

安全規制からみた 燃料ふるまいと研究課題

2012年7月30日
原子力学会 第五回溶融事故における
核燃料関連の課題検討WG

上村 勝一郎

技術参与
独立行政法人 原子力安全基盤機構 (JNES)

内容

1. 主旨

2. 検討分野

- ・ シビアアクシデント
- ・ 安全評価の見直し
- ・ 超長期貯蔵と直接処分

3. 着目すべき燃料ふるまい

- ・ Fuel Fragmentation
- ・ 破損モードと破損しきい値
- ・ 水素ぜい化と再配向
- ・ 水素ガス発生と蓄積

4. まとめ

5. 参考文献

1. 主旨

- ・今回の福島事故を契機に、どのような分野が、燃料安全性について検討・評価あるいは試験・研究の対象として考えられるか。
- ・また、その際に留意あるいは注目すべき燃料ふるまいは何で、何故かを考えてみる。
- ・検討にかけた時間は短く、系統だったものにはなっていない。Just Information あるいは、話題提供のレベル。

2-1. シビアアクシデント

「福島事故及び一般のBDBシナリオ事故時の燃料挙動評価」 に関するIAEA専門家会議の開催予定

開催時期； 2013年11月

場所； ドイツ カールスルーエ

主催； KIT(旧 FZK)とIAEAの共催

目的； シビアアクシデントに関連した水炉燃料のふるまいに関する研究の現状をレビューすることを目的とした世界の専門家のフォーラム

KITが毎年開催しているシビアアクシデントの会議を拡大版として開くもので、福島事故と関連して、シビアアクシデント直前及びシビアアクシデント時の燃料挙動に照点をあてた討議を行う。

この討議結果によって、新たなIAEAのCRP(共同研究計画)の内容を検討し、IAEAへその実行を提言する。

2-1. シビアアクシデント

Proposal of Technical Meeting on “Fuel Behaviour and Modeling Related to Severe Accident” : Needs

(1) Lessons learned from Fukushima Accident:

- It is necessary to understand the reactor core damage progress from the early stages of fuel damage to fuel melting and fall down in real time, and to carry out timely the measures and correspondence during accident progress.
- Based on a suitable stage division of a phenomenon, the improvement in accuracy of a reactor core damage progress scenario is required.
- It is necessary to review the existing knowledge of each stage and to examine the specification of future research and the methodology (experiment, model, and code development).
- Feedback on the regulation standard about a severe accident is necessary.

(2) The exact recognition on the present state of the reactor core and the measure against it:

- Reflection to prediction of happening from now on, and prevention measures against accident expansion
- The measure towards decommissioning (recovery, processing and disposal of SF in SFP, and melted down fuel)

2-1. シビアアクシデント

Proposal of Technical Meeting on “Fuel Behaviour and Modeling Related to Severe Accident” : Topics

(3) Topics to be Covered

Behaviour of fuel pellet, cladding, fuel rod, and fuel bundle just prior and during a severe accident

Oxidation rate and embrittlement of cladding

UO₂ oxidation and fuel behaviour in air related to severe accident

Hydrogen production

Rod burst and fuel relocation

Fuel failure mode

Fuel, cladding, control rod(B4C, Ag-In-Cd, etc), core structure, and eutectic alloy melting

Effect of burnup

Sub-channel blockage and coolability

Long term integrity of fuel rod in water pool with sea water

Radiological consequences (extent of burst, release of fission products)

Modeling adequacy and accuracy

Regulatory requirements

Experience and lessons from the Fukushima accident relevant to the subject of the meeting

Both experimental and theoretical/modeling works are welcome.

2-2. 安全評価の見直し

燃料側から見た安全評価

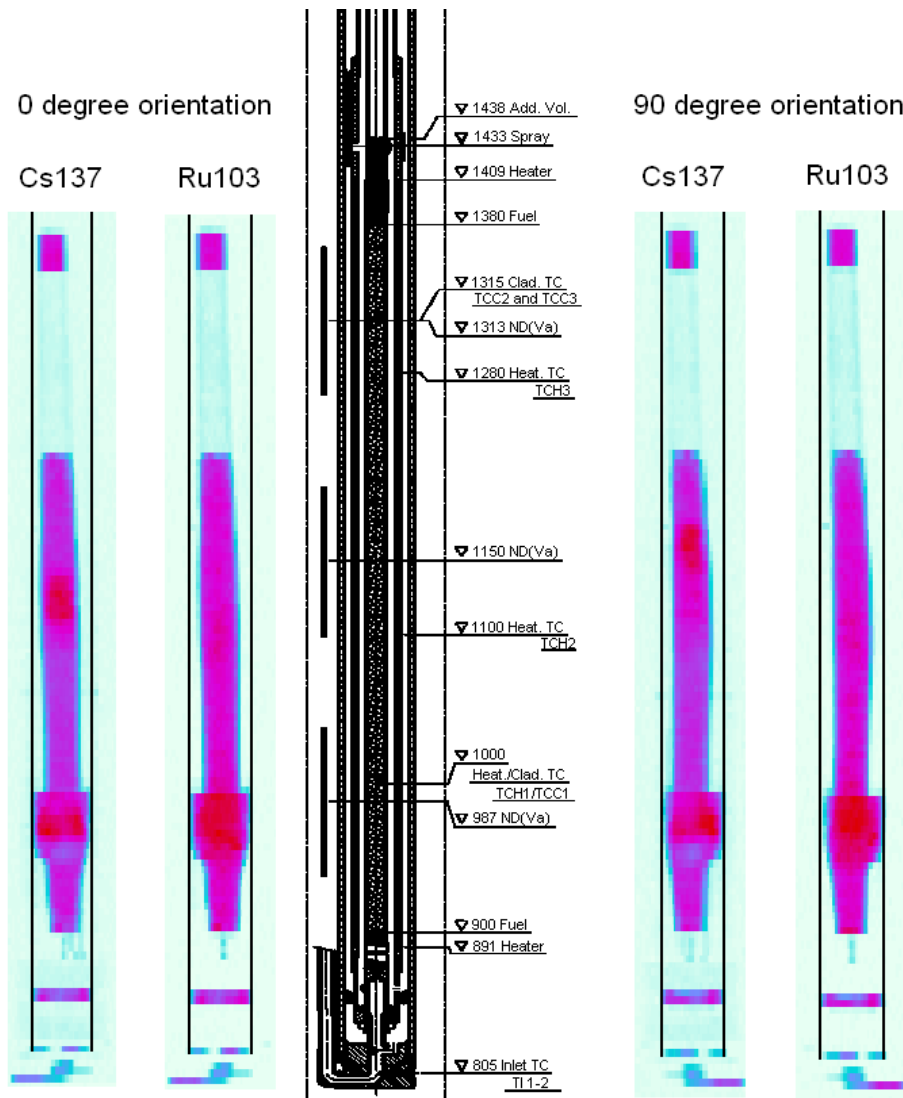
シビアアクシデントだけでなく、通常の事故時(DBA)の安全評価条件・基準の見直しが必要

最新知見に基づいた、燃料研究者側から安全評価者側への安全評価条件の積極的提示

- ・LOCA; バルーンング破裂とリロケーション
- ・ギャップインベントリ;
- ・燃料の熱伝導度の燃焼度依存性; 「燃料の熱伝導度低下による現実的なECCS評価モデルへの適用指示」(9)
- ・その他

2-2. 安全評価の見直し

HALDEN LOCA試験：バルーニング破裂と燃料軸方向リロケーションの発生



PWR Zry-4 duplex 90Gwd/t (4)

Gamma scans (Cs-137 and Ru-103) of IFA-650.9 about 6 weeks after the test.

The target peak cladding temperature was 1,100 degrees C, and cladding failure occurred about 133 seconds after blowdown at about 810 degrees C less than current criteria.

Cf. Current LOCA Criteria;
 PCT: 1200 degrees C.
 ECR: 15%

2-2. 安全評価の見直し

燃料ギャップインベントリ

- ・原子炉事故時、輸送事故時等において燃料破損が生じたときのソースタームとしては、ペレット/被覆管ギャップ部に存在するFPがまず取り上げられる。
- ・日本では、ギャップインベントリとしては希ガスとハロゲンのみしか考慮されていない。→セシウムを主としたアルカリ金属を取り入れるべき。(1)
- ・また、高燃焼度燃料のFP放出量の増加を考慮すべき。
- ・ペレットからのFP放出挙動研究は、希ガスの放出ばかりにとらわれず、燃料研究者側からソースタームとして考慮すべきFPとしてヨウ素、セシウム等の放出ふるまいとその量について研究しその成果を示す。

2-2. 安全評価の見直し

燃料ギャップインベントリ

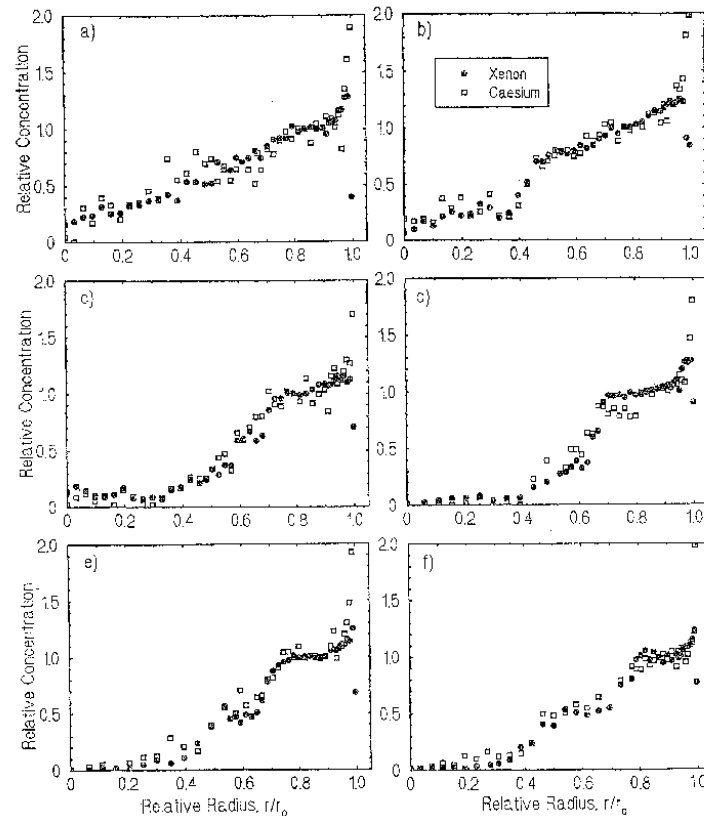


Fig. 1. EPMA concentration profiles for the radial distribution of cesium and xenon retained in the UO_2 grains. (a) SK 677, irradiated in a power reactor at high rating to 4.7 at.% burn-up; (b) CB10-19, transient-tested at 4.3 at.% burn-up; (c) CB13-4R-16, transient-tested at 4.4 at.% burn-up; (d) ZX113-4R-4, transient-tested at 4.5 at.% burn-up; (e) ZX114-3R-8, transient-tested at 4.4 at.% burn-up; (f) M72-2-7R-15, transient-tested at 5.2 at.% burn-up. In CB10-19 the average concentrations of xenon and cesium between $r/r_0 = 0.75$ and 0.85 are taken as unity for the purposes of normalization.

図 燃料ペレット中の残留Cs, Xe分布 (2)

2-3. 超長期貯蔵と直接処分

原子力委員会 平成25年度予算基本方針

「核燃料サイクル政策の選択肢について」

平成24年6月21日 原子力委員会決定

-----本委員会は、これらを踏まえ、国がその解決に向けて、以下のように、取組の検討を始めることを提言する。

冷却に係る安全性も考慮し、発電所敷地内外に係わらず乾式貯蔵を含めた使用済燃料の貯蔵容量を増強する取組、高レベル放射性廃棄物の最終処分場の選定作業は、いずれの選択肢を選ぶ場合でも、現在にも増して、国がリーダーシップを発揮して、強力に推進していく必要がある。また、最終処分場に関しては、すでに発生している研究炉の使用済燃料や福島第一原子力発電所の使用済燃料対策などを考えると、使用済燃料を直接処分することを可能にしておくことの必要性は明らかである。したがって、直接処分を可能とするための技術開発や所要の制度措置の検討に早急に着手すべきである。-----

2-3. 超長期貯蔵と直接処分

NRCの超長期貯蔵研究活動の対象

(3)

- HBU Cladding Integrity – Does it have to be maintained?
- Retrievability of fuel after storage or transportation? How should it be defined?
- Does storage after transport change the issues?

(Fuel/Cladding Concerns)

- Cladding stress due to: additional fuel fragmentation*, helium release*, swelling of fuel pellets due to helium in-growth* and fission gas release during accidents
- Realistic upper and lower time dependent thermal profiles
- Effects of residual moisture after normal drying
- Development of in-service monitoring methods for canister interiors
- Corrosion, SCC*, and metal fatigue of fuel assembly hardware*
- Hydride reorientation effects, SCC*, DHC*, and fatigue of cladding caused by temperature fluctuations

* Only an EST (EXTENDED STORAGE AND TRANSPORTATION) issue

2-3. 超長期貯蔵と直接処分

ITUの超長期貯蔵研究活動の対象

(3)

ペレットの α ダメージによるスウェリングとマイクロクラックの研究

- ・長期貯蔵中のペレットスウェリングの基礎データを得るため(U、 ^{238}Pu)O₂を用いて α ダメージの加速実験を実施中。
 - ・乾式貯蔵では長期間になると、温度が低いので照射欠陥(転位ループ)及び α 崩壊によるHe生成によるスウェリングやマイクロクラックに注意が必要である。
 - ・貯蔵中の照射量は、100年で0.1~0.2dpaであるが、300年で約1dpaに達するので影響が出てくる。
 - ・格子スウェリング($\Delta a/a_0$)は、100年(0.1~0.2dpa)で0.2~0.3%の割合で照射量(貯蔵時間)とともに増加するが、300年(1.2dpa)では飽和して0.5%程度にとどまる。
- ただ、He生成によるナノスケールのマイクロポアに伴うスウェリングは数dpaまで飽和せずに増え続ける。この結果、マイクロクラックの増加によるFPガス放出の増加やPCMIIによる被覆管の健全性については、検討が必要である。

3-1. Fuel Fragmentation

課題

高燃焼度燃料がLOCA時にバーストしたり、キャスク落下時に破断 * した場合には、燃料ペレットは微細化した粉末となって放出される。

- ・UO₂, PuO₂水溶液の臨界
- ・機械的衝撃力
- ・FP放出(ソースターム)

燃料ペレットの放出量は燃料棒内圧が大きくなると多くなる。 → 照射済燃料の再加工セグメント試験時に注意

*** JNESの使用済燃料の衝撃試験結果**

3-1. Fuel Fragmentation

LOCA (HALDEN 炉内試験)

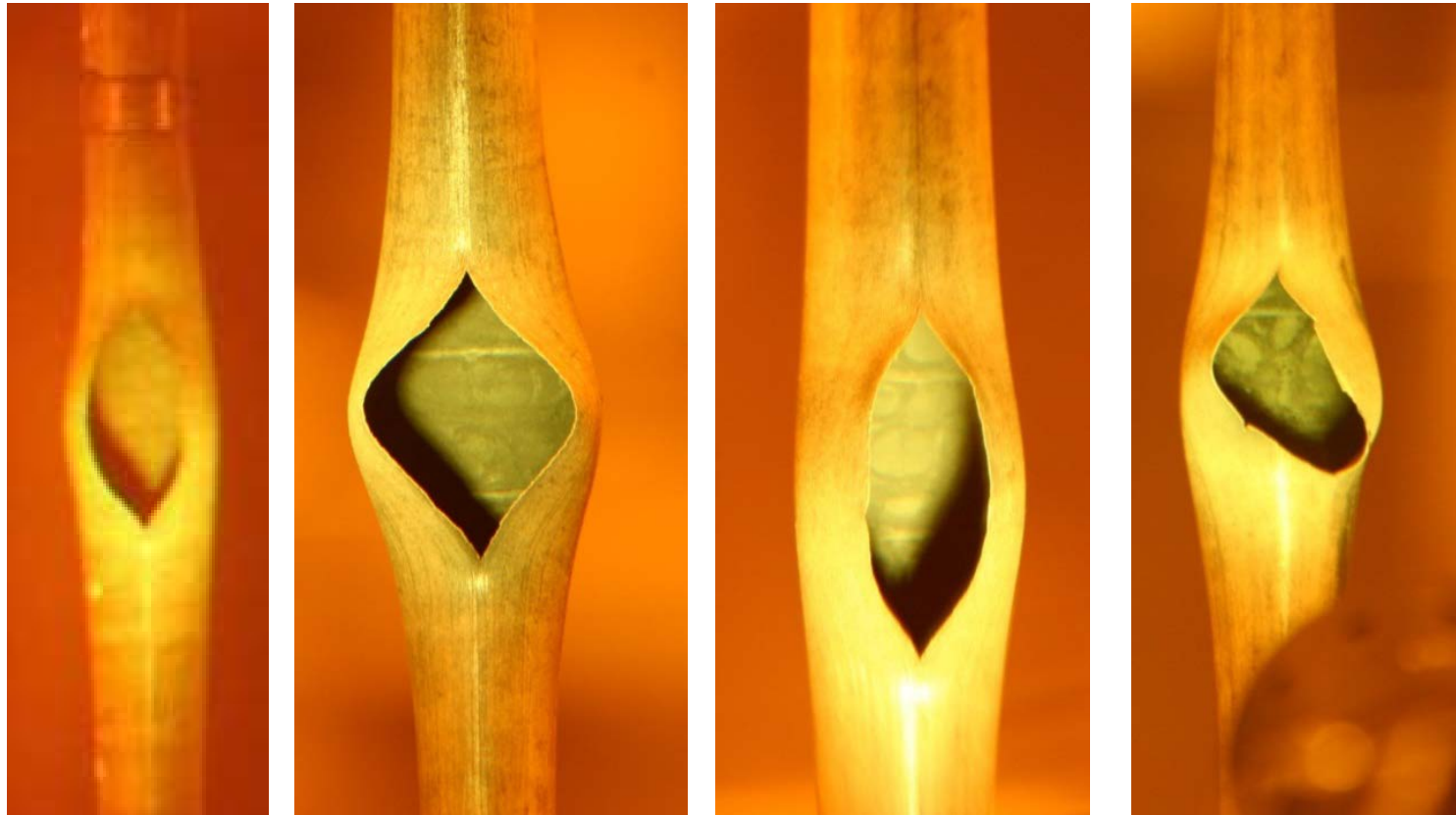
Dismantling of 650.9



Figure; Fuel residue from posttest disassembly of IFA-650.9
(4)

3-1. Fuel Fragmentation

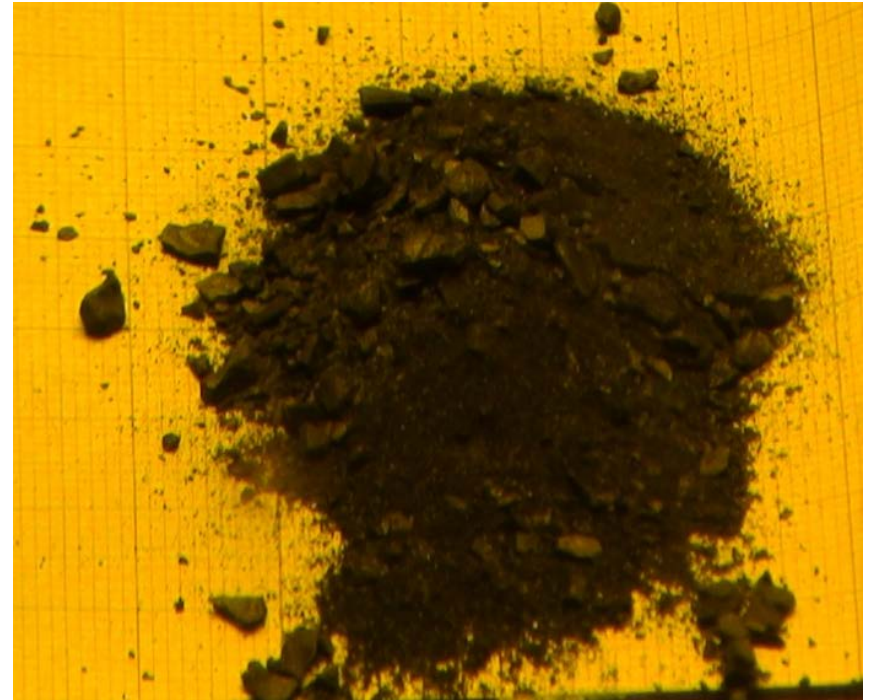
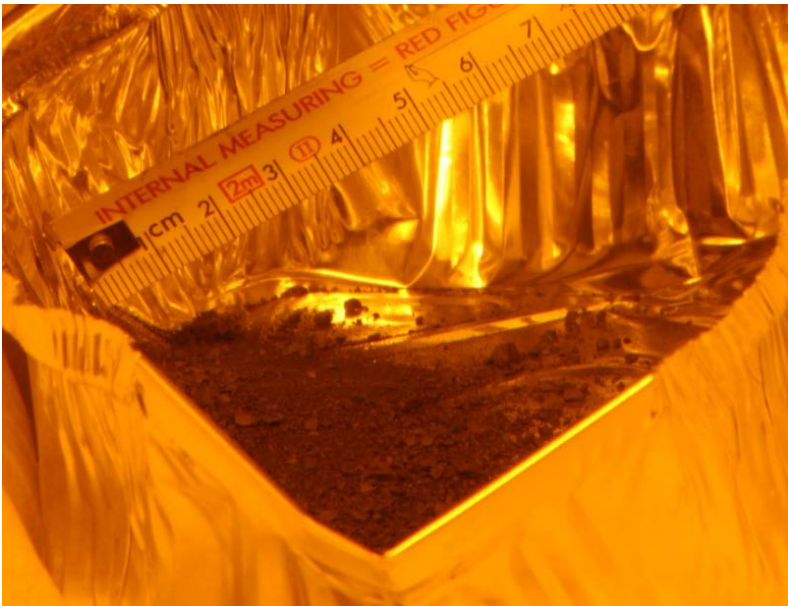
LOCA (Studsvik 炉外試験)



Figure; Rupture opening in Studsvik LOCA tests 189, 191, 192, and 193 (left to right), showing the absence of fuel in the rupture plane (4)

3-1. Fuel Fragmentation

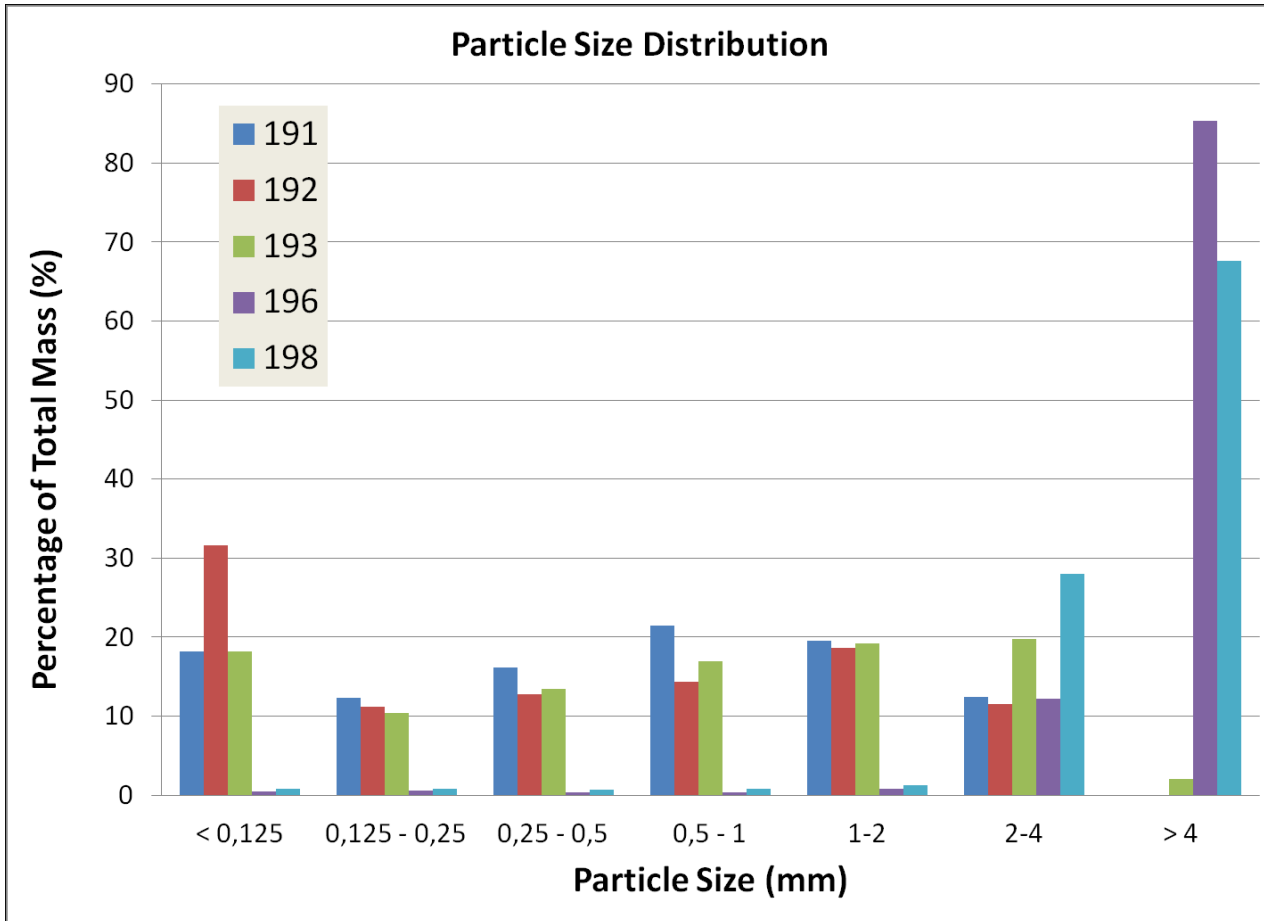
LOCA (Studsvik 炉外試験)



Figure; Images of fuel particles collected from test rod (a) 192 and (b) 193 revealing a very small, sand-like fragmentation size (4)

3-1. Fuel Fragmentation

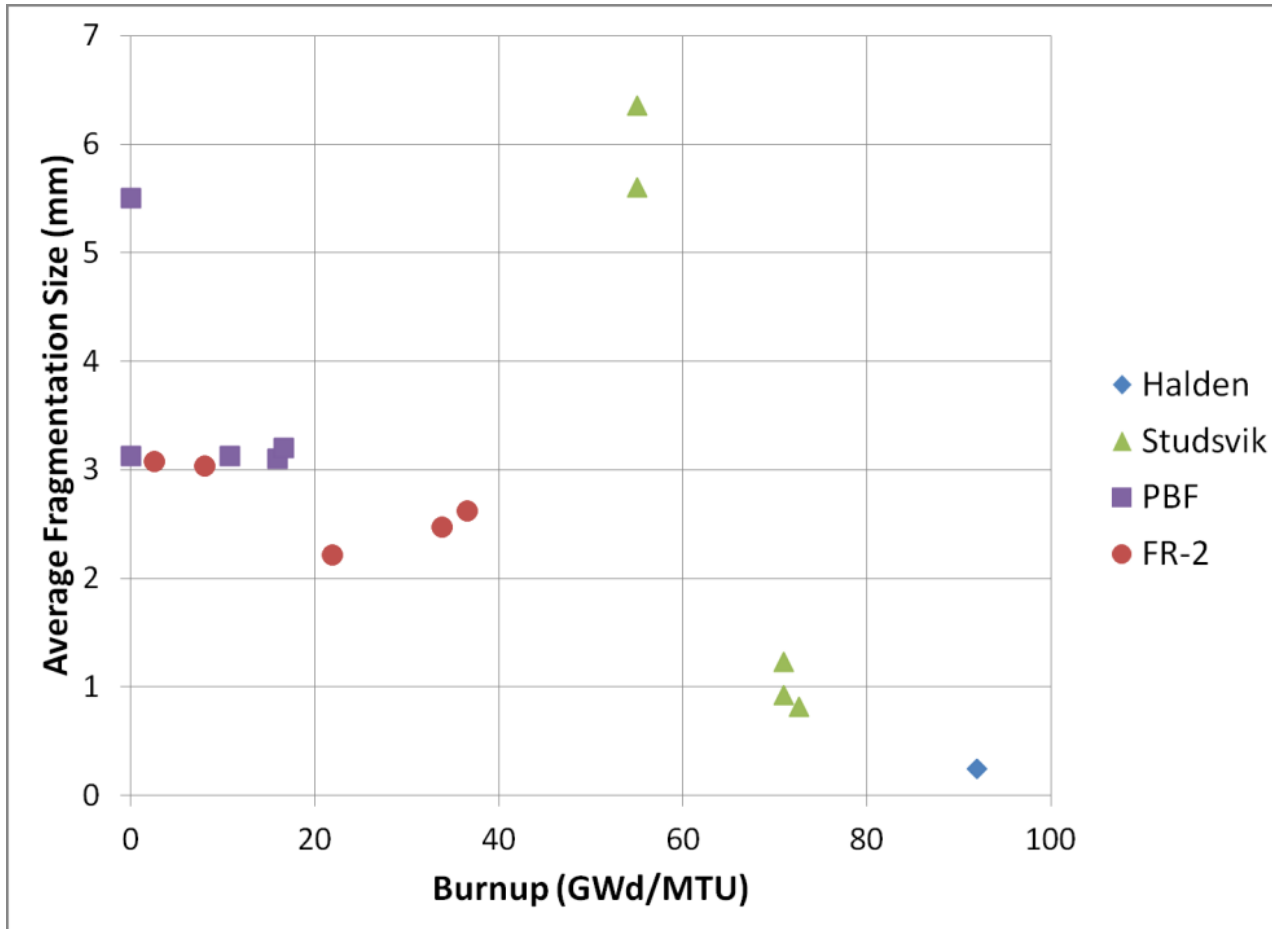
LOCA (Studsvik 炉外試験)



Figure; Particle size distribution from six integral LOCA tests (4)

3-1. Fuel Fragmentation

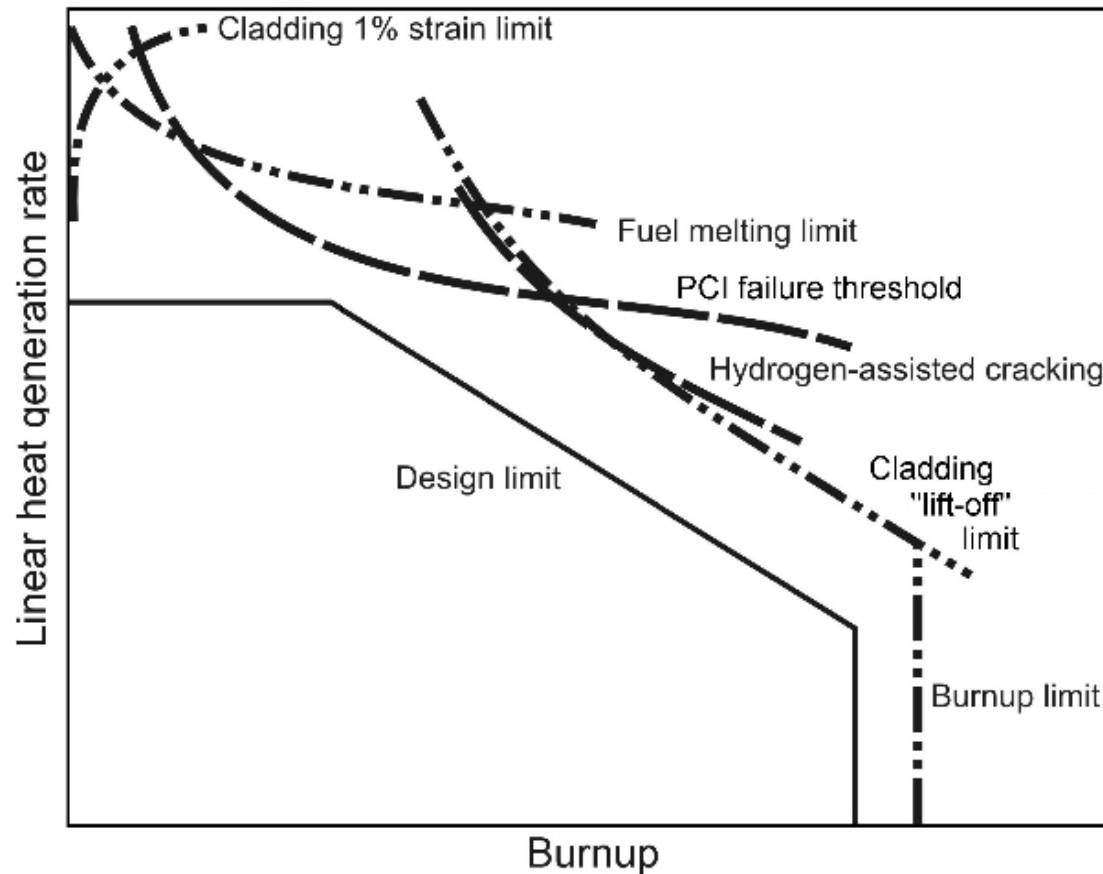
LOCA Summary (by NRC)



Figure;
Average fuel fragment cross-section as a function of burnup, showing increased fragmentation with increasing burnup.
(4)

3-2. 破損モードと破損しきい値

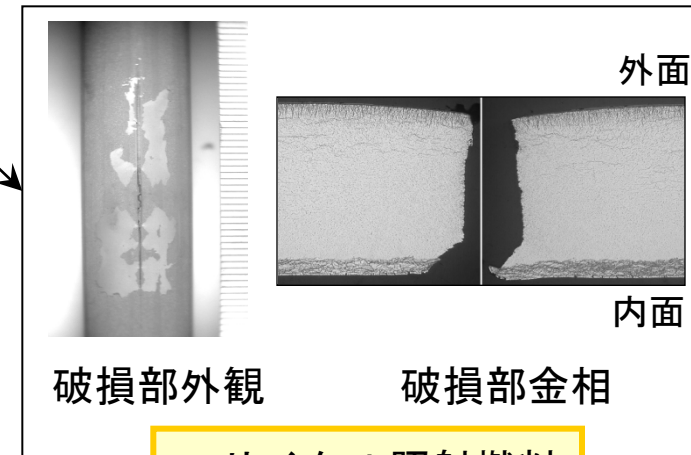
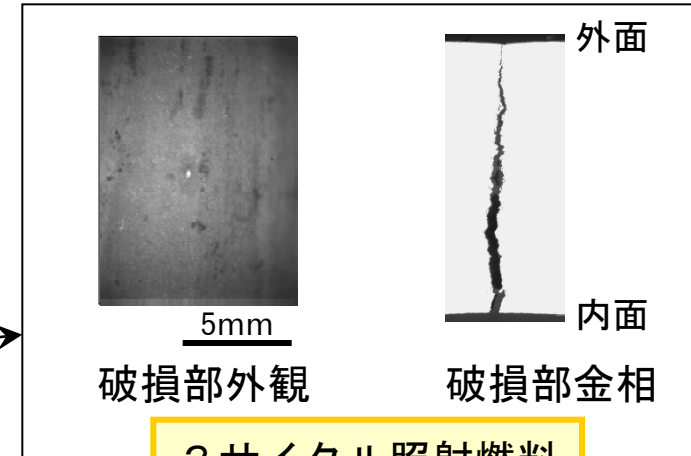
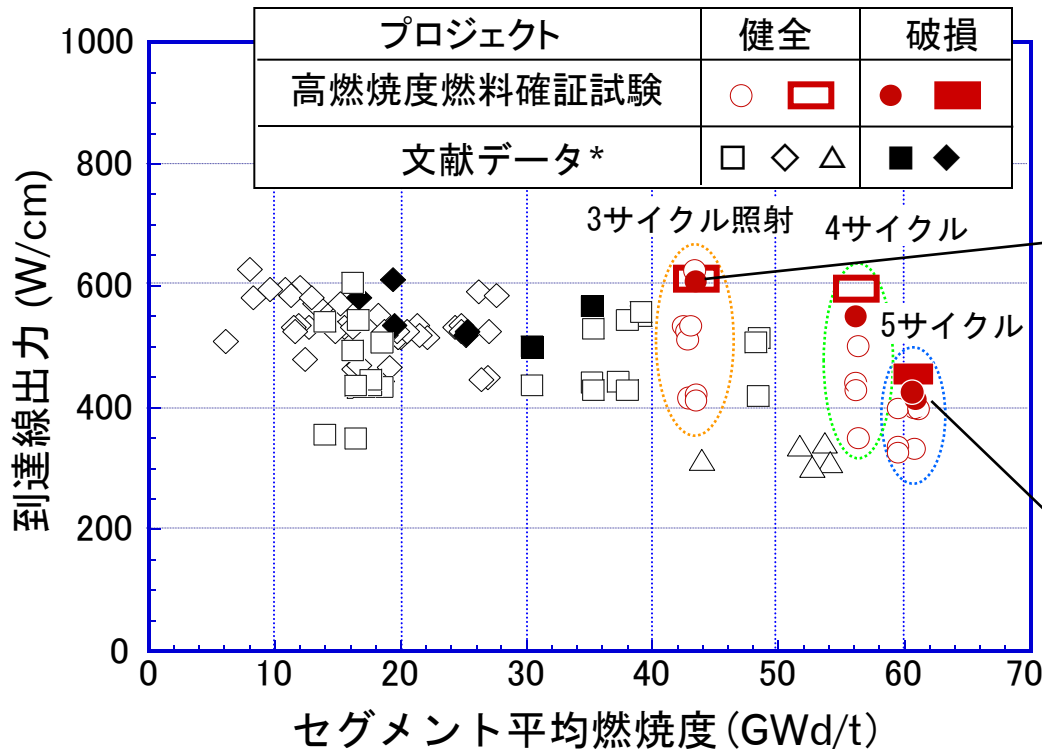
燃料安全基準のレビュー ; LHGR Limits



Figure; LHGR as a function of burnup for various fuel safety criteria (1)

3-2. 破損モードと破損しきい値

BWR燃料の出力急昇試験結果



高燃焼度BWR燃料の出力急昇試験で従来にない破損

- ・軸方向クラックを伴う被覆管外面からの破損
- ・破損出力の低下傾向

* : H. Ohara, et al. , "Fuel Behavior During Power Ramp Tests", Proc. 1994 Int. Topical Mtg. on LWR Fuel Performance, West Palm Beach, FL, (1994).

3-3. 水素ぜい化と再配向

- ・水素ぜい化(+照射ぜい化)

被覆管→1%歪み基準?

スペーサ

- ・水素化物再配向

炉内→異常過渡時のDHC破損

輸送・貯蔵時→DHC, 衝撃荷重

3-3. 水素ぜい化と再配向

支持格子(スペーサ)の材料劣化事象

NRC Information Notice 2012-09(2012/06/28 発行) (5)

「燃料集合体スペーサの圧縮強度(crush strength)に対する照射の影響」

既存のNRCスタッフガイダンスは、供用開始時の燃料スペーサ強度が最も制限的であると想定して評価してきたが、Framatome ANPの運転経験及び三菱重工業(MHI)の10CFR52に基づく燃料設計の認証申請において、燃料集合体スペーサグリッドの圧縮強度(crush strength)が供用期間中に低下する可能性が示されている。

地震や原子炉冷却系の想定配管破断により、燃料集合体に外力が加わる可能性がある。これらの外力に対する燃料集合体の構造応答は、制御棒挿入性能及び炉心冷却性能要件を満たしていることを、評価により確認する。

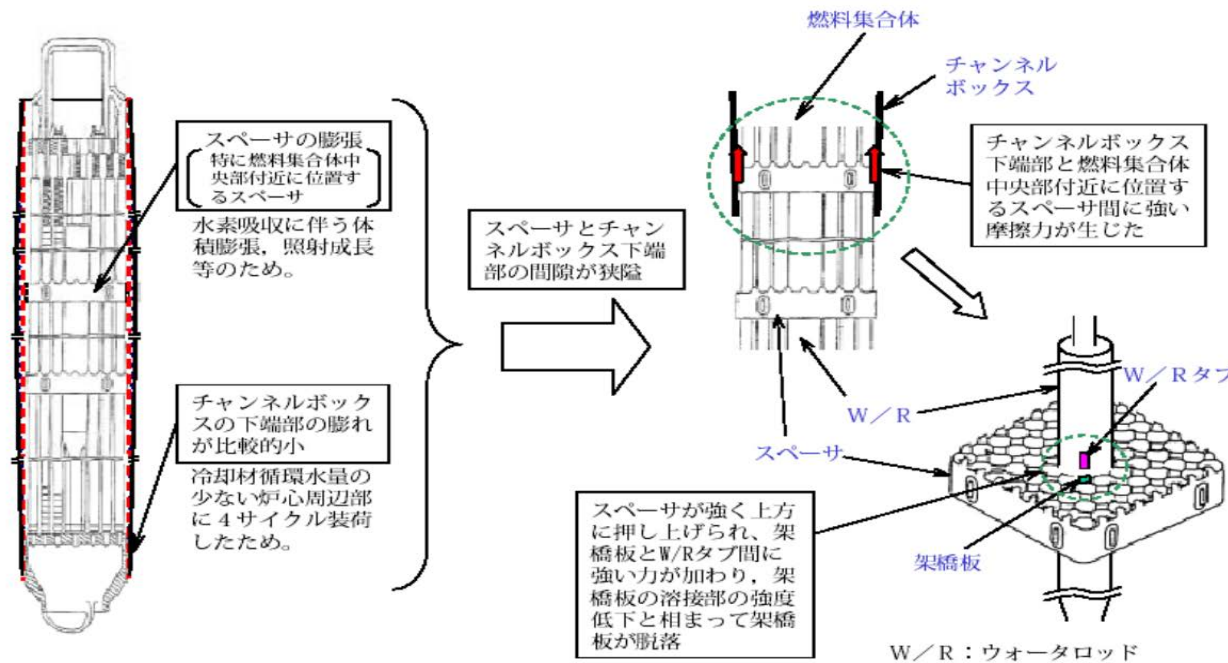
構造強度に影響しうるものとして、燃料集合体の燃焼度及び中性子フルエンス(スペーサばねの緩和、照射硬化、伸長、被覆管クリープ等)、腐食(減肉、水素吸着等)、運転条件(温度等)が含まれる。

3-3. 水素ぜい化と再配向

支持格子(スペーサ)の材料劣化事象

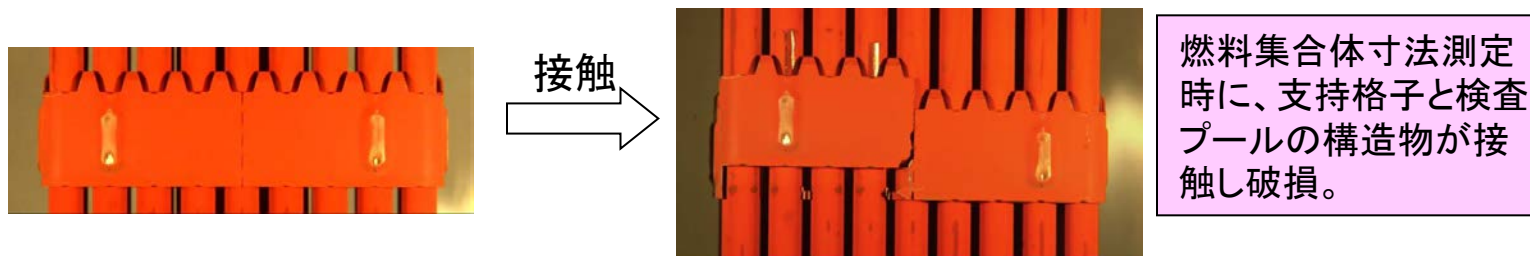
① 島根原子力発電所1号機の燃料集合体の支持格子位置ずれ

(実炉での例: 中国電力ホームページより)



燃料集合体のスペーサ位置ずれの原因

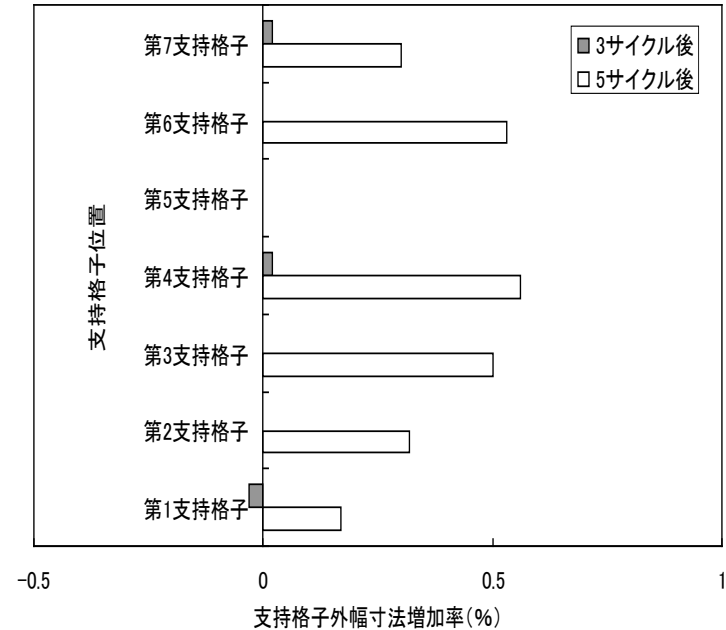
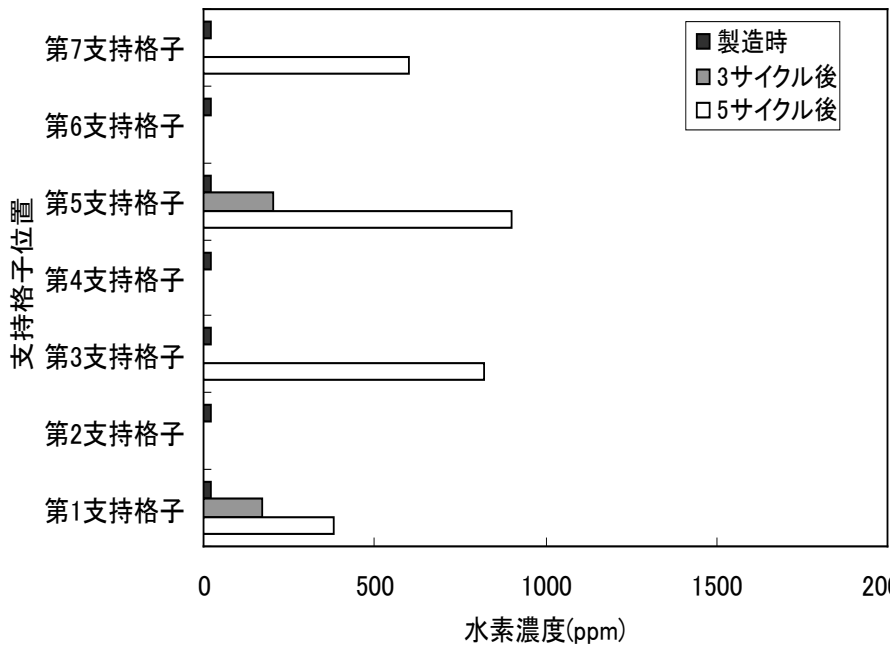
② 9x9A型PIE時における支持格子損傷



3-3. 水素ぜい化と再配向

スペーサの水素吸収 (BWR 9X9燃料)

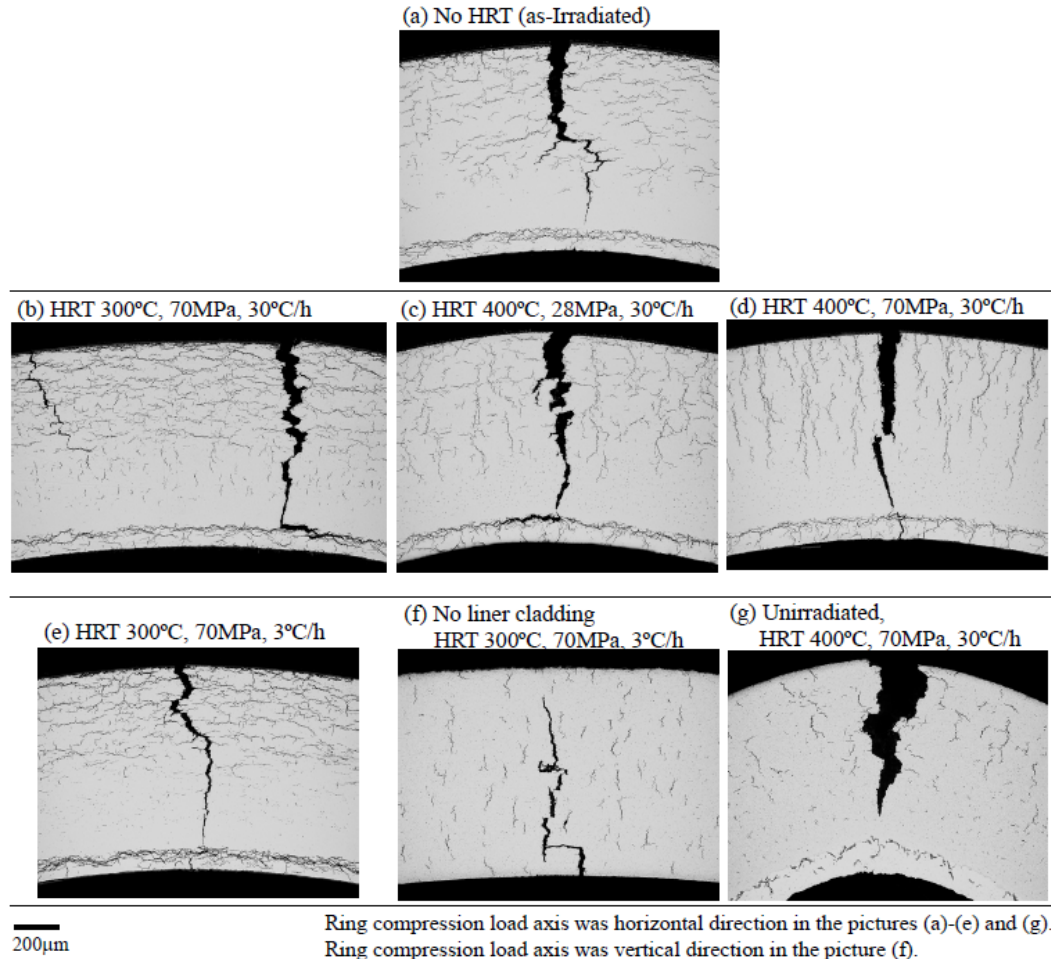
支持格子バンドの水素濃度



BWR 9X9燃料 5サイクル燃焼後、水素濃度の増大と、それに伴う支持格子の寸法の増大を確認。
支持格子PIE取り扱い時破損の要因は水素脆化と推定。

3-3. 水素ぜい化と再配向

種々のBWR被覆管の水素化物再配向の違いとクラック



Figure; Metallography of BWR Zry-2 specimens after ring compression test (Room temperature, Crosshead speed ;2mm/min) (10)

3-4. 水素ガス発生と蓄積

フランスにおける輸送容器からの水素ガス発生について

経緯(6)(11)

- ・ リーク燃料の輸送は、フランスにおけるTN社の年間合計輸送回数の5～10%を占める。2008年には、合計約200回の輸送回数のうちこうした輸送は20回行われた。
- ・ ASNの指示によりTN社が2009年春に提出したリーク燃料入りキャスク中の水素ガス量の実測に基づく追加的な解析結果は、TN社が想定し当初申請していた解析書の数値より多かった。
(キャビティ濃度で3%)
- ・ ASNは、引火点を超える水素発生とキャスク内のガスの加熱が組み合わされば、「爆発にさえ至る可能性があった」との見解。(爆発臨界濃度4%)
- ・ ASNは、INISのレベル1に格付けし、2009年6月当面の輸送を禁止。
- ・ なぜ当初設計値を大幅に上回る水素ガスが発生したかの原因については未だ公表されていない。

3-4. 水素ガス発生と蓄積

破損燃料における水素ガスの発生原因の検討(1/3)

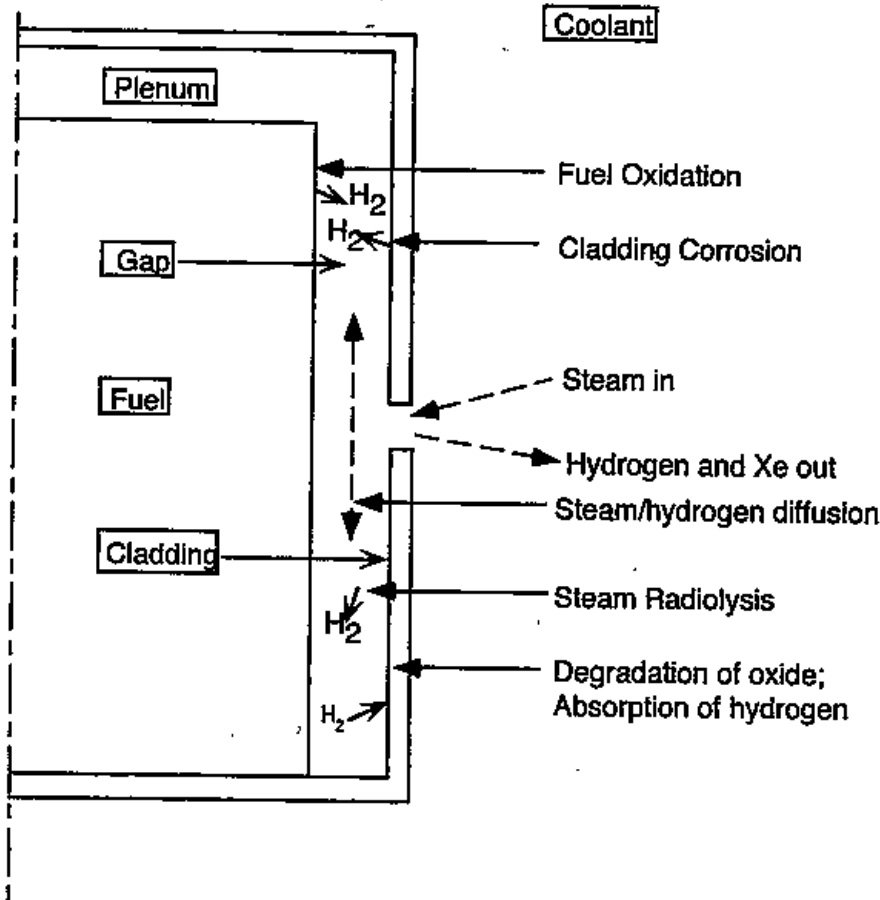


Fig. 1. Sources of hydrogen in a defective fuel rod. (7)

・ 水素ガス発生メニズムの候補

- ①水によるUO₂ペレットの酸化
- ②水による被覆管の酸化
- ③水そのものの放射線分解

・TN社の乾式輸送キャスクの環境条件で具体的な計算評価を行った。

・このうち①②は、原子炉内での燃料破損のような高温であれば相当量の水素が発生するが、輸送キャスクのような低温条件では量的に少なくキャスク内の実濃度(約3%)には達しない。

・また、③としても、従来の水の放射線分解で用いられている水素の生成収率(G値=0.45)では小さすぎて(二桁小さい)、やはり今回のキャスク中の発生水素量を説明することはできない。

3-4. 水素ガス発生と蓄積

破損燃料における水素ガスの発生原因の検討(2/3)

Figure3は UO_2 の γ -放射線分解における H_2 生成のG値と表面に吸着された水層の厚さの関係を測定した結果である。

バルクの水中の γ -放射線分解による H_2 生成のG値は、一般的に0.45 molecule/100 eVとされているが、これに対して、 UO_2 の表面に吸着された水の γ -放射線分解によるその値は、約40 molecule/100 eVと100倍程度促進される。

(一種の光触媒効果)

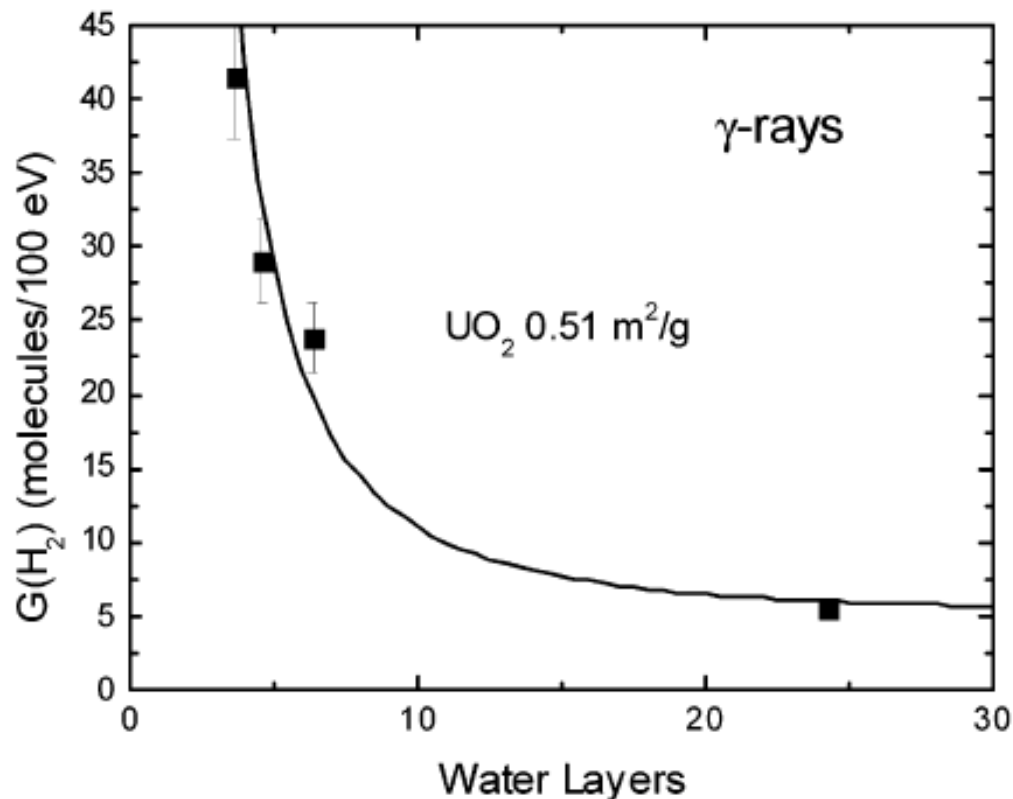


Figure 3. Production of H_2 relative to amount of energy directly deposited by γ -rays in the water adsorbed on UO_2 as a function of the number of water layers. The yield of H_2 in bulk water is 0.45 molecules/100 eV, ref 27. (8)

3-4. 水素ガス発生と蓄積

破損燃料における水素ガスの発生原因の検討(3/3)

文献調査の結果:新しい知見

- ・最近の知見(8)では、UO₂及びZrO₂表面においては放射線分解が100倍程度促進されることが分かっている。
- ・この加速効果をいれるとキャスク中の水素濃度が説明できる。

フランスでの破損燃料輸送乾式キャスクでの水素ガス発生の原因推定

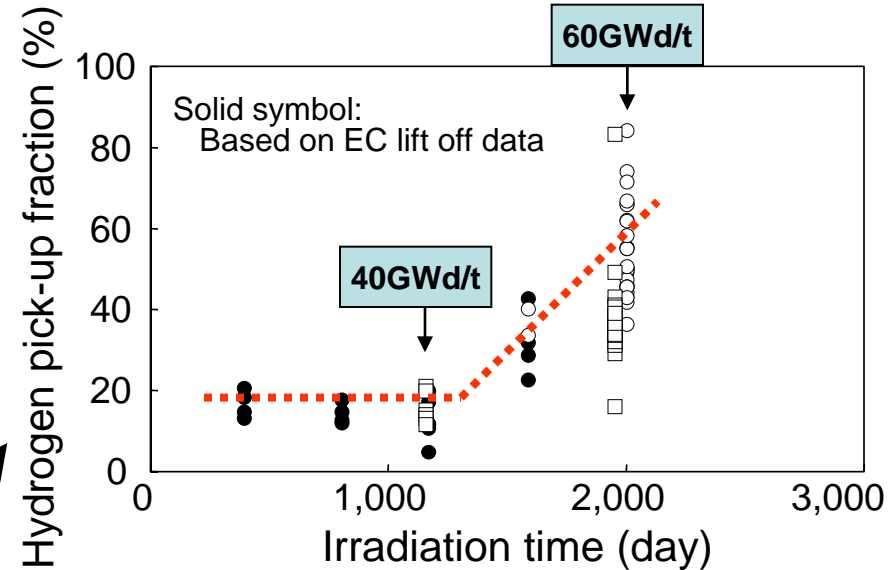
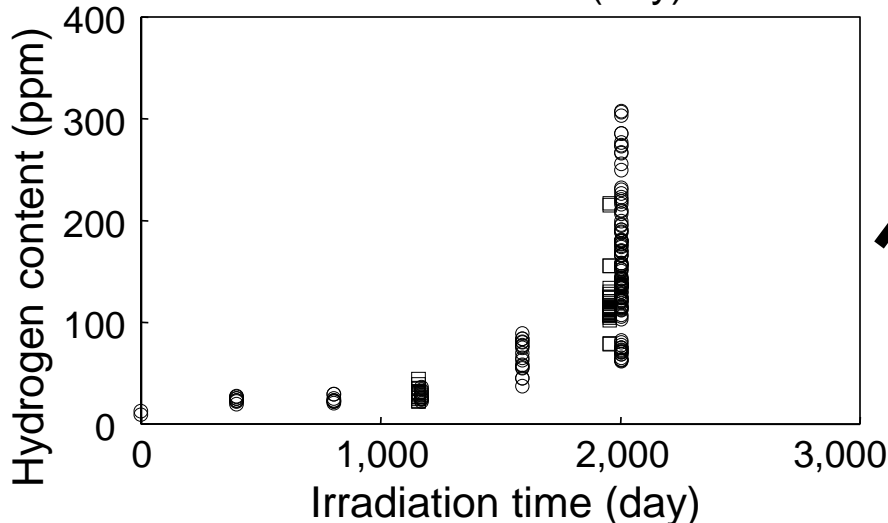
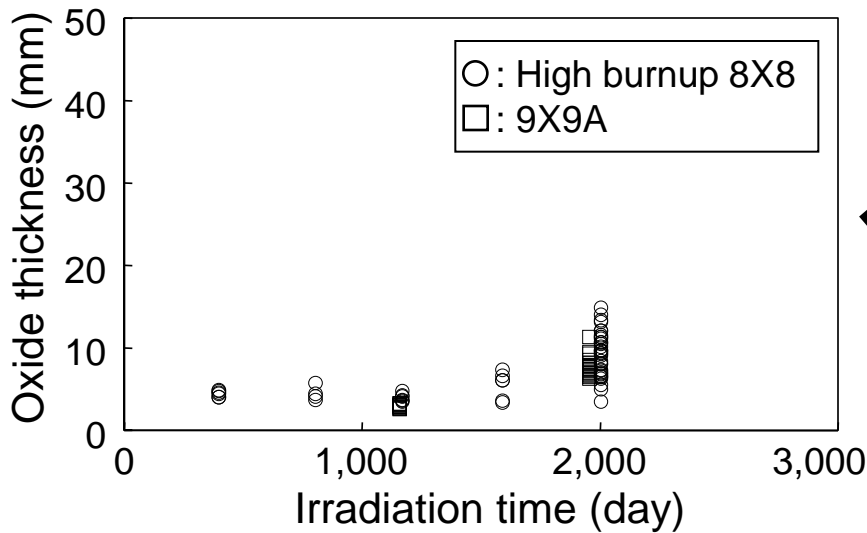
- ・リーク燃料棒内には水が浸入している。
- ・キャスク仕立て時にキャスクキャビティの水抜きと乾燥を行っても、リーク燃料棒内の水は残る。
- ・リーク燃料棒の破損口が小さければ、穴がふさがり、燃料棒内は400°C程度の高温で、高い蒸気圧になっていることが想定される。
- ・ペレットのUO₂表面及び酸化している被覆管内面のZrO₂に吸収されている水層で、加速的な水の放射線分解が起こり、多くの水素ガスが発生した。

得られた留意点

- ・キャスクに入れる前に燃料棒にリークのないことを十分確認することが大切である。
- ・米国では、TRU廃棄物貯蔵を対象に、このメカニズム(UO₂及びZrO₂表面における加速効果(一種の光触媒効果))による水素ガス蓄積問題の試験研究を精力的に行っている。(8)
- ・日本でも破損燃料の輸送・貯蔵にあたっては、十分留意する必要がある。
- ・1Fの使用済み燃料プールから使用済み燃料を取り出し、輸送・貯蔵をするときには、燃料の破損の有無、状態の把握をするための検査の基準・方法をしっかりたてることが重要。

3-4. 水素ガス発生と蓄積

Enhanced Hydrogen Uptake at High Burnup (BWR Fuel)



3-4. 水素ガス発生と蓄積

BWR高燃焼度燃料被覆管の水素濃度急増要因のヒント

(光触媒効果により加速された放射線分解によるHの生成量の増加)

- ・水素のピックアップ率は、「H₂Oが分解してOが1に対してHが2できたとして、Zrの酸化に使われたOに対応したHのうちZr中に取り込まれたHの割合」と定義されている。
- ・40GWd/tを超えるような高燃焼度BWR燃料被覆管では、Zrの酸化の進展に比較してHの吸収が急激に増えピックアップ率が増加している。時間微分で見ると15～20%だったものが100%前後になっている。
- ・Zr中へ取り込まれる水素のソースがZrの酸化以外の要因で生まれた単独の水素によるものとしたら、このピックアップ率は100%近く、あるいは100%を超えることがあってもおかしくない。
- ・被覆管表面のZrO₂膜は、燃焼度40GWd/tあたりで、急激にマイクロクラックが多数発生しだして、水との実効的な接触表面積が急激に増加する。
- ・ZrO₂水側表面付近の水素生成率は、ZrO₂表面の光触媒効果によって、バルクの水の中のそれより100～200倍も大きい。
- ・H₂Oの分解によるHないしH₂の生成率は、OないしO₂の生成率の10倍近い。これはH₂O₂の介在によって平衡状態の酸素の濃度が水素と比較して相対的に下がるためである。
- ・そこでZrO₂水側表面からの水素の取り込みは、酸素より大きくなる。
- ・取り込まれたHないしH₂はZrO₂皮膜中を水側からZr金属側へ濃度拡散で移動し、Zr金属内の水素濃度が増加する。

4. まとめ

今回の福島事故を契機に、次の分野の燃料安全性について、検討・評価並びに試験・研究が必要と考えられる。

1. シビアアクシデント
2. 安全評価の見直し
3. 超長期貯蔵と直接処分

特に次のような燃料ふるまいに注目した試験・研究が望まれる。

1. Fuel Fragmentation
2. 破損モードと破損しきい値
3. 水素ぜい化と再配向
4. 水素ガス発生と蓄積

5. 参考文献(1/2)

2-2.安全評価の見直し

(1) “FUEL SAFETY CRITERIA UPDATE”, Working Group on Fuel Safety Committee on the Safety of Nuclear Installations OECD/NEA Version 3b (August 2011)

(2) C.T. Walker et al “Observations on the release of cesium from UO₂ fuel” Journal of nuclear materials 240 (1996) 32-42

(9) NRC Information Notice 2011-21 (2011/12/13 発行)

“Realistic Emergency Core Cooling System Evaluation Model Effects Resulting from Nuclear Fuel Thermal Conductivity Degradation (December 13, 2011)”

「燃料の熱伝導率低下による現実的なECCS評価モデルへの影響(2011年12月13日)」

2-3.超長期貯蔵と直接処分

(3) IAEA SPAR-III会議 2012年5月 米国 シャーロット

3-1 Fuel Fragmentation

(4) NUREG-2121 “Fuel Fragmentation, Relocation, and Dispersal During the Loss-of-Coolant Accident” Manuscript Completed: February 2012, Date Published: March 2012, Prepared by Patrick A.C. Raynaud, Office of Nuclear Regulatory Research

5. 参考文献(2/2)

3-3 水素ぜい化と再配向

(5) NRC Information Notice 2012-09(2012/06/28 発行)

“Irradiation Effects on Fuel Assembly Spacer Grid Crush Strength (June 28, 2012.)”

(10) Aomi, M., et al, “ Evaluation of Hydride Reorientation Behavior and Mechanical Properties for High Burnup Fuel Cladding Tubes in Interim Dry Storage ”, Journal of ASTM international, to be published, (2008).

3-4. 水素ガス発生と蓄積

(6) “TN halt defective fuel shipments after ASN revises certificates”, Nuclear Fuel, Vol.34, No.12 (2009年6月15日)

(7) D.R. Olander: Chemical processes in defective LWR fuel rods, Journal of Nuclear Materials 248 (1997) 214-219

(8) Jay A. LaVerne, et.al : H₂ Production in the Radiolysis of Water on UO₂ and Other Oxides Adsorbed ; University of Notre Dame, Los Alamos National Laboratory, J. Phys. Chem. B 2003, 107, 13623-13628

• Dr. Steven C. Marschman, et.al : Pacific Northwest National Laboratory; Final Report U.S. Department of Energy Radiolytic and Thermal Processes Relevant to Dry Storage of Spent Nuclear Fuels; Project ID Number: 60392, Project Duration: September 8, 1997 to September 8, 2000

(11) J. Garcia; Safety and Licensing of Spent Fuel Storage and Transport – Safety Issues within Spent Fuel Transport by AREVA, International Conference on Management of Spent Fuel from Nuclear Power Reactors, Session 5b(05-09), IAEA, 31 May – 4 June (2010).



Thank You for Your Attention