

RREP-2018-3001

安全研究成果報告

破損燃料輸送に係る技術調査

Technical survey on damaged fuel transport

菱田 政清 奥田 泰久 八木橋 秀樹 丸岡 邦男

Masakiyo HISHIDA, Yasuhisa OKUDA, Hideki YAGIHASHI, and Kunio
MARUOKA

核燃料廃棄物研究部門

Division of Research for Nuclear Fuel Cycle and Radioactive Waste

原子力規制庁

長官官房技術基盤グループ

Regulatory Standard and Research Department,
Secretariat of Nuclear Regulation Authority(S/NRA/R)

平成 30 年 11 月

November 2018

本報告は、原子力規制庁長官官房技術基盤グループが行った安全研究プロジェクトの活動内容・成果をとりまとめたものです。

なお、本報告の内容を規制基準、評価ガイド等として審査や検査に活用する場合には、別途原子力規制委員会の判断が行われることとなります。

本レポートの内容に関するご質問は、下記にお問い合わせください。

原子力規制庁 長官官房 技術基盤グループ 核燃料廃棄物研究部門
〒106-8450 東京都港区六本木 1-9-9 六本木ファーストビル
電 話：03-5114-2225
ファックス：03-5114-2235

破損燃料輸送に係る技術調査

原子力規制庁 長官官房技術基盤グループ

核燃料廃棄物研究部門

菱田 政清 奥田 泰久 八木橋 秀樹 丸岡 邦男

要 旨

東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所（以下「1F」という。）の使用済燃料プール（以下「SFP」という。）からの燃料の輸送については、燃料が破損している可能性を否定できないため、破損している燃料の特性や輸送物の形態を想定して検討する必要がある。さらに、想定される輸送物について現行の技術基準への適合性を評価して評価対象項目を抽出し、それらについての評価手法を整備する必要がある。また、1FのSFPから共用プールへ使用済燃料を輸送する際に、1FのSFPの水質が通常の発電所の水質と異なるため、水質が輸送容器内での水素発生量に与える影響についても知見を取得する必要がある。これらを踏まえ、本研究では、以下の知見を取得した。

本研究では、国際原子力機関（IAEA）の文献、放射性物質の輸送容器と輸送に関する国際シンポジウム（PATRAM）の文献、その他公開文献等を中心に、破損燃料輸送に係る調査を実施するとともに、1F4号機SFP内の燃料集合体に関する情報を取得し、輸送物の状態を想定して課題を抽出した。さらに、それらについて検討し、以下に示す結果を得た。

破損燃料を同定するための技術的な方法については、燃料の健全性が確認されていない燃料を検査のためハンドリングすることは困難と考えられるため、燃料集合体上部タイプレートの変形量を測定する方法が利用可能であること等の結果を得た。さらに、1FのSFPの水質が輸送容器内での水素発生量に与える影響については、放射線分解による水素発生量を測定する試験を実施し、水質が水素発生に与える影響としては、ハロゲン化物イオンのうち、ヨウ化物イオンの影響が最も大きいこと及び海水存在下においてもヨウ化物イオ

ンが共存すると、水素発生量に影響を与えることを明らかにした。

あわせて、破損燃料を収納した輸送物に関する臨界評価手法についても公開情報を基に検討し、ケーススタディ等を通して評価上の留意点を抽出した。

これらの知見は、将来の破損燃料輸送の安全評価のための技術基盤として利用する。

Technical survey on damaged fuel transport

Masakiyo HISHIDA, Yasuhisa OKUDA, Hideki YAGIHASHI, and Kunio MARUOKA
Division of Research for Nuclear Fuel Cycle and Radioactive Waste

Regulatory Standard and Research Department,
Secretariat of Nuclear Regulation Authority(S/NRA/R)

Abstract

Regarding the transportation of fuel stored in the spent fuel pool (hereinafter referred to as "SFP") of TEPCO Holdings, Inc.'s Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (hereinafter referred to as "1F"), it is necessary to assume the characteristics of the damaged fuel and the form of the package since it is not possible to deny the possibility that the fuel is damaged. It is also necessary to evaluate the conformity of the assumed package to the current technical standards, identify the items to be evaluated, and implement their evaluation methods. Also, the water quality in SFPs of 1F is different from that of a normal power plant, and as the water quality affects the amount of hydrogen generation in the package it is necessary to acquire relevant technical knowledge. In light of these background, in this research we obtained the following findings:

First, we conducted a survey on transportation of damaged fuel, mainly in the literature of the International Atomic Energy Agency (IAEA), the International Symposium on Transport Containers and Transport of Radioactive Materials (PATRAM), and other open literature. In parallel, we obtained information on the fuel assemblies in the 1F Unit 4 SFP. Then, we assumed the condition of the packages and identified some technical issues which we further examined shown as follows:

Regarding the technical method for identifying damaged fuel, since it is considered difficult to handle fuel for which fuel integrity has not been confirmed, for inspection, it is concluded that a method such as to measure the amount of deformation of the fuel assembly upper tie plate is applicable. Regarding the influence of water chemistry on hydrogen generation during transportation, we have conducted a basic experiments to measure the amount of hydrogen generated by radiolysis. As a result, it was found that iodide ions had the largest effect on the amount of hydrogen generated among halogen ions and moreover, when the iodide ions of a certain concentration coexist under the presence of seawater, iodide ions had a dominant effect on the amount of hydrogen generated.

In addition, we conducted a study on the criticality evaluation methods for packages containing damaged fuels including case studies and identified some technical focal points for conducting such evaluation.

These findings will be used as a technical basis for future safety assessment of damaged fuel transportation.

目次

1. 序論	1
1. 1 背景	1
1. 2 研究の目的	1
1. 3 研究の全体工程	1
1. 3. 1 破損燃料輸送に係る技術調査	1
1. 3. 2 輸送物中の水素発生量の評価	1
2. 本論	5
2. 1 破損燃料輸送に係る技術調査	5
2. 1. 1 4号機のプール内燃料の情報収集	5
2. 1. 2 破損燃料等の輸送に係る文献調査	6
2. 1. 3 破損燃料を収納した場合の輸送物の推定	8
2. 1. 4 調査結果の課題の抽出	8
2. 1. 5 抽出された課題の検討	8
2. 1. 6 破損燃料を収納した輸送物の臨界評価	10
2. 2 輸送物中の水素発生量の評価	13
2. 2. 1 試験	13
2. 2. 2 解析	20
2. 2. 3 放射線分解とハロゲン化物イオンの反応に係る検討	22
3. 結論	24
3. 1 成果の要点	24
3. 2 目的の達成状況	24
3. 3 成果の活用等	24
参考文献一覧	25

表目次

表 1. 1	工程表	2
表 2. 1	海外における破損燃料輸送実績	7
表 2. 2	試験条件	15
表 2. 3	試験で使用する人工海水に含まれる成分及び濃度	15
表 2. 4	水素発生に係る定常水素濃度測定結果	16
表 2. 5	水素発生に係る見かけの G 値の測定結果	17
表 2. 6	ハロゲン化物イオンと OH ラジカルの反応速度定数比の比較	23

図目次

図 1. 1	1F の破損燃料輸送に係る課題の解決のためのフローチャート	3
図 1. 2	気液二相での放射線照射下のカプセル式水素発生量測定装置	4
図 2. 1	輸送物モデル (例)	12
図 2. 2	試験装置	18
図 2. 3	希釈人工海水 (単独) 及び希釈人工海水とヨウ化物イオン共存系での 水素発生 (室温)	18
図 2. 4	水素発生に係る見かけの G 値計算結果 (室温)	19
図 2. 5	定常水素濃度の解析値と実測値との相関 (室温及び 150°C)	21

略語表

1F	TEPCO Holdings, Inc.'s Fukushima Daiichi Nuclear Power Station 東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所
G 値	G value 放射線化学収率。放射線化学では、物質が電離放射線のエネルギー100eV を吸収するごとに、化学反応を起こして生成する分子又はイオンの数。
IAEA	International Atomic Energy Agency 国際原子力機関
keff	effective multiplication factor (中性子の) 実効増倍率
PATRAM	the International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials 放射性物質の輸送容器と輸送に関する国際シンポジウム
SFP	spent fuel pool 使用済燃料プール
TEPCO Holdings, Inc.	Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. 東京電力ホールディングス株式会社

1. 序論

1. 1 背景

使用済燃料の輸送については、核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律（昭和 32 年法律第 166 号）、核燃料物質等の工場又は事業所の外における運搬に関する規則（昭和 53 年総理府令第 57 号）等において、除熱、遮蔽、臨界防止等の安全確保のために求められる基準が定められており、これらの基準に基づき審査が行われている。なお、収納物（輸送対象物）によらず求められる技術基準は同じである。

現在、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所（以下「1F」という。）の使用済燃料プール（以下「SFP」という。）に貯蔵中の燃料については破損が生じている可能性が否定できない。

破損燃料を輸送する際の審査に当たっては、破損している燃料の特性や輸送物の形態を想定し、評価に必要な項目を抽出し、評価手法が整備されている必要がある。また、1F の SFP から共用プールへ使用済燃料を輸送するための審査が行われる際には、1F の SFP の水質が輸送容器内での水素発生量に与える影響を定量的に評価されることが必要である。

1. 2 研究の目的

東京電力ホールディングス株式会社（以下「事業者」という。）が実施した 1F の SFP における使用済燃料の破損状況に関する調査結果を基に、本研究では、想定される輸送物について現行の技術基準への適合性を評価し、審査における留意点を整理する。また、1F の SFP の水質が輸送容器内での水素発生量に与える影響の定量的評価を行う。

1. 3 研究の全体工程

本研究の全体工程を表 1. 1 に示す。表 1. 1 のとおり、本研究は、平成 24 年度から平成 28 年度まで実施した。

1. 3. 1 破損燃料輸送に係る技術調査

事業者が実施した 1F の SFP における使用済燃料の破損状況に関する調査結果を基に、プール内燃料の情報を収集し、破損燃料を収納した場合の輸送物を推定するとともに、破損燃料等の輸送に係る文献調査を実施した。

本研究における 1F の破損燃料輸送に係る課題の解決のためのフローチャートを図 1. 1 に示す。

1. 3. 2 輸送物中の水素発生量の評価

輸送物中の水素発生量について評価するため、希釈人工海水、ヨウ化物イオン水溶液及び臭化物イオン水溶液に対して放射線照射を行い、発生した水素による内圧の上昇を測定

することにより水素の定常濃度を求めた。気液二相での放射線照射下のカプセル式水素発生量測定装置を図1. 2に示す。続いて水素発生量が吸収線量に比例して増加する領域のデータを使用して水素の見かけのG値（試験条件に依存するG値）を測定した。取得した定常濃度測定データと見かけのG値のデータを基に、解析ツールを用いて輸送容器中の水素発生量を評価した。次に、得られた知見を基に使用済燃料からの水素発生に係る総合評価を実施した。

表1. 1 工程表

Table 1. 1 Process sheet

	平成24年度	平成25年度	平成26年度	平成27年度	平成28年度
・破損燃料輸送に係る技術調査					
(1) プール内燃料の情報収集	4号機				
(2) 破損燃料等の輸送に係る文献調査	文献調査				
(3) 破損燃料を収納した場合の輸送物の推定	4号機				
(4) 調査結果の課題の抽出	課題抽出				
(5) (4)にて抽出された課題の検討		課題検討			
(6) 破損燃料を収納した輸送物の臨界評価			臨界評価		
・輸送物中の水素発生量の評価			試験	試験	評価

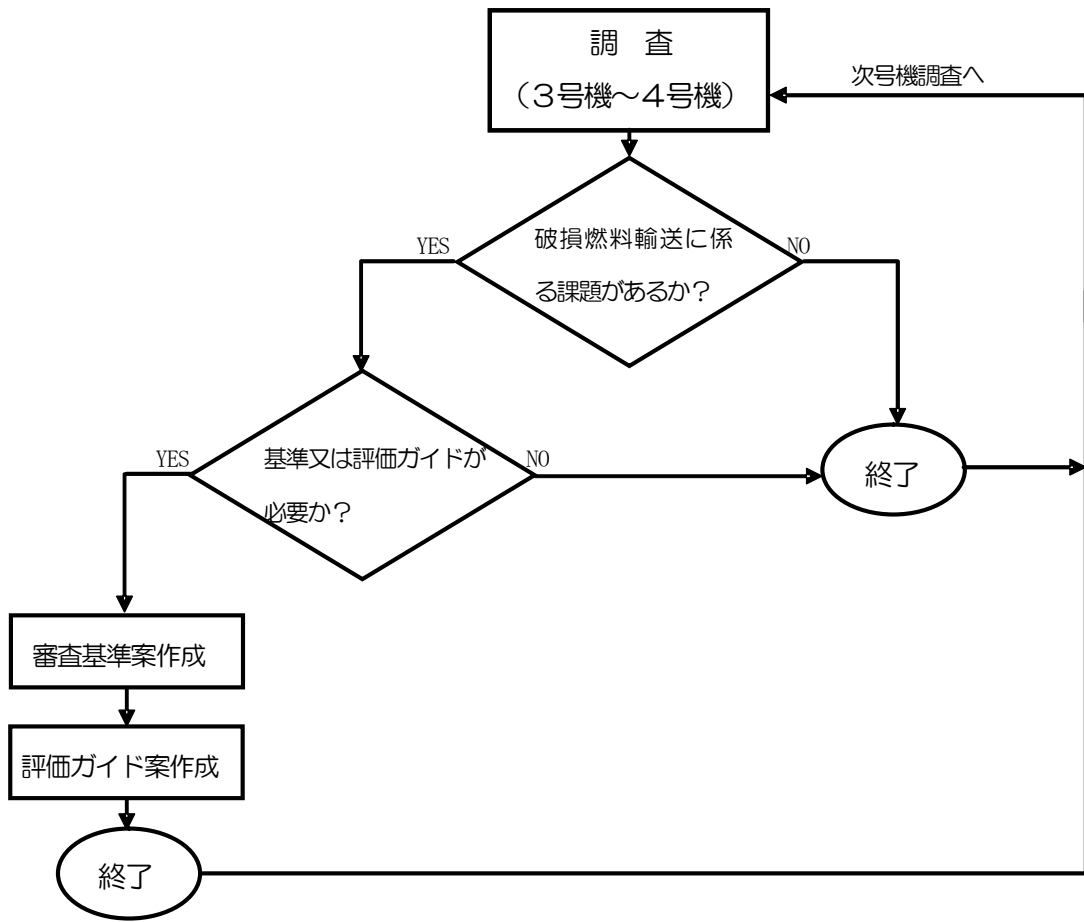


図1. 1 1Fの破損燃料輸送に係る課題の解決のためのフローチャート

Fig. 1. 1 Flowchart for resolving the issues related to damaged fuel transportation of 1F



図1. 2 気液二相での放射線照射下のカプセル式水素発生量測定装置

Fig. 1. 2 A capsule-type hydrogen generation amount measuring apparatus under irradiation with radiation in gas-liquid two-phase

2. 本論

2. 1 破損燃料輸送に係る技術調査

2. 1. 1 4号機のプール内燃料の情報収集

1FのSFPにおいては、平成23年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震に伴う津波の襲来により全交流電源が喪失し、SFPの冷却機能及び補給水機能が喪失した。このため、SFP内の水温上昇及び水位低下の対策としてコンクリートポンプ車等によるSFPへの注水が実施された。この際、注水開始後の短い期間ではあるが、2号機、3号機及び4号機には海水が注水された。また、1号機、3号機及び4号機では水素ガスによると思われる爆発が発生し、SFP内にガレキ等が落下した。

4号機における震災後の発生事象及びその後事業者が実施したSFP調査等に基づき、SFP内燃料の現況を以下にまとめた。

(1) 貯蔵燃料体数

平成23年3月11日時点で、4号機のSFP内には使用済燃料1331体、新燃料204体が貯蔵されていたが、平成24年7月18日、19日に新燃料2体を取り出された。

(2) SFPへの注水及び水温、水位変化

震災後から平成23年8月12日までのSFPへの注水量は約6242tであり、そのうち、平成23年3月22日～3月27日の期間は海水が注水された。4号機のSFPの水位は、平成23年4月20日頃までは蒸発量が注水量を上回っており、使用済燃料貯蔵ラック頂部+1.5mまで水位は低下したが、燃料の露出は無かったとされた。

なお、平成23年7月31日以降、SFPは代替冷却系による冷却が開始された。

(3) SFP水の分析結果

SFP水中の放射性物質の核種分析結果では、3回の採取結果ともに事故発生前(3月4日)に採取された濃度よりは高いが、絶対値は大きくなかった。このため、SFP内の大部分の燃料は健全な状態にあり、系統的な大量破損は発生しなかったと推測された。SFP内の使用済燃料は、最も冷却期間が短い燃料でも事故時点で4か月以上冷却されていたため、検出された短半減期核種のI-131(半減期約8日)はSFP内に貯蔵していた燃料の影響とは考えにくく、1～3号機の原子炉由来の可能性が高いと考えられた。

逆浸透膜装置(RO装置)等による塩分除去により、当初1944ppmであった塩素濃度は、平成24年10月12日には9ppm(保安規定制限値100ppm)まで低下した。

(4) SFPへのガレキ落下状況

4号機では、平成23年3月15日6時頃、水素ガスによると思われる爆発により、原子

炉建屋のオペレーティングフロア上部等の壁面が破損した。平成23年5月7日には、ビデオカメラによるSFP内の撮影が実施され、SFP内には大小様々なガレキが落下していたが、SFP内に保管されていた燃料は使用済燃料貯蔵ラックに収納された状態を維持しており、大量の燃料破損は無いことが確認された。また、平成24年3月15日～21日には、遠隔水中探査機（Remotely Operated Vehicle、ROV）を用いて、SFP内ガレキ分布状況が調査された。

（5）新燃料の取出検査

平成24年7月18日、19日に取り出された新燃料2体について、平成24年8月28日、29日に目視点検が実施された。燃料集合体の中に小石のような異物が10個ほど（最大約2cm角）発見・回収されたが、燃料に損傷がないことが確認された。燃料棒の表面にはサビのようなものが確認されたが、拭き取れたことからSFP内の金属粉のようなものが付着したものと考えられた。また、検査時点では構造部材に腐食などは見られておらず、燃料取出しに大きな支障となるような課題は確認されなかった。

2. 1. 2 破損燃料等の輸送に係る文献調査

本研究では、破損燃料の定義に関連する文献及び破損燃料輸送に係る文献について、国際原子力機関（IAEA）の文献、放射性物質の輸送容器と輸送に関する国際シンポジウム（PATRAM）の文献、その他公開文献等を中心に調査を実施した。その結果、輸送方式は乾式輸送が用いられていること、情報は米国のものであること及び燃料の破損の程度は軽度のものから重度のものまで様々であることが分かった。成果の一つとして海外における破損燃料輸送実績を表2.1に示す。

また、本研究において、海外調査としてハンガリー規制当局及びパクシュ（Paksi）原子力発電所を訪問し情報収集を行い、破損燃料の回収、貯蔵及び輸送に係る技術、安全要件及び安全に係る研究開発に関する知見を得た。

表2. 1 海外における破損燃料輸送実績

Table 2. 1 Experience of damaged fuel transportation abroad

No	搬出元	搬出先	使用輸送容器 収納缶の有無	乾式/ 湿式	燃料タイプ/ 燃料の損傷状態
1	TMI-2 (米)	アイダホ研究所 (米)	NuPac 125-B 有	乾式	PWR 燃料/デブリ
2	パクシユ発電所 (ハン ガリー)	マヤク再処理施設 (ロシア)	TUK-6 有	乾式	VVER 燃料/デブリ
3	コネチカット ヤンキ ー ハダム ネック発 電所 (米)	バッテリー コロンバス 研究所 (米)	NAC-1E 無	乾式	PWR 燃料/クラック
4	Western New York Nuclear Service Center (米)	ドレスデン発電所 (米)	TN-9 有	乾式	BWR 燃料/ピンホール・ ヘアーライン
5	Western New York Nuclear Service Center (米)	オイスタークリーク発 電所 (米)	TN-9 有	乾式	BWR 燃料/ピンホール・ ヘアーライン
6	Western New York Nuclear Service Center (米)	アイダホ研究所 (米)	TN-REG TN-BRP 無	乾式	PWR 燃料、BWR 燃料 /不明
7	ハンフォード (米) 貯蔵プール	キャニスタ貯蔵建屋 (構内)	MCO 有	乾式	MarkIV燃料 /腐食タイプ
8	GKSS研究所 (独)	キャダラッシュ研究セ ンター (仏)	NCS45 不明	湿式/ 乾式	原子力船燃料 /ペレット放出
	キャダラッシュ研究セ ンター (仏)	ZIN 中間貯蔵施設(独)	CASTOR KNK 有	乾式	
9	ステファン研究所 (スロベニア)	アイダホ研究所 (米)	不明	不明	研究炉燃料 /亀裂、腐食
10	イグナリア発電所 (リトアニア)	発電所内貯蔵施設	CONSTOR RBMK-1500/M2 有	乾式	RBMK 燃料 /ペレット放出等
11	ドコバニ発電所 (チェ コ)	発電所内貯蔵施設	CASTOR 440/84 不明	乾式	VVER 燃料/漏洩
12	テジョン研究炉 (韓国)	アイダホ研究所 (米)	NAC-LWT 不明	不明	PWR 燃料/不明
13	試験炉 (ヴェネズエラ)	サバンナリバー研究所 (米)	GE-2000 不明	不明	研究炉燃料/腐食

2. 1. 3 破損燃料を収納した場合の輸送物の推定

本研究では、2. 1. 1で収集した4号機SFP内の燃料情報及び2. 1. 2で得られた破損燃料等の輸送に係る文献調査の結果を基に、破損燃料を収納した輸送物を推定した。

輸送物の推定では、被覆管の状態と燃料取扱性（通常の手扱いが可能か否か）を組み合わせて、推定される燃料の状態を検討し、破損状態ごとにケース分けして推定を行った。ケースごとに破損状態を考慮した安全評価に関する考え方と運用に対する考え方について整理した検討結果と破損燃料輸送に係る文献調査の結果から、破損燃料を搬出する場合の安全評価を実施する上で、不足あるいは見直すべきと思われる知見を抽出した。

輸送物を推定する際に考慮した状態を以下に示す。

- ・被覆管の状態：健全、漏えい燃料、
ピンホールやヘアラインクラックより大きな損傷レベルⅠ（燃料集合体としては健全性を維持しているが、被覆管から燃料微粒子の放出の可能性がある破損）、
ピンホールやヘアラインクラックより大きな損傷レベルⅡ（燃料集合体の形状を維持していない燃料で、デブリ、ペレットや粒子の脱落、燃料棒の断片などを含む。）
- ・輸送中の破損の進展：有、無
- ・新たな破損：有、無
- ・燃料取扱性：通常の手扱いが可能、通常の手扱いができない破損状態
- ・収納缶：有、無

2. 1. 4 調査結果の課題の抽出

2. 1. 2で得られた破損燃料等の輸送に係る文献調査の結果及び2. 1. 3で得られた破損燃料を収納した場合の輸送物の推定を踏まえ、破損燃料を搬出する場合の安全評価を実施する上で、不足あるいは見直すべきと思われる次の課題が抽出された。

- ・破損燃料を同定するための技術的な方法
- ・破損燃料を収納する収納缶及び輸送容器に求められる機能
- ・水素発生量の評価に関連して湿式輸送における水質が水素発生量に与える影響

2. 1. 5 抽出された課題の検討

2. 1. 4で抽出された3つの課題について検討した。

(1) 破損燃料を同定するための技術的な方法

現在原子力発電所で運用されている方法を中心に調査を実施した。その結果、1Fの現場の状況を考慮すると、燃料の健全性が確認されていない燃料を検査のためハンドリン

グすることは困難と考えられるため、4号機での運用が検討されていた燃料のハンドリングを伴わない燃料集合体上部タイプレートの変形量を測定する方法が利用可能であると考えられる。

(2) 破損燃料を収納する収納缶及び輸送容器に求められる機能

収納缶は、破損した燃料が飛散することによる汚染拡大を防止する（密封機能）とともに、臨界を防止するため核燃料物質が集積する範囲を限定する（臨界防止機能）観点から設けるものである。ただし、破損燃料を輸送する際に必要な機能である密封機能及び臨界防止機能は、輸送容器が密封機能及び臨界防止機能を持つ場合には、収納缶にこれらの機能を持たせる必要はない。

また、輸送容器本体について、核燃料物質等の工場又は事業所の外における運搬に関する規則に適合させる観点から、基本的安全機能（除熱、密封、遮蔽及び臨界防止）及び構造強度について整理し、各項目について必要となる対策を検討した。収納缶を使用しないで破損燃料を輸送する場合においては、収納缶を使用して輸送する場合に比べて、輸送容器の基本的安全機能について破損状態を考慮した検討及び評価を実施する必要がある。なお、輸送容器の構造強度については基本的安全機能を維持されるようにすることが必要である。

(3) 水素発生量の評価に関連して湿式輸送における水質が水素発生量に与える影響

破損燃料の周囲に水分が存在し、海水成分や臭化物イオンが共存すると水素の発生量の増加が予想されることが文献調査^(参1)の結果より判明した。この文献より、以下の知見が得られた。

- ・海水成分が水の放射線分解に及ぼす影響に関連する研究は、廃棄物の処分の観点で地下水が岩塩に浸透して保管容器周りに濃厚な海水成分が存在する場合の影響を調べることを目的として1980年代後半に始まった。その中で、海水成分に含まれる塩化物イオン、臭化物イオン等のハロゲン化物イオン、炭酸イオン又は硫酸イオン等の関与する複雑な反応機構の研究や、高塩化物イオン濃度の体系でのG値が調べられてきた。海水中の塩化物イオン、臭化物イオン、炭酸イオン及び硫酸イオンの反応が検討されてきた結果、臭化物イオンに関する反応が海水の放射線分解による水素の発生に最も影響を与えることが分かった。

また、破損燃料を輸送する際に輸送容器内で発生する水素の量を適切に評価するためには、水の放射線分解機構を考慮した評価方法が必要であることも判明した。

2. 1. 6 破損燃料を収納した輸送物の臨界評価

燃料の破損の有無にかかわらず未臨界であることが求められることから、3号機にて使用される構内輸送容器を破損燃料輸送にも使用される場合を想定して、破損燃料を収納した輸送物に関する臨界評価手法について整理した。

(1) 臨界評価の前提条件

①燃料仕様

保守的な評価とするため濃縮度が最大となる初期濃度を、臨界評価に用いた。具体的には、3号機のSFPに貯蔵されている燃料から最も初期濃縮度の高い高燃焼度9×9燃料(A型)を採用した。

②輸送容器仕様

公開情報を基に、収納体数を7体とした。輸送物の解析モデルの1例を図2.1に示す。モデル化に当たり、バスケットの詳細寸法等に公開情報では明らかにされていない情報もあることから、そのような仕様については公開情報を参考にして独自に設定した。

③破損状態に応じた破損燃料モデル

本研究実施時には、3号機のSFPに貯蔵されている燃料について、ガレキ等の落下の影響による破損状態が確認されていなかった。したがって、幾つかの破損状態を想定し、破損状態に応じて燃料モデルを設定した。以下に想定した破損状態を記述する。

a 燃料棒に変形がある場合 (破損燃料1体から7体まで収納を想定)

燃料棒に曲がり等の変形が生じ、燃料棒の配列が健全な位置からずれている場合

b 燃料棒がスペーサから脱落する場合 (破損燃料1体から7体まで収納を想定)

燃料集合体が破断し、燃料棒が上下部タイプレート及びスペーサから外れて抜け落ちること等により配列を維持していない場合

c 燃料棒からペレットが放出される場合 (破損燃料1体当たり1本、2本及び5本収納を想定 (輸送容器当たり7本、14本及び35本収納を想定))

燃料棒が破損し、ペレットが燃料棒から輸送容器キャビティ内に放出された場合

(2) 臨界評価結果

①燃料棒に変形がある場合

燃料棒に変形がある場合の破損燃料を想定した評価では、それぞれ均一ピッチモデル及び実効増倍率(k_{eff})が最も大きくなる最適ピッチモデルを用いた評価方法により臨界評価を実施したが、 k_{eff} は0.95を下回った。

②燃料棒がスペーサから脱落する場合

燃料棒がスペーサから脱落した場合の破損燃料を想定した評価についても、それぞ

れ均一ピッチモデル及び実効増倍率 (k_{eff}) が最も大きくなる最適ピッチモデルを用いた評価方法により臨界評価を実施したが、 k_{eff} は 0.95 を下回った。

③燃料棒からペレットが放出される場合

燃料棒からペレットが放出される場合については、放出されたペレットが洞内水と混合するものとしてモデル化し、ペレット放出量、 UO_2 濃度及び UO_2 粒径をパラメータとして解析を実施した。ペレット放出量が輸送容器当たり燃料棒 35 本分（集合体当たり 5 本）を上限として解析を実施した結果、ペレットが収納缶内にとどまる場合には k_{eff} は 0.95 を下回った。

また、収納缶外へのペレットの放出を想定した場合には、ペレットの堆積する箇所にバスケットの中性子吸収材がないと k_{eff} は 0.95 を超える結果となった。

以上より、破損燃料を収納した輸送物の臨界評価における留意点として、以下を抽出した。

a 燃料棒ピッチの変化量

b 燃料棒からペレットが放出される場合については、ペレットの放出量、放出されたペレットとその近傍の水との存在比、放出されたペレットの堆積場所（中性子吸収材との位置関係）等が k_{eff} に与える影響

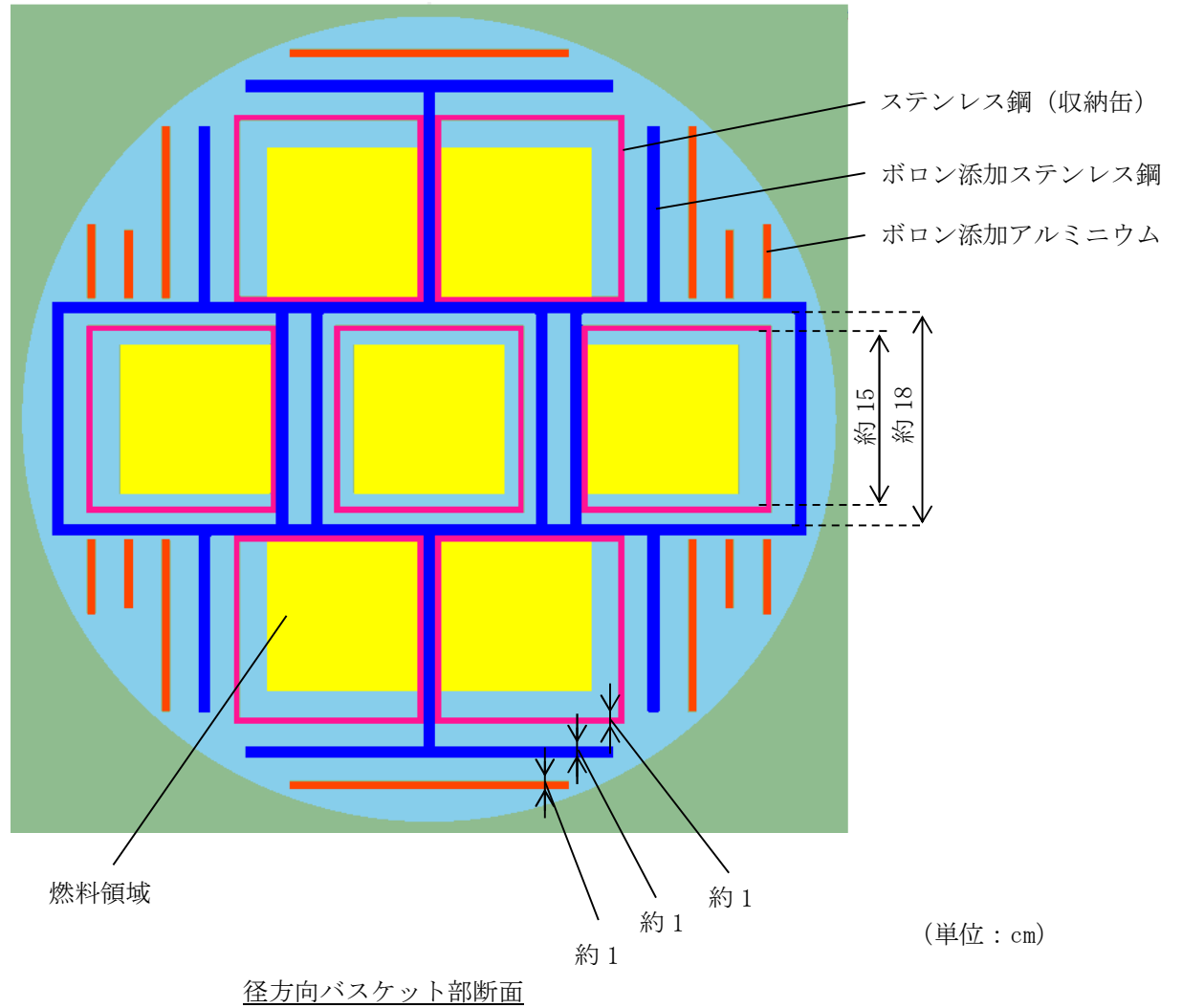
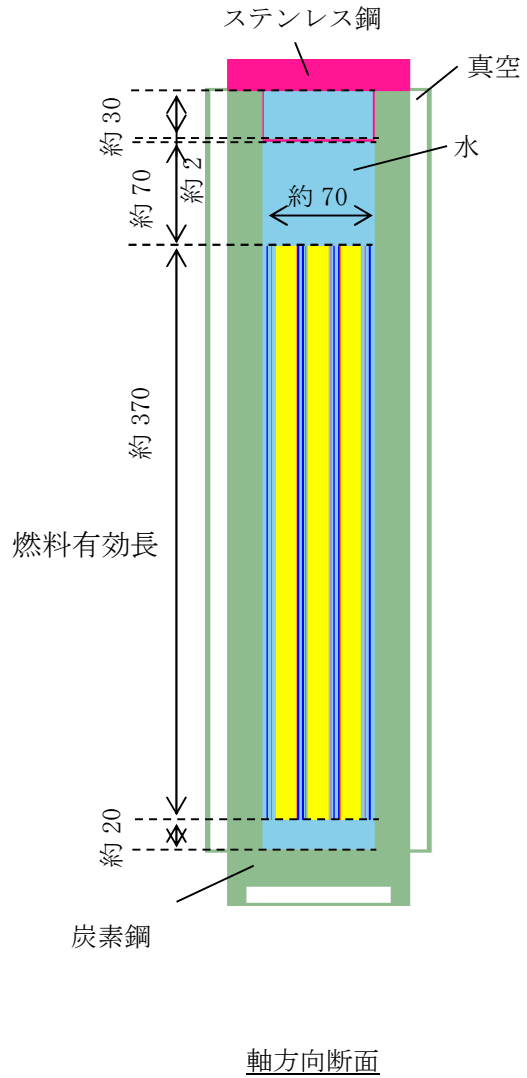


図 2. 1 輸送物モデル (例)
Fig. 2. 1 Package model (example)

2. 2 輸送物中の水素発生量の評価

本研究では、使用済燃料からの水素発生試験を実施し、取得した試験データを整理・検討して、輸送物中に水素が発生した際の評価における留意点を抽出するために、実際に破損燃料が輸送容器に装荷される体系を想定し、容器内の水質管理等について検討を行い、以下のとおり水素発生管理に着目した総合評価を実施した。

2. 2. 1 試験

事故時に 1F の SFP に海水が注入されたためプール水に海水成分が含まれていること、また、破損燃料からはヨウ化物イオン等のハロゲン化物イオンが溶出していると考えられることを踏まえて、これらイオンや温度が放射線分解による水素発生 of 挙動に与える影響を把握することを目的として試験条件を設定した。具体的には、海水成分、ヨウ化物イオン又は臭化物イオンがそれぞれ単独で存在する系及び海水成分とヨウ化物イオンが共に存在する系で、それらイオン濃度及び液温をパラメータとして、水の放射線分解により発生する水素の定常濃度及び水素の見かけの G 値（試験条件に依存する G 値。本試験では、気液比に依存した G 値）の測定試験を実施した。

(1) 試験装置及び試験条件

試験装置の概要を図 2. 2 に、試験条件を表 2. 2 に示す。また、試験で使用する海水（人工海水）に含まれる成分及び濃度を表 2. 3 に示す。

(2) 定常水素濃度測定結果

本試験では、室温及び 150°C での人工海水成分、ヨウ化物イオン単独又は臭化物イオン単独が存在する系及び人工海水成分とヨウ化物イオンが共に存在する系での水素発生試験を実施した。その結果を表 2. 4 に示す。また各試験条件において、経時的に圧力変化を測定し、(2. 1) 式を用いて吸収線量に対する水素の定常濃度を取得した。

$$C_{H_2} = \frac{P_g}{k_H M_{H_2O}} \dots\dots\dots(2. 1)$$

C_{H_2} : 水素の平衡濃度 (mol/g)

P_g : 水素の圧力 (Pa)

k_H : ヘンリー一定数 (Pa)

M_{H_2O} : 水のモル質量 (g/mol)

本試験で得られた知見は次のとおりである。

図 2. 3 (a) に、希釈人工海水中の塩化物イオン濃度がそれぞれ 1.4×10^{-3} mol/L、 2.8×10^{-3} mol/L 及び 1.4×10^{-2} mol/L に対し、ヨウ化ナトリウム (NaI) をヨウ化物イオン

濃度として 1.0×10^{-4} mol/L 添加して照射した結果を示す。このとき、水素発生に伴う圧力上昇は、初期の 100h 程度まではいずれの条件でもほぼ直線的であった。ところが、時間の経過とともに各条件の圧力変化の差が大きくなり、希釈人工海水中の塩化物イオン濃度が 1.4×10^{-2} mol/L のときに、平衡圧が最も低い 0.23 MPa 付近の値となり、次に 2.8×10^{-3} mol/L のときに 0.46 MPa、そして 1.4×10^{-3} mol/L のときに 0.66 MPa 付近まで増加した。

各平衡圧は希釈人工海水単独の場合 (図 2. 3 (c)) よりもはるかに高いことから、本試験条件では、吸収線量が低い領域 (試験時間が短い領域) では希釈人工海水濃度には無関係に、ヨウ化物イオン濃度が水素発生量に支配的であることが分かった。一方、吸収線量がある程度高くなって (試験時間がある程度長くなって)、平衡圧を示すようになると、共存する希釈人工海水濃度の影響が無視できなくなることも明らかとなった。

図 2. 3 (b) は定常水素濃度をヘンリー則 (2. 1 式) に基づき計算した結果である。本条件での室温は 13°C だったのでヘンリー定数は 13°C の値を使用して計算した。本条件では、希釈人工海水濃度とヨウ化物イオン濃度 (10^{-4} mol/L) の相互の影響により水素発生量を決めており、各水素の平衡濃度は、希釈人工海水中の塩化物イオン濃度が 1.4×10^{-2} mol/L のときに 2600 ppb、 2.8×10^{-3} mol/L のときに 5000 ppb、並びに 1.4×10^{-3} mol/L のときには、まだ完全な平衡に到達していないが 7000 ppb 程度の定常水素濃度と評価した。これらの値はヨウ化物イオンが共存していない希釈人工海水の条件での定常水素濃度 (図 2. 3 (d)、 20°C 、100~200 ppb) に比べ、10 倍以上高い濃度となっており、ヨウ化物イオンの影響が強く表れた結果となっている。

(3) 見かけの G 値の測定結果

水素の見かけの G 値を評価するために、試験条件に従って気液比影響試験及び見かけの G 値測定試験を実施した。その測定結果を表 2. 5 及び図 2. 4 に示す。図 2. 4 が示すとおり室温においては試験水の各種イオン濃度の増加に伴い、水素の見かけの G 値が増加する傾向にある。

表2. 2 試験条件

Table 2. 2 Test condition

項目	条件
キャプセル内容積 (cm ³)	300
照射線量率 (Gy/h)	10 ³ 程度
試験温度 (°C)	室温、150
試験時間 (h)	100 (計画時最大) ただし、試験を進める過程で、平衡圧力を確認するまで100h以降も延長した場合もある。

表2. 3 試験で使用する人工海水に含まれる成分及び濃度

Table 2. 3 Components and concentrations in artificial seawater used in the test

成分	濃度 (ppm)	モル濃度 (mol/L)
Na	10019	4.4×10 ⁻¹
Mg	1184	4.9×10 ⁻²
Ca	409	1.0×10 ⁻²
K	449	1.1×10 ⁻²
Sr	7.19	8.2×10 ⁻⁵
Li	0.16	2.3×10 ⁻⁵
B	8.38	7.8×10 ⁻⁴
Cl	17795	5.0×10 ⁻¹
SO ₄	2638	2.7×10 ⁻²
HCO ₃	138	2.3×10 ⁻³
Br	51	6.4×10 ⁻⁴
F	1.36	7.2×10 ⁻⁵
I	0.05	3.9×10 ⁻⁷
Mn	0.17	3.1×10 ⁻⁶
Co	0.50	8.5×10 ⁻⁶
Al	0.89	3.3×10 ⁻⁵
Fe	1.03	1.8×10 ⁻⁵
NH ₄	1.58	8.8×10 ⁻⁵
W	1.11	6.0×10 ⁻⁶
Mo	9.78	1.0×10 ⁻⁴

(注) 人工海水は、富田製薬(株)製の人工海水マリンアート SF-1 (25L 用) を純水 25L に溶解した溶液

表 2. 4 水素発生に係る定常水素濃度測定結果

Table 2. 4 Measurement results of equilibrium hydrogen concentration concerning hydrogen generation test

No.	温度 (°C)	試験水			定常水素濃度 (ppb)
		人工海水 ([Cl ⁻] mol/L)	ヨウ化物イオン (mol/L)	臭化物イオン (mol/L)	
1	室温	1.4×10^{-3}			110
2	室温	2.8×10^{-3}			150
3	室温	1.4×10^{-2}			210
4	室温	1.4×10^{-3}	1.0×10^{-4}		7000
5	室温	2.8×10^{-3}	1.0×10^{-4}		5000
6	室温	1.4×10^{-2}	1.0×10^{-4}		2600
7	室温		1.0×10^{-4}		6000
8	室温		1.0×10^{-5}		520
9	室温		1.0×10^{-6}		80
10	室温			1.0×10^{-4}	650
11	室温			1.0×10^{-5}	80
12	室温			1.0×10^{-6}	20
13	150	1.4×10^{-3}			<120
14	150	2.8×10^{-3}			<120
15	150	1.4×10^{-2}			<120
16	150	1.4×10^{-3}	1.0×10^{-4}		5000
17	150	2.8×10^{-3}	1.0×10^{-4}		4500
18	150	1.4×10^{-2}	1.0×10^{-4}		4000
19	150		1.0×10^{-4}		4700
20	150		1.0×10^{-5}		410
21	150		1.0×10^{-6}		370
22	150			1.0×10^{-4}	350
23	150			1.0×10^{-5}	<120
24	150			1.0×10^{-6}	<120
25	室温	Reference data (pure water)			50
26	150	Reference data (pure water)			<120

表2. 5 水素発生に係る見かけのG値の測定結果

Table 2. 5 Apparent G value measurement result on hydrogen generation

No.	気液比 (vapour/liquid)	試験水			G 値 (個/100eV)	
		人工海水 (Cl ⁻) mol/L)	ヨウ化物イオン (mol/L)	臭化物イオン (mol/L)	室温	150°C
1	0.2	1.4×10^{-3}			0.02	—
2	0.5	1.4×10^{-3}			0.02	0.04
3	1.0	1.4×10^{-3}			0.00	0.11
4	0.2	2.8×10^{-3}			0.03	—
5	0.5	2.8×10^{-3}			0.07	0.01
6	1.0	2.8×10^{-3}			0.12	0.09
7	2.0	2.8×10^{-3}			0.17	—
8	0.2	1.4×10^{-2}			0.04	0.01
9	0.5	1.4×10^{-2}			0.12	0.02
10	1.0	1.4×10^{-2}			0.26	0.28
11	2.0	1.4×10^{-2}			0.32	0.60
12	0.2		1.0×10^{-6}		0.06	—
13	0.5		1.0×10^{-6}		0.14	0.02
14	1.0		1.0×10^{-6}		0.17	0.35
15	2.0		1.0×10^{-6}		0.05	—
16	0.2		1.0×10^{-5}		0.21	0.05
17	0.5		1.0×10^{-5}		0.28	0.42
18	1.0		1.0×10^{-5}		0.46	0.42
19	2.0		1.0×10^{-5}		0.37	0.07
20	0.2		1.0×10^{-4}		0.54	1.04
21	0.5		1.0×10^{-4}		0.41	0.78
22	1.0		1.0×10^{-4}		0.57	0.75
23	2.0		1.0×10^{-4}		0.54	0.30
24	0.2			1.0×10^{-6}	0.02	—
25	0.5			1.0×10^{-6}	0.03	0.38
26	1.0			1.0×10^{-6}	0.04	0.22
27	2.0			1.0×10^{-6}	0.05	—
28	0.2			1.0×10^{-5}	0.02	—
29	0.5			1.0×10^{-5}	0.03	NA
30	1.0			1.0×10^{-5}	0.03	0.26
31	2.0			1.0×10^{-5}	0.04	—
32	0.2			1.0×10^{-4}	0.12	0.04
33	0.5			1.0×10^{-4}	0.15	0.06
34	1.0			1.0×10^{-4}	0.27	0.02
35	2.0			1.0×10^{-4}	0.39	0.55

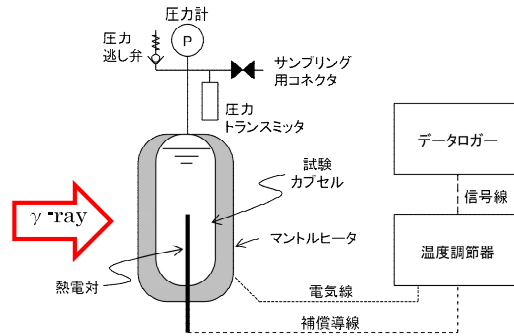


図 2. 2 試験装置

Fig. 2. 2 Experimental apparatus

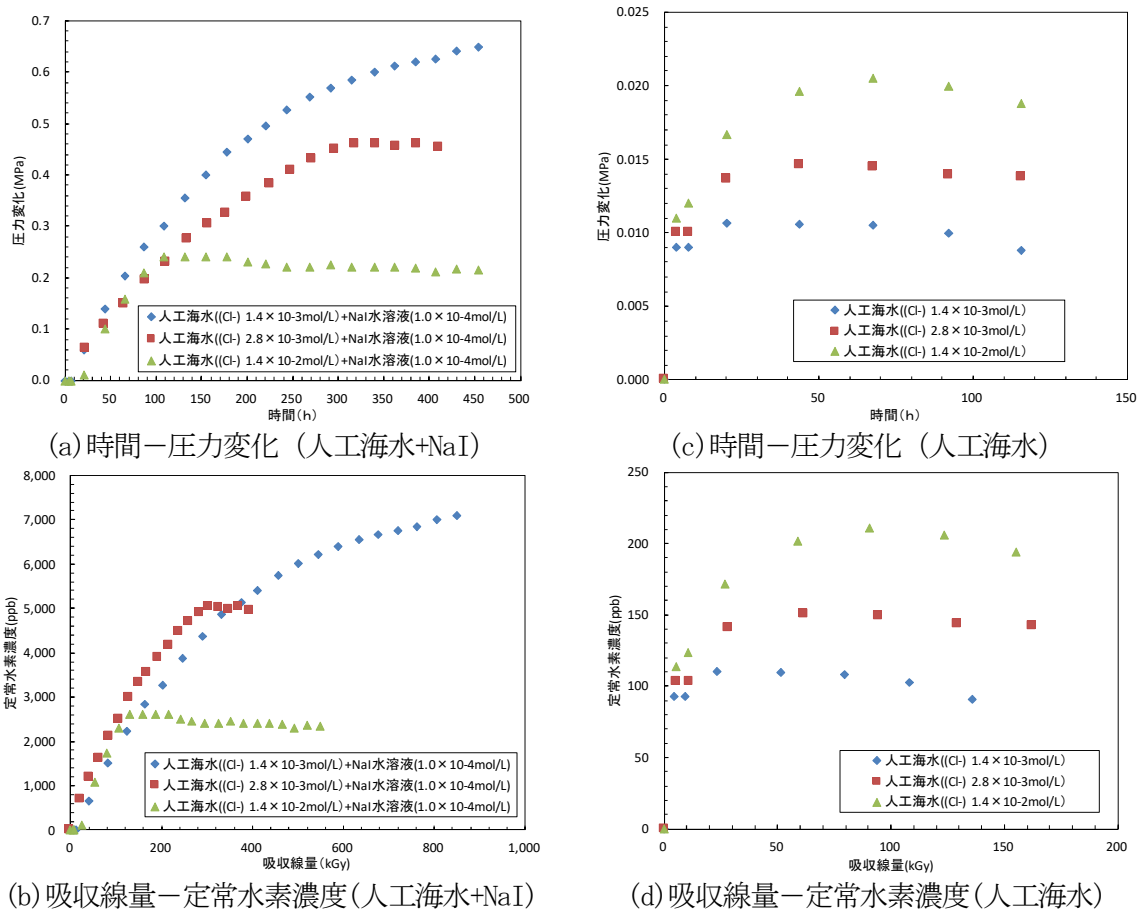


図 2. 3 希釈人工海水 (単独) 及び希釈人工海水とヨウ化物イオン共存系での水素発生 (室温)

Fig. 2. 3 Hydrogen generation in simulated water and hydrogen generation in simulated water with iodide ions (Room temperature)

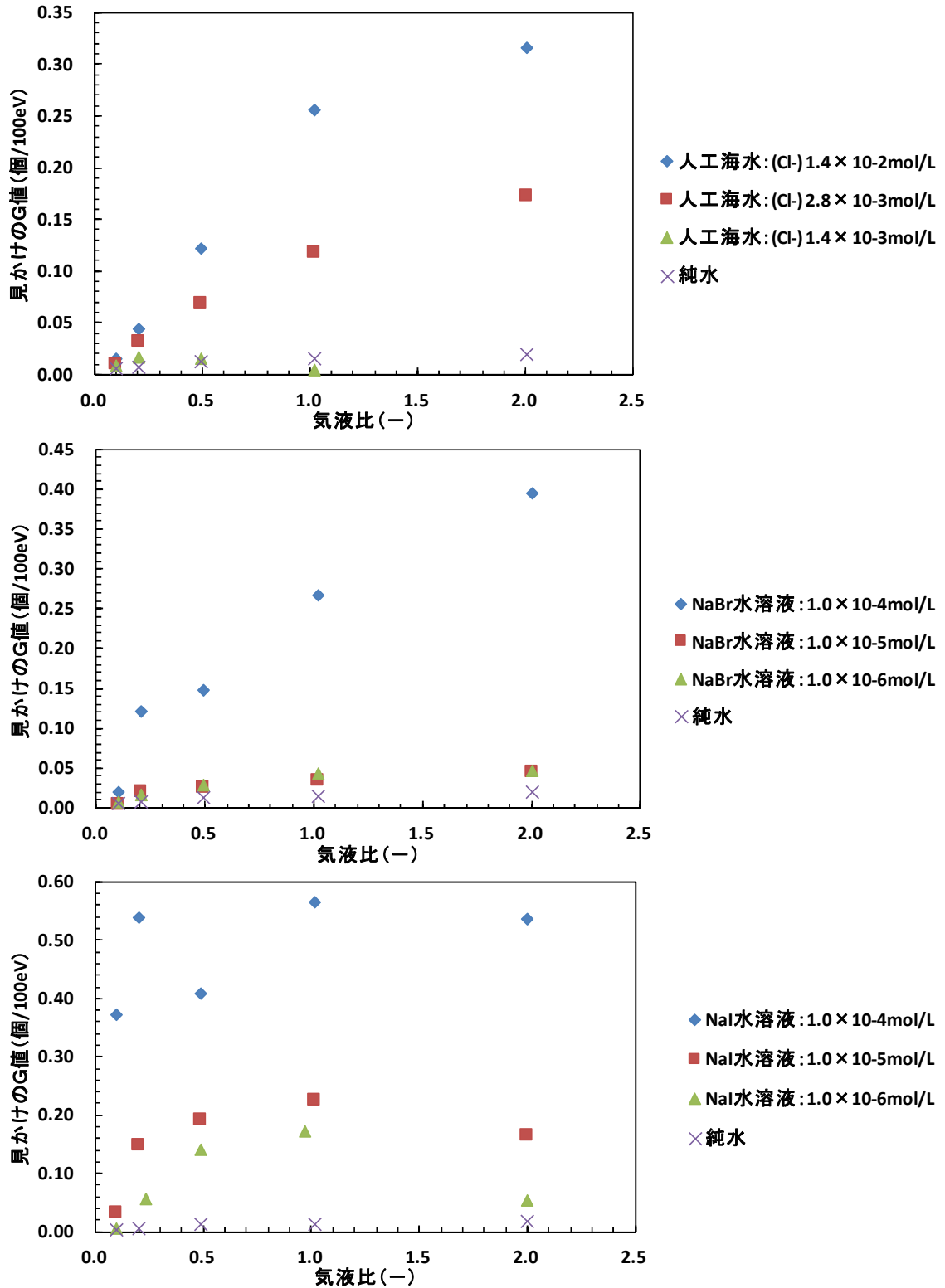


図 2. 4 水素発生に係る見かけの G 値計算結果 (室温)

Fig. 2. 4 Apparent G value calculation result on hydrogen generation (Room temperature)

2. 2. 2 解析

(1) 解析コードの概要

本研究では、水質解析には水の放射線分解反応機構に基づく水質解析コード SIMFONY^(参2)を使用した。本解析では、初めに水中（液相単相）での水の放射線分解による水素発生を計算し、次に水中（液相）の水素濃度が気相に存在する水素と気液平衡になると仮定して、液相濃度と気相濃度との関係をヘンリー則（(2. 1) 式）と理想気体の状態方程式を用いて評価した。SIMFONY の基本式（照射下での液単相中での化学種 i の濃度の時間変化を表す式）は(2. 2)式のとおりである。

なお、(2. 2)式の右辺第一項は放射線分解による化学種 i の生成、第二項は化学種 i の生成する化学反応及び第三項は化学種 i が消費される化学反応を示す。

$$\frac{dC_i}{dt} = \xi(g_i^\gamma Q^\gamma + g_i^n Q^n) + \sum_l^N \sum_m^N k_{lm} C_l C_m - C_i \sum_s^N k_s C_s \quad \dots\dots\dots(2. 2)$$

i : 化学種を総称

l, m : 化学種 i を生成する化学反応に関わる化学種を総称

s : 化学種 i を消費する化学反応に関わる化学種を総称

C_i : 液相での化学種 i の濃度 (mol/L)

ξ : 単位換算係数 ((mol/L)/s)/((個/100eV) (W/L))

g_i^γ : ガンマ線での G 値 (個/100eV)

g_iⁿ : 中性子での G 値 (個/100eV)

Q^γ : ガンマ線の吸収線量率 (W/L)

Qⁿ : 中性子の吸収線量率 (W/L)

N : 純水中の放射線分解反応に関与する化学種の数

k_{lm} : 化学種 l と化学種 m の間の反応の反応速度定数 ((mol/L)⁻¹s⁻¹)

(2) 解析結果

試験により取得した定常水素濃度と解析で得た定常水素濃度の相関を図 2. 5 に示す。定常水素濃度が 100ppb 程度以上では、解析結果は実験結果と同等であり、バラツキは -50%から+100%までの範囲内にある。したがって、解析結果は実験結果をよく再現していると考ええる。

なお、低濃度側 (100ppb 程度以下) でやや差が大きくなっているのは、実験において圧力変化が小さかったことから誤差が大きくなったものと思われる。

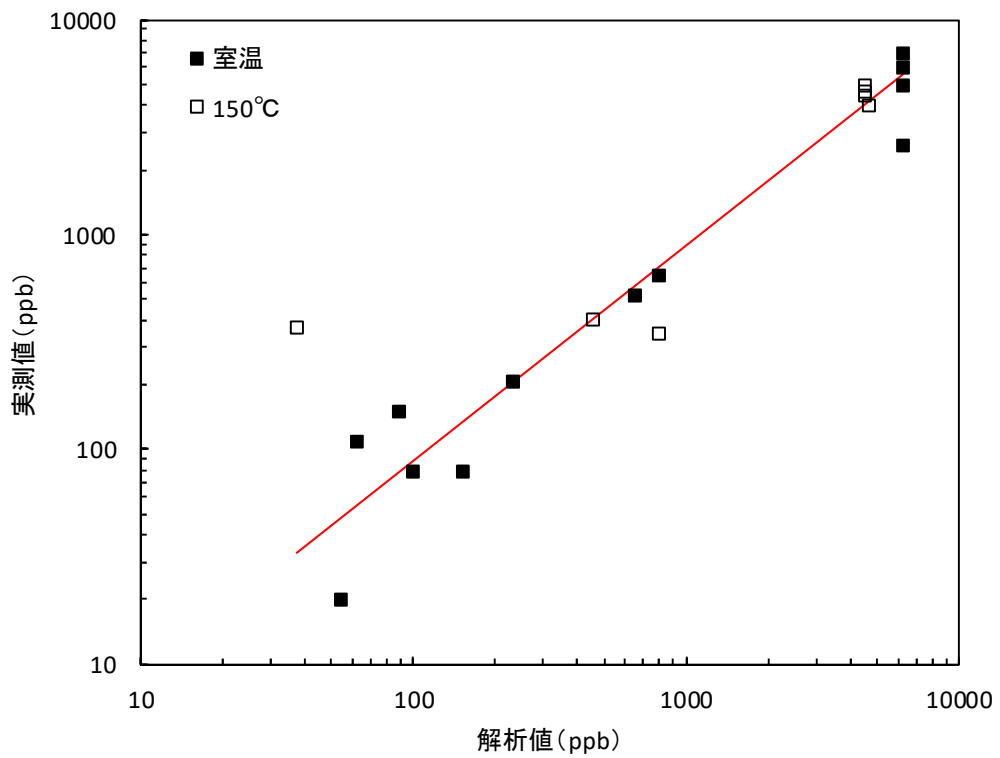
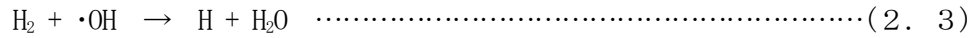


図2. 5 定常水素濃度の解析値と実測値との相関 (室温及び150°C)

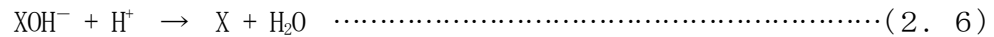
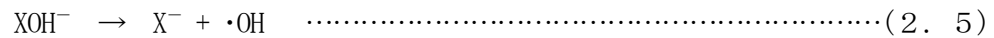
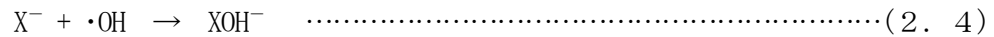
Fig. 2. 5 Correlation between analytical and experimental equilibrium hydrogen concentrations (Room temperature and 150°C)

2. 2. 3 放射線分解とハロゲン化物イオンの反応に係る検討

水の放射線分解が進行して水中の水素濃度が高くなると再結合反応が無視できなくなる。再結合反応は次の反応を起点に進行する。このとき OH ラジカルが必要となる。



水中にハロゲン化物イオン X^- (Cl^- 、 Br^- 又は I^-) が存在すると、次の反応式のようにハロゲン化物イオンによって OH ラジカルが消費され、再結合反応が阻害されるため、水の放射線分解により生成する水素の定常濃度が純水の場合よりも高い値となる。



(2. 4) 式と (2. 5) 式は平衡反応となるが、塩化物イオンと臭化物イオンのそれぞれの反応速度定数を見ると、塩化物イオンでは逆反応 (OH ラジカルを生成する反応) の反応速度定数が大きく OH ラジカル消費は効果的に進行しない。一方、臭化物イオンでは逆反応の反応速度定数が正反応 (OH ラジカルを消費する反応) よりも 2 桁小さいことから、OH ラジカルを消費する反応が効果的に進行する。したがって、水への再結合反応の開始となる反応に必要な OH ラジカルが臭化物イオンによって消費されるため、海水成分が共存すると水素発生量が増加する。

なお、ヨウ化物イオンは、臭化物イオンよりも更に逆反応の反応速度定数が正反応よりも小さい。

また、表 2. 6 に示すようにハロゲン化物イオンと OH ラジカル反応の正反応の反応速度定数と逆反応の反応速度定数の比 $R=k_f/k_b$ は、ヨウ化物イオン > 臭化物イオン > 塩化物イオンの順に大きくなる。このため、ヨウ化物イオンの反応系が最も水素発生量に影響を与えたと考える。

表 2. 6 ハロゲン化物イオンと OH ラジカルの反応速度定数比の比較 (参2) (参3)

Table 2. 6 Comparison of reaction rate constant ratios between halide ions and OH radicals

ハロゲン化物イオン	反応速度定数比 R ($=k_f/k_b^*$)	水素発生の傾向
Cl ⁻	0.7	↓ 増加
Br ⁻	200	
I ⁻	9000	

*) k_f : 正反応 (OH ラジカルを消費する反応) の反応速度定数。(2. 4) 式

k_b : 逆反応 (OH ラジカルを生成する反応) の反応速度定数 (2. 5) 式

3. 結論

3. 1 成果の要点

破損燃料輸送に係る技術調査では、事業者が実施した 1F の SFP における使用済燃料の破損状況に関する調査結果を基に、4 号機 SFP 内燃料の情報収集、破損燃料等の輸送に係る文献調査及び破損燃料を収納した場合の輸送物の推定を実施し、それらの結果に基づき破損燃料輸送に係る課題を抽出し、抽出された課題の検討を行った。また、破損燃料を収納した輸送物の臨界評価においては、燃料の変形事象及びペレットの放出事象が安全評価をする上で考慮すべき事項であることを確認した。

輸送物中の水素発生量の評価では、臭化物イオン単独の見かけの G 値、ヨウ化物イオン単独の見かけの G 値及び希釈人工海水の見かけの G 値を測定した。これらの新しい知見と、ハロゲン化物イオンの反応性（素反応とその反応速度定数）の知見^{(参2) (参3) (参4) (参5) (参6)}を組み合わせることで、放射線分解反応モデルにより(2. 2)式を用いて適切に放射線分解による水素発生量を評価できる。

輸送時における水素の発生に係る管理については、海水と共存している場合を含めヨウ化物イオンが水素発生については支配的であり、破損燃料から溶出するヨウ化物イオン濃度に留意する必要がある。

3. 2 目的の達成状況

本研究では、事業者が実施した 1F の SFP における使用済燃料の破損状況に関する調査結果を基に、想定される輸送物について現行の技術基準への適合性を評価し、審査における留意点を整理することを目的に調査を実施し、それらの結果に基づき破損燃料輸送に係る課題を抽出し、抽出された課題の検討を行った。

また、調査の過程において抽出された 1F の SFP の水質が輸送容器内での水素発生量に与える影響について、水素発生試験を実施し、海水成分や破損燃料から溶出するハロゲン化物イオンについて、その影響度合いを明らかにした。

3. 3 成果の活用等

本研究で取得した破損燃料等の輸送に関する知見は、破損燃料が発生していた場合の輸送の審査に係る安全評価のための技術基盤として利用する。

参考文献一覧

- (参1) J. A. LaVerne, M. R. Ryan, Hydrogen production in the radiolysis of bromide solutions, *Radiation Physics and Chemistry*, 78, 12, pp.1148-1152, 2009
- (参2) Y. Wada, M. Tachibana, A. Watanabe, K. Ishida, N. Ota, N. Shigenaka, H. Inagaki, H. Noda, Effects of seawater components on radiolysis of water at elevated temperature and subsequent integrity of fuel materials, *Journal of Nuclear Science and Technology*, 53, 6, pp.809-820, 2016
- (参3) M. Kelm, E. Bohnert, A kinetic model for the radiolysis of chloride brine, its sensitivity against model parameters and comparison with experiments, FZKA-6977, 2004
- (参4) J.C. Wren, J.M. Ball, LIRIC 3.2 an updated model for iodine behavior in the presence of organic impurities, *Radiation Physics and Chemistry*, 60, 6, pp.577-596, 2001
- (参5) K. Hata, S. Hanawa, S. Kasahara, Y. Muroya, Y. Katsumura, Radiation-induced reactions of Cl^- , CO_3^{2-} , and Br^- in seawater, model calculation of gamma radiolysis of seawater, *Proceedings of the Nuclear Plant Chemistry Conference 2012 (NPC2012)*, France, Ref. number 99, 2012 September 23-27
- (参6) H. Karasawa, M. Endo, H. Tagawa, M. Takahashi, E. Ibe, Effect of Boiling Upon Radiolysis of Iodide Solution, *PROCEEDINGS OF THE THIRD CSNI WORKSHOP ON IODINE CHEMISTRY IN REACTOR SAFETY*, JAERI-M92-012, pp.137-151, 1992

「破損燃料輸送に係る技術調査」の執筆者

原子力規制庁 長官官房 技術基盤グループ

核燃料廃棄物研究部門

菱田 政清 上席技術研究調査官

奥田 泰久 主任技術研究調査官

八木橋 秀樹 技術研究調査官

丸岡 邦男 技術参与