

平成 29 年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業
英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

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

成果報告書

平成 30 年 3 月

国立大学法人 東京工業大学

本報告書は、文部科学省の英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業による委託業務として、国立大学法人 東京工業大学（受託機関名）が実施した平成27～29年度「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」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	vii
1. はじめに	1
2. 業務計画	
2.1 全体計画	2
3. 業務の実施内容及び成果	
3.1 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 (H27-H29)	5
3.1.1 メタル系デブリへのステンレス鋼の溶解挙動試験と解析 (H27-H29)	5
3.1.2 スラグ系デブリへのステンレス鋼の溶解挙動試験と解析 (H27-H29)	31
3.2 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:東北大学)	35
3.2.1 制御棒およびジルカロイの溶融に関する試験 (H27-H28)	35
3.2.2 制御棒およびジルカロイの固液反応速度に関する試験 (H27-H29)	43
3.2.3 ジルカロイとステンレスチールの金属融体が生成する条件におけるジルカロイの溶融速度の定量 (H28-H29)	50
3.3 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	57
3.3.1 シビアアクシデント解析コードを用いた実機条件の検討 (H27-H29)	57
3.3.2 炉心支持板破損模擬試験による検証データの取得 (H27-H29)	64
3.3.3 溶融物の特性調査 (H27-H29)	74
3.4 本事業で得られた研究成果の福島廃炉プロジェクトへの反映 (H29)	81
3.4.1 JUPITERコードの概要	81
3.4.2 本事業で得られた成果の JUPITER コードへの反映方針	82
3.4.3 課題	82
3.5 研究推進 (H27-H29)	85
4. 結言	86

表一覧

表 3-1-1	溶融物模擬試料の秤量組成	6
表 3-1-2	B 濃度分析用溶融物模擬試料の秤量組成 (in mass%)	26
表 3-1-3	ICP-OES での B 定量結果 (in mass%) (mass%)	28
表 3-2-1	Chemical composition of Zircaloy-4 alloy investigated, wt%.	36
表 3-2-2	Gas composition at Pre-oxidized Zry-4 sample preparation.	36
表 3-2-3	Chemical composition of 4.5wt%B4C SS alloy, wt%.	37
表 3-2-4	Gas composition at experiment.	38
表 3-2-5	Chemical composition of the new layer, wt%.	42
表 3-2-6	Chemical composition in the each layer observed in Figure 3-12(a) sample, atom%.	46
表 3-2-7	1473K での Ar/H ₂ O 雰囲気中加熱実験の SST の組成 (mass%)	54
表 3-2-8	1473K での Ar/H ₂ /H ₂ O 雰囲気中加熱実験の SST, ジルカロイおよび B ₄ C の組成	55
表 3-2-9	1473K における種々の雰囲気中 B ₄ C 共存下での SST およびジルカロイの挙動	55
表 3-3-1	LAGUNA VERDE 炉と福島第一原子力発電所 2 号機の主要仕様	59
表 3-3-2	福島第一原子力発電所 2 号機解析用炉心構成	59
表 3-3-3	福島第一原子力発電所 2 号機解析用熱出力・崩壊熱	59
表 3-3-4	福島第一原子力発電所 2 号機解析用注水履歴	60
表 3-3-5	RELAP/SCDAPSIM の構造材要素	60
表 3-3-6	炉心下部破損模擬試験装置の仕様	66
表 3-3-7	試験条件	66
表 3-3-8	分析装置	67
表 3-4-1	3 次元多相多成分熱流動シミュレーションコード JUPITER の概要	83
表 3-4-2	拡散係数の算出式例	83

図一覧

図 3-1-1	BWR 炉心構造図	5
図 3-1-2	溶融物模擬試料外観	6
図 3-1-3	SS 棒状試験片	7
図 3-1-4	試験装置模式図	8
図 3-1-5	浸漬試験後の試料模式図	9
図 3-1-6	4 min 浸漬試験後の光学顕微鏡像, 反射電子像, B マッピング (AR 試料)	9
図 3-1-7	30 sec 浸漬試験後の光学顕微鏡像 (AR, HT-1473, HT-1573)	10
図 3-1-8	浸漬に伴う SS 試験片半径の減少量	11
図 3-1-9	溶融物模擬試料中での B のみかけの拡散係数	12
図 3-1-10	多結晶における拡散の 3 分類の模式図	14
図 3-1-11	SS 固相/溶融物界面模式図	15
図 3-1-12	浸漬に伴う浸潤量変化	15
図 3-1-13	浸漬に伴うみかけの浸漬深さの変化	16

図 3-1-14	浸漬時間に伴う単位界面あたりの浸潤量の変化	17
図 3-1-15	みかけの粒界拡散係数の算出	17
図 3-1-16	溶融物浸潤量と脱落挙動のまとめ	18
図 3-1-17	SS 棒状回転試験片	18
図 3-1-18	回転浸漬試験装置模式図	19
図 3-1-19	回転浸漬試験後の試験片外観	20
図 3-1-20	樹脂埋め試料	20
図 3-1-21	回転浸漬試験後の断面 OMI	21
図 3-1-22	回転浸漬試験後の断面 OMI	21
図 3-1-23	SS-AR の回転浸漬に伴う SS 固相の断面積変化	23
図 3-1-24	SS-HT1573 の回転浸漬に伴う SS 固相の断面積変化	23
図 3-1-25	SS-AR の回転浸漬に伴う試験片の破損長さ	23
図 3-1-26	SS-HT1573 の回転浸漬に伴う試験片の破損長さ	24
図 3-1-27	各回転速度での SS 固相破損速度	24
図 3-1-28	破損速度の比較	25
図 3-1-29	得られた波長プロファイルの一例	28
図 3-1-30	ICP-OES 分析により得られた検量線	29
図 3-1-31	3.71 mass% 試料の反射電子像 (BEI)	29
図 3-1-32	ICP-OES と EPMA 分析から作製した検量線	32
図 3-1-33	溶融コリウムへの浸漬時間と直径 10mm のステンレス鋼の温度の関係の見積もり	32
図 3-1-34	コールドクルーシブル外観図	33
図 3-1-35	石英チューブの取り付け写真	33
図 3-1-36	コリウムの溶融写真	33
図 3-1-37	ステンレス鋼棒の取り付け先端写真	33
図 3-1-38	C70 コリウムでの実験中の温度変化	34
図 3-1-39	C70 での浸漬実験後の SUS 先端写真	34
図 3-1-40	C50 での浸漬実験後の SUS 先端写真	34
図 3-1-41	実験後のコリウムの写真	34
図 3-2-1	Cross section of Pre-oxidized Zircaloy-4 with about 100 μm thick oxide. (a) oxidized in $\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ atmosphere for 15min; (b) oxidized in $\text{N}_2/\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ atmosphere for 5min.	37
図 3-2-2	Experimental set-up.	38
図 3-2-3	Cross sections of sample heated at 1300 $^\circ\text{C}$ for 60 min in $\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ atmosphere using Zircaloy-4. (a) without oxide layer; (b) with 100 μm thick oxide layer formed in $\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ atmosphere; (c) with 100 μm thick oxide layer formed in $\text{N}_2/\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ atmosphere.	39
図 3-2-4	Elemental mapping of sample heated at 1300 $^\circ\text{C}$ for 60 min in $\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ atmosphere using Zircaloy-4 without oxide layer.	40
図 3-2-5	Calculated phase diagram for the system B-Zr.	40

図 3-2-6	Elemental mapping of sample heated at 1300 °C for 60 min in H ₂ O/Ar atmosphere using Zircaloy-4 with 100 μ m thick oxide layer formed in H ₂ O/Ar atmosphere.	41
図 3-2-7	Enlarged image of the new layer formed at 1300°C for 60 min in H ₂ O/Ar atmosphere using Zircaloy-4 with 100 μ m thick oxide layer formed in H ₂ O/Ar atmosphere.	41
図 3-2-8	Fe-Zr binary phase diagram.	42
図 3-2-9	Elemental mapping of the area around porous oxide layer of the sample with 100 μ m thick oxide layer formed in N ₂ /H ₂ O/Ar atmosphere.	43
図 3-2-10	Cross section of sample heated at 1300 °C. (a) for 5 min in H ₂ O/Ar atmosphere; (b) for 15 min in H ₂ O/Ar atmosphere using Zircaloy-4, with 100 μ m thick oxide layer formed in H ₂ O/Ar atmosphere.	43
図 3-2-11	Elemental mapping of sample heated at 1300 °C for 15 min in H ₂ O/Ar atmosphere using Zircaloy-4 with 100 μ m thick oxide layer formed in H ₂ O/Ar atmosphere.	44
図 3-2-12	Line scan of Zircaloy-4 oxide and molten stainless steel boundary of sample heated at 1300°C for 15 min in H ₂ O/Ar atmosphere using Zircaloy-4 with 100 μ m thick oxide layer formed in H ₂ O/Ar atmosphere.	45
図 3-2-13	Cross section of sample heated at 1300 °C in H ₂ O/Ar atmosphere using Zircaloy-4 with 100 μ m thick oxide layer formed in H ₂ O/Ar atmosphere. (a) for 90 min; (b) for 180 min.	46
図 3-2-14	Elemental mapping of sample heated at 1300°C in H ₂ O/Ar atmosphere for 180 min using Zircaloy-4 with 100 μ m thick oxide layer formed in H ₂ O/Ar atmosphere.	47
図 3-2-15	Thickness of reaction layer vs reaction time under H ₂ O/Ar atmosphere at 1300°C	48
図 3-2-16	Difference of thickness of reaction layer of sample heated at 1300°C in H ₂ O/Ar atmosphere for 180 min using Zircaloy-4 with 100 μ m thick oxide layer formed in H ₂ O/Ar atmosphere	49
図 3-2-17	1473Kにおける SST, ジルカロイ, および B ₄ C の加熱実験後の断面監査写真.	53
図 3-2-18	Ar/H ₂ O 雰囲気, 1473K での SST, ジルカロイ, および B ₄ C の加熱実験後の断面観察写真	53
図 3-2-19	Ar/H ₂ /H ₂ O 雰囲気, 1473K での SST, ジルカロイ, および B ₄ C の加熱実験後の断面観察写真	54
図 3-2-20	1473K において 1mol の B ₄ C と H ₂ O から生じる B ₂ O ₃ および気体の物質質量	55
図 3-3-1	RELAP/SCDAPSIM コードの福島 2 号機解析モデル	61
図 3-3-2	冷却材の水力挙動を扱う要素及びそれらの熱交換を媒介する構造要素の相対位置 (黒字 : 冷却材の水力挙動を扱う要素、赤字 : 熱交換を媒介する構造要素)	61
図 3-3-3	炉心最高温度の時間変化	62

図 3-3-4	炉心部高さ方向の温度分布 (約 6.5h 後)	62
図 3-3-5	各チャンネルの炉心支持板直上部の温度履歴 (炉心支持板からの高さ 7.6cm)	63
図 3-3-6	炉心部高さ方向の H ₂ O/H ₂ 比の時間変化	63
図 3-3-7	試験装置内部	68
図 3-3-8	試験体及び溶融物受皿	68
図 3-3-9	SUS-B ₄ C 状態図	69
図 3-3-10	試験後の試験体 (1 回目) (左図: 試験前、右図: 試験後)	70
図 3-3-11	試験後の試験体 (2 回目)	70
図 3-3-12	試験体断面 (1 回目)	71
図 3-3-13	試験体断面 (2 回目)	71
図 3-3-14	1 回目試験体の光学顕微鏡による金属組織観察結果	72
図 3-3-15	1 回目試験体の光学顕微鏡による金属組織観察結果 (図 3-3-14 左図の赤枠部拡大)	72
図 3-3-16	1 回目試験体の走査型電子顕微鏡観察結果	73
図 3-3-17	1 回目試験体の面分析結果	73
図 3-3-18	模擬燃料試験体の断面図と加熱後の様相	76
図 3-3-19	模擬燃料試験体 (燃料ピン部分) の高さ方向温度分布の時間変化	76
図 3-3-20	模擬燃料集合体の断面写真と X 線 CT 画像 (上図: 横断面、下図: 縦断面)	77
図 3-3-21	EPMA (WDX) による酸素 (O)、鉄 (Fe)、ホウ素 (B) 及びジルコニウム (Zr) の マッピング分析結果 (II-1 領域)	78
図 3-3-22	EPMA (WDX) による酸素 (O)、鉄 (Fe)、ホウ素 (B) 及びジルコニウム (Zr) の マッピング分析結果 (II-2 領域)	79
図 3-3-23	EPMA (WDX) による Zr (Mz 線) の影響を差し引いたホウ素 (K α 線) マッピング 分析結果と簡易定量分析結果 (II-1 領域)	80
図 3-3-24	EPMA (WDX) による Zr (Mz 線) の影響を差し引いたホウ素 (K α 線) マッピング 分析結果と簡易定量分析結果 (II-2 領域)	80
図 3-4-1	JUPITER コードの共晶反応モデル	84
図 3-4-2	JUPITER コードへの反映方針と実施計画	84

略語一覧

- BEI : Backscattered Electron Image (反射電子像)
- CLADS : Collaborative Laboratory for Advanced Decommissioning Science
(廃炉国際共同研究センター)
- ICP : Induced Coupled Plasma Spectroscopy (誘導結合プラズマ発光分光分析装置)
- RCIC : Reactor Core Isolation Cooling system (原子炉隔離時冷却系)
- SA : Severe Accident (過酷事故)
- OMI : Optical Microscopic Image(光学顕微鏡像)
- SEM : Scanning Electron Microscope(走査型電子顕微鏡)
- EDS : Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (エネルギー分散 X 線分析装置)
- WDS : 波長分散 X 線分析装置
- SNL : Sandia National Laboratory (米国・サンディア国立研究所)
- SRV : Safety Relief Valve (主蒸気逃し弁)
- BWR : Boiling Water Reactor (沸騰水型原子炉)
- CT : Computed Tomography (コンピュータ断層撮影法)
- EPMA : Electron Probe Micro Analyser (電子線マイクロアナライザー)
- OES : Optical Emission Scopy (光学発光分光法)
- SS, SST:Stainless Steel (ステンレス鋼)
- SUS :ステンレス鋼の種類
- WDX : Wave Length-dispersive X-ray Spectroscopy(波長分散型 X 線分析装置)
- JUPITER: Jaea Utility Program with Immersed boundary Technique and Equations of multiphase flow analysis for simulating Relocation behavior of molten debris (3次元多相多成分熱流動シミュレーションコード)

概略

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・研究を行った。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った。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。最終年度までに、それぞれの課題に対して得られた成果を以下に概括する。

制御棒と燃料棒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では、燃料棒と制御棒を模擬した B_4C 、ステンレス鋼、ジルカロイ共存あるいは B_4C 、ステンレス鋼を、アルゴン、窒素、水素、水蒸気などを混合した雰囲気気体内で共存させ、溶解挙動を調べた。ステンレス鋼は水蒸気に水素を加えることにより、表面酸化被膜が還元され、 B_4C との反応・溶解が促進されること、ジルカロイは表面酸化膜の形成速度が小さくなることが明らかとなった。また、雰囲気に窒素が加わることにより、ジルカロイ表面に形成される酸化膜の形状に大きな影響が見られ、ポーラスな状態となって、皮膜による反応抑制機構が弱まることが予見された。さらに、表面酸化済みジルカロイとステンレス鋼融体の反応について検討した結果、酸化層には共溶解抑制効果があるものの、金属元素の移動は生ずるため、ある程度は反応が進むこと、窒素含有雰囲気中で表面酸化を行った場合は、膜の不完全性により抑制効果はさらに限定的であり、双方とも金属元素は液相の状態でも膜中空孔内を伝っていく機構であることが明らかになった。すなわち、共倒れの可否条件を決定づける共溶解の進行は、酸化膜の厚みと気孔率によって支配され、それは酸化膜生成雰囲気に強く依存することが明確となった。

メタル系およびスラグ系溶融物によるステンレス鋼製構造物の溶融試験と解析では、制御棒由来のメタル系デブリ中へのステンレス鋼を溶損挙動について、溶融 Fe-Cr-Ni-B-C 金属融体中に SUS304 ステンレス鋼を浸漬する実験により調べたところ、(1)Fe/B 液相形成反応による化学的溶解と(2)溶融金属の浸潤による固相結晶釉の脱落(物理的溶解)の2つの溶解モードの存在が存在することが明らかとなった。液相中の B の拡散は遅く、固相の溶損は、B の拡散による化学的溶解よりも、液相の浸潤による結晶粒の脱落による溶損が先行して、その後脱落した粒の化学的溶解が進むという形態が考えられ、1F 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。さらに、回転ステンレス棒鋼の溶融 Fe-Cr-Ni-B-C 金属融体中への溶解挙動を調べることにより、両相間に中間層などを形成しない組み合わせであり、B と Fe の共晶反応に基づく粒界浸潤による粒の脱落と引きずりによる移動によって溶損現象が支配されていることが定量的に明らかとなった。

また、燃料棒由来のスラグ系デブリがどのようにステンレス鋼を溶損するかを調べるための実験条件について、ステンレス鋼の高温デブリ中への浸漬による昇温見積もりなども経て検討を行った。ZrO₂-UO₂系融体および Zr(O)-UO₂系融体の2種類を対象し、1kg程度の大容量のこれらのコリウムの溶解を可能とするための、金属の浮揚溶解装置・コールドクルーシブルの改造を行い、安定した溶解のための調整を経て、チェコ共和国当局の放射性物質溶解実験の許可進行のプロセスに応じて、準備を進めた。さらに、これらの準備完了に呼応する形で実施した、U-Zr-O 酸化物の溶融実験、同酸化物中へのステンレス鋼棒の溶解実験、同酸化物に金属ジルコニウムを添加したデブリ模擬融体へのステンレス鋼棒の溶解実験から、同系融体にはステンレス鋼棒は迅速に溶損し、その溶損形態から化学的溶解ではなく、熱的溶融が支配していること、融体が高温で分離層を形成している可能性は少ないことがわかった。

さらに、上記の材料学的実験と関連して、シビアアクシデントコードによる実機条件での炉心支持板破損解析を行うため、福島第一原子力発電所2号機における炉内温度分布、酸素分圧分布を、RELAP/SCDAPSIM コードを用いて、実計測データと合致する注水量条件を導出するなど、より精緻な解析へ向けた検討を行った。炉心支持盤から高さ1mまでの領域の温度勾配が非常に大きいことを明らかにし、支持盤の温度変化が部材強度に及ぼす影響が大きいことを指摘した。一方、炉心支持板以下の構造物は、約9h後の大規模スランピング時に炉心支持板が大規模破損に至る可能性が高いと評価されたが、模擬燃料集合体のプラズマ加熱試験結果等から燃料集合体内部の溶融プールが生成する可能性は低く、溶融前の高温ペレットが先行溶融した制御棒スペースを経由して炉心支持板上に落下し、炉心支持板を加熱して破損させる可能性のほうが高いと評価された。

炉心支持盤の破損状況模擬試験において、45°に傾けたステンレス鋼上への溶融ステンレス鋼-B4C融体の流下実験を行い、基板上での凝固・固化および下部への流下状況を調査したところ、溶融物が固化・付着した試験体表面での結晶粒の粗大化やホウ素の試験体内への侵入は確認されず、余熱が十分でない限り、制御棒由来のデブリの流下で固体金属が大きく溶損する可能性は少ないことがわかった。さらに、燃料棒の破損状況を模擬するため、Zr-ZrO₂系集合体のプラズマ溶融試験後の燃料ピンのX線CT観察を行ったところ、Zr-ZrO₂間の反応も含め、溶解が進んだものの、大規模溶解には至らず、少量ずつ連続的に溶融、流下が進み、融点の低い金属部材が先に溶融し、その後酸化物が溶損する機構が明らかとなった。

上記のように、燃料棒と制御棒の共倒れ条件の調査、ステンレス鋼の燃料デブリ模擬融体中への溶解挙動の把握、シビアアクシデントコード高度化のための炉内温度・雰囲気解析および炉心支持盤破損実験を進めて得られた結果を活用し、福島第一原子力発電所のような過酷事故炉の炉内事故進展状況の把握をより精度高く行うため、JUPITERのような熱流体を扱うモデルにおいて、拡散係数として共晶反応や酸化反応の影響、流体の速度などをファクターとして組み込む形で高度化を行うことで、事故進展マップの高度化に寄与することが可能となり、燃料デブリ取り出しプロセス進捗に大きく貢献できるものと考えられる。

1. はじめに

過酷事故後の原子炉を廃炉する際に必要な、燃料デブリの取り出し方法の検討の際に必要なとなるデブリへのアクセス性は、炉内の特に炉心下部構造物の破損状況に大きく依存している。現在直接炉内の状況を確認できない以上、炉内の温度、雰囲気、構成材料を勘案した材料学的実験を実施し、そのデータを踏まえて従来のシビアアクシデント解析コードの高度化を行い、その予測結果の妥当性を模擬試験により検証して、実機内状況予測の確度を上げていくのが現実的なアプローチであると考えられる。

本稿は、そのような背景に基づき提案した「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」において、平成27～29年度に実施した事業の成果を報告するものであり、実際の事故時に起きたであろう燃料棒・制御棒の損傷・溶落、生じた溶融体の下方へのリロケーション、この融体によるステンレス製の燃料棒支持板などの炉心下部構造物の溶損を考えた実験、解析を実施し、以下のような成果を得た。

制御棒由来のメタル系融体が炉心下部構造物に流下し、ステンレス製の同構造物が溶損するプロセスを模擬し、SUS304 ステンレス鋼と B_4C を共晶条件に近い組成に配合し、 Al_2O_3 製るつぼの中で予備溶融した融体に、同ステンレス棒を所定の時間浸漬し、解析を行うことにより、オーステナイト粒の脱落と、粒表面からの溶解拡散の2つのモードで溶落が進むことが明らかとなり、その脱落速度は液相金属の流動速度により著しく大きくなることがわかった。また、燃料棒由来のスラグ系融体についても、1kg 程度のコリウムの溶解を可能にするため、大型のコールドクルーシブルを整備し、調整を経て、溶融コリウム中へのステンレス鋼の浸漬・溶解実験を行い、溶損を支配するのは化学的溶解でなく熱的溶融であることがわかった。

燃料棒と制御棒が共溶解して溶落するかどうかの雰囲気条件を調査するため、燃料棒、制御棒、被覆管の共存を考慮して選別した材料、 B_4C 、SUS304 ステンレス鋼およびジルカロイを、実機炉内雰囲気を想定して水蒸気を含有しつつ制御した酸素分圧中雰囲気下で共存保持し、水素および窒素の影響を各素材の表面酸化膜の性状に着目して精緻に調査し、還元雰囲気では部材同士の共溶解が進むこと、ジルカロイ表面の酸化膜による共溶解抑制がみられるが、窒素雰囲気で生成した酸化物ではこの抑制効果は限定的であることが分かった。

また、事故時の実機炉内の温度、雰囲気の情報が、これら材料実験の精度を高めるため、またシビアアクシデント(SA)解析コードによる高度な炉内状況予測のため重要であり、既存のコードを用いて、福島第一原子力発電所の中でも、電源喪失、RCIC稼働、主蒸気逃し弁作動による減圧、注水といったデータ履歴が比較的明確な2号機において、実計測データと照合しながら注水条件を定めることにより、より精緻な温度、雰囲気予測を行った。また燃料棒支持金具上への制御棒由来融体模擬流下試験を実施し、速度リミッター下部模擬部での凝固・固化および破損状況の検討を行い、下部金属の予熱がないとほとんど溶損しないことがわかった。また、すでに実施した燃料棒集合模擬体のプラズマ溶融試験の凝固試験体のX線CT解析を行い、事故時の破損状況について、融点の低い金属溶融に続いて酸化物が溶融するという融体の形成・流下挙動であるとの予測を行った。

これら、材料学的な知見及び事故進展予測から、既存のSAコード、例えば熱流体を扱うモデルのJUPITERに、これらの現象要素を拡散係数の形で組み込むなどして高度化を図ることで、デブリ取り出しアクセス性における最適な提案を行うことが可能であると考えられる。

2. 業務計画

2.1 全体計画

本業務の全体計画図を図 2.1-1 に示す。

業務項目	実 施 日 程 (平成27年度)											
	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
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(東京工業大学) 1) メタル系デブリへのステンレス鋼の溶解挙動試験と解析 2) スラグ系デブリへのステンレス鋼の溶解挙動試験と解析								←				→
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(東北大学) 1) 制御棒およびジルカロイの溶融に関する試験 2) 制御棒およびジルカロイの固液反応速度に関する試験								←				→
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(原子力機構) 1) シビアアクシデント解析コードを用いた実機条件の検討 2) 炉心支持板破損模擬試験による検証データ取得 3) 燃料溶融物の特性調査								←				→
4. 研究推進								←				→

業務項目	実 施 日 程 (平成28年度)											
	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
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(東京工業大学)												
1) メタル系デブリへのステンレス鋼の溶解挙動試験と解析	←											→
2) スラグ系デブリへのステンレス鋼の溶解挙動試験と解析	←											→
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(東北大学)												
1) 制御棒およびジルカロイの溶融に関する試験	←											→
2) 制御棒およびジルカロイの固液反応速度に関する試験	←											→
3) ジルカロイとステンレスチールの金属融体が生成する条件におけるジルカロイの溶融速度の定量	←											→
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(原子力機構)												
1) シビアアクシデント解析コードを用いた実機条件の検討	←											→
2) 炉心支持板破損模擬試験による検証データ取得	←											→
3) 燃料溶融物の特性調査	←											→
4. 研究推進	←											→

業務項目	実 施 日 程 (平成29年度)											
	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
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(東京工業大学)												
1) メタル系デブリへのステンレス鋼の溶解挙動試験と解析	←											→
2) スラグ系デブリへのステンレス鋼の溶解挙動試験と解析	←											→
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(東北大学)												
2) 制御棒およびジルカロイの固液反応速度に関する試験	←											→
3) ジルカロイとステンレスチールの金属融体が生成する条件におけるジルカロイの溶融速度の定量	←											→
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(原子力機構)												
1) シビアアクシデント解析コードを用いた実機条件の検討	←											→
2) 炉心支持板破損模擬試験による検証データ取得	←											→
3) 燃料溶融物の特性調査	←											→
4. 研究推進	←											→

3. 業務の実施内容及び成果

3.1 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 (H27-H29)

3.1.1 メタル系デブリへのステンレス鋼の溶解挙動試験と解析 (H27-H29)

(1) 試験・解析の目的と概要

沸騰水型原子炉における過酷事故時には、炉を構成する材料間で液相形成反応が生じる。図 3-1-1 に BWR 炉心の構造と使用される材料を示す。事故が発生して炉心が過熱すると、ステンレス鋼(SS)被覆材と B_4C からなる制御棒、および、ジルカロイ被覆材と UO_2 からなる燃料棒等が共晶溶解反応により溶け落ちる。これら溶融物に、下部支持構造材であるステンレス鋼がどのような速度で溶解するかを明らかにすることを目的とし、メタル系溶融物(制御棒由来の溶融コリウムを仮想)とスラグ系溶融物(燃料棒由来の溶融コリウムを仮想)に分けて試験を行う。

制御棒由来のメタル系溶融物は、代表的な組成の溶融 Fe-Cr-Ni-B-C 合金(SS+ B_4C)中に、予熱したステンレス棒材(SS 固相)を様々な条件の下で浸漬して一定時間反応させる試験を行う。浸漬後取り出した試料の断面を光学顕微鏡、SEM による組織観察と、EDS, WDS, ICP-OES などによる組成分析といった解析を行うことで、各種元素がどのように拡散するかを評価する。これにより、事故時の炉内構造物の破損形態や破損速度を検討する。

昨年度の成果報告にて、メタル系溶融物による SS 固相の破損形態を調査し、本系での破損挙動には 1. Fe/B 間の共晶溶解による化学的破損と、2. メタル系溶融物が SS 結晶粒界に浸潤することによる結晶粒の脱離(物理的破損)の 2 種類があることを報告した。また、メタル系溶融物中の B のみかけの拡散係数が小さいことから、メタル系溶融物に対流がない場合、化学的破損速度は遅いことを報告した。

本成果報告書では、1. メタル系溶融物による SS 固相の**物理的破損挙動の評価**を目的とした、結晶粒径を調整した SS 棒を用いたメタル系溶融物中への浸漬試験の結果、2. **メタル系溶融物に対流がある条件(動的条件)**下での破損メカニズムの解明と破損速度の定量を目的とした、SS 棒のメタル系溶融物中への回転浸漬試験の結果、3. メタル系溶融物中の**元素(特に B)濃度の定量**を目的とした、分析方法の検討結果について報告する。

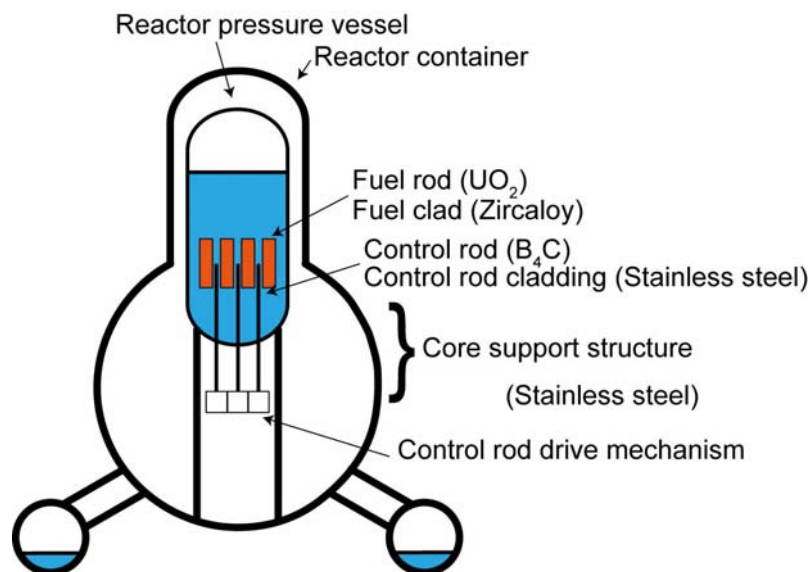


図 3-1-1. BWR 炉心構造図

(2)メタル系溶融物によるSS固相の物理的破損挙動の評価を目的とした浸漬試験

(2)-1 試験方法

制御棒由来のメタル系溶融物模擬試料の作製

SS 304 粉末試料(18-20 % Cr, 8-11 % Ni, Mn < 2 %, Si < 1 %, Fe balance)と B₄C 粉末試料を, Fe-B 共晶組成に近い 3.71 mass %B (Fe-B 換算で 5 mass %B)の配合比で秤量・混合し, 内径 9 mm×外径 12 mm×高さ 120 mm のアルミナるつぼに装入した. このるつぼを SiC 電気炉に挿入し, 1723 K, Ar-3 %H₂ 雰囲気化で 1.5 h 保持後水冷し, 溶融物模擬試料を得た. 得られた溶融物模擬試料の秤量組成を表 3-1-1 に, 試料外観を図 3-1-2 に示す.

表 3-1-1. 溶融物模擬試料の秤量組成

Fe	Cr	Ni	B	C	
70.5	17.1	7.62	3.71	1.03	(mass%)
58.7	15.3	6.04	16.0	3.99	(at.%)



図 3-1-2. 溶融物模擬試料外観

結晶粒径を調整した SUS 304 試験片の作製

SUS 304 棒状試料(φ10 mm, 長さ 150 mm)を SiC 電気炉に挿入し, Ar-3 %H₂ 雰囲気下で所定温度, 所定時間保持後水冷し, 結晶粒径を調整した. 施した熱処理は 2 種類であり, 1473 K/ 20 h と, 1573 K/ 20 h である. 熱処理を施した試料では, 最終熱処理温度が異なるため, 粒界の不純物元素の偏析の状態が異なる事が考えられる[1, 2]. 結晶粒径の大きさの幾何学的影響のみを考察するため, 各熱処理の後に, Ar-3 %H₂ 雰囲気下で 1373 K/ 5 min の再溶体化処理を施した後に水冷することで, 不純物元素の偏析の影響を統一した. 水冷後, 図 3-1-3 に示す SS 棒状試験片を, 各棒状試料に旋盤加工を施すことにより作製した. 浸漬部(φ7 mm 部分)には SiC ペーパー(#800 ~ #2000)を用いて機械研磨を施した.

結晶粒径測定のため, 棒状試験片浸漬部から一部を切り出し, SiC ペーパーとダイヤモンドペーパーにより鏡面研磨を施し, エッチング(HCl:HNO₃:H₂O:H₂O₂=2:2:3:1)により結晶粒界を腐食し, 切断法(intercept method, JIS 0551: 2013)により平均結晶粒径を算出した. 受け取りまま材

(As Received material, AR), 熱処理材(1473 K/ 20 h), 熱処理材(1573 K/ 20 h)の平均結晶粒径はそれぞれ 9.64 μm , 68.7 μm , 75.0 μm , であった. 以下では熱処理温度を各試料名とし, SS-AR, SS-HT1473, SS-HT1573 と呼称する.

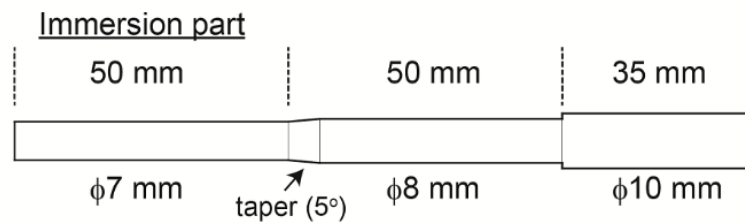


図 3-1-3. SS 棒状試験片

浸漬試験

メタル系溶融物模擬試料中への SS 棒状試験片の浸漬試験を行った. 溶融物模擬試料を適量, アルミナるつぼに入れ, SiC 電気炉に装入し, 1573 K, Ar 雰囲気下で所定の時間予備溶融させた. 予備溶融後, SS 棒状試験片を, るつぼ直上に装入し, 2 min 予熱した後に, 溶融物中に浸漬し, 所定の時間(10 sec ~ 240 sec)保持した. 保持後, 試験片とるつぼを一体で取り出し, 水冷した. 図 3-1-4 に炉内状況模式図および, 均熱帯を示す. 試験中, 浸漬部は $1573 \pm 0.5 \text{ K}$ に保たれた.

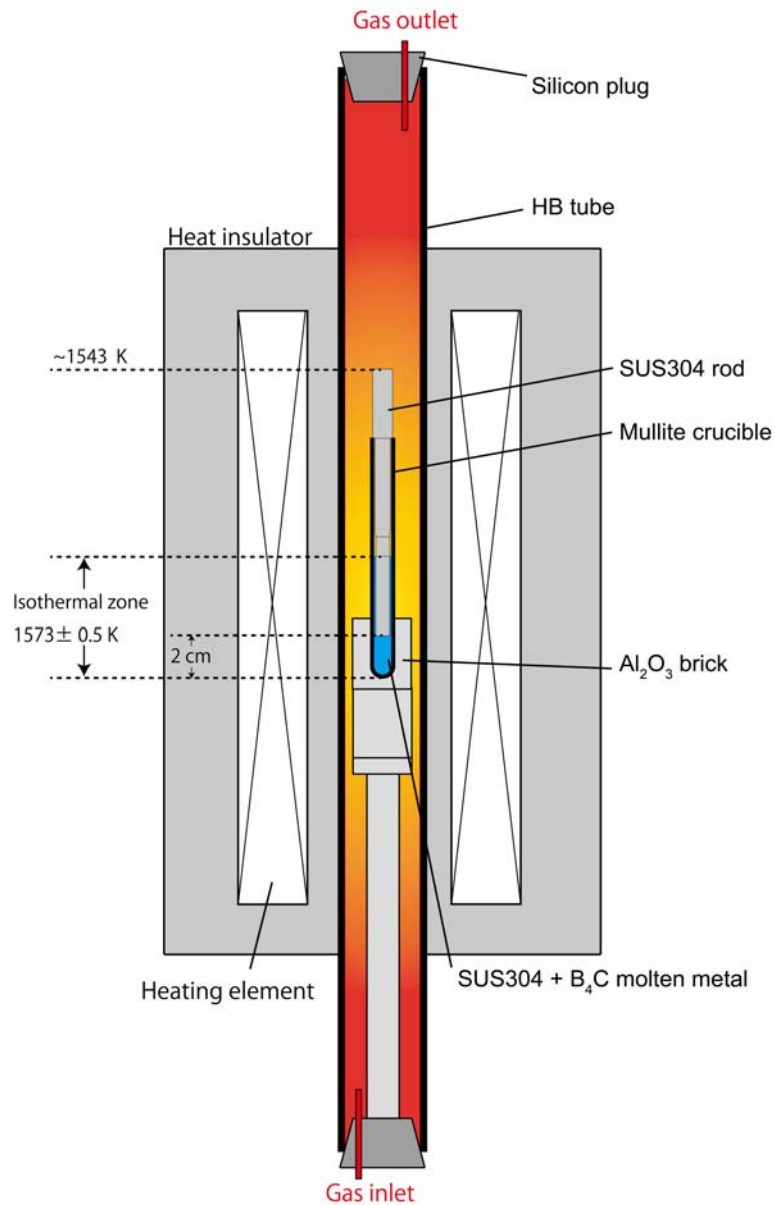


図 3-1-4. 試験装置模式図

反応界面の組織観察と元素分析

図 3-1-5 に試料の浸漬部断面の切り出し方法の模式図を示す。切り出した試料は棒状試験片先端の水平断面とした。試料を樹脂埋めし、SiC ペーパー(#100-#2000)とダイヤモンドペースト(5 μm , 1 μm)により鏡面研磨を施した。組織観察には光学顕微鏡と Scanning Electron Microscope(SEM), 元素分析には Electron Probe Micro Analyzer-Wavelength Dispersive X-ray Spectroscopy (EPMA-WDS)を用いた。分析元素は B とし、分光結晶は LDE2H を用いた。元素マッピング時の分析間隔は 0.5 μm , 分析時間は 50 ms とした。

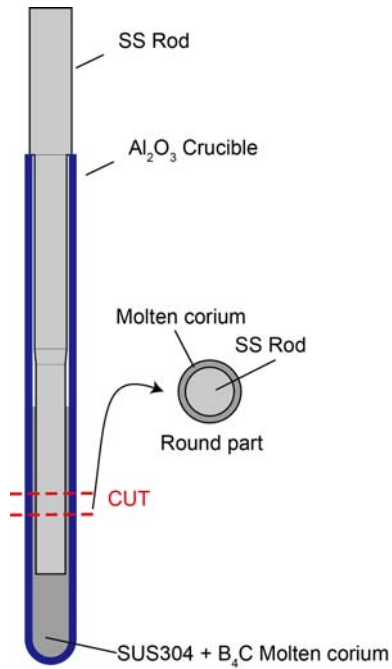


図 3-1-5. 浸漬試験後の試料模式図

(2)-2 試験結果および考察

浸漬試験後の組織観察

図 3-1-6 に 4 min 浸漬した試験後 SS-AR の水平断面外観(OMI), SS 固相/熔融物界面近傍の反射電子像(BEI)および EPMA-WDS による B マッピングを示す. OMI, BEI において, SS 試験片と熔融物模擬試料(SS+B₄C)の境界が明瞭に区別でき, また, 熔融物模擬試料の SS 結晶粒界への浸潤が確認できた. B マッピング図から, 浸潤部分と, B の検出領域の一致が確認された. 図 3-1-7 に 30 sec 浸漬した SS-AR, SS-HT1473, SS-HT1573 の SS 固相/熔融物界面近傍の OMI を示す. いずれの試料においても, 熔融物模擬試料の SS 結晶粒界への浸潤が確認できた. これより, 結晶粒径に関わらず, 物理的破損が生じていることが示唆される.

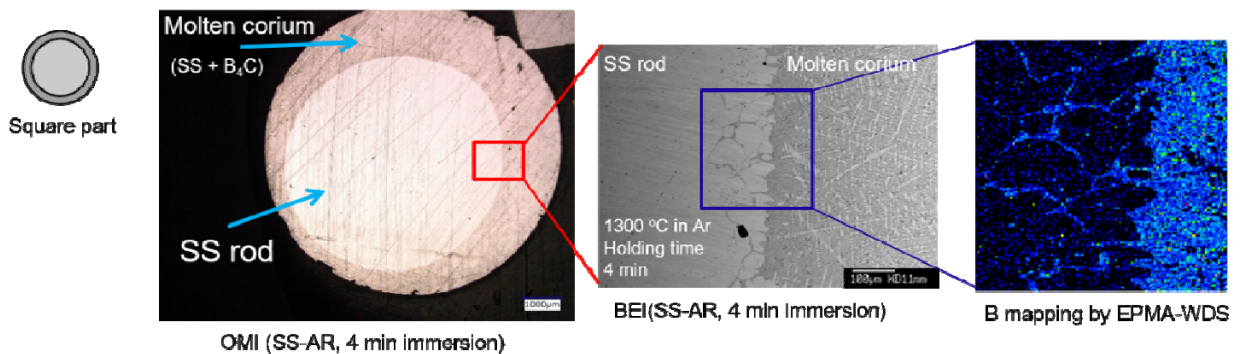


図 3-1-6. 4 min 浸漬試験後の光学顕微鏡像, 反射電子像, B マッピング (AR 試料)

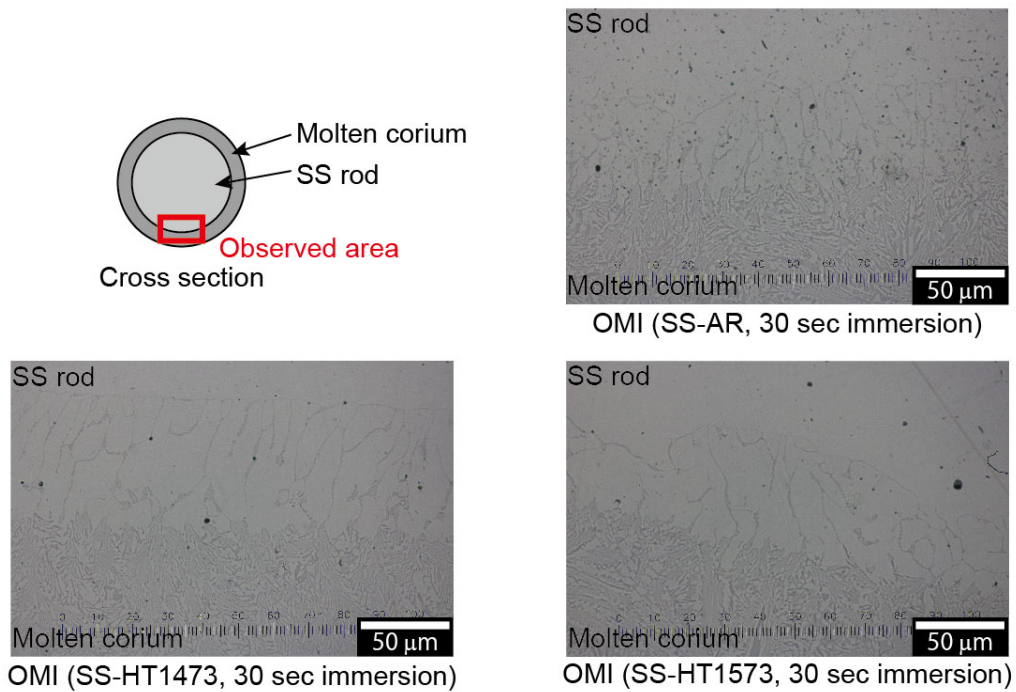


図 3-1-7. 30 sec 浸漬試験後の光学顕微鏡像 (AR, HT-1473, HT-1573)

結晶粒径が SS 固相の破損速度に及ぼす影響

浸漬試験後の水平断面 OMI (図 3-1-6 左) から、画像処理ソフト (Image J) を用いて SS 棒部分の断面積を算出し、浸漬に伴う半径の減少量を求めた。図 3-1-8 に浸漬に伴う SS 試験片半径の減少量を示す。結晶粒径が小さいほど破損速度が大きいことが分かった。昨年度報告したように、本系での破損挙動には 1. Fe/B 間の共晶溶解による化学的破損と、2. メタル系溶融物が SS 結晶粒界に浸潤することによる結晶粒の脱離 (物理的破損) の 2 種類である。SS-AR, SS-HT1473, SS-HT1573 とともにその化学的性質は等しく、化学的破損速度は同じであると考えられることから、破損速度の差は、物理的破損速度の差に起因すると予想される。すなわち、結晶粒径が小さいほど、一つの結晶粒を脱落させるのに必要な浸潤量が少ないため、破損速度 (半径の減少速度) が大きくなる。以上より、結晶粒径が固相の物理的破損速度に影響を及ぼしていることが確認できた。

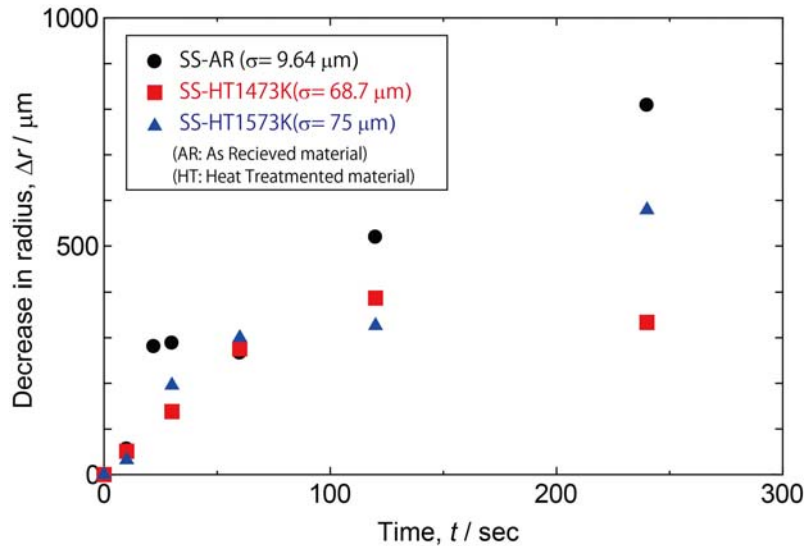


図 3-1-8. 浸漬に伴う SS 試験片半径の減少量

結晶粒径が化学的溶解速度に及ぼす影響

結晶粒径が、化学的溶解速度に影響を与えないことを確認するために、昨年度の報告と同様の方法で、熔融物模擬試料中の B のみかけの拡散係数を算出した。対流のない熔融物中での B の拡散が化学的溶解の律速過程であると仮定し、熔融物中での B のみかけの拡散係数を算出し評価した。通常、固相から液相への拡散現象を評価するときは、平滑な固相/液相界面を想定し、固相元素で飽和した液相から液相バルクに至るまでの濃度勾配を考えることで行う。しかしながら本試験系では、液相(熔融物)が固相粒界に浸潤しているため、一つの結晶粒に着目し、みかけの拡散係数を導出する手法を用いた。

非定常拡散方程式を用いた速度論的解析は、本試験系のような円筒対称系については、円筒モデルの適用が望ましく、円筒座標系の拡散方程式に基づき、第 1 種円柱関数 (Bessel 関数) および第 2 種円柱関数 (Neumann 関数) を用いて解くべきものである。しかしながら、式が煩雑で考慮すべきパラメータも多く、精度のよい見積もりが困難である。そこで、本系の SS 固相直近ではおおよそデカルト座標系の 1 次非定常拡散方程式に基づいた解析が可能と考え、そのような計算を行った。また、初期の SS 固相と熔融物の組成の違いは B₄C の有無のみであり、そのため Fe, Cr, Ni ではなく、B 濃度分布に着目した解析を行った。その際、B は SS 固相から溶け出す方向ではなく、SS 固相の溶出により熔融物中で薄まる方向の反応であるので、そのことを考慮して解析を行った。

1 次元の非定常拡散方程式は、式(1)の Fick の第 2 法則で示され、その一般解は式(2)、(3)の初期条件、境界条件の下、式(4)のように導出される。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (1)$$

初期条件:

$$t = 0 \text{ sec}, x > 0 \text{ mm} \Rightarrow C = C_t \text{ mass\%} \quad (2)$$

境界条件:

$$t > 0 \text{ sec}, x = 0 \text{ mm} \Rightarrow C = C_0 \text{ mass\%} \quad (3)$$

$$\frac{C_x - C_0}{C_1 - C_0} = \operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{Dt}}\right) \quad (4)$$

ここで、 t : 溶解・拡散時間 [t], C_x : 位置 x での B 質量濃度, C_1 : 溶融物十分遠方での B 質量濃度, C_0 : SUS304 中の初期 B 濃度 (=0), D : B のみかけの拡散係数 [mm^2/s]である. したがって, 試験結果に対して式(4)に基づき, $(x^2/4t)$ と $\left(\operatorname{erfc}^{-1}\left(\frac{C_x - C_0}{C_1 - C_0}\right)\right)^2$ の値をプロットすれば, その回帰直線の傾きから $(1/D)$, すなわちみかけの拡散係数を評価することができる.

得られた結果を図 3-1-9 に示す. みかけの拡散係数は固相の結晶粒徑によらず, $1.32 \times 10^{-11} \sim 5.83 \times 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{s}$ と, およそ $10^{-10} \text{ cm}^2/\text{s}$ オーダーであった. 浸漬時間の増加に伴い, 拡散係数の値が小さくなっているが, これも前報と同様に, 結晶粒の脱落から説明できる. 浸漬時間の増加に伴い, 結晶粒の脱落が生じ, 式(4)に示す時間 t (固相が溶融物に触れている時間)を過大評価することになり, 結果, みかけの拡散係数が小さくなる. 前述したように, 結晶粒の脱落は, 結晶粒徑が小さいほど頻発する傾向にあり, 結晶粒徑が大きく, 浸漬時間が短いほど, 拡散係数の誤差が小さくなる. 以上より, 本系でのみかけの拡散係数は, $6 \times 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{s}$ 程度であると考えられる. この値は, 他の系と比較して小さいことから, 本系では昨年度の報告と同様に, 固相の物理的破損が優勢であると考えられる.

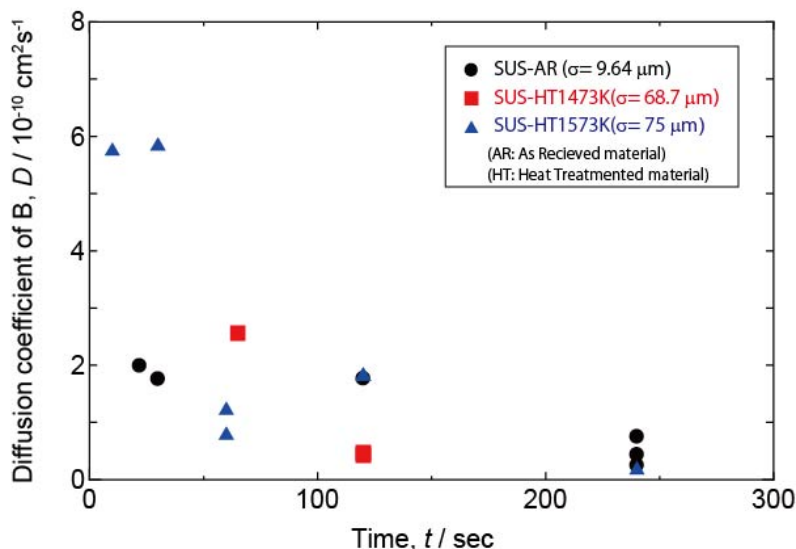


図 3-1-9. 溶融物模擬試料中での B のみかけの拡散係数

物理的破損挙動 (溶融物模擬試料の SS 結晶粒界への浸潤挙動) の評価

(a) 評価方法

前述したとおり, 本系では溶融物 (メタル系コリウム) が SS 結晶粒界へ浸潤することによる結晶粒の脱落 (物理的破損) により固相の破損が生じている. 物理的破損の評価のため, 溶融物の浸潤現象を評価する.

熔融物の浸潤は、熔融物中の B が SS 結晶粒界に拡散し、結晶粒界で Fe/B 共晶溶解することにより、生じていると考えられる。この時、結晶粒界での共晶溶解反応がすぐさま生じていると仮定すると、熔融物の浸潤を律速するのは、B の SS 粒界拡散である。また、仮に、共晶溶解反応が遅く、粒界中に未反応の B がいたとしても、それは液相ではないため、物理的破損に寄与しない。そこで本研究では、B の SS 粒界での粒界拡散係数を算出する。

(b) 粒界拡散係数の算出方法

一般に、結晶粒界拡散係数を算出することは以下の理由から困難である。第一に、結晶粒界の幅が約 0.5 nm と小さく、結晶粒界中の元素濃度を正確に測定することが困難である[3]。また、粒界拡散が生じている時、結晶粒界から粒内への体拡散も同時に進行することがあり、結晶粒界付近での元素プロファイルを、粒界拡散によるものと、体拡散によるものとで区別することも困難である[4]。

しかし本系では、Harrison が提唱した多結晶中拡散運動の 3 分類を導入することで、上記の困難を避け、粒界拡散係数を算出することができる[5]。図 3-1-10 に多結晶における拡散の 3 分類の模式図を示す。Harrison は多結晶中の拡散挙動をタイプ A~C の 3 つに分類した。

- タイプ A は、体拡散係数が粒界拡散係数と比較して大きく異なる状況であり、高温での拡散や長時間アニール時、小さな結晶粒径の材料において観察される挙動である。
- タイプ C は、粒界拡散係数が体拡散係数と比較して大きく、つまり、実質的に粒界拡散のみが生じ、また、粒界から粒内への拡散も無視できる状況である。低温での拡散時や短いアニール時に観察される挙動であり、Cu 中の Ag、Au、Ni、Bi の拡散などがこのタイプに当てはまる[6-8]。
- タイプ B はタイプ A とタイプ C の中間状態であり、多くの拡散試験で観察される。体拡散、粒界拡散、粒界から粒内への拡散が生じており、粒界拡散係数を算出するのが困難である。

ここで図 3-1-6 より、本試験系では SS 固相内への B の拡散が確認されず、また、熔融物の浸潤が深くても、固相結晶粒の形が保たれていることから(結晶粒が化学的に溶けていない=体拡散がほとんど生じていない)、本系での拡散はタイプ C であると考えられる。熔融物中の B の拡散係数が小さいことから、SS 固相中での体拡散も小さいことが予想される。このとき、B の拡散距離 (L_{gb} [mm]) は、熔融物の浸潤長さであり、この長さから、SS 結晶粒界中の拡散係数 (D_{gb} [cm^2/s]) を式(5)に基づき算出できる。

$$L_{gb} = \sqrt{D_{gb}} \times \sqrt{t} \quad (5)$$

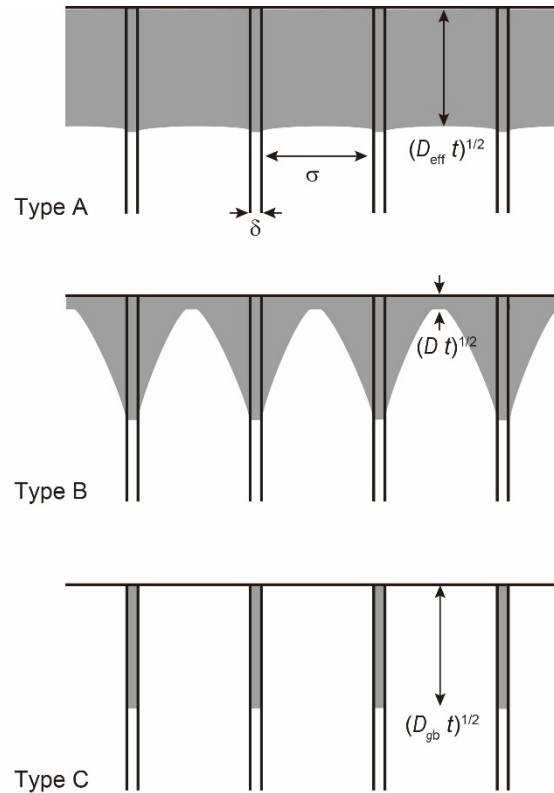


図 3-1-10. 多結晶における拡散の 3 分類の模式図[5]

(c) 溶融物の浸潤量評価

SS 固相結晶粒界への溶融物浸潤量を評価するために、水平断面における、溶融物の浸潤量を測定した。図 3-1-11 に溶融物が浸潤した SS 固相/溶融物界面の模式図を示す。SS 固相は結晶粒から構成されており、溶融物は結晶粒界に沿って浸潤する。この時固相/溶融物界面の長さを L [m]、総浸潤長さを I [m] とし、単位界面長さあたりの浸潤長さ (I/L [-]) に結晶粒径 σ [m] をかけた値 $L_{gb} = \sigma \times \frac{I}{L}$ [m] を浸潤長さと考え、ここで、定義した L_{gb} の妥当性を考察するため、図 3-1-12 に示すみかけの浸潤深さを L_{ap} として測定、比較する。

水平断面における固相/溶融物界面近傍の OMI にて、ダイヤルキャリパーを用いて界面長さとして総浸潤長さを測定した。解析に用いた視野には、十分多くの結晶粒が入るように、固相/溶融物界面長さが $600 \mu\text{m}$ 程度になるように選択した。また、結晶粒の脱落が生じていることを考え、各試料に対して、4 視野以上の測定を行った。図 3-1-12、3-1-13 に浸漬時間に伴う浸潤長さ L_{gb} およびみかけの浸潤深さ L_{ap} の変化を示す。SS-AR 試料を用いた試験では、 L_{gb} および L_{ap} がともに約 $50 \mu\text{m}$ と、良い一致を示した。これは、図 3-1-8(SS 固相半径の減少量)からも示唆されたように、結晶粒径の小さい試料では、結晶粒の脱落が頻発しているため、固相/溶融物界面水平方向の浸潤が少なく、 L_{gb} および L_{ap} が近い値を示したものと思われる。他方、SS-HT1473 および SS-HT1573 の、結晶粒径の大きい試料を用いた試験では、 L_{gb} は L_{ap} の 2~3 倍の値を示した。これは、固相/溶融物界面水平方向の浸潤を考えると、妥当な値であるといえる。

SS-1573 では 2 min 浸漬と 4 min 浸漬の間に、 L_{gb} および L_{ap} の減少が確認された。他方、マクロ観察である SS 固相半径の減少量においても、SS-HT1573 の 2 min 浸漬から 4 min 浸漬の間に、減少量の増加(大きく半径が減少)が確認できる。これらは、結晶粒の脱離が大規模に生じたため、

マイクロレベルでは浸潤長さが減少，また，マクロレベルでは半径の減少量が増大したのだと考えられる．つまり，マクロ挙動(固相半径の減少)とマイクロ挙動(溶融物の浸潤量)が一致しており，本系の破損モードが，物理的破損であることを支持している．

大規模な脱落が生じていない，SS-HT1473 の 1 min までと，SS-HT1573 の 2 min までの浸潤量の最大値を見ると，溶融物の浸潤量は，結晶粒径によらず，浸漬時間の増加に伴い大きくなっていく．

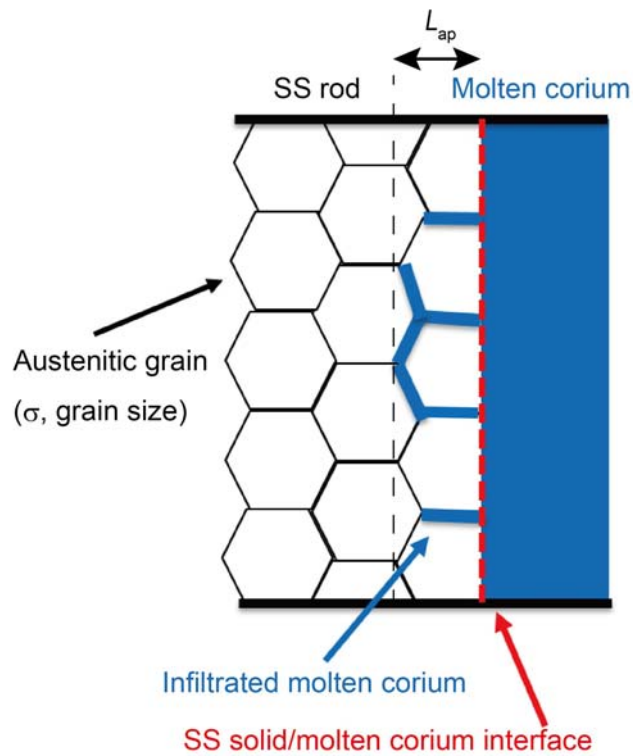


図 3-1-11. SS 固相/溶融物界面模式図

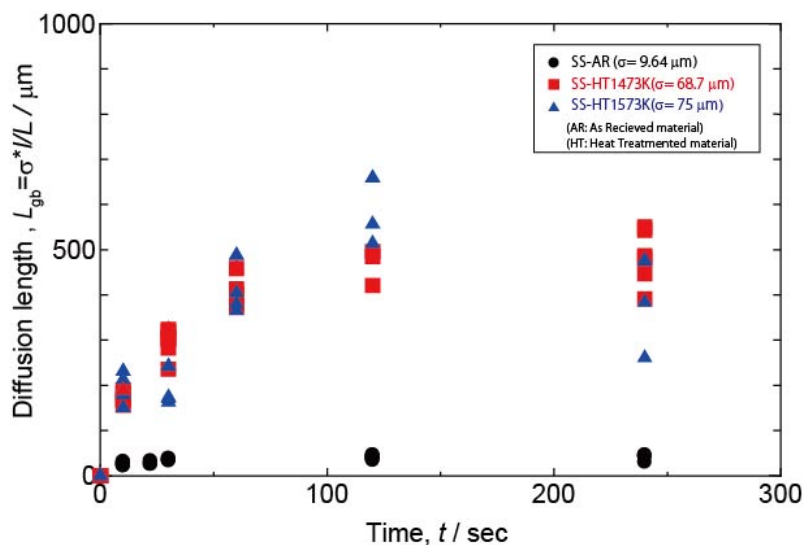


図 3-1-12. 浸漬に伴う浸潤量変化

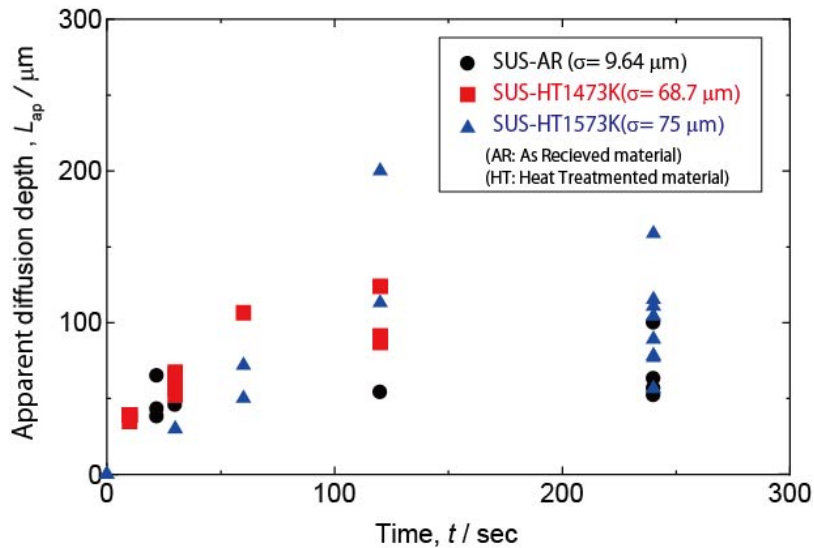


図 3-1-13. 浸漬に伴うみかけの浸漬深さの変化

(d) 粒界拡散係数の算出

以上より, $L_{gb} = \sigma \times \frac{t}{L}$ [m]を浸潤長さと考えerことは妥当であると考えられる. 図 3-1-14 に浸漬時間に対する浸潤長さを示す. 但し脱落が頻発している, SS-AR 試料, SS-HT1473 の浸漬時間 2 min 以上, SS-HT1573 の浸漬時間 4 min 以上, および脱落が生じている, 最大値以外の値を白抜きで示した. 脱落が少ない試料(塗りつぶしで示す)は, 浸漬時間に対して, 放物線則に従い, 浸潤長さが増加していることがわかる. 式(5)に従い, 縦軸に浸潤長さ(L_{gb}), 横軸に浸漬時間のルート(\sqrt{t})を示したグラフを図 3-1-15 に示す. $R^2 > 0.9$ の直線が得られ, その傾きから, 粒界拡散係数が $3.51 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ と算出された.

図 3-1-16 に溶融物浸潤率と脱落挙動をまとめたグラフを示す. 得られた値は $10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ オーダーであった. 過去の報告より, 本系と同様のタイプ C の粒界拡散を示す Ni in Cu, Ag in Cu, Bi in Cu, が高温にて $10^{-4} \sim 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$ オーダーの粒界拡散係数であることから, 今回得られた値の妥当性がわかる[8]. この値は, 溶融物中のみかけの拡散係数よりも 5 桁程度大きな値であることから, 本系の破損形態は液相の浸潤による物理的破損であると考えられる.

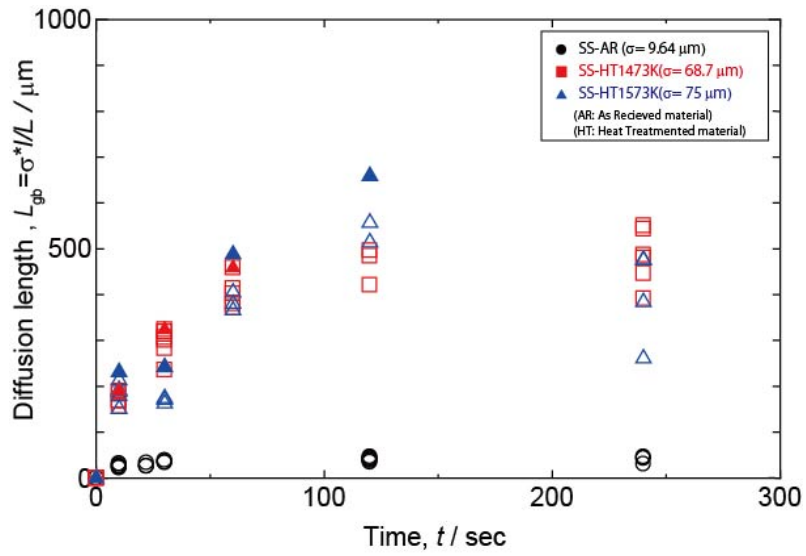


図 3-1-14. 浸漬時間に伴う単位界面あたりの浸潤量の変化

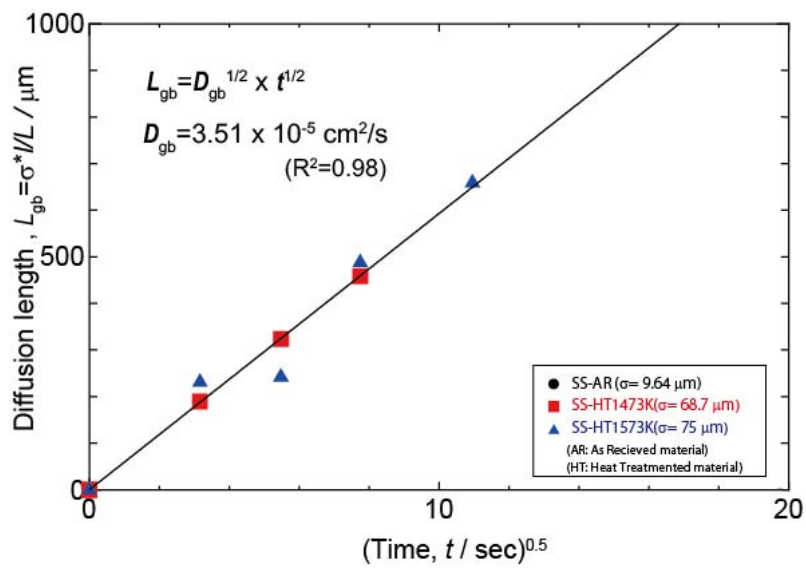


図 3-1-15. みかけの粒界拡散係数の算出

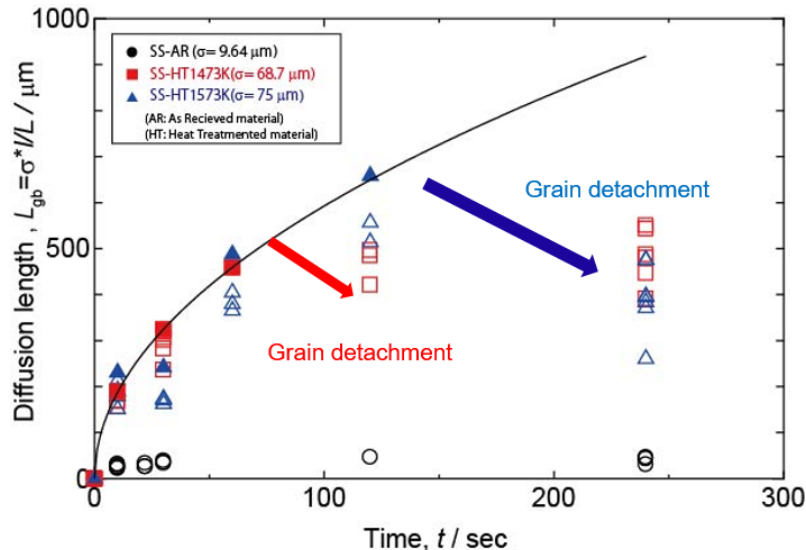


図 3-1-16. 溶融物浸潤量と脱落挙動のまとめ

(3) メタル系溶融物に対流がある条件(動的条件)下での SS 棒のメタル系溶融物中への回転浸漬試験

(3)-1 試験方法

制御棒由来のメタル系溶融物模擬試料およびの結晶粒径を調整した SS 棒状回転試験片の作製

(2)-1 と同様の手順でメタル系溶融物模擬試料を作製した。また同様の手順で SUS 304 棒状試料(φ10 mm, 長さ 150 mm)に熱処理を施し, 結晶粒径を調整した。本試験で使用した試料は 2 種類であり, AR(結晶粒径 9.64 μm)と SS-HT1573(結晶粒径 75.0 μm)である。各棒状試料に旋盤加工を施すことにより, 図 3-1-17 に示す SS 棒状回転試験片を作製した。浸漬部(φ7 mm 部分)には SiC ペーパー(#800 ~ #2000)を用いて機械研磨を施した。

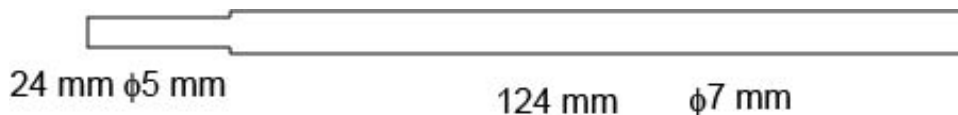


図 3-1-17. SS 棒状回転試験片

回転浸漬試験

メタル系溶融物模擬試料中への SS 棒状試験片の回転浸漬試験を行うため, 図 3-1-18 に示す回転浸漬試験装置を作製した。SS 棒状試験片は SUS304 製試験片ホルダーを介して回転機(HIGHPOWER MIXER, AS ONE)に取り付けられる。試験片ホルダーは電気炉内のるつぼに対して昇降できるようになっており, また, SS 棒状試験片は断熱材を介して試験片ホルダーに取り付けられる。

溶融コリウム模擬試料を適量(約 38 g), SSA-H アルミなるつぼ(内径 20 mm×外径 25 mm×高さ 120 mm)に入れ, SiC 電気炉に装入し, 1573 K, Ar-3 %H₂ 雰囲気下で 45 min 予備溶融させた。溶融後, SS 棒状試験片を試験片ホルダーに取り付け, るつぼ直上に装入, 保持した。2 min 予熱した後, 試験片を下部約 25 mm が浸漬する位置まで降ろし, 直ちに所定の回転速度で浸漬試

験を開始した。所定の時間経過後，回転を止め，直ちに試験片を取り出し，水冷した。回転速度は 0~300 rpm で，浸漬時間は 30~240 sec で行った。水冷後，試料浸漬部を切断，樹脂埋めし，SiC ペーパー(#100~#2000)とダイヤモンドペースト(5 μm, 1 μm)により鏡面研磨を施し，組織観察を行った。

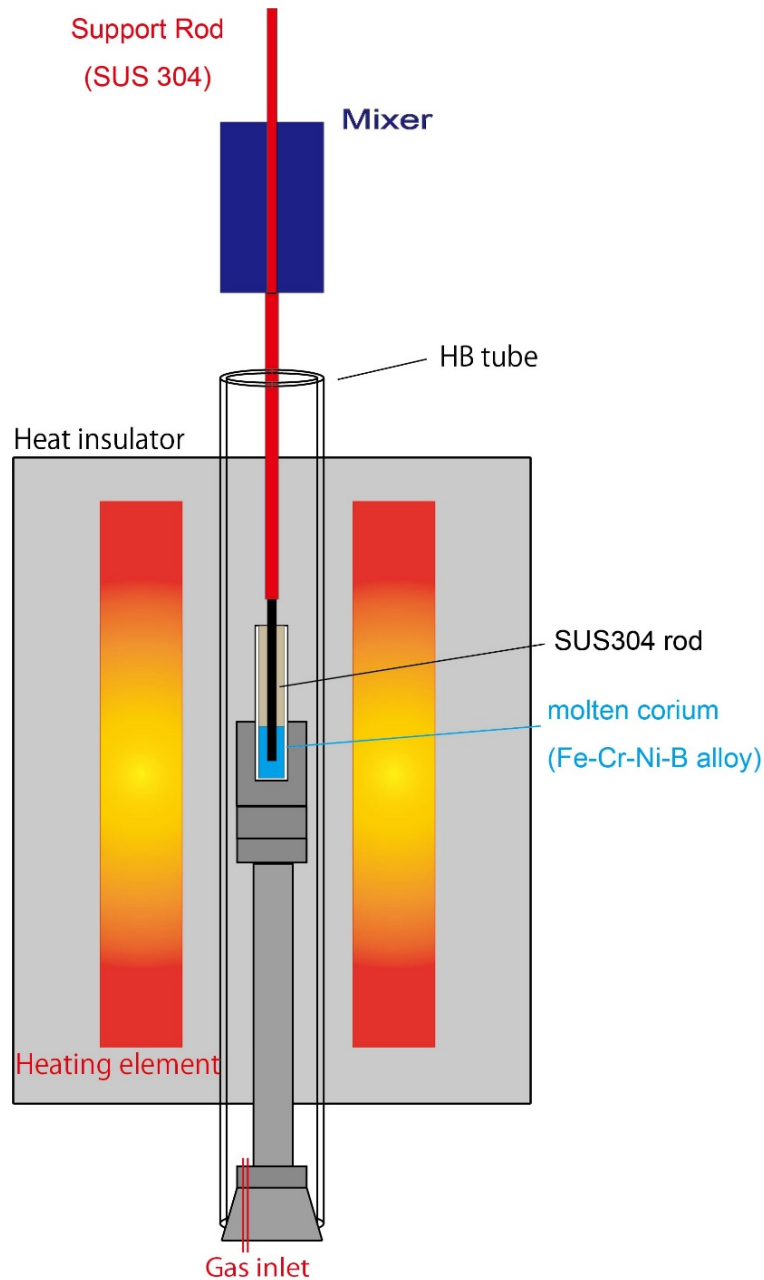


図 3-1-18. 回転浸漬試験装置 模式図

(3)-2 試験結果および考察

動的条件下での破損形態

図 3-1-19 に回転浸漬試験後の試験片外観を示す。浸漬部の破損が確認できる。また，浸漬部には溶融コリウムが冷えて付着していることも確認できる。図 3-1-20 に樹脂埋めした試料外観を，図 3-1-21 に断面 OMI を示す。SS 固相部および冷えて固まった溶融物が明瞭に区別できる。

また、化合物層などの中間層は認められなかった。図 3-1-22 に高倍率で撮影した棒状試験片の端部 OMI を示す。いずれの試料でも、(2) 静止系試験で観察された、溶融物の浸潤は認められなかった。

これは、**物理的破損が優勢**であると考え、SS 固相の回転による溶融物/SS 固相界面での相対速度に起因するずり応力が、結晶粒の脱離を促進したためであると考えられる(コロージョン・エロージョンの一種)。一方、**化学的破損が優勢**であるとする、液相の攪拌により境膜が薄くなり、溶融物中 B が SS 固相表面に供給され、共晶溶融反応が促進したためであると考えられる。

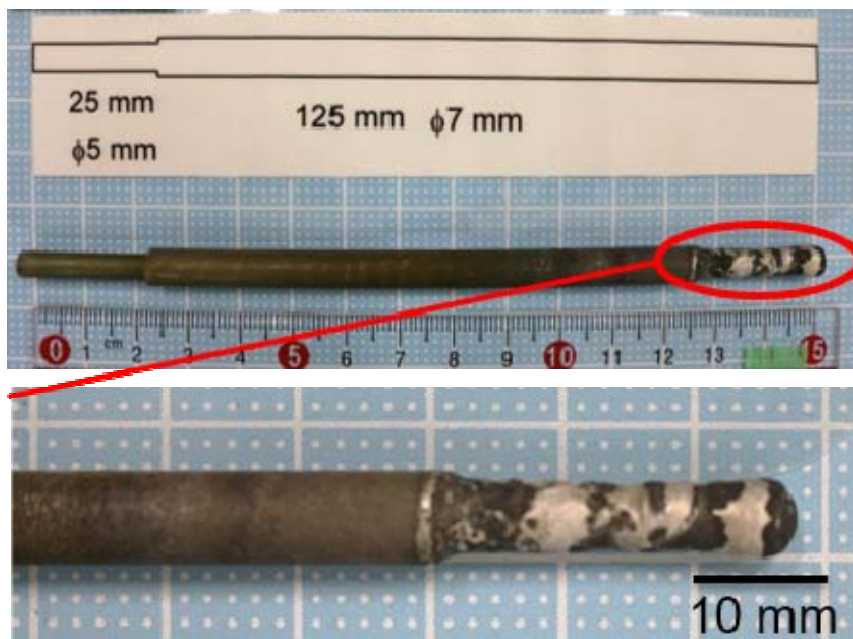


図 3-1-19. 回転浸漬試験後の試験片外観

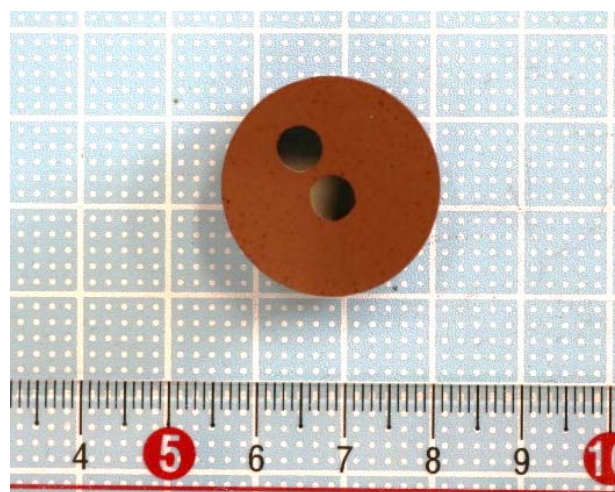


図 3-1-20. 樹脂埋め試料

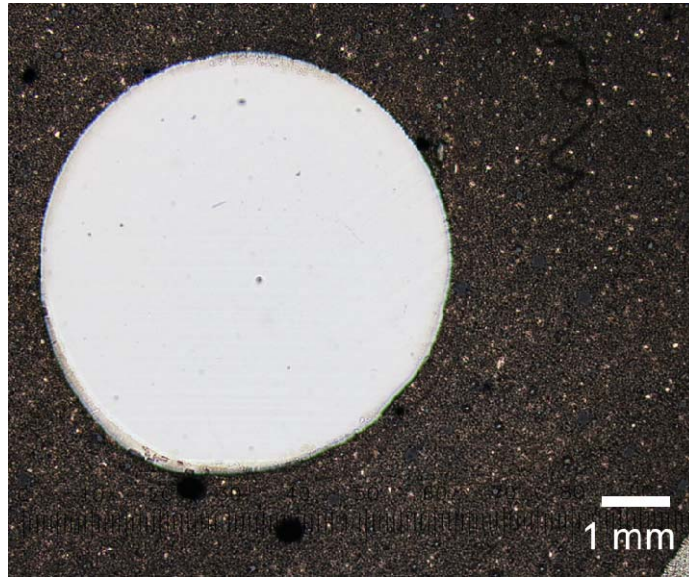


図 3-1-21. 回転浸漬試験後 断面 OMI

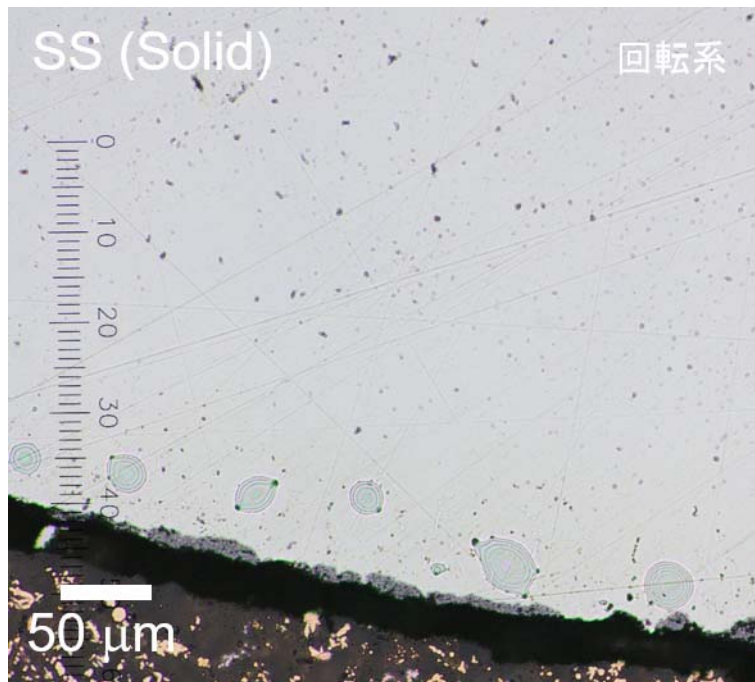


図 3-1-22. 回転浸漬試験後 断面端部 OMI

動的条件下での破損速度の評価

SS 固相の破損速度を評価する。SS 固相の破損量を測定するために、ノギスで浸漬部の直径を測定する手段も考えられるが、付着した熔融物が誤差原因となるため、本研究では試験片断面から、SS 固相の断面積を求めた。図 3-1-21 に示した OMI から、画像解析ソフト Image J を使用して、SS 固相部の面積を算出した。図 3-1-23, 3-1-24 に SS-AR および SS-HT1573 の浸漬に伴う SS 固相の断面積変化を示す。回転速度の増加に伴う、固相破損量の増加が確認された。

ここで破損が進むと、SS 試験片の浸漬部表面積が変化するため、表面積変化を考慮した半径の減少量を求める。試験片の浸漬部が均一に破損した場合、破損体積と破損速度の関係は下式で

表される。

$$V = \pi r_0^2 l_0 - \pi (r_0 - \Delta r)^2 (l_0 - \Delta l) \quad (6)$$

ここで V : 破損体積 [mm³], r_0 : 初期試験片半径 [mm], l_0 : 浸漬長さ [mm], Δr : 試験片半径方向破損長さ [mm], Δl : 試験片浸漬方向破損長さ [mm]である。本系では試験片底面での浸漬方向の破損は無視できると考え、

$$V = \pi r_0^2 l_0 - \pi (r_0 - \Delta r)^2 l_0 \quad (7)$$

と近似した。 $V/l_0 = \Delta S$ (:破損断面積)であるから、上式は

$$\Delta r = r_0 - \sqrt{r_0^2 - \frac{\Delta S}{\pi}} \quad (8)$$

と変形できる。図 3-1-25, 3-1-26 に SS-AR および SS-HT1573 の回転浸漬に伴う試験片の破損長さを示す。回転数が大きいほど破損速度(グラフの傾き)が大きいことがわかった。また、破損速度(グラフの傾き)が浸漬時間に依らず一定であるとみなせる ($R^2=0.80\sim 0.98$)。図 3-1-27 に各回転速度での SS 固相破損速度を示す。回転速度の増加に伴い、破損速度が直線的に増加すること、また、SS 固相の結晶粒径が大きいほど破損速度が増加することがわかる。本系での破損挙動は 1. Fe/B 間の共晶溶融による化学的破損と、2. メタル系溶融物が SS 結晶粒界に浸潤することによる結晶粒の脱離(物理的破損)の 2 種類であり、また、SS-AR, SS-HT1573 とともにその化学的性質は等しく、化学的破損速度は同じであると考えられることから、破損速度の差は、物理的破損速度の差に起因すると考えられる。つまり、動的条件下では、SS 固相の回転による溶融物/SS 固相界面での相対速度に起因するずり応力が、結晶粒の脱離を促進したと考えられる。

本試験で得られた破損速度を評価するために、他の類似した回転浸漬試験で報告されている値と比較する。図 3-1-28 に破損速度の比較を示す。ここで横軸に示される固相/液相界面の相対速度には、式(9)で表される SS 固相の周速度を用いた。

$$u = 2\pi r N \quad (9)$$

ただし、 u : 周速度 [mm/s], r : SS 固相半径 [mm], N : 回転速度 [rpm]である。また報告値として、溶融 Al 合金中の SKD61(鉄基合金)の破損速度[9], 溶融 Cu 中の Fe の破損速度[10], 溶融 Cu 中の Co の破損速度[11]を採用した。

試験条件が異なるため、直接比較することはできないが、定性的に、本系での破損速度が速いということがわかる。これは、本系は溶融物/SS 固相界面に中間化合物層を形成しないため、物質移動抵抗や化学移動抵抗が小さく、また、本系での破損メカニズムが他の試験系とは異なり、物理的破損であるためだと考えられる。

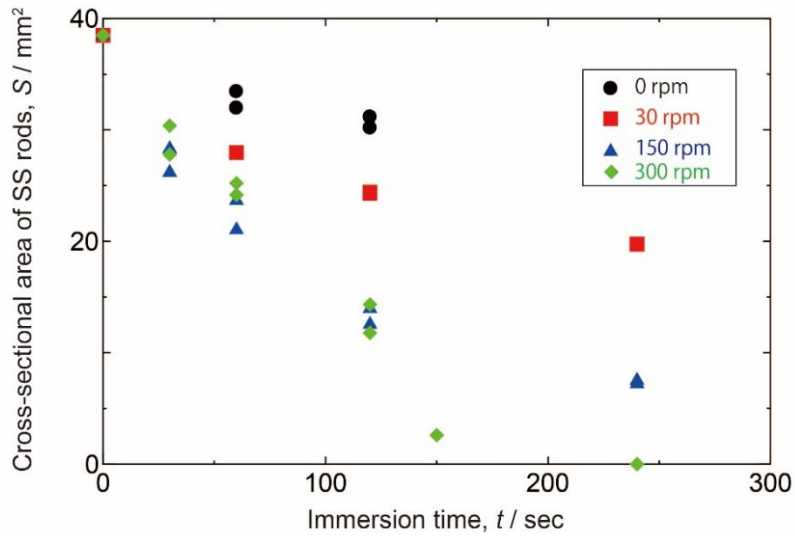


図 3-1-23. SS-AR の回転浸漬に伴う SS 固相の断面積変化

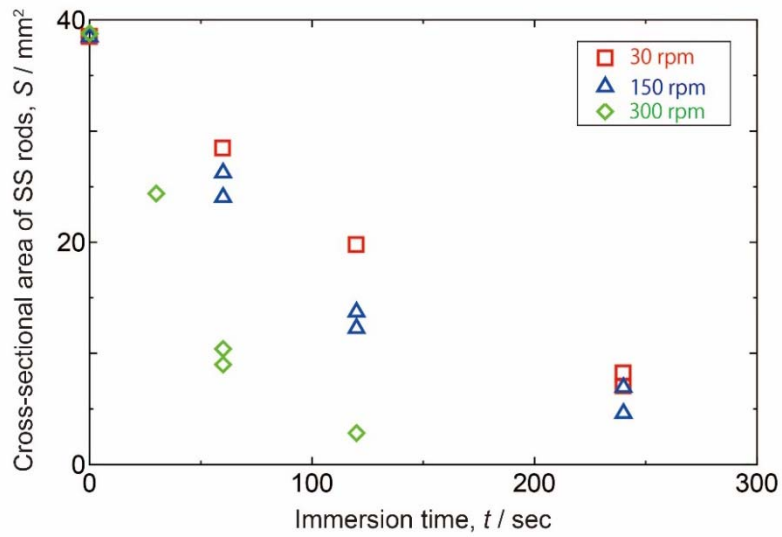


図 3-1-24. SS-HT1573 の回転浸漬に伴う SS 固相の断面積変化

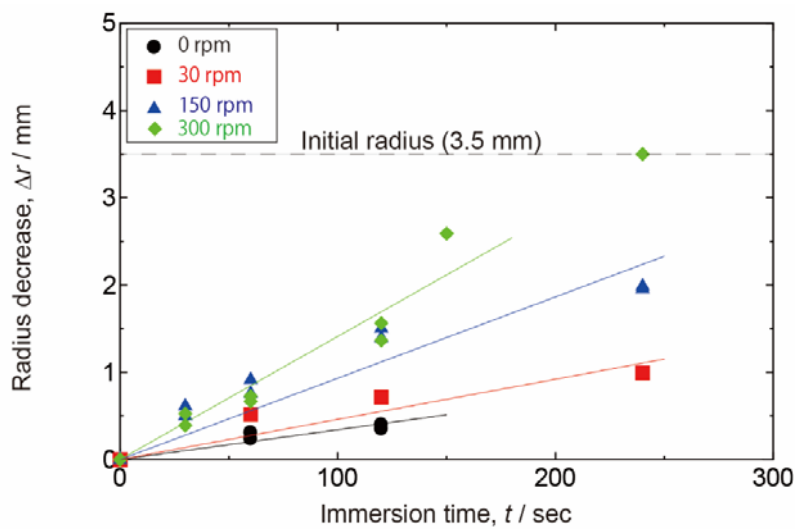


図 3-1-25. SS-AR の回転浸漬に伴う試験片の破損長さ

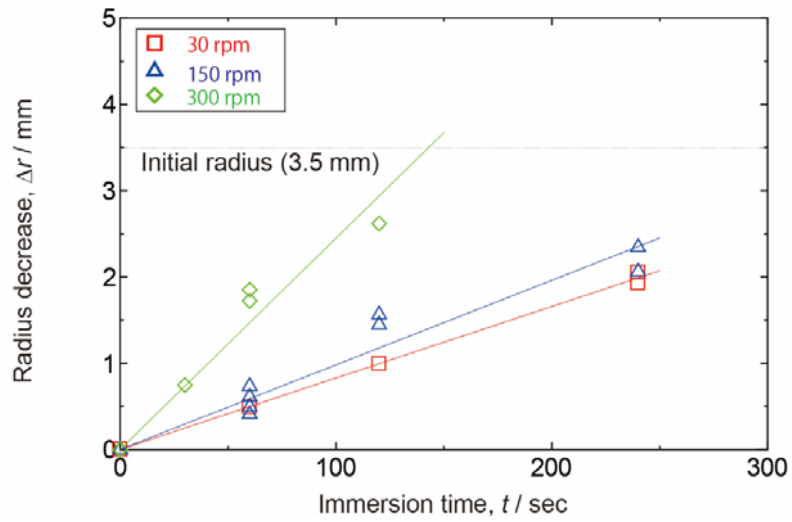


図 3-1-26. SS-HT1573 の回転浸漬に伴う試験片の破損長さ

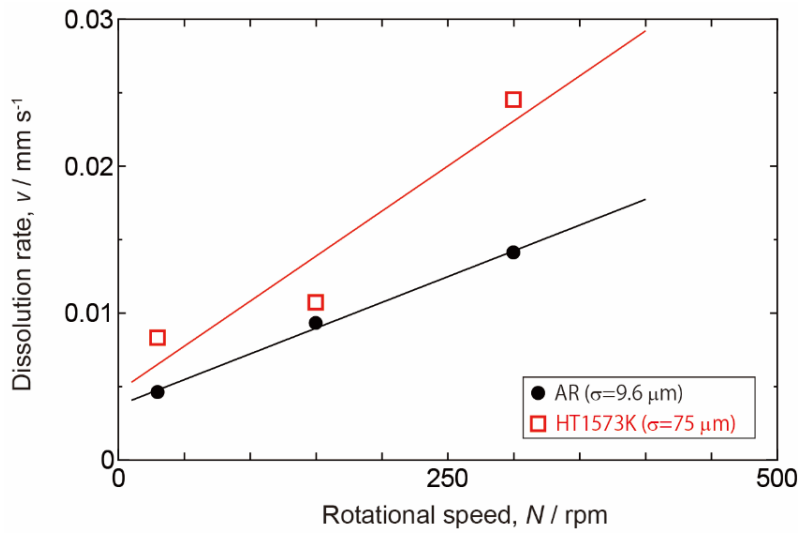


図 3-1-27. 各回転速度での SS 固相破損速度

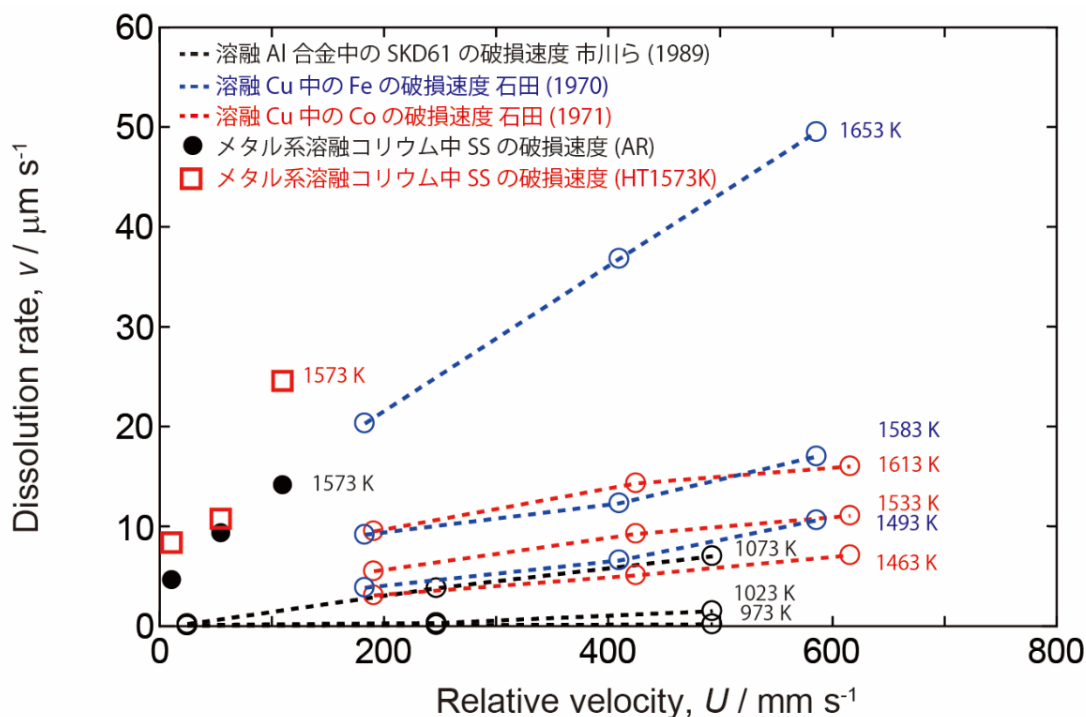


図 3-1-28. 破損速度の比較[9-11]

(4) メタル系溶融物中の元素(特に B)濃度の定量を目的とした, 分析方法の検討結果について

(4)-1 試験方法

ICP-OES によるメタル系コリウム(SS+B₄C 合金)の元素濃度定量

微量元素分析装置 (高周波誘導プラズマ発行分光分析装置, Induced Coupled Plasma Spectroscopy-Optical Emission Spectrometry: ICP-OES) を用いた, メタル系コリウム中の B 濃度の定量を行った. ICP-OES は湿式分析であるため, 合金を酸などにより溶液化する必要がある. (ホウ素含有率 1mass%以上の高濃度ホウ素含有鋼の B 定量は, 酸融解中に Cr 等のほう化物とみなされる未分解物が大量に残るため, JIS では未だ規格化されておらず, また, メタル系コリウムの B 濃度を定量した文献も見当たらない[12]) 本研究では, 硫酸リン酸分解法(JIS G1258-5:2017)および炭酸ナトリウム融解法(JIS G1258-6:2017)を参考とし, 両手順を組み合わせることで合金の完全融解を試みた.

試料溶液の作製

試料溶液の調整は次の手順によって行った.

- ① 適当な B 濃度のメタル系コリウムを, SS 304 粉末試料(18-20 % Cr, 8-11 % Ni, Mn < 2 %, Si < 1 %, Fe balance)と B₄C 粉末試料を混合後高温保持することで作製した. 作製方法は(2)-1 制御棒由来のメタル系溶融物模擬試料の作製と同様であった. 得られた溶融物模擬試料の秤量組成を表 3-1-2 に示す. 作製した合金は 4 種類であり, それぞれ B 質量濃度が 1.00, 2.00, 3.00, 3.71 mass%となるように秤量した.
- ② 合金約 0.1 g を量り取り, 石英ガラス製ビーカー(300 ml)に移し入れ, 石英ガラス製時計皿で覆った.
- ③ 塩酸(11 規定)15 ml, 硝酸(16 規定)10 ml, 硫酸(37 規定)5 ml, リン酸(44 規定)10 ml,

超純水 15 ml を加え、テフロン製回転子を投入後、室温で攪拌した。

- ④ 試料の分解が進まなくなった後、約 200 °C まで加熱後攪拌し、さらに試料の分解を行った。
- ⑤ 分解が進まなくなった後、室温付近まで放冷し、超純水を少量ずつ加え、シロップ状の溶液を薄めた。
- ⑥ この時点で、未分解の白い残渣(Cr のほう化物と考えられる、約 0.01 g)が確認されるため、ろ紙にて残渣を回収後、炭酸ナトリウム融解法を適用した。ろ液は主液として保存した。
- ⑦ 残渣をろ紙とともに白金るつぼに移し入れ、炭酸ナトリウム 0.1 g を加えた後、強熱し、るつぼの内容物を融解した。放冷した後、白金るつぼに塩酸 3 ml, 超純水 3 ml を加え、融成物を溶解し、保存していた主液に合わせた。
- ⑧ 得られた溶液を、250 ml のテフロン製全量フラスコに超純水を用いて移し入れ、超純水で標線まで薄めた。

表 3-1-2. B 濃度分析用溶融物模擬試料の秤量組成 (in mass%)

試料名	Fe	Cr	Ni	B	C
B 1mass%	73.1	17.8	7.90	1.00	0.278
B 2mass%	72.1	17.5	7.80	2.00	0.555
B 3mass%	71.2	17.3	7.69	3.00	0.833
B 3.71mass%	70.5	17.1	7.62	3.71	1.03

ブランク溶液および検量線用溶液の作製

本研究では微量元素である B 濃度の定量を目的とするため、その他の主成分である Fe, Cr, Ni の濃度は、試料溶液と同程度になるように調整した(マトリックスマッチング法)。ブランク溶液および検量線用溶液の調整は次の手順で行った。

- ① 純鉄粉末試料(C < 54 ppm, P < 2 ppm, S < 72 ppm, Si < 5 ppm, Mn < 8 ppm, Ti < 1 ppm, Cu < 6 ppm, Ni < 21 ppm, Cr < 2 ppm, Fe balance)を試料溶液の作製と同様の手順で溶解後、100 ml のテフロン製全量フラスコに超純水を用いて移し入れた。
- ② クロム標準液、ニッケル標準液、ほう素標準液(濃度それぞれ 1 mg/mL)を適量加えた後、超純水で標線まで薄めた。調整した検量線用溶液は 3 種類であり、B 濃度はそれぞれ 0, 25, 50 $\mu\text{L}/\text{ml}$ であった。

発光強度の測定

上記操作で得られたブランク試料と検量線用試料の一部を ICP-OES のアルゴンプラズマ中に噴霧し、ほう素の発光強度を測定した。ほう素は、他の成分に比べてスプレーチャンパー内に対流する時間が長いため、洗浄時間を通常より長くにとって測定を行った。また、各試料溶液の

測定の間、ブランク試料の発行強度を測定し、その強度が定常強度まで下がったことを確認した後に次の測定を行った。また代表的な B の分析線のうち、249.77 nm, 249.68 nm, 208.96 nm, 208.89 nm, 182.64 nm は Fe や Cr, Ni の分析線と干渉するため、本研究では 182.59 nm を分析線として使用した。ここで短波長領域(200 nm 以下)では空気中の酸素による光の吸収があるため、分析装置内を窒素で十分パージした後に分析を行った。

EPMA によるメタル系コリウム(SS+B₄C 合金)の元素濃度定量

メタル系コリウムの組織観察と同時に組成分析が可能な、電子線を用いた B 濃度の定量法を開発することは、破損形態の解明に有用である。そこで本研究では EPMA による B 濃度の定量を試みた。表 3-1-2 に示した各濃度の試料を樹脂埋め後、SiC ペーパー(#100-#2000)とダイヤモンドペースト(5 μm, 1 μm)により鏡面研磨を施した。EPMA により得られる特性 X 線の発光強度を濃度に変換する方法には、ZAF 補正法や $\phi(\rho z)$ 法、検量線法などがある。一般には ZAF 補正法を用いて簡易的に定量を行うが、メタル系コリウム中の B は軽元素であり、ZAF 補正法での定量では誤差が大きくなると考えられる。そこで本研究では、鋼中の炭素の分析などに使用される、検量線法を採用した。点分析時の加速電圧は 15 keV、ビーム電流は 10 μA、分析時間は 20 ms、分光結晶は LDE2H を用いた。

(4)-2 試験結果および考察

ICP-OES による分析

図 3-1-29 に得られた波長プロファイルの一例を示す。高強度を示す青色のプロファイルが標準試料、間の濃青色のプロファイルが測定試料、低強度を示す緑色のプロファイルがブランク試料である。他元素による干渉などによるピーク形の偏りなどは見られず、B の分析に成功していることがわかる。図 3-1-30 に得られた検量線を示す。R²>0.999 の直線性良い検量線が得られた。得られた検量線を用いて定量した、各試料の B 濃度を表 3-1-3 にまとめる。概ね秤量時の組成に近い値が得られた。いずれの試料でも、定量値が秤量値より小さくなったが、これは合金作製時に、SUS304 粉末に比べて軽い B₄C 粉末が Ar 気流などにより飛ばされた結果であると考えられる。また、本測定条件下での検出下限値を測定したところ、3.5 ppm であり、今回得られた値は 1mass%試料でも 3.9 ppm であったことから、有意な値であることがわかった。以上より、メタル系コリウム(SS+B₄C)合金中の B 濃度の湿式分析方法の確立に成功した。

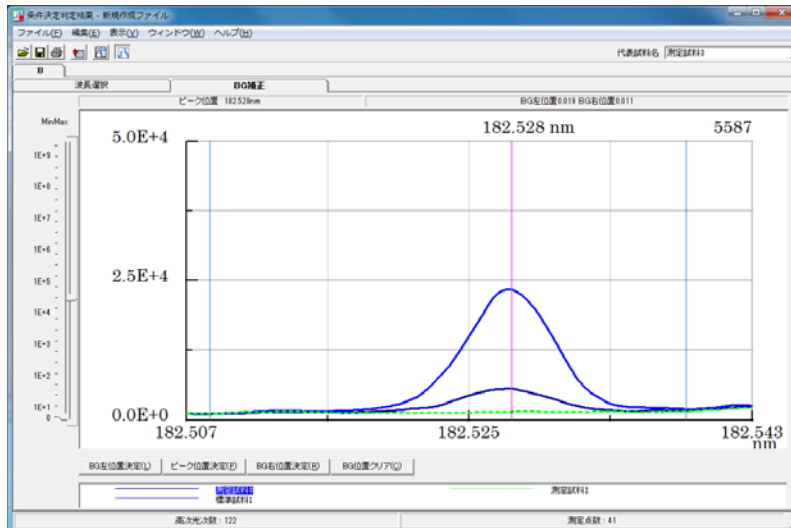


図 3-1-29. 得られた波長プロファイルの一例

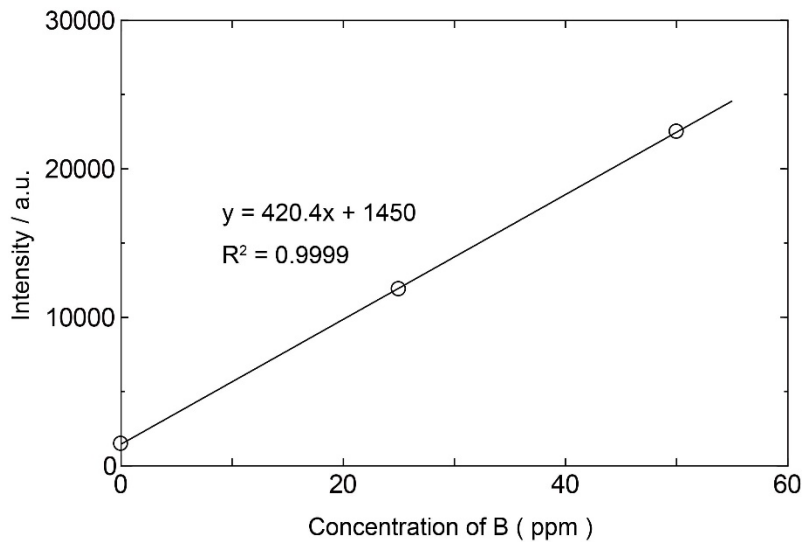


図 3-1-30. ICP-OES 分析により得られた検量線

表 3-1-3. ICP-OES での B 定量結果 (in mass%)

試料名	B 1mass%	B 2mass%	B 3mass%	B 3.71mass%
秤量組成	1.00	2.00	3.00	3.71
ICP-OES 定量値	0.937	1.78	2.63	3.54

EPMA による分析

図 3-1-31 に 3.71 mass% 試料の反射電子像を示す。組織観察の結果，メタル系溶融物が冷却時に 2 相分離することがわかる。過去の報告[13-15]から明部は Ni が濃化 Cr が欠乏した鋼，暗部は Fe と Cr のほう化物だと考えられる。ここで EPMA の点分析により，2 相分離する直前の相中の B 濃度を定量するため，電子線のビーム径を 20 μm とし，分離した両相の平均的な値を得られ

るようにした。測定は 100 μm 毎に 4 点 \times 4 点の合計 16 点の分析を行い，得られた平均値を試料中 B の特性 X 線強度とした。図 3-1-32 に EPMA と ICP-OES 分析で得られた結果から作製した検量線を示す。 $R^2 > 0.9$ の直線性のある検量線を得ることができた。

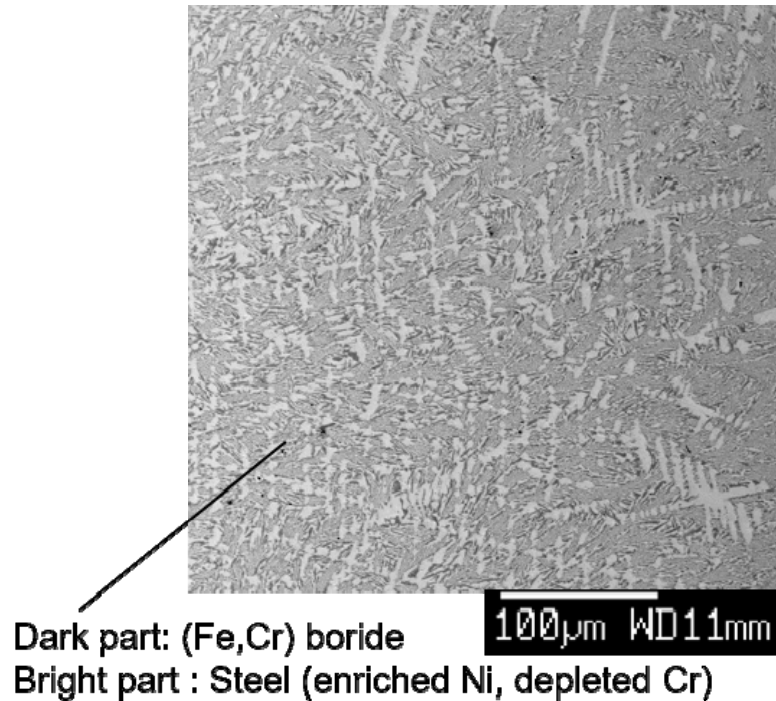


図 3-1-31. 3.71 mass%試料の反射電子像 (BEI)

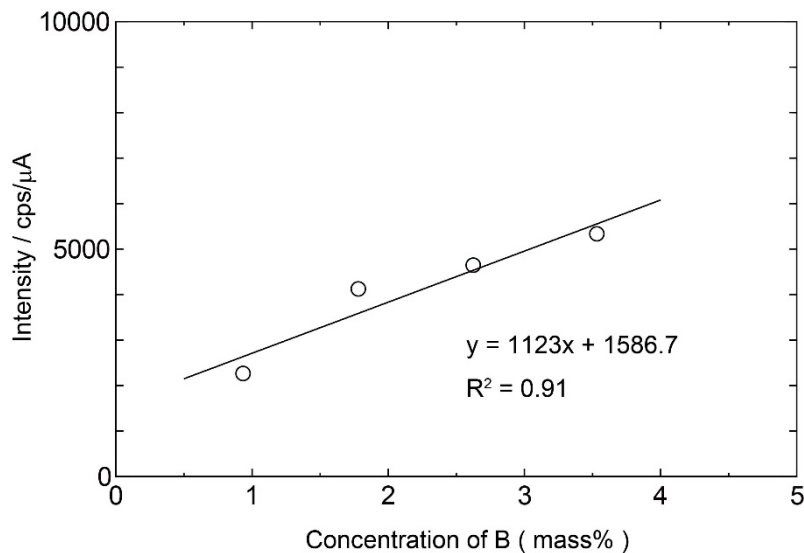


図 3-1-32. ICP-OES と EPMA 分析から作製した検量線

参考文献

- [1] 秋山哲也、寺崎敏夫：日本金属学会誌, 52,8 (1988) 792-796.
- [2] JOSHI, A.; STEIN, D. Ff., *Corrosion*, 28.9 (1972) 321-330.
- [3] MISHIN, Yu; HERZIG, Chr., *Materials Science and Engineering: A*, 260.1 (1999) 55-71.
- [4] KAUR, Inderjeet, Mishin Yuri, Gust Wolfgang, *Fundamentals of grain and interphase boundary diffusion*. John Wiley,
2: Analytical Models of Grain Boundary Diffusion, (1995) 13-215.
- [5] HARRISON, L. G.; Trans. Farad. Soc. 57 (1961) 1191.
- [6] DIVINSKI, Sergiy; LOHMANN, Maik; HERZIG, *Interface Science*, 11.1 (2003) 21-31.
- [7] SURHOLT, T.; MISHIN, Yu M.; HERZIG, Chr., *Physical Review B*, 50.6 (1994), 3577.
- [8] Magnusson, Hans, and Karin Frisk. "TR-13-24 Sulphur and Phosphorus in Copper." (2013):
n. pag. Print
- [9] 市川 二郎, 須藤 興一, 大木 武博, 河辺 訓受, *電気製鋼* 60.4 (1989) 343-353.
- [10] 石田恒雄, *溶接学会誌* 39.4 (1970) 259-268.
- [11] 石田恒雄, *溶接学会誌* 40.10 (1971) 1032-1038.
- [12] 日本規格協会. 金属分析 I, 鉄鋼. JIS ハンドブック 50 (2017) 970.
- [13] Shibata H, Sakamoto K, Ouchi A, Yamano H., *J Nucl Sci Technol*. 52 (2015) 1313-1317.
- [14] Nagase F., *Journal of the Atomic Energy Society of Japan*. 56 (2014) 235-239/
- [15] 第六回溶融事故における核燃料関連の課題検討ワーキンググループ 議事録 (Oct. 15, 2012)

3.1.2 スラグ系デブリへのステンレス鋼の溶解挙動試験と解析 (H27-H29)

(1) 試験・解析の目的と概要

沸騰水型原子炉の炉心は燃料棒と制御棒のアセンブリで形成されており、過酷事故時には制御棒から燃料棒への逐次溶融・落下と、双方の共倒れによる混合融体としての落下の2つのケースが考えられる。前者の場合、溶融燃料棒すなわち、 UO_2 燃料と燃料被覆管のZr合金であるジルカロイの混合溶融物が生成し、それが溶け残ったステンレス製炉心下部構造物を損傷させる。その基本系であるZr(O)- UO_2 系融体へのステンレス鋼 SUS304 棒の溶解挙動を調べるための、同系融体の溶融に適した金属の溶解装置・コールドクルーシブル型浮揚溶解炉を用いた実験実施に向けて、本溶解方法に関して高い技術を持つCVR研究所と連携し、研究打合せ、手続き、実験直前の実験条件の打ち合わせを行い、本外注実験のための契約書であるAgreementに明記されているように、高周波電源を用いた放射性物質の溶解に関するチェコ共和国政府当局の許可の範囲で、材料購入、予備試験、本試験へ向けての入念な準備を行った。

(2) 実験条件の検討

平成27年度において、 UO_2 と ZrO_2 からなるデブリとこれにZrを追加したデブリの組成で行うことの提案がなされ、外注予定のCVR研究所では、現存のコールドクルーシブルの性能と装置内雰囲気ではZrを追加した金属質のスラグの溶解は困難であるため、順序を追って、①まず UO_2 - ZrO_2 二元系融体をこの従来炉で溶解し、②その後、同系にZrを添加した溶解を行い、実験装置と溶解材料とマッチング、試料のサンプリング、ステンレス棒の浸漬溶解実験を行うこととした。溶解組成は①には70mass% UO_2 + 30mass% ZrO_2 (Corrium 100)、②には70mass% UO_2 + 30mass% (20mol% ZrO_2 +80mol%Zr)(Corium 20)を候補とすることとした。

(3) 実験装置整備および予備実験

最大出力160kW、周波数2.0MHzの電源を備え、250cm³の体積、重量にして約1kgのコリウムの溶解および約3000℃までの昇温が可能な浮揚型誘導溶解炉、通称コールドクルーシブルを用いて実験を行うための調整を行った。コールドクルーシブルの各セグメントからなる銅坩堝に対する誘導コイルの位置決めを行い、効率的な電流を誘導するためのマッチングが重要であることを示した。測温は光高温計、映像撮影は赤外線カメラを用いて行った。本装置は本実験のためサイズや出力を拡張したため、安定した溶解に向けた調整が必要となり、 UO_2 - ZrO_2 系に2mass%の Gd_2O_3 を添加した予備実験を考案した。溶解状態の解析を試みるために、銅棒を溶融体に浸漬してサンプリングを行ったところ、白色の試料が万遍なく付着し、完全な溶融体となっている可能性が示唆された。また、本実験の溶解浸漬に用いるステンレス鋼はSUS304タイプで直径が10mmのロッド状であり、中心部に穴をあけて、熱電対を装入し、直接測温も可能な仕様とした。浸漬時間を検討するため、温度上昇挙動をSUS309Lを対象として見積もったグラフを図3-1-15に示す。浸漬後、4秒程度で完全溶解することが予想され、浸漬時間について検討をして実験を行うこととした。

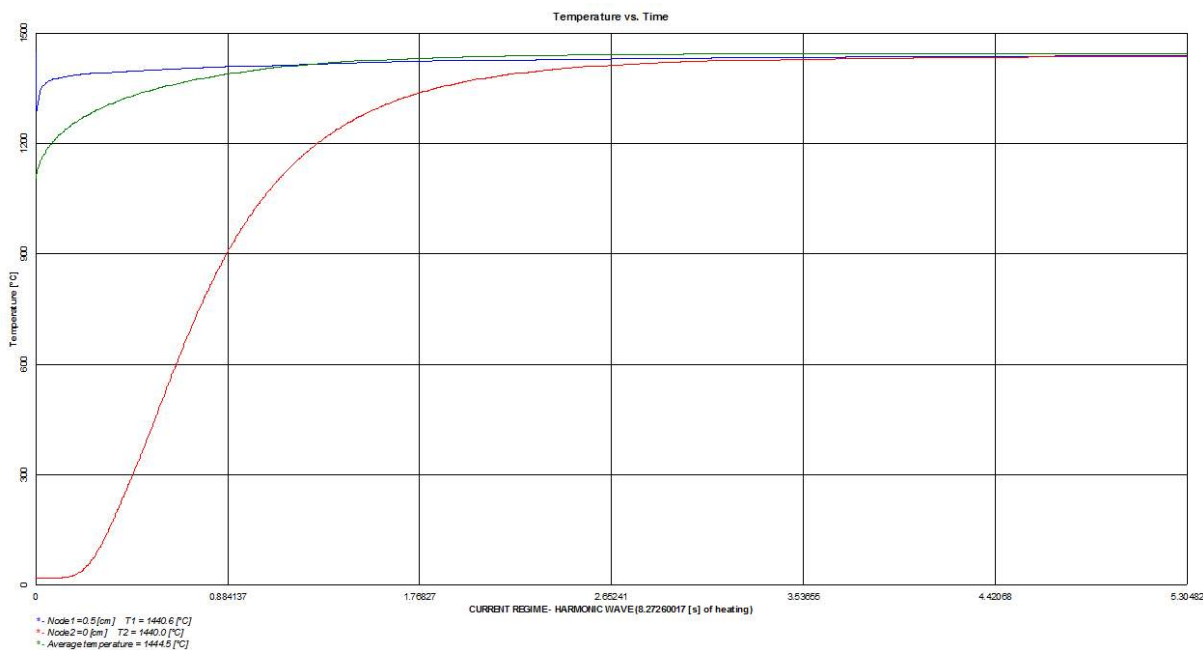


図 3-1-33. 熔融コリウムへの浸漬時間と直径 10mm のステンレス鋼の温度の関係の見積もり

(4) 本実験の実施と実験結果および考察

上記検討結果、および試験進行上の熔融状態を踏まえた条件設定により、本試験は、①C100 タイプのコリウム (70wt%UO₂+30wt%ZrO₂, 合計 1000g) の熔融試験および同コリウム中への SUS316 ステンレス鋼 (直径 1cm) 熔融実験、② C70 タイプのコリウム (70wt%UO₂+30wt%(70mol%ZrO₂+30mol%Zr), 合計 1000g) を用いた同実験、③C50 タイプのコリウム (70wt%UO₂+30wt%(50mol%ZrO₂+50mol%Zr), 合計 1000g) を用いた同試験として実施した。ステンレス鋼の浸漬時間は、①5, 10, 10s、②3, 5, 2s (ただし、2s の実験のみ、700°Cまで予熱)、③3, 5, 7s として行った。全ての実験において、コールドクルーシブルに生成エアロゾル排出用のアルゴンガスを導入するための石英チューブを備え付けた装置で、2000°C~2600°Cまで昇温・コリウムを熔融した。金属ジルコニウムを用いる場合は、小片ジルコニウムを 2h にわたって少量ずつ加える方法で完全に溶解することに成功した。十分に熔融した後、ステンレス鋼を導入銅棒の先に固定したデバイスで炉の上部から熔融コリウム中に浸漬させ、所定の浸漬時間の後、取り出した。その後、取り出したステンレス鋼の溶解挙動、コリウムの熔融挙動を観察することにより、溶解挙動およびメカニズムを考察した。

その結果、C100 コリウムの場合は、5s の浸漬では、ステンレス鋼の先端部分が残存していたのだが、10s の実験では、2 回とも熔融コリウム表面の断面で、完全に切れており、熔融が進んで、切断されるように先端がコリウム中へ溶け落ちたことが予測された。このことを受け、C70 コリウムの実験では、より短い浸漬時間としたところ、3, 5s では、浸漬時間が長くなるにつれ、段階的に熔融が進んだこと、先端部分を 700°Cまで予熱した 2s の実験では、溶損が激しかったことがわかった。C50 の実験でも、3, 5, 7s と浸漬時間が長くなるにつれ、やはり熔融が進んでいる様子が観察された。一方で、すべての実験後のステンレス棒鋼の溶損部分は基本的には丸形で、表面に、化学溶解をしたときに特有の凹凸のような表面状態が見られなかったこと、溶損状況は、浸漬時間と強い相関があること、特に予熱した際には溶損が顕著であったことから、本系コリウ

ム中へのステンレス鋼の溶解は、熱的な溶融が支配しており、しかも 10s に満たない時間で完全溶融するような熱流動があり、化学溶解の支配ではないことがわかった。さらに、本溶融コリウムの溶融中の表面状態から、溶湯内部の活発攪拌が観察され、表面で冷えては側面に移動してまた内部に対流する様子が見られたが、表面の方が温度が低いことによる表面の色彩上の変化はあるものの、溶融相としては一相であることが観察された。 UO_2 - ZrO_2 系の状態図として図が知られており、本実験温度では、一液相であること、Zr のような金属成分が大幅に増えると図で示されるような二相分離が予測されるものの、その濃度まで到達していないことから、一相であることは妥当であると考えられる。

このように、酸化物が主相であり、金属ジルコニウムを最大約 15wt%含有したとしてもほぼ UO_2 と ZrO_2 の存在が優勢な一相の溶融コリウムでは、ステンレス鋼成分の金属元素の化学的溶解は数秒という短時間ではほぼ起こらず、熱容量の大きい酸化物融体からの、伝熱性の良い金属への熱の移動による溶融が支配因子であることが妥当であると考えられ、例えば福島第一発電所 2 号機のペDESTAL内下部のグレーチングが下方に大きく変形している様子が観察されたのも、溶融コリウムからの熱移動による熱変形によるものと考えられる。

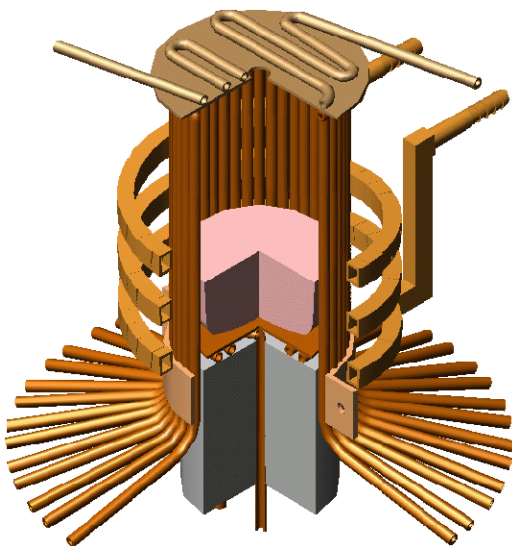


図 3-1-34. コールドクルーシブル外観図



図 3-1-35. 石英チューブの取り付け写真

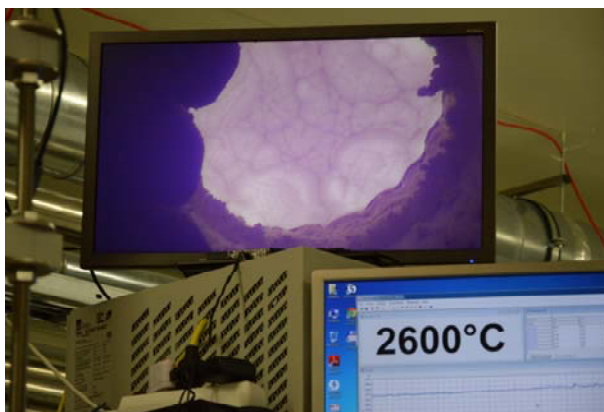


図 3-1-36. コリウムの溶融写真

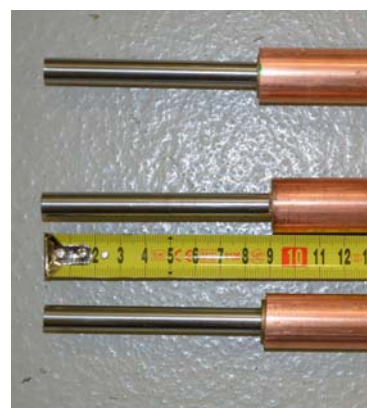


図 3-1-37. ステンレス鋼棒の取り付け先端写真

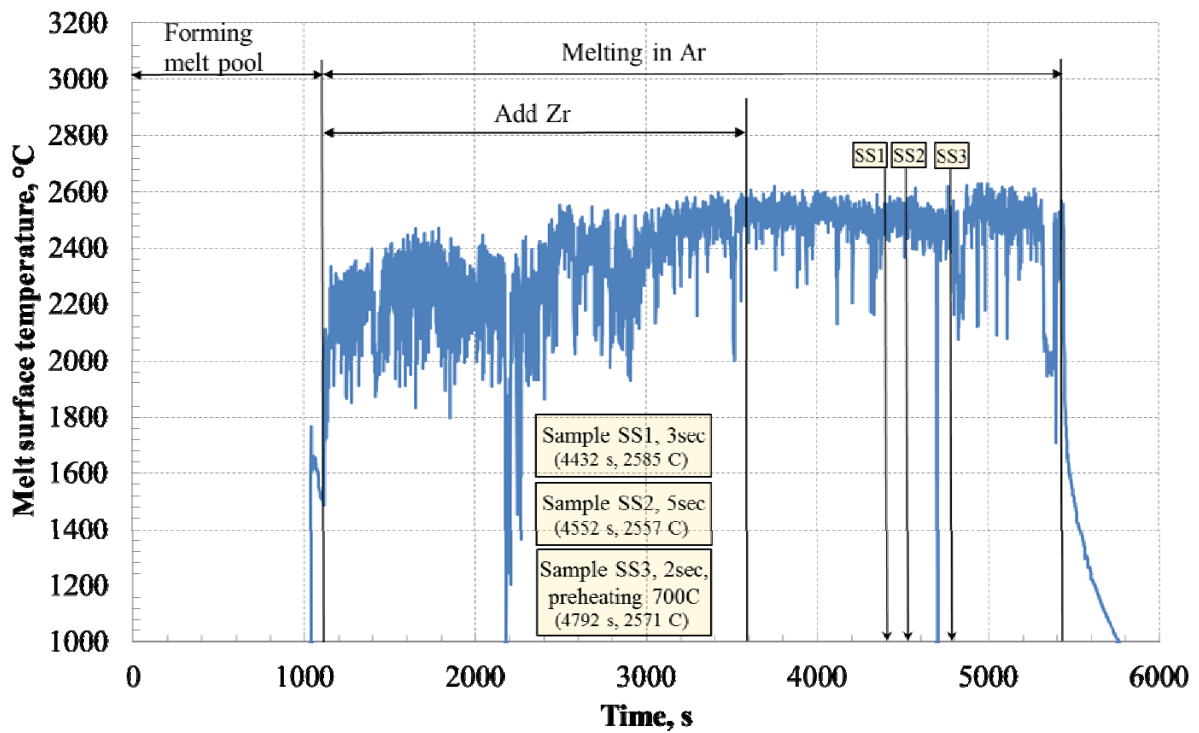


図 3-1-38 C70 コリウムでの実験中の温度変化

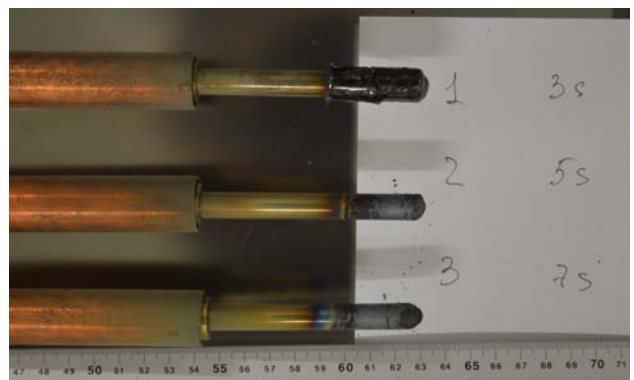


図 3-1-39. C70 での浸漬実験後の SUS 先端写真 図 3-1-40. C50 での浸漬実験後の SUS 先端写真



図 3-1-41. 実験後のコリウムの写真

3.2 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：東北大学）

3.2.1 制御棒およびジルカロイの溶融に関する試験（H27-H28）

(1) 背景と目的

沸騰水型原子炉のシビアアクシデント（SA）下で炉心溶融が発生する場合、燃料棒集合体の溶融に先んじて、融点の低い制御棒が溶融する。福島第一原子力発電所の制御材は B_4C を用いているため、事故ではまず B_4C とクラッドチューブ材料の SUS304L (SUS) の溶融が進行し、生成した溶融物と、燃料棒のチャンネルボックスが接し、溶融あるいは軟化崩落が進行した可能性がある。

福島第一原子力発電所廃炉に向けて炉内に残存するデブリを取り出す必要があるが、炉内の構造物の状態およびデブリの存在位置および状態が不明である。デブリの状態を高精度に推定するためには、初期の溶融および制御棒と燃料棒を含むチャンネルボックスの溶融メカニズムを探求し、液体の移動および炉内構造物との反応の解析のための情報とすることが有効である。

そこで、制御棒の高温安定性を評価するために、制御棒材料である SS と B_4C が共存するときに起こる反応を検討する必要がある。 B_4C は単体では高温で安定であり^{1, 2)}、非酸化性雰囲気下での B_4C と SS との反応が検討されてきた³⁻⁶⁾。1200℃以下では B_4C と SS との反応進行が遅いことが報告されている^{3, 4)}。しかし H_2O 共存下では、1200℃以下での B_4C は化学反応を起こし、 HB_2O_2 、 H_3BO_3 、や B_2O_3 を生成し⁷⁾、その反応速度も研究された。 B_4C の酸化は表面に生成する B_2O_3 内の酸素の透過性に律速される⁵⁾。これらの反応より B_4C の融点以下でも B_2O_3 の生成により液相が生成する。炉内には水が存在するため、燃料棒、制御棒の崩壊時には SS クラッドチューブ内の B_4C は気相に暴露され、 H_2O と反応する⁸⁾。しかし、 B_2O_3 の共存下では低温域においても SS と融体を生成する可能性がある⁹⁾。

SA 時には炉内の温度は 500K (227℃) から 2500K (2227℃) 以上までの広い温度域であったことが記録された。その間注水作業や排気が行われたため雰囲気が変化した。基本的な炉内雰囲気は H_2O であるが、炉内構造物の酸化により H_2 が発生する可能性があり、また注水時の随伴ガスとして空気や窒素が導入される可能性がある。本試験では、制御棒から発生する融液を対象とするため、固液が共存する温度域を試験温度とした。炉内の多用な条件に対応できるように雰囲気として H_2O 、 N_2/H_2O 、 H_2O/H_2 、 $N_2/H_2O/H_2$ 混合ガスを選択した。ここで、 N_2 の影響を明確にするために、 N_2 を用いない場合には不活性なキャリアガスとして Ar を用いた。

以上の目的と条件により、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に関する試験と解析を進行した。29 年度は、制御棒およびジルカロイの溶融に関する試験、制御棒およびジルカロイの固液反応速度に関する試験を行った。

シビアアクシデント下において実炉内で発生しうる雰囲気をシビアアクシデント解析コード等の情報を基に設定し、制御棒由来融体および表面酸化を行ったジルカロイの接触溶融試験を行った。実験用炉内を所定の温度（1000℃-1200℃）に加熱し、 $H_2/H_2O/Ar$ フローで制御した雰囲気下で、SUS304 システンレススチールを接触させた試料を、炉内の高温部に置き反応進行の試験を行った。ジルカロイ表面の酸化相生成を制御し、ステンレススチール系融体とジルカロイの溶融反応試験の検討を行い、ジルカロイ表面に酸化

膜の影響を含んだステンレス系融体に対するジルカロイの溶融速度測定を実施した。

(2)試験方法

燃料棒材料である Zircaloy-4 と制御棒材料である SUS304-B₄C 系合金の融体(ステンレス鋼系融体)との高温水蒸気雰囲気下における反応に及ぼす Zircaloy-4 表面の酸化相の影響を検討することを目的とした。

SA 時の炉内状況下において制御棒が融体となりチャンネルボックスに接触する状況を想定し実験条件を設定した。あらかじめ、制御棒材料である SUS304 と B₄C の合金融体を作製し、その合金と酸化相形成済みの Zircaloy-4 とをるつぼ内で反応させるものとする。SA 時には炉内は高温の水蒸気ガスが多量に発生していることを考慮し、実験雰囲気は主に H₂O/Ar を用い、反応温度は制御棒が融体として存在し Zircaloy-4 が固体として存在する 1300°Cとした。

本実験では任意に酸化相の厚さを制御した酸化相形成済みの Zircaloy-4 とステンレス鋼系融体との反応を検討することを目的としているため、2 種類の試料を事前に作製し実験を行った。以下に Zircaloy-4 の酸化相形成とステンレス鋼系融体の生成方法について述べる。

まず、Zircaloy-4 とステンレス鋼系融体との反応に対する Zircaloy-4 表面の酸化相の影響を検討するため、表 3-2-1 に示す組成の縦 18mm、横 8mm、厚さ 1mm に切り出した Zircaloy-4 合金 (Nilaco 製) の表面にあらかじめ酸化相を形成させた試料を作製した。酸化相の形成については前年度の Zircaloy の酸化試験結果を元に酸化相の厚さを制御し、Zircaloy-4 試料とした。本実験に用いた試料の作製条件としては、1200°Cの H₂O/Ar 雰囲気下における 15min の加熱と、1200°Cの H₂O/N₂/Ar 雰囲気下における 2.8min の加熱の 2 条件である。詳細なガス組成等を表 3-2-2 に示す。これらの条件により酸化相の膜厚を約 100µm に制御した。また、比較実験に用いる試料として、酸化相を形成していない試料も準備した。図 3-2-1 に、酸化相形成済みの Zircaloy-4 試料の断面写真を示す。雰囲気によって酸化相の構造が異なることがわかる。

表 3-2-1 Chemical composition of Zircaloy-4 alloy investigated, wt%.

Zr	Sn	Hf	O	Cr
94.89	1.75	2.32	1.02	0.03

表 3-2-2 Gas composition at Pre-oxidized Zry-4 sample preparation.

Steam flow rate [ml/min]	Ar flow rate [ml/min]	N ₂ flow rate [ml/min]	Atmosphere of pre-oxidizing Zry-4	Reaction time [min]
80	300	0	H ₂ O/Ar	15
80	300	80	N ₂ /H ₂ O/Ar	2.8

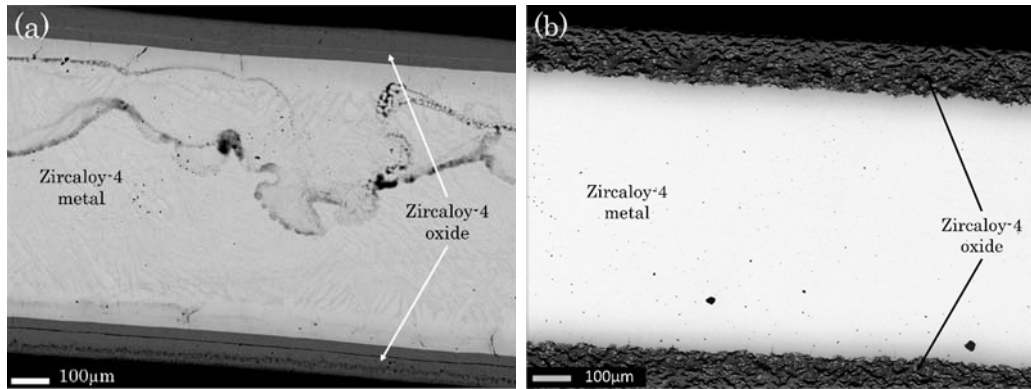


図 3-2-1 Cross section of Pre-oxidized Zircaloy-4 with about 100 μm thick oxide. (a) oxidized in $\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ atmosphere for 15min; (b) oxidized in $\text{N}_2/\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ atmosphere for 5min.

制御棒由来のステンレス鋼系融体を模した合金を作製するために、制御棒材である SUS304 と B_4C をプリメルトして 4.5wt% B_4C 含有 SUS304 合金を事前に作製した。86.0g の SUS304 ステンレス小片及び粉体と 4.0g の B_4C の粉体を混合し、縦型電気抵抗炉を用いてアルミナるつぼ中で 1300 $^\circ\text{C}$ の Ar 雰囲気下で 90min 加熱した。加熱後、炉から取り出して水で急冷した後、小片に切り出し、ステンレス鋼系融体試料の母材とした。冷却後に FE-EPMA で分析した組成を表 3-2-3 に示す。

表 3-2-3 Chemical composition of 4.5wt% B_4C SS alloy, wt%.

Fe	Cr	Ni	B	C
58.02	13.06	6.89	1.98	0.92

上記の手順で作製した酸化相形成済みの Zircaloy-4 小片 1 枚とステンレス鋼系融体を 5.0g 用い、図 3-2-2(a)に示すようにジルコニアるつぼに入れ反応試料とした。試料の加熱には、図 3-2-2(b)に示すように前年度までに用いたものとほぼ同様の縦型電気抵抗炉および水蒸気発生装置を用いた。

あらかじめ炉の均熱体を 1300 $^\circ\text{C}$ に制御し均熱帯温度を安定化させるために 30min 保持した。次に、Zircaloy-4 試料を Pt ワイヤー(直径:0.5mm)と Fe ワイヤー(直径:1.0mm)で固定し、反応管上部からおおよそ 10cm の位置に保持しゴム栓で反応管を密閉した。この位置の温度はおおよそ 60 $^\circ\text{C}$ であった。反応管内の空気を除去するために、反応管内に 2.8L/min の流量で 10min 間高純度 Ar ガスを導入した。その後、炉内に Ar ガスを前章でも用いた水温 70 $^\circ\text{C}$ に保持した水蒸気ガス発生装置を介して 300ml/min の流量で 30min 流すことで $\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ 混合雰囲気を炉内に導入した。このとき H_2O ガスの流量は 80ml/min とした。炉内雰囲気置換後、試料を炉内の 1300 $^\circ\text{C}$ の均熱体に降ろし、任意の時間保持した。用いた条件を表 3-2-4 に示す。任意の時間保持した後、反応管から試料を直ちに取出し、He ガスを直接吹き付け急冷した。冷却後、試料を樹脂埋めし Zircaloy-4 の断面が観察できるように切断し、切断面が下部になるように再び樹脂埋めし研磨を行った。また、

その断面にカーボンコーティングを行い、SEM-EDS 及び FE-EPMA を用いて観察および組成分析を行った。画像処理及び各相の厚さの測定には Image-Pro Plus 7.0J を用いた。

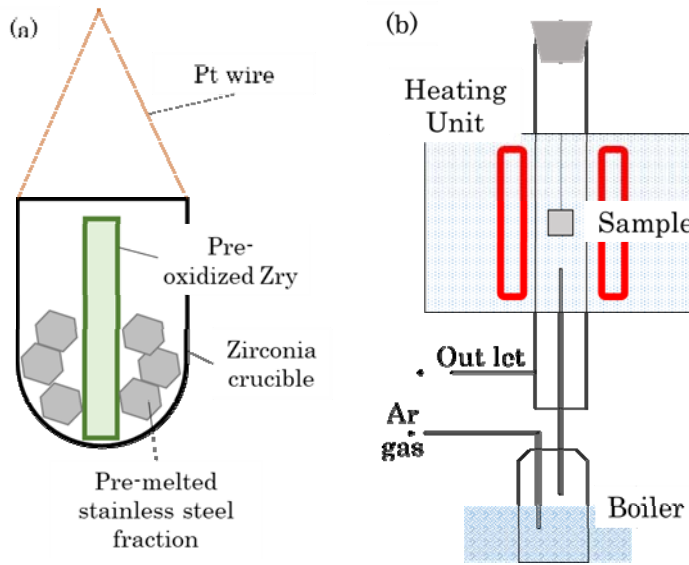


図 3-2-2 Experimental set-up.

表 3-2-4 Gas composition at experiment.

Steam flow rate [ml/min]	Ar flow rate [ml/min]	Reaction time [min]
80	300	5
80	300	15
80	300	60
80	300	90
80	300	180

(3)試験結果

Zircaloy-4/ステンレス鋼系融体間の反応に対する Zircaloy-4 酸化相の影響を示すために、酸化相を伴わない Zircaloy-4 とステンレス鋼系融体を 1300°C、H₂O/Ar 雰囲気下で 60min 反応させた試料の断面を Figure 3-3(a) に示す。プレート状であった Zircaloy-4 は原形をとどめておらず、ステンレス鋼系融体との接触によって溶解したと考えられる。また、H₂O/Ar 雰囲気下で形成した酸化相を有する Zircaloy-4 をステンレス鋼系融体に対して 1300°C で 60min 反応させた試料の断面を図 3-2-3(b) に示す。中央の白色部は Zircaloy-4 の金属相であり、左右の黒灰色部はステンレス鋼系融体である。また、その界面は Zircaloy-4 の酸化相である。図 3-2-3(b) から明らかなように、Zircaloy-4 小片の形状は保たれており、Zircaloy-4 表面の緻密な酸化相がステンレス鋼系融体と Zircaloy-4 金属相との直接接触を防ぐことで溶解を抑制していると考えられる。

また、N₂/H₂O/Ar 雰囲気下で形成した多孔質な酸化相を有する Zircaloy-4 をステンレス鋼系融体に対して 1300°C で H₂O/Ar 雰囲気下で 60min 反応させた試料の断面を図 3-2-

3(c)に示す。図 3-2-3(c)から、Zircaloy-4 金属相内部にまで反応相が生成したことがわかるが、図 3-2-3(b)の Zircaloy-4 表面の酸化相が H₂O/Ar 雰囲気中で生成した場合に比べ、反応が進行したことがわかる。図 3-2-3(c)の Zircaloy-4 の左右において反応の様子が異なるが、右側には Zircaloy-4 の酸化相が顕在である一方、左側の酸化相は消失していることから、Zircaloy-4 の金属相がステンレス鋼系融体に容易に直接接触し、直ちに融解が起こったことに起因すると考えられる。

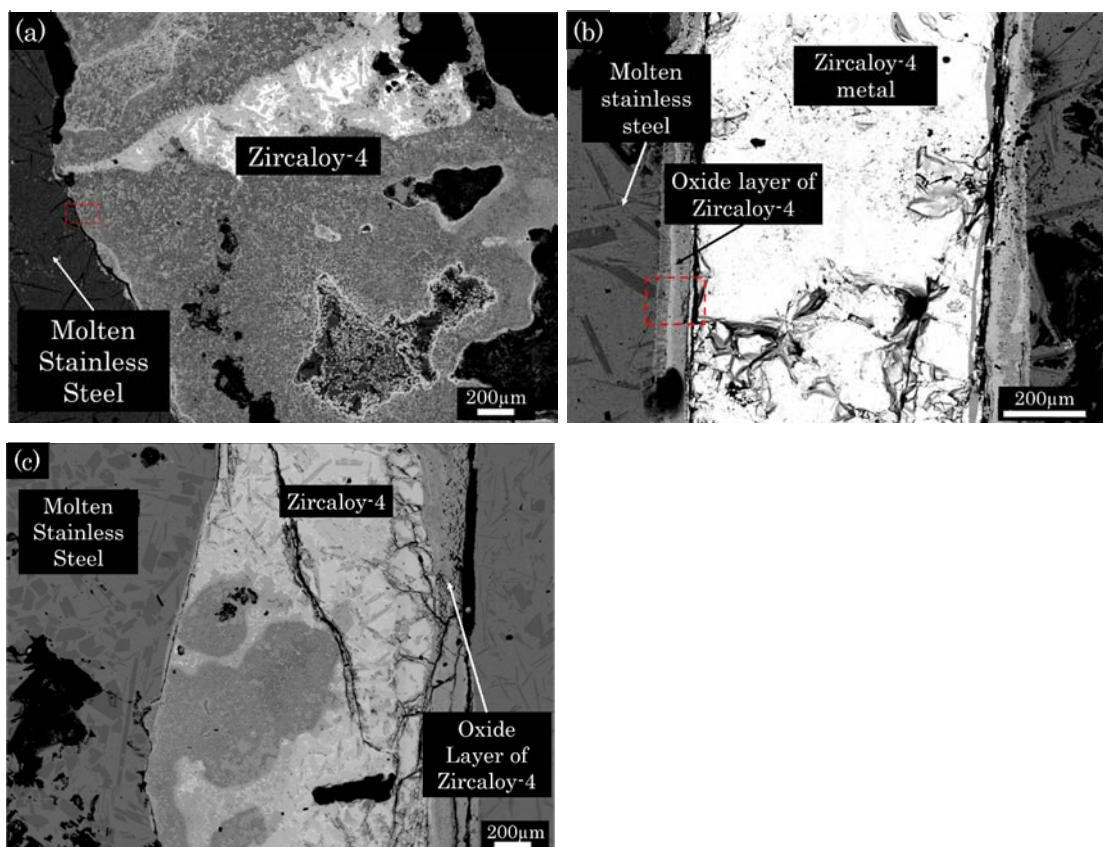


図 3-2-3 Cross sections of sample heated at 1300 °C for 60 min in H₂O/Ar atmosphere using Zircaloy-4. (a) without oxide layer; (b) with 100 μm thick oxide layer formed in H₂O/Ar atmosphere; (c) with 100 μm thick oxide layer formed in N₂/H₂O/Ar atmosphere.

まず、図 3-2-3(a)に破線で示した Zircaloy-4 とステンレス鋼系融体との界面付近を FE-EPMA による元素マッピングを用いて観察を行ったものを図 3-2-4 に示す。この図 3-2-4 において、もともと Zircaloy-4 であった領域は主に Zr-Fe-Ni 相と Fe-Cr 相と B-Zr 相に大別される 3 つの相に分かれていることから、冷却中に相分離して析出した相であると考えられる。Fe-Zr 二元系状態図から、1300°C においては広い範囲の組成で液相が共存することがわかるが、図 3-2-5 に示す B-Zr 二元系状態図からは 1300°C ではすべての組成で固相である。したがって、この分離相は固液共存相であると考えられる。また、同様の相がもともと Zircaloy-4 であったと考えられる領域全体においても観察されたことから、全体的に Zircaloy-4 の溶融が起こったことがわかった。

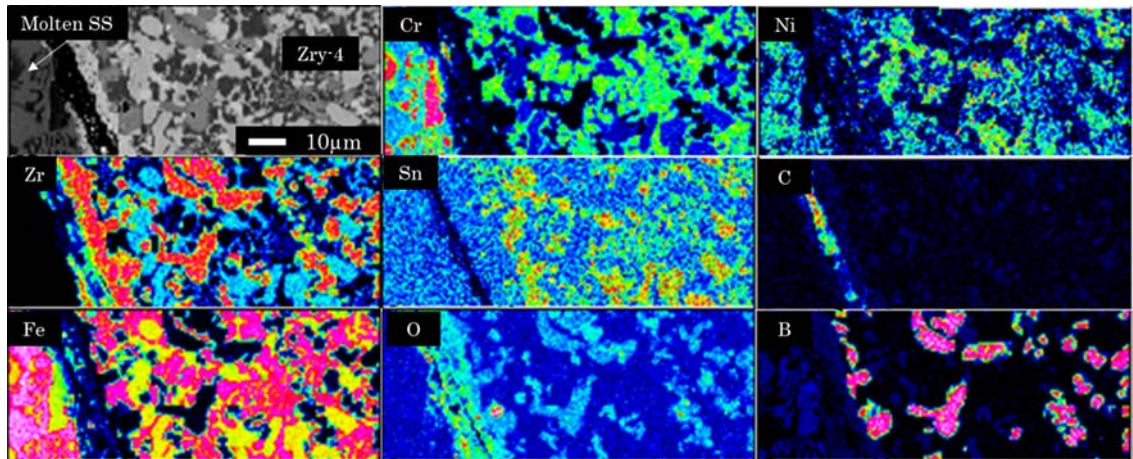


図 3-2-4 Elemental mapping of sample heated at 1300°C for 60 min in H₂O/Ar atmosphere using Zircaloy-4 without oxide layer.

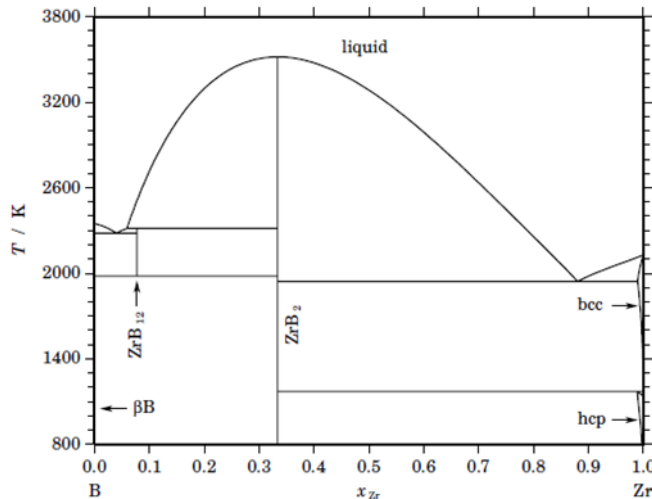
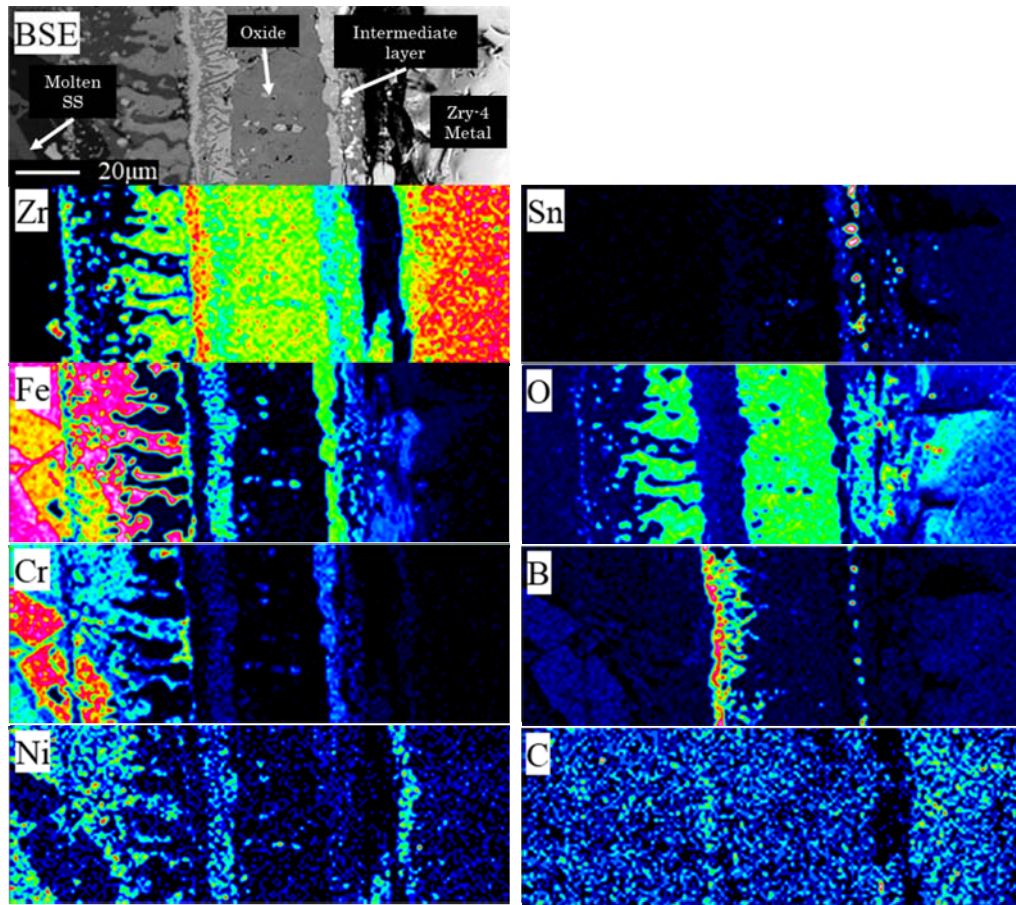
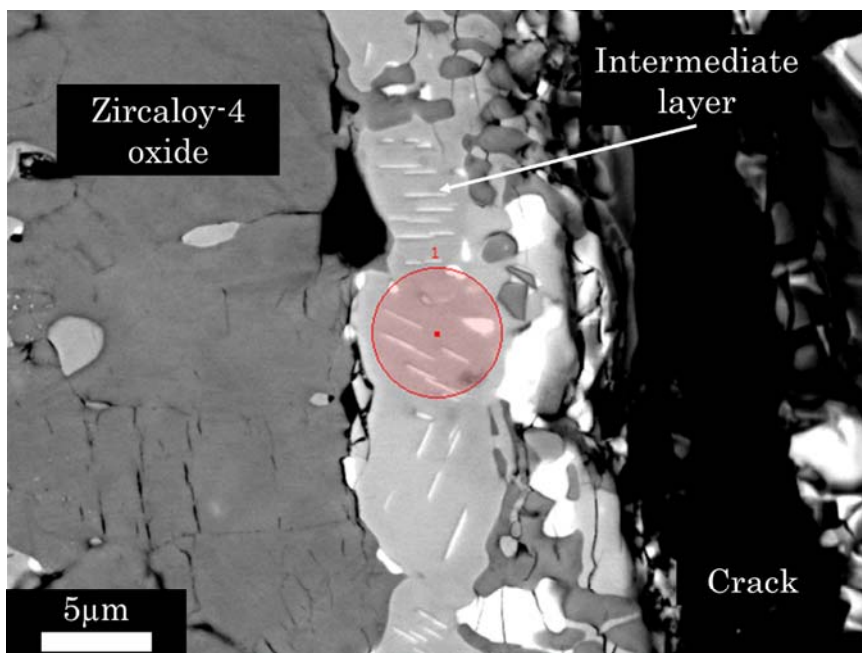


図 3-2-5 Calculated phase diagram for the system B-Zr [8].

続いて、図 3-2-3(b)における Zircaloy-4 とステンレス鋼系融体との反応界面付近を FE-EPMA による元素マッピングを行ったものを図 3-2-6 に示す。観察の結果から、Zircaloy-4 の酸化相表面近傍では Zr 及び O 濃度が大きく低下しており Fe, Ni, Cr が検出された。酸化相中央付近では Zr, B が濃化し、O 濃度が低い相が確認された。また、Zircaloy-4 の酸化相と金属相との界面付近において Fe, Cr, Zr, 等が検出され、厚さ 10µm 程度の間生成相が新たに形成していることがわかった。ここで、この図 3-2-7 に示す中間生成相に注目して点分析を行った結果を表 3-2-5 に示す。図 3-2-8 の Fe-Zr 状態図中に十字で示すように、中間生成相は固液共存相であり、Zircaloy-4 表面に酸化相が存在する場合であっても Zircaloy-4 の金属相とステンレス鋼系融体との反応はわずかに進行していることがわかった。そのため、酸化相はステンレス鋼系融体の拡散を妨げ Zircaloy-4 の溶融を抑制するものの、それを完全に防ぐものではないということがわかった。



☒ 3-2-6. Elemental mapping of sample heated at 1300 °C for 60 min in H₂O/Ar atmosphere using Zircaloy-4 with 100 µm thick oxide layer formed in H₂O/Ar atmosphere.



☒ 3-2-7 Enlarged image of the new layer formed at 1300°C for 60 min in H₂O/Ar atmosphere using Zircaloy-4 with 100 µm thick oxide layer formed in H₂O/Ar

atmosphere.

表 3-2-5 Chemical composition of the new layer, wt%.

Zr	O	Fe	Cr	Ni	B	C	Sn
41.70	0.29	37.73	9.17	2.73	-	0.19	5.80

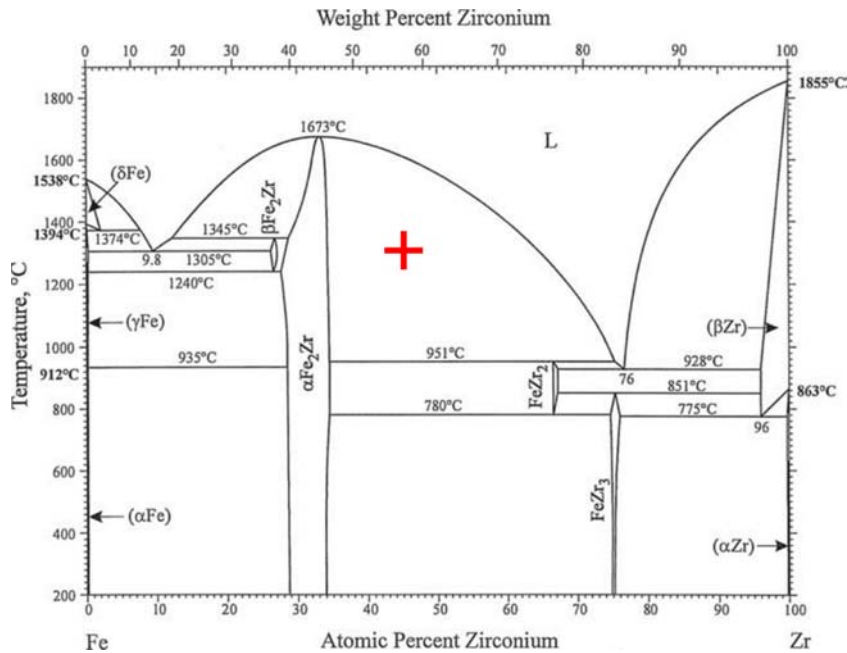


図 3-2-8. Fe-Zr binary phase diagram [4].

続いて、図 3-2-3(c)における Zircaloy-4 とステンレス鋼系融体との反応界面付近を FE-EPMA による元素マッピングを用いて観察したものを図 3-2-9 に示す。図 3-2-1 において、H₂O/N₂/Ar 雰囲気下で形成された Zircaloy-4 の酸化相が多孔質な構造であることを示したが、図 3-2-9 中に破線で示したように、ステンレス鋼系融体との反応の後にも多孔質構造の一部が残存していることが確認できる。また、図 3-2-9 から、Zircaloy-4 金属相内部にまで Fe や Cr といったステンレス鋼系融体由来の元素が侵入し、図 3-2-3(b)に示した Zircaloy-4 表面の酸化相が H₂O/Ar 雰囲気下で生成した緻密な構造の場合に比べて溶解が進行していることがわかる。

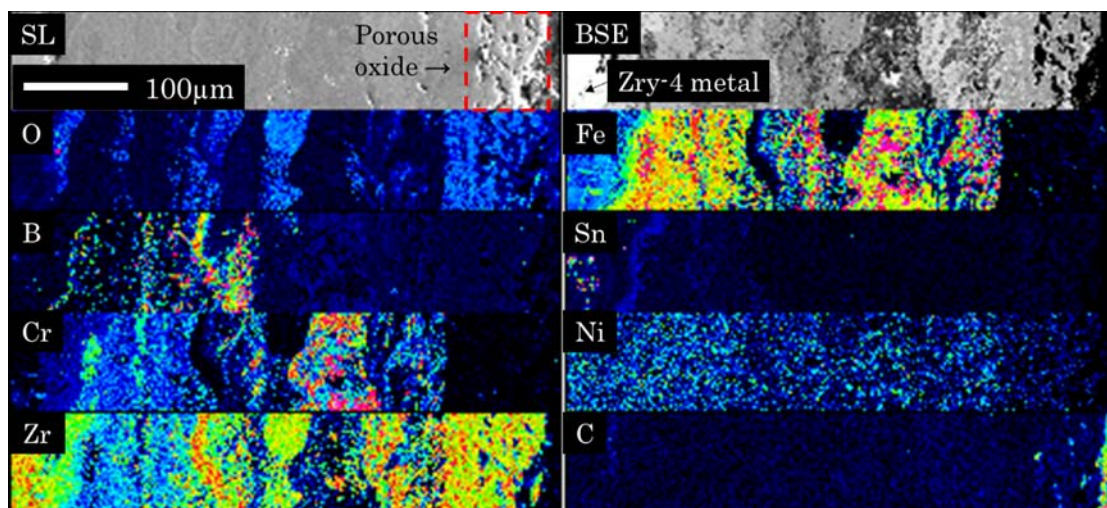


図 3-2-9. Elemental mapping of the area around porous oxide layer of the sample with 100 μm thick oxide layer formed in $\text{N}_2/\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ atmosphere.

3.2.2 制御棒およびジルカロイの固液反応速度に関する試験(H27-H29)

制御棒およびジルカロイの固液反応速度を導出するために $\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ 雰囲気下の温度が 1300°C の条件下で Zircaloy-4 とステンレス鋼系融体との反応時間のみを変化させた場合の反応の様子を観察した。

まず、 $\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ 雰囲気で加熱した酸化相を有する Zircaloy-4 をステンレス鋼系融体に対して 1300°C で 5min および 15min 反応させた試料の酸化相付近の断面をそれぞれ図 3-2-10(a), (b)に示す。両条件とも、Zircaloy-4 金属相と酸化相の間に中間生成相が生成している様子は観察されなかった。そのため、中間生成相は Zircaloy-4 酸化相にステンレス鋼系融体が接触後ただちに形成するものではないことがわかった。また、図 3-2-10(b) から、Zircaloy-4 酸化相表面にステンレス鋼系融体との界面に反応相を生成していることが観察された。

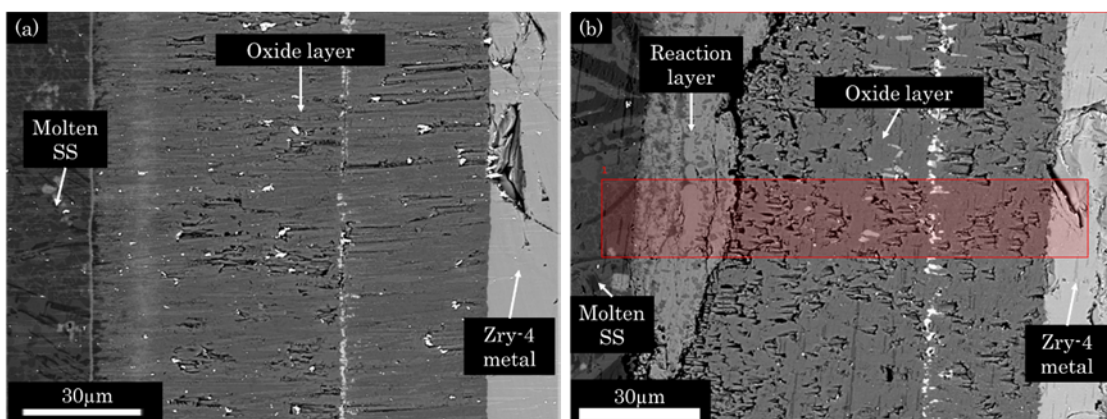


図 3-2-10. Cross section of sample heated at 1300°C . (a) for 5 min in $\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ atmosphere; (b) for 15 min in $\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ atmosphere using Zircaloy-4, with 100 μm thick oxide layer formed in $\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ atmosphere.

ここで、図 3-2-10(b) 中に赤枠で示した領域に対して FE-EPMA による元素マッピングを行った結果を図 3-2-11 に示す。図 3-2-11 から、Zircaloy-4 酸化相とステンレス鋼系融体との界面反応相中には Zr の他 Fe, Cr, Ni, B といったステンレス鋼系融体を由来とする元素が検出された。また、酸化相中央付近に Zircaloy-4 酸化物とは異なる不連続な相があり、Fe, Cr, Ni が検出された。ここで、Zircaloy-4 酸化相とステンレス鋼系融体との界面近傍の Zr, Fe, Cr の線分析の結果を図 3-2-12 に示す。酸化相中における Fe や Cr の濃度勾配が非常に急峻であり、酸化相中を徐々に拡散しているわけではないことがわかる。また、Zircaloy-4 の酸化相が H₂O/Ar 雰囲気下で形成された緻密な構造であっても、酸化相中にはごく小さな空孔が存在することが観察された。したがって、ステンレス鋼系融体を由来とする元素の Zircaloy-4 酸化相中の主となる移動機構は酸化相バルク内の拡散ではなく液相の状態での酸化相中の空孔を通過することであると考えられる。

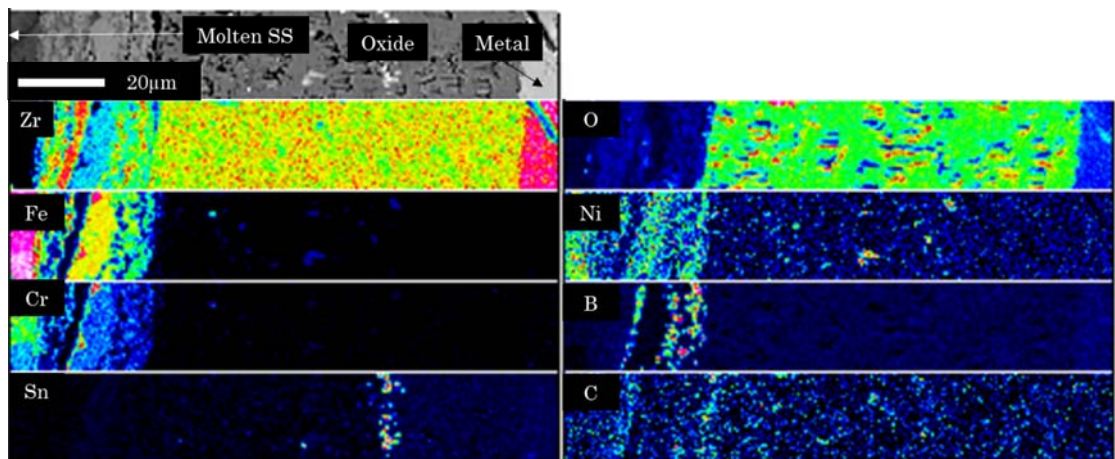


図 3-2-11 Elemental mapping of sample heated at 1300°C for 15 min in H₂O/Ar atmosphere using Zircaloy-4 with 100 μm thick oxide layer formed in H₂O/Ar atmosphere.

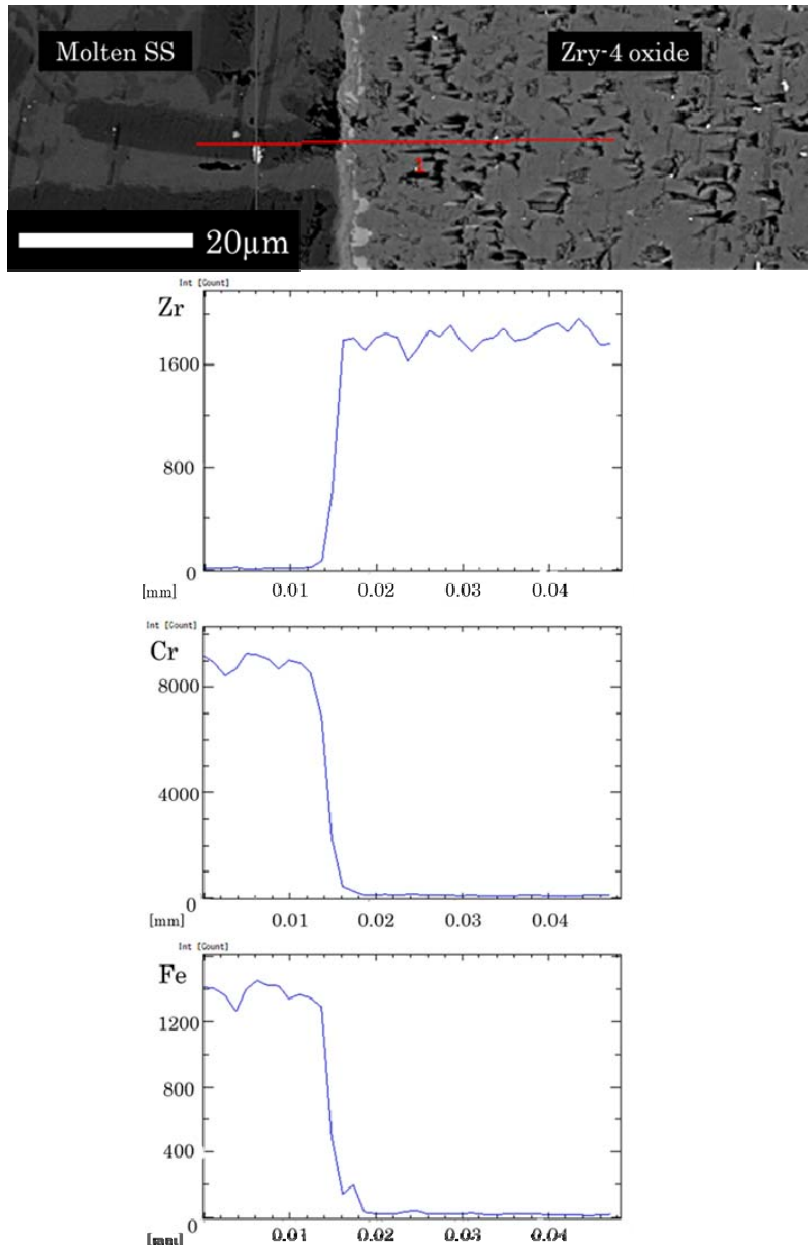


図 3-2-12. Line scan of Zircaloy-4 oxide and molten stainless steel boundary of sample heated at 1300°C for 15 min in H₂O/Ar atmosphere using Zircaloy-4 with 100 μm thick oxide layer formed in H₂O/Ar atmosphere.

次に、図 3-2-13 に H₂O/Ar 雰囲気加熱した酸化相を有する Zircaloy-4 をステンレス鋼系融体に対して 1300°C の H₂O/Ar 雰囲気下で 90min および 180min 反応させた試料の断面を示す。図 3-2-3 (b) に示した反応時間が 60min の場合と比較しても、反応時間の増加に伴い中間生成相の厚さは増加しており、Zircaloy-4 とステンレス鋼系融体との反応が進行していることがわかる。また、Zircaloy-4 金属相とステンレス鋼系融体との間には大きく分けて 4 つの相を形成していることが観察された。図 3-2-13 (a) において、これらの生成相に注目し SEM-EDS による点分析を行った結果を表 3-2-6 に示す。Zircaloy-4 金属相からはおよそ 27atom% の O が検出された。したがって、Zr 金属相は α-Zr(O) として存

在していることがわかる。また、図 3-2-14 中に ZrO_{2-x} と示したモル比がおおよそ $Zr:O=2:3$ の Zr 系酸化物の相に挟まれて存在している L2 と表記した相からは Zr, O の他 Fe, Ni が検出された。図 3-2-13 中に L1 と表記した相からは Fe, Cr, Ni, Zr が検出された。

図 3-2-13(b) から、反応時間が 180min の場合には、図 3-2-13(a) に示した反応時間 90min の場合と比較して、主に L1, L2 相の厚さが増加していることがわかる。一方で、Zircaloy-4 酸化相が残存している以外に生成した相の形態に大きな差は見られなかった。

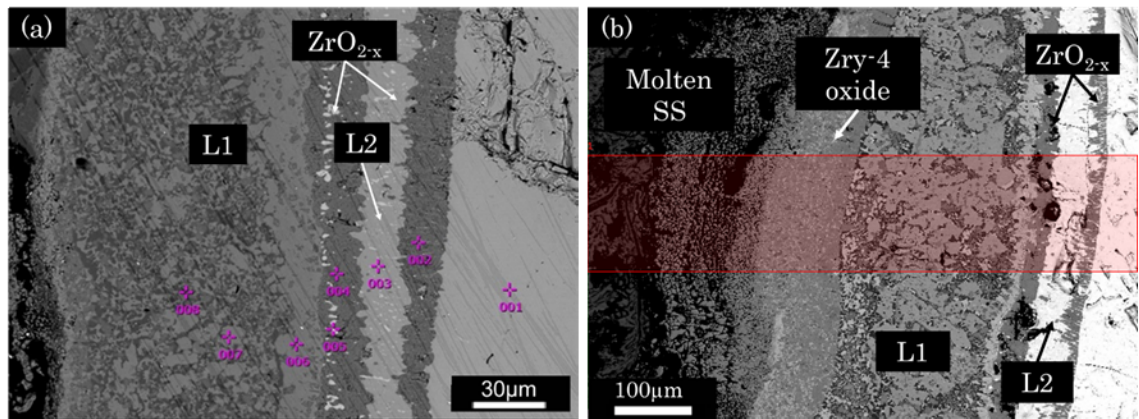


図 3-2-13. Cross section of sample heated at 1300°C in H_2O/Ar atmosphere using Zircaloy-4 with 100 μm thick oxide layer formed in H_2O/Ar atmosphere. (a) for 90 min; (b) for 180 min.

表 3-2-6 Chemical composition in the each layer observed in Figure 3-12(a) sample, atom%.

Point	Zr	O	Fe	Cr	Ni	Sn	Note
1	73.02	26.98	-	-	-	-	α -Zr(O)
2	40.64	59.36	-	-	-	-	ZrO_{2-x}
3	57.31	16.22	13.05	-	13.41	-	L2
4	42.1	57.9	-	-	-	-	ZrO_{2-x}
5	55.68	15.98	-	-	-	28.35	Sn rich
6	27.37	-	53.96	5.93	11.39	1.35	L1
7	28.41	-	53.14	6.72	11.74	-	L1
8	14.12	-	62.35	19.15	4.38	-	L1

ここで、図 3-2-13(b) 中に赤枠で示した領域に元素マッピングを行った結果を図 3-2-14 に示す。上部がステンレス鋼系融体側であり、下部が Zircaloy-4 側である。L2 相中には Fe, Ni といった元素が多く検出され、特に Ni が L2 相中において濃化していることがわかる。一方で、Zircaloy-4 金属相中では Fe, Ni などのステンレス鋼系融体由来の元素はほとんど検出されなかった。

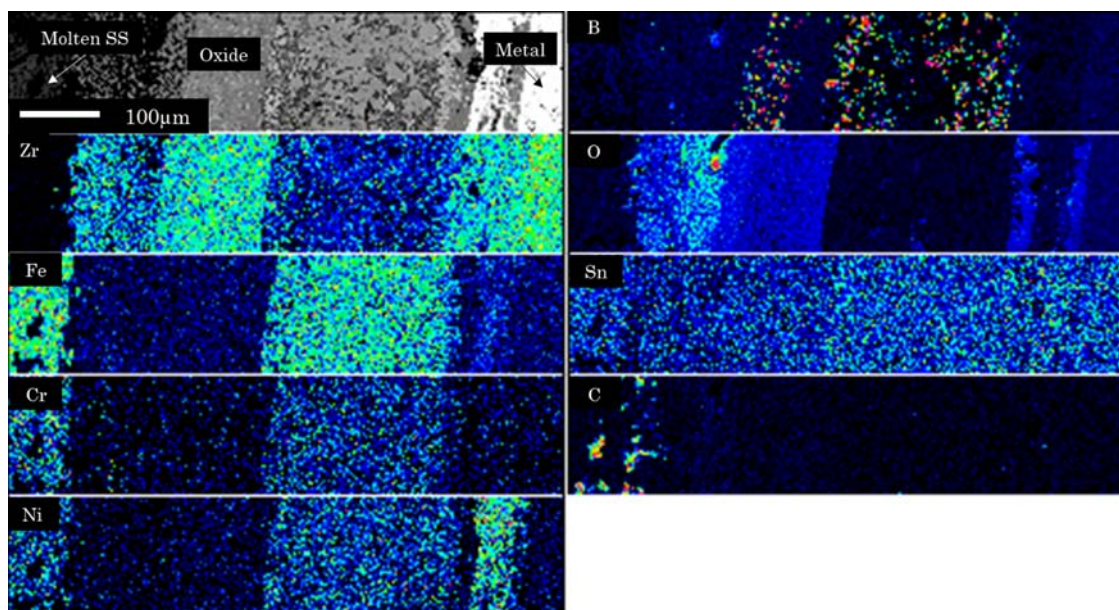


図 3-2-14 Elemental mapping of sample heated at 1300°C in H₂O/Ar atmosphere for 180 min using Zircaloy-4 with 100 µm thick oxide layer formed in H₂O/Ar atmosphere.

Zircaloy-4 とステンレス鋼系融体との反応の時間依存性を評価するために、1300°Cの H₂O/Ar 雰囲気下で反応させた試料の生成相の厚さと反応時間の関係を図 3-2-15 に示す。図 3-2-15 中の横軸は反応時間を示す。ここでいう生成相は、Zircaloy-4 金属相とステンレス鋼系融体との間に形成した相のことを指し、Zircaloy-4 の酸化相や L1, L2 といった相を含む。あらかじめ形成してあった Zircaloy-4 表面の酸化相の厚さは全て約 100µm であったことから、未反応時(反応時間 0min)の時の反応相の厚さを 100µm としている。本実験では、ステンレス鋼系融体と Zircaloy-4 金属相の反応が見られたのは 60min 以降であることから、反応時間が 60min 以降の生成相の厚さが反応時間におよそ比例して増加していることがわかる。

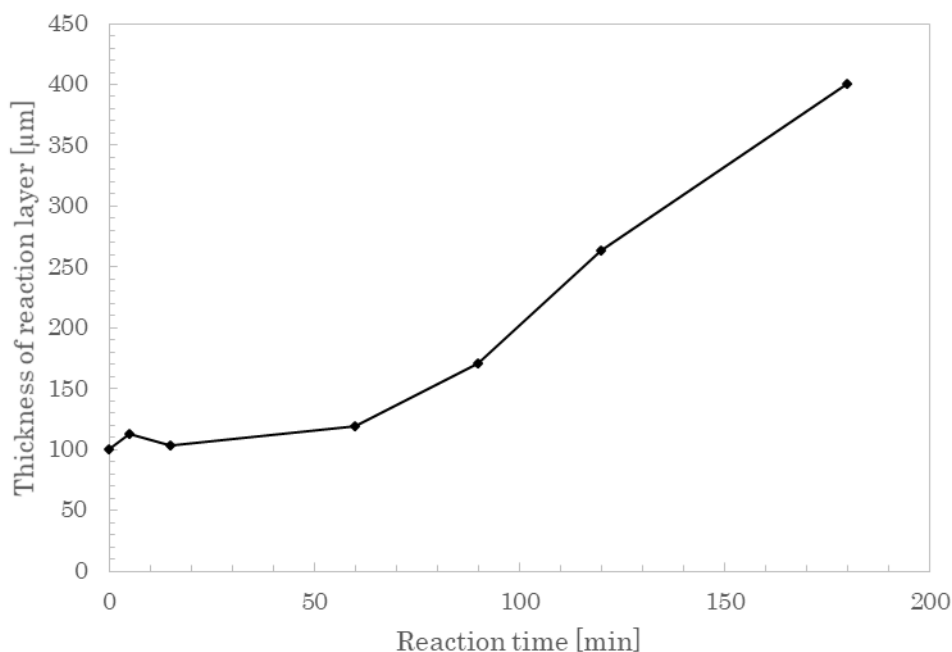


図 3-2-15 Thickness of reaction layer vs reaction time under $\text{H}_2\text{O}/\text{Ar}$ atmosphere at 1300°C

しかし、本実験においては例えば、図 3-2-16 に示す反応時間が 180min の時の試料の Zircaloy-4 の左右において反応相の厚さが異なっていた。つまり試料の左右において反応速度に差があることになってしまいが、前章において Zircaloy-4 の酸化相の形成の様子に表裏の差は認められなかった。また、試料の左右において反応界面の様子は図 3-2-13 に示したような ZrO_{2-x} 相と L2 相の構成であり、組成にもほとんど差は認められなかったことから界面反応の様子に違いがあるとは考えづらい。そのため、ステンレス鋼系融体が酸化相中を移動する過程に差が生じ、これが律速段階であると考えられる。図 3-2-10 において、反応時間が短時間の場合の酸化相近傍の様子を示したが、特に保持時間が 15min の場合には酸化相表面がステンレス鋼系融体と反応し異なる相を形成していた。しかしこのとき、試料全体に渡って均一な厚さの反応相を形成していたわけではなく、反応の進行に差があった。したがってこのとき、ステンレス鋼系融体の酸化相中の移動距離は場所によって異なり、酸化相が薄くなった部分からステンレス鋼系融体が侵入しやすくなったことで、反応相の厚さの不均一性を招いたと考えられる。

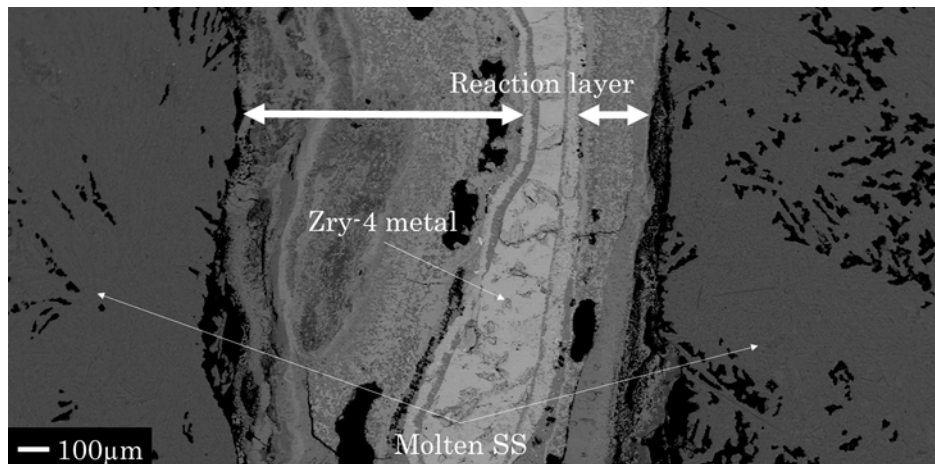


図 3-2-16 Difference of thickness of reaction layer of sample heated at 1300°C in H₂O/Ar atmosphere for 180 min using Zircaloy-4 with 100 μm thick oxide layer formed in H₂O/Ar atmosphere

制御棒およびジルカロイの溶融に関する試験、制御棒およびジルカロイの固液反応速度に関する試験として 1300°Cにおけるステンレス鋼系融体と酸化相形成済み Zircaloy-4 との反応について検討した。この系の反応に対して Zircaloy-4 表面の酸化相が与える影響について以下のような結果を得た。

- Zircaloy-4 表面の酸化相は Zircaloy-4 金属相とステンレス鋼系融体の直接接触を防ぐことから、酸化相が形成していない場合と比較して液相の生成を抑制する効果がある。しかし、反応時間が長くなると、Zircaloy-4 の金属相と酸化相の間に Fe, Cr, Ni, Zr 等からなる固液共存層が形成し、酸化相が残存しているにも関わらず溶融反応が進行していくことから、Zircaloy-4 表面の酸化相は完全に溶融を防ぐものではない。

- 酸化相が N₂/H₂O/Ar 雰囲気下で形成された多孔質な構造の場合、H₂O/Ar 雰囲気下で形成された緻密な構造の酸化相の場合と比較して、Zircaloy-4 の金属相とステンレス鋼系融体との反応が顕著に起こった。また、酸化相が H₂O/Ar 雰囲気下で形成された場合においても酸化相中に Fe, Cr, Ni 等の不連続な相が検出されたことから、高温下における Zircaloy-4 の酸化相は元素透過性がありステンレス鋼系融体は固体中の拡散によって金属相に到達するのではなく、酸化相中の空孔を液相の状態で通過する。

- 酸化相と金属相との界面にステンレス鋼系融体由来の元素が到達した後の反応は、反応時間に比例して進行する。

参考文献

- [1] 原子力ハンドブック編集委員会, (2007), 原子力ハンドブック: オーム社(株)
- [2] C. Dominguez, D. Drouan, Degradation in steam of 60cm-long B₄C control rods, Journal of Nuclear Materials, 451 (2014), pp. 111-119.
- [3] P. Hofmann, S. J. L. Hagen, G. Schanz, A. Skokan, Reactor core materials interactions at very high temperatures, Nuclear Technology, 87 (1989) 146-186.
- [4] M. Steinbrück, Degradation and oxidation of B₄C control rod segments at high temperatures, Journal of Nuclear Materials, 400 (2010), pp. 138-159.

[5] H. Okamoto, Fe-Zr (Iron-Zirconium), Journal of Phase Equilibria and Diffusion Vol. 27 No. 5 (2006)

[6] Fumihisa NAGASE, Takahashi OTOMO and Hiroshi UETSUKA, HIGH TEMPERATURE INTERACTION BETWEEN ZIRCALOY-4 AND STAINLESS STEEL TYPE 304, JAERI-Research (2001) 009

[7] P. Hofmann, M. Markiewicz, Chemical Interactions between as-received and pre-oxidized Zircaloy-4 and Stainless Steel at High Temperatures, (May 1994) KfK-5106

[8] P. Franke, D. Neuschütz, B-Zr (Boron - Zirconium), Binary Systems. Part 5: Binary Systems Supplement 1, pp 1-4

3.2.3 ジルカロイとステンレスチールの金属融体が生成する条件におけるジルカロイの溶融速度の定量 (H28-H29)

Ar あるいは N_2 をキャリアガスとして用いた H_2O 、 H_2/H_2O 雰囲気内で SUS、Zry 片と B_4C を 3600s 加熱した。加熱後の試料の断面を図 3-2-16 に示す。a), b), c), d) はそれぞれ、Ar/ H_2O 、 N_2/H_2O 、Ar/ H_2/H_2O 、 $N_2/H_2/H_2O$ 雰囲気の試料を示す。a) では SUS 上部における酸化溶解している、b) は大きな変化は見られず、c), d) は SUS 下部における溶解が確認できる。a), b) では Zry. の変形が見られ、c), d) では上部の酸化がみられる。

図 3-2-17 に図 3-2-16a) の拡大した断面を示す。a-i、a-ii、a-iii はそれぞれ SUS 上部、SUS/Zry 界面上部と下部の像を表す。それぞれ 1-12 の番号を付けた分析点の組成を表 3-2-1 に示す。

点 1 は金属の SUS であるが、2-4 は酸化物である。外側の 3, 4 は B_2O_3 を含むことから、固液共存であったと判断できる。点 5 は SUS、点 6, 7 はジルカロイ由来でどちらも酸素を含む、界面に近い 6 は酸化物を主体とする。a-iii のジルカロイ酸化物と SUS が接する箇所においても SUS、ジルカロイ間に元素の相互拡散は見られない。点 8, 9 はそれぞれ、SUS、ジルカロイであるが、ジルカロイに酸素が 1.3%程度ほど検出された以外は大きな変化はない。

図 3-2-18 に図 3-2-16c) の拡大した断面を示す。c-i、c-ii はそれぞれ気相に曝露した部分と B_4C に埋まった SUS とジルカロイ界面部分である。また、c-iii は B_4C に埋まった、ジルカロイ部分である。分析点の組成を表 3-2-7 に示す。c-i の点 1, 2 は SUS の金属相、点 2 は B を含み固液共存であった。点 3 は $200\mu m$ ほどの Zry. の酸化相、点 4 は 5.8mass% 程度の酸素を含んだジルカロイ相である。SUS とジルカロイの間で成分の相互拡散は進行せず、SUS 表面以外は固体であったと考えられる。c-ii の B_4C に埋まった部分のジルカロイの表面 (点 5) は酸化層が生成した。最下部の c-iii では点 8, 9 の様に C、B により溶解した、SUS と一部酸化物となった点 10、Fe により溶融した点 11 が共存している。3600s 以降ではジルカロイ内での Fe の拡散が進行し全体の溶融に進展する可能性がある。前報の Ar 雰囲気下での Zr の溶融が 3600s で完全に進行したことから、Ar、 $H_2/H_2O/Ar$ 、 H_2O/Ar の順に Fe 等の拡散によるジルカロイの溶融が進行しやすいと考えられる。これは酸素の供給と酸素ポテンシャルの影響を受け、ジルカロイが酸化しやすい条件ほど Fe, C

が侵入しにくく溶解が進行しにくいということが出来よう。前報の Air 雰囲気ではジルカロイが溶解したが、 B_2O_3 が十分にある位置で酸化物が溶解したであろうことから、Ar 中や本実験条件での金属ジルカロイの溶解と現象が異なる。

以上より鉄は酸化性が弱い雰囲気中では B_4C の成分の影響を受けやすく、金属として溶解しやすい。ジルカロイは酸化しにくい条件ほど SUS や B_4C の成分の影響を受けやすく、金属として溶解しやすい。

本実験により、 H_2O/H_2 を含む雰囲気では 1473K における SUS の溶解が観察された。一方、Zry. は雰囲気によらず、表面に酸化膜を形成し、溶解しなかった。Ar, Air 中で同様の反応実験を行った前報では Zry. 表面に酸化膜が生成せず、Zry. 中への鉄や炭素の侵入により溶解した¹⁰⁾。Zry. 表面の酸化膜形成には雰囲気中の酸素が影響する、酸素の供給の観点では Air, H_2O /carrier, H_2/H_2O /carrier, Ar の順に Zry. を酸化しやすい。SUS、Zry. と B_4C を所定の雰囲気下 1473K で共存させた場合、雰囲気により SUS、Zry. の酸化や溶解の挙動が変化する。SUS、Zry. の溶解の有無の関係を表 3-2-9 に纏める。

上層は、SUS と Zry. が気相と接する位置、下層は SUS、Zry. が B_4C 内に埋まった位置を表す。溶解、著しく酸化した場合、大きな変化が見られない場合をそれぞれ、Melt、Oxidized、- と示した。

SUS は Air、 H_2O 中において酸化が進行し、一部に B_2O_3 を含む酸化物融体を生成した。また、 B_4C に埋まった部分では十分に B、C の浸透が進行せず、溶解しない。一方、 H_2/H_2O 、Ar 中においては気相と接する部分の反応は見られないが、 B_4C 中に埋まった部分で B、C の浸透による溶解が進行した。 H_2O を含む雰囲気はステンレス中のクロムに対して酸化雰囲気であり、クロムの酸化被膜が安定な雰囲気である。一方ステンレス中の鉄に対して、Air、 H_2O 雰囲気は酸化雰囲気、 H_2/H_2O ($PO_2=1.6 \times 10^{-12}$ at 1473K) は Fe/FeO 平衡 ($PO_2=1.3 \times 10^{-12}$ atm at 1473K) の雰囲気である。 N_2 雰囲気下の B_4C 層内では B_4C による不純物酸素の吸収により、層内への酸素の供給を妨げたと考えられる。 B_4C 層内の SUS に関しては、酸化性雰囲気でない場合、 B_4C から SUS に B と C が供給された。

前年度の試験では Zry. は Air、Ar 雰囲気中の B_4C 層内で溶解した。しかし、本年度の試験である H_2O 、 H_2/H_2O 雰囲気中では溶解しなかった。Zry. 表面の酸化膜が、Fe、C の侵入を遅らせ、溶解を防ぐ働きがある。 H_2O 、 H_2/H_2O 雰囲気と接する Zry. 表面の酸化は進行し、 B_4C 層に埋まった、Zry. 表面にも薄い酸化膜が形成されていた。一方、Air 中では気相と接する部分の酸化は進行したが、 B_4C 中の Zry. は溶解し、Fe、C 濃度が上昇していた。また、Ar 中では Fe、C の侵入により溶解が進行した。

酸素分圧および酸素供給の観点から、Zry の酸化は Air、 H_2O 、 H_2/H_2O 、Ar の順に進行するはずである、しかし、 B_4C に埋まった部分では、Air、Ar 中では酸化が進行せず、 H_2O 、 H_2/H_2O 雰囲気中では酸化された。雰囲気の酸化性では説明できない結果となった。

B_4C 層に目を向けると、Air、Ar 中では表面に 1mm 程度の B_2O_3 層を生成したが、 H_2O /Ar、 H_2/H_2O /Ar 雰囲気中では 0.5mm 程度の B_2O_3 層を生成し、 H_2O/N_2 、 $H_2/H_2O/N_2$ 中では不均一に分散し酸化相が生成していた。特に金属板の周囲には空洞ができており、外気が下部の SUS 及び Zry. と接する状態であった。雰囲気により B_2O_3 の生成量と分散状態に差が生じたこ

とが、雰囲気から B₄C 層への酸素の供給を変化し、B₄C 層内における SUS と Zry の反応に影響を与えた。

上記より、SUS に対する酸化、還元雰囲気と共に、B₄C の雰囲気との反応も構造体の溶解に影響する可能性が見出された。ここでは、B₄C と水蒸気の反応について考察を加える。

熱力学データベース¹¹⁾を用いて B₄C、H₂O が 1473K、1 気圧下で反応した際の平衡生成物を算出した。1 モル当たりの B₄C と初期に共存する H₂O の量により反応生成物が変わるため、B₄C に対する H₂O のモル数を変数とした。図 3-2-20 に H₂O/B₄C 比と生成物の生成量の関係を示す。横軸に H₂O/B₄C 比を取り、縦軸に反応生成物のモル数をとった。主な生成物は B₂O₃、HBO₂、H₃BO₃、(HBO₂)₃ であり、他の B 含有ガスも発生するが無視可能なほどわずかである。H₂O/B₄C が 7 程度までは、H₂O の増加とともに残存する B₄C が低下し、B₂O₃ の生成量が増加する。更に H₂O の比が増加すると、B₂O₃ が減少し、HBO₂、H₃BO₃、(HBO₂)₃ が増加する。初期の雰囲気中に H₂ が共存する条件だと、B₂O₃ が主に生成する範囲が高 H₂O/B₄C 側に若干広がる。炉内状況を考慮すると、破損した制御棒内の B₄C が雰囲気に曝露したとき、H₂O の供給が迅速かつ過剰であると HBO₂ 等のガスが生成しやすく、H₂O の供給に対して酸化反応の進行が速いと、B₂O₃ が生成しやすい。

いったん生成した B₂O₃ が H₂O と反応する可能性があるが、



$$\Delta G^\circ = 332,000 - 159.7K \quad [\text{J/mol}] \quad (2)$$

1473K での平衡定数は 3.6×10^{-4} であるため、炉内で想定できる H₂O の分圧下では、HBO₂ の平衡分圧は低く、気相中に HBO₂ がわずかに存在すると B₂O₃ と H₂O からの HBO₂ の発生は進行しないことが予想される。したがって、多くの場合、H₂O による B₄C の酸化により B₂O₃ が生成し、SUS の酸化や Zry 酸化膜での元素の拡散速度に影響する。

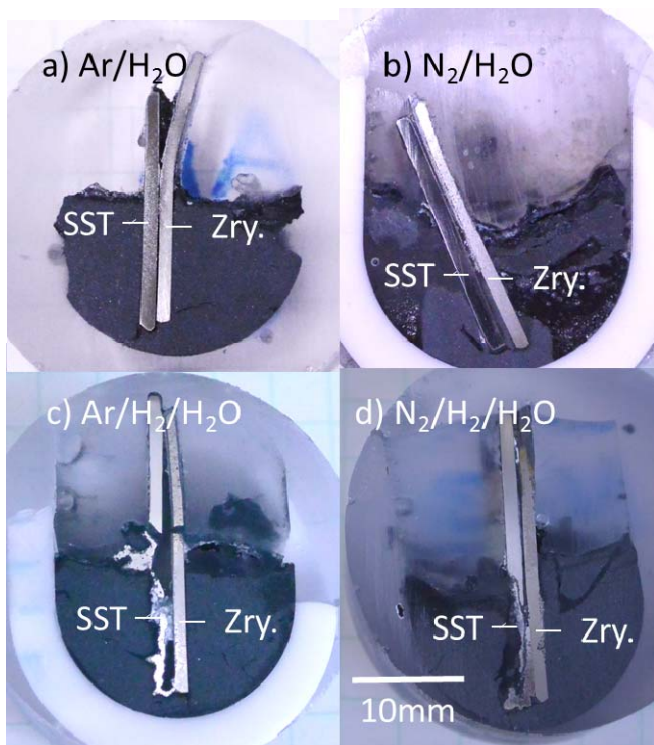


図 3-2-17. 1473K における SST, ジルカロイ, および B_4C の加熱実験後の断面監査写真.

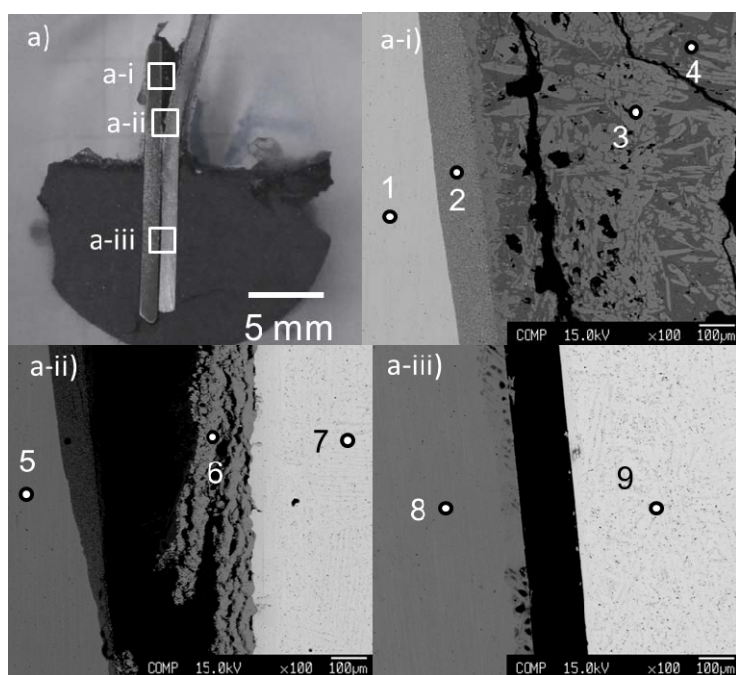


図 3-2-18. Ar/ H_2O 雰囲気, 1473K での SST, ジルカロイ, および B_4C の加熱実験後の断面観察写真

表 3-2-7. 1473K での Ar/H₂O 雰囲気中加熱実験の SST の組成 (mass%)

No.	B	C	Fe	Cr	Ni	O	N	Total
1	-	1.02	55.02	14.61	5.62	-	-	76.28
2	-	0.81	19.87	33.36	0.49	18.62	-	73.16
3	8.14	0.97	26.35	0.21	0.45	31.14	-	67.24
4	3.28	0.95	18.90	20.39	5.27	22.35	-	71.14
5	-	1.15	54.18	14.99	5.60	-	0.08	76.00
6	0.30	1.61	62.11	0.41	12.19	0.63	0.09	77.33
7	-	1.48	74.08	0.11	0.16	0.38	-	76.21
8	-	1.00	53.69	14.79	5.29	-	-	74.76
9	-	1.75	59.47	7.88	7.17	0.10	-	76.36

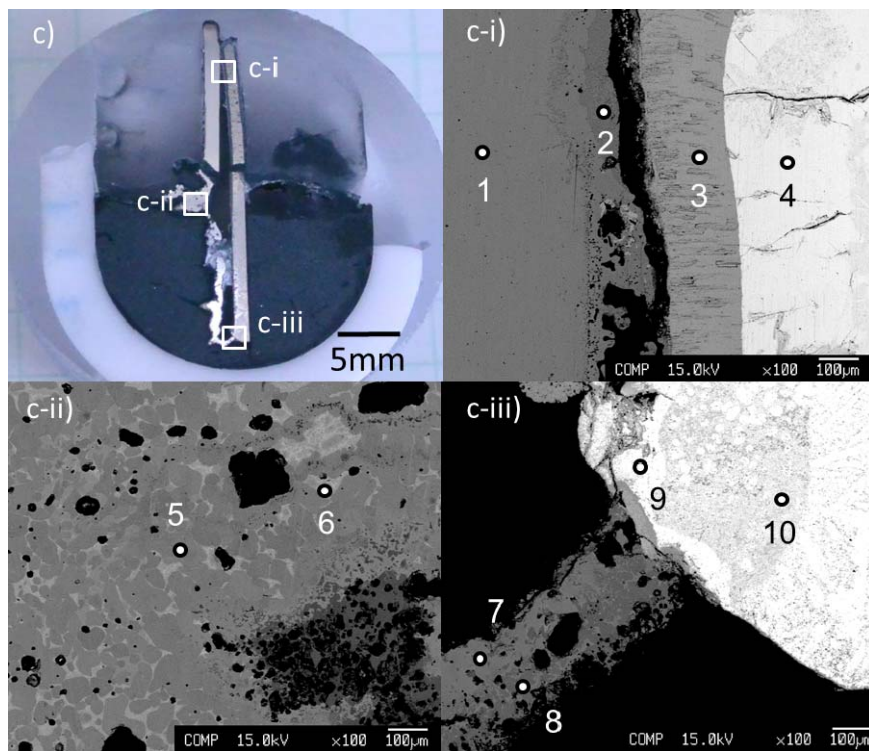


図. 3-2-19 Ar/H₂/H₂O 雰囲気, 1473K での SST, ジルカロイ, および B₄C の加熱実験後の断面観察写真

表 3-2-8 1473K での Ar/H₂/H₂O 雰囲気中加熱実験の SST, ジルカロイおよび B₄C の組成 (mass%)

No.	B	C	Fe	Cr	Ni	Zr	Sn	O	N	Total
1	0.0	1.4	71.8	19.2	8.2	0.1	0.0	0.0	0.0	100.7
2	5.0	1.2	77.1	14.0	1.3	0.0	0.0	0.0	0.0	98.7
3	0.0	0.9	0.0	0.0	0.0	72.5	0.0	23.0	0.6	97.0
4	0.0	1.2	0.1	0.0	0.0	92.7	0.0	5.8	0.0	99.8
5	7.1	0.5	62.4	23.7	3.1	0.1	0.0	0.0	0.0	96.9
6	2.9	1.3	67.4	4.7	19.5	0.0	0.1	0.0	0.0	95.9
7	6.7	1.0	66.6	15.8	7.8	0.0	0.0	0.0	0.0	98.0
8	13.6	0.6	56.3	22.9	3.0	0.0	0.0	0.0	0.0	96.5
9	0.0	0.6	0.0	0.0	0.0	96.4	0.0	3.8	0.0	100.7
10	0.0	0.6	12.9	0.5	4.4	77.3	0.0	0.7	0.0	96.4

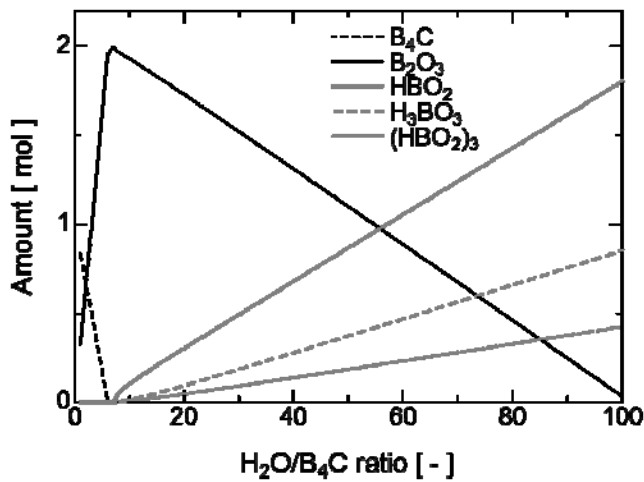


図 3-2-20 1473K において 1mol の B₄C と H₂O から生じる B₂O₃ および気体の物質質量

表 3-2-9. 1473K における種々の雰囲気中 B₄C 共存下での SST およびジルカロイの挙動

Atmosphere	Oxygen partial pressure	Position	SUS in B4C/SUS	SUS/ Zircaloy in B4C/SUS/Zry.
Air	0.21	Upper	Partially M with O	Partially M / M w O
		Lower	-	Partially M / M w O
N ₂ /H ₂ O	3.2×10 ⁻³ (at 10 atm)	Upper	-	- / O
		Lower	-	- / -
N ₂ /H ₂ /H ₂ O	1.8×10 ⁻¹²	Upper	-	- / O
		Lower	M	M / -
Ar	Low	Upper	-	- / M
		Lower	-	M / M

参考文献

- (1) P. Hofmann, S. J. L. Hagen, G. Schanz, A. Skokan, Nuclear Technology, 87 (1989) 146-186.
- (2) R. Kubo et al., Iwanami Rikagakujiten 4th ed. Iwanamishoten, Tokyo, 1987.
- (3) M. Steinbrück, J. Nucl. Mater., 400 (2010) 138-159.
- (4) T. Sato, K. Haryu, T. Endo, M. Shimada, Zairyo 37 (1988) 77-82.
- (5) F. Nagase, H. Uetsuka, T. Otomo, J. Nucl. Mater., 245(1997) 52-59.
- (6) M. Steinbrück, J. Nucl. Mater., 336 (1995) 185-193.
- (7) C. Dominguez, J. Nucl. Mater., 427 (2012) 140-151.
- (8) T. Haste, F. Payot, C. Dominguez, Ph. March , B. Simondi-Teisseire, M. Steinbrück, Nucl. Eng. Des., 246(2012) 147-156.
- (9) Sasaki et al., Journal of Nuclear Materials, 466(2015), 334-342.
- (10) R. Sasaki, S Ueda, S.J. Kim, X. Gao, S. Kitamura, J. Nucl. Mater., 477 (2016) 205-214.
- (11) FACTSAGE, Ecole Polytechnique CRCT, Montreal.
- (12) I. Barin Ed., Thermochemical data of pure substances, VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim, 1989.
- (13) Von CARL WAGNER, Zeitschrift fur Elektrochemie, 7(1959), 781.

3.3 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

3.3.1 シビアアクシデント解析コードを用いた実機条件の検討 (H27-H29)

(1) 解析の目的及び概要

平成 28 年度にシビアアクシデント解析コード (RELAP/SCDAPSIM) を使用して実施した典型的な BWR 事故条件における解析結果を基に、溶融反応速度測定及びジルカロイ溶融・固液反応挙動解析に必要な燃料集合体から炉心下部支持構造部に至る領域の温度条件と雰囲気条件を評価し、原子力機構が別途実施した試験結果等を反映した炉心支持体以下の構造物の破損解析を実施して、事故シナリオ発生条件のとりまとめを行った。

RELAP/SCDAPSIM コードによる解析結果については平成 28 年度の報告書に詳細を記載済であるが、後段の議論の参考とするため再掲する。

(2) 解析対象、解析条件

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おり、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。

H28 年度の解析では福島第一原子力発電所 2 号機の設計情報に基づいて、炉内出力分布 (4 チャンネルそれぞれの集合体数、軸方向出力分布)、流動特性データ (炉心、压力容器、主蒸気系のジオメトリー) を実機に整合するものに修正している。解析体系を図 3-3-1 に、LAGUNA VERDE 炉と福島第一 2 号機の主要仕様を表 3-3-1 に、2 号機解析用炉心構成を表 3-3-2 に、熱出力・崩壊熱を表 3-3-3 に、注水履歴を表 3-3-4 に示す。

解析では津波による電源喪失から主蒸気逃し弁開による減圧までの 3 日 2 時間 27 分 (268,020 秒) 間の、RCIC が稼働しつつ崩壊熱が減少していく期間を 15,000 秒の簡易解析で代替し、15,000 秒後に 2 個の SRV 開による減圧が行われたと仮定した解析を実施した。また、注水流量をパラメータとした解析により、注水流量を約 8.0 kg/sec とする場合には計測データと整合する水位上昇挙動が得られることがわかり、この後の解析ではこの値を使用した。

(3) 炉心支持板以下の構造物モデル[1]

冷却材の水力挙動を扱う要素及びそれらの熱交換を媒介する構造要素の相対位置関係を図 3-3-2 に示す。また、RELAP/SCDAPSIM コードの構造材要素は表 3-3-5 に示すように冷却材を内包する構成要素間の熱交換を媒介する Heat Structure と定義されている。

しかし、現状の RELAP/SCDAPSIM では炉心溶融物質はこれらの構造物上に落下するモデル化がなされていない。このため、今年度の検討では、燃料の最下端部 (炉心支持板から 7.6cm 上方) の温度の解析結果から、炉心支持板以下の温度履歴を推定することとした。

(4) 炉内温度分布

解析により得られた炉心最高温度の時間変化を図 3-3-3 に、下部プレナムへの炉心物質のロケーションが開始している約 6.5h 後の高さ方向の燃料温度分布を図 3-3-4 に示す。図 3-3-

4 から、炉心物質の下部プレナムへのリロケーションが開始している約 6.5h 後でも炉心燃料下端の温度は約 300°C～約 650°Cであり、炉心支持板から高さ 1m までの領域での温度勾配が非常に大きいことがわかる。また、各チャンネルの炉心支持板からの高さ 7.6cm の温度履歴を図 3-3-5 に示すが、炉心支持板等の炉内構造物を構成するステンレス鋼の融点の約 1,450°C 近くまで温度上昇するのは約 8.5h～9h 後以降の channel-2 と channel-1 のみである。

(5) 炉内雰囲気条件

解析により得られた炉心部の水蒸気 (H_2O) と水素 (H_2) の比率 ($\log H_2O/H_2$) の時間変化を図 3-3-6 に示す。図 3-3-6 から炉心部の H_2O/H_2 は 10^{-1} ～ 10^4 の範囲となり、高さ方向に H_2O/H_2 が小さくなり、より酸化性の低い雰囲気となることがわかる。この H_2O/H_2 比では 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る。

(5) 炉心支持板以下の構造物の破損評価

図 3-3-5 から炉心支持板直上の 7.6cm 位置でのステンレス鋼の融点の約 1,450°C 近くまで上昇するのは約 9h 近くであり、図 3-3-3 からこの時刻は炉心プールが局所的に破壊されて炉心物質の大規模スランピングが発生する時刻とほぼ一致する。また、この時刻においてもステンレス鋼の融点を超える可能性のあるのは channel-2 及び channel-1 のみである。これらのことから、RELAP/SCDAPSIM の解析結果に基づけば、炉心支持板以下の構造物の破損は比較的早い時刻に発生する制御棒ブレード、チャンネルボックス、等の金属系の炉心物質のリロケーションによるものではなく、大規模スランピング時に channel-2 及び channel-1 に相当する中央部付近で発生し、channel-3 及び channel-4 に相当する周辺部では発生しない可能性が高いと考えられる。

3.3.2 章に述べる炉心支持板破損試験結果でも、制御棒溶融物（ステンレス鋼と B_4C の混合溶融物）による炉心下部支持構造物を模擬した試験体の破損は全く見られておらず、解析結果と整合する。しかし、3.3.3 章に述べるように、原子力機構で別途実施した模擬燃料集合体のプラズマ加熱試験ではドレナージシナリオで想定されるような制御棒ブレードの先行溶融と燃料ペレットの崩落が見られており、RELAP/SCDAPSIM 解析で見られたような模擬燃料集合体内部での溶融プールの形成は観察されていない。

上記のことを総合的に勘案すると、炉心支持板以下の構造物の破損は、ドレナージシナリオで想定しているように、比較的早い時刻に発生する金属系の溶融炉心物質（制御棒ブレード、チャンネルボックス等）のリロケーションによるものではなく、燃料ピンなどの高融点の炉心物質が未溶融に近い状態で構造物上に落下し、構造物が加熱されてステンレス鋼の融点を超えることで発生する可能性が高いと考えられる。

(6) シビアアクシデント解析コードを用いた実機条件検討のまとめ

平成 28 年度にシビアアクシデント解析コード（RELAP/SCDAPSIM）を使用して実施した典型的な BWR 事故条件における解析結果を基に、溶融反応速度測定及びジルカロイ溶融・固液反応挙動解析に必要な燃料集合体から炉心部下支持構造部に至る領域の温度

条件と雰囲気条件を評価し、連携機関や原子力機構が実施する解析や試験の結果を反映した炉心支持体以下の構造物の破損解析を実施して、事故シナリオ発生条件のとりまとめを行った。

RELAP/SCDAPSIM コードによる解析結果からは、炉心支持板以下の構造物は、約 9h 後の大規模スランピング時に炉心支持板中央部付近の温度がステンレス鋼の融点の約 1,450°C を超え、破損に至る可能性が高いと評価されたが、別途原子力機構が実施した模擬燃料集合体のプラズマ加熱試験結果等から燃料集合体内部の溶融プールが生成する可能性は低く、溶融前の高温ペレットが先行溶融した制御棒スペースを經由して炉心支持板上に落下し、炉心支持板を加熱して破損させる可能性が高いと考えられる。

参考文献

- [1] U.S.NRC, "SCDAP/RELAP5/MOD 3.3 Code Manual", NUREG/CR-6150.
- [2] R. Wachowiak, "Modular Accident Analysis Program (MAAP) – MELCOR Crosswalk: Phase 1 Study," EPRI, Palo Alto, CA, 3002004449 (2014).

表 3-3-1 LAGUNA VERDE 炉と福島第一原子力発電所 2 号機の主要仕様

仕様項目	LAGUNA VERDE	福島第一原子力発電所 2 号機
熱出力	2317 MWt	2381 MWt
炉心水力等価直径	3890 mm	4020 mm
蒸気流量	81 t/h	94t/h
ペレット外径	10.42 mm	9.4 mm
被服管厚さ	0.813 mm	0.70 mm
集合体数	444	548
有効炉心長	3810 mm	3710 mm

表 3-3-2 福島第一原子力発電所 2 号機解析用炉心構成

チャンネル番号	集合体数	制御ブレード本数	平均燃焼度(MWseg/kg)
1	100	25	433641.6(37.5GWD/t)
2	156	39	433468.8(37.5GWD/t)
3	144	36	374112.0(32.3GWD/t)
4	148	37	188438.4(16.3GWD/t)

表 3-3-3 福島第一原子力発電所 2 号機解析用熱出力・崩壊熱

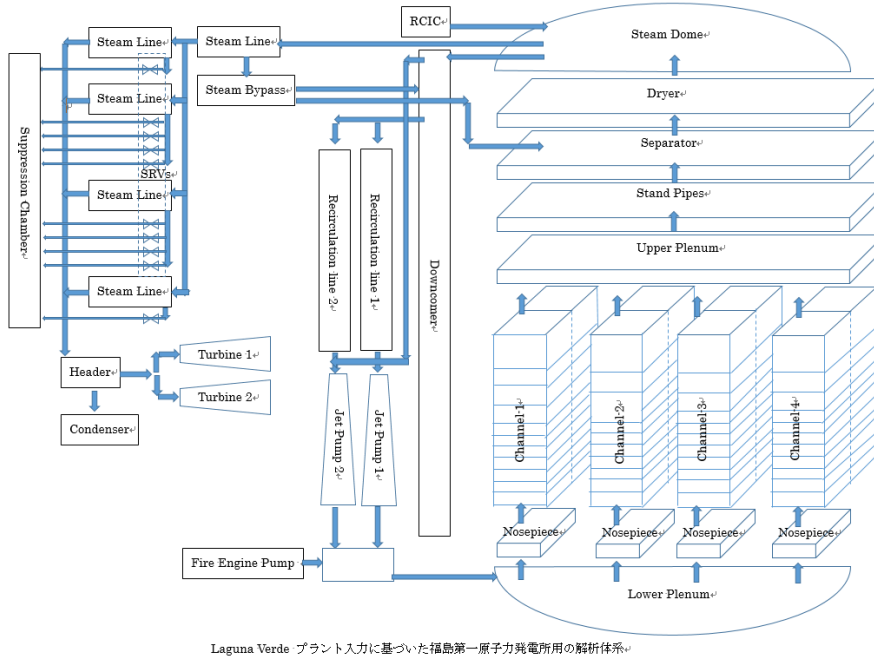
項目	熱出力・崩壊熱量
定格熱出力	2,027 MW
減圧時の崩壊熱	8.34 MW

表 3-3-4 福島第一原子力発電所 2号機解析用注水履歴

減圧後の時間 (秒)	注水
7980.0	on
9960.0	off
11880.0	on
16680.0	off
20340.0	on
22440.0	off
25740.0	on

表 3-3-5 RELAP/SCDAPSIM の構造材要素
(冷却材を内包する構成要素間の熱交換を媒介する要素)

要素名	媒介する熱交換
CORE PLATE	ノーズピース及びチャンネルボックス外側のノーズピースと同じ高さの部品と下部プレナム上端の熱交換を媒介
LOWER CORE SHROUD	ダウンカマ下部と下部プレナム中間部の熱交換を媒介
CORE PLATE STIFFNERS	下部プレナム上部と熱交換を行う構造体
CONTROL ROD GUIDE TUBES	制御棒案内管と下部プレナム上部の熱交換を媒介
CONTROL ROD DRIVE HOUSINGS	下部プレナム下部と制御棒案内管下部の熱交換を媒介
SHROUD SKIRT AND SUPPORT COLUMNS	下部プレナム中間部とダウンカマ下端部の熱交換を媒介



Laguna Verde プラント入力に基づいた福島第一原子力発電所用の解析体系

図 3-3-1 RELAP/SCDAPSIM コードの福島 2 号機解析モデル

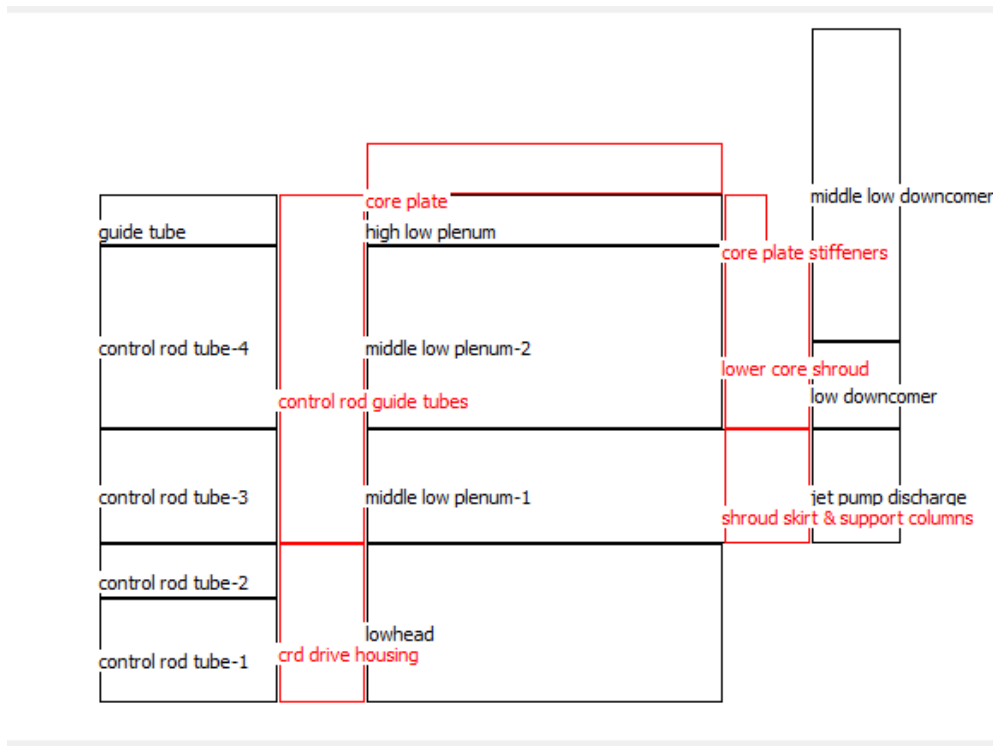


図 3-3-2 冷却材の水力挙動を扱う要素及びそれらの熱交換を媒介する構造要素の相対位置（黒字：冷却材の水力挙動を扱う要素、赤字：熱交換を媒介する構造要素）

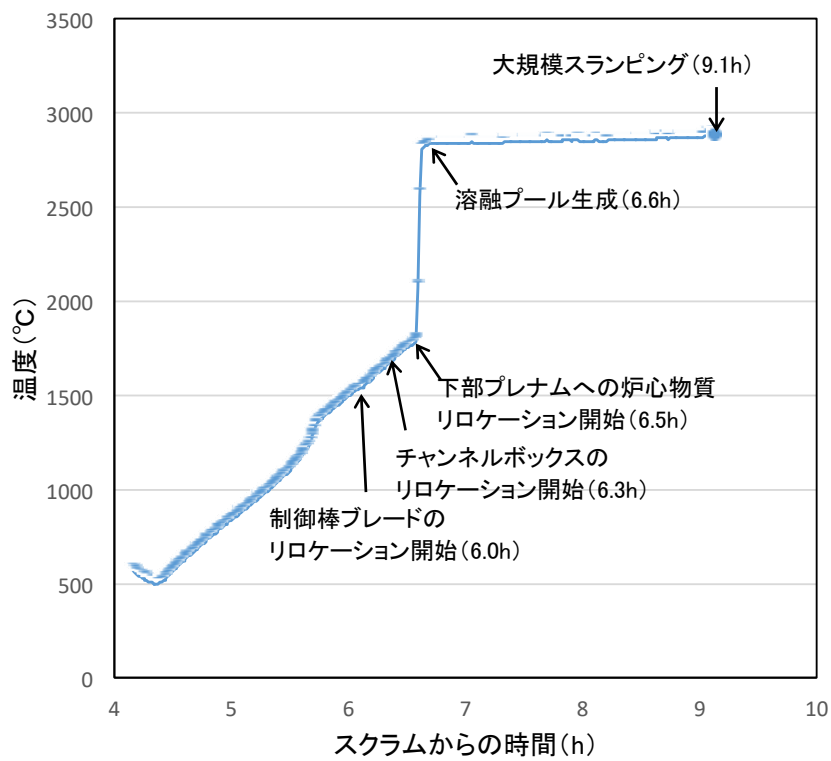


図 3-3-3 炉心最高温度の時間変化

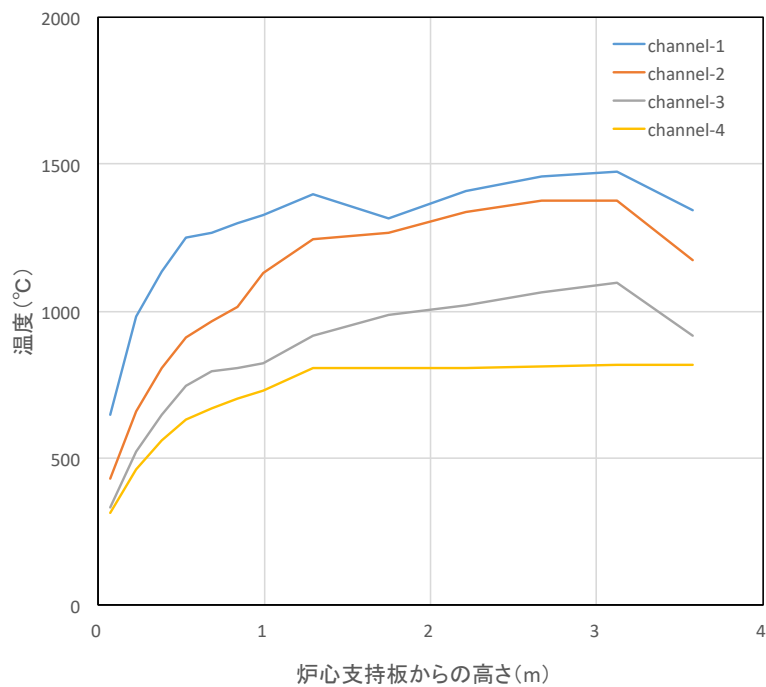


図 3-3-4 炉心部高さ方向の温度分布 (約 6.5h 後)

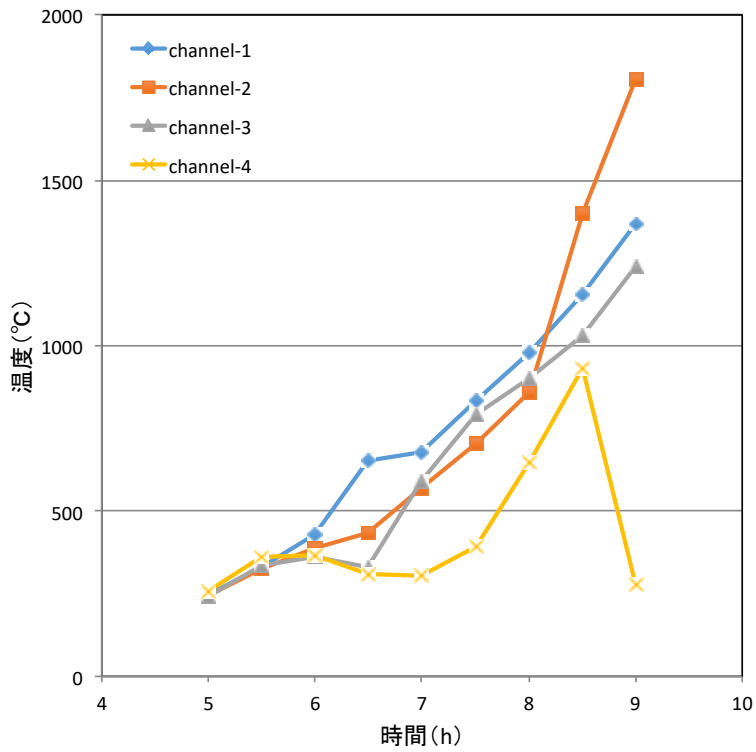


図 3-3-5 各チャンネルの炉心支持板直上部の温度履歴
(炉心支持板からの高さ 7.6cm)

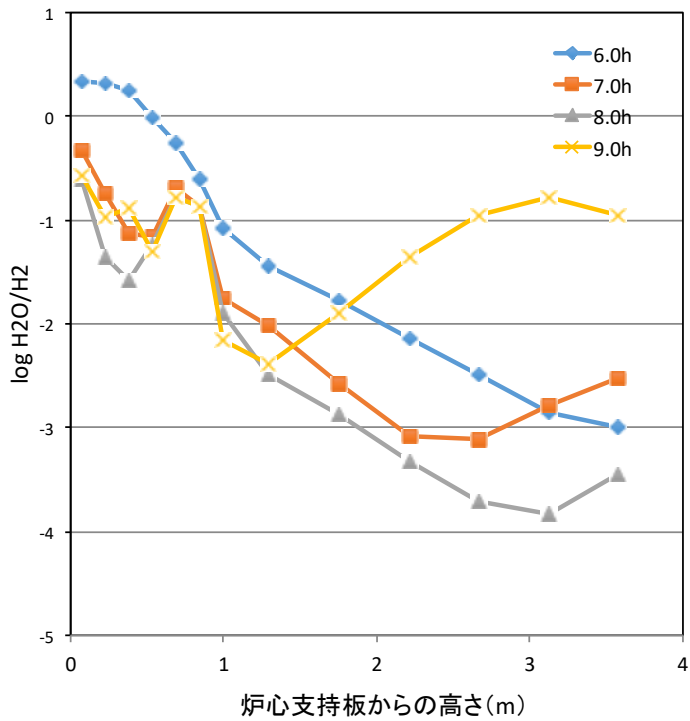


図 3-3-6 炉心部高さ方向の H₂O/H₂ 比の時間変化

3.3.2 炉心支持板破損模擬試験による検証データの取得 (H27-H29)

H28 年度に実施した炉心支持板破損模擬試験結果の評価を行い、解析モデル検証に向けたデータ整備を行った。具体的には、試験体の外面・断面観察および断面の元素分布の分析を行い、溶融物による試験体上面の破損状況の評価を実施した。

(1) 炉心下部支持板破損模擬試験結果の概要

SUS304L-B₄C 溶融物を SUS の融点より高い約 1,550°Cまで加熱・流下し、試験体部での固化・下方への流下挙動、試験体の損傷程度に関するデータを取得した。

試験装置の仕様を表3-3-6に、内部を図3-3-7に示す。最高加熱温度は1,600°C、溶解可能量は約6kgである。つぼはジルコニア製であり、下部に溶融物流下用の穴を持つ。この穴にはジルコニア製の棒状の栓をしてあり、試験時にはこの栓を上方に引き上げることで溶融物を流下させた。また、試験体部分の上方からの熱放射を防ぐために、つぼ下方に熱遮蔽板を設置した。

試験体及び溶融物の受皿の写真を図3-3-8に示す。試験体はSUS304製の平板（縦10cm×横10cm、厚さは1cm～3cm程度）で、実機の制御棒速度リミッタの形状を考慮して45°傾けた状態で設置した。

また、制御棒ブレードの溶融でSUS-B₄C系溶融物が生成するが、完全な液相が生成する最も低い温度は図3-3-9に示すようにSUS : B₄C = 98:2 (mol比) の場合の約1,500K (約1,223°C) であると考えられる。このため、試料の組成はSUS : B₄C = 98:2 (mol比) とした。

試験は試料加熱温度を変えた2回実施した。試験条件を表3-3-7に示す。試料は1回目、2回目ともに約4kg使用し、加熱温度を1,412°C (1回目)、1,559°C (2回目) とした。溶融物落下時の試験体中央部の温度は約450°C (1回目)、約415°C (2回目) であった。

試験後の試験体の写真を図3-3-10及び図3-3-11に示す。1回目、2回目の実験ともつぼ内の溶融物は試験体上に落下させることができたが、2回目の試験では一部の溶融物が昇温中に約1,400°Cで早期に漏えいしたが、残りの溶融物は約1,550°Cですべて試験体上に落下した。

図3-3-10及び図3-3-11からわかるように、溶融物は一部試験体上で固化しているものの、かなりの割合は受皿内に落下している。H25年度METI事業では溶融物が1,450°Cの場合にも燃料支持金具-制御棒速度リミッタ実構造に近い試験体の隙間部で固化したが、今回は速度リミッタ下部のみを模擬した平板状の試験体を使用しており、試験体の熱容量等の違いが挙動の違いの原因であると考えられる。

福島2号機のロボットによる格納容器内調査でも、鋼製グレーチング上に溶融金属が落下・固化したと考えられる堆積物が見られている。本事業で得られる溶融物・試験体表面～内部の観察・分析から得られるデータは、福島2号機の鋼製構造物の評価に反映できる可能性がある。

(2) 試験体断面の観察、分析

1回目の試験体について、高温溶融物と試験体表面の界面位置の光学顕微鏡観察、走査型電

子顕微鏡観察および元素分布調査のための面分析を行った。

使用した分析装置を表 3-3-8 に、観察で得られた写真を図 3-3-12～図 3-3-17 に示す。試験体表面—熔融固化物界面付近と試験体裏面の結晶粒の大きさを比較すると、表面側の結晶粒の粗大化はほとんど認められない。また、ホウ素の試験体内部への明瞭な侵入も確認されていない。

(3) 炉心支持板破損試験結果のまとめ

H28 年度に実施した炉心支持板破損模擬試験の試験体の外面・断面観察および断面の元素分布の分析を行い、熔融物による試験体上面の破損状況の評価を実施した。

試験では 1,400°C 以上の制御棒ブレード熔融物 (SUS : 98mol%、 B_4C : 2mol%) 約 4kg を試験体上に流下したが、熔融物が固化・付着した試験体表面での結晶粒の粗大化やホウ素の試験体内への侵入は確認されなかった。

参考文献

- [1] 平成 25 年度発電用原子炉等安全対策高度化技術基盤整備事業(シビアアクシデント時の燃料破損・熔融過程解析手法の高度化) 報告書

表3-3-6 炉心下部破損模擬試験装置の仕様

試験体装荷	約 100mmx100mm のステンレス製平板試験体が、装置内の中央で所定温度の位置に水平または斜めに配置できる
試験体温度分布	実機事故時の炉心支持板近傍温度（約 200°C～約 600°C）に維持する。
るつぼ部温度	～1500°C
雰囲気	アルゴン(常圧) ガスパージで、装置内の酸素濃度を 200ppm 以下にする
加熱方式	黒鉛ヒータ
試験体温度測定	試験体裏面で熱電対による温度測定を行うとともに、パイロメータにより表面温度測定を行う。
試験体の回収	試験後の試験体及び溶融物、崩落物が回収可能とする
撮影窓	試験体の崩落過程が外部から動画撮影できる耐熱性の窓を取り付ける
酸素濃度測定	ガス分析配管を取り付け、試験中の酸素濃度変化を測定する
安全弁	圧力逃がしの安全弁を備える

表3-3-7 試験条件

試験No.	試験条件
1	試料組成 : SUS 98mol%、B ₄ C 2mol% 試料重量 : 3,992g 溶融物落下時温度 : 1,412°C 溶融物落下時試験体（中央部）温度 : 約450°C
2	試料組成 : SUS 98mol%、B ₄ C 2mol% 試料重量 : 3,989g 溶融物落下時温度 : 1,559°C（一部が約1,400°Cで漏えい） 溶融物落下時試験体（中央部）温度 : 約415°C

表3-3-8 分析装置

測定項目	測定装置	その他
外面観察	Polaroid製 接写装置 MP4	
光学顕微鏡観察	Polaroid製 接写装置 MP4 Nikon製 光学顕微鏡 ECLIPSE MA200	
走査型電子顕微鏡観察	カールツァイス製 電子線表面イメージング顕微鏡 ULTRA55	
面分析	島津製作所製 電子線マイクロアナライザ EPMA-1600	対象元素は炭素、ホウ素及び鉄

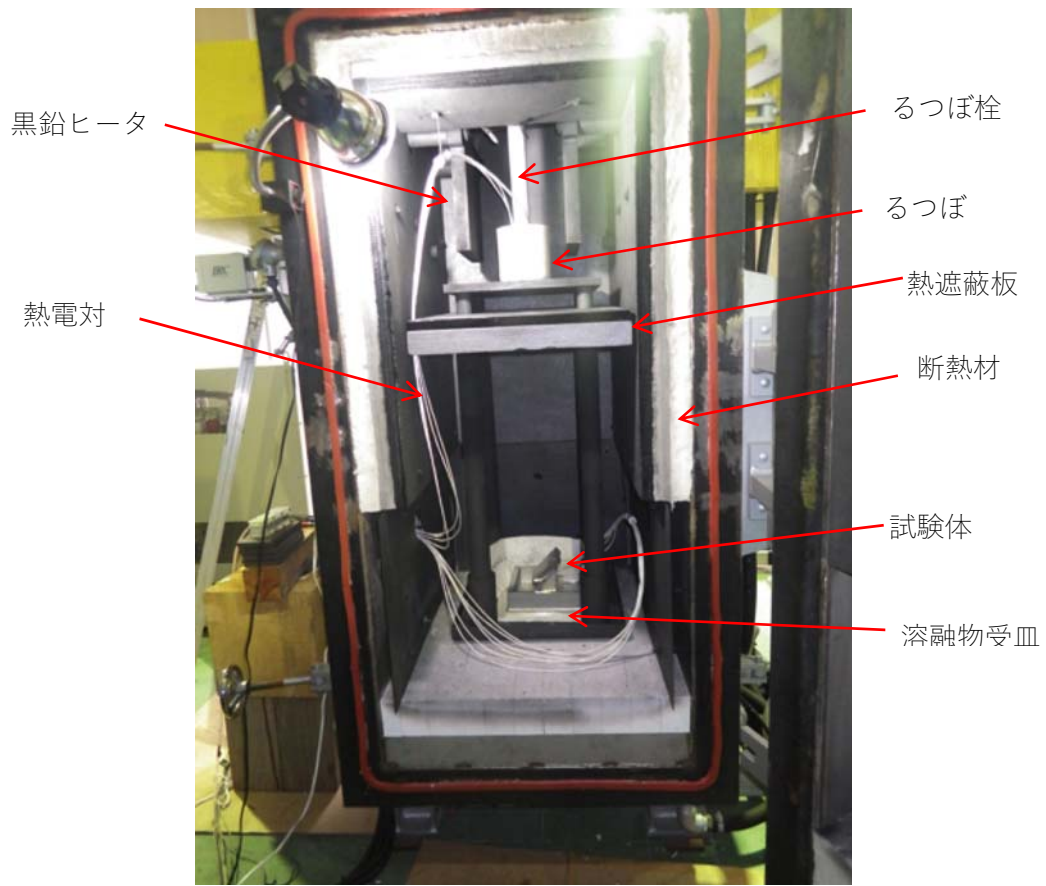


図3-3-7 試験装置内部



図3-3-8 試験体及び溶融物受皿

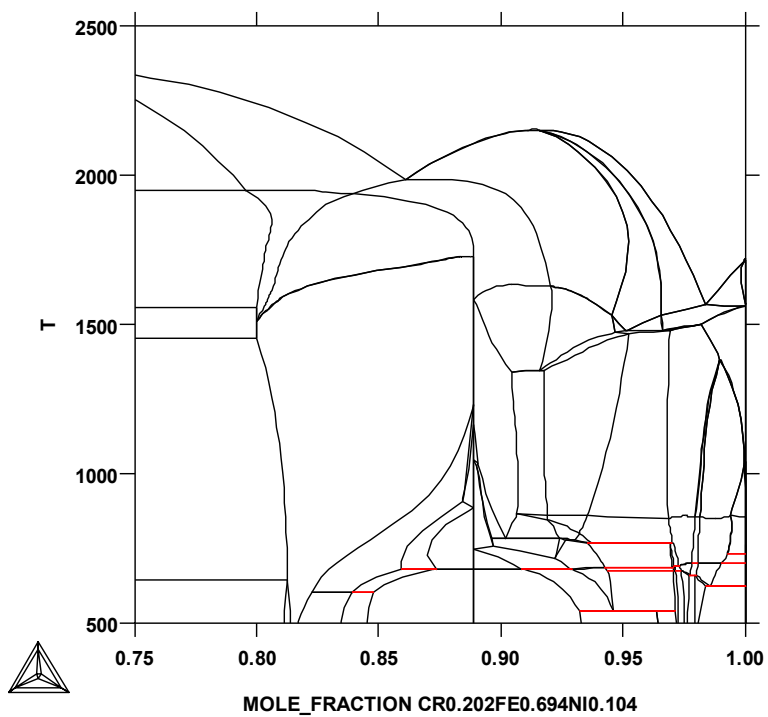


图3-3-9 SUS-B₄C状态图

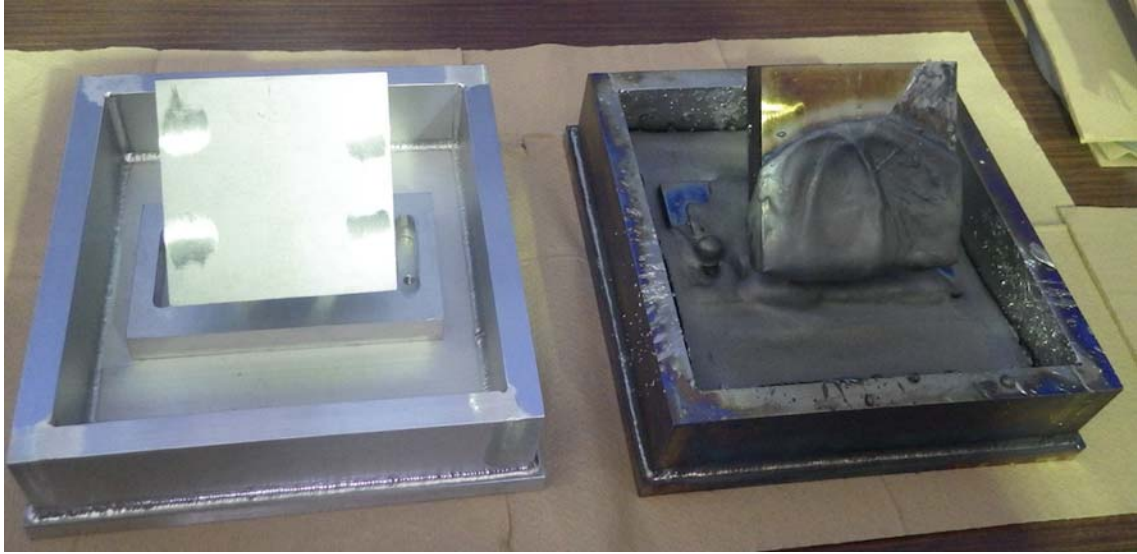


図3-3-10 試験後の試験体（1回目）（左図：試験前、右図：試験後）

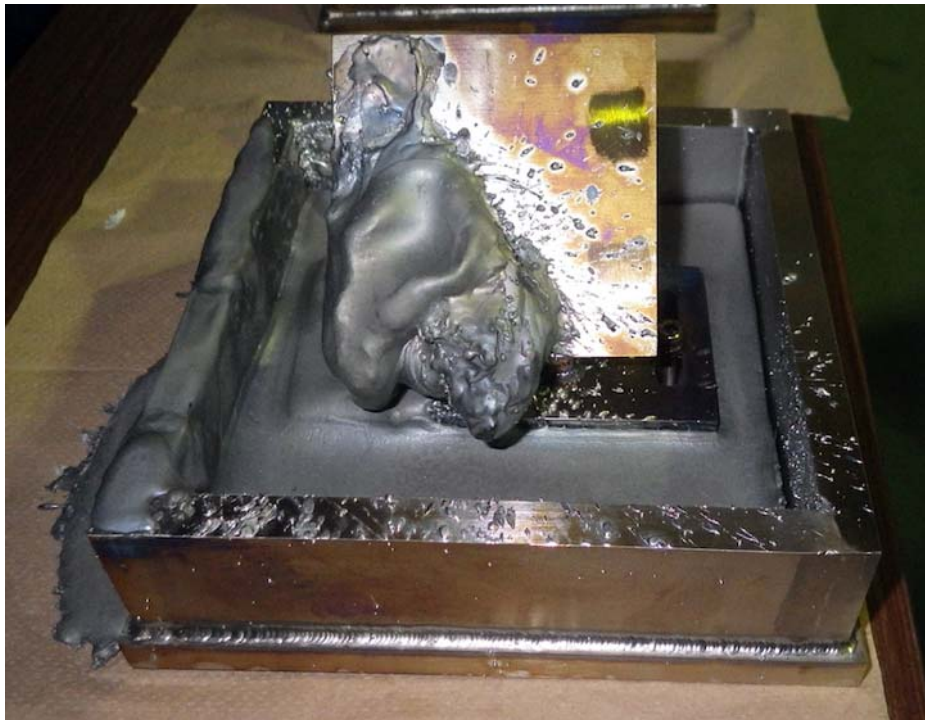


図3-3-11 試験後の試験体（2回目）

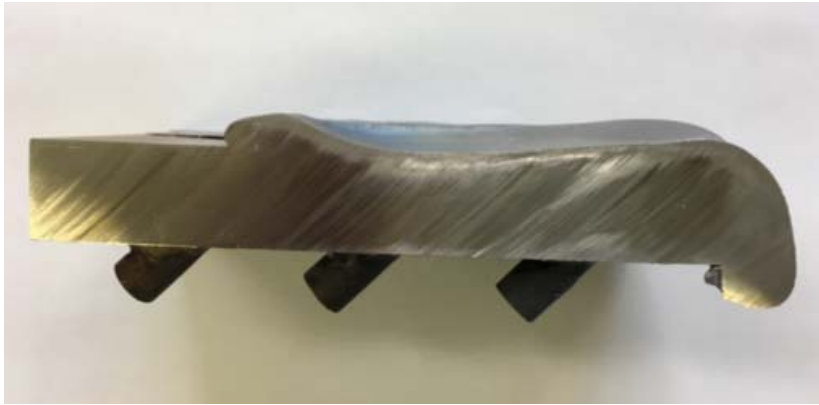


図3-3-12 試験体断面（1回目）



図3-3-13 試験体断面（2回目）

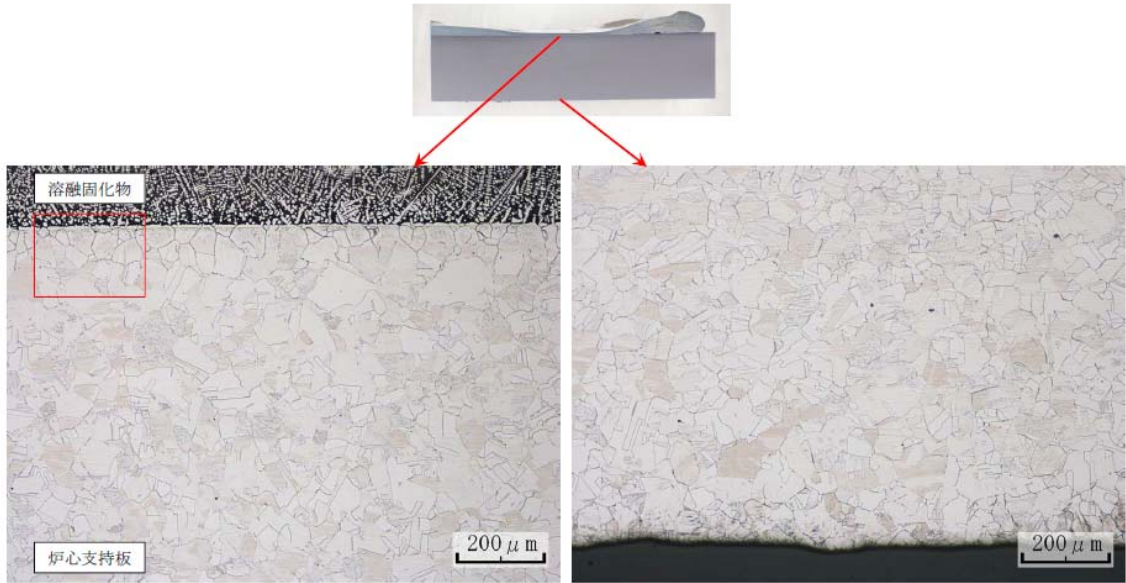


図3-3-14 1回目試験体の光学顕微鏡による金属組織観察結果

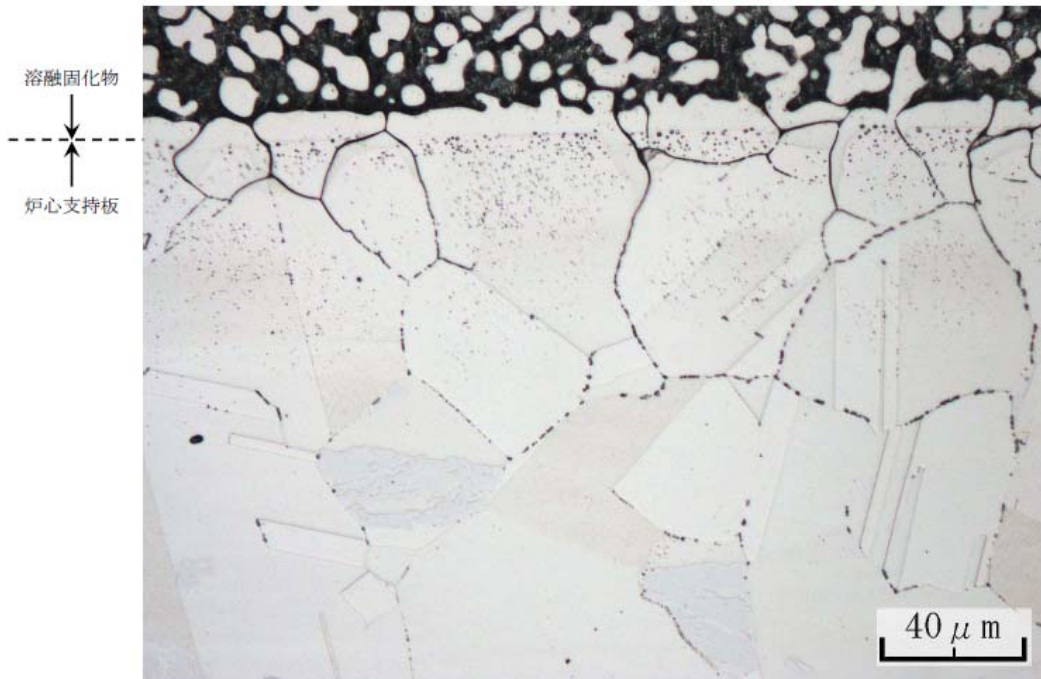


図 3-3-15 1回目試験体の光学顕微鏡による金属組織観察結果
(図 3-3-14 左図の赤枠部拡大)

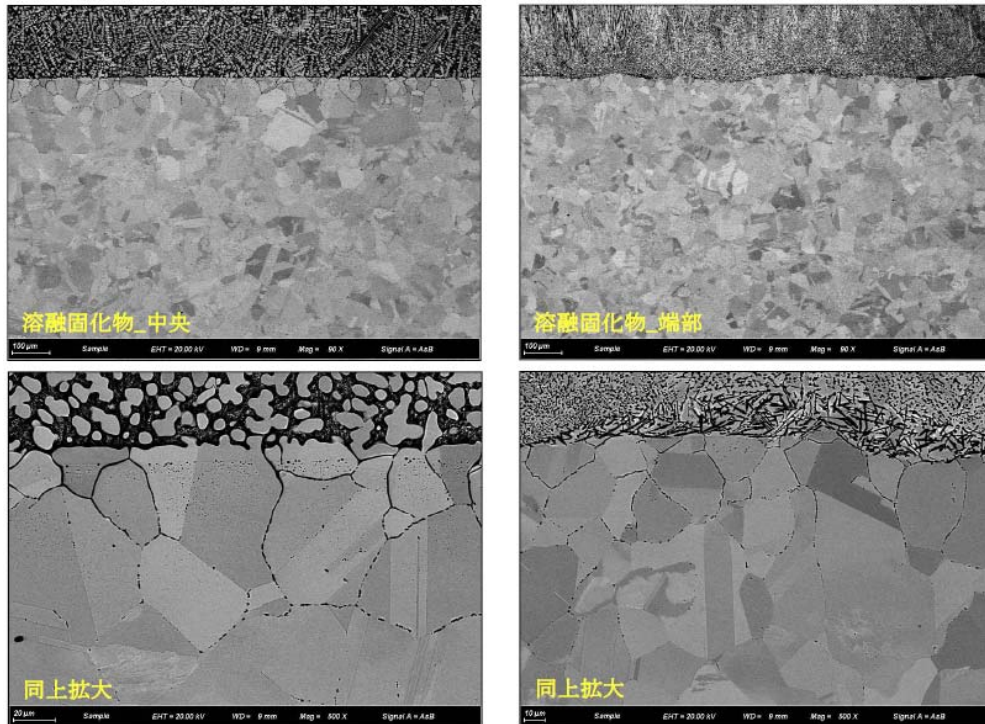


図 3-3-16 1回目試験体の走査型電子顕微鏡観察結果

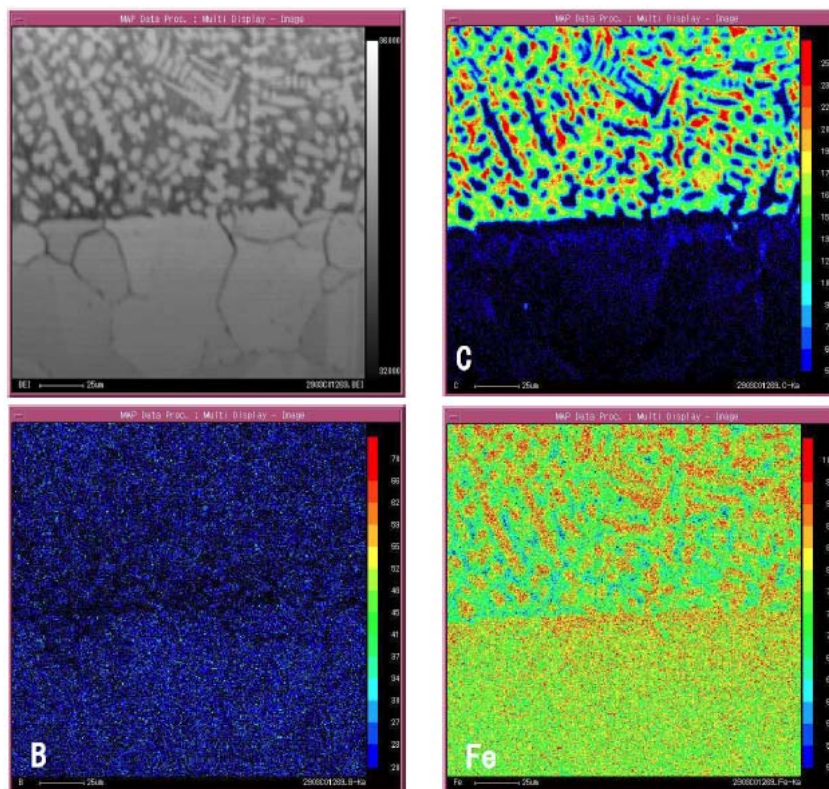


図 3-3-17 1回目試験体の面分析結果

3.3.3 溶融物の特性調査 (H27-H29)

別途、原子力機構にて実施したプラズマ溶融試験体の分析結果を評価し、解析モデル検証に向けたデータを整備する。

(1) プラズマ加熱試験の概要

原子力機構では制御棒および燃料が溶融・流下して炉心支持板を含む下部支持構造部が破損する挙動の調査を目的として、H27年度に炉心下部支持構造及び模擬制御棒ブレードを持つ模擬燃料集合体のプラズマ加熱試験を実施した[1]。

本試験では図3-3-18に示すような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、中心部に設置した模擬制御棒ブレードの溶融挙動とそれに続く燃料ピンの溶融挙動を確認した。約50本の模擬燃料ピンはジルコニア合金製の被覆管とジルコニア製ペレットからなり、中央に設置した平板状の模擬制御棒ブレードは実機と同様のステンレス製の鞘と B_4C ペレットから構成されている。試験は2回実施したが、2回目の試験（試験-II）時の試験体内部の高さ方向温度分布の時間変化を図3-3-19に示す。

冷却後の試験-IIの試験体内部の状況を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）で撮像した。試験体の横断面及び縦断面のX線CT像を図3-3-20に示す。X線CT撮像では、密度に関する情報も得られることから、画像情報と合わせて、融体生成・流下挙動を評価することが可能である。

試験では、制御棒ブレードを持つ模擬燃料集合体の加熱試験により、プラズマ加熱により試験体上部を加熱し、実機で予想されると同様に高さ方向に大きい温度勾配をつけた場合、金属成分をより多く含む融点の低い制御棒ブレード由来のメタル系溶融物が試験体下部の低温領域までまず流下し、セラミック成分が多く融点の高い燃料ピン由来のスラグ系溶融物はよりメタル系溶融物に比べ溶融・流下のタイミングが遅くなることが確認された。

(2) 試験体の元素分析[2]

プラズマ加熱後の試験体（試験-II）をウォータージェットにより縦方向に半分に切断し、その中央部の2領域（II-1、II-2）について、電子線マイクロアナライザ（EPMA）のうち波長分散型（WDX）の装置を用いて酸素（O）、鉄（Fe）、ホウ素（B）、ジルコニウム（Zr）のマッピング分析を行った。結果を図3-3-21および図3-3-22に示す。また、ホウ素（B）のマッピングに使用した $K\alpha$ 線は、ジルコニウム（Zr）の Mz 線のピークの近傍にあり干渉するため、 $B(K\alpha)$ のマッピング結果から、Zr（ Mz ）の影響を差し引いた結果を図3-3-23及び図3-3-24に示す。この結果はWDX単独での簡易定量分析で得られた濃度と定性的に一致することが確認された。

これらの分析結果から、溶融した制御棒が流下したと考えられる試験体中央部では酸素が検出されておらず、鉄やジルコニウムを中心に少量のホウ素が検出されていることがわかる。

(3) 溶融物の特性調査のまとめ

別途JAEAにて実施した模擬燃料集合体加熱試験で使用した試験体のX線CT撮像を実施し、溶融物の特性に関するデータを取得した。メタル・スラグ系混合物の試験体解析により、まず融点の低いメタル系溶融物が制御棒速度リミッタ部に流下し、遅れて融点の高いスラグ系溶融物が炉心支持板周辺に落下する、という融体生成挙動予測の妥当性を確認した。

参考文献

- [1] Y. Abe, I. Sato, T. Nakagiri, A. Ishimi, Y. Nagae, “Application of Nontransfer Type Plasma Heating Technology for Core-Material-Relocation Tests in Boiling Water Reactor Severe Accident Conditions”, Journal of Nuclear Engineering and Radiation Science, Vol.4, April 2018.
- [2] 阿部雄太、中桐俊男、佐藤一憲、中野菜都子、山口英信、丸山信一郎、「プラズマ加熱試験の材料分析を用いた評価手法の確立 (1) プラズマ加熱試験の材料分析を用いた評価手法の概要」、日本原子力学会 2017 年秋の年会 2C21、2017 年 9 月。

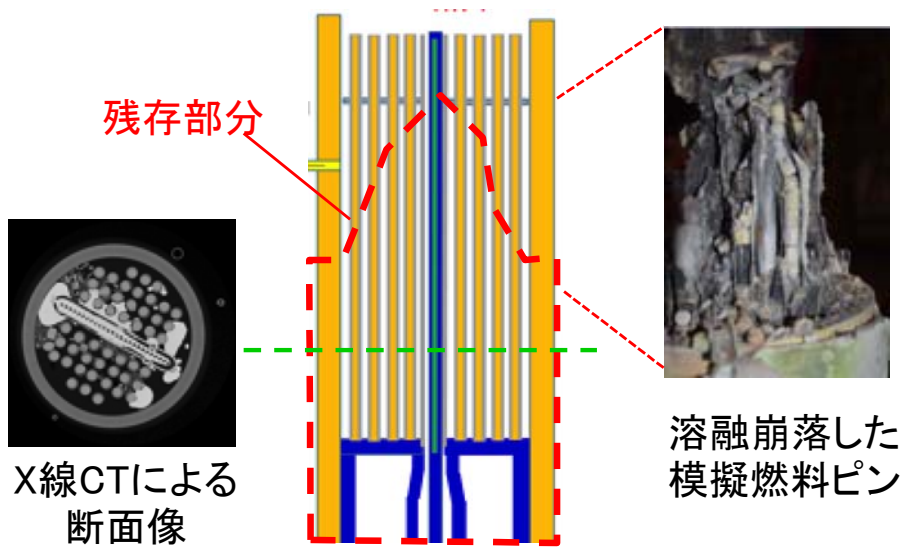


図3-3-18 模擬燃料試験体の断面図と加熱後の様相

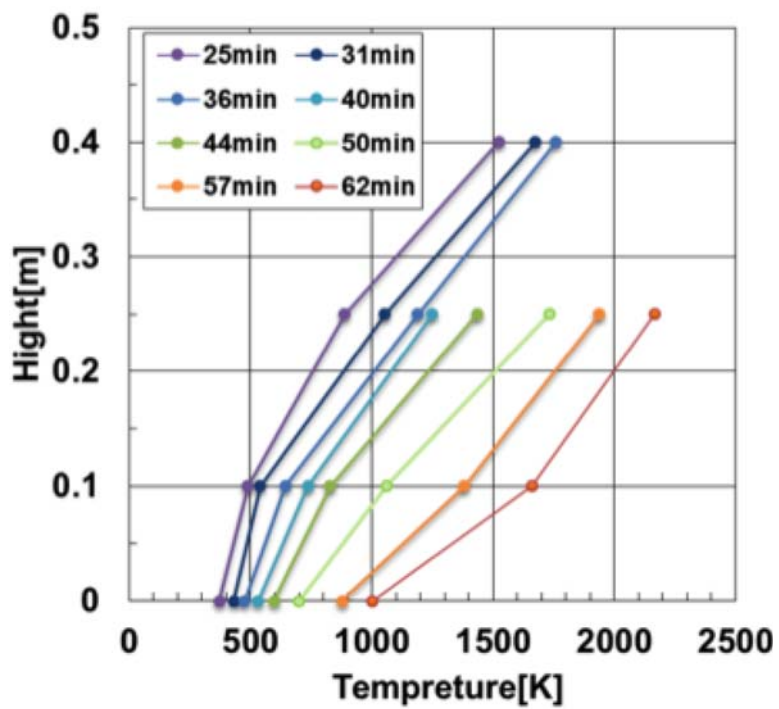


図3-3-19 模擬燃料試験体（燃料ピン部分）の高さ方向温度分布の時間変化

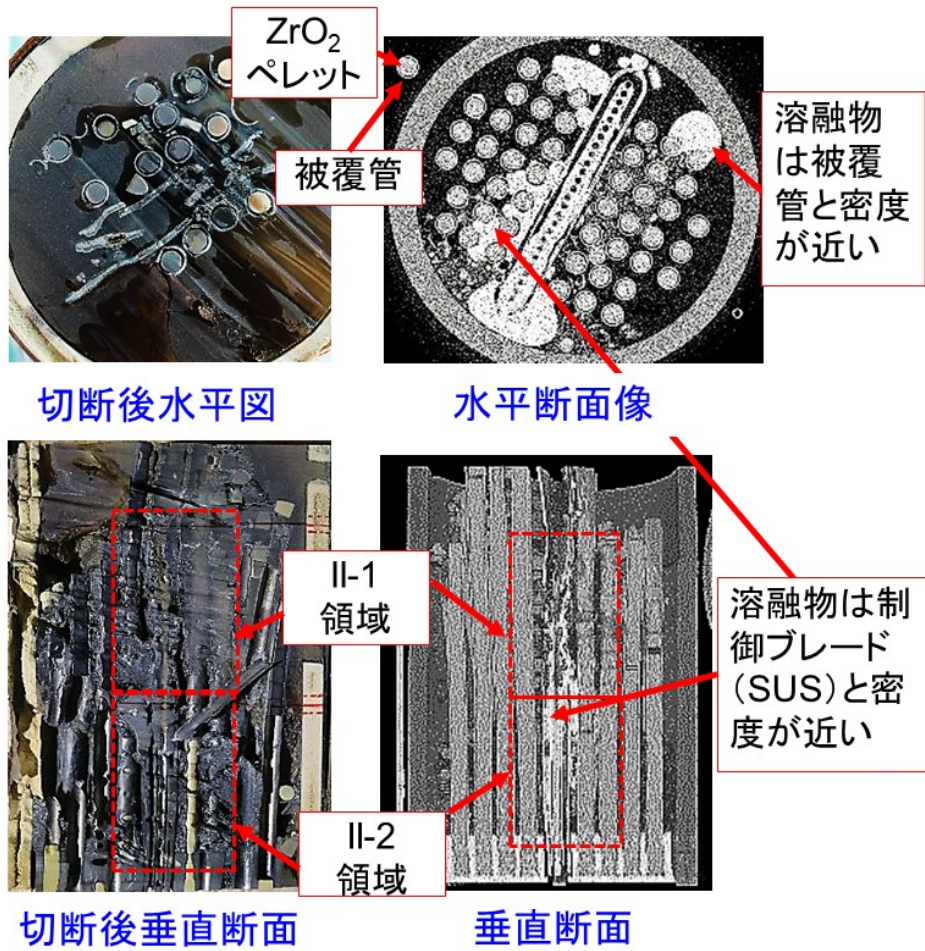


図3-3-20 模擬燃料集合体の断面写真とX線CT画像（上図：横断面、下図：縦断面）

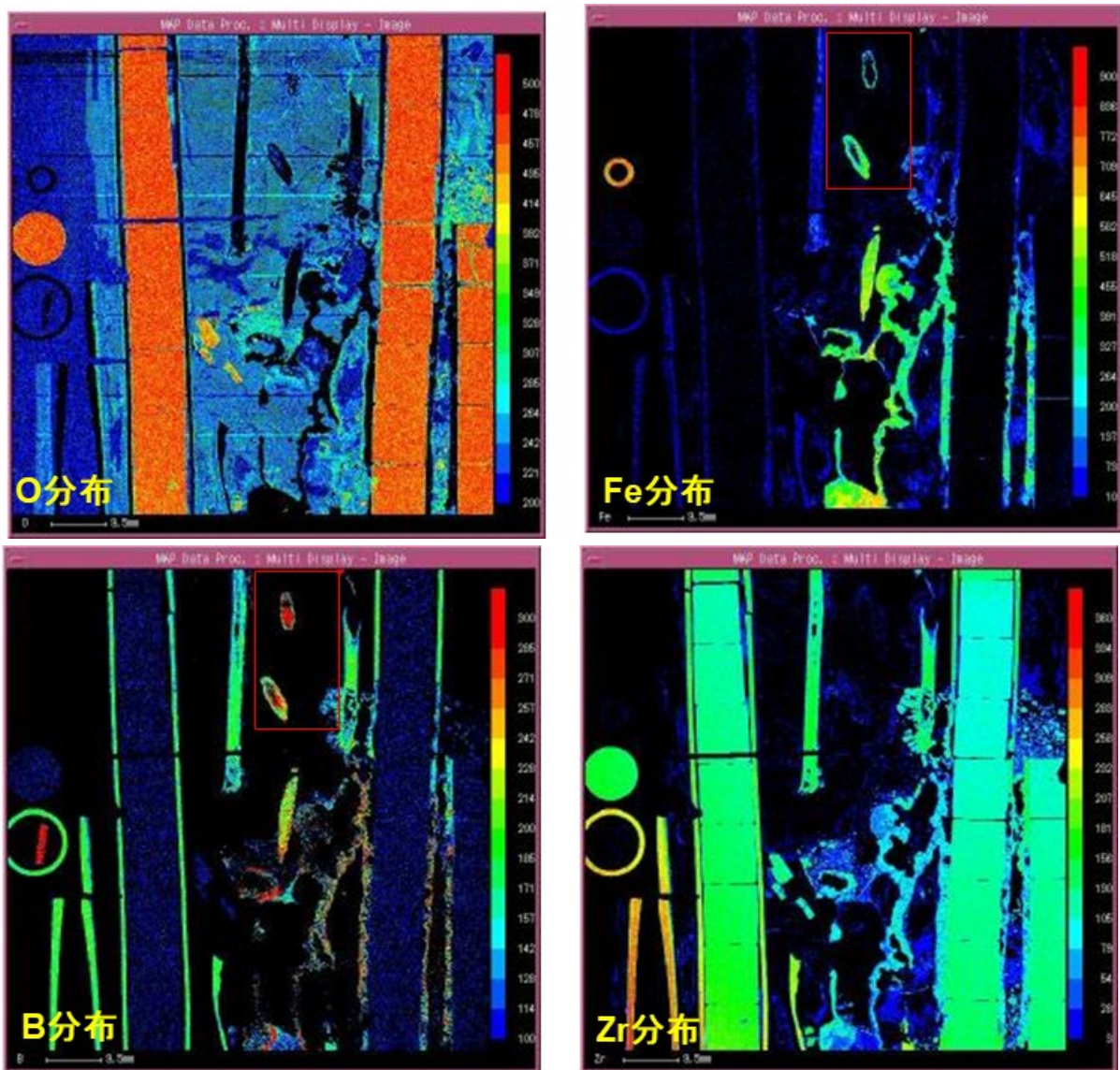


図3-3-21 EPMA (WDX) による酸素 (O)、鉄 (Fe)、ホウ素 (B) 及びジルコニウム (Zr) のマッピング分析結果 (II-1 領域)

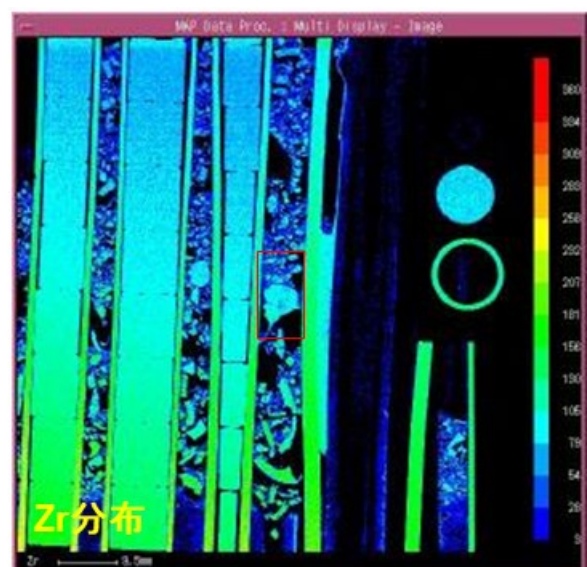
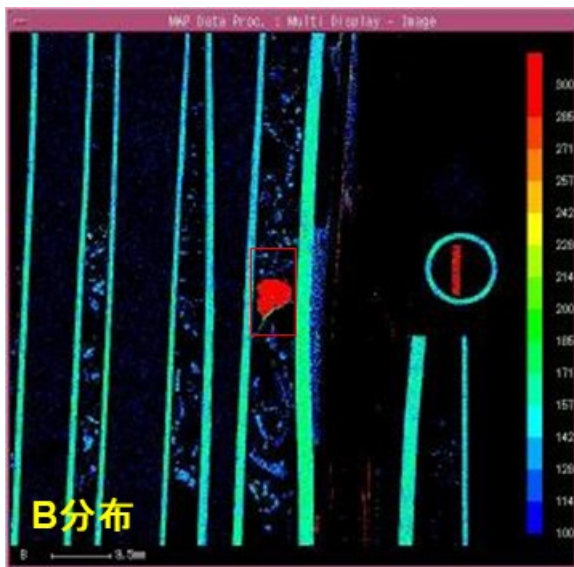
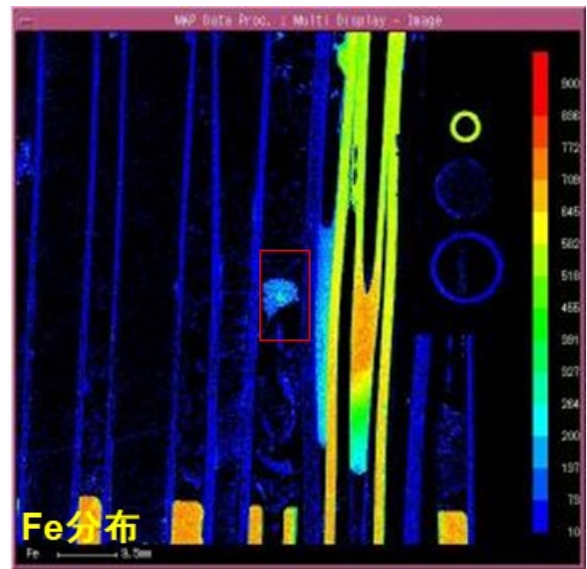
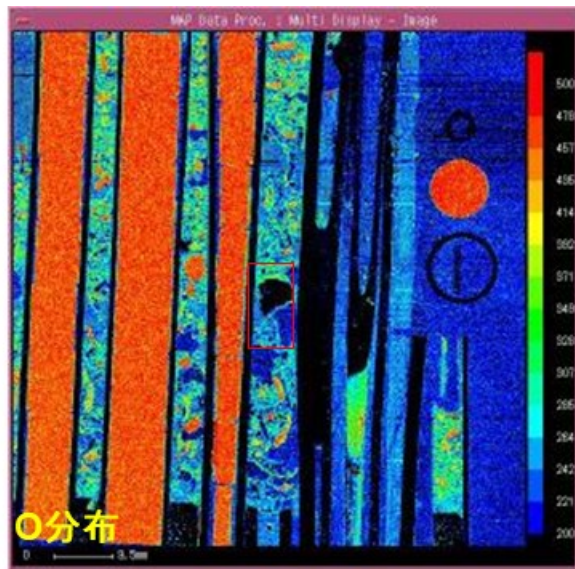
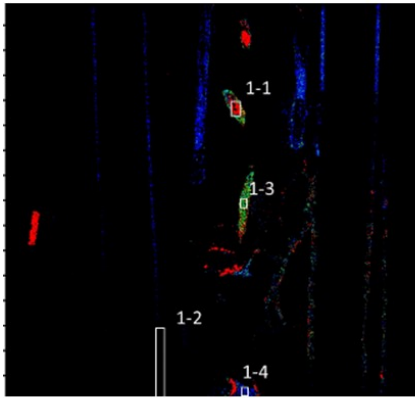


図3-3-22 EPMA (WDX) による酸素 (O)、鉄 (Fe)、ホウ素 (B) 及びジルコニウム (Zr) のマッピング分析結果 (II-2 領域)

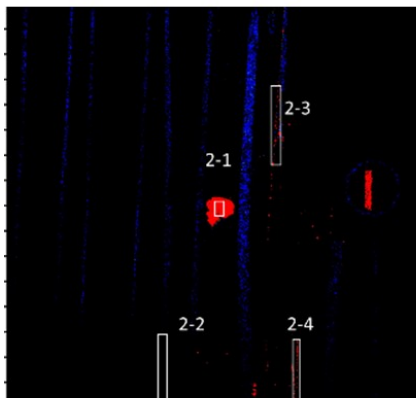


WDXによる簡易定量分析結果 (単位: mol%)

	Zr	O	B [※]	C	Fe	その他
B ₄ C	—	—	72.6	27.4	—	—
ペレット	21.8	65.4	4.0	6.1	—	2.7
被覆管	51.8	17.9	7.3	22.2	0.6	0.2
1-1	—	1.5	31.2	53.8	8.9	4.6
1-2	57.4	17.6	8.1	15.4	0.3	1.2
1-3	—	—	24.9	35.7	26.3	13.1
1-4	11.4	10.7	—	10.5	43.1	24.3

WDXによるホウ素
(B) マッピング分析

図3-3-23 EPMA (WDX) によるZr (Mz線) の影響を差し引いたホウ素 (K α 線) マッピング分析結果と簡易定量分析結果 (II-1 領域)



WDXによる簡易定量分析結果 (単位: mol%)

	Zr	O	B [※]	C	Fe	その他
B ₄ C [※]	—	—	72.6	27.4	—	—
ペレット [※]	21.8	65.4	4.0	6.1	—	2.7
被覆管 [※]	51.8	17.9	7.3	22.2	0.6	0.2
2-1	24.1	18.5	34.8	13.8	5.1	3.7
2-2	55.3	21.0	6.8	15.5	0.4	1.0
2-3	—	—	—	10.3	58.9	30.8
2-4	0.5	—	—	9.7	59.8	30.0

WDXによるホウ素
(B) マッピング分析

※II-1の比較試料の結果

図3-3-24 EPMA (WDX) によるZr (Mz線) の影響を差し引いたホウ素 (K α 線) マッピング分析結果と簡易定量分析結果 (II-2 領域)

3.4 本事業で得られた研究成果の福島廃炉プロジェクトへの反映(H29)

本章では、本事業で得られた研究成果を、原子力機構で開発中の過酷事故時炉内溶融物移行挙動解析コード JUPITER に反映する方針について記載する。

3.4.1 JUPITERコードの概要[1], [2]

原子力機構では、過酷事故時の炉内溶融物移行挙動進展を現象論的に評価するために、数値流体力学的手法に基づく3次元多相多成分熱流動解析手法 (JUPITER: Jaea Utility Program with Immersed boundary Technique and Equations of multiphase flow analysis for simulating Relocation behavior of molten debris) の開発を行っている。

原子炉過酷事故では、燃料棒1本スケール(数 cm) から圧力容器スケール(十数メートル) まで非常に広範囲にわたるマルチスケール・マルチフィジクス現象を含むため、溶融物の移行挙動の詳細な予測のためには、高性能な大規模計算が必要不可欠となる。このような問題を解決するため、JUPITER コードでは大規模並列計算に適した計算スキームの適用だけでなく、計算負荷の多くを占める圧力 Poisson ソルバーに対する反復解法を超並列計算に適したソルバーを適用している。

シビアアクシデント時に起こる現象は非常に多岐にわたり、その全てを数値流体力学的手法による再現することは極めて難しい。そこで、JUPITER コードでは以下に示す現象を主に取り扱っている。JUPITER コードの概要を表 3-4-1 に示す。

- ・冷却材喪失による燃料の温度上昇(燃料の変形、熱伸び、亀裂、破断は対象としない)
- ・融点を超える或いは下回る時の溶融・凝固挙動
- ・溶融した物質の炉内構造物内の移行挙動
- ・輻射伝熱、酸化反応(水-ジルコニウム反応など)、共晶による溶融

これまで、熱伝導、温度回復法による相変化、埋め込み境界法による炉内構造物界面表現手法並びに、複数の成分が存在する炉内構造物(UO₂、B₄C、Zry、SUS等)を区別するためのVOF (Volume of Fluid) 関数による多成分流体シミュレーション機能により、温度上昇による炉内構造物の溶融とその移行挙動をシミュレーションするための基本的な機能の妥当性を確認している。これにより、詳細な燃料の流動の取扱いと、多成分の取扱いが可能になり、発熱する物質であるUO₂及び非発熱体である構造物(Zry、SUS、B₄C)を含んだ体系での一貫したシミュレーションが可能となっている。

共晶反応を取扱うために、図 3-4-1 に示すような、溶質元素の拡散モデルと組成に対応する融点を算出するサブルーチンを新たに開発中である。表 3-4-2 に関連する物質系での拡散係数の算出式例を示す[3]。

3.4.2 本事業で得られた成果の JUPITER コードへの反映方針

東北大、東工大で得られた成果は 3.1 章、3.2 章で述べられているように、それぞれ下記のように異なる金属が接する界面やステンレス粒界における元素拡散現象に起因するものである。

これらのことから、それぞれ下記のように JUPITER コードの共晶反応モデル中で使用されている拡散係数式に反映することを検討する。

- (1) 東北大成果のモデル化：雰囲気中に酸素が存在する場合のジルカロイ表面での酸化膜生成がジルカロイ-ステンレス共晶反応を抑制する効果、さらに雰囲気中に窒素が存在する場合に酸化膜が多孔質化して左記抑制効果が減少する現象が確認されている。また、溶融ステンレス-ホウ素系溶融物中にジルコニウムが存在する場合にはステンレス溶融速度が低下することが確認されている。これらの現象について、それぞれ共晶反応モデル中で使用されている拡散係数式に反映する方向で検討する。
- (2) 東工大成果のモデル化：ステンレス鋼の結晶粒脱離挙動は溶融金属中のホウ素がステンレス製構造物の表面から結晶粒界中に拡散浸入し、粒界を劣化されることに起因するが、実際の粒の脱離速度は構造物表面を流動する溶融金属の流動に支配されている。これらのことから、ステンレス鋼表面近傍の溶融ステンレス境界層内のホウ素の拡散が律速過程となっている可能性が高いと考えられる。しかしながら上記の東北大の知見で溶融物中にジルコニウムが存在する場合には脱離現象が遅くなることから、他の現象（溶融ステンレスにジルコニウムが混入することで溶融物の融点が上昇する。粒界中に侵入したジルコニウム原子が粒界の劣化を抑制する等）が影響している可能性も考えられる。東工大と東北大でこれまでに得られている実験結果を併せて評価して、モデル化方針を検討する必要がある。

JUPITER コードへの反映方針と実施計画を図 3-4-2 に示す。種々の溶損速度支配因子を、物理現象系統、化学反応系統に切り分けて捉え、それぞれの効果を総括拡散係数の形で評価して一元化し、JUPITER コードへ反映させる、という方針で進めることが考えられる。このような手法で、従来取り扱われてこなかった共晶などの化学反応や、粒脱落のような物理現象を組み込むことで、より効果的に溶損挙動を記述できるかどうかを確認する。

3.4.3 課題

JUPITER の共晶反応モデルは元素拡散という局所的な現象を取扱うものである。このため、実機プラントの炉心部全体の溶融移行挙動評価のようなマクロな領域の解析へ反映するためには、ミクロ-マクロ解析を連成させるための手法の導入について別途検討が必要である。

表 3-4-1 3次元多相多成分熱流動シミュレーションコード JUPITER の概要[2]

支配方程式	<ul style="list-style-type: none"> ・連続の式 ・非圧縮性流体のナビエ・ストークス方程式 ・エネルギー方程式 ・界面捕獲方程式：流体率関数により固・気・液三相の熱物性値を定義
数学モデル	<ul style="list-style-type: none"> ・時間積分：3次精度 Runge-Kutta、陰解法 ・移流項：5次精度 WENO、3次精度風上 ・拡散項：2次中心差分 ・界面捕獲手法：THIC、THINC/WLIC 法
物理モデル	<ul style="list-style-type: none"> ・相変化：温度回復法 ・表面張力：CSF モデル ・埋め込み境界法：埋め込み境界法

表 3-4-2 拡散係数の算出式例

対象とする系	拡散係数の算出式
SUS-B ₄ C[3]	$\begin{cases} 1.422 \times 10^{-2} \times \exp\left(-\frac{30011.976}{T}\right) & (T \leq 1473) \\ 1.094 \times 10^{10} \times \exp\left(-\frac{65349.669}{T}\right) & (1473 \leq T) \end{cases}$
SUS-Zircaloy[3]	<p>Zircaloy 中の SUS: SUS に対して Zircaloy の濃度が高い ($Y_{\text{SUS}} \leq Y_{\text{Zr}}$) 場合</p> $1.006 \times 10^9 \times \exp\left(-\frac{57924.824}{T}\right)$ <p>SUS 中の Zircaloy: Zircaloy に対して SUS の濃度が高い ($Y_{\text{SUS}} > Y_{\text{Zr}}$) 場合</p> $1.173 \times 10^6 \times \exp\left(-\frac{52366.8739}{T}\right)$
B ₄ C-Zircaloy[4]	$5.398 \times 10^{-8} \times \exp\left(-\frac{21448.519}{T}\right)$

○共晶等を再現するため、溶質拡散モデルを導入。

・溶質の移流拡散方程式

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + u_i \frac{\partial \phi}{\partial x_i} = 0, \quad \frac{\partial Y_k}{\partial t} + u_i \frac{\partial Y_k}{\partial x_i} = D_k \frac{\partial^2 Y_k}{\partial x_i^2}$$

・物性値

$$Mat(\phi) = M(Y_k)\phi + M_g(1 - \phi)$$

$$M(Y_k) = 1 / \sum \frac{Y_k}{\rho_k}$$



実験で得られた
拡散係数を
反映可能

○熱力学データベース(状態図)に基づき、組成に対応する融点を算出するサブルーチンを構築。



図 3-4-1 JUPITER コードの共晶反応モデル

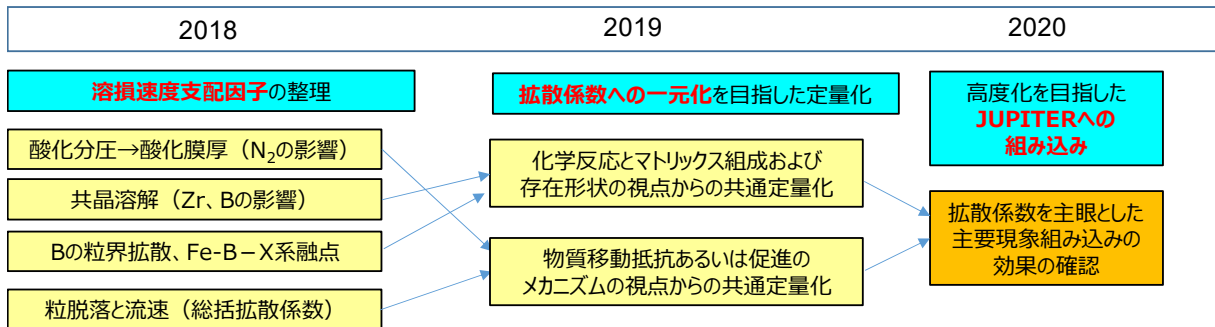


図 3-4-2 JUPITER コードへの反映方針と実施計画

参考文献

[1] 山下晋、伊奈拓也、井戸村泰宏、吉田啓之、「原子炉過酷事故時における炉内溶融物移行挙動の大規模数値シミュレーション」、第 31 回数値流体力学シンポジウム講演論文集、2017.12.

[2] 山下晋、高瀬和之、吉田啓之、「燃料溶融複雑系シミュレーション」、第 26 回 CCSE ワークショップ「複雑現象シミュレーション技術の最前線」講演資料、平成 27 年 2 月 26 日.

[3] W.Hering and P. Hofmann, “Material Interactions during LWR Accident”, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1994.

3.5 研究推進 (H27-H29)

委託先機関の東京工業大学、再委託先機関の東北大学、原子力機構のそれぞれの代表研究者により、二者および三者間で、材料研究間での連携調整、材料研究と模擬体での実験研究および材料研究と SA 解析コードでのシミュレーション内容の相互関連討論のため、関連学会および国際会議の機会に、あるいは東工大、東北大、原子力機構のそれぞれの機関で会合し、に綿密に協議を行った。また、最終年度である平成 29 年度においては、成果の取りまとめの方針、および本成果の、廃炉プロセスへの活用を念頭に置いた今後の展開として、材料学的実験から得られた知見を SA 解析コードへ然るべきパラメーターに組み込んで反映させ、熱、物質移動、化学反応を加味したモデル化をさらに進めるという基本的な考え方について確認した。

4. 結言

この研究は、過酷事故を生じた沸騰水型原子炉における炉内破損状況把握に関して重要な情報を得るため、燃料棒・制御棒溶融体形成時の反応、本溶融体による炉心下部構造物のステンレス鋼の溶損挙動、より高度なシビアアクシデントコードによる解析を行うために必要な事故実機炉内の温度・雰囲気についての予測、本解析による炉内状況予測の妥当性を検証するための模擬実験について、東京工業大学、東北大学、日本原子力研究開発機構が、それぞれの研究領域の特色を生かし、得られた知見を集結することにより行ったものである。

現在、廃炉に向けて段階的に整備・アプローチが進められている福島第一原子力発電所の炉内からの燃料デブリ取り出しアクセス性の検討に役に立つ予測を将来的に行い、燃料デブリ取り出しプロセスを促進することを目指して、本事業の成果を活用してまいりたいと考えている。

具体的には、材料学的実験・および破損模擬実験結果から得られた知見を、熱流体解析コードなどの SA 解析コードに、拡散係数などのパラメーターの形で反映させて解析を行うことで、炉内損傷あるいは事故進展状況解明のためのマップに反映させ、例えば、制御棒被覆材と B_4C の反応、制御棒由来の融体と下部構造物との反応、燃料棒の溶融挙動の予測など、マップ完成に向けた貢献を行い、炉内破損状況を予測・把握し、燃料デブリ取り出し方法の決定に寄与することができれば、と考えている。