

燃料デブリ臨界管理のための非溶解性中性子吸収材の耐放射線特性評価

Evaluation of Irradiation Characteristic of Candidate Insoluble Neutron Absorbers for Criticality Control technique development for Fukushima Daiichi fuel debris

石橋 良^{1,2)} 藤田 敏之^{1,3)} 川野 昌平^{1,3)} 進藤 雄太^{1,3)} 森本 裕一^{1,2)}

Ryo ISHIBASHI Toshiyuki FUJITA Shohei KAWANO Yuta SHINDO Yuichi MORIMOTO

¹⁾IRID ²⁾日立 GE ニュークリア・エナジー(株) ³⁾東芝エネルギーシステムズ(株)

(概要)

福島第一原子力発電所での燃料デブリ取り出し時における臨界管理技術の一環として、非溶解性中性子吸収材を用いた臨界防止技術の開発を進めている。非溶解性中性子吸収材適用に伴う構造材腐食または水素発生に及ぼす副次的影響を評価することを目的に、最大照射量 72 MGy の気中ガンマ線照射試験、および、最大照射量 11 MGy の水中ガンマ線照射試験を実施した。この結果、非溶解性中性子吸収材候補からの溶出成分による試験液の pH、および、非溶解性中性子吸収材候補存在下でのみかけの水素発生 G 値の照射量依存性に関する知見が得られた。本結果は、構造材の腐食、収納缶の腐食および水素発生に関わる管理技術の開発に資すると考える。

キーワード：福島第一原子力発電所事故、燃料デブリ、中性子吸収材、臨界防止、ガンマ線照射

1. 目的

福島第一原子力発電所 1, 2 および 3 号機の廃炉に向けて、燃料デブリを安全に取り出すため、炉内作業時の臨界管理技術としてほう素 (B)、ガドリニウム (Gd) 等の熱中性子吸収断面積の大きな元素を含んだ非溶解性の固体、固化体または粘性体 (非溶解性中性子吸収材) を用いた臨界防止技術を検討している¹⁾。これまでに、最大 720 h の気中および水中でのガンマ線照射試験を実施し、炉内の放射線に晒されることによる、非溶解性中性子吸収材の機能維持、構造材の健全性、および、作業の安全性への影響の観点から、候補材を選定した²⁾。臨界防止技術開発では、燃料デブリ取出作業後、燃料デブリとともに回収された非溶解性中性子吸収材は数十年ほどの長期間の照射環境に晒される可能性があることから、収納・貯蔵工程における非溶解性中性子吸収材適用による副次的影響の評価が早急の課題である³⁾。本研究は、長期間放射線照射に伴う非溶解性中性子吸収材の副次的影響を評価することを目的とする。長期間放射線照射に伴う特性変化トレンドを明確にするため、2017 年度までに取得した結果⁴⁾を補完する試験を実施した。本試験で得られる知見は、燃料デブリ取出作業後に長期間の照射環境に晒されることを想定し、臨界防止技術開発に資するものである。

2. 実施方法

2. 1 実施方法の概要

非溶解性中性子吸収材候補に対して長期間のガンマ線照射試験を実施し、放射線照射に伴う副次的影響として、1)溶出による構造材腐食に及ぼす影響、2)水素発生に及ぼす影響を評価した。1)は気中ガンマ線照射材の溶出試験及び水中ガンマ線照射試験での試験水水質変化から推定する。2)は水中ガンマ線照射試験によりみかけの水素発生 G 値から推定する。

2. 2 供試材

表 1 に各形態の非溶解性中性子吸収材の期待される機能および候補材を示す。臨界防止には、燃料デブリと混合して燃料デブリ取り出し時に生じる投入反応度を打ち消すことが必須である。さらに、中性子吸収材投入時または燃料デブリ取り出し時における中性子吸収材の保持性における信頼性を高める機能として、取り出し時の燃料デブリ形状変化に対する追従性または燃料デブリへの付着性の機能を期待している。非溶解性中性子吸収材では、固体、固化体および粘性体の 3 つの形態を検討してきた。期待する機能は形態によって異なり、燃料デブリの形態に応じて使い分ける予定である。2017 年度の試験結果を踏まえて、固体では、B₄C 金属焼結材、B・Gd 入ガラス材および Gd₂O₃ 粒子を、固化体では、Gd₂O₃ 粉末を含有した水ガラスを候補材として残した。供試材の形状と寸法は、後述の気中ガンマ線照射試験後の溶出試験、および、水中ガンマ線照射試験において、比液量が約 40 ml/cm² となるように定めた。

表1 各形態の非溶解性中性子吸収材の期待される機能および候補材

形態	期待される機能			候補材
	燃料デブリとの混合性	取り出し時の燃料デブリ形状変化に対する追従性	燃料デブリへの付着性	
固体	○	○	-	B ₄ C 金属焼結材 B・Gd 入ガラス材 Gd ₂ O ₃ 粒子
固化体 (液体から固体に変化)	○	-	○	水ガラス/Gd ₂ O ₃ 造粒粉材
粘性体	○	○	○	現状候補材なし

2. 3 気中ガンマ線照射試験

第二照射室において、大気中で線量率 10 kGy/h で 2017 年度に 3600 h 照射した試験片に対して 3600 h のガンマ線照射試験を追加して実施した(照射量 72 MGy)。照射試験後、試験片を 200 倍希釈海水中に浸漬し、試験液温度 80°C で溶出試験を 72 h 実施して、溶出試験液の pH を構造物腐食等に及ぼす影響の指標とした。

2. 4 水中ガンマ線照射試験

第六照射室において、試験片を 200 倍希釈海水中に浸漬し、窒素ガスで脱気後に封入した密閉容器(内容積 1 l)に対して、平均線量率 5.4~5.9 kGy/h で 4 水準の照射量 0.5, 2.2~2.6, 7.2 および 11 MGy のガンマ線照射試験を実施した。窒素ガスと 200 倍希釈海水との気液比を 1 : 1, 初期圧力 0.02 MPa とした。照射試験後、容器内圧力測定と内部ガス組成分析を行い、水素ガス分圧を算出した。さらに、その水素ガス分圧および照射量から、みかけの水素発生 G 値を求めた。照射試験後の試験液の pH を構造物腐食等に及ぼす影響の参考指標とした。2017 年度までに得られた平均線量率 6.1~9.0 kGy/h でのガンマ線照射試験結果に追加し、特性変化トレンドを評価した。

3. 結果及び考察、今後の展開等

3. 1 溶出による構造物腐食等に及ぼす影響

表 2 に気中ガンマ線照射材の溶出試験液および水中ガンマ線照射試験後試験液の pH を示す。気中ガンマ線照射材の溶出試験液は、B₄C 金属焼結材、B・Gd 入ガラス材および Gd₂O₃ 粒子では照射量 72 MGy まで中性域 (pH5~9) を示した。水ガラス/Gd₂O₃ 造粒粉材はガンマ線照射に関わらず強アルカリ性(pH12)を示した。炉内や冷却水巡回経路の構造物の腐食は冷却水を介して生じる。冷却水が中性域の場合、構造物腐食に及ぼす影響は小さいと考えられる。酸性の場合、構造物腐食が懸念される。アルカリ性の場合、構造物の種類、温度や照射条件によっては腐食に対して注意を払う必要がある。しかし、冷却水の pH に及ぼす溶出成分の影響は冷却水量との割合に関わるので、溶出試験液の pH が酸性またはアルカリ性であっても冷却水の pH がそうなるとは限らない。少なくとも、溶出試験液が中性域であれば、冷却水は pH 調整の必要なく中性域になるといえる。

水中ガンマ線照射試験後試験液は、候補材試験片を入れた場合、B₄C 金属焼結材、B・Gd 入ガラス材および Gd₂O₃ 粒子では照射量 11 MGy まで中性域 (pH5~9) を示し、水ガラス/Gd₂O₃ 造粒粉材ではガンマ線照射に関わらず強アルカリ性(pH12)を示した。候補材試験片がない場合、pH3~6 と pH が低下する傾向にあり、密閉容器の中で、窒素ガスから生じた硝酸イオンが試験液中に蓄積された結果、pH が低下したためと考えられる。このことから、候補材からの溶出成分によって、ある程度緩衝作用が期待できるとともに、水ガラス/Gd₂O₃ 造粒粉材のように溶出成分の影響が大きく現れる場合があるといえる。非溶解性中性子吸収材が燃料デブリとともに装填される収納缶の保管条件が湿式かつ水循環のない場合は、本結果を考慮する必要があると考えられる。

上述のように、構造物腐食に及ぼす影響の観点で候補材選定および水質管理方法に資する試験データが得られた。2018 年度に選定し評価した候補材は、長期間のガンマ線照射によりダメージを受けて非溶解性中性子吸収材候補からの溶出量が増加したにもかかわらず、試験液の pH の変化は小さかった。このことから、試験液の pH が変化しにくいのは溶出成分の影響であり、照射によるダメージがさらに増加しても pH の変

化は小さい可能性が高いと推定される。

表2 気中ガンマ線照射材の溶出試験液および水中ガンマ線照射試験後試験液の pH

形態	非溶解性中性子吸収材候補		気中ガンマ線照射材の溶出試験液	水中ガンマ線照射試験後試験液
固体	B ₄ C 金属焼結材	B ₄ C/SUS 焼結材	照射量 0~72 MGy:中性域	照射量 0.5~11 MGy:中性域
		B ₄ C/Ni 焼結材	照射量 0~72 MGy:中性域	-
		B ₄ C/Al 焼結材	照射量 0~72 MGy:中性域	-
	B・Gd 入ガラス材	亜鉛ホウ酸塩ガラス材	照射量 0~72 MGy:中性域	-
		ビスマスホウ酸ガラス材	照射量 0~72 MGy:中性域	照射量 0.5~11 MGy:中性域
	Gd ₂ O ₃ 粒子	照射量 0~72 MGy:中性域	照射量 0.5~11 MGy:中性域	
固化体	水ガラス/Gd ₂ O ₃ 造粒粉材		照射量 0~72 MGy:pH12	照射量 0.5~11 MGy:pH12
参照	候補材試験片なし		-	照射量 0.5~11 MGy:pH3~6

中性域 : pH 5~9

3. 2 水素発生に及ぼす影響

図1にみかけの水素発生 G 値の照射量依存性に及ぼす非溶解性中性子吸収材候補投入の影響に関する結果を示す。みかけの水素発生 G 値の誤差棒は、分析結果から試験中に試験容器外にガス漏えいがあったと仮定した場合の最大値を示している。図中には、2014 年度、2015 年度および 2017 年度の試験結果(線量率 6.1~9.0 kGy/h)も掲載している。試験時期による線量率の低下はコバルト線源の減衰によるものである。図1では、線量率が低下した 2018 年度の結果と 2017 年度までの結果とを重ねてみて顕著な差異がみられなかったことから、線量率依存性がないと仮定して同一候補材に対する結果を整理した。図中に、照射量増加に伴うみかけの水素発生 G 値の変化イメージを示す曲線を示す。ほとんどの非溶解性中性子吸収材候補は試験片のない密閉容器と比べて、みかけの G 値が高くなったが、純水の初期 G 値 0.45 よりも低いこと、さらに、照射量が増加するに従いみかけの水素発生 G 値が低下する傾向があるという 2017 年度の評価結果を裏付けた。詳細にみると、B₄C/SUS 焼結材の結果では、みかけの水素発生 G 値が 0.1~0.2 にあるグループ A とほとんど 0 のグループ B とに分かれ、グループ A のほうがグループ B よりも試験片の腐食量が大きく、試験片の腐食と水素発生に相関がみられた。試験片の腐食には、例えば残留溶存酸濃度など本試験では制御しきれなかった要因が関係していると考えている。

水素発生 G 値変化のトレンドについて考察する。候補材試験片からの溶出はガンマ線照射開始以降であるので、溶出成分のみが水素発生に影響を与えるのであれば、初期 G 値はいずれの非溶解性中性子吸収材候補試験片の入った密閉容器も同じである。海水成分を含んだ水も初期の水素発生 G 値は 0.45 と評価され、照射時間とともに水素ガス圧力の増加率が低下する^{5,6)}ことから、この水中ガンマ線照射試験においても水素発生の初期 G 値 0.45 程度から照射時間が経過するとともにみかけの水素発生 G 値が低下したと考えられる。密閉容器の場合、ガンマ線照射前には気相に水素ガスを含んでいないことから、ガンマ線照射開始時には水の放射線分解反応により一方的に水素ガスが発生し気相に移行する。気相に移行した水素ガスが増加すると逆に水に戻る水素ガスが生じ、水素発生 G 値が低下し平衡状態に達する⁷⁾。照射量 11 MGy でも水素ガス分圧は上昇する傾向を示したので、平衡状態には達しておらず、照射量がさらに増加すれば平衡状態に達すると考えられる。このことから、照射量がさらに増加しても水素発生 G 値が低下していくと推定される。

上述のとおり、非溶解性中性子吸収材候補の投入により、みかけの水素発生 G 値は増加するものの、密閉容器の場合、照射時間とともに低下することが推定され、水素発生に対して例えば純水の初期 G 値を上限として管理ができる可能性が示された。

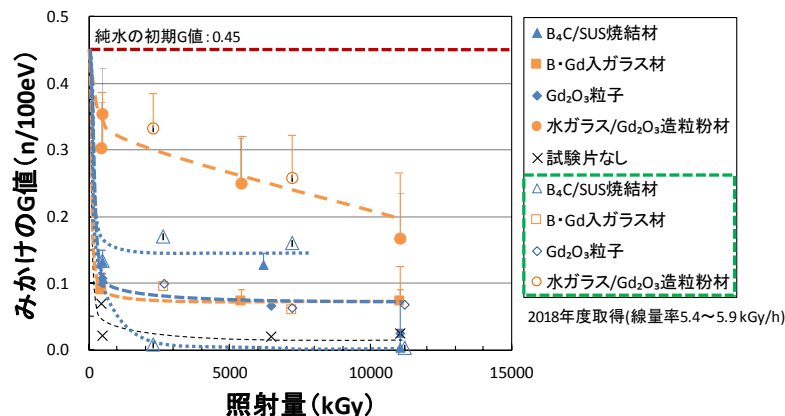


図 1 みかけの水素発生 G 値の照射量依存性に及ぼす非溶解性中性子吸収材候補投入の影響に関する結果 (平均ガンマ線線量率: 2017 年度以前 6.1~9.0 kGy/h 2018 年度 6.1~7.5 kGy/h)

3. 3 今後の展開

構造材腐食等に及ぼす非溶解性中性子吸収材適用の影響の検討として、腐食対策として検討されている防錆剤の効果に及ぼす溶出成分の影響を評価するため、2019 年度にガンマ線照射下での腐食試験を実施する計画である。

4. 謝辞

本件は、資源エネルギー庁『平成 29 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金燃料デブリ・炉内構造物の取り出し工法・システムの高度化（臨界管理方法の確立に関する技術開発）」』の成果の一部を取りまとめたものである。

5. 引用(参照)文献等

- 1)Y. Harada, M. Nakano, Y. Hayashi and K. Ishii, Criticality Control System Development for Fuel Debris Removal in Fukushima Daiichi, Proceedings of ICAPP 2017, Fukui and Kyoto, paper No.17225, (2017).
- 2)R. Ishibashi, T. Fujita, K. Ishii and Y. Harada, Development of Criticality Prevention Technology by Using Insoluble Neutron Absorbers for Fuel Debris Removal in The Fukushima- Daiichi Nuclear Power Plants, Proceedings of ICAPP 2017, Fukui and Kyoto, paper No.17279, (2017).
- 3)石橋良, 石井一弥, 森本裕一, 中性子吸収材を用いた燃料デブリ取り出し時の臨界防止対策と腐食に及ぼす影響, 第 64 回材料と環境討論会予稿集, 沖縄県市町村自治会館, 腐食防食学会, E-117, (2017).
- 4)石橋良, 石井一弥, 藤田敏之, 進藤雄太, 森本裕一, 燃料デブリの臨界管理技術の開発 (48) 溶液 pH および水素発生に及ぼす非溶解性中性子吸収材の影響, 日本原子力学会 2018 年秋の大会予稿集, 岡山, 1M17, (2018).
- 5)宮本和, 内山秀明, 松岡寿浩, 檜崎千尋, 菊地義春, 上野学, 和田陽一, 燃料デブリ用収納缶の開発 (7) γ 線照射下での水の放射線分解による水素発生量の測定, 日本原子力学会 2017 年秋の大会予稿集, 札幌, 2D16, (2017).
- 6) 和田陽一, 内山秀明, 松岡寿浩, 檜崎千尋, 宮本和, 菊地義春, 上野学, 燃料デブリ用収納缶の開発 (8) γ 線照射下での水の放射線分解による水素発生量の解析的評価, 日本原子力学会 2017 年秋の大会予稿集, 札幌, 2D17, (2017).
- 7) Y. Wada, Y. Kani, K. Ishida, N. Ota and M. Ueno, Radiolytic hydrogen evolution in a closed vessel, Journal of Nuclear Science and Technology, 55, pp.1481-1489 (2018).