

一般セッション | V. 核燃料サイクルと材料：501-2 核燃料とその照射挙動

2024年9月12日(木) 16:40 ~ 18:05 N会場(講義棟B棟2F B203)

[2N17-21] シビアアクシデントと燃料デブリ

座長:廣岡 瞬(JAEA)

16:40 ~ 16:55

[2N17]

燃料デブリの経年変化特性の推定技術の開発

(6) $Zr(O)+(U,Zr)O_2$ 燃料デブリの気中での長期にわたる微粒子発生量評価*鈴木 晶大¹、三浦 祐典¹、大内 敦¹、川原田 義幸²、浦田 英浩²、川野 昌平^{3,2} (1. NFD、2. 東芝ESS、3. 東大)

16:55 ~ 17:10

[2N18]

燃料デブリの経年変化特性の推定技術の開発

(7) $(U,Zr)O_2$ 介在ガラス状燃料デブリの水中での長期にわたる微粒子発生量評価*三浦 祐典¹、鈴木 晶大¹、大内 敦¹、下田 千晶²、浦田 英浩²、川野 昌平^{3,2} (1. NFD、2. 東芝ESS、3. 東大)

17:10 ~ 17:25

[2N19]

福島第一原子力発電所の事故初期における中性子検出事象に関する確認試験

*坂本 寛¹、坂口 知聡¹、遠藤 洋一¹、佐々 勝明¹、溝上 暢人²、平井 睦²、溝上 伸也² (1. NFD、2. 東電HD)

17:25 ~ 17:40

[2N20]

炭素添加窒化ウラン燃料の水蒸気反応試験

*柴崎 京介¹、樽松 繁¹、村上 望² (1. NDC、2. MHI)

17:40 ~ 17:55

[2N21]

湿式貯蔵時のMOX破損燃料からの浸出挙動

*園田 健¹、稲垣 健太¹、中村 勤也¹、Serrano-Purroy Daniel²、Rondinella Vincenzo² (1. 電中研、2. JRC-Karlsruhe)

17:55 ~ 18:05

座長持ち時間

燃料デブリの経年変化特性の推定技術の開発

(6) Zr(O)+(U,Zr)O₂ 燃料デブリの気中での長期にわたる微粒子発生量評価

Development of Estimation Technology of Aging Properties of Fuel Debris

(6) Quantity Evaluation of Micronized particles from Zr(O)+(U,Zr)O₂ Fuel Debris

deteriorated by Oxygen-containing Gas

*鈴木 晶大¹、三浦 祐典¹、大内 敦¹、川原田 義幸²、浦田 英浩²、川野 昌平^{2,3※1}

¹NFD、²東芝エネルギーシステムズ、³東大

福島第一原子力発電所（1F）燃料デブリのうち Zr(O)+(U,Zr)O₂ の組成を有する燃料デブリの模擬材を用いて、組成、酸素分圧、時間等を変えた系統的な加速試験を実施した。空気中での化学的経年変化による微粒子発生量予測式にまとめ、1F の燃料デブリからの長期にわたる微粒子発生量を予測した。

キーワード：燃料デブリ性状、化学的経年変化、放射性微粒子、気中試験

1. 緒言 1F 燃料デブリは現在原子炉格納容器(PCV)内で窒素封入されているが、今後、燃料デブリ取出し時の負圧管理での空気侵入下や保管中に空気雰囲気下に置かれることが考えられる。金属性の Zr を有する Zr(O)+(U,Zr)O₂ 組成の模擬燃料デブリの気中加速試験にてわずかな微粒子発生が認められており、その組成や酸素分圧によって発生量が変わることがわかっている[1]。本報では、Zr(O)+(U,Zr)O₂ に着目して長期にわたる微粒子発生予測式を推定し、1F 廃炉工程にわたる微粒子発生量を予測した。

2. 長期にわたる微粒子発生量予測式 前報[1]で微粒子発生速度が Zr/U 組成に依存することを報告したが、測定点を増やした結果、試料表層の Zr(O) 比率が約 10%に達するまで微粒子は発生せず、しきい値を超えると Zr(O) 比率と微粒子発生速度が比例した。また、試験温度を変化させた加速試験により微粒子発生の活性化エネルギーから加速試験の加速倍率を計算した。実時間が 35 年間相当に達するまで加速試験を実施したところ、微粒子発生速度は時間経過とともに若干減少し、試験後試料の表層の Zr(O) 比率の減少に依存していることがわかった。また、任意の Zr(O) 比率にて、微粒子発生量は環境中酸素濃度に比例した。これらの結果を Zr(O)+(U,Zr)O₂ の長期にわたる微粒子発生量予測式としてまとめた。

3. 廃炉工程に沿った微粒子発生量の予測 現在より 15 年後に取出しを開始し、30 年後に取り出される Zr(O)-(U,Zr)O₂ の微粒子発生量の積算値を予測した結果を図 1 に示す。PCV 内が窒素雰囲気の間、及び取出しによる負圧管理にて酸素分圧が上昇しても燃料デブリが水分で覆われている間は、微粒子は発生しない。一方、取り出し後大気中に保管すると微粒子が発生し始め 60 年後の積算値で約 0.06mg/cm²の微粒子が発生する。ただし、取り出し後窒素中で保管すれば微粒子は発生しない。今後、各号機の廃炉工程に沿った微粒子発生量の予測を基に、各廃炉技術における影響評価が進むことを期待する。

参考文献 [1] 鈴木ら、2E05、原子力学会 2024 年春の年会

本研究は、経済産業省「廃炉・汚染水対策事業費補助金」として、東芝エネルギーシステムズ株式会社が 2019～2022 年度に実施した「燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発（燃料デブリの経年変化特性の推定技術の開発）」の成果の一部である。

*Akihiro Suzuki¹, Yusuke Miura¹, Atsushi Ohuchi¹, Yoshiyuki Kawaharada², Hidehiro Urata², Shohei Kawano^{2,3※1}

¹NFD, ²Toshiba Energy Systems & Solutions Corporation, ³U Tokyo

※1 2023 年 8 月より東京大学大学院

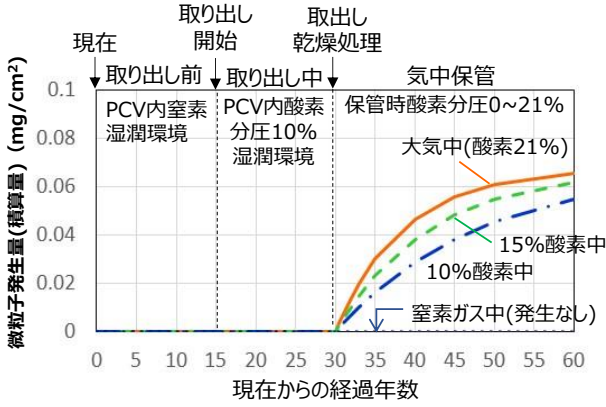


図 1 Zr(O)+(U,Zr)O₂ の廃炉工程に沿った微粒子発生量の積算値

燃料デブリの経年変化特性の推定技術の開発
(7) (U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリの水中での長期にわたる微粒子発生量評価

Development of Estimation Technology of Aging Properties of Fuel Debris

(7) Quantity Evaluation of Micronized particles

from Glassy Fuel Debris Containing (U,Zr)O₂ Inclusions in Water

*三浦 祐典¹、鈴木 晶大¹、大内 敦¹、下田 千晶²、浦田 英浩²、川野 昌平^{2,3※1}

¹NFD、²東芝エネルギーシステムズ、³東大

福島第一原子力発電所（1F）燃料デブリのうち、(U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリの模擬材に対し、組成、平衡気相中酸素分圧、時間等を変えた系統的な加速試験を実施した。水中での化学的経年変化による微粒子発生量予測式を推定し、1Fにおける燃料デブリからの長期にわたる微粒子発生量を評価した。

キーワード：燃料デブリ性状、化学的経年変化、放射性微粒子、水中試験

1. 緒言 燃料デブリが長期間おかれる環境下における経年変化（微粒子化）挙動を明らかにすることを目的として研究を進めている。前報^[1]までに、(U,Zr)O₂介在ガラス状燃料デブリが水中環境にて、(U,Zr)O₂介在物、ガラス質および水中溶存酸素の3因子が揃った時に微粒子を発生させることや、その微粒子発生速度が組成や平衡気相中酸素分圧に依存することを確認した。本報では、前報からデータ点を追加する加速試験により長期にわたる微粒子発生予測式を推定し、1F廃炉工程にわたる微粒子発生量を評価した。

2. 長期にわたる微粒子発生量予測式 追加データの取得により、微粒子化は、(U,Zr)O₂ 介在物とガラス相の比率（介在物比率）が約 7 %～49 % の範囲で発生し、介在物比率 25.6 % の条件で最も微粒子発生速度が大きくなることを確認した。また、平衡気相中酸素分圧に対して微粒子発生速度は放物線則で変化した。長期挙動については、介在物比率 12.4 % の模擬燃料デブリに対して、実時間に換算して 10 年に達するまでの加速試験を実施したところ、時間の経過に応じて、微粒子発生速度が低下する傾向を確認した。これは時間とともに表層の微粒子化が進むことで、介在物比率が減少したことによるもの推定された。これらを (U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリの長期にわたる微粒子発生量予測式としてまとめた。

3. 廃炉工程に沿った微粒子発生量の予測 廃炉工程に沿った微粒子発生量の予測の一例を図 1 に示す。(U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリは、酸素を含む水中環境のみで微粒子化が発生するため、現在の窒素脱気水中環境や、保管中の気中環境では微粒子が発生しないと推定される。取出し中に、作業中の負圧管理等によって平衡気相中酸素分圧が上昇した場合は微粒子が発生し、その発生量は、平衡気相中酸素分圧に依存する。今後、これらの結果が各廃炉工程や臨界管理等の設計・評価等に資されることを期待する。

図注釈 介在物比率 25.6 % の (U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリを 15 年後に取出し開始、50 年後に気中保管すると設定。確認範囲 10 年までの予測式のため微粒子化開始後 10 年以降は外挿評価。

参考文献[1] 三浦ら、2E06、原子力学会 2024 年春の年会
本研究は、経済産業省「「廃炉・汚染水対策事業費補助金」
として、東芝エネルギーシステムズ株式会社が 2019～2022
年度に実施した「燃料デブリの性状把握のための分析・推定
技術の開発（燃料デブリの経年変化特性の推定技術の開発）」
の成果の一部である。

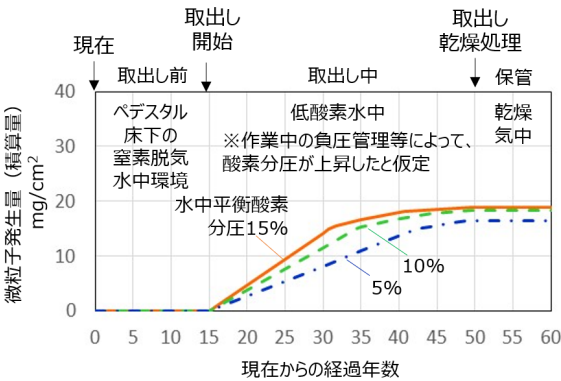


図 1 (U,Zr)O₂ 介在ガラス状燃料デブリの
廃炉工程に沿った微粒子発生量の積算値※

*Yusuke Miura¹, Akihiro Suzuki¹, Atsushi Ohuchi¹, Chiaki Shimoda², Hidehiro Urata², Shohei Kawano^{2,3※1}

¹NFD, ²Toshiba Energy Systems & Solutions Corporation, ³U Tokyo

※1 2023 年 8 月より東京大学大学院

福島第一原子力発電所の事故初期における中性子検出事象に関する確認試験

Confirmatory examination of neutron detection events in the early phase of FDNP accident

*坂本 寛¹, 坂口 知聡¹, 遠藤 洋一¹, 佐々 勝明¹, 溝上 暢人², 平井 睦², 溝上 伸也²

¹NFD, ²東電 HD

福島第一原子力発電所の事故初期に正門付近において中性子が検出された原因は未だ不明である。検出の原因を試験的に確認するため、事故初期を模擬した照射済燃料試料の加熱試験を実施した。その結果、事故初期の 1500 °C 程度までの温度領域で放出された自発核分裂性核種が原因であることが示唆された。

キーワード：福島第一原子力発電所，事故進展，中性子検出，照射済燃料，同位体

1. 緒言

これまでに多くの調査や解析が実施され、より確からしい炉内状況、燃料デブリの状態、核分裂生成物の放出経路等についての情報が取得されているが、現時点でも多くの未解明事象が残されている。3/13 早朝、及び、3/14 夜から 3/15 未明の中性子検出もその一つであるが、検出場所は原子炉建屋から約 1 km 離れた場所であること、検出された時間帯が実測・解析により予測される炉心損傷/熔融時期と一致することから、炉心損傷/熔融と関連した事象である可能性が指摘されている^[1]。しかし、具体的な中性子源は不明であることから、本試験では事象解明の最初の取り組みとして、自発核分裂により中性子を放出するアクチノイド(An)核種の燃料ペレットもしくは燃料マトリクスからの放出に注目した照射済燃料試料の加熱試験を実施した。

2. 手法

国内商用炉で約 2000 日間照射された燃料棒から被覆管を含めた厚さ 2 mm のディスク状試料を乾式切断により取得して、外観観察、放射線測定 ($\beta \cdot \gamma$ 線、中性子線) の後に、0.9 %H₂-Ar ガス雰囲気において昇温速度約 5 °C/min、最高温度約 1280 °C もしくは 1440 °C、保持時間約 2 h で加熱した。加熱は炉心管内で試料の上部に長さ 300 mm の Ta 製トラップ板を配置した縦型電気炉で行い、雰囲気ガスは炉心管下部から上部にガス流量 1.2 L/min で供給した。なお、蒸発/放出核種のトラップ板への回収を促進するため、試料位置から 300 mm 上部で約 150 °C 低くなる温度勾配を形成した。試験後は、試験後試料の外観観察、放射線測定、回収したトラップ板の付着物の ICP-MS 測定、 α 線測定、 γ 線測定を行った。

3. 結果

約 1280 °C まで加熱した試料では加熱による外観上の変化はなく、An 核種の放出もごく微量であった。一方、最高温度 1440 °C まで加熱した試料では、図 1 に示す様に燃料被覆管が粉碎する等の外観上の変化が大きく、かつ、An 核種の放出も増加した。この結果から、An 核種の放出は Cs と同様に比較的低温である 1500 °C 程度までの温度領域で起こることが確認された。また、各核種の付着量と自発核分裂の確率から中性子放出への寄与を比較したところ、Cm の同位体の寄与が支配的となった。今後、放出機構解明のため、燃料被覆管の役割や An 核種の放出形態などを明らかにしていく。

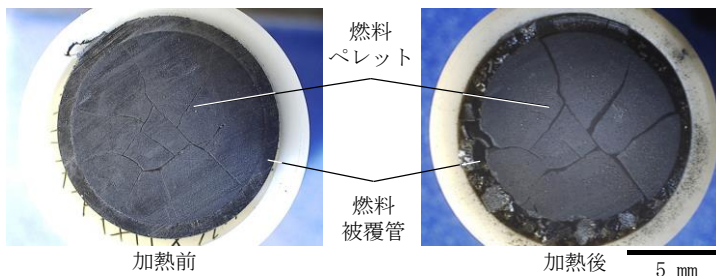


図1 加熱前後の試料外観

参考文献

[1] 東京電力ホールディング株式会社、「福島第一原子力事故発生後の詳細な進展メカニズムに関する未確認・未解明事項の調査・検討結果のご報告 -第 6 回進捗報告-」、2022 年 11 月 10 日

* Kan Sakamoto¹, Chisato Sakaguchi¹, Yoichi Endo¹, Katsuaki Sasa¹, Masato Mizokami², Mutsumi Hirai², Shinya Mizokami²

¹NFD, ²TEPCo HD

炭素添加窒化ウラン燃料の水蒸気反応試験

Steam oxidation tests of uranium nitride fuels with carbon additives

*柴崎 京介¹, 樽松 繁¹, 村上 望²

¹NDC, ²MHI

窒化ウラン燃料を軽水炉へ適用する場合の課題である水蒸気との高い反応性の抑制を指向した既往研究において、無添加試料と比較して炭素添加窒化ウラン試料で水蒸気との反応性が抑制される傾向が確認されている。本研究では、炭素添加量をパラメータとして試作した窒化ウラン試料の水蒸気反応試験を行い、その結果、炭素添加量の多寡は水蒸気反応抑制効果に与える影響は小さい可能性が示唆された。

キーワード：窒化ウラン, 核燃料, 水蒸気酸化, 添加物

1. 緒言

窒化ウラン燃料は、二酸化ウラン燃料と比較してウラン密度や熱伝導率が高く、核燃料として優れた特性を有し、将来の原子炉燃料の候補として検討されている。一方で、高温で水蒸気と反応する特性が知られ^[1]、軽水炉への適用に際しては、燃料リーク時の水分との反応による燃料の酸化・細粒化発生が課題となる。既往研究^[2]では、無添加試料と比較して炭素添加窒化ウラン試料で水蒸気との反応性が抑制される傾向が確認された。本研究では、炭素添加による水蒸気反応抑制効果について更なる知見を獲得するため、炭素添加量をパラメータとした窒化ウラン試料を製作し水蒸気反応試験に適用した。

2. 試験

2-1. 試料作製

原料である金属 U 塊を UH_3 粉末とし、窒化处理により U_2N_3 を経由し UN 粉末の調製を行った。UN 粉末に C 粉末を混合した粉末、ならびに無添加試料用の UN 粉末単体を成形し、Ar 気流中で焼結を行った。

2-2. 試験装置・条件

電気炉内で石英管を加熱・保温しながら、石英管入口側からフラスコにて沸騰させた純水を導入した。石英管内にはアルミナ製試料ボートを配置し、そのボート上にて試料を水蒸気と反応させた。水蒸気の導入、電気炉の昇温により試料近傍温度が所定温度に達した時点から所定の時間、水蒸気を導入し、電気炉内温度を所定温度に保った。

2-3. 結果

図 1 に試験後の炭素添加窒化ウラン試料の例を示す。無添加試料では 350°C に到達後 75 分で試料が粉体化したのに対し、炭素添加試料ではより長時間の 240 分間の水蒸気反応試験後も寸法形状を維持しており、反応が微小であることが確認された。炭素添加量によらず、各試料の試験前後での重量変化は同程度であった。

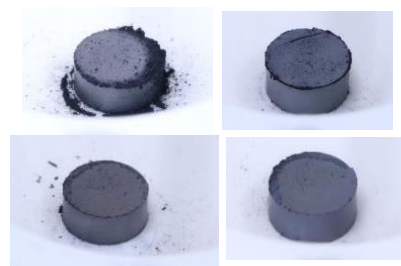


図 1 350°C240 分試験後試料例
(左上)0.25wt%C 添加 重量増 0.17wt%
(右上)0.50wt%C 添加 重量増 0.05wt%
(左下)0.92wt%C 添加 重量増 0.11wt%
(右下)1.40wt%C 添加 重量増 0.15wt%

3. まとめ

炭素添加試料は、無添加試料の粉体化が生じた条件においても反応が微小であり、炭素添加により水蒸気反応が抑制される傾向が確認された。今回の試験条件の範囲内では、炭素添加量によらず試料の反応の進行度は同程度であり、炭素添加量の多寡が水蒸気反応抑制効果に与える影響は小さい可能性が示唆された。

参考文献

- [1] S. Sugihara, S. Imoto, Hydrolysis of Uranium Nitrides, J. Nucl. Sci. Technol. 6(5)(1969)237-242
- [2] 柴崎ほか, 日本原子力学会 2022 年秋の大会, 2D08.

*Kyosuke Shibasaki¹, Shigeru Kurematsu¹ and Nozomu Murakami²

¹NDC, ²MHI

湿式貯蔵時の MOX 破損燃料からの浸出挙動

Leaching behavior of elements from failed MOX fuel during wet storage

*園田 健¹, 稲垣 健太¹, 中村 勤也¹, D. Serrano-Purroy², V. V. Rondinella²

¹電中研, ²JRC-Karlsruhe

湿式貯蔵時の MOX 破損燃料からの浸出挙動を解明するため、ほう酸水中における使用済 MOX 輪切り試料の浸出試験を実施した。これまでに取得した使用済 UO₂ 燃料や TMI-2 燃料デブリ試料の浸出挙動と比較し、MOX 燃料からの元素の浸出挙動の特徴について報告する。

キーワード：MOX 破損燃料、浸出試験、ほう酸水、UO₂ 燃料、TMI-2 燃料デブリ

1. 緒言

軽水炉燃料は稀に、照射環境の変化による腐食発生、腐食性の核分裂生成（FP）による被覆管内面からの亀裂発生、等によりピンホール破損が発生する。これら破損燃料は現状、乾式貯蔵や再処理を行うことが出来ず、使用済燃料プールまたはピットに水中で長期保管されている。しかし破損燃料からの元素の長期の浸出挙動についての情報は少ない。また事故時の燃料デブリからの浸出挙動の情報も少ない。本研究ではこれまで BWR と PWR 使用済 UO₂ 燃料、および TMI-2 燃料デブリについて異なる水環境での浸出試験を実施し、燃料中の各元素の浸出挙動および溶媒の影響を調査してきた[1]。今回、ほう酸水中における使用済 MOX 燃料試料の浸出試験を実施し、これまでの試験結果との比較から、MOX 燃料の浸出挙動の特徴を調査する。

2. 実験方法

JRC-Karlsruhe のホットセル内で、使用済 MOX 輪切り試料の浸出試験を行った。試験試料は、商用 PWR で局所燃焼度：56 GWd/tHM まで照射した MOX 燃料棒（製造法：SBR 法、Pu 濃度：5.5wt%、結晶粒径：7-8.4μm）の輪切り試料（被覆管付、約 1.7g）を使用した。試験試料は室温にて 50cc のほう酸水：2g/L に浸漬し、常時攪拌した。0.1、1、6、13、34、61、103、237、320 日で溶媒を取り換えた。採取した溶液は 1mol/L の硝酸で希釈後に ICP-MS 測定を行い、溶出元素濃度を測定した。試料表面に形成される析出物の情報を得るため、ラマン分光測定を実施した。

3. 結果および考察

図 1 に使用済 MOX 輪切り試料からの U、Pu、Cs、Tc、Mo の浸出速度(mg/m²d)の時間変化を示す。浸出試験後期の浸出速度を同試験条件の照射済 UO₂ 輪切り試料の浸出試験結果と比較したところ、U と Pu の浸出速度はほぼ同等であり、ほう酸水中での U と Pu の浸出挙動は MOX も UO₂ と大きな違いはない傾向を確認した。他元素の挙動、および試料表面の析出物については当日報告する。

参考文献

[1] T. Sonoda et al., Proc. of TopFuel 2019, Pages 257-262.

*Takeshi Sonoda¹, Kenta Inagaki¹, Kinya Nakamura¹, D. Serrano-Purroy², and V. V. Rondinella²

¹CRIEPI, ²JRC-Karlsruhe.

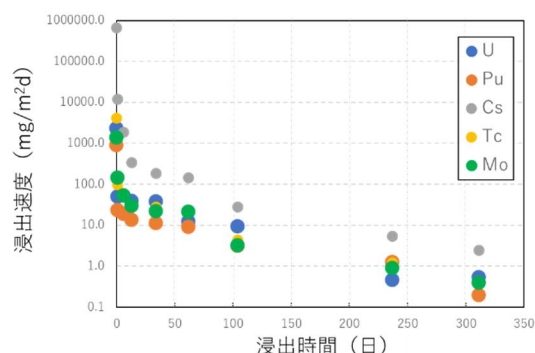


図 1 ほう酸水中での使用済 MOX 輪切り試料からの元素の浸出速度