平成30年度補正予算廃炉・汚染水対策事業費補助金 (燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発)

2020年度実施分成果

2021年 9月

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構 (IRID)









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。
 ✓ 海水の影響や溶融炉心・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拡充が必要
- ・ 従来、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。
 ⇒今後は実際の燃料デブリの分析から情報が得られる見込み。
- 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、これらの分析から燃料デブリの性状を推定できる可能性があることがわかってきた。
- 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。
 ⇒そこ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るにあたり重要。
- 段階的に燃料デブリ取り出しの規模が拡大され、取り出す燃料デブリの量が多くなれば、取り出しによって発生する微粒子によって作業員や一般公衆の被ばく量が増加するリスクがある。⇒微粒子の挙動を把握し、推定する技術の開発が必要。



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



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年度以降、初号機の燃料デブリ取り出しが開始される見込み。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

年度	\sim 2018	2019-2020	2021	2022~
情報利用側PJ・ 東電HD	技術開	技術開発/装置設計·製作		取り出し作業等実施 ^{機取り出し開始(1年程度遅延の見通し)}
本課題 (燃料デブリ性状の 分析に必要な技術 開発等)	前事業	燃料デブリ特性リストの更新 ・少量の試料から、号機ごと領域 ごとの燃料デブリの特徴を推定す る。(特性値の最確値とばらつ きの推定結果を加味)	装置	置設計・作業工程管理・安全 策等に反映
		廃炉工程ニーズに基づく、分析項目と 効率的な分析方法の提案		料デブリの管理(ラベリング等) 法に反映

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	△初号開始	取り出し作業等実施 機取り出し (1年程度
-★-=田□百		模擬燃料デブリを用いた取り出し の模擬試験を実施し、発生挙動、 微粒子特性に関する知見を取得、 整理する。	_{選進} COVID-19 による延長	段階的取り出し規模の拡
(燃料デブリ 微粒子挙動の	前事業	微粒子移行挙動の (モデル化)を進	一般化 める。	大に係る閉し込め・安全 設計に反映
推定技術の開発)		微粒子移行挙動試験を実施し、 移行挙動に関する知見を取得す ると共に、モデル化に反映する。		

IRID

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 (2020年度) (その1)



IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

4. 実施スケジュール (2020年度) (その2)





5. 実施体制(2020年度)



5. 実施体制(2021年度)





6.	実施内	容

2020年度実施内容について(全体計画)

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等	15
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 (2019~2020年)	<u> </u>
② 燃料デブリの性状推定の高度化 (2019~2020年)	<u> </u>
<u>(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発</u>	87
① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動 (2019 ~2021年)	<u>度)</u> 90
<u> ①-1. ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験</u>	90
<u>①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験</u>	102
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】	112
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	<u>宴)</u> 118
<u> ②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価</u>	118
<u> ②-2. 液相における微粒子挙動評価</u>	118



6. 実施内容

2020年度実施内容について(全体計画)

(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(2019~2020年度)
 ② 燃料デブリの性状推定の高度化
 (2019~2020年度)

(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 (2019~2021年度)
 - ①-1. ウラン含有模擬燃料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
- ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (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





6. 実施内容

2020年度実施内容について(全体計画)

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① <u>得られる燃料デブリサンプル等の分析</u>及び分析効率化の検討(2019~2020年度)
 ② 燃料デブリの性状推定の高度化(2019~2020年度)

(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 (2019~2021年度)
 - ①-1. ウラン含有模擬燃料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
- ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (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



(1) 燃料デブリの性状の分析に必要な技術開発等< ④得られる燃料デブリサンプル等の分析 -今年度実施概要 	Ę-
(1)2019年度搬入試料の追加分析・・・ a~c項目について、2020年	度に追加分析
<u>#</u> a. U粒子の追加探索(JAEA)・・・ 1u-3, 2u-5, 2u-6, 3u-2試料	リノノル <u>宙</u> ラリスト(P.59)
→ サンプル中の広範囲を(例:8mm ² (1u-3))再度走査	(P.18)
b. 難溶性燃料デブリの分析前処理技術の開発(JAEA)・・・ 1u-4試料	
→ 実サンプル(1u-4)を用いた、アルカリ融解技術の検証	(P.18、19)
c. U粒子の追加分析(NFD)・・・ 1u-2, 2u-4試料	
→ セータ因子法を用いた、重要テータである酸素含有量の定量	(P.18、20)
(2) 2020年度搬入試料の分析	
a. 2020年度搬入試料の選定・・・	
→ 東電HDとの情報交換により、2試料選定	(P.21)
b. 分析データの品質管理(<mark>分析TF</mark> *)・・・ 分析目的に照し合せた、分析手順・ラ	データ評価手法の検討
→ 物理分析法(外観、IP、SEM/WDX、SEM/EDX、TEM/EDX)	
→ 化学分析法(液調製、放射線測定、ICP-MS)	(P.22-26)
・ 分析TF(タスクフォース)の目的、構成等についてはp.56に示す。	$(\mathbf{D}, \mathbf{D}, \mathbf{D}, \mathbf{D}, \mathbf{C})$
C. 2U2U中 度 版 人 試 科 の 分 析 ・・・・ <u> # 品 肖 官 埋 の 方 法 に 奉 つ く</u>	(P.27-36)

(1) 燃料デブリの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 -(参考)実施内容まとめ-

分析対象		分析項目	分析目的		
2019	1号機 X-2ペネスミヤサンプル(1u-3) 2号機 シールリングスミヤサンプル(2u- 5)	FE-SEM/WDX			
年度ま	2号機 トーラス室滞留水ろ紙(2u-6)	(U粒子の追加探 索)→検出できず	U粒子を広範囲で探索し、分析データを拡充		
での輸送サン	3号機 トーラス室滞留水ろ紙(3u-2)				
プル	1号機ウェルプラグスミア(1u-4)	アルカリ融解技術 確認	実サンプルでの全量溶融確認(適用性検証)		
(追加分 析)	1号機PCV底部堆積物(1u-2)	TEM (FIB薄膜化、酸素	従来分析で不確かさが大きかった酸素の定量に ついて、最新の分析法を導入し、高精度化		
	2号機内部調査カメラスミア(2u-4)	定量法の高度化)			
2020 年度輸 送サン プル	1/2号機SGTS配管内部拭き取りスミア 1号機PCV内部調査アクセスルート構築 関連サンプル(ガス管理設備) 1号機PCV内部調査アクセスルート構築 関連サンプル(AWJ装置)	外観測定 イメージングプ レート測定 FE-SEM/WDX SEM/EDXおよび TEM ICP-MS (品質管理を反映)	1号機事故途中の燃料デブリ状態に係る知見(1 号機ベント時のガスがSGTS配管を通過) 1号機PCV内壁へのU粒子やその他元素の付着 に関わる知見		



①(1)-b. アルカリ融解技術の実サンプルによる検証 -2020年度成果の概要-



IRID

①(1)-c. U粒子の追加分析 -2020年度成果の概要-

<u>O TEM分析の課題(分析TF)</u>

- TEMは、U粒子の化学的特性(相状態、組成)の詳細分析手段 → 燃料デブリ形成メカニズム評価
 > しかし、高精度分析にむけた、適切な薄膜化技術(FIB)と、定量性高度化技術(ゼータ因子法)が必要
- 従来の実績
 - ▶ いくつかのサンプルで、金属Zr相(a-Zr(O))を同定(例:1u-2,2u-4) → 分析精度の確認が課題 (# 原理的には、金属Zr相中に金属Uが少量混入する可能性 → 廃炉ニーズにおける検討課題(前述)





①(2)-a. 今年度搬入試料の選定

<u>O 東電HDとの認識共有(分析TF)</u>

- 1/2号機SGTS配管内部ふき取りス
 ミアサンプル
 - > 1号機ベント時のPCV内雰囲気が通過
 - 事故進展途中のPCV内汚染物が付着 している可能性
- 1 号機PCV内部調査アクセスルート構 築関連サンプル
 - アクセスルート構築時にガス管理設備 フィルタとAWJ(孔あけ加工機、アブ レシブウォータージェット)から採取
 - <u>PCV内壁面の汚染</u>を拾っている可能
 性
- #参考(1号機最確シナリオ)

IKID

- > 高温の燃料デブリが短時間でPCVに崩落
- 約1週間、ペデスタル内デブリが冠水 せず、高温を維持
- ▶ PCV内壁温度も高温(約400℃、東電 HD測定)を維持



1/2号機SGTS 配管内部拭き取りスミヤサンプル



1号機PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル

①(2)-b. 分析データの品質管理 -品質管理の方針(分析TF)-

<u>(1)1Fサンプル分析では、多元素・核種が混合した未知試料を扱う</u>

- ・どの元素が、どのような濃度・組成で、どのような化合・混合状態で存在しているか不明
- 分析者は、分析手法の原理に立ち戻り、実際には、何の信号をどのような精度・範囲で測定し、どのように物性値に換算しているかを確認・理解した上で、分析を行い、分析値を評価することが不可欠
- ・照射済み燃料などの既知サンプルでの経験(例:〇〇分析では、UによるPuへの干渉は無視できる)のみに基づいて、 効率化した分析手順やデータ評価方法を用いることは適切でない
- ▶ 分析者は、【先入観を持たない定性分析】による元素・核種の同定 → 【同定結果に適した定量分析の 具体化】 → 分析目的に整合する【不確かさ範囲の確認】、を愚直に実施することが必要

(2)1Fサンプル分析データは、廃炉工程の設計に活用するものである

・今後、数10年にわたり、過去データにさかのぼって検索・利用される。

・設計根拠データ・エビデンスとして利用されることも想定される。

- 分析者は、現在及び将来の分析データ評価者・利用者が、一定水準の品質を持つデータとして閲覧・利用できるように、同定・定量の判断根拠や誤差評価の方法を明示する必要がある。
- ▷ 分析者は、【分析事実】を全て記載 → 【同定過程の明記】(判断根拠、未同定の理由を含む) → 【分析事実】と【仮説・推論】を明確に区別して記載
- > 大洗地区既存設備での分析について、分析品質管理の方法を具体化

▶ 改訂した分析フローを【燃料デブリの分析精度の向上及び熱挙動の推定のための技術開発PJ】 と情報共有

IRID

①(2)-b. 燃料デブリサンプル等の分析 -各分析手法のねらいの再確認(分析TF)-



▶ 各分析手法について、全体分析フローにおけるねらい(青字)を再確認
 ▶ ねらいに照し合せて、分析手順の詳細を改定(詳細: P.24~26)

IRID

詳細説明

物理分析フローの改訂(JAEA)



◆ IP測定

- ・注目箇所の選定過程を明記するため、サンプルサイズと暴露時間の選定方法を記載
- ・ 全サンプルで線量値を比較・定量できるように、コンター図を全て掲載、標準線源情報を記載

◆ FE-SEM/WDX測定

- ・ 同定・定量根拠を判断できるように、主要な特性X線のオーバーラップについて付表掲載
- ・ 全波長走査での定性分析を実施し、含有元素を同定
- ・同定根拠について、特性X線マップと波長チャートと対応させて明記





化学分析フローの改訂(JAEA)



♦ 液調製

- ・水溶と酸溶の区別を廃止(# 微粉末含有の可 能性があり、あまり意味がないと判断)
- ・ 全量溶解するため、8N硝酸に少量フッ酸を添 加した溶解処理法に改訂



◆ ICP-MS測定

- ・ <u>定性分析(全質量数)データ</u>をブランクデータ と共に全掲載し、同定結果と判断根拠を明記 (未同定質量数についても示す)
- ・ 定量分析は、原則、検量線溶液の濃度範囲内で
 実施し、検量線範囲を外れる場合(#特に低濃度側に外れる場合は、そのことを明記)
- ・ 定量結果は、<u>FeおよびUに対し規格化</u>し、濃度
 比として整理(# 多核種・元素混入サンプルでは、比の値が重要と判断)
- ・ 重要核種については、同位体比を評価

IRID

SEM/EDX、TEM分析フローの改訂(NFD)



SEM/EDX

・ 点分析・ZAF較正による定量値の妥当性・判定根拠・有効数字・オーバーラップを明示

♦ TEM

詳細説明

- ・結晶構造解析の妥当性・確からしさを明示
- ・分析事実と推定を分けて記載
- ・重要測定項目である酸素の定量のため、<u>ゼータ因子法を導入</u>、その基本原理・測定手順を記載
 - ゼータ因子法:質量膜厚とX線強度の間の比例因子であるゼータ因子を用いる方法。特性X線強度とともに照射電流量を測定す ることで組成と質量膜厚を決定することができるため、位置によって試料密度が大きく異なり、膜厚が決定しに くい試料における定量値の補正に有効。





1/2号機SGTS配管内部拭き取りスミアサンプル

- 分析品質管理 (P.28-30)
- 分析事実のまとめ (P.31)

<u>1号機PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル</u>

- 分析品質管理 (P.32-36)
- 分析事実のまとめ (P.37)

COVID-19の影響で分析データとりまとめが遅延したため、今年度は、品質管理法に基づく 『分析事実』のまとめに注力した。分析事実に基づく、仮説・推論については、予備的検討に 留まっており、今後、分析TFで精査する計画である。





¹/2号機SGTS配管内部拭取りスミアサンプル -外観、IP、SEM/WDXデータの品質管理-







測定例(XM2012)

SEM/WDX測定例(XM2012)

◆ 外観・IP

- ・ 品質管理方法に従って、スケール、暴露 時間、コンター、標準線源等の情報を記 載
- ・ 高線量部位を同定、サンプル分取

SEM/WDX

・品質管理方法に従って、定性分析、特性X線ピーク同定
 →Zn,Fe,Cr,Cs,U,Siを同定し、特性X線マップ分析
 →Puは未検出

28

IRID



1/2号機SGTS配管内部拭取りスミアサンプル -ICP-MS、放射能データの品質管理-

29

ICP-MSによる定量結果

Faとの重量比

看景 (畄位・na)※



	王王 (十四:	ng).		「ビビジ重重」	,U
元素	XM20111	XM20121	元素	XM20111	XM20121
Cr	5.19×10 ²	5.41×10 ²	Cr	1.2×10 ⁻²	4.2×10 ⁻³
Fe	4.43×10 ⁴	1.30×10 ⁵	Fe	1	1
Мо	$1.66 imes 10^{1}$	9.18×10 ²	Мо	3.8×10 ⁻⁴	7.1×10 ⁻³
U	$1.04 imes 10^{1}$	5.10×10 ⁰	U	2.3×10 ⁻⁴	3.9×10 ⁻⁵

※Cr, Mo(XM20121のみ)の元素量は、Cr-52, Mo-95の重量に天然同位体組成を乗 じて算出した。Mo(XM20111のみ)には、FPの混入が認められたため、天然同位体 と核分裂生成物でMo中の同位体組成として近い値をもつMo-98に着目し、Mo-98の 重量に天然同位体組成を乗じて算出した。Feの元素量は、Fe-56, 57の重量の和であ る。Uの元素量は、U-234, 235, 236, 238の重量の和である。

U同位体比

	XM20111	XM20121		
U235/U238	1.65 × 10 ⁻²	1.9×10 ⁻²		
U236/U238	2.53×10 ⁻³	1.9×10 ⁻³		

◆ 液調製・放射線

- ・品質管理方法に従って、8N硝酸+フッ酸 で液調製、残渣をγ測定し、¹³⁷Csの放射 能量が、100分の1以下となることを確認
- · 溶液のγ線測定で、¹³⁴Cs、¹³⁷Csを検出
- ・測定日の情報を記入してデータ格納

ICP-MS

- ・品質管理方法に従って、定性分析、データ格納
- ・ 検量線濃度範囲で定量分析し、Feに対して規格化
- ・検量線範囲で測定された核種について、同位体比を評価
- ・不確かさ評価を実施



¹/2号機SGTS配管内部拭取りスミアサンプル -SEM/EDX、TEMデータの品質管理-







							1000	ath			
() ()	0	Na	Mg	AI	Si	S	Ca	Cr	Fe	Ni	Zn
1	約70	0.0	0.2	0.3	0.2	0.0	0.0	0.1	3.0	0.0	0.3
2	約70	0.0	0.1	0.3	0.2	0.0	0.0	0.2	8.5	0.0	0.3
3	約70	0.0	0.0	0.4	0.0	0.0	0.0	0.1	3.0	0.0	0.2
4	約70	0.0	0.1	0.3	0.0	0.0	0.0	0.2	12.1	0.0	0.2
5	約30	0.0	0.5	0.4	0.1	1.1	0.0	0.1	2.1	18.8	1.2
6	約50	0.0	0.4	0.5	0.4	0.7	0.0	0.1	2.0	11.0	1.1
Ø	約60	0.0	0.2	0.6	0.2	0.0	0.0	0.3	2.9	3.3	0.4
(8)	約0	0.0	1.3	0.6	0.5	6.1	0.0	0.2	3.8	29.4	0.6

Se	Zr	Mo	Ag	Sn	Sb	Te	Cs	Pb	U
0.0	0.1	0.0	0.7	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	24.7
0.1	0.1	0.0	0.7	0.3	0.0	0.2	0.1	0.0	21.1
0.0	0.1	0.0	0.7	0.0	0.0	0.2	0.0	0.0	23.1
0.0	0.0	0.1	0.5	0.4	0.0	0.1	0.0	0.0	14.7
5.8	0.1	0.0	1.1	9.5	0.0	25.3	0.0	0.2	0.2
3.4	0.1	0.0	2.8	13.9	0.0	17.2	0.0	0.2	0.1
0.9	0.1	0.0	1.4	1.1	0.0	8.0	0.1	0.1	23.6
20.1	0.4	0.0	0.2	0.0	1.5	35.0	0.0	0.2	0.0

SEM/EDX

IRID

- ・ 同定根拠、オーバーラップを記載
- ・TEM分析対象領域の選定根拠を記載

♦ TEM

- ・ゼータ因子法を導入、薄膜化を調製
- ・EDXチャートにより、同定根拠および定量分析範囲 を記載(元素オーバーラップは現在評価中、表中の 数字は暫定値)

①(2)-c. R2年度搬入試料の分析 -分析結果のまとめ--1/2号機SGTS配管内部拭き取りスミアサンプル-

- ◆ 分析データの特徴・傾向
- ロ 核種・元素分析(ICP-MS):
 - 同位体分で、由来を推定
 - > U:燃料由来(海水由来混入の可能性)
 - B、Cr、Fe、Zr、Mo: 天然同位体比に近い。
 (MoはFP由来を含んでいる可能性あり)
- □ 粒子の分析(SEM/EDX、TEM-EDX):
 > U含有粒子(複数の種類を同定)
 - 1. UO₂, ZrO₂, FeO_x混合する粒子 2. UO₂とZrO₂が同伴しない粒子 (2は、<u>照射燃料の破砕片</u>の可能性)
 - Ag-Te-Pbなど、金属主体と思われる元素を 多く含む粒子
 - ⇒ Ag-Te, Ag-Te-Pbなど (<u>揮発性* FPが主成分</u>と推定)
 - > Cs-Siを多く含む領域

IRID

- ⇒ ガラス質のSiO₂粒子を形成 (<u>Cs含有粒子</u>の可能性)
- ➢ Moを多く含む領域 (TEM分析なし)
- * 以降、本報告書では事故時の高温過程において蒸発し易 い性質を揮発性、蒸発し難い性質を難揮発性と呼ぶ。

U同位体比の分析結果 XM20111 XM20121 0235/ 0238 1.65×10⁻² 1.9×10⁻² 0236/ 0236/ 0238 2.53×10⁻³ 1.9×10⁻³

Si-Cs含有粒子



31

Ag-Te-Pb含有粒子







1号機PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル (ガス管理設備)-外観、IP、SEM/WDXデータの品質管理-







32



測定例(XM2013)

◆ 外観・IP

- 品質管理方法に従って、スケール、暴露時 間、コンター、標準線源等の情報を記載
- 高線量部位を同定、サンプル分取

SEM/WDX測定例(XM2014)

SEM/WDX

- 品質管理方法に従って、定性分析、特性X線ピーク同定
 - →Ni,Fe,Ti,Cs,U,Pu,Si,Al.Mgを同定し、マップ分析
- → Pu, UはU粒子内で同伴
- →それ以外の元素はU粒子の周辺で検出
- →Al定量法はさらに検討が必要(オーバーラップ)





1号機PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル (ガス管理設備)-ICP-MS、放射能データの品質管理-ICP-MSによる定量結果

重量 (単位: ng)※



γ線測定例(XM20131 (2020年12月15日測定))

元素	XM20131	XM20141	元素	XM20131	XM20141
Cr	4.79×10 ²	8.39×10 ²	Cr	2.1×10 ⁻¹	2.5×10 ⁻¹
Fe	2.30×10 ³	3.30×10 ³	Fe	1	1
Мо	< LOQ	6.57×10 ¹	Мо	-	2.0×10 ⁻²
U	3.46×10 ⁰	5.66×10 ⁰	U	1.5×10 ⁻³	1.7×10 ⁻³

※Cr, Moの元素量は、Cr-52, Mo-95の重量に天然同位体組成を乗じて算出した。 Feの元素量は、Fe-56, 57の重量の和である。Uの元素量は、U-234, 235, 236, 238の重量の和である。

U同位体比

	XM20131	XM20141
U235/U238	1.78×10 ⁻²	1.72×10 ⁻²
U236/U238	<loq< td=""><td>1.2×10⁻³</td></loq<>	1.2×10 ⁻³

◆ 液調製・放射線

- ・品質管理方法に従って、8N硝酸+フッ酸 で液調製、残渣をγ測定し、¹³⁷Csの放射 能量が、100分の1以下となることを確認
- · 溶液のγ線測定で、¹³⁴Cs、¹³⁷Csを検出
- ・測定日の情報を記入してデータ格納

♦ ICP-MS

- ・品質管理方法に従って、定性分析、データ格納
- ・検量線濃度範囲で定量分析し、Feに対して規格化
- ・検量線範囲で測定された核種について、同位体比を評価
- ・不確かさ評価を実施

Feとの重量比



1号機PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル (ガス管理設備、AWJ)-SEM/EDXデータの品質管理-



◆ SEM/EDX(ガス管理設備)

- ・ 同定根拠、オーバーラップを記載
- ・ ウラン粒子検出できず

IRID

1 号機 PCV 内部	1 号機 PCV 内部調査アクセスルート構築関連サンプル (AWJ 装置) ⑧ (1)						
SE	c	 O(強いCrの信号に 影響される) 	F (or Fe)				
Na (or Zn)	Mg	AI	Si (Wの信号の影響 が含まれる)				
Sor Mo (強い TcRu.Pd.Ag.Pb の信号に影響される)	Cl(Ruの信号に影響され る)	Ca (強いU.Teの信号に 影響される)	Ti or Ba				
Cr	Ma(強い Crの信号に 影響される)	Fe	Co (wo信号の影響 が含まれる)				
tid dan Ni	Cu	Zn (強いWの信号に 影響される)	Zr				

SEM/EDX (AWJ)

・同左



1 号機PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル (AWJ)-外観、IP、SEM/WDXデータの品質管理-



外観



IΡ

(10min)

(10分露光)

30mm



35

SEM/WDX測定例(XM2015)、特性X線チャート



SEM/WDX測定例(XM2015)、特性X線マップ

SEM/WDX

- ・品質管理方法に従って、定性分析、特性X線ピーク同定
 →Fe,Cr,U,Puを同定し、マップ分析
 - →Pu,UはU粒子内で同伴
 - →Fe,CrはU粒子の周辺で検出

◆ 外観・IP

・ 品質管理方法に従って、スケール、暴露 時間、コンター、標準線源等の情報を記 載

標準線源

測定例(XM2015)

(約48kBa)

・ 高線量部位を同定、サンプル分取



1 号機PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル (AWJ)-ICP-MS、放射能データの品質管理-

重量 (単位: ng)※

ICP-MSによる定量結果

Feとの重量比



γ線測定例(XM20151 (2020年12月17日測定))

◆ 液調製・放射線

- 品質管理方法に従って、8N硝酸+フッ酸 で液調製、残渣をγ測定し、¹³⁷Csの放射 能量が、100分の1以下となることを確 認
- ・溶液のγ線測定で、¹³⁴Cs、¹³⁷Csを検出
- ・測定日の情報を記入してデータ格納

元素	XM20151	XM20161	元素	XM20151	XM20161
Cr	7.76×10 ²	5.60×10 ²	Cr	3.8×10 ⁻²	7.9×10 ⁻³
Fe	2.01×10 ⁴	7.11×10 ⁴	Fe	1	1
Мо	1.35 × 10 ²	2.69×10 ⁴	Мо	6.7×10 ⁻³	3.8×10 ⁻¹
U	6.44×10 ⁰	5.03×10 ⁰	U	3.2×10 ⁻⁴	7.1×10 ⁻⁵

※Cr, Moの元素量は、Cr-52, Mo-95の重量に天然同位体組成を乗じて算出した。 Feの元素量は、Fe-56, 57の重量の和である。Uの元素量は、U-234, 235, 236, 238の重量の和である。

U同位体比

	XM20151	XM20161
U235/U238	1.33×10 ⁻²	1.29×10 ⁻²
U236/U238	<loq< td=""><td><loq< td=""></loq<></td></loq<>	<loq< td=""></loq<>

♦ ICP-MS

- ・品質管理方法に従って、定性分析、データ格納
- ・検量線濃度範囲で定量分析し、Feに対して規格化
- ・検量線範囲で測定された核種について、同位体比を評価
- ・不確かさ評価を実施
①(2)-c. R2年度搬入試料の分析 -1号機PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル-

- * 分析データの特徴・傾向(ガス管理設備サンプル)
- ICP-MS分析: Mo, Zr, Cr, Fe, B, Uを主たる元素として検出
- 放射能分析: ¹³⁴Cs, ¹³⁷Csを検出
- SEM/WDX分析: (XM2013)U粒子は未検出、Feが主成分として検出された。Cr、Niも周囲に存在 (XM2014)~3 µm サイズのU粒子を検出。同部位に Pu、Znを検出。周囲に Fe, Cr, Ni が存在
- TEM分析: U粒子未検出



- ☆ 分析データの特徴・傾向(AWJ 装置サンプル)
- ICP-MS分析: Mo, Zr, Cr, Fe, B, Uを主たる元素として検出
- ・
 か射能分析:
 ¹³⁴Cs, ¹³⁷Csを検出
- SEM/WDX分析: (XM2015) ~5 μmサイズのU粒子を検出。同部位にCu, Al, Pu を検出。周囲に Fe, Cr, Ni, Znが存在。 (XM2016) ~4 μmサイズのU粒子を検出。同部位にPu, Fe, Cr, Ni, Znが存在。
- SEM/EDX分析: Fe-Co, Agを多く検出。それぞれ独立して存在している可能性。

• TEM分析: U粒子未検出

いずれのサンプルも、SEM/WDXでのみU粒子検出 TEM分析ができていないため、燃料デブリ特性に関 する推定は十分にできていない。⇒**今後の課題**







6. 実施内容

2020年度実施内容について(全体計画)

(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(2019~2020年度)
 ②燃料デブリの性状推定の高度化(2019~2020年度)

(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 (2019~2021年度)
 - ①-1. ウラン含有模擬燃料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
- ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (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



- (1)燃料デブリの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
 ①-2 分析効率化の検討
- ・2019年度 NDF、東電HD、MRI、JAEAによる分析効率化に関する事務局連絡会を開催し、 <u>試験的燃料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</u>に、ケーススタディを実施した。
 - ⇒この結果(分析フロー及び分析項目)について、関係者より以下の意見が得られた。

<u>〇ケーススタディの成果について得られた意見(2019年度事務局連絡会)</u>

- ・PuとUを分析し、分析物が燃料デブリであることを特定・宣言した後で、深い分析に入っていくべきではないか。そういうオプションを加えてほしい。
- ・試料はワイヤブラシに付着したものを直接輸送容器に入れて払い出す可能性があるので、その手順を考慮して欲しい。

<u>○関連する意見(分析項目に関して得られた意見(2019年度 第2回1F試料評価委員会))</u>

- ・輸送されてくる試料の性状として、U-Zr-Oを主成分とする燃料デブリ、金属部材を主成分とする燃料デブ リ等、に分類して、カテゴリー毎に分析項目を設定しているが、異なったカテゴリーで分析を行わないように、 分析フローのどの段階でカテゴリーが明らかになるか、明確にしておく必要がある。
- ・どの情報が重要なのかをはっきりさせて対応すべきである。その中で、分析に必要な試料の量と測定精度 についてできるだけ定量的に示し、所望の情報が得られるかどうかの検討をしておく必要がある。検出感度 や精度を示した上で、十分使えそうな項目や参考情報程度のものしか得られないものという様に区別して 評価するのが良い。
- ・含水率、空隙率、表層ダスト層の厚みなど、0.5g程度あれば分析可能と思われる項目も挙げた方がよい。

分析効率化に関する2020年度の検討方針

2020年9月17日の事務局連絡会において、昨年度のケーススタディでの分析フロー、分析項目 に対する意見を反映し、以下の方針で、分析効率化の検討を行い、分析フローを構築することで 合意した。

- (a)分析の初期段階でUとPuの定性分析を実施して、分析物が燃料デブリであることを早期に特定するフローを作成
- (b)特別な形態で輸送された場合(燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送)における作業手順を追記
- (c) 燃料デブリ試料の量について受入れ重量の範囲を拡大した時に分析フローにどのような影響が でるか検討
- (d) 今期事業で実施している品質管理の検討結果など、新たな知見・成果の取り込み



(<u>(a) 分析の初期段階でU と Puの定性分析を実施して、分析物が燃料デブリであることを早期に特定するフローを</u> <u>作成</u>

○ 検討の要点

✓ 燃料デブリの試験的取り出しでは、採取されたサンプルが燃料デブリであるか否かをまず確認することが必須 (核燃料物質含有の判定) 次に、含有される主成分によって、その後の分析評価項目の要否を判断す ると想定

核燃料物質の分析項目の抽出⇒全分析項目(昨年度検討 P.42)の中から抽出 ・物性測定・機器分析: 「B-3 構成元素・不純物の分析(SEM/ EPMA)」 ・化学分析 : 「C-1 元素分析 (ICP-AES)」、「C-2 核種分析 (ICP-MS)」

✓ 定性分析方法の具体化(非破壊分析を優先、また、簡易な定性分析法を採用)

「B-3 構成元素・不純物の分析(SEM/EPMA)」(非破壊的な分析として使用)

SEM/EPMA<u>定性</u>分析方法:

定量分析での樹脂埋め・平滑研磨面の分析ではなく、分取したサンプルの一部をそのまま測定、 表面にある構成元素を同定 _____

「B-3構成元素・不純物の分析(SEM/EPMA)」を先行実施するフローを作成する。



燃料デブリの試験的取り出しの燃料デブリサンプルに対する分析項目 (2019年度成果より)

・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-1外観観察(ペリスコープ)B-5密度測定(液浸型天秤)A-2 重量測定B-6 硬さ・靭性(ビッカース硬さ計)A-3 線量測定B-7 水分測定(カールフィッシャー水分計)A-4 イメージングプレートC 化学分析
A-2 重量測定B-6 硬さ・靭性(ビッカース硬さ計)A-3 線量測定B-7 水分測定(カールフィッシャー水分計)A-4 イメージングプレートC 化学分析
A-3 線量測定 B-7 水分測定(カールフィッシャー水分計) A-4 イメージングプレート A-5 y線測定(スキャン) C 化学分析
A-4 イメージングプレート A-5 γ線測定(スキャン)
A-5 Y 術別 正 (人+ヤノ)
A C V组CT* C-1 元素分析(ICP-AES)
C-2 核種分析(ICP-MS)
B 物性測定・機器分析
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





(a) 分析の初期段階でUとPuの定性分析を実施して、分析物が燃料デブリであることを早期に特定するフローを作成



- (1)燃料デブリの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
 - ①-2 分析効率化の検討



(1)燃料デブリの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

①-2 分析効率化の検討

(b) 特別な形態で輸送された場合(燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送)における 作業手順を追記

「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」PJにおいて試験的取り出しにおける少量の燃料デブリの取り出し方式として検討されている方式は以下の方式である。

・極細線金ブラシ方式 (P.46)

極細線の金属ブラシを対象となる燃料デブリの表面に押し付けることにより、ブラシに絡められた粒子を回収 する。ブラシにて採取するために、原則として固体状のサンプルとなる。過去の模擬試験においては、2mm径の 鉛玉も採取されている。

・真空容器方式 (P.47)

真空引きした容器とニードルの組み合わせで、対象となる燃料デブリの表面にニードルを押し付け、真空容器の密封を破り管内に燃料デブリサンプルを採取する。この方法では、真空により吸引するために、気中ではなく、水中において周囲の液体とともに粒子を吸引して燃料デブリを採取する。そのため真空容器には液体が混入している。また、ニードル径の関係上粒径の大きなものは採取できないため、極細線金ブラシ方式に比べて小径の粒子やスラッジ状の燃料デブリが採取されるものと考える。



(b) 特別な形態で輸送された場合(燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送)における 作業手順を追記



(b) 特別な形態で輸送された場合(燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送)における 作業手順を追記



サンプル容器 ***** (真空容器方式)



採血管上部(フィルムシールを 剥がして開封)





真空容器方式による模擬粒 子(1.0mm鉛玉) 採取

採取用ニードル 真空容器方式による燃料デブリサンプル採取

*「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PJ」提供

(1)燃料デブリの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

①-2 分析効率化の検討

(b) 特別な形態で輸送された場合(燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送)における 作業手順を追記

・ 極細線金ブラシ方式 (P.50に分離回収フロー(案)を示す)

極細線金ブラシ方式の燃料デブリ取り出し治具は炉内で燃料デブリサンプルを採取した後、その場でフォルダ内に格納される。このブラシアダプタとブラシフォルダが一体となったサンプル容器の形態にて分析施設に輸送される。

サンプル容器は、遠隔操作により開封される。この時は、容器からのサンプルからの落下、飛散に対応するために、受け皿等準備した上で、適切なサンプル容器の固定治具を用いることが必要となる。

ブラシからのサンプルの回収については、以下の3つの方法が考えられる。

- ① ピンセットあるいは細い櫛状の治具により、ブラシからサンプルを回収する方法
- ② 水を張ったビーカーに浸し、超音波洗浄機にて水中に回収する方法
- ③サンプルが付着したブラシーワイヤーを切断し、その後サンプルとブラシを回収する方法

①の方法では、ピンセットや櫛状の治具を準備することで、大きな粒子の燃料デブリの回収は可能であると考えられる。一方、ブラシ部の周囲にあるガイド部のピンが障害となる恐れがある。また、櫛状の治具を用いた際に ブラシの一部が折損して燃料デブリに混入する可能性がある。

②超音波洗浄方式においては、ブラシ内部にからめとられた粒子の回収率が低い怖れがある。①を実施後、
 ②の超音波洗浄を行うことも可能である。

ただし、①、②いずれもブラシ内に絡めとられた燃料デブリの粒子が一部残留する恐れがある。



(b) 特別な形態で輸送された場合(燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送)における 作業手順を追記

・<u>極細線金ブラシ方式 (続き)</u>

③においてサンプルが付着したブラシごと切断することで、ブラシアダプタからはサンプルを除去することが可能である。切断に当たっては、遠隔で操作できるハサミ等を用意し、ガイド部のピンを避けながらブラシ部を切断することになるが、切断時にサンプルの飛散防止措置(例えば先端部分に粘着テープ等を貼り付けての切断)が必要である。

切断後、燃料デブリの粒子とブラシの毛を遠隔操作で分別することが必要である。 セル内において比較的大きな粒子以外は完全に分離させることは困難であると思われる。 ブラシをマニプレータで取り外せるようにしておくと、切断の必要が無く、セル内での作業が容易になるが、そのよう な構造の取り出し治具が製作可能か、取り出しPJと協議する必要がある。

ブラシの毛ごと溶解させる方法はあるが、この場合は、毛の成分も一部溶解するため、化学分析の結果に対し影響がでるため、予め成分情報を取り出し側より入手しておくことが必要となる。

なお、ブラシアダプタを格納していたブラシフォルダ内においても燃料デブリの粒子が残っている可能性があるため、 目視での確認し、必要であればフォルダ内の水洗浄を行い、サンプルを回収しておくことが必要である。





- (1) 燃料デブリの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
 - ①-2 分析効率化の検討

(b) 特別な形態で輸送された場合(燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送)における 作業手順を追記

<u>真空容器方式 (P.52 分離回収フロー(案))</u>

真空容器方式においては、燃料デブリは液体とともに容器内に封入された状態で分析施設に輸送される。分析 施設においては、サンプルの線量によってセル内または、グローブボックス内を選択する。分析施設においては、サンプ ルの線量率によってセル内または、グローブボックス内を選択するする。ここではセル内を基に記述する。 サンプル容器は、遠隔操作により開封される。この時は、容器からのサンプルからの落下、飛散に対応するために、 受け皿等準備した上で、適切なサンプル容器の固定治具を用いることが必要となる。

① 真空容器の開封

真空容器の上部はフィルムシートにて密封されているため、このフィルムを剥がす。粒子の飛散等を防止するために、受け皿を準備するとともに、必要に応じてフィルムを遠隔で剥がし操作ができるようにつまみ治具等を考慮する。

② 真空容器からの粒子の回収

真空容器より、内容物を水で洗い出し、フィルタ等に回収する。または、真空容器よりビーカーなどに回収し、静置後に上澄み液を回収するとともにビーカーに残った固体成分を乾燥させた後、ピンセット等で回収する。





(b) 特別な形態で輸送された場合(燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送)における作業手順を追記(<u>まとめ)</u>

極細金ブラシ方式及び真空容器方式でのサンプル回収の手順を分析実務者と検討した。サンプリング治具 からのサンプルの回収について可能性のある手順があることは判った。ただし、いずれの場合もサンプルの放射線 線量率が高い場合は、マニプレータでの遠隔操作になるため、必要に応じた治具を準備するとともに、モックアッ プによる操作の習熟しておくことが重要である。 (1)燃料デブリの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

①-2 分析効率化の検討

(c)燃料デブリ試料の量について想定を拡大した時の効果

対象の分析装置についての分析スペック等を右表に示す。表に示す赤枠の分析装置において、昨年度の ケーススタディにおいて、0.447gのサンプルの量で実施できないと想定した。今回実際に測定を行った実績を 基にスペックを具体的に検討した結果

「B-5 密度測定」 ピクノメーター:約3g以上

(直径 7mm × 高さ 8 mm, 重量 約 3g)

「B-7 水分測定」 カールフィッシャー:約3g以上

であれば測定は可能となることが判った。

なお、サンプルの大きさに関係するのは、上記の他に「A-6 X線CT」や「B-5 密度測定」(液浸法:数mm Φ以上)がある。これらについては昨年度の評価では実施可と評価しているが、約4mmΦの大きさとしてはス ペックの下限に近いため、サンプルが大きくなれば、より測定や取り扱いが容易となる。

一方、化学分析においては、サンプル量が多ければ、溶解液の量や濃度が大きくなるため、分析装置のスペックに応じての量、濃度に調整することが可能であり、また測定回数も増やせることから、精度の向上につながるものと考える。

- (1) 燃料デブリの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
 - ①-2 分析効率化の検討

(d) 今期事業で実施している品質管理の検討結果など、新たな知見・成果の取り込み

今年度について新たな知見として、各施設における分析装置の整備状況について確認を行った結果、 JAEA大洗研究所(FMF)においてTEM、FIBが整備され「B-4 結晶構造・相同定」が可能となり、今後活 用して行く予定である。

また今年度の「4.1.2燃料デブリの性状推定の高度化」においては、サンプル分析データの品質管理に重点をおき、分析手順、評価方法についての検討を実施している。今後、各分析施設における分析フローの構築においては、期間やサンプル量について評価を行うことが必要となる。

分析効率化の検討 まとめ

以上の検討により、<u>試験的燃料デブリ取り出しサンプルに対応可能な基本フロー及びケーススタディが</u> <u>準備できた。</u>最終的には、実際のサンプルの情報を詳細に検討し、これらのフローを適切に選択して分 析を行う予定である。

また、燃料デブリの取り出し治具の開発を担当するPJとは、今後も密な情報交換を行う。



6. 実施内容

2020年度実施内容について(全体計画)

(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(2019~2020年度)

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(2019~2020年度)

55

(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 (2019~2021年度)
 - ①-1. ウラン含有模擬燃料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
- ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (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





分析事実とは: 品質管理した分析データから直接読取れる傾向(濃度比、同位体比、元素分布等)

仮説・推論とは: 分析データの傾向に基づく、核種・元素の<u>由来の推定</u> 関連知見を含む総合評価による、<u>燃料デブリ形成メカニズム等</u>の考察結果

IRID



(1)② 燃料デブリの性状推定の高度化 -今年度の計画と実施概要-												
【分析TF】本事業、及び先行事業で取得した分析データから、 <mark>分析事実</mark> と、 <mark>仮説・推論</mark> をとりまとめ												
▶ 1号機サンプル(1u-1~1u-4)									(P.60-63)			
▶ 2号機サンプル(2u-1~2u-5)											(P.64-70)	
>> 3号機サンプル(3u-1)									(P.71-74)			
▶ 2、3号機トーラス室滞留水ろ過物(2u-6, 3u-2)											(P.75-78)	
▶ R2年度サンプル(SGTS配管、PCVアクセスルート構築関連)										(P.28~)		
【1F試料評価委員会】 外部有識者によるTF検討結果のレビュー(8/18、3/4開催)												
【情報利用側(廃炉事業者など)への効果的な情報提供・・・ 1F事故の科学的な調査の活用】												
▶ 廃炉ニーズの再検討、 <mark>分析必要項目と分析成果の反映先を再度整理</mark> (P.80-83)												
▶ 燃料デブリ・周辺物質サンプル等の、分析によるニーズ充足度を検討 (P.84-85)												
● 概略スケジュール												
	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
文献調査等		文献	等調査									
情報利用側PJ等との打合せ												▼
分析TF		•										

 分析TF



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning



サンプル番号と採取位置(昨年度まで)



日楼	試料番号		~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	标节生物	
万饭	debrisWiki	東電HD	济水区直	抓以时别	
	1u-Airrock-X-2017	1u-1	原子炉建屋エアロック室堆積物	2015/12/1	
1号機	1u-PCV-X-2017	1u-2	格納容器底部堆積物	2017/4/1	
	1u-X2PEN-X-2019	1u-3	X-2ペネ堆積物除去治具(チャンバー)	2019/5/1	
	1u-WELLP-X-2019	1u-4	ウェルプラグ	2019/7~8	
2号機	2u-OPFSHE-X-2014	2u-1	原子炉建屋オペレーティングフロア養生シート	2014/3/1	
	2u-TIP-X-2017	2u-2	TIP配管内閉塞物	2013/7/1	
	2u-PCVDEPO-X-2017	2u-3	格納容器內部調査装置付着物(堆積物除去装置付着物)	2017/2/1	
	2u-PCVDEPO-X-2018	2u-4	格納容器内部調査装置付着物(カメラ部スミア)	2017/1/1	
	2u-PCVDEPO-X-2019	2u-5	格納容器内部調査装置付着物(シールリングスミア)	2019/2/1	
	2u-TORUS-X-2019	2u-6	PCV外(トーラス室)滞留水ろ過物ろ紙	2019/3/1	
3号機	3u-PCVDEPO-X-2017	3u-1	格納容器内部調査装置付着物	2017/7/1	
	3u-TORUS-X-2019	3u-2	PCV外(トーラス室)滞留水ろ過物ろ紙	2019/3/1	

(1)② 燃料デブリの性状推定の高度化-1号機分析結果のまとめ-

- ▶ U・・ 燃料由来、天然由来混入の可能性 (同位体比より)
- ➢ Mo(1u-2,4のみで検出)・・Moグリス由来 (同位体比より)
- Zr・・燃料被覆管など、Zn・・塗料、
 Pb・・遮蔽体、Si,Al・・保温材、
 Fe,Ni,Cr・・鋼材、B・・中性子吸収材、
 と推定(RPV/PCV内装荷物質からの推定)



- ▶ ウラン粒子の化学特性・・Na(海水)、Zn(塗料)、Mo(グリス)、Al(保温材)などの含有量が、他号機 サンプルより大きい
 - → ペデスタルに崩落した燃料デブリ中に、コンクリートや鋼材(従来推定)の他に、海水、塗料、 グリス、保温材、遮蔽材、などが混入している可能性
- ▶ ウラン粒子化学特性の違い・・
 PCV堆積物(1u-2): 低温安定相を多く検出、溶融した燃料デブリが徐冷された可能性(Type-I粒子)
 子)
 X-2ペネ(1u-3)、ウェルプラグ(1u-4): 蒸発・凝縮過程のU粒子形成が示唆(Type-II粒子)
- ▶ U/Pu相対濃度・・Pu相対濃度が高い(1u-3,1u-4)
 → a粒子の移行経路と特性に係る知見が得られる可能性(検討継続中)
- ▶ 金属Zr残留可能性・・現状サンプル中には未検出(<u>昨年度分析結果を修正:#後述</u>)

IRID

詳細説明

1号機サンプル分析事実のまとめ

1u-1 (エアロック室)

- a核種(U,Pu,Am)
- 軽元素(B,Na,Mg,Al,Ca)
- 鋼材(Ti,Cr,Mn,Fe,Co,Ni,Cu,Mo)
- 塗料,遮蔽(Zn,Al,Pb)
- FP (Sr,Rb,Y,Sn,Sb,Te,Cs,Ba,RE*)
- その他 (Bi)
- U粒子、Zr未検出

1u-2(PCV底部堆積物)

- a核種(U,Pu,Am,Cm)
- 軽元素(B,Si,K,Mg,Al,Ca)
- 鋼材(Ti,Cr,Fe,Co,Ni,Cu,Mo)
- 被覆管 (Zr)
- 塗料,遮蔽(Zn,Al,Pb)
- FP (Sr,Sn,Sb,Te,Cs,Ba)
- ・ <u>RE系FP(難揮発性)を未検出</u>

 U粒子を検出(次頁、組成三角図)
 1号機

 Pu(はUと同一部位

 U粒子の周辺物はFe,Ni,Cr,Znなど

 U:Zr=約92:8(モル比)の粒子を多く検出

 蛍石相、tet-ZrO2相、a-Zr(0)相、スピネルを同定(R元年度)

 #同定結果改定: 蛍石相のみ(R2年度追加分析、前述)

 U粒子中のNa,Mo,Zn,Al濃度が2,3号機サンプルより高い

* Rare Earth

1u-3(X-2ペネ堆積物)

- a核種(U,Pu)
- 軽元素(B,Na,Mg,Al,Ca)
- 鋼材(Ti,Cr,Mn,Fe,Co,Ni,Cu,W)
- 被覆管(Zr)
- 塗料,遮蔽(Zn,Al,Pb)
- FP (Sr,Rb,Sn,Sb,Cs,Ba,RE)
- <u>Mo未検出</u>



1u-PCV-X-2017

(1u-2)

- -X-2019 • a核種(U,Pu) • 軽元素(B,Na,Mg,Al,Ca) • 鋼材(Ti,Cr,Fe,Ni,Cu,Mo,W) • 被覆管(Zr)
 - 塗料,遮蔽(Zn,Al,Pb)
 - FP (Sr,Rb,Sb,Te,Cs,Ba)
 - ・ <u>RE系FP(難揮発性)を未検出</u>

U粒子を検出(次頁、組成三角図)

PuはUと同一部位(Pu濃度高)

U粒子の周辺物はFe,Ni,Crなど

U:Zr=約90:10(モル比)

蛍石相(Fe固溶)を同定

<u>mono-ZrO₂の析出を同定</u>

・ U粒子を検出(次頁、組成三角図)
 PuはUと同一部位(Pu濃度高)
 U粒子の周辺物はFe,Ni,Crなど
 U:Zr=約98:2(モル比)の粒子を多く検出
 Na混入濃度が、1u-2より有意に少ない
 蛍石相(Fe固溶)を同定
 mono-ZrO₂、スピネルの析出を同定



<mark>詳細説明</mark>U粒子中の主要成分組成比三角図(1号機)





1号機サンプル分析からの仮説・推論

1u-3 (X-2ペネ堆積物) g核種:燃料由来の可能性大(分析精度に課題) 1u-1 (エアロック室) Pb: 生体遮蔽由来 ·Zn: 塗料由来 • a核種:燃料由来 U粒子中にFe固溶、Zrが別相析出(1u-2と異なる傾向) (#同位体比から、海水成分混入の可能性) • Pb: 生体遮蔽由来 →いったん蒸発・凝縮したU粒子が、溶融・再凝固・ • Zn: 塗料由来 さらにX-2ペネまで飛散した可能性(Type-II粒子) Mo: Moグリス由来 1u-WELLP-X-2019 (#天然同位体比) (1u-4) 1u-4 (ウェルプラグスミア) SGTS-1u-X2PEN-X-2019 • q核種:燃料由来の可能性大 (1u-3) • Pb: 生体遮蔽由来 1u-Airrock-X-2017 1u-2(PCV底部堆積物) • Zn: 塗料由来 (1u-1) Feに対するCr,Ni相対濃度が低い • g核種:燃料由来(海水成分 混入の可能性) 1u-3,1u-4で同定元素がほぼ一致 1u-PCV-X-2017 (1u-2) • Pb:生体遮蔽由来 →いったん蒸発・凝縮したU粒子が、 • Zn: 塗料由来 1号機 溶融・再凝固・さらにXウェルプラグ Mo: Moグリス由来 まで飛散した可能性(1u-3と同様、 U粒子中に、酸化物燃料デブリ低温安定相を同定 Type-II粒子) U粒子中のNa, Mo, Zn, Al濃度が2,3号機サンプルより高い

→燃料デブリが溶融状態から徐冷された可能性を示唆(Type-I粒子)
 →燃料デブリ中に、様々な成分が混入している可能性を示唆

<u>赤字は、本事業で新たに得た評価・推定結果を示す。</u>

IRID

(1)② 燃料デブリの性状推定の高度化-2号機分析結果のまとめ-

- ▶ U・・燃料由来(オペフロ:2u-1、堆積物除去 スミア:2u-3)、天然由来混入の可能性(シーリ ングスミア:2u-5)
- Mo・・FP由来(オペフロ:2u-1)、Moグリス由 来(TIP配管:2u-2,堆積物除去スミア2u-3)
- Zr・・燃料被覆管など、Zn・・塗料、Pb・・ 遮蔽体、Si,Al・・保温材、Fe,Ni,Cr・・鋼材、
 B・・中性子吸収材、と推定(RPV/PCV内装荷 物質からの推定)



64

2号機サンプル採集位置

- ▶ ウラン粒子の化学特性(オペフロ:2u-1)・・Type-I粒子, Type-II粒子ともに検出
 - → ウラン粒子移行ルート・メカニズムが複数ある可能性(ウェルプラグ高線量の原因と関連 している可能性、重要課題として検討継続中)
- ▶ ウラン粒子化学特性の違い(内部調査カメラスミア:2u-4)・・ 他号機・部位サンプルに比べ、 U:Zr比のばらつきが大きい(<u>RPV内燃料デブリの情報を拾っている可能性</u>)
- ▶ 金属相中のFeとZrの相分離(TIP配管: 2u-2)・・金属デブリが相分離している可能性を示唆
- ▶ 金属Zr残留可能性・・現状サンプル中には未検出(<u>昨年度分析結果を修正:#後述</u>)



注:主要成分組成比三角図にプロットされた点は、同一試料のSEM/EDS分析により確認されたU粒子の組成比を 表す。図中の赤い点はTEM分析を実施するものとして選定されたU粒子を示す。





Type-I、Type-II粒子について (オペフロ養生シート:2u-1)



注:主要成分組成比三角図にプロットされた点は、同一試料のSEM/EDS分析により確認されたU粒子の組成比を表す。これらの点(U粒子)には全て番号が付されているが、図中に赤く表記された番号はTEM分析を実施するものとして選定されたU粒子を示す。

U:Zrモル比が、2群に大別

群1: 溶融・凝固 (Type-I)
 UとZrが相互固溶
 蛍石相(低温相、Zr固溶限)
 Zrリッチ正方相(U固溶限)
 PCV崩落以降の溶融した燃料デブリ
 由来?

66

群2: 蒸発・凝縮 (Type-II) UとFeが均質に固溶 蛍石相(高温相) RPV内の高温化炉心由来?

専門家の意見が集約されておらず、検討継続中



詳細説明2号機サンプル分析事実のまとめ(その1)

2u-1 (オペフロ養生シート)

- a核種(U,Pu,Am)
- 軽元素(B,Si,Na,Mg,Al,Ca)
- 鋼材(Ti,Cr,Mn,Fe,Co,Ni,Cu,Mo,W)
- 被覆管(Zr)
- 塗料,遮蔽(Zn,Al,Pb)
- FP (Sc,Sr,Rb,Y,Pd,Cd,Sn,Sb,Te,Cs,Ba,RE)
- その他(Li,Tl,Bi,Hf)
- 揮発性・難揮発性の多様な物質を検出
- 多様なU粒子を検出(次頁、組成三角図)
 PuはUと同一部位、周辺物はFe,Cr,Si,Zn,Moなど
 U:Zr比に基づきおよそ2群に分類
 群1:U:Zr=約1:1(モル比)、U-Zr-Fe-Cr酸化物固溶、スピネル共存、tet-ZrO₂相同定
 群2:Zrをほとんど含有しない、UとFe酸化物固溶、スピネル共存



赤字は各サンプルに固有の特徴を示す。





2 号機サンプル分析からの 仮説・推論(その1)

2u-1(オペフロ養生シート)

- a核種(U,Pu,Am): 燃料由来(<u>海水の影響ほぼなし</u>)
- Zr:燃料集合体部材
- Pb:生体遮蔽
 ·Zn:塗料
 ·Al:保温材
- Mo: FP由来(1号機と相違)
- Fe,Ni,Crなど:鋼材由来(<u>Ni,Cr相対濃度が低い</u>)
- B:中性子吸収材
- <u>U粒子をおよそ2群に大別</u>



→Type-I粒子(溶融・凝固)生成・・・事故進展最確シナリオにおける、炉心溶融・崩落(RPV内部)時の液状飛沫の冷却物、SRV経由 or PCV経由でオペフロに移行し、冷却時にZrリッチ相とUリッチ相に分離すると推定(前頁、群2)

→Type-II粒子(蒸発・凝縮)生成・・・事故進展最確シナリオにおける、金属デブリの先行崩落 (RPV⇒PCV)、酸化物燃料デブリの高温化(主にRPV内部)時に、燃料デブリから蒸発した成分、PCV経 由でオペフロに移行・凝縮と推定、蒸気圧の低いZrをほとんど含まない(前頁、群1)

赤字は、本事業で新たに得た評価・推定結果を示す。



2 号機サンプル分析事実のまとめ(その2)

• a核種(U,Pu,Am)

PuはUと同一部位

・U粒子を検出(次頁,組成三角図)

Ca-Al-Si、U-Zr、Fe-Ni-Crに同伴性

- 2u-2(TIP配管堆積物)
- a核種(U,Pu,Am)
- 軽元素(Li,B,Na,Mg,Al,Ca)
- 被覆管(Zr)

詳細説明

- 鋼材(Ti,Li,V,Cr,Mn,Fe,Co,Ni,Cu,Mo)
- 塗料,遮蔽(Zn,Al,Pb)
- FP (Sr,Rb,Y,Pd,Ag,Cd,Sn,Sb,Te,Cs,Ba,RE)
- ・ Cr-Mn, Fe-Ni, Si-Al-Naに同伴性
- <u>Fe-Zrは別相形成</u>

2u-3(配管堆積物除去装置スミア)

- a核種(U,Pu)
- 軽元素(Li,B,Na,Mg,Al,Ca)
- 鋼材(Ti,V,Cr,Mn,Fe,Co,Ni,Cu, Mo)
- 被覆管(Zr)
- 塗料,遮蔽(Zn,Al,Pb)
- FP (Ru,Rh,Pd,Cd,Sr,Sn,Sb,Te,Cs,Ba,RE)
- その他(Ga,Bi)
- ・ <u>揮発性・難揮発性FPを多く含む</u>
- U粒子を検出(TEM未実施)
 PuはUと同一部位
 U粒子の周辺物はFe,Ni,Crなど



<u>U粒子中にZr固溶 or a-Zr(O)析出</u> スピネル、tet-ZrO₂相を同定(R元 <u>年度)</u> #**同定結果改定:蛍石相のみ(R2**

年度追加分析、前述)

2u-5(PCV内部調査シーリングスミア)

ICP-MS未実施、放射線でCo-60,Cs-134,Cs-137,Eu-154検出

U:Zrモル比はばらつきが大きい(2u-4に固有の特徴)

- <u>ICP-MS分析のみ実施</u>
- a核種(U) · 被覆管(Zr)
- 軽元素(Li,B,Na,Mg,Al,Ca)
- 鋼材: Mn,Fe,Ni,Cu
- 塗料、遮蔽:Zn,Pb
- FP : Sr,Sn,Ba,Sb,Ce

赤字は各サンプルに固有の特徴を示す。





2 号機サンプル分析からの 仮説・推論(その2)

2u-2(TIP配管堆積物)

- a核種:同定できていない
- Zr:ジルカロイ由来
- Pb,Zn,Mo:生体遮蔽、塗料、Moグリス由来
- Co-60, Mn-54: 放射化物、冷却水中の腐食生成物
- FeとZrが別相

→金属デブリの凝固時偏析、選択酸化の可能性

2u-4(PCV内部調査カメラスミア)

- RPVからの移行物質である可能性が高い
- U粒子中にa-Zr(O) は同定されていない

→RPVからの移行物質中に活性金属成分は検出されていない



2u-3(堆積物除去装置スミア)

- a核種:燃料由来
- Fe,Ni,Cr:鋼材由来
- Al:保温材、コンクリート
- Zn:塗料由来
- Mo: Moグリス由来
- Pb: 生体遮蔽由来
- Co:放射化物
- Al,Mg,Na,Ca:コンクリート、海水
- FP:揮発性、難揮発性を含む

→サンプル中に多くの成分が混入される(燃料・被覆管、鋼材、揮発性・難揮発性FP、遮蔽材、放射化物など)



- (1)② 燃料デブリの性状推定の高度化-3号機分析結果のまとめ-
- ▶ U・・ほぼ燃料由来
- ➢ Mo··未確定
- Zr・・燃料被覆管など、Zn・・塗料、Si,Al・・ 保温材、Fe,Ni,Cr・・鋼材、B・・中性子吸収材、 と推定(RPV/PCV内装荷物質からの推定)
 Pb 含有量が小さい



3号機サンプル採集位置

- ▶ ウラン粒子の化学特性(PCV内部調査スミア:3u-1)・・相状態・結晶構造が多様化・複雑化
 - → 3号機最確事故シナリオに整合【従来予測(>2550℃で完全溶融)より低い温度(2000~ 2200℃程度)で、<u>固液混合状態の燃料デブリが、数時間かけて</u>、RPVからPCVペデスタルに 崩落】 <u>燃料デブリ中の相や成分偏析が示唆される</u>
- ▶ ウラン粒子中に多様な物質が混入・・燃料デブリ中にも混入している可能性
- ▶ 金属Zr残留可能性・・ウラン粒子中にわずかに残留





3号機サンプル分析事実のまとめ

3u-1 (PCV調査装置スミア)

- a核種(U,Pu,Am,Cm)
- 軽元素(Li,B,Si,Na,Mg,Al,Ca)
- 鋼材(Ti,V,Cr,Mn,Fe,Co,Ni,Cu)
- 被覆管(Zr)
- ・ 塗料,遮蔽(Zn,Al,Pb)、
 Pbは他号機より濃度が低い
- FP (Rb,Sr,Sn,Y,Mo,Sb,Sn,Cs,Ag,Cd,Ba,RE)
- その他 (Bi,W)
- U粒子を検出(次頁、組成三角図)
 PuはUと同一部位
 U粒子の周辺物はFe,Ni,Crなど

<u>U:Zr=約98:2(モル比)の粒子を多く検出</u> 異なったモル比のU粒子も多く検出

Fe固溶した蛍石相(Zrほとんど固溶なし)、tet-ZO2相、a-Zr(O)相、スピネルを同定 他号機サンプルに比べ、ウラン粒子中の相状態が多様



赤字は各サンプルに固有の特徴を示す。






3u-1(PCV内部調査装置付着物)

3u-1(PCV内部調査装置付着物)

- 注:主要成分組成比三角図にプロットされた点は、同一試料のSEM/EDS分析により確認されたU粒子の組成 比を表す。これらの点(U粒子)には全て番号が付されているが、図中に赤く表記された番号はTEM分 析を実施するものとして選定されたU粒子を示す。
- #:U:Zrモル比は、U粒子(数µmサイズ)のEDX点分析+ZAF補正での評価値から、U,Zr,Fe+Crの分析値の み抜出し、比を取って評価したもの。従って、粒子の平均組成そのものを示していないことに留意。



3号機サンプル分析からの推論

3u-1 (PCV調査装置スミア)

- a核種:燃料由来(海水の影響をあまり受けていない)
- Pb: 生体遮蔽由来と推定
- Zn: 塗料由来と推定
- Fe,Ni,Cr:鋼材由来と推定、CrとNiが分離
- Ca,Si,Al:コンクリート、またAl及びSiは保温材の可能性も
- <u>FP: 揮発性・難揮発性を含む</u>



 →燃料デブリ中に、様々な物質が混在している可能性
 →U粒子は、Type-Iと推定。相状態が複雑・多様なことから、最高到達温度が低く、徐冷された可能性を示唆 (最確シナリオと整合)
 →a-Zr(O)が残留し、燃料デブリの一部で、酸化度が高くない可能性を示唆





(1)② 燃料デブリの性状推定の高度化



75

〇他の領域と異なる特徴

- ▶ U/Pu相対濃度・・ Pu相対濃度が高い
- ▶ レアアース系FPのうちCeのみを検出
- ➤ Moを未検出
- ▶ 蛍石相中にU,Zr,Fe,Crが固溶(Type-I粒子:溶融・凝固)、酸化度が高い可能性
- ▶ UO₂粒子を検出(Type-II粒子:蒸発・凝縮?ペレット破砕片?)
 - → PCV内からの移行過程で、水相を介してウラン粒子が変質した可能性を示唆

a粒子の移行メカニズムの可能性を検討継続中



詳細説明 (参考) 2、3号機トーラス室サンプル分析事実のまとめ



2u-6(トーラス室滞留水ろ過物)

- a核種(U,Pu)
- 軽元素(Li,B,Si,Na,Mg,Al,Ca)
- 鋼材(Ti,Cr,Mn,Fe,Co,Ni,Cu)
- 被覆管(Zr微量)
- 塗料,遮蔽(Zn,Al,Pb)
- FP (Sr,Pd,Rb,Cd,Sn,Sb,Cs,Ba,Ce)
- Moを含有しない(トーラス室サンプルの特徴)
- <u>REはCeのみ検出(同上)</u>
- ・ U粒子を検出(次頁、組成三角図)
 PuはUと同一部位(Pu相対濃度が高い)
 U粒子の周辺物はFe(Ni,Crが少ない)
 蛍石相(U,Zr,Fe,Cr固溶)、UO₂、スピネル同定

赤字は各サンプルに固有の特徴を示す。



3u-2(トーラス室滞留水ろ過物)

- a核種(U,Pu)
- 軽元素(Li,B,Si,Na,Mg,Al,Ca)
- 鋼材(Cr,Mn,Fe,Co,Ni,Cu)
- 被覆管(Zr)
- 塗料,遮蔽(Zn,Al)
- FP (Sr,Sn,Sb,Cs,Ba,Ce)
- Moを含有しない(トーラス室サンプルの特徴)
- <u>REはCeのみ検出(同上)</u>





U粒子中の主要成分組成比三角図 (2号機トーラス室サンプル)



注:主要成分組成比三角図にプロットされた点は、同一試料のSEM/EDS分析により確認されたU粒子の組成 比を表す。図中に赤く示された点はTEM分析を実施するものとして選定されたU粒子を示す。





2、3号機トーラス室サンプル分析からの仮説・推論 ⁷⁸



2u-6(トーラス室滞留水ろ過物)

- a核種:燃料由来(海水成分の混入は見られない)
- Fe: <u>錆成分由来</u>(Cr,Niの相対濃度が極めて低い)
- Cr: 試料全体での存在量は少ないが、ウラン粒子中に検出
- Ca, Si, Al: コンクリート、保温材
- Zn,Pb:塗料、生体遮蔽

- FP:難揮発性FPを多く検出
- ・ 特性が異なるU粒子を検出
 - <u>(U,Zr,Fe,Cr)O₂: Type-I粒子と推定</u> <u>UO₂: Type-II粒子の可能性 or ペレット破砕片の可能性</u>
- ➢ S/C付近にリークの可能性(2,3号機共)
- ▶ ペデスタル堆積物と含有成分が異なる可能性 →



3u-2(トーラス室滞留水ろ過物)

- a核種:燃料由来(海水成分の混入は見られない)
- Fe: <u>錆成分由来</u>(Cr,Niの相対濃度が極めて低い)
- Ca, Si, Al: コンクリート、保温材
- Zn:塗料由来
- ・ Pb検出量が小さい(3号機はPb装荷量が少ない?)
- FP: ほぼ揮発性FPのみ検出

水相を介したa粒子の移行メカニズムを示唆



1F事故の科学的な調査の例

2号機燃料デブリ移行ルートに関する推論

BWRにおける燃料デブリ移行ルートの検討

- プラント設計情報を取入れた総合評価に基づき、 事故進展解析で追い切れない、三つの燃料デブ リ移行ルート(i)~(iii)の可能性を抽出
- 実プラントの幾何形状を考慮して、2号機での 移行ルート解明のための実験的研究を検討中

2u-3サンプルの分析結果

- 炉心物質(燃料成分、揮発性・難揮発性FP、 等)、ペデスタル内の物質(鋼材、保温材、 等)、ペデスタル外の物質(内壁塗料、生体遮 蔽、放射化物質、等)、を由来とする物質が混 合して存在
- ✓ プラント情報、内部調査の結果、等を把握した上で、サンプル分析データを活用する、 総合的評価の良好事例
- ✓ 今後の調査時に確認すべき項目を提示できる可能性



79

2号機の燃料デブリ崩落ルートの推定

- (i) RPV下部ヘッド底部脆弱部の局所破損(ペデスタル内 <u>部調査で付着物を観測</u>)
- (ii) 同じく側面の大規模破損(破損孔があるとみられる真下に<u>未溶融の集合体部材を観測</u>)
- (iii) 一部燃料デブリのペデスタル外への崩落(プラント設計情報(構造、材料、配置など)や金属デブリの特性 (模擬試験)を取入れた<u>総合評価に基づく予測</u>)

IRID

(1)② 燃料デブリの性状推定の高度化 –廃炉ニーズへの反映--検討の進め方-

分析データの廃炉ニーズへの反映について、現状と経緯を整理(P.81以降)

【本来構想】・・ <u>廃炉工程設計に直接利用できる燃料デブリデータベースの整備を目指した</u>。

【廃炉ニーズ調査】 廃炉事業者のニーズ調査(H26年度)、臨界管理、収納・移送・保管の観点での 燃料デブリ分析ニーズリストとしてとりまとめ(次頁)、JAEAでも、燃料デブリ分析ニーズに基づく分 析方法について検討(R1年度、次々頁)

80

【燃料デブリ周辺サンプル分析のねらい】 燃料デブリ分析の前に<u>予備的に実施、燃料デブリ本体</u> の特性予測・評価が主目的(#技術的な知見は、<u>シームレスに燃料デブリ分析に繋がる</u>)

【最近の情勢】・・ (1)燃料デブリ取出しの遅延、一方、(2)1F内部調査や事故解析の進展 【燃料デブリ特性・堆積状態】 従来予測(PWR典型的事故シナリオ(TMI-2知見)に基づく)に比べ、 号機・領域ごとに、複雑で多様な特徴を有していることが明らかに。。。。

【情報利用者と分析・解析側での認識共有の必要性】・・ 燃料<u>デブリ多様性をどこまでどのように設計に反映するか</u>の合意形成するプロセスが必要ではないか?

【廃炉工程設計(現状)】実際の燃料デブリの系統的データが得られないため、PWR典型シナリオで 生成される燃料デブリをイメージし、安全裕度を大きくとって設計(#サンプル分析データは、必ず しも直接設計に役立てられていない?)

【燃料デブリ分析・事故解析】 号機・領域ごとの知見の精緻化・高度化が、どのように工程設計に貢献できるのか認識共有が必要(#工程設計はできるだけロバストがベター、燃料デブリ多様性を、 廃炉ニーズにどう反映するか?)

担当者間の情報共有に向け、廃炉ニーズに対し、分析データで得られる知見の充足度を再検討した。

(1)② 燃料デブリの性状推定の高度化 –廃炉ニーズへの反映--H26年度のニーズ調査-

表第2棟運用前の燃料デブリ分析のニーズ【1】 (廃炉作業の反映先の観点から優先度高と判断した分析項目)

分野	分析項目	分析装置【分析項目】	反映先※1					
	U, Pu濃度	ICP-AES(ICP-MS),	臨界評価の確認					
臨界		TIMS【C-1, 2, 6】 注	(U, Puの分離かないこと)					
	Gd, Fe, Cr濃度	ICP-AES(ICP-MS)	臨界評価の確認					
		【C-1, 2】 ^注	(Gdの偏在かないこと, Fe, Crの混合 率)					
	U濃縮度	TIMS	臨界評価の確認					
富		【C-2, 6】 ^注	(U濃縮度に偏在が無いこと)					
理	化学形態	WDX, XRD	臨界評価の確認 (Gd, Fe, Crなど					
		【B-2, 3】 ^注	の分布状況把握:偏在が無いこと)					
	Pu, ²⁴¹ Am	aスペクトル測定装置	臨界評価の確認					
		(Si半導体)【C-3】	(Pu+Am合計値必要)					
		注						
	U,Pu濃度	ICP-AES(ICP-MS),	収納缶設計の確認					
		$IIMS[C-1, 2, 6]^{\pm}$	(収納物の想定の確認)					
	Fe,Cr濃度	ICP-AES(ICP-MS)	収納缶設計の確認(収納物の想定の					
収		【C-1, 2】 ^注	確認)					
納	Cl濃度(水中)	イオンクロマトグラフ	収納缶設計の確認					
・ 移送・ 保管			(水素発生量評価,腐食評価)					
	化学形態	WDX,XRD	収納缶設計の確認(収納物の想定の					
		【B-2, 3】 ^注	確認), Puなどの確認					
	気孔率,含水率	X線CT(非破壊測定)	収納缶内の水素発生量推定の確認					
		【A-6, B-5,7】						
	γ核種分布	γスキャン装置	収納缶設計の確認					
	(+密度分布)	(+X線CT)【A-5, 6】	(収納物の推定の確認)					
	*2	注						

※1)許認可申請前,申請中は参考データとして利用

※2)分析項目を決定するために、非破壊測定により分析サンプルの全体の把握に利用

【1】平成26年度補正予算 廃炉・汚染水対策事業費補助金 燃料デブリの性状把握 より

 従来調査では、臨界管理と収納・移送・保 管について、設計側から『反映先』が提案 された。(本質的なニーズ)

81

 反映先項目を評価できるように、分析・解 析側で『分析項目・装置』にブレークダウ ンした。

○ 課題

 ブレークダウンした『分析項目』は、分析 実施側の観点で整理されており、必ずしも、 廃炉ニーズそのものではない!!



本質的な『反映先』に対し、燃料 デブリ分析データがどこまで充足 できるのかを再度検討



(1)② 燃料デブリの性状推定の高度化 -廃炉ニーズへの反映--廃炉PJからの燃料デブリ分析ニーズ(先行事業での調査まとめ)-

- 燃料デブリ取り出し・・・ 燃料デブリ分布・物量、侵食範囲、<u>化学特性</u>#、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、リスク#、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>UとPuの帯同性</u>、UとGdの帯同性、<u>Fe, Crの混合率</u>、
 燃料デブリ中のGd, Fe, Cr濃度と分布、Gd-155濃度、<u>U同位体組成</u>、
 (Pu+Am-241)/U組成、Cm-244濃度
- 線量評価···· <u>Cs-137線量</u>(濃度)、Sr-90線量(濃度)
- ・ 収納・移送・保管・・・
 協衆管理に係る項目(上述)
 腐食・長期安定性に係る項目(<u>燃料デブリ化学形</u>#、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

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。

で取得可能なデータを青字で、本事業での分析項目を下線で示す。

- 従来は、廃炉ニーズとして示された個別の分析項目(右側の一覧)に対し、分析・解析側が 分析方法を技術的に選定し、分析データの積み上げでデータベース化を進めてきている。
- 従って、そもそも分析データの積上げでは評価しきれない項目、設計裕度に影響が小さくロバストな評価で十分な項目、分析データ積上げて精緻化が必要な項目、臨界や保障措置などの前提となる議論が必要な項目、などを区別し、分析データの優先度・充実度を整理するのが現実的ではないか? (関連知見が次第に拡充され、ある程度の整理ができる状況)
- > 以下で、現状での充足度の評価結果を示す。



IRID



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

込まれる.

(1)② 燃料デブリの性状推定の高度化 -廃炉ニーズへの反映まとめ-

- サンプル分析データの廃炉ニーズへの反映・・・ 廃炉ニーズ調査結果を再検討し、知見の『反映先』=本質的なニーズを整理し、それに対し、これまでに取得された1Fサンプルの分析データや将来の実際の燃料デブリ分析データが、どこまで充足するかを検討した。
- 最新知見を工程設計にどのように反映するか?・・・ 他方、最近の現場観測や事故進展解析の結果から、1F燃料デブリが<u>号機・領域ごとに、事故直後の想定よりずいぶん多様化している</u>ことがわかってきている。技術的には、大量(数、量とも)の燃料デブリサンプルを分析しないと燃料デブリ特性データベースは精緻化できない。一方で、本質的な ニーズに対して、どこまでどうやって精緻化するかの議論が必要となってきている。
- 廃炉設計で必要となる項目ごとに、1F燃料デブリの多様性をどのようにとらえ、分析・解析で得られる知見・データをどのように拡充し、設計に反映していくのか、担当者レベルでの合意形成が必要と認識している(大前提として、工程設計はできるだけロバストにしたい)。
- ▶ 確率の低いリスクについて(研究開発の観点では、現状想起されない課題の先取りともいえるが。。。)、どこまでどのように扱っておくかの合意形成も必要ではないか?(例えば、現状では、ある項目については基礎研究にとどめることを認識共有するなど)
- 計量管理・保障措置、臨界安全、廃棄物・・・ 燃料デブリデータベース拡充・精緻化の前に、最新知見に基づいて、ある程度の合意形成を行うタイミングではないか?

6. 実施内容

2020年度実施内容について(全体計画)

(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(2019~2020年度)
 ②燃料デブリの性状推定の高度化(2019~2020年度)

(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 (2019~2021年度)
 - ①-1. ウラン含有模擬燃料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
- ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (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

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発 全体実施計画

- 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. ウラン含有模擬燃料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含有模擬燃料デブリ試料の調整、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】
 - ▶ 上述の大型試験の実施、結果評価【2020-2021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】





1年間延期 ・ 模擬燃料デブリ由来のウラン微粒子について、発生時の性状(発生量・粒子特性)を示す。

ウランと共存するプルトニウムの挙動(帯同性)を推定する。

② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動<移行挙動の理解>

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

88

・ 数値流体力学(CFD)シミュレーション等を用いて、微粒子の移行を推定する技術を開発する。



6. 実施内容

2020年度実施内容について(全体計画)

(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(2019~2020年度)
 ②燃料デブリの性状推定の高度化(2019~2020年度)

(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 (2019~2

(2019~2021年度)

89

①-1. ウラン含有模擬燃料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

- ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (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



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. ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

目的:

ウラン含有模擬燃料デブリの加熱並びに機械的切断に伴い発生する放射性微粒子を捕 集・分析することにより、気相における放射性微粒子の生成・移行挙動に関する情報を取得 し、燃料デブリ取り出しシステムへの影響を評価、検討する。

実施方法:

- ・ウラン含有In-vessel (MCCI無)、及びEx-vessel (MCCI有)模擬燃料デブリ試料とハ フニウム含有模擬燃料デブリ試料を作製する。又、加熱試験、機械的切断時に発生する 微粒子挙動を試験するためのサンプリングライン・分析システムの設計・製作を行う。
- 加熱試験及び機械的切断で上述模擬燃料デブリ試料から発生する微粒子を捕集・分析 (形態観察、ICP等)し、その結果を空気力学的直径等の観点から検討する。

主要成果:

- ・ウラン含有材料の切断によって生成するエアロゾル粒子の生成挙動に関するデータ(粒径 分布/質量濃度・数密度/発生量/放射能の推定値)を取得。
- ・上記取得データや、過去のONET/CEA/IRSNのコールド環境でのレーザー切断時の微粒 子挙動データを踏まえた、コンクリート成分の有無(MCCIの影響)による生成・移行挙動の 違いや、ウランハフニウムの気相におけるエアロゾル挙動の違いに関しての知見。



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. ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN)

【新型コロナウィルス感染拡大の影響】

- > 2020年3月、新型コロナウィルス感染拡大の影響で、フランスの事業実施者の活動・施設がストップ。
- ▶ その後、各事業者(ONET/CEA/IRSN)の活動が徐々に再開するも、フランス国内移動禁止措置が続いた影響で、今年度実施予定の試験(CEAのホット施設)の開始が出来ない状況が発生。
- 本事業は、2021年度まで延長。2022年3月に事業完了予定。
- ▶ 2020年9月以降、移動禁止措置解除も含めフランス国内の活動制限が緩和されたことから、新たな 実施計画・内容を検討し、事業再開のための契約手続き等を進め、令和3年1月に試験を再開。

【2020年度計画(延長のための修正後)】

• 2019年度事業で作成した供試体(ホット・コールド)、試験装置・施設を使用した機械切断試験、 加熱試験の実施

【2021年度計画(延長のための修正後)】

- 2020年度に取得した微粒子試料の分析(粒径分布、元素分析、形態観察等)
- 分析結果を別事業で取得したレーザー切断試験の結果と比較し、微粒子発生挙動の加工法別の傾向 を検討
- 本事業の成果を踏まえ、「タスク全体のアウトプットのイメージ」のように微粒子移行挙動推定・評価法を 2021年度末に提案



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. ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN)

【試験供試材】

- ▶ ウラン含有In-vessel (MCCI無)、及びEx-vessel (MCCI有)模擬燃料デブリ試料とハフニウム含有 模擬燃料デブリ試料を作製。
- ▶ 加熱試験、機械的切断時に発生する微粒子発生挙動及び発生微粒子特性を試験・測定するため のサンプリングライン・分析システムの設計・製作を実施。

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(‡(* PultCe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-											

ま、大東学で使用する試験体の仕様 制造法 ひび組成法定の相切について

5 万悈半均10010年栓迴・埃灸を忍止した計昇値を奉に組成を次正した。

模擬燃料デブリの原料組成例:試料番号3 (HfO。In-vessel)

Materials	HfO ₂	Zr	ZrO ₂	CeO ₂	SnO ₂	B ₄ C	SUS	Nd_2O_3	MoO ₂	CsOH.H ₂ O	BaO	La_2O_3	PdO	Pr ₂ O ₃	Sm ₂ O ₃	SrO	Y ₂ O ₃	TeO ₂
Composition (%)	30.2	37.9	19.8	0.2	1.0	1.1	9.3	0.12	0.09	0.08	0.05	0.035	0.033	0.033	0.016	0.024	0.016	0.015

esearch institute for Nuclea

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. ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN)





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. ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN)



IRID

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. ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN)

2020年度進捗(コールド模擬燃料デブリの加熱試験について:試験結果のレーザー切断との比較例)

過去に行われたHf Ex-vessel模擬燃料デブリの気中レーザー切断試験 (文献値)



今回実施した、Hf- Ex-vessel模擬燃料デブリ<mark>加熱試験</mark>時の粒径分布 (試料番号2)

95



現在実施中の加熱試験で得られた粒径分布は、過去にCEAサクレー研究所で実施されたHf-模擬燃料デブリのレーザー切断試験の結果と相似



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

文献值: Porcheron, E., et. Al., J. Nucl. Sci. Technol. 1–13. 2020.

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. ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN)



- ▶ 加熱中に生成された粒子は、一次粒子が凝集したフラクタル形状をしている。(レーザー切断に類似)
- 総合的にIn-Vessel試料の方が、Ex-Vessel試料よりも粒径が大きい傾向。
- > いずれの条件でも、分布の大半はサブミクロン領域である。
- Ex-Vesselの酸化物部分においては、双峰性分布が生じている。(次頁でTEM像を比較)



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. ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN)



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. ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN)

2020年度成果(コールド模擬燃料デブリの機械的切断試験について:試験概要)



- ▶ 封じ込めボックス内にコアボーリング装置を設置。ボックス壁面のサンプリングポートからエアロゾルをサンプリング。
- ドリルは2種類、接線速度一定条件。(φ15mm、4428rpmおよびφ25mm、2655rpm)
- ▶ ドリルー試料間には約10kgfの力を加えて切断。
- ▶ 粒子濃度をモニタリングしながら、複数回の切断を実施。(インパクターDLPI+の捕集量を確保するため)



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. ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN)



注) ADDAIR:標準粒子を用いたサンプリング試験。ボックス内に粒子をサンプリングした結果、上記4つのポートはほぼ同じ濃度、粒径分布が得られた。

粒子濃度測定中に、PEGASORの接続ホートを入れ替えた例。 グラフはなめらかにつながっており、ポート間で濃度に差がないことがわかる。

	m _{airborne}			小計	m _{der}	oosited	小計 被切削量		
TRIALS	m _{PEGASOR} (mg)	m _{HEPA} (mg)	m _{DLPI} (mg)	m _{airborne} (mg)	m _{vacuumed} (mg)	m _{walls} (mg)	m _{deposited} (mg)	Δm _{bloc} (mg)	E%
#3 InVessel_15_1	1.5	1.1	0.9	4.3	1840.0	27.2	1920.2	2300.0	84
#3 InVessel_15_2	2.1	2.4	2.7	8.3	1070.8	10.9	1099.9	2380.0	47
#3 InVessel_25_3	0.8	5.9	6.2	13.3	7264.0	95.0	7394.0	17500.0	42
#4 ExVessel_15_4	1.9	1.4	1.3	5.6	5188.0	282.9	5470.9	5900.0	93
#4 ExVessel_25_1	0.8	0.9	0.9	3.2	3080.0	27.2	3114.2	4300.0	72
#4 ExVessel_M_25_1	0.2	0.2	0.2	0.7	4023.0	81.6	4112.6	4600.0	89

TRIALS欄に記載された記号は、左から順に、試料の番号、InVessel / Exvesselの区別、ドリル径、試験番号を示す。

機械的切断試験におけるマスバランス

 $E=(サンプリングされた粒子質量(m_{airborne})+封じ$ $込めボックス内に残った粒子質量(m_{deposited})/被切$ $削量(<math>\Delta m_{bloc}$)×100で定義。

Eが低い例は、切削工具内または床面用掃除機 内部に粒子がトラップされ、正確な計測が困難だった場合に対応。

質量のほとんどは床面に落下した粗大粒子 (m_{vaccumed})によるものである。

最下段はEx-vesseの金属部分であり、難切削性。





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. ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験(仏・ONET/CEA/IRSN)



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

6. 実施内容

2020年度実施内容について(全体計画)

(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(2019~2020年度)
 ②燃料デブリの性状推定の高度化
 (2019~2020年度)

(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 (2019~2021年度)
 ①-1. ウラン含有模擬燃料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

- ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (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



(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

【実施計画】

目的:

燃料デブリ切断工程での放射性飛散粒子生成にいて、内部被ばく評価上重要なPuの挙動を調査する。本調査では集光加熱による局所溶融と低速切断機による機械切断の2種類の加工方法を対象とする。

実施方法:

- ・Pu含有模擬燃料デブリ試料((U,Pu,Zr)O2系固溶体)に対し、集光加熱による局所 溶融と低速切断機を用いた機械切断を行い、それによって発生する微粒子を捕集する。
- ・捕集した微粒子について、EPMAによる元素分析を行う。Puが検出された微粒子に対して は、さらにFE-SEMによる粒径・形状観察を行い、Pu系微粒子の外観的特徴を把握する。

主要成果:

集光加熱による局所溶融や低速切断機による機械切断のための実験・捕集系の確立

- → 高濃度Pu含有模擬燃料デブリ試料を用い、両加工手法によって発生する微粒子がPu を含んでいるかを確認する。
- 上記実験・捕集系を用いた、微粒子生成におけるUに対するPu随伴性評価
- → U及びPuの組成を変化させた試料を用い、両加工手法によって生成する微粒子を分析 する。初期組成と微粒子中での組成を比較することで、Uに対するPu随伴性を評価する。

(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

【模擬燃料デブリの製作と試験フローの概要】



IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

(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



【試験方法】



IRID

機械的加工試験



低速切断機(機械的加工試験) 切断刃:ダイヤモンド切断砥石 ビューラー製 刃厚:0.3mm 回転速度:0~150rpm



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



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

【試験結果(機械切断試験、EPMA及びSEM)】



(切断後試料1)



(切断後試料3)



写真の左上:U、右上:Pu、 左下:Zr、右下:SEI 倍率:約1000倍(カーソル長さ:50 µm) 濃度目安色の最大値(wt%) U:100、Pu:25、Zr:25

機械切断微粒子のEPMA及びSEM 結果 ⇒ Uが最も多く検出され、次いで Pu, Zrを検 出。その程度は加工前の元素濃度に従う。 微粒子はµmオーダーの小粒子表面に 1µm未満の微小粒子が付着



(切断後試料1)





106

(切断後試料2)

SEM観察結果





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

【試験結果(加熱試験、EPMA及びSEM)】

(試料1、窒素雰囲気) (試料1、大気雰囲気) (試料2、窒素雰囲気) (試料3、窒素雰囲気) 写真上段はEPMA測定結果 写真左上:U、右上:Pu、左下:Zr、左下:SEI、倍率:約1000倍(カーソル長さ:50 µm)、 濃度目安色の最大値 U:100 wt%、Pu:25 wt %、Zr:25 wt %



IKID

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

【試験結果(加熱試験、EPMA及びSEM)】

- ・加熱により、微粒子が飛散し、ベルジャーに付着。これに伴い、ベルジャーに曇りが発生。集光加熱を行った模擬試料は、試料にクラックが生じ、見かけ体積が膨張した状態となった。
- ・昇温の雰囲気別では、大気雰囲気でベル ジャーへの付着量が多く、また、昇温中に試料 の変形や割れも大きい。
- ・付着物の組成は、Uが主体であり、Puがわずか であり、Zrはほとんど検出されない。機械切断 の微粒子の分析結果に比して、かなり小さい。
- ・付着物の組成の特徴として、Puは窒素雰囲気 ではわずかに検出されたが、大気雰囲気では 検出されなかった。
- ・付着した微粒子の大きさは、窒素雰囲気では 100 nmオーダーであり、機械的切断に比べ て丸い形状の粒子が多い。一方、大気雰囲 気では粒子径が窒素雰囲気より大きく300 nm程度であった。



加熱試験後のベルジャーの比較 左窒素雰囲気、右大気雰囲気



加熱試験における模擬燃料デブリの経時変化(大気雰囲気)
(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

【試験結果の検討】

・集光加熱を行った模擬試料は, 試料にクラック が生じ、見かけ体積が膨張した状態となった。 ・この現象はUO2の酸化破砕と呼ばれるU3O8へ の結晶構造変化による体積膨張現象と類似し ており、U成分が雰囲気中の酸素と反応したため に生じた可能性があると考えられる。 ・機械的切断で生じた微粒子に比べ、集光加熱 で生じた微粒子のPu及Zr濃度が低いことについ て、以下の通り検討した。 ・模擬試料の出発物質である UO_2 , PuO_2 , ZrO_2 に加え、Uの最終酸化物であるUO₃の蒸 気圧について算出した。右図に示すようにUO。が 最も高く、ZrO₂が最も低い結果となった。 ・このことから、集光加熱試験において生じた微粒 子中にPu及びZrが少ないのは、昇温雰囲気中

の酸素とUが反応し、蒸気圧の高いU酸化物が 生成したからである可能性が考えられる。



蒸気圧計算結果(FactSage 6.3, Database ELEM 6.3)

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

粒子生成挙動に係る基礎試験のまとめ

- ・低速切断試験(機械的加工)では、X線回折及びEPMAの定性分析の結果から、PuとUの組成や結晶構造に変化は認められないことから、PuはUに随伴すると考えられる。
- ・また、低速切断に伴い発生する微粒子のサイズはµmオーダーとであった。
- ・集光加熱試験(熱的加工)では、EPMAによる定性分析の結果から、PuはUとともに 検出されることから随伴するものと考えられるものの、Puの濃度は低速切断試験の微粒子 に比べ低い。これは、昇温された試験体中のUが雰囲気中の酸素と反応し、蒸気圧の高 いU酸化物を形成し、このU酸化物が主体となって蒸発したため、相対的にPuの濃度が下 がった可能性があると考えられる。
- ・ただし、今回の試験においては、回収できた微粒子の量がごく微量であったため、定量分析には至らなかった。このため、微粒子中のPu濃度減少幅についてはデータが得られなかった。 また、レーザーガウジングのようにごく短時間で加熱する加工法と、集光加熱試験のように 長時間かけて昇温する試験法とでは酸素との反応の程度が異なると考えられるため、この 点に留意する必要がある。
- ・集光加熱に伴い発生する微粒子のサイズは100nmオーダーであった。

6. 実施内容

2020年度実施内容について(全体計画)

(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(2019~2020年度)
 ②燃料デブリの性状推定の高度化
 (2019~2020年度)

(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 (2019~2021年度)
 - ①-1. ウラン含有模擬燃料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

- ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (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



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

目的:

原子炉や核燃料施設等の運転又は廃止措置で発生した放射性微粒子の飛散事例についての情報(性状や挙動)を収集し、飛散物質(放射化金属や核燃料)及び発生条件等との関連性を纏めて評価するとともに、TMI-2、ChNPP4における燃料デブリの飛散事例等とも比較評価することにより、1F燃料デブリ取り出し作業時の微粒子挙動の推定に資する。

112

実施方法:

- ・国内施設(「ふげん」、JPDR、MOX燃料製造、ホットラボ、再処理)等の事例情報を、 当該施設の文献・資料及び聞取りにより収集・調査する。
- ・欧米施設(TMI-2、ChNPP4、廃止措置施設)に関する事例情報・内容の事前予備 調査、及び本調査を行う。

主要成果:

(1)情報取得:

異なる切断工法(機械的、熱的)及び作業条件・環境において発生した微粒子の性状 (発生量、粒径/分布、形態、等)及び挙動(気中飛散、空間線量、汚染濃度、水中 移行、捕集性、封じ込め性、等)に関して、施設・条件・環境特有の情報・データを取得。

(2) 取得情報の評価

(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
- ①-3.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)

【成果の取りまとめ方針】

2. 国内外事例調査結果の各粒子性状を包括的に取り纏め、工法・加工条件・対象材料等の観点から、放射性微粒子発生挙動を抽出するとともに、1F条件下での挙動を予測



(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 ①-3.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)

国内外の原子力施設における放射性微粒子飛散事例調査一覧表(その1)

施設分	漢	組織、施設名	調査の視点
原子力発電	電所	・JAEA/JPDR、ふげん ・ドイツRWE / Gundremmingen	廃止措置の実績として原子力発電所の放射化した炉内構造物の気中 及び水中切断で発生する放射性微粒子の性状と挙動、その除去方策 について情報を収集・整理する。また、水中切断における放射性微粒 子の挙動、とくに水中浮遊物、ドロス、気中移行の比率、回収方法等の 情報を収集した。
燃料製造加	施設	 ・スウェーデンW.H Vasteras 施設 ・JAEA/核燃料サイクル工学 研究所Pu燃施設 ・JAEA/核燃料サイクル工学 研究所混合転換施設 	軽水炉燃料(MOX燃料含む)の製造時、切断時の粒径分布と製造施設 における飛散挙動に関して1Fの放射性微粒子性状の理想的形態(乾 式及び環境影響無)として理解・把握した。
照射後試 設(PIE施討	t 験 施 没)	 JAEA/大洗研究所5施設 (FMF, AGF, MMF, WDF, JMTR ホットラボ) JAEA/原子力科学研究所2 施設 ドイツFRM/RCM施設 米国DOE/HFEF施設 	PIE施設は、高燃焼度燃料(U/TRU)、放射化金属材料、FP, CP(腐食生成物)等を扱うことから高放射能濃度の放射性微粒子が多量に発生する。燃料の比放射能も燃料デブリを遥かに超えるものもある。これらの放射性微粒子の性状と挙動、セルの閉鎖空間における飛散状況の調査結果は1Fの燃料デブリ切断・取扱い、換気及び放射性廃棄物に係る安全対策の基礎情報として整理・評価した。

- 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)

国内外の原子力施設における放射性微粒子飛散事例調査一覧表(その2)

施設分類	組織、施設名	調査の視点
再処理施設	・ドイツZFK WAK施設 ・JAEA再処理特研 (JRTF)	照射燃料の機械的切断(せん断工法)及び燃料溶解や精製過程で発 生する放射性微粒子の性状と挙動把握から1F燃料デブリ切断工法と 放射性微粒子の回収方策の検討に資する。
事故炉	・ウクライナ SSE チェルノブイリ4号機	Chernobyl 4号機の燃料とジルカロイの相互作用を含む燃料溶融の 事故の初期段階は、TMI-2事故及び福島第一発電所事故、炉外模擬 実験とほぼ同じである。Chernobyl 4号機とTMI-2の重要な違いは、後者 ではコリウムーコンクリート相互作用が無いことであり、前者は、福島第 一原子力発電所の事故とは、より関連性が高いと思われる。この観点 で従来の国内外の文献を見直し、かつウクライナの最新情報をドイツコ ンサルを経由して入手し、Chernobyl 4号機内のLFCM(燃料含有物質: 燃料デブリ)形態の確認、プラント内外のエアロゾル発生状況に関して、 1F燃料デブリ性状の類推に資することとした

- 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)

【重要な微粒子挙動の抽出とその検討(例)】 抽出課題:難捕集性微粒子の捕集効率改善	
把握の課題	改善策の検討
微粒子の生成挙動	・ 燃料デブリのレーザ切断時に発生する微粒子が、
 燃料デブリ取り出しで生ずる微粒子の内、比較的粒径の大きな微粒子は、水スプレーによって除去されるが、ある粒径範囲の微粒子はHEPAに捕集されにくい。 	HEPAフィルタで捕集しにくい粒径範囲であることを考 慮すると、レーザ切断オフガスを環境に放出するときは、 HEPAだけではなく適切な補完設備を併用することが 望ましい。
 その粒径範囲は概ね0.03 µm~0.4 µmであり、 Greenfield Gap (GFG) とも呼ばれる。 	 HEPAの補完設備としては、別途研究されている水ス プレーの他に、TVF*1で使用されているデミスタや電
 レーザ切断によって発生した微粒子の粒径は0.04 µm~10 µmの範囲であり、GFGを考慮すると、水 スプレーだけで低減させることは困難 	 気集塵器が利用できる。 0.1 µmの粒子に対するDF*2 1)デミスタ 300
HEPAフィルタの捕集特性	2)電気集塵器 電位4kVで約250、
 HEPA フィルタの捕集効率は、粒子径0.1 µm付近でDFが最低値を示しており、この場合もGFG領域で効率が低い。 従って、GFG領域粒径の微粒子捕集を補助するシステムの追加が有効。 	電位55 k Vで約5000 (電気集塵機の電極に付着した微粒子は、電極 上部からの注水によって洗浄できるので、遠隔保 守性にも優れている。)
	*1:JAEA再処埋上場カラス固化処埋施設(IVF) *2:米谷ら、(1991) PNC TN8410 91-026

6. 実施内容

2020年度実施内容について(全体計画)

(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(2019~2020年度)
 ②燃料デブリの性状推定の高度化
 (2019~2020年度)

(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 (2019~2021年度)
 - ①-1. ウラン含有模擬燃料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
- ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (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

- 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

【実施計画】

目的:

燃料デブリ取り出し作業時に発生する微粒子のエアロゾル化評価、及び輸送挙動を想定する ため、気液界面における微粒子の移行率(②-1)及び微粒子の液相における沈降率(②-2)を、想定される1F環境条件下で幅広く評価する。 また、液相での評価(②-2)においては、流れ中での微粒子輸送挙動(移行距離)につい ても評価する。

実験方法:

燃料デブリを想定したモデル粒子を用い、現在検討されている燃料デブリ取り出し工法を踏まえ たpH、電解質濃度を有する水槽において、プールスクライビング実験(②-1)、及びビーカーを 用いた沈降試験(②-2)を行う。

主要成果:

- 移行挙動を推定するための基礎試験データとして、各種条件における、粒径分布、移行率 (2-1)、沈降率(2-2)の取得
- ・実験データから移行挙動を推定するための評価モデル(CFDシミュレーション等)の提示



6. 実施内容

2020年度実施内容について(全体計画)

(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(2019~2020年度)
 ②燃料デブリの性状推定の高度化
 (2019~2020年度)

(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 (2019~2021年度)
 - ①-1. ウラン含有模擬燃料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
- ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (2019~2020年度)

②-1. <u>気相・気液界面における微粒子挙動評価</u>

②-2. 液相における微粒子挙動評価



【モデル粒子選定】

本研究では、被覆材、あるいは、核分裂生成物に由来し、燃料デブリを構成する元素であるZrに着目し、その酸化物である酸化ジルコニウム(ZrO₂)を採用した。また、比較のために、ZrO₂より、密度・硬度が小さい二酸化チタン(TiO₂)も使用した。

モデル粒子の粒径としては、Porcheron ら(Porcheron et al., 2018)の 気中で模擬燃料デブリのレーザー切断試験で得られたエアロゾル 粒子の粒径(100, 190 nm)に関する報告を参考に、粒径100 nm及 び粒径200 nmの粒子を使用した。

【水質設定】

現在検討されている燃料デブリ取り出し工法を踏まえ、 pH、電解質濃度を変化させた電解質溶液をプール内に 作成し、スクライビング実験を行った。

バブルの影響を調べる試験では、マイクロバブルは AURS TEC製OM4-MDG-045(加圧溶解式)を、ナノバブ ルはAcniti®製超微細GaLF標準-モデルFZ1N-05Sw(静的 ミキサー式)を用いて水相中にバブルを発生させた。

ケース	рН	水相組成	備考
1	7 (5.8 ⁽¹⁾)	蒸留水	標準ケース
2	4 (HCl)	<u>蒸留水⁽²⁾</u>	
3	10 (NaOH)	<u>蒸留水⁽²⁾</u>	セメントの影響
4	7	蒸留水 + 0.1 mol/L NaCl	高濃度電解質(海 水、ホウ酸水等)
5	-	蒸留水 +バブル	バブルの影響
6	-	蒸留水 + 5 wt%エタノール	表面張力の影響 ⁽³⁾

(1) 微粒子の添加によりpHが5.8に変化した。

(2) pH調整のために、イオン交換水に少量の酸、塩基試薬を添加した。

(3) 0.072 N/m(蒸留水)⇒0.05641 N/m(エタノール添加)

ZrO ₂	
カタログ粒径	100, 200 nm
結晶相	単斜晶
密度	5.89 g/cm ³
モース硬度	6~7
融点	2,715°C
TiO ₂	
カタログ粒径	100, 200 nm
結晶相	正方晶ルチル型
密度	4.23 g/cm ³
モース硬度	5 ~ 66
融点	1,870°C





IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

【試験結果のまとめ】

水相条件等	移行率の違い
全体的傾向:ZrO ₂	0.2 μmから0.3 μmのサイズ範囲で移行率が最小
: TiO ₂	0.15 μm~0.5 μmのサイズ域でフラット、且つ、0.6 μm以上でサイズ に対して単調増加
予めZrO ₂ 粒子を水 相に分散	イオン交換水を除き、全サイズ域で移行率を増加させる傾向はな い
水相の気泡	ナノバブルでは、移行率が全サイズ域によって減少 マイクロバブルでは、0.5 μm以下のサイズ域で移行率が低下
中和器	HCI添加の場合は、他の液相条件と比べて移行率が大きくなる傾向
エタノールの添加	移行率が全サイズ域で増加。特に、イオン交換水に対し、最大で4 割程度増加。特にその傾向は0.6 µm以上の比較的大きなサイズ 域で顕著。



【CFDシミュレーション】

Star-CCM+を用いたCFDシミュレーション

- ・Volume of Fluid (VOF)-Lagrangian法を使用してソルバーを構築、
- ・オイラーの連続方程式が流体相に対して解かれ、
- ニュートンの運動方程式が粒子相に対して解かれ、個々の粒子の軌跡が決定される。

Star-CCM+を用いたCFDシミュレーションのパラメータ

Parameter	Value
粒子濃度	10 ⁵ 粒子/mL
粒子密度	1 g/cm ³ ; 5.86 g/cm ³
入口での気相速度	22.55 m/s
粒子径	1 μm; 0.5μm
表面張力	0.072 N/m; 0.05641 N/m
計算体系	$200\times 200\times 1100\ mm^3$
	(水柱高さは 550 mm)
ノズル半径	4.85 mm(試験で使用した 0.7
	mm 径の 48 穴のノズルと等価)



【 CFDシミュレーション】



異なる時間における粒子速度のカラーマップ

異なる粒子径、表面張力を用いた高さ0.55 mの 水柱での粒子移行率の時間変化



【CFDシミュレーション結果のまとめ】

試験条件等	シミュレーション結果
結果の概要	全てのケースで、移行率の計算結果が0.5を超えており、試験結果 と一致した結果が得られた。
表面張力の模擬	エタノールの添加を模擬した、より低い表面張力でのシミュレーショ ン結果は比較的大きな気液移行率を示しており、試験結果と対応 する結果が得られた.
水相から直接気相 に移行する粒子の 寄与	水相から気相に輸送される微粒子の大部分が気泡を介しての輸送によるもので,水相から直接気相に移行する粒子の寄与は小さい(0.42%)



6. 実施内容

2020年度実施内容について(全体計画)

(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(2019~2020年度)
 ②燃料デブリの性状推定の高度化(2019~2020年度)

(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 (2019~2021年度)
 - ①-1. ウラン含有模擬燃料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
- ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (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

【実験装置概要】

沈降試験方法:

・250 mLのビーカーに濃度1 g/Lの微粒子を分散
 ・試験期間: ZrO₂: 2週間、 TiO₂: 2時間
 ・サンプリング位置:

水面から2 mmと50 mmの2箇所で複数回 ・サンプル中の粒子濃度測定:紫外可視吸光光度計 (島津製作所社製UV-2700)

・試料中の沈降していない粒子の平均濃度(C*):

$$C^* = rac{C_1(h_{total} - h_z) + C_2h_z}{h_{total}}$$

 $C_1, C_2: サンプリング位置1(水面から2 mm)及び
位置2(同じく50 mm)における粒子濃度
hz: 位置2の高さ(= 20 mm)
 $h_{total}: 全試料高さ(= 70 mm)$$

・沈降率 φ_{t} (%)





沈降試験状況とサンプリング状況

【モデル粒子選定(②-1と同様】

本研究では、被覆材、あるいは、核分裂生成物に由来し、燃料デブリを構成する元素であるZr に着目し、その酸化物である酸化ジルコニウム(ZrO₂)を採用した。また、比較のために、ZrO₂より、密度・硬度が小さい二酸化チタン(TiO₂)も使用した。

モデル粒子の粒径としては、Porcheron ら(Porcheron et al., 2018)の気中で模擬燃料デブリの レーザー切断試験で得られたエアロゾル粒子の粒径(100, 190 nm)に関する報告を参考にした。

【水質設定】

現在検討されている燃料デブリ 取り出し工法を踏まえ、pH、電解 質濃度を変化させた電解質溶液 にモデル粒子を分散させた。

ケース No.	рН	電解質濃度	気泡影響 (ナノバブル添加)
1	7 (5.8 ⁽¹⁾)	イオン交換水	無し
2	4 (HNO ₃)	イオン交換水(2)	無し
3	10 (NaOH)	イオン交換水(2)	無し
4	7	0.1 mol/l NaNO ₃	無し
5	調整なし	イオン交換水	有り

(1) 微粒子の添加によりpHが5.8に変化した。

(2) pH調整のために、イオン交換水に少量の酸、塩基試薬を添加した。

【試験結果】



131

ケース1及び4の沈降試験におけるサンプルの経時変化

各写真において、左ビーカーがケース1、右ビーカーがケース4に対応 異なるサンプリング時の写真を順に左から右,上から下に,配置した。

【試験結果】



異なる水質条件でのZrO₂粒子沈降試 験における液相濃度の時間変化



異なる水質条件でのZrO₂粒子沈降試 験における液相濃度の時間変化



【実験装置概要】



異なる水質条件でのTiO₂粒子沈降試 験における液相濃度の時間変化 異なる水質条件でのTiO₂粒子沈降率の時間変化



【試験結果のまとめ】

水相条件等	移行率の違い
全体的傾向:ZrO ₂	ZrO ₂ 粒子沈降は水相の条件に大きく依存する。 イオン交換水に分散させたZrO ₂ 微粒子は粒子間の静電的な反発 のため安定で、2週間の試験期間では完全には沈降せず、90%程 度の沈降率に留まった。
全体的傾向:TiO ₂	pH 10(条件3)の場合を除いて、全ての条件で沈降率は1分以内に 約80%に達した。
pHや電解質濃度	pHや電解質濃度は沈降挙動に大きな影響を与え、特に、0.1 M NaNO ₃ 存在下では、体系上部でのサンプリング位置では、実験開 始から5時間後には、90%以上の沈降率に到達し、50時間経過後 には、100%沈降率、つまり、沈降が完了していた。



【CFDシミュレーション】

OpenFOAMを用いたCFDシミュレーションの概要

- ・モデリングには、OpenFOAMソルバーMPPICFoamを使用
- ・MP-PIC法(MultiPhase Particle-In-Cell法):

高密度粒子流の数値オイラー/ラグランジュモデリング手法



微粒子沈降挙動シミュレーションの計 算体系とメッシュ分割



微粒子沈降挙動シミュレーションの 計算体系(上)とメッシュ分割(下)



TiO₂ (500µm)

TiO₂ (1000µm)

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

円管内微粒子輸送シミュレーションにおける粒子移行率と移行距離(流速1m/s) 粒子移行率 (%)⁽¹⁾ 粒子種と径 移行距離 (m)⁽²⁾ シミュレーション結果】 5秒後 10秒後 15秒後 ZrO₂ (MD 0.712 μm) 90.1 n/a 34.2 89.7 TiO₂ (MD 7.940 μm) 88.0 88.6 35.9 n/a TiO_2 (1µm) 31.3 91.5 91.8 n/a TiO_2 (10µm) 36.1 89.0 89.5 n/a TiO_{2} (50µm) 80.4 80.4 n/a 33.7 TiO₂ (100μm) 27.0 60.7 60.8 n/a (1)5 mの円管流路を通過 TiO₂ (200µm) 26.6 26.8 13.5 n/a した粒子の割合。 TiO₂ (300µm) 3.9 7.7 7.7 3.9983 (2)計算開始から7秒後に TiO₂ (400µm) 0.2 0.4 1.2 1.6761

0

0

0

0

0%

0%

1.4552

1.3984

おける90%の粒子が到 達した距離。n/aは 90%以上の粒子が管 を通過した場合に相当 する。

【CFDシミュレーション】

円管内微粒子輸送シミュレーションにおける粒子移行 率と移行距離(流速0.5 m/s)。

	粒子	子移行率 (%		
粒子種と径	10秒後	20秒後	30秒後	移行距離 (m) ^{(2)s}
ZrO ₂ (MD 0.712μm)	45.1	79.0	79.1	n/a
TiO ₂ (MD 7.940μm)	42.1	74.9	75.2	n/a
TiO ₂ (1μm)	60.3	82.5	82.6	n/a
TiO ₂ (10μm)	41.6	75.7	76.2	n/a
TiO ₂ (50μm)	36.2	65.8	66.1	n/a
TiO ₂ (100μm)	26.6	41.1	41.6	n/a
TiO ₂ (500μm)	0	0	0	1.0456
TiO ₂ (1000μm)	0	0	0	1.2498

(1)5 mの円管流路を通過 した粒子の割合。

(2)計算開始から7秒後に おける90%の粒子が到 達した距離。n/aは 90%以上の粒子が管 を通過した場合に相当 する。

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

【CFDシミュレーション結果のまとめ】

水相条件等	シミュレーション結果
沈隆試験体	沈降試験と同様のサイズ分布、濃度を有する粒子を用い、同じ体系でシミュ レーションを行ったところ、TiO ₂ 粒子の場合は、実験と同等の早い沈降が再 現できた。
系での適用 性確認	粒径の小さなZrO2粒子の場合は、沈降率を過大評価しており、粒子間の静 電反発による粒子分散構造の安定化の影響が示唆された。
	ただ、MP-PICシミュレーションにおいて、粒子間の静電的相互作用を導入することは、計算機時間の観点で困難であり、効率的かつ適切な計算方法を実現するための研究が望まれる。
円管体系に おける粒子 の輸送挙動	1 m/sの流速で、大部分の粒子が流れとともに配管を通過しており、9秒時点 での粒子移行率はほぼ90%近い。1 m/sの流体速度では、10 µm程度まで の粒子において、重力の影響が無視でき、粒子径がそれ以上大きくなると、 輸送中に重力によって沈降し、管の底面に付着した粒子が現れ、数百 µm 以上では、移行率がさらに減少し、5 mの円管を通過できる粒子の量が少な くなることが分かった。

IRID



7. 実施結果のまとめ(1/5)

(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

令和2年度は、1、2号機のSGTS配管に関するスミアサンプルや1号機の内部調査アクセスルート構築関連サンプル、計3種類のサンプルを輸送し、これらを中心に昨年度輸送分を一部含めて分析を実施し、多くの分析データを取得した。

また、分析効率化の効率化に関して、分析物が燃料デブリであることを早期に特定するフ ローや燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送等につい て検討し、試験的燃料デブリ取り出しサンプルに対応可能な基本フロー及びケーススタディ が準備できた。

② 燃料デブリの性状推定の高度化

上述の分析結果、及び既に1F各号機の様々な領域から取得されたサンプルの分析結果 について、廃炉工程に適切に活用していくために、以下を実施した。

・分析データの品質管理の手順や方法の明確化

本研究で取得する分析データは、様々な専門性を有する技術者や研究者が長期にわたって様々に利用することを想定し、分析手順とデータ評価の方法について、品質管理の検討を行った。検討では、本事業内に、東電HDの専門家を交えた分析タスクフォースを設置し、JAEA大洗地区およびNFDの施設・設備で現状用いている分析手法を対象とした。

⇒ 次ページに続く

7. 実施結果のまとめ(2/5)

(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

(前ページからの続き)

> 分析データの系統的な整理,特徴・傾向の抽出,特性の推定

上で検討した品質管理の方法に基づいて,先行事業および本事業で取得・分析した結果 について,系統的な整理を行った。

整理においては、これまでのJAEAの評価で得られている号機ごとの最確シナリオと対照 づけながら推論することで,事故進展過程のどこに関係する議論なのかを示すようにした。

▶ 分析ニーズに関する検討

分析ニーズについては、従来調査に基づいて抽出した分析データの『反映先』を分析項 目ごとに再検討した結果をまとめた。また、実際の燃料デブリや周辺堆積物の分析データ が、『反映先』に対して現在どこまで充足するかについて考察した。



7. 実施結果のまとめ(3/5)

- (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. ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

放射性微粒子の生成・移行挙動に関する情報を取得すべく、ウラン含有模擬燃料デブリの加熱並びに機械的切断に伴い発生する放射性微粒子を捕集・分析試験を実施してきたが、令和2年度はCOVID-19により研究施設の活動が停止した。

このため,関係機関との協議により,本事業を1年間延長して実施することとし、最終的 に試験は令和3年1月に開始され,試験装置のコールドラン,およびウランを含まない模擬 試料のデータ取得に着手した。

①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験

UおよびPuを含有する模擬燃料デブリの加工の際に発生する放射性微粒子について, その性状をUおよびPuの挙動の類似性/相違性の観点から検討することを目的として、機 械加工試験及び熱加工試験を実施した。

その結果、機械的加工試験では、X線回折及びEPMAの定性分析の結果から、PuとUの 組成や結晶構造に変化は認められないことから、PuはUに随伴すると考えられる。



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

(前ページからの続き)

一方、熱的加工試験では、EPMAによる定性分析の結果から、PuはUとともに検出されることから、随伴するものと考えられるものの、Puの濃度は低速切断試験の微粒子に比べ低い結果が得られた。

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

国内外の原子力関連施設の運転又は廃止措置作業時に発生した放射性微粒子の飛 散事例についての情報(発生微粒子の物理・化学特性・性状や発生・飛散挙動)を収集した。

令和元年度は国内の施設を中心として、また、令和2年度は海外の施設を中心として、 原子力発電所,核燃料製造加工施設,照射後試験施設,再処理プラントなど国内外の多 数の施設における放射性微粒子の発生,飛散,性状,挙動を調査した。


7. 実施結果のまとめ(5/5)

② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-1.気相・気液界面における微粒子挙動評価

燃料デブリ取り出し作業時に発生する微粒子の生成、移行挙動評価に資する基礎知見 として、1Fの想定環境条件下における微粒子の気液界面移行率を評価することを目的と して、令和元年度に続いてZrO₂、およびTiO₂の微粒子を用いたプールスクラビング実験を 実施した。その結果、種々の水質条件における気液移行率データを取得した。

また、CFD コードであるStar-CCM+を用い、実験をシミュレーションした結果、概ね、試験結果と一致した結果を得た。

②-2.液相における微粒子挙動評価

同様に、微粒子の液相での移行・輸送挙動評価のための基礎的な知見を得るために、 ZrO₂及びTiO₂を用いた微粒子沈降試験を行った。

得られた試験結果についてCFDコードOpenFOAMで沈降試験をシミュレーションした結果、径が相対的に大きいTiO2粒子の場合は、実験と同等の早い沈降が再現できた。一方、 粒径の小さなZrO2粒子の場合は、沈降率を過大評価しており、粒子間の静電反発による 粒子分散構造の安定化の影響が示唆された。粒子間の静電的相互作用を今回の計算に 導入することは、計算時間の観点で困難であり、効率的かつ適切な計算方法を実現する ための研究が望まれるが、粒径分布の実測値から近似的な評価は可能である。





©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

146

主な専門用語、略語等の説明(1)

147

専門用語/略語	,我们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们们
燃料デブリ	ー般には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をいうが、多 種多様であり、本報告では基本的に、日本原子力学会核燃料部会が2018年11月に発表したポジションステートメントや、NDFの「廃炉 のため技術戦略プラン 2019」の中の整理を当PJでは当面踏襲する。 なお、炉心構造材(Zircaloyやステンレス鋼等)が溶融凝固したものも、燃料デブリと容易に分離できないものは燃料デブリに含めるも のとするが、単独で存在する場合は、本報告においては金属デブリと呼ぶ。
揮発性、難揮発性	本報告では、事故時の高温過程(およそ700℃から2550℃、圧力0.1MPa~80MPa)において、物質の蒸発し易い性質を揮発性と呼び、 同様の条件で、蒸発し難い性質を難揮発性と呼ぶ。
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
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。、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(2012年11月~2014年3月): OECD/NEAのプ ロジェクトの一つ
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 UO ₂ Lab for Corium ANalysis and Observation:CEA VULCANO施設における大型 MCCI (Molten Core - Concrete Interaction) 試験

主な専門用語、略語等の説明(2)

148

専門用語/略語	説 明
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)
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
ТЕМ	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
RE	rare earth elements (Sc, Y, La, Ce, Pr, Nd, Tc, Sm, Gdなど)
品質管理	本報告書では、1Fサンプル分析の「品質管理」とは以下のとおり。 〇分析手法の品質管理:分析フローで示したそれぞれの分析手法について、サンプル処理(ID振付、外観観察、試料分取、溶融処理、 残渣処理、など)、定性分析の手順(質量走査、領域走査、ピーク同定方法、など)、定量分析の手順(検量線、ピーク、バックグランド、 ブランク、誤差評価方法、など)、定量分析結果のまとめかた、データ技術レビューの方法、これらの承認体制、を示したもの。 〇分析データの品質管理:上の品質管理方法に則って、実施した分析データを系統的に格納すること。測定日、評価結果確定にかか わる経緯、残された課題の状況も含めて記述。将来の分析者・評価者に対するトレーサビリティを持った分析データー覧。
IRID	Sinternational Research Institute for Nuclear Decommissioning