
リスク・防災安全研究

—ヨウ素化学反応を考慮したソースターム評価手法の開発—

日本原子力研究開発機構
安全研究センター
サイクル施設等安全研究ユニット
リスク評価・防災研究グループ
石川 淳

平成23年度 安全研究センター成果報告会
平成24年1月17日(火)
富士ソフトアキバプラザ6階



報告内容

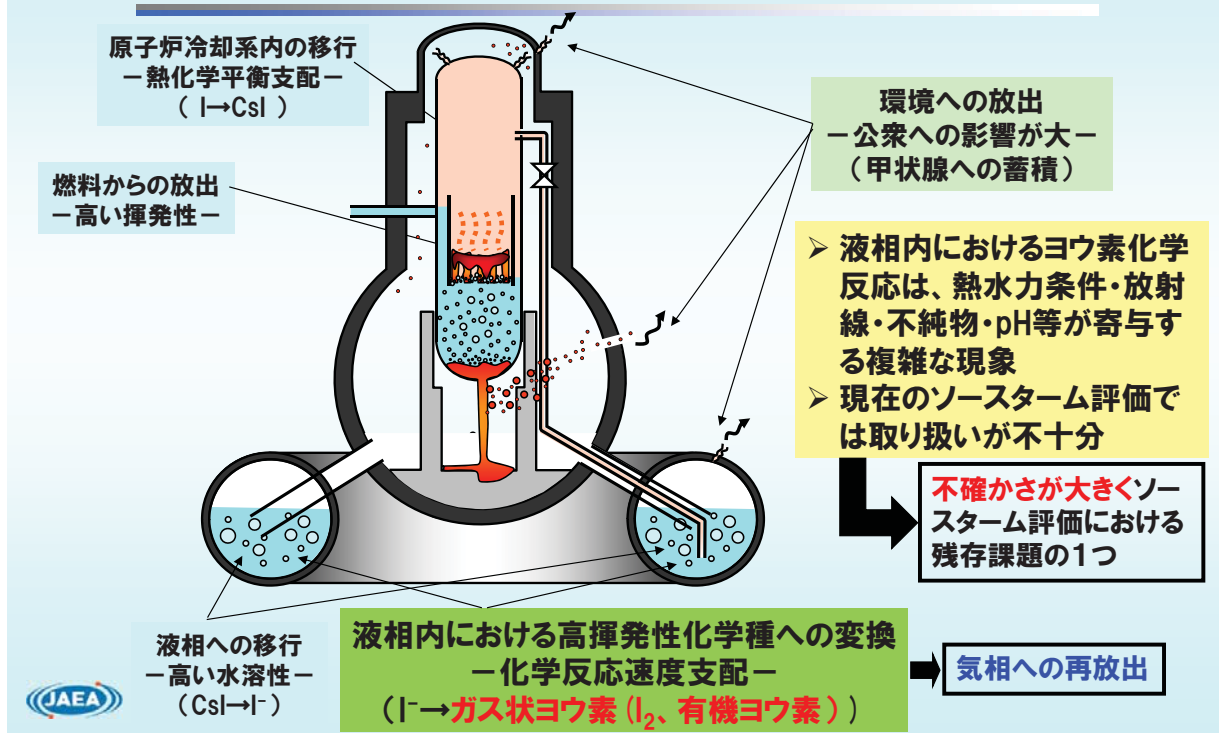
①

- 背景と目的
- 解析手法の概要
- 解析結果
- まとめ



背景—シビアアクシデント時におけるヨウ素挙動—

②



ヨウ素の化学形と環境中における挙動

③

- ✓ 環境に放出された放射性物質の拡散・沈着による汚染分布は、気象条件に大きく依存する。
- ✓ ヨウ素の化学形によって、環境での移行挙動が大きく異なる。

CsI : 粒子状
I₂、有機ヨウ素 (eg. CH₃I) : ガス状

環境に放出されたヨウ素は、大気拡散するとともに地表面や農作物に沈着(乾性、湿性)する

■乾性沈着

粒子状: 沈着の度合い(沈着速度)は、粒径に強く依存

粒径小(サブミクロン域, 0.1 < 1 μm)では沈着しにくい

粒径大では、重力沈降が支配して放出点近傍に沈着しやすい

ガス状: I₂は吸着性が高く、地表面や農作物に沈着しやすい

有機ヨウ素は、沈着しにくい

■湿性沈着(降雨による洗浄効果)

粒子状: 洗浄効果は、粒径に強く依存

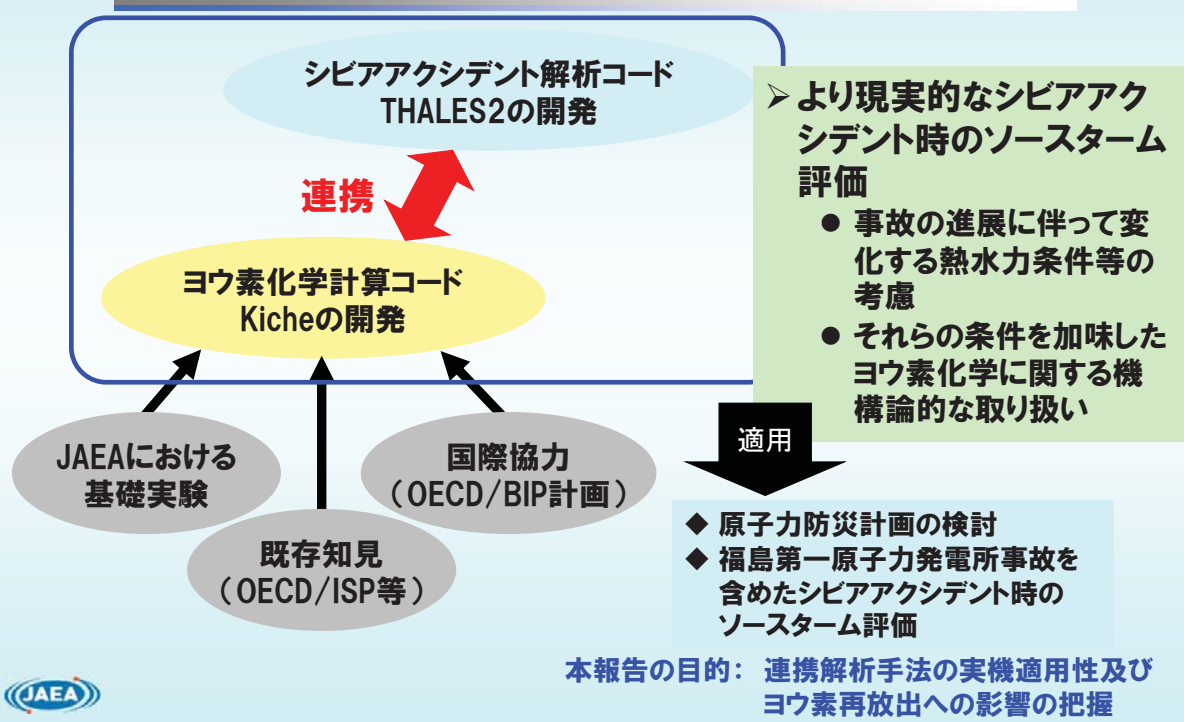
粒径小(サブミクロン域, 0.1 < 1 μm)では洗浄効果が小さい

ガス状: 洗浄効果は、気液分配(霧困気と液滴間の平衡濃度比)が影響

有機ヨウ素は、I₂よりも洗浄効果が小さい

研究の目的・構成

④



THALES2コードの概要

⑤

- ✓ 熱水力挙動及びFP挙動を同時に評価可能なシビアアクシデント解析コード
- ✓ エネルギー保存及び質量保存則に基づくノード・ジャンクション法
- ✓ ノード間の流動変化、安全・緩和系の作動/停止の模擬

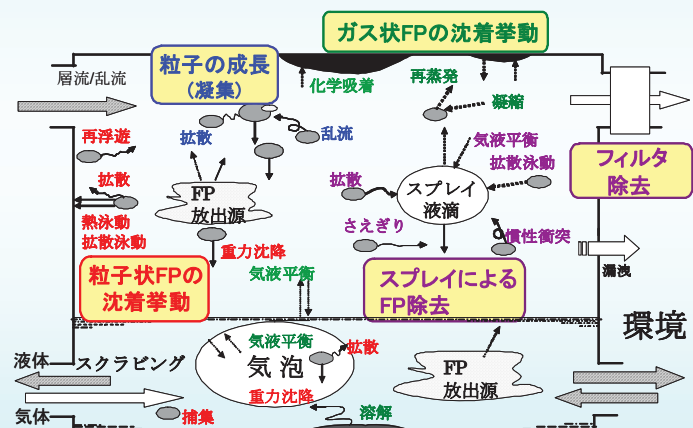
事故進展、ソースタームの評価

解析可能なFP等(8グループ)

Xe, CsI, CsOH, Te, Sr, Ru, Ce, その他のエアロゾル

→ THALES2では、 I_2 や有機ヨウ素などガス状ヨウ素は未考慮

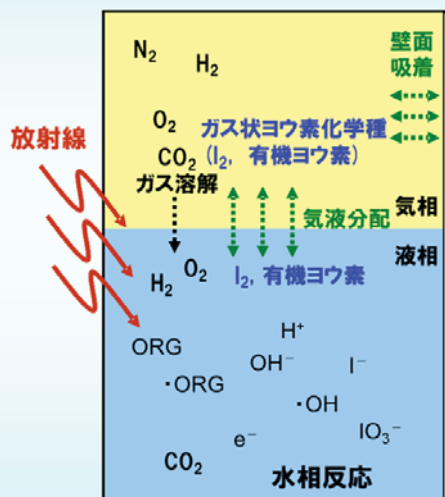
FPの移行・沈着挙動



Kicheコードの概要

⑥

化学反応及び物質移動速度論に基づく
機構論的なヨウ素化学計算コード



✓ **液相内無機反応**(ガス状ヨウ素生成の主要過程)
水の放射線分解

- プライマリ生成物の生成($H_2O \rightarrow e_{aq}^-$, $\cdot OH$ 等、G値と温度依存)
- プライマリ生成物による二次反応(生成物: $\cdot O_2^-$, OH^- など)

無機ヨウ素反応

- 水の放射線分解生成物による酸化・還元
 - 酸化: $I^- + \cdot OH \rightarrow \cdot I + OH^-$, $2\cdot I \rightarrow I_2$
 - 還元: $I_2 + \cdot O_2^- \rightarrow \cdot I_2^- + O_2$, $\cdot I_2^- + \cdot O_2^- \rightarrow 2I^- + O_2$
- I_2 の加水分解: $I_2 + OH^- \leftrightarrow I_2OH^- \leftrightarrow HOI + I^-$
- H_2O_2 による還元: $I_2OH^- + H_2O_2 \leftrightarrow HIO_2 + I^-$ など

✓ **気液分配**(再放出: **気液分配係数**と**物質伝達係数**で決定)

✓ **壁面吸着・脱着**

✓ **壁からの有機物溶出、有機ヨウ素の生成**

✓ **酸生成によるpH低下等**

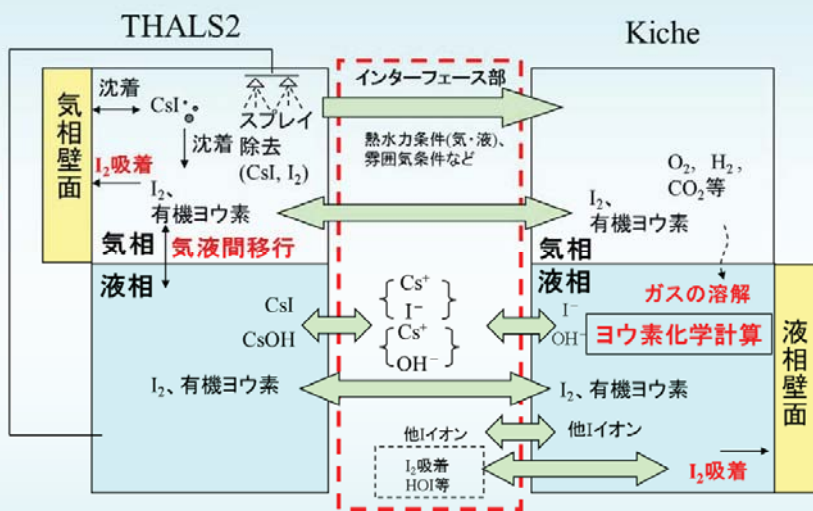


THALES2/Kicheコード連携解析手法

⑦

THALES2の改良

- ✓ 考慮するヨウ素化学種
 - CsI (既存)
 - I_2 及び有機ヨウ素 (追加)
- ✓ I_2 及び有機ヨウ素に関わる以下のモデルを追加・拡張
 - I_2 壁面吸着
 - 気液間移行
 - スprayによる除去、など



両コードのアウトプットをインターフェースを介して授受



解析条件

⑧

■ 解析プラント

- ✓ Mark-I型格納容器を有する110万kWe級のBWR4

■ 解析シナリオ

- ✓ 代表的な4つのシビアアクシデントシーケンスの事故終息シナリオ
(炉心注水失敗、全交流電源喪失、小破断LOCA、大破断LOCA)

- ✓ 福島では、2及び3号機で原子炉減圧操作を実施

→ 福島事故との類似性が比較的高い炉心注水失敗TQUVの結果を紹介

■ 解析ケース

- ✓ pH固定で条件が異なる3ケース
(pH=5/7/9)

- 壁ペイント溶剤の分解に伴う有機酸生成
- コンクリート分解ガス(CO₂)の液相溶解
→ pH=5
- CsOH(強アルカリ)溶解時のイオン化
→ pH=9

主要事象の進展

過渡事象発生

- 高圧のECCS(RCIC及びHPCI)作動失敗
- 原子炉手動減圧成功
- 低圧のECCS(LPCI)作動失敗
- 炉心損傷開始
- 圧力容器破損

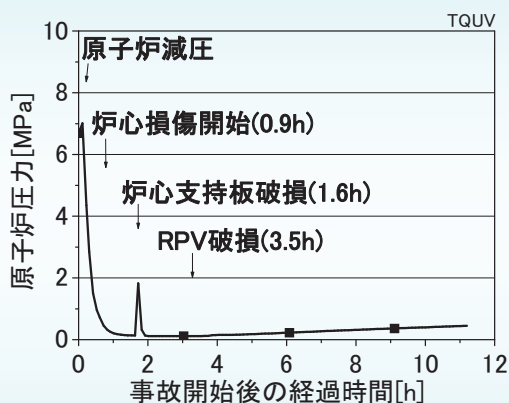
- 代替スプレイ開始(約11時間)
- 蒸気発生によるスプレイ復帰
- 崩壊熱除去系の回復
- 事故終息



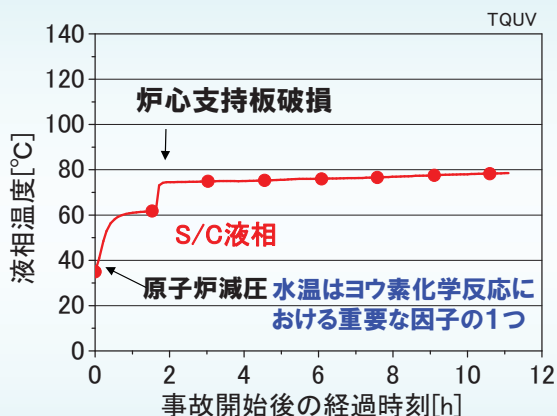
解析結果—事故進展—

⑨

原子炉圧力



サブプレッションチェンバー (S/C) 液相温度

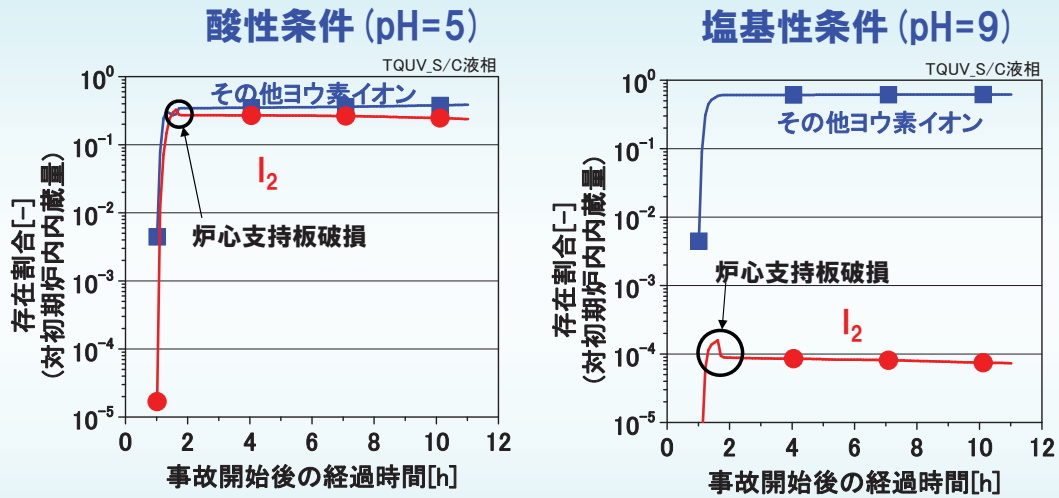


- ✓ 逃がし安全弁ラインを通じた蒸気流入によりS/C液相温度は上昇
- ✓ 炉心注入系不作動のため、その後はほぼ一定の温度で推移



解析結果－S/C液相中のヨウ素挙動－

⑩

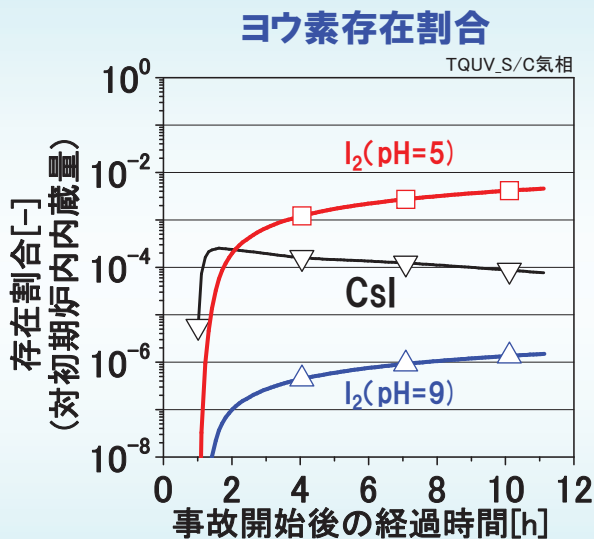


- ✓ S/Cへ移行したCsI(I⁻)の一部は水の放射線分解や種々のヨウ素化学反応によりI₂に変換
- ✓ 酸性条件に比べて、塩基性条件ではI₂の割合が小
(I₂加水分解: $I_2 + OH^- \leftrightarrow HOI + I^-$)
- ✓ 炉心支持板破損時のS/C水温上昇によりI₂の割合が低下(加水分解の温度依存性)



解析結果－S/C気相中のヨウ素挙動－

⑪



- ✓ CsIは、自然沈着や真空破壊弁を経由したドライウェルへの移行により減衰(ヨウ素化学反応に関係しないため全ケースで同様)
- ✓ 液相内で生成されるI₂は、気液分配に従って気相中に移行
- ✓ 酸性条件では、液相内における生成量が多いため、気相への再放出が増大

連携解析手法を適用することにより、熱水力条件等の影響を受けるI₂の再放出挙動を事故の進展に従って評価することが可能

格納容器の損傷や格納容器ベントは気液平衡を崩す効果があるため、ガス状ヨウ素の放出が継続する可能性あり



- シビアアクシデント解析コードTHALES2とヨウ素化学解析コードKicheの連携手法を構築し、BWR/Mark-Iの代表的なシビアアクシデントシナリオの解析を通じて実機適用性を確認した。
- 酸性液相内においてはI⁻からI₂への変換が促進されるため、気液分配により気相中に放出されるI₂量が増大する。
 - ✓ 再放出の抑制には長期的なpH管理が重要である。
 - ✓ より現実的なソースターム評価には、ガス状ヨウ素の生成を考慮する必要がある。
- 今後、有機ヨウ素反応を考慮した評価を実施するとともに、福島第一原子力発電所の事故進展解析を進める予定である。