



シビアアクシデント時の燃料からの 放射性物質放出

工藤 保

日本原子力研究開発機構

「第二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」

平成23年11月4日

はじめに 1/3

原子炉: 燃料中への放射性物質の蓄積

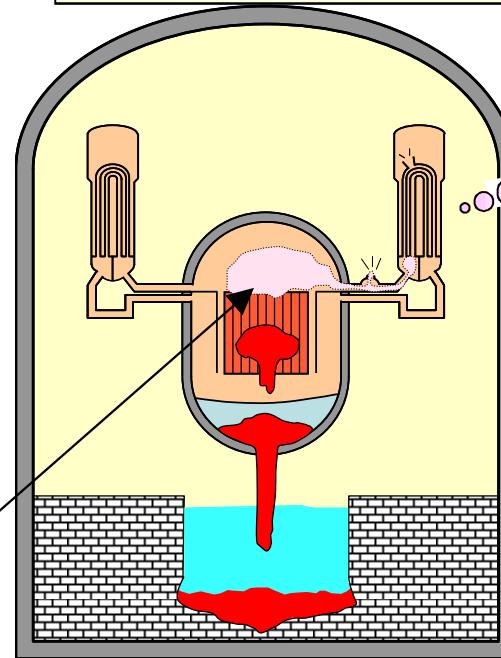
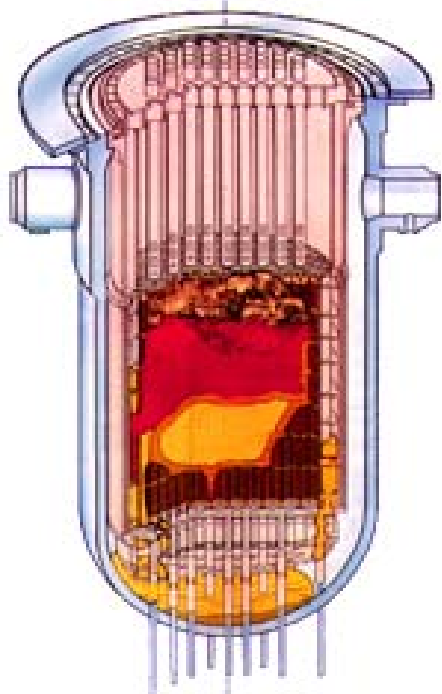
事故の防止、事故影響の低減

多重防護

しかしながら.....

TMI-2事故等

シビアアクシデント条件下における
ソースターム評価研究が多く行わ
れる



放射性
物質

燃料からの放射性物質の放出: ソースタームの第一段階目

多くの実験を実施

燃料からの放射性物質放出に関する実験計画

米国 (ORNL): HI及びVI実験

- 比較的高温での実験により低揮発性の核種であるBa, Sr, Mo, Eu, Ru, Ce及びPuのデータを取得
- Te及びSn: 揮発性であるがそれらの放出は被覆管が酸化するまで遅れる

仏国 (CEA): HEVA及びVERCORS実験

- 研究炉における再照射によりTe, Mo, Ba, La等の短半減期核種のオンラインデータを取得
- ガンマトモグラフィーによる非破壊での燃料の最終状態を確認

カナダ (AECL): MCE, HCE, UCE実験シリーズ

- 雰囲気の影響: 酸化条件では揮発性元素とルテニウムの放出の増加を確認

これら実験から多くのデータを取得

しかしながら,

- 燃料温度2900 K以下
- MOX燃料からの放射性物質放出: 少ない
- 燃料酸化と熔融の相互影響: ほとんどなし

VEGA計画

Verification Experiments of radionuclides Gas/Aerosol release

酸化雰囲気等で燃料を融点まで昇温可能な実験装置を製作し、広い範囲のデータを取得

1. 燃料温度：3150Kまで

>燃料が溶融する温度まで昇温してセシウム放出を調べる

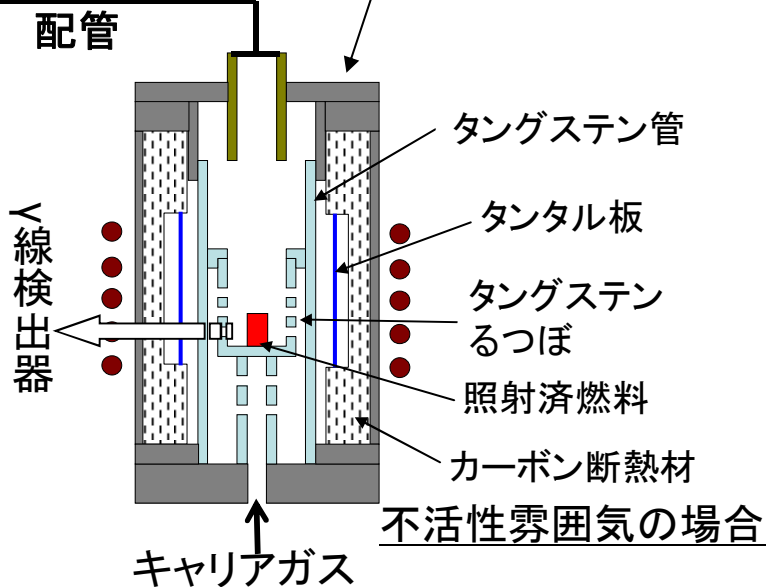
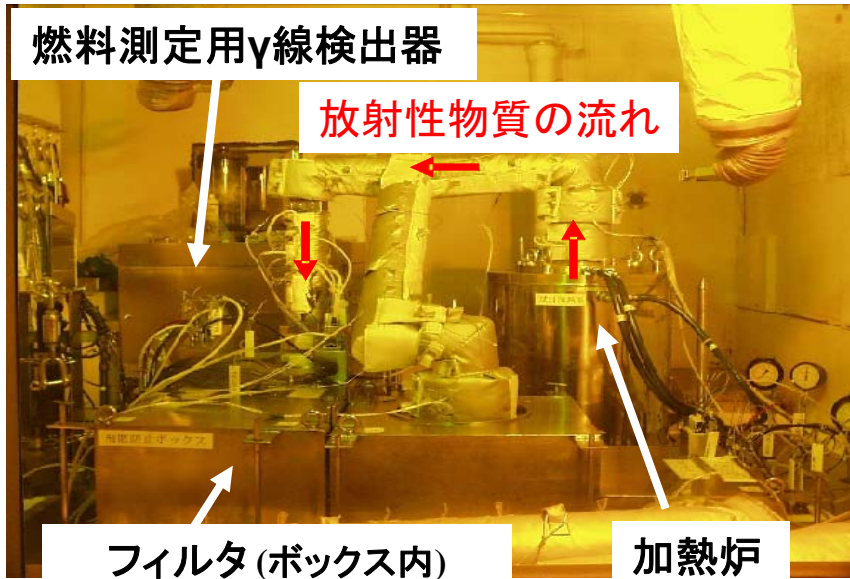
2. 燃料：UO₂, MOX

>UO₂及びMOX燃料からの放射性物質の放出を調べる

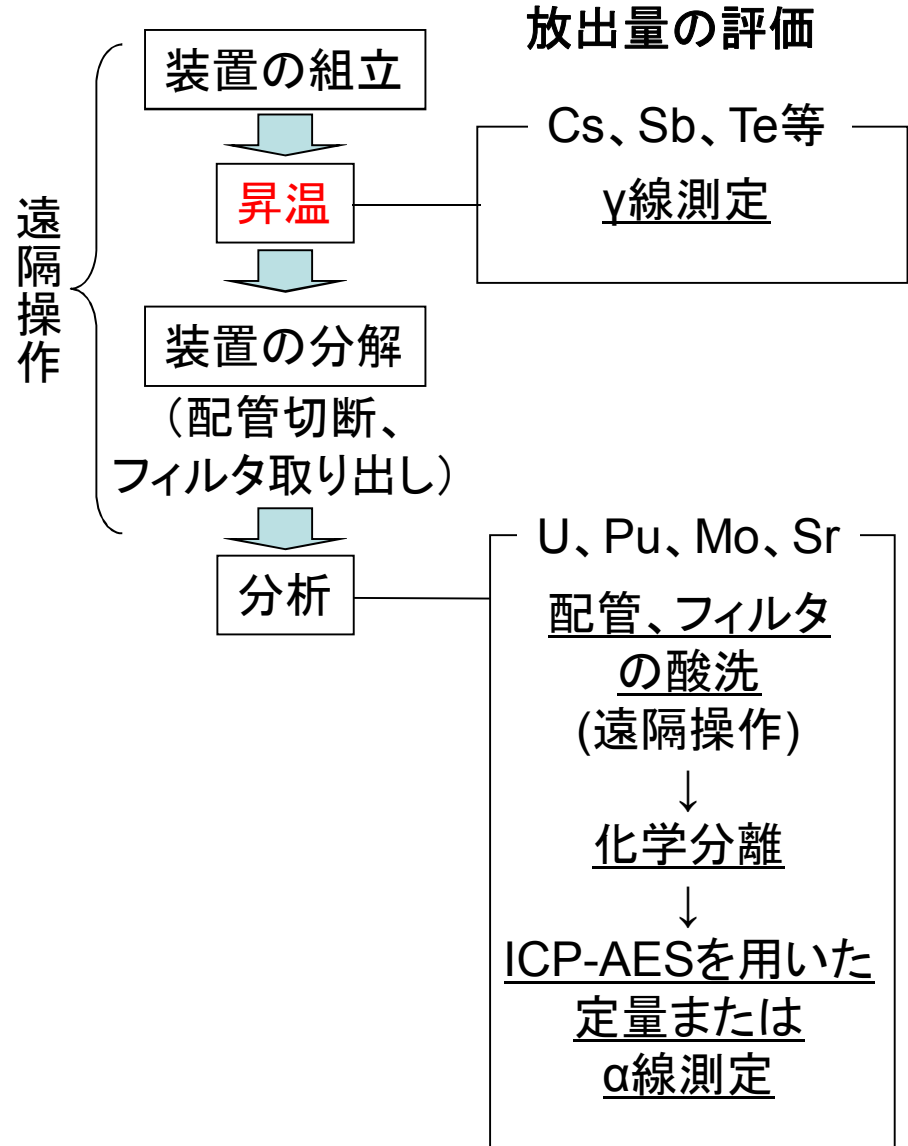
3. 雰囲気：He, Steam

> 燃料の酸化及び溶融の複合的な影響を調べる

装置の外観



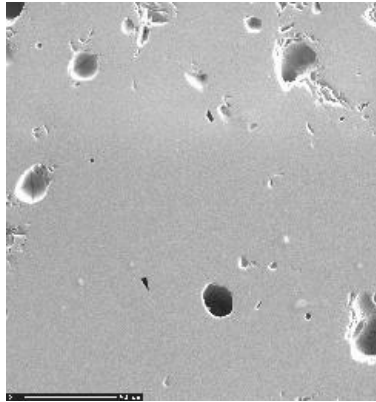
実験の流れ



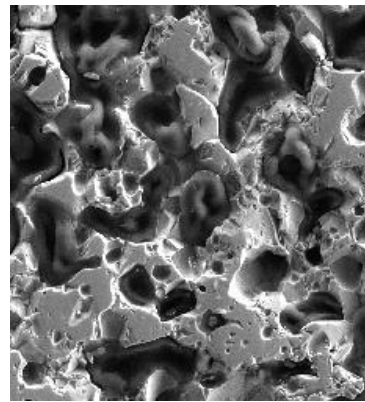
1. 温度の影響

ペレットが溶融するような高温でのCs放出を評価

溶融固化組織



泡状組織(融点直下)



50μm

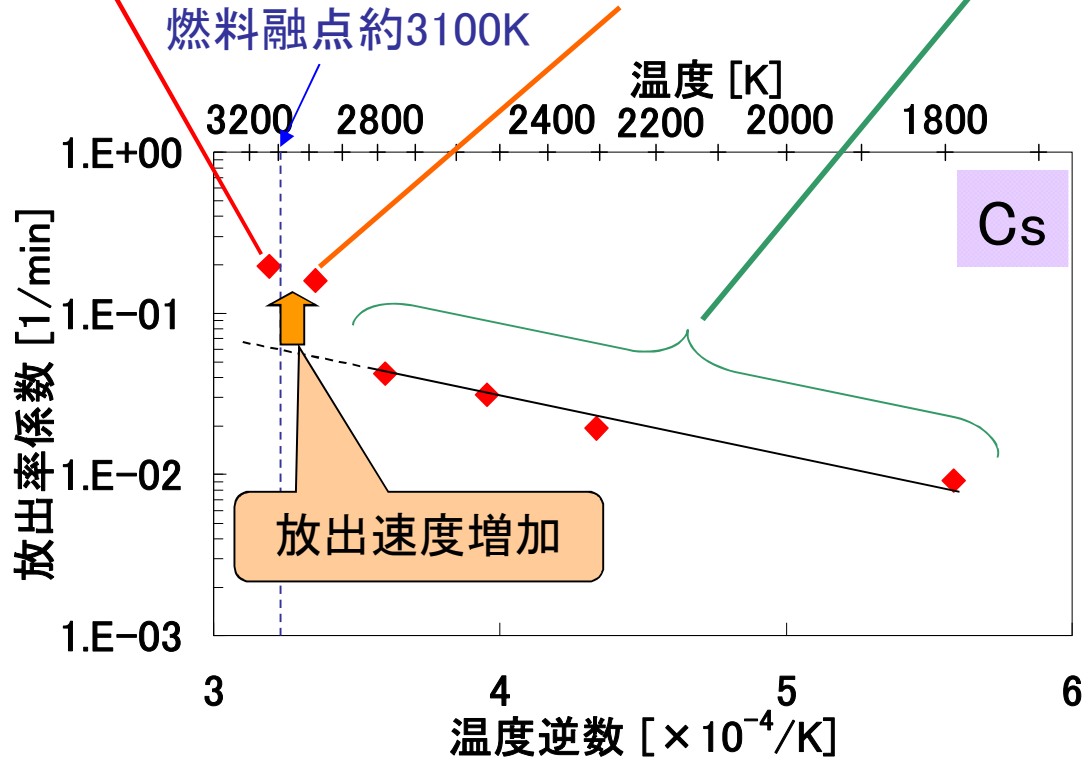
雰囲気:ヘリウム
被覆管:なし
最高温度:3130 K

1800K~2800Kの温度:
固体内拡散による放出

2800K超の高温領域:
放出速度増大

↓

- 放出メカニズムの変化
- 燃料融点(約3100K)以下の温度領域で放出は加速されることを実測

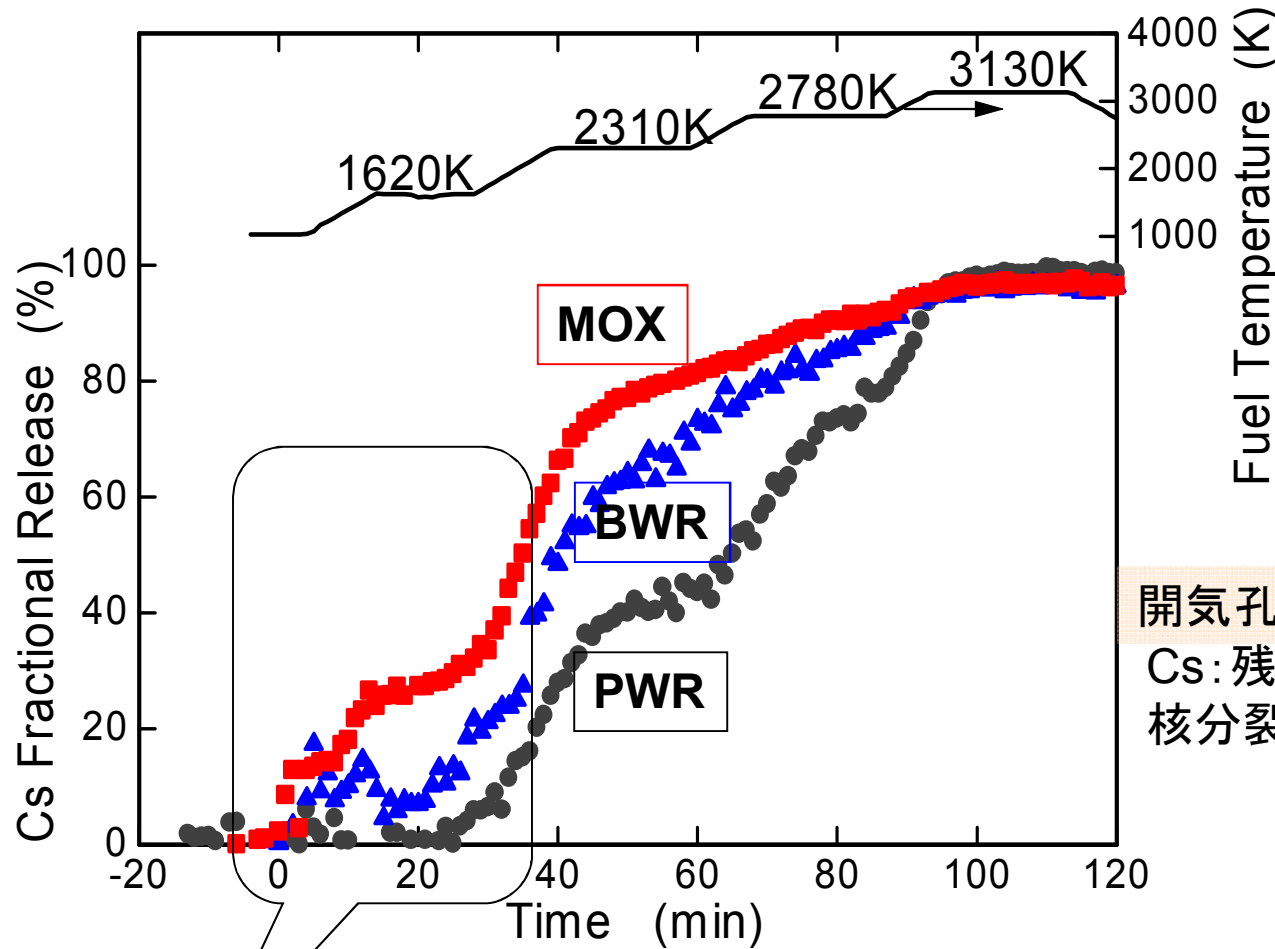


2. UO₂及びMOX燃料からの放射性物質の放出 1/7

燃料タイプの影響 (PWR-UO₂, BWR-UO₂ and ATR-MOX)

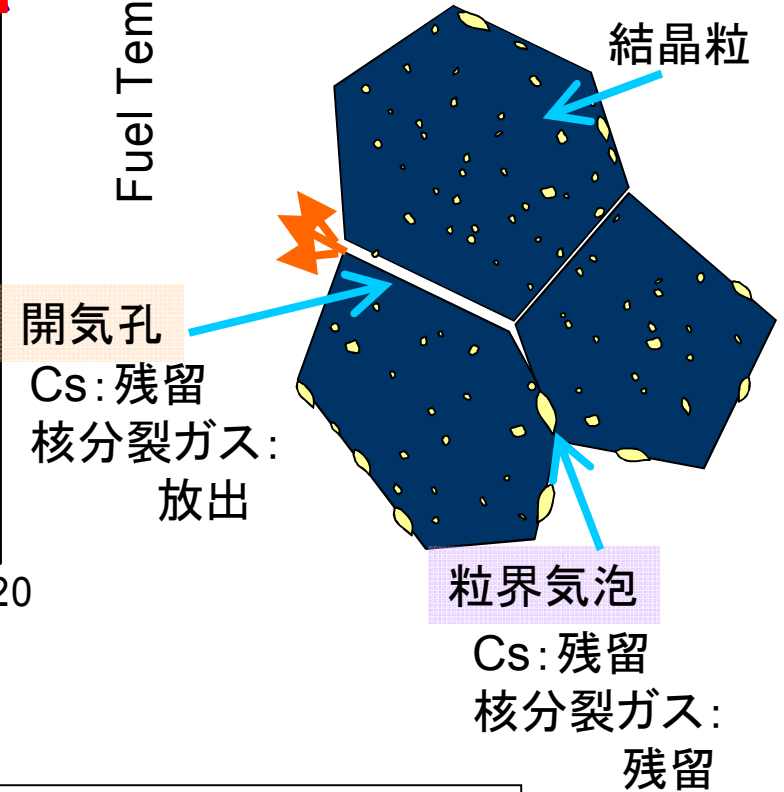
	試験燃料		
	PWR-UO ₂	BWR-UO ₂	ATR-MOX
燃焼度 [GWd/t]	47	56	43
線出力密度 (平均値) [kW/m]	18	26	28
ペレット温度(評価値) [中心平均値] [K]	1000	1500	1700
照射中の核分裂ガス放出 (FGR) [%]	0.4	12	20

雰囲気:ヘリウム
 被覆管:なし
 最高温度:3130 K

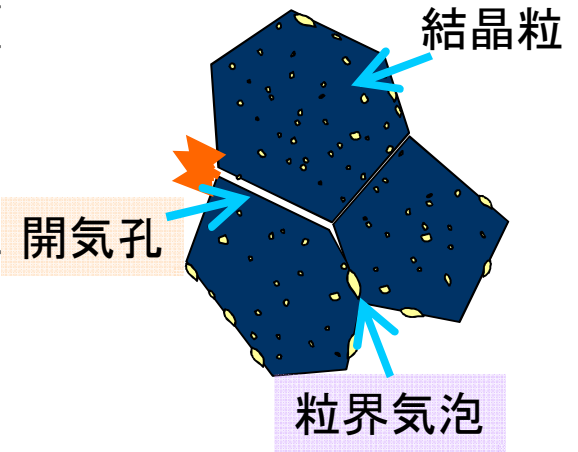
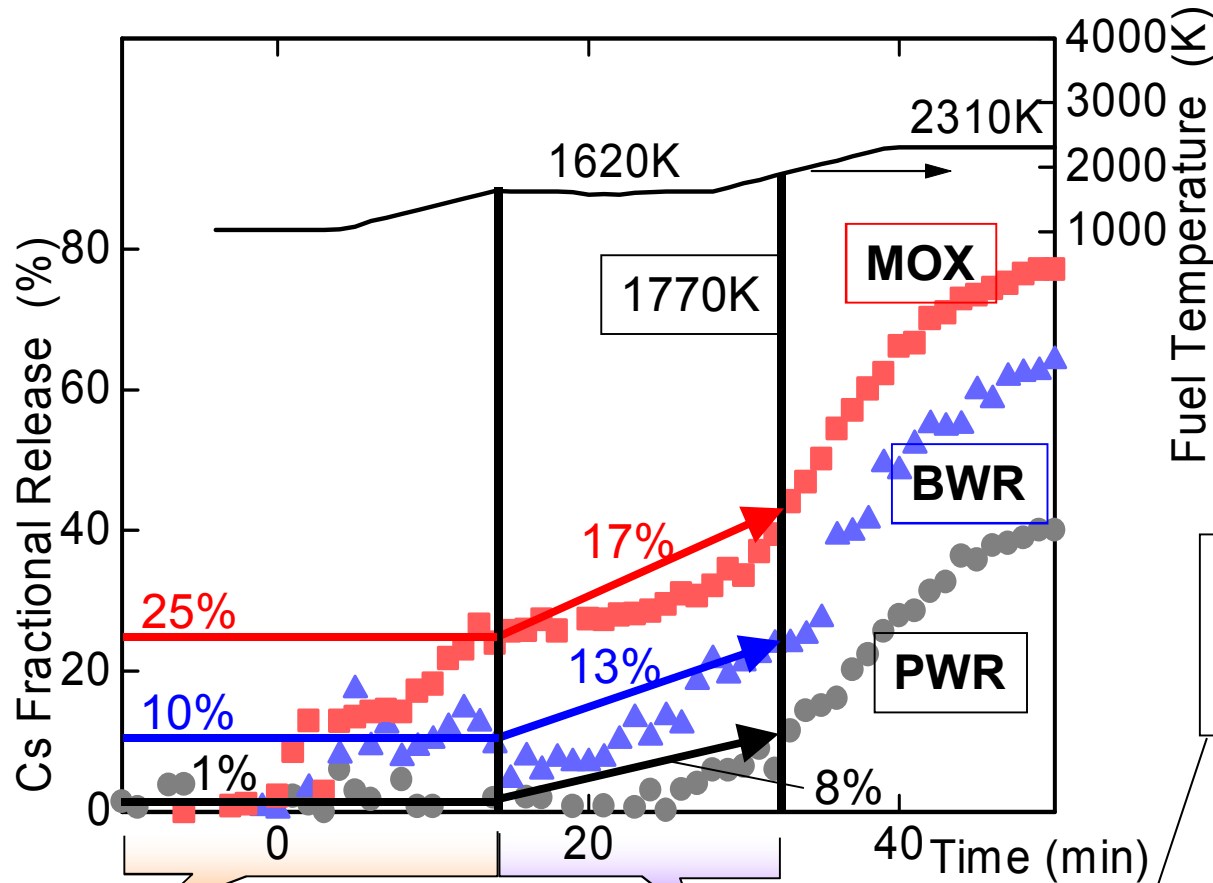


Csの放出は核分裂ガスとほぼ同等

照射後の燃料



低温域における燃料間のCs放出に違い
→結晶粒界への移動量の違い?

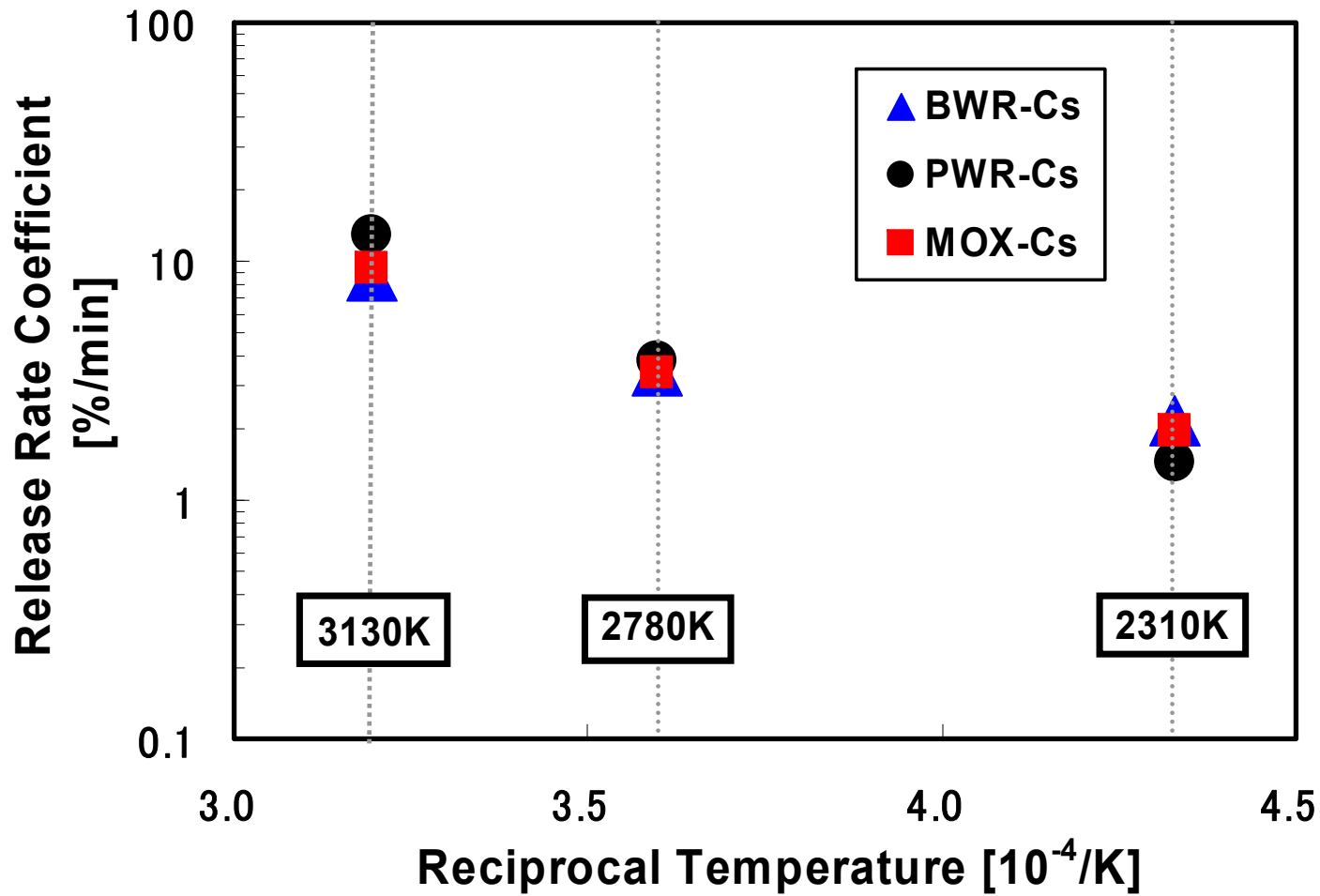


1670から1770Kにおける結晶粒界気泡からの急激放出
 K. Une, et al., J. Nucl. Mater., 189, 210(1992).

開気孔から
 照射中の核分裂ガス(FGR)の放出割合
 ATR-MOX: 20%
 BWR-UO₂: 12%
 PWR-UO₂: 0.4%

結晶粒界気泡から
 FASTGRASSコードによって評価された核分裂ガスの割合
 ATR-MOX: 13%
 BWR-UO₂: 11%
 PWR-UO₂: 9%

1770K以下の比較的低温におけるCs放出は、照射中の線出力密度に依存する

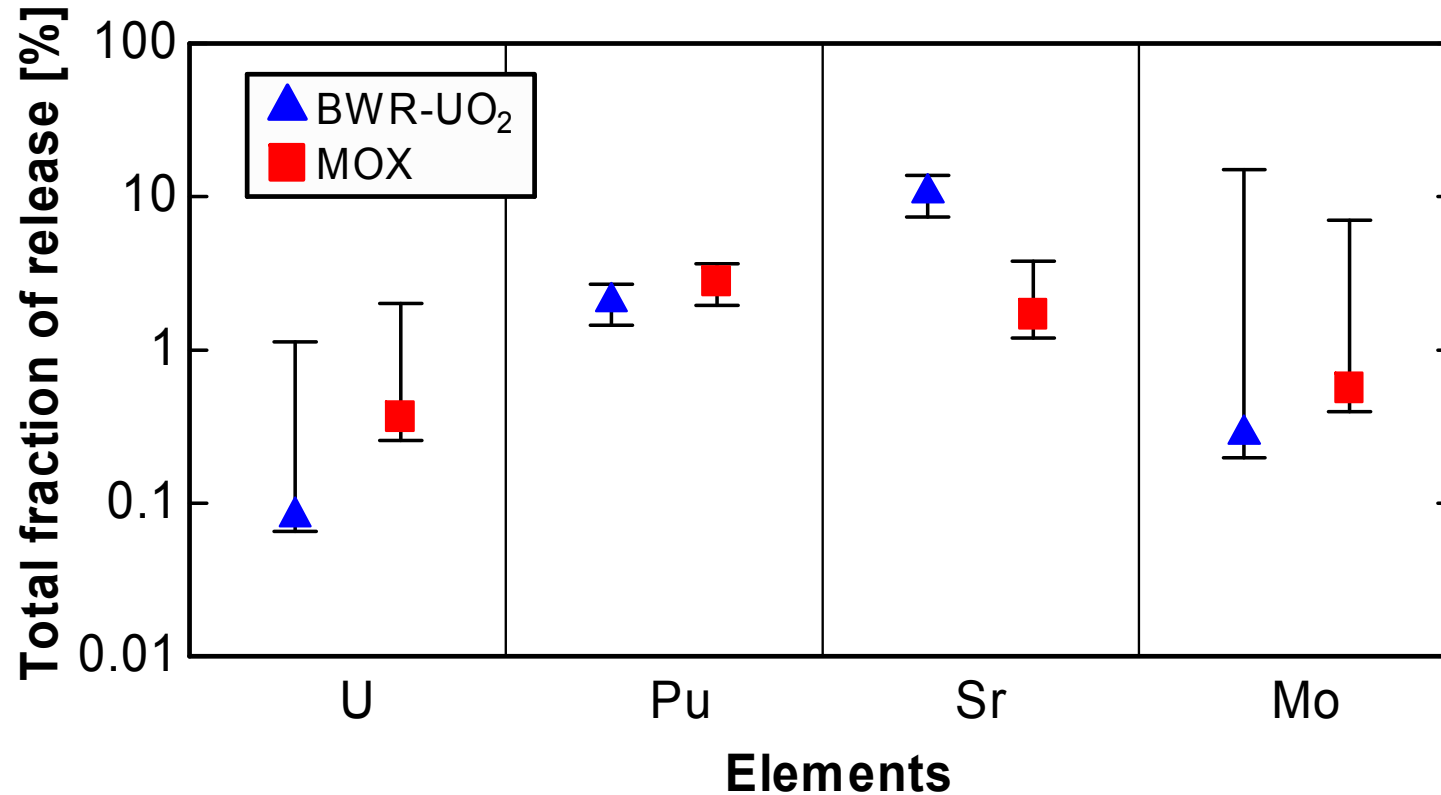


燃料間に違いはほとんどなし

高温域におけるCsの放出は、燃料のタイプに影響されない



低揮発性元素の放出割合の評価



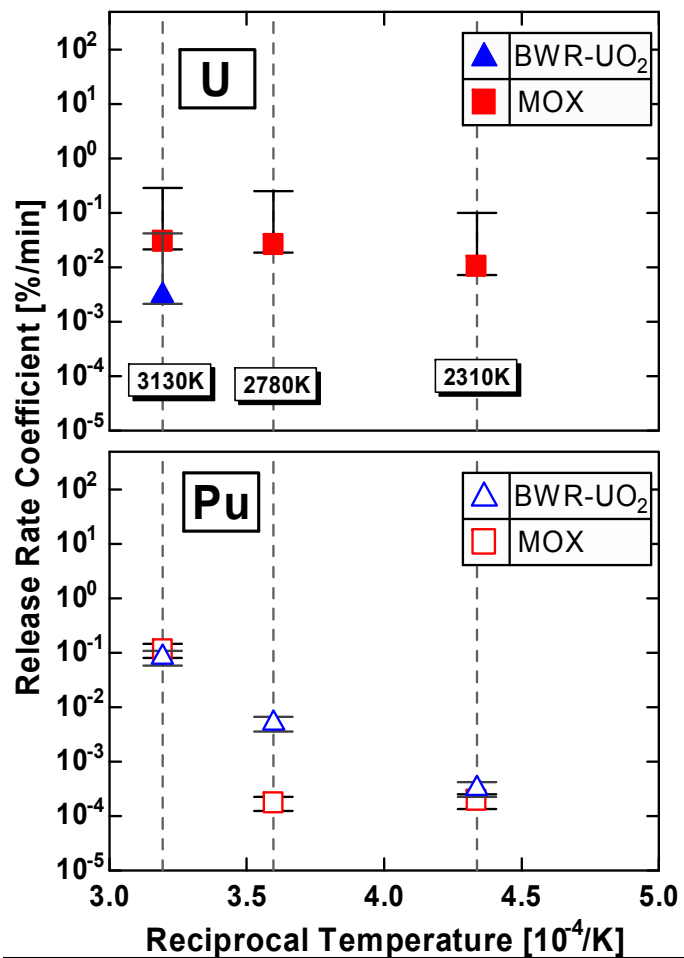
初期存在量に対する低揮発性元素の放出割合はMOX及びUO₂でほぼ同じで、燃料の種類による違いはない

従来の水蒸気雰囲気における実験ではPuの放出割合はUより一桁以上小さかったが、本実験ではMOX燃料、UO₂燃料ともに同程度か僅かに高い傾向が見られる → 次ページ

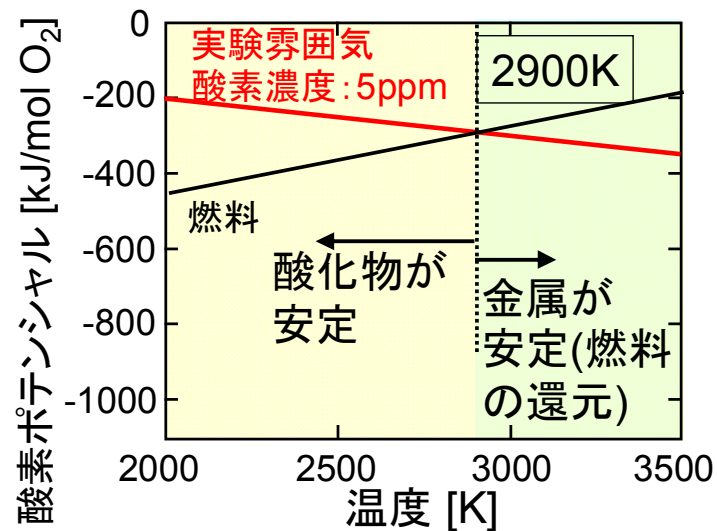
2. UO₂及びMOX燃料からの放射性物質の放出 6/7

低揮発性元素
の放出

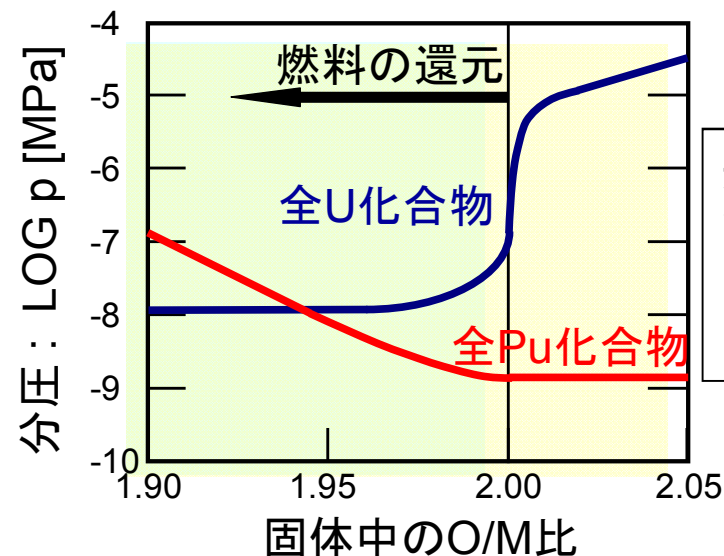
⑪



U: 大きな変化無し
Pu: 3130 Kにおいて放出速度大



燃料: 2900K
以上で
還元

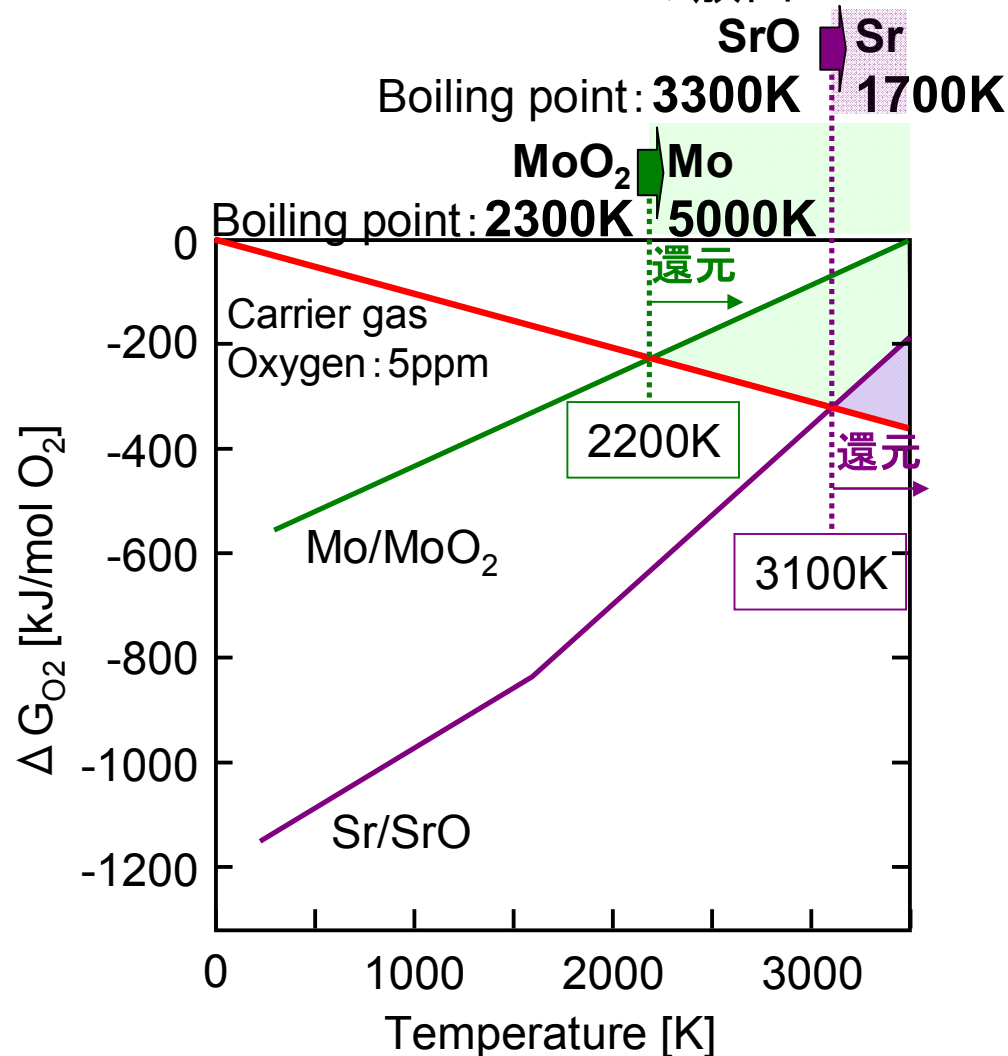
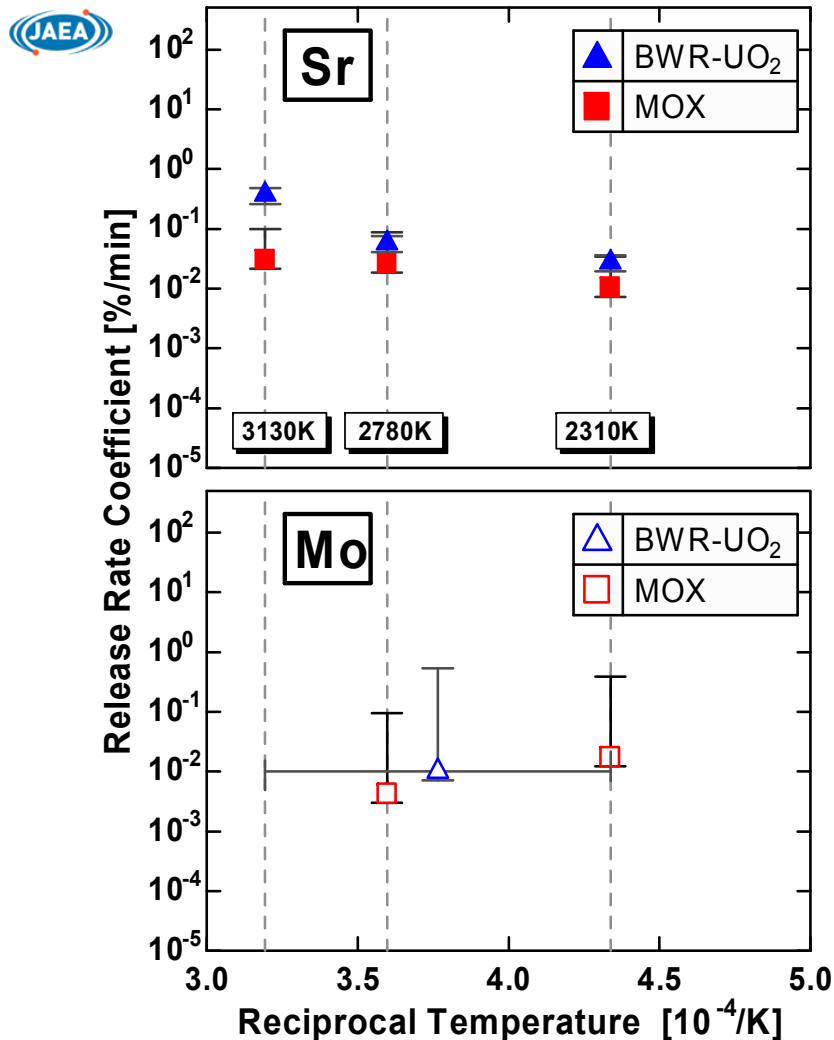


還元された燃料
で放出は
U: 僅かに小さく
Pu: 大きくなる

3130 KにおけるUに比べて大きいPuの放出速度は燃料の還元が主原因であり、それによるPu化合物の分圧増大により説明できる

2. UO₂及びMOX燃料からの放射性物質の放出 7/7

低揮発性元素
の放出 ⑫

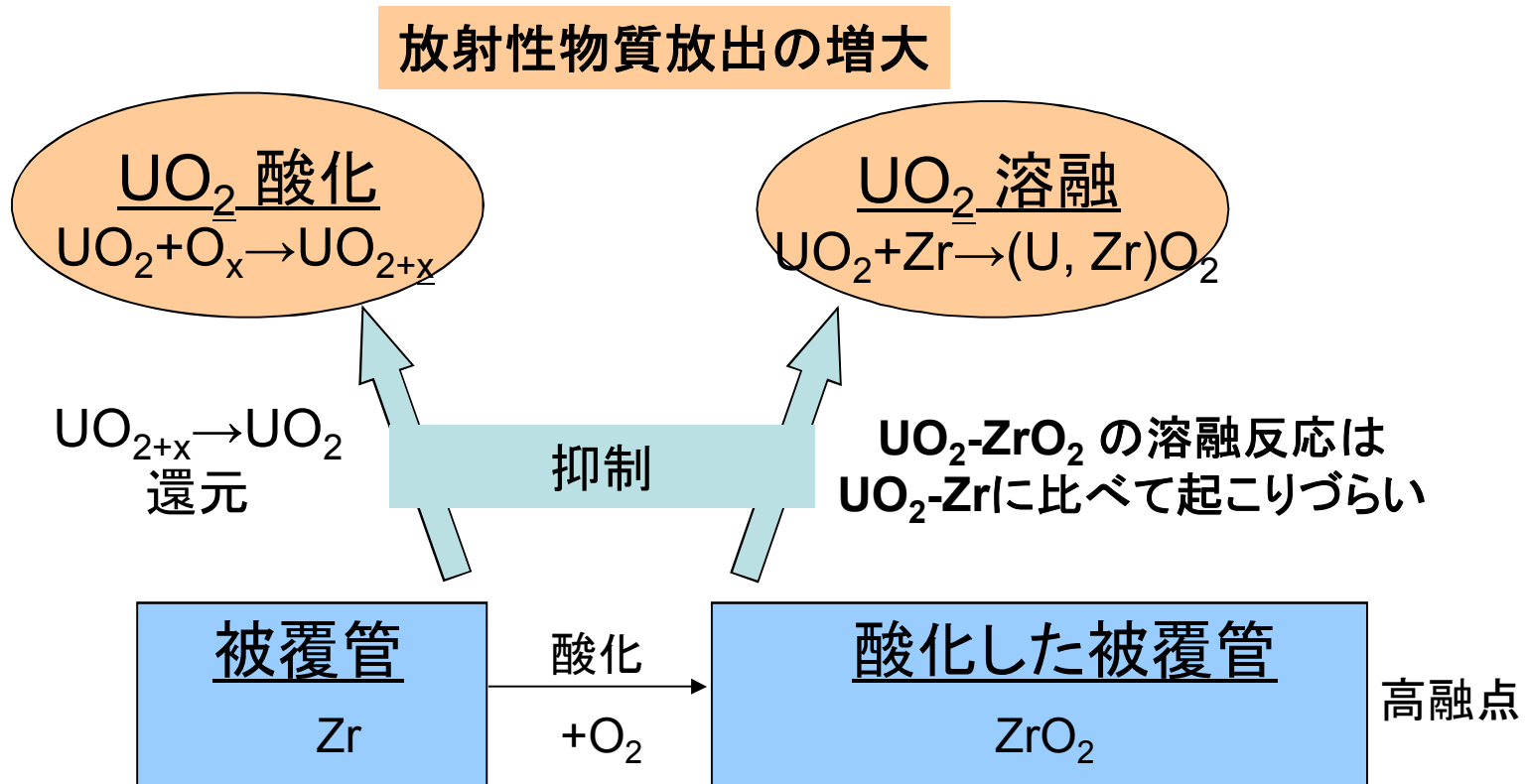


>3130 KにおけるSrの放出速度の増加
>Moの高温域での放出速度低下

酸化物の還元によるもの

揮発性元素の放出は、その雰囲気での化学形を評価することが重要

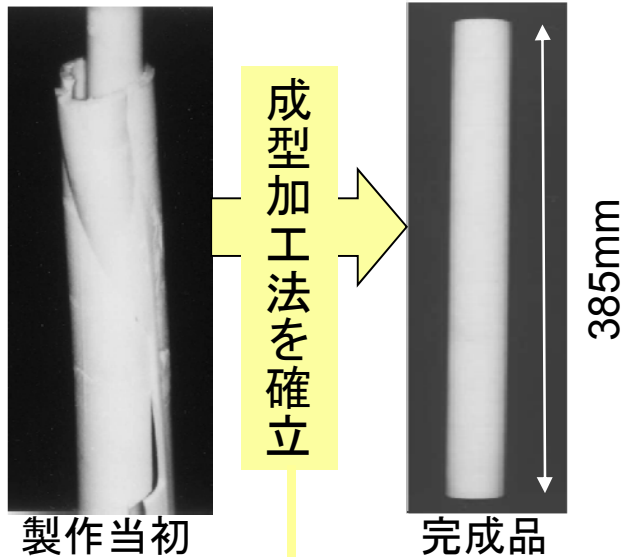
被覆管付きの燃料を用いた水蒸気雰囲気下における放射性物質の放出に関して UO_2 の酸化及び溶融の影響を調べた



3. 燃料の酸化と溶融の影響 2/6

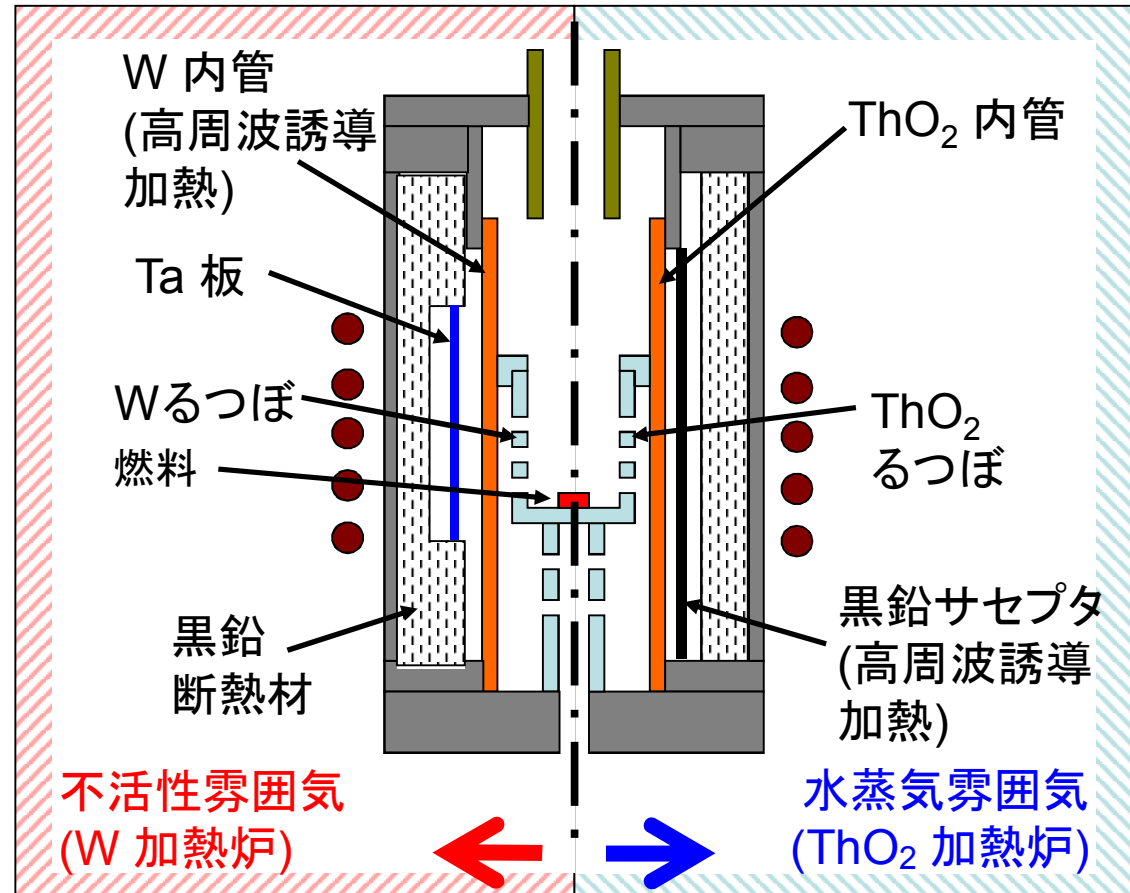
水蒸気雰囲気での高温実験のために

加熱炉構造材料として、水蒸気雰囲気、燃料が溶融するような高温で安定なトリア(ThO₂)を使用

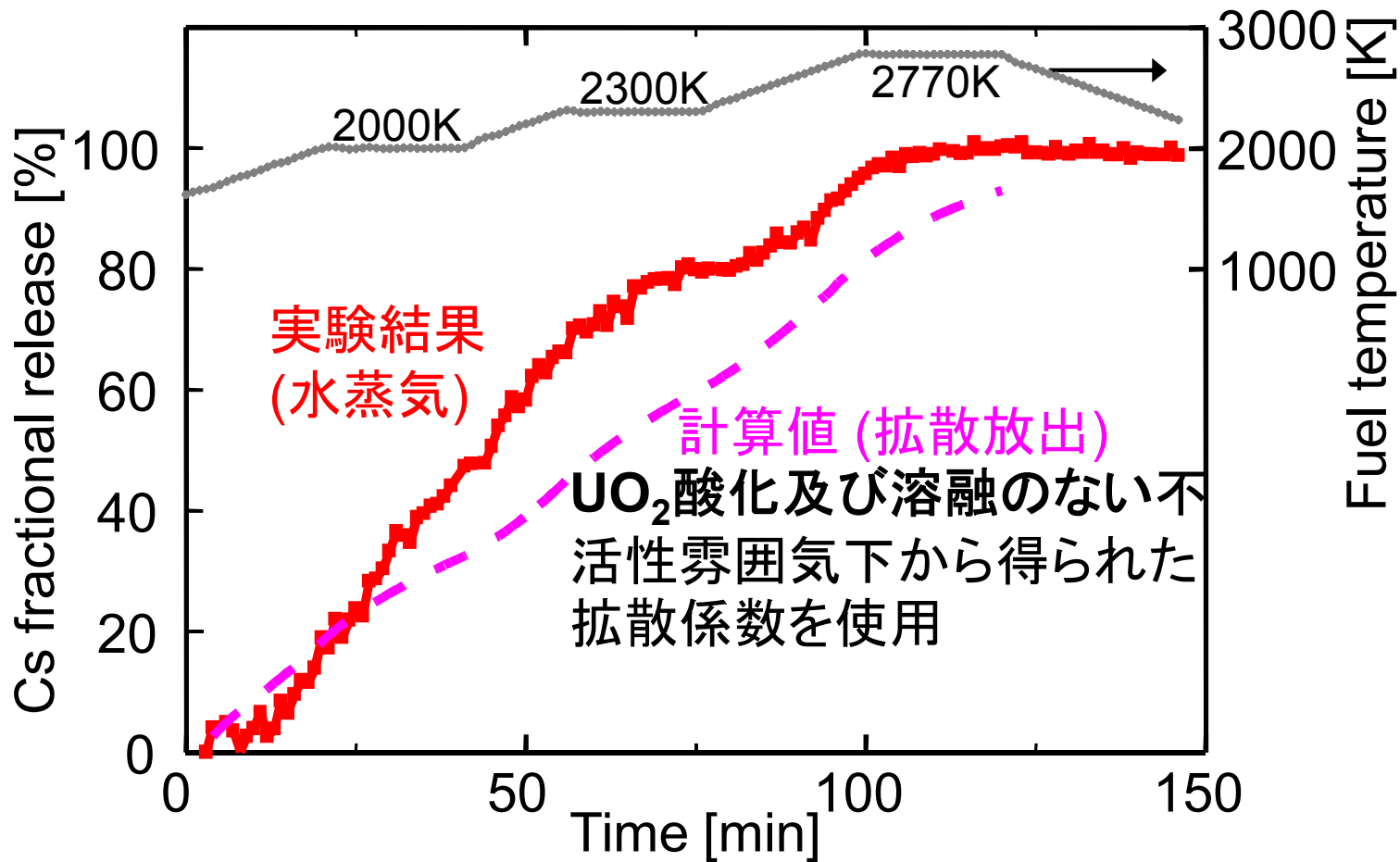


セラミックの製作技術を適用

- ・粉体の熱処理
- ・遠心鑄込み法



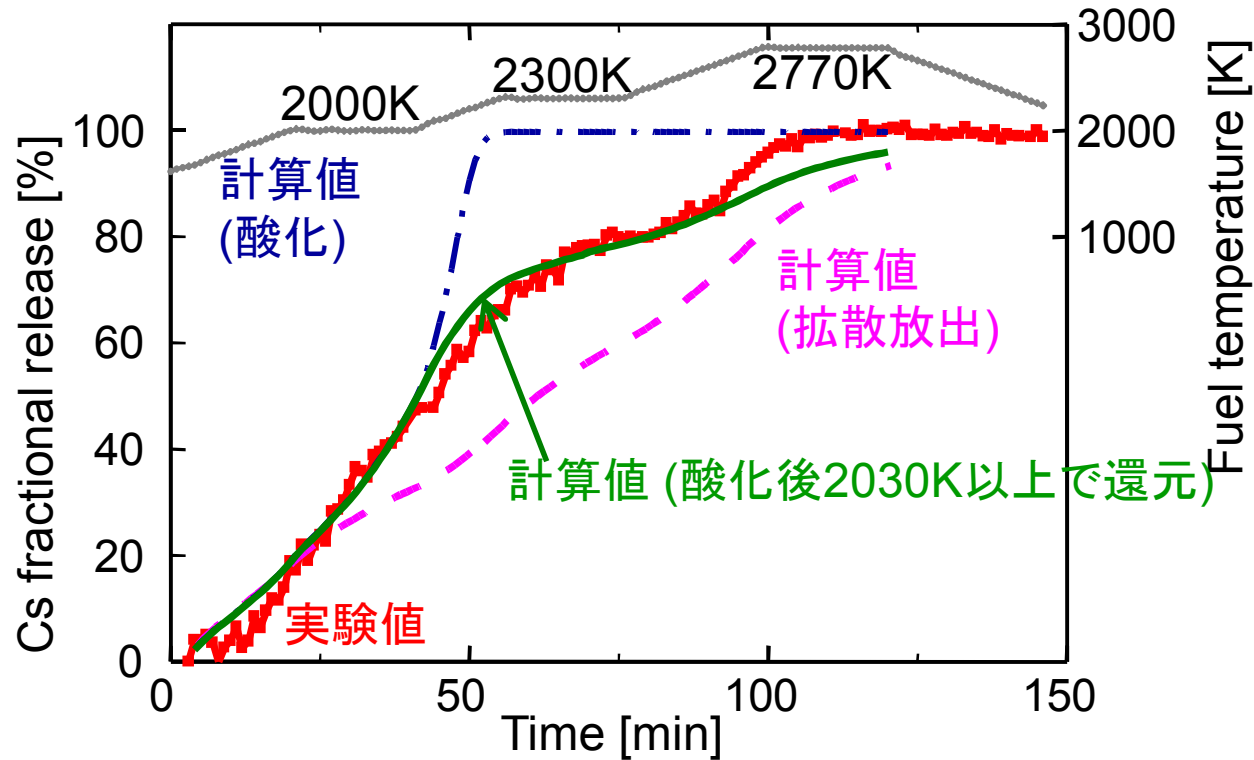
3. 燃料の酸化と溶融の影響 3/6



Cs放出割合: 水蒸気雰囲気実験 (被覆管有り) > 不活性雰囲気実験 (被覆管無し)

UO₂ 酸化と溶融の影響か?

UO₂酸化モデルにより評価



UO₂酸化による計算値との比較

溶融ジルカロイによる一旦酸化した UO_{2+x} の還元を行った評価との比較

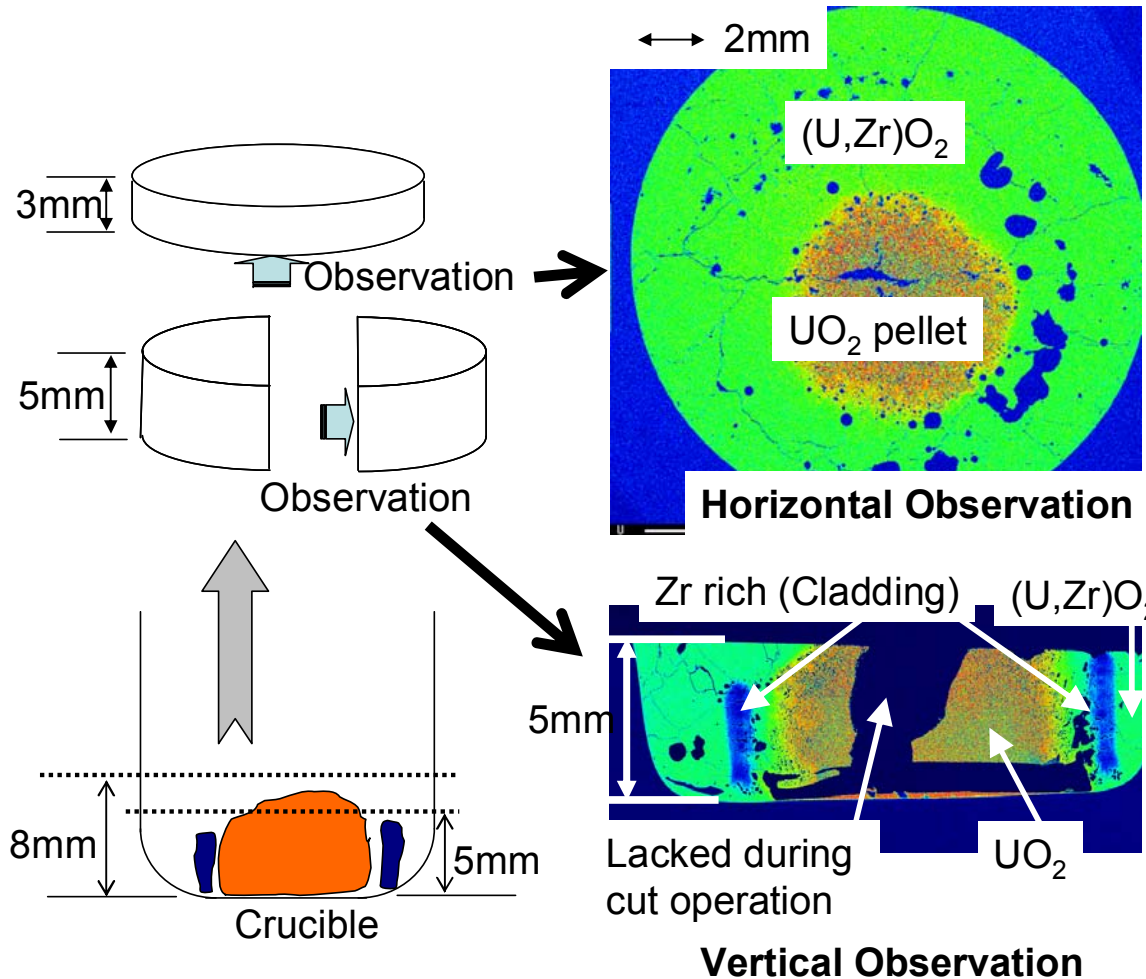
⇒ Csの放出は約2000 Kまでペレット酸化により増大する。その温度以上では実験は酸化による放出の促進を示していない。

⇒ 被覆管の融点2030 K以上においてはペレットの還元によって、放出速度の増加は見られない。

2500 K以上では過大評価

→ 溶融の影響?

水蒸気雰囲気下における燃料の溶融

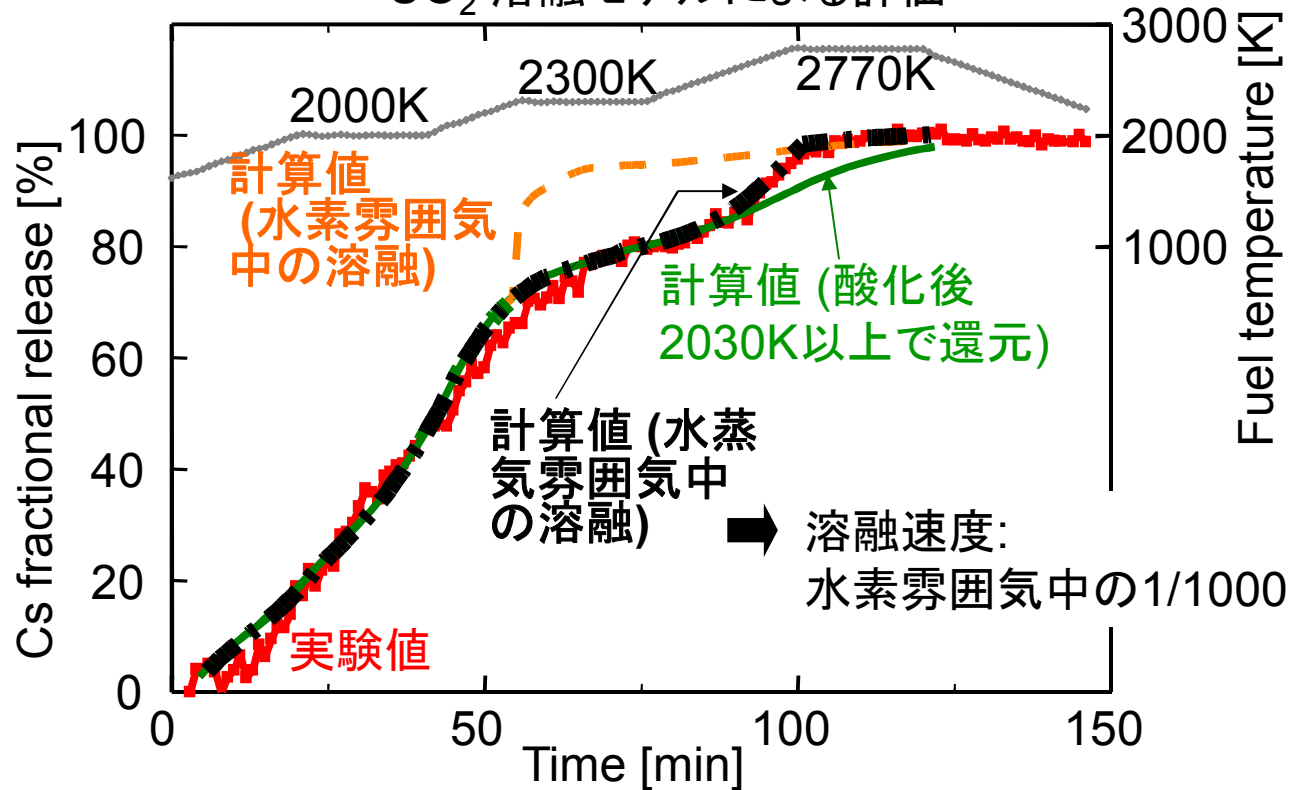


溶融ジルカロイとの相互作用により燃料ペレットの溶融が起こった

燃料ペレットの高さ
 実験前: 20 mm
 実験後: 5から8 mm

↓
 ペレットの60から75%
 が溶融したと評価

UO₂ 溶融モデルによる評価



水素雰囲気中におけるUO₂ 溶融モデルとの比較

水蒸気雰囲気中における低下したUO₂ 溶融速度との比較



急激な溶融は見られず、水蒸気雰囲気中におけるCs放出速度の増加はごく僅か



水蒸気雰囲気中の溶融速度は、水素雰囲気中に比べておよそ1/1000と極めて小さくなる

1. 燃料温度の影響

- セシウムの放出は、燃料の泡状化及び溶融により増大する

2. UO_2 及びMOX燃料からの放射性物質の放出

- セシウムの放出に関し、低温域において照射中の温度に依存して放出挙動は異なるが、燃料のタイプによる相違は見られない
- 低揮発性元素であるU、Pu、Sr及びMoに関して、 UO_2 とMOXで放出に差は見られない

3. 燃料の酸化と溶融の影響

- 水蒸気による燃料酸化のため約2000Kまではセシウムの放出が増加する
- 2030 K以上では一旦酸化した燃料が溶融ジルカロイにより還元されることで酸化による放出増大は見られなくなる
- 水蒸気雰囲気下では被覆管の酸化により水素雰囲気と比べて燃料の溶融速度が低下することを定量的に示した