

原子力規制庁  
平成 25 年度原子力発電施設等安全調査研究委託費  
(臨界解析コードの信頼性向上に向けた調査) 事業  
報告書

平成 26 年 3 月

(独) 日本原子力研究開発機構



# 目 次

1. はじめに.....	1
1.1 目的.....	3
1.2 概要.....	3
2. 通常施設における核燃料物質の臨界管理.....	5
2.1 はじめに.....	7
2.2 未臨界担保.....	8
2.3 臨界事故対策.....	16
3. TMI-2 事故における燃料デブリの臨界管理.....	19
3.1 はじめに.....	21
3.2 炉内燃料デブリの未臨界担保.....	22
3.3 取出後の燃料デブリの未臨界担保.....	26
4. 臨界解析コードを用いた臨界評価精度の検証方法.....	29
4.1 はじめに.....	31
4.2 TMI-2 デブリ性状に係る文献調査.....	31
4.3 燃料デブリ模擬体の試作.....	35
4.4 臨界解析を検証する実験手法.....	83
5. まとめ.....	91
5.1 核燃料物質を扱う施設における臨界管理手法の再確認及び臨界管理の実例調査.....	93
5.2 臨界解析コードの精度の実験的確認方法の検討.....	95



## 1. はじめに



## 1.1 目的

東京電力福島第一原子力発電所（1F）事故等を踏まえた原子炉のシビアアクシデント時の対策や安全評価においては、炉心の損傷・熔融、その結果生じる燃料デブリ等の状況を評価するために、安全評価コードや臨界解析コードの信頼性が重要となる。そこで、本事業では、核燃料物質を扱う施設における臨界管理手法の再確認、燃料デブリの臨界管理の実例調査、並びに臨界解析コードの精度の実験的確認方法を検討し、臨界解析コードの信頼性向上に資する。

## 1.2 概要

### (1) 核燃料物質を扱う施設における臨界管理手法の再確認及び臨界管理の実例調査

核燃料物質の臨界管理について、既存指針類をレビューし、核燃料物質性状（組成等）、取扱設備の設計・施工（形状等）、及び取扱条件（質量、濃度、水分等）それぞれの管理要件を整理し、臨界解析コードを用いた臨界評価に係る不確かさの課題を抽出する。

また、臨界解析コードを用いた臨界評価の不確かさを克服して燃料デブリの臨界管理を行った実例について、臨界管理手法、及びこれに対する評価について文献調査等を行い、今後の課題等を検討する。

### (2) 臨界解析コードの精度の実験的確認方法の検討

新たに知見が必要な燃料デブリの核特性を模擬した試料を試作し、製作可能な性状範囲及び調製特性を測定・評価することにより、臨界解析コードを用いた燃料デブリの臨界評価の精度を実験的に確認する方法を検討する。



## 2. 通常施設における核燃料物質の臨界管理



## 2.1 はじめに

原子炉の運転を除いて、核燃料物質は臨界になってはならない。臨界事故は作業者に致命的な影響を与え、核分裂生成物（FP）の放出による外部影響を生じ得る。そして、作業者の臨機介入による未臨界状態への回復が困難を極めることはJCO臨界事故の経験からも明らかである。したがって、未臨界状態を担保することが臨界管理の原則である。

取扱う核燃料物質について、取扱目的からその性状の仕様が定まり、続いて、未臨界状態を確保できる取扱設備・機器の仕様や取扱方法が定まる。通常、原子炉の炉心設計に基づく新燃料の仕様があり、これに従って加工施設で取扱われる核燃料物質が決まる。同様に、原子炉における燃焼条件によって再処理施設で取扱われる核燃料物質が決まる。その上で、設備・機器の臨界設計を行い、実際の核燃料物質の取扱いに際してはその性状を臨界設計の前提条件範囲に収まるように管理しなければならない。

臨界設計は、臨界評価モデルを入力とした臨界解析コードによる解析に多くを依存している。これまでの研究開発の結果、臨界解析コードは高い精度を有しており、臨界設計においては、臨界評価モデルが適切であることの確認が重要である。臨界評価モデルは、取扱う核燃料物質の性状範囲、及び設備・機器の設計を安全側に包絡しなければならない。

核燃料物質の取扱いにあたっては、その性状や設備・機器の状態が、臨界評価モデルの範囲から逸脱してはならない。このように、技術的にみて想定されるいかなる場合に対しても対策が講じられていることを、本報告書では「未臨界が担保されている」と呼ぶ。

これらの制限をすべて確実に守ることが、すなわち、臨界を防止する対策である。偶発的な機器の故障や作業者の誤操作により制限から逸脱することが無いように安全裕度を設けることも、臨界管理の原則である。

安全裕度を考慮した制限をも逸脱し臨界に至る可能性が無視できない場合は、臨界事故のリスクを考慮しなければならない。作業者の被ばくを最小限にするため、あるいはFP放出による外部影響を抑制するため、臨界検知、放射性物質放出抑制等の機能を持つ機器、又は作業員や周辺公衆の避難計画が必要となる場合がある。

本章では、安全規制の観点で、これらの臨界防止の要求がどのように実現されているかを概観する。まず、未臨界を担保する臨界管理の基本的な考え方を臨界安全ハンドブック等でレビューする。次に、核燃料物質性状及び核燃料物質取扱設備・機器の臨界管理の実例として、独立行政法人日本原子力研究開発機構の定常臨界実験装置 STACY に附置されている核燃料物質取扱設備を採りあげて調査・整理する。最後に、複数の故障・誤操作が相次ぎ通常の臨界管理から大きく逸脱し、臨界となることを想定している施設として日本原燃株式会社の再処理施設を採りあげる。同再処理施設は臨界となっても自動的に影響を緩和する設備を有しており、この設備の性能を担保する管理を調査・整理する。なお、この調査にあたっては、日本原燃株式会社殿のご助力を得た。

## 2.2 未臨界担保

### 2.2.1 法令・安全審査指針等の要求

我国の法令（文献 1～3）や安全審査指針（文献 4～12）は、原子炉以外の原子力施設（輸送容器を含む。以下同じ。）に所在する核燃料物質について、技術的にみて想定されるいかなる場合でも臨界を防止する対策を講じることを求めている。逆に、法令に基づいて設置され反応度制御能力等の機能を維持している原子炉においてのみ、核燃料物質を臨界とし、制御された核分裂連鎖反応を起こすことが許容されている。

原子炉以外の原子力施設では、通常、反応度制御機能は無く、一旦核燃料物質が臨界に達すると連鎖反応を制御することが難しい。また、放射線遮へいや核分裂生成物の閉じ込め機能を有しない場合もあり、このような意図しない連鎖反応は作業員や公衆に重大な障害を与え得る（文献 13、14）。米国原子力学会では、このような障害の防止を臨界管理の目的として掲げている（文献 15）。この目的を達するために、そもそも臨界を防止する対策を講じるのが、我国の臨界安全ハンドブック（文献 16）を含め諸外国の同様の指針類（文献 17～19）に明示されている。

### 2.2.2 臨界評価

#### (1) 基本

臨界安全ハンドブックは、施設の臨界評価において、単一ユニットに含まれる核燃料物質及びその他の物質の種類、量、物理的・化学的形態を考慮し、指定されたユニットの形状や寸法のもとで臨界とならないことを平常時ばかりでなく異常時をも含めて確認することを求めている。さらに、複数ユニットでも臨界とならないことを確認するため、ユニット間の距離あるいは遮へい材厚さを考慮し、中性子相互作用効果を平常時ばかりでなく異常時をも含めて評価するとしている。

#### (2) 単一ユニット

単一ユニットは、機器の形状寸法、核燃料物質の性状等の核的制限値が設定できる、核燃料物質取扱上の 1 つの単位として定義される。臨界安全ハンドブックは、核的制限値を設定できる要件、すなわち、臨界管理の最も根幹の要件として、内部に含まれる核燃料物質及びその他の物質の種類、組成、物理的・化学的性質、量等が指定できるものでなくてはならない、としている。これらの諸量は、後述する臨界評価モデルの基本的な入力となり、実機における臨界管理で把握できることが必要である。さらに、単一ユニットの外周条件として、増倍率が最も高くなる条件を定義できることも、核的制限値を設定する要件としている。

#### (3) 複数ユニット

複数ユニットは、2 つ以上の単一ユニット及び反射体、遮へい体等からなる体系のことである。複数ユニットは、内部に含まれる各単一ユニットが何であるか規定でき、それらの配置が決められているものでなければならない。臨界を防止するために、単一ユニット間の中性子相互作用を考慮し、技術的にみて想定されるいかなる場合でも臨界にならないように単一ユニットの配置及び中性子遮へい材の配置等を決めなければならない。

#### (4) 核的制限値

核的制限値は、単一ユニットの場合は、機器の形状寸法、核燃料物質の濃度・質量・同位体組成、中性子吸収材の形状寸法・濃度・材質等を、複数ユニットの場合は、単一ユニット相互間の配置、中性子遮へい材の配置・形状寸法等を、あるいはこれらを組み合わせ設定する。具体的な実機的设计においては、加工、再処理、研究開発等の目的に応じて取扱う核燃料物質の同位体組成や濃度の性状がまず定まり、これに応じて他の核的制限値が導出される場合が多い。逆に、大容量の廃液処理のように、形状寸法がまず定まり、これに応じて核燃料物質の濃度が核的制限値として定まることもある。

#### (5) 臨界評価モデル

核的制限値を設定する上述の諸量を系統的に変化させて臨界解析を行い、最終的に臨界とならないことが確認された、つまり核的制限値が定まった臨界評価モデルが決まる。この臨界とならないことの確認においては、平常時ばかりでなく異常時をも想定して最も厳しくなる状況を想定しなければならない。すなわち、取扱う核燃料物質の性状及び中性子の吸収・減速・反射の条件に単一故障等あるいは外的要因により変化が生じることを考慮して、増倍率が最も大きくなる場合を想定しなければならない。この臨界評価モデルは、実機における臨界管理の基本となる。

#### (6) 臨界解析コードの不確かさ

臨界とならないことは、臨界評価モデルを臨界解析コードに入力して増倍率を計算し、結果が基準値を下回ることにより確認する。

臨界安全ハンドブックでは、臨界解析コードと核データの組み合わせに特有の系統的な不確かさを考慮するために、基準値として推定臨界下限増倍率という概念を導入している。特定の臨界解析コードと核データの組み合わせを用いて、臨界実験に基づく多数のベンチマークデータの解析を行い、増倍率の計算結果の不確かさを定量する。初版の臨界安全ハンドブック（文献 20）では、臨界安全解析システム JACS（多群モンテカルロコード KENO-IV と核データライブラリー ENDF/B-IV に基づく多群ライブラリー MGCL-137 の組み合わせ）の不確かさを定量し、推定臨界下限増倍率を 0.95 としている。その後、臨界安全ハンドブック・データ集第 2 版（文献 21）では、連続エネルギーモンテカルロコード MVP と核データライブラリー JENDL 3.2 の組み合わせで不確かさを定量し、推定臨界下限増倍率を 0.98 としている。

モンテカルロ法に基づく臨界解析コードで臨界評価モデルの増倍率を計算すると、計算結果にはモンテカルロ法特有の統計的な不確かさを伴う。計算結果を  $k$ 、その不確かさの標準偏差が  $\sigma$  の場合、 $k + 3\sigma$  が推定臨界下限増倍率を下回ることを確認する。

#### (7) 燃焼度クレジット

燃焼燃料を対象とした臨界評価モデルに、燃焼による核分裂性物質の組成変化や FP の蓄積を反映した核燃料物質性状モデルを入力すれば、燃焼燃料が新燃料よりも臨界になりにくい効果を臨界評価に取入れることができる。これを「燃焼度クレジットを採る」と言う。

燃焼度クレジット導入ガイド原案（文献 22）では、正常な使用済燃料の輸送、貯蔵及び再処理の臨界評価を対象として、燃焼度クレジットを採る場合の要件を示している。まず、燃焼燃料に含まれる核分裂性物質や FP の組成を算出する燃焼計算コード、及び燃焼燃料の臨界評価に用いる臨界解析コードのそれぞれについて不確かさの検証が必要としている。また、実際の燃焼燃料の臨界管理においては、燃焼燃料の燃焼度を実測により確認することとしている。この燃焼度の測定は IAEA 輸送規則（文献 23）でも要求されている。

燃焼度クレジットを採った臨界評価モデルは、実際の燃焼燃料の取扱条件を安全側に包絡していなければならない。上述の実測もこの要件に基づくものである。また、臨界評価モデルに FP を取入れる場合には、その FP は実際の燃焼燃料中に存在することが保証されなければならない。

#### 調査文献

- [1] 核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律
- [2] 同法施行令
- [3] 同法に基づく各規則
- [4] 原子力安全委員会、「核燃料施設安全審査基本指針」（昭和 55 年）
- [5] 原子力安全委員会、「ウラン加工施設安全審査指針」（昭和 55 年）
- [6] 原子力安全委員会、「特定のウラン加工施設のための安全審査指針」（平成 12 年）
- [7] 原子力安全委員会、「ウラン・プルトニウム混合酸化物燃料加工施設安全審査指針」（平成 14 年）

- [8] 原子力安全委員会、「再処理施設安全審査指針」（昭和 61 年）
- [9] 原子力安全委員会、「金属製乾式キャスクを用いる使用済燃料中間貯蔵施設のための安全審査指針」（平成 14 年）
- [10] 原子力安全委員会、「ウラン・プルトニウム混合酸化物燃料加工施設に対する仮想的な臨界事故の評価について」（平成 14 年）
- [11] 原子力安全委員会、「発電用軽水型原子炉施設に関する安全設計審査指針」（平成 2 年）
- [12] 原子力安全委員会、「水冷却型試験研究用原子炉施設に関する安全設計審査指針」（平成 3 年）
- [13] T. P. McLaughlin, S. P. Monahan, N. L. Pruvost et al., "A Review of Criticality Accidents (2000 Revision)", LA-13638, Los Alamos National Laboratory (2000).
- [14] ウラン加工工場臨界事故調査委員会、「ウラン加工工場臨界事故調査委員会報告書」、原子力安全委員会 (2003).
- [15] "American National Standard for Nuclear Criticality Safety in Operations with Fissionable Materials Outside Reactors", ANSI/ANS-8.1-1983, American Nuclear Society, LaGrange Park, Illinois (1983).
- [16] 臨界安全性実験データ検討ワーキンググループ、「臨界安全ハンドブック第 2 版」、JAERI 1340、日本原子力研究所 (1999).
- [17] "Nuclear Criticality Safety Guide", LA-12808, Los Alamos National Laboratory (1996).
- [18] "Handbuch zur Kritikalität", Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH (1996).
- [19] L. Maubert, "Standard de Criticité – Valeurs Minimales Critiques", CEA-N-2051, Commissariat à l'Énergie Atomique (1983).
- [20] 科学技術庁原子力安全局核燃料規制課編、「臨界安全ハンドブック」、につかん書房 (1988).
- [21] 奥野浩、須山賢也、外池幸太郎、他、「臨界安全ハンドブック・データ集第 2 版」、JAEA-Data/Code 2009-010、日本原子力研究開発機構 (2009).
- [22] 燃料サイクル安全研究委員会、「燃焼度クレジット導入ガイド原案（受託研究）」、JAERI-Tech 2001-055、日本原子力研究所 (2001).
- [23] International Atomic Energy Agency, "Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material 2005 Edition", Safety Requirements, No. TS-R-1 (2005).

### 2.2.3 臨界管理の実例

#### (1) 臨界実験装置 STACY/TRACY の溶解槽

定常臨界実験装置 STACY と過渡臨界実験装置 TRACY は、それぞれ硝酸ウラニル水溶液を燃料体として用いる臨界実験装置であり、日本原子力研究開発機構の原子力科学研究所に所在する。両臨界実験装置は、燃料サイクル安全工学研究施設 NUCEF の実験棟内に設置されており、硝酸ウラニル水溶液を調製・調整する設備を共有する。

硝酸ウラニル水溶液の燃料体は、 $^{235}\text{U}$ 濃縮度が 10 wt% のものと 6 wt% のものがあるが、U 溶解槽において  $^{235}\text{U}$ 濃縮度が 1.5 wt% と 12 wt% のウラン酸化物原料を同時に硝酸水溶液に溶解して調製された。

本項では、この U 溶解槽における核燃料物質の臨界管理について述べる。

#### (2) 基本設計—設置変更許可申請書（文献 1）記載内容

硝酸ウラニル水溶液を調製・調整する設備は想定されるいかなる場合でも臨界を防止する設計とする臨界安全設計方針が謳われ、U 溶解槽もこの方針の下に設計されている。臨界評価は JACS による解析に基づき、臨界の判定に増倍率 0.95 を用いている。

ウラン濃度、空気中水分率、反射条件等について想定し得る最も厳しい条件を臨界評価モデルに設定している。単一故障・単一誤操作を想定しても臨界にならない設計とするため、U 溶解槽を収納するグローブボックスは、U 溶解槽の硝酸ウラニル水溶液が全量漏えいしたとしても、臨界とならない液厚に制限できるよう十分な広さを有する設計とする。

臨界評価モデルにおける<sup>235</sup>U濃縮度は、ウラン酸化物原料の<sup>235</sup>U濃縮度を包絡するよう13 wt%としている。その上で、U溶解槽の直径を14.2 cm以下、高さを253.5 cm以下とし、臨界とならない設計にしている。溶解後の硝酸ウラニル水溶液を受入れる下流の設備は、<sup>235</sup>U濃縮度13 wt%を前提とした全濃度の形状寸法管理により臨界を防止する。

このような基本設計及び臨界評価は、科学技術庁及び原子力安全委員会（いずれも申請当時）による安全審査において妥当と判断されている。

#### (3) 詳細設計—設計及び工事の方法の認可申請書（文献2）記載内容

U溶解槽の設計条件のうち臨界防止に係る条件は寸法制限值のみであり、上述の基本設計を反映して、円筒直径を14.2 cm（内径）以下、高さを253.5 cm以下としている。これに対して設計仕様は、主要材料としてSUS304LTPを用い、直径を139.8 mm（外径）、高さを2517 mm、厚さを5 mmとしている。これは設計条件を満足するものである。

U溶解槽の未臨界計算書には、図2.2-1及び図2.2-2の臨界評価モデルとJACSによる図2.2-3の計算結果が示されている。臨界評価モデルのうちU溶解槽内の核燃料物質は、<sup>235</sup>U濃縮度13 wt%のUO<sub>2</sub>ペレットと水減速材からなる非均質体系で、直径14.2 cm、高さ253.5 cmである。増倍率が最も高くなる条件として、厚さ30 cmの水反射体が設けられ、中性子吸収材として働くSUS304LTPの容器は省略されている。UO<sub>2</sub>ペレットの直径及びUO<sub>2</sub>ペレットと水減速材の存在比をパラメータとして系統的に増倍率の計算を行い、 $k+3\sigma$ は、最も高い場合でも0.83で、0.95を下回っている。

臨界防止に係る使用前検査として、寸法検査を行うとしている。

これらの設計及び工事の方法は、科学技術庁（申請当時）による審査において妥当と判断されている。

#### (4) 施工—使用前検査（文献3、4）

U溶解槽の施工時に、科学技術庁（当時）は使用前検査を行い、臨界防止に係る寸法を測定している。U溶解槽の外形の直径及び高さを測定し、外形が上述の寸法制限值に収まることをもって、臨界評価モデルの核燃料物質の寸法に内包されていることを確認した。

#### (5) 溶解作業における臨界管理—保安規定（文献5）

上述の基本設計や臨界評価モデルから導かれる臨界管理の要点は、溶解作業時にU溶解槽に投入される核燃料物質が、<sup>235</sup>U濃縮度が13 wt%以下のUO<sub>2</sub>であることを確認することである。

臨界実験装置の燃料体もまた、その原料調達から調製に至るまで、設計及び工事の方法が定められ、認可されている。この中でウラン酸化物原料の材料検査を行うことが定められ、実際に使用前検査で化学形と<sup>235</sup>U濃縮度が実測に基づき確認されている。この情報をウラン酸化物原料の輸送、受入れ、保管、U溶解槽への投入に至るまで一貫して保持することにより、臨界管理が行われた。受入れ時には、保安規定に則り、受入れようとしている核燃料物質が使用前検査を受けたものであることを同定している。

上述のとおり、U溶解槽から払出される硝酸ウラニル水溶液を受入れる下流の設備では、<sup>235</sup>U濃縮度13 wt%を前提とした全濃度の形状寸法管理による臨界管理が行われている。このため、U溶解槽から払い出す際の硝酸ウラニル水溶液の性状確認は不要であった。

調査文献

- [1] 日本原子力研究所、東海研究所 原子炉設置変更許可申請書 別冊 10 STACY（定常臨界実験装置）施設
- [2] 日本原子力研究所、STACY 施設（定常臨界実験装置）の設計及び工事の方法の認可申請書（抜粋）
- [3] 科学技術庁、STACY 施設（定常臨界実験装置） 使用前検査要領書（抜粋）
- [4] 科学技術庁、STACY 施設（定常臨界実験装置） 使用前検査成績書（抜粋）
- [5] 日本原子力研究開発機構、原子力科学研究所原子炉施設保安規定第 11 編 STACY の管理

燃料形態	UO <sub>2</sub> ペレット (非均質系)
密度・濃度	ペレット密度10.412g/cm <sup>3</sup> , ペレット半径0.01~0.62cm
同位体比	U-235:13%, U-238:87%
計算体系	<p>(単位: cm)</p>
STACY (第4回申請)	図1 縦型円筒槽 (U溶解槽) の計算条件 (1/2)

図 2.2-1 U 溶解槽の臨界評価モデル (非均質体系のユニットセル)

燃料形態	UO <sub>2</sub> ペレット (非均質系)
密度・濃度	ペレット密度10.412g/cm <sup>3</sup> , ペレット半径0.01~0.62cm
同位体比	U-235:13%, U-238:87%
解析結果	$K_{eff} + 3\sigma \leq 0.83$
計 算 体 系  (単位: cm)	<p>図2 縦型円筒槽 (U溶解槽) の計算条件及び計算結果 (2/2)</p>
STACY (第4回申請)	図2 縦型円筒槽 (U溶解槽) の計算条件及び計算結果 (2/2)

図 2.2-2 U 溶解槽の臨界評価モデル (全体)

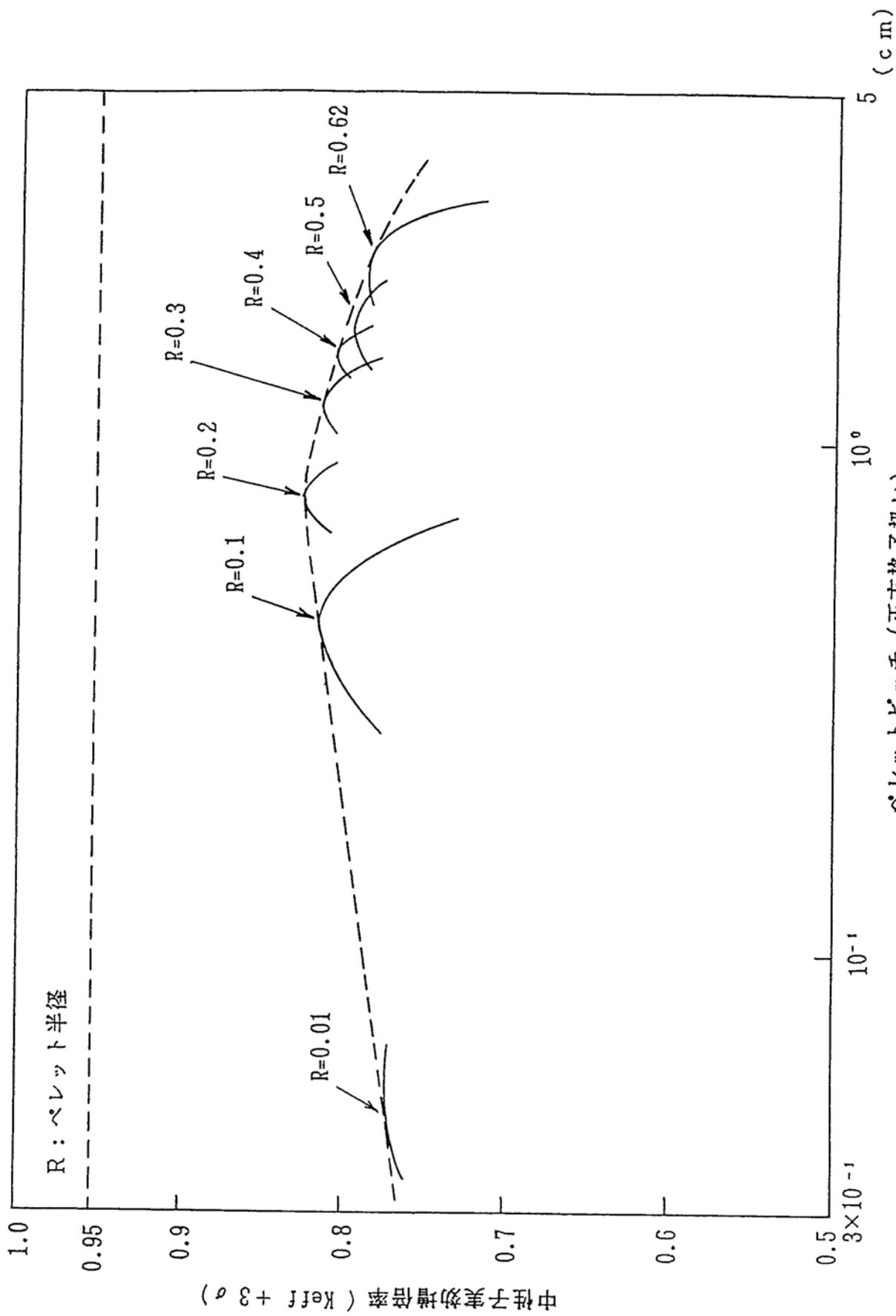


図 2.2-3 U 溶解槽の臨界評価モデルの増倍率計算結果

## 2.3 臨界事故対策

### 2.3.1 臨界事故対策の要求

核燃料施設安全審査基本指針（文献 1）は、「指針 12 臨界事故に対する考慮」として、誤操作等により臨界事故の発生するおそれのある核燃料施設においては、万一の臨界事故時に対する適切な対策が講じられていることを求めている。臨界事故の発生するおそれがなければ、本指針は適用されず、実際、 $^{235}\text{U}$ 濃縮度が 5% 未満のウラン加工施設においては（文献 2）、臨界管理が適切に行われることを前提に、臨界事故に対する考慮は不要とされている。 $^{235}\text{U}$ 濃縮度が高いウラン（文献 3）や MOX（文献 4）の加工施設においては、臨界検知が義務付けられるとともに、臨界事故の発生が想定される施設においては未臨界にするための措置が講じられる設計を要求している。

再処理施設においては（文献 5）、さらに踏み込んで、臨界管理上重要な施設において臨界事故が発生したとしても、これを未臨界にするための措置が講じられる設計であることが求められている。

ここで言う「臨界管理上重要な施設」とは、複数の核的制限値が、機器設計のみならず、運転時に管理する制限値としても設定されているような施設を指すと考えられる。日本原燃株式会社の再処理施設では、溶解槽が臨界管理上重要な施設と位置付けられ、臨界事故を検知し、自動的に未臨界にするための設備が設けられている。

### 2.3.2 臨界事故対策の実例

#### (1) 概要（文献 6）

日本原燃株式会社の再処理施設は、設計基準事故として臨界事故を想定し、その影響緩和策として臨界収束の手段を備えている国内唯一の例である。同施設の溶解槽は、使用済燃料のせん断片を溶解槽内で回転する 12 個のバケットに順次投入するとともに、硝酸水溶液を連続的に供給し、使用済燃料溶解液を連続的に取出す構造となっている。この連続的な操作において、核燃料物質及び硝酸水溶液の出入りのバランスを保ち、槽内の核燃料物質の性状と量を一定範囲に維持することによって、溶解槽の未臨界を担保する。バランスが崩れそうな場合でも、安全裕度を超えないうちに計測機器で兆候を検知し、溶解作業を自動的に停止し、溶解槽を未臨界に保つ。臨界事故は、何らかの理由で、管理が損なわれてバランスが崩れ、かつ兆候検知と作業自動停止にも失敗した場合に生ずる。

#### (2) 通常時の臨界管理（文献 6）

溶解槽は未臨界担保のため、槽の寸法、溶解液中の核燃料物質濃度、1 つのバケットに装荷する核燃料物質質量（せん断された使用済燃料）、及び可溶性中性子毒物濃度に核的制限値を設けている。寸法の制限は溶解槽の設計・製作の段階で達成され、改造しない限り同じ状態が静的に維持される。他の制限は溶解作業時における硝酸水溶液流量、使用済燃料をせん断するタイミング等のプロセス管理によって動的に維持される。バケットに装荷する核燃料物質質量と可溶性中性子毒物濃度については、複数組の制限値が用意されており、溶解する使用済燃料の種類によって制限値を選択する。

このような動的な管理を必要とするプロセス量は、流量計、密度計などの多重化あるいは多様化された計測機器を用いて監視されており、制限からの逸脱が検知されたならば自動的に使用済燃料の溶解槽への供給が停止する。

#### (3) 設計基準事象としての臨界事故一事業指定申請書（文献 6）記載内容

このような対策の結果、単一の故障・誤操作では、溶解槽で核燃料物質が臨界になることはない。しかし、さらに多重の故障や誤操作を想定した検討の結果、硝酸水溶液の溶解槽への供給が何らかの理由で水に置き換わった場合、臨界に至るとされている。

施設の放射性物質の閉じ込め機能は、 $10^{19}$  の核分裂数であれば、有意な外部影響を与えない性能を持つとされている。このため、この核分裂数に至るまでに上述のシナリオで発生する臨界状態を自動的に未臨界に復し、臨界事故の影響を緩和する、可溶性中性子吸収材緊急供給系が設けられている。

(4) 可溶性中性子吸収材緊急供給系の設計

—設計及び工事の方法の認可申請書（文献7）記載内容

この設備は安全上重要な設備として位置づけられ、その性能を担保するため安全規制の対象となっている。上述の核分裂数を上限値として、溶解槽に投入すべき可溶性中性子毒物量（濃度及び溶液の体積）、投入を完了すべき時間が決まる。この条件に応じて、設備の詳細設計では、中性子毒物溶液を含む水溶液を保持し待機する可溶性中性子吸収材緊急供給槽、溶液を溶解槽へ注入する配管、配管上の供給弁、供給弁を開くための回路（臨界を検知する放射線検出器を含む。）の仕様が決められ、審査を経て認可されている。

(5) 施工—使用前検査（文献8）

可溶性中性子吸収材緊急供給系の施工において可溶性中性子吸収材緊急供給槽が適切な容量を持つことが使用前検査で確認されているほか、施工完了後に、設備を実際に動作させ、溶液の溶解槽注入に要する時間を実測し、所定の性能を持つことも確認されている。

(6) 運転の管理—保安規定（文献9）

可溶性中性子吸収材緊急供給系が適切に待機状態にあることが、溶解作業の前提条件として保安規定に定められている。また、可溶性中性子吸収材緊急供給槽の液位が低下すると自動的に使用済燃料のせん断を停止するインターロックが設けられている。

調査文献

- [1] 原子力安全委員会、「核燃料施設安全審査基本指針」（昭和55年）
- [2] 原子力安全委員会、「ウラン加工施設安全審査指針」（昭和55年）
- [3] 原子力安全委員会、「特定のウラン加工施設のための安全審査指針」（平成12年）
- [4] 原子力安全委員会、「ウラン・プルトニウム混合酸化物燃料加工施設安全審査指針」（平成14年）
- [5] 原子力安全委員会、「再処理施設安全審査指針」（昭和61年）
- [6] 日本原燃株式会社、再処理事業所／再処理事業指定申請書
- [7] 日本原燃株式会社、再処理施設に関する設計及び工事の方法の認可申請書（抜粋）
- [8] （独）原子力安全基盤機構、「日本原燃株式会社 再処理事業所 再処理施設の工事についての使用前検査要領書」（抜粋）
- [9] 日本原燃株式会社、再処理事業所 再処理施設保安規定（抜粋）



### 3. TMI-2 事故における燃料デブリの臨界管理



### 3.1 はじめに

「2. 通常施設における核燃料物質の臨界管理」では、通常施設における核燃料物質の臨界管理について述べた。取扱う核燃料物質の性状範囲を確定し、これを前提条件として施設・機器の臨界設計を行い、運転段階では実際の核燃料物質性状が前提条件から逸脱しないように管理することが要点であった。

TMI-2 や 1F の事故で生じた燃料デブリの臨界管理では、この要点の多くが成立しない。燃料集合体は水中で取扱うことを前提として臨界設計がなされているが、その形状が崩れている。この崩壊の経緯を事故時に管理することはできないため、燃料デブリ性状についても、ごく少数のパラメーターを除いて、管理できない。多数の燃料集合体が損傷・溶融した場合、臨界を防止できるように燃料デブリの形状を変更することも容易ではない。

このため、燃料デブリ全体に包括的に適用できる性状管理が有効な未臨界担保手段と考えられる。可溶性中性子吸収材の利用や、空冷により中性子減速材である水を排除することなどの方法が候補となる。1F では未だ燃料デブリの未臨界担保が実現できていないが、TMI-2 においては、前者の可溶性中性子吸収材の利用により、燃料デブリ取出しに際して全燃料デブリの未臨界担保を実現した。

本章では、TMI-2 における未臨界担保の方策について調査した結果を述べる。

## 3.2 炉内燃料デブリの未臨界担保

### 3.2.1 冷却水中の可溶性中性子毒物濃度の変遷（文献 1、2）

1979 年、事故直前の TMI-2 では、1 次冷却水のホウ素濃度は 1,050 ppm、高圧注入系に準備されていた冷却水のホウ素濃度は 2,300 ppm であった。事故において高圧注入系が作動したことから、1 次冷却水ホウ素濃度は上昇し、事故直後には 1,750～2,300 ppm であったと考えられている。

同年中に炉心の臨界性の評価が複数行われ、その結果に基づいて、1 次冷却水ホウ素濃度は、さらに上昇させ、3,000～3,500 ppm に維持された。

1983 年に、大規模に炉心が損傷・溶融し、燃料デブリが生じていることが、初めて観察により確認された。この結果を反映し、水中における燃料デブリ取出しも想定した臨界評価が行われた。

1984 年に、この臨界評価の結果として、炉内における燃料デブリの未臨界を担保するために、1 次冷却水ホウ素濃度の下限値を 4,350 ppm とすることとなった。この値は事業者である GPU Nuclear Corporation (GPU) が策定し、米国原子力規制委員会 (NRC) が是認している。これ以降、TMI-2 においては、燃料デブリの取出しが完了するまで、1 次冷却水ホウ素濃度は 4,950～5,200 ppm に維持された。1985 年には燃料デブリの取出しが開始されている。

1990 年に、若干の燃料デブリを炉内に残して、燃料デブリの取出しが完了した。残留している燃料デブリの分布等の状況を考慮してホウ素を含まない水中における臨界性が評価され、臨界になる可能性は無いと判断された。これを受けて、1 次冷却水ホウ素濃度を維持する必要がなくなった。

### 3.2.2 法令・安全審査指針等の要求（文献 1）

TMI-2 事故当時の米国の法令 10CFR50（炉）、10CFR70（燃料加工）、10CFR71（貯蔵・輸送）は、核燃料物質の臨界管理の要求として、不用意な臨界を防ぐ対策を要求している。これらは、「2.2.1 法令・安全審査指針等の要求」で述べた我国における要求と同様のものである。TMI-2 における燃料デブリの臨界管理にもこの要求が適用された。しかし、これらの法令は、臨界を防ぐために必要な安全裕度については述べていない。

NRC は、安全裕度の設定は施設の状態に依存するものであり、事業者は設定の妥当性を安全評価案件ごとに証明しなければならないとしている。事故後の TMI-2 の炉内状況及び燃料デブリ取出しは特殊な状況であり、既存の規制指針や審査の先例はほとんど適用できない。このため、事業者は、燃料デブリ取出作業で想定される状況、臨界評価モデルの不確かさ、解析コードの不確かさについて説明を求められた。さらに、取出作業中の異常も考慮すべきとされた。一方で、取出された燃料デブリの貯蔵・輸送については、従来の規制指針の多くを適用できた。

### 3.2.3 臨界評価（文献 1、3、4）

#### (1) 事故前の炉心条件

TMI-2 では、177 体の集合体からなる 90 t 余の新燃料が装荷され、94 日間の全出力運転を経て事故が発生した。この時の集合体ごとの燃焼度は 900～6,000 MWD/t の範囲にわたる。集合体には、初期  $^{235}\text{U}$  濃縮度が 1.98 wt%、2.65 wt% 及び 2.96 wt% と異なる 3 種類があり、それぞれ batch 1、batch 2 及び batch 3 と称される。

#### (2) 臨界評価モデル

この集合体仕様や燃焼条件に基づき、燃料デブリ取出作業におけるいかなる形状変更をも包絡する臨界評価モデルが図 3.2-1 のとおり策定された。このモデルは許認可モデルと呼ばれている。

モデルには燃料インベントリが全て含まれており、中心部領域には batch 3 集合体由来の燃料デブリがモデル化されている。周辺部領域には batch 1 及び batch 2 集合体由来の燃料デブリを混合してモデル化されている。本来、batch 3 集合体は炉心周辺部に配置されていたが、最も増倍率が高くなるようにモデルの中心に置かれた。

燃焼度クレジットは中心部領域の batch 3 集合体由来の燃料デブリのモデルにのみ採られている。 $^{235}\text{U}$  の燃焼による減損、核分裂性プルトニウムの生成が考慮されている。核分裂生成物のうち希土類元素であるランタン、セリウム、プラセオジウム、ネオジウム、プロメチウム、サマリウム及びユーロピウムも考慮されている。水溶性のもの、気体のもの、及び炉心溶融時の高温環境下で揮発する可能性のある核分裂生成物は用いられていない。被覆管や可燃性毒物のような集合体の構造物、及び炉内構造物はモデルに含まれていない。

これらの 2 つの領域は、当初、それぞれの燃料デブリとホウ素水の均質混合物としてモデル化され、水中のホウ素濃度に応じて最適減速条件となるようにデブリとホウ素水の構成比が決められた。その後、炉内の観察で粒塊状の燃料デブリが確認されたことから、モデルの一部がホウ素水中に燃料デブリ球が配列した非均質混合物に改められている。これは、均質よりも非均質な混合物の方が増倍率が高いため、この効果が最大となるような燃料デブリ球の直径がモデルに採用されている。

反射条件として、燃料デブリ下部には圧力容器をモデル化した鉄の反射体が配置されている。一方、燃料デブリ上部にはホウ素水がモデル化されている。なお、このモデルにおいては、ホウ素水に比べて鉄の方が中性子反射効果が高い。

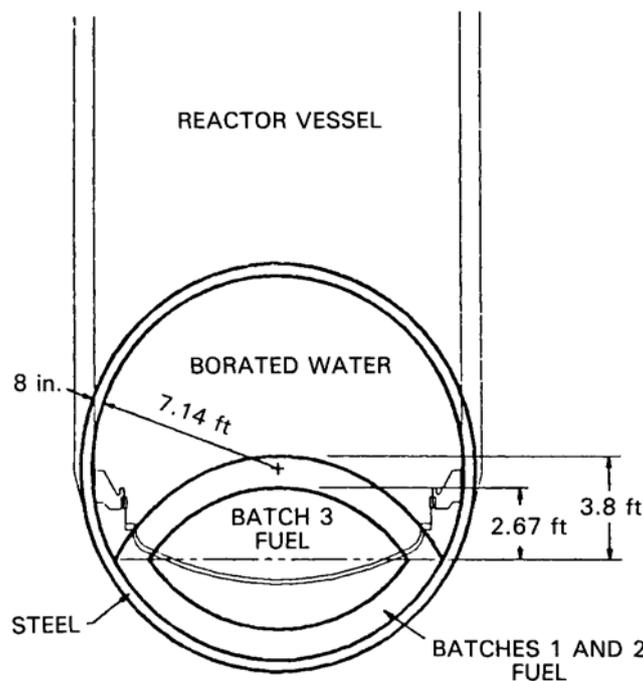


図 3.2-1 TMI-2 炉内の燃料デブリの臨界評価モデル (文献 4 より)

### (3) 臨界解析コードの不確かさ評価と増倍率の基準値

許認可モデルの増倍率の計算には主に臨界解析コードの KENO V.a が用いられ、同時に、その不確かさを評価するベンチマーク解析も行われた。燃料デブリの条件に類似する、 $^{235}\text{U}$  濃縮度が 2~5 wt%、燃料体がウラン酸化物、減速材が水、H/U 比が約 1.76、減速材中ホウ素濃度が ~5,000 ppm の臨界実験に基づくベンチマークデータが選ばれた。

増倍率のベンチマーク解析の結果、ほとんどのベンチマークデータに対して 1% 以内の一致を見たが、全ての計算結果を包絡する不確かさは 2.5% であった。

この結果を受けて、未臨界であること判定する増倍率の基準値は 0.99 とされた。燃料デブリの臨界評価は、臨界解析コードが算出する増倍率に不確かさ 0.025 を加えて、この基準値と比較することとした。

結論として、濃度が 4,350 ppm のホウ素水に基づく許認可モデルの増倍率の計算結果は、不確かさ 0.025 を加えても、0.99 を下回った。

なお、TMI-2 事故当時においても、臨界解析コードの不確かさよりも、燃料デブリ性状の不確かさが臨界管理の安全裕度を決定する上で重要な因子であると認識されていた。このため、図 3.2-1 に示した臨界評価モデルの過度の保守性が議論となり、より現実的とされる多くの臨界評価モデル案が提示されている。しかし、冷却水中のホウ素濃度制限値の変更には至らなかった。

### 3.2.4 臨界管理の実務（文献 1）

#### (1) ホウ素濃度の監視と希釈の防止

燃料デブリの臨界管理の手段が 1 次冷却水中のホウ素濃度の維持であることから、ホウ素濃度の低下をもたらすような異常に対し注意が払われた。1 次冷却系に接続されている配管で希釈の原因となり得るものが特定され、そこは二重の弁で隔離され、その弁状態が定期的に点検された。また、不要な配管は物理的に切り離された。さらに、燃料デブリ取出し等の特定の作業条件ごとに、希釈が起きないように管理された。

希釈が起きている兆候を把握するために、1 次冷却系及び水を共有する箇所において定期的な水のサンプリング・分析が行われた。そのサンプリング箇所と頻度は、約 22 m<sup>3</sup> の冷却水体積増加が約 60 L/m の速さで進むことを想定して、綿密に決められている。

これらの対策を講じた上で、なお、燃料デブリ取出し中は、米国法令 10 CFR 70.24 の適用を受け、臨界監視が必要となった。

#### (2) 冷却水喪失への対策

燃料デブリ取出し時には、冷却の観点では不要だが、作業員に対する遮へいとして水が必要であった。万一、漏水で圧力容器内の水位が低下し、かつ、その漏水を止められない場合、圧力容器へ継続的に給水しなければならないが、この場合でも、ホウ素濃度の希釈は許されない。このため、漏れたホウ素水を原子炉建屋の地下で回収し、圧力容器に戻す機材が準備されていた。

### 3.2.5 臨界管理の終了（文献 2）

#### (1) 燃料デブリ取出しの完了

「不意の臨界の可能性を排除できる」まで燃料デブリを取出すこと、及び原子炉圧力容器と原子炉冷却設備から「合理的に達成可能な範囲」で燃料デブリを取出すことが主要な要求であった。この要求に対して、燃料デブリ取出しの目的は以下のとおり設定された。

1. 技術的に現実的な方法で合理的に近づける全ての燃料デブリを取出す。
2. 潜在的に臨界となる可能性が無いことを確認するのに十分な燃料デブリを、近づき易さや困難さにかかわらず、取出す。
3. 現実的な方法では合理的に近づけず、かつ、公衆の健康と安全に対する有意な影響が無いと判断される残存燃料デブリは、そのまま残されてよい。

#### (2) 残存する燃料デブリの調査

燃料デブリ取出し作業は、補助・燃料取扱建屋、原子炉建屋、原子炉冷却設備、原子炉圧力容器において行われた。質量の定量の可否は別にして、放射線検出器等により燃料デブリの存在が確認されたため、洗浄等の作業が行われた場所を含む。

その後、それぞれの場所において、改めて、計測器による測定、目視検査、サンプル採取・分析など、残存する燃料デブリの調査が行われた。その結果、残存する質量は以下に示す値と評価された。

・ 補助・燃料取扱建屋	< 17 kg
・ 原子炉建屋（原子炉冷却設備を除く）	< 75 kg
・ 原子炉冷却設備（原子炉圧力容器を除く）	< 133 kg
・ 原子炉圧力容器	< 900 kg

### (3) 残存燃料デブリの臨界評価

残存する燃料デブリの質量制限値 (SFML : Safe Fuel Mass Limit) は 140 kg と決定された。これは、燃料デブリ取出し作業を通じて得られた燃料デブリ性状の知見から、残存する燃料デブリの性状を推定し、保守的な仮定を置いて導かれた値である。具体的には、TMI-2 燃料デブリの燃焼度クレジットを含む平均的な性状、不純物を無視、ホウ素を含まない水と最適減速条件での混合、十分な厚さの水反射体の存在を仮定している。

したがって、補助・燃料取扱建屋、原子炉建屋及び原子炉冷却設備においては臨界の可能性は無いと結論された。

原子炉圧力容器については、調査で判明している内部の燃料デブリ分布を詳細に再現し、燃料デブリ量を大幅に加味する等の安全裕度を組み込んだ臨界評価モデルが策定された。ホウ素を含まない水で満たされた条件に対して、臨界解析コードで増倍率を計算したところ、その結果は、不確かさを加えても 0.983 で、判定値 0.99 を下回った。

異常時の評価として、原子炉圧力容器内に分布した燃料デブリが一箇所に集まる事態を想定した評価も行われた。そもそも、原子炉圧力容器内で強固に固着して取出せない燃料デブリであるので、分布が変化することは考えにくい。その上での想定として、構造材や制御材を不純物として含む現実的な燃料デブリ性状がモデル化された。最適減速条件においても臨界解析コードによる無限増倍率の計算結果は 0.99 を下回った。

したがって、原子炉圧力容器においても臨界の可能性は無いと結論づけられた。

### (4) 原子力規制委員会 NRC の了承

NRC は、燃料デブリ取出しが進捗しつつある 1988 年に、TMI-2 における臨界管理の大枠 (Mode) を以下のとおり定めた。

**Mode 1** 炉 (燃料デブリ) は冷却水平均温度 200 °F 未満の状態でも未臨界でなければならない。

**Mode 2** a. 原子炉圧力容器及び原子炉冷却設備において合理的に達成可能な範囲で燃料デブリが取出されていること。 b. 原子炉建屋における臨界の可能性が無いこと。 c. 燃料デブリを内蔵した容器が原子炉建屋に無いこと。

**Mode 3** Mode 2 に適合し、かつ、燃料デブリを内蔵した容器が TMI-2 敷地内に無いこと。

本節 (2) と (3) は、GPU が、燃料デブリの取出しが完了し Mode 1 から Mode 2 へ移行できると評価し、NRC に対して文書 (文献 2) で示した内容の概要である。NRC は 1990 年にこれを了承し、臨界監視に係る米国家令 10 CFR 70.24 の適用を解除した。

### 調査文献

- [1] W. R. STRATTON, "Review of the State of Criticality of the Three Mile Island Unit 2 Core and Reactor Vessel," DOE/NCT-01, Lawrence Livermore National Laboratory (1987).
- [2] GPU Nuclear Corporation, "Three Mile Island Nuclear Station Unit 2 Defueling Completion Report, Revision 4," Middletown, PA: GPU Nuclear Corporation (1990).
- [3] J. R. Wolf, et al., "TMI-2 Vessel Investigation Project Integration Report," NUREG/CR 6197 TMI V(93)EG10 EGG-2734 (1994).
- [4] D. S. Williams, et al., "An Overview of Nuclear Criticality Safety Analyses Performed to Support Three Mile Island Unit 2 Defueling," Nucl. Technol., vol.87, p.1134 (1989).

### 3.3 取出後の燃料デブリの未臨界担保

取出された燃料デブリは、図 3.2-1 に示すような 3 種類の容器に収納された。燃料容器 (FUEL CANISTER) は比較的大きなサイズの燃料デブリを収納するものである。燃料デブリは掴む、すくうなどの機械的な方法で取出され、燃料容器に直接投入された。ノックアウト容器 (KNOCKOUT CANISTER) は、燃料デブリの吸引回収装置に組み込んで用いられた。水流で吸い上げられた燃料デブリは回収装置を経由してノックアウト容器に入れられた。フィルター容器 (FILTER CANISTER) は水中に浮遊する細かい燃料デブリを回収・収納する目的の容器であり、水処理装置あるいは燃料デブリ回収装置の一部に組み込んで用いられた。

いずれの容器も、 $^{235}\text{U}$  濃縮度 3% の未照射のウラン酸化物と水が最適減速の状態に混合したもので満たしても、単一ユニットとして臨界を防止する設計となっている。この内容物の性状モデルは、TMI-2 燃料デブリ性状を全て包絡するものである。(文献 1、2)

これらの容器は外形が同一であり、プール水中の貯蔵ラックに混在して配列、保管された。また、輸送キャスクにも複数混載され、TMI-2 からアイダホ国立研究所へ輸送された。さらに、乾式貯蔵へ移行するため、乾燥処理装置に接続されて内部の水分が除去された。その後、乾式貯蔵キャスクに複数混載し、乾式貯蔵設備に収納され、現在に至っている。これらのキャスク、装置及び設備ともに、単一ユニットである燃料デブリ容器の配列に対して、複数ユニットの臨界管理が行われている。(文献 3~6)

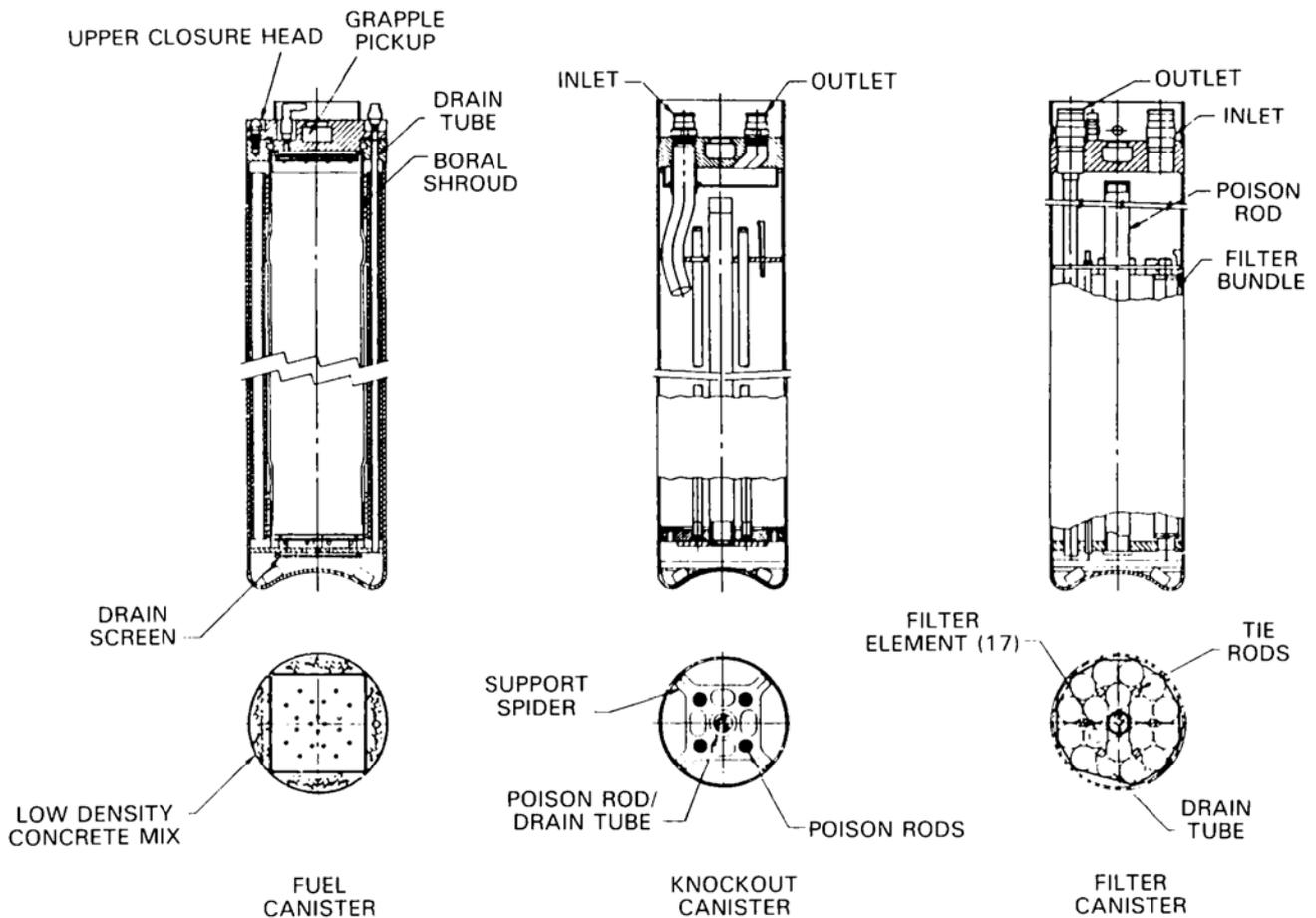


図 3.2-1 3 種類の TMI-2 燃料デブリ容器 (文献 4 より)

調査文献

- [1] D. S. Williams, et al., "An Overview of Nuclear Criticality Safety Analyses Performed to Support Three Mile Island Unit 2 Defueling," Nucl. Technol., vol.87, p.1134 (1989).
- [2] Babcock & Wilcox Company, "TMI-2 Defueling Canisters Final Design Technical Report," Document No. 77-1153937-04 (1985).
- [3] R. R. Jones, "Criticality Safety Evaluation for the TMI-2 Fuel Canister Storage Rack," SE-PB-85-25, EG&G Idaho (1985).
- [4] J. B. Briggs, "Preliminary Criticality Safety Calculations for the TMI-2 Canister Storage Cask", JBB-31-88, EG&G Idaho (1988).
- [5] R. R. Jones, "Independent Criticality Safety Evaluations for the TMIE-2 Dry Storage Cask," NRRT-N-89-005, EG&G Idaho (1989).
- [6] J. B. Briggs, "Criticality Safety Evaluation of the TMI-2 Dry Storage Cask and Canister Drying System," NRRT-N-89-009, EG&G Idaho (1989).



#### 4. 臨界解析コードを用いた臨界評価精度の検証方法



## 4.1 はじめに

原子炉のシビアアクシデントにおける炉心損傷・溶融の過程は制御されたものではなく、その結果生じる燃料デブリの組成、形状等の性状は不定である。このため、シビアアクシデント解析コードを用いた評価、観察、試料採取・分析等により燃料デブリ性状の把握に努め、臨界評価を行い、燃料デブリの冷却、回収等のシビアアクシデント後の対応を安全に進めなければならない。

燃料デブリの未臨界を担保できない状況では、適切なリスク評価が必要となり、燃料デブリの臨界評価精度の確認が重要な課題となる。「3. TMI-2 事故における燃料デブリの臨界管理」では、冷却水中の可溶性中性子毒物濃度を適切に設定・維持し、未臨界を担保した例を示した。この例では、毒物濃度設定に十分な安全裕度を持たせたことにより、臨界評価の精度は問題となっていない。しかし、毒物濃度を維持できない等の理由により未臨界を担保できない状況下では、臨界に近い状態の燃料デブリが見出される可能性があり、臨界評価精度の確認が重要となる。

燃料デブリは核燃料物質と様々な原子炉構造材料との混合物と考えられている。燃料デブリはその生成過程で圧力容器、制御棒駆動装置等と共に溶融し、鉄等の構造材を相当量含んでいると考えられる。また、溶融後に格納容器に落下した燃料デブリは、格納容器ペDESTALのコンクリートと溶融炉心コンクリート反応 (MCCI) を起こし、コンクリートと混合した状態となる可能性がある。これらの核燃料物質と構造材の混合物は、通常取扱われる核燃料物質と組成が異なる。

したがって、燃料デブリに係る臨界解析コードを用いた臨界評価精度を実験的に高精度で検証しなければならない。この検証には燃料デブリの臨界特性を良好に模擬した試料が必要となる。

本章では、この検証実験手法の予備的な検討として、まず、TMI-2 の燃料デブリ性状について情報を収集し、燃料デブリの特性のうち特に臨界性に影響が大きいものについて整理し、1F 事故で発生した燃料デブリ (1F デブリ) との違いについて検討した結果を紹介する。次に、燃料デブリの臨界特性を模擬した試料及びその調製方法の成立性を確認するため、酸化ウランと構造材 (鉄、ケイ素、ジルコニウム等) を混合したペレット (燃料デブリ模擬体) を試作し、焼結条件等、調製に必要な情報を取得した結果を示す。最後に、このような核燃料物質を含む試料を検証実験に供する際に必要となる実験用装荷物を試作し、検証実験手法を検討した結果を示す。

## 4.2 TMI-2 デブリ性状に係る文献調査

### 4.2.1 概要

燃料デブリ模擬体の組成を検討するためには、まず対象とする燃料デブリについて、臨界特性に影響の大きい特性に係る情報を得る必要がある。

1F 事故以前の代表的なシビアアクシデントに 1979 年の TMI-2 事故及び 1986 年のチェルノブイリ発電所 4 号機事故があるが、1F デブリの性状を検討するためには、同じ軽水炉の TMI-2 事故の燃料デブリ (TMI-2 デブリ) に関する情報を収集することが適切である。

本事業では、TMI-2 デブリに関する先行研究の文献を調査し、臨界特性に影響の大きいパラメータとして燃料デブリの形状・サイズ、組成及び空孔率について調査し、TMI-2 デブリと 1F デブリの類似点・相違点に着目して整理、燃料デブリ模擬体調製に参考となる知見を抽出した。

### 4.2.2 調査結果

文献調査の結果、燃料デブリに関連する文献を抽出し、燃料デブリ模擬体の調製に先立つ組成の検討に有用な情報を得ることができた。抽出した文献を本節末に調査文献一覧として示す。以下では、調査文献から得られた情報の概要及び燃料デブリ模擬体調製の参考にするべき知見について概説する。

### (1) 燃料デブリの形状・サイズ

軽水炉用燃料に由来する燃料デブリが臨界となるためには、減速材となる軽元素と混合されることが必要である。したがって、減速材と燃料デブリの混合物の減速材対燃料体積比や非均質性の検討に必要なパラメータである形状・サイズは臨界管理上重要な情報である。このため、TMI-2 の炉内状況を調査し、燃料デブリの形状及びサイズについて報告した文献を調査した。

TMI-2 の事故後の炉内状況については文献 1 及び 2 に詳しい。TMI-2 では炉心の大半が溶融して下方に移動し、溶融・再固化した巨大な燃料デブリの塊を作っている。塊は溶融した核燃料、制御棒、構造材の混合物であり、比較的損傷の少ないペレットも含む硬い「クラスト」で覆われている。塊状の燃料デブリの上方及び下方には破砕したペレット、制御棒、再固化して砕けたデブリ等からなる比較的サイズの小さい「ルースデブリ」が堆積している。事故前の炉心の組成から想定される燃料デブリ量は燃料である二酸化ウラン及び被覆材等を合計して約 133 トンであるが、塊状のデブリの量はその 4 分の 1 の約 33 トンと推定されている。

文献 3 では数  $\mu\text{m}$  から 1 cm 程度のデブリが報告されており、またコアボーリングで採取したサンプルを分析した文献 2 は、0.5 インチ (1.25 cm 程度) 未満の砂利のようなデブリを報告している。また同文献は、圧力容器底部に幅広いサイズのルースデブリが堆積しており、最大 6 インチ (15 cm 程度) のものが見られたことを報告している。その他文献 4 もデブリのサイズを報告しているが、 $\mu\text{m}$  オーダーから cm オーダーまで幅広いサイズのデブリを報告している。また、圧力容器外部へ流出したデブリを評価した文献 5 においては、一次冷却系の低温側配管から 1  $\mu\text{m}$  未満の沈殿物を採取したことを報告している。

### (2) 燃料デブリの組成

溶融・再固化した燃料デブリは、通常の核燃料とは違い、制御棒等の炉内の構造物、また圧力容器を貫通した場合は格納容器のコンクリートペDESTAL等の炉外の構造物を含むことも考えられる。炉内外の構造物と混合した結果、燃料デブリには、制御棒内の中性子吸収材 (カドミウム、ホウ素等) やバーナブルポイズン (ホウ素、ガドリニウム等)、鉄等の中性子を吸収する物質、コンクリートに含まれるケイ素等の軽元素が含まれている可能性がある。これらの元素による中性子の吸収、拡散、減速効果は燃料デブリの臨界特性に影響を及ぼすため、燃料デブリの組成は重要な情報である。

TMI-2 の燃料デブリの組成を分析した文献のうち文献 6 及び 7 は上部及び下部のルースデブリを分析し、それらが主にウラン、ジルコニウムの酸化物で構成されており、その結晶は、おそらく冷却速度の違いから、U リッチな相と Zr リッチな相に区別できることを報告している。文献 8 は、塊状のデブリのコアボーリングを分析した結果、金属相とセラミック相 (酸化物相) の 2 相を示すものがあることを見出し、生成条件によっては燃料デブリが金属と酸化物に分離している可能性があることを報告している。

また、TMI-2 にバーナブルポイズンとして含まれていたガドリニウムの挙動については、文献 9 に報告がある。TMI-2 に装荷されていた 177 体の燃料集合体のうちガドリニウムを含んでいたものは 4 体のみであり、ここから予想されるウラン量に対するガドリニウム量の比は 0.11 mg/gU 程度の少量であったが、分析したサンプルの 25% から平均 0.33 mg/gU の濃度で検出された。これは燃料デブリの溶融・再固化の過程でガドリニウムが一樣に分布せず、何らかのリロケーションを経て局在したことを示唆している。

### (3) 燃料デブリの空孔率について

燃料デブリ内に空孔がある場合、そこに水が侵入して中性子減速効果をもたらす可能性があるため、空孔率は臨界管理の観点から重要な要素である。燃料デブリの空孔率について分析した結果は文献 10 に詳しく、圧力容器下部から採取したルースデブリについて 9~31%、平均 27%、圧力容器の底部に付着していたデブリについて 5~41%、平均 18% の空孔の存在を報告している。また、燃料デブリの外観を観察した報告文献 11、6 にも、空孔率の言及はないが多孔質または空孔を持つデブリが採取されていることが報告され

ている。また、液浸法で燃料デブリの密度を測定した文献 8 では、測定された密度が理論から予測される密度より小さいことから、内部に空孔あるいは軽い物質が含まれていることを推測している。

#### 4.2.3 得られた知見

以上の調査結果から、1F 事故と TMI-2 事故の違いを考慮し、燃料デブリ模擬体を用いた実験手法の検討にあたって有用と考えられる知見を抽出した。結果を以下に示す。

##### (1) 代表性のあるサンプルの取得の困難が予想される

TMI-2 においては推定 133 トンの燃料デブリの質量の 4 分の 1 は巨大な塊となっている。一方、残りの 4 分の 3 はよりルースデブリとなり、炉心の上方から圧力容器底部まで各所に分散して存在している（文献 1）。サンプリングで採取された燃料デブリの組成を分析した結果、採取されたサンプルの代表性には疑問が呈されており（文献 9）、燃料デブリの組成が多様であること、サンプリングで採取した燃料デブリを通じてデブリ全体の組成を推定することが困難であることが示唆されている。1F 事故において燃料デブリは圧力容器貫通、MCCI 等 TMI-2 デブリよりも複雑な生成過程を経ていることから、燃料デブリの多様性は TMI-2 よりもさらに大きくなる可能性があり、代表性のあるサンプルの取得がより困難であることが予想される。燃料デブリ模擬体調製の際には、これらの不確かさを十分に考慮して組成を検討しなければならない。

##### (2) 幅広い減速条件及び非均質性の考慮が必要である

ルースデブリのサイズは  $\mu\text{m}$  のオーダーから  $\text{cm}$  サイズまで多様である（文献 2,3）。1F でもルースデブリが大量に生成されていることが考えられる。これらは減速材となる冷却水中に水没しており、また 1F 事故では MCCI が起きたことを考えるとルースデブリがコンクリート中に分散している可能性もある。このような場合、燃料デブリの形状・サイズにより減速材対燃料体積比や体系の非均質性は大きく異なることが考えられる。これらを踏まえ、幅広い減速条件でかつ非均質体系も考慮に入れた実験手法を検討する必要がある。

##### (3) 燃料デブリの不均一性の考慮が必要である

ルースデブリの組成を分析した結果、燃料デブリは冷却速度の違い等の原因で、場所により組成の違いがあることが報告されている（文献 6,7）。また、金属、酸化物が分離したサンプルも見出されている（文献 8）。燃料デブリ模擬体調製にあたっては、これらの不均一性も考慮に入れて組成を検討する必要がある。

##### (4) 燃料デブリの炉外流出の可能性はある

TMI-2 原子炉容器外のデブリの量を評価した結果、コールドレグまで  $\mu\text{m}$  サイズの燃料デブリの流出が確認された（文献 5）。1F においても圧力容器、格納容器外へ燃料デブリが流出している可能性が考えられるが、1F においてはさらに冷却水の流路の詳細が不明であるため、想定外の場所に流出している可能性が否定できない。このため、冷却材流路にスラリーを加えた体系の臨界性検討が必要となる可能性がある。

##### (5) ガドリニウム濃度の不確かさを考慮する必要がある

バーナブルポイズン由来の元素として TMI-2 デブリ中に含まれているガドリニウムは、ガドリニウムを含む燃料集合体の数から予想されるよりも多くのサンプルから検出された。また、その濃度は均一分布を仮定した濃度よりも大きかった（文献 9）。このことから、ガドリニウムを局在させる何らかのリロケーションメカニズムの存在が示唆されている。ガドリニウムは中性子吸収効果の大きい元素であることから、シビアアクシデント時におけるガドリニウムのリロケーションメカニズムを解明し、デブリ中に存在することが期待できるガドリニウム濃度を確定することは臨界管理の上で重要である。また、このことから、燃料デブリ模擬体にガドリニウムを添加する際には、炉内存在量から期待される濃度を越える幅広い添加量を考慮することが必要である。

(6) ホウ素濃度の不確かさを考慮する必要がある

ガドリニウムと同じくバーナブルポイズンとして TMI-2 の炉内に含まれているホウ素の炉内分布については、共存していたはずのアルミニウムの分析結果が報告された（文献 9）が、TMI-2 では冷却水にホウ素を添加したことから多くのデブリサンプルに冷却水由来のホウ素が検出され、バーナブルポイズン由来のホウ素の炉内分布は明確にならなかった。1F では  $B_4C$  制御棒が使用されていたことから燃料デブリが臨界管理上有意な量のホウ素を含有する可能性があるが、臨界管理のために考慮する場合にはサンプル採取及び分析を行い、炉内分布を明確にすることが必要である。その際にはサンプルの代表性について十分に検討されなくてはならない。

(7) 燃料デブリの空孔を考慮する必要がある

ルースデブリの分析結果から、デブリには空孔が存在することが明らかになった（文献 10）。また、塊状のデブリの内部にも空孔が存在する可能性が示された（文献 8）。このため、燃料デブリ模擬体を調製する際には、ペレットにジルコニウム、アルミニウム等の中性子反応断面積が小さい元素を添加し、空孔を含む燃料デブリを核的に模擬したサンプルを作成する必要があると考えられる。調製の際のデータとしては、本事業で調査した TMI-2 デブリの空孔率が参考になる。

#### 調査文献

- [1] W. C. Holton *et al.*, “The cleanup of Three Mile Island Unit 2: A technical history, 1979-1990,” EPRI NP-6931, Electric Power Research Institute (1990)
- [2] E. L. Tolman *et al.*, “TMI-2 core bore acquisition summary report,” EGG-TMI-7385, EG&G Idaho, Inc. (1986)
- [3] W. F. Pasedaga, “DOE's TMI-2 accident evaluation program,” *Proc. of Three Mile Island Reactor Pressure Vessel Investigation Project. Achievements and Significant Results*, BOSTON, 20-22 Oct. 1993, pp. 51-59 (1994)
- [4] G. Kalman *et al.*; “Progress in the recovery operations at Three Mile Island Unit 2: an update,” *Nuclear Safety*, **27**[1], pp. 69-84 (1986)
- [5] R. L. Patterson *et al.*, “Data acquisition methods used at TMI-2 [Three Mile Island Unit 2],” *Trans. of the American Nuclear Society*, **57**, pp. 492-493 (1988)
- [6] L. A. Neimark *et al.*, “The microstructural and microchemical characterization of samples from the TMI-2 core,” *the Fifteenth Water Reactor Safety Research Information Meeting*, Gaithersburg, Maryland, 26th-29th Oct. 1987 (1987)
- [7] R. V. Strain *et al.*, “Fuel relocation mechanism based on microstructures of debris,” *TMI-2 accident materials behavior, plant technology and recovery*, Washington, DC, 30 Oct. 1988 (1988)
- [8] J. Duco *et al.*, “TMI-2 core materials examination at CEA,” *Proc. of the American Nuclear Society Topical Meeting on the TMI-2 Accident*, Washington, DC, 31 Oct. - 4 Nov. 1988 (1989)
- [9] D. W. Akers *et al.*, “Core debris chemistry and fission product behavior,” American Chemical Society Symposium Series No. 293, ISBN 0-8412-0948-0, pp. 146-167 (1986)
- [10] D. W. Akers *et al.*, “Examination of relocated fuel debris adjacent to the lower head of the TMI-2 reactor vessel,” NUREG/CR-6195, U. S. Nuclear Regulatory Commission (1994)
- [11] G. R. Eidam, *et al.*, “Core damage,” *The Three Mile Island accident. Diagnosis and prognosis*, American Chemical Society Symposium Series No. 293, ISBN 0-8412-0948-0, pp. 87-107 (1986)

## 4.3 燃料デブリ模擬体の試作

### 4.3.1 目的

4.1 節で述べたように、原子炉のシビアアクシデントで発生する燃料デブリの組成の幅は広く、生成の過程によっては多様な構造材が含まれていることを想定しなくてはならない。それらの構造材には、例えば MCCI 反応によって含まれるコンクリート等、従来の臨界管理の対象となってきた核燃料物質には含まれていない物質も含まれる。

これらの燃料デブリに係る臨界解析コードを用いた臨界評価を実験的に検証するためには、燃料デブリ模擬体を調製する必要がある。本事業では、燃料デブリ模擬体を調製する設備の設計に資するため、燃料デブリ模擬体ペレットを試作し、その調製の成立性について検討した。なお、4.2 節による調査の結果、1F デブリは被覆管に由来するジルコニウムやコンクリートに由来するケイ素等を多量に含有する可能性があり、これらの核特性を模擬するため、U-Zr 混合系、U-Si 混合系、U-Zr-Fe-Ca 混合系のペレットを試作した。これらのペレットの試作を通じ、調製可能な構造材含有率の範囲、形状安定性、成型条件、焼結条件等のペレット調製が可能な条件について検討するとともに、試作したペレットを分析し、焼結体密度、焼結収縮率及び不純物等の臨界解析コードを検証するための実験に必要な基礎データを測定した。

### 4.3.2 試作ペレットの仕様

試作ペレットの仕様を以下に示す。また、ペレットの組成を表 4.3.2-1 に、調製手順を図 4.3.2-1 に示す。なお本節では、試料の No. は特に断りの無い限りロット No. を用いる。

焼結後ペレット寸法	: $\phi 8 \text{ mm} \times \text{H}10 \text{ mm}$ (目標値)
粉末粒径	: 125 $\mu\text{m}$ 以下
<sup>235</sup> U 濃縮度	: 劣化ウラン
組成	: 表 4.3.2-1 参照

表 4.3.2-1 試作ペレット組成表

ロット No.	wt% (各ペレットの金属成分組成)					
	U	Zr	Si	Fe	Ca	Al
No.1	44	56				
No.2	34	66				
No.3	23	77				
No.4	12	88				
No.5	88		12			
No.6	65		35			
No.7	32		68			
No.8	100					
No.9	0	100				
No.10	0		100			
No.11	55	28		9	9	
No.12	80					20
No.13	90	10				
No.14	75	25				
No.15	59	41				
No.16	43		57			
No.17	73		27			
No.18	94		6			
No.19	80		20			

注) 全ての組成は酸化物とする。

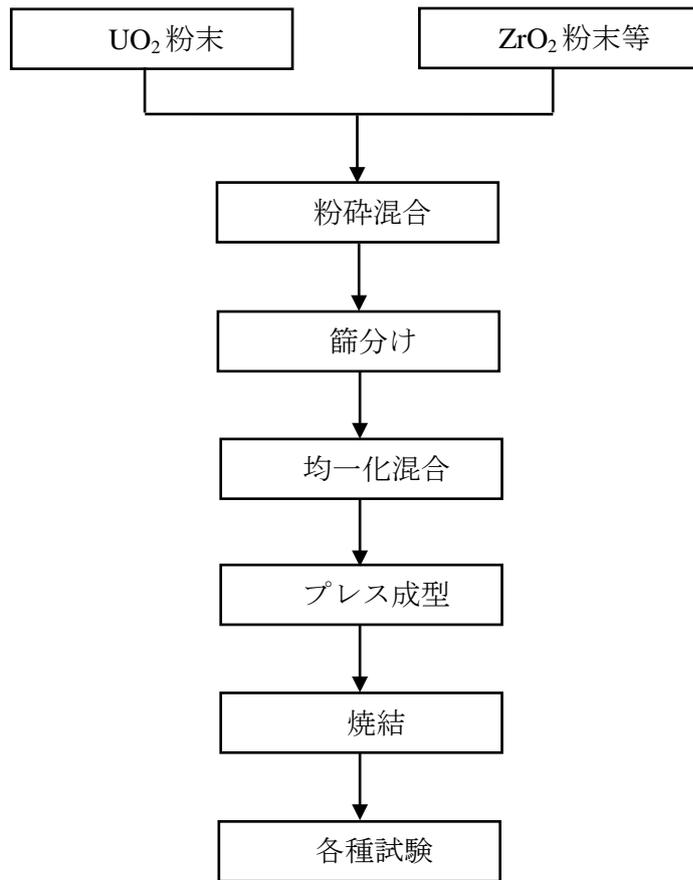


図 4.3.2-1 ペレット調製手順

#### 4.3.3 試作ペレットの検査項目

試作したペレットについて以下の検査を実施する。なお、(2)以降の検査は、(1)の検査結果が良好であった場合にのみ実施する。

##### (1) 外観検査及び形状安定性に係る検査

各サンプルについて、焼結後のペレットの外観を目視により著しい割れ、欠け、へこみ等がないことを確認する。また、片端に端栓を溶接した被覆管（内径 9.60 mm、長さ 400 mm：9×9BWR 被覆管相当）に、ペレット 1 個を挿入した後抜き取り、挿抜による形状の変化を目視により確認する。

##### (2) 荷重負荷試験

各サンプルについて、図 4.3.3-1 に示す試験治具によりペレットに対して静的に 1570 gf の軸方向荷重を 10 秒負荷した後、荷重を除去し試験前後のペレット外観の変化を確認する。

##### (3) 密度測定

各サンプルについて、焼結前後のペレットの寸法・重量をマイクロメータ、レーザー測長器及び電子天秤にて測定し、これらの測定値からペレットの密度を算出する。

##### (4) 焼結収縮率

(3)で得られたペレットの寸法より、焼結による径方向及び軸方向の収縮率を算出する。また、熱膨張計（TD：Thermo Dilatometer）を用いて、ペレット各 1 個の軸方向の収縮率の温度依存性データを取得する。

##### (5) 不純物分析

焼結後のペレットを分析し、ペレットに含まれる不純物の量を測定する。測定した元素及び測定方法を以下に示す。

- 炭素　：高周波加熱－赤外線吸収法
- 窒素　：瞬間融解－熱伝導度法
- 水素　：瞬間加熱－熱伝導度法

##### (6) 焼結中の重量変化

混合後粉末各 1 試料について、示差熱重量分析（TG-DTA：Thermogravimetry - Differential thermal analysis）による重量変化の温度依存性データを取得する。

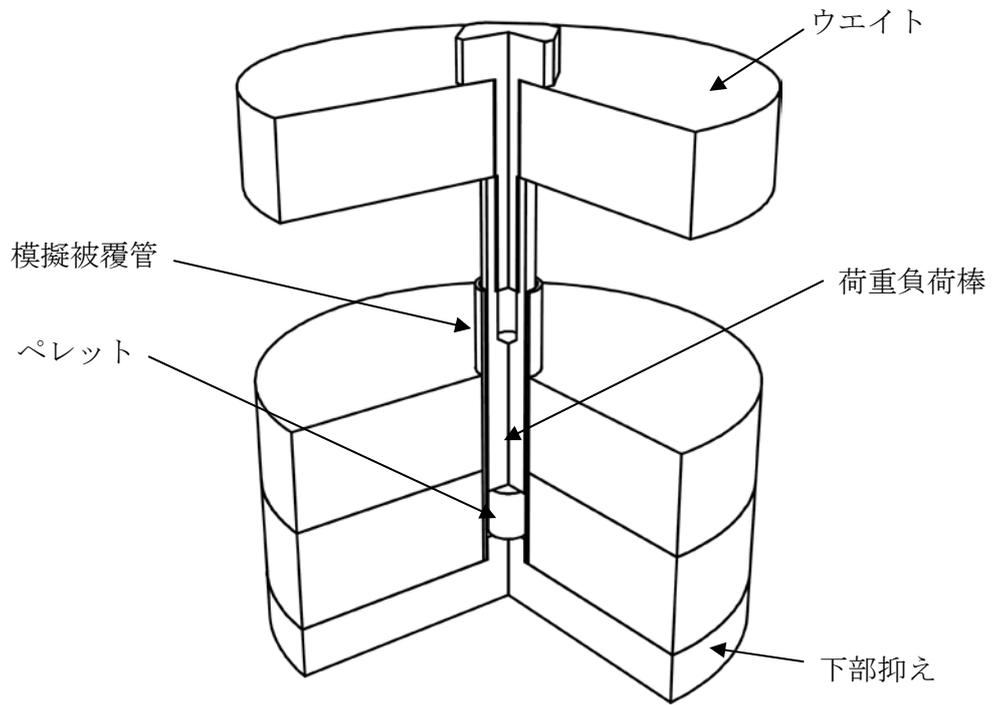


図 4.3.3-1 荷重負荷試験の試験治具（部分断面図）

#### 4.3.4 試作及び検査結果

##### 4.3.4.1 試作結果

図 4.3.2-1 の手順に基づく詳細な調製条件を以下に示す。

##### (1) 粉末混合

原料となるウラン粉末 ( $\text{UO}_2$  粉末) とジルコニア粉末 ( $\text{ZrO}_2$  粉末) 等の金属酸化物の必要量を秤量し、遊星ボールミル (フリッチュ・ジャパン社製プレミアムライン P-7) により粉碎混合後、目開き  $125\ \mu\text{m}$  の篩により篩分けをし、混合機 (筒井理化学器械社製ミクロ形混合機 S-1 形) により均一化混合 (6 rpm、15 分) した。混合後の粉末の一部は、焼結中の重量変化の測定 (第 4.3.4.7 節) に供した。粉碎混合条件の詳細を以下に記す。

粉碎混合条件：

型式	：フリッチュ・ジャパン社製プレミアムライン P-7
粉碎容器	：ジルコニア内張り (80 cc)
粉碎ボール	：ジルコニアボール ( $\phi 10\ \text{mm}$ 、30 個)
回転数 (公転)	：400 rpm (粉碎容器の回転数：800 rpm)
混合時間	：3 分 (30 秒ごとに公転方向を反転)

##### (2) プレス成型

前項にて混合した粉末を使用して、以下に示す 2 種類の形状のペレットを成型した。

##### ① 試作ペレット

混合した粉末を約 3~5g 採取し、焼結後ペレット寸法が  $\phi 8\ \text{mm} \times \text{H}10\ \text{mm}$  となるように、以下に示すプレス条件によりグリーンペレットを成型した。

ダイス内径	： $\phi 9.97\ \text{mm}$
プレス圧力	：1.6~5.0 MPa
加圧時間	：3 秒
充填深さ	：30~45 mm (グリーンペレット高さ 12 mm を目標とする)

##### ② 熱膨張計 (TD) 試験用ペレット

混合した粉末を約 2g 採取し、以下に示すプレス条件によりグリーンペレットを成型した。なおプレス条件は、試作ペレットと同等の密度となるように調整した。

ダイス内径	： $\phi 6.37\ \text{mm}$
プレス圧力	：1.6~1.8 MPa
加圧時間	：3 秒
充填深さ	：40~42 mm (グリーンペレット高さ 11 mm を目標とする)

##### (3) 焼結

成型後のグリーンペレットを 2 バッチに分け、 $\text{Ar-H}_2$  混合ガス雰囲気での焼結炉 (大亜真空社製) にて  $1650^\circ\text{C}$  まで昇温し、4 時間程度保持することで焼結した。温度プロファイルを図 4.3.4.1-1 に示す。温度プロファイルの詳細は以下のとおりである。

昇温① (室温~ $800^\circ\text{C}$ )	： $4^\circ\text{C}/\text{min}$ (目標値) ※
昇温② ( $800^\circ\text{C}$ ~ $1650^\circ\text{C}$ )	： $7^\circ\text{C}/\text{min}$ (目標値)
焼結キープ ( $1650^\circ\text{C}$ )	：4 時間キープ
降温① ( $1650^\circ\text{C}$ ~ $500^\circ\text{C}$ )	： $10^\circ\text{C}/\text{min}$ (目標値)
降温② ( $500^\circ\text{C}$ ~室温)	：炉冷 (自然冷却)

※添加剤 (ステアリン酸亜鉛) の昇華、及び  $\text{U}_3\text{O}_8$  を  $\text{UO}_2$  に還元するために緩やかな昇温とする。

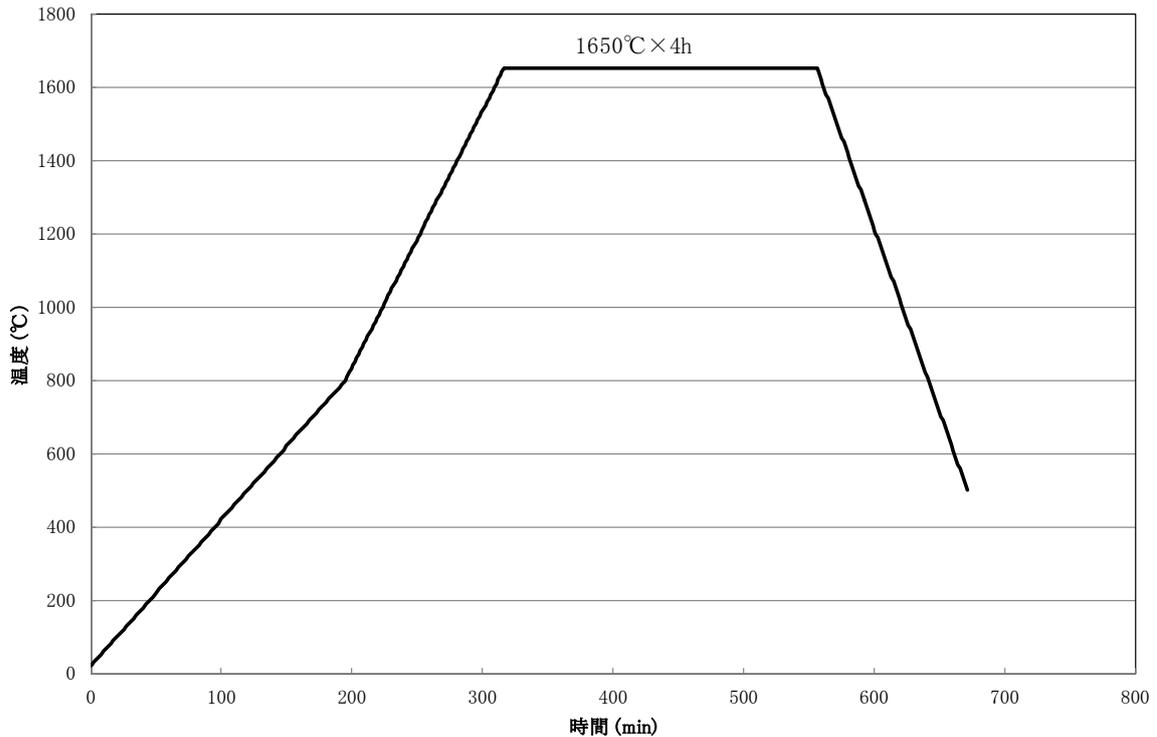


図 4.3.4.1-1 温度プロファイル

ペレット調製におけるプレス成型作業の状況写真を図 4.3.4.1-2 に、各バッチの焼結前後でのペレット配置状況等を図 4.3.4.1-3,4 に示す。また、調製したペレットの一覧を表 4.3.4.1-1 に示す。

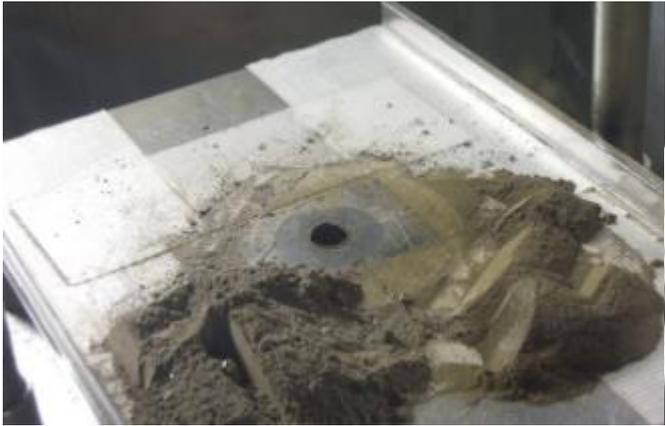
表 4.3.4.1-1 に示すように、試料 No.7(U32:Si68), No.10(Si100), No.16(U43:Si57)については、プレス条件を調整しても成型することができなかった。試料 No.6(U65:Si35)では成型可能、試料 No.16(U43:Si57)では成型不可であることから、今回の粉末混合条件及び成型条件においては、Si 添加量 35wt%～57 wt%の間に成型可能範囲の閾値が存在すると考えられる。また、成型できた U-Si 系統試料においてもグリーンペレット状態での成型性が低く、落下等で破損してしまう試料が見られたが、大きく破損した試料は見られなかった。

図 4.3.4.1-5 に金属酸化物単体 (ZrO<sub>2</sub> 粉末、SiO<sub>2</sub> 粉末) の SEM 観察結果を示す。ZrO<sub>2</sub> 粉末では、1μm 以下の微細な一次粒子が凝集し数十μm オーダーの二次粒子を形成しているのに対し、SiO<sub>2</sub> 粉末では、100μm 程度の一次粒子であることが確認された。Si100% 試料 (No.10) では成型できなかったのに対し、Zr100% 試料 (No.9) では成型可能であったことから、このような粉末性状がペレットの成型性に影響を与えたものと考えられる。

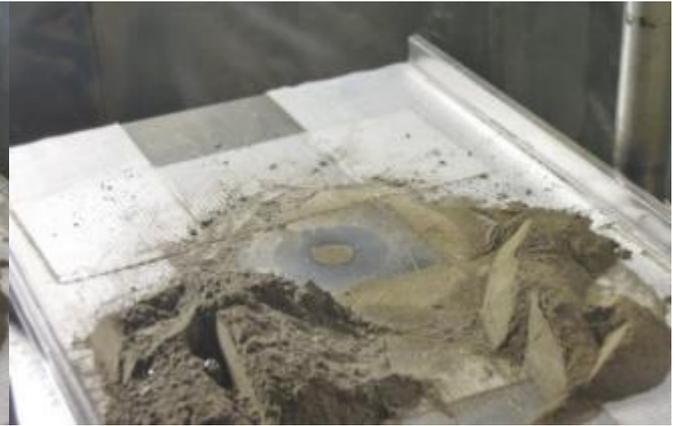
以上より、本試作試験において成型ができなかった高濃度側の U-Si 系統の組成に関しては、造粒粉の採用といった粉末特性 (粒度、流動特性、粉碎混合条件) の最適化が必要と考えられる。

表 4.3.4.1-1 ペレット調製結果一覧 (プレス後)

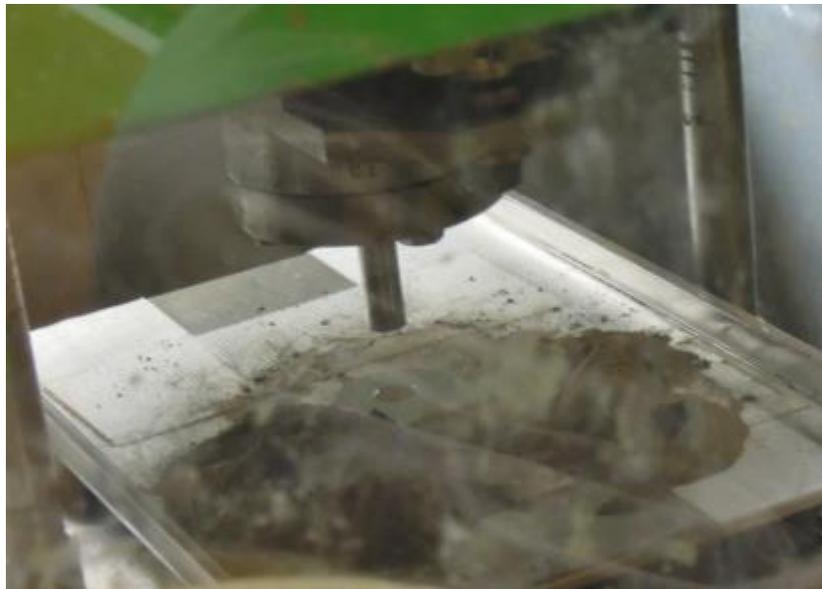
ロットNo.	各ペレットの金属成分組成 (wt%)						ダイス内径 (mm)	プレス圧力 (Mpa)	加圧時間 (秒)	充填深さ (mm)	焼結 ハッチ	備考
	U	Zr	Si	Fe	Ca	Al						
1	44	56					9.97	1.8	3	35	1	
2	34	66					9.97	1.8	3	41	1	
3	23	77					9.97	2.0	3	45	1	
4	12	88					9.97	2.0	3	42	1	
5	88		12				9.97	1.6	3	40	1	
6	65		35				9.97	3.7	3	30	1	
7	32		68				-	-	-	-	-	プレス成型出来ず
8	100						9.97	2.0	3	32	1	
9		100					9.97	1.8	3	34	1	
10			100				-	-	-	-	-	プレス成型出来ず
11	55	28		9	9		9.97	2.0	3	40	1	
12	80					20	9.97	3.8	3	43	2	
13	90	10					9.97	2.0	3	40	2	
14	75	25					9.97	3.2	3	40	2	
15	59	41					9.97	5.0	3	40	2	
16	43		57				-	-	-	-	-	プレス成型出来ず
17	73		27				9.97	5.0	3	35	2	
18	94		6				9.97	5.0	3	45	2	
19	80		20				9.97	5.0	3	41	2	



粉末充填前



粉末充填状況



プレス状況



プレス後



グリーンペレット取出し

図 4.3.4.1-2 プレス成型作業状況

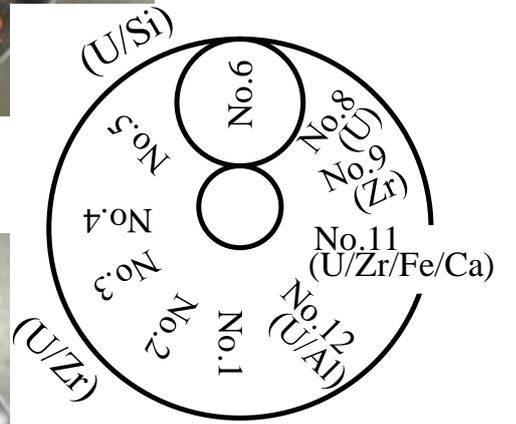
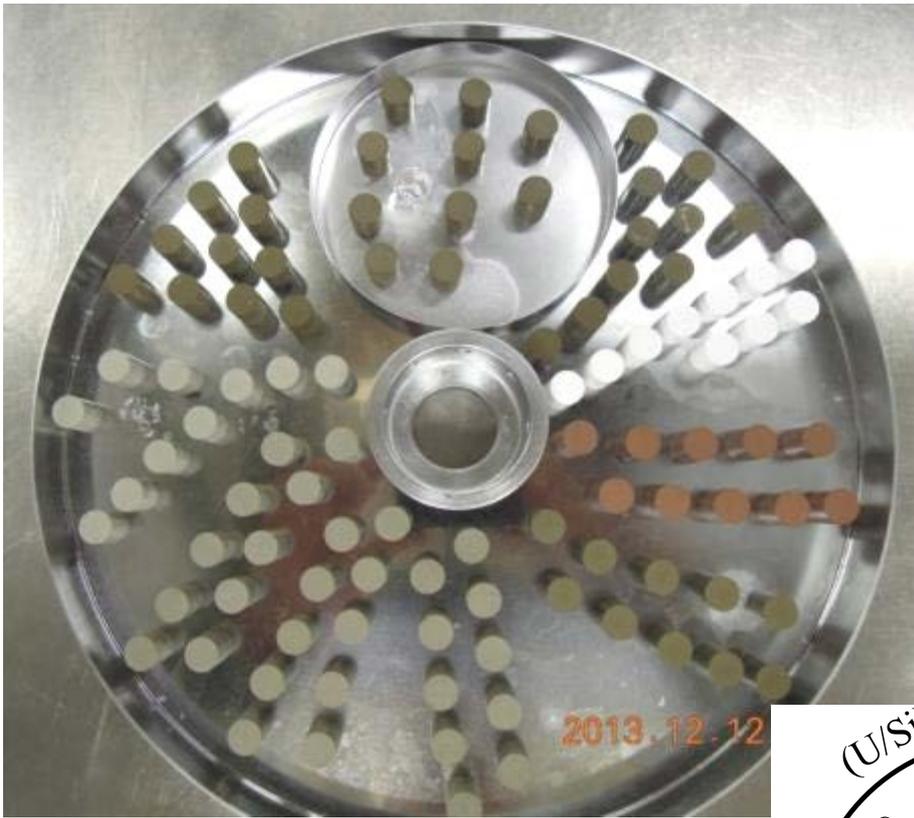


図 4.3.4.1-3 焼結第 1 バッチ熱処理時の外観（上：焼結前、下：焼結後）

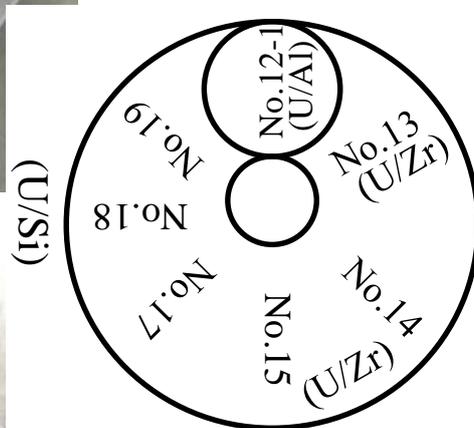
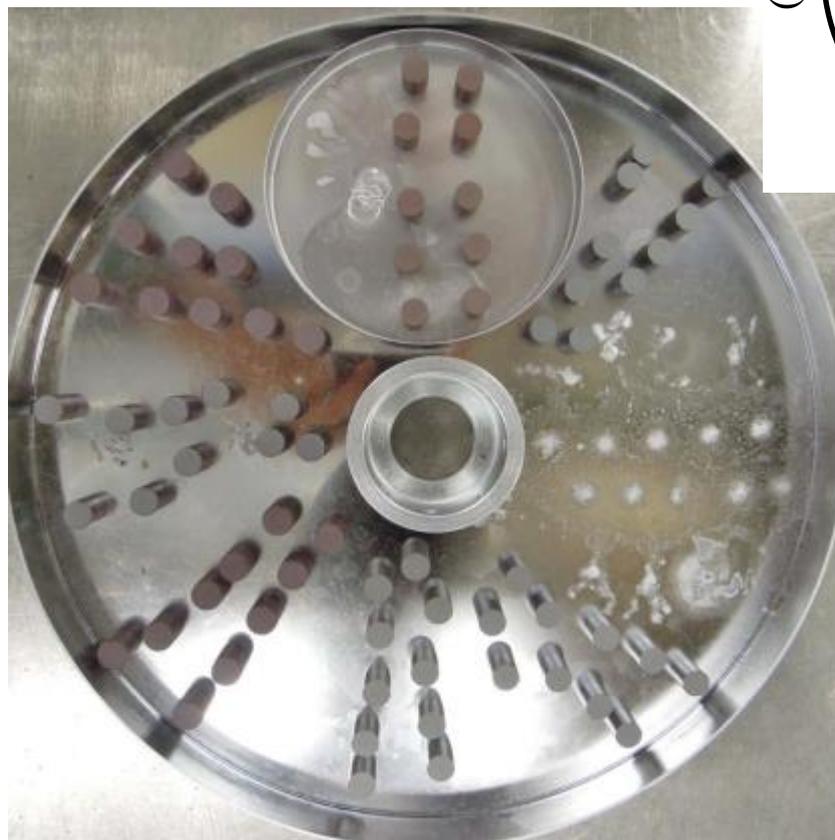
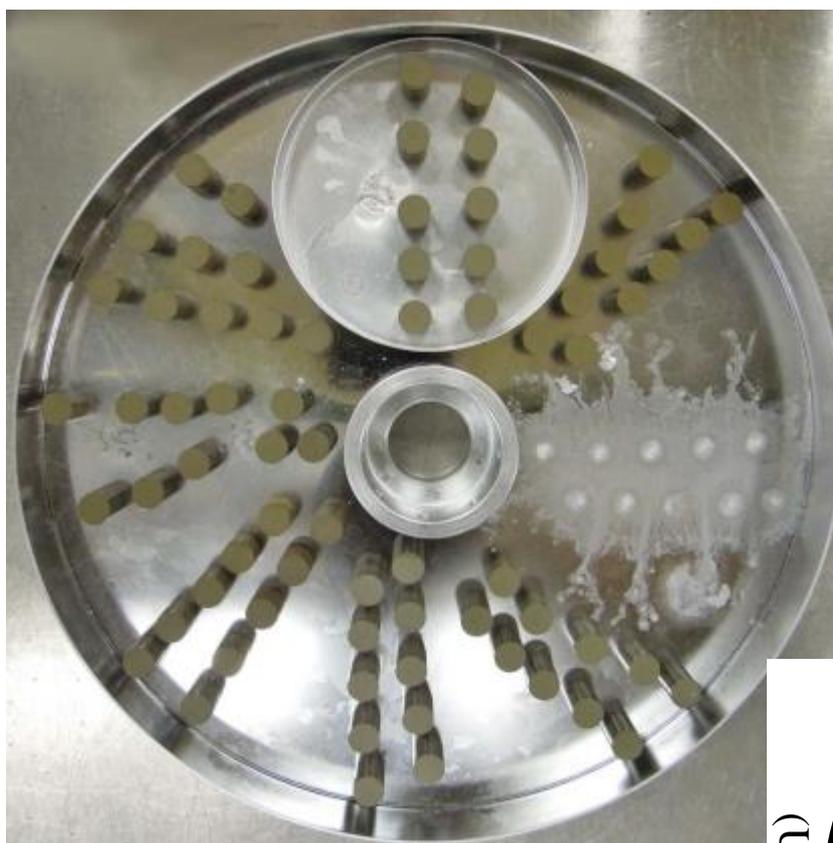
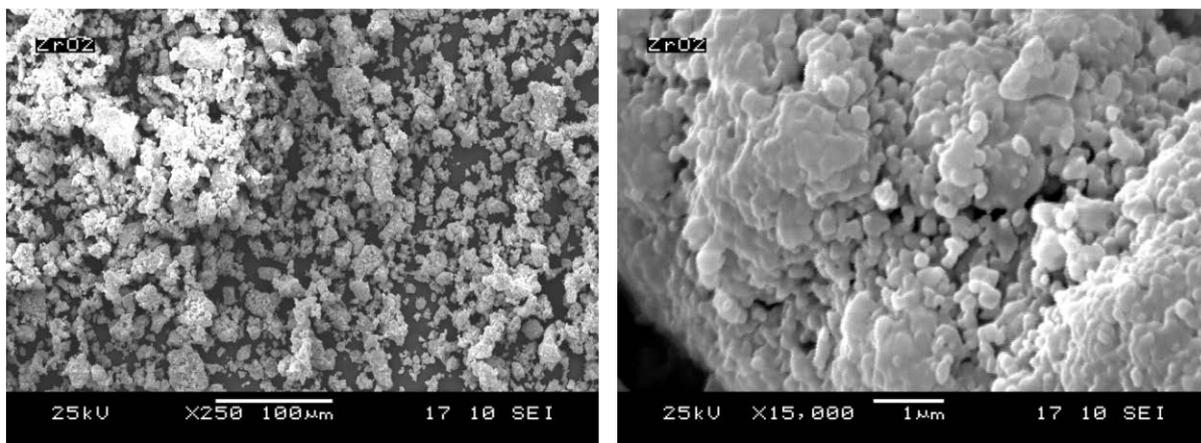
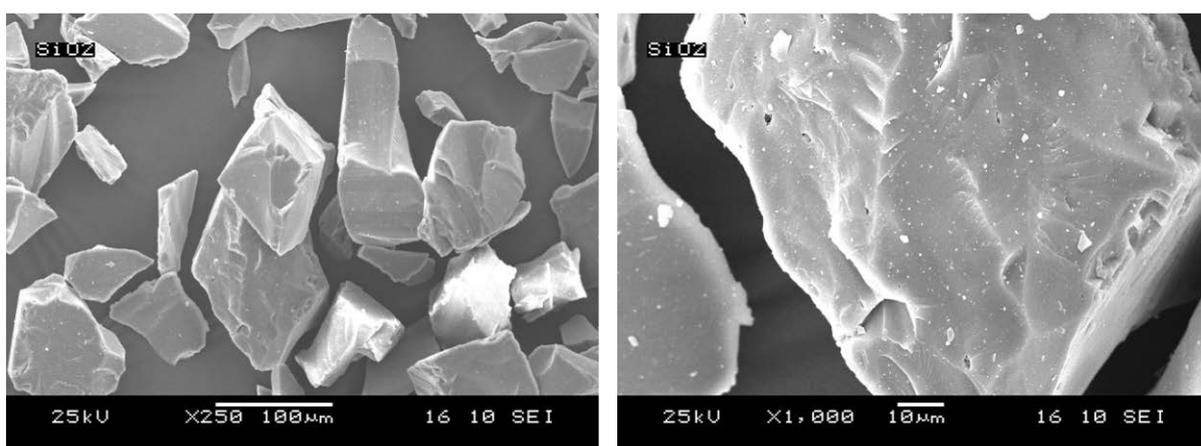


図 4.3.4.1-4 焼結第 2 バッチ熱処理時の外観（上：焼結前、下：焼結後）



(1)ZrO<sub>2</sub>粉末 (左 : 250 倍、右 : 15,000 倍)



(2)SiO<sub>2</sub>粉末 (左 : 250 倍、右 : 1,000 倍)

図 4.3.4.1-5 金属酸化物単体のSEM像

#### 4.3.4.2 外観検査及び形状安定性に係る検査

##### (1) 外観検査

焼結後ペレットの外観を目視により確認した結果、U-Si 系統ペレットには表面の微細なへこみ及びふくれによるざらつき（肌アレ）やヒビ等が見られたが、試験に供することができないレベルでは無かった。

##### (2) 被覆管挿入試験

形状安定性に係る検査として、ペレット取扱い時に破損することなく形状が保たれることを確認するため、被覆管挿入試験を実施した。試験においては、片端の端栓を溶接した被覆管（内径 9.596 mm(実測値)、長さ 400 mm：9×9BWR 被覆管相当）に、ペレット各 1 個を挿入し、抜き取り後の外観を確認した。

被覆管挿入試験の結果を表 4.3.4.2-1 に、被覆管挿入試験状況を図 4.3.4.2-1 に示す。

Si 系統試料（No.6(U65:Si35)及び No.17(U73:Si27)）においては、被覆管に挿入できたものの、肌アレ等の影響によるペレットと被覆管内面の摩擦のため自重で移動せず、端栓部まで挿入できなかった。

被覆管挿入試験前後での外観については、試験前ペレット外面にヒビが確認されたものもあったが、試験の結果、特に変化は見られなかった。

表 4.3.4.2-1 被覆管挿入試験結果

ロットNo.	各ペレットの金属成分組成 (wt%)						被覆管挿入試験結果	備考
	U	Zr	Si	Fe	Ca	Al		
1	44	56					試験前後で変化無し	
2	34	66					試験前後で変化無し	
3	23	77					試験前後で変化無し	
4	12	88					試験前後で変化無し	
5	88		12				試験前後で変化無し	
6	65		35				試験前後で変化無し ※1	
7	32		68				—	プレス成型出来ず
8	100						試験前後で変化無し	
9		100					試験前後で変化無し	
10			100				—	プレス成型出来ず
11	55	28		9	9		試験前後で変化無し	
12	80					20	試験前後で変化無し	
13	90	10					試験前後で変化無し	
14	75	25					試験前後で変化無し	
15	59	41					試験前後で変化無し	
16	43		57				—	プレス成型出来ず
17	73		27				試験前後で変化無し ※1	
18	94		6				試験前後で変化無し	
19	80		20				試験前後で変化無し	

※1 ペレット外径が被覆管内径に対して大きかったため、端栓部までは到達しない状態で挿入・抜き取りを実施



(試験用被覆管 (内径 9.596 mm、長さ 400 mm : 9×9BWR 被覆管相当品))



(上 : 挿入状況、下 : 取出し状況)

図 4.3.4.2-1 被覆管挿入試験状況

#### 4.3.4.3 荷重負荷試験

試験治具により焼結後ペレット各 1 個に対して静的に 1570 gf の軸方向荷重を 10 秒負荷した後、荷重を除去してペレットにおける試験前後での変化を観察した。荷重負荷試験の結果を表 4.3.4.3-1 に、荷重負荷試験状況を図 4.3.4.3-1 に示す。

荷重負荷試験により外観が変化した試料は見られなかった。なお、一部試料においては、試験前ペレット外面にヒビが確認されたものもあったが、試験の結果、特に変化は見られなかった。

表 4.3.4.3-1 荷重負荷試験結果

ロットNo.	サンプル No.	各ペレットの金属成分組成 (wt%)						荷重負荷試験結果	備考
		U	Zr	Si	Fe	Ca	Al		
1	7	44	56					試験前後で変化無し	
2	8	34	66					試験前後で変化無し	
3	9	23	77					試験前後で変化無し	
4	10	12	88					試験前後で変化無し	
5	13	88		12				試験前後で変化無し	
6	14	65		35				試験前後で変化無し	
7	17	32		68				-	プレス成型出来ず
8	1	100						試験前後で変化無し	
9	11		100					試験前後で変化無し	
10	19			100				-	プレス成型出来ず
11	2	55	28		9	9		試験前後で変化無し	
12	3	80					20	試験前後で変化無し	
13	4	90	10					試験前後で変化無し	
14	5	75	25					試験前後で変化無し	
15	6	59	41					試験前後で変化無し	
16	12	43		57				-	プレス成型出来ず
17	15	73		27				試験前後で変化無し	
18	16	94		6				試験前後で変化無し	
19	18	80		20				試験前後で変化無し	



ペレット配置



模擬被覆管取り付け

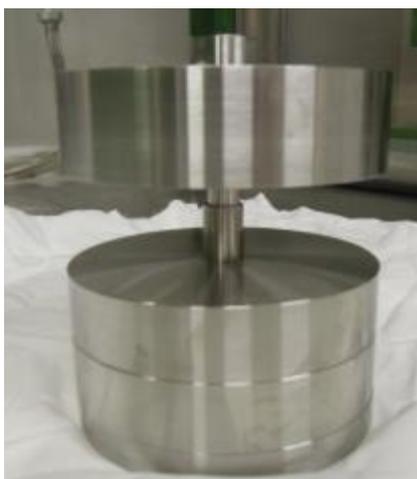


被覆管抑え取り付け



(左)試料部

(右)ウエイト(1570g)



試験状況

図 4.3.4.3-1 荷重負荷試験状況

#### 4.3.4.4 密度測定

焼結前後のペレット各 10 個について、高さをマイクロメータ、外径をレーザー測長器、また重量を電子天秤で測定し、それぞれの測定値を用いて密度を算出した。

プレス後のグリーンペレットの密度測定結果を表 4.3.4.4-1 (平均値) に示す。同様のプレス条件であっても、各ペレットの金属成分の組成により、密度の値が異なっていることが分かる (例えば、No.8 の U:100 wt% では  $5.34 \text{ g/cm}^3$  であるが、No.4 の U:12 wt%, Zr:88 wt% では  $3.83 \text{ g/cm}^3$ )。また、U-Zr 系統試料で比較すると、Zr 濃度が増えるとともに密度が低くなっていることが分かる。この傾向は U-Si 系でも同様であり、組成と共に密度の最適化が必要であることが分かる。また、プレスにおいては全組成とも同一の金型を使用しているため、グリーンペレットの外径はほぼ同じ値である。

焼結後のペレットの密度測定結果を表 4.3.4.4-2 (平均値) に示す。焼結後の外径及び高さは  $\phi 8 \text{ mm} \times \text{H}10 \text{ mm}$  を目標値としていたが、各ペレットの組成により大きく異なることが分かる。

上記の結果より、以下のことが言える。

- ① 目的とするペレットの外径を最適化するには、金型の径及びプレス圧力の調整が必要
- ② 目的とするペレットの高さを最適化するには、金型への粉末充填量 (本試験では充填深さ) 及びプレス圧力の調整が必要

表 4.3.4.4-1 ペレット密度測定結果一覧（プレス後）

ロットNo.	各ペレットの金属成分組成 (wt%)							プレス圧力 (Mpa)	充填深さ (mm)	平均外径 (mm)	平均高さ (mm)	平均密度 (g/cm <sup>3</sup> )	備考
	U	Zr	Si	Fe	Ca	Al							
1	44	56					1.8	35	10.069	11.958	4.31		
2	34	66					1.8	41	10.071	12.063	4.11		
3	23	77					2.0	45	10.065	12.706	3.99		
4	12	88					2.0	42	10.072	12.161	3.83		
5	88		12				1.6	40	10.114	12.614	4.16		
6	65		35				3.7	30	10.307	11.115	3.02		
7	32		68				-	-	-	-	-	プレス成型出来ず	
8	100						2.0	32	10.086	12.019	5.34		
9		100					1.8	34	10.090	12.234	3.49		
10			100				-	-	-	-	-	プレス成型出来ず	
11	55	28		9	9		2.0	40	10.064	12.000	3.89		
12	80					20	3.8	43	10.068	12.343	4.12		
13	90	10					2.0	40	10.064	12.227	5.27		
14	75	25					3.2	40	10.070	12.018	5.23		
15	59	41					5.0	40	10.069	12.000	5.05		
16	43		57				-	-	-	-	-	プレス成型出来ず	
17	73		27				5.0	35	10.286	11.563	3.39		
18	94		6				5.0	45	10.101	11.974	5.18		
19	80		20				5.0	41	10.255	12.345	3.78		

表 4.3.4.4-2 ペレット密度測定結果一覧 (焼結後)

ロットNo.	各ペレットの金属成分組成 (wt%)						焼結 ハッチ	平均外径 (mm)	平均高さ (mm)	平均密度 (g/cm <sup>3</sup> )	径方向収縮率 (%)	軸方向収縮率 (%)	備考
	U	Zr	Si	Fe	Ca	Al							
1	44	56					1	8.749	10.691	6.32	86.9	89.4	
2	34	66					1	8.976	11.076	5.59	89.1	91.8	
3	23	77					1	9.008	11.765	5.35	89.5	92.6	
4	12	88					1	9.069	11.318	5.05	90.0	93.1	
5	88		12				1	8.845	11.207	5.88	87.5	88.8	
6	65		35				1	9.461	10.526	3.54	91.8	94.7	
7	32		68					-	-	-	-	-	プレス成型出来ず
8	100						1	8.007	9.572	10.43	79.4	79.6	
9		100					1	8.922	11.153	4.88	88.4	91.2	
10			100					-	-	-	-	-	プレス成型出来ず
11	55	28		9			1	9.217	11.090	4.75	91.6	92.4	
12	80				20		2	8.300	10.328	7.12	82.4	83.7	
13	90	10					2	8.258	10.047	9.37	82.1	82.2	
14	75	25					2	8.537	10.270	8.39	84.8	85.5	
15	59	41					2	8.739	10.652	7.46	86.8	88.8	
16	43		57					-	-	-	-	-	プレス成型出来ず
17	73		27				2	9.445	10.912	4.03	91.8	94.4	
18	94		6				2	8.844	10.816	7.22	87.6	90.3	
19	80		20				2	9.344	11.566	4.65	91.1	93.7	

#### 4.3.4.5 焼結収縮率

##### (1) 試験方法

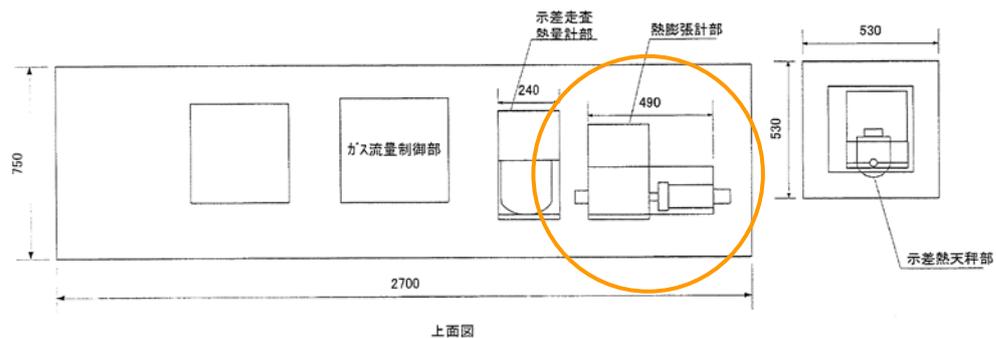
###### ①焼結収縮率の測定装置について

収縮特性は、熱物性測定装置に組み込まれた熱膨張計（TD：Thermo Dilatometer）を用いて行った。熱膨張計の配置と外観を図 4.3.4.5-1 に、原理図等を図 4.3.4.5-2 に示す。

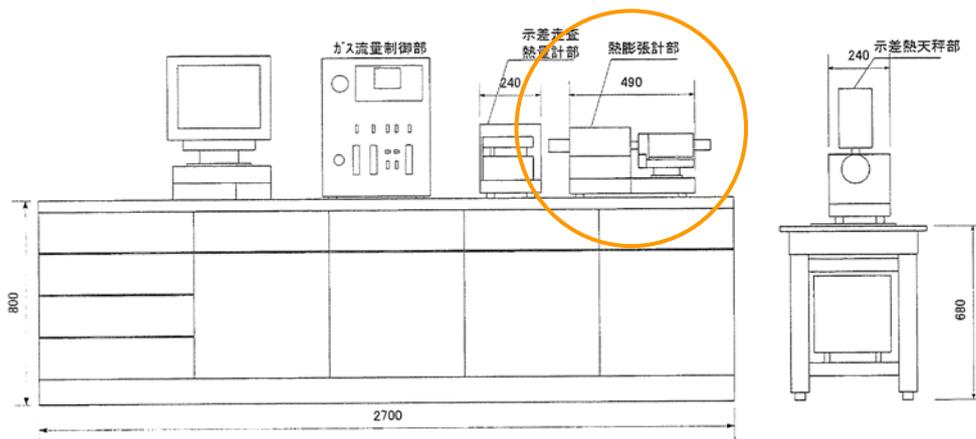
本装置により、熱膨張によるペレットの高さ方向の寸法変化量（DLT）を測定する。DLT は標準試料との差異であるので標準試料補正を行う。なお、通常標準試料は、熱による寸法変化が少ない焼結済みのアルミナ試料を用いるため、補正前後での量的変化は極僅かである。

###### ②TD 試験条件について

本試験の標準試料はアルミナ標準試料を用い、標準試料側に約 20 mm のアルミナ標準試料をセットし、試料側には約 10 mm の標準試料と測定試料約 11 mm をセットした（図 4.3.4.5-2（下写真）参照）。検出棒へ負荷する荷重は 50 gf、昇温時の雰囲気は Ar+4.3% $H_2$  とし、加湿は実施していない。試験温度は 1650 °C まで昇温後、4 時間キープとした（図 4.3.4.1-1 参照）。



上面図



立面図

機器名称	熱物性測定装置
------	---------

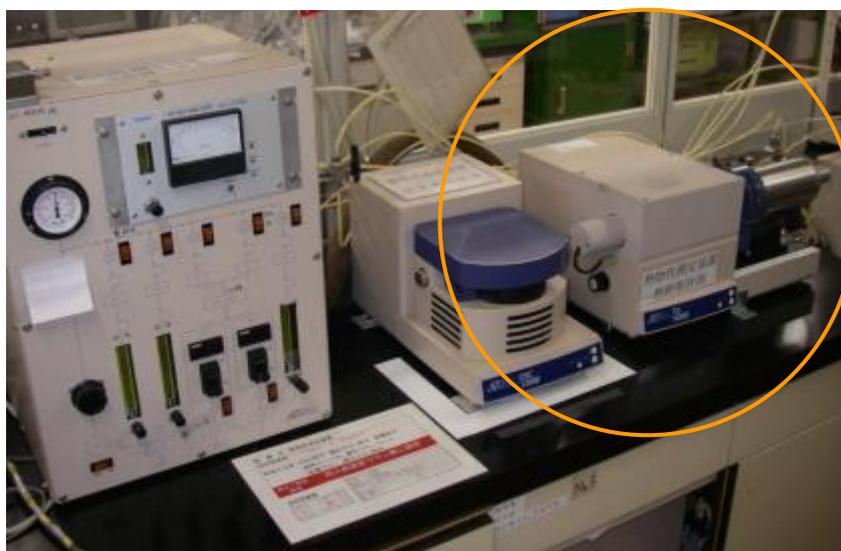


図 4.3.4.5-1 熱膨張計の配置と外観 (○内が熱膨張計)

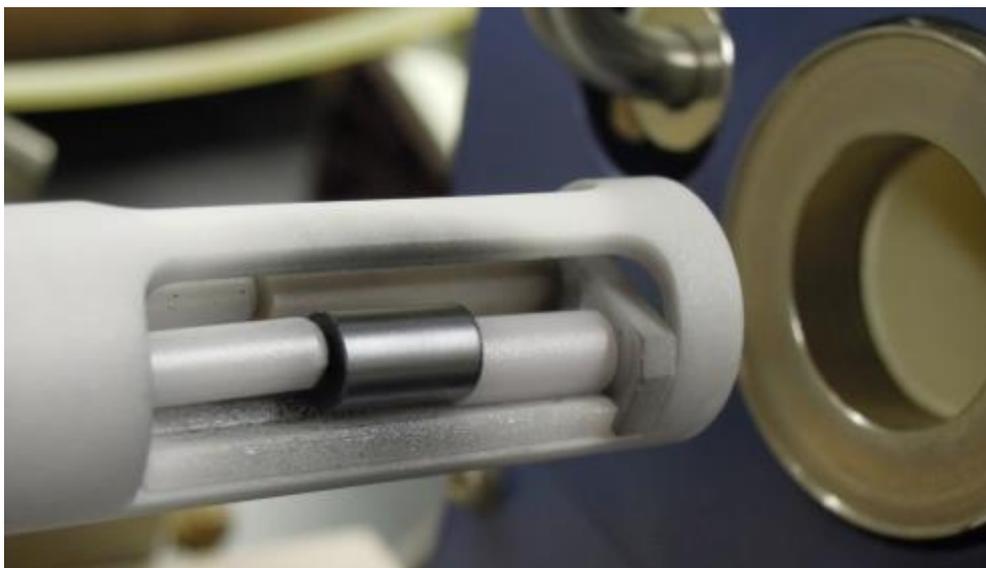
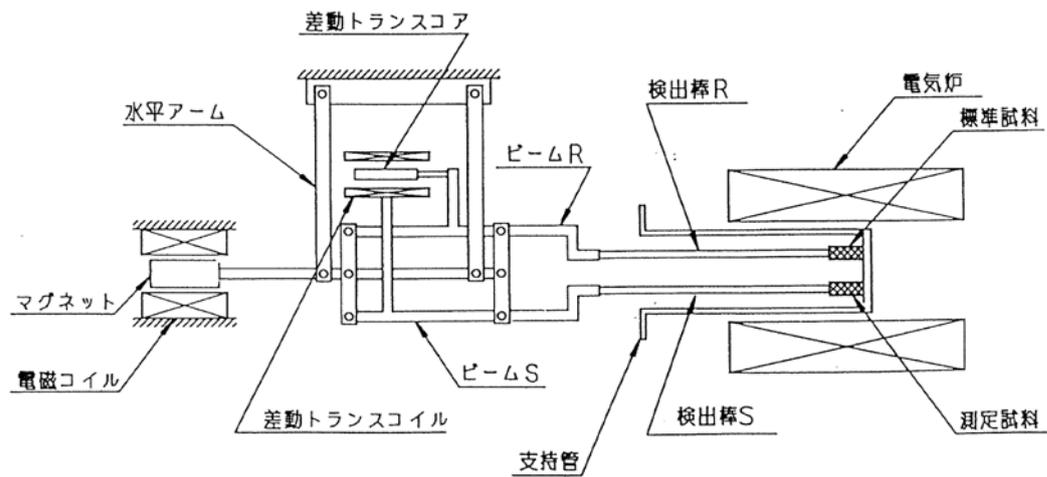


図 4.3.4.5-2 熱膨張計の原理図と使用時の状況

## (2) 試験結果

表 4.3.4.5-1 に熱膨張計による収縮温度及び収縮速度結果を示す。また、図 4.3.4.5-3～14 に TD 試験結果を示す。本試験において、U-Si 系試料では、TD 試験装置を構成するアルミナ製部材との溶着等が見られた。図 4.3.4.5-15 にその状況を示す。

各焼結温度に対する収縮率を示した図 4.3.4.5-3～5 の温度-DLT(%)図及び温度プロファイルに対する収縮率を示した図 4.3.4.5-6～8 の温度プロファイル-DLT(%)図より、Zr100%試料 (No.9) 及び U-Zr-Fe-Ca 試料 (No.11) 以外の試料では約 300℃～600℃の間で初期膨張・収縮が観察された。これらは、 $UO_{2+x}$  が  $UO_2$  になることに伴う膨張・収縮であると考えられる。U-Al 試料 (No.12) は、初期の膨張過程において、DLT が急激に減少しており、試料が破損したものと見られる。

U-Zr 系統の試料 (No.1,2,3,4,13,14,15) では、初期収縮の後、800℃～930℃で再び収縮開始する様子が確認された。また、U-Si 系統試料 (No.5,6,17,18,19) では、初期収縮の後、820℃～860℃付近で極僅かに収縮が開始した後、1350℃を超えてから急激に収縮する挙動が確認された。この様子は、各焼結温度及び焼結プロファイルに対する収縮速度を示した図 4.3.4.5-9～14 の  $\Delta DLT(\%/s)$  図でより明確に確認することができる。U100%試料

(No.8) は、U-Zr 系統試料とほぼ同じ 800℃から収縮する様子が観測された。Zr100%試料 (No.9) は、U 試料や U-Zr 系統試料より若干高い約 950℃から収縮する様子が観測された。U-Zr-Fe-Ca 試料 (No.11) では、100℃～950℃付近まで比較的ゆるやかに膨張し、プラトーが現れた後、収縮する様子が観測された。これは、U 以外の組成の熔融や膨張・収縮温度が異なること等により、ゆるやかに膨張したと考えられる。U-Al 試料 (No.12) は、同程度の Zr、Si を添加した No.14 及び No.19 と比較して、やや高い約 880℃から収縮が開始する傾向が観測され、その傾きも比較的大きい傾向を示した。

図 4.3.4.5-16 に、試料中の Zr 含有率に対する焼結温度と収縮速度( $\mu\text{m/s}$ )の関係を示す。

収縮速度は Zr 含有率と相関があり、Zr 含有率が増えると収縮速度が遅くなる関係にある。その関係は Zr 含有率と比較的明確な反比例の関係にあり、試みとして以下の近似式を算出した。

$$y = 0.0046x - 0.6486 \quad R^2 = 0.9432$$

y : 収縮速度( $\mu\text{m/s}$ ) x : Zr 含有率(%)

収縮速度が最も大きい時の焼結温度について、Zr 含有率が増えるに従い僅かに低下する傾向にあるが、近似式を得るまでには至らなかった。

図 4.3.4.5-17 に、試料中の Si 含有率に対する焼結温度と収縮速度( $\mu\text{m/s}$ )の関係を示す。

収縮速度は Zr と同様に Si 含有率と相関があり、Si の場合は含有率が増えると収縮速度が遅くなる関係にあるとみられる。Si は含有率データが 35%までしか無いが、試みとして U100%のデータを除いた場合の Zr と同様に近似式を算出した。

$$y = -0.0154x - 0.4154 \quad R^2 = 0.7457$$

y : 収縮速度( $\mu\text{m/s}$ ) x : Si 含有率(%)

収縮速度が最も大きい時の焼結温度について、Zr 同様、Si 含有率が増えるに従い低下する様子が観察された。

本試験の結果では、初期収縮後の U-Zr 系統試料において明確な 2 段階の収縮過程は観察されなかったが、U-Si 系統試料において 2 段階の収縮過程を経ていることが確認された。また、U-Zr-Fe-Ca 試料では複数段階の収縮過程が確認された。複数材料を粉末混合状態で焼結する場合、混合状態にも依存するものの基本的には構成するそれぞれの材料の焼結収縮は別々に進行するため、複数段階の収縮によりペレットにひずみや空隙が発生する原因となる。また、U-Si 系統のペレットにおいては、U-Zr 系統試料に比べ収縮速度が大きいこと、Si 含有率の増加に比例して収縮速度が大きくなることから、焼結中の割れ欠けが発生しやすい状況となる。このため、U-Si 系統試料による高密度ペレットの製造は困難となる可能性がある。よって、今後 U-Si 系統試料を調製する場合、800℃付近の収縮 (U の収縮によるものと考えられる) 及び 1350℃付近の収縮 (Si の収縮による

ものと考えられる) 並びにそこに至る過程の昇温速度及び保持時間等を最適化することが必要である。

表 4.3.4.5-1 熱膨張計 (TD) による収縮温度及び収縮速度結果一覧

ロットNo.	各ペレットの金属成分組成 (wt%)							初期 収縮開始温度(°C)	2段目の 収縮開始温度(°C)	収縮速度最大値		備考
	U	Zr	Si	Fe	Ca	Al	温度(°C)			速度(μm/s)		
1	44	56					910.6	-	1498.6	-0.43		
2	34	66					932.1	-	1495.4	-0.35		
3	23	77					847.3	-	1491.1	-0.29		
4	12	88					872	-	1471	-0.24		
5	88		12				832.3	1390.3	1652	-0.73		
6	65		35				855.4	1359.5	1563.2	-0.92		
7	32		68				-	-	-	-	プレス成型出来ず	
8	100						800	-	1437.8	-0.72		
9		100					947.8	-	1281	-0.21		
10			100				-	-	-	-	プレス成型出来ず	
11	55	28		9	9		909.7	1317.9	1651.9	-0.45		
12	80				20		883.9	-	1479.1	-0.64		
13	90	10					859.3	-	1528.7	-0.58		
14	75	25					827.1	-	1494.3	-0.53		
15	59	41					841.1	-	1503.1	-0.44		
16	43		57				-	-	-	-	プレス成型出来ず	
17	73		27				843.2	1376.1	1629.7	-0.92		
18	94		6				822.4	1419.2	1598.3	-0.44		
19	80		20				842.7	1386.2	1615.1	-0.61		

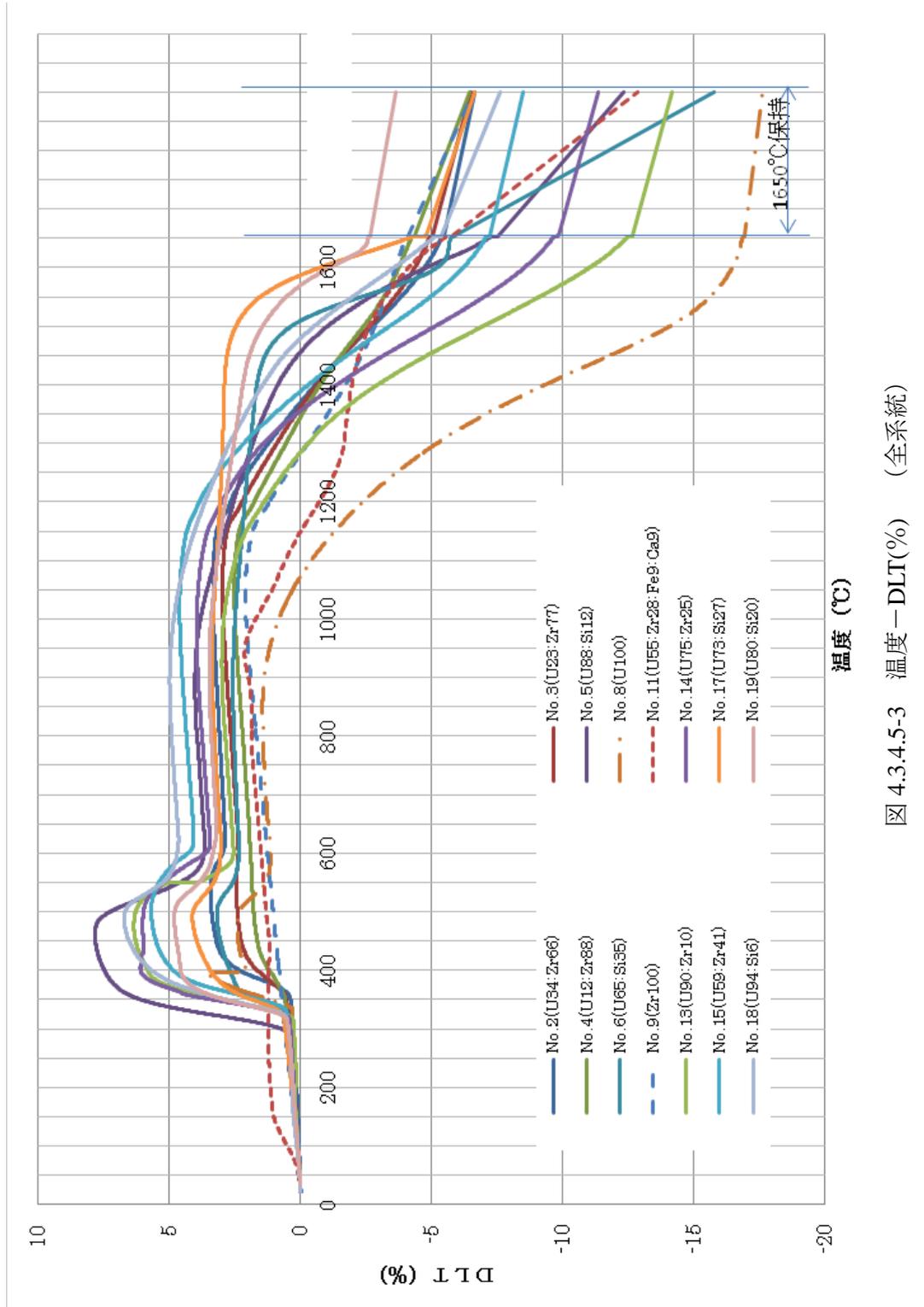


図 4.3.4.5-3 温度- DLT(%) (全系統)

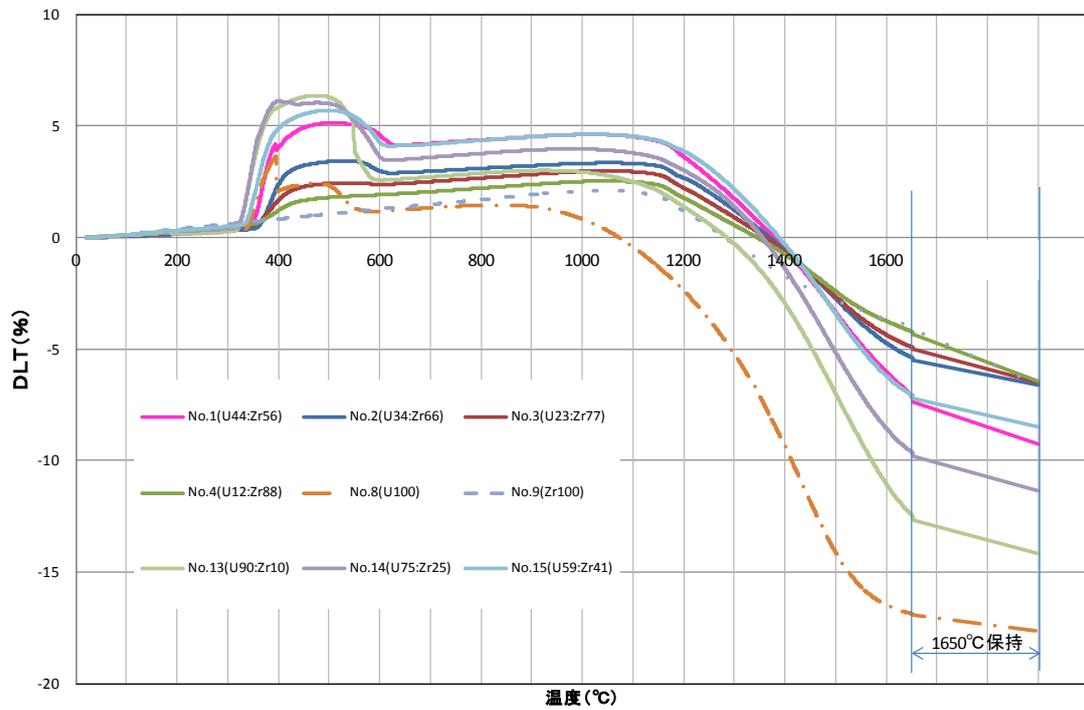


図 4.3.4.5-4 温度-DLT(%) (Zr 系統)

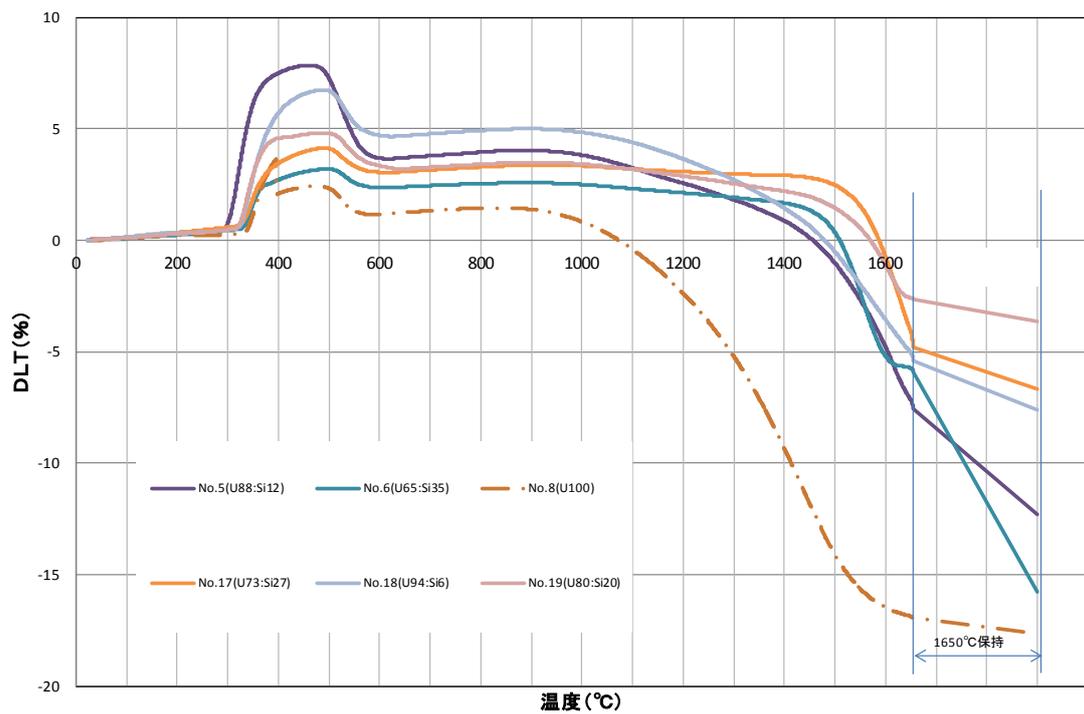


図 4.3.4.5-5 温度-DLT(%) (Si 系統)

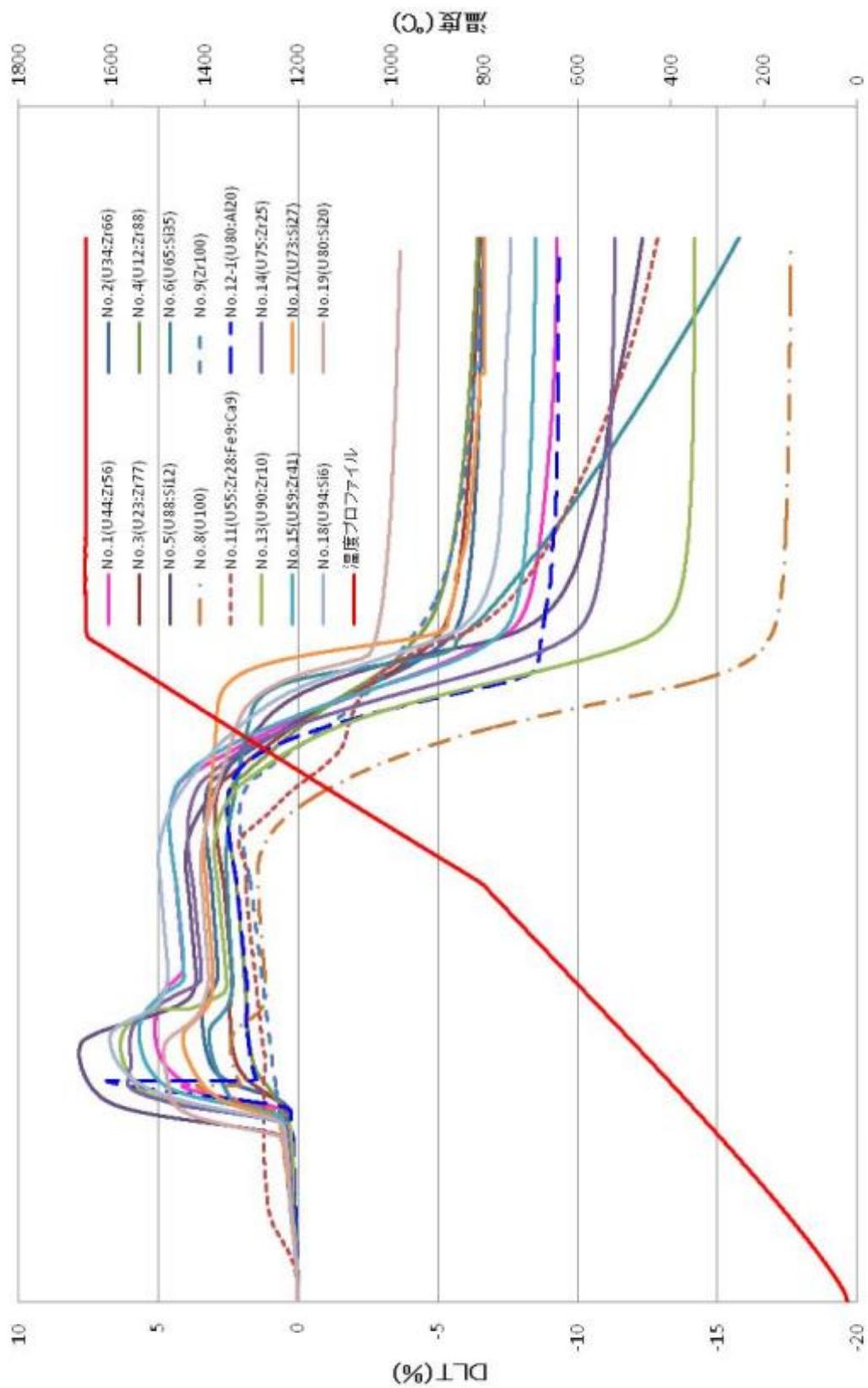


図 4.3.4.5-6 温度プロファイル-DLT(%) (全系統)

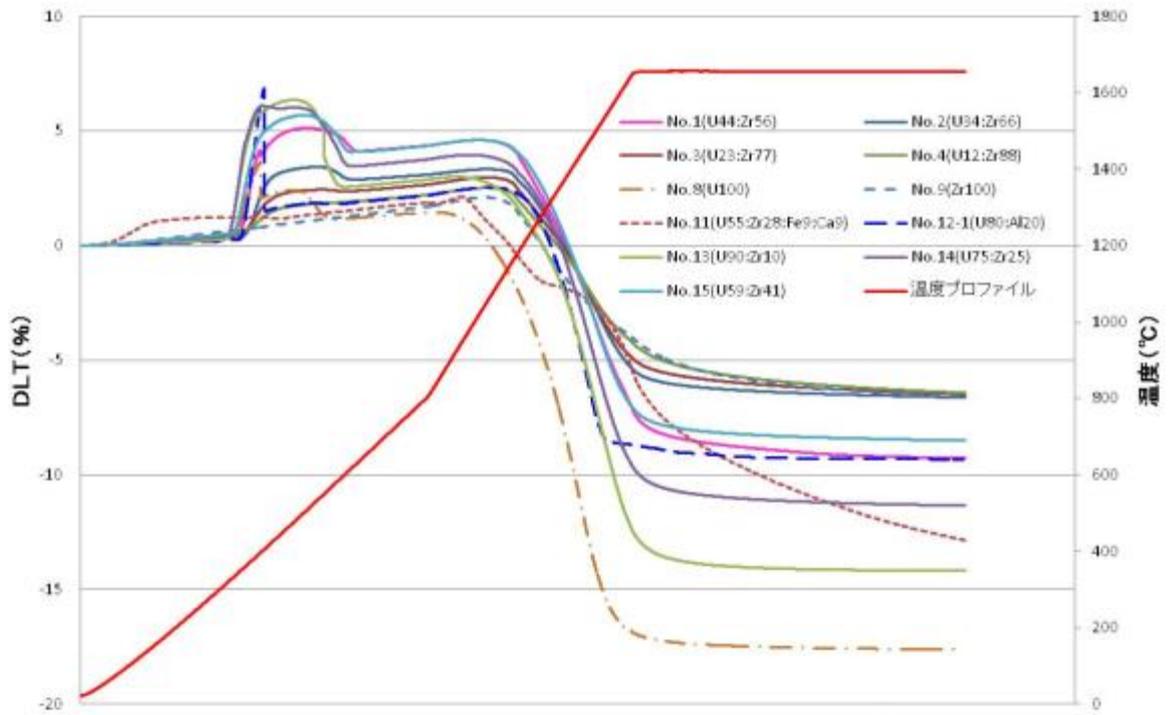


図 4.3.4.5-7 温度プロファイル-DLT(%) (Zr 系統)

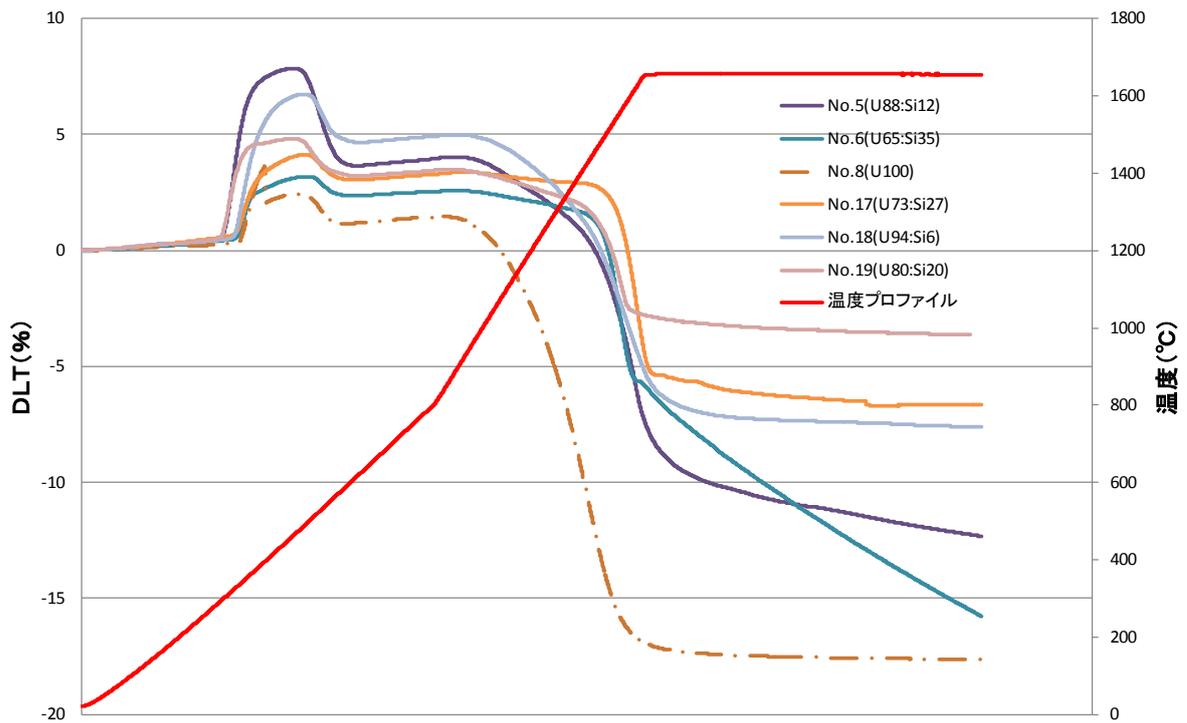


図 4.3.4.5-8 温度プロファイル-DLT(%) (Si 系統)

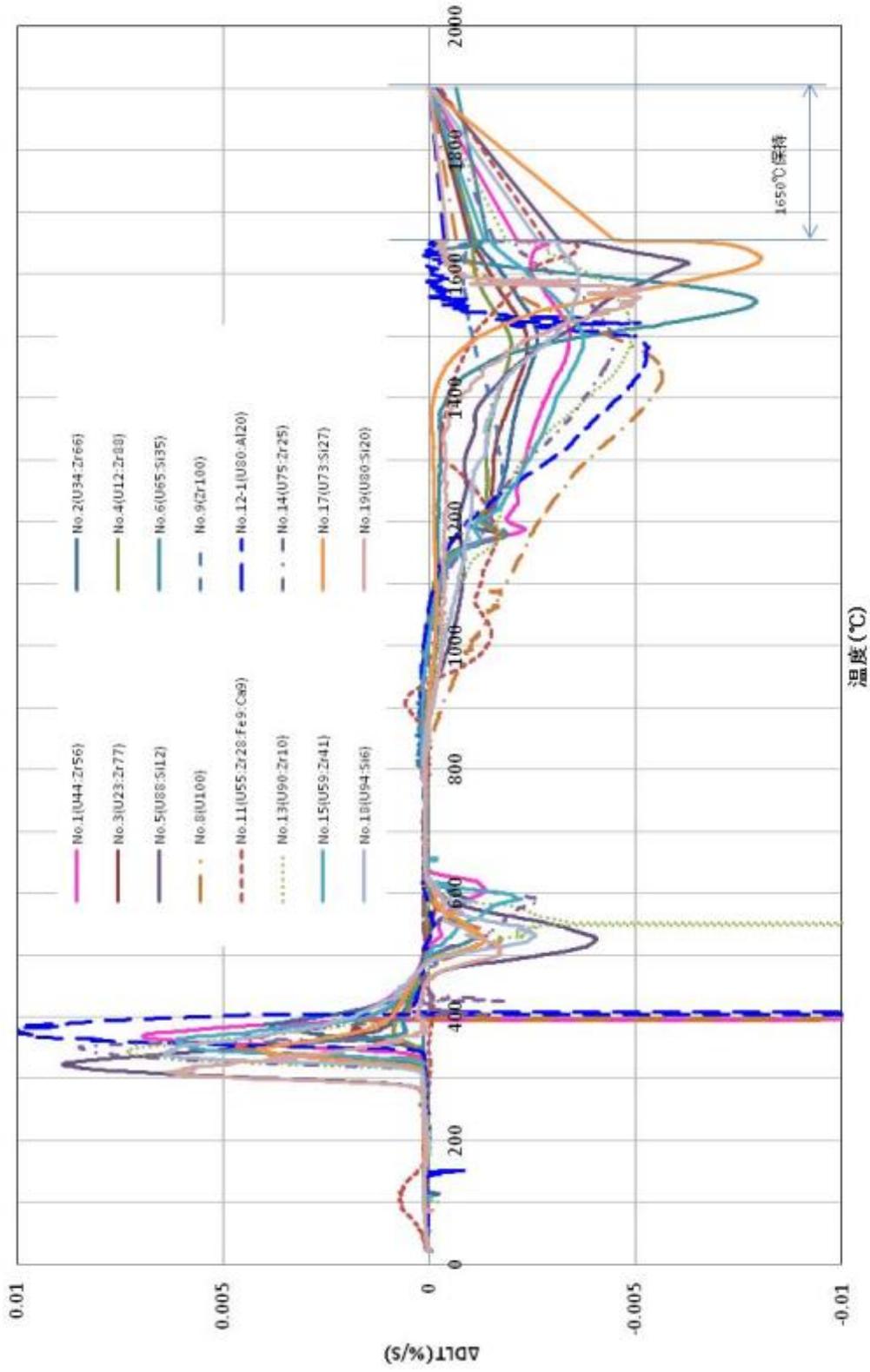


図 4.3.4.5-9 温度 - ΔDLT(%/s) (全系統)

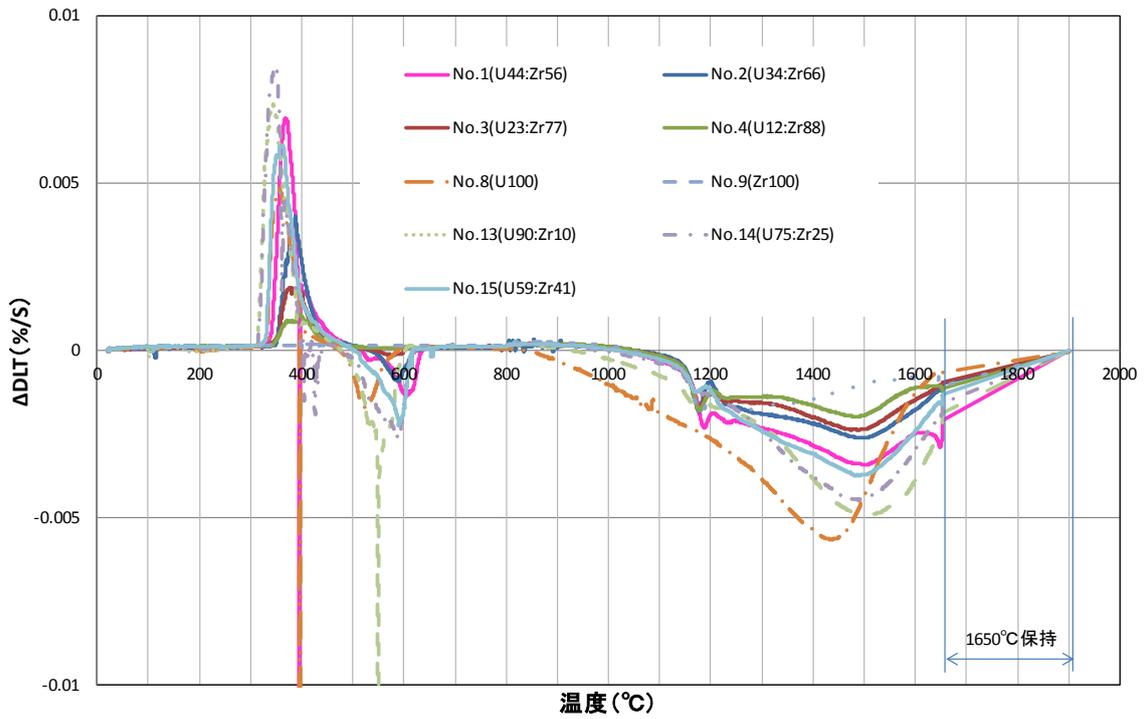


図 4.3.4.5-10 温度 -  $\Delta$ DLT(%/s) (Zr 系統)

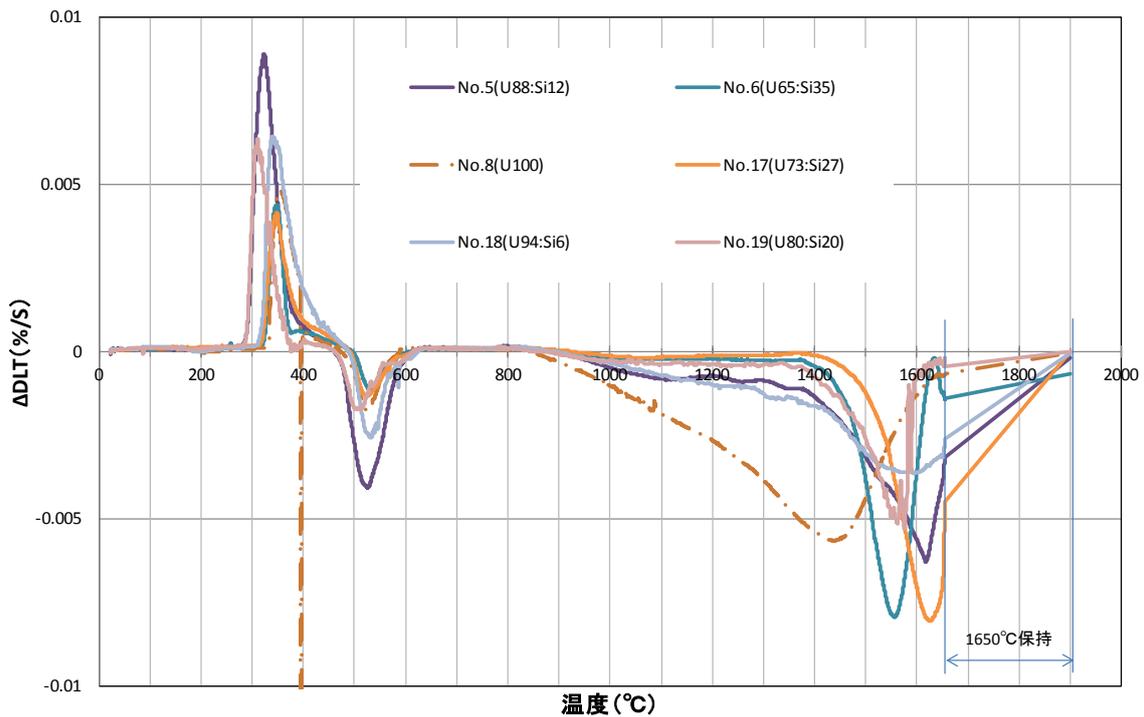


図 4.3.4.5-11 温度 -  $\Delta$ DLT(%/s) (Si 系統)

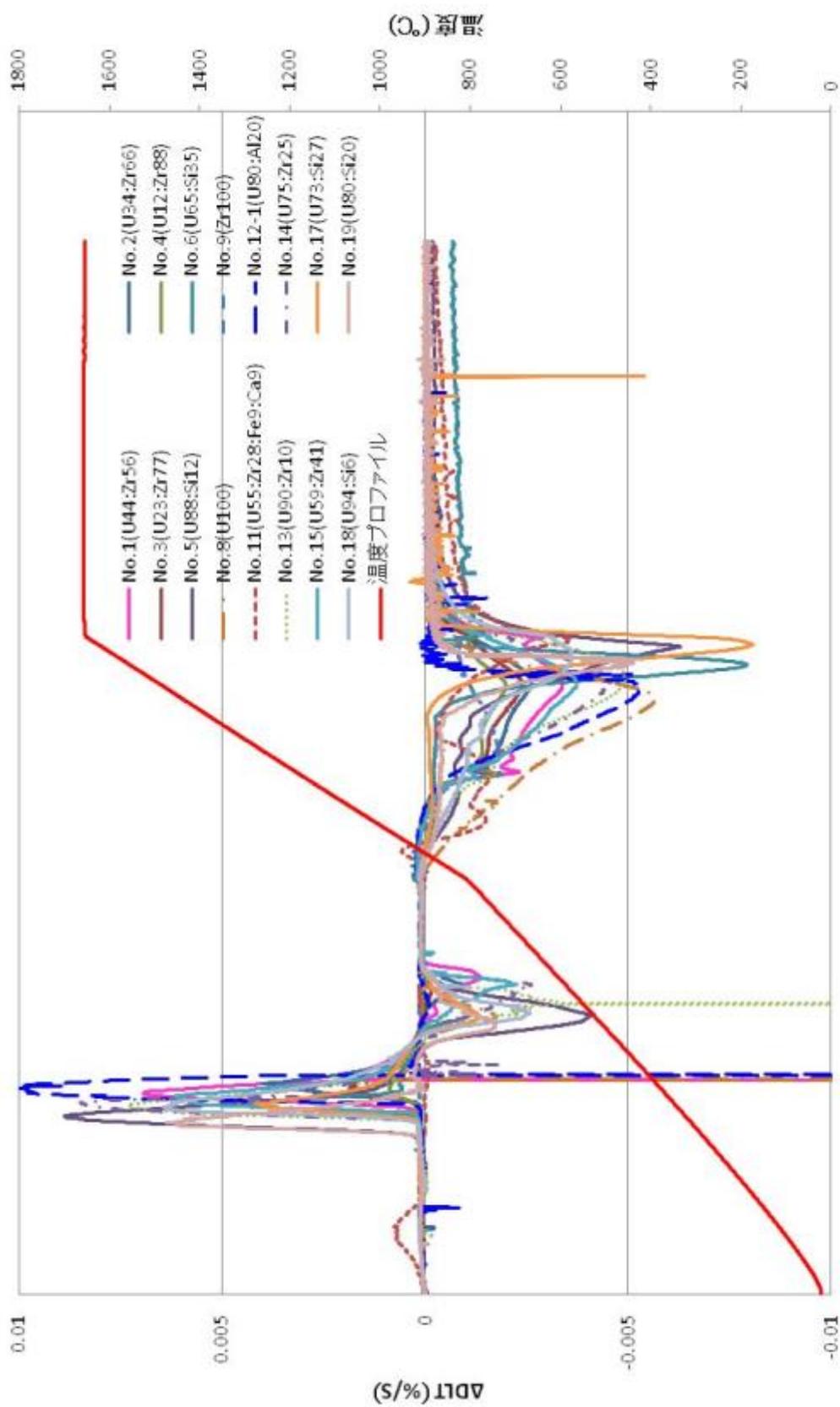


図 4.3.4.5-12 温度プロファイルー $\Delta$ DLT(%/s) (全系統)

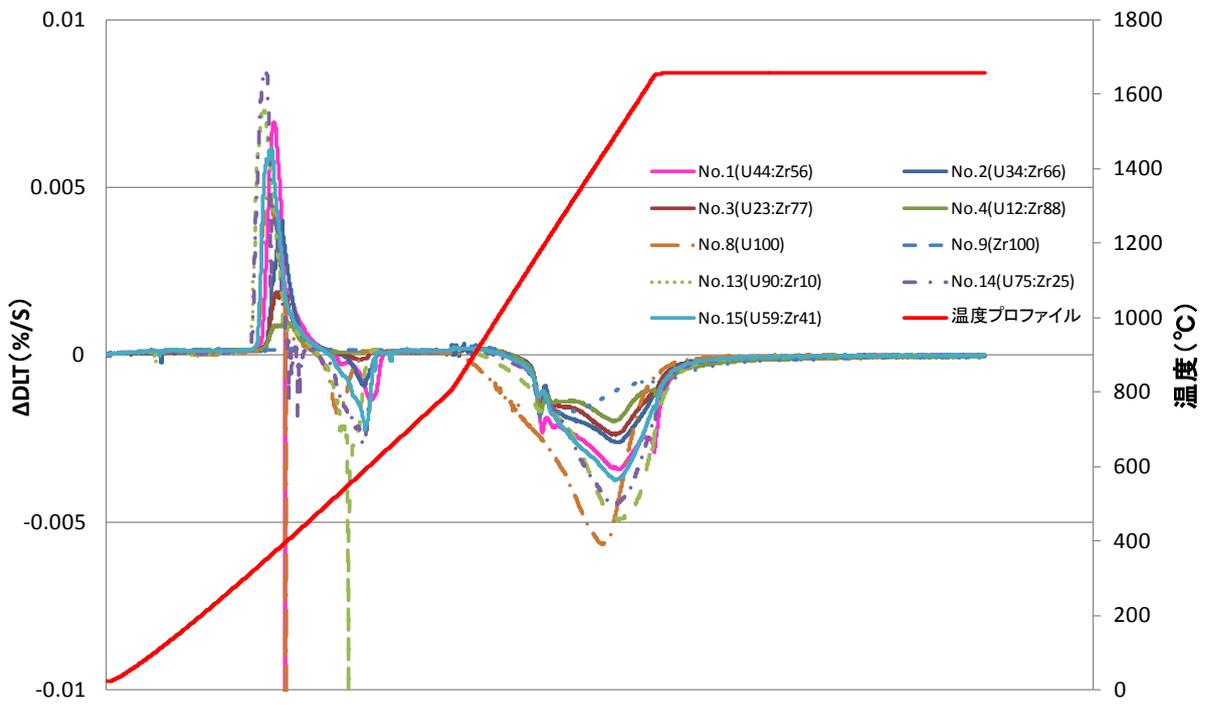


図 4.3.4.5-13 温度プロファイルー $\Delta$ DLT(%/s) (Zr 系統)

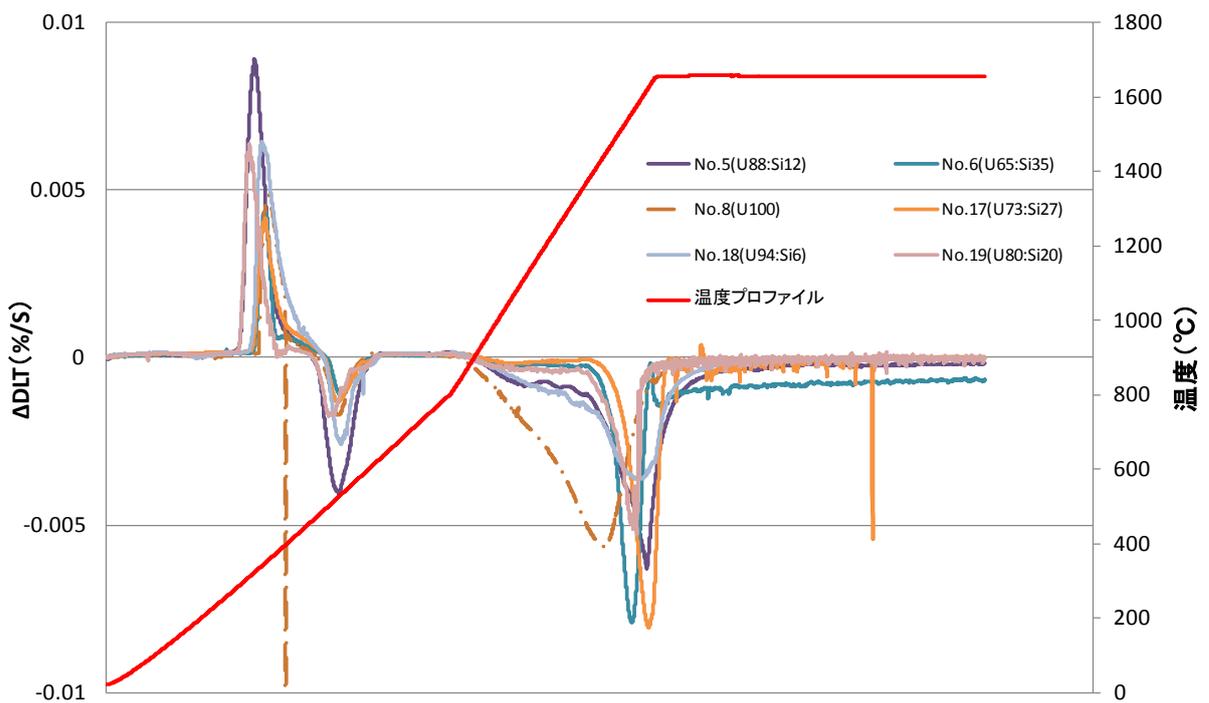


図 4.3.4.5-14 温度プロファイルー $\Delta$ DLT(%/s) (Si 系統)



図 4.3.4.5-15 U-Si 系統 TD 試験後の試料部外観

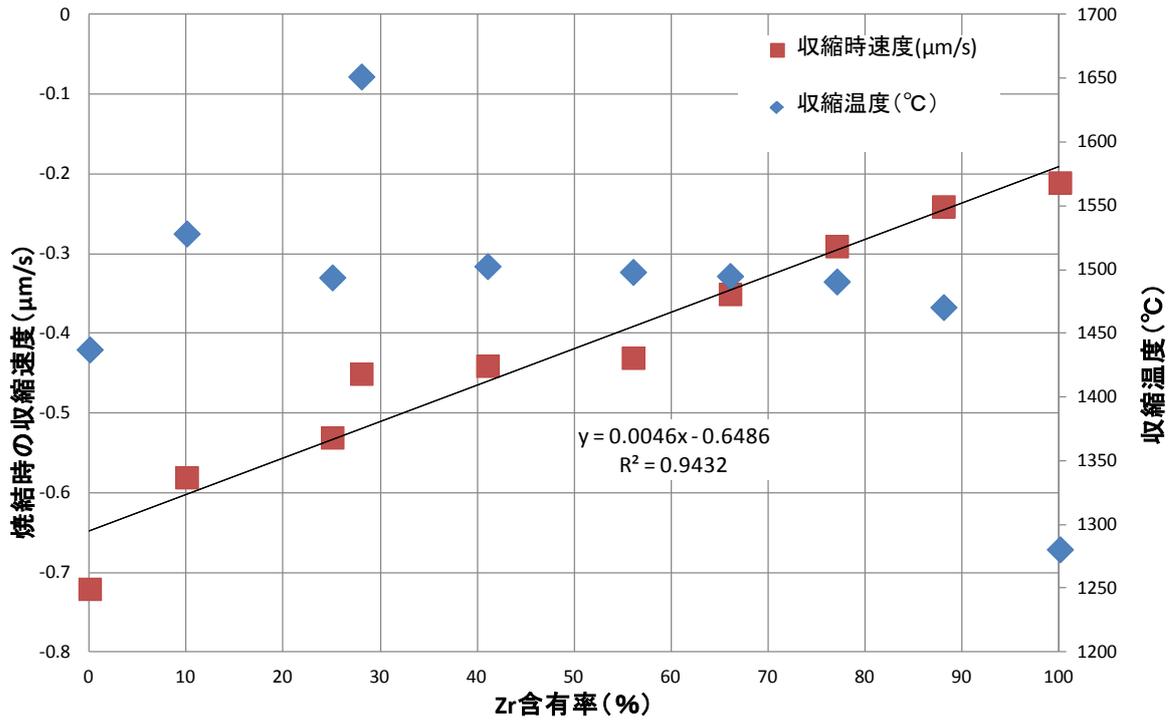


図 4.3.4.5-16 試料中の Zr 含有率に対する焼結収縮速度と収縮温度の関係

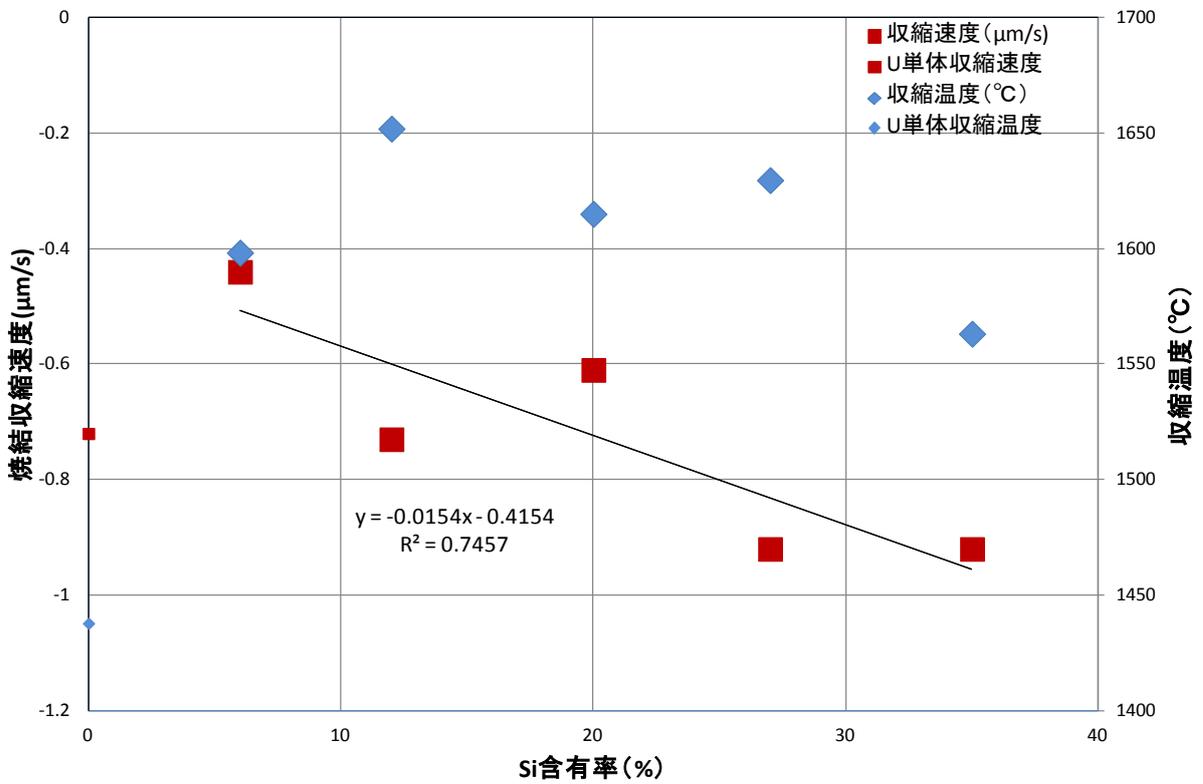


図 4.3.4.5-17 試料中の Si 含有率に対する焼結収縮速度と収縮温度の関係

#### 4.3.4.6 不純物分析

ペレット調製過程で混入する可能性がある元素のうち、反応度等の物性試験に影響を及ぼす組成について、不純物分析を実施した。混入する可能性がある元素として、プレス成型時に使用するステアリン酸亜鉛 ( $C_{36}H_{70}O_4Zn$ ) の炭素及び水素、並びに空気中の窒素が挙げられる。なお、ステアリン酸亜鉛の添加量は極微量であり、焼結温度約  $200^{\circ}C \sim 400^{\circ}C$  で昇華するため、焼結後のペレットには残存しないと考えられる。表 4.3.4.6-1 に不純物分析結果をまとめて示す。

##### (1) 炭素分析

高周波加熱－赤外線吸収法を用いて、ペレット中の炭素分析を実施した。

U-Zr 系試料 (No.1,2,3,4)、Zr100% 試料 (No.9)、及び U-Zr-Fe-Ca 試料 (No.11) において、分析下限値 (10 ppm) に対して有意な値を検出したが、最大でも 23 ppm と低い値であり他の物性試験に影響を与える程度ではないと考えられる。

##### (2) 窒素分析

瞬間融解－熱伝導度法を用いて、ペレット中の窒素分析を実施した。

U-Zr 系試料 (No.2,3,15)、U-Zr-Fe-Ca 試料 (No.11)、U-Al 試料 (No.12) において、分析下限値 (20 ppm) に対して有意な値を検出されたが、最大でも 39 ppm と低い値であり他の物性試験に影響を与える程度ではないと考えられる。U-Zr 系試料 (No.2,3) では若干高めの値となっているが、同一焼結バッチで Zr 濃度が異なる U-Zr 系試料 (No.1,4) では検出下限となっていることから、Zr の添加量に起因するものではないと考えられる。

##### (3) 水素分析

瞬間加熱－熱伝導度法を用いて、ペレット中の水素分析を実施した。

U-Zr 系試料 (No.1,2,3,4)、及び Zr100% 試料 (No.9) において、その他の条件と比べると高めの値が検出された。同一焼結バッチの U-Si 系試料 (No.5,6) の値は低く、さらに焼結バッチは異なるが Zr 添加量の低い U-Zr 系試料 (No.13,14,15) では水素分析値が低いことから、水素含有量が増加する Zr 濃度の閾値が存在する可能性が考えられる。

表 4.3.4.6-1 不純物分析結果 (炭素、窒素、水素)

ロットNo.	各ペレットの金属成分組成 (wt%)							炭素 (ppm)	窒素 (ppm)	水素 (ppm)	焼結 ハッチ	備考
	U	Zr	Si	Fe	Ca	Al	AI					
1	44	56						12	<20	23.3	1	
2	34	66						18	36	21.0	1	
3	23	77						20	29	20.1	1	
4	12	88						23	<20	17.0	1	
5	88		12					<10	<20	3.3	1	
6	65		35					<10	<20	4.0	1	
7	32		68					-	-	-		プレス成型出来ず
8	100							<10	<20	0.2	1	
9		100						15	<20	14.2	1	
10			100					-	-	-		プレス成型出来ず
11	55	28		9	9			21	25	4.1	1	
12	80					20		<10	23	0.7	2	
13	90	10						<10	<20	0.8	2	
14	75	25						<10	<20	1.9	2	
15	59	41						<10	25	4.0	2	
16	43		57					-	-	-		プレス成型出来ず
17	73		27					<10	<20	3.1	2	
18	94		6					<10	<20	1.6	2	
19	80		20					<10	20	2.3	2	

#### 4.3.4.7 焼結中の重量変化

##### (1) 試験方法

##### ①示差熱重量分析について

温度変化に伴う混合粉末の重量変化を、示差熱重量分析装置（以下、TG-DTA 試験装置）により測定した。装置の外観を図 4.3.4.7-1~3 に示す。

図 4.3.4.7-3 の左側に標準試料を、右側に測定試料をセットし、設定した温度プロフィールに従って昇温させ、左右の試料の示差熱及び重量差を測定する装置である。

##### ②TG-DTA 試験条件について

本試験の標準試料はアルミナ標準試料を用い、標準試料側に約 85 mg のアルミナ標準試料をセットし、測定試料側には測定試料約 70~100 mg をセットした。昇温時の雰囲気は、Ar+4.3% $H_2$ とし、加湿は実施していない。試験温度は 1650 °C まで昇温後、4 時間キープとした（図 4.3.4.1-1 参照）。

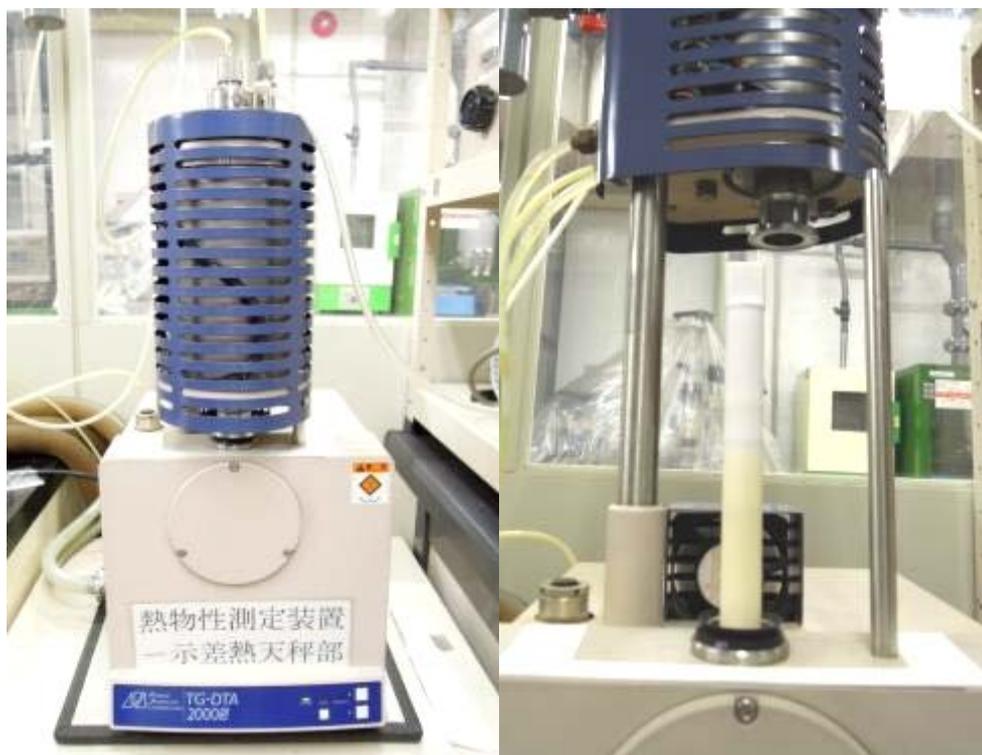


図 4.3.4.7-1 TG-DTA 試験装置外観



図 4.3.4.7-2 TG-DTA 試験装置天秤部

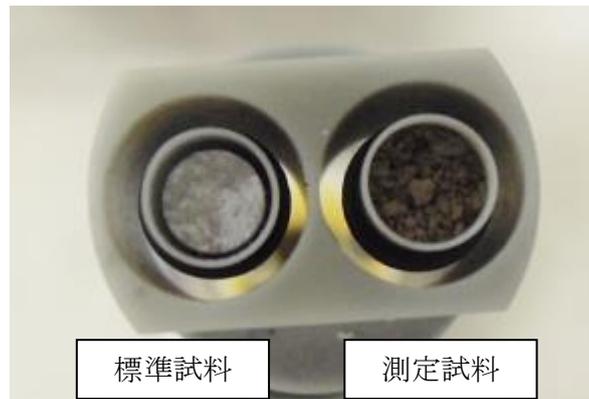


図 4.3.4.7-3 TG-DTA 試験試料の例

## (2) 試験結果

図 4.3.4.7-4～9 に TG-DTA 測定結果を示す。重量変化率並びに発熱及び吸熱ピークはそれぞれの観測グラフより読み取った。表 4.3.4.7-1 に各試料の重量変化率並びに発熱及び吸熱ピークデータを示す。

図 4.3.4.7-4～6 に示した温度プロファイル-TG (%) より、重量変化率は U-Zr 系統より U-Si 系統の試料が明確に大きいことが確認された。U-Si 系統試料 (No.5,6,17,18,19) は 1650 °C 保持状態となって以降、一様に重量が減少する傾向が確認された。U-Zr 系統の試料 (No.1,2,3,4,13,14,15) の重量変化率は、もっとも重量変化が少なかった Zr100% 試料 (No.9) と U100% 試料 (No.8) の間で推移した。また、U-Al 試料 (No.12) の重量変化率も U-Zr 試料と同様の傾向を示した。U-Zr-Fe-Ca 試料 (No.11) の重量変化の推移は他の試料と大きく異なり、900 °C 付近まで重量変化しその後、変化が緩慢となっている。

図 4.3.4.7-7～9 に示した温度プロファイル-DTA より、U-Zr 系統の試料 (No.1,2,3,4,13,14,15) では、1400 °C 付近で発熱反応が収束に向かい、その後吸熱ピークが観測された。1650 °C 保持開始付近を境に本吸熱反応が収束し、以降は発熱ピークが観測された後、緩やかに推移する傾向が確認された。U-Si 系統試料 (No.5,6,17,18,19) では、U-Zr 試料と同様に、加熱段階での発熱方向のピークの後、一旦、発熱反応が収束し再び発熱方向のピークが観測された。その後、吸熱方向のピークが観測され、1650 °C 保持付近を境に再び発熱方向のピークが観測されるが、その後比較的明確に吸熱方向に推移した。U-Zr-Fe-Ca 試料 (No.11) と U-Al 試料 (No.12) は、U-Si 系統試料と近い挙動を示した。

U100% 試料 (No.8) は U-Zr 系統試料と近い挙動を示し、1650 °C 保持後しばらくすると発熱反応方向を示した。

U-Si 系統試料 (No.5,6,17,18,19) で見られた 1650 °C 保持状態以降の重量減少及び吸熱反応は、U-Si 系統試料で観察された図 4.3.4.7-10 に示すサンプル周辺の着色やアルミナ製ルツボ等の溶着現象を示すものと考えられ、何らかの化学反応によるルツボ等の変質や着色の原因とみられる脱ガス反応を示唆するものと考えられる。

U100% 試料 (No.8) は 1650 °C 保持後しばらくすると発熱反応方向を示したが、通常のウランペレットの焼結温度は 1650 °C より高い温度であることなどより、まだ活性度が高い状態で昇温過程が 1650 °C で途切れて保持されたことに起因する温度変化であると考えられる。

これらの結果より、組成が異なるペレットを製造する場合は、その組成における発熱及び吸熱ピークに至る過程の昇温速度や保持時間等を最適化することで、緩やかな反応となり、焼結における割れ欠け等を低減できると考えられる。

表 4.3.4.7-1 TG-DTA 試験装置による重量変化試験結果一覧

ロットNo.	各ペレットの金属成分組成 (wt%)										TG-DTA						備考
	U		Zr	Si	Fe	Ca	Al	TG変位		DTA (主な発熱)		DTA (主な吸熱)					
	温度(°C)	変位(%)	温度(°C)	DTA(μV)	温度(°C)	DTA(μV)	温度(°C)	DTA(μV)	温度(°C)	DTA(μV)							
1	44	56						733.7	-1.08	1262	10.12	1548.8	2.28				
2	34	66						835.32	-0.94	1164.6	14.33	1584	9.4				
3	23	77						984.6	-1.13	1254.9	10.81	1580.3	1.32				
4	12	88						1129.3	-1.32	1282.2	6.44	1565.7	-1.58				
5	88		12					1654.6	-7.52	1072.7	-0.49	1573.8	-13.32				
6	65		35					1655.8	-5.46	1323.8	2.31	1487.9	-2.15				
7	32		68					-	-	-	-	-	-	プレス成型出来ず			
8	100							722.5	-2.42	1257.3	14.09	1635.3	-8.87				
9		100						714.2	-0.15	958.8	5.38	1573.1	-10.54				
10			100					-	-	-	-	-	-	プレス成型出来ず			
11	55	28		9	9			1655.3	-5.55	10,269	0.26	1549.9	-11.88				
12	80				20			625	-1.18	998.4	8.12	1630.4	-6.57				
13	90	10						894.4	-1.63	1028.3	7.17	1594.8	-7.93				
14	75	25						1290.8	-1.85	971	4.77	1592.6	-10.51				
15	59	41						662.9	-1.08	1048.1	4.36	1578.2	-10.09				
16	43		57					-	-	-	-	-	-	プレス成型出来ず			
17	73		27					1655.7	-4.14	1315.8	3.74	1468.2	-2.96				
18	94		6					1656.5	-5.63	1381.6	-1.61	1512.3	-6.45				
19	80		20					1654.6	-8.55	1644.1	15.51	1655.3	1				

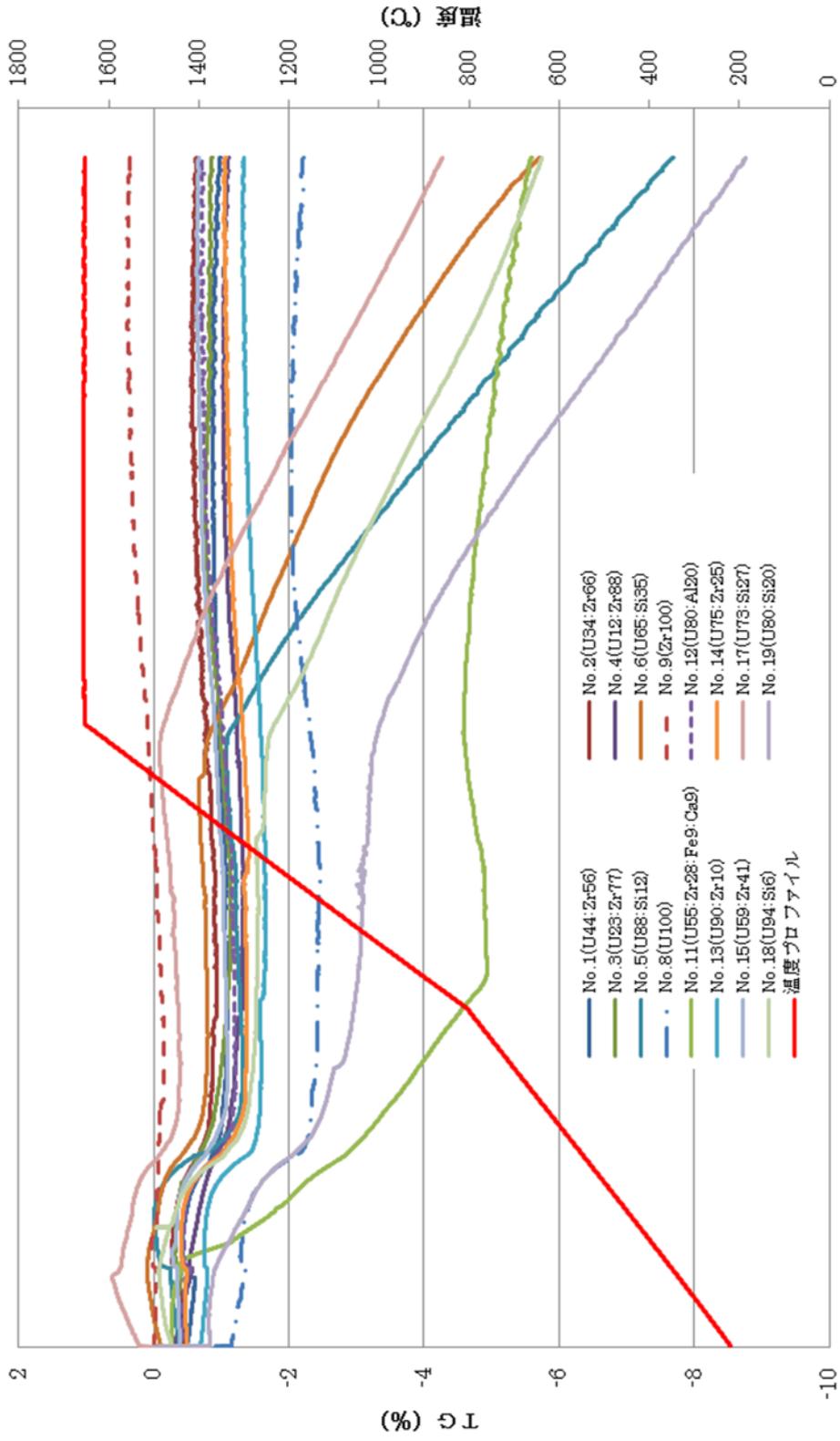


図 4.3.4.7-4 温度プロファイル-TG(%) (全系統)

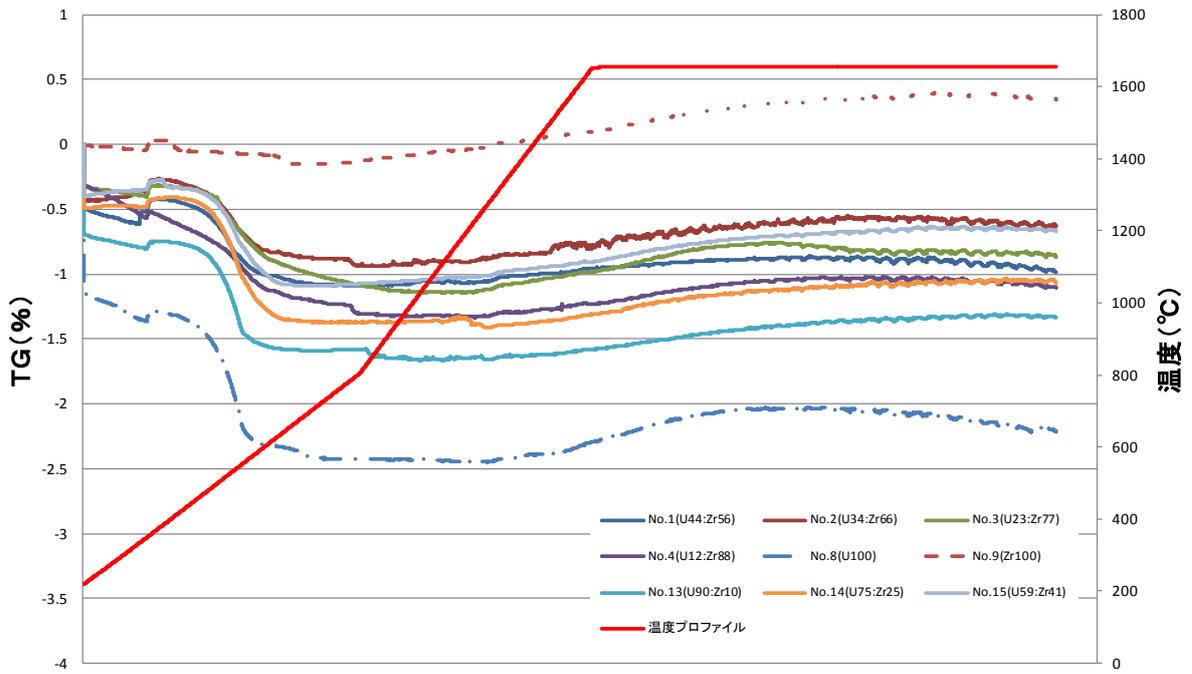


図 4.3.4.7-5 温度プロファイルーTG(%) (Zr 系統)

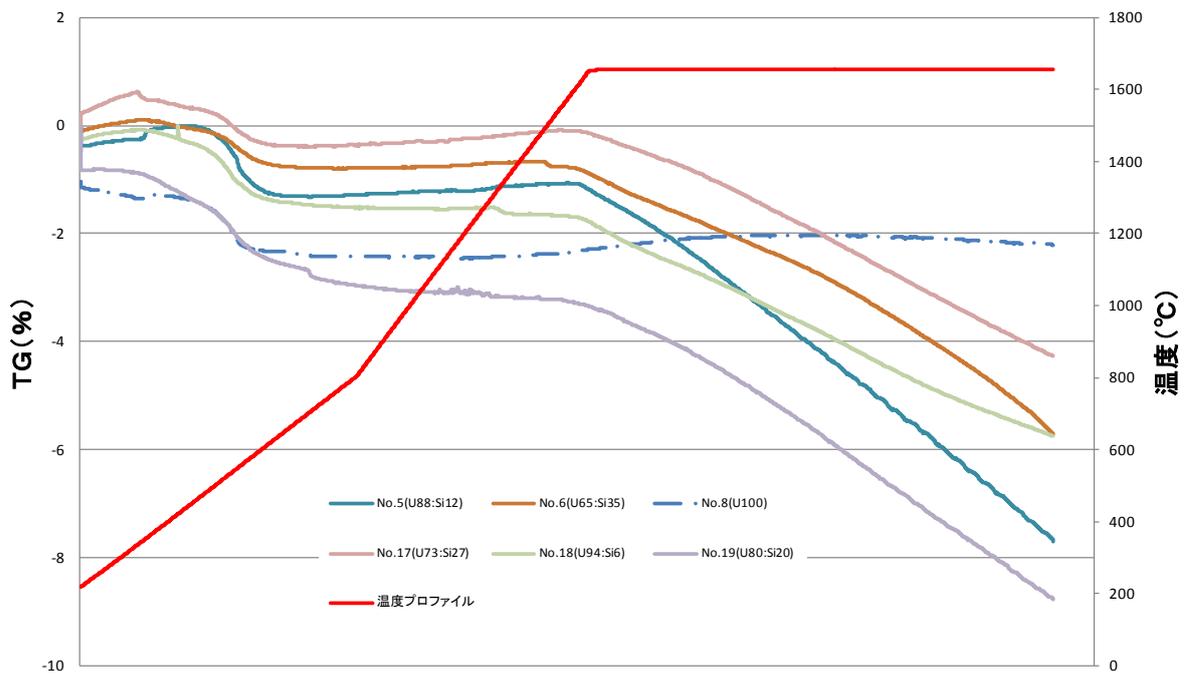


図 4.3.4.7-6 温度プロファイルーTG(%) (Si 系統)

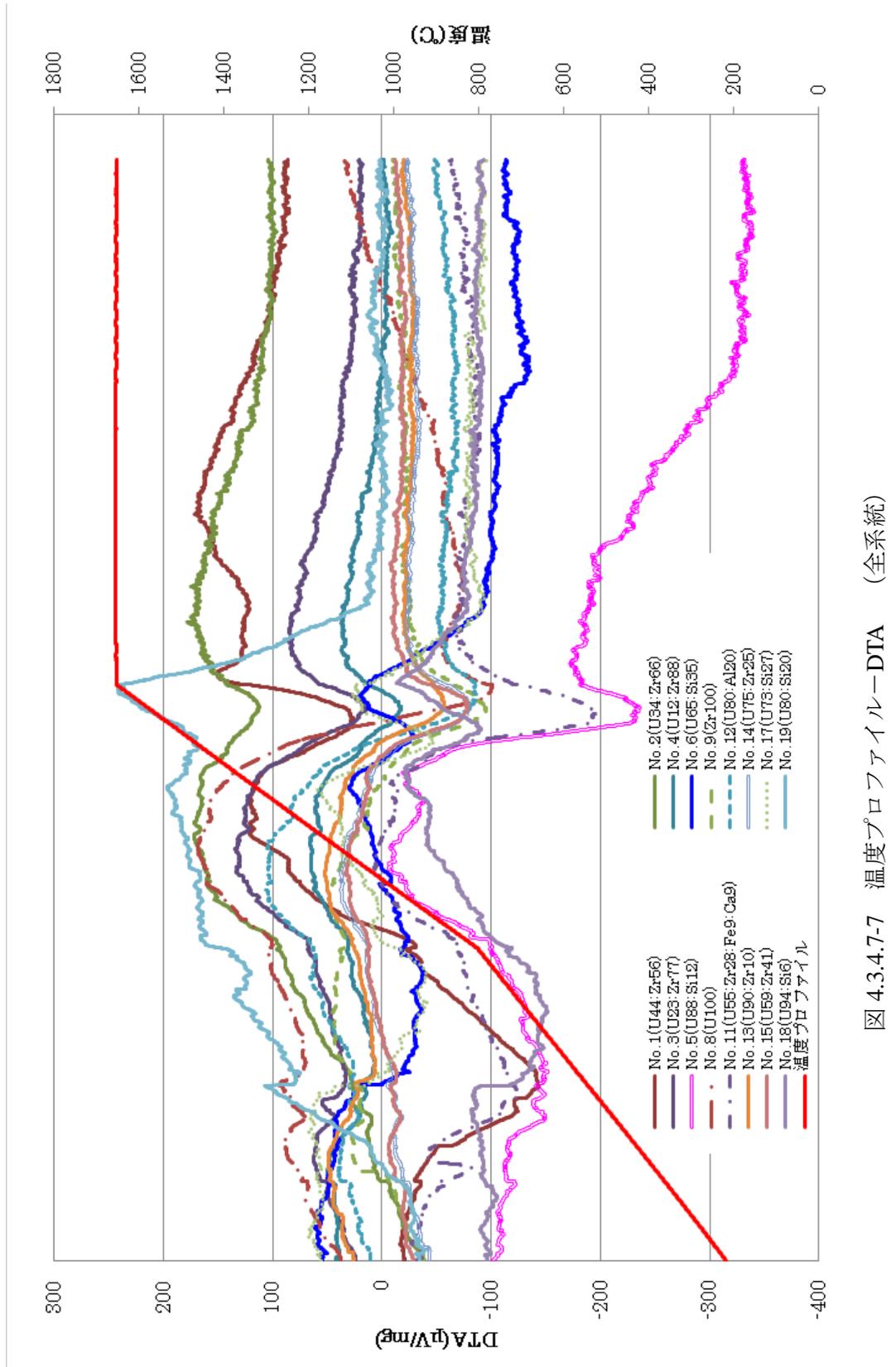


図 4.3.4.7-7 温度プロファイル-DTA (全系統)

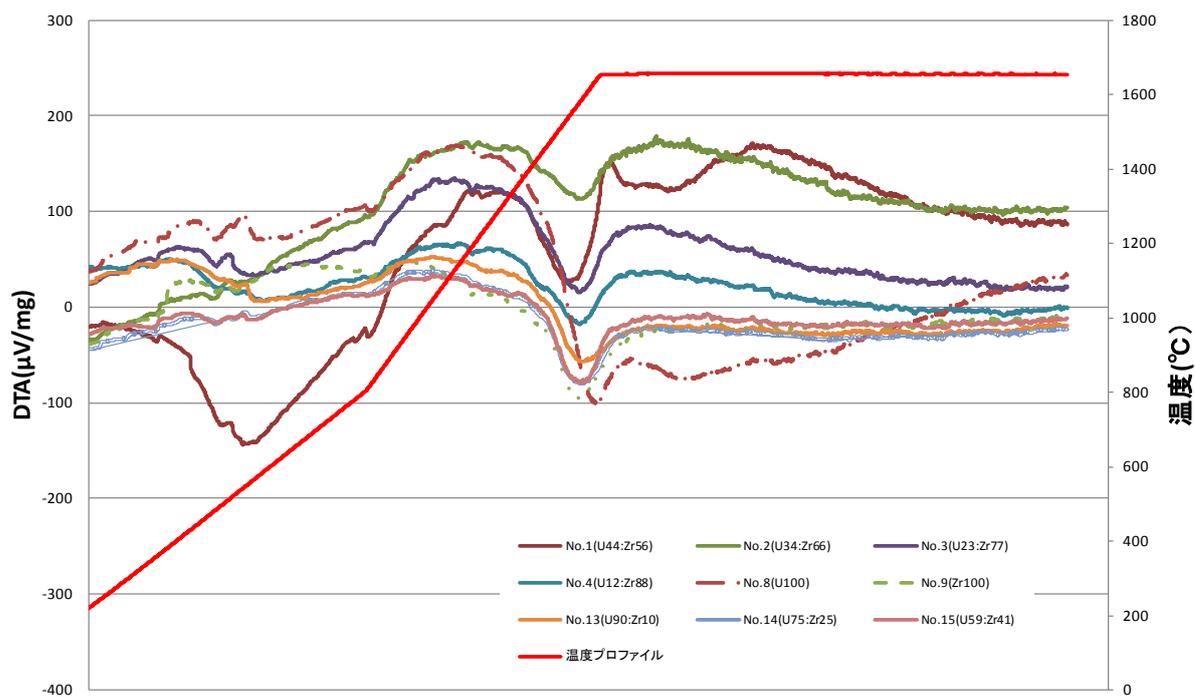


図 4.3.4.7-8 温度プロファイルーDTA (Zr 系統)

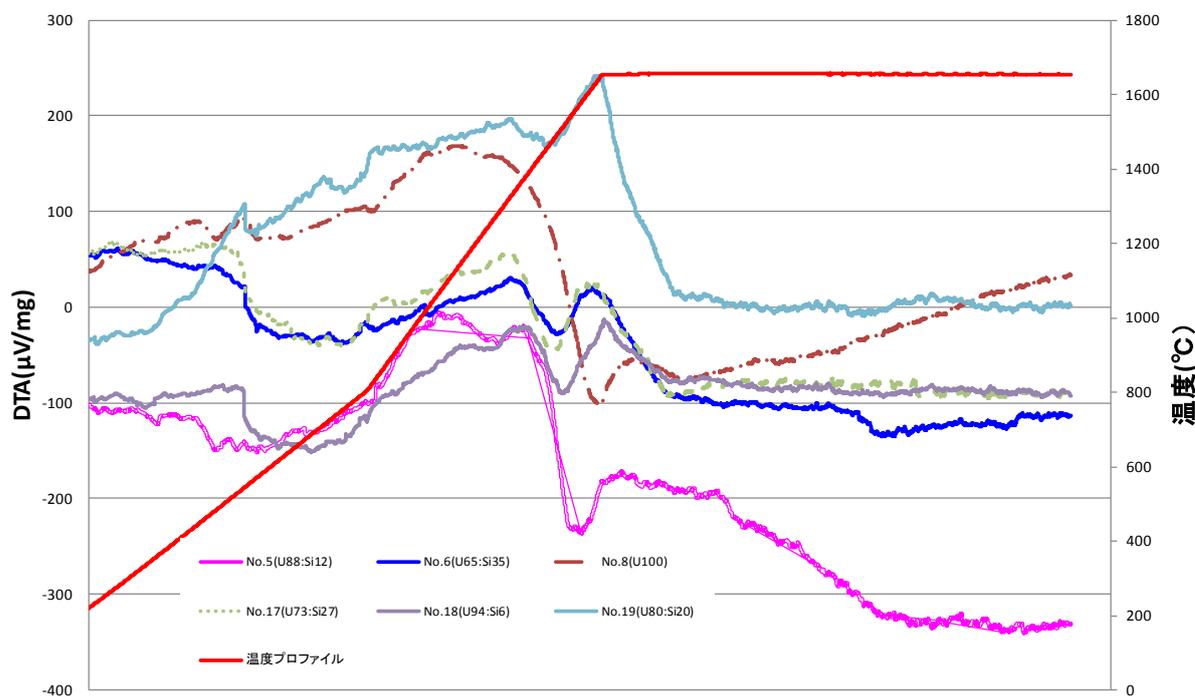


図 4.3.4.7-9 温度プロファイルーDTA (Si 系統)

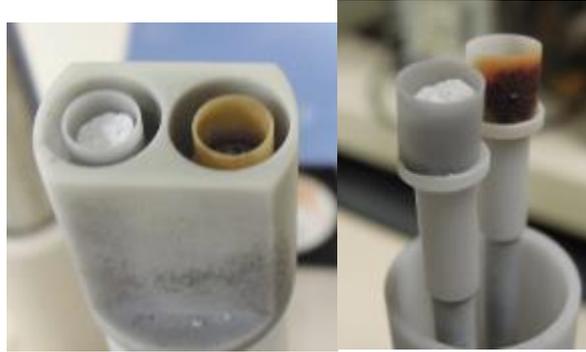


図 4.3.4.7-10 U-Si 系統 TG-DTA 試験後の試料部外観

#### 4.3.5 ペレット試作により得られた知見

グリーンペレットの成型条件は、本試験で用いた油圧プレスにおける条件であるが、メーカーその他が異なるプレスでも成型しやすい、例えば  $ZrO_2$  単体でペレットを成型し、その条件を本試験結果より得られた成型条件と照らし合わせ、そこを基準とすれば、今回の試験で成型したプレス条件を再現することは可能と推察される。また、成型できなかった Si 濃度の高い 3 条件についても、 $SiO_2$  単体での成型が可能となる粉末特性(粒度、流動特性など)や成型条件を見いだせれば成型できる可能性がある。

ペレットの焼結においては、16 種類の成型されたグリーンペレットを焼結炉により焼結し、一部のペレットに肌アレやヒビ割れ等は見られたが 16 種類のペレットを得ることができた。焼結条件については、混合やプレス条件と比較して装置依存性はないと考えられ、他の施設・設備を用いた場合においても、今回の試験結果を参考とすることは可能である。ただし、今回の試験条件を参考に、他の機器によりペレットを調製する際は、焼結炉内への雰囲気ガス導入方法、ペレット装荷量及び温度プロファイル等について考慮する必要がある。また、より高密度で外観が良好(肌アレやヒビ割れ等の無い)なペレットを得るためには、温度プロファイル(焼結時の収縮速度が大きくなる温度領域や、そこに至る過程の昇温速度、保持時間等)を最適化することが必要であると考えられる。

焼結前後のペレット寸法より、各組成における径方向及び軸方向の収縮率を得ることができた。今後、目的とする寸法のペレットを調製するためには、これらの収縮率を基に、金型の径、プレス圧力及び金型への粉末充填量(本試験では充填深さ)の調整が必要である。

以上より、ウランへ各種組成の金属成分を添加したペレットを製造する場合、今回の U-Zr 系統試料及び U-Si 系統試料と同様に金属成分の含有量をパラメータとしつつ、各成分に最適なプレス条件(金型設計を含む)及び焼結条件を取得する試験を行うことが望ましい。

その他、本試験の結果として得られた知見を以下に示す。

##### (1) Fe, Ca と Mo の相互作用

本試験において実施した焼結炉による焼結試験の結果、U-Zr-Fe-Ca 試料 (No.11) では、Mo 製トレイと何らかの相互作用が見られた。

図 4.3.5-1 に U-Zr-Fe-Ca 試料 (No.11) の Mo 製トレイ上での焼結前後の外観を示す。



図 4.3.5-1 U-Zr-Fe-Ca 試料 (No.11) 焼結前後

左：焼結前（白い Zr ペレットの左側、中央茶色ペレットが U-Zr-Fe-Ca 試料 (No.11)）  
 中央：焼結後（白い Zr ペレットの左側、中央部の 10 個のペレットが U-Zr-Fe-Ca 試料 (No.11)）  
 右：U-Zr-Fe-Ca 試料 (No.11) 除去後の Mo 製トレイ状況

図の中央及び右に示した焼結後写真においてペレットが配置されている周囲の Mo 製トレイ面に白色のシミが観察された。また、ペレットがあった直下はそのシミの色が濃く、U-Zr-Fe-Ca 試料 (No.11) とトレイの Mo が何らかの相互作用をしたと見られる。同一焼結バッチであった U-Zr 系統試料でこの様な様子は観察されなかったことから、Fe もしくは Ca が関係していると考えられる。将来、Fe もしくは Ca が含まれる試料を焼結する場合は、Mo 以外の組成として W 等のトレイを検討すべきである。

## (2) 焼結時の $H_2$ 濃度について

TD 試験においては、焼結炉による試作ペレットと寸法が異なる TD 試験用ペレットを調製しており、実施した 19 組成のうち、16 組成について TD 試験データを取得できた。しかし、焼結炉による試作ペレットとは異なり TD 試験用ペレットでは TD 試験中に破損したペレットが多かった。図 4.3.5-2 は同一組成である焼結炉によって焼結した試作ペレットと TD 試験後の TD 試験用ペレットの外観を比較したものであるが、ペレットの色が異なっていることが分かる。

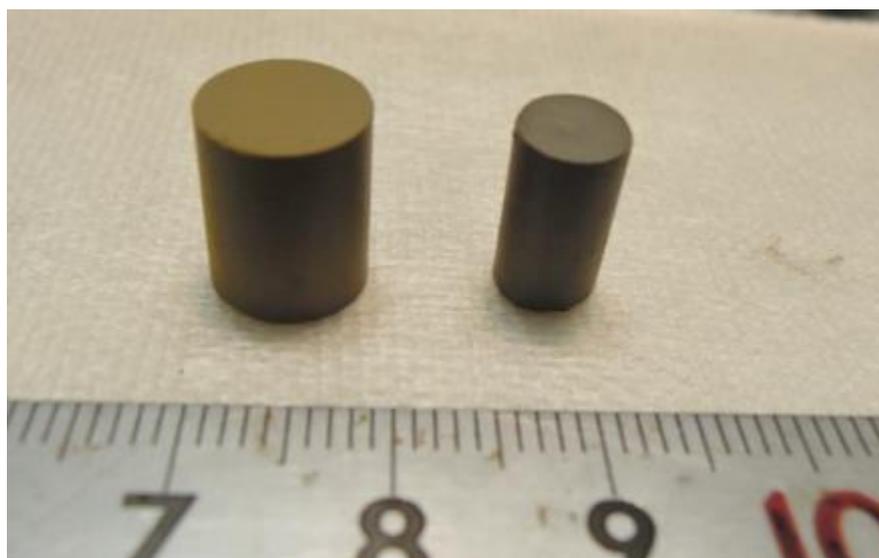


図 4.3.5-2 焼結炉による試作ペレットと TD 試験後ペレットの外観  
 (左：試作ペレット、右：TD 試験後ペレット)

焼結炉による試作ペレットと TD 試験用ペレットの試験条件において、組成、焼結時の温度プロファイルは同一であるが、以下のとおり装置の違いに起因する条件の相違点がある。

- ①焼結炉では Ar-29% $H_2$  であるのに対して、TD 試験では Ar-4.3% $H_2$  であること。
- ②TD 試験における焼結過程では、TD 試験用ペレットに対し継続的に 50 gf の軸方向荷重を負荷していること。
- ③ペレット寸法の相違により自然降温時の降温速度が異なること。(寸法の小さい TD 試験用ペレットの方がより急速に降温される。)

このため、今後ペレットを調製する際の条件として、Ar- $H_2$  比率及び降温速度は、本試験における焼結炉によるものを基準とすべきと考えられる。

#### 4.3.6 燃料デブリ模擬体試作のまとめ

本試作の結果、臨界解析コードの精度を検証するための実験に供する試料として、約  $\phi 8 \text{ mm} \times H10 \text{ mm}$  のペレットを安定して調製できる見通しを得た。

調製範囲として、試作した 19 組成のうち 16 組成のペレットの成型条件及び焼結条件並びに形状安定性、調製再現性及び取扱性等について評価した結果、U-Zr 系統試料では Zr 含有率 0 wt% から 100 wt%、U-Si 系統試料では Si 含有率 0 wt% から 35 wt% の範囲で調製成立性を確認することができた。さらに、調製工程の品質管理を行うために必要な各種知見を得ることができた。

以上のことから、本試作で得られた知見に基づき燃料デブリ模擬体を調製し被覆管に挿入することで、燃料体としての燃料棒を製造することができる。



## 4.4 臨界解析を検証する実験手法

### 4.4.1 目的

前節「4.3 燃料デブリ模擬体の試作」により、酸化ウランに炉心内外の構造材を添加したペレットタイプの燃料デブリ模擬体を調製できる見通しが得られた。本節では、前節で検討した燃料デブリ模擬体を使用した反応度価値測定実験の実現可能性について検討する。

ペレットとして調製した燃料デブリ模擬体の反応度価値を測定するためには、ペレットを適切な密封性を有する実験用装荷物に封入し、原子炉の炉心に挿入し、反応度の変化を測定する方法が適切である。このような実験では炉心の核的な特性のみに着目するため、実験用原子炉には、冷却系を必要としない極低出力の臨界実験装置が用いられる。

本事業で想定する臨界実験装置を図 4.4-1 に示す。ここでは、熱体系臨界実験装置として実績のある形状である、炉心タンク内部に燃料を配列し、水減速材を供給して炉心を構成するタイプの装置とした。炉心タンクは炉心構成の自由度向上のために上方開放型とする。燃料は、実験者が手で取扱えるよう、被覆材で密封した棒状燃料とする。棒状燃料を炉心に配列する際には格子板を使用して一定間隔に配列し、格子板を交換することによって炉心の減速材対燃料体積比を変更することができるものとする。炉心タンクに供給する水減速材はヒータで昇温することができ、昇温実験を行うことができる。

反応度測定実験のために燃料デブリ模擬体を炉心に装荷する際には、調製したサンプルペレットを実験用装荷物に封入し、格子板に配列する方法を取る。実験用装荷物は棒状燃料と同じ形とし、着脱可能な端栓を設けることで、試料を入れ替えて炉心の任意の位置に挿入することが可能になり、実験の自由度を向上することができる。

上記の実験用装荷物は、実験上の必要性から以下のような要求事項を満たす必要がある。

- 1) 実験後にサンプルペレットを分析する必要があることから、端栓は密封性を保ちつつ開閉可能な開閉機構を備え、サンプルペレットの出し入れが可能なものでなければならない。
- 2) 実験用装荷物を炉心に装荷する際に実験者が手で扱うことから、端栓の開閉機構は簡易な構造であり取扱いが容易である必要がある。また、運搬中に予期せず開封されないことがない機構としなければならない。
- 3) 減速材である水中に配列する必要性から、端栓の開閉機構は水密を担保しなければならない。
- 4) 燃料デブリ体系に想定される減速材対燃料体積比は幅が広いため、燃料が稠密に配列された減速不足の炉心における臨界実験を行う必要性が考えられる。したがって、棒状燃料との干渉を避けるため、端栓の開閉機構は外径の増大を伴わないものである必要がある。
- 5) 被覆及び端栓の開閉機構は昇温実験の際にも健全性を失ってはならない。

臨界実験を実施するためには上記の条件を満たす実験用装荷物を作成しなければならないが、棒状燃料と同等のペレット径を確保するためには、実験用装荷物の被覆管は厚み約 0.6 mm の薄肉になるため、外径を増大させずに密封性を持った開閉機構を組込むのは技術的に困難であることが予想される。このため、本事業では、実験に先立って実験用装荷物の被覆及び端栓を設計・試作し、実験手法が成立することを確認する。また、挿入した燃料デブリ模擬体が有意な反応度を持ち、測定実験が可能なることを確認するため、反応度差を解析した。

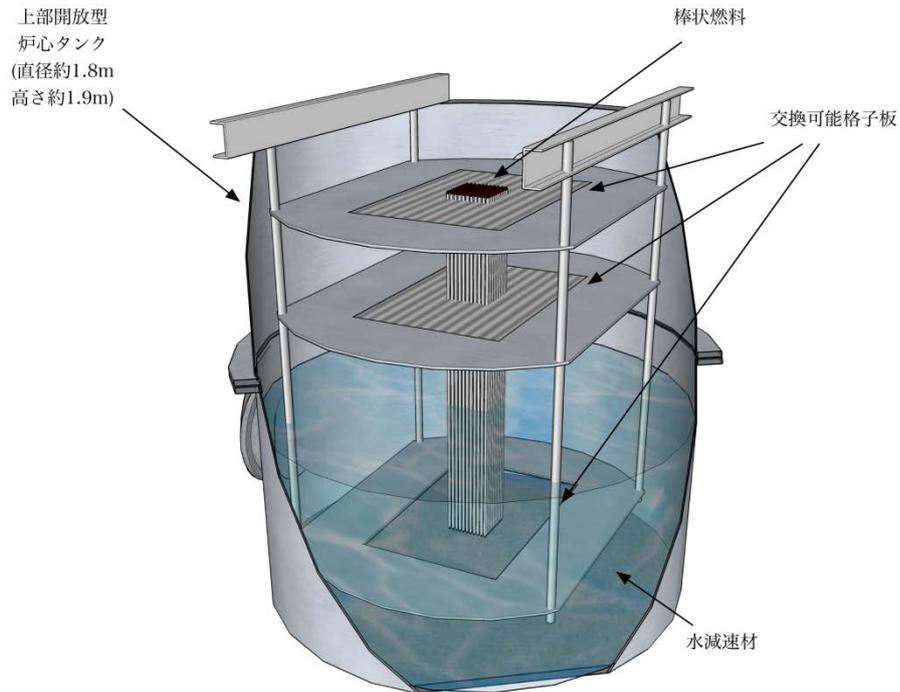


図 4.4-1 本事業で想定する臨界実験装置（イメージ図）

#### 4.4.2 試作被覆管及び端栓の仕様と確認項目

4.4.1 で示した仕様を満たすための被覆管及び端栓の仕様は以下のとおりである。

##### (1) 寸法

外径	9.5 mm
内径	8.36 mm
肉厚	0.57 mm
最小格子間隔	10.9 mm（減速材対燃料体積比約 1）

##### (2) 材料

被覆管材料	ジルカロイ
開閉機構部	ジルカロイ、アルミニウム、SUS 等

##### (3) 機能

- 1) 燃料デブリ模擬体ペレットを封入してロックし、炉心に装荷できる開閉機構を備える。
- 2) 開閉機構は開閉の際に溶接・切断を必要とせず、繰り返し使うことができる。
- 3) ロックした時、内部に水が浸入しない(水位 2 m 静水圧で 1 時間水密が取れること)。
- 4) 炉心への燃料棒挿入時のハンドリングでロックした開閉機構が外れることがない。
- 5) 人力で簡易に開閉が可能。
- 6) 90 °C 以下の温度で健全性を失わない。

#### 4.4.3 試作結果

4.4.2 で示した仕様を満たす被覆及び端栓を設計した結果を図 4.4-2 に示す。図のように、被覆管に L 型スリットを設け、O リング付きの端栓に組み込んだピンと嵌めあうことによってロックする機構とした。この機構により、棒状燃料と同じ外径に開閉機構を組込むことができる。また、この機構は人力で簡易に開閉することができる。さらに、端栓にはネジを組み込み、組み立て後にネジを締め込むことによって O リングを締め、密封性を確保することができる設計としている。

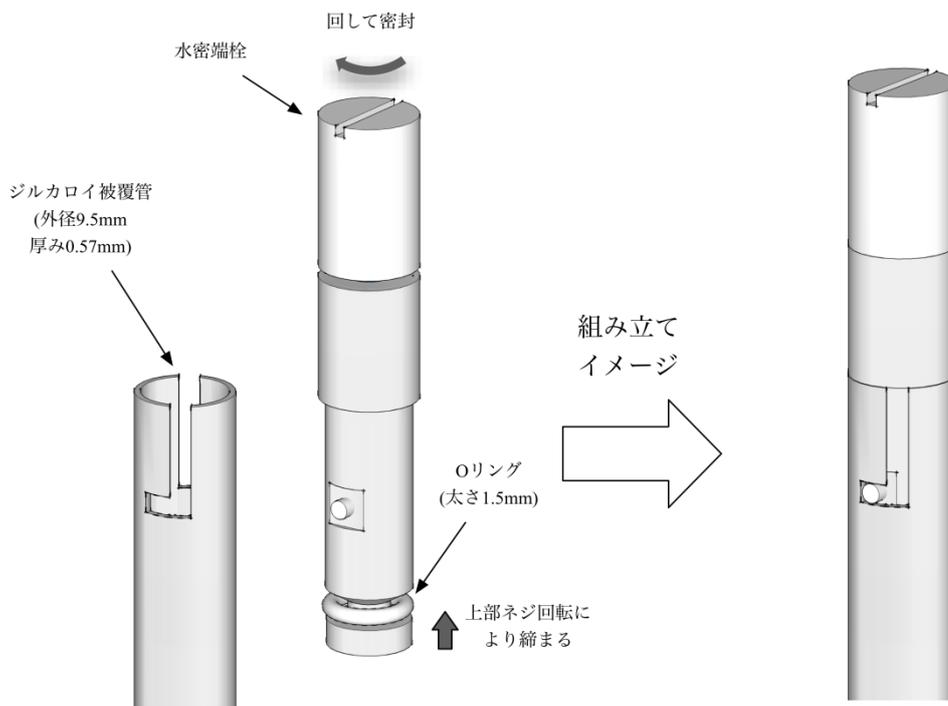


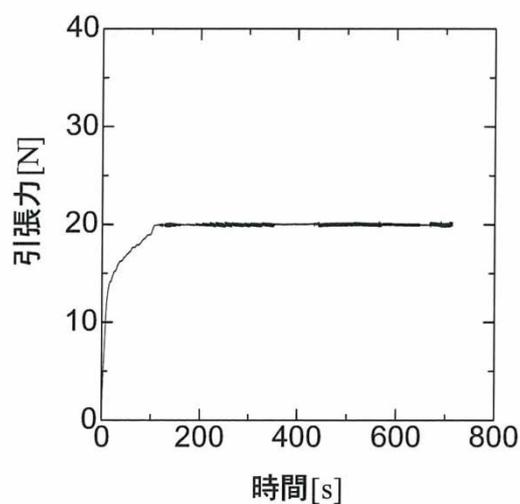
図 4.4-2 炉心装荷用被覆管及び端栓の設計結果

上記設計による試作品を作成し、引抜検査及び水密検査を実施し、性能を確認した。検査の概要を以下に示す。

##### (1) 引抜検査

引抜検査は試作した端栓に引張り荷重を負荷し、開閉機構のロック性能を確認する試験である。試作した端栓を実験用装荷物として使用する際は実験者が手動で取扱うため、取扱い時にかかる力でロックが外れることがあってはならない。このため、ロックした端栓に 20 N の力を 700 秒間負荷してその性能を確認した。なお、20 N は棒状燃料 1 本分の燃料ペレット (約 900 g) より 1 G 下でもたらされる荷重の約 2 倍に相当する。

引抜検査の結果を図 4.4-3 に示す。700 秒間の負荷の後も開閉機構に有害な傷、割れ等の欠陥が発生することなく、健全性を保っていることが確認できた。



引抜検査荷重履歴

検査前



検査後



図 4.4-3 引抜検査の結果

## (2) 水密検査

水密検査は、端栓が水没した際に内部に水の浸入がないことを確認するための試験である。試作した端栓を使用する実験用装荷物は棒状燃料と同じく水減速材に挿入して使用する。このとき端栓部は通常は水没することはないが、不測の事態により水中に沈んだときにも内部に水が浸入することがないようにする必要がある。このため、2 m の水中に 1 時間水没させ、水密性能を確認する試験を実施した。水密検査の試験体系図を図 4.4-4 に示す。試作被覆管内部には水分によって変色する塩化コバルト紙を封入し、変色がないことにより水密性能を確認する。臨界実験においては水減速材をヒータで加熱する昇温試験を実施することが想定されるため、減速材温度を室温 (20 °C) の他 90 °C に昇温した体系でも水密試験を実施した。

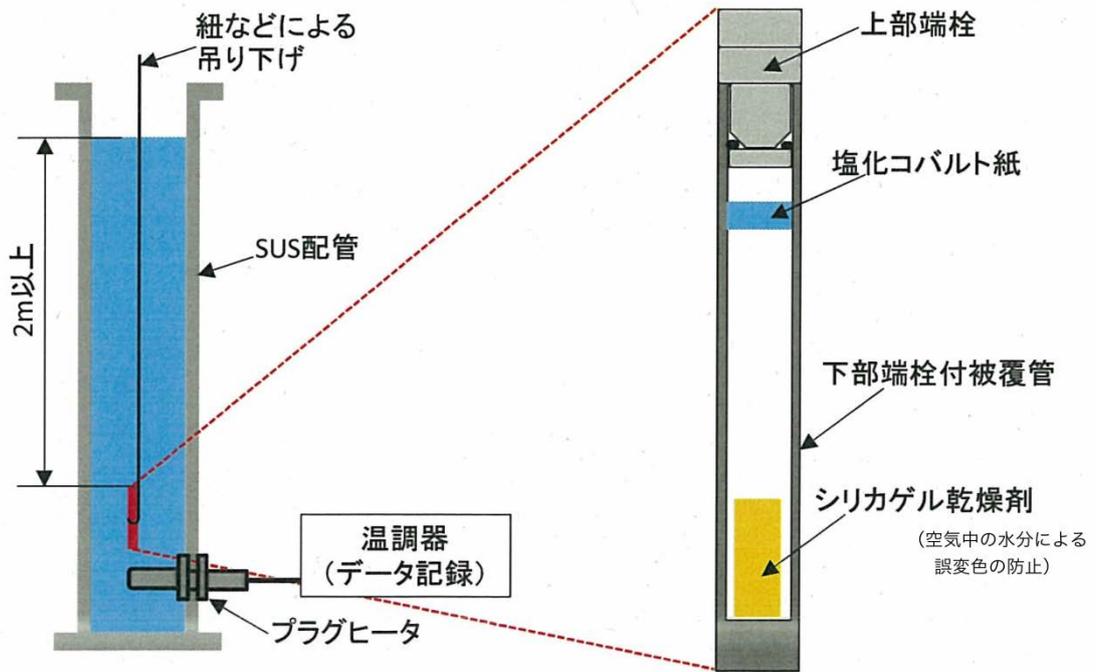
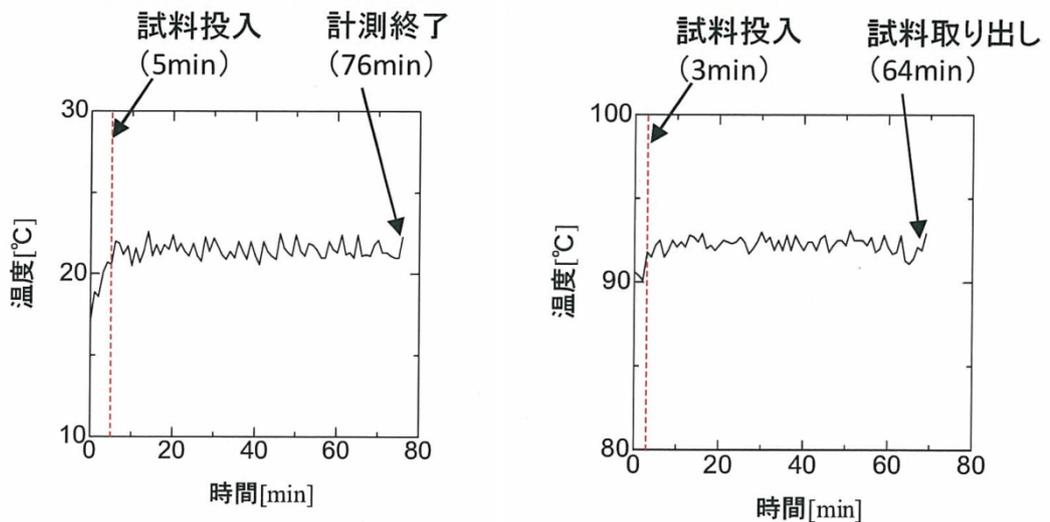


図 4.4-4 水密検査体系図

水密検査の結果を図 4.4-5 及び図 4.4-6 に示す。室温（水温 20℃）の体系及び昇温時（水温 90℃）の体系においてそれぞれ 1 時間以上水中に保持し、封入された塩化コバルト紙の変色の有無を確認した。検査終了後も塩化コバルト紙は変色がなく、内部に水の侵入がないことが確認できた。



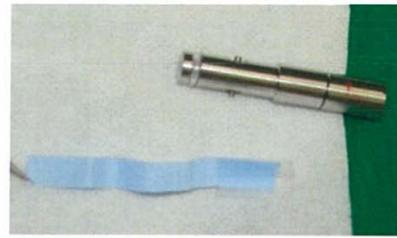
水密検査温度履歴（水温20℃）

水密検査温度履歴（水温90℃）

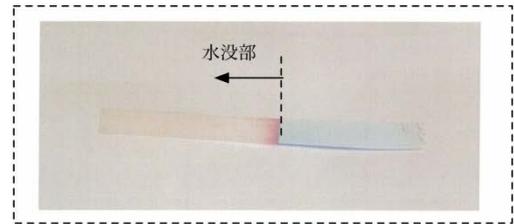
図 4.4-5 水密検査の結果（温度履歴）



水密検査結果（水温20℃）  
変色なし



水密検査結果（水温90℃）  
変色なし



参考：水没した場合の色の变化

図 4.4-6 水密検査の結果（塩化コバルト紙による浸水確認）

#### 4.4.4 燃料デブリ模擬体の反応度価値

実験用装荷物の被覆及び端栓の試作及び性能試験の結果、燃料デブリ模擬体を実験用装荷物に封入し、臨界実験装置の炉心に挿入する手法が成立することが確認できた。ただし、反応度価値測定実験が成立するためには、燃料デブリ模擬体が炉心に挿入可能なだけでなく、挿入した際に反応度計等の機器で測定可能な反応度差が生じることを確認する必要がある。このため、燃料デブリ模擬体を炉心に挿入した際の反応度差を計算によって解析した。

計算には多群輸送計算コードTWODANTと評価済み核データJENDL-3.3を組合せて使用した。臨界実験装置の炉心としては、 $^{235}\text{U}$ 濃縮度 5 wt%の棒状燃料を格子間隔 1.7 cm で 222 本配列した円筒形炉心を想定し、炉心中央に燃料デブリ模擬体を挿入するテスト領域を設けた。炉心の水位は 70 cm とした。炉心に装荷する燃料デブリ模擬体は 4.3 節で試作したペレットの組成条件から、 $^{235}\text{U}$ 濃縮度 5 wt%二酸化ウランに構造材としてコンクリートを想定した二酸化ケイ素 ( $\text{SiO}_2$ ) を添加したものとした。燃料デブリ模擬体の量は、大量の製造が困難であることも想定されることから、棒状燃料の 150 cm に比べて短尺とし、60 cm とし、実験用装荷物は 1 基とした。

上記の炉心を TWODANT の R-Z 体系としてモデル化し、燃料デブリ模擬体を炉心中央に挿入した際の反応度差を計算した。計算体系及び結果を図 4.4-7 に示す。

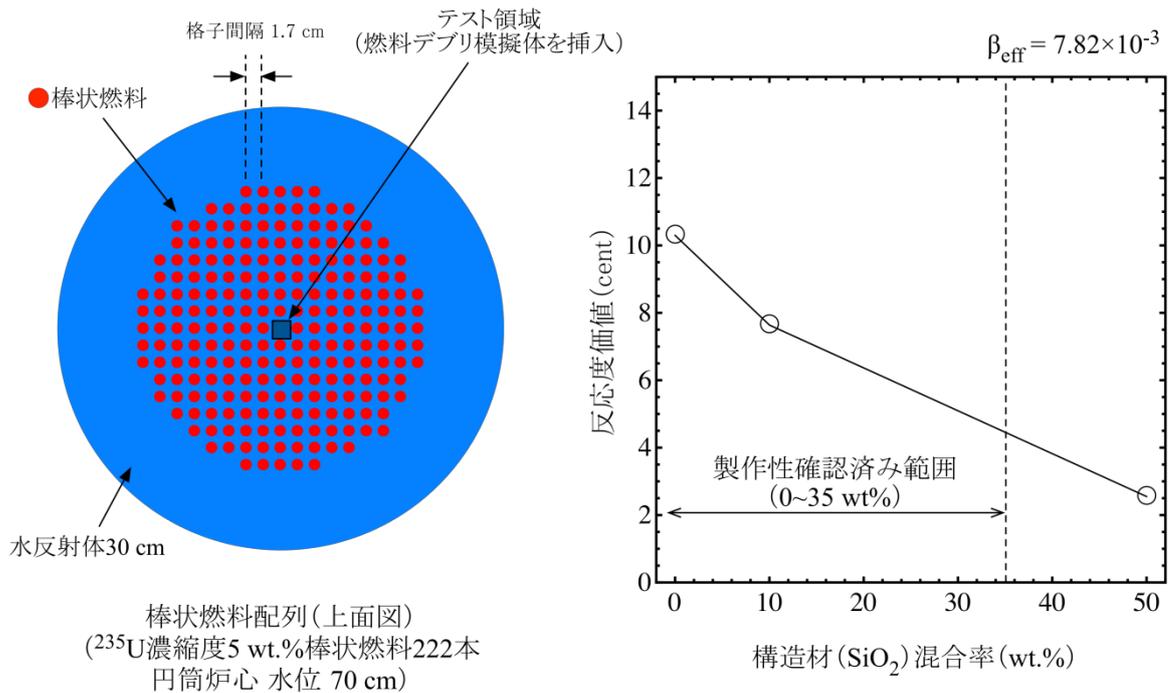


図 4.4-7 燃料デブリ模擬体の反応度価値解析 (左：計算体系、右：計算結果)

図 4.4-7 より、燃料デブリ模擬体に添加する構造材の混合率によって反応度価値は変化するが、製作可能性が確認された範囲の燃料デブリ模擬体は 10 cent~4 cent の反応度価値を持つことがわかる。臨界実験で反応度測定に使用される反応度計は 1 cent 程度の反応度差を測定できる性能を持つことから、燃料デブリ模擬体を臨界実験装置の炉心に挿入する実験手法は、反応度価値の観点からも十分に成立性があることが確認できた。



## 5. まとめ



## 5.1 核燃料物質を扱う施設における臨界管理手法の再確認及び臨界管理の実例調査

- ① 正常な原子炉以外において核燃料物質の核分裂連鎖反応を生じさせてはならず、このため法令や指針は、技術的にみて想定されるいかなる場合でも臨界を防止することを求めている。福島第一原子力発電所を対象とした原子力規制委員会決定も燃料デブリの未臨界の確保を要求している。

臨界安全ハンドブックは、臨界管理の適否を判断する臨界評価において、異常時をも考慮して最も厳しくなるような臨界評価モデルを用いることとしている。平常時の臨界管理に係る測定の不確かさ、及び技術的にみて想定されるいかなる異常時の状態も厳しい側に包絡した臨界評価モデルについて、増倍率が制限値を下回ることを確認する。

燃焼度クレジットを臨界管理に導入する場合、燃焼による核燃料物質の性状変化を臨界評価モデルに反映しなければならない。特に、FP等の負の反応度効果を期待する場合は、そのFP等の存在を保証する必要がある。また、IAEA指針等は、燃焼燃料の実際の性状を実測に基づいて評価することを求めている。

このとき、増倍率の計算に係る不確かさも考慮しなければならない。主要な不確かさは、解析コード等に特有の計算結果の系統的な偏りであり、臨界実験等によって定量される。臨界安全ハンドブックでは、この不確かさを制限値の設定の中で考慮している。モンテカルロ法による計算では、この系統的な偏りに加えて、統計的な不確かさも生じる。この不確かさは、計算結果の期待値に加算して制限値と比較することにより考慮する。

- ② 事業者によるこのような臨界評価モデルの解析コード等による評価、及びその結果に基づく臨界管理の策定と実施の妥当性は、安全規制により確認される。核燃料物質の性状範囲、施設の基本設計等の臨界管理の基本的な考え方は、許可等申請段階において妥当性が審査される。取扱設備の具体的な形状等が臨界評価モデルに内包されていることは、設計、施工及び維持の各段階で、設計及び工事の方法の認可、使用前検査、並びに施設定期検査で確認される。取扱われる核燃料物質の実際の性状は、認可された保安規定に則って事業者が臨界評価モデルの範囲内に管理し、保安規定遵守状況検査で確認される。

法令や指針で臨界事故の想定が求められている場合で、例えば六ヶ所再処理施設の溶解槽では、事故に際して、核燃料物質を速やかに未臨界状態に戻し、事故の影響を緩和する設備が設けられている。この設備は安全上重要な設備として位置づけられ、その性能を担保するための安全規制が行われている。

- ③ 通常の臨界管理においては、取扱う核燃料物質の性状をまず定義し、この性状に基づき取扱設備の形状等の制限値を決定する方法と、形状等を制限せず、取扱う核燃料物質の濃度等の性状を実測に基づき制限する方法がある。いずれの方法でも、臨界解析コードの不確かさに対して、各々の制限値に安全裕度を持たせる。

原子炉のシビアアクシデントにより燃料デブリが生じた場合、その性状も形状等も不定で管理できないため、臨界管理が難しくなる。臨界解析コードの不確かさよりも、むしろ、臨界評価モデルの不確かさが課題となる。

- ④ 通常の臨界管理では、実際に取扱う核燃料物質の性状が臨界評価モデルから逸脱していないことを、実測に基づき確認できることが前提である。このため、臨界管理で考慮しなければならない安全裕度は、臨界解析コードの計算の不確かさに対応するものと、異常時の想定に対応するものとなる。

燃料デブリの臨界管理においては、さらに性状の不確かさをも考慮した臨界評価モデルを用いなければならない。

- ⑤ TMI-2で生じた燃料デブリの取出し作業については、その性状の不確かさを考慮し、通常と同様の臨界管理が適用できた。冷却水中に可溶性中性子吸収材を加え十分な濃度を維持することにより、燃料デブリの臨界が防止された。単一故障・誤操作の内的要因や、自然災害等の外的要因も考慮した技術的にみて想定されるいかなる場合でも、中性子吸収材

濃度が希釈により制限値を下回らないように管理された。このような臨界管理下でもなお、燃料デブリが臨界となるリスクを考慮し、臨界モニタリングが要求された。

TMI-2 の炉内及び 1 次冷却水系統には、実質的に取出しが不可能な燃料デブリが若干量残っている。この残存燃料デブリが臨界になる可能性はないと事業者とともに規制当局も判断し、取出し作業と臨界モニタリングが打ち切られた。

取出された燃料デブリの保管、輸送等の臨界管理は、通常と同じ考え方による。

- ⑥ シビアアクシデント後の廃炉措置において、TMI-2 のような燃料デブリの包括的な臨界管理ができない、つまり、技術的にみて想定されるいかなる場合でも臨界を防止することが担保できない場合には、臨界に係るリスク評価が必要となる。この場合、燃料デブリ取出作業ごとに、リスク評価に基づき作業の可否を決定することになる。

したがって、シビアアクシデント後の廃炉措置の各工程におけるリスク評価手法、及びリスク基準の整備が課題である。

このリスク評価においては、臨界解析コードの不確かさのために燃料デブリの臨界性の判断が困難となる場合も想定される。このため、臨界解析コードの不確かさを実験的に確認することが必要となる。

## 5.2 臨界解析コードの精度の実験的確認方法の検討

- ① 臨界解析コードの精度の実験的確認にあたり必要な燃料デブリ模擬体の組成を検討するため、TMI-2 デブリの性状に関する先行論文を収集し、情報を分析、整理した。調査の結果、1F デブリに関連が高い TMI-2 デブリの文献を抽出し、臨界特性に与える影響が大きいパラメータである、燃料デブリの形状・サイズ、組成、空孔率等について有益な知見を得た。TMI-2 では、それらのパラメータは炉心溶融の過程によって幅広く変化し、多様な燃料デブリが生成された。このため、直接採取によっても炉心全体に対して代表性のあるサンプルを得ることは困難であった。1F 事故は TMI-2 事故の条件に加えて、溶融炉心が圧力容器を貫通し、MCCI の可能性があるという違いがある。このため、コンクリートを含む燃料デブリの発生も想定され、パラメータの多様性は TMI-2 デブリのそれよりもさらに大きくなることが予想される。本検討に加え、今後は MCCI を経た燃料デブリに関する情報を収集する必要がある。

上述の情報を踏まえ、燃料に炉心内外の構造材を模擬した材料（鉄、ケイ素、ジルコニウム等）を添加した燃料デブリ模擬体の組成を検討し、19 種類のペレットを試作した。試作を通じ、グリーンペレット成形のためのプレス圧力、ペレット成形が可能な燃料・構造材比率のデータ、焼結のための温度プロファイル等、試料調製に必要な基礎データを取得し、実験試料としての製作可能範囲を確認した。

- ② 上述の試料を用いた実験手法として、軽水減速非均質型臨界実験装置の炉心に実験用装荷物を使用して試料を挿入、反応度値を測定する方法を検討し、当該手法に必要な開閉機構等を備える被覆管及び端栓を試作した。また、試作した装荷物が実験に必要な密封性能等を備えていることを各種試験により確認した。さらに、本事業で試作した燃料デブリ模擬体を当該装荷物により炉心に挿入した場合の反応度値を計算により評価し、臨界実験手法の成立性を確認した。その結果、燃料デブリ模擬体を実験試料として使用した反応度値測定を実施できる見通しを得た。

同様の調製方法で燃料・構造材混合燃料棒を製造し、水減速材中に配列し、臨界量を直接測定する方法も考えられるが、必要な調製作業量が膨大となり、多数の実験条件において臨界実験を実施することができない。このため、特に確認が必要な条件を絞り込む必要がある。一方で、通常の燃料棒と構造材棒を交互に水減速材中に配列することは容易、かつ、多くの実験条件を実現できる。今後の検討では、このような交互に配列させた実験方法と燃料デブリの臨界特性の類似性について評価する必要がある。

上述のとおり、臨界実験で少なくとも反応度値測定を行える見通しが得られたことから、微量試料の中性子ビームの照射による微視的な反応率測定は検討しなかった。





