平成29年度補正予算

廃炉・汚染水対策事業補助金に係る補助事業 (燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発)

2019年度実施分成果報告

2020年9月 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構 (IRID)



目 次

- 1. 研究の背景・目的
- 2. 目標
- 3. 実施項目とその関連、他研究との関連
- 4. 実施スケジュール
- 5. 実施体制
- 6. 実施内容



1. 研究の背景・目的 研究の背景

福島第一原子力発電所(1F)事故後、スリーマイル島原子力発電所2号機(TMI-2)事故 情報、シビアアクシデント(SA)研究情報等の知見および1F事故情報の調査、整理

✓ TMI-2事故事例や海外のSA研究では沸騰水型原子炉(BWR)に関する知見が少ない。
 ✓ 海水影響や溶融炉心・コンクリート反応等の1F特有事象に関する燃料デブリ情報が少ない。

- 廃炉(取り出し、臨界管理、収納・移送・保管、計量管理、最終的取扱)を安全・着実、かつ
 迅速に実施するためには、廃炉作業の技術開発に利用できる燃料デブリ情報の整理とその拡充 が必要である。
- これまでは、既存の国内外の知見や模擬物質等を用いた研究開発を基に燃料デブリ情報を推定してきたが、2021年内に燃料デブリの試験的な取り出しが開始され、今後は実際の燃料デブリから情報が得られる見込みである。
- 初期に得られる燃料デブリ試料は量的な観点や採取場所的な観点において極めて限定的であり、 、そこからから如何にして有効な情報を引き出すかが、今後の廃炉作業を進めていくにあたり重要である。
- 1 Fの格納容器の内部調査において採取された堆積物や調査装置の付着物などの分析を行った結果、ウランを含有する微粒子が検出され、このウラン含有微粒子を詳細に調べることによって、 燃料デブリの性状を推定できることがわかってきた。



1. 研究の背景・目的 (1)燃料デブリ性状の推定の分析に必要な技術開発等



1.研究の背景・目的

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

2021年より初号機の燃料デブリ取り出しが開始される。初期は小規模であると想定されるが、徐々に規模を 拡大し燃料デブリの取り出し作業が行われていくものと考えられる。 5

本格的な燃料デブリの取り出し作業において、多量の燃料デブリを扱う際に発生する微粒子によって、作業環境が悪化したり、閉じ込め対策が十分ではなく環境へ漏えいしたりすることで作業員や一般公衆の被ばく量が著しく増加するリスクがある。

適切な閉じ込め方法や、作業環境管理の方法を検討するにあたり、燃料デブリを由来とする微粒子の挙動を 推定することが重要である。



2. 目標

(1)燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

"廃炉に向けたロードマップ"と本課題の関係



IRID

2. 目標

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発 "廃炉に向けたロードマップ"と本課題の関係

年度	~2018	2019-2020	2021	2022~
情報利用側PJ・ 東電HD㈱	技術開	<mark>]発/装置設計</mark> ・製作	△初号	取り出し作業等実施 ^{規模の拡大}
本課題 (燃料デブリ 微粒子挙動の 推定技術の開発)	前事業	発生挙動、微粒子特性 に関する知見 微粒子特性・移行挙動 移行挙動に関する知見	か一般化	閉じ込め・安全設計に反映



3. 実施項目と他事業との関連 (2019~2020年度)



※1事業開始時の事業名称は「燃料デブリ・炉内構造物の取り出しに向けたサンプリング技術の開発」であるが、廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議(第75回)において公開された 2020年度廃炉研究開発計画に合わせ、「燃料デブリの段階的に規模を拡大した取り出し技術の開発」と変更した。 ※2事業開始時の事業名称は「燃料デブリ・炉内構造物の取り出しに向けた技術の開発」であるが、廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議(第75回)において公開された2020年度廃 炉研究開発計画に合わせ、「燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けた技術の開発」と変更した。

4. 実施スケジュール (2019年度) (その1)

3月末時点





黒:計画 赤:実績

4. 実施スケジュール (2019年度) (その2)

3月末時点



IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning



*PreADES:燃料デブリの分析に関する予備的研究(Preparatory Study on Analysis of Fuel Debris)



6. 実施内容

2019年度実施成果について

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

- ① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討
- ② 燃料デブリの性状推定の高度化
- ③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

- ① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動
 - ①-1. ウラン含有模擬デブリを用いた粒子生成に関する大型試験
 - ①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験
 - ①-3.国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査【RANDEC】
- ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 【東大】 (2019~2020年度)
 - ②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価
 - ②-2. 液相における微粒子挙動評価



内部調査時の炉内付着物、堆積物サンプル 少量サンプリング試料 (燃料デブリサンプリング) b.分析効率化の検討 【2019年度】 【2020年度】 【2019年度】 13

② 燃料デブリの性状推定の高度化

①の結果等に基づく専門家会議による領域ごとの燃料デブリの特性の評価、及び領域ごとの「燃料デブリ特性リスト」の改訂。 【2019年度、2020年度】

③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

①b.で実施する燃料デブリサンプルの分析項目について、OECD/NEAにおける国際会 議の知見も取り込んだ専門家会議によるレビュー。

【2019年度】

注)下線部については関連性が高いため、まとめて報告(→46-50ページ)





① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

2019年度計画

- 1. 燃料デブリサンプル等の分析
- > 以下のサンプルを大洗地区ホットラボに輸送し、破壊・非破壊分析を実施(右図)
 - a. 2018年度下期に実施した2号機調査時のPCV挿入装置のスミアサンプル
 - b. 2019年上期に実施予定の1号機内部調査にて採取される堆積物サンプル
 - c. 昨年度までの輸送済みサンプルによる追加分析(分析法確認、難溶物の分析等)
- > 分析結果の系統的な整理
 - i. サンプル中の測定部位ごとのデータ(組成、元素マップ)をリスト化
 - ii. U:Zr比、(U+Zr):Fe比、各種FPのU濃度に対する規格化、など

2. 分析効率化の検討

燃料デブリの最初の試験的取り出しサンプルに対する、効率的な分析方法について、 NDFや東電HDなど関係者の意見を聴取、ケーススタディを実施。(検討結果について は49、50ページ)





©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 -2019年度実績-

1. 燃料デブリサンプル等の分析

- ▶大洗地区ホットラボで、以下の破壊・非破壊分析を実施
 - a. 2018年度下期に実施した2号機調査時のPCV挿入装置のスミアサンプル(一部実施#1)
 - b. 2019年度上期に実施予定の1号機内部調査にて採取される堆積物サンプル(未実施#2)
 - c. 昨年度までの輸送済みサンプルによる追加分析(分析法確認、難溶物の分析等)
 - ・2号機オペフロ養生シートの難溶物のSEM/EDX分析(実施)、1,2号機のPCV内部サンプル難溶物のアルカリ融解処理及び分析(未実施#3)
 - ・コールド試験によるGd分離法の確認(実施)
 - d. 追加試料の分析(東電の要望に基づいて新たに実施)
 - ・1号機 X-2ペネ堆積物除去治具スミア、オペフロウェルプラグスミア
 - ・2号機 トーラス室内滞留水ろ過物ろ紙
 - ・3号機 トーラス室内滞留水ろ過物ろ紙
 - e. U同位体比に関する分析精度の確認、Gd分離法の確認(実施)

▶ 分析結果の系統的な整理

- i. サンプル中の測定部位ごとのデータ(組成、元素マップ)をリスト化
- ii. U:Zr比、(U+Zr):Fe比、各種FPのU濃度に対する規格化

#1サンプル搬入時期が遅れたため #21号機内部調査が実施されなかったため #3トラブルの水平展開によりセル・グローブ ボックスの作業再開が遅れたため



(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

試料の採取位置と分析内容(2019年度当初の計画)

●:2017・2018年度分析実施済み ○:2019年度分析実施 * 17

			1号機				2두	号機			3号機
		PCV内 PCV9		PCV外	PCV内				PCV内		
分析 施設	測定項目	D/W泥 状サンフ ル	D/W堆積 物サンプル	エアロック 室サンプル	CRD交 換レール 領域調査 時付着物 サンプル	ペデスタル 内調査時 付着物サン プル	PCV内 調査時 付着物 サンプル	TIP付着 サンプル	オペフロ養 生シート	オペフロ側 壁コンク リート及び 周辺スミ アサンプル	ペデスタル 内調査時 付着物サ ンプル
	イメージプレート		0		•		0	●	•	•	
	FE-SEM(全体像)		0		•		0	•	•	•	
	a核種分析		0	•	•		0	•	•		•
	γ核種分析		0				0	•			
	ICP-MS(硝酸溶液)										
	ICP-MS(アルカリ融解)		0	I			0				
	FE-SEM (U含有粒子)	•	0	1		●	0		•		•
NFD**	TEM-EDX <u>(FIB調整^{***}後)</u>	•	0			●	0		•		•
	ICP-MS(王水他)		0				0				
₩D/	W堆積物の化学特性や	会右 約	オン生の特	性を分析	1. 2 至	と 構PCV内の	り卑たる	位置の土	いプルを	分析」	従 中デー

1号機D/W堆積物の化学特性や含有U粒子等の特性を分析し、 従来データと比較・検討することで、1号機D/W堆積物の 平均的特性とばらつきを評価する。 2号機PCV内の異なる位置のサンプルを分析し、従来デー タと比較・検討することで、サンプル代表性や多様性の 知見を得て2号機燃料デブリの特性把握を進める。

*2018年度までの分析実施済みサンプルについても追加分析が有効な場合は分析実施

**NFD:日本核燃料開発株式会社

***FIB調整: Focused Ion Beamにより試料の断面を露出させる

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

●:2017・2018年度分析実施済み ○:2019年度分析実施*

18

■:2020年度に実施予定

試料の採取位置と分析内容(2019年度の実績その1)

		1号機				2号機						
		PCV内 PCV外		PCV外	PCV内				PCV内			
分析 施設	測定項目	D/W泥' 状サンプ ル	D/W堆積 物サンプル	エアロック 室サンプル	CRD交 換レール 領域調査 時付着物 サンプル	ペデスタル 内調査時 付着物サン プル	PCV内 調査時 付着物 サンプル	TIP付着 サンプル	オペフロ養 生シート	オペフロ側 壁コンク リート及び 周辺スミ アサンプル	ペデスタル 内調査時 付着物サ ンプル	
	イメージプレート						0			•		
	FE-SEM(全体像)						0		•	•		
	a核種分析			•			0	●	●			
	γ核種分析						0	●				
	ICP-MS(硝酸溶液)							\bullet				
	ICP-MS(アルカリ融解)											
	FE-SEM		_									
	(U含有粒子)											
NFD**	TEM-EDX <u>(FIB調整^{***}後)</u>	•	-			●			•		•	
	ICP-MS(王水他)											
1号機堆積物サン プルは未実施 (2020年度)						巻PCV内の 比較・検 と得て2号 カリ溶融 輸送実施 れたこと	異なる る す 数 ず 燃 料 ひ の が が い FD に よ り 次	2置のサン ことで、サ デブリの での分析 [整に時間 2年度に総	✓プルを分 ↓ンプル代 特性把握 は1Fにま ↓を要し、 ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓	▶析し、従 表性や多 を進める Sける試料 試料の搬	É来デー S様性の 。 Aの集約 吸入時期	



(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

試料の採取位置と分析内容(2019年度の実績その2)

●:2017・2018年度分析実施済み ○:2019年度分析実施*

		1号機				2号機							}機
		PCV内		PCV外		PC\	/内	PCV外				PCV内	
分析 施設	測定項目	D/W泥 状サンプ ル	エアロッ ク室サン プル	X-2ペネ 堆積物 除去治具 スミア サンプル	オペフロウ エルプラグ スミアサン プル	CRD交換 レール領域 調査時 付着物 サンプル	ペデスタル 内 調査時 付着物サ ンプル	TIP付着 サンプル	オペフロ 養生シー ト	オペフロ側 壁コンク リート及び 周辺スミア サンプル	2号機 滞留御 ろ留物 ろ の プル	ペデスタ ル内調 査 村 サンプル	3号機 滞留水 ろ留物 ろ紙 サンプル
	イメージプレート			0	0	●	•		●		0		\bigcirc
	FE-SEM(全体像)			0	0	•					0		0
	a核種分析				0						0		\bigcirc
JAEA	γ核種分析				0	●					\bigcirc		\bigcirc
	ICP-MS(硝酸溶液)			0	0				•		\bigcirc		\bigcirc
	ICP-MS(アルカリ融 解)								201	9年度			
	FE-SEM (U含有粒子)	•		0	0		•				0	•	0
NFD ^{**}	TEM-EDX (FIB調整 ^{***} 後)	•		0	0		•		•		0	•	0
	ICP-MS(王水 他)										0		0
1号機 したす し、1 リ性料	1号機D/Wに近接した箇所の堆積物とPCV内の雰囲気が通過 した可能性がある個所(アクセスルート)の試料を分析 し、従来データと比較・検討することで、1号機燃料デブ リ性状の特性把握を進める。 2号機、3号機の高線量の滞留水のろ過物を分析し、従来 データと比較・検討することで、サンプル代表性や多様 性の知見を得て2号機、3号機燃料デブリの特性把握を進 める。比較のため従来サンプルの詳細分析を実施する。												

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 20 1Fサンプルの分析ニーズ ○ 廃炉関連の他のPJからの燃料デブリ分析へのニーズ[#] 燃料デブリ取り出し・・・ 燃料デブリ分布・物量、侵食範囲、化学特性#、機械特性、熱特性、線量・発熱 高温反応性#、乾燥特性、水素発生特性、装置検証・モックアップ# • 計量管理・保障措置・・・燃料デブリ中のU,Pu濃度、UとPuの同位体組成 臨界管理・・・ UとPuの帯同性、UとGdの帯同性、Fe, Crの混合率、 燃料デブリ中のGd, Fe, Cr濃度と分布、Gd-155濃度、U同位体組成、 (Pu+Am-241)/U組成、Cm-244濃度 1F堆積物サンプルから、現有施設 で取得可能なデータを青字で、本 線量評価・・・ Cs-137線量(濃度)、Sr-90線量(濃度) 事業での分析項目を下線で示す。 • 収納·移送·保管··· 臨界管理に係る項目(上述) 腐食・長期安定性に係る項目(燃料デブリ化学形#、塩素濃度) 水素発生に係る項目(気孔率、含水率、塩素濃度) 燃料デブリ物量の指標(Eu-154の物量及びU帯同性) 廃棄物・・・ 地層処分安全評価に係る38核種インベントリ O分析データの信頼性、サンプル代表性の観点でのニーズ(JAEA内及びタスクフォースでの議論) • 分析データの信頼性・・・ 溶解技術、不溶解成分の分析、軽元素分析、干渉元素・核種、 検出限界・闘条件、誤差評価 # メカニズムの理解により、一部評価 が可能となる項目を緑字で示す。 サンプル代表性・・・ 燃料デブリ形成メカニズムの理解 (メカニズム理解によりサンプル代表性の不確かさを減らせる可能性)

〇 事故進展解析·炉内状況把握

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

1Fサンプル分析データの評価について(2019年度)

O 燃料デブリに係る知見のアップデート

- 1F建屋内部観察や、炉内状況把握の解析等により、1F燃料デブリの特性は、TMI-2燃料デブリ 等の従来知見と予想以上に異なることがわかってきた。
 - > 号機・領域ごとに、多様な特性を有する物質(酸化物、金属・合金、化合物、等)が異 なった状態で混在
- 従って、分析ニーズ(前ページ)に対応させ、号機・領域ごとに、分析データの信頼性やサンプルの 代表性を考慮しつつ、分析データの評価を進める必要がある。

○ 分析の進め方

- <u>前ページのニーズに対応しつつ、少量のサンプルでも実施可能な分析項目を優先</u>する(特に、燃料 デブリの知見にシームレスにつながっていると見込まれるU粒子に着目した分析に関して)。
- サンプル溶解条件、分析精度(データの信頼性)、闘条件・検出限界、干渉元素・核種、誤差評価、等の課題を抽出し、燃料デブリ分析に向けた分析環境を整備する。
- ・サンプル代表性に係る知見が得られる可能性がある、

 <u>し粒子形成メカニズム</u>に係る知見を取得する。
- さらに、得られた分析結果を既往知見と照らし合わせて系統的に整理し、事業者が活用しやすい形式で、号機・領域ごとに、「高度化燃料デブリ特性リスト」に集約する。

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

分析のねらいと分析結果の活用の概要

	試料採集部位	分析のねらい	分析結果の活用	関連頁
1 - 四 榔	オペフロプラグスミア	I. aダストの物量・建屋内分布 II. U含有粒子の特性(Pu帯同性、U同位体比、 化学特性) III. 2号機オペフロサンプルとの比較	I. 燃料デブリ取出し(線量・発熱、リスク)、廃棄物 II. 臨界管理、燃料デブリ取出し(化学特性、リスク) III. 事故進展解析・炉内状況把握	23 24
1	X-2ペネ堆積物スミア	I. U粒子分布・特性のPCV内の場所による相違 の確認 II. U含有粒子の特性(同上)、形成メカニズム、 副成分の特性	I. 燃料デブリ取出し(燃料デブリ分布・物量、化学特 性、リスク)、サンプル代表性 II. 燃料デブリ取出し(燃料デブリ分布・物量、線量・ 発熱、リスク)、廃棄物	25 26
	オペフロ養生シート上 (H30サンプル追加分析)	 I. U含有粒子の多様性確認 II. 事故シナリオがデブリ特性に与える影響の 推定 (H30年度に同定した4群のU粒子のうち未分析 の2群を分析) III. 硝酸難溶融物の分析方法の検討 	I. 燃料デブリ取出し(燃料デブリ分布・物量) II. 事故進展解析・炉内状況把握 III. 分析データの信頼性	28 29
2 号機	内部調査装置シーリン グスミア	I. 内部調査装置本体のスミアとの比較 II. サンプル特性のバラつき確認	I.II. 燃料デブリ取出し(燃料デブリ分布・物量、化学 特性、リスク)、サンプル代表性	30
	トーラス室内滞留水ろ 過物	I. PCVサンプル、オペフロサンプルとの比較 (特性のバラつき確認) II. デブリ・構造材の腐食に係る知見	I. 燃料デブリ取出し(燃料デブリ分布・物量(トーラ ス堆積物について)、線量・発熱)、長期安定性、廃 棄物 II. 長期安定性、燃料デブリ取出し(リスク)	31 32 36
3 号機	内部調査装置スミア (H30サンプル追加分析)	I.3号機サンプルに固有の粗密構造を有するU 含有粒子の詳細分析 II.デブリ形成メカニズムの検討、金属相形成 可能性の検討 III.1,2号機との比較	I.II. 燃料デブリ取出し(燃料デブリ分布・物量、線 量・発熱、化学特性、リスク)、臨界管理 III. 事故進展解析・炉内状況把握	33 34
う	トーラス室内滞留水ろ 過物	I. PCVサンプル、オペフロサンプルとの比較 (特性のバラつき確認) II. デブリ・構造材の腐食に係る知見 III. 2号機との比較	I. 燃料デブリ取出し(燃料デブリ分布・物量(トーラ ス堆積物について)、線量・発熱)、長期安定性、廃 棄物 II. 長期安定性、燃料デブリ取出し(リスク) III.事故進展解析・炉内状況把握	35 36

 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 サンプルの概要と分析目的(1号機:オペフロウェルプラグスミア)
 〇サンプルの概要







スミアサンプル外観 イメージングプレート像 (露出30秒)

 ・U粒子密度(FE-SEM/WDX):約1個/cm²
 ・主な検出成分(ICP-MS):Fe, Cr(構造材), Pb, Zn(塗料), Te, Mo, Cs, Ba, Sr, Sb(FP), 微量U

・線量: Cs-137に起因する高線量を検出

○ 分析のねらい

- ・U粒子のPCVからオペフロ移行経路 ロダストの建屋内分布に係る知見【燃料デブリ取り出し、線量】
- ・U粒子・構造材の組成、U/Pu帯同性、形成メカニズム 燃料デブリ化学特性に係る知見【燃料デブリ取り出し】 U/Pu帯同性、同位体組成【臨界管理、計量管理】 最高到達温度予測、燃料デブリの相状態【燃料デブリ取り出し、リスク】
- ・2号機オペフロサンプルとの比較

事故シナリオの違いが燃料デブリ特性に与える影響 1号機:高温溶融状態(2500℃以上)からの徐冷 2号機:固液混合状態(2000-2300℃程度)からの急冷 【燃料デブリ取り出し、リスク、事故進展解析】



- □ U粒子の特性(FE-SEM/WDX)・・数µmサイズのU粒子を検出(約1個/cm²)。UとPu帯同を確認。周囲に 構造材成分、塗料成分が別相を形成。U同位体比を概略評価(後述)。Zrは検出限界レベル(低蒸気圧のZrO₂ のみ移送されなかった可能性)
- □ 2号機オペフロサンプルとの比較(TEM)
 - 1号機(2019): Zrを含有しないU-Fe-O液相から、徐冷して析出と推定
 - 2号機(2018): Zr濃度の異なる4種類のU粒子を確認、それぞれ<u>急冷して析出</u>と推定
- □ U粒子移行経路(分析結果からの考察)・・1,2号機で異なる可能性。U粒子の最高到達温度が異なる可能性。
- □ 燃料デブリ形成メカニズム(同上)・・1,2号機で燃料デブリの溶融・凝固パスが異なる可能性。燃料デブリの化学的特性、機械的特性、高温反応性、水素発生特性、取扱いリスク、等に影響する可能性。
 - → 酸化物系の燃料デブリの諸特性が相違する可能性

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

〔① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 サンプルの概要と分析目的(1号機:X-2ペネ堆積物スミア)

○ サンプルの概要







25

- スミアサンプル外観 イメージングプレート像(露出60分)
- •U粒子量(FE-SEM/WDX):約0~2個/cm²
- 主な検出成分(ICP-MS): Fe, Cr(構造材), Pb, Zn(塗料), Ba, Sr, Sb(FP), 微量U
- ・線量:汚れ部にピンポイントで高線量部分を検出

○ 分析のねらい

- PCV内サンプルの類似性(D/W泥状堆積物との比較)
 U粒子やマトリックス成分のばらつき【代表性、燃料デブリ分布】
 aダストの建屋内分布に係る知見【燃料デブリ取り出し】
- U粒子の組成、U/Pu帯同性、形成メカニズム デブリ化学特性に係る知見【燃料デブリ取り出し】 U/Pu帯同性、同位体組成【臨界管理、計量管理】 最高到達温度予測、燃料デブリの相状態【燃料デブリ取り出し】
- ・ 副成分:ペイント材(Zn)や構造材に係る知見

 副成分の相状態(燃料デブリ特性に係る知見が得られる可能性)
 【燃料デブリ取り出し】



(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等





26

- □ U粒子の特性(FE-SEM/EDX)・・数µmサイズのU粒子を検出。UとPu帯同。周囲に構造材成分が別層形成 (Fe, CrとNiの存在部位が異なる⇒鋼材成分のいったん溶融を示唆)
- マトリックス成分(ICP-MS)・・鋼材成分, Si, その他軽元素(Al, Ca, Na, Mg, etc.)
- □ D/W泥状サンプルとの比較(TEM)

 X-2ペネ(2019): 低温相(単斜晶ZrO₂)を検出、<u>U-Zr-Fe-O液相からの徐冷</u>の可能性 D/W泥(2018): 低温相(a-Zr(O))を検出、<u>U-Zr-Fe-O液相からの徐冷</u>の可能性
 → 堆積位置によって、燃料デブリ酸化度が異なる【化学特性、機械特性、リスク等に影響する可能性】
 ■ 形成メカニズム(考察)・・事故過程での、燃料デブリの徐冷を示唆 ⇒相分離、成分偏析





① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

サンプルの概要と分析目的(2号機:オペフロ養生シートサンプル)



① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

2号機サンプルの分析結果(例:オペフロ養生シートサンプルの追加分析)

TEM分析(2019, d群)

12.4 (U, Zr)O₂+FeCr₂O₄ or Fe₃O₄
FeCr₂O₄

 $(U, Zr)O_2 + FeCr_2O_4 \text{ or } Fe_3O_4$

□ 4群のU粒子の化学的な特徴を同定



2号機オペフロ上でのU粒子(4群)の同定

a群:高温相fct-(Zr, U)O₂, FeCr₂O₄, Fe₃O₄ b群:高温相fcc-(U, Zr, Fe)O₂ c群:高温相fcc-(U, Fe)O₂, FeCr₂O₄, Fe₃O₄ d群:高温相fcc-(U, Zr)O₂, FeCr₂O₄, Fe₃O₄ □ 形成メカニズム(考察)・・U, Zr酸化物は高温相を維持(ただし、複数の高温相形成)、 酸化鉄相(スピネル)が析出

⇒ 酸化鉄固溶により、燃料デブリの化学特性・機械特性が影響を受ける可能性

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

サンプルの概要と分析目的(2号機: PCV内部調査装置シーリングスミア)

○ サンプルの概要







30

スミアサンプル外観 イメージングプレート像 (露出30分)

・U粒子量(FE-SEM/WDX):これまでに検出されていない

- 主な検出成分(ICP-MS): Fe, Cr(構造材), Pb, Zn(塗料), Ba, Sr, Zr, Sb(FP), 微量U
- ・線量:汚れ部にピンポイントで高線量部分を検出

○ 分析のねらい

・PCV内サンプルの類似性

内部調査装置スミアとの比較【サンプル代表性】

バルク成分に大きな相違は見られていない(ICP-MS) U粒子の探索を継続予定(2020年度)

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

サンプルの概要と分析目的(2号機:トーラス室内滞留水ろ過物)



○ サンプルの概要



スミアサンプル外観 イメージングプレート像(露出30秒)

31

- •U粒子量(FE-SEM/WDX):約10~15個/cm²
- 主な検出成分(ICP-MS): Fe(錆), Pb, Zn(塗料), Cs, Sb(FP), 微量U
- ・線量:汚れ部にピンポイントで極めて高い線量部分を検出

○ 分析のねらい

- ・ オペフロサンプル、PCV内サンプルとの特性比較
 - 燃料デブリ特性の多様性に係る知見【燃料デブリ取り出し、代表性】 水相を介した移行メカニズムに係る知見【長期劣化】 aダストの分布に係る知見【燃料デブリ取り出し、リスク】
- ・燃料成分や副成分の特性

燃料デブリや構造材の腐食程度に係る知見【腐食、長期劣化】

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

2号機サンプルの分析結果(例:トーラス室内滞留水ろ過物)

TEM分析(U粒子の一部を切り出し)

32

FE-SEM/WDX分析



ころZr低濃度粒子のみを検出

□ U粒子の特性(FE-SEM/WDX, TEM)・・数µmサイズの2種類のU粒子を検出。UとPu帯同。周囲にFe検出 (錆と推定)

- マトリックス成分 (ICP-MS) ・・鋼材、Si, Zn, Pb, Cs, Sn, Sbなどを検出
- PCV内サンプル、オペフロサンプルとの比較(考察)・・燃料成分と鋼材成分やSiとの混合性が異なる可能性
 → PCV内やオペフロサンプルと形成メカニズムが異なる可能性、化学特性、機械特性が相違する可能性
 その他の知見・・U粒子表面に、腐食の形跡(U(VI)形成)は観測されなかった。
 → 燃料デブリの長期安定性を示唆

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

サンプルの概要と分析目的(3号機: PCV内部調査装置のスミア)

O サンプルの概要 疎な部位 密な部位





<u>B3</u>

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 3号機サンプルの分析結果(例: PCV内部調査装置のスミア)



□ U粒子の特性(TEM)・・追加分析では、α-Zr(O)残留は同定されず、2群の粒子の特性を評価 Zr高濃度粒子: U-Zr-Fe-O液相からの徐冷と推定、<u>燃料デブリの最高到達温度が低い可能性</u>(固液混合) Zr低濃度粒子: U-Fe-O液相からの徐冷の可能性、<u>複数の燃料デブリ形成メカニズム</u>を示唆

□ 他号機サンプルとの比較(考察)・・・3号機で検出されたU粒子は、他号機に比べ、いずれも複雑な構造を持っており、燃料デブリの溶融・移行・凝固過程において、燃料デブリが相・成分分離・多様化した可能性示唆

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

サンプルごとの分析目的について(3号機:トーラス室内滞留水ろ過物) O サンプルの概要







35

スミアサンプル外観 イメージングプレート像(露出30秒)

- U粒子量(FE-SEM/WDX):検出されていない
- 主な検出成分(ICP-MS): Fe(錆), Pb, Zn(塗料), Cs, Sb(FP), 微量U
- ・線量:汚れがろ紙全体に広がり、高線量検出 (2号機滞留水ろ過物より、微粉化されている可能性)

○ 分析のねらい

 オペフロサンプル、PCV内サンプル、2号機サンプルとの特性比較 燃料デブリ特性の多様性に係る知見

【燃料デブリ取り出し、代表性】 水相を介した移行メカニズムに係る知見【長期劣化】 αダストの分布に係る知見【燃料デブリ取り出し、リスク】

燃料成分や副成分の特性
 燃料デブリや構造材の腐食程度に係る知見【腐食、長期劣化】

36

3号機

- U粒子(FE-SEM/WDX): 検出されていない。
 - 有機物or塗料成分とみられる物質にわずかにUが付着
- 主な検出成分(ICP-MS): Fe (錆), Pb, Zn (塗料), Cs, Sb, 微量のU
- U235/(U-235+U-238):0.018(燃料由来)
- 線量:汚れがろ紙全体に広がり、高い線量を検出(微粉が堆積している可能性)
- U粒子の類似性: 2,3号機で異なる可能性

IRID

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

難溶物の分析と溶解処理技術の整備

目的・・・燃料デブリ分析フロー確立に向けた、硝酸難溶物の主成分同定 難溶物溶解技術(アルカリ溶融法以外の技術(王水・フッ酸))のフィージビリティ確認



(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 Gd分離法の確認

背景・・・中性子毒物(Gd)は、ICP-MSでの、希土類元素FP(Ce, Pr, Nd, Sm, Eu等)分析の妨害元素。 目的・・・照射済み燃料からのGd分離技術(既往文献: Bowers et al., 2008)を参考に、適切なイオン交 換樹脂の選定と溶解条件の調整を実施。

38



□ 希土類FP分析精度向上に向けて、妨害元素となるGdの分離法を調査し、これをイオン交換法により、分離できる見通しを得た。
 # 希土類元素の一部、Ndは、燃焼度の指標として使える可能性があり、高精度の分析が求められている。

同じく、Euは、計量管理における燃料デブリ量の指標として使える可能性がある。

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

分析結果の系統的な整理方法(主要成分の組成三角図の活用) SEM/EDX測定で求めた、U:Zr比、(U+Zr):Fe比を組成3角図にプロット



U粒子近傍の主要元素比の3角図



39

1号機オペフロウェルプラグスミアサンプル中の U粒子近傍の主要元素比の3角図

燃料デブリやU粒子において、主要成分の組成比を系統的に整理することで、燃料デブリを分別できる可能性

【U:Zr比】・・・U粒子の溶融・凝固条件(均質高温相の維持 or 低温相に成分・相分離)

【(U+Zr):Fe比】・・・燃料デブリ酸化度(活性金属成分残留の可能性)、燃料と鋼材の混合程度

⇒既往知見(TMI-2燃料デブリなど)との比較にも活用(既往知見のどれと、1Fの多様な燃料デブリのどれが、類似性を 有するか判断することで、機械的特性などある程度大きなサンプルが必要な知見について、既往知見を活用できる可能性)

② 燃料デブリの性状推定の高度化

2019年度計画

・国内専門家によるブレーンストーミング((1)①の成果、1F内部観察、関連文献、等を利用)

- a. 燃料デブリの生成プロセスの評価(1、2号機+3号機についても予備的に実施#)
- b. 号機ごと領域ごとの燃料デブリ・構成材料の破損・堆積状態の推定、燃料デブリ特性の評価

40

c. 「燃料デブリ特性リスト」の改訂、分析ニーズの観点での整理



本事業内でのサンプル分析は予定されていないが、炉内状況推定図などを参考に予備的な検討を実施

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等② 燃料デブリの性状推定の高度化(実施概要)



② 燃料デブリの性状推定の高度化

<u>2019年度の実績</u>

<u>第1回 1F試料評価委員会(2019年7月17日)</u>

- > 1F試料評価委員会の趣旨・進め方の認識共有
- > 関連情報の紹介(燃料デブリ特性リスト、炉内状況推定図、1F試料分析結果、等)
 - ・1Fサンプル分析では、燃料デブリ生成プロセスの評価が重要である。
 - ・燃料デブリ特性リストは、廃炉事業者が利用しやすい形が望ましい。 利用者側と密に連携することが肝要
 - ・固体廃棄物の処理処分PJ等と連携し分析結果の情報共有が必要である。

<u>第2回 1F試料評価委員会(2020年2月25日)</u>

少量の燃料デブリサンプルに適切な分析項目について、国際的な議論も紹介しつつ、技術レビュー・本事業で選定した分析項目は、国際的にも高い重要度を有していると認識されていることを確認した。

タスクフォース(2019年11月20日より不定期に実施)

> 本年度分析サンプル、および、従来サンプルについて、生成メカニズムの着目点を議論

・気相中のCs化学種(Cs₂MoO₄, CsBO2等)は、事故発生時の炉内状況を反映、MoやBにも着目して整理する。

42

・U粒子は微細であっても、その化学状態はシームレスに燃料デブリ形成メカニズム(急冷or徐冷、燃料デブリの多様性、

等)を反映している可能性が高い。U粒子に付随する構造材についても同様である。 少量の燃料デブリサンプルから得られる知見をデブリ取り出しに向けたリスク評価に活用するには、 U粒子形成メカニズムの理解が有効

・化学分析データについては、検出限界、微粉末の混入、不溶解残渣等について、常に留意したデータ整理が必要である。
 ▶ 本年度サンプルの分析データについて、信頼性の確認、データの品質管理を実施

- ・ICP-MS分析、放射線分析における、検出限界、信頼できるデータが得られる閾条件、Np, Pu以上の重元素の評価 方法、等について意見交換し、系統的なデータ整理方法についてとりまとめた。
- ・FE-SEM/WDX、FE-TEM/EDXにおける、測定誤差要因を検討し、次年度実施する、U粒子等の形成メカニズム検討に用いる重要データを選定した。





■SA解析

etc.

■ 線量率

■ 表面付着物



【まとめ】

・燃料デブリ特性リストの改定案を作成した。(2020年度に、高度化リストを使い勝手のよい形式で整理する計画であり、67ページに 参考資料として、とりまとめ形式を示す。)

・2020年度は、判断根拠を充実させ、現状で得られる全ての知見を反映した特性リストを整備すると共に、廃炉事業者との情報交換 を進め、燃料デブリ取り出しリスクの抽出と重要度評価を進める。また、得られた知見の炉内状況推定図への反映を行う。

① b.分析効率化の検討 および ③分析項目に関する専門家会議によるレビュー

これらについては関連性が高いため、下記の順序でまとめて報告(46~50ページ)

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

- b. 分析効率化の検討
 - ・少量の燃料デブリサンプルの分析項目の検討
 - ・ 分析効率化の検討
- ③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力



① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

少量の燃料デブリサンプルの分析項目の検討

背景:燃料デブリに関するJAEA内での検討(補助事業外)

JAEA では、1 Fの廃炉作業を安全かつ着実に進めるニーズの観点から、燃料デブリの取り出しから処理処分に 至る工程管理分析において、その課題と解決のための分析ニーズ、方法をまとめた。【1】

その基本的な考え方に基づき、少量の燃料デブリサンプルを例に、分析にあたっての着眼点の抽出、評価項目、 分析項目について検討を行った。 【1】東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所燃料

検討の条件

】東京電力ホールティンクス(株)福島第一原子力発電所燃[;] デブリ等分析について、 JAEA-Review 2020-004

- > 初期に想定される少量の燃料デブリ取り出しの場合を対象に分析項目の検討を実施
 - ・ 少量の取り出し燃料デブリの輸送はA 型輸送と想定
 - ・ A 型容器で輸送できる量は、形状、重量では定まらないが、ここでは分析の困難さを考慮し、形状で1mm 球 程度、あるいは5mm 角程度、重量として約0.5g 程度以下を想定
 - ・現状の茨城地区の既存施設(JAEA + NFD)において実施可能と考える項目を検討
- > 燃料デブリ分析項目検討の着眼点
 - ・ 現状の茨城地区の既存施設における燃料デブリサンプルの分析にあたり、関連プロジェクトのニーズに着目
 - ・近年、分析を蓄積してきた1Fの付着物や堆積物の評価結果に基づき、1F燃料デブリの特性の推定に重要 な情報となる生成メカニズムについても考慮



(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

少量の燃料デブリサンプルに対する分析項目

・少量の燃料デブリサンプル (A型輸送容器)を想定、A) 受入時分析・非破壊分析、B) 物性測定・機器分析、C) 化 学分析の各段階で、既存施設 (JAEA + NFD) の分析設備において実施可能な分析項目を抽出 ⇒ 燃料デブリ分 析ニーズに反映可能

A 受入時分析・非破壊分析 A-1外観観察(ペリスコープ) A-2 重量測定	B-5密度測定(液浸型天秤) B-6 硬さ・靭性(ビッカース硬さ計)
A-3 緑量測定	B-7 水分測定(カールノイッシャー水分計)
A-4 イメージングプレート	C 化学分析
A-5 γ線測定(スキャン)	C-1 元素分析(ICP-AES)
A-6 X線CT*	C-2 核種分析(ICP-MS)
B 物性測定・機器分析	C-3 a線放出核種分析 (a線スペクトロメーター)
B-1 金相観察 (光学顕微鏡)	C-4 β線放出核種分析 (液体シンチレーション)
B-2 結晶構造・相同定 (XRD)	C-5 γ線放出核種分析 (γ線スペクトロメーター)
B-3 構成元素・不純物 (SEM/EPMA)	C-6 核種分析 (TIMS) *
B-4 結晶構造・相同定 (TEM)	*option :必須ではないがより高度なデータ等取得が望める項目



① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

2. 分析効率化の検討

▶ 効率化の検討方針

- ・NDF、東電HD、MRI、JAEAによる分析効率化に関する連絡会を開催し、試験的デブリ取り出しで予想され る少量の燃料デブリサンプルを対象に、ケーススタディを実施することで合意。
 - ✓ 廃炉に関するニーズに即した分析項目
 - ✓ 1 Fの付着物や堆積物の評価結果に基づき、燃料デブリ形成メカニズムについても考慮
 - ✓ 茨城地区既存施設(JAEA, NFD)の設備状況を考慮。
 - ✓ できるだけ多くのデータが得られるように分析項目とフローを検討

▶ ケーススタディ(重量、形状)

- Case1: 4mmФ球1粒、0.447g(A型輸送容器の最大搭載量での球状UO₂粒子を想定)
- Case2: 1mm Φ球1粒、0.006g(金ブラシ方式のサンプリングにより球状UO2粒子1粒回収を想定)
- Case3: 粉末状サンプル(真空採血管方式のサンプリングにより3cmΦのろ紙に約0.1g回収を想定)

▶ ケーススタディ (分析に要する日数)

- ・事業期間内での実施を前提に、分析にかけられる日数として、1か月、2か月に限定した場合の実施項目と、 上の検討方針で示したすべての分析項目を実施した場合を比較。
- ・なお、実際の分析作業においては、非破壊分析、物性測定、化学分析等の分析サンプル加工の方法、結果の確認等、ホールドポイントを設け、関係者間で協議を行うことが想定できるが、<u>その日程は考慮していない</u>。



④ 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討
 ・分析効率化の検討

▶<u>検討のまとめ</u>

分析効率化の検討として、現状の茨城地区既存施設を対象に,サンプル重量・形状および分析期間をパラ メータとするケーススタディを実施した。

これらの結果をまとめると、概略以下のとおりである。

・燃料デブリサンプルが比較的大きい場合(Case 1)では、想定する燃料デブリの分析項目がほぼ実施可能である。(原科研、大洗研)

・燃料デブリサンプルが比較的小さい場合(Case 2、Case 3)は、物性測定・機器分析のなかに実施が 困難な分析項目が生じる。

今後は、この結果を分析計画の検討に反映させるとともに、NDFと東電HDと協議を行い、必要な検討を追加実施する。



③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

1F試料評価委員会に対し、OECD/NEAにおける国際会議の検討状況を紹介するとと もに、前述の燃料デブリサンプルの分析項目についてレビューを受け、概略、下記のようなコメ ントを得た。

- ・現場の方がどのサンプルを採取するのかの指針になったり、採取した後の分析作業が スムーズになるようなものを作る必要がある。
- ・時間はまだあるので、議論を続けて良いものを作っていくことが大事である。

▶まとめ

今回の1F試料評価委員会でのレビュー結果を受けて、分析項目についての精査を継続する。



燃料デブリ微粒子挙動研究 全体計画

- ① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動
 - ①-1. ウラン含有模擬デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN)
 - ▶ U及びHf含有模擬デブリ試料の調整、加熱・機械切断時に発生する放射性微粒子のサンプリングライン・分析システムの設計・製作・据付【2019年度】
 - ▶ 上述試料、サンプリングライン・分析システムを用いた大型試験の実施、結果評価【2020年度】
 - ①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験(JAEA)
 - > Pu含有試料を用いた集光加熱・機械切断試験のための実験・捕集系の確立【2019年度】
 - Pu含有試料を用いた集光加熱・機械切断試験の実施、Pu随伴性評価【2020年度】
 - ①-3. 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査(RANDEC)
 - > 国内原子力施設の事例調査、纏め、実作業工程への適用性検討【2019年度】
 - > 欧米原子力施設の事例調査、纏め、事例調査成果を包括した適用性検討【2020年度】
- ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動(東京大学)
 - ②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価
 - 試験微粒子選定、水質条件決定、気液界面移行率測定、解析モデルの検討【2019年度】
 - > 気液界面移行率測定、解析モデルの適用性評価【2020年度】
 - ②-2. 液相における微粒子挙動評価
 - > 試験微粒子選定、水質条件決定、沈降率測定、評価用シミュレーションの検討【2019年度】
 - > 沈降率測定、CFDシミュレーションの適用性評価及び移行率評価【2019-2020年度】





IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning



① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動 ①-1. ウラン含有模擬デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN))

2019年度の成果実績

- > 試料仕様の検討(製造法、試験体組成の検討)、全8試料の調製完了
- 加熱試験システムの設計完了、最適化・据付作業完了、予備試験を実施、試験可能な 雰囲気(N₂)を確認、次年度試験はN₂雰囲気で実施予定
- 機械切断試験に使用する加工器具の仕様決定、切断試験システムの設計最適化完了、予備試験実施

						2019年度				
		7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
	試料仕様の検証									
試料製造	In-Vessel試料の製造・供給									
	Ex-Vessel試料の製造・供給									
	既存設備の改良・更新									
VITI(加熱試験装置・施設)の整備	サンプリングライン設計・検証									
	装置組立設置・コミッショニング									
	切断試験システムの設計									
の町山秋衣画・旭設の金浦	切断試験チャンバー・試験システムの組立・検証									



① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動 ①-1. ウラン含有模擬デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN))

2019年度成果(試験体について)

表:本事業で使用する試験体の仕様、製造法、及び組成決定の根拠について

試料番号	試料名	試験体の量	Pu/FP模擬体*の有無	製造法	試験項目	試料製造	組成決定の根拠
1	UO ₂ MCCI	5 kg	×	実MCCI反応	加熱 / 切断	済(2017年1月)	1F(1号機)の炉心溶融物・コンクリート成分のMCCI反応
2	HfO ₂ _MCCI	0.1 kg	×	るつぼ内加熱	加熱	本事業で製造	試料1の組成を参照(1F・1 号機のMCCI)
3	HfO ₂ _In-vessel	2 - 3 kg	0	るつぼ内加熱	加熱 / 切断	済(2016年以前)	BSAF計算による1F・2 号機の炉心溶融物の平均組成
4	HfO ₂ _Ex-vessel	2 - 3 kg	0	るつぼ内加熱	加熱 / 切断	済(2016年以前)	BSAF計算+US-DOE/NRCのMCCI計算 (2号機)
5	UO ₂ _In-vessel	0.1 kg	0	るつぼ内加熱	加熱	本事業で製造	BSAF計算による1F・2 号機の炉心溶融物の平均組成
6	UO ₂ _In-vessel	10 kg	0	るつぼ内加熱	切断	本事業で製造	BSAF計算による1F・2 号機の炉心溶融物の平均組成
7	UO ₂ Ex-vessel	0.1 kg	0	るつぼ内加熱	加熱	本事業で製造	BSAF計算+US-DOE/NRCのMCCI計算 (2号機)
8	UO ₂ _Ex-vessel	10 kg	0	るつぼ内加熱	切断	本事業で製造	BSAF計算+US-DOE/NRCのMCCI計算 (2号機)

* PuはCeで模擬、FP組成は1Fの燃料組成評価値(ORIGEN2コードを用いた2011年3月11日時点での燃料組成(JAEA-Data/Code 2012-018))を基に、1 – 3 号 機平均値の10年経過・壊変を想定した計算値を基に組成を決定した。

実燃料デブリに想定される代表組成(コリウム系・MCCI反応生成物、 FP成分有無)を比較・検討出来るように試験体仕様を設定。全8試験体の調整完了。



5c coin Ø21 mm UO₂_MCCI試料(No. 1)の外観



UO₂_In-vessel試料(No. 6)の外観



UO₂_In-vessel試料(No. 8)の外観



(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発 ① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動 ①-1. ウラン含有模擬デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN)) 2019年度成果(加熱試験装置及びサンプリング・分析システムについて)





最適化された加熱試験用システム、及びサンプリング・分析ライン



CFDシミュレーションによる加熱試験用サンプリング・分析ライン内の 微粒子移行・沈着挙動の評価



加熱試験用チャンバー及びサンプリン グ・分析ライン(上図)、加熱チャン バー内の構造図(下図); 加熱炉・及び輸送・サンプリング・分析 ラインの設計を最適化し、加熱により発 生する微粒子の輸送中の沈着を最小 限にした。



(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発 ① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動 ①-1. ウラン含有模擬デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN))

2019年度成果(機械切断(コアボーリング)試験装置及びサンプリング・分析システムについて)





燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動 ①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験(JAEA)

<u>2019年度の成果実績</u>

▶ 試験に使用する加熱装置(集光加熱装置)及び機械切断装置(低速回転切断機)を JAEA内施設(Pu燃料技術開発センター)内のグローブボックス内に設置

- ▶ 模擬物質(Fe₂O₃,U₃O₈)を用いた、上述試験装置の性能確認試験の実施
- ▶ Pu含有模擬デブリ試料 (Pu,Zr)O_{2-x})の調製
- ▶ 上述Pu含有模擬デブリ試料を用いた加熱試験、機械切断試験の実施
- ▶ 使用した加熱装置によってPuのヒュームが発生可能な事、及び発生したヒュームが微粒子状の 固化物を形成し得ることを確認、及び機械切断装置によって発生した粒子状試料(切子)の採取、分析が可能なことを確認

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動
 1-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験(JAEA)

2019年度の成果(模擬デブリ試料作成、微粒子捕集システムの整備)





(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発 ① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験(JAEA)

2019年度の成果(試験装置の性能確認、試料の分析)









(Pu,Zr)O_{2-x}試料を集光加熱した際に発生した ヒュームの固化物(左写真、白い物質)及び当該 固化物のEPMA測定結果(右写真)

(Pu,Zr)O_{2-x}試料を機械切断した後の断面(左写 真)及び切断時に発生した切子(微粒子)の EPMA測定結果(右写真)

<2019年度の成果まとめ>

- ・JAEAのホット試験用グローブボックス内に加熱装置、機械切断装置を設置
- ・Fe2O3及びU3O8を用いた、加熱装置の性能確認試験を実施、ヒューム由来微粒子試料の採取・分析
- ・Pu含有模擬デブリ (Pu, Zr)O_{2-x}の調製
- ・ (Pu, Zr)O_{2-x}試料を用いた加熱試験、機械切断試験の実施、採取試料の分析 (加熱時はPu・AmはZrよりも蒸発し易い、機械切断では発生粒子組成に元素依存性は無い等を確認)



燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動
 ①-3.国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 (RANDEC)

<u>2019年度の実績</u>

- 1. 国内原子力施設における事例・報告の纏め
 - > 以下の4分野、計13施設の事例報告の調査を実施
 - ① 原子炉施設の廃止措置事例(旧JAERI・"JPDR"、新型ATR"ふげん")

 - ③ 混合酸化物燃料製造施設(JAEA核サ研・Pu燃料技術開発施設、混合転換技術開発施設)
 - ④ 再処理施設の廃止措置事例(JAEA原科研・JRTF)
 - ▶ 調査事例を踏まえ、特に微粒子発生・飛散に関する情報を抽出し、1Fでの燃料デブリ取出作業における放射性微粒子発生・移行挙動の評価との関連性・適応性を検討中
- 2. 欧米施設における事例情報・内容の予備調査
 - ① 欧州における放射性微粒子飛散事例が報告されている施設及び報告書等の有無に関する予備調 査実施、ドイツ4施設を選定
 - ② 上述内容について、米国における対象施設の予備調査実施、DOE関連照射後試験施設を選定
 - ③ ウクライナ・チェルノブイリ原発事故、及び米国・TMI-2原発事故に関する情報の再調査、情報の再 取得等の必要性を検討



① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動 ①-3.国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 (RANDEC)

国内原子力施設における事例調査結果例

ふげん解体時の切断工法と発生微粒子の関係の調査

✓ 熱的加工の場合、加工法の違いにより発生微粒子の粒径分布に違いが出るが、材料による違いはあまり出ない。

- ✓ 発生した微粒子(~100 nm以上)の捕集システムとしては、従前から使用されている排気システム・HEPAフィルター で十分に対応可能である。
- ✓ 水中で加工(プラズマアーク、AWJ)を実施した際の微粒子の水→気中移行率を調査した結果、加工条件と移行率の関係(切断速度を上げる(微粒子発生量が大きくなる)或いは入熱を伴う加工(高温条件)場合、気中への微粒子移行率が高くなる、等)を抽出。

混合酸化物燃料製造施設におけるGB機械切断解体時の発生微粒子の調査)

- ✓ バンドソーやニブラといった工具で機械切断を実施した場合に発生する微粒子はµmオーダーであり、熱的加工時に発生する微粒子(nmオーダー)よりも大きい。
- ✓ 工具や切断対象物の材料特性により多少の違いはあるものの、機械切断加工時に発生する微粒子のサイズ・分布は 基本的にはµmオーダーである。
- ✓ 発生微粒子の粒径分布において、放射性核種の種類に対する依存性は見受けられない。



- ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (東京大学)
 - ②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価
 - ②-2. 液相における微粒子挙動評価

<u>2019年度の実績</u>

- ②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価
 - ▶試験に使用する微粒子及び水質条件の選定
 - ▶異なる水質条件(気泡量・サイズ、pH、微粒子表面電荷)での気→液界面微粒子移 行率の測定
 - >デブリ取り出し時の様々な擾乱で発生し得る気泡の影響、特に液相中の残存時間や、微 粒子との相互作用を考える上で重要になる気泡サイズに着目した基礎的評価のため、及び 表面張力などの水の物性値を変更するためにナノバブル・マイクロバブルを用いた試験を実施
 >気→液界面微粒子移行現象を評価するための解析モデルの検討
- ②-2. 液相における微粒子挙動評価

▶試験に使用する<mark>微粒子及び水質条件の選定</mark> ▶異なる水質条件(pH、電解質濃度)での<mark>液相沈降率の測定</mark> ▶流れのある条件下で微粒子沈降現象を評価するためのシミュレーションの検討



② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (東京大学)
 ②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価

<u>2019年度の実績</u>

- ▶ 【共通】 試験に用いる微粒子の選定、水質条件の設定:
 - ONETによるレーザー切断試験の結果を踏まえ、ZrO2粒子(100, 200 nm)、及び密度の低いTiO2粒子 (4.2 g/cm³、100, 200 nm)を選定、レーザー回折・DLSにより粒子サイズ確認、ゼータ電位を評価。
 - 微粒子密度は移行挙動を支配する主要因であることを踏まえ、1F燃料デブリの主要成分の一つとして考えられているZrO2、及びそれよりも密度の低いTiO2の2試料を選定
 - 1FPCV滞留水の水質測定の結果(中性pH)を踏まえ、イオン交換水(蒸留水)を気相・気液界面、液相試験の分散媒体として選定
- ▶ 【 ②-1:気相・気液界面】気液界面での微粒子 移行率の測定
 - 気相→液相移行率と粒子サイズ分布の測定を光散乱測定により実施、気泡の性質・濃度、粒子の電化等が移行率に与える影響を評価(気泡量が多くなる、気泡サイズが大きくなると液相への移行が促進される、微粒子表面電荷の増加により移行率は上昇、等)





 試験で確認された気相→液相の微粒子移行挙動を評価するためのモデル(Fuchモデル, Friedlanderモデル 等)を複数検討、実験結果と比較検討中

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (東京大学)
 ②-2.液相における微粒子挙動評価

2019年度の実績(続き)

- ▶ 【 ②-2:液相】液相中の微粒子沈降率の測定
 - イオン交換水 (pH = 4, 7, 10) 中に分散させたZrO₂粒子を用いて、実験方法妥当性確認の ための予備試験を実施、低pH / 低電解質濃度条件下では微粒子沈降が遅い事等を確認



沈降率測定試験の様子:異なる水質条件(右試料; pH = 6、左試料; pH = 7) における ZrO₂微粒子沈降の時間変化(左上写真;測定開始時の試料、右下写真;280時間後の試料)



65

左記データを基にした沈降率の計算例

- ▶ 【 ②-2:液相】液相中での微粒子移行距離の評価
 - CFD計算のための環境構築(計算機、CFDソフトウェア整備)、及び予備計算試験実施



平均流速0.1 m/sの流れ中における 異なる粒径のZrO₂微粒子の沈降挙動 のCFDシミュレーション予備試験結果





(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等②燃料デブリの性状推定の高度化燃料デブリ特性リストの高度化 (燃料デブリ特性リストの例)

(参考資料) 燃料デブリ特性リストの高度化 (今後取りまとめていくフォーマット例)



主な専門用語、略語等の説明(1)

専門用語/略語	。
燃料デブリ	高温となった燃料が,制御棒や原子炉圧力容器内及び格納の構造物等ともに溶け,冷えて再び固まった物質
1F	福島第一 原子力発電所
RPV	Reactor Pressure Vesse:原子炉圧力容器
PCV	Primary Containment Vessel:原子炉格納容器
D/W	Dry Well:原子炉格納容器のうち,原子炉圧力容器等を格納するフラスコ型容器
S/C	Suppression Chamber:圧力抑制室。原子炉建屋の地下階にあるドーナツ型容器
AWJ	Abrasive Water Jet:切断加工能力を高めるたに、ウォータジェットに研磨材(アブレシブ)を混入させて 、噴射 ・加工を行う工法
トーラス室	原子炉建屋の地下階に、トーラス形状(ドーナツ状)の圧力抑制室(S/C)が 配置されている部屋のこと
CRD	CRD Control Rod Drive:制御棒駆動機構
TIP	Traversing Incore Probe、or Transverse Incore Probe:移動式炉心内計装、移動式炉心内較正装置、叉は、走行型炉内検出器
オペフロ	オペレーションフロアの略語で、原子炉建屋オペフロは、原子炉建屋の最上階で、ここで定期検査時には燃料交換作業などが行われ る
ペデスタル	ペデスタルは、原子炉本体を支える基礎のことをいう。鋼板円筒殻の内部にコンクリートを充填した構造となっている
FP	Fission Products:核分裂によって生じた核種、またはそのような核種(核分裂片)から放射性崩壊によって生じた核種
BSAF	The Benchmark Study of the Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station:OECD/NEAのプロジェクト(2012年11月~ 2014年3月)の一つ
SA研究	Study of a Severe Accident:シビアアクシデント研究
VULCANO試験	France CEA Versatile UO2 Lab for Corium ANalysis and Observation:CEA VULCANO施設における大型 MCCI (Molten Core - Concrete Interaction) 試験
CFDシミュレーション	Computational Fluid Dynamics:数値流体解析(流体現象の基礎方程式を数値的に解くことで, さまざまな流れの性質や, 流体中での 物質輸送, 熱輸送などの現象を解析する手法)



主な専門用語、略語等の説明(2)

専門用語/略語	
FE-SEM	Field Emission (Type) Scanning Electron Microscope:電界放出型(電子銃を伴った)走査型電子顕微鏡
FE-SEM/WDX	FE-SEM Field Emission (Type) Scanning Electron Microscope:電界放出型(電子銃を伴った)走査型電子顕微鏡 WDX Wave-length Dispersive X-ray Spectroscopy:波長分散型X線分光法(WDSと略す場合もある)
FE-TEM/EDX TEM-EDX	FE-TEM Field Emission (Type) Transmission Electron Microscopy:電界放出型(電子銃を伴った)透過型電子顕微鏡 EDX Energy Dispersive X-ray Spectroscopy:エネルギー分散型X線分光法(EDSと略す場合もある) Transmission Electron Microscopy Energy Dispersive X-ray Spectroscopy:エネルギー分散型X線分析装置付き透過型電子顕微鏡
SEM/EDX	Scanning Electrode Microscope - Energy Dispersive X-ray Spectrometer:エネルギー分散型X線分析装置付き走査型電子顕微鏡
TEM	Transmission Electron Microscope:透過電子顕微鏡
ICP-MS	Inductively Coupled Plasma Mass Spectroscopy:誘導結合高周波プラズマ質量分析法
ICP-AES	Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry:誘導結合高周波プラズマ発光分光分析法
TIMS	Thermal Ionization Mass Spectrometry:表面電離質量分析法
X線CT	X-ray Computed Tomography:X線を用いたコンピュータ断層撮影法
EPMA	Electron Probe Micro Analyzer: 電子線マイクロアナライザ
α線スペクトロメーター	α -ray spectrometer:アルファ(α)線のエネルギースペクトルを測定する装置
γ線スペクトロメーター	γ -ray spectrometer:ガンマ(γ)線のエネルギースペクトルを測定する装置





