

# 使用済燃料を用いた水素発生試験

2019/07/09

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構 (IRID)  
/ 日立GEニュークリア・エナジー株式会社

この成果は、経済産業省 / 平成27年度、平成28年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金  
(燃料デブリ収納・移送・保管技術の開発)」で得られたものの一部である。

# 目次

1. 背景と目的
2. 試験方法および条件
3. 水素発生試験結果
4. 粒子輸送計算との比較
5. まとめ

# 1-1. 背景(燃料デブリ用収納缶の開発)

- 福島第一原子力発電所(以下、1F)の廃止措置に向けて、取り出される燃料デブリを安全かつ合理的に収納・移送・保管する技術が必要。
- 燃料デブリには核燃料物質が含まれているため、特に放射性物質の閉じ込め、未臨界等に配慮した取扱いが必要。
- 米国スリーマイルアイランド原子力発電所2号機(以下、TMI-2)の廃止措置と同様、燃料デブリを収納する“収納缶”の利用を計画しているが、燃焼度等の条件がTMI-2と異なるため1F向けの収納缶を開発中。

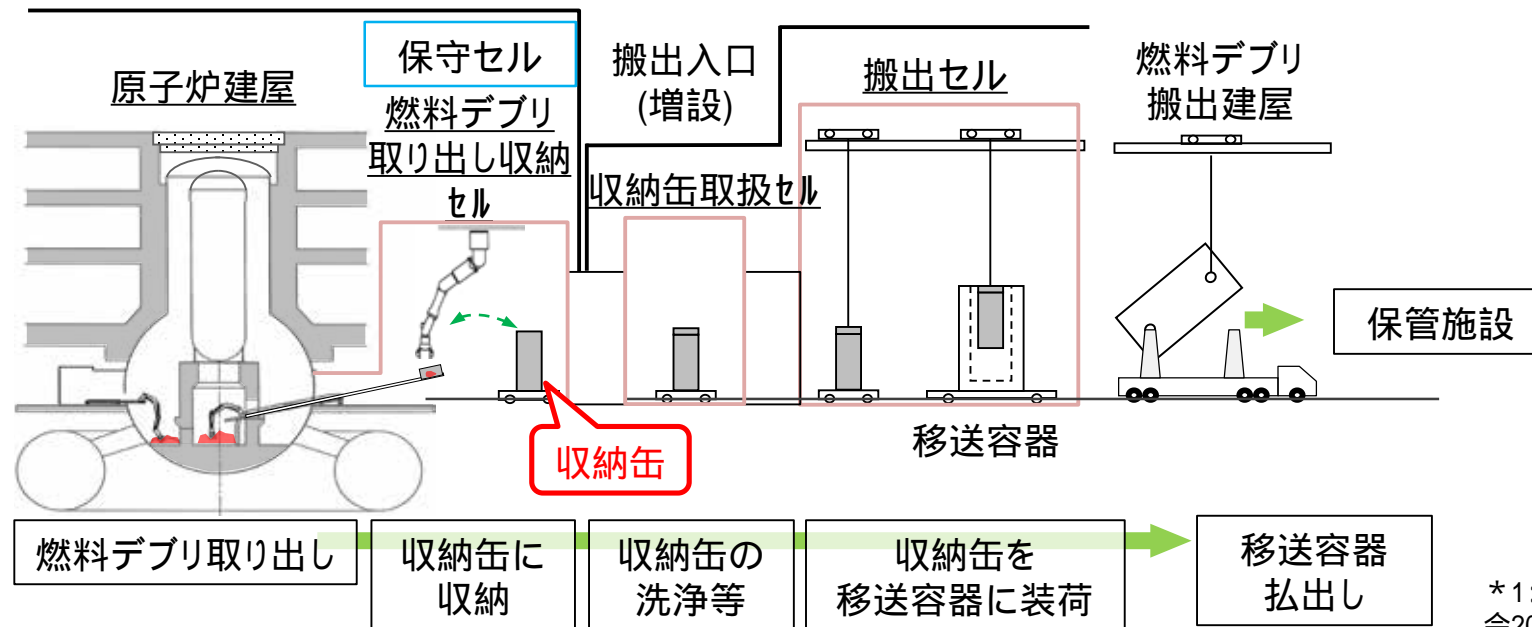


図 燃料デブリ取り出し 気中-横アクセス工法の例\*1

\*1: 富板靖博ら、日本原子力学会2017年秋の大会、燃料デブリ用収納缶の開発(2)燃料デブリ用収納缶の仕様、2017年9月

## 1-2. 背景(水素発生量評価技術の必要性)

- 収納缶内部では水の放射線分解により水素が発生する状態であり、水素濃度が爆発下限界を超えると水素爆発が生じる可能性あり。放射性物質の閉じ込めのために収納缶の密封移送を計画しており、発生する水素への対策が必要。
- TMI-2では次式により水素発生量 $G_{H_2}$ [L/h]を評価\*1。

$$G_{H_2} = E \times P \times F \times \frac{1eV}{1.6 \times 10^{-19}Ws} \times \frac{0.44molecules}{100eV} \times \frac{22.4L}{6.02 \times 10^{23}} \times \frac{3600s}{hr}$$

E:崩壊熱(W)、P:ピーク比((最大燃焼度)/(平均燃焼度))、F:エネルギー吸収率

- ただし、1Fでは水の放射線分解の観点で以下がTMI-2と相違。
  - 燃料の初期濃縮度、燃焼度が高く、線、線、線の割合および線源強度が相違。
  - 炉内に海水を注入したのでハロゲン濃度が高い。
  - 溶融炉心-コンクリート相互作用が生じ、コンクリート成分が共存。



- 1F特有の条件を踏まえた水素発生量評価技術の開発が必要。

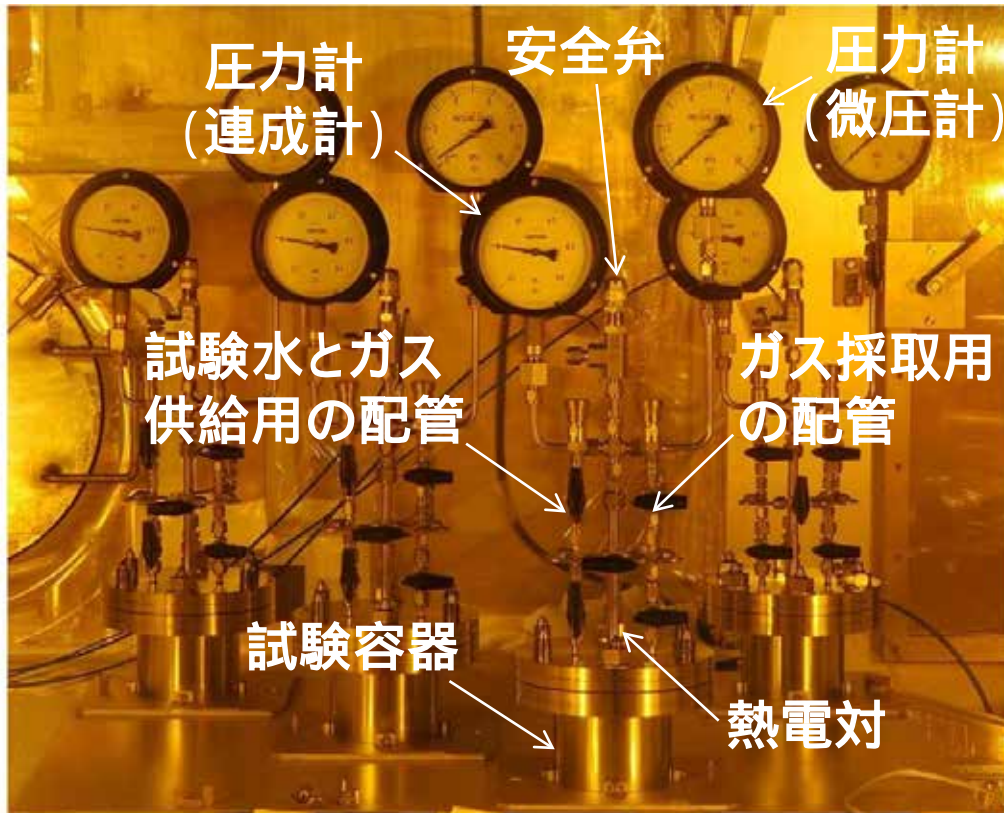
\*1 : J.O.Henrie 他, "HYDROGEN CONTROL IN THE HANDLING, SHIPPNG, AND STORAGE OF WET RADIOACTIVE WASTE", GEND-052 (1986), EG&G Idaho, Inc.

## 1-3. 目的

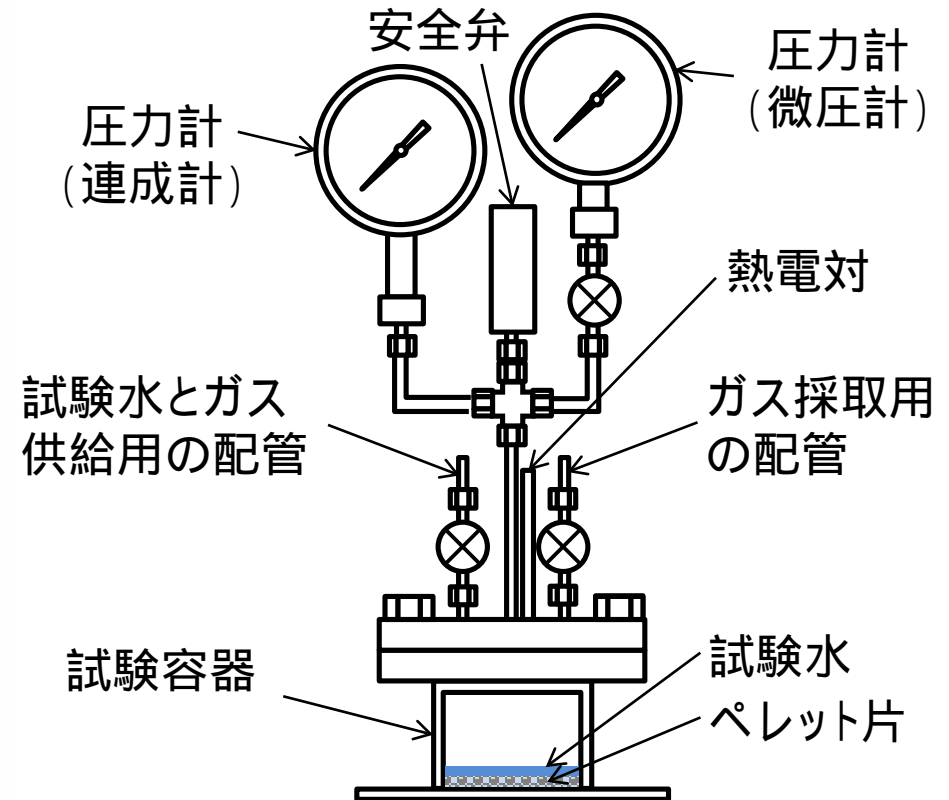
- 燃料デブリは健全な使用済燃料と異なり、被覆管による遮蔽効果が期待できないため、線に加え、線、線が水素発生に影響すると推定。
- そこで、比放射能が1F燃料と同程度の使用済燃料ペレット片を用いて水素発生試験を実施し以下の影響を検討。
  - (1) 線の影響
  - (2) 水分量の影響
  - (3) ペレット片粒径の影響

## 2-1. 試験装置

- ホットセルに試験装置を設置して、水素発生試験を実施。
- 水素、酸素発生による圧力変化を圧力計で測定、水素発生試験後の試験容器内ガスを採取して水素濃度の分析値から水素発生量を算出。



(a) 外観写真



(b) 試験装置の構成

## 2-2. 試験条件

- 水素発生に及ぼす 線の影響、水分量の影響、ペレット片粒径の影響を調べるために、下記条件で水素発生試験を実施。

Case	ペレット片			試験水量 [mL]	試験内容 ( :対象、-:対象外)			備考
	粒径 [ $\mu\text{m}$ ]	重量 [g]	設置位置		線の影響	水分量の影響	ペレット片粒径の影響	
1	20 ~300	80	試験水中	100	(線有)	(多量)	-	-
2					(線有)	(多量)	-	Case1と同条件
3			(線無)		-	-	線を遮蔽	
4		100 <sup>*3</sup>	試験水中	8 <sup>*1</sup>	-	(少量)	(粒径小)	-
5				10 <sup>*1</sup>	-	(少量)	(粒径小)	Case4と同条件
6			容器底部	0	-	(なし)	-	ペレット片乾燥 <sup>*2</sup>
7			1000 ~4000	試験水中	10 <sup>*1</sup>	-	-	(粒径大)

\*1: ユニット缶による水切り状態を想定し、ペレット片の50 vol%と仮定(燃料デブリは原子炉建屋でユニット缶内に回収され、別建屋にてユニット缶ごと収納缶に収納。)

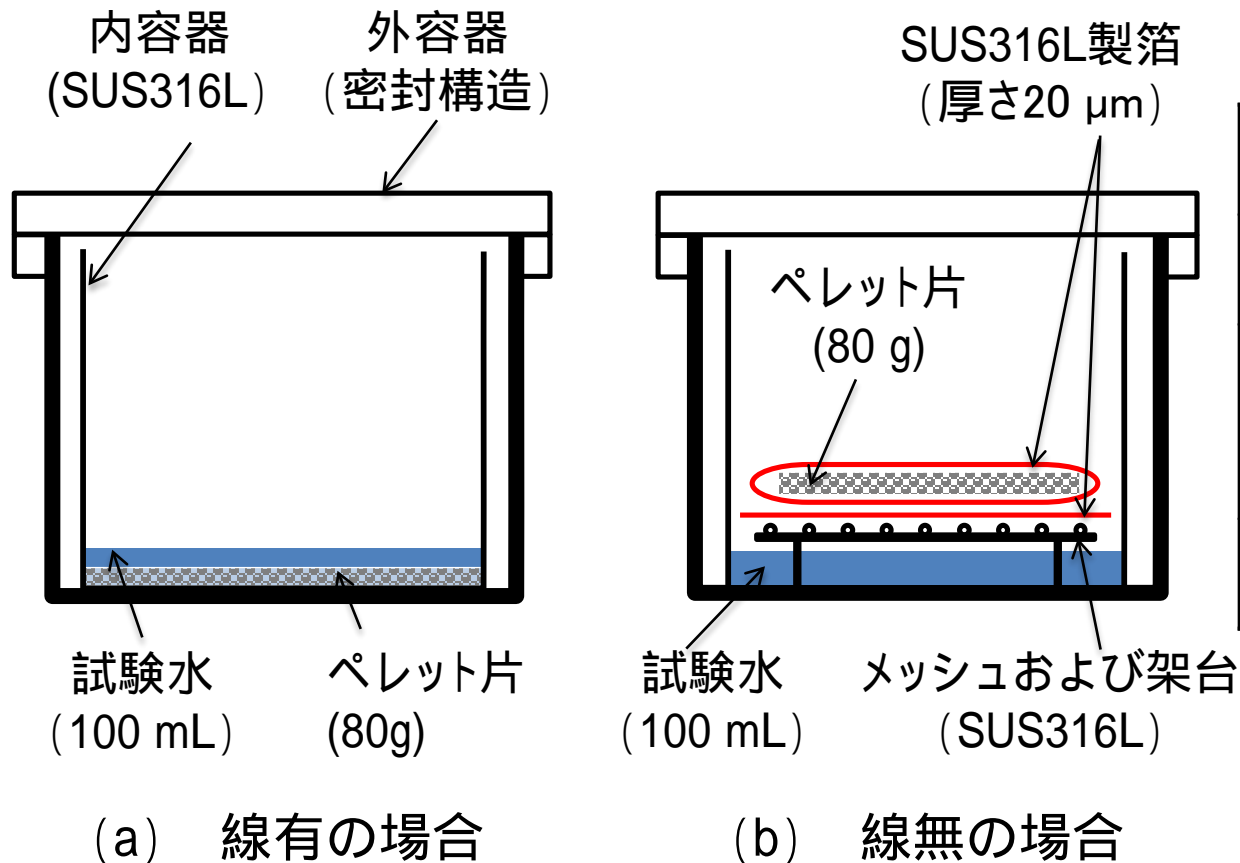
\*2: 重量変化が $\pm 0.1\%$ 以下になるまで約100 で乾燥冷却を繰り返し実施

\*3: 水素発生量を増加させるためにCase1~4より増量

- 試験水: 希釈人工海水 ( $5.6 \times 10^{-4}$  mol/L as  $\text{Cl}^-$ ) にヨウ化物イオン ( $1 \times 10^{-4}$  mol/L) 添加
- 試験温度: 室温、試験期間: 約20日間

## 2-3. 試験体系 ( 線の有無 )

- 線有の場合は、試験水にペレット片を浸漬。
- 線無の場合は、線を遮蔽するためにペレット片をSUS316L製箔で包み、かつ、ペレット片が試験水と接触しないように架台に載せて内容器内に設置。



項目	値
試験容器体積 [mL]	約600
ペレット片堆積高さ [cm]	約0.2 <sup>*1</sup>
水位 [cm]	約1.6 <sup>*2</sup> , 1.8 <sup>*3</sup>

\*1: 試験内容器の内径 8.8 cm、  
ペレット片 80 g、密度10.96 g/cm<sup>3</sup>  
充填率50%より計算

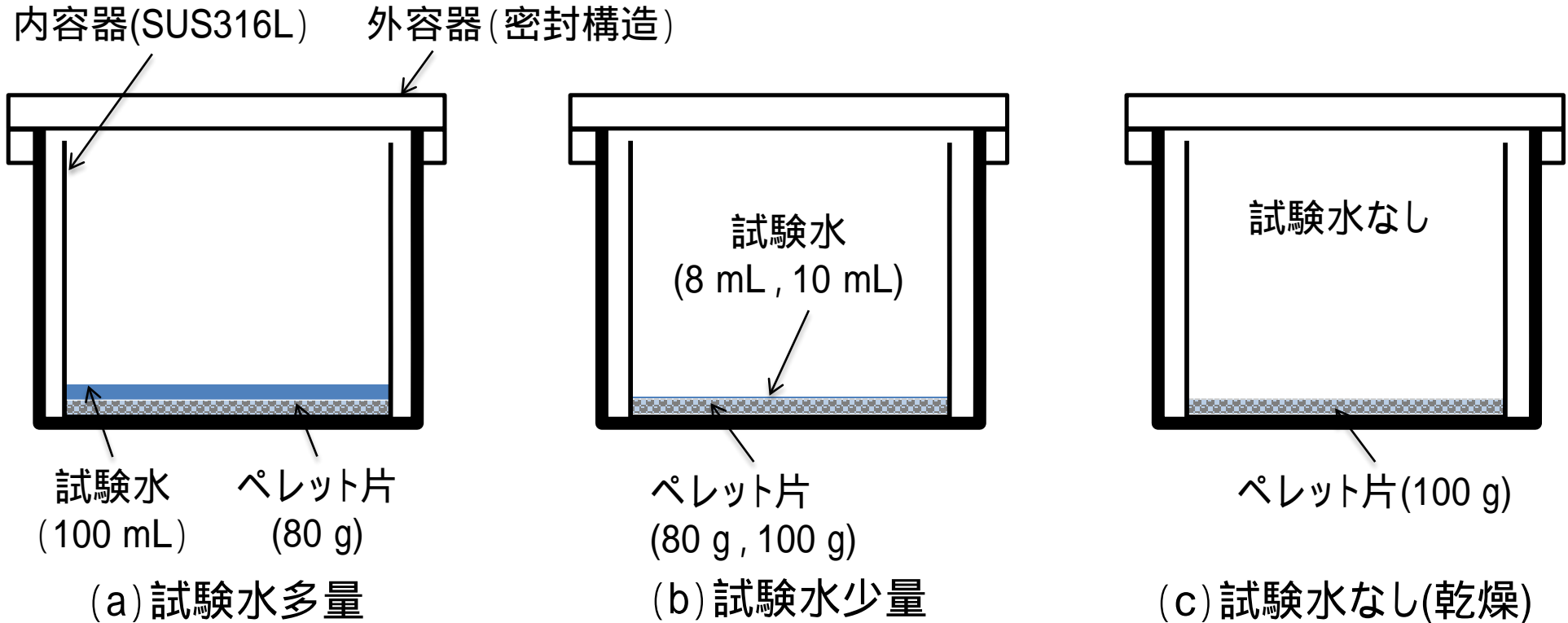
\*2: (b) 線無の場合

\*3: (a) 線有の場合



## 2-4. 試験体系 (水分量の影響)

- 試験水多量の条件では、ペレット片を試験水100 mLに浸漬。
- 試験水少量の条件では、ペレット片を試験水8 mL、10 mLに浸漬。  
(試験水量はペレット片の50 vol%、ユニット缶による水切り状態を想定)
- 試験水なしの条件では、乾燥させたペレット片のみを容器に設置。



## 2-5. 使用済燃料の燃焼度、線源強度

- 試験に用いた使用済燃料は、1F燃料と同程度の比放射能。

項目	試験に用いた使用済燃料*1 (燃焼計算結果)	(参考) 1F燃料(例:1号機)*2
燃焼度 [GWd/t]	■■■■ ■■■■■■■■■■	約26 (炉内平均)
冷却期間 [年]	■■■■	約10
比放射能 [GBq/tU]	■■■■■■■■■■	$1.08 \times 10^7$
発熱量 [W/t]	■■■■■■■■■■	$7.97 \times 10^2$
線強度 [photon/s/t]	■■■■■■■■■■	$3.04 \times 10^{15}$
中性子強度 [neutron/s/t]	■■■■■■■■■■	$1.07 \times 10^8$

\* 1: ■■■■燃料■■■■から脱ミートしたペレット片を使用。

\* 2: 西原健司、岩元大樹、須山賢也、JAEA-Data/Code2012-018、福島第一原子力発電所の燃料組成評価、日本原子力研究開発機構、2012年9月より。

## 2-6. 使用済燃料の放射線種毎の発熱量

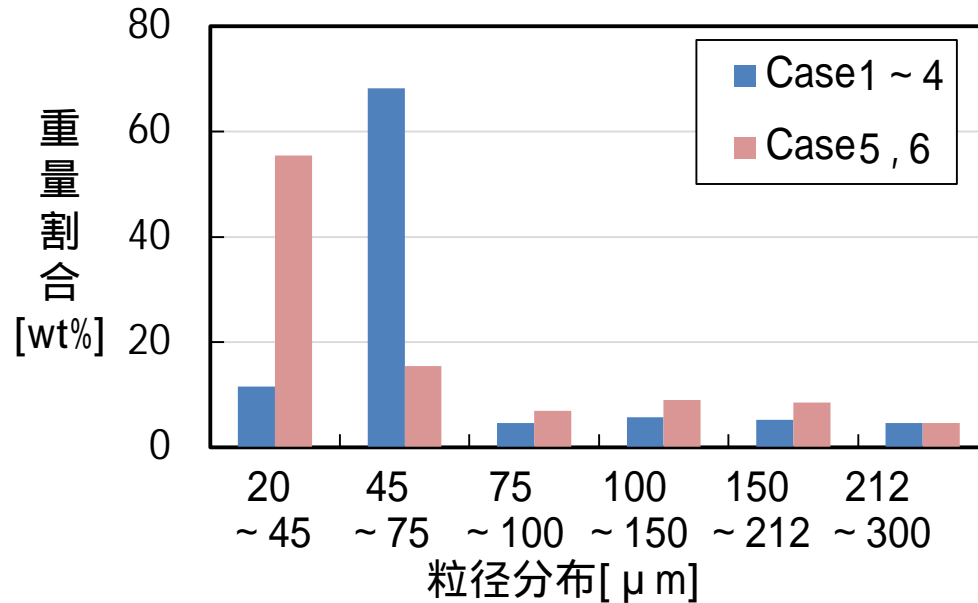
- 試験に用いた使用済燃料は、 $\alpha$ 線の発熱量が全発熱量の44%であり、 $\beta$ 線、 $\gamma$ 線より高い。

放射線の種類	発熱量*1 [J/(h・100gUO <sub>2</sub> )]	主な核種
$\alpha$ 線	■	Pu-238, Pu-239, Pu-240, Am-241, Cm-244
$\beta$ 線	■	Sr-90, Y-90, Cs-137
$\gamma$ 線	■	Cs-137

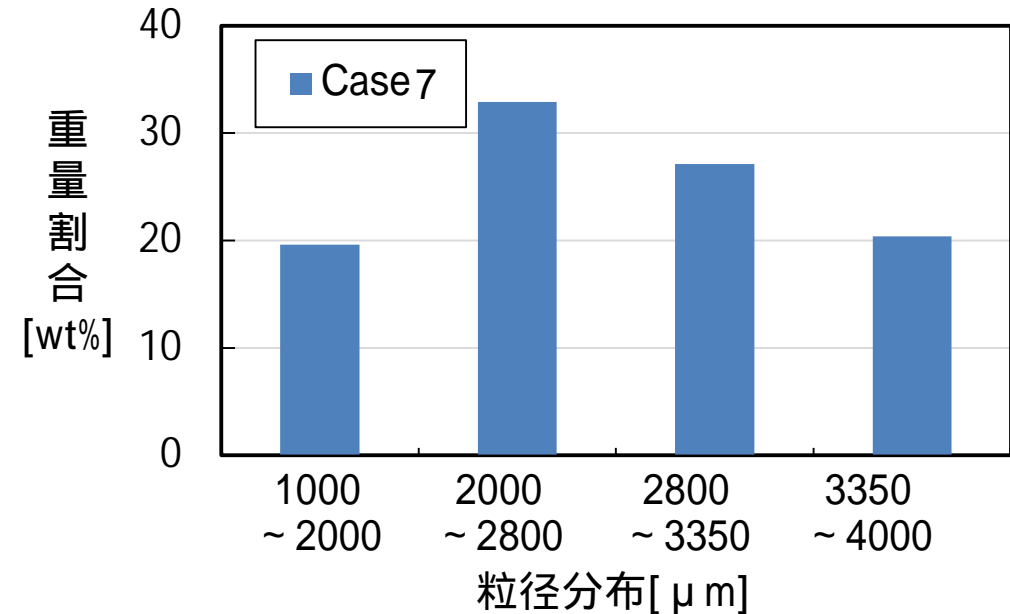
\* 1 : ORIGEN2による計算結果をもとに評価

## 2-7. 使用済燃料の粒径分布

- 粒径分布はふるいによる分級結果から評価。
- 粒径小の条件では20～300  $\mu\text{m}$ 、粒径大の条件では1000～4000  $\mu\text{m}$ のペレット片を使用。



(a) 粒径小



(b) 粒径大

## 2-8. 水素発生量及び吸収線量率計算方法

- 水素発生量  $n_{H_2}$  [mol] は次式で計算。

(1) 圧力変化から求める場合 (水素と酸素が 2 : 1 で発生すると仮定)

$$n_{H_2} = \frac{2}{3} \cdot \frac{V_g \cdot \Delta p}{R \cdot T}$$

(2) ガスクロマトグラフ分析結果から求める場合

$$n_{H_2} = \frac{V_g \cdot p_f}{R \cdot T} \cdot \frac{x_{H_2}}{100}$$

$V_g$ : 試験容器の気相体積[m<sup>3</sup>],  $\Delta p$ : 試験後ゲージ圧[MPa],  $p_f$ : 試験後絶対圧[MPa],  
 $x_{H_2}$ : 水素濃度ガスクロマトグラフ分析結果[vol%],  $T$ : 温度[K],  $R$ : 気体定数[J/(mol·K)] (=8.31)

- 水の吸収線量率  $Dose$  [Gy/h]、吸収エネルギー  $EA$  [J/h] は次式で計算。

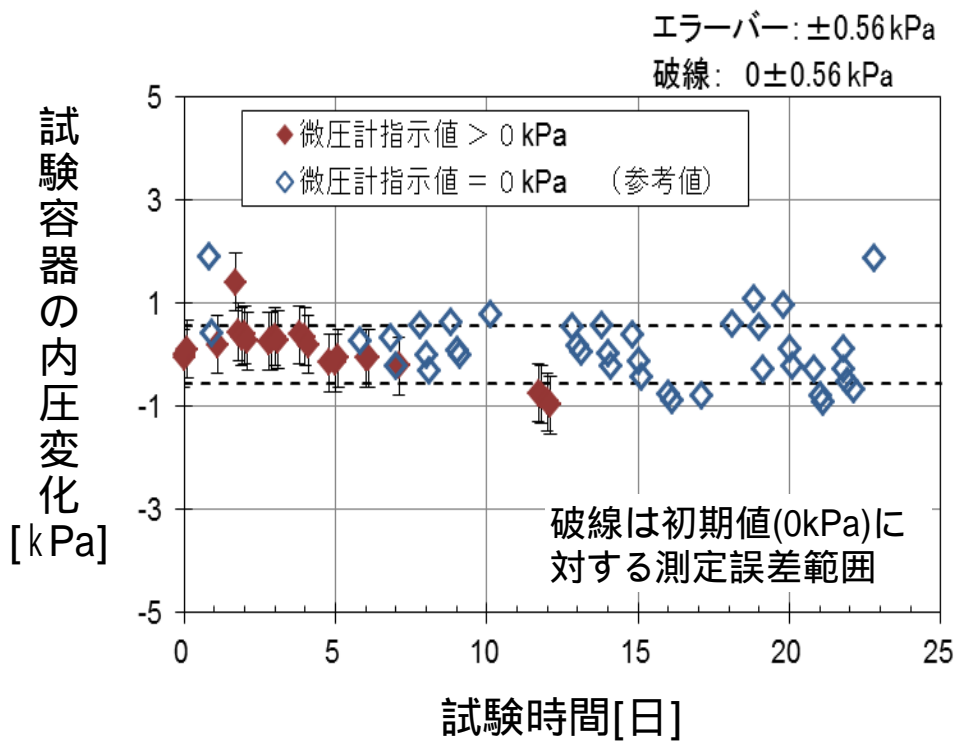
$$Dose = \frac{n_{H_2}}{G_{H_2} \cdot W_{H_2O} \cdot t}$$

$$EA = Dose \cdot W_{H_2O}$$

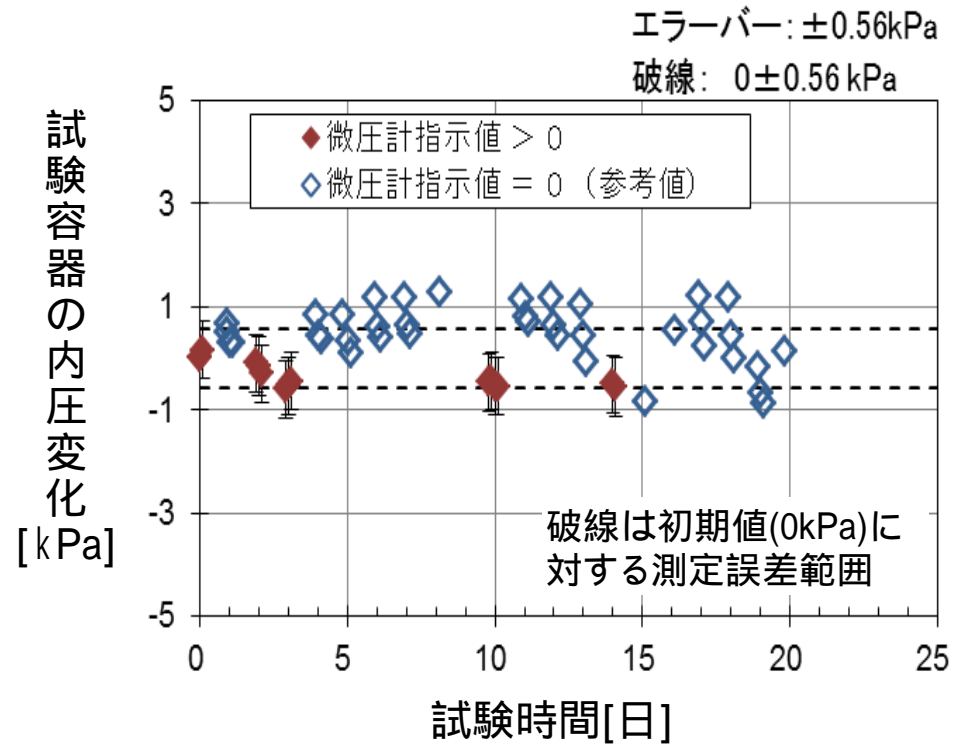
$n_{H_2}$ : 水素発生量[mol]、 $t$ : 試験期間[h]、 $W_{H_2O}$ : 試験水量[kg]  
 $G_{H_2}$ : 水素発生のG値 (線および線の場合は  $0.46 \times 10^{-7}$  mol/J、線の場合は  $1.35 \times 10^{-7}$  mol/J)

### 3-1. 圧力測定結果の例

- ゲージ圧の変化は測定誤差範囲内。
- 水素発生量はガスクロマトグラフによる水素濃度分析結果から計算。



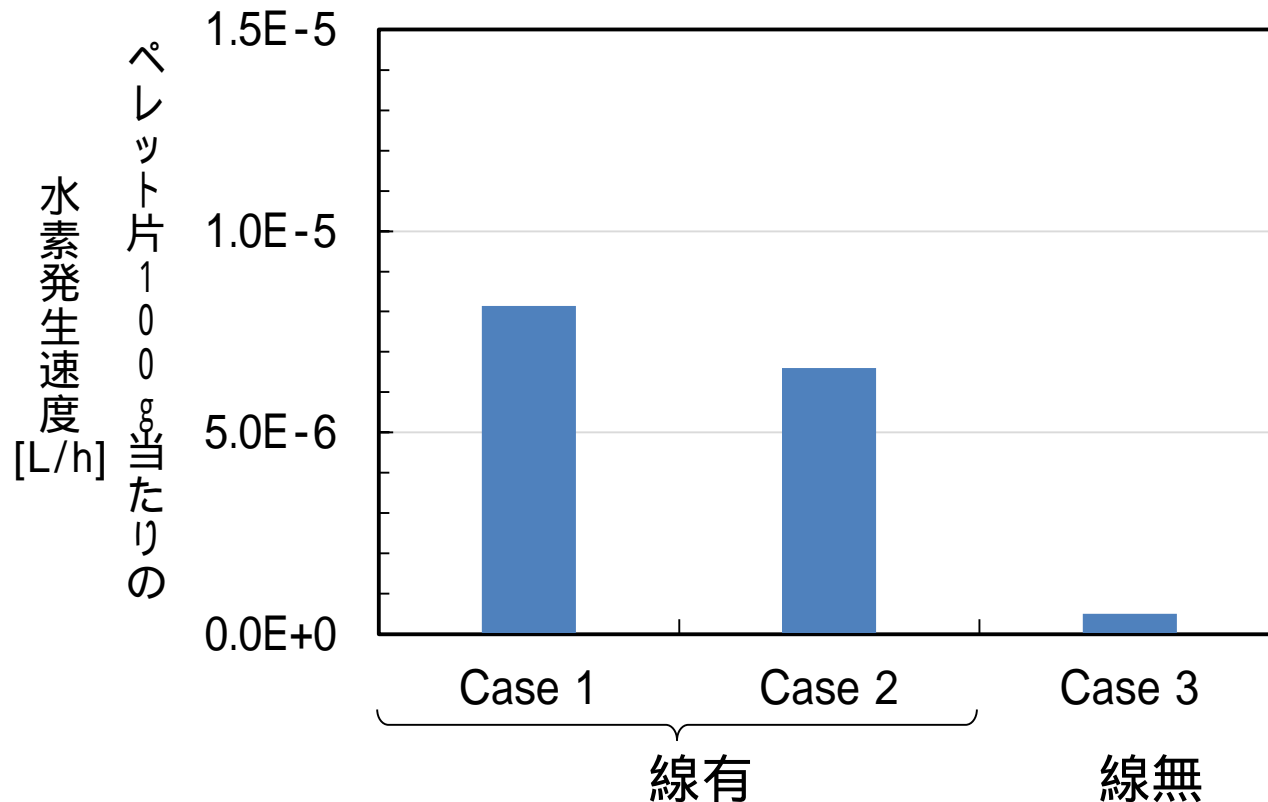
(a) ケース1



(b) ケース4

## 3-2. 線の有無

- Case 1、Case 2の水素発生速度は同程度であり、良い再現性。
- 線有の場合は、線を遮蔽した場合より、10倍程度水素発生速度が大きく、本試験で使用した使用済燃料では水素発生に及ぼす線の寄与が大きい。

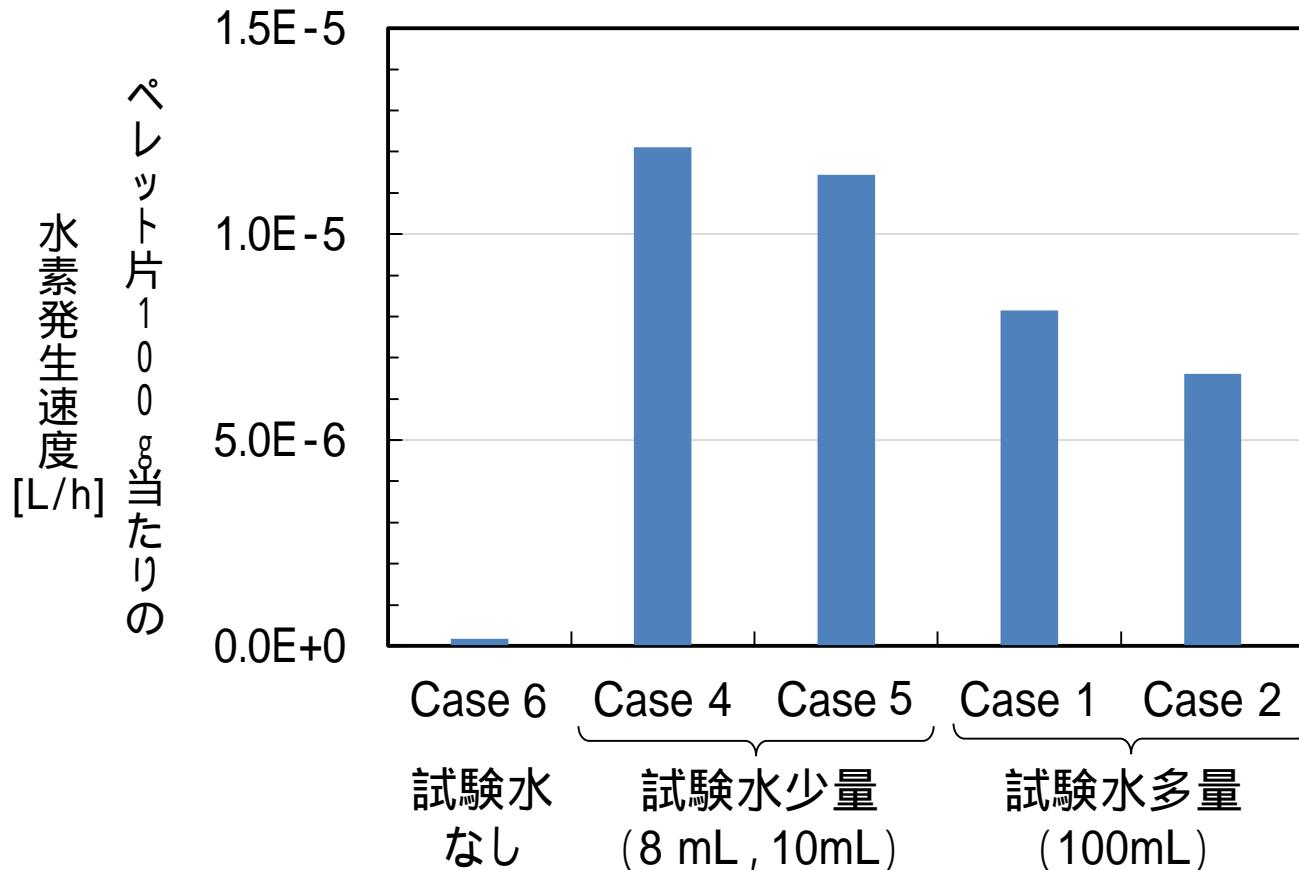


### <共通条件>

- ペレット片粒径: 20 ~ 300  $\mu\text{m}$
- ペレット片重量: 80 g
- 試験水量: 100 mL
- 試験水:  
希釈人工海水  
( $5.6 \times 10^{-4}$  mol/L as  $\text{Cl}^-$ ) に  
ヨウ化ナトリウム  
( $1 \times 10^{-4}$  mol/L) を添加
- 試験温度: 室温
- 試験期間: 約20日間

### 3-3. 水分量の影響

- 試験水無(乾燥)の場合は顕著に水素発生速度が抑制。
- 試験水量を多量(ペレット片体積の約10倍)から少量(ペレット片の50 vol% (水切り程度の水分量))に減らしても水素発生速度は抑制不可。



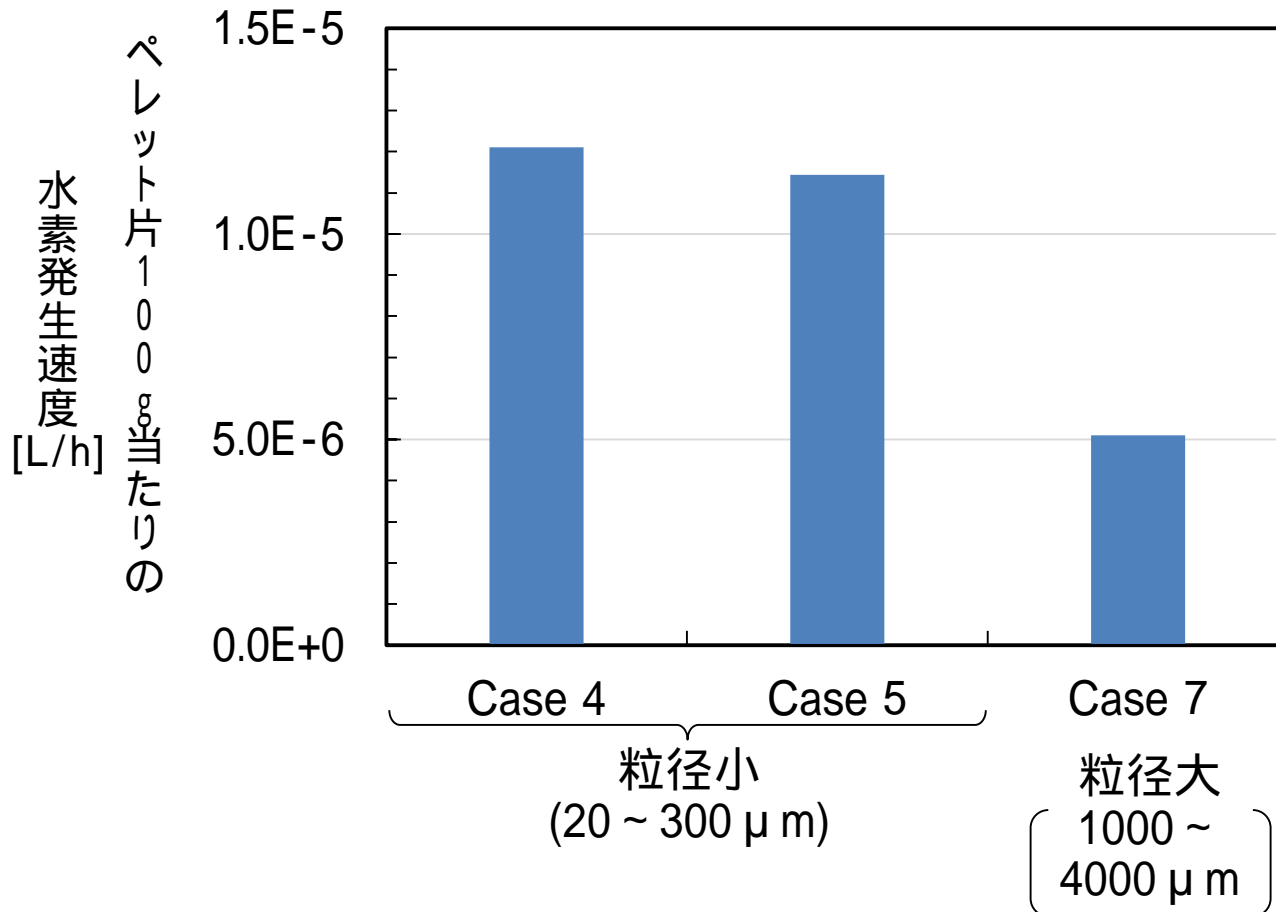
#### <共通条件>

- ペレット片粒径: 20 ~ 300  $\mu\text{m}$
- ペレット片重量: 80 g, 100 g
- 試験水:  
希釈人工海水  
( $5.6 \times 10^{-4} \text{ mol/L as Cl}^-$ ) に  
ヨウ化ナトリウム  
( $1 \times 10^{-4} \text{ mol/L}$ ) を添加
- 試験温度: 室温
- 試験期間: 約20日間



## 3-4. 粒径の影響

- 粒径が大きくなると、水素発生速度は低下。



### <共通条件>

- ペレット片重量: 80 g, 100 g
- 試験水量: 8mL, 10 mL  
(試験水少量)
- 試験水:  
希釈人工海水  
( $5.6 \times 10^{-4}$  mol/L as  $\text{Cl}^-$ ) に  
ヨウ化ナトリウム  
( $1 \times 10^{-4}$  mol/L) を添加
- 試験温度: 室温
- 試験期間: 約20日間

### 3-5. 吸収線量率、吸収エネルギー計算結果

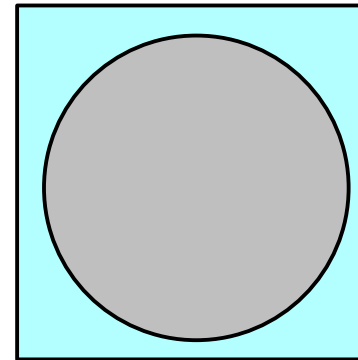
- 使用済燃料の発熱量のうち、水素発生に利用された発熱量を把握するため、水の吸収線量率および吸収エネルギーを計算
- その結果、測定された水素発生量から計算された吸収エネルギーは使用済燃料の発熱量に対して小さいと判明。
- 線や 線はペレット片による自己遮蔽、 線は試験体系外への散逸が原因の一つと推定。
- ペレット片による自己遮蔽の影響を調べるために粒子輸送計算を実施(次頁以降)。

項目		Case 1 Case 2 (平均値)	Case 3	Case 4	Case 7	発熱量(参考)
吸収線量率 [Gy/h]	線	23.1	-	283	154	-
	、 線	4.7	4.0	4.7	5.9	-
吸収エネルギー [J/(h・100gUO <sub>2</sub> )]	線	2.9	-	2.9	1.54	■
	、 線	0.59	0.5	0.059	0.059	■

## 4-1. 粒子輸送計算(条件)

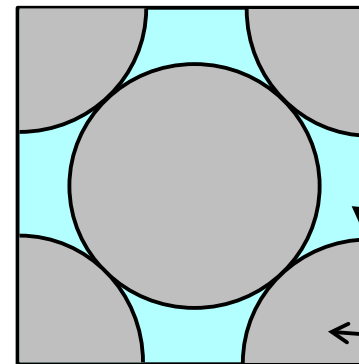
- ペレット片粒径が水素発生量に及ぼす影響について、粒子輸送計算により検討

項目	条件
粒子輸送計算	PHITS version 3.02
ペレット片仕様	形状: 球形を仮定 組成: $^{238}\text{UO}_2$ 密度: $10.97 \text{ g/cm}^3$ 粒径: $20 \sim 4000 \mu\text{m}$
体系	構造は (a) 単粒子、(b) 面心立方
境界条件	全反射 試験容器に設置した 粒子層の中心を想定
線源	各核種が一様に分布
試行回数	$1 \times 10^7$ 回



(a) 単粒子

- 正六面体内に重心を同じくする1個のペレット片を配置
- ペレット片と試験水の体積は同じ



(b) 面心立方

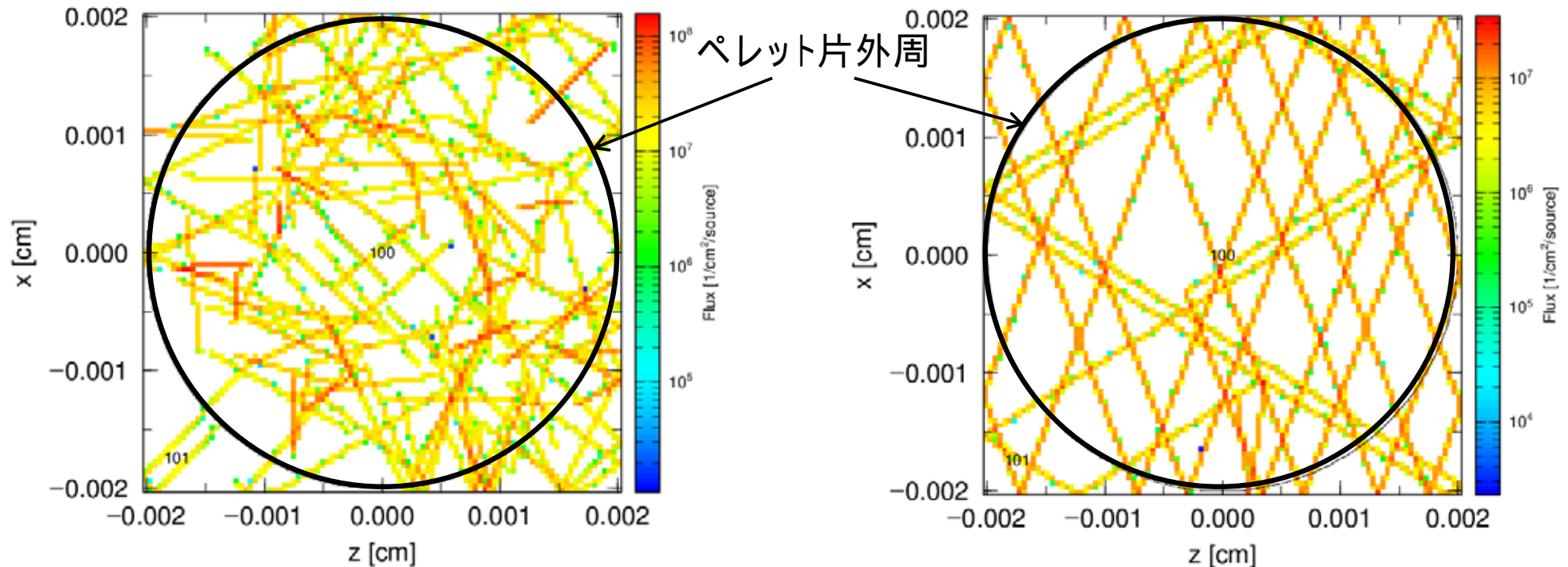
- ペレット片が点接触
- 正六面体内に粒子4個

試験水

ペレット片

## 4-2. 粒子輸送計算(線、線の飛跡)

- 線はペレット片中での飛程が短い(約 $10\ \mu\text{m}$ )ため、ペレット片による自己吸収量が大きく、水の放射線分解に寄与する割合が小さい。
- 線は線と比較してペレット片による自己吸収量が小さく(境界で30回以上反射)、線と比較して水の放射線分解に寄与する割合が大きい。



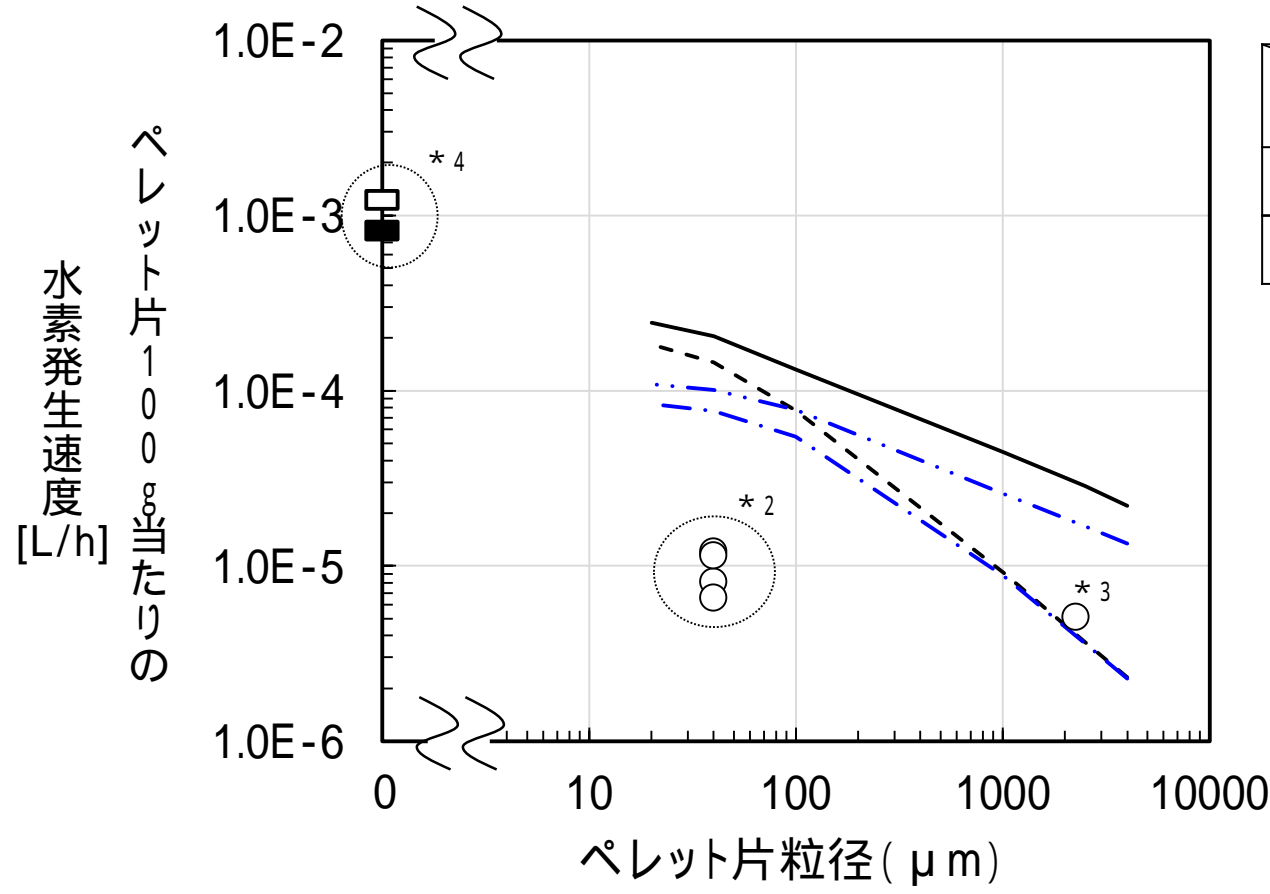
(a) 線の飛跡(単粒子体系)  
 ペレット片粒径:  $40\ \mu\text{m}$   
 線100個、 $4.9 \sim 5.81\text{MeV}$

(b) 線の飛跡(単粒子体系)  
 ペレット片粒径:  $40\ \mu\text{m}$   
 線1個、 $0.61\text{MeV}$

# 4-3. 粒子輸送計算結果

- 面心立方構造を仮定した粒子輸送計算結果による水素発生量は、水素発生試験による水素発生量より1桁程度高め。
- ペレット片の粒径分布、線のLET\*<sup>1</sup>の影響、線の体系外への散逸、気泡溜まり等の影響をもとに試験結果、粒子輸送計算結果との差異を検討する予定。

\*1: 線エネルギー付与



	全放射線	α線のみ
単粒子	—	----
面心立方	- · - · -	- · - · -

- \*2: 粒径小(20 ~ 300 μm) の水素発生試験結果
- \*3: 粒子大(1000 ~ 4000 μm) の水素発生試験結果
- \*4: 粒径0 μmを仮定した場合の水素発生量計算結果  
( : 全放射線、 : 線のみ)

1F特有の条件を踏まえた水素発生量評価技術の開発に向けて、比放射能が1F燃料と同程度の使用済燃料ペレット片を用いた水素発生試験を実施し、線の影響、水分量の影響、ペレット片粒径の影響を検討。

## (1) 線の影響

- ・ペレット片粒径が20～300  $\mu\text{m}$ の場合において、線を考慮した体系と線を考慮しない体系とを比較した結果、水素発生に及ぼす線の寄与が大きいことを確認。

## (2) 水分量の影響

- ・試験水無(乾燥)の場合は、顕著に水素発生量が抑制。
- ・試験水量を多量(ペレット片体積の約10倍)から少量(ペレット片の50 vol% (水切り程度の水分量))に減らしても水素発生速度は抑制不可。

## (3) ペレット片粒径の影響

- ・粒径が大きくなると、水素発生量は低下。