
福島第一原子力発電所3号機における 気体状ヨウ素の放出に関わる解析的検討

平成25年度 安全研究センター成果報告会
平成26年1月15日(水)
富士ソフトアキバプラザ

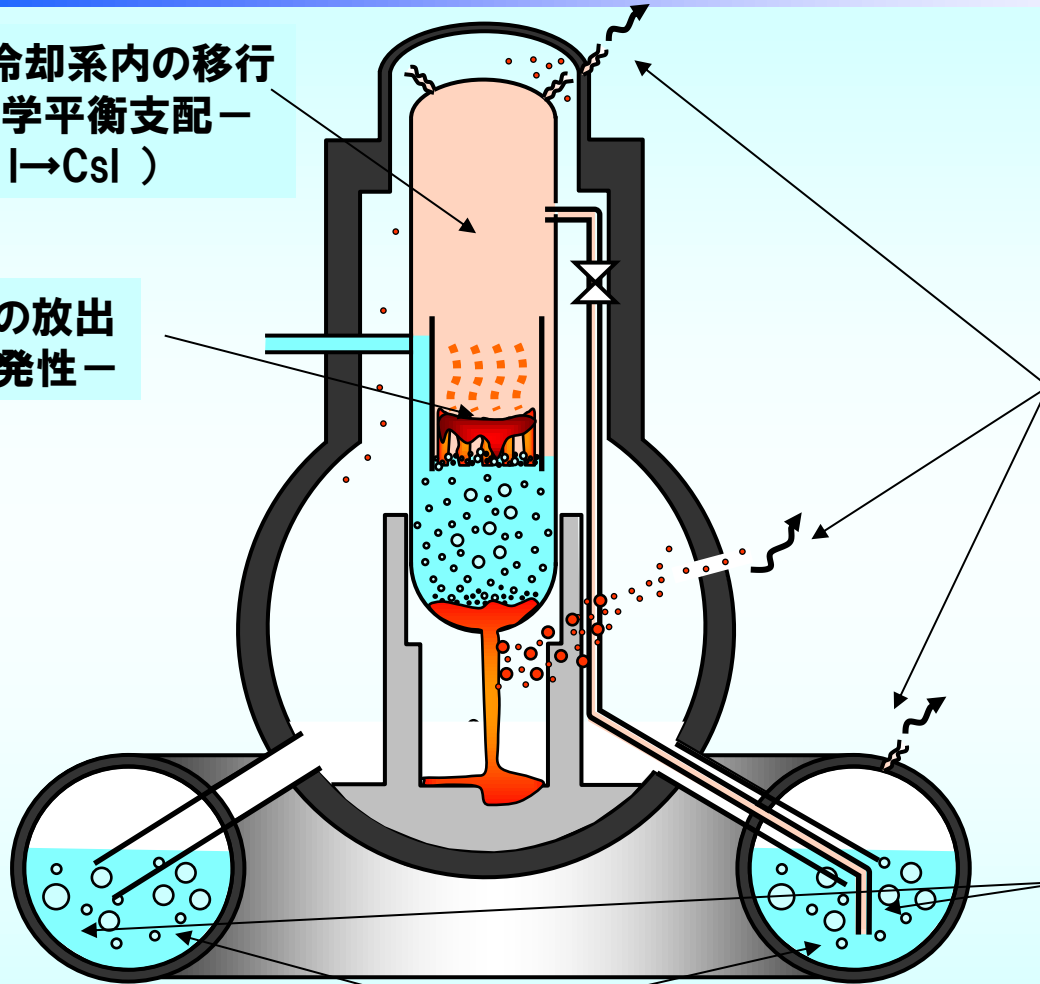
日本原子力研究開発機構
安全研究センター
シビアアクシデント評価研究グループ
石川 淳

—シビアアクシデント時におけるヨウ素挙動—

原子炉冷却系内の移行
—熱化学平衡支配—
($I^- \rightarrow CsI$)

燃料からの放出
—高い揮発性—

環境への放出
—公衆への影響が大—
(甲状腺への蓄積)



液相への移行
—高い水溶性—
($CsI \rightarrow I^-$)

液相内における高揮発性化学種への変換
—化学反応速度支配—
($I^- \rightarrow$ 気体状ヨウ素 (I_2 、有機ヨウ素 CH_3I))

気相への再放出

研究の概要

シビアアクシデント解析コード
THALES2の開発

連携

ヨウ素化学計算コード
Kicheの開発

➤ 連携解析

- 事故の進展に伴って変化する熱水力条件等の考慮
- それらの条件を加味したヨウ素化学に関する機構論的な取り扱い

適用・活用

JAEAにおける
基礎実験

国際協力
(OECD/BIP計画)

既存知見
(OECD/ISP等)

- 福島第一原子力発電所事故の分析・評価
- シビアアクシデント対策の有効性評価
- 環境評価用の入力情報提供・活用
 - 公衆被ばく・環境影響評価
 - 緊急時防護措置の最適化
 - 安全目標・立地評価等

1F事故におけるヨウ素の再放出評価

本研究のねらい

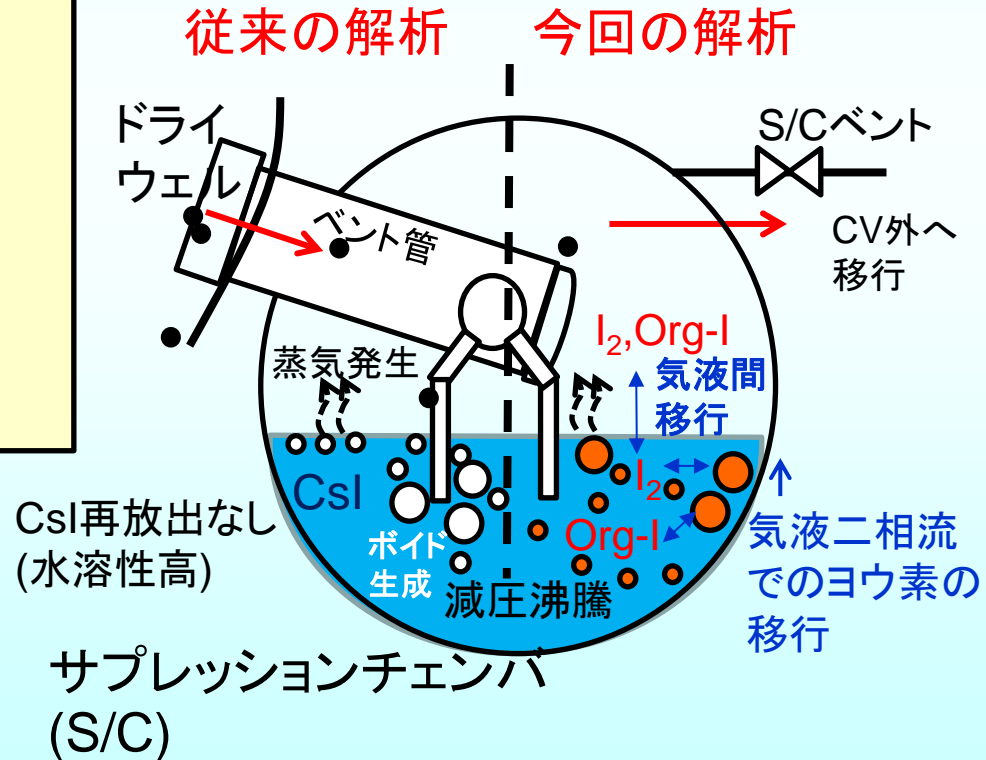
- ◆ ヨウ素は、公衆の初期被ばくの観点から重要だが、事故初期の環境モニタリングデータが得られておらず課題
- ◆ JAEAモニタリング測定(2011年3/15～)
気体状ヨウ素 > 粒子状ヨウ素
→ 環境への放出メカニズムとして液相中のヨウ素化学反応が関わる可能性を示唆
- ◆ SA解析コードによる既存評価
ヨウ素の化学形としてCsI(常温で粒子状)を仮定、上記、測定結果と整合せず課題



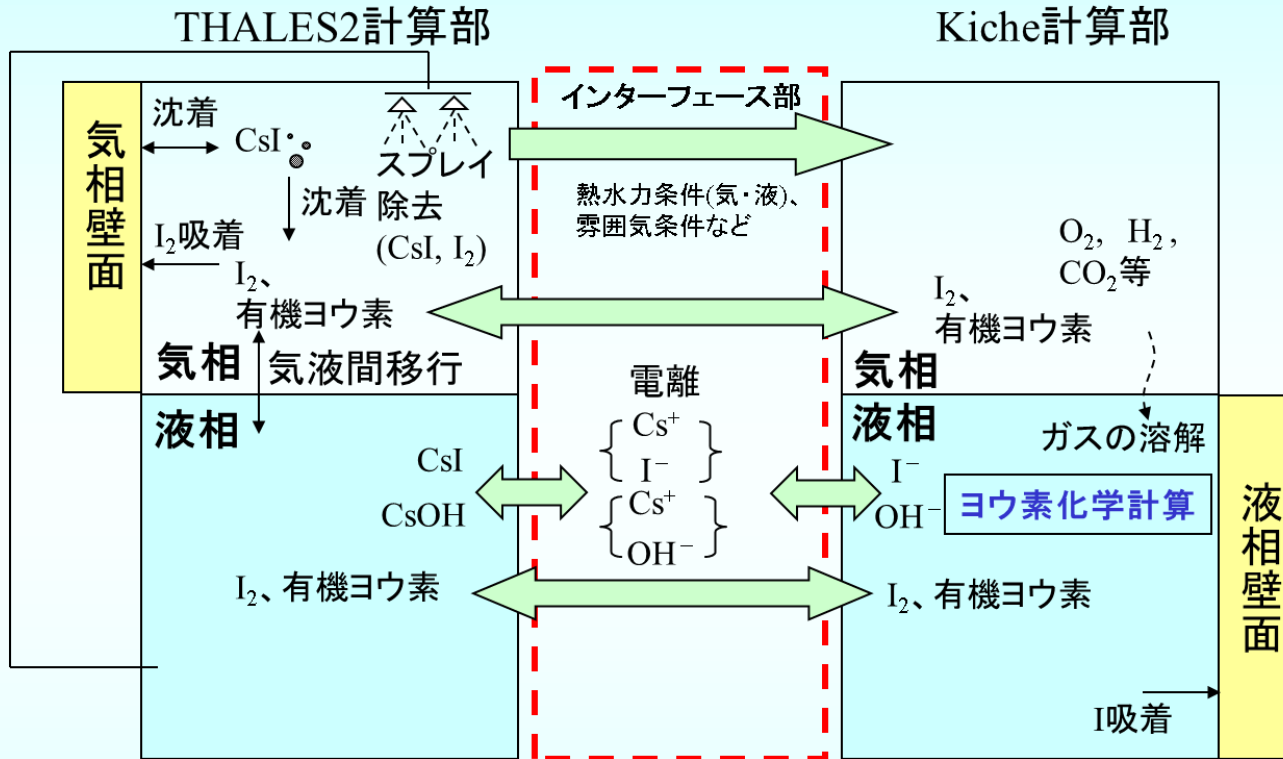
✓ THALES2/Kiche連携解析を1F事故に適用

S/Cベント作動に伴うヨウ素の挙動

- ◆ 3号機ではS/Cベントを繰り返し実施



THALES2/Kicheコード連携解析手法



- 炉心損傷を含む主要なSA現象の扱い
- 安全・緩和系の作動
- 放射性物質・構造材等の複雑な移行・沈着挙動等

- 液相反応(気体状ヨウ素生成の主要過程)
 - 水の放射線分解
 - 無機ヨウ素反応(I₂生成・分解)
 - 有機ヨウ素反応(Org-I生成・分解)等
- 有機物のペイント壁からの溶出・放射線分解
- 酸生成に伴うpH低下等

解析シナリオ及び条件

⑥

■ 事象進展

1F3東電公表情報ベース

日時	時間(h)	事象	
3/11	14:47	0	地震発生、スクラム
	15:05	0.3	RCIC手動起動
3/12	11:36	20.8	RCICトリップ
	12:06	21.3	スプレイ作動(1回目)
	12:35	21.8	HPCI作動
3/13	2:42	35.9	HPCI手動停止
	9:08	42.4	原子炉減圧
	9:20	42.6	S/Cベント(1回目)
	9:25	42.6	淡水及び海水注入開始
	12:30	45.7	S/Cベント(2回目)
	20:30	53.7	S/Cベント(3回目)
3/14	16:00	73.2	S/Cベント(4回目)
3/15	16:05	97.3	S/Cベント(5回目)

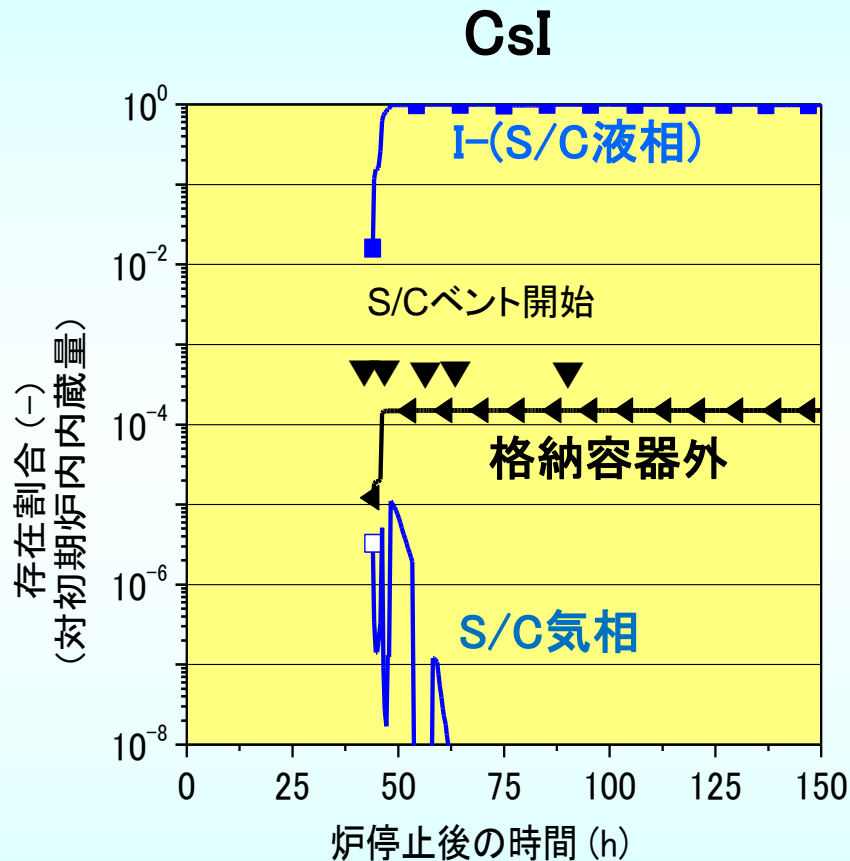
■ 主な解析条件

- ✓ S/C液相内初期有機物濃度： 10^{-4}mol/L^*
- ✓ I_2 及び有機ヨウ素の質量移行係数： 10^{-4}m/s
(OECD/NEA国際標準問題ISP-41の推奨式等に基づき設定)
- ✓ S/C液相初期pH: 7
- ✓ I_2 及び有機ヨウ素の気液分配係数: 温度依存を考慮した相関式

S/Cを通じたベントの間欠作動

結果:ヨウ素化学反応を考慮しない場合

7



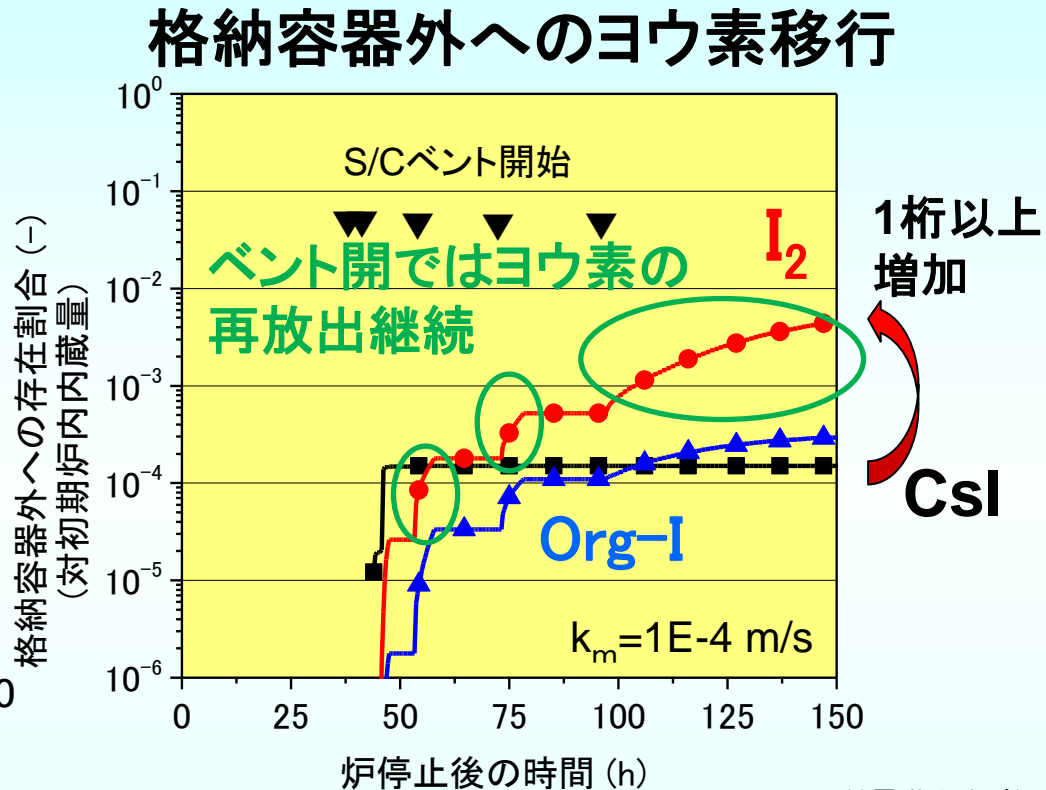
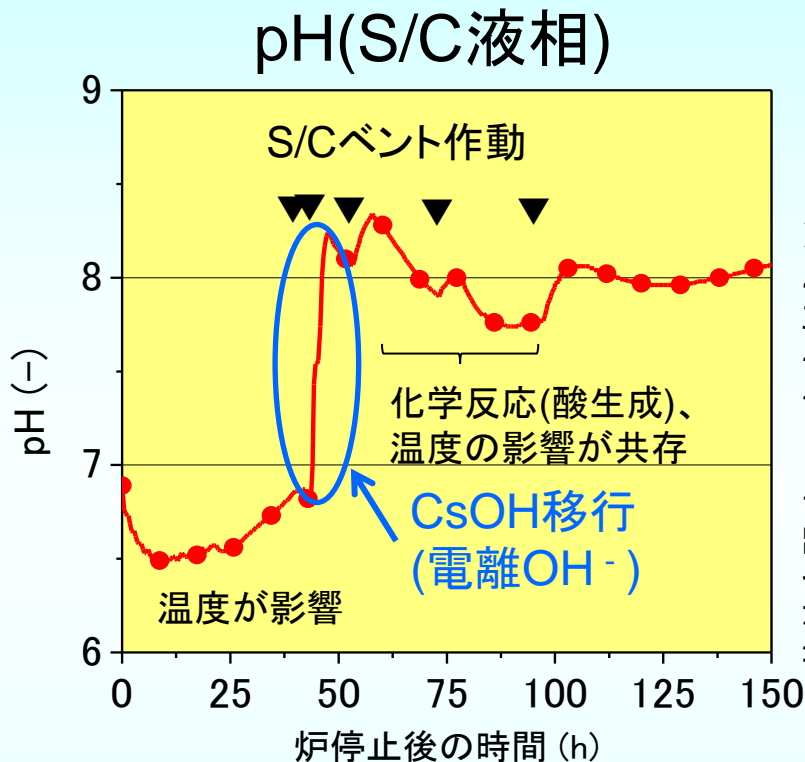
- ◆ヨウ素の大部分がS/Cに移行
(再蒸発が寄与)
- ◆プールスクラビング効果により、ヨウ素の大半がS/C液相中に蓄積



潜在的なヨウ素の放出源

結果:ヨウ素化学反応を考慮した場合

⑧



- ◆ pH変化は、CsOHの移行・電離の寄与大 (pH=8程度)
- ◆ 塩基性条件では気体状ヨウ素は生成され難いのが一般的な見解



本結果:ベント作動に伴う気液間移行により放出継続

感度解析

ヨウ素化学反応に影響しうる主要なもの

- ◆ 化学反応 : 反応モデル、pH、不純物の影響
- ◆ 再放出 : 質量移行係数、気液分配係数
- ◆ 放出後 : 壁への吸脱着、雰囲気中での反応等

- ◆ ヨウ素再放出量を増大させる可能性が高いことに着目、上記、**2パラメータ**に関する検討を実施

(1) pH

- ✓ 本結果 : S/CへのCsOH移行・電離が支配的
⇒RPV内の化学形変化は考慮不可⇒課題

S/C移行により影響を及ぼす可能性があるもの

- ◆ ヨウ素及びセシウムの化学
 - HI、CsI、CsOH、Cs₂MoO₄、CsBO₂
- ◆ 制御材の酸化
 - ホウ酸や二酸化炭素の生成

S/C液相 (~3000m³) のpHを1低下させるのに必要な概略量

HI	~3mol
ホウ酸	~5000mol
二酸化炭素	~10mol

■初期インベントリ

- ヨウ素 : ~100mol
- B₄C : ~23000mol

(2) 気液界面での物質移行

$$\dot{M} = k_m A_{fs} (C_{liq} - H_p C_{gas})$$

A_{fs} : 自由界面面積、
 C : 濃度、 H_p : 気液分配係数

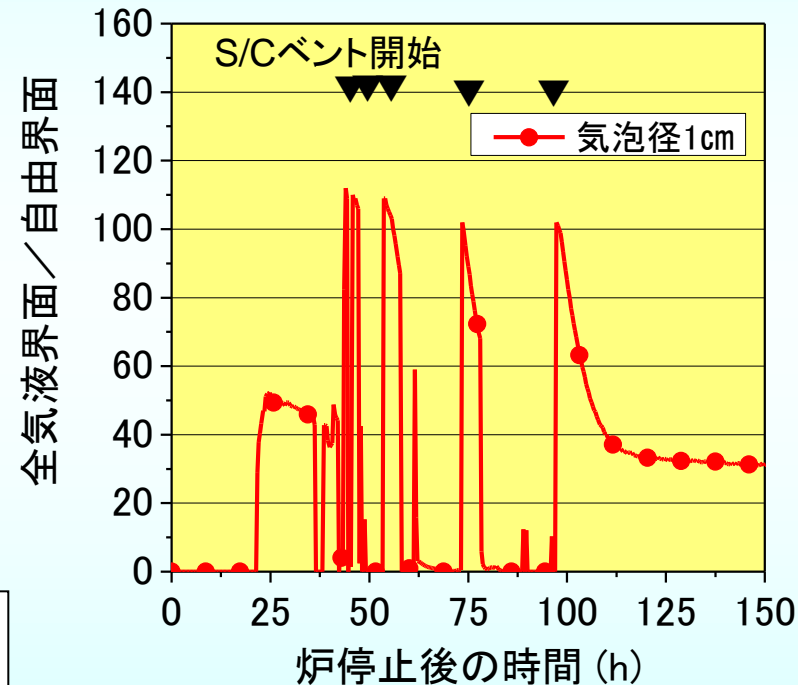
質量移行係数

液相流動の効果及び
 気液界面面積増大の
 効果を包含

感度解析ケース

- ① pH=7固定 : ベースケースはpH=8相当
- ② $k_m=10^{-2}m/s$: ベースケースの100倍

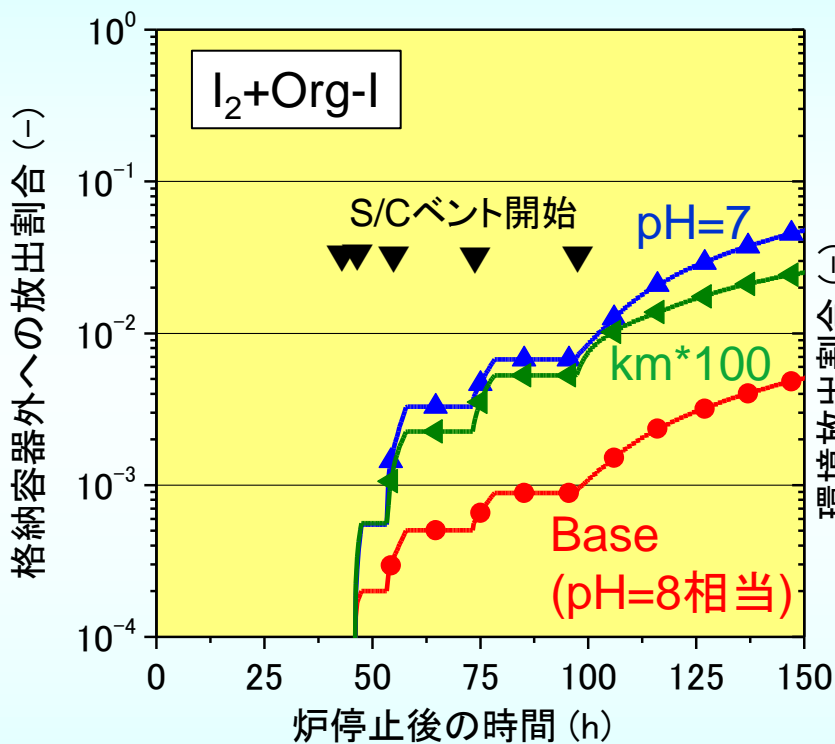
気液界面面積の増大



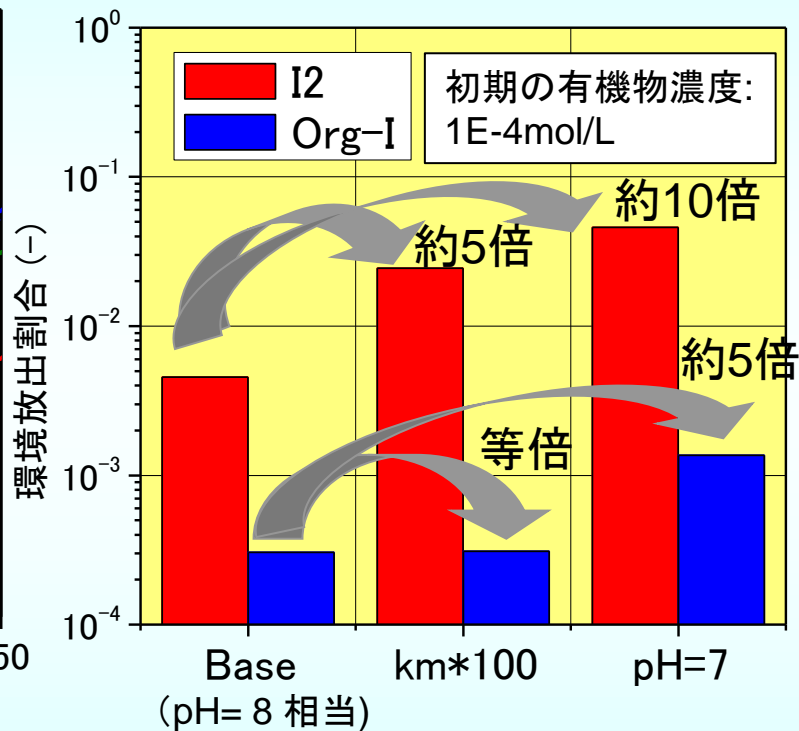
感度解析：pH及び質量移行係数の影響

11

格納容器外へのヨウ素放出割合



ヨウ素内訳(150h結果)



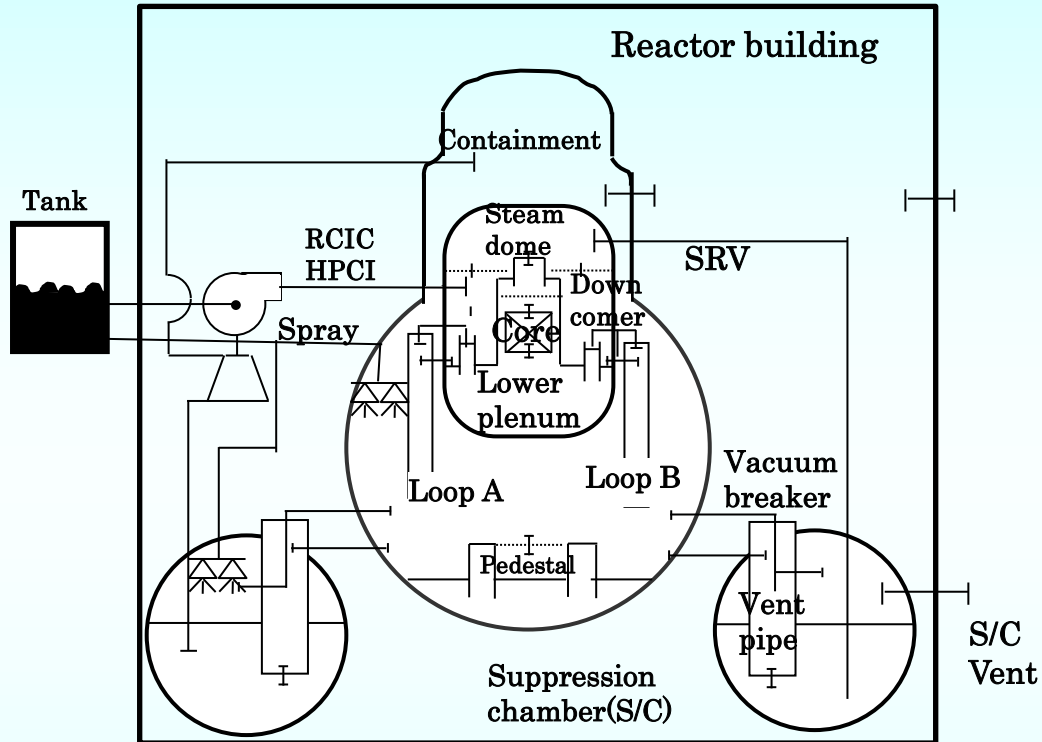
pHや質量移行係数がベント作動時の気体状ヨウ素の再放出挙動に大きな影響を及ぼし得ることを示唆

まとめ

- シビアアクシデント解析コードTHALES2とヨウ素化学計算コードKicheの連携手法を福島第一原子力発電所事故(3号機)の解析に適用し、S/Cベントに伴うS/C液相からの気体状ヨウ素放出に着目した検討を実施した。
- 本解析より、一旦、S/C液相に捕獲されたヨウ素(CsI)が揮発性の高い I_2 及び有機ヨウ素に変換され、S/Cベントにより格納容器外に継続的に放出され得る結果が示された。
- 液相のpH及び質量移行係数の影響に関する感度解析を実施し、両者が気体状ヨウ素の放出量に多大な影響を及ぼすことを明らかにした。
- 今後は、1F1及び1F2に対する連携解析、ヨウ素化学を考慮した不確かさ解析、質量移行係数等の実験的検討を進める予定である。

以下、参考資料

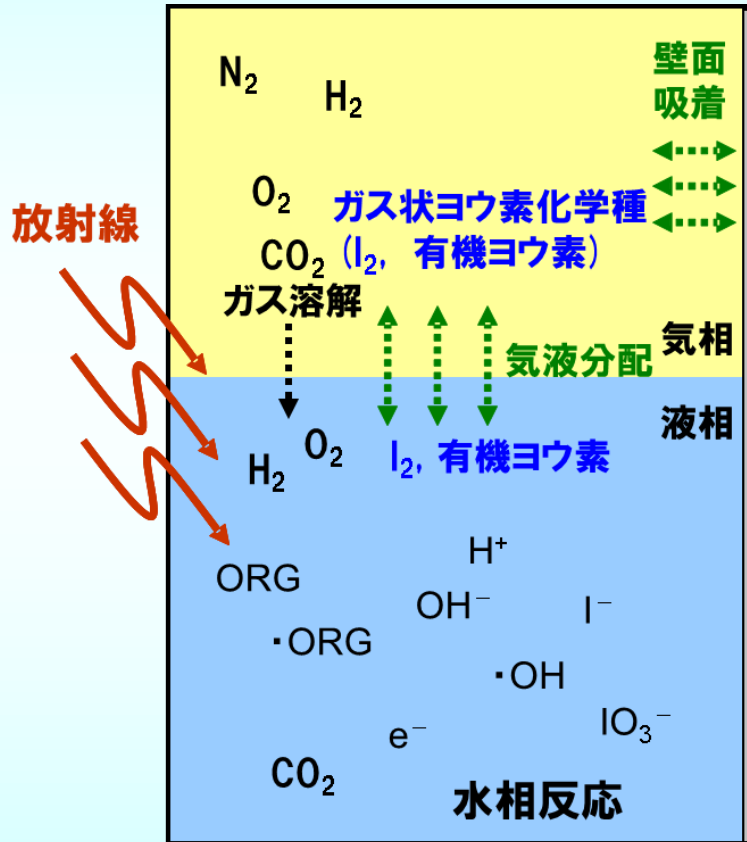
1F3解析におけるボリューム分割



	分割数
原子炉冷却系	7個
格納容器	4個
原子炉建屋	1個
環境	1個

Kicheコードの概要

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 (~40反応)

- 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 (~30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

有機ヨウ素反応 (~25反応)

- 酸化: $I_2 + \cdot R \rightarrow Org-I + \cdot I$ 、 $HOI + \cdot R \rightarrow Org-I + \cdot OH$
- 還元: $Org-I + e_{aq}^- \rightarrow \cdot R + I^-$

✓ ペイント壁からの有機物ORG溶出/放射線分解

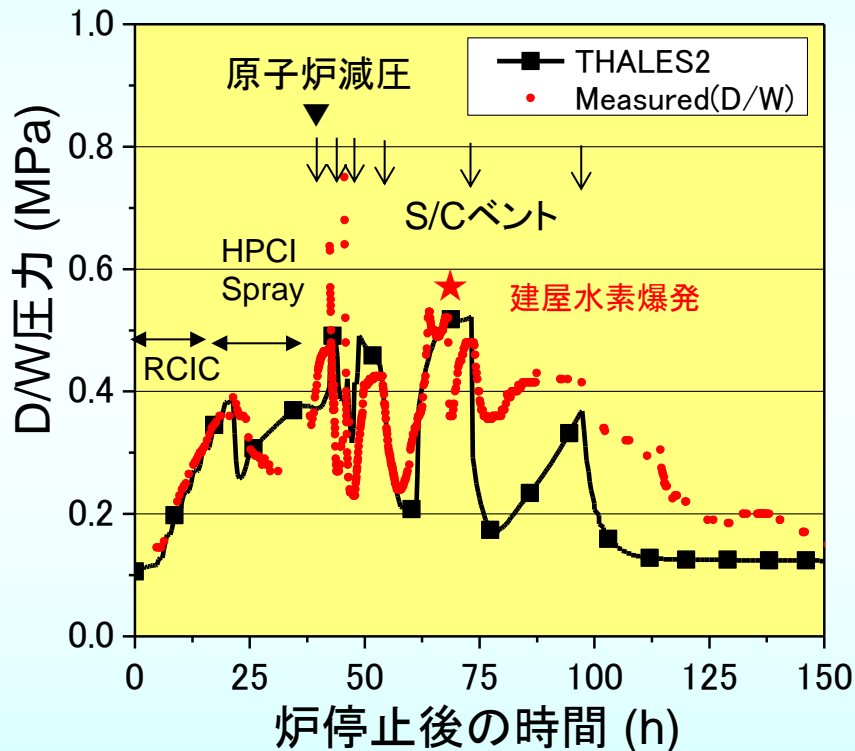
✓ 酸生成によるpH低下

✓ 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・脱着等

S/Cベント作動に伴うヨウ素の挙動 (化学反応なしケース)

ドライウェル圧力 (THALES2)



炉心溶融開始(43.8h)

