

令和3年度
原子力規制庁技術基盤グループ-原子力機構安全研究・防災支援部門
合同研究成果報告会

- シビアアクシデント研究グループの概要
- 量子化学計算を用いたガス状ルテニウムとNO_xの相互作用解析
—シビアアクシデント時の放射性核種移行モデルの精緻化を目指して—

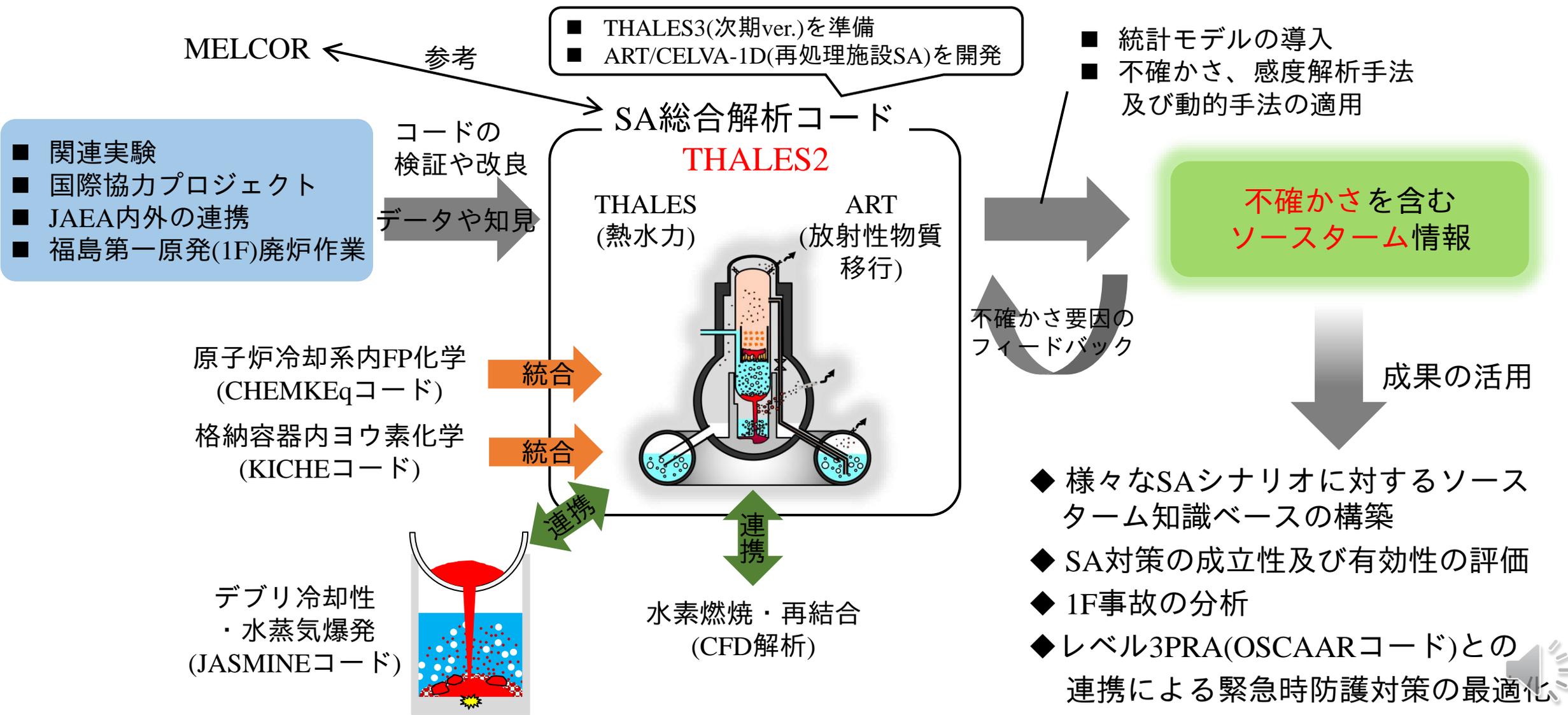
令和3年11月2日

国立研究開発法人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
シビアアクシデント研究グループ

城戸 健太郎

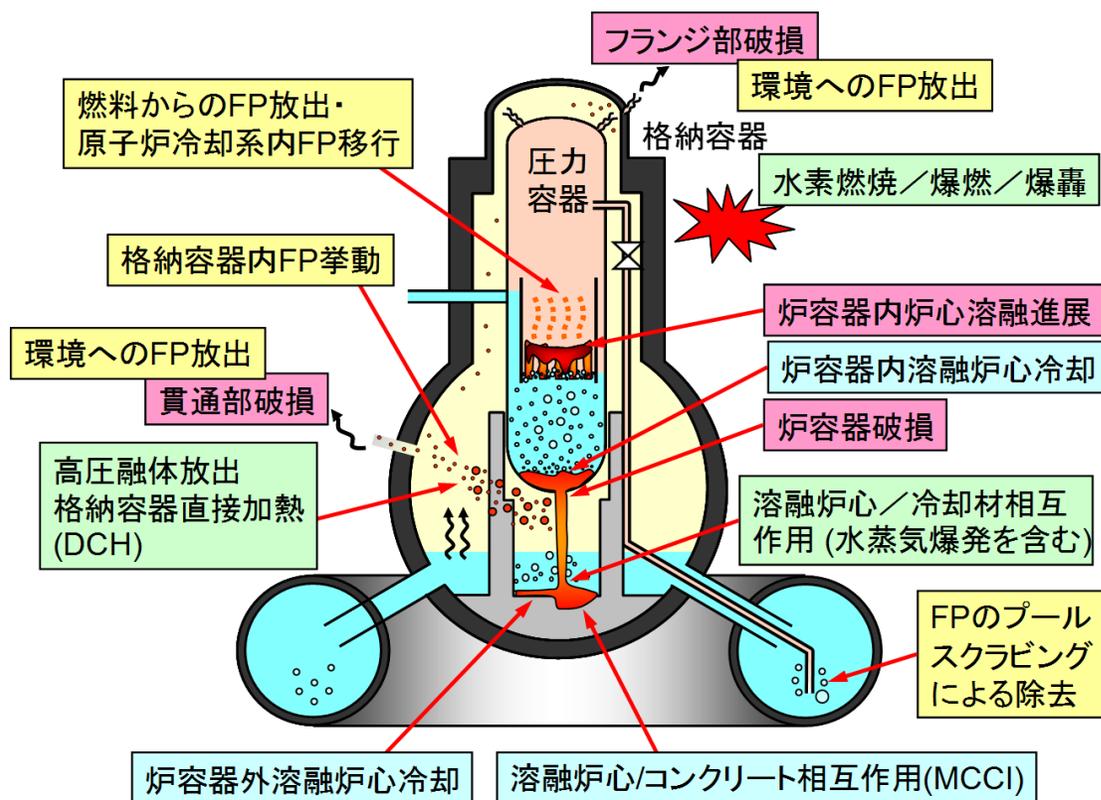


不確かさ及び感度解析を含めたソースターム評価手法の高度化を目的としたシビアアクシデント(SA)研究



最近の研究活動

シビアアクシデント時の諸現象



- ソースターム評価上重要な原子炉冷却系及び格納容器内における核種の化学的挙動の解明

規制庁受託研究

OECD/NEA ESTER, THEMIS Proj.

- 圧力容器破損後の格納容器内における溶融炉心の挙動及び冷却性評価手法の開発

事前注水によるMCCI防止対策の有効性評価など

規制庁受託研究

ROSAU Proj.

- THALES2による1F事故進展の解明と放射性核種放出経路の推定

ARC-F, FACE Proj.

- 動的PRA手法の開発

規制庁受託研究

本日の報告

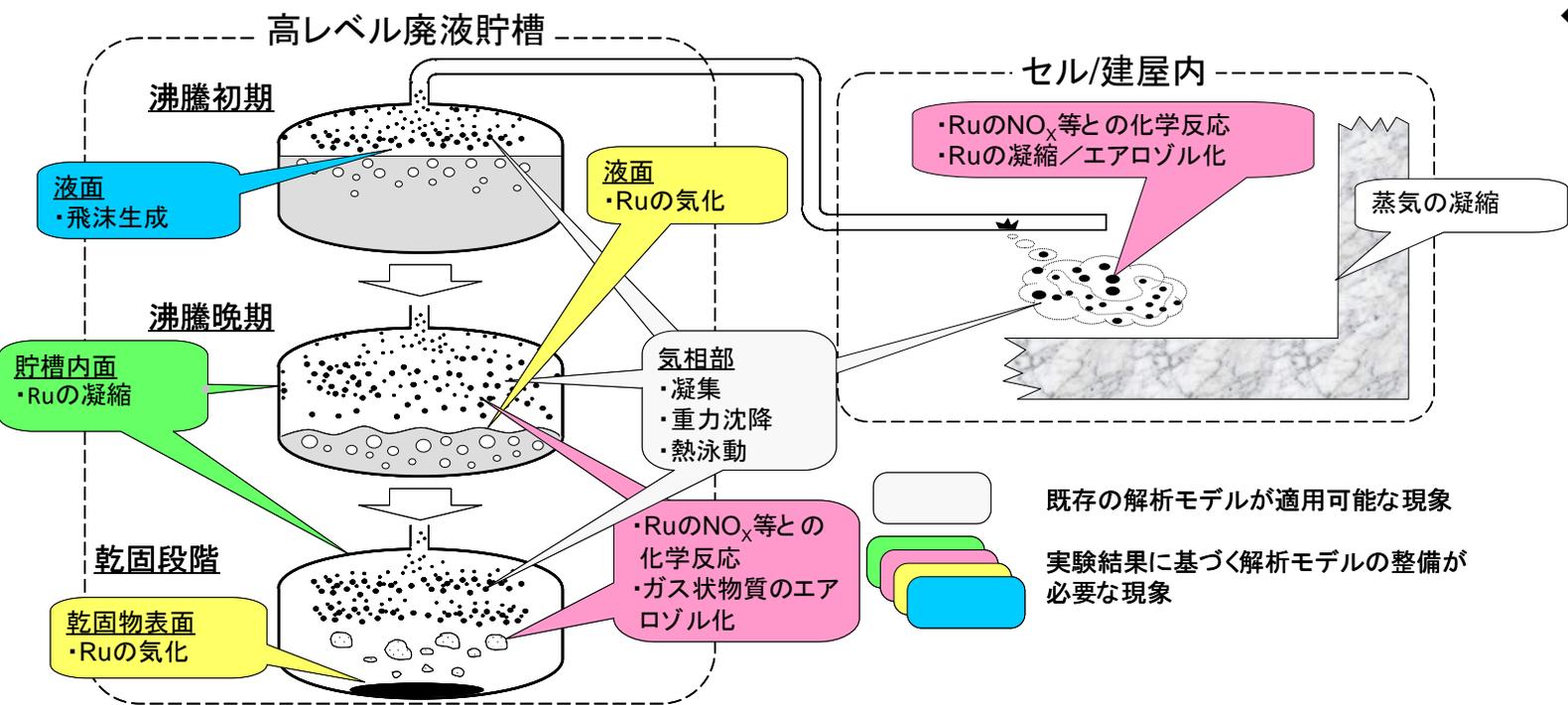
- 再処理施設のソースターム評価手法の高度化
高レベル廃液の沸騰乾固事故時のRu挙動のモデル化など



高レベル廃液の沸騰乾固事故解析手法の整備

Ruのソースタームを評価するため、沸騰によって生成する硝酸蒸気、NO_xガス、ガス状Ruの貯槽を含めた施設内での熱流動及び凝集、沈着などの移行挙動、化学反応のモデル化を実験・解析両面から行っている

Ruのソースターム評価の枠組みと必要となるモデル



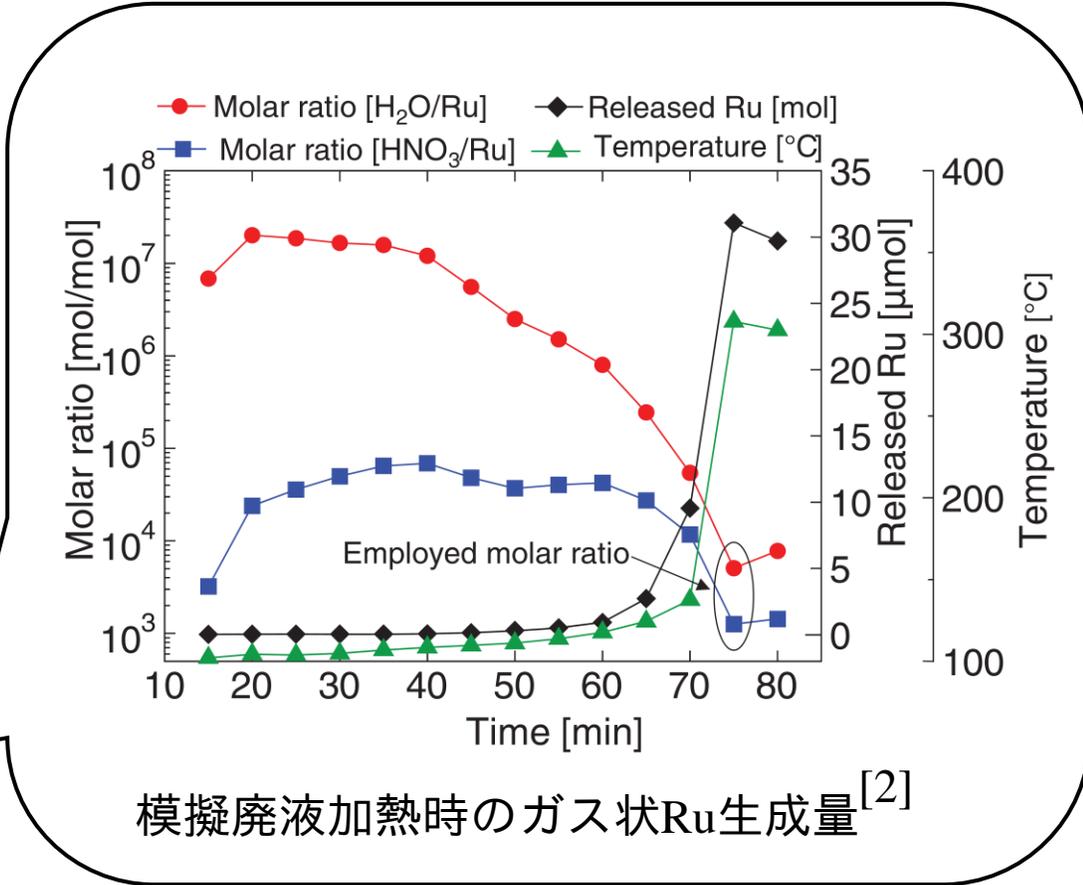
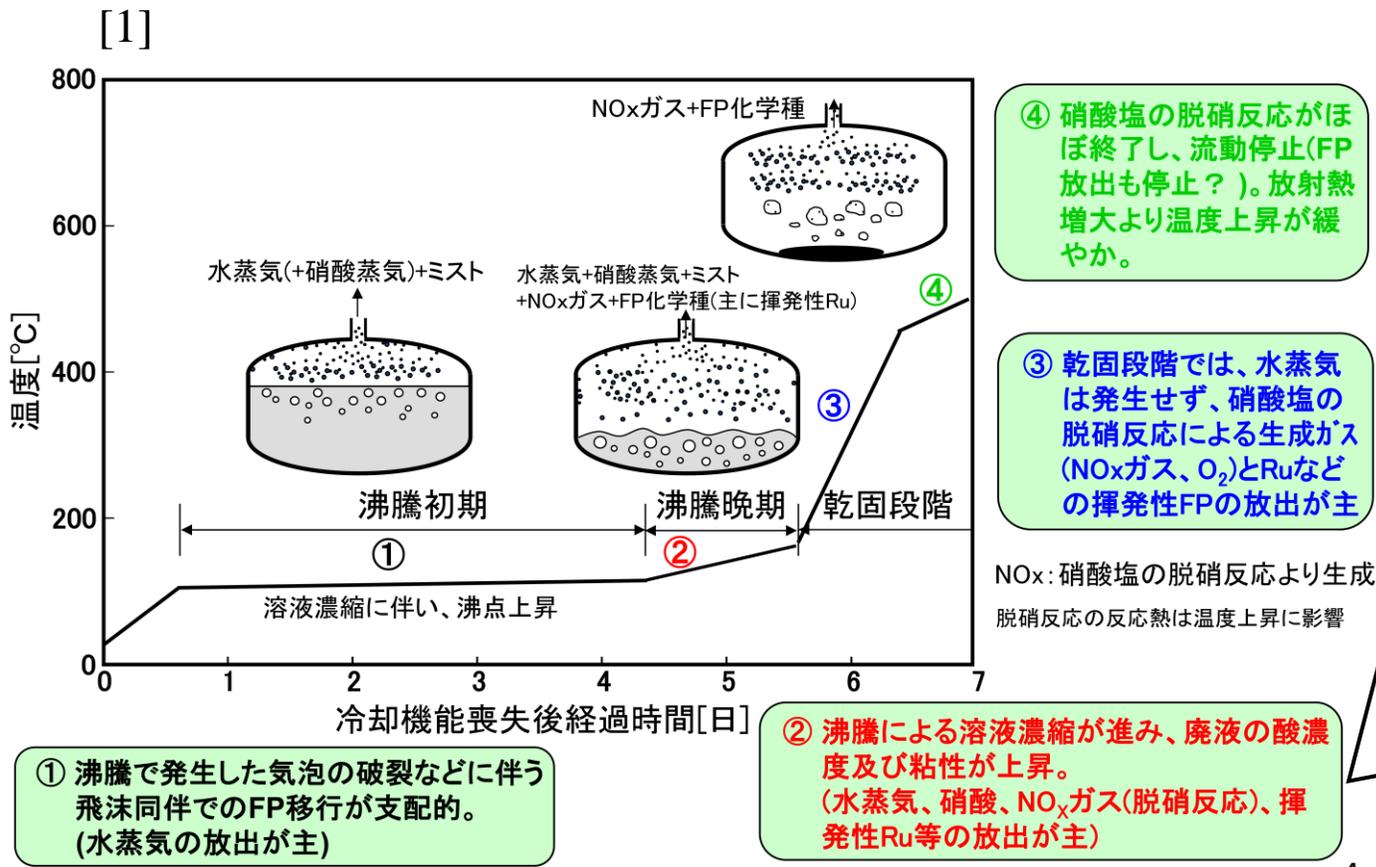
◆ Ruの環境放出量の定量に必要なデータ

- ✓ 貯槽を含めた施設内の熱流動条件
- ✓ 飛沫同伴による不揮発性物質の移行
- ✓ ガス状Ruの発生量
- ✓ **気相中のガス状Ruの化学反応**
- ✓ Ruの凝縮水への移行挙動

... など



事故の進展とガス状Ruの生成



➡ ガス状Ruは沸騰晩期(120°C前後)から生成し、気相では硝酸蒸気やNO_xと共存する

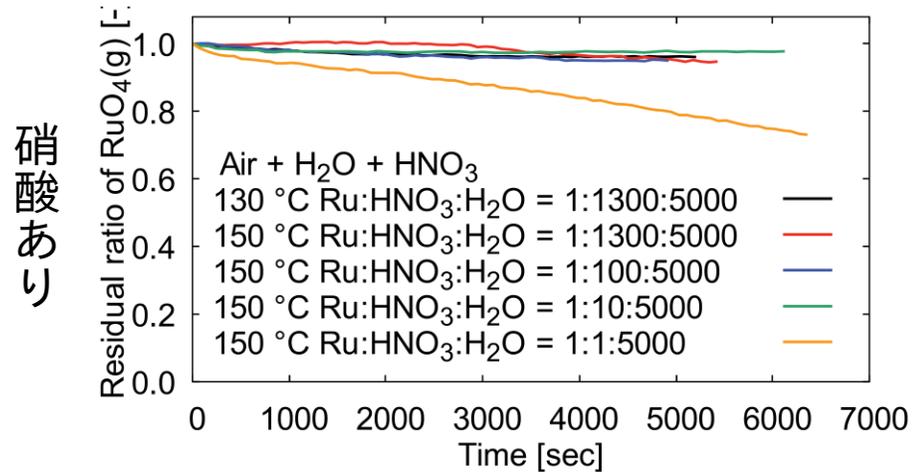
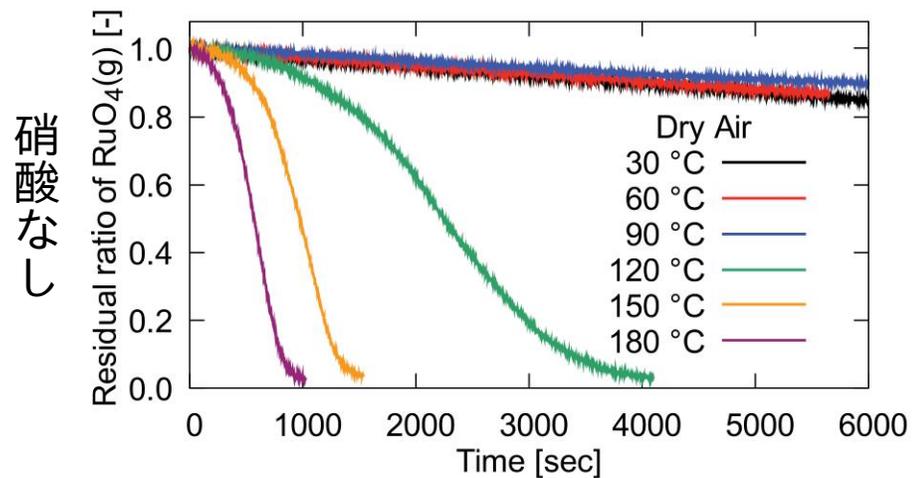
[1] 「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究」運営管理グループ, 「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究報告書」(2014).

[2] N. Yoshida, T. Ohno, Y. Amano, H. Abe, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **55**, 2018, 599-604.



ガス状Ru (RuO₄) の分解と硝酸蒸気・NO_xの効果

気相でのRuO₄の分解に対する硝酸蒸気の効果^[3]

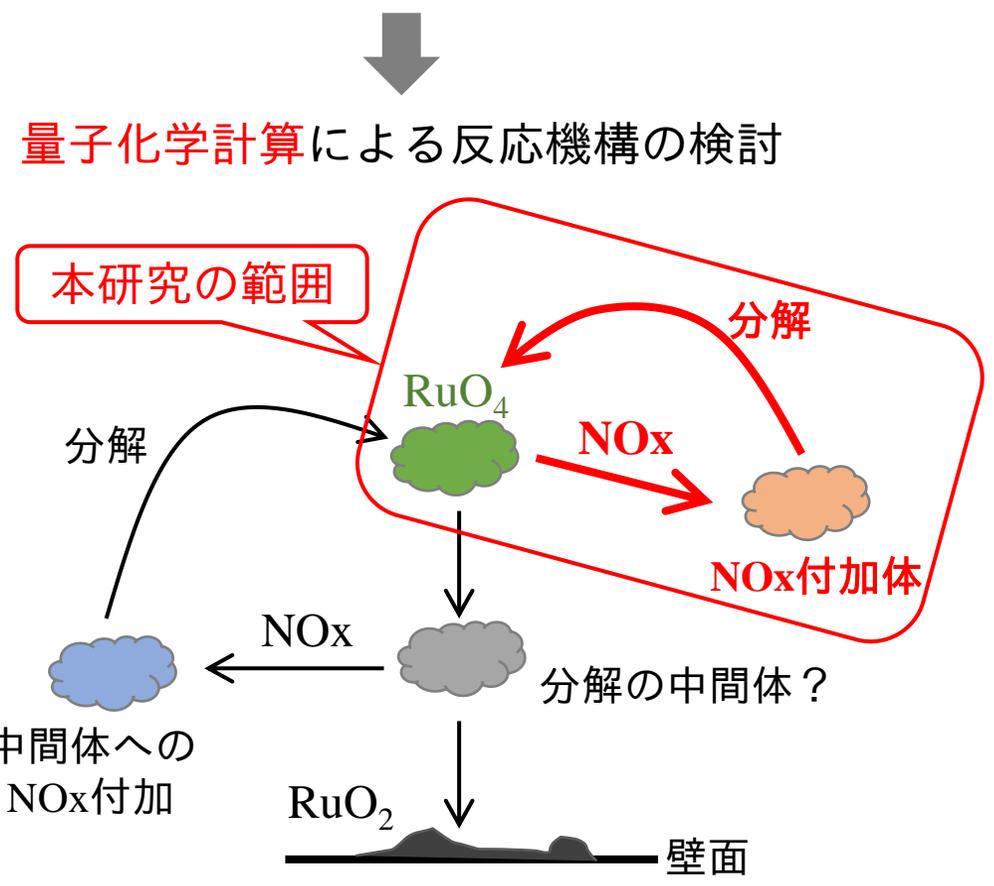


NO_xにも同様の効果がある

硝酸蒸気は分解を阻害して長距離移行を可能にし、ソースタームを増加させる一因になる

課題

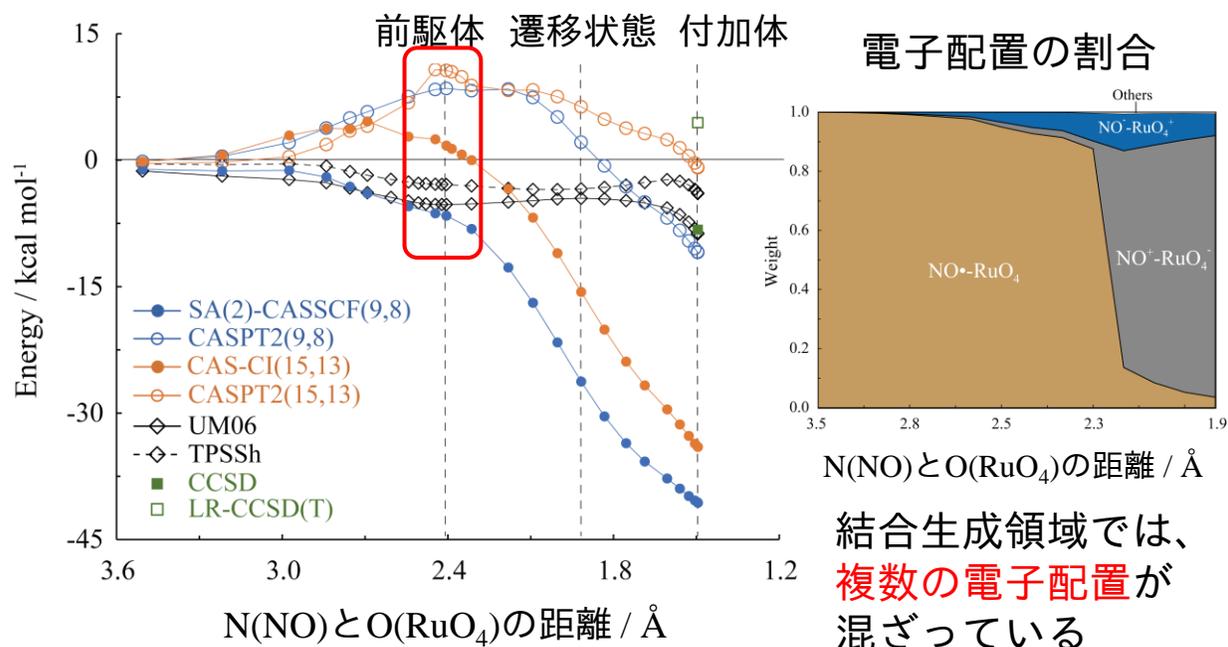
このメカニズムは明らかでなく、化学反応モデル構築の障害となっており、実験的な知見の取得も難しい



密度汎関数法(DFT)はRuO₄-NO_x系を適切に扱えるか?

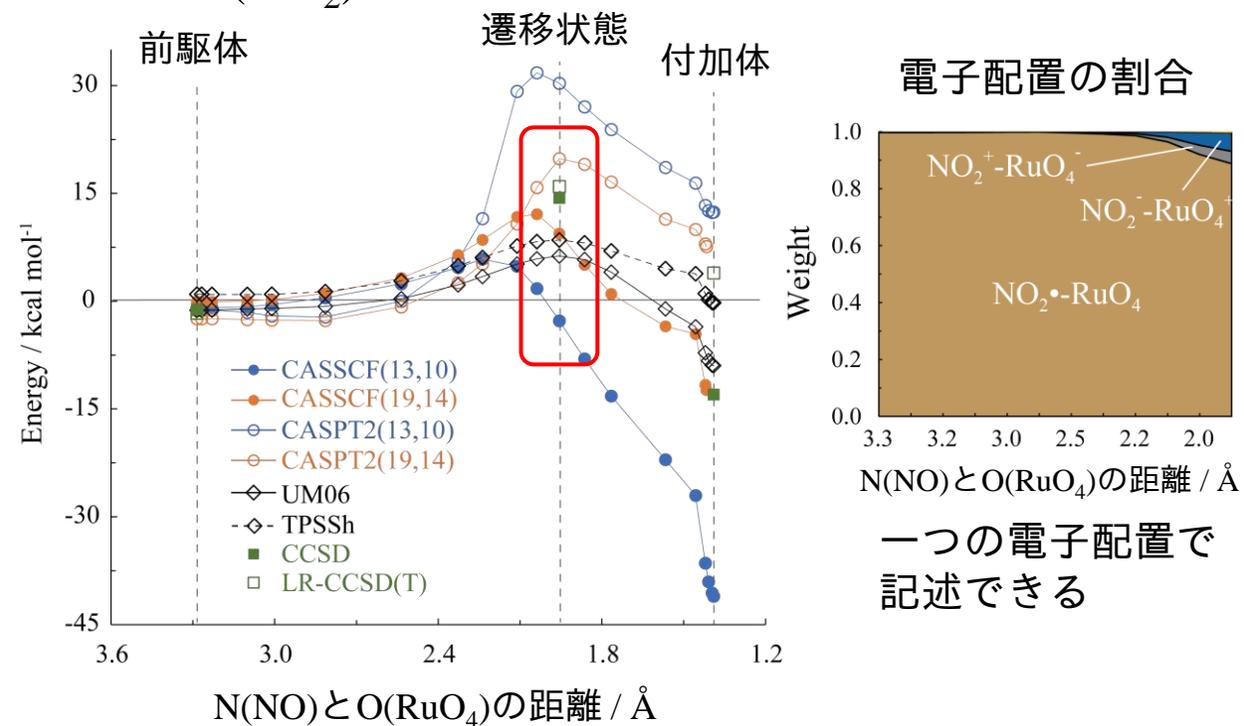
[3] N. Yoshida, T. Ono, R. Yoshida, Y. Amano, and H. Abe, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **57**, 1 (2020).

➤ X=1 (NO)



➡ DFT(M06,TPSSh)では活性障壁が適切に評価されない

➤ X=2 (NO₂)



➡ DFTでは活性障壁の高さを10kcal/mol程度過小評価する

■ NOの付加では、DFTの反応プロファイルに活性障壁が見られず、CASPT2のような高精度計算を必要とする。結合生成領域の波動関数はNOとRuO₄との間で電子の授受を伴う複数の電子配置からなる。

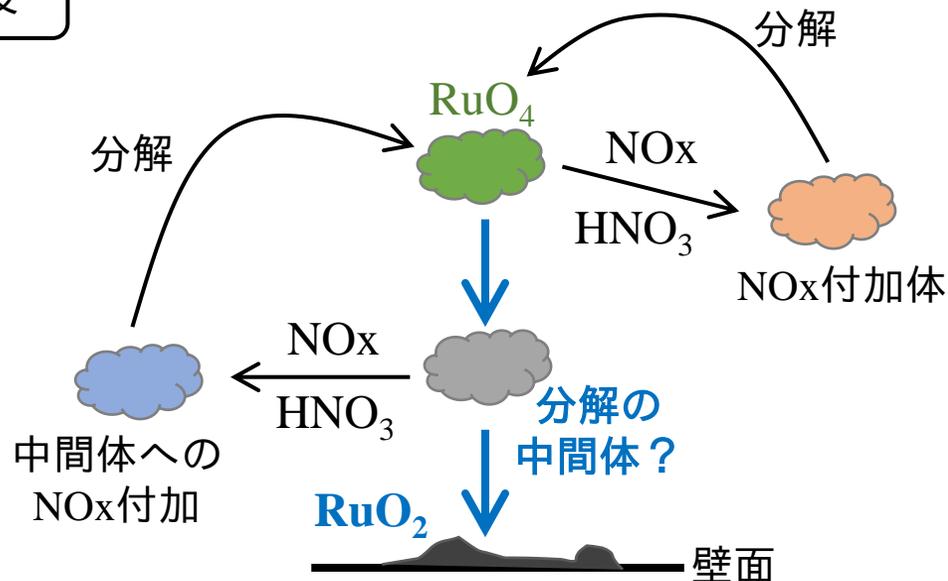
■ NO₂が付加する場合、上記のような多配置性は無視できる。DFTではピーク的位置はCASPT2と一致する。一方で、その高さを10kcal/mol程度過小評価するため、定量性に欠ける。



まとめと今後

- シビアアクシデント研究グループの研究の方針や最近の成果について紹介した
- 高レベル廃液の沸騰乾固事故におけるRuのソースタームを評価するため、ガス状Ru (RuO₄)とNO_x (X=1,2)の反応を様々なレベルの量子化学計算を用いて検討した
 - DFTによる反応プロファイルの評価は定性・定量の両面において信頼性が低く、高精度計算を要する
 - CASPT2に基づけばNO_xの付加は吸熱反応であるが、沸騰晩期における気相温度(150°C程度)では十分進行し得る

今後



□ RuO₄の自己分解

□ HNO₃によるRuO₂やRuO₃の酸化

□ NO_xによるRu(NO)錯体生成

過程の検討



反応データベースの構築

