

# 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3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 B<sub>4</sub>C の粉末を、Fe-B 系共晶組成<sup>(1)</sup>に近い B 質量濃度 5mass%の配合比で混合し内径 11mm の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> るつぼ中で縦型管状電気抵抗炉内にて 1573K 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同温度にて溶融 Fe-Cr-Ni-B-C 合金中に浸漬し、所定の時間 (1~250s) 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。

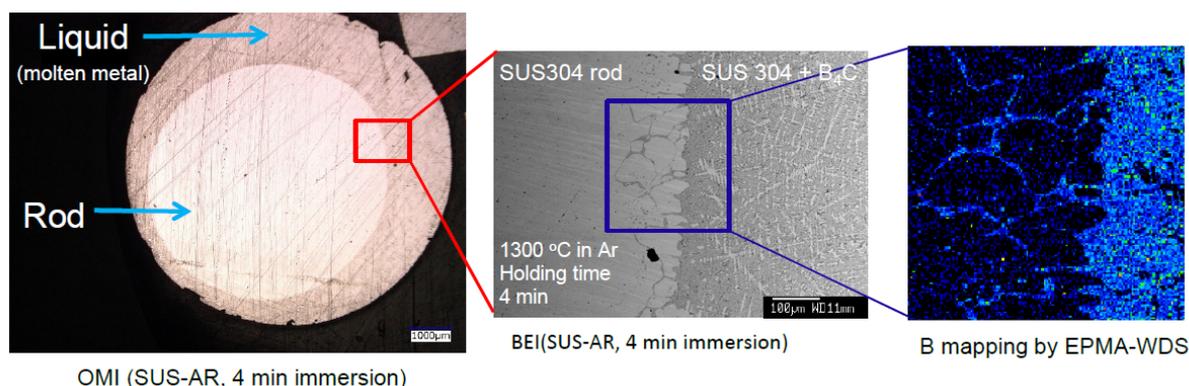


図 1. B 含有溶融金属の浸潤挙動

図1に代表的な SUS 鋼と Fe-Cr-Ni-B-C 融体の反応界面の解析結果を示す。左図に外観を示すように Rod と Liquid が反応し、Rod の外径が減少していく過程において、中央図のように粒界に B 含有液相が浸潤し、粒が脱落することで破損が進む状況が観察された。特に B にフォーカスして EPMA-WDS を用いてマッピングした右図から、B が結晶粒界に拡散し、粒界で Fe/B 共晶熔融反応が生じ、結晶粒の脱離により SUS 鋼が溶損するというメカニズムが予測された。そこで、単位界面当たりの浸潤量 ( $l/L$ ,  $l$ : 浸潤した粒界断面の距離の合計,  $L$ : 固液界面の長さ) を評価し、平均粒径  $\sigma$  との積を取った量、結晶粒界当たりの浸潤長さの経時変化 ( $t$ : 保持時間) を調べ、以下の関係式<sup>(2)</sup>より粒界拡散係数を算出した。

$$L_{gb} = (D_{gb} \cdot t)^{1/2} \quad (1)$$

図2から式(1)の関係に基づき、粒界拡散係数として、 $3.51 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$  を得た。

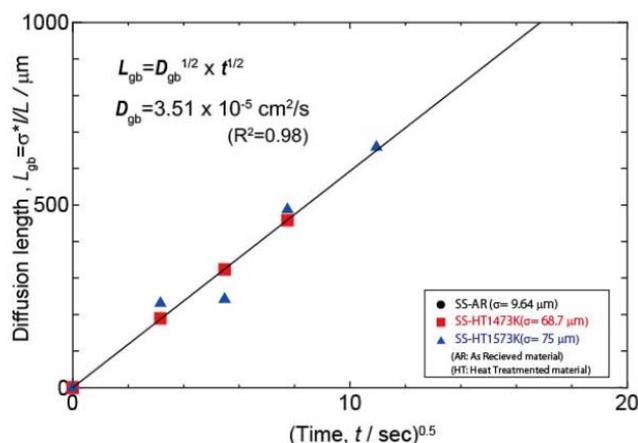


図2. B 含有熔融金属浸潤長さの経時変化

また、熔融流れの溶損挙動に及ぼす影響を調べるため、浸漬する SUS 棒を回転させ、回転数と半径現象量の経時変化の関係を調べたところ、150rpm (分当たりの回転数) までは半径減少速度が増大したが、その後 300rpm までは減少速度の変化がなかったことがわかった。すなわち、流動によって粒界脱落が促進される領域と、液相の粒界への浸潤及び粒界での反応が律速になる領域とが回転数 150rpm を境界として存在することがわかり、事故時の制御棒由来デブリの流下速度によって破損挙動の律速過程が異なることが予測された。さらに、実炉で共熔融した可能性のあるジルコニウムの、金属融体による SUS 鋼溶損速度に及ぼす影響を、Fe-B 融体にジルコニウムを添加することにより調べたところ、5.4mass%Zr までの添加で溶損速度が小さくなることが分かった。一方、スラグ系熔融デブリへのステンレス鋼の溶解反応速度測定実験をチェコ共和国 CVR 研究所への依頼し、実施したところ、コールドクルーシブル中で熔融した 2kg の 70mass% $\text{UO}_2$ +30mass% $\text{ZrO}_2$  (Corrium100) および 70mass% $\text{UO}_2$ +30mass% (20mol% $\text{ZrO}_2$ +80mol%Zr) (Corium 20) 中への SUS 鋼(直径 1cm)の溶解は大変早く、5, 10, 15s の浸漬で、浸漬部分はほぼ完全溶解しており、化学溶解より熱的熔融が支配的であることが推察された。今後、熔融挙動考察のためより短時間の実験により コリウム成分への化学的溶解の可能性を検討する。

## 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)

ジルカロイ表面に生成する酸化被膜の生成速度の窒素分圧依存性およびジルカロイ表面に酸化膜が生成する条件におけるジルカロイと制御棒の反応可能性を調べた。ジルカロイまたは表面酸化

ジルカロイとステンレス鋼を雰囲気制御用のセラミック製反応管内に装入し、PID コントローラーにより炉内の温度制御した、縦型環状電気抵抗炉中で、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た雰囲気中、3600s までの所定の時間保持した。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、反応進行を調べた。その結果、図 3 に示すように窒素分圧の増大に伴い、酸化膜形成が促進されることがわ

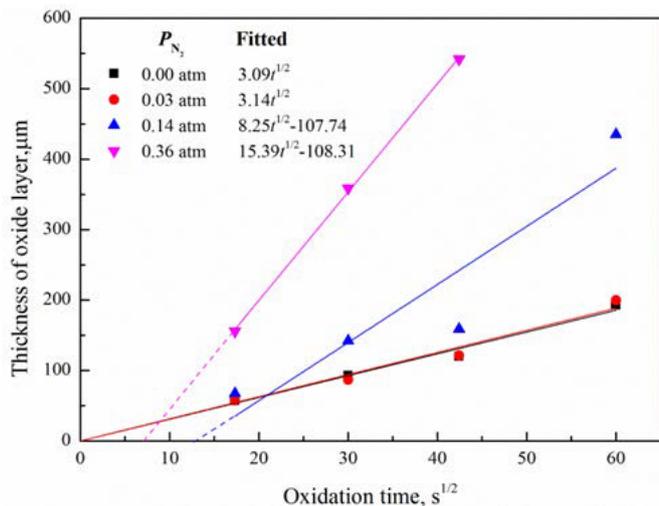


図 3. ジルカロイ表面酸化膜厚みの経時変化

かり、顕微鏡観察により、いったん窒化反応により形成された  $ZrN$  が  $ZrO_2$  に移行する過程で酸化物相が多孔質化し、酸化速度が増大するメカニズムが推測された。また、ジルカロイとステンレス鋼のジルカロイ表面酸化被膜を介した反応の可能性については、酸化膜とジルカロイの界面に液相が生成していることが観察され (図 4)、酸化膜内を熔融ステンレス鋼が浸透するメカニズムが推測され、酸化性雰囲気でも Fe-Zr 共晶反応による共熔融の可能性があると示唆された。

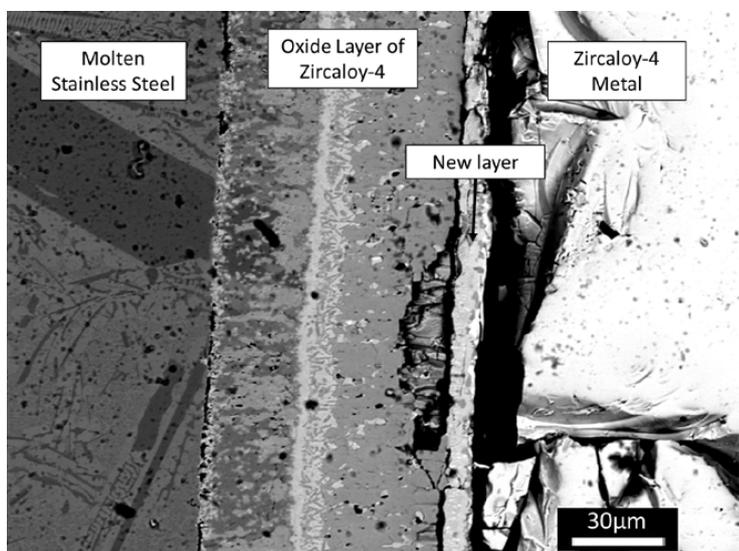


図 4. ジルカロイ表面酸化膜とステンレス鋼界面の反応

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

昨年度行った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の RELAP/SCDAPSIM コード (Mod. 3.5) および MELCOR コード (Version 2.1) (3)、(4) 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受け、引き続き、溶解反応速度測定及びジルカロイ溶解・固液反応挙動解析に必要な燃料集合体から炉心部下部支持構造部に至る領域の温度条件と雰囲気条件の評価を行っている。また、炉心支持板破損模擬試験による各種検証データを

表 1 試験体と熔融試料

試験体	SUS304製平板 (縦10cm×横10cm、厚さ1cm)
熔融試料	SUS:B <sub>2</sub> C = 98:2 (mol比) (液相線が最も低温となる組成) 重量：約4kg

表 2 試験条件

試験No.	試験条件
1	試料重量 : 3.992g 熔融物落下時温度 : 1,412°C 熔融物落下時試験体 (中央部) 温度 : 約450°C
2	試料重量 : 3.989g 熔融物落下時温度 : 1,559°C (一部が約1,400°Cで漏えい) 熔融物落下時試験体 (中央部) 温度 : 約415°C

取得においては、表 1, 2 のような試験条件で試験を実施した。その結果、1 回目の試験体は溶融物が落下した部分で若干溶けて凹んでいる様子が観察され、溶融物により試験体 (SUS304: 融点 1, 400~1, 450°C) 表面が融点を越えたことでこのような現象になったと考えられる。2 回目の試験体は固化した溶融物と試験体が離れており、試験体が溶けている様子は見られず、早期に漏えいした溶融物 (約 1, 400°C) が表面に付着したため、設定温度で流下した溶融物の熱が伝わらず、試験体表面温度が上がらなかったことが考えられる (図 5)。すなわち、炉心損傷初期に発生する溶融金属では炉心支持板などの炉心下部支持構造部の破損はほぼ発生しないこと、破損が発生

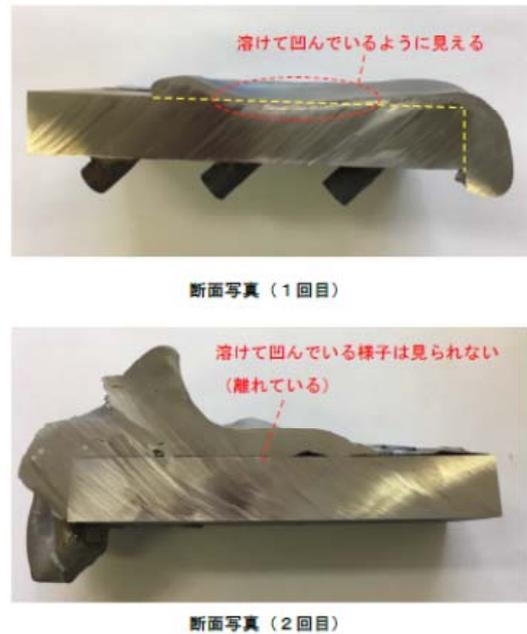


図 5. 溶融体流下試験体の断面写真

するとすればより高温のセラミックスを含む溶融物が流下する時点になる可能性が高いと考えられる。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

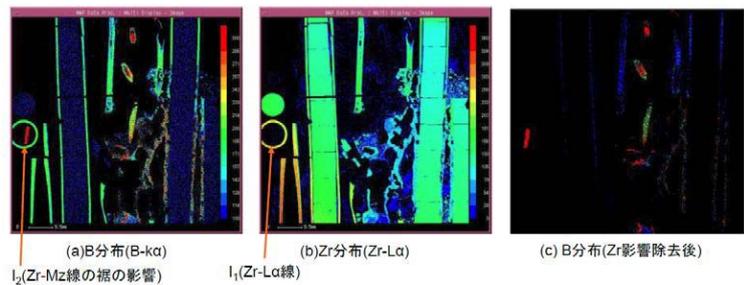


図 6. 溶融後模擬燃料集合体の WDX 元素マッピング象

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

させた。溶融後模擬燃料集合体の WDX 元素マッピングから、被覆管の Zr が先に溶け落ちた様子がわかるが、実際には U-Zr-O 融体が生じている可能性があるためさらに検討を進めていく。

### 3. 今後の展望

材料学的に得られた実験データを SA 解析コードに組み込むポイントを検討し、高度化に向けての提案を行う。例えば、燃料集合体レベルでの燃料破損・溶融過程を、マルチスケール/フィジクスモデル (流体解析と材料科学解析の連成) で評価できる詳細解析コードの整備を目指す。

### 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) L. G. Harrison, J. A. Morrison, R. Rudham: R. Trans. Faraday Soc. 1961.
- (3) “MELCOR Computer Code Manuals Vol.1 Primer and Users' Guide Version 2.1”, Sandia National Laboratories, 2011.
- (4) “MELCOR Computer Code Manuals Vol.2 Reference Manual Version 2.1”, Sandia National Laboratories, 2011.