

平成25年度実績概要

使用済燃料プールから取り出した燃料集合体他の長期健全性評価

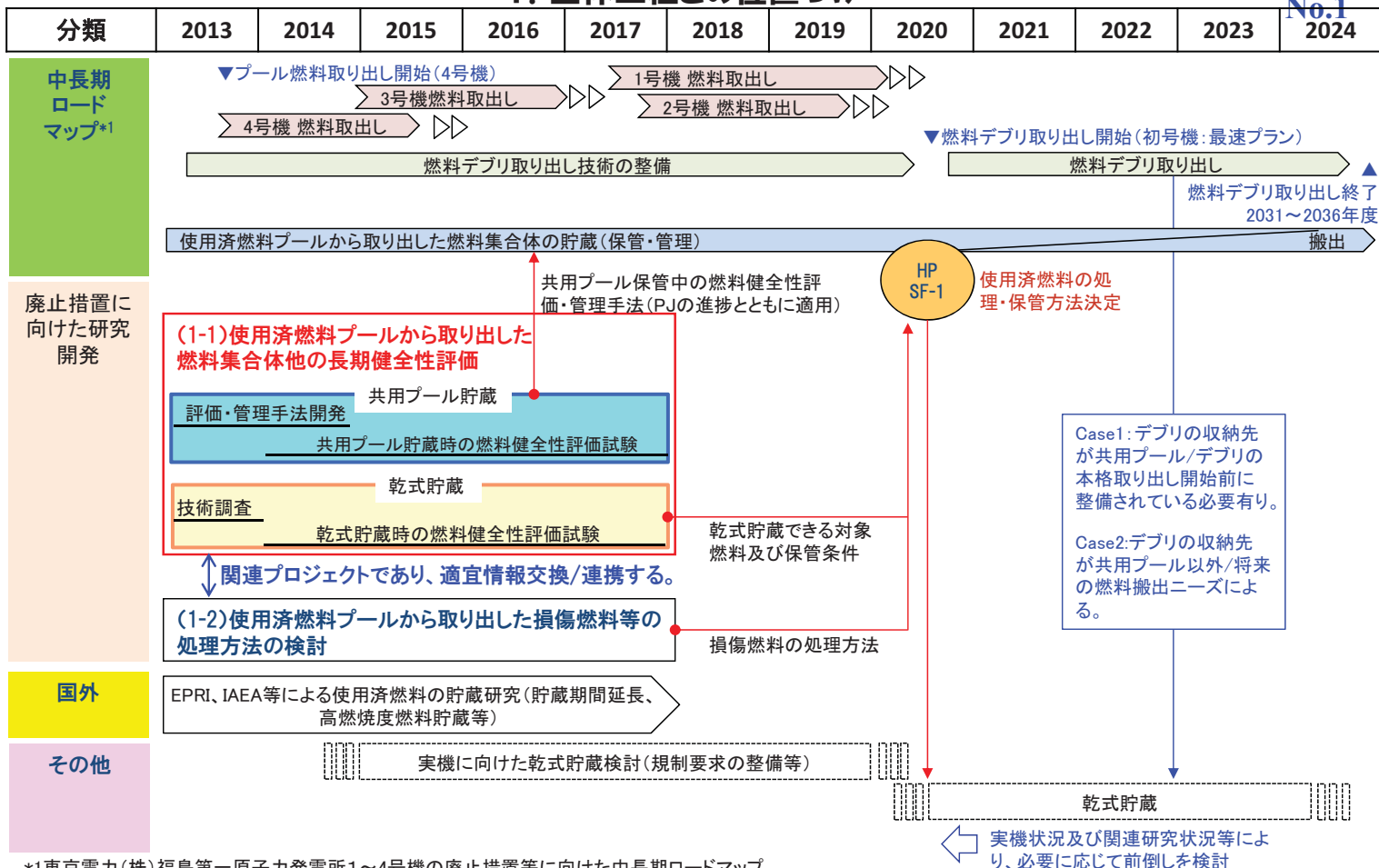
平成26年5月29日

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構

無断複製・転載禁止 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構
©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

1. 全体工程との位置づけ

No.1



*1東京電力(株)福島第一原子力発電所1~4号機の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ

平成25年度の主要目標

瓦礫の影響を模擬した浸漬試験結果から長期健全性評価のための試験条件を策定する。共用プールの水質変化を模擬した非照射燃料部材の腐食試験、強度試験を行い、長期健全性に及ぼす水質影響評価技術を確立する。また、乾式保管のための調査を実施する。さらに、使用済ペレットの共用プール水質への溶出挙動評価技術を確立する。

平成25年度の実施内容

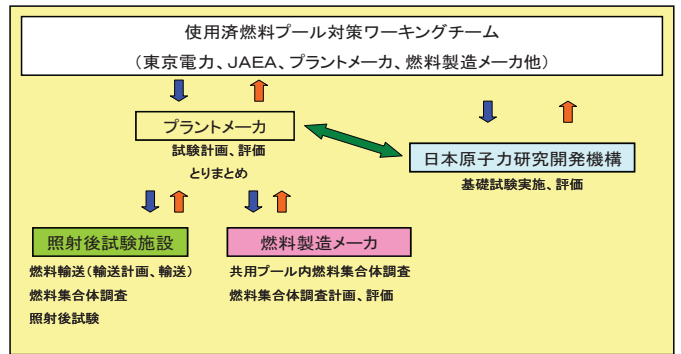
1. 燃料集合体の長期健全性評価
 - ① 長期健全性評価のための試験条件検討 (p5) : 使用済燃料プールおよび共用プールの水分析結果や瓦礫浸漬後の水質分析結果を基に、長期健全性評価のための試験条件を策定する。
 - ② 共用プールでの燃料集合体材料の長期健全性評価 (p6) : 燃料の構造等を模擬した非照射試験片による腐食試験及び強度試験を実施し、共用プールに持ち込まれる瓦礫等が腐食に及ぼす影響や、瓦礫による損傷による腐食影響を評価する手法を確立する。
 - ③ 共用プール保管燃料の状態調査 (p7) : 使用済燃料プールから移送する燃料の長期的な健全性確認手法を確立するため、使用済燃料の外観観察や酸化膜厚さ測定等の測定技術等を開発すると共に、今後の評価の比較データとして共用プールに事故前から保管されていた燃料の酸化膜厚さを調査する。
 - ④ 乾式保管等に関する調査及び試験計画立案 (p8) : 損傷燃料の乾式貯蔵に関する調査及び、使用済燃料プールに保管している使用済燃料の乾式貯蔵の成立性検討に必要な試験の計画を立案する。
2. 燃料集合体移送による水質への影響評価
 - ① 損傷燃料からの核分裂生成物 (FP) 等溶出評価 (p9) : 既に照射後試験施設に保管してある健全燃料から取り出した照射済ペレットを共用プール模擬水などに浸漬し、FP等の溶出挙動を調べる。
3. 長期健全性に係る基礎試験 (JAEA実施) (p10-11)

事故を経験した燃料被覆管と比較するため、健全燃料の使用済燃料被覆管を用いた加速腐食試験などの基礎試験を行う。

実施工程

事項/H25期	1/4	2/4	3/4	4/4
1 燃料集合体の長期健全性評価技術開発		長期健全性評価のための試験条件検討		
		共用プールでの燃料集合体材料の長期健全性評価		
		共用プール保管燃料の状態調査		
		乾式保管等に関する調査及び試験計画立案		
2 燃料集合体移送による水質への影響評価技術開発		損傷燃料からの核分裂生成物 (FP) 等溶出評価		
		健全燃料による加速腐食試験		
3 長期健全性に係る基礎試験 (JAEA実施)				

実施体制



3. 本プロジェクトの概要（湿式保管の長期健全性評価の考え方）

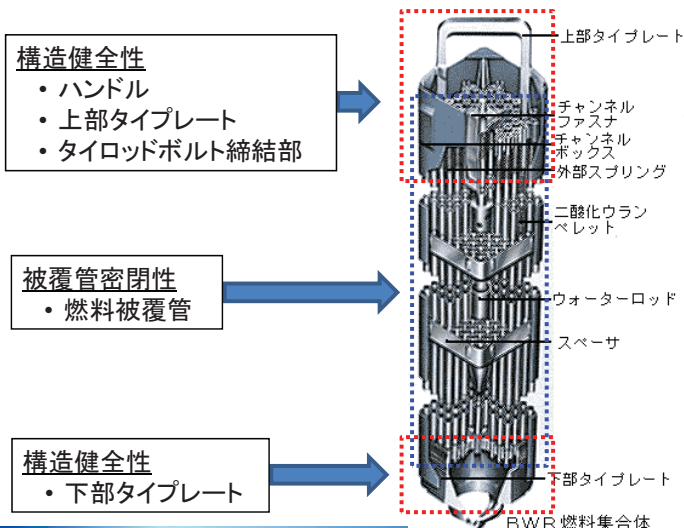
湿式保管研究開発の目的

燃料取出し作業に対して使用済燃料プール(SFP)の特異な環境(海水注入、瓦礫落下)の影響がないことは、4号機からの燃料取出し作業に先立って、SFP内新燃料調査や水質模擬腐食試験等により確認されている。本研究開発の目的は、海水注入および瓦礫混入の特異性を考慮した燃料集合体の**長期健全性評価および長期保管方法に関する検討を行う**ことである。

1FサイトのSFPから取り出した燃料集合体の長期健全性

SFPから共用プールに移送した燃料集合体が、長期保管後に中間貯蔵/処理施設での受入れが可能であること。

- ・構造健全性 ⇒ 荷重伝達経路が構造強度を満足。
- ・被覆管密閉性 ⇒ 燃料被覆管からFP漏洩による影響評価 (例えば乾式保管時の規格基準値以下)。



1Fサイトの燃料集合体長期健全性評価の課題

1Fサイトの燃料集合体健全性評価にあたり以下の特異性を考慮する必要がある。

- ・海水注入によるSFP水質変化
 - ・塩化物イオン等の海水成分混入
 - ・導電率増大
- ・SFPへの瓦礫混入
 - ・pH増加(アルカリ化)
 - ・燃料集合体の損傷(キズ、変形等)

SFPでこれらの履歴を受けた燃料集合体が共用プールに移送された後の長期健全性を確認する。

共用プール(湿式)保管時に懸念される事象

- ・共用プール内での腐食
 - ・材料因子
 - ・炉内で使用中の照射履歴が材料特性に及ぼす影響 → 実燃料部材による評価基礎試験*(腐食試験等)による評価
 - ・瓦礫落下による新生面露出
 - ・環境因子
 - ・SFPから燃料とともに持ち込まれる瓦礫からの溶出 → 実燃料より採取された瓦礫による評価
 - ・海水成分
 - ・コンクリート成分
 - ・燃料破損部からのFP溶出 → 使用済燃料による評価
 - ・放射線による局所水質変化 → 基礎試験*(γ線照射試験等)による評価

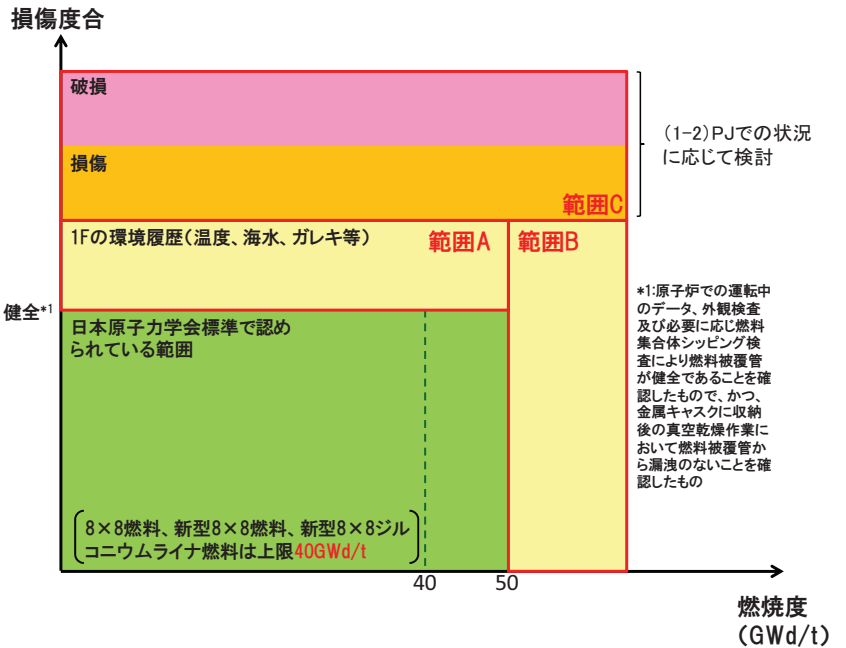
実機燃料等を用いた試験により実証的なデータを取得し、既存データと併せて条件を設定し1F燃料の長期健全性を評価する。また基礎試験*により照射影響および加速試験法の検討を行う。

*文科省からの運営費交付金によりJAEAが実施

乾式保管研究開発の目的

廃止措置等に向けた中長期ロードマップの中で「使用済燃料の処理・保管方法の決定」が2020年度にHPとして設定されている。その中で乾式による保管も有力な保管方法の一つであるが、海水や瓦礫のような1Fサイトの1~4号機SFP特有の環境履歴を受けた燃料の乾式保管時の健全性を評価した試験データがなく、乾式保管可否を判断するために整備が必要となっている。

また、数年内に共用プールに運び込まれる予定の燃料は多く、今後デブリの収納先の検討結果によっては共用プールの容量に余裕がなくなる。この中の燃料の一部でも乾式保管することで、共用プールの容量の確保が可能となる。共用プールに容量が確保された場合、燃料デブリの保管先になる可能性もある。



<乾式保管時の燃料集合体長期健全性評価の課題>

1FサイトのSFPに保管されていた燃料集合体にはSTEPⅢ燃料が含まれている。高燃焼度燃料であることに加えて、震災後の環境条件他を考慮すると以下が課題として考えられる。

- ①海水注入などによる被覆管表面の付着物等の影響に関しては知見がない
- ②落下瓦礫による傷など、瓦礫が乾式保管時の健全性に与える影響については知見がない

- 範囲A: 本事業の乾式保管の検討で優先的に実施する範囲
- 範囲B: 本事業での実施に関してH25年度の技術調査をもとに検討した結果、H26年度実施内容から追加検討する範囲
- 範囲C: 「(1-2)使用済燃料プールから取り出した損傷燃料等の処理方法の検討」の検討状況に応じて、乾式保管の検討可否を検討する範囲

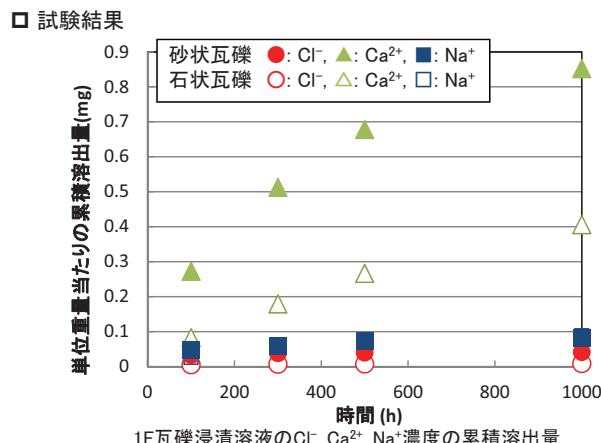
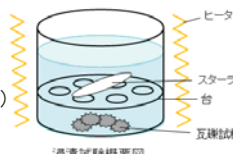
5. 本プロジェクトの成果 メーカー実施分（実施内容1. ①）

実施内容

2012年8月に4号機のSFPから共用プールに移送した新燃料調査の結果、燃料集合体のすきま部に瓦礫が入り込んでいることが確認された。瓦礫からの海水成分やコンクリート成分の溶出で、チャンネルボックス内の局所的な水質に影響を及ぼすことが懸念されるため、本試験では、新燃料調査時に4号機から採取した瓦礫を用いた溶出試験を実施し、水質に与える影響を評価する。共用プールの水分析結果や瓦礫浸漬後の水質分析結果を基に、長期健全性評価のための試験条件を策定する。

4号機のSFP燃料に混入していた瓦礫を用いた浸漬試験

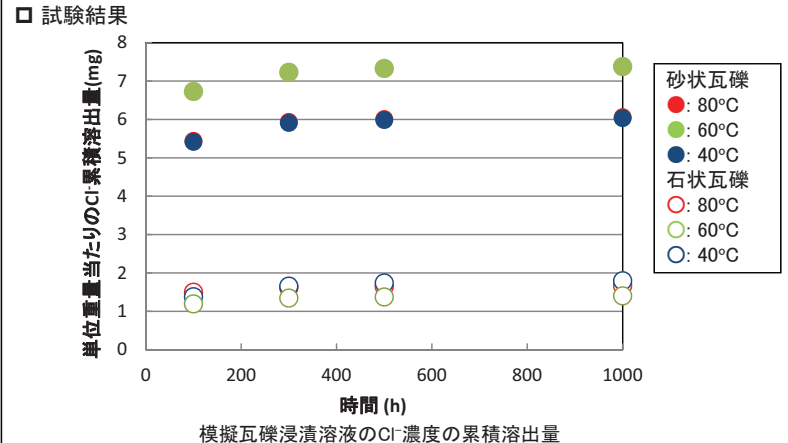
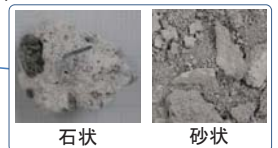
□ 試験条件
 瓦礫形状: 石状、砂状
 溶液量: 100mL
 浸漬温度: 60°C
 浸漬時間: 1000hr (100、300、500hrで溶液採取)
 雰囲気: 大気開放条件
 測定方法: イオンクロマトグラフ、誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS)



- ◆ 海水成分のCl⁻, Na⁺, コンクリート成分のCa²⁺を検出した。
- ◆ 浸漬時間の増加により累積塩化物イオン濃度が飽和に近づく傾向。

模擬瓦礫を用いた浸漬試験

□ 試験条件
 模擬瓦礫: 市販コンクリートを塩化物イオン濃度が6000ppm程度、水温が90°Cの海水模擬溶液に浸漬した瓦礫
 瓦礫形状: 石状、砂状
 溶液量: 100mL
 浸漬時間: 1000hr (100、300、500hrで溶液採取)
 浸漬温度: 40、60、80°C
 測定方法、雰囲気はSFP燃料瓦礫浸漬試験と同等



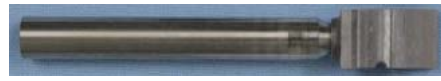
- ◆ 浸漬時間の増加により累積塩化物イオン濃度が飽和に近づく傾向。
- ◆ 温度による塩化物イオン濃度の溶出量依存性は見られなかった。

実施内容

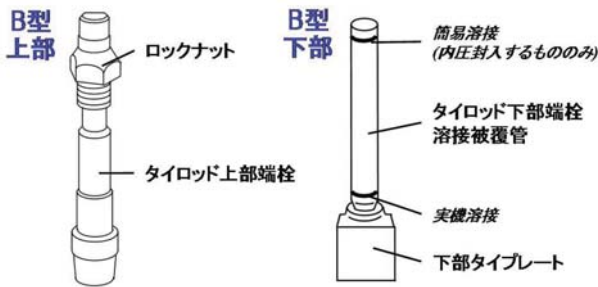
2012年8月に4号機のSFPから共用プールに移送した新燃料の調査の結果、燃料集合体のすき間部に瓦礫や異物が入り込んでいることを確認した。このような瓦礫は完全に取り除くことは困難であり、共用プールに持ち込まれることになる。そのため、瓦礫の存在や、瓦礫によって生じる傷や応力などが腐食に与える影響を評価する。

浸漬試験マトリクス

模擬条件	目標塩化物イオン濃度(ppm)	目標温度(°C)	浸漬時間	
			1000h	2000h
高塩化物イオン濃度経験(1000h)+コンクリート瓦礫	2500 →100	90 →60	●①	●
コンクリート瓦礫(小片)	100	60	-	●
コンクリート瓦礫(砂礫)			●	●
鉄瓦礫			-	●
表面きず(目標深さ10μm)			-	●
表面きず(目標深さ100μm)			●	●
応力付与(2条件)			-	●



浸漬後(B型下部
下部タイプレート、
①条件)



- ・評価対象の被覆管、内部のねじ部に顕著な腐食は確認されなかった。
- ・取り出したコンクリート表面に白色の沈殿物が確認された。EDSで元素分析した結果、主としてMg、Si、Caが検出された。人工海水の成分のうち、溶解度の低いこれらの水酸化物や炭酸化合物であると推定される。
- ・浸漬試験後、一緒に入れた砂礫上のコンクリートが固まっていた。

7. 本プロジェクトの成果 メーカー実施分（実施内容1. ③）

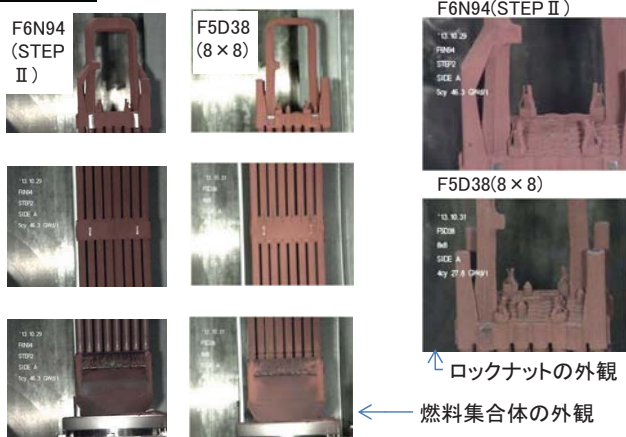
実施内容

今後、SFPから取り出され、共用プールに移送された燃料集合体については、使用済燃料の長期的な健全性を確認する目的で、定期的に健全性を確認する必要がある。今年度は、共用プールに貯蔵中の使用済燃料を用いて燃料棒の酸化膜厚測定及び外観観察を実施し、今後の調査のための比較データを採取する。調査対象燃料については、燃料のタイプや使用履歴、被覆管の製造条件等を考慮し、選定する。

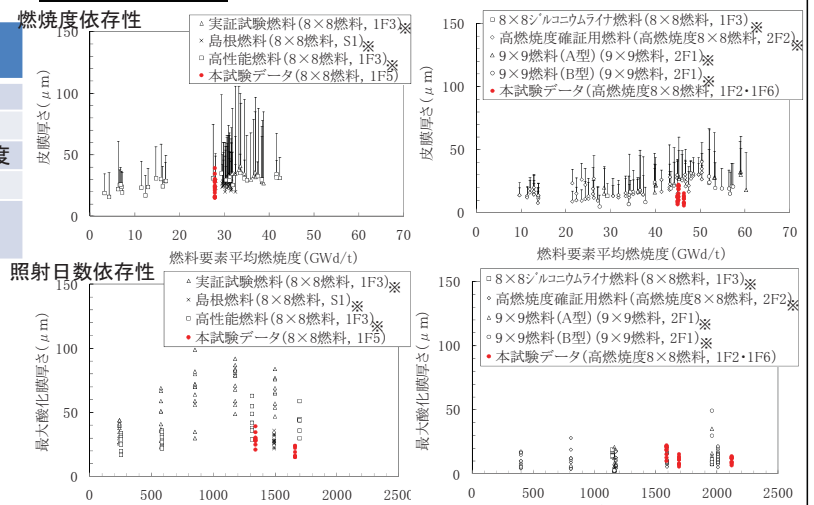
調査対象燃料の選定

燃料番号	メーカー	燃料タイプ	燃焼度(GWd/t)	Cy	照射日数	備考
F2RN1	NFI	STEP II	45.1	4	1586	燃焼度が高い
F6N94	GNF-J	STEP II	46.3	5	1688	燃焼度が高い
F6M40	GNF-J	STEP II	44.9	6	2118	照射日数が2000日程度
F5D38	GNF-J	8x8	27.8	4	1339	燃焼度が高い
F5C23	GNF-J	8x8	27.8	5	1659	燃焼度範囲は同等で照射日数が多い

外観観察



酸化膜厚さ測定



財団法人 原子力安全基盤機構「平成17年度高燃焼度9×9型燃料信頼性実証成果報告書」平成18年7月
財団法人 原子力安全基盤機構「平成18年度高燃焼度9×9型燃料信頼性実証成果報告書」平成19年12月

・外観観察では一様な褐色のクラッドに覆われており、特異な腐食挙動は認められなかった。また浄化系の停止に伴う水質低下時に懸念される塩化物イオン増加による隙間腐食を示唆する局所的な錆の付着も認められなかった。

・酸化膜厚さ測定結果と従来データとの比較を行ったが、今回の測定結果は従来データの範囲内の値であり、特異な腐食挙動は確認されなかった。

実施内容

平成25年度は平成26年度以降の試験計画を立案するために、国内外の乾式保管に関する①規制、②事例、③試験データの調査を実施する。その際、当該燃料を乾式保管を実施する場合の課題などを抽出する(例：NUREG、Interim Staff Guidance(ISG)等)。

海外実績

米国では、既に多くの燃料を乾式貯蔵している。欧州でもドイツ、スイス、トルコ、ロシア、ベルギーなどで既に乾式保管の実績が存在している。米国を含め、一部では破損燃料の保管も実施している。

海外の現状

最終処分場の目処がたたないため、乾式保管年数の延長が課題であり、また、今後の乾式貯蔵を考慮した場合の高燃焼度燃料の保管に関しても課題になっている。そのため、欧米では各機関で研究・評価が現在も進められている。

本実施項目の最終アウトプット

乾式保管できる燃料の範囲及び追加規定要否について明確にする。

H25年度の課題抽出状況

劣化機構		可能性のある1F環境影響事象候補
化学的要因	腐食	表面付着海水成分等による腐食への影響
	水素脆化	表面傷による応力集中、温度勾配による水素化物偏析への影響
熱的要因	クリープ	表面傷等による減肉・応力集中の影響
	照射硬化回復	—
	水素化物再配向	表面傷による応力集中、温度勾配による水素化物偏析への影響
	SCC	海水成分付着による影響、タイプレート含む →部材表面に海水成分がどの程度残留しているかの確認が必要
	DHC	表面傷等による発生・進展への影響 →表面傷などによる水素化物偏析状況の確認が必要
放射線要因	中性子照射脆化	—
機械的要因	外力	燃料棒曲がり⇒水素化物析出などへ影響の可能性
その他		瓦礫水分の影響(水素発生、腐食)

9. 本プロジェクトの成果 メーカー実施分（実施内容2. ①）

実施内容



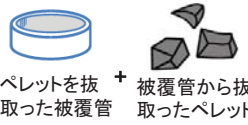
瓦礫落下による燃料棒破損に伴いSFP水(例：3号機高pH)およびコンクリート瓦礫が燃料集合体内にある状態で共用プールに持ち込まれる可能性がある。共用プール内においても燃料部位において局所的に高pHとなる可能性があり、高pH環境下での燃料ペレットからのFP溶出挙動は不明。また高燃焼度ペレットのデータ少なく、かつ腐食に影響する可能性のあるヨウ素等ハロゲン元素の測定例も少ない。

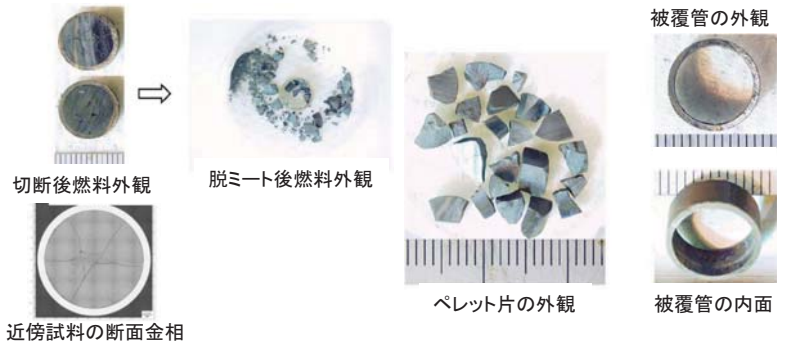
本試験は、共用プールでの燃料長期保管安全性を示すため、高pH環境下において、高燃焼度ペレットに関し、ハロゲン元素を含むFP溶出データを試験により取得・拡充し、燃料部材の腐食挙動評価の際の条件設定に用いる。

試料準備

供試燃料棒：5サイクル照射済9x9A型LUAのC6燃料棒
(燃料棒平均燃焼度：約56GWd/t)

試験前データ：外観観察、重量測定、燃焼度測定、断面観察

試験片タイプ	①(被覆管)	②(ペレット破片)	③(被覆管+ペレット破片)
概略図			
	ペレットを抜取った被覆管	被覆管から抜取ったペレット	ペレットを抜取った被覆管 + 被覆管から抜取ったペレット



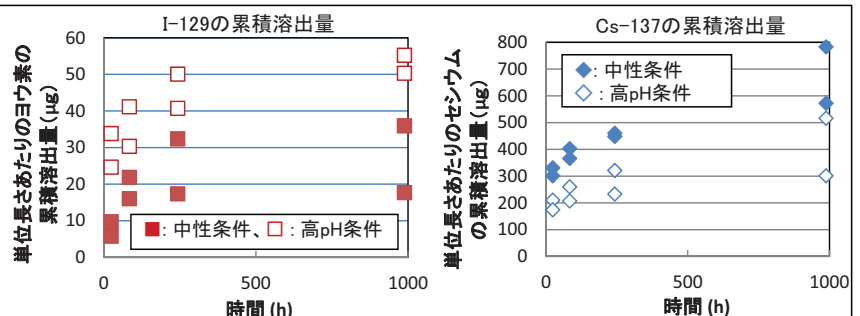
水質分析試験

□ 試験条件

試験水質：純水、純水+水酸化カルシウム(pH約12目標)
浸漬温度：約60°C
浸漬時間：1000hr(24、72、240hrで溶液採取)
測定方法：γ線計測、ICP-MS

□ 試験結果

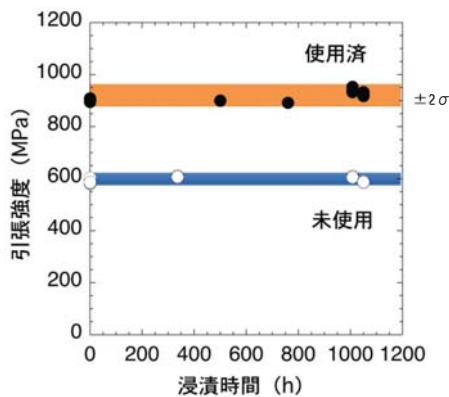
◆ 浸漬時間とともにヨウ素累積溶出量が飽和する傾向を確認。セシウムの累積溶出量については、1000時間後も溶出量が増加する傾向であった。



実施内容

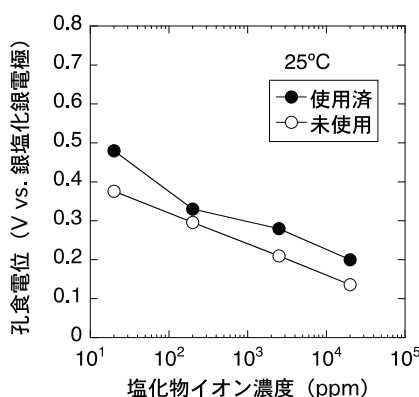
- ①事故初期プール環境履歴が、被覆管の機械的強度に与えた影響を80℃海水に浸漬した被覆管のリング引張り試験で評価する。
- ②使用済被覆管の孔食発生への酸化皮膜の影響を、人工海水中の孔食電位測定により調査する。
- ③未使用被覆管の孔食発生への放射線場(高酸化性環境)の影響を、ガンマ線照射下で孔食電位測定を実施して評価する。

①80℃で1000時間まで海水浸漬した使用済被覆管の引張強度



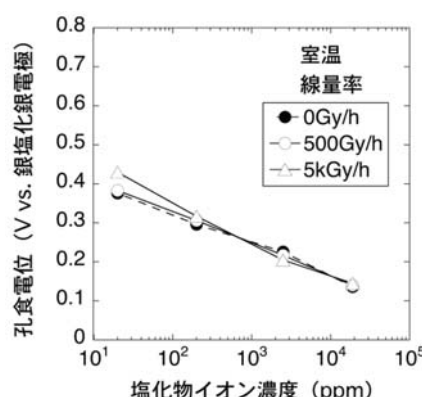
温海水に晒されたことによる有意な強度特性変化はなく、腐食も認めず。

②未使用及び使用済被覆管の希釈人工海水での孔食電位



使用済被覆管(酸化皮膜付)の孔食電位は、未使用被覆管(酸化皮膜無し)より高かった。

③希釈人工海水での未使用被覆管の孔食電位に及ぼすガンマ線照射(水質変化)の影響



放射線下で、海水成分を含む水中で、孔食電位は低下することはなかった。

試験結果(概要)

- ①高温海水への短期間の浸漬履歴は、強度特性に影響しない。
- ②酸化皮膜の存在により被覆管の孔食発生は抑制される。
- ③放射線場で、被覆管の孔食発生電位は低下しない。

まとめ

- 使用済燃料プール環境では、燃料被覆管の孔食発生の可能性は低く、腐食の観点からは損傷していない被覆管は健全と推定される。

※文科省からの運営費交付金によりJAEAが実施

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

実施内容

- ① 福島第一原発(1F)4号機の使用済燃料プールから引き上げられた新燃料集合体に、平成24年8月の共用プールにおける目視点検では腐食の痕跡は認められなかったが、現場の目視検査では確認できなかったネジ部等の特異な部位を重点とする詳細な検査を行う。
- ② 表面汚染の付着状況、部材表面及びネジ部内面等の腐食及び割れの有無等を調査し、新燃料の部材健全性を評価する。

検査した部材

ロックナット
(ステンレス)

スペーサータブ
(ジルカロイ合金)

膨張スプリング
(ニッケル合金)

主要実施項目

- 汚染検査
- 表面観察
- 断面観察
- EPMA*分析

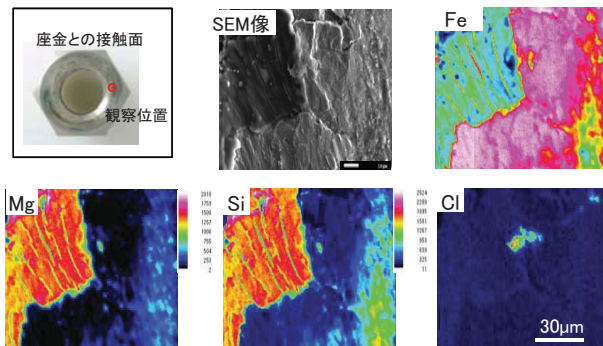
ロックナットの汚染検査結果
γ線強度(cps)

	Mn-54	Co-60	Cs-134	Cs-137
洗浄前	1.72	22.20	ND	ND
攪拌 洗浄後	1.60	22.15	ND	ND
超音波 洗浄後	0.54	16.73	ND	ND

ND: 不検出

Mn-54, Co-60を検出
Cs-134, Cs-137は不検出

ロックナット表面の走査電子顕微鏡像とEPMA分析結果



海水由来成分(Mg, Si, Cl元素)を検出

* EPMA: 電子線プローブマイクロアナライザー

調査結果(概要)

- ① 表面汚染はクラッド由来(Mn-54, Co-60)と判断された。
- ② 部材表面に海水成分が固着していた。
- ③ 観察した部分では、腐食痕跡やき裂は観察されなかった。

まとめ

- 検査した部材では、燃料集合体の取扱い作業に影響する可能性のある腐食事象は認められなかった。

※文科省からの運営費交付金によりJAEAが実施

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

1. 燃料集合体の長期健全性評価

①長期健全性評価のための試験条件検討(p5) :

- ・瓦礫浸漬時間の増加により、累積塩化物イオン濃度が飽和に近づく傾向が見られた。また温度による塩化物イオン濃度の溶出量依存性は見られなかった。
- ・今後は得られる水質分析結果を基に、長期健全性評価のための試験条件を策定する。

②共用プールでの燃料集合体材料の長期健全性評価(p6) :

- ・平成25年度の試験の結果、評価対象の被覆管、内部のねじ部に顕著な腐食は確認されなかった。

③共用プール保管燃料の状態調査(p7) :

- ・共用プール保管燃料は、外観観察、酸化膜厚さ測定結果から健全燃料と同等の傾向を示しており、震災直後の共用プール水の変化を経験しているものの、今後各号機のSFPより共用プールに移送されてきた燃料の腐食挙動を評価する際の比較データとして活用できるものと考えられる。

④乾式保管等に関する調査及び試験計画立案(p8) :

- ・国内外の知見の整理を実施し、1F燃料の乾式保管を考慮した場合の課題について整理した。

2. 燃料集合体移送による水質への影響評価

①損傷燃料からの核分裂生成物(FP)等溶出評価(p9) :

- ・浸漬時間とともにハロゲン元素であるヨウ素の累積溶出量が飽和する傾向を確認した。

3. 長期健全性に係る基礎試験(p10-11)

- ・使用済被覆管を用い、酸化皮膜が孔食発生を抑制すること、1000時間の海水浸漬で引張強度は低下しないことを示した。
- ・4号機新燃料から採取された部材の汚染はクラッド由来であること、表面に海水由来の付着物があることを確認した。
- ・今後は海水成分の燃料部材への移行挙動および放射線による局所的な水質変化の腐食への影響を評価する。

今後は今年度結果を踏まえて、事故を経験した使用済燃料の現状や共用プールでの長期保管を前提とした腐食影響、水質側への影響について確認するとともにこの保管方法について検討していく。