

水化学部会セッション「福島第一原子力発電所廃止措置の現状と今後の取り組み」

(5) 燃料デブリ性状把握研究の概要

(5) Characteristics study on fuel debris

高野 公秀

IRID (原子力機構)

1. 緒言 燃料デブリ取出しに向けた性状把握のため、デブリ中に何が生成し（化合物、相）、それらがどのように入り混じり（組織）、どのくらい硬いのかを主眼に、実験室規模で種々の模擬デブリを作製して性状予測データを取得・整理した概要を報告する。

2. 模擬デブリ作製・試験内容 酸化物デブリの主要構成成分である(U,Zr)O₂を、UO₂とZrO₂から焼結法により作製するとともに、少量添加物として希土類（可燃性毒物、FP）、Fe（ステンレス鋼由来）、Ca（海水塩及びコンクリート由来）の酸化物を固溶させたものも作製した。炉心の模擬デブリとして、(U,Zr)O₂/Zr/SUS/B₄C系混合物をアーク溶解により溶融・固化して作製した。格納容器底部で炉心溶融物とコンクリートが反応した模擬MCCI生成物として、上記炉心材料にコンクリート粉を加えてアーク溶解した試料に加え、コンクリート片上で炉心材料成形体を局所集光加熱で溶融させる手法も用いた。これら模擬デブリ試料に関して、断面の組織観察、元素分析による組成評価、X線回折による相同定を行うとともに、デブリ取出しの切削系工具への負担の指標となる微小硬さを測定した。さらに、水中に浸漬した際の物理・化学的変性について基礎知見を取得した。

3. 生成相・組織・硬さの概要 (U,Zr)O₂ コリウムの性状には、冷却条件が大きく影響することが分かった。UO₂-ZrO₂二元系は、超高温では全率固溶し立方晶単相となるが、2000℃以下では急激に相互固溶度が低下するため、ゆっくりと冷えた部位ではUリッチの立方晶とZrリッチの正方晶（+単斜晶）に相分離が起こる。Feが固溶した際にはこの傾向が助長され、両相がミクロンサイズで入り混じった組織となることを模擬デブリとTMI-2デブリで確認した。急冷条件の立方晶単相組織が12～14.5 GPaの微小硬さであるのに対し、微細入り混じり組織の微小硬さは8～11 GPa程度である。元々UO₂に含まれているGdは、二相分離が起こる際にもGd/U比をほぼ保持したまま分配される。

炉心の燃料デブリは(U,Zr)O₂セラミック質部分と金属質部分からなり、酸化が進まないような条件下では、金属質部分にはFe-Cr-Ni及び(Fe,Cr,Ni)₂(Zr,U)などの金属相に加えて、ZrB₂や(Fe,Cr)₂B等の非常に硬いホウ化物が分散析出することが分かった。水蒸気中の酸素分圧を模擬した酸化雰囲気焼鈍（酸素分圧 1×10⁻³atm、1500℃）では、金属相中のUとZr及びZrB₂中のZrは酸化して(U,Zr)O₂となるが、遊離したホウ素は周辺のFe、Crと(Fe,Cr)₂Bを形成してFe-Cr-Ni合金とともに比較的安定に残存する。

MCCIによる生成相の傾向は、還元剤として作用する金属Zrと、脱水が酸化要因として作用するコンクリートの混合比に依存する。溶融物中の金属Zr比率が高い条件下では、コンクリート中のSiO₂と一部のAl₂O₃が還元され、金属相にはFe-Cr-Ni-Si-Al-Zr-U系の種々の合金が生成するとともに、酸化物相は(U,Zr,Ca)O₂とAl-Ca-Oが主要成分となる。逆に、コンクリート成分が多い場合には、金属相はFe-Ni(-Si)が主要成分となり、酸化物相は(U,Zr,Ca)O₂とケイ酸ガラス(U, Zr, Gd, Fe, Cr等が溶解)が主要成分となる。一方、炉心溶融物とコンクリートの界面付近では2000℃前後の温度勾配があるので、集光加熱の手法で到達温度と生成相の階層構造イメージを構築した。約1200℃以下のコンクリート部分は溶融しないものの、脱水による熱劣化で強度が低下するとともに取出し作業時に汚染水が浸透しやすい形態になっている。

デブリ水中浸漬時の物理・化学的変性には、水の放射線分解で生成する過酸化水素の影響が最も大きい。UO₂を過酸化水素水に浸漬すると、サブミクロンの微細な過酸化ウラン酸が生じ、コロイド的性質を示す。一方、PuO₂は過酸化水素水中でも変性しないことから、長期に渡る浸漬中にUとPuの分布に差が生じる可能性が示唆される。ただし、(U,Zr)O₂を過酸化水素水に浸漬した際の過酸化ウラン酸生成量は、UO₂からの生成に比べてかなり少なく、比較的安定であることが分かっている。

本報告は、「平成25年度発電用原子炉等廃炉・安全技術基盤整備事業（燃料デブリ性状把握・処置技術の開発）」に係る資源エネルギー庁からの受託事業、平成25年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金（燃料デブリ性状把握・処置技術の開発）」及び平成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）」に係る補助事業の成果である。

Masahide Takano

IRID (JAEA)