

# 平成27年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金」 (燃料デブリ臨界管理技術の開発)

## 最終報告

平成30年3月

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構(IRID)

## 目次

1. 全体計画	1.1 背景・目的	2
	1.2 目標	4
	1.3 実施項目とその関係性、他研究との関連	6
	1.4 実施体制	8
2. 実施内容	2.1 臨界評価手法の確立	9
	(1)臨界シナリオの策定	9
	(2)臨界時挙動評価	12
	(3)臨界管理手法の策定	14
	2.2 臨界管理技術の開発	15
	(1)臨界近接監視手法	15
	(2)再臨界検知技術の開発	21
	(3)臨界防止技術	
	①非溶解性中性子吸収材	26
	②溶解性中性子吸収材	32
3. まとめ		34

# 1. 全体計画

## 1.1 背景・目的

### 【目的】

現状の燃料デブリは臨界になっていないと推定しているが、今後の燃料デブリ取り出し作業等に伴い燃料デブリ形状や水量が変化する場合の臨界を防止し、万一臨界が生じた場合でも一般公衆及び作業員に過度の被ばくが生じることのないような臨界管理手法を確立する。

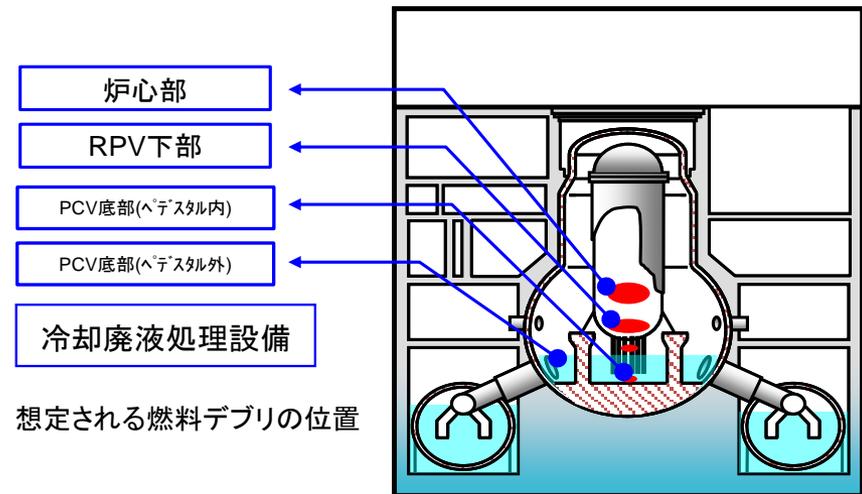


### 【目標】

・ロードマップ上の2017年(平成29年)夏頃の燃料デブリ取り出し方針決定に向け、検討中の各工法ごとの臨界管理方法を策定し、適用する要素技術開発を進め、その成立性を確認する。



燃料デブリ取り出し時臨界管理方法確立に向けて、以下の開発を実施する。



1. 臨界評価手法…… (1)臨界シナリオ及びその評価、(2)臨界時挙動評価、(3)臨界管理手法の策定
2. 臨界管理技術…… (1)臨界近接監視手法
  - (注)小循環ループ向け臨界近接モニタ開発は平成25年度完了)
  - (2)再臨界検知技術(ガスサンプリング系システム、中性子システム)
  - (3)臨界防止技術(非溶解性中性子吸収材、溶解性中性子吸収材開発)

# 【本研究の成果の反映先】

事項／年度	2015	2016	2017	2018	2019	2020	2021
ロードマップ主要工程	燃料デブリ取り出し方針決定▲			取り出し方法確定△		燃料デブリ取り出し△	
【燃料デブリ臨界管理技術の開発】Pj	臨界シナリオ検討 最新情報でのアップデート						
1. 臨界評価手法の確立 (臨界評価・臨界時挙動評価)	デブリ加工方法毎の評価・臨界管理方法						
	内部調査・サンプリング時臨界評価						
2. 臨界管理技術の開発 (1) 臨界近接監視技術	手法検討		成立性試験(原理検証)				
(2)再臨界検知技術の開発	高度化システム検討 成立性試験						
(3) 臨界防止技術 非溶解性中性子吸収材	候補材選定・適用方法検討・成立性試験						
	適用時影響評価・設備検討 成立性試験						
溶解性中性子吸収材							
【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】Pj	開発成果を工法・設備検討に反映						

## 1.2 目標（臨界管理の目標、基本的な考え方）

外部有識者の意見を反映し臨界管理の目標を設定（電中研評価委員会，平成28年度実施）

### [臨界管理の目標]

臨界を防止するとともに、万一の臨界発生の場合にも、これを検知し抑制することにより、一般公衆および作業員の過剰な被ばく(放射線障害)を防止する。

判断基準：敷地境界での一般公衆：5 mSv、作業員：100mSv

### [深層防護に基づいた臨界管理方法]

	第一層 異常の発生防止		第二層 異常状態の把握と 異常の終息		第三層 一般公衆の 保護	第四層 想定を超える事象 への施設外対応
臨界管理	パラメータ監視 Monitoring	異常発生防止 Prevention	異常検知 Detection	影響緩和 Mitigation	・放射性物質漏えい、火災 など全体のリスク管理の一 部として対応する。	
具体的手段 (主要なもの)	・臨界近接監視手法による 臨界近接監視 ・水位/ホウ素濃度等の監視	・1回のデブリ取り出し量制限 ・ホウ酸水/非溶解性中性子吸収材適用	・中性子束/FPガス濃度による 臨界検知	・ホウ酸水/非溶解性中性子吸収材投入による臨界終息		
目標	・臨界近接を監視し、臨界を防止する。		・臨界を速やかに検知し、抑制する。 (平常時レベル(*)を超える放射性物質の放出防止)		・事故時の一般公衆および作業員の過剰な被ばく(放射線障害)を防止する。	

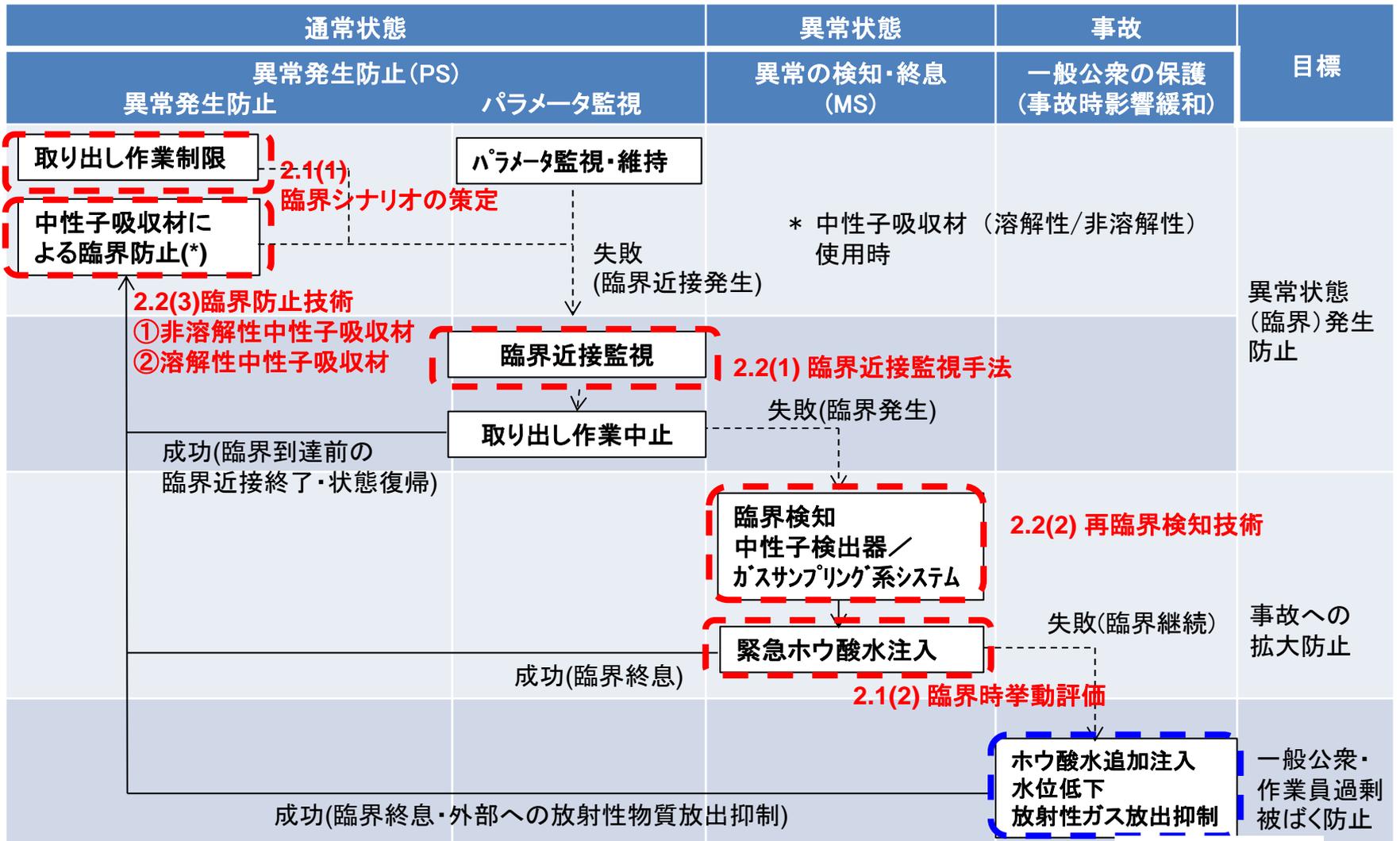
臨界管理が重点を置く部分

全体で達成する部分

\* 今後、臨界を含む安全管理全般で検討すべきもの

# 【デブリ取り出し時臨界管理方法(要素技術の位置づけ)】

全体: 2.1(3) 臨界管理方法の策定



設備全体で検討

# 1.3実施項目とその関係性、他研究との関連

## 1. 臨界評価手法の確立

### (1) 臨界シナリオの策定

- ① 最新知見反映による臨界リスクの見直し
- ② 統計的臨界評価
- ③ 臨界評価

### (2) 臨界時挙動評価

- ① デブリ取り出し時評価

### (3) 臨界管理手法の策定

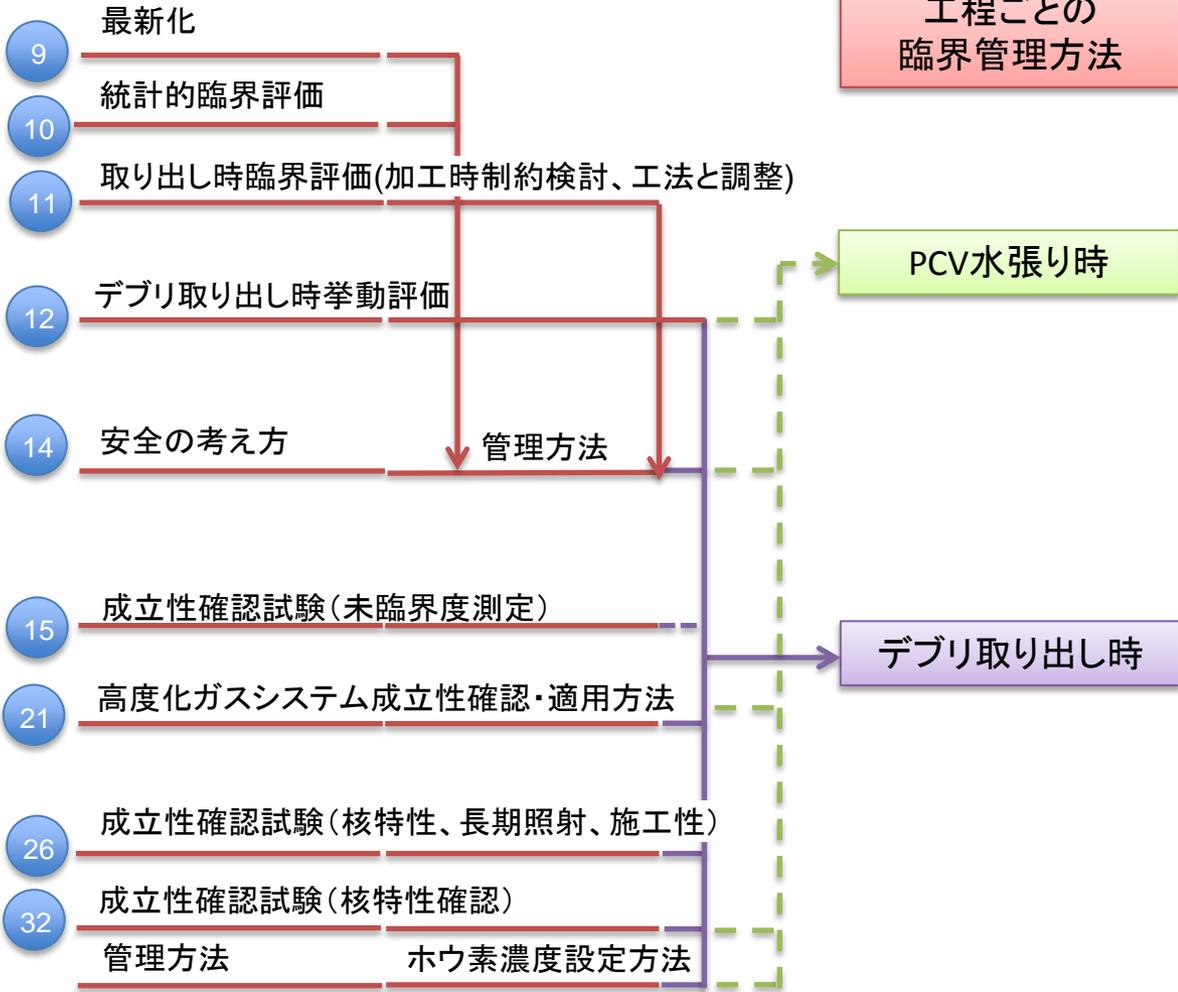
## 2. 臨界管理技術の開発

### (1) 臨界近接監視手法

### (2) 再臨界検知技術の開発

### (3) 臨界防止技術

- ① 非溶解性中性子吸収材
- ② 溶解性中性子吸収材



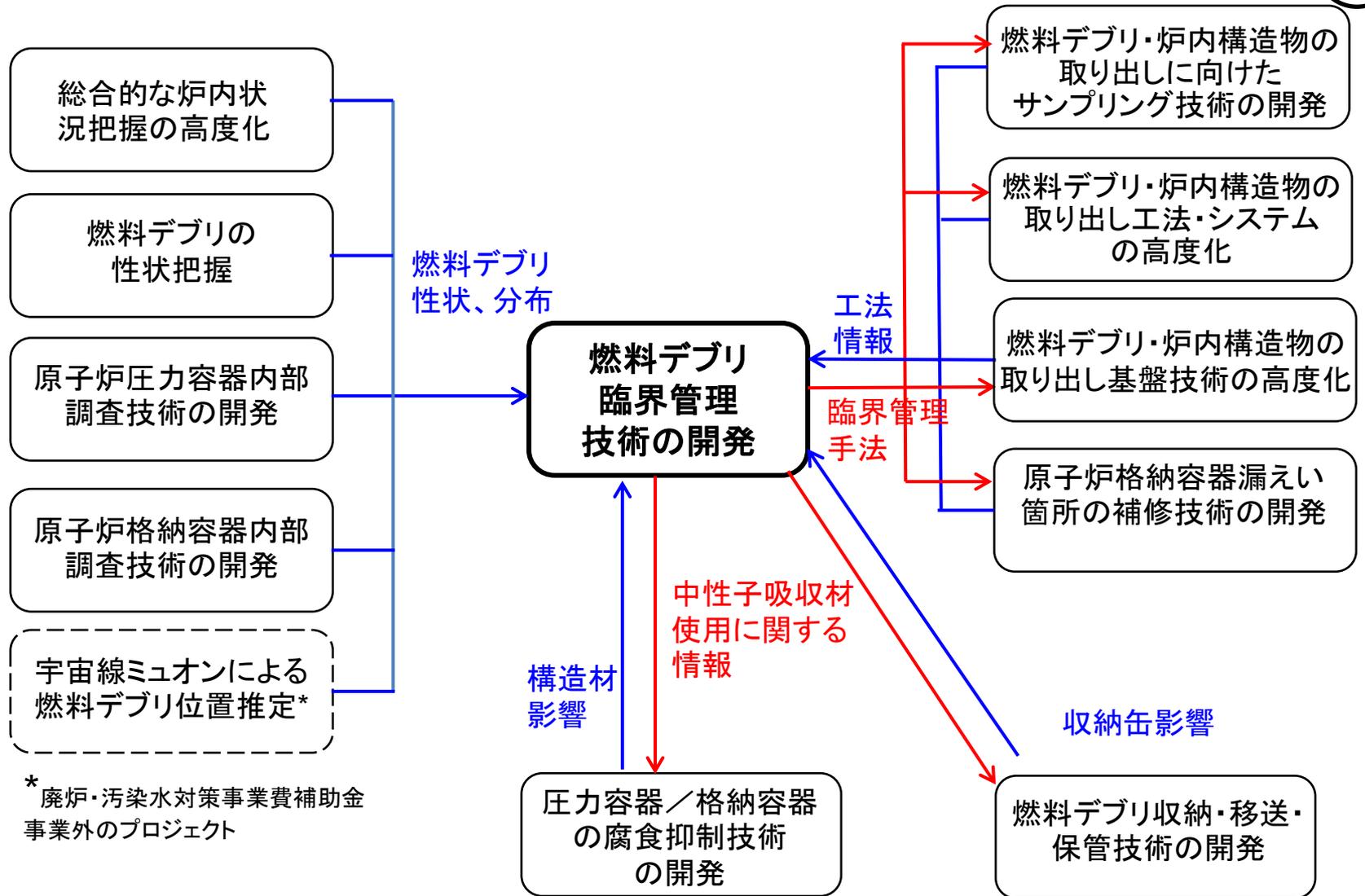
目標  
工程ごとの  
臨界管理方法

PCV水張り時

デブリ取り出し時

15 等は該当ページを示す

# 【関連Pjとの関係】



# 1.4 実施体制

**技術研究組合 国際廃炉研究開発機構(本部)**

- 全体計画の策定と技術統括のとりまとめ
- 技術開発の進捗などの技術管理のとりまとめ

**三菱重工業株式会社**

- 1) 臨界評価技術の確立
  - 臨界シナリオの策定
  - 臨界時挙動評価
  - 臨界管理方法の策定
- 2) 臨界管理技術の開発
  - 臨界監視技術
  - 臨界防止技術  
(溶解性中性子吸収材)

**東芝エネルギーシステムズ株式会社**

- 1) 臨界評価技術の確立
  - 臨界シナリオの策定
  - 臨界時挙動評価
  - 臨界管理方法の策定
- 2) 臨界管理技術の開発
  - 臨界近接監視手法
  - 再臨界検知技術の開発  
(中性子システム)
  - 臨界防止技術  
(非溶解性中性子吸収材)

**日立GEニュークリア・エナジー株式会社**

- 1) 臨界評価技術の確立
  - 臨界シナリオの策定
  - 臨界時挙動評価
  - 臨界管理方法の策定
- 2) 臨界管理技術の開発
  - 臨界近接監視手法
  - 再臨界検知技術の開発  
(ガスサンプリング系システム)
  - 臨界防止技術  
(非溶解性中性子吸収材)

## 2. 実施内容

### 2.1 臨界評価手法の確立 (1)臨界シナリオの策定

#### (i)最新知見反映による臨界リスク(臨界管理の重要度)の見直し

- [目的]**
  - ・複数工法を踏まえた各工程の臨界シナリオ整理、臨界管理の重要度提示
  - ・最新情報を反映した臨界シナリオ・リスク評価の精緻化
- [成果]**
  - ・炉内状況把握Pj 平成28年度成果、1号機PCV内部調査(B2)、2号機PCV内部調査(A2,A2')、3号機PCV内部調査/ミュオン測定による最新知見の反映、横アクセス工法の検討  
従来 of 想定を大きく変える知見はないが2号機PCV下部の水没の管理重要度を小に見直し(表1)。
  - ・再臨界リスク低減のための防止対策/運用と有効性の検討
- [実用化に向けた課題]**
  - ・炉内状況把握Pjの成果、PCV/RPV内部調査結果、デブリサンプリング結果などの反映

表1 号機毎の臨界管理の相対的重要度

部位	臨界シナリオ	1号機	2号機	3号機
炉心部	・残存燃料の水没	<b>極小</b> (残存燃料ほとんどなし)	<b>中</b> (炉心領域, 外周部に燃料 残存可能性あり)	<b>小</b> (外周部に燃料残存可能性 を否定できない)
RPV下部	・デブリの水没 ・取り出し時状態変化	水没: <b>小</b> 取り出し: <b>極小</b> (残存量少)	水没: <b>中</b> 取り出し: <b>小</b> (残存量多く、かつ露出)	水没: <b>中</b> 取り出し: <b>小</b> (残存量多く、かつ露出)
CRD ハウジング	・付着デブリ水没	<b>小~極小</b> (付着形状・量からリスク小)	<b>小~極小</b> (付着形状・量からリスク小)	<b>小~極小</b> (付着形状・量からリスク小)
PCV底部	・露出デブリ水没 ・取り出し時状態変化 (含、巻き上がり)	水没: <b>小</b> 取り出し: <b>小</b> (存在量多い、露出量少)	水没: <b>中→小</b> 取り出し: <b>小</b> (存在量やや少、露出量大)	水没: <b>小</b> 取り出し: <b>小</b> (存在量多い、露出量少)

(注)デブリ取り出し時臨界管理の相対的重要度

元の燃料の形状が維持され相応の燃料デブリ量の存在が想定される場合が臨界管理上重要であるので、これを”大”とした上で、相対的に重要度を示している。

## 2.1 臨界評価手法の確立 (1) 臨界シナリオの策定 (ii) 統計的手法を取り入れた臨界評価

### [目的]

- 評価条件の厳しいところ取りではなく、分布を仮定した臨界評価

### [実施内容]

- デブリ性状などのパラメータを確率変数として取り扱い、未臨界である度合い(中性子増倍率)を推定
- 統計的臨界評価の考え方・解析方法を策定
  - ・ 確率変数として取り扱うパラメータ
    - ┌ デブリ粒径、空隙率、デブリ体積占有率、
    - └ デブリ組成(構造材等の混合割合)、Gd帯同割合
  - ・ ケースの設定

1号機PCV体系(炉内状況把握等の結果を反映)

### [成果]

- 統計的臨界評価結果を用いた現状推定方法を検討
  - ・ 1号機のガス管理システムの放射能濃度比を用いた中性子増倍率推定結果を踏まえ、ベイズ推定により金属成分混入割合を推定
- デブリ性状や観測値を取り入れた評価方法を構築し、現在得られているデブリ性状の推定値や中性子増倍率に整合する統計的評価を実施した結果、十分未臨界であることが示唆された

### [実用化に向けた課題]

新規知見を取り入れ信頼性を向上する方法の検討。

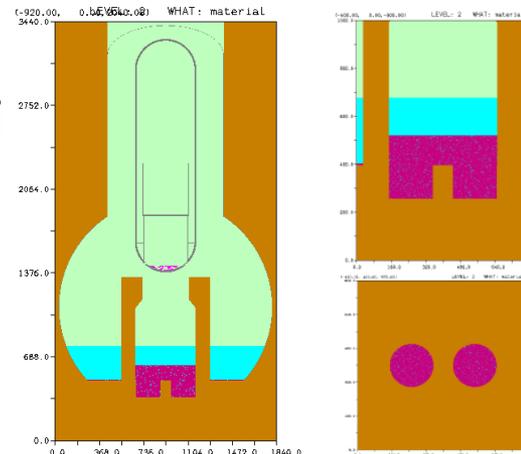


図1 解析体系(左:全体、右ペDESTAL床)

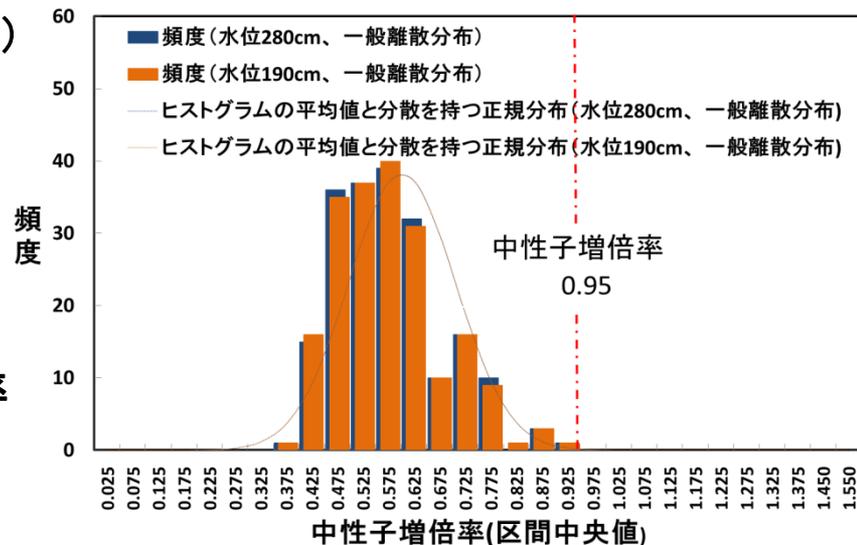


図2 水位変化前後の中性子増倍率分布の比較

## 2.1 臨界評価手法の確立 (1)臨界シナリオの策定 (iii)燃料デブリ取り出し方法検討を反映した臨界評価

**[目的]** デブリ取り出し方法ごとに臨界評価を実施、安全要求に反映

**[成果]** **ボーリング加工**： 取り出し1回あたりに過剰な反応度が  
添加されないよう取り出し量制限を検討

評価条件の見直しによる1回の取り出し量制約の緩和  
可能性を検討

- ・濃縮度：5wt% (ペレット最高) → 4wt% (集合体平均最高)  
(現実的条件の取り込み)
- ・添加反応度：0.1% Δk/k以下 → 0.5% Δk/k以下



(即発臨界にならない範囲で条件緩和)

1回の取り出し量を一辺12cm以下から16cm以下へ緩和可能

**レーザー加工**： 最新知見を調査し、加工速度が遅く、臨界量に到達しにくい。

**プラズマ加工**： デブリ巻き上がり時最小臨界重量評価により、臨界リスクは小と判断。

表1 デブリ細粉巻き上がりの最短臨界到達時間

加工方法(*) (加工速度)	1 集合体最小燃焼度組成 (最小臨界量46kg)	炉心平均燃焼度組成 (最小臨界量109kg)
レーザー加工 (330g/min)	2時間19分	5時間30分
プラズマ加工 (850g/min)	54分	2時間8分

(この他にウォータージェット、超音波ドリル等の加工方法があるが加工速度が遅いため  
レーザー加工、プラズマ加工を代表として記載)

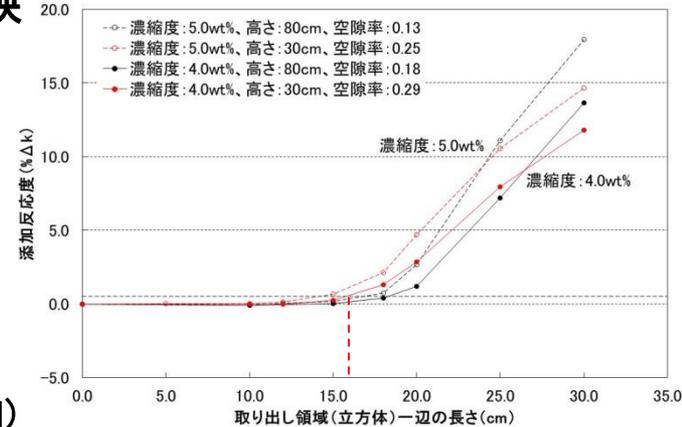
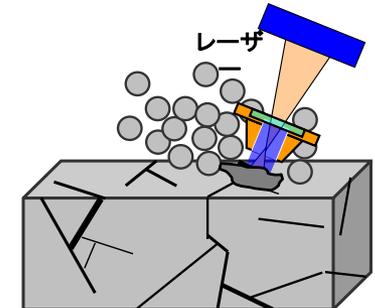


図1 1回の取り出し量と添加反応度の関係

加工による形状変化、微粒子状  
デブリの巻き上がり



**[実用化に向けた課題]** ・取り出し工法毎の要求事項を取り出し工法検討PJ要求とのすり合わせ

## 2.1 臨界評価手法の確立 (2)臨界時挙動評価

### (i)評価事象の選定

#### [評価の事例]

万一臨界になった場合の対策を検討するため、保守的な条件を仮定した場合の影響を評価

#### [想定事象]

#### ・デブリ取り出し時の代表事象として、加工に伴う亀裂発生・臨界発生

RPV下部に堆積した燃料デブリは塊状に固化しているものとする(13 t)。燃料デブリは冠水しているものとする。燃料デブリに対して切削する加工を行う。切削箇所を中心として燃料デブリ全体に瞬時に亀裂が入るものとする。亀裂の体積は燃料デブリの1%程度とする。水が亀裂に浸入して、最適減速状態になり、燃料デブリ全量が臨界になるものとする。臨界超過反応度は0.1%dk程度となる。(図1 臨界発生モデル)

#### ・臨界検知： 取り出し位置近傍の中性子検出器

臨界によって発生する中性子をデブリから数10cm以内(暫定)に設置された中性子検出器(臨界近接監視手法)が瞬時に検知する。中性子計数率が初期値の1000倍に到達した時点で臨界と判定する。(図2 臨界検知モデル)

#### ・臨界終息： 緊急ホウ酸水注入

臨界検知後に五ホウ酸ナトリウム水の注入開始する。10分後に五ホウ酸ナトリウム水がデブリに到達して、負の反応度効果が顕れはじめ、やがて臨界事象は終息する。(図3 臨界停止モデル)

#### ・被ばく評価： FPガス放出を想定した被ばく量評価

臨界終息までに発生した核分裂生成物のうち、FPガスがPCVガス管理システムの排気によって建屋外に放出される。放出されたFPガス雲が、屋外作業員および敷地境界上の公衆に及ぼす内部および外部被ばく影響を評価。FPガスの一部はセルからオペフロに漏れて、オペフロ作業員への被ばく要因となる。臨界検知後1時間で作業員の避難は完了して、被ばく事象は終息する。(図4 臨界による被ばくのモデル)

デブリを切削する加工装置 (候補)

- ・ディスクカッタ
- ・ワイヤーソー
- ・レーザ
- ・油圧カッタ
- ・ガス
- ・プラズマアーク
- ・プラズマジェット
- ・アブレイシブ・ウォーター・ジェット(AWJ)

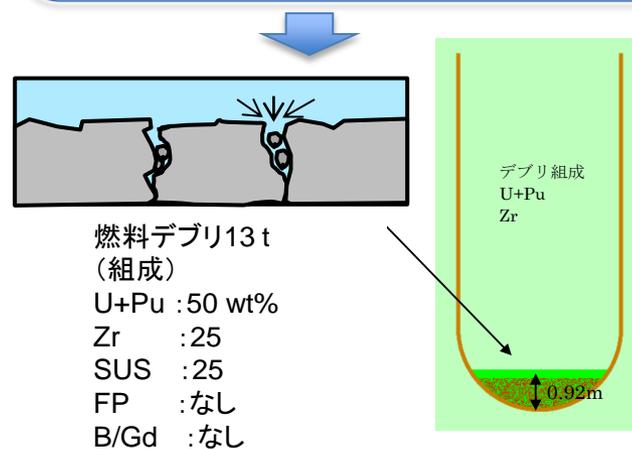


図2.1-1 臨界発生モデル

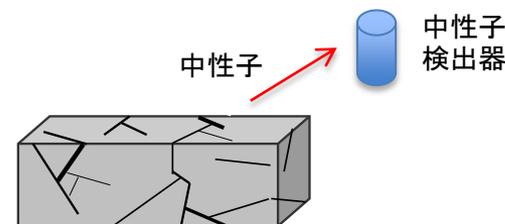


図2.1-2 再臨界検知モデル

## 2.1 臨界評価手法の確立 (2)臨界時挙動評価 (ii) デブリ取り出し時挙動評価

### [解析条件]

- ・臨界になる燃料デブリ 13 t (U+Pu/Zr/SUS含む、FP/B/Gdなし)
- ・瞬時の投入反応度 0.1%dk (初期状態は臨界と仮定)
- ・中性子検知の遅れ時間なし
- ・中性子検出器の臨界判定基準 初期値の1000倍
- ・五ホウ酸ナトリウム注入遅れ 10分
- ・PCVで生じたFPガスのうちフィルタを通過した希ガスが建屋外へ排出されると仮定
- ・PCVガス管理システムの排気 3000 m<sup>3</sup>/h
- ・セルからオペフロへの漏洩率 1%

### [成果]

- ・総核分裂数は～10<sup>18</sup>個程度
- ・敷地境界上の公衆被ばく線量は自主的管理目標(0.1mSv)未満
- ・屋外作業員の被ばく線量は平常時基準20mSv未満
- ・オペフロ作業員の被ばく線量はさらに2桁小さい

### [実用化に向けた課題]

- ・万一臨界になったとしても被ばく影響を最小限に抑えるための設備要求を提示
- ・デブリ取り出しの他、PCV/RPV内部調査等の各工程で想定される事象評価の拡充
- ・デブリの不確かさを統計的に評価するためのデータ拡充

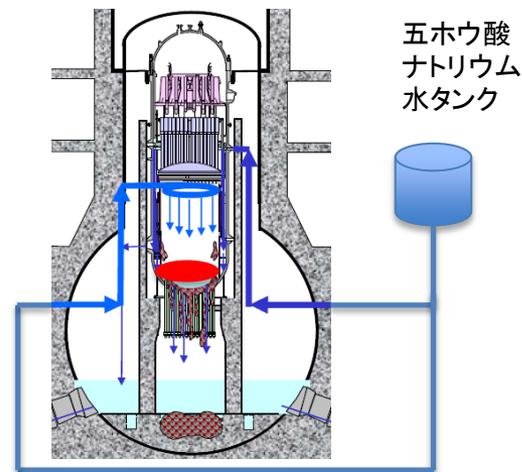


図3 臨界停止のモデル

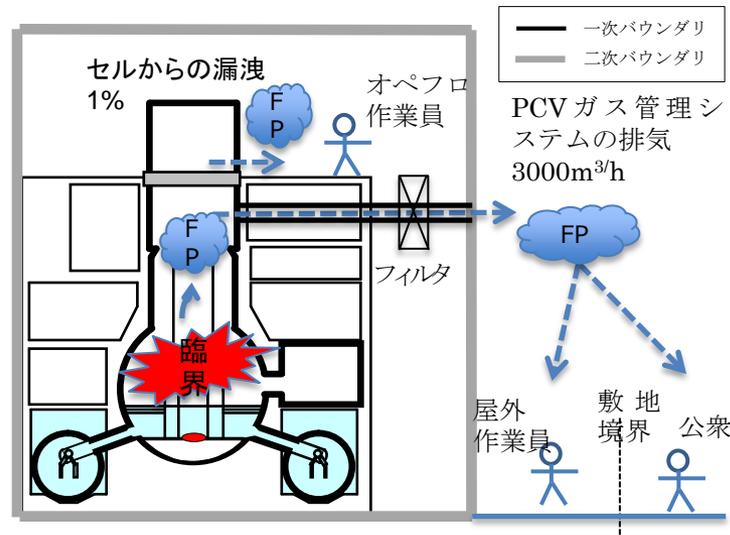


図4 臨界による被ばくのモデル

## 2.1 臨界評価手法の確立 (3)臨界管理手法の策定

### [目的]

- ・燃料デブリ取り出し方法確定に向けて、臨界管理目標を達成する臨界管理方法の策定
- ・デブリ取り出し工法との整合性確認、管理方法の手順化

### [成果]

- ・デブリ取り出し時管理方法の策定
  - 臨界管理面から取り出し設備・工法に向けた要求提示、摺合せ
    - ・設備要求 臨界近接監視システム用検出器設置、中性子吸収材投入設備(溶解性、非溶解性)
    - ・1日の取り出しスケジュールとの整合性: 臨界近接監視方法(時間短縮)
    - ・加工方法ごとの管理法(表1参照)
      - 臨界影響が無視し得る場合には管理不要
      - 変化が段階的・緩慢な場合には臨界近接監視で対応
      - 上記が満足できない場合に中性子吸収材適用等の対策を検討
- ・サブシナリオ(取り出し位置以外の対策)検討

表1 デブリ加工方法毎の管理方法

### ・異常事象の抽出・対策検討

分類	加工方法	臨界管理	課題
拾い上げ	拾い上げ	特段の管理 不要	機材落下など想定外事象対応は別途考慮 (以下、共通)
吸引	吸引		
表面切削	レーザーカウジング	臨界近接 監視	切削粉の流出・蓄積対策 (以下、共通)
穿孔	コアホーリング		
切断	ディスクカッター、AWJ、 油圧カッター等		
粉砕	チゼル	課題	変化が瞬時に生じるため、中性子吸収材の適用等の手段を検討

### [実用化に向けた課題]

- ・中性子吸収材適用方法のオプションの課題及び得失を整理

## 2.2 臨界管理技術の開発 (1)臨界近接監視手法

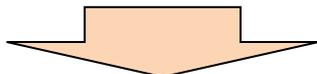
### [目的]

### 現状

PCVガス管理システム付帯の核種分析装置  
→未臨界状態の維持を監視中(全体監視)

### デブリ取り出し時

燃料デブリの配置, 周辺の減速状態が変化  
→未臨界度変化(臨界近接)が生じる可能性



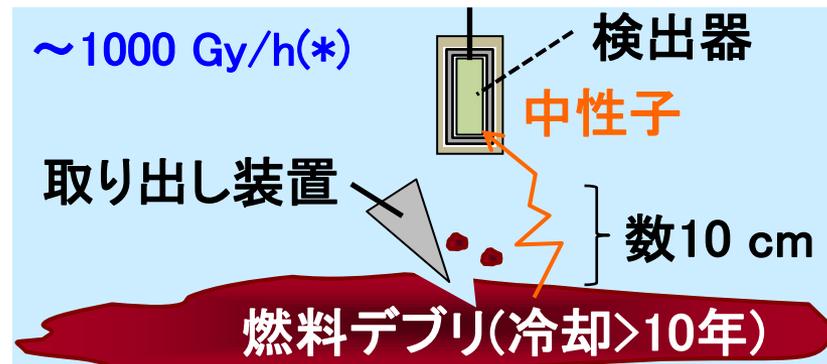
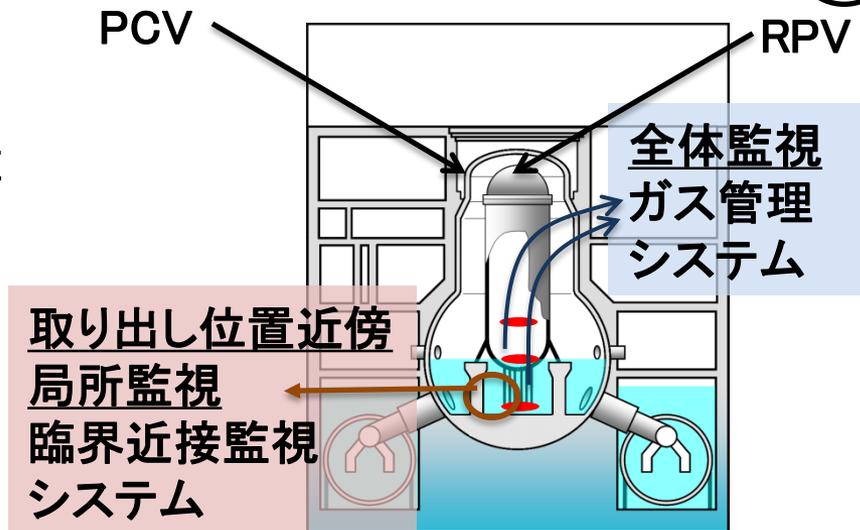
デブリ取り出し場所での臨界近接監視の併用

### 臨界近接監視システムの開発

- ・最大1000Gy/h下に適用可(\*)
- ・現実的な測定時間を実現する高感度設計
- ・移動/保持が可能な軽量化設計

### 検討した監視手法

手法		適用方法
炉雑音法	ファインマンα法	主たる手段
	ASC法(AMETEK社手法) Y <sup>∞</sup> 相関式法	ファインマンα法の高度化手法
中性子源増倍法		取り出し作業中の連続監視
仮想中性子捕獲法		深い未臨界状態を含む参考情報として活用



- シンプルな計装構成・信号処理で未臨界度測定が可能なファインマン-α法を主たる手法に選定
- 各手法の特徴に応じて組み合わせ検討(測定系統は同じであり、信号処理のみ異なるため組み合わせ適用も可能)

\*PCV内部調査結果を踏まえ低く見直せる見込みあり

## 2.2 臨界管理技術の開発 (1)臨界近接監視手法 (iii) 未臨界測定性能試験(KUCA)

### [目的]

- ・試作したシステムの動作検証
- ・臨界近接監視手法の成立性確認

### [試験方法]

- ・KUCAにおいて未臨界体系を構築、中性子信号(約30分間の測定)をファインマン $\alpha$ 法で分析して、未臨界度を推定し、参照値(核計算解析結果)と比較評価

### [成果]

- ・臨界近傍(中性子増倍率 $k_{eff} \approx 0.95$ )では約1%、深い未臨界度( $k_{eff} \approx 0.7$ )では約10%の推定誤差で測定することができた。  
⇒現場で想定する時間内で実現可能な見通しを得た。
- ・水対燃料比(中性子スペクトル)の不確かさによる推定誤差への影響は小さいことを確認
- ・中性子源種類・配置によって推定誤差に影響が生じた。
- ・上記精度で測定可能となる燃料デブリと中性子検出器の距離は、  
水中:約20cm、気中:約35~60cm、部分気中:約25cm  
⇒デブリ取り出し時の具体的適用方法の検討に活用

### [実用化に向けた課題]

- ・今回の試験データに基づき、1F現場で必要とされる測定時間、取り出し装置への要求、具体的な適用方法を検討

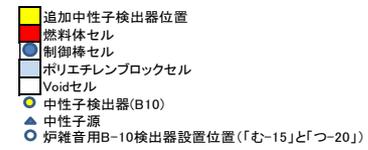
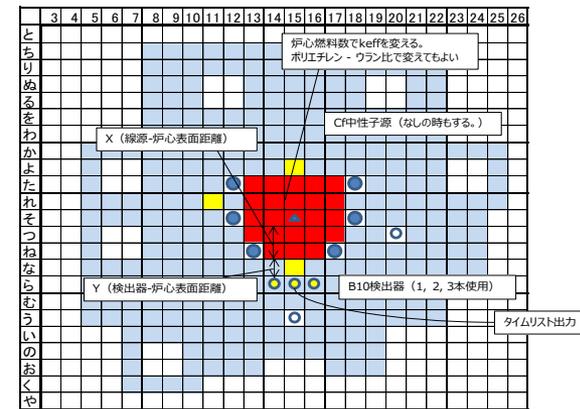


図1 KUCA実験イメージ

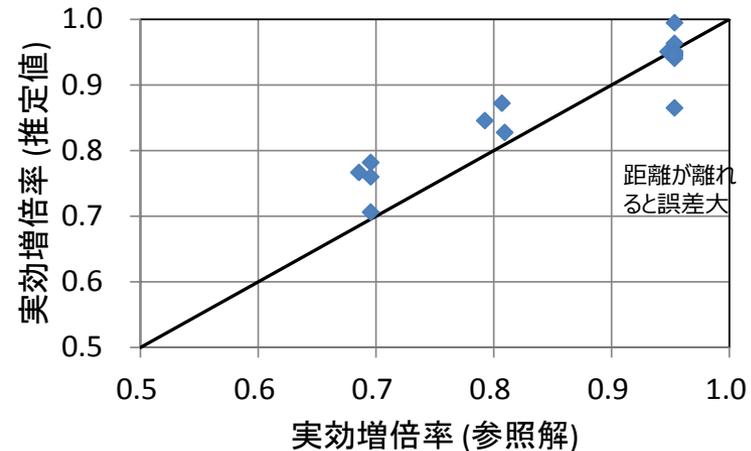


図2 未臨界度測定結果の参照解との比較

## 2.2 臨界管理技術の開発 (1)臨界近接監視手法 (iv)高放射線下動作性確認試験～検出器仕様検討

### [目的]

- 燃料由来のガンマ線高線量率環境における中性子検出器の動作性確認

### [試験方法]

- 使用済燃料保管設備(日本核燃料開発株式会社(NFD))
- B-10比例計数管と使用済燃料集合体との距離を変化させ、中性子計数率の変化を測定(試験はH28年度実施)

### [成果]

- 燃料由来のガンマ線環境下でも適切な遮へいを講じることで、中性子検出感度

高感度B-10 : 2 cps/nv, 小型B-10 : 0.2 cps/nv  
達成の見通しを得た。

- 1000Gy/h(\*)環境適用時の遮へい要求(鉛)は、下記の通り

高感度B-10 : 2 cm, 小型B-10 : 1cm

- 試験結果に基づき検出器仕様を検討

サイズ・重量: 350mmX310mmX130mm、150Kg

### [実用化に向けた課題]

- 高感度検出器について、遮へい体込の中性子検出器  
サイズ・重量が当初想定より増大、かつデブリに近接させて設置が必要と判明したため、デブリ取り出し工法検討Pjとの調整実施

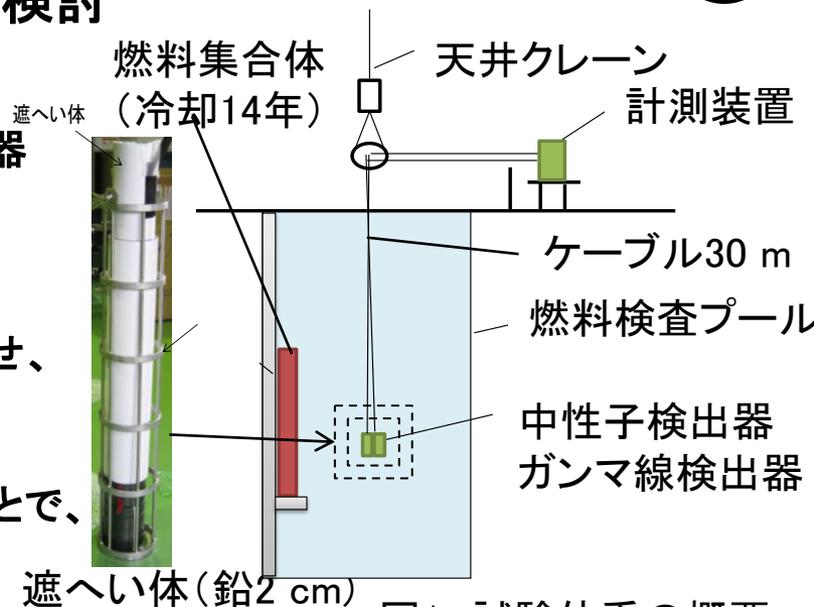


図1 試験体系の概要

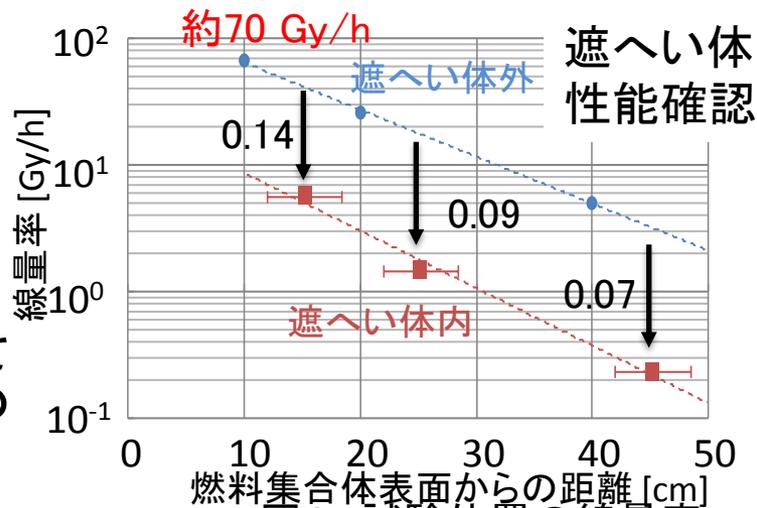


図2 試験位置の線量率

## 2.2 臨界管理技術の開発 (1)臨界近接監視手法 (v)デブリ取り出し時の適用方法

### [目的]

- ・デブリ取り出し作業と整合する臨界近接監視の手順の立案

### [課題]

- ・炉雑音法(ファインマンα法)の未臨界度測定には30分以上の時間が必要  
未臨界度測定の頻度は、1日の取り出し作業量に影響する。  
⇒ 炉雑音法と中性子源増倍法の組み合わせにより、短時間で監視が行える手法を検討(図1、図2)

### [成果]

- ・1回のデブリ加工・取り出し毎の測定時間を数分に抑えることで、取り出しスキームへの影響を排除できる見通しを得た。

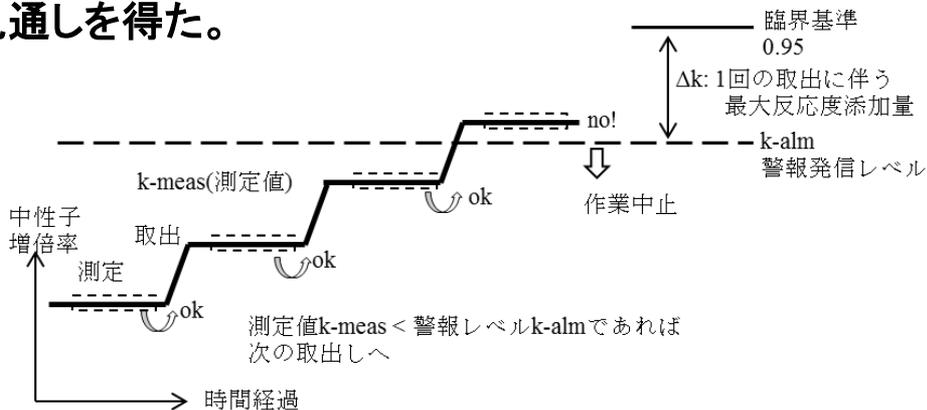


図1 臨界近接監視による臨界防止のイメージ

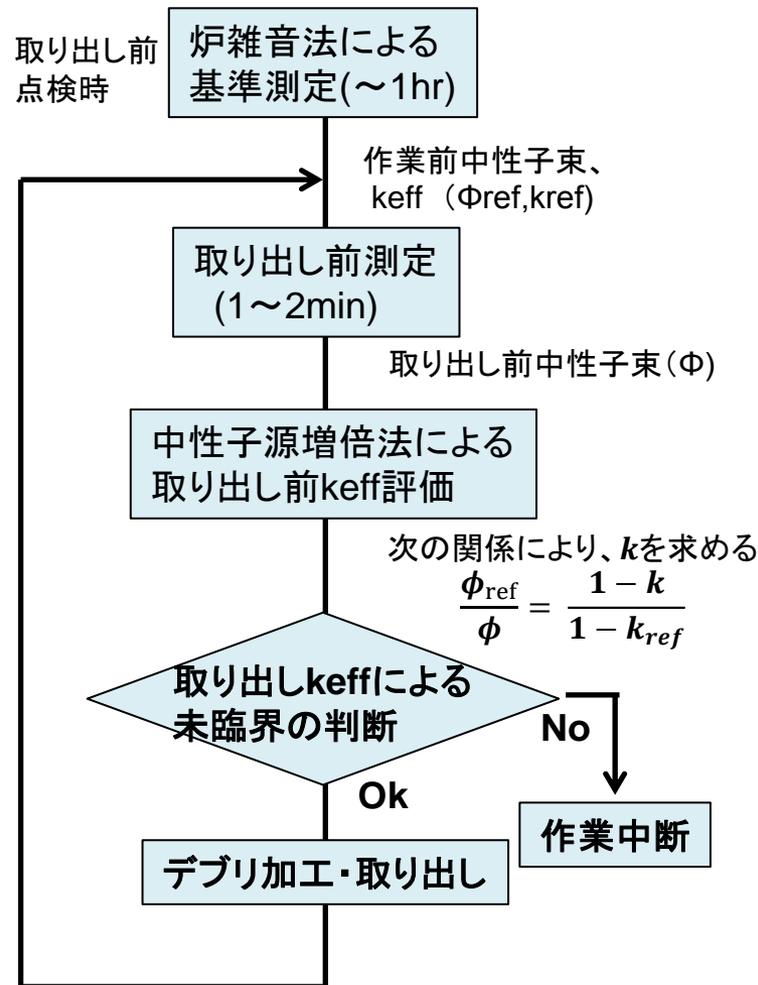


図2 臨界近接監視のフロー案

## 2.2 臨界管理技術の開発 (1)臨界近接監視手法

### (vi)成立性見通しと課題

#### [成果]

- ・B-10検出器の燃料由来ガンマ線環境下での中性子計測性能を確認。
  - ・ $\sim 100$  Gy/hのガンマ線量率環境において中性子検出器の遮へいは不要。
    - ・ $\sim 1000$  Gy/h(\*)までなら2cm(高感度B-10)  $\sim$  1cm(小型B-10)厚さの鉛遮へいが必要。
- ・高感度B-10検出器を用いた試作システムによる機能試験において、オフラインによる未臨界度測定が現実的な時間( $\sim 1$ 時間)で可能になった。
- ・未臨界度測定誤差に影響を及ぼす因子(未臨界度、中性子スペクトル、中性子源種類・配置、中性子検出器配置、水中/気中)について、設計の基礎となる感度データが得られ、未臨界度( $0.7 < k < 0.95$ )の範囲で測定可能となる条件が見いだされた。
- ・水中でデブリから20cm以内に検出器を配置することが必要。  
=> ファインマン $\alpha$ 法に基づき開発を進めている臨界近接監視手法について基本的な成立見通しを得た。

#### [実用化に向けた課題]

- ・未臨界度測定誤差への影響因子の重畳を検討し、その効果を確認するための追加試験条件を検討する。
- ・採取したデータに基づき、システム仕様・検出器配置案をまとめ、デブリ取り出しシステム側と協議して、装置概念を確立する。
- ・測定誤差を低減するため、手法改良の検討(AMETEK手法)。
- ・今回、KUCAで試験した体系は、比較的小型で単純な体系であるため、実際のデブリを模擬した複雑かつ大型の体系での確認試験を行うことが望ましい。
- ・他Pjで検討されている小型検出器を候補として検討する

## 2.2 臨界管理技術の開発 (1)臨界近接監視手法

### (v)仮想中性子捕獲法による臨界近接検知システムの成立性評価

#### システム設計

**[目的]** 中性子源増倍法および仮想中性子捕獲法に適用可能な装置を設計

**[方法]** 高線量率下での動作確認試験(昨年実施)に基づき1F環境(1000 Sv/h)向け遮へい体構造を検討

**[成果]** 遮へい体を含む検出部は5 kg/台以下の見通し

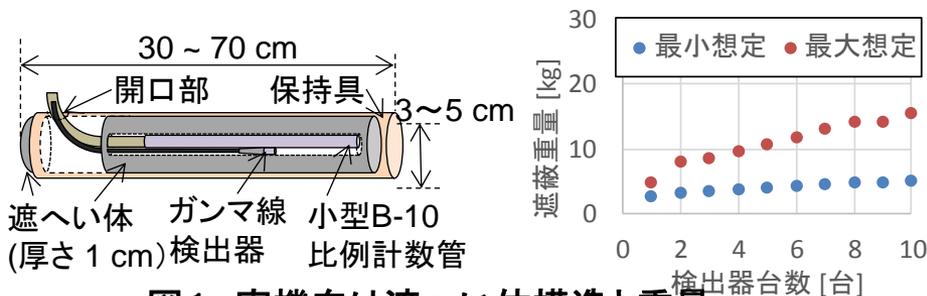


図1 実機向け遮へい体構造と重量

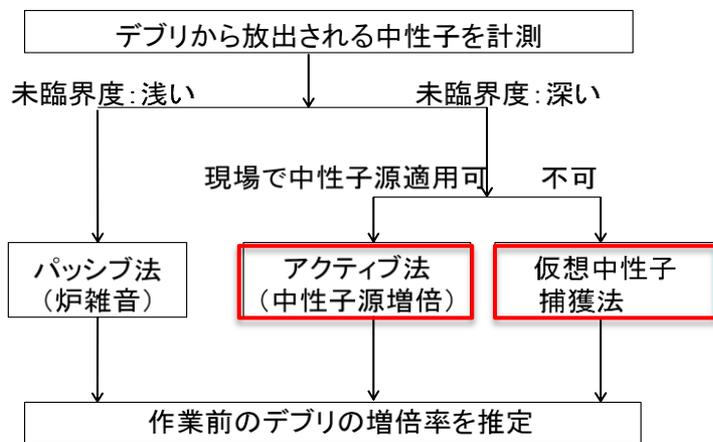


図2 臨界近接監視手法のフローチャート

#### 成立性評価

**[目的]** 試作したシステムの動作検証

・臨界近接監視手法を適用したシステムの成立性評価

**[方法]** 未臨界度の異なる炉心を模擬し試作システムで測定

・仮想中性子捕獲法・中性子源増倍法で未臨界度を評価

・計測時間と統計誤差の関係を評価

**[成果]** 仮想中性子捕獲法は未臨界度が深いケースで最大差4.3%dk

・統計誤差が1%dk以下相当となる計測時間は最大15秒 → 実用的な時間内で測定できる見込みを得た。

**[実用化に向けた課題]**

・中性子源増倍法に対する中性子源位置依存性の確認

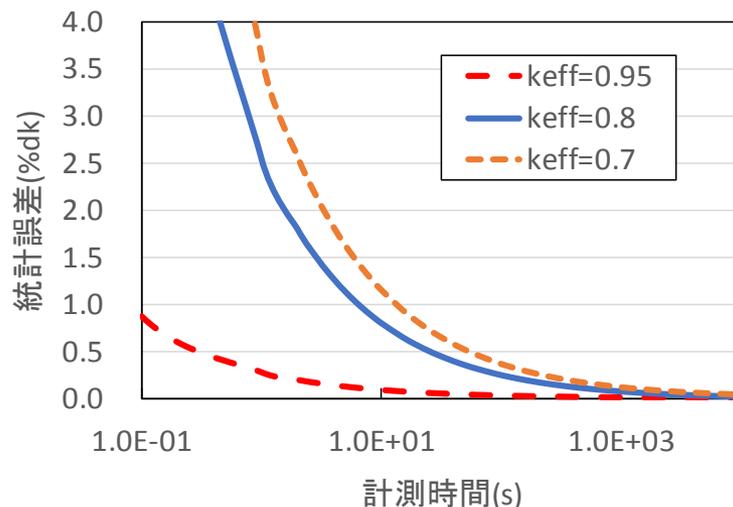


図3 計測時間と統計誤差の関係

## 2.2 臨界管理技術の開発(2)再臨界検知技術の開発

### (i) 概要・目的

[ガスサンプリング系システム(PCV排気核種分析モニタ)を用いた臨界管理]

[目的] PCV水張りから燃料デブリ取り出しまでにおいて、再臨界を早期に検知する。

第2層(異常検知・影響緩和)に適用

【現状】 Xe-135 (250keV) の測定による連続監視(判断基準: 1Bq/cm<sup>3</sup>)

【提案】 Kr-87, Kr-88を測定できるよう改良し、Xe-135の測定と併用して

(1) 系全体の未臨界度評価と、(2) 早期臨界近接監視を併用して監視

・自発核分裂と誘起核分裂の収率差を利用し  
中性子源増倍係数を推定、現状: 0.5~0.7

(1号機データ分析結果)

・Xe135より早く応答する Kr88を検知し、  
短時間で臨界近接を検知

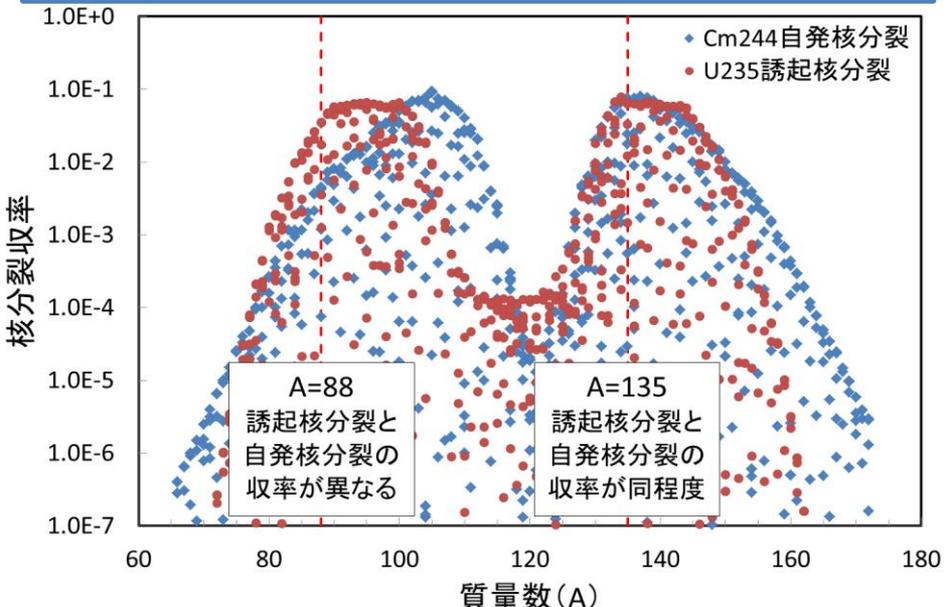
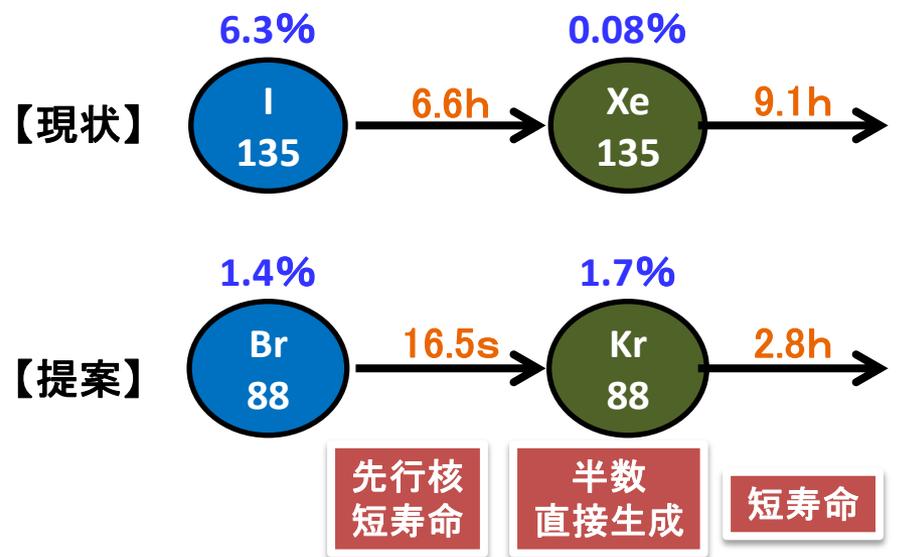


図1 自発核分裂と誘起核分裂の収率



青字: 核分裂収率, 橙字: 半減期

図2 監視対象核種の挙動

## 2.2 臨界管理技術の開発 (2)再臨界検知技術 (ii) これまでの成果と課題

No.	課題	対応	状況
1	対象核種の測定エネルギーピークの選定	1号機現地試験	済
2	早期検知を可能とするシステム仕様の決定	検出器・チャンバ構成の検討	済
3	現実的な検知時間の推定、実機適用基準	ガス挙動解析、部分気中時の検知性	済
4	ガス放射能濃度校正技術(初期、保守)の開発	海外技術の活用	検討中*
5	取り出し工法に対応したシステム最適設計	工法に応じた流量、流路、検出器構成	今後

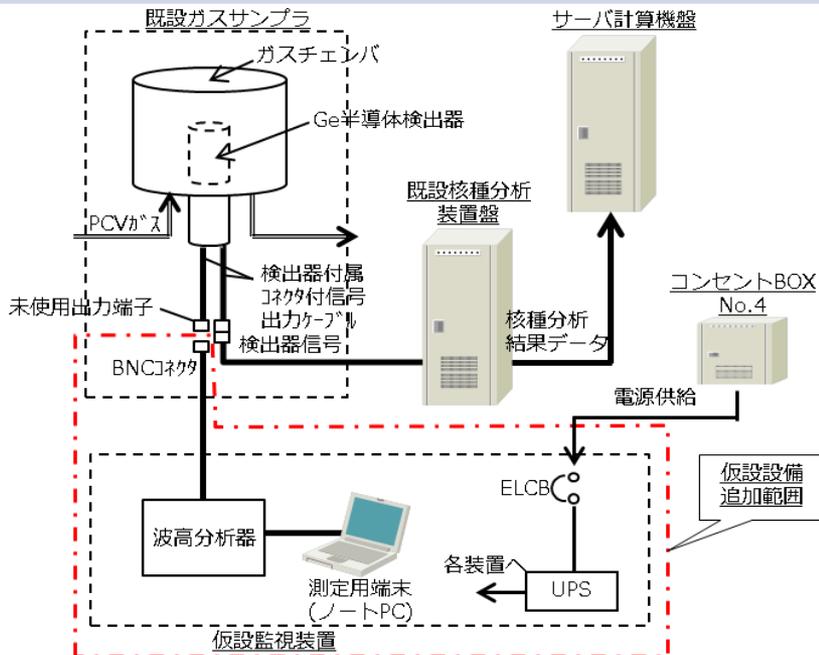
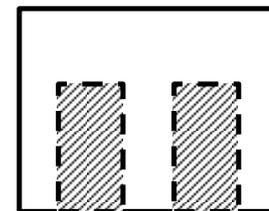
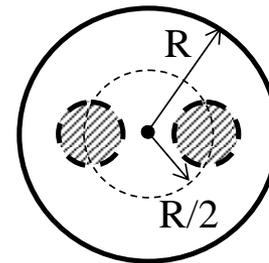


図1 1号機ガスサンプリング系現地試験システム

\*:H29年度は机上検討、試験計画を完了



- ・40 L円筒形チェンバ  
H : 32.5 cm  
R : 21.0 cm
- ・チェンバ周囲を鉛遮へい
- ・Ge検出器2台を  
チェンバ内に配置

図2 高度化システムのチェンバ形状(案)

## 2.2 臨界管理技術の開発 (2)再臨界検知技術

### (iii)対象核種の測定エネルギーピークの選定

#### [方法]

・1号機実機試験を実施

表1 対象核種の算出濃度

核種	エネルギー (keV)	算出濃度 (Bq/cm <sup>3</sup> )
Xe-135	249.8	$(1.16 \pm 0.01) \times 10^{-3}$
Kr-87	402.6	$(7.72 \pm 0.70) \times 10^{-5}$
	2554.8	$(8.39 \pm 1.54) \times 10^{-5}$
Kr-88	196.3	$(2.06 \pm 0.11) \times 10^{-4}$
	2392.1	$(1.69 \pm 0.06) \times 10^{-4}$

#### [成果]

- ・Kr-88は高エネルギー側の測定が適切と判断
- ・測定対象エネルギーにより算出濃度に差有
- ・A系とB系とで放射能濃度に差異有  
⇒校正技術検討の必要性

#### [実用化に向けた課題]

- ・校正技術の確立(海外活用)
- ・システム仕様の決定

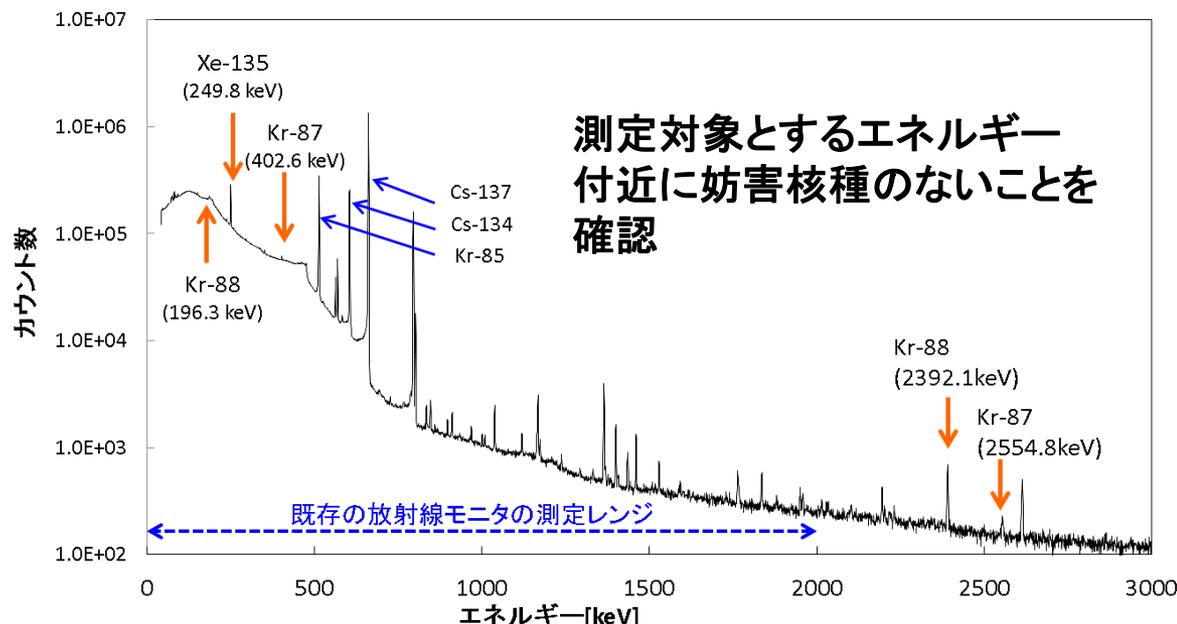


図 1号機のガンマ線スペクトル測定結果(積算)

## 2.2 (2)再臨界検知技術の開発 [現実的な検知時間の推定、実機適用基準]

### [方法]

#### (1) 希ガス挙動を取り込んだ臨界時挙動解析による検知時間推定

- ・ 放射線モニタ位置でのKr-88の濃度上昇挙動を評価
- ・ 実測放射能濃度との合わせ込み
- ・ 臨界時挙動評価に伝達関数モデルとして組み込み

#### (2) 気中取り出し時における準定常時の未臨界度把握性の検討

### [成果]

- (1) 従来想定(3時間)より早く(約0.5時間)検知できる見通し
  - (2) 準定常時の系全体の未臨界度を1時間で推定できる見通し
- ⇒ 過渡時の臨界近接早期検知、系全体の未臨界度把握

### [実用化に向けた課題]

- ・ 取り出し位置以外を含めた監視技術の具体化検討

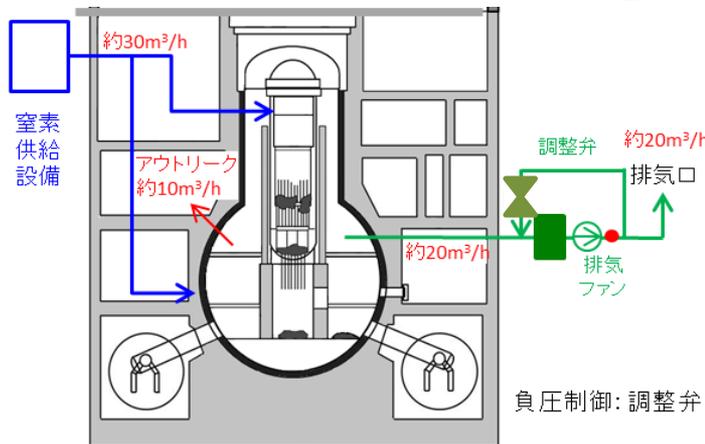


図1 現状の系統構成

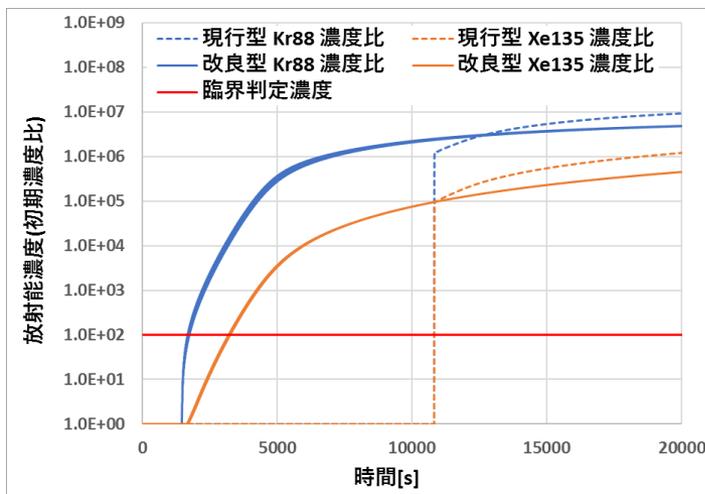
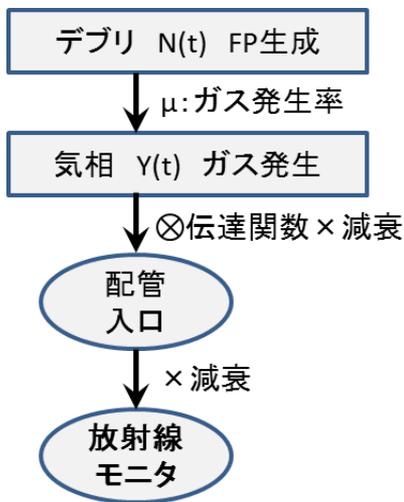


図3 臨界時の放射能濃度変化 (CRD付着デブリ落下想定)

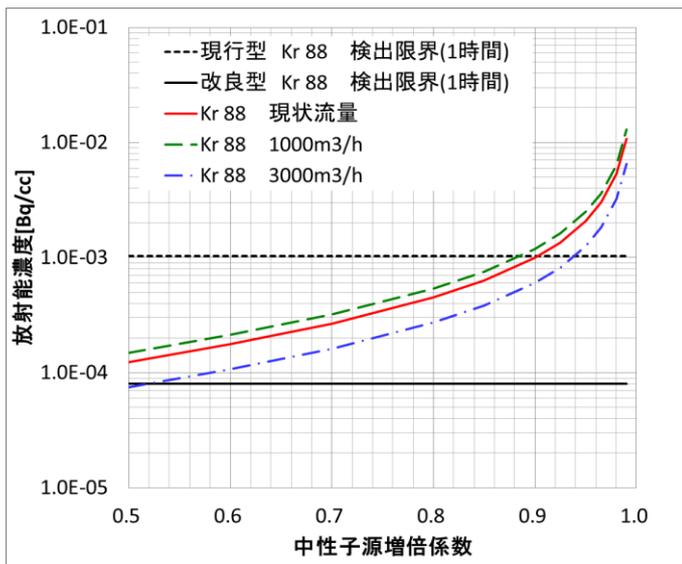


図4 部分気中取り出し時の未臨界度推定への適用性

図2 臨界時挙動解析への希ガス挙動の取り込み

## 2.2 臨界管理技術の開発 (2)再臨界検知技術 (iv) PCVガス放射線モニタの校正技術

### [校正のための技術課題]

- (1) 放射性希ガスの生成方法及び精製方法
- (2) 放射性希ガス組成の決定方法
- (3) 放射性希ガスの取り扱い方法
- (4) 校正の為のガス回路\*設計と校正手順
- (5) トレーサビリティと不確かさの明確化
- (6) 規制に対する対応

### [本年度連携先:英国物理学研究所(NPL)]

- ・計測学と物質科学で国際的に評価されている中核的研究機関
- ・英国の計量標準の開発と保守を担当
- ・産業、医療における計測に対し科学的支援サービスも実施

### [本年度成果(机上検討)]

NPL所有濃縮ウランを熱中性子パイプ内で照射し、放射性希ガスを生成する方法

- (1) 微粒子や揮発性物質の除去等、Kr-87,88の精製方法
- (2) ガス比例計数管を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリーによりKr-87,88の放射能濃度を定量的に決定する方法
- (3) ガス回路\*と校正手順の検討
- (4) 期待される精度の評価
- (5) 規制上の問題の確認

### [実用化に向けた課題]

試校正の実施による不確かさの定量化

**IRI** (\*ガス回路:測定対象放射性希ガスを掃気用ガスで循環し放射能を測定する回路)



図1 英国物理学研究所研究棟



図2 加速器実験施設



図3 熱中性子パイプ

## 2.2 臨界管理技術の開発 (3)臨界防止技術 ①非溶解性中性子吸収材

### (i) 概要

#### 【候補材の概念】

- ・溶解性中性子吸収材の代替手段として開発。デブリ取り出し時に直接散布して使用
- ・種々の燃料デブリを想定し3つの形態のB又はGdを高濃度に含有した候補材

形態	期待する特性			候補材
	デブリのすき間や表面亀裂への侵入性	取り出しに伴うデブリ形状変化への追従性	傾いたデブリ表面への付着性	
固体	○	○	—	B <sub>4</sub> C金属焼結材
				B・Gd入ガラス材
				Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 粒子
液体→固体 (固化材)	○	—	○	セメント/Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 造粒粉材
				水ガラス/Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 造粒粉材
				水中硬化樹脂/Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 粉末材
粘性体	○	○	○	B <sub>4</sub> Cゲル材
				スラリー-/Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 粒子



B<sub>4</sub>C金属  
焼結材

B・Gd入  
ガラス材

Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子



水ガラス/Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>造粒粉材  
(硬化後)

核特性確認、長期照射試験、施工性試験の結果から候補材を平成29年度成果として選定(黄色マーキング)

## 2.2 臨界管理技術の開発 (3)臨界防止技術 ①非溶解性中性子吸収材候補材選定の流れ

### (iii) 核特性の確認

#### [KUCAでのサンプル反応度価値測定]

- 候補材選定の最終フェーズ。  
耐放射線性試験などを基に選定した5種類の候補材を対象
- 核的特性(中性子吸収能力)の確認、解析手法の検証に資すること、  
許認可向けデータ取得を目的
- 中性子吸収材のサンプル反応度価値測定

基礎物性  
確認

耐放射線  
性能試験

核的特性  
確認試験

表1 反応度価値の測定値と解析値の比較

中性子吸収材	測定値 $\pm 1\sigma$ ( $\% \Delta k/k$ )	C/E
B <sub>4</sub> C金属焼結材	0.598 $\pm$ 0.052	1.19
B・Gd入りガラス材	0.656 $\pm$ 0.048	1.20
Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 粒子	0.536 $\pm$ 0.036	1.28
水ガラス	0.463 $\pm$ 0.028	1.15
水中硬化樹脂	0.479 $\pm$ 0.031	1.05

中性子スペクトル最適減速(H/U235=107)

#### [成果]

- Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子を除き、測定値と解析値は  
測定誤差3 $\sigma$ の範囲で一致  
→ 核的特性、及び解析精度が概ね  
良好であることを確認  
Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子は粒径が大きく(数百 $\mu$ m)  
容器内の配置を厳密に模擬できないことが  
原因と推定。
- 中性子スペクトルを変えたケース  
(減速過多H/U235=322)でも同様の傾向

#### [実用化に向けた課題]

- 中性子吸収材の装荷量、装荷位置などを変化させた測定を検討、測定の不確定さを低減させる再現試験等による信頼性の向上

(iv) 長期照射試験

[長期照射試験]

- ・取り出し後工程での副次的影響(水素発生と腐食)の評価のためのデータ取得
- ・長期照射に供する候補材を選定し、QST高崎量子応用研究所にて長期照射試験実施

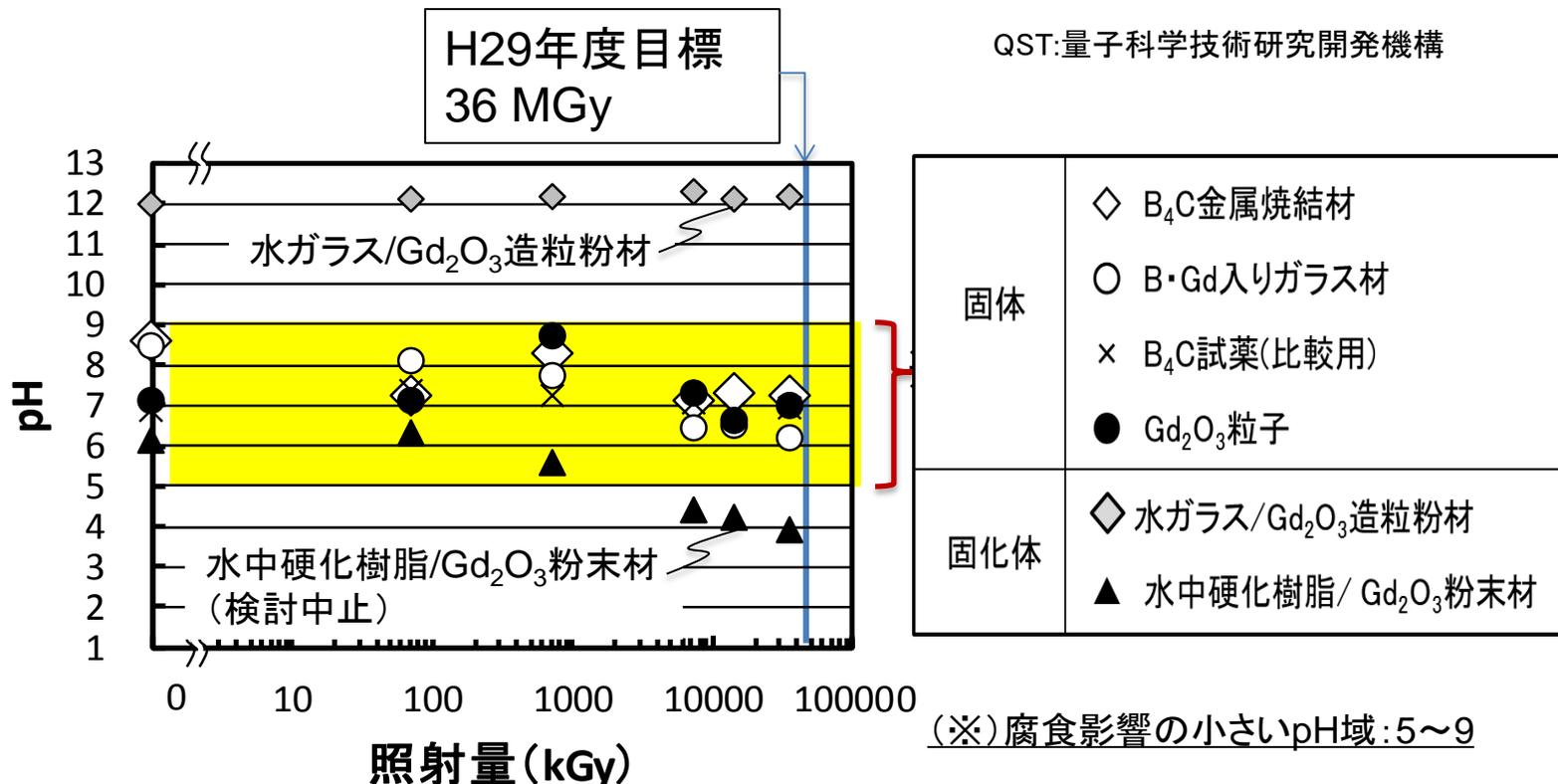


図1 長期照射に伴う溶出成分による腐食リスクの検討結果と計画(検討例)  
(ガンマ線照射材の80℃溶出試験後の試験液pH)

[成果]・炉内残留、収納缶保管を想定して候補材を選定した

[実用化に向けた課題]・データ数追加による信頼性向上

# 2.2 臨界管理技術の開発 (3)臨界防止技術 ①非溶解性中性子吸収材 (v) デブリ取り出し時の施工法

## [実施内容]

- ・デブリの凹凸面を想定した試験体(溶岩)に中性子吸収材を滴下して、拡がり、膜厚、付着重量、を測定し、付着性を評価した(水ガラス系および水中硬化樹脂系中性子吸収材)
  - ・平板、粒状溶岩(大きさ数cm程度)、板状溶岩、等について試験実施
- ※水中硬化樹脂は平板と板状溶岩のみ実施

## 【付着性基礎試験】

## [成果]

- ・デブリを模擬した板状溶岩と粒状溶岩に対する必要投入量を評価した。

## [成果の使用方法]

- ・非溶解性中性子吸収材の施工方法の検討
- ・最終的な候補材選定、デブリ取り出し設備要求、手順へ反映

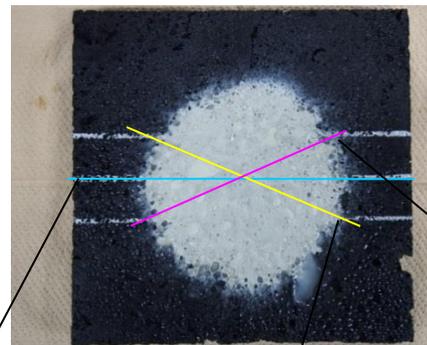
## [実用化に向けた課題]

- ・搬送性と施工性の組合せ試験
- ・試験データに基づく適用工法の検討
- ・取り出し工程への影響検討(加工性、視認性、水処理系への影響、装置構成)

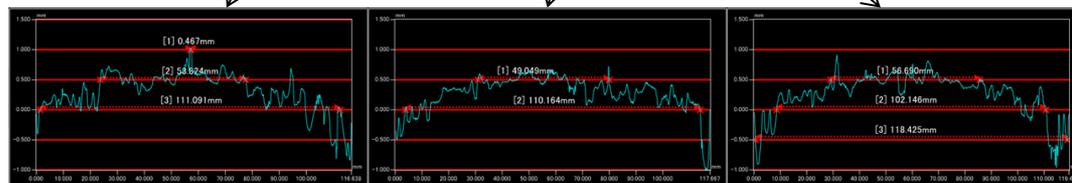


水中で流下し広がる中性子吸収材

板状溶岩



所定の膜厚(暫定1mm)で付着した面積の評価



板状溶岩に付着した中性子吸収材の断面形状 測定結果

(材料:水ガラスTX-10、粘度2000[mPa・s]、ノズル基板間距離56[mm]、水中環境、温度:20[°C])

水中で流下する中性子吸収材 (投入量1000[g])



粒状溶岩



粒状溶岩に付着した中性子吸収材の重量 測定結果

粘度 [mPa・s]	投入量 [g]	試験回数	重量増 [g]	重量増(平均) [g]
2000	1000	1	109.2	107.3
		2	105.4	
	100	1	19.5	21.5
		2	23.4	

## 2.2 臨界管理技術の開発 (3)臨界防止技術 ①非溶解性中性子吸収材 (v) デブリ取り出し時の施工法 防錆剤との共存性評価

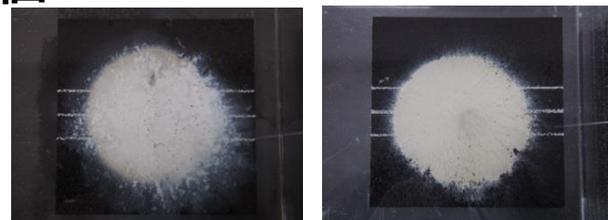
### [実施内容]

・平板、粒状溶岩、板状溶岩、について試験実施し、非溶解性中性子吸収材の固化特性や付着特性に防錆剤環境が及ぼす影響を評価した (水ガラス系中性子吸収材)

・防錆剤溶液の試験前後の分析変化を評価した  
【防錆剤の共存性影響試験】

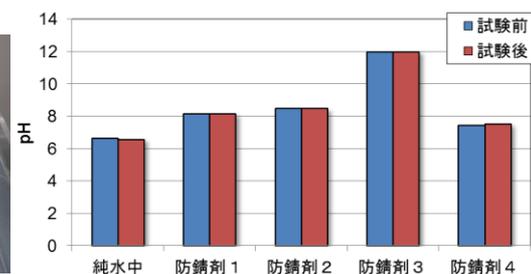
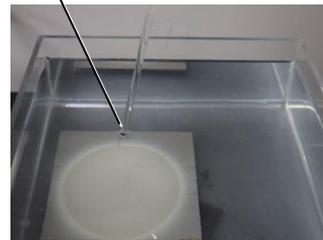
### [成果]

- ・非溶解性中性子吸収材の固化や付着特性に防錆剤環境が及ぼす影響を評価
- デブリを模擬した溶岩への固化特性や付着特性を確認
- 防錆剤1で反応物が生成(ボロン量に依存)
- ・防錆効果を発揮する溶液中の添加物成分の変化の有無を分析評価
- 有意な変化なし



溶岩に付着した中性子吸収材の外観写真(温度: 20[°C])  
(左:五ホウ酸ナトリウム(防錆剤1)、  
右:亜鉛/モリブデン酸ナトリウム混合リン酸塩(防錆剤3))

水質分析サンプリングの状況



試験前後のサンプル水分析結果(防錆剤の影響評価)

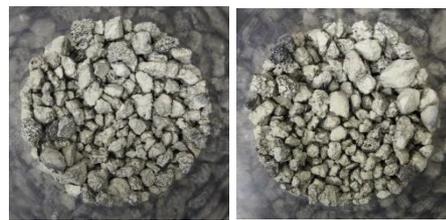
### [成果の使用法]

- ・非溶解性中性子吸収材の施工方法の検討
- ・最終的な候補材選定、  
デブリ取り出し設備要求、手順へ反映

### [実用化に向けた課題]

- ・搬送性と施工性の組合せ試験
- ・試験データに基づく適用工法の検討
- ・取り出し工程への影響検討

(加工性、視認性、水処理系への影響、装置構成)



粒状溶岩に付着した中性子吸収材の重量測定結果

粒状溶岩に付着した中性子吸収材重量測定結果

粘度 [mPa·s]	投入量 [g]	試験雰囲気	試験回数	重量増 [g]	重量増(平均) [g]
2000	1000	防錆剤 1	1	141.2	160.2
			2	179.1	
	1000	防錆剤 3	1	100.5	98.8
			2	97.0	
1000	水中	1	109.2	107.3	
		2	105.4		

## 2.2 臨界管理技術の開発 (3)臨界防止技術 ①非溶解性中性子吸収材

### (v) デブリ取り出し時の施工法

#### [施工性評価]

- ・候補材に対して施工性評価項目を整理し、固化体の付着性・搬送性をラボスケール試験により確認
- ・固体は、すき間浸透性提示のため量産可能な方法による所定形状製造性の基礎検討で顕著な問題がないことを確認

形態	候補材	デブリ混入性	デブリ付着性				搬送性
		すき間浸透	傾斜面被覆 平板	水平面被覆 平板	板状溶岩	粒状溶岩	
固体	B <sub>4</sub> C金属焼結材	○	/	/	/	/	/
	B, Gd入ガラス材	○	/	/	/	/	/
	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 粒子	○	/	/	/	/	/
液体→ 固体 (固化 体)	セメント/Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 造粒粉材	◎	◎	◎	※3	※3	※3
	水ガラス/ Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 造粒粉材	○	△	○	○	○	粘度管理でスク イーズポンプで 50m搬送可
	水中硬化樹脂/ Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 粉末材	○	○	○	水中施工時に収縮・浮き上がりを確認 (水中施工性に課題あり)		
粘性体	B <sub>4</sub> Cゲル材	※1	※1	※1	※1	※1	※1
	スラリー-/Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 粒子	◎	○	※2	※2	※2	※2

※1 B<sub>4</sub>Cゲル材は溶出特性未達のため未実施

※2 スラリー-/Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子は照射により固化したため、検討中断

※3 セメント/Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>造粒粉は照射によりアルカリ成分が溶出したため、検討中断

2 mm幅すき間浸透深さ

◎100 mm以上、

○50~100 mm

△50 mm未満

傾斜面被覆:

◎付着性良好、

○付着性比較的良好

△付着性改善必要

#### [成果]

- ・想定するデブリ形状に対し施工可能性を確認。臨界防止に必要な投入が可能である見通し。2形態、4種の候補材選定(黄色マキング)

#### [実用化に向けた課題]

- ・デブリ加工後(破碎等)の非溶解性中性子吸収材の追従性の確認
- ・搬送性について実規模までスケールアップした試験による確認
- ・デブリ切削粉蓄積など、場所が特定できない場合の代替対策検討

## 2.2 臨界管理技術の開発 (3)臨界防止技術

### (i) 核特性の確認

## ②溶解性中性子吸収材

#### [目的]

- ・高濃度五ホウ酸ナトリウム水の核特性(中性子吸収能力)の確認、臨界計算解析手法の検証

#### [試験内容]

- ・KUCAにおけるサンプル反応度値測定  
6,000ppmおよび12,000ppmの試験を実施

核計算コード解析との比較

#### [試験結果]

- ・中性子吸収材の反応度効果を確認するとともに、臨界計算コードによる核計算の予測性も概ね良好であることを確認

	体系の H/U235	ホウ素濃度 ppm	サンプル 装荷位置	測定値(C) % Δk/k	測定値と計 算値(E)と の差 % Δk/k
サンプル値	322	6,000	A架台そ16	0.017	0.005
サンプル値	107	6,000	B架台れ14	0.224	-0.001
サンプル値	107	12,000	B架台れ14	0.356	-0.001
サンプル値(再現)	107	6,000	B架台れ14	0.226	-0.001

#### [成果]

- ・高濃度五ホウ酸ナトリウム水も従来と同程度の精度で臨界評価上取り扱える見通しを得た。

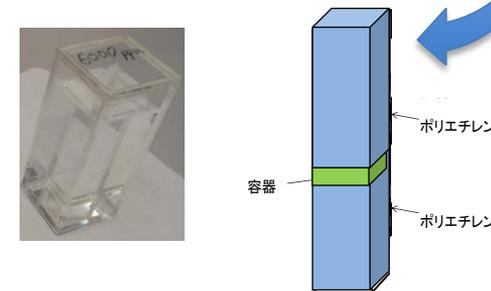
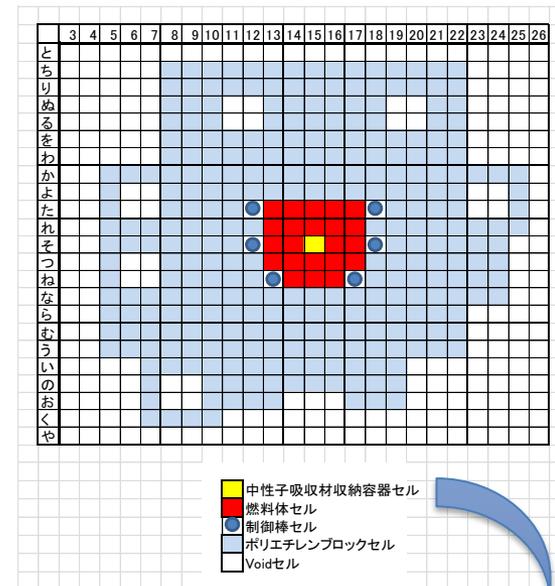


図1 試験体系(A架台)

## 2.2 臨界管理技術の開発 (3)臨界防止技術 ②溶解性中性子吸収材

### (ii) 濃度維持のための設備成立性確認

#### [目的]

PCVからトーラス室へ漏洩し、地下水と混合する五ホウ酸ナトリウム水を回収し、濃度調整したうえで、循環ループへ戻すシステムの検討

#### [成果]

- ・デブリ取り出し工法高度化Pj(システム検討)に要求し、五ホウ酸ナトリウム水濃度維持(運転条件7,000ppmを設定)のための設備構成案の基本的な成立性を確認
- ・運用方法(通常時・異常時)検討
- ・五ホウ酸ナトリウム水がコンクリートに接した場合にも、ホウ素が析出低下しないことを確認(計算ベース)

#### [実用化に向けた課題]

- ・ホウ酸水使用システムについては、デブリ取り出し工法検討Pj(システム検討)で引き続き成立性を検討
- ・システム検討と協力し、濃度維持のための運用方法、想定外事象の選定・対応検討を実施

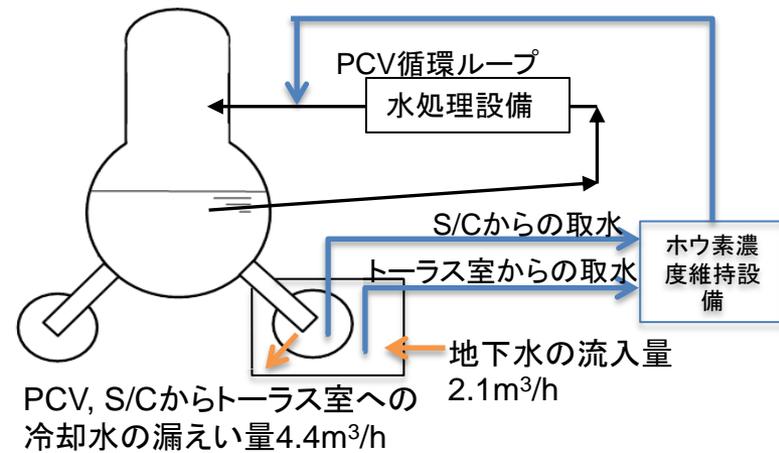


図1 ホウ素濃度維持設備の概要

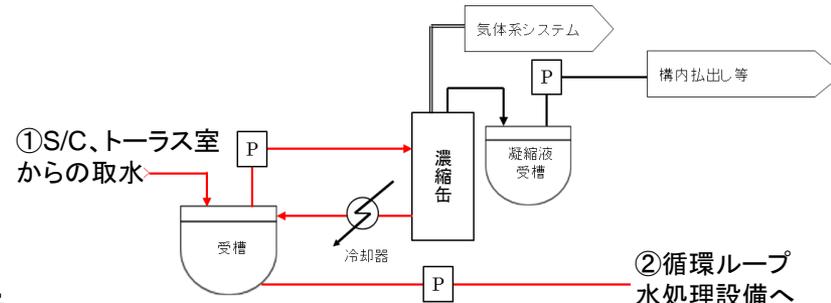


図2 濃縮缶を用いたホウ素濃縮システム

表1 各機器の概略の大きさ

機器名	容量、処理量	基数	1基あたりの概略寸法
受槽	約40m <sup>3</sup> /基	2基	φ4m×3m
濃縮缶	約10m <sup>3</sup> /h(蒸発量)	2基	8mW×7mL×7mH
冷却器	約0.25MW	1基	φ1m×3m
凝縮液受槽	約10m <sup>3</sup> /基	2基	φ2m×3m

### 3. まとめ

成果	実用化までに解決すべき課題
<p><b>[臨界評価手法の確立]</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・最新知見反映による臨界シナリオ・リスク評価精緻化</li> <li>・臨界時挙動・被ばく評価方法確立、代表事象で被ばく量が通常レベル未満となることを確認</li> <li>・臨界管理の目標設定・深層防護に基づく考え方の確立</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・PCV内部調査等の結果を踏まえて最新化継続</li> <li>・本格取り出しまでの各工程での条件を踏まえた評価</li> <li>・取り出し工法検討進捗を踏まえた管理方法の具体化(中性子吸収材適用方針等)</li> </ul>
<p><b>[臨界管理技術の開発]</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・臨界近接監視: 炉雑音法に基づく臨界近接監視方法確立、基本的成立性確認</li> <li>・再臨界検知: Kr監視による臨界検知高度化方法確立</li> <li>・中性子吸収材: 非溶解性吸収材候補選定、デブリ体系への適用性確認  溶解性吸収材適用設備、適用方法確立</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・1F現場体系を想定した実証(複雑体系での未臨界度測定、現場条件での計測システム成立性) 取り出し設備への中性子検出器搭載方法具体化</li> <li>・Ge検出器校正方法など現場適用方法具体化、本格取り出しまでのシステム条件を踏まえた検知性確認</li> <li>・現場設備・適用方法の具体化、デブリ加工方法への適合性確認</li> <li>・ホウ酸水システム運用方法の具体化</li> </ul>

以上