

令和 2 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 3 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調査	
2.1 再移行モデルの調査	2-1
2.1.1 溶存化学種の再揮発	2-3
2.1.2 飛沫同伴によるエアロゾル生成	2-5
2.1.3 エアロゾル再浮遊	2-9
2.1.4 構造物上エアロゾルの再蒸発	2-11
2.2 再移行挙動に係る影響度の検討	2-20
2.2.1 FP 移行挙動に係る現象影響度の評価	2-20
3. 化学挙動に関するデータ取得	
3.1 目的	3-1
3.2 実験装置	3-1
3.3 水蒸気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	3-1
3.3.1 実験条件	3-1
3.3.2 実験結果	3-2
3.3.3 まとめ	3-4
4. 化学挙動を考慮したソースターム評価の検討	
4.1 シビアアクシデント総合解析コードへの FP 化学形予測機能の追加	4-1
4.1.1 THALES2/KICHE への FP 化学形予測モデルの導入	4-1
4.1.2 FP 化学種平衡組成予測モデル	4-1
4.1.3 FP 化学種平衡組成予測モデルの傾向	4-2
4.2 BWR 実機ソースターム解析	4-2
4.2.1 代表事故シナリオに対する化学挙動を考慮したソースターム解析	4-2
4.2.2 その他事故シナリオに対する化学挙動を考慮したソースターム解析	4-6
4.3 まとめ	4-8
5. おわりに	5-1
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）の再移行挙動に係る現象及び同現象に対する一般的なシビアアクシデント総合解析コードにおけるモデルを調査し、技術的な知見を整理した。さらに、実験的な知見を拡充すべき再移行挙動を検討するために、再移行挙動に係る感度解析等を実施し、同現象がソースタームに与える影響及び各再移行挙動中で重要度の高い現象を検討した。
- ② 気体状ヨウ素について、既往実験により原子炉冷却系等の高温気相部では炭化ホウ素（B<sub>4</sub>C）の構成元素であるホウ素存在下では様々な雰囲気条件においてセシウムとホウ素の化学的相互作用により有意量の生成が確認されている[1.4-1.8]。一方で、シビアアクシデントにおいては、ヨウ素、ホウ素に加えセシウムと比較的強い化学的相互作用を示すFPのモリブデンが共存し、フランス原子力・代替エネルギー庁（CEA）が中心になって実施したFP移行実験 VERDON-2 及び 5 の解析においても、セシウムとモリブデンの化合物の生成が推定されている [1.8]。しかしながら、モリブデン・ホウ素・ヨウ素の競合条件における気体状ヨウ素の生成に関する物理モデルの構築や改良に必要な実験データは十分に整備されていない。そこで、まずは、モリブデン・ヨウ素の競合条件における気体状ヨウ素の生成挙動を対象として、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ことを目的とし、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 最新知見を集約させた実機のソースターム知見の拡充に向けて、既往研究では原子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[1.9, 1.10]をプラットフォームとして、原子炉冷却系でのセシウム化学挙動を定性的に評価し得る熱化学平衡に基づく簡易化学モデルを導入した[1.4-1.8]。そこで本年度の事業では同コードを用いた実機の系統的なソースターム解析を実施し、現化学モデルによるソースタームへの影響を検討した。

#### 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, 空气中放射性物質濃度, 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、「平成 27 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」、2016.
- [1.5] 国立研究開発法人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」、2017.
- [1.6] 国立研究開発法人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」、2018.
- [1.7] 国立研究開発法人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」、2019.
- [1.8] 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.
- [1.9] 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.
- [1.10] 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,” JAEA-Data/Code 2010-034, Japan Atomic Energy Agency, March, 2011.

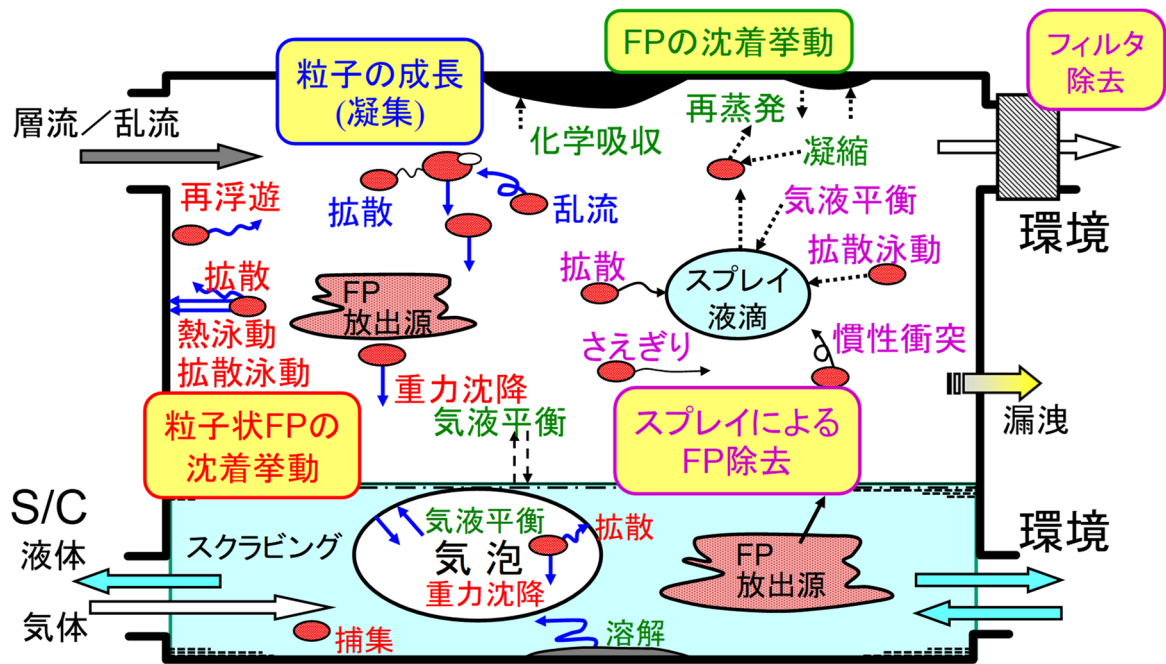


図 1.1 シビアアクシデント時に生じる放射性物質の移行挙動

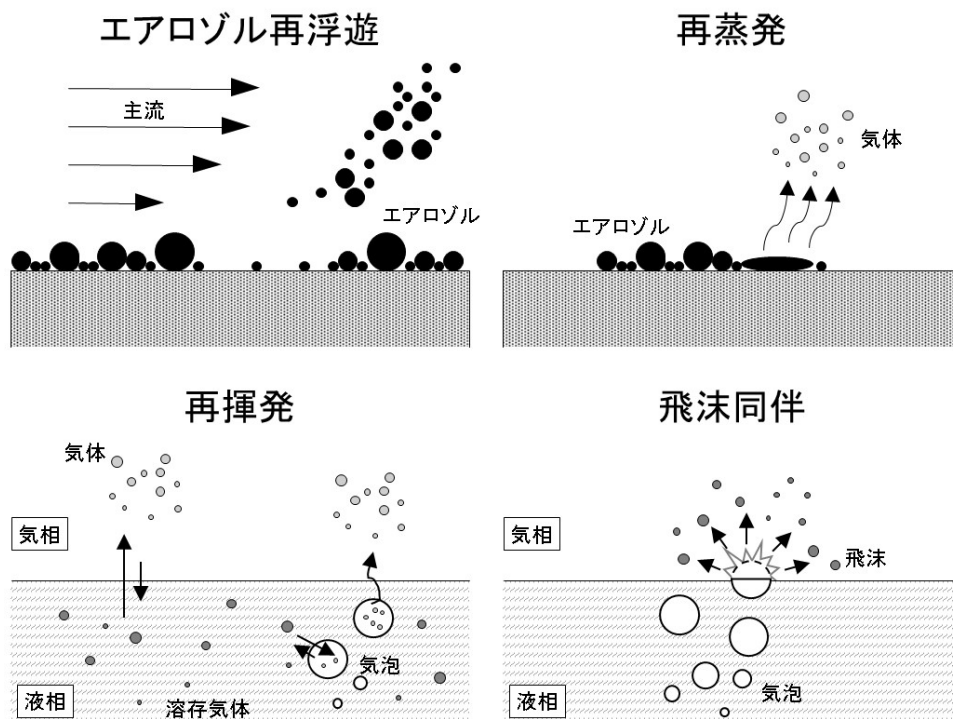


図 1.2 本事業で対象とした再移行挙動

## 2. 再移行挙動に関する調査

核分裂生成物（FP）の再移行挙動に係る現象及び同現象に対する一般的なシビアアクシデント総合解析コードにおけるモデルを調査し、技術的な知見を整理した（2.1節）。再移行挙動に係る感度解析等を実施し、同現象がソースタームに与える影響及び各再移行挙動中で重要度の高い現象を検討した（2.2節）。なお本節における再移行現象の定義は、構造材への沈着等で一度移行しなくなったFPが再度移行する際に寄与する現象とする。具体的には、冷却水中に溶解したFPの再揮発、液—気二相流における飛沫同伴、沈着エアロゾルの気流による再浮遊、沈着エアロゾルの再蒸発である。

### 2.1. 再移行モデルの調査

再移行モデルとして挙げられる溶存化学種の再揮発、飛沫同伴、エアロゾルの再浮遊、エアロゾルの再蒸発モデルについて、既往研究を基に調査し、以下の項に知見を整理した。なお知見を整理するにあたり、MELCOR[2.1.1]等で代表されるシビアアクシデント総合解析コードにおいて使用されるモデルを重点的に調査を行った。また、シビアアクシデント総合解析コードでモデル化されていない場合についても一部検討を行った。

#### 2.1.1. 溶存化学種の再揮発

シビアアクシデントで燃料から放出されるFPは、気体状もしくはエアロゾル状として原子炉内を移行するが、その一部はスクラビングやスプレー等の工学安全系により冷却水中に捕集される。捕集されたFPが気体状や溶解度の大きなエアロゾル状の場合、冷却水中に溶存・溶解することで長期的に保持することが可能である。一方で、ヨウ素は、冷却水中の放射線分解反応により揮発性の高い化学種に変換されることで、液相から気相への再移行（再揮発）すると想定されている。冷却水中での揮発性の高い化学種への変換に係る化学反応が重要である事は明白であり多くの研究が実施されている（現象及び一般的な傾向について2.2.1項に示す）。一方で、気液界面での物質伝達も重要な物理現象であると考えられる。本項では、気液物質伝達に着目してモデルの調査を行った。なおシビアアクシデントにおいて考慮すべき気液物質伝達の場合は、（1）流動のない静水面と（2）減圧沸騰やスクラビング時の気泡界面が挙げられる。それぞれのモデルについて、以下に示す。

##### （1）静水面における気液物質伝達モデル

MELCORを含めた多くのシビアアクシデント総合解析コードにおける静水面での気液物質伝達は、二重境膜モデルが採用されている（図2.1.1）。二重境膜モデルでは、気液界面近傍の気相境膜と液相境膜で気液間の物質伝達が起こると仮定するものである。なお、気液界面における気相境膜側と液相境膜側の濃度は不連続であり、その比は気液分配定数 $H$ （ヘンリー一定数ともいう）の値をとる。



この二重境膜概念を導入することで、気液分配に伴う気相側の質量変化は、総括物質伝達係数 $k_{mt}$ 、と気液界面積 $A_{surf}$ により次式で表される。

$$\frac{dM_g}{dt} = -\frac{dM_{aq}}{dt} = k_{mt}A_{surf} \left[ \frac{M_{aq}}{V_{aq}} - H \frac{M_g}{V_g} \right] \quad (2.1.1)$$

$M_g$	気相での化学種存在量
$M_{aq}$	液相での化学種存在量
$k_{mt}$	総括物質伝達係数
$A_{surf}$	気液界面積
$V_{aq}$	液相体積
$V_g$	気相体積
$H$	気液分配係数

式(2.1.1)の通り気液物質伝達は、液相と気相の濃度比が気液分配定数 $H$ となるまで進行する可逆的なモデルである。また総括物質伝達係数 $k_{mt}$ は、気相側と液相側の物質伝達係数 $k_g$ 、 $k_{aq}$ から成り、遅い物質伝達係数に律速される。

$$\frac{1}{k_{mt}} = \frac{H}{k_g} + \frac{1}{k_{aq}} \quad (2.1.2)$$

$k_g$	気相側の物質伝達係数
$k_{aq}$	液相側の物質伝達係数

## (2) 二相流における気液物質伝達モデル

MELCOR コードにおける二相流の気液物質伝達モデルは、スクラビングモデル SPARC に含まれる[2.1.1]。SPARC コードにおける気体の物質伝達は、気泡内の循環によるものとしてモデル化されており、最終的に除染係数 $DF$ （気泡内の初期質量 $M_{b,in}$ に対する気泡が液相表面に到達した際の最終的な気泡内質量 $M_{b,out}$ の比）の形で定義される。

$$DF = \frac{M_{b,in}}{M_{b,out}} = \exp \left[ \frac{\Delta t}{V_b} \int A_b V_D dA_b \right] \quad (2.1.3)$$

$DF$	スクラビング気泡中の気体の除染係数
$M_{b,in}$	スクラビング気泡中の気体の初期存在量

$M_{b,out}$	気泡が液面に到達した際のスクラビング気泡中の気体存在量
$\Delta t$	気泡界面との気体の接触時間
$V_b$	気泡体積
$V_D$	気泡界面に向かうフラックス
$A_b$	気泡の表面積

ここで $V_D$ は、気泡-液相界面での蒸発速度 $V_V$ を $\varphi$ で補正した気泡内部から気泡-液相界面に向かう拡散速度である。

$$V_D = V_D' \left\{ \frac{\exp(-\varphi^2)}{2 - \exp(-1.85\varphi)} \right\} \quad (2.1.4)$$

$$\varphi = \frac{V_V}{V_D'} \quad (2.1.5)$$

$$V_D' = \frac{1}{M_{b,in}/N_b V_b} \left\{ \sqrt{\frac{D_g V_l}{\pi l} \left( \frac{M_{aq}}{V_{aq}} - H \frac{M_{b,in}}{N_b V_b} \right)} \right\} \quad (2.1.6)$$

$V_D'$	気泡内での気体拡散速度
$V_V$	気泡界面での水の蒸発速度
$N_b$	気泡個数
$D_g$	気体の拡散速度

ここで、 $N_b$ 、 $V_b$ 、 $D_g$ は、それぞれ気泡個数、気泡1つあたりの体積、気体の拡散係数である。 $V_l$ と $l$ は、コードマニュアルに記載されない不明な変数である。

上述の通り MELCOR コードでは除染係数 $DF = M_{b,in}/M_{b,out}$ の逆数を流入してきた気泡の質量 $M_{b,in}$ に乗じることによってスクラビング後の質量 $M_{b,out}$ を計算するため、気泡中のFPの液相への除去は扱うことができるが、除染係数 $DF$ が1を下回るような液相から気泡へ向かう物質伝達を扱うことは困難であると考えられる。(ただし、この懸念事項はあくまでもコードマニュアルにのみ基づき推測されたものであり、実際のコード上では適切に例外処理が施されている場合もあるので注意が必要である。)

一方で、気泡中のFPの液相への除去は、二重境膜モデルを気泡-液相間でも適応することで容易に考慮することが可能であると考えられる。二重境膜モデルにも基づく気相、気泡、液相の質量 $M_g$ 、 $M_b$ 、 $M_{aq}$ の質量変化は、以下である。なお、次式には気泡-液相間の物質伝達のみに着目しているため、自由界面からの物質伝達項は含まないものとする。

$$\begin{aligned}\frac{dM_b}{dt} &= -\frac{dM_{aq}}{dt} - \frac{dM_g}{dt} + \Delta M_{in} \\ &= -N_b A_b k_{mt} \left( H \frac{M_b}{N_b V_b} - \frac{M_{aq}}{V_{aq}} \right) - \frac{v_r A_{surf}}{V_{aq}} M_b + \Delta M_{in}\end{aligned}\quad (2.1.7)$$

$$\frac{dM_g}{dt} = \frac{v_r A_{surf}}{V_{aq}} M_b \quad (2.1.8)$$

$$\frac{dM_{aq}}{dt} = N_b A_b k_{mt} \left( H \frac{M_b}{N_b V_b} - \frac{M_{aq}}{V_{aq}} \right) \quad (2.1.9)$$

$v_r$                       気泡の上昇速度

ここで、式 (2.1.7) の第一項は気泡と液相間の物質伝達、第二項は気泡が気液界面に到達することによる気相への質量供給、第三項はスクラビングにより外部から流入による気体質量である。第二項の気相への気泡からの質量供給は、気泡が液相内に均一に分散しているとの仮定のもと、気泡上昇速度 $v_r$ と静置界面の面積 $A_{surf}$ で表している。

二重境膜モデルを気泡—液相間まで拡張した ART コードを用いて、気泡塔の試験装置(高さ 2.0 m、半径 15 cm) に水位 1.0m の水に、それぞれ 80%窒素と 20%酸素で構成される空気、酸素を含まない 100%窒素を液相底部から交互に 10 分間 1.0 L/min で通気した際の酸素質量変化を計算した (図 2.1.2)。なお、各通気操作の前後には無操作状態の 10 分間インターバルを設けた。また気泡塔の上部からの気体の流出は通気を行っている期間のみ行われるものとした。液相通気時の気泡径は、同コード内のモデルにより計算され、等価直径で 7.01 cm の楕円 (長軸 : 4.16 cm、短軸 : 2.49 cm) であった。

0~600 秒では、液相に溶存酸素がないものとして設定したため、気相から静置界面を通した酸素の比較的緩やかな溶け込みが見られる。600 秒から 1200 秒の空気の液相への通気より、液相内の酸素濃度が急激に増加した。これはスクラビングモデルにおける  $DF > 1$  の状態に相当する。続く、窒素の通気では液相内に溶存していた酸素が急激に減少した。窒素通気時の溶存酸素量の減少について、窒素通気を気相部と液相部に行った場合の感度解析を行った (図 2.1.2 (b))。ここで液相部の窒素通気は、スクラビングを意味する。図 2.1.2 (b) より、本系のような静置界面が小さい条件では液相部に窒素通気を行った場合に、静置界面からの物質移行速度よりも気泡—液相の物質伝達が大きく、溶存酸素の再移行を促進することを示唆している。

### 2.1.2. 飛沫同伴によるエアロゾル生成

飛沫同伴とは、液相界面で気泡の破裂や気液界面からの気泡離脱時に液滴飛沫（エアロゾル）が気相に放出される現象である。飛沫同伴現象は、大気中の海塩粒子生成機構の1つであることや蒸留塔における飛沫混入による性能・品質低下の要因等であることから幅広く研究が行われている。原子力分野においても、冷却材喪失事故での炉心下部からの再冠水時に生成される飛沫による冷却現象等で重要であり一部研究が行われている。具体的に飛沫同伴が想定される場合は、崩壊熱もしくは減圧による沸騰時、圧力抑制室でのプールスクラビング時、MCCI等で発生した気体による炉心溶融プール攪拌時である。このように飛沫同伴は、FP移行挙動だけでなく熱流動に対しても影響を及ぼす現象である。

NEA/CSNI/R (2009) 5 レポート[2.1.2]によると、2009年時点でのシビアアクシデント総合解析コードにおける現象の取り扱い状況は、ASTECで圧力抑制室でプールスクラビング時のみ有効、MAAPでヨウ素についてのみ沸騰や気泡流時に有効、MELCORで炉心溶融プールでのみ有効である。なお、MELCORのプールスクラビングを計算するSPARC-90では、BWRで想定されるスクラビング時最大流量で液面上で生成される液滴エアロゾルの質量中央径 $200\mu\text{m}$ と大きく、即座に液面に沈降すると考えられることから、スクラビング時の飛沫同伴によるエアロゾル生成を実装しないこととしている。

また、飛沫同伴によるエアロゾル生成機構は流動条件（気泡流、Churn流）で異なるため、それぞれ個別のモデルを扱う必要がある。MAAPやMELCORでは、Azbelらの気泡流 [2.1.6]、Kataoka-IshiiらのChurn流[2.1.7]における飛沫同伴による生成液滴の総質量フラックス相関式が用いられる。（1）では気泡流、（2）ではChurn流における飛沫同伴現象とそのモデルを示す。

#### （1）気泡流における飛沫同伴

気泡流での飛沫同伴現象によるエアロゾル生成機構は、図2.1.3に示す二つの異なる機構がある。1つ目は“Film droplets”と呼ばれる気泡液膜が破裂する際に発生するエアロゾルである。2つ目は、気泡が破裂した際に気泡が占めていた空間に周囲の水が流れ込みによって生じる水柱の一部がちぎれることで発生するエアロゾル“Jet drops”である。①にそれぞれの機構を分けて考慮した飛沫同伴モデルを、②にMELCORで扱われる気泡破裂時の飛沫同伴モデルを示す。

##### ① 飛沫同伴によるエアロゾル生成機構を考慮したモデル

“Film droplets”は、気泡破裂時に気泡上部に形成される液膜が破裂時に断片化したものであるため、その質量フラックスは液膜厚さ $\delta_c$ から計算することができる。なお、以下の“Film droplets”に関するモデルは、Lhuissier及びVillermaux (2011) [2.1.3]を参考としたものである。通常の水において気泡破裂時の液膜厚さ $\delta_c$ は、気泡直径 $d_B$ を用いて実験的に以下の関係であることが示されている。

$$\delta_c \approx \frac{(0.5d_B)^2}{\mathcal{L}} \quad \mathcal{L} = 20 \text{ m} \quad (2.1.10)$$

$\delta_c$             破裂直前の気泡上部の液膜厚さ  
 $d_B$             気泡直径

例えば、気泡直径 1 cm の時の液膜厚さ  $\delta_c$  は、1.25  $\mu\text{m}$  である。気泡 1 つあたりに生成する”Film droplets”の平均的な直径  $\langle d_{film} \rangle$  及び個数  $N_{film}$  は、気泡直径  $d_B$ 、液膜厚さ  $\delta_c$ 、キャピラリー長さ  $a$  を用いて、実験的に以下の相関式であることが示されている。

$$N_{film} \approx \left( \frac{0.5d_B}{a} \right)^2 \left( \frac{0.5d_B}{\delta_c} \right)^{7/8} \quad (2.1.11)$$

$$\langle d_{film} \rangle \approx (0.5d_B)^{3/8} \delta_c^{5/8} \quad (2.1.12)$$

$N_{film}$             気泡破裂時に生成する Film droplet 数  
 $\langle d_{film} \rangle$         気泡破裂時に生成する Film droplet の平均直径  
 $a$                 キャピラリー長さ

なお、静水圧と表面張力の比であるキャピラリー長さ  $a$  は以下で定義される。

$$a = \sqrt{\frac{\sigma}{\rho_{aq}g}} \quad (2.1.13)$$

$\sigma$             表面張力  
 $\rho_{aq}$         液相の密度  
 $g$             重力加速度

図 2.1.4 に、気泡 1 個あたりに生成する”Film droplets”の平均直径と個数濃度の傾向を示した。なお、液相は 100°C の水と仮定している。図 2.1.4 によると”Film droplets”は、気泡径の増大と共に、生成直径と個数が増大する。1 cm の気泡径では、平均直径は約 28  $\mu\text{m}$  の飛沫が約 5600 個生成する。生成する飛沫の分布  $p(x)$  は、ガンマ分布でよく再現できる。この時、ガンマ関数  $\Gamma(n)$  は  $n=11$  が分布を最もよく再現する。

$$p\left(x = \frac{d_{film}}{\langle d_{film} \rangle}\right) = \frac{n^n}{\Gamma(n)} x^{n-1} \exp(-nx) \quad (2.1.14)$$

”Jet drops”について、その大きさは破裂した気泡径の約 1/10 程度であり、1 気泡あたりに生成する個数は数個程度である。ASTEC では、Navier-Stokes 式を用いた機構論的な計算コード RESUS を用いて、気泡径に対する”Jet drops”の大きさと生成個数の関係をあらかじめ導出し、その関係を実装している[2.14] (図 2.1.5)。図 2.1.5 に示す通り、生成する”Jet drops”の数は、破裂する気泡径に依存しており、気泡径が増大すると次第に生成量が減少する。また、生成する”Jet drops”の液滴径は、数 100  $\mu\text{m}$  である。

上述したモデルを用いて、飛沫同伴で一般的に使用される飛沫同伴率を計算した (図 2.1.6)。ここで、飛沫同伴率  $E_{fg}$  は、流入した気泡体積に対する飛沫同伴によって生成する液滴体積の割合としている。小気泡の場合は Jet drops による寄与が大きく、大気泡では Jet drops が生成しないため全ての液滴が Film droplet 由来であることがわかる。一方で、大気泡で生成される Film droplet は 0.1 mm と大きく、飛沫同伴後即座に液相へ沈降すると考えられる。

## ② MELCOR で扱われる気泡破裂時の飛沫同伴モデル

上述の通り MELCOR で扱われる飛沫同伴モデルは、炉心溶融プールを適応先としたものであり、MELCOR の一部で溶融炉心—コンクリート間の相互作用を計算する CORCON コードにその相関式が示されている。本モデルでは、主に気泡破裂時の Film droplet の体積について気泡破裂時の機構に着目して定式化したものを用いている。

$$E_{fg}(d_B) = \frac{3K_1}{2\pi\rho_g d_B} \sqrt{NUMER/DENOM} \quad (2.1.16)$$

$$NUMER = \left[1 - \frac{d_B^2}{2K_2} + \frac{9d_B^4}{16K_2^2}\right]^{0.5} + \left[\frac{d_B^2}{4K_2} - 1\right] \quad (2.1.17)$$

$$DENOM = 1 + \frac{3d_B^2}{4K_2} - \left[1 - \frac{d_B^2}{2K_2} + \frac{9d_B^4}{16K_2^2}\right]^{0.5} \quad (2.1.18)$$

$$K_1 = \frac{1.15\pi\sigma}{c^2} \quad (2.1.19)$$

$$K_2 = \frac{6\sigma}{g(\rho_{aq} - \rho_g)} \quad (2.1.20)$$

ここで、 $c$  は気体の音速である。

図 2.1.6 と同様の条件で計算した飛沫同伴率は  $E_{fg}$  は、気泡径 1.0 mm と 1.0 cm でそれぞれ  $5.37 \times 10^{-5}$ 、 $7.92 \times 10^{-5}$  である。

## (2) Churn 流における飛沫同伴

Churn 流での飛沫同伴現象によるエアロゾル生成に係る質量フラックスについて、MELCOR 等の多くのシビアアクシデント総合解析コードでは、半理論式の Kataoka-ishii 式 [2.1.5] が用いられる。Churn 流では、気泡塊が液面を通過する際に持ち上げられた液体がせん断応力によって断片化して液滴が生じる (図 2.1.7)。Kataoka-ishii 式は、液面から距離  $h$  と気相の空塔速度  $j_g$  に対して、Near Surface Region、Momentum Controlled Region、Deposition Controlled Region としてそれぞれ飛沫同伴率  $E_{fg}(h, j_g)$  の半理論式を提案している。

### Near Surface Region

$$E_{fg}(h, j_g) = 4.84 \times 10^{-3} \left( \frac{\rho_g}{\Delta\rho} \right)^{-1} \quad (2.1.21)$$

### Momentum Controlled Region

$$E_{fg}(h, j_g) = 2.21 N_{\mu g}^{0.5} D_H^{*1.25} \left( \frac{\rho_g}{\Delta\rho} \right)^{-0.31} j_g^* h^{*-1} \quad (2.1.22)$$

### Deposition Controlled

$$E_{fg}(h, j_g) = 7.13 \times 10^{-4} N_{\mu g}^{0.5} j_g^{*3} \left( \frac{\rho_g}{\Delta\rho} \right)^{-1} \exp\left(-0.205 \frac{h}{D_H}\right) \quad (2.1.23)$$

$E_{fg}$	飛沫同伴率
$h$	液面からの高さ
$j_g$	気相 (気泡) の体積流量
$D_H^*$	規格化した水力直径
$N_{\mu g}$	液相の粘度数
$h^*$	規格化した高さ
$j_g^*$	規格化した気相 (気泡) の体積流量

ここで、 $\rho_g$ 、 $N_{\mu g}$ 、 $D_H$  は、それぞれ気相の密度、無次元化した気体の粘性数、水力直径である。なお各変数の右肩の\*は、規格化していることを示す。

### 2.1.3. エアロゾル再浮遊

一般に、エアロゾルは、熱泳動、拡散、重力沈降、慣性衝突等の駆動力により機器や流路の内壁、土壌表面等に沈着する。沈着したエアロゾルは、ファンデルワールス力等の付着力により保持されるが、流体による抗力が付着力を上回る場合エアロゾルが浮遊し再移行する。このようにエアロゾル再浮遊は、原子力事故特有の現象でなく、産業分野等を含めて幅広く研究が行われている。

再浮遊モデルは、静的なモデルと動的なモデルの二つに大別される。MELCOR では、静的なモデルの1つである“力”のつり合いモデルを実装している[2.1.8]。これは、動的なモデルは静的なモデルに比べて多くの実験的なパラメータが導入されており、検証された実験の範囲に依存する可能性があることに加え、既存モデルの実験検証範囲が高温ガス炉に想定される条件を十分に保証していないためとしている。また、MELCOR の再浮遊モデルの適応範囲は、乾いた表面に沈着したエアロゾルのみであり、液相表面や構造物上に液膜が形成されている濡れ表面は適応範囲外である。以降では、(1)に MELCOR で採用されている静的な再浮遊モデルを、(2)に動的なモデルの例として、ART に導入した簡易 RRH モデル[2.1.9]について示す。ここで、物質移行に係る質量変化を微分方程式で求める ART v3.0 コードでは、静的なモデルの取り扱いが難しいため動的なモデルの1つである RRH を導入している。

#### (1) 静的なエアロゾル再浮遊モデル

MELCOR で採用している静的な再浮遊モデルは、Wichner(2009)に基づいているが、モデルの適応範囲を拡張するために一部モデルを改良している。MELCOR では、再浮遊に係る力のつり合い方程式よりエアロゾル再浮遊に係る臨界直径 $d_{crit}$ を最終的に定式化し、その直径以上のエアロゾルは再浮遊すると仮定している。臨界半径を定式化する際に用いた除去力 $F_R$ 、揚力 $F_L$ 、せん断応力 $F_D$ の関係式は、次の通りである。

$$F_R = \frac{1}{2}F_L + \frac{r_a}{a}F_D \quad (2.1.24)$$

$F_R$	除去力
$F_L$	揚力
$F_D$	せん断応力
$r_a$	エアロゾル半径
$a$	表面の粗さ

ここで、 $r_a$ と $a$ はそれぞれエアロゾル半径と壁表面の粗さである。式(2.1.24)からの臨界半径



の定式化手順は省略するが、最終的にエアロゾル再浮遊に係る臨界半径は、次式となる。

$$d_{crit} = \frac{4.0 \times 10^{-5}}{\pi \tau_w} \quad (2.1.25)$$

$d_{crit}$  エアロゾル再浮遊のエアロゾル臨界直径  
 $\tau_w$  壁面に作用するせん断応力

ここで、壁面に作用するせん断応力 $\tau_w$ は、摩擦係数 $f$ 、流体の密度 $\rho_g$ と壁面表面での流体の流速 $U$ を用いて、次式で与えられる。

$$\tau_w = \frac{f \rho_g U^2}{2} \quad (2.1.26)$$

$f$  摩擦係数  
 $\rho_g$  気相の密度  
 $U$  (壁に沿う方向に対する) 壁面表面の気相流速

摩擦係数 $f$ は流体のレイノルズ数 $Re$ を変数とする Blasius 公式より求める。

$$f = \frac{0.0791}{Re^{0.25}} \quad (2.1.27)$$

$Re$  流体のレイノルズ数

また、式 (2.1.25) により計算されるエアロゾル再浮遊に係る臨界半径 $d_{crit}$ と流体のレイノルズ数 $Re$ に関する傾向は、図 2.1.8 に示す通りである。これは、粒径の大きい粒子は流体から受ける力が大きいため、再浮遊しやすいことを示している。

## (2) 動的なエアロゾル再浮遊モデル

RRH モデルは、1988 年に開発されたものであり、付着粒子が流体によって受けるエネルギーと粒子の付着ポテンシャルエネルギーをバランスさせるモデルある。Nguyen 及び Loyalka (2015)[2.1.9]は、シビアアクシデント総合解析コードへの動的な再浮遊モデルの導入のために、この RRH モデルを再浮遊速度に関する簡易式に置き換えた。以下に、RRH 簡易モデルの概要を示す。

エアロゾルが流体から受ける抗力( $F_L$ )が付着力 $F_a$ より大きくなった際に、再浮遊モデルが

有効となる。

$$\langle F_L \rangle \approx 20.9 \rho_g \nu_g^2 \left( \frac{r_a u^*}{\nu_g} \right)^{2.31} \quad (2.1.28)$$

$$F_a = \frac{3}{2} \pi \Delta \gamma r_a \quad (2.1.29)$$

$\nu_g$	流体の動粘性係数
$u^*$	摩擦速度
$\Delta \gamma$	表面張力

ここで、 $\rho_g$ 、 $\nu_g$ 、 $r_a$ 、 $u^*$ 、 $\Delta \gamma$ は、それぞれ流体の密度、流体の動粘性係数、エアロゾルの流液、摩擦速度、表面張力である。また、再浮遊が発生してからの時刻 $t_{resus}$ における再浮遊速度 $\hat{p}$ は、再浮遊確率 $p$ を用いて時間と共に再浮遊量が関数である。

$$\begin{aligned} \hat{p} &= p \times (1 - 2.75 \times 10^{-4} t_{resus})^{1.8} & t_{resus} \leq 3600s \\ &= p \times 0.01^{1.8} & t_{resus} > 3600 \end{aligned} \quad (2.1.30)$$

基本的な再浮遊確率 $p$ は、配管の水力直径 $d_H$ 、流体の粘性係数 $\mu_g$ 、流体の速度 $U$ を用いて以下で簡易化される。

$$p = 1.5134 \times 10^{-4} \frac{1}{d_H} \left( \frac{\rho_g U d_H}{\mu_g} \right)^{0.8} U \quad (2.1.31)$$

$\mu_g$	流体の粘性係数
---------	---------

なお、上式の再浮遊確率は、付着半径等を用いて一部補正を行っている。

#### 2.1.4. 構造物上エアロゾルの再蒸発

構造物上のエアロゾルの再蒸発現象は、(1) 雰囲気もしくは構造物の温度上昇による熱的な駆動力、(2) 構造物上で共存する元素や化学種との反応による化学反応による駆動力の2つの機構から成る。

(1) 熱駆動によるエアロゾルの再蒸発モデル

熱駆動による構造物上に凝縮性 FP の凝縮及び再蒸発モデルは、MELCOR では物質移動係数 $k_i$ と構造物上の飽和濃度 $C_s^{sat}$ とバルク気体中の濃度 $C_g$ を用いて次式で表される。

$$\frac{dM_g}{dt} = -\frac{dM_s}{dt} = k_i A_{surf} (C_g - C_s^{sat}) \quad (2.1.32)$$

$M_g$	各化学種の気相存在量
$M_s$	各化学種の構造物上の存在量
$k_i$	各化学種の物質伝達係数
$A_{surf}$	表面積
$C_g$	各化学種の気相濃度
$C_s^{sat}$	各化学種の構造物表面での飽和濃度

本モデルは、構造物表面だけでなく、エアロゾル表面、液相表面においてそれぞれ適応される。化学種  $k$  における物質移動係数 $k_i$ は、化学種  $k$  と水蒸気—空気の拡散係数 $D_k$ 、 $D_{steam-air}$ 及び、水蒸気—空気の物質移動係数 $k_{HS}$ より求める。水蒸気—空気の物質移動係数 $k_{HS}$ は、物質移動に係る無次元数シャーウッド数  $Sh$  の定義式より求める。

$$k_i = k_{HS} \frac{D_k}{D_{steam-air}} \quad (2.1.33)$$

$$k_{HS} = F_m Sh D_{steam-air} / L_C \quad (2.1.34)$$

$k_{HS}$	水蒸気の物質伝達係数
$D_k$	化学種 $k$ の拡散係数
$D_{steam-air}$	水蒸気-空気の拡散係数
$F_m$	スケーリング係数
$Sh$	シャーウッド数
$L_C$	代表長さ

ここで、 $F_m$ と $L_C$ は、それぞれスケーリング係数、代表長さである。またシャーウッド数は、流動条件ごとにヌセルト数  $Nu$ 、シュミット数  $Sc$ 、プラントル数  $Pr$  による相関式で定義される。

## (2) 化学反応駆動によるエアロゾルの再蒸発モデル

MELCOR における化学反応による構造物上に凝縮性 FP の凝縮及び再蒸発モデルについて、標準モデルは実装されていないが、入力オプション“Class Transfer Information”でその反応機構と速度を定義することができる（ただし、取り扱い注意の記載あり）。MELCOR のレファレンスマニュアルで例として挙げられる反応機構は以下であり、その他の具体的な反応セットは記載されていない。



ここで、カッコ内の g、ad、s は、それぞれ気体状態、構造物への収着状態、固体状態であることを示す。片矢印の反応式は不可逆な反応、両矢印は可逆的な反応であることを表す。上記の式について、入力ファイルで定義された反応速度  $dM/dt$  より反応物と生成物の化学反応後の質量  $M_{from,t+\Delta t}$ 、 $M_{to,t+\Delta t}$  は、以下で計算する。

$$M_{from,t+\Delta t} = M_{from} - \frac{dM}{dt} \Delta t \quad (2.1.39)$$

$$M_{to,t+\Delta t} = M_{to} + \frac{dM}{dt} \Delta t \quad (2.1.40)$$

したがって、現 MELCOR コードで化学反応によるエアロゾル上の再蒸発を考慮するためには、構造物上で沈着するエアロゾルの再蒸発に関わる化学反応機構の特定とその反応速度情報が重要になると考えられる。

### 参考文献

- [2.1.1] L. L. Humphries et. al., “MELCOR Computer code manuals vol. 2: Reference Manual version 2.2.9541 2017,” SAND2017-0876 O, 2017.
- [2.1.2] H. J. Allelein et.al., “State of the art report on nuclear aerosols”, NEA/CSNI/R(2009)5, 2009.
- [2.1.3] H. Luissier and E. Villermaux, “Bursting bubble aerosols”, J. Fluid Mech., 696, 5-44, 2012.

- [2.1.4] M. K. Koch et.al., “Radionuclide re-entrainment at bubbling water pool surfaces”, J. Aerosol Sci., 31, 1015-1028, 2000.
- [2.1.5] I. Kataoka and M. Ishii, “Mechanistic modeling of pool entrainment phenomenon”, J. Heat Mass Transfer, 27, 11, 1999-2014, 1984.
- [2.1.6] D. S. Azbel et. al., “Acoustic Resonance Theory for the rupture of film cap of a gas bubble at a horizontal gas-liquid interface”, Two Phase Momentum, Heat and Mass Transfer in Chemical Process and Energy Engineering Systems, 1, 159-170, 1978.
- [2.1.7] D. R. Bradiey et. al., “CORCON-MOD3: An integrated computer model for analysis of molten core-concrete interactions”, NUREG/CR-5843 SAND92-0167, 1993.
- [2.1.8] M. F. Young, “Liftoff Model for MELCOR,” Sand report, SAND2015-6119, 2015.
- [2.1.9] G.N. Nguyen and S.K. Loyalka, “A Numerical solution of the Reeks-Hall equation for particulate concentration in recirculating turbulent fluid flow”, Nucl. Technol., 190, 161-173, 2015.

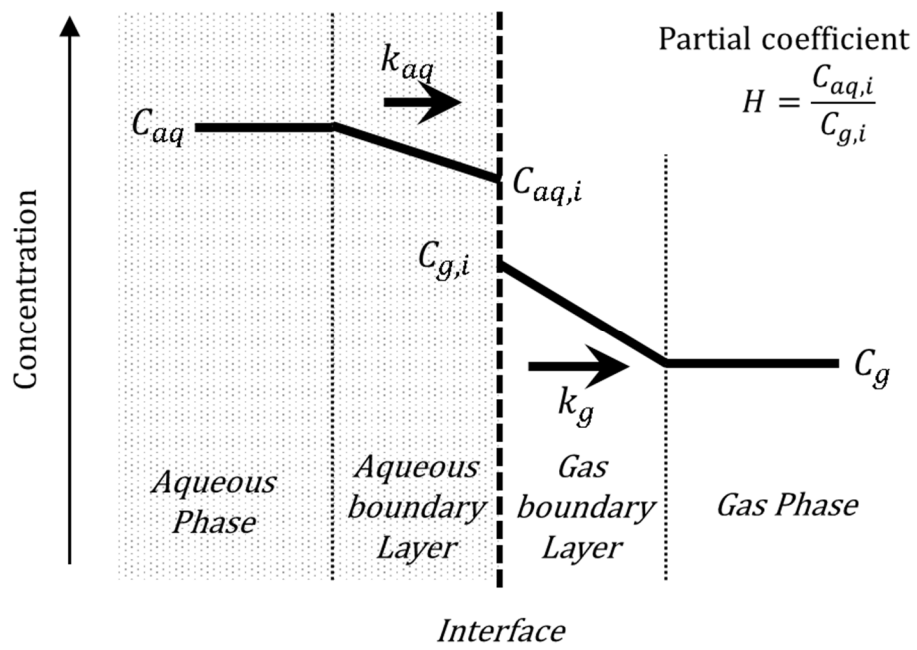


図 2.1.1 二重境膜モデルの概念

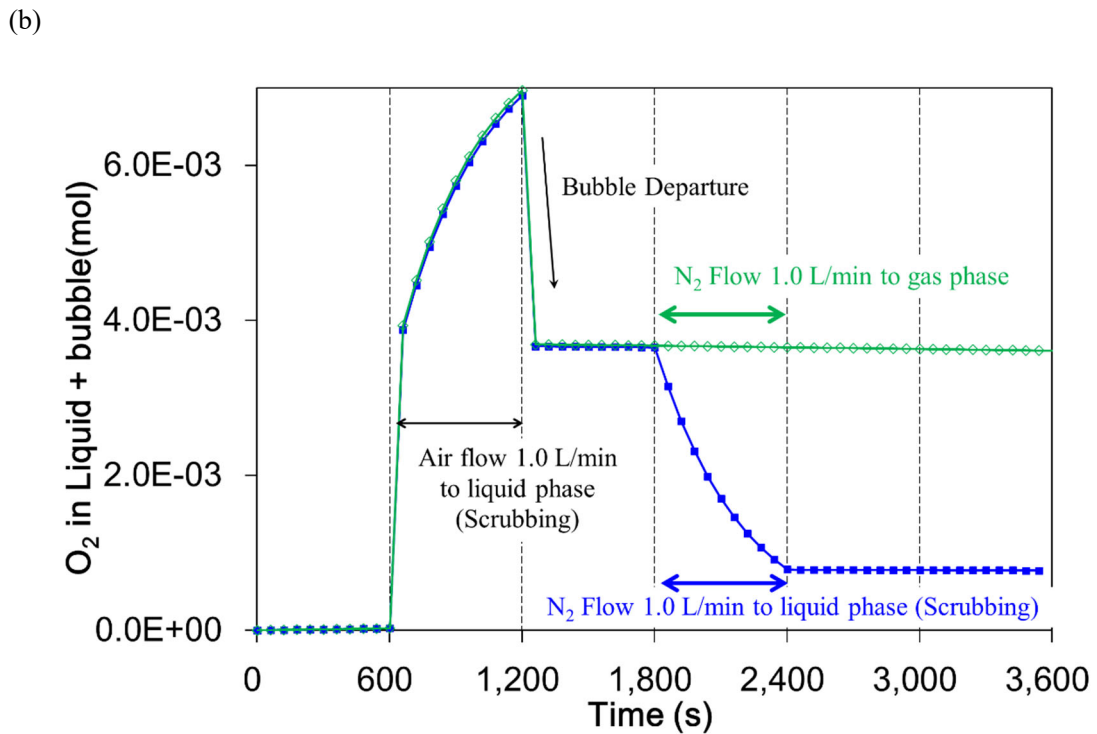
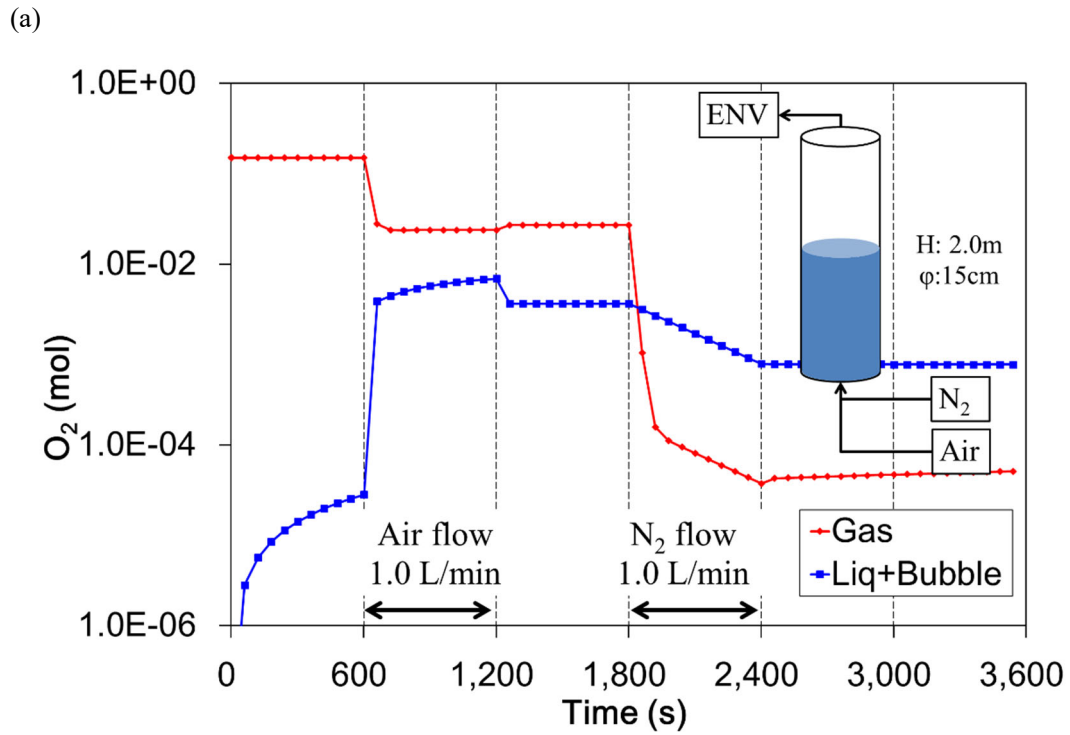


図 2.1.2 再揮発モデルの (a) 簡易検証 及び (b) 感度解析

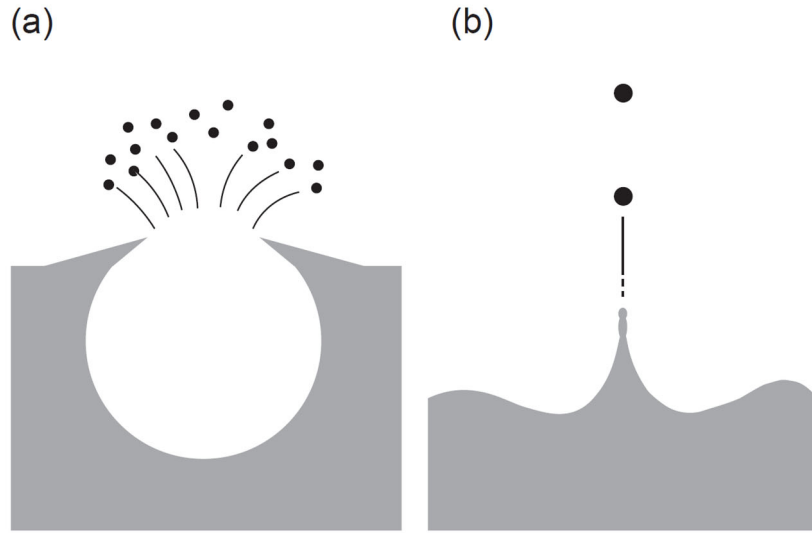


図 2.1.3 気泡流条件での飛沫同伴によるエアロゾル生成機構  
(a) Film droplets、(b) Jet drops

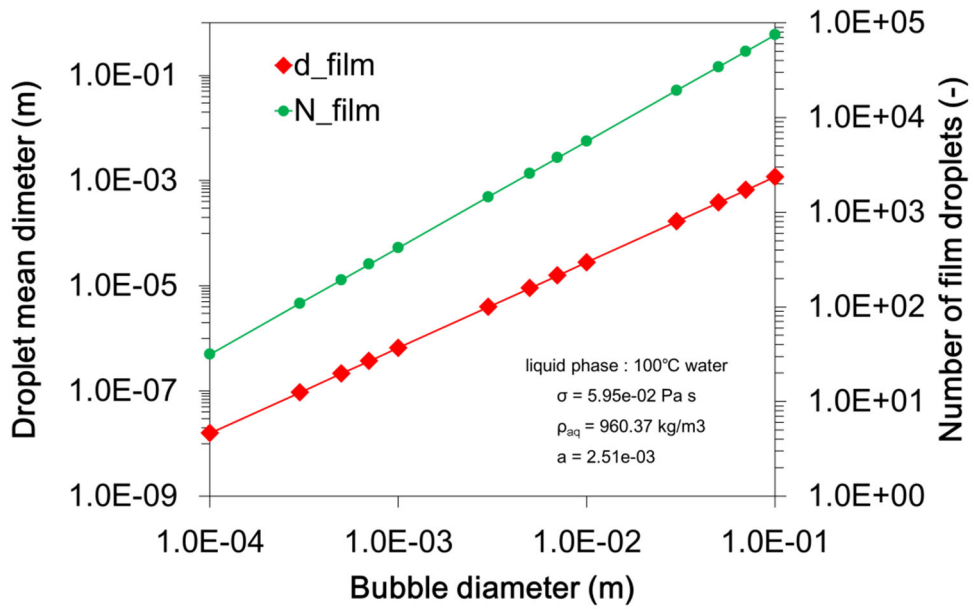


図 2.1.4 気泡 1 個あたりに生成する Film droplet の粒径と個数の気泡径依存性



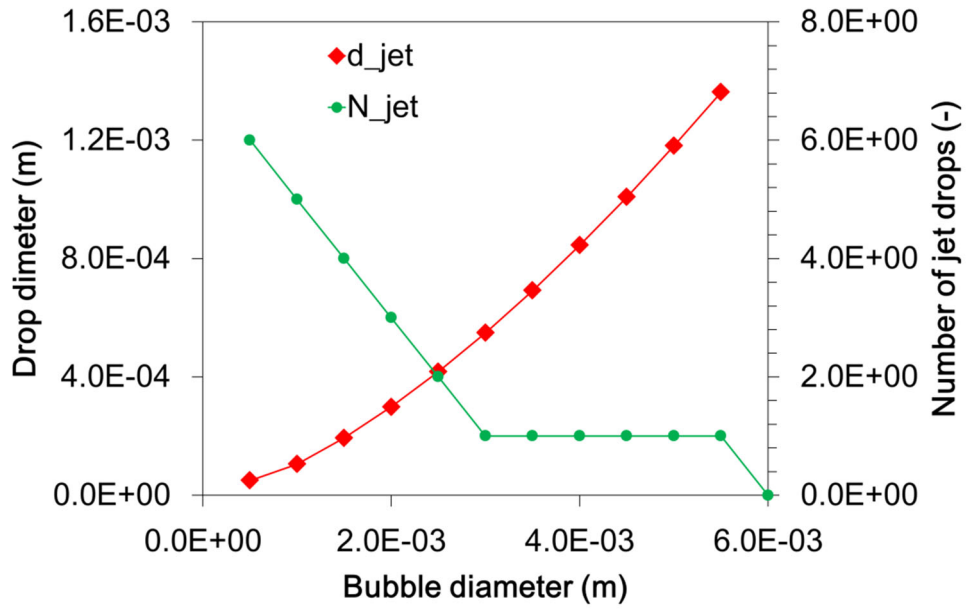


図 2.1.5 気泡 1 個あたりに生成する Jet drop の粒径と個数の気泡径依存性

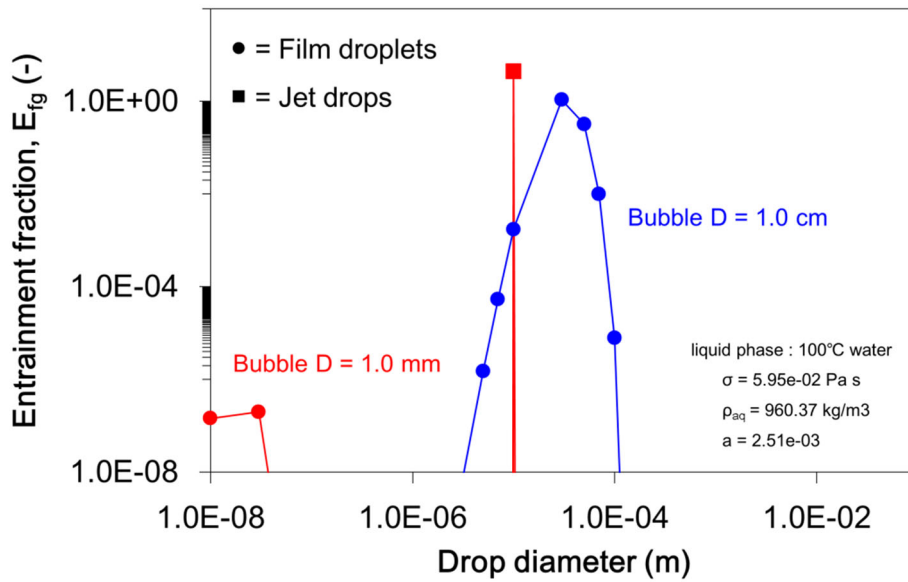


図 2.1.6 気泡流における飛沫同伴率

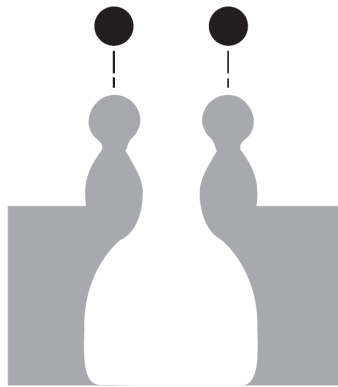


図 2.1.7 Churn 流条件での飛沫同伴によるエアロゾル生成機構

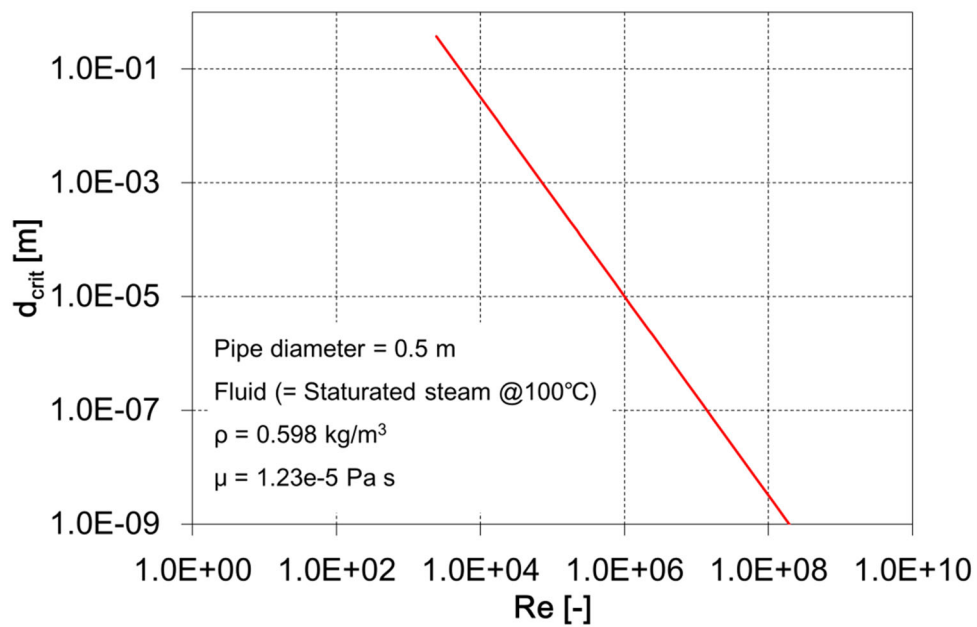


図 2.1.8 静的なエアロゾル再浮遊モデルにおける臨界半径 $d_{crit}$ と流体Reの関係

## 2.2. 再移行挙動に係る影響度の検討

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、次の点に注意する必要がある。

- 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±20%もしくは±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±20%及び±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。

### 2.2.1. FP移行挙動に係る現象影響度の評価手法

FP移行挙動に係る現象影響度を評価では、Morris法に基づく感度解析手法[2.2.1, 2.2.2]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法に基づく感度解析手法について説明する。

本感度解析で用いる計算コードは、JAEAで開発を進めているFP移行挙動解析コードART (Analysis of Radionuclide Transport) を用いた。ARTコードは、ASTECやMELCOR等の一般的なFP移行挙動解析コードと同様に、熱水力条件を境界条件とする物質移行に係る質量 $M$ の時間に対する微分方程式から成る。

$$\frac{dM}{dt} = \mathbf{UM} + \mathbf{Z}(M) \quad (2.2.1)$$

ここで $U$ と $Z$ は、各物質移行現象のモデルより算出された物質移行速度であり、それぞれ1/sとmol/sの次元を有する。上記の物質移行式に感度解析係数 $f$ を導入し、感度解析を実施した。

$$\frac{dM}{dt} = fUM + Z(M, f) \quad (2.2.2)$$

適応した感度解析係数は、(2) において ART コードの概要と併せて説明する。また、(3) に影響度解析で対象とした解析条件を示す。

#### (1) 影響度解析手法

Morris 法[2.2.1, 2.2.2]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  $\Delta$  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  $k=4$ 、繰り返し数  $R=2$  の場合のパラメータセット  $\mathbf{f}$  を表 2.2.1 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。感度解析パラメータセットで計算実行後、計算結果の 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  $M_{ART}(\mathbf{f})$  より、モデル  $i$  の影響度  $d_i$  を次式より計算する。

$$d_i = \left| \frac{M_{ART}(\mathbf{f}^{(l)}) - M_{ART}(\mathbf{f}^{(l-1)})}{\Delta \times j} \right| \quad (2.2.3)$$

現象の影響度  $d_i$  は、各繰り返し回で計算できるため、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  $\mu$ 、標準偏差  $\sigma$  は次より求められる。

$$\mu_i = \frac{1}{r} \sum_{n=1}^r d_i(n) \quad (2.2.4)$$

$$\sigma_i = \sqrt{\frac{1}{r} \sum_{n=1}^r \{d_i(n) - \mu\}^2} \quad (2.2.5)$$

ここで、標準偏差  $\sigma$  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) FP 移行挙動解析コード ART

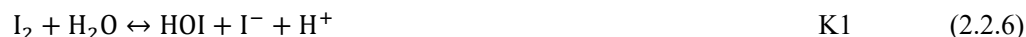
ART コードは、日本原子力研究開発機構で開発した機構論モデルに基づく FP 移行挙動解析コードである。本解析では、現在開発を進めている ART Ver. 3.0 を使用した。ART コードは、種々の軽水炉プラントや再処理施設を模擬できるように汎用性のある区画モデル（ノード・ジャンクション法）を採用している。区画モデルとは、区画と区画間流路から構成され、区画流路を通じて区画間の物質移行が行われるとするものである。

ART コードで対象とする現象を表 2.2.2 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。表 2.2.2 の太枠内が再移行モデルである。2.1 節に示す通り、気液二相流時の再揮発モデル及び、飛沫同伴は、既往の FP 移行挙動解析コードでモデル化されていない。そこで本影響度解析では、液相—気泡間の二重境膜モデル（2.1.1 節）を二相流での再揮発モデルに、気泡流での“Jet drops”と“Fim droplets”生成モデル（2.1.2 節）を飛沫同伴モデルに採用した。また、二相流における再揮発モデルの感度解析を行うにあたり、放射線場における液相中ヨウ素化学を考慮する必要がある。これは、スクラビングで液相に一度捕集されるヨウ素は液相でのヨウ素化学により徐々に揮発性の高い化学形に化学変化するためである。ART Ver. 3.0 コードでは、機構論的にヨウ素化学を

扱うことができる Kiche との連携を今後検討しているが、現在は未実装である。したがって、放射線場でのヨウ素化学を簡易的に考慮可能なモデルを一時的に導入することとした。以下に、水の放射線分解に伴う I<sub>2</sub> 生成に係る簡易モデルを示す。

① 水の放射線分解に伴う I<sub>2</sub> 生成に係る簡易モデル

ヨウ素の水中における加水分解反応は次の反応であることが一般的に知られている。



水温  $T[K]$  における加水分解反応の平衡定数は、J.C.Wren 及び J.M.Ball (2001) [2.2.3]ら及び K.Moriyama ら (2010) [2.2.4]の文献より以下である。

$$\text{K1} = 10^{13880/T - 0.2445T + 308.4 \log T - 749.1} \quad (2.2.8)$$

$$\text{K2} = \frac{0.14 \exp\{1.97 \times 10^4(1/298.15 - 1/T)\}}{5.0 \times 10^9 \exp\{1.47 \times 10^4(1/298.15 - 1/T)\}} \quad (2.2.9)$$

また、水中での各ヨウ素化学種の主要な放射線分解反応は、以下である。



ここで各反応速度 [ $\text{dm}^3 / \text{mol} / \text{s}$ ] は、Burns 及び Sims (1989) [2.2.5]より、次の温度依存性を持つ。

$$\text{k1} = 9.1 \times 10^7 \exp(-6711/T) \quad (2.2.15)$$

$$\text{k2} = 37 \quad (2.2.16)$$

$$\text{k3} = 2.6 \times 10^{11} \exp(-1511/T) \quad (2.2.17)$$

E.C.Beahm らは、定常時における放射線分解反応による濃度変化が、反応(2.2.12)と、(2.2.13)と(2.2.14)の和と等しくなる ( $k_1[I^-][H_2O_2] = k_2[HI0][H_2O_2] + k_3[IO^-][H_2O_2]$ ) とし、次に示す放射線分解を考慮した定常時の平衡状態を定義している [2.2.6]。

$$\frac{[H^+]^2[I^-]^2}{[I_2]} = d + e[H^+] \quad (2.2.18)$$

$$d = \frac{K_1K_2k_3}{k_1} \quad (2.2.19)$$

$$e = \frac{K_1k_2}{k_1} \quad (2.2.20)$$

式 (2.2.18) を用いることで、定常時の水溶液中の放射線分解反応に伴う溶存 I<sub>2</sub> 割合を容易に計算することができる。なお、本簡易モデルの傾向（溶存 I<sub>2</sub> 割合の pH 依存性）は、図 2.2.1 に示す通りであり、低 pH 条件において液相中の I<sub>2</sub> 割合が増加する傾向を適切に示している。

### (3) 解析条件

解析で対象とする仮想事故として、78.4 万 kW 級沸騰水型原子炉 (BWR-4、Mark-I 型) の仮想プラントにて高圧・低圧注水失敗事故シーケンス (TQUV) の D/W 過圧破損ケースを選定した。TQUV は炉心損傷頻度に対する寄与割合の上位グループの 1 つである。

以降では解析条件を示す。

#### 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 2.2.2 に示した。2.2.1 項の (1) に記した通り、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、ダウンカマ、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ェル、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、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

シビアアクシデント総合解析コード THALES-2 [2.2.7]を用い、78.4 万 kW 級沸騰水型原子炉 (BWR-4、Mark-I 型) の仮想プラントにて高圧・低圧注水失敗事故シーケンス (TQUV) の D/W 過圧破損ケースの解析を実施し、ART コードの解析の境界条件となる熱水力条件を決定した。

TQUV シーケンスは、過渡事象発生後、原子炉未臨界確保には成功するが、高圧注水に失敗する。その後、運転員による手動減圧操作には成功するが、低圧注水に失敗するためアクシデントマネジメントによる原子炉注水がない場合には炉心冷却手段が確保できず、炉心損傷、原子炉圧力容器の破損に至る。圧力容器破損後の炉心・コンクリート相互作用によって生成される非凝縮性ガスの格納容器への蓄積により、格納容器は過圧破損に至る。THALES 解析によって得られた主要なイベントを表 2.2.3 に、原子炉冷却系と格納容器系の圧力及び温度履歴を図 2.2.3、図 2.2.4 に示した。

## 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 2.2.4)。

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 [2.2.8]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 (図 2.2.5)。

## ④ 影響度解析

本影響度解析において対象とする現象は、表 2.2.2 に示す全 13 現象である。なお、本影響度解析では、再移行モデルの 1 つであるエアロゾルの蒸発に関する FP 蒸発・凝縮モデルは含んでいない。これは、現 ART コードの FP 蒸発・凝縮モデルが、常に平衡を仮定とした非動的なモデルのためである (式 (2.2.1) の形式に乗らない)。また、対象とした現象群に対して、2.2.1 項 (1) に示す Morris 法を使って設定した感度解析パラメータセットを表 2.2.5 に示す。繰り返し回数 R は 5 回とし、総計 70 (= (13+1) × 5) 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。



#### (4) 結果及び考察

ART の解析結果について、まず影響度解析で対象する事故シーケンスの FP 挙動について、全ての感度解析パラメータが 1 の場合の結果を①に示す。続いて②では、環境への FP 移行に対する各現象の影響度の結果を示す。

##### ① TQUV-D/W 過圧破損ケースにおける FP 挙動

###### a) 希ガス

ART 解析で得られた希ガス Xe の原子炉施設内分布の履歴を図 2.2.6 に示した。希ガスは反応性が低い非凝縮性の気体であり、燃料から早期に放出される FP である。TQUV 事故において、まず燃料から放出された Xe は、逃し安全弁による原子炉減圧操作によって原子炉冷却系を經由して圧力抑制室に移行する。圧力抑制室に移行する Xe は、スクラビングを経た後、圧力抑制室の気相部に蓄積する。なお、Xe は難溶解性の気体のため、スクラビングによる液相捕集はほとんどおきない。ここで、キセノンの 100°C における気液分配定数 (= 液相濃度/気相濃度) は約 0.031 であり、難溶解性と言えど微量は溶解する。また、圧力抑制室の気相部に蓄積された Xe は、圧力抑制室—ドライウエル間の真空破壊弁を通じて、ドライウエルに流入する。ドライウエルに流入した Xe は、ドライウエルが過圧破損した後に、原子炉建屋へ流出し、建屋から環境へ漏洩する。本解析終了時刻には約 40% の環境放出量に留まるが、さらに長時間の解析を行った場合最終的には 100% が環境へ放出される。

###### b) セシウム

ART 解析で得られたセシウム Cs の原子炉施設内分布の履歴を図 2.2.7 に示した。まず燃料から放出された Cs は、蒸気圧が低いため、炉心部で大部分が凝縮によりエアロゾル化する。エアロゾル化した Cs は、炉心部の上昇流により上部プレナムを経て蒸気ドームへと移行するが、その一部が気水分離機へ沈着する。その後、Xe と同様に、逃し安全弁による原子炉減圧操作によって、原子炉冷却系を經由して圧力抑制室に移行する。圧力抑制室に移行する Cs は、スクラビング効果により多くが液相に捕集される。Cs のスクラビング除去が盛んな解析時間の 1~2 時間において、気泡のウェーバー数は 100~600 であり、除去効率 DF は  $10^2 \sim 10^6$  である。スクラビング効果で除去されなかった Cs は、圧力抑制室の気相部に蓄積し、圧力抑制室—ドライウエル間の真空破壊弁を通じて、ドライウエルに流入する。また、圧力抑制室の気相部に残存する Cs は、エアロゾル粒子のため徐々に圧力抑制室の液相表面へ沈降する。ドライウエルに流入した Cs は、ドライウエルが過圧破損した後に、原子炉建屋へ流出し、建屋から環境へ漏洩する。本解析終了時刻には初期インベントリに対して約  $1.0 \times 10^{-4}$  % が環境へ放出される結果となった。

### c) ヨウ素

ART 解析で得られたヨウ素 I の原子炉施設内分布の履歴を図 2.2.8 に示した。まず燃料から放出された I は、Cs と同様に、蒸気圧が低いため、炉心部で大部分が凝縮によりエアロゾル化する。エアロゾル化した I は、炉心部の上昇流により上部プレナムを経て蒸気ドームへと移行するが、その一部が気水分離機へ沈着する。その後、逃し安全弁による原子炉減圧操作によって、原子炉冷却系を経由して圧力抑制室に移行し、スクラビング効果により多くが液相に捕集される。スクラビング効果で除去されなかった I は、圧力抑制室の気相部に蓄積し、圧力抑制室ードライウェル間の真空破壊弁を通じて、ドライウェルに流入する。また、圧力抑制室の液相部に捕集された I は、水の放射線分解反応により揮発性の高い分子状 I<sub>2</sub> に変換され、その一部が気液分配により気相へ再放出される。ドライウェルに流入した I は、ドライウェルが過圧破損した後に、原子炉建屋へ流出し、建屋から環境へ漏洩する。本解析終了時刻には初期インベントリに対して約  $1.0 \times 10^{-4}$ % が環境へ放出される結果となった。

### ② 環境への FP 移行に対する各現象の影響度

本項では、①と同様に、まず Xe に対する環境放出量に対する各現象の影響度を示した後に、Cs 及び I に対する現象の影響度を示す。

#### a) 希ガス

本影響度解析で得られた希ガス Xe の環境放出量に対する各現象の影響度を図 2.2.9 に示した。①に示した通り、希ガスは反応性が低い非凝縮性の気体であるため、エアロゾルに関する移行現象の影響を受けない。そのため、気液自由界面での物質移行とスクラビング時の気体除去/再移行の影響度が得られた。影響度としては、気液自由界面での物質移行に比べて、スクラビング時の気体除去/再移行効果が大きいことが示された。一方で、燃料インベントリに対する Xe の環境放出量の 0.4 に対してこれらの影響度は小さい値であり、より大きな変動率を使った影響度評価が必要であると考えられる。また、これらの各現象の相関はほとんどない。希ガスの反応性低さから妥当な結果が得られたと考えられる。

#### b) セシウム

本影響度解析で得られた Cs の環境放出量に対する各現象の影響度を図 2.2.10 に示した。Cs は炉心以降の放出経路でエアロゾル状であるため、エアロゾルに関する現象の影響度と相関が大きくなった。最も現象の影響度及びその相関が大きな現象として、拡散泳動によるエアロゾル沈降であることが分かった。ART コードでは扱う拡散泳動とは、壁面や液相表面での水の凝縮・蒸発に伴う対流によるものである。そのため、構造材表面や液相表面での水の蒸発モデルも比較的高い影響度を示している。今回の解析対象の TQUV の D/W 過圧破損事故シーケンスでは、継続した原子炉減圧操作により約 85% の Cs が圧力抑制室に移行する。その際、スクラビングにより大部分の Cs は液相に除去されるが、除去されなかった Cs は圧力抑制室の気相部に一時的に保持され、その後の格納容器破損時に環境へ放出される

ソースとなっている。圧力抑制室の気相部の Cs はエアロゾルのため、重力沈降により徐々に圧力抑制室の液相部に沈降していくため、環境へ放出し得る Cs 量は減少していく。そのため、格納容器の過圧破損までの時間が長い本影響度解析ではスクラビングの除去の影響が重力沈降によりも小さな値となったと考えられる。また、重力沈降よりも拡散泳動の影響が大きくなった理由は、圧力抑制室内部では液相が蒸発するため蒸発による拡散泳動により重力沈降の一部が抑制され、環境へ放出し得る Cs が低減するためである。

再移行モデルの影響度としては、どのモデルも同程度の影響度であり、強く影響を示す現象はなかった。ただし、本影響度評価では仮定した変動率が小さいことに加え、影響度が大きいと考えられる再蒸発を含んでいないため、これらの改善した再検討が望まれる。

### c) ヨウ素

本影響度解析で得られた I の環境放出量に対する各現象の影響度を図 2.2.11 に示した。本影響度解析において I は、その化学形として凝縮性の CsI を仮定しているため、エアロゾルとして移行する。そのため、Cs と同様に、エアロゾルに関する各現象の影響度と相関が高く得られた。また、Cs と異なる挙動として、液相での放射線分解による非凝縮性のヨウ素生成が挙げられるが、仮定した液相内の水素イオン濃度 $[H^+]$ を室温での中性相当の  $1.0 \times 10^{-7}$  と設定のため、ほとんど非凝縮性のヨウ素生成はなかった。

なお、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。

### 参考文献

- [2.2.1] M.D. Morris, "Factorial Sampling Plans for Preliminary Computational Experiments", *technometrics*, 33, 2, 161-174, 1991.
- [2.2.2] 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.
- [2.2.3] J. C. Wren and J. M. Ball, "LIRIC 3.2 an updated model for iodine behaviour in the presence of organic impurities," *Radiat. Phys. Chem.* 60, 577-596, 2001.
- [2.2.4] K. Moriyama et. al., "Kiche: 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.
- [2.2.5] W. G. Burns and H. E. Sims, "The use of the FACSIMILE/CHEKMAT program in the speciation of iodine in a PWR reactor containment following a loss of coolant accident,"

Proceedings of the second CSNI Workshop on Iodine chemistry in reactor safety, AECL-9923/CSNI-149, 1989; Toronto, Canada.

- [2.2.6] E. C. Beahm et. al., "Iodine evolution and pH control," NUREG/CR-5950 ORNL/TM-12242, 1992.
- [2.2.7] 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.
- [2.2.8] J. Cardoni and Z. Jankovsky, "Fukushima Daiichi Radionuclides Inventories," SANDIA REPORT SAND2016-9065R, 2016.

表 2.2.1 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

		Parameter				
Round		$f_1$	$f_2$	$f_3$	$f_4$	$\Delta \times j$
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

表 2.2.2 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	感度解析 係数 $f$
1	エアロゾルの凝集	Maeros モデル	$f_1$
2	熱泳動によるエアロゾル沈着	Block モデル Waldman モデル	$f_2$
3	重力沈降によるエアロゾル沈着		$f_3$
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	$f_4$
	ブラウン拡散によるエアロゾル沈着	Fick の法則	
5	強制対流によるエアロゾル沈着	層流 : H.Schlichting、Gromely 乱流 : Davies、Friendlander	$f_5$
6	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、、、)		$f_6$
7	エアロゾルの再浮遊	簡易 RHH モデル Nguyen and Loyalka (2015)	$f_7$
8	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	$f_8$
9	スプレー時の気体/エアロゾルの除去	Postma and Pasedag(1973)	$f_9$
10	フィルターによるエアロゾル除去	Vendel et. al. (2009)	$f_{10}$
11	スクラビング時のエアロゾル除去	SPARC90 モデル(凝縮を除く)	$f_{11}$
	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	
12	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	$f_{12}$
13	水の凝縮/蒸発	構造物/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)	$f_{13}$
14	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	
15	液相中のヨウ素化学	簡易モデル (無機 I <sub>2</sub> のみ)	
16	化学吸着	未実装	

表 2.2.3 THALES 解析で得られた主要イベントの発生時刻

イベント事象	炉停止からの経過時間
炉心損傷開始**	0.80
下部炉心支持板破損	1.85
圧力容器破損	5.40
格納容器破損 (過圧破損)	24.5

\*\*：被覆管最高温度 2098 K 到達

表 2.2.4 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[2.2.7]	燃料中の インベントリ(kg) [2.2.7]	ART で代表し 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	Xe
2	アルカリ金属	Cs-134, Cs-136, Cs-137, Rb- 86, Rb-88	212.90	Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub>
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	BaO
4	ハロゲン	I-131, I-132, I-133, I-134, I- 135	13.97	CsI
5	カルコゲン	Te-127, Te-127m, Te-129, Te- 129m, Te-131, Te-131m, Te- 132	34.52	TeO <sub>2</sub>
6	白金族	Ru-103, Ru-105, Ru-106, Rh- 103m, Rh-105, Rh-106	243.44	RuO <sub>2</sub>
7	遷移金属	Co-58, Co-60, Mo-99, Tc- 99m, Nb-95, Nb-97, Nb-97m	280.30	MoO <sub>2</sub>
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	CeO <sub>2</sub>
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, Y92, Y-93, Y-91m, Pr-143, Pr-144, Pr- 144m	812.17	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>



表 2.2.5 影響度解析で使用するパラメータセット (ラウンド1)

Parameters														
Round	$f_1$	$f_2$	$f_3$	$f_4$	$f_5$	$f_6$	$f_7$	$f_8$	$f_9$	$f_{10}$	$f_{11}$	$f_{12}$	$f_{13}$	$\Delta \times j$
$f^{(0)}$	1.4	1.4	0.8	0.8	1.0	0.6	0.8	0.8	0.6	1.0	1.4	1.2	0.6	
$f^{(1)}$	1.4	1.4	0.8	0.8	1.0	0.6	0.8	0.8	0.6	1.0	1.4	1.4	0.6	0.2
$f^{(2)}$	1.4	1.4	0.8	0.8	0.6	0.6	0.8	0.8	0.6	1.0	1.4	1.4	0.6	-0.4
$f^{(3)}$	1.4	1.4	0.8	0.8	0.6	0.6	0.8	0.8	0.6	1.0	1.4	1.4	1.0	0.4
$f^{(4)}$	1.4	1.4	0.8	0.8	0.6	0.6	0.8	0.8	0.2	1.0	1.4	1.4	1.0	-0.4
$f^{(5)}$	1.4	1.4	0.8	0.8	0.6	0.6	0.8	0.8	0.2	1.0	1.2	1.4	1.0	-0.2
$f^{(6)}$	1.2	1.4	0.8	0.8	0.6	0.6	0.8	0.8	0.2	1.0	1.2	1.4	1.0	-0.2
$f^{(7)}$	1.2	1.4	0.8	0.8	0.6	1.0	0.8	0.8	0.2	1.0	1.2	1.4	1.0	0.4
$f^{(8)}$	1.2	1.4	0.8	0.8	0.6	1.0	0.6	0.8	0.2	1.0	1.2	1.4	1.0	-0.2
$f^{(9)}$	1.2	1.4	0.8	0.8	0.6	1.0	0.6	0.8	0.2	1.2	1.2	1.4	1.0	0.2
$f^{(10)}$	1.2	1.4	0.8	1.2	0.6	1.0	0.6	0.8	0.2	1.2	1.2	1.4	1.0	0.4
$f^{(11)}$	1.2	1.0	0.8	1.2	0.6	1.0	0.6	0.8	0.2	1.2	1.2	1.4	1.0	-0.4
$f^{(12)}$	1.2	1.0	0.6	1.2	0.6	1.0	0.6	0.8	0.2	1.2	1.2	1.4	1.0	-0.2
$f^{(13)}$	1.2	1.0	0.6	1.2	0.6	1.0	0.6	0.4	0.2	1.2	1.2	1.4	1.0	-0.4

表 2.2.5 影響度解析で使用したパラメータセット (ラウンド2)

Round	Parameters													
	$f_1$	$f_2$	$f_3$	$f_4$	$f_5$	$f_6$	$f_7$	$f_8$	$f_9$	$f_{10}$	$f_{11}$	$f_{12}$	$f_{13}$	$\Delta \times j$
$f^{(0)}$	1.4	1.4	1.4	1.4	0.8	1.2	1.2	0.8	0.8	1.4	1.4	0.6	1.4	1.4
$f^{(1)}$	1.4	1.4	1.4	1.4	1.0	1.2	1.2	0.8	0.8	1.4	1.4	0.6	1.4	0.2
$f^{(2)}$	1.4	1.2	1.4	1.4	1.0	1.2	1.2	0.8	0.8	1.4	1.4	0.6	1.4	-0.2
$f^{(3)}$	1.4	1.2	1.4	1.4	1.0	1.2	1.2	0.4	0.8	1.4	1.4	0.6	1.4	-0.4
$f^{(4)}$	1.4	1.2	1.4	1.4	1.0	1.2	1.2	0.4	0.8	1.4	1.4	0.2	1.4	-0.4
$f^{(5)}$	1.4	1.2	1.8	1.4	1.0	1.2	1.2	0.4	0.8	1.4	1.4	0.2	1.4	0.4
$f^{(6)}$	1.6	1.2	1.8	1.4	1.0	1.2	1.2	0.4	0.8	1.4	1.4	0.2	1.4	0.2
$f^{(7)}$	1.6	1.2	1.8	1.4	1.0	1.2	1.2	0.4	0.8	1.4	1.4	0.2	1.0	-0.4
$f^{(8)}$	1.6	1.2	1.8	1.2	1.0	1.2	1.2	0.4	0.8	1.4	1.4	0.2	1.0	-0.2
$f^{(9)}$	1.6	1.2	1.8	1.2	1.0	1.2	1.2	0.4	0.8	1.0	1.4	0.2	1.0	-0.4
$f^{(10)}$	1.6	1.2	1.8	1.2	1.0	1.2	1.2	0.4	0.8	1.0	1.2	0.2	1.0	-0.2
$f^{(11)}$	1.6	1.2	1.8	1.2	1.0	1.0	1.2	0.4	0.8	1.0	1.2	0.2	1.0	-0.2
$f^{(12)}$	1.6	1.2	1.8	1.2	1.0	1.0	1.0	0.4	0.8	1.0	1.2	0.2	1.0	-0.2
$f^{(13)}$	1.6	1.2	1.8	1.2	1.0	1.0	1.0	0.4	1.0	1.0	1.2	0.2	1.0	0.2

表 2.2.5 影響度解析で使用了パラメータセット (ラウンド3)

Round	Parameters													
	$f_1$	$f_2$	$f_3$	$f_4$	$f_5$	$f_6$	$f_7$	$f_8$	$f_9$	$f_{10}$	$f_{11}$	$f_{12}$	$f_{13}$	$\Delta \times j$
$f^{(0)}$	0.6	0.8	1.4	0.6	0.8	0.6	0.8	1.0	1.4	0.6	0.8	1.0	0.8	-0.2
$f^{(1)}$	0.6	0.8	1.4	0.6	0.8	0.4	0.8	1.0	1.4	0.6	0.8	1.0	0.8	-0.2
$f^{(2)}$	0.6	0.8	1.4	0.6	0.8	0.4	0.8	1.0	1.4	0.6	0.8	1.0	1.0	0.2
$f^{(3)}$	0.4	0.8	1.4	0.6	0.8	0.4	0.8	1.0	1.4	0.6	0.8	1.0	1.0	-0.2
$f^{(4)}$	0.4	0.8	1.4	0.6	0.8	0.4	0.8	1.0	1.4	0.6	0.8	0.8	1.0	-0.2
$f^{(5)}$	0.4	0.8	1.4	0.6	0.8	0.4	1.2	1.0	1.4	0.6	0.8	0.8	1.0	0.4
$f^{(6)}$	0.4	0.8	1.4	0.8	0.8	0.4	1.2	1.0	1.4	0.6	0.8	0.8	1.0	0.2
$f^{(7)}$	0.4	0.8	1.4	0.8	0.8	0.4	1.2	1.0	1.2	0.6	0.8	0.8	1.0	-0.2
$f^{(8)}$	0.4	0.8	1.2	0.8	0.8	0.4	1.2	1.0	1.2	0.6	0.8	0.8	1.0	-0.2
$f^{(9)}$	0.4	0.8	1.2	0.8	0.8	0.4	1.2	0.6	1.2	0.6	0.8	0.8	1.0	-0.4
$f^{(10)}$	0.4	1.2	1.2	0.8	0.8	0.4	1.2	0.6	1.2	0.6	0.8	0.8	1.0	0.4
$f^{(11)}$	0.4	1.2	1.2	0.8	0.8	0.4	1.2	0.6	1.2	0.8	0.8	0.8	1.0	0.2
$f^{(12)}$	0.4	1.2	1.2	0.8	0.8	0.4	1.2	0.6	1.2	0.8	1.2	0.8	1.0	0.4
$f^{(13)}$	0.4	1.2	1.2	0.8	0.6	0.4	1.2	0.6	1.2	0.8	1.2	0.8	1.0	-0.2

表 2.2.5 影響度解析で使用したパラメータセット (ラウンド4)

Parameters														
Round	$f_1$	$f_2$	$f_3$	$f_4$	$f_5$	$f_6$	$f_7$	$f_8$	$f_9$	$f_{10}$	$f_{11}$	$f_{12}$	$f_{13}$	$\Delta \times j$
$f^{(0)}$	0.6	0.8	1.2	1.4	0.8	0.6	0.8	1.0	0.6	1.2	1.4	1.4	0.8	
$f^{(1)}$	0.6	0.8	1.2	1.4	0.8	0.6	0.8	1.0	0.6	1.6	1.4	1.4	0.8	0.4
$f^{(2)}$	0.6	1.0	1.2	1.4	0.8	0.6	0.8	1.0	0.6	1.6	1.4	1.4	0.8	0.2
$f^{(3)}$	0.6	1.0	1.2	1.4	1.0	0.6	0.8	1.0	0.6	1.6	1.4	1.4	0.8	0.2
$f^{(4)}$	0.6	1.0	1.2	1.4	1.0	0.2	0.8	1.0	0.6	1.6	1.4	1.4	0.8	-0.4
$f^{(5)}$	0.6	1.0	1.2	1.4	1.0	0.2	0.8	0.8	0.6	1.6	1.4	1.4	0.8	-0.2
$f^{(6)}$	0.6	1.0	1.2	1.4	1.0	0.2	0.8	0.8	0.6	1.6	1.6	1.4	0.8	0.2
$f^{(7)}$	0.6	1.0	1.2	1.2	1.0	0.2	0.8	0.8	0.6	1.6	1.6	1.4	0.8	-0.2
$f^{(8)}$	0.6	1.0	1.2	1.2	1.0	0.2	0.8	0.8	0.6	1.6	1.6	1.2	0.8	-0.2
$f^{(9)}$	0.6	1.0	1.2	1.2	1.0	0.2	0.8	0.8	0.6	1.6	1.6	1.2	0.6	-0.2
$f^{(10)}$	0.6	1.0	1.2	1.2	1.0	0.2	1.2	0.8	0.6	1.6	1.6	1.2	0.6	0.4
$f^{(11)}$	0.6	1.0	1.2	1.2	1.0	0.2	1.2	0.8	0.4	1.6	1.6	1.2	0.6	-0.2
$f^{(12)}$	0.6	1.0	1.0	1.2	1.0	0.2	1.2	0.8	0.4	1.6	1.6	1.2	0.6	-0.2
$f^{(13)}$	0.4	1.0	1.0	1.2	1.0	0.2	1.2	0.8	0.4	1.6	1.6	1.2	0.6	-0.2

表 2.2.5 影響度解析で使用したパラメータセット (ラウンド5)

Parameters														
Round	$f_1$	$f_2$	$f_3$	$f_4$	$f_5$	$f_6$	$f_7$	$f_8$	$f_9$	$f_{10}$	$f_{11}$	$f_{12}$	$f_{13}$	$\Delta \times j$
$f^{(0)}$	1.4	1.4	0.8	0.6	0.8	1.2	1.4	0.8	1.2	1.2	0.6	1.0	1.4	
$f^{(1)}$	1.4	1.4	0.6	0.6	0.8	1.2	1.4	0.8	1.2	1.2	0.6	1.0	1.4	-0.2
$f^{(2)}$	1.4	1.4	0.6	0.6	0.8	1.2	1.4	0.8	1.2	1.2	0.4	1.0	1.4	-0.2
$f^{(3)}$	1.4	1.4	0.6	0.2	0.8	1.2	1.4	0.8	1.2	1.2	0.4	1.0	1.4	-0.4
$f^{(4)}$	1.8	1.4	0.6	0.2	0.8	1.2	1.4	0.8	1.2	1.2	0.4	1.0	1.4	0.4
$f^{(5)}$	1.8	1.4	0.6	0.2	1.2	1.2	1.4	0.8	1.2	1.2	0.4	1.0	1.4	0.4
$f^{(6)}$	1.8	1.4	0.6	0.2	1.2	1.2	1.4	0.8	1.2	1.6	0.4	1.0	1.4	0.4
$f^{(7)}$	1.8	1.4	0.6	0.2	1.2	1.2	1.4	0.8	1.2	1.6	0.4	1.0	1.2	-0.2
$f^{(8)}$	1.8	1.4	0.6	0.2	1.2	1.2	1.6	0.8	1.2	1.6	0.4	1.0	1.2	0.2
$f^{(9)}$	1.8	1.4	0.6	0.2	1.2	1.2	1.6	1.2	1.2	1.6	0.4	1.0	1.2	0.4
$f^{(10)}$	1.8	1.4	0.6	0.2	1.2	1.6	1.6	1.2	1.2	1.6	0.4	1.0	1.2	0.4
$f^{(11)}$	1.8	1.4	0.6	0.2	1.2	1.6	1.6	1.2	1.0	1.6	0.4	1.0	1.2	-0.2
$f^{(12)}$	1.8	1.0	0.6	0.2	1.2	1.6	1.6	1.2	1.0	1.6	0.4	1.0	1.2	-0.4
$f^{(13)}$	1.8	1.0	0.6	0.2	1.2	1.6	1.6	1.2	1.0	1.6	0.4	1.2	1.2	0.2

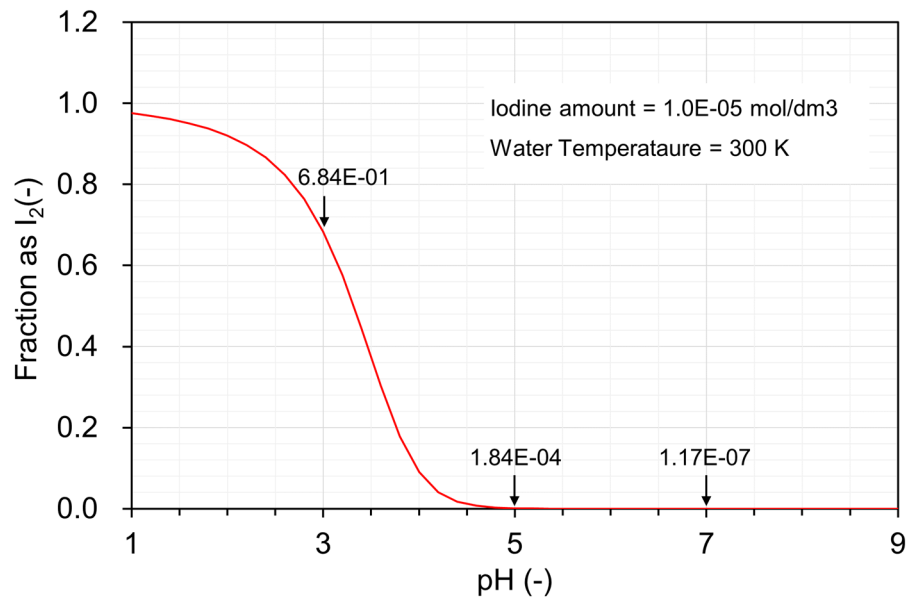


図 2.2.1 放射場における溶存 I<sub>2</sub> 生成率の pH 依存性

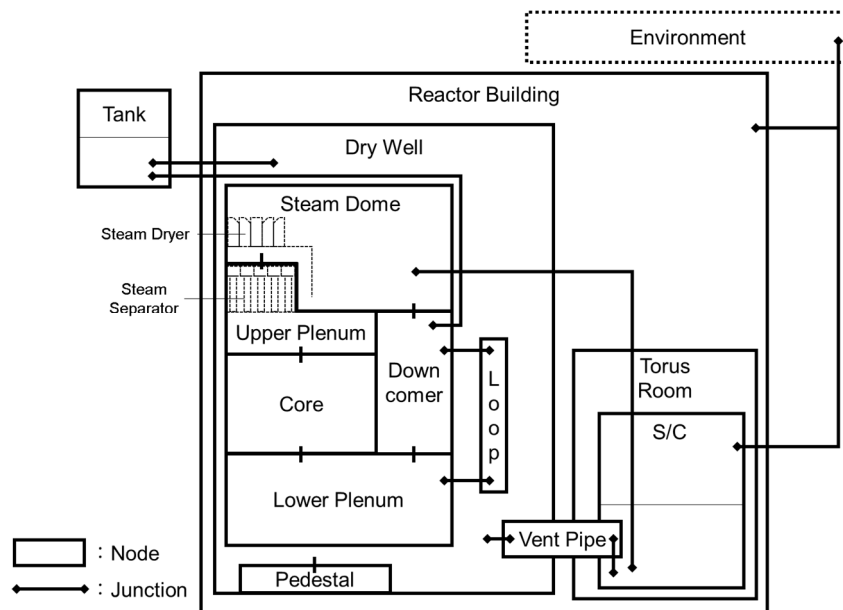


図 2.2.2 ART 解析で模擬した BWR プラント

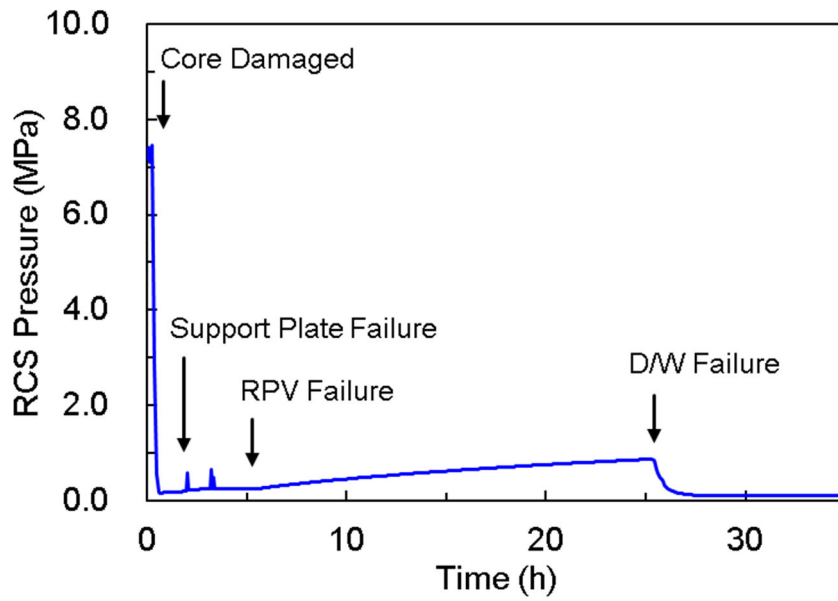


図 2.2.3 THALES 解析で得られた原子炉冷却系の圧力履歴

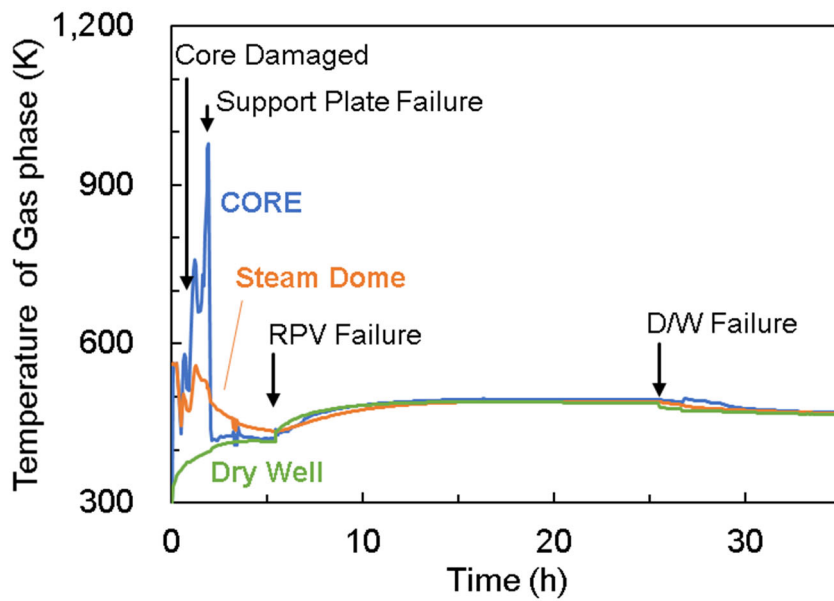


図 2.2.4 THALES 解析で得られた主要ノードの気相温度履歴

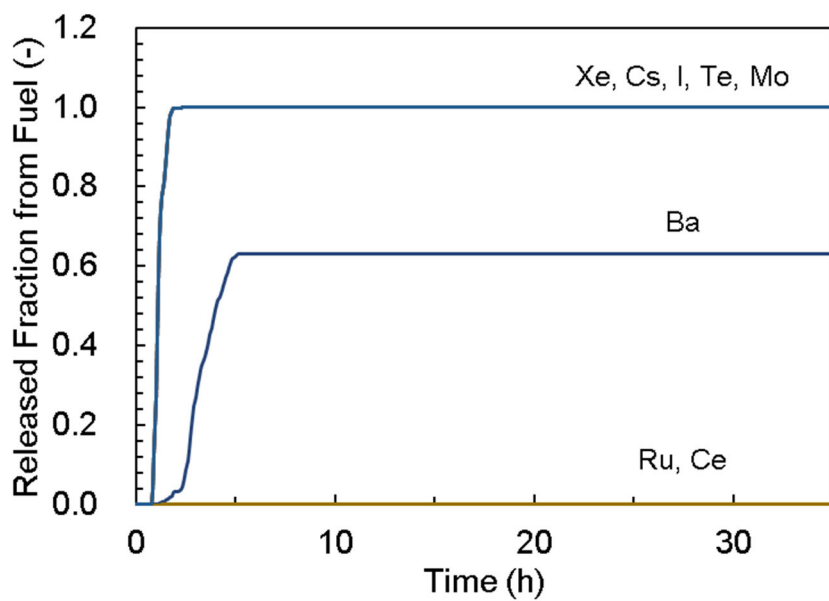


図 2.2.5 THALES 解析で得られた FP 放出履歴

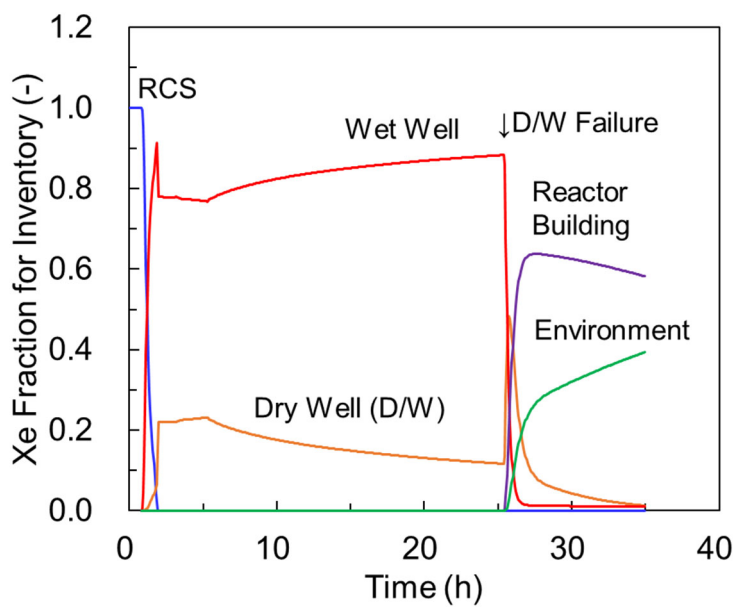


図 2.2.6 希ガス Xe の原子炉施設内分布履歴



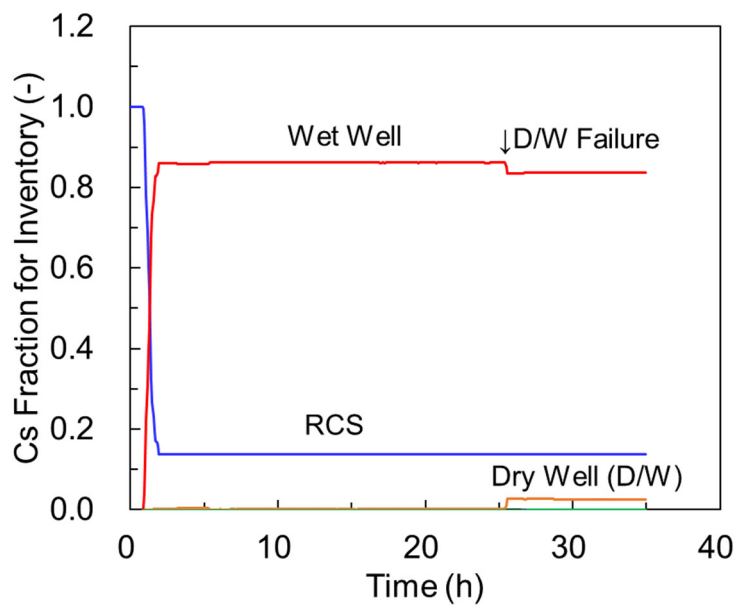


図 2.2.7 セシウム Cs の原子炉施設内分布履歴

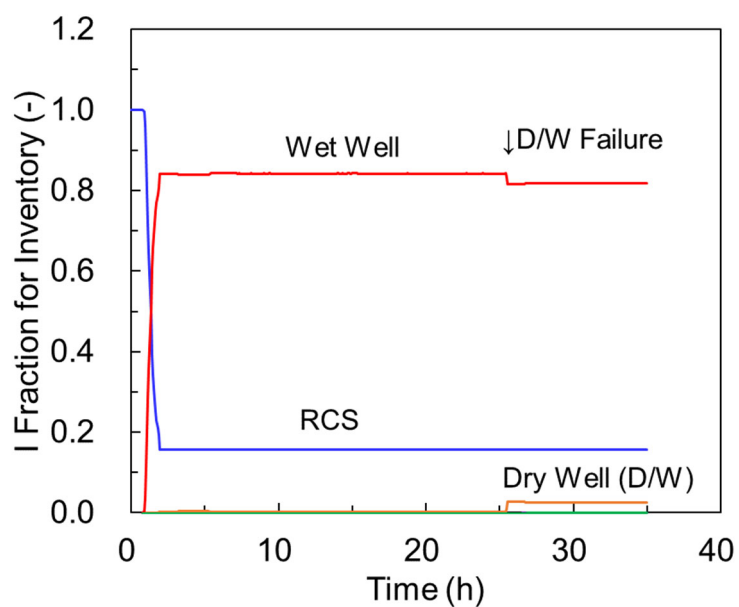


図 2.2.8 ヨウ素 I の原子炉施設内分布履歴

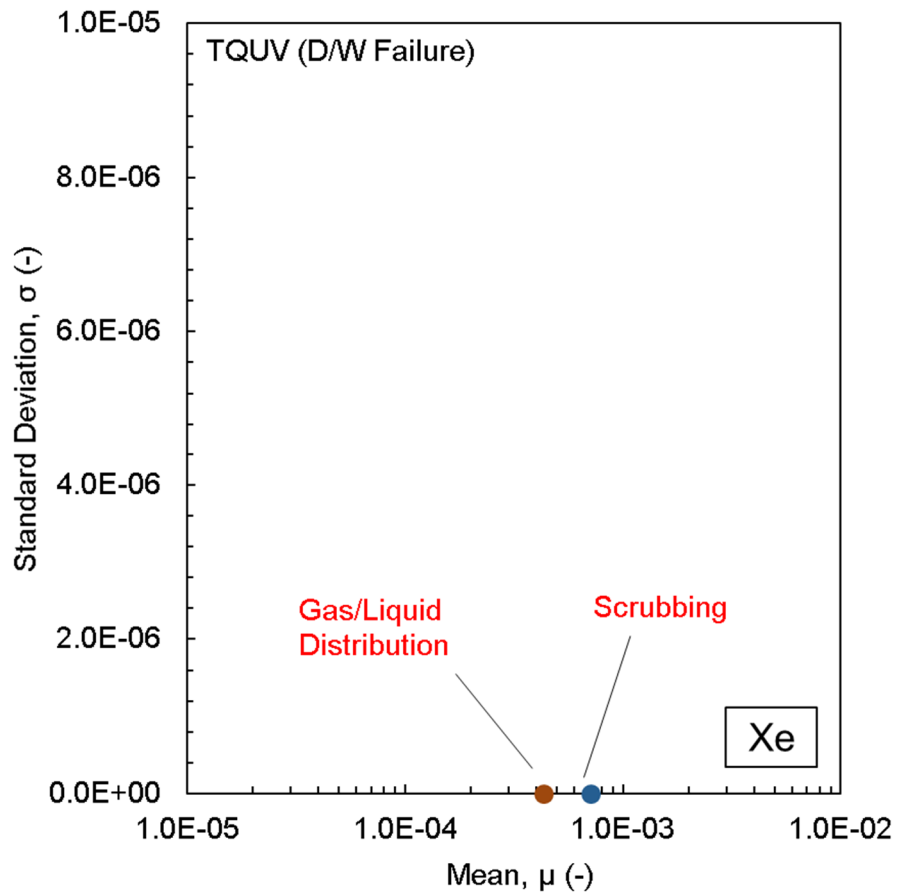


図 2.2.9 希ガス Xe の環境放出量に対する各現象の影響度  
(赤字は再移行に関する現象)

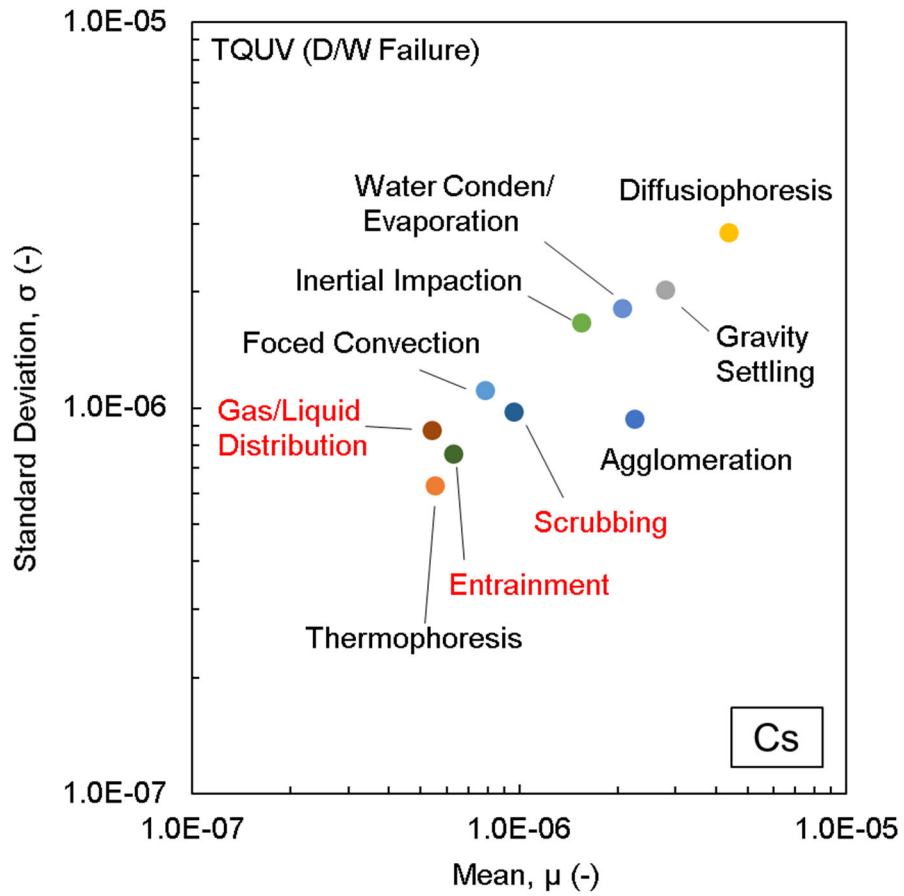


図 2.2.10 Cs の環境放出量に対する各現象の影響度  
 (赤字は再移行に関する現象)

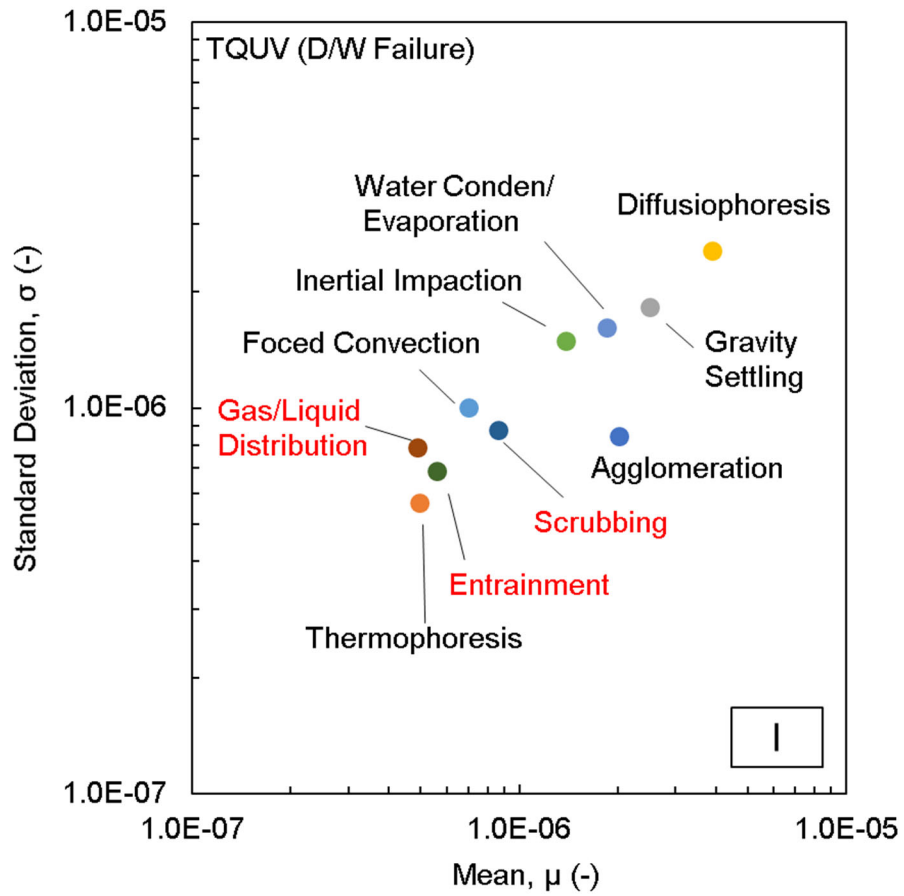


図 2.2.11 I の環境放出量に対する各現象の影響度  
(赤字は再移行に関する現象)

### 3. 化学挙動に関するデータ取得

#### 3.1 目的

フランス原子力・代替エネルギー庁(CEA)が中心になって実施した FP 移行実験 VERDON 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 ( $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ ) 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。このことから、これらの化合物の生成反応を明らかにするため、非放射性のセシウム、ヨウ素、モリブデン等を含有する試料を用いて FP の炉内移行時における高温化学反応を想定した実験を行い、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。

実験には、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 : Test bench for FP Release and tRansport) を用いた[3.2, 3.3]。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 ( $\text{CsI}$ ) [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 ( $\text{MoO}_3$ ) 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。ヨウ化セシウムのみを供試材とした実験結果と比較し、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の影響を評価した。

#### 3.2 実験装置 [3.2,3.3]

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 : 1  $\mu\text{m}$ )、PTFE メンブレンフィルタ (0.3  $\mu\text{m}$ ) によりエアロゾル粒子状の試料を捕集する。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  $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ ) 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 の位置に白金製のつぼに入れて装荷した。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)、雰囲気露点を 60°C の水蒸気を含む流量が異なるアルゴン (Ar) ガスフロー (2 L/min) 雰囲気下として加熱実験を行い、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。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 13 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。また、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の影響を評価するため、上記の加熱実験 (CsI+MoO<sub>3</sub> 実験) の他、ヨウ化セシウム粉末のみを白金製のつぼに装荷し、その他を同条件とした加熱実験 (CsI 実験) を実施した。

加熱後、白金製のつぼ、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 mm<sup>2</sup>) 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 $\alpha$  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 実験及び CsI+MoO<sub>3</sub> 実験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 (< 0 mm) で高温になるほど大きくなり、CsI 実験に比べて CsI+MoO<sub>3</sub> 実験の方が大きくなった。1000 K 以下 (> 0 mm) の重量変化は、CsI 実験においては、750 ~ 900 K (250 ~ 550 mm) 付近でピークを示し、焼結金属フィルタで大

きくなった。一方、CsI+MoO<sub>3</sub>実験においては、温度勾配管での重量変化は小さく、焼結金属フィルタでもCsI実験に比べて小さくなった。

## (2) サンプル管、焼結金属フィルタ等への付着物中の元素量

CsI実験及びCsI+MoO<sub>3</sub>実験においてICP-MS分析により取得したサンプル管及び焼結金属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実験においては、約1100 K (-50 mm)及び750~900 K (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。約1100 K (-50 mm)の結果に関しては、(1)で示す重量変化で1000 K以上で増加しているものの、(3)で示すX線回折測定結果にてこれらを含む化合物が検出されていないことから、重量変化はSSの酸化に起因するものであり、得られたセシウムとヨウ素の元素量はICP-MS測定におけるコンタミネーションにより生じた可能性が考えられる。CsI+MoO<sub>3</sub>実験においては、CsI実験で見られた750~900 K (250~550 mm)付近におけるセシウム、ヨウ素の沈着はなく、750 K以下(550 mm~)において微量の沈着が見られ、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。一方、モリブデンは1000 K以上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。このことから、(1)で観察されたCsI実験に比べて大きくなった1000 K以上での重量増加は、モリブデンの沈着が影響している可能性が考えられる。

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つぼ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実験では、セシウムとヨウ素の分布はほぼ同じであり、温度勾配管内のサンプル管への分布が多い一方で、焼結金属フィルタ等からガス捕集瓶までの配管内でも付着がみられた。CsI+MoO<sub>3</sub>実験においては、セシウム、ヨウ素ともに温度勾配管のサンプル管への分布は減り、ガス捕集瓶までの配管内での分布が増加し、特にヨウ素の割合が約0.77と高い値を示した。またモリブデンについては、電気抵抗炉のサンプル管に多量に分布した。

## (3) サンプル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実験及びCsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>実験において、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ル管への沈着物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及び図3.10に示す。CsI実験においては、1100 K (-80 mm)でSS表面が大きく変質しているのが観察されたが、セシウムとヨウ素の分布は観察されなかった。840 K (370 mm)ではセシウム及びヨウ素を含む数10 µmの沈着物が見られた。700 K (650 mm)、400 K (1250 mm)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、400 K (1250 mm)では粒径が大きくなったものも見られた。これらの様相は、平成29年度に実施したCsI実験の結果と同様に、840 K (370 mm)では、ヨウ化セシウム蒸気種のSSへの凝縮、400 K (1250 mm)においては、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。CsI+MoO<sub>3</sub>実験においては、1100 K (-80 mm) で塊状のモリブデンを含む沈着物が見られた。840 K (370 mm) ではCsI実験のようにセシウム、ヨウ素を含む沈着物は見られず、モリブデンを含む層状の沈着物のみが見られた。700 K (650 mm) では、セシウム及びヨウ素を含む 10 μm 程度の沈着物が見られ、微細なモリブデンを含む沈着物も見られた。400 K (1250 mm) では 1 μm 以下の微細なセシウム、ヨウ素、モリブデンの沈着物が見られ、CsI実験のような球状のエアロゾル粒子は見られなかった。これらの様相は、1100 K (-80 mm) ではモリブデン酸化物のエアロゾル粒子の沈着、840 K (370 mm) ではモリブデン酸化物と SS との反応生成物、700 K (650 mm) では、ヨウ化セシウム蒸気種の SS への凝縮、可能性として凝縮物と酸化モリブデンの反応生成物、400 K (1250 mm) ではヨウ化セシウム、酸化モリブデンの微細な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。

CsI実験及びCsI+MoO<sub>3</sub>実験において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 3.11 及び図 3.12 に示す。CsI実験においては、サンプリング管材料であるSSに起因するピークの外、1000 K (50 mm) 以上で酸化鉄 (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) に起因するピークが得られた。また、840 K (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<sub>3</sub>実験においては、サンプリング管材料であるSSに起因するピークの外、1000 K (50 mm) 以上では酸化鉄に起因するピーク、1100 K (-80 mm) では二酸化モリブデン (MoO<sub>2</sub>) 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、700 K (650 mm) でヨウ化セシウムに起因するピークが見られた。

CsI実験及びCsI+MoO<sub>3</sub>実験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 3.13 及び図 3.14 に示す。CsI実験においては、840 K (370 mm) で、サンプリング管材料であるSSに起因するピークの外、ヨウ化セシウムに起因するピーク、さらにクロム酸セシウム (Cs<sub>2</sub>CrO<sub>4</sub>) に起因するピークが得られた。尚、クロム酸セシウムは既往研究における同様の実験においてもその生成が見られており[3.3]、沈着したヨウ化セシウムがSSと反応し、ガス状ヨウ素が生成した可能性を示している。400 K (1250 mm) では、ヨウ化セシウムに起因するピークが得られた。CsI+MoO<sub>3</sub>実験においては、1100 K (-80 mm) で酸化モリブデンに起因するピークが得られた。一方、セシウム、ヨウ素とモリブデンが共存して沈着していることが観察された700 K (650 mm) では、ヨウ化セシウム、酸化モリブデンの外、二モリブデン酸セシウムに起因する可能性のあるピークが得られた。400 K (1250 mm) では、ヨウ化セシウムに起因するピークが得られた。

### 3.3.3 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。ヨウ化セシウムのみを用いた加熱実験・化学分析結果と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の影響に関する以下の知見を得た。

CsI 実験の結果より、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下流側に移行して沈着した。一方、CsI+MoO<sub>3</sub> 実験の結果より、モリブデンの影響として以下の違いが見られた。

- ① セシウム、ヨウ素の SS への凝縮温度が低くなっている。このことは、温度勾配管内を移行中に蒸気種の化学反応により揮発性の高いセシウム、ヨウ素の化合物が生成した、もしくはヨウ化セシウムの蒸気種濃度が低下した可能性を示している。
- ② メンブレンフィルタ (0.3 μm) を通過したセシウム、ヨウ素量が非常に多くなり、特にヨウ素量が多くなった。このことは、温度勾配管内を移行中に蒸気種の化学反応によりセシウム、ヨウ素が化学反応により揮発性の高い化合物が生成した、もしくは非常に微細なエアロゾル粒子を形成して移行した可能性が考えられる。

①及び②が生じた要因と考えられる化学反応を検討するため、Thermo-Calc ソフトウェアを用いて SGTE データベースにより本実験で想定される条件にて化学平衡計算を実施した。CsI+MoO<sub>3</sub> 実験条件での計算結果を図 3.15 に示す。電気抵抗炉の最高温度である約 1273 K においては、モリブデンは主に二酸化モリブデン凝縮相、セシウムはヨウ化セシウム蒸気種と少量のモリブデン酸セシウム蒸気種、ヨウ素はヨウ化セシウム蒸気種その他、ガス状ヨウ素 (I, HI) が安定相となった。温度低下とともにモリブデン酸セシウム蒸気種濃度は低くなり、約 1150 K 以下で凝縮相が安定となった。また、ヨウ化セシウム蒸気種は約 850 K 以下で凝縮相が安定となった。

化学平衡計算では、高温領域で二酸化モリブデンの沈着物が見られており、化学分析結果と良く一致する。一方で、①の SS への凝縮温度という観点では、化学平衡計算ではモリブデン酸セシウムとヨウ化セシウムがそれぞれ約 1150 K と約 800 K で凝縮する結果となっており、凝縮温度は実験結果とは大きく異なる。このことから、①の要因、また②のセシウムに関する要因として、化学反応により揮発性の化合物が生成した可能性は考えにくい。一方、②のヨウ素に関する要因としては、化学平衡計算ではガス状ヨウ素が生成されており、また化学分析結果により揮発性の高いヨウ素化合物と二モリブデン酸セシウムが生成した可能性が示されていることから、例えば、以下の式で示されるような反応が生じたことが考えられる。



以上のことから、揮発性の高いヨウ素化合物の生成以外は、①及び②は化学反応に起因したものではない可能性が考えられる。図 3.16 にメンブレンフィルタに捕集された浮遊エアロゾル粒子の二次電子像及び元素分布を示す。1 μm 以下の微細なエアロゾル粒子が生成されており、本装置での解像度において、セシウム、ヨウ素、モリブデンが共存している箇所も観察されている。このことから、例えば、二酸化モリブデンのクラスターが多量に

生成し、そのクラスターにヨウ化セシウムが凝縮するようなことが生じたため、SS配管の方に有意量が沈着しなかったこと等のメカニズムが考えられる。

以上の結果より、モリブデンの影響により、揮発性の高いヨウ素化合物、及び、セシウム及びヨウ素を含む微細なエアロゾル粒子が生成し、より下流側に移行しやすくなることが分かった。これらの挙動は、モリブデン濃度（セシウムに対する割合）[3.5]や雰囲気により影響を受けることが考えられるため、これらをパラメータとし、さらに微細なエアロゾル粒子等も捕集して分析する等により化学形態や移行挙動に関するデータの蓄積が必要であると考えられる。

#### 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 MoO<sub>3</sub> vapours in flowing steam, *Nuclear Engineering and Design* 263 (2013) 462–472.

表 3.1 水蒸気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 <sub>3</sub> 実験	CsI 実験
試料	化合物 装荷重量 (g)	CsI 1.3 MoO <sub>3</sub> 1.3	CsI 1.3
	試料装荷位置：温度勾配管 からの距離 (mm)	CsI : 226、MoO <sub>3</sub> : 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 <sub>3</sub> : 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	
	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 Mo/Cs : 実験結果からの推定値	CsI : $1.7 \times 10^{-7}$ MoO <sub>3</sub> : $3.3 \times 10^{-7}$ 1.9	CsI : $1.1 \times 10^{-7}$ —
	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 <sub>3</sub> 実験	CsI 実験	
Cs	サンプリング管 (電気抵抗炉)	0.02	0.15
	サンプリング管 (温度勾配管)	0.21	0.50
	焼結金属フィルタ等	0.05	0.00
	配管内	0.44	0.05
	ガス捕集瓶	0.00	0.00
I	サンプリング管 (電気抵抗炉)	0.00	0.15
	サンプリング管 (温度勾配管)	0.17	0.50
	焼結金属フィルタ等	0.03	0.00
	配管内	0.77	0.06
	ガス捕集瓶	0.00	0.00
Mo	サンプリング管 (電気抵抗炉)	0.56	—
	サンプリング管 (温度勾配管)	0.11	—
	焼結金属フィルタ等	0.05	—
	配管内	0.08	—
	ガス捕集瓶	0.00	—

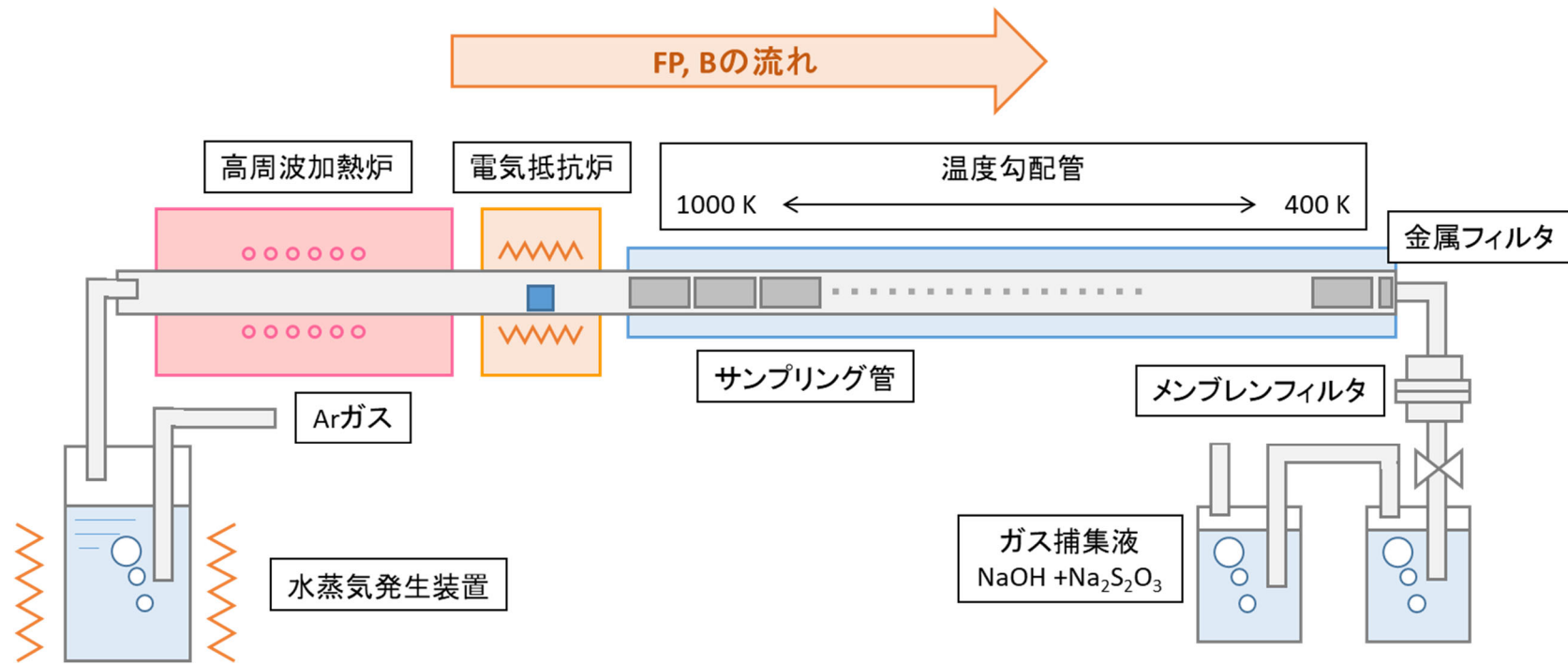


図 3.1 FP 放出移行挙動再現実験装置 (TeRRa) 模式図

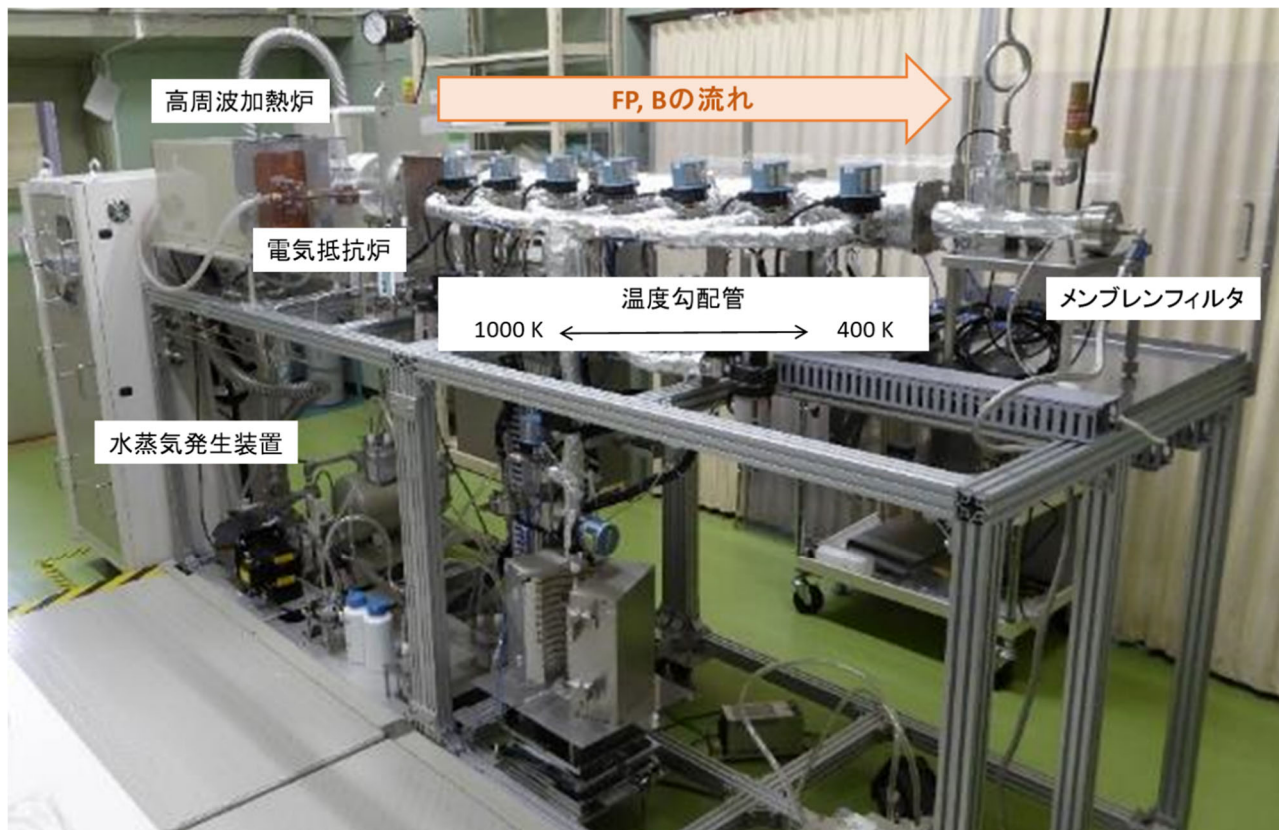


図 3.2 FP 放出移行挙動再現実験装置 (TeRRa) 外観写真

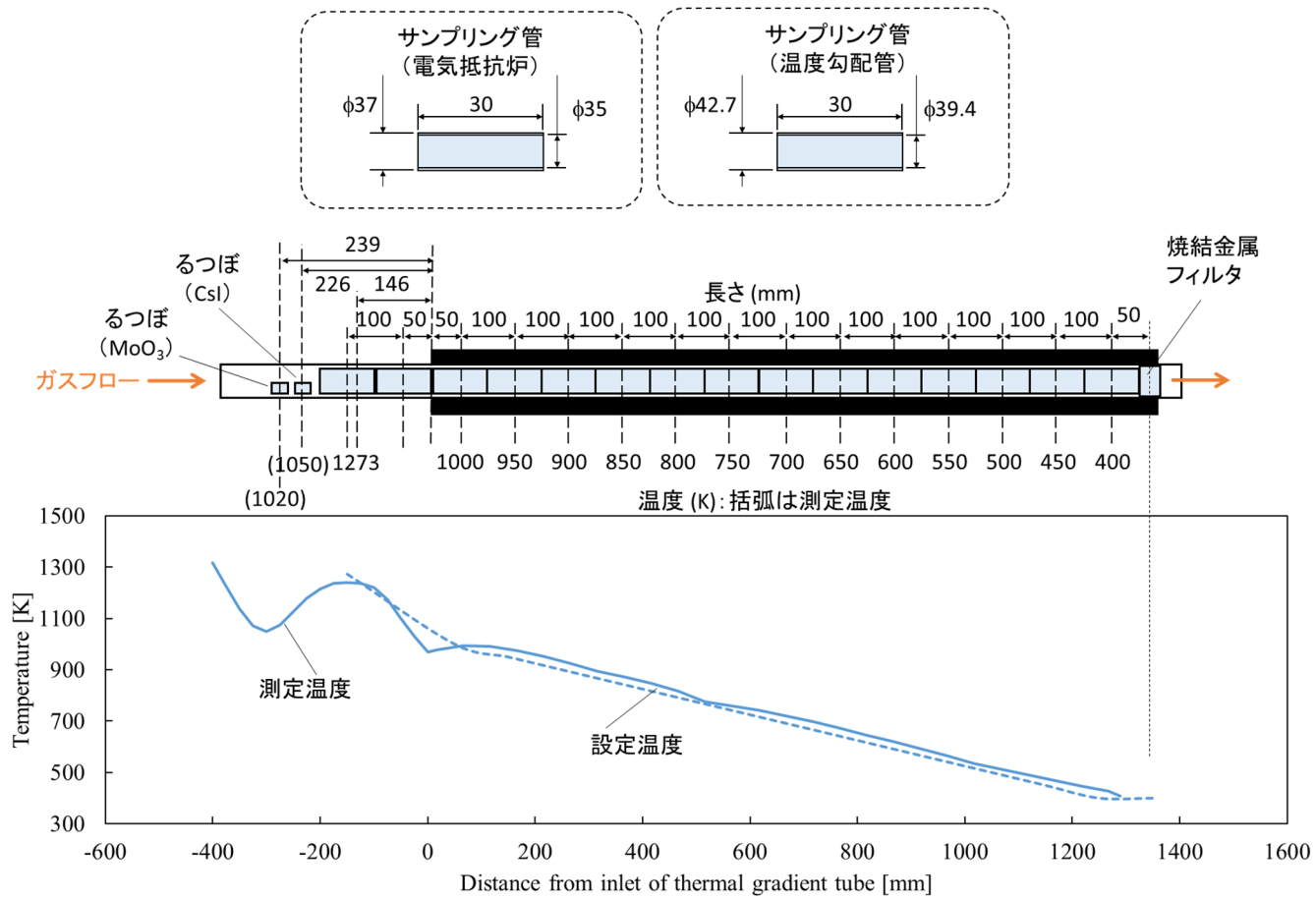


図 3.3 水蒸気雰囲気におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の高温化学反応を想定した加熱実験の加熱体系

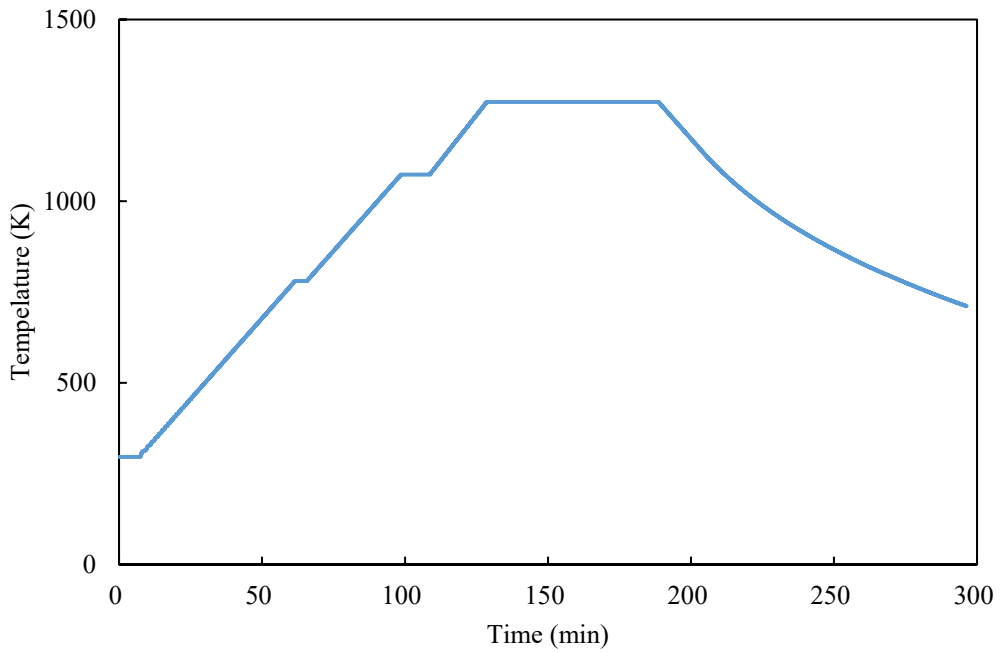


図 3.4 水蒸気雰囲気におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン素蒸気種の高温化学反応を想定した加熱実験における電気抵抗炉の加熱温度履歴

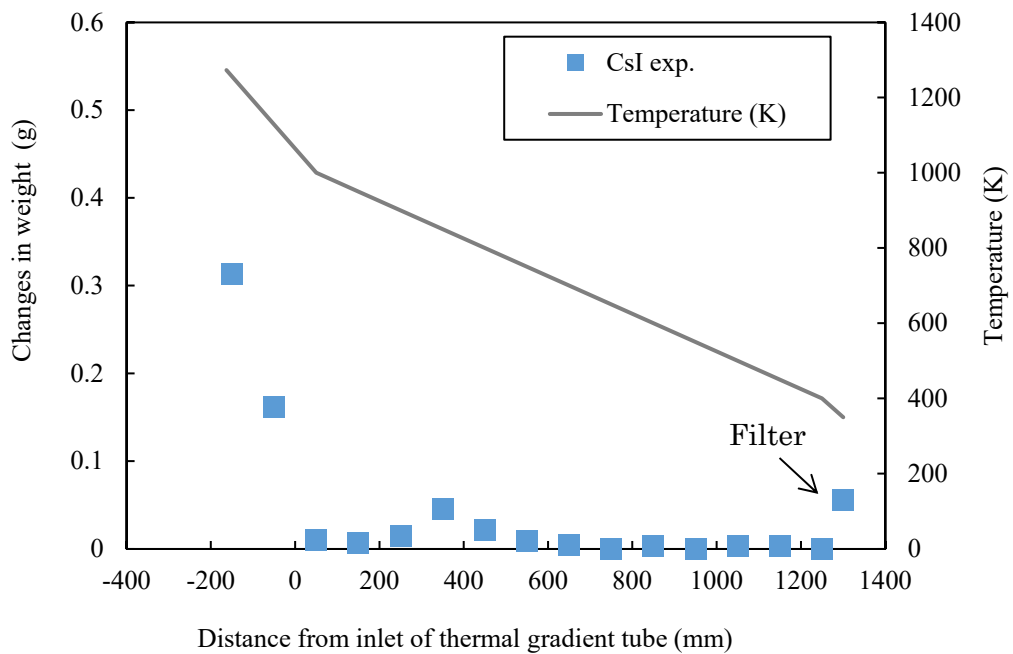


図 3.5 CsI 実験におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化 (変動係数 CV 値 : 0.04%)



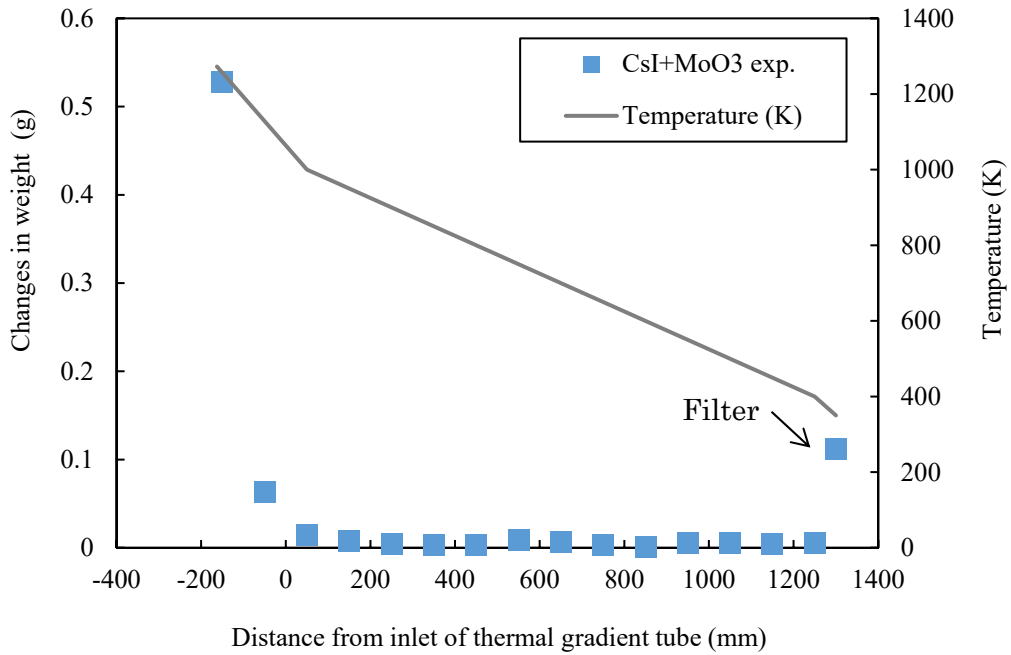


図 3.6 CsI+MoO<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化（変動係数 CV 値：0.04%）

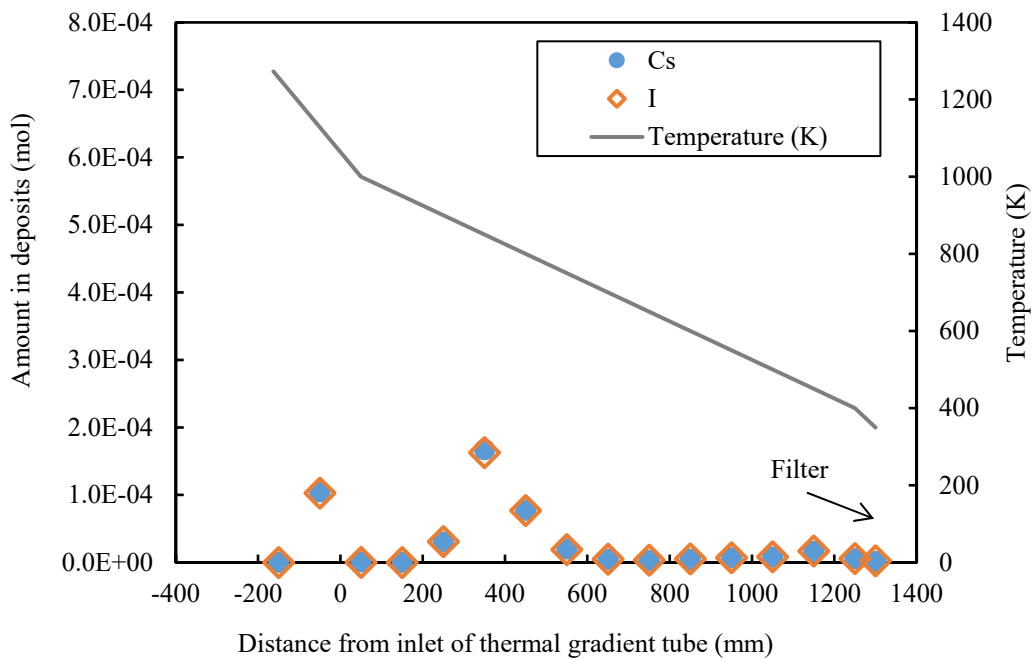


図 3.7 CsI 実験におけるサンプリング管等への沈着物中のセシウム及びヨウ素元素量（変動計数 CV 値：Cs-133 0.7%、I-127 2.2%、Mo-95 1.8%）

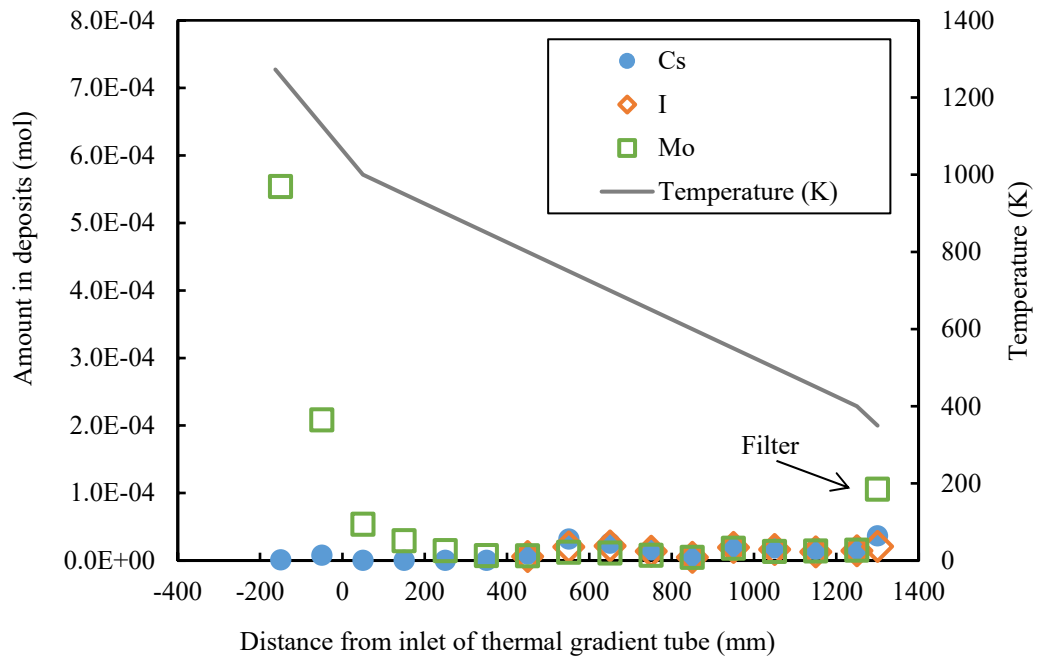


図 3.8 CsI+MoO<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管等への沈着物中のセシウム、ヨウ素及びモリブデン元素量 (変動計数 CV 値 : Cs-133 0.7%、I-127 2.2%、Mo-95 1.8%)

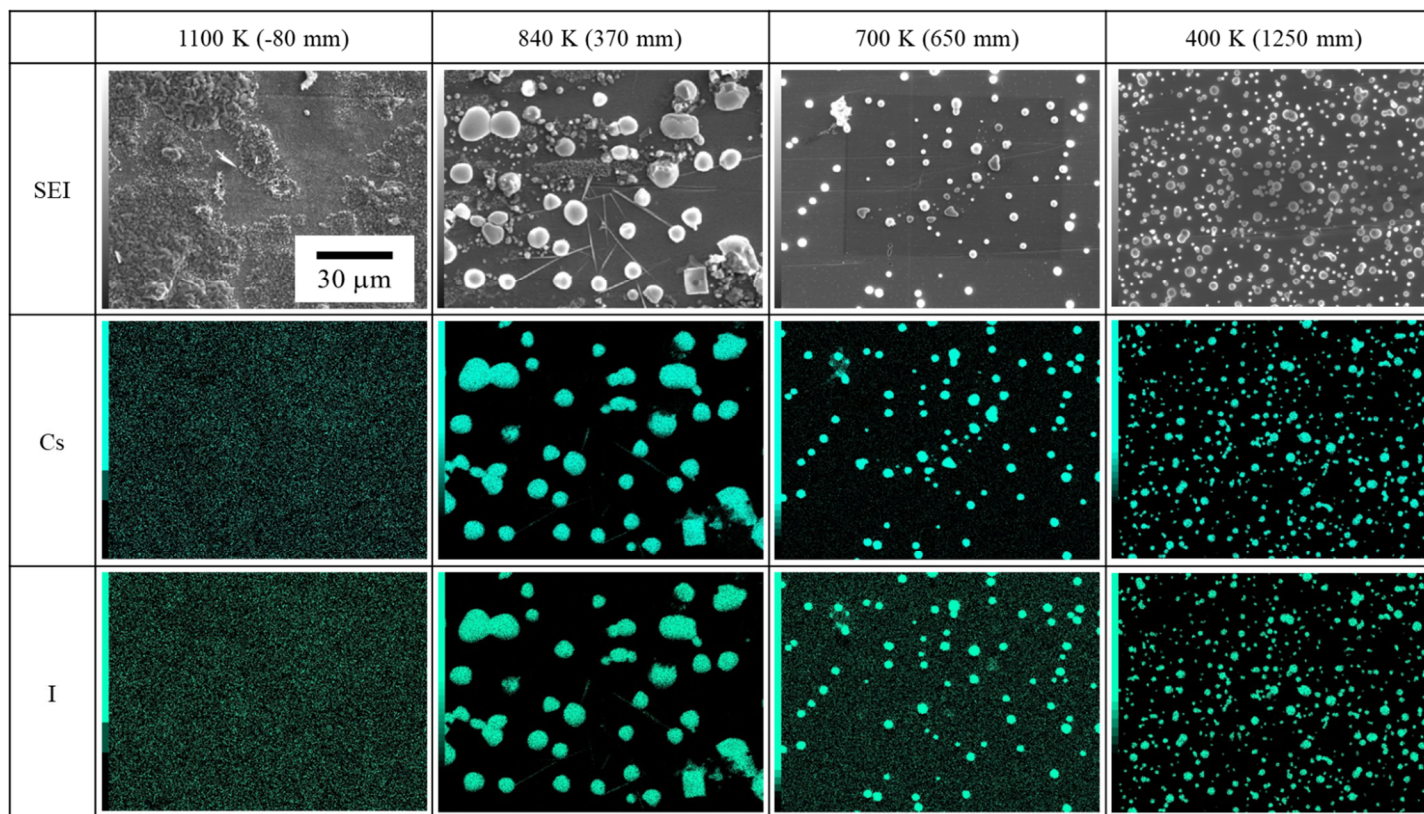


図 3.9 CsI 実験におけるサンプリング管沈着物の二次電子像及びセシウム、ヨウ素の分布

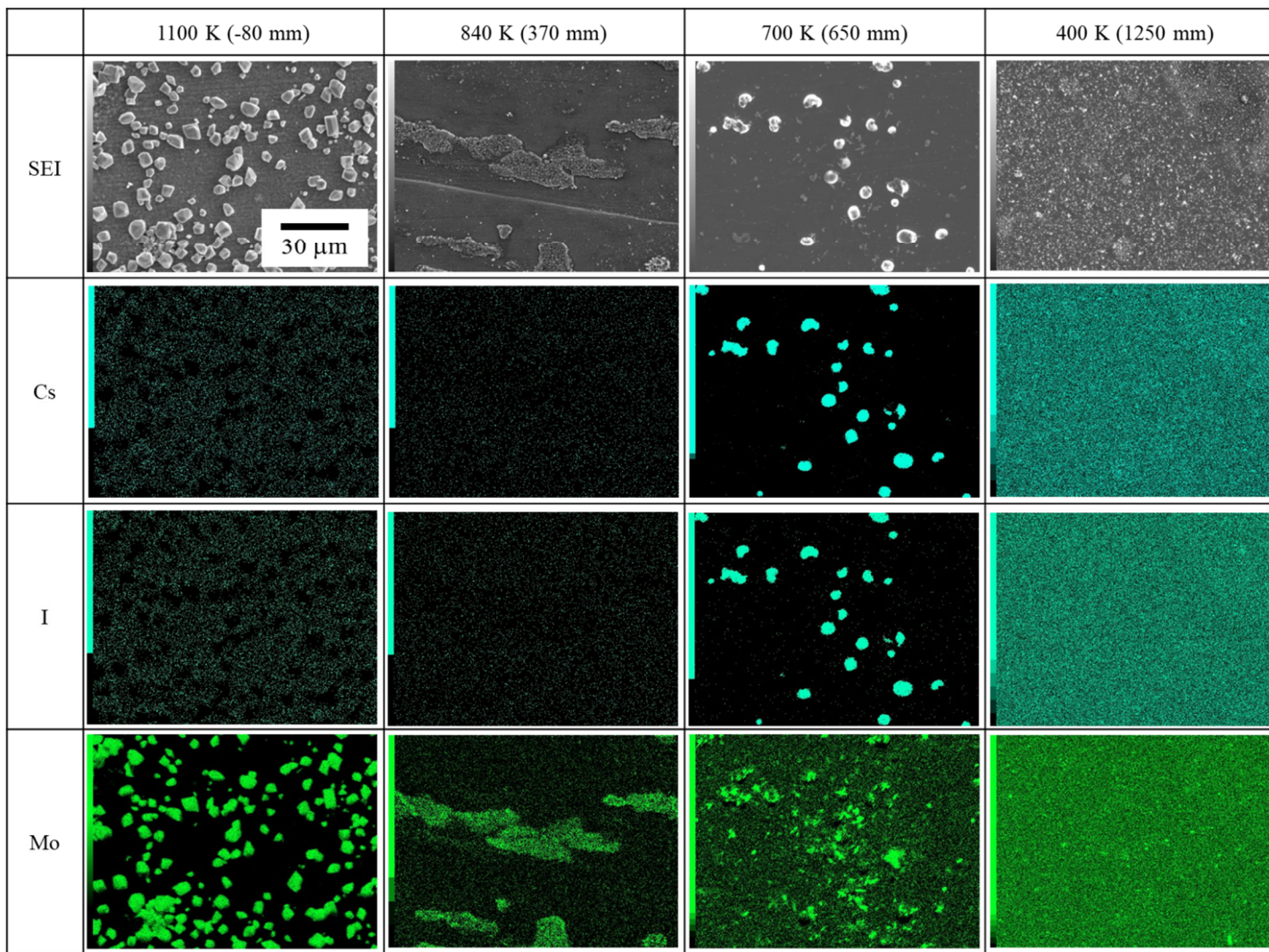


図 3.10 CsI+MoO<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物の二次電子像及びセシウム、ヨウ素、モリブデンの分布

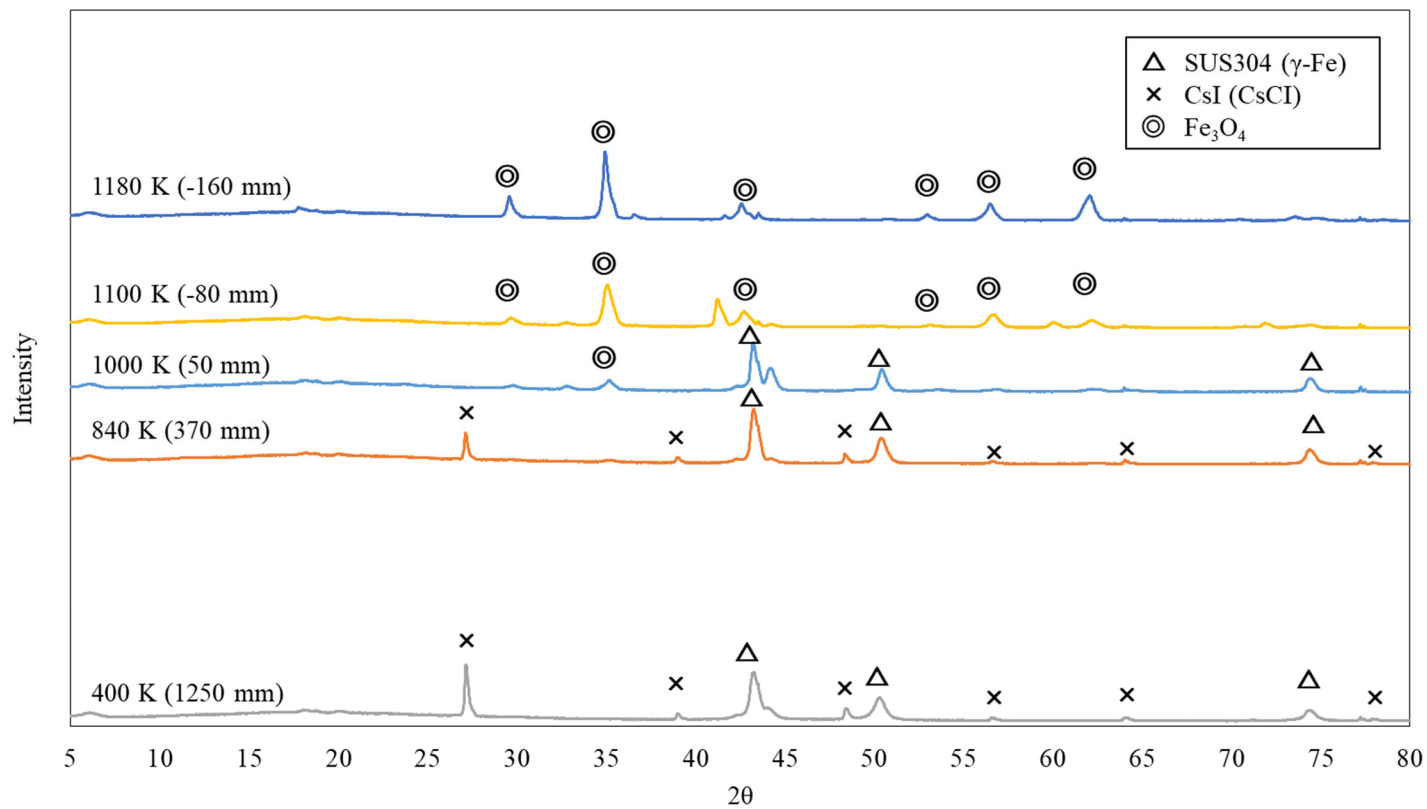


図 3.11 CsI 実験におけるサンプリング管沈着物の X 線回折ピーク

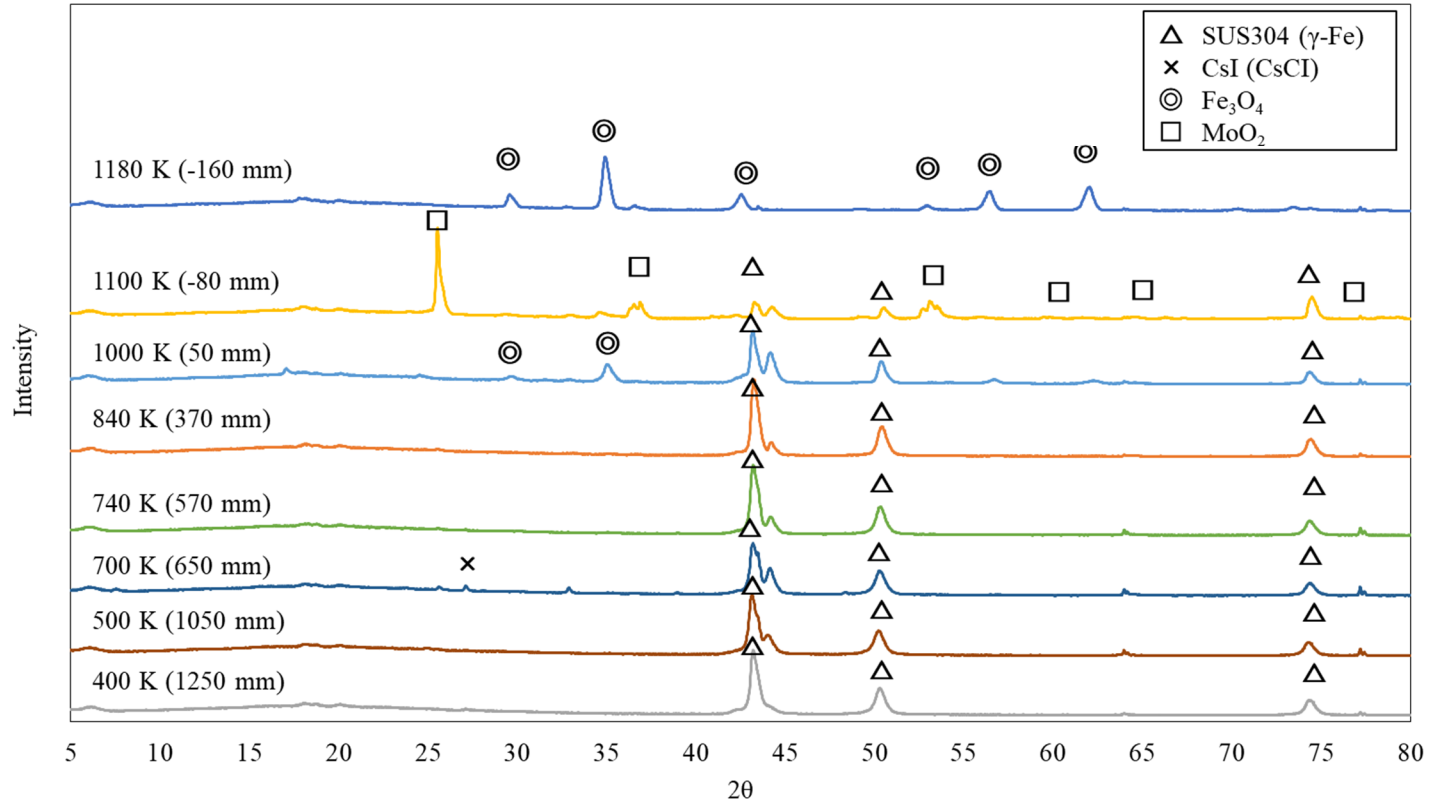


図 3.12 CsI+MoO<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物の X 線回折ピーク

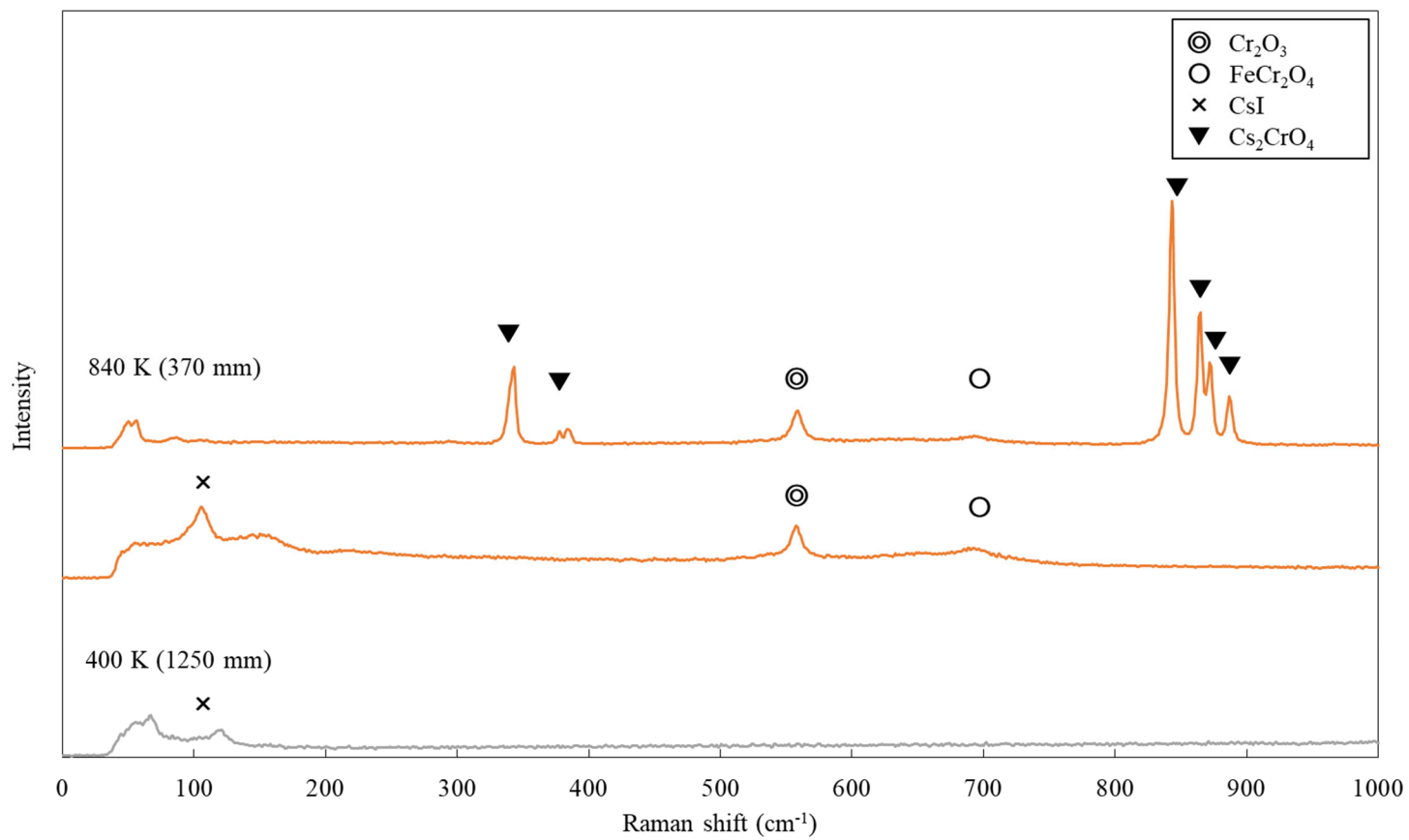


図 3.13 CsI 実験におけるサンプリング管沈着物のラマンスペクトルピーク

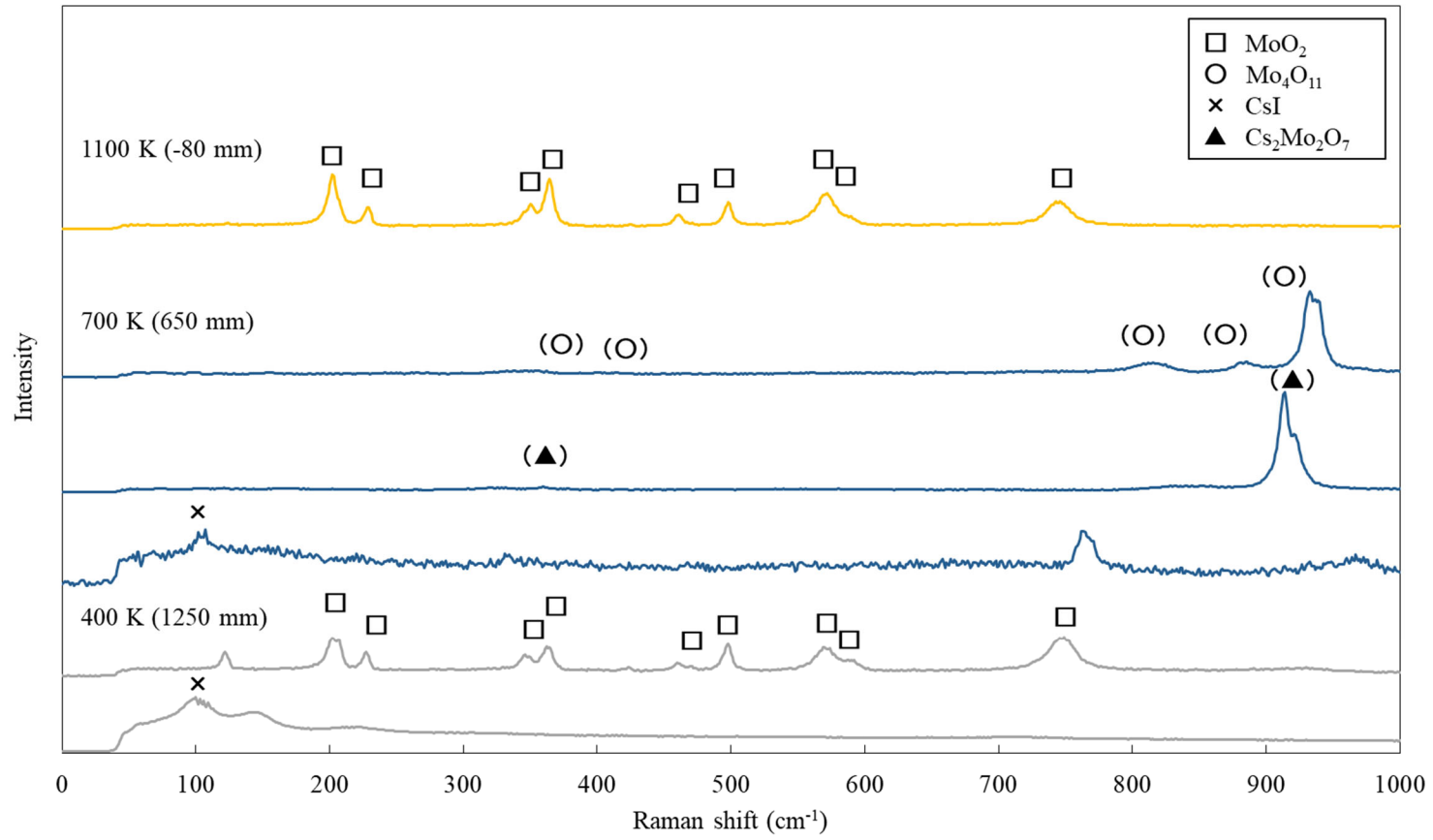


図 3.14 CsI+ $\text{MoO}_3$  実験におけるサンプリング管沈着物のラマンスペクトルピーク



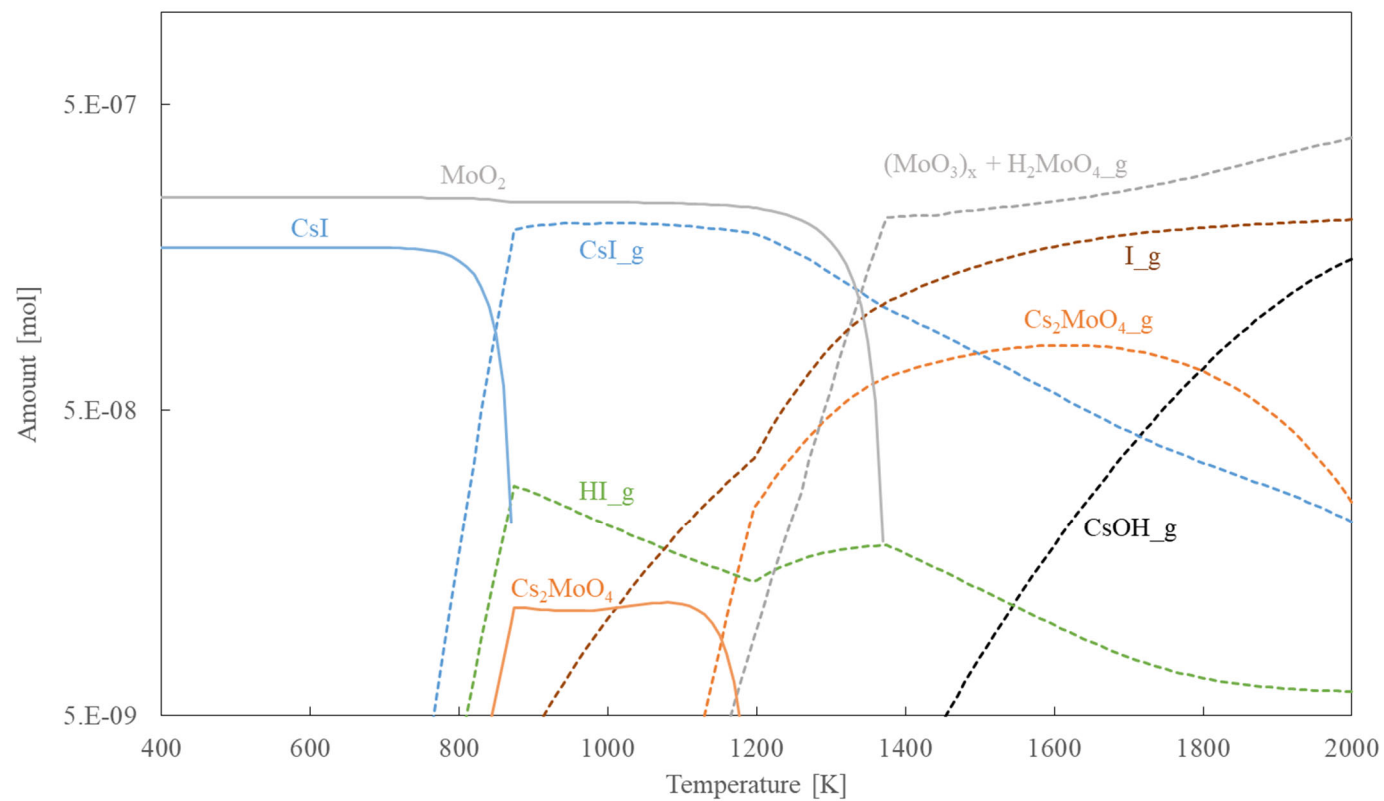


図 3.15 CsI+MoO<sub>3</sub> 実験条件における化学平衡計算結果

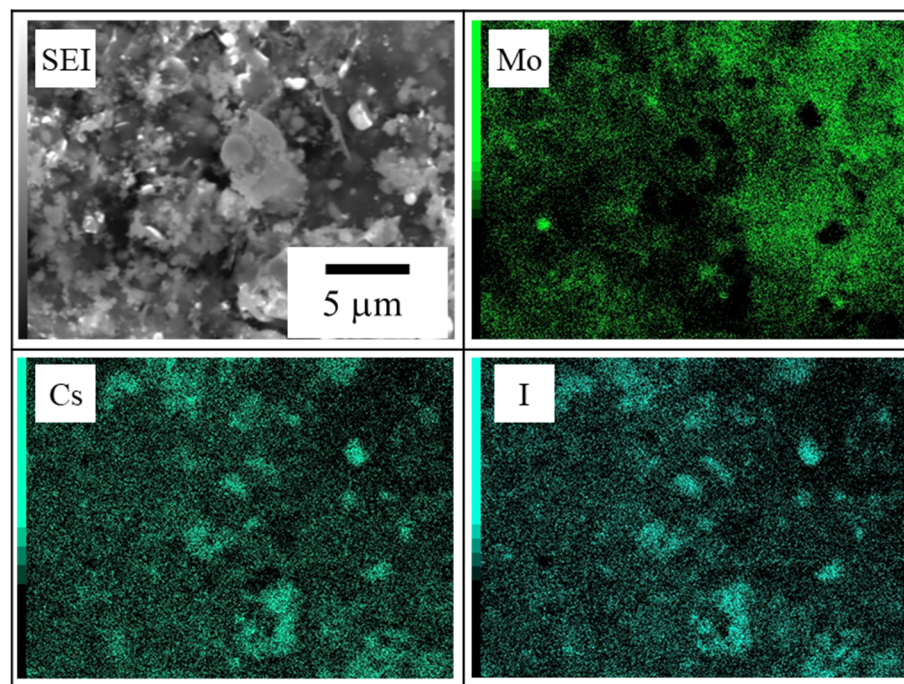


図 3.16 CsI+MoO<sub>3</sub> 実験におけるメンブレンフィルタで捕集した浮遊物の二次電子像及びセシウム、ヨウ素、モリブデンの分布

#### 4. 化学挙動を考慮したソースターム評価の検討

##### 4.1 シビアアクシデント総合解析コードへの FP 化学形予測機能の追加

###### 4.1.1 THALES2/KICHE への FP 化学形予測モデルの導入

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、 $B_4C$  制御材を有する沸騰水型原子炉 (BWR) プラントでは、ヨウ素及びセシウムの化学種として、従来、想定してきた CsI や CsOH とは異なる化学形で移行する可能性がある。それ故、原子力機構では、これまでに、図 4.1.1 に示すように本事業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) の化学形を予測するモデルを構築するとともに、同モデルを総合的なシビアアクシデント解析コード THALES2/KICHE [4.1 - 4.2] に導入・整備している。そこで、同コードを用いた BWR プラントのソースターム評価を実施し、原子炉冷却系内の FP 化学がヨウ素及びセシウム化学種の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。

なお、本章では 4.1.2 及び 4.1.3 項で THALES2/KICHE に導入している FP 化学種平衡組成予測モデルの概要とその一般的傾向を説明した後、4.2 節の BWR 実機ソースターム解析結果について示す。

###### 4.1.2 FP 化学種平衡組成予測モデル[4-3, 4-4]

シビアアクシデント総合解析コードで原子炉冷却系内 FP 化学を考慮する方法として、化学平衡組成計算コードを総合コードに直接組み込む方法が考えられる。しかしながら、本事業で化学平衡組成計算コードとして当初使用した VICTORIA [4.3] は、著作権上の理由から直接 THALES2 に導入することが出来なかったため、VICTORIA 解析で作成したデータベースに基づいて代替統計モデルを構築し、これを THALES2 コードに導入する方法を採用した。その後、化学組成評価コード CHEMKEq [4.4] を原子力機構で開発したことにより THALES2 コードに直接 FP 化学モデルを組み込むことが可能になったが、不確かさ解析や感度解析への適用を見越した場合に計算時間の短縮を図ることが望ましいという点を考慮し、代替統計モデル (データベースと K 近傍法を利用した手法) を用いるアプローチも継続している [4.5-4-6]。また、計算精度と計算時間を両立させるために CHEMKEq と代替統計モデルのハイブリットモデルの開発も検討している。

原子力機構が開発を進める化学組成評価コード CHEMKEq は、熱化学平衡論及び反応速度論の部分混合モデルを備えているが、現時点において反応速度論モデルは未だ開発途上である。CHEMKEq を THALES2 コードに導入するにあたり、シビアアクシデントで特に重要と考えられる対象元素と化学種に限定してインターフェースを構築している (表 4.1.1)。また、THALES2 コード内に導入した CHEMKEq は、THALES2 にて計算される対象領域内の元素濃度、雰囲気組成、温度に基づき、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を計算する。同コードの一般的な傾向について、4.1.3 項に示す。

#### 4.1.3 FP 化学種平衡組成予測モデルの傾向

CHEMKEqコードを利用したFP化学種平衡組成予測モデルの傾向を示すために、表4.1.2に示す条件で解析を実施した[4-6]。元素濃度や雰囲気条件など基本的な解析条件は、THALES2の全交流電源喪失TBシーケンスの結果を参考に設定した。また、ヨウ素及びセシウム化学種の平衡組成はホウ素濃度によって傾向が異なることから、解析ケースとしてホウ素あり、なしの2ケースを実施した。同計算では、CsI、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>、CsBO<sub>2</sub>などのFP化学種平衡組成予測モデルで採用した主要な化学種以外にもCs<sub>2</sub>I<sub>2</sub> (g)、単体Cs (g) など多数の化学種を扱っている。

存在割合1%以上の化学種（表4.1.3参照）に対し、500～2500 Kの温度域での化学種平衡組成の温度依存性を図4.1.2に整理した。なお、化学種の組成比は、表4.1.3に示すように固相(s)とガス相(g)を集計して算出している。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。高温においては、ホウ素が存在する場合、CsIとホウ素が化学反応し、CsBO<sub>2</sub>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Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>、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CsBO<sub>2</sub>となる傾向が示された。

#### 4.2 BWR 実機ソースターム解析

THALES2 コードを用いた本実機ソースターム解析では、原子炉が BWR4 で格納容器が Mark-I 型(以下、BWR4/Mark-I と記す)及び BWR5/Mark-II (4.2.1 節参照)、並びに BWR5/Mark-II 改良型を対象としたソースターム解析を実施した(4.2.2 節参照)。解析の対象としたプラントの仕様及び体系を表 4.2.1 及び図 4.2.1 に示す。ここで BWR4/Mark-I、BWR5/Mark-II、BWR5/Mark-II 改良型は、それぞれ、福島第一 2 及び 3 号機、東海第二及び柏崎刈羽 1 号機、柏崎刈羽 2～5 号機の型式に対応するが、詳細仕様は対応していないため、本解析の結果はこれらのプラントに対する評価値を与えるものではない。なお、格納容器型式における Mark-I と Mark-II の大きな違いは、Mark-I 型のウェットウエルがドーナツ状であるのに対し、Mark-II 型はドライウエル床下の全面にウェットウエルが存在する点である。また、Mark-II に対して、Mark-II 改良型ではドライウエル体積が 1.6 倍程度拡張されている。これらの解析結果を以下に示す。

なお本解析に使用した THALES2 コードは、昨年度以降に原子力機構にて実施した軽微な不具合の修正を反映させたものを使用している。

##### 4.2.1 代表事故シナリオに対する化学挙動を考慮したソースターム解析

THALES2/KICHE に導入した FP 化学平衡組成予測モデルを使用し、BWR4/Mark-I 及び BWR5/Mark-II に対する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 FP 挙動

への影響について検討した。解析シナリオを表 4.2.2 に示す。解析の対象とする事故シナリオとして、2つの炉心損傷事故シーケンスのそれぞれについて2通りの格納容器機能喪失シナリオを選定し、計4ケースを選定した。

炉心損傷事故シーケンスとして、全交流電源喪失(TB)と炉心冷却機能喪失(TQUV)の2つを選定した。解析の対象とした事故シナリオの概要を表 4.2.3 に示す。TB シーケンスは、原子炉が高圧状態で炉心損傷が進展するのに対して、TQUV シーケンスは原子炉が低圧状態で炉心損傷が進展する。これにより、原子炉冷却系内の雰囲気条件が大きく異なり、原子炉冷却系内の FP 化学への影響を確認できる。

格納容器機能喪失シナリオとしては、格納容器過圧破損と格納容器ベント作動のケースの2つを選定した。この2つは、環境への移行経路としてドライウェル経由又はウェットウェル経由で移行するなど、移行経路が異なる影響を検討するために選定した。これら4つの事故シナリオに対して、原子炉冷却系内 FP 化学の考慮の有無を想定し、合計8ケース実施した。なお、解析対象とする事故シナリオについては BWR5/Mark-II も同様である。

事故進展及び FP 挙動に関わる解析条件を表 4.2.4 及び表 4.2.5 に示す。格納容器破損圧として設計圧の2倍、設計圧が低い BWR5/Mark-II では設計圧の2.5倍を想定した。格納容器破損又は格納容器ベントの位置は、過圧破損ケースではドライウェル気相部、格納容器ベントケースではウェットウェル気相部とし、サイズは共に  $0.01 \text{ m}^2$  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。

FP 移行挙動に関わる解析条件は、燃料からの放出速度について CORSOR-M モデルを利用した。原子炉冷却系内 FP 化学の考慮の有無の解析ケースとして、FP 化学モデルを導入していない“改良前”の解析ケースでは、放出された全てのヨウ素は Cs と結合し CsI となり、残りの Cs は全て CsOH になると仮定し、その後の化学変化による組成の変化はないものとした。原子炉冷却系内 FP 化学を考慮する“改良後”ケースでは、原子炉冷却系内の全てのボリュームに対して、FP 化学平衡組成予測モデルを適用し、燃料から放出後の FP の化学変化を考慮した。また、両解析で共通するパラメータとして、 $\text{I}_2$  及び有機ヨウ素の総括的な物質伝達係数として  $1.0 \times 10^{-4} \text{ m/s}$  を設定した。

まず、解析結果例として、BWR4/Mark-I に対する事故の進展、RCS 内 FP 化学による格納容器移行化学種への影響、格納容器 pH への影響、RCS 内 FP 化学によるソースタームへの影響について(1)から(4)で記載し、炉型(BWR4/Mark-I と BWR5/Mark-II)の違いを(5)で述べる。

#### (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。BWR4/Mark-I プラントの熱水力挙動の例として、原子炉圧力及び原子炉水位を図 4.2.2 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: ペデスタル破損(Mark-II プラントのみ)、⑤: 格納容器破損)の発生時刻を示

している。イベント時刻及び事象進展の概要は、表 4.2.6 及び表 4.2.3 を参照のこと。

### (2) RCS 内 FP 化学による格納容器への移行化学種への影響

燃料から放出されたヨウ素及びセシウムは、RCS 内の雰囲気条件に基づく FP 化学によって化学変化し、その一部は原子炉冷却系内に沈着するが、大半は逃し弁経由で格納容器に移行する。RCS 内 FP 化学による格納容器への移行化学種への影響を図 4.2.3 に示す。本図には、TB 及び TQUV シーケンスの圧力容器破損時点における(a)ヨウ素と(b)セシウム化学種の格納容器への移行化学種の相違を、初期炉内内蔵量に対する割合で示した。“改良前”が RCS 内 FP 化学を考慮しないケース、“改良後”が考慮したケースの結果となっている。炉心損傷事故シーケンスの違いによる影響として、原子炉減圧操作を実施する TQUV の方が、実施しない TB よりも格納容器への移行割合は多くなり、TQUV では燃料から放出されヨウ素の 90%以上の量が格納容器に移行する。また、原子炉減圧操作を実施することで、蒸気ドームなど炉心より下流側ボリュームでの温度が高温とならないことで、RCS 内 FP 化学を考慮したケースでも HI への化学変化が抑えられている(図 4.1.2 ヨウ素及びセシウム化学種の温度依存性を参照)。また、TB シーケンスでは、RCS 内 FP 化学を考慮することにより、CsI に加えて、ガス状ヨウ素 HI への置換が促進され、格納容器への移行が増加している。ここで、HI は、蒸気圧が高く（沸点：-35.5°C，融点：-50.8°C）、還元力が強く、強酸、水に極めて溶解しやすい性質を有する。RCS 内 FP 化学を考慮した場合、移行するヨウ素の一部は HI であるため、その一部が RCS 内液相に溶解し、格納容器へのヨウ素の移行量が減少した。セシウム化学種については、FP 化学なしでは CsOH として移行するのに対し、RCS 内 FP 化学の考慮した場合は、1000K 以下で比較的安定な Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> 化学種の割合が増加した。また、格納容器へのセシウムの総移行量については、RCS 内 FP 化学による影響は殆どなく限定的である。

### (3) RCS 内 FP 化学による格納容器 pH への影響

格納容器 pH への影響を図 4.2.4 に示した。TB シーケンスで炉心損傷前までに pH が低下するのは、RCIC 継続により W/W の水温上昇が関わる。常温では pH=7 が中性だが、温度が上昇すると水のイオン積が増加し、中性である基準 pH 値が低下するためである。炉心損傷前の 12 時間程度で pH は 6 程度である。RCS 内 FP 化学を考慮しない場合は、強塩基性の CsOH として格納容器に移行するため pH は大幅に上昇するが、RCS 内 FP 化学を考慮すると、強酸 HI や弱塩基性の Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> での移行となるため CsOH と仮定した場合より pH が低下する。原子炉減圧操作を行う事故シーケンスでは、格納容器へのセシウムの移行が促進されるため、RCS 内 FP 化学の考慮の有無により pH の違いが大きい。

### (4) RCS 内 FP 化学によるソースタームへの影響

解析の対象とした 4 つの事故シナリオに対する(a)ヨウ素と(b)セシウム化学種の環境への移行割合を図 4.2.5 (縦軸が対数表示の積み上げ棒グラフ) で示した。“改良前”が RCS 内 FP 化学を考慮しないケース、“改良後”が考慮したケースの結果であり、炉心損傷事故シーケンスの違い及び環境までの移行経路の違いによるソースタームへの影響について検討した。まず、RCS 内 FP 化学の影響について示す前に、低温となる格納容器内において CsI や CsOH などエアロゾルとして挙動する化学種に対するソースタームの傾向について説明する。その後に RCS 内 FP 化学の影響について説明する。

原子炉隔離時冷却系 RCIC が作動する TB シーケンスは、格納容器への崩壊熱の移行が促進されることで、炉心注水系が作動しない TQUV シーケンスよりも早期に格納容器破損に至る。この際、プラント内 (特にドライウェル) に浮遊する CsI などエアロゾルが格納容器破損口から建屋を經由し環境に放出される。ドライウェルに移行した CsI などエアロゾルは、主に重力沈降により徐々に床に沈着する。この際、ドライウェル内での沈着期間 (圧力容器破損から格納容器破損までの間隔) が長いほど、床への沈着が促進される。それ故、CsI や CsOH など低温で主にエアロゾルとして振舞う FP は、ドライウェル内での沈着期間が短い TB の方が TQUV よりも環境への放出が促進される傾向がある。

次に、同一の事故シーケンスで移行経路の違いについて比較する。過圧破損ケースとベント作動ケースの環境までの移行経路の違いを図 4.2.6 に示した。ベント作動ケースでは、ドライウェル雰囲気中に浮遊している CsI などエアロゾルは、一旦、ウェットウェル液相を經由することで、プールスクラビング除去効果によって低減されるため、ドライウェル過圧破損ケースよりも環境への移行が抑制される傾向がある。

本傾向は、エアロゾルで挙動する FP は同様の傾向を示すが、分子状ヨウ素  $I_2$  などガス状ヨウ素は傾向が異なる。燃料から放出されたヨウ素は、逃し弁経路でウェットウェルに移行し、ウェットウェル液相中には大量のヨウ素が存在している。シビアアクシデント時の高放射線場において、ウェットウェル液相中のヨウ素の一部は  $I_2$  や有機ヨウ素(Org-I)などガス状ヨウ素に化学変化し、気液間移行により気相に再放出される。気液間移行量は、総括的な物質伝達係数と気液分配係数  $H$  (平衡時の気相と液相の濃度比  $H=C_{liq}/C_{gas}$ ) で決定され、平衡濃度に近づくように物質移行が進む。それ故、ベント作動ケースでは、ウェットウェル液相から放出された  $I_2$  は移行媒体である水蒸気と共に外部への移行が継続するので、ドライウェル過圧破損ケースよりもガス状ヨウ素の環境放出は増加する可能性がある。これは、TB に限らず、全ての事故シーケンスで同様である。

RCS 内 FP 化学によるソースタームへの影響について、最初にセシウム化学種から説明する。RCS 内 FP 化学を考慮した場合、低温で安定な化学形  $Cs_2MoO_4$  の化学種割合が増加した。このように蒸気圧が低い化学種に変化することで、原子炉建屋など移行経路での沈着が促進、環境放出も抑制される傾向はみられるが、その効果は限定的で大差はない。セシウム

化学種への影響としては、(3)で説明したように、格納容器内ヨウ素化学反応の影響因子の1つである pH を低下させる効果大きい。

ヨウ素のソースタームについては、格納容器へ移行するセシウム化学種が変化することで格納容器内 pH が低下することで、ガス状ヨウ素 I<sub>2</sub> の気相への再放出と環境への移行が促進される。I<sub>2</sub> の環境放出が促進される傾向は、過圧破損ケースよりもヨウ素を多く含むウェットウェル気相からの移行を想定した格納容器ベントケースで顕著となる。また、TQUV のように、格納容器 pH の低下幅が大きいシーケンスほど、I<sub>2</sub> のソースタームへの影響が大きくなる傾向がある。

#### (5) 格納容器形状の違いによるソースタームへの影響

Mark-I 及び Mark-II など格納容器形状の違いを図 4.2 に示す。Mark-I 型はウェットウェルがドーナツ型なのに対して、Mark-II ではドライウェル床の下にウェットウェルが存在する。格納容器自由空間体積は、BWR5/Mark-II の方が 1.3 倍程度と大きい。ここでは、格納容器形状の違いによるソースタームへの影響について述べる。

解析結果として、事故進展時刻、熱水力挙動の例、圧力容器破損までに格納容器に移行するヨウ素とセシウム化学の割合、格納容器 pH への影響、ソースタームへの影響を示す結果を表 4.2.6 並びに、図 4.2.7～図 4.2.10 に示した。FP 挙動に関わる基本的な傾向は、BWR4/Mark-I と同様の傾向を示すが、格納容器形状の違いに起因して環境までの移行経路が変化することで、ソースタームへの影響が若干異なる。Mark-II 型格納容器における FP の環境までの移行経路を図 4.2.11 に示す。Mark-II 格納容器では、ペDESTAL床破損前後で環境までの移行経路が異なる。ペDESTAL破損前は、Mark-I 格納容器 (図 4.2.6 参照)と同様だが、ペDESTAL床破損後は、図 4.2.11 に示すようにドライウェルとウェットウェル間の貫通口 (経路) が形成されることで、FP の環境までの移行経路が変化する。特に、Mark-II では、ペDESTAL破損後に熔融炉心がウェットウェルに落下することで、ウェットウェル水の沸騰と水蒸気の移行が継続することで、ウェットウェルからのガス状 I<sub>2</sub> の再蒸発が促進される結果となった。仮にプール冷却など事故緩和策が実施されなければ、Mark-I 型格納容器を有する炉型よりも I<sub>2</sub> の環境放出が増大する可能性が示唆された。

#### 4.2.2 その他事故シナリオに対する化学挙動を考慮したソースターム解析

本解析では、より設置数が多い BWR5/Mark-II 改良型 (解析プラント体系図 4.2.1 参照)を対象とし、事故シナリオを拡張させたソースターム評価を実施した。解析の対象とした事故シナリオとして、表 4.2.7 に示すように、原子炉減圧失敗、冷却材喪失事故、格納容器先行破損となる崩壊熱除去失敗や低圧注入系配管漏洩を想定した格納容器バイパスを含む 6 つに拡張させている。格納容器機能喪失シナリオは、格納容器バイパスを除き過圧破損を想定した。格納容器破損及び破損面積は、BWR4/Mark-I と同様の設計圧の 2 倍、0.01 m<sup>2</sup> を仮定した。これらの事故シナリオを対象に、原子炉冷却系内 FP 化学によるソースタームへの影



響について検討した。FP 挙動に関わる解析条件は、4.2.1 節の条件と同様である(表 4.2.5 参照)。

#### (1) 事故進展

本研究では、FP 挙動に着目した検討であるため熱水力挙動については概要のみを記載する。BWR5/Mark-II 改良型の熱水力挙動として、原子炉圧力及び原子炉水位を図 4.2.12 に示した。なお、図中の①～⑤は、事象進展時刻(①：炉心熔融開始、②：炉心支持板破損、③：圧力容器破損、④：ペダスタル破損(Mark-II プラントのみ)、⑤：格納容器破損)を示した。その他事故シナリオに対する事象進展の概要及びイベント時刻は、表 4.2.8 及び表 4.2.9 を参照のこと。

#### (2) RCS 内 FP 化学による格納容器への移行化学種への影響

その他事故シナリオに対する解析では、炉心注入系の作動状況、原子炉減圧操作、並びに原子炉冷却材圧力バウンダリ確保の有無など事故条件が異なることで、炉心熔融進展の際の FP 移行挙動が異なる。プラント内 FP 分布例として、圧力容器破損時点におけるプラント内セシウム元素の存在割合を表 4.2.10 に示す。本表は、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、その後の移動しやすさを検討できるよう、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。また、本表を円グラフにしたものを図 4.2.13 に示した。

原子炉の減圧操作を実施しない(a)全交流電源喪失 TB、(c)高圧注水・減圧失敗 TQUX、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、原子炉冷却系内の雰囲気中に浮遊又は壁や床に沈着するなど残存量が増加する傾向がある。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 内に浮遊していたセシウムは圧力容器破損時の高圧噴出により、格納容器内に噴出する可能性があることが判断できる。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ている。D/W 内は温度が低いため、D/W に移行したセシウム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 移行と環境放出を増大させる恐れがある。本解析では、原子炉減圧操作などの事故緩和策を想定しているが、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。

原子炉冷却系内 FP 化学による影響について述べる。圧力容器破損までに格納容器(ウェットウェル)に移行するヨウ素及びセシウムの割合を図 4.2.14 に示す。ヨウ素化学種については、主に CsI の化学形でウェットウェルに移行するが、原子炉冷却系内 FP 化学を考慮する

ことで、10%程度がガス状ヨウ素 HI の化学形でウェットウェルに移行した。これは BWR4/Mark-I 及び BWR5/Mark-II など他プラントでも同様である。一部が水に溶解しやすい HI に置換することで、原子炉冷却系内への残存量が増加し、格納容器への移行量が若干抑制される。LOCA の事故シーケンスでは、破断口経由で HI が放出されるため、逃し弁経由での HI のウェットウェルへの移行は殆どない。

セシウム化学種については、原子炉冷却系内 FP 化学を考慮しない場合は CsI 及び CsOH の化学形で格納容器に移行するが、原子炉冷却系内 FP 化学を考慮することで、大半は Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> の化学形で格納容器に移行する。化学形 CsBO<sub>2</sub> での移行もみられるが、その量は限定的である。

### (3) RCS 内 FP 化学による格納容器 pH への影響

格納容器 pH への影響を図 4.2.15 に示した。4.2.1 節で示したように、原子炉冷却系内 FP 化学を考慮することにより、強酸 HI や弱塩基性の Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> などの化学種で移行することで、CsOH と仮定した場合より pH が低下する。原子炉減圧操作を行う事故シーケンスでは、格納容器へのセシウムの移行が促進されるので、RCS 内 FP 化学による pH への影響は大きい。

### (4) RCS 内 FP 化学によるソースタームへの影響

ヨウ素及びセシウム化学種に対するソースタームへの影響を図 4.2.16 に示した。BWR4/Mark-I 及び BWR5/Mark-II を対象とした解析におけるセシウムのソースタームとしては、化学形 Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> での環境放出が支配的であったが、その他事故シナリオに対する解析では炉心損傷事故シーケンスの相違により、若干傾向が異なる傾向がみられる。TQUV、TQUX、S1QUV、ISLOCA など、炉心損傷の進展が早い事故シーケンスでは主に Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> の化学形で放出される結果となっている。進展が遅い TB 及び TW シーケンスでは CsOH の化学形での放出が多い。これは燃料からの Cs と Mo の放出特性が関連している可能性がある。なお、pH が低下する傾向は変わらないので、RCS 内 FP 化学を考慮することで、ガス状ヨウ素 I<sub>2</sub> の放出が促進される傾向があることは変化ない。

## 4.3 まとめ

化学組成評価コード CHEMKEq の導入により FP 化学組成計算機能を追加したシビアアクシデント総合解析コード THALES2/KICHE を用いて BWR プラントを対象としたソースターム解析を実施した。BWR4/Mark-I 及び BWR5/Mark-II を対象として、全交流電源喪失事故シーケンス TB と炉心冷却機能喪失事故シーケンス TQUV のそれぞれに 2 通りの格納容器機能喪失シナリオを想定した計 4 ケースの解析を実施した。さらに、解析対象とする型式に BWR5/Mark-II 改良型を追加し、代表的な 6 つの炉心損傷事故シーケンスに対するソースターム解析を実施した。これらを通して取得した主な知見は以下の通りである。

- 原子炉冷却系内 FP 挙動において、ホウ素は、ヨウ素及びセシウムの FP 的挙動に影響を及ぼし、ヨウ化セシウム CsI、ヨウ化水素 HI、モリブデン酸セシウム Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>、ホウ酸セシウム CsBO<sub>2</sub> など多くの化学形で格納容器へ移行することが示された。
- 格納容器へ移行するセシウム化学種として、従来、考えられてきた強塩基の水酸化セシウム CsOH の化学形で移行するのではなく、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> などの弱塩基性の化学種で移行することで、CsOH での移行を想定した場合よりも格納容器 pH が低下する可能性が示された。
- 格納容器 pH の低下により、大量のヨウ素が存在するウェットウェル気相部からの放出を想定した格納容器ベント作動のケースで、ガス状ヨウ素 I<sub>2</sub> のソースタームが増加する可能性が示唆された。特に、Mark-II タイプの格納容器は Mark-I タイプよりも、ペDESTAL破損後に溶融炉心がウェットウェルに落下することで、ウェットウェル水の沸騰と水蒸気の移行が継続することで、ウェットウェルからのガス状 I<sub>2</sub> の再放出と環境への移行が促進される傾向が示された。

#### 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] 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.
- [4.4] 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.
- [4.5] 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, 日本原子力研究開発機構, 平成 31 年 4 月.
- [4.6] 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, 日本原子力研究開発機構, 令和 2 年 4 月.

表 4.1.1 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 セシウム : CsI、CsOH、Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> 、CsBO <sub>2</sub> ホウ素 : CsBO <sub>2</sub> 、HBO <sub>2</sub> * モリブデン : Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> 、単体 Mo
雰囲気組成比(-)	H <sub>2</sub> O/H <sub>2</sub>	元素別の 組成比(-)	同上
温度(K)	雰囲気温度		

\*制御材 B<sub>4</sub>C 酸化からの生成化学種

表 4.1.2 CHEMKEq 計算条件

解析ケース	I濃度 (kmol/L)	Cs濃度 (kmol/L)	Mo濃度 (kmol/L)	B濃度 (kmol/L)	全圧 (MPa)	雰囲気濃度 比 (H <sub>2</sub> O/H <sub>2</sub> )
ホウ素無し	0.01	0.1	0.1	B無(=0.0)	0.1	100
ホウ素あり	0.01	0.1	0.1	B有(=1.0)	0.1	100

表4.1.3 CHEMKEq結果の整理(主要な化学種抽出)

ヨウ素	主要	整理(g: ガス、s : 固相)
	① CsI	CsI(s)+CsI(g)
	② I	I(g)
	③ HI	HI(g)
セシウム	① CsI	CsI(s) + CsI(g)
	② Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub>	Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> (s) + Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> (g)
	③ CsBO <sub>2</sub>	CsBO <sub>2</sub> (s) + CsBO <sub>2</sub> (g)
	④ CsOH	CsOH(s) + CsOH(g)

表 4.2.1 解析対象プラントの仕様

炉型		BWR4/ Mark-I	BWR5/ Mark-II	BWR5/ Mark-II 改良型	
類似プラント		福島第一 2 及び 3 号	東海第二、 柏崎刈羽 1 号	柏崎刈羽 2～5 号	
定格熱出力[MWt] (電気出力)		2352 (80 万 kW 級)	3300 (110 万 kW 級)	3300 (110 万 kW 級)	
(RCIC 制御用直流電源容量)		8 時間	8 時間	8 時間	
格 納 容 器	設計圧[kg/cm <sup>2</sup> g]	3.92	2.85	3.16	
	設計漏洩率 [%/day]	0.5	0.5	0.5	
	格納容器自由体積 (D/W+W/W)[m <sup>3</sup> ]	7400	9800	14400	
	ドライ ウェル (D/W)	全体積[m <sup>3</sup> ]	4.40	5700	8700
	ウェット ウェル(W/W)	全体積[m <sup>3</sup> ]	6140	7300	9700
		水体積[m <sup>3</sup> ]	2980	4100	5700
気相体積[m <sup>3</sup> ]		3160	3200	4000	
原子炉隔離時冷却系 (RCIC)	系統数	1	1	1	
	定格流量[t/h/台]	91	14.	14.	
高圧注水系(HPCI)#1	系統数	1	1	1	
	定格流量[t/h/台]	965	1440	1580	
低圧注水系(LPCI)	系統数	1	1	1	
	定格流量[t/h/台]	1225	1690	1440	
低圧炉心スプレイ系 (LPCS)	系統数	2	2	2	
	定格流量[t/h/台]	1141	1690	1690	

#1: BWR5 では高圧炉心スプレイ系(HPCS)

表 4.2.2 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)	D/W 過圧破損
2		格納容器ベント作動
3	炉心冷却機能喪失 (TQUV)	D/W 過圧破損
4		格納容器ベント作動

表 4.2.3 解析の対象とした事故シナリオの概要

No	事故シーケンスの概要
1	<p>全交流電源喪失 (TB)</p> <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。</p> <p>事故進展の推移を以下に示す。</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)→制御用電源の喪失により高圧状態で炉心損傷→下部ヘッド破損→格納容器除熱失敗(復旧なしを仮定)→格納容器過圧破損又は格納容器ベント作動</p>
2	<p>炉心冷却機能喪失 (TQUV)</p> <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。</p> <p>事故進展の推移を以下に示す。</p> <p>過渡事象+高圧注水系の機能喪失+運転員による原子炉減圧(ADS,L1)→低圧注水系の機能喪失→炉心損傷→下部ヘッド破損→格納容器徐熱機能喪失(復旧なしを仮定)→格納容器過圧破損又は格納容器ベント作動</p>

表 4.2.4 事故進展に関わる解析条件

プラント	BWR4/Mark-I	BWR5/Mark-2
格納容器設計圧 (kgf/cm <sup>2</sup> g)	3.92	2.85
格納容器破損圧力#1	格納容器設計圧×2 倍	格納容器設計圧×2.5 倍
格納容器ベント作動圧力#1	同上	同上
格納容器破損の位置及びサイズ	ドライウエル気相部、0.01 m <sup>2</sup>	
格納容器ベント位置及びサイズ	ウェットウエル気相部、0.01 m <sup>2</sup>	
シビアアクシデント対策など事故緩和策	なし	
#1 移行経路の違いによるソースタームへの影響検討のために、同条件を仮定		

表 4.2.5 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	RCS 内の全ボリューム#1
スクラビングモデル	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。ガス状 FP については、プール移行時の初期凝縮と気泡中の拡散による液面への移行を考慮
格納容器内ヨウ素化学	ウェットウエル液相内の反応を考慮
I <sub>2</sub> 及び有機ヨウ素の気液自由界面での総合的な物質伝達係数#2	1.0×10 <sup>-4</sup> m/s (仮定)
気液分配係数(HI、I <sub>2</sub> 、Org-I、CO <sub>2</sub> )	温度の関数である相関式を利用
#1: RCS 内 FP 化学計算は、高温となる RCS 内でのみ適用可能。ウェットウエルから再放出されたガス状ヨウ素 I <sub>2</sub> は壁等に吸着しやすい性質を有するなど、熱力学平衡計算では安定ではなく存在しえない。低温領域ではヨウ素化学計算コード KICHE のような反応速度論に基づくモデルが必要	
#2: 静水条件では 1.0×10 <sup>-6</sup> m/s、攪拌条件では 1.0×10 <sup>-3</sup> m/s 程度に上昇するなど、不確かさあり。	

表 4.2.6 事象進展時刻(BWR4/Mark-I 及び BWR5/Mark-II)

(単位 時間)

プラント	BWR4/Mark-I		BWR5/Mark-II	
	全交流電源喪失 TB	炉心冷却機能喪失 TQUV	全交流電源喪失 TB	炉心冷却機能喪失 TQUV
RCIC 作動	0.01	—	0.03	—
RCIC 停止 <sup>#1</sup>	7.58	—	6.78	—
ADS 作動	—	0.30	—	0.38
ギャップ放出 <sup>#2</sup>	11.7	0.64	10.55	0.68
炉心溶融開始① <sup>#3</sup>	12.3	0.83	11.1	0.78
炉心支持板破損②	15.4	1.87	12.3	0.93
下部ヘッド破損③	17.7	5.99	20.0	7.64
ペDESTAL貫通④	—	—	23.9	10.7
格納容器破損⑤	20.2	13.9	23.1	15.5
計算終了	35	35	35	35

#1: 最後の注水が止まった時間、#2: 被覆管最高温度 > 1173K、#3: 被覆管最高温度 > 2098K

表 4.2.7 解析シナリオの概要(BWR4/Mark-I 及び BWR5/Mark-II 解析)

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 4.2.8 その他事故シナリオの事故進展の概要(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。事故進展の概要を以下に示す。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。事故進展の概要を以下に示す。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。事故進展の概要を以下に示す。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 4.2.8 その他事故シナリオの事故進展の概要(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。</p> <p>事故進展を以下に示す。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。</p> <p>事故進展を以下に示す。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 インターフェースシステム LOCA(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 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。</p> <p>事故進展を以下に示す。低圧系配管破断によるインターフェース 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→格納容器過圧破損</p>

表 4.2.9 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*	7.7	—	—	—	57.9	—
ADS 作動	—	0.36	—	—	—	0.21
ギャップ放出	10.8	0.64	0.90	0.26	63.6	0.43
炉心溶融開始①	11.5	0.74	1.1	0.34	64.4	0.53
炉心支持板破損②	12.0	0.87	2.3	0.72	71.1	0.65
下部ヘッド破損③	19.6	7.7	6.8	5.90	75.8	7.40
ペDESTAL貫通④	22.4	9.8	9.1	8.10	80.1	9.50
格納容器破損⑤	31.5	28.0	27.8	25.9	58.8	4.9
計算終了	60.0	60.0	60.0	60.0	120.0	60.0

\* 最後の注水が止まった時間

表 4.2.10 圧力容器破損時におけるプラント内セシウム分布の内訳例  
(RCS 内 FP 化学考慮ケース、BWR5/Mark-II 改良型)

	TB 過圧	TQUV 過圧	TQUX 過圧	S1QUV 過圧	TW 過圧	IS-LOCA バイパス
燃料中	1.56E-02	8.36E-07	7.29E-02	8.36E-07	7.64E-02	8.36E-07
RCS 浮遊 #1	2.03E-01	4.42E-04	7.33E-02	2.57E-02	5.94E-02	3.55E-04
RCS 沈着 #2	1.55E-01	3.69E-03	9.48E-02	3.53E-01	1.59E-01	3.46E-03
D/W 浮遊	5.08E-03	6.33E-05	5.12E-06	1.67E-02	5.76E-09	2.52E-06
D/W 沈着	1.27E-05	1.19E-07	4.23E-08	2.29E-01	8.07E-08	3.75E-08
W/W 浮遊	3.03E-05	2.18E-06	6.16E-06	1.21E-03	2.27E-10	1.92E-06
W/W 沈着	6.21E-01	9.96E-01	7.59E-01	3.74E-01	7.05E-01	7.16E-01
R/B 浮遊	1.24E-08	3.67E-09	3.24E-09	2.71E-05	4.81E-08	2.59E-02
R/B 沈着	1.24E-12	1.78E-13	1.26E-13	3.63E-05	5.65E-08	2.53E-01
環境	0.00E+00	5.70E-12	4.63E-12	9.35E-08	1.47E-06	1.78E-03

#1: 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

#2: 壁凝縮、壁エアロゾル付着、液相溶解又は床沈着などの沈着量の合計

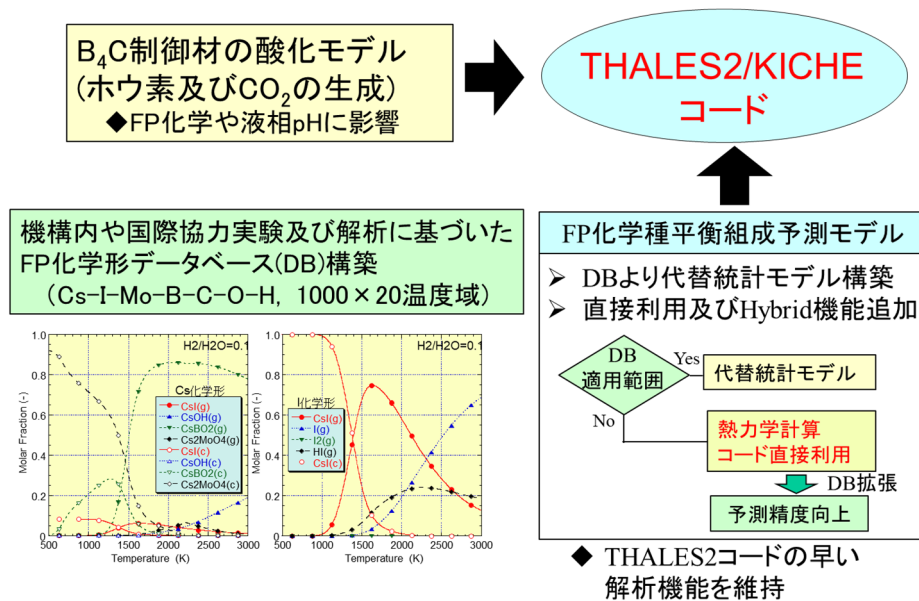


図 4.1.1 原子炉冷却系内 FP 化学に関わる解析手法

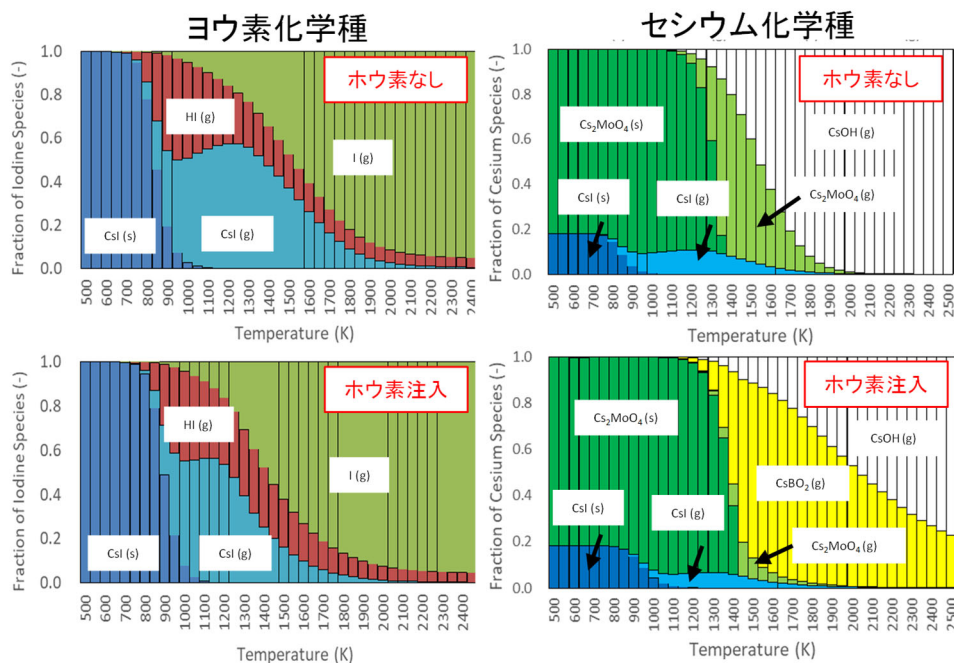


図 4.1.2 ヨウ素及びセシウム化学種の温度依存性

(CHEMKEq 結果、条件: モル濃度比 I:Cs:Mo:B= 0.01: 0.1: 0.1:1.0, H<sub>2</sub>O/H<sub>2</sub>=100)

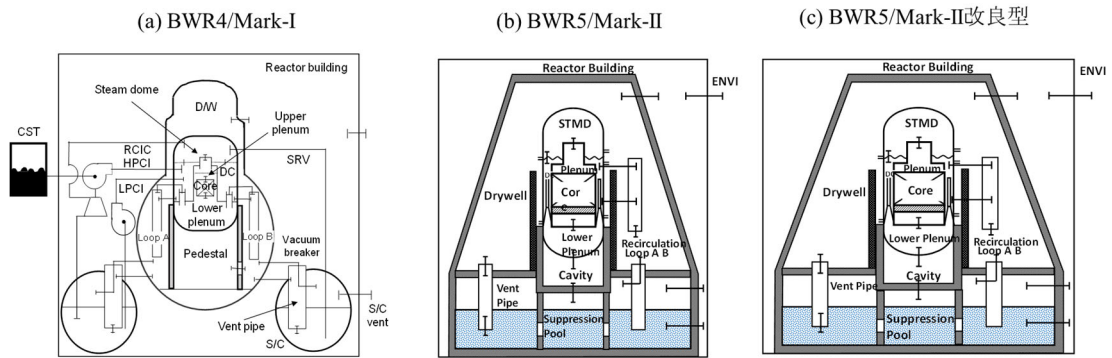


図 4.2.1 解析対象プラントの体系

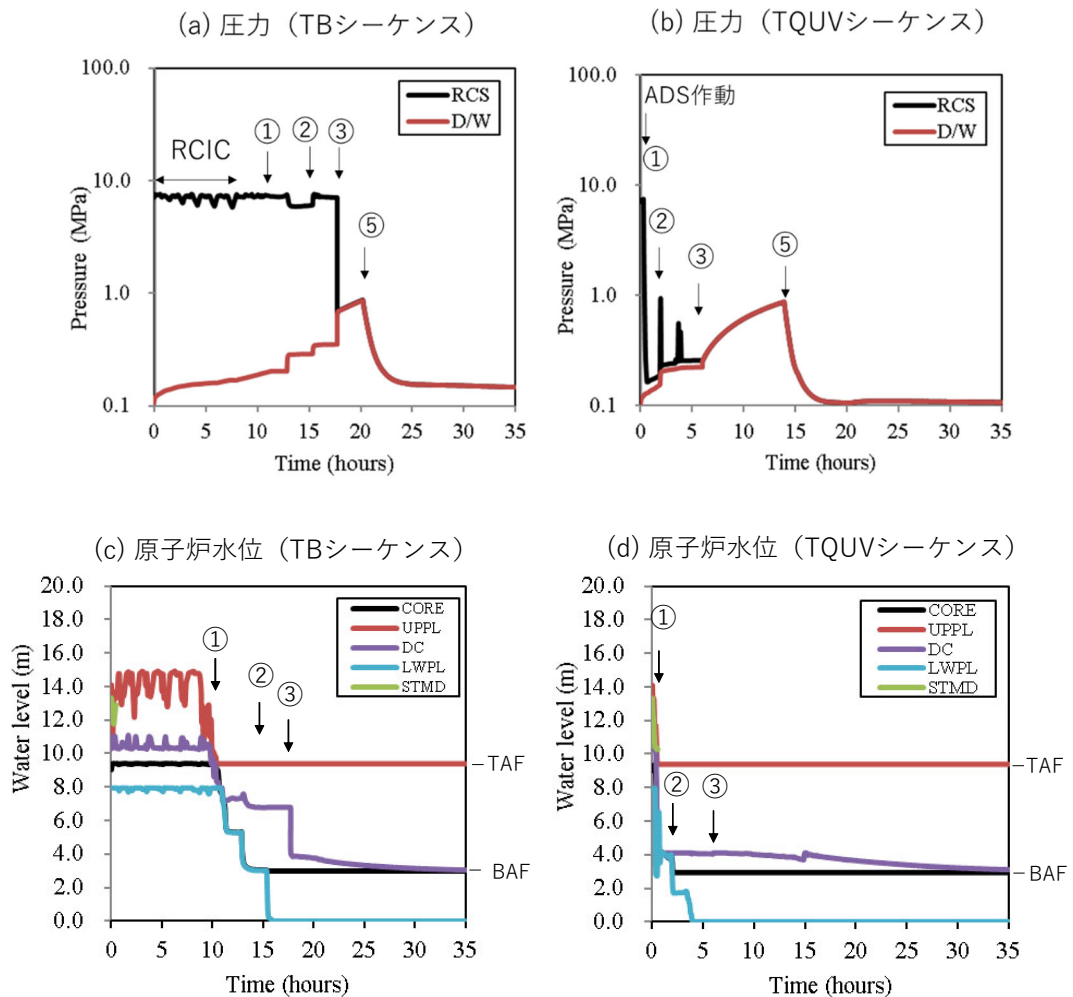


図 4.2.2 熱水力挙動の例 (BWR4/Mark-I、格納容器過圧破損ケース)

(① : 炉心溶融開始、② : 炉心支持板破損、③ : 圧力容器破損、④ : ペデスタル破損 (Mark-II プラントのみ)、⑤ : 格納容器破損)

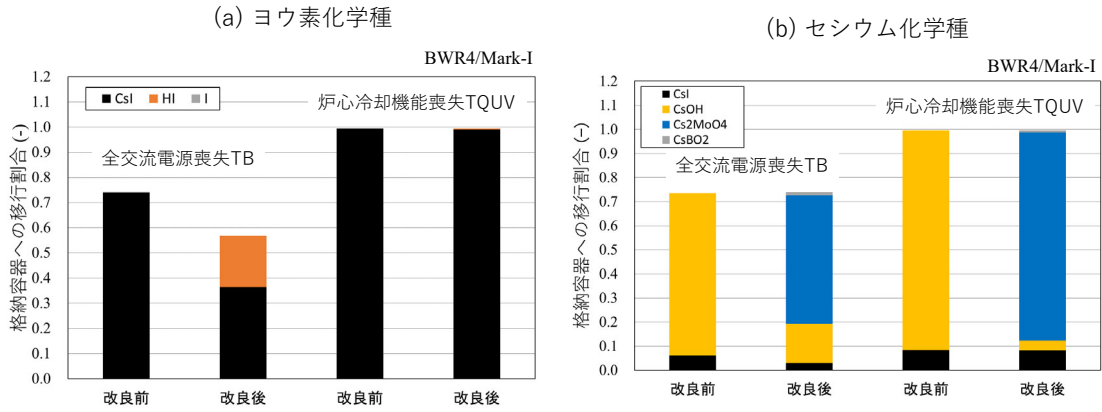


図4.2.3 RCS内FP化学による格納容器(ウェットウェル)への移行化学種への影響  
(対初期炉内内蔵量、BWR4/Mark-I、過圧破損及び格納容器ベント作動ケースで共通。改良前がRCS内FP化学を考慮しないケース、改良後が考慮した結果を表す)

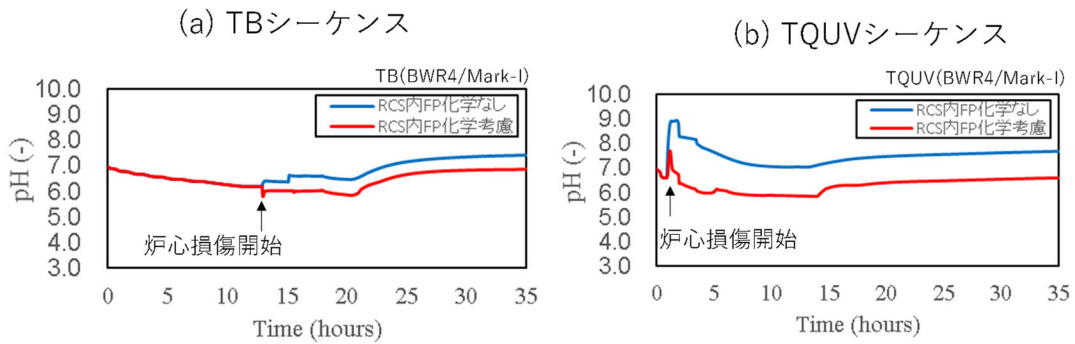


図4.2.4 RCS内FP化学による格納容器pHへの影響  
(BWR4/Mark-I、過圧破損及び格納容器ベント作動ケースで共通)

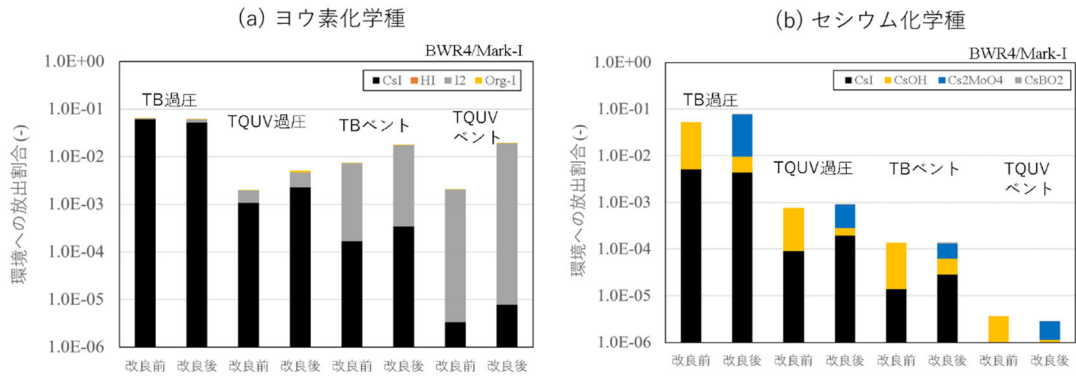
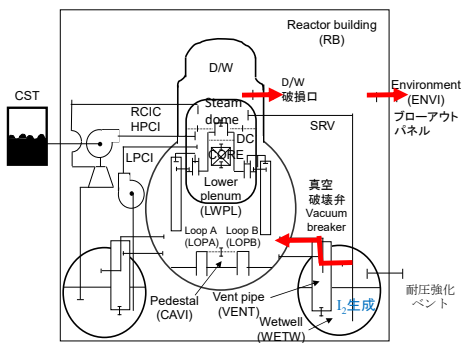
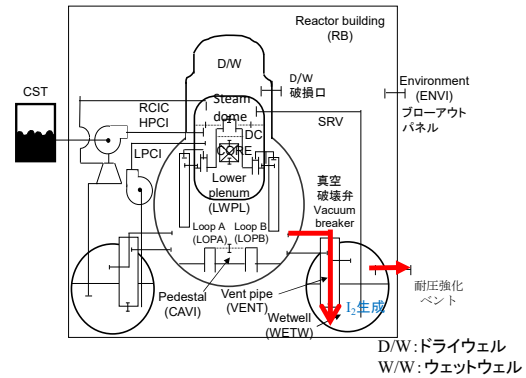


図4.2.5 RCS内FP化学によるソースタームへの影響  
(対初期炉内内蔵量、BWR4/Mark-I)

(a) D/W過圧破損ケース



(b) ベント作動ケース



	環境への移行経路		環境への移行経路
D/Wに存在するFP	D/W気相部⇒D/W破損口⇒原子炉建屋⇒環境	D/Wに存在するFP	D/W気相⇒ベント管⇒W/W液相(スクラビング)⇒W/W気相⇒耐圧強化ベント⇒排気塔経由環境
W/Wに存在するFP	W/W気相部⇒真空破壊弁⇒D/W気相部⇒D/W破損口⇒原子炉建屋⇒環境	W/Wに存在するFP	W/W気相⇒耐圧強化ベント⇒排気塔経由で環境

図4.2.6 環境までの移行経路の相違(BWR4/Mark-I)

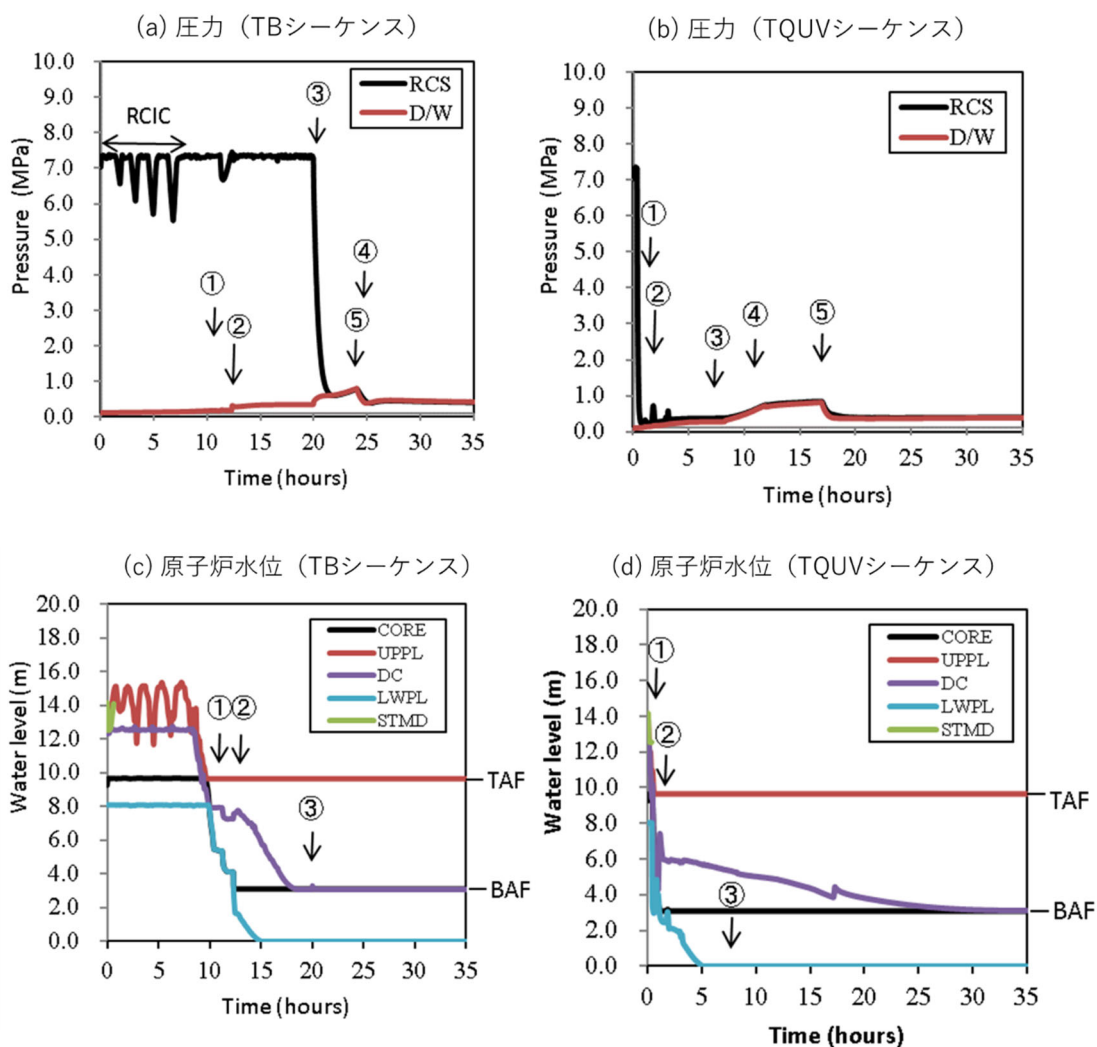


図 4.2.7 熱水力挙動の例

(BWR5/Mark-II、格納容器過圧破損ケース)

- (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(Mark-II プラントのみ)、⑤: 格納容器破損)



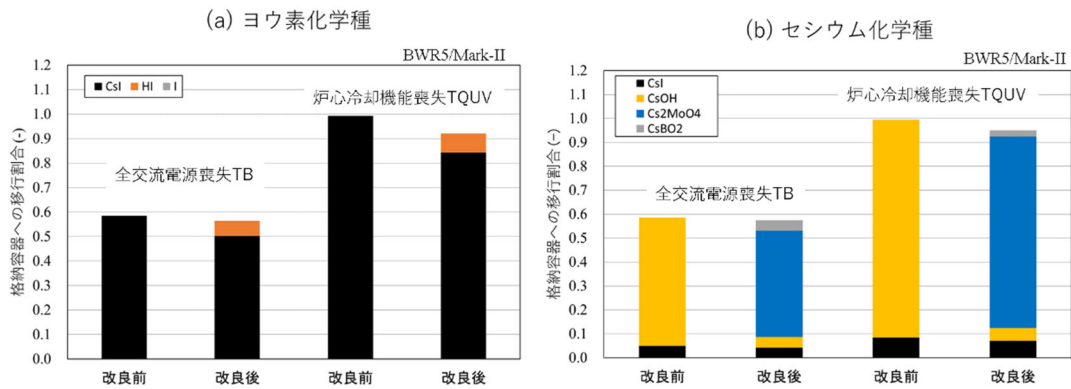


図4.2.8 圧力容器破損までに格納容器(ウェットウェル)に移行する割合  
 (対初期炉内内蔵量、BWR5/Mark-II、過圧破損及び格納容器ベント作動ケースで共通、改良前がRCS内FP化学を考慮しないケース、改良後が考慮した結果を表す)

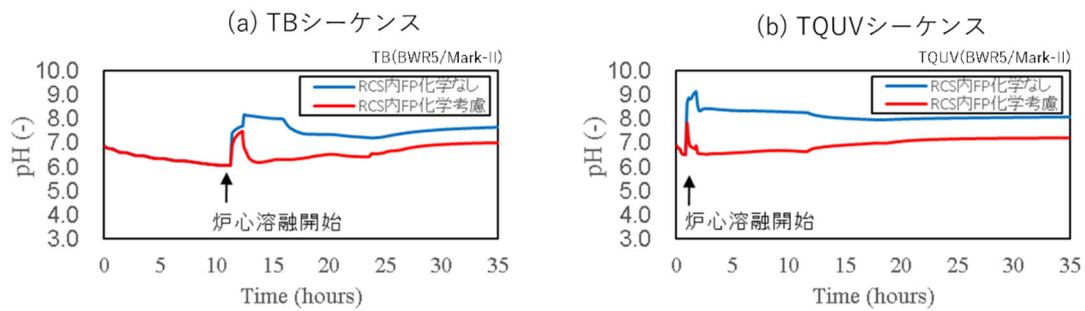


図4.2.9 RCS内FP化学による格納容器pHへの影響  
 (BWR5/Mark-II、過圧破損及び格納容器ベント作動ケースで共通)

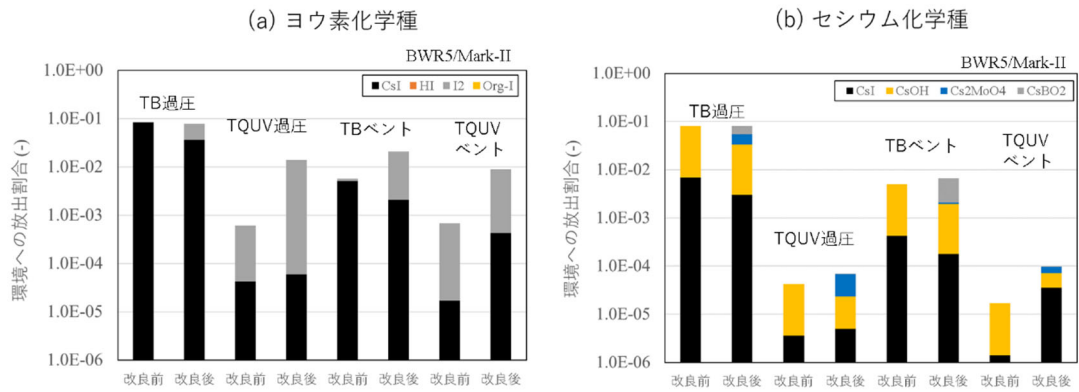
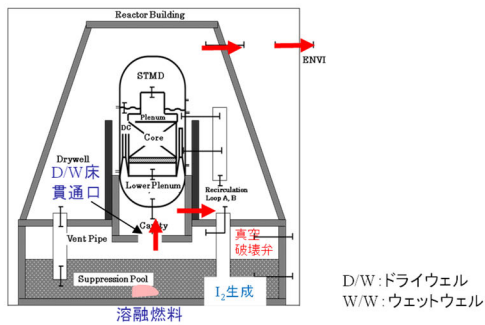
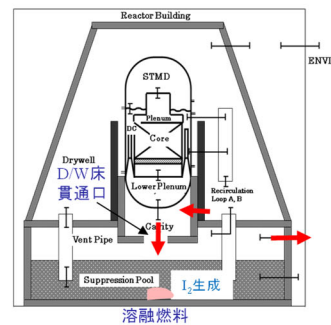


図4.2.10 RCS内FP化学によるソースタームへの影響  
(対初期炉内内蔵量、BWR5/Mark-II)

(a) ドライウェル破損ケース



(b) 格納容器ベント作動ケース



	環境への移行経路		環境への移行経路
D/Wに存在するFP	D/W気相⇒D/W破損口⇒原子炉建屋⇒環境	D/Wに存在するFP	D/W気相⇒ベント管⇒W/W液相(スクレピング)⇒W/W気相⇒耐圧強化ベント⇒排気塔經由環境
W/Wに存在するFP (D/W床貫通前)	Mark-Iと同様(W/W気相⇒真空破壊弁⇒D/W気相⇒D/W破損口⇒原子炉建屋⇒環境)	D/Wに存在するFP (D/W床貫通後)	Mark-Iと同様(D/W気相⇒D/W床溶融貫通口⇒W/W気相⇒耐圧強化ベント⇒排気塔經由環境)
W/Wに存在するFP (D/W床貫通後)	W/W気相⇒D/W床溶融貫通口⇒D/W気相⇒D/W破損口⇒原子炉建屋⇒環境	W/Wに存在するFP	W/W気相⇒耐圧強化ベント⇒排気塔經由環境

図 4.2.11 ペDESTAL破損後の FP の環境までの移行経路の相違  
(Mark-II 格納容器、 D/W 床溶融貫通後)

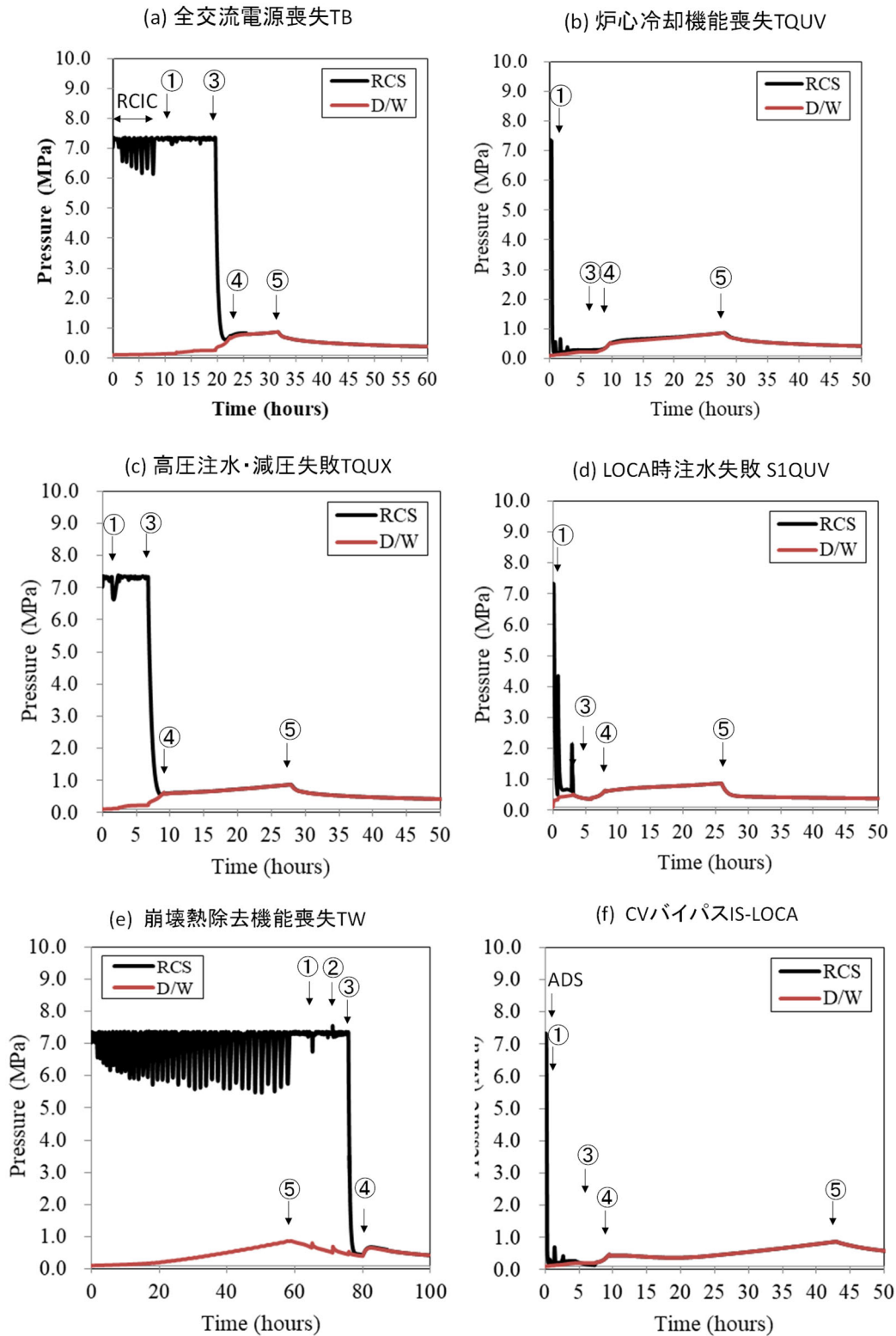


図 4.2.12 BWR5/Mark-II 改良型の熱水力挙動の例 (その 1、原子炉圧力)

(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(Mark-II プラントのみ)、⑤: 格納容器破損)

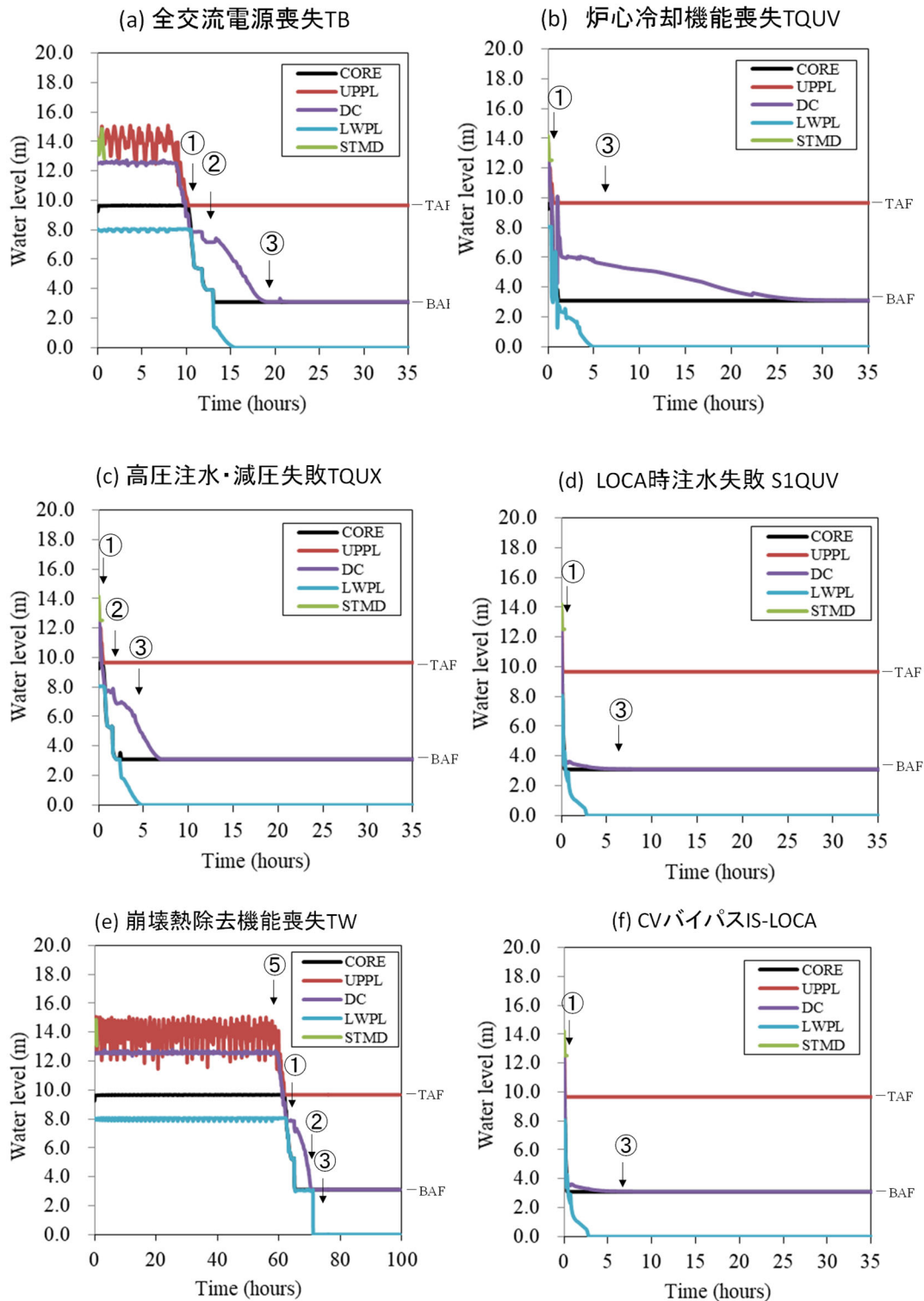


図 4.2.12 BWR5/Mark-II 改良型の熱水力挙動の例 (その 2、原子炉水位)

(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(Mark-II プラントのみ)、⑤: 格納容器破損)

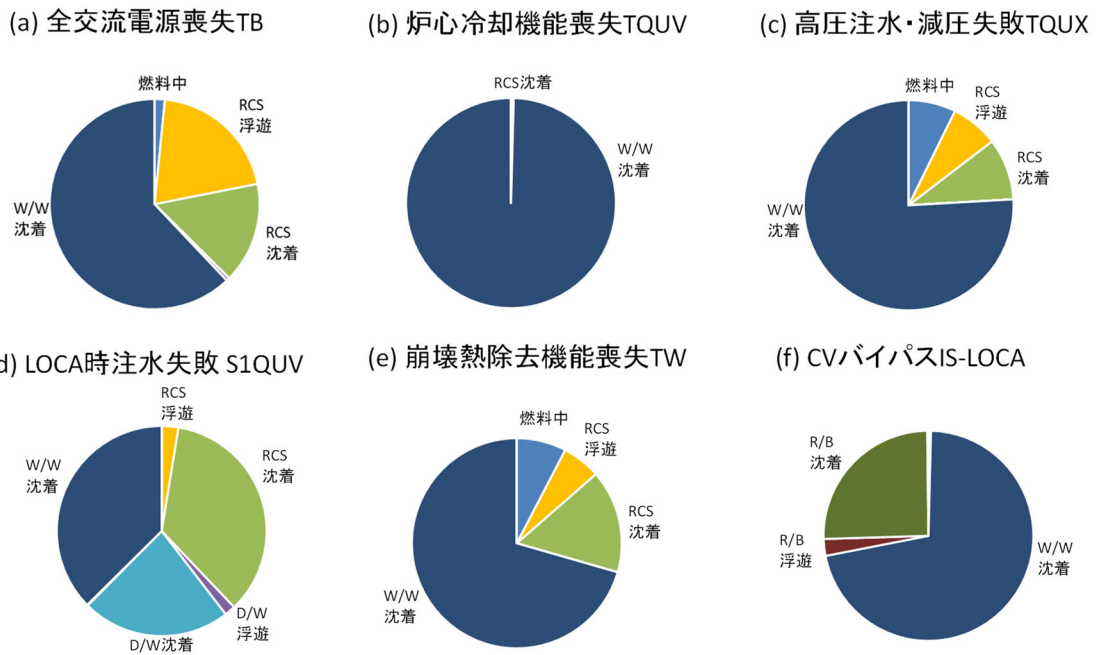


図4.2.13 圧力容器破損時におけるセシウムのプラント内分布例(BWR5/Mark-II改良版)  
 (浮遊は、雰囲気中の浮遊ガスと浮遊エアロゾルの合計、沈着は、壁凝縮、壁エアロゾル付着、液相溶解又は床沈着、壁への化学吸着の合計値を示す)

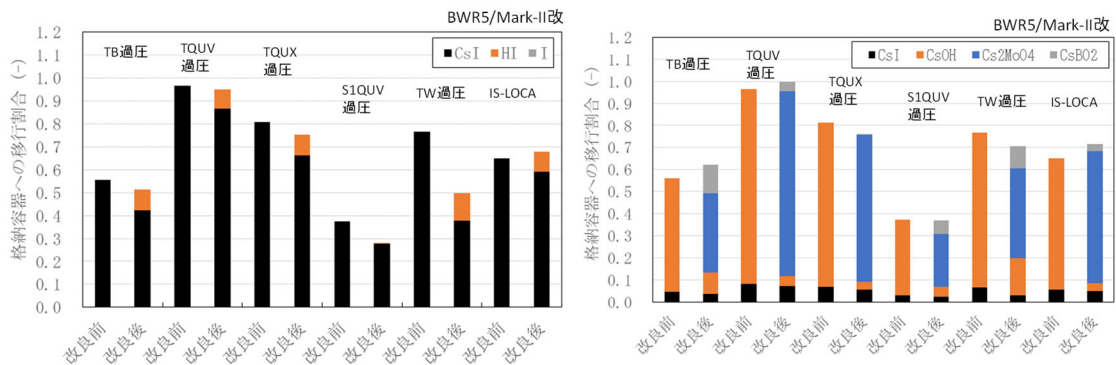


図4.2.14 圧力容器破損までに格納容器(ウェットウェル)に移行する割合  
 (対初期炉内内蔵量、BWR5/Mark-II改良型、改良前がRCS内FP化学を考慮しないケース、改良後が考慮した結果を表す)

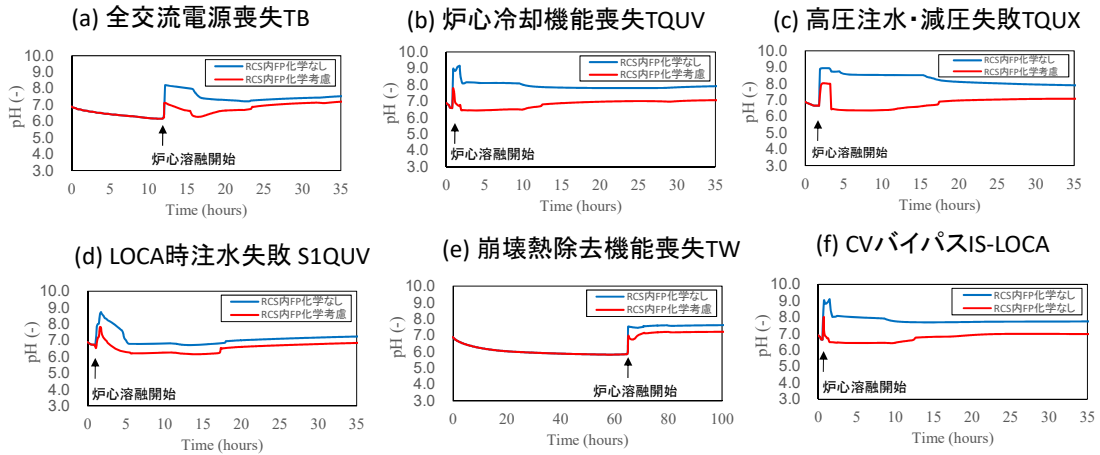


図4.2.15 RCS内FP化学による格納容器pHへの影響  
(BWR5/Mark-II改良型)

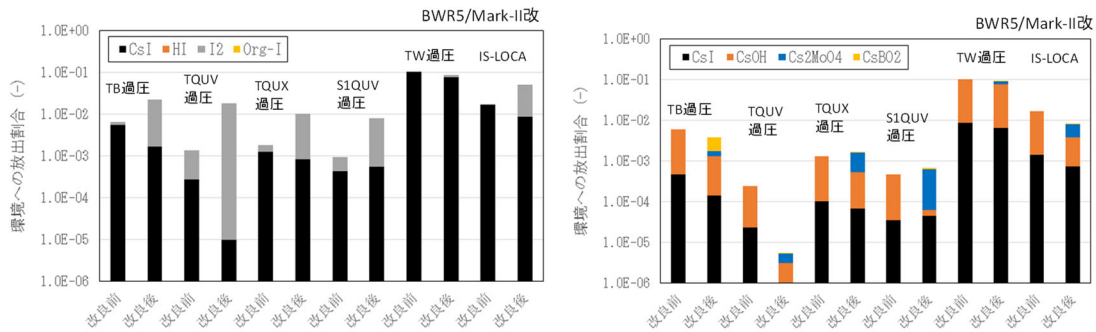


図4.2.16 RCS内FP化学によるソースタームへの影響  
(対初期炉内内蔵量、BWR5/Mark-II改良型)

## 5. 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) 再移行挙動に係る調査

再移行挙動について、冷却水中に溶解したFPの再揮発、液・気二相流における飛沫同伴、沈着エアロゾルの気流による再浮遊、沈着エアロゾルの再蒸発の4つの現象について既往文献調査し、同現象をシビアアクシデント総合解析コードで扱う場合のモデルを整理した。本調査により、一般的なシビアアクシデント総合解析コードでは、二相流におけるFP再揮発の促進、飛沫同伴によるエアロゾル生成がモデル化されていないと考えられる。また、沈着エアロゾルの再蒸発現象はモデルが確立しているものの、化学反応駆動による再蒸発考慮するにはその化学反応機構や速度の情報が必要であり解析ユーザー依存である課題が挙げられた。

さらに上記再移行挙動を含む放射性物質の移行モデルに着目し、沸騰水型原子炉(BWR)事故におけるその影響度を評価し、支配的な物質移行現象を検討した。今回対象とした高圧・低圧注水失敗事故シーケンスのドライウェル過圧破損ケースでは、拡散泳動等のエアロゾルに関するモデルが環境放出量に対して高い影響度とその他モデルとの相関があることが示された。再移行挙動に関するモデルの影響は十分に特定できなかったが、気体状FPに対しては二相流条件での再揮発効果が比較的高いと考えられる。引き続き、その他代表事故シーケンスに対する影響度解析を実施、総合的な評価が必要である。

### (2) セシウム、ヨウ素等の高温化学に係る基礎実験

シビアアクシデント総合解析コードに組み込む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したFP放出移行挙動再現装置 TeRRa を用いた水蒸気雰囲気下でのヨウ化セシウムと酸化モリブデン ( $\text{MoO}_3$ ) の各蒸気種の反応実験を実施するとともに、同実験装置配管等に付着した生成物等を対象に化学分析、X線回折、ラマン分光計測等の分析をすることで、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。さらに、熱力学を用いた化学平衡計算と併せてセシウム、ヨウ素の移行挙動、化学挙動に与えるモリブデンの影響を検討した。

実験及び分析の結果より、モリブデンの影響により、揮発性の高いヨウ素化合物、及び、セシウム及びヨウ素を含む微細なエアロゾル粒子が生成し、より下流側に移行しやすくなることが示唆された。これらの挙動は、モリブデン濃度(セシウムに対する割合)や雰囲気により影響を受けることが考えられるため、これらをパラメータとし、さらに微細なエアロゾル粒子等も捕集して分析する等により化学形態や移行挙動に関するデータの蓄積が必要である。特に、本事業では同定しきれなかった揮発性の高いヨウ素化合物の生成機構やその生成量は、熱力学平衡に基づく化学モデルのソースターム解析への適応可能性を検

討する上で重要な課題である。

### (3) 化学挙動を考慮したソースターム評価の検討

シビアアクシデント総合解析コード THALES2/KICHE に導入した FP 化学平衡組成予測モデルを用いて、BWR プラント(BWR4/Mark-I, BWR5/Mark-II, BWR5/Mark-II 改良型)に対するソースターム解析を実施し、原子炉冷却系内 FP 化学による格納容器への移行化学種やソースタームへの影響について検討した。主な知見は以下の通り。

- 原子炉冷却系内 FP 挙動において、ホウ素は、ヨウ素及びセシウムの FP 的挙動に影響を及ぼし、ヨウ化セシウム CsI、ヨウ化水素 HI、モリブデン酸セシウム Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>、ホウ酸セシウム CsBO<sub>2</sub> など多くの化学形で格納容器へ移行することが示された。
- 格納容器へ移行するセシウム化学種として、従来、考えられてきた強塩基の水酸化セシウム CsOH の化学形で移行するのではなく、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> などの弱塩基性の化学種で移行することで、CsOH での移行を想定した場合よりも格納容器 pH が低下する可能性が示された。
- 格納容器 pH の低下により、大量のヨウ素が存在するウェットウェル気相部からの放出を想定した格納容器ベント作動のケースで、ガス状ヨウ素 I<sub>2</sub> のソースタームが増加する可能性が示唆された。特に、Mark-II タイプの格納容器は Mark-I タイプよりも、ペDESTAL破損後に熔融炉心がウェットウェルに落下することで、ウェットウェル水の沸騰と水蒸気の移行が継続することで、ウェットウェルからのガス状 I<sub>2</sub> の再放出と環境への移行が促進される傾向が示された。



## 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 2 年 9 月 28 日(月) ~ 9 月 29 日(火)
出張者	ディビジョン長 1 名  研究員 1 名
概要	<p>本会合は FP の遅延再放出の知見を得ることを目的とした Experiments on Source Term for delayed Releases (ESTER) プロジェクトの初回ミーティングであり、OECD/NEA Behaviour of Iodine Project (BIP) Phase 3 及び Source Term Evaluation and Mitigation (STEM) Phase 2 プロジェクトの後継に相当する。NEA 事務局の他、フランス (IRSN、CEA、EDF)、ドイツ (GRS)、スウェーデン (SSM)、フィンランド (VTT、STUK)、チェコ (UJV Rez)、アメリカ (US-NRC)、日本 (NRA、JAEA)、韓国 (KINS) よりおよそ 20 名が参加した。日本からは NRA 1 名、JAEA 2 名が参加した。計画されている実験やその結果を吟味する Analytical Working Group (AWG)の活動内容について情報収集を行った。</p>

Web 会議 (2)

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 2 年 11 月 23 日(月) ~ 11 月 24 日(火)
出張者	研究員 2 名
概要	<p>軽水炉シビアアクシデント後期の現象理解のため、格納容器内における典型的な可燃性ガス（水素）や核分裂物質の挙動の実験的調査が計画された。THEMIS の全称（THAI Experiments on Mitigation measures, and source term issues to support analysis and further Improvement of Severe accident management measures）にあるように、全ての実験はドイツのベッカーテクノロジー(BT)社にある THAI+装置で行われる。BT 社は、これまでに同装置で実施された OECD/NEA の THAI(2007-2009)、THAI (2011-2014)、THAI-3 (2016-2019) プロジェクトを通して、関連実験研究に対する豊富な知見を蓄積してきた。THAI-3 参加機関や、本会合に先駆けて開かれた THEMIS の事前会合から提案された実験テーマ候補は、2019 年 9 月に開かれた WGAMA のソースタームワークショップに提出され、その中から THEMIS の対象テーマが 5 つ選出された。日本からは原子力規制庁及び原子力機構が参加する。</p>

Web 会議 (3)

件名	MUSA 計画会合への出席
出張先	オンライン
期間	令和 2 年 11 月 23 日 (月) ~11 月 25 日 (水)
出張者	副センター長 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) プロジェクトの第一回会合に参加し、シビアアクシデント時のソースターム評価における不確かさの定量化に関する技術的な活動方針や今後の計画等について議論した。</p>

Web 会議 (4)

件名	不確かさ解析プロジェクト MUSA 会合への出席
出張先	オンライン
期間	令和 2 年 9 月 15 日 (火)
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 のキックオフ会合に参加し、シビアアクシデント時のソースターム評価に係る重要な影響因子について情報収集を行うとともに、不確かさ解析手法・ツールのレビューに関する技術的な検討と今後の計画について議論した。</p>

Web 会議 (5)

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 2 年 8 月 31 日 (月) ~ 9 月 4 日(金)
出張者	研究員 2 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) の会議に参加し、シビアアクシデント、燃料安全、熱水力安全等の分野における各機関の最新知見や研究計画等に関する情報収集を行った。</p>

協議 (1)

件名	VERDON 実験試料の追加分析に関する協議
手段	電子メール
相手方	フランス原子力庁 (CEA)
概要	<p>VERDON 実験において捕集した FP の沈着試料について、シビアアクシデント時の原子炉冷却系や格納容器等で想定されるセシウム、ヨウ素等の化学反応を検討する上で重要と考えられる追加分析について CEA 担当者とメールにて協議した。FP の沈着試料の分析において、X 線回折測定、ラマン分光計測による構造に関する情報に加え、化学形態を同定するためには微小領域における元素分布の情報が必要である。このためには遮蔽型の EPMA 装置が必要であるが、CEA Cadarache 研究所の照射後試験施設 LECA-STAR において当該装置を保有しており、CEA において元素分布測定が実施可能であることを確認した。</p>