



# シビアアクシデント時における 再揮発現象に係る検討

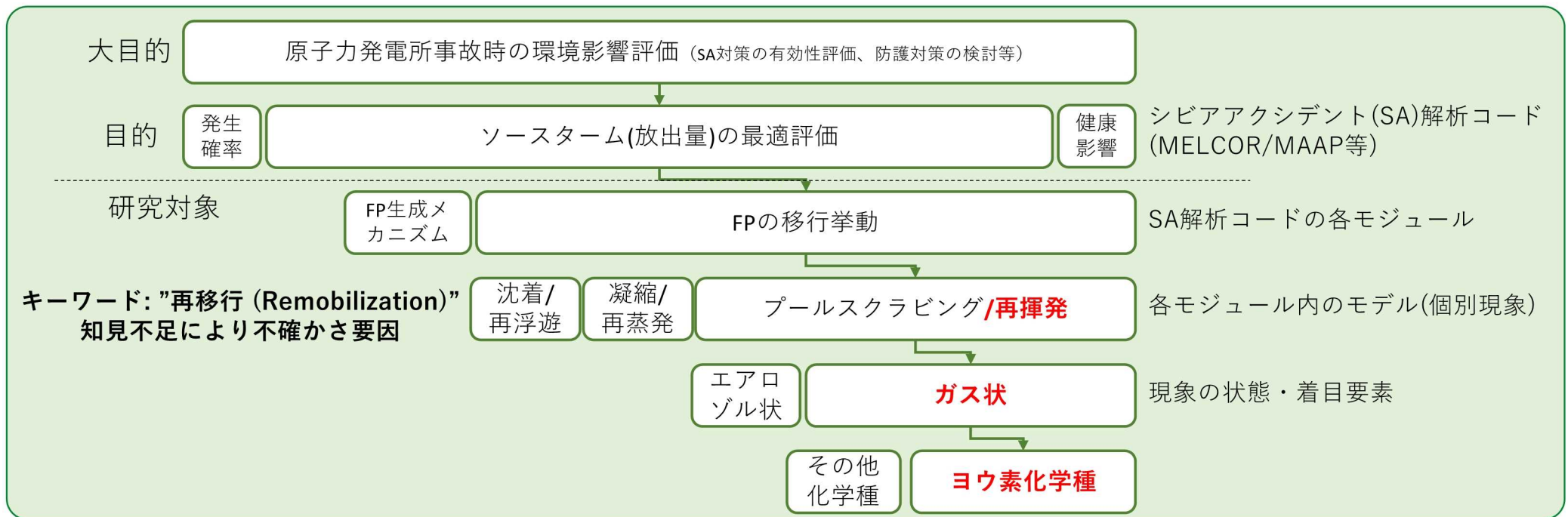
2024年2月26日

技術基盤グループ シビアアクシデント研究部門

本研究は原子力規制庁及び国立研究開発法人日本原子力研究開発機構による共同研究（気体状FP移行挙動モデルの不確かさ低減に関する研究）の成果である。



# 【全体像】 本研究で対象とする現象・目的



本件研究で対象とする現象・目的  
ガス状ヨウ素化学種のプールスクラビング/再揮発現象のモデル化・精緻化



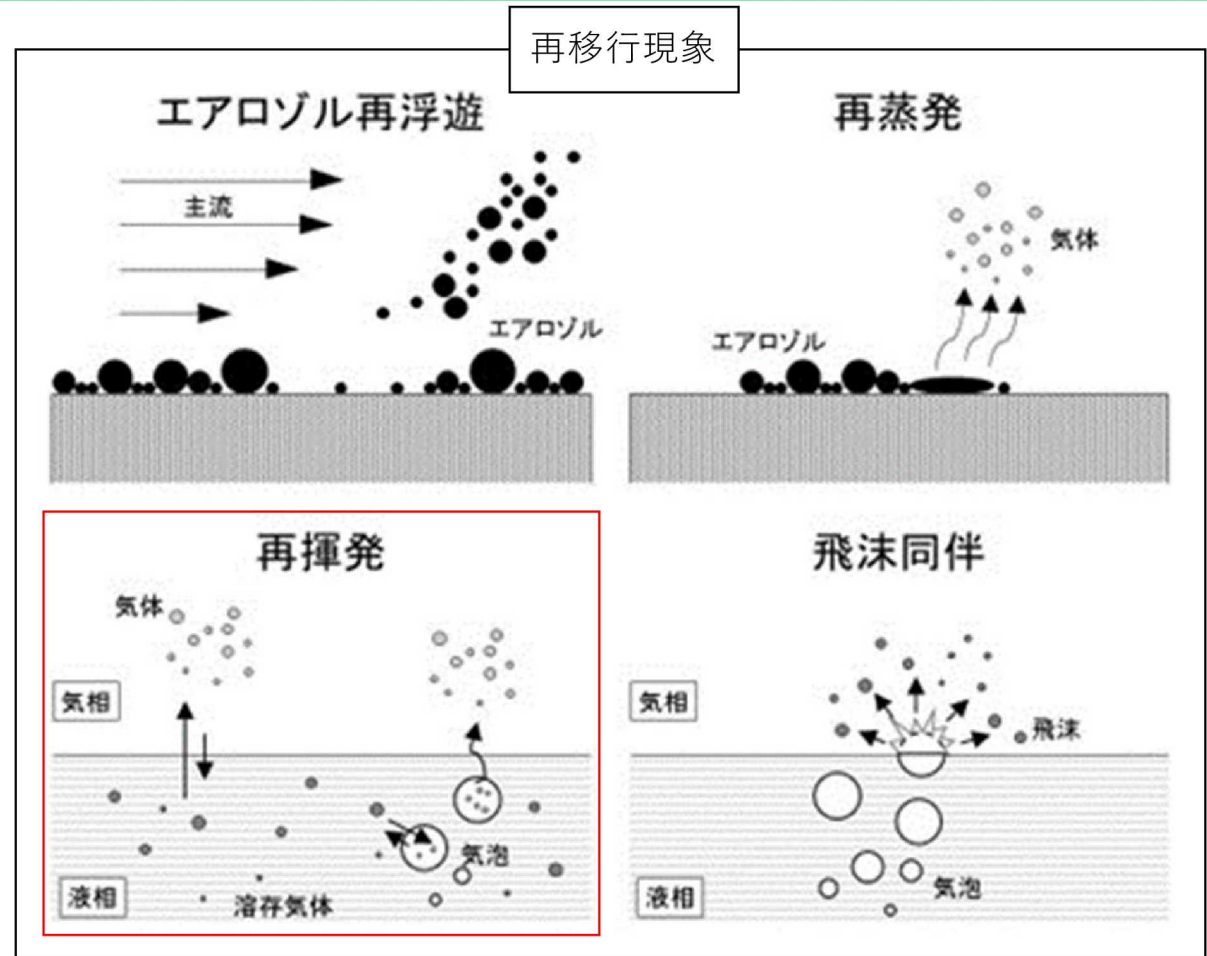
## 【背景】 ソースターム評価の不確かさ

### 解析コード内モデルの知見不足

- 原子力発電所事故時のソースタームを評価するために、シビアアクシデント解析コードには放射性物質の**多種多様な生成・移行挙動**がモデル化されている。
- 一方で、知見の不足等により現行の解析コードではモデル化が不十分な物理化学現象も存在し、それらが解析結果における不確かさ要因となる。

### 知見不足の現象：再移行挙動

- 特に、モデル化に必要な知見が不足している現象として、**再移行挙動**が挙げられる。再移行挙動は、従来のソースターム評価よりも環境放出量を増加させる恐れがある。
- 右記4つの現象のうち、本研究では「**再揮発**」現象に着目した。

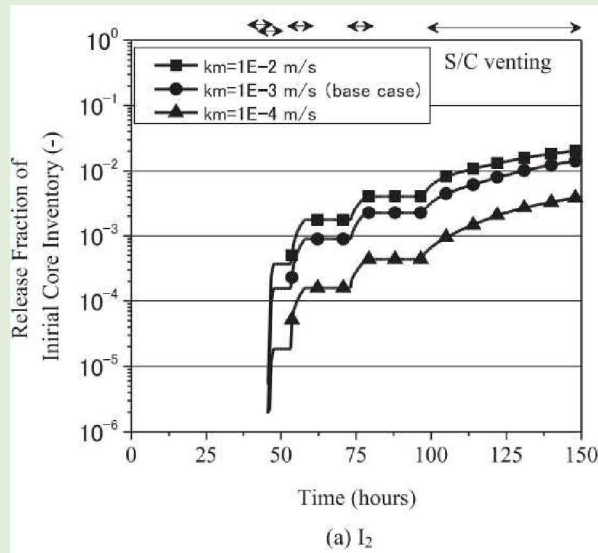




# 【背景】再揮発現象に対する先行研究

## ■ JAEAによる1F3事故解析[1]

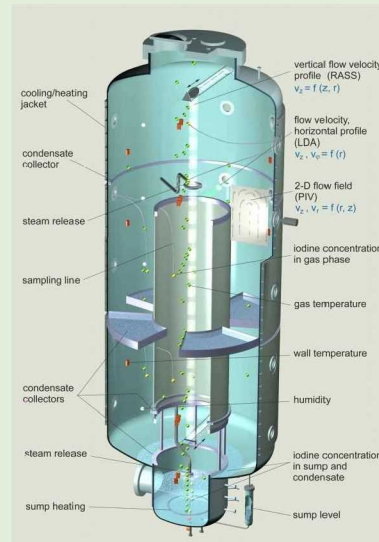
- サプレッションプール表面からの気体状ヨウ素化学種の放出について感度解析
- 気体状ヨウ素化学種の環境放出量が10~30倍程度増加させる恐れがあるとの指摘



1F3からのI<sub>2</sub>環境放出量解析結果

## ■ OECD/NEA THAI-3 project; Iod-32 test[2]

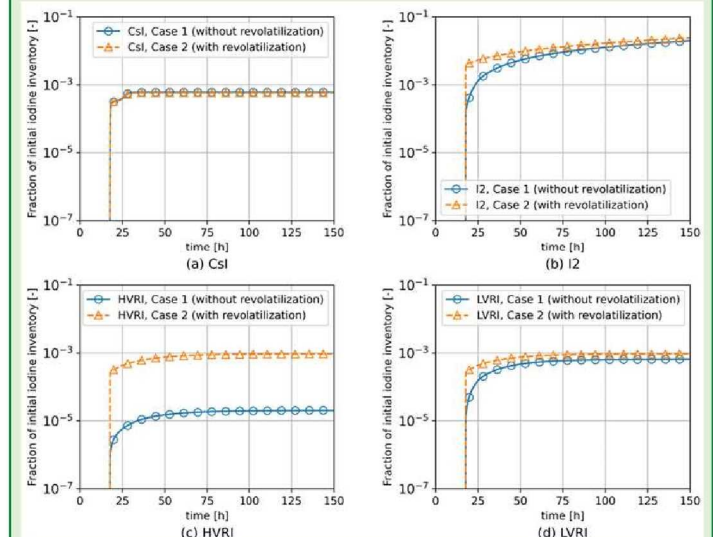
- 大型の格納容器試験装置にて、減圧沸騰によるプール水中ヨウ素の揮発実験
- 実験結果には大きな不確かさが伴うものの、プール静水面からの揮発と比較して、10倍~100倍増加した。



THAI格納容器試験装置

## ■ 本研究での試解析[3]

- サプレッションプールにおける気泡流による再揮発現象をモデル化
- ベント操作時に、D/WからS/Pへ種々の気体の流入により気泡流が生じ、再揮発現象が促進された。



ヨウ素化学種の環境放出量

[1] Ishikawa, J., et. al., (2015). Analysis for iodine release from unit 3 of Fukushima Dai-ichi nuclear power plant with consideration of water phase iodine chemistry.

[2] OECD/NEA THAI-3 project: Volatile Iodine Release from Boiling Water Pool at Elevated Temperature (Test Iod-32) (2018).

[3] Nanjo, K., et. al., (2022). Revolatilization of iodine by bubbly flow in the suppression pool during an accident. Journal of Nuclear Science and Technology



## 【背景・目的】再揮発現象モデル化の課題・アプローチ

### ガス状ヨウ素化学種のプールのスクラビング/再揮発現象の支配因子

物質移動係数

気液界面積

液相化学反応

化学種と流動条件に依存

多種多様なヨウ素化学種に対して知見が不足

二相流条件下での知見が不足

ヨウ素化学種は実験や測定が難しい

気液界面積項と分離して評価することが難しい

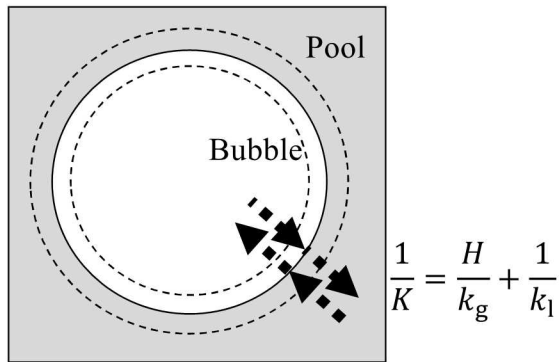
そこで、  
二相流条件下におけるヨウ素化学種の物質移動係数を推定するモデルの構築を目指した。

- 気液界面積を測定せずに推定できるものとする
- 取扱いが容易な気体を用いて推定できるものとする

構築したモデルを検証する実験を実施した。



## 【現象】 気液間の物質移動現象（二重境膜モデル）

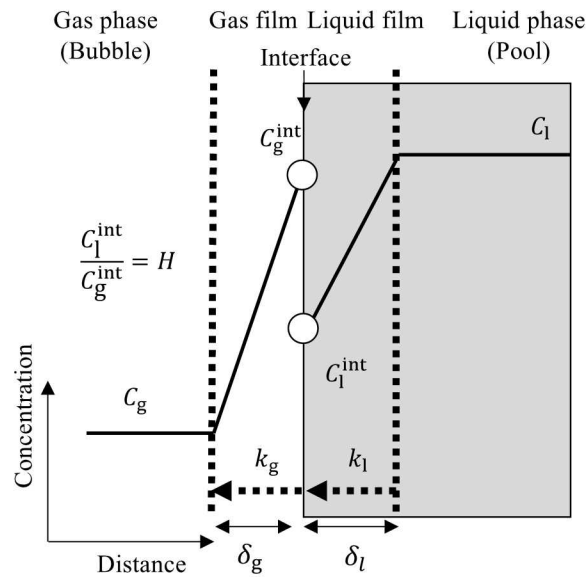


液相の濃度変化はFickの法則より、

$$\frac{dC_l}{dt} = K \frac{A}{V_l} (HC_g - C_l)$$

$k_g \gg k_l$  の関係から、総括物質移動係数  $K$  は液相側抵抗となり、

$K$	: 総括物質移動係数 [m/s]
$H$	: 分配係数 [-]
$A$	: 気液界面積 [m <sup>2</sup> ]
$V_l$	: 液相体積 [m <sup>3</sup> ]
$C_g$	: 気相濃度 [mol/m <sup>3</sup> ]
$C_l$	: 液相濃度 [mol/m <sup>3</sup> ]
$k_l$	: 液相側物質移動係数 [m/s]
$D_l$	: 液相中の拡散係数 [m <sup>2</sup> /s]
$\delta_l$	: 液相側の境膜厚さ [m]



$$K \approx k_l$$

また、液相側物質移動係数  $k_l$  は、

$$k_l = \frac{D_l}{\delta_l}$$

- 物質移動係数  $K$  と気液界面積  $A$  は分離して評価することが難しい。
- 物質移動係数  $K$  は  $D_l/\delta_l$  で表される。



## 【理論式導出】物質移動係数と気液界面積の積 $K \cdot A$ の導出

2つの気体成分a及びbを考える。各気体成分に対して、濃度の時間変化の式を立てる。

$$\frac{dC_{la}}{dt} = K_a \frac{A}{V_l} (H_a C_{ga}^t - C_{la}^t),$$

$$\frac{dC_{lb}}{dt} = K_b \frac{A}{V_l} (H_b C_{gb}^t - C_{lb}^t).$$

上昇中の気泡内濃度は測定することが出来ないため、気相と液相の初期濃度を用いて、下式に変換する。

$$C_{ga}^t = C_{gai} - \frac{(C_{la}^t - C_{lai})V_l}{V_g},$$

$$C_{gb}^t = C_{gbi} - \frac{(C_{lb}^t - C_{lbi})V_l}{V_g}.$$

式に代入し、整理すると（気体成分aについてのみ記載）,

$$\frac{dC_{la}^t}{dt} = \beta_1 - \alpha_1 C_{la}^t,$$

$$\alpha_1 = \frac{K_a A}{V_l} \left(1 + \frac{H_a V_l}{V_g}\right),$$

$$\beta_1 = \frac{K_a A}{V_l} H_a \frac{C_{gai} V_g + C_{lai} V_l}{V_g}.$$

この微分方程式を解くと,

$$C_{la}^t = \frac{\beta_1}{\alpha_1} + \left(C_{lai} - \frac{\beta_1}{\alpha_1}\right) e^{-\alpha_1 t}$$

この式を  $K_a A$  についてまとめ直すと,

$$K_a A = \frac{V_l}{(1 + \varepsilon_1)t} \ln \left( \frac{C_{la}^t - \frac{\gamma_1}{1 + \varepsilon_1}}{C_{lai} - \frac{\gamma_1}{1 - \varepsilon_1}} \right)$$

$$\gamma_1 = C_{gai} + \frac{V_l C_{lai}}{V_g},$$

$$\varepsilon_1 = \frac{H_a V_l}{V_g}.$$

$K_a, K_b$  : 気体成分a/bの総括物質移動係数 [m/s]

$H_a, H_b$  : 気体成分a/bの分配係数 [-]

$A$  : 気液界面積 [m<sup>2</sup>]

$V_l$  : 液相体積 [m<sup>3</sup>]

$V_g$  : 気相体積 [m<sup>3</sup>]

$C_{ga}^t, C_{gb}^t$  : 時刻tの気体成分a/bの気相濃度 [mol/m<sup>3</sup>]

$C_{la}^t, C_{lb}^t$  : 時刻tの気体成分a/bの液相濃度 [mol/m<sup>3</sup>]

$C_{gai}, C_{gbi}$  : 気体成分a/bの気相初期濃度 [mol/m<sup>3</sup>]

$C_{lai}, C_{lbi}$  : 気体成分a/bの液相初期濃度 [mol/m<sup>3</sup>]



## 【理論式導出】 気液界面積項Aをキャンセルアウト

導出した $K_a A$ ,  $K_b A$ について：

$$K_a A = \frac{V_l}{(1+\varepsilon_1)t} \ln \left( \frac{C_{la}^t - \frac{\gamma_1}{1+\varepsilon_1}}{C_{lai} - \frac{\gamma_1}{1-\varepsilon_1}} \right), \quad \gamma_1 = C_{gai} + \frac{V_l C_{lai}}{V_g}, \quad \varepsilon_1 = \frac{H_a V_l}{V_g}$$

$$K_b A = \frac{V_l}{(1+\varepsilon_2)t} \ln \left( \frac{C_{lb}^t - \frac{\gamma_2}{1+\varepsilon_2}}{C_{lbi} - \frac{\gamma_2}{1-\varepsilon_2}} \right), \quad \gamma_2 = C_{gbi} + \frac{V_l C_{lbi}}{V_g}, \quad \varepsilon_2 = \frac{H_b V_l}{V_g}$$

赤色：測定できない値  
 青色：既知の値  
 緑色：測定が必要な値

青色の変数は実験初期において既知の値となる。

ここで、2つの気体成分が液相に溶存していると状況を考える。ここに不活性( $N_2$ )ガスを供給することで、2つの気体成分を同一の流動条件下で脱気し、緑の値を得ると、 $K_a A$ と $K_b A$ が得られる。さらに、その比を求めることで、気液界面積Aを消去できる。

$$\frac{K_b A}{K_a A} = \frac{K_b}{K_a}$$

同一の二相流条件下では、気体成分によらず、境膜厚さが等しいと仮定すると、

$$K \approx \frac{D_l}{\delta_l} \quad \text{とすると、} \quad \frac{K_b}{K_a} \approx \frac{D_{lb}}{D_{la}}$$

液相中拡散係数 $D_l$ は比較的容易に推定することができる。

よって、参照値となる $K_a$ が既知であれば、未知の $K_b$ を推定することができる。

$K_a, K_b$  : 気体成分a/bの総括物質移動係数 [m/s]  
 $H_a, H_b$  : 気体成分a/bの分配係数 [-]  
 $A$  : 気液界面積 [m<sup>2</sup>]  
 $V_l$  : 液相体積 [m<sup>3</sup>]  
 $V_g$  : 気相体積 [m<sup>3</sup>]  
 $C_{ga}^t, C_{gb}^t$  : 時刻tの気体成分a/bの気相濃度 [mol/m<sup>3</sup>]  
 $C_{la}^t, C_{lb}^t$  : 時刻tの気体成分a/bの液相濃度 [mol/m<sup>3</sup>]  
 $C_{gai}, C_{gbi}$  : 気体成分a/bの気相初期濃度 [mol/m<sup>3</sup>]  
 $C_{lai}, C_{lbi}$  : 気体成分a/bの液相初期濃度 [mol/m<sup>3</sup>]  
 $D_{la}, D_{lb}$  : 気体成分a/bの液相中拡散係数 [m<sup>2</sup>/s]  
 $\delta_l$  : 液相側の境膜厚さ [m]



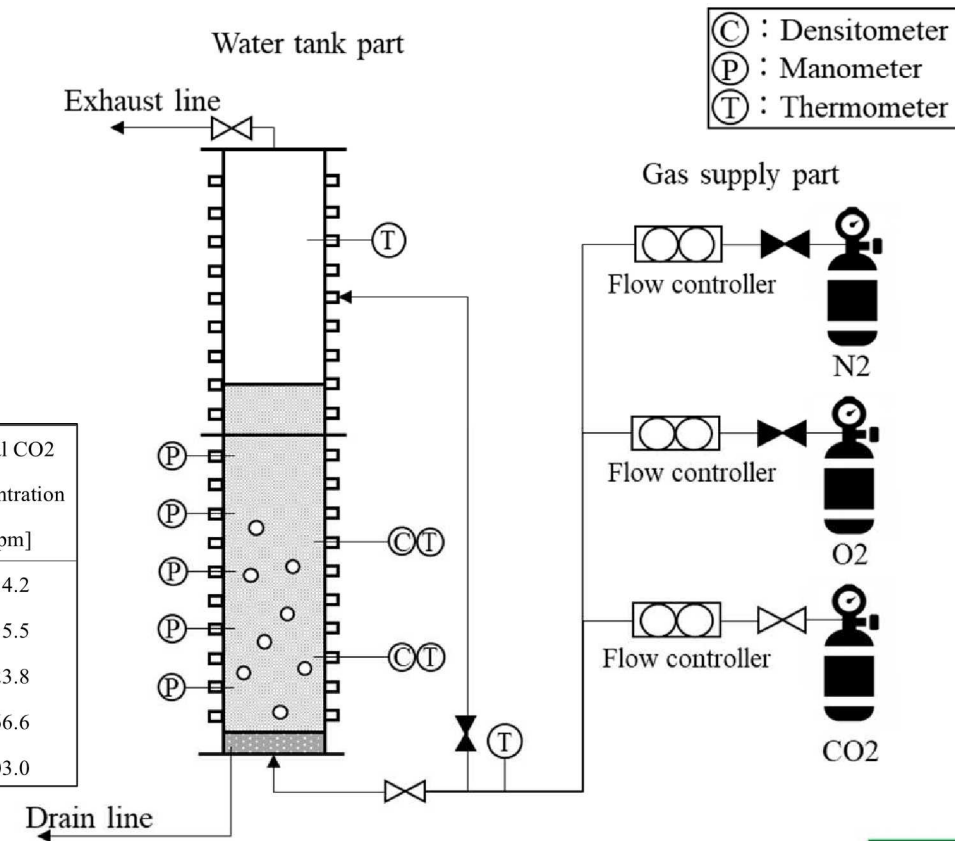


# 【実験】 実験装置概略

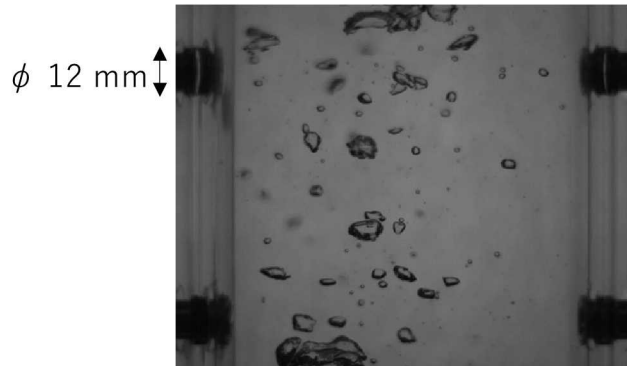
## 2つの気体成分を液相から同時に脱気する実験装置

- 予め液相に2つの気体成分を溶存させておき、気泡塔底部から窒素を供給することで、液相に溶けた2つの気体成分に同一の流動条件を与え、同時に脱気した。
- 対象気体成分は、酸素及び二酸化炭素とした。
- 水槽に挿入した各気体成分の濃度計で、液相中の酸素及び二酸化炭素の濃度変化を計測した。
  - なお、予備実験の結果、高さ方向で濃度分布が発生しなかったため、液相濃度は1点で代表できるものとした。

Element	Feature	Test	Flow rate [L/min]	Temperature [°C]	Initial O2 concentration [ppm]	Initial CO2 concentration [ppm]
Water tank						
Height	2.0 [m]					
Tank diameter	0.15 [m]					
Water level	1.0 [m]					
Liquid volume	0.018 [m3]					
Densitometer position						
O2 sensor	0.3 [m] from bottom	1-4	4	23.08	5.390	566.6
CO2 sensor	0.4 [m] from bottom	1-5	5	23.10	5.238	503.0



## 【実験】 実験の様子及び結果



注入 $N_2$ 流量 2 [L/min]の場合  
約10 [mm]程度の気泡が観察できる

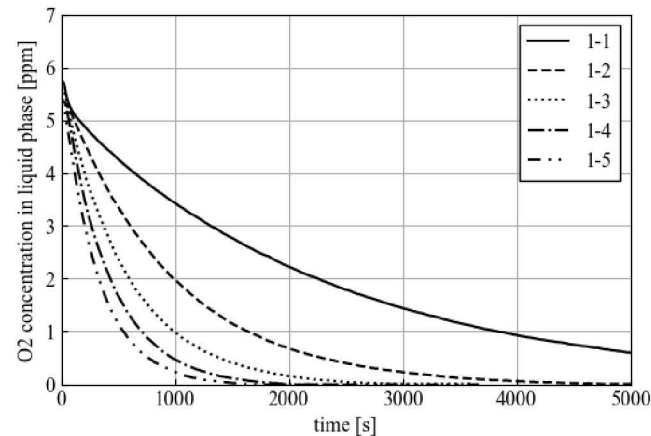


図. 酸素の脱気結果

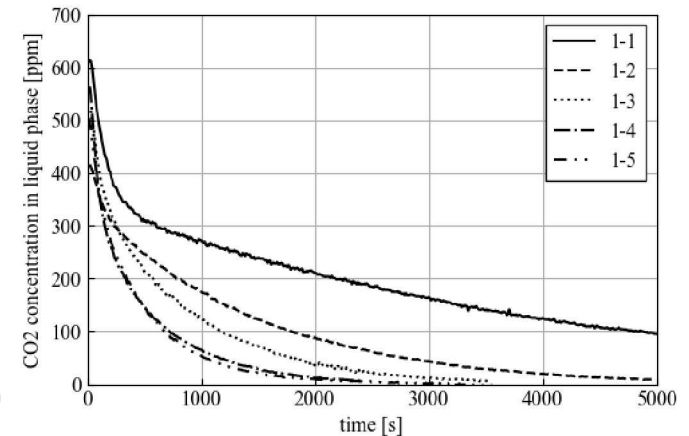


図. 二酸化炭素の脱気結果

- 窒素ガスの注入によって、両気体が液相から脱気されていることが確認できる。
- 気泡流の安定及び濃度計の安定のため、窒素注入開始から500秒間のデータは以降のデータ処理から除外した。
- 濃度計の信頼性の観点から、酸素においては0.3 [ppm]、二酸化炭素においては50 [ppm]以下のデータは以降のデータ処理から除外した。



## 【実験】 実験結果の解析（ $K_aA$ 及び $K_bA$ の計算）

$$K_aA = \frac{V_l}{(1+\varepsilon_1)t} \ln \left( \frac{C_{la}^t - \frac{\gamma_1}{1+\varepsilon_1}}{C_{lai} - \frac{\gamma_1}{1-\varepsilon_1}} \right), \quad \gamma_1 = C_{gai} + \frac{V_l C_{lai}}{V_g}, \quad \varepsilon_1 = \frac{H_a V_l}{V_g}$$
$$K_bA = \frac{V_l}{(1+\varepsilon_2)t} \ln \left( \frac{C_{lb}^t - \frac{\gamma_2}{1+\varepsilon_2}}{C_{lbi} - \frac{\gamma_2}{1-\varepsilon_2}} \right), \quad \gamma_2 = C_{gbi} + \frac{V_l C_{lbi}}{V_g}, \quad \varepsilon_2 = \frac{H_b V_l}{V_g}$$

- 導出した理論モデルを用いて $K_aA$ 及び $K_bA$ を計算した。実験結果を120秒ごとに平均化し下図としてプロットした。
- 気泡形成及び気泡上昇の不確かさによって、値が大きく揺らぐが、平均値(プロット点)はある一定の範囲に収束していることが読み取れる。

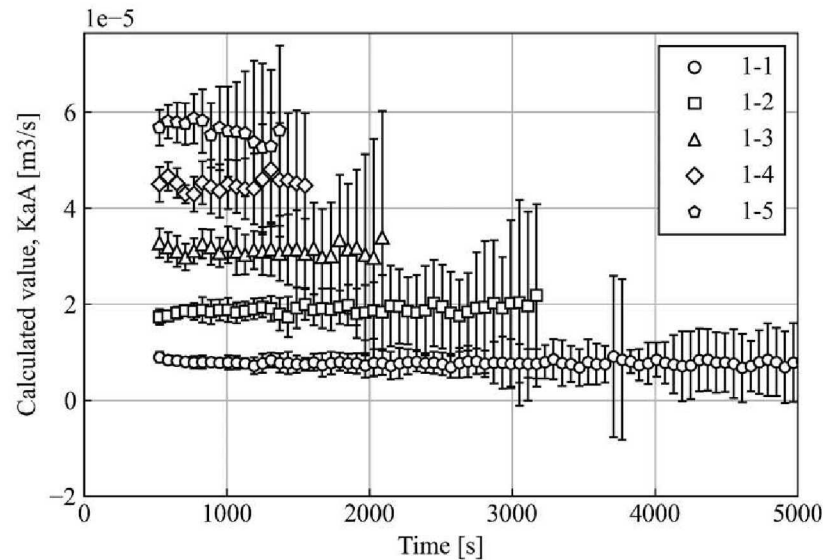


図. 酸素における $K_aA$ 計算結果

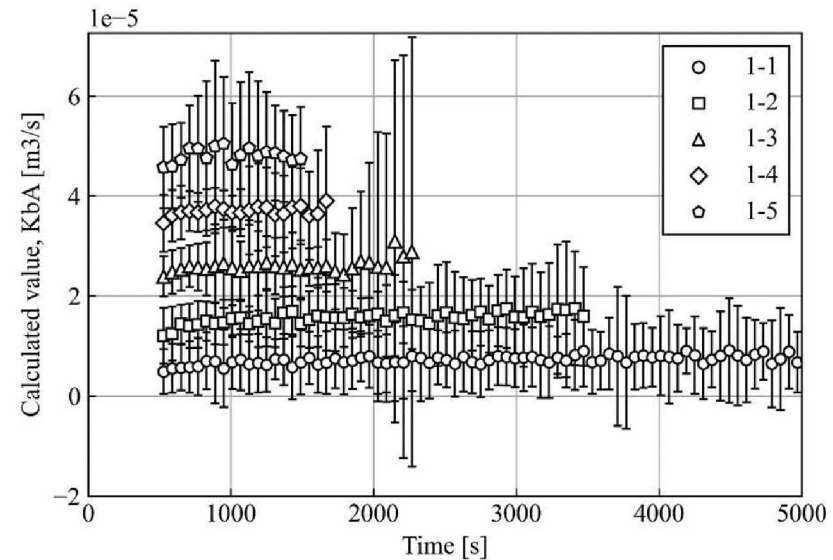


図. 二酸化炭素における $K_bA$ 計算結果

シビアアクシデント時における再揮発現象に係る検討, 研究報告会, 2/26 2024.



## 【実験】 $K_aA$ 及び $K_bA$ の計算結果

- 実験から得られた各流量における $K_aA$ 及び $K_bA$ の全対象区間の平均値を図に示す。
- 高い流量ほど、 $K_aA$ 及び $K_bA$ が大きくなることを確認できる。
- $K_aA$ 及び $K_bA$ は、流量に対して線形増加よりもわずかに高い増加率を示している。
- これは流量(ボイド率)が増加するごとに、気泡径が小さくなるか気泡形状が歪む傾向があることを示している。
- この傾向により、ボイド率の増加以上に気液接触面積 $A$ が増加していると考えられる。

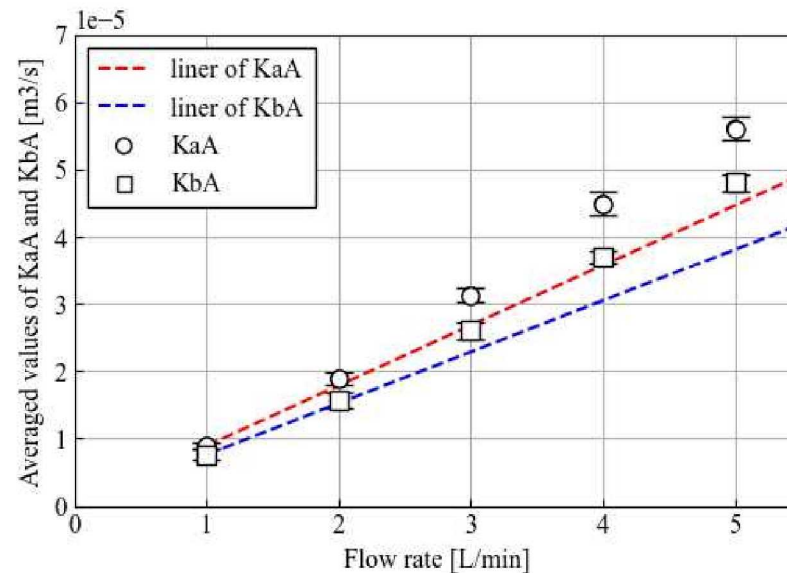


図. 各流量における $K_aA$ 及び $K_bA$ の平均値における再揮発現象に係る検討, 研究報告会, 2/26 2024.

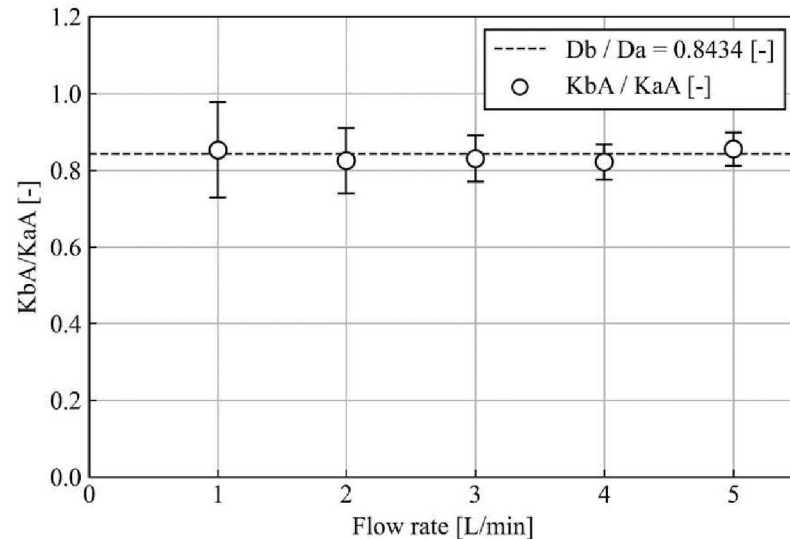


## 【実験】 $K_bA/K_aA$ の計算結果

- 導出した理論モデルから、 $K_bA/K_aA$  の計算結果は、 $D_b/D_a$  に等しくなると考えられる。
- 酸素及び二酸化炭素の拡散係数を下式で示すWilkeの推算式を用いて推定した。

$$D = 7.4 \times 10^{-8} \frac{(xM)^{\frac{1}{2}} T}{\mu V^{0.6}}$$

- 酸素(気体成分a)及び二酸化炭素(気体成分b)の拡散係数の比は、0.84となった。
- 実験結果より、物質移動係数の比は拡散係数の比と概ね一致した。



$D$  : 拡散係数 [ $\text{cm}^2/\text{s}$ ]  
 $x$  : 溶媒の会合度 [-]  
 $M$  : 溶媒の分子量 [ $\text{g/mol}$ ]  
 $T$  : 温度 [ $\text{K}$ ]  
 $\mu$  : 溶媒の粘度 [ $\text{cp}$ ]  
 $V_i$  : 気体成分の沸点モル体積 [ $\text{cm}^3/\text{mol}$ ]

図.  $K_bA/K_aA$  の計算結果



## 【実験】ヨウ素化学種への適用

- 酸素及び二酸化炭素を用いた検証実験から、導出した理論モデルの妥当性を確認した。

$$\frac{K_b}{K_a} \approx \frac{D_{lb}}{D_{la}}$$

- 本研究で確認した上記関係式を用いて、バイオ工学における酸素の物質移動係数を参照値( $K_a$ )として、ヨウ素化学種の物質移動係数( $K_b$ )を推定した。

本実験で得られた関係式から推定した常温常圧時における二相流条件下におけるヨウ素化学種の物質移動係数 (20 [°C]) [1]

	$D$ [cm <sup>2</sup> /s]	$D/D_{O_2}$ [-]	$K$ [m/s]
O <sub>2</sub>	2.12E-05	1	4.23E-04
CO <sub>2</sub>	1.79E-05	0.8434	3.57E-04
I <sub>2</sub>	1.14E-05	0.5399	2.28E-04
CH <sub>3</sub> I	1.24E-05	0.5831	2.47E-04
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> I	1.06E-05	0.5014	2.12E-04
CH <sub>3</sub> (CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> I	9.51E-06	0.4485	1.90E-04
(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> CHI	9.37E-06	0.4420	1.87E-04

- ただし、C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>I以降のヨウ素化学種については、低揮発性ヨウ素であり、分配係数 $H$ が大きいと予測されるため、気相側抵抗についても考慮する必要がある。

[1] Nanjo, K., et al., (2023). Estimation for mass transfer coefficient under two-phase flow conditions using two gas components. Journal of Nuclear Science and Technology



- **二相流条件下における物質移動係数を推定するモデルを構築した。**
  - 構築したモデルは、物質移動係数の比と拡散係数の比が等しくなる関係を利用し、参照値となる物質移動係数を用いて、気液界面積を測定せずに未知の物質移動係数を推定するものである。
- **同モデルを検証する実験装置を製作し、酸素及び二酸化炭素を用いてモデルの妥当性を確認した。**
- **実験結果から、実験条件下では物質移動係数と拡散係数の比が等しくなることが確認された。**
- **同モデルを用いて、ヨウ素化学種の物質移動係数を推定した。**
- **本検討は、常温常圧における実験結果となる。今後、実験温度領域を拡張し、高温環境での適用性を検証する。**