガス爆発対策をとる必要があります。1.3 MGy の照射では、フェロシアン化ニッケルの分解は 1.2%未満であると推定され、Cs の溶出は確認されませんでした。また、HCN の発生量については、許容濃度未満であり、作業環境上の問題は無いものと考えられます。

今後は、より長期間の保管時の安全性を確認するため、高線量の照射試験を実施する予定です。

《参考文献》 ・ 荒井陽一ほか、Cs を吸着したフェロシアン化ニッケルのガンマ線照射試験、日本原子力学会 2012 年秋の大会、C37, 2012

# 3-5 水処理二次廃棄物の処理方法を調べる

## —廃ゼオライトのガラス固化試験—

核燃料サイクル工学研究所 再処理技術開発センター ガラス固化技術開発部 ガラス固化技術課 小林秀和、横澤拓磨  
山下照雄、永井崇之、天本一平

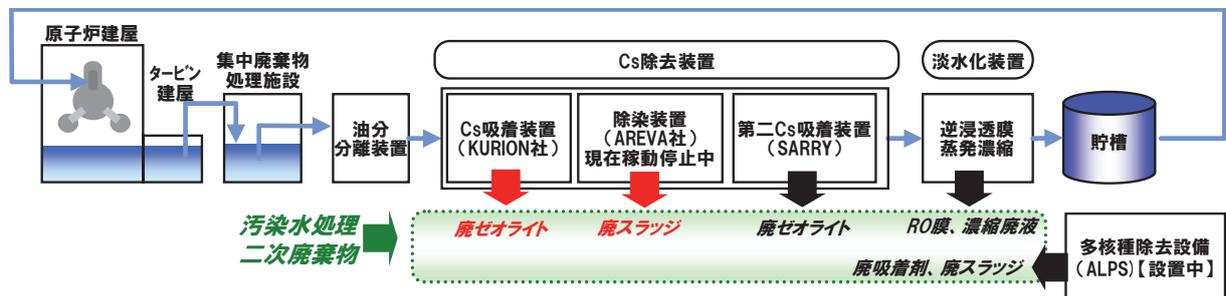
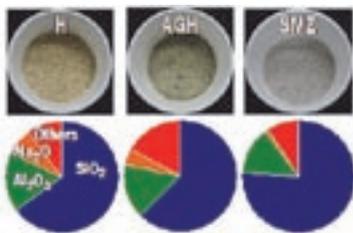


図 1 汚染水処理に伴い発生する放射性廃棄物

1Fでの汚染水処理により発生した廃ゼオライト、廃スラッジなどの放射性廃棄物を、安全に管理できる状態に処理することが必要です。この処理方法として、セメント固化法やガラス固化法などを候補に検討が進められています。



(組成は酸化物換算)

図 2 ゼオライトの外観及び組成

ゼオライトにはケイ素、アルミニウム、ナトリウムが含まれており、一般のガラス製品と成分が共通しています。

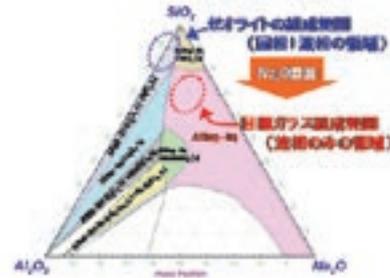


図 3 SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Na<sub>2</sub>O 系状態図(1200°C)

ゼオライトに不足しているナトリウムを加えて 1200 °C で加熱・熔融するとガラスが得られます。



図 4 ガラスの作製条件

実際にゼオライトと試薬を混合し 1200°C に加熱し、室温まで冷却するとガラスが得られることが確認できました。

放射性セシウムなどを含む汚染水の浄化処理に伴って、多種多様な放射性廃棄物が発生しています(図 1)。原子力機構では、これまでに放射性廃棄物処理技術開発で蓄積してきた知見・経験を活用して、これらの廃棄物を物理的・化学的に安定な状態にするために適用可能な処理技術の検討を進めています。

ここでは、様々な放射性核種を安定に閉じ込めるとともに、廃棄物の減容化が期待できるガラス固化法に着目し、廃ゼオライト及び廃スラッジを対象に行った予備的検討の状況について紹介します。なお、ガラス固化法は、使用済燃料の再処理から発生する高レベル放射性廃液の処理技術として開発実用化されています。

### (1) 廃ゼオライトに係る基礎試験結果

本試験では、KURION 社の Cs 吸着装置で使用されているゼオライト (H、AGH、SMZ の 3 種類) を対象としました。ゼオライトに含まれる主な成分は一般に市販されているガラス製品と組成が共通しているケイ素、アルミニウム及びナトリウム(図 2)であり、ゼオライトそのものを加熱・熔融することでガラスの状態に変化させることができますが、そのためには、1500 °C 程度という非常に高い温度が必要になります。そこで、実用的な熔融温度 (~1200 °C 程度を目安) で均質なガラス化が可

能となる条件を理論的に検討し、ゼオライトに対してナトリウムを補助的に加えることにしました(図 3)。一方、ナトリウムの増加によるガラスの化学的耐久性(処分時の地下水への溶け出し難さ)の低下への影響も考慮して、目標ガラス組成のナトリウムを 15 及び 20 wt% に調整するとともに、ガラスの特性(化学的耐久性率、熱膨張)を向上させる効果のあるホウ素を 10 wt% 加えることにしました。さらに、実廃ゼオライトに吸着している重要核種を模擬して非放射性的セシウムを 5 wt% 加えました。作製方法は図 4 に示す通り、各ゼオライトと試薬 (Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>、H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> 及び Cs<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>) を混合し、電気炉内にて 1200 °C で 2 時間熔融した、室温まで冷却し固化試料を得ました。

作製した試料の外観写真及び X 線回折によるガラス化状態の評価結果を図 5 に示します。いずれの試料においてもガラス特有の光沢と透明感が認められ、X 線回折の結果からも試料全体がガラスになっていることが確認されました。ガラスの化学的耐久性を評価するために行った浸出試験の結果からは、いずれの試料とも高レベルガラス固化体組成のホウケイ酸塩ガラスと同程度の結果が得られ(図 6)、重要元素である Cs もガラスの網目構造に閉じ込められていることが示唆されます。また、ガラス固化することにより、ゼオライトに含まれる空隙が消

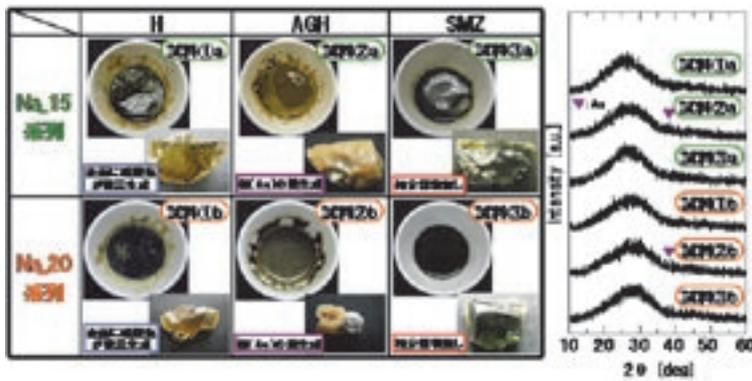


図5 試料の外観及びX線回折パターン

作製した固化試料にはガラスの光沢があり、X線回折パターンからも、結晶構造を示すピークが無い(銀のピークをのぞく)ことから、全ての試料がガラスの状態になっていることが確認されました。ただし、ゼオライトHを固化した試料については、ゼオライトに含まれる不純物成分の硫黄が試料表面にわずかながら析出しました。

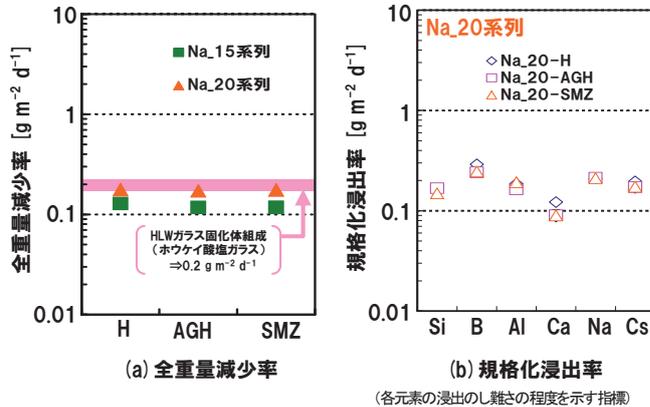


図6 固化ガラスの化学的耐久性

全重量減少率は高レベルガラス固化体組成と同程度以下、重要元素であるセシウムの規格化浸出率はガラス骨格成分のケイ素と同程度であり、総じて良好な特性であることを確認しました。

失し、ゼオライトの状態に比べて1/3~1/2程度に体積を小さくできることが分かりました。

## (2) 廃スラッジに係る検討状況

AREVA社の除染装置から発生する廃スラッジについては、放射性Srを含む硫酸バリウム(BaSO<sub>4</sub>)、放射性Csを含むフェロシアン化物とともに、原子炉に注入された海水を起源とする成分(Na, Clなど)が混在した廃棄物であると推定されます。これら成分のうち、BaSO<sub>4</sub>に含まれる硫黄は、一般にガラスの網目構造に入り難い性質があります。また、フェロシアン化物や塩素のガラス化への影響について試験で確かめていく必要があります。

現状としては、廃スラッジを固化するのに適したガラス素材の選定に資するため、ホウケイ酸塩ガラスだけではなく、他の素材も対象に加えて試験を行っているところです。

廃ゼオライトについては、適切な量のナトリウム及びホウ素を加えて組成を調整することにより、ガラス化ができることが分かりました。ガラス溶融過程でのセシウムの揮発挙動評価などが今後の課題です。廃スラッジについては、各含有成分がガラス化に及ぼす影響を確認するための試験を行う予定です。

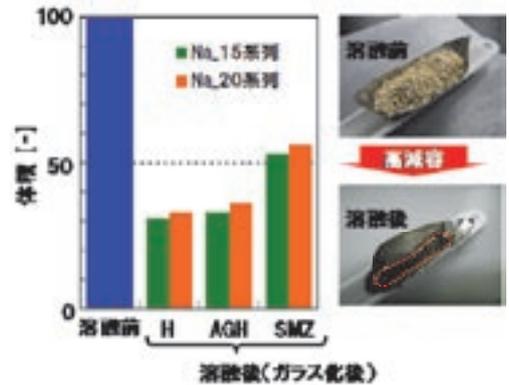


図7 ガラス固化による減容効果

空隙の多いゼオライトをガラスにすることで、溶融処理前の体積を大幅に縮小できることが分かりました。

《参考文献》  
 ・ 小林秀和ほか、汚染水処理に伴う二次廃棄物のガラス固化に関する基礎検討、日本原子力学会第8回再処理・リサイクル部会セミナー、2012年8月24日。  
 ・ 横澤拓磨ほか、汚染水処理廃棄物の廃棄体化に向けたガラス固化適用性検討、(1)廃ゼオライトのガラス固化に係る予備試験、日本原子力学会「2012年秋の大会」、2012。

# 3-6 効率的な汚染水処理技術を目指して

## —Cs や Co などを一括除染する沈殿法—

核燃料サイクル工学研究所 福島技術開発試験部 試験運転第1課 高島容子、大島史一、駒義和、中島靖雄

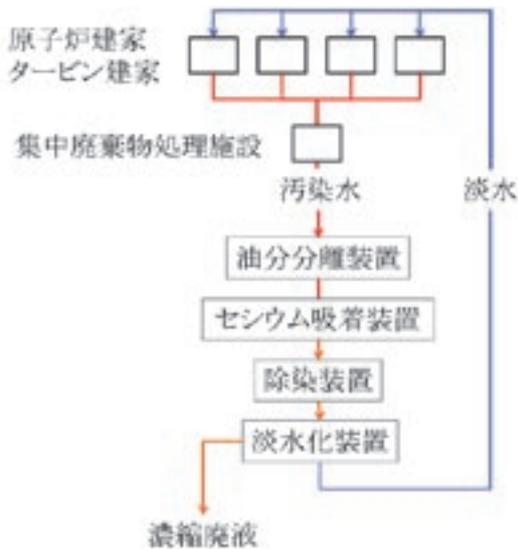


図 1 1F 内で行われている放射線汚染水の処理

汚染水から淡水を複数の処理技術により分離して冷却水として再利用します。

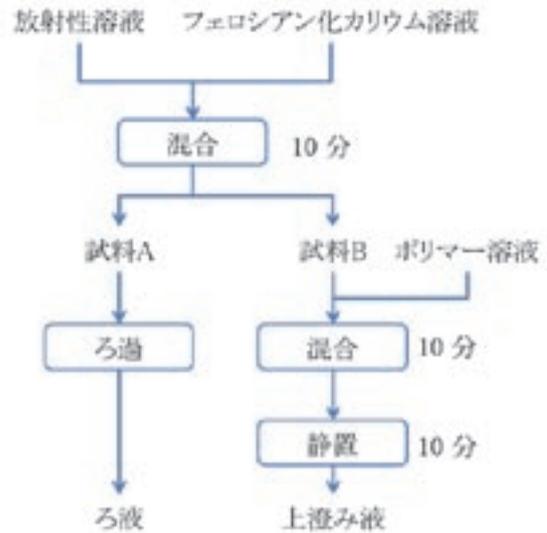


図 2 試験の手順

放射性溶液にフェロシアン化カリウム溶液を加えて混合することでフェロシアン化金属の固体粒子が生じます。A と B の 2 試料に分け、固体粒子回収法としてフィルターろ過とポリマーの添加を試しました。

表 1 淡水化装置濃縮廃液に含まれる放射性核種(2012年9月6日 東京電力発表)

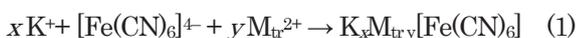
淡水化処理の後に残る濃縮廃液には、Cs などの核分裂生成物、Co などの放射化生成物が含まれます。

	<sup>54</sup> Mn	<sup>60</sup> Co	<sup>106</sup> Ru	<sup>125</sup> Sb	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	β核種
濃度 [Bq/cm <sup>3</sup> ]	2.4	5.3	13	51	ND	6.7	1.3 × 10 <sup>5</sup>

原子炉内の燃料は水により冷却していますが、冷却に使用した水には放射性元素が溶け込んでしまいます。原子炉冷却により発生した放射線汚染水は図 1 の順序で Cs 除去等の処理がなされています。セシウム吸着装置及び除染装置では主に Cs を除去しているの、他の放射性元素は濃縮廃液として排出されます。これらの放射性元素はさらに除去されることが望まれます。

通常、放射性遷移金属の除去と放射性セシウムの除去は異なる工程で行います。たとえば放射性コバルトはキレート樹脂に吸着させて除去しますし、放射性セシウムはゼオライトや吸着剤により除去します。除去工程が増えるごとに放射性廃棄物の種類・量が増加するため、除去工程は必要最低限とすることが求められます。

使用済核燃料の再処理施設で発生した低レベル放射性廃液に含まれる Cs の除去に使われる吸着剤にはフェロシアン化金属があります。フェロシアン化金属は式(1)のようにフェロシアン化物イオンと Co や Fe などの遷移金属が反応することで固体粒子として速やかに生じます。



遷移金属は表 1 のように濃縮廃液に含まれているため、濃縮廃液にフェロシアン化物イオンを添加することで、液中でフェロシアン化金属を作ることができます。生成

したフェロシアン化金属は Cs を吸着するので、液中からフェロシアン化金属を取り除くことで濃縮廃液から遷移金属と Cs を除去することができます。この除去方法が実証できれば複数の工程で行っていた放射性の遷移金属と Cs の除去を一つの工程で行えることとなり、廃棄物の種類・量を減らすことが可能となります。

そこで濃縮廃液にフェロシアン化物イオンを添加することにより放射性の遷移金属と Cs の同時除去が可能であることを実験により確かめました。

実験に使用した放射性溶液の海水割合は約 50%で、濃縮廃液に含まれる放射性元素と同種の元素を含みます。図 2 の手順で実験を行いました。フェロシアン化物イオンはフェロシアン化カリウムとして遷移金属の 3 倍程度を添加しました。これは放射性溶液に含まれる遷移金属の約 50%を除去できる量です。試料 A ではフェロシアン化金属粒子をフィルターによるろ過で回収しました。また、試料 B ではポリマーによる凝集沈殿法により粒子の回収を行いました。凝集沈殿法は一般的な水処理でも使われている方法で、ポリマーにより細かな粒子を塊状にすることで粒子を沈殿しやすくし、水中から容易に粒子を取り除く方法です。2つの方法を比較することでこの除去方法に適した粒子回収方法を導き出します。

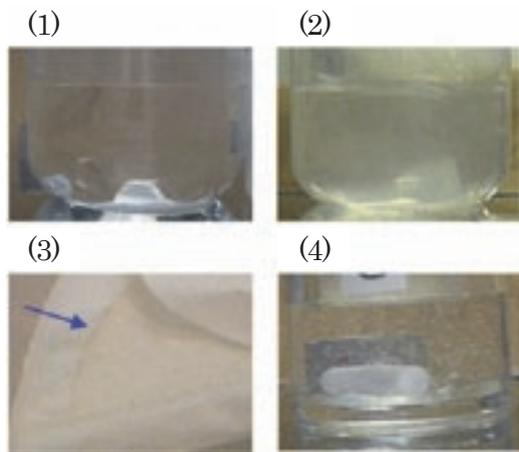


図3 実験時の溶液の外観とろ過後のフィルター

実験前の放射性溶液は透明です (1)。フェロシアン化カリウム溶液を添加すると濁りを生じます (2)。ろ過した後のフィルターにはフェロシアン化金属粒子が回収されました (3、矢印)。ポリマーを添加すると、白い凝集沈殿物が生成します (4)。

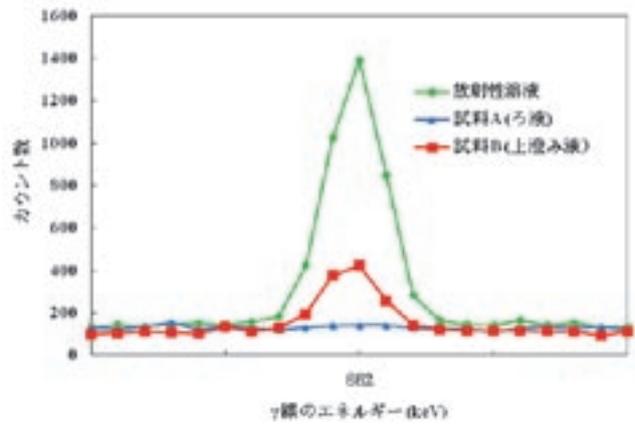


図4 溶液の<sup>137</sup>Csの測定結果

<sup>137</sup>Csのγ線エネルギーは662 keVです。662 keVのカウントが多いほど<sup>137</sup>Cs濃度が高いことになります。フィルターによるろ過ではろ液は<sup>137</sup>Csが認められず、ポリマー添加によっては75%程度の<sup>137</sup>Csが回収、除染されました。

表2 溶液の放射性核種濃度と除去率

Cs 沈殿の除去はフィルターろ過が効果的であることが分かりました。CoとMn除去率はCsと傾向が異なるので、沈殿生成のふるまいが異なることが示唆されます(各試料の放射性核種濃度は、γ線スペクトロメトリにより測定しました)。

	放射性核種濃度 [Bq/mL]			除去率 [%]		
	<sup>60</sup> Co	<sup>54</sup> Mn	<sup>137</sup> Cs	<sup>60</sup> Co	<sup>54</sup> Mn	<sup>137</sup> Cs
放射性溶液	10	25	3.9	-	-	-
フィルターろ過 (ろ液)	5.3	23	<0.13	47	8.0	>97
ポリマー添加 (上澄み液)	4.9	20	0.94	51	20	76

図3の写真は実験時の放射性溶液の様子です。実験前の透明だった溶液は、フェロシアン化物イオンを添加すると白濁しました。この変化によりフェロシアン化物イオンと溶液中の遷移金属が反応し、フェロシアン化金属粒子が生成したことが分かります。図3(3)が試料Aのろ過に使用したフィルターの写真です。フィルター上にはフェロシアン化金属粒子が付着していました。ポリマーを添加した後の試料Bでは粒子がポリマーにより塊状となった様子が観察されました(図3(4))。ポリマー添加前は10分以上沈降しなかった粒子がポリマー添加後は数秒で沈降したことから、ポリマーにより粒子が沈殿しやすくなったことがはっきりとわかりました。

表2が各溶液の放射性核種濃度の分析結果とそれから求めた除去率です。Csは97%以上、Coは47%を除去することができました。今回添加したフェロシアン化物イオンの量は遷移金属を50%除去することが出来る量でしたが、さらにフェロシアン化物イオンを添加することでCoの除去率を向上することができ、今回の実験で除去率が低かったMnも除去できると考えます。

粒子の回収方法の比較では、図4のようにフィルター

によるろ過の方が良い結果が得られました。ポリマーによる凝集沈殿法では微細な粒子を回収しきれなかったことがCsのピークが残った原因と思われます。この結果からフィルターろ過法が粒子の回収に効果的であると判断できますが、フェロシアン化金属粒子は非常に細かいため、フィルターがすぐに目詰まりを起こすことが想定されます。そのためポリマーによる凝集沈殿法で大部分の粒子を回収した後に、フィルターによるろ過法で液中に残った微細な粒子を回収することが合理的であると考えます。

フェロシアン化物イオンを添加することにより放射性の遷移金属とCsの同時除去が行えることを放射性溶液を用いた模擬実験により確かめました。

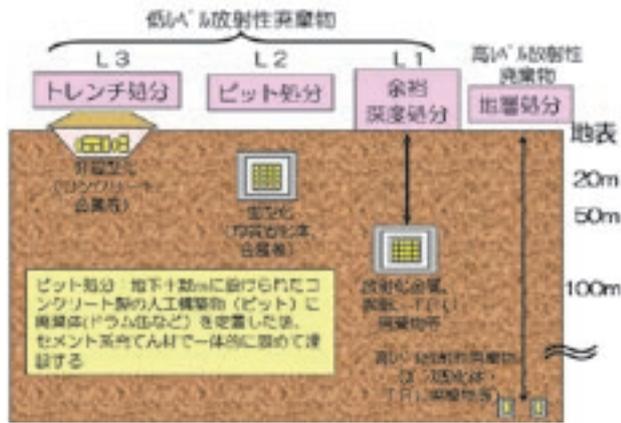
またフェロシアン化金属粒子の回収はポリマーによる凝集沈殿法とフィルターによるろ過法を組み合わせる行うことが有用であるとわかりました。

《参考文献》 ・ Takahatake, Y. et al., Decontamination of Radioactive Liquid Waste with Hexacyanoferrate(II), Procedia Chemistry, vol. 7, 2012, p.610-615.  
 ・ 高島容子ほか、海水を含む汚染水のフェロシアン化カリウム添加による遷移金属及びCsの除染、日本原子力学会2012年秋の大会、2012、C25。

# 3-7 ガレキ等廃棄物の処理・処分に向けて

## —性状の把握と従来処分法の適用性検討—

核サ研福島技術開発特別チーム 廃棄物処理処分技術開発グループ 芦田敬  
福島技術本部 復旧技術部 福島技術開発現地対応グループ 檜山敏明



放射性廃棄物は、含有する放射性核種の濃度などに応じて分類され、処分方法が決定されます。例えば、使用済核燃料の再処理によって生じる高放射性溶液はガラス固化体にして地層処分され、汚染が少ないものは地表近くに処分されます。

放射性廃棄物は、含まれる放射性核種の種類や量などに応じてその処分方策を適切に決定します。1Fの廃棄物は、通常の原子炉廃棄物とは性状が異なりますので、処分方法を決定するためには、廃棄物の性状把握と処理（廃棄体への加工）方法の検討が不可欠です。「廃棄物の処理処分検討」プロジェクトではこのための取り組みを進めており、次の事項を行ってきました。

### (1) ガレキ等の性状調査等

廃棄物中の放射性核種インベントリの把握が必要であり、上記廃棄物への放射性物質の付着状況等の性状を調査する計画です。これまでに、ガレキ試料及び伐採木試料の採取を行いました。試料は、10月に原子力機構原子力科学研究所へ輸送し、分析を進めています。試料の輸送と分析は次年度も継続する予定であり、試料の採取を計画的に行っています。

### (2) 測定核種分析技術の開発

分析方法が確立されていない処分安全評価上重要な難測定核種の分析技術を開発する必要があります。これまでに分析経験のない<sup>93</sup>Mo及び<sup>93</sup>Zrの分析手法について文献調査を進めました。また、高線量廃棄物中のα線放出核種や長半減期核種に対して遠隔・自動化が可能なキャピラリー電気泳動及びレーザー共鳴電離を利用した分析法の開発を進めています。



図2 1Fにおけるガレキ、伐採木廃棄物の管理状況

燃料の取り出しや廃止措置に向けた作業を容易にし、また線量率を下げるために、ガレキや伐採木は敷地内で集積、管理されています。9月末の時点で122,000 m<sup>3</sup>に達しています。(東京電力の発表から引用)

### (3) 処理・処分に関する研究開発基盤整備についての検討

既存の処分概念の適用性を確認し、処理・処分に必要な課題の抽出及び課題の解決を行う計画です。処理・処分に関する安全性の見通しの確認に必要な事項の国内外文献情報を収集・整理しつつ、これらの事項に関する課題、対応策等を検討しています。また、検討に必要な基礎試験データ収集の準備を進めています。

### (4) 処理・処分に関する研究開発計画の策定

処理・処分に関する研究開発計画の策定に向け、大学等の専門家の意見を反映することを目的とし、原子力学会に設けられる特別専門委員会と連携して進めていきます。これまでに、研究開発計画策定に向けた検討会を開催し、課題の抽出、研究開発項目の検討等を実施しています。

ガレキ等の性状調査に関しては、東京電力と協力し、現地において試料採取を行い、我々の施設に輸送し、詳細な核種分析を行っています。この概要を以下に紹介します。

試料採取を遂行するために、福島第二原子力発電所に駐在所を設け、これを拠点として1Fにおける現地対応業



がれき等の試料を採取した場所

図 3 ガレキ等の採取場所及び採取試料の例

発電所の敷地には、爆発に伴い生じたがれきや、放射性核種で汚染された木々などがあり、これらを分析用試料として採取しています。6月より採取を始め、継続して進めています。

務を開始しました。併せ、1F 及び 2F の現場での東京電力のニーズを集め、積極的に支援する活動も行っています。

ここでは「がれき」と総称しますが、コンクリート、砂礫、金属（鉄筋等）など廃棄物は雑多であり、線量率もまちまちです。また、事故後に移動された物も多く、廃棄物はそれぞれの履歴を持つことに注意しなければなりません。がれき等の採取にあたっては、爆発事故の事象進展を踏まえ、廃棄物の種類や採取の場所などを考慮してサンプリングの計画を立てる必要があります。6月から7月にかけては、図3に示すように、原子炉建屋が大きく破損した1号機、3号機、4号機周辺のがれき、樹木、また、汚染水処理設備やがれき仮置場等の整備に伴い大量に発生した伐採木等の試料の採取を行いました。また、滞留水や淡水化処理に伴う濃縮廃液といった溶液の試料採取も進めています。これらの作業は、高線量で、しかも施設が破損している作業環境下で行うことから、予め効率的な作業計画を立案し、目的とする試料を的確に採取しています。

採取した固体の試料は、粉碎、切断等の調製作業を行い（図3右上）、10月に原子力科学研究所へ輸送し、現在、詳細な核種分析を進めており、放射性廃棄物、滞留水等の性状把握に貢献することが期待されます。

9月からは1F敷地内の線量を低減する措置の一環として覆土式一時保管施設へのがれき搬入が開始されました。これらのがれきは、今後覆土される予定であり、がれきの採取が困難となるため、コンクリートや金属のがれき



採取したがれき(コンクリート)の例



採取したがれきから分析試料を調製する様子

試料の採取を精力的に進めています。

廃棄物の処理・処分方法の検討は速やかに行うことが求められますので、十分なデータを得るためにより多くの試料を分析しなければなりません。現在採取が困難な原子炉建屋内の構造物、機器なども視野に入れ、現場の作業環境に十分配慮しながら、最適な試料採取を行い、適切な放射性廃棄物処理・処分の実現に向けて貢献できるよう、現地活動を展開していきたいと考えています。

一方で、得られたデータから発生した廃棄物の性状を総合的に推定、評価する方法を確立するための検討を並行して行い、相互に補完していきます。

今後も、一日も早い事態の收拾に向けて、東京電力との協力関係を元にして現地での活動を進めていきます。

《引用文献》 [1] 原子力災害対策本部 政府・東京電力中長期対策会議 東京電力(株) 福島第一原子力発電所1~4号機の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ, 2012年7月30日

## Ⅲ. 事故時に海水が注入された影響を知る

<b>4</b>	<b>海水注入の影響把握とその対策に向けて</b>	
	—原子炉の構造材料・燃料集合体等への影響把握—	7
4-1	海水と放射線が材料に与える影響を評価する(1)	
	—燃料集合体および燃料プール材料の腐食特性の把握—	7
4-2	海水と放射線が材料に与える影響を評価する(2)	
	—原子炉格納容器・圧力容器材料の腐食特性の把握—	7
4-3	海水等の影響を受けた燃料集合体の処理に向けて	
	—プール内損傷燃料等の処理検討—	7



# 4 海水注入の影響把握とその対策に向けて

## —原子炉の構造材料・燃料集合体等への影響把握—

原科研福島技術開発特別チーム 材料健全性評価技術開発グループ 塚田隆

核サ研福島技術開発特別チーム プール燃料処理・保管技術開発グループ 田口克也

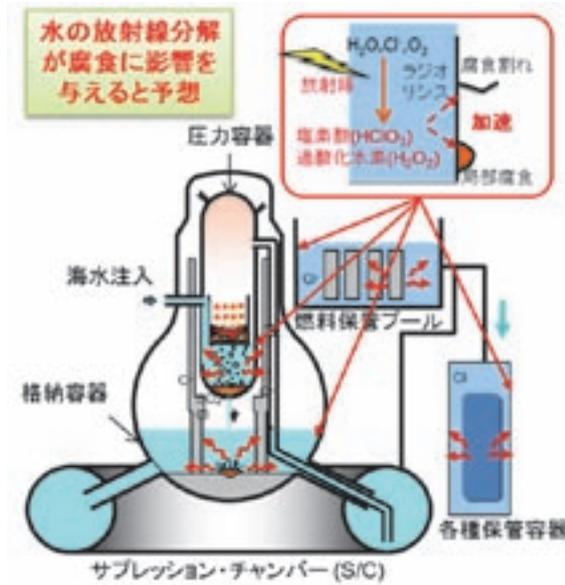


図 1 圧力容器／格納容器等に入った海水の放射線分解

原子炉内や SFP に注入された海水は、炉内の燃料が発する放射線の影響により分解します。そして発生する活性な化学種(過酸化水素など)は容器などを構成する金属材料の腐食を加速するため、放射線が腐食に与える影響を評価することが必要です。

東京電力(株)福島第一原子力発電所 (1F) の事故では、地震後の津波の影響により原子炉建屋の格納容器上部にある使用済燃料プール (SFP) の冷却機能が失われ、さらに水素爆発により建屋が大きく損傷し、SFP 内の燃料集合体が水中から露出する危惧がありました。このため、1F 2、3、4 号機では SFP 内の水位を維持するために建屋の外部から注水が行われ、その際一時的に海水が使われました。また、原子炉本体の水位も低下し炉内の緊急な冷却のために消防車による注水が行われましたが、防火水槽に貯蓄されていた淡水が枯渇したため、海水が 1、2、3 号機の原子炉内へ注入されました。

今後実施される SFP からの燃料集合体の取り出し作業とその後の共用プールにおける長期的な保管および原子炉から燃料デブリを取り出すまでの多くの作業を安全かつ確実に実施するため、これまで経験のない海水由来の成分を含む水環境と放射線と同時に晒された各種の金属材料の劣化・損傷について調べ、必要に応じてそれを防止・抑制する方策が必要です (図 1)。

現在は各原子炉で注水冷却系が作動し冷却水中の海水由来の塩化物イオン濃度も低下していますが、一旦海水が注入された圧力容器／格納容器では今後も長期に亘り希釈海水環境に曝されることが想定され、構造材料の腐食の進行に起因した構造強度の低下が起こる可能性も懸念されています。

そこで、原子力機構では、政府・東電中長期対策プロジェクトと連携して、使用済燃料集合体・SFP の材料お

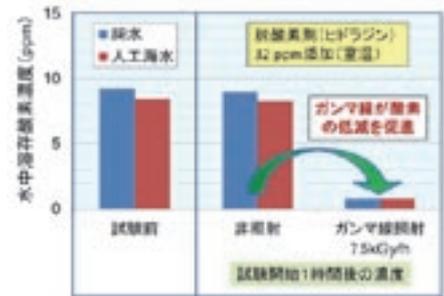


図 2 高崎量子応用研究所におけるガンマ線照射試験

高崎量子応用研究所においてガンマ線照射試験を実施しています。グラフは腐食抑制剤として SFP に注入されているヒドラジンの脱酸素作用における放射線による促進効果を示す結果です。

よび格納容器・圧力容器の材料の健全性に影響を与える可能性のある腐食あるいはそれに起因する強度低下に関わる下記(1)～(6)のような試験研究を実施しています。既にその成果は、SFP における最適な腐食防止対策を検討するための基礎データとして活用されるなどの貢献を果たしています。

また、1F の SFP 内の燃料集合体は、当面は共用プールに保管しますが、その後の処理方策を検討しておく必要があります。処理方策の 1 つとして、再処理があり、海水成分の付着、ガレキの同伴、損傷、構造強度の低下の可能性のある使用済燃料集合体を再処理する場合の再処理工程に与える影響の検討も行っています。

### (1) 燃料被覆管及び SFP 材料の腐食損傷評価

海水が混入した SFP 水中でのジルカロイ製の燃料被覆管の腐食挙動を検討するため、海水を含む溶液での腐食発生条件を電気化学的手法により調べています。その場合に、腐食条件は出来るだけ 1F SFP の環境を模擬して、使用済燃料からの放射線 (主にガンマ線) が冷却水環境と腐食に与える影響を検討することが必要です。そのため、原子力機構の高崎量子応用研究所のガンマ線照射施設で、燃料被覆管材料のガンマ線照射下の希釈海水中腐食試験を実施しています。その結果、現在の SFP では水中の塩化物イオン濃度が低下しておりさらに温度も低下していることから、現状の水質では孔食発生の可能性が低いことを示しました。また、現在 1F では SFP 水

中に溶存している酸素濃度（腐食加速要因）を低減するためにヒドラジンが注入されていますが、その添加は放射線の存在により有効に作用することを確認しました（図 2）。

### (2) 放射線分解現象に与える海水注入の影響検討

ガンマ線は水分子にエネルギーを与え放射線分解を生じさせ、その結果水素および酸素が発生するとともに、過酸化水素などの活性な化学種が生成するため材料の腐食挙動に影響を与えます。しかし、塩化物イオンを含む水溶液中での放射線分解の影響を含めて腐食挙動を検討した例はほとんどなく、海水成分を含む水の放射線分解により生成した化学種が腐食挙動に与える影響を検討する必要があります。そこで、海水を含む水の放射線分解を評価できる解析コードの整備とコード検証のためのガンマ線及び電子線照射施設での実験を行い、海水成分を含む水の放射線分解を適切に評価する手法の検討を行っています。その結果、海水由来の成分が水の放射線分解に与える影響が明らかになって来ました（図 3）。

### (3) 使用済燃料被覆管を用いる材料健全性の評価

燃料集合体の長期健全性評価に係る先行基礎試験として、原子力機構の施設内に保管されていた使用済燃料の被覆管を用いて腐食試験を実施し、実機相当の照射を受けた使用済燃料被覆管の健全性に及ぼす塩化物イオンの影響等を調べています。2012年度は東京電力福島第二原子力発電所の使用済燃料（燃焼度 55GWd/t）被覆管を用いる腐食試験を開始しました。また、「ふげん」の照射済燃料被覆管（45GWd/t）に対しても人工海水を用いた浸漬試験後の強度特性評価を完了するとともに、希釈なし浸漬溶液での浸漬試験（80℃の液温に保持し、300 時間超および 1000 時間程度）を実施しました。

### (4) 原子炉容器材料の腐食劣化、放射線影響の評価

圧力容器/格納容器の材料の長期健全性評価に必要な腐食試験等をメーカーおよび電力中央研究所と分担して実施しています。原子力機構は、ガンマ線照射が腐食挙動

へ与える影響を評価するためガンマ線照射施設にて照射下で希釈人工海水環境における腐食試験を実施し、照射下腐食速度の環境依存性データを取得することおよび防錆剤などの腐食劣化抑制策の照射下における有効性を確認することを主な目的としています。腐食試験には、格納容器材として炭素鋼（SQV480）、圧力容器材として低合金鋼（SQV2A）を用い、希釈人工海水中の試験を 50℃～200℃で行い、試験前後の重量変化から腐食速度を評価しています。また、腐食対策の有効性を検証するため、水中溶存酸素除去剤（ヒドラジン）、防錆剤等の添加条件での照射下腐食試験も実施します。

### (5) 原子炉容器材料の強度特性への浸漬の影響評価

腐食による材料の減肉や局所的な損傷が材料の強度に影響を与える可能性があります。このため、原子炉容器を構成する材料（炭素鋼、低合金鋼、ステンレス鋼等）を照射済燃料を塩水浸漬した溶液へ浸漬しその後強度試験を行い、腐食挙動や強度特性に及ぼす塩化物イオン、核分裂生成物（FP）及びγ線照射が重畳する条件の影響を評価します。この試験の条件の設定では、下記(6)で得られる使用済燃料から海水中へ溶出する放射性核種成分に関する知見を活用します。

### (6) 使用済燃料からの放射性核種の浸出挙動評価

事故時に注入された海水と接した高温の燃料からは放射性核種成分が溶け出したと考えられます。各種炉心構成材料の腐食特性評価を行うためには、炉内の水環境を予測することが必要ですが現状ではまだ炉内水の分析データがありません。このため、1F で使用されている燃料成分と類似の使用済燃料（「ふげん」照射済燃料）を用いて塩水浸漬試験と浸漬後の水溶液の成分分析を行い、放射性核種成分等の浸出挙動を評価しています。得られる知見は、今後取得される 1F の炉内水サンプルの分析結果と比較することで、事故時および事故後の炉内環境を推定することに役立てられます。

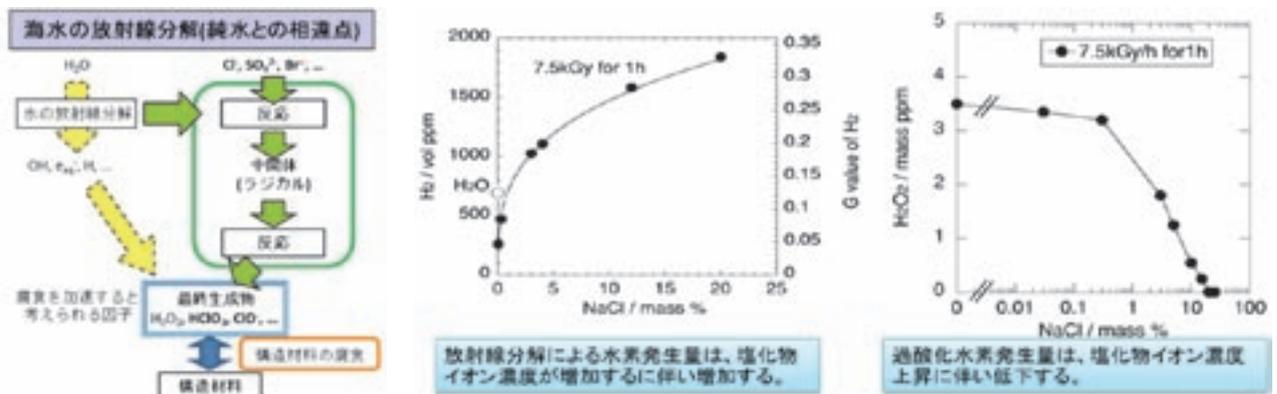


図 3 純水と海水成分を含む水の放射線分解の違い

純水の放射線分解では、水素や過酸化水素が生成します。水に海水成分、とくに塩化物イオンが含まれると、さらに塩素酸が生成されます。塩素酸は金属の腐食を加速する可能性があります。また、過酸化水素や水素の生成量も塩化物イオンの影響を受け変化します。正確な腐食環境評価には、これらの知見を取り入れた解析評価が必要です。

《参考文献》 ・ 本岡隆文, 佐藤智徳, 山本正弘; 日本原子力学会和文論文誌 Vol.11, No.4 (2012.12.01 発行) に掲載予定

# 4-1 海水と放射線が材料に与える影響を評価する(1)

## —燃料集合体および燃料プール材料の腐食特性の把握—

原科研福島技術開発特別チーム 材料健全性評価技術開発グループ 本岡隆文  
 安全研究センター 高度化軽水炉燃料材料研究グループ 端邦樹  
 大洗研究開発センター 福島燃料材料試験部 材料試験課 林長宏

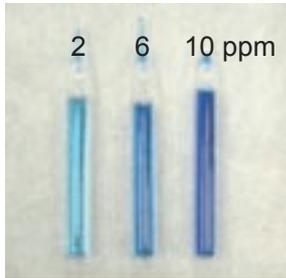


図1 溶存酸素濃度の分析例  
 溶存酸素が多いと青色が濃くなります

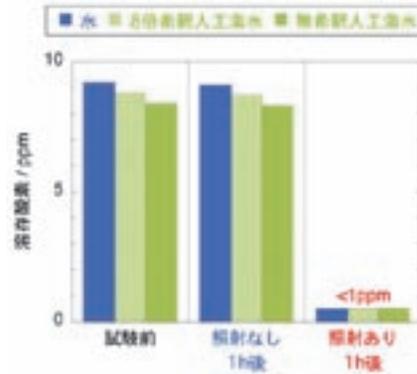


図2 水及び海水含有溶液でガンマ線を照射した場合の溶存酸素濃度の違い

ヒドラジンを微量含有する純水、8倍に希釈した人工海水、無希釈の人工海水にガンマ線を照射しました。放射線照射下では腐食を加速する因子である溶存酸素濃度が短時間で低下しました。

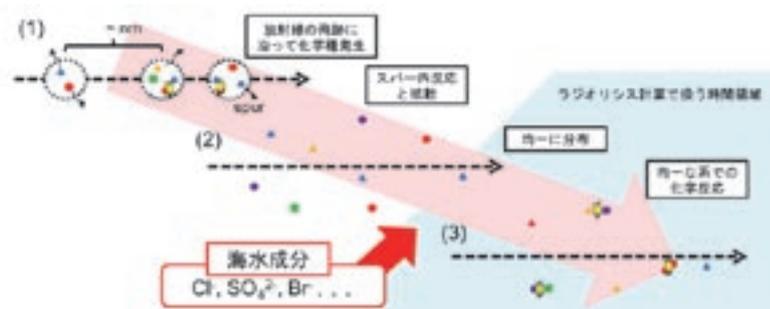


図3 水の放射線分解現象の概略図

左上から右下に向かって、時間の経過とともに進行する水の放射線分解の概要を示しています。(1) 放射線の飛跡に沿って水分解活性種(OHラジカル、Hラジカルなど)が局所領域(スパー)内に発生。(2) スパー内反応と拡散を繰り返しながら均一に分布。(3) 均一な状態となった後も活性種間での反応が進行。(海水成分がこれら活性種と反応することで、通常の水の放射線分解とは異なる生成物の挙動が見られる可能性があります。)

### (1) 燃料被覆管及びSFP材料の腐食損傷評価

1F 2、3及び4号機のSFPには事故時に海水が注入されました。海水成分が混入した水環境では通常運転時の高純度水の場合と異なり、腐食による様々な問題が懸念されます。その一つとして、SFP水に海水が混入したことによる局部腐食(孔食、すきま腐食)が考えられます。SFPの内貼り材として使用されているステンレス鋼の局部腐食が進むと、そこから放射能に汚染されたプール水が漏れ出ることや使用済燃料の冷却機能が喪失する可能性があります。

そのことを考慮して、東京電力㈱は、腐食防止対策の一手段として、プール水に溶けている腐食要因となる酸素(溶存酸素)を取り除くために、高温ボイラーにおいて使用されている酸素除去剤の一つであるヒドラジンを注入しました。200℃程度の高温の高純度水の溶存酸素はヒドラジンを注入すれば除去できることは既に知られていましたが、海水が混入した比較的低い温度のプール水でも溶存酸素が除去できるかどうかについてはよく分からない状況でした。

そこで、海水が混入したプール水をモデル化した条件で、溶存酸素の除去割合を分析しました。室温の人工海水にヒドラジンを微量(32ppm)添加した後、ガンマ線を1時間照射しました。その結果、ガンマ線を照射しないと溶存酸素濃度はほとんど低下しませんが、ガンマ線を照射することで溶存酸素濃度は著しく低下しました。これにより、使用済燃料からはガンマ線が出ていること

から、海水が混入したプール水にヒドラジンを注入すると、温度が低い条件でも腐食を加速する溶存酸素濃度を短時間で低下させることが確認できました(図1及び図2)。本結果を反映して、1Fでは腐食防止策として、SFPへのヒドラジン注入が継続的に実施されています。

### (2) 海水を含む水の放射線分解現象の把握

海水注入の結果、原子炉内構造物やSFPの材料は、ガンマ線による海水の分解生成物や海水成分の作用によって、これまで想定されなかった腐食環境に晒されていると考えられます。すなわち、冷却水中に海水が混入することで、水の放射線分解生成物である酸素、水素や過酸化水素などの生成量が変化するとともに、海水成分(Cl<sup>-</sup>等)に由来する生成物が発生し、材料の腐食環境がより過酷になることが考えられます(図3)。そこで、海水成分を含む冷却水の放射線分解挙動を評価するための解析ツールの整備を進めています。

解析ツールの整備の一環として、複合化学反応の動的モデリングソフトウェア Facsimile を用いた計算を行いました。計算における海水の取り扱いを簡便にするため、海水の主要な成分であり水の放射線分解挙動への影響が考えられる Cl<sup>-</sup>、Br<sup>-</sup>、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>を含む水溶液を“モデル海水”として取り扱いました。また、上記成分の個々の影響を調べるために、海水中濃度と同濃度 pH を 8、線量率を 1 Gy/s としています。

純水、モデル海水、0.5 M NaCl 水溶液、0.8 mM NaBr

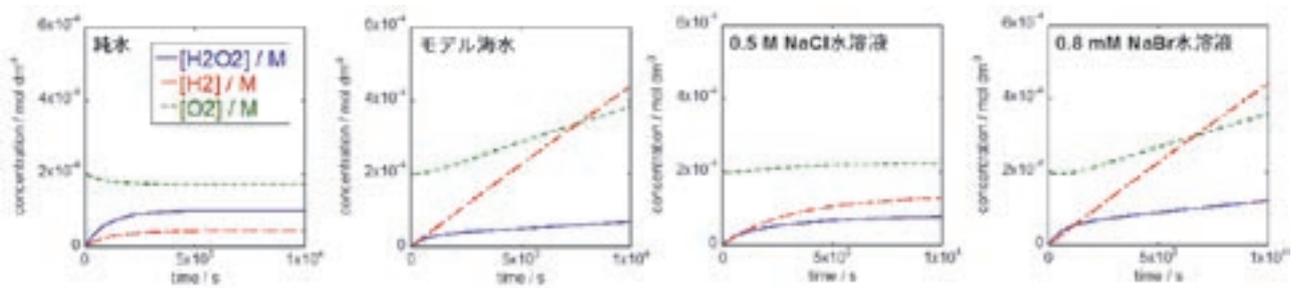


図 4 1 Gy/s のガンマ線照射下における H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>、O<sub>2</sub>、H<sub>2</sub> の水中濃度の時間変化

モデル海水の計算結果が NaCl より NaBr 水溶液の計算結果に類似していることから Br<sup>-</sup> の存在が海水の放射線分解において重要であることがわかりました。

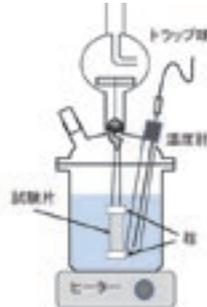


図 5 浸漬試験の模式図

浸漬試験中の浸漬液侵入を防ぐための専用治具を考案し、燃料被覆管内面を保護した状態で浸漬試験を実施しました。

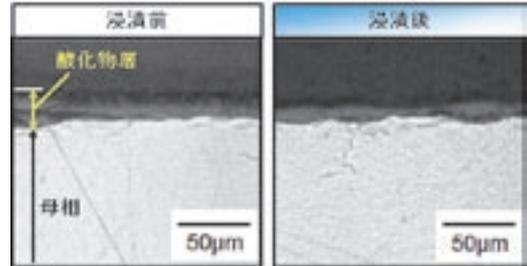


図 6 浸漬試験前後における被覆管外表面の断面組織

酸化物質層(照射により形成したゾジュラー腐食)の剥離など母相との界面における浸漬試験前後での顕著な変化は認められませんでした。

水溶液について、ガンマ線照射下における酸素、水素、過酸化水素の生成挙動を計算した結果を図 4 に示します。純水では、すべての生成物が 5000 秒以内に定常状態に達しましたが、モデル海水では各生成物が単調に増加するという結果になりました。NaBr 水溶液についても同様に生成物が増加しましたが、NaCl 水溶液では生成物の増加は認められませんでした。これらの結果より、海水における放射線分解生成物の挙動は、Br<sup>-</sup> によって決定され、Cl<sup>-</sup>、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> などのより高濃度のイオン種の影響はほとんどないということが示されました。この結果は、モデル海水では H<sub>2</sub> の生成が顕著であることを示唆しています。

### (3) 使用済燃料を用いる材料健全性の評価

海水を注入した SFP に保管されている燃料集合体の腐食特性把握に資するため、SFP 内の水質を模擬した溶液(模擬 SFP 水)を調製し、使用済ジルカロイ-2 燃料被覆管による浸漬試験を実施しました。試験片は、平均燃焼度約 45GWd/t の「ふげん」燃料棒から切り出して燃料を除去した燃料被覆管(照射材)を用いました(長さ約 30mm、外径 14.5mm、肉厚 0.9mm)。模擬 SFP 水は、SFP 水の半分が海水に置き換わった状況を想定して、人

工海水を 2 倍希釈した溶液としました。浸漬試験は、図 5 に示す実験装置にて、液温を 80°C に設定し約 336 時間実施しました。浸漬後の試験片は輪切りにしてリング状の試験片を調製し、光学顕微鏡による断面組織観察及び室温でのリング引張試験(試験片幅:3mm、引張速度:0.1 mm/min 一定)に供しました。また照射材と同一ロットの製造予備材(非照射材)についても同様の浸漬試験に供し、比較しました。

試料断面観察の結果、表面近傍の状態に浸漬前後における明瞭な差は見られず、照射時に形成された酸化層(図 6)や、被覆管内部の水素化物についても浸漬による明瞭な影響は認められませんでした。また、リング引張試験の結果、浸漬による引張強さや破断伸びの変化は認められませんでした(図 7)。さらには、非照射材の引張特性についても、引張強さに対する浸漬による変化がほとんど見られませんでした。これらから、本試験の範囲では模擬 SFP 水が燃料被覆管材の腐食挙動や強度特性に及ぼす影響は小さいと考えられます。

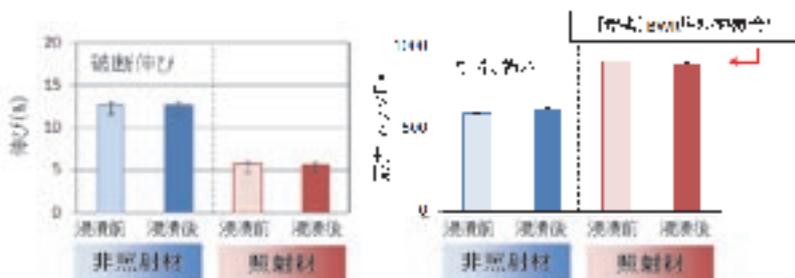


図 7 浸漬試験前後における引張強さと破断伸び(非照射材、照射材)

非照射材、照射材ともに、引張強さ及び破断伸び等の強度特性に有意な差は見られませんでした。

《参考文献》 ・ 林長宏ら、人工海水を用いたジルカロイ-2 照射材の浸漬試験、日本原子力学会 2012 年秋の年会 講演番号 J32  
 ・ K.Hata, et al., Radiation-induced reactions among components of sea water, Cl<sup>-</sup>, CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>, Br<sup>-</sup>, Proc. 2012 Nuclear Plant Chemistry Conference, Paris, France, Sep. 23-27 (2012)

## 4-2 海水と放射線が材料に与える影響を評価する(2)

### —原子炉格納容器・圧力容器材料の腐食特性の把握—

原科研福島技術開発特別チーム 材料健全性評価技術開発グループ 塚田隆

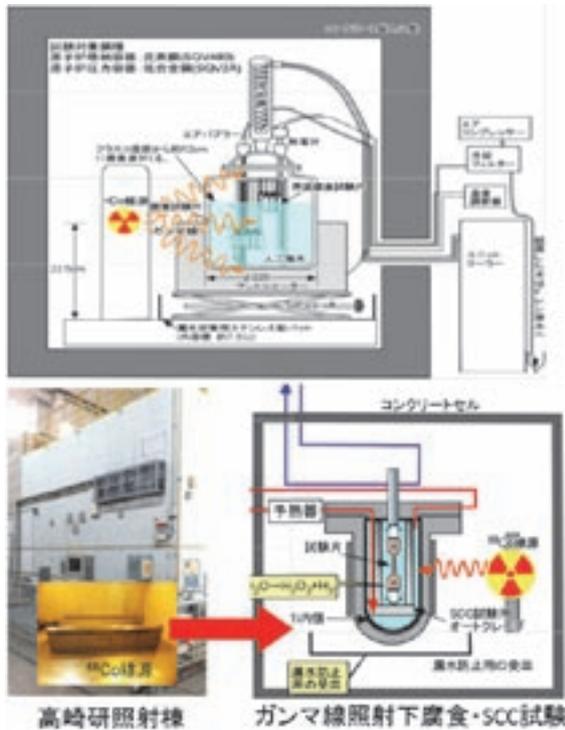


図1 高崎量子応用研究所における照射下腐食試験

1Fで海水成分を含む水に接している材料の腐食挙動を調べるためには、ガンマ線照射下の腐食試験が必要です。このため高崎量子応用研究所のガンマ線照射施設で試験を実施しています。

原子炉の中には原子燃料やFPといった放射性物質がありますが、事故時においても大量の放射性物質を放出するのを防ぐため、原子炉の周囲には格納容器と呼ばれる鋼鉄（炭素鋼）製の容器で覆われています。しかし、炭素鋼は水と接触することにより腐食し、錆（酸化鉄）となって強度が低下したり、孔が開いたりします。特に、海水に含まれる塩分は、腐食速度を増加させ、局所的な腐食を進行させる原因となります。また、原子炉の内部は溶融した原子燃料が落下しているため高い放射線量になっていますが、水は放射線により分解され過酸化水素、ラジカルなどの活性な化学種が生じます。これらは炭素鋼の腐食の進行を速める可能性があります。さらに、燃料が溶融したことで原子炉の内部も高い温度の状態が継続しました。1F 3号機においては、100℃以上の状態が事故後約半年間も続いていましたが、高温の水も炭素鋼の腐食の進行を速める要因となります。このように、原子炉の内部は容器の鋼材の腐食を加速する環境となっています。このため原子力機構では、圧力容器（RPV）/格納容器（PCV）の材料の腐食劣化損傷に関する評価および容器材料の強度特性に及ぼす浸漬の影響評価などを実施しています。以下にその概要を紹介します。

#### (1) 原子炉容器材料の腐食劣化、放射線影響の評価

格納容器に使用されている材料とほぼ同じ化学組成の

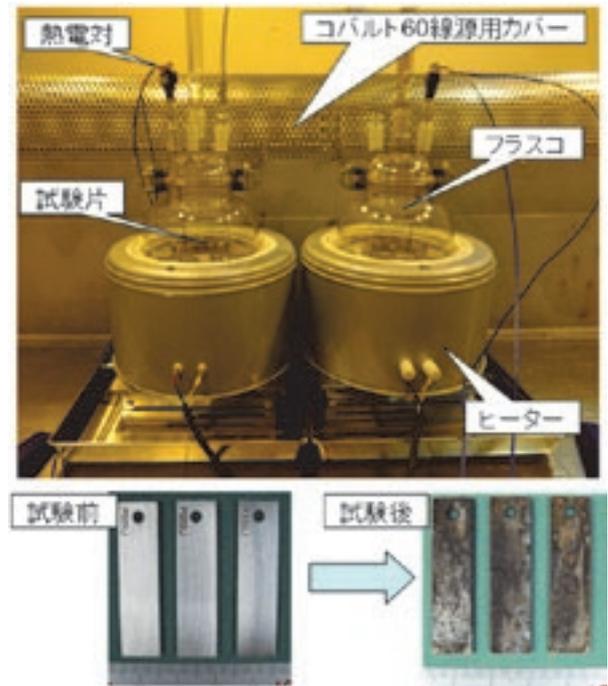


図2 ガンマ線照射下塩素環境中腐食試験

照射室床下のプールからコバルト60ガンマ線源が線源用カバー内に上昇することでガンマ線照射が開始されます。温度50℃、200倍希釈の人工海水に50時間浸漬した炭素鋼は赤く錆びています(写真下)。

炭素鋼から試験片を作成し、濃度を薄めた人工海水中に浸漬した状態でガンマ線を照射する腐食試験を行っています。ガンマ線照射は、高崎量子応用研究所の照射施設で行っています(図1)。1F 2号機の格納容器内での放射線測定データを元に炉内の吸収線量率を推定し、それを模擬するためガンマ線照射試験では約3.5 kGy/hの線量率で試験を実施しています(図2)。この試験により、放射線がない場合と比較して、ガンマ線の照射により腐食速度がどの程度加速されるのか、腐食が加速されやすい気液界面での腐食速度はどの程度になるかといった情報を得ることができます。

格納容器の内部には多くの配管や機器が設置されています。全てが炭素鋼で構成されている訳では無いため、ステンレス鋼など異なる金属と接触する部位が存在します。化学組成の異なる金属同士が水中で接触している場合、電気化学的な電池が形成され耐食性の低い金属の腐食が進行してしまうこと（異種金属接触腐食またはガルバニック腐食）が懸念されています。図3には炭素鋼を低合金鋼およびステンレス鋼と接触させた試験片の100℃～200℃での腐食試験の結果を示します。炭素鋼同士が接触している場合よりも、いずれの温度でも低合金鋼およびステンレス鋼と接触していた炭素鋼の腐食速度が2倍以上に増加していることが分かりました。

このように放射線照射下での炭素鋼の基本的な腐食特

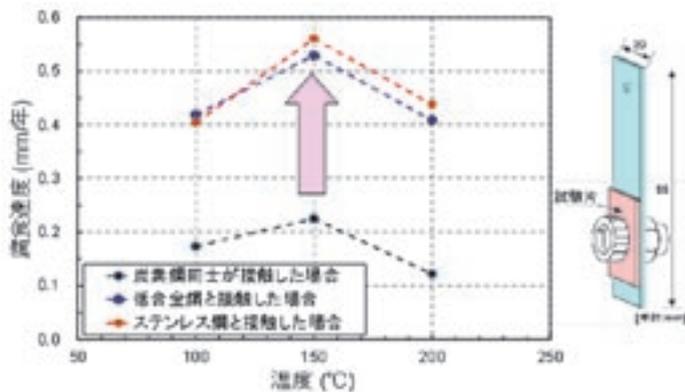


図3 非照射で500時間浸漬した炭素鋼の腐食速度

人工海水に浸漬してもその時に接触している相手側の材料が異なるだけで炭素鋼の腐食速度が変化します。同じ鉄系の材料であっても、クロム等が添加されている低合金鋼やステンレス鋼と接触していると腐食速度が増加します。

性を把握した上で、1Fの格納容器に注入することが検討されているヒドラジンに代表される酸素除去剤あるいは防錆剤が、放射線照射下でも有効な腐食抑制効果を示すとともに副次的な影響の少ない添加剤を探索します。さらに、それらの薬剤の添加量や添加間隔等を変化させた場合の腐食抑制効果を調べ、効率的でかつ環境への影響が少ない添加手法を検討し、1Fの格納容器の腐食対策に貢献することを目指しています。

## (2) 原子炉容器材料の強度特性への浸漬の影響評価

腐食劣化が材料の強度に与える影響を調べるため、RPV/PCVを構成する鉄鋼材料（炭素鋼、低合金鋼、ステンレス鋼等）を、照射済燃料を塩水浸漬した溶液等への浸漬及びその後に強度試験を行い強度特性への影響を評価し、原子炉構造材料の長期間の健全性評価に資することを目的としています。RPV/PCVの健全性評価に資するためには、塩水等を含む炉内水浸漬環境を模擬した体系で、各種部材等の人工海水等への浸漬による腐食、強度特性等への影響を評価する試験を行っています。RPV/PCV材料劣化予測精度向上を主眼として、その原因となる孔食、応力腐食割れ、すきま腐食等の腐食挙動、さらにはこれらの進行に起因する局所的な強度低下などに着目し、想定される温度、環境等を踏まえた加速条件下での試験を行います。試験結果から腐食等発生条件を評価し、健全性評価のための基礎データとします。具体的には、原子力機構内の共通試料（炭素鋼等）やSUS等照射材に対する模擬炉内水中での加速条件下での浸漬試験を実施し、浸漬前後の組織、強度特性等の変化から、腐食挙動や強度特性に及ぼす塩化物イオン、 $\gamma$ 線照射、FP等が重量する条件での影響を評価します。また、その照

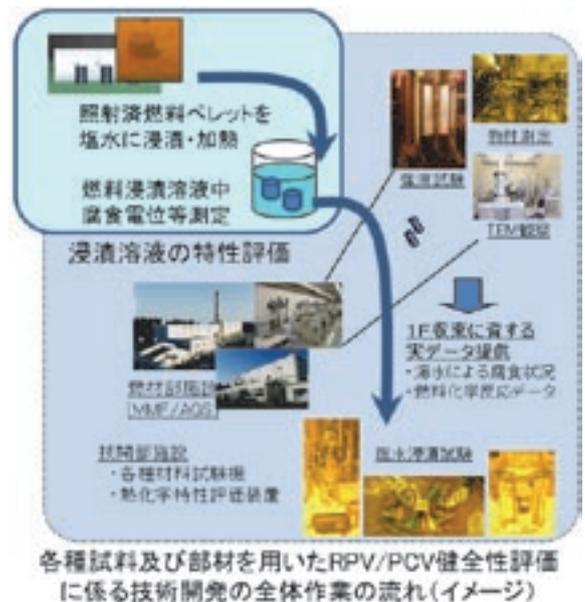


図4 照射済燃料の人工海水中浸漬試験

腐食試験における炉内環境の模擬性を高めるために、人工海水等に実照射済燃料を浸漬させた水溶液を調製することを試んでいます。その水溶液を分析することにより事故後の炉内水の状態の予測に役立てるとともに、溶液中に原子炉の構造材料を浸漬した後に強度試験などを行い、炉内模擬水への浸漬が材料に及ぼす影響を検討します。

射済燃料が塩水浸漬して生じた水溶液における炉内金属材料の腐食特性等に関する基礎データを取得します（図4）。

## (3) 使用済燃料からの放射性核種の浸出挙動評価

炭素鋼はわずかな環境の変化によって腐食速度が大きく変化する可能性があるため、格納容器内の状況にできるだけ近い条件で腐食試験を行うことが必要です。事故時に緊急措置として原子炉内に注入された海水は、原子炉内にある燃料（初期のペレット形状のものおよび溶解し不定形化したもの）と接触し化学反応を生じ、燃料の成分が海水中へ溶け出したと考えられます。また、燃料から放出されたFPによって海水の成分が変化すると予測されます。このため、原子炉内の水質の変化が材料の腐食に与える影響についても評価を行っています。

具体的には、現在廃止措置中の新型転換炉「ふげん」で使用されていた燃料棒から切り出した試料を100°Cの人工海水中に6~18時間の浸漬を行い溶液組成を調べました。その結果、浸漬した燃料中に含有される代表的なFPであるセシウムは、燃焼度から見積もられる生成量（計算値）のうち1.5~6.0%が人工海水中に溶け出すこと、アメリカシウム、プルトニウム等は溶解せずに微粒子の状態で人工海水中に存在する可能性があること等が分かりました。これらの結果は、今後実施する人工海水での構造材料の浸漬試験の条件選定に反映させていきます。

# 4-3 海水等の影響を受けた燃料集合体の処理に向けて

## —プール内損傷燃料等の処理検討—

核サ研福島技術開発特別チーム プール燃料処理・保管技術開発グループ 田口克也

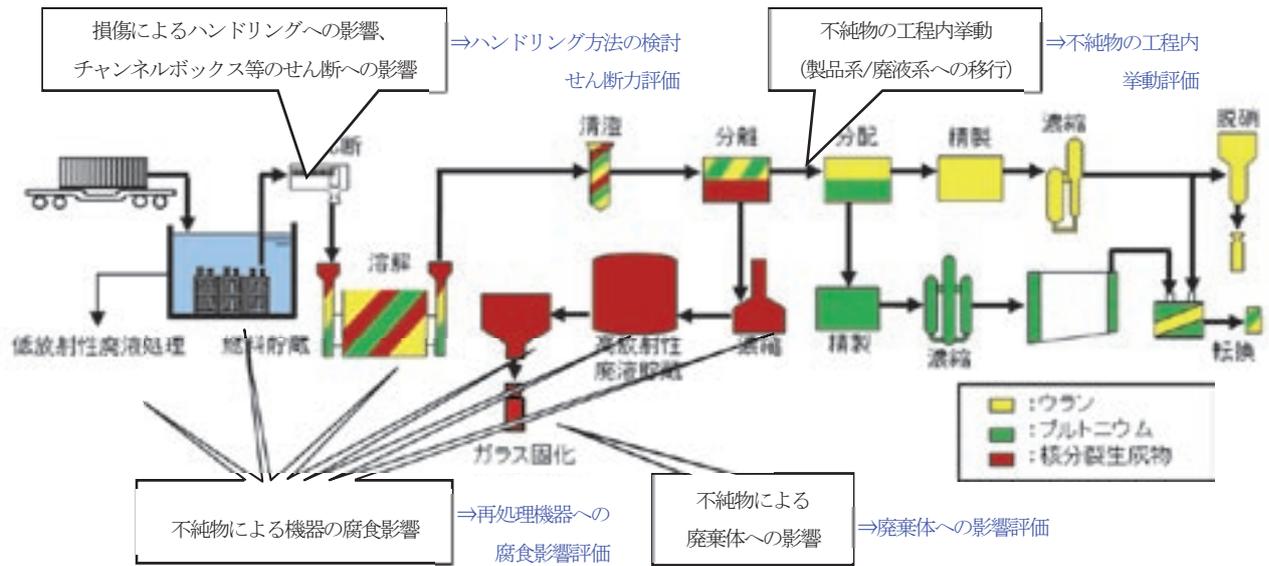


図 1 想定される損傷燃料等の再処理時の影響と必要となる評価

1号機から4号機のSFPには、計2724体の使用済燃料集合体が貯蔵されています。これらの燃料集合体のうち、2、3、4号機のものについては海水に曝されており、1、3、4号機のものについては落下したガレキによる変形・損傷や燃料集合体へのガレキの同伴の可能性があります。これらの燃料集合体は、より安定的な貯蔵のため、SFPからの取り出しを行い、発電所内にある共用プールに移送する計画です。これらの燃料集合体は、当面の間、共用プールで保管しますが、今後の廃止措置に向け、それ以降の取り扱いを決める必要があります。本件は、これらの損傷等の可能性のある燃料集合体(損傷燃料等)の処理方策検討に資するため、使用済燃料の処理方策の1つである再処理を行った場合の再処理工程における影響の有無を把握することを目的としています。損傷燃料等の再処理を行う場合の課題を図1に示します。

損傷燃料等は新たに設計・製造する収納缶、さらに輸送容器に収納し、再処理施設に搬入すると考えられます。燃料集合体の受入・貯蔵を行う工程ではこれらの輸送容器からの収納缶の取り出し、収納缶からの損傷燃料等の取り出し等を行う必要があります。また、燃料集合体のせん断を行う工程では損傷燃料等に取り付けられたチャンネルボックスの解体等を行う必要があります。これらの工程においては、損傷燃料等を取り扱う際のハンドリングへの影響を把握し、設備や取り扱い手順の変更等により、損傷燃料等への対応が可能であることの確認が必要となります。

また、損傷燃料等は海水に晒されたことやガレキの同伴により、通常の使用済燃料には含まれない海水成分やコンクリート成分等の不純物を伴っていると考えられます。これら不純物の除去が困難な場合に備え、不純物による化学処理工程等への影響を把握する必要があります。

把握が必要な主な影響として、機器への腐食影響、ウラン・プルトニウム製品への影響、廃棄体への影響が挙げられます。

再処理施設の機器は、腐食環境に応じ、ステンレス鋼等の耐食性の高い材料を使用しています。しかし、損傷燃料等には腐食の考慮が必要な塩化物を含む不純物を伴っていると考えられるため、不純物を含む溶液を取り扱う機器について腐食影響を把握する必要があります。また、再処理施設の製品であるウラン・プルトニウム製品は、原子炉で再利用するために不純物の含有率を低く抑える必要があります。このため、損傷燃料等に伴う不純物の工程内挙動、製品への影響を把握する必要があります。さらに、工程内で除去された不純物はFPとともに高放射性廃液や低放射性廃液に移行すると考えられます。これらの廃液は、蒸発濃縮後、ガラス固化体等への廃棄体化処理を行うことから、不純物による廃棄体への影響を把握する必要があります。

本件では、上述の損傷燃料等のハンドリング、不純物の影響に係る試験や検討を行い、その結果を整理し、最終的には損傷燃料等の再処理が可能かを判断するための指標の整備を行います。

本件の全体スケジュールを図2に示します。損傷燃料等の処理技術に関するプロジェクトが2013年度に設置され、その成果は2020年度に設定された使用済燃料の再処理・保管方法の決定という判断ポイントに反映されます。

プロジェクトでの本格的な議論に向け、損傷燃料等の再処理への影響の検討や影響把握のための基礎的な試験を開始しています。各R&Dの現状を以下に示します。

年度	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020
外部イベント			プール燃料取出し開始 ▽						使用済燃料の再処理 保管方法の決定	▽
・損傷燃料等に関する事例調査										
・損傷燃料等の化学処理工程等への影響の検討										
・損傷燃料のハンドリングに係る検討										
・損傷燃料等の分別指標の検討										

図 2 全体スケジュール

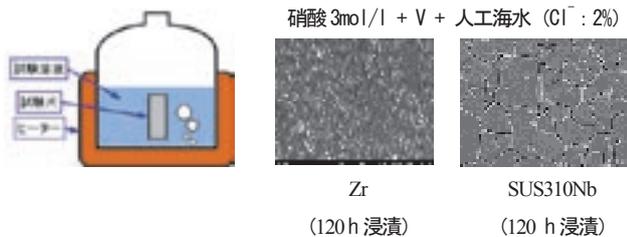


図 3 再処理機器材料の腐食試験

硝酸溶液に塩素イオンが加わった場合の腐食影響を評価しています。現在、使用済燃料の溶解槽の材料を対象とした試験を実施中です。今後、高放射性廃液貯槽等の代表的な機器材料を対象とした腐食試験を実施します。

1) 損傷燃料に関する事例調査

SFP 内燃料に関する情報収集を適宜実施中です。また、今後、国内外における損傷燃料の取り扱いに関する文献調査を実施します。

2) 損傷燃料等の化学処理工程等への影響の検討

1~4 号機の SFP に貯蔵されている損傷燃料等の損傷の程度や同伴する不純物の性状・量はまだ明らかになっていません。このため、当面は海水成分やコンクリート成分の影響を把握するための予察試験を実施し、その後、現地の調査結果を反映した現実的な条件での試験を実施していきます。

(a) 不純物による再処理機器への腐食影響評価

不純物による腐食影響評価のため、腐食環境の厳しい使用済燃料の溶解槽の材料を対象とし、模擬不純物として塩化ナトリウムや人工海水等を用いた腐食試験を実施中です(図 3)。また、今後、高放射性廃液貯槽等の代表的な機器材料を対象とした腐食試験を実施します。

(b) 不純物の工程内挙動評価

損傷燃料等に同伴したコンクリート片が使用済燃料溶解槽に移行することを想定し、コンクリート片の沸騰硝酸への浸漬試験を実施しました(図 4)。その結果、セメント部分はほぼ溶解することを確認したことから、今後、海水成分及びコンクリート成分が使用済燃料溶解液中に移行した場合の抽出工程における不純物の挙動を評価するための試験を実施します。

(c) 不純物の廃棄体への影響評価

廃液中に不純物が移行した場合の廃棄体の製造や健

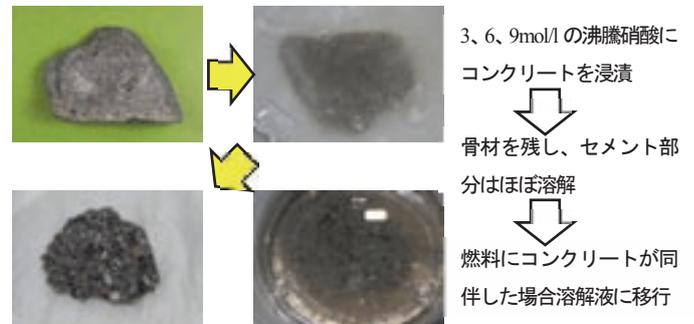


図 4 コンクリートの硝酸浸漬試験

燃料集合体にコンクリートのガレキが同伴した場合の影響を評価しています。今後、不純物の溶媒抽出に係る試験を実施します。

全性への影響評価のため、模擬廃液を用いた廃棄体の試作試験を計画中です。

3) 損傷燃料等のハンドリング等に係る検討

損傷燃料等をチャンネルボックス付きの状態や収納缶に収納した状態でのせん断力推定のため、過去の燃料集合体のせん断時に測定したせん断力データの整理やせん断力評価手法の調査を実施中です。

本件については、試験・検討を開始した段階ですが、1~4 号機の廃止措置を行う上で SFP に貯蔵された使用済燃料集合体の措置は重要な課題であり、将来の処理・保管方法の決定に向け、着実に損傷燃料等の再処理時の影響の検討を進めていきます。



## 東京電力(株)福島第一原子力発電所の廃止措置技術に係る原子力機構の取組み

2012年版

---

発行 2012年11月

編集・発行 独立行政法人 日本原子力研究開発機構

---

■本誌及び内容についてのお問い合わせは、下記にお願いいたします。

**独立行政法人 日本原子力研究開発機構**

**福島技術本部 復旧技術部**

〒100-0011 東京都千代田区内幸町2丁目2番2号 富国生命ビル19階

TEL (03)3592-2111

FAX (03)5157-1950

---



独立行政法人

**日本原子力研究開発機構**