

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)」

2015年度成果報告

2016年4月

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構 (IRID)

# 背景

福島第一原子力発電所事故

(2011年3月)

TMI-2情報、SA研究情報等の過去の知見および福島第一原子力発電所事故に関する情報の調査、整理  
(2011年-2012年)

- ✓ TMI-2事故事例や海外のSA研究ではBWRに関する知見は少ない。
- ✓ 海水影響やコンクリート反応(MCCI)等の福島第一原子力発電所特有事象に関する情報が少ない。

- 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、**技術開発(以下「情報利用側PJ」)**に利用できる**燃料デブリ情報の整理とその提供が必要である。**
- 初期段階で、燃料デブリに関する正確な情報が得られないとすれば、**既存の知見や研究開発を元に燃料デブリ情報を設定(仮定)する必要がある。**なお、本情報は研究開発者及び実務作業員間で改訂してゆくことが必要である。
- 収集すべき具体的な燃料デブリ情報については、**情報を利用する側PJ(取り出し、収納移送保管、臨界等、以下「情報利用側PJ」)**のニーズ・時期を十分に整理、確認しつつ進める必要がある。

# 背景・目的(性状把握)

## 現状認識

- 燃料デブリ取り出し、収納移送保管、等の技術開発を進めるにあたり、**前提条件となる燃料デブリ情報が整理されていない。**

(燃料デブリ取り出し) 燃料デブリの炉内位置、量、性状(硬さ、靱性、弾性率、等)の情報が無いと、取り出し工具の設計や工法選定ができない。

(収納・移送・保管) 燃料デブリの気孔率、乾燥特性、等に関する情報が無いと、収納容器内発生水素に対する安全評価、乾燥プロセスの設計ができない。

(臨界管理) 燃料デブリ中のGd量、 $B_4C$ 濃度、気孔率等の情報が無いと、取り出しや収納保管時の臨界発生防止設計が出来ない。

(廃棄物) 燃料デブリの成分情報が無いと、廃棄物として安全評価の検討ができない。

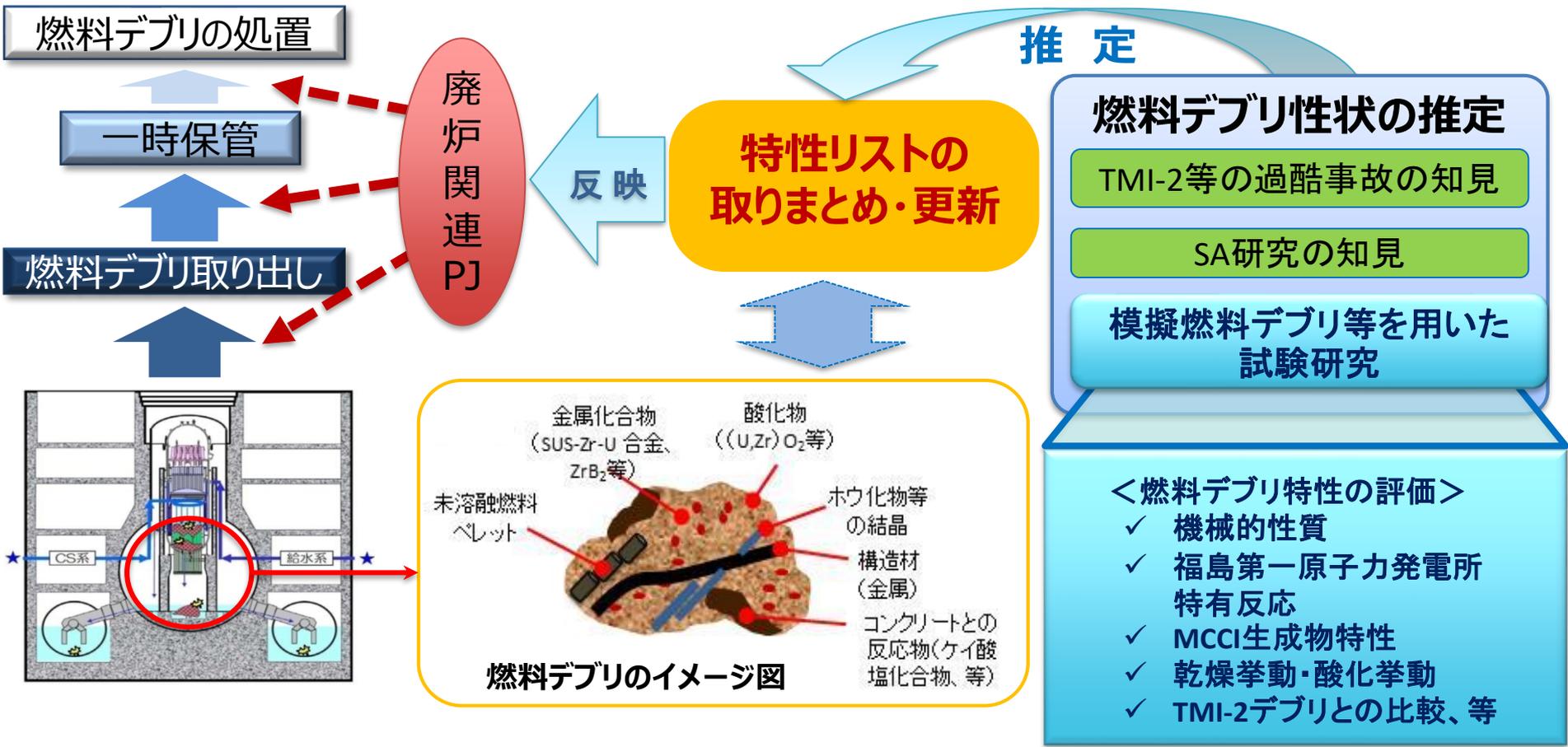
## 目的

前提条件となる**燃料デブリの特性に関する情報を推定し、提供する**必要がある。

(具体的な取得データは、情報利用側PJと密接に調整し設定する)

# 事業の目的 (1) 炉内燃料デブリ性状の推定 (2) 模擬デブリを用いた特性評価

● 本PJでは過去の過酷事故(SA)やSA研究の知見に加えて、模擬燃料デブリ等を用いた研究を行い燃料デブリ性状を推定、各PJへ情報を提供する。



# 背景・目的(性状分析)

## 現状認識

- 廃炉作業に有益な燃料デブリのサンプルが取得できても、**現実的に分析できる条件、環境が整っていない。**

(分析目的)	分析目的が整理されていない。 ⇒ 取り出し準備(炉内燃料デブリ状況把握、臨界管理、汚染管理等)に必要な燃料デブリ分析情報(核物質の位置、形状等)。 ⇒ 取り出し工具、収納缶等の設計の妥当性の確認に必要な燃料デブリ分析情報(機械的、化学的特性)。
(分析シナリオ)	福島第一原子力発電所サイトからのサンプル梱包⇒輸送⇒分析施設での受入⇒各種分析のシナリオが構築されていない。
(分析技術・環境)	難溶性の燃料デブリに対する溶解技術や一連の手順が整備されていない。サンプルの受入れ・分析が実施ができるホット環境が整備されていない。

### 目的

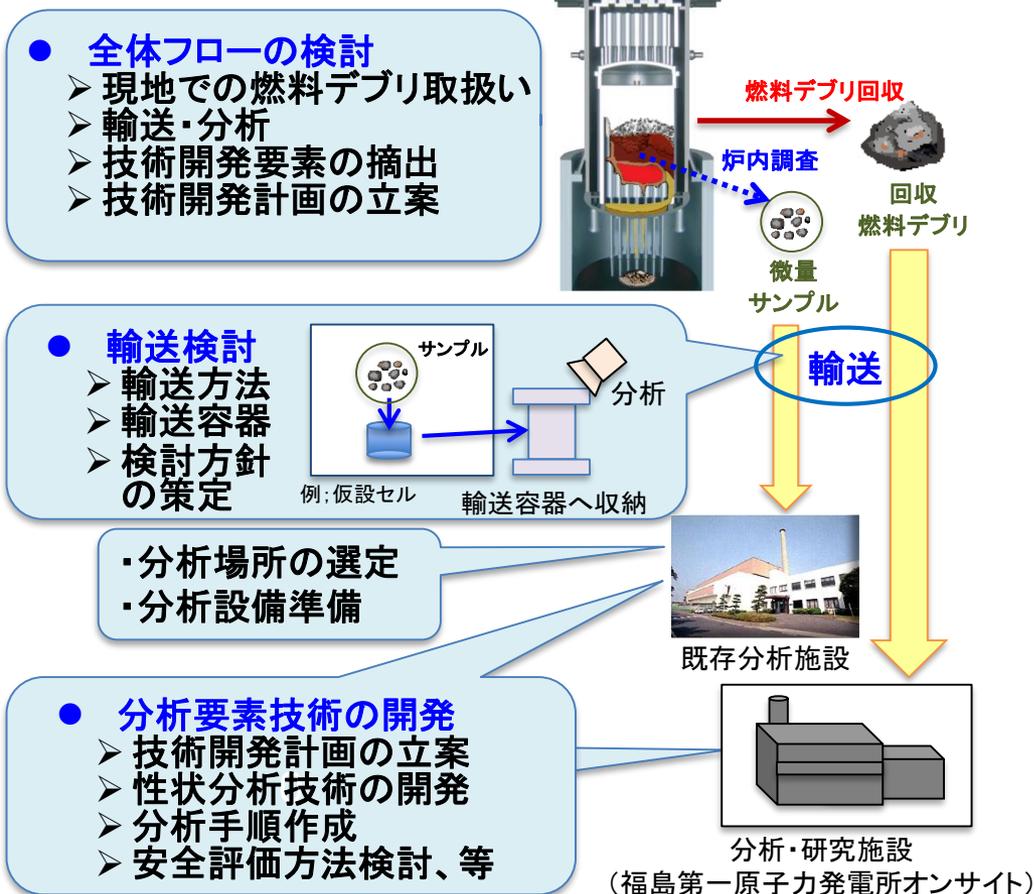
燃料デブリ分析を可能とするため、**分析シナリオの構築、分析技術・輸送技術の開発**が必要。

(炉内部調査での微量サンプリングの取扱いと連携する)

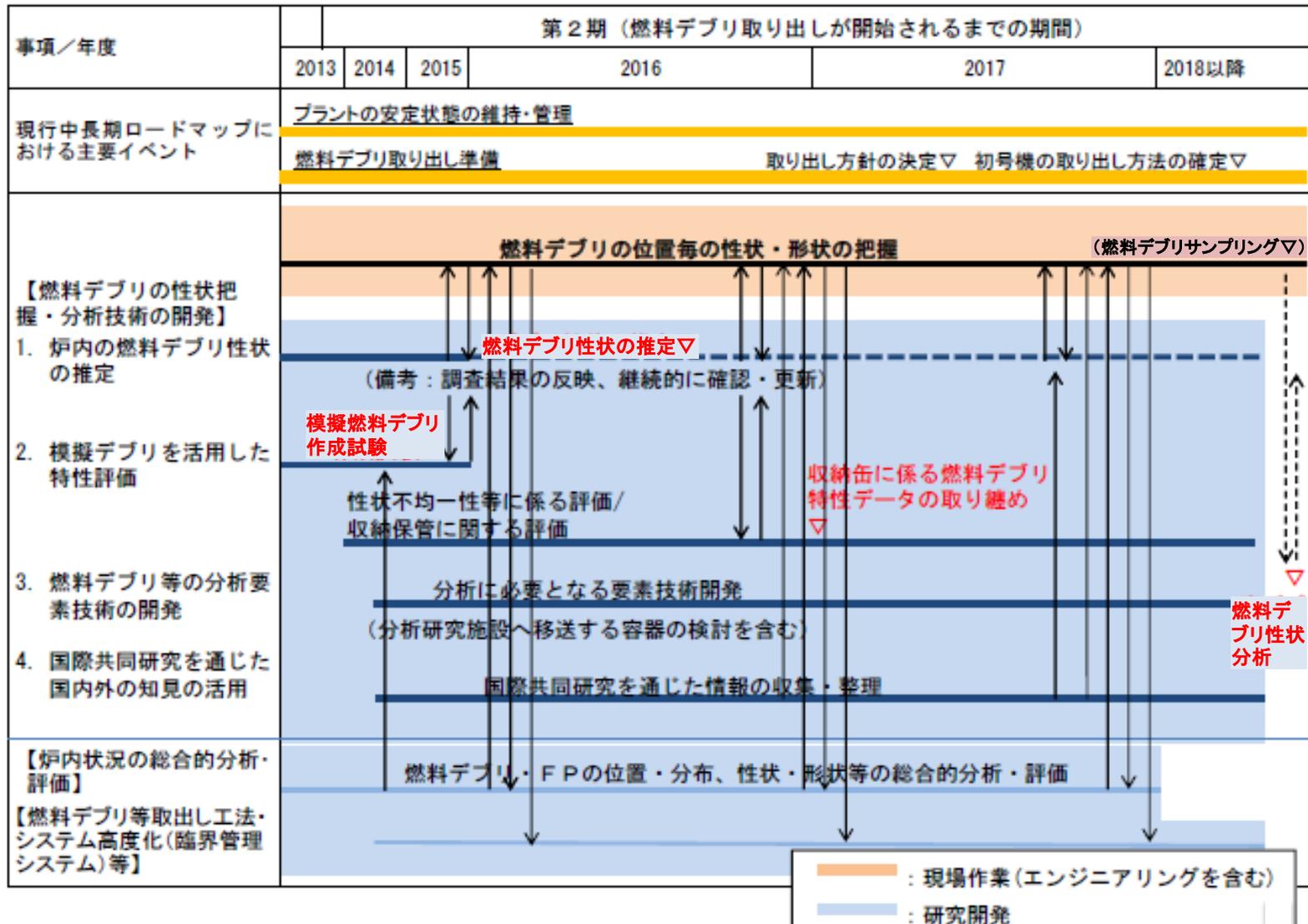
# 事業の目的(3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発

- 燃料デブリの特性を更新していくうえで有益な燃料デブリの分析を可能とするために、微量サンプル及び回収燃料デブリサンプルが取得されたことを想定し、分析技術・輸送技術の開発を行う。

## 燃料デブリ等の分析・測定技術の開発

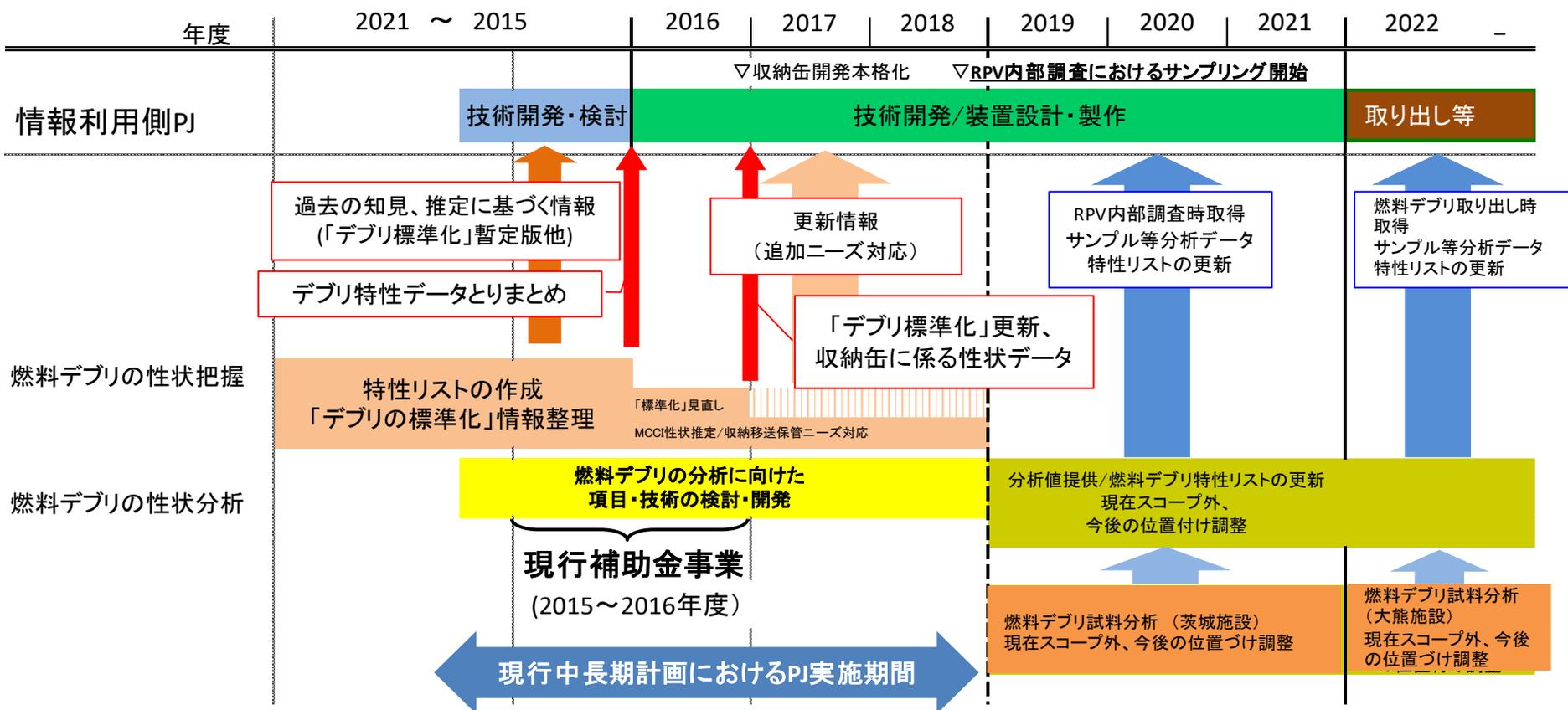


# 全体工程に対する位置づけ



# 燃料デブリの性状把握PJのスコープ

## 燃料デブリの性状把握PJの構成について



# 本事業(2015-2016年度)の内容および実施方法

- (1) 炉内の燃料デブリの性状の推定
- (2) 模擬デブリを活用した特性評価
  - ① 燃料デブリ特性データの把握
    - a. 金属デブリの機械的性質評価
    - b. 福島第一原子力発電所事故に特有な反応による生成物の特性
    - c. 収納・保管に資する燃料デブリ特性の把握
  - ② TMI-2デブリとの比較
    - a. TMI-2デブリの機械的性質評価および分析手法の確認
  - ③ 性状不均一性に係る評価
    - a. MCCI生成物の特性評価
    - b. 燃料デブリ取り出し装置の開発を支援する $UO_2$ を用いた金属セラミックス溶融固化体製作及び特性評価
- (3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発
  - ① 燃料デブリ等の分析・測定技術の開発計画の策定
  - ② 分析に必要な要素技術開発
    - a. 分析・測定のための技術開発
    - b. 燃料デブリサンプルの輸送に係る検討
  - ③ 技術レビュー

# 本事業(2015-2016年度)全体実施概要/スケジュール

	2015年度	2016年度
(1) 炉内の燃料デブリの性状の推定		▽特性リストとりまとめ
(2) 模擬デブリを活用した特性評価	情報集約	更新
① デブリ特性データの把握		【反映】
a. 金属デブリの機械的性質評価	模擬金属デブリ試験	
b. 福島第一原子力発電所事故に特有な反応による生成物の特性	溶融界面構造、微細デブリ等に係る試験	
c. 収納・保管に資する燃料デブリ特性の把握	含水・乾燥挙動等に係る試験	含水・乾燥挙動、アクチニド浸出挙動に係る試験等
② TMI-2デブリとの比較		
a. TMI-2デブリの機械的性質評価および分析手法の確認	TMI-2デブリサンプルの物性測定、溶解試験	
③ 性状不均一性に係る評価		
a. MCCI生成物の特性評価	模擬MCCI生成物試験、大規模MCCI生成物物性測定 (CEA共研)	大規模模擬MCCI試験検討(CEA共研)
b. 燃料デブリ取り出し装置の開発を支援するUO <sub>2</sub> を用いた金属セラミックス溶融固化体製作及び特性評価	大規模不均質溶融固化体製作・特性評価 (カザフNNC共研)	
(3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発		
① 燃料デブリ等の分析・測定技術の開発計画の策定	サンプル分析全体シナリオ立案、課題抽出、分担調整	【反映】
② 分析に必要な要素技術開発		↓
a. 分析・測定のための技術開発	化学分析手法検討、安全性評価方法検討	検討継続、新規開発課題対応
b. 燃料デブリサンプルの輸送に係る検討		
・ 既存施設への構外輸送検討	【反映】 輸送容器の設計承認に関する検討	【反映】 輸送容器の設計承認に関する検討継続
・ 分析・研究施設への構内輸送検討	検討方針、分担等具体化	方針に基づく検討実施
③ 技術レビュー		
(4) 研究開発の運営		

# (1) 炉内の燃料デブリの性状の推定(1/2)

## ● 特性リストのとりまとめ(2015年度)

これまでに得られている知見 (TMI-2事故やSA研究の文献等) や模擬燃料デブリで取得されたデータをもとに燃料デブリの性状を推定し、特性リストを取りまとめる。

### 【目標を達成するための指標】

- 特性リストについて、利用側PJのニーズを満足していること。このため、昨年度の「デブリ標準化」の事例を参考に、ニーズ情報の合意形成を図るための利用側PJの意見交換打合せを実施する。(2015年度) →実施完了

## ◆ 推定する燃料デブリ特性に関する情報の具体化

「燃料デブリ特性リスト」として推定される燃料デブリの材料および特性を包括的に提示。

⇒ 各プロジェクトのインプットデータとして提供。

A: 燃料デブリとして生成する材料(あるいは相) ⇨ A

⇒ 開始時は熱力学平衡計算による暫定評価をベースにスタート。

★ ⇒ 福島第一原子力発電所特有な事象の影響については、プロジェクト中で実験等により評価。

★ ⇒ 炉内状況把握プロジェクトや内部観察プロジェクトの状況を見てアップデート。

★ : プロジェクトの重点実施項目  
★ : 他プロジェクトの進捗を参考にしつつ反映

B: 各材料(あるいは相)に対して評価が必要な物性 ⇨ B

⇒ 開始時はTMI-2の取り出し作業を参考に設定。

★ ⇒ 実験等により取り出し作業への影響を確認。

★ ⇒ 廃炉関連作業のプロジェクトのニーズを反映。

C: 各材料(あるいは相)の物性データ ⇨ C

★ ⇒ プロジェクトにおいて、文献調査や実験等により、物性データ\*を取得。

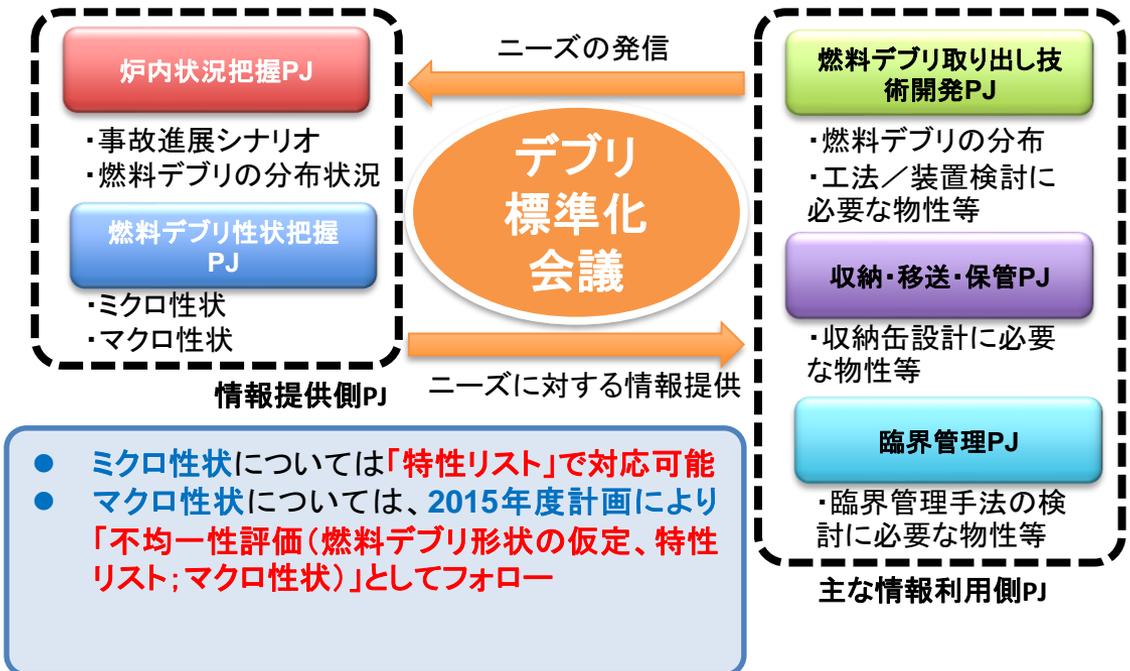
\* 記載に対する設定根拠一覧も合わせて作成。推定した化合物の既存情報(文献値等)や本PJで実施した福島第一原子力発電所特有条件での実験値等から、不純物や生成条件などを影響を考慮して幅をもった記載を志向。

「燃料デブリ特性リスト」イメージ

# (1) 炉内の燃料デブリの性状の推定 (2/2)

## ◆「デブリ標準化会議」の概要

- 関連各PJの立上げに伴い、各PJで必要となる「燃料デブリ性状」を再確認する必要性があり、IRID内に「**デブリ標準化会議**」を2014年度に立上げて対応
- 「デブリ標準化会議」資料について関係PJ等向けに説明会を実施し、燃料デブリ性状の相互理解を図るとともに、技術的要望を調査(2015年度実施)
- 新規要望事項は資料更新時に対応検討(2016年度予定)



## 設定が必要な燃料デブリ性状

分類	ニーズ調査の結果、設定が必要と考えられた燃料デブリ性状
マクロ性状	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 材質または相</li> <li>● 形状</li> <li>● 寸法</li> <li>● 気孔率(空隙率)</li> <li>● 含水率</li> <li>● 水素発生G値</li> <li>● 圧縮強度</li> <li>● U含有率(U重量／燃料デブリ全重量)</li> <li>● Pu含有率(Pu重量／燃料デブリ全重量)</li> <li>● Fe含有率(Fe重量／燃料デブリ全重量)</li> <li>● B含有率(B重量／燃料デブリ全重量)</li> <li>● Gd混合率</li> <li>● U濃縮度</li> <li>● 塩分濃度</li> </ul>
マイクロ性状	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 機械的特性: ビッカース硬さ、弾性率、破壊靱性</li> <li>● 熱的特性:熱伝導率、比熱、融点</li> </ul>

## IRID「デブリ標準化会議」における各PJ間のコミュニケーション

【性状の分類】 ・マイクロ性状：材料によっておおよその値が想定できる（そのため比較的小さなサンプル・部位で測定可能な）性状  
 ・マクロ性状：同一材料でも生成過程や形状などにより大きく影響を受ける（そのため測定には大きなサンプルを必要とする）性状

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

### a. 金属デブリの機械的性質評価

#### ● Zr(O)の機械的性質の把握(2015年度)

燃料デブリの中に含まれる金属相には、ジルコニウムに酸素が固溶したZr(O)が存在していることが示唆されている。酸素をパラメータとしたZr(O)サンプルを作製し、機械的性質を評価する。またZry-2についても同様な試験を行う。熱履歴（焼き入れ、焼き鈍しなど）の影響も考慮する。

#### 【目標を達成するための指標】

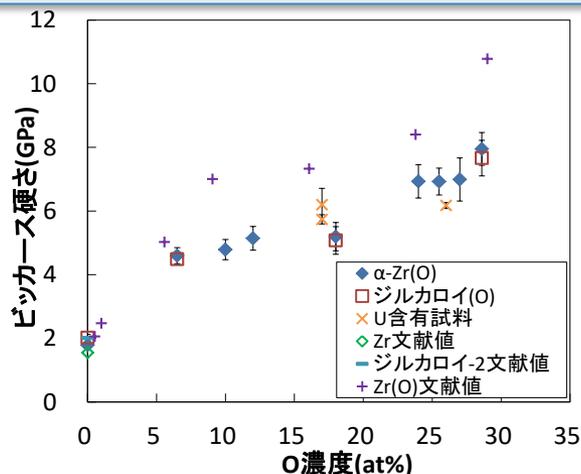
- ZrO<sub>2</sub>の添加量を調整することにより、試料全体に占める酸素量が異なるサンプルを4種類作製し、これらのサンプルの性状観察および機械的物性データを取得されていること。(2015年度) ⇒取得完了

#### 成果概要

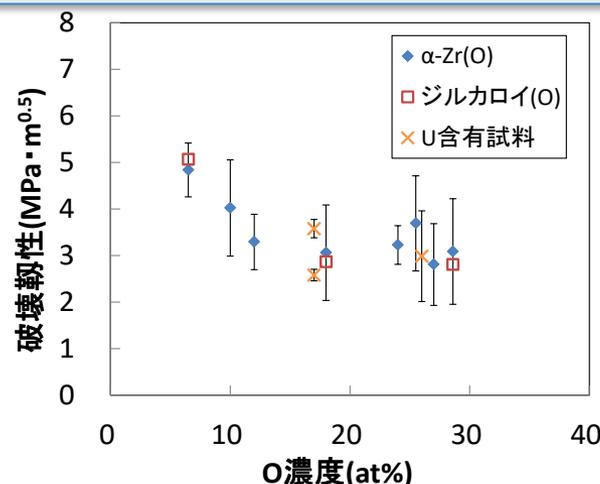
・酸素濃度を6.5～28.6[at%]として作製したα-Zr(O)を用いて機械的性質を測定した結果、ビッカース硬さが4.6～8[GPa]、破壊靱性が2.8～4.8[MPa・m<sup>0.5</sup>]、弾性率が123～209[GPa]となり、酸素の固溶とともにZrO<sub>2</sub>に近い物性を示すことがわかった。

炉内に存在すると考えられる燃料デブリの性質を確認した。

⇒燃料デブリ特性リストに反映し、燃料取り出しのモックアップ試験を行う際の模擬燃料デブリの選定に利用可能



O濃度とビッカース硬さの関係 (文献値: Zr, Zircaloy-2 (澁谷ほか, 1998)、Zr(O) (IAEA, 1998))



O濃度と破壊靱性の関係

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

### b. 福島第一原子力発電所事故に特有な反応による生成物の特性(1/5)

#### ● 性状マッピング構築(2015年度)

SUS酸化物、FP元素(希土類)、海水塩成分が固溶した(U,Zr)O<sub>2</sub>模擬燃料デブリの生成相、機械的性質(硬さ、破壊強度、弾性率)、及び高温酸化挙動データを取得する。

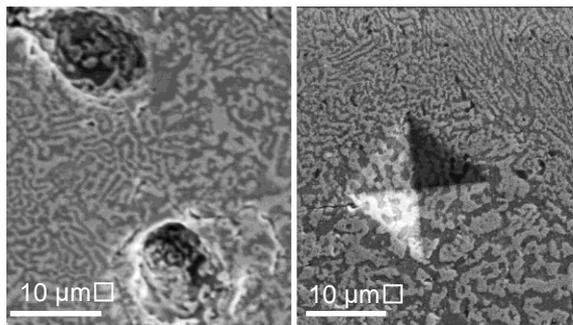
#### 【目標を達成するための指標】

➢ (U,Zr,Ln)O<sub>2</sub>(U濃度2種類)、(U,Zr,Ca,Fe,Ln)O<sub>2</sub>(U濃度2種類)の酸化状態(2条件)、硬さ、弾性率、圧縮破壊強度データ、及び(U,Zr)O<sub>2</sub>へのFe固溶度データが取得されていること。(2015年度) →取得完了

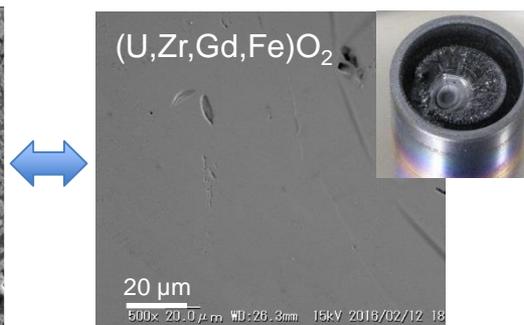
#### 成果概要

- 焼鈍試料では**Fe固溶**により、UO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub>相互固溶度が低下し、Uリッチ相とZrリッチ相がミクロンサイズで微細に入り交じった組織が出来やすい(TMI-2デブリの溶融プール部(徐冷条件)とよく似た組織)。
- MO<sub>2.0</sub>定比組成では、Uリッチ相にFe(II)として2mol%、MO<sub>2+x</sub>不定比組成ではUリッチ相にFe(III)として4mol%程度Feが固溶する。Zrリッチ相へのFe固溶度は大きい。
- **Gd固溶**により、MO<sub>2+x</sub>が酸化雰囲気でも安定でU<sub>3</sub>O<sub>8</sub>が生じ難い。**Ca固溶**はZrリッチ相を立方晶に安定化する。
- 機械的性質のうち、硬さについて、O/Mの増大と添加元素の固溶は硬さを増加させる傾向を示した。

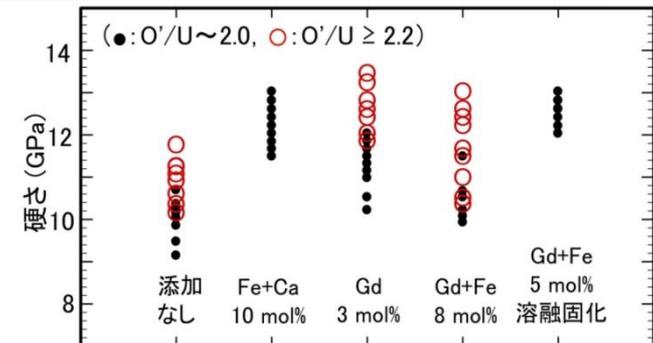
燃料デブリ主成分である(U,Zr)O<sub>2</sub>へのFe、希土類、Ca固溶による相状態、酸化状態、機械的性質への影響に関するデータを取得した。⇒より実際に近いデータとして燃料デブリ取り出し方法・工具検討に利用可能



Fe固溶による微細な2相入り交じり組織  
(左：模擬燃料デブリ，右：TMI-2溶融プール)



集光加熱による溶融固化組織  
(急冷条件では単相)



(U<sub>0.5</sub>Zr<sub>0.5</sub>)O<sub>2</sub>の硬さへの固溶元素及びO/M変化の効果(抜粋)

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

### b. 福島第一原子力発電所事故に特有な反応による生成物の特性 (2/5)

#### ● コンクリートとの反応生成物の性状 (2015年度)

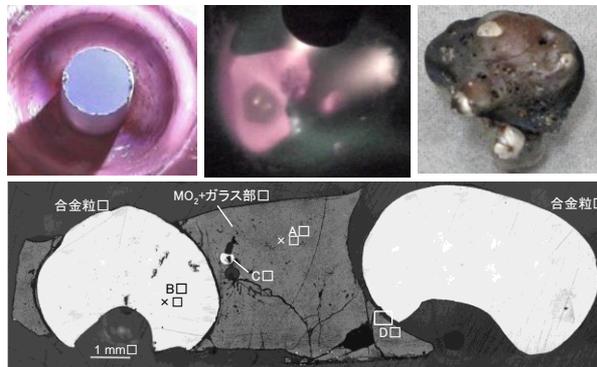
炉心溶融物成分として、基本のSUS/Zr/(U,Zr)O<sub>2</sub>系にFP元素、海水塩、制御材を加え、コンクリートとの溶融反応生成物中の生成相、組織、硬さに関するデータを取得する。

#### 【目標を達成するための指標】

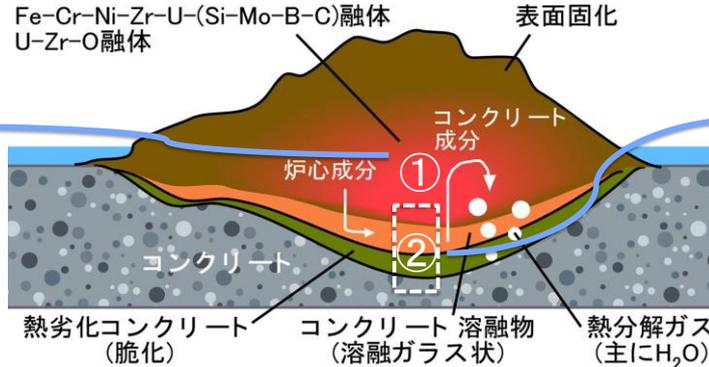
➢ 炉心材料、海水塩、コンクリートの溶融固化物(混合組成3種類、雰囲気2種類)が作製され、その性状データ(生成相、硬さ)が取得されていること。(2015年度) →取得完了

#### ① 堆積物内部の均熱溶融部

材料混合物のアーキ溶解



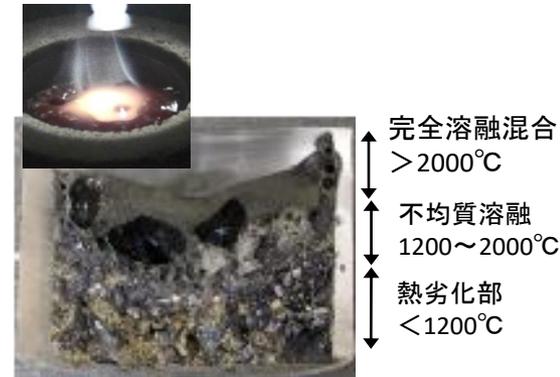
均熱溶融部の生成相、組織、硬さデータ



希土類、金属FP、海水塩の挙動、生成相への影響

#### ② 溶融界面の階層構造

コンクリート上で炉心材料を局所集光加熱(温度勾配)



温度勾配下の階層構造データ

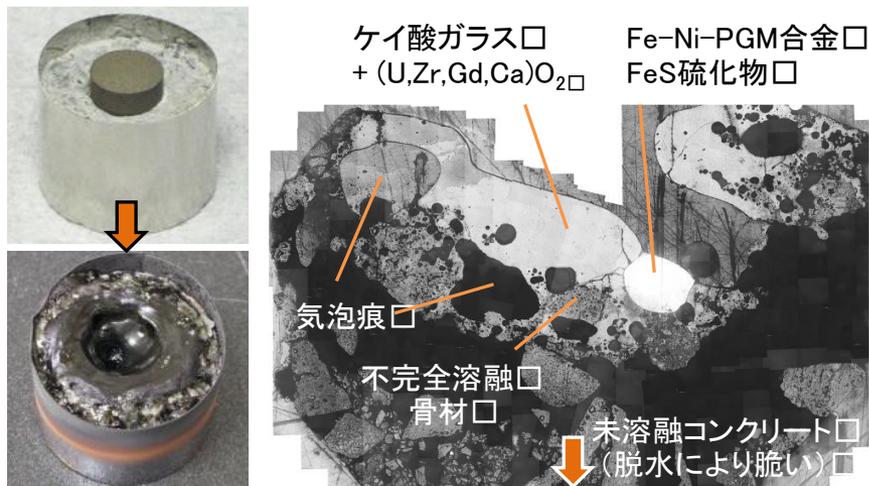
## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

### b. 福島第一原子力発電所事故に特有な反応による生成物の特性 (2/5)

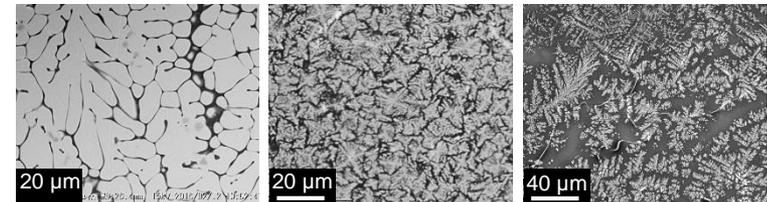
#### 成果概要

- ・アーク溶解による模擬MCCI生成物中では、希土類は(U,Zr,Gd,Ca)O<sub>2</sub> (硬さ12~15GPa) として存在するほか、ケイ酸ガラス中にもU, Zrとともに少量溶解していた。白金族元素は、一部は蒸発するものの、Fe-Cr-Ni-Si-Mo-Ru-Rh-Pd合金 (硬さ3~7GPa、Si濃度に依存) として存在することがわかった。
- ・集光加熱でも、コンクリートとの界面に近い酸化条件下でFe-Ni-Mo-Ru-Rh-Pd合金が残存する他、海水塩の影響として、合金中にFe硫化物 (FeS) の生成が確認された。
- ・小型ボーリング装置によるコア抜き試験では、ダイヤモンドビットに柔らかい合金相が噛み込み、ビット回転の妨げとなることを確認した。

MCCI時の希土類、白金族FP、海水塩の挙動と生成相への影響に関するデータを取得した。  
⇒MCCI生成物内部の性状予測データとして、取り出し方法・工具の検討に利用可能



集光加熱による炉心溶融物-コンクリート界面の階層構造模擬実験 (Gd、白金族、海水塩添加)



MO<sub>2</sub>/ケイ酸ガラス相対量による凝固組織の違い



集光加熱試料のコア抜き試験の様子

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

### b. 福島第一原子力発電所事故に特有な反応による生成物の特性(3/5)

#### ● 微細デブリの水中挙動(2015年度)

コンクリート成分及び模擬FP元素を含んだ(U,Zr)O<sub>2</sub>模擬燃料デブリ粉末を水に浸漬し、化学変化、コロイド(スラリー)生成、溶出成分等、水中挙動に関するデータを取得する。

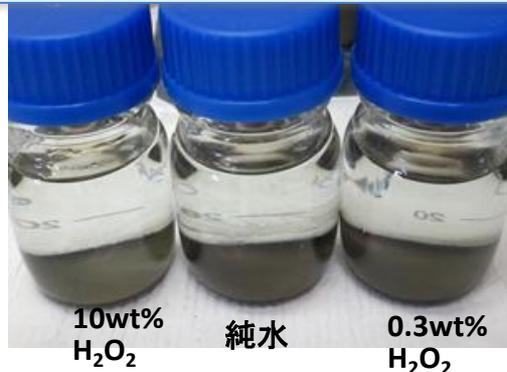
#### 【目標を達成するための指標】

- 同様の炉心材料、海水塩、コンクリートの溶融固化物(混合組成3種類、雰囲気2種類)を用いて、水中浸漬時(2条件)の生成物性状データ(化学形、粒度、分散性、加熱時挙動)が取得されていること。(2015年度) →取得完了

### 成果概要

- (U<sub>0.5</sub>Zr<sub>0.5</sub>)O<sub>2</sub>の過酸化水素水(10, 0.3 wt%)への浸漬では、過酸化ウラン酸の生成はごくわずかで、**UO<sub>2</sub>より格段に安定**であることがわかった。
- 溶融固化した模擬MCCI生成物3種類の過酸化水素水(0.3 wt%)への浸漬では、上記同様に過酸化ウラン酸の生成はほとんど見られず、**コロイド的挙動を示す微細成分(<1 μm)はなかった**。溶出成分としては、コンクリート由来のCaが主で、浸漬液乾固時にCaCO<sub>3</sub>として析出した。

(U,Zr)O<sub>2</sub>及び溶融固化模擬MCCI生成物は、過酸化水素水中でUO<sub>2</sub>より格段に安定で、常温では化学変化によるコロイド生成がほとんど起きないことを確認した。⇒取り出し時の冷却水管理の検討に利用可能



10wt% H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>      純水      0.3wt% H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>

各媒質に浸漬中のウラン・ジルコニウム酸化物粉末



マイクロ  
カッター  
切削粉末      Zr組成：  
酸化物 > 金属      Zr組成：  
酸化物 < 金属

濾過後孔径10 μmメンブレンフィルタに残留した  
コンクリート入りアーク溶解固化物

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

### b. 福島第一原子力発電所事故に特有な反応による生成物の特性 (4/5)

#### ● 模擬燃料デブリ中における $\text{Fe}_2\text{Zr}$ 相の析出挙動 (2015年度)

(U, Pu, Zr) $\text{O}_2$  固溶体と $\text{Fe}_2\text{Zr}$  試料をともに溶融させたU, Pu, Zr, Fe, Oから構成される溶融固化試料に対し、析出した相の状態や分布を観察し、金属成分の析出挙動を調査する。

#### 【目標を達成するための指標】

➢  $\text{Fe}_2\text{Zr}$  試料の添加量(2条件)を変化させたU, Pu, Zr, Fe, Oから構成される溶融固化試料が作製され、その性状データ(元素分布、融点、熱伝導率)が取得されていること。(2015年度) **⇒取得完了**

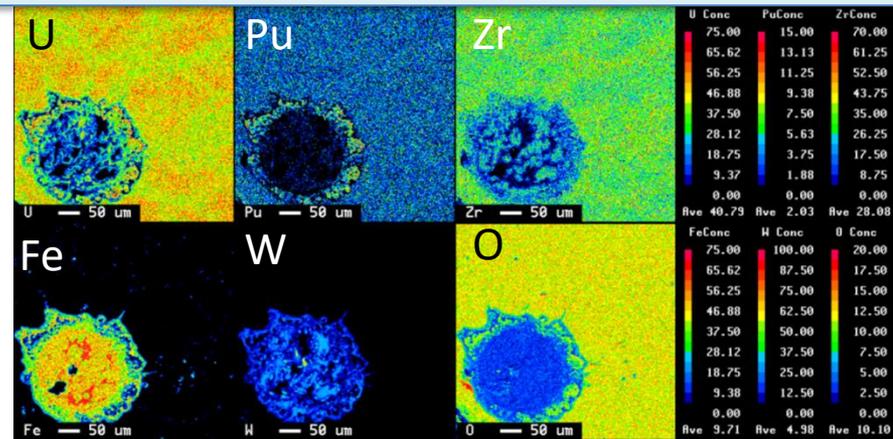
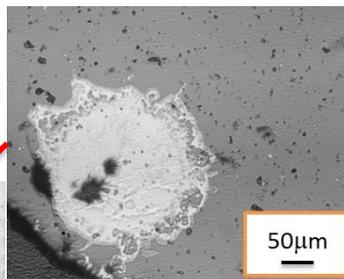
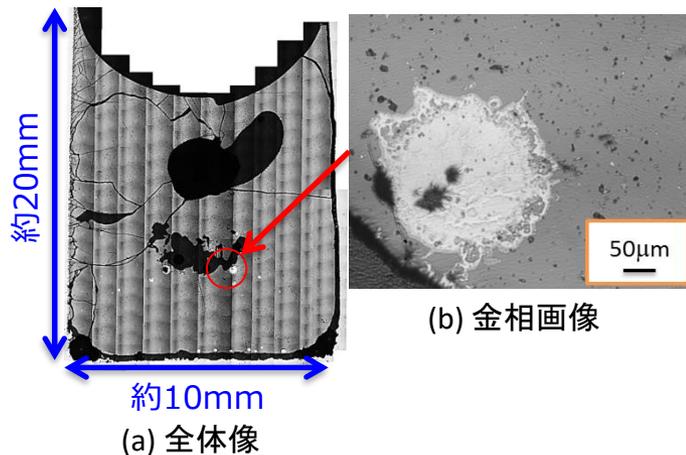
#### 成果概要

・ $\text{FeZr}$  含有模擬燃料デブリに含まれる金属成分は(U, Pu, Zr) $\text{O}_2$  系の相にはほとんど溶解せず、**5[ $\mu\text{m}$ ]程度のFeおよびFe-Zr金属粒が点在し**、本試験では**最大約300 $\mu\text{m}$ の金属粒が確認された**。

・(U, Pu, Zr) $\text{O}_2$  相中へ溶解した金属Fe, Zrがごく僅かであることから、母相の融点への影響は限定的であったが、熱伝導率は $\text{Fe}_2\text{Zr}$  添加により熱伝導率が上昇する傾向を示し、2.5 [W/m $^\circ\text{C}$ ] 程度の値となった。

(U, Pu, Zr) $\text{O}_2$  とFe, Zr金属から構成される溶融固化試料の相状態並びに熱物性に関する知見を得た。

⇒金属成分を含む燃料デブリの溶融固化後の状態及び性状の予測データとして、取り出し方法・工具の検討に利用可能



Fe含有模擬燃料デブリ試料の金相写真及びEPMA分析結果 【(U<sub>0.46</sub>Pu<sub>0.04</sub>Zr<sub>0.50</sub>)O<sub>2</sub> + 3.6 mol%Fe<sub>2</sub>Zr】

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

### b. 福島第一原子力発電所事故に特有な反応による生成物の特性 (5/5)

#### ● 冷却固化速度の影響 (2015年度)

ZrO<sub>2</sub>とコンクリート成分 (CaO-SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) を溶融加熱し、多相析出系での組織や硬さへの冷却固化速度の影響を調べる。

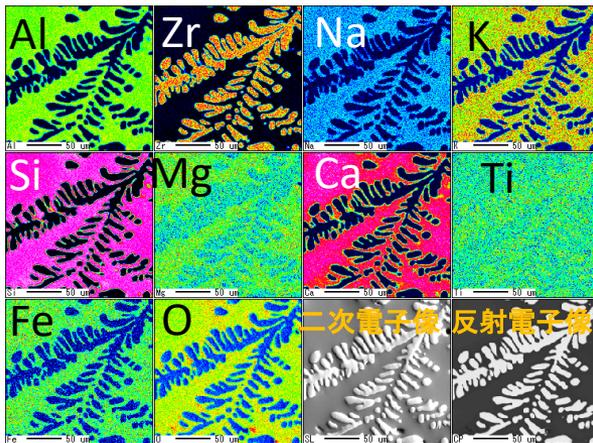
#### 【目標を達成するための指標】

- 冷却固化速度をパラメータ(3条件)に、多元系溶融固化デブリ(組成2種類)が作製され、その性状データ(組織、空隙率、硬さ)が取得されていること。(2015年度) →取得完了

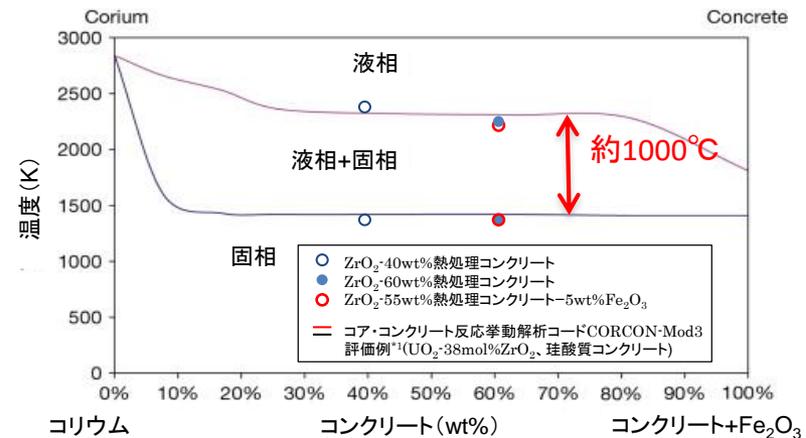
#### 成果概要

- ・単斜晶ZrO<sub>2</sub>デンドライト組織とケイ酸塩マトリクス(Zr< 1mol%)から構成される二相組織が均一に形成され、多相組織においても、溶融固化条件(冷却速度及び溶融温度)や組成によらず、ZrO<sub>2</sub>-CaO単相系と同様に燃料デブリ特性(硬さ等)への影響は軽微であった。
- ・凝固温度の測定点はコリウム-コンクリート擬二元系状態図とも整合し、凝固開始から完了まで約1000℃の幅であった。

ZrO<sub>2</sub>-コンクリート系溶融物冷却過程における凝固温度、組織、硬さデータを取得した。  
⇒MCCI生成物内部の性状予測データとして、取り出し方法・工具の検討に貢献できる。



ZrO<sub>2</sub>-60wt%コンクリート酸化物溶融固化体の元素分布 (2300℃-10分溶融, 冷却速度0.1℃/s)



コリウム-コンクリート擬二元系状態図上にプロットしたZrO<sub>2</sub>-コンクリート酸化物系の固相線・液相線温度

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ② TMI-2デブリとの比較

### a. TMI-2デブリの機械的性質評価および分析手法の確認

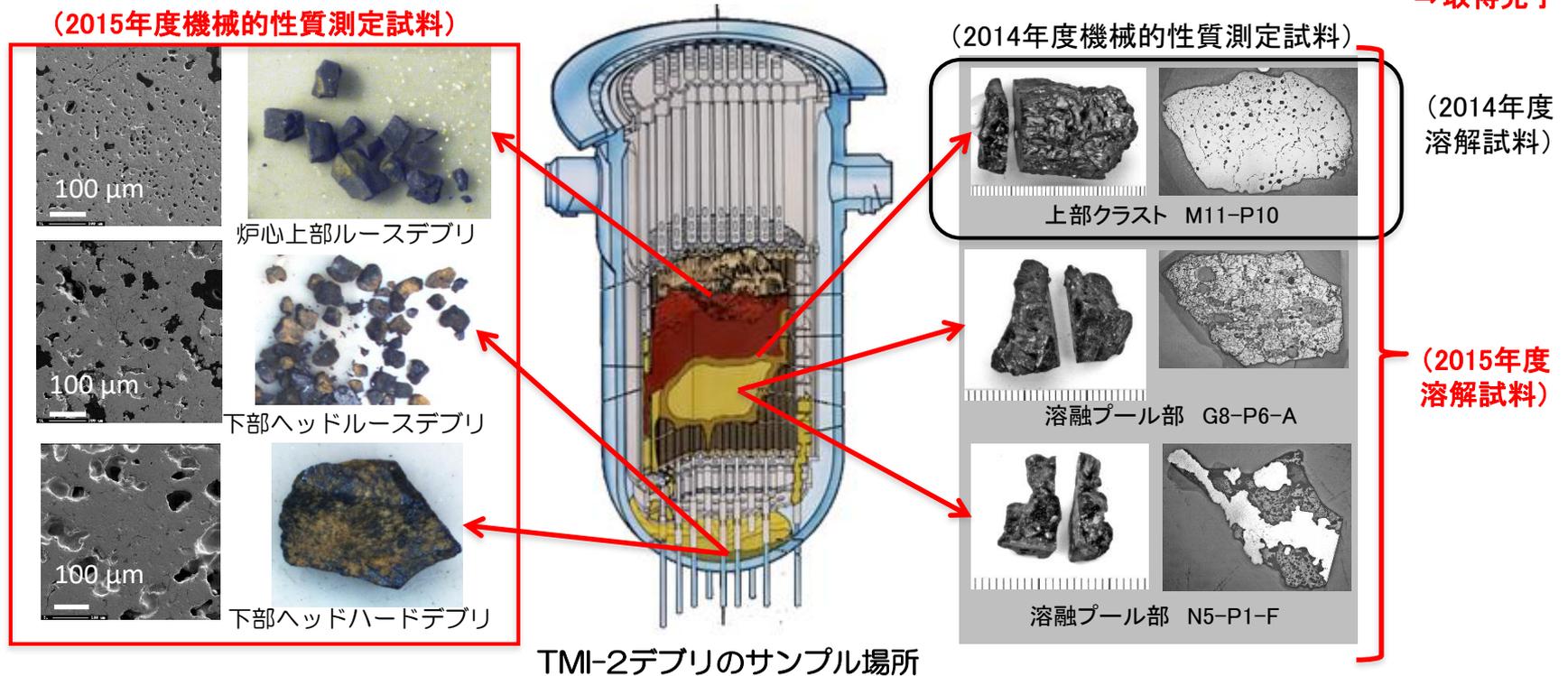
#### ● 実施項目 (2015年度)

下部ヘッドに堆積した燃料デブリ等、2014年度と異なる採取部位のTMI-2デブリの硬さデータを取得し、模擬燃料デブリと比較検証する。また、溶融プール部の組成の異なる2試料（セラミック/金属）について、アルカリ融解の適用性を検証する。

#### 【目標を達成するための指標】

- 採取部位の異なるTMI-2デブリ試料片3個について、生成相の組成とそれに対応した硬さが取得され、模擬燃料デブリのデータと比較されていること。(2015年度) ⇒取得完了
- 組成の異なるTMI-2デブリ試料2種類について、アルカリ融解処理による酸への溶解性データが取得されていること。(2015年度)

⇒取得完了



## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ② TMI-2デブリとの比較

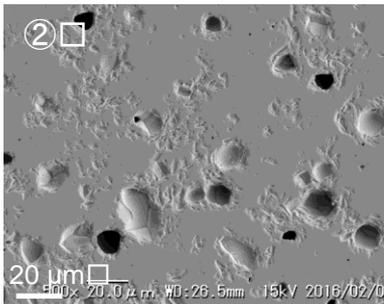
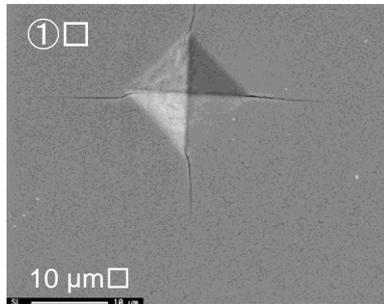
### a. TMI-2デブリの機械的性質評価および分析手法の確認

#### ◆ TMI-2デブリの機械的性質評価

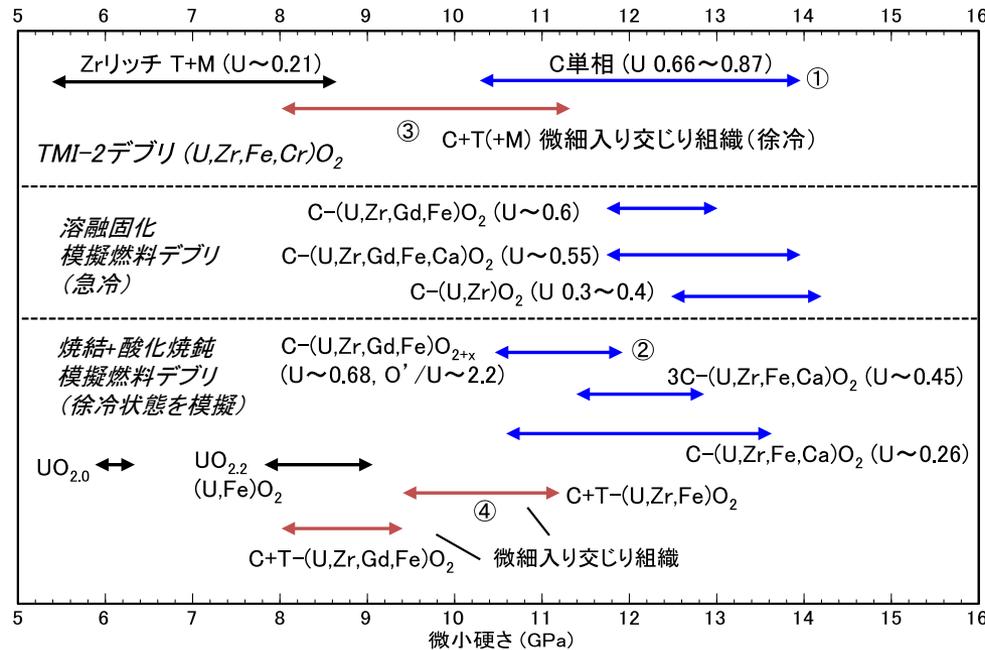
##### 成果概要

- いずれのサンプルも Uリッチの(U,Zr,Fe,Cr)O<sub>2</sub>が主だった。溶融プールのようなC+T(+M)微細入り交じり組織は少ない。
- 粒界にFe-Cr-Ni系合金 (炉心部) 又はFe-Cr-Ni-Al-O系酸化物 (下部ヘッド) が析出した。
- 組織と硬さの相関は、TMI-2デブリと模擬燃料デブリとで同様の傾向であった。

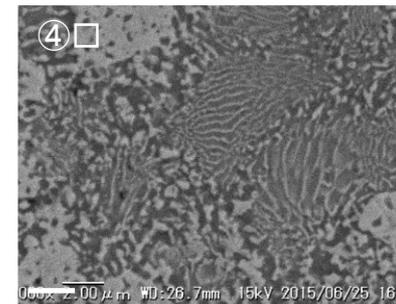
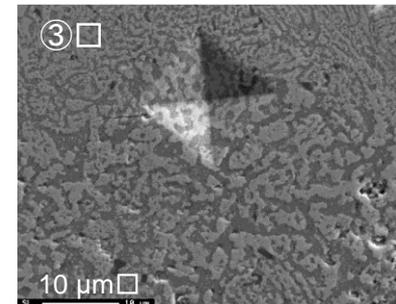
燃料デブリ主成分の(U,Zr)O<sub>2</sub>に関して、TMI-2デブリと種々の模擬燃料デブリの組織・組成と微小硬さの相関を比較検証し、冷え方や固溶元素の影響について、模擬燃料デブリの模擬性が確保されていることを確認した。



单相組織



採取部位の異なる5種類のTMI-2デブリの硬さデータ比較



微細入り交じり組織

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ② TMI-2燃料デブリとの比較

### a. TMI-2デブリの機械的性質評価および分析手法の確認

#### ◆ TMI-2デブリの分析手法の検討

##### 成果概要

- 過酸化ナトリウムを融剤としたアルカリ融解条件では、試料N5-P1-Fについては溶解液を放冷後に白色の濁りが生じた。これは金属相の銀によるものと推察された。沈殿物はアンモニウム塩溶解法により溶解できた。
- アンモニウム塩溶解法による試料分解後の酸溶解では、全ての試料が良好な溶解液となった。過去の試験で本方法では溶解時残渣があるケースがあったため、適用条件の検討が必要である。

一部沈殿物が観察される条件があったがアルカリ融解法をベースに燃料デブリを溶解できることを確認した。  
⇒燃料デブリ分析前処理の溶解手順に反映



TMI-2デブリ試料溶解試験結果

試料番号	試料採取量 (mg)	試料分解法	目視による溶解状況	溶解液中の主な元素の分析結果 (%)						
				U	Zr	In	Cr	Fe	Ni	Ag
M11-P10 クラスト	100	アルカリ融解法	完全溶解	42	14	1.7	0.3	0.5	--	0.0
	154	アンモニウム塩融解法	完全溶解	53	18	0.2	0.3	0.5	0.1	0.0
G-8-P6-A 溶融プール	112	アルカリ融解法	完全溶解	22	8.3	1.4	0.2	0.5	--	0.0
	77	アンモニウム塩融解法	完全溶解	37	14	0.1	0.3	0.6	0.1	0.0
N5-P1-F 溶融プール	137	アルカリ融解法	沈殿有	12	4.3	4.5	0.2	0.3	--	17.4
	43	アンモニウム塩融解法	完全溶解	7.0	2.5	0.3	0.1	0.3	0.1	16.5

溶解試験を実施したTMI-2デブリサンプル

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ③ 性状不均一に係る評価

### a. MCCI生成物の特性評価

#### ● 過去の大型MCCI試験生成物を利用した特性評価（2015年度）

仏国CEAの所有する過去の大型MCCI試験生成物を利用した特性評価を継続する。

#### ● 福島第一原子力発電所のMCCI条件を考慮した大型MCCI試験生成物の作製（2016年度）

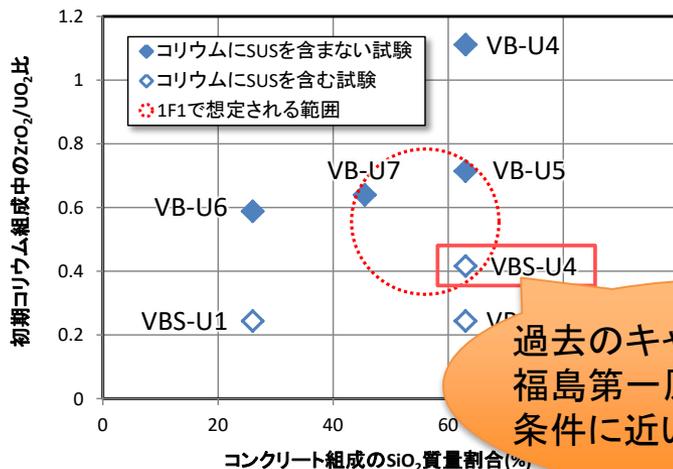
福島第一原子力発電所でのMCCI条件を考慮し、過去の試験では十分に考慮されないパラメータの影響を評価可能な大型MCCI試験をCEA協力のもと準備し、作製に着手する。

#### ● MCCI生成物の生成相に関する機械的性質の評価（2015年度）

大型MCCI試験生成物の分析や熱力学評価によって想定されるMCCI生成物の主な生成相について機械的性質を評価する。

##### 【目標を達成するための指標】

- 過去のCEAの大型MCCI試験生成物から5種類以上のサンプルが選定され、これらの組成分析および機械的物性データが取得されていること。（2015年度） ⇒取得完了
- MCCI生成物およびコンクリート劣化物として想定される材料3種類以上について、機械的性質（硬さ、弾性率、破壊じん性）のデータが取得されていること。（2015年度） ⇒取得完了
- 福島第一原子力発電所のMCCI条件を考慮した大型MCCI試験生成物の作製に着手していること。（2016年度）



過去のキャンペーンから  
福島第一原子力発電所の  
条件に近いものを選んで試験

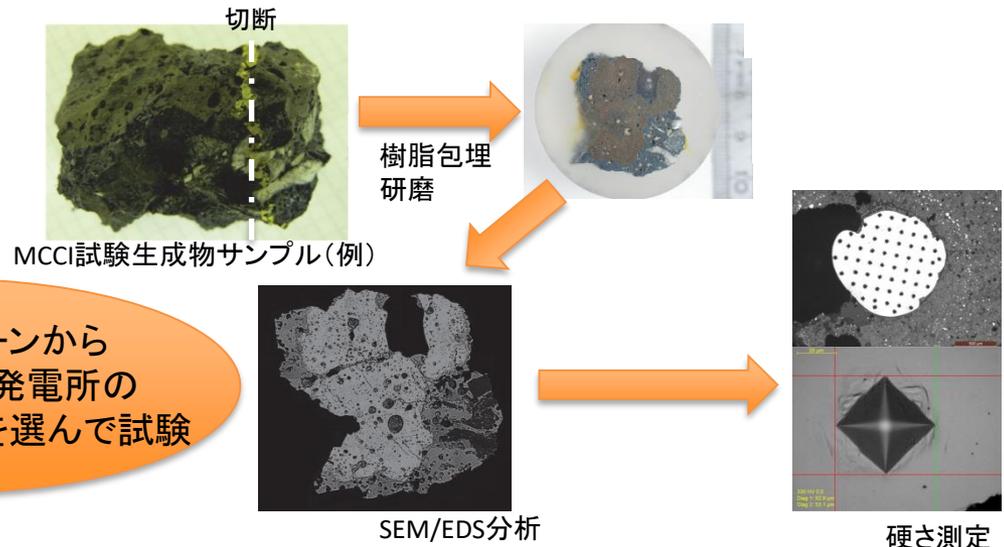


図 CEA VULCANO試験条件

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ③ 性状不均一に係る評価

### a. MCCI生成物の特性評価

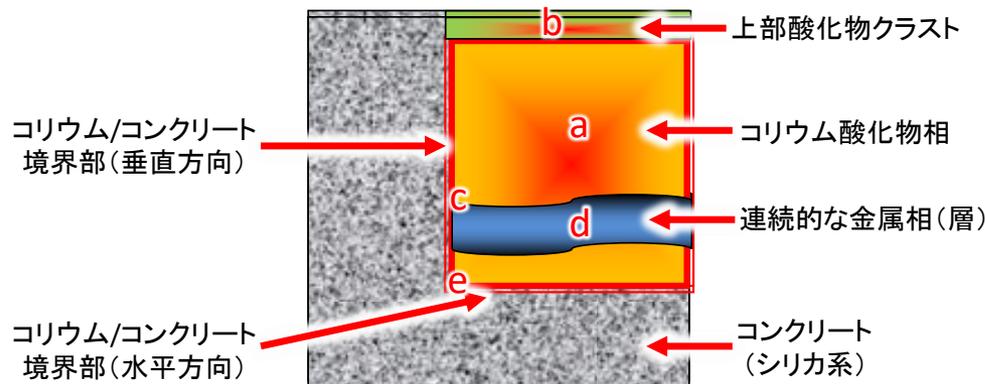
#### ◆ 大型MCCI試験生成物を利用した特性評価

##### 成果概要

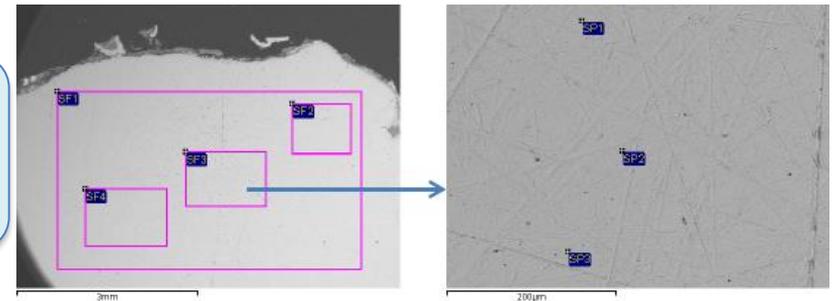
・福島第一原子力発電所に比較的条件に近いCEAの大型MCCI試験VBS-U4の試験サンプル5種の内、昨年度測定していない試験サンプル3種（下図のb, d, e）の組成分析を実施した。この結果、**上部クラスト（サンプルb）は25%程度の気孔率を有する酸化物と金属がマクロに混合していることを確認した。**連続的な金属層（サンプルd）はFe、Cr、Niを主成分とした均質な層であることを確認した。コリウムと下部コンクリートの境界部（サンプルe）は、1-2mm程度の気孔とコンクリート由来の凝集物を多く含む酸化物層であることを確認した。

・サンプルeでは  $(Zr,U)SiO_4$  が生成していることを確認した。

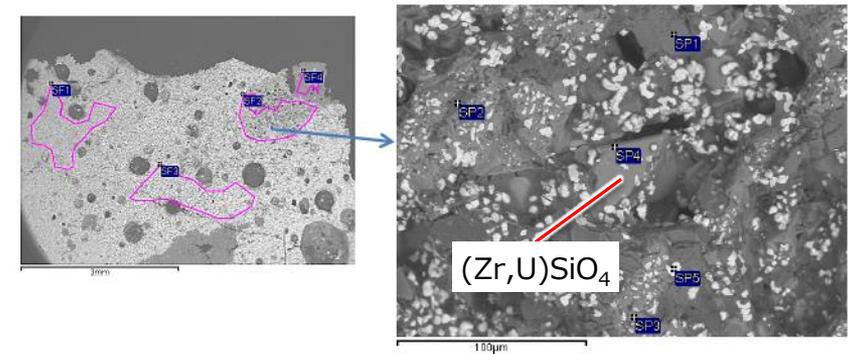
大型MCCI試験生成物の、位置による生成相、機械的性質の変化、金属成分によるこれらへの影響を把握した。  
⇒取り出し工具の設計や、収納保管準備などで想定すべきMCCI生成物の性状の設定に資する。



過去のCEAの大型MCCI試験（VBS-U4）の  
コンクリート浸食状態及びサンプル位置



試験サンプルdの組織構造



試験サンプルe中のコンクリートリッチ領域の組織構造

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ③ 性状不均一に係る評価

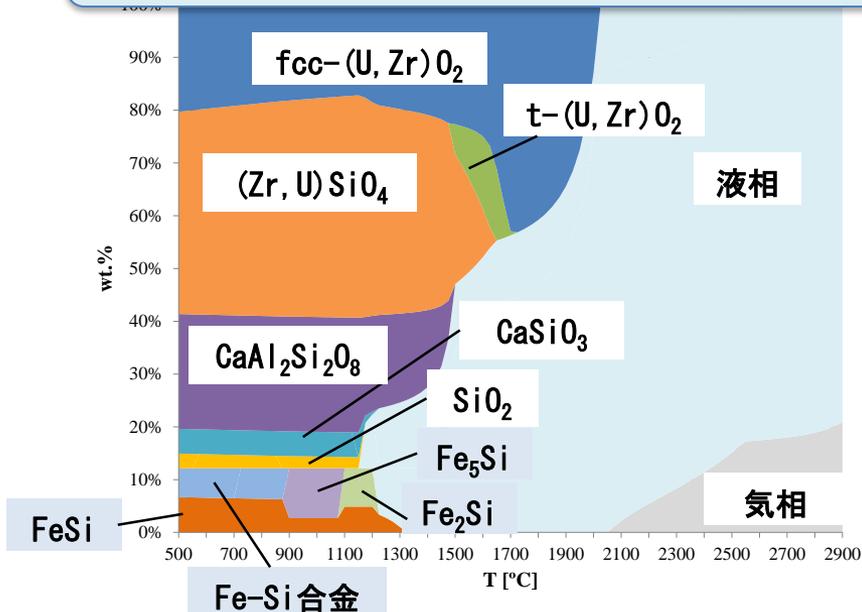
### a. MCCI生成物の特性評価

#### ◆ MCCI生成物の生成相に関する機械的性質の評価

##### 成果概要

- ・熱力学平衡計算等により推定した $(Zr,U)SiO_4$ 、 $Cr_2O_3$ 、 $Fe_2SiO_4$ 、 $FeSi$ 、 $CaAl_2Si_2O_8$ 、 $CaSiO_3$ について、試験体を作製し、硬さ等の機械的性質を測定した。
- ・ $ZrSiO_4$ は $UO_2$ の固溶により硬さが低下すること、 $Fe_2SiO_4$ 、 $CaAl_2Si_2O_8$ 、 $CaSiO_3$ の硬さは他の酸化物同様6~7[GPa]であること、**SUS中へのSiの混入により生成する $FeSi$ は約10[GPa]**、**SUS中のCrの酸化により、金属層の周囲に僅かに生成すると推測する $Cr_2O_3$ の硬さは、約23[GPa]で最大であることを確認した。**

酸化物層内の硬さの分布幅は小さいが、金属層はSiの取り込みや酸化により局所的に硬くなることを確認した。  
⇒取り出し工具の設計、特にMCCI生成物中の金属層を対象とした機械的取り出し工具の設計に資する。



熱力学平衡計算によるMCCI生成物の相状態の評価の例

	硬さ [GPa]	弾性率 [GPa]	破壊じん性 [MPa·m <sup>1/2</sup> ]
$ZrSiO_4$	10.8	235	2.2
$(Zr_{0.96}, U_{0.04})SiO_4$	7.5	183	3.0
$Cr_2O_3$	23.5	236	0.19
$Fe_2SiO_4$	6.3	18	0.04
$FeSi$	10.5	198	0.26
$CaAl_2Si_2O_8$	7.1	-	0.17
$CaSiO_3$	6.0	39	0.01

MCCI生成物中の生成相の機械的性質の測定結果

(2)模擬デブリを活用した特性評価

③ 性状不均一性に係る評価

b. 燃料デブリ取り出し装置の開発を支援するUO<sub>2</sub>を用いた金属セラミックス溶融固化体製作及び特性評価

● 金属セラミックス溶融固化体の製作 (2015年度)

取り出し作業時に細かく粉砕すると推定される、溶融燃料が水冷固化した粉状燃料デブリ及びその凝集固化物を製作する。また、燃料と炉内構造物が溶融した後、徐冷されて不均一固化した金属セラミックス溶融固化体を製作する。

● 金属セラミックス溶融固化体の材料特性評価 (2015年度)

製作した粉状燃料デブリ及びその凝集物の粒度や空隙率、組織等の物性データを取得し、取り出し装置の開発に活用する。また、徐冷して製作した金属溶融固化体の金属/セラミックス境界部近傍の材料特性を評価し、モックアップ体製造方法に反映する。

【目標を達成するための指標】

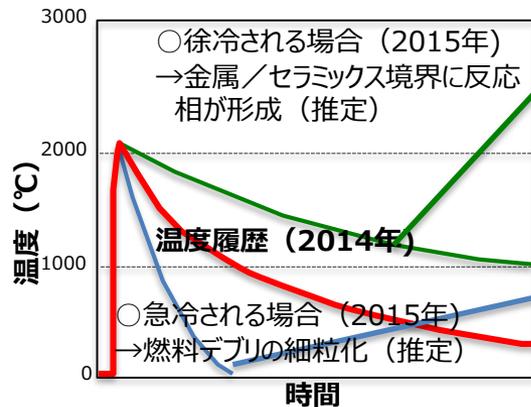
- 急冷固化した粉状燃料デブリに関する材料物性データが取得されていること。(2015年度) ⇒取得完了
- 金属セラミックス溶融固化体の材料特性への冷却速度影響がモックアップ製造方法に反映されていること。(2015年度) ⇒反映完了

本研究の位置付け

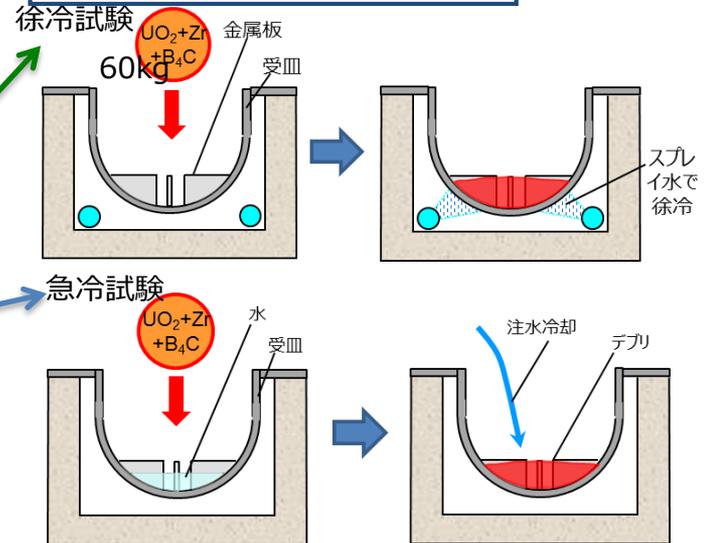
燃料デブリの種類	分担
酸化物デブリ, 金属デブリ	J A E A
B化合物, 海水由来物等	J A E A
MCCI生成物	仏国 C E A
金属セラミックス溶融固化体 急冷固化した粉状燃料デブリ	カザフスタン NNC

目的：  
燃料デブリ取り出しに必要な物性の取得  
機器装置開発用モックアップ体の製作仕様策定

大型溶融固化体の製作方法



温度履歴が燃料デブリ性状に与える影響を2015年度試験で明確化



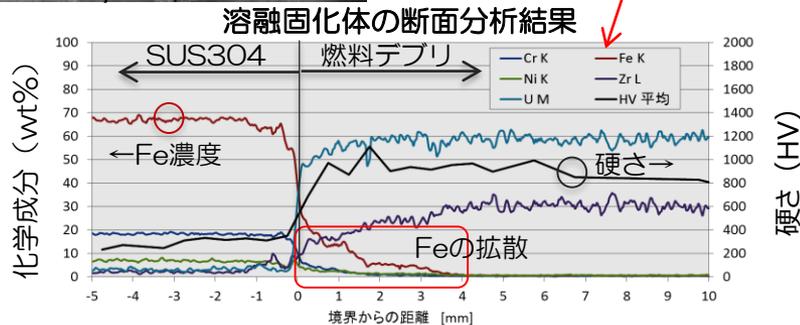
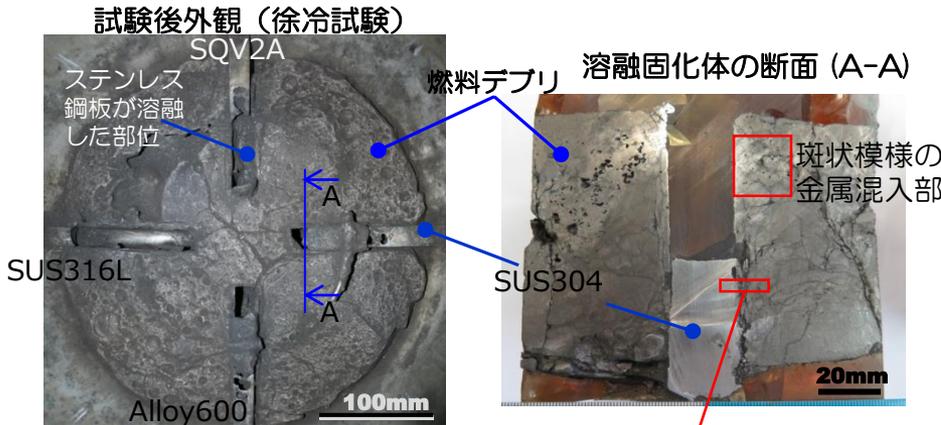
NNC : 国立原子力センター

(2) 模擬デブリを活用した特性評価 ③ 性状不均一性に係る評価

b. 燃料デブリ取り出し装置の開発を支援するUO<sub>2</sub>を用いた金属セラミックス溶融固体製作及び特性評価

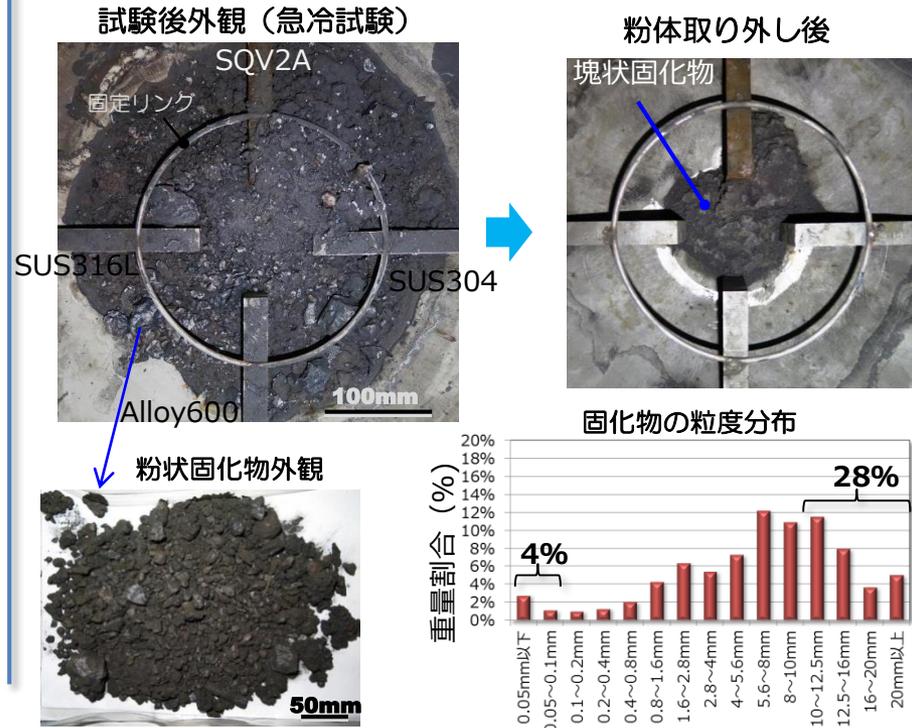
◆ 金属セラミックス溶融固化体の特性評価  
成果概要

- ・2014年度に比べ徐冷条件の金属セラミックス溶融固化体を作製。
- ・Fe等が燃料デブリへ拡散あるいは斑状に混入した部位を確認。
- ・燃料デブリ硬さ4~14GPa、金属混入による顕著な硬化なし。
- ・徐冷の影響を反映したモックアップ製造方法を策定。



◆ 粉状燃料デブリの特性評価  
成果概要

- ・水冷固化により上部に粉状、下部に塊状固化体が形成。
- ・粒径分布は0.1mm以下4%、10mm以上28%。
- ・粒状固化物の密度は8.8~9.0g/cm<sup>3</sup>。
- ・粉状燃料デブリの物性を取得。機器開発や臨界管理に活用。

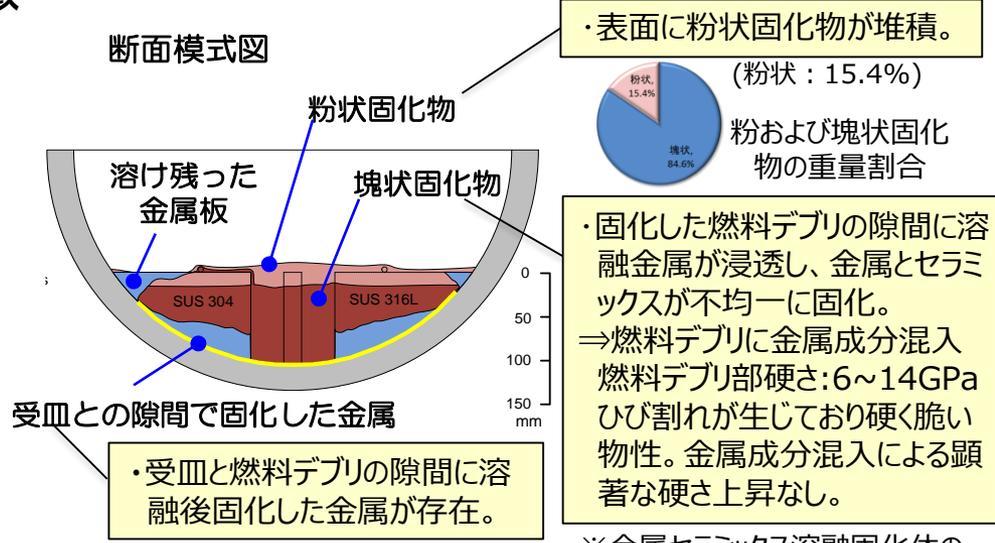
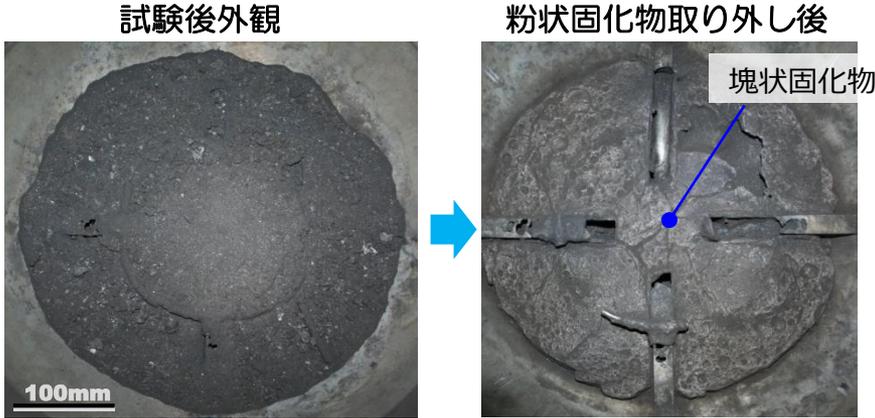


UO<sub>2</sub> + Zr + B<sub>4</sub>Cと炉内構造材混合物との岩盤状および粉状燃料デブリを作製し、形態や材料物性を把握した。機械的特性や粒径分布、密度データを、取り出し機器開発や収納缶設計、臨界管理に提示し、活用する。

(2) 模擬デブリを活用した特性評価 ③ 性状不均一性に係る評価

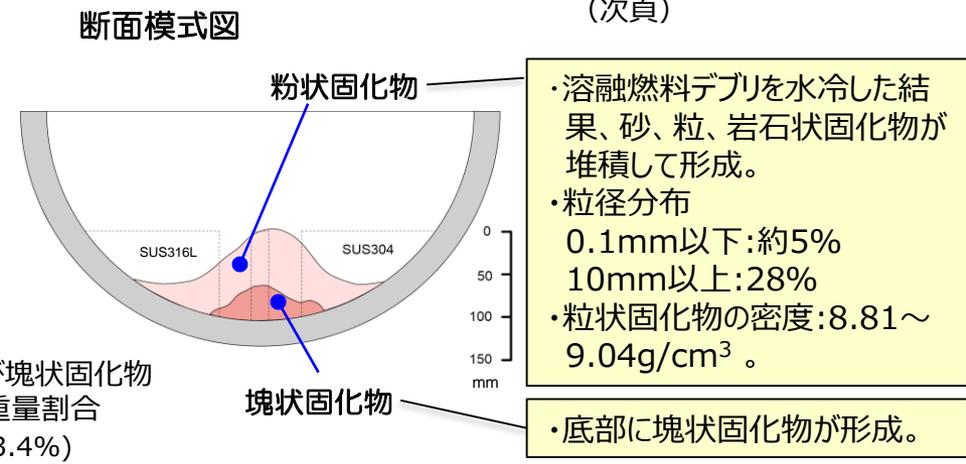
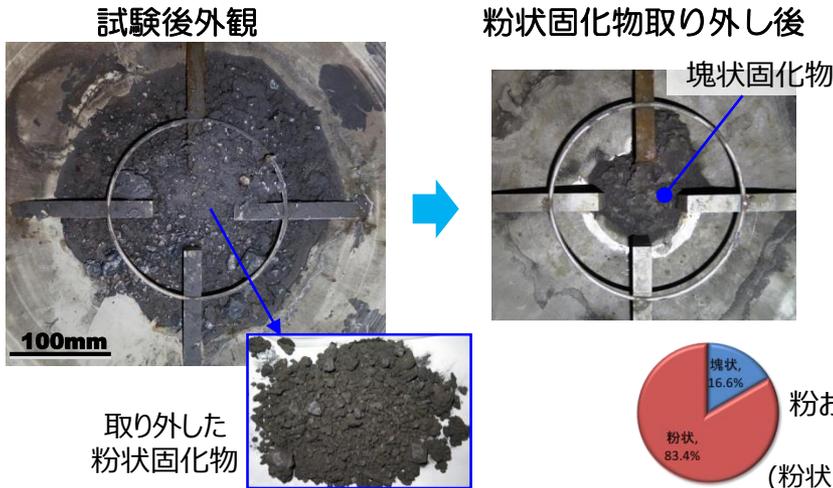
b. 燃料デブリ取り出し装置の開発を支援するUO<sub>2</sub>を用いた金属セラミックス溶融固体製作及び特性評価

◆ 金属セラミックス溶融固化体(徐冷)の特徴



※金属セラミックス溶融固化体のモックアップ体作製方法を策定(次頁)

◆ 粉状燃料デブリ(急冷)の特徴



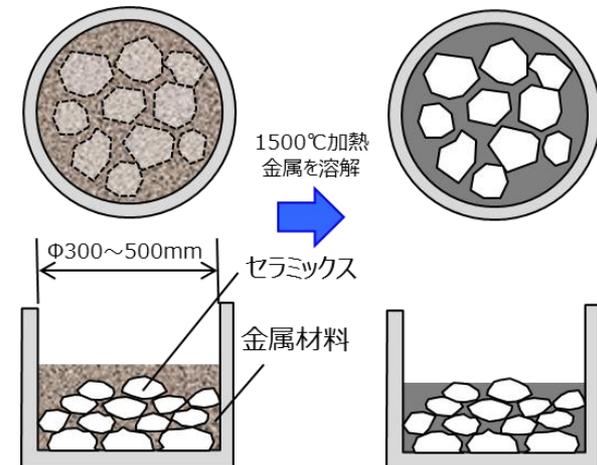
## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ③ 性状不均一性に係る評価

b. 燃料デブリ取り出し装置の開発を支援する $UO_2$ を用いた金属セラミックス溶融固体製作及び特性評価

## 加工要素試験用モックアップ体作製方法の検討

## &lt;モックアップ体作製方法&gt;

加工試験方法や目的に応じて候補材料のセラミックスと金属を選定

↓  
候補材料の量比、形状、配置を設定↓  
金属の融点以上に加熱し、金属部を溶解凝固

	試験結果 (2014, 2015年度)	モックアップ体原料
セラミックス部	<b>硬さ</b> (U, Zr, O) : 540~1400HV 斑状金属混入 : 600~1400 ZrB <sub>2</sub> : 1970HV 靱性 : 1.9~2.0MPa·m <sup>0.5</sup>	候補材料 ・ZrO <sub>2</sub> (1300HV, 3~4 MPa·m <sup>0.5</sup> ) ・Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1500HV, 4~5 MPa·m <sup>0.5</sup> ) ・多孔質Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (900HV, 3~4 MPa·m <sup>0.5</sup> ) ・フォステライト (2MgO, Si <sub>2</sub> O) (590~870HV, 1 MPa·m <sup>0.5</sup> ) ・微量分散するZrB <sub>2</sub> の影響を評価する場合は、ZrB <sub>2</sub> 粉体を添加
金属部	<b>硬さ</b> 150~425HV	候補材料 ・SUS304 (160HV) ・Alloy600 (180HV)
境界部	・徐冷条件でFe、Niが拡散 ・境界近傍のFeリッチ部 400~1000HV ・Feによる顕著な硬さ上昇みられず	セラミックス中に金属が拡散した領域は、セラミックス部の硬さ・靱性と同等ないしそれ以下と仮定

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

### c. 収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性の把握

#### ● 収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性の把握 (2015~2016年度)

福島第一原子力発電所特有の代表的な燃料デブリやMCCI生成物等を考慮した材料を用い、収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性(含水・乾燥挙動や酸化処理時の酸化挙動)の評価を行う。

##### 【目標を達成するための指標】

- 収納缶の設計に影響する燃料デブリ特性リストについて、収納保管PJのニーズに対応していること。(2016年度)
- 内的条件(材質、空隙率、気孔径分布等)を測定等した各模擬燃料デブリ( $ZrO_2$ 、セメントペースト、 $ZrO_2$ -セメント溶融体)が準備され、外的条件(乾燥温度等)を変化させた場合の乾燥特性曲線が取得されていること。(2016年度) \* 2015年度から実施
- アクチノイド元素の浸出に関する知見が取得されていること。(2016年度)
- 温度をパラメータ(2条件以上)とした模擬MOX燃料デブリの酸化反応速度に関するデータが取得されていること。(2015年度) ⇒ 取得完了

#### □ 収納・移送・保管PJでの懸念事項→ニーズ (2014年度の調整結果)

項目	
燃料デブリの乾燥特性	含水・乾燥
水素発生量	含水・乾燥
残留金属(Zrほか)の酸化処理	酸化
燃料デブリからの放射性核種の水中への溶出量	浸出



##### 【開発項目】

- ➔ 含水・乾燥挙動評価  
(元素・化学形・形状の影響評価)
- ➔ 酸化挙動評価  
(酸化速度評価, 性状変化の評価)
- ➔ 浸出挙動評価  
(使用済燃料の浸水試験等の結果参照、あるいはホット試験)

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

### c. 収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性の把握

#### ◆ 収納保管に関する技術課題の設定

##### 成果概要

- 収納保管PJとの調整により、**収納缶設計に必要な燃料デブリ特性**を設定した。

収納保管PJの必要な情報について共通認識を図った。

⇒ 必要な燃料デブリ特性に関する知見を整理し収納保管PJに提供。(2016年度末までに取りまとめ、提示)

#### 【必要な燃料デブリ特性情報】

1. 収納缶設計、輸送
  - 燃料デブリ粒径
  - 燃料デブリから元素、核種溶出率
  - 水素発生量
  - 密閉：燃料デブリから核種溶出率
  - 徐熱：発熱量
  - 遮蔽、臨界評価：燃料デブリ組成
  - 遮蔽：線源強度

#### 【技術課題の整理】

収納保管PJと調整し優先度の高い技術課題を設定

- 燃料デブリ粒径
- 燃料デブリ組成
- G値、含水率、気孔率 (水素発生量推定)

➡ 推定値を特性リストにて提供

2. 一時保管 (湿式)
  - 燃料デブリからの元素、核種溶出率

3. 乾燥処理
  - 燃料デブリの含水・乾燥特性

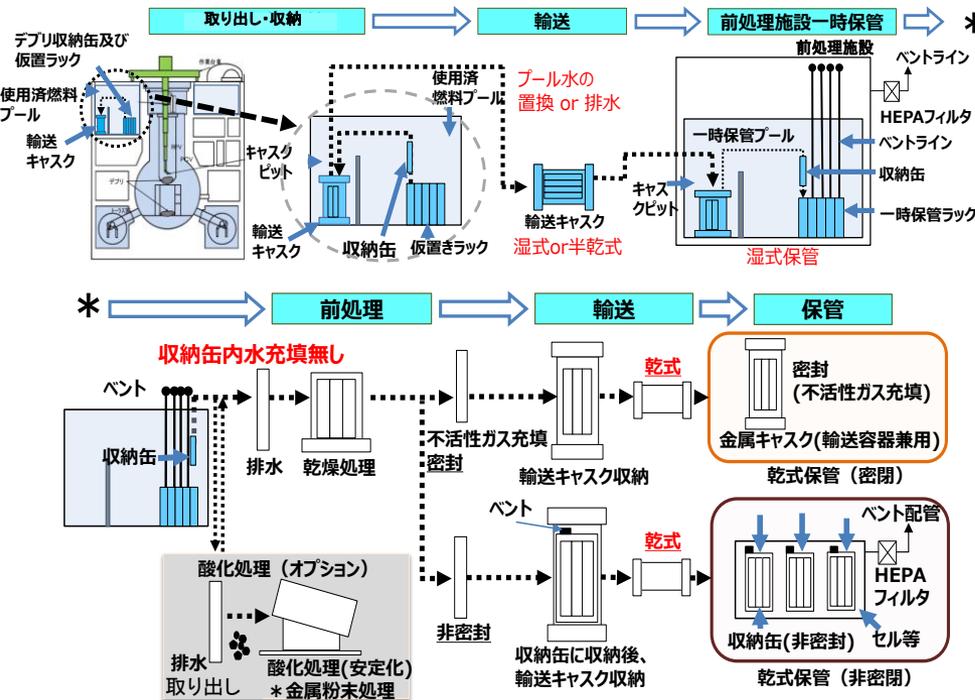
4. 酸化処理 (オプション)
  - 燃料デブリの熱処理 (酸化) 特性 (気相中での燃料デブリ変性含)

5. 乾式保管 (密閉)
  - 燃料デブリの含水・乾燥特性

6. 乾式保管 (非密閉)
  - 水素発生量
  - 燃料デブリの含水・乾燥特性
  - 気相中の燃料デブリ変性

- アクチノイド元素等の浸出に関する知見 (燃料デブリからの元素、核種溶出率の推定)
- 燃料デブリの含水・乾燥特性
- 燃料デブリの熱処理 (酸化) 特性 (気相中でのデブリ変性含)

➡ 個別に文献調査及び試験結果から知見を整理し提供



1F燃料デブリ収納保管フローの検討案

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

### c. 収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性の把握

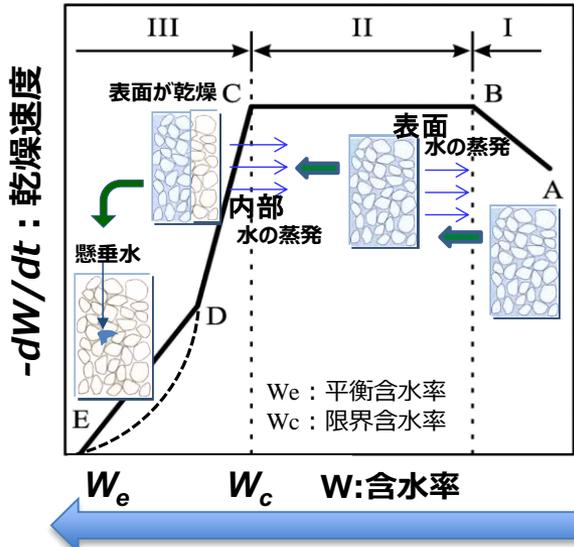
#### ◆ 収納・保管に影響する燃料デブリ含水・乾燥特性の評価 成果概要

- セラミックス系の試料に関しては、**内的・外的条件によらずおおそ同様の乾燥特性を示し**、混合物の検討が必要ではあるが、セラミックスの燃料デブリの乾燥特性は**コールドの試料を用いたデータにより評価できる見通しを得た**。
- セメントペースト試料については、水和物の影響で明確にセラミックス試料と乾燥特性が異なり**、1000 [°C]の条件においても乾燥に長時間を要することがわかった。そのため、**コンクリートを含む燃料デブリを乾燥**させるときには、目標とする乾燥状態を決めたうえで**乾燥工程の条件を選定する必要**がある。

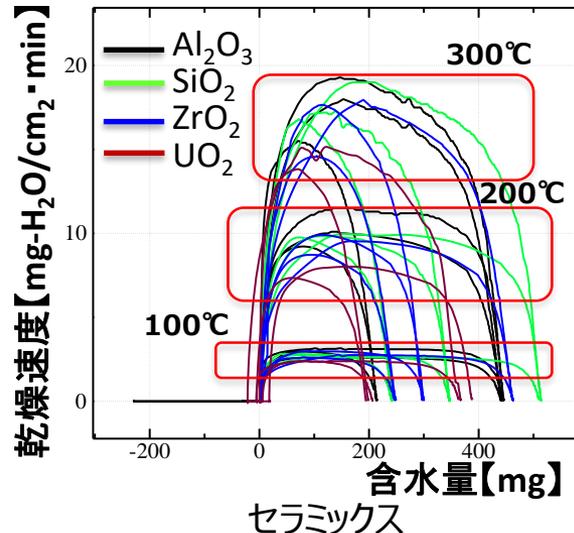
燃料デブリ主成分となるセラミックス等を用いて乾燥特性を把握した。コンクリートの乾燥条件の設定が重要。  
⇒燃料デブリの乾燥設備設計に資するデータを提供。

(Ⅲ) 減率乾燥期間 (Ⅱ) 定率乾燥期間 (Ⅰ) 予熱期間

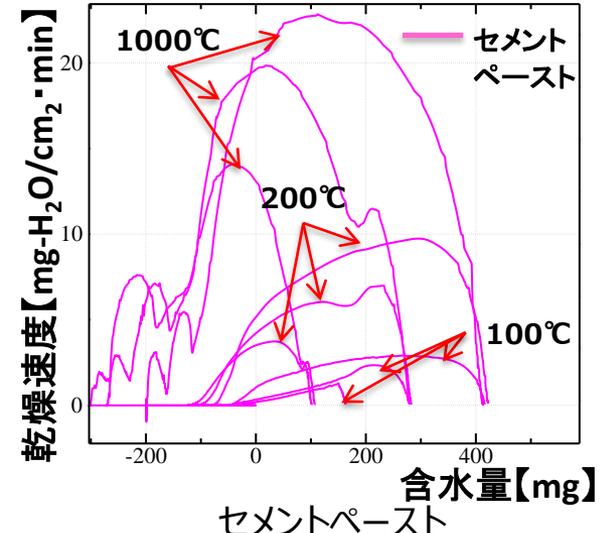
【内的条件】気孔径：0.1～500μm 気孔率：20～60%；【外的条件】温度、Heガス掃気条件



乾燥特性曲線 (理論)



セラミックス



セメントペースト

乾燥特性曲線 (試験結果)

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

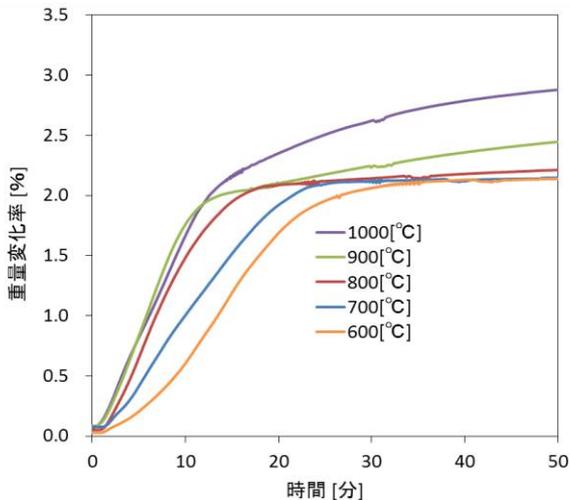
### c. 収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性の把握

#### ◆ 収納・保管に影響する燃料デブリの酸化挙動の評価

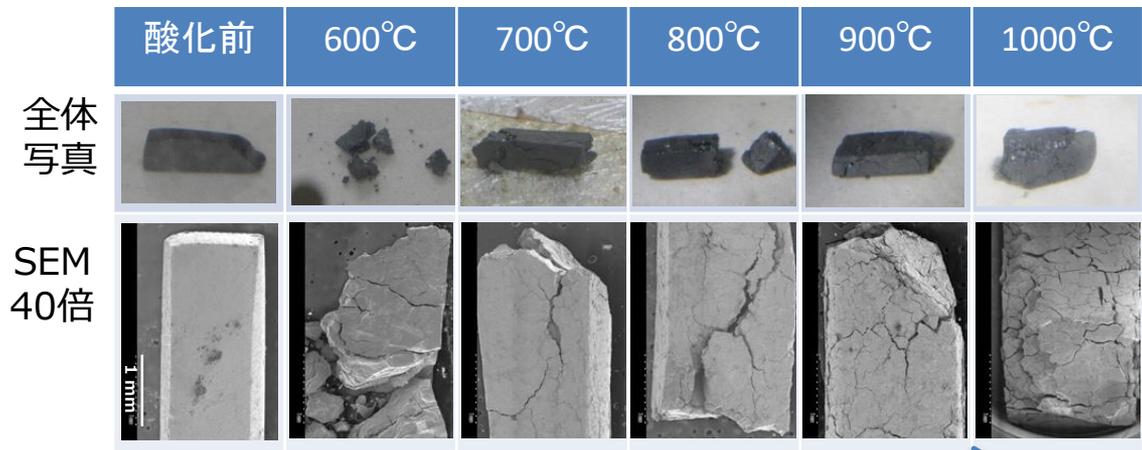
##### 成果概要

- ・大気中の酸化では、MOX模擬燃料デブリの重量変化は $UO_2$ の酸化と同様に二段階の重量増加を示し、800[°C]以上の酸化では $U_3O_8$ 相と同様の側心斜方格子の構造が観測された。高温になるほど酸化速度は速くなったが、一段階目の酸化においては900[°C]と1000[°C]で有意な差はみられなかった。
- ・酸化前は緻密で高密度であったが、酸化後はどの試料も全体にクラックが入り、ピンセットで軽くつまむと壊れるほど脆くなった。また、高温になるほど大量のクラックが観察された。

MOX模擬燃料デブリの酸化速度および酸化にともなう性状変化を確認した。燃料デブリを熱処理する際には酸化にともない割れ・粉化が予測される。⇒燃料デブリについて安定化処理などの熱処理方法の検討に資するデータを提供。



等温酸化試験における重量変化率  
(0～50分を拡大図)



高温になるほどクラックが多い（600°Cの試料は強く持ったため砕けた。どの試料も同様に脆い。）

酸化後の試料断面

### (3)燃料デブリ等の分析要素技術の開発

#### ① 燃料デブリ等の分析・測定技術の開発計画の策定(1/7)

##### ● 実施項目 (2015年度)

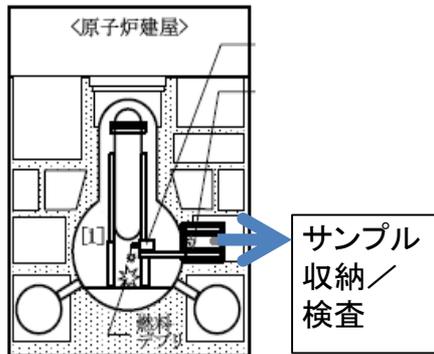
炉内等から得られた燃料デブリの微量サンプルについて、分析・測定可能なように現地での取り扱い・分析を含めた分析全体フローの検討を行い、技術開発要素を抽出及び今後の技術開発を立案する。

##### 【目標を達成するための指標】

- 現地での取扱い、輸送を含めた燃料デブリに係る分析全体フローの検討結果が提示されていること。(2015年度) →**実施完了**
- 今後の技術開発計画が提示されていること。この計画策定に先立って、昨年度の「デブリ標準化」の事例を参考に、ニーズ情報の合意形成を図るための活用側PJとの意見交換打合せを実施すること。(2015年度) →**実施完了**

#### ◆ 分析全体フローの検討

##### RPV内部調査PJ実施範囲



サンプル  
収納/  
検査

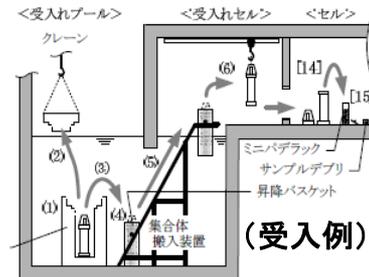
##### 炉内サンプリング

- ①サンプリング場所の設定
- ②輸送に伴う分析、検査の準備  
・発送前検査(表面密度、線量率等)

##### 本PJ実施範囲

##### 構外輸送

- ①技術開発項目の選定



既存分析施設  
(茨城地区)

燃料デブリ  
取り出し後

構内輸送

大熊分析施設

- ①分析ニーズの調査
- ②分析優先度の調査
- ③技術開発項目の選定

⇒優先度が高い分析項目について、時期が早い既存分析施設での分析を考慮して技術開発を進め、分析要領に反映する。

##### ④分析反映先の明確化

⇒技術開発が必要な他の分析項目については、分析反映先が明確になった時点で、優先順位をつけて技術開発計画を見直す。

### (3)燃料デブリ等の分析要素技術の開発

#### ① 燃料デブリ等の分析・測定技術の開発計画の策定(2/7)

#### ◆分析ニーズの調査

- 「デブリ標準化会議」にて設定した性状を中心に、廃炉作業に必要な燃料デブリの性状(分析項目)をIRIDにて情報利用側PJに2014年度に調査。

燃料デブリ性状把握に係る各PJのニーズ整理(案)



廃炉作業への反映先が不明確な項目があり、優先度設定、技術開発項目の具体化に先立って再調査が必要な状況であった。

#	特性			燃料デブリ取出前					燃料デブリ取出・分析後					優先度					
	大項目	中項目	小項目	デブリ取出	臨界管理	収納・移送・保管*	計量管理	廃棄物処理・処分	デブリ取出運用改善	トラブル対応※リスク	臨界管理	収納・移送・保管*	計量管理		廃棄物処理・処分				
1	挙動把握	事故進展挙動	ベテスタル部浸食範囲	○	○	△	△	-	△	○	-	△	△	-	○	-	○	○	
2			冷温停止挙動	-	○	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
3		取り出し時挙動	コロイド形成	-	○	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
4			コロイド挙動	-	○	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
5	基礎特性	気中放出	気中放出	○	○	△	○	-	△	○	○	△	△	△	○	-	-	-	◎
6			水中放出(溶出・浸出)	○	○	△	-	-	△	○	○	△	△	△	○	-	-	-	○
7		形状(粉/粒/塊)	形状(粉/粒/塊)	○	○	△	○	-	△	○	○	△	△	△	○	-	-	-	◎
8			寸法(粒径)	○	○	△	○	-	△	○	○	△	△	△	○	-	-	-	◎
9		密度	真密度	○	○	△	○	△	△	△	○	△	△	△	○	-	○	○	◎
10			空隙率(気孔率)	○	○	△	○	△	△	△	○	△	△	△	○	-	△	△	◎
11		組成	UIPu 濃度	○	○	△	△	△	△	△	○	△	△	△	○	○	△	△	◎
12			SUS 混合率	○	○	△	○	△	△	△	○	△	△	△	○	-	△	△	◎
13			B4C 混合率	○	○	△	○	△	△	△	○	△	△	△	○	-	△	△	◎
14			Gd 混合率	○	○	△	○	△	△	△	○	△	△	△	○	-	△	△	◎
15			U 濃度	○	○	△	△	△	△	△	○	△	△	△	○	-	△	△	◎
16		インベントリ	塩分濃度等	塩分濃度等	○	-	△	△	△	△	○	-	△	△	○	-	△	△	◎
17				FP、CP、アクチニド濃度	-	○	△	○	△	-	-	△	△	△	○	-	○	○	◎
18			化学形態、表面観察	化学形態、表面観察	○	-	△	○	-	△	○	△	△	△	○	○	○	○	◎
19				含水率	○	○	△	○	△	△	△	○	△	△	△	○	-	△	△
20	機械的強度		水蒸気発生量	水蒸気発生量	○	-	△	-	△	△	○	-	△	○	-	△	△	-	◎
21				硬さ	○	-	-	-	-	△	○	-	-	-	-	-	-	-	-
22			じん性	○	-	-	-	-	△	○	-	-	-	-	-	-	-	-	○
23			圧縮強度	○	-	△	-	-	△	○	-	△	△	-	-	-	-	-	-
24	熱的特性		穿孔速度	穿孔速度	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
25				熱伝導率	○	○	△	-	△	△	○	△	△	△	△	-	-	○	○
26		熱挙動	○	-	△	-	-	△	○	○	△	△	△	-	-	-	-	-	◎
27		熱膨張率	○	-	△	-	-	△	○	○	△	△	△	-	-	-	-	-	◎
28		熱拡散率	○	-	△	-	-	△	○	○	△	△	△	-	-	-	-	-	◎
29		融点	○	-	△	-	-	△	○	○	△	△	△	-	-	-	-	-	◎
30		FP 放出挙動	○	○	△	-	△	△	△	○	△	△	△	○	-	○	○	◎	
31		放射線特性	線量率	線量率	○	○	△	○	△	△	○	△	△	△	○	○	△	△	◎
32	発熱量			○	-	△	○	△	△	○	-	△	△	△	○	○	○	◎	
33	その他	燃焼・爆発特性	燃焼・爆発特性	○	-	△	-	-	△	○	-	△	○	-	-	-	-	◎	
34			電気特性	○	-	-	-	-	△	○	-	-	-	-	-	-	-	-	○
35		磁気特性	○	-	-	-	-	△	○	-	-	-	-	-	-	-	-	○	
36		高温特性	○	-	△	-	-	△	○	-	△	△	-	-	-	-	-	-	○
37		高温反応性	○	-	△	-	-	△	○	-	△	△	-	-	-	-	-	-	○
38		燃料デブリ乾燥特性(乾燥方法開発)	-	-	△/○	-	-	-	-	-	-	-	○	-	-	-	-	-	◎
39		水素発生特性(特に完全乾燥できない場合の特性)	-	-	△	-	△	-	-	-	△	○	-	-	△	△	-	-	◎
40		装置検証	○	-	-	-	-	△	○	-	-	-	○	-	-	-	-	-	◎

凡例 PJニーズ 優先度 ○:検討において必須(具体的な前提条件) △:参考データもしくは別途取得されれば良し -:必要なし ◎:PJ実施の上で必須 ○:トラブル対応、規制対応等、事故進展評価として必要 -:分析の必要なし

### (3)燃料デブリ等の分析要素技術の開発

#### ① 燃料デブリ等の分析・測定技術の開発計画の策定(3/7)

#### ◆分析優先度の調査 成果概要

・優先度の高い燃料デブリの情報を選定し、必要な技術開発項目を具体化した。

優先度の高い分析が実施可能な施設の選定、必要な技術開発計画の策定を進めた。

#### 分析ニーズの精査

(次の観点で、各PJのニーズを再調査)

- 優先度の高い分析項目の整理
- 技術開発すべき内容を具体化



#### ① 優先度が高い情報

元素濃度、U濃縮度、α核種濃度、  
γ核種分布、化学形態、気孔率、  
含水率

#### ② 必要な技術開発項目を具体化

- 1) 難溶性燃料デブリ溶解技術
- 2) ICP-AESによる元素定量分析
- 3) X線CTによる気孔率の測定
- 4) γスキャン装置及びX線CTによるγ線核種分布測定

上記以外の技術開発が必要な項目については、廃炉作業の検討が進み、反映先が明確になった時点で再検討する。

#### 優先度の高い燃料デブリの分析項目(案)

分析項目	既存施設分析実施可否	既存施設の分析装置	情報の用途 ◎: 優先度が高い情報
形状	○	・光学顕微鏡 ・電子顕微鏡	・基本情報
粒径	○	・電子顕微鏡 ・ふるい分け	・基本情報
密度分布、気孔率	△	・X線CT	◎気孔率: 収納缶内の水素発生量を推定するために利用
組成	○	・表面電離型質量分析装置(TIMS)	◎臨界評価に利用
	△	・誘導結合プラズマ発光分光分析装置(ICP-AES) *	
	△	・誘導結合プラズマ発光分光分析装置(ICP-AES) *	◎Gd: 臨界評価に利用(偏在していないことの確認) ◎Fe,Cr: 構造材の混在量の推定を行い、臨界評価で利用
	○	・表面電離型質量分析装置(TIMS)	◎臨界評価等に利用(U濃縮度に変化がないことの確認)
	×	・イオンクロマトグラフ	・収納缶内の水素発生量を推定するために利用(Cl <sup>-</sup> が水素発生量に影響与える可能性があるため)
インベントリ	○	・αスペクトル測定装置(Si半導体)	◎Am241:臨界評価に利用
	○	・液体シンチレーションカウンター	・収納缶設計に対し現実的な評価により合理化検討に利用
	○	・γスペクトル測定装置(Ge半導体)	・収納缶設計に対し現実的な評価により合理化検討に利用
	△	・γスキャン装置(+X線CT)	◎構造材の混在量の推定を行い、臨界評価で利用 ・収納缶設計に対し現実的な評価により合理化検討に利用
	○	・γスキャン装置	・収納缶設計に対し現実的な評価により合理化検討に利用
化学形態(断面分析)	○	・波長分散型X線分析装置(WDX)	◎Gd: 臨界評価に利用(偏在していないことの確認) ◎収納缶内の水素発生や腐食評価に利用
含水率	×		◎収納缶内の水素発生量を推定するために利用
機械的特性	○	・ビッカース硬度計	・装置、ツールの設計に利用。ロボットアームの設計の合理化検討に利用
	△ (サンプル調整検討要)	・一軸圧縮試験装置	・装置、ツールの設計に利用。ロボットアームの設計の合理化検討に利用
熱特性	○ (DSCのみ)	・示差走査熱量計(DSC)	・熱的切断手法(レーザ等)の設計に利用

\* 多元素の定量分析の一般的な分析方法としてICP-AESを選定。  
特定元素の微量定量分析のニーズが明確になった時点でICP-MSの利用のための技術開発も検討。

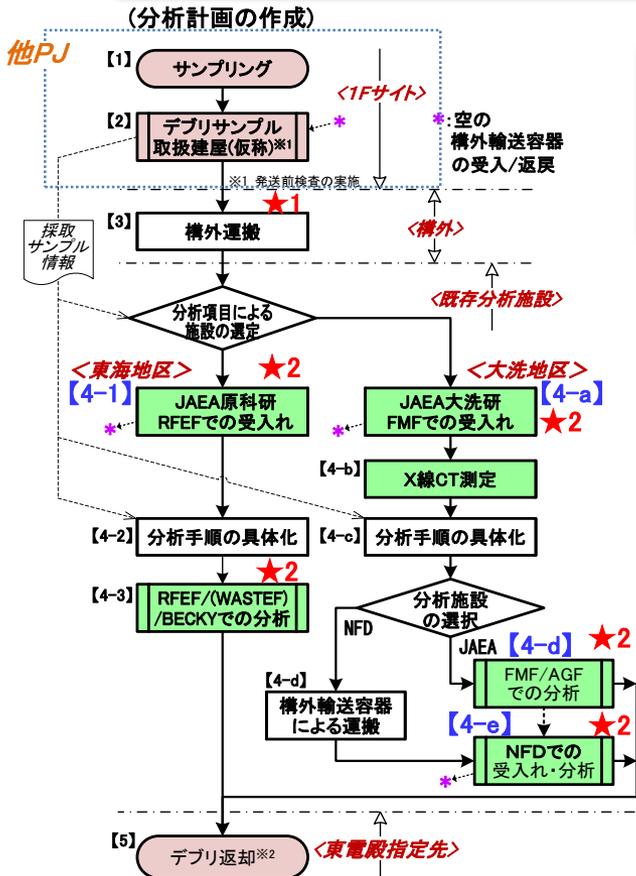
### (3)燃料デブリ等の分析要素技術の開発

#### ① 燃料デブリ等の分析・測定技術の開発計画の策定(4/7)

##### ◆燃料デブリサンプルに係る分析全体フローの作成 成果概要

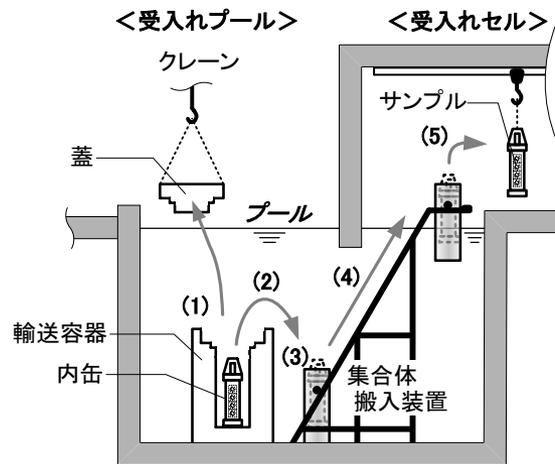
・燃料デブリサンプルに係る分析全体フローを作成し、課題を抽出した。

燃料デブリの優先度が高い分析項目について、分析可能な施設を選定した。  
また、当該施設で分析を行うことを想定した場合に解決が必要となる課題を整理した。



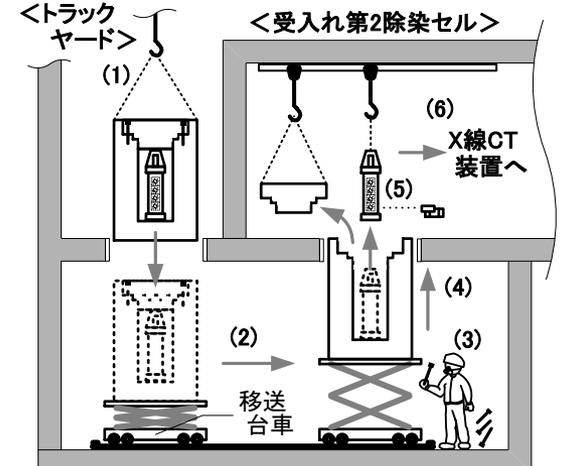
#### [課題] \* 解決の必要な課題

- ★1 燃料デブリサンプルの輸送に係る技術検討、許可が必要
- ★2 受入れ・分析施設ごとに使用変更許可の取得が必要
- その他 ニーズ側と要求される分析精度の調整が必要



<プール取合いによる搬入>

[4-1]燃料試験施設;RFEFの輸送容器の受入れ



<セルアンダーローディング取合いによる搬入>

[4-a]照射燃料集合体試験施設;FMFの輸送容器の受入れ

(3)燃料デブリ等の分析要素技術の開発

① 燃料デブリ等の分析・測定技術の開発計画の策定(5/7)

◆作成例:【4-a】大洗地区(JAEA\_FMF/AGFによる分析)の分析フロー

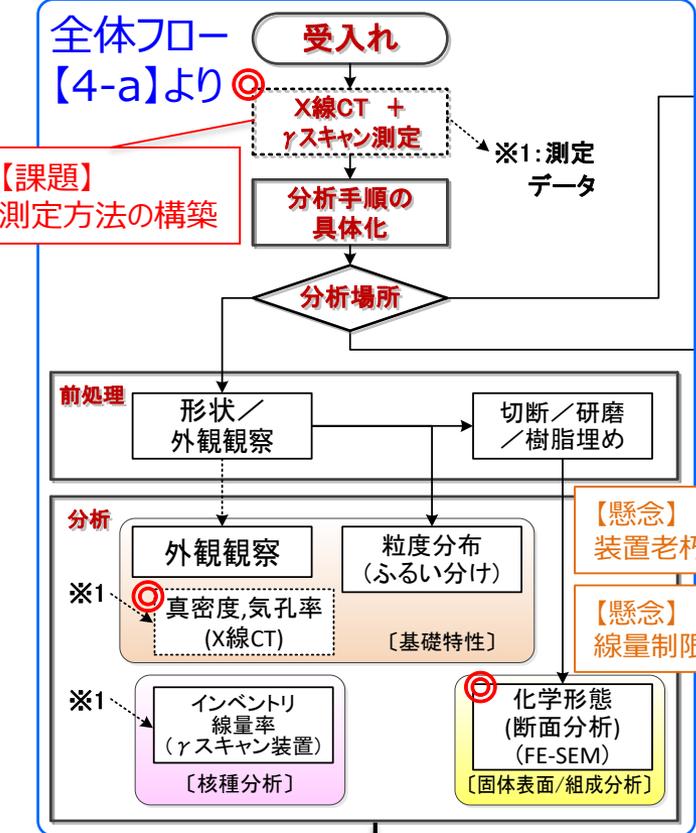
分析を実施するためには課題、懸念等をクリアする必要がある。

<照射燃料集合体試験施設：FMF>

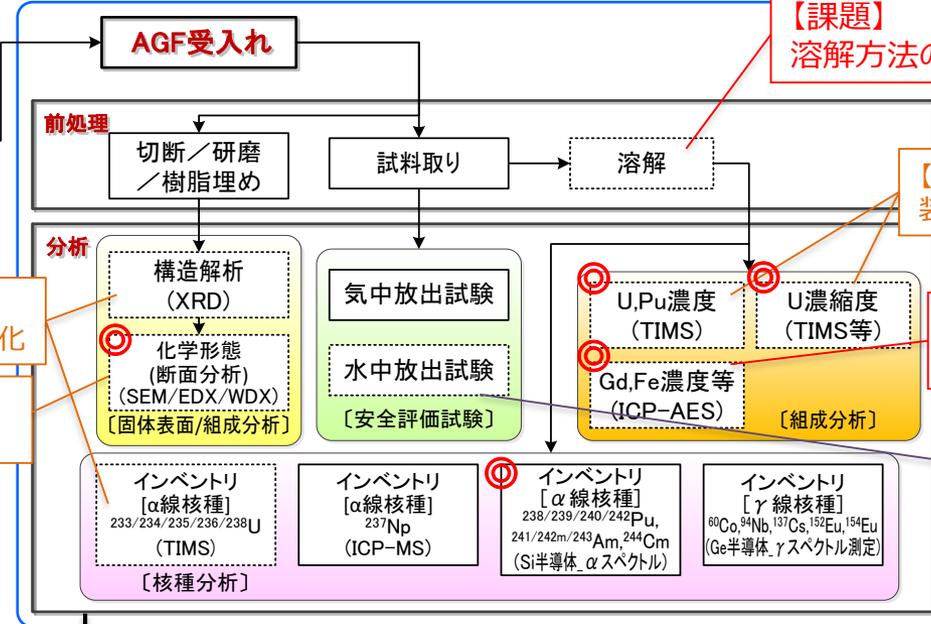
<日本核燃料開発株式会社：NFD>

【凡例】

- : 対応可能な分析項目
- (点線) : 検討、確認等が必要な分析項目
- ◎ : 優先度が高い分析項目



<照射燃料試験施設：AGF>



【課題】溶解方法の構築

【懸念】装置老朽化

【課題】干渉影響評価

【対応】方法具体化

燃料デブリサンプル返却

### (3)燃料デブリ等の分析要素技術の開発

#### ① 燃料デブリ等の分析・測定技術の開発計画の策定(6/7)

##### ◆大熊分析施設の設計進捗に伴い必要となる新規の技術開発課題の設定

- 今後、大熊分析施設の設計進捗に伴い分析項目(分析装置)が具体化されていく見通しであるところ、その過程で廃炉のために実施すべき分析項目について新規の技術開発課題が明らかになった場合には、設計・建設側と調整し、必要に応じ技術開発項目を再設定し開発に着手する。

##### ◆現行提起されている新規技術開発課題:ICP-MSを用いた多核種分析手法の開発

38核種\*定量分析に対する従来法に関する課題 \*廃棄物処分を検討する上での重要核種

①化学分離工程が複雑

②単離した核種ごと、長時間測定が必要

\* 懸案である大熊分析施設の年間処理数に影響大

 トリプル四重極ICP-MSを用いた多核種分析手法の開発による合理化の可能性

・測定時間と感度の最適化:

高感度を確保しながら測定時間を短縮 (約9割減: ~20分/1核種)

・同重体干渉の除去方法の確立:

特定の複数核種を一度で同時測定が可能(ICP-MSの対象核種数3→28核種)

### (3)燃料デブリ等の分析要素技術の開発

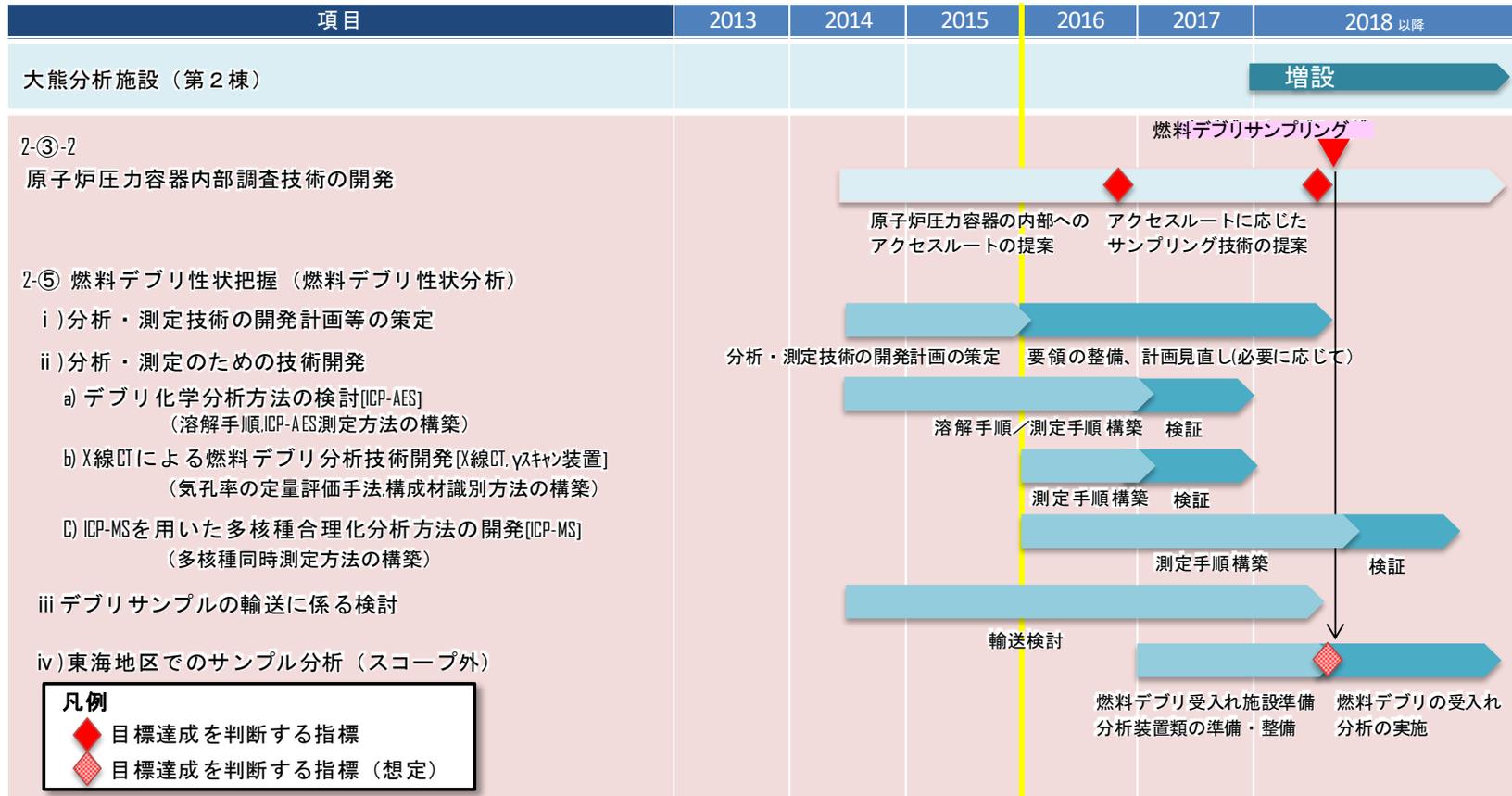
#### ① 燃料デブリ等の分析・測定技術の開発計画の策定(7/7)

#### ◆燃料デブリサンプルの分析に係る技術開発計画の策定

##### 成果概要

・抽出した技術開発課題について、技術開発計画を策定した。

選定した技術開発を行い、燃料デブリ分析に向けた準備を行う。



### (3)燃料デブリ等の分析要素技術の開発 ②分析に必要となる要素技術開発

#### a. 分析・測定のための技術開発

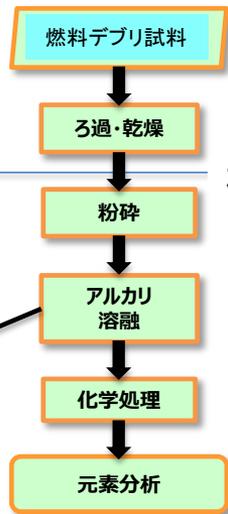
#### ●実施項目（2015～2016年度）

燃料デブリ等の性状等を分析・測定するための技術開発を行う。具体的には、アルカリ融解法の検討を継続し、ICP-AESによる元素の簡易迅速分析法を構築するための検討を行う。また、試験方法が具体化されていない安全評価のための試験方法の検討を行い、ホット環境での試験装置を決定する。さらに、2015年度の検討において、明確になった技術開発項目について開発を実施する。

#### 【目標を達成するための指標】

- るつぼの腐食性に係るデータが取得され、アルカリ融解に用いるるつぼ材料が選定されていること。（2015年度） →取得完了
- 融剤及び燃料デブリ等の主な共存成分に対し、元素分析への影響が提示されていること。（2016年度）
- 燃焼・爆発特性等の安全評価方法が提示されていること。（2016年度）

#### ○燃料デブリ化学分析方法の検討(2015年度～)



検討範囲

- ・ るつぼの腐食等について対策を検討し、るつぼ材料と融剤の組み合わせを検討する。（2015年度）
- ・ るつぼの腐食等を考慮した条件でのU模擬燃料デブリ等を用いて溶解挙動を確認する。（2016年度）
- ・ アルカリ融剤や燃料デブリの主成分による元素分析結果への影響を検討をする。（2015～2016年度）

#### ○安全評価方法の検討(2016年度)

他PJからの燃料デブリを用いた測定ニーズに安全評価を目的とした各特性の取得がある。燃料デブリを使用したホット試験であるため、試験装置を含めた試験方法を検討する。

#### 【燃料デブリを用いた特性把握のニーズ】

- ①核種・元素放出挙動(気中、水中)
- ②水素発生特性
- ③燃焼・爆発特性
- ④燃料デブリ乾燥特性

#### ○新規技術開発の実施(2016年度)

今年度の検討において、新たに開発が必要な項目について技術開発を実施する。（2016年度）

# (3)燃料デブリ等の分析要素技術の開発 ②分析に必要となる要素技術開発 41

## a. 分析・測定のための技術開発

### ◆ 燃料デブリ化学分析方法の検討

#### 成果概要

##### ①溶解手順の構築

- 新たな融剤種や融解条件の変更では、Niるつぼの腐食は防止できなかったが、Niは他元素測定に干渉しないことがわかったため、汎用性が高いNiるつぼを選定した。
- 模擬試料（ZrO<sub>2</sub>など4種）を全量溶解可能であるNa<sub>2</sub>O<sub>2</sub>融解法の融剤条件を決定した。

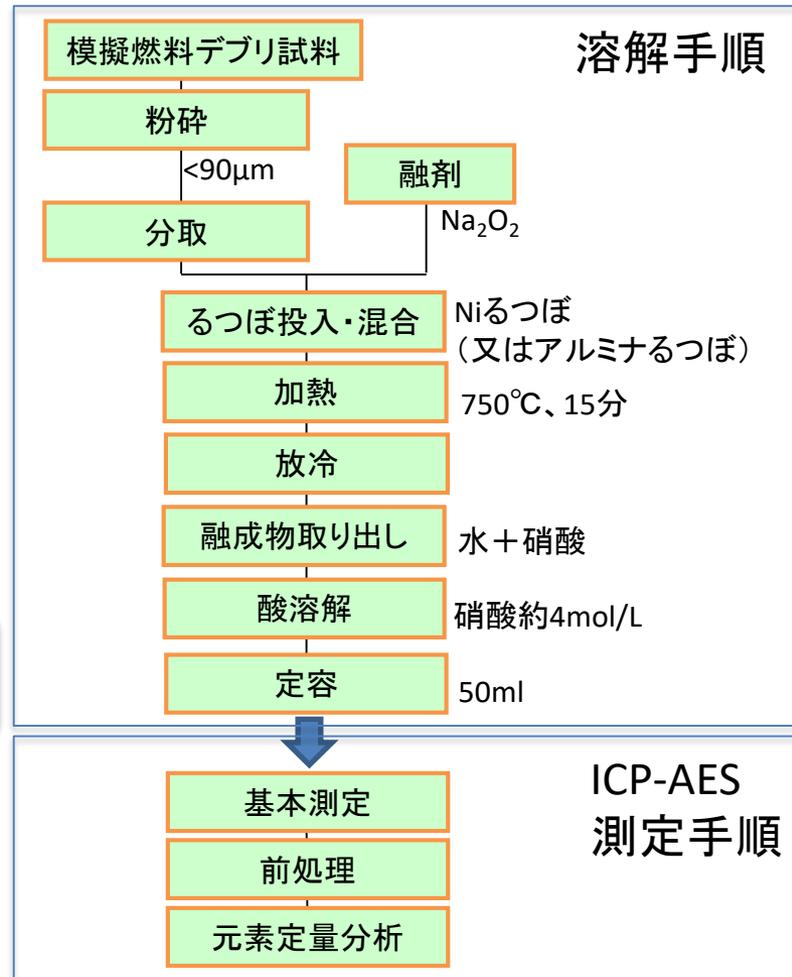
##### ②ICP-AES測定方法の構築

- 定量分析対象の12元素(Zr, Fe, Gd, Al, B, Ca, Cr, K, Mg, Na, Ni\*, Si)の分析線について、分光干渉の影響を評価し、12元素間相互の分光干渉の影響がない分析線を選定した。
- 定量分析対象の11元素(Zr, Fe, Gd, Al, B, Ca, Cr, K, Mg, Ni\*, Si)について、Naによるイオン化干渉の影響を把握した。  
\* アルミなるつぼを利用予定

るつぼ材の選定に係るデータ、アルカリ融剤や燃料デブリの主成分による元素分析結果への影響に係るデータを取得した。  
⇒燃料デブリの元素定量分析要領に反映。

#### 選定した分析線

元素	波長(nm)	備考	元素	波長(nm)	備考
Al	394.4032	BG、Gdの軽微干渉	K	766.4907	
B	249.6778		Mg	280.270	第2分析線
Ca	396.8468		Ni	361.939	第5分析線
Cr	425.4346		Si	288.1578	Gdの軽微干渉
Fe	358.1195		Zr	343.3230	第2分析線
Gd	342.2466		Na	589.5923	



#### 元素定量分析フロー

### (3)燃料デブリ等の分析要素技術の開発 ②分析に必要となる要素技術開発

#### b. 燃料デブリサンプルの輸送に係る検討

##### ● 実施項目（2015～2016年度）

既存施設による早急な燃料デブリの分析実施も想定し、燃料デブリを試験施設へ輸送して化学的及び物理的な調査を行える準備をしておくことは重要である。そのため、既存輸送容器を用いた核燃料輸送物設計承認に関する詳細検討を行う。また、放射性物質分析・研究施設への輸送については初年度に実施主体(PJ)の調整を含め検討方針を具体化する。

##### 【目標を達成するための指標】

- 核燃料輸送物設計承認及び容器承認に関する詳細検討結果が提示されていること。(2015年度) ⇒**検討完了**
- 輸送許認可申請の検討結果が提示されていること。(2016年度)

#### 成果概要

- 輸送方法に係る検討の一環として、2014年度の検討に加えMOX燃料由来の燃料デブリサンプルを想定して輸送容器の安全解析などを実施した結果、法令に定める**B型核燃料輸送物としての技術上の基準（構造、熱、密閉、遮蔽、臨界）に適合**することが確認された。照射後試験施設における当該輸送容器の取扱方法などの検討を踏まえ、燃料デブリ試料の輸送が可能である見通しが得られた。
- **A型輸送**の検討も実施した。法令上の制限値に基づく最大収納可能量は0.447gと評価された。また燃料デブリサンプルが輸送物の種類の何に相当するかの解釈によっては、現行の協定等の下では量に関わらずA型輸送容器による輸送ができない可能性があることが示された。

B型輸送容器により燃料デブリを輸送可能な見通しを得た。

⇒既存施設での燃料デブリの分析に向けて、燃料デブリの輸送に係る解析データを提供

# 実施体制

2015年度

