

計算科学技術部会セッション

計算科学技術に基づいた福島第一原子力発電所事故に関する最新知見

Latest knowledge about the Fukushima Daiichi accident obtained by computational science and technology

(2) デブリの特性に関する計算材料科学的研究

(2) Computational materials science study on the properties of fuel debris

*板倉 充洋¹, 中村 博樹¹, 奥村 雅彦¹¹JAEA

1. 緒言

福島第一原発の廃炉作業を前に、炉内で燃料、被覆管、制御棒、構造材など様々な材料が溶融し化学変化、反応して生成したデブリの組成や分布を予測することが現在求められている。様々な材料が関わり組み合わせの数も膨大となるため全ての可能性を網羅することはできないが、いくつかの重要な組み合わせがあり、事故進展やデブリの特性に影響が大きいと考えられる。本発表では 1,3 号機で多いと考えられている燃料・被覆管溶融体、また 2 号機で多いと考えられている金属系デブリの特性に関し、原子シミュレーションやメゾスケール計算で評価を試みた結果を示す。

2. 計算結果

2-1. 燃料・被覆管溶融体

燃料である二酸化ウラン(UO₂)と、被覆管のジルカロイの主成分 Zr が高温において酸化して生成する二酸化ジルコニウム(ZrO₂)は高温において同じ蛍石型の構造を持ち、Zr 成分が多くない場合は UO₂ の U 原子を部分的に Zr で置換した構造となるが、Zr 成分が増えると少量の ZrO₂ が monoclinic 構造や fct 構造となって析出する。模擬デブリを用いた実験においては Zr 成分の増加にともない破壊靱性などが不連続に変化する振る舞いが観察されている[1]。第一原理計算を用いて UO₂-ZrO₂ 混合蛍石構造の機械的特性を調べた結果、弾性定数が Zr 25%付近で極小となる振る舞いが見られ、実験を再現することができた[2]。破壊靱性の計算では Zr 分率によって大きな変化は見られなかった。したがって実験で観察される不連続な変化は微小な ZrO₂ 析出物が亀裂進展の大きな抵抗となっており、その有無によるものであると推測された。析出していると考えられる fct-ZrO₂ は歯科インプラントにも用いられ割れにくい特徴を持つ。デブリの機械的切り出しにおいては機器の摩耗などに影響を与える可能性がある。デブリ表面付近で急冷された場合は fct へと変化する時間がなく、全体的に蛍石構造となるが、Zr の分率は不均一で、数 μm ~数 $10\mu\text{m}$ 程度の大きさの Zr 濃化部分が分布していることがフェイズフィールドモデルによる凝固過程の解析で分かった。

2-2. 制御棒 B4C/SUS 溶融体

制御棒被覆管のステンレスに含まれる鉄と、制御棒内部の B₄C に含まれるホウ素は共晶による融点低下を示し、約 1500K で炉内構造物の中では最初に溶融すると考えられる。1200K 以上では鉄へのホウ素原子の拡散が活性化し、事故解析では約 20 分で 1500K に達すると考えられているが、その間に被覆管の厚さの 10% 以上までホウ素が拡散すると考えられる。オーステナイトをホウ化材に浸蝕し約 1200K で数時間置くことで表面を硬化させる処理は産業的に行われており拡散速度の実験データも多い。1500K ではホウ素が拡散した部分が一気に溶融すると予想される。また溶融し落下した後で急冷された場合、固溶限以上に存在しているホウ素がそのまま固溶しているのか、Fe₂B, FeB などとなって析出するかで機械的特性が変わってくる。第一原理計算により γ 鉄中のホウ素原子の拡散を評価した結果、バルク中では活性化障壁の実験値 0.1eV より大きい 0.3eV 程度の障壁があることが分かった。またバルク中では B 原子同士は反発しクラスターを形成しにくいことも分かった。また B 原子はサイズが大きく空孔や粒界面の隙間と強く結合する。これらの結果から、鉄中ではホウ素原子はほぼ粒界面にのみ存在し、濃度によってはそこで Fe₂B などに変化していると推測される。Fe₂B 中の B 原子の拡散活性化障壁は実験、計算ともに 0.1eV 程度で一致している。したがって鉄にホ

ウ素が拡散していく過程は、まず粒界面に B 原子が集積し Fe2B となり、その中を B 原子が拡散し Fe2B 部分が成長していく過程で説明できるとの仮説を立てるに至った。さらにデブリについては低温になっ
ても強い放射線に晒されていることから空孔濃度が通常より数桁多いと考えられ、それによる B 原子の拡散の加速があると考えられ、やはり B 原子はほぼ全て拡散により粒界面に集積していると予想される。

3. 結論

過酷事故においては様々な材料が相互作用し、溶融、移行、凝固するためそのすべてを予測することは困難である。材料の計算についても、ごく一部の組み合わせについて理想化された状況の計算を行うことしかできない。しかし融点の違い、比重の違いなどでの分離が起こるためすべての組み合わせについて考えることは重要でなく、デブリの性状に影響が大きい材料の組み合わせを選んで計算し知見を積み重ねていくことが重要と考えられる。

参考文献

- [1] Kitagaki T, Hoshino T, Yano K, Okamura N, Ohara H, Fukasawa T, Koizumi K. “Mechanical properties of cubic (U, Zr) O₂”. Journal of Nuclear Engineering and Radiation Science 4. 031011 (2018).
- [2] M Itakura, H Nakamura, T Kitagaki, T Hoshino, M Machida, “First-principles calculation of mechanical properties of simulated debris ZrxU1-xO₂”, Journal of Nuclear Science and Technology 56, 915-921 (2019)

^{**}Mitsuhiro Itakura ¹, Hiroki Nakamura ¹, Masahiko Okumura ¹

¹JAEA