

「令和元年度破損燃料輸送・貯蔵に係る技術調査」  
安全評価項目の感度整理（燃料デブリ分析試料の性状）の結果速報  
三菱重工業株式会社／ニュークリア・デベロップメント(株)  
2019年12月12日

## 1. まえがき

本資料は、「破損燃料輸送・貯蔵に係る技術調査」の実施項目である「安全評価項目の感度の整理」のうち、デブリの分析試料の質量、密度、物質組成、核種組成についての整理結果の概要を纏めた速報である。

## 2. 燃料デブリ分析試料の性状の整理

### 2.1 整理方針

燃料デブリ分析試料の性状（質量、密度、物質組成、核種組成）について、公開文献情報を基に整理を行う。

### 2.2 燃料デブリ分析試料の性状

#### (1) 燃料デブリの分布

燃料デブリについては、燃料 ( $UO_2 \cdot ZrY (Zr)$ ) 及び炉心構造物 (SUS (Fe)、 $B_4C$ 、Inconel) の炉内構成要素の成分により構成されていると考えられる。東電福島第一（以下 1F）1号機から3号機の主要構成要素の物量を表1に示す [1]。これら構成要素は融点が異なり、また複数成分を溶融したものが降温した場合は温度によって凝固する成分が異なる。ここで、1Fの事故挙動は各号機において大きく異なる（図1） [2]。このため、燃料デブリの性状も異なると考えられる。想定される燃料デブリの化学形態について、MAAP評価による分布・組成を表2に示す [3]。ここで、MAAP評価には制御棒成分が記述されていないが、燃料成分が溶融する温度では制御棒成分も溶融することから、燃料デブリ組成には制御棒成分の  $B_4C$  及びその酸化物  $B_2O_3$  等が含まれると考えられる [4]。したがって、同表にはこれら成分も追記した。

溶融した燃料デブリがRPVより落下した際は、PCVの床コンクリートに接触し、MCCI反応が生じると考えられる。この場合に生成するMCCI生成物は燃料デブリにコンクリート成分が融合したものとなる。

上述の様に、燃料デブリは均一ではなく、採取される号機及び位置により組成が異なる。また、各採取位置に複数成分が存在する可能性も考えられる。

表1 炉心構成要素の物量評価結果及び熱特性 [1] [5]

炉心材料	重量 (t)		融点 (K)
	1号機	2/3号機	
UO <sub>2</sub>	78.3	106.6	UO <sub>2</sub> : 3113
Zry	32.7	44.8	Zr : 2130
(燃料被覆管)	(19.1)	(26.1)	ZrO <sub>2</sub> : 2960
(チャンネルボックス)	(13.6)	(18.7)	
Fe	12.5	17.7	Fe : 1720 Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> : 1813
B <sub>4</sub> C	0.59	0.82	B <sub>4</sub> C : 2743 B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 723~743
Inconel (推定値)	1.0	1.4	Inconel : 1663
合計	125.1	171.3	— —

(a) 1号機

(b) 2号機

(c) 3号機

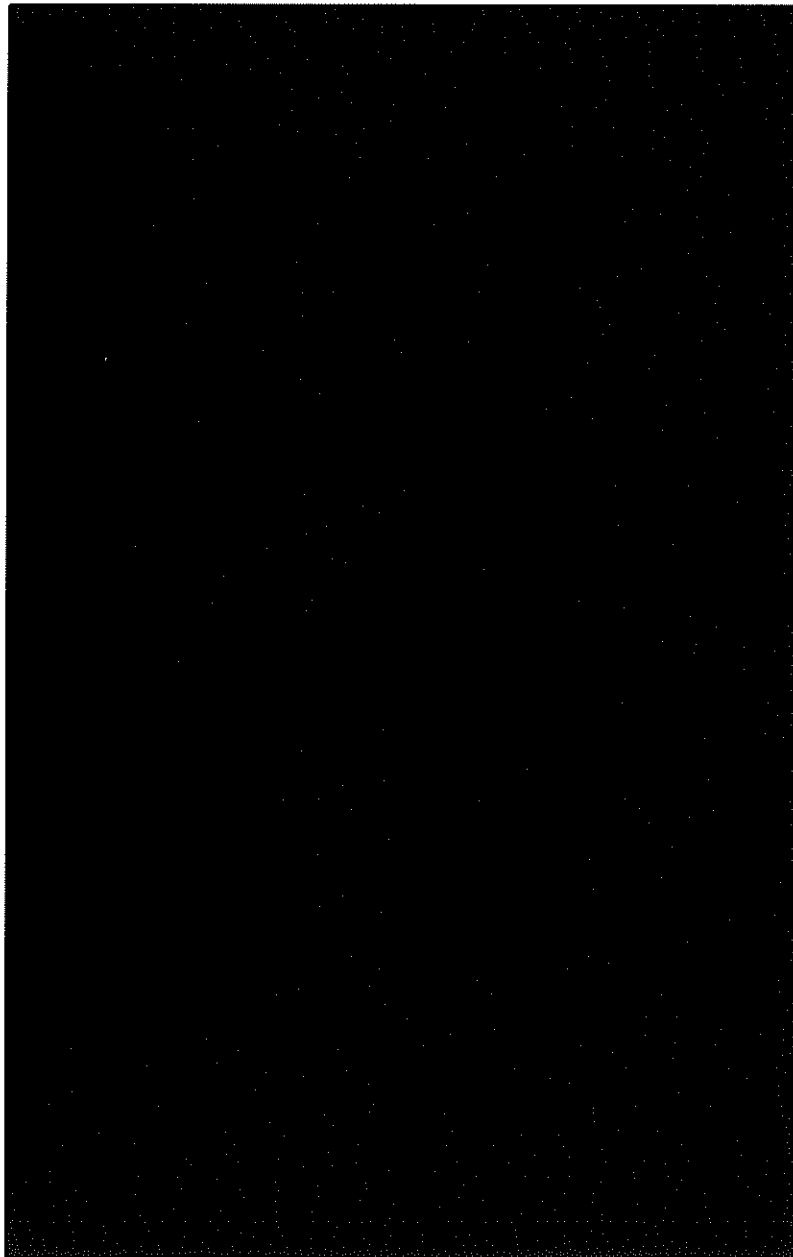


図1 1F炉内の熱挙動 1F炉内の熱挙動 [2]

表 2 燃料デブリの分布・質量・組成 (一覧) [3]

分布位置	MAAP評価 質量(t)			性状	燃料デブリ組成	
	1号機	2号機	3号機		1号機	2号機 3号機
炉心部	0 ~ 3	0 ~ 51	0 ~ 31	切株燃料	UO <sub>2</sub> , ZrO <sub>2</sub> (U,Zr)O <sub>2</sub> -c Zr(O)	
				粉状 小石状	(U,Zr)O <sub>2</sub> -c (U,Zr)O <sub>2</sub> -t B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> B <sub>4</sub> C-Steel	
炉底部	7 ~ 20	25 ~ 85	21 ~ 79	粉状 小石状	(U,Zr)O <sub>2</sub> -c (U,Zr)O <sub>2</sub> -t Zr(O) B <sub>4</sub> C-Steel B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Fe	
				塊状		
CRD/ 計装管				構造物+ 付着燃料デブリ	(U,Zr)O <sub>2</sub> -c (U,Zr)O <sub>2</sub> -t Fe, B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> B <sub>4</sub> C-Steel	
ペDESTAL 内	120 ~ 209	102 ~ 223	92 ~ 277	MCCI 粉状 小石状	(U,Zr)O <sub>2</sub> -c (U,Zr)SiO <sub>2</sub> B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> B <sub>4</sub> C-Steel	
				粉状 小石状		UO <sub>2</sub> Zr(O) (U,Zr)O <sub>2</sub> -c Fe, B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> B <sub>4</sub> C-Steel
				MCCI クラスト	(U,Zr)O <sub>2</sub> -c (U,Zr)SiO <sub>2</sub>	
				塊状MCCI	SiO <sub>2</sub> , B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> B <sub>4</sub> C-Steel	
				塊状		UO <sub>2</sub> , Zr(O) (U,Zr)O <sub>2</sub> -c (U,Zr)SiO <sub>2</sub> Fe, B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> B <sub>4</sub> C-Steel
金属層	Fe FeSiO <sub>2</sub> Fe-Zr B <sub>4</sub> C-Steel					
ペDESTAL 外	70 ~ 153	3 ~ 142	0 ~ 146	MCCI/粉状 小石状	(U,Zr)O <sub>2</sub> -c (U,Zr)SiO <sub>2</sub> B <sub>4</sub> C-Steel B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	UO <sub>2</sub> , Zr(O) (U,Zr)O <sub>2</sub> -c Fe, B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> B <sub>4</sub> C-Steel
				MCCI クラスト/ 塊状MCCI	(U,Zr)O <sub>2</sub> -c (U,Zr)SiO <sub>2</sub> SiO <sub>2</sub> FeSiO <sub>2</sub> B <sub>4</sub> C-Steel B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	UO <sub>2</sub> , Zr(O) (U,Zr)O <sub>2</sub> -c (U,Zr)SiO <sub>2</sub> Fe, B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> B <sub>4</sub> C-Steel

## (2) 燃料デブリの輸送質量

燃料デブリの取出しは、「原子炉格納容器（以下、PCV）内部調査（サンプリングを含む）」→「小規模なデブリ取り出し」→「大規模なデブリ取り出し」と規模を段階的に拡大していく作業の流れが想定されている。ここで、サンプリングされた燃料デブリについては、1F 事故由来のサンプルの取り扱い経験を有する茨城県内の機関へと輸送し、分析することが検討されている。この際、サンプリングの初期（今後1～2年）においては、サンプル量が少量に限られることからA型輸送レベルが想定されている。また、その後のサンプリングではB型輸送レベルが想定されている [6]。したがって、サンプリング時の輸送質量としては、各輸送容器の輸送可能放射線量から表3のようになると考えられる。

表3 燃料デブリの輸送質量

サンプリング時期	輸送質量	輸送容器
初期(今後1～2年)	数g以下程度	A型容器輸送
以降	数十～数百g程度	B型容器輸送

## (3) 燃料デブリの密度

上述の様に、燃料デブリは均一ではなく、採取される号機及び位置により密度が異なると考えられる。燃料デブリを構成すると考えられる各成分及びその派生物質（例： $B_4C$  の場合の  $B_2O_3$ ）の理論密度を表4に示す [7] [8]。

表4 燃料デブリを構成すると考えられる成分の密度

物質	理論密度 (g/cm <sup>3</sup> )	引用
UO <sub>2</sub>	11	[7]
Zry-2	7	
Zr(O)	7	
ZrO <sub>2</sub>	6	
(U,Zr)O <sub>2</sub> -C/T	6-11	
(U,Zr)O <sub>2</sub> -M	6	
(U,Zr)SiO <sub>2</sub>	4-9	
Fe	8	
Fe <sub>2</sub> (Zr,U)	7-8	
B <sub>4</sub> C	2.5	
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.5	
B-Fe	7.4(Fe <sub>2</sub> B)	
SiO <sub>2</sub>	3	
コンクリート	2.4	

#### (4) 燃料デブリの物質組成

燃料デブリにおいて想定される成分を表 2 に示した。ここで、前述の様に、複数成分を含む燃料デブリが溶融状態から凝固する場合、各成分の融点・密度・結晶形態に応じて各成分の分布が生じる。1F3 号機 PCV ペDESTAL 部で採取された試料の FE-TEM/EDS 測定結果を図 2 に示す [9]。PCV より採取された燃料デブリ試料は数  $\mu\text{m}$  大の粒子であるにも係わらず  $(\text{U, Zr})\text{O}_2$  層と  $\alpha\text{-Zr (0)}$  相の 2 相が観察された。したがって、燃料デブリは、各成分が混合した状態で採取されると考えられる。

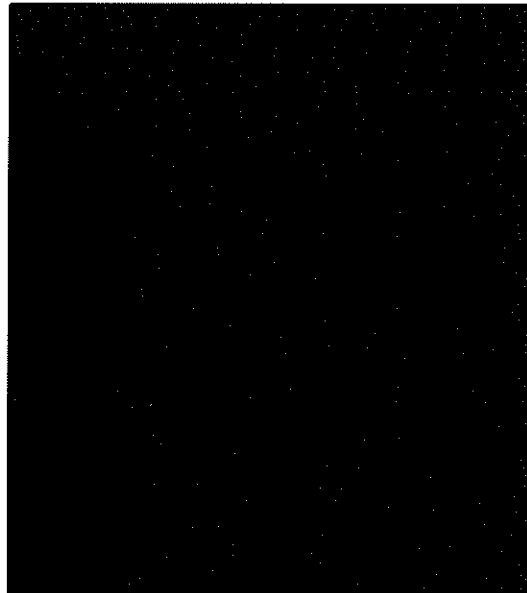


図2 燃料デブリ分析結果（1F3号機ペDESTAL領域調査時スミアサンプル） [9]

ここで、1F 事故時に海水注入が行われたため、この海水成分が燃料デブリに取り込まれた可能性がある。また、燃料自体にも稼働時生成したよう素等が含まれる。これらハロゲン元素及び化合物が燃料デブリ試料中に存在する量は少ないと考えられるが、これらが残留していた場合には腐食成分となる。但し、燃料デブリ試料は分析に供するものであることから、容器成分からの汚染を避けるために、耐食性の個別容器に装荷した状態で輸送すると考えられ、輸送容器に対する影響は小さいと考えられる。

また、揮発成分については炉心溶融時にその殆どが揮発していると考えられ、且つ残留成分についても低温では凝縮状態にあると考えられる。したがって、輸送時に燃料デブリ試料が高温にならない限り、揮発成分が再揮発して容器内の圧力上昇の原因になる可能性は小さいと考えられる。但し、燃料デブリ試料に有機物成分が存

在する場合、燃料デブリの放射線により分解し、気体が生成することで容器内の圧力が上昇する可能性が考えられる。

#### (5) 燃料デブリの各核種組成

燃料デブリに含まれる各核種の重量については、燃料デブリの主成分である燃料成分(燃料及び燃料被覆管)を対象に ORIGEN2 コードによって計算されている [10]。本計算結果は燃料及び燃料被覆管によるものであることから、表 3 に示した (U, Zr) O<sub>2</sub> に含まれる核種重量である。

上述の様に、燃料デブリは燃料成分以外の成分も含まれる。この燃料成分と燃料以外成分の割合は不明であることから、核種重量については保守的に採取された燃料デブリが (U, Zr) O<sub>2</sub> の単成分として核種重量を評価する。実際に採取された燃料デブリ試料において (U, Zr) O<sub>2</sub> 以外が含まれる場合は、他成分の存在割合に応じて核種重量が減少することになる。

ここで、燃料デブリは溶融時に高温履歴を受けていることから、沸点が低い元素については溶融時に燃料デブリから放出された可能性がある。この溶融時の放出率評価値が評価されている [11]。

輸送する分析試料中の核種重量については、下式に記す計算を行うことで保守的に得られると考えられる。また、揮発性核種については、上記核種重量に放出率から得られた残存率を乗じた値となる。

$$C_s = m_s / m_{core} \times C_{core} \times (1 - k \div 100)$$

ここで、 $C_s$  (g/sample) : 燃料デブリ試料中の核種重量

$m_s$  (g) : 燃料デブリ試料重量

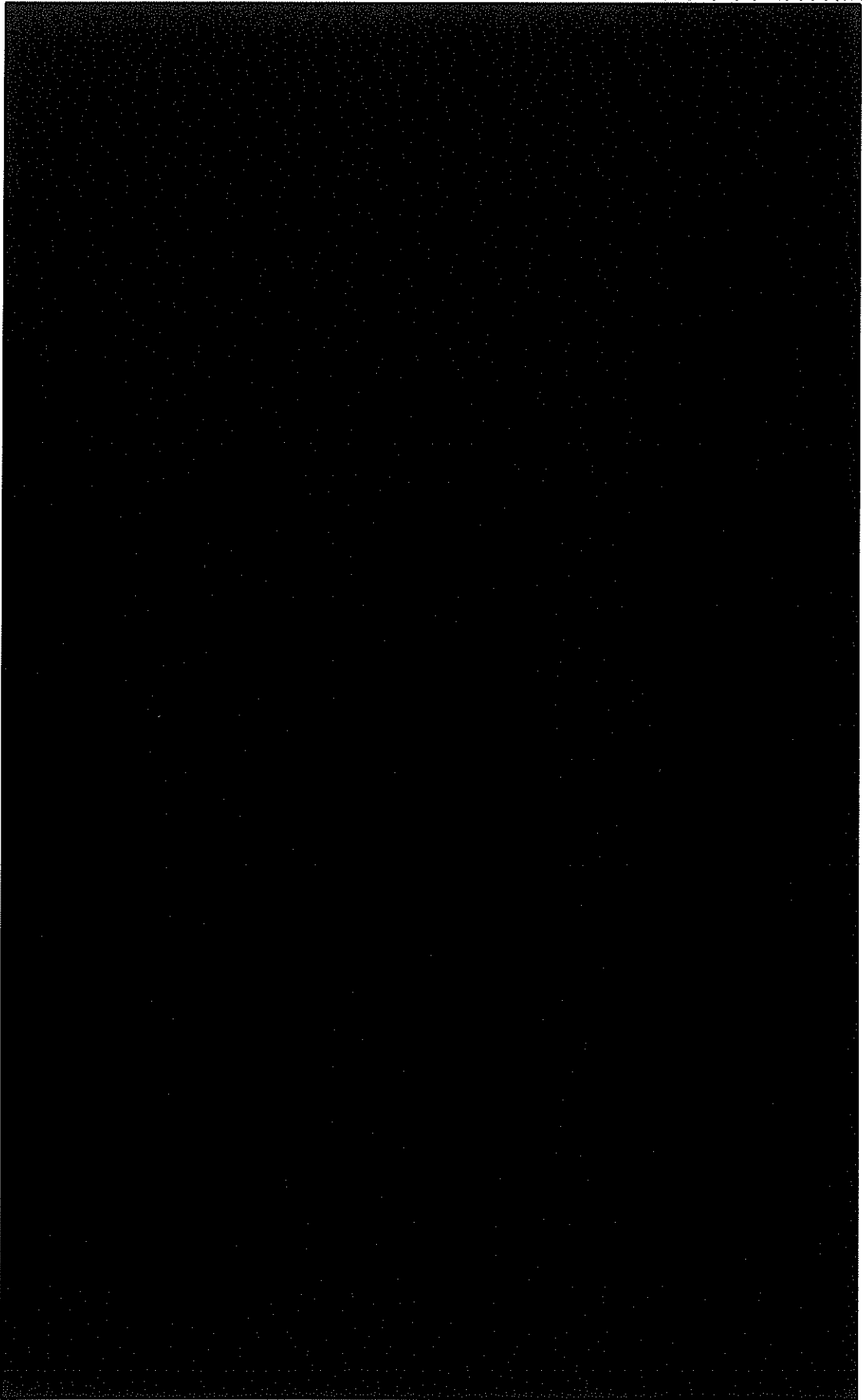
$m_{core}$  (g/core) : 炉内燃料成分重量 (燃料+被覆管)  
 1号機 :  $9.7 \times 10^7$  (g/core)  
 2/3号機 :  $1.3 \times 10^8$  (g/core)  
 表 1 より

$C_{core}$  (g/core) : 炉心当りの核種重量

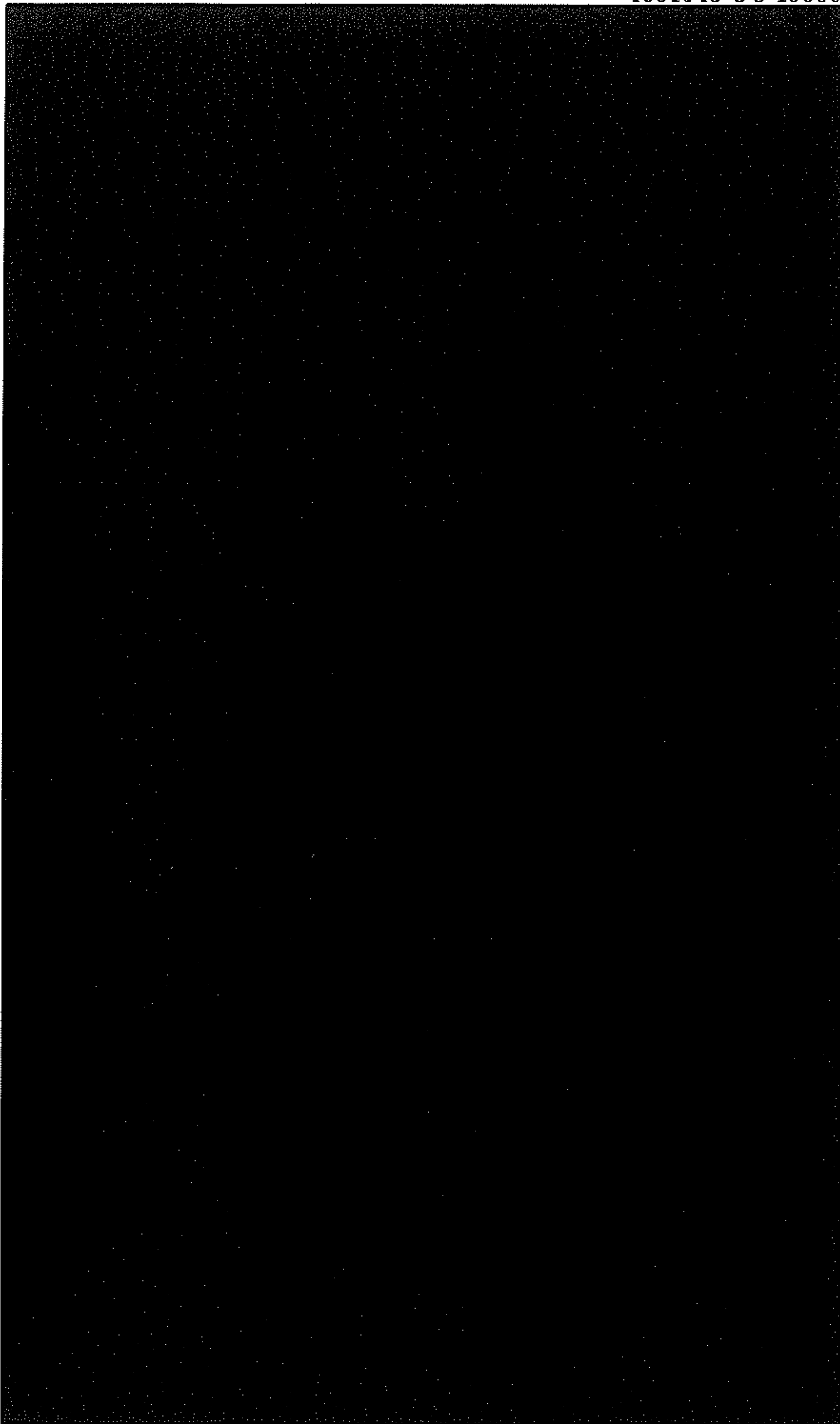
文献 9 より

$k$  (%) : 元素放出率 (揮発性元素)

文献 10 より



引用文献 [10]



引用文献 [11]

■内は著作権保護のため非公開とします



## 引用文献

- [1] F. Tanabe, “Analysis of Core Melt Accident in Fykushima Daiichi-Unit Nuclear Reactor,” *Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY*, 第 48 卷, 第 8, pp. 1135-1139, 2011.
- [2] 溝上伸也, “福島第一原子力発電所における炉心・格納容器内の状況推定について,” *福島第一廃炉国際フォーラム*, 福島県いわき市, 2017.
- [3] IRID, “平成 28 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費助金」 燃料 デブリ・炉内構造物の取り出し基盤技術の高度化,” 25 9 2018. [オンライン]. Available: [http://irid.or.jp/wp-content/uploads/2018/06/20170000\\_09.pdf?v=2](http://irid.or.jp/wp-content/uploads/2018/06/20170000_09.pdf?v=2). [アクセス日: 20 10 2019].
- [4] 小林能直, “沸騰水型軽水炉過酷事故後の燃料デブリ取り出しアクセス性に関する研究,” *平成 28 年度 廃炉加速化研究プログラムおよび廃止措置研究・人材育成等強化プログラム成果報告会*, 2016.
- [5] ア・イ・イエヒーモフ, エリ・ペ・ペロルーコワ, イ・ヴェ・ワリシコフ, ヴェ・ペ・チェチェフ, 無機化合物の物性定数表, 日・ソ通信社, 1983.
- [6] IRID/TEPCO, “原子炉格納容器内部調査, サンプルング及び分析の検討状況について,” *廃炉・汚染水対策チーム会合／事務局会議 (第 56 回)*, 2018.
- [7] 鷺谷忠博, 荻野英樹, 鍛冶直也, 宮本泰明, 川野昌平, “燃料デブリの性状把握,” *日本原子力学会 2015 年秋の大会*, 2015.
- [8] 野村顕雄, 田中宏志, 白阪靖人, “原子力発電とコンクリート 9. 福島原子力発電所第 3 号機工事報告,” *コンクリートジャーナル*, 第 12 巻, 第 6, pp. 72-81, 1974.
- [9] IRID, “平成 28 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・分析技術の開発)」平成 30 年度実施分成果,” 7 2019. [オンライン]. Available: [http://irid.or.jp/\\_pdf/20180000\\_12.pdf](http://irid.or.jp/_pdf/20180000_12.pdf). [アクセス日: 22 10 2019].
- [10] 西原健司, 岩元大樹, 須山賢也, “福島第一原子力発電所の燃料組成評価 JAEA-Data/Code 2012-018,” *日本原子力研究開発機構*, 2012.
- [11] 三輪周平, 天谷政樹, 田中康介, 逢坂正彦, 永瀬文久, “化学形態に着目した破損燃料からの核分裂生成物及びアクチノイドの放出挙動評価のための研究－研究の位置づけ及び計画－,” *日本原子力研究開発機構*, 2013.