

令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書

原子力施設等防災対策等委託費
(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)
事業

国立研究開発法人
日本原子力研究開発機構
令和 4 年 3 月

本報告書は、原子力規制委員会原子力規制庁からの委託により実施した業務の成果をとりまとめたものです。

本報告書に関する問い合わせは、原子力規制庁までお願いします。

目次

1. はじめに	1-1
2. 再移行挙動に関する解析	
2.1 目的	2-1
2.2 代表事故シーケンスの FP 移行挙動の標準解析	2-1
2.3 FP 移行挙動に係る影響度の解析	2-13
2.3.1 影響度評価手法及び条件	2-13
2.3.2 影響度評価結果	2-15
2.4 まとめ（再移行挙動に係る重要な現象の検討）	2-21
3. 化学挙動に関するデータ取得	
3.1 目的	3-1
3.2 TeRRa 実験装置の概要及び、捕集機能の強化	3-1
3.3 水蒸気雰囲気及び水蒸気-酸素雰囲気における ヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の高温化学反応	3-2
3.3.1 実験条件	3-2
3.3.2 実験結果	3-3
3.4 まとめ	3-5
4. 化学挙動を考慮したソースターム評価手法の検討	
4.1 目的	4-1
4.2 FP 化学種平衡組成予測モデル	4-1
4.3 ソースターム評価への化学知見の反映方法の検討	4-2
4.4 系統的なソースターム解析に基づく化学種組成表の検討	4-3
4.4.1 解析対象プラント及び解析条件	4-4
4.4.2 解析結果及び化学種組成表の検討	4-4
4.5 まとめ	4-8
5. FP 化学モデルの高度化	5-1
5.1 目的	5-1
5.2 熱力学平衡論及び反応速度論の混合モデルの妥当性評価	5-1
5.3 まとめ	5-2
6. おわりに	6-1
付録 A 会議等参加報告	A-1

1. はじめに

シビアアクシデントにおけるソースターム（環境中に放出される放射性物質（FP：Fission Product）の量や化学形、放出のタイミング）情報は、シビアアクシデントの影響評価、レベル2確率論的リスク評価（PRA：Probabilistic Risk Assessment）、レベル3PRA、緊急時防護対策の検討等において不可欠な情報である。このソースタームの評価では、原子炉冷却系内や格納容器内における炉心熔融進展、熱水力挙動及び燃料からのFP放出とその後の移行挙動を考慮する必要があり、一般にそれらをモデル化した数値解析コード（シビアアクシデント総合解析コード）を用いる。シビアアクシデント総合解析コードにおいて一般的に考慮されているFP移行挙動を図1.1に示す。シビアアクシデント総合解析コードを利用したソースターム情報の活用には、各モデルの精度の低さや、未考慮・未説明の現象のモデル欠如等から来る不確かさを含有するため、それらの不確かさを定量化するとともにその低減を図ることが重要である。

FP移行挙動は、気体状FPについては化学吸着や冷却水への溶解現象、粒子状（エアロゾル）FPについては凝集や重力沈降等に支配されるといったように、物理状態に強く依存する。大部分のFPは、蒸気圧が低いため原子力施設内でエアロゾル化し、環境へ放出されるまでの間に重力沈降や拡散泳動等の物理挙動の影響を受けて移行経路中に保持され、さらに、スクラビングやスプレイ等の安全設備により気相中からの低減が図られる。エアロゾル化しない気体状FPとしては希ガスであるキセノンや気体状ヨウ素化学種が挙げられ、希ガスについては原子力施設内での物理挙動による保持効果が小さいため格納容器が破損した場合にはほぼ全量が環境へ放出される。一方で、気体状ヨウ素の移行挙動については、フランスで実施されたPHEBUS-FP計画の炉内実験及びその解析[1.1]、並びに東京電力福島第一原子力発電所（1F）事故後のモニタリングでの観測[1.2, 1.3]により生成・移行が示唆されているものの、その詳細な生成機構や生成割合について十分な知見は得られておらず、ソースターム評価における不確かさの要因となっている。

また、気体状ヨウ素に加えて、シビアアクシデント時に一旦保持されたFPがその後の温度上昇、流動条件の変化、流入する気体/液体の組成変化等により再び移行する現象、すなわち再移行挙動がソースタームに対して大きな不確かさをもたらすことが改めて認識されている。例えば、経済協力開発機構/原子力機関（OECD/NEA）の事故分析・管理ワーキンググループ（WGAMA）が2019年1月に開催したソースタームワークショップでは、1F事故の分析から得られた知見やOECD/NEAのTHAI、STEM等のプロジェクト成果に基づき、再移行挙動を重要な研究課題と位置付けている。また、このような議論を経て、OECD/NEAはソースタームにおける遅延放出メカニズムに関する実験プロジェクトESTERを計画した（2020年に開始）。シビアアクシデント晩期での重要となる再移行挙動としては、沈着したエアロゾルの再蒸発、水素爆発時等でのエアロゾルの再浮遊、スクラビング時の飛沫同伴によるエアロゾル生成、冷却水中の溶存気体の再揮発等が挙げられる（図1.2）。それらの一部については既往研究とモデルがあるものの、知見は限られている。

以上を踏まえ、本事業では気体状ヨウ素挙動及び再移行挙動に関する不確かさ低減を目的とした実験及び解析、並びにそれらの知見の集約先となるシビアアクシデント総合解析

コードによる代表事故シーケンスのソースターム解析を実施した。規制判断に活用できる技術的知見を取得するとともに、シビアアクシデント時ソースタームに係るデータベースを構築することで、ソースターム評価手法の高度化を目指すものである。より具体的には、以下を実施した。

- ① 核分裂生成物 (FP) の再移行 (再浮遊、再蒸発、飛沫同伴、再揮発) を含む移行挙動モデルについて、複数の主要事故シーケンスに対する一般的なシビアアクシデント総合解析コードを用いたモデル影響度の解析を実施し、ソースタームに対して各移行挙動モデルが与える影響度及び各再移行挙動中で重要度の高い現象を検討した。
- ② 既往手法によるソースターム評価で大きな不確かさを有する原子炉冷却系での非凝縮性ヨウ素ガスの生成反応の一つであるモリブデンによるヨウ素の移行促進現象 [1.4] について、基礎データの拡充を目的とし、日本原子力研究開発機構 (原子力機構) 原子力科学研究所の FP 放出移行挙動再現装置 (TeRRa : Test bench for FP Release and tRansport) を用いた酸素をパラメータとしたモリブデン・ヨウ素の相互作用実験と生成された化合物の化学形態や結晶構造等に関する分析を実施した。
- ③ ソースターム評価に広く用いられるシビアアクシデント総合解析コード (MELCOR 等) では原子炉冷却系から格納容器に移行する FP 化学種組成を解析者が入力する必要がある。そこで、原子炉冷却系でのセシウム及びヨウ素の化学挙動に係るモデルを用いた系統的なソースターム解析を力機構が整備するシビアアクシデント総合解析コード THALES2/KICHE [1.5, 1.6] で実施し、得られた知見を MELCOR コード等への入力に反映する方法を検討した。

参考文献

- [1.1] N. Girault et al., “Towards a Better Understanding of Iodine Chemistry in RCS of Nuclear Reactors,” Nucl. Eng. Des., 239, 1162–1170, 2009.
- [1.2] 古田定昭 他, “福島第一原子力発電所事故に係る特別環境放射線モニタリング結果—中間報告 (空間線量率, 空気中放射性物質濃度, 降下じん中放射性物質濃度)—”, JAEA-Review 2011-035, 日本原子力研究開発機構, 2011 年 8 月.
- [1.3] T. Ohkura et al., “Emergency Monitoring of Environmental Radiation and Atmospheric Radionuclides at Nuclear Science Research Institute, JAEA Following the Accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant,” JAEA-Data/Code 2012-010, Japan Atomic Energy Agency, May, 2012.
- [1.4] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度原子力施設等防災対策等委託費 (シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化) 事業 成果報告書」、2021.
- [1.5] M. Kajimoto et al., “Development of THALES-2, A Computer Code for Coupled Thermal-

Hydraulics and FP Transport Analyses for Severe Accident at LWRs and Its Application to Analysis of FP Revaporization Phenomena,” Proc. International Topical Meeting on Safety of Thermal Reactors, Portland, OR, 584-592, 1991.

- [1.6] K. Moriyama, Y. Maruyama and H. Nakamura, “Kiche: A Simulation Tool for Kinetics of Iodine Chemistry in the Containment of Light Water Reactors under Severe Accident Conditions,” JEAE-Data/Code 2010-034, Japan Atomic Energy Agency, March, 2011.

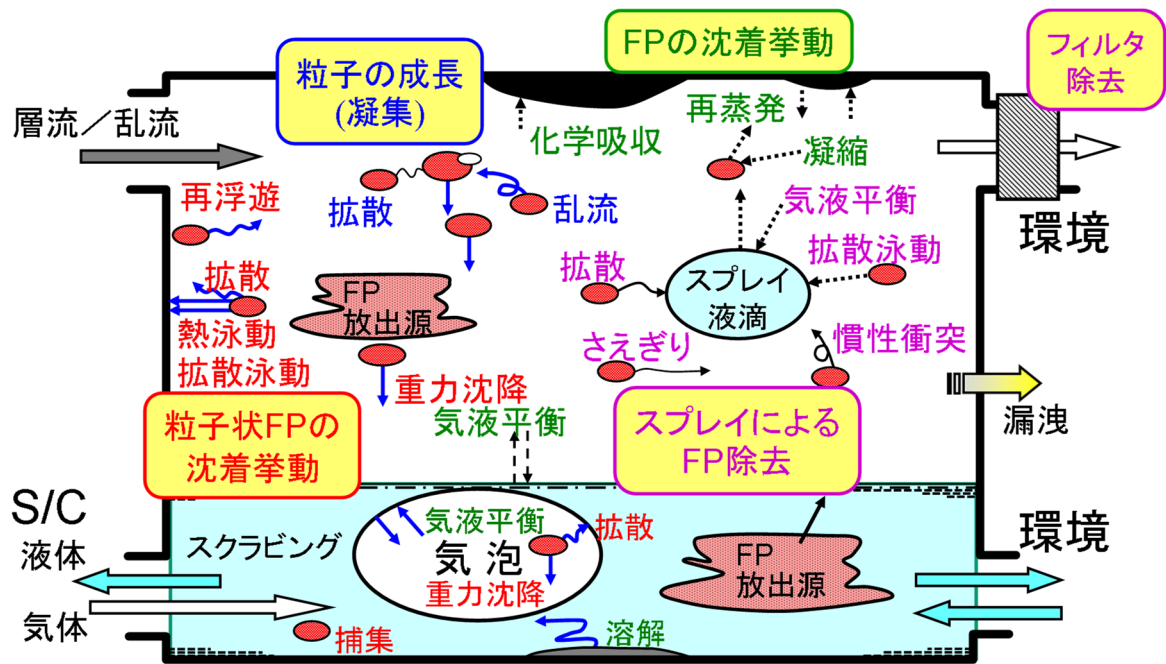


図 1.1 シビアアクシデント時に生じる放射性物質の移行挙動

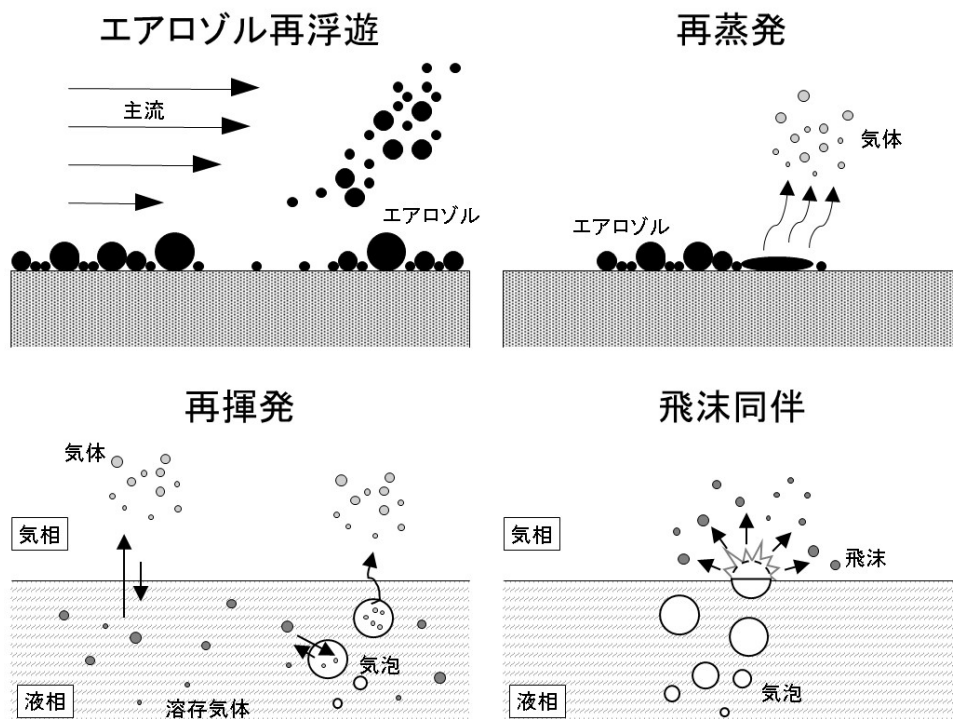


図 1.2 本事業で対象とした再移行挙動

2. 再移行挙動に関する解析

2.1. 目的

実用発電用原子炉におけるシビアアクシデントの影響評価、確率論的リスク評価、緊急時防護対策の検討とにおいて、環境中に放出される FP の量や化学形、放出のタイミングといった情報であるソースタームの評価は重要である。ソースターム評価では、一般に FP 挙動をモデル化した数値解析コードにおいて実施されるが、各モデルの精度の低さや、未考慮・未説明の現象のモデル欠如等から来る不確かさを含有するため、それらの不確かさを定量化するとともにその低減を図ることが重要である。近年実施された経済協力開発機構/原子力機関 (OECD/NEA) の事故分析・管理ワーキンググループ (WGAMA) のソースタームワークショップでは、1F 事故の分析から得られた知見や OECD/NEA の THAI、STEM 等のプロジェクト成果に基づき、再移行挙動を重要な研究課題と位置付けている。シビアアクシデント晩期での重要となる再移行挙動としては、沈着したエアロゾルの再蒸発、水素爆発時等でのエアロゾルの再浮遊、スクラビング時の飛沫同伴によるエアロゾル生成、冷却水中の溶存気体の再揮発等が挙げられる。それらの一部については既往研究とモデルがあるものの、知見は限られており、実験及び解析的な知見の拡充が必要である。

本受託では、これまでに再移行の一部の現象（再蒸発以外）に係る簡易/既存モデルを追加した FP 移行挙動解析コードを用いたソースターム評価に対する影響度を調査した[2.1]。その結果、再移行挙動はその他移行現象に比べ影響度が比較的小さく、再移行挙動の中では飛沫同伴の影響が大きいことが示された。一方で、再蒸発モデルの影響や事故シーケンスに依存する移行経路の相違による影響は不明である。そこで本解析では、令和 2 年度に実施した FP 移行現象のソースターム影響度評価手法において再蒸発現象を考慮するとともに、移行経路の相違 (D/W 破損、CV ベント) を含めて各現象モデルのソースタームに対する影響度を評価した。対象とした事故シーケンスの標準解析結果を 2.2 節に、2.2 節の標準解析に対して影響度解析結果を 2.3 節に示す。

2.2. 代表事故シーケンスの FP 移行挙動の標準解析

本節では、各モデルのソースタームに対する影響度解析の実施に先立ち対象とした事故シーケンスとその際の FP 移行挙動について示す。本解析では全交流動力電源喪失 (TB) でのドライウエル破損と格納容器ベントの 2 ケースについて、FP 移行挙動を機構論的に扱うことができる ART コードを用いた。TB 事故シーケンスの選定理由は、炉心溶融から原子炉圧力容器破損までの時間が比較的長く、圧力容器内に FP が保持されやすくその後の事故進展により再移行挙動に寄与が大きくなると想定したためである。さらにソースタームは、原子炉の破損個所や放出経路により大きく依存するため、ドライウエル (D/W) 破損と格納容器 (CV) ベントの 2 ケースを検討した。以下に解析条件とその結果を示す。

(1) 事故シーケンス

TB シーケンスは、過渡事象後、炉心の崩壊熱により発生した水蒸気が逃し安全弁からウェットウェル (W/W) へ流出するため、原子炉水位が低下する。原子炉水位低 (レベル 2) で全交流動力電源喪失のため蒸気駆動ポンプを用いている原子炉隔離時冷却系 (RCIC) が起動する。RCIC が作動すると原子炉水位が上昇し、原子炉水位レベルが 8 になると RCIC が停止する。この間原子炉圧力は、逃し安全弁の開閉により設定圧がほぼ保たれる。逃し安全弁から流出した水蒸気は W/W で凝縮し W/W プール水温を上昇させる。なお、この RCIC の作動/停止は、バッテリーが枯渇するまで継続される。炉心が注水できなくなると原子炉水位が急激に減少し、炉心が露出し炉心温度が上昇する。その後、炉心溶融が開始し、まず支持板位置まで落下する。さらに支持板が溶融するとさらに下部プレナム (LWPL) まで落下する。LWPL ではデブリの落下により水蒸気の急激な発生しドライアウトする。ドライアウト後、LWPL の水蒸気発生がなくなるため原子炉温度及び原子炉圧力が減少する。その後、デブリと LWPL 構造材の伝熱により溶融貫通し、デブリがペDESTAL に落下する。ペDESTAL に落下したデブリは、ペDESTAL 床面のコンクリートを分解し不活性ガスを発生させる。この不活性ガスの発生により格納容器圧力が上昇し、一部がベント管経由で W/W に流入する。その後、格納容器の圧力が破損限界に至り過圧破損する。

TB シーケンスについて、シビアアクシデント総合解析コード THALES-2 [2.1] を用い、78.4 万 kW 級沸騰水型原子炉 (BWR-4、Mark-I 型) の仮想プラントで計算した際の圧力と圧力容器内の水位履歴をそれぞれ図 2.2.1、図 2.2.2 に示す。本解析では、FP 移行経路の違いに着目するため、格納容器の破損圧力で D/W が過圧破損するケースと格納容器ベントをする 2 ケースの解析を実施している。また RCIC は 8 時間駆動するとした。上述した挙動を示していることがわかる。

(2) FP 移行挙動解析コード ART

ART コードは、日本原子力研究開発機構で開発した機構論モデルに基づく FP 移行挙動解析コードである。本解析では、現在開発を進めている ART Ver. 3.0 を使用した。ART コードは、種々の軽水炉プラントや再処理施設を模擬できるように汎用性のある区画モデル (ノード・ジャンクション法) を採用している。区画モデルとは、区画と区画間流路から構成され、区画流路を通じて区画間の物質移行が行われるとするものである。

ART コードで対象とする現象を表 2.2.1 に示した。基本的に MELCOR 等の一般的な FP 移行挙動解析コードと同様のモデルが採用されている。ART で解かれる物質移行方程式は、物理状態毎に異なっており簡略化すると次式で示される。気体状 FP の物質移行方程式は次式である。

$$\frac{d}{dt} M_{gas} = S_{fuel} \mp S_{condensate} - \lambda_{partition} \pm \lambda_{fluid} - \lambda_{scrub} + \lambda_{re-vola} \quad (2.2.1a)$$

また、エアロゾル状 FP の物質移行方程式は、粒径毎に定式化されており次式で示される。

$$\frac{d}{dt}M_{aero}(r) = S_{fuel} \pm S_{condensate} - \lambda_{deposition} + \lambda_{re-suspension} \pm \lambda_{agglome} \quad (2.2.1b) \\ \pm \lambda_{fluid} - \lambda_{scrub} + \lambda_{entrainment} - \lambda_{spray} - \lambda_{filter}$$

上記の連立微分方程式を陰的な後退差分法で求解し dt 秒後の質量を求める。ART ver3.0 コードでは、将来的な化学反応モデルの実装のため、各ノードを構造物表面境界層とバルク層の副領域に分割し、任意の計算時間においてそれぞれの副領域が相平衡 or 化学平衡状態であると仮定することで、構造物上での蒸発と凝縮（再蒸発を含む）を計算している。副領域間の物質移行は、気体の場合は濃度勾配を駆動力とする拡散であり、エアロゾルの場合は各エアロゾル沈着モデルにより計算される。本年度の解析では、副領域間の物質移行速度に感度解析係数を乗じることで間接的に蒸発、凝縮や再蒸発の影響を考慮した。なお、この影響度解析では熱による再蒸発のみを扱っており、近年研究が盛んな化学的な再蒸発効果は含まない。

(3) ART 解析条件

① プラント体系

ART コード解析で模擬した BWR プラント体系を図 2.2.3 に示した。プラント体系を区画（ノード）と区画間流路（ジャンクション）で BWR プラントを模擬している。模擬したプラント部位は、原子炉冷却系として炉心、上部プレナム、蒸気ドーム、ダウンコマ、下部プレナム、再循環ループ（A/B の 2 系統）の 6 ノード、格納容器系としてドライウエル、ペDESTAL、圧力抑制室、ベント管の 4 ノード、原子炉建屋としてトラス室、建屋の 2 ノードである。総ノード数は、環境セル（2 ノード）、冷却水の貯蔵タンクを含めて 15 ノードである。なお、各ノードの幾何形状は、78.4 万 kW 級沸騰水型原子炉（BWR-4、Mark-I 型）を想定した容積や、直径を与えている。

② 熱水力条件

熱水力条件は、あらかじめシビアアクシデント総合解析コード THALES-2 [2.2]を境界条件として設定している（同節(1)の条件）。具体的に設定するパラメータとしては、圧力、流体の体積流量、温度、構造材温度、液相体積、温度である。

③ 対象とする FP 及び構造材

本解析では、従来のソースターム解析手法と同様に、化学・物理的に性質が類似する FP 及び構造物を 1 つのグループにまとめた。FP グループは、希ガス、アルカリ金属、アルカ

リ土類金属、ハロゲン、カルコゲン、白金族元素、遷移金属、3価・4価ランタノイド/アクチノイドである（表 2.2.2）。

初期インベントリは、78.4 万 kW 級 BWR-4 Mark-I である福島第一原発 2 号機事故時のソースターム解析のために、サンディア国立研究所が ORIGEN-S を用いて評価したインベントリ[2.3]を用いた。なお、具体的な計算条件は、炉心熱出力 2381 MWt、炉内 U インベントリ 94 tHM、9x9B 型燃料集合体、集合体数 548 本、濃縮度 3.8 wt%、平均比出力 25.6 MW/t、平均燃焼度 20.17 GWd/t とされる。また、各 FP の放出履歴は、（機構論的な放出モデルである CORSOR-M に基づく）THALES 解析で得られた傾向を境界条件として与えた。

(4) 解析結果

a) 希ガス

図 2.2.4 に TB シーケンスの D/W 破損及び CV ベントにおける Xe 移行挙動を示した。まず希ガスは非凝縮性の気体（常に気体状）であり水への溶解度が小さいため、原子炉施設内での自然沈着等の低減効果は小さく、基本的には流体による移行挙動に従う性質がある。燃料から放出された Xe は、原子炉冷却系に一時的に保持された後に、逃し安全弁により W/W に移行する。W/W に移行した Xe の一部は、真空破壊弁を経由して D/W に移行する。また、原子炉圧力容器が破損した後では、D/W の圧力が W/W より高くなるため、ベント管を通じて再度 W/W の Xe 存在量が増加する。その後、D/W 破損ケースでは D/W→建屋→環境の順に移行する。一方で CV ベントでは、W/W からスタックを経由して環境へと放出される。

b) セシウム

図 2.2.5 に TB シーケンスの D/W 破損及び CV ベントにおける Cs 移行挙動を示した。燃料から放出した Cs は、一時的に圧力容器内に保持されるが、凝縮によりエアロゾル状のためその一部が原子炉圧力容器の構造材や壁面に沈着する。その後、Xe と同様に、逃し安全弁の作動により W/W に移行する。逃し安全弁で移行する Cs はエアロゾル状のため、W/W でのスクラビングにより W/W の液相に大部分が捕集される。スクラビングにより液相に捕集できなかった Cs は、エアロゾルのため重力沈降等により液相に沈着する。気相に浮遊する Cs は、Xe と同様に、真空破壊弁を通して D/W に移行する。また、原子炉圧力容器が破損時には、原子炉圧力容器に残存する Cs が D/W に移行する。その後、D/W 破損ケースでは D/W→建屋→環境の順に移行する。一方で CV ベントでは、W/W からスタックを経由して環境へと放出される。

c) ヨウ素

図 2.2.6 に TB シーケンスの D/W 破損及び CV ベントにおける I 移行挙動を示した。その挙動は、Cs と同様にエアロゾル状のため、類似の挙動を示す。ここで、本解析ではヨウ素グループの代表化学種の物性値を凝縮性の高い CsI を選定しているが、揮発性の高い I₂ な

どを選定した場合希ガスの移行挙動に近づくことに留意が必要である。また、Cs と移行挙動が違う点としては、冷却材等の液相において水の放射線分解に伴い溶存状のヨウ素イオン I から揮発性の高い I₂ に生成され液相から気相に再移行（再揮発）する点である。D/W 破損もしくは CV ベント後では、エアロゾル沈着やスクラビングによって W/W 液相からの再揮発によりヨウ素存在量が減少する。

表 2.2.1 FP 移行挙動に係る物理現象と感度解析で対象とする現象

	現象	ART v3.0 におけるモデル
1	エアロゾルの凝集	Maeros モデル
2	熱泳動によるエアロゾル沈着	Block モデル Waldman モデル
3	重力沈降によるエアロゾル沈着	
4	拡散泳動によるエアロゾル沈着	水の凝縮/蒸発フラックス
5	ブラウン拡散によるエアロゾル沈着	Fick の法則
6	強制対流によるエアロゾル沈着	層流：H.Schlichting、Gromely 乱流：Davies、Friendlander
7	特殊構造物へのエアロゾル慣性沈着 (気水分離器、曲がり配管、等、)	
8	エアロゾルの再浮遊	簡易 RHH モデル Nguyen and Loyalka (2015)
9	気液自由界面での気体物質移行	気相—液相間の二重境膜モデル
10	スプレー時の気体/エアロゾルの除去	Postma and Pasedag(1973)
11	フィルターによるエアロゾル除去	Vendel et. al. (2009)
12	スクラビング時のエアロゾル除去	SPARC90 モデル(凝縮を除く)
	スクラビング時の気体の除去/再揮発	気泡—液相間の二重境膜モデル
13	飛沫同伴によるエアロゾル生成	気泡流： Luissier and Villermaux(2012) Koch et. al.(2000) Churn 流：未実装
14	水の凝縮/蒸発	構造材/液相表面での凝縮/蒸発（動的） エアロゾル表面での凝縮/蒸発（動的）（Kelvin 効果+溶質効果を考慮）
15	凝縮/蒸発（水を除く）	飽和蒸気圧モデル（静的） + 均質/不均質核生成モデル
16	液相中のヨウ素化学	簡易モデル（無機 I ₂ のみ）
17	化学吸着	未実装

表 2.2.2 解析で対象とする FP グループ

	グループ	該当する元素/同位体[2.2]	燃料中の インベントリ/kg (元素モル数) [2.3]	ART で用いた 元素/化学種
1	希ガス	Kr-85, Kr-85m, Kr-87, Kr-88, Xe-133, Xe-135, Xe-135m	371.14 (2826.9)	Xe
2	アルカリ金属	Cs-134, Cs-136, Cs-137, Rb- 86, Rb-88	212.90 (1601.9)	Cs ₂ MoO ₄
3	アルカリ土類 金属	Ba-137m, Ba-139, Ba-140, Sr-89, Sr-90, Sr-91, Sr-92	159.63 (1162.4)	BaO
4	ハロゲン	I-131, I-132, I-133, I-134, I- 135	13.97 (110.1)	CsI
5	カルコゲン	Te-127, Te-127m, Te-129, Te- 129m, Te-131, Te-131m, Te- 132	34.52 (270.5)	TeO ₂
6	白金族	Ru-103, Ru-105, Ru-106, Rh- 103m, Rh-105, Rh-106	243.44 (2408.6)	RuO ₂
7	遷移金属	Co-58, Co-60, Mo-99, Tc- 99m, Nb-95, Nb-97, Nb-97m	280.30 (2921.6)	MoO ₂
8	4 価ランタノイ ド/アクチノイ ド	Ce-141, Ce-143, Ce-144, Np- 239, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Zr-95, Zr-97	1005.93 (7179.3)	CeO ₂
9	3 価ランタノイ ド/アクチノイ ド	Am-241, Cm-242, Cm-244, La-140, La-141, La-142, Nb- 147, Y-90, Y-91, Y-92, Y-93, Y-91m, Pr-143, Pr-144, Pr- 144m	812.17 (5846.9)	La ₂ O ₃

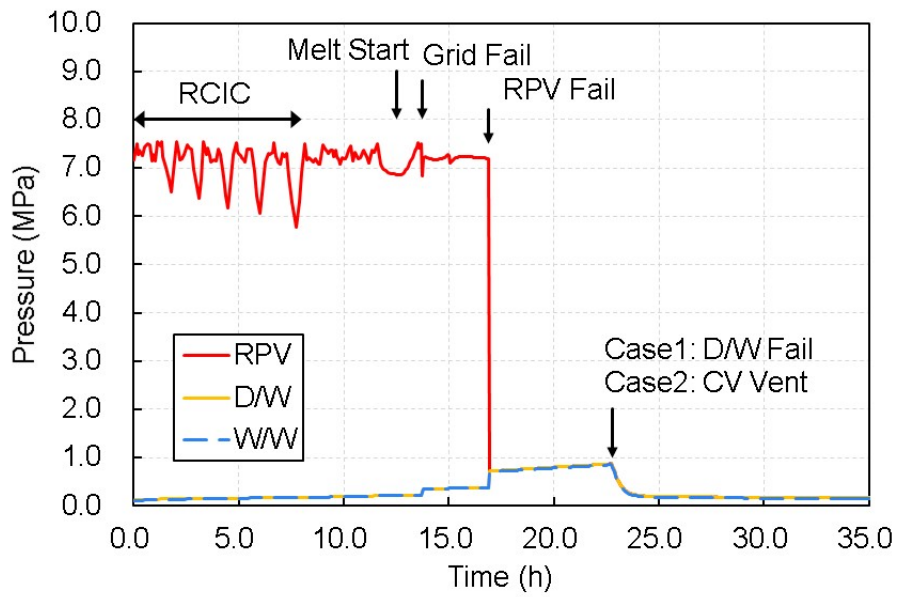


図 2.2.1 THALES 解析で得られた原子炉冷却系の圧力履歴

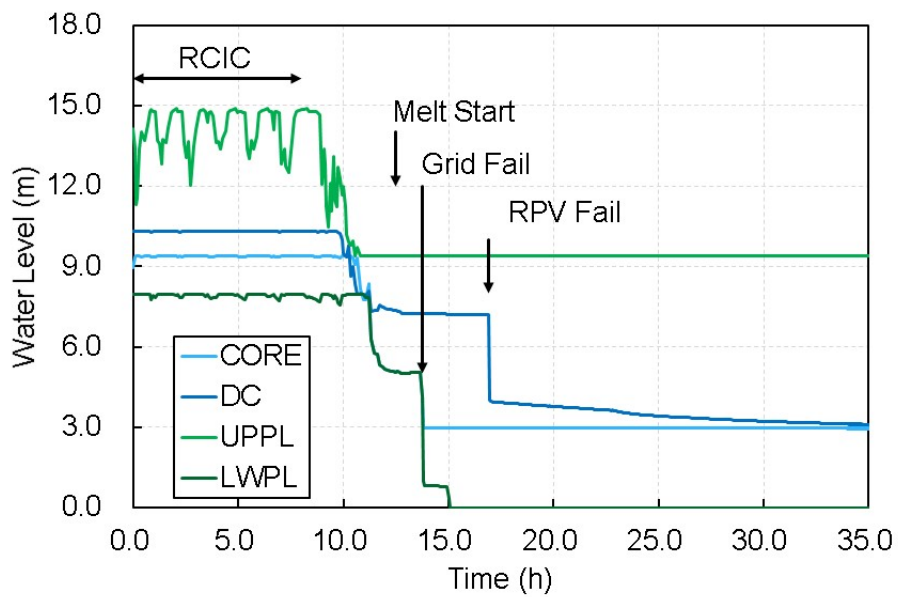


図 2.2.2 THALES 解析で得られた原子炉冷却系の水位履歴

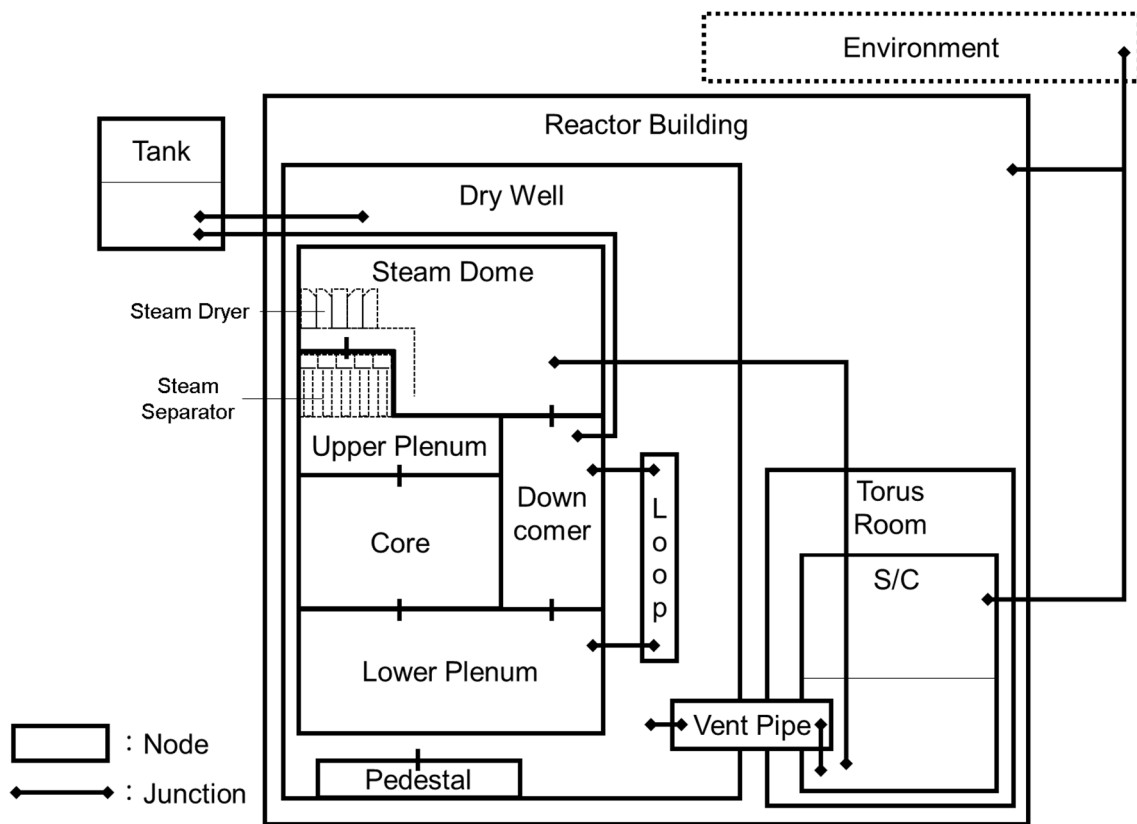
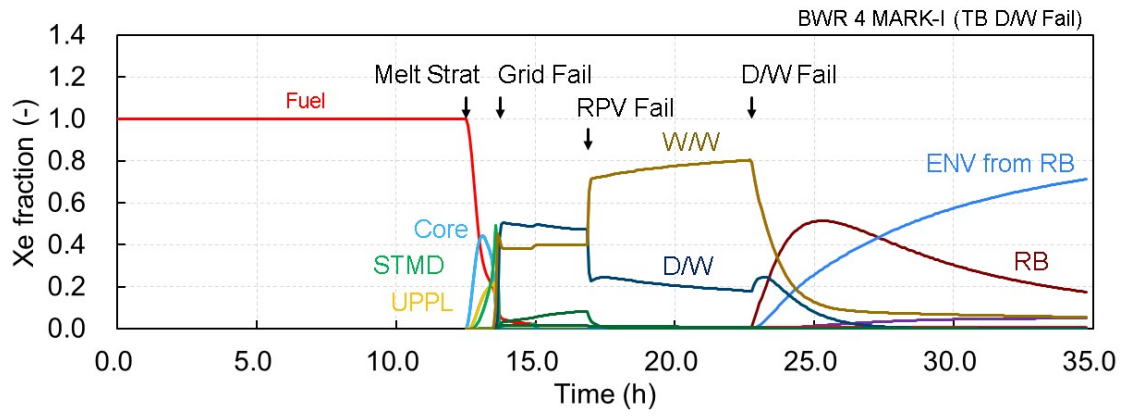


図 2.2.3 ART 解析で模擬した BWR プラント

(a)



(b)

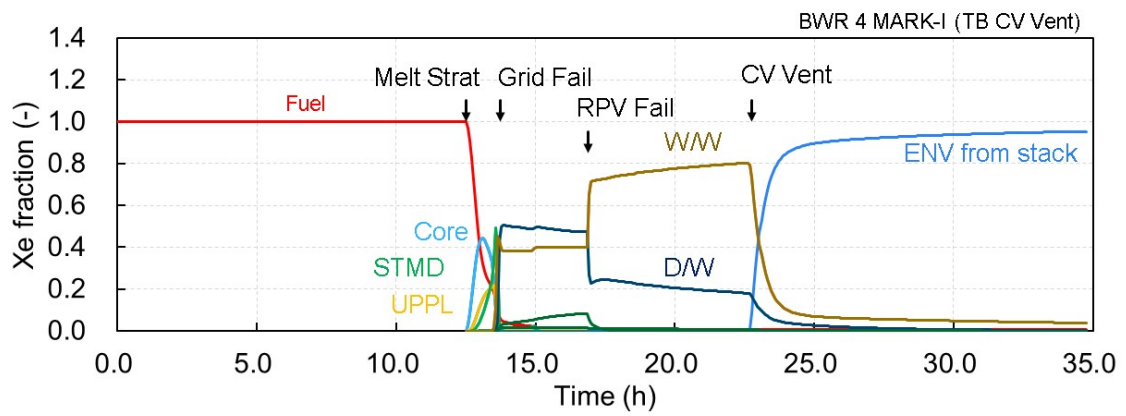


図 2.2.4 TB シーケンス(a) D/W 破損及び(b)CV ベントにおける Xe 移行挙動

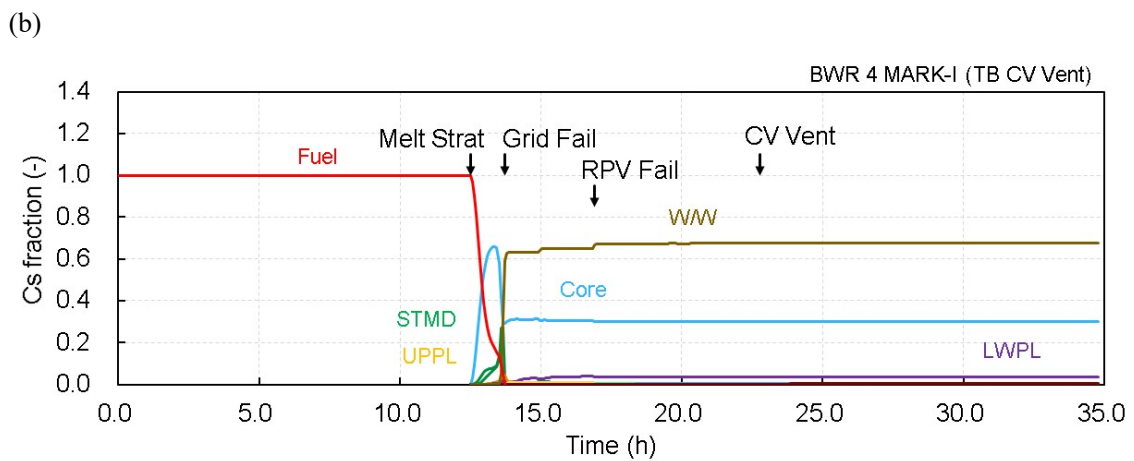
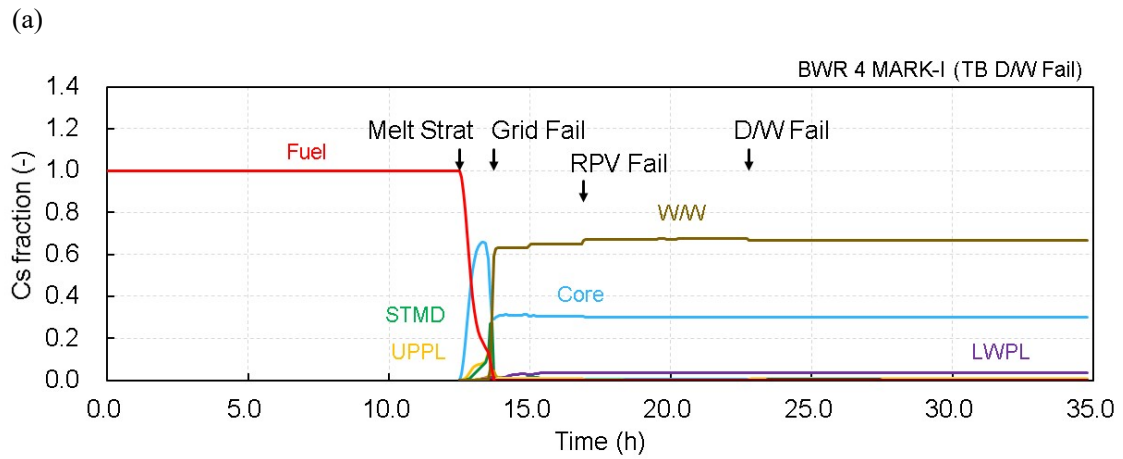


図 2.2.5 TB シーケンス(a) D/W 破損及び(b)CV ベントにおける Cs 移行挙動

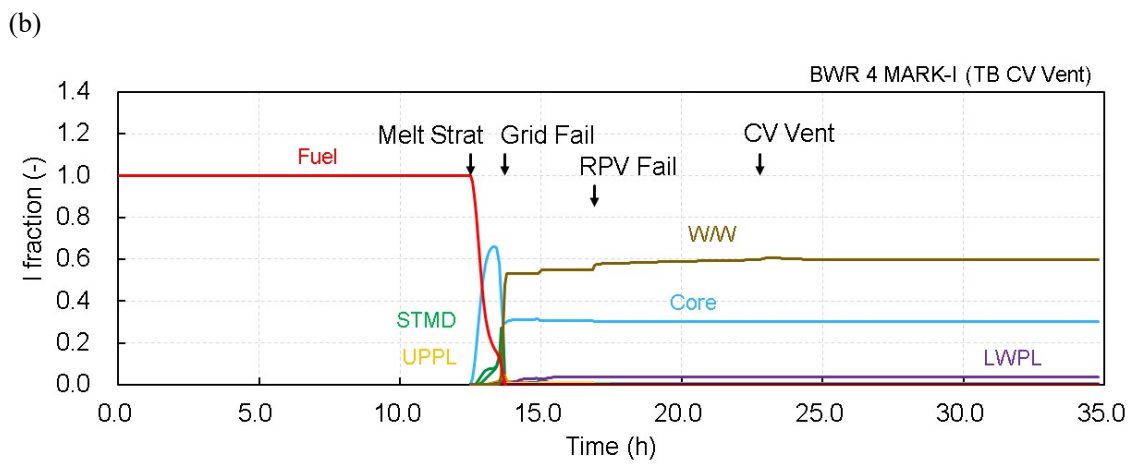
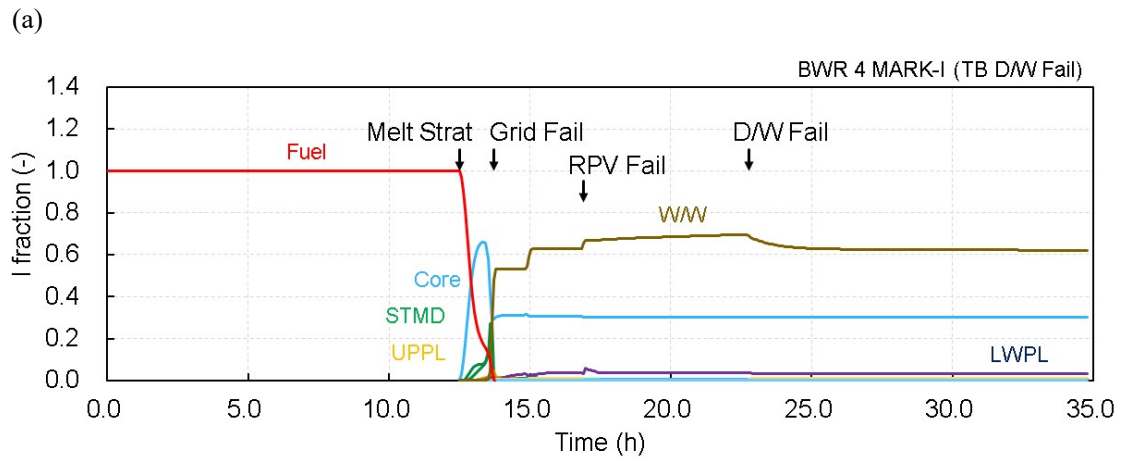


図 2.2.6 TB シーケンス(a) D/W 破損及び(b)CV ベントにおける I 移行挙動

2.3. FP 移行挙動に係る影響度の解析

ソースターム評価における不確かさは、どこから FP がリークするか等の事故進展の仮定、燃料溶融、熱水力モデルや FP 移行モデル自体の精度や、各モデルをプログラム化した際の離散化誤差などから生じる複合的な物である。本検討では、FP 移行モデルにのみ着目し、その影響度を評価し、支配的な物質移行現象を検討した。特に、シビアアクシデント晩期で重要であると考えられる各再移行についても、それらモデルの精緻化の必要性について検討した。

なお、本影響度を評価及びその結果の取り扱いは、次の点に注意する必要がある。

結果の取り扱い注意事項

- 解析コードの物質移行モデルが定性的に正しいと仮定する。
- 熱水力条件は全ての解析において共通の境界条件として与えている。つまり、FP 崩壊熱の熱水力条件へのフィードバックが行われない。
- 本影響度は各物質移行モデルに相対誤差 $\pm 20\%$ もしくは $\pm 40\%$ を仮定して計算した物であるが、実際のコード誤差を示すものではない。また、相対誤差 $\pm 20\%$ 及び $\pm 40\%$ についての根拠はない。
- 本影響度は物質移行モデルのみの影響度であり、プログラム化の離散化誤差や熱水力モデルの誤差による影響は含まれない。

2.3.1. 影響度評価手法及び条件

FP 移行挙動に係る現象影響度を評価では、感度解析手法の一種である Morris 法[2.4, 2.5]を用いた。これは、Morris 法に基づく感度解析手法では現象影響度だけでなく、現象間の相関を取得できるためである。(1) で Morris 法に基づく影響度解析手法の概要について説明する。(2) では Morris 法で用いた FP 移行挙動に係る現象影響評価条件を示す。

(1) Morris 法による影響度解析の概要

Morris 法[2.4, 2.5]では、 k 個のモデルに対して、次の手順に従った感度解析パラメータセット $\mathbf{f} = (f_1, f_2, \dots, f_k)$ を作成し、各モデルの影響度を解析する。

- ① 初期入力パラメータセット $\mathbf{f}^{(0)}$ について、それぞれの入力パラメータに 0.6、0.8、1.0、1.2、1.4 から値を一つ選び、設定する。
- ② 値を設定した初期入力パラメータセット $\mathbf{f}^{(0)}$ からパラメータ番号 i を一つ選択する。
- ③ $j = -2, -1, 1, 2$ からランダムに一つ値を選択して、②で選択したパラメータ

番号のパラメータ値 f_i に変動値 $\Delta \times j$ を加算する。変動幅 Δ は、 $\pm 20\%$ とする。

- ④ ③で変化させたパラメータ値 f_i を含むセット $\mathbf{f}^{(1)}$ とする。 f_i 以外の変数は、全て $\mathbf{f}^{(0)}$ と同じ値である。
- ⑤ パラメータ番号 m ($\neq i$) を一つ選択する。
- ⑥ ③と同様に、⑤で選択したパラメータに値を加算する。 $f_m = 1.0 + \Delta \times j$
- ⑦ ④と同様に、パラメータセット $\mathbf{f}^{(1)}$ の⑥のパラメータ値 f_m で更新し、 $\mathbf{f}^{(2)}$ とする。
- ⑧ ④～⑦を繰り返し実行し、全てのパラメータ（総数 k ）を $\Delta \times j$ 変化させる。

①～⑦の手順で R 回繰り返し、感度解析パラメータセットを $(k + 1) \times R$ 個作成する。

簡単な例として、対象パラメータ数 $k=4$ 、繰返し数 $R=2$ の場合のパラメータセット \mathbf{f} を表 2.3.1 に示す。1つ目の感度解析パラメータ f_1 は、 $R=1$ 回目ではその他感度解析パラメータにおいて $f_2 = 1.4$ 、 $f_3 = 1.2$ 、 $f_4 = 1.0$ の時に $\Delta \times j = +0.4$ 変化させた場合の影響度、 $R=2$ 回目ではその他感度解析パラメータにおいて $f_2 = 0.6$ 、 $f_3 = 1.4$ 、 $f_4 = 0.6$ の時に $\Delta \times j = +0.4$ 変化させた場合の影響度が得られる。この時、1つ目の感度解析パラメータ f_1 が完全に独立でその他感度解析パラメータの影響を受けない場合は、 $R=1$ と $R=2$ の間での影響度は等しくなる。一方で、1つ目の感度解析パラメータ f_1 がその他感度解析パラメータを従属関係(相関)がある場合は、影響度が異なることとなる。

具体的な影響度の計算方法を以下に示す。パラメータ i についての影響度 e_i は、感度解析パラメータセット $\mathbf{f}^{(l)}$ と $\mathbf{f}^{(l-1)}$ でパラメータ i を変動させた際の数値結果 $E(\mathbf{f})$ (例えば、Cs と I の燃料インベントリに対する環境中への放出割合) を用いると次式で表される。

$$e_i = \left| \frac{E(\mathbf{f}^{(l)}) - E(\mathbf{f}^{(l-1)})}{\Delta \times j} \right| \quad (2.3.1)$$

この影響度 e_i は繰り返し回 R ごとに計算されるため、影響度を R 回計算することとなる。各繰り返し回における影響度の平均値 \bar{e}_i 、標準偏差 σ は次より求められる。

$$\bar{e}_i = \frac{1}{R} \sum_{n=1}^R e_i(n) \quad (2.3.2)$$

$$\sigma_i = \sqrt{\frac{1}{R} \sum_{n=1}^R \{d_i(n) - \mu\}^2} \quad (2.3.3)$$

ここで、標準偏差 σ は、初期パラメータセット $\mathbf{f}^{(0)}$ やパラメータ変動方法の違いにより生じ

るものである。つまり、パラメータ間の相関である。

(2) 影響度解析条件

Morris 法を用いた影響度解析を実施するにあたり、2.2 節に示した ART の物質移行方程式の各現象モデルによる変化速度に感度解析係数 $\mathbf{f} = (f_1, f_2, \dots, f_k)$ を導入した。

気体状 FP

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} M_{gas} = & S_{fuel} \mp f_1 S_{condensate} - f_2 \lambda_{partition} \pm \lambda_{fluid} - f_3 \lambda_{scrub} \\ & + f_4 \lambda_{re-vola} \end{aligned} \quad (2.3.4a)$$

エアロゾル状 FP

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} M_{aero}(r) = & S_{fuel} \pm f_1 S_{condensate} - f_{5-9} \lambda_{deposition} + f_{10} \lambda_{re-suspension} \\ & \pm f_7 \lambda_{agglome} \pm \lambda_{fluid} - f_{11} \lambda_{scrub} + f_{12} \lambda_{entrainment} \\ & - \lambda_{spray} - \lambda_{filter} \end{aligned} \quad (2.3.4b)$$

本影響度解析において対象とする現象は、気体の気液分配、エアロゾルの凝集、エアロゾルの熱泳動沈着、拡散泳動沈着、重力沈降沈着、強制対流による沈着、慣性衝突による沈着、再浮遊、凝縮・蒸発、飛沫同伴、スクラビングの全 11 現象である。また、対象とした現象群に対して、2.3.1 項 (1) に示す Morris 法に従い感度解析パラメータセットを作成した。繰り返し回数 R は 50 回とし、総計 600 (= (11+1) × 50) ケースの解析を実施し、解析終了時刻における燃料インベントリに対するセシウム及びヨウ素の環境放出量に対する各モデル影響度とモデル相関を評価した。

$$e_i = \left| \frac{M_{environment}(\mathbf{f}^{(l)}) - M_{environment}(\mathbf{f}^{(l-1)})}{\Delta \times j} \right| \quad (2.3.5)$$

2.3.2. 影響度評価結果

評価結果を利用するにあたり、本影響度解析は使用した物質移行モデルの精度や性質に大きく依存するものであり、使用するモデルを変更することで結果が変わり得ることを重ねて注意されたい。

Cs 及び I についての FP 移行挙動に係る現象影響度評価の結果を図 2.3.1 及び図 2.3.2 に示

した。図 2.3.1 及び 2.3.2 の通り、影響度 e_i が大きくなるにつれてモデル相関 σ_i が大きくなる Morris 法の一般的な傾向を得た。また、本影響度解析の一般的な傾向として、原子炉施設から環境放出に至るまでの経路で最も出口（環境）に近い解析ノード（場所）で支配的な移行現象の影響度が高くなった。

Cs の CV ベントケースについて、スクラビングと重力沈降の影響度 e_i が大きく評価された（図 2.3.1 (b)）。これは、CV ベントで環境中に放出される Cs 移行元が W/W の気相部、つまり W/W の気相に浮遊するエアロゾルのためであり、そのエアロゾル浮遊量を支配する現象を反映した結果であると考えられる。まず、W/W 気相部の Cs エアロゾルは、燃料から放出された Cs が主蒸気配管経由で移行し、W/W でのスクラビングにより除去されなかったものである。さらに、スクラビングで除去されず W/W 気相部に浮遊する Cs エアロゾルは、CV ベントにより環境に放出されるまでの間に、エアロゾル沈着により減少する。本解析では、エアロゾルの沈着駆動力として、重力沈降の最も大きくなった。これらの移行現象に基づき、スクラビングと重力沈降の影響が大きく評価されたと考えられる。次いで、圧力容器内で重要と考えられるエアロゾルの凝集と熱泳動沈着の影響が大きく評価された。これは、圧力容器から W/W へのスクラビング時の境界条件である圧力容器内の浮遊エアロゾル量に影響するためであると考えられる。また、再移行モデルの中では飛沫同伴による影響が最も大きかったが、圧力容器や格納容器内での燃料から放出された FP プルームからのエアロゾルの除去現象（重力沈降）に比べ約 1/5 の影響度であった。

Cs の D/W 破損ケースについて、原子炉圧力容器内で重要とされるエアロゾルの凝集、熱泳動、重力沈降の影響度 e_i が大きく評価された（図 2.3.1 (a)）。これは、環境に放出される Cs 源が D/W に浮遊する Cs エアロゾルであることに加え、この D/W 内浮遊エアロゾルは圧力容器破損時に圧力容器内に浮遊する Cs エアロゾル由来であるためである。また D/W に放出された Cs エアロゾルは、重力沈降により D/W 気相部より徐々に除去されるため、同程度の影響であると考えられる。CV ベントケースと同様に、再移行モデルの中では飛沫同伴による影響が最も大きかった。また TB ケースにおいて、飛沫同伴は W/W でのエアロゾル生成に寄与するため、D/W 破損ケースではその寄与はさらに低下し、圧力容器や格納容器内での燃料から放出された FP プルームからのエアロゾルの除去現象（重力沈降）に比べ約 1/10 の影響度であった。

I の CV ベントケースについて、重力沈降 > スクラビングの順に影響度 e_i が大きく評価された（図 2.3.2 (b)）。これは、Cs と同様に、CV ベント時の W/W の浮遊エアロゾル量に大きく寄与する現象であるためである。しかしながら、Cs に比べ、重力沈降の影響は大きく、スクラビングの影響度は小さい結果となった。追加の詳細な検討が必要ではあるが、これは I が Cs に比べて大きなエアロゾルサイズであり、常に十分にスクラビングで除去されていたためだと考えられる。また、スクラビングによる除去量を示す除染係数 DF は粒径に依存してオーダーで異なるのに対し今回の変動幅は数 10%にとどまっており、スクラビングの影響を過小評価した可能性がある。本ケースでは、再移行モデルの中では飛沫同伴による影

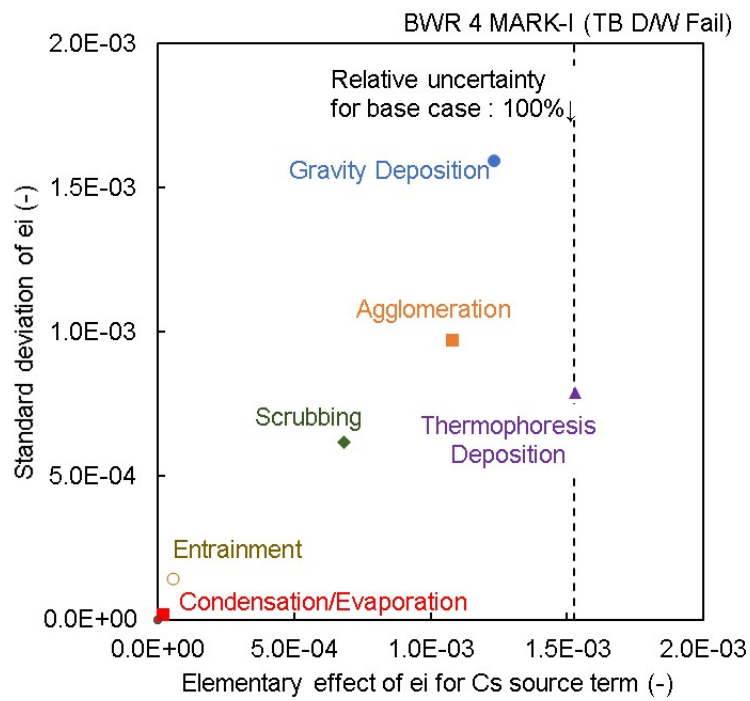
響が最も大きくなった。

I の D/W 破損ケースについて、重力沈降 > 凝集 > 気液分配の順に影響度 e_i が大きく評価された (図 2.3.2 (b))。これは、Cs と同様に、原子炉圧力容器内で支配的な現象であり、Cs に比べ I のエアロゾル径が大きいためであると考えられる。さらに、D/W 破損ケースでは、水の放射線分解に伴うヨウ素の再揮発現象のため、気液分配の影響度が凝集と同等の影響度を持つことが示された。また、再移行モデルの中では凝縮・蒸発による影響が最も大きくなった。これは、本解析でヨウ素グループを代表した CsI は Cs グループで代表した Cs₂MoO₄ に比べ融点が低く、加熱により蒸発しやすいためである。

表 2.3.1 Morris 法を用いたパラメータ設定例 (対象パラメータ数 $k=4$ 、繰返し数 $R=2$)
 塗りつぶし：変化させるパラメータ

Round		Parameter				$\Delta \times j$
		f_1	f_2	f_3	f_4	
R1	$f^{(0)}$	0.8	1.4	1.2	1.4	
	$f^{(1)}$	0.8	1.4	1.2	1.0	-0.4
	$f^{(2)}$	1.2	1.4	1.2	1.0	+0.4
	$f^{(3)}$	1.2	1.4	1.0	1.0	-0.2
	$f^{(4)}$	1.2	1.8	1.0	1.0	+0.4
R2	$f^{(0)}$	0.8	0.6	1.4	0.6	
	$f^{(1)}$	1.2	0.6	1.4	0.6	+0.4
	...					
	$f^{(4)}$	1.2	1.0	1.0	0.2	-0.4

(a)



(b)

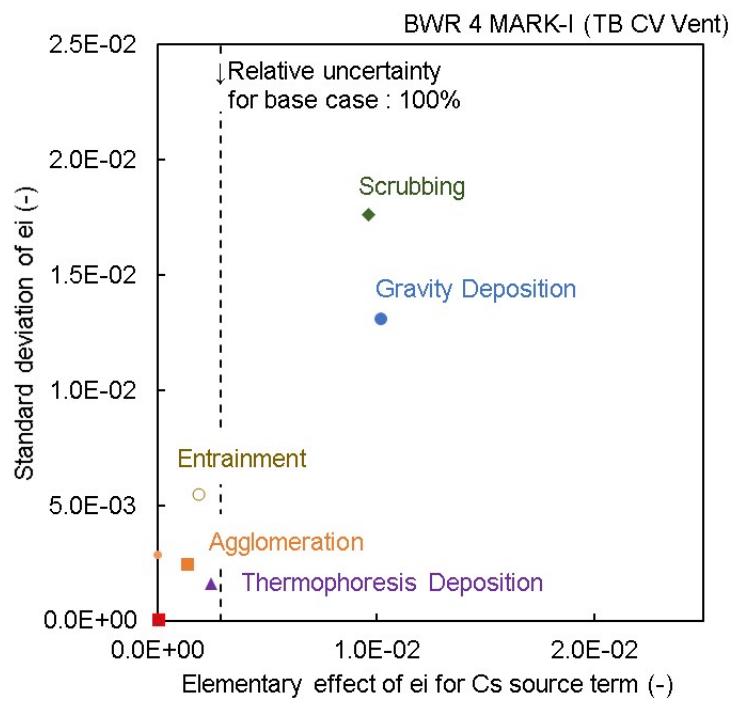
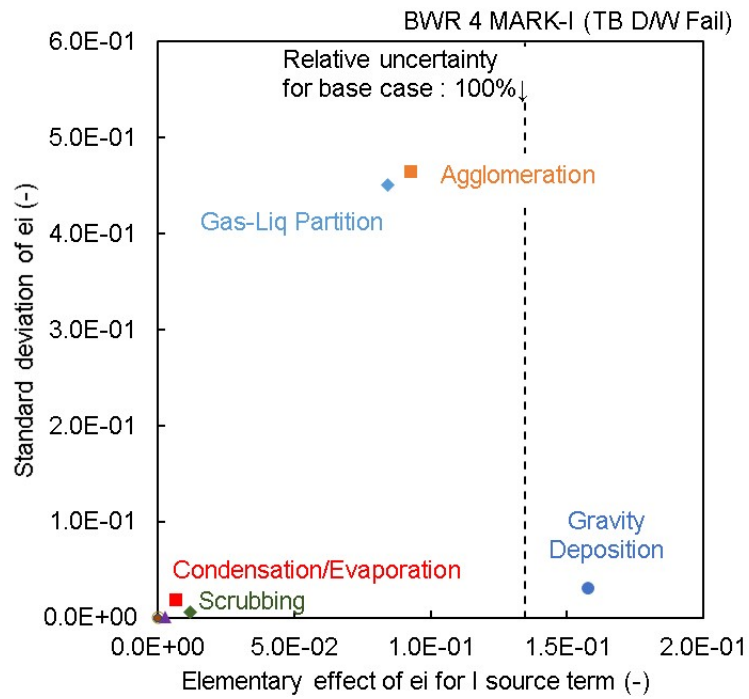


図 2.3.1 TB シーケンス(a) D/W 破損及び(b)CV ベントにおける Cs ソースタームに対する各現象の個別影響

(a)



(b)

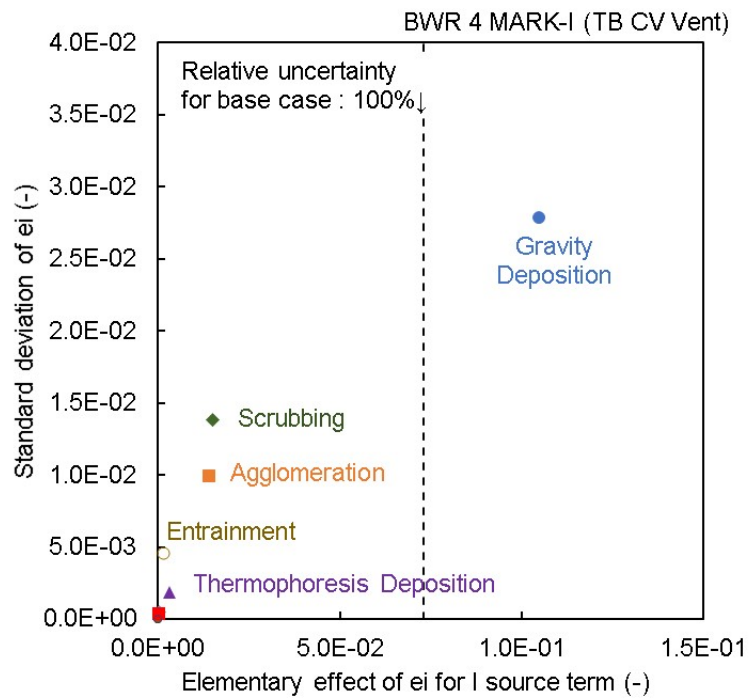


図 2.3.2 TB シーケンス(a) D/W 破損及び(b)CV ベントにおける I ソースタームに対する各現象の個別影響

2.4. まとめ（再移行挙動に係る重要な現象の検討）

FP の再移行（再浮遊、再蒸発、飛沫同伴、再揮発）を含む移行挙動モデルについて、複数の主要事故シーケンスに対する一般的なシビアアクシデント総合解析コードを用いたモデル影響度の解析を実施し、ソースタームに対して各移行挙動モデルが与える影響度及び各再移行挙動中で重要度の高い現象を検討した。本年度の評価では、再蒸発を含めて影響度を評価するとともに、移行経路の相違による影響度の違いに着目している。影響度解析の結果、原子炉施設から環境放出に至るまでの経路で最も出口に近い解析ノード（場所）で支配的な移行現象が高い影響度を示した。Cs について、TB シーケンスでは移行経路に依らず飛沫同伴が再移行挙動の中で比較的重要である事が示された。また、I に係る再移行現象として、CV ベントケースでは飛沫同伴が、D/W 破損ケースでは再蒸発が影響度の高いことが示唆された。

また、ソースターム評価の観点で重要度の高い現象（特にモデル開発や検証に向けて実験的な研究が必要かどうかの観点）を検討する上で、PIRT (Phenomena Identification and Ranking Table) 法と同様に、既往研究の知見に基づく現象の理解度やその実験的なデータの豊富さを考慮する必要がある。飛沫同伴については、気泡流等に関する実験データ及び既往知見が比較的多くある。再蒸発について熱的再蒸発メカニズムは良く理解はされているものの、シビアアクシデント特有の CsI 等に対する検証に資する実験データは限られる。同様に化学的な再蒸発について検証やモデル開発に資する実験データは限られる。以上を踏まえて、再移行挙動において優先的に実験データの拡充が必要な再移行挙動としては、再蒸発（特に、化学的な再蒸発）であると考えられる。

参考文献

- [2.1] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度原子力施設等防災対策等委託費（シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化）事業 成果報告書」、2021.
- [2.2] M. Kajimoto et al., “Development of THALES-2, A Computer Code for Coupled Thermal-Hydraulics and FP Transport Analyses for Severe Accident at LWRs and Its Application to Analysis of FP Revaporization Phenomena,” Proc. International Topical Meeting on Safety of Thermal Reactors, Portland, OR, 584-592, 1991.
- [2.3] J. Cardoni and Z. Jankovsky, “Fukushima Daiichi Radionuclides Inventories,” SANDIA REPORT SAND2016-9065R, 2016.
- [2.4] M.D. Morris, “Factotial Sampling Plans for Preliminary Computational Experiments”, *technometrics*, 33, 2, 161-174, 1991.
- [2.5] X. Zheng, et. al., “Estimation of source term uncertainty in a severe accident with correlated variables,” Proceedings of the 22th international conference on nuclear engineering (ICONE-22), 2014 July 7-11; Prague, Czech Republic.

3. 化学挙動に関するデータ取得

3.1 目的

VERDON 実験データにおいて推定されるセシウム、ヨウ素等の主要な化学反応を対象に、シビアアクシデント解析コードに組み込まれる物理モデルの構築や改良に必要な基礎データを取得する。化学平衡モデルを有する VICTORIA コードを用いて VERDON-5 実験解析を行った結果では[3.1]、主要な沈着物としてモリブデン酸セシウム (Cs_2MoO_4) や二モリブデン酸セシウム ($\text{Cs}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$) である可能性が示された。さらに、シビアアクシデント時の原子炉冷却系までの温度範囲を再現可能な FP 放出移行挙動再現装置 (TeRRa : Test bench for FP Release and transport) [3.2, 3.3]を用いて実施した令和 2 年度の水蒸気雰囲気下での加熱試験では、モリブデンの影響によりヨウ素が下流の低温領域に移行しやすくなることが示された。この移行促進現象の要因としては、揮発性のヨウ素化合物、もしくは、セシウム及びヨウ素を含む微細なエアロゾル粒子の生成が考えられるが、これらを支持する十分な実験データは得られていない。そこで、モリブデンによるヨウ素の移行促進現象の詳細理解並びに実験データの拡充を行うために、TeRRa 装置の低温領域での捕集機能を強化するとともに、移行促進の駆動力として推定される化学反応の支配要因である酸素ポテンシャルを増加させた TeRRa 実験を実施し、生成された化合物の化学形態や結晶構造等の分析を行った。ここで酸素ポテンシャルを増加させることで、モリブデンによるヨウ素の移行促進現象を有意に測定できることが期待される。

実験では、放出時のセシウム、ヨウ素の化学形の一つとして考えられているヨウ化セシウム (CsI) [3.4]と FP の内、生成量が多くセシウムと化合物を形成する可能性が示されているモリブデン[3.4]の酸化物を供試材とし、ヨウ化セシウムと酸化モリブデン (MoO_3) の各蒸気種を反応させ、温度勾配管中のサンプリング管、焼結金属フィルタ等に付着した生成物等を対象に化学分析、X 線回折、ラマン分光計測等を実施することで、化合物の化学形態や結晶構造等に関する基礎データを取得した。雰囲気酸素ポテンシャルを変化させた実験結果を比較し、セシウム、ヨウ素の移行挙動や化学反応に与えるモリブデン及び雰囲気の影響を評価した。

3.2 TeRRa 実験装置の概要[3.2,3.3]及び、捕集機能の強化

FP 放出移行挙動再現装置 (TeRRa) の模式図及び外観をそれぞれ図 3.1 及び図 3.2 に示す。本装置は、試料を蒸発させる加熱炉と放出された FP 等を捕集する温度勾配管等から構成される。試料の加熱は、高周波誘導加熱もしくは電気抵抗炉により行い、最高温度はそれぞれ 2500 K 及び 1273 K である。加熱炉の下流に接続された温度勾配管は、1000 K (上流) ~ 400 K (下流) の間で線形的に温度分布が付けられており、充填されたステンレス鋼 (SS) 304L 製のサンプリング管 (内径 39.4 mm × 100 mm : 13 本) により FP の沈着物を捕集できる。この温度勾配管の他、温度勾配管の出口に配置されている SS 製焼結金属フィルタ (公称ろ過精度 : 0.8 μm)、PTFE メンブレンフィルタ (0.3 μm) によりエアロゾル粒子状の試料を捕集する。令和 3 年度は、令和 2 年度の実験結果をふまえ、焼結金属フィルタを通過したエアロゾル粒子を捕集するために、焼結金属フィルタと PTFE メンブレンフィルタの間に金属リボン配置し、FP の沈着物を捕集する。また、これらの下流側に設置されたガス捕集瓶中の

水酸化ナトリウム及びチオ硫酸ナトリウム溶液 (0.2 mol/L NaOH + 0.02 mol/L Na₂S₂O₃) によりガス状の試料を捕集することが可能である。

3.3 水蒸気雰囲気及び水蒸気-酸素雰囲気におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の高温化学反応

3.3.1 実験条件

加熱実験には、高純度のヨウ化セシウム粉末 (和光純薬工業製、99.9%) と酸化モリブデン粉末 (三津和化学薬品製、99.9999%) を供した。表 3.1 及び図 3.3 にそれぞれ加熱条件及び加熱体系を示す。また、図 3.4 に加熱温度履歴を示す。ヨウ化セシウム粉末約 1.3 g 及び酸化モリブデン粉末約 1.3 g を、電気抵抗炉を 1273 K まで加熱した場合のそれぞれ約 1050 K 及び約 1020 K の位置に白金製るつばに入れて装荷した。電気抵抗炉の温度を 1273 K (昇温速度 10 K/min、保持時間 60 分)、温度勾配管の温度を 1023 K (上流) ~ 400 K (下流) とし、加熱実験 (CsI+MoO₃ 実験①及び CsI+MoO₃ 実験② : 2 ケース) を行い、蒸発した試料を温度勾配管に充填されている SS304L 製のサンプリング管、焼結金属フィルタ、メンブレンフィルタ等に沈着させた。雰囲気は、露点 60°C の水蒸気を含むアルゴン (Ar) 及びアルゴン-酸素 1% (Ar-1%O₂) ガスフロー (2 L/min) の 2 条件とし、それぞれ酸素ポテンシャルが比較的低い、及び比較的高い条件とした。尚、加熱実験においてメンブレンフィルタが閉塞して装置内が加圧されたため、保持時間 16 分及び 17 分においてメンブレンフィルタをバイパスさせ加熱実験を継続した。尚、メンブレンフィルタの分析結果については、保持時間中において化学挙動が定常的であると仮定し、保持時間 60 分の結果として換算した。

加熱後、白金製るつば、サンプリング管、焼結金属フィルタ等の重量を電子天秤 (メトラートレド社製 XS304) により測定し、加熱前後の重量変化からセシウム、ヨウ素及びモリブデン化合物の沈着量とその分布を確認した。また、サンプリング管、焼結金属フィルタ、メンブレンフィルタ、下流側の配管内に沈着した試料やガス捕集液を ICP-MS 分析に供し、沈着物中に含まれる元素量を定量した。さらに、サンプリング管中に設置したクーポン (約 10 mm²) 及び焼結金属フィルタと PTFE メンブレンフィルタの間に設置した金属リボンにより捕集した沈着物を二次電子像観察、エネルギー分散型 X 線分析、X 線回折測定及びラマン分光計測に供することにより、微細組織、元素分布、結晶構造、分子構造等に関するデータを取得し、元素分析の結果と合わせて化学形態を評価した。

ICP-MS 分析 (アジレントテクノロジー社製 7900 ICP-MS) では、セシウム-133、ヨウ素-127、モリブデン-95 を対象とした。SS 製サンプリング管等に沈着したセシウム、ヨウ素及びモリブデン化合物を溶解させるため、サンプリング管等を、室温で 0.04 mol/L 水酸化ナトリウム溶液に 24 時間浸漬した後、室温で 3 mol/L 硝酸溶液に 3 時間浸漬し、さらに約 343 K で 0.15 mol/L 硝酸と 0.25 mol/L 硫酸の混合溶液に 3 時間浸漬した。沈着物の溶解後、溶液をそれぞれメスフラスコに回収し、イオン交換水を添加しメスアップを行って分析サンプルとした。二次電子像観察及びエネルギー分散型 X 線分析 (JEOL 社製 JSM-IT100) は、加速電圧を 15 kV で実施した。X 線回折測定 (リガク社製 MiniFlex) は、Cu-K α 線を用いて、加速電圧 40 kV、電流 15 mA で実施した。ラマン分光計測 (日本分光社製 MRS-4500) は、不活性雰囲気において、レーザー波長 532 nm とした。測定温度はいずれも室温とした。

3.3.2 実験結果

(1) サンプリング管、焼結金属フィルタ等の重量変化

CsI+MoO₃ 実験①及び CsI+MoO₃ 実験②において電子天秤により測定したサンプリング管及び焼結金属フィルタの加熱実験後の重量変化をそれぞれ図 3.5 及び図 3.6 に示す。サンプリング管の沈着物等による重量変化は、1000 K 以上（温度勾配管入り口からの位置：<0 mm）で高温になるほど大きくなり、CsI+MoO₃ 実験①に比べて CsI+MoO₃ 実験②の方が大きくなった。1000 K 以下（温度勾配管入り口からの位置：>0 mm）の重量変化は、CsI+MoO₃ 実験①においては、750~900 K（温度勾配管入り口からの位置：250~550 mm）付近でピークを示した。一方、CsI+MoO₃ 実験②においては、温度勾配管での重量変化は小さくなった。焼結金属フィルタでは、CsI+MoO₃ 実験①に比べて CsI+MoO₃ 実験②の方が大きくなった。

(2) サンプリング管、焼結金属フィルタ等への付着物中の元素量

CsI+MoO₃ 実験①及び CsI+MoO₃ 実験②において ICP-MS 分析により取得したサンプリング管、及び、焼結金属フィルタ及びメンブレンフィルタへの沈着物中のセシウム、ヨウ素及びモリブデンの元素量をそれぞれ図 3.7 及び図 3.8 に示す。CsI+MoO₃ 実験①においては、約 1100 K（温度勾配管入り口からの位置：-50 mm）及び 750~900 K（温度勾配管入り口からの位置：250~550 mm）付近にセシウム、ヨウ素が沈着しており、これらの沈着物中のセシウムとヨウ素の元素量はほぼ同じであった。但し、約 1100 K（温度勾配管入り口からの位置：-50 mm）の結果に関しては、(3)で示す二次電子像観察及びエネルギー分散型 X 線分析、及び X 線回折測定結果にてこれらを含む化合物が検出されなかった。またモリブデンについては、約 1100 K（温度勾配管入り口からの位置：-50 mm）以上で多量の沈着が見られた。CsI+MoO₃ 実験②において、セシウムについては、約 1100 K（温度勾配管入り口からの位置：-50 mm）以上及びフィルタで多量の沈着が見られた。一方で、ヨウ素については、フィルタで沈着が見られたものの、サンプリング管への沈着は微量であり、CsI+MoO₃ 実験①で見られた 750~900 K（温度勾配管入り口からの位置：250~550 mm）付近におけるセシウム、ヨウ素の沈着はなかった。モリブデンは 1000 K 以上及びフィルタで多量の沈着が見られ、1000 K 以下でも温度勾配管内全域において沈着が見られた。

装置流路内の付着物中の元素量の分析結果より算出したヨウ化セシウム及び酸化モリブデンのろつばからの蒸発量に対する各領域への沈着物の割合を表 3.2 に示す。ここで、焼結金属フィルタ等は、焼結金属フィルタとメンブレンフィルタの測定値、配管内とは、これらのフィルタとガス捕集瓶を接続する配管内に沈着した試料の測定値をもとに算出した値を示している。CsI+MoO₃ 実験①では、沈着物（電気抵抗炉、温度勾配管、配管内）中のセシウムとヨウ素の分布はほぼ同じであり、温度勾配管のサンプリングへの分布が多かった。一方で、焼結金属フィルタ、メンブレンフィルタを通過してガス捕集瓶までの配管内まで移行したのものについては、ヨウ素の方が大きくなった。モリブデンについては、電気抵抗炉のサンプリング管及び焼結金属フィルタ等に多量に分布した。CsI+MoO₃ 実験②において、セシウム、モリブデンの分布はほぼ同じであり、焼結金属フィルタまでへの分布が多かった。一方ヨウ素については、焼結金属フィルタまでの分布は微量であるが、ガス捕集瓶におけるヨ

ウ素の割合は約 0.44 と高い値を示した。

(3) サンプリング管等への沈着物の微細組織、元素分布、結晶構造及び分子構造

CsI+MoO₃ 実験①及び CsI+MoO₃ 実験②において、二次電子像観察及びエネルギー分散型 X 線分析により取得したサンプリング管及び金属リボンへの沈着物及び焼結フィルタ等による捕集粒子の二次電子像及びセシウム、ヨウ素、モリブデンの元素分布をそれぞれ図 3.9、図 3.10、図 3.11 及び図 3.12 に示す。CsI+MoO₃ 実験①においては、1100 K（温度勾配管入り口からの位置：-80 mm）でモリブデンを含む球状の沈着物が見られたが、セシウムとヨウ素の分布は観察されなかった。840 K（温度勾配管入り口からの位置：370 mm）、700 K（温度勾配管入り口からの位置：650 mm）、400 K（温度勾配管入り口からの位置：1250 mm）、金属フィルタではセシウム及びヨウ素を含む球状の沈着物が見られており、高温になるほど粒径が大きくなった。一方で、モリブデンはセシウム及びヨウ素とは共存せず、840 K（温度勾配管入り口からの位置：370 mm）では沈着物として、700 K（温度勾配管入り口からの位置：650 mm）、400 K（温度勾配管入り口からの位置：1250 mm）では球状の沈着物として少量見られた。これらの様相は、サンプリング管への沈着物及び金属フィルタでの捕集物については、令和 2 年度に実施した CsI 実験の結果と傾向が似ていることから、ヨウ化セシウムのエアロゾル粒子の沈着に起因しているものと考えられる。モリブデンについては、1100K（温度勾配管入り口からの位置：-80 mm）では酸化モリブデンのエアロゾル粒子の沈着、840 K（温度勾配管入り口からの位置：370 mm）では酸化モリブデンの凝縮、可能性として酸化モリブデンと SS との反応に起因しているものと考えられる。このように、サンプリング管及び金属フィルタまでは、ヨウ化セシウムと酸化モリブデンとの反応が生じたことを示す傾向は見られなかったが、金属リボン及びメンブレンフィルタではセシウムとモリブデンを含む微細な粒子が沈着又は捕集しており、ヨウ素はほとんど見られなかった。これは、下記の X 線回折測定結果も踏まえ、少量ではあるが酸化モリブデンとヨウ化セシウムとの反応によりごく微細なモリブデン酸セシウムエアロゾル粒子が生成し、金属フィルタを通過し下流側へ移行したことによるものと考えられる。CsI+MoO₃ 実験②においては、1100 K（温度勾配管入り口からの位置：-80 mm）、700 K（温度勾配管入り口からの位置：650 mm）、400 K（温度勾配管入り口からの位置：1250 mm）でセシウムとモリブデンを含む数 10 μm の沈着物、針状の沈着物、球状の沈着物が見られたが、全ての温度でヨウ素はほとんど見られなかった。また、金属フィルタ及びメンブレンフィルタでもサンプリング管と同様にセシウムとヨウ素を含む微細な粒子が見られた。一方で、金属リボンではヨウ素を含む数 10 μm の沈着物が見られた。これらの様相は、CsI+MoO₃ 実験①とは異なり、1100 K（温度勾配管入り口からの位置：-80 mm）より高温で酸化モリブデンとヨウ化セシウムの反応によりモリブデン酸セシウム及びヨウ素化合物が生成し、下流側への移行に伴い、モリブデン酸セシウム蒸気種の SS への凝縮、エアロゾル粒子の生成とその沈着、さらにヨウ素化合物蒸気種の<400 K（温度勾配管入り口からの位置：1440 mm）での金属リボンへの凝縮に起因すると考えられる。

CsI+MoO₃ 実験①及び CsI+MoO₃ 実験②において X 線回折測定により取得したサンプリング管への沈着物の X 線回折ピークをそれぞれ図 3.13 及び図 3.14 に示す。CsI+MoO₃ 実験①

においては、サンプリング管材料である SS に起因するピークの外、1100 K（温度勾配管入り口からの位置：-80 mm）で二酸化モリブデン（ MoO_2 ）に起因するピーク、1000 K（温度勾配管入り口からの位置：50 mm）以上で酸化鉄（ Fe_3O_4 ）に起因するピークが得られた。また、840 K（温度勾配管入り口からの位置：370 mm）以下においては、ヨウ化セシウムに起因するピークが得られた。CsI+ MoO_3 実験②においては、サンプリング管材料である SS に起因するピークの外、840 K（温度勾配管入り口からの位置：370 mm）以上では酸化鉄（ Fe_2O_3 ）に起因するピーク、700 K（温度勾配管入り口からの位置：650 mm）では三酸化モリブデン（ MoO_3 ）に起因するピークが得られた。また、微小なピークではあるが、640 K（800 mm）でモリブデン酸セシウム（ $\text{Cs}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ ）に起因するピークが見られた。

CsI+ MoO_3 実験①及び CsI+ MoO_3 実験②においてラマン分光測定により取得したサンプリング管への沈着物のラマンスペクトルピークをそれぞれ図 3.15 及び図 3.16 に示す。CsI+ MoO_3 実験①においては、1100 K（温度勾配管入り口からの位置：-80 mm）で SS 酸化物（ Cr_2O_3 、 FeCr_2O_4 ）に起因するピークが見られた他は、840 K（温度勾配管入り口からの位置：370 mm）から < 400 K（温度勾配管入り口からの位置：1580 mm）で酸化モリブデン（ MoO_2 、 Mo_4O_{11} ）に起因するピークが見られた。CsI+ MoO_3 実験②においては、1100 K（温度勾配管入り口からの位置：-80 mm）及び 840 K（温度勾配管入り口からの位置：370 mm）で二モリブデン酸セシウム（ $\text{Cs}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ ）に起因するピークが見られた。さらに、下流側への移行に伴い、三モリブデン酸セシウム（ $\text{Cs}_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}$ ）、四モリブデン酸セシウム（ $\text{Cs}_2\text{Mo}_4\text{O}_{13}$ ）、五モリブデン酸セシウム（ $\text{Cs}_2\text{Mo}_5\text{O}_{16}$ ）に起因するピークが得られた。このように下流側への移行に伴いモリブデンが高次となるモリブデン酸セシウム化合物が生成することは、既往研究における同様の実験においても確認されている[3.5]。これは、図 3.17 に示す平衡状態における CsI+ MoO_3 実験①及び CsI+ MoO_3 実験②の雰囲気酸素ポテンシャルが表す通り、CsI+ MoO_3 実験②の雰囲気酸素ポテンシャルが高く二酸化モリブデンより三酸化モリブデンの方が安定であることから、三酸化モリブデン蒸気種のまま下流側（低温側）へ移行することによりヨウ化セシウム蒸気種やモリブデン酸セシウム蒸気種との反応が生じやすいことに起因すると考えられる。一方で、CsI+ MoO_3 実験①の雰囲気酸素ポテンシャルが低く二酸化モリブデンの方が安定であることから、平衡状態ではヨウ化セシウムとの反応は生じないと考えられる。しかしながら、上記二次電子像観察及びエネルギー分散型 X 線分析では、モリブデン酸セシウムの生成が確認されている。これは、本実験においては加熱試料に三酸化モリブデンを供しており、三酸化モリブデン蒸気種から二酸化モリブデン蒸気種への変化は実際には速度論に則ると考えられることから、一部の三酸化モリブデン蒸気種とヨウ化セシウムの蒸気種が反応したことに起因すると考えられる。

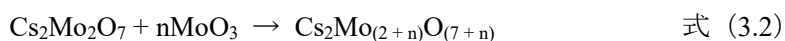
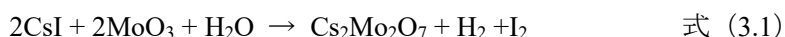
3.4 まとめ

VERDON 実験データにおいて推定されるセシウム、ヨウ素等の主要な化学反応を対象に、シビアアクシデント解析コードに組み込まれる物理モデルの構築や改良に必要な基礎データを取得するため、シビアアクシデント時の原子炉冷却系までの温度範囲を再現した FP 放出移行挙動再現装置（TeRRa）を用いて、水蒸気雰囲気及び水蒸気-酸素雰囲気におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の高温度化学反応に着目した加熱実験を行った。

温度勾配管中のサンプリング管、焼結金属フィルタ等で捕集した反応生成物の化学分析、X線回折、ラマン分光計測等を行うことで、化合物の化学形や結晶構造等に関する基礎データを取得した。雰囲気酸素ポテンシャルを変化させた加熱実験・化学分析結果を比較することにより、セシウム、ヨウ素の移行挙動、化学挙動に与えるモリブデン及び雰囲気の影響に関する以下の知見を得た。

水蒸気雰囲気下での CsI+MoO₃ 実験①の結果より、ヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の化学反応はほとんど生じず、ヨウ化セシウム蒸気種は化学形態をほとんど変化させずに SS に凝縮して沈着、またエアロゾル粒子となり 400 K (温度勾配管入り口からの位置：1300 mm) まで移行して沈着した。また、ヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の化学反応により生成したモリブデン酸セシウムは微細な粒子として金属フィルタ (0.8 μm) を通過し 400 K 以下まで移行した。水蒸気-酸素雰囲気下での CsI+MoO₃ 実験②の結果より、1100 K 以上でヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の化学反応により二酸化モリブデンが生成し、下流側への移行に伴いモリブデン酸蒸気種との反応を繰り返しながら、SS に凝縮して沈着、またエアロゾル粒子となり 400 K (温度勾配管入り口からの位置：1300 mm) 以下まで移行した。この反応に伴い生成したヨウ素化学種は、一部は凝縮して沈着、また一部は蒸気種のまま移行した。CsI+MoO₃ 実験①と CsI+MoO₃ 実験②、さらに令和 2 年度に実施した CsI 実験より、以下の結論を得た。

- I. モリブデンの影響により、ヨウ化セシウムが温度勾配管内を移行中に酸化モリブデン蒸気種との化学反応によりモリブデン酸セシウム及び揮発性のヨウ素化合物を生成し、それぞれ、ヨウ化セシウムよりも微細なエアロゾル粒子、及び蒸気種のままとして下流側へ移行する
- II. 酸素ポテンシャルが高い雰囲気においては、三酸化モリブデン蒸気種のまま下流側へ移行することにより、以下の式で示されるようなヨウ化セシウム及びモリブデン酸セシウムとの反応が生じ、揮発性のヨウ素化合物がより生成及び下流側へ移行しやすくなる。



以上に示す通り、モリブデンによりヨウ素の移行促進に係る反応機構を明らかとした。またモリブデン存在下では、式 (3.1) の揮発性ヨウ素の生成量について水蒸気雰囲気よりも酸素含有水蒸気雰囲気有意に増加することが示された。一方で、モリブデン非含有かつ高酸素ポテンシャル雰囲気 (参照条件) の実験結果は未取得であり、高酸素ポテンシャルにおいてモリブデンの有無により揮発性ヨウ素の生成量がどの程度定量的に増加するか不明である。エアロゾルの微細化についても同様である。これらの定量的な実験知見は機構論的な数値解析コードを検証する上で重要な情報であるため、モリブデン非含有かつ高酸素ポテンシャル雰囲気でのヨウ素に関するデータ取得等の実験データ拡充が必要であると考える。

参考文献

- [3.1] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「平成 31 年度原子力施設等防災対策等委託費（シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化）事業 成果報告書」、2020.
- [3.2] S. Miwa, G. Takase, J. Imoto, S. Nishioka, N. Miyahara, M. Osaka, Boron chemistry during transportation in the high temperature region of a boiling water reactor under severe accident conditions, *Journal of Nuclear Science and Technology*, 57(3) (2020) 291–300.
- [3.3] N. Miyahara, S. Miwa, M. Gouello, J. Imoto, N. Horiguchi, I. Sato, Experimental study on transport behavior of cesium iodide in the reactor coolant system under LWR severe accident conditions, *Journal of Nuclear Science and Technology*, 57(12) (2020) 1287–1296.
- [3.4] N. Girault, F. Payot, Insights into iodine behaviour and speciation in the Phébus primary circuit. *Annals of Nuclear Energy*, 61 (2013) 143–156.
- [3.5] M. Gouello, H. Mutelle, F. Cousin, S. Sobanska, E. Blanquet, Analysis of the iodine gas phase produced by interaction of CsI and MoO₃ vapours in flowing steam, *Nuclear Engineering and Design* 263 (2013) 462–472.

表 3.1 水蒸気雰囲気及び水蒸気-酸素雰囲気における
 ヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の高温化学反応を想定した加熱実験条件

		CsI+MoO ₃ 実験①	CsI+MoO ₃ 実験②
試料	化合物 装荷重量 (g)	CsI 1.3 MoO ₃ 1.3	CsI 1.3 MoO ₃ 1.3
	試料装荷位置：温度勾配管 からの距離 (mm)	CsI : 226、MoO ₃ : 239 (内径 : 38 mm、最高温度位置 : 146 mm)	
	加熱温度 (K) (試料加熱温度)	1273 (CsI : 1050、MoO ₃ : 1020)	
	昇温速度 (K/min)	10	
試料加熱	保持時間 (min)	60	
	ガスフロー雰囲気	Ar + 露点 60°C	Ar-1%O ₂ + 露点 60°C
	ガスフロー流量 (L/min)	2	
	蒸発速度 (mol/s) : 実験結果からの推定値	CsI : 2.9×10^{-7} MoO ₃ : 8.8×10^{-8}	CsI : 2.7×10^{-7} MoO ₃ : 3.5×10^{-7}
	Mo/Cs : 実験結果からの推定値	0.3	1.3
	サンプリング管寸法	内径 39.4×100 mm : 13 本	
温度勾配管加 熱	最高温度 (K)	1000	
	最低温度 (K)	400	
	温度分布	線形	

表 3.2 水蒸気雰囲気及び水蒸気-酸素雰囲気におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の高温化学反応を想定した加熱実験における沈着割合

	CsI+MoO ₃ 実験①	CsI+MoO ₃ 実験②	
Cs	サンプリング管 (電気抵抗炉)	0.08	0.27
	サンプリング管 (温度勾配管)	0.28	0.10
	焼結金属フィルタ等	0.12	0.34
	配管内 (金属フィルタ-ガス捕集瓶間)	0.13	0.21
	ガス捕集瓶	0.14	0.06
I	サンプリング管 (電気抵抗炉)	0.07	0.00
	サンプリング管 (温度勾配管)	0.28	0.01
	焼結金属フィルタ等	0.08	0.05
	配管内 (金属フィルタ-ガス捕集瓶間)	0.12	0.29
	ガス捕集瓶	0.26	0.44
Mo	サンプリング管 (電気抵抗炉)	0.18	0.41
	サンプリング管 (温度勾配管)	0.03	0.11
	焼結金属フィルタ等	0.10	0.34
	配管内 (金属フィルタ-ガス捕集瓶間)	0.02	0.02
	ガス捕集瓶	0.02	0.02

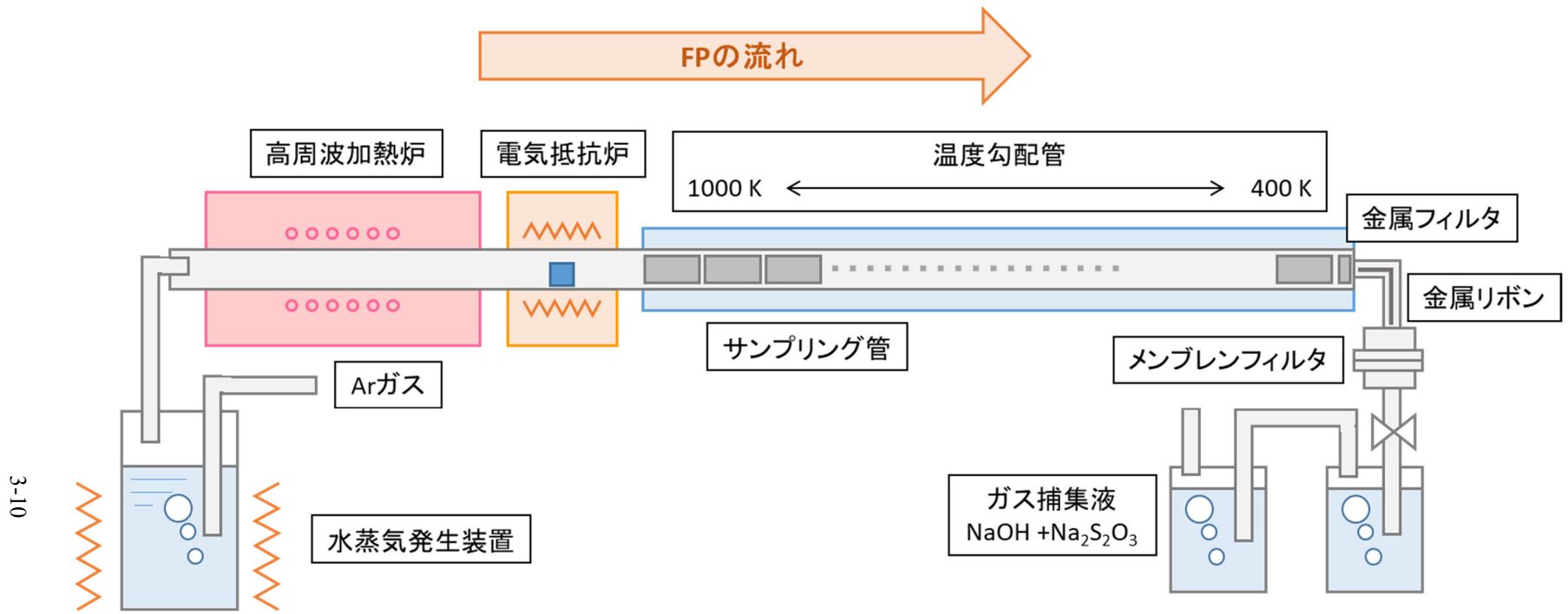


図 3.1 FP 放出移行挙動再現実験装置 (TeRRa) 模式図

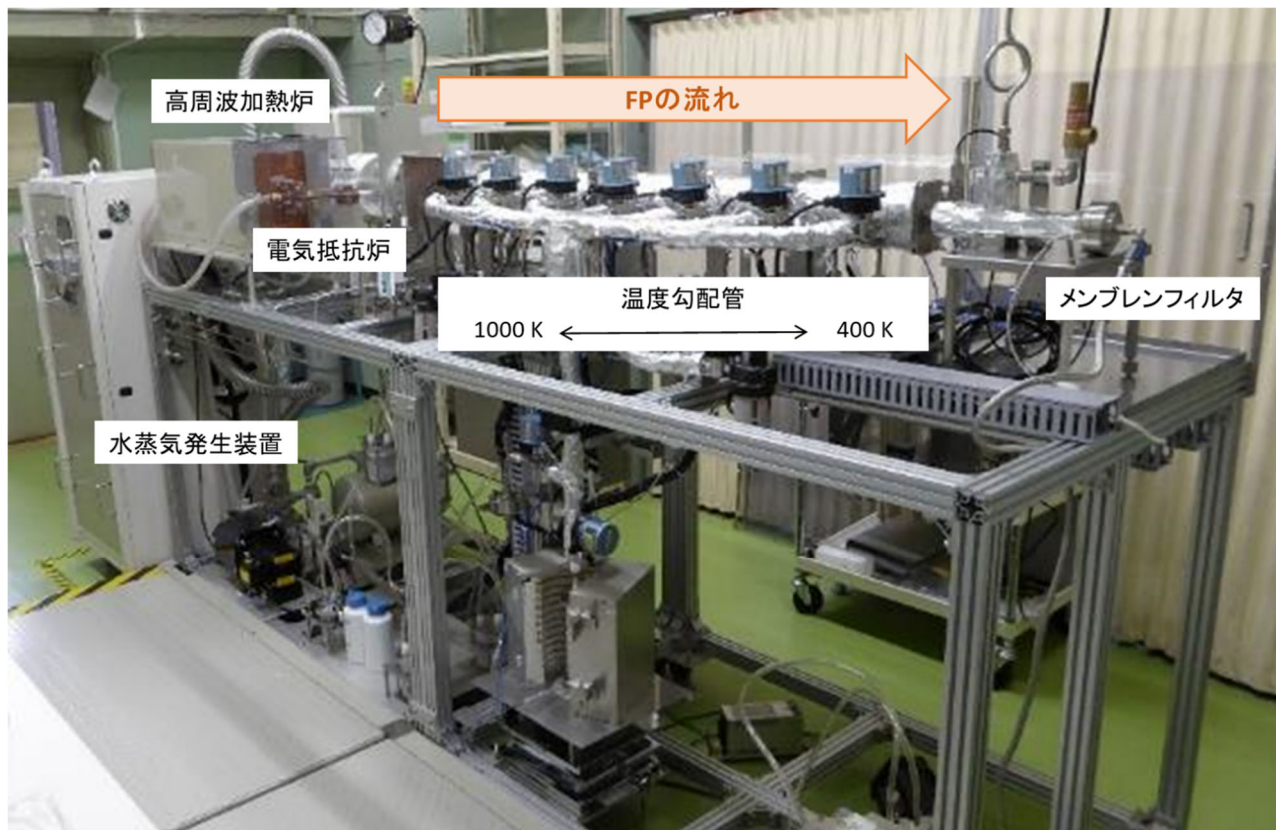


図 3.2 FP 放出移行挙動再現実験装置 (TeRRa) 外観写真

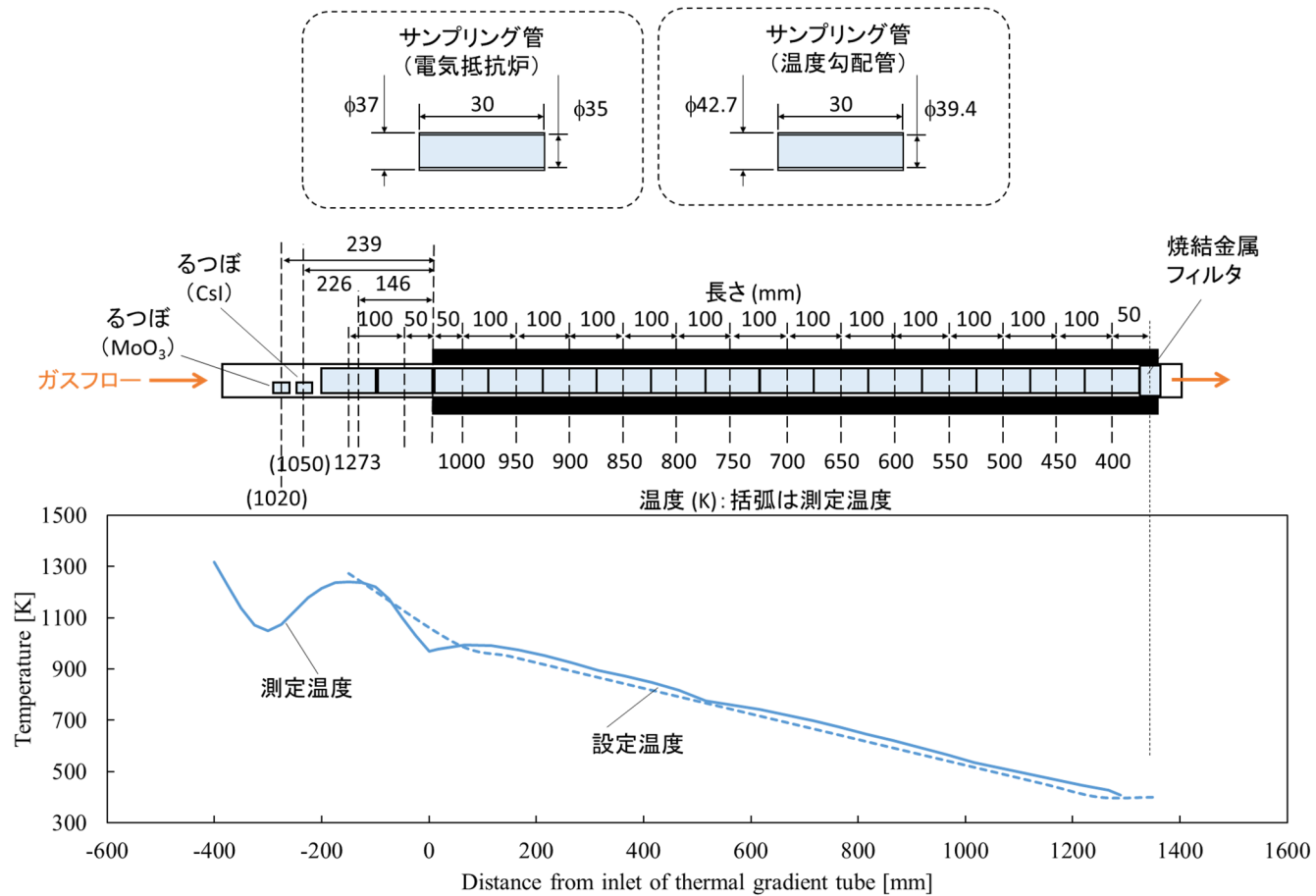


図 3.3 水蒸気雰囲気及び水蒸気-酸素雰囲気における
ヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の高温化学反応を想定した加熱実験の加熱体系

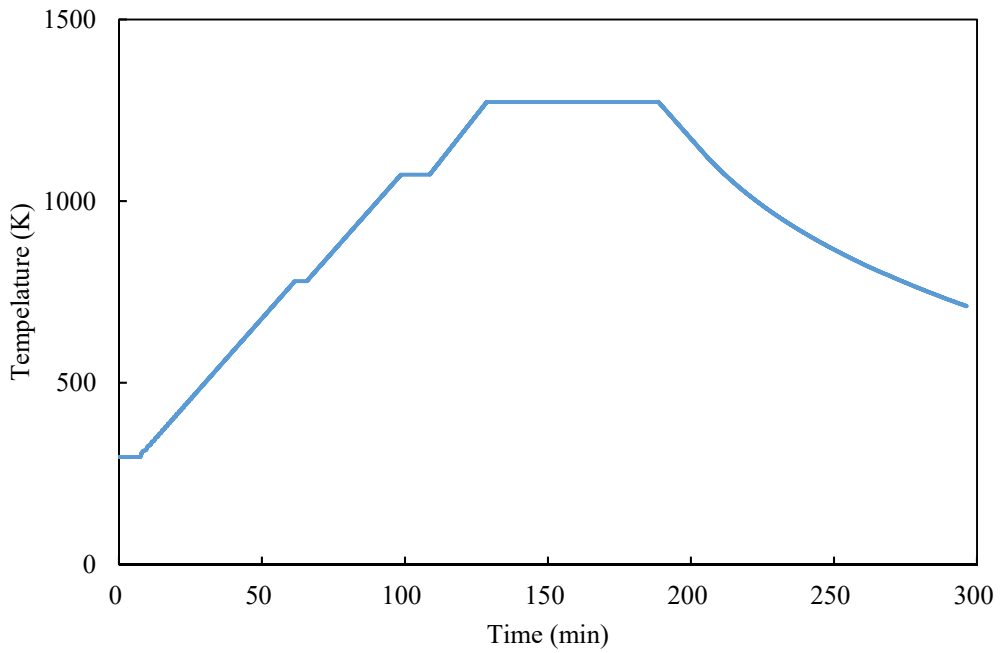


図 3.4 水蒸気雰囲気及び水蒸気-酸素雰囲気におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の高温化学反応を想定した加熱実験における電気抵抗炉の加熱温度履歴

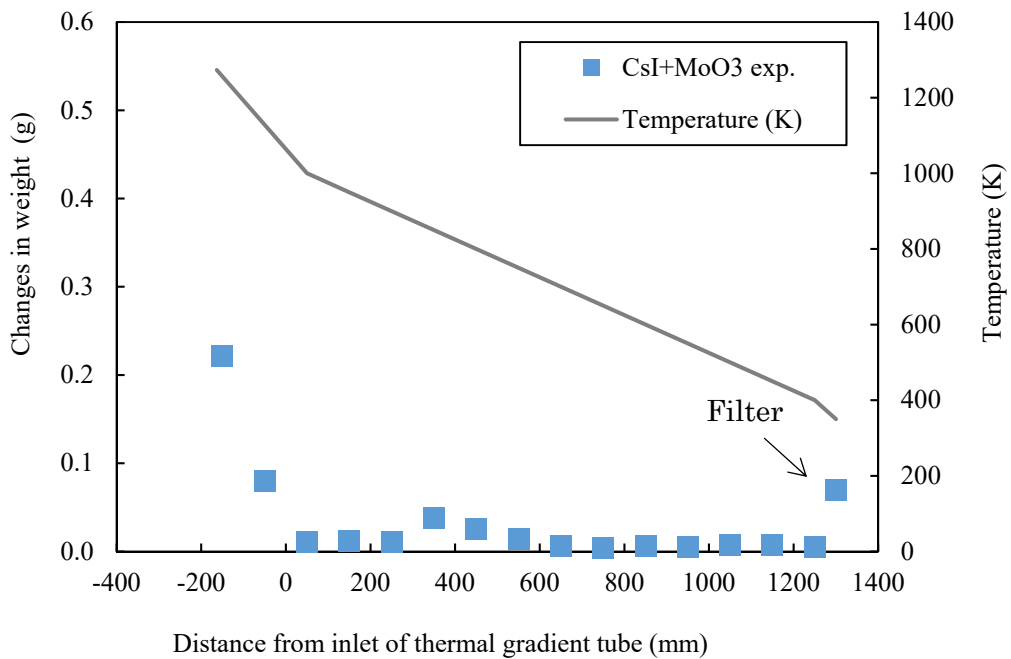


図 3.5 CsI+MoO₃ 実験①におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化

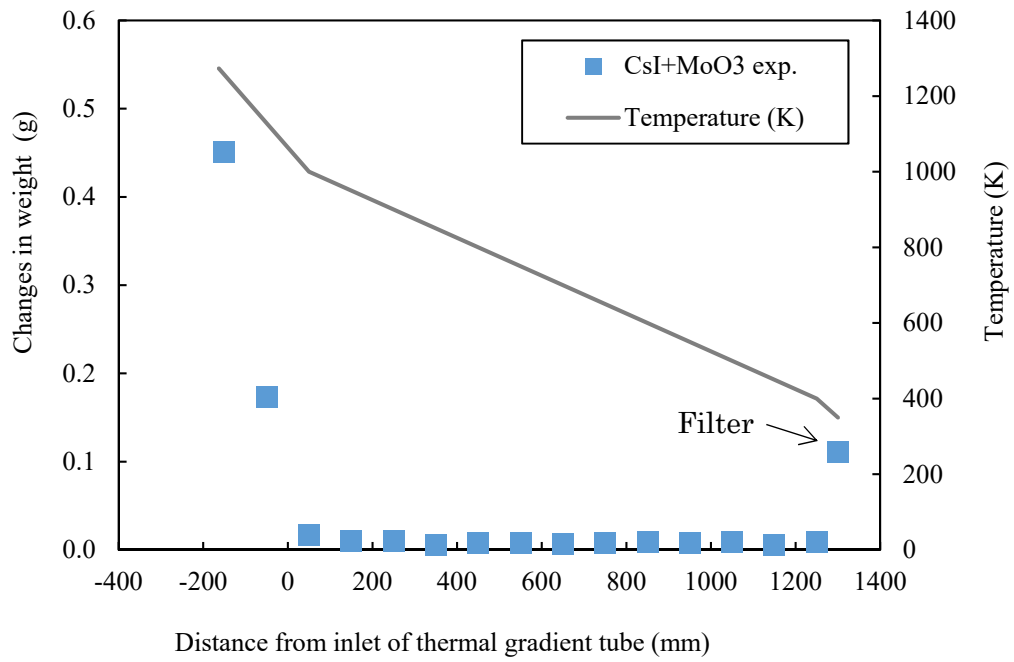


図 3.6 CsI+MoO₃ 実験②におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化

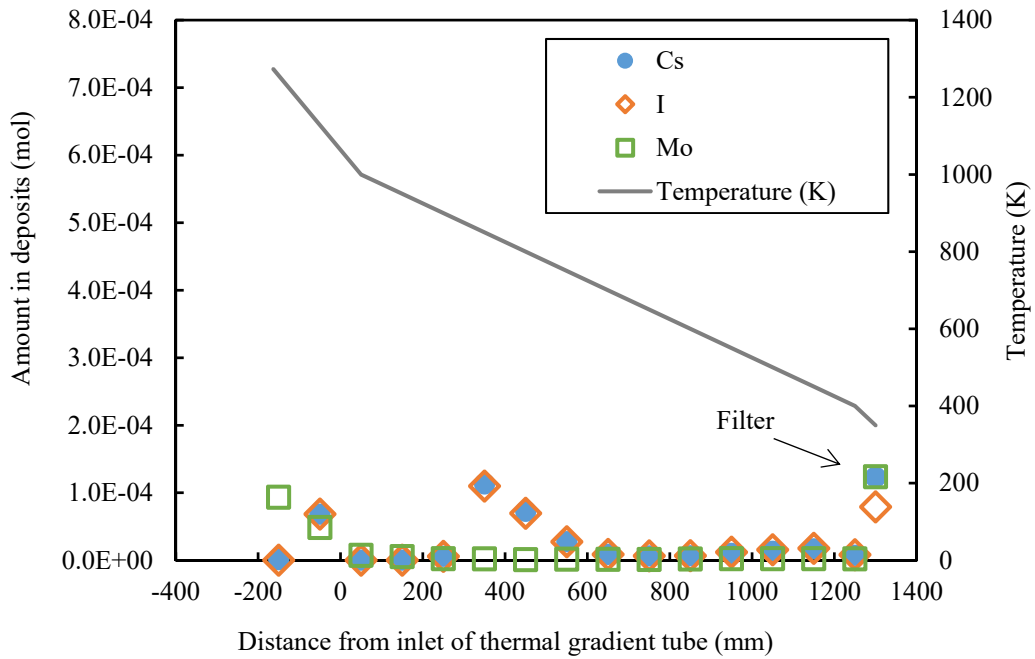


図 3.7 CsI+MoO₃ 実験①におけるサンプリング管等への沈着物中のセシウム及びヨウ素元素量

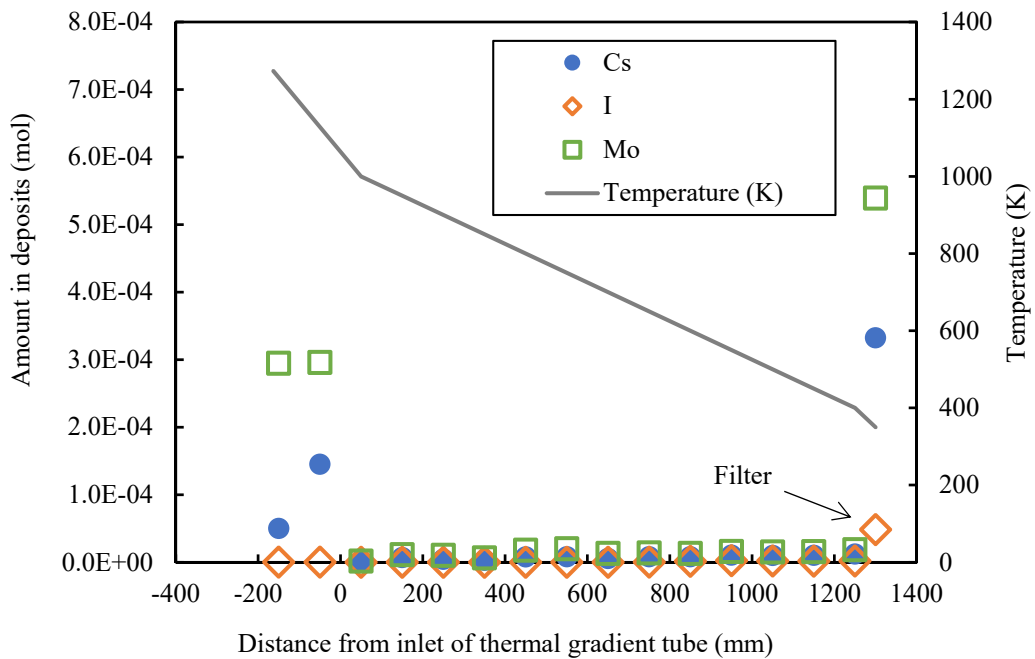


図 3.8 CsI+MoO₃ 実験②におけるサンプリング管等への沈着物中のセシウム、ヨウ素及びモリブデン元素量

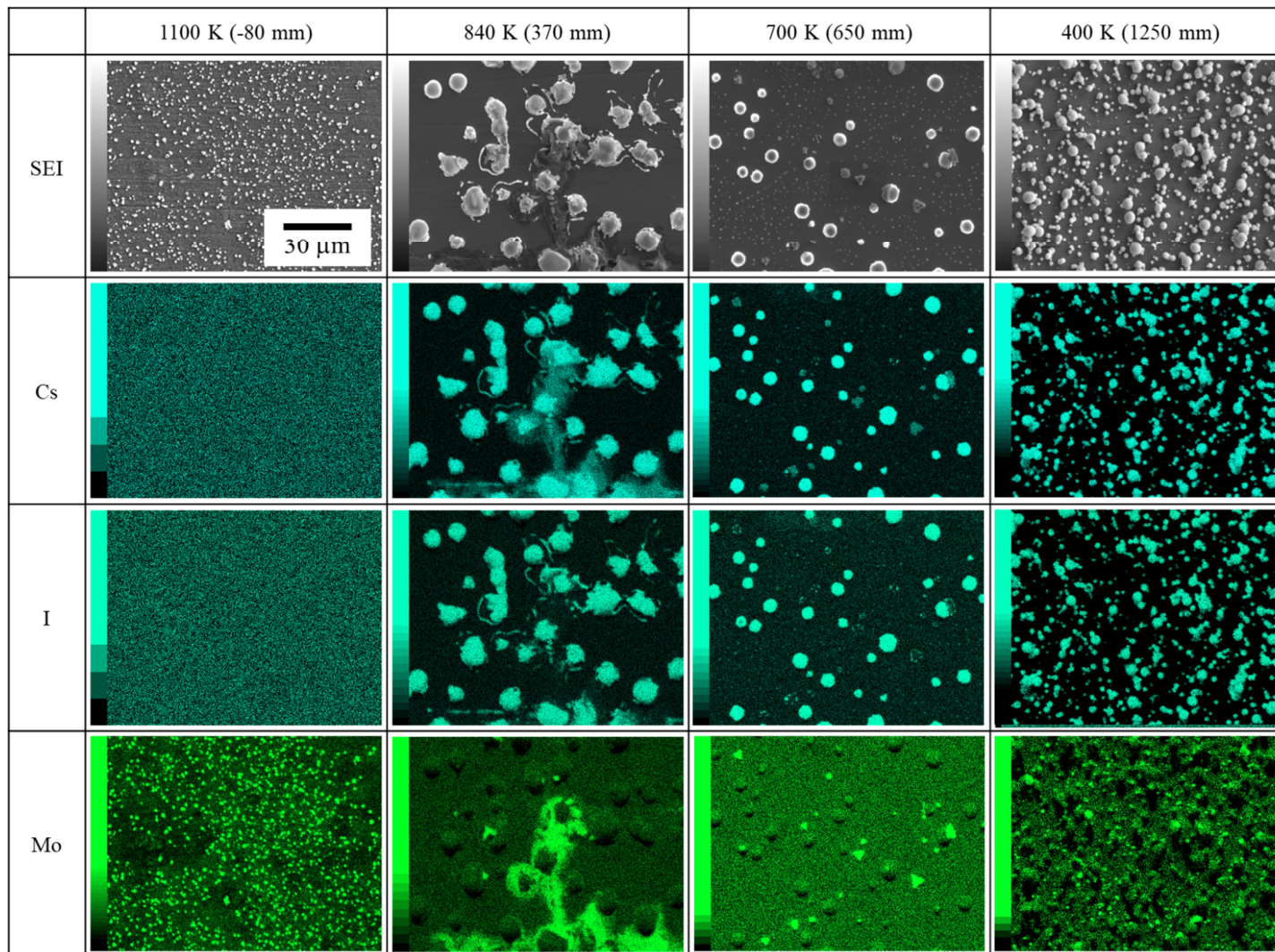


図 3.9 Cs I+MoO₃ 実験①におけるサンプリング管沈着物の二次電子像及びセシウム、ヨウ素の分布

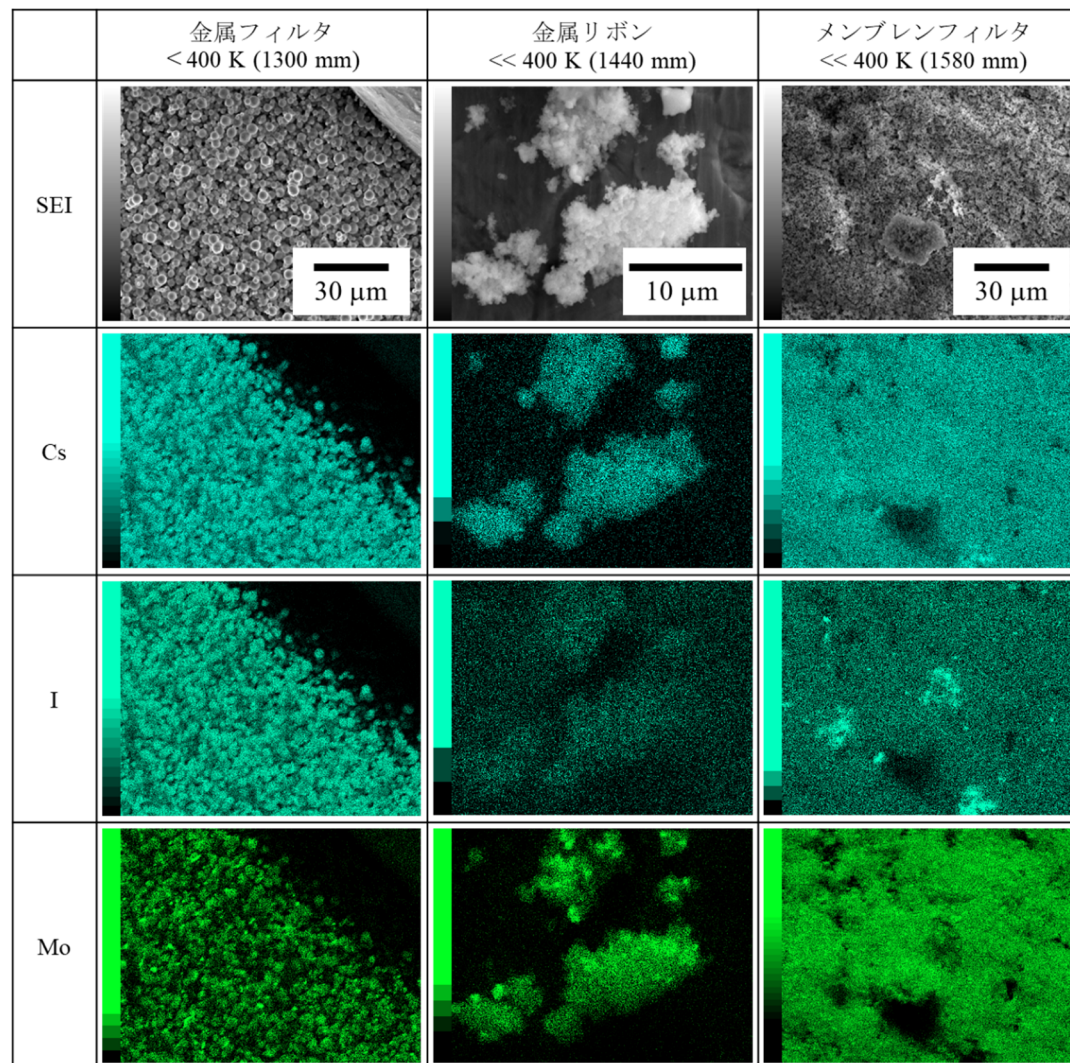


図 3.10 Cs I+MoO₃ 実験①における焼結金属フィルタ等の二次電子像及びセシウム、ヨウ素の分布

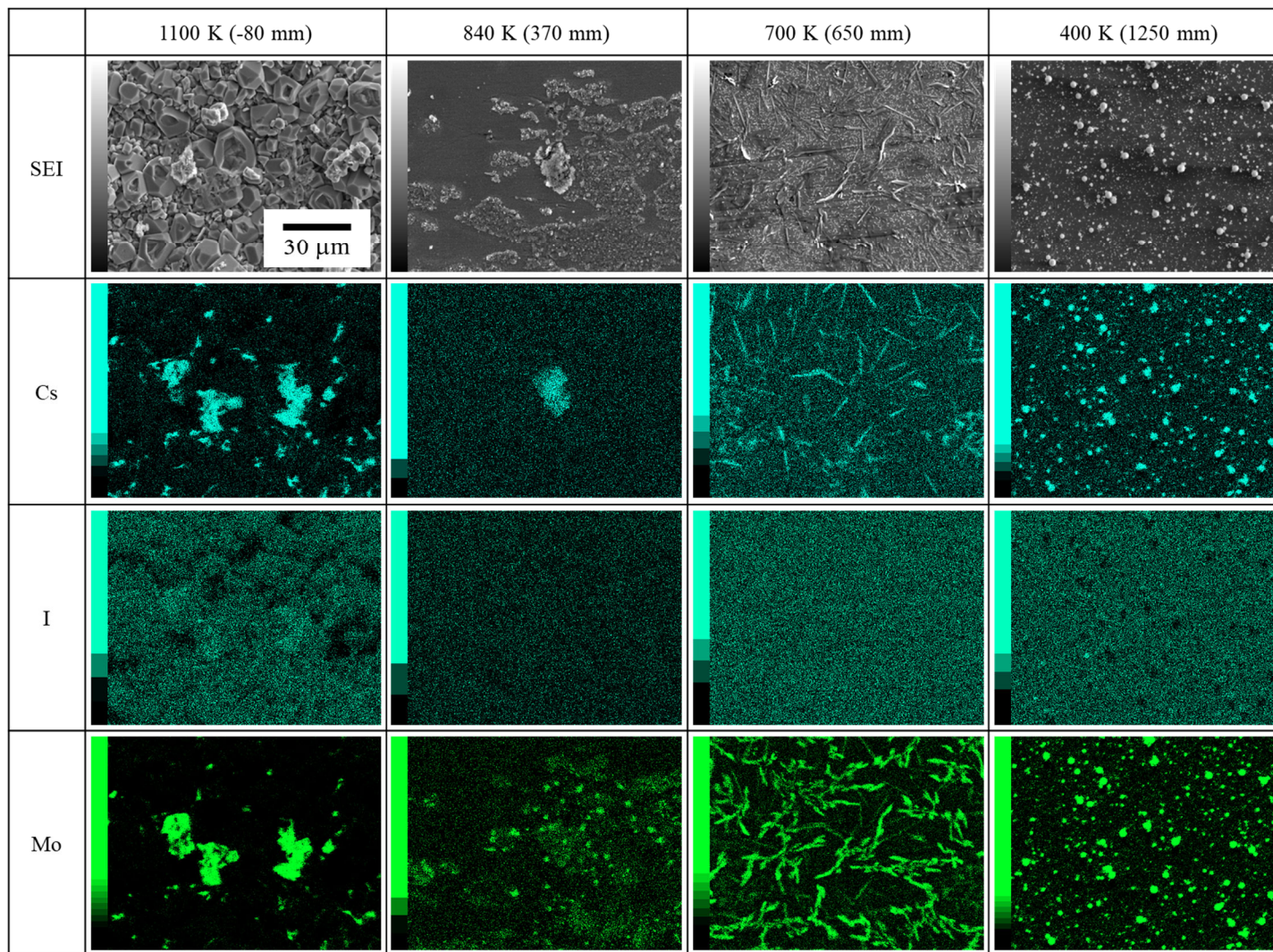


図 3.11 CsI+MoO₃ 実験②におけるサンプリング管沈着物の二次電子像及びセシウム、ヨウ素、モリブデンの分布

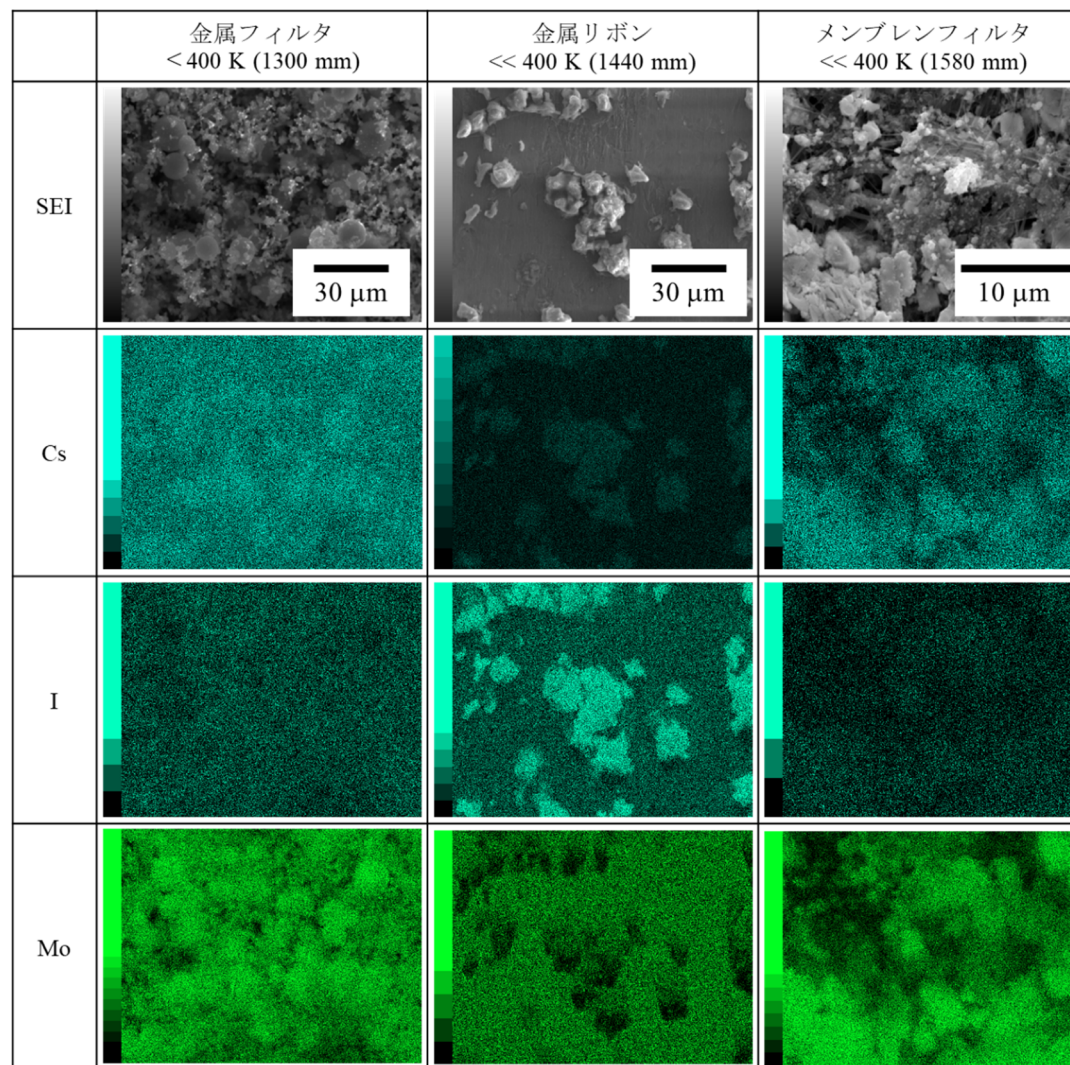


図 3.12 CsI+MoO₃ 実験②における焼結金属フィルタ等の二次電子像及びセシウム、ヨウ素の分布

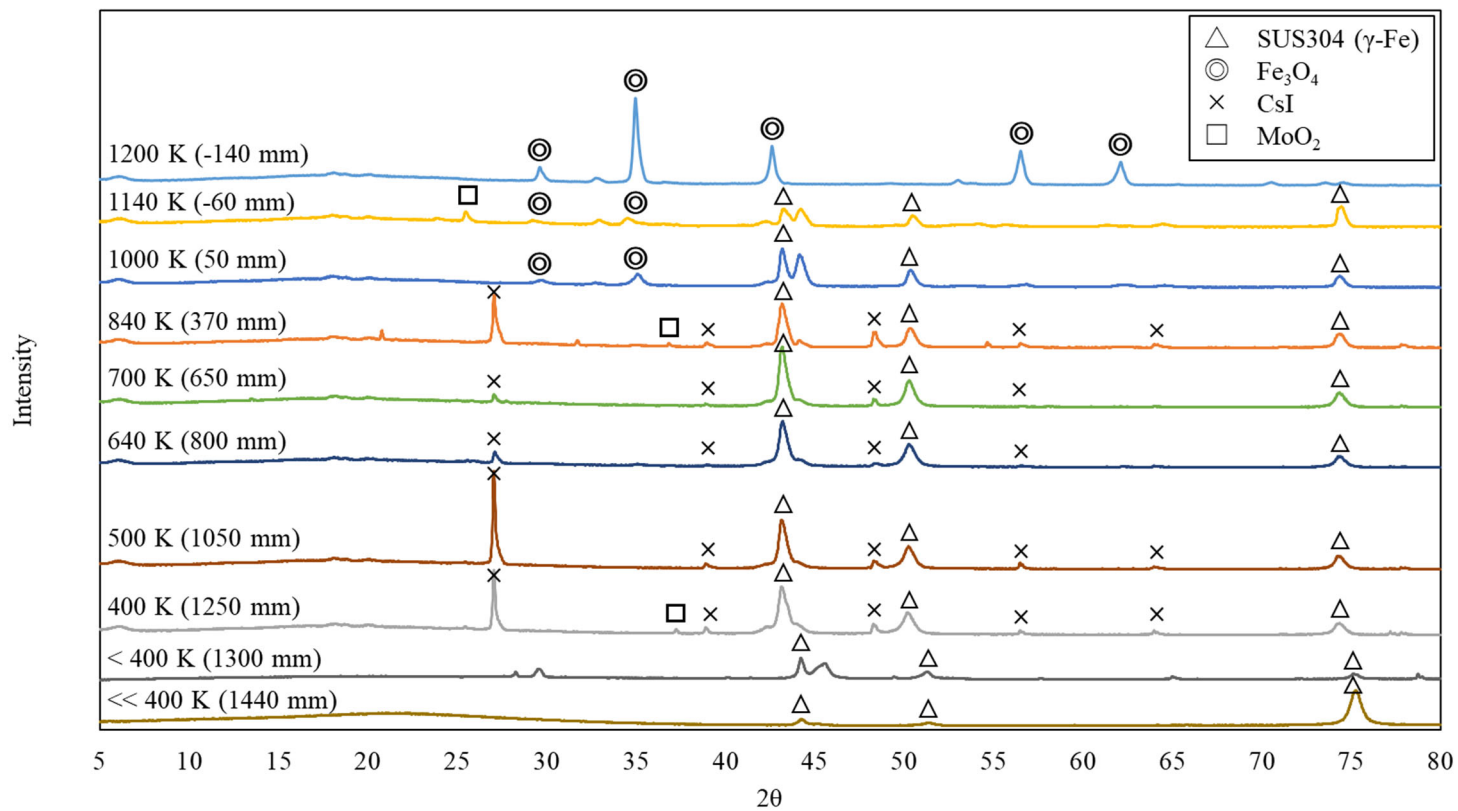


図 3.13 CsI+MoO₃ 実験①におけるサンプリング管沈着物の X 線回折ピーク

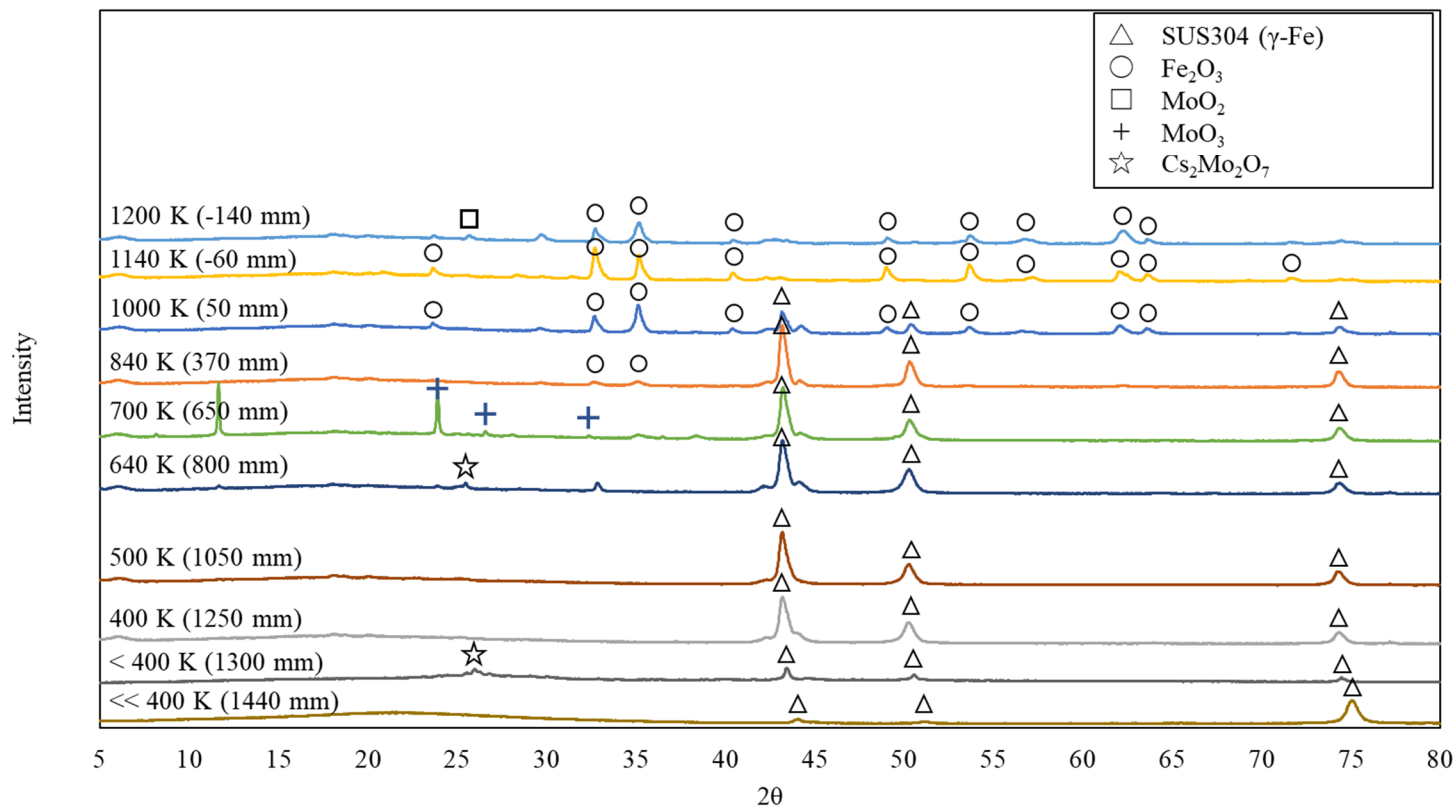


図 3.14 CsI+MoO₃ 実験②におけるサンプリング管沈着物の X 線回折ピーク

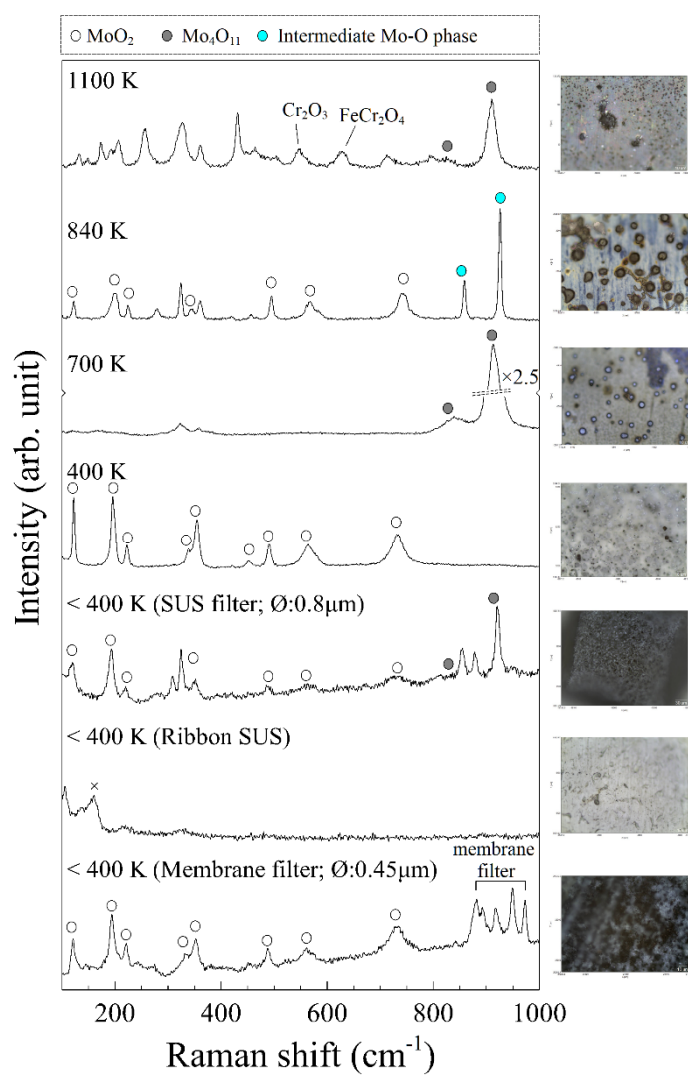


図 3.15 CsI+MoO₃ 実験①におけるサンプリング管沈着物のラマンスペクトルピーク

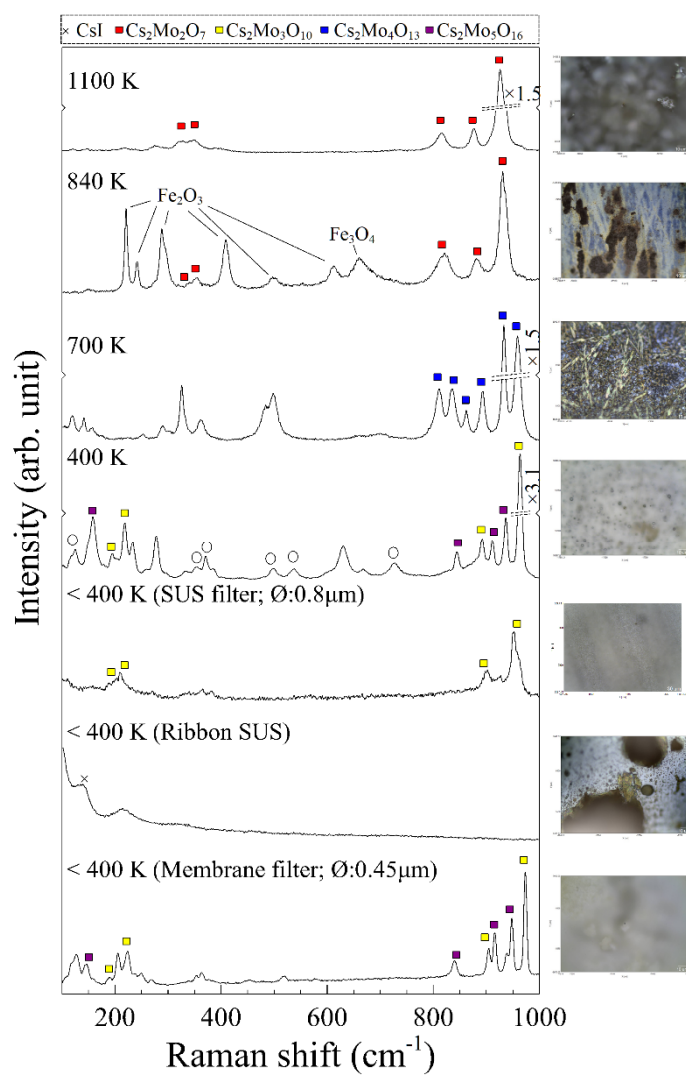


図 3.16 CsI+MoO₃ 実験②におけるサンプリング管沈着物のラマンスペクトルピーク

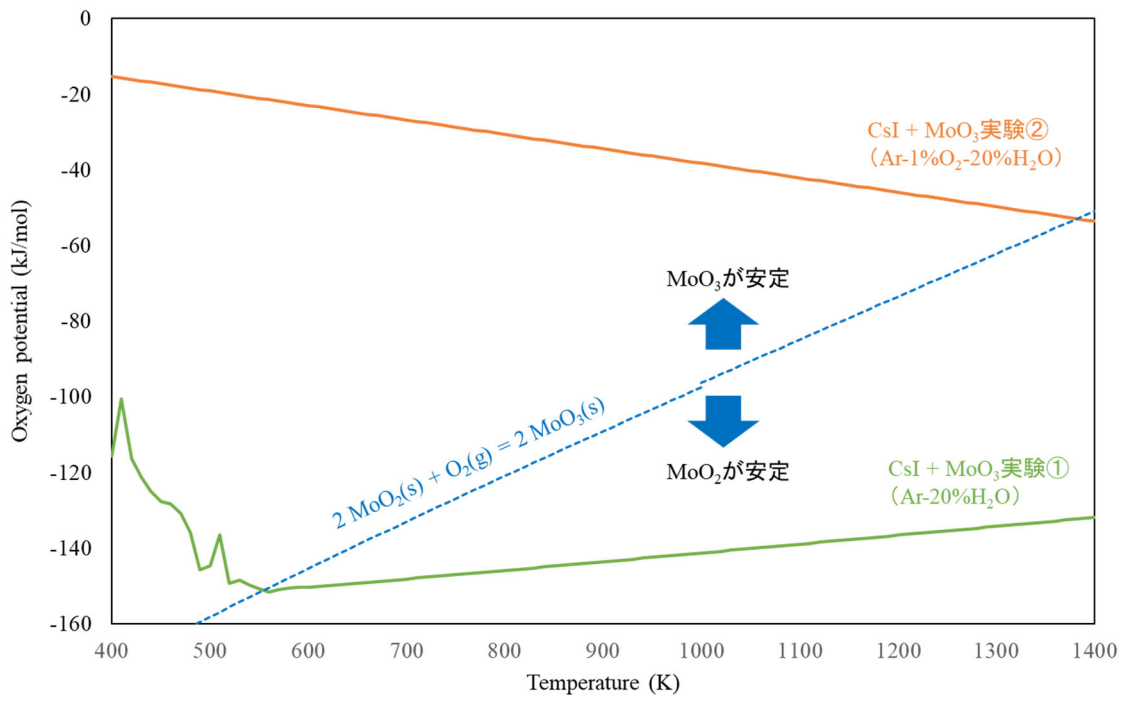


図 3.17 CsI+MoO₃ 実験条件における酸素ポテンシャル

4. 化学挙動を考慮したソースターム評価手法の検討

4.1 目的

軽水炉シビアアクシデント時の原子炉冷却系内の放射性物質の化学的挙動において、 B_4C 制御材を有する BWR プラントでは、ヨウ素及びセシウム化学種として、従来、想定してきた CsI や $CsOH$ とは異なる化学形で存在する可能性がある。それ故、本研究では、原子力機構内及び国際協力で実施した実験及び解析に基づいた核分裂生成物 (FP) 化学形の予測モデルを構築し、原子力機構で開発している THALES2/KICHE [4.1, 4.2] に導入するとともに、原子炉冷却系内 FP 化学を考慮した BWR のソースターム評価に適用した。令和 2 年度の検討では、BWR4/Mark-I、BWR5/Mark-II、BWR5/MarkII 改良型の 3 つの代表プラントに対するソースターム評価に適用し、原子炉冷却系内の FP 化学がプラント内移行挙動やソースタームに及ぼす影響について検討した[4.3]。

令和 3 年度は、原子炉冷却系でのセシウム及びヨウ素の化学的挙動を扱えないシビアアクシデント総合解析コード MELCOR[4.4, 4.5]への本研究で得られた知見の反映方法についての検討を進めた。4.2 節に昨年度までに構築した FP 化学種平衡組成予測モデルの概要、4.3 節に MELCOR への導入方法についての検討結果を示す。さらに 4.4 節では、4.3 節で提案した導入方法である化学種組成表を作成するとともに、作成した化学組成表の不確かさを把握するために実施した感度解析結果について示す。

4.2 FP 化学種平衡組成予測モデル

原子力機構では熱化学平衡論及び反応速度論の部分混合モデルに基づく化学組成評価コード CHEMKEq[4.6]を開発している。本研究では、CHEMKEq の機能の 1 つである熱化学平衡論モデルを用いて、原子炉冷却系内 FP 化学を考慮するための、FP 化学種平衡組成予測モデルを構築している[4.3]。本研究で構築した原子炉冷却系内 FP 化学種平衡組成予測モデルを使用する際に必要となる入出力情報を表 4.2.1 に示す。入力データとして、セシウム、ヨウ素、モリブデン及びホウ素の FP 元素濃度、雰囲気条件となる水蒸気と水素の濃度、そして温度の 7 個のパラメータを与えることで、その条件下で安定となるヨウ素及びセシウム化学種の濃度と元素別の組成比が計算できる。本化学モデルでは、出力情報の簡略化のため、生成化学種をヨウ素は CsI 、 HI 及び I (又は I_2)の 3 つの化学種、セシウムは CsI 、 Cs_2MoO_4 、 $CsBO_2$ 及び $CsOH$ の 4 つの化学種と仮定している。ここで、ヨウ素、セシウム、モリブデンは燃料から放出、ホウ素は BWR 制御ブレード内の中性子吸収材 B_4C の酸化から生成されたものを想定している。特に、モリブデン及びホウ素は、雰囲気や温度条件によって、セシウムや水分子と結合するなど安定となる化学種(化学形)が異なるため、重要な入力パラメータである。具体的な例として、CHEMKEq の熱化学平衡計算機能を用いて評価した化学種組成の温度依存性を図 4.2.1 に示す[4.3]。左側がヨウ素化学種、右側の図がセシウム化学種の結果を表し、上段がホウ素なし条件、下段がホウ素あり条件での化学種組成の傾向を示している。ヨウ素化学種は、低温域では CsI 、高温では I の化学形が支配的である。高温におい

では、ホウ素が存在する場合、CsI とホウ素が化学反応し、CsBO₂ と HI が生成される。セシウム化学種については、ホウ素なし条件では、低温域では Cs₂MoO₄、高温域では CsOH が支配的となるが、ホウ素あり条件では高温域では CsOH の一部が CsBO₂ に置換される傾向が示された。本傾向の詳細は令和 2 年度受託報告書[4.3]を参考のこと。

4.3 ソースターム評価への化学知見の反映方法の検討

熱力学平衡計算機能を有しない MELCOR 等のシビアアクシデント総合解析コードで取扱う方法について検討する。THALES2 への導入時にも検討したが、MELCOR に直接、熱力学平衡計算機能を導入する方法も考えられるが、取り扱い化学種を増やす必要があること、更に計算コストが大幅に増加(THALES2 では計算時間が 3 倍程度に増加)する可能性があることから、本検討では、熱力学平衡計算機能を直接導入するのではなく、モリブデン酸セシウムの取り扱いなど MELCOR2.0 以降の新バージョンで追加された新機能を活用する手法について検討した。

MELCOR は、米国原子力規制委員会及びサンディア国立研究所において開発されているシビアアクシデント総合解析コードであり、シビアアクシデント時の主要な炉心溶融進展やソースタームに係わる現象の取り扱いを網羅している。例えば、炉心伝及び炉内構造物の熱応答・リロケーションは COR(Core)、崩壊熱は DCH(Decay heat)、放射性物質は RN(Radionuclide)パッケージで取扱っている。本 RN パッケージにおいて取り扱い可能な放射性物質の元素グループの分類を表 4.3.1 に示す。従来のバージョンでは、クラス 16 の CsI までの取り扱いとなっていたが、MELCOR2.0 以降では、クラス 17 にモリブデン酸セシウム Cs₂MoO₄(略記 CsM)が追加されている。MELCOR での通常の計算スキームは以下のとおり。

- ① 燃料からのヨウ素、セシウム、モリブデンなど放射性元素の放出は、従来通り放出モデル(CORSOR、CORSOR-M、CORSOR-Booth)により、1 タイムステップ毎に燃料からの発生量が計算され、その量に基づき、該当化学種(化学形)への振り分けが行われる。
- ② 放出モデルから計算された各元素は、結合モデルによって化学種に結合、燃料から放出される。まず、放出されたヨウ素はセシウムと結合し CsI となる。残りのセシウムの一部はモリブデンと結合し、モリブデン酸セシウム Cs₂MoO₄ が生成される。ここで、セシウム量に対し、Cs₂MoO₄ 生成に必要なモリブデンが不足した場合には、CsOH として放出される。また、過剰分となった Mo は、単体 Mo として燃料から放出されるモデルとなっている。例えば、1 タイムステップ間に、燃料からヨウ素、セシウム、モリブデンが、それぞれ 1、10、20 モル放出された場合を想定する。本モデルでは、まず、反応のし易さと物質の関係から、1 モルの CsI、4 モルの Cs₂MoO₄ が形成される。残った 1 モルの Cs は CsOH となり、最後に余剰分 16 モルのモリブデンは単

体 Mo として放出される。なお、MELCOR では CsOH 及び Cs₂MoO₄ は、Cs(クラス 2) 及び CsM(クラス 17)として扱われる。

- ③ 燃料から放出された放射性物質は、各 FP クラスで個別に定義される蒸気圧、拡散係数、気液分配係数など様々な物性値に従い、プラント内を移行（気体状及び粒子状の放射性物質の壁や床への凝縮や沈着など様々な移行・沈着挙動）する。MELCOR では、モリブデン酸セシウムも含め元素グループの分類表に定義された元素又は化学種の移行挙動に関わる物性値は、既に MELCOR コード内に内蔵されており、追加のコード改造は不要である。

放出後のどの化学形安定するかは、原子炉減圧操作の有無など事故シナリオが影響すると考えられる。それ故、FP 化学種平衡組成予測モデルを導入した THALES2 を用いて、多ケース解析を実施し、事故シーケンス毎に生成されるヨウ素及びセシウム化学種の化学組成表を提案する。その提案した組成表に基づき、燃料からの放出される化学種の振り分けを設定することで、原子炉冷却系 FP 化学を考慮するものと同様の解析ができると考えられる。

上記の計算スキームに対して考えられる

$$Mo \text{ 放出に関わる感度解析パラメータ} = \frac{f_{MELCOR,base}^{CSM}}{f_{THALES \text{提案値}}^{CSM}} \quad \text{式(4.3-1)}$$

ここで、

- $f_{MELCOR,base}^{CSM}$: MELCOR 基本入力データを実行した際に生成されるセシウム化学種のうち CSM の割合 (-)
- $f_{THALES \text{提案値}}^{CSM}$: 簡易平衡組成予測モデルを導入した THALES2 を用いて計算し、提案したセシウム化学種の比 (-)

4.4 系統的なソースターム解析に基づく化学種組成表の検討

4.3 節において MELCOR コード等で使用される FP 取り扱い化学種分類表に対する同解析で得られた知見の反映方法として検討した化学組成表を作成するために、原子炉冷却系でのセシウム及びヨウ素に係る簡易的な化学モデルを有するシビアアクシデント総合解析コードである THALES2/KICHE [4.1, 4.2]を用いた沸騰水型原子炉の系統的なソースターム解析を実施した。さらに、作成した化学組成表の不確かさを評価するために、感度解析を実施した。

4.4.1 解析対象プラント及び解析条件

プラント体系及び仕様は図 4.4.1 及び表 4.4.1 を参考のこと。解析対象事故シーケンス及び格納容器機能喪失シナリオを表 4.4.2 に示す。解析対象は、全交流電源喪失(TB)、炉心冷

却機能喪失(TQUV)、高圧注水・減圧機能喪失(TQUX)、冷却材喪失事故(LOCA)時注水機能喪失(S1QUV)、崩壊熱除去機能喪失(TW)の過圧破損ケース、そして格納容器バイパス事象であるインターフェースシステム LOCA(IS-LOCA)の6つの事故シーケンスを対象とした。

事故進展及びFP挙動に関わる解析条件を表4.4.3及び表4.4.4に示す。格納容器破損圧として設計圧の2.5倍を想定した。格納容器の過圧破損の位置及び漏洩面積は、ドライウェル気相部、漏洩面積はハッチ等のフランジ及び低電圧モジュールで想定されるリーク面積より1桁大きい値 0.01m^2 を仮定した。なお、本解析では、格納容器スプレイや崩壊熱除去機能などの事故緩和策の復旧は考えていない。

また、FP移行挙動に関わる解析条件として、燃料からの放出はCORSOR-Mモデルを利用し、全てのヨウ素はCsと結合しCsIとなり、残りのCsは全てCsOHになると仮定した。ホウ素は、制御棒ブレードの酸化によるホウ素酸化物の生成により供給され、原子炉冷却系内FP化学に影響を及ぼす。FP化学に関わる解析条件として、原子炉冷却系内の全てのボリウムに対して、FP化学平衡組成予測モデルを適用し、燃料から放出後のヨウ素及びセシウムの化学変化を考慮した。なお、令和2年度の解析では、格納容器の液相からのガス状ヨウ素 I_2 の再放出現象を評価するヨウ素化学反応を想定していたが、本反応を考慮すると、格納容器に移行したヨウ素及びセシウム化学種の液相移行時の解離やヨウ素化学反応によって化学形が変化してしまい、原子炉冷却系内FP化学に限定した化学変化が特定できない。それ故、本解析では格納容器内ヨウ素化学反応は考慮しないこととした。これにより、CsIやCsOH等が格納容器に移行し液相中に溶解しても、 Cs^+ やI-に解離せず、その化学形のまま存在することで、原子炉冷却系内FP化学で生成された化学種のその後のプラント内移行挙動を把握することが可能となる。

4.4.2 解析結果及び化学種組成表の検討

FP化学平衡組成予測モデルを導入したTHALES2を用いて、BWR4/Mark-II改良型を対象とした系統的なソースターム解析を実施し、原子炉冷却系内FP化学による生成化学種及びプラント内へのFP移行挙動への影響について検討した。

(1) 事故進展

本研究では、FP挙動に着目しているので熱水力挙動については概要のみを記載する。熱水力挙動の例として、原子炉圧力及び原子炉水位を図4.4.2に示した。なお、図中の①～⑤は、事象進展時刻(①:炉心溶融開始、②:炉心支持板破損、③:圧力容器破損、④:ペDESTAL破損、⑤:格納容器破損)の発生時刻を示している。また、イベント時刻及び事象進展の概要は、表4.4.5及び表4.4.6を参照のこと。

炉心損傷開始時の原子炉冷却系の状態は、原子炉が高圧状態で炉心損傷が進展する高圧シーケンスと、低圧状態で進展する低圧シーケンスの2つが存在し、それにより水蒸気濃度などの雰囲気条件に相違が生じる。例えば、原子炉圧力履歴から確認できるように、(a)全交

流電源喪失シーケンス TB、(c)高圧注水・転圧失敗 TQUX、(e)崩壊熱除去失敗 TW においては、制御用電源(DC 電源)の喪失、原子炉減圧の失敗、格納容器破損起因による安全機能の喪失によって、原子炉は高圧の状態での炉心損傷が開始する高圧シーケンスである。それに対して、(b)炉心冷却機能喪失 TQUV、(d)LOCA 時注水失敗 S1QUV、(f)格納容器バイパス IS-LOCA は、原子炉減圧操作や原子炉圧力バウンダリの LOCA により、原子炉は減圧、低圧状態で炉心損傷が開始する低圧シーケンスである。工学的安全設備の作動状況や LOCA の有無により、雰囲気条件が異なり、原子炉冷却系内の FP 化学に影響を及ぼす。

(2) FP 放出時の雰囲気条件

各事故シーケンスの燃料からの FP 放出特性及び雰囲気組成を図 4.4.3 に示す。例として、(a)全交流電源喪失 TB の結果をベースに説明する。左図が燃料からの放出特性として、ヨウ素及びセシウム、モリブデン Mo、ホウ素 B の原子炉冷却系への放出割合を初期炉内内蔵量に対する割合で示した。なお、燃料からの放出が顕著となる時期の目安として Cs 放出 20% と 80%放出の位置を示した。放出特性は、揮発性が高いヨウ素及びセシウムが先に放出され、その後、中揮発性の Mo、B が続く。なお、ホウ素は、制御棒の中性子吸収材 B₄C の酸化反応に関わる。B₄C は、BWR 制御棒ブレード内の中性子吸収棒に内包されており、周辺のスチール被覆部の B/Fe 共晶熔融によって減厚され、B₄C が水蒸気雰囲気に晒されることで B₄C 酸化が開始され、ホウ素(酸化ホウ素)の放出が開始される(参考までに、図には B₄C 共晶熔融を点線で明記)。

図 4.4.3 右図は、蒸気ドームの元素濃度を示した。炉心部は 2000K 以上と高温のため、格納容器内で安定となる化学種と近い蒸気ドームでの元素濃度を示した。全交流電源喪失 TB、原子炉減圧失敗 TQUX、崩壊熱除去失敗 TW のように、原子炉が高圧状態で炉心損傷に至る高圧シーケンスでは、原子炉減圧操作や LOCA など低圧となる低圧シーケンスよりも、水蒸気及び水素を含め元素濃度は高くなる傾向がある。

(3) プラント内 FP 挙動

プラント内 FP 分布例として、全交流電源喪失時のヨウ素とセシウムの挙動を図 4.4.4 に示す。本図は、セシウム化学種を主要ボリューム及び存在形態別に集計し、初期炉内内蔵に対する割合で示した。存在形態は、その後の移動し易さを把握できるように、浮遊(雰囲気中の浮遊ガスと浮遊エアロゾルなど浮遊量の合計)と沈着(壁沈着と液相溶解又は床沈着の合計)の2つに分別し整理した(同一位置は同色、浮遊が点線、沈着を実線で表記)。また、図 4.4.5～図 4.4.10 には、炉心損傷開始、圧力容器破損及び格納容器破損など主要なイベント発生時刻におけるヨウ素及びセシウムのプラント内内訳を示した。原子炉冷却系内 FP 化学により多数の化学種(化学形)が存在しえるので、全体像が把握し難い。まず、プラント内の全体像を元素別で示した円グラフで把握し、次に化学種(化学種)の内訳を棒グラフで確認することで、化学種に対する移行挙動についても確認できる。プラント内ヨウ素及びセシウムの

存在割合を示した棒グラフの TB シーケンスの例データを表 4.4.7 に整理した)。

ヨウ素及びセシウムのプラント内挙動の例として、図 4.4.4 (a)全交流電源喪失シーケンス TB を例に説明し、その後には事故シーケンスによる移行挙動の違いについて記載する。ここで、ヨウ素とセシウムは、共に、高揮発性で燃料から放出されやすく、高温ではガス状、低温では粒子状で振舞うなど類似の移行挙動を示す傾向がある。

TB シーケンスでは、事故開始後一定期間の間は炉心で発生した蒸気を駆動とする原子炉隔離時冷却系による炉心注水が継続する。その後、8 時間で制御用電源である直流電源が枯渇することで炉心への注水が停止し、炉心損傷開始に至る。TB シーケンスは、制御用電源が喪失することで、原子炉は減圧できず、高圧状態で炉心損傷が進展する。それ故、原子炉の減圧操作を実施しない高圧注水・減圧失敗 TQUX 及び崩壊熱除去機能喪失 TW は、圧力容器破損時点(直前)において、原子炉冷却系内への FP 沈着量が促進される傾向がある。また、これらの事故シーケンスは原子炉が高圧状態で炉心損傷に至るため、RCS 内に浮遊していたヨウ素は圧力容器破損時に高圧噴出する。原子炉が低圧状態で圧力容器が破損する場合、その時点での浮遊 FP の移行が主だが、高圧噴出の際には流動変化が激しくなるため、沈着 FP の一部が再蒸発され格納容器への移行がみられる。これは図 4.4.5-2 円グラフにおける圧力容器破損時と格納容器破損時の RCS 内沈着量の差から把握できる。また、再循環配管での LOCA を想定した S1QUV は、RCS 内への沈着と破断口からドライウェル(D/W)への移行が促進される。D/W 内は温度が低いため、D/W に移行したヨウ素の大部分は床や壁に沈着する。また、炉心冷却機能喪失 TQUV の結果より、原子炉減圧操作は、FP のウェットウェル(W/W)への移行を促進させることがわかる。また、格納容器バイパス事象は、建屋への FP 移行と環境放出が大幅に増大させる恐れがある。本解析では、事故緩和策として、原子炉減圧操作を想定しているが、それでもなお炉内インベントリの 20%程度のセシウムが低圧系配管を介して、原子炉建屋に移行している。

ヨウ素とセシウムのプラント内挙動は同様の傾向を示すと述べたが、化学形の違いにより沈着挙動が若干異なる。セシウムは、想定される化学形が多数存在し、CsI から CsOH、CsBO₂、Cs₂MoO₄ など蒸気圧が低い化学種に置換することで、CsI に比べて、移行経路での沈着量が促進される傾向がある。その違いが明確なのが、格納容器破損直前におけるヨウ素とセシウムのプラント内浮遊量の違いである。全交流源電源喪失 TB における格納容器破損時と計算終了時の円グラフ(図 4.4.5-1 及び図 4.4.5-2)の比較からも明確なように、格納容器破損時(直前)でのプラント内浮遊量は、セシウムよりもヨウ素の方が多傾向がある。浮遊割合が少ないセシウムは、ヨウ素よりもソースタームが小さい傾向がある。

(4) 化学種組成表の提案及び感度解析

系統的なソースターム解析において、圧力容器破損時、格納容器破損時、計算終了時の 3 つのタイミングにおけるプラント内のヨウ素及びセシウム分布を棒グラフ(図 4.4.5～図

4.4.10)に整理した。このうち、図 4.4.11 及び表 4.4.8 に示す計算終了時の組成比を化学種組成表として提案する。FP 化学の計算機能を有しない解析コードにおいて、本化学種組成に従い燃料からのヨウ素及びセシウム化学種の放出を想定することで、FP 化学の計算機能を有する計算コードと同等の解析ができると考えられる。

また同化学種組成表は、熱力学平衡計算（系の元素組成と雰囲気温度により一意に定まる）に基づくので、原子炉系内の各 FP 間の相対的な元素量の不確かさが伝播されていると考えられる。つまり、現コードで評価される元素量比を反映した結果である。原子炉系内の元素量やその元素量比を決定する要因として、燃料からの FP 放出速度が挙げられる。そこで、燃料放出時のヨウ素、セシウム、モリブデン等の放出速度について感度解析を実施し、化学種組成表の不確かさを評価した。

THALES/KICHE コードにおいて、燃料からの放出速度は、シビアアクシデント総合解析コードで良く利用される実験相関式である CORSOR-M モデルにより決定している。CORSOR-M モデルは、温度 T[K]の関数からなるアレニウス型の相関式である。

$$dM^k / dt = -F^k M^k \quad \text{式(4.4-1)}$$

$$F^k = f^k \times k_0^k \exp\{-Q_k / (RT)\} \quad \text{式(4.4-2)}$$

- M^k : 燃料中に残存している FP 種 k の質量 [kg]
- F^k : 元素 k の放出率[1/s]
- f^k : 元素 k の補正係数 [-] (デフォルト値=1.0)
- k_0^k : 放出速度係数 [1/min]
- Q_k : 活性化エネルギー[kcal/mol]
- R : 気体定数 [kcal/mol-K]

本相関式は、放出速度係数 k_0^k [1/min]、活性化エネルギー Q_k [kcal/mol]の 2 つのパラメータからなり、元素毎に FP 放出実験から決定される。式(4.4-2)の f^k が放出率に対する補正係数 (デフォルト値が 1.0)であり、THALES2 では入力により設定できる。この放出率に対する補正係数 f^k を用い感度解析を実施した。

感度解析ケースを表 4.4.9 に示す。系統的なソースターム解析で実施した 6 個の事故シーケンスに対して、それぞれ 7 ケース(合計 42 ケース)の感度解析を実施し、生成されるヨウ素及びセシウム化学種量への感度を検討した。感度解析結果例として、Mo 放出率を変動させた場合の生成化学種への影響例を図 4.4.12 に示す。本図は、6 つの事故シーケンス毎に Mo 放出速度に対する補正係数を 1 倍(デフォルト値)、0.8 倍、0.5 倍、0.1 倍にした場合の生成割合(対初期インベントリ)の比較を 6 つの化学種毎に示した。Mo 補正係数を変更した場

合に、デフォルト(Mo1.0)の結果と比較することで、生成化学種への影響が確認できる。本結果から、感度解析パラメータの1つである Mo 放出速度は、CsI、I₂、CsBO₂ の生成には殆ど影響ないが、CsOH 及び Cs₂MoO₄ の生成に関わっている。Mo の放出速度が 0.1 倍となった場合、本組成表から CsOH や Cs₂MoO₄ に着目すると数 10%オーダーの評価誤差を生じる可能性がある。したがって、本組成表は、FP 元素量比を大きく変える可能性があるモデル（例えば FP 放出モデル）が更新された際に再度作成する必要がある。

4.5 まとめ

MELCOR 最新版(バージョン 2.2)のマニュアルを調査し、原子炉冷却系でのセシウム及びヨウ素の化学的挙動を扱えないシビアアクシデント総合解析コード MELCOR への本研究で得られた知見の反映方法について検討を進めた。ここで、より具体的な MELCOR 解析への反映方法についてはユーザーズガイドの調査も含め更なる調査・検討が必要である。

更に、MELCOR 解析の参考となる技術的基礎情報の取得を目的に、BWR5/Mark-II 改プラントを対象に、THALES2/KICHE を用いて、系統的なソースターム解析を実施し、事故シーケンス別に化学種組成表の検討を実施した。系統的なソースターム解析の全体傾向として、Cs は主に CsOH と Cs₂MoO₄ が主成分であり、I は約 80~90%が CsI であった。また詳細な組成比は、事故シーケンスに依存して数 10%オーダーで変化した。さらに、作成した化学組成表の不確かさを評価するために実施した感度解析では、FP 元素量比を大きく変える可能性があるモデル（例えば FP 放出モデル）による影響を受けることが示された。つまり、本組成表は、FP 元素量比を大きく変える可能性があるモデル（例えば FP 放出モデル）が更新された際に再度作成する必要がある。

参考文献

- [4.1] 石川, 他, THALES-2 コードによる BWR Mark-II を対象としたレベル 3PSA のための系統的なソースターム解析, JAERI-Research 2005-021, 2005.
- [4.2] K. Moriyama, et al., A Simulation Tool for Kinetics of Iodine Chemistry in the Containment of Light Water Reactors under Severe Accident Conditions, JAEA-Data/Code 2010-034, 2010.
- [4.3] 令和 2 年度原子力施設等防災対策等委託費（シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化）事業成果報告書 改訂版, 日本原子力研究開発機構, 令和 3 年 4 月.
- [4.4] L.L. Humphries, et. al., MELCOR computer Code Manuals Vol. 1: Primer and User's Guide Version 2.2.19018, SAND2021-0252 O, 2021.
- [4.5] L.L. Humphries, et. al., MELCOR computer Code Manuals Vol. 2: Reference Manual Version 2.2.19018, SAND2021-0241 O, 2021.
- [4.6] 伊藤, 他, CHEMKEq: 化学平衡論及び反応速度論の部分混合モデルに基づく化学組成評価コード, JAEA-Data/Code 2018-012, 2018 年 10 月.

表 4.2.1 FP 化学種平衡組成予測モデルの入出力情報

入力パラメータ		出力パラメータ	
元素濃度 (kmol/L)	Cs, I, Mo, B	各化学種の 平衡濃度 (kmol/L)	ヨウ素 : CsI、HI、I(又は I ₂) セシウム : CsI、CsOH、Cs ₂ MoO ₄ 、CsBO ₂ ホウ素 : CsBO ₂ 、HBO ₂ * モリブデン : Cs ₂ MoO ₄ 、単体 Mo
雰囲気組 成比(-)	H ₂ O/H ₂	元素別の 組成比(-)	同上
温度(K)	雰囲気温度		

*制御材 B₄C 酸化からの生成化学種 B₂O₃ に水蒸気分子が 1 個結合したもの
(B₂O₃+H₂O → 2HBO₂)

表 4.3.1 MELCOR で扱える元素グループ

Class	元素グループ	代表 元素	主な元素の種類
1	希ガス類	Xe	Xe, Kr, Rn, He, Ne, Ar, H, N
2	アルカリ金属類	Cs	Cs, Rb, Li, Na, K, Fr, Cu
3	アルカリ土類	Ba	Ba, Sr, Be, Mg, Ca, Ra, Es, Fm
4	ハロゲン類	I	I, Br, F, Cl, At
5	テルル類	Te	Te, Se, S, O, Po
6	貴金属類	Ru	Ru, Pb, Rh, Ni, Re, Os, Ir, Pt, Au
7	前期遷移元素類	Mo	Mo, Tc, Nb, Fe, Cr, Mn, V, Co, Ta, W
8	四価元素類	Ce	Ce, Zr, Th, Np, Ti, Hf, Pa, Pu, C
9	三価元素類 (希土類など)	La	La, Pm, Sm, Y, Pr, Nd, Al, Sc, Ac, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Am, Cm, Bk, Cf
10	ウラン類	U	U
11	高揮発性種族	Cd	Cd, Hg, Zn, As, Sb, Pd, Tl, Bi
12	低揮発性種族	Ag	Ga, Ge, In, Sn, Ag
13	ホウ素	B	B, Si, P
14	水	H ₂ O	H ₂ O
15	コンクリート	-	-
16	Cesium Iodine	CsI	Class 2 と Class 4
17	Cesium Molybdate	CsM	Class 2 と Class 7

表 4.4.1 解析対象プラントの仕様

	炉型	BWR5/Mark-II 改良型	
	類似プラント	柏崎刈羽 2～5号	
	定格熱出力[MWt] (電気出力)	3300 (110万kW級)	
	(RCIC 制御用直流電源容量)	8時間	
格 納 容 器	設計圧[kg/cm ² g]	3.16	
	設計漏洩率 [%/day]	0.5	
	格納容器自由体積 (D/W+W/W)[m ³]	14400	
	ドライ ウェル (D/W)	全体積[m ³]	8700
	ウェット ウェル(W/W)	全体積[m ³]	9700
		水体積[m ³]	5700
		気相体積[m ³]	4000
原子炉隔離時冷却系 (RCIC)	系統数	1	
	定格流量[t/h/台]	14.	
高圧注水系(HPCI)#1	系統数	1	
	定格流量[t/h/台]	1580	
低圧注水系(LPCI)	系統数	1	
	定格流量[t/h/台]	1440	
低圧炉心スプレー系 (LPCS)	系統数	2	
	定格流量[t/h/台]	1690	

#1: BWR5 では高圧炉心スプレー系(HPCS)

表 4.4.2 解析シナリオの概要

No	炉心損傷事故シーケンス	格納容器機能喪失シナリオ
1	全交流電源喪失(TB)	過圧破損
2	炉心冷却機能喪失(TQUV)	過圧破損
3	高圧注水・減圧機能喪失(TQUX)	過圧破損
4	LOCA 時注水機能喪失(S1QUV)	過圧破損
5	崩壊熱除去機能喪失(TW)	過圧破損
6	インターフェースシステム LOCA (IS-LOCA)	格納容器バイパス

表 4.4.3 事故進展に関わる解析条件

プラント	BWR4/Mark-II 改良
格納容器設計圧 (kgf/cm ² g)	3.16
格納容器破損圧力	格納容器設計圧×2.5 倍
格納容器破損の位置及びサイズ	ドライウェル気相部、0.01 m ²
シビアアクシデント対策など事故緩和策	格納容器バイパスを除きなし。格納容器バイパスは、放射性物質の建屋への大量放出を抑制するため原子炉減圧操作を仮定

表 4.4.4 FP 移行挙動に関わる解析条件

項目	概要
燃料からの FP 放出	CORSOR-M
燃料放出時のヨウ素及びセシウムの化学形	CsI 及び CsOH (全てのヨウ素は Cs と結合し CsI となり、残りの Cs は全て CsOH になると仮定)
原子炉冷却系(RCS)内 FP 化学の計算対象 スクラビングモデル	高温となる RCS 内全ボリュームを対象#1 エアロゾルについては、電力共通研究の金子らのモデルを利用。
格納容器内ヨウ素化学	考慮しない#2。

#1: RCS 内 FP 化学計算は、高温となる RCS 内でのみ適用可能

#2: 格納容器ヨウ素化学を利用すると、液相に移行したヨウ素及びセシウム化学種は、I⁻及び Cs⁺イオンなど、他の化学種に変化してしまうので利用しないことにした

表 4.4.5 主要イベント発生時刻 (BWR5/Mark-II 改良型)

(単位：時間)

	TB 過圧	TQUV 過圧	TQUX 過圧	S1QUV 過圧	TW 過圧	IS-LOCA バイパス
RCIC 作動	0.02	—	—	—	0.02	—
RCIC 停止*	7.90	—	—	—	58.1	—
ADS 作動	—	0.36	—	—	—	0.25
ギャップ放出	10.9	0.64	0.86	0.25	63.7	0.49
炉心溶融開始①	11.2	0.78	1.03	0.33	64.0	0.60
炉心支持板破損②	12.3	1.16	1.95	0.51	65.5	0.95
下部ヘッド破損③	17.9	6.83	6.09	5.65	73.5	7.24
ペDESTAL貫通④	40.6	33.3	24.5	22.7	—	—
格納容器破損⑤	46.8	58.1	44.0	46.5	58.9	—
計算終了	80.0	80.0	60.0	80.0	100.0	100.0

* 最後の注水が止まった時間

表 4.4.6 多ケース解析における事故進展の概要(その 1)

No	事故シーケンスの概要
1 全交流電源喪失 (TB)	<p>全交流電源喪失を起因事象とする。原子炉スクラムには成功する。その後、原子炉隔離時冷却系(RCIC)は作動するが、事故後 8 時間に制御用電源(直流電源)の枯渇によって、RCIC が機能喪失し、炉心損傷に至る。炉心損傷は後期に生じ、原子炉は高圧状態で炉心損傷が進展する。その後、事故緩和策の復旧に失敗することで、圧力容器破損及び格納容器破損に至る。事故進展の流れを以下に示す。</p> <p>過渡事象+全交流電源喪失+高圧注水系作動後停止(RCIC,8時間でDC枯渇)→原子炉は高圧状態で炉心損傷→下部ヘッド破損→格納容器除熱失敗(仮定)→ペDESTAL破損→格納容器過圧破損</p>
2 炉心冷却機能喪失 (TQUV)	<p>過渡事象発生後、原子炉スクラムには成功する。高圧注水系の故障により炉心注水に失敗する。運転員による原子炉減圧操作に成功するが、低圧注水にも失敗する。炉心損傷は早期に生じ、原子炉は低圧状態で炉心損傷が進展する。その後、事故緩和策の復旧に失敗することで、圧力容器破損及び格納容器破損に至る。事故進展の流れを以下に示す。</p> <p>過渡事象→高圧注水失敗→原子炉減圧(ADS,L1)→低圧注水失敗→原子炉は低圧状態で炉心損傷→下部ヘッド破損→格納容器徐熱失敗(仮定)→ペDESTAL破損→格納容器過圧破損</p>
3 高圧注水・減圧失敗 (TQUX)	<p>過渡事象発生後、原子炉スクラムには成功する。高圧注水系の故障により炉心注水に失敗する。また、原子炉減圧に失敗するため、低圧注水にも失敗する。原子炉は高圧状態で炉心損傷が進展する。その後、事故緩和策の復旧に失敗することで、圧力容器破損及び格納容器破損に至る。事故進展の流れを以下に示す。</p> <p>過渡事象→高圧注水・減圧失敗→原子炉は高圧状態で炉心損傷→下部ヘッド破損→格納容器徐熱失敗(仮定)→ペDESTAL破損→格納容器過圧破損</p>

表 4.4.6 多ケース解析における事故進展の概要(その 2)

No	事故シーケンスの概要
4 LOCA 時注水失敗 (SIQUV)	<p>再循環配管の 4 インチ口径の破断を初期事象とする中小破断 LOCA。原子炉スクラムには成功する。原子炉注水機能の故障によって炉心損傷する事故シナリオである。炉心損傷は早期に生じ、原子炉は低圧状態で炉心損傷が進展する。その後、事故緩和策の復旧に失敗することで、圧力容器破損及び格納容器破損に至る。事故進展の流れを以下に示す。</p> <p>中破断 LOCA→高圧注水失敗→原子炉減圧(ADS,L1)→低圧注水失敗→低圧状態で炉心損傷→下部ヘッド破損→格納容器徐熱機能喪失→ペDESTAL破損→格納容器過圧破損</p>
5 崩壊熱除去機能喪失 (TW)	<p>過渡事象発生後、原子炉スクラムに成功する。その後、RCIC には成功するが、崩壊熱の除去に失敗する。格納容器内に蓄積する水蒸気によって、炉心損傷前に格納容器が過圧破損する。その後、RCIC が何らかの原因で機能喪失するとの仮定により炉心損傷に至る。原子炉は高圧状態で炉心損傷が進展する。その後、事故緩和策の復旧に失敗することで、圧力容器破損及び格納容器破損に至る。事故進展の流れを以下に示す。</p> <p>格納容器からの崩壊熱除去失敗→高圧系 RCIC 作動→プール水温上昇→格納容器過圧破損→高圧系停止(仮定)→高圧状態で炉心損傷→下部ヘッド破損→ペDESTAL破損</p>
6 格納容器バイパス (IS-LOCA)	<p>低圧炉心スプレイ配管を介したインターフェースシステム LOCA(IS-LOCA)を想定した。原子炉建屋での 2 インチ口径の破断を初期事象とし、高圧注水系の故障により、炉心への注水機能が喪失する。本事象は、大きな環境への放出となりうるので、事故緩和策として運転員による原子炉減圧操作を想定した。また、事故後期に格納容器破損に至る可能性があるため、IS-LOCA と格納容器過圧破損の複合事象を想定した。事故進展の流れを以下に示す。</p> <p>低圧系配管破断による IS-LOCA→全 ECCS 機能喪失→ADS による原子炉減圧操作(事故緩和策)→原子炉は低圧状態で炉心損傷→下部ヘッド破損→ペDESTAL破損</p>

表 4.4.7 プラント内ヨウ素存在割合(全交流電源喪失 TB、棒グラフデータ、その 1)

1) 圧力容器破損時(直前)でのヨウ素存在割合(化学種別、対初期炉内内蔵量)

	RCS	D/W	W/W	R/B	ENVI	Fuel	Total
CsI	1.29E-01	1.25E-05	6.48E-01	7.51E-09	0.00E+00	-	7.78E-01
HI	4.59E-02	1.01E-13	9.45E-02	8.25E-26	0.00E+00	-	1.40E-01
I or I ₂	3.28E-03	1.19E-03	1.47E-02	3.74E-07	0.00E+00	-	1.92E-02
Fuel	-	-	-	-	-	6.29E-02	6.29E-02

2) 格納容器破損時(直前)のヨウ素存在割合 (化学種別、対初期炉内内蔵量)

	RCS	D/W	W/W	R/B	ENVI	Fuel	Total
CsI	5.07E-02	1.21E-01	6.54E-01	3.88E-05	0.00E+00	-	8.25E-01
HI	2.80E-02	1.10E-09	6.79E-02	4.39E-12	0.00E+00	-	9.59E-02
I or I ₂	4.05E-04	3.98E-02	3.95E-02	1.25E-04	0.00E+00	-	7.98E-02
Fuel	-	-	-	-	-	1.03E-04	1.03E-04

3) 計算終了時(80h)のプラント内ヨウ素存在割合 (化学種別、対初期炉内内蔵量)

	RCS	D/W	W/W	R/B	ENVI	Fuel	Total
CsI	5.07E-02	1.20E-01	6.54E-01	8.27E-05	1.86E-04	-	8.25E-01
HI	2.80E-02	1.10E-09	3.56E-02	6.71E-13	1.88E-12	-	6.36E-02
I or I ₂	4.19E-04	1.64E-02	2.58E-02	5.53E-03	6.45E-02	-	1.13E-01
Fuel	-	-	-	-	-	1.03E-04	1.03E-04

表 4.4.7 プラント内セシウム存在割合(全交流電源喪失 TB、棒グラフデータ、その 2)

1) 圧力容器破損時(直前)のセシウム存在割合 (化学種別、対初期炉内内蔵量)

	RCS	D/W	W/W	R/B	ENVI	Fuel	Total
CsI	1.08E-02	1.05E-06	5.45E-02	6.31E-10	0.00E+00	-	6.53E-02
Cs ₂ MoO ₄	9.63E-02	2.03E-06	3.04E-01	9.52E-10	0.00E+00	-	4.00E-01
CsBO ₂	6.28E-04	7.11E-06	4.24E-02	4.03E-09	0.00E+00	-	4.31E-02
CsOH	7.12E-02	1.63E-06	3.57E-01	1.00E-09	0.00E+00	-	4.29E-01
Fuel	-	-	-	-	-	6.29E-02	6.29E-02

2) 格納容器破損時(直前)のセシウム存在割合 (化学種別、対初期炉内内蔵量)

	RCS	D/W	W/W	R/B	ENVI	Fuel	Total
CsI	4.26E-03	1.01E-02	5.49E-02	3.25E-06	0.00E+00	-	6.93E-02
Cs ₂ MoO ₄	3.08E-02	6.59E-02	3.09E-01	2.26E-05	0.00E+00	-	4.06E-01
CsBO ₂	4.71E-04	1.27E-04	4.24E-02	4.81E-08	0.00E+00	-	4.30E-02
CsOH	2.92E-02	9.20E-02	3.60E-01	2.69E-05	0.00E+00	-	4.82E-01
Fuel	-	-	-	-	-	1.04E-04	1.04E-04

3) 計算終了時(80h)のヨウ素存在割合 (化学種別、対初期炉内内蔵量)

	RCS	D/W	W/W	R/B	ENVI	Fuel	Total
CsI	4.26E-03	1.01E-02	5.49E-02	6.94E-06	1.57E-05	-	6.93E-02
Cs ₂ MoO ₄	3.08E-02	6.59E-02	3.09E-01	3.07E-05	3.60E-05	-	4.06E-01
CsBO ₂	4.71E-04	1.26E-04	4.24E-02	1.64E-07	5.11E-07	-	4.30E-02
CsOH	2.92E-02	9.19E-02	3.60E-01	4.45E-05	7.57E-05	-	4.82E-01
Fuel	-	-	-	-	-	1.04E-04	1.04E-04

表 4.4.8 提案するヨウ素及びセシウムの化学種組成表 (計算終了時結果)

1) ヨウ素化学種

	TB	TQUV	TQUX	S1QUV	TW	IS-LOCA
CsI	8.25E-01	9.38E-01	8.36E-01	8.30E-01	7.81E-01	8.36E-01
HI	6.36E-02	1.36E-02	5.39E-02	9.85E-03	5.65E-02	3.78E-02
I or I ₂	1.13E-01	4.90E-02	1.12E-01	1.61E-01	1.58E-01	1.24E-01

2) セシウム化学種

	TB	TQUV	TQUX	S1QUV	TW	IS-LOCA
CsI	6.93E-02	7.88E-02	7.02E-02	6.97E-02	6.56E-02	7.02E-02
Cs ₂ MoO ₄	4.06E-01	3.96E-01	4.57E-01	3.31E-01	4.00E-01	3.24E-01
CsBO ₂	4.30E-02	1.57E-02	4.89E-02	5.51E-02	5.22E-02	2.33E-02
CsOH	4.82E-01	5.10E-01	4.24E-01	5.44E-01	4.76E-01	5.80E-01

表 4.4.9 感度解析ケース

感度解析パラメータ		変動幅
FP 放出率に対する 補正係数 (デフォルト=1.0)	セシウム#1	1.0
	ヨウ素	1.0、0.8
	モリブデン	1.0、0.8、0.5、0.1
	ホウ素 #2	内蔵の B ₄ C 制御材酸化モデルから計算

#1: セシウム元素は固定させ、他の元素を変動

#2: 広範な温度及び雰囲気条件に適用可能なモデルのため変動パラメータから除外

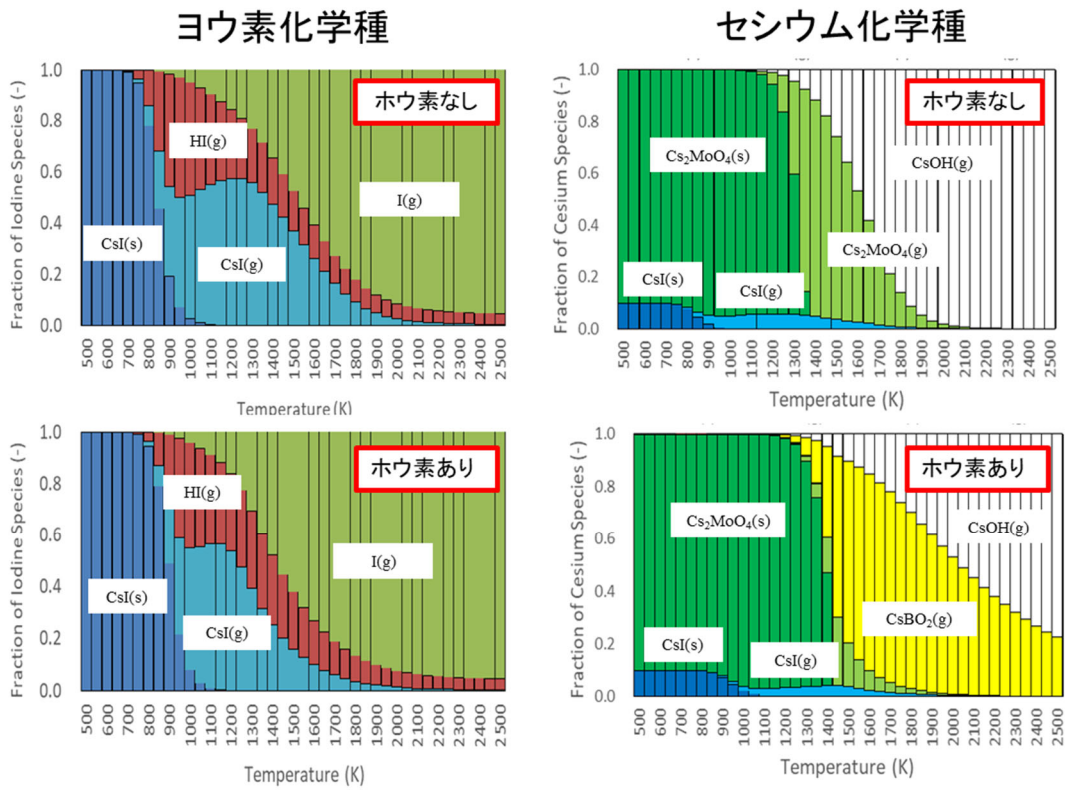


図 4.2.1 ヨウ素及びセシウム化学種の温度依存性
(CHEMKEq 結果、BWR 条件: モル濃度比 I:Cs:Mo:B= 0.01: 0.1: 0.1:1.0, H₂O/H₂=100)

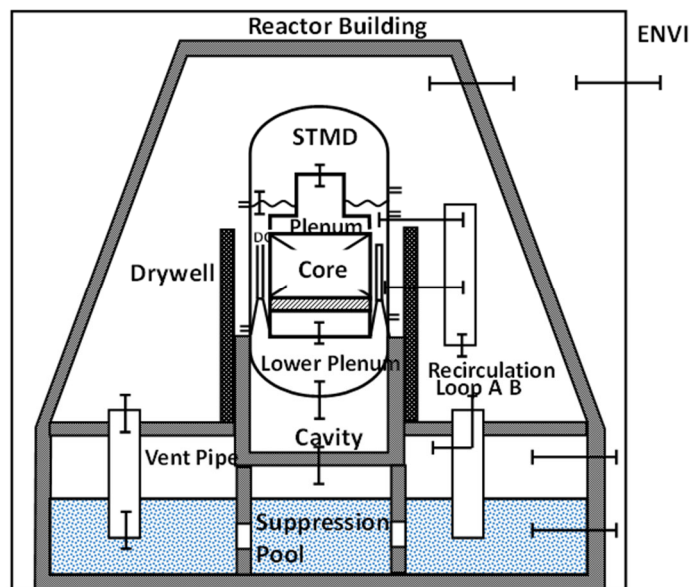


図 4.4.1 解析対象プラント(BWR5/Mark-II 改良型)の体系

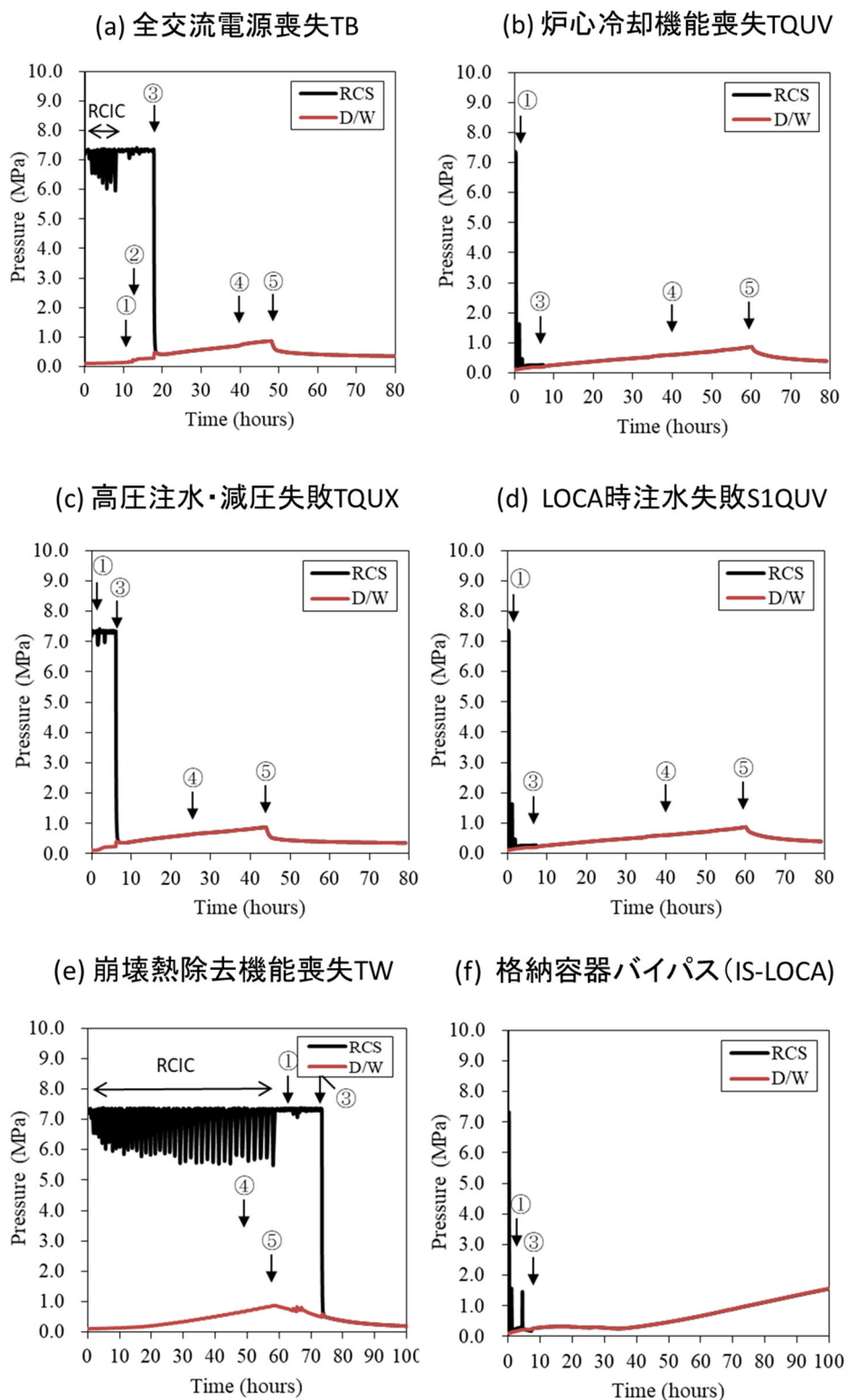


図 4.4.2 BWR5/Mark-II 改良型の熱水力挙動の例 (その 1、原子炉圧力) (①：炉心溶融開始、②：炉心支持板破損、③：圧力容器破損、④：ペDESTAL破損、⑤：格納容器破損)

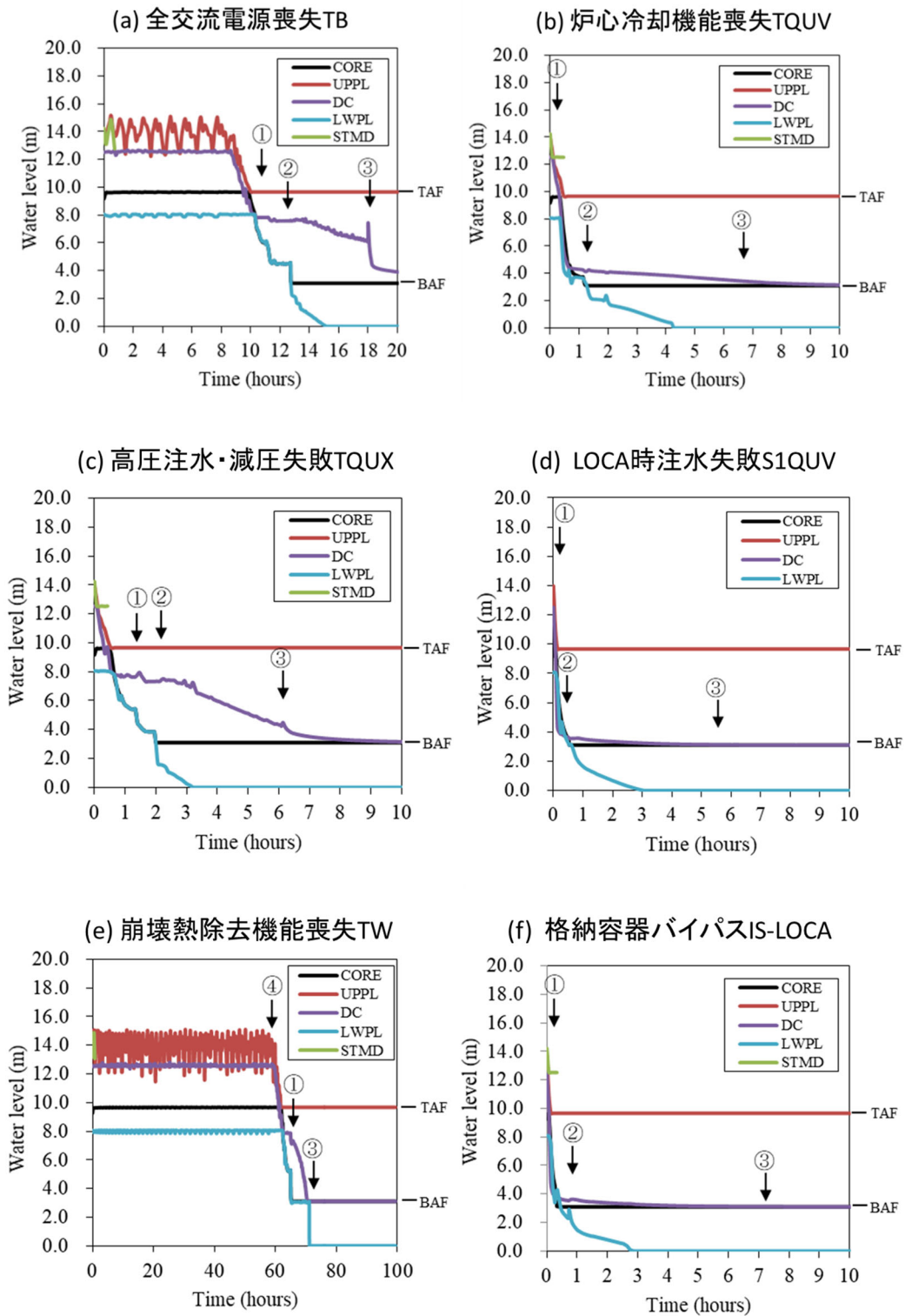
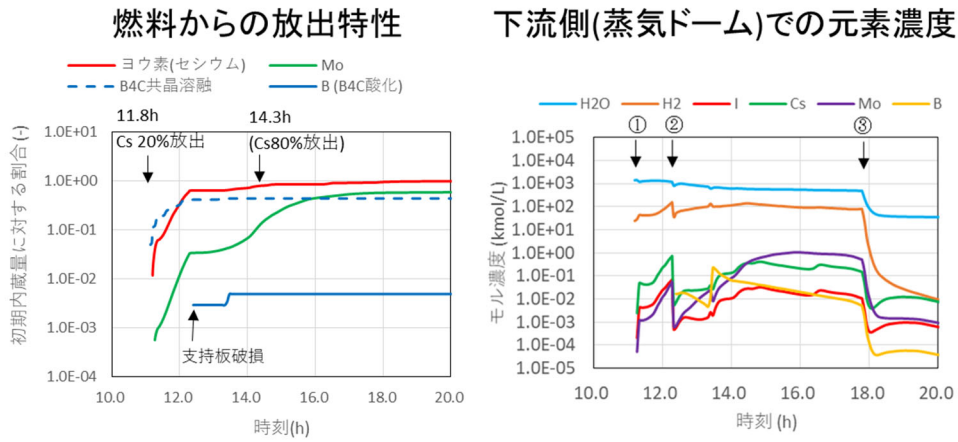
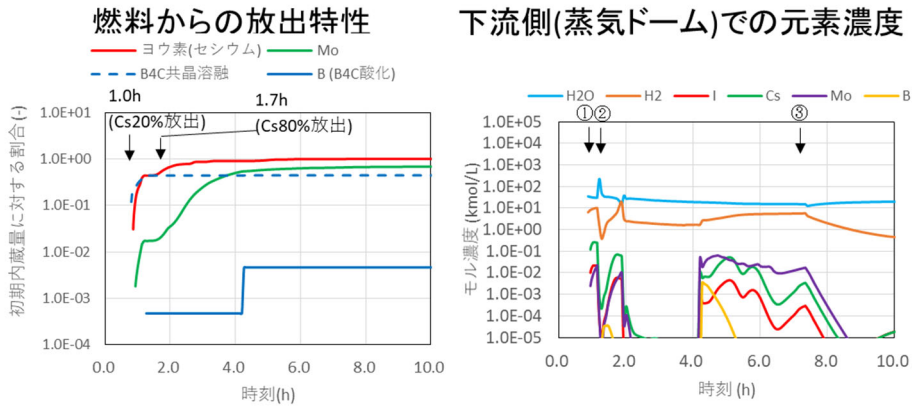


図 4.4.2 BWR5/Mark-II 改良型の熱水力挙動の例 (その 2、原子炉水位) (①: 炉心溶融開始、②: 炉心支持板破損、③: 圧力容器破損、④: ペDESTAL破損、⑤: 格納容器破損)

(a) 全交流電源喪失TB



(b) 炉心冷却機能喪失TQUV



(c) 高圧注水・減圧失敗TQUX

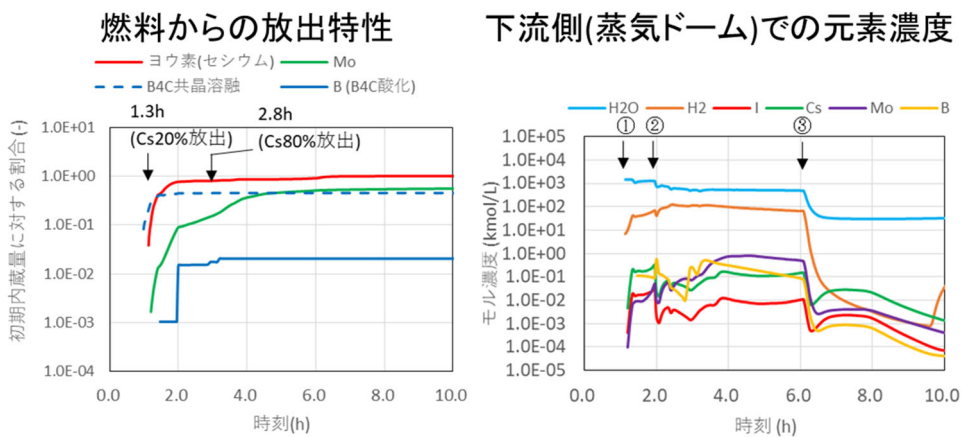
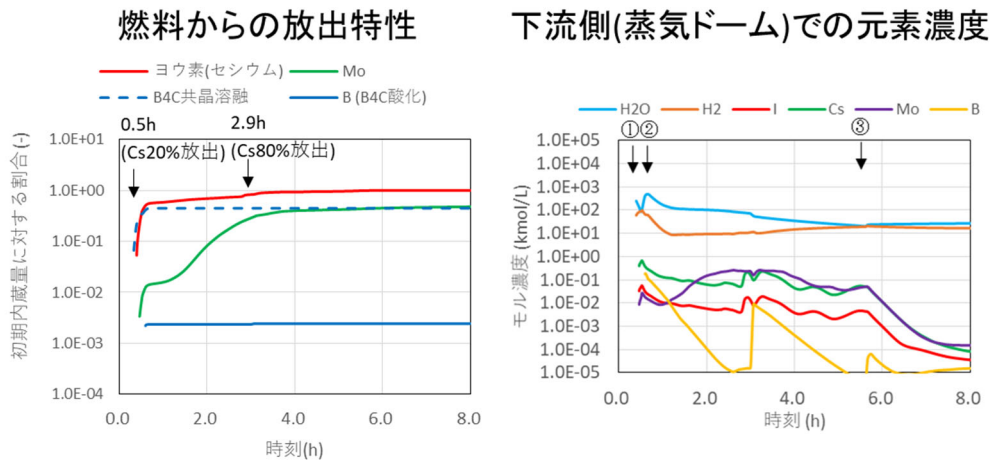


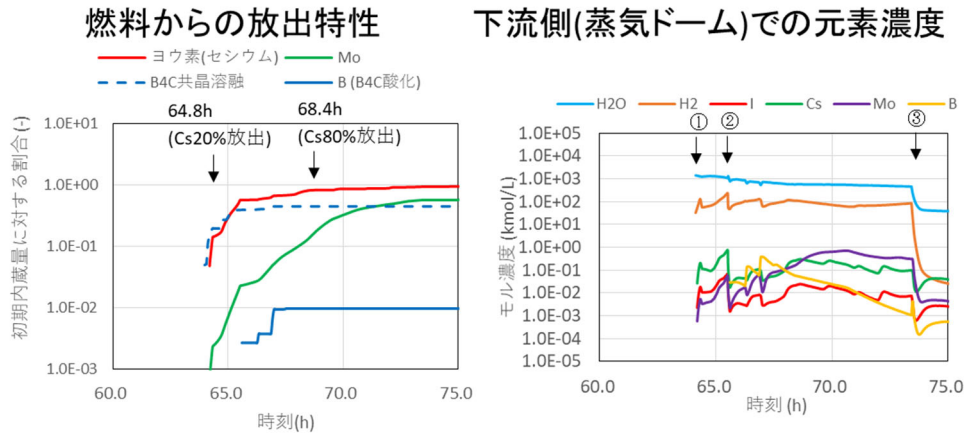
図 4.4.3 燃料からの FP 放出特性及び雰囲気組成(その 1)

(① : 炉心溶融開始、② : 炉心支持板破損、③: 压力容器破損)

(d) LOCA時注水失敗S1QUV



(e) 崩壊熱除去機能喪失TW



(f) 格納容器バイパスIS-LOCA

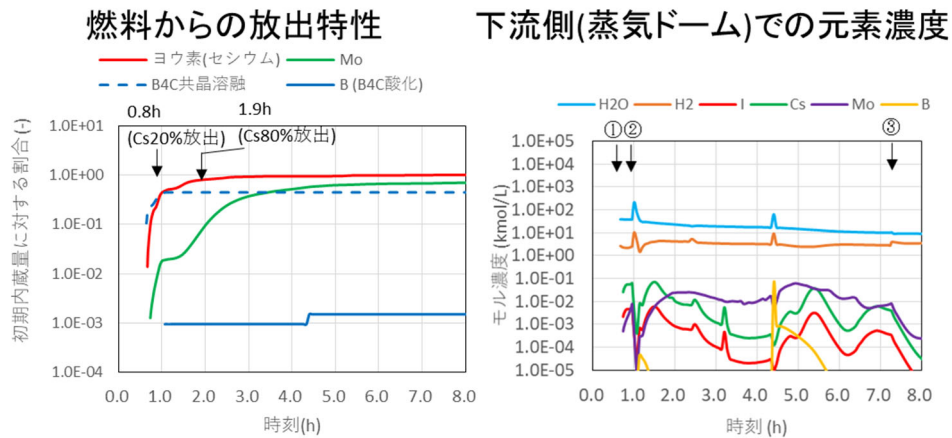
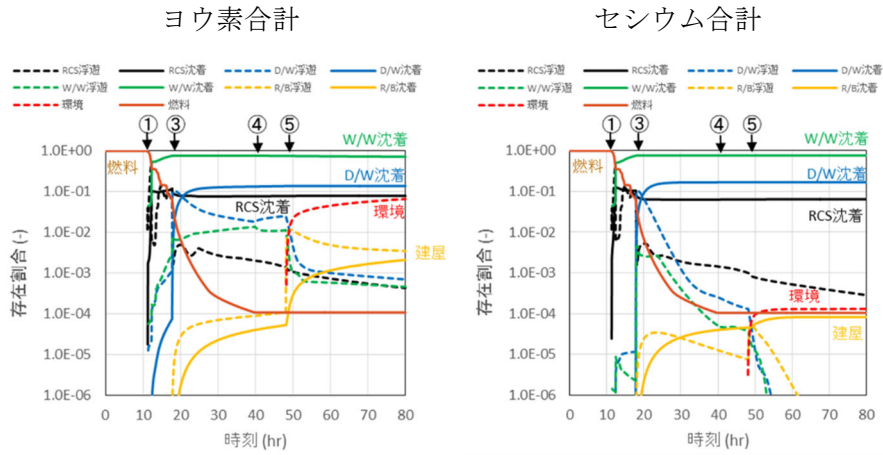


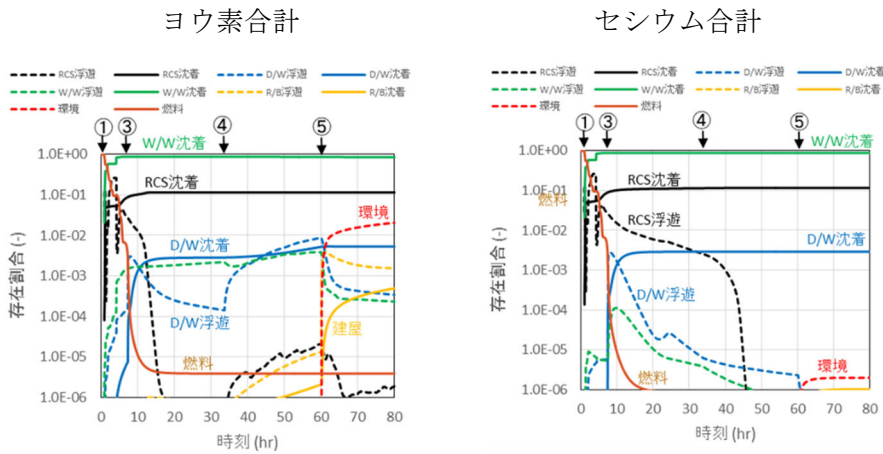
図 4.4.3 燃料からの FP 放出特性及び雰囲気組成(その 2)

(① : 炉心溶融開始、② : 炉心支持板破損、③ : 压力容器破損)

(a) 全交流電源喪失 (TB)



(b) 炉心冷却機能喪失 (TQUV)



(c) 原子炉減圧失敗 (TQUX)

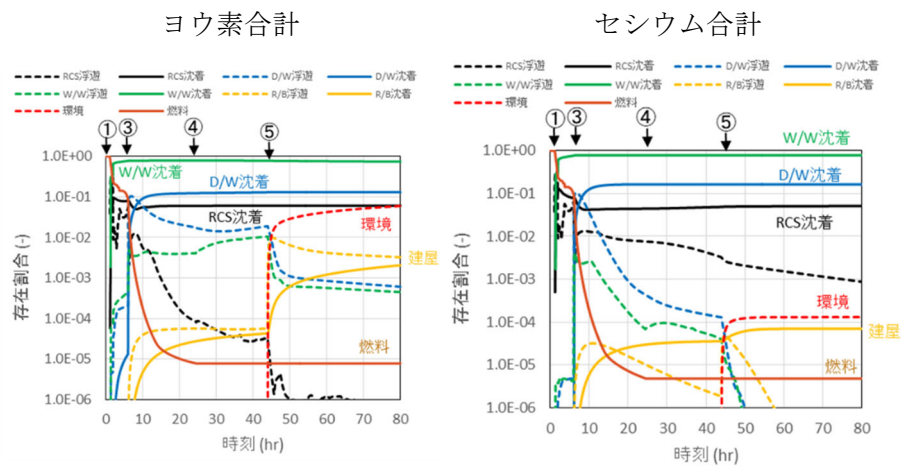
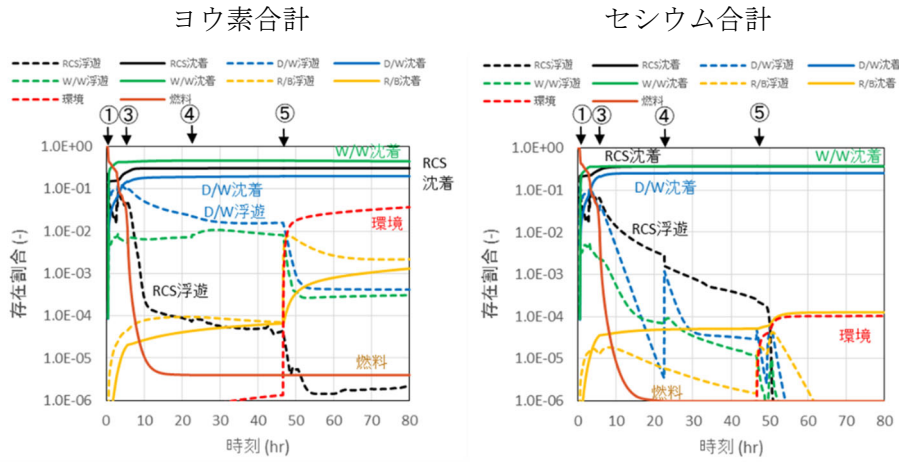
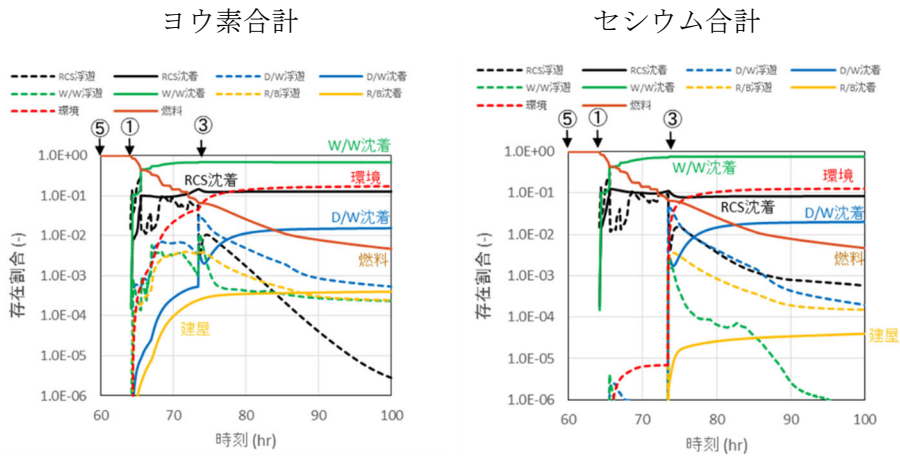


図 4.4.4 ヨウ素及びセシウムのプラント内挙動 (その 1)
 (① : 炉心溶融開始、② : 炉心支持板破損、③ : 圧力容器破損、
 ④ : ペDESTAL破損、⑤ : 格納容器破損)

(d) 中小破断 LOCA (SIQUV)



(e) 崩壊熱除去失敗 (TW)



(f) 格納容器バイパス (IS-LOCA)

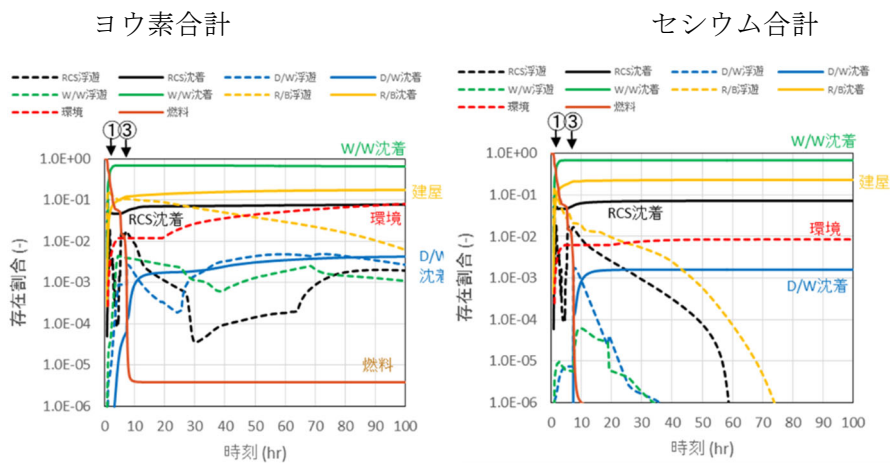


図 4.4.4 ヨウ素及びセシウムのプラント内挙動 (その 2)
 (①: 炉心溶融開始、②: 炉心支持板破損、③: 圧力容器破損、
 ④: ペDESTAL破損、⑤: 格納容器破損)

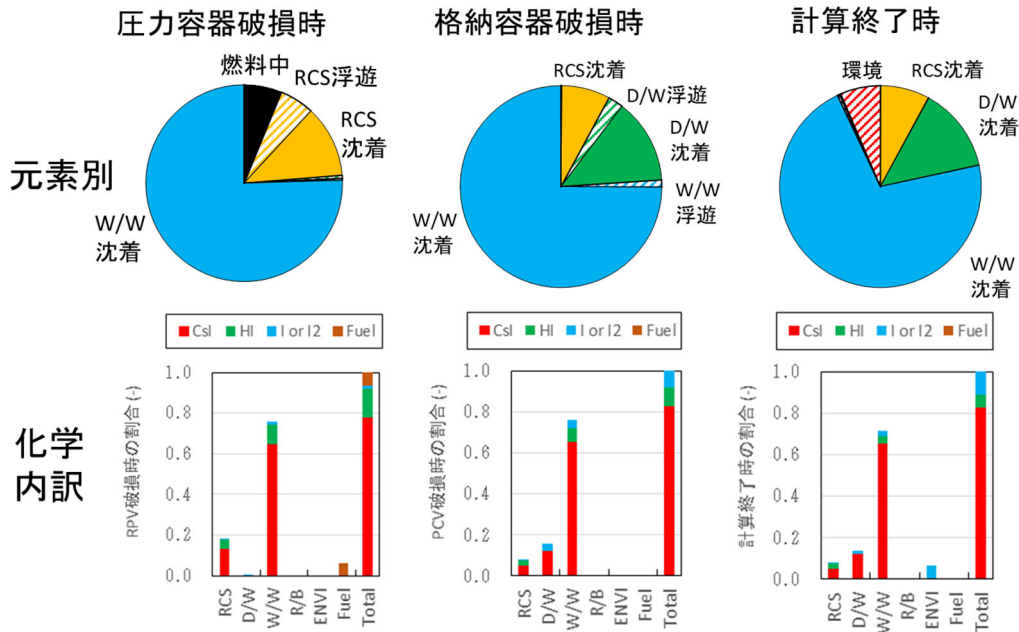


図 4.4.5-1 ヨウ素のプラント内分布 (全交流電源喪失 TB)
(主要なタイミングにおけるスナップショット)

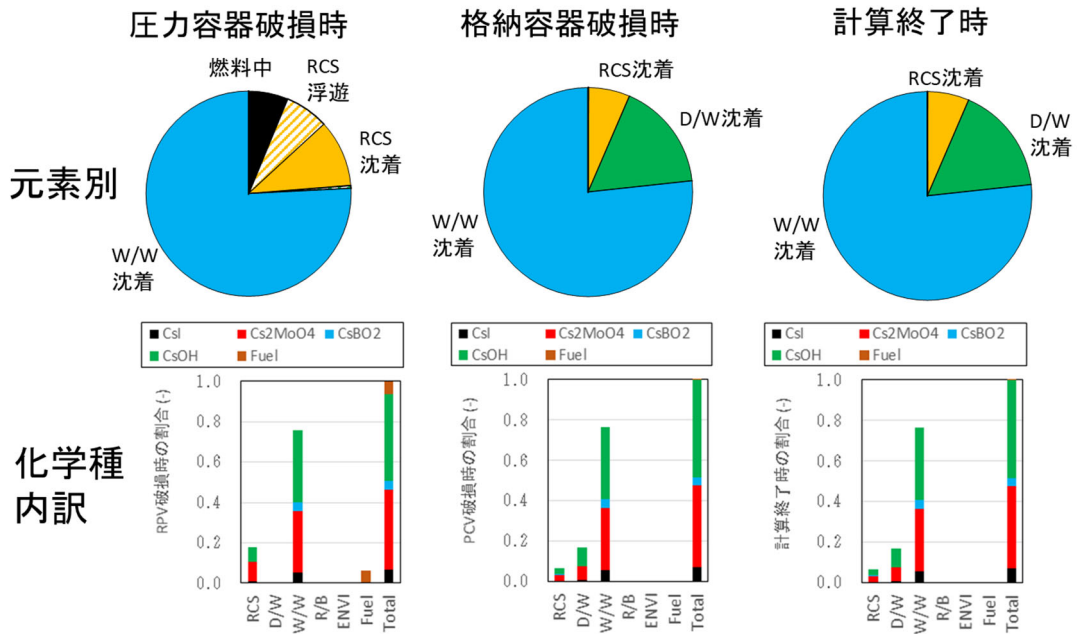


図 4.4.5-2 セシウムのプラント内分布 (全交流電源喪失 TB)
(主要なタイミングにおけるスナップショット)

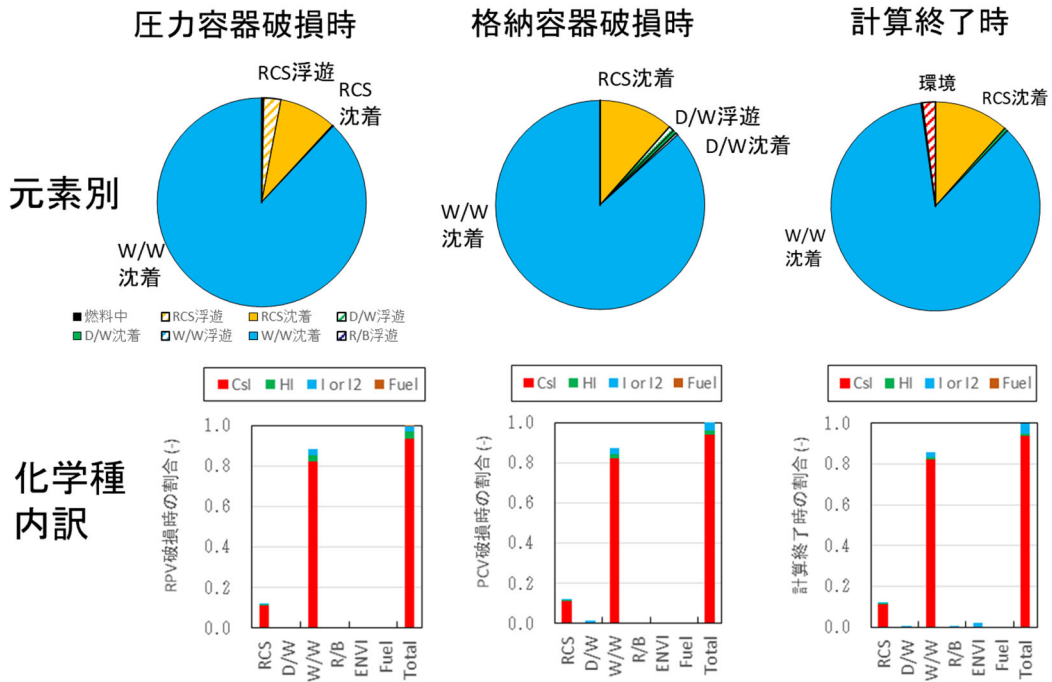


図 4.4.6-1 ヨウ素のプラント内分布 (炉心注水失敗 TQUV)
(主要なタイミングにおけるスナップショット)

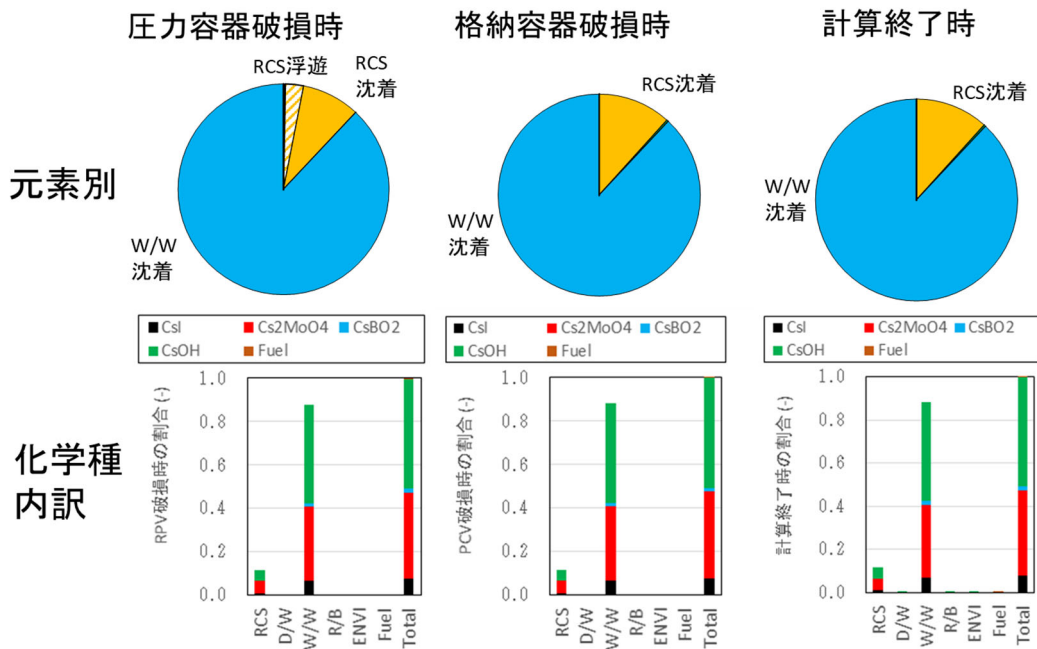


図 4.4.6-2 セシウムのプラント内分布 (炉心注水失敗 TQUV)
(主要なタイミングにおけるスナップショット)

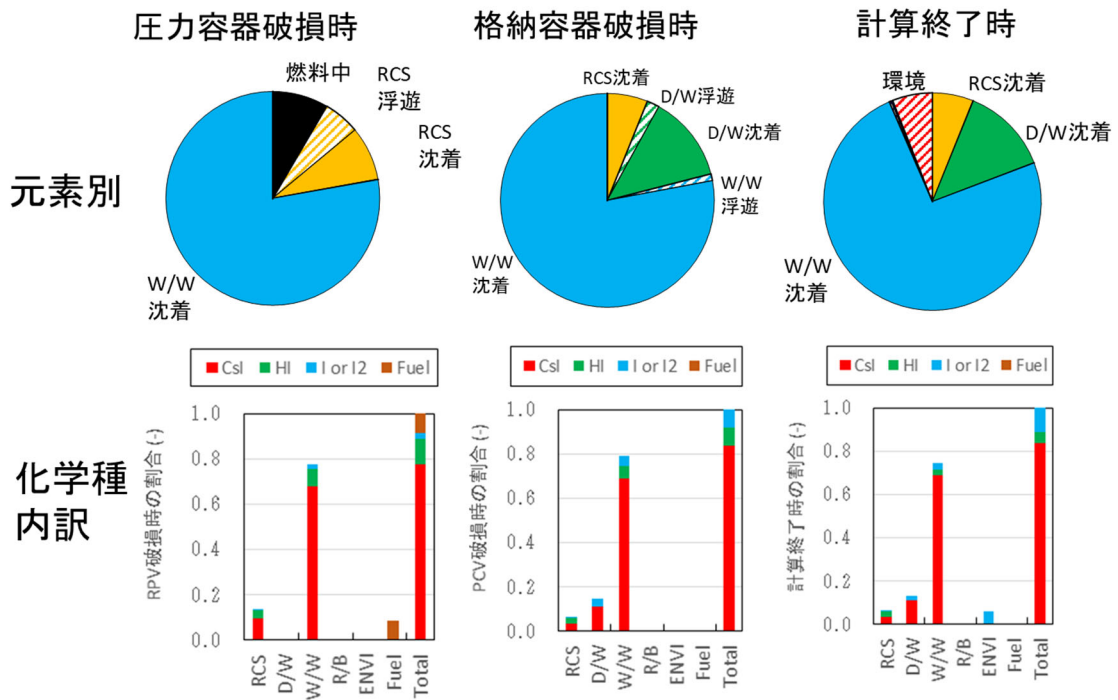


図 4.4.7-1 ヨウ素のプラント内分布 (原子炉減圧失敗 TQUX)
(主要なタイミングにおけるスナップショット)

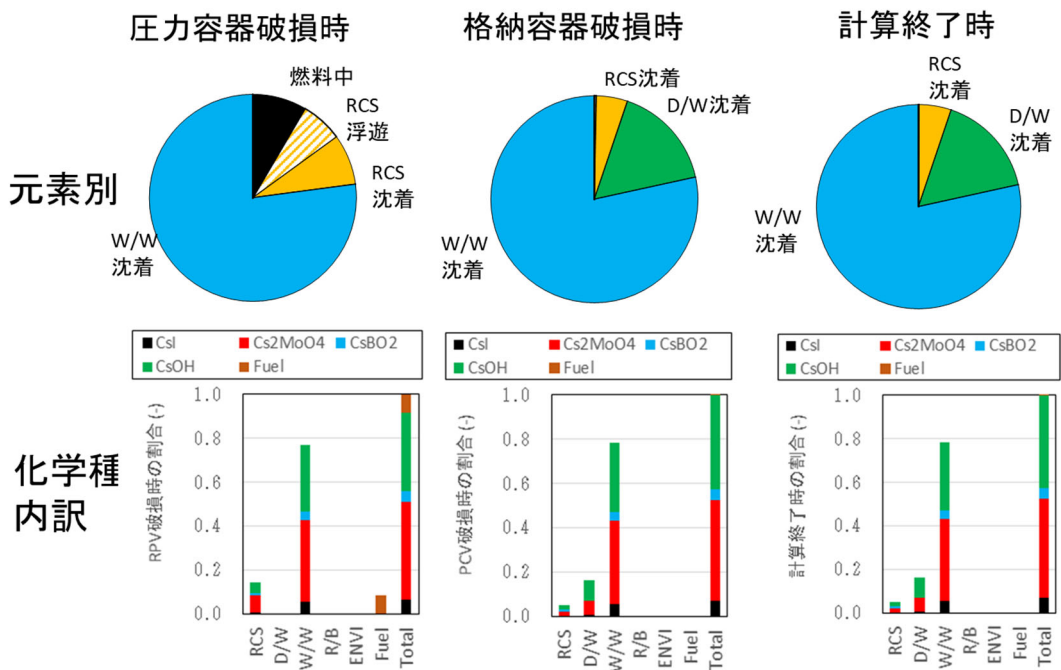


図 4.4.7-2 セシウムのプラント内分布 (原子炉減圧失敗 TQUX)
(主要なタイミングにおけるスナップショット)

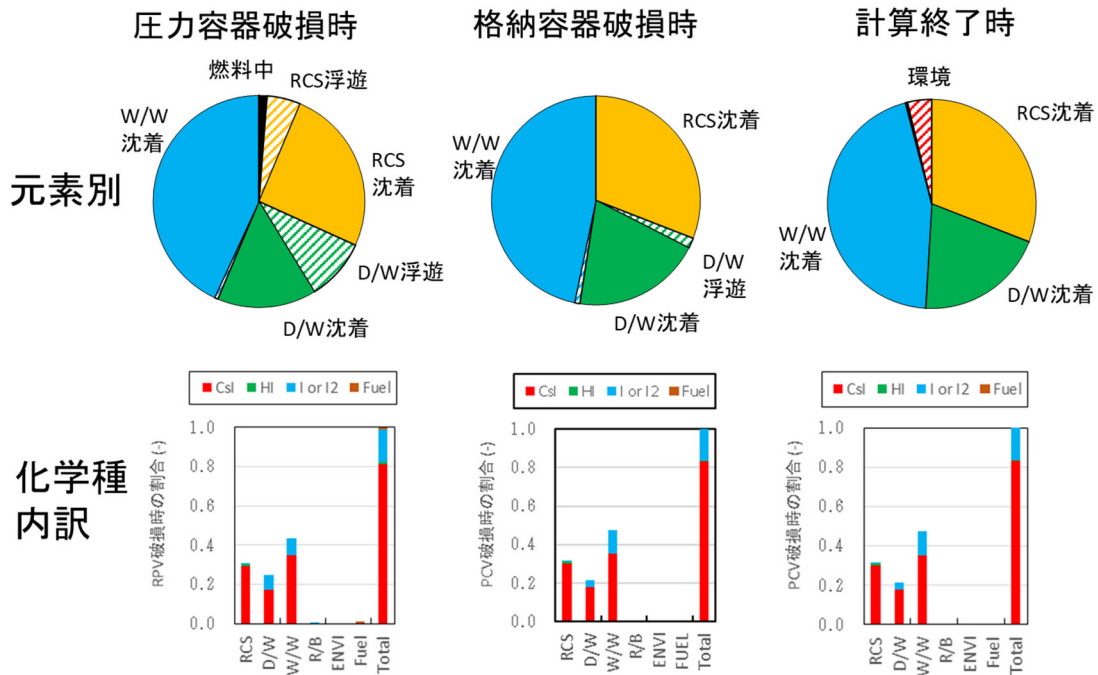


図 4.4.8-1 ヨウ素のプラント内分布 (中小破断 LOCA S1QUV)
(主要なタイミングにおけるスナップショット)

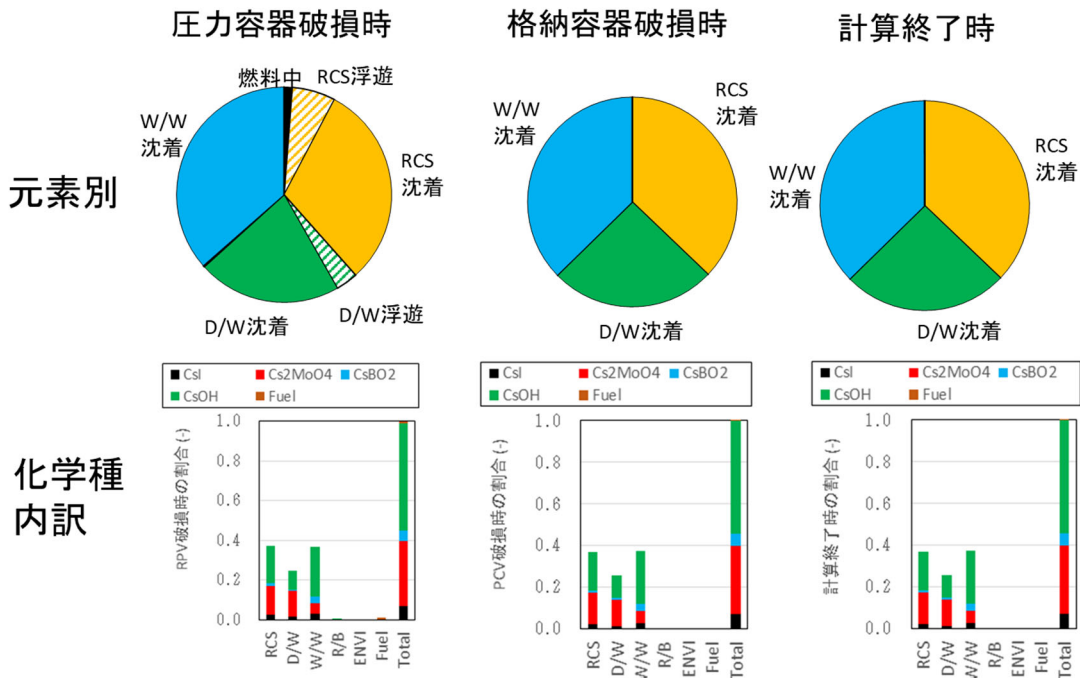


図 4.4.8-2 セシウムのプラント内分布 (中小破断 LOCA S1QUV)
(主要なタイミングにおけるスナップショット)

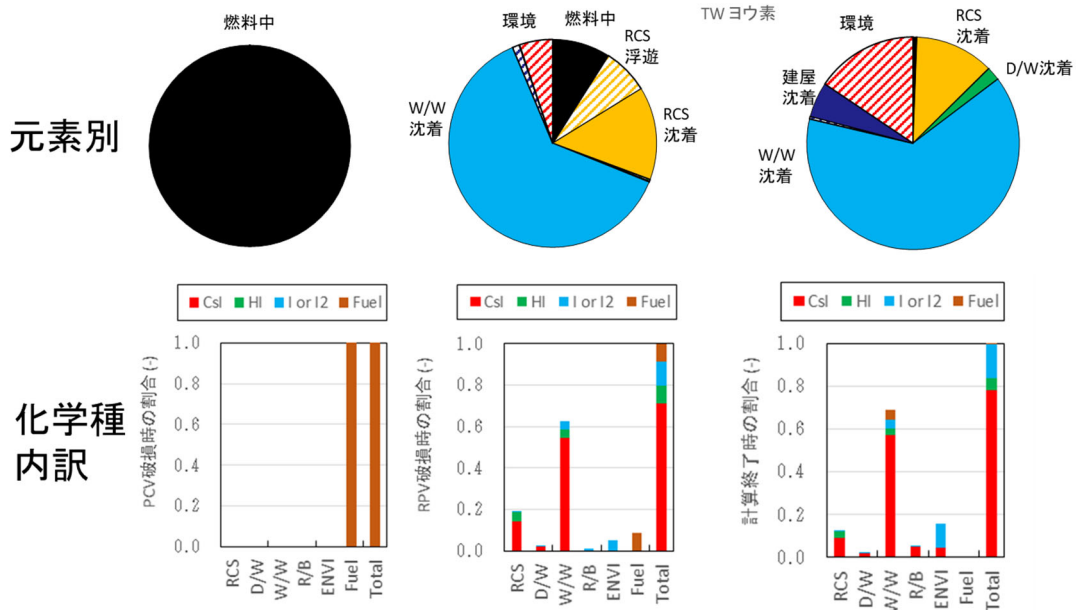


図 4.4.9-1 ヨウ素のプラント内分布 (崩壊熱除去機能喪失 TW)
(主要なタイミングにおけるスナップショット)

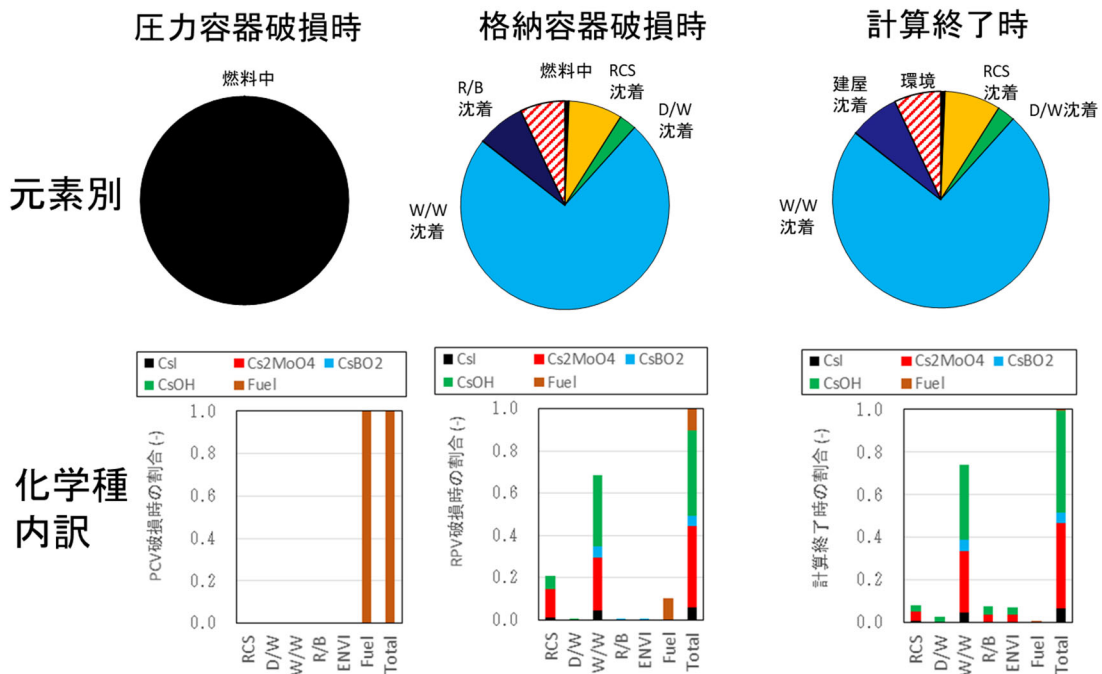


図 4.4.9-2 セシウムのプラント内分布 (崩壊熱除去機能喪失 TW)
(主要なタイミングにおけるスナップショット)

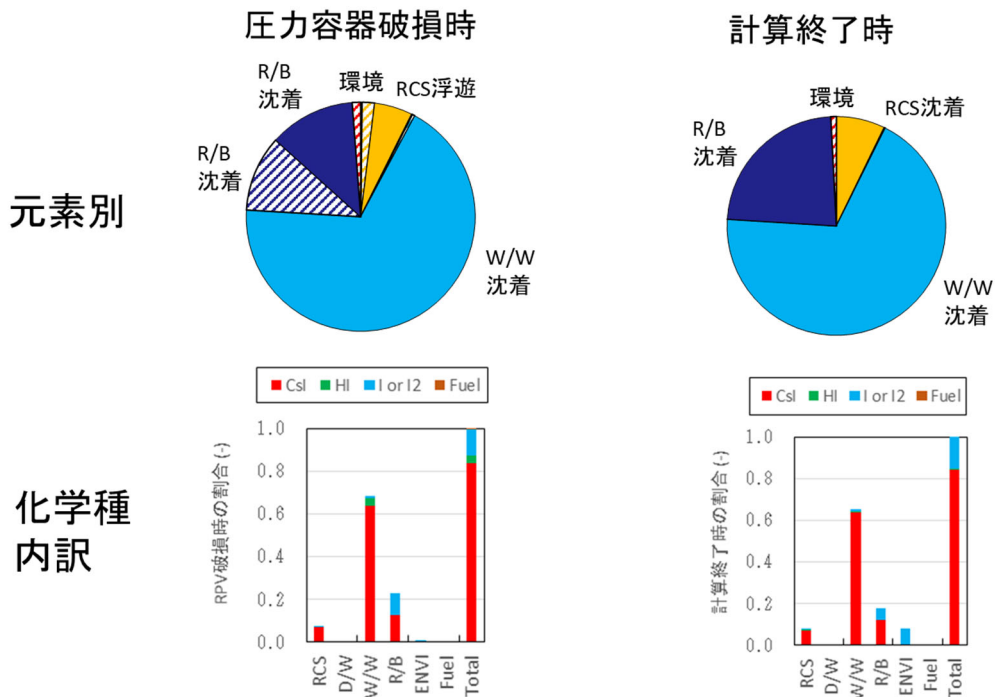


図 4.4.10-1 ヨウ素のプラント内分布 (格納容器バイパス IS-LOCA)
(主要なタイミングにおけるスナップショット)

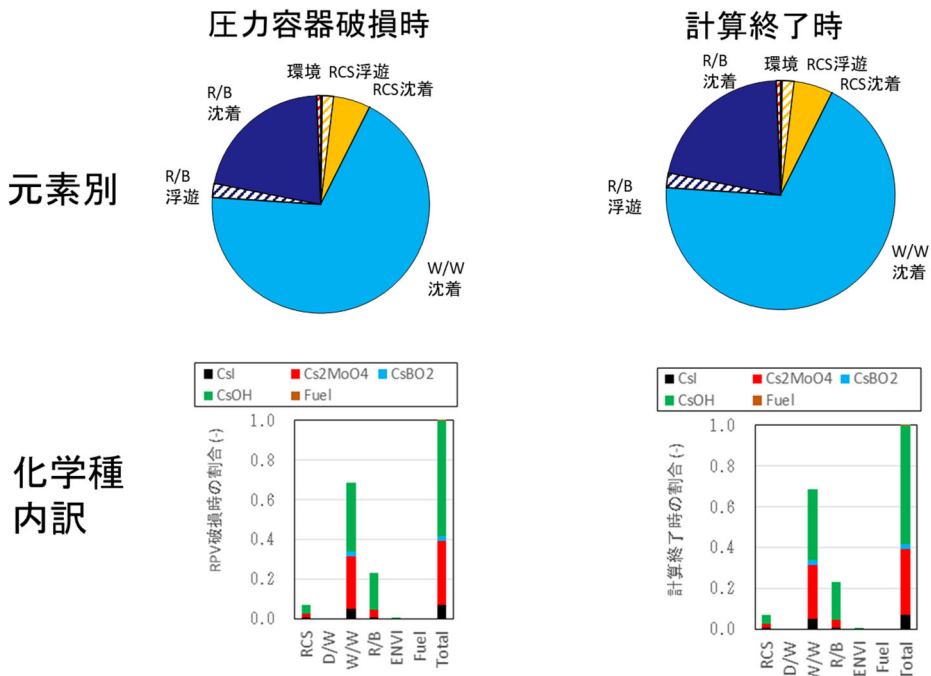


図 4.4.10-2 セシウムのプラント内分布 (格納容器バイパス IS-LOCA)
(主要なタイミングにおけるスナップショット)

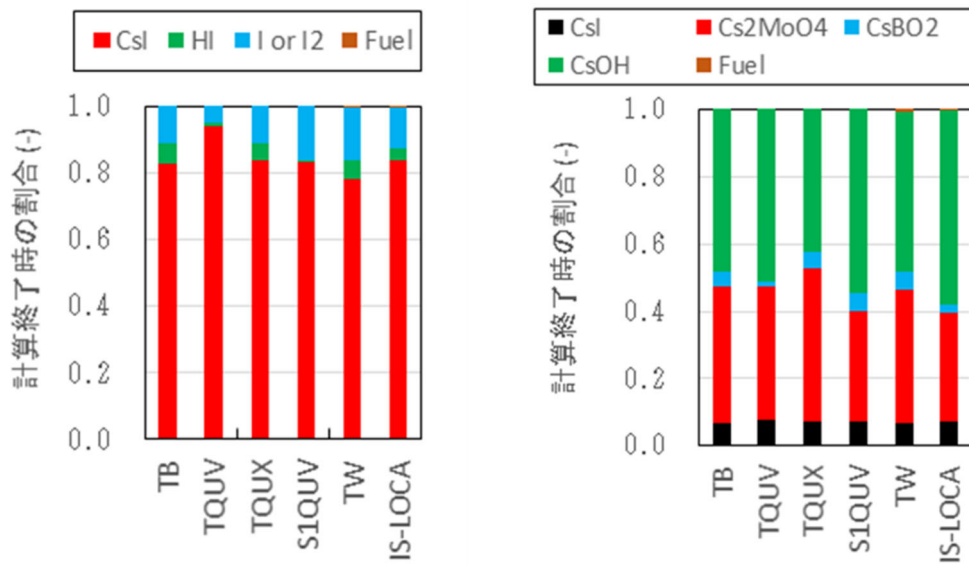


図 4.4.11 提案する化学組成表 (計算終了時の結果)

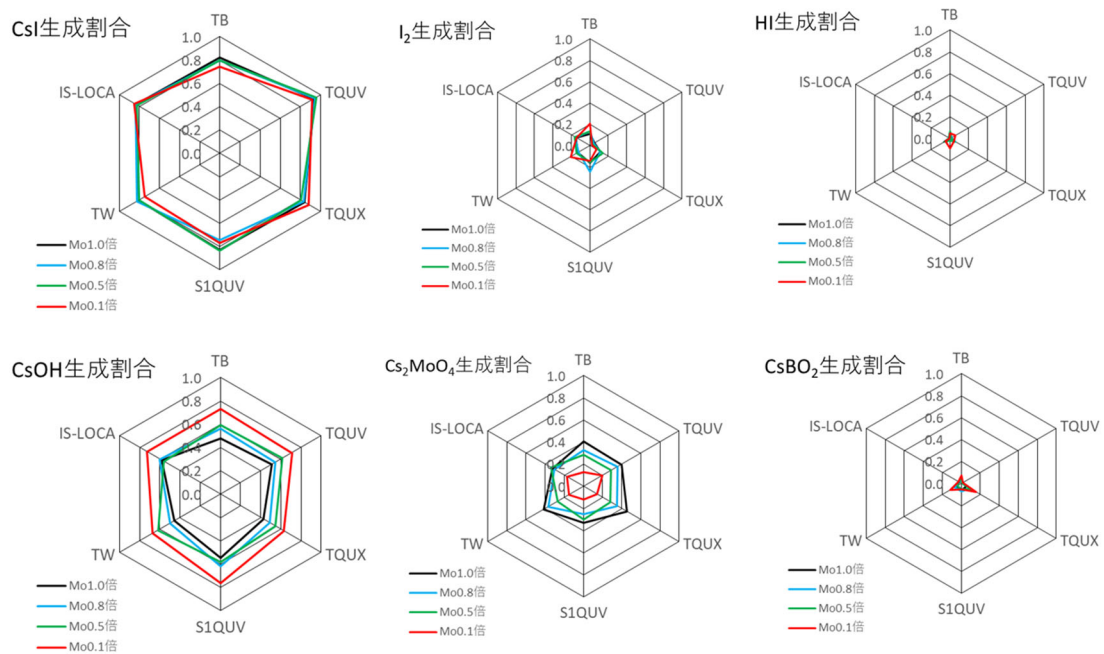


図 4.4.12 Mo 放出率を変動させた場合の生成化学種への影響例(感度解析)
 (燃料放出後は FP 化学種平衡組成予測モデルを用いて計算、ヨウ素の補正係数=1.0 とした
 場合の計算終了時の結果)

5. FP 化学モデルの高度化

5.1. 目的

シビアアクシデントにおいて燃料から放出される核分裂生成物 (FP) の内、公衆に対する被ばくを考える上で特に重要なヨウ素 (I) は、多様な化学形をとり得ることに加え、化学形によりその揮発性が大きく異なる。そのため、ヨウ素の化学形情報はソースタームにおける大きな不確かさの要因の一つである。一般に化学形及び組成の推定手法として系の自由エネルギーを最小化する化学平衡論があるが、同受託[5.1-5.4]及び ASTEC コードによる Phibus 実験の解析[5.5]では動的な化学組成評価を行う反応速度論の必要性が示唆されている。一方で、反応速度論の評価に必要となる反応速度論データベースは、一部の FP 化学種に限定されており、実機評価で全 FP 元素を対象とした反応速度論の適応は現状不可能である。そこで平成 30 年度の同受託では、反応速度論を部分的の取り込んだ取り化学平衡論との混合モデル CHEMKEq を構築した[5.4]。本項では、構築された混合モデルについて実験解析を実施し、その妥当性を評価した。

5.2. 熱力学平衡論及び反応速度論の混合モデルの妥当性評価

(1) 解析条件

混合モデルの妥当性確認では、同受託において速度論の重要性が示唆された平成 30 年度に JAEA で実施された FP 放出移行挙動再現装置 (TeRRa) を用いた CsI と B₂O₃ の気相反応実験[5.4]を対象とした。なお、TeRRa 装置は、粉末試料を蒸発させる加熱炉と放出された FP 等を捕集する温度勾配管、液相トラップ等から構成される。加熱炉で蒸発させた CsI 及び B₂O₃ 粉末試料は、加熱炉の上流より導入されるキャリアガス (Ar+露点 60℃ H₂O, 2.0 L/min) により装置下流に輸送され、輸送中一部の蒸発試料は凝縮し配管内もしくは最下流の金属フィルターにて捕集される。なお、非凝縮性の試料は最終的に液相トラップにて捕集する。試験終了後、得られた沈着物は誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) で分析し各領域での元素量を評価している。

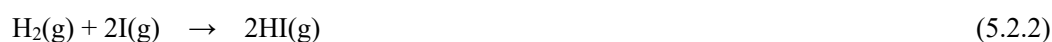
本解析では、Cs-I-B-O-H で構成されるブルームが TeRRa 装置内を移行する際のブルーム温度変化によりその化学組成がどのように変化するかを評価した。なお、TeRRa 装置を移行するブルームの質量は常に保存すると仮定している。そのため、エアロゾルの沈着や壁面への凝縮に伴うブルーム内から外部への除去効果は考慮していない。ブルーム温度の変化は、TeRRa 実験の解析で用いた雰囲気温度とキャリアガス流量より決定した。加熱炉入り口が 1200℃であり、温度勾配管出口で 600℃である。加熱炉入り口でのブルーム内の初期組成は、熱力学平衡計算による TeRRa 実験解析の結果を参考に決定した (表 5.2.1)。解析の対象とした加熱炉から温度勾配管出口までの通過に係る時間は約 23 秒 (温度変化速度: -28 K/s) であり、感度解析として約 46 秒 (温度変化速度: -14 K/s) のケースも評価した。

解析では、反応速度論を部分的の取り込んだ取り化学平衡論との混合モデル CHEMKEq を用いた。化学平衡論のデータベースとしては、VICOTRIA コードと同様のギブズ自由エネ

ルギー関数[5.6]を使用した。反応速度論のデータベースは、簡易的な反応速度論データベースを作成し、その影響を評価した Cantrel らの研究を参考とした[5.7]。したがって、本解析系において、反応速度論データベースの Cs-I-O-H 系の速度式の律速効果を考慮することが可能である。

(2) 解析結果

図 5.2.1 に平衡論及び、温度変化速度 (-14 K/s 及び-28 K/s) での速度論に基づくプルームの Cs と I の組成変化を計算した結果を示した。平衡論におけるプルームの組成変化は、1200°C付近では CsI、CsBO₂、I が主要な成分であり、温度低下に伴い CsI のみの組成に変化した。これは、熱力学平衡計算機能を有する VICTORIA での解析結果と同様の結果[5.3]であり、以下の反応が進行したと考えられる。



また、降温速度が早く速度論的な影響を受けやすいケース (図 5.2.1(c)) では、速度論の影響により式 (5.2.2) の反応速度が遅いため、CsBO₂ から CsI への反応が遅延する結果となった。したがって、混合モデルにより反応速度論の影響を評価し得る可能性が示された。一方で、降温速度が遅いケースでは降温速度が速いケースに比べ平衡論の結果に近づくことが予想されるが、図 5.2.1 に示す通り予想と反する結果のため改良の余地があると考えられる。

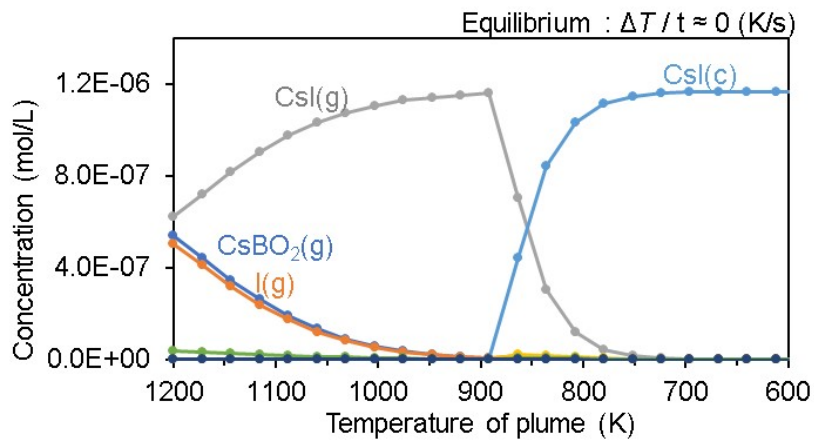
5.3. まとめ

本章では、ソースターム評価の化学モデルとして一般的な化学平衡論モデルに対し部分的に化学反応速度論を取り込んで構築された混合論について、実験解析を実施しその妥当性を評価した。妥当性評価の結果、混合論モデルにより実験結果から予想される化学反応律速効果を評価し得る可能性が示された。一方で、平衡論から予想される収束点との相違がみられており、データベースの構築方法及び計算モデルについて改良の余地があると考えられる。

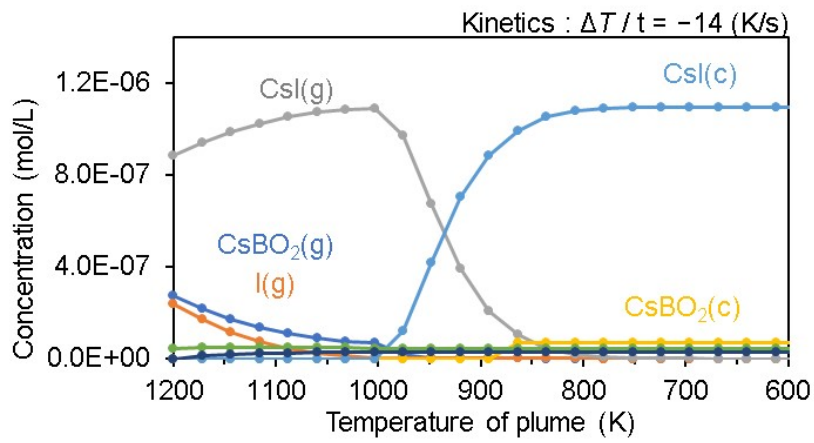
表 5.2.1 FP プルーフの初期組成

化学種名	初期濃度[mol/m ³]
CsI(g)	6.52E-04
CsOH(g)	2.97E-06
Cs(g)	8.13E-10
I(g)	4.72E-04
I ₂ (g)	3.42E-07
HI(g)	4.20E-05
H(g)	9.03E-09
HO(g)	5.02E-07
H ₂ (g)	2.41E-04
H ₂ O(g)	1.72E+00
O ₂ (g)	7.19E-08
O(g)	1.93E-11
Ar(g)	1.02e+01
IO(g)	2.97E-11
HIO(g)	1.49E-07
HBO ₂ (g) + H ₃ B ₃ O ₆ (g)	2.86E-03
H ₃ BO ₃ (g)	1.07E-03
CsBO ₂ (g)	5.11E-04

(a)



(b)



(c)

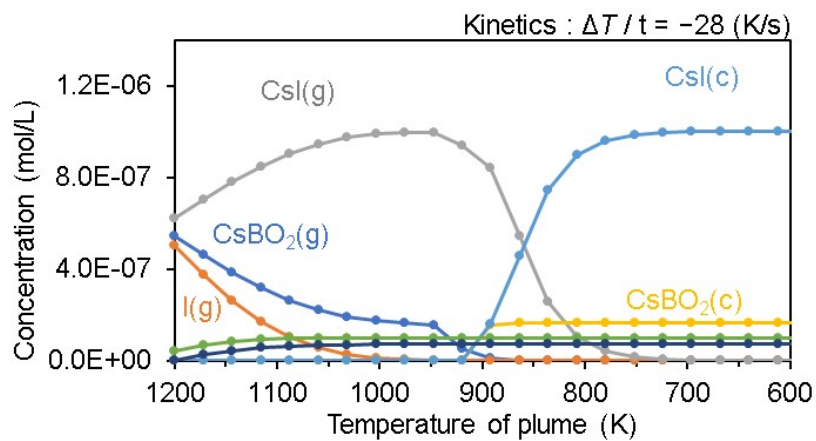


図 5.2.1 (a) 平衡論、(b)速度論 (-14 K/s) 及び(c)速度論 (-28K/s) に基づく FP プルーム中の Cs 及び I に係る組成変化

参考文献

- [5.1] 日本原子力研究開発機構, 平成28年度 原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業成果報告書 改訂版、平成29年度3月
- [5.2] 日本原子力研究開発機構, 平成29年度 原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業成果報告書 改訂版、平成30年度3月
- [5.3] 日本原子力研究開発機構, 平成30年度 原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業成果報告書 改訂版、平成31年度4月
- [5.4] 日本原子力研究開発機構, 平成31年度 原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業成果報告書 改訂版、令和2年度3月
- [5.5] B. Xerri et al., “Ab initio calculation and iodine kinetic modeling in the reactor coolant system of a pressurized water reactor in case of severe nuclear accident,” *Comput. Theor. Chem.*; 990, 194-208, 2012.
- [5.6] N. E. Bixler, “VICTORIA2.0, A Mechanical Model for Radionuclide Behavior in a Nuclear Reactor Coolant System under Severe Accident Conditions,” NUREG/CR-6131, 1998.
- [5.7] L. Cantrel and E. Krausmann, “Reaction Kinetics of a Fission-Product Mixture in a Steam-Hydrogen Carrier Gas in the PHEBUS Primary Circuit,” *Nucl. Technol.* 144, 1, 1-15, 2003.

6. おわりに

本事業では、シビアアクシデント時ソースターム評価手法の高度化を図り、規制判断等に活用できる技術的知見を取得することを目的に、気体状ヨウ素挙動及び再移行挙動に関する不確かさ低減を目的とした実験及び解析、並びにそれらの知見の集約先となるシビアアクシデント総合解析コードによる代表事故シーケンスのソースターム解析を実施した。主な成果は以下のとおりである。

(1) 再移行挙動に係る解析

再移行（再浮遊、再蒸発、飛沫同伴、再揮発）を含むFP移行挙動モデルについて、複数の主要事故シーケンスに対する一般的なシビアアクシデント総合解析コードを用いたモデル影響度の解析を実施し、ソースタームに対して各移行挙動モデルが与える影響度及び各再移行挙動中で重要度の高い現象を検討した。本評価では、これまで未考慮であった再蒸発を含めて影響度を評価するとともに、移行経路の相違による影響度の違いに着目している。影響度解析の結果、原子炉施設から環境放出に至るまでの経路で最も出口に近い解析ノード（場所）で支配的な移行現象が高い影響度を示した。Csについて、TBシーケンスでは移行経路に依らず飛沫同伴が再移行挙動の中で比較的重要である事が示された。また、Iに係る再移行現象として、CVベントケースでは飛沫同伴が、D/W破損ケースでは再蒸発が影響度の高いことが示唆された。一方で、今回使用した影響度の指標はFP放出時間を考慮していないため再移行の影響度が比較的小さく評価された。今後、SA早期や晩期に区別して影響度を検討する必要があると考える。

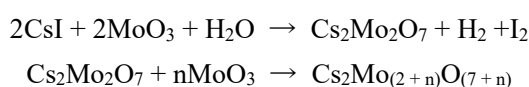
また、ソースターム評価の観点で重要度の高い現象（特にモデル開発や検証に向けて実験的な研究が必要かどうかの観点）を検討する上で、PIRT (Phenomena Identification and Ranking Table) 法と同様に、既往研究の知見に基づく現象の理解度やその実験的なデータの豊富さを考慮する必要がある。飛沫同伴については、気泡流等に関する実験データ及び既往知見が比較的多くある。再蒸発について熱的再蒸発メカニズムは良く理解はされているものの、シビアアクシデント特有のCsI等に対する検証に資する実験データは限られる。同様に化学的な再蒸発について検証やモデル開発に資する実験データは限られる。以上を踏まえて、再移行挙動において優先的に実験データの拡充が必要な再移行挙動としては、再蒸発（特に、化学的な再蒸発）であると考えられる。

(2) 化学挙動に関するデータ取得

シビアアクシデント条件を模擬したVERDON実験及びその解析等で想定されるヨウ素-モリブデンの化学的な相互作用について、実験知見の拡充を目的として実施したTeRRa実験により水蒸気雰囲気においてモリブデンの影響によりヨウ素が下流の低温領域に移行しやすくなることが示された。しかしながら、その移行促進に係る詳細な反応機構は不明である。そこで、モリブデンによるヨウ素の移行促進現象の詳細理解並びに実験データの拡充を行うために、TeRRa装置の低温領域での捕集機能を強化するとともに、移行促進の駆動力として推定される化学反応の支配要因である酸素ポテンシャルを増加させた系でのTeRRa実験を実施し、生成された化合物の化学形態や結晶構造等の分析を行った。本実験

及び既往知見との比較により、以下の結論を得た。

- I. モリブデンの影響により、ヨウ化セシウムが温度勾配管内を移行中に酸化モリブデン蒸気種との化学反応によりモリブデン酸セシウム及び揮発性のヨウ素化合物を生成し、それぞれ、ヨウ化セシウムよりも微細なエアロゾル粒子、及び蒸気種のままとして下流側へ移行する
- II. 酸素ポテンシャルが高い雰囲気においては、三酸化モリブデン蒸気種のまま下流側へ移行することにより、以下の式で示されるようなヨウ化セシウム及びモリブデン酸セシウムとの反応が生じ、揮発性のヨウ素化合物がより生成及び下流側へ移行しやすくなる。



またモリブデン存在下では、揮発性ヨウ素の生成量について水蒸気雰囲気よりも酸素含有水蒸気雰囲気で有意に増加することが示された。一方で、モリブデン非含有かつ高酸素ポテンシャル雰囲気（参照条件）の実験結果は未取得であり、高酸素ポテンシャルにおいてモリブデンの有無により揮発性ヨウ素の生成量がどの程度定量的に増加するか不明である。エアロゾルの微細化についても同様である。これらの定量的な実験知見は機構論的な数値解析コードを検証する上で重要な情報であるため、モリブデン非含有かつ高酸素ポテンシャル雰囲気でのヨウ素に関するデータ取得等の実験データ拡充が今後必要であると考えられる。

(3) 化学挙動を考慮したソースターム評価の検討

ソースターム評価での不確かさ要因の一つである FP や構造材の化学反応について、これまでに実験及び簡易化学モデルを有するシビアアクシデント総合解析コード THALES2/KICHE を用いた解析により技術知見を拡充してきた。本項では、その他のシビアアクシデント総合解析コード MELCOR 等へ同知見を反映させる方法を検討した。そこで、化学モデルを有する THALES2/KICHE コードにより主要な事故ケース毎の化学組成表をあらかじめ作成し MELCOR 解析時にそれら組成を用いる方法を提案した。さらに、本項では、実際に BWR5/Mark-II 改プラントを対象に、THALES2/KICHE を用いた系統的なソースターム解析を実施し、Cs と I を対象に事故シーケンス毎の化学組成表の作成を検討した。作成した化学組成表の全体的な傾向として、Cs は CsOH と Cs₂MoO₄ が主成分であり、I は約 80～90% が CsI であった。また、詳細な組成比は、事故シーケンスに依存して数 10%オーダーで変化した。作成した化学組成表の不確かさを評価するために実施した感度解析では、FP 元素量比を大きく変える可能性があるモデル（例えば FP 放出モデル）による影響を受けることが示された。つまり、本組成表は、FP 元素量比を大きく変える可能性があるモデル（例えば FP 放出モデル）が更新された際に再度作成する必要がある。さらに、作成した化学組成表を用いることで化学影響を簡易的に模擬できるかの検証が今後必要であると考えられる。

付録 A 会議等参加報告

Web 会議 (1)

件名	OECD/NEA/ESTER 計画に関する会議への出席
出張先	オンライン
期間	令和 3 年 5 月 25 日(火) ~ 5 月 26 日(水)
出張者	研究員 1 名
概要	<p>ESTER 計画の第 2 回ミーティングが上記の日程で行われ、フィンランド(VTT)、フランス(CEA、EDF、IRSN)、ドイツ(GRS、Framatome)、スウェーデン(SSM)、アメリカ(US-NRC)、韓国(KINS)からおおよそ 30 名が参集した。日本からは規制庁 2 名、原子力機構から 1 名が出席した。IRSN が前回の会議からこれまでに実施された EPICUR 試験について報告するとともに、今後の CHIP 施設の改造計画や VERDON 試験の進捗状況を共有した。また、それぞれの試験について次回ミーティングまでの計画を議論した。Analytical Working Group (AWG)の活動内容が示され、次回のミーティングまでに 2 つの課題についてそれぞれ参加・不参加を IRSN の担当者に連絡するよう指示があった。</p>

Web 会議 (2)

件名	OECD/NEA/ESTER 計画に関する会議への出席
出張先	オンライン
期間	令和 3 年 11 月 24 日(水) ~ 11 月 25 日(木)
出張者	研究員 1 名
概要	<p>ESTER 計画の第 3 回ミーティングが上記の日程で行われ、前回と同様にフィンランド(VTT)、フランス(CEA、EDF、IRSN)、ドイツ(GRS、Framatome)、スウェーデン(SSM)、アメリカ(US-NRC)、韓国(KINS)からおおよそ 30 名が参集した。日本からは規制庁 2 名、原子力機構から 1 名が出席した。IRSN によって前回議論された実験計画に沿った報告が行われた。EPICUR や VERDON 両試験が予定通り進捗しているのに対して、CHIP 施設での実験は COVID-19 の影響もあり、5 ヶ月程度遅延している。AWG では、各参加機関が採択した課題が示された。原子力機構は課題 2 のみに参加する予定である。</p>

Web 会議 (3)

件名	OECD/NEA/THEMIS 計画に関する会議への出席
出張先	オンライン
期間	令和 3 年 10 月 4 日(月) ~ 10 月 5 日(火)
出張者	研究員 2 名
概要	<p>今回は第 2 回の会合であり、オンラインで実施された。日本からは原子力規制庁及び原子力機構が出席した。ベッカーテクノロジーズから進捗報告として、THAI 装置を用いた H₂ と CO 雰囲気における静的触媒式水素再結合器 (PAR) の性能に関する実験及びプールスクラビングの除染効果に関する事前準備がそれぞれ完了したことが示された。後者は本実験も年内に終了する予定である。これらの報告書は、令和 4 年 2 月あるいは 3 月に配布の予定である。その他、H₂-CO-水蒸気-空気を含む雰囲気における燃焼と火炎伝播挙動、バックグラウンドエアロゾルとの相互作用や高温条件を含む雰囲気におけるヨウ素酸化物 IO_x の挙動、H₂ と CO 雰囲気における IO_x やエアロゾルとの相互作用を含む PAR の性能、等に関する実験の進捗が示され、議論された。</p>

Web 会議 (4)

件名	OECD/NEA/THEMIS 計画に関する会議への出席
出張先	オンライン
期間	令和 4 年 3 月 15 日(火) ~ 3 月 16 日(水)
出張者	研究員 2 名
概要	第 3 回の会合であり、各機関から 50 名程度が出席した。日本からは原子力規制庁 2 名、原子力機構 2 名が参加した。ベッカーテクノロジーズからの THAI 装置を用いた実験に関する進捗が報告され、議論された。また、AWG の活動報告として、CEA、GRS、KINS などの機関から PAR を対象とした数値解析の結果が示された。

Web 会議 (5)

件名	MUSA 計画会合への出席
出張先	オンライン
期間	令和 3 年 4 月 26 日(月)
出張者	研究員 2 名
概要	<p>欧州研究・イノベーション枠組計画 Horizon2020 の下で開始された MUSA (Management and Uncertainties of Severe Accident) プロジェクトのワークパッケージ 5 の会合に参加し、MUSA 計画ワークパッケージ 5 の進捗を把握し、ワークパッケージ 2 (ソースタームに影響する不確かさ因子の選定)、3 (不確かさ解析ツールのレビュー) と 4 (PHEBUS FPT1 試験を対象とした不確かさ評価) からのフィードバックを反映して今後の予定を議論した。</p>

Web 会議 (6)

件名	MUSA 会合への出席
出張先	オンライン
期間	令和3年11月3日(水)～11月4日(木)
出張者	副センター長1名、研究員1名
概要	<p>欧州共同体における Horison2020 の下で開始されたシビアアクシデントの管理及び不確かさに 係わる MUSA (Management and Uncertainties in Severe Accident) プロジェクトの第二回会合に参加し、2年目の MUSA 計画の進捗と成果が報告され、3年目の MUSA の計画を策定した。ワークパッケージ 2 により、ソースターム環境への放出を影響する不確かさ因子の選定が完了された。JAEA が参加しているワークパッケージ 3 と 5 の進捗報告により、不確かさ評価ツールのレビューが完了され、各機関が PWR や BWR を対象とする不確かさ解析を進めている。具体的に、ベースケースのサンプル入力の作成が完了され、多ケース解析及び計算負荷等を検討している。</p>

Web 会議 (7)

件名	米国 NRC CSARP/MCAP 会合への出席
出張先	オンライン
期間	令和 3 年 6 月 7 日 (月) ~ 6 月 11 日(金)
出張者	ディビジョン長 1 名、研究員 3 名
概要	<p>米国 NRC が主催する CSARP (Cooperative Severe Accident Research Program) 及び MCAP (MELCOR Cooperative Assessment Program) の会議に出席した。原子力機構を含め、各参加機関がシビアアクシデントや新型炉の事故解析に関する研究を紹介した。また、MELCOR の最新の開発及び利用状況について情報収集を行った。</p>