

講師：東京大学名誉教授 伊藤邦夫氏（金属材料）

1 関村先生より

汚染の状況：どのような元素が、どのような化合物として、どのような寸法・形で存在しているのか：を知りたいと思っています。

チェルノブイリ事故については、全体的な把握が最も完備しているのは、2006年のIAEA報告書で、大学院講義にも用いてきました。タイトルは、Environmental Consequences of the Chernobyl Accident and their Remediation: Twenty Years of Experience です

燃焼に伴う核分裂生成物量については、ORIGEN2コードで評価しています。このコードについては、多くの文献がありますので、すぐに検索できると思います。例としては
<http://www.inss.co.jp/seika/pdf/11/214.pdf>

2 出典

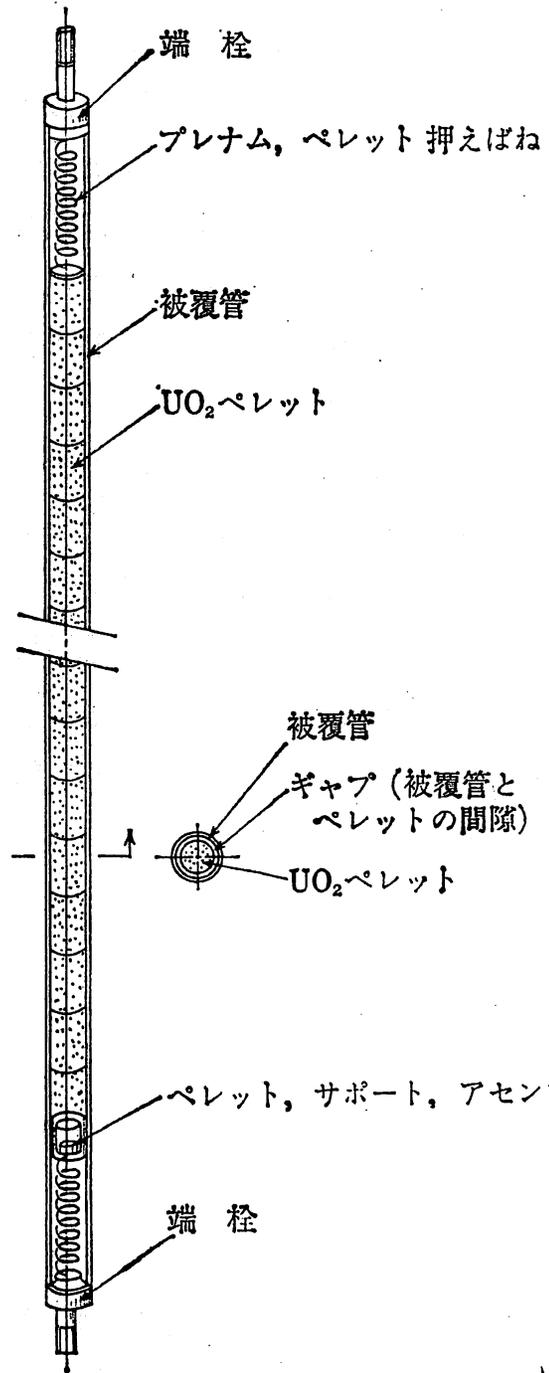
原子力学会からの回答：

下記の文献が、過酷事故時のFPの振る舞いを評価するベースとなっております。L. Soffer, S.B. Burson, C.M. Ferrell, R.Y. Lee and J.N. Ridgely "Accident Source Terms for Light-Water Nuclear Power Plants," NUREG-1465 (1995).

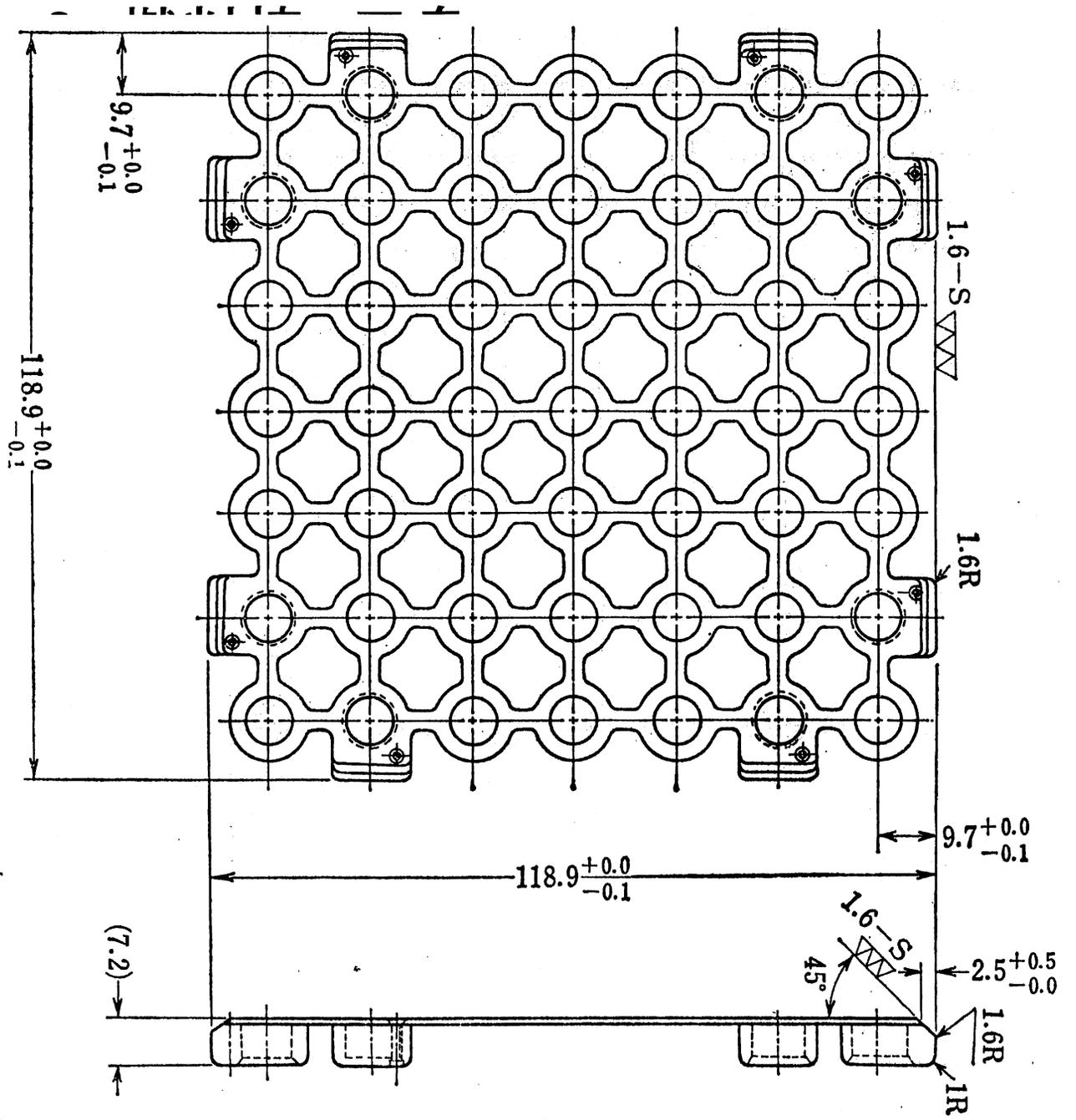
三島良績 核燃料工学 東京同文書院 昭和50年4月

大島恵一・高島洋一・田宮茂文・清瀬量平・鈴木篤之 核燃料サイクル工学 日刊工業新聞社 昭和56年11月

文科省放射線量等分布マップの作成等に係る検討会
http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/chousa/gijyutu/017/giji_list/index.htm

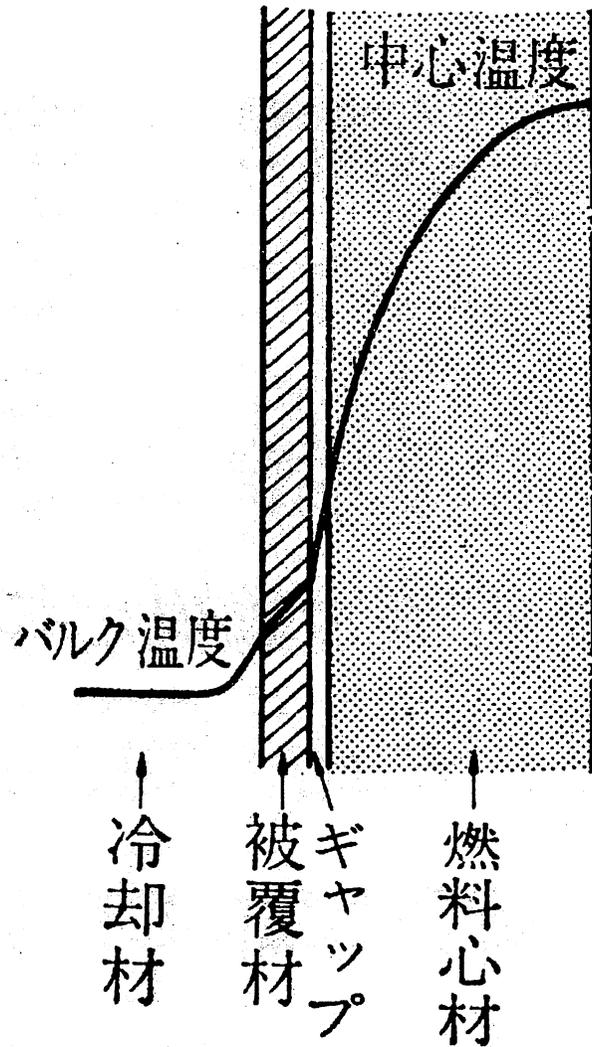


第 2.10 図 JPDR-II 燃料棒の構造



第 2.11 図 JPDR-I の板状スペーサ

4 燃料棒温度分布 鈴木



軽水炉の蒸気サイクルは基本的には
来在火力のそれと変わらないが、技術
的に核過熱が難しく、飽和に近い蒸気
しか得られない。したがって軽水炉発
電の熱効率は火力に比べて劣る。

燃料心材—被覆材—冷却材にまたが
る温度分布は、図1・2のようになる。

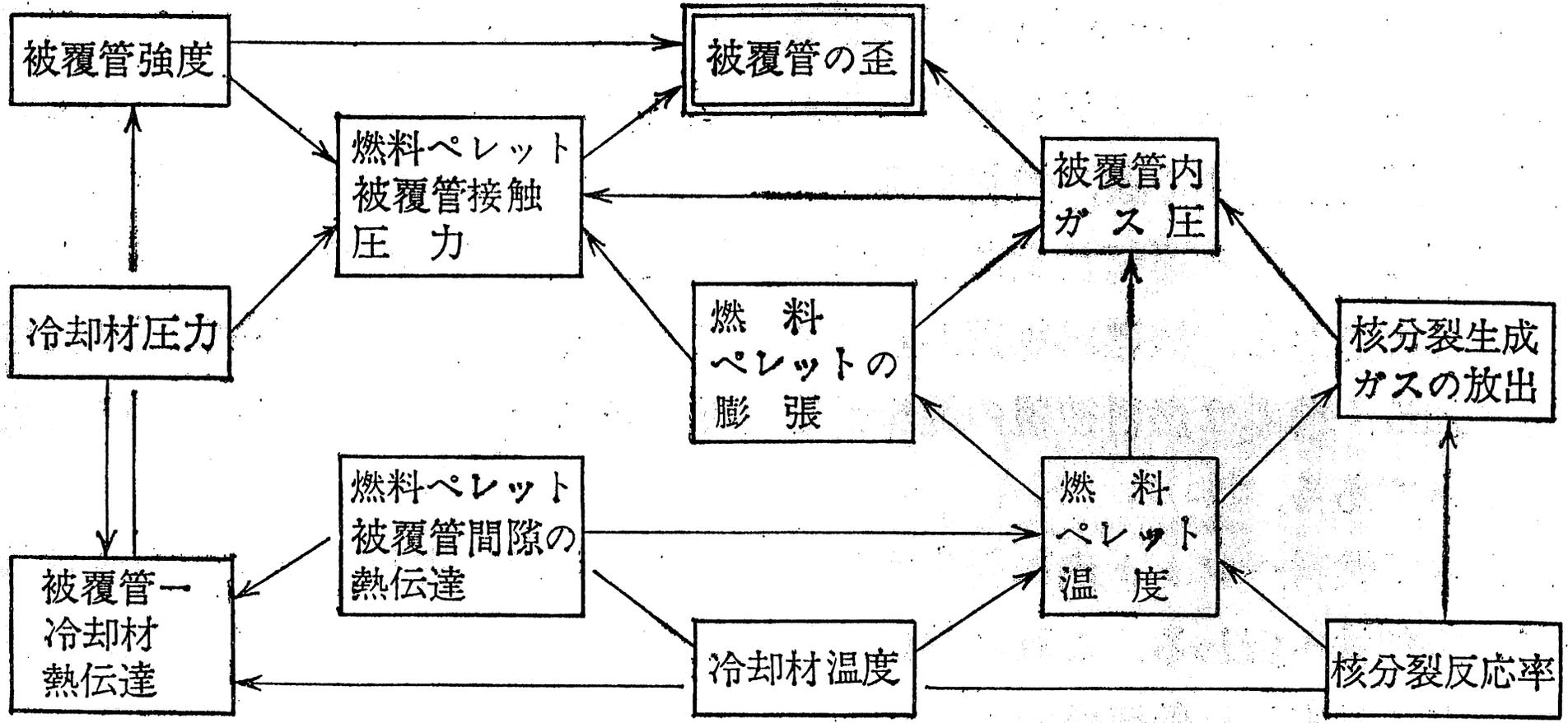
軽水炉では核燃料ペレット最高中心温
度は 2000°C 前後、冷却材温度は
 300°C 前後に設計される。

図1・2 燃料心材—
被覆材—冷却材の
温度分布³⁾。

核燃料の融点 約 2700°C

ジルカロイの融点 約 1850°C

5 燃料集合体設計 三島



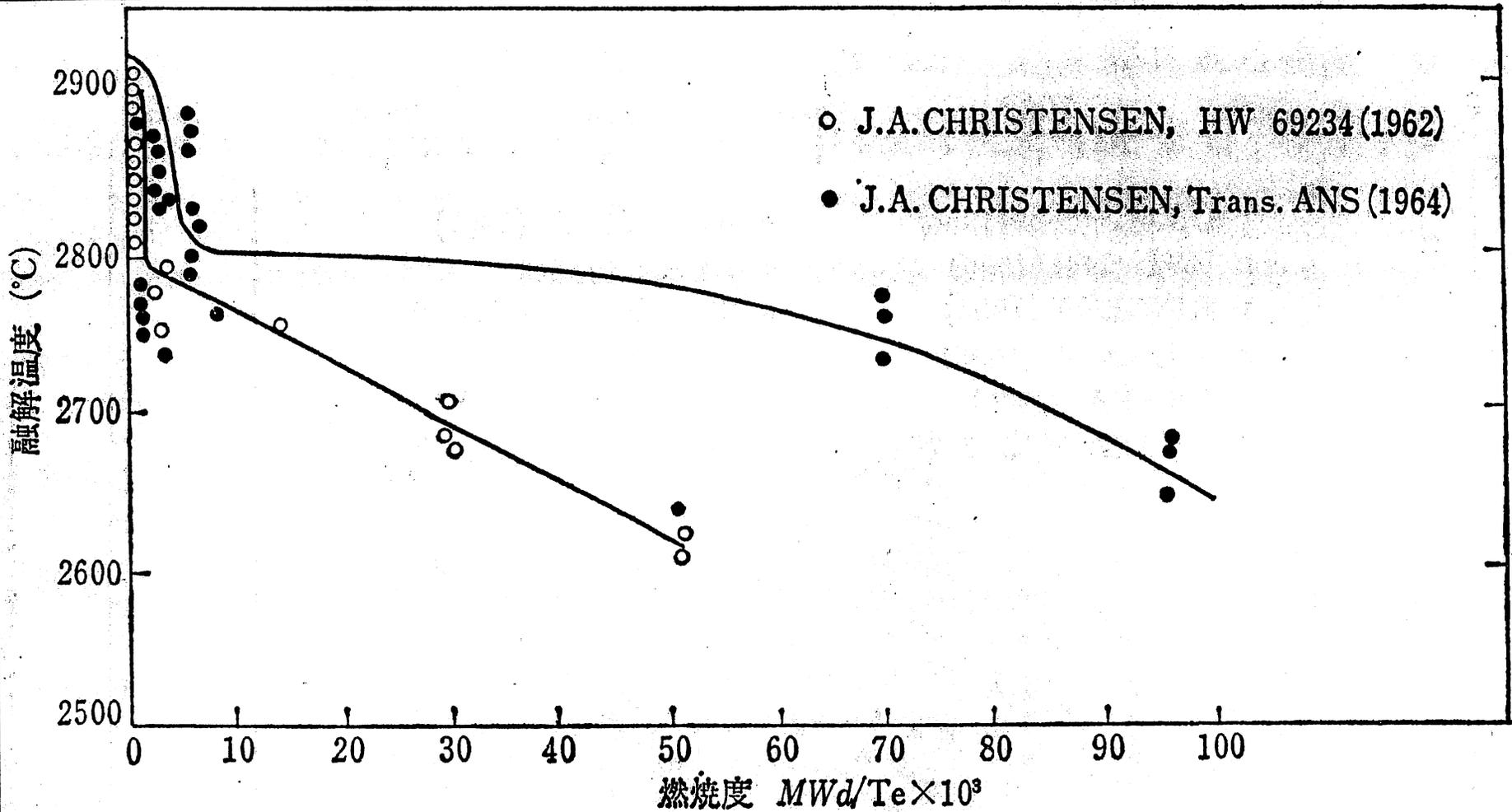
第2.4図 水冷却型炉の燃料集合体設計における主要検討要目の相互関連図 (回印は最終判定個所)

第 2.2 表 動力炉の核熱設計基準

項目	水 冷 却			ガ ス 冷 却		
	冷却型式 炉型式	沸騰水型軽水炉	加圧水型軽水炉	沸騰軽水冷却型重水炉	マクツクス炉	改良型黒鉛炉
燃 料	<ul style="list-style-type: none"> ○過出力時に燃料ペレットの中心が溶融をおこさない (2500~2800°C) ○燃料束反応度制限 	<ul style="list-style-type: none"> ○過出力時に燃料ペレットの中心が溶融をおこさない (2500~2800°C) ○燃料束反応度制限 	<ul style="list-style-type: none"> ○過出力時に燃料ペレットの中心が溶融をおこさない (2500~2800°C) 	<ul style="list-style-type: none"> ○スエリングが助長しない温度 (600~660°C) ○スエリングが助長しない燃焼度 (4500 MWD/T) 	<ul style="list-style-type: none"> ○核分裂生成物の放出が急増しない温度 (1600°C) 	<ul style="list-style-type: none"> ○核分裂生成物の放出が急増しない温度 (1350~1400°C)
被 覆 管	<ul style="list-style-type: none"> ○最小限界熱流束比 ≥ 1.9 (定格出力時) ○Zry-2のブレイクアウェイ温度 (316°C), パーフォレーション温度 (870°C), 溶融温度 (1850°C) 	<ul style="list-style-type: none"> ○最小限界熱流束比 ≥ 1.3 (118%過出力時) ○Zry-2の各種基準温度については同左 	<ul style="list-style-type: none"> ○最小限界熱流束比 ≥ 1.5 (120%過出力時) ○Zry-2の各種基準温度については同左 	<ul style="list-style-type: none"> ○温度 $\leq 495^\circ\text{C}$ [発火温度は 620~640°C] 	<ul style="list-style-type: none"> ○温度 $\leq 750^\circ\text{C}$ [溶融温度は 1400~1450°C] 	<ul style="list-style-type: none"> ○PyC & SiC層が破損しない温度 (1500~1600°C)
冷却材, 減速材	<ul style="list-style-type: none"> ○Zry-2への水素吸集 $\leq 250 \text{ ppmH}_2$ ○流量振動をおこさせない 	<ul style="list-style-type: none"> ○流量振動をおこさせない 	<ul style="list-style-type: none"> ○流量振動をおこさせない 	<ul style="list-style-type: none"> ○黒鉛温度 T を 250°C (ウイグナーエネルギー蓄積) $\leq T \leq 440^\circ\text{C}$ (酸化反応) の範囲で運転 	<ul style="list-style-type: none"> ○黒鉛温度 T $\geq 250^\circ\text{C}$ (ウイグナー・エネルギー蓄積) 	<ul style="list-style-type: none"> ○黒鉛温度 T $\leq 1050 \sim 1100^\circ\text{C}$ (メタン化防止)

第 2.3 表 軽水炉の炉心パラメータの 1 例

設計諸元	炉型式	BWR	PWR
燃料有効長 (cm)		368	368
集合体当り燃料棒本数		49	204
燃料ペレット直径 d (cm)		1.24	0.93
被覆管肉厚 t (cm)		0.081	0.062
t/d 比		0.065	0.067
濃縮度 初装荷 (%)		2.19	2.37
取替 (%)		2.56	3.30
水対 UO ₂ 体積比		2.41	1.66
H/U 原子数比		3.74	4.23
炉心入口温度 (°C)		191 (給水)	286
炉心出口温度 (°C)		286	321
原子炉圧力 (kg/cm ²)		70.3	157
全出力時炉心冷却材流量 (lb/hr)		99.6 × 10 ⁶	121.8 × 10 ⁶

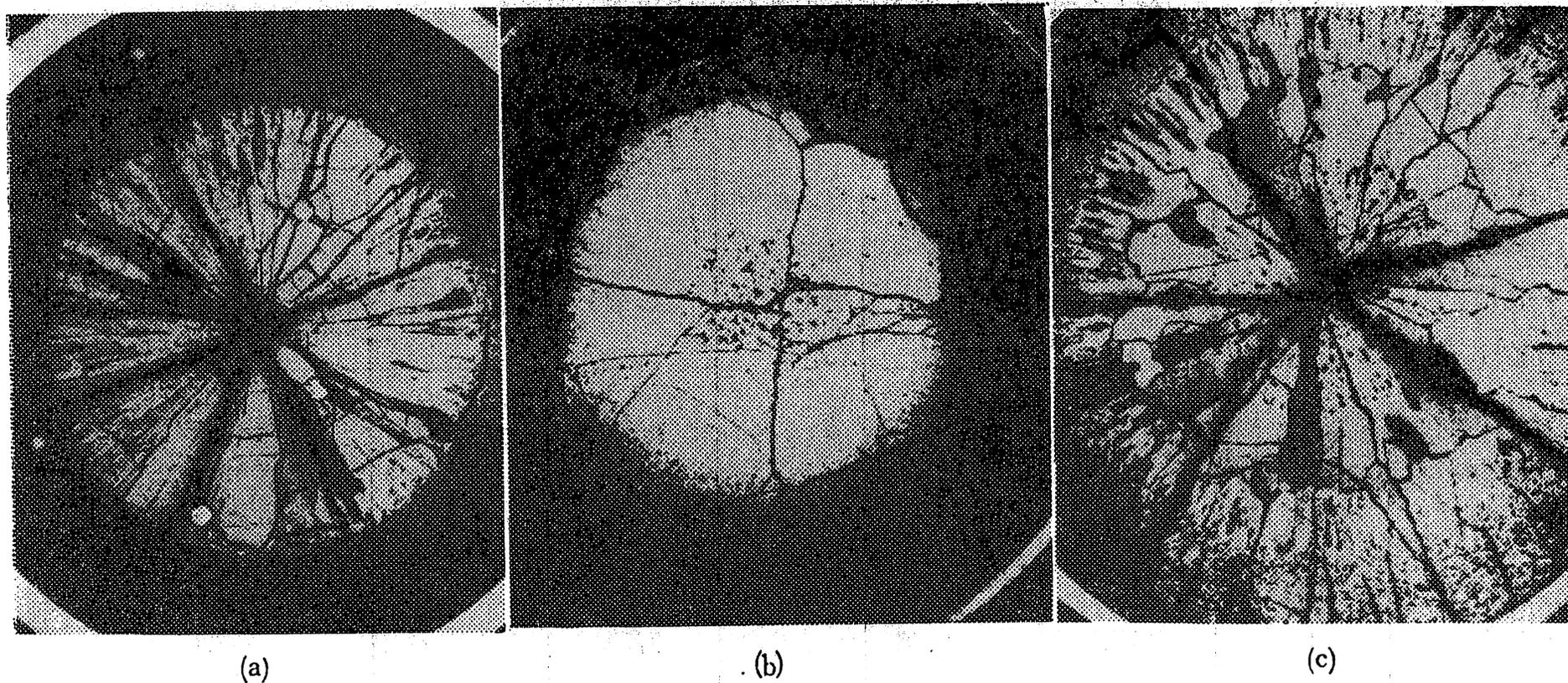


第3.21図 二酸ウラン融点の燃焼度による変化⁷⁾

燃焼度＝核燃料単位質量当たりの積算熱出力．燃料は炉の中に3～5年間装荷され，20000～30000 MWD/MTHMの燃焼度が得られるように設計されている．MWD/MTHM: Mega Watt Day / Metric Ton of Heavy Metal

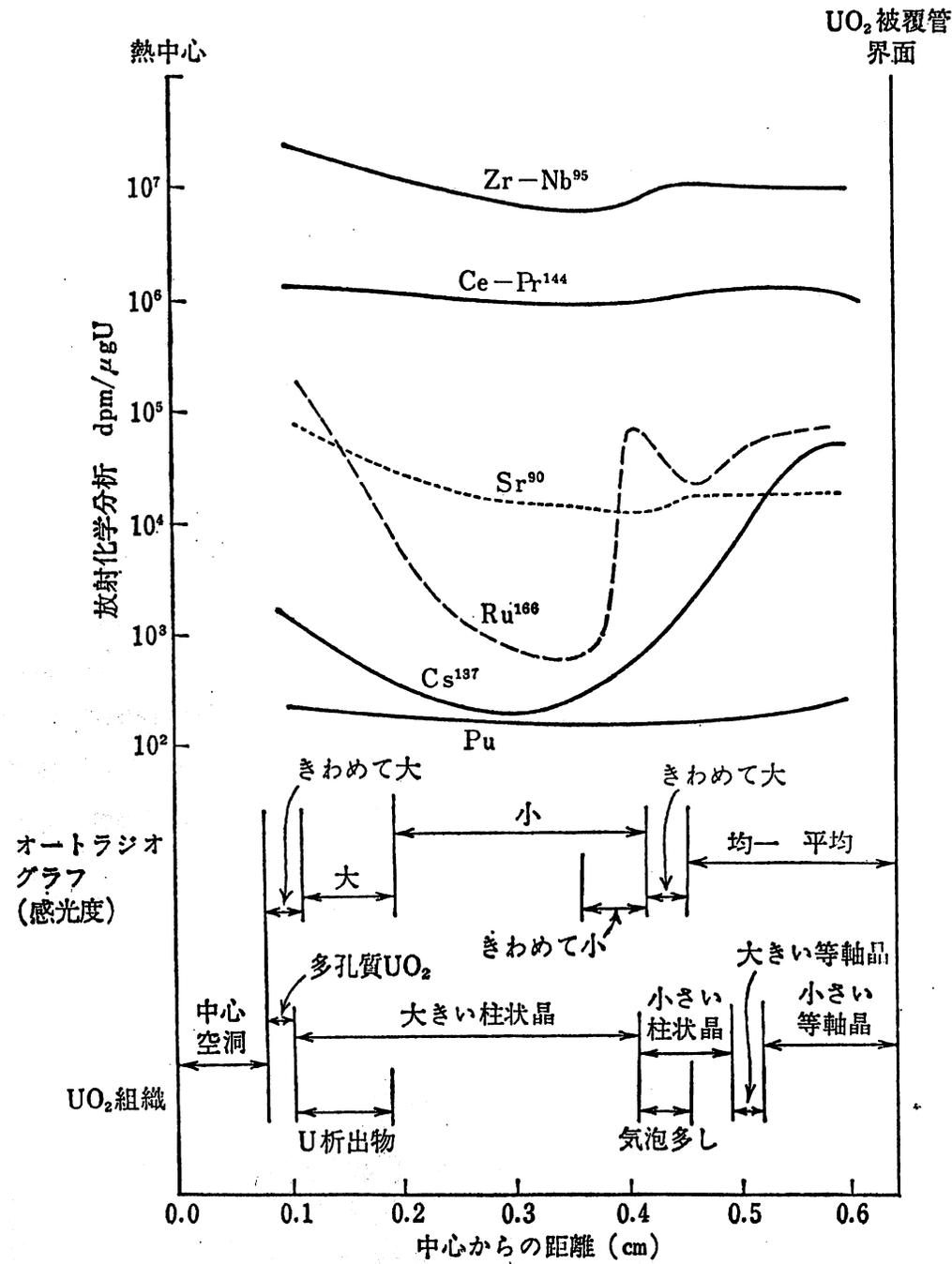
8

9 燃烧による組織変化 三島



第3.22図 照射後の二酸化ウランの切口
 $\int kd\theta$ (kW/m) は a=30, b=59, c=76.5

10 燃焼後のFP分布 三島

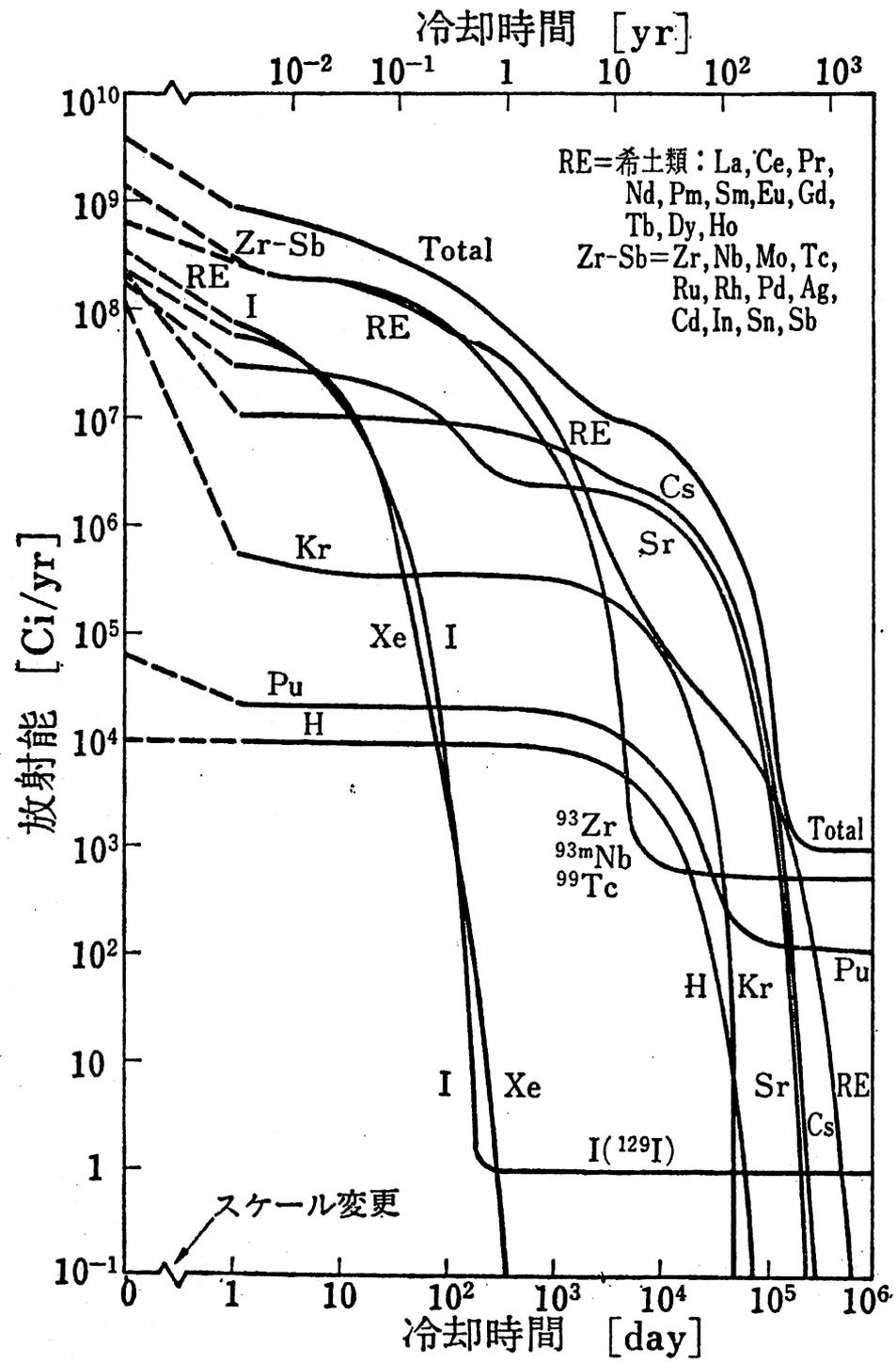


第3.84図 照射後 UO₂ ペレット中の FP の分布と組織との関係

表 5.5 原子力発電所 (1000 MWe・yr) における放射性廃棄物発生量の概数⁶⁾

	発生量/放出量	放射能濃度	備 考	
気体廃棄物	希ガス, 1 次系 換気系 ヨウ素, 1 次系 換気系 放射化生成物, ^{41}Ar ^{13}N	$\sim 5 \times 10^4 \text{ Ci/yr}$ $\sim 1 \times 10^4 \text{ Ci/yr}$ $\sim 3 \times 10^0 \text{ Ci/yr}$ $\sim 5 \times 10^0 \text{ Ci/yr}$ $\sim 2 \times 10 \text{ Ci/yr}$ $\sim 1 \times 10 \text{ Ci/yr}$	炉内インベントリの 1/1000 程度がもれるものと仮定. ^{133}Xe , ^{135}Xe , $^{135\text{m}}\text{Xe}$	
液体廃棄物	機器ドレン 床ドレン 再生廃液 ランドリ・ドレン	$\sim 100 \text{ m}^3/\text{day}$ $\sim 20 \text{ m}^3/\text{day}$ $\sim 10 \text{ m}^3/\text{day}$ $\sim 30 \text{ m}^3/\text{day}$	$\sim 10^{-1} \mu\text{Ci/cc}$ $\sim 10^{-2} \mu\text{Ci/cc}$ $\sim 10^{-3} \mu\text{Ci/cc}$ $\sim 10^{-4} \mu\text{Ci/cc}$	いずれも液体廃棄物処理系へ導かれ, さらに濃度を下げて放出される. 腐食生成物の発生量が機器ドレンや再生廃液の放射能濃度を左右する.
固体廃棄物	使用済 中レベル 樹脂, 低レベル フィルタ・スラッジ 濃縮廃液 雑固体, 可燃性 不燃性 使用済制御棒等	$5 \sim 15 \text{ m}^3/\text{yr}$ $100 \sim 150 \text{ m}^3/\text{yr}$ $\sim 100 \text{ m}^3/\text{yr}$ $200 \sim 500 \text{ m}^3/\text{yr}$ $100 \sim 200 \text{ m}^3/\text{yr}$ $150 \sim 200 \text{ m}^3/\text{yr}$	$0.5 \sim 2 \text{ mCi/cm}^3$ $\sim 2 \mu\text{Ci/cm}^3$ $\sim 5 \text{ mCi/cm}^3$ $10^0 \sim 10^1 \mu\text{Ci/cm}^3$ $(1 \sim 10 \text{ Ci/l})$ $10^{-2} \sim 10^{-1} \mu\text{Ci/cm}^3$	原子炉浄化系, 復水脱塩器, 使用済燃料貯蔵プール系など 廃棄物処理系フィルタ 紙類, 布類, 木材 プラスチック類, ゴム類 耐用年数 5 年

2 使用済み燃料中の放射性廃棄物の減衰 鈴木



6.1 軽水炉使用済み燃料 (30 MTHM/yr, 33000 MWD/MTHM) に含まれる放射性物質濃度. ただし U および Pu の 99.5% は再処理によって回収されるものとしてある¹⁾.

13 蓄積FP量 三島

第3.29表 天然ウランが3,000 MWD/T 燃焼したときの蓄積 FP 量

元 素	生 成 量		放 射 能*	
	重量(g)	容量(mL)	β	γ
Kr	44	12,600	○	○
Rb	22	14	—	—
Sr	102	39	○	—
Y	55	10	◎	—
Zr	351	54	○	○
Mo	298	29	—	—
Tc	76	—	—	—
Ru	143	12	○	○
Rh	26	2	—	—
Pd	13	1	—	—
Te	39	6	○	○
I	17	4	○	○
Xe	350	63,600	○	○
Cs	320	170	○	○
Ba	109	31	○	○
La	110	18	○	○
Ce	239	35	◎	○
Pr	103	16	○	○
Nd	345	50	—	—
Pm	8	—	○	—
Sm	33	4	—	—
Eu	2	—	—	—
Pu	約 1,600			

* ◎: 強放射性 ○: 放射性 —: 非放射性

表 5.3 1000 MWe 軽水炉使用済燃料に含まれるアクチノイド核種⁴⁾
(燃焼度 30000 MWD/MTHM, 冷却期間 150 days)

核 種	半 減 期	kg/yr	Ci/yr
²³⁴ U	2.47×10^5 yr	3.14	1.94×10^1
²³⁵ U	7.1×10^8 yr	2.15×10^2	4.61×10^{-1}
²³⁶ U	2.39×10^7 yr	1.14×10^2	7.22
²³⁷ U	6.75 days	9.15×10^{-7}	7.47×10^1
²³⁸ U	4.51×10^9 yr	2.57×10^4	8.56
計		2.60×10^4	$\alpha 3.56 \times 10^1$ $\beta 7.47 \times 10^1$
²³⁷ Np	2.14×10^6 yr	2.04×10^1	1.44×10^1
²³⁹ Np	2.35 days	2.05×10^{-6}	4.78×10^2
計		2.04×10^1	$\alpha 1.44 \times 10^1$ $\beta 4.78 \times 10^2$
²³⁶ Pu	2.85 yr	2.51×10^{-4}	1.34×10^2
²³⁸ Pu	86 yr	5.99	1.01×10^5
²³⁹ Pu	28500 yr	1.44×10^2	8.82×10^3
²⁴⁰ Pu	6580 yr	5.91×10^1	1.30×10^4
²⁴¹ Pu	13.2 yr	2.77×10^1	2.81×10^6
²⁴² Pu	3.79×10^5 yr	9.65	3.76×10^1
計		2.46×10^2	$\alpha 1.23 \times 10^5$ $\beta 2.81 \times 10^6$
²⁴¹ Am	458 yr	1.32	4.53×10^3
^{242m} Am	152 yr	1.19×10^{-2}	1.16×10^2
³²⁴ Am	7950 yr	2.48	4.77×10^2
計		3.81	$\alpha 5.01 \times 10^3$ $\beta 1.16 \times 10^2$
²⁴² Cm	163 days	1.33×10^{-1}	4.40×10^5
²⁴³ Cm	32 yr	1.96×10^{-3}	9.03×10^1
²⁴⁴ Cm	17.6 yr	9.11×10^{-1}	7.38×10^4
²⁴⁵ Cm	9300 yr	5.54×10^{-2}	9.79
²⁴⁶ Cm	5500 yr	6.23×10^{-3}	1.92
計		1.11	$\alpha 5.14 \times 10^5$
計		2.63×10^4	$\alpha 6.42 \times 10^5$ $\beta 2.81 \times 10^6$

■6月6日原子力安全・保安院放出量の推定値に基づく新たな調査対象核種の検討について

(放出された核種が全量1箇所に沈着した場合における50年間被ばく線量の比較)

核種	半減期	放出量(保安院6月6日試算値) 【Bq】	50年間積算実効線量換算係数 【mSv/kBq/m ² 】 ※IAEA-TECDOC1162使用	放出された放射性物質の全量が1m ² に沈着したと想定して、その場に50年間滞在した場合の被ばく線量(吸入・外部)【mSv】 ※IAEA-TECDOC1162使用	セシウム137による50年間被ばく線量に対する他核種による50年間被ばく線量の割合【-】	備考欄(調査状況、分析手法他)
Xe-133	5.2d	1.1E+19	-	-	-	
Cs-134	2.1y	1.8E+16	5.1E-03	9.2E+13	4.7E-02	本調査で実施済み
Cs-137	30.0y	1.5E+16	1.3E-01	2.0E+15	1	本調査で実施済み
Sr-89	50.5d	2.0E+15	2.8E-05	5.6E+10	2.9E-05	本調査で実施済み
Sr-90	29.1y	1.4E+14	2.1E-02	2.9E+12	1.5E-03	本調査で実施済み
Ba-140	12.7d	3.2E+15	2.5E-03	8.0E+12	4.1E-03	
Te-127m	109.0d	1.1E+15	1.6E-04	1.8E+11	9.0E-05	
Te-129m	33.6d	3.2E+15	2.2E-04	7.0E+11	3.6E-04	本調査で実施済み
Te-131m	30.0h	9.7E+13	2.0E-04	1.9E+10	9.9E-06	
Te-132	78.2h	7.6E+14	6.9E-04	5.2E+11	2.7E-04	
Ru-103	39.3d	7.5E+09	1.5E-03	1.1E+07	5.8E-09	
Ru-106	368.2d	2.1E+09	-	-	-	
Zr-95	64.0d	1.7E+13	6.8E-03	1.2E+11	5.9E-05	
Ce-141	32.5d	1.8E+13	2.0E-04	3.6E+09	1.8E-06	
Ce-144	284.3d	1.1E+13	1.4E-03	1.5E+10	7.9E-06	
Np-239	2.4d	7.7E+13	3.4E-05	2.6E+09	1.3E-06	
Pu-238	87.7y	1.9E+10	6.6E+00	1.3E+11	6.4E-05	本調査で実施済み
Pu-239	24065y	3.2E+09	8.5E+00	2.7E+10	1.4E-05	本調査で実施済み
Pu-240	6537y	3.2E+09	8.4E+00	2.7E+10	1.4E-05	本調査で実施済み
Pu-241	14.4y	1.2E+12	1.9E-01	2.3E+11	1.2E-04	
Y-91	58.5d	3.4E+12	2.0E-08	6.8E+04	3.5E-11	
Pr-143	13.6d	4.1E+12				
Nd-147	11.0d	1.6E+12				
Cm-242	162.8d	1.0E+11	5.9E-02	5.9E+09	3.0E-06	
I-131	8.0d	1.6E+17	2.7E-04	4.3E+13	2.2E-02	本調査で実施済み
I-132	2.3h	4.7E+14	1.9E-05	8.9E+09	4.6E-06	
I-133	20.8h	6.8E+14	8.1E-06	5.5E+09	2.8E-06	
I-135	6.6h	6.3E+14	3.7E-05	2.3E+10	1.2E-05	
Sb-127	3.9d	6.4E+15	2.3E-05	1.5E+11	7.5E-05	
Sb-129	4.3h	1.6E+14	3.7E-06	5.9E+08	3.0E-07	
Mo-99	66.0h	8.8E+07	6.1E-05	5.4E+03	2.8E-12	

16 20111020第11回 放出核種

福島県の面積に均一

核種	放出量(Bq)	放出量(g)	放出量 ($\mu\text{g}/\text{m}^2$)	放出量(原子 数/ m^2)	14日未満は青 半減期(y)	50年間の相 対被ばく線量
Cs-137	1.5E+16	4662.337	0.338292	1.49E+21	30.000	100
Cs-134	1.8E+16	383.060	0.027794	1.25E+20	2.100	4.7000
I-131	1.6E+17	34.742	0.002521	1.16E+19	0.022	2.2000
Ba-140	3.2E+15	1.179	0.000086	3.68E+17	0.035	0.4100
Sr-90	1.4E+14	27.729	0.002012	1.35E+19	29.100	0.1500
Te-129m	3.2E+15	2.874	0.000209	9.73E+17	0.092	0.0360
Te-132	7.6E+14	0.068	0.000005	2.24E+16	0.009	0.0270
Pu-241	1.2E+12	0.315	0.000023	5.71E+16	14.400	0.0120
Te-127m	1.1E+15	3.155	0.000229	1.09E+18	0.299	0.0090
Sb-127	6.4E+15	0.657	0.000048	2.26E+17	0.011	0.0075
Pu-238	1.9E+10	0.030	0.000002	5.50E+15	87.700	0.0064
Zr-95	1.7E+13	0.021	0.000002	9.85E+15	0.175	0.0059
Sr-89	2.0E+15	1.862	0.000135	9.14E+17	0.138	0.0029
Pu-239	3.2E+09	1.392	0.000101	2.54E+17	24065.000	0.0014
Pu-240	3.2E+09	0.380	0.000028	6.91E+16	6537.000	0.0014
I-135	6.3E+14	0.005	0.000000	1.57E+15	0.001	0.0012

17 崩壊熱推定線図 鈴木

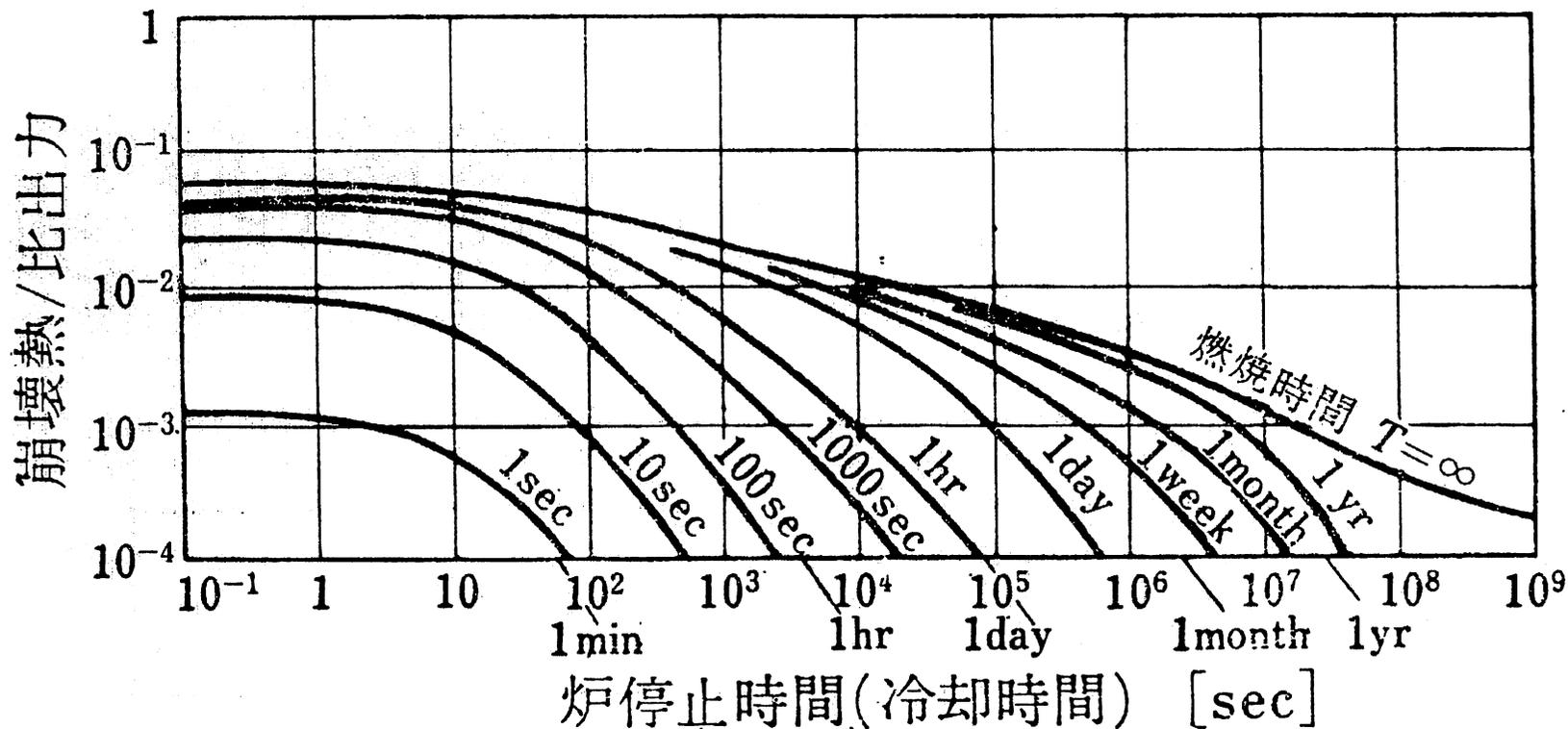


図 5.3 崩壊熱推定線図¹⁾.

燃焼度25000MWD/MTHM,燃焼時間800日の使用済燃料であれば,その平均比出力25000/800=30MW/MTHMから推定して,炉とり出し直後で~2MW/MTHM,3ヵ月冷却時で30kW/MTHMの発熱量となる.

4.

燃料の破損程度	通常運転の時	冷却効果を失う事故の時						
	穴の発生 FPのもれる	事故のシヨツクによる破損	内圧による ジルカロイ被覆破裂	ジルカロイ融解とけおち	二酸化ウラン融解	崩壊熱で 昇温し燃料 揮散へ		
→ 大 約 温 度 (°C)	300		750	900	1850	2800		
Zr-水反応			ジルカロイの腐食ゆるおこる	ジルカロイの腐食ゆるおこる	Zr-水反応はげしくおこる			
FPの放出程度		① 一次冷却水に定常にのこるだけのFP追加放出	② 冷却水がなくなったための圧力差分の追加放出	③ 破損燃料のギャップ中のFP放出	④ 破裂燃料のギャップ中のFP放出	⑤ 1650°C以上では燃料の内蔵FP一部放出	⑥ 燃料に内蔵のFP全量放出	⑦ 格納容器破損し外界へ放出

第3.127図 通常運転時および冷却材喪失事故時のFP放出の事情と、事故後に燃料のこわれてゆく順序

19 事故時の被覆の破損-1 三島

一次冷却系の主配管が全周破断し、冷却水が短い時間に全部が出てしまうと仮定する。

炉は停止する(ように設計されている)が、冷却水の喪失による外圧の降下で燃料被覆管には衝撃的に内圧による力がかかる。それまでの炉心内滞留時間が長く、水素も十分に吸い、照射も充分うけた被覆管であると、このショックにより破壊するのが皆無ではないかもしれず、これによるFPの追加放出が一応は考えられる。

最初のショックに耐えたとすると、燃料の温度はいったん下がる。崩壊熱を除くには、水蒸気で飽和した空気による自然対流による冷却しかないが、これでは断熱と大差ない効き目しかないため、燃料の温度は以後数十℃/分くらいの速さで上がりだす。被覆管内の放出FPガスは $PV=RT$ の法則に従い圧力をましてゆくのに対し、被覆材の方は温度が上がるにしたがって強さは低下してゆくから、どこかで破裂して穴があくことになる。

21 事故時の被覆の破損-3 三島

事故後の燃料の温度は崩壊熱の出るままに放っておくとさらに上がり、被覆内圧も上昇一方であるから、いつまでも放っておくと全部の燃料が破裂(burst)する。しかし非常用炉心冷却系(ECCS)による水の散布による再冷却がはじまるのでこれが早く作動するほど被覆の破れる燃料棒の本数は少なくなる。

しかしこの注水までにジルカロイ被覆管が高温にさらされて酸化すると、このための脆化で再注水効果をそこなうほど形をくずすことが心配される。

22 事故時の被覆の破損-4 三島

一方事故後の炉内雰囲気は水蒸気を含んだ空気であるので、燃料が昇温してゆくとジルカロイは酸化し、
 $Zr + 2H_2O \rightarrow ZrO_2 + 2H_2$ の反応がおこる。
 この反応は900°C以下ではあまり問題にならないが900°C以上でははげしくなり、いわゆるジルコニウム-水反応がおこる。そして水素が発生して格納容器の内圧を上げ、その濃度によっては爆発の心配があるので、軽水炉の事故解析ではこのことも検討される。
 再注水系は複数あるのでひとつも働かないことはないと思われるが、仮想事故では炉心スプレーの効果をもとめないこととして事故解析をする。

23 事故時の被覆の破損-5 三島

燃料の温度はさらに上がり、ジルカロイの融点(約1850°C)に達してジルカロイが溶け、集合体を立てて並べてある下部タイプレートに滴下し、ここに一度たまってから炉底に滴下することになる。これが炉底にたまった冷却水の残りの中におちて激しく反応し、やがて冷えて固まってしまう。
 被覆が溶けて流れ下ってしまえば燃料心材は裸になり、さらに昇温してゆけば心材も融解する。そうすると心材中にはいていた気体FPは100%放出される。仮想事故ではここまでを仮想して災害評価をしている。

- 1)三島他:核分裂生成物の放出と移行, 原子力安全研究協会(1967):
- 2)三島他:高速炉における核分裂生成物の放出と移行, 原子力安全研究協会(1970).
- 3)三島他:軽水炉燃料被覆管のふるまい, 原子力安全研究協会(1970).
- 4)三島他:水炉燃料のふるまい, 原子力安全研究協会(1972).
- 5)C.W.Keilholtz, G.C.Battle: ORNL-NSIC-37(1969).