

第9章

燃料健全性評価



9-1 使用済燃料の線源評価とペレットの酸化挙動評価 … 126

9-1-1 燃料の諸元と計算方法

9-1-2 使用済燃料の核種生成量と実測値との比較

9-1-3 感度解析を用いた生成量計算精度の向上方法
の提案

9-1-4 まとめ

9-2 乾式貯蔵時の使用済燃料健全性評価 …… 128

9-2-1 燃料被覆管軸方向の水素の再分布

9-2-2 燃料ペレットの酸化挙動

9-2-3 まとめ

9-1 使用済燃料の線源評価とペレットの酸化挙動評価

使用済燃料貯蔵キャスクや中間貯蔵施設の遮へいや臨界計算、除熱計算の精度は、使用済燃料中のアクチニドや核分裂生成核種の生成量評価精度に直接依存している。ウラン燃料の高燃焼度化や MOX 燃料の軽水炉利用が進むと、照射後のこれらの燃料中のアクチニドや核分裂生成核種の組成は、従来の燃焼度（約 40MWd/kgU）の燃料と比較して変化しており、線源強度や発熱量が増加する。そのため、核種生成量の計算精度の向上は、中間貯蔵はもちろん、炉心燃焼管理から再処理に至る幅広い分野の解析や評価精度の向上に寄与するものである。

本項では、高燃焼度のウランおよび MOX 燃料を用いた核種組成分析と計算解析を比較し、核種生成量の評価精度向上方法について検討を行った^{1,2)}。

9-1-1 燃料の諸元と計算方法

本試験で用いた高燃焼度 PWR ウラン燃料は、初期²³⁵U 濃縮度 3.8wt.% で、燃料棒平均燃焼度 60.2MWd/kgHM まで燃焼したものである。この燃料棒の軸方向燃焼度分布を利用して、燃焼度 60～65MWd/kgHM の範囲の 4 試料を採取した。一方、高燃焼度 PWR-MOX 燃料は、初期富化度 5.07wt.% で、燃焼度約 46MWd/kgHM まで燃焼したものの 2 試料を採取した。

9-1-2 使用済燃料の核種生成量と実測値との比較

採取した試料に核種組成分析を実施して、燃焼度と各核種の生成量を決定するとともに燃焼計算の結果と比較し、高燃焼度ウラン燃料および MOX 燃料の各核種の計算精度を把握した。

(1) 核種組成分析方法と燃焼計算方法

高燃焼度 PWR ウラン燃料の 4 試料および高燃焼度 PWR-MOX 燃料の 2 試料は、硝酸溶液やフッ化水素溶液を用いて溶解し、これらの溶液に質量分析やスペクトル分析を基本とした各種の分析方法を適用して、表 9-1-1 に示すように、アクチニド 17 核種、核分裂生成物 40 核種の組成を決定した。また、燃焼計算では、詳細燃焼計

表 9-1-1 実測値と計算値の比較を行った核種一覧

アクチニド核種	²³⁴ U ~ ²³⁶ U, ²³⁸ U, ²³⁷ Np, ²³⁸ Pu ~ ²⁴² Pu, ²⁴¹ Am, ^{242m} Am, ²⁴³ Am, ²⁴² Cm, ²⁴⁴ Cm ~ ²⁴⁶ Cm
核分裂生成核種	⁸⁵ Rb, ⁸⁷ Rb, ⁸⁶ Sr, ⁸⁸ Sr, ⁹⁰ Sr, ⁸⁹ Y, ¹⁰⁶ Ru, ¹²⁵ Sb, ¹³³ Cs ~ ¹³⁵ Cs, ¹³⁷ Cs, ¹³⁹ La, ¹⁴⁰ Ce, ¹⁴² Ce, ¹⁴⁴ Ce, ¹⁴¹ Pr, ¹⁴² Nd ~ ¹⁴⁶ Nd, ¹⁴⁸ Nd, ¹⁵⁰ Nd, ¹⁴⁷ Pm, ¹⁴⁷ Sm ~ ¹⁵² Sm, ¹⁵⁴ Sm, ¹⁵³ Eu ~ ¹⁵⁵ Eu, ¹⁵⁴ Gd ~ ¹⁵⁶ Gd, ¹⁵⁸ Gd, ¹⁶⁰ Gd

算コード SWAT および評価済核データライブラリ JENDL-3.2、JENDL-3.3、ENDF/B-VI.5、ENDF/B-VI.8、JEF-2.2 および JEFF-3.0 を用い、さらに、核種組成分析で決定した局所燃焼度を用いた。計算体系は、燃料ペレット、被覆管、減速材より構成される単一格子体系を用い、燃料集合体の減速材と燃料の個数割合が等価になるように、単一格子体系の減速材体積または個数を調整した。

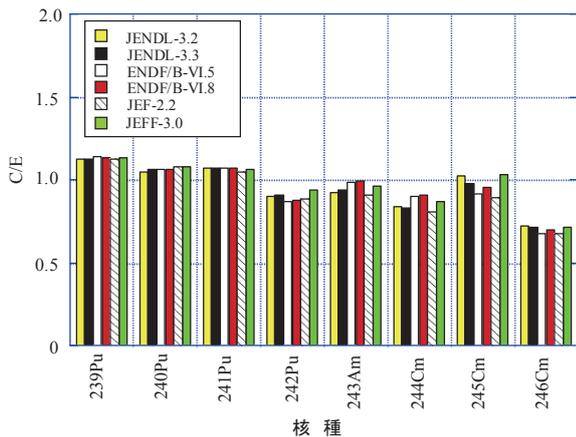
(2) 分析と計算値との比較結果

燃焼計算で求められた生成量と核種組成分析で得た生成量とを比較するために、計算値と分析値との比 (C/E) で示した。C/E を求める際には、核種組成分析値と SWAT による計算値の各々について、残留した²³⁸U の個数密度で核分裂生成核種の個数密度を規格化して、これらの規格化された分析値と計算値の比をとって C/E とした。図 9-1-1 にアクチニドの C/E を示す。

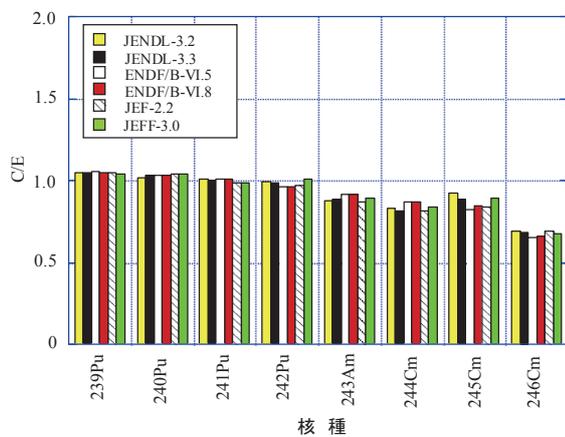
²⁴⁴Cm は、2 年以上冷却した使用済燃料の主要な中性子発生核種であるが、図から、高燃焼度ウラン燃料および MOX 燃料共に計算では、約 20% 過小評価する結果となった。核分裂生成核種についても同様に C/E で評価した結果、遮へいや臨界解析および燃焼度指標として重要ではあるが、生成量の計算予測精度の低い核種として、²⁴⁴Cm、⁹⁰Sr、¹⁰⁶Ru、¹³³Cs および ¹³⁵Cs を抽出した。

9-1-3 感度解析を用いた生成量計算精度の向上方法の提案

生成量の計算予測精度の低い核種について、生成に係る生成経路に注目して、生成や核変換を容易にかつ精度よく取り扱える簡易燃焼計算チェーンを作成し、生成経路に沿った感度係数を求め、これを利用することで



(a) PWR-UO₂ 燃料



(b) PWR-MOX 燃料

図 9-1-1 アクチニド核種の C/E

生成量の計算予測精度の向上方法を提案した。

(1) 簡易感度解析による核種生成経路の特定

前述した ²⁴⁴Cm、⁹⁰Sr、¹⁰⁶Ru、¹³³Cs、¹³⁵Cs について、各々の核種を含んだ簡易燃焼計算チェーンを作成して感度解析を実施し、燃焼チェーン上の各核種の核分裂断面積、捕獲断面積および核分裂収率が、注目する核種の生成量に与える影響（感度係数）を求めた。図 9-1-2 に、Xe、Cs、Ba、La の簡易燃焼チェーンの一例を示す。²⁴⁴Cm、⁹⁰Sr および ¹⁰⁶Ru についても同様な燃焼チェーンを作成し、さらにこれらの感度係数を基にして、計算精度の低い核種の生成に大きな感度（寄与）をもつ生成経路を明確にした。

(2) 計算予測精度の向上方法の提案

C/E 値、感度係数を利用して、²⁴⁴Cm、⁹⁰Sr、¹⁰⁶Ru、¹³³Cs、¹³⁵Cs の核種について、計算精度の向上方法を検討した結果、²⁴⁴Cm は、²⁴³Am だけでなく ²⁴⁰Pu、²⁴¹Pu などのプルトニウムの捕獲断面積に補正を行うことで、⁹⁰Sr と ¹⁰⁶Ru は、自身を生成する核分裂収率に補正を行うことによって生成量が改善し、C/E が 1.0 に近づいた。¹³³Cs は ¹³³Xe の核分裂収率に、¹³⁵Cs は ¹³⁵Xe の核分裂収率または捕獲断面積に補正を行うことで生成量が改善することを示した。表 9-1-2 に例として、²⁴⁴Cm と ¹³⁵Cs

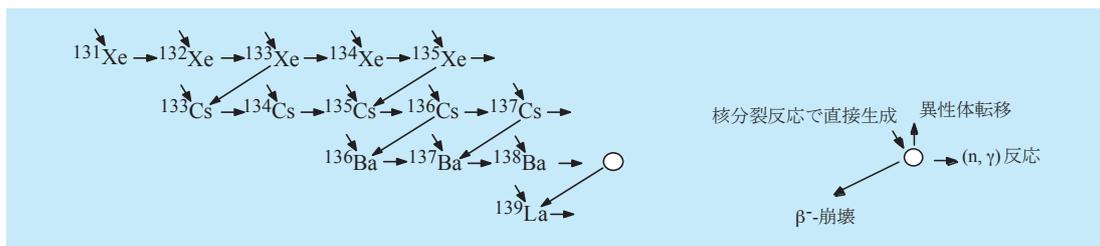


図9-1-2 核分裂生成核種の簡易燃焼チェーン

表 9-1-2 ²⁴⁴Cm と ¹³⁵Cs の補正による C/E の改善

アクチニド核種	補正前の C/E	²⁴³ Am, ²⁴⁰ Pu, ²⁴¹ Pu の捕獲断面積補正後の C/E	核分裂生成核種	補正前の C/E	¹³⁵ Xe の核分裂収率補正後の C/E	¹³⁵ Xe の捕獲断面積補正後の C/E
²⁴⁰ Pu	1.06	1.02	¹³³ Cs	0.87	0.87	0.87
²⁴¹ Pu	1.07	1.07	¹³⁴ Cs	0.83	0.83	0.83
²⁴² Pu	0.91	0.96	¹³⁵ Cs	0.88	1.00	1.03
²⁴³ Am	0.94	0.92	¹³⁷ Cs	0.95	0.95	0.95
²⁴⁴ Cm	0.83	0.96				

の補正による改善の結果を示す。

9-1-4 ま と め

高燃焼度 PWR ウラン燃料、および PWR-MOX 燃料の核種組成の実測データと計算結果との比較を行い、生成量の計算精度を確認した。さらに、線源強度や臨界安全評価で重要ではあるが計算精度の低い核種について、簡易燃焼チェーンを作成して感度解析を実施し、計算精度の向上方法を提案した^{1,2)}。

9-2 乾式貯蔵時の使用済燃料健全性評価

乾式貯蔵方式では、使用済燃料の貯蔵雰囲気はヘリウムなどの不活性雰囲気に保持されている場合には、燃料の健全性が確保されと考えられるが、実際に照射した燃料棒、または長期間貯蔵や保管した燃料棒に試験を実施して健全性を確認することが必要である。燃料被覆管については、水素化物配向の機械的強度への影響など、水素挙動の把握と評価が重要となっている。一方、燃料ペレットについては、空気との接触による酸化反応が、燃料健全性に影響を与える現象として考えられている^{1,2)}。そのため本研究では、20年間乾式（空気）保管した燃料被覆管を用いた水素再分布試験およびペレットの酸化挙動試験を実施し、燃料健全性に与える影響を評価した。

本研究は、経産省原子力安全・保安院からの受託研究として実施した成果の一部を利用している。

9-2-1 燃料被覆管軸方向の水素の再分布³⁾

本試験では、20年間乾式保管した燃焼度 58MWd/kgHM、および 31MWd/kgHM の脱ミートした PWR-UO₂ 被覆管を用いた水素再分布試験を実施し、これまで照射被覆管についてほとんどデータがなかった水素の輸送熱、固溶限、拡散係数を求めた。さらに、これらのパラメータを用いて 40年間乾式貯蔵した場合の燃料被覆管の軸方向の水素分布を計算で求めた。

表 9-2-1 20年間乾式保管した PWR-UO₂ 燃料被覆管の再分布試験結果

	Sample-1AR (58GWd/tHM)	Sample-1BR (31GWd/tHM)
照射量 (n/cm ²)	1.04×10 ²²	0.56×10 ²²
輸送熱、Q* (kcal/mol)	11.0	13.4
拡散係数、D ₀ (m ² /s)	0.73×10 ⁻⁷	0.63×10 ⁻⁷
固溶限、C (ppm)	1.0×10 ⁴	6.0×10 ⁴

(1) 水素再分布試験

試験試料は、20年間乾式保管した燃焼度 58 および 31MWd/kgHM の被覆管の他に、未照射の Zry-4 および低スズ Zry-4 を用いた。試験では、長さ 30mm の被覆管試料の一方の端を 653K (380℃)、もう一方の端を 533K (260℃) に加熱して 10 日間保持し、試験後、試料内の水素濃度を測定した。この水素濃度分布に一致するように、水素の輸送熱、拡散係数および固溶限をパラメータにして、水素の一次元拡散方程式を用いた水素濃度のフィッティング計算を実施することで、水素の輸送熱、固溶限および拡散係数を決定した。表 9-2-1 に、20年間乾式保管した燃料被覆管の水素再分布試験で得られた輸送熱などを示す。照射後 20年間保管した被覆管の輸送熱は、未照射被覆管の輸送熱 (4.6 ~ 9.7 (kcal/mol)) に比較して大きくなった。また、未照射被覆管の水素の輸送熱と文献値との比較から、フィッティング計算の妥当性を確認した。

本試験で得た結果および文献値との比較から、照射後 20 年保管した被覆管の固溶限は、未照射被覆管と同程度であるが、拡散係数は、未照射被覆管に比較して同程度か小さい結果となった。また、Sample-1AR と Sample-1BR では、照射量が約 2 倍異なるにもかかわらず、拡散係数に対する影響は少ない結果となった。

(2) 計算による 40 年間乾式貯蔵後の水素分布

20 年間乾式保管された 2 本の被覆管について、水素再分布試験で取得した水素の輸送熱、固溶限および拡散係数を用いて、さらに、米国で実際に測定した乾式貯蔵中の使用済燃料の温度分布に、貯蔵中の崩壊熱の減少を考慮して、40 年間乾式貯蔵した後の燃料棒軸方向の水素分布を一次元拡散方程式を用いて計算した。

図 9-2-1 に、燃料棒下端から上部への水素濃度分布の

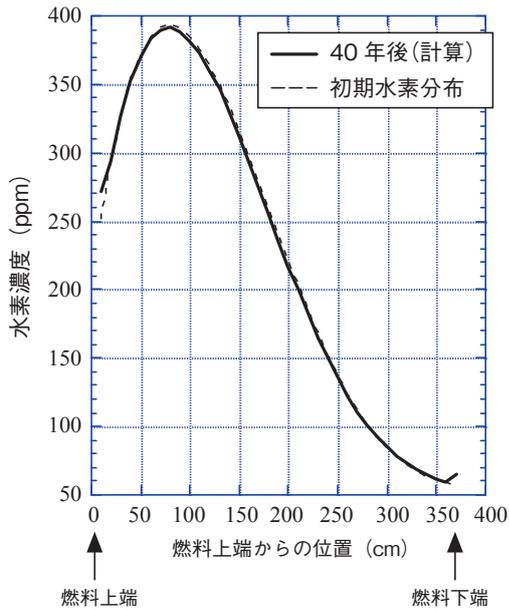


図 9-2-1 計算で求められた 40 年乾式貯蔵後の軸方向水素濃度分布

計算結果を示す。図から、燃料棒の両端部分でやや水素濃度が増加するが、燃料被覆管全体では水素の初期分布からの移動による変化は少なく、被覆管の特性変化も少ないと判断され、貯蔵中の被覆管の健全性に与える影響は小さいと判断される。

9-2-2 燃料ペレットの酸化挙動

乾式貯蔵キャスクに使用済燃料を収納して、キャスクから内部の水を除去する際やキャスク・キャニスタの密封性が破れた場合に、燃料被覆管にピンホールやヘアク

ラックなどの小さな欠陥がある場合には、条件によってはペレットと空気が接触して、 $\text{UO}_2 \rightarrow \text{U}_4\text{O}_9 \rightarrow \text{U}_3\text{O}_8$ の酸化反応が進展する可能性がある。酸化反応によって U_3O_8 が生じると、燃料体積が 30% 以上増加するため、小さな初期欠陥が拡大して燃料棒の破損に至る可能性があるとしてされている⁴⁾。本研究では、燃焼度 65 および 50MWd/kgHM のウラン燃料を用いた 300℃ および 350℃ の酸化特性試験を実施した。

(1) 酸化特性試験⁵⁾

使用済燃料ペレット片を 12 個のセラミック製のつぼに分割してセットし、電気炉で 300℃ および 350℃ の加熱した状態で空気を流して、適宜、試料をつぼごと酸化反応の進展に伴う重量増加を測定した。また、一部の試料は酸化形態を決定するため X 線回折 (XRD) 測定を実施した。

(2) ペレットの酸化挙動⁵⁾

図 9-2-2 に、燃焼度 65 および 50MWd/kgHM の試料の酸化に伴う重量変化を示す。重量が 4% 増加した時点で、 UO_2 が 100% U_3O_8 に酸化している。 UO_2 から U_4O_9 への酸化反応は燃料母材の酸素の拡散で進展し、生成した U_4O_9 相から U_3O_8 が核生成すると考えられている。図から、300℃ では燃焼度の違いによる酸化挙動の大きな差異は見られない。350℃ では重量変化約 2.4% 増加 (U_4O_9 の生成に対応) するまでは燃焼度による違いは見られないが、2.4% 以上では 65MWd/kgHM の試料で酸化の進展が速く、また、高温ほど酸化の進展が速くなっ

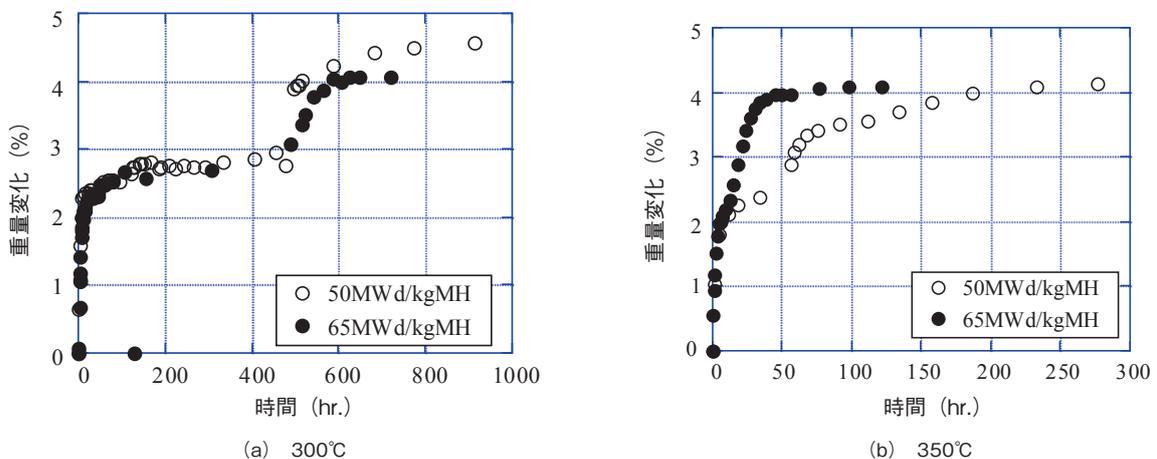


図9-2-2 酸化挙動の燃焼度および温度依存性

た。高燃焼度燃料ほど核分裂生成物の蓄積などによって酸化の進展が遅くなると報告されているが、本試験結果から、燃料組織の変化も酸化の進展に大きな影響を与えることが分かった。

9-2-3 ま と め

20年間乾式保管した燃焼度 58 MWd/kgHM、および 31MWd/kgHM の PWR-UO₂ 被覆管を用いた水素再分布試験を実施し、これまで照射被覆管についてほとんどデータが取得されていなかった水素の輸送熱、固溶限、拡散係数を求めた。これらのデータを用いて、40年間乾式貯蔵した場合の燃料被覆管軸方向の水素分布を計算で求めた。その結果、燃料被覆管全体では水素の初期分布からの移動による変化は少なく、貯蔵中の被覆管の健全性に与える影響は小さいとの評価結果になった。また、燃焼度 65MWd/kgHM および 50MWd/kgHM のウラン燃料を用いた酸化特性試験を実施し、試験結果から、燃焼度の他に燃料ペレット組織の変化も酸化の進展に大きな影響を与えることが分かった。

参考文献

9-1

- 1) A. Sasahara, T. Matsumura, G. Nicolaou, Y. Kiyonagi : Isotopic Analysis of Actinides and Fission Products in LWR High Burn-up UO₂ Spent Fuels and Its Comparison with Nuclide Composition Calculated Using JENDL, ENDF/B, JEF and JEFF, J. Nucl. Sci. Technol., Vol.45, No.4, pp. 313-327, 2008.
- 2) A. Sasahara, T. Matsumura, G. Nicolaou, Y. Kiyonagi : Chemical Isotopic Analysis of Fission Products in PWR-MOX Spent Fuels and Computational Evaluation Using JENDL, ENDF/B, JEF and JEFF, J. Nucl. Sci. Technol., Vol.45, No.5, pp.390-401, 2008.

9-2

- 1) U.S. NRC : Potential Rod Splitting due to Exposure to an Oxidizing Atmosphere during Short-term Cask Loading Operations in LWR or Other Uranium Oxide Based Fuel, Interim Staff Guidance-22, May 2006.
- 2) F. Feria, L. E. Herranz : UO₂ Oxidation under Dry Storage Conditions: From Data Gaps to Research Needs, 2008 Water Reactor Fuel Performance Meeting, Oct 19-23, 2008, Seoul, Korea.
- 3) 笹原昭博、松村哲夫：乾式貯蔵時における使用済燃料被覆管中の水素移動量評価、電力中央研究所研究報告 L05005、2006年7月。
- 4) TU Annual Report 1995 (EUR 16368 EN).
- 5) 笹原昭博、松村哲夫、D. Papaioannou：使用済燃料の貯蔵時の健全性評価試験（5）－使用済 UO₂ 燃料の酸化反応特性－、日本原子力学会「2003 秋の大会」予稿集、p.446、2003年。