# 東京電力(㈱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 2013年版

独立行政法人 日本原子力研究開発機構

### はじめに

東京電力㈱福島第一原子力発電所(1F)の廃止措置等に向けて、国、東京電力㈱の他、研究開発に携わる 原子力機構、㈱東芝、㈱日立製作所のトップにより構成される廃炉対策推進会議のもと、オールジャパン体 制での活動が展開されています。

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。また、原子炉建屋内への地下水流入によって汚染水が増え続けるとともに、これを貯蔵するタンクからの漏えいや、港湾への汚染水の流出が問題となっています。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ます。水素爆発や炉心溶融により著しく損壊・汚染した施設を解体し、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、これらは多岐に亘ります。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次段階の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 作業効率を飛躍的に向上させる可能性のある画期的な技術開発、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、1F事故後に中期計画を改定して経営上の最優先課題として福島第一原子力発電所の廃止措置等に関する業務を位置付け、その具体化として2012年4月1日に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)及び大洗研究開発センターに福島技術開発特別チームを設置しました。 これらチームを中心に、燃料デブリ取り出し準備に係る研究開発や放射性廃棄物処理・処分に係る研究開発 など、中長期ロードマップに沿った研究開発・技術開発に取り組んでいます。

2013年4月1日には、遠隔操作ロボットの開発・実証と放射性物質の分析・研究を実施する施設を整備する組織として福島廃炉技術安全研究所を設置しました。遠隔操作ロボット開発・実証試験施設は福島県双葉 郡楢葉町に整備することを決定し、放射性物質の分析・研究施設は、1Fサイト内、あるいはその近傍に整備 する方向で検討を進めています。また、1F事故で生じた炉心の溶融・崩落現象を解明する実験に取り組む組 織として燃料溶融複雑系試験準備室を、2013年4月1日に大洗研究開発センター内に設置しました。

さらに、2013年10月1日には、1F汚染水問題に機動的かつ組織横断的に取り組む組織として、関連分野の専門家等で構成する1F汚染水対策タスクフォースを設置し、1Fサイト内の地下水流動や汚染水の敷地内拡散、海への流出・海洋拡散予測等について検討を進めています。

1Fの廃止措置等に向けた取り組みは、今後 30~40 年は続くと考えられており、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、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も積極的に進めています。

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 在価値はないと思っています。本冊子は、福島技術開発特別チーム、福島廃炉技術安全研究所、燃料溶融複 雑系試験準備室のメンバーが、検討途上の内容も含め、主にこの1年間に実施した研究開発業務の概要を纏 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。

2013年11月

独立行政法人 日本原子力研究開発機構 理事 福島技術本部 本部長代理 上塚 寛

# 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

#### 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)	
	―放射線を可視化する技術による1F2オペフロ汚染分布計測―	7
1-2	汚染の状況・性状を評価し除染方法を立案する(2)	
	―コンクリートコアサンプルの分析による汚染性状評価―	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)	
	―化学形に着目した破損燃料からの核分裂生成物及びアクチニドの放出挙動評価―	15
1-6	炉内で起きたことを実験・計算により評価する(2)	
	―シビアアクシデント進展詳細分析のための熱水力挙動に関する技術開発―	17
1-7	炉内で起きたことを実験・計算により評価する(3)	
	―事故時の圧力容器下部ヘッドの変形状況を予測する―	19
1-8	炉心の溶融挙動を明らかにする	
	―溶融炉心の複雑な流下挙動を調査するための実規模試験―	21
2 燃	料デブリの取出しとその後	
	―燃料デブリ性状把握・取出し工法・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かを理解する(1)	

	一取出しに向けた燃料デブリ性状の把握一	5
2-2	燃料デブリとはどのようなものかを理解する(2)	
	―MCC丨生成物の特性把握の進め方―	7
2-3	燃料デブリとはどのようなものかを理解する(3)	
	—海水塩の影響・B4C制御棒との溶融固化物—	9
2-4	燃料デブリとはどのようなものかを理解する(4)	
	―燃料デブリの内部状態の推定―	1
2-5	原子炉から燃料デブリを取り出す	
	―プラズマアーク、AWJ、レーザー、プラズマジェット切断技術の開発―	3
2-6	燃料デブリの再臨界を防ぐ	
	一臨界管理の実現に向けた損傷・溶融燃料の現状理解―	5

2-7	燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築	
	一随伴FPガンマ線測定法と中性子共鳴濃度分析法による核物質量測定技術の開発―	7
2-8	燃料デブリを取出した後どうすべきか(1)	
	―燃料デブリ処置シナリオの検討― ····· 39	9
2-9	燃料デブリを取出した後どうすべきか(2)	
	―燃料デブリ処置技術(湿式・乾式)―	1

#### II. 放射性廃棄物の処理・処分に向けて

#### 3 長期間の安定保管・処理・処分のために

	一性状把握・長期保管・処理・処分検討―	45
3-1	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(1)	
	―廃ゼオライトの性状調査と保管対策評価―	47
3-2	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(2)	
	―スラッジ貯槽材料の耐食性評価― ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	49
3-3	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(3)	
	— S r を選択的に吸着するチタン酸化合物の探求—	51
3-4	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(4)	
	―除染装置スラッジのセメント固化の検討―	53
3-5	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(5)	
	一放射能分析手法の検討と適用―	55
3-6	多様な事故廃棄物の処分に向けて	
	―事故廃棄物の処分に係る基礎的な検討と研究計画の立案―	57

### Ⅲ. 事故時に海水が注入された影響を知る

#### 4 海水注入の影響把握とその対策に向けて

	一原子炉の構造材料・燃料集合体等への影響把握―	51
4-1	海水と放射線が材料に与える影響を評価する(1)	
	—燃料集合体材料の長期健全性評価—	53
4-2	海水と放射線が材料に与える影響を評価する(2)	
	一原子炉格納容器・圧力容器材料の長期健全性評価― ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	55
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—	57

## IV. 研究開発拠点施設の整備

#### 5 研究開発拠点施設の整備

# 研究開発体制と取組みの概要

福島技術本部 復旧支援部 船坂英之



図 1 廃止措置等に向けた研究開発体制

原子力機構は、放射性物質の分析・研究施設や遠隔操作ロボットの開発・実証施設を整備するとともに、平成25年8月に設置された国際廃炉研究機構の一員として研究開発を実施しています。(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(平成25年6月27日)を加工)

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震及 びその後に襲来した津波により、東京電力㈱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。

同年12月には、「放射性物質の放出が管理され、放射 線量が大幅に抑えられている」状況を達成したものの、 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、継続して注水冷却する必要が あります。こ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注水冷却システムを とっていますが、建屋への地下水の流入により大量の汚 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21日、 原子力災害対策本部政府・東京電力中長期対策会議にお いて、「東京電力㈱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)の初版が決定されました。その後、2013年2月8 日、原子力災害対策本部において、燃料デブリ取出し等 に向けた研究開発体制を強化するため、現場の作業と研 究開発の進捗管理を一体的に進めていく体制を構築する ことが重要との観点から、政府及び東京電力に加え、原 子力機構をはじめとする研究開発に携わる主要な機関の 長を構成員とする「東京電力福島第一原子力発電所廃炉 対策推進会議」(廃炉対策推進会議)が設置されました。 議長である経済産業大臣の指示に基づき、燃料デブリ取 出しのスケジュール前倒しなどの検討が進められ、同年6 月27日、中長期ロードマップの改訂版が決定されました。 中長期ロードマップにおいて研究開発は、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 係る研究開発に分類され、それぞれの研究計画が策定さ れています。

また、同年4月19日、建屋への地下水流入対策や汚染 水の漏えい等に対応するため、廃炉対策推進会議の下に 「汚染水処理対策委員会」が設置され、さらに汚染水問 題が深刻化したことから、同年9月3日には、原子力災 害本部において「汚染水問題に関する基本方針」が決定 され、国が前面に出て、必要な対策を実行し、逐次的な 事後対応ではなく、想定されるリスクを広く洗い出し、 予防的かつ重層的な対策を講じることが示されました。

原子力機構では、事故の直後から、様々な方面で活動 を行ってきました。2011年5月6日には、理事長を本部



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。

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)や環境回復に向けた取組み (企画調整部、福島環境安全センター)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研究開発課 題のうち、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 つつ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を拠点とする「現地対応グ ループ」を2012年7月1日に設置(2013年4月1日に 福島現地調査事務所に改組)して現場対応力の向上も図 っています。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。

また、2013年4月1日には、放射性物質の分析・研究 や遠隔操作ロボットの開発・実証施設を整備するため、 福島廃炉技術安全研究所を設置するとともに、BWR 炉心 の溶融・崩落現象を解明する試験を実施するため、燃料 溶融複雑系試験準備室を大洗研究開発センターに設置し ました。

さらに、同年10月1日には、1Fにおける汚染水問題 に対し、原子力機構全体として組織横断的に取り組み、 速やかに対応することを目的に、1F汚染水対策タスクフ ォースを設置し、汚染水の海への流出・拡散予測や敷地 内の地下水流動等について検討を進めています。 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、福島廃炉安全技術研究所、燃料溶融 複雑系試験準備室は、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90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60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。

福島廃炉技術安全研究所は、施設の設計・建設、許認 可対応、運転保守・管理などの経験者から約40名のメン バーで構成されています。

燃料溶融複雑系試験準備室は、シビアアクシデント研 究などの専門家から約 20 名のメンバーで構成されてい ます。

本冊子は、原子力機構における 1F 廃止措置技術に係る 研究開発について、計画中・検討中のものやチャレンジ ングな取組みを含めて、これまでに実施した成果等をと 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ますれば幸いです。

# 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)	
	一放射線を可視化する技術による1F2オペフロ汚染分布計測一 ······	7
1-2	汚染の状況・性状を評価し除染方法を立案する(2)	
	―コンクリートコアサンプルの分析による汚染性状評価―	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)	
	―化学形に着目した破損燃料からの核分裂生成物及びアクチニドの放出挙動評価―	15
1-6	炉内で起きたことを実験・計算により評価する(2)	
	―シビアアクシデント進展詳細分析のための熱水力挙動に関する技術開発―	17
1-7	炉内で起きたことを実験・計算により評価する(3)	
	―事故時の圧力容器下部ヘッドの変形状況を予測する―	19
1-8	炉心の溶融挙動を明らかにする	
	―溶融炉心の複雑な流下挙動を調査するための実規模試験―	21

### 2 燃料デブリの取出しとその後

	―燃料デブリ性状把握・取出し工法・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かを理解する(1)	
	―取出しに向けた燃料デブリ性状の把握―	25
2-2	燃料デブリとはどのようなものかを理解する(2)	
	―MCCI生成物の特性把握の進め方―	27
2-3	燃料デブリとはどのようなものかを理解する(3)	
	一海水塩の影響・B4C制御棒との溶融固化物一	29
2-4	燃料デブリとはどのようなものかを理解する(4)	
	―燃料デブリの内部状態の推定―	31
2-5	原子炉から燃料デブリを取り出す	
	―プラズマアーク、AWJ、レーザー、プラズマジェット切断技術の開発―	33
2-6	燃料デブリの再臨界を防ぐ	
	―臨界管理の実現に向けた損傷・溶融燃料の現状理解―	35
2-7	燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築	
	一随伴FPガンマ線測定法と中性子共鳴濃度分析法による核物質量測定技術の開発―	37
2-8	燃料デブリを取出した後どうすべきか(1)	
	―燃料デブリ処置シナリオの検討― ・・・・	39
2-9	燃料デブリを取出した後どうすべきか(2)	
	—燃料デブリ処置技術(湿式・乾式)—	41

# 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
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
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
原科研福島技術開発特別チーム 炉口	内状況解析技術開発グループ	永瀬文久



#### 図1 原子炉建屋内汚染部位の計測例(建屋開口部より計測) 放射線の強さを計測した結果を色で表現して、CCDカメラの映像に 重ねたものです。線量率が高い(赤~黄色)ところは炉心の上部で す。

東京電力㈱福島第一原子力発電所(1F)の1号機(1F1) から3号機(1F3)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年後に完了するため、東京電力福島第一原 子力発電所廃炉対策推進会議(廃炉対策推進会議)の下、 必要な研究開発が行われています。原子力機構において は、遠隔除染のための汚染状況の詳細な把握、原子炉の 内部を観察するための基礎的な技術の開発及び解析コー ドを用いた炉内状況推定のための基礎研究を行うことに より、技術開発に貢献しています。

#### (1) 原子炉建屋内の汚染の状況を把握する

1F 原子炉建屋内部は事故時に放出された放射性物質 により高濃度に汚染され極めて高い放射線量となってお り、原子炉建屋内で作業を行う作業員の被ばく低減のた めには、遠隔操作による除染技術の開発が必要です。原 子炉建屋内の遠隔除染技術の開発を効率的・効果的に行 うためには、汚染源となる放射性物質の種類・量、放射 性物質の床や壁への浸透状態、汚染の建屋内での分布状 況等の汚染の状況を把握することが必須です。このため、 原子力機構が有する遠隔操作技術や高放射性物質取扱い 技術を活かして、原子炉建屋内の広範囲における放射線 量の分布や放射性物質の浸透状態の評価等、現場での放 射線量測定等による簡易的な調査では把握できない詳細 な汚染の状況を評価しました。

核サ研福島技術開発特別チームでは、原子力機構が開 発したγカメラを使って、1F2の使用済燃料プールがあ



#### オートラジオグラフィー 測定面(塗膜の研磨面)

矢印(→)の方向に0.5mmずつコンクリート コアサンプル塗膜を研磨し、研磨面のオー トラジオグラフィーを実施した。



#### 図2 原子炉建屋内床への放射性物質の浸入深さの分析

塗膜の研磨・研磨面のオートラジオグラフィーを繰り返し放射性物質の 浸透深さを評価した結果、1F2 から採取したサンプルにおいては、放射 性物質は約 1mm 深さまで不均一に浸入していることが分かりました。

る原子炉建屋 5 階の汚染分布を評価しました。原子力機 構の γ カメラはピンホールカメラと同様の構造で、視野 を 196 ピクセルに分割し各セルから受ける放射線強度を 個別に計測し、その強度を色で表現して可視化する装置 です。1F2 は水素爆発に至らなかったため屋根が残って おり、そのことが外部からの調査機器の持ち込みを拒ん でいました。このため機構の γ カメラを 1F2 原子炉建屋 の開口部前に設置し、建屋内部を覗き込むようにして内 部の放射線の強さを計測しました(図1)。放射線の強さ から汚染源の放射能量を計算し、1 セルに投影される床 面積で除すことで表面汚染密度を求め、床面上の汚染分 布を評価しました。

大洗研福島技術開発特別チームでは、1F 原子炉建屋内 床及び壁から採取されたコンクリートコアサンプルを大 洗研究開発センター燃料材料試験施設に輸送し、α/γ 線スペクトロメトリー、オートラジオグラフィー等の各 種の分析試験を行い、放射性物質の床や壁への浸透状態 を評価しました。その結果、1F2 から採取したサンプル においては、放射性物質は約 1mm 深さまで不均一に浸 入していること等が分かりました(図 2)。

これらの成果は、原子炉建屋内の遠隔除染計画や、2013 年度に線量低減化を目的に実施する予定の除染・しゃへい計画の検討に活用されます。

#### (2) 原子炉の内部を覗き状況を把握する

原子炉格納容器・圧力容器内の燃料デブリの位置を把 握し、炉内の損傷・汚染機器の状況を調査するためには、 高線量、狭隘、水中という過酷な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。原子力機構では、こ





ファイバスコープによる観察技術とレーザー誘起ブレークダウン分光に よる元素分析技術を組み合わせ、さらに光ファイバの耐放射線性を向 上させることにより、観察と組成分析の両機能を併用できる水中用のプ ローブシステムの成立性を確認しました。

れまでに基盤的な技術として開発を進めてきた高放射線 下での観察技術やレーザー分光による元素分析技術等、 各種要素技術の融合と展開を図ることにより、遠隔検知 技術の提案に向けた取り組みを進めています。

ファイバスコープによる観察技術とレーザー誘起ブレ ークダウン分光による元素分析技術を組み合わせて炉内 の燃料デブリの分布を調査する装置の開発では、観察と 組成分析の両機能を併用できる水中用のプローブシステ ムの成立性を確認しました(図3)。現在、水中・放射線 環境下における観察・元素分析性能を確認する実験を進 めています。

また、宇宙線ミューオンを用いた非破壊検査技術も提唱しており、地盤の空洞化調査のために開発されてきた ミューオン受光装置を用いてHTTRの炉内を可視化する 実験を行い、炉心部と炉内構造物を識別できることを確認しました。1Fに適用するためには位置分解能の向上と 測定時間の短縮が必要であり、そのための高度化改良計 画を立案しました。

炉内の放射線量の把握も重要であり、JMTR の炉内照 射試験技術として開発してきた自己出力型ガンマ線検出 器を 1F 炉内の線量計測に使えるように感度向上を目指 した開発を行い、検出器を試作してγ線照射試験を行い、 検出下限を 10 Gy/h まで拡張できたことを確認しました。

1F 格納容器内部調査については 2016 年頃の本格調査 の方法を検討するための事前調査が昨年度から始まって おり、圧力容器内部調査についても来年度から調査技術 の開発が開始される計画です。これらの調査に開発の成 果を反映できるよう、研究開発に取り組んでいきます。

#### (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



#### 図4 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

原子力機構では、事故時の熱水力挙動、燃料損傷及び溶融 進展挙動、圧力容器下部ヘッドの変形及び破損挙動に係る 研究開発を行っています。

する技術開発が、廃炉対策会議の下行われています。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事故の進展を予 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 展挙動、圧力容器の変形及び破損挙動について研究開発 を行っています(図4)。

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。燃料損傷及び溶融進展挙動に関する 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。圧力容器の変形及び破損挙動に関 する研究開発においては、炉心から落下した溶融燃料が 圧力容器下部ヘッドのどの部分を貫通したのか、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 ションや構造物試験等を行っています。平成24年度には、 基礎的なデータ取得及び解析を実施するとともに、平成 25年度以降に本格実施する試験等の準備を実施しました。 また、1F事故進展の理解と解析コードの開発促進を目的 とした OECD/NEA 主催のベンチマーク解析プロジェク ト (BSAF 計画) に運営機関として参加するなど国際協 力を積極的に進めています。

<sup>《</sup>参考文献》 · Maeda, K. et al., Results of detailed analyses performed on boring cores extracted from the concrete floors of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant reactor buildings, Proceedings of GLOBAL2013: International Nuclear Fuel Cycle Conference, Salt Lake City, USA, 2013, to be published, in CD-ROM.

Nagase, F. et al., Research Subjects for Analytical Estimation of Core Degradation at Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant, Proceedings of GLOBAL2013: International Nuclear Fuel Cycle Conference, Salt Lake City, USA, 2013, to be published, in CD-ROM.

# 1-1 汚染の状況・性状を評価し除染方法を立案する(1)

カメラ

## -放射線を可視化する技術による1F2オペフロ汚染分布計測―

図1: 原子力機構が開発した ピンホール・コリメータ型ガンマ・

厚さ20mmの鉛遮へい材を使 用。計測範囲 水平 42°

50°。14行14列(196分割)の

垂直

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 岡田尚、福嶋峰夫、金山文彦、羽生敏紀、川野邊崇之





放射線強度分布を計測。チルト 角度 40°~-20°。 -eve II 収納箱



b)装置組立て状況 図2 オペフロ汚染分布計測の状況

c)装置設置のためのクレーン吊状況

図はγ-eye IIによるオペフロ汚染分布計測のイメージ図です。写真はγ-eye IIを収納したオペフロ計測用装置の組立て・設置の状況です。

2013年2月21日、原子力機構は独自に開発したガン マ・カメラ (y-eye II) による 1F2 原子炉建屋5 階のオ ペレーティングフロア(オペフロ)の汚染分布計測を行 いました。

オペフロは原子炉への燃料交換を操作するところであ り、また使用済の燃料を一時保管する燃料プールがある ところです。東京電力はオペフロでの燃料取り出し準備 のため種々の調査を実施してきており、ロボットによる 放射線強度測定では、空間線量が毎時数十から数百 mSv と高い状況であること、原子炉格納容器上部(原子炉ウ ェル)が最も高い状況であることが確認されていました。 これは人が容易に立入ることができない放射線状況であ り、除染や遮へい対策を施さなければ、燃料取出し作業 などを実施できない状態であることを示しています。除 染・遮へい対策を適切に行うためには、放射線の発生源 を知る必要があります。しかし空間線量の結果だけでは、 放射線の発生源がどこにあるのかが分かりません。そこ で放射線の発生源、すなわち汚染がどこにあるのかをイ メージ画像として撮影できる y-eve II で、オペフロの汚 染分布調査を行うため、東京電力から昨年7月、原子力 機構に y-eye II によるオペフロ汚染分布計測及び評価の 依頼がありました。

なお1F2の原子炉は、事故でオペフロのブロー・アウ ト・パネル (BOP) が開口していたので、東京電力は2012 年度内にこのBOP開口部を閉鎖するため、地上約30mの 高さにある BOP 開口部まで、外壁に沿り構台を設置する 計画でした。そこでγ-eye IIによるオペフロ汚染分布計 測は、この構台から実施することにしました。

#### 計測装置について

原子力機構の y-eyeⅡ (図1) は、ピンホール・コリメ ータ型ガンマ・カメラで、視野を196 セルに分割し各セ ルから受ける放射線強度を個別に計測し、その強度を色 で表現して可視化する装置です。放射線検出素子はフォ トダイオード (PD) を使用し、14 個の PD を縦1 列に 並べ任意の速度で横方向に走査しながらピンホールから 入射する放射線を計測し、14 行 14 列の放射線強度分布 図を作成します。この図を同時に撮影した映像と重ね合 わせることで、放射線の発生源を可視化したイメージ画 像が得られます。またピンホールの前面に厚さ20mmの 鉛シャッタを設け、シャッタの開閉による入射放射線の 強度の差を取り、正味の放射線強度計測ができる仕組み になっています。放射線計測に関する校正は、137Csの 標準線源を用いた照射試験を行い、検出面で 0.1mSv/h、 1mSv/h、10mSv/h の線量を受けた際の計数率を測定し ました。またオペフロ調査は地上約30mの高さの構台ま でクレーンで吊り上げるため、吊冶具及び無線機を付け た汚染防止用の箱の中にγ-eyeⅡを収納し、高さ約2m の設置台の上に組み上げました(図2)。箱内部は熱が籠 るのを避けるため、ファンを設けフィルタを介して換気 しました。設置台には、発電機、無停電電源装置、LED ライト、監視カメラを設置し、オペフロ計測用装置とし



・図の扇状の短冊は  $\gamma$ -eye II の計測結果からもとめた表面汚染密度の推定値を示します。 また  $\triangle \bigcirc \nabla$ は  $\gamma$ -eye II 汚染分布計測を基に

計算した空間線量率の評価値と、東京電力がロボットで実測した空間線量率を比べた評価結果を示します。数字は評価地点の番号です。 ・評価ケース ①は、γ-eye II 計測で検出下限値未満のセルを検出下限値相当の放射能量として、空間線量を評価しました。

・評価ケース ②は、アーeye II 計測で検出下限値未満のセルを放射能量ゼロとして、空間線量を評価しました。

・評価ケース ③は、オペフロ上の設備による遮へい等の影響を考慮し、 また γ-eye II 計測で検出下限値未満のセルを放射能量ゼロとして、 空間線量を評価しました。

#### て整備しました。

なお事前検討として、東京電力が測定したオペフロの 空間線量の値を基に、BOP 開口部の構台におけるオペ フロの床面等からの放射線強度がγ-eye IIの計測範囲内 であることを机上評価しました。またバック・グラウン ド放射線の影響や無線操作を確認するため、1F 内での 予備試験を行い、オペフロ汚染分布計測の準備を行いま した。

#### (2) オペフロ汚染分布計測結果及び評価

オペフロ汚染分布計測結果は、196 個(14 行 14 列) のそれぞれのセル内の被写体からの放射線でγ-eye IIが 受けた放射線量に換算し、そのレベルに応じて色分けを 行いました(図3)。すなわち値が高いセルの被写体は放 射能量が多い場所であると考えられます。

次に汚染分布の解析を行いました。先ずオペフロは平 滑な平面で、計測された放射線はオペフロ平面の表面汚 染に由来するものであると仮定しました。また汚染密度 は、検出面1セルあたりの計測値を距離補正し、<sup>137</sup>Csの 1cm線量当量率定数で放射能量をもとめ、これを検出面 1 セルに投影されたオペフロ平面の面積で割り、表面汚 染密度としました。各セルの表面汚染密度をレベル毎に 表記し、オペフロ汚染分布図としました(図4)。なお図 3の映像のとおり、オペフロは、種々の設備機器が存在 し、平滑面ではありません。よってこれら設備機器の材 質・寸法等の情報を基に、これらの遮へい影響や表面汚 染の影響も考慮し、汚染分布図に反映しました。また表 面汚染密度の推定値をもとにオペフロ平面から高さ 1m における空間線量率をもとめ、東京電力の実測値と比較 評価しました(図4)。その結果、評価値が実測値を上回 るところ(▲) は誤った評価とし、▲が少ない評価ケー ス③がオペフロ汚染分布として妥当な評価であると考え ました。またこのことより放射能量をゼロとして評価し た検出下限値未満の場所においても、実測値同等あるい は過小評価(●) となっており、放射能量はゼロでは なく、何らかの汚染が存在しているものと考えられま す。

以上、これらの結果は東京電力より、廃炉対策推進会 議に適宜報告され、2013年3月7日「本結果は、今後の 燃料取り出し準備を行う上で不可欠となる除染・遮へい の効率的な作業計画の立案に資する。」との評価を受け ました。

《引用文献》	[1]	東京電力㈱ 福島第一原子力発電所2号機原子炉建屋内調査結果(3階~5階)(平成24年6月13日実施)、
		2012年6月14日, 2012 http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts_120614_02-j.pdf

[2] 東京電力(㈱) 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進捗状況(概要版), 2013 年 3 月 7 日, 東京電力福島第一原子力発電所廃炉対策推進会議事務局, 2013

# 1-2 汚染の状況・性状を評価し除染方法を立案する(2) -コンクリートコアサンプルの分析による汚染性状評価-

大洗研究開発センター 福島燃料材料試験部 集合体試験課 熊井美咲 大洗研究開発センター 福島燃料材料試験部 材料試験課 前田宏治 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



図 1 コンクリートコアサンプルの外観

1F原子炉建屋の床、壁等から採取された直径約10cmのコンク リートコアサンプルを原子力機構大洗研究開発センターの照射 後試験施設に輸送して分析しました。

#### 表1 汚染性状評価項目と分析試験項目

コンクリートコアサンプルに対して、各種分析を行うことで、汚染の浸透状態等の汚染性状を評価しました。

評価項目	分析項目
(1)汚染核種の同定	・α,γ線スペクトロメトリー
(2)汚染の分布状態の把握 (汚染の強度分布) (元素の分布状態)	<ul> <li>・イメージングプレート測定</li> <li>・WDX (FE-SEM):波長分散形X線分析装置</li> </ul>
(3)汚染の浸透状態の把握	<ul> <li>・ アスキャン</li> <li>・ イメージングプレート測定</li> </ul>



#### 図 2 コンクリートコアサンプルに対する簡易除染試験の様子

汚染浸透状態の評価に資するため、1F2 号機から採取したコンクリートコアサンプル塗膜表面に固着している汚染に対して、水やクエン酸によるふき取り、剥離性塗膜等により、簡易除染試験を行いました。

燃料デブリ取出し等に必要な原子炉建屋内作業での作 業員の被ばく低減のためには、放射性物質で汚染され高 放射線量となっている原子炉建屋内を遠隔で除染する技 術を開発する必要があります。原子炉建屋内の遠隔除染 を効果的に行うためには、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物質の種類、 放射性物質の床や壁への浸透状態、汚染の建屋内での分 布状況等の汚染の状況を把握することが必要です。特に、 放射性物質の床や壁への浸透状態を評価するためには、 原子炉建屋内床、壁等の内部の詳細な分析を行う必要が あります。このため、1F原子炉建屋床及び壁から採取さ れたコンクリートコアサンプル(図1)を原子力機構大洗 研究開発センターの照射後試験施設に輸送して各種分析 を行い、汚染の浸透状態等の汚染性状評価を行いました。

#### (1) コンクリートコアサンプルの分析試験の背景と目的

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、これまでに照射済燃料の照射後試験を数多く実施し ており、照射済燃料試料の輸送、遠隔操作での試料の取 り扱い、放射能測定、機器分析等、高度な放射性物質の 取り扱い及び分析技術を有しています。これらの技術を 活かして、1F 廃止措置に向けた研究開発プロジェクト 「原子炉建屋内の遠隔除染技術の開発」の一環として、 除染技術選定、除染条件検討、汚染経路評価等に資する ための基礎データを提供することを目的に、1F 原子炉建 屋床及び壁から採取されたコンクリートコアサンプルの 分析による汚染性状評価を実施しました。本汚染性状評 価は、α線及びγ線スペクトロメトリー、イメージング プレート測定(IP 測定)等の分析試験を基に行うもので、 プロジェクトの中でメーカー等が実施する線量測定によ る推測等の「汚染状況調査(オンサイト分析)」によって は困難であるところの評価を機構が分担実施するものと なっています。

#### (2) 分析試験方法

1F1、1F2 及び 1F3 の原子炉建屋内床及び壁から計 18 試料採取したコンクリートコアサンプルに対して、汚染 核種の同定、汚染の分布状態の把握及び汚染の浸透状態 の把握を行うために、α線及びγ線スペクトロメトリー 測定、IP 測定、γスキャン測定、元素分布測定等を実施 しました(表 1)。

上述の分析に加えて、1F2 から採取されたコンクリー



#### 図31F2の1階床から採取されたコンクリートコアサンプル の研磨及び P測定による放射性物質浸透深さの評価



#### 図4 1F2の1階床から採取されたコンクリートコアサンプルの 簡易除染試験による汚染密度の変化

1F2 のコアサンプルの塗膜表面を0.5mm 研磨し、研磨面 の P 測定を行うことを繰り返すことにより、放射性物質の 浸透深さを評価しました。その結果、放射性物質は塗膜 の約 1mm 深さまで浸入していることが分かりました。

トコアサンプルの汚染性状が1F1及び1F3から採取され たものと比べて異なる傾向を示したことから、1F2から 採取されたコンクリートコアサンプルの浸透状態を詳細 に調べるため、コンクリートコアサンプルの塗膜表面の 水や弱酸による洗浄、剥離性の汚染除去剤等による汚染 の簡易除去試験(図2)を行いました。

#### (3) 分析試験及び簡易除去試験結果

 $\gamma$ 線スペクトロメトリー測定による汚染核種の同定の 結果、全号機において、汚染源となる放射性物質の大半 は1<sup>34</sup>Cs及び<sup>137</sup>Csであること、その割合は号機によら ず<sup>134</sup>Cs: <sup>137</sup>Cs=2:3であること(2012年8月の分析時 点における値)が明らかになりました。さらに、1F1及 び1F2から採取された試料においては極微量の<sup>110m</sup>Ag (放射能量は<sup>137</sup>Csの約1/100)が、また1F2から採取さ らた試料においては極微量の<sup>125</sup>Sb(放射能量は<sup>137</sup>Csの約 1/10)が検出されました。一方、全号機において、 $\alpha$ 線 スペクトロメトリー分析によっては有意な $\alpha$ 核種は検出 されませんでした。

IP 測定及び γ スキャン測定等による汚染の浸透深さの 評価では、全号機において汚染はコンクリートコアサン プルの塗膜表面近傍に存在し、コンクリート内部への浸 透が無い事を確認しました。更に、放射性物質の浸入深 さが 1F1 及び 1F3 では約 0.5mm であったのに比べ、1F2 では約 1mm と号機間で異なっている事が分かりました (図 3)。

上述した号機間の汚染浸入深さ相違等の原因調査に資 するため、1F2から採取されたコンクリートコアサンプ ルを用いて、塗膜表面の水や弱酸による洗浄、剥離性の 汚染除去剤等による汚染の除去試験を行い、その浸透状

1F2 から採取されたコンクリートコアサンプルに対して各種の除染試験を行った結果、汚染密度が大きく低下しました。(試料①:ふき取り除染及び浸漬除染に純水を使用、試料②:ふき取り除染及び浸漬除染にクエン酸を使用、試料③:比較用として除染を実施しなかった試料)

態を調べました。その結果、1F2 においては、塗膜表面 の洗浄等のみにより約 1mm 深さにまで浸入していた放 射性物質の大半が除去(初期汚染密度の 97%が除去)さ れました(図 4)。本結果は、放射性物質の塗膜内部への 浸透が不均一であったことと合わせて考えると、放射性 物質は、いずれも均一に放射性物質が浸透すると考えら れる塗膜材料内部への浸入や塗膜材料との化学反応等で はなく、塗膜表面に不均一に分布する微小な傷等に入り 込んだものであることを示唆していると考えられ、塗膜 表面を除去しなくても洗浄等により比較的容易に汚染を 除去できる可能性が示されました。

これらの結果は、除染手法選定や除染装置の実証試験 条件設定等、遠隔除染計画の策定に反映されました

<sup>《</sup>参考文献》 · Maeda, K. et al., Results of detailed analyses performed on boring cores extracted from the concrete floors of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant reactor buildings, Proceedings of GLOBAL2013: International Nuclear Fuel Cycle Conference, Salt Lake City, USA, 2013, to be published, in CD-ROM.

# 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─

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、内藤裕之 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 原子力水素・熱利用研究センター 熱利用システム設計Gr 竹上弘彰



図 1 HTTR 内部構造可視化試験結果

原子炉容器を囲む A 点~E 点にミューオン受光システムを設置し、方位角は格納容器中心から両側 30°まで、天頂角は 0°(真上)~70°まで、それぞれ 5°間隔で検出器に到達するミューオン数を計測しました(左及び中図)。C 点の測定結果から作成した面密度マップ (右図)では、高密度構造物である原子炉容器方向は高密度(赤色)に示されました。

原子力機構大洗研究開発センターには、高温ガス炉で ある HTTR、照射試験用の軽水炉である JMTR、ナトリ ウム冷却型の高速炉である「常陽」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。HTTR では、原子炉出口温度で 950℃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 ミュー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。JMTR では、照射試験用の炉 内計装技術の開発を通じて、炉内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。これらの炉内の計測・検査技 術を1F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を進めています。

#### (1) ミューオンを用いた非破壊検査技術の開発

本研究では、原子炉建屋外から非破壊で燃料デブリの 位置情報を取得可能な技術の候補として、宇宙線ミュー オンを用いた非破壊検査技術に着目しました。この技術 は地盤探査を目的として開発された技術であることから、 原子炉内部調査への適用性を検証するため、既存のミュ ーオン受光システムを用いてHTTRの内部構造可視化試 験を実施しました。その結果、同時計数法を用いたミュ ーオン非破壊検査技術により、HTTR内部の炉心、コン クリートのような高密度の構造物が判別可能であること が示されました(図1)。ただし、燃料デブリの状態は不 明であり、密度差が小さい場合やより詳細な状況観察が 必要な場合には、ミューオン受光システムの空間分解能 の向上が必要であることがわかりました。また、ミュー オン受光システムを福島第一原発の敷地内に設置して測 定を実施するためには、周囲の放射性物質及び空間線量 が装置及び測定品質に及ぼす影響を抑制する必要があり ます。これらの課題を抽出・検討し、既存装置の改良に より空間分解能の向上、測定期間の短縮が可能であり、 現場の高線量にも対応可能であることを示し、実用化に 向けた技術開発計画を立案しました。

#### (2) 自己出力型 γ線検出器の開発

JMTR 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、y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、自己出力型y線検出器(SPGD) の開発を行ってきました。

1F の炉内調査への適用に向けて、より低い $\gamma$ 線量率 (10 Gy/h) での測定を可能とするために、鉛(Pb)を エミッタ材として用いた SPGD(図2参照)の最適化試 験を行いました。本試験では、エミッタ形状の最適化を 図るため、エミッタ直径及び長さが異なる5種類の SPGD(直径: $\phi$ 2、 $\phi$ 3 もしくは $\phi$ 5mm、長さ:50、 100 もしくは150 mm)を製作し、コバルト-60(Co-60) 照射施設に持ち込み、 $\gamma$ 線量率に対する出力電流の依存 性を調べました。

その結果を図 3 に示します。この結果、 $\gamma$ 線量率 10 Gy/h 以上での測定が可能であるとともに、 $\gamma$ 線量率に対する出力電流のリニアリティも明らかにしました。また、出力電流はエミッタの直径よりも長さに大きく依存することも明らかにし、使用条件の違いによる高感度 SPGD の設計・製作への指針を得ることができました。本結果を踏まえて、1F での測定準備を進めていきます。



#### 図2 自己出力型γ線検出器の概略図

γ線照射の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 弱な電流を計測しγ線量を測定します。





図 4 イメージファイバの照射前後の透過光量(照射長10 m) 可視光領域は 610 nm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が、OH基含有量を 1000 ppmと高くすることで、 1.06×10<sup>6</sup> Gyもの高線量を照射した後でも、近赤外領域(700~900 nm、1000~1100nm)は照射後も透過光量は低下しません。

#### (3) 光ファイバの耐放射線性向上

光ファイバは、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。

格納容器・圧力容器の遠隔検知技術に光ファイバを適 用するため、純粋石英コアファイバにヒドロキシ基 (OH 基)を 1000 ppmと多く含有させることにより可視光領 域の伝送損失増加を抑制し、耐放射線性を向上させる技 術開発を行いました。耐放射線性能については104 Gv/h で一日以上の使用に耐えることを目標とし、γ線照射試 験によりイメージファイバの耐放射線性能を評価しまし た。照射長 10m のイメージファイバを照射した結果、 10<sup>6</sup> Gy照射による可視光領域の伝送損失増加は 610nm 近傍で最大の6dBとなり、透過光量低下は約1/4に抑え



#### 図 5 イメージファイバによる照射前後の観察画像

10<sup>6</sup> Gy照射後、可視光画像では、透過光量の低下が大きいイメージ サークル外周部を除けば、CCDの増感により照射前と同等の画像 が得られました。一方、赤外線画像は照射前後で透過光量の低下 は見られませんが、可視光画像より解像度が低下しています。

られる高い耐放射線性能を有することを確認しました (図4)。観察画像より中央部では透過光量の低下が少な く、10<sup>6</sup> Gy照射後でも撮像素子の増感等により画質を維 持できる見込みを得ました(図5)。また、近赤外領域に 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から、赤外線イメージング性能 についても検討しました。近赤外領域は10<sup>6</sup> Gy照射後も 照射による透過光量の低下はなく (図 4)、照射前後で赤 外線画像に変化は見られませんでした(図5)。ただし、 可視光よりも解像度が低下しているため、クラッドをよ り厚くする必要があることがわかりました。

ここに紹介した研究開発の成果を評価し、1Fの格納容 器・圧力容器内部調査装置の開発へ提案していきます。 また、光ファイバの耐放射線性向上技術は、別途開発を 進めているファイバスコープによる観察と光ファイバ伝 送による遠隔レーザー分光による元素分析技術を組み合 わせた「光ファイバプローブシステム」に機能を統合し、 高放射線環境下で使える光ファイバデバイスの複合機能 の開発を進めていきます。

K. Takamatsu, et al., Imaging technology for internal structure of the nuclear reactor using cosmic ray 《参考文献》 muons, HTR2012: 6th International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology, Tokyo, Japan, 2012

C. Ito, et al., Development of In-vessel Inspection Technology Using Remote Imaging and Spectroscopy, LANE '13: International Conference on Laser Applications in Nuclear Engineering, Yokohama, Japan, 2013

# 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、内藤裕之、上地優 量子ビーム応用研究部門 光量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





燃料デブリの取出しに向けて、原子炉圧力容器・原子 炉格納容器内の燃料デブリの位置や状況を把握するため には、高放射線、水中又は高湿度、狭隘という過酷な環 境下における遠隔検査技術が要求されます。本研究では、 ファイバスコープによる観察技術とレーザー誘起ブレー 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光ファイバプロー ブの概念を構築し、その適用性を検討するため、水中観 察・分光及びy線照射の予備試験を実施しました。

#### (1) 複合型光ファイバプローブシステム

観察した映像の中心部分にレーザー光を照射できる複 合型ファイバスコープ技術を応用し、これにパルスレー ザー分光分析を組み合せることにより、1F原子炉圧力容 器・原子炉格納容器内の燃料デブリを探索できる技術を 開発します。レーザー分光分析については、LIBS を用い た燃料の組成・不純物分析技術を応用した光ファイバ伝 送による遠隔・水中分光技術を開発します。 空間分解能1 mm、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、第1段階として、これまでに開発し てきた同軸型の複合型光ファイバ(イメージファイバの 本数:2万)を利用し、その先端に魚眼レンズと防水ハウ ジングを組み合せた防水プローブを試作しました。これ を用いて、模擬燃料デブリに見立てたステンレス鋼片を 水中に沈めて観察し、図1に示すようにその映像を捉え ることができました。また、LIBS 分光実験により Fr, Cr, Ni 等の分光スペクトルを測定でき (Cr の分析結果を図2 に示します。)、水中観察と元素分析のための分光を組み 合せたプローブの成立性が確認できました。

#### (2) レーザー誘起ブレークダウン分光による元素分析

LIBS は、強力なレーザーパルスで測定対象物を蒸発さ



図2 複合型光ファイバを用いた Cr の LIBS 分光スペクトル 複合型光ファイバを用いて Cr の LIBS 分光実験を行い、得られ たスペクトルのピークは、米国立標準技術研究所 (NIST) のデ ータベースとよい一致を示しました。

せ発生したプラズマ光の発光スペクトルを分光すること により元素分析を行う手法です。この手法は迅速・遠隔・ その場分析が可能であり、高放射線環境における分析手 段として有効です。そこで、高放射線量環境下で狭隘部 に存在する水中のデブリ(U/Fe/Zr 系混合物)を検知す るためにファイバ伝送 LIBS 分析の研究開発を進め、ダ ブルパルス照射・ガスパージ型ファイバ伝送 LIBS シス テムを構築し、大気・水中両雰囲気での金属(>99.99%Fe) と合金(SUS304)の識別、さらに燃料デブリの取出し工 法の情報として極めて重要な酸化物(ZrO<sub>2</sub>)と金属・合 金(Zircaloy-2)の識別に成功し、LIBS による水中デブ リ組成分析への適用性の見通しを得ました。

水中で LIBS による元素分析が可能な強度のプラズマ 発光を得るため、測定対象部表面近傍に気相を形成させ ることで対応し、図 3 に示すダブルパルス照射型とガス パージ型のファイバ伝送 LIBS システムを開発しました。 光ファイバは高放射線環境下では透過率が著しく低下し、 700 nm 以上の波長域での使用に限定されるので、LIBS 用パルスレーザーは Nd:YAG の基本波(1064 nm)、分 光波長範囲を 700~900 nm の近赤外領域としました。

水中でのダブルパルス照射では、Fe と SUS304 の LIBS 発光でCr のピーク出現による金属と合金の識別や、 ZrO2からの発光スペクトル観測に成功しました。ガスパ ージ型ファイバ伝送 LIBS では、分析プローブヘッドに ガスを導入して水中の固体表面にガスを吹き付けて、単 ーパルスレーザーで大気中と同様の LIBS 分析を実現し ました。図4の分析例では、ZrO2ではレーザー照射によ り分解した O 原子の発光が観測されるため、金属と酸化 物とが容易に識別できます。このように、ガスパージ型 ファイバ伝送 LIBS を適用することで、これまで難しい とされてきた化学形を識別する手段を見出すことができ ました。



図3 光ファイバによる遠隔水中LIBS システム パルスレーザー2 台によりダブルパルス照射型のシステムとサンプルへのレーザ 一照射領域をガスパージできるシステムを開発しました(図には双方を記載して います。)。



図5 SURF 法によるステレオ画像の対応点抽出結果 左右の円を結ぶ直線が対応点を示します。2 組の画像に対して対 応点を認識できない箇所が存在し、認識した場合も誤った箇所を 対応させているケースが多く見られます。

#### (3) 三次元図面作成技術の開発

本技術開発は、複合型光ファイバプローブシステムで 取得した画像から三次元図面を作成することによる内部 状況の詳細な把握と機器の位置推定を目的としています。 画像から物体の三次元情報を取得する手法として、こ こでは1組の画像を用いた両眼ステレオ法を用いますが、 この手法を用いる場合、画像間でそれぞれ対応する箇所 (対応点)の抽出精度が三次元情報の取得に大きな影響 を与えます。さらに、炉内は光量不足等の制限が想定さ れることから、これまでに高速実験炉「常陽」炉内の観 察画像を用いた対応点抽出に係る予備評価を実施しまし た。予備評価では、画像中から高速かつロバストに特徴 量を記述できる SURF (Speeded Up Robust Features) を用いました。その結果、SURF を適用した場合、同一 画像内で局所的に似たような模様がみられることによ り、左右の対応点(左の画像と右の画像のそれぞれにお ける同一箇所)の抽出が阻害される結果となり(図5)、



**図4 純鉄と SUS304 のLIBS 発光スペクトル** 水中に置かれた Zircaloy-2, ZrO<sub>2</sub>表面近傍の酸素 を排除することにより、パルスレーザー光1回照 射で発光スペクトルを測定できました。



図6 画像のエッジ抽出結果

左側の元画像からエッジ抽出を試み、抽出された数値データをプロットして右側に画像化しました。画像に見られる上部構造物(「常陽」炉心上部機構下部)側面や下端の凹凸形状が SURF 法より安定して抽出されています。

改良が必要であることが明らかになりました。一方、画像上のエッジに着目した画像処理を用いた場合、画像上 部構造物の突起部分は安定して抽出することができ(図 6)、今回の構造物のように直線的な対象であれば奥行き 方向の位置を測定することができる見通しが得られまし た。しかしこの場合も照明の反射及び明度変化により上 部構造物の下端はエッジを抽出されていない箇所が生じ ておりハード・ソフトの両面から対策を検討する必要が あることがわかりました。

今後は、観察技術ではイメージファイバの本数を増加 して解像度を向上し(3万本目標)、LIBSでは近赤外領 域でのUの水中分光に取り組み、10<sup>2</sup> Gy/h以上の高放射 線環境下での適用性を評価します。三次元図面化技術に ついては、手法の最適化を図り、視差画像を用いた三次 元復元及び位置検出の評価を行います。これらの成果に 基づきプロトタイプを試作してその性能を実証し、格納 容器・圧力容器内部調査技術として提案する予定です。



# 1-5 炉内で起きたことを実験・計算により評価する(1)

## ―化学形に着目した破損燃料からの核分裂生成物及びアクチニドの放出挙動評価―

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 三輪周平、逢坂正彦 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、佐藤勇



図 1 化学形に着目した破損燃料からの核分裂生成物及びアクチニドの放出挙動評価に関する研究概要 THALES-2 等のシビアアクシデント(SA)解析コードによるソースターム評価の精度向上のために、主にセシウム(Cs)等を対象として、破 損燃料からの核分裂生成物及びアクチニド(FP等)放出挙動に与える化学形の影響(雰囲気、被覆管・制御棒材との高温化学反応)に着目 して放出時の FP 等の化学形及び放出した FP 等の化学安定性を評価し、得られた知見を SA 解析コードにおける FP 等放出モデル改良・

#### (1)研究目的

高度化に反映します。

燃料デブリや放射性物質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行われています。SAに関す る研究のうち、ソースターム\*に関する研究では、主に原 子力施設の立地・安全評価における公衆の被ばくを評価 する観点で実施されてきましたが、1F事故の進展を予測 するためには関連する知見が十分ではありません。した がって、従来知見とそれらの1F事故評価への応用性を考 慮してソースタームに関する知見を拡充し、SA解析コー ドを高度化することが必要となります。

燃料からの核分裂生成物(以下、FP)やアクチニド(以下、FP等)の放出挙動に関する従来の研究では、FP等の放出速度に関するデータは得られているものの、FP等の放出における物理化学的な挙動を決定づける「化学形」を直接測定したデータや知見は皆無に等しく、低温部に沈着した FP等の測定結果から間接的に推定されていました。また、従来の研究の多くは PWR に関するものであり、1Fで採用されているBWRに関する研究は少なく、その知見の拡充が必要となります。

そこで、本研究では FP 等の放出挙動に与える「化学 形」の影響、特に化学形に大きな影響を与える雰囲気や、 BWR 特有の制御棒材である炭化ホウ素(B4C)等との高 温化学反応の影響を評価し、得られた知見を JAEA が開

\*SA時に施設から放出される放射性物質の種類、量、放出開始時間、放出継続時間の総称

発したTHALES・2等のSA解析コードに組み込まれているFP等の放出モデルの改良・高度化に反映することで、 解析コードによるソースターム評価の精度を向上させる ことを目指します。

本研究では、1F における公衆被ばくへの寄与が大きく、 ソースタームとして最も重要な元素であるヨウ素(I)と 化合物を形成し、さらに B<sub>4</sub>C との反応により高揮発性の 化合物を形成する可能性があるセシウム(Cs)を主な対 象として、化学形が FP 等の放出へ与える影響を評価で きるように FP 等放出モデルを改良します。このために、 FP 等の化学形を直接測定できる示差熱天秤・質量分析装 置等を用いて、温度、雰囲気、被覆管・制御棒材(B<sub>4</sub>C) との高温化学反応条件等をパラメータとした系統的な FP 等の化学形に関する実験データ取得及び評価を行い ます。(図 1)

#### (2) FP 等放出モデルの改良

THALES・2 コード等に組み込まれている FP 等放出モ デルを、化学形(雰囲気、B4C 等との高温化学反応)の 影響が評価できるように改良します。

既往研究で得られている FP 等放出挙動に係るデータ 及び知見を整理・解析するとともに、後述する「(3) 放出 時の FP 等の化学形評価」及び「(4) 放出した FP 等の化 学安定性評価」で新たに得られる実験データ・評価結果 を加えて、燃料からの元素毎の放出率を計算するモデル (放出率計算モデル)と放出後の化学形を設定するモデ ル(化学形設定モデル)を改良します。



#### 図 2 沈着 FP の X線回折測定及び γ線スペクトロメトリー結果

X線回折測定結果より、サンプリング管の中心位置(温度:約450°C)での沈着物はパイロクロア(AB<sub>2</sub>O<sub>8</sub>)型の化合物であることがわかりました。一方、フィルターで見られた沈着物は結晶性化合物ではない可能性が示唆されました。また、これらの試料のア線スペクトロメトリーにより、沈着物は Cs を含有する化合物を含むことがわかりました。

#### (3) 放出時の FP 等の化学形評価

放出率計算モデル改良のための基礎データ及び知見を 得るため、温度、雰囲気、被覆管・制御棒材(B4C)と の高温化学反応条件等をパラメータとして燃料からの FP等の放出時の化学形、放出速度及び放出率を実験によ り求め、放出速度及び放出率に及ぼす化学形の影響を評 価します。

燃料からの FP 等の放出時の化学形を直接測定するために、示差熱天秤-質量分析装置を大洗研究開発センターの照射燃料試験施設(AGF)に導入して測定技術の開発を行い、放出時の化学形に関する系統的なデータを取得していきます。この装置は、試料加熱により発生した蒸気種のエアロゾル化や測定系への沈着により質量分析による化学形直接測定が行われないことを防止するための測定系が工夫されており、従来の研究においてデータが得られていない放出時の化学形を直接測定することが期待されます。さらに試料の重量変化をその場測定できることから、燃料の酸化等の高温化学反応がFP 等放出挙動に与える影響を評価できる等、より多面的な評価ができる可能性があります。

また、同施設のホットセル内に設置された FP 放出挙 動試験装置を用いてオンラインγ線スペクトロメトリー により照射済燃料からの FP 等の放出速度、またγ線ス ペクトロメトリー/誘導結合プラズマ質量分析計

(ICP-MS) 測定により放出率を評価します。これらの 結果と示差熱天秤-質量分析装置により得られたデータと 合わせて放出時の FP 等の化学形を評価し、放出速度及 び放出率に与える影響を評価します。

#### (4) 放出した FP 等の化学安定性評価

化学形設定モデル改良のための基礎データ及び知見を 得るため、FP 放出挙動試験装置による加熱実験で放出さ れサンプリング管等の低温部に沈着した FP 等(沈着 FP) の化学形を測定し、この評価結果と放出時の化学形評価 結果を合わせ、化学平衡計算等を補助的に使用すること により、放出 FP の化学安定性を評価します。また、ク ヌーセンセルを用いた高温質量分析装置により Cs 化合 物等の熱力学データを拡充し、化学平衡計算の高精度化 を同時に行います。

沈着 FP の測定は、温度勾配が付いたサンプリング管 及び流路のフィルターへ付着した FP 等の化合物(以下、 沈着 FP)のX線回折(XRD)測定及び $\gamma$ 線スペクトロ メトリー/ICP-MS測定により行います。それぞれの測 定により結晶構造及び化学組成を求め、沈着 FP の化学 形を評価します。

これまでに沈着 FP の化学形評価手法を確立すること を目的に、新型転換炉「ふげん」で照射された MOX 燃 料(燃焼度: 43GWd/t、製造時 Pu 富化度: 5.6%)の FP 放出挙動試験装置による加熱実験を行い、FP 等が沈着し たサンプリング管及びフィルターの XRD 測定及びγ線 スペクトロメトリーを開始しました。「ふげん」燃料の加 熱実験は、アルゴンガス雰囲気において、2,100℃で5分 間保持する条件にて行いました。加熱終了後、サンプリ ング管では、中心位置(約 450℃)に黒色の沈着物が、 また流路のフィルターに灰色の沈着物が観察されました。 これらの試料の XRD 測定結果より、サンプリング管の中 心位置での沈着物はパイロクロア (AB2O6) 型の化合物 であることがわかりました。一方、フィルターで見られ た沈着物は結晶性化合物ではない可能性が示唆されまし た。また、これらの試料のy線スペクトロメトリーによ り、観察された沈着物はCs化合物を含むことがわかりま した。(図2)。

今後は、ICP-MS により Cs 以外の元素組成を分析して 沈着 FP 化合物の化学形を評価するとともに、XRD によ り測定できなかったフィルターに沈着した FP の結晶構 造(化学結合状態)の評価手法についても検討し、沈着 FP の化学形の分析手法を確立する予定です。

# 1-6 炉内で起きたことを実験・計算により評価する(2) ーシビアアクシデント進展詳細分析のための熱水力挙動に関する技術開発--

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 吉田啓之



腐食性のある海水を用いた実験を行うため、タンク内の攪拌機 や塩分濃度計などを設置するとともに、清掃・交換を容易に行 うための工夫を施した実験ループと試験部を製作しました。

シビアアクシデント (SA)時の原子炉内状況は、冷却 材である水や熱の移動(熱水力挙動)により大きな影響 を受けます。このため、東京電力福島第一原子力発電所 事故(1F事故)時の炉内状況の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、水 や蒸気の流れや温度分布、さらに、その時間的な変化な どを精度良く推定する必要があります。

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 号炉での事故の後広く行われま した。しかし、炉内状況の変化を含めて SA 進展を予測 するためには、事故時の熱水力挙動の解析技術が未だ十 分ではありません。そのため、炉内状況の解析技術を高 度化するために、事故時の熱水力挙動の予測精度を高め るための研究開発を行っています。

本研究では、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3次元解析手法の整備などを進めています。ここでは、実施中の実験及び計算手法開発の中から、海水が熱水力に与える影響を把握するための実験と、溶けた燃料が圧力容器下部に落下する際の挙動の評価手法開発について紹介します。

#### (1) 海水が熱水力挙動に与える影響把握のための実験

1F 事故において圧力容器内に注入された海水により、 熱水力挙動が影響を受けた可能性があります。そこで、 海水が燃料棒近傍の熱流動に与える影響について把握す るための実験を実施しています。

実験にあたっては、まず、腐食性があり、また、濃度 が変化する海水を循環させる実験装置(実験ループ)を 製作しました(図1a)。この装置は、濃度を調節・把握





しながら実験を実施するため、海水を貯めるタンク内に 攪拌機を設置するとともに、濃度計で塩分濃度を監視・ 記録する機能を有しています。また、海水を用いた場合、 塩の析出(沈着・固着)や腐食の影響が考えられるため、 清掃・交換のための分解作業が容易な構造としています。

海水が熱水力挙動に与える基本的な影響を把握するた め、一本の燃料棒を模擬した二重円管形状の試験部(図1 b)を製作し、ループに接続して実験を開始しました。そ の実験結果の一例として、被覆管表面温度に相当する壁 面温度と、流体温度の差を図2に示します。●及び〇が 実験結果、実線及び点線が、沸騰しない条件での実験結 果を純水に関する予測式(相関式)を用いて評価した値 です。単位面積あたりの加熱量(熱流束)の増加ととも に大きくなる壁面と流体の温度差は、沸騰が起こらない 条件では、相関式とほぼ一致しており、有意な差異は確 認されませんでした。今後は、濃度などを変化させた海 水を用いた実験を行い、この傾向を確認するともに、 沸騰が起こる条件でも、従来の純水用の沸騰が起こる条 件での相関式で評価することが可能かどうかを確認する 予定です。

#### (2) 溶融燃料落下挙動評価手法の開発

溶融した燃料や被覆管等の炉内構造物が炉心から落下 した際の挙動は、溶融物の分布や圧力容器下部の損傷に 影響を及ぼします。BWR圧力容器下部は制御棒案内管及 び計装管等により複雑な構造となっており、これらの影 響を含めて溶融燃料落下挙動を詳細に評価できる解析手 法を、原子力機構が開発した詳細二相流解析コード TPFIT<sup>II</sup>をもとに開発しています。

開発する解析手法の妥当性を確認するための実験及び



図3 BWR 下部構造を模擬した模擬溶融燃料落下試験

BWR 圧力容器の下部構造を模擬した試験部内の水に、溶融燃料 を模擬した透明な溶融燃料模擬物質を落下させ高速度ビデオカメ ラにより落下の挙動を撮影することで、解析手法の妥当性確認に 必要なデータを取得します。



図5 実験による先端速度に対する構造物の影響 図3の装置を用いて、構造物がある場合と無い場合の実験を行い ました。落下する溶融燃料模擬物質の速度を比較すると、構造物 の影響により、落下速度の減衰が異なることが分かります。

解析用データの取得を同時に実施しています。実験のために製作した装置の概要を図3に示します。実験では、 解析手法により再現される落下状況における、構造物の 影響のみを評価・検討するため、水中に、溶融燃料と動 粘性係数が同程度であり、かつ透明で可視化に適した物 質(フッ素系不活性液体、商品名:フロリナート)を落 下させ、高速度ビデオカメラにより水とフロリナートの 間に形成される界面の形状などを調べています。

図4に、界面の形状について、解析結果と実験結果の 比較を示します。複雑に変化する界面の形状に関して、 解析結果と実験結果は定性的に一致していることが分か ります。

定量的な比較を実施するため、高速度ビデオカメラで 取得した画像に対し、様々な処理を行っています。その 一例として、画像処理により得られた先端速度に対する、





#### (構造物あり)

開発した解析手法により、構造物を含む実験を模擬した解析を行いました。左図中に棒のように見える部分は構造物の影となっている部分です。解析による界面形状は、実験結果と良く一致しており、定性的に模擬溶融燃料物質の落下挙動を評価できることが分かります。



図 6 予測した先端速度と実験結果の比較

開発した解析手法により予測したジェット先端位置を実験結果と比較した結果です。時間に比例してジェット先端位置が下方に移動 する様子が、定性的・定量的に再現されることが分かります。

制御棒案内管を模擬した構造物の影響を図5に示します。 先端速度は、溶融燃料模擬物質の散らばり方(分散)の 程度により大きな影響を受けます。構造物が存在する場 合、落下速度の減衰が小さくなっており、模擬物質があ まり分散していないことが想定されます。落下する溶融 燃料模擬物質先端の水面からの位置(ジェット先端位置) を実験結果と比較した結果を図6に示します。実験によ るジェット先端位置は、時間に正比例していますが、解 析もこの傾向を再現していることが分かります。現在、 より詳細な実験データの取得と、解析結果との比較を進 めています。

《参考文献》	•	Liu, W., Yoshida, H. et al., Research of Seawater Effects on Thermal-Hydraulic Behavior at Severe Accident
		(1) Research Plan and Results of Preliminary Experiments, Proc. of ICONE21, ICONE21-16599, 2013, 6
	•	Suzuki, T., Saito, R., Yoshida, H. et al., Development of Numerical Simulation for Jet Breakup Behavior in
		Complicated Structure of BWR Lower Plenum (1)(2), Proc. of ICONE21, ICONE21-15744, 15624, 2013, 8
《引用文献》	[1]	H. Yoshida, et al., Current Status of Thermal/Hydraulic Feasibility Project for Reduced-Moderation Water
		Reactor (2) -Development of Two-Phase Flow Simulation Code with Advanced Interface-Tracking Method-,
		Nuclear Engineering and Technology, 38 [2], 2006, 10

# 1-7 炉内で起きたことを実験・計算により評価する(3)

## -事故時の圧力容器下部ヘッドの変形状況を予測する―

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 加治 芳行



D) トロドトット用作作用モノフレ(グラ)

図 1 BWR の圧力容器下部ヘッドの構造シミュレーションモデル(材料及びメッシュ図) 公開文献に基づいて、制御棒案内管の圧力容器下部ヘッド貫通部の溶接部も考慮した圧力容器下部ヘッド解析モデルを構築し、シミ

ュレーションを行っています。

沸騰水型原子炉 (BWR) における炉心溶融挙動は、大 まかに見ると表1に示す過程をたどって進展すると考え られています。

これらの過程で現れる個々の現象は非常に複雑で十分 に理解されていないため、大きな不確かさを有するもの が多く含まれています。

炉心の過熱、被覆管の酸化、炉心溶融等の早期の炉心 溶融挙動については、PWR に比べると少ないものの BWR を対象とした総合的な実験がこれまで数種類実施 されており、ある程度の知見は得られております。ただ し、炉心構成物質の相互作用や制御棒の溶融・崩落等に 関しては、十分にデータが得られておらず、ターゲット を絞った基礎実験あるいは分離効果実験等によりデータ を取得することが計画・実施されています。

一方、炉心下部領域から炉心支持板を経て下部プレナ

#### 表1 BWRにおける炉心溶融過程(推定)

-		
ſ	$\bigcirc$	制御棒・燃料集合体の溶融
		冷却水位低下による被覆管温度の上昇、蒸気の発生
		→被覆管酸化・脆化
		→制御棒の溶融・崩落、被覆管と燃料の溶解
		一燃料棒、集合体の溶融・落下
	2	炉心支持板と下部プレナム構造の破損
		溶融物の炉心支持板への落下、炉心支持板の損傷・
		溶融
		→溶融物の下部プレナム構造物への流下・損傷
ſ	3	圧力容器下部ヘッドの破損
		溶融物の下部ヘッドへの落下・堆積
		→下部ヘッドの貫通
ſ	4	格納容器内への燃料デブリの落下
ĺ		圧力容器ペデスタルへの落下
		→溶融物とコンクリートとの反応、ペデスタルの劣
		化・損傷

ムにいたる溶融物の移動挙動や下部ヘッドの破損を含む 後期の炉心溶融進展挙動についてはほとんど実験が行わ れておらず、特に制御棒案内管等が貫通し複雑な構造と なっている BWR の下部ヘッドの破損挙動に関する検討 はこれまでほとんど実施されていません。

1F 事故の解析及び復旧においては、炉心から落下した 溶融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ことが重要であるため、種々 のシナリオにおける下部ヘッドの破損挙動を計算機シミ ュレーションにより検討することとしました。

BWR 圧力容器下部ヘッド部を模擬した3次元解析モ デルを構築しました。BWR の圧力容器の下部ヘッドには、 制御棒の案内管や炉内の温度・圧力を測定するための多 くの配管が貫通しています。図1 a)に BWR の圧力容器 下部ヘッドの構造物と材料を示します。圧力容器は低合 金綱、燃料集合体や炉内構造物を支持するシュラウドや 制御棒案内管はステンレス鋼、貫通部のスタブチューブ は Ni 基合金という異なる構造材料を用いて作られてい ます。また、圧力容器内部の水が外部へ漏れ出ないよう にスタブチューブと圧力容器は貫通部で溶接されていま す。私たちは、公開文献に基づき図1b)に示すようなス タブチューブと圧力容器の溶接部も考慮した下部ヘッド 詳細構造解析モデルを構築しました。この解析モデルは、 六面体要素を用いてメッシュを作成しており、節点数は 約64万点、要素数は約45万要素で構成されています。 また、この構造解析モデルの空間部分は、溶融物や水蒸 気等の流路となるため、空間部分にもメッシュを作成す ることにより熱流動解析用モデルも構築しました。

まず、熱流動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 に伴ってどの様な温度分布になるのかを予測します。基本的シナリオとして、最も厳しいシナリオであると考え られる、内圧が下がり炉心溶融物が下部ヘッドに堆積し、





a)溶融物の流速分布図

b)下部ヘッド内面の温度分布図

#### 図 2 BWR の圧力容器下部ヘッドの熱流動シミュレーション結果の例(下部ヘッド貫通部近傍)

熱流動シミュレーションにより、溶融物の流動状況を解析し、それに基づく下部ヘッド、制御棒案内管等の構造物の温度分布を解析しました。 自然対流により上昇流が発生し、下部ヘッド内面の上部の温度が高くなっていることがわかります。





a) 下部ヘッド貫通部近傍の変形図 b) 下部ヘッド貫通部近傍の応力分布図 図3 BWR の圧力容器下部ヘッドの構造シミュレーション結果の例(下部ヘッド貫通部近傍) 図2の温度分布の結果を用いて、構造シミュレーションにより温度分布に起因する構造物の変形や応力分布を求めました。スタブチ ューブ付け根部回りに応力が集中していることがわかります。

残存冷却水が蒸発後、堆積した溶融物の崩壊熱による加 熱で炉内構造物が加熱される場合を想定して熱流動シミ ュレーションを実施しました。解析コードは、FLUENT Ver.14.0 を使用し、1/8 セクタモデルを用いて、溶融物 が下部ヘッド底から1mの高さまで堆積し、初期温度 100 ℃、1.0 MW/m<sup>3</sup>で発熱する条件で熱流動シミュレー ションを実施しました。流体物性値はMVI Project [1]の 模擬溶融物の物性値を用いました。熱流動シミュレーシ ョンの解析結果の例を図2に示します。図2a)はZX断 面 (Y=0.3m) における流速分布を示しています。 圧力容 器(グレー部)を貫通している部分が制御棒案内管(白 色部)を示しており、図中の青色矢印が流動方向を示し ています。この図から溶融物が制御棒案内管やスタブチ ューブなどの構造物の形状の影響を受けながら流動し、 上昇流が発生していることがわかります。この影響を受 けて制御棒案内管の溶融物に接触している上部の温度が 下部に比べて高くなる傾向が見られました。図 2 b)は下 部ヘッド内面の温度分布を表示させた例ですが、下部ヘ ッド底(左下部)よりも溶融物が堆積している右上部の 温度が高くなっていることがわかります。また、制御棒 案内管の貫通孔の回りもスタブチューブなどの構造物の 形状の影響を受けて不均一な温度分布となっています。 次に、熱流動シミュレーションにより求めた温度分布 データ等を基に構造シミュレーションを行うことによっ て、貫通配管部や下部ヘッド自体がどの様に変形するの かを検討しました。解析コードは、ANSYS Mechanical Ver.14.0を使用し、FLUENTのシミュレーション結果を 読み込み、構造物毎の異なる材料(図1a)参照)の物性 値<sup>[2][3]</sup>を用いて弾性解析を実施しました。本解析結果の例 を図3に示します。図3b)は図2b)の温度分布の場合の 下部ヘッド貫通部近傍の応力分布図です。本解析は弾性 解析であるため、応力の絶対値は実際よりもかなり大き な値を示しておりますが、スタブチューブ付け根部回り に応力が集中していることがわかります。このことから 制御棒案内管等の貫通部近傍に高い応力が発生すること が想定され、この部分から破損が起こる可能性が示唆さ れています。

上記解析は、あるシナリオを想定した場合の弾性解 析の結果であり、今後さらに詳細な解析を実施する予 定です。これらを実施することにより、種々のシナリ オにおける1Fの1~3号機の圧力容器下部ヘッドの破 損状況(いつ破損したのか、どこが破損したのか、破 損部の大きさはどのくらいか等)の推定及び格納容器 内の燃料デブリ状況(どこにどれだけの燃料デブリが 存在するか等)の推定が可能となると考えています。

《引用文献》	[1]	B. R. Sehgal, et al., "Final report for the "Melt-Vessel Interactions" Project, Royal Institute of Technology,
		Sweden (1999).
	[o]	

- J. L. Rempe, et al., "Light Water Reactor Lower Head Failure Analysis", NUREG/CR-5642 (1993).
- [3] T.Y. Chu, et al., "Lower Head Failure Experiments and Analysis", NUREG/CR-5582 (1998).

# 1-8 炉心の溶融挙動を明らかにする

### ─溶融炉心の複雑な流下挙動を調査するための実規模試験─

燃料溶融複雑系試験準備室 三宅収、中桐俊男、加治芳行、永瀬文久、丸山結、逢坂正彦



図 1 BWR の炉心溶融過程と試験の範囲

BWR の炉心支持板、下部プレナム及び下部ヘッド上には複雑な構造物があり、そこでの炉心溶融物の流下、下部ヘッドの破損などの 現象は非常に複雑ですが、これらに着目した試験はほとんど行われていません[1, 2]。

我が国には、1F での事故を徹底究明し、得られる知 見・教訓を後世に残す国際的責任があります。事故進展 を解明する上で最重要かつ困難な課題は BWR 炉心の溶 融・崩落現象の解明であり、本研究はこの課題に正面か ら取り組むものです。

BWR における炉心の溶融・崩落は、図 1 に示す過程 をたどって進展すると考えられますが、この過程で現れ る個々の現象と相互作用は非常に複雑で全てが十分に解 明されているとは言えません。

特に BWR の炉心下部領域から炉心支持板を経て下部 プレナムに至る溶融炉心のリロケーション(移動)や落 下した溶融物による下部ヘッドの破損については OECD/NEA が知見を取得すべき現象[1]、日本原子力学 会等がシビアアクシデント(SA)評価における重要現象 [2]と位置付けているにもかかわらず、被覆管材(ジルカ ロイ)、制御材(B<sub>4</sub>C)及び構造材(ステンレス鋼製の炉 心支持板や制御棒案内管)を用いた XR-2 実験が米国サ ンディア国立研究所で実施されたのみであり、実験の困 難さ等から二酸化ウラン(UO<sub>2</sub>)を用いた実験は行われ ていません。

溶融炉心のリロケーション、溶融炉心の固化に伴う流 路閉塞、溶融炉心と構造材との熱のやり取りなどの現象 は、相互に影響しあう複雑な現象であるとともに、溶融 炉心及び構造材の物性、溶融炉心の流量、流路の寸法等 が強く影響することが予想されます。そのため、模擬物 質を用いた小規模実験で現象を把握することは困難であり、実機に近い規模でUO2を主成分とする溶融物を用いた実験を行うことが必須であると考えられます。

このため本研究ではUO2を用いた実規模に近い試験を 実施し、溶融炉心の移行現象を把握するとともに、炉心 溶融進展事象を再現できる大規模シミュレーション法を 開発します。併せて主な現象を詳細に調査するための要 素試験も実施します。

図2に検討中の試験装置及び試験体の概念を示します。 試験装置は大洗研究開発センターの試験施設(約14m×約18m×約10m(高さ))に設置します。試験では劣化ウ ランからなるUO<sub>2</sub>(最大 400kg)と制御材及び金属構造 材(約200kg)の溶融物を加熱装置で生成し、所定の流 量で試験体上部に流下させて、集合体下部、炉心支持板 上、下部プレナムにおける溶融物のリロケーション経路 及び量、燃料集合体、チャンネルボックス及び制御ブレ ードの損傷・溶融状況を観察します。SA時にBWRでは、 制御ブレードやチャンネルボックスなどの金属がUO<sub>2</sub>な どの酸化物に先行して溶融・流下すると推定されるため、 金属及び酸化物を別々に溶融し、時間をずらして試験体 に供給することを検討します。

試験装置を構成する主要機器は以下のものです。

(1)格納容器:実機炉容器内部の雰囲気条件を再現し、 発生する熱やエアロゾル等を閉じ込めるために設置 します。



#### 図 2 BWR の燃料溶融複雑系試験概念図と試験体概念図

劣化ウランからなる U0<sub>2</sub> 及び金属を主成分とする溶融炉心模擬物質を加熱装置により溶融し、所定の流量で試験体上部に流下させます。試験体は BWR の炉内構造物の形状・材質等を模擬した実規模の試験体とし、着目する現象等に応じて2種類の試験体を使い分けます。

- (2) 溶融物生成装置: UO₂、ジルカロイ、ステンレス鋼、 B4Cを2000℃以上に加熱溶融し、一定の速度で流下 させます。高周波誘導加熱、プラズマ加熱等を検討 中です。
- (3) 試験体領域:試験体、試験体予備加熱装置、断熱構 造等から構成されます。
- (4) キャッチパン: 試験体を通して落下する高温の溶融 物を受け止め、格納容器等の損傷を防止します。
- (5) 計測系:溶融物及び試験体の温度を放射温度計、熱 電対などで測定します。溶融物の移動を可視化する 技術も検討します。

試験体は、BWR の炉内構造物の形状・材質等を模擬し た実規模の試験体とし、着目する現象等に応じて下記の ように2種類の試験体を使い分けます。ただし、照射し ないウランを使用することから実際の燃料で発生する崩 壊熱を模擬することが難しく、試験体の高さを実機より 短縮することで温度低下の影響を低減することを検討し ています。

#### <u>Type A</u>試験体

燃料集合体・制御棒の溶融挙動に着目した試験体で、 燃料集合体・チャンネルボックス・制御ブレード(4バン ドル、高さを2m程度)、炉心支持板及び制御棒案内管(高 さを2m程度)を模擬しています。

#### Type B 試験体

炉心支持板より下部の下部プレナム内での溶融炉心落 下挙動、圧力容器破損挙動に着目した試験体で、炉心支 持板、制御棒案内管等(高さ 2m 以下)及び圧力容器壁 を模擬しています。

計画では、2014 年度中に試験装置を設置予定の試験施 設の整備を行い、2014 年から 2016 年の3年間で試験 体・試験装置の設計・製作・設置とともに加熱・計測・ 分析技術の開発を実施する予定です。試験は、2016 年か ら金属・模擬物質溶融試験を開始し、2018 年からウラ ン・金属溶融試験と段階的に進める予定です。要素試験 としては、落下した溶融物による圧力容器下部へッドの 破損挙動に着目した試験を小規模な試験装置を用いて本 試験計画において実施するとともに、原子力機構内で実 施している①制御棒・燃料棒材料の熱力学評価/材料反 応試験、②小規模制御棒・燃料溶融試験、③研究炉(NSRR) 内での燃料溶融試験、④原子炉内熱流動試験、などとも 連携を図り、また SA 解析コードを用いた試験条件の設 定、解析結果と試験結果の比較による解析モデルの検 証・高度化を行います。

本研究で実施する研究開発は国際的な SA 研究への多 大な貢献が期待できるものであり、福島第一原発事故の 解析評価、デブリ取り出しに有用な技術的知見等も提供 できます。また、本研究は多方面の専門分野の人材を必 要とする比較的長期のプロジェクトであり、国内の大学、 産業界のみならず、海外との研究協力により国際的な人 材育成に貢献できると考えます。

 《引用文献》
 [1] OECD/NEA/CSNI, Molten Material Relocation into the Lower Plenum - A Status Report, 1998, (NEA/CSNI/R(97)34))
 [2] 日本原子力学会,「シビアアクシデント評価」研究専門委員会報告,日本原子力学会2013 年春の年会:

# 燃料デブリの取出しとその後

## 一燃料デブリ性状把握・取出し工法・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 燃料デブリの取出しとその後に関する中長期ロードマップ(2 号機) 廃炉を加速していくために、スケジュールの前倒しなどの検討を進め、2013 年 6 月 27 日に「東京電力㈱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」が改定されました。

東京電力㈱福島第一原子力発電所(1F)の事故対応に おいては、2012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(図1)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 になりますが、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、 TMI-2のような過去のシビアアクシデント (SA) に関す る情報や溶融炉心・コンクリート反応 (MCCI) のよう なその後の SA 研究の成果などをもとに、1F 事故の経緯 やプラントデータなど明らかとなっている今回の事故デ ータを十分に考慮して、1F 各号機の内部状況を推測し、 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(図2)についての概要をご紹介します。また、最 近の成果を中心に個別の取り組みについて 2-1 よりご紹

介します。

#### (1) 燃料デブリがどのようなものかを理解する

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

今回の事故では、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 を必要とする可能性があり、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の整理・検討を進めていま





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 られた成果を国のプロジェクトに提案します。

#### (3) 燃料デブリの再臨界を防ぐ

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 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。

具体的な臨界管理の方法として、TMI-2 で経験したように冷却水にホウ素を常時加えられれば確実であり、必要なホウ素濃度の検討を進めています。しかし、格納容器から冷却水が漏えいしている状況では実現が難しいため、代替として、中性子測定により未臨界であることを確認しながら燃料デブリを回収することも想定しています。特に強γ線環境下における高感度中性子計数を実現するための遮蔽の検討を行っています。

#### (4) 燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築

燃料デブリ中の核物質を適切に管理し、平和利用目的 以外に用いられないことを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、事故前の様に燃料集合体を一つの単位とした計量 管理を適用することができません。そこで今後、炉内燃 料デブリを取出して貯蔵を行うまでの透明性を確保しつ っ、合理的な計量管理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 事故とチェルノブ イリ事故の計量管理等に関する調査を行い、今回の事故 の燃料デブリに適用する計量管理方法の構築に役立てる 考えです。

燃料デブリ中の核物質量の測定技術については、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複数の候補技術 を選定しています。これら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。

#### (5) 燃料デブリを取り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、長期保管や直接処分、安定化処理、湿式処理、乾式 処理など、様々な取りうる処置の組合せをシナリオとし て整理し、フィージビリティの評価を行っています。

また、これと並行して、早ければサンプリングの際に も必要となるアルカリ溶融法などの燃料デブリの破壊分 析に係る技術開発を進めるとともに、既存技術である湿 式、乾式の処理適用性の評価として、硝酸や溶融塩など に対する燃料デブリの溶解性に関する基礎的なデータ採 取を行っています。

《参考文献》	N.Kaji, Current Status of Research and Development Program for Characterizing Fuel Debris at Fukushima	L
	Daiichi NPS by JAEA, Global 2013, Salt Lake City, US, Sept. 29-Oct. 3, 2013	
《引用文献》	[1] 原子力災害対策本部「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」,2013 年 6 月 27 日,東京電力福島第一原子力発電所廃炉対策推進会議 ,2013	

### 

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、北垣徹、矢野公彦



図 1 熱力学平衡計算による燃料デブリの化学形の推定(例)

化学形の推定結果の例として、2 号機の圧力容器が破損していない場合での推定結果です。下部支持板付近では(U,Zr)O<sub>2</sub>や Zr(O)の他、 Fe<sub>2</sub>(Zr,U)などの Fe-Zr-U 系合金が生成すると予想されます。

TMI-2 における事故の後処理では、種々の特性をもつ 燃料デブリに対して、チゼル(たがね)やハンマーなど による破砕、コア・ボーリング装置などによる穿孔、プ ラズマアーク切断機による溶断など、様々な工法を取り 入れ、燃料デブリ取出しが行われました。1F 事故処理に おける燃料デブリ取出しについても、TMI-2 と同様に、 様々な取出し装置を準備し適材適所で使用していくこと になると考えられます。今後予定されている取出し技術 開発において効果的な工法・装置を効率的に選定・開発 していくにあたって、燃料デブリがどのようなものであ るかを理解することは、極めて重要なことと考えていま す。TMI-2 でも有効に利用された工法・装置は、1F にお いても有効に利用できる可能性が高いことから、TMI-2 での実績をもとに、これらの工法や装置を選定、開発す るために必要な燃料デブリの特性を調査しています。

#### (1) 炉内のデブリに関する推定

事故時の原子炉内で生成する燃料デブリがどのような ものであるかを推定することは、取出しに関連するプロ ジェクトにおいて種々の検討を進めていくうえで、大き な課題のひとつであると考えています。このため、燃料 デブリとして主にどのような化学形のものが生成したと 考えられるかについて、解析により概略評価を行いまし た。

化学形は、熱力学平衡計算により簡易的に推定しました。計算では、材料の組成や温度を計算条件として入力

し、平衡状態における化学形が出力されます。このよう な解析は、過酷事故を想定した大規模溶融試験における デブリの生成挙動の理解にも活用されてきました。ここ で、材料の組成や温度は、事故進展とともに炉内におい てある程度の分布を示すと考えられます。そこで、MAAP や MELCOR などを用いた事故進展解析結果から炉内に おける材料の分布状況や温度に関する情報を整理し、平 衡計算条件に反映することとしました。

図1に解析結果の一例を示します。考えられる種々の ケースについて計算をおこなったところ、炉心上部にお いてはほとんど酸化物であるものの、炉心底部において は溶融した金属が流れ込み、上部に比べて多くの金属相 が生成することがわかりました。下部の燃料デブリ取出 しを検討する上では、酸化物相の物性とともにこの金属 相が重要であると考えられますので、今後は金属相の物 性についても取り組んでいく計画です。

#### (2) 取出し工法・装置の開発に必要な物性の検討

(1)で推定された種々の材質について、どのような物性 を取得することが取出し工法や装置の検討に役立つかを 検討しています。工法・装置開発において、装置の要素 試験やモックアップなどで用いるための燃料デブリ特性 の似た非放射性の材料(コールド模擬デブリ)が必要と なると考えられていますが、その材料選定の指標となる 物性として、経験式や半理論式などから形状、粒径、密 度、硬さ、弾性率、破壊靱性、熱伝導率、比熱、融点を

#### 表 1 取出し工法・装置の開発に必要な燃料デブリ物性

取出し工法・装置の開発に必要と考えられる燃料デブリの物性を選定した結果です。これらの物性を手掛かりに装置類の設計が行われる と考えています。また、これらを指標としてコールド模擬デブリの選定を行っていく予定です。

取出し装置	主な 対象	形状	粒径	密度	<u>硬さ</u>	<u>弾性率</u>	引張り 強さ	曲げ 強さ	<u>破壊</u> <u>靱性</u>	動的 破壊 靱性	<u>熱伝</u> 導度	<u>比熱</u>	融点	溶融 潜熱
①切断ツールA (衝撃破壊)	塊状 デブリ			•	•	•			•	$\bigtriangleup$				
②切断ツール B (せん断)	ピン状 構造物				•	•	$\bigtriangleup$		•					
③切断ツール C (溶融切断)	板状の 構造物			•							•	•	•	$\bigtriangleup$
④燃料回収用ツール (摘み取り)	粒子状 デブリ	0	0	•										
⑤吸引システム (固液輸送)	粒子状 デブリ	0	0											
⑥コア・ボーリング装 置(研削)	塊状 デブリ			•		•	$\bigtriangleup$	$\bigtriangleup$	•					
										,				,

#### 新たに取得すべき物性 SA研究等による知見も活用

●:模擬デブリや文献調査により評価する物性。○:実デブリでの評価が中心となる物性 △:模擬デブリや実デブリでの評価が困難な物性。

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



a)ビッカース硬さ



#### 図 2 機械的性質への O/M の影響

(U<sub>09</sub>,Zr<sub>01</sub>)O<sub>2±x</sub> (-0.03≦x≦0.19)について機械的性質の測定を行いました。ビッカース硬さ、破壊靱性は O/M が上昇するとともに上昇する ことが確認できました。

ピックアップしました。(表1)特に、既存データの少な い機械的性質(硬さ、弾性率、破壊靱性)を中心にデー タを取得していきます。また、さらに、これらの物性が 機器の作用に与える影響を実験的に確認する計画です。

#### (3) 模擬デブリを用いた機械的性質の調査

(2)で検討した燃料デブリの機械的性質(硬さ、弾性率、 破壊靱性)について、模擬デブリを用いて実験的に調査 しています。まずは燃料デブリの大部分であるウラン・ ジルコニウム酸化物固溶体について、その組成や不純物 の影響を確認しているところです。昨年度は組成のうち O/M (酸素・金属比) について確認したところ、そのビ ッカース硬さや破壊靱性はO/Mに大きく影響をうけるこ とがわかりました (図 2)。

今後はウランとジルコニウムの比率や不純物としてFe が混入した際の影響について評価していくとともに、金 属質のデブリについてもその物性を評価していく計画で す。

《参考文献》	・ 池内 宏知ほか,福島第一原子力発電所の圧力容器内デブリの化学形態に関する熱力学的検討,日本原子力学	学会
	2013 年秋の大会予稿集, L33, 2013	
	・ 北垣 徹ほか,福島第一原子力発電所事故処理における燃料取出し機器検討に必要な燃料デブリ物性の選定,	日本
	原子力学会 2013 年秋の大会予稿集, P19, 2013	
	· 矢野 公彦ほか、ウラニア・ジルコニア固溶体の機械的性質に対する OM 影響評価、日本原子力学会 2013 4	3年秋
	の大会予稿集,L32,2013	

# 2-2 燃料デブリとはどのようなものかを理解する(2)

—MCCI生成物の特性把握の進め方—

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、池内 宏知、矢野 公彦、鍛治 直也、鷲谷 忠弘



図1 1F1 で発生した MCCI の概念図

1F1 では溶融燃料が圧力容器を貫通し格納容器のコンクリート上に落下して MCCI が発生 したと推定されています。MCCI はコンクリートの浸食や分解ガスの発生、溶融燃料と溶融 コンクリートの熱流動等、様々な反応が同時に起こる非常に複雑な反応です。



図2 仏国 CEA で実施された MCCI 試験 の生成物

ポーラス状の燃料成分とコンクリートの混 合物中に白い未溶融の二酸化ケイ素が含 まれているのが分かります。

#### MCCI とは何か

1F1 では図1に示すように、溶融した燃料が圧力容器の底を貫通し、格納容器内のコンクリート床面上に落下して MCCI が発生したと推定されています。

コンクリートはセメント、水、二酸化ケイ素や石灰で 作られた凝結材からなる複雑な混合物です。コンクリー トは熱せられると100℃で水分の蒸発が始まり、700℃程 度で石灰が分解されてCO2が発生し、1100℃から1400℃ の間で溶融が始まります。崩壊熱により2000℃以上まで 昇温して溶融した燃料がコンクリートに接触すると、熱 がコンクリートに伝わり、これらの反応を伴ってコンク リートが浸食されます。また、発生したガスによる溶融 燃料の撹拌や溶融したコンクリートと溶融燃料の混合物 の熱流動等、様々な反応が生じます。MCCI に関する研 究では、これらの現象を理解し予測するために様々な実 験とシミュレーション技術の開発が行われてきました。

MCCIの研究としては米国のサンディア国立研究所な どで1980年代から1990年代までに多くの実験が行われ ました。近年では、米国、仏国、独国等で大規模な実験 を伴う研究が積極的に行われています。米国のアルゴン ヌ国立研究所(ANL)では、コンクリートの組成や注水 がコンクリートの浸食挙動へ与える影響について調べら れ、仏国の原子力・代替エネルギー庁(CEA)では、金 属と酸化物が成層化した状態でのMCCIについて調べら れています。また、独国のカールスルーエ工科大学では 試験にウランは使用していませんが、大規模な試験によ って、酸化物と金属の高温反応等が調べられています。 一方で、これらの研究の主な目的はMCCIが発生した場 合での原子炉の健全性を確認することであり、MCCIに よる生成物(MCCI生成物)の特性や取り扱い方法等に ついてはほとんど検討されていません。

#### (2) 1Fの MCCI に関わる現状とプロジェクトの目的

1F で発生した MCCI 生成物は格納容器内に堆積して いることから、圧力容器内の燃料デブリよりも外部から アクセスし易いと考えられており、数年以内にサンプリ ングされる計画となっています。サンプリングした MCCI 生成物を詳しく分析することで、圧力容器の中の 状態がどうなっているかを知る手掛かりとなることが期 待されます。

原子力機構が進めている模擬デブリを用いた特性の把 握プロジェクトでは、サンプリングや取出し、取り出し 後の処置等の技術開発に有益な情報となる MCCI 生成物 の特性を明らかにすることを目的としています。しかし、 前述のように MCCI 生成物の特性に関する知見は少な く、かつ MCCI 生成物は溶融燃料とコンクリートの複雑 な混合物であるため(図2)、網羅的にその特性を研究す るには長期を要し、1Fの廃炉作業に成果が十分に反映さ れないことが危惧されます。そのため、今後の廃炉作業 に必要な情報を明確にした上で、優先度の高い研究開発 項目に絞り、どの様に開発を進めるかを検討しました。

#### (3) MCCI 生成物の特性把握の進め方

廃炉作業に必要なMCCI生成物の特性に関する知見を 明確にするため、先ず燃料デブリ取出し準備に係る研究 開発において必要となる情報を検討しました。例えば、 燃料デブリ・炉内構造物取出工法・装置開発では、MCCI 生成物の硬さ等の機械的物性や分布状態に関する情報が 重要であり、これをもとに取出工法の検討や装置開発が 行われます。また、実デブリの性状分析では、MCCI 生 成物の化学的特性に関する情報や、その分析方法に関す る知見が必要となると考えられます。同様の検討を研究 開発課題毎に実施し、研究開発課題間で重複した内容を 纏め、MCCI 生成物の物性調査、MCCI 生成物の分布の



図3 熱力学平衡計算による CEA のコリウム流下試験の試験生成物の評価例

CEA では燃料成分とコンクリート成分を含んだコリウムを加熱溶融し、ジルコニア(ZrO<sub>2</sub>)基板上に流下させる試験が行われ、その生成物 が分析されました。CEA の試験条件と同様な組成比率で、熱力学平衡計算による生成物の評価を行い、CEA の分析結果と比較したとこ ろ、同様の化学形が計算で評価できることを確認しました。今後は CEA の試験生成物についてさらに調査を進めて計算手法を確立し、IF の MCCI 生成物を評価します。

推定、MCCI 生成物のインベントリ評価、MCCI 生成物 の分析手法の確立の 4 つに分類しました。このうち、 MCCI 生成物の物性調査は内部調査(サンプリング)技 術開発や取出工法・装置開発からのニーズが明白となっ ているため優先度は高いと考えられます。MCCI 生成物 の分布推定やMCCI 生成物のインベントリ評価は事故進 展解析技術の高度化による炉内状況の把握で推定される ことになっており、MCCI 生成物の分析手法確立は燃料 デブリ処置技術の開発として原子力機構が別途着手して います。このため、模擬デブリを用いた特性の把握とし てはMCCI 生成物の物性調査に関する研究を重点的に進 めることとしました。

MCCI 生成物の物性を細かく分類すると、機械物性、 熱物性、化学的特性に分けられます。また、MCCI 生成 物のこれらの物性はその化学形に大きく依存するため、 まずは化学形を推定し、次に推定した化学形の物性を取 得する予定です。化学形の推定手法としては、図3に示 す熱力学平衡計算による推定方法等が考えられます。機 械物性については、現在想定される化学形についてのデ ータが非常に少ないため、新たに実験的に取得する必要 があります。取得する機械物性は、昨年度に燃料デブリ の取出し技術開発に必要な物性として摘出した「硬さ」 「弾性率」「破壊靱性」であり、要求があれば、その他の 機械物性についても取得する予定です。熱物性は熱力学 データベースとして多くのデータが整備されていること から、まずはそれらのデータベースから MCCI 生成物に 関するデータを抽出することとします。化学的特性につ いては、燃料デブリの特性と合わせてデブリ処置技術の 開発において調査します。以上より、模擬デブリを用い た特性の把握において実施する研究項目は、MCCI 生成 物の化学形を推定し、その機械物性を実験的に取得する ことに絞られました。

実施されていますが、日本国内の知見は限られています。 そのため、CEA や ANL の知見や試験設備等を有効に活 用することにより、有益な成果が早期に得ることができ ると期待されます。そこで、CEA や ANL の MCCI 研究 の現状を調査した結果、CEA では MCCI 生成物の特性 に関して知見は少ないが、過去に実施した MCCI 試験の 生成物を用いて化学形の推定と機械物性の取得に活用で きる見通しを得ました。また、1Fを模擬した体系で新た に MCCI 試験を行うことも検討しています。一方、ANL とは、ANL が豊富に知見を有する MCCI に対する注水 の影響について情報交換を主として行っていく予定で す。現在は CEA との協力を開始すべく詳細な実施内容を 調整しています。

前述の様に、MCCIの研究はCEAやANL等で盛んに

(引用文献)	[1]	東京電力株式会社,福島第一原子力発電所 1~3 号機の炉心状態について,
		http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts_111130_09-j.pdf
	[2]	C.Journeau et al.,"Two-dimensional interaction of oxidic corium with concretes: The VULCANO VB test
		series", Annals of Nuclear Energy, 36, 2009, pp.1597–1613.
	[3]	C. Journeau et al., "Physico-chemical analyses and solidification path reconstruction of multi-component
		oxidic spread melts". Materials Science and Engineering, A299, 2001, pp.249–266.

# 2-3 燃料デブリとはどのようなものかを理解する(3)

## -海水塩の影響・B4C制御棒との溶融固化物−

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 高野 公秀



図 1 海水塩と共に加熱した(UnaZrne)O,ペレットの断面観察像(2次電子像とX線像)

a) 空気中、1002 °C、12 時間加熱。ペレット表面に厚さ 50 µm 程度の Caと Na のウラン酸塩の層が生成しています

b) アルゴン気流中、1002 °C、12 時間加熱。ペレット表面の塩残渣(MgO)相の中に、ウラン酸塩が還元されてできた(Ca,U)O<sub>2+x</sub>の破片状 粒子が分散しています(丸枠内)

1F事故で生じた燃料デブリの取り出しに向けて、その 方法や工具類の検討、さらに取り出し後の安全な保管方 法の検討に反映するため、種々の模擬デブリを作製して 性状予測データの取得を進めています。TMI-2 事故と比 較した際に、1F事故での燃料デブリ生成過程で特徴的な 点として、(1) 炉心に海水を注水したことにより、高温 の燃料デブリと海水塩との間で化学反応が起きている可 能性があること、(2) 制御棒の中性子吸収材が炭化ホウ 素(B4C)であり、圧力容器下部に堆積した燃料デブリ は主に燃料集合体のUO2とZr及び制御棒のB4Cとステン レス鋼の溶融固化物からなること、(3) 炉心溶融物が圧 力容器下部を貫通し、格納容器底部でコンクリートと反 応 (MCCI) していること、等が挙げられます。これら の内、(1) と(2) について、ウラン含有模擬デブリ試料 による高温反応試験と生成物の性状を評価して得られた 成果を以下に示します。

#### (1) 海水塩と(U, Zr)0,模擬デブリの高温反応

圧力容器下部に堆積し、水面上に露出した高温の燃料 デブリ表面では、注水した海水が蒸発して塩が析出した 可能性があります。海水塩と高温の燃料デブリとの間で どのような化学反応が起こるかは、これまでほとんど知 見がありません。そこで、燃料デブリ取り出し時に塩由 来成分がどのような物理・化学形状で付随するかを明ら かにするため、酸化物デブリの主成分である(U,Zr)O2模 擬デブリと海水塩の高温反応試験を行い、生成物を調べ ました。

海水を蒸発乾固させて取り出した塩には、主成分の NaClの他、Mg塩化物と硫酸塩、Ca硫酸塩等が含まれま す。酸化物模擬デブリとして、UO<sub>2</sub>とZrO<sub>2</sub>から焼結法で 作製したペレット状の(U,Zr)O<sub>2</sub>試料を用いました。この ペレットを海水塩と共に空気流中あるいはアルゴン気流 中、815 ℃から1398 ℃の温度範囲で等温保持した後、生 成物をX線回折(XRD)測定と元素分析装置付走査電子 顕微鏡(SEM/EDX)で調べました。

まず、高温で海水塩がどのような挙動を示すかを説明 します。NaClは融点(約800℃)以上で徐々に蒸発し、 1000~1100℃に達する過程でほとんど消失します。一 方、Mg塩は塩化物、硫酸塩ともに熱分解によりMgO結 晶となり、デブリ表面に付着します。Ca硫酸塩も酸化物 に熱分解しますが、Ca単独の酸化物は検出されず、後述 の通り(U,Zr)O<sub>2</sub>との反応性が高いことが示唆されます。 これらの塩の蒸発あるいは熱分解時には、腐食性のHCl 及びSO<sub>x</sub>ガスの発生を伴うことが分かっています。

次に、空気中1002℃で12時間加熱した模擬デブリペレットの断面観察像を図1a)に示します。外観は、ウラン酸塩に特徴的な橙色であり、分析の結果、CaとNaのウラン酸塩の緻密な層がペレット表面に生成していることを確認しました。また、ペレット内部の母相は酸化に伴い斜方晶U-Zr-OとU<sub>3</sub>O<sub>8</sub>の2相に変化していました。長期間水に浸漬した際に、ウラン酸塩層からウランが溶出する可能性があるため、実際に浸漬試験を行って確認する予定です。

一方、アルゴン雰囲気中で加熱した際には、塩中のCa と微量のMgがペレット表面に拡散固溶し、立方晶の (Ca,Mg,U,Zr)O2+xとなることが分かりましたが、1198℃ で12時間保持した際の反応深さは5µm程度であり、デ ブリ性状への影響は小さいと考えられます。ところが、 図1b)に示すように、ペレット表面の塩残渣堆積層(主 にMgO)の中に、(Ca,U)O2+xで表される破片状の微細な 粒子が分散していることがわかりました。これは、硫酸 塩の熱分解時に発生するSO<sub>x</sub>ガスによりウランが酸化さ れ、一時的にウラン酸塩がペレット表面に生成し、その 後アルゴン気流中で保持している間に二酸化物固溶体に



図 2 B<sub>4</sub>C/SUS316L/Zr/(U<sub>05</sub>Zr<sub>05</sub>)O<sub>2</sub>混合物の溶融固化物の外観と断面観察像(光

- 溶融固化前後の外観 a)
- b) 溶融固化物断面の全体像。合金及びホウ化物からなる領域と、酸化物セラミックス領域は分離しやすい
- c) 合金+ホウ化物領域の拡大像。Fe-Cr-Ni-Zr-U合金中に棒状のZrB。結晶が分散析出している他、(Fe.Cr)。Bも生成しています
- d) 合金領域と酸化物セラミックス領域の境界拡大像。酸化物領域にホウ化物は含まれません

還元されたものと考えられます。

以上の試験結果から、燃料デブリ性状への海水塩の影 響として、デブリ取り出し時には MgO が付随すること、 高酸素分圧下ではデブリ表面にCaとNaのウラン酸塩層 が生成している可能性があること、低酸素分圧下でも硫 酸塩の熱分解で生じる酸化性ガスにより、デブリ表面の ウランの酸化状態が一時的に変化する可能性があること を明らかにしました。

#### (2) B<sub>4</sub>C制御棒と燃料の模擬溶融固化物の性状

圧力容器下部に堆積した燃料デブリ(コリウム)は、 主に燃料集合体と制御棒が溶融して混じり合い、冷えて 固まったものと考えられます。燃料集合体はUO2ペレッ トと、被覆管及びチャンネルボックスの主成分であるZr から成り、制御棒は中性子吸収材のB4Cとステンレス鋼 製のロッド及びブレードから成ります。そこで、これら の材料の溶融固化物を模擬的に作製し、どのような化合 物(相)が生成し、どのように混じり合うかを調べまし た。特に、溶融固化物中のホウ素の化学形と分散状態は、 取り出し作業時の臨界管理の観点からも重要な知見とな ります。

粉末状のB<sub>4</sub>C、SUS316L、Zr、ZrO<sub>2</sub>、(U<sub>0.5</sub>Zr<sub>0.5</sub>)O<sub>2</sub>を 種々の組合せで混合した成型体を、アルゴン雰囲気下で アーク溶解した後、固化物の切断面のXRD測定、光学顕 微鏡観察、SEM/EDXによる分析を行いました。さらに、 生成した代表的な各相について、取り出し工具選定で重 要な指標の一つとなる硬さをマイクロビッカース硬度計 で測定しました。

作製した試料の例として、B4C/SUS/Zr/(U,Zr)O2を重量 比 5/45/10/40 で混合した溶融固化試料の観察結果を 以下に説明します。図2a)に溶融固化前後の外観を示す ように、ペレット形状に成型した混合物は溶融固化に伴 いボタン形状になります。図2b)に示す切断面の全体像 から、(U,Zr)O2酸化物セラミックス領域と合金領域が固 化時に分離しやすいことがわかりました。これは、両者 の密度差の他に、固化温度の差が大きいことが影響して いると推測されます。

図 2c) は合金領域の拡大像で、棒状あるいは針状に析 出しているのは六方晶のZrB2結晶です。ホウ化物として は、他にFe<sub>2</sub>B型正方晶の(Fe,Cr)<sub>2</sub>Bも生成しています。合 金相には、溶融Zrによって還元されたウランも含まれ、 種々の組成のFe-Cr-Ni-Zr-U合金が生成しています。B4C 由来の炭素は、合金とホウ化物中にそれぞれ低濃度で含 まれていますが、金属Zrを豊富に含む系では、微細なZrC 粒子が合金相中に析出することもわかりました。

図 2d) は合金領域と酸化物領域境界の拡大像で、溶融 過程を経た(U,Zr)O2は、急冷に伴うクラックが見られる ものの、密な組織を有しています。ウランの一部が合金 相へ溶出したことにより、酸化物中のウラン含有率は溶 融前より10%程度減少しています。ビッカース硬さの測 定値は、(U.Zr)O2に比べてホウ化物が顕著に高いことが わかり、ホウ化物が分散析出していることで難削性が予 想されます。

以上の試験結果は、不活性雰囲気下で急冷に近い作製 条件ですが、酸化物相から合金相へのウランの溶出やホ ウ化物の分散析出等、重要な知見が得られました。今後 さらに、各種雰囲気下で模擬溶融固化物の焼鈍試験を行 い、酸素分圧や冷却速度の違いによる生成相や分散状態 への影響を調べる予定です。

《参考文献》

Takano, M. et al., High temperature reaction between sea salt deposit and (U.Zr)O<sub>2</sub> simulated corium debris, Journal of Nuclear Materials, vol.443, 2013, 32-39.

# 2-4 燃料デブリとはどのようなものかを理解する(4)

## ―燃料デブリの内部状態の推定―

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 加藤正人 廣岡 瞬

No.	組成1	相	密度 g/cm <sup>3</sup>	融点 <sup>2)</sup> Co	熱伝導率 <sup>3)</sup> W/mK	熱膨張率 <sup>3)</sup> %
A1	$(U_{0.75} Zr_{0.243} M_{0.007})O_{2.00}$	fcc	9.57	2622	1.753	0.849
A2-1	$(U_{0.50} Zr_{0.49} M_{0.01})O_{2.00}$	fcc+tet.	8.27	2509	2.669	0.580
A2-2	$(U_{0.50} Zr_{0.49} M_{0.01})O_{2.01}$	fcc+fcc+tet.	8.26	2519	2.222	-
A2-3	$(U_{0.50} Zr_{0.49} M_{0.01})O_{2.04}$	fcc+tet.	8.31	2495	2.927	-
A3	$(U_{0.25} \operatorname{Zr}_{0.735} M_{0.015})O_{2.00}$	fcc+tet.	7.49	2540	3.388	0.372
B1	(U <sub>0.72</sub> Pu <sub>0.03</sub> Zr <sub>0.25</sub> )O <sub>2.00</sub>	fcc	9.51	2659	*	*
B2	(U_0.48 Pu_0.02 Zr_0.50)O_2.00	fcc+fcc	8.45	2603	*	*
B3	(U <sub>0.24</sub> Pu <sub>0.01</sub> Zr <sub>0.75</sub> )O <sub>2.00</sub>	tet.	7.28	2604	*	*
C1	(U0.69 Pu0.06 Zr0.25)O2.00	fcc	9.26	2739	*	*
C2	(U <sub>0.46</sub> Pu <sub>0.04</sub> Zr <sub>0.50</sub> )O <sub>2.00</sub>	tet.	8.58	2607	*	*
C3	$(U_{0.23} Pu_{0.02} Zr_{0.75})O_{2.00}$	tet.	7.27	2605	*	*

#### 表1 模擬デブリの基礎特性

様々な組成の模擬デブリについて、相や密度、融点、熱伝導率、熱膨張率を評価しました。

1) M:Zry-2 の合金元素、2)固相線温度、3) 1000 ℃ の測定データ、\*:測定中のデータ、::未測定

原子炉内から燃料デブリを取り出す技術を開発するた めには、燃料デブリへのアクセス方法、切断工具、臨界 管理、計量技術、一時保管方法、及び処理処分方法など の評価・検討を実施することが不可欠です。そのために は、炉内の状況把握、燃料デブリの基礎特性評価、及び 燃料デブリ内部の状態の推定を行うことが重要となりま す。本技術開発では、燃料デブリを模擬した試料を調製 し、様々な基礎データの測定、データベース化を行いま す。さらに、得られた基礎データを基に、燃料デブリ内 部の状態を予測する技術を開発することを目標としてい ます。

#### (1) 模擬試料の調製

表1に試料のリストと基礎データを示します。Zr含有 率、Pu含有率及びO/M比をパラメータとして試料を調 製しました。試料 No.は、A シリーズがウラン系のデブ リ、B及びCシリーズの試料は、それぞれ4%Pu及び 8%Puを含有したMOXを基に調製した模擬デブリです。 各試料は、混合した原料粉をペレットに成型後、焼結・ O/M調整を行い、タングステンカプセル中に真空封入し ました。さらに、高周波炉を用いて、融点以上の温度ま で加熱後、冷却した。溶融した試料を取り出し、基礎デ ータの測定を実施しました。

#### (2) 基礎特性評価

基礎特性としては、相状態の評価、密度、融点、熱伝 導率、熱膨張率について測定を進めました。さらに、比 熱、ビッカース硬度、弾性定数、破壊靱性値、燃料デブ リ内の偏析・移行挙動などの測定・評価を進める計画で す。

ZrO2は、約1100℃と約2200℃に2つの同素変態点を

有しており、低温側から単斜晶(mon.)、正方晶(tet.)、 立方晶(fcc)と変態することが知られています。これら の相のうち、正方晶へ変態すると、約6%の体積減少を起 こすため、相状態を評価することは、基礎特性を評価す る上で重要です。X線回折測定から得られた相状態では、 これらの相変態を反映した相が得られました。Zr濃度が 約25%の試料では、立方晶がほぼ単相ですが、50%を超 えると正方晶が観察されます。また、Puが入ることによ り、単相になりやすい傾向が観察されます。

密度測定では、Zr濃度の増加により小さくなることが 観察されます。また、Pu濃度の影響は、わずかに低下す ることが観察されますが、その変化は小さいです。O/M の上昇では、密度が大きくなる傾向でした。

融点の測定結果では、Zr濃度が 50%程度で最も低くなり、Puの増加は、融点を上昇させることが観察されました。これらの結果から、模擬デブリの最も低い融点は、約 2500℃と推定され、最も高い融点は、UO2であり、MOXのデブリに比べUO2のデブリは、融点が低いことが分かりました。

熱伝導率及び熱膨張率の測定は、ウラン系のデブリに ついてデータを取得したところです。熱伝導率は、 1.5·3.5W/mKの範囲であり、組成依存性は明確に観察さ れませんでした。相変態によるマイクロクラック発生が 懸念され、そのために低い熱伝導率であったと考えられ ます。熱膨張率の測定データは、Zr 濃度が高いほど膨張 量が小さいです。これは、Zr 濃度が高いほど正方晶の割 合が増加するため、相変態に起因していると考えられま す。

#### (3) 状態解析

状態解析技術としては、燃料デブリ内の温度プロファ


### 図 1 燃料デブリ内部の温度プロファイルと密度変化

直径 1mの円柱状の燃料デブリを仮定して、取得した基礎データを基に内部の温度と密度変化を評価しました。

イル、密度変化、溶融プールの形成・消滅、偏析・移行 挙動及び機械特性分布を評価することが目標です。これ らの評価項目は、事故からの経過時間に応じた燃料デブ リの温度、空隙率、元素分布、機械特性など基礎特性の 分布を予測することができ、燃料デブリの取出しに向け て、切断工具の選定、切断方法の検討、臨界評価、計量 管理方法などを検討するための基礎データとなります。

状態解析技術の一次評価として、図1a)に示すように 燃料デブリの形状が無限円柱と仮定して評価を行いまし た。無限円柱を仮定すると、燃料デブリ内の温度分布は ①式で得ることができます。

$$T_2 - T_1 = Q(r_2^2 - r_1^2)/4\lambda$$
 (1)

T<sub>1</sub>:外表面の温度[K] T<sub>2</sub>:r<sub>2</sub>の位置の温度[K] r<sub>1</sub>:T<sub>1</sub>の位置[m] r<sub>2</sub>:求めたい温度の位置[m] Q:発熱密度[W/m<sup>3</sup>] λ:熱伝導率[W/mK]

燃料の発熱密度は、ORIGEN による燃焼、崩壊計算の 結果によって得ることができるため、デブリの組成と密 度を設定すれば、燃料デブリの発熱密度 Q を得ることが できます。熱伝導率 $\lambda$ の測定結果と合わせると、①式を 用いることによって燃料デブリ内部の温度プロファイル を得られます。図 1 b)は、円柱を仮定した場合の中心部 の温度変化を示しました。全 FP 元素を考慮した場合の 温度を $\Delta$ で、揮発性の FP の発熱を除いた場合の温度変 化を〇で示した。事故後、3 年経過で中心部は 350-480℃ です。

燃料デブリの温度プロファイルを得ることができれば、 熱膨張率のデータと合わせると密度変化を評価可能とな り、空隙率を評価することができます。空隙率は、クラ ックの発生やポアの成長により増加するため、臨界評価 を行う上で重要なデータです。図 1c)に中心部の密度変化 を示します。密度は、溶融状態の密度を 100%TD として、 温度低下による収縮率から得ました。密度変化から燃料 デブリの空隙率は、5 年経過で 7%程度に達すると見積も られます。

さらに、融点のデータから、溶融プールの大きさを評価すると、燃料デブリの円柱が1.5 mの場合、溶融プールは1年にわたり存在することになります。今後、溶融プール内に存在するSUS成分やPu、FPなどの元素が、溶融プールの消滅過程でどのように偏析するかを調べ、燃料デブリ内部の化学的な安定性の評価につなげます。また、機械物性値の取得データと合わせて機械物性の分布の評価を行います。

### (4) まとめ

ウラン燃料及び MOX 燃料から燃料デブリを模擬して 調製された試料について、融点、熱伝導率、密度などの 基礎データを取得し、データベース化を進めました。こ れら取得した基礎データを基に燃料デブリ内部の状態を 評価するためのモデルを検討し、温度分布、密度分布、 溶融プールの形成について、経時変化を評価することを 可能としました。現在のところ、内部状態評価は、無限 円柱モデルで実施していますが、今後、球体モデルで実 験データを検証しながら、実際の燃料デブリの予測形状 で評価ができるように、解析技術の開発を目指します。 また、本研究を通して得られる基礎データは、安全研究 や燃料デブリの熱力学計算を行うための基礎データとし ても反映していきます。

《参考文献》	•	T. Uchida, H. Sugata, K. Shibata, D. Sato, M. Kato and K. Morimoto, Melting temperature of ZrO <sub>2</sub> -MOX
		system , Global 2013, Salt Lake City, US, Sept. 29-Oct. 3, 2013
	•	S. Hirooka, M. Kato, K. Morimoto, A. Komeno, T. Uchida, M.Akashi, Effect of oxygen- to-metal ratio on
		properties of corium prepared from UO <sub>2</sub> and Zircaloy-2, J. Nucl. Mater.437(2013)130-134
	•	M. Kato, T. Uchida, S. Hirooka, M. Akashi, A. Komeno, K. Morimoto, "Melting Temperatures and Thermal
		Conductivities of Corium Prepared from UO2 and Zircaloy-2", Mater. Soc. Symp. Proc. Vol.1444(2012)91-96
	•	S. Hirooka, M.Akashi, T. Uchida, K.Morimoto, M. Kato, "Thermal expansion of corium prepared from UO2
		and Zircaloy-2", Mater. Soc. Symp. Proc. Vol.1444(2012)97-101

# 2-5 原子炉から燃料デブリを取り出す ープラズマアーク、AWJ、レーザー、プラズマジェット切断技術の開発-

大洗研究開発センター 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、佐野 一哉、上田 多生豊、村松 壽晴、手塚 将志、中村 保之





b)気中及び水中の切断性能





a)切断試験装置

### 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のトーチと切断試験に使用する試験体であり、図は気中及び水中での出力電流と切断板厚の関係を示しています。

炉心溶融に至ったと推定されている 1F では、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。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ます。そのため、 原子炉圧力容器のような厚さが 150mm 以上の鋼材の切断 が可能なこと、燃料デブリのような靱性が低く、高硬度 の材質の切断や破砕が可能なこと、原子炉の上部から取 り出そうとした場合、高い遠隔操作性が求められます。 原子力機構では、試験研究の使命を終えた原子炉施設等 の廃止措置を進めており、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。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の燃料デブリと炉内構造物の取出に必要な研究開発を 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、国のプロジェクトに提 案する計画です。

### (1) プラズマアーク切断技術の開発

プラズマアーク切断技術は、切断対象金属とプラズマ トーチの電極との間に放電を発生させ、ガスを高温のプ ラズマ状態にして切断物を溶融して切断する技術であり、 炭素鋼やステンレス鋼に適用でき、気中のみならず水中 においても使用可能な切断技術です。これまでに、水中 において電流 200A の出力でステンレス鋼を板厚 50mm ま で切断可能であること、水中で先端部と切断対象物の距 離(スタンドオフ)を 10mm まで離してもステンレス鋼の 切断が可能であること等を確認しています。

1Fの溶融再凝固した炉内溶融金属の取出しに向けて、 2012年度は、電流 600Aの出力のプラズマ切断装置の切断

a)切断後の試験体 図2

b)スタンドオフと切断深さの関係 図2 AWJ による切断試験

## 写真はAWJで切断した試験体であり、図は気中及び水中でのポンプの吐出圧力、スタンドオフと切断深さの関係を示しています。

能力を把握するために、IFの炉内構造物で主に使用され ているステンレス鋼(SUS304)及び比較のために汎用炭 素鋼(S45C)の2種類の一般鋼材に対する切断試験を行 い、切断雰囲気(気中、水中)、プラズマガス流量、スタ ンドオフ等の試験条件が切断能力に及ぼす影響等の基礎 的な切断データを取得しました。

切断雰囲気の影響に関しては、気中ではステンレス鋼 を板厚 220mm まで切断できましたが、水中での切断板厚 は半分以下の100mm まで低下することを確認しました(図 1)。この要因は、水中ではプラズマガス等の放出が水の 抵抗により阻害されることに加え、プラズマによる入熱 が水により放熱されてしまうこと等であると推察されま す。

今後は、試験体への入熱付与や切断方向等を加味した 切断条件下で切断能力を確認するとともに、その確認結 果を踏まえ、炉内構造物を想定した鋼材等が溶融再凝固 した試験体や圧力容器に用いられている低合金鋼を用い て切断データを取得し、切断性能の確認を行うことを計 画しています。

### (2) アブレイシブウォータージェット切断技術の開発

AWJ は、高圧水に研掃材を混合させ、対象物に噴射して 切断する技術であり、鋼材のみならず樹脂やコンクリー ト等の切断に適用でき、水中においても使用可能な切断 技術です。また、スタンドオフに対する自由度が高く、 切断面が不定形な対象物にも適用が可能です。これまで に、内径 φ 95mm の圧力管に挿入可能な小型ヘッドの開発 や吐出圧力 200MPa ポンプを用いて水中で板厚 150mm 以上 のステンレス鋼を切断可能なこと等を確認しています。

1F の燃料デブリの取出しに向けて、2012 年度は、AWJ の切断性能を把握するために、ポンプ吐出圧力やスタン ドオフ等の切断条件が切断能力に及ぼす影響を確認しま した。

試験において、吐出圧力 370MPa でステンレス鋼を気中





a)レーザースキャニング b)レーザー切断・破砕 図3 レーザーによる切断・破砕試験 写真左は不規則な形状で金属とセラミックスを混合した試 験体の形状をスキャンニングしている状況です。写真右は レーザー照射により溶断・破砕した試験体です。

において約270mm、水中においては約220mm まで切断でき ることを確認しました。また、スタンドオフの増加によ る切断能力の低下は、気中よりも水中の方が大きく、ス タンドオフ10mm の場合と比較し、50mm で1/2 程度、100mm で1/4 以下に低下しました(図2)。これは、スタンドオ フの長さに伴う噴射水の拡散及び水の抵抗による切断能 力低下が一因であり、ノズルロ径を変更することにより 抵抗を低減し、切断能力を向上できると考えます。

今後は更に切断能力を向上させるためにノズルロ径変 更、吐出圧力変動等による影響確認試験を行い、これら の試験結果で得られた条件を基に炉内構造物を想定した 鋼材等が溶融再凝固した試験体や圧力容器に用いられて いる低合金鋼、燃料デブリを想定したセラミックス試験 体を用いた切断試験を実施し、切断性能の確認を行うこ とを計画しています。

### (3) レーザー切断技術の開発

レーザー切断は、直径 1mm 程度に集光したレーザー光 を熱源とするため、局所加工性に優れ、発生する二次廃 棄物量が少なく、またファイバー伝送が可能であること から、遠隔操作性にも優れています。更に、レーザー光 照射条件の変更により、靭性の高い金属から、燃料デブ リのような靭性の低いセラミックスまでを、切断・破砕 することができます。

IF へ適用する燃料デブリ取出し技術開発の一環として、 切断・破砕対象物が溶融再凝固によって不規則形状であ り、また金属とセラミックスの混合体であることを前提 に基礎試験を実施しています。試験は、不規則形状を持 つ炭素鋼表面にアルミナペレットをセラミックスボンド により接着した試験体に対し、レーザースキャナにより 表面形状(凹凸)を認識した後、ロボット動作とレーザ 一照射動作とを連動させ、炭素鋼に対してはレーザー光 連続照射による切断を、セラミックスに対してはレーザー パルス照射による破砕を表面形状をトレースしながら 行うものです。この結果、不規則形状で且つ金属とセラ ミックスの混合体を的確に切断・破砕できることを確認 しており、この技術を1Fへ適用できる見通しを得ました (図 3)。

今後は、レーザー切断・破砕特性に影響を与える因子





a)切断試験の状況 b)出力と切断板厚との関係 図4 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 電流と切断板厚の関係を示しています。

を定量化することにより、取出し対象物の条件に応じて 切断・破砕性能を常に適切な状態に維持することが可能 な適応制御システムとして取りまとめます。

### (4) プラズマジェット切断技術の開発

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砕できます。し かし、大洗で開発したプラズマジェット切断装置は、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 マアークや AWJ 切断同様、燃料デブリや炉内構造物を想 定した試験体の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 4)。

このように原子力機構では、1Fへの適用性を確認する ため、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、2014 年度までに切断試験や性能評価、 遠隔操作技術を組み合わせた総合的な燃料デブリ取出し システムの検討を進め、得られた成果を 2015 年度に廃炉 対策推進会議等に提案します。

 <sup>(</sup>参考文献)・ 手塚将志 他、福島第一原子力発電所炉内構造物解体を想定した熱的及び機械的切断技術による切断試験(1)(2)、 原子力学会「2013 年秋の大会」予稿集 P01、P02
 ・ 村松壽晴 他、レーザー光を用いた福島燃料デブリ取出し技術に関する研究開発(1)~(5)、原子力学会「2013 年

利松壽晴 他、レーサー元を用いた福島燃料テノリ取出し技術に関する研究開発(I)~(5)、原子刀字会 2013 年 秋の大会」予稿集 P14~P18

# 2-6 燃料デブリの再臨界を防ぐ

## –臨界管理の実現に向けた損傷・溶融燃料の現状理解—

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



図1 存在するであろう様々な性状の燃料デブリ 圧力容器・格納容器内には、事故進展に応じて様々な性状の 燃料デブリが生じたと考えられます。格納容器を水で満たす ときに、どの部分の燃料デブリも再臨界にならないように管 理する必要があります。

沸騰水型軽水炉の大規模な炉心溶融事故において、事 故進展、特に燃料集合体の損傷・溶融の結末は冷却水の 注入条件等によって様々であると考えられます。全体形 状を保った燃料集合体、部分的に損傷した燃料集合体、 破損した燃料集合体から分離・散乱し、完全な溶融を免 れた燃料ペレットや燃料棒等が残っているかもしれませ ん。溶融した燃料についても、固化する過程で粒状・微 粉化したもの、大きな塊のまま冷えたもの、さらに格納 容器に落下しコンクリートと反応(MCCI)したもの、 というように種々の性状のものが存在すると想像されま す(図1)。これらの損傷・溶融燃料を総称して燃料デブ リと呼びます。

圧力容器と格納容器に存在する燃料デブリを回収する には、放射線遮へいのため、格納容器全体を水で満たす ことが望ましいとされています。しかし、水は、核分裂 連鎖反応を仲立ちする中性子の減速材や反射材として働 き、核燃料物質を臨界に近づける作用があります。この ため、核分裂連鎖反応を防ぐ臨界管理が重要になります。

### (1) 1F 燃料デブリ臨界管理における課題

TMI-2 事故対応において、水中で燃料デブリを回収す る際には、水に中性子を吸収するホウ素を加えて作業を 行いました。<sup>235</sup>U 濃縮度が最大約3wt%の燃料をいかな る状態でも未臨界に保つため、必要なホウ素濃度は 4350 ppm と算出されました。いかなる状態でもとは、 切削加工に伴う燃料デブリ微粉の水中舞い上がりや、部 分的に形状が残った燃料集合体をマジックハンドで解体 する際の崩落なども含みます。さらに、不測の事態でホ ウ素濃度が低下することも想定して、実際のホウ素濃度 は約5000 ppm を保つように管理されました。<sup>[1]</sup>

表	1	燃料集合体の概要及び各号機の装荷状況
---	---	--------------------

燃料集合体 (新燃料)の概要 (OECD/NEA 燃焼計算ベンチマーク Phase III-C より)						
<sup>235</sup> U 濃縮度	ウラン量	<sup>235</sup> U 濃縮度	ウラン量			
(wt%)	(kgU)	(wt%)	(kgU)			
4.9	9.6	3. 4	19. 2			
4.4	76. 8	2. 1	9.6			
3.9	28. 8	3.4 Gd 入り	26. 9			

各号機の燃料集合体の燃焼状況 <sup>[2]</sup>					
1 <del>号機</del>		2 <del>号</del> 機		3号機	
燃焼度 (GWd/t)	集合体数	燃焼度 (GWd/t)	集合体数	燃焼度 (GWd/t)	集合体数
5. 2	64	3.3	116	4.5 MOX	32
15. 2	64	15. 8	116	4.7 UO <sub>2</sub>	116
24. 2	80	26. 0	120	15. 5	112
33. 3	68	35. 2	120	28. 5	140
37.5	64	40.6	76	36. 2	112
40. 2	60			40. 5	36

1F の各号機には約2~5 wt%の<sup>225</sup>U 濃縮度(新燃料)の燃料ペレットを組み合わせた燃料集合体が装荷されていました。3号機には MOX 燃料も用いられていました。集合体の数は、1号機が 400 体、2 及び3 号機が 548 体です。

福島第一原子力発電所(1F)の1~3号機についても 同様に考察する際、TMI-2の時代に比べて燃料設計が進 化し、最高235U濃縮度が約5wt%まで上昇していること に留意が必要です。1F に装荷されていた燃料集合体は STEP 3型と呼ばれるもので、新燃料集合体には表1に 示す種類・量の二酸化ウラン(UO2)が用いられていま す。可燃性中性子毒物ガドリニウムを含む燃料棒もあり、 通常の燃焼条件では、新燃料よりも約 12 GWd/t 燃焼し た燃料の方が臨界になりやすいという特徴があります。 事故当時の各号機には、約3~40 GWd/t の範囲で、 5~6 種類の燃焼度の燃料集合体が混在して装荷されて いました。22 溶融を経た燃料デブリの場合、複数の集合 体の溶融物が混ざり合って固化し、燃焼度が平均的な値 になっている可能性もあります。しかし、溶融を免れた 燃料デブリの場合は、混合は期待できず、部分的に燃焼 度が低く、残留 235U 濃縮度が高い UO2 が残っていること も想定しなければなりません。そのような場合の臨界評 価では、ウラン・水均質体系の最小臨界量が 36 kgU (235U 濃縮度 5 wt%) ないし 53 kgU (同 4 wt%)、UO<sub>2</sub>・水非 均質体系の最小臨界量が 28 kgU(同 5 wt%)ないし 67 kgU (同 3 wt%) というような基礎データ<sup>[3]</sup> が重要な 指標になります。

溶融を経た燃料デブリについては、制御棒も一緒に溶 融して、ホウ素と共存しているかが重要な因子になりま す。しかし、UO2のような酸化物と金属構造材、さらに 制御棒が一緒に溶融・固化する際には、酸化物と金属に 相分離することが知られています。しかも、ホウ素は金 属相に移るという知見があり、燃料デブリとホウ素の共 存は必ずしも期待できません(2-3 章参照)。さらに、こ のような混合溶融物がコンクリートと MCCI を起こした



図2 未臨界担保に必要な冷却水中ホウ素濃度の検討 中性子無限増倍率k<sub>∞</sub>を1とする冷却水中ホウ素濃度を計算 した結果を示します。k<sub>∞</sub>が1以上だと潜在的に臨界になる可 能性があります。確実に未臨界に保つためには、ここに示し た値よりさらに高いホウ素濃度が必要になると考えられま す。

場合は、酸化物相に多数の気泡が生じる可能性が示され ており、MCCI生成物が冠水すると気泡に水が浸入し得 ることから、特に注意が必要です。<sup>[4]</sup>

### (2) 臨界防止のための可溶性中性子毒物の使用

燃料デブリを対象とした臨界管理の手段は、高線量に 阻まれて近づくことが難しく、ごく限られています。<sup>235</sup>U 濃縮度が高々 5 wt% の燃料デブリは水が無ければ臨界 になり得ませんが、放射線遮へいの観点で冠水が必要と されています。このため、中性子を強く吸収する材料、 いわゆる中性子毒物を投入することが経験のある唯一の 未臨界担保の手段です。TMI-2 の例に見られるように、 燃料デブリの至るところに行きわたらせるために、ホウ 素を溶かした水を用いることが有効です。<sup>[1]</sup>1Fにこの方 法を適用すると、概ね<sup>235</sup>U 濃縮度に比例したホウ素濃度 が必要になり、約 8000 ppm 以上になると予想されます (図 2)。今後、より詳細な解析を進め、未臨界を担保す るために必要なホウ素濃度を確定させる計画です。

### (3) 中性子計数による未臨界確認手法

ただし、1Fの現状は、格納容器で漏水が続いています。 注いだ冷却水は、タービン建屋を経由して回収され、流 入した地下水と併せて各号機の水を一か所にまとめて浄 化され、このうち一部が圧力容器・格納容器に戻されて います。この流れは、中性子毒物投入の観点では一方通 行であり、圧力容器・格納容器の冷却水中のホウ素濃度 を一定に保つためには、常にホウ素を加え続けなければ なりません。このため、ホウ素は常用せず、臨界が確認



### 図 3 燃料デブリ直近における中性子計測のための ガンマ線遮蔽最適化の検討(例)

局所的に臨界に近い箇所を探索することを想定し、燃料デブ リ表面から 50 cm の水中に検出器を置き、半円形遮蔽体(鉛 30 cm)を設けた場合の中性子及びガンマ線の減衰を解析しま した(PHITS/JENDL 3.3)。ガンマ線は5 ケタ以上減衰しますが、 中性子は2 ケタ程度の減衰に留まります。

されたときにのみ緊急に投入することとなっています。<sup>[4]</sup> ホウ素を常用できないまま格納容器の水張りや燃料デ ブリ回収作業に着手することも想定すると、再臨界を防 ぐ別の方法が必要になります。例えば、中性子を測定し 未臨界であることを確認しつつ作業し、臨界に近づく兆 候が見られたら作業を中止する方法が考えられます。最 初に述べたように様々な性状の燃料デブリが存在し、再 臨界は、条件が揃えば、局所的に起こり得ます。このた め、臨界に近い箇所を探索するように、燃料デブリのす ぐ近くに検出器を配置し測定することが求められます。

この場合、γ線が極めて強い環境で高感度の中性子計 数を実現することが課題になります。γ線遮蔽と中性子 計数感度の最適化が必要であり、燃料デブリ近傍におけ るγ線及び中性子の線量、及び各種遮蔽体の効果を検討 しています(図3)。

### (4) まとめ

1F では燃料デブリを確実に未臨界に保って回収作業 を進めることが求められています。しかし、燃料デブリ の性状を確認すること自体が困難であり、また、事故進 展が異なる各号機で様々な性状の燃料デブリに遭遇する と予想されます。たまたま核分裂連鎖反応が起きやすい 性状となった燃料デブリをも含めて確実に未臨界を保つ ために、冷却水に十分な濃度のホウ素を添加する方法、 及び中性子計数により未臨界を確認しながら作業を進め る方法の両面から研究開発にアプローチしており、引き 続き、検討を進める予定です。

《参考文献》	•	K.Tonoike, et al., "Major Safety and Operational Concerns for Fuel Debris Criticality Control," Proc. of
		GLOBAL 2013, Salt Lake City, Utah, USA (2013).
《引用文献》	[1]	W. R. Stratton, Review of the State of Criticality of the Three Mile Island Unit 2 Core and Reactor Vessel,
		DOE/NCT-01, Lawrence Livermore National Laboratory (1987).
	[2]	西原健司、他、福島第一原子力発電所の燃料組成評価、 JAEA-Data/Code 2012-018、JAEA (2012).
	[3]	奥野浩、他、臨界安全ハンドブック・データ集第2版、JAEA-Data/Code 2009-010、JAEA (2009)
	[4]	K. Izawa, et al., "Infinite Multiplication Factor of Low-Enriched UO2-Concrete System," Journal of Nuclear
		Science and Technology, <b>49</b> , 1043 (2012).
	[5]	福島第一原子力発電所特定原子力施設に係る実施計画、東京電力 (2013)

# 2-7 燃料デブリ中の核物質計量管理方法の構築

## ―随伴FPガンマ線測定法と中性子共鳴濃度分析法による核物質量測定技術の開発―

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富川裕文、小林 直樹



図 1 パッシブ アスペクトロメトリの適用性検討結果例

a) 測定フロー b) 減衰特性のシミュレーション結果 c) 測定体系のモデリング例 d) 1F2 号機の燃焼度推定指標のシミュレーション結果 e) 1F2 号機の FP/核燃料比の燃焼度依存性

2020 年頃に開始される燃料デブリの取り出しに際しては、核物質の計量管理及び保障措置のため、燃料デブリ中の U や Pu を定量的に測定する非破壊測定技術が必要となります。このため、以下の技術開発を行っています。

### (1) 随伴 FP ガンマ線測定による核物質量測定技術

燃料デブリ中の核物質の測定技術開発として、過酷事 故においても核物質とともに随伴する低揮発性核分裂生 成物 (FP) のγ線を測定することによって核物質を定量 する手法の適用性評価を行っています。

TMI-2 事故の経験から、原子炉から取り出した燃料デ ブリは収納缶に充填することが予想されています。本手 法を適用する場合、図 1a)に示すような測定フローが考え られます。すなわち、収納缶外側よりッ線スペクトル測 定を行い、スペクトル解析により得られた FP のッ線ピ ークから低揮発性 FP の重量及び燃焼度を推定し、これ らのデータ及びインベントリ計算により予め求めておい た FP と核物質の重量比(<sup>154</sup>Eu/Pu等)から核物質重量 を導き出します。ここでは、このフローに沿い、私たち が取り組んだ技術開発について、その概要を紹介します。

低揮発性 FP の重量測定では、燃料デブリそのものに よる γ 線遮へい効果を考慮することが必要になります。 そこで、遮へい効果の基礎データを得るための計算シミ ュレーションを行ないました。図 1b)は球状の燃料デブリ モデルを使用し、均質及び非均質、燃料デブリの大きさ などをパラメータとした γ 線の漏えい率を解析した結果 について、<sup>154</sup>Euの2つのγ線ピーク強度比で整理したも のを示しています。漏えい率とγ線ピーク強度比との間 に、径の大きい燃料デブリについて、均質・非均質それ ぞれに特徴的な相関があることが確認できました。今後、 データを更に拡充し、収納缶内の燃料デブリ性状に応じ た適切な減衰補正を行うことにより、測定技術の信頼性 向上を目指します。さらに、測定系全体についてもγ線 測定に影響を与える因子を考慮する必要があるため、図 1c)のような収納缶や測定装置をモデル化した解析も検討 しています。

燃焼度の推定については、2 種類の FP の重量比がその 指標として適用できるかどうか、燃焼計算により検討し ました。図 1d)に示す通り、FP の生成重量比(<sup>154</sup>Eu / <sup>144</sup>Ce 及び <sup>134</sup>Cs / <sup>137</sup>Cs)と燃焼度との間には、一定の相関があ ることが確認できました。

低揮発性 FP と燃料の重量比については、1F1~3の燃料組成や運転履歴等に基づいたインベントリ計算を行い、その燃焼度依存性の検討を行ないました。例えば<sup>154</sup>Euと<sup>239</sup>Puの生成比は図 1e)に示すように、照射位置、水のボイド率によらず一定の燃焼度依存性があることが確認できました。ただし、この計算は<sup>154</sup>Euが燃料中に保持される事を前提としています。TMI-2事故では Ce や Euは、ほとんどが溶融燃料中に保持されていたと報告されていますが、1F 事故時の炉内環境においても同様に保持されるかどうかについて確認が必要なため、その調査の可能性、方法等を検討しています。



図2 井戸型シンチレーターの概念図

円筒型LaBr3 シンチレーター (φ127×127 cm) に、φ2cmの 穴が中央に開いている円筒型 (φ127×H cm)を組み合わせて います。

### (2) 中性子共鳴濃度分析法による核物質量測定技術

燃料デブリ中の U や Pu の全同位体を高い精度で定量 的に直接測定する技術は、過去の 2 つの過酷事故 (TMI-2 事故及びチェルノブイリ事故)後も開発されていないた め、世界的に未開発の技術分野です。

私たちは、急速な冷却などで破砕されて粒子状になっ た燃料デブリ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(Neutron Resonance Densitometry, NRD)を提案しています。NRD は、中性 子共鳴透過分析法(Neutron Resonance Transmission Analysis, NRTA)と中性子共鳴捕獲ガンマ線分析法

(Neutron Resonance Capture Analysis, NRCA) もし くは即発ガンマ線分析法 (Prompt Gamma ray Analysis, 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 (Time of Flight, TOF) 測定を行う技術です。

Pu や U 同位体の中性子反応断面積は、1 から 30 eV のエネルギー範囲に特徴的な共鳴があります。NRTA の 測定では、このエネルギー範囲における中性子の透過ス ペクトルのピークから、同位体の同定とその定量を行い ます。

NRCA/PGA では、ガンマ線エネルギーを高分解能で測定し、NRTA で同定することができない核種の同定・定量を行います。得られた情報をNRTAの測定・解析に用いて、高精度に核物質の量を決定します。特に、ボロン(<sup>10</sup>B)は、中性子の吸収剤などとして原子炉で使用されている核種のため、燃料デブリにも多く含まれると予測され、NRTA の解析において<sup>10</sup>B の存在を確認しておく必要があります。その中性子吸収によるガンマ線は、478 keV です。



図3 井戸型検シンチレーターで測定したガンマ線スペクトル 井戸型検出器で Cs-137 の崩壊ガンマ線を測定した際のスペク トルをモンテカルロシミュレーションで計算した結果。穴あ きの円筒を長くするほど、コンプトン端を小さくできること が確認できました。

種(主に<sup>137</sup>Cs)からのガンマ線がバックグラウンドとな ります。<sup>137</sup>Csの崩壊ガンマ線(661 keV)のコンプトン 端は、ちょうど<sup>10</sup>Bからのガンマ線測定を妨害するため、 この妨害を避けるための井戸型検出器の開発を進めてい ます。図2にガンマ線検出装置の概念を、図3にモンテ カルロシミュレーションで計算した結果を示します。こ のように、深い井戸型検出器を用いることで、<sup>137</sup>Csから のガンマ線のコンプトンピークを小さくできるため、こ の検出器を用いれば、<sup>10</sup>Bへの感度を上げることができる ことが確認されました。

NRD の基礎技術を確立するために、私たちは、24 年 度から欧州の研究機関(EC-JRC-IRMM)との共同研究 を進めています。IRMMには、GELINAと呼ばれる中 性子 TOF 実験施設があり、2012 年度は、この施設にお いて、安定核試料を用いたサンプル性状が測定精度へ与 える影響に関する実験を行いました。この共同研究では、 2014 年度末頃に、NRD のデモンストレーションを実施 する予定です。

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 り実施しています。

NRCA/PGA 測定では、溶融燃料中に含まれる放射性核

《参考文献》	•	Sagara, H., Tomikawa, H. et al., "Feasibility of passive gamma spectrometry of molten core material from
		Fukushima Daiichi Nuclear Power Station unit 1,2, and 3 cores for special nuclear material accountancy -
		low-volatile FP and special nuclear material inventory analysis and fundamental characteristics of
		gamma rays from fuel debris," Journal of Nuclear Science and Technology, 2014.
	•	Tsuchiya, H. et al., A Monte Carlo simulation to study a design of a gamma-ray detector for neutron

• Tsuchiya, H. et al., A Monte Carlo simulation to study a design of a gamma-ray detector for neutron resonance densitometry, to be published in NIM A.

Harada, H. et al., Recent progress in research and development on the neutron resonance densitometry (NRD) for particle-like debris of melted fuel, The proceedings of the INMM 54th Annual Meeting, (July 14-18, 2013, Palm Desert, Cl. USA).

# 2-8 燃料デブリを取出した後どうすべきか(1)

## ―燃料デブリ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,小林 丙午



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(冷温停止状態の達成)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、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ー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。これまでに、シナリオの選択肢を選出し、各選択肢の特徴を整理するとともに、選出した選択肢の技術課題を抽出、整理しました。

### (1) シナリオを構成する工程の選出

燃料デブリ取出し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。

図1では、燃料デブリ取出しから最終的な状態までの 一連の流れを、「取出し」「収納」「輸送」「中間処理」「輸 送」「短期貯蔵」「輸送」「処置」「輸送」「最終処分」に区 分し、これらの各段階を「工程」としました。

最終処分を除く各工程においては機器(例:燃料キャ ニスタ、フィルタキャニスタ etc.)、概念(例:既存容器、 新規容器)、方式(例:湿式貯蔵、乾式貯蔵)等の選択肢 が考えられ、これらを「工程の選択肢」としました。

各工程における選択肢を組み合せ、取出しから最終処 分に至る流れを示したものを「シナリオ」としました。 このうち「取出し」から「短期貯蔵」までに限定したシ ナリオを「短期貯蔵シナリオ」、処置から最終処分までに 限定したシナリオを「処置シナリオ」としました。燃料 デブリ収納缶(収納缶)への収納から短期貯蔵に至るま での工程はTMI-2を参考としています。

### (2) 各工程における選択肢の選出

全体工程を構成する各工程について、想定される選択 肢の選出を行いました。以下に主要工程の選択肢につい て述べます。

<u>短期貯蔵工程</u>への収納缶の受入に当たっては、中間処理 施設を経由する場合と直接受け入れる場合を想定します。 後者の場合、短期貯蔵施設内に中間処理機能を有する設 備を保有する必要があります。

貯蔵施設では、収納缶を湿式又は乾式で貯蔵します。 TMI-2 では、HEPA フィルタを介したベントを有する乾 式キャスク保管方式を採用していますが、現状、国内に おける乾式貯蔵では、収納缶の長期密封機能が要求され るので、選択肢として、収納缶の長期密封機能が担保で きる場合とそうでない場合を想定します。

収納缶の長期の密封機能が担保できる場合、貯蔵方式 としては、現行の使用済燃料の中間貯蔵技術を基に、湿 式貯蔵(水プール貯蔵)、乾式貯蔵(金属キャスク貯蔵、 コンクリートモジュール貯蔵、ボールト貯蔵等)を選択 肢として想定します。湿式貯蔵の場合、既存設備(運用 補助共用施設内共用プール)の利用も選択肢の一つとな ります。

収納缶の長期の密封機能が担保できない場合、破損燃料、漏洩燃料の湿式貯蔵技術(プール貯蔵技術)と同等の貯蔵方式及びTMI-2と同様の収納缶内部発生ガスのベントを有する乾式キャスク貯蔵方式を選択肢として想定します。

<u>処置工程</u>は、最終処分に向けた安定な廃棄体を製造する ための前処理の位置付けとなります。燃料デブリ処置方 式の選択肢は以下の各方針に基づいて選出しています。

① 具体的な処置方策が決定されるまで貯蔵

### 表 1 燃料デブリ処置方式の比較

表中の赤文字はメリットを、青文字はデメリットを示します。

	長期貯蔵	直接処分	安定化処理	処理 湿式処理【通常溶解】	処理 湿式処理【新型溶解】	処理 乾式処理
定義	泉体的な処置方策が決 U/Puの回収は行わず、処 定されるまで貯蔵 スタに収納し直接処分		U/Puの回収は行わず、廃棄物として安 定化するための処理を行って最終処分	U/Puを回収し植	國力現行の処分体系の中で廃棄	要物を最終処分
ベース 技術	使用済燃料の 中間貯蔵技術	使用済燃料の 直接処分技術	高レベル廃棄物の 固化技術	湿式再処理技	術(PUREX法)	乾式再処理技術 (金属電解法)
	你主动的男子怎么	がまいが思ったけよいフォレムの生		極力既存の処分区	分に沿う廃棄物へ変換(管理し	やすい廃棄物形態)
・簡素な処置を優先 ・実績のあるTMIや短期 概要 貯蔵方式の中から適し た方式を選定し貯蔵 ・基本的に先送りと同じ		・間茶な处値と元結させることを優た - 最終処分サイトが決まるまで貯蔵 後に地層処分 ・回収時のデブリ形態のまま処分する 場合と処理を加える場合を想定	・間茶な処直を優先 ・廃棄物として安定化(廃棄体からの溶 出率の低下)するために処理(ガラス固化 相当を想定) ・二次廃棄物低減のため溶液化を行わず	技術的成立性のある簡素な 処理とすることを優先し容易 に回収が可能な核物質のみ 回収する方式	核物質の回収、廃棄物のた	放射能低減を優先する方式
廃棄 物量	-	最少	・大 ・二次廃棄物は処理より少 ・高レベル廃棄物量は増加	・二次廃棄物量は増 ・TRU廃棄物は最大 ・高レベル廃棄物量は最少	・二次廃棄物量は増 ・高レベル廃棄物量は通常溶 解より増、安定化処理より減	・二次廃棄物量は増 ・高レベル廃棄物量は湿式より増,安定化処理より減
総コスト	期間が数十年では最低	低(長期貯蔵に次いで)	高(処理と同等)	高(安定化処理と同等)	最高	高(通常溶解と同等)
有価物		回収量はゼロ		回収(有価物の価	面値«回収コスト)	回収はUのみ,且つ低除染
技術 課題	収納缶長期密封機能	・廃棄体の安定性 ・最終処分施設の設計・安全評価	<ul> <li>・安定化処理技術</li> <li>・廃棄体の安定性</li> <li>・最終処分施設の設計・安全評価</li> </ul>	・処理対象物(各種混合物)の ・新規廃棄体については安定性	比率に応じた処理技術(開発1 :確認, 最終処分施設の設計・3	項目 : 湿式 <乾式) 安全評価の見直し

- ② 簡素な処置を前提とし、U/Pu を回収せず、燃料 デブリをそのまま最終処分
- 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最終処分
- ④ U/Pu を回収し極力現行の処分体系の中で廃棄物 を最終処分

上記の各方針に対応して、現状、技術的成立性に関し 多くの課題を有するものもありますが、以下の選択肢を 検討対象として選定します。

### a. 長期貯蔵

方針①に対する選択肢です。具体的方式としては、前 述の短期貯蔵方式と同一の方式の内、乾式貯蔵(金属キ 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))を想定します。

### b. 直接処分

方針②に対する選択肢です。炉内から回収した燃料デ ブリを直接処分することを想定します。廃棄体化に際し て、炉内から回収時の形態のままの場合と例えば廃棄体 数の低減及び均一化を考慮し細かく粉砕する場合等を想 定します。

### c. 安定化処理

方針③に対する選択肢です。回収した燃料デブリを廃 棄物として最終処分するに当たり、何らかの安定化処理 を行って安定な廃棄体を製造し最終処分することを想定 します。

d. 処理

方針④に対する選択肢です。再処理技術等を用いて燃料デブリを処理し、U/Puを回収し極力現行の処分体系の中で廃棄物を最終処分することを想定します。処理技術として以下の方式が考えられます。

(a) 技術的成立性のある簡素な処理とすることを優先 し容易に回収が可能な核物質のみ回収する方式

(b) 核物質の回収、廃棄物の放射能低減を優先する方式 上記(a) に相当する選択肢として、通常溶解による湿式 処理を想定します。本選択肢では、燃料デブリの粉砕、 溶解を行う前処理技術や多量に発生すると予想される不 溶解成分の処理技術に技術課題が想定されます。 上記(b) に相当する選択肢として、新しい溶解技術による湿式処理と乾式処理を想定します。前者に対しては、 不溶解成分を削減する新しい溶解技術の開発が必要です。 後者に対しては従来進められてきた乾式再処理技術の燃 料デブリに対する適用性の検討が必要です。

<u>最終処分工程</u>では、搬送された廃棄体を受入検査施設に て検査を行った後、第一種特定放射性廃棄物(ガラス固 化体等)についてはオーバーパック等に収納、第二種特 定放射性廃棄物(TRU廃棄物)についてはパッケージ化 し地層処分を行います。他の廃棄体については、処分区 分に応じ浅地中処分、余裕深度処分を行います。

実績のない新たな廃棄体については、最終処分施設の 人工バリア設計を含む設計、及び最終処分施設の操業中、 閉鎖後の安全性評価の見直しが必要となります。

### (3) まとめ

燃料デブリ取出しから最終処分に至る全体工程につい て、全体プロセス概念を整理すると共に、全体プロセス を構成する各工程の選択肢(各種方式や技術選択肢)を 選出し、その特徴を整理しました。

また、処置シナリオについて代表例を素案として選出 し、得失を整理した結果(表1参照)、直接処分の廃棄物 発生量が最も少なく、経済性の面でも最も安価(長期貯 蔵を除く)になると予測されますが、新たな廃棄体概念 の導入が必要となるため多くの技術課題を有すると推定 されます。

既存技術を基に既存の処分体系に沿った処置を目指す 処理(湿式処理)においても、新たな技術課題として、 各種前処理技術(種々雑多な成分、形態の燃料デブリ粉 砕技術、高い不溶解成分濃度の溶液に対する溶解や清澄 技術等)の開発が必要であることが分かりました。

今後、これまでの R&D 成果を踏まえて、技術的成立 性の見通しの観点から、処置シナリオ案における各選択 肢(長期貯蔵、直接処分、安定化処理、処理)の技術的 課題を整理し、総合的な得失の比較評価を実施する予定 です。

《参考文献》 • N.Kaji, Current Status of Research and Development Program for Characterizing Fuel Debris at Fukushima Daiichi NPS by JAEA, Global 2013, Salt Lake City, US, Sept. 29-Oct. 3, 2013

# 2-9 燃料デブリを取出した後どうすべきか(2)

### ―燃料デブリ処置技術(湿式・乾式)―

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、小藤博英 核燃料サイクル工学研究所 福島技術開発試験部 石原美穂、比内 浩、仲吉彬、北脇慎一、鹿野祥晴、中村雅弘 一般財団法人電力中央研究所 原子力技術研究所 燃料サイクル領域 坂村義治、飯塚政利



図 1 燃料デブリへの適用を想定する湿式処理のフロー 燃料デブリを硝酸に溶かしてUおよびPuを除去することにより、既存の高 レベル廃棄物(ガラス固化体)と同等の組成の廃棄体とします。



図3 燃料デブリの溶解率の経時変化(Pu の有無による比較) 時間とともに溶解率(投入量に対して溶けた割合)は増加していきます。こ のときの傾きが溶けるスピードに、曲線の終点での値が溶けた量に対応 します。

燃料デブリは将来的に長期保管あるいは廃棄体化に向 けた処理等、何らかの処置が必要となります。燃料デブ リの物理化学形態や特性は評価中ですが、主成分である (U, Zr)O<sub>2</sub>の溶解性が課題となる可能性があります。今後 の廃止措置の状況に柔軟に対応するため、燃料デブリの 処置技術オプションは幅広く検討しておくべきであり、 従来の再処理実績がある湿式法や研究段階の乾式法の適 用性を検討しています。また、これらの検討結果につい ては、将来の燃料デブリ処置シナリオの評価に反映して いきます。

### (1) 湿式処理技術の適用性評価

湿式処理技術では、図1のように、燃料デブリを硝酸 に溶かして溶媒抽出によりUとPuを取り除き、使用済 燃料再処理に由来する既存のガラス固化体と同等の廃棄 体とすることを目指しています。本技術では、難溶とさ れる燃料デブリを如何に硝酸に溶かすかが最大の課題で す。この見通しを得るため、燃料デブリの硝酸中での溶 解挙動の解明を進めてきました。

昨年度までに、(U,Zr)O2の硝酸溶解試験を行い、Zrを 多く含むほど溶けにくくなること、また、溶けにくい成 分についても、UO2と新たに混合してUに富む固溶体と Zr/(U+Pu+Zr) = 0.25 Zr/(U+Pu+Zr) = 0.75



図 2 MOX 模擬デブリの外観 MOX 燃料(Pu 富化度 4%)の粉末とジルカロイ-2 の粉末を 混合・焼結し、粉砕した後の試料の外観です。



### 図 4 燃料デブリの溶解反応のモデル

### 燃料デブリの粒子表面において均一に溶解が進むことを 想定したモデルを用いることで、「溶けるスピード」に対す る解析的な評価が可能になります。

することで溶けやすくすることができることを見出しま した。一方、今回の1F1~3の事故においては、燃料中 のPuやFP、制御棒、炉内構造材など様々な材料が溶融し、 混ざり合っていると予想されます。特に、1F3にはPu 富化度(UとPuの全量に対するPu量の割合)が3~5% のMOX燃料が装荷されており、これが被覆管と溶融・混 合することで、少量のPuが溶け込んだ(U,Pu,Zr)O2を形 成したと考えられます。Puが混合することで硝酸に溶け にくくなることが懸念されます。そこで今回は、このPu の混合の影響に着目し、(U,Pu,Zr)O2の硝酸への溶解試験 を行い、溶解性に関する基礎データの拡充を図ることと しました。

MOX燃料の粉末とジルカロイ・2の粉末を混合・焼結す ることで、図 2 に示すような均質な(U,Pu,Zr)O<sub>2</sub>の試料 (Pu富化度4%)を製作し、これを硝酸溶液(酸濃度6 mol/L、温度80°C)に4時間溶解させ、溶けるスピード や量に関するデータを取得しました。その結果、図3に 示すように、(U,Pu,Zr)O<sub>2</sub>が溶けるスピードと量は、Pu を含まない(U,Zr)O<sub>2</sub>と比べても遜色ないものであること を確認しました。これにより、少なくとも1Fの燃料で想 定されるPu富化度の範囲では、Puは燃料デブリの溶解性 に対し悪影響を及ぼさないことが見出されました。





図6 電解還元・Cd 溶解後の XRD パターン

金属 U への還元は進行しているものの、Cd 溶解

後にも金属 U が残っているため、装置や試験操

(0.5U, 0.5Zr)O<sub>2</sub> Powder:

(0.15U, 0.85Zr)O<sub>2</sub> Powder:

溶解・凝固後の塩

-0-Zr(%)

-<u>→</u>Zr(%)

● U (%)

📥 U (%)

作を改良して処理効率の向上を目指しています。

### 図5 燃料デブリ処置に金属電解法を適用するための処理フロー案

模擬デブリの電解還元試験において、それ自体が還元困難な複合酸化物(Li<sub>2</sub>ZrO<sub>3</sub>)の 生成が判明したため、複合酸化物や未還元の酸化物が電解槽に移行しないように、還 元されたUやTRU等の金属のみを分離する前処理法を検討しています。



### 図8 塩素ガスによる模擬デブリの溶解率と溶解後の塩の外観

### 図7 酸化物電解法の処理フロー案

燃料デブリを塩素ガスにより塩素化して溶融塩に溶 2 種類の組成の模擬デブリ試料について、塩素ガス吹き込みによる溶解率の時間変化 解した後、電解処理を行うプロセスフロー案です。 を表しています。U の溶解が先行し、続いて Zr が溶解していく様子がわかりました。

試験により取得したデータは、図4のように溶解反応 をモデル化・解析することで整理され、燃料デブリの処 置シナリオの得失を評価していく際の技術的拠り所とし て活用される予定です。今後、このような検討に必要な データとして、炉内構造材(主にFe)の混入による影響 や、反応における物質収支について、実験的に把握して いきます。

### (2) 乾式処理技術の適用性評価

もう一つの燃料デブリの処置技術として、乾式再処理 技術の適用性評価を進めています。

乾式再処理としては、①金属電解法と②酸化物電解法 がありますが、いずれも高温の溶融塩に燃料を溶解させ て、電解等により核燃料物質を回収する手法です。燃料 デブリを乾式法によって処理するためには、溶融塩に溶 解させる前処理法が課題になると考えられることから、 試験により燃料デブリの溶解性の評価を行っています。

### ①金属電解法(電力中央研究所との共同研究)

本法で燃料デブリを処理するためには、まず金属に還 元させる必要があります。還元法としては、LiやCa等 の活性金属を使う手法や電気的に還元を行う電解還元法 があり、最近では電解還元法の研究開発が進み、技術の 成立性の見通しが得られています。

電解還元法の適用性を評価するため、ZrO2や(U, Zr)O2 固溶体の模擬デブリを用いた試験を行ったところ、還元 反応は進行するものの、副生成物として、それ自体の電 解還元が困難な複合酸化物であるLi2ZrO3の生成が不可 避であることが分かりました。このような酸化物が電解 槽へ混入すると、還元させたUを再びUO2に酸化させて 沈殿を生じ、電解精製処理を阻害することが懸念される ため、図5に示した様に還元された金属のみを液体Cdに 溶解させて、生成した複合酸化物や未還元の酸化物から 分離するプロセスフローを考案しました。この電解還元 -Cd溶解技術を(U, Pu, Zr)O2模擬デブリ試験により確認 したところ、図6に示した様に還元反応の効率やCdへの 溶解が課題であることが分かったため、試料の粉砕や撹 拌、Cdへの濡れ性の向上策を施した試験により反応性の 向上効果を検討しています。

### 2酸化物電解法

本法では燃料デブリの溶解に塩素化溶解法を用います (図7)。塩素化溶解法は反応性が極めて高いいロゲンガ スを直接試料に作用させるため、燃料デブリを完全に溶 解させる技術として期待できます。しかしながら、燃料 デブリの主成分と考えられる(U, Zr)O2固溶体を溶解させ た例は無く、またZr含有率が高い固溶体の溶解が困難で あることが予測されるため、2種類の組成の模擬デブリ試 料を用いた塩素化溶解試験により、組成による溶解性を 評価しました。

図8に示した様に、固溶体中のUは溶解しやすく、続いてZrが溶解しはじめることが分かりました。

今後も乾式処理の適用性を検討するための模擬デブリ を用いた試験を行い、前処理の効率向上を確認していき ます。

 <sup>(</sup>参考文献)
 ・ 石原美穂ほか、シビアアクシデント後における燃料デブリの湿式再処理に関する検討;(3) MOX-Zry 模擬デブリの硝酸溶解基礎試験、日本原子力学会 2013 年秋の大会予稿集、N42、2013
 ・ 仲吉彬ほか、破損燃料への乾式再処理法の適用性評価;(1)(U,Zr)O2とLiCl-Li2O 溶融塩との反応によるリチウ

ムジルコネートの生成挙動,日本原子力学会2013年秋の大会予稿集,N40,2013

<sup>・</sup>小藤博英ほか,破損燃料への乾式再処理法の適用性評価;(2)(U,Zr)O2模擬デブリの塩素化溶解特性評価,日本原子力学会2013年秋の大会予稿集,N41,2013

II. 放射性廃棄物の処理・処分に向けて

### 3 長期間の安定保管・処理・処分のために

	―性状把握・長期保管・処理・処分検討―	45
3-1	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(1)	
	―廃ゼオライトの性状調査と保管対策評価―	47
3-2	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(2)	
	―スラッジ貯槽材料の耐食性評価―	49
3-3	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(3)	
	— S r を選択的に吸着するチタン酸化合物の探求—	51
3-4	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(4)	
	―除染装置スラッジのセメント固化の検討―	53
3-5	水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(5)	
	一放射能分析手法の検討と適用―	55
3-6	多様な事故廃棄物の処分に向けて	
	―事故廃棄物の処分に係る基礎的な検討と研究計画の立案―	57

#### 長期間の安定保管。処理。処分のために 3 性状把握・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 榆討方針 検討の進め方 【共通の特徴】 〇放射性核種の起源: 〇放射性核種の存在形態 事故により飛散・拡散した炉内装荷燃料(1~3号機) 3億:主に表面汚染(一部、汚染水を通じた浸透汚染) 将来発生量の想定が困難(廃止措置作業が具体化されていないため) 廃棄体仕様の検討 ・分析データの蓄積と並行し、解 ○廃棄物の発生量 : 将来発生量の想定が困難(廃止措置作業が具体化されていた ○廃棄物の性状 : 核種組成(特に長半減期核種)に関するデータが非常に限定的 析的手法を併用し廃棄物性状の 性状把握 予測・評価を実施 (インペントリ、化学組成等) ・処理・処分に関する研究成果を 飛散·拡散 活用し、効率的に性状把握が進められるよう分析計画を適宜見 二次廃棄物の反映 /廃棄物分類見直し 演し 燃料 污染水 廃棄物処理に関する検討 (保管、前処理、廃棄体化を含む) ・適用可能な既存処理技術とそ の特徴を整理・廃棄物性状評価の進展に合わ 放射化物 (クラッド含む)。 汚染水処理 二次廃棄物 交換配管類等 廃棄体性能 土壤 (伐採木) 瓦礫 せ適用可能性を評価し絞り込み の向上に向 燃料デブリ を実施 けた目標設 水素爆発により発生した廃棄物 循環注水冷却に伴い発生する廃棄物 原子炉建屋等 分析対象試 廃棄物処分に関する検討 定等 料、核種の 優先順位付 瓦礫/伐採木等 8.料デブリノ解体廃棄物 汚染水処理二次廃棄物 わが国で主に検討されてきた既 処分概念検討 【主な特徴】 〇物量が多く、広範囲に分布 〇樹木、土壌の処理・処分実績 は乏しい 【主な特徴】 〇処理・処分実績が乏しい材料が多い 〇汚染水処理施設の特徴に応じた廃 棄物の推定がある程度可能 【主な特徴】 存の処分概念に加え、海外情報 け等 〇通常の廃止措置に比較し廃 等を参考に適用可能な処分概念 を幅広に検討 棄物量が多い(高線量物も多 廃棄物性状評価の進展に合わ 〇当面の間はアクセス自体が 困難であり、データ採取も容易 ○原廃棄物の採取が困難なものあり せ処分方策を最適化 安全性評価 a) 事故で発生した放射性廃棄物の特徴 b)技術開発の基本的な考え方

#### 図 1 事故で発生した放射性廃棄物の特徴と技術開発の基本的な考え方

事故で発生した放射性廃棄物は、従来の原子力発電所で発生していた廃棄物とは核種の起源や性状及び廃棄物の種類などの 異なった特徴を有します。これらの特徴を踏まえた、技術開発の進め方が必要になります。

東京電力㈱福島第一原子力発電所(1F)の事故によ り発生した放射性核種によって汚染された物質は、従来 の原子力発電所で発生する放射性廃棄物と異なる次のよ うな特徴を持っています(図 1a)。

- ・破損した燃料に由来した放射性核種を含んでいる
- ・津波や事故直後の炉心冷却に起因する海水成分を含む可能性がある
- ・高線量であり処理処分の実績が乏しい材料を含む
- ・汚染レベルが多岐にわたりその物量も大きい

事故で発生した放射性廃棄物を安全に処理・処分する ための見通しを得ることと、処理・処分するまでの期間 を安定に保管管理することを目的に、発生した放射性廃 棄物の物理化学的特性、核種組成や放射能データ等の性 状について幅広く分析調査を実施することにより性状把 握を行い、さらに、長期保管、処理、廃棄体化、処分の 安全性に関する技術開発を進めていきます。

一般に放射性廃棄物の処理・処分に関する検討は、イ ンベントリといった廃棄体条件に関する事項を前提条件 として設定したうえで進められますが、事故で発生した 放射性廃棄物は、性状に関する情報が現時点では限定的 であり、それらの情報は分析データの蓄積や廃止措置作 業の進展に応じて増加していくことになります。従って、 廃棄物性状に関する情報が不足している段階においても 処理・処分に関する検討を行えるように進めることが重 要です。検討に際しては、性状把握、長期保管、処理、 廃棄体化、処分の各々の検討で得られた成果を活用しな がら、適用する概念や技術の拡張と絞り込みを各検討で 得られた成果や課題を相互にフィードバックしながら繰 り返し進めることが必要になります。(図 1b)。

### (1) 主な実施内容

1Fの廃止措置等に向けて、原子力機構がこれまでに 蓄積してきた知見や特徴を生かして、放射性廃棄物の処 理・処分に関する技術開発に取り組んでいます。以下に、 その主な実施内容を示します。

### 1) 事故で発生した放射性廃棄物の性状把握

長期保管方策、処理、廃棄体化技術、処分の検討に資 するため、汚染水処理二次廃棄物、瓦礫、伐採木等の性 状把握を進めます。

汚染水処理二次廃棄物に関し、汚染水及び処理工程中 の処理水を分析し、分析結果等に基づき二次廃棄物の核 種組成の評価(インベントリ評価)を進めてきました。 また、シミュレーション解析、模擬試験等により廃ゼオ ライト吸着塔内部のセシウム濃度分布や熱伝導率等の 保管に係わる性状データを評価しています。

瓦礫、伐採木等の廃棄物に関し、1 Fで分析試料を採 取し、その試料の核種分析を実施し、場所や線量に対す る核種組成の特徴の検討を進めています。さらに、分析 実績がない難測定核種の分析フロー検討や高線量廃棄 物に対応可能な分析技術の開発を実施しています。

### 2) 長期保管方策の検討

汚染水処理二次廃棄物は、処理・処分技術の確立まで 安全に保管する必要があります。長期保管に係る安定性 を確認するために、廃棄物からの水素発生や容器の腐食 等を検討していきます。

廃ゼオライト、スラッジ等の保管容器材料を対象に、 塩化物イオンやy線の影響を考慮して腐食データを 取得のうえ、腐食挙動を評価しています。廃ゼオラ



HP SW-1: 固体廃棄物の処理・処分に関する基本的な考え方の取りまとめ(2017 年度) HP SW-2: 固体廃棄物の処理・処分における安全性の見通し確認(2021 年度)

#### 図 2 中長期ロードマップでの主要スケジュール

廃炉を加速していくために、スケジュールの前倒しなどの検討を進め、2013年6月27日に「東京電力㈱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」が改訂されました。

イト吸着塔については解析及び実体系模擬試験によ り、現行の水素安全対策の妥当性を確認しています。 また、スラッジ保管の安全性(水素、崩壊熱)につ いて確認していきます。

### 3) 処理、廃棄体化技術の検討

将来の廃棄物の処分に向け、廃棄物の性状に関す る調査等の成果を反映させながら、国内のみならず 海外情報も含め既存の処理、廃棄体化に係る技術の 調査を行います。

汚染水処理二次廃棄物の長期保管方策の検討において、十分な保管性能が担保されないケースに対応 し、これら廃棄物の種々の処理技術の基礎的検討を 実施しています。この中で、廃ゼオライト、スラッ ジに関する基礎試験を実施し、適用可能な技術を提 案するとともに、多核種除去設備等から発生する二 次廃棄物の廃棄体化のための技術調査及び必要に応 じて基礎試験を実施しています。

瓦礫、伐採木等の廃棄物に関して、処理技術、廃 棄体化技術等に関する既存技術の調査を実施すると ともに、廃棄物の処理への既存技術の適用性確認に 向けた技術比較等を実施しています。特に瓦礫、伐 採木等の処理については、最適な廃棄物対策に資す るための分別、除染、減容、再利用等の技術も念頭 において進めます。

### 4) 処分に関する検討

既存処分概念や安全評価手法の適用性に関する検討を実施します。

適用性の検討においては、国内のみならず海外情報も 含め処分概念(処分区分、処分場の構成要素等)や安全 評価手法(シナリオ、モデル、解析ケース等)を調査・ 整理し、廃棄物の種類、性状、物量などの多様な想定に 対する適用可能性と課題を検討しています。適用可能性 を検討するために必要となる情報、データ等は必要に応 じて収集しています。これら検討は、廃棄物の性状把握、 長期保管、処理、廃棄体化等の進捗にあわせて進めてい くとともに、それらに係る処分の観点での課題やニーズ の整理を行います。

### 5) データベースの構築

前項までの検討により得られた成果や情報を体系的 かつ継続的に集約し共有できるようにするためのデー タベースの構築を進めています。プロトタイプのデータ ベースの機能・運用方法等の検討、設計・製作、試運用 を行うとともに、運用上の課題の抽出、課題解決に向け た改良案の検討を実施しています。なお、国内外への情 報発信に、本データベースのアウトプットを活用できる よう配慮して進めます。

### (2) 今後の計画と成果のとりまとめ

1 Fの廃炉を加速していくために、スケジュールの前 倒しなどの検討を進め、2013 年 6 月 27 日に「東京電力 ㈱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」が改訂されました。この中で、 事故で発生した放射性廃棄物の処理・処分に向けた計画 におけるホールドポイント(HP)と、その考え方が整理 されています(図2)。

当面は、2017年度に処理・処分に関する基本的な考え 方を取りまとめた報告書を作成して安全規制などの制度 的な検討を開始し、2021年度に技術的な成立性を踏まえ た安全性の見通しを確認し安全規制の枠組みを作るため に必要な情報を整理することとなっています。これらの 目標に向けて、技術開発を進めていきます。

<sup>(</sup>引用文献) [1] 日本原子力学会,「福島第一原子力発電所事故により発生する放射性廃棄物の処理・処分報告書~研究開発課題の抽出と解決に向けた考え方~」,2013年3月,日本原子力学会「福島第一原子力発電所事故により発生する放射性廃棄物の処理・処分」特別専門委員会,2013

<sup>[2]</sup> 原子力災害対策本部,「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」, 2013 年6月27日,東京電力福島第一原子力発電所廃炉対策推進会議, 2013

## 3-1 水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(1) - 廃ゼオライトの性状調査と保管対策評価-

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、永石隆二、加藤千明、森田圭介、田代信介、斉藤隆一 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、佐藤博之、上地優、竹上弘彰 原子力基礎工学研究部門 西原健司、津幡靖宏



図 1 性状調査と保管対策評価の流れ

直接分析が困難な廃ゼオライトについて、放射能、熱伝導率、水 素発生量等を基礎試験により推定し、廃吸着塔内の温度、水素濃 度を評価します。実規模吸着塔の塩分洗浄試験、腐食試験等の結 果と塔内環境から、吸着塔容器材料の健全性を評価します。

循環注水冷却システムの水処理設備では、ゼオライト 系吸着材を充填した吸着塔に汚染水を通して、99%以上 の放射性セシウム(Cs)を除去しています。使用済吸着 塔は強い放射線を出すため、遮蔽体に入れて一時保管さ れていますが、処理処分に至るまでは20年以上を要する ため、現在の保管方法が長期保管方策としても妥当であ ることを早急に確認することが必要です。特に、初期の 汚染水には海水が高濃度で混入しており、放射線分解に よる水素発生に加え、吸着塔容器材料の腐食の評価も重 要です。これら保管評価に必要な性状データも取得して います(図 1)。

### (1) 廃ゼオライトの性状調査

これまでの研究により、セシウム吸着装置(KURION 社) に装荷されているゼオライト (Herschelite) の Cs 平衡吸着量は、汚染水中の Cs 濃度に比例し、その比例定 数(分配定数)は海水濃度(Cl濃度)の経験式で表せる ことがわかりました。これにより、保管評価で重要とな る吸着塔1塔あたりの最大Cs放射能量及び最大崩壊熱を 見積もることができます。東京電力が公開した Cs 濃度、 処理液量及び発生塔数から試算した平均的な崩壊熱は約 300W/塔(塔外へのγ線漏洩を考慮した発熱量では 237 W / 塔)ですが、平衡吸着量経験式で試算した上限は 約 500 W / 塔(発熱量 414 W) となります。現在は、上 限発熱量で保管対策を評価しています。一方、平衡吸着 まで使用されなかった吸着塔の内部では、放射能が不均 一に分布し、温度分布等に影響を及ぼします。運転履歴 から塔内 Cs 濃度分布を解析するための吸着挙動解析コ ード (ZAC: Zeolite Adsorption Column)を整備し、流 速の異なる小規模試験の結果を再現できることを確認し ました (図2)。

ゼオライト層の有効熱伝導率については、定常熱流法 により乾燥 Herschelite 層を測定し、乾燥状態の吸着塔内



**図 2 小規模試験での Cs 分布と ZAC コード解析値の比較** Herschelite 吸着材を充填した小型カラム (1 cm  $\phi$  × 23 cmH) に、 Cs 含有人工海水を空塔線流速 3.7 あるいは 33cm/min で約 4L 通液しました。Herschelite 層の Cs 濃度の分析値(実験値)と 吸着解析コード ZAC で推定した Cs 分布は良く一致しています。

の温度分布解析に反映しました。塔内に残水がある状態 の解析に対応するため、湿度 80 %の Herschelite 層を測 定し、乾燥状態よりも熱伝導率が 10%程度増加すること がわかりました。底部の水没ゼオライト層の値には、ゼ オライト(参照用国産モルデナイト)含有セメントの測 定結果から、水に近い熱伝導率に設定しています。今後、 実測により確認する予定です。

### (2) 水の放射線分解による水素発生量評価

水の放射線分解による水素発生量は、海水だけを照射 した場合に最大となります。これは、海水中のCl-イオン、 Br-イオンが、水素を酸化して水に戻すラジカルの働きを 阻害するためです。吸着塔を真水で洗浄すると、塔内の Cl-、Br-イオンが減少するため、水素発生の模式図(図3 左)に示す酸化が起こり、水素発生量が低下する効果が 期待されます。ガンマ線照射試験の結果(図3右)、海水 が100倍以上希釈されると、純水と同程度の発生量に低 下しますが、10倍希釈程度では発生量はそれ程低下しな いことがわかりました。このため、塔内の塩分は1/100 程度まで洗浄することが望ましいと言えます。

純水や希釈海水から発生した水素の一部は、液面で放 出されるまでの経路でラジカルによって酸化されるので、 液がより深いと、水素発生量が低下します(液深効果)。 また、ゼオライトの含水、浸漬等の状況に応じて、液深 効果を加味した吸着塔内の水素発生量を経験式で表せる こともわかってきました。さらに、照射損傷による吸着 材の特性(細孔、含水率、形状、Cs保持性能)の変化を 調べ、長期保管に及ぼす影響を併せて評価しています。

### (3) 吸着塔内の温度、水素濃度分布解析

吸着塔配管の大気開放による水素滞留防止対策の妥当 性について、解析評価を進めています。塔内乾燥状態を 仮定し、発熱量 237 W 均一分布、水素発生量を海水







図4 乾燥した吸着塔内の温度、水素濃度の定常解析例 解析(水素発生量18.3L/day、発熱量237W)の結果(定常状態)、 吸着塔内の最高温度は、自己着火温度560℃を十分に下回り、水 素濃度も、水素の爆発下限界4%を下回ります。



### 図 5 吸着塔容器材料の健全性評価

a) 人工海水(Cl:20000 ppm)、希釈人工海水(同 6000、2000 ppm)とゼオライト(モルデナイト)の混合物中に80°Cで2000時間浸漬 したUベンド試験片には応力腐食割れは観察されませんでした。b)局部腐食発生の可能性を電気化学的手法により評価します。

-Herschelite 浸漬状態の 18.3 L/d として、乾燥 Herschelite 層の有効熱伝導率を用いて定常解析評価した結果を図4に示します。水出入口管、ベント管及びプラグ栓を開放した状態では、塔内の熱自然対流や分子拡散により、ベント管等から流出する水素と水出口管から流入した空気が置換することで、塔内の水素濃度は1.6% 程度(燃焼下限界は4%)に静定するとともに、ゼオライト層の最高温度は150 ℃程度(自然発火温度は560 ℃)となることがわかりました。

また、腐食試験条件の設定に向けて、底部が水没した 状態の温度解析を実施しました。発熱量 237 W 及び 414 W 均一分布、底部残水高さ約 14 cm、ゼオライト層 の有効熱伝導率(80%湿度の Herschelite 層、水没層) の条件で定常解析評価した結果、底部容器温度は 60 ℃以 下となることがわかりました。今後、KURION 吸着塔試 験で実測する残水量、ゼオライト性状調査結果などを反 映し、塔内温度、水素濃度分布を評価する予定です。

### (4) 吸着塔容器材料の健全性評価

吸着塔容器材料 SUS316L は耐食性に優れていますが、 一度発生した局部腐食の進展を予測することが難しい材 料でもあり、ゼオライト共存下での塔内環境(塩分、pH、 温度、放射線等)が、腐食が発生しにくい条件に保たれ ていることを確認する必要があります。図 5a は、海水、 希釈海水とゼオライトの混合物に、80℃で 2000 時間浸 漬したUベンド試験片の外観ですが、応力腐食割れ(SCC) は観察されず、また、10 倍希釈海水(Cl:2000 ppm)で は、すき間腐食も観察されていません。局部腐食発生の 評価には、電気化学的手法を用います。図 5b に示すよう に、孔食発生電位と自然浸漬電位の関係を実験的に調べ て腐食発生領域を明らかにし、これを実機の塔内腐食環 境と比較することにより、腐食発生の可能性を評価しま す。ゼオライト共存系の孔食発生電位は、温度と Cl 濃度 の増加とともに低下することがわかってきました。現在 は、ガンマ線照射下で電気化学試験を行っています。

吸着塔内の水質環境を推定する試験も実施しています。 使用前の KURION 吸着塔に NaCl 水 (Cl:1000 ppm)を 充填後、純水約 3 t を 75 L/分で通液したところ、洗浄液 の Cl 濃度は 1 / 2000 以下に低下し、pH は腐食しにくい アルカリ性となることを確認しました。今後、より保管 手順条件に近い洗浄排水操作によって初期残水情報を取 得し、残水の蒸発による経時変化を推定する予定です。

### (5) おわりに

中長期ロードマップでは、上述の基礎研究の成果をも とに、初期に発生した保管容器の健全性を25年度に評価 し、必要に応じて2014年度に策定する設備更新計画に反 映することになっています。今後も、中長期ロードマッ プの着実な遂行に向け、研究を進めています。

Yamagishi, I., Terada, A. et al, "Safe Storage of Zeolite Adsorbents used for Treatment of Accident -generated Water at Fukushima Daiichi Power Station"IAEA International Experts' Meeting on Decommissioning and Remediation after a Nuclear Accident, 28 Jan.-1 Feb. 2013, Vienna.

## <u>3-2 水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(2)</u> ―スラッジ貯槽材料の耐食性評価―

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2課 安倍 弘、佐野雄一、星 真之、坂内信行、竹内正行



図 1 凝集沈殿による汚染水処理と保管容器を取り巻く腐食環境

凝集沈殿工程では放射性物質が吸着したスラッジが廃棄物として発生します。この長期保管にあたっては、スラッジの他、多量の 汚染水を含むため、複雑な腐食環境の中で容器材料の耐食性を評価する必要があります。



a)電気化学セルの外観

図 2 電気化学試験の装置構成

電気化学セルは、分極測定に必要な作用電極、参照電極、対極、試験溶液がコンパクトに一体となった構造を選定しており、 γ線照射条件ではb)のような装置構成で電気化学試験を進めています。

1F 原子炉内の冷却に使用されている水は、破損燃料と 接触することで、燃料中の放射性物質が溶け込むため、 その除去処理が必要になります。この処理には、水中の 放射性物質を吸着剤によりスラッジとして分離する凝集 沈殿の工程があり、処理後には強い放射線を発するスラ ッジ廃棄物(スラッジ)が発生します。このスラッジを 長期間にわたって安全に保管することが必要であり、そ のために重要な点は、スラッジを保管容器の中にしっか りと閉じ込めておくことです。スラッジは炭素鋼製の貯 槽内で一定期間保管される計画となっており、貯槽の長 期健全性を検討する上で、材料の腐食に関する評価がと ても重要になります。

貯槽内の保管対象にはスラッジだけでなく、多量の放 射能汚染水を含みます。そのため、材料腐食の評価を行 うためには、スラッジと汚染水の共存状態で形成される 特殊な環境を考慮することが必要になります。図1には、 貯槽材料の腐食に影響を与える可能性のある環境側の要 因を示します。主な腐食要因としては、スラッジと貯槽 材料の間のすきま(すきま腐食)、放射線、溶存酸素、塩 分(原子炉の冷却に海水が投入されているため)などが

考えられ、これらの要因をパラメータとして考慮の上、 炭素鋼の腐食評価を進めています。

一般に海水中の炭素鋼の腐食は、海水に溶け込んでい る酸素(溶存酸素)が持つ金属の酸化作用に強く影響を 受けることが知られています。そのため、腐食評価にあ たっては、溶液中の溶存酸素の拡散状態を考慮すること が重要です。そこではじめに、溶存酸素の拡散が進行し にくい静置系で炭素鋼の腐食挙動を評価しました。

腐食試験は電気化学試験と材料浸漬試験の2種類に大 別されます。電気化学試験では、材料の腐食が電気化学 的な反応を介して進行するため、評価対象の材料を電極 として使用して、電位や分極特性などの電気化学データ を測定することにより、腐食特性を評価することができ ます。また、材料浸漬試験では、材料を溶液中に浸漬さ せて腐食試験を行うことにより、直接的に材料の腐食状 態や腐食速度を評価することができます。

試験方法についてですが、v線照射条件における電気 化学測定は図2に示すように、所定の吸収線量率となる ように、<sup>60</sup>Coy線源との距離を設定し、各種電極を備え た電気化学セルにγ線照射を行いながら、照射室外の計



γ線照射下におけるスラッジ共存海水溶液での分極曲線及び作用電極の表面観察の各結果から、孔食に起因するプロファイルは 認められず、炭素鋼は本条件において全面腐食で進展していると考えられます。



炭素鋼の腐食速度は固液比の増大とともに低下傾向を示し、吸収線量率の増加とともに増加傾向を示しました。腐食試験によって試験片表面には色ムラが観察されましたが、顕著な腐食減肉などは認められませんでした。

測器でデータの測定を行いました。また、スラッジには 東京電力から提供された模擬物質を使用し、固液比(試 験溶液に対する模擬スラッジの容量比)を変化させなが ら、材料腐食に与えるスラッジの影響を調査しました。

電気化学測定結果の一例として分極曲線の結果を図 3 に示します。図内のアノード分極曲線において、電流密 度が単調に増加している傾向や分極曲線測定後の電極表 面の腐食痕跡から、局部腐食の発生や進展を示す兆候は 認められず、全面腐食に近い腐食形態であることが示唆 されました。

また、図4には浸漬腐食試験結果の一例として、炭素 鋼の腐食速度に与える固液比及び吸収線量率の影響を示 すとともに、腐食試験片の表面観察結果を示します。静 置系における炭素鋼の平均腐食速度については、図4に 示す放射線の照射や固液比の条件に加え、塩分濃度やpH の影響を含めても0.1mm/y以下であり、いずれの条件で も良好な耐食性を示しました。これは文献による腐食デ ータともほぼ一致した傾向を示しています。加えて、腐 食試験片の観察結果から、局部腐食の痕跡は認められま せんでした。 また、個別のパラメータの影響についてふれますと、 腐食速度と固液比の関係については、液量一定の条件下 でスラッジ量が増大するにつれて、腐食速度は若干低下 する傾向を示しました。これはスラッジの堆積量が増加 することで、酸素の拡散が遮断され、腐食速度が低下し たものと考えられます。また、γ線の吸収線量率と腐食 速度の関係については、吸収線量率の増大に伴い、腐食 速度が増加する傾向が認められました。この原因として は、試験溶液の成分分析の結果から、放射線の照射によ って、水の放射線分解が進行し、発生した酸素や過酸化 水素が材料の酸化剤として作用することで、炭素鋼の腐 食が促進されたものと考えています。

今後については、溶存酸素の拡散が活発に進行する溶 液撹拌状態の系で炭素鋼の腐食挙動を評価し、容器材料 の耐食寿命について検討を進めていく予定です。

《参考文献》 ・ 安倍 弘ほか、廃スラッジ貯槽材料の耐食性評価、日本原子力学会 2013 年秋の大会、N18、2013 (引用文献) [1] 腐食防食ハンドブック、腐食防食協会編、丸善(2000)

# 3-3 水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(3)

### –Srを選択的に吸着するチタン酸化合物の探求—

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 小川剛、高畠容子、中村雅弘、柴田淳広、駒義和、中島靖雄

### 表1 東京電力㈱福島第一原子力発電所多核種除去設備の概要

多核種除去設備は、2種類の前処理設備と7種類の吸着材を用いた吸着塔により構成されています。各工程の除去対象元素、吸着塔数、 廃棄物発生予想本数(高性能容器本数)は下表のとおりです。

工程	前処理法/吸着材	除去対象元素等	吸着塔数	予想される廃棄物量(基/年)
前加田	鉄共沈処理	α核種、Co、Mn		147
削处理	炭酸塩沈殿処理	Ca、Mg		635
	活性炭	コロイド	1	4
吸着	チタン酸化合物	Sr (M <sup>2+</sup> )	3	8
	フェロシアン化合物	Cs	2	5
	銀添着活性炭	Ι	2	8
	酸化チタン	Sb	2	7
	キレート樹脂	Co (M <sup>2+</sup> 、M <sup>3+</sup> )	4	7
	樹脂系吸着材	Ru、負電荷⊐ロイド	1	-





図1 チタン酸化合物の合成方法 硫酸チタン溶液を原料としてチタン酸ナトリウムを合成 しました。後半の操作における乾燥温度をパラメータと しました。

図1の方法で合成したチタン酸ナトリウムの写真です。左から乾燥温度 100、150、200、300、400、500℃です。いずれも白色で、外観上の違いは 認められませんでした。

図2 合成したチタン酸化合物

1Fサイト内で保管されている汚染水には <sup>90</sup>Sr などの 放射性核種が含まれています。これらの放射性核種を十 分低い濃度になるまで除去する目的で多核種除去設備が 設置され、2013 年 3 月 30 日にホット試験が開始されま した。多核種除去設備の概要は、表1のとおりです[1][2]。

汚染水中の主要放射性元素である Sr は多核種除去設備においてチタン酸化合物吸着材により除去しますが、 化学的な性質が似ている Ca や Mg が Sr 吸着を阻害する ため、炭酸塩沈殿による前処理がなされます。炭酸塩沈 殿物は多核種除去設備から発生する二次廃棄物の約 8 割 を占めるため、発生量の低減が望まれます。Ca 及び Mg を含む溶液から Sr を選択的に回収できる吸着材を合成 できれば、炭酸塩沈殿前処理工程を省略でき、二次廃棄 物発生量が大幅に削減される可能性があります。

そこで、Ca 及び Mg を含む溶液から Sr を選択的に回 収することを目的としてチタン酸化合物の合成及び性能 調査を実施しました。化合物の構造及び吸着性能の変化 を狙って、合成過程における乾燥温度をパラメータとし てチタン酸化合物を 6 種類合成しました。合成したチタ ン酸化合物について、化学的性能と乾燥温度の関係を調 べました。

図1に示すチタン酸化合物の合成方法において、乾燥

温度を100、150、200、300、400、500℃として合成し、 図2に示す白色のチタン酸化合物を得ました。合成した 化合物の構造を調べるため、試料をメノウ乳鉢で粉砕し、 X線回折測定を行いました。図3はチタン酸化合物のX 線回折スペクトルです。乾燥温度が100℃~400℃の試料 ではブロードなピーク強度を有しており、非晶質である ことがわかりました。乾燥温度の上昇に伴い10°付近の ピーク強度の低下が観測されたことから、構造が少しず つ変化していると考えられます。500℃の試料では低角の ブロードなピークに加えてチタン酸ナトリウム (NasTi4Oa)結晶のピークが観察されました。これはチタ ン酸化合物が非晶質から結晶質に変化したことを示して います。

次に、合成した化合物の化学的性能を調べるため、チ タン酸化合物と塩化ストロンチウム水溶液を 0.1 g:10 cm<sup>3</sup>の割合で混ぜて、3 時間振とうし、Sr の吸着しやす さ(分配係数、Kd)を求めました。同様にして Ca と Mg の Kd も求めました。初期金属濃度を 20 mmol/cm<sup>3</sup> としたときの Kd を図 4 に示します。乾燥温度 100°Cの チタン酸化合物の Kd は Sr>Ca>Mg であったのに対し、 100°Cを超える場合では Kd が逆の順序の Mg>Ca>Sr と なりました。また、乾燥温度 100°Cの化合物が Sr に対し



図3 チタン酸化合物の X線回折スペクトル

100から400°Cで乾燥した試料は非晶質であり、500°Cのものには Na,Ti<sub>4</sub>O,結晶のピークが見られます。縦軸の CPS は任意単位です。



図4 乾燥温度と分配係数 Kd の関係

KdはSr等の吸着しやすさを表す指標であり、大きいほどよく吸着 します。Kdは次式により求めました。

$$\mathrm{Kd} = \frac{\mathrm{C}_{\mathrm{0}} - \mathrm{C}_{\mathrm{L}}}{\mathrm{C}_{\mathrm{L}}} \times \frac{\mathrm{V}_{\mathrm{L}}}{\mathrm{V}_{\mathrm{S}}}$$

Kd:分配係数(cm<sup>3</sup>/g)、C<sub>0</sub>:吸着前の溶液濃度(mmol/cm<sup>3</sup>)、C<sub>L</sub>:吸 着後の溶液濃度(mmol/cm<sup>3</sup>)、V<sub>L</sub>:溶液量(cm<sup>3</sup>)、V<sub>S</sub>:吸着材量(g)

て最大の Kd を示しました。図 4 の結果から求めた分離 係数SFを図5に示します。乾燥温度100°Cの化合物のみ、 Ca 及び Mg に対する SF が 1 を超えており、Sr を選択的 に吸着することがわかりました。

乾燥温度 100℃の化合物は、Ca に対する SF が 1 を超 えていますが、炭酸塩沈殿処置工程を省略できるほどの 分離性能ではないため、更なる改良が必要であることが わかりました。乾燥温度 100℃の化合物と他の化合物の 構造の違いを明らかにすることは、Sr 選択性に優れる化 合物の探索の手掛りに成り得るため、構造解析の検討を



図5 乾燥温度と分離係数 SF の関係

SFはSrと対象金属元素の分離しやすさを表す指標であり、大きい ほど分離しやすいことを表します。SFは次式により求めました。

$$SF = \frac{Kd(Sr)}{Kd(M)}$$

SF:分離係数、Kd(Sr):Sr の分配係数(cm<sup>3</sup>/g)、Kd(M):金属元素 M の 分配係数(cm<sup>3</sup>/g)

### 進めていく予定です。

本研究は、富士産業株式会社及び芝浦工業大学工学部 材料工学科新エネルギー材料化学研究室との共同研究と して実施しました。本研究において、富士産業株式会社 にはチタン酸化合物の合成を、芝浦工業大学にはチタン 酸化合物の構造解析を担当していただきました。ここに 感謝の意を表します。

《参考文献》	•	小川剛ほか,海水を含む汚染水のチタン酸吸着剤による Sr 除染,チタン酸化合物の乾燥温度による構造と分離
		への影響, 日本原子力学会 2013 年秋の大会予稿集, N32, 2013
《引用文献》	[1]	東京電力株式会社, "福島第一原子力発電所第1~4号機に対する「中期的安全確保の考え方」に基づく施設運
		営計画に係る報告書(その3)(改訂)",2012
	[2]	東京電力株式会社, "福島第一原子力発電所1~4号機の廃炉措置等に向けた取り組みの進捗状況 2013年1 月
		31 日「多核種除去設備の運転開始に当たっての安全性評価」",2013
		http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/images/t130131_01-j.pdf

## 3-4 水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(4) 一除染装置スラッジのセメント固化の検討一

核燃料サイクル工学研究所 再処理技術開発センター 環境保全部 環境管理課 菅谷篤志、堀口賢一、圷茂 バックエンド推進部門 廃棄物処理技術開発グループ 中山卓也、佐藤淳也、富岡修、川戸喜実、目黒義弘



図1 模擬スラッジ a)と乾燥処理後のスラッジ b) 実際の汚染水処理における除染装置から発生したスラッジを模擬 して作製した試料。模擬スラッジは約 10xt%の沈殿物/固形物と 模擬海水から成ります。

1F原子炉施設内に滞留している水は、<sup>137</sup>Cs 等の放射 性核種を大量に含んでいる、すなわち汚染されています。 このような水(汚染水)は、事故初期に炉心の冷却のた めに投入した海水中の成分も含んでいます。1Fでは、こ の汚染水から放射性核種や海水成分を取り除いて、原子 炉の冷却に再利用しています。放射性核種を取り除くた めに実施しているいくつかの工程(汚染水処理)からは、 放射性核種を含んだ様々な廃棄物(水処理二次廃棄物) が発生しています。汚染水処理の一つの手法として、い くつかの試薬を用いて、汚染水から放射性核種を沈殿物 として取り除く方法が採用されています。この沈殿物は 汚染水と混ざり合った状態(スラッジ)で保管されてい ます。将来的には、スラッジを処分するために固型化な どの処理を行う必要がありますが、そのような処理を開 始するまで、容器内で保管することが計画されています。 他方、その保管中の安全性の評価が進められています。 万が一、この安全性評価において、スラッジを長期間安 全に保管することが困難であると判断される場合を想定 し、将来のスラッジの処分も見据えつつ、スラッジを固 型化するための技術の基礎的検討を開始しています。本 報告では、実際1Fにおいて発生しているスラッジの化学 的組成を模擬したもの(模擬スラッジ)を作製し、セメ ント材を用いてこれを固型化する技術を検討するととも に、ここで得られた固化体の硬さなどの特性について調 べました。

### (1) 模擬スラッジの前処理及びセメント混練

模擬スラッジは、1Fの汚染水処理装置に使用されたもの(アレバ社製)と同様な装置を用いて作製しました(図1a))。模擬スラッジは、主成分が硫酸バリウム、フェロシアン化ニッケル、水酸化鉄である粒状物質と海水塩を含む水溶液との混合物です。セメント材としては一般的なセメント材である普通ポルトランドセメント(OPC)と高炉セメント B種(BB)を使用しました。スラッジの約90質量パーセント濃度(以下、wt%)は水であるため、



図2 模擬スラッジのセメント固化体 OPCをセメント材として用いて、乾燥スラッジを充填率40wt%、 水セメント比1.2の条件で混練して作製した固化体。

これに合わせた量のセメント材を加えて固めると、固化 体が大量になると予想されます。そこで模擬スラッジの 水分を減らしてからセメント固化を試みました。水分を 減らす方法として、二つの方法を検討しました。一つの 方法は、スラッジを加熱濃縮してある程度の水分を蒸発 除去した「濃縮スラッジ」を調製する方法、もう一つは 同様にスラッジを加熱し、水分がなくなるまで乾燥させ た「乾燥スラッジ」(図 1b))を調製する方法です。濃縮 スラッジのセメント固化試験では、濃縮スラッジにセメ ント材を加えて混練し、乾燥スラッジの固化試験では、 乾燥スラッジに水とセメント材を加えて混練し、固化体 を作製しました。固化体の作製において、スラッジの充 填率(スラッジ、セメント材、水の混練物中のスラッジ の固形分のwt%) と水セメント比(スラッジ、セメント 材、水の混練物中の水とセメント材の重量比率)をパラ メータとしました。ここで、スラッジ充填率を18、20、 40、45、50、55、60wt%、水セメント比を0.8、1、1.2、 1.5、1.6、2.0、3.0 と変化させました。混練物の流動性、 及び硬化したセメント固化体上部の浮き水発生の有無、 硬化日数、固化体膨張の有無、28日養生後の固化体の一 軸圧縮強度について調べました。

### (2) 混練の状況と固化体の強度試験

濃縮スラッジを用いても、乾燥スラッジを用いてもス ラッジをセメントで固化することができました。図2に 乾燥スラッジを40wt%充填し、水セメント比1.2で練り 混ぜて作製した固化体の写真を示します。混練物を一月 ほど静置している間で、固化体上部の浮き水や固化体の 膨張などは観察されませんでした。スラッジの充填率や 水セメント比は材料を練り混ぜする際の粘性や硬化日数 に大きく影響しました。濃縮スラッジを用いた場合、ス ラッジの充填率を低い方から徐々に増やしていくと、混 練物の粘性が徐々に増大していき、だんだん練り混ぜる ことが困難になってきました。充填率を20wt%にすると、 セメント材としてOPCあるいはBBのどちらを用いた場



#### 図 3 濃縮スラッジと乾燥スラッジの粒度分布

模擬スラッジとそれを乾燥処理した乾燥スラッジ、それぞれを水に懸濁さ せた状態での粒度分布を調べました。濃縮スラッジの粒径は 1~20 µm の間に分布し、6 µm 付近にピークを持つことが分かりました。他方、乾燥 スラッジの粒径は 2~1,000 μm の広い範囲に分布していました。



合でも粘性が大きく、スラッジとセメントがきれいに混 ざり合った固化体を作製することが困難になりました。 他方、乾燥スラッジを使用した場合、濃縮スラッジと同 様に、スラッジの充填率が増すとともに混練物の粘性が 増大していきましたが、セメント材に OPC を用いた場合 でスラッジの充填率 40wt%まで、BB を用いた場合 50wt%まで増やしても、混練物の粘性は十分に低く、混 練物の良好な流動性を確保することができ、スラッジと セメントがよく混ざりあった固化体を作製することがで きました。従って、実際のスラッジをセメントで固化す る場合、乾燥した後に水とセメント材を練り混ぜた方が、 より多くのスラッジをセメント固化体中に練りこむこと ができることが分かりました。水セメント比を増すこと で、混練物の粘性を低下させることができますが、水の 量が増えると、浮き水が発生したり、固化体の強度が低 下したりする可能性があり、粘性を低下させるためだけ に大量に水を加えることができません。セメント固化体 の硬化速度にはセメント材の影響が大きく、OPC を用い た場合には1日で硬化しますが、BBを用いた場合は、硬 化には数日必要でした。濃縮スラッジ及び乾燥スラッジ の混練性の違いを調べるために、両スラッジの粒度分布 を測定しました。結果を図3に示します。濃縮スラッジ では粒径が6 µm 近辺の粒子が多く、また、1~20 µm と比較的狭い範囲に分布していました。他方、乾燥スラ ッジは濃縮スラッジよりも大きな粒径に複数のピークを 持ち、2~1,000 μm と広い範囲に分布していました。 粒 子が大きいほどセメント混練中の粒子間の摩擦が減るた め、乾燥スラッジの方が混練時の粘性が低下したと考え



#### 図 4 圧縮強度試験後の固化体

圧縮試験機を用いてセメント固化体(充填率 40wt%、水セメ ント比 1.2)の強度測定を行った際の写真 a)と破壊された固 化体 b)。固化体の内部の状態から、スラッジとセメントがほ ぼ均一に混ざっていることが確認されました。

#### 図 5 水セメント比と圧縮強度の関係性

セメント固化体作製時の水セメント比が大きくなると固化体の一軸 圧縮強度が徐々に低下しました。また、BB を用いて作製した固化 体の方が、より硬い固化体を作製できることが分かりました。

ています。

乾燥スラッジをセメント固化したものの強度を調べま した。図4に圧縮試験機によって固化体が壊れるまで圧 力をかけた時の写真と、破壊された固化体の写真を示し ました。破壊された固化体の内部にむらなどは観察され ず、スラッジとセメントがほぼ均一に混ざっていること が確認できました。図5に固化体作製時の水セメント比 と圧縮強度の関係を示しました。水セメント比が大きく なるほど固化体の強度は低下しました。すなわち、水セ メント比を小さくするほどより硬い固化体を作製するこ とが可能です。また、セメント材として BB を用いた方 が、OPCを用いるよりもより固い固化体を作製できるこ とが分かりました。

### (3) まとめ

模擬スラッジを用いて、現在、溶液と一緒に保管され ているスラッジを安定な固体の形態にするための基礎検 討を行いました。スラッジのセメント固化に先立ち、ス ラッジの水分を減らす必要がありますが、スラッジを濃 縮するのではなく、一度乾燥させた後に必要な量の水を 加えて固化した方が、より多くのスラッジを固化体中に 充填できることが分かりました。また、スラッジは、一 般的なセメント材 (OPC、BB) を用い固化できることが 確認できました。実際に1Fで発生しているスラッジには、 <sup>137</sup>Cs 等の放射性核種が含まれています。今後は、スラッ ジのセメント固化体が水に接触した際に、固化体から放 射性核種が溶け出す速度の調査などを実施していきます。

《参考文献》

菅谷篤志ほか、汚染水処理二次廃棄物の廃棄体化技術検討(1)除染装置スラッジのセメント固化の検討、日本 原子力学会 2013 年秋の大会予稿集, N12, 2013

# 3-5 水処理二次廃棄物の安定保管に向けて(5)

-放射能分析手法の検討と適用--

原科研福島技術開発特別チーム 廃棄物分析グループ 田中 究、安田 麻里



図 1 水処理設備の概要と滞留水等の採取箇所



水処理設備は、セシウム吸着装置や塩分を除去する淡水化装置などから構成されています。水処理により発生する二次廃棄物(廃ゼ オライトやスラッジ)の放射能性状を調査するため、①~⑨で示した箇所で水試料を採取し、放射能分析を行いました。

### **図 2 滞留水等の放射能濃度測定結果** 各水処理装置における<sup>3</sup>H、<sup>60</sup>Co、<sup>63</sup>Ni、<sup>79</sup>Se、<sup>90</sup>Sr、<sup>129</sup>I、<sup>137</sup>Csの放射能濃度の変化を表しています(白抜き:検出下限値)。

IF 事故では、放射性核種を含む汚染水が大量に発生し ており、図1に示す水処理設備を用いて、その処理が行 われています。これらの水処理により発生した廃ゼオラ イト・スラッジなど(水処理二次廃棄物)の処理・処分 方策を検討するためには、水処理二次廃棄物の放射能に 関する情報が必要となります。しかし、水処理二次廃棄 物は極めて放射線量が高く、直接、試料を採取して放射 能分析を行うことが困難です。このため、各水処理装置 の前後から汚染水を採取して放射能分析を行い、その差 から間接的に水処理二次廃棄物の評価を進めています。

水処理設備のひとつである多核種除去装置(ALPS)の本格運転に向けた性能確認においても放射能分析が必要となることから性能確認の指標となる放射性核種のうち<sup>113m</sup>Cdを対象に、迅速な分析法の検討も行いました。

### (1) 水処理二次廃棄物の放射能性状調査

水処理二次廃棄物の性状調査に関しては、既存の処分 システムにおいて安全評価上、重要と考えられる核種を 参考に、約30種類の放射性核種を分析対象に選定しまし た。その中には、非破壊測定が可能なγ線放出核種(<sup>60</sup>Co、 <sup>137</sup>Cs)とともに、化学分離操作を行った後に放射線計測 が必要となるβ線放出核種(<sup>3</sup>H、<sup>90</sup>Sr)やα線放出核種(<sup>235</sup>U、 <sup>238</sup>Pu)など、多種多様な放射性核種があります。 私たちは、研究施設から発生する放射性廃棄物(研究 所廃棄物)を対象に、上記の重要核種に対する体系的な 放射性廃棄物分析法を構築し、放射能分析を行ってきま した。そこで、この放射性廃棄物分析法に基づき、滞留 水等の分析を行いましたが、滞留水等は、<sup>90</sup>Sr や<sup>137</sup>Cs などの核分裂生成物(FP 核種)が極めて高濃度で含まれ ているため、FP 核種の混入が放射能測定において妨害と なるケースが生じました。そこで、分析対象核種と高濃 度の FP 核種を効率よく分離できる条件を把握し、分析 法を一部、改良することとにより、滞留水等の放射能デー タを精度良く取得することを可能としました。

このようにして取得した放射能濃度データのうち、検 出された核種を図2に示します。②~⑤のセシウム吸着 装置や除染装置では<sup>137</sup>Csの濃度が大きく低下し、⑥、⑧ の淡水化装置などでは<sup>60</sup>Coや<sup>90</sup>Srなど、多くの放射性核 種の濃度が低下していることが確認されました。また、 淡水化装置などで除去された放射性核種は、⑦、⑨の濃 縮廃液に移行していることもわかりました。これらのデ ータを用いて、水処理二次廃棄物の放射能濃度の評価を 進めています。





#### 図 3 Cd 及び共存元素の溶離曲線

試料を2M塩酸溶液に調整後、陰イオン交換樹脂に通液し、 Cdを樹脂に吸着させ、その後、硝酸(1+12)通液しCdを溶 離しました。溶離液通液後の15~45mlを回収すればCdを効 率よく分離回収することができます。

### (2) 汚染水処理に係る<sup>113</sup>mCd 分析法の検討

水処理設備のうち、淡水化装置からは <sup>90</sup>Sr などの放射 性核種を含む濃縮塩水が発生し、その安全な保管が課題 となっています。このため、濃縮塩水の放射能濃度をよ り一層低く管理するため、<sup>3</sup>H を除く 62 種類の放射性核 種を除去する ALPS が設置されています。ALPS による 放射性核種の除去性能を確認するためには、その処理水 の放射能濃度を把握する必要があります。評価対象核種 のひとつである <sup>113m</sup>Cd はγ線の放出率が小さく (0.023 %)、 非破壊γ線測定が適用できないため、放出率の大きなβ線

(放出率: 99.9%)を測定する新たな分析法について検討を行いました。

β線を精度良く測定するためには、共存する<sup>3</sup>H やマト リックス元素から Cd を分離することが必要です。この 分離には、陰イオン交換法を適用し、Cd 及び共存元素の 吸着状態や溶離挙動を確認するため、溶離曲線を取得し ました (図3)。この結果、Cd は溶離液通液後 25 ~ 30 ml にほぼ全量が溶出し、他の元素から効率よく分離・回収 できることがわかりました。この結果に基づき作成した <sup>113m</sup>Cd 分析フローを図4に示します。

β線の測定には、液体シンチレーションカウンタを使用 しますが、測定試料のクエンチングにより計数効率が変



図 4 <sup>113m</sup>Cd 分析フロー

溶離液の始めの 15 ml は廃棄し、後の 30 ml で Cd を回収しま す。Cd の回収率は ICP-AES で、<sup>113m</sup>Cd のβ線は液体シンチレー ションカウンタで測定します。



<sup>113m</sup>Cd (561 keV)の計数効率は、<sup>99</sup>Tc (294 keV) と <sup>36</sup>Cl (709 keV)の間の値をとると考えられます。

化します。このため、β線測定においては、クエンチング 補正曲線を作成し、効率校正を行う必要があります。し かし、<sup>113m</sup>Cd の標準溶液は入手が困難なためクエンチン グ補正曲線を作成することができません。そこで、入手 が容易な他のβ線核種の標準溶液を用いてクエンチング 補正曲線を作成し(図 5)、<sup>113m</sup>Cd のβ線計数効率を推定 しました。

このようにして構築した本分析法を、ALPS 処理水を 想定した模擬試料に対して適用したところ、97%以上の 安定した Cd 回収率が得られました。また、目標として いた検出下限値(0.004 Bq/ml)を達成することができま した。以上の検討により、ALPS の本格運転に向けた性 能評価に対して貢献しました。

《参考文献》	•	田中ほか、福島第一原子力発電所の滞留水に対する分析フローの検討と適用、Proceedings of the 14th Workshop
		on Enviromental Radioactivity (印刷中)
		安田ほか、液体シンチレーションカウンタを用いたβ線計測法による福島第一原子力発電所の滞留水中の

 安田ほか、液体シンチレーションカウンタを用いたβ線計測法による福島第一原子力発電所の滞留水中の 113mCd分析法の検討、分析化学(投稿中)

# 3-6 多様な事故廃棄物の処分に向けて

### ―事故廃棄物の処分に係る基礎的な検討と研究計画の立案―

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牧野仁史、舘幸男

表 1 「放射性廃棄物の処分に関する検討」についての課題、対策、必要情報の整理

事故廃棄物の特徴を踏まえて、処分に関する検討に向けての課題、対策、及び HP SW-1 と HP SW-2 に必要な情報を整理しました。

HPSW-1:固体廃棄物の処理・処分に関する基本的な考え方の取りまとめ(2017年度)

HPSW-2:固体廃棄物の処理・処分における安全性の見通し確認(2021年度)

課題	対策	HP SW-1 に必要な情報	HP SW-2 に必要な情報
<共通> ・処分の検討に重要な放射性核 種、化学組成、物理的性状等に 関する情報が少ない ・処分実績のない廃棄物を大量 に含む <瓦礫/伐採木等、解体廃棄物> ・物量が大きい	<ul> <li>・国内外の処分概念、安全評価手法を調査・整理し、適用性を検討</li> <li>・性状調査等の進捗に合わせ、概括的なものからより詳細なものへ進展</li> <li>・必要に応じて新たな処分概念を検討</li> <li>・燃料デブリに関しては、保障措置/核セキュリティ確保の検討も実施</li> </ul>	<ul> <li>インベントリ評価や廃棄 体化技術候補の評価を踏 まえた、既存の処分概念、 安全評価手法の適用範囲 の検討結果</li> <li>燃料デブリの処分におけ る核物質管理方法</li> </ul>	<ul> <li>・処理・処分フロー案と廃棄 体情報</li> <li>・既存の処分概念、安全評価 手法の適用あるいは合理 化・高度化(特に不確実性 評価、確率論的評価)を反 映した、処分概念の技術的 成立性と安全性の見通し</li> </ul>

1F事故で発生した廃棄物(事故廃棄物)は、従来の原 子力発電所で発生していた廃棄物とは異なった特徴を持 っています。このため、廃棄物の性状を把握しつつ、安 全に事故廃棄物の処理・処分を行うための見通しを得る 研究開発を進めていく必要があります。2012年度は、そ れに向けて、主に処分の観点からの事故廃棄物の特性の 把握に重点をおいた国内外の最新情報の収集、処分への 取り組みを進めるための課題等の予察的な抽出等とあわ せて、2017年の「固体廃棄物の処理・処分に関する基本 的な考え方の取りまとめ」に向けての事故廃棄物の処分 に係る研究開発計画の検討等を行いました。

### (1) 事故廃棄物の処分に係る研究開発計画の検討

事故廃棄物を安全に処理・処分するための技術的な見 通しを得るために必要な研究開発計画案について検討し ました。

計画案の検討にあたっては、事故廃棄物が有する従来 の原子力発電所で発生していた廃棄物とは異なった以下 の特徴を考慮しました。

- •破損した燃料に由来した放射性核種が付着している
- 処分場の性能に悪影響を与える可能性がある塩分等の共存物質を含む

また、日本原子力学会特別専門部会報告書[1]を参考とし、 そこで示された「事故廃棄物に関する処理・処分の安全 性の見通しを得る上では、廃棄物処理方法や処分概念に ついてあらかじめ幅広く評価し、廃棄物性状評価の進展 に応じて絞り込んでいくことにより、できるだけ早期に 安全性の見通しを得るべく、効率的・効果的に研究開発 を進めていく必要がある。」との基本的な考え方に従い ました。

計画案の検討では、まず課題、対策、必要情報の整理 を行い(表1参照)、それに基づきスケジュールを示す 研究開発ロードマップを作成しました。

この計画案を「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」(2013 年6月27日)に反映しました(3-1項参照)。

### (2) 事故廃棄物の処分に係る基礎的検討

事故廃棄物についての現段階で想定される特徴を考慮 しつつ、処分安全性に係る検討を進める上での基礎的事 項を以下のように整理するとともに、それら事項に関す る予察的な検討(一部データ取得を含む)を開始しまし た。

・燃料デブリの廃棄体化と処分時安全性に関する調査・検討

燃料デブリを直接処分する場合を想定して調査・ 検討を行い、廃棄体化と処分の観点から燃料デブリ の特性を整理するとともに、ガラス固化体や使用済 燃料の特性とを対比しつつ、廃棄体化と処分時安定 性について定性的検討と課題抽出を実施しました。

コンクリート系廃棄物の処理・処分に向けた調査・検
 討

建屋の爆発によって周囲に飛散した様々な形状を もつ瓦礫及び将来の廃止措置の際に建屋解体に伴っ て生じるコンクリート廃棄物の処理・処分について、 発生状況や想定される性状や特徴、それを踏まえた 処理・処分における課題を調査・検討しました。

• 既存処分概念に関する調査・検討

事故廃棄物の処理・処分に関する検討における基 盤情報となる既存処分概念の要件等に関する情報を 収集・整理しました。

燃料デブリについては、ガラス固化体や使用済燃料等 の性状と対比しながら、燃料デブリの特性、廃棄体化、 処分時安全性について、直接処分を行うことを考慮した 場合の概括的検討を行い、以下の課題を抽出しました (図1a)参照)。

福島第一/1号炉推定	種類	1)デブリ特性	2)廃棄体化	3)処分時安全性
	軽微破損/ 切株状燃料	・健全燃料に近い ・FPガスは散逸	・燃料デブリ等の特性を踏 まえた廃棄体要件と課題 検討	<ul> <li>SF評価パラメータの適用</li> <li>・瞬時放出成分の取扱い</li> </ul>
	燃料デブリ (溶融プール)	<ul> <li>・酸化物相(U, Zr, Fe)O<sub>2-x</sub></li> <li>・低融点の合金U-Zr-Fe alloy</li> <li>・海水成分の共存</li> <li>・揮発性FP/IRF散逸</li> </ul>	<ul> <li>(快利)</li> <li>内容物の長期的安定性</li> <li>海水成分,残存水分の 容器耐食性への影響</li> <li>臨界可能性と対策</li> <li>核種含有量や不均質性 の把握と対策</li> <li>性状別の管理</li> <li>既存廃棄体との整合</li> <li>※一部は貯蔵の要件とし</li> </ul>	<ul> <li>・燃料デブリ(酸化物相)の溶解,核種放出挙動</li> <li>・海水成分の核種溶解挙動やバリア性能への影響</li> <li>・瞬時放出成分の取扱い</li> </ul>
	<b>閉塞物</b> (炉心中央~下部)	<ul> <li>・酸化物相</li> <li>・ホウ化物/炭化物 Fe₂B, ZrB₂, ZrC</li> <li>・低融点の合金</li> <li>・海水成分の共存</li> <li>・放射化金属/IRF</li> </ul>		<ul> <li>・金属/合金/ホウ化物/炭化物の放射化生成物の インベントリー</li> <li>・瞬時放出成分の取扱い</li> <li>・海水成分の金属溶解や核種溶解への影響</li> </ul>
出身)東京電力HPより転用		<ul> <li>・酸化物相(混合相)(U, Zr)O<sub>2</sub>+SiO<sub>2</sub>,Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub></li> <li>・ケイ酸塩(U, Zr)SiO<sub>4</sub></li> <li>・コンクリートの共存</li> </ul>	ても重要	<ul> <li>・ケイ酸塩系デブリの溶解、核種放出挙動</li> <li>・コンクリート成分のデブリ溶解、核種溶解度、パリア性能への影響</li> </ul>

a)燃料デブリの直接処分についての課題抽出例



b) コンクリート廃棄物の処理処分フローとデータ調査

図 1 処分に係る基礎的検討の成果例

a) 燃料デブリの直接処分におけるデブリ特性、廃棄体化、処分時安全性に関する主要な課題を抽出・整理しました。 b) コンクリート廃棄物の処理処分フローとの関係を考慮しつつ、核種の浸透や吸着等に関する基礎情報調査・検討を進めています。

- ○デブリ特性:燃料デブリの4つの区分の特徴に応じて、 処分の検討を行うことが重要。デブリそのもののみ ならず、共存物が重要。
- ○廃棄体化:燃料デブリや共存物との相互作用等による 物理的・化学的な長期的安定性、及び閉じ込め性に 係る金属腐食への影響が最大の懸念。また、直接処 分の場合、貯蔵の要件とも関連付けた議論が重要。
- ○処分時安全性:長期的なデブリ性状や溶解の確認等が 重要となるが、核種インベントリの中で特に瞬時放 出成分の取り扱い、共存物の核種の溶解度や移行パ ラメータへの影響が重要。

ここで、燃料デブリの処理処分の検討においては、

「I. 燃料デブリの取出しに向けて」で行う性状把握や 処置シナリオについての検討との連携が重要になりま す。

コンクリート系廃棄物については、発生状況に応じた 性状や特徴及び処理処分フローを考えながら、処理・処 分に向けた以下の課題を抽出しました(図1b)参照)。

○コンクリート系廃棄物は、建屋の爆発によって飛散し

た瓦礫と将来の建屋解体に伴って生じる瓦礫に大別 することができ、前者は様々な形状をもつこと、後 者は高濃度汚染水への長期接触による核種内部浸透 も含めてより多様な核種と汚染レベルを有する可能 性があることへの留意が重要。

○今後の合理的な処理・処分検討に資するため、コンク リート中の核種の浸透や吸着等に関するデータを蓄 積するとともにそれらのメカニズムの理解が重要。 そのために、既存情報の調査や一部基礎データの取 得・拡充等の基盤情報整備を着実に進めることが重 要。

既存処分概念に関する調査・検討においては、既存処 分概念がどのようなものであるかの情報とあわせて、そ れがどのような点を重視して構築されてきたかなどの要 件に係る情報にも着目することで、事故廃棄物の特徴を 踏まえた適用性の検討や課題抽出等に利用しやすい情報 整理となるように調査を進めました。

《参考文献》	•	日本原子力研究開発機構、「平成24年度地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連:先進的地
		層処分概念・性能評価技術高度化開発 報告書」、2013
	<b>F 7</b>	

《引用文献》 [1] 日本原子力学会,「福島第一原子力発電所事故により発生する放射性廃棄物の処理・処分報告書~研究開発課題の抽出と解決に向けた考え方~」,2013年3月,福島第一原子力発電所事故により発生する放射性廃棄物の処理・処分」特別専門委員会,2013

# Ⅲ. 事故時に海水が注入された影響を知る

### 4 海水注入の影響把握とその対策に向けて

61	 ―原子炉の構造材料・燃料集合体等への影響把握―	
	1 海水と放射線が材料に与える影響を評価する(1)	4-1
63	 ―燃料集合体材料の長期健全性評価―	
	2 海水と放射線が材料に与える影響を評価する(2)	4-2
65	 一原子炉格納容器・圧力容器材料の長期健全性評価	
	3 海水等の影響を受けた燃料集合体の処理に向けて	4-3
67	 ―プール内損傷燃料等の処理検討―	

# 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 海水注入と放射線の影響 事故時に注入された海水成分及び原子炉内 に残留している核分裂生成物 (FP) と燃料 デブリから発生する放射線は、各種材料の 腐食を加速する可能性があります。

### 図2 燃料被覆管材料のガンマ線照射下海水中腐食試験

使用済燃料プールには燃料集合体が保管されています。使用済燃料集合体の構成材料の一つであるジルカロイ-2について、すき間腐食の挙動を調査しました。使用済燃料プール環境を模擬した人工海水にガンマ線を照射した試験では、すき間腐食は起こっていませんでした。

東京電力㈱福島第一原子力発電所(1F)の廃止措置に おいては、使用済燃料集合体の最終処分までの長期保管 及び炉内からの燃料デブリ取り出し終了までの圧力容器 (RPV)、格納容器(PCV)の健全性維持が重要となり ます。これらを妨げる可能性としては、燃料被覆管また は容器構造材料に腐食が発生し放射性物質が漏えいする ことや、腐食減肉により RPV、PCVの構造強度及び耐 震性が低下すること等が懸念されます。また、燃料及び 炉内を冷却している循環冷却系の配管に腐食損傷が生じ た場合には冷却が中断される可能性もあります。このた め、燃料集合体や各種構造材料の腐食の発生と進展を予 測するとともに腐食抑制策を講じることは、燃料及び RPV、PCVの長期健全性維持のために重要です。

1F 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、1F2~4 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。さらに、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 1F1~3 の RPV 内へ注入されました。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 イオン濃度は低下していますが、一旦海水が注入された RPV、PCV では容器鋼材が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ます。

海水の主成分である塩化物イオンは、鋼材の全面的な 腐食を加速する可能性は高くはありませんが、局部腐食 (孔食、すき間腐食、応力腐食割れ)の発生とその後の 進展を加速する可能性は十分にあります。さらに、RPV 底部及び PCV 内に落下した燃料デブリは、容器鋼材に近 い位置で放射線源となり鋼材の腐食を加速する可能性が あります。このため、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、及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には、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に同 時に晒される各種材料の腐食劣化損傷について発生予測 評価を可能とするとともに、必要に応じてそれを防止抑 制する方策を適用することが必要です。

また、1FのSFP内の燃料集合体は、当面は共用プー ル内に保管されますが、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 低下の可能性が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。

本章で対象とする燃料集合体及び RPV、PCV の材料 健全性評価に関する成果は、「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」における「使用済燃料プールから取り出した 燃料集合体他の長期健全性評価」、「圧力容器/格納容器 の健全性評価技術の開発」及び「使用済燃料プールから 取り出した損傷燃料等の処理方法の検討」に関連して進 めているものです。

### (1) 燃料集合体材料の腐食損傷の評価

1F各号機の使用済燃料プール(SFP)には、合計約2700 体の燃料集合体が保管されています。これらは、順次 SFP から取り出して共用プールへ移され、長期間に亘り保管 されることになります。また、集合体の材料表面には海 水成分が付着し残留していることも考えられます。この



図3 電気化学試験セル (ホットセル内照射材用) 照射済被覆管が取扱い可能なホ ットセルに、電気化学試験セル を設置し実験を行ないました。



### 図4 電気化学試験セルの構造図 (非照射材用)

電気化学試験セルは、試料極(ジルカ ロイ2)、電流を測る対極(白金)、電位 を測る参照局(SSE)から構成されます。



### 図5 未使用(非照射)ジルカロイの電気化学測定結果 (孔食発生と海水濃度の関係)

人工海水を水で希釈すると、塩化物イオン濃度が 低下し、その影響で孔食電位は上昇しました。浸 漬電位との差が大きくなり孔食発生し難くなり ました。

ため、燃料被覆管であるジルカロイ及び集合体部材のス テンレス鋼等について、原子力機構の高崎量子応用研究 所にあるガンマ線照射施設を利用して、照射下の希釈人 工海水中における腐食試験を実施しています。例えば、 図2はジルカロイを重ねて固定した試験片を用いて集合 体のすき間部等に腐食が発生する可能性を調べた結果で す。ここでは、人工海水の原液中で7.5 kGy/h という高 い線量率の照射を1ヶ月間実施してもすき間腐食が発生 しないことを明らかにしました。また、腐食現象の基礎 的検討のため、電気化学的試験法を適用して孔食の発生 の可能性等を調べています(図3-図5)。

### (2) 海水を含む水の放射線分解現象の把握

水にガンマ線等が照射されると放射線分解(ラジオリ シス)が起こり、酸素、水素が発生するとともに、材料 の腐食に影響を与える活性なラジカル種や過酸化水素が 生成することが知られています。しかし、海水成分を含 む水の放射線分解についてはほとんど知られていません。 このため、海水と照射が材料の腐食等へ与える影響を調 べるための基礎知見を得るため海水を含む水の放射線分 解に関する計算解析とその結果を検証するための照射実 験を行っています。これまでに主要な海水成分を含めて 解析ができるラジオリシスコードを作成し、その検証実 験をガンマ線照射施設で実施しました。

### (3) 使用済燃料を用いる材料健全性の評価

1F-SFP 内には炉内で使用済みの燃料が多数保管され ています。それらの燃料被覆管では運転中に 300 ℃近い 高温水中でジルカロイ表面に酸化皮膜が、ジルカロイ内 部には水素化物が形成され、未使用の被覆管とは異なる 材料状態となっています。そのため、実際に使用された 燃料から採取した被覆管材料を用いて腐食試験、電気化 学測定試験(図3)、強度試験等を行い、運転中に受けた 照射の影響について調べています。

### (4) 原子炉容器材料の腐食劣化、放射線影響の評価

1F 廃止措置の最重要課題である燃料デブリの取り出

しが終了するまでの長期に亘り RPV、PCV の損傷を防 止するため、海水成分と放射線が鋼材の腐食に与える影 響を明確にしさらに腐食を抑制する必要があります。こ のため、ガンマ線照射施設において希釈海水中で鋼材試 験片の照射下腐食試験を実施し、腐食速度に及ぼすガン マ線量率の影響や水中溶存酸素の低減剤として使用され るヒドラジンの添加効果等を調べています。これまでの 結果からは、PCV 内で実測された放射線レベルであれば 鋼材の腐食が著しく加速される可能性は低いことを示し ました。ただし、炉内には局所的に水質が悪化したり放 射線レベルの高い部位があり得るため注意を要します。

### (5) 使用済燃料からの放射性核種浸出挙動の評価

事故時に炉内で溶融した燃料は注入された海水と激し く反応し、その結果炉内の水には燃料から FP 等の放射 性核種成分が溶出しています。原子炉容器鋼材の腐食挙 動を詳しく検討するためには、これらの溶出物の成分を 知る必要があります。そのため、1F 燃料と類似の使用済 燃料(「ふげん」照射済燃料等)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っています。得られる知 見は、腐食試験及び1F 炉内環境の推定に用います。

### (6) 損傷燃料等の化学処理工程等への影響の評価

海水成分の付着、ガレキの同伴の可能性のある燃料集 合体の再処理を行うには、事前に再処理工程における影 響を把握しておく必要があります。そのため、海水やコ ンクリートといった不純物を含む模擬液を用いた溶媒抽 出試験を行い、不純物の分配比(有機相/水相)が文献値 と同様に低い値であることを確認しました。また、不純 物を含む模擬液を用いた再処理施設の機器材料の腐食試 験を行い、一部の条件で塩化物イオンの影響を確認しま した。これらの知見は今後の試験に反映し、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整備 に役立てられます。

# 4-1 海水と放射線が材料に与える影響を評価する(1)

### 燃料集合体材料の長期健全性評価―

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 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 端邦樹 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 山下真一郎 大洗研究開発センター 福島燃料材料試験部 材料試験課 山県一郎



水中の塩化物イオン濃度が低下するとジルカロイ被覆管の孔食 電位が上昇し孔食発生が困難となることを示しています。

### (1) 燃料被覆管及び燃料集合体部材の健全性評価

1F 事故では、電源喪失により緊急措置として 1F2~4 の使用済燃料プールに海水が注入されました。海水混入 水中は通常運転時の高純度水中と異なる腐食が懸念され ます。その一つは孔食です。燃料被覆管に孔食が起こる と、孔食部分から放射性物質が被覆管外部に漏れ出て環 境汚染の恐れがあります。

そこで、海水混入水中で燃料被覆管に孔食が起こる可 能性を調査しました。SFP には、未使用と使用済燃料が 保管されていることから、先行的に未使用被覆管につい て、電気化学的手法から得られた孔食電位から孔食発生 の可能性を評価しました。

室温で希釈した人工海水に、Zry-2 製燃料被覆管から作成した電極を浸して孔食電位測定を実施しました。その結果、放射線下で孔食電位が上昇する傾向が伺えました。 また、海水の希釈率が高いと(塩化物イオン濃度が低くなると)孔食電位は高くなりました(図1)。このことは、 塩化物イオン濃度が低くなると孔食発生が困難なことを 意味しています。現在の使用済燃料プールの塩化物イオ ン濃度は100 ppm以下です。燃料被覆管に孔食発生する 可能性が低い環境となっています。

2012年8月に1F4のSFPから取出された未使用燃料 集合体は、共用プールでの目視調査の結果、目視の範囲 では燃料部材には腐食等は認められませんでした。目視 では実施できなかった詳細な腐食調査を実施するため、 2013年6月に一部の燃料部材(ロックナット、スペーサ



### 図2 過酸化水素発生量に関するラジオリシス計算結果とガンマ線 照射実験結果の線量依存性の比較

海水成分を含む水溶液の照射下における過酸化水素発生の計 算結果は実験結果をよく再現でき、計算結果を検証できまし *t*<sub>c</sub>。

タブ、膨張スプリング)を1Fから原子力機構原科研に移送しました。同年7月からこれらの部材について、汚染調査を手始めに電子顕微鏡等を用いて詳細な腐食状況の調査を実施しています。

### (2) 海水を含む水の放射線分解現象の把握

炉心及び燃料プールなどの構造物が海水に晒されるこ とは、原子炉設計時の想定にはない現象です。放射線場 においては水の放射線分解(ラジオリシス)が起こり、 酸化性の生成物である H2O2などが発生しますが、海水成 分が混在した環境ではそれらの生成量が変化したり、海 水成分(Cl'等)に由来する生成物が発生したりすること が懸念されます。本研究では、放射線場にある海水が炉 内構造物にとってどのような腐食環境となり得るのかを 把握するために、海水の放射線分解挙動を予測するため の計算コードの整備を行っています。以下では、海水ラ ジオリシスモデル計算が妥当であるかを検証するために 行った、海水のガンマ線照射実験結果について述べます。

図2中には、海水ラジオリシス模擬水溶液(AQ1)、人 工海水、0.5 M NaCl 水溶液、0.8 mM NaBr 水溶液につ いて、ガンマ線照射下における H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>の生成量を測定した 実験結果と計算結果(図中の曲線)を比較して示しまし た。AQ1 は NaCl、NaBr、NaHCO<sub>3</sub>を海水と同程度の 濃度(それぞれ 2.9%、82 ppm、193 ppm)含む水溶液 です。実験、計算ともに線量率は毎時約 3.6 kGy としま した。AQ1、NaCl 水溶液、NaBr 水溶液については、計



#### 図3 浸漬時間に対する引張強度特性(左:引張強さ 右:破断伸び)

引張強さ及び破断伸びは、照射材、未照射材ともに、浸漬時間(0−1,000h)に依らず一定でした。図中の帯は平均値±2σのデータ 範囲を示しています。



### 図4 リング引張試験後の破面組織(照射材、人工海水原液、80°C×1,008 h 浸漬)

(左:破面全体、中:外表面近傍、右:肉厚中央部)

照射材のリング引張試験後破面において、肉厚中央部で照射時に生成された水素化物が見られましたが、浸漬による明瞭な変化はなく、全体的に延性破壊を示す組織が見られました。

算結果は実験結果を良く近似していることが分かりました。また、人工海水についての実験結果は、AQ1の結果 と類似の値となっています。この結果から、過酸化水素 の発生挙動に関しては、ラジオリシス計算によって適切 に再現されていること、人工海水のラジオリシス挙動は AQ1 とほぼ同じとなることが示されました。本結果は、 海水のラジオリシスにおける過酸化水素の発生挙動が Cl、Br、HCO3の3種類のイオンの寄与によってほぼ決 定されるということを示しています。海水のラジオリシ ス挙動をこのように簡素化した条件で模擬できるという ことは、複雑な混合水溶液である海水のラジオリシス現 象を把握する上で有益な知見です。今後、その他の主要 な放射線分解生成物である水素分子と酸素分子の発生に ついても実験による検証を行い、海水のラジオリシス計 算コードの精度向上を進めて行きます。

### (3) ふげん照射材等を用いた浸漬試験

海水を注入したSFPに保管されている燃料集合体の腐 食特性把握の一環として、使用済ジルカロイ・2燃料被覆 管を用いた人工海水への浸漬試験を実施しました。

試験片は、「ふげん」で照射された平均燃焼度約 45 GWd/tの燃料棒を切り出して、燃料を除去した燃料 被覆管(照射材)を用いました(長さ約 30 mm、内径 12.7 mm、肉厚 0.9 mm)。浸漬液には、SFP 水の半分が 海水に置き換わった状況や局所的に海水濃度が高くなっ た状況を想定して、人工海水を 2 倍に希釈したものや人 工海水原液を用いました。浸漬試験は液温 80 ℃で約 335 ~1,008 時間実施し、浸漬後の試験片は輪切りにしてリン グ状の試験片に調製することで、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(試験片長さ: 3.0 mm、引張速度:0.1 mm/min 一定)に供していま す。また引張試験後の破面の状態を走査電子顕微鏡で観 察しました。照射材と同一ロットの製造予備材(未照射 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、表面近傍の状態は浸漬前後にお ける明瞭な差は見られず、照射時に形成された酸化物層 や、被覆管内部の水素化物についても浸漬による明瞭な 変化は認められませんでした。また、リング引張試験の 結果、照射材、未照射材ともに浸漬による引張強さや破 断伸びの低下は認められませんでした(図3)。さらには、 破面においても全体的に延性破壊の特徴が見られ、浸漬 による変化等は見られませんでした(図4)。

これらの結果から、液温 80 ℃、約 1,000 時間までの人 工海水への浸漬が燃料被覆管材の腐食挙動や強度特性に 及ぼす影響は、照射材及び未照射材ともに小さいものと 考えられます。

K. Hata, et al., "Radiolysis calculation and gamma-ray irradiation experiment of aqueous solutions containing seawater components", Symposium on Water Chemistry and Corrosion of Nuclear Power Plants in Asia, 2013 (to be submitted)

# 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・圧力容器材料の長期健全性評価-

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 中野純一 大洗研究開発センター 燃料材料試験部 燃料試験課 田中康介



図1 福島第一原子力発電所の炉格納容器内の環境を模擬した照射下腐食試験

格納容器の内部は非常に高い放射線量になっています。水に放射線があたると酸素や過酸化水素等の金属に錆(酸化鉄)を形成しやす くする物質が発生するため、格納容器内に長期間放射性物質を閉じ込めておけるか危惧されています。そのため、格納容器内の環境 を模擬して、放射線(ガンマ線)を照射しながら、材料の腐食量がどのように変化するのかを調べる試験を行っています。





ガンマ線を 0. 2kGy/h 照射した場合と照射しない場合の腐食量はほぼ同じであり、4. 4kGy/h 照射の場合は非照射の場合の約1.7倍に 高くなります(図左)。100mg/L NH,添加した場合、非照射の腐食量のみが低下し、4. 4kGy/h と 0. 2kGy/h 照射の場合は何も添加しな い場合とほぼ同じでした(図中)。100mg/L NH,添加し、フラスコ上部へ窒素を導入すると、0. 2kGy/h 照射と非照射の腐食量は著し く低下し、4. 4kGy/h 照射の腐食量は何も添加しない場合の約1/4 となりました(図右)。

1F 事故では、原子炉を緊急に冷却するため 1F1~3の 原子炉内へ大量の海水が注入されました。さらに、RPV の内部で溶融した燃料の一部が、PCV の内部へ落下して 固化したとみられています。RPV の容器壁材料は低合金 鋼であり、PCV のそれには炭素鋼が使用されています。 これらの鋼材は水と長期間接触していると腐食が進行し、 容器の肉厚減少による強度低下や、孔食等の局部腐食に より穴が開く可能性も懸念されます。さらに、PCV の内 部は事故時に飛散した核分裂生成物(FP)及び落下した 燃料デブリにより、高い放射線量になっています。放射 線が水に照射されると、放射線分解により酸素(O<sub>2</sub>)、過 酸化水素(H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)、ラジカルと呼ばれる化学種が生じま す。これらは化学的に活性で強い酸化力を持ち、炭素鋼 の腐食の進行を速めることが危惧されます。

PCVは燃料デブリ回収までに放射性物質を閉じ込めて おく重要な構造物でありますが、PCV内では鋼材の腐食 を加速する要因が存在し、その内部の状況は断片的にし か分かっていません。このため、原子力機構では PCV/RPVに使用されている鋼材の腐食挙動に関する評 価、腐食抑制対策の検討を実施しています。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

PCVに使用されている材料とほぼ同じ化学組成の炭素 鋼から短冊状の試験片を作製し、塩化物イオン濃度を薄 めた50℃の人工海水中に浸漬した状態で、ガンマ線を照 射する試験を行っています(図1)。1F2のPCV内の放 射線量が2012年3月に東京電力によって測定されており、 それを基にPCV壁面部分では0.1~0.3 kGy/h程度と推 定し、約4.4 kGy/hと約0.2 kGy/hのガンマ線照射線 量率での腐食試験を実施しました。

その結果、0.2 kGy/h 照射と非照射の腐食量はほぼ同じであり、4.4 kGy/h 照射の場合は非照射の場合の約1.7倍でした(2 2 L)。このため、現在判明している PCV 鋼内の放射線量では容器鋼材の腐食速度が著しく加速されることはないと考えられます。ただし、著しく腐食が加速されないとはいえ、腐食の進行は少しでも遅らせなければなりません。このため、ボイラ設備などで多く使用されているヒドラジン( $N_2H_4$ )の添加の有効性を検討しました。 $N_2H_4$ は既に使用済燃料プールでは腐食対策と



図3 ガンマ線照射下腐食試験後の希釈海水中の O2濃度 水の放射線分解により常に酸素が発生しているので、N4H。添加では照射 下の希釈海水中の O2濃度は低下しませんが、N2雰囲気では酸素濃度が 低下しています。

して添加されています。 $N_2H_4 & 0.01\%$  (=100 mg/L) まで希釈し、照射下腐食試験を行いました。 $N_2H_4$ の添加 により、非照射の場合には腐食量が低下しましたが、 4.4 kGy/h  $\geq$  0.2 kGy/h 照射の場合の腐食量は添加しない 場合とほぼ同じでした(図2中)。これは、放射線分解に より水中に常時 $O_2$ 、 $H_2O_2$ 等が生じており、それら $\geq N_2H_4$ が照射下で反応( $N_2H_4+O_2 \rightarrow N_2+2H_2O$ 、 $N_2H_4+2H_2O_2$  $\rightarrow N_2+4H_2O$ )してしまい、試験開始初期に $N_2H_4$ が消失 したため、添加しない場合と同じ状態になったと考えら れます。高線量率のガンマ線照射下では、 $N_2H_4$ の連続添 加による腐食対策が有効と考えられます。

1F では、事故以降、水素爆発防止のため PCV 内に窒 素封入がされています。この状態を模擬するため、 100 mg/L N<sub>2</sub>H<sub>4</sub> 添加と試験用フラスコの上部への窒素 導入を同時に実施行いました。0.2 kGy/hと非照射の腐 食量は著しく低下し、4.4 kGy/hの腐食量は何も添加し ない場合の約 1/4 となりました(図 2 右)。試験後、試験 用フラスコ内の希釈海水の水質を分析すると、 $O_2$ および H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度ともに N<sub>2</sub> 無添加の場合よりも低下していまし た(図 3)。これは、試験用フラスコの上部を窒素としたこ とで水中の  $O_2$ が気相へ移行、水中の  $O_2$ が減少したこと によると考えられます。 $O_2$ 、 $H_2O_2$ 濃度が低下すれば、炭 素鋼の腐食が抑制されるため、1F で行われている窒素封 入は腐食抑制の観点からも有効であるといえます。

### (2) 使用済燃料からの放射性核種浸出挙動の評価

1F 事故の際には、溶融した燃料と海水が有意な時間直 接的に接触する状態が生じました。この状態においては 燃料から FP 等が海水中に溶出することが想定されるこ とから、燃料からの FP 等の溶出・浸出挙動を評価して おくことは、FP 等が浸出した海水が RPV、PCV の健全 性に与える影響を評価する上で基礎的な情報として有用 であると考えられます。照射済燃料から水への FP 等の 浸出挙動は、主に地層処分研究における核種移行のため の基礎データ及び知見が蓄積されてきていますが、海水 への浸出挙動についてはこれまでに殆どデータが取得さ



図4 人工海水に浸漬した照射済燃料

新型転換原型炉「ふげん」で照射された MOX 燃料から採取した燃料と被覆管を人工海水中に浸漬し、FP 成分等の溶出挙動を調べています。

れていないのが現状です。そこで、本研究では、FP等の 海水への浸出挙動に係る基礎的な知見を得ることを目的 として、照射済燃料を人工海水中で浸漬させ得られた溶 液の組成を分析する試験を行いました。

供試材は、「ふげん」で照射された MOX 燃料(燃焼度:約43 GWd/t、製造時 Pu 富化度:約5.6%、被覆管: Zry-2、照射終了後約15年間経過)です。燃料棒を1.9 mm 長さに切断し、燃料ペレットを機械的に取り出し、さら に表面積を増やす観点から小片に破砕しました。破砕し た燃料ペレット(約2.3 g)と輪切り状の被覆管(約0.5 g) を人工海水(アクアマリン)中に装填し、100 °Cにおい て6時間、12時間、18時間の浸漬試験を実施しました(図 4)。得られた溶液を核種分析、ICP-AES分析および ICP-MS分析に供しました。

その結果、海水成分は浸漬試験の前後で大きな変動は 確認されず、被覆管成分については定量下限未満であり 溶出は認められませんでした。FP 成分については、溶液 中にCs、Cd、Mo等が検出されました。ORIGEN2を用 いた燃焼計算および照射後試験結果をもとに燃料ペレッ ト中の各核種量を評価し、浸漬試験後の溶液中で測定さ れた値と比較することにより溶出率を算出した結果、大 部分の FP が燃料ペレット中に残存していることがわか り、Cs、Cd及びMoの溶出率は、それぞれ約3%、約4% 及び約0.2%と評価されました。また、溶出した FP の量 は浸漬時間によらず、ほぼ一定の値を示しました。一方、 燃料由来成分については、U、Pu 及びAm がわずかに検 出されました。これらの FP 成分及び燃料成分の溶出挙 動は、地下水を想定した溶液に高燃焼度燃料を浸漬させ た試験結果と類似する傾向を示し、燃料の結晶粒界や燃 料と被覆管のギャップ部に存在する FP 組成が海水中へ 移行したものと推測されました。これらの結果は、今後 実施する人工海水中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。

《参考文献》 ・ 中野純一ら、ガンマ線照射希釈海水中における原子炉容器鋼の腐食試験(1)、日本原子力学会 2013 年秋の年会 L19 ・ 田中康介、山下真一郎ら、照射済燃料を浸漬させた人工海水の組成分析、日本原子力学会 2013 年秋の年会 L20 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 モルタル浸漬試験の概要

再処理工程へ使用済燃料とともにガレキが移行することを想定し、モルタルの硝酸への溶解性について確認しました。



### 図3 不純物の抽出試験の概要

再処理工程では使用済燃料の溶解液を有機溶媒(油)と接触させ、有用な ウランとプルトニウムのみ有機溶媒側に抽出します。このため海水成分等 の不純物が有機溶媒側へ移行しないか確認しました。

1F1から4のSFPに貯蔵されている燃料集合体のうち、 1F2~4のものについては海水に曝されており、1F1、3、 4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、使用済燃料 プール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を整 備することを目的としています。

損傷燃料等を再処理施設で取り扱う場合の課題として、 燃料集合体の受入・貯蔵を行う工程等における損傷や強 度が低下した燃料集合体のハンドリング、海水成分やコ ンクリート成分等の不純物による機器への腐食影響、ウ ラン・プルトニウム製品への影響、液体廃棄物の廃棄体 への影響が挙げられます。

これらの影響の把握のため、以下の評価を実施してい ます。

### (1) 不純物の工程内挙動評価

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



#### 図2 各元素の溶解率

モルタルの主成分のうち、ケイ素以外の硝酸への溶解率は約70% であり、使用済燃料の溶解液に移行する可能性が高いことを確認 しました。



図4 各元素の分配比

不純物の分配比(有機相/水相)は非常に小さく、不純物がウランやプルトニウムとともに有機溶媒に抽出される可能性が低いことを確認しました。

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。

このため、まず、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、モルタルの硝酸への溶解試験 を実施し、溶解率を調べました(図 1)。沸騰状態の 3mol/L 硝酸にモルタルを4時間浸漬したところ、約20% が溶解しました。また、元素毎に見ると、モルタルの大 部分を占める Si の溶解率は約3%と低いですが、その他 の Ca 等については70%以上が溶解することがわかりま した(図 2)。

コンクリート成分についても海水成分とともに抽出工 程へ移行することがわかったことから、これらの不純物 の工程内の移行挙動を把握するため、溶媒抽出試験を実 施し、不純物成分の有機相/水相の分配比を調べました(図 3)。人工海水及びモルタルの硝酸溶解液について溶媒

(30%TBP・n・ドデカン)による抽出操作を行い、有機 相と水相中の不純物量より分配比を求めました。その結 果、不純物成分の分配比は 10<sup>3</sup>オーダー以下であり、文 献値と同様に低い値であることが確認できました(図 4)。

これにより、分離工程からウラン・プルトニウム製品 系へ不純物が有意に移行する可能性は低く、不純物の影 響の検討が必要な工程の絞込みができると考えられます (図 5)。今後、不純物によるウラン・プルトニウム抽出 への影響、核分裂生成物が共存した場合の影響等を確認 するための試験を行う予定です。


溶媒抽出試験で不純物成分の分配比が充分低いことが確認できたことから、今後は図の左半分の工程を中心に影響を検討します。

 $(A c m^2)$ 

電流密度



図6 浸漬試験装置の概要

再処理機器の材料を人工海水等の不純物を添加した溶液に長期 間浸漬し、腐食速度や孔食の発生について確認しました。



図8 浸漬試験結果の例(SUS316L、人工海水、浸漬時間960h) SUS316Lを硝酸1~5mol/L,人工海水(塩化物イオン濃度 0.1%~2%),65°Cで浸漬した場合、塩化物イオン濃度の増加によ る腐食速度の増加が認められました。

#### (2) 不純物による腐食影響評価

再処理施設の機器は、腐食環境に応じ、ジルコニウム や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 む不純物を伴うと考えられ、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。

このため、不純物が移行する可能性の高い代表的な機器の材料について、硝酸に塩化ナトリウムや人工海水等を添加した模擬液を用い、浸漬試験及び電気化学試験による腐食影響評価を実施しています(図 6、図 7)。

ジルコニウム及び R-SUS310Nb は沸騰状態の硝酸溶 液を取り扱い腐食環境の厳しい機器である使用済燃料の 溶解槽等に使用される材料です。これらの材料について 溶解槽の環境を模擬した試験を行った結果、どちらの材 料についても塩化物による腐食速度の増加や孔食の発生 は確認されませんでした。

SUS316L は常温の溶液を取り扱い腐食環境は比較的 緩和な機器である高放射性廃液貯槽等に使用される材料 です。高放射性廃液貯槽の環境を模擬した試験を行った



#### 図7 電気化学試験装置の概要

再処理機器の材料を電極として模擬溶液に浸漬し、不純物の電気 化学的な影響に関するデータを採取しました。



図9 電気化学試験の例(SUS316L、人工海水、分極速度 20mV/min) SUS316Lを硝酸 3mol/L,人工海水(塩化物イオン濃度 0.1%~ 2%),65℃で浸漬した場合、硝酸のみの場合よりも電流密度の上 昇が認められました。

結果、孔食の発生は確認されませんでしたが、塩化物に よる腐食速度の増加が確認されました(図 8)。また、電 気化学試験において、塩化物による腐食速度の増加の裏 付けとなる電流密度の上昇が確認されました(図 9)。但 し、今回の試験では塩化物の影響の把握のため、塩化物 イオン濃度の高い溶液で試験を行っており、推定される 実際の不純物量での影響は小さいと考えられます。

今回の試験の一部において塩化物の影響が確認されて おり、今後、他の機器の材料・環境の試験を行うほか、 核分裂生成物が共存した場合の影響、放射線の影響等を 確認するための試験を行う予定です。

使用済燃料プール内の使用済燃料の状態は、2013年11 月に予定されている1F4の取り出し開始以降、その詳細 が明らかになると考えられます。本件でもそれらの情報 を反映しつつ、将来の処理・保管方法の決定に向け、損 傷燃料等の再処理時の影響の検討を継続します。

# IV. 研究開発拠点施設の整備

## 5 研究開発拠点施設の整備

# 研究開発拠点施設の整備

―モックアップ試験施設及び放射性物質の分析・研究施設-

福島技術本部 福島廃炉技術安全研究所 河村 弘



図 1 研究開発拠点施設の目指すべきもの

モックアップ試験施設及び放射性物質の分析施設から構成される研究開発拠点施設について、目指すべきも及び施設整備に関する基本的考え方を整理し、これに基づき、施設整備を進めています。

東京電力㈱福島第一原子力発電所(1F)1~4号機の廃 止措置等に向けた研究開発に関し、経済産業省から原子 力機構へ平成24年度補正予算850億円が出資され、第1 回東京電力福島第一原子力発電所廃炉対策推進会議(平 成25年3月7日)において、候補地の選定を含む研究開 発拠点の基本的考え方が示されました。

これに基づき、放射性物質の分析・研究施設及び遠隔 操作機器・装置実証施設(モックアップ試験施設)を整 備し、1Fの廃止措置に向けた研究開発を遂行するため、 原子力機構に福島廃炉技術安全研究所が発足(平成25年 4月1日)しました。なお、モックアップ試験施設及び 放射性物質の分析・研究施設から構成される研究開発拠 点施設は、図1に示す考え方に従って、整備を進めてい ます。

これらの施設の整備についてのこれまでの進捗等は次の通りです。

#### (1) モックアップ試験施設の整備

モックアップ試験施設は、1Fへの対応を含む原子力施 設の廃止措置に向けた研究開発を着実に実施するととも に、災害対応ロボット等に関する技術基盤を確立するた めに整備するものです。

この施設の立地場所については、福島県楢葉町楢葉南 工業団地内に整備することが、第4回廃炉対策推進会議 (平成25年5月22日)において決定されました。 本施設は、1Fの格納容器下部からの漏洩部の補修、原 子炉施設解体等を行うエリア、遠隔操作機器等の研究・ 開発を行うエリア及び共用エリアから構成されます。そ して、次に示す試験等を実施することを想定しています。

- ① 1Fの格納容器下部の調査・補修、格納容器内部の 調査のための機器・装置の研究開発を推進するため の遠隔操作機器等の開発実証試験。
- ② 1F 関連ロボットの実証試験計画を明らかにした上での災害対応ロボット等に関する技術基盤確立のための開発実証試験。
- ③遠隔操作機器・装置に係る作業者の訓練。

また、1Fの廃止措置及び遠隔操作機器・装置等の研究 開発を確実に推進するために必要な人材を育成するため、 3D 画像等を用いた訓練用シミュレータ等を活用した研 修・訓練をできるようにする予定です。

現在、本施設の基本設計を取りまとめると共に、格納 容器下部の補修や遠隔操作機器のための設備の検討、作 業者の訓練設備の検討、施設の利用計画の検討を実施し ています(図2)。



a)モックアップ試験施設

b)放射性物質の分析・研究施設

#### 図2研究開発拠点施設整備に関する平成25年度の活動計画

研究開発拠点施設の整備に関する平成25年度の活動として、モックアップ試験施設については、基本設計の確認、遠隔操作機器のための設備検討等を行い、整備する施設の概要のとりまとめを行い、放射性物質の分析・研究施設については、概念検討を実施いたします。

#### (2) 放射性物質の分析・研究施設の整備

本施設は、放射性物質の分析・研究に関する技術基盤 を確立するとともに、1Fの廃炉に向けた研究開発を着実 に実施するために整備するものです。

本施設は、1Fの廃止措置に必要な定常的な分析データ を取得するための分析エリア及び放射性物質の処理・処 分に関する研究開発を行う研究エリアから構成される予 定です。そして、次に示す分析、技術開発等を実施する 計画です。

- ①ガレキ等、放射性廃棄物の性状把握のための分析。
- ② 燃料デブリ等の性状把握や放射性物質の分析。
- ③ 放射性物質の分析、ガレキ等の放射性物質の処理・ 処分等に必要な技術開発。
- ④ 事故進展挙動の解明に関する研究開発等。

平成25年度は概念検討を実施しており、1Fの廃止措置のために必要な本施設を利用する研究開発ニーズの整理を行い、必要な設備、装置等の検討を実施します(図2)。 さらに、海外のホットラボの調査も行い、具体的な施設の規模や施設内のセル、グローブボックス等の配置等を検討していきます。また、本施設に必要な原子炉等規制法に基づく許認可取得方策の検討も開始します。

#### (3) 魅力ある国際的な研究拠点を目指して

研究開発拠点施設の運用開始後は、東京電力㈱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(平成25年6月27日改訂)に従った研究 開発等を進めていきます。また一方で、原子力機構の「施 設供用制度」のもとで広く研究課題を募集し、国内外の 研究者が利用しやすい施設運営を目指していきます。

また、研究開発拠点施設の整備に当たっては、関連す る研究者のみならず、国内外の幅広い専門分野の研究者 が知見を持ち寄り、研究開発が実施できる体制を構築し ていきます。

さらに、原子力施設の廃止措置等に関する研究開発成 果の発信基地として、原子力機構独自の研究成果や照射 後試験技術を活用するとともに国内外の英知を結集した 新たな研究課題への挑戦、技術者等の育成等を行う等、 国内外の原子力発電所の安全性向上にも役立つ国際的な 研究開発拠点を目指していきます。

#### (4) まとめ

研究開発拠点施設の整備にあたっては、中長期ロード マップを念頭に置いて、整備を進めていきます。平成25 年度は、次の内容を実施しています。

- モックアップ試験施設については、今後、必要な 機能等の検討を行い、実施設計に反映させる。
- ② 放射性物質の分析・研究施設については、概念検討 を行いながら、施設の機能、規模、許認可取得方策 等の検討を行い、詳細設計に反映させる。

また、魅力的な研究開発拠点を目指して、国内外の英 知を結集するための方策を具体化し、国際的利用の促進 を図っていきます。

《参考文献》	• H. Kawamura, et. al. "JAEAACTIVIVITIES TOWARD CONSTRUCTION OF ADVANCED RESEARCH
	FACILITIES TO ACCERARATE DECOMMISSIONING OF TEPCO'S FUKUSHIMA DAIICHI NUCLEAR
	POWER STATION", 6th ISMTR, Oct. 28-31, 2013.
	・ 有井 祥夫, "東電福島第一原子力発電所の廃炉技術開発に係る試験施設の整備状況" , 第26回原子力施設デコミ
	ッショニング技術講座、Oct. 28, 2013.
	・ 河村 弘, "福島県楢葉町における遠隔操作機器等の開発・実証施設整備構想",東京電力福島第一原子力発電所の
	廃炉に向けた研究開発と <u>基盤</u> 研究に関するワークショップ, Oct. 8, 2013.

### 東京電力㈱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

#### 2013年版

発 行 2013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