

ポジション・ステートメント(見解、提言(解説)、その他)

「燃料デブリ」について

2018年11月
日本原子力学会
核燃料部会

1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故では、原子炉の炉心が溶融して、その一部あるいは大半が原子炉圧力容器の内部から格納容器の底部へ移行したものと考えられている。1F事故のような炉心が溶融する事故においては、溶融によって様々な物質ができる。それは、軽水炉の炉心は、二酸化ウラン(UO_2)を焼き固めて作った燃料ペレットをジルコニウム(Zr)合金製の燃料被覆管に詰めた燃料棒、燃料棒を束ねた燃料集合体を形作るための構造材、銀-インジウム-カドミウム(Ag-In-Cd)合金あるいは炭化ホウ素(B_4C)をステンレス鋼製の被覆管に封入した制御棒など、様々な物質から構成されるためである。炉心が溶融してできる物質は、固化する前の溶融した状態では「炉心溶融物質」あるいは「コリウム」などと呼ばれる。炉心溶融物質が固化したものは、固化する条件によって、塊状、粒状、殻状など様々な形態を示し、また、多孔質であったり緻密質であったりする。炉心溶融物質が塊状や粒状に固化したものや溶融しなかった燃料棒の破片などは燃料デブリと呼ばれる。デブリ(debris)とは破片やがれきを意味する語である。しかし、国内では、1F事故以降、炉心が溶融して固化してできる様々な物質は全て「燃料デブリ」と総称されるようになった。「燃料デブリ」には、「燃料デブリ」からの分離が困難な構造材やコンクリートの一部、さらには溶融には至らなかった燃料棒の一部も含まれる。

「燃料デブリ」の取り出し・保管・管理(長期的には処理・処分)は1Fの廃止措置における重要な課題である。これらを進める際には、「燃料デブリ」には放射性の核分裂生成物が多く含まれることや未燃焼の核分裂性のウラン(U)やプルトニウム(Pu)も含まれることに留意して、放射性元素を環境に放出しないこと、作業員の放射線被ばくを低減すること、取り出し中および保管中に臨界にならないようにすること、核物質管理のため「燃料デブリ」に含まれるUおよびPuの量をできるだけ正確に測定すること、などが要求される。これらの要求に応えつつ、「燃料デブリ」の取り出し・保管・管理を適切に進めるためには、「燃料デブリ」の組成や性状を把握しておく必要があり、現在、1Fにおける現場状況の観察や「燃料デブリ」の模擬物質等を用いた研究などが進められている。

本ステートメントでは、国内で「燃料デブリ」と呼ばれる物質の組成や性状はどのようなものであるかを示すため、「燃料デブリ」の生成過程と代表例、および「燃料デブリ」に関する研究の重要性について解説する。なお、以下の第2章と第3章においては末尾に掲げた文献1~4を参考にした。

2. 「燃料デブリ」の生成過程

原子炉の炉心に溶融等の重大な損傷を引き起こすような事故はシビアアクシデントと呼ばれる。軽水炉のシビアアクシデントにおいては、炉心に制御棒が挿入されて核分裂の連鎖反応が止まっても、炉心の適切な冷却が行われないと、燃料ペレット中の放射性物質の崩壊熱のために炉心の温度が上昇し、冷却水が失われ、炉心が露出する。これに伴い、Zr合金製の燃料被覆管が水(水蒸気)と反応して酸化することによって水素が発生する。燃料被覆管の酸化に伴って化学反応熱が発生するが、

この酸化反応は約 1200℃以上で著しくなり、炉心温度の一層の上昇を引き起こす。炉心温度が過度に上昇すると、以下に述べるような多様な化学反応を含む様々なプロセスで炉心の溶融が進展する。

軽水炉のシビアアクシデントにおいて溶融が生じる化学反応とその開始温度を図1に示す。図1には、ステンレス鋼の融点(約 1450℃) および燃料被覆管に用いられる Zr 合金の融点(約 1760℃) より低い温度においても、炉心に損傷や溶融が生じることが示されている。例えば、加圧水型軽水炉(PWR)の場合には、制御材である Ag-In-Cd 合金は約 800℃(融点)を超えると溶融する。約 1300℃を超えると、制御棒の被覆管に用いられるステンレス鋼と制御棒案内管や燃料被覆管に用いられる Zr 合金との共晶反応¹⁾によって溶融が生じる。1Fのような沸騰水型軽水炉(BWR)の場合には、約 1200℃を超えると、ステンレス鋼

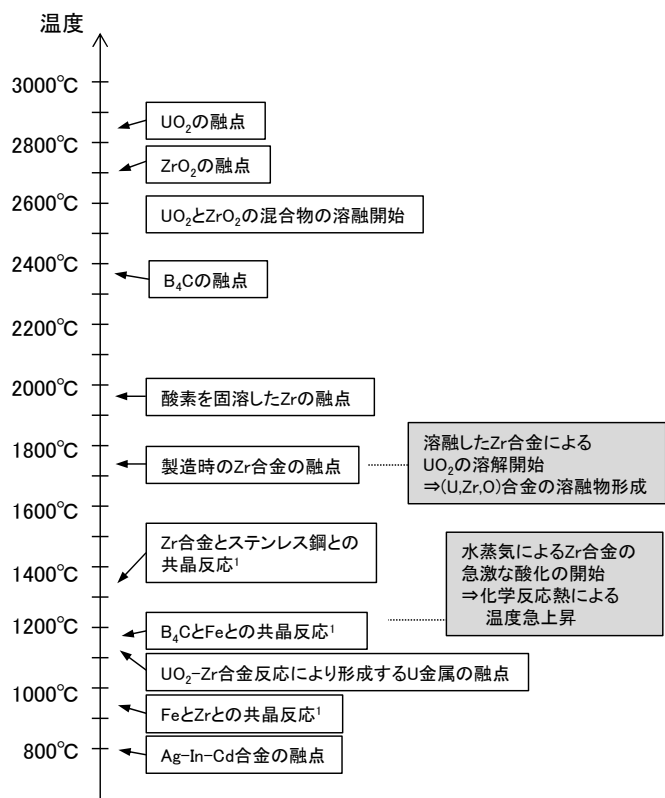


図1 軽水炉のシビアアクシデントにおいて溶融が生じる化学反応の開始温度と原子炉を構成する主な物質の融点(文献2を参考に作成)

製の制御棒被覆管とその中に封入されている制御材である B₄C との共晶反応によって溶融が生じる。約 1300℃を超えると、制御棒の被覆管や構造材に用いられるステンレス鋼とチャンネルボックスや燃料被覆管に用いられる Zr 合金との共晶反応によって溶融が生じる。PWR と BWR のいずれにおいても Zr 合金製の燃料被覆管は、酸化していない場合には約 1760℃で溶融する。溶融した燃料被覆管は、燃料被覆管の酸化物層(主として二酸化ジルコニウム(ZrO₂))や燃料ペレットを溶解する。約 2600℃を超えると、UO₂ と ZrO₂ の混合物、ZrO₂、さらには UO₂ が溶融する。このような高温では、これらの酸化物は互いに溶け合う。

このような炉心が溶融するプロセスは、炉心内の場所、燃料棒の燃焼の進行の度合い、炉心内に残った冷却水の量、注水の条件などによって異なる。例えば、損傷した炉心には注水して溶融の進展を抑える必要があるが、一方で、注水によって、Zr 合金の大規模な酸化による化学反応熱と水素の発生、酸化によって脆くなった物質の急冷による崩壊などが誘発される。溶融した炉心の一部や構造的な支持を失った燃料ペレット等は落下し、比較的溫度が低く、構造物が多い炉心下部で固化したり堆積したりする。残留している崩壊熱や水蒸気による Zr 合金の酸化に伴う化学反応熱が十分に除去されない場合、堆積した物質の一部が再び溶融し、原子炉圧力容器の底部に移動する。

炉心溶融物質による熱的な影響などによって原子炉圧力容器が破損すると、炉心溶融物質は格納容

¹⁾ 例えば、Fe(融点 1538℃)と Zr(融点 1855℃)が接触している部分は双方の融点より低い約 930℃で溶融し始める。こうしてできた液体を冷却すると Fe と Zr の割合が異なる 2 種類の固体が共に出現することから、このような反応は「共晶反応」と呼ばれる。ここでは、2 種類の物質が接触している部分が双方の融点より低い温度で溶融し始めるような反応を「共晶反応」と呼んでいる。

器底部のコンクリート上に移動し、コンクリートと相互作用を起こして、コンクリートを侵食する。

この相互作用は炉心溶融物質－コンクリート相互作用（Molten Core-Concrete Interaction：MCCI）と呼ばれる。MCCIでは、コンクリートの分解と溶融、酸化カルシウム（CaO）と二酸化ケイ素（SiO₂）を主成分とするコンクリート分解生成物の炉心溶融物質への溶解、炉心溶融物質に含まれる Zr 等の金属成分によるコンクリート

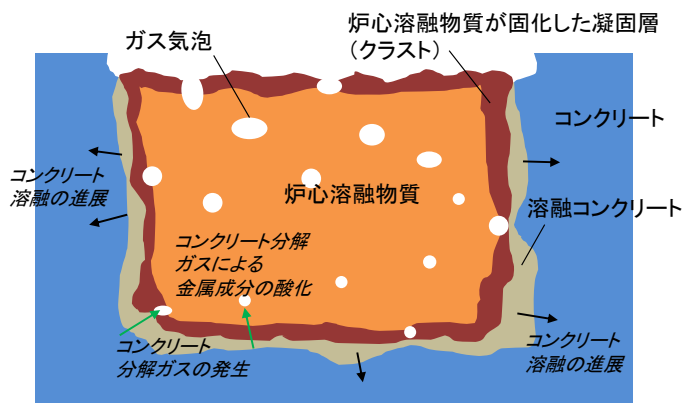


図2 炉心溶融物質－コンクリート相互作用の模式図
(文献 4 を参考に作成)

成分の還元とこれに伴う水素や一酸化炭素等のガスの発生など、図 2 に示すような様々な化学反応や物理的变化が起きる。MCCIによって生成する物質も「燃料デブリ」に含まれるが、この組成や性状は、コンクリートの種類、炉心溶融物質中に含まれる金属成分の量、注水の有無などによって広範囲に変化し得る。

時間が経過するにつれて崩壊熱が低下して、周囲の構造物等への熱の放散の方が大きくなると、炉心溶融物質が凝固し、溶融の進展が止まる。注水等による冷却が有効に働いた場合にはその時点で溶融の進展が止まる。

3. 「燃料デブリ」の代表例

米国スリーマイルアイランド原子力発電所 2 号機

(TMI-2、PWR)²で起きたシビアアクシデントでは、炉心全体の約 45%に相当する約 62t が溶融した。溶融は炉心中央で始まり、炉心溶融物質は炉心下部で一旦固

化した再び溶融し、19t の炉心溶融物質が冷却材の溜まった原子炉压力容器の底に移動したと考えられている (図 3)。事故後の炉内の調査の結果、原子炉压力容器から採取された「燃料デブリ」は様々な物質から成ることがわかった。炉心中心よりやや下方 (図 3 の中央部の黄色の部分) では、炉心溶融物質がプールのように溜まった領域が形成されたと考えられ、それが固化した領域では、(U, Zr)O₂ 固溶体あるいは U/Zr 比が異なる (U, Zr)O₂ と (Zr, U)O₂ の混合物から成る酸化物が大部分を占め、これに少量の金属の部分が混在していた。この領域から採取された「燃料デブリ」の写真の一例を図 4 に示す。その下の下部クラスト層と呼ばれる領域 (図 3 の中央部の黄色の領域を取り巻く橙色の部分の下

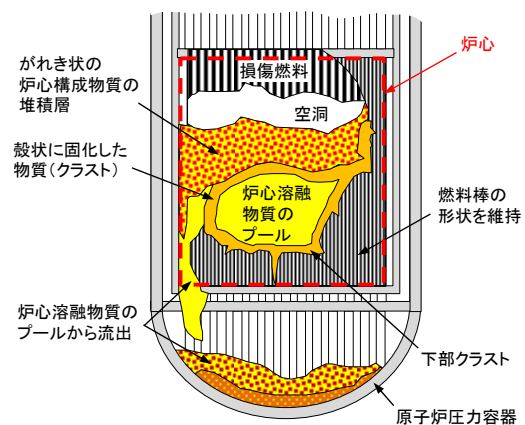


図3 TMI-2シビアアクシデント時の状況 (推定)
(文献 3 を参考に作成)

² 米国スリーマイルアイランド原子力発電所 2 号機(TMI-2)はバブコック&ウイルコック社の設計による電気出力 95.9 万 kW の PWR 型で、1978 年 3 月に臨界となり、同年 12 月に運転を開始した。事故が発生したのは 1979 年 3 月 28 日午前 4 時であった。約 97%で定格出力運転中、制御用空気系の故障のため主給水ポンプが停止、更にタービンが停止したことから、原子炉一次系の温度、圧力が上昇したため設計通り加圧器逃し弁が開き、原子炉は緊急停止した。その後、一次系圧力低下に伴って自動的に閉まるべき加圧器逃し弁が故障して開固着の状態となり、ここから一次冷却水が系外に流失した。このため炉心は 2/3 が露出して大きな損傷をうけた。この事故に伴って放射性物質の外部放出による周辺公衆の個人の被曝線量は 1mSv 以下であり、健康に与える影響はほとんど無視できる程度であった。

(参考：(一財) 高度情報科学技術研究機構「原子力百科辞典 ATOMICA」<http://www.rist.or.jp/atomica/index.html>)

半分)では、事故前の形状を残した燃料ペレットを Zr や Fe を主成分とする金属部分が取り囲んだ「燃料デブリ」も見られた。原子炉压力容器の底に移行したものは、上述の溶融プール領域と同様の酸化物で多孔質となっており、塊状や粒状など様々な性状を示した。



図4 TMI-2燃料デブリの例 (いずれも溶融プール形成領域から採取されたもの)
(日本原子力研究開発機構より提供)

4. 「燃料デブリ」に関する研究の重要性

以上に述べたように、「燃料デブリ」は、炉心溶融の進行の度合い、冷却水の残留量、注水の有無など様々な因子に影響を受けながら、様々なプロセスを経て形成される。「燃料デブリ」は、 $(U, Zr)O_2$ 、 UO_2 、 ZrO_2 などの酸化物の部分および Zr、Fe、Fe-Zr 合金などの金属の部分に加えて、条件によっては未反応あるいは未溶融の燃料ペレット、制御棒の一部、各種構造材、核分裂生成物などが混在したものとなる。燃料ペレット中で生成する Pu や MOX 燃料ペレットに含まれる Pu も「燃料デブリ」に含まれる。MCCI に至った場合には、砂や砂利などの骨材を含むコンクリートの成分も加わる。そのため、「燃料デブリ」の組成は広範囲に変化する。また、「燃料デブリ」の性状も、塊状、粒状、殻状、多孔質、緻密質など、様々である。さらに、「燃料デブリ」の組成や性状は、原子炉压力容器内あるいは格納容器内で存在する場所によって異なる。別の見方をすれば、「燃料デブリ」の組成や性状、これらの存在する場所による違いなどを詳細に調査、分析することによって、実際の事象進展をある程度推定することができる。

先に述べた「燃料デブリ」の生成過程はこれまでの多くの試験によって解明されてきたものであるが、中でも原子炉压力容器が破損する前までのシビアアクシデントの事象進展過程の解明には、TMI-2の事故後調査において実施された「燃料デブリ」の組成、性状、分布の調査と分析の結果が役立った。一方、水（水蒸気）との反応を含むホウ素（B）の挙動やMCCIにおける核分裂生成物の挙動など、「燃料デブリ」の生成過程と特性については未解明の部分もある。

1Fにおいては各号機によって事象進展の状況が異なるため、多種多様の「燃料デブリ」が形成されたものと推察されるが、1Fの「燃料デブリ」の調査と分析は、「燃料デブリ」の取り出し・保管・管理だけでなく、事象進展状況の推定にも有用である。また、「燃料デブリ」の生成過程と特性に関連する未解明の点に対する研究も重要である。このような1Fの「燃料デブリ」の詳細な調査と分析、および「燃料デブリ」に関する研究は、シビアアクシデントの事象進展過程の理解の深化を通じて、軽水炉の安全性向上にも役立つ。

参考文献：

1. In-Vessel Core Degradation in LWR Severe Accidents: A State-of-the-Art Report to CSNI, NEA/CSNI/R(91)12 (1991).
2. P. Hofmann, "Current Knowledge on Core Degradation Phenomena, a Review", J. Nucl. Mater. 270 (1999) 194-211.

3. R.K. McCardell, et al., "Summary of TMI-2 Core Sample Examinations", Nucl. Eng. and Design, 118 (1990) 441-449.
4. C. Journeau and P. Pilso, "Core Concrete Interaction", Comprehensive Nuclear Materials (ed. by R.J.M. Konings), volume 2, pp. 635-654, Amsterdam, Elsevier (2012).