

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

(受託者) 国立大学法人東京工業大学

(研究代表者) 小林能直 科学技術創成研究院・先導原子力研究所

(再委託先) 国立大学法人東北大学、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

(研究期間) 平成 27 年度～29 年度

1. 研究の背景とねらい

沸騰水型原子炉のシビアアクシデント (SA) 時に炉心溶融が発生した場合、燃料棒集合体および制御棒が溶融し、炉心下部構造物のステンレス鋼を巻き込みながら、下部プレナムへとリロケーションし、最終的には圧力容器を破損して溶落していくことが考えられる。このような過酷事故を起こした原子炉を廃炉するにあたっては、上記のように形成された燃料デブリを取り出す必要があり、その燃料デブリ取り出しに向けてのアクセス性を評価する必要がある。炉心下部構造物が完全に溶落していれば、上方からのアクセスが可能であるし、大体部が残存していれば、燃料デブリ存在位置の側方からアプローチせざるを得なくなる。

炉心下部構造物が燃料棒あるいは制御棒溶融体によってどの程度破損したかを知るため、本課題では、以下の 3 段階に分けて調査・研究を行う。まず、燃料棒と制御棒の溶落および融体形成挙動をまず把握し、そしてこの融体による炉心下部構造物の破損、溶損挙動を調査し、さらにこれらの結果に基づいて高度化した SA 解析コードによる炉内損傷状況予測の妥当性を確認するため、溶融デブリ流下による指示構造物溶損の模擬実験及び溶融凝固物の解析を行う。これらより得られる総合的知見から、過酷事故後の原子炉内の燃料デブリへのアクセス性を評価する。本報告書では事業 2 年目のこれまでのそれぞれの課題に対して得られた成果を概括する。

2. これまでの研究成果

①メタル系およびスラグ系溶融デブリへのステンレス鋼の溶解反応速度の測定 (東工大)

SUS304 ステンレス鋼および B4C の粉末を、Fe-B 系共晶組成⁽¹⁾に近い B 質量濃度 5mass%の配合比で混合し内径 11mm の Al2O3 るつぼ中で縦型管状電気抵抗炉内で予備溶融した後、同るつぼ直上で予熱した直径 10mm の SUS304 ステンレス鋼の丸棒を溶融 Fe-Cr-Ni-B-C 合金中に浸漬し、所定の時間 (7s, 1min, 6min) 保持した。その後同るつぼを炉内から引き上げて、るつぼの外側を水冷することにより試料を急冷した。試料断面を研磨して鏡面に仕上げた後、SEM-EDS (Scanning Electron Microscope with Energy Dispersion Spectroscopy) を用いて、組織および組成を調べた。

図 1 に 6min 間浸漬した実験の固液界面近傍の B 濃度分布を示す。本実験は B を含有した合金中へ B を含まない固相

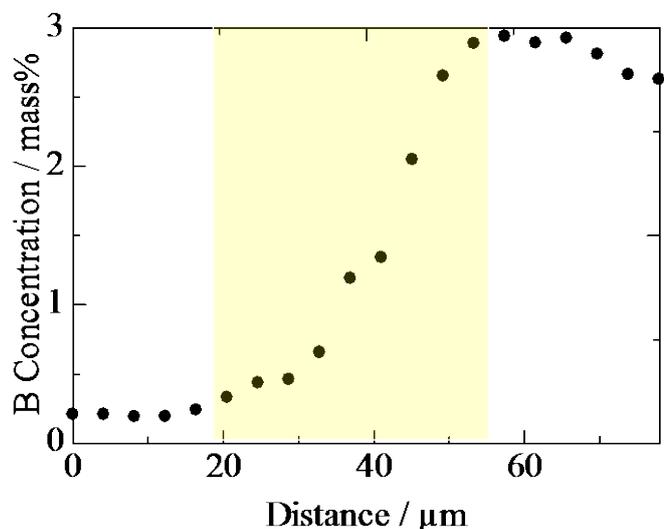


図 1 6min 間浸漬実験の固液界面近傍の B 濃度分布

SUS304 ステンレス鋼が溶解する反応であるため、界面近傍の液相中 B 濃度は、界面に近づくにつれ低減する傾向にある。その他の保持時間に関しても同様の濃度分布が見られた。この濃度分布に基づき、Fick の第二法則を適用した速度論的解析を行った。円筒座標系の拡散方程式⁽²⁾では円柱関数に関連し考慮すべきパラメーターが多く精度のよい見積もりが困難であるため、固相直近において直交座標系の 1 次非定常拡散方程式で近似した解析を行った。また、固液界面を境界として、固相側は粒界拡散、液相側は体積拡散とみなして二領域に分けてみかけの拡散係数を求めたところ、全体として $5.54 \times 10^{-9} \sim 2.90 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}$ の範囲の値を得た。みかけの拡散係数は 6min、1min、7s と浸漬時間が短くなるに従い大きくなり、初期に大きく溶解が進むメカニズムが考えられる。また、長時間側では、粒界拡散係数は体積拡散係数より 1 オーダーほど大きな値となった。融液側の体積拡散係数を用いて、直径 1cm のステンレス球完全溶解時間の見積もりを Ranz-Marshall の実験式を適用して行ったところ、 10^4s オーダーと非常に長時間の見積もりとなったこと、断面の組織観察結果より、固相 SUS304 ステンレス鋼の粒界に溶融合金が深く侵入している様子が観察されたことから、粒の脱落による溶損が先行して、その後化学的な溶解が進むという形態が考えられ、実機破損プロセスでも同様の溶解機構により溶損が促進された可能性があることがわかった。

また、スラグ系溶融デブリへのステンレス鋼の溶解反応速度測定のための予備実験のチェコ共和国 CVR 研究所への依頼に関する事前検討を行った。同所を訪問し、導入中の大出力の新型の金属浮揚溶解装置コールドクルーシブルを見学しながら説明を受け、Zr(0)-UO₂系デブリのコールドクルーシブル中での溶解実験の具体的な実験方法について検討を行った。酸化物系融体として 70mass%UO₂ + 30massZrO₂ (Corrium 100)、金属ジルコニウムを添加した融体として 70mass% UO₂ + 30mass% (20mol% ZrO₂+80mol%Zr) (Corium 20)を用い、サンプリング、ステンレス棒浸漬溶解実験を行うことを予定した。

②制御棒とチャンネルボックスからなるメタル系溶融物の特性評価（再委託先：東北大）

燃料棒・制御棒の集合体において起こりうる各種反応を明らかにするために、B₄C-SUS304-Zircaloy の 3 つの素材が関わる反応界面実験および観察を以下のように行った。雰囲気を制御するためにセラミック製の反応管を設置し、白金熱電対を接続した PID コントローラーにより炉内の高温帯温度を制御した、二珪化モリブデン製発熱体を有する縦型環状電気抵抗炉を用いた。必要に応じて、高純度の窒素、アルゴン、水素ガスをそれぞれ、マスフローコントローラーを介して炉内に導入し、窒素ガスおよびアルゴンガスを水蒸気発生装置を経由させることにより H₂O 分圧を制御した。φ19mm のアルミナるつぼに約 20×10×1mm³ の SUS-304、Zircaloy-4 片を 2.5g の B₄C 粉末と共に入れ、Air, Ar あるいは (Ar・N₂)/H₂/H₂O(=1/1/1 または 1/0/1) に雰囲気を制御し

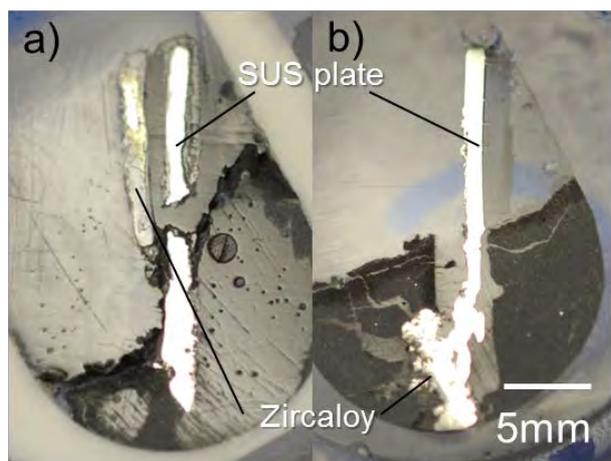


図 2 B₄C/ SUS/Zircaloy 試料の 1473K における保持実験の観察結果 (a: in Air, b: in Ar)

た縦型管状炉内で 1473K に 3600s 保持した。保持後の試料は急冷の後、樹脂埋めし断面観察試料を作成した。FE-EPMA により試料の組成を定量し、進行した反応を推定した。

図 2 には Air、Ar 中で加熱した試料の断面を示す。中央の白色部が SUS、Zircaloy、下部黒色部が B_4C を示す。Air 中では、 B_4C 層表面に B_2O_3 が生成した。 B_4C 層と接する Zircaloy は酸化され B_4C あるいは B_2O_3 層内に分散した。また B_2O_3 と接する部位の SUS が溶解した。一方 Ar 中では Zircaloy が溶解し液体金属相を生成した⁽³⁾。Ar/ H_2 / H_2O 混合ガス中において、SUS は B_4C からの B および C の浸透により溶解し、Zircaloy は表面が酸化したのみで溶解しなかった。以上の結果より反応機構を検討したところ、空気のような酸化性雰囲気では、 B_2O_3 - FeO_x 共晶反応(348°C)により SUS304 表面の酸化膜が除去されることにより SUS304 の溶解が促進されること、Zircaloy が未反応であるのは、表面に生成した ZrO_2 が元素拡散を妨げているためであることが考えられた。また、Ar 雰囲気では、SUS304 の溶解が B-Fe の共晶反応(1174°C)を主要因として起きていること、また、Zircaloy の溶解が Fe-Zr 共晶反応(928°C)を主要因として起きていることを推察した。さらに、実機内では Zr、B による H_2O の還元により H_2 が発生し、 H_2 / H_2O が約 1 近辺になることが推測されるため、この比が 0 と 1 の場合を選定し、これに Ar または N_2 を加えた雰囲気で行ったところ、比が 0 の場合(H_2O のみ)には Zr 表面の酸化により共溶解が起きず、比が 1 の場合は双方ともある程度共溶解が起きるが、 N_2 を加えた場合の方が Zr の酸化が促進され、共溶解の程度が小さいことが分かった。

③実機条件での炉心支持板破損解析と燃料溶融物の特性調査 (再委託先：原子力機構)

シビアアクシデント解析コードによる実機解析準備のため、RELAP/SCDAPSIM コード (Mod. 3.5) および MELCOR コード (Version 2.1)⁽⁴⁾、⁽⁵⁾ の炉心部温度分布評価に大きく影響する炉心部からの輻射伝熱モデル等の調査を実施するとともに、RELAP/SCDAPSIM コードによる予備計算を実施して、解析結果の評価により炉心部温度分布予測の妥当性の検討を実施した。使用コード選定においては、MELCOR コードは熱輻射解析に使用するビューファクターの検討が十分でなく、炉心中心部の温度を過少評価している可能性がある一方、RELAP/SCDAPSIM コードは、炉心部の温度分布の評価において LAGUNA VERDE 炉の安全審査で使用された実績を持ち、燃料溶融・下部プレナムへの移行挙動を再現できることが確認されたため、後者を用いることとした。事故のあった福島第一原子力発電所の 1 号機～3 号機のうち、事故時のプラントデータが得られているため、炉心損傷に至る初期条件がより明確な 2 号機を解析対象として選定した。図 3 に溶融燃料の下方へのリロケーションが開始している約 8h 後の高さ方向の燃料温度分布を示す。溶融燃料の下方へのリロケーションが開始している channel 1 では炉心燃料下部の温度は 2,500°C を超えているが、その他の燃料集合体の下部の温度は約 400°C～250°C と低く、その直上の約 2,000°C を超えている部分との温度勾配は非常に大きいことがわかる。また、解析により得られた炉心部の水蒸気 (H_2O) と

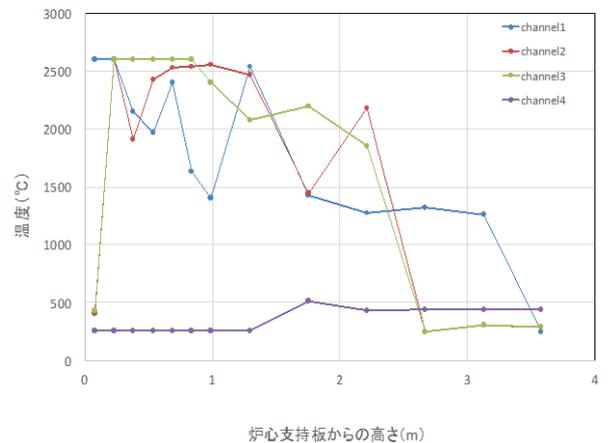


図 3 FDDNP2U における事故 8 時間後の炉心高さ方向温度分布

水素 (H_2) の比率 ($\log H_2O/H_2$) の時間変化を調べた結果、 H_2O/H_2 は $10^{-2} \sim 10^4$ の範囲となり、 ZrO_2 、 B_2O_3 、 FeO 等の酸化物の生成が可能な雰囲気条件となっていることがわかった。

炉心支持板破損模擬試験による各種検証データを取得するため、「第1回 CLADS 廃止措置研究国際ワークショップ」などで海外機関などとの協議も行って、炉心下部支持構造への制御棒及び構造材の溶融物が落下した際の燃料支持金具部-制御棒速度リミッター部の閉塞状況・破損状況の把握を目的とした試験実施に向けて検討を行った。制御棒ブレード溶融物は直下にある傾きを持った制御棒落下速度リミッター上に落下するものと考えられるため、溶融物が斜面上を流下することで腐食生成物が継続的に除去される一方で、溶融物が落下位置に存在する時間が短くなる等の影響が考えられ、これらの要因を考慮して、本試験では、実機の制御棒落下速度リミッターを模擬するように傾けて設置したステンレス平板上に、ステンレス- B_4C 混合溶融物または $Zr-ZrO_2$ 混合溶融物を流下させる実験を実施することを策定した。現在、SUS304- B_4C 系の計算状態図などを参考に SUS- B_4C 溶融物の生成条件について検討し、溶融物中の B_4C 割合は 0%~50% の範囲の融点の低い組成で選定する方針を定めるとともに、炉心支持板破損模擬試験の準備作業を実施中である。

燃料溶融物の特性調査としては、別途 JAEA にて実施したプラズマ溶融後の模擬燃料集合体の分析結果を評価し、溶融物の特性に関するデータを取得した。この実験では金属 Zr で被覆された ZrO_2 ペレットの集合体からなる試験体を、アルゴンガス中で出力 150kW の非移行型アルゴンガスプラズマトーチにより加熱し、溶融下部まで溶融させることが可能であることを確認した。溶融後の試験体に対し、原子力機構大洗燃料集合体試験施設 (FMF) に設置されている X 線コンピューター断層撮影装置 (X 線 CT 装置) による内部撮像を行い、併せて溶融物用の化学分析を実施した。その結果、主な溶解機構としては、被覆管である金属 Zr に ZrO_2 ペレットから多少の酸素の溶解はあるものの、融点の低い金属 Zr が先に溶融し、その後 ZrO_2 ペレットが溶解するという現象になることが分かり、これまでの事故炉の融体生成挙動予測とおおむね一致した。

3. 今後の展望

メタル系溶融デブリによるステンレス鋼損傷機構を、温度などの実験条件を変えてさらに検討するとともに、スラグ系溶融デブリへのステンレス鋼の溶解反応速度の測定を行う。制御棒とチャンネルボックスからなる集合体における共溶解を中心とした反応機構への雰囲気ガス・温度の影響をさらに明確化する。SA 解析コードによる実炉での雰囲気・温度条件の把握を進めて材料実験へのフィードバックを行うとともに、実機条件での炉心支持板破損解析実験を実施し、新たに構築する反応を考慮した溶損モデルとの整合性を検討する。

4. 参考文献

- (1) 鉄合金状態図集、O. A. バニフら編、アグネ技術センター、2001、東京。
- (2) J. Crank : The Mathematics of Diffusion, Clarendon Press (1975), 87
- (3) R. Sasaki, S. Ueda, S.J. Kim, X. Gao, S. Kitamura, J. Nucl. Mater., 466(2015) 334-342.
- (4) “MELCOR Computer Code Manuals Vol.1 Primer and Users' Guide Version 2.1”, Sandia National Laboratories, 2011.
- (5) “MELCOR Computer Code Manuals Vol.2 Reference Manual Version 2.1”, Sandia National Laboratories, 2011.