

令和4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5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 事故進展過程毎の影響度指標 (FoM) の検討	2-2
2.3 代表事故シーケンスの FP 移行挙動の標準解析	2-4
2.4 FP 移行挙動に係る影響度の解析	2-12
2.4.1 影響度評価手法及び条件	2-12
2.4.2 影響度評価結果	2-17
2.5 まとめ	2-20
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	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	3-2
3.4 まとめ	3-5
4. ソースターム評価手法における化学知見の整理	
4.1 目的	4-1
4.2 FP 化学種平衡組成予測モデルの開発及び高度化	4-1
4.2.1 CHEMKEq を用いた FP 化学種平衡組成予測モデルの構築	4-2
4.2.2 代替統計モデルを用いた FP 化学種平衡組成予測モデルの構築	4-2
4.3 原子炉冷却系内 FP 化学を考慮した BWR ソースターム解析	4-6
4.3.1 FP 化学平衡組成予測モデルの BWR ソースターム解析への適用	4-6
4.3.2 系統的なソースターム解析	4-9
4.4 ソースターム評価への化学知見の反映方法の検討	4-10
4.5 まとめ	4-15
5. 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（Working Group on Analysis and Management of Accidents：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（Thermal-hydraulics Hydrogen Aerosols and Iodine）、STEM（Source Term Evaluation and Mitigation）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（Experiments on Source Term for Delayed Releases）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への導入効果を日本原子力研究開発機構（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[1.4, 1.5]を例として確認した。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、令和 3 年度までに同移行モデルを有する機構論 FP 移行挙動解析コード ART を用いたソースタームに対する影響度解析（Morris 法）を実施し、結果を可視化した。令和 4 年度は、同様の解析を新たな事故シナリオに対して実施するとともに、これまでに解析した事故シナリオの解析結果を含めて各移行挙動モデルの影響度を事故進展過程における主要なタイミング（環境放出開始、ベント開始等）におけるプラント内 FP 分布、FP 形態（エアロゾル等）等と関連付けて分析することで得られた結果に対する解釈を与え、これまでの知見を取りまとめた。
- ② シビアアクシデント時の炉心から原子炉格納容器への FP 移行挙動に対する共存元素の影響について、令和 3 年度までに取得したモリブデンがヨウ素の移行を促進する現象[1.5]に関する実験データについて、同実験データの分析に必要な対照実験を実施しデータを拡充した。データ取得は、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）による模擬 FP（ヨウ化セシウム等）の加熱・沈着実験及び生成された化合物の化学形や結晶構造等の分析により実施した。
- 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）で化学知見を活用する方法として、原子炉冷却系の FP 化学挙動モデルを有する THALES2 コードを用いて事故シーケンス毎に評価したセシウム及びヨウ素の化学形割合を MELCOR 等の入力に与える手法を令和 3 年度事業[1.6,1.7]で提案した。この手法を、FP 化学挙動モデルを無効にした THALES2 を用いたソースターム解析に適用し、同モデルを有効にした解析の結果と比較することで手法の妥当性を確認するとともに、実機評価で考慮すべき化学知見並びに知見及び手法の整備状況を取りまとめた。

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] 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.
- [1.5] 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.
- [1.6] 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.
- [1.7] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 3 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」、2022.

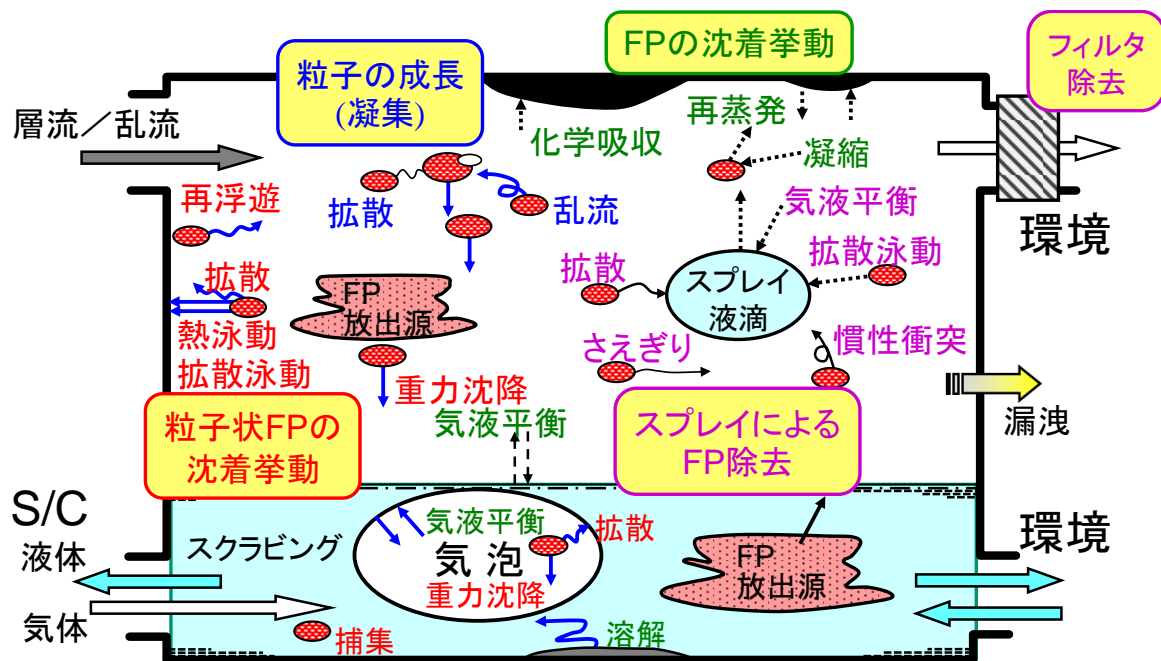


図 1.1 シビアアクシデント時に生じる放射性物質の移行挙動

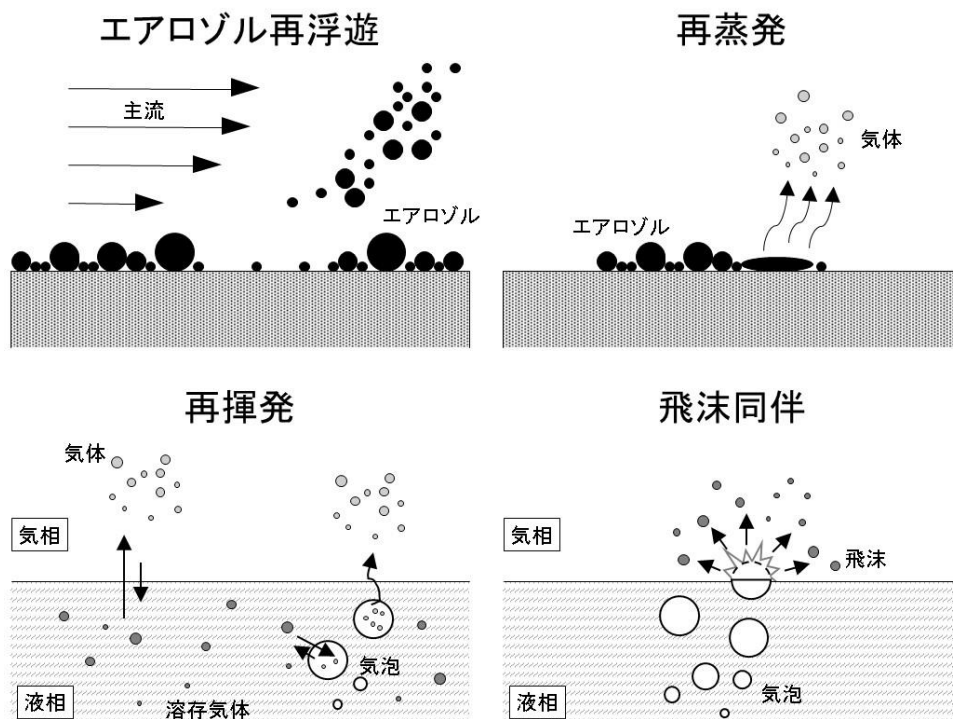


図 1.2 本事業で対象とした再移行挙動

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において、環境中に放出される FP (Fission Products) 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 (Working Group on Analysis and Management Accidents, 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 (Thermal-Hydraulics Hydrogen, Aerosols and Iodine Project)、STEM (Source Term Evaluation and Mitigation) 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 (図 2.2.1)。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沸騰水型軽水炉 (Boiling Water Reactor, BWR) のシビアアクシデントにおける FP の環境放出に対する各移行挙動モデルの影響度を調査した[2.1, 2.2]。影響度評価では、各現象の移行速度に乗じる感度係数を Morris 法により変動させ、モデル相関を含めて影響度 (感度) を評価できる手法を用いている。その結果、移行経路 (ドライウェル (Drywell, D/W) 破損と格納容器 (Primary Containment Vessel, PCV) ベント) により影響度の大きい現象は異なり、原子炉施設から環境放出に至るまでの経路で最も環境に近い解析ノード (場所) で支配的な移行現象が高い影響度を示した。具体的には、D/W 破損ケースでは、D/W→建屋→環境への放出経路となるため、D/W や建屋での浮遊 FP 量を低減させる現象の影響度が高くなった：熱泳動>重力沈降、凝集>スクラビング>>その他現象。一方で、PCV ベントでは、W/W からスタックを通して環境へ放出されるため、W/W で浮遊 FP 量を低減する現象の影響度が高くなった：スクラビング、重力沈降>>飛沫同伴、凝集、熱泳動。またこれらの結果は、再移行挙動はその他移行現象に比べ環境放出する“積算”量に対する影響度が比較的小さいことを同時に示している。一方で D/W 破損ケース等の環境への放出が制御しにくい場合は、事故晩期において再移行現象による微量な FP 放出が継続する可能性があり、公衆に対する被ばくを考慮する上で重要な現象であると考えられる。そこで本解析では、事故進展過程毎の影響度指標 (Figure of Merit : FoM) を検討するとともに、同 FoM の指標を使用した影響度解析を実施した。2.2 節には事故進展過程毎の影響度指標 (FoM) の検討について、2.3 節には対象とした事故シーケンスの標準解析結果を、2.4 節に影響度解析結果を示

す。

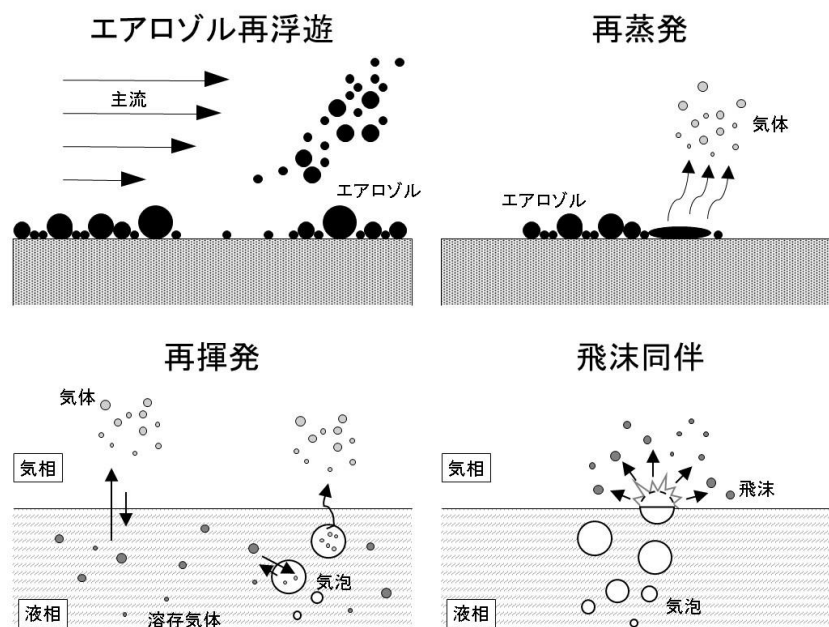


図 2.1.1 本事業で対象とした再移行挙動

2.2. 事故進展過程毎の影響度指標 (FoM) の検討

本節では、安全研究における課題の優先順位付けやその意思決定に活用される PIRT (Phenomena Identification and Ranking Table) 手法[2.3]を参考に、事故進展過程毎の影響度指標 (FoM) を検討した。PIRT 手法は、多くの専門家が複数の検討・審議ステップを経て、各課題に対する影響の大きさや、その根拠となる知見や研究の十分さを考慮し優先順位を決定するものである。このように同手法は、既知モデルの精度だけでなく、モデル化されていない現象等が抽出される点が大きな利点である。検討・審議ステップは、対象とする分野や目的や簡易化などにステップ数が異なるが、一般的には次の通りである。

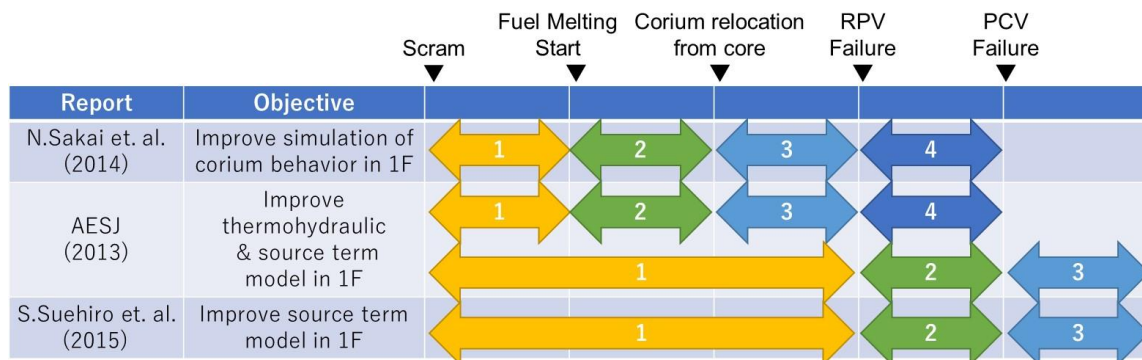
- 1: Define problem or issue
- 2: Define PIRT objective
- 3: Define potential plant designs
- 4: Define potential scenarios
- 5: Define parameters of interest**
- 6: Identify, obtain and review all available experimental and analytical data
- 7: Define high level basic system processes
- 8: Partition scenario into convenient time phases**

- 9: Partition plant design into components
- 10: Identify plausible phenomena by phase and component
- 11: Develop pair-wise ranking of component and phenomena importance
- 12: Apply the analytical hierarchy process (AHP) to determine phenomena relative importance
- 13: Review AHP results; modify if required
- 14: Perform selected PIRT confirmation sensitivity studies
- 15: Finalize and document PIRT for subject scenarios and plant designs

これらのステップでの、注目パラメータである FoM 定義やその対象期間の分割方法は有益な知見である。そこで、PIRT 研究である、Sakai et. al. (2014) [2.4]、原子力学会 (2013) [2.5]、Suehiro et. al. (2015) [2.6]、欧州での軽水炉過酷事故研究活動ネットワーク SARNET (Severe Accident Research Network) [2.7, 2.8]を対象に文献を調査した。

表 2.2.1 に調査対象とした既往研究における PIRT 評価の事故進展分割を示す。PIRT 評価の目的に応じてその分割数が異なり、熱水力モデルの改良を目的とした PIRT では原子炉圧力容器 (Reactor Pressure Vessel, RPV) 破損までを細分化するのに対し、ソースターム評価の高度化の目的では PRV 破損、格納容器 (PCV) 破損、それ以降に分類が行われる。SARNET やその他調査では、事故進展過程での分類ではなく、In-vessel と Ex-vessel 現象として分類しており、後者と類似したものであった。これは In-vessel と Ex-vessel で支配的な現象が異なるためである。したがって本研究では、事故シナリオを3分割し、スクラムから RPV 破損までの期間を「初期」、RPV 破損から PCV 破損までを「中期」、PCV 破損以降を「晩期」として取り扱うこととした。

表 2.2.1 既往研究における PIRT 評価の事故進展過程の分割



各事故進展過程における FoM を表 2.2.2 にまとめた。熱水力 PIRT では、初期と中期において重要となる領域でのエンタルピーや温度を指標としている。またソースターム PIRT の事故初期や中期の FoM は、事故進展の熱水力挙動に影響を与えうる指標 (炉心溶融挙動等や FP の発熱源として寄与 (構造物等への沈着)) が挙げられている。また事故晩期では、環境への FP 放出量が FoM である。

表 2.2.2 既往 PIRT 研究における FoM

		Fuel Melting Start			Corium relocation from core		RPV Failure		PCV Failure	
		1			2		3			
Report	Objective	FoM1			FoM2		FoM3			
AESJ (2013)	Improve thermohydraulic model in 1F	H(kJ) in Fuel Rod	H(kJ) & T(K) for Core region	Max. T(K) In RPV wall & Corium	Max. P(Pa) & T(K) in PCV	[H ₂], [O ₂], [H ₂ O] (mol/m ³)				
AESJ (2013)	Improve source term model in 1F	Heat up/Melting/Relocation			PCV Deposition		Release to Environment			
S.Suehiro et. al. (2015)	Improve source term model in 1F	Release fraction of radionuclide into environment, their chemical forms and the release timing								

したがって本解析では、事故晩期での環境への FP 放出源となる気相に浮遊する FP 量に着目し指標を設定した。事故初期の FoM1 では、RPV 破損までの気相の浮遊 FP 変化量を指標、つまり、燃料から放出され気相に浮遊する FP が RPV 破損までに構造材等への沈着によりどの程度気相から除去されるかを指標としている。事故中期の FoM2 では、RPV 破損時に気相に残存する FP 量が PCV 破損までにどの程度低減したかの指標である。また、事故晩期の FoM3 は、PCV 破損までに気相に残存した FP 量が環境放出までの経路でどの程度低減したかである。これらの指標には、気相に浮遊する FP の構造材や冷却水表面への除去だけでなく、再浮遊によって気相の浮遊 FP 量を増加させる影響も含まれる。

表 2.2.2 本解析で選定した事故進展期間とその FoM

		Scram			RPV Failure		PCV Failure	
		1			2		3	
Report	Objective	FoM1			FoM2		FoM3	
本解析	既存FP移行モデル影響度評価	原子炉施設内の浮遊FP(気相)の変化量 (~RPV破損)			原子炉施設内の浮遊FP(気相)の変化量 (RPV破損~PCV破損)		環境中に放出されたFP量	

2.3. 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って、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。これまでに、沸騰水型原子炉 (BWR-4, Mark-I 改良型仮想プラント) での高圧及び低圧注水失敗の事故シーケンス TQUV の D/W 過圧破損及び、全交流動力電源喪失 (TB) の D/W 過圧破損及び PCV ベントの解析を実施

している。本解析では、新たな事故シナリオとして、沸騰水型原子炉（BWR-5、Mark-II 改良型仮想プラント）での過渡事象後の TQUV の D/W 過圧破損を対象とした。過去に実施した TQUV の解析ケースに比べて、D/W 過圧破損する圧力を高く仮定したため、過圧破損するまでの時間が長い点で異なる。この事故シナリオについて、シビアアクシデント総合解析コード THALES-2 [2.9]を用いた解析を実施し、得られた事故進展とその熱水力挙動を境界条件とし半経験論的な FP 移行挙動解析コード ART により FP 挙動を解析した。以下に解析条件とその結果を示す。

(1) 事故シーケンス

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原子炉冷却系と格納容器系の圧力を図 2.3.1 に示した。

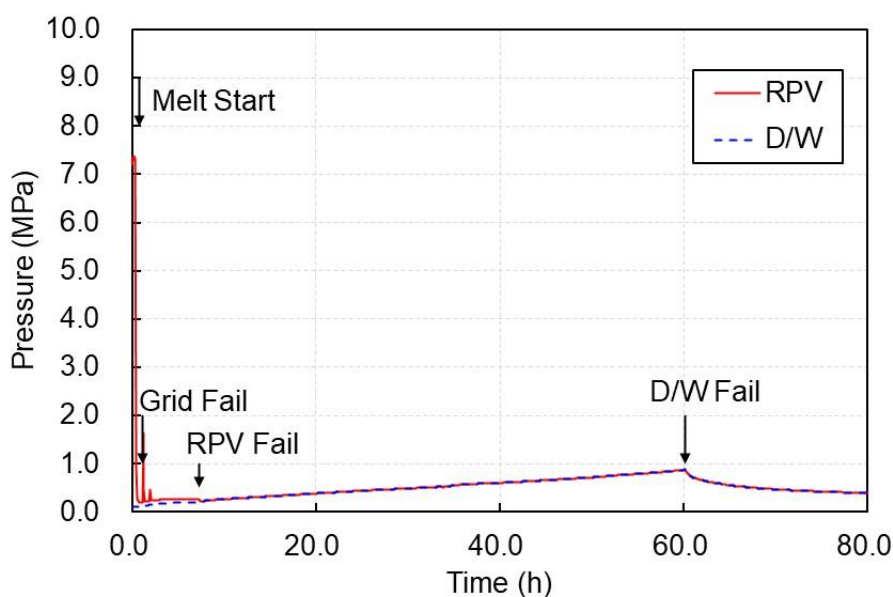


図 2.3.1 THALES 解析で得られた原子炉冷却系の圧力履歴

(2) FP 移行挙動解析コード ART

ART コード[2.10]は、日本原子力研究開発機構で開発した半経験論モデルに基づく FP 移行挙動解析コードである。ART コードは石神らの文献[2.10]にて初版が公開されたとのものであり、続いて各実験検証によるモデル改良を進めたコードを Ver.2 として公開している。本

解析では、将来的な化学反応モデルの実装のため、現在開発を進めている ART Ver. 3.0-β 版を使用した。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 コードの支配方程式は、流動条件を境界条件とした物質移行方程式のみで構成される（運動量や熱量は扱わない）。ART で解かれる物質移行方程式は、区画位置、区画内の位置（気相、液相、構造材上）から成る物理状態毎に異なり簡略化すると次式で示される。区画 I の気相に浮遊する気体状 FP の物質移行方程式は次式である。

$$\begin{aligned} \frac{dM_{gas}^I}{dt} = & S_{fuel}^I + \{S_{evap}^I - S_{cond}^I\}_{cond/evapo} \\ & + \sum_{J \neq I}^{Nc} \left\{ DF_{scrub} \frac{G^{J \rightarrow I}}{V_g^J} M_{gas}^J - \frac{G^{I \rightarrow J}}{V_g^I} M_{gas}^I \right\}_{fluid} \\ & + \left\{ \frac{k_{mt}A}{V_{liq}^I} M_{liq}^I - \frac{k_{mt}A}{V_g^I} M_{gas}^I \right\}_{gas-liq} \\ & + \left\{ \lambda_{spray} \left(\frac{M_{drop}^I}{V_{drop}^I} - \frac{M_{gas}^I}{V_g^I} \right) \right\}_{spray} \end{aligned} \quad (2.3.1a)$$

$$DF_{scrub} = \begin{cases} M_{out}^I / M_{in}^I & \text{gas flow into liquid} \\ 1 & \text{other flows} \end{cases}$$

なお各 {} の下付け添え字は、現象名である（表 2.3.1）。また、区画 I の気相に浮遊する半径 r のエアロゾル状 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。

$$\begin{aligned}
\frac{dM_{aero}^I(r)}{dt} = & S_{fuel}^I(r) + \{S_{cond}^I(r) - S_{evap}^I(r)\}_{cond/evapo} \\
& + \sum_{J \neq I}^{Nc} \left\{ DF_{scrub} \frac{G^{J \rightarrow I}}{V_g^J} M_{aero}^J(r) - \frac{G^{I \rightarrow J}}{V_g^I} M_{aero}^I(r) \right\}_{fluid} \\
& \pm \left\{ \sum_l \sum_m \frac{\beta_{l-m}}{V_g^I} M_{aero,l}^I M_{aero,m}^I \right\}_{agglome} \\
& - \left\{ \frac{v_{borwn} A}{V_g^I} M_{aero}^I(r) \right\}_{brown} - \left\{ \frac{v_{thermo} A}{V_g^I} M_{aero}^I(r) \right\}_{thermo} \\
& - \left\{ \frac{v_{diff} A}{V_g^I} M_{aero}^I(r) \right\}_{diffusio} - \left\{ \frac{v_{gravity} A}{V_g^I} M_{aero}^I(r) \right\}_{gravity} \\
& - \left\{ \frac{v_{convection} A}{V_g^I} M_{aero}^I(r) \right\}_{convection} \\
& + \{\lambda_{resus} M_{aero-str}^I(r)\}_{resuspention} \\
& + \{\lambda_{entrain}(r) M_{liq}^I\}_{entrainment} + \left\{ \lambda_{spray} \frac{M_{aero}^I(r)}{V_g^I} \right\}_{spray}
\end{aligned} \tag{2.3.1b}$$

同様に、各区画での構造材や液相での物質移行方程式を定義し、それら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。

表 2.2.1 に示した ART コードで対象とする現象について、同コードでは MELCOR 等の一般的な FP 移行挙動解析コードと同様のモデルを採用している。なお、令和 3 年度で使用した ART コード[2.2]から熱泳動による沈着モデルを変更と一部バグの修正を行っている。また、MELCOR 等の一般的な FP 移行挙動モデルと比較して、ART ver3.0 コードでは蒸発 S_{evap}^I と凝縮 S_{cond}^I の取り扱いが異なる。同コードでは、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。具体的には、(2.3.1)に示した連立方程式により各区画と副領域の物質量を計算した後に、各副領域での化学組成と物理状態（気体 or エアロゾル）を計算するものである。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。

また ART コードの取り扱う現象について、Suchiro らのソースターム PIRT 研究[2.6]で整理した原子炉施設での FP 移行挙動現象と比較すると、以下の点でコードの不十分さがある点で注意が必要である。

- 燃料からの FP 放出量、被覆管の酸化による水素発生量、熔融燃料—コンクリート相互作用での発生気体を THALES からの境界条件（入力）としている。

- 再臨界による FP 放出が未考慮である。
- RPV 等の漏洩パスでの FP 沈着・除去モデルが未実装である。
- 化学・物理的な吸着モデルが未実装である。
- 化学モデルを有さないため化学形の不確かさがある。

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[2.11]
2	熱泳動によるエアロゾル沈着	Talbot モデル[2.12]
3	重力沈降によるエアロゾル沈着	[2.13]
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[2.13]
5	ブラウン拡散によるエアロゾル沈着	Fick の法則[2.13]
6	強制対流によるエアロゾル沈着	層流：H.Schlichting、Gromely[2.14] 乱流：Davies、Friendlander[2.15]
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、)	[2.10]
8	エアロゾルの再浮遊	簡易 RHH モデル[2.16]
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[2.17]
10	スプレイ時の気体/エアロゾルの除去	Postma and Pasedag(1973)[2.18]
11	フィルターによるエアロゾル除去	Vendel et. al. (2009) [2.19]
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)[2.20]
	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[2.20]
13	飛沫同伴によるエアロゾル生成	気泡流： Luissier and Villermaux(2012)[2.21] Koch et. al.(2000)[2.22] 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） [2.23]
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[2.23-24]
16	液相中のヨウ素化学	簡易モデル（無機 I ₂ のみ） [2.25]
17	化学・物理吸着	未実装

(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 2.3.2 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 7 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、原子炉建屋の 1 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 14 ノードである。

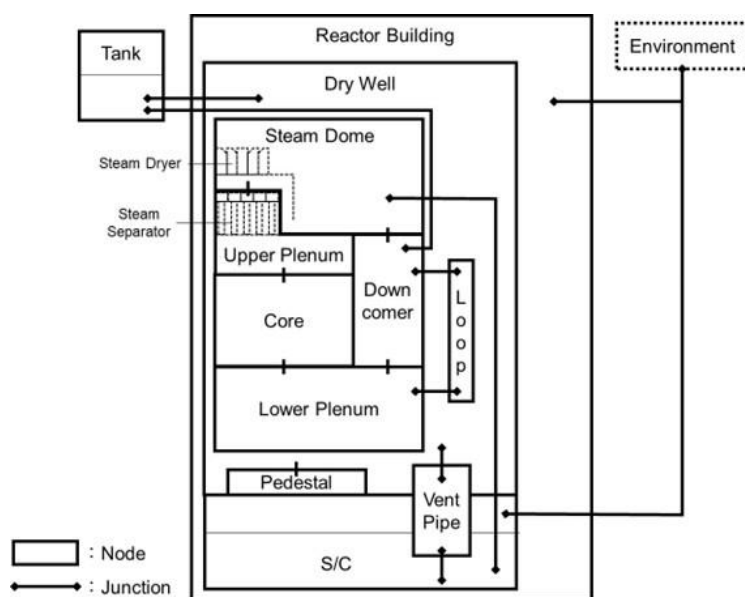


図 2.3.2 ART 解析で模擬した BWR プラント

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 を境界条件として設定している。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、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 [2.26] を用いた。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 である。また、各 FP の放出履歴は、(経験論的な

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。

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	燃料中の インベントリ/kg (元素モル数) [2.26]	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, Y92, Y-93, Y-91m, Pr-143, Pr-144, Pr- 144m	812.17(5846.9)	La ₂ O ₃

(4) 解析結果

ART 解析で得られた標準ケースでの原子炉施設内の Cs 挙動を図 2.3.3 に示す。炉心溶融開始後の主蒸気逃し安全弁 (Safety Relief Valve, SRV) 作動による原子炉冷却系 (Reactor Coolant System, RCS) の減圧に伴って、燃料から放出され RCS に浮遊する Cs は水蒸気と共に RCS からウェットウェル (Wetwell, W/W) に移行する。この時、SRV 接続位置は W/W の液相部である。そのため、W/W へ流入する気体中に浮遊する Cs エアロゾルは、スクラビング効果により大部分が W/W の液相部で除去・保持される。除去されなかった一部の Cs は、W/W 気相部へ放出され、W/W と D/W をつなぐ真空破壊弁を介し D/W へと移行する。また、圧力容器が破損後では、溶融炉心-コンクリート相互作用 (MCCI) 等で発生した気体により D/W の圧力が増加する。約 33 時間時点では、ベント管を通して D/W から W/W へ一部の気体移行し、その圧力増加が抑制される。この際、D/W に浮遊していた一部の Cs も W/W へと移行する。約 60 時間の格納容器過圧破損時には、D/W に浮遊している Cs が建屋 (Reactor Building, RB) へと移行し、その後環境へ放出される。

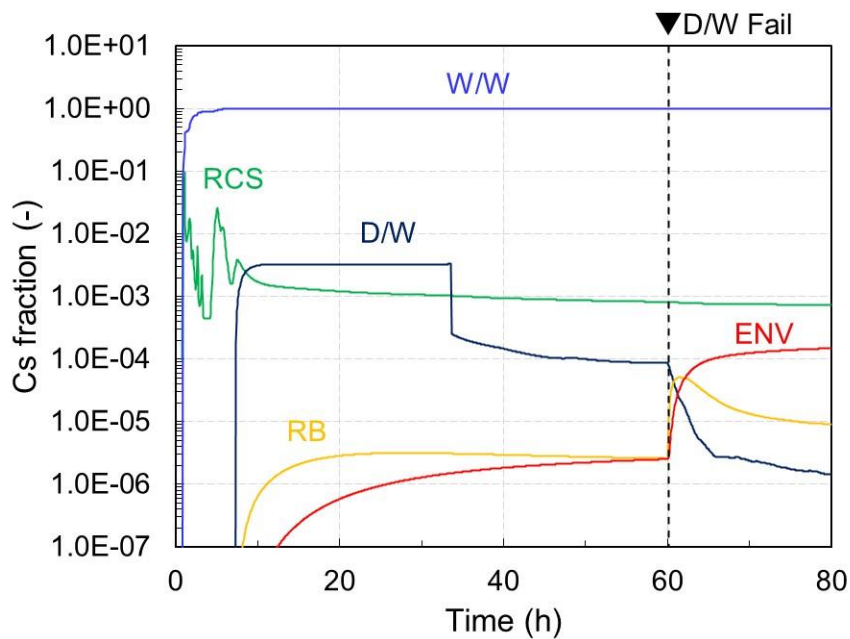


図 2.3.3 ART 解析で得られた Cs 挙動

2.4. 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。

なお本影響度解析の結果は、表 2.2.1 に示すモデルの組み合わせで構成される数値解析コードでの影響度の一例であり、異なる数値解析コードの使用やモデル改良・実装する場合は、その都度実施することが望ましいと考える。これは数値解析コード固有のパラメータ有無やプログラム化の離散化方法の相違の可能性が排除できないためである。実際に、エアロゾルの熱泳動沈着モデルにおける温度の不連続性に関する補正因子の取り扱いがシビアアクシデント数値解析コード間で異なり沈着速度が 1.5 倍異なることが示されている[2.26]。また、同影響度解析手法は、それぞれのコード特性を解析者が理解する上で有用な情報を与えると考える。この背景を鑑み、本影響度解析において注意すべき点を次の通り整理した。

- 本解析で使用した ART コードは一部未実装モデルがある (2.3 節)。
- 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。
- 本影響度は物質移行モデルのみの影響度であり、熱水力モデルの誤差による影響は含まれない。
- 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。

2.4.1. 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[2.28, 2.29]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[2.28, 2.29]では、 N_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 $\mathbf{f} = (f_1, f_2, \dots, f_k, \dots, f_{N_k})$ を作成し、各モデルの個別影響度 $\mathbf{e} = (e_1, e_2, \dots, e_k, \dots, e_{N_k})$ を解析する。

- ① 初期パラメータセット \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 初期パラメータセット f^0 を使った解析を実行する。
- ③ 次の解析に使用するパラメータセット f^1 を設定するために、 $f^1=f^0$ として前回のパラメータセット情報を反映させた後に、値を設定したパラメータセット f^1 からパラメータ番号 k を1つランダムに選択する。
- ④ $j = -2, -1, 1, 2$ 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_k^1 に変動値 $\Delta \times j$ を加算する。変動幅 Δ は、 $\pm 20\%$ とする。
- ⑤ ④で変化させたパラメータ値 f_k^1 を含むセット f^1 として解析を実行し、得られた結果を前回のパラメータセット f^0 の解析結果と比較することで個別影響度 e_k を計算する。ここで、個別影響度 e_k が取得できるのは、パラメータセット f^0 と f^1 では f_k のみが異なるためである。
- ⑥ 同様にして、 f^1 のパラメータセットをベースにパラメータ番号 m ($\neq i$) を一つ選択し、③～⑤と同様の操作を繰り返し、全てのパラメータ (総数 N_k) を $\Delta \times j$ 変化させ、全てのパラメータに対する個別影響度 e を取得する。

①～⑤の手順で R 回繰り返し、感度解析パラメータセットを $(N_k + 1) \times R$ 個作成・解析し、 R 個の個別影響度 e が得られる。さらに、全ラウンドの個別影響度 e を用いて、平均値と標準偏差を計算する。ここで、標準偏差は自分以外のパラメータから受ける影響を意味する。

簡単な例として、対象パラメータ数 $N_k=4$ 、繰り返し数 $R=2$ の場合のパラメータセットと個別影響度について表 2.4.1 に示す。 $k=1$ の感度解析パラメータ f_1 に着目すると、 $R=1$ 回目では感度解析パラメータセット $f^1 = \{0.8, 1.4, 1.2, 1.0\}$ と $f^2 = \{1.2, 1.4, 1.2, 1.0\}$ の間で $\Delta \times j = +0.4$ の値を変化させている。したがって、感度解析パラメータセット f^1 と f^2 間の計算結果を比較することで、パラメータ $k=1$ の個別影響度 $e_{k=1}$ が得られる。個別影響度 e_k は計算コードで得られた結果から取得される指標 FoM を用いて次式で計算する。

$$e_k = \text{func}(f) = \left| \frac{\text{FoM}(f^l) - \text{FoM}(f^{l-1})}{\Delta \times j} \right| \quad (2.4.1)$$

このように個別影響度 e_i は、各ラウンド R に対して得られる。 $k=1$ の感度解析パラメータの影響度は、 $R=1$ で $e_1 = 0.2$ であり、 $R=2$ で $e_1 = 0.5$ が得られた場合、 $k=1$ 以外の感度解析パラメータセットによる影響を受けること従属関係 (相関) があるといえる。この場合、個別影響度の平均値 \bar{e}_k と標準偏差 σ_k は次式で計算される。

$$\bar{e}_k = \frac{1}{r} \sum_{n=1}^R e_k(n) \quad (2.4.2)$$

$$\sigma_k = \sqrt{\frac{1}{R} \sum_{n=1}^R \{e_k(n) - \bar{e}_k\}^2} \quad (2.4.3)$$

なお従属関係が全くない場合は、標準偏差 σ_k が 0 となる。表 2.4.1 に示した例の e_3 のような場合である。

表 2.4.1 Morris 法を用いた感度解析パラメータ f と個別影響度 e_k の設定例
(対象パラメータ数 $N_k=4$ 、繰り返し数 $R=2$) 塗りつぶし：変化させるパラメータ

Round	Sensitivity Parameter Sets, f				Selected		Elementary Effect, $e_k = func(f)$
	f_1	f_2	f_3	f_4	Parameter, k	$\Delta \times j$	
R1	$f^0 =$	0.8	1.4	1.2	1.4		
	$f^1 =$	0.8	1.4	1.2	1.0	4	-0.4
	$f^2 =$	1.2	1.4	1.2	1.0	1	+0.4
	$f^3 =$	1.2	1.4	1.0	1.0	3	-0.2
	$f^4 =$	1.2	1.8	1.0	1.0	2	+0.4
R2	$f^0 =$	0.8	0.6	1.4	0.6		
	$f^1 =$	1.2	0.6	1.4	0.6	1	+0.4

	$f^3 =$	1.2	1.0	1.0	0.2	3	-0.4

(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、2.3 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 $f = (f_1, f_2, \dots, f_k, \dots, f_{N_k})$ を導入した (式 (2.4.4a, 2.4.4b))。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、スプレイの全 12 現象である。式 2.4.4 に示す通り各感度解析係数は全て質量変化速度 (mol/s) に乗じるため、同一次元の影響として整理することが可能である。

気体状 FP

$$\begin{aligned}
\frac{dM_{gas}^I}{dt} &= S_{fuel}^I + f_1 \{ S_{evap}^I - S_{cond}^I \}_{cond/evapo} \\
&+ \sum_{J \neq I}^{Nc} \left\{ DF_{scrub} \frac{G^{J \rightarrow I}}{V_g^J} M_{gas}^J - \frac{G^{I \rightarrow J}}{V_g^I} M_{gas}^I \right\}_{fluid} \\
&+ f_3 \left\{ \frac{k_{mt} A}{V_{liq}^I} M_{liq}^I - \frac{k_{mt} A}{V_g^I} M_{gas}^I \right\}_{gas-liq} \\
&+ f_4 \left\{ \lambda_{spray} \left(\frac{M_{drop}^I}{V_{drop}^I} - \frac{M_{gas}^I}{V_g^I} \right) \right\}_{spray} \\
DF_{scrub} &= \begin{cases} f_2 M_{out}^I / M_{in}^I & \text{gas flow into liquid} \\ 1 & \text{other flows} \end{cases}
\end{aligned} \tag{2.4.4a}$$

エアロゾル状 FP

$$\begin{aligned}
\frac{dM_{aero}^I(r)}{dt} &= S_{fuel}^I(r) + f_1 \{ S_{cond}^I(r) - S_{evap}^I(r) \}_{cond/evapo} \\
&+ \sum_{J \neq I}^{Nc} \left\{ DF_{scrub} \frac{G^{J \rightarrow I}}{V_g^J} M_{aero}^J(r) - \frac{G^{I \rightarrow J}}{V_g^I} M_{aero}^I(r) \right\}_{fluid} \\
&\pm f_5 \left\{ \sum_l \sum_m \frac{\beta_{l-m}}{V_g^I} M_{aero,l}^I M_{aero,m}^I \right\}_{agglome} \\
&- f_6 \left\{ \frac{v_{borwn} A}{V_g^I} M_{aero}^I(r) \right\}_{brown} \\
&- f_7 \left\{ \frac{v_{thermo} A}{V_g^I} M_{aero}^I(r) \right\}_{thermo} \\
&- f_8 \left\{ \frac{v_{diff} A}{V_g^I} M_{aero}^I(r) \right\}_{diffusio} \\
&- f_9 \left\{ \frac{v_{gravity} A}{V_g^I} M_{aero}^I(r) \right\}_{gravity} \\
&- f_{10} \left\{ \frac{v_{convection} A}{V_g^I} M_{aero}^I(r) \right\}_{convection} \\
&+ f_{11} \{ \lambda_{resus} M_{aero-str}^I(r) \}_{resuspention} \\
&+ f_{12} \{ \lambda_{entrain}(r) M_{liq}^I \}_{entrainment} \\
&+ f_4 \left\{ \lambda_{spray} \frac{M_{aero}^I(r)}{V_g^I} \right\}_{spray}
\end{aligned} \tag{2.4.4b}$$

$$DF_{scrub} = \begin{cases} f_2 M_{out}^l / M_{in}^l & \text{gas flow into liquid} \\ 1 & \text{other flows} \end{cases}$$

また、対象とした現象群に対して、2.4.1 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 30 回とし、総計 360 (= (11+1) × 30) ケースの解析を実施し、次に示す通り、各事故進展過程における各モデルの個別影響度 e_k とモデル相関 σ_k を評価した。

$$e_k^{early} = \left| \frac{FoM1(f^l) - FoM1(f^{l-1})}{\Delta \times j} \right|$$

$$FoM1 = \Delta M_{suspended}^{early} \tag{2.4.5a}$$

$$= \left| M_{inventory}^{CS} - \sum_{i \neq ENV} \sum_{j \in gas, aerosol}^{Nc} M_{i,j}^{CS}(t = RPV fail) \right|$$

$$e_k^{middle} = \left| \frac{FoM2(f^l) - FoM2(f^{l-1})}{\Delta \times j} \right|$$

$$FoM2 = \Delta M_{suspended}^{middle} \tag{2.4.5b}$$

$$= \sum_{i \neq ENV} \sum_{j \in gas, aerosol}^{Nc} |M_{i,j}^{CS}(t = RPV fail) - M_{i,j}^{CS}(t = PCV fail)|$$

$$e_k^{late} = \left| \frac{FoM3(f^l) - FoM3(f^{l-1})}{\Delta \times j} \right|$$

$$FoM3 = \Delta M_{env}^{late} = \left| \sum_{i \neq ENV} \sum_{j \in gas, aerosol}^{Nc} M_{i,j}^{CS}(t = PCV fail) - \sum_{j \in gas, aerosol} M_{i,j}^{CS}(i = ENV, t = calc. end,) \right| \tag{2.4.5c}$$

2.4.2. 影響度評価結果

本影響度評価の結果を示すにあたり、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、使用するモデルや数値解析コード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。

解析で得られたCsの各事故進展過程における各モデルの個別影響度 e_k とモデル相関 σ_k を図 2.4.1 に示す。本解析で仮定したCs化学形は蒸気圧が低く凝縮しやすい Cs_2MoO_4 であるため、原子炉施設内ではエアロゾルとして移行するため、全事故進展過程においてエアロゾルに関する現象の影響度高い傾向となった。

圧力容器が破損するまでの事故初期では、エアロゾルの凝集、重力沈降>スクラビング>>拡散泳動>凝縮・蒸発の順に個別影響度が大きくなった。これは事故初期では、原子炉冷却系や減圧時のスクラビング効果が大きいためである。また、スクラビングではその除去効果がエアロゾルサイズに大きく依存するため、スクラビングよりもエアロゾルの凝集モデルの影響が大きくなったと考えられる。また、スクラビングで除去されなかったエアロゾルは、真空破壊弁を介してD/Wへ移行するがD/Wでの主要な除去メカニズムは、凝集によって成長したエアロゾルの重力沈降である。したがって、重力沈降の影響度が大きくなったと考えられる。一方で、本解析ではD/W内の複雑な炉内構造物を考慮していないため、壁面付近の現象である熱泳動や拡散泳動の効果を過小評価している可能性があることの注意が必要である。また、再移行挙動としては、凝集に比べて影響は小さいものの、凝縮・蒸発に次いで飛沫同伴によるエアロゾル生成の効果が大きくなった。

圧力容器破損から格納容器破損までの期間である事故中期では、事故初期と同様に、エアロゾルの凝集、重力沈降>スクラビング>>拡散泳動>凝縮・蒸発の順に個別影響度が大きくなった。この期間では、浮遊するエアロゾルの大部分がD/Wにあるため、その効果を受けたと考えられる。スクラビングの効果が大きい理由は、格納容器が破損する間にベント管を通したD/W→W/Wのスクラビングがあることに加え、圧力容器破損時点で浮遊するエアロゾル量が事故初期のスクラビング効果に依存するためである。

格納容器破損以降の事故晩期では、格納容器破損時に気相に浮遊するCs量が大きく低減しているため、個別影響度は事故初期や中期に比べて大きく減少した。影響度は、エアロゾルの凝集、重力沈降>凝縮・蒸発>スクラビングの順に大きくなった。特徴的な点として、凝縮・蒸発の効果が相対的に大きくなっている点が挙げられる。実際に各事故進展過程で、最も影響度が大きな凝集と凝縮・蒸発の影響度の相対比は、初期0.03、中期、0.03、晩期0.46である。これは、気相に浮遊するCsが十分に減少した事故晩期においては、再蒸発現象による気相への移行が重要になることを示している。実際に、2.3節の標準解析において、凝縮・蒸発の速度のみの感度解析結果を図2.4.2に示す。図2.4.2に示す通り、環境放出量に対する凝縮・蒸発速度の影響が大きいことわかる。

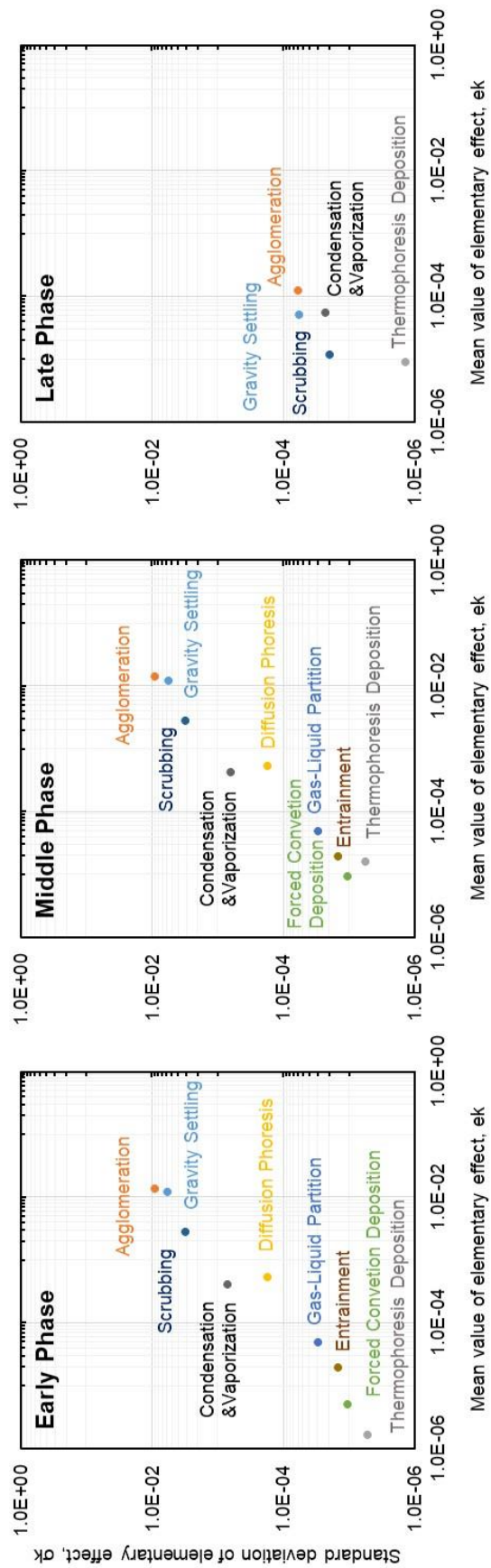


図 2.4.1 Cs ソースタームに対する各現象の個別影響

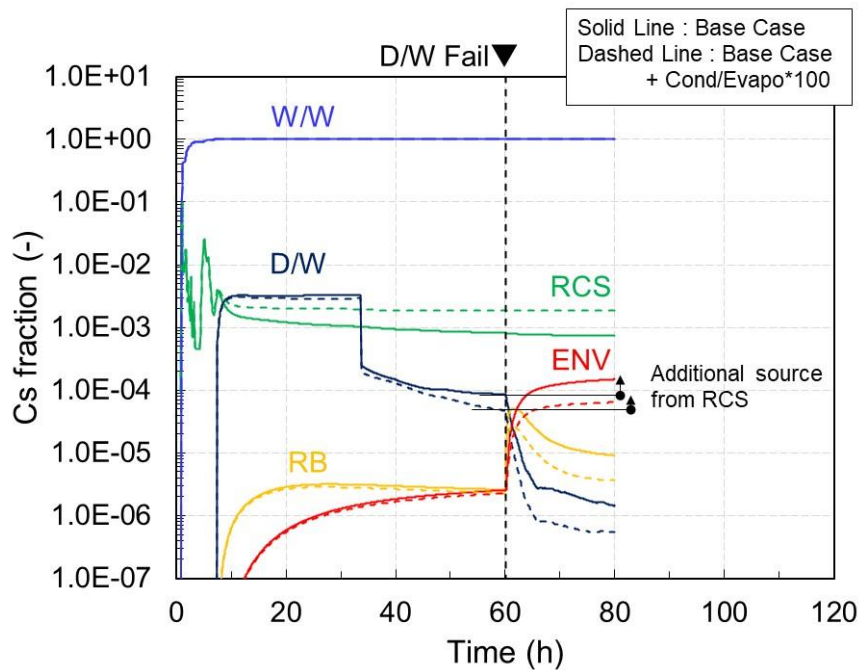


図 2.4.2 TQUV (D/W 破損) シーケンスでの Cs 移行挙動に対する凝縮・蒸発モデルの感度解析
(実線：標準解析、破線：標準解析の凝縮/蒸発速度を制限)

以上の結果と過去の影響度解析の結果[2.1, 2.2]を含めて、再移行（再浮遊、再蒸発、飛沫同伴、再揮発）を含む各移行挙動モデルの影響度を事故進展過程における主要なタイミング（環境放出開始、ベント開始等）におけるプラント内 FP 分布、FP 形態（エアロゾル等）等と関連付けて次の通り分析した。

FP 移行挙動は、“空間”、“時間”、“FP 形態” の条件により影響度の大きい現象は異なる。まず、“空間的な条件” とは移行経路の違いである。D/W 破損と格納容器ベントで移行経路に着目した影響度解析では、環境に放出された Cs 量に対する影響度は、原子炉施設から環境放出に至るまでの経路で最も環境に近い解析ノード（場所）で支配的な移行現象が大きな影響度を示した（Cs は原子施設内でエアロゾルとして移行するため、エアロゾルに関する現象の影響が大きい）。具体的には、D/W 破損ケースでは、D/W→建屋→環境への放出経路となるため、D/W や建屋での浮遊 FP 量を低減させる現象の影響度が高くなった：熱泳動>重力沈降、凝集>スクラビング>>その他現象。一方で、PCV ベントでは、W/W からスタックを通して環境へ放出されるため、W/W で浮遊 FP 量を低減する現象の影響度が高くなった：スクラビング、重力沈降>>飛沫同伴、凝集、熱泳動。またこれらの結果は、再移行挙動はその他移行現象に比べ環境放出する“積算”量に対する影響度が比較的小さいことを同時に示している。

また、“時間”に関する影響を評価するために、環境に放出に直接的に寄与する気相に浮遊する Cs 量に対する影響度指標を用い事故初期、中期、晩期で確認した。その結果、事故進展過程に寄らず、重力沈降、凝集、スクラビングの影響が大きいことが示された。一方で、影響度は小さいものの、再移行挙動の一つである再蒸発の影響度が事故晩期において相対的に増加していることが示された。

2.5. 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、同移行モデルを有する半経験論 FP 移行挙動解析コード ART を用いたソースタームに対する影響度解析（Morris 法）を実施し、影響の大きな現象を検討した。なお本年度の影響度解析では、事故進展過程に伴って影響度の大きな現象がどのように変化にするかに着目している。本解析結果及び過去に実施した影響度解析の結果の分析から以下の知見を得た。

- 環境放出総量に対する影響度は、放出経路に大きく依存しており、環境に最も近い場所（D/W、W/W や建屋）で支配的な移行モデルが高くなる。
- Cs の環境放出総量に対する、再移行モデルの影響はその他の重力沈降や凝集、スクラビングモデルに対して小さい。
- Cs について、事故進展過程に着目した場合、事故晩期では、事故初期や中期に比べて、再移行モデルの一つである再蒸発の影響度が相対的に大きくなる。

したがって、公衆に対する被ばくに対する影響を考慮する上では、再移行挙動（再浮遊、再蒸発、飛沫同伴、再揮発）の内、再蒸発挙動が重要であると考えられる。一方で、本解析で取り扱った再蒸発挙動は、熱的のみであり、化学的な再蒸発のモデルを含まないため、その不確かさを含有している。したがって、今後化学的な再蒸発に対するモデル開発やそれら実験の実施と検証が必要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] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 3 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」、2022.
- [2.3] G.E. Wilson and B.E. Boyack, “The role of the PIRT process in experiments, code development and code applications associated with reactor safety analysis,” Nucl. Eng. Des., Vol. 186, 1-2, 23-37, 1998.
- [2.4] N. Sakai et. al., “Validation of MAAP model enhancement for Fukushima Dai-ichi accident analysis with Phenomena Identification and Ranking Table (PIRT),” J. Nucl. Sci. Technol., Vol.

51, 7-8, 951-963, 2014.

- [2.5] 一般社団法人 日本原子力学会 「シビアアクシデント評価」研究専門委員会、「シビアアクシデント評価に関する調査研究報告書（中間報告）」、2013.
- [2.6] S. Suehiro et. al., “Development of the source term PIRT based on findings during Fukushima Daiichi NPPs accident,” Nucl. Eng. Des., 286, 163-174, 2015.
- [2.7] D. Magallon et. al., “European expert network for reduction of uncertainties in severe accident safety issues,” Nucl. Eng. Des., 235, 309-346, 2005.
- [2.8] W. Kein-Heßling et. al., “Conclusions on severe accident research priorities,” Ann. Nucl. Energy, 85, 4-11, 2014.
- [2.9] 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.
- [2.10] T. Ishigami, et al., “User’s manual of ART code for analyzing fission product transport behavior during core meltdown accident.” JAERI-M. 1988.
- [2.11] F. Gelbard, JH. Seinfeld, “Simulation of multicomponent aerosol dynamics.” J Colloid Interface Sci. 1980;78:485–501.
- [2.12] L. Talbot, et al., “Thermophoresis of particles in a heated boundary layer.” J Fluid Mech. 2006/04/19. 1980;101:737–758.
- [2.13] WC. Hinds, “Aerosol Technology.” New York: John Wiley & Sons; 1982.
- [2.14] PG. Gormley, M. Kennedy, “Diffusion from a Stream Flowing through a Cylindrical Tube.” Proceedings of the Royal Irish Academy. 1949. p. 163–169.
- [2.15] NB. Wood, “A simple method for the calculation of turbulent deposition to smooth and rough surfaces.” J Aerosol Sci. 1981;12:275–290.
- [2.16] GN. Nguyen, SK. Loyalka., “A Numerical Solution of the Reeks-Hall Equation for Particulate Concentration in Recirculating Turbulent Fluid Flow.” Nucl Technol. 2017;190:161–173.
- [2.17] WK. Lewis, WG. Whitman, “Principles of Gas Absorption.” Ind Eng Chem. 1924;16:1215–1220.
- [2.18] AK. Postma, et al., “Models for Predicting the Removal of Airborne Contaminants by Reactor Containment Sprays”, BNWL-B-417 (1975).
- [2.19] J.Vendel, et. al. “Lessons learnt over 30 years of air filtration in the nuclear industry”, Journal of Physics, 170, 012026, (2009)
- [2.20] PC. Owczarski, KW. Burk, “SPARC-90: A Code for Calculating Fission Product Capture in Suppression Pools,” NUREG/CR-5765, PNL-7723 (1991).
- [2.21] H. Luissier, E. Villermaux, “Bursting bubble aerosols”, J. Fluid Mech., 696, 5-44, 2012.
- [2.22] MK. Koch et.al., “Radionuclide re-entrainment at bubbling water pool surfaces”, J. Aerosol

Sci., 31, 1015-1028, 2000.

- [2.23] NA. Fuchs, AG. Sutugin, "HIGH-DISPERSED AEROSOLS." Topics in Current Aerosol Research. 1971;1.
- [2.24] M. Khairul Alam, RC. Flagan "Simultaneous homogeneous nucleation and aerosol growth." J Colloid Interface Sci. 1984;97:232–246.
- [2.25] EC. Beahm et. al., "Iodine evolution and pH control," NUREG/CR-5950 ORNL/TM-12242, 1992.
- [2.26] LE. Herranz et. al., "Benchmarking LWR codes capability to model radionuclide deposition within SFR containments: An analysis of the Na ABCOVE tests," Nucl. Eng. Design, 265, 772-784, 2013.
- [2.27] J. Cardoni and Z. Jankovsky, "Fukushima Daiichi Radionulides Inventories," SANDIA REPORT SAND2016-9065R, 2016.
- [2.28] M.D. Morris, "Factorial Sampling Plans for Preliminary Computational Experiments", technometrics, 33, 2, 161-174, 1991.
- [2.29] 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 3 年度の加熱試験では、水蒸気雰囲気下よりも 1%酸素を含んだ水蒸気雰囲気下で、より多く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[3.4]。この移行促進現象の要因としては、モリブデンだけでなく酸素への影響もあることが分かったが、酸素の効果を示す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、移行促進の駆動力として可能性がある酸素の影響を明らかにするためモリブデンを含まない系での 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。

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) のみを供試材とし、ヨウ化セシウムと水蒸気および酸素と反応させ、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。そして、これまで行ってきたモリブデンや酸素を含む系と含まない系での実験結果を比較することで、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]

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 4 年度は、令和 3 年度と同様、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を設置し、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 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$) 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%）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。なお、比較のために表 3.1 及び表 3.2 には、令和 2 年度及び令和 3 年度に実施したモリブデンや酸素を含む系と含まない系での加熱条件も示す[3.4,3.5]。ヨウ化セシウム粉末約 1.3 g を、電気抵抗炉を 1273 K まで加熱した場合の約 1190 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）として加熱実験（CsI 実験②：1 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℃の水蒸気を含むアルゴン（Ar）-酸素 1%（Ar-1%O₂）ガスフロー（2 L/min）の 1 条件とした。

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及びヨウ素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カーボン（約 10 mm²）及び焼結金属フィルタと PTFE（polytetrafluoroethylene）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 実験①、CsI 実験②、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、図 3.6、図 3.7 及び図 3.8 に示す。サンプリング管の沈着物等による重量変化は、今年度実施した CsI 実験②以外は、1000 K 以上（温度勾配管入り口からの位置：< 0 mm）で高温にな

るほど大きくなっている。CsI 実験②でも、外観からは温度が高くなるほどサンプリング管表面の酸化は激しくなっていた。そのため、1000 K 以上（温度勾配管入り口からの位置：< 0 mm）で見られた重量減少は、おそらく、TeRRa の電気抵抗炉からサンプリング管を取り出す際に、酸化により発生する剥離した酸化被膜を落とすなどしてすべて回収しきれなかった可能性がある。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②以外においては、800~950 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ほとんどなく、焼結金属フィルタでは、最も重量変化が大きくなった。

(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 実験①、CsI 実験②、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 3.9、図 3.10、図 3.11 及び図 3.12 に示す。CsI+MoO₃ 実験②以外は、約 1100 K（温度勾配管入り口からの位置：-50 mm）及び 800~950 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 800~950 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 CsI 実験及び CsI+MoO₃ 実験に対して、それぞれ表 3.3 及び表 3.4 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、酸素の有無にかかわらずセシウム、ヨウ素、共に大部分が焼結金属フィルタまでに分布しヨウ素の低温部への移行はほとんど起こらなかった。一方、CsI+MoO₃ 実験については、CsI+MoO₃ 実験①において、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管への分布が多かったが、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においては、セシウム、モリブデンの分布はよく似ており、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、

温度勾配管のサンプリング管までの分布は微量で、大部分は配管内に沈着する結果を示した。また、図 3.13 に示すように下流チューブも黄色～茶色に変色したことから、下流の低温領域に移行しやすくなることが示された。

(3) サンプリング管等への沈着物の微細組織、元素分布

CsI 実験①、CsI 実験②、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（クーポン）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図 3.14～図 3.17 に示す。

CsI 実験①、CsI 実験②、何れにおいても 1150 K（温度勾配管入り口からの位置：-65 mm）におけるセシウム及びヨウ素を含む沈着物については、元素量の測定結果（図 3.9 及び図 3.10）からより多くの存在が示唆されたが、観察されなかった。一方、CsI 実験①では、880 K（温度勾配管入り口からの位置：390 mm）、740 K（温度勾配管入り口からの位置：660 mm）、450 K（温度勾配管入り口からの位置：1260 mm）の何れにおいても、セシウム及びヨウ素を含む球状の沈着物が観察されたのに対し、CsI 実験②では、450 K（温度勾配管入り口からの位置：1260 mm）のみであった。その代わりに、図 3.18 に示すようにクーポンの端部において、局所的に分布するヨウ素の凝集体が見ついている。これら凝集体の様相の違いについては、CsI 実験①と CsI 実験②におけるエアロゾル粒子の密度に起因していることも考えられる[3.6]が、この凝集体には、図 3.19 に示すようにほとんどセシウムが含まれておらず銅と共存している可能性が高いことが分かった。したがって、クーポン端部で見つかったヨウ素を含有した凝集体は、エアロゾル粒子の密度の違い（CsI 実験①よりも CsI 実験②では気相中のエアロゾル密度が低かったことにより、デンドライト成長が起りやすくなった）以外に、今回使用したクーポンに含まれる銅の濃度がたまたま高く、ヨウ化銅の生成に起因して出現した可能性もあると考えられた。

CsI+MoO₃ 実験①においては、1150 K（温度勾配管入り口からの位置：-65 mm）でモリブデンを含む球状の沈着物が観察されたが、セシウムとヨウ素を含む沈着物は観察されなかった。880 K（温度勾配管入り口からの位置：390 mm）、740 K（温度勾配管入り口からの位置：660 mm）、450 K（温度勾配管入り口からの位置：1260 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観察されており、高温になるほど粒径が大きくなった。これらの様相は、CsI 実験①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。一方で、モリブデンは、880 K（温度勾配管入り口からの位置：390 mm）において、一部セシウムと似た分布を示しているところが見ついているが、他の温度領域ではセシウム及びヨウ素とはほとんど共存していない。したがって、大部分は酸化モリブデンのエアロゾル粒子の沈着挙動に起因しているものと考えられる。CsI+MoO₃ 実験②においては、1150 K（温度勾配管入り口からの位置：-65 mm）、740 K（温度勾配管入り口からの位置：660 mm）、450 K（温度勾配管入り口からの位置：1260 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、球状の沈着物が観察されたが、全ての温度でヨウ素はほとんど観察されなかった。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モリブデンを含む微細な粒子が見られている。一方、金属リボンではヨウ素を含む数 10 μm の沈着物が観察されている。

これらの様相は、CsI+MoO₃実験①とは異なり、1150 K（温度勾配管入り口からの位置：-65 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。

(4) サンプリング管等への沈着物の結晶構造及び分子構造

CsI 実験①、CsI 実験②、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3.20、図3.21、図3.22及び図3.23に示す。CsI 実験①においては、840 K（370 mm）以下においてヨウ化セシウムに起因するピークが得られたのに対し、CsI 実験②においては、微細組織観察の結果と整合するように700 Kから900 Kの温度領域においては得られず、500 K（1050 mm）以下においてヨウ化セシウムに起因するピークが得られた。CsI+MoO₃ 実験①においては、1150 K（温度勾配管入り口からの位置：-65 mm）で二酸化モリブデン（MoO₂）に起因するピーク、880 K（温度勾配管入り口からの位置：390 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+MoO₃ 実験②においては、ヨウ化セシウムに起因するピークはほとんど得られず、金属フィルタにおいて、モリブデン酸セシウムの存在を示唆するピークが得られた。

CsI+MoO₃ 実験②の450 K（温度勾配管入り口からの位置：1260 mm）において見つかったモリブデン酸セシウム（Cs₂Mo₃O₁₀及びCs₂Mo₄O₁₃）のラマンスペクトルを図3.24に示す。CsI+MoO₃ 実験②では、ラマン分光測定によりモリブデン酸セシウムのCs₂Mo₃O₁₀やCs₂Mo₄O₁₃の生成が確認されたが、表3.2に示しているようにCsI+MoO₃ 実験②では、MoO₃とCsIの蒸発速度がモル比で約2倍の条件で行っていること、表3.4に示す沈着割合では、電気抵抗炉のサンプリング管のところ以外は、ほぼ同じ沈着割合を示していることなどから、今回見つかった組成のモリブデン酸セシウムが生成したと考えられる。そのほか、CsI 実験②のクーポン端部において見つかったヨウ素の凝集体やCsI+MoO₃ 実験②において700 Kを超える温度領域で見ついているモリブデン酸セシウムについても、ラマン分光測定を実施しているが同定には至っていない。モリブデン酸セシウムについては、同定できない原因としてモリブデン酸セシウムの多くが低融点（Cs₂Mo₂O₇: 725 K、Cs₂Mo₃O₁₀: 806K、Cs₂Mo₅O₁₆: 813 K）であることと関係している可能性があるため、今後、様々なモリブデン酸セシウムを調製し、融点を越える温度まで上げたモリブデン酸セシウムを急冷するなどして、今回見つかった未同定のラマンスペクトルを明らかにしていくことを考えている。

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及び水蒸気-酸素雰囲気下での CsI 実験②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あるいは酸素と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ステンレス鋼に凝縮して沈着、または、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。一方、水蒸気-酸素雰囲気下での CsI+MoO₃ 実験②の結果より、1150 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モリブデン酸セシウムが生成し、下流側への移行に伴いステンレス鋼に凝縮して沈着、または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 実験や CsI+MoO₃ 実験より、以下の結論を得た。

- I. CsI 実験①及び CsI 実験②により酸素ポテンシャルが高い雰囲気だけでは、ヨウ素の低温部への移行はほとんど起こらない。
- 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、例えば、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、揮発性のヨウ素が生成し、下流側へ移行しやすくなる。



そのため、揮発性ヨウ素の生成のためには、モリブデンが 6 価である三酸化モリブデンが還元されない高い酸素ポテンシャルが必要になると考えられた。なお、水蒸気雰囲気下での CsI+MoO₃ 実験①でも、セシウムとモリブデンの分布からモリブデン酸セシウムの生成が示唆されているが、水素をほとんど含まない水蒸気雰囲気下であれば、モリブデンが 6 価のまま還元されない高い酸素ポテンシャルを維持することは可能である。そのため、水蒸気雰囲気下での CsI+MoO₃ 実験①でも、ステンレス鋼製のサンプリング管の酸化による水素発生が少なくなる試験の終盤にモリブデン酸セシウムが生成した可能性はあると考えられる。一方で、実際の燃料中に生成するセシウム、モリブデン及びヨウ素の生成割合、すなわち、Cs : Mo : I = ~10 : ~10 : ~1 に近い組成で燃料から放出された場合、揮発性ヨウ素の生成に関与するモリブデンがセシウムとの反応に大部分消費され、揮発性ヨウ素の生成に影響を与える恐れがある。そのため、高酸素ポテンシャルにおいても、実際に想定されるセシウム、モリブデン及びヨウ素の生成割合に近い組成で燃料から放出された場合、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。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、高酸素ポテンシャル雰囲気かつ燃料中の生成割合に近い組成でセシウム、モリブデン及びヨウ素

を蒸発させた場合の揮発性ヨウ素の生成に関するデータ取得等、実験データの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] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 3 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」、2022.
- [3.5] 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.
- [3.6] 上羽牧夫、斎藤幸夫、「デンドライト 酔歩から秩序が生まれる フラクタル凝集とデンドライト成長」*バウンダリー* 6 (1990) 26-31.

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の高温化学反応を想定した加熱実験条件

		CsI 実験① [3.5]	CsI 実験②
試料	化合物 装荷重量 (g)	CsI 1.3	CsI 1.3
試料加熱	試料装荷位置：温度勾配管からの距離 (mm)	CsI : 226 (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 : 1190)	
	昇温速度 (K/min)	10	
	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 : 1.9×10^{-7}	CsI : 1.6×10^{-7}
温度勾配管 加熱	サンプリング管寸法	内径 39.4 × 100 mm : 13 本	
	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条件

		CsI+MoO ₃ 実験① [3.4]	CsI+MoO ₃ 実験② [3.4]
試料	化合物 装荷重量 (g)	CsI 1.3 MoO ₃ 1.3	CsI 1.3 MoO ₃ 1.3
試料加熱	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 : 1190、MoO ₃ : 1160)	
	昇温速度 (K/min)	10	
	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 : 1.9×10^{-7} MoO ₃ : 3.4×10^{-7}	CsI : 2.1×10^{-7} MoO ₃ : 4.4×10^{-7}
	Mo/Cs : 実験結果からの推定値	1.8	2.1
温度勾配管加熱	サンプリング管寸法	内径 39.4 × 100 mm : 13 本	
	最高温度 (K)	1000	
	最低温度 (K)	400	
	温度分布	線形	

表 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 実験① [3.5]	CsI 実験②	
Cs	サンプリング管 (電気抵抗炉)	0.21	0.57
	サンプリング管 (温度勾配管)	0.71	0.38
	焼結金属フィルタ等	0.00	0.00
	配管内 (金属フィルタ-ガス捕集瓶間)	0.08	0.05
	ガス捕集瓶	0.00	0.00
I	サンプリング管 (電気抵抗炉)	0.21	0.57
	サンプリング管 (温度勾配管)	0.70	0.38
	焼結金属フィルタ等	0.00	0.00
	配管内 (金属フィルタ-ガス捕集瓶間)	0.09	0.04
	ガス捕集瓶	0.00	0.00

表 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沈着割合

		CsI+MoO ₃ 実験①	CsI+MoO ₃ 実験②
		[3.4]	[3.4]
Cs	サンプリング管 (電気抵抗炉)	0.17	0.39
	サンプリング管 (温度勾配管)	0.58	0.14
	焼結金属フィルタ等	0.17	0.39
	配管内 (金属フィルターガス捕集瓶間)	0.08	0.08
	ガス捕集瓶	0.00	0.00
I	サンプリング管 (電気抵抗炉)	0.13	0.00
	サンプリング管 (温度勾配管)	0.53	0.04
	焼結金属フィルタ等	0.14	0.17
	配管内 (金属フィルターガス捕集瓶間)	0.10	0.57
	ガス捕集瓶	0.11	0.22
Mo	サンプリング管 (電気抵抗炉)	0.71	0.51
	サンプリング管 (温度勾配管)	0.11	0.14
	焼結金属フィルタ等	0.14	0.34
	配管内 (金属フィルターガス捕集瓶間)	0.04	0.01
	ガス捕集瓶	0.01	0.00

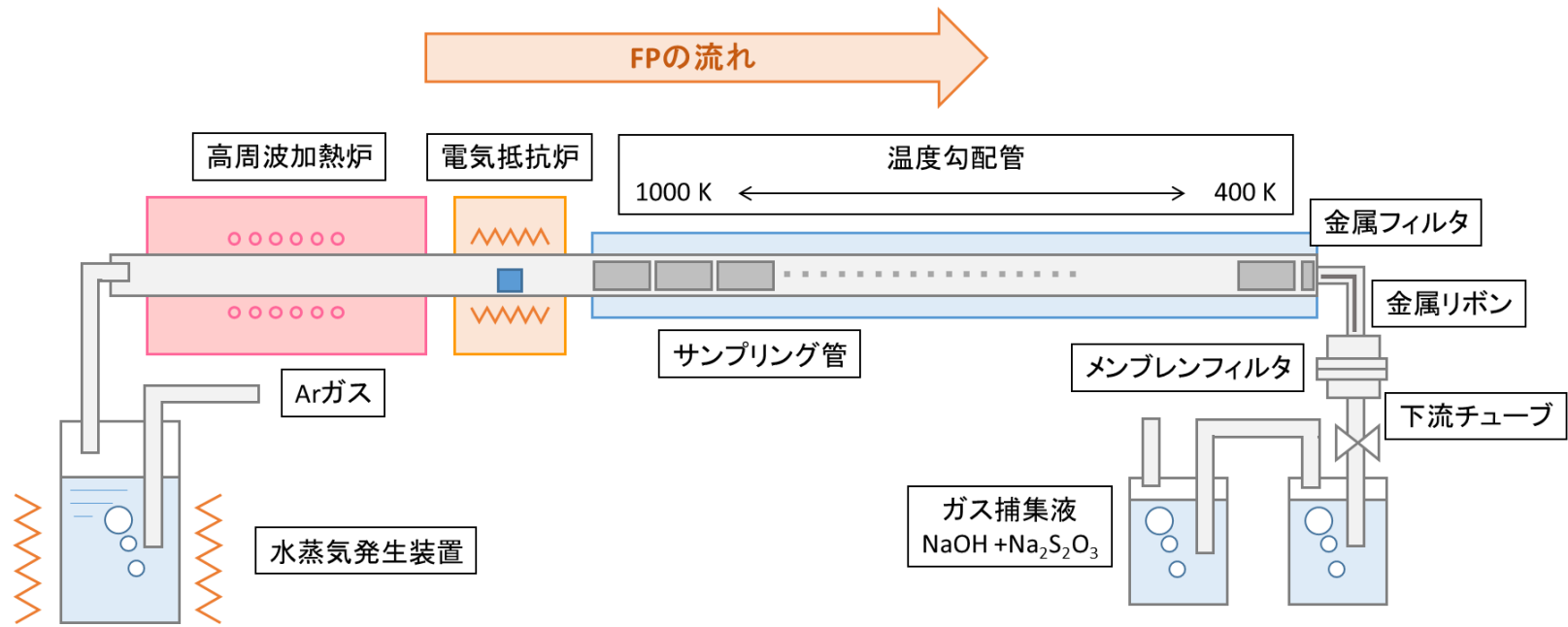


図 3.1 FP 放出移行挙動再現実験装置 (TeRRa) 模式図

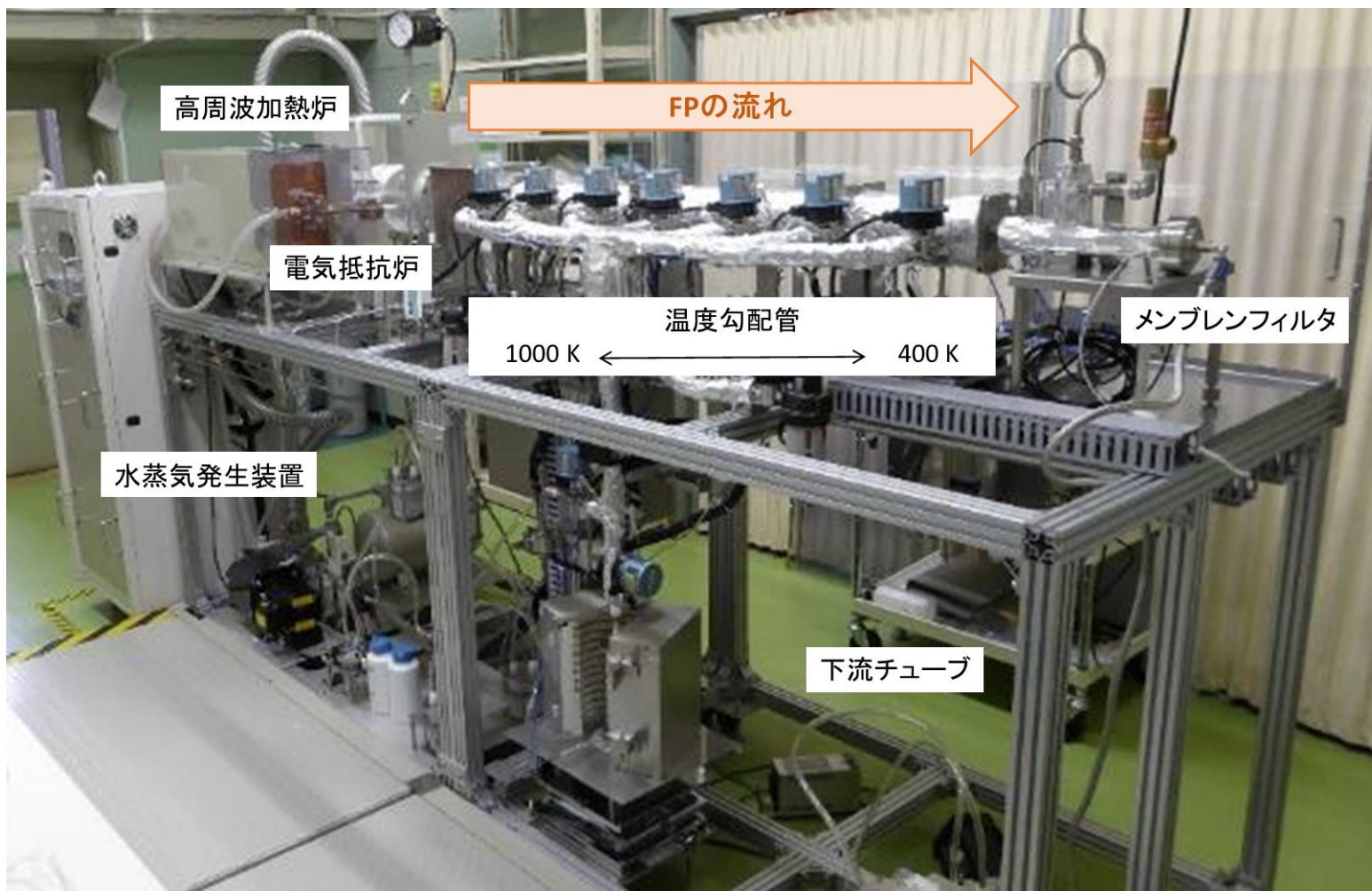


図 3.2 FP 放出移行挙動再現実験装置 (TeRRa) 外観写真

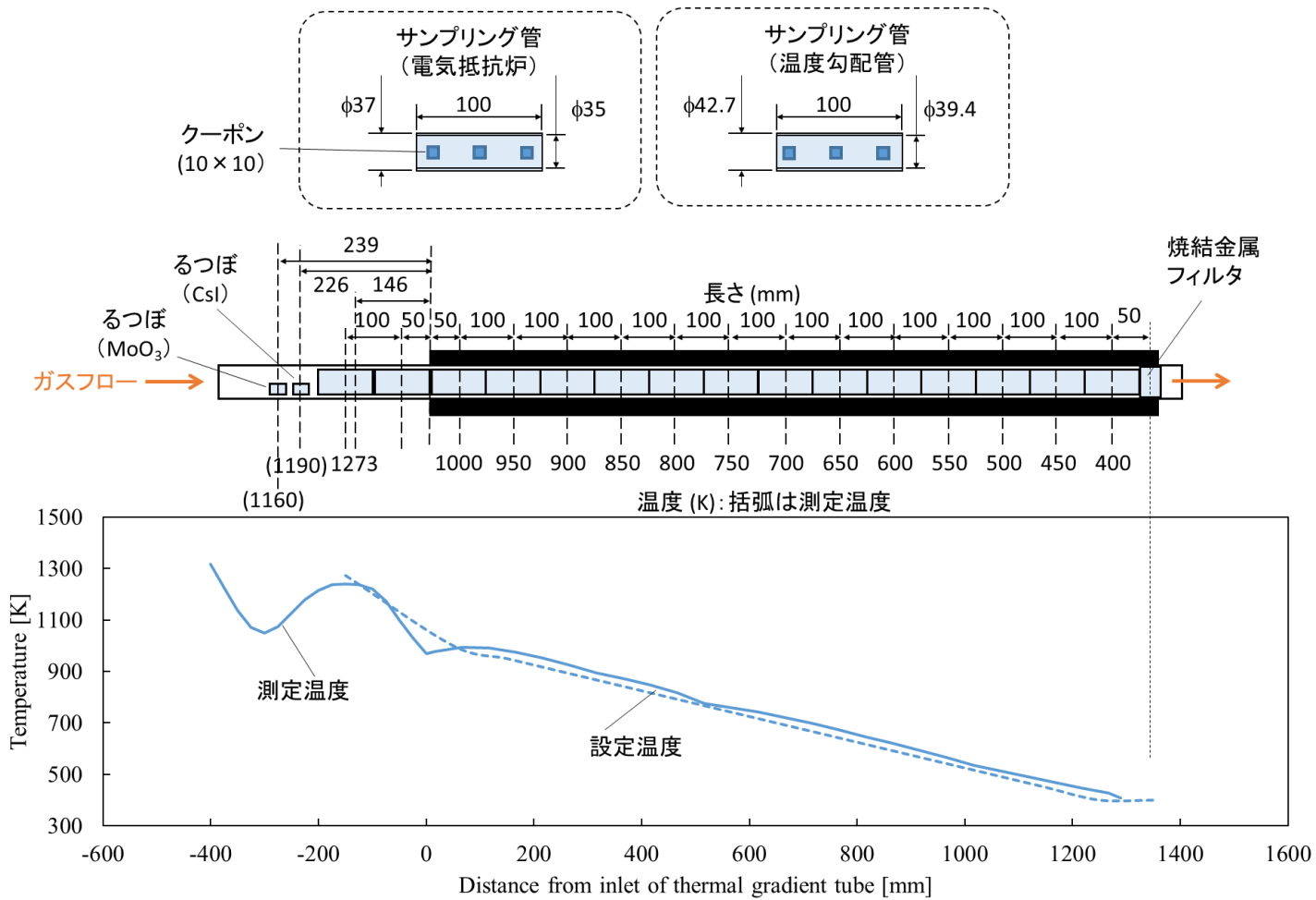


図 3.3 水蒸気雰囲気及び水蒸気-酸素雰囲気における
 ヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の高温化学反応を想定した加熱実験の加熱体系

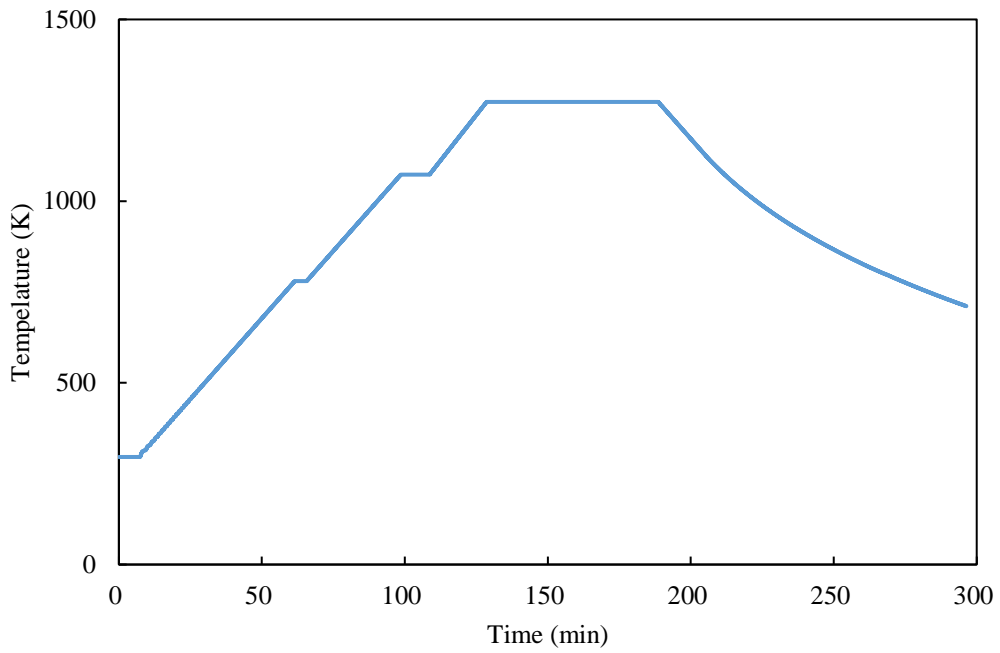


図 3.4 水蒸気雰囲気及び水蒸気-酸素雰囲気における
 ヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の高温化学反応を想定した
 加熱実験における電気抵抗炉の加熱温度履歴

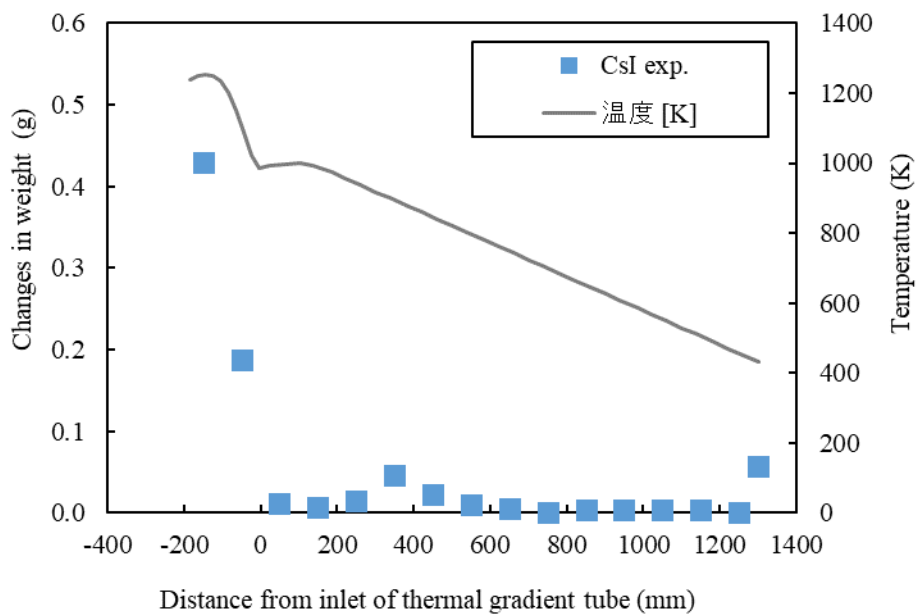


図 3.5 CsI 実験①におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化[3.5]

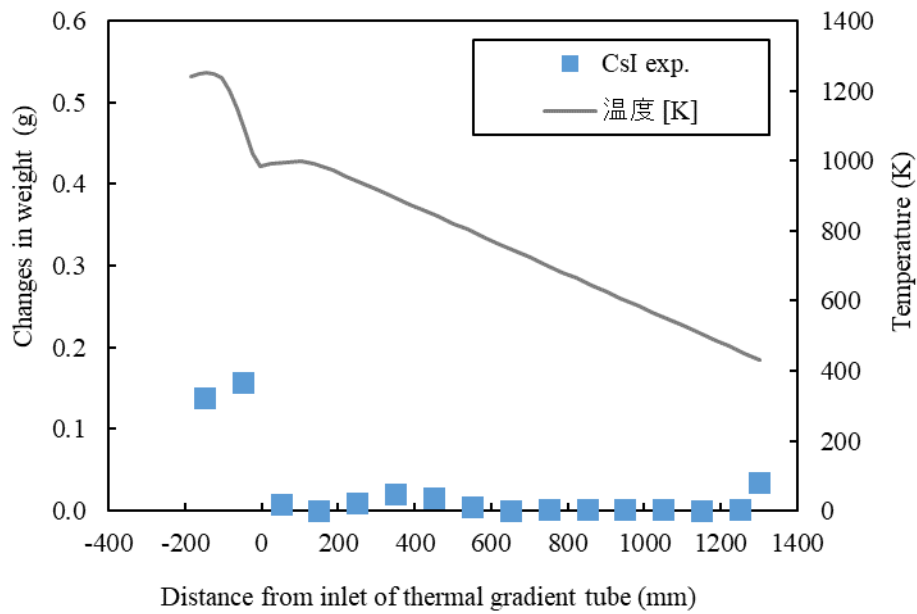


図 3.6 CsI 実験②におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化

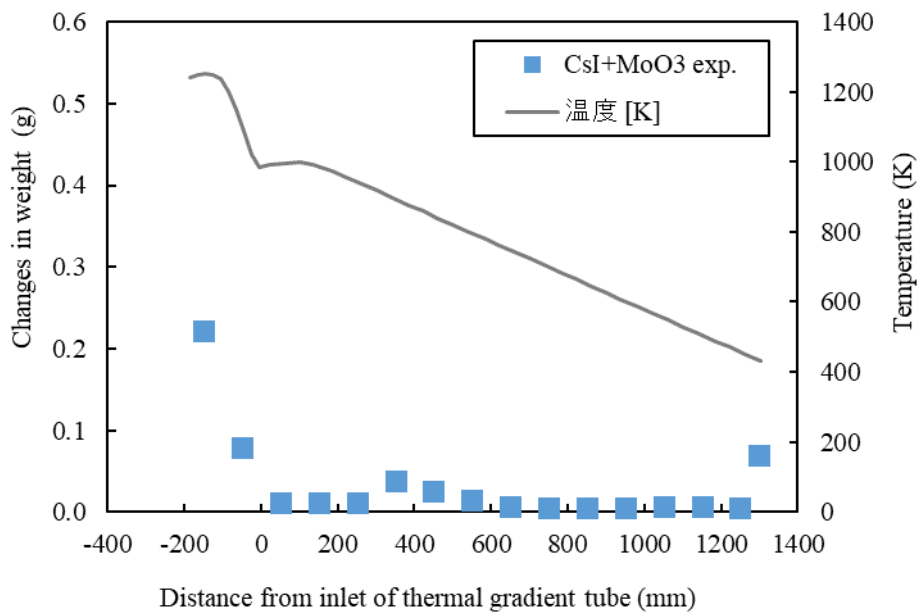


図 3.7 CsI+MoO₃ 実験①におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化[3.4]

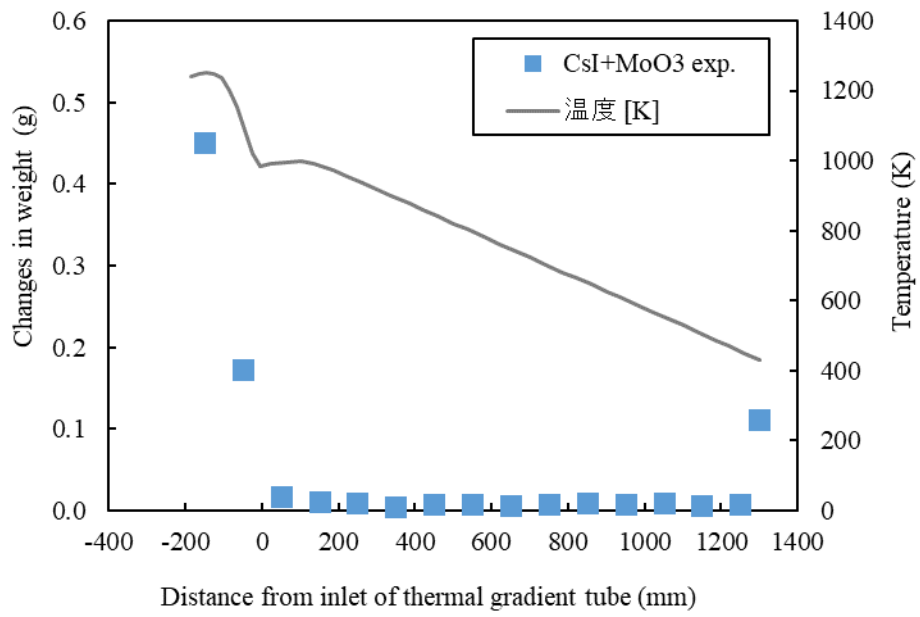


図 3.8 CsI+MoO₃ 実験②におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化[3.4]

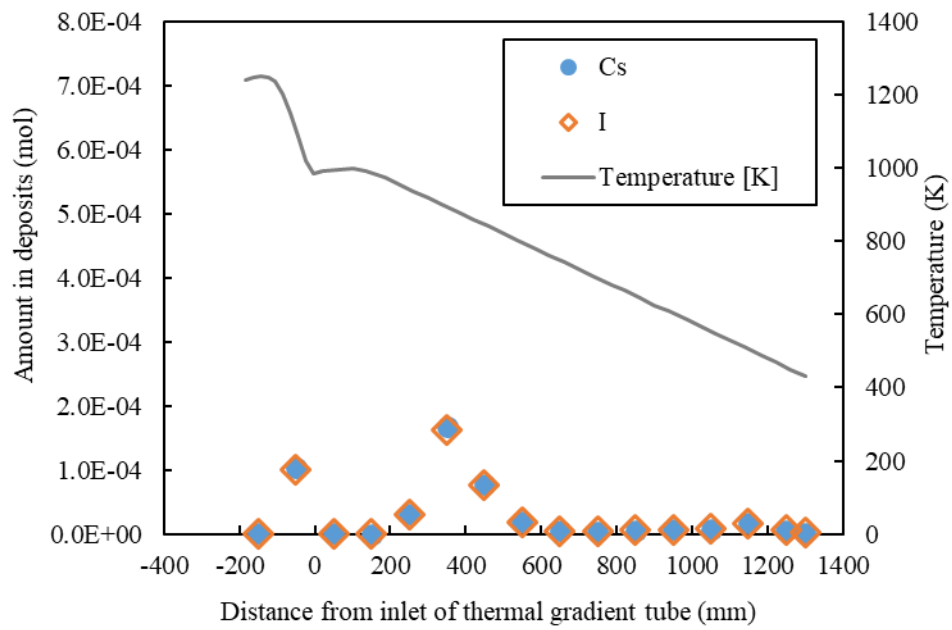


図 3.9 CsI 実験①におけるサンプリング管等への沈着物中のセシウム及びヨウ素元素量[3.5]

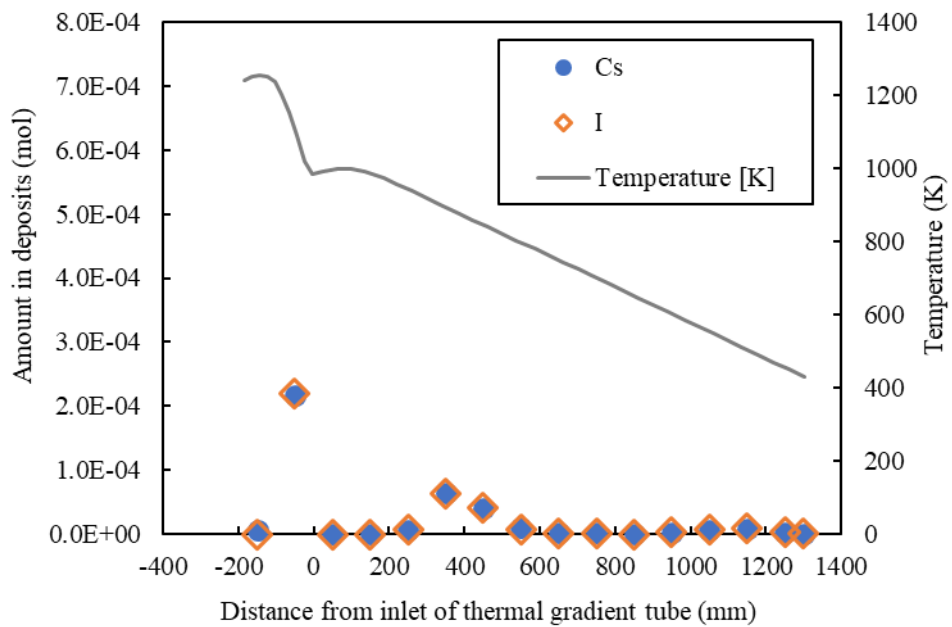


図 3.10 CsI 実験②におけるサンプリング管等への沈着物中のセシウム及びヨウ素元素量

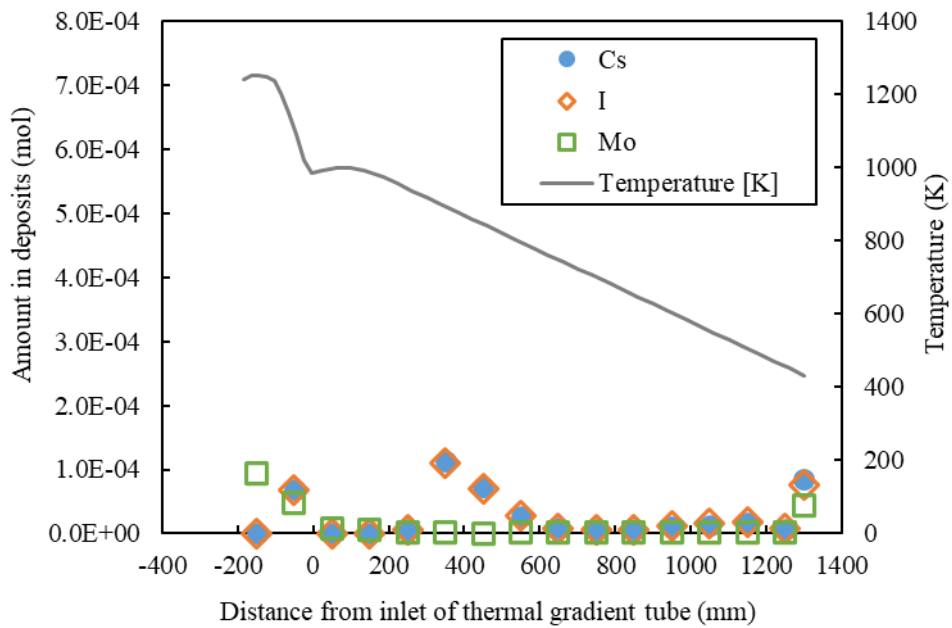


図 3.11 CsI+MoO₃ 実験①におけるサンプリング管等への沈着物中のセシウム、ヨウ素及びモリブデン元素量[3.4]

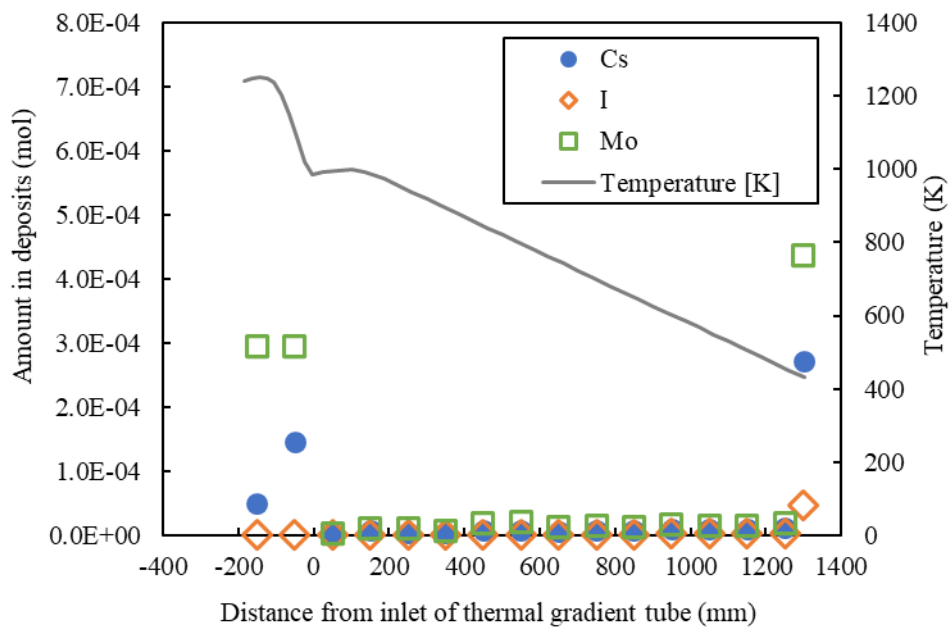
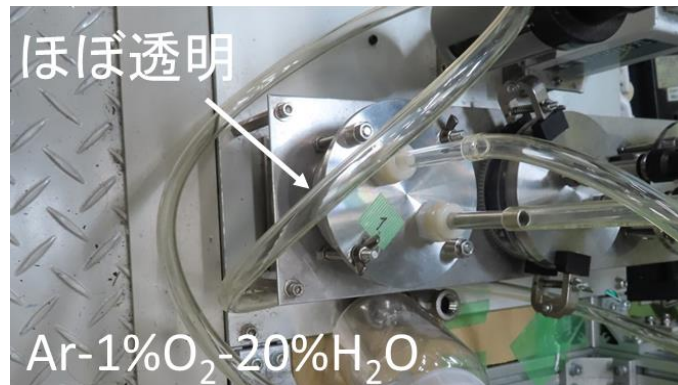
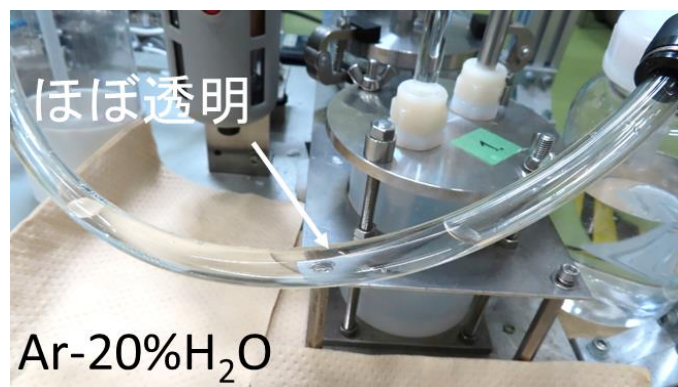


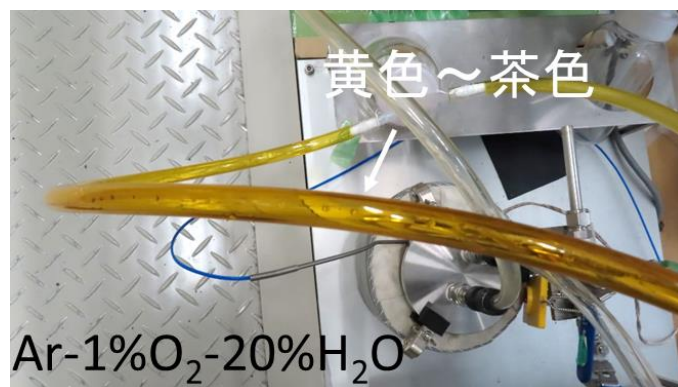
図 3.12 CsI+MoO₃ 実験②におけるサンプリング管等への沈着物中のセシウム、ヨウ素及びモリブデン元素量[3.4]



Cs I 実験②



CsI+MoO₃ 実験①



CsI+MoO₃ 実験②

図 3.13 Cs I 実験②、CsI+MoO₃ 実験①及び CsI+MoO₃ 実験②における下流チューブの外観

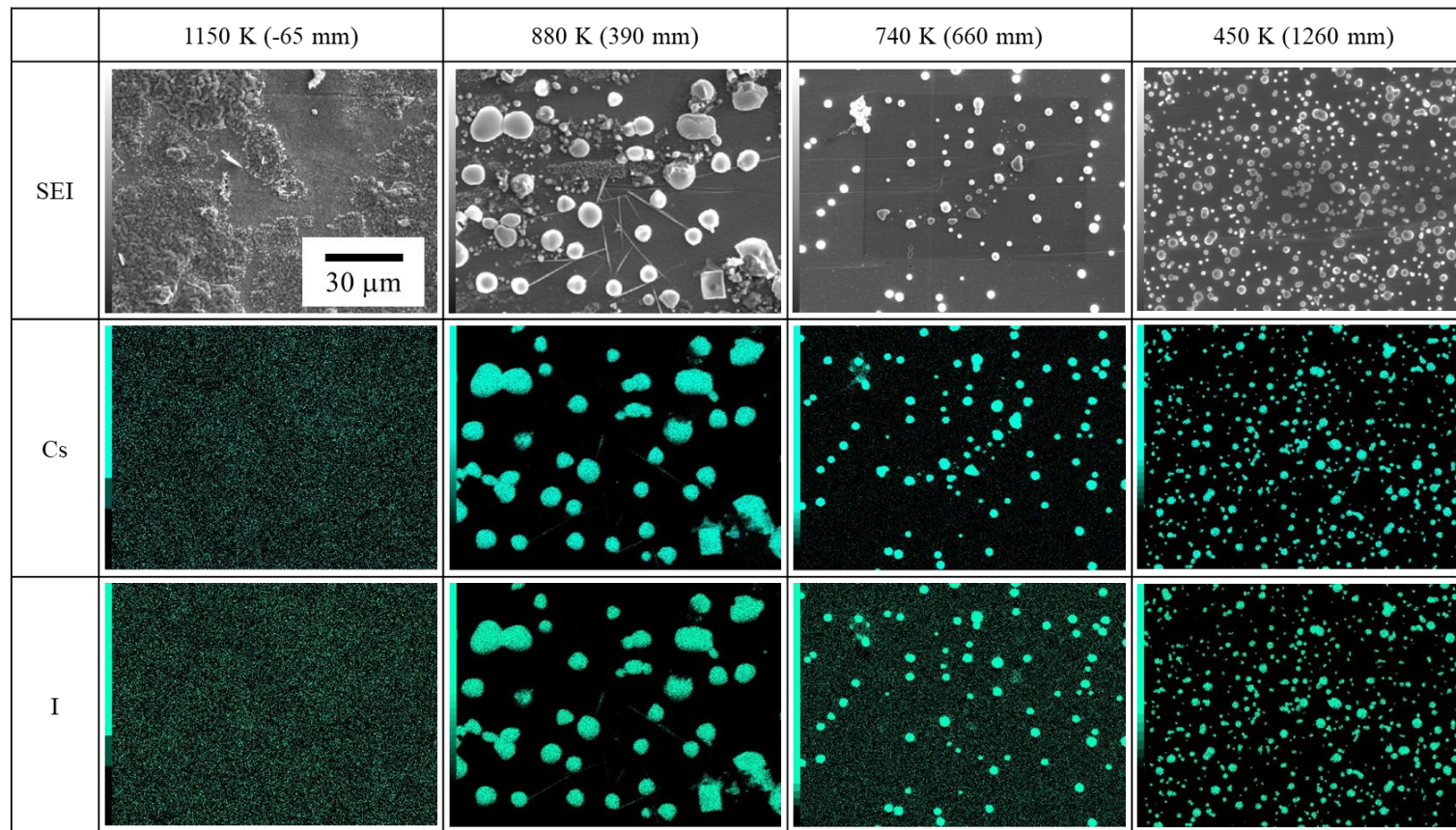


図 3.14 Cs I 実験①におけるサンプリング管（クーポン）沈着物の二次電子像及びセシウム、ヨウ素の分布[3.5]

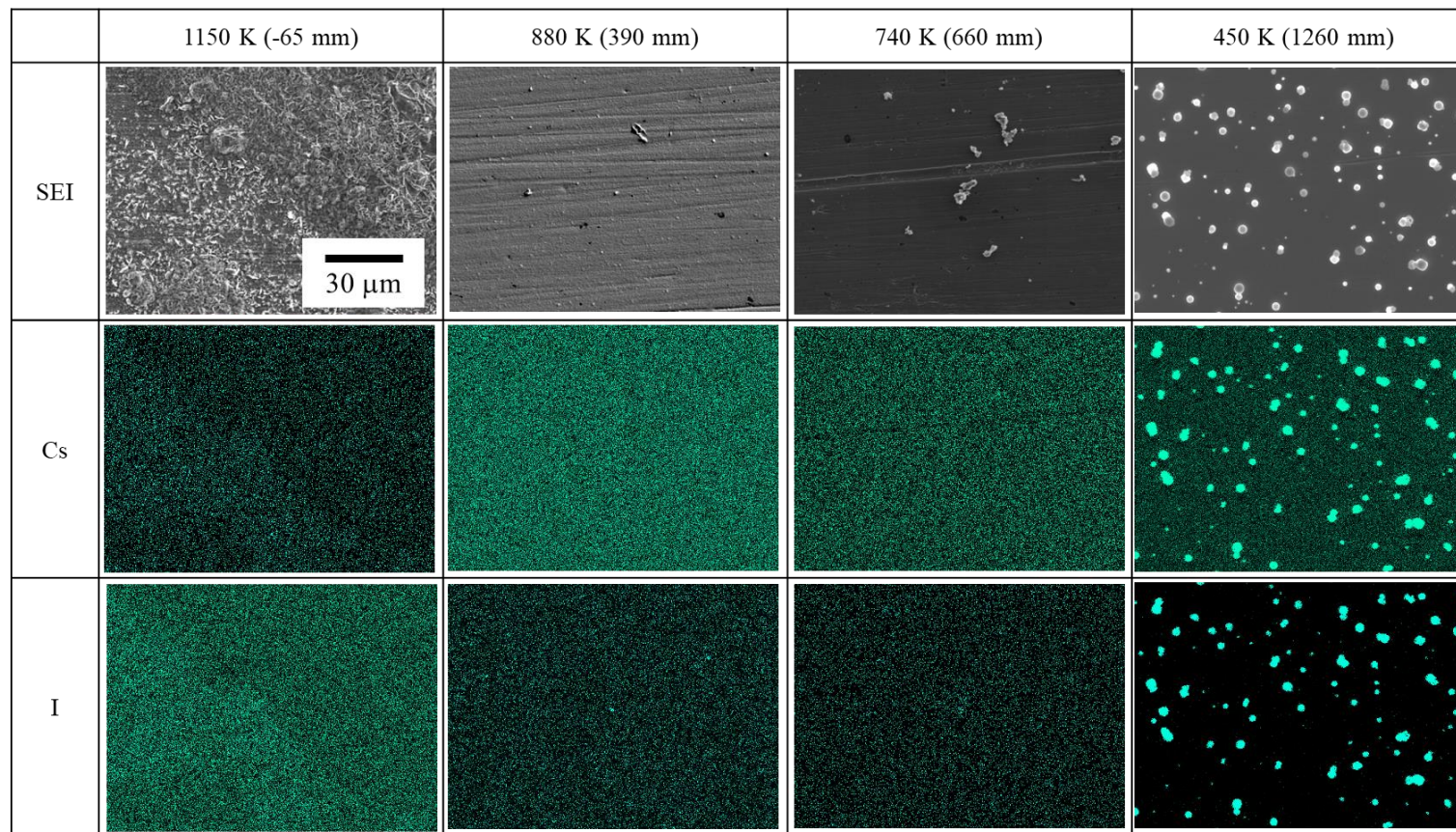


図 3.15 CsI 実験②におけるサンプリング管（クーポン）沈着物の二次電子像及びセシウム、ヨウ素の分布

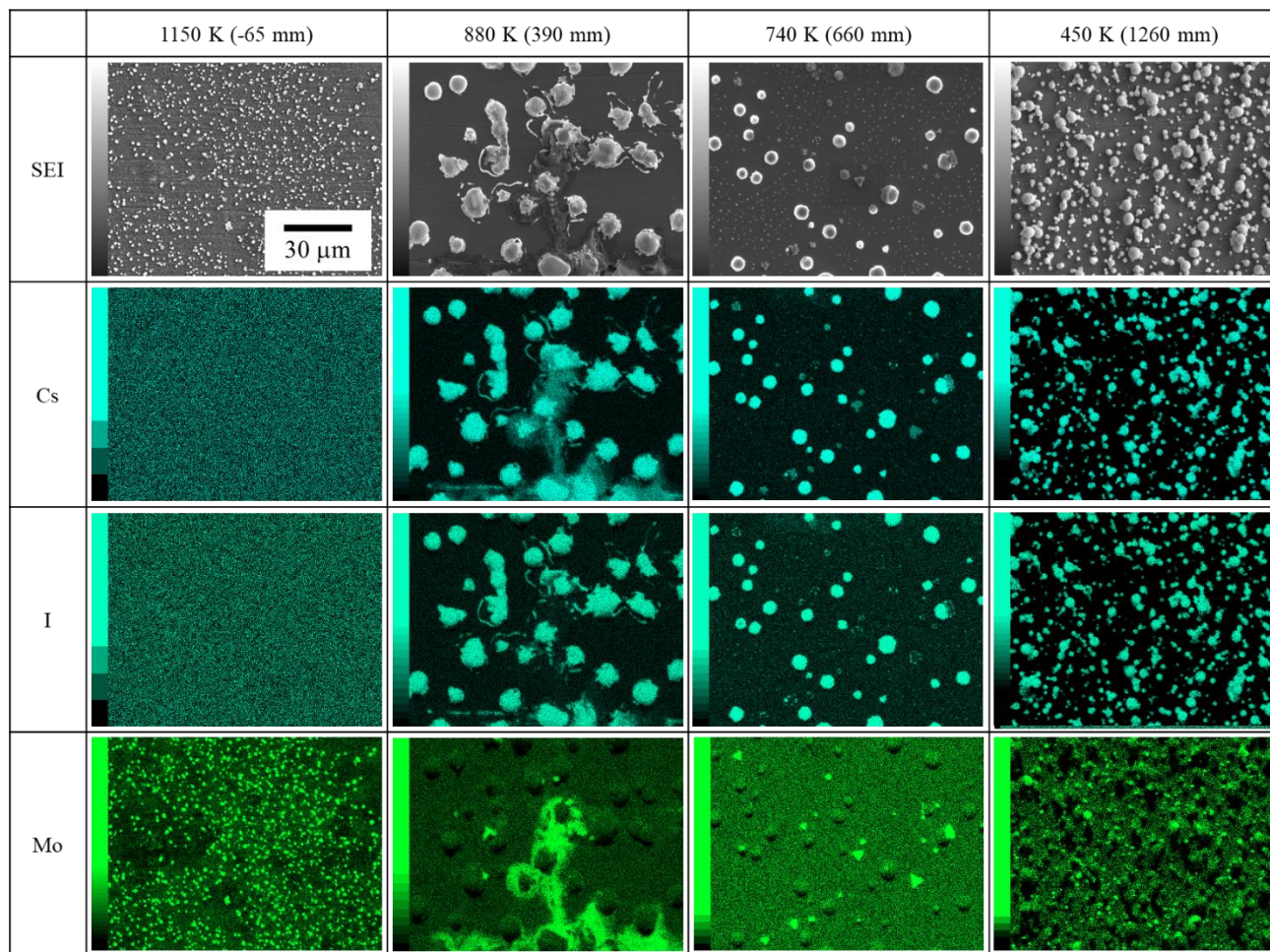


図 3.16 Cs I+MoO₃ 実験①におけるサンプリング管（クーポン）沈着物の二次電子像及びセシウム、ヨウ素、モリブデンの分布[3.4]

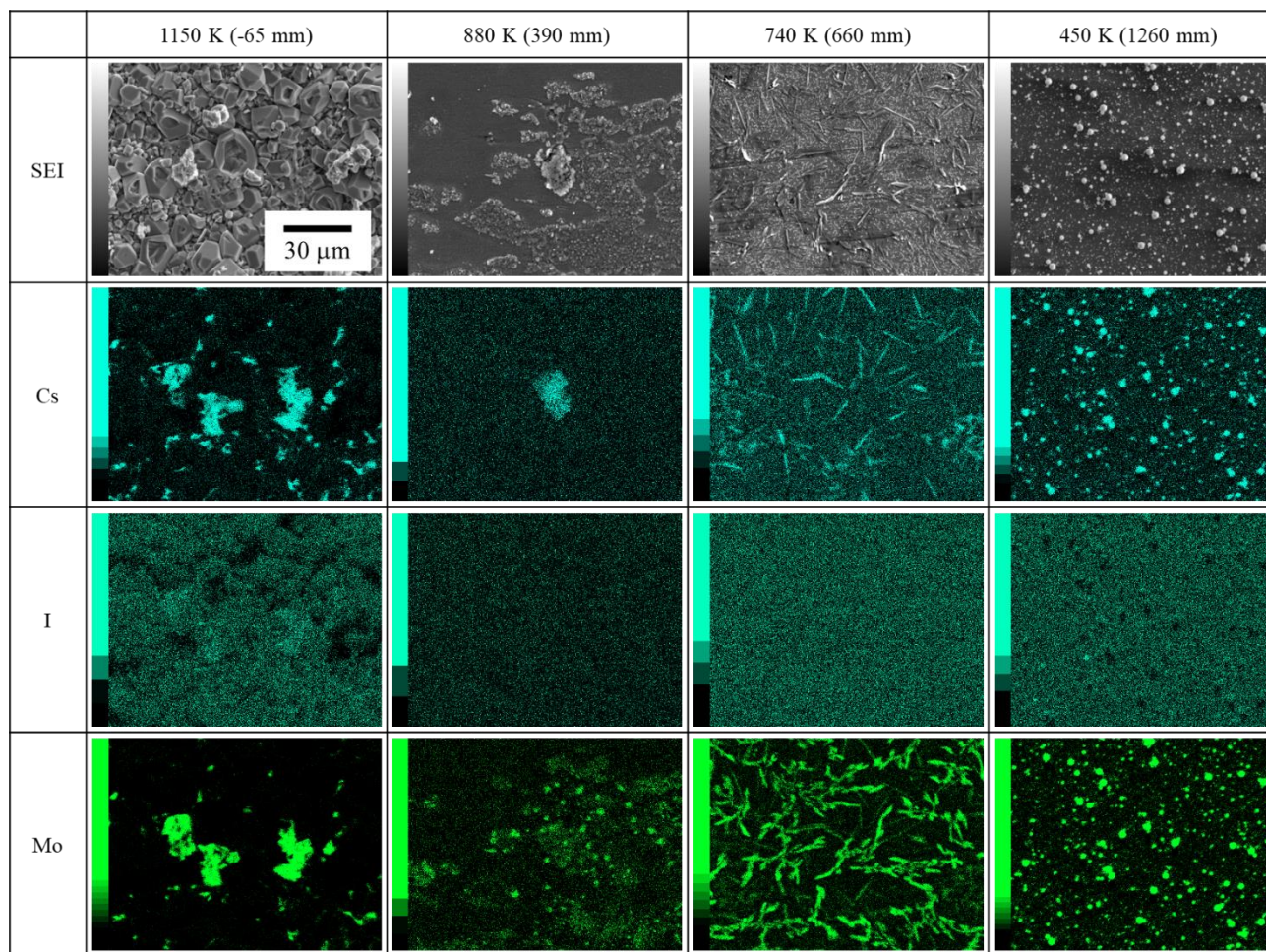


図 3.17 CsI+MoO₃ 実験②におけるサンプリング管（クーボン）沈着物の二次電子像及びセシウム、ヨウ素、モリブデンの分布[3.4]

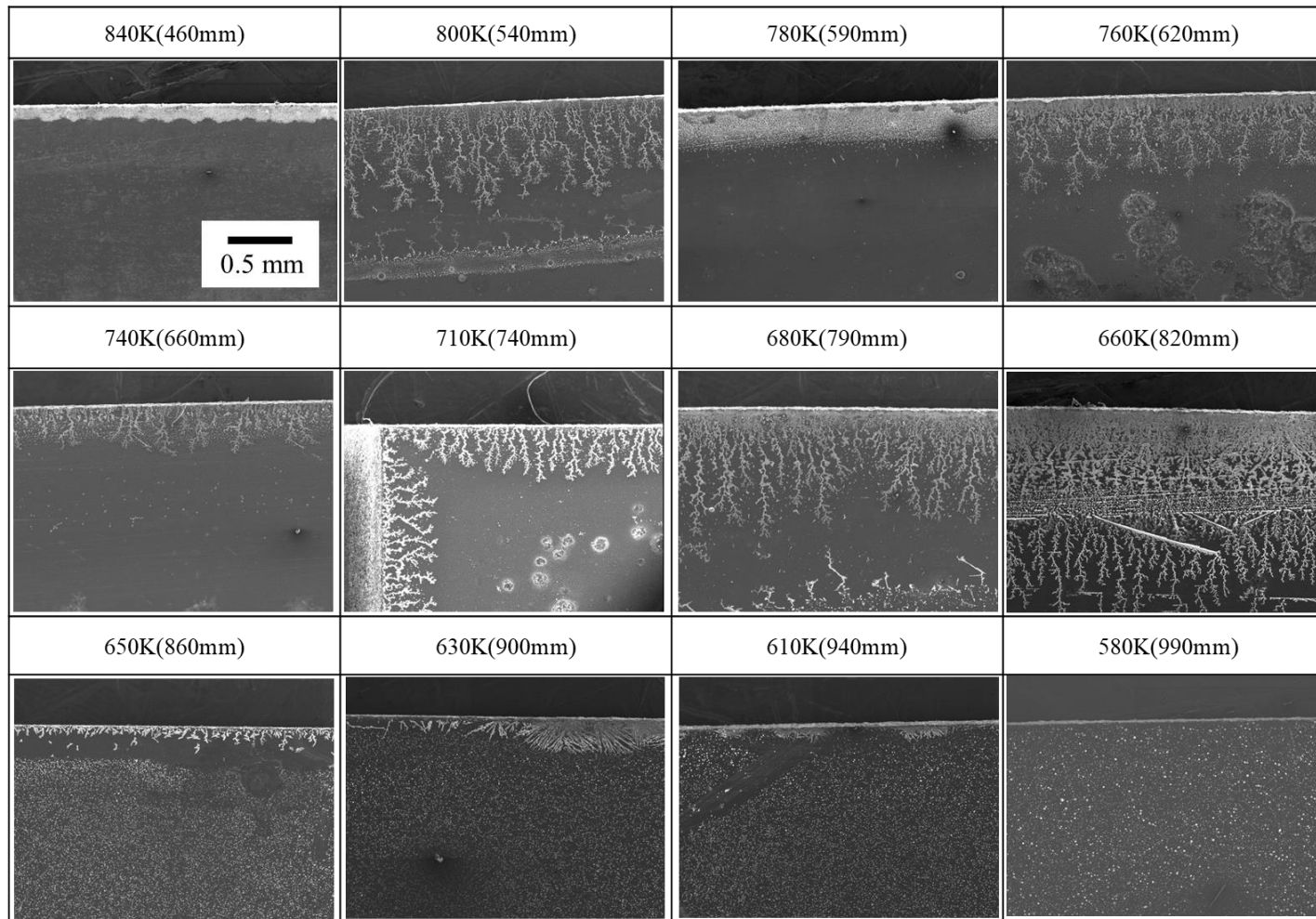


図 3.18 CsI 実験②におけるサンプリング管（クーポン）沈着物で見つかったクーポン端部のヨウ素凝集体の二次電子像

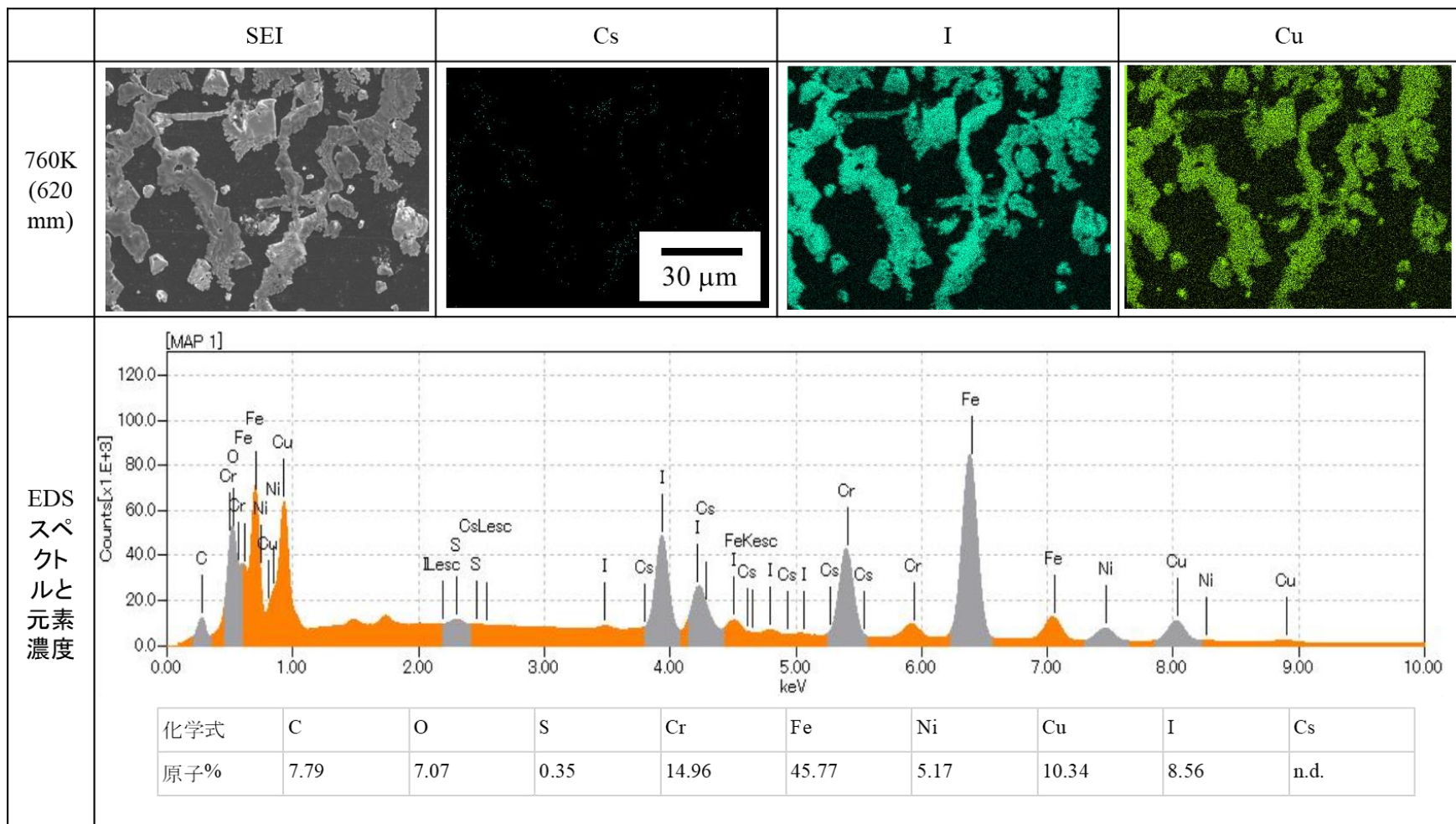


図 3.19 CsI 実験②におけるサンプリング管（クーポン）沈着物で見つかったクーポン端部のヨウ素凝集体の二次電子像及びセシウム、ヨウ素、銅の分布

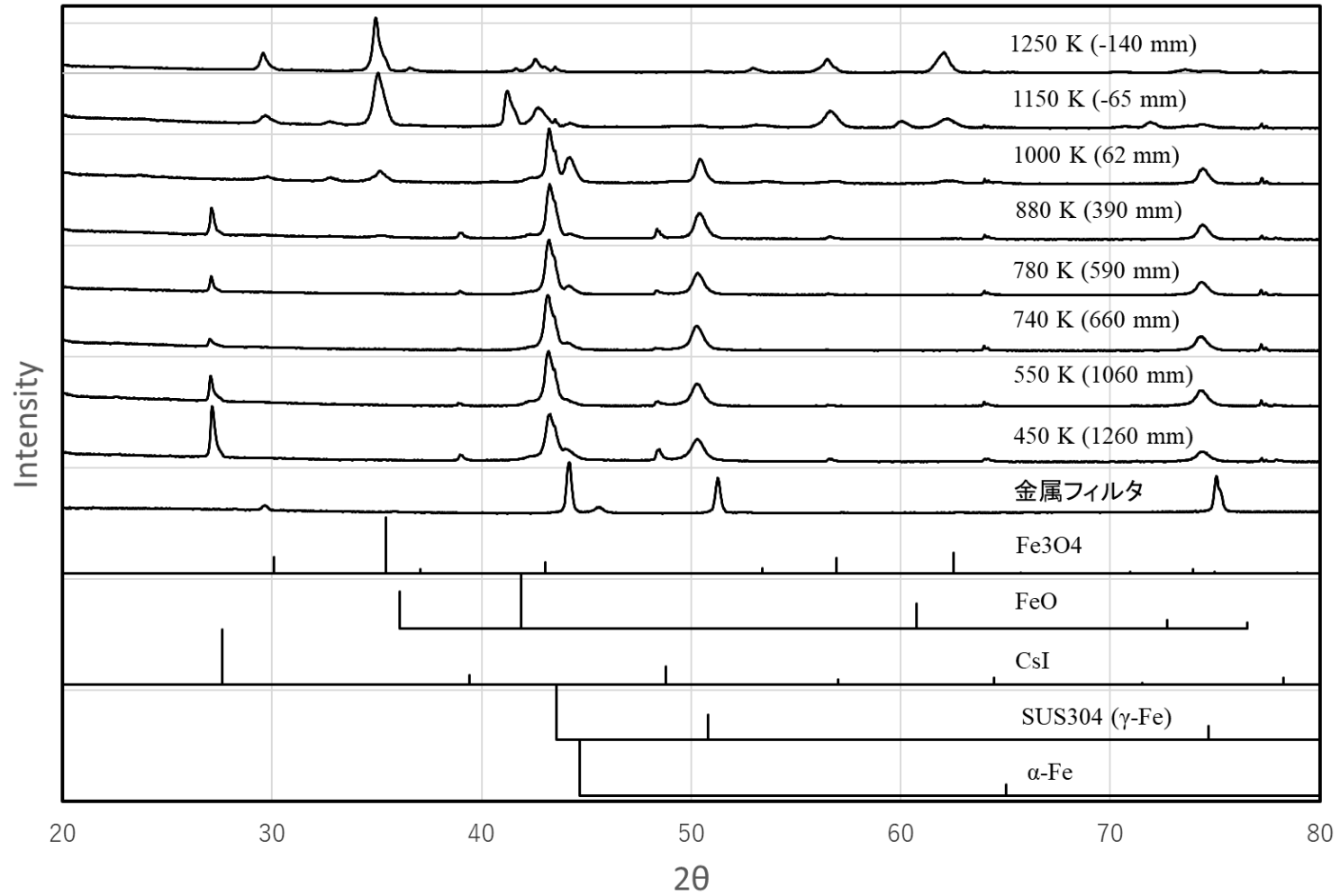


図 3.20 CsI 実験①におけるサンプリング管 (クーポン) 沈着物の X 線回折ピーク [3.5]

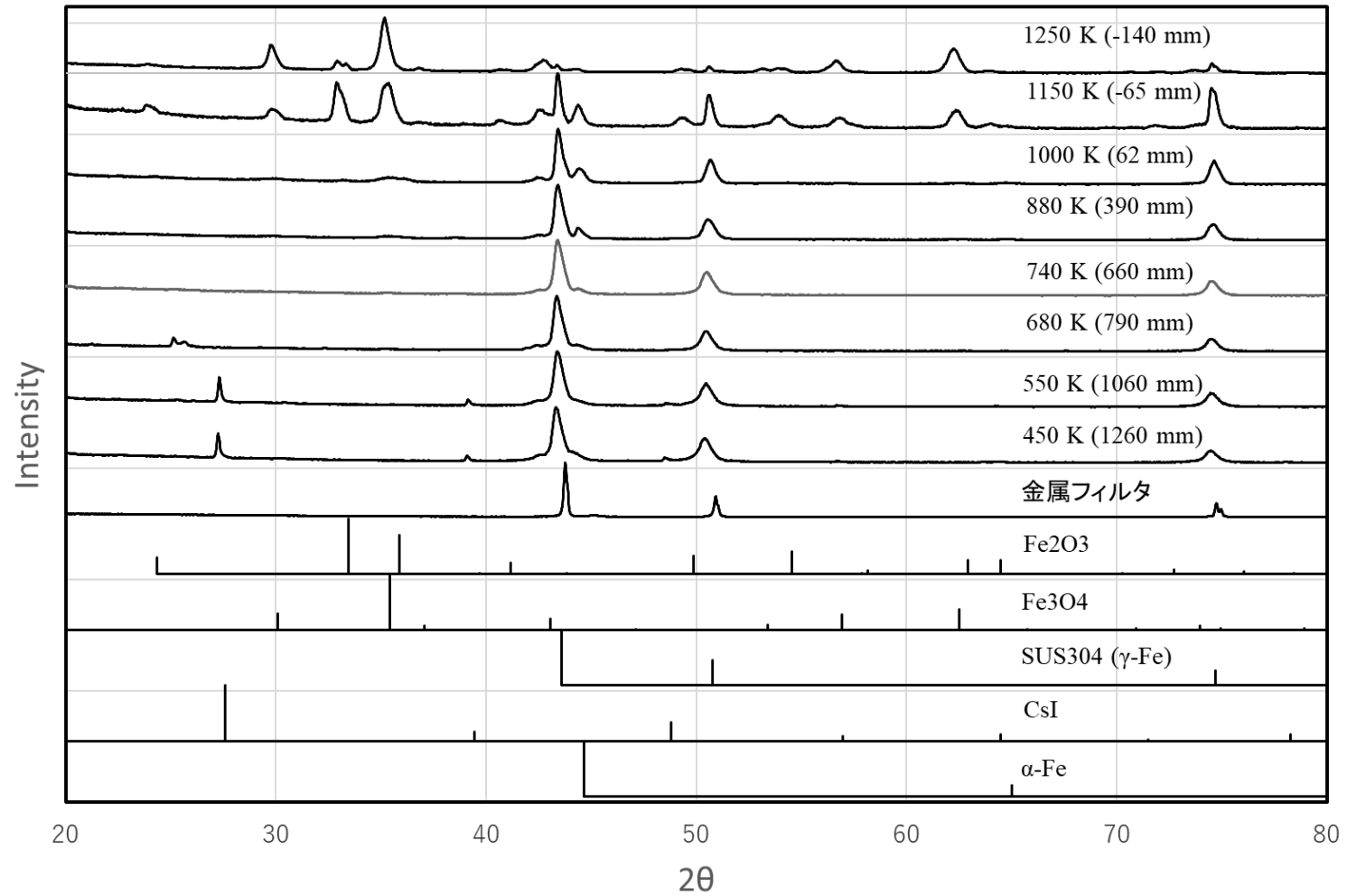


図 3.21 CsI 実験②におけるサンプリング管（クーポン）沈着物の X 線回折ピーク

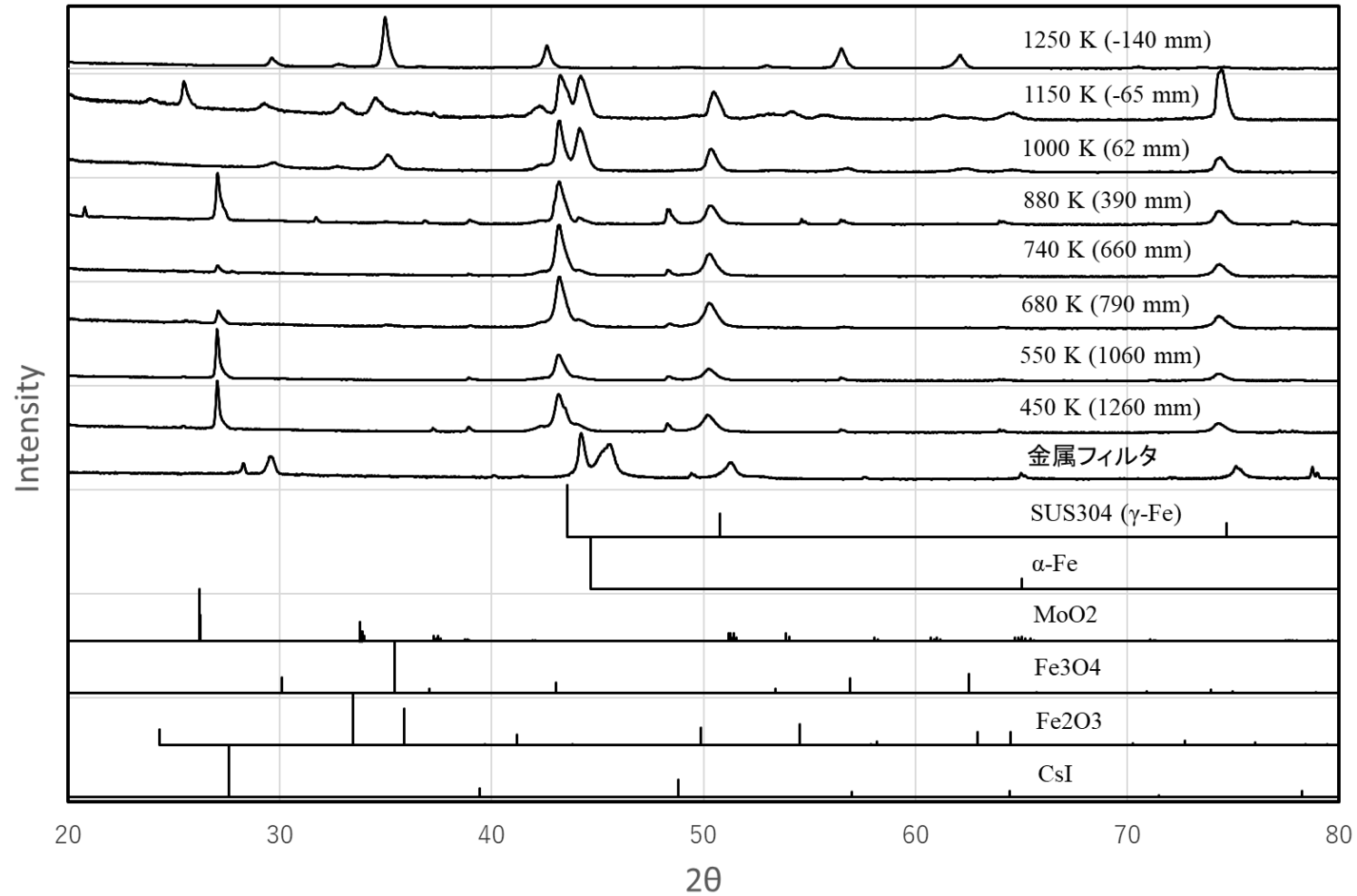


図 3.22 CsI+MoO₃ 実験①におけるサンプリング管 (クーポン) 沈着物の X 線回折ピーク [3.4]

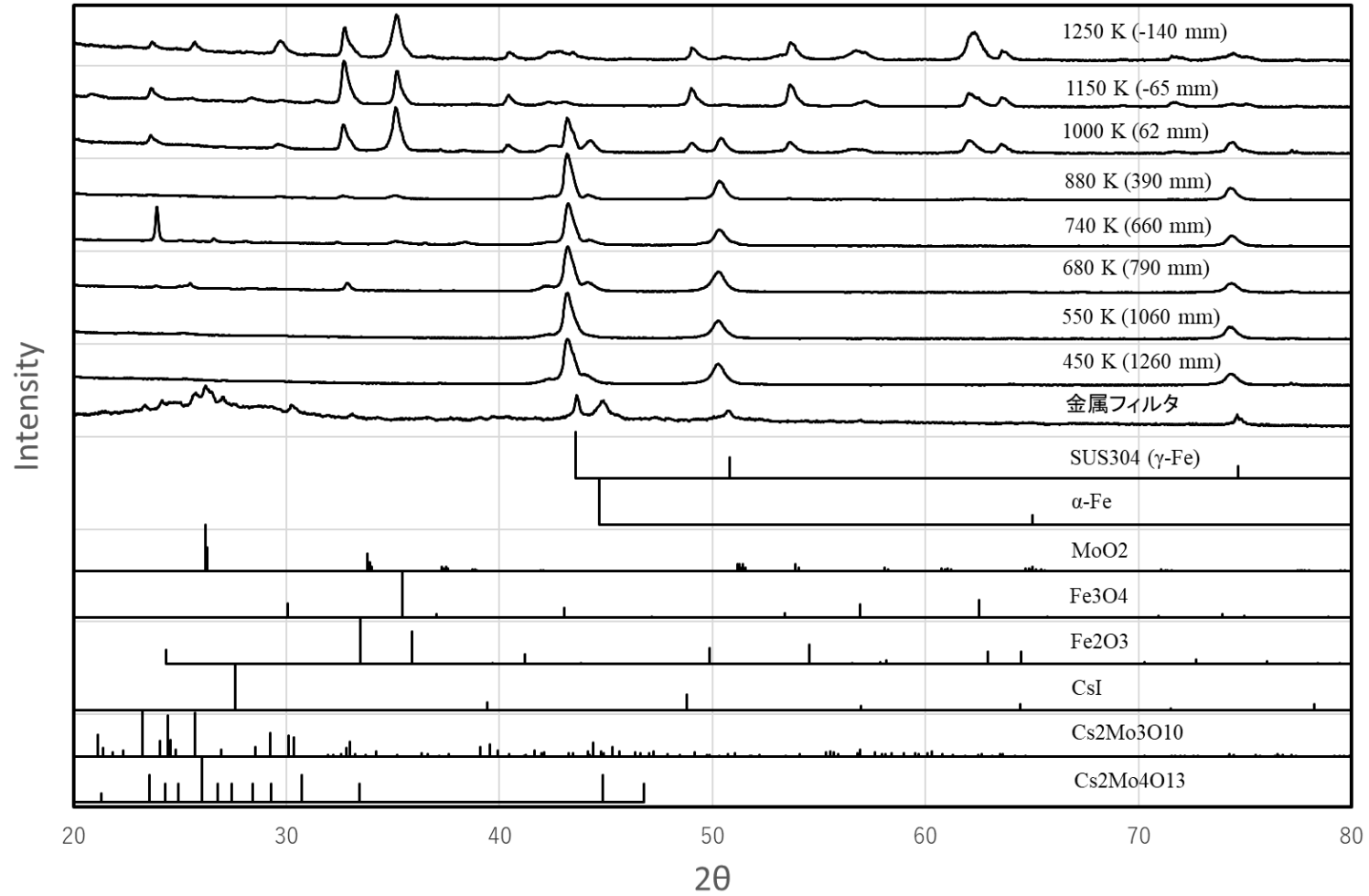


図 3.23 CsI+MoO₃ 実験②におけるサンプリング管（クーポン）沈着物の X 線回折ピーク[3.4]

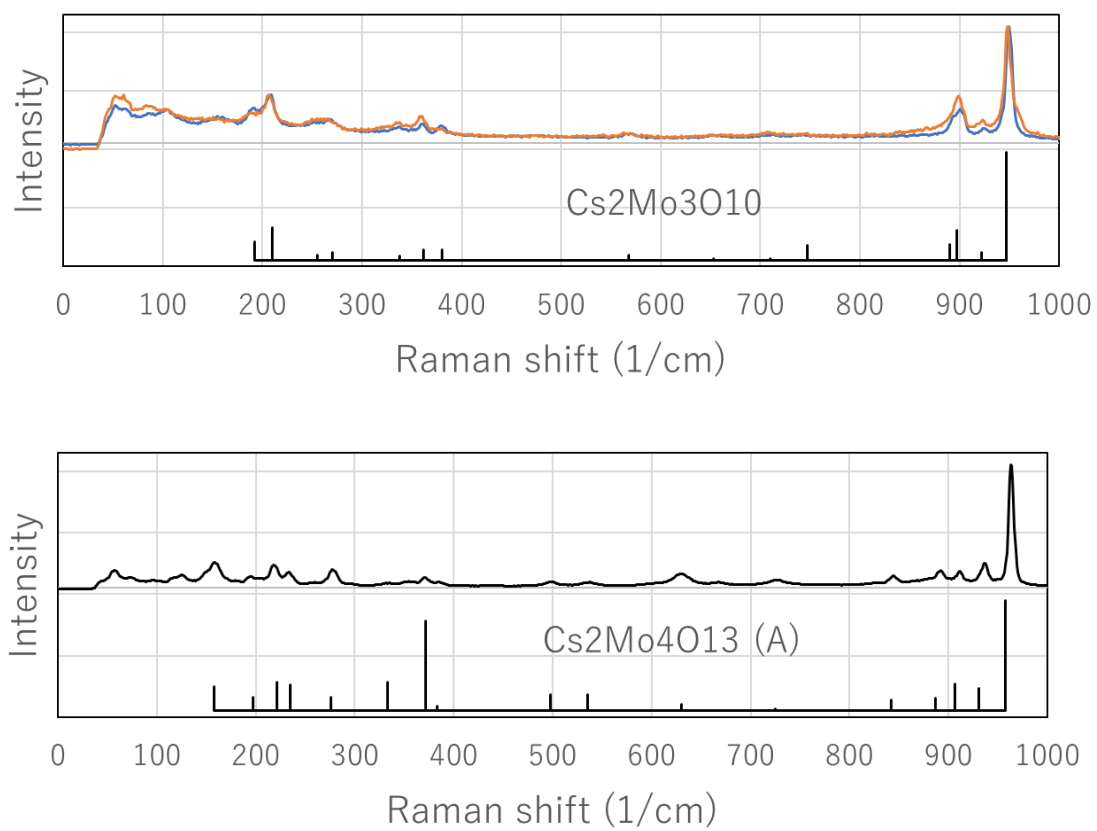


図 3.24 CsI+MoO₃ 実験②の 450 K 付近におけるサンプリング管 (クーポン) 沈着物で見つかったモリブデン酸セシウムのラマンスペクトルピーク

4. ソースターム評価手法における化学知見の整理

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 (Boiling Water Reactor) 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、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 (Fission Product, FP) 化学形の予測モデルを構築し、本予測モデルを原子力機構で開発している THALES2/KICHE [4.1.1, 4.1.2] に導入している。本コードを実機 BWR プラントのソースターム評価に適用することで、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の検討を進めている。これまで実施してきた実機評価で考慮すべき化学的知見並びに知見及び手法の整備状況を 4.2~4.3 節に整理するとともに、MELCOR 等の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 (Integrated Severe Accident Code, ISA) で化学知見を活用する方法について検討した結果を 4.4 節に示した。

4.2 FP 化学種平衡組成予測モデルの開発及び高度化

化学組成の予測モデルは、原子力分野に限らず産業・学術分野で多くの知見が蓄積されており、一般に化学平衡論もしくは化学反応速度論により対象とする化学変化を予測することが可能である。化学平衡論は、自発的な化学反応が十分に進行した際の平衡状態 (系のギブズ自由エネルギーが最も安定) となる一意な化学組成を計算するものである。化学反応速度論は、各化学反応経路とその速度を考慮し、化学平衡状態に至るまでの時々刻々変化する化学組成を計算するものである。これら 2つの手法の中で化学平衡論は、自発的な化学反応が十分に進行したとする化学平衡仮定が成立する範囲では、計算に必要な化学種の熱力学データベースも豊富で特に汎用性が高い手法である。そこで、化学平衡に基づく化学モデルを有する VICTORIA[4.2.1]コードで、シビアアクシデント条件を模擬した実験に対する検証を行い、その妥当性を確認してきた。結果として、化学平衡論モデルは Cs に対して比較的よくその化学組成を予測できると見通しを得た。

原子力機構では、化学平衡論等に基づき化学組成を評価するコード CHEMKEq[4.2.2]を開発し、本コードを FP 化学種平衡組成予測モデルの一部として ISA 解析コード THALES2 に直接組み込んだ (4.2.1 項)。

一方で、原子炉冷却系内 FP 化学モデルの ISA 解析コードへの直接的な実装は、取り扱う化学種が多く計算負荷の増大をもたらした。そのため、不確実さ解析や確率論的リスク評価といった膨大なケース数の解析への適用を考慮した場合の汎用性を低下させた。そこで計算負荷の小さい代替統計モデルを用いて FP 化学種平衡組成予測モデルの構築を同時に進めた。この方法では、化学平衡に基づく化学モデルを用いて広範囲の温度、元素組成条件に対する化学平衡組成を計算してあらかじめデータベース化し、これに基づく代替統計モデル

を構築して ISA 解析コードに導入することにより、計算負荷の増大を抑えつつ化学モデルを追加できる。VICTORIA コード等の化学平衡モデルを直接 ISA 解析コードに実装する場合よりも計算精度は低下するが、膨大な解析ケース数を必要とする不確実な解析や確率論的リスク評価を、化学挙動を考慮して実施できるメリットは大きいと考えられる。(4.2.2 項)

4.2.1 CHEMKEq を用いた FP 化学種平衡組成予測モデルの構築[4.2.3, 4.2.4]

原子力機構において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[4.2.2]が開発された。FP 化学種平衡組成予測モデルの傾向を把握するために、シビアアクシデント条件における化学平衡論に基づく化学組成について試解析を実施した。その解析条件である原子炉冷却系内 FP 元素濃度や雰囲気条件(水蒸気や水素)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(表 4.2.1 参照)。なお、ホウ素濃度により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。CHEMKEq 計算では、CsI、Cs₂MoO₄、CsBO₂ 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 Cs₂I₂ (g)、単体 Cs(g)など多数の化学種を扱っているが、その大半は組成比としては 0.1%以下であり少ない。ここでは想定した 500~2500 K の温度域で存在割合 1%以上の化学種(表 4.2.2)を抽出し、化学種組成の温度依存性を図 4.2.1 に示した。図中の左側がヨウ素化学種、右側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た。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。また高温域において、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 が支配的だが、ホウ素あり条件では、CsI とホウ素の反応による影響で CsOH の一部が CsBO₂ に置換される傾向が示された。

4.2.2 代替統計モデルを用いた FP 化学種平衡組成予測モデルの構築[4.2.3, 4.2.5, 4.2.6]

計算精度確保と計算負荷抑制のバランスの観点から Dirichlet 過程を用いたノンパラメトリック・ベイズ法と K 近傍法による線形回帰モデルを選定し、開発した代替統計モデルを THALES2 に導入して検証を行った。各統計手法で構築される線形回帰モデルについて以下で説明する。

(1) 代替統計モデルで使用するデータベース

代替統計モデルを作成する上で、統計処理の対象となるデータベース(入力と出力)の作成が必要である。本研究では、VICTORIA や CHEMKEq 等の化学平衡論に基づきデータベースの構築を行う。データベースで対象とする入力と出力は、同コードの解析の傾向から検討を行った。本研究で構築した 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 4.2.3 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。本予測モデルでは、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 I₂)の3つの化学種、セシウムは CsI、Cs₂MoO₄、CsBO₂ 及び CsOH の4つの化学種を仮定した。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 B₄C 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。

(2) Dirichlet 過程を用いたノンパラメトリック・ベイズ法[4.2.5]

代替統計モデルとは、従属変数(出力:y)と独立変数(入力:x)の間の定量的な関係($y = f(x)$)を統計的手法によって推計するモデルである。本代替統計モデルでは、ノンパラメトリック・ベイズ法を適用している。ノンパラメトリック・ベイズ法は、ベイズ統計の新しい統計モデルであり、「利用できるデータの複雑さに応じてモデル自体の複雑さも自動的に学習する」ことのできる統計モデルである[4.2.7]。さらに、本統計モデルは回帰モデルのような自由度を事前に設定する必要がなく、ベイズ更新を用いた最適なモデルの推定が可能である。ノンパラメトリック・ベイズ法の最も基本となる統計モデルとして、ディリクレ過程(Dirichlet Process)が挙げられる。

ディリクレ過程を説明する前に、ガウス混合回帰モデルから説明する。データ y を生成するガウス混合回帰モデルは次式で表される。

$$p(y|\pi, \mu, \sigma) = \sum_{k=1}^K \pi_k N(y|\mu_k, \sigma_k^2) = \sum_{k=1}^K \pi_k N(y|\beta_{k0} + \beta_k^T \cdot x, \sigma_k^2) \quad \text{式(4.2-1)}$$

ここで、xは入力変数のベクトル、yは出力変数、 β_{k0} と β_k は各サブモデル(ガウス分布)の回帰係数、 σ_k^2 は各サブモデルの分散である。出力は入力のK個のガウス回帰モデルを混合比($\pi : \pi \sim \text{Dir}(\alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_K)$)で混合したモデルである。混合比はK次元のディリクレ分布に従う。ガウス混合回帰モデルの予測性能は必ず混合数Kで制約される。混合数Kを事前に設定する必要がないモデルは、ディリクレ過程無限混合モデルと呼ばれ、最適な混合数Kと回帰係数をベイズ推定で計算する(図 4.2.2 参照) [4.2.8, 4.2.9]。

$$p(y|\pi, \mu, \sigma) = \sum_{k=1}^{\infty} \pi_k(x) N(y|\mu_k, \sigma_k^2) = \sum_{k=1}^{\infty} \pi_k N(y|\beta_{k0} + \beta_k^T \cdot x, \sigma_k^2) \quad \text{式(4.2-2)}$$

ISA 解析コードへの実装では、あらかじめ作成した化学データベース(入力と出力が非線形な関係)にあるデータセットを対象としたディリクレ過程混合モデルを構築し、そのモデルをコード中に実装するものである。つまり、ユーザは化学データベースについて意識するこ

となく化学挙動を考慮した計算が可能である。

図 4.2.2 では、化学平衡論の化学モデルにより作成した化学データベース（1000 ケース、入力：Cs、I、Mo、B 元素比、温度、H₂O/H₂ 比、出力：セシウム及びヨウ素の化学組成（CsI、I、HI、CsOH、CsBO₂、Cs₂MoO₄））で作成した代替統計モデルの単体検証結果を示した。参照データベースの温度や元素組成による化学変化に係る定性的な傾向を評価できることを確認した[4.2.5]。しかしながら、同計算モデルはデータベース中の緩やかな変化を模擬することに強いものの、入力値に対して出力値の変化が急激な場合その予測精度が低い。化学組成変化は、特に温度に対して急激な変化をもつ。そのため Dirichlet 過程を用いたノンパラメトリック・ベイズ法による代替統計モデルの構築では、各温度領域に対して個別のモデルを構築することで予測精度向上させている。一方で、各温度領域の代替統計モデル間では、予測結果が不連続となるため、データ補完方法についての課題が挙げられた。

(3) K 近傍法[4.2.6]

K 近傍法による線形回帰モデルは、予測したい入力パラメータ値の最近傍にある K 個のデータ点を用いて構築される。予測にあたり選定すべきデータ点は、予測したい点からの距離と最適化した重み値を用いて選定される。具体的には、手順は次の通りである。まず、VICTORIA コード等の化学平衡論に基づく化学モデルにより、元素濃度や温度の境界条件に対応する化学組成にかかるデータベースをあらかじめ作成する。次に、ISA 解析コードでの実行において、同作成したデータベースを参照し、化学組成を評価したい化学条件（元素濃度や温度など）に近いデータをデータベースから 10 個程度抽出する。これら抽出したデータから化学種別に平衡組成濃度を予測する回帰曲線をモデル内で導出し、それを用いて予測する（図 4.2.3）。近傍データの抽出には、複数の入力パラメータ間の距離（Log-Euclidean 距離： $D(X_i, X^*)$ ）を判定に利用している。

$$D(X_i, X^*) = \sqrt{(\log_{10} X_i - \log_{10} X^*)^2} \quad \text{式(4.2-3)}$$

ここで、予測する入力値 X^* とデータベースの点 i の入力値 X_i は、化学反応の入力条件である元素濃度と、データベースにおける結果(化学種組成)に該当する。なお、最近傍の K 個のデータは下記で判断する。

$$D(X_1, X^*) \leq D(X_2, X^*) \leq \dots \leq D(X_K, X^*) \leq \dots \leq D(X_N, X^*) \quad \text{式(4.2-4)}$$

なお、選定された K 個のデータより、データベースの入出力変数の相関などを分析し、精度良くデータ抽出ができるようにモデル構築にも機械学習を使用する。本手法の利点は、類

似した化学条件のデータから線形回帰モデルを作成できるため、急激な変化を持つようなデータベースに柔軟に対応することができる点である。

本研究で作成した化学モデルのデータベースは、化学平衡論に基づくものであり、入力パラメータ (X) としてセシウム及びヨウ素の化学組成を決定する上で重要な元素比 (Cs、I、Mo、B)、雰囲気組成 (H_2O/H_2 比)、雰囲気温度を選定し、出力結果 (Y) としてセシウム及びヨウ素の化学組成 (CsI、I、HI、CsOH、CsBO₂、Cs₂MoO₄) を有する。また、広範な SA 条件に対応するデータベース化を行う必要があるため、各入力パラメータを変動させた解析を約 2 万ケース実施し、データベースを構築した。構築したデータベースに対し K 近傍法による線形回帰モデルの予測性能を図 4.2.4 に示す。本図に示す通り、入力パラメータ (温度及び元素組成) に対する参照データベースの傾向を本モデルにより比較的よく再現できることを確認した[4.2.6]。

実際に、化学モデルに関する K 近傍法を用いた代替統計モデルを ISA 解析コードである THALES2/KICHE に導入し、BWR4/Mark-I プラントの全交流電源喪失 (以下「TB」という。) 及び炉心冷却機能喪失 (以下「TQUV」という。) の 2 シーケンスについて、ソースターム評価を行った[4.2.3, 4.2.6]。その結果、化学モデルに係る代替統計モデルの計算コストの寄与は、熱流動、炉心損傷、エアロゾル挙動等の全ての計算コストに対して 1%未満であり、計算時間の増大なしに化学挙動を考慮できることを確認した。一方で、同計算では、あらかじめ作成した化学データベース範囲を外れる計算も一部あり、有効な K 個のデータを選定できない計算点が見られた。そのため、データベースの拡充やデータベース範囲を超えた場合に、その都度、化学平衡計算を実施しデータベースに追加する等の対応が必要である。

本代替統計モデルを用いて解析した BWR4/Mark-I の TB シーケンス (ドライウェル気相部過圧破損ケース) に関する結果を図 4.2.4 に示す。制御材に含まれるホウ素の影響等によりセシウムが CsBO₂、Cs₂MoO₄ 等を含む様々な化学形態で格納容器に移行するため(図 4.2.5(1))、セシウム化学種が強塩基性の CsOH として移行すると想定する従来解析よりも格納容器液相の pH は 1 程度低下する(図 4.2.5(2))。その結果、液相でのガス状ヨウ素 (I₂ 及び有機ヨウ素) のソースターム増加が示唆された。本結果は既往研究と同様の結果であり、リーズナブルである。

以上より、代替統計モデルは計算負荷抑制の観点で非常に有効であることが示された。しかしながら、計算精度について各手法に応じた課題があり、シビアアクシデント総合解析コードでは化学モデルに対して要求される計算精度に応じて手法の選定及び改良が必要であると考える。

FP 化学種平衡組成予測モデルとして、FP 化学組成データベースと代替統計モデルを用いた予測モデルは、4.2.2 で述べたように、要求される予測精度に課題が残った。代替統計モデルの予測精度が上がらなかったのは、原子炉冷却系内におけるヨウ素及びセシウムの化学反応は、入出力変数の個数が多く、各パラメータの感度も高いなど、現象が複雑なことが主

な要因と考えられる。本改善には、採用するデータベースの細分化も含む代替統計モデルの再検討が必要となる。

4.3 原子炉冷却系内 FP 化学を考慮した BWR ソースターム解析

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[4.1.1, 4.1.2]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 の系統的なソースターム評価を実施し、化学挙動がヨウ素及びセシウム化学種に与える影響を評価した[4.3.1, 4.3.2]。

4.3.1 FP 化学平衡組成予測モデルの BWR ソースターム解析への適用[4.3.1]

簡易予測モデル (FP 化学種平衡組成予測モデル) を導入した THALES2/KICHE を用いて、BWR4/Mark-I の代表的な事故シナリオ (炉心冷却機能喪失 TQUV 及び全交流電源喪失 TB のドライウェル過圧破損、並びに格納容器ベント作動のシナリオ) に適用し、原子炉冷却系内 FP 化学による FP 挙動及びソースタームへの影響について検討した。

事故進展の概要及び FP 挙動に関わる解析条件を表 4.3.1 及び表 4.3.2 に示す。格納容器破損圧として設計圧の 2 倍を仮定した。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、サイズは移行経路の違いに着目するために共に 0.01 m^2 を仮定した。

(1) 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、大半は逃し弁経路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 4.3.1 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。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たヨウ素の 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 4.2.1 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 Cs₂MoO₄ 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。

(2) RCS 内 FP 化学による格納容器 pH への影響

格納容器内液相における pH への影響を図 4.3.2 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 (Wetwell) 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 Cs₂MoO₄ 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 (Reactor Coolant System) 内 FP 化学の考慮の有無により pH の違いが大きい。

(3) 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 4.3.3 (縦軸が対数表示の積み上げ棒グラフ) で示した。最初に、主にエアロゾルとして挙動する CsI や CsOH などの化学種に対するソースタームへの影響として、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影響について a)及び b)に示した。その後に RCS 内 FP 化学の影響について c)に示した。

a) 事故シーケンスの違いによるソースタームへの影響

原子炉隔離時冷却系 RCIC (Reactor Core Isolation Cooling system) が作動する TB シーケンスは、RCIC 駆動蒸気の継続によって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 (特にドライウエル) 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。ドライウエルに移行した 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していくが、この際、ドライウエル内での沈着期間 (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 については、ドライウエ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。

b) 移行経路の違いによるソースタームへの影響

移行経路の違いによるソースタームへの影響について同一の事故シーケンスの結果を比較する。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 4.3.4 に示した。ドライウェル過圧破損及びベントが作動する段階における格納容器内のヨウ素やセシウムの浮遊量は、一般的に、ドライウェル内に多く存在する。ドライウェル過圧破損ケースでは、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、格納容器の破損口を經由して建屋に移行し、環境に放出される。それに対し、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 などガス状ヨウ素においては傾向が異なる。燃料から放出されたヨウ素は、逃し弁経由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傾向がある。これは、TB に限らず、全ての事故シーケンスで同様である。

c) RCS 内 FP 化学によるソースタームへの影響

RCS 内 FP 化学によるソースタームへの影響について、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 の化学種への置換が促進される。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され、環境放出が抑制される傾向があるが、その効果は限定的であり大差はない。セシウム化学種への影響としては、セシウムのソースタームへの影響よりも、b) 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 を低下させる効果が大きい。

ヨウ素のソースタームは、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、液相中のヨウ素化学反応が顕著となることで、ガス状ヨウ素 I_2 の気相への再放出と環境への移行が促進される。 I_2 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_2 のソースタームへの影響が大きくなる傾向がある。

4.3.2 系統的なソースターム解析

系統的なソースターム評価で対象としたプラントは、110万kW級のBWR5/Mark-II改良型とした(表4.3.3参照)。解析対象事故シーケンスは、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(表4.3.4参照)。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モデルを利用した。燃料から放出時において、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(表4.3.5参照)。燃料からの放出後、化学平衡論化学データ及びK近傍法に基づく代替統計モデルによりその化学種は即座に化学平衡組成に変化する。同FP化学モデルは、原子炉冷却系内の全てのボリュームに対して実施している。また、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るものとした。なお本解析では、放射線場での液相化学反応に伴うガス状ヨウ素I₂の再放出現象に係るKICHEのオプションを無効としている。これは、気相での化学反応による化学組成変化に焦点を置いたためである。

ヨウ素及びセシウムのプラント内挙動の解析例として、全交流電源喪失シーケンスTBを例に説明する。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、低温ではエアロゾル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(本解析で仮定した値)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。

図4.3.5及び図4.3.6に、TBシーケンスにおけるセシウム及びヨウ素の化学組成として、圧力容器破損時、格納容器破損時、計算終了時の組成を示した[4.3.2]。

TBは、制御用電源が喪失することで、原子炉は減圧できず、原子炉が高圧状態で炉心損傷に至るため、ヨウ素及びセシウムの原子炉冷却系内の残存量は多くなる(圧力容器破損時点の円グラフ参照)。原子炉が高圧状態で圧力容器が破損するTBでは、高圧噴出により原子炉冷却系内のヨウ素及びセシウムが格納容器に高圧噴出するので、格納容器への移行量が多くなる。格納容器内は比較的低温のため、ヨウ素及びセシウム化学種はエアロゾルになりやすく、重力沈降により徐々に床に沈着していく。沈着せず浮遊している化学種が格納容器破損時の減圧によって格納容器外に放出される。ヨウ素はセシウム化学種と比べ浮遊して存在している量が多いので、環境への移行量が大きい。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ことが多いが、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。図 4.3.5 及び図 4.3.6 の下図(棒グラフ)には、各進展段階における化学種組成の結果を示している。TB では、最終段階(計算終了時)のセシウムは、約 4 割が CsOH、約 4 割が Cs₂MoO₄ であることが予想された。これより、化学モデルを有さない ISA 解析コードにおいても、計算終了時の同化学組成表を用いることで簡易的に原子炉冷却系内 FP 化学を考慮した場合と同等の評価が可能となる(提案する化学組成表は 4.4 節に後述するので参照のこと)。

上記は、全交流電源喪失シーケンス TB の傾向を示したが、その他のシーケンスの傾向を上記傾向と比較して以下に示す。なお、詳細は令和 2 年度報告書[4.3.1]を参照のこと。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。

再循環配管での LOCA を想定した SIQUV 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する恐れがある。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、原子炉建屋に移行する結果となった。

4.4 ソースターム評価への化学的知見の反映方法の検討

本研究で得られた化学的知見の熱力学平衡計算機能を有しない MELCOR[4.4.1, 4.4.2]等の ISA 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と、取り扱い化学種が増えることで計算コストの増大 (THALES2 では計算時間が 3 倍程度に増加)を招く可能性が高い。MELCOR での放射性物質の移行挙動は、RN (Radionuclide)パッケージで取り扱っており、その放射性物質の元素グループの分類を表 4.4.1 に示す。以前のバージョンでは、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 の Cs₂MoO₄(略記 CSM)まで拡張されている。それ故、本検討では、熱力学平衡計算機能を直接 MELCOR に導入するのではなく、MELCOR2.0 以降に追加された新機能(燃料からの FP 放出時の化学種結合モデル)を活用する方法で検討を進めた。

放出後のどの化学形が安定かどうかは、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、昨年度の解析において FP 化学種平衡組成予測モデルを導入し

た THALES2 を用いて、系統的な事故シーケンスの解析を実施し、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した(図 4.4.1 及び表 4.4.2)。その提案した組成表に基づき、式(4.4-1)に示すように MELCOR 解析において燃料からの放出される FP 化学種の振り分けを補正することができれば、原子炉冷却系 FP 化学を考慮したものと同等の解析ができると考えられる。

$$\text{Mo 放出に関わる感度解析パラメータ} = \frac{f_{\text{MELCOR,base}}^{\text{CSM}}}{f_{\text{THALES提案値}}^{\text{CSM}}} \quad \text{式(4.4-1)}$$

ここで、

- $f_{\text{MELCOR,base}}^{\text{CSM}}$: 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 (-)
- $f_{\text{THALES提案値}}^{\text{CSM}}$: FP 化学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 (-)

(1) MELCOR での取り扱い手順

MELCOR2.0以降で新設された化学種結合モデルと CSM の取り扱い機能を用いることで、原子炉冷却系 FP 化学を考慮したものと同等の解析ができると考えられる。その手順は4つのステップからなる(表 4.4.3 参照)。まず、ステップ1では、FP 放出モデルを用いて燃料からの FP 放出を計算する。本手順では、FP 放出モデルの Mo のモデルパラメータの補正が必要となるので、MELCOR で主要な FP 放出モデルである CORSOR-M 及び CORSOR-Booth について説明する。その後に入力データでの設定方法について記載する。

(2) FP 放出モデルの概要

ISA 解析コードでは、燃料からの FP 放出量は、FP 放出モデルを用いて計算される。燃料ノード(i,j)に残存する FP 種 k の変化は、FP 種 k の質量を $M^k(i,j)[\text{kg}]$ 、放出率 $F^k(i,j)$ を用いて次式で与えられる。

$$dM^k(i,j)/dt = -F^k(i,j)M^k(i,j) \quad \text{式(4.4-2)}$$

ここで

- $M^k(i,j)$: 燃料ノード(i,j)に残存する FP 種 k の質量 (kg)
- $F^k(i,j)$: 燃料ノード(i,j)の元素 k の放出率 (1/min)
- $T(i,j)$: 径方向 i,軸方向 j の炉心ノード(i,j)の温度 (K)
- K_k : 元素 k 特有の放出率 (1/min)
- Q_k : 元素 k 特有の活性化エネルギー (kcal/mol)
- R : 気体定数 (=1.987x10⁻³ kcal/mol-K)

式(4.4-2)における放出速度定数 $F^k(i,j)$ は、実験に基づき様々な相関式が提案されている。MELCOR では、FP 放出モデルとして、CORSOR-M や CORSOR-Booth 等が良く利用される。本提案では放出モデルのパラメータの補正が必要となるので、各放出モデルの概要を以下に示す。

1) CORSOR-M モデル

CORSOR-M は、式(4.4-3)に示すように放出速度係数 k_0^k 、活性化エネルギー Q_k の 2 つのパラメータからなるアレニウス型の相関式となっている。表 4.4.4 に示すモデルパラメータは、実験に基づき決定されている。これら各パラメータは、MELCOR で感度解析パラメータ C7102(1)及び C7102(2)として定義されており、入力データにより値の変更が可能である。なお、式(4.4-3)中の f_{sen}^k は、放出速度の補正係数としているが、MELCOR ではこのような補正変数は入力データに備わっていないので、感度解析をする場合にはモデルパラメータを直接修正する必要がある。

$$F^k(i,j) = f_{sen}^k \times k_k \exp\{-Q_k / (RT(i,j))\} \quad \text{式(4.4-3)}$$

ここで

$F^k(i,j)$: 炉心ノード(i,j)における元素 k の放出率速度定数 (1/min)
$T(i,j)$: 炉心ノード(i,j)の温度 (K)
f_{sen}^k	: 元素 k の放出速度の補正係数 (-) (デフォルト値=1.0)
k_k	: 元素 k 特有の放出速度定数 (1/min)
Q_k	: 元素 k 特有の活性化エネルギー (kcal/mol)
R	: 気体定数 (=1.987x10 ⁻³ kcal/mol-K)

2) CORSOR-Booth モデル

UO₂ 燃料(ペレット)は、UO₂ 結晶粒と結晶粒の境界(粒界)からなり、燃料中に蓄積された放射性物質は、UO₂ 結晶粒内を拡散し、粒界に移行、粒界を通過して燃料外へ放出される。CORSOR-Booth モデルは、結晶粒内拡散と粒界での移行の 2 つを考慮したモデルである。燃料中 Cs の結晶粒内の拡散は次式で定義される。

$$D = D_0 \exp\{-Q_0 / (RT(i,j))\} \quad \text{式(4.4-4)}$$

ここで

D	: 燃料中の結晶粒内における Cs の拡散係数 (m ² /s)
D_0	: アレニウス拡散パラメータ(m ² /s) =5E-8 (燃焼度 3E4 MWD/MTU 以下の低燃焼度燃料の場合) =2.5E-7 (燃焼度 3E4 MWD/MTU 以上の場合)
Q	: アレニウスパラメータ(活性化エネルギー) (J/mol)=3.8E5

- R : 気体定数(J/mol-K) =8.314
T(i,j) : 燃料ノード(i,j)の温度 (K)

CORSOR-Booth モデルは、Cs を参照元素の放出挙動として定義し、これに実験から元素毎に決定された補正係数 S_k (スケーリングファクター)を乗じて、その他の元素に拡張させている。参照元素(Cs)の放出速度 $DIFF_{Cs}$ は、粒内拡散から求まる放出速度 $Release\ rate_{Cs}$ に、粒界内部での物質移行による制限(抵抗) \dot{m}_{Cs} を考慮し、式(4.4-3)で定義される(詳細はMELCOR マニュアル参照のこと)。FP クラス k の放出速度は、 $DIFF_{Cs}$ に Cs に対するすけーリングファクター S_k を乗じた式(4.4-4)により計算される。CORSOR-Booth のスケーリングファクターを表 4.4.5 に示す。各パラメータは、感度解析パラメータ C7103 として定義されており、入力データにより値の変更が可能である。なお、 f_{sen}^k は、放出速度の補正係数だが、MELCOR の入力にはこのような補正変数は備わっていないので、調整する場合にはスケーリングファクター S_k を直接変更する必要がある。

$$DIFF_{Cs} = \left[\frac{1}{f_{sen}^k \times Release\ rate_{Cs}} - \frac{1}{\dot{m}_{Cs}} \right]^{-1} \quad \text{式(4.4-5)}$$

$$DIFF_k = DIFF_{Cs} S_k \quad \text{式(4.4-6)}$$

ここで

- Release Rate $_{Cs}$: 結晶粒内を考慮した Cs の放出速度 (mol/s)
 f_{sen}^k : 元素 k の放出速度の補正係数 (-)(デフォルト値=1.0)
 \dot{m}_{Cs} : Cs の粒界からの燃料外への放出速度 (mol/s) (粒界外の Cs 濃度ゼロを仮定、粒界での物質移行 (抵抗)を考慮)
 $DIFF_{Cs}$: Cs の燃料外への移行速度 (mol/s)
 $DIFF_k$: FP クラス k の燃料外への放出速度 (mol/s)
 S_k : FP クラス k のスケーリングファクター (-)

(3) MELCOR 入力データの設定方法

本検討では、前述したように、熱力学平衡計算機能を直接導入するのではなく、MELCOR2.0以降に追加された新機能(燃料からのFP放出元素の化学種結合モデルによるモリブデン酸セシウム CSM の取り扱い機能)を利用する。その MELCOR での取扱い手順を表 4.4.6 に示す。なお、本検討は MELCOR (Version 2.2.18019)とサンプル入力データ(BWR、ECCS 不作動、格納容器ベント作動ケース)を用いて検討した。

- 最初にモリブデン酸セシウム CSM を扱うための基本設定として、CSM の FP クラスの使用と崩壊熱の設定を行う(表 4.4.6 No.1 を参照のこと)
- 燃料からの FP 放出は放出モデルで計算する。MELCOR では CORSOR-Booth 又は-M が良く利用されており、モデル指定方法は表 4.4.6 の No.2 を参照のこと。

- FP 放出モデルから計算された I, Cs, Mo 元素を、入力変数「RN1_CLS」を用いて化学種 CsI、CsOH、Cs₂MoO₄に結合する。入力では CsI と CSM の2つを指定することで考慮が可能となる（表 4.4.6 No.3 参照）。
- 上記結合モデルによる Cs の化学種生成の概念を図 4.4.2 に示す。ここでは Cs 化学種を例に説明する。放出モデルから 1 タイムステップ毎に放出される Cs、I、Mo など元素の物量(モル数)が計算される。その物量の中の元素を結合し化学種を生成させ、その後に燃料から放出されるという手順で計算がなされる。まず、Cs と I の結合が優先され CsI が生成される。残った Cs がどの化学種となるかは Mo 元素の有無に関わる。MELCOR の本元素結合モデルでは、Cs 放出と同タイミングで Mo 放出があれば CSM が生成されるが、CSM 結合に必要な Mo が不足していれば CsOH として燃料から放出される仕様となっている。なお、CSM 結合指定を入力で設定しなければ CsOH として放出される。
- 上記、仕様の動作確認のため MELCOR2.2 とサンプル入力データを用いて化学種結合モデルの動作確認を実施した。ここでは CSM 結合モデルの考慮の有無、そして FP 放出モデル(CORSOR-M、CORSOR-Booth)の違いが、Cs の化学種組成にどのように影響するかについて確認した。本結果を図 4.4.3 に示す。CSM 結合モデルを使用しない場合、MELCOR の仕様どおり Cs 化学種は CsI と CsOH のみとなった(2つの FP 放出モデルとも同様)。CSM 結合モデルを使用した場合、CSM 生成割合は、CORSOR-M で 10%程度、CORSOR-Booth で 30%程度となった。ただし、この割合は各元素の放出特性に影響するので事故シーケンスに依存するものである。
- 本仕様により、燃料からの Mo の放出特性を調整することにより、Cs の化学種組成(CsOH 及び CSM の振り分け)を調整することが可能である。MELCOR では FP 放出率の調整には、放出モデルのモデルパラメータ(表 4.4.4 又は表 4.4.5)を感度解析用の変数を用いて補正することで調整が可能である。調整方法について以下に示す。放出モデルに CORSOR-M を利用する場合には、表 4.4.4 の Mo の第 1 変数である放出速度係数(感度解析パラメータ C7102(1)、デフォルト値 23.15)を修正する。CORSOR-Booth を利用する場合には、表 4.4.5 の Mo のスケールリングファクター(感度解析パラメータ 7103、デフォルト値 1.0E-3)を修正することで Mo の放出特性の調整が可能である（入力での設定方法について表 4.4.6 No.4 を参照のこと）。
- MELCOR2.0 以上では、CSM は FP クラス 17 として割り当てられている。既設クラスには、蒸気圧曲線(表 4.4.7 及び図 4.4.4 参照)、ガスとして振舞う際の拡散係数等の物性値推定に利用される Lennard-Jones パラメータなど基本的な物性値データが既に内蔵されており、これらを利用することで FP 移行挙動の解析が可能である。

(4) 提案した方法の妥当性検討

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に整理し、このうち、計算終了時の組成比を化学種組成表(表 4.4.2 及び図 4.4.1 参照)として提案した[4.3.2]。提案した本組成は、原子炉冷却系内 FP 化学の計算機能を有効にした ISA 解析コード (THALES2)を用いて評価したものである。MELCOR など FP 化学の計算機能を有しない解析コードにおいて、同等の化学種組成を想定できれば、FP 化学の計算機能を有する計算コードと同等の解析が可能となる。ただし、FP 化学組成は、原子炉冷却系内の雰囲気条件、つまり事故シナリオに依存することから、系統的な炉心損傷事故シーケンスに対するソースターム解析(4.3.2 系統的なソースターム解析を参照のこと)を実施し、事故シーケンス毎に FP 化学組成を提案した。

THALES2 では、式(4.4-3)及び式(4.4-5)の f_{sen}^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、入力により設定できる。RCS 内 FP 化学計算を無効にした THALES2 を用いて本補正係数 f_{sen}^k を変えた感度解析を実施し、提案した FP 化学組成表の再現方法の妥当性の確認を行った。感度解析ケースを表 4.4.9 に示す。CORSOR-M において、Mo の放出特性は過小評価することが指摘されている[4.4.3]。Mo 補正係数の幅は ASTEC 解析の温度分布[4.4.4]を用いた PHEBUS/FPT1 解析結果を参考に決定した。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、Mo 放出速度に対する補正係数を 1 倍(デフォルト値)、3 倍、5 倍、7 倍にした場合の Cs_2MoO_4 生成割合(対初期インベントリ)を図 4.4.5 示した。これより、本図と提案した組成表の Cs_2MoO_4 割合を再現するために必要な FP 放出モデルにおける Mo の補正係数の値が推定できる。この値を MELCOR 入力データに反映させることにより、FP 化学を考慮した場合と同等の解析が可能となる。

4.5 まとめ

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、本予測モデルを原子力機構で開発している THALES2/KICHEに導入した。本コードを実機BWRプラントのソースターム評価に適用することで、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。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_2MoO_4 、ヨウ化セシウムCsOH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_2MoO_4 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I₂のソースタームが増加する可能性が示唆された。

また、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 等への本研究で得られた知見の反映方法について検討した。RCS 内 FP 化学計算モデルを導入した THALES2 を用いてヨウ素及びセシウム化学種の組成(FP 化学組成表)を提案し、本組成表と MELCOR2.0 以降に追加された新機能(燃料からの FP 放出元素の化学種結合モデルによるモリブデン酸セシウム CSM の取り扱い機能)を活用する方法を提案した。この手法を、FP 化学挙動モデルを無効にした THALES2 を用いたソースターム解析に適用し、同モデルを有効にした解析の結果(化学平衡組成表)と比較することで手法の妥当性を確認した。

参考文献

- [4.1.1] 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.
- [4.1.2] 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.
- [4.2.1] N. E. Bixler, “VICTORIA 2.0: A Mechanistic Model for Radionuclide Behavior in a Nuclear Reactor Coolant System Under Severe Accident Conditions”, NUREG/CR-6131, 1998.
- [4.2.2] 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.
- [4.2.3] 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構, “平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書 原子力施設等防災対策費等委託費 (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,” 2019.
- [4.2.4] 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構, “平成 31 年度原子力規制庁委託成果報告書 原子力施設等防災対策費等委託費 (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,” 2020.
- [4.2.5] 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構, “平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書 原子力施設等防災対策費等委託費 (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,” 2017.
- [4.2.6] 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構, “平成 29 年度原子力規制庁委託成果報告書 原子力施設等防災対策費等委託費 (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,” 2018.
- [4.2.7] S.J. Gershman and D.M. Blei, “A tutorial on Bayesian nonparametric models”, J. Math. Psychol., 56, 1-12, 2012.
- [4.2.8] J.E. Griffin and M.F.J. Steel, “Order-based dependent Dirichlet processes”, J. Am. Stat. Assoc., 101(473), 179-194, 2012.
- [4.2.9] S.N. MacEachern, “Dependent nonparametric processes”, In: ASA proceedings of the section on Bayesian statistical science, Virginia, U.S., 1999.
- [4.3.1] 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構, “令和 2 年度原子力規制庁委託成果報告書 原子力施設等防災対策費等委託費 (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,” 2021.
- [4.3.2] 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構, “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費等委託費 (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,” 2022.

- [4.4.1] L.L. Humphries, et. al., MELCOR computer Code Manuals Vol. 1: Primer and User's Guide Version 2.2.19018, SAND2021-0252 O, 2021.
- [4.4.2] L.L. Humphries, et. al., MELCOR computer Code Manuals Vol. 2: Reference Manual Version 2.2.19018, SAND2021-0241 O, 2021.
- [4.4.3] Randall O. Gauntt ,Synthesis of VERCORS and Phebus Data in Severe Accident Codes and Applications, SAND2010-1633,2010
- [4.4.4] G. Brilliant, C. Marchetto, W. Plumecocq, Fission product release from nuclear fuel II. Validation of ASTEC/ELSA on analytical and large scale experiments, Annals of Nuclear Energy 61 (2013) 96–101

表 4.2.1 CHEMKEq 計算条件[4.2.4]

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 ₂ O/H ₂)
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4.2.2 CHEMKEq結果の整理(主要な化学種抽出) [4.2.4]

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 ₂ MoO ₄	Cs ₂ MoO ₄ (s) + Cs ₂ MoO ₄ (g)
	③ CsBO ₂	CsBO ₂ (s) + CsBO ₂ (g)
	④ CsOH	CsOH(s) + CsOH(g)

表 4.2.3 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 個結合したものの
(B₂O₃+H₂O → 2HBO₂)

表 4.3.1 解析の対象とした事故シナリオの概要[4.3.1]

No	事故シーケンスの概要	
1	全交流電源喪失 (TB)	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。 事故進展の推移を以下に示す。 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)→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
2	炉心冷却機能喪失 (TQUV)	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。 事故進展の推移を以下に示す。 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→格納容器除熱機能喪失(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

表 4.3.2 FP 移行挙動に関わる解析条件[4.3.1]

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	RCS 内の全ボリューム#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。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	ウェットウェル液相内の反応を考慮
I ₂ 及び有機ヨウ素の気液自由界面での総括的な物質伝達係数#2	1.0×10 ⁻⁴ m/s (仮定)
気液分配係数(HI、I ₂ 、Org-I、CO ₂)	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

#2: 静水条件では 1.0×10⁻⁶ m/s、攪拌条件では 1.0×10⁻³ m/s になるなど不確かさあり

表 4.3.3 解析対象プラントの仕様[4.3.2]

	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
低圧炉心スプレイ系 (LPCS)	系統数	2
	定格流量[t/h/台]	1690

#1: BWR5 では高圧炉心スプレイ系(HPCS)

表 4.3.4 多ケース解析における事故進展の概要(その 1) [4.3.2]

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。</p> <p>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。</p> <p>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 4.3.4 多ケース解析における事故進展の概要(その 2) [4.3.2]

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 4.3.5 FP 移行挙動に関わる解析条件[4.3.2]

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 4.4.1 MELCOR の FP クラス[4.4.1, 4.4.2]

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 4.4.2 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)[4.3.2]

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 4.4.3 MELCOR での取り扱い手順

ステップ	概要
ステップ 1	燃料からの FP 放出量(元素別の放出量)は通常通り FP 放出モデルで計算
ステップ 2	化学種結合モデルを利用し、放出元素から化学種に結合 (例：放出元素 Cs ,I, Mo を CsI、CsOH、CSM 化学種に結合)
ステップ 3	CsOH と CSM の生成比など化学種結合時の振り分けは FP 放出モデルのモデルパラメータ(感度解析パラメータ)を利用して調整
ステップ 4	化学種形成後、MELCOR の該当する FP クラスへの割り当て

表 4.4.4 CORSOR-M のモデルパラメータ[4.4.1, 4.4.2]

FP クラス	放出速度係数 k_k [1/min] (感度解析パラメータ : C7102(1))	活性化エネルギー Q_k [kcal/mol] (感度解析パラメータ : C7102(2))
Xe	2.0E5	63.8
Cs	2.0E5	63.8
Ba	2.95×10^5	100.2
I2	2.0E5	63.8
Te	2.0E5	63.8
Ru	1.62×10^6	152.8
Mo	23.15 #	44.1
Ce	2.67×10^8	188.2
La	1.46×10^7	143.1
UO2	1.46×10^7	143.1
Cd	5.95×10^3	70.8
Ag	5.95×10^3	70.8
BO2,H2O,C ON, CSI, CSM	0.	0.

Cs 化学種組成を調整する際に利用するパラメータ

表 4.4.5 CORSOR-Booth のスケーリングファクター [4.4.1, 4.4.2]

Class	デフォルト値 (感度解析パラメータ:7103)	
	Version 1.8.6	Version 2.0
Xe	1.0	1.0
Cs	1.0	1.0
Ba	3.33E-03	4.0E-04
I2	1.0	6.4E-01
Te	1.0	6.4E-01
Ru	1.0E-04	2.5E-03
Mo	1.0E-03	1.0E-03 #
Ce	3.34E-05	4.0E-08
La	1.0E-04	4.0E-08
UO2	1.0E-04	3.2E-04
Cd	5.0E-02	2.5E-01
Ag	5.0E-02	1.6E-01
CsI	0.0	6.4E-01
CSM	-	1.0

Cs 化学種組成を調整する際に利用するパラメータ

表 4.4.6 MELCOR での取扱い手順 (案)

No	項目	MELCOR2.2 での設定方法
1	基本設定	<p>➤ 「DCH_CL」を使い CSM の崩壊熱としてデフォルト値を設定 ! Add 17th CSM class, along with 2.0 defaults 例) DCH_CL 'CSM' DEFAULT</p> <p>➤ FP クラス数(NUMCLS=17)の指定 ! NUMSEC NUMCMP NUMCLS NUMCA default 例) RN1_DIM 10 3 17 6</p>
2	FP 放出モデルの指定 (RN1_FP00)	<p>➤ FP 放出モデルの指定は入力変数「RN1_FP00」を利用 ➤ デフォルト値=CORSOR-Booth 高燃焼度燃料用の放出モデル (default = -5) 例) RN1_FP00 -5 !-5 または'RCB_HBF'</p> <p>➤ CORSOR-M(実験との表面積/体積比による補正あり)を利用する場合には以下のように指定 例) RN1_FP00 'CM_SVO' !-2 または'CM_SVO'</p>
3	燃料放出時の元素結合による化学種生成モデル (RN1_CLS)	<p>FP 放出モデルから計算された元素量を、入力変数「RN1_CLS」を用いて化学種に結合する。CsI と CSM の 2 つを指定する。 例 1: 1 モルの Cs と 0.5 モルの I2 を結合し CsI を生成 RN1_CLS CsIcombination CsI 2 1 Cs 1.0 2 I2 0.5</p> <p>例 2: 2 モルの Cs と 1 モルの Mo を結合し CSM を生成 RN1_CLS CsMcombination CSM 2 1 CS 2.0 2 MO 1.0</p> <p>なお、例 2 の入力を指定しなければ CSM ではなく CsOH が生成される。本結合モデルでは、ガス状ヨウ素の生成は取り扱えないので、ガス状ヨウ素の放出を想定する場合には燃料 GAP 放出モデルを利用し I₂ の放出を考える必要がある。「RN1_GAP」を利用し、Xe、Cs、I₂ など元素毎に炉心インベントリに対する割合を設定できる。</p>
4	放出モデルでの Mo 放出特性の調整方法	<p>放出モデルに CORSOR-M を利用する場合には、表 4.4.3 の Mo の第 1 変数である放出速度係数(感度解析パラメータ C7102(1)、デフォルト値 23.15)を修正する。CORSOR-Booth を利用する場合には、表 4.4.4 の Mo のスケーリングファクターSf(感度解析パラメータ 7103、デフォルト値 1.0E-3)を修正することで Mo の放出特性の調整が可能である。調整方法を以下に示す。 例 1) CORSOR-M の Mo の第 1 パラメータ C7102(1)を 2 倍の値 (46.3) に変更する方法 RN1_CSC 1 1 7102 MO 46.3 1 !N SC 番号 ClassName Index1 Index2</p> <p>例 2) CORSOR-Booth モデルの Mo の Sf(デフォルト値 1.0E-3)を 1.5 倍の値(1.5E-3)に変更する方法 RN1_CSC 1 1 7103 MO 1.5E-3 !N SC 番号 ClassName Index1 Index2</p>
5	FP クラスに割り当て	<p>CSM は FP クラス 17 に割り当てられている。既設クラスには既に FP 移行挙動解析ができるように、蒸気圧曲線など基本的な物性値が備わっている。</p>

表 4.4.7 FP クラスの飽和蒸気圧[4.4.1, 4.4.2]

クラス	代表化学種	飽和蒸気圧 $P^{(s)}$ (mmHg)、温度 T_k (K) 温度下限値以下では蒸気圧ゼロ
1	Xe	常時ガスとして挙動
2	Cs	$600 \leq T_k \leq 1553$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{9.4E3}{T_k} + 21.59 - 3.75 \times \log_{10}(T_k)$ #1 $T_k > 1553$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{6870.778}{T_k} + 7.994503$
3	Ba	$T_k \geq 1000$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{1.10E4}{T_k} + 8.4$
4	I ₂	$273 \leq T_k < 387$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{3578}{T_k} + 17.72 - 2.51 \times \log_{10}(T_k)$ $387 \leq T_k \leq 457$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{3205}{T_k} + 23.6636 - 5.18 \times \log_{10}(T_k)$ $T_k > 457$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{2176.912045}{T_k} + 7.637352$
5	Te	$T_k \geq 273$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{13940}{T_k} + 23.51 - 3.52 \times \log_{10}(T_k)$
6	Ru	$T_k \geq 1500$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{33200}{T_k} + 11.6088$
7	Mo	$T_k \geq 1500$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{32800}{T_k} + 9.68$
8	Ce	$T_k \geq 1500$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{21570}{T_k} + 8.74$
9	La	$T_k \geq 1500$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{21800}{T_k} + 8.683$
10	UO ₂	$T_k \geq 1500$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{32110}{T_k} + 11.873$
11	Cd	$T_k \geq 1000$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{13730}{T_k} + 8.43$
12	Ag	$T_k \geq 1000$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{15400}{T_k} + 8.15s$
13	BO ₂	$T_k \geq 1000$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{19520}{T_k} + 11.125$
14-15	H ₂ O, CON	-
16	CsI	$600 \leq T_k < 894$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{10420}{T_k} + 19.70 - 3.02 \times \log_{10}(T_k)$ $894 \leq T_k < 1553$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{9678}{T_k} + 20.34569 - 3.52 \times \log_{10}(T_k)$ $T_k \geq 1553$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{7303.903158}{T_k} + 7.58405103$
17	CSM	$600 \leq T_k < 1229.5$ の場合 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{13600}{T_k} + 8.895$ $T_k \geq 1229.5$ の時 $\log_{10}P^{(s)} = -\frac{12100}{T_k} + 7.675$

#1 マニュアル記載ミスあり(9.4E4→9.4E3)

表4.4.8 Lennard-Jonesパラメータ[4.4.1, 4.4.2]

クラス	代表 化学種名	$\sigma(\text{\AA})$	$\epsilon/k_B(\text{K})$	クラス	代表 化学種名	$\sigma(\text{\AA})$	$\epsilon/k_B(\text{K})$
1	Xe	4.055	229	11	Cd	Csと同値を使用	
2	Cs	3.617	97	12	Ag	同上	
3	Ba	3.617	97	13	B	同上	
4	I2	4.982	550	14	H2O	同上	
5	Te	Csと同値を使用		15	Concrete	同上	
6	Ru	同上		16	CsI	同上	
7	Mo	同上		17	CsM	同上	
8	Ce	同上					
9	La	同上					
10	U	同上					

備考：Lennard-Jonesパラメータは、拡散係数や粘性係数などガス状の形態で存在する場合の化学種の物性値推定に利用される。なお、常時エアロゾルとして存在するものは、エアロゾルの拡散として扱うため無関係である。

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	セシウム#1	1.0
る補正係数[倍]	モリブデン	1.0、3.0、5.0、7.0
(デフォルト=1.0)		

#1: セシウム元素は固定させ、Mo 元素の補正係数を変動

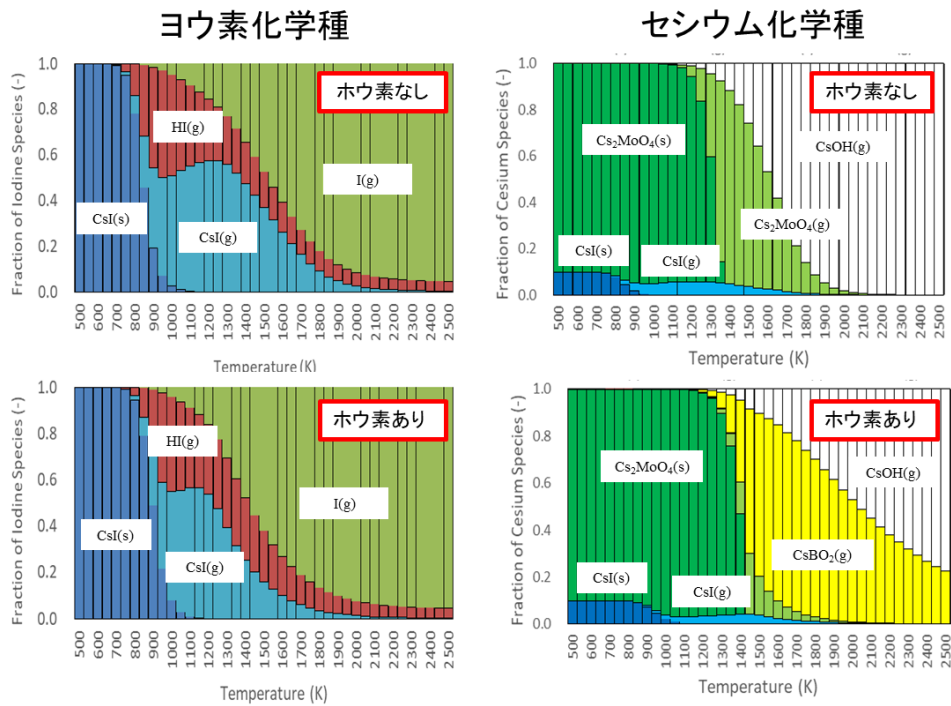
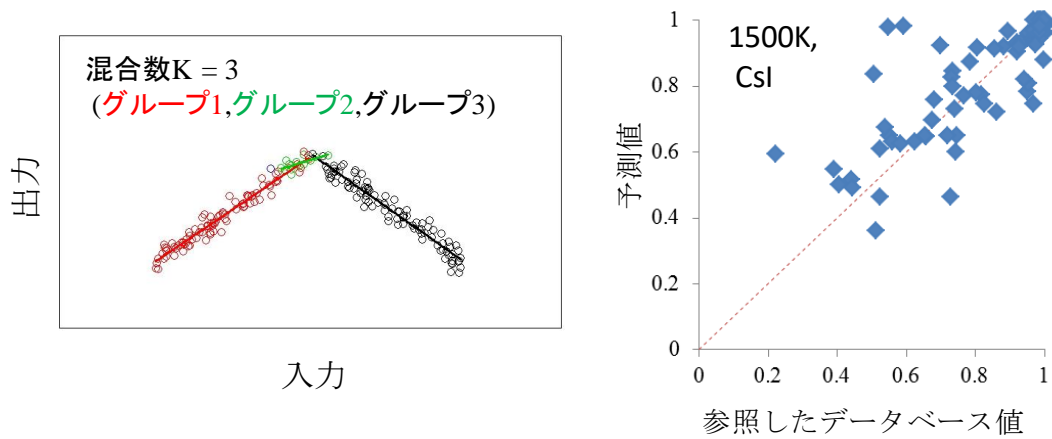


図 4.2.1 ヨウ素及びセシウム化学種の温度依存性[4.2.4]

(CHEMKEq 結果、BWR 条件: モル濃度比 I:Cs:Mo:B= 0.01: 0.1: 0.1:1.0, $H_2O/H_2=100$)



(a) Dirichlet過程による混合数Kの推定

(b) 代替統計モデルの検証

図 4.2.2 ノンパラメトリック・ベイズ法による線形回帰モデル[4.2.5]

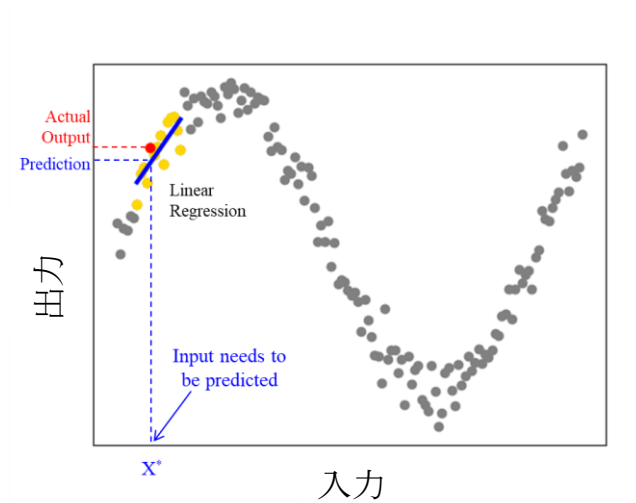


図 4.2.3 K 近傍法による線形回帰モデル[4.2.6]

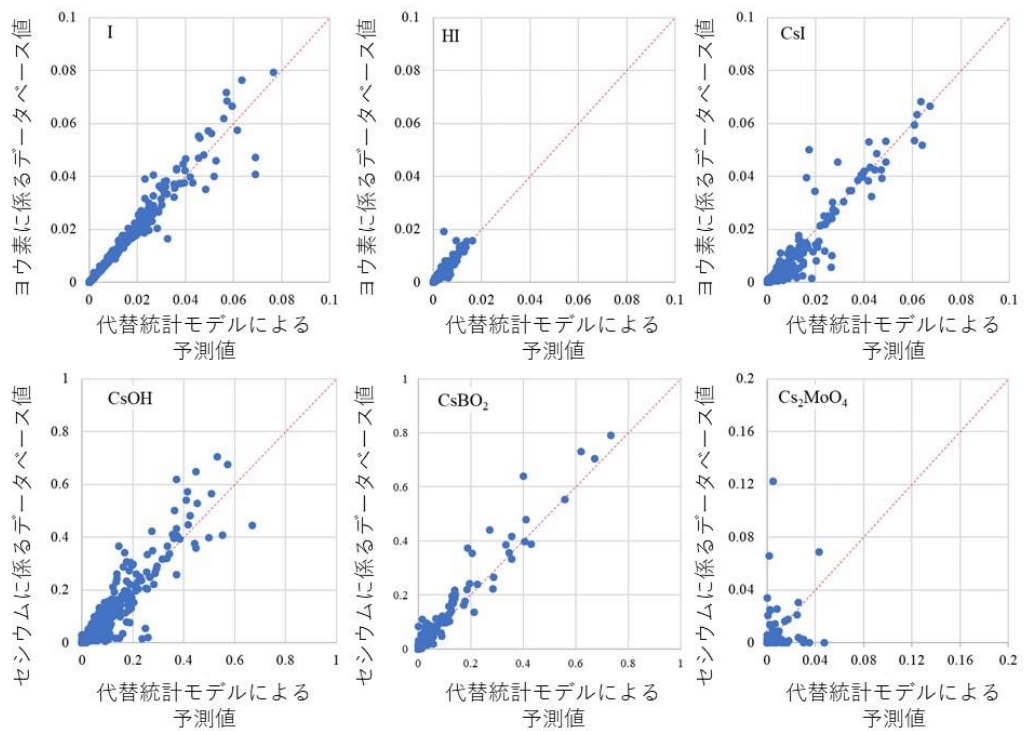
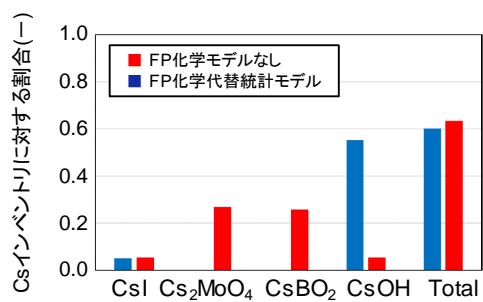
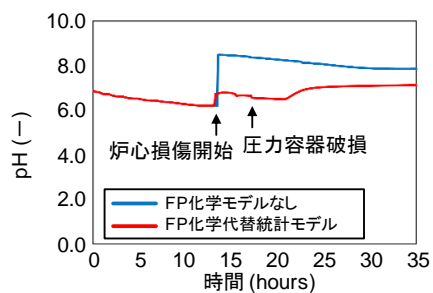


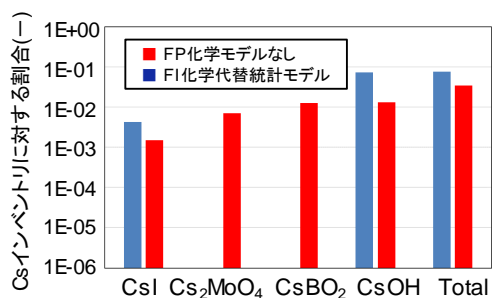
図 4.2.4 K 近傍法に基づく線形回帰モデルによる化学組成評価 [4.2.6]



(1) 格納容器に移行するCs化学種



(2) 格納容器液相のpH



(3) 環境に放出されるCs化学種

注)「FP化学モデルなし」ではセシウムの化学形をCsIとCsOHに固定

図 4.2.5 ソースターム解析結果の例

(BWR4/Mark-I 全交流電源喪失時のドライウェル過圧破損ケース) [4.2.6]

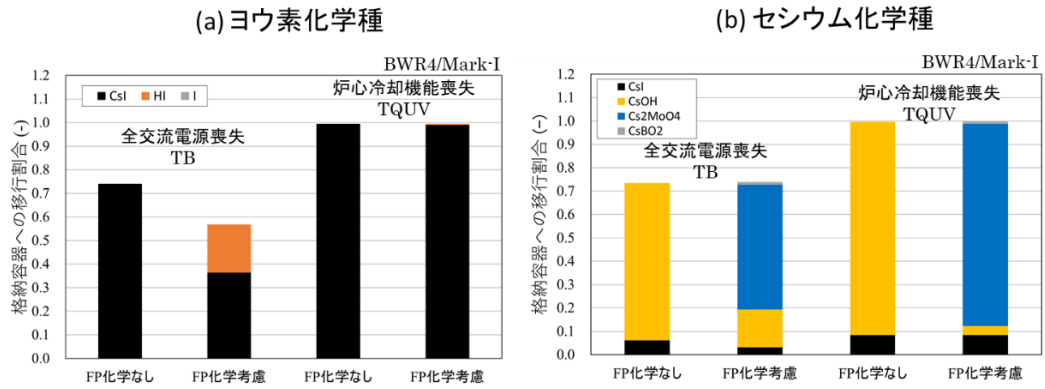


図4.3.1 RCS内FP化学による格納容器(ウェットウェル)への移行化学種への影響[4.3.1]
 (対初期炉内内蔵量、原子炉減圧操作を実施しないTBでは炉心近傍での温度が上昇しガス状ヨウ素への置換が促進、減圧操作を実施するTQUVでは置換は少ない。同様にRCS温度の上昇が抑制されると低温で安定なCs₂MoO₄への置換が促進される)

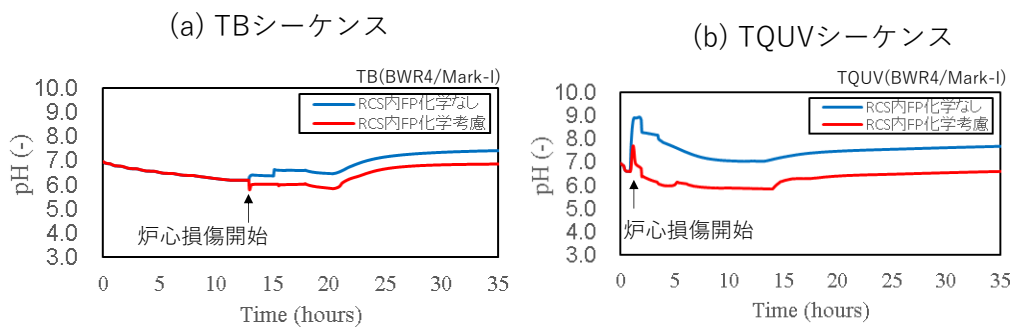


図4.3.2 RCS内FP化学による格納容器pHへの影響 (BWR4/Mark-I) [4.3.1]
 (FP化学の考慮によりCsOHからCs₂MoO₄への置換が促進されpH上昇が抑制)

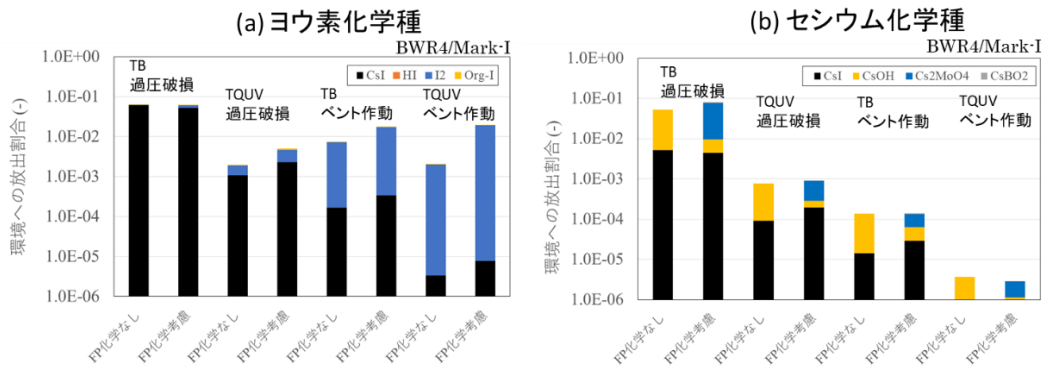
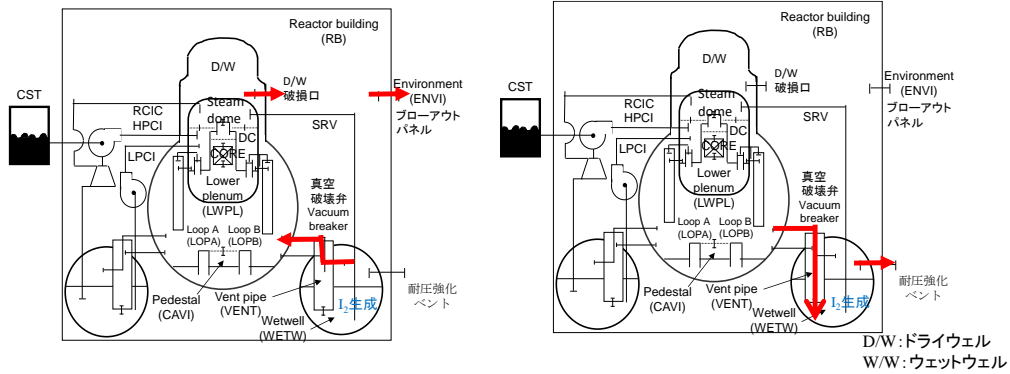


図4.3.3 RCS内FP化学によるソースタームへの影響 [4.3.1]

(対初期炉内内蔵量、pH低下により特にベント作動ケースでI₂放出が促成、セシウム化学種は蒸気圧が低い化学種への置換により、移行経路での沈着が進み、環境放出量は低下)

(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⇒排気塔經由環境
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⇒排気塔經由環境

図4.3.4 環境までの移行経路の相違(BWR4/Mark-I) [4.3.1]

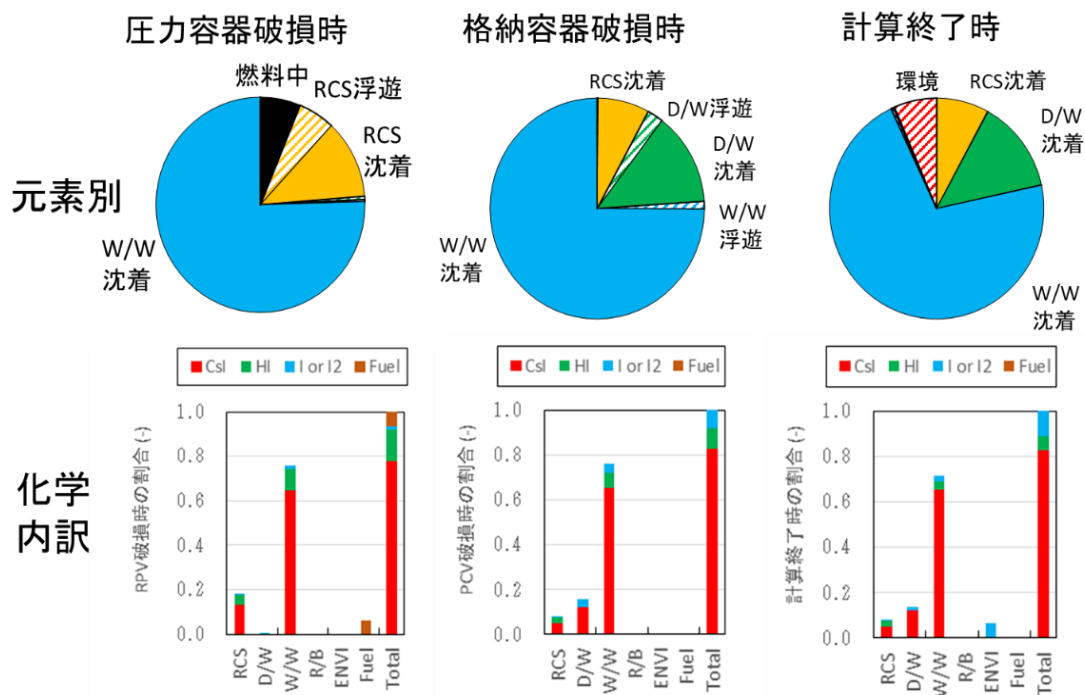


図 4.3.5 TB シーケンスでのヨウ素の化学組成[4.3.2]

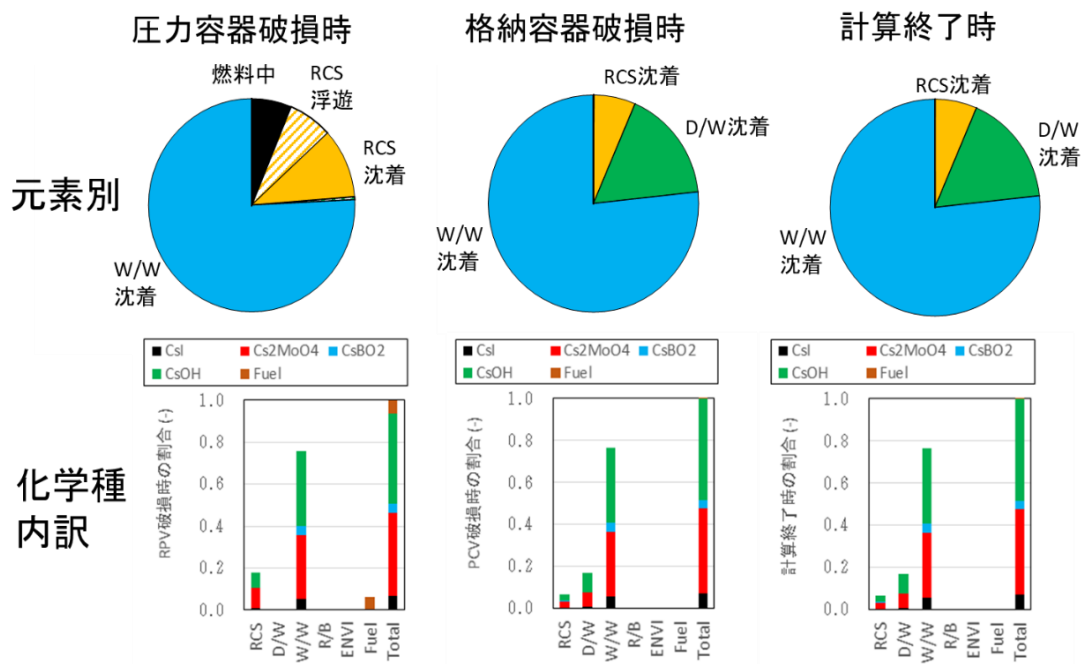


図 4.3.6 TB シーケンスでのセシウムの化学組成[4.3.2]

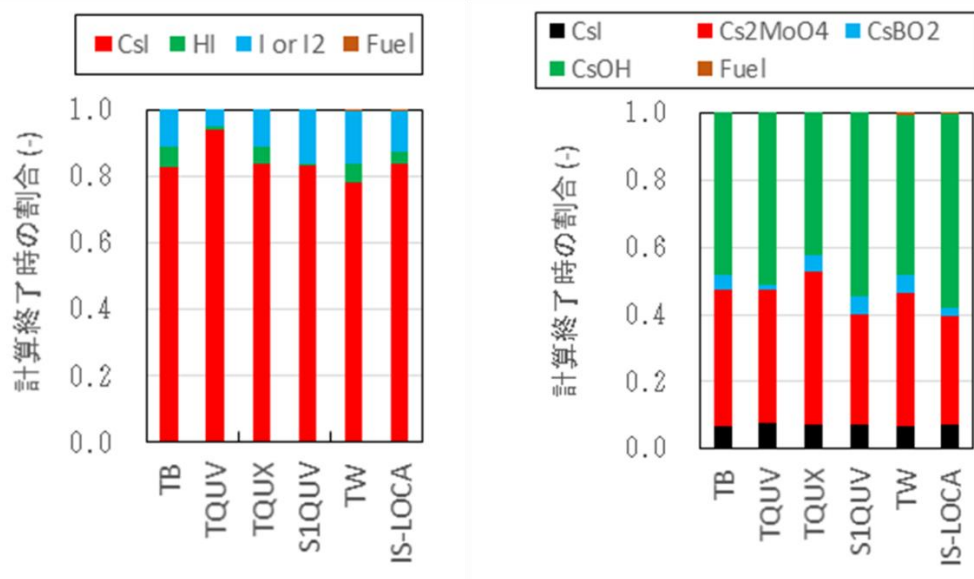


図 4.4.1 提案する化学組成表 (BWR5/mark-II 改、計算終了時の結果)[4.3.2]

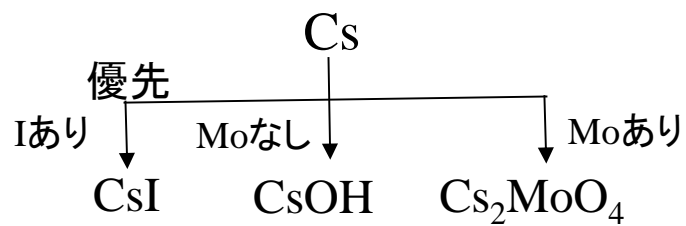


図 4.4.2 元素結合による化学種生成モデル

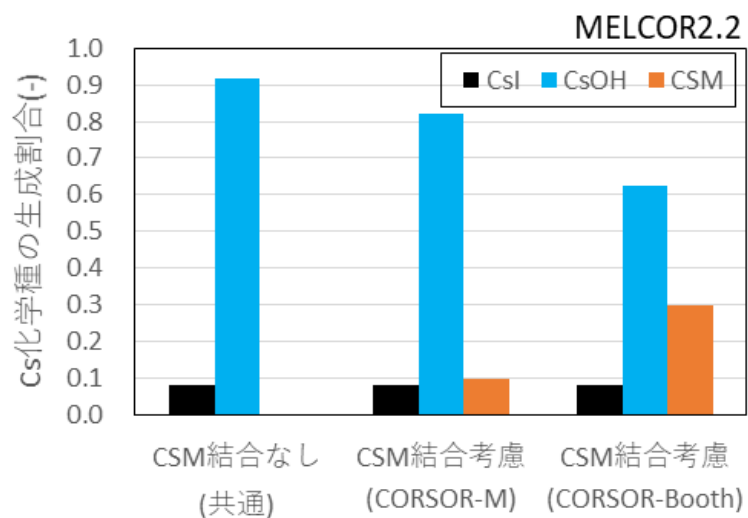


図 4.4.3 元素結合モデルの使用例

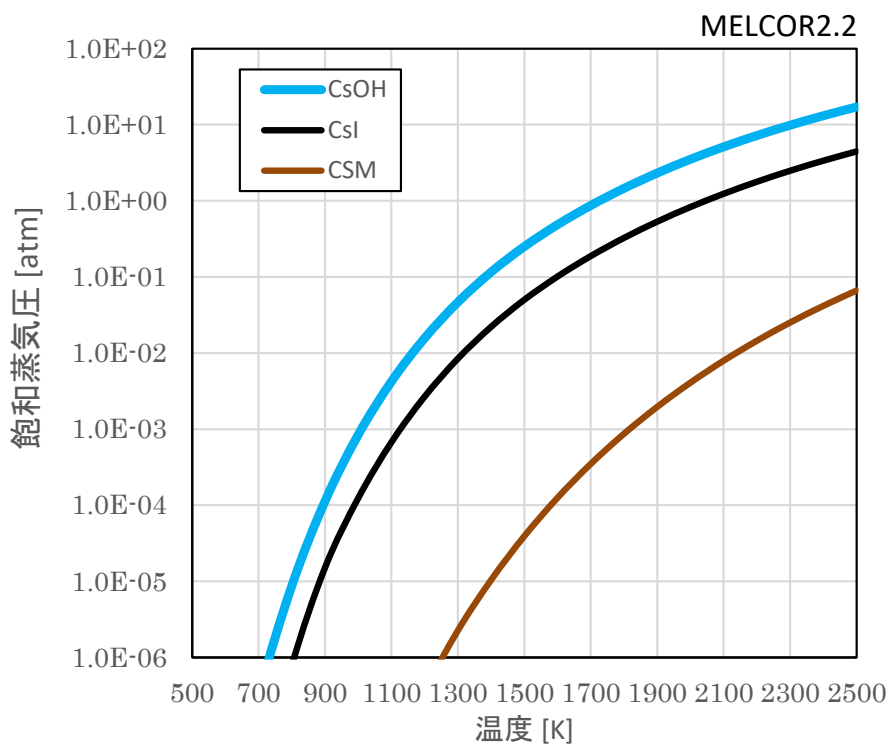


図 4.4.4 Cs 化学種の飽和蒸気圧

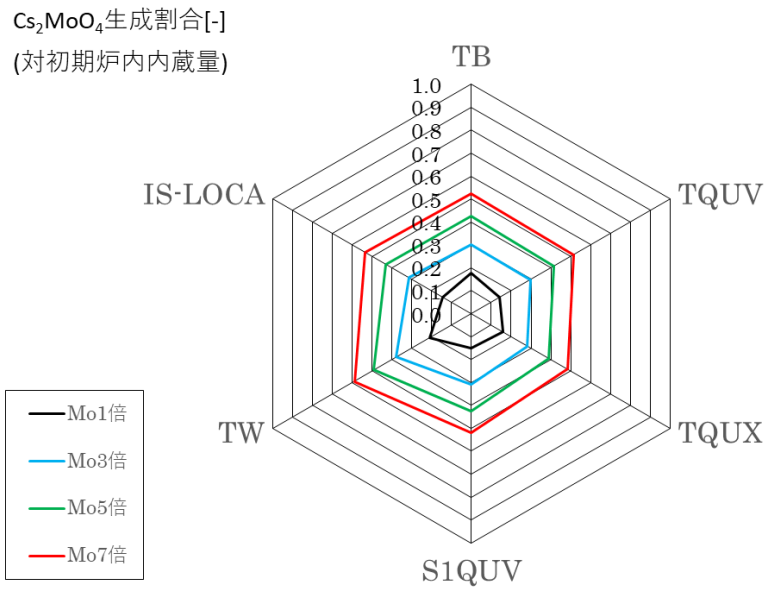


図 4.4.5 Mo 補正係数の違いによる Cs_2MoO_4 生成割合への影響

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に資する実験及び解析、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への導入方法やその効果を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 を例として確認した。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

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、同移行モデルを有する機構論 FP 移行挙動解析コード ART を用いたソースタームに対する影響度解析（Morris 法）を実施し、影響の大きな現象を検討した。なお本年度の影響度解析では、事故進展過程に伴って影響度の大きな現象がどのように変化にするかに着目している。本解析結果及び過去に実施した影響度解析の結果の分析から以下の知見を得た。

- 環境放出総量に対する影響度は、放出経路に大きく依存しており、環境に最も近い場所（D/W、W/W や建屋）で支配的な移行モデルが高くなる。
- Cs の環境放出総量に対する、再移行モデルの影響はその他の重力沈降や凝集、スクラビングモデルに対して小さい。
- Cs について、事故進展過程に着目した場合、事故晩期では、事故初期や中期に比べて、再移行モデルの一つである再蒸発の影響度が相対的に大きくなる。

したがって、公衆に対する被ばくに対する影響を考慮する上では、再移行挙動（再浮遊、再蒸発、飛沫同伴、再揮発）の内、再蒸発挙動が重要であると考えられる。一方で、本解析で取り扱った再蒸発挙動は、熱的のみであり、化学的な再蒸発のモデルを含まないため、その不確かさを含有している。したがって、今後化学的な再蒸発に対するモデル開発やそれら実験の実施と検証が必要であると考えられる。

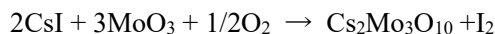
(2) 化学挙動に関するデータ取得

シビアアクシデント時の FP 移行において想定されるヨウ素－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過去に実施した 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、例えば、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、揮発性のヨウ素が生成し、下流側へ移行しやすくなる。



そのため、揮発性ヨウ素の生成のためには、モリブデンが6価である三酸化モリブデンが還元されない高い酸素ポテンシャルが必要になると考えられた。一方で、実際の燃料中に生成するセシウム、モリブデン及びヨウ素の生成割合、すなわち、Cs : Mo : I = ~10 : ~10 : ~1 に近い組成で燃料から放出された場合、揮発性ヨウ素の生成に関与するモリブデンがセシウムとの反応に大部分消費され、揮発性ヨウ素の生成に影響を与える恐れがある。そのため、高酸素ポテンシャルにおいても、実際に想定されるセシウム、モリブデン及びヨウ素の生成割合に近い組成で燃料から放出された場合、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。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、高酸素ポテンシャル雰囲気かつ燃料中の生成割合に近い組成でセシウム、モリブデン及びヨウ素を蒸発させた場合の揮発性ヨウ素の生成に関するデータ取得等、実験データの拡充が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

ソースターム評価における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。これまで、本事業で実施してきたソースターム解析手法の構築において、実機評価で考慮すべき化学知見、並びに手法の整備状況を取りまとめた。また、化学モデルを持たないシビアアクシデント総合解析コード (MELCOR 等) で化学知見を活用する方法として、原子炉冷却系の FP 化学挙動モデルを有する THALES2 コードを用いて事故シーケンス毎に評価したセシウム及びヨウ素の化学形割合(令和3年度に提案した化学平衡組成表)を MELCOR 等の入力に反映する手法を令和3年度事業で提案した。この手法を、FP 化学挙動モデルを無効にした THALES2 を用いたソースターム解析に適用し、同モデルを有効にした解析の結果(化学平衡組成表)と比較することで手法の妥当性を確認した。

付録 A 会議等参加報告

件名	OECD/NEA/ESTER 計画に関する会議への参加
出張先	オンライン
期間	令和4年10月4日(火)～10月6日(水)
出張者	研究員1名
概要	<p>ESTER 計画の第4回ミーティングが上記の日程でエクサンプロバンス(フランス)で行われた。日本からは機構職員1名と規制庁職員1名(現地参加)が参加した。1日目と2日目にPRG及びMBミーティングが開催され、3日目にはIRSNカダラッシュ研究所にあるCHIP装置などの施設見学が実施された。PRGミーティングでは、CHIP装置とEPICUR装置を用いた実験の進捗状況が共有され、今後の実験条件について議論が交わされた。共通の課題に対して参加機関が解析を試みるAWGの活動では、フェーズ1の課題に対する解析結果が示された。次回のミーティングでは、フェーズ2に移行する。</p>

件名	OECD/NEA/THEMIS 計画に関する会議への出席
期間	令和4年11月7日(月)～11月8日(火)
概要	今回は第4回の会合であり、パリで実施された。日本からは原子力規制庁職員1名が出席した。THAI装置を用いた実験の進捗状況やそれに対する議論などの当事業に関する情報については、参加した規制庁職員との意思疎通の他、追って参加機関向けに公開された資料から収集した。

件名	MUSA 計画会合への出席
出張先	オンライン
期間	A. 令和4年4月20日(水) B. 令和4年6月27日(月)～6月29日(水) C. 令和4年10月5日(水) D. 令和4年11月16日(水)～11月18日(金)
出張者	A. 研究員2名 B. 研究員1名 C. 研究員2名 D. 研究員1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(WP) 5 と 6 の会合に参加し、以下の通り解析結果の報告及び情報収集を行った。</p> <p>A. WP5 サブグループ (BWR) の進捗報告 JAEA で実施している MELCOR 及び RAVEN を結合した不確実さ解析について、進捗報告を行った。具体的には、上記コードの結合、不確実さパラメータの選定等が完了していること及び不確実さ解析を実行中であることを報告した。</p> <p>B. 第3 会年次会合 それぞれの WP の進捗について、WP のリーダーより報告があった。WP5 については、今後、各国間で議論を深めるとともに、2023 年に1本の論文を準備することが目標とされた。</p> <p>C. WP5 サブグループ (BWR) の進捗報告 JAEA で実施している MELCOR 及び RAVEN を結合した不確実さ解析について、進捗報告を行った。具体的には、4月20日に報告した条件において、実施した解析の結果を報告した。</p> <p>D. WP5 及び WP6 合同進捗報告 WP5 及び 6 の進捗について、WP のリーダーより報告があった。WP5 については、令和4年度中を目処に、報告書の初稿を提出する予定となった。</p>

件名	IRSN-NRA-JAEA 三者セミナーへの出席
出張先	東京
期間	令和4年11月28日(月)～11月30日(水)
出張者	副部門長、ディビジョン長、研究員など32名
概要	<p>1日目(11/28)にはJAEAの施設見学が実施され、セミナーは2日目と3日目に新橋の第5海事ビルのセミナールームにおいて開催された。セミナーでは、使用済み燃料プールの安全性、シビアアクシデント、臨界安全、経年劣化、大気汚染物質、熱流動、先進炉、燃料安全、外的事象など幅広い安全研究のテーマに関するプレゼンテーションが行われ、活発に意見交換された。また、参加機関による共同研究の可能性についても議論された。</p>

件名	日本原子力学会 2022 年秋の大会への参加
出張先	茨城大学日立キャンパス
期間	令和 4 年 9 月 7 日(水) ~ 9 月 9 日(金)
出張者	博士研究員 1 名
概要	<p>本受託に関する情報収集の他、以下の発表を行った。</p> <p><u>Giedre Zablackaite</u>, Hiroyuki Shiotsu, Kentaro Kido, Tomoyuki Sugiyama, “Analysis of mass transfer effect on iodine release from aqueous phase under severe accident conditions”. (下線は登壇者)</p>