



Japan Atomic Energy Agency

ソースターム評価の不確かさ低減に向けて① ～放射性物質の化学挙動に関する予測～

日本原子力研究開発機構
安全研究・防災支援部門
安全研究センター
リスク評価研究ディビジョン
シビアアクシデント評価研究グループ

塩津 弘之

平成30年度 安全研究センター報告会
平成30年11月8日
富士ソフト アキバプラザ

本研究成果の一部は、原子力規制庁から受託した平成27～30年度「原子力施設等防災対策等委託費（シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化）事業」の一部として得られたものである

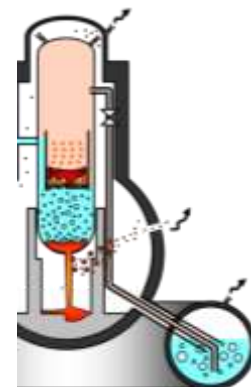
軽水炉でのソースターム評価の課題

◆ ソースターム

FP:核分裂生成物

シビアアクシデント時に、環境へ放出される放射性物質(主に、FP)の種類、物質量、物理的・化学的形態、放出時期といった情報の総称

- 【活用先】
- 原子力施設のリスク評価(レベル2及び3PRA)
 - SA対策の有効性の評価



◆ 軽水炉でのソースターム評価手法

従来

- FP元素毎に**主要な化学形を仮定**し、その化学形の**物性値**を基に移行挙動を計算

NUREG-1465 Cs = CsOH (凝縮性)
(Soffer et al., 1995) I = 95% CsI (凝縮性) + 5% HI/I (ガス状)

- 原子炉冷却系での**FP化学形**: FP同士や構造材等との**反応により変化**
 ✓ **ガス状ヨウ素の割合**: **制御棒の材料に依存**

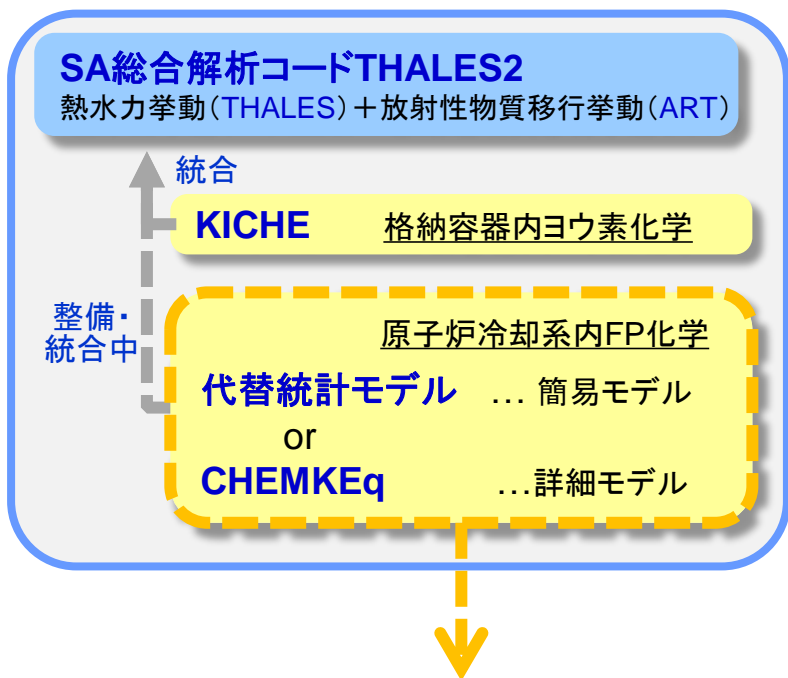
Ag-In-Cd: 0.1~1%、**B₄C**: ~27% PHEBUS-FP実験 (Herranz and Clement, 2010)

【**化学形の違いで生じる影響**】

炉内の存在分布、スクラビング、冷却水pH、環境への放出とその後の移行

原子炉冷却系での**FP化学挙動**を考慮したソースターム評価

FP化学挙動を考慮したソースターム評価に向けて



統計モデルの導入
不確かさ・感度解析手法
及び動的手法の適用



不確かさ要因の
フィードバック



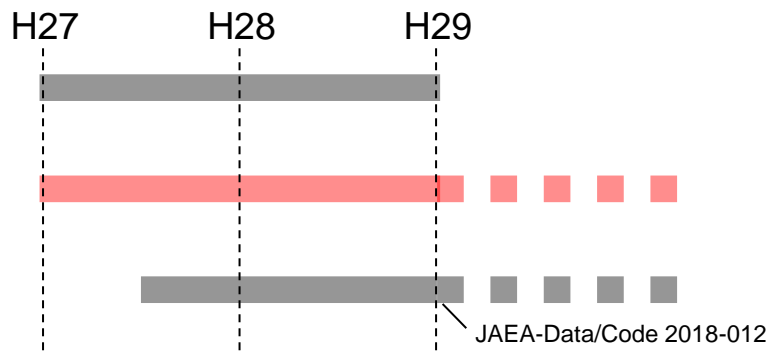
- 様々なSAシナリオに対するソースターム知識ベースの構築
- SA対策の成立性及び有効性の評価
- 福島第一原子力発電所事故の分析
- レベル3PRAコードOSCAARとの連携による緊急時防護対策の最適化

◆ 原子炉冷却系内のFP化学モデル

I. 代替統計モデルの構築・導入
(化学平衡論に基づく)

↑ 化学平衡論の検証解析 *本発表*

II. CHEMKEqの整備
(化学平衡論/反応速度論)



化学形の評価モデル

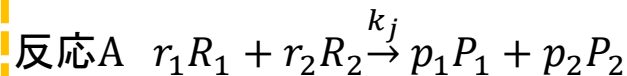
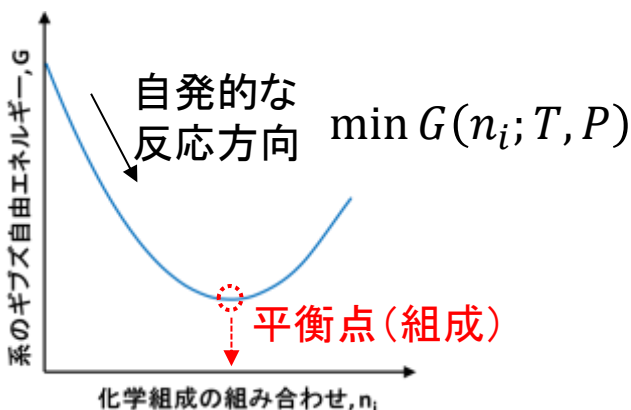
化学平衡論

反応速度論

自発的な反応が十分に進行し平衡に至った際の化学組成(系のギブズ自由エネルギーが最小)を計算

任意の反応によって変化する化学形の濃度変化に関する連立常微分方程式群より微小時間 Δt に対するその変化量を逐次計算

解法



$$\frac{d[R_1]}{dt} = -r_1 k_j [R_1]^{r_1} [R_2]^{r_2}$$

$$\frac{d[R_2]}{dt} = -r_2 k_j [R_1]^{r_1} [R_2]^{r_2}$$

.....

支配量

元素組成、温度、圧力

初期化学形、温度、(圧力)、時間

時間の概念

無 (反応速度 = ∞ 仮定)

有

利用可能なデータベース数 (FP関連)

多

少

データベース数の観点で利用しやすい

目的・内容

- ◆ **FP化学挙動の理解・化学モデルの確立**に向けて、化学平衡論モデルを有する数値解析コードによる実験解析・検証を実施
 - 特に、**ホウ素がFP化学挙動に与える影響**に着目

① 総合効果実験

- 照射済み燃料を使用
- 仏原子力・エネルギー代替庁主導の国際協力実験VERDON

② 個別効果実験

- ヨウ素に注目した個別効果実験
- 既知のヨウ素試料を使用
- JAEA 原子力基礎工学研究センターとの協力実験
 - ・ AGF装置： 不活性-還元雰囲気
 - ・ TeRRa装置： 水蒸気雰囲気

	VERDON-2 (2012)	VERDON-5 (2016~)
燃料	MOX (~70GWd/t) 再照射あり	UO ₂ (~60GWd/t) 再照射あり
雰囲気	H ₂ O →Air+H ₂ O	H ₂ O+ホウ素 →Air+H ₂ O

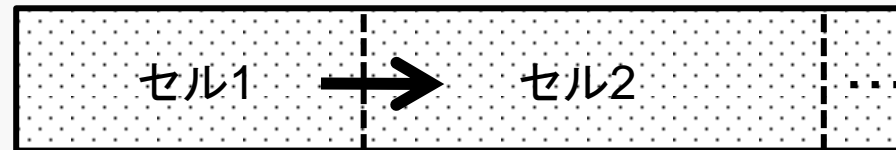
	JAEA_AGF (2015~)	JAEA_TeRRa (2017~)
装置	AGF	TeRRa
試料	CsI粉末 or CsI+B ₂ O ₃ 粉末	
雰囲気	Ar+H ₂	Ar+H ₂ O

化学平衡論に基づくVICTORIAコード

◆ VICTORIAコード: 原子炉冷却系でのFP移行挙動に関する機構論的な解析コード
(米国サンディア国立研究所で開発)

- 【取り扱う現象】
- ・ 燃料からのFP放出
 - ・ エアロゾル生成、凝集
 - ・ 流体による移行、エアロゾルの沈着
 - ・ 凝縮/再蒸発
 - ・ **化学反応 (化学平衡論)**

化学平衡論の適用方法



平衡組成1
($T_1, P_1, Elem_1$)

平衡組成2
($T_2, P_2, Elem_2$)

温度: T_N (K)
 圧力: P_N (Pa)
 元素組成: $Elem_N$ (mol/m³)

平衡組成に達してから次のセルに移動

化学モデルの検証①

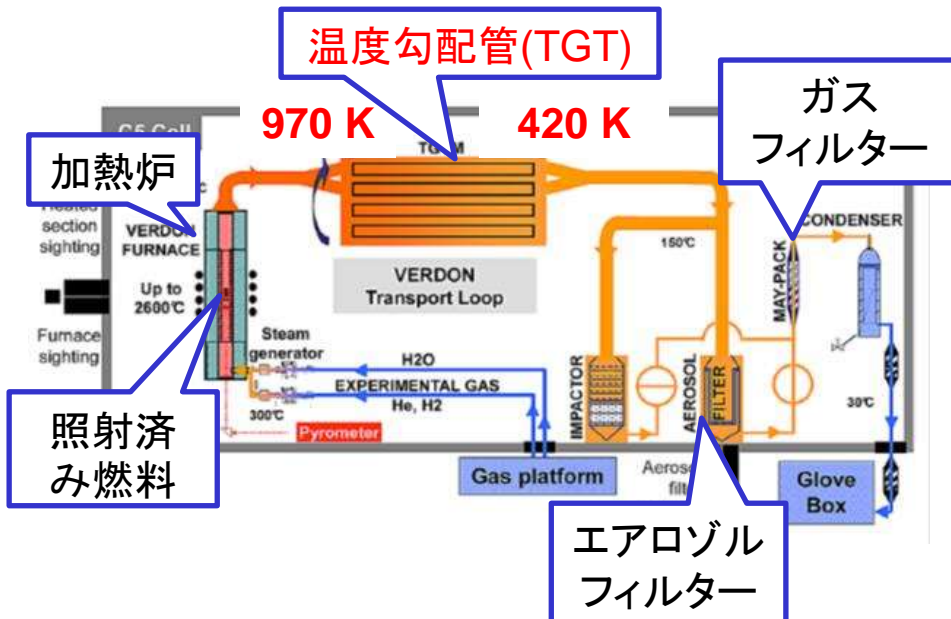
～総合効果実験VERDON～

VERDON実験の概要

(A. Gallais-During et al., Ann. Nucl. Energy, 101, 109-117, 2017.)

- ◆ 国際ソースタームプログラムの枠組みで整備されたVERDON装置を用い、照射済み燃料からのFP放出・移行挙動を評価
 - 温度勾配管 (TGT) を実装し、凝縮温度の違いを利用して化学形を分離
 - VERDON-2 (ホウ素なし) vs VERDON-5* (ホウ素あり) の比較により、ホウ素のFP化学へ与える影響を評価

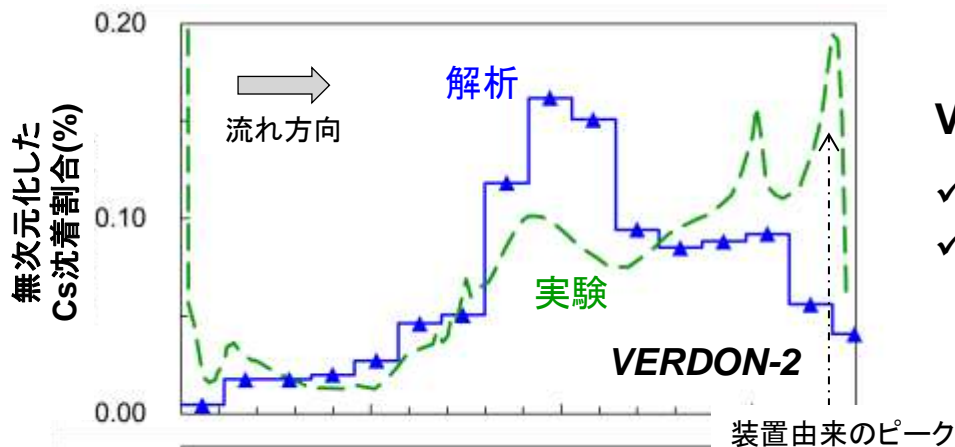
VERDON実験装置の概略図



VERDON-2及び-5実験の条件(一部)

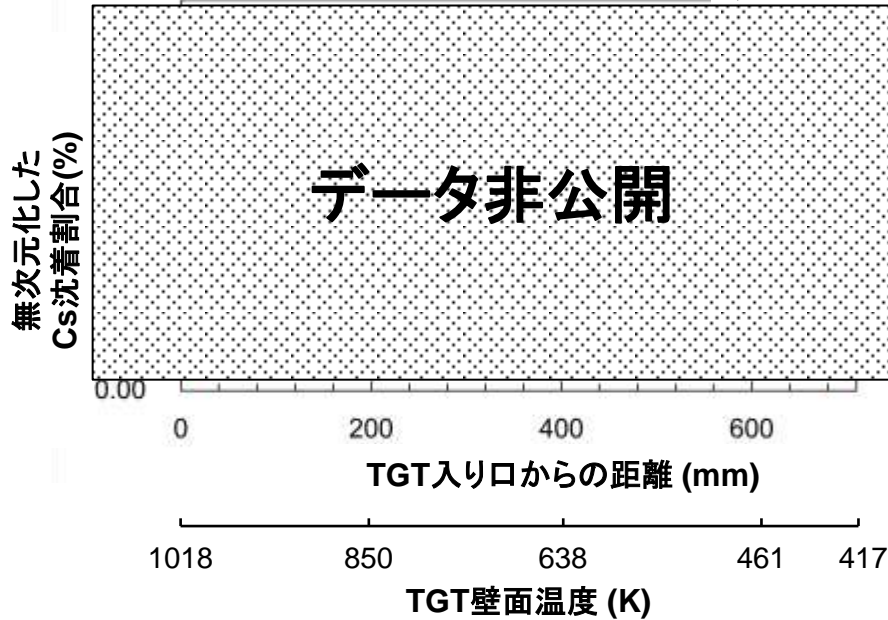
	VERDON-2 (2012)	VERDON-5 (2016~)
燃料	MOX (~70GWd/t) 再照射あり	UO ₂ (~60GWd/t) 再照射あり
雰囲気 (燃料 温度)	Phase-1: He	(670 K)
	Phase-2: H ₂ O	H ₂ O + B (670-1780 K)
	Phase-3: He+H ₂ O	(1780-2270 K)

温度勾配管でのセシウム沈着物の分布



VERDON-2 (ホウ素なし)

- ✓ 約700Kでの沈着ピーク【実験, 解析】
- ✓ 上流から下流にかけての右肩上がりの沈着傾向【実験, 解析】



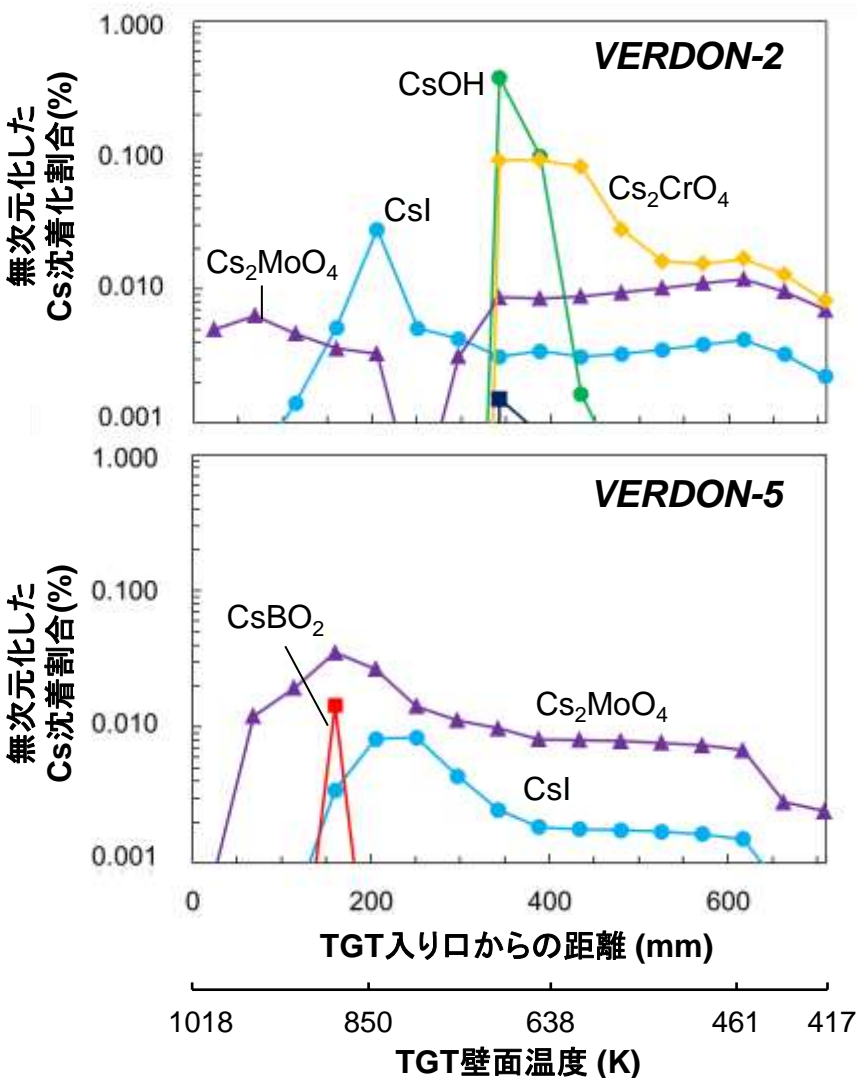
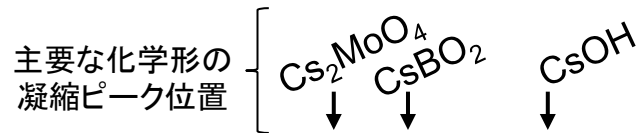
VERDON-5 (ホウ素あり)

- ✓ >850Kでの沈着ピーク【実験, 解析】

◆ 両実験の主なCsピーク位置や定性的な沈着傾向と一致 (低温領域を除く)

セシウム沈着物の化学形

解析で予測されたCs化学形 (Phase-2終期)

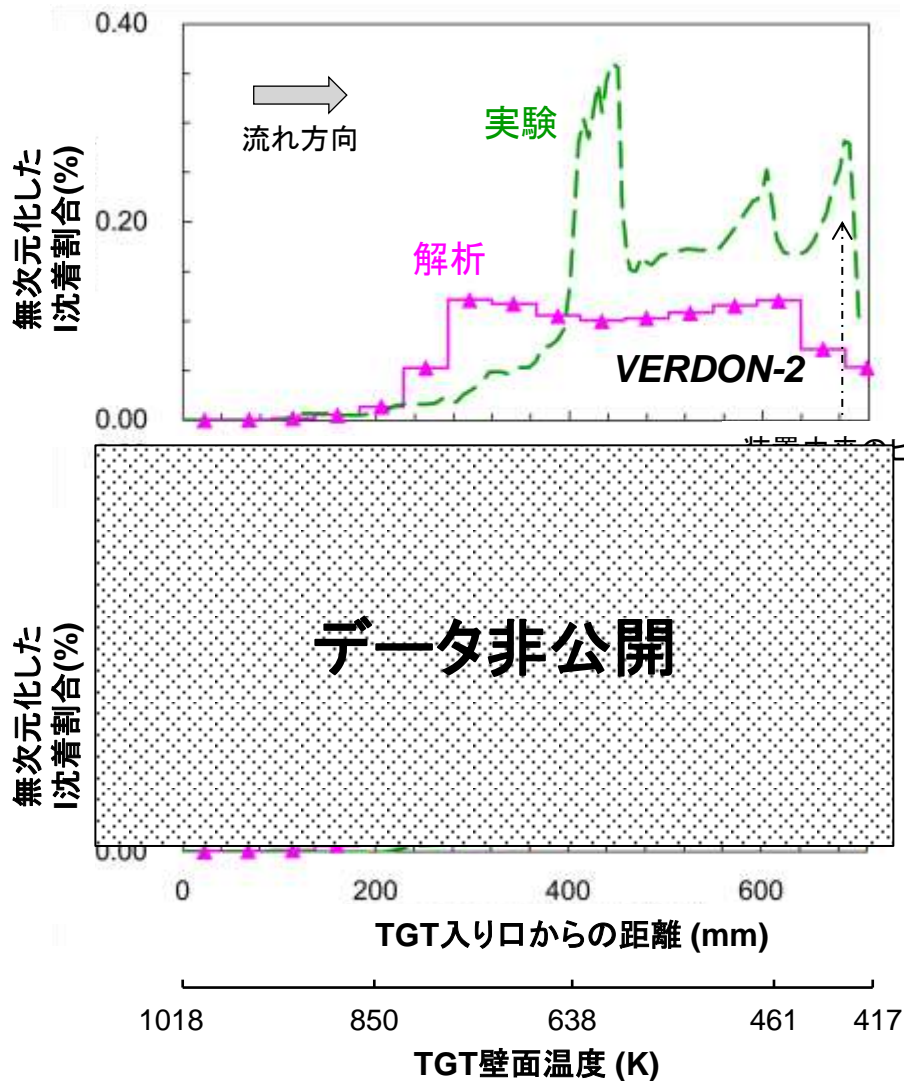


VERDON-2
解析結果
~ Cs分布の経時変化 ~

VERDON-5
解析結果
~ Cs分布の経時変化 ~

◆ ホウ素の影響によりFP放出初期のCs化学形が変化 (CsOH→CsBO₂)
= 凝縮しやすさ(CsBO₂ >> CsOH)の違いにより、ホウ素存在下ではより高温領域に沈着/凝縮

温度勾配管でのヨウ素沈着物の分布



VERDON-2 (ホウ素なし)

- ✓ 約850Kから沈着が開始【実験, 解析】
- ✓ 約600~500Kに沈着ピーク【実験のみ】

VERDON-5 (ホウ素あり)

- ✓ 約850Kから沈着が開始【実験, 解析】
- ✓ ホウ素なしの場合に比べ下流に沈着ピーク【実験のみ】

◆ 高温側に沈着ピークを予測し、低温への移行を過小評価

- 【要因】
- ・化学データベースの不足
 - ・再蒸発量の過小評価
 - ・化学平衡仮定の破たん

→沈着物の化学分析を実施中

化学モデルの検証②

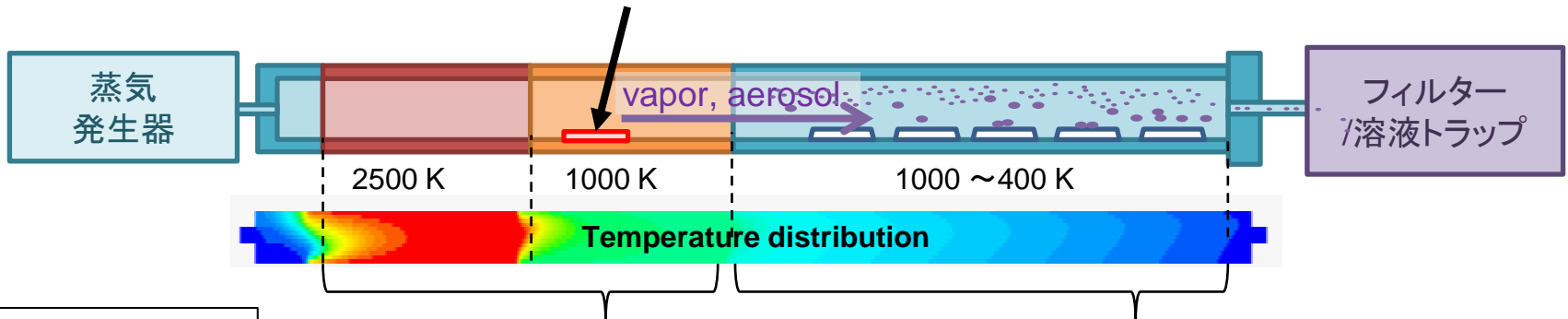
～個別効果実験TeRRa～

TeRRa実験の概要

◆ JAEA 原子力基礎工学研究センターと連携して実施したTeRRa (Test bench for FP Release and tRansport) 実験で、ヨウ素の主な化学形CsIに対するホウ素の影響に着目

- 温度勾配管 (TGT) を実装し、凝縮温度の違いを利用して化学形を分離
- 凝縮性とガス状のヨウ素を分離/定量

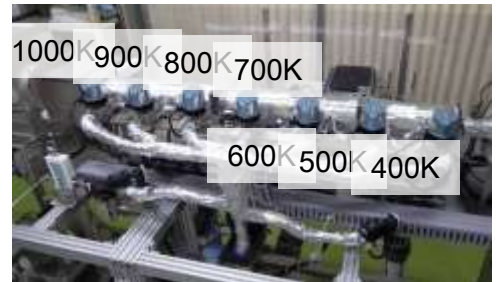
試料: CsI粉末 or CsI+B₂O₃粉末 (B/I=B/Cs=約8.9)



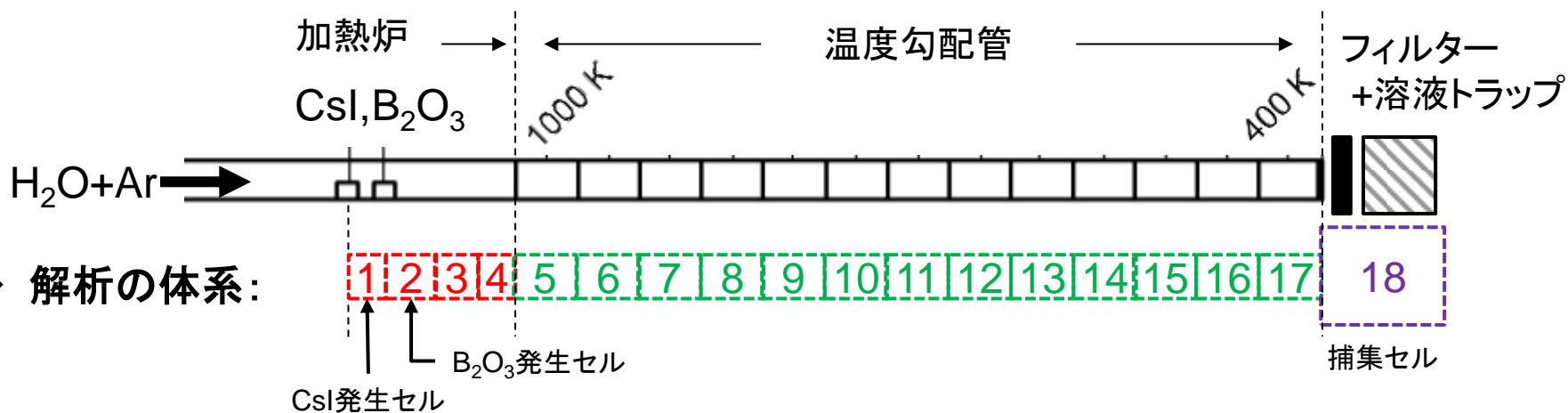
雰囲気条件:
16% H₂O-Ar
流速: 2.0 L/min

高周波誘導加熱 (~2500 K)

温度勾配管 (1000 - 400 K)

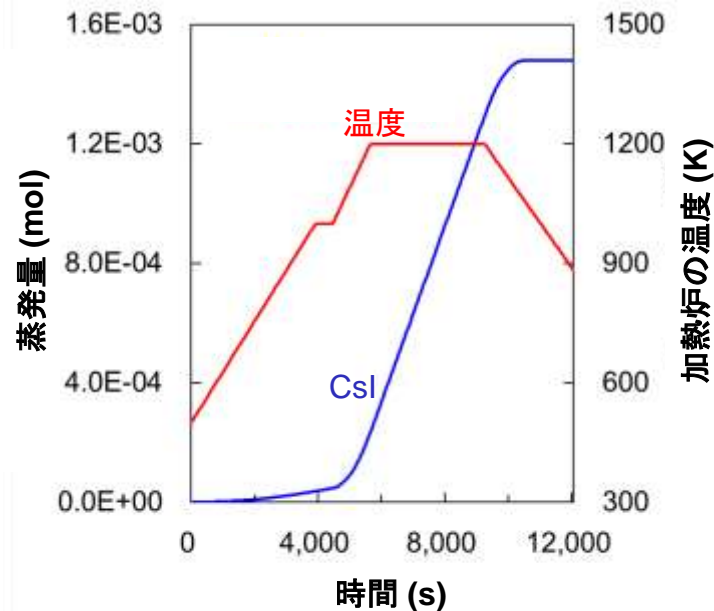


TeRRa実験の解析条件

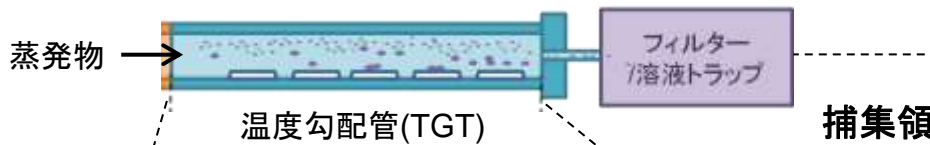


- ◆ 加熱炉温度履歴: 実験値 (右図赤線)
- ◆ CsI/B₂O₃蒸発速度: 実験値 (右図青線)
- ◆ 解析パラメータ: CsIのみ or CsI+B₂O₃

加熱炉の温度履歴とCsIの蒸発量

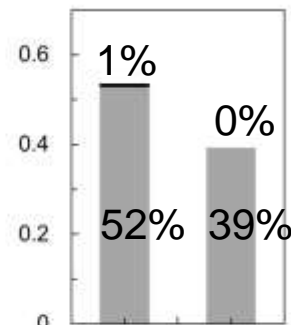
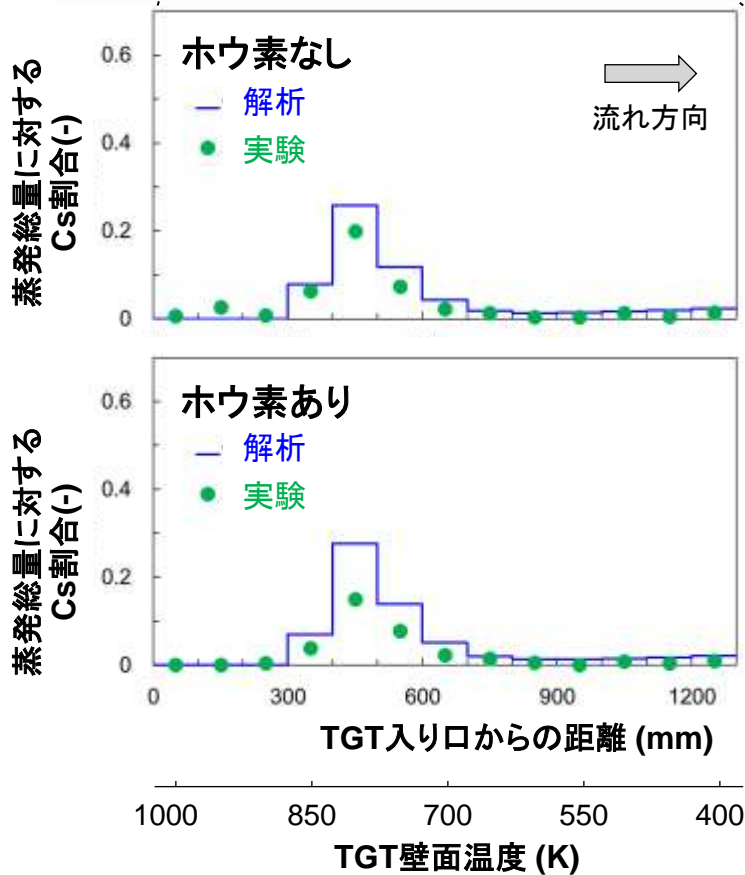


TeRRa装置内のセシウム分布



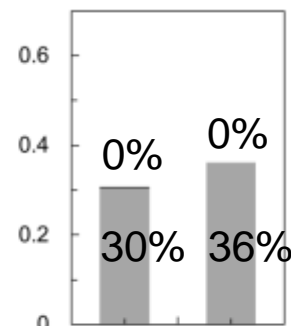
捕集領域での凝縮性・ガス状割合(-)

■ ガス, ■ 凝縮性



TeRRa_CsI (ホウ素なし)

- ✓ 約800Kでの沈着ピーク【実験, 解析】
- ✓ 最下流に到達するCs: 100%エアロゾル状 【実験, 解析】

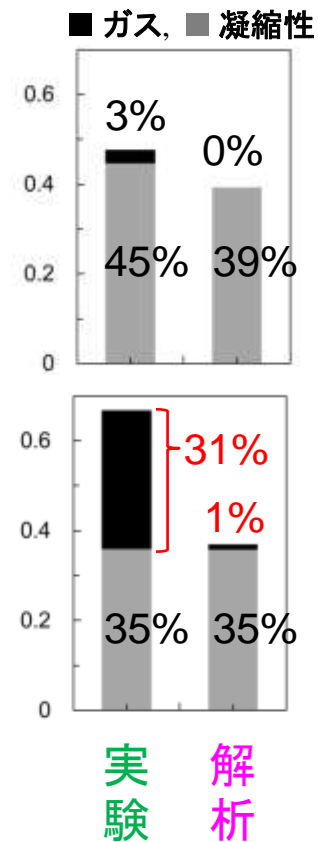
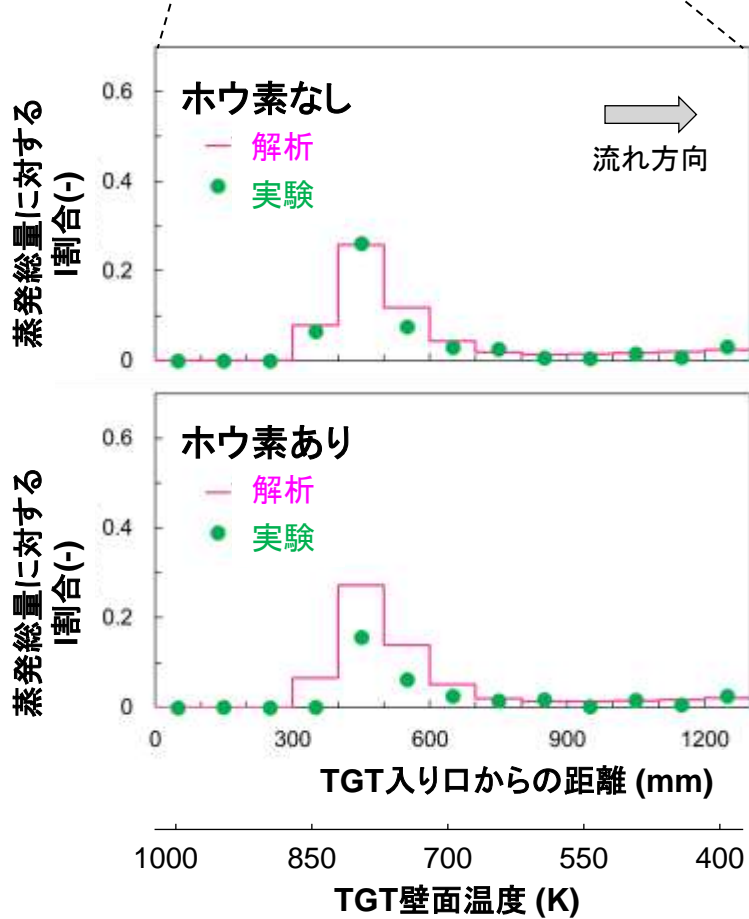
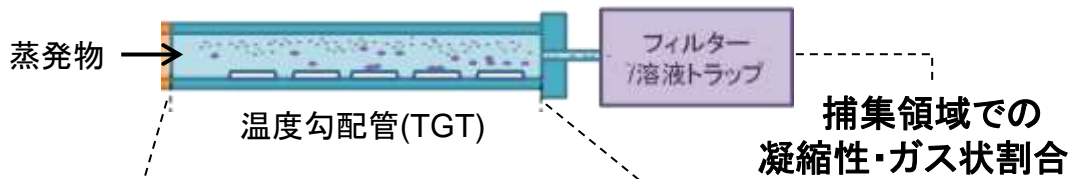


TeRRa_CsI+B₂O₃ (ホウ素あり)

- ✓ TeRRa_CsI実験と類似のTGT内沈着ピーク位置 【実験, 解析】

実験 解析

TeRRa装置内のヨウ素分布



TeRRa_CsI (ホウ素なし)

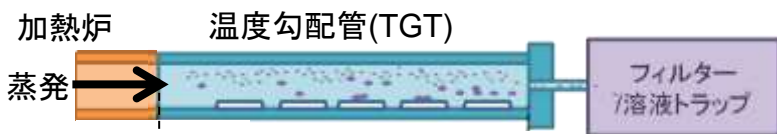
- ✓ 約800Kでの沈着ピーク【実験, 解析】
- ✓ 最下流 (<400 K) に到達するI:
>90% エアロゾル状 【実験, 解析】

TeRRa_CsI+B₂O₃ (ホウ素あり)

- ✓ TeRRa_CsIと類似のTGT内沈着ピーク位置 【実験, 解析】
- ✓ ホウ素含有系では、最下流にまで有意な量のガス状ヨウ素が移行 【実験, (解析)】

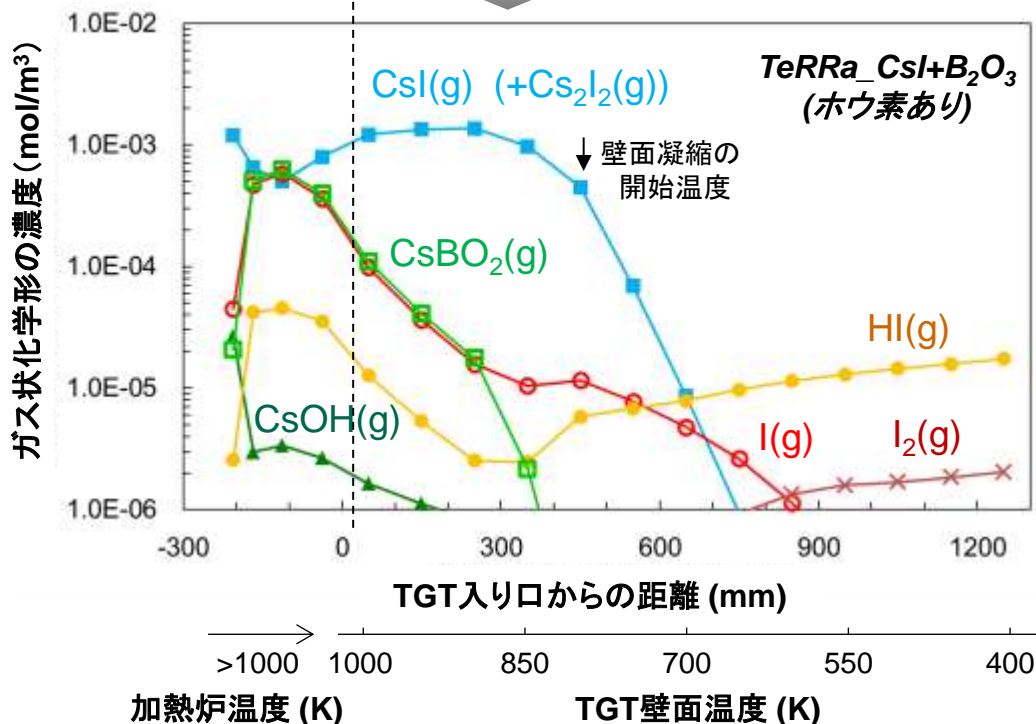
◆ **ホウ素含有系での最下流到達するガス状ヨウ素の定量性に課題(誤差:>10倍)**

ガス状ヨウ素はどのように低温部へ移行したか



* 加熱炉最高温度1200 K時点

ガスとして移行する化学形*に着目



◆ 最下流に到達するガス状ヨウ素:
HI(g), I₂(g)

◆ 想定される反応

【加熱炉(>1000 K)】

- ① $\text{CsI(g)} + \text{HBO}_2\text{(g)} \rightarrow \text{CsBO}_2\text{(g)} + \text{HI(g)}$
- ② $2\text{HI(g)} \rightarrow \text{H}_2\text{(g)} + \text{I}_2\text{(g)}$

【温度勾配管(<1000 K)】

- ① $\text{CsI(g)} + \text{HBO}_2\text{(g)} \leftarrow \text{CsBO}_2\text{(g)} + \text{HI(g)}$
- ② $2\text{HI(g)} \leftarrow \text{H}_2\text{(g)} + \text{I}_2\text{(g)}$
- ③ $\text{I}_2\text{(g)} \leftarrow 2\text{I(g)}$

◆ 化学平衡論での評価誤差の要因:

反応①~③の左反応の進行が遅く、高温で生成したガス状ヨウ素が再下流まで到達した可能性 = 反応速度の考慮が必要

まとめ

- FP化学挙動を考慮したソースターム評価に向けて、**化学平衡論モデル (VICTORIAコード) の検証解析を実施**

VERDON実験

- ◆ **ホウ素含有/非含有の水蒸気雰囲気でのセシウム化学挙動について、沈着ピーク・その傾向を定性的に再現**
 - ・ 移行化学形: CsOH、Cs₂MoO₄及びCsBO₂
- ◆ **ヨウ素挙動について、高温側に沈着ピークを予想し、下流の低温域への移行を過小評価**
 - ・ 要因: 化学データベースの不足、再蒸発量の過小評価、本系での化学平衡仮定の破たん

TeRRa実験

- ◆ **ホウ素含有水蒸気雰囲気でガス状ヨウ素割合が増加する傾向について定性的な一致 (定量性に課題)**
 - ・ 推定される反応: 高温領域での $\text{CsI(g)} + \text{HBO}_2\text{(g)} \rightarrow \text{CsBO}_2\text{(g)} + \text{HI(g)}$

→ **セシウム化学挙動**評価に係る**化学平衡論モデルの適応性**を示すとともに、**ヨウ素化学挙動**に評価における**課題を明らかにした**

今後の展望

- ヨウ素の化学挙動に係る予測精度の向上に向けて、
 1. VERDON実験での化学分析結果の検証解析への反映
 2. TeRRa装置を用いた追加実験
 - 流速をパラメータ(反応速度に係る影響を評価)
 3. 反応速度論モデルを使用した実験解析と検証
- シビアアクシデント総合解析コードTHALES2への知見の反映

ご清聴ありがとうございました