

平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書

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

**【改訂版】**

国立研究開発法人  
日本原子力研究開発機構  
平成 31 年 4 月

本報告書は、原子力規制委員会原子力規制庁からの委託により実施した業務の成果をとりまとめたものです。

本報告書に関する問い合わせは、原子力規制庁までお願いします。

## 成果報告書の改訂について

平成 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）事業成果報告書に誤記が含まれていたため改訂した。

平成 31 年 4 月

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構



## 目次

1. はじめに	1-1
2. ソースターム評価技術の高度化	2.1-1
2.1 VERDON 実験	2.1-1
2.1.1 空気雰囲気条件でのホット実験 VERDON-2 (Phase 3-4) の分析	2.1-1
2.1.2 ホウ素を含む水蒸気雰囲気及び空気雰囲気条件での FP 化学挙動に係る知見の整理	2.1-13
2.2. FP 化学及び移行に係わる実験	2.2-1
2.2.1 不活性雰囲気におけるホット実験 (AGF 実験)	2.2-1
2.2.2 水素及び水蒸気雰囲気におけるコールド実験	2.2-17
2.3. FP 化学及び移行に係わる解析	2.3-1
2.3.1 熱力学平衡計算による FP 移行挙動の予測性能評価	2.3-1
2.3.2 ソースターム評価手法における化学モデルの改良検討	2.3-22
2.3.3 原子炉冷却系内 FP 化学を考慮した実機 BWR ソースターム解析	2.3-33
3. 1F プラント内核種移行調査	3.1-1
3.1 公開情報の収集及び整理	3.1-1
3.1.1 公開情報データベースの更新	3.1-1
3.1.2 把握可能な核種移行挙動の整理	3.1-3
3.2 プラント内試料の分析及び今後の試料入手に向けた準備等	3.2-1
3.2.1 水試料の分析	3.2-1
3.2.2 固相試料の分析前処理方法の検討	3.2-9
3.2.3 分析を行う施設の使用許可取得等に向けた準備	3.2-10
3.2.4 シビアアクシデント解析に基づく分析試料の検討	3.2-12
3.3 1F 事故分析に係る OECD/NEA プロジェクトに知見を提供するためのデータベース作成	3.3-1
4. おわりに	4-1
付録 A 出張報告	A-1



## 1. はじめに

シビアアクシデント時におけるソースターム（環境中に放出される放射性物質の量や化学形、放出のタイミング）は、シビアアクシデントの影響評価、レベル 2 確率論的リスク評価（PRA：Probabilistic Risk Assessment）、レベル 3PRA、緊急時防護対策の検討等において不可欠な情報である。ソースタームは原子炉冷却系内や格納容器内における炉心溶融進展及び放射性物質の移行挙動に影響されるため、その評価においては、シビアアクシデントの進展を総合的に解析できる解析コードを用いる場合が多い。シビアアクシデント総合解析コードでは、図 1.1 に示すような放射性物質の多様な移行挙動が考慮される。これらの現象の多くは放射性物質の化学形に依存し得るが、現在のシビアアクシデント総合解析コードのほとんどは化学形を固定して解析を行う。ソースターム評価上重要な核分裂生成物（FP：Fission Product）であるヨウ素やセシウムについては、通常、主要な移行経路内において粒子状（エアロゾル）の形態を取るヨウ化セシウム（CsI）や水酸化セシウム（CsOH）が仮定される。

フランスで実施された PHEBUS-FP 計画の炉内実験及びその解析において、上記と異なる化学形のヨウ素及びセシウム化合物が原子炉冷却系内で形成され得ることが示された[1.1]。特に、炭化ホウ素（ $B_4C$ ）の制御材が炉心に含まれる場合には、有意な割合の気体状ヨウ素が原子炉冷却系から模擬格納容器に移行するという結果が得られている。また、東京電力福島第一原子力発電所（1F）事故後のモニタリングでは、粒子状のヨウ素と合わせて、有意な量の気体状ヨウ素が観測されている[1.2, 1.3]。気体状ヨウ素化合物は、原子炉冷却系内で直接生成される場合やサブプレッションチャンバー（S/C）等の液相内における放射線場の化学反応により生成される場合が考えられる。原子力機構において整備しているシビアアクシデント総合解析コード THALES2/KICHE[1.4, 1.5]を用いた 1F3 号機のシビアアクシデント解析では、一旦 S/C の液相内に負イオンとして溶解したヨウ素が、液相内の化学反応により揮発性の高い分子状ヨウ素（ $I_2$ ）や有機ヨウ素（ $CH_3I$ ）に変換され、格納容器ベントの作動に伴う気液間の物質伝達を通じて気体状ヨウ素の形で格納容器外に移行し得ることが示唆された[1.6]。

原子炉冷却系内における FP の化学形は、個々の化合物が有する物性に依存して直接的にソースタームに影響を及ぼし得る。また、それらが液相内に溶解した場合には、pH の変化をもたらして気体状ヨウ素の生成を著しく増大させる可能性がある。しかしながら、原子炉冷却系内で想定される熱水力や化学的条件下における FP 化学に関する技術的知見は十分に整備されていない。このような点と 1F 事故の知見を踏まえて、本事業においては、表 1.1 に示すスケジュールに基づいて、沸騰水型軽水炉（BWR）の原子炉冷却系内における FP（主にヨウ素及びセシウム）化学に及ぼす炭化ホウ素制御材の影響及び生成された化合物の移行挙動に着目した実験及び解析を実施し、規制判断に活用できる技術的知見を取得するとともに、シビアアクシデント時ソースターム評価手法の高度化を目指す。

本年度の事業においては、①照射済み燃料を用いた実験データ等に基づき FP 移行時の化学形に係る技術的情報を整理し、②上記の実験を補完する基礎実験を実施するとともに、③ソースターム評価手法の高度化及びその手法を用いた実機事故条件に対する試解析を行った。より具体的には、以下を実施した。

- ① 照射済み燃料からの FP の放出、化学的特性及び移行挙動に関する総合的なデータを収集するためにフランス原子力・代替エネルギー庁（CEA）が中心になって実施した FP 移行実験 VERDON-2 及び 5 に関する取得済データを活用し、本年度は原子炉冷却系内放射性物質移行挙動解析コード VICTORIA2.0 [1.7]を用いて VERDON2 実験の空気混入条件における温度勾配管（TGT：Thermal Gradient Tube）への FP 沈着に関する解析を実施した。また、これまでに実施した解析結果と合わせて、ホウ酸を含む水蒸気雰囲気及び空気雰囲気条件下における主要な FP に係わる移行時の化学形や気体状ヨウ素の生成等、化学的特性に係る技術的知見を整理した。
- ② ソースターム評価手法に取り入れる物理モデルの構築に必要な基礎データを取得するため、原子力機構大洗研究所の照射燃料試験施設（AGF：Alpha Gamma Facility）ホットセル内に設置されている FP 放出移行試験装置（照射済み燃料試験片を加熱して FP 放出及び移行挙動を調べる装置）を用いて照射済み燃料の加熱試験を実施した。また、非放射性的ヨウ素、セシウム、ホウ素等を含有する試料を用いた基礎的な高温化学実験（コールド実験）を同じく AGF 及び原子力機構原子力科学研究所の TeRRa（Test bench for FP Release and tRansport）装置において実施し、温度勾配管への沈着分布、生成された化合物の化学形や結晶構造等に関する実験データを拡充した。
- ③ 熱力学平衡計算による FP 移行挙動の予測性能評価を目的として TeRRa 実験の解析を実施するとともに、熱力学平衡計算に加えて化学反応速度を考慮できる解析手法の開発として汎用化学モデル CHEMKEq[1.8]と 1 次元 FP 移流コード ART の連成を図った。また、FP 化学組成データベースに基づく代替統計モデルを導入した THALES2/KICHE コード（図 1.2 参照）を用いて BWR の代表的なシビアアクシデントシーケンスを対象とした解析を実施し、FP の原子炉冷却系から原子炉格納容器への移行量及び環境放出量を評価した。

上記に加えて、現在進められている 1F 廃止措置の過程で取得される様々な試料の情報に基づき 1F プラント内における核種の移行経路や FP 分布を推定するため、東京電力その他により公開された情報の収集及び整理を行うとともに、平成 29 年度「東京電力福島第一原子力発電所プラント内核種移行に関する調査」事業[1.9]において検討された分析計画を踏まえて、水試料や固体試料の分析及び今後の試料入手に向けた準備等を実施し、整理した情報及び取得した知見を 1F 事故分析に係る経済協力開発機構／原子力機関（OECD/NEA）プロジェクトに提供するためのデータベースを作成した。具体的には、以下を実施した。

- ④ 公開情報（1F サイト内の汚染水、建屋内線量、がれき、土壌等の分析結果、OECD/NEA の 1F 関連プロジェクト等の報告）等から、プラント内における核種の濃度や分布に関連する情報の収集及び整理を行い、現時点で把握可能な核種の移行挙動について取りまとめた。
- ⑤ プラント内の核種移行挙動を把握するため、水試料の分析手法を検討するとともに、同手法を検証するための分析を実施した。また、今後の試料入手に向けて、固相試料の分析前処理方法について検討するとともに、分析を行う施設の使用許可取得等に向けた準備を進めた。
- ⑥ 上で取得した知見を OECD/NEA の 1F 事故分析に係るプロジェクトに提供するためのデータベースを作成した。

## 参考文献

- [1.1] N. Girault et al., “Towards a Better Understanding of Iodine Chemistry in RCS of Nuclear Reactors,” Nucl. Eng. Des., 239, 1162–1170, 2009.
- [1.2] 古田定昭 他, “福島第一原子力発電所事故に係る特別環境放射線モニタリング結果—中間報告 (空間線量率, 空气中放射性物質濃度, 降下じん中放射性物質濃度)—”, JAEA-Review 2011-035, 日本原子力研究開発機構, 2011 年 8 月.
- [1.3] T. Ohkura et al., “Emergency Monitoring of Environmental Radiation and Atmospheric Radionuclides at Nuclear Science Research Institute, JAEA Following the Accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant,” JAEA-Data/Code 2012-010, Japan Atomic Energy Agency, May, 2012.
- [1.4] M. Kajimoto et al., “Development of THALES-2, A Computer Code for Coupled Thermal-Hydraulics and FP Transport Analyses for Severe Accident at LWRs and Its Application to Analysis of FP Revaporization Phenomena,” Proc. International Topical Meeting on Safety of Thermal Reactors, Portland, OR, 584-592, 1991.
- [1.5] K. Moriyama, Y. Maruyama and H. Nakamura, “Kiche: A Simulation Tool for Kinetics of Iodine Chemistry in the Containment of Light Water Reactors under Severe Accident Conditions,” JAEA-Data/Code 2010-034, Japan Atomic Energy Agency, March, 2011.
- [1.6] J. Ishikawa, K. Kawaguchi and Y. Maruyama, “Analysis for Iodine Release from Unit 3 of Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant with Consideration of Water Phase Iodine Chemistry,” J. Nucl. Sci. Technol. DOI : 10.1080/00223131.2014.951417, September, 2014.
- [1.7] N. E. Bixler, “VICTORIA 2.0: A Mechanistic Model for Radionuclide Behavior in a Nuclear Reactor Coolant System under Severe Accident Conditions,” NUREG/CR-6131 SAND93-2301 R3, December, 1998.
- [1.8] 伊藤, 塩津, 田中, 他, CHEMKEq : 化学平衡論及び反応速度論の部分混合モデルに基づく化学組成評価コード, JAEA-Data/Code 2018-012, 2018 年 10 月.
- [1.9] 日本原子力研究開発機構: 平成 29 年度原子力規制庁委託成果報告書 東京電力福島第一原子力発電所プラント内核種移行に関する調査, 平成 30 年 3 月 (2018).

表 1.1 事業の実施スケジュール及び実施内容

	平成27年度	平成28年度	平成29年度	平成30年度	平成31年度
実験	<ul style="list-style-type: none"> <li>● VERDON5実験</li> <li>● AGFコールド実験①②</li> <li>● AGFホット実験の準備</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● VERDON5実験(分析等)</li> <li>● AGFコールド実験③④</li> <li>● AGFホット実験①</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● VERDON2及び5試料分析</li> <li>● AGFコールド実験⑤⑥⑦</li> <li>● AGFホット実験①(分析等)</li> <li>● AGFホット実験②</li> <li>● TeRRa実験①②</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● VERDON2及び5試料分析</li> <li>● AGFコールド実験⑧⑨⑩⑪</li> <li>● AGFホット実験②(分析等)</li> <li>● TeRRa実験③④</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● TeRRa実験⑤⑥</li> <li>● 成果取りまとめ</li> </ul>
解析	<ul style="list-style-type: none"> <li>● VICTORIA2.0コードによる解析準備及び実験解析</li> <li>● 化学平衡組成データベースの構築</li> <li>● THALES2コードへのFP放出モデル導入</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● VICTORIA2.0コードによる実験解析</li> <li>● 化学平衡組成代替統計モデルの構築</li> <li>● THALES2コードへの代替統計モデル導入</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● VICTORIA2.0コードによる実験解析</li> <li>● FP化学モデル開発</li> <li>● 化学平衡組成代替統計モデルの更新</li> <li>● THALES2コードによる実機ソーターム解析</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● FP移行挙動解析コードへのFP化学モデル導入</li> <li>● THALES2コードのFP化学モデル高度化及び実機ソーターム解析</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● THALES2コードによる実機ソーターム解析</li> <li>● 成果取りまとめ</li> </ul>

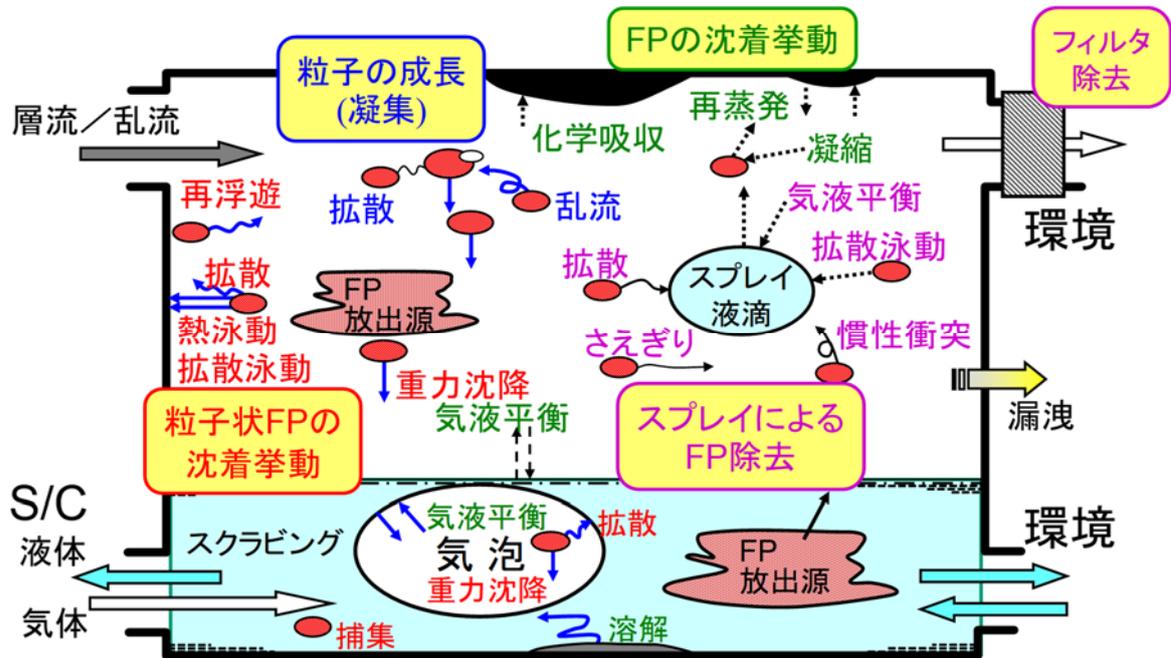
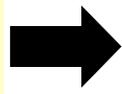


図 1.1 シビアアクシデント時に生じる放射性物質の移行挙動

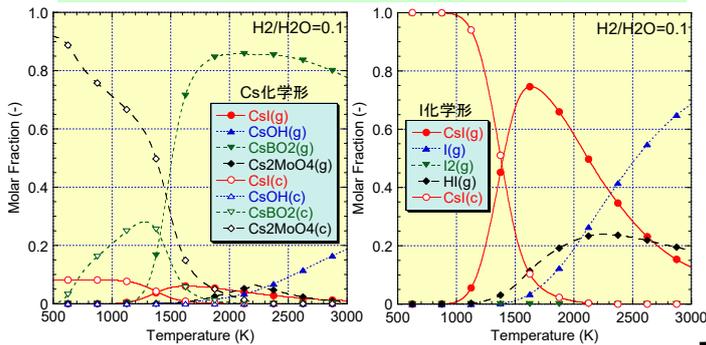
B<sub>4</sub>C制御材の酸化モデル  
(ホウ酸及びCO<sub>2</sub>の生成)



THALES2/KICHE  
コード

◆ FP化学や液相pHに影響

機構内や国際協力実験及び解析に  
基づいたFP化学形データベースの整備  
(Cs-I-Mo-B-C-O-H系)



熱化学平衡組成を  
予測する統計モデル  
の構築

- ◆ 重要度評価において活用実績のある手法
- ◆ THALES2コードの速い解析機能を維持

図 1.2 THALES2/KICHE コードの高度化 (原子炉冷却系内 FP 化学解析機能の導入)

## 2. ソースターム評価技術の高度化

### 2.1 VERDON 実験

#### 2.1.1 空気雰囲気条件でのホット実験 VERDON-2 (Phase 3-4) の分析

##### 2.1.1.1 目的

VERDON-2 実験は、空気中における高燃焼度の混合酸化物 (MOX) 燃料からの FP の放出・移行挙動を評価し、PWR でのシビアアクシデント時に想定される空気混入シナリオにおけるソースタームに係る知見を拡充することを目的に実施された[2.1.1.1]。H30 年度時点では、同実験に係る核分裂生成物 (FP) 放出傾向及び温度勾配管内での FP 蓄積分布についての結果が得られている[2.1.1.2]。一方でこれらの実験結果について化学形は未同定であり、十分に化学挙動が理解されておらず、解析等を通じた実験結果の分析が必要であると考えられる。そこで同事業では、熱力学平衡計算機能を有する VICTORIA2.0 コード[2.1.1.3]を用いた解析を実施し、VERDON 実験結果の解釈と分析を進めている。本項では、同事業内で未実施である VERDON-2 における空気混入条件での FP 化学挙動に着目した解析を実施し、その挙動について分析を行った。

##### 2.1.1.2 VERDON-2 実験解析

###### (1) 解析条件

VICTORIA2.0 解析で模擬した VERDON 装置の体系を図 2.1.1.1 に示す。上流より加熱炉を 1 分割、700℃加熱ループを 1 分割、温度勾配管を 16 分割した。各セルにおける流動の向きは、実際の実験装置と同様に、加熱炉と 700℃加熱ループを鉛直方向、温度勾配管を水平方向として設定した。700℃加熱ループでは VICTORIA2.0 コード内の 90° 曲管オプションを設定し、流体中のエアロゾルの慣性沈着を考慮している。また、実際の実験装置では、4 本の温度勾配管を有しており、各実験条件で切り替え (温度勾配管 1 : Phase 1~3、温度勾配管 2 : Phase 1~5、温度勾配管 3 : Phase 4~5、温度勾配管 4 : Phase 5) を実施している。なお実験では、700℃加熱ループから常に 2 系統の温度勾配管に流体が分岐するように制御が行われている。ここで、解析上で模擬した温度勾配管は、VICTORIA2.0 コードの仕様 (セル間の流動方向切り替えができない) により、実際の実験装置での 2 系統温度勾配管を 1 配管で模擬している。模擬した温度勾配管は、2 系統分と等価の水力直径、沈着面積を有する。

FP と構造材の化学的な相互作用を含めた FP 移行挙動評価のために、温度勾配管の構造材を Inconel-600 としている。Inconel-600 の組成は、77%ニッケル (Ni)、16%クロム (Cr)、7%鉄 (Fe) である。本構造材と FP の化学的な相互作用は、反応に寄与し得る構造材深さ 5 nm の仮定に基づき、構造物表面近傍の境界層における熱力学平衡計算により評価される。

各構造材温度は、実験データを参考に決定している。また、加熱炉での構造材温度は、各実験過程での加熱操作に対応して変化するが、その他装置部位の構造材温度は、解析中常に一定とした。各セルでの気体温度および流速は、層流を仮定した簡易熱伝達計算により決定し、解析の境界条件とした。

実験で得られた結果[2.1.1.1]を基に決定した VICTORIA2.0 解析で模擬した実験過程を図 2.1.1.2 に示す。対象とする実験過程は、VERDON-2 実験での温度勾配管 1 及び 2 への沈着・凝縮へ寄与する Phase-1～Phase-5'をである。各 Phase では、主に加熱炉の雰囲気温度と雰囲気条件が異なる。Phase-1、2、3、4、5'では、それぞれヘリウムガス (He) を用いた不活性雰囲気 (約 550°C)、水蒸気雰囲気 (550～1500°C)、不活性雰囲気 (1500～2000°C)、空気雰囲気 (2000°C)、空気雰囲気 (2100°C) である。空気雰囲気を VICTORIA2.0 コードで解析するにあたり、VICTORIA2.0 コードは窒素ガス (N<sub>2</sub>) を扱えないため、同じ不活性ガスであるアルゴン (Ar) を代替ガスとして選定している。また、Phase-2 での燃料被覆管の酸化による水素ガス (H<sub>2</sub>) 生成も考慮した。

燃料からの FP 放出傾向は、実験より得られたオンラインでのガンマ線測定結果[2.1.1.1]を参考に決定した。VICTORIA2.0 コードでは、燃料中での拡散モデルを基に燃料からの FP 放出速度を計算可能であるが、本解析では FP 移行時の化学的な挙動に注目するために FP 放出速度は境界条件 (入力値) として与えている。本解析で対象とする FP は、Phase-1～5'での放出が顕著なセシウム (Cs)、ヨウ素 (I)、モリブデン (Mo)、バリウム (Ba)、ルテニウム (Ru)、アンチモン (Sb) である。各元素の放出傾向について、高揮発性の Cs、中揮発性の Mo、Ba を代表元素として図 2.1.3 に示した。解析時間で約 3500～10000 秒に該当する Phase-2 では、高揮発性の Cs に続き中揮発性の Mo が放出される。Phase-3 では、高・中揮発性元素の燃料からの放出が継続し、中揮発性の Ba の放出が開始される。Phase-4～5'では、中揮発性の Ba が緩やかに放出される。また、燃料から放出時の化学形は、気体状の元素 (Cs の場合、Cs(g)) としているが、キャリアガス中に放出されると化学平衡計算により即座にその雰囲気での安定な化学種へと変化する。

## (2) 解析結果

各代表元素の装置内での分布の経時変化について、図 2.1.1.4～2.1.1.6 に示す。

Cs は、燃料からの放出開始から Phase-2 の終期 (約 7000～9000 秒) において、約 95% が温度勾配管内に蓄積された。Phase-3 の水蒸気条件では、700°C加熱ループへの Cs 蓄積量と装置系外への流出量が増加した。また Phase-2 に温度勾配管内に蓄積した Cs は、Phase-3 への切り替え初期で一部が下流へ再移行し、蓄積量が減少した。Phase-3 の中期では、再び温度勾配管での Cs 蓄積量が増加した。空気条件の Phase-4 初期から中期では、700°C加熱ループでの Cs 蓄積が増加した。燃料からの Cs 放出が収束した後では、700°C加熱ループでの蓄積傾向が一変し、700°C加熱ループで蓄積した Cs の再移行と温度勾配管への蓄積した。

Mo は、水蒸気雰囲気の Phase-3 で放出開始時刻約 9500 秒から Phase-3 の終期まで、一定の傾向で装置内の分布が変化した。Phase-3 終期において Mo は、加熱炉に 7%、700°C加熱ループに 21%、温度勾配管に 16%、装置系外に 50%の分配割合であった。Phase-4 の空気条件に切り替えた後では、700°C加熱ループに蓄積していた Mo が再移行し、下流の温度勾配管及び装置系外への質量割合が増加した。温度勾配管での質量増加は Phase-4 の初期のみであり、Phase-4 の中期以降では蓄積した Mo が再移行する傾向が見られた。

Ba は、水蒸気条件の Phase-3 と空気条件の Phase-4 での雰囲気条件の違いによる大きな傾向の変化は見られなかった。放出初期において Ba は、大部分が加熱炉への蓄積と装置系外

への流出した。約 12500 秒以降で Ba 放出速度が緩やかになると、加熱炉への蓄積した Ba は再移行し、700°C加熱ループや温度勾配管への蓄積が見られた。

実験過程 Phase-1~3 の沈着/凝縮物に寄与する温度勾配管 1 及び Phase-1~5'に係る温度勾配管 2 における Cs および I の分布について図 2.1.1.7 に示す。なお、温度勾配管出口では、温度勾配管入り口で 2 つに分岐した流体を 1 系統に統合[2.1.1.1]しており、それに伴う流動条件の変化により元素分布に影響を及ぼすと考えられる。また、VICTORIA2.0 コードではそのような複雑な流動挙動をコード内で取り扱えないため、温度勾配管入り口からの距離 600 mm 以上では、元素分布の比較を行わないものとした。

温度勾配管 1 に相当する水蒸気雰囲気の実験過程 Phase-1~3 に係る VICTORIA2.0 解析において、Cs は温度勾配管の 50 mm 位置より沈着/凝縮を開始し、下流の低温部に進むにつれてその沈着/凝縮量が緩やかに増加した(図 2.1.1.7(a))。温度勾配管の壁面温度約 650 K に相当する約 380 mm の位置では、沈着/凝縮量の極大値が得られた。本傾向は、実験の傾向と一致しており、妥当な結果であると考えられる。解析で予想された温度勾配管 1 での蓄積物分布について、Cs 及び I 化学種に着目して分類した結果を図 2.1.1.8 に示す。Phase-2 終期での蓄積物中の化学種は、温度勾配管の約 380 mm の位置では水酸化セシウム (CsOH) 及びクロム酸セシウム (Cs<sub>2</sub>CrO<sub>4</sub>) であった。ここで Cs<sub>2</sub>CrO<sub>4</sub>は、配管構造物 Inconel と CsOH の反応物であることが一般的に知られている。また、温度勾配管の約 200 mm の位置の蓄積物は、主にヨウ化セシウム (CsI) であることが示された。これらの結果は、Cs 等の高揮発性元素の放出初期 (Phase-2 に相当) では、CsOH や CsI として移行していることが示唆される。一方で、中揮発性の元素が放出される Phase-3 では、最終的な化学種が Phase-2 までと大きく異なった。Phase-3 終期では、温度勾配管内の主要な Cs および I 化学種は、モリブデン酸セシウム (Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>) と CsI である。つまり、Phase-2 で蓄積していた CsOH や Cs<sub>2</sub>CrO<sub>4</sub> が Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>に変化したと考えられる。これは、中揮発性の Mo が蓄積物 CsOH と反応した結果であると考えられる。

温度勾配管 2 に相当する水蒸気及び空気雰囲気を含む実験過程 Phase-1~5'に係る VICTORIA2.0 解析において、Cs は温度勾配管の 50~200 mm と約 380 mm の位置で 2 つのピークを有する。水蒸気雰囲気 (Phase-1~3) のみの蓄積分布を示す温度勾配管 1 で分布と比較すると、空気雰囲気条件の Phase-4~5'で 50~200 mm の蓄積量が増大していることがわかる。しかしながら、実験では Phase-4~5'において 380~600 mm での蓄積量増加する結果を得ており、上流の 50~200 mm で蓄積量の増加を予測した解析結果と異なる。解析結果における蓄積化学種を分析した結果(図 2.1.1.9)、上流の 50~200 mm で増加した化学種は、Cs<sub>2</sub>CrO<sub>4</sub>であることが明らかとなった。同 Phase-4~5'における温度勾配管の上流にあたる加熱炉及び 700°C加熱ループでの流体中の移行化学種を分析したところ、主に CsOH であった。したがって、CsOH と構造物中 Cr との反応を解析では過大に評価したため、実験傾向と不一致であったと考えられる。VICTORIA2.0 では、構造物表面の近傍の反応を考えるにあたり、反応に寄与する構造物の深さを 5.0 nm と仮定している。そこで、反応に寄与する構造物深さを 1.0 nm とし、再度計算を行った結果を図 2.1.1.10 に示す。反応に寄与する構造物が減少したため、50~200 mm に位置する Cs<sub>2</sub>CrO<sub>4</sub> 由来のピークは減少したが、新たに 200~300 mm の位置のピークが得られた。これは、流体中の CsOH と配管表面の蓄積物 MoO<sub>2</sub>

が反応し Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> 形成したためである。しかしながら、このピーク増加位置も実験の傾向とは一致しておらず、さらに考察が必要であることが示唆された。実験傾向と解析結果が一致しない要因の一つとして、VICTORIA2.0 コードでは気相-固相反応の進行を過大に評価する点が挙げられる。

温度勾配管 1 に相当する水蒸気雰囲気の実験過程 Phase-1~3 に係る VICTORIA2.0 解析において、I は温度勾配管の 100 mm 位置より沈着/凝縮を開始し、下流の低温部に進むにつれてその沈着/凝縮量が緩やかに増加した (図 2.1.1.7(b))。さらに、温度勾配管の壁面温度約 720 K に相当する約 300 mm の位置では、沈着/凝縮量の極大値が得られた。本傾向は、実験の傾向と概ね一致しているが、沈着ピーク位置を実験よりも約 100 K 高温側に予測している。この誤差についての原因は、現在特定ができておらず今後検討する必要がある。また、解析で予想された温度勾配管 1 での蓄積物分布 (図 2.1.1.8) より解析では、ほぼ全ての蓄積した I 化学種が CsI であることが示された。

温度勾配管 2 に相当する水蒸気及び空気雰囲気を含む実験過程 Phase-1~5' に係る VICTORIA2.0 解析において、I は温度勾配管内にほとんど存在しないことが示された。水蒸気雰囲気 (Phase-1~3) のみの蓄積分布を示す温度勾配管 1 で分布と比較すると、空気雰囲気条件の Phase-4~5' では Phase-1~3 で確認された約 300 mm に極大値を持つ蓄積物が全て再移行したことを示唆している。同様に、実験では Phase-4~5' において蓄積物の再移行が確認されている。空気雰囲気に切り替えた際に再移行した I 化学種の分析によると、主要な化学種は、ヨウ素ガス (I<sub>2</sub>) であった。VERDON-2 実験では、最下流に設置された May-Pack フィルターの銀含有ゼオライト位置で I が検出されたことから、実験中一部の I が I<sub>2</sub> として移行したことが確認されている[2.1.1.1]。したがって、I<sub>2</sub> としての再移行した評価結果は、妥当であると考えられる。つまり、VICTORIA2.0 解析で示された水蒸気雰囲気 (Phase-1~3) での蓄積化学種 CsI が正しいと仮定すると、空気雰囲気の影響で CsI から I<sub>2</sub> へ化学反応したことが推測される。

空気雰囲気条件での CsI→I<sub>2</sub> 反応機構を推定するために、温度勾配管内で主要な蓄積物である CsI(c)、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>(c)及び酸化モリブデン (MoO<sub>2</sub>(c)) に対し、空気含有水蒸気条件での化学種評価を実施した (図 2.1.1.11)。化学種は、閉鎖系を仮定した熱力学平衡計算により決定している。解析の結果、I<sub>2</sub>(g)の割合は、酸素濃度に大きく依存することが示された。本解析条件での CsI→I<sub>2</sub> 反応に係る酸素濃度閾値は、0.1~1.0%間にあると考えられる。また、本解析における化学種を分析したところ、CsI→I<sub>2</sub> 反応は下記の機構であると推定された。



この反応式は、Mo の 4→6 価と I の -1→0 価への酸化反応であることを示している。本反応群は燃料中でも進行することから、ジルカロイ被覆管の健全性を考慮する際の重要な反応として扱われている[2.1.1.3]。

以上より、VERDON-2 実験において Cs と I は、水蒸気雰囲気において CsOH、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>、

CsI として移行しており、反応性の高い CsOH は配管構造材と反応し得ることが示された。また、空気条件において CsI は Mo と酸化反応に伴い I<sub>2</sub> として再移行することが示唆された。

#### 参考文献

- [2.1.1.1] A. Gallais-During et al., “Overview of the VERDON-ISTP Program and main insights from the VERDON-2 air ingress test,” *Ann. Nucl. Energy*, 101, 109-117, 2017.
- [2.1.1.2] 平成 28 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）事業成果報告書，日本原子力研究開発機構，平成 29 年 3 月
- [2.1.1.3] N. E. Bixler, “VICTORIA2.0, A Mechanical Model for Radionuclide Behavior in a Nuclear Reactor Coolant System under Severe Accident Conditions,” NUREG/CR-6131, 1998.
- [2.1.1.4] J. McFarlane et al., “High-Temperature Chemistry of Molybdenum, Cesium, Iodine, and UO<sub>2+x</sub>,” AECL-11708, 1996.



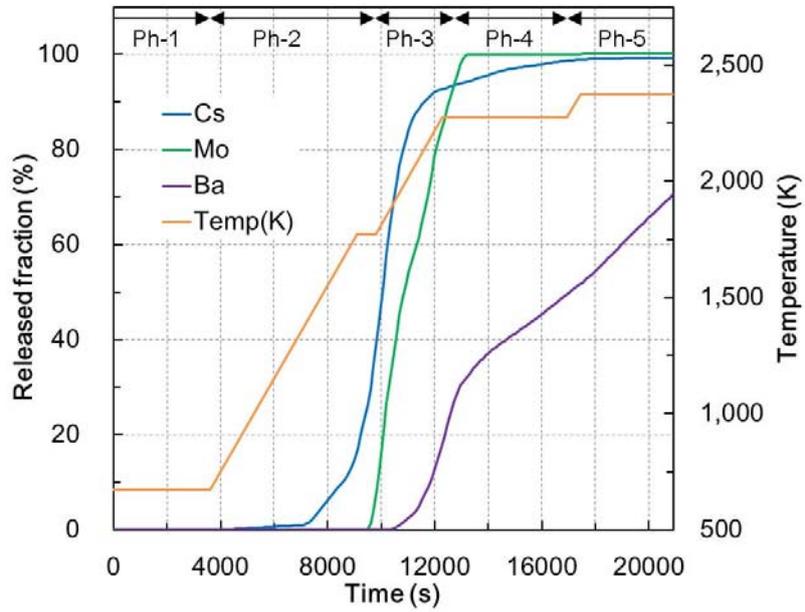


図 2.1.1.3 VERDON-2 実験解析での FP 放出傾向

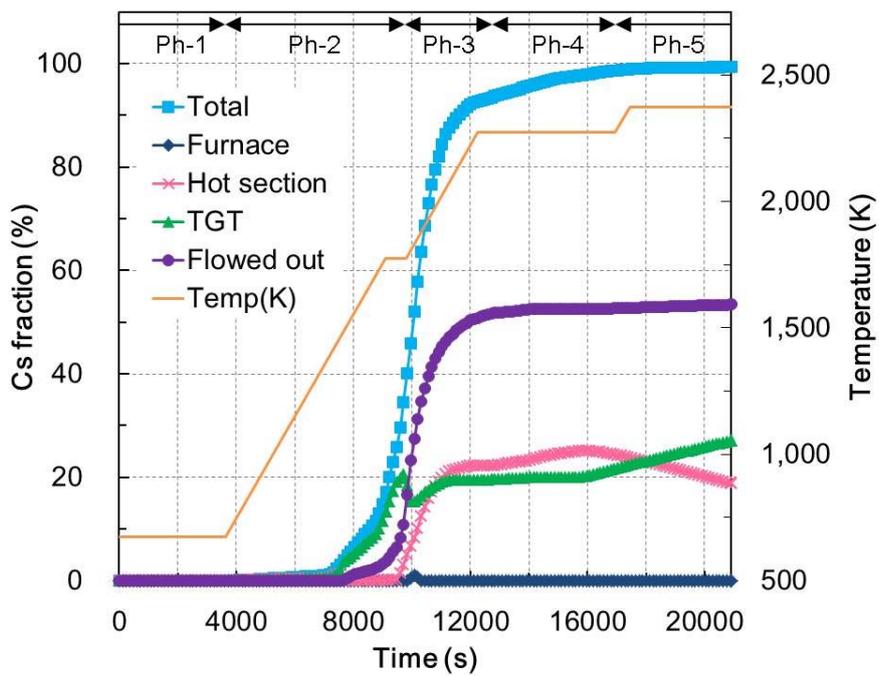


図 2.1.1.4 Cs の装置内蓄積分布の経時変化

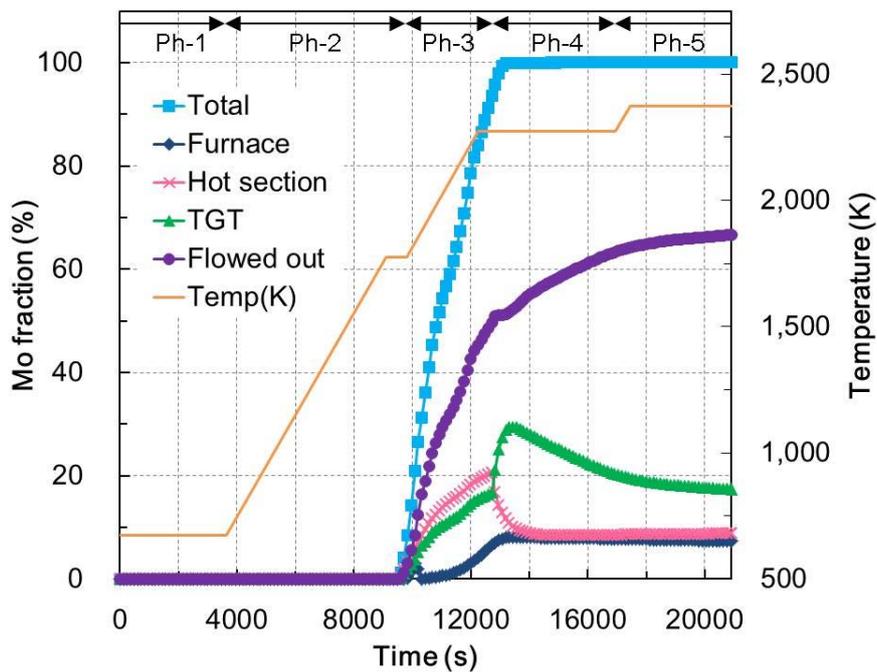


図 2.1.1.5 Mo の装置内蓄積分布の経時変化

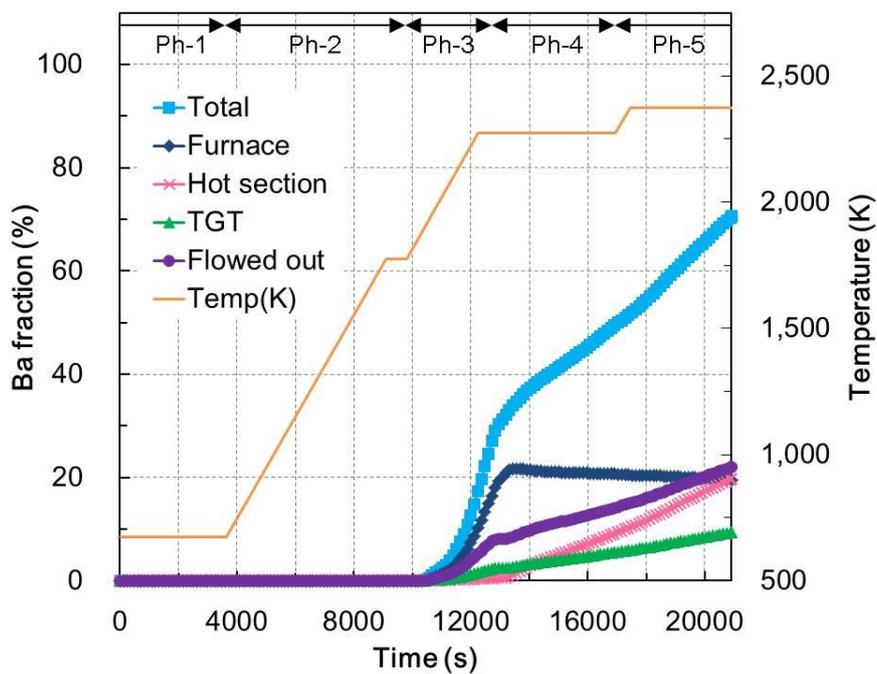


図 2.1.1.6 Ba の装置内蓄積分布の経時変化

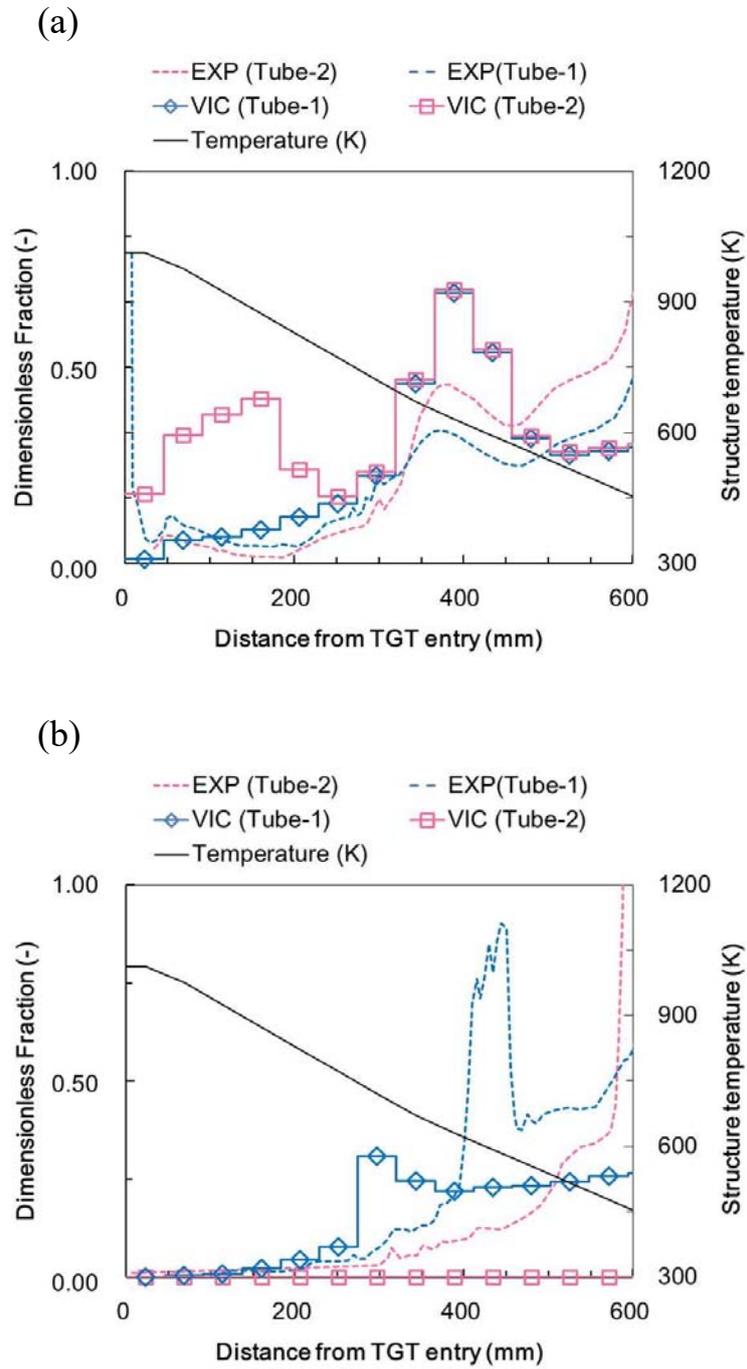


図 2.1.1.7 温度勾配管における(a) Cs 及び(b)I 元素の蓄積分布  
 反応に寄与する構造物の厚さ=5.0 nm、実線：解析値、破線：実験値[2.1.1]

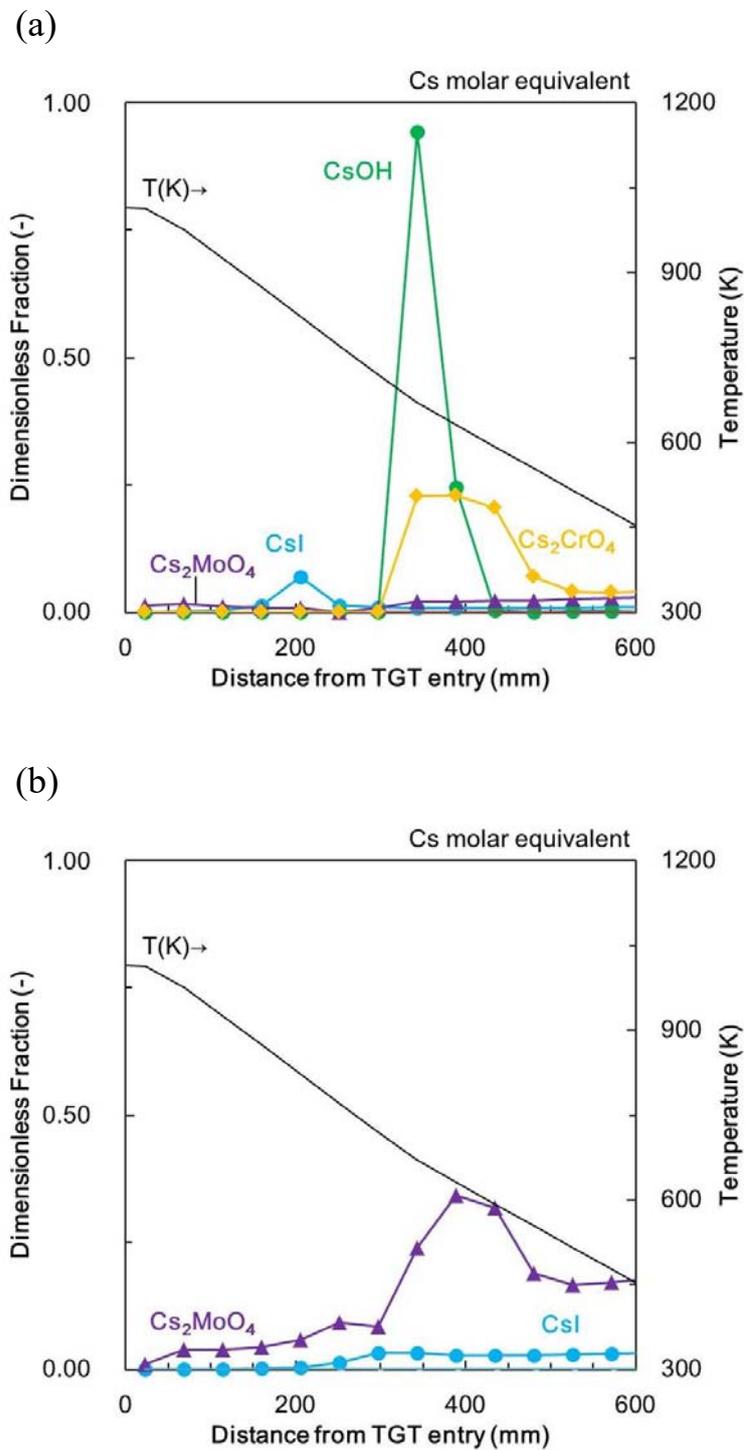


図 2.1.1.8 (a) Phase-2 終期及び(b)Phase-3 終期における温度勾配管 1 の蓄積化学種  
 反応に寄与する構造物の厚さ=5.0 nm

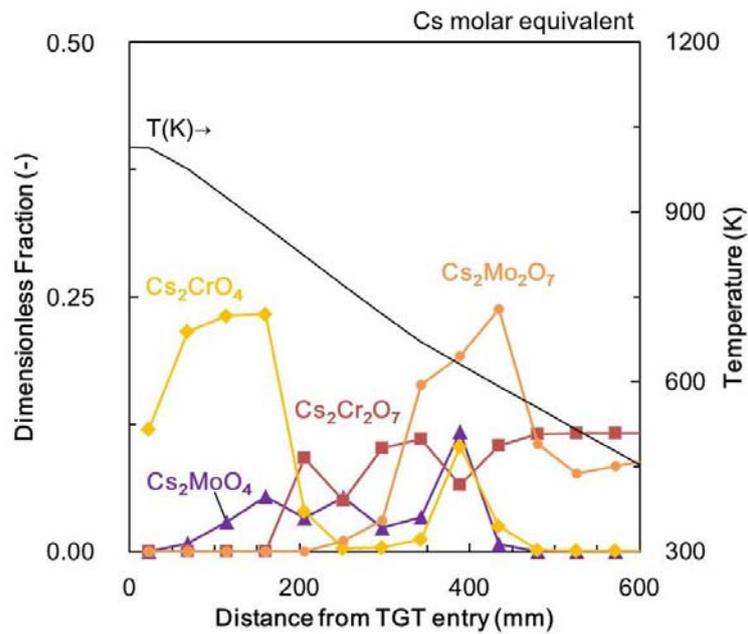


図 2.1.1.9 Phase-5'終期における温度勾配管 2 の蓄積化学種  
反応に寄与する構造物の厚さ=5.0 nm

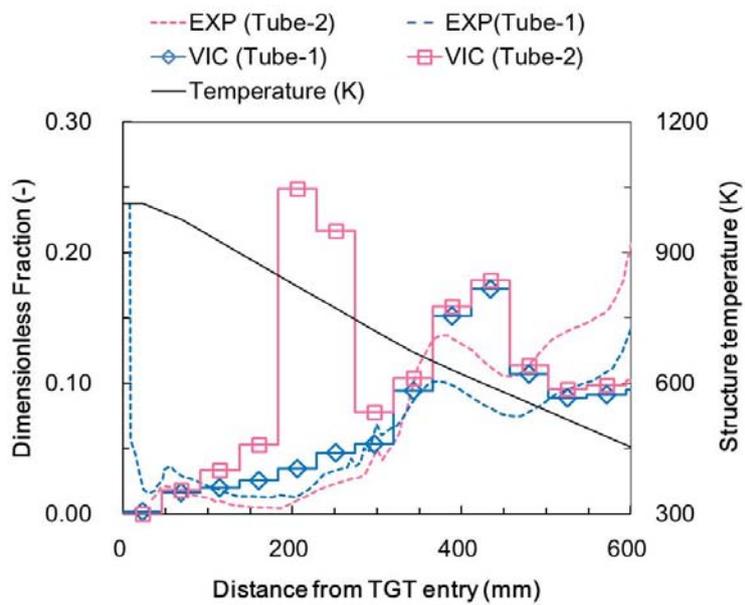


図 2.1.1.10 温度勾配管における Cs 蓄積分布  
反応に寄与する構造物の厚さ=1.0 nm、実線：解析値、破線：実験値[2.1.1]

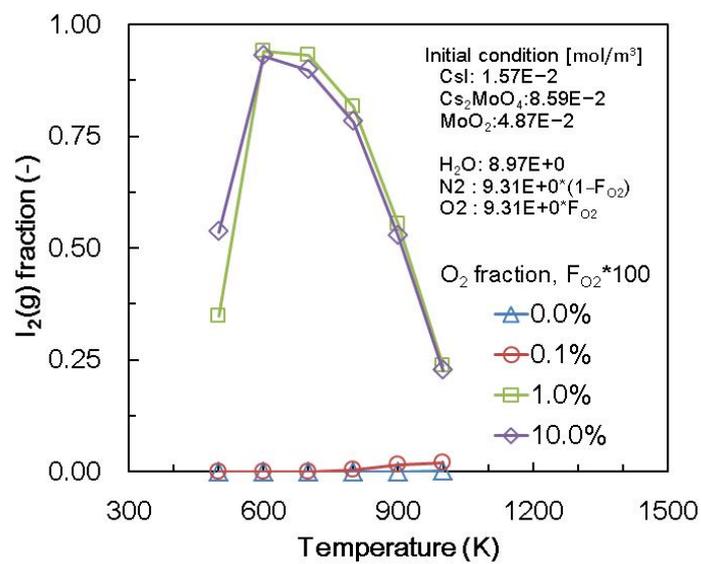


図 2.1.1.11 CsI-Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>-MoO<sub>2</sub>系での I<sub>2</sub>(g)割合に対する酸素の影響

## 2.1.2 ホウ素を含む水蒸気雰囲気及び空気雰囲気条件での FP 化学挙動に係る知見の整理

### 2.1.2.1 目的

照射済み燃料を使用した核分裂生成物 (FP) の移行挙動実験 VERDON-2 及び 5 について、熱力学平衡計算機能を有する VICTORIA2.0 解析コードによる分析結果を用いて、ホウ素 (B) を含む水蒸気雰囲気及び空気雰囲気条件での FP 化学挙動に係る知見を整理した。

### 2.1.2.2 VERDON 実験の知見

本事業で実施した熱力学平衡計算機能を有する VICTORIA2.0 コードによる VERDON-2 及び 5 の実験解析[2.1.2.1, 2.1.2.2, 2.1.1 項]により、主要な FP であるセシウム (Cs) 及びヨウ素 (I) の化学種を図 2.2.1 に整理した。

ホウ素を含まない水蒸気条件では、燃料からの FP 放出初期に水酸化セシウム (CsOH) 及びヨウ化セシウム (CsI) である。FP 放出中期には、モリブデン (Mo) 化合物との反応により CsOH がモリブデン酸セシウム (Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>) へと変化する。また空気条件では、沈着/凝縮物である CsI は、Mo 化合物の酸化に伴いヨウ素ガス (I<sub>2</sub>) として再移行する。

B を含む水蒸気条件では、燃料からの FP 放出初期に CsOH は B 化合物と反応し、ホウ酸セシウム (CsBO<sub>2</sub>) として移行する。FP 放出中期には、Mo 化合物との反応により CsBO<sub>2</sub> が Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> へと変化する。空気条件では、沈着/凝縮物への影響は、十分に検討が行えていないため、今後 VICTORIA2.0 コード等による分析が必要である。

### 参考文献

- [2.1.2.1] 平成 28 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) 事業成果報告書, 日本原子力研究開発機構, 平成 29 年 3 月
- [2.1.2.2] 平成 29 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) 事業成果報告書, 日本原子力研究開発機構, 平成 30 年 9 月

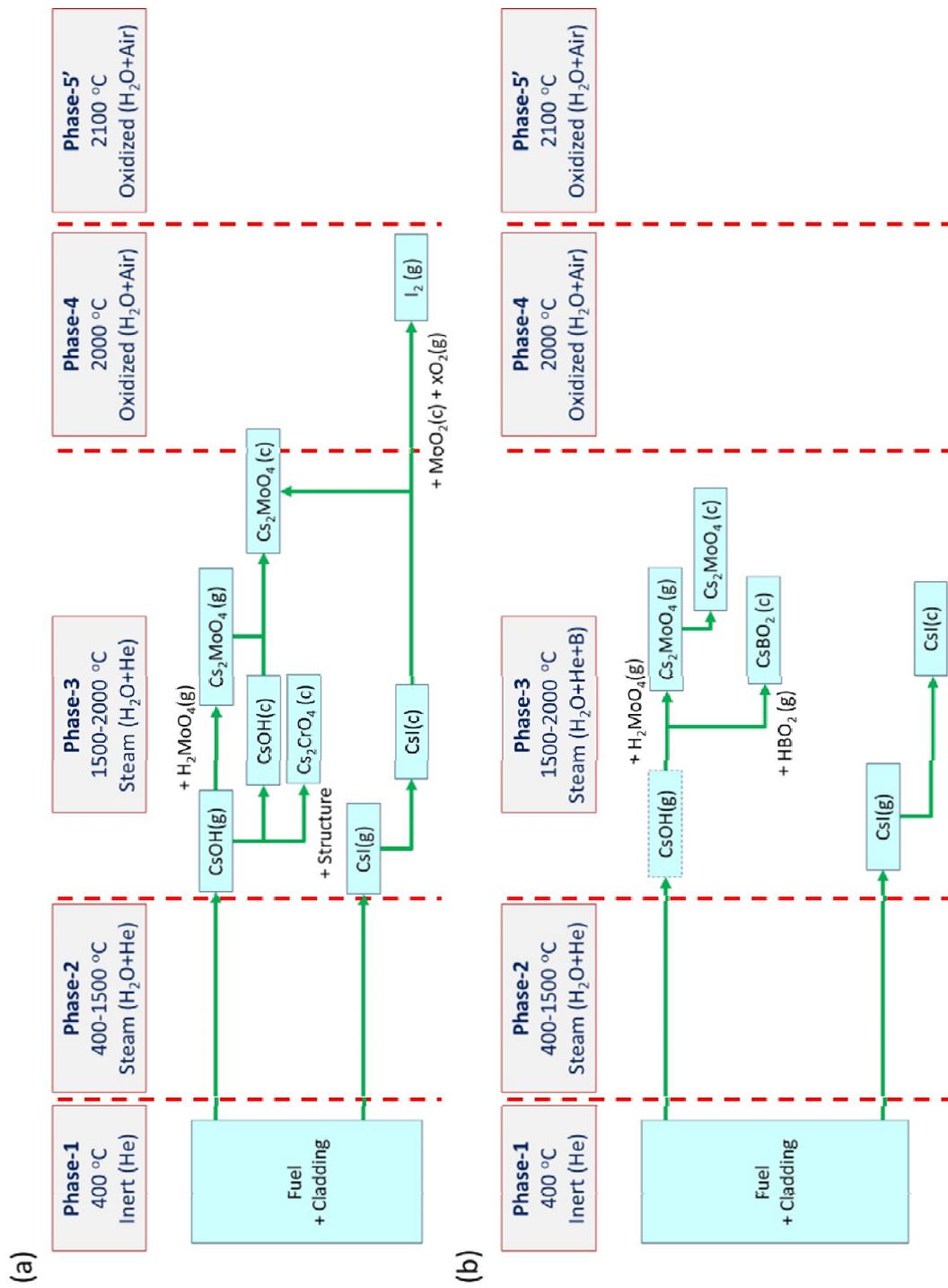


図 2.1.2.1 VICTORIA2.0 解析によって予測された Cs 及び I の化学形 (a) VERDON-2、(b) VERDON-5

## 2.2 FP 化学及び移行に係わる実験

### 2.2.1 不活性雰囲気におけるホット実験（AGF 実験）

#### 2.2.1.1 目的

シビアアクシデント解析コードに組み込まれる物理モデルの構築や改良に必要な基礎データを取得するために、照射済燃料とホウ素を含有する試料を用いて FP 移行時の系統内における高温化学反応を想定した実験を行い、生成された化合物の化学形や結晶構造等に関する基礎データを取得する。

本実験においては、照射済み燃料を高温まで加熱できること、BWR 制御材に含まれるホウ素の影響を考慮できること、VERDON-5 実験を補完する雰囲気組成を設定できることを条件として、照射済み燃料を用いたホット実験が可能な日本原子力研究開発機構 大洗研究所 照射燃料試験施設（AGF）のホットセル内に設置されている FP 放出移行試験装置 [2.2.1.1, 2.2.1.2] を用いた。平成 28～29 年度において、不活性雰囲気において照射済燃料から放出されたセシウム、ヨウ素等の FP 蒸気種と BWR 制御材炭化ホウ素の酸化により生成する酸化ホウ素 ( $B_2O_3$ ) 蒸気種との気相中反応が再現できる条件を設定して加熱実験を実施し、捕集した試料に対して化学分析を実施することで、化学形を評価するための組成に関するデータを取得した。本年度は、ホウ素の影響を評価できるように酸化ホウ素が無い以外は同条件で平成 29 年度に実施した加熱実験で捕集した試料に対して化学分析を実施した。また、酸化ホウ素試料のみを装荷し、同条件にて加熱実験を実施した。これらにより、化学形を評価するための組成に関するデータを取得するとともに、酸化ホウ素の有無による結果の違いを検討することにより、ホウ素の影響を評価した。

#### 2.2.1.2 実験方法

##### (1) 加熱実験装置

FP 放出移行試験装置の模式図及び外観をそれぞれ図 2.2.1.1 及び図 2.2.1.2 に示す。FP 放出移行試験装置は、加熱炉、温度勾配管、焼結金属フィルタ、ガス供給システム、FP トラップシステム等から構成される。また、FP 等の放出速度等を計測するため、 $\gamma$  線スペクトロメーター、FP ガス等の捕集システム、ガスクロマトグラフィが設置されている。加熱炉は高周波誘導加熱を用いており、加熱雰囲気は不活性雰囲気に限定されるが、約 3000 K までの高温加熱が可能である。加熱炉上部に接続された温度勾配管は、1023 K（上流）～423 K（下流）の間で線形的に温度分布が付けられており、充填されたステンレス鋼（SS）304 製のサンプリング管（内径 4.2 mm × 30 mm : 14 本）により FP の沈着物を捕集できる。この温度勾配管の他、温度勾配管の出口に配置されている公称ろ過精度が異なる SS 製焼結金属フィルタ（入口側から公称ろ過精度：43  $\mu$ m、30  $\mu$ m、10  $\mu$ m、5  $\mu$ m、1  $\mu$ m）によりエアロゾル状の試料を捕集する。これらの FP 沈着物を捕集可能な温度勾配管及び焼結金属フィルタは二系統（A 系統及び B 系統）を有しており、放出温度等、異なる条件で放出した FP を捕集することが可能である。

$\gamma$  線スペクトロメーター（セイコーEG & G 社製 GEM15P4-70PL）は A 系統の温度勾配管の出口に設置されている焼結金属フィルタを対象としており、 $\gamma$  線核種の焼結金属フィルタ

への沈着速度をオンラインで計測することが可能である。ガス捕集システムは、加熱により放出された FP ガスを最下流のグローブボックスに設置されているサンプリングボトルに捕集し、捕集したガスのガスクロマトグラフ分析 (ヤナコ社製 G2800T) を行うことにより、ガスの定量分析を行うことが可能である。

本 FP 放出移行試験装置は VERDON 装置と試験体系や計測系についてはほぼ同等であることから、不活性雰囲気での実験により VERDON-5 実験を補完するデータの取得が可能と考えられる。

## (2) 加熱実験条件

表 2.2.1.1 に平成 28 年度～平成 30 年度の加熱条件を示す。加熱実験には新型転換炉原型炉「ふげん」で最高燃焼度を達成した集合体である PPFE09 (E09) にて照射された MOX 燃料 (製造時プルトニウム (Pu) 富化度 : 3.01%) 及び酸化ホウ素粉末 (高純度化学研究所製、99.995%) を供した。「ふげん」は減速材に重水、冷却材に軽水をそれぞれ利用しており、燃料集合体が圧力管内に装荷された原子炉である。E09 は「ふげん」炉心の第 16 ～ 25 サイクルまで炉心中心位置で照射され、本加熱実験に供した中間層燃料棒の照射履歴中における最大線出力は 34.1 kW/m であり、最高約 45 GWd/t の燃焼度を達成している。平成 28 年度及び平成 29 年度の加熱実験に用いた試料は外層のほぼ同じ個所に装荷された MOX 燃料であり、燃焼度は約 41.6 GWd/t である。

外層燃料棒から試料重量が約 5 g になるように、ダイヤモンドホイールを用いて乾式にて輪切り切断を行い、燃料ペレットを取り出した。加熱時における燃料ペレットからの FP 放出量を促進させることを目的に、エリスモーターを用いて燃料ペレットを小片に粉砕した。

粉砕した燃料を装置に装荷するが、平成 28 年度の加熱実験においては、酸化ホウ素 (融点 : 約 750 K) が蒸発前に燃料中の FP と反応することを防ぐために、図 2.2.1.3 の模式図に示すように小型のタングステン製のつぼを準備し、約 5 g の「ふげん」燃料と約 30 mg の酸化ホウ素試料を別々の加熱炉に装荷した。一方、平成 29 年度の加熱実験においては、平成 28 年度の加熱実験結果との比較によりホウ素の影響有無を評価するため、酸化ホウ素試料を装荷せずに空の小型タングステン製のつぼと約 5 g の「ふげん」燃料を装荷した。また、平成 30 年度は、ホウ素の影響を評価するため、2.2.1.2 (1) で示した加熱実験装置と同体系のクールド加熱実験装置 (2.2.2.2 (1) 参照) を用いて約 30 mg の酸化ホウ素試料のみを装荷した。

図 2.2.1.4 及び図 2.2.1.5 にそれぞれ加熱温度履歴及び加熱体系を示す。加熱炉の温度 2173 K (昇温速度 3 K/s、保持時間 20 分)、温度勾配管の温度を 1023 K (上流) ～ 423 K (下流) でアルゴン (Ar) ガスフロー (1 L/min) 雰囲気下で試料を加熱し、温度勾配管に充填されている SS 製のサンプリング管、焼結金属フィルタ等にて放出した FP 及びホウ素化合物を捕集した。平成 28 年度においては、一回の加熱実験により燃料から放出した FP とホウ素を異なる割合で作用させたデータを取得するために、最高温度到達から 5 分後 (加熱時間は A 系統 : 約 15 分、B 系統 : 約 15 分) において捕集流路の切り替え (A 系統から B 系統) を行った。平成 29 年度及び平成 30 年度の加熱実験においても同様に捕集流路の切り替えを行った。

### (3) 捕集試料の化学分析方法

平成 29 年度の加熱実験において SS 製サンプリング管及び焼結金属フィルタに沈着した FP 化合物を定量するため、SS 製サンプリング管及び焼結金属フィルタを水溶液に浸漬し、FP 化合物を溶出させた後、誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) により溶出した FP 化合物を定量した。

本試験において特に着目すべき FP はセシウム及びヨウ素であるため、ヨウ素の損失を抑制する浸漬条件 (コールド実験と同条件) にて FP 化合物の溶出を行った。SS 製サンプリング管においては、テフロン製メスフラスコ内の 0.04 mol/L 水酸化ナトリウム溶液 20 mL 中で約 16 時間浸漬を行った。その後、イオン交換水で 50 mL に定容した。また、焼結金属フィルタの場合は、テフロン製ビーカー内の 0.04 mol/L 水酸化ナトリウム溶液 20 mL 中で約 16 時間浸漬を行った。その後、イオン交換水で 50 mL に定容した。

ICP-MS においては、四重極型誘導結合プラズマ質量分析装置 (アジレント・テクノロジー株式会社製 7500cx) を用いた。測定試料として、ヨウ素の検出を目的とした 0.001 mol/L 水酸化ナトリウム溶液に調製した試料と、ヨウ素以外の元素の検出を目的とした 1 mol/L 硝酸溶液に調製した試料の 2 種類の試料を準備した。また、目的とする溶液組成に調製するよう、測定試料の濃度に応じて倍率を 20, 100 又は 1000 倍で希釈した。ヨウ素の測定においては、ヨウ化セシウム (高純度化学、99%) を 0.001 mol/L の水酸化ナトリウムを用いて溶解及び希釈し、ヨウ化セシウムを用いて濃度を 10 及び 20 µg/L に調製したものを標準試料とした。ヨウ素以外の元素の測定においては、汎用混合標準溶液 (SPEX, XSTC-1, XSTC-7 及び XSTC-331、いずれも各元素 10 mg/L)、ICP-MS 用金属標準液 (AccuStandard、ジルコニウム (Zr)、モリブデン及びタングステン (W)、いずれも 100 mg/L) 又はホウ素 ICP 標準溶液 (メルク、1000 mg/L) を 1 mol/L 硝酸溶液を用いて希釈し、各元素の濃度を 1, 2, 4, 5, 10, 25 又は 50 µg/L に調製したものを標準試料とした。

#### 2.2.1.3 捕集試料の化学分析結果 (平成 29 年度加熱実験試料の分析)

ICP-MS 分析により取得した A 系統、B 系統それぞれのサンプリング管及び焼結金属フィルタの沈着物中のセシウム及びヨウ素の元素量を図 2.2.1.6~図 2.2.1.9 に示す。尚、これらの元素に関しては、ICP-MS 分析で得られた同位体量を足し合わせた結果を示している。

A 系統のサンプリング管への沈着物について、セシウムの元素量の分布は比較的ブロードで、そのピークは約 720 K であった。ヨウ素の元素量のピークは同じく約 720 K であった。焼結金属フィルタについては、平成 28 年度の加熱実験では、公称ろ過精度が低くなるとともにセシウム及びヨウ素の元素量は低い値となる傾向を示したが、平成 29 年度の加熱実験ではそのような傾向とはならなかった。

B 系統のサンプリング管への沈着物について、セシウムの元素量の分布は比較的ブロードで、そのピークは約 720 K であった。ヨウ素の元素量のピークも約 720 K であり、ピーク温度は A 系統と同じであった。焼結金属フィルタについては、A 系統と同様に焼結金属フィルタの公称ろ過精度に応じた傾向は見られなかった。

また、セシウム及びヨウ素以外で検出された核種量を図 2.2.1.10~図 2.2.1.13 に示す。FP

核種としてテルル (Te) 及びルビジウム (Rb) が有意量検出され、その他装置構成部材であるタングステンも検出された。A 系統のサンプリング管について、テルルの核種量のピークは約 850 K と約 720 K、ルビジウムの核種量のピークは約 720 K であった。焼結金属フィルタについては、これらの核種量はセシウムやヨウ素と同様の傾向を示した。B 系統のサンプリング管について、テルルの核種量のピークは約 720 K と約 470 K、ルビジウムの核種量のピークは約 670 K であった。焼結金属フィルタについては、これらの核種量はセシウムやヨウ素と同様の傾向を示した。

#### 2.2.1.4 酸化ホウ素試料のみの加熱実験結果

図 2.2.1.15 に酸化ホウ素試料のみを装荷した実験におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化結果を示す。重量変化は、A 系統よりも B 系統の方が小さく、サンプリング管の重量変化に対して焼結金属フィルタ重量変化は大きく、その違いは A 系統の方が大きかった。

#### 2.2.1.5 ホット実験のまとめ

FP 放出移行試験装置を用いて、照射済燃料から放出されたセシウム、ヨウ素等の FP 蒸気種と BWR 制御材炭化ホウ素の酸化により生成する酸化ホウ素蒸気種との気相反応を再現した加熱実験を平成 28 年度に実施した。この参照用として、同条件にて平成 29 年度に実施した照射済燃料のみの加熱実験で捕集した試料の化学分析を行い、化学形を評価するためのデータを取得した。

本実験と同様に水蒸気を含まない雰囲気にて過去仏国で実施された VERCORS HT1 及び HT3 実験と本実験における温度勾配管へのセシウム等の沈着分布をまとめたものを表 2.2.1.2 に示す[2.2.1.3]。)セシウムは約 900 K 及び約 700 K で沈着し、それぞれテルル及びヨウ素と同じ温度領域に沈着している。各実験で装置体系、加熱温度条件、流量条件等の違いはあるものの、本実験の A 系統においては、ホウ素の有無に依らずセシウムはブロードな分布を示しており、ヨウ素及びテルルと共存した結果が得られていることから、既往の実験結果と合わせて、本実験においてセシウムテルライド ( $\text{Cs}_2\text{Te}$ ) やヨウ化セシウム ( $\text{CsI}$ ) 等の化合物が形成した可能性が示唆されている。

一方、ホウ素の有無の影響に関しては、平成 28 年度の結果では、A 系統の約 950 K においてホウ素の沈着が見られ、また B 系統の約 850 K 及び 450 K においてホウ素の沈着が見られた。これらのホウ素の沈着ピークはセシウムの沈着ピークと一致しており、特に平成 29 年度の結果において A 系統の約 950 K、B 系統の 450 K でセシウムの沈着ピークが見られないことから、これらの沈着ピークはセシウムとホウ素の反応生成物であるセシウムボレイト ( $\text{Cs-B-O}$ ) 系化合物が生成した可能性を示している。

図 2.2.1.15 に本実験における温度勾配管のサンプリング管と焼結金属フィルタに沈着したセシウム及びヨウ素量を比較した結果を示す。図 2.2.1.15 には捕集したセシウムに対するヨウ素の比も合わせて示す。絶対量に違いはあるものの、A 系統よりも B 系統の方が量は少なく、セシウムはサンプリング管への沈着量に対して焼結金属フィルタへの沈着量は多く、ヨウ素では沈着量の違いは小さかった。また、ホウ素の沈着分布については図 2.2.1.14

に示すとおり酸化ホウ素のみの実験結果と大きな違いは見られなかった。ヨウ素に対するセシウムのは、ホウ素が共存する平成 28 年度の方が高い値となった。これは、ホウ素が共存することにより、揮発性のヨウ素化合物が生成し、焼結金属フィルタよりも下流に移行した可能性を示している。

以上の結果より、不活性雰囲気においても、セシウムやヨウ素とホウ素が相互作用を生じ、揮発性のヨウ素化合物の生成が促進された可能性が示された。

#### 参考文献

- [2.2.1.1] I. Sato et al., “Fission Products Release from Irradiated FBR MOX Fuel during Transient Conditions,” J. Nucl. Sci. Technol., 40 (2), 104-113, 2003.
- [2.2.1.2] K. Tanaka et al., “Effects of interaction between molten zircaloy and irradiated MOX fuel on the fission product release behavior,” J. Nucl. Sci. Technol., 51 (7-8), 876-885, 2014.
- [2.2.1.3] Y. Pontillon et al., “Behaviour of fission products under severe PWR accident conditions The VERCORS experimental programme—Part 2: Release and transport of fission gases and volatile fission products”, Nucl. Eng. Design, 240, 1853-1866, 2010.
- [2.2.1.4] 田中康介, 他, 化学形に着目した破損燃料からの核分裂生成物及びアクチニドの放出挙動評価, JAEA-Research 2013-022, 2013.

表 2.2.1.1 平成 28 年度～平成 30 年度の加熱実験条件

		加熱条件		
		平成 28 年度	平成 29 年度	平成 30 年度
照射 燃料	照射炉	新型転換炉 「ふげん」	新型転換炉 「ふげん」	—
	Pu 富化度 (製造時：%)	3.01 (MOX 燃料)	3.01 (MOX 燃料)	—
	燃焼度 (GWd/t)	41.6	41.6	—
	装荷重量 (g)	5	5	—
ホウ素 化合物	化学形	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	—	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
	装荷重量 (mg)	30	—	30
試料 加熱	試料装荷位置： 温度勾配管から の距離 (mm)	251	251	251
	加熱温度 (K)	2173	2173	2173
	昇温速度 (K/s)	3	3	3
	保持時間 (min)	20	20	20
	ガスフロー 雰囲気	Ar	Ar	Ar
	ガスフロー流量 (L/min)	1	1	1
温度勾 配管加 熱	サンプリング管 寸法	内径 4.2×30 mm : 14 本	内径 4.2×30 mm : 14 本	内径 4.2×30 mm : 14 本
	最高温度 (K)	1023	1023	1023
	最低温度 (K)	423	423	423
	温度分布	線形	線形	線形

表 2.2.1.2 過去実施された加熱実験における沈着分布

試験名	条件	沈着温度ピーク [K]				参考文献
		Cs	I	Te	B	
VERCORS HT1	UO <sub>2</sub>	900		900	—	
	水素	720	720			
VERCORS HT3	UO <sub>2</sub> 水素	950		950		[2.2.1.3]
		900			—	
		780				
		660	660			
AGF A-route	MOX 不活性 ホウ素有			850	950	平成 28年度
		720	720	<u>560</u>		
			720	850		
670		670	470	450		
AGF B-route		<u>450</u>				
				850		
AGF A-route	MOX 不活性	720	720	720		平成 29年度
					720	
670		670				
AGF B-route				470		

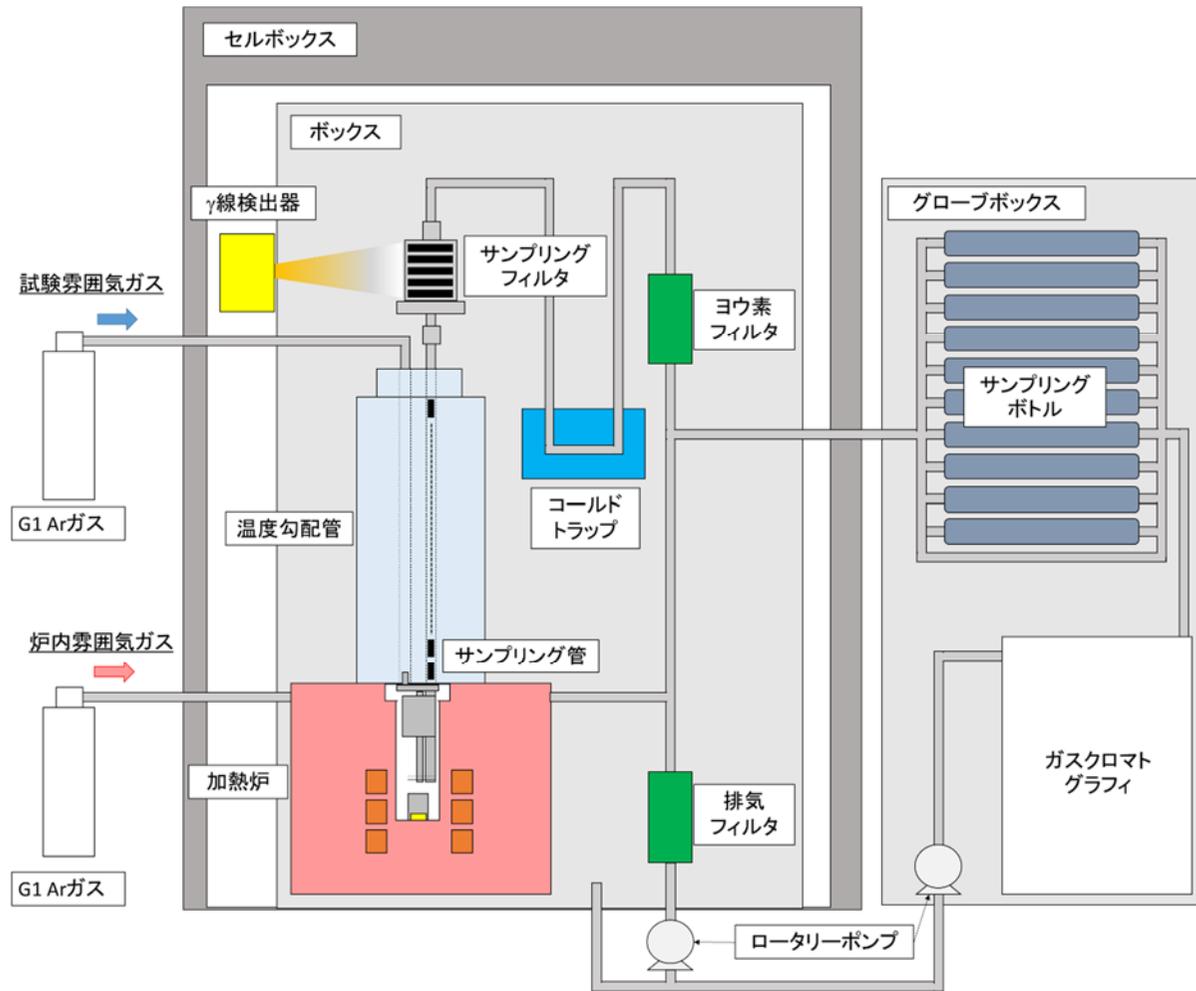


図 2.2.1.1 FP 放出移行試験装置模式図



図 2.2.1.2 FP 放出移行試験装置外観写真

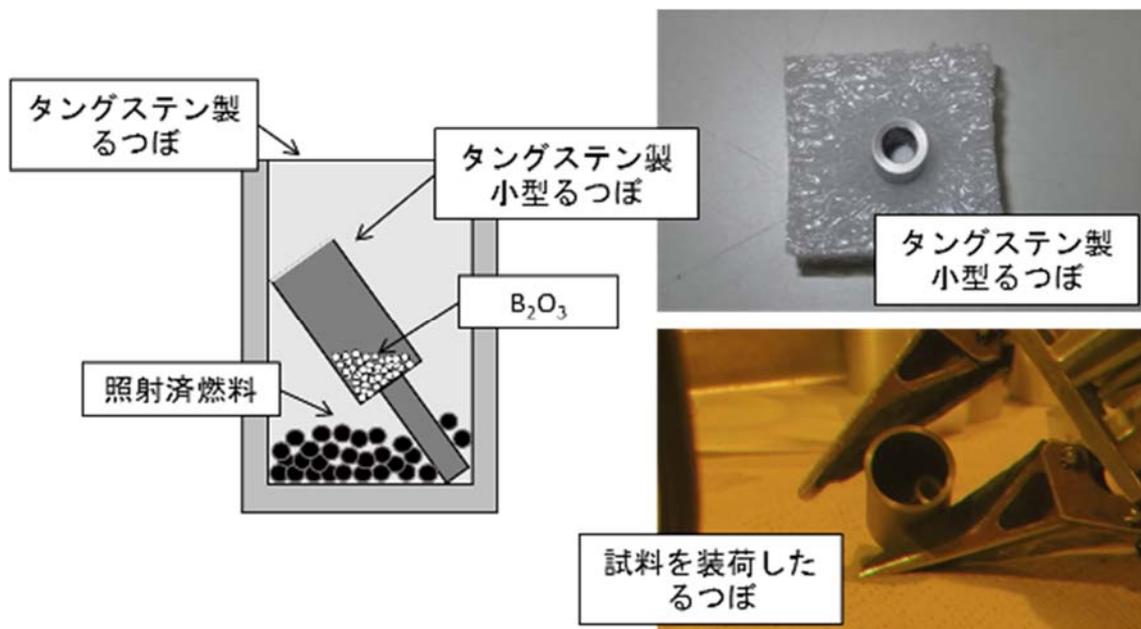


図 2.2.1.3 平成 28 年度のホット実験試料模式図

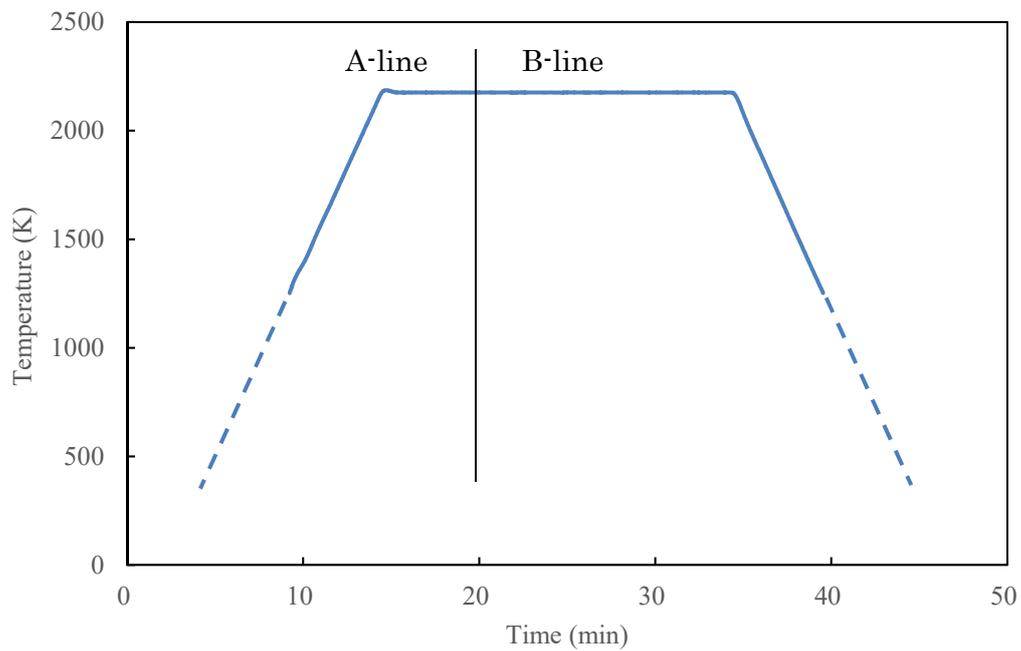


図 2.2.1.4 ホット実験加熱温度履歴

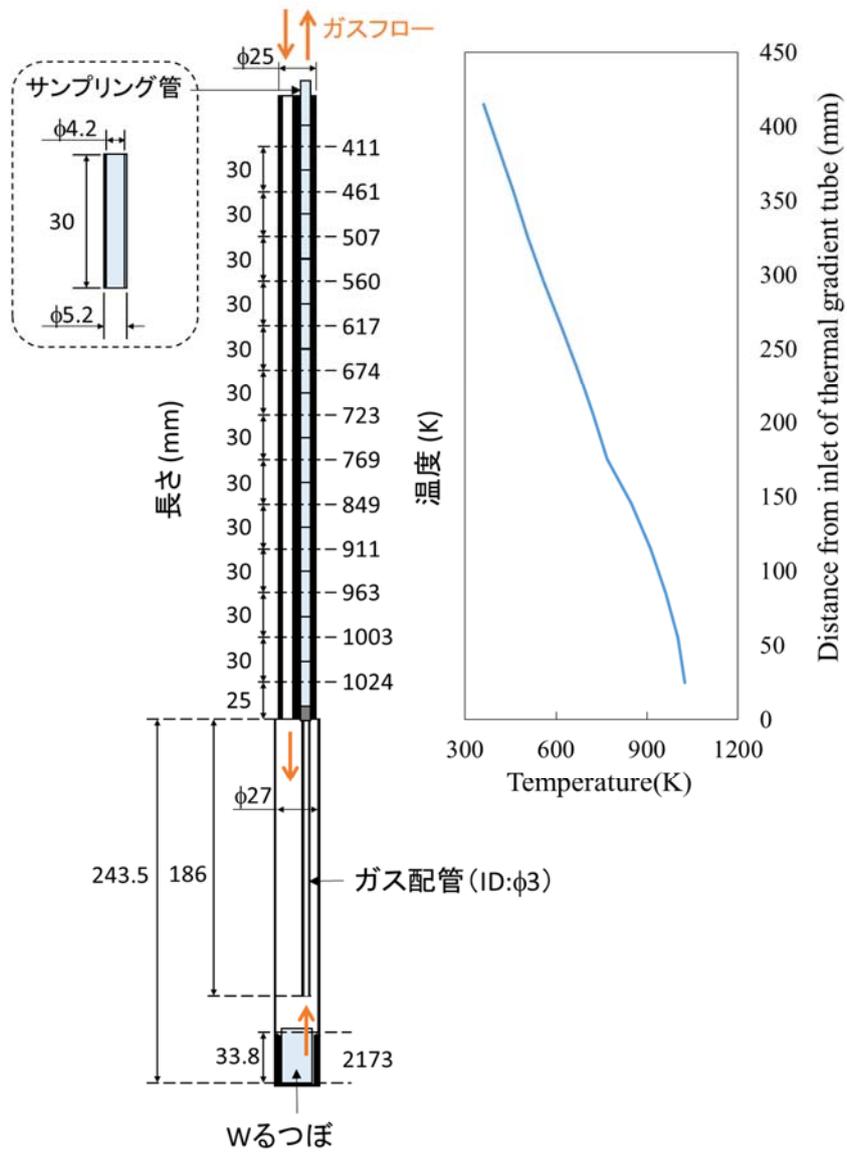


図 2.2.1.5 ホット実験加熱体系

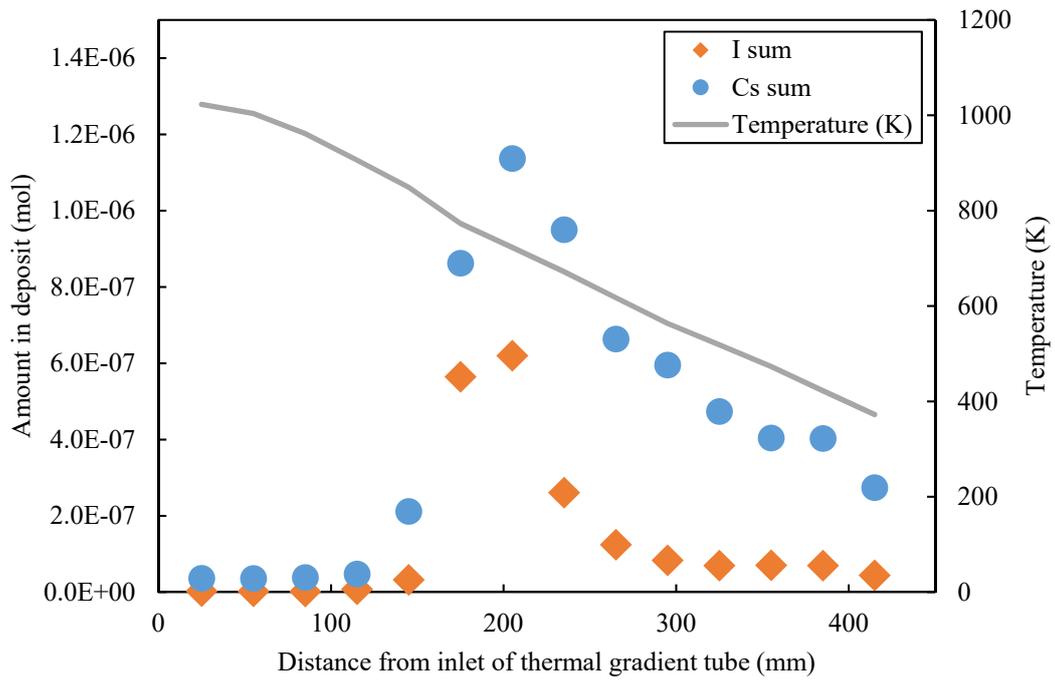


図 2.2.1.6 A 系統のサンプリング管沈着物中のセシウム及びヨウ素の元素量

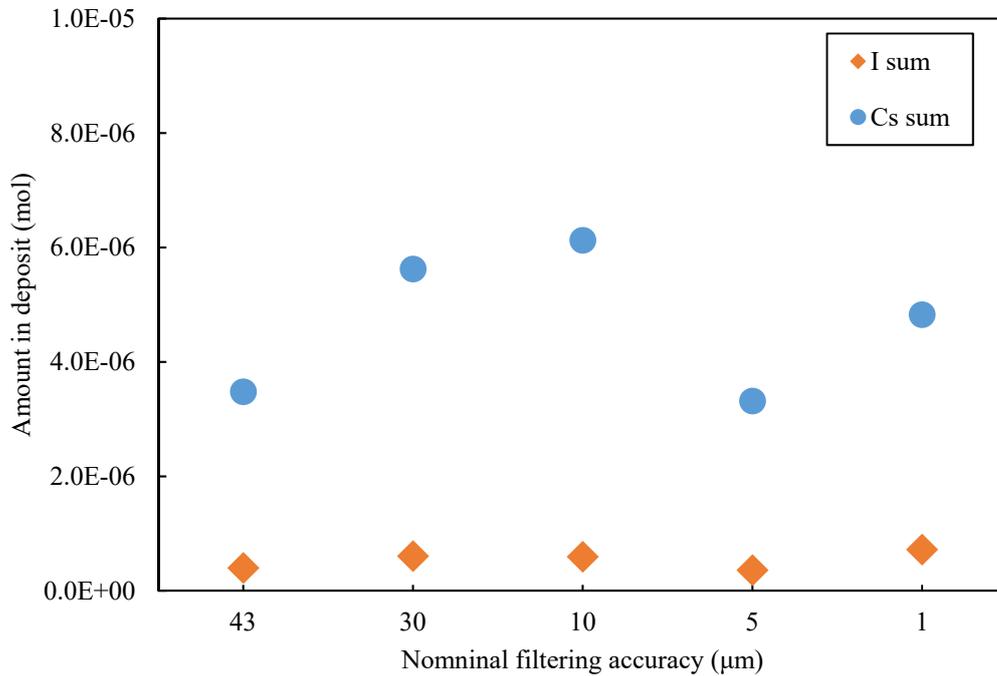


図 2.2.1.7 A 系統の焼結金属フィルタ沈着物中のセシウム及びヨウ素の元素量

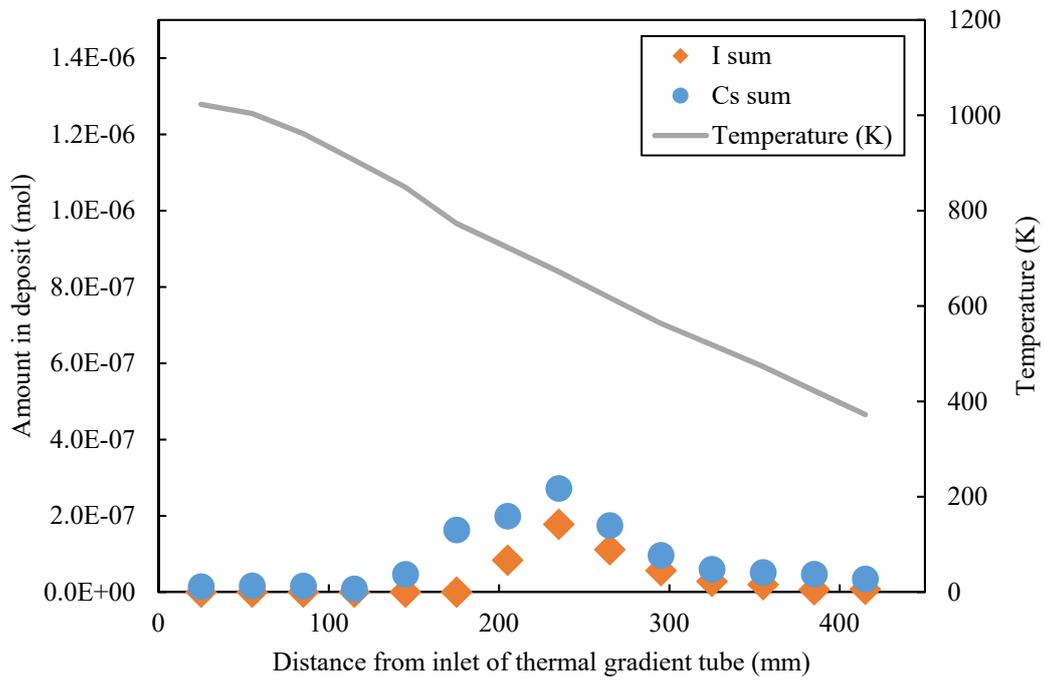


図 2.2.1.8 B 系統のサンプリング管沈着物中のセシウム及びヨウ素の元素量

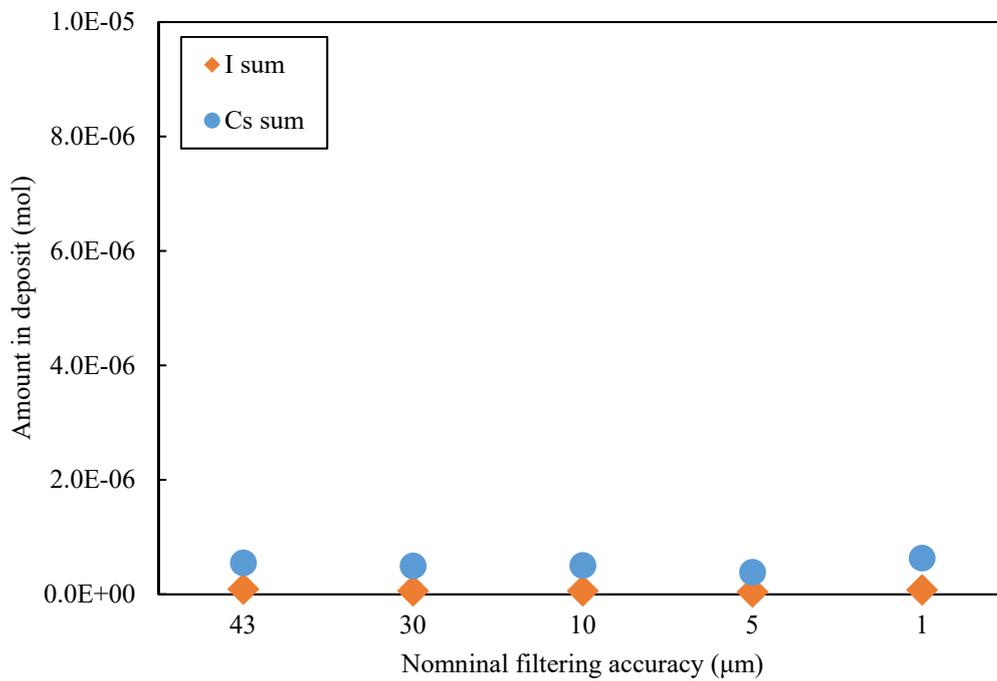


図 2.2.1.9 B 系統の焼結金属フィルタ沈着物中のセシウム及びヨウ素の元素量

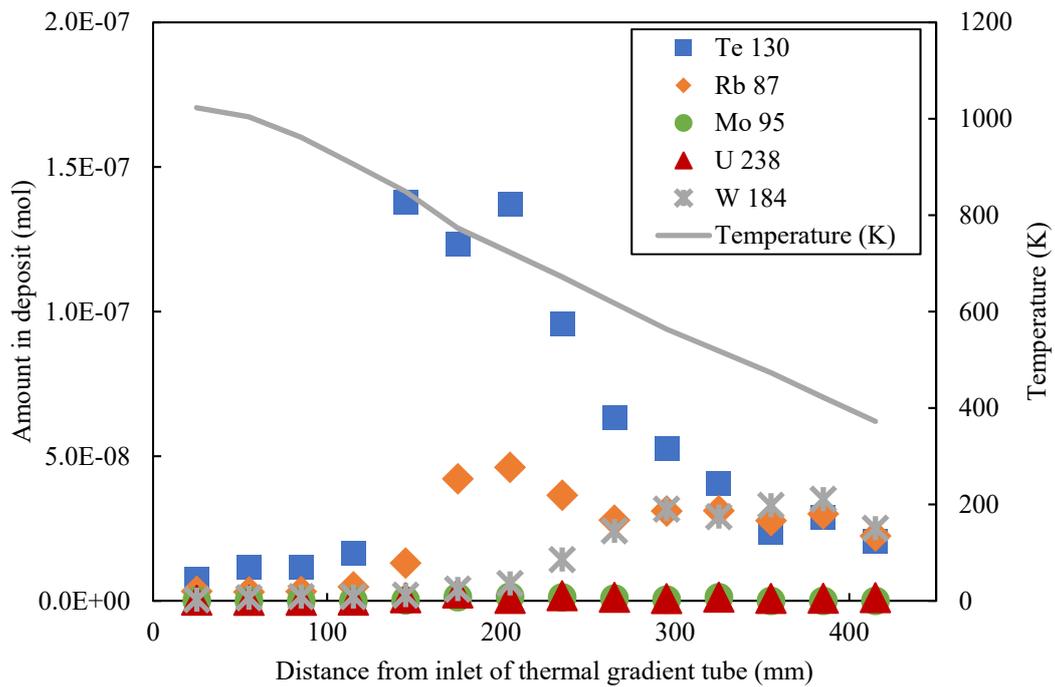


図 2.2.1.10 A 系統のサンプリング管沈着物中のその他 FP 等の元素量

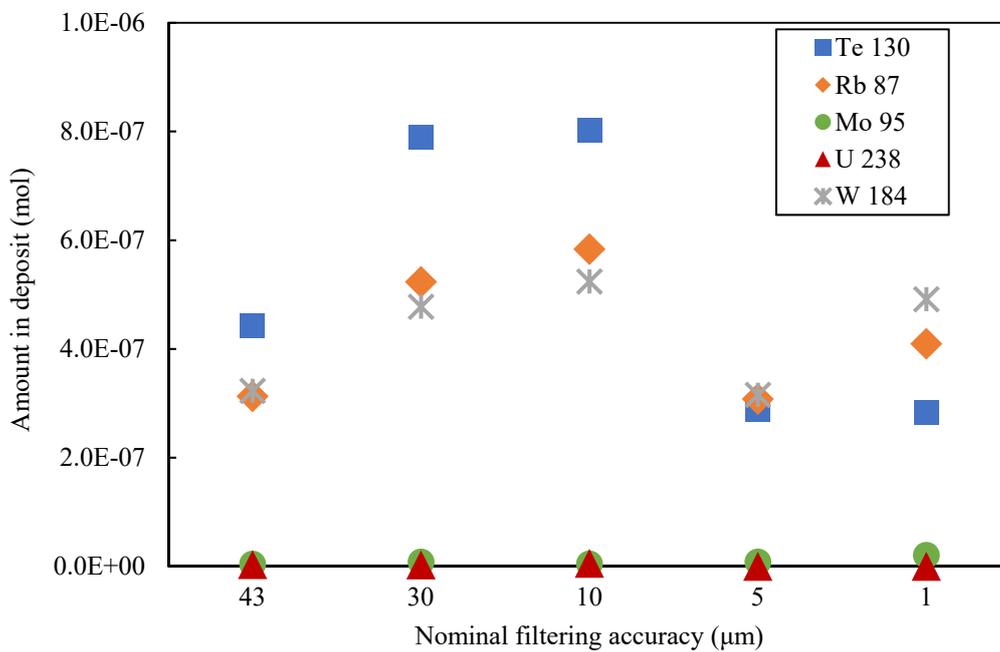


図 2.2.1.11 A 系統の焼結金属フィルタ沈着物中のその他の FP 等の元素量

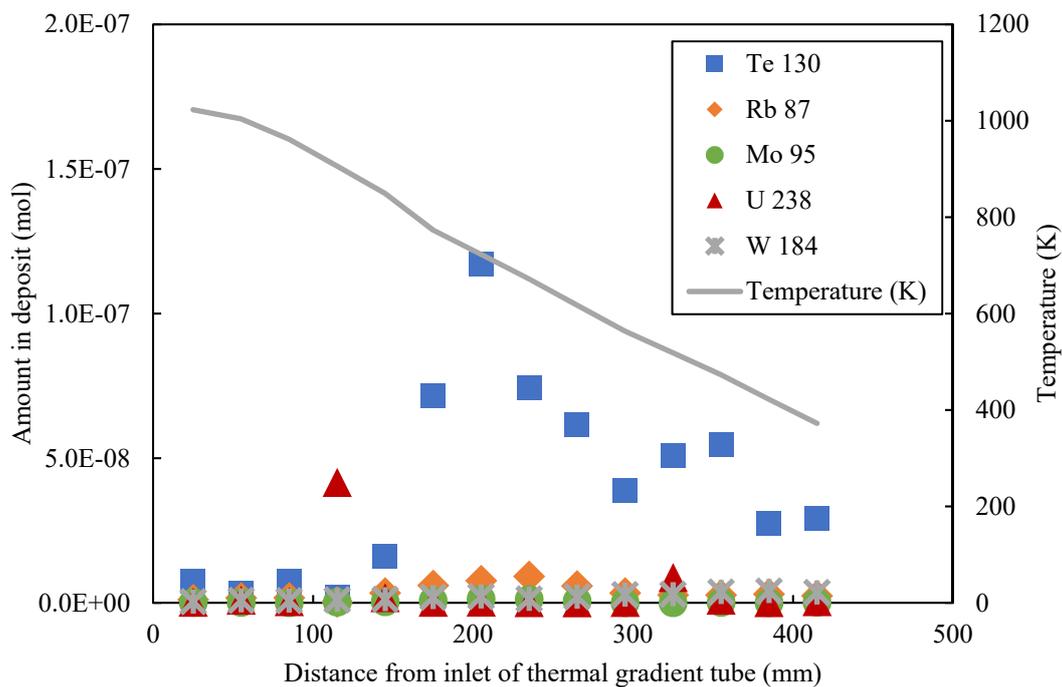


図 2.2.1.12 B 系統のサンプリング管沈着物中のその他の FP 等の元素量

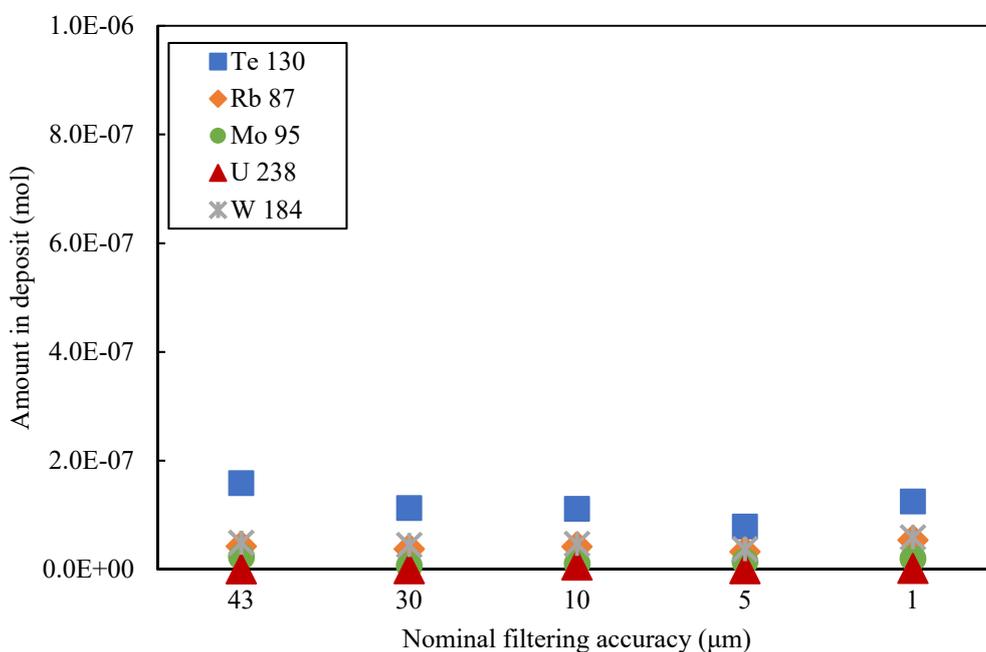


図 2.2.1.13 B 系統の焼結金属フィルタ沈着物中のその他の FP 等の元素量

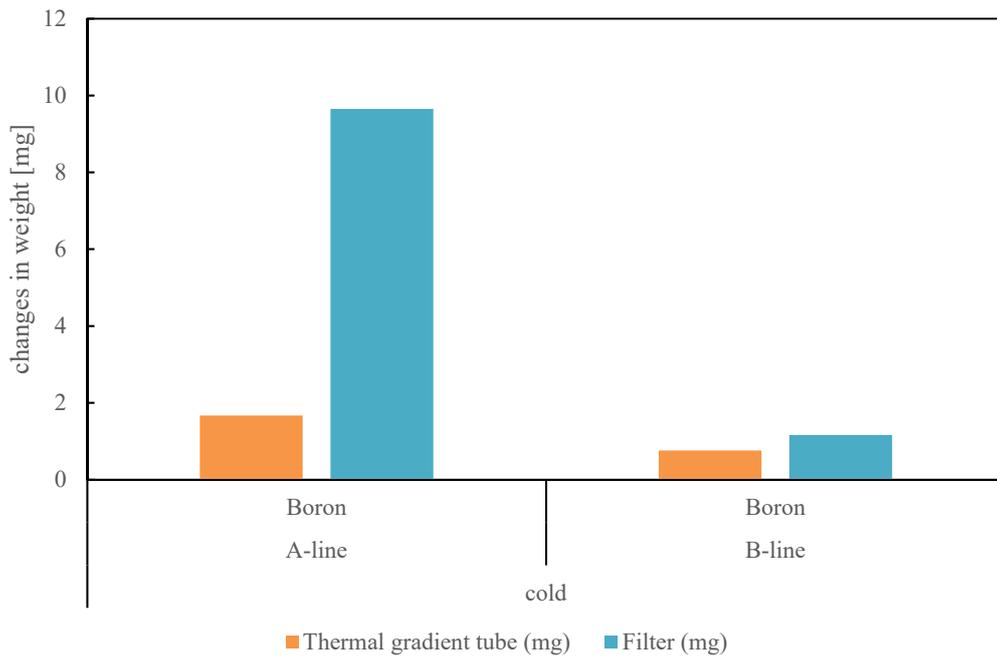


図 2.2.1.14 酸化ホウ素試料のみを装荷した実験におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化

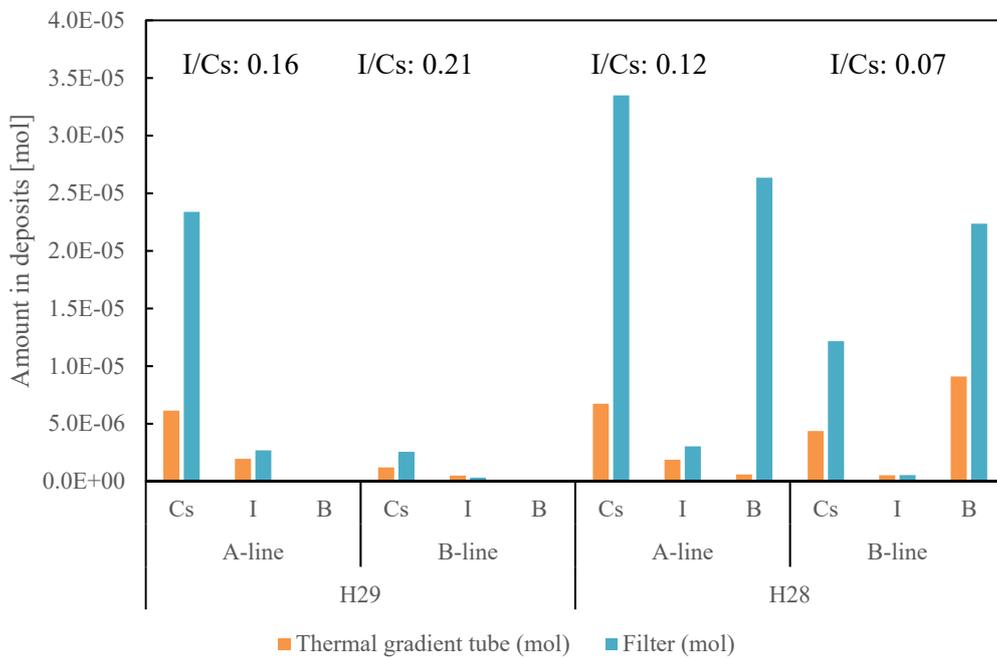


図 2.2.1.15 サンプリング管及び焼結金属フィルタへの沈着量

## 2.2.2 水素及び水蒸気雰囲気におけるコールド実験

### 2.2.2.1 目的

シビアアクシデント解析コードに組み込まれる物理モデルの構築や改良に必要な基礎データを取得するために、非放射性のセシウム、ヨウ素、ホウ素等を含む試料を用いて FP の炉内移行時における高温化学反応を想定した実験を行い、生成された化合物の化学形や結晶構造等に関する基礎データを取得する。放出時の主たるヨウ素の化学形として考えられているヨウ化セシウム[2.2.2.1]と BWR 制御材炭化ホウ素 ( $B_4C$ ) の酸化により生成する酸化ホウ素 ( $B_2O_3$ ) を供試材として、以下に示す雰囲気条件や想定する高温化学反応に着目した実験を実施した。

- (a) 水素雰囲気の気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応
- (b) 水蒸気雰囲気の気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応
- (c) 水素雰囲気の固相：ヨウ化セシウム沈着物-気相：酸化ホウ素蒸気種間における高温化学反応

実験は、シビアアクシデント時の原子炉冷却系までの温度範囲を再現した FP 移行挙動模擬試験装置（大洗研究所 AGF に設置、上記(a)及び(c)で使用）及び FP 放出移行挙動再現装置（TeRRa：Test bench for FP Release and tRansport、上記(b)で使用）を用いてヨウ化セシウムと酸化ホウ素を反応させ、温度勾配管中のサンプリング管、焼結金属フィルタ等で捕集した生成物等を対象に化学分析、X 線回折、ラマン分光計測等を実施した。平成 29 年度に実施した加熱実験においてヨウ化セシウムと酸化ホウ素等との高温化学反応により揮発性のヨウ素化合物の生成が促進されることが観察されたことから、平成 30 年度は雰囲気ガス流量を変化させることにより、揮発性のヨウ素化合物の生成反応における速度論的なデータ取得を行った。

### 2.2.2.2 実験方法

#### (1) 加熱実験装置

##### (a) AGF/FP 移行挙動模擬試験装置

FP 移行挙動模擬試験装置の模式図及び外観をそれぞれ図 2.2.2.1 及び図 2.2.2.2 に示す。本装置は、主に試料を蒸発させる加熱炉と放出された FP 等を捕集する温度勾配管等から構成される。試料の加熱は、高周波誘導加熱により行い、最高温度は 2273 K、最高昇温速度は 15 K/s である。加熱炉上部に接続された温度勾配管は、1023 K（上流）～423 K（下流）の間で線形的に温度分布が付けられており、充填された SS304 製のサンプリング管（内径 4.2 mm または 6.2 mm × 30 mm：14 本）により FP の沈着物を捕集できる。この温度勾配管の他、温度勾配管の出口に配置されている公称ろ過精度の異なる SS 製焼結金属フィルタ（入口側から公称ろ過精度：43  $\mu\text{m}$ 、30  $\mu\text{m}$ 、10  $\mu\text{m}$ 、5  $\mu\text{m}$ 、1  $\mu\text{m}$ ）、PTFE メンブレンフィルタ（0.1  $\mu\text{m}$ ）によりエアロゾル状の試料を捕集する。また、これらの下流側に設置されたガス捕集瓶中の水酸化ナトリウム及びチオ硫酸ナトリウム溶液（0.2 mol/L NaOH + 0.02 mol/L  $Na_2S_2O_3$ ）によりガス状の試料を捕集することが可能である。

#### (b) FP 放出移行挙動再現装置 (TeRRa)

FP 放出移行挙動再現装置 (TeRRa) の模式図及び外観をそれぞれ図 2.2.2.3 及び図 2.2.2.4 に示す。本装置も上記の FP 移行挙動模擬試験装置と同様に試料を蒸発させる加熱炉と放出された FP 等を捕集する温度勾配管等から構成されるが、FP 流路が横型となっている。試料の加熱は、高周波誘導加熱もしくは電気抵抗炉により行い、最高温度はそれぞれ 2500 K 及び 1273 K である。加熱炉の下流に接続された温度勾配管は、1000 K (上流) ~ 400 K (下流) の間で線形的に温度分布が付けられており、充填された SS304 製のサンプリング管 (内径 39.4 mm × 100 mm : 13 本) により FP の沈着物を捕集できる。この温度勾配管の他、温度勾配管の出口に配置されている SS 製焼結金属フィルタ (公称ろ過精度 : 1 µm)、PTFE メンブレンフィルタ (0.3 µm) によりエアロゾル状の試料を捕集する。また、これらの下流側に設置されたガス捕集瓶中の水酸化ナトリウム及びチオ硫酸ナトリウム溶液 (0.2 mol/L NaOH + 0.02 mol/L Na<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) によりガス状の試料を捕集することが可能である。

### (2) 実験条件

#### (a) 水素雰囲気中のヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応 (使用装置 : AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

加熱実験には、高純度のヨウ化セシウム粉末 (高純度化学研究所製、99%) と酸化ホウ素粉末 (高純度化学研究所製、99.995%) を供した。加熱試料の概要図を図 2.2.2.5 に示す。これらの蒸発温度が異なる物質を加熱容器の温度の異なる場所に装荷することによって、蒸発タイミングを合わせて気相中で反応させるようにした。表 2.2.2.1 及び図 2.2.2.6 にそれぞれ加熱条件及び加熱体系を示す。また、図 2.2.2.7 に加熱温度履歴を示す。ヨウ化セシウム粉末約 150 mg を加熱容器上部に、酸化ホウ素粉末約 300 mg を加熱容器下部のタングステン製のつばに入れ加熱炉に装荷し、加熱炉の温度 1773 K (昇温速度 2 K/s、保持時間 120 分)、温度勾配管の温度を 1023 K (上流) ~ 400 K (下流) で流量が異なる Ar + 4% H<sub>2</sub> ガスフロー (0.5, 0.25 L/min) 雰囲気下で蒸発させ、温度勾配管に充填されている SS 製のサンプリング管、焼結金属フィルタ等で捕集した。加熱後、タングステン製のつば、サンプリング管、焼結金属フィルタの重量を電子天秤 (メトラートレド社製 MS205DU、最小表示 0.01 mg、変動係数 CV 値 : 0.004%) により測定し、加熱前後の重量変化からセシウム、ヨウ素及びホウ素化合物の各箇所への沈着量を確認した。なお、沈着物等を対象とした ICP-MS 分析、X 線回折測定、ラマン分光計測等は次年度に実施する予定である。

#### (b) 水蒸気雰囲気中のヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応 (使用装置 : TeRRa)

加熱実験には、高純度のヨウ化セシウム粉末 (和光純薬工業製、99.9%) と酸化ホウ素粉末 (高純度化学研究所製、99.995%) を供した。表 2.2.2.2 及び図 2.2.2.8 にそれぞれ加熱条件及び加熱体系を示す。また、図 2.2.2.9 に加熱温度履歴を示す。ヨウ化セシウム粉末約 2.8 g 及び酸化ホウ素粉末約 1.4 g を、電気抵抗炉を 1273 K まで加熱した場合のそれぞれ 1050 K 及び 1150 K の位置にアルミナ製のつばに入れて装荷した。電気抵抗炉の温度を 1273 K (昇

温速度 10 K/min、保持時間 60 分)、温度勾配管の温度を 1023 K (上流) ~ 400 K (下流)、雰囲気は、露点 60°C の水蒸気を含む流量が異なる Ar ガスフロー (2, 1, 0.5 L/min) 雰囲気下として加熱実験を行い、蒸発した試料を温度勾配管に充填されている SS 製のサンプリング管、焼結金属フィルタ等で捕集した。加熱後、アルミナ製のつぼ、サンプリング管、焼結金属フィルタ等の重量を電子天秤 (メトラートレド社製 XS304、最小表示 0.1 mg、変動係数 CV 値: 0.04%) により測定し、加熱前後の重量変化からセシウム、ヨウ素及びホウ素化合物の沈着量とその分布を確認した。

サンプリング管、焼結金属フィルタ、メンブレンフィルタ、下流側の配管内に沈着した試料やガス捕集液を ICP-MS 分析に供し、沈着物中に含まれる元素量を定量した。また、サンプリング管中に設置したクーポン (約 1 cm<sup>2</sup>) により捕集した沈着物を二次電子像観察、X 線回折測定及びラマン分光計測に供することにより、微細組織、結晶構造、分子構造等に関するデータを取得し、元素分析の結果と合わせて化学形を評価した。

ICP-MS 分析 (パーキンエルマージャパン社製 ELAN DRC-II) では、セシウム-133、ヨウ素-127、ホウ素-10 及びホウ素-11 を対象とした。前項で示した方法と同様に SS 製サンプリング管等に沈着したセシウム、ヨウ素及びホウ素化合物を溶解させるため、サンプリング管等を、0.04 mol/L 水酸化ナトリウム溶液に浸漬した後、18 時間室温で静置した。沈着物の溶解後、溶液をメスフラスコに回収し、イオン交換水を添加しメスアップを行って分析サンプルとした。

二次電子像観察 (JEOL 社製 JSM-7000F) は、加速電圧を 15 kV で実施した。X 線回折測定 (リガク社製 MiniFlex) は、Cu-K $\alpha$  線を用いて、加速電圧 40 kV、電流 15 mA で実施した。ラマン分光計測 (日本分光社製 NRS-3100) は、不活性雰囲気において、レーザー波長 532 nm とした。測定温度はいずれも室温とした。

(c) 水素雰囲気の固相: ヨウ化セシウム沈着物-気相: 酸化ホウ素蒸気種間における高温化学反応 (使用装置: AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

ヨウ化セシウムを用いた平成 29 年度以前の結果との比較によりホウ素の影響有無を確認するため、加熱実験には、酸化ホウ素粉末 (高純度化学研究所製、99.995%) のみを供した。表 2.2.2.3、図 2.2.2.10 及び図 2.2.2.11 にそれぞれ加熱条件、加熱体系及び実験フローを示す。試料を装荷せずにヨウ化セシウムを蒸発・沈着させるための加熱実験を行った後に、酸化ホウ素を蒸発させる加熱実験 (B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験) を行った。尚、本実験条件は、平成 27 年度及び平成 29 年度に実施した実験と同条件であり、沈着したヨウ化セシウムが酸化ホウ素蒸気種との反応により揮発性のヨウ素化合物が再蒸発する傾向を示した結果を解釈するためのデータ取得を目的とした加熱実験である

加熱実験においては、先ずタングステン製のつぼに何も試料を入れずに加熱炉に装荷し、加熱炉の温度 2173 K (昇温速度 3 K/s、保持時間 60 分)、温度勾配管の温度を 1023 K (上流) ~ 400 K (下流) で Ar + 4% H<sub>2</sub> ガスフロー (1 L/min) 雰囲気下で加熱した。加熱後、タングステン製のつぼ、サンプリング管、焼結金属フィルタの重量を電子天秤 (メトラートレド社製 MS205DU、最小表示 0.01 mg、変動係数 CV 値: 0.004%) により測定し、加熱前後の重量変化を確認した。

重量測定の後、加熱したサンプリング管、焼結金属フィルタ等を再び装置内に戻し、再加熱を実施した。再加熱時の条件は、160 mg の酸化ホウ素をタンゲステン製のつぼに入れ、到達温度 2108 K（昇温速度 3 K/s、保持時間 60 分）、温度勾配管の温度を 1023 K（上流）～423 K（下流）とし、最初の加熱雰囲気と同様に Ar+4%H<sub>2</sub> フロー（1 L/min）雰囲気とした。加熱実験後、サンプリング管及び焼結金属フィルタの重量を電子天秤により測定し、再加熱でのホウ素化合物の沈着量を確認した。沈着物等を対象とした ICP-MS 分析、X 線回折測定、ラマン分光計測等は次年度に実施する予定である。

### 2.2.2.3 実験結果

(1) 水素雰囲気中の気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

(a) サンプリング管、焼結金属フィルタ等の付着物重量

Ar + 4%H<sub>2</sub> ガスフローの流量を 0.5 L/min で実施した実験において、電子天秤により測定したサンプリング管及び焼結金属フィルタの加熱実験後の重量変化をそれぞれ図 2.2.2.12 及び図 2.2.2.13 に示す。また、Ar + 4%H<sub>2</sub> ガスフローの流量を 0.25 L/min で実施した実験のサンプリング管及び焼結金属フィルタの加熱実験後の重量変化をそれぞれ図 2.2.2.14 及び図 2.2.2.15 に示す。サンプリング管の沈着物による重量変化は、0.5 L/min の場合の方が 0.25 L/min の場合の方よりも高い値を示したが重量変化ピーク位置は同じであり、730～840 K 付近で高く、約 840 K で最も高くなった。フィルタの沈着物による重量変化も、0.5 L/min の場合の方が 0.25 L/min の場合の方よりも高い値を示し、上流側に配置された公称ろ過精度 43 μm のフィルタで最も高くなった。

流量が低い方で重量変化が低くなったのは、蒸発物の拡散量が低くなったためと考えられる。一方、平成 29 年度に実施した 1 L/min での沈着物のピーク位置は今年度よりも低い（下流側の）770 K となっており、流量の影響によりヨウ化セシウム等の沈着分布が変化した可能性を示している。

(2) 水蒸気雰囲気中の気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応（使用装置：TeRRa）

(a) サンプリング管、焼結金属フィルタ等の付着物重量

露点 60°C の水蒸気を含む Ar ガスフローの流量を 2 L/min、1 L/min 及び 0.5 L/min とした CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験において電子天秤により測定したサンプリング管及び焼結金属フィルタの加熱実験後の重量変化をそれぞれ図 2.2.2.16、図 2.2.2.17 及び図 2.2.2.18 に示す。1000 K 以上の重量変化は流量が低くなるに従い、高くなった。1000 K 以下の重量変化は 700～900 K 付近で高く、流量が低くなるに従い、低くなった。焼結金属フィルタの重量変化は流量が低くなるに従い、低くなった。

(b) サンプリング管、焼結金属フィルタ等への付着物中の元素量

露点 60°C の水蒸気を含む Ar ガスフローの流量を 2 L/min、1 L/min 及び 0.5 L/min とした CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験において ICP-MS 分析により取得したサンプリング管及び焼結金属フィルタ

への沈着物中のセシウム、ヨウ素及びホウ素の元素量をそれぞれ図 2.2.2.19、図 2.2.2.20 及び図 2.2.2.21 に示す。流量に関わらずサンプリング管及び焼結金属フィルタへの沈着物中のセシウムとヨウ素の元素量はほぼ同じであった。ホウ素は、2 L/min で焼結金属フィルタに沈着したが、1 L/min 及び 0.5 L/min ではほとんど沈着は無かった。また流量に関わらず 1000 K 以上の高温領域において沈着していることが分かった。上記の(2)(a)で観察された 1000 K 以上の重量増加については一部ホウ素等を含む化合物が生成したものと考えられる。

装置流路内の付着物中の元素量の分析結果より算出したヨウ化セシウムの蒸発量に対する各領域への沈着物の割合を表 2.2.2.4 に示す。セシウムに関しては、ヨウ化セシウムの下流側に設置した酸化ホウ素用のろつぼで多く沈着したことが分かった。一方、焼結金属フィルタを通過して下流まで移行した量はわずかであった。ヨウ素に関しては、酸化ホウ素用のろつぼで沈着は見られず、有意量が焼結金属フィルタを通過してガス捕集瓶までの配管内で沈着されており、揮発性のヨウ素化合物が生成したことが分かった。酸化ホウ素用ろつぼ近傍においてヨウ化セシウムとホウ素化合物が反応して、揮発性のヨウ素化合物が生成したと仮定した場合、2 L/min では全てのヨウ素がそのまま移行する（ホウ素ろつぼ近傍でセシウムが 0.20、配管内でヨウ素が 0.20）一方で、1 L/min 及び 0.5 L/min では揮発性のヨウ素割合は低くなる傾向であった。

#### (c) サンプリング管、焼結金属フィルタ等への沈着物の微細組織、結晶構造及び分子構造

露点 60°C の水蒸気を含む Ar ガスフローの流量を 2 L/min、1 L/min 及び 0.5 L/min とした CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験において SEM 観察により取得したサンプリング管への沈着物の二次電子像をそれぞれ図 2.2.2.22、図 2.2.2.23 及び図 2.2.2.24 に示す。1230 K においては流量に依らず、SS 表面が大きく変質しているのが観察された。800 K においては流量により形状は異なるもののセシウム及びヨウ素を含む数 100 µm の沈着物が見られた。400 K においてはセシウム及びヨウ素を含む球状の沈着物が観察され、2 L/min (1~2 µm) に比べ、1 L/min 及び 0.5 L/min (4~5 µm) で粒径は大きくなった。これらはそれぞれホウ素化合物の高温での化学反応（下記で示す SS との反応）、ヨウ化セシウム、ホウ素化合物もしくはそれらの反応生成物の蒸気種の SS への凝縮、ヨウ化セシウム、ホウ素化合物もしくはそれらの反応生成物のエアロゾルの沈着の様相を示しているものと考えられる。

2 L/min、1 L/min 及び 0.5 L/min とした CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験において X 線回折測定により取得したサンプリング管への沈着物の X 線回折ピークをそれぞれ図 2.2.2.25、図 2.2.2.26 及び図 2.2.2.27 に示す。サンプリング管材料である SS に起因するピークその他、1230 K では鉄ホウ素複合酸化物 (Fe<sub>3</sub>BO<sub>5</sub>) や酸化鉄 (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) に起因するピークが得られた。800 K 以下において、2 L/min 及び 0.5 L/min でヨウ化セシウムに起因するピークが得られたものの、1 L/min では明確なヨウ化セシウムに起因するピークは見られなかった。

2 L/min、1 L/min 及び 0.5 L/min とした CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験においてラマン分光測定により得られた取得したサンプリング管への沈着物のラマンスペクトルピーク位置を図 2.2.2.28、図 2.2.2.29 及び図 2.2.2.30 に示す。ヨウ化セシウムに起因するピークその他、酸化クロム、クロマイト等、SS の酸化に起因すると考えられるピークが得られた。また、一部でホウ酸セシウムに起因すると考えられるピークが見られたが、同定するには至らなかった。

(d) 水蒸気雰囲気中の気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応のまとめ

ヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種が水蒸気雰囲気中の気相中において反応することにより、ヨウ化セシウムは異なる化学形に変化することが分かった。有意量のセシウム化合物が高い温度で沈着したことから、凝縮性の高い化合物が高温で生成した可能性が考えられる。また、サンプリング管等においてセシウムとヨウ素の割合がほぼ同等であることから、この高温領域でのセシウムの化学反応により揮発性のヨウ素化合物が生成して焼結金属フィルタよりも下流に移行したものと考えられる。流量の影響として、高温で生成したと考えられる揮発性のヨウ素化合物の低温までの移行割合は、流量が低くなった場合に低くなるという傾向を示した。

(3) 水素雰囲気中の固相：ヨウ化セシウム沈着物-気相：酸化ホウ素蒸気種間における高温化学反応（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

(a) サンプリング管、焼結金属フィルタ等の付着物重量

電子天秤により測定した  $B_2O_3$  実験におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの加熱実験後の重量変化を図 2.2.2.31 及び図 2.2.2.32 に示す。重量測定の結果、1 回目の 2173 K での加熱において、サンプリング管及び焼結金属フィルタの重要変化は見られなかった。酸化ホウ素を装荷して 2 回目の 2108 K での加熱後、サンプリング管の重量は 720 K 以下において増加した。フィルタの重量は、公称ろ過精度  $43 \mu m$  のフィルタで増加し、 $30 \mu m$  以下で増加量は低くなった。次年度実施する ICP-MS 分析によるホウ素の沈着分布結果を平成 29 年度の結果と比較することにより、ヨウ化セシウム沈着物-酸化ホウ素蒸気種間における高温化学反応におけるホウ素の寄与について検討する。

#### 2.2.2.4 まとめ

シビアアクシデント時の原子炉冷却系までの温度範囲を再現した AGF/FP 移行挙動模擬試験装置及び FP 放出移行挙動再現装置 (TeRRa) を用いて、下記の高温化学反応に着目した加熱実験を行い、温度勾配管中のサンプリング管、焼結金属フィルタ等で捕集した反応生成物の化学分析、X 線回折、ラマン分光計測等を行った。雰囲気ガス流量をパラメータとして沈着物性状や分布の比較を行い、揮発性のヨウ素化合物生成反応の速度的なデータ取得を行った。

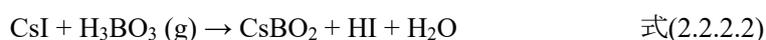
(a) 水素雰囲気中の気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

(b) 水蒸気雰囲気中の気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応（使用装置：TeRRa）

(c) 水素雰囲気中の固相：ヨウ化セシウム沈着物-気相：酸化ホウ素蒸気種間における高温化学反応（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

(a)(c)に関しては、次年度実施する化学分析等により、ヨウ化セシウムに与えるホウ素の化学的影響に関するデータを取得する。

(b)の結果より、水蒸気雰囲気において、ヨウ化セシウム蒸気種とホウ素蒸気種の主に気相化学反応により揮発性のヨウ素化合物が生成することが分かり、雰囲気ガスフロー流量でヨウ素の移行挙動が異なる可能性が示された。高温の水蒸気雰囲気においては、以下の化学反応[2.2.2.1 – 2.2.2.3]が生じたものと考えられる。1 L/min において上流での Cs 沈着割合が高くなる、CsI に起因する XRD ピークが見られない等の結果が得られたものの、ガスフローの流量が低下することにより焼結金属フィルタを通過する揮発性のヨウ素の割合が低下したことから、以下の化学反応を伴う移行挙動に関しては速度論的な評価が必要である可能性が示された。



今後は、今回の実験結果の妥当性を確認するとともに、速度論的な評価のための実験データを拡充していくことが必要であると考えられる。

#### 参考文献

- [2.2.2.1] K. Minato, “Thermodynamic analysis of cesium and iodine behavior in severe light water reactor accidents,” J. Nucl. Mater., 185, 154-758, 1991.
- [2.2.2.2] B.R. Bowsher et al., “High Temperature Studies of Simulant Fission Products: Part 4, Interaction of Cesium Iodide with Boric Acid over the Temperature Range 400 to 1000 °C,” AEEW-R 1973, 1985.
- [2.2.2.3] E.H.P. Cordfunke et al., “Recent Thermochemical Research on Reactor Materials and Fission Products,” J. Nucl. Mater., 167, 205-212, 1989.

表 2.2.2.1 水素雰囲気中の気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応に着目した加熱実験条件（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

		CsI+B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 実験	
試料	化合物 装荷重量 (mg)	CsI 150	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 300
試料加熱	試料装荷位置：温度勾配管 からの距離 (mm)	CsI : 105、B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 251	
	加熱温度 (K) (試料加熱温度)	1773 (CsI : 最高 1020、B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 1773)	
	昇温速度 (K/s)	2	
	保持時間 (min)	120	
	ガスフロー雰囲気	Ar + 4%H <sub>2</sub>	
	ガスフロー流量 (L/min)	0.5, 0.25	
	温度勾配管加熱	サンプリング管寸法	内径 6.2×30 mm : 14 本
最高温度 (K)		1023	
最低温度 (K)		423	
温度分布		線形	

表 2.2.2.2 水蒸気雰囲気中の気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の  
高温化学反応に着目した加熱実験（使用装置：TeRRa）

CsI+B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 実験			
試料	化合物 装荷重量 (g)	CsI 2.8	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 1.4
	試料装荷位置：温度勾配管 からの距離 (mm)	CsI : 226、B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 186 (内径 : 38 mm、最高温度位置 : 146 mm)	
	加熱温度 (K) (試料加熱温度)	1273 (CsI : 1050、B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 1150)	
	昇温速度 (K/min)	10	
	保持時間 (min)	60	
試料加熱	ガスフロー雰囲気	Ar + 露点 60°C	
	ガスフロー流量 (L/min)	2, 1, 0.5	
	蒸発速度 (mol/s) :	CsI : $4.1 \times 10^{-7}$ B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : $3.6 \times 10^{-7}$ (2 L/min)	
	実験結果からの推定値	CsI : $1.6 \times 10^{-7}$ B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : $6.8 \times 10^{-8}$ (1 L/min)	
		CsI : $1.7 \times 10^{-7}$ B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : $1.3 \times 10^{-7}$ (0.5 L/min)	
	B/Cs :	約 0.9 (2 L/min)	
	実験結果からの推定値	約 0.4 (1 L/min)	
		約 0.8 (0.5 L/min)	
	サンプリング管寸法	内径 39.4×100 mm : 13 本	
温度勾配管加 熱	最高温度 (K)	1000	
	最低温度 (K)	400	
	温度分布	線形	

表 2.2.2.3 水素雰囲気中の固相：ヨウ化セシウム沈着物-気相：酸化ホウ素蒸気種間における高温化学反応に着目した加熱実験条件（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

		B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 実験	
		1 回目	2 回目
試料	化合物	-	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
	装荷重量 (mg)	-	160
試料装荷位置：温度勾配管からの距離 (mm)		253	
試料加熱	加熱温度 (K)	2173	2108
	昇温速度 (K/s)	3	3
	保持時間 (min)	60	60
	ガスフロー雰囲気	Ar + 4%H <sub>2</sub>	Ar + 4%H <sub>2</sub>
	ガスフロー流量 (L/min)	1	1
サンプリング管寸法		内径 4.2 mm × 30 mm : 14 本	
温度勾配管加熱	最高温度 (K)	1023	1023
	最低温度 (K)	423	423
	温度分布	線形	線形

表 2.2.2.4 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験における沈着割合（使用装置：TeRRa）

		2 L/min	1 L/min	0.5 L/min
Cs	ホウ素るつぼ	0.20	0.48	0.29
	サンプリング管	0.27	0.23	0.35
	焼結金属フィルタ	0.31	0.00	0.01
	配管内	0.05	0.00	0.05
	ガス捕集瓶	0.00	0.00	0.00
I	ホウ素るつぼ	0.00	0.00	0.00
	サンプリング管	0.29	0.34	0.38
	焼結金属フィルタ	0.31	0.02	0.03
	配管内	0.20	0.16	0.21
	ガス捕集瓶	0.00	0.00	0.00

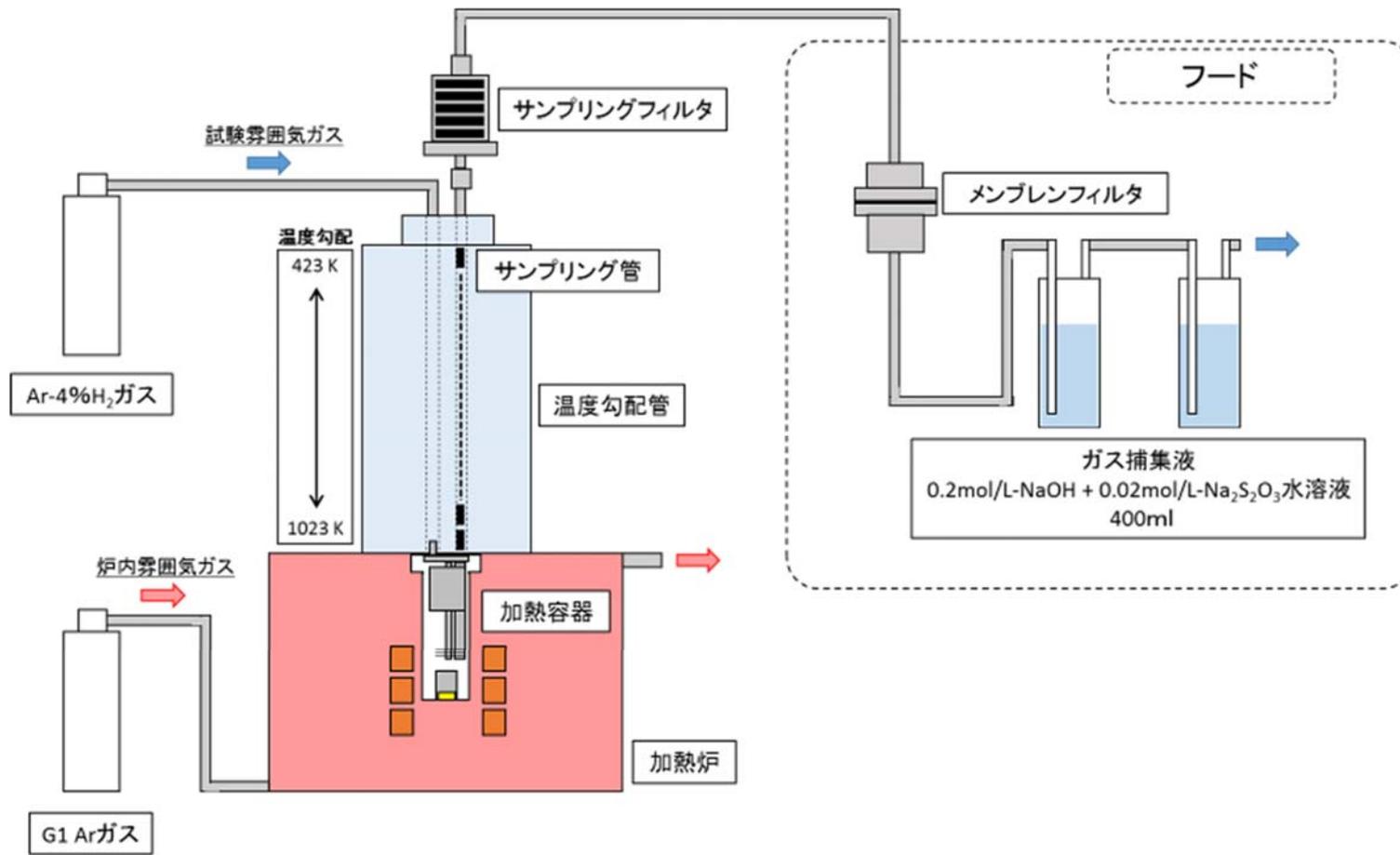


図 2.2.2.1 AGF/FP 移行挙動模擬試験装置模式図

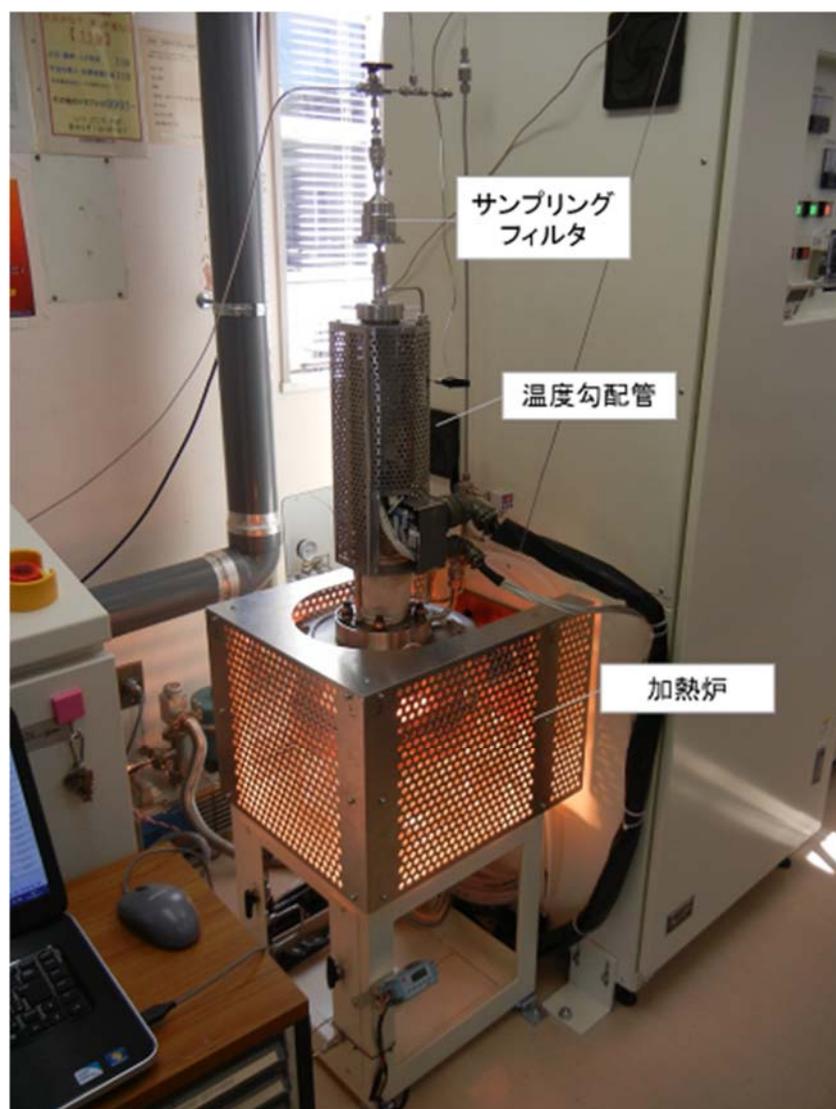


図 2.2.2.2 AGF/FP 移行挙動模擬試験装置外観写真

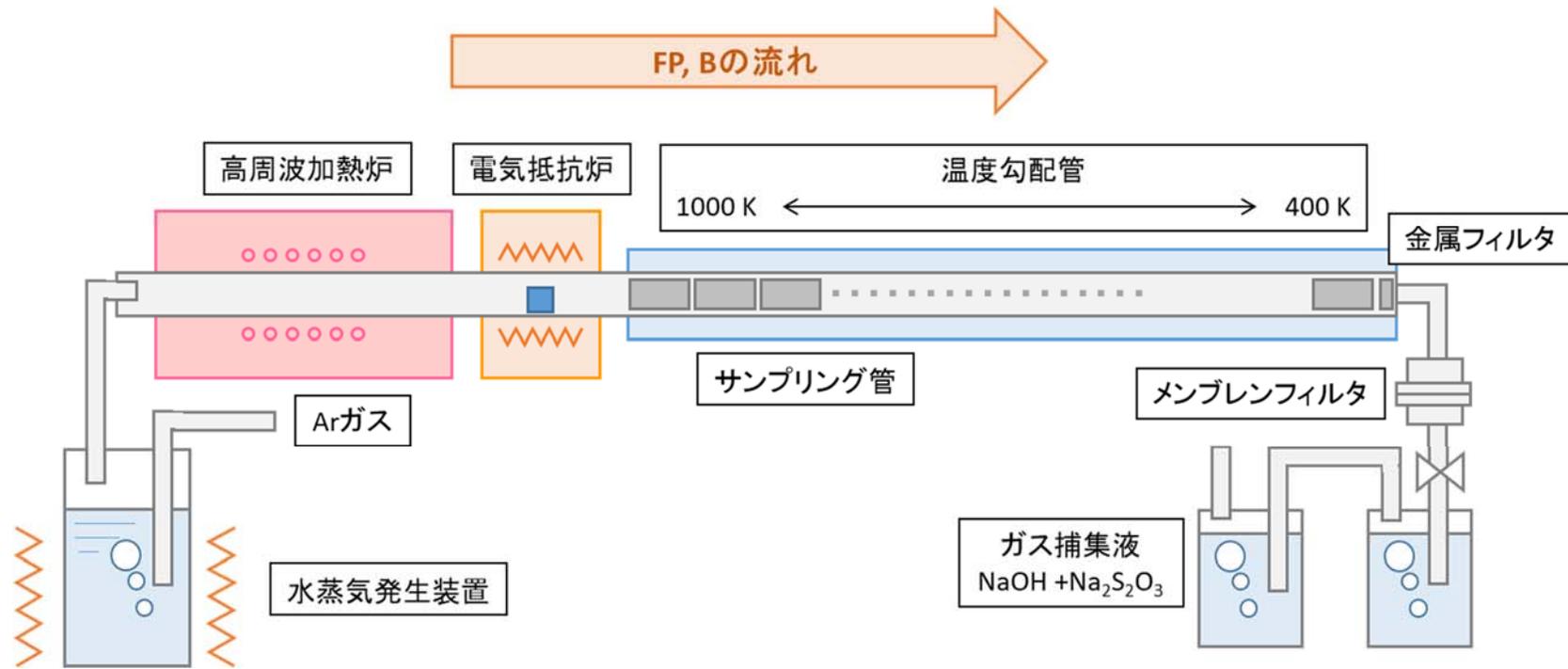


図 2.2.2.3 FP 放出移行挙動再現実験装置 (TeRRa) 模式図

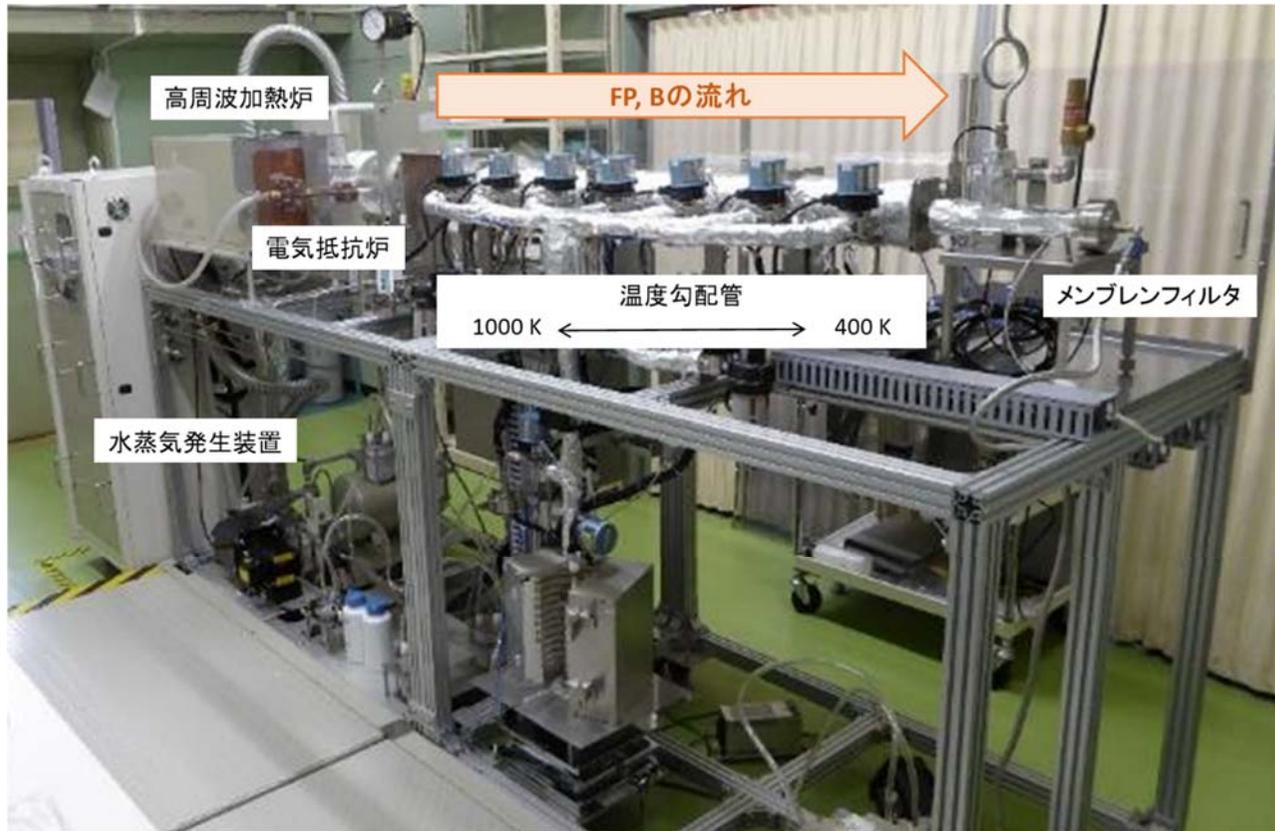


図 2.2.2.4 FP 放出移行挙動再現実験装置 (TeRRa) 外観写真

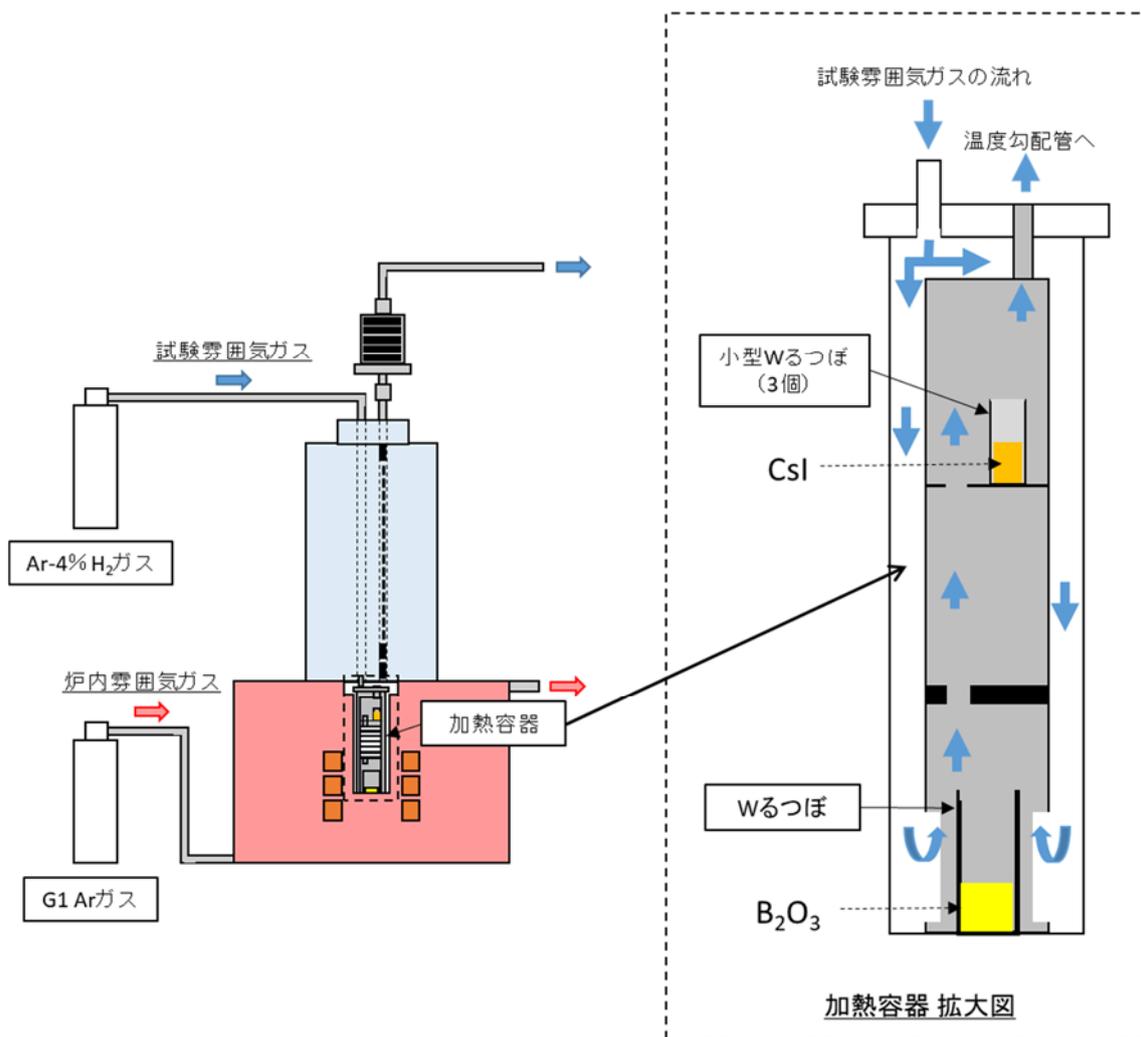


図 2.2.2.5 気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応のための加熱試料の概要図 (使用装置: AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

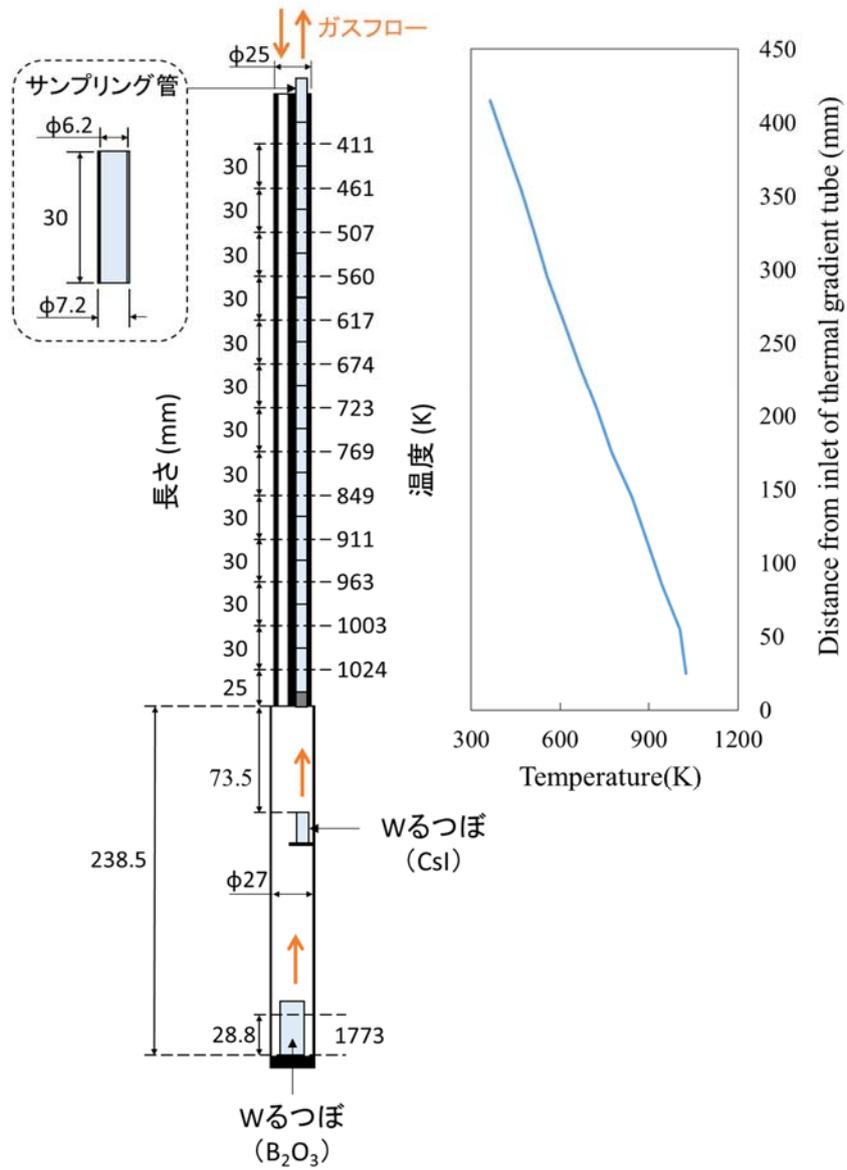


図 2.2.2.6 気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応のための加熱体系 (使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

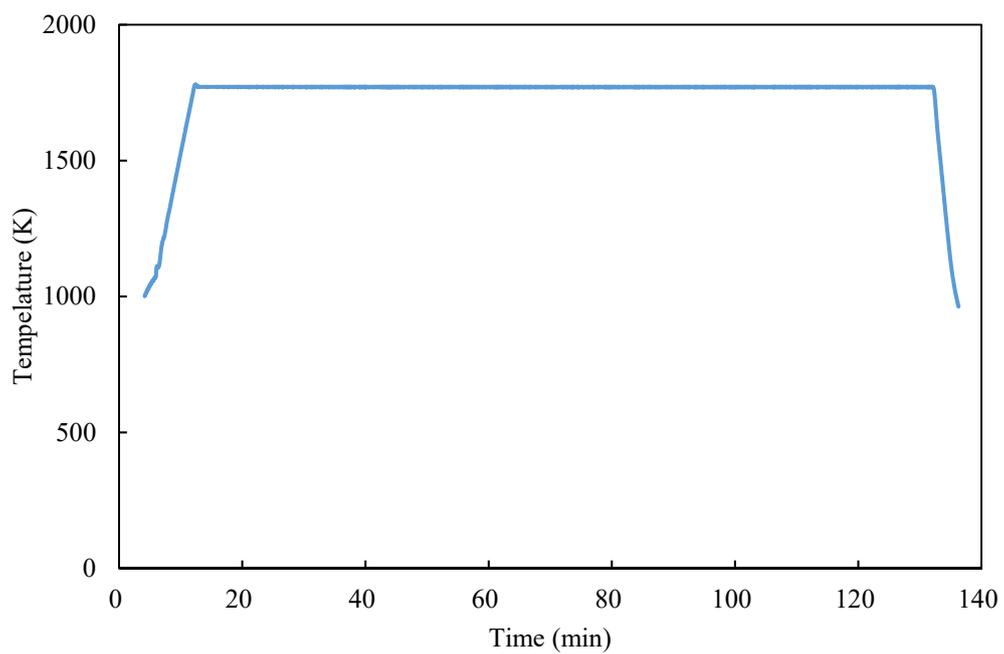


図 2.2.2.7 気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温度化学反応の加熱温度履歴（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

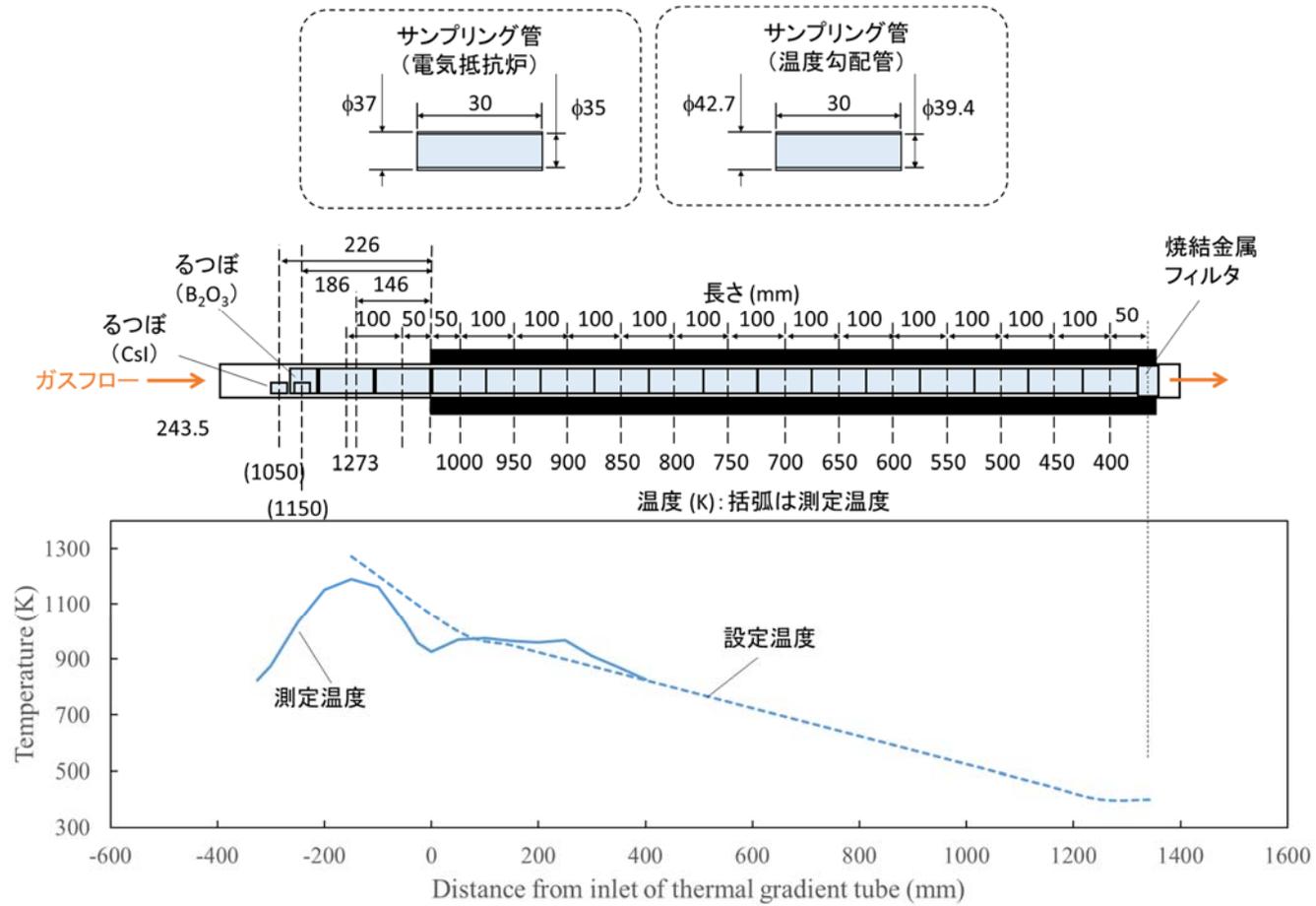


図 2.2.2.8 水蒸気雰囲気中のヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応の加熱体系（使用装置：TeRRa）

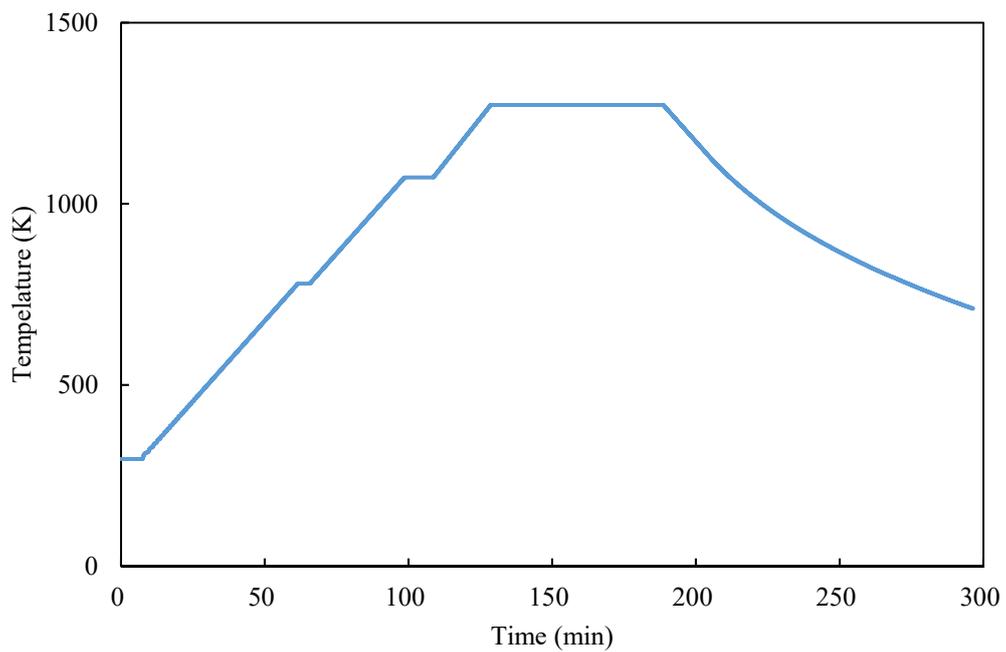


図 2.2.2.9 水蒸気雰囲気中の気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応の加熱温度履歴（使用装置：TeRRa）

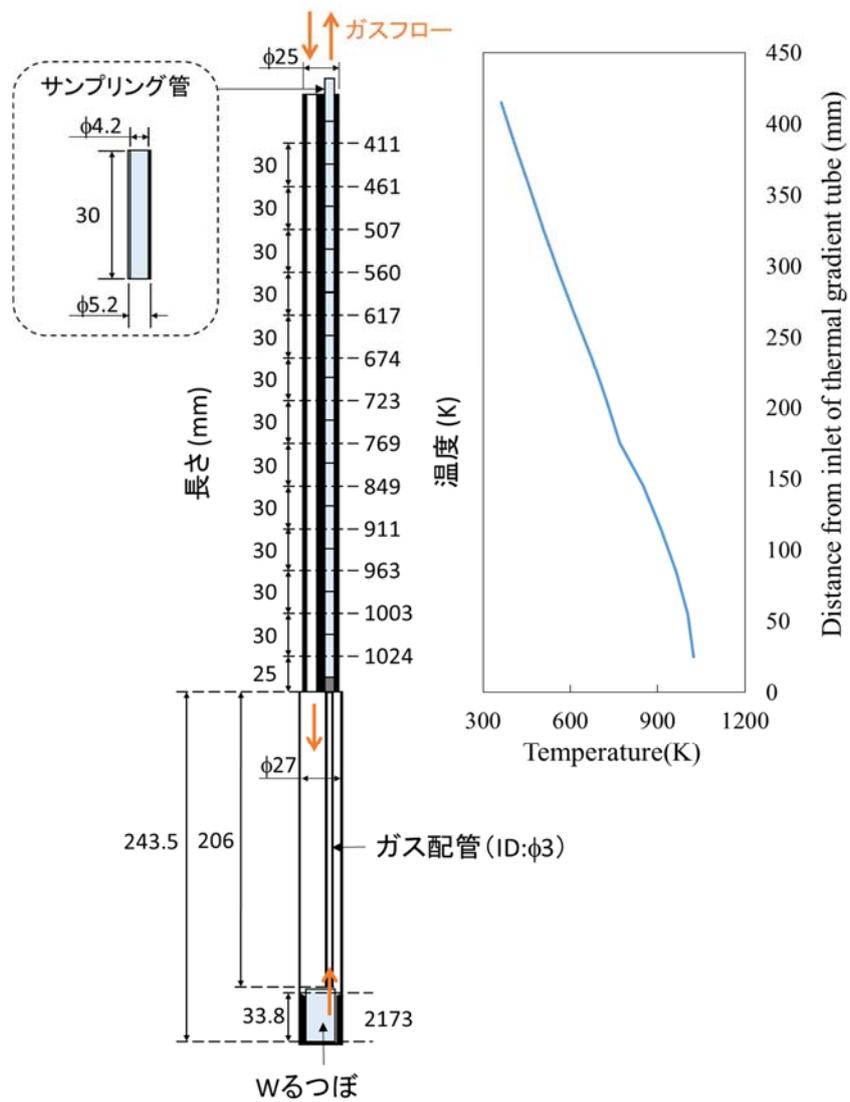


図 2.2.2.10 水素雰囲気中の固相：ヨウ化セシウム沈着物-気相：酸化ホウ素蒸気種間における高温化学反応に着目した加熱実験の加熱体系（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

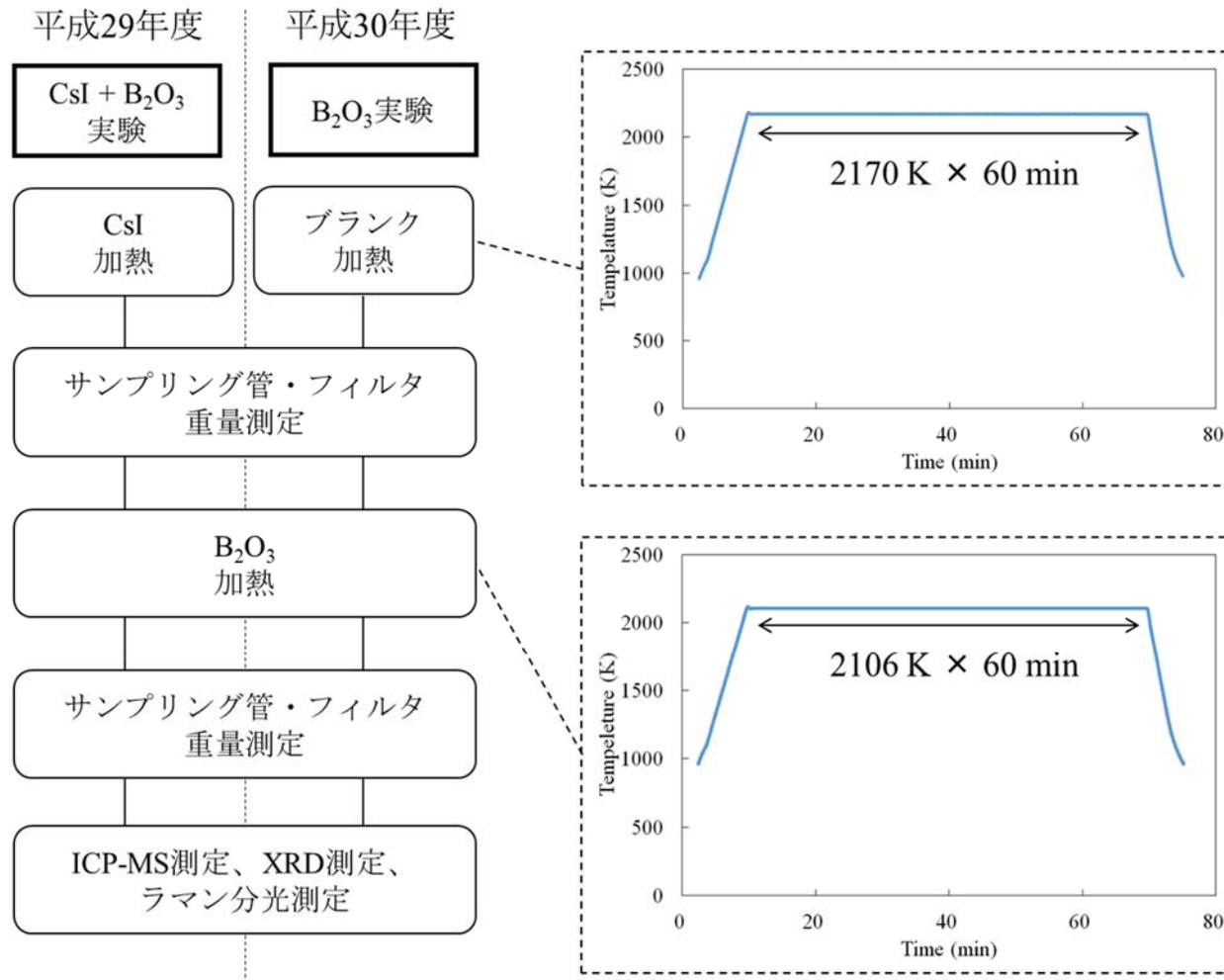


図 2.2.2.11 水素雰囲気中の固相：ヨウ化セシウム沈着物-気相：酸化ホウ素蒸気種間における高温化学反応に着目した加熱実験の実験フロー及び加熱履歴（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

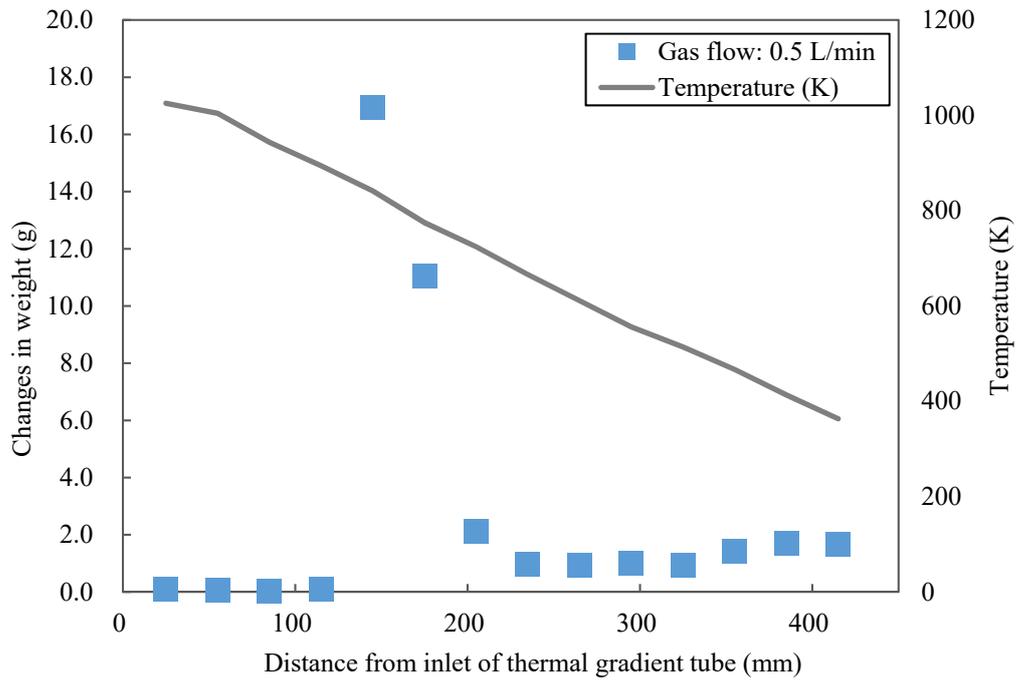


図 2.2.2.12 水素雰囲気中の気相中反応実験におけるサンプリング管の重量変化：0.5 L/min  
 (変動係数 CV 値：0.004%) (使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

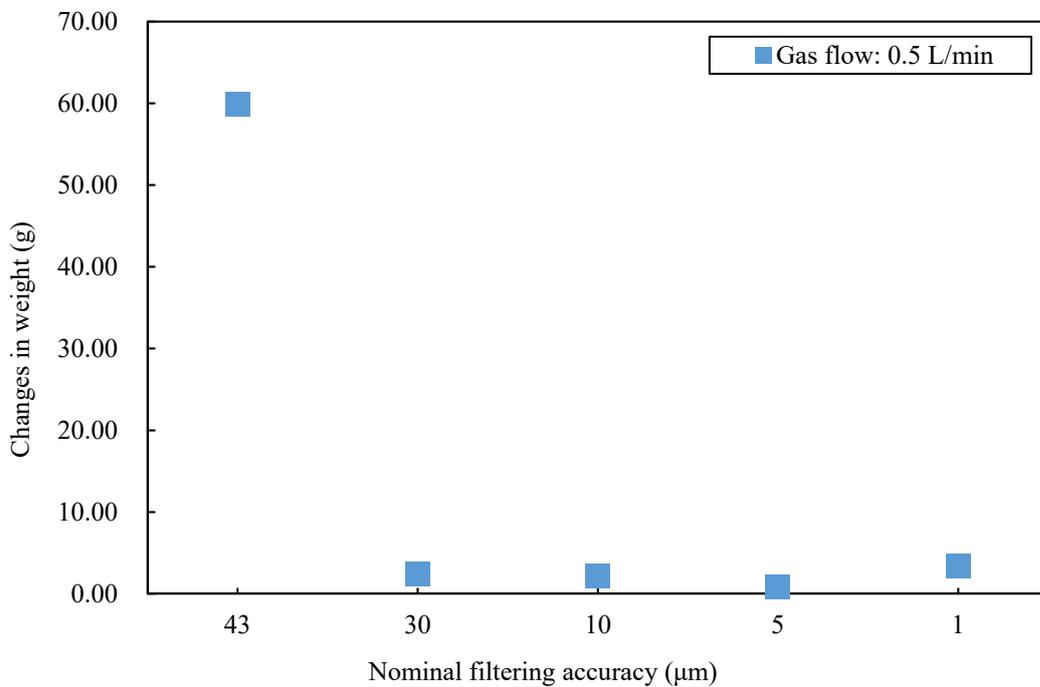


図 2.2.2.13 水素雰囲気中の気相中反応実験における焼結金属フィルタの重量変化：0.5 L/min  
 (変動係数 CV 値：0.004%) (使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

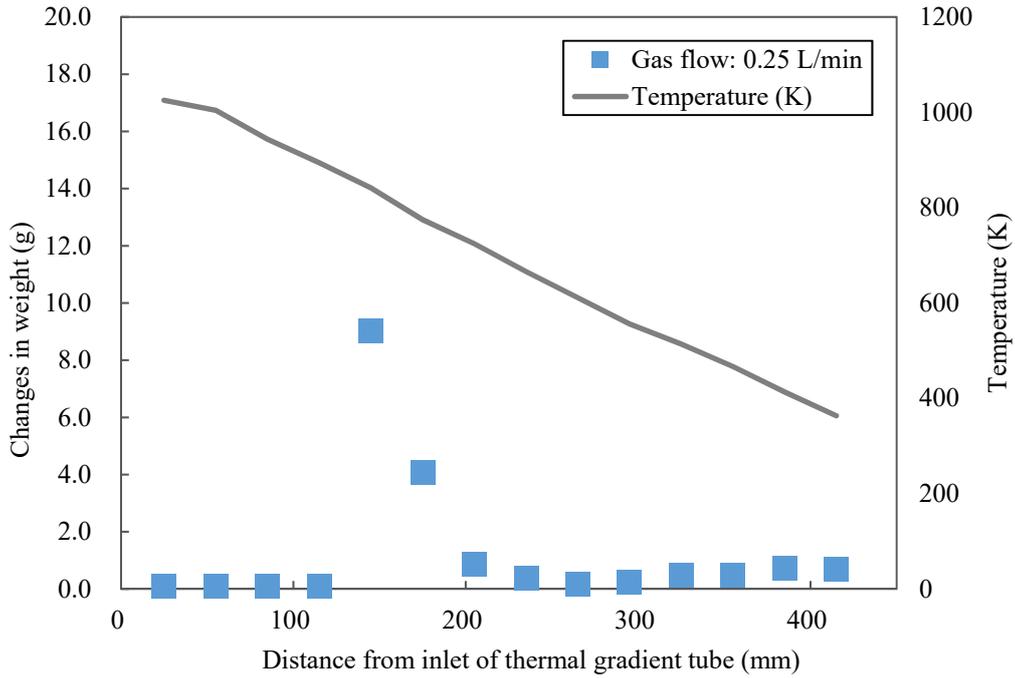


図 2.2.2.14 水素雰囲気中の気相中反応実験におけるサンプリング管の重量変化：0.25 L/min  
 (変動係数 CV 値：0.004%) (使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

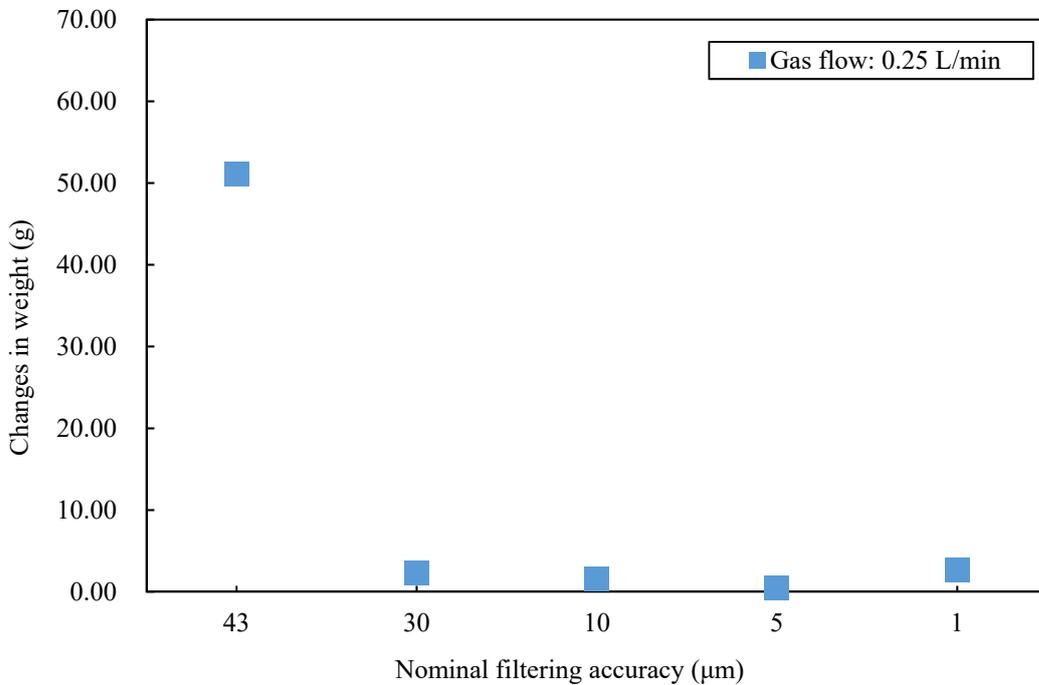


図 2.2.2.15 水素雰囲気中の気相中反応実験における焼結金属フィルタの重量変化：0.25 L/min  
 (変動係数 CV 値：0.004%) (使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

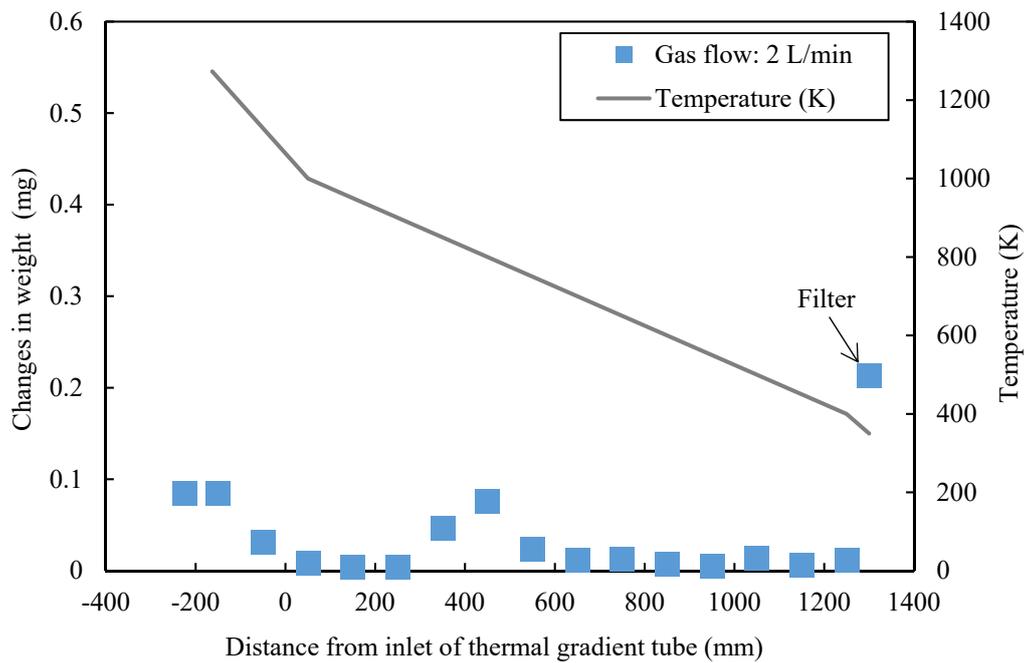


図 2.2.2.16 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化：2 L/min（変動係数 CV 値：0.04%）（使用装置：TeRRa）

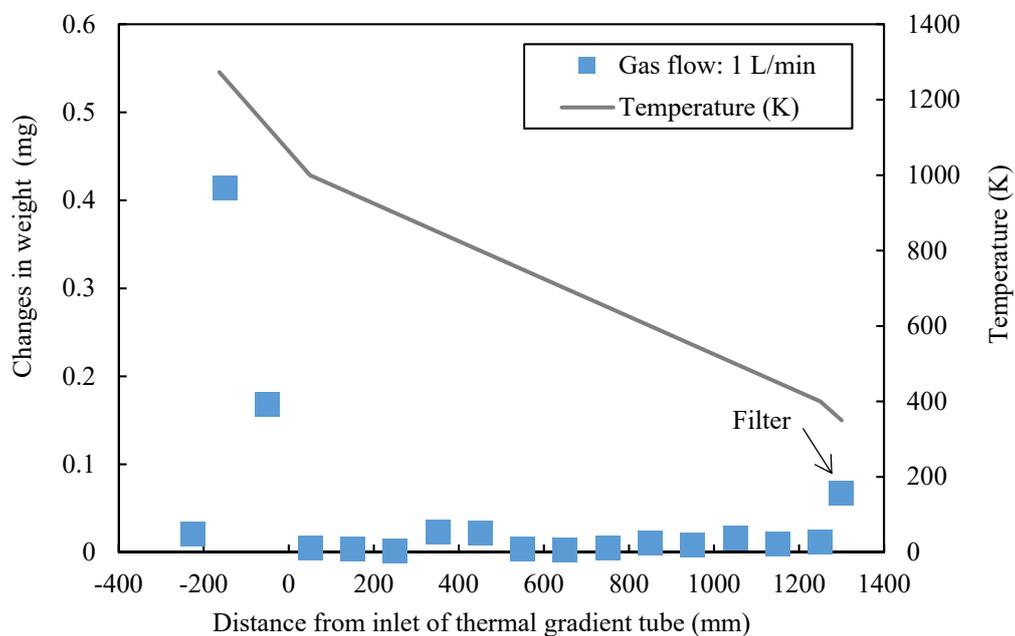


図 2.2.2.17 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化：1 L/min（変動係数 CV 値：0.04%）（使用装置：TeRRa）

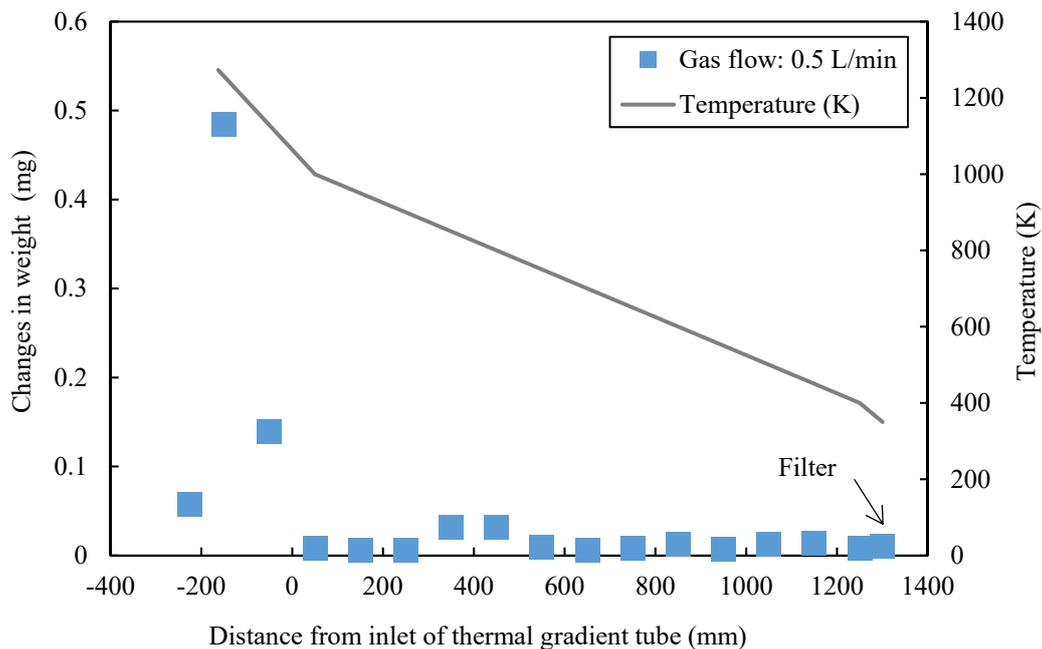


図 2.2.2.18 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化：0.5 L/min（変動係数 CV 値：0.04%）（使用装置：TeRRa）

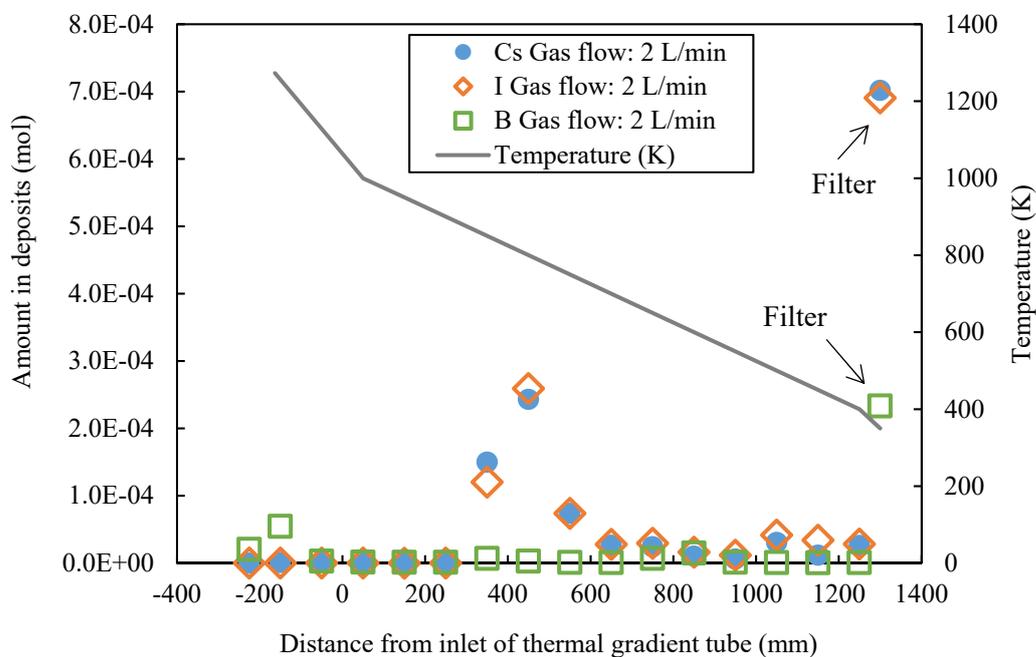


図 2.2.2.19 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物中のセシウム及びヨウ素元素量：2 L/min（変動計数 CV 値：Cs-133 1.2%、I-127 3.5%、B-10 1.4%、B-11 2.0%）（使用装置：TeRRa）

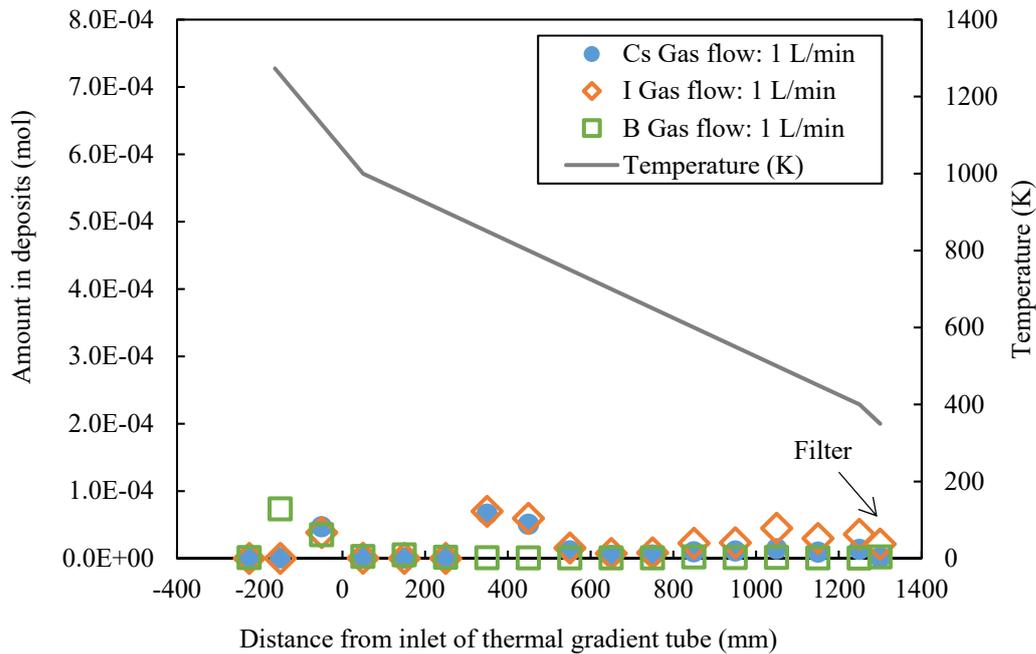


図 2.2.2.20 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物中のセシウム及びヨウ素元素量：1 L/min（変動計数 CV 値：Cs-133 1.2%、I-127 3.5%、B-10 1.4%、B-11 2.0%）（使用装置：TeRRa）

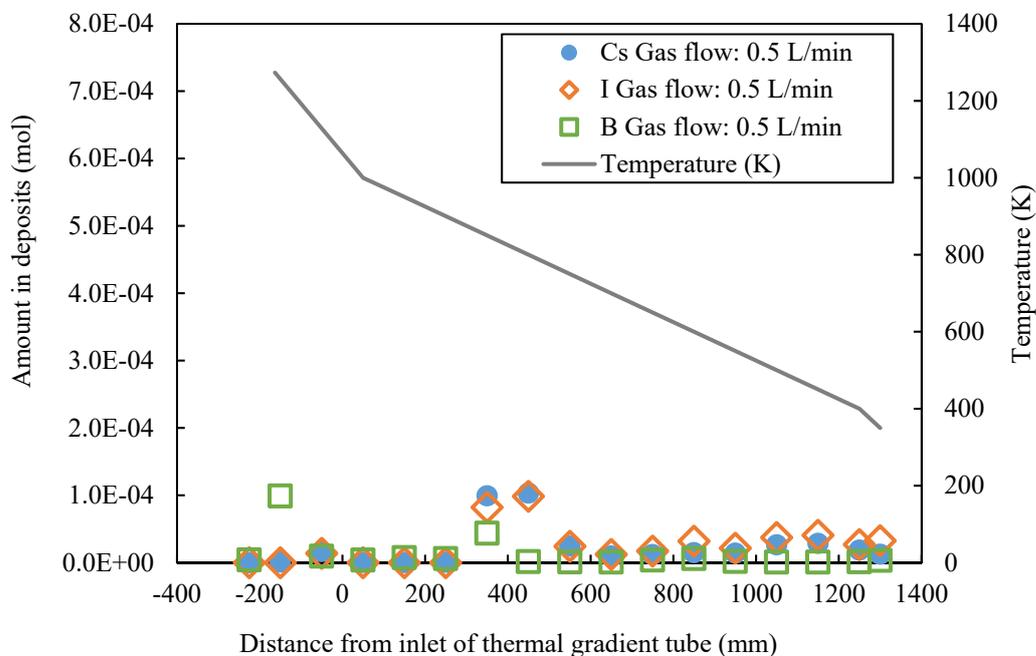


図 2.2.2.21 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物中のセシウム及びヨウ素元素量：0.5 L/min（変動計数 CV 値：Cs-133 1.2%、I-127 3.5%、B-10 1.4%、B-11 2.0%）（使用装置：TeRRa）

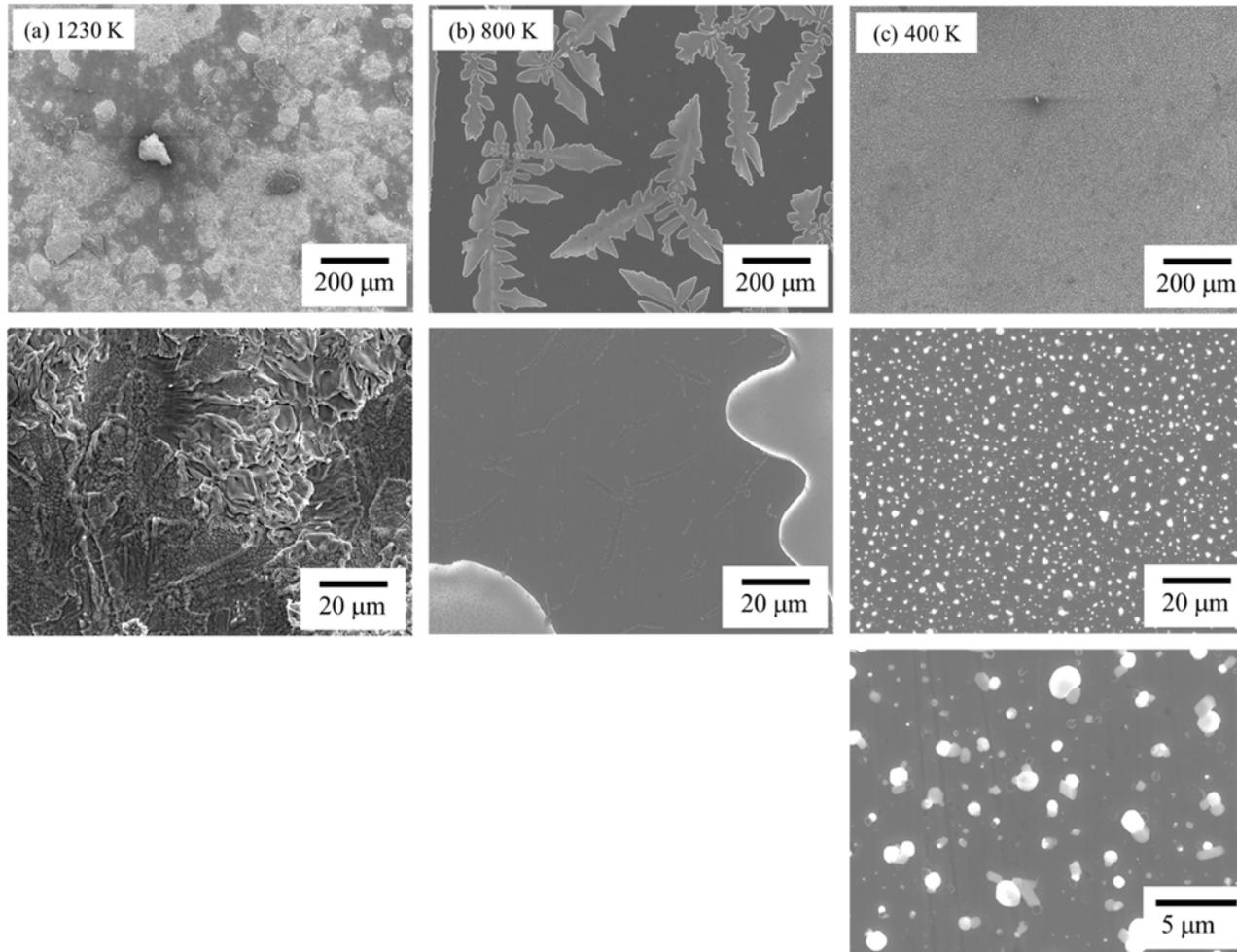


図 2.2.2.22 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物の二次電子像：2 L/min（使用装置：TeRRa）

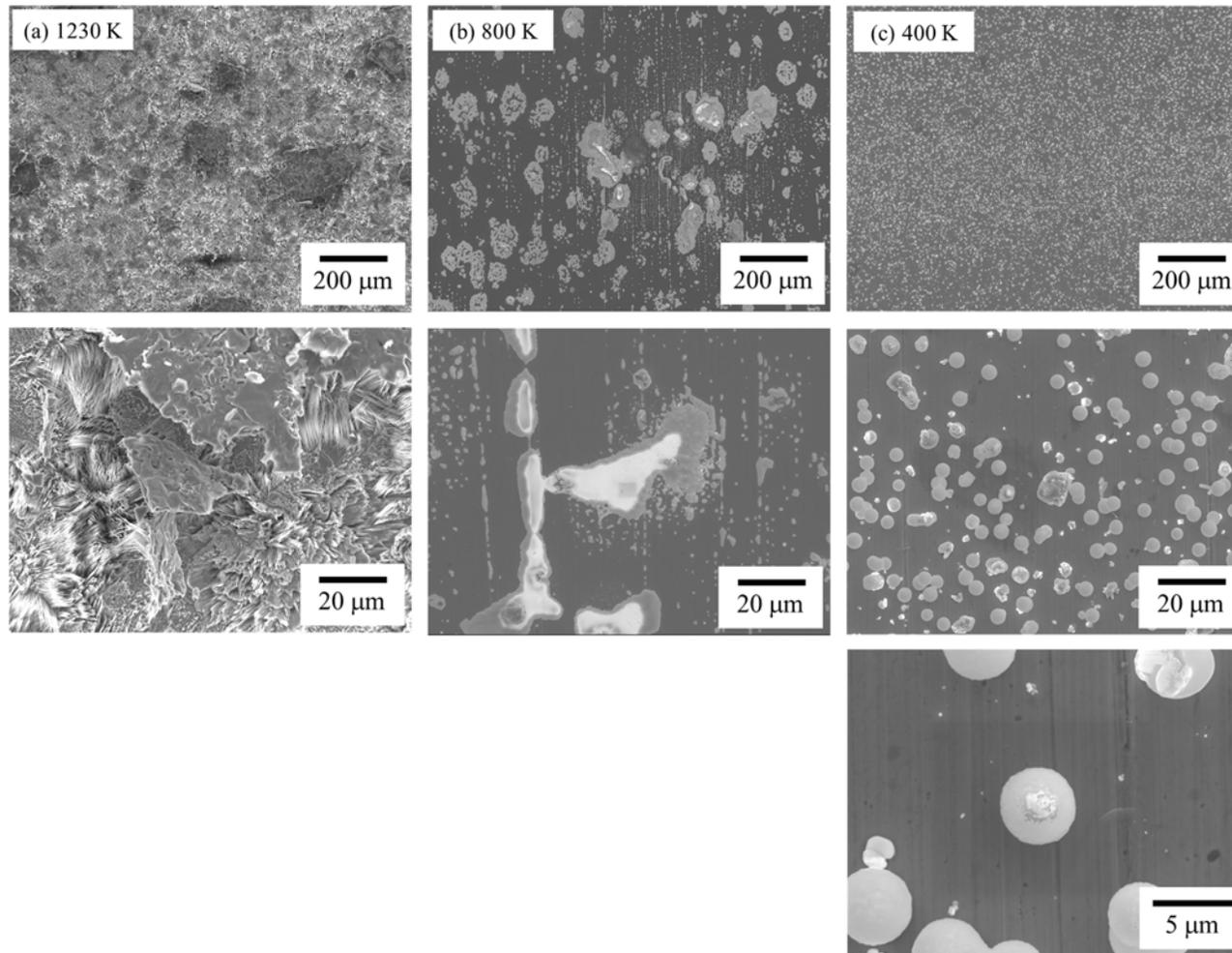


図 2.2.2.23 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物の二次電子像：1 L/min（使用装置：TeRRa）

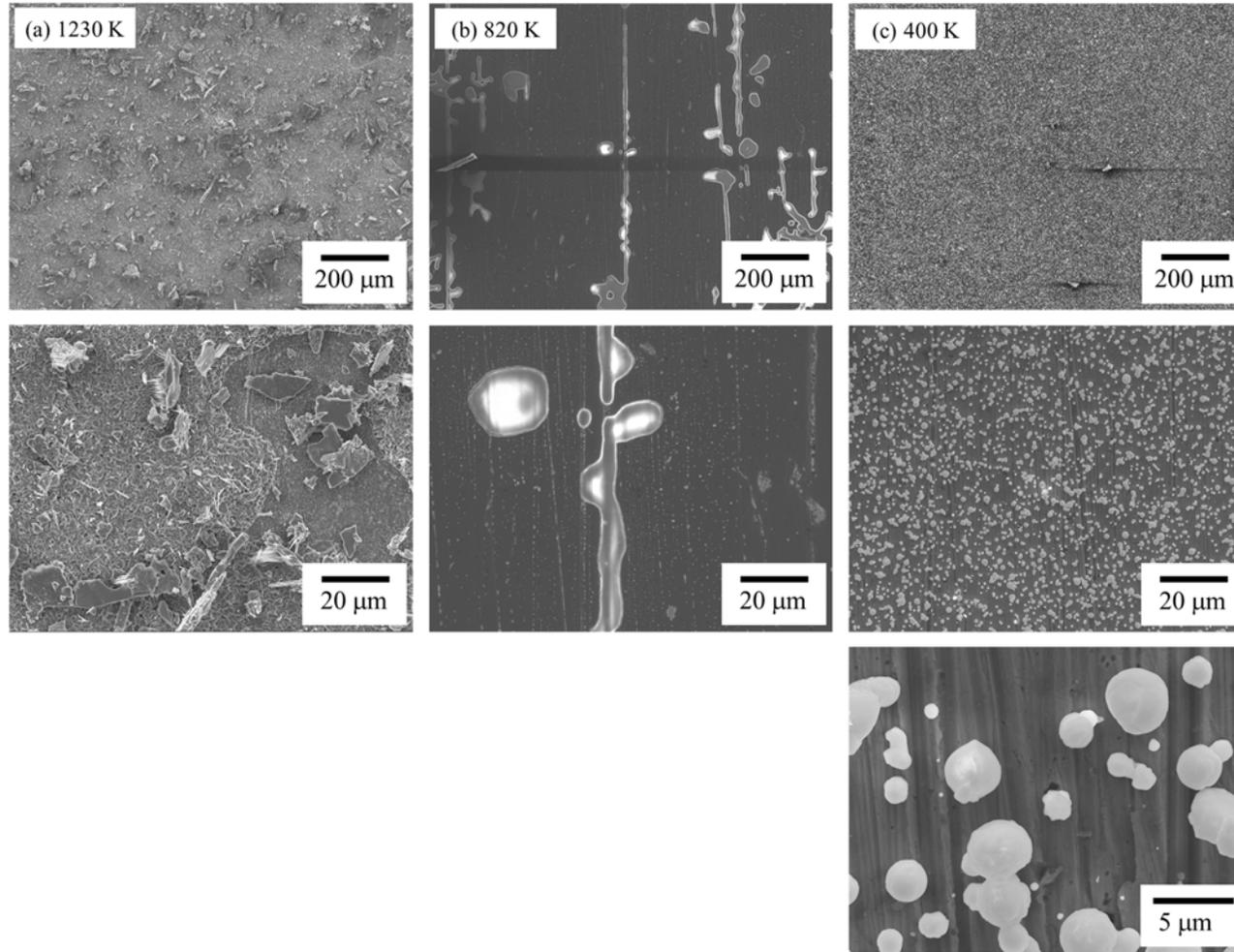


図 2.2.2.24 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の  $\text{CsI}+\text{B}_2\text{O}_3$  実験におけるサンプリング管沈着物の二次電子像：0.5 L/min（使用装置：TeRRa）

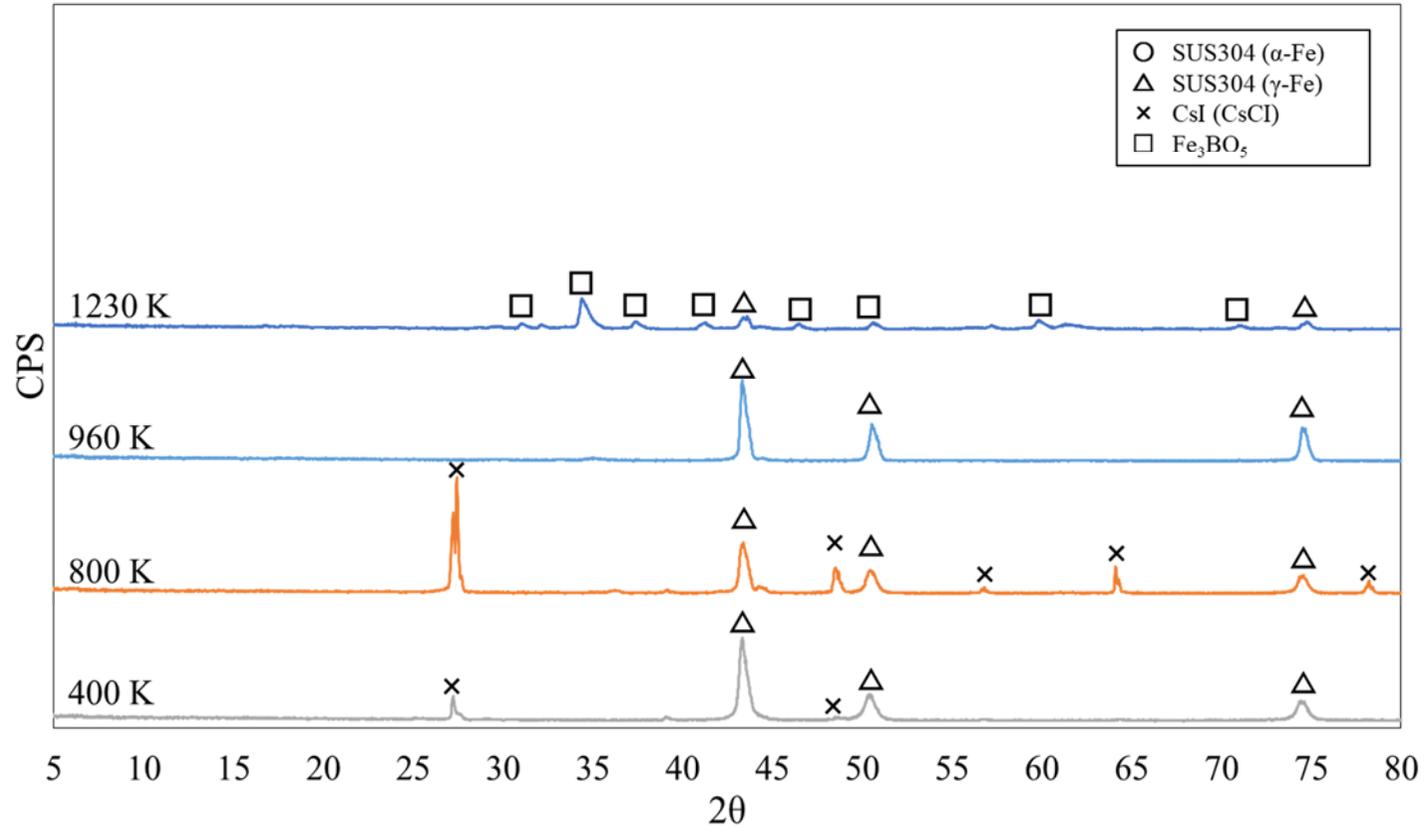


図 2.2.2.25 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物の X 線回折ピーク：2 L/min（使用装置：TeRRa）

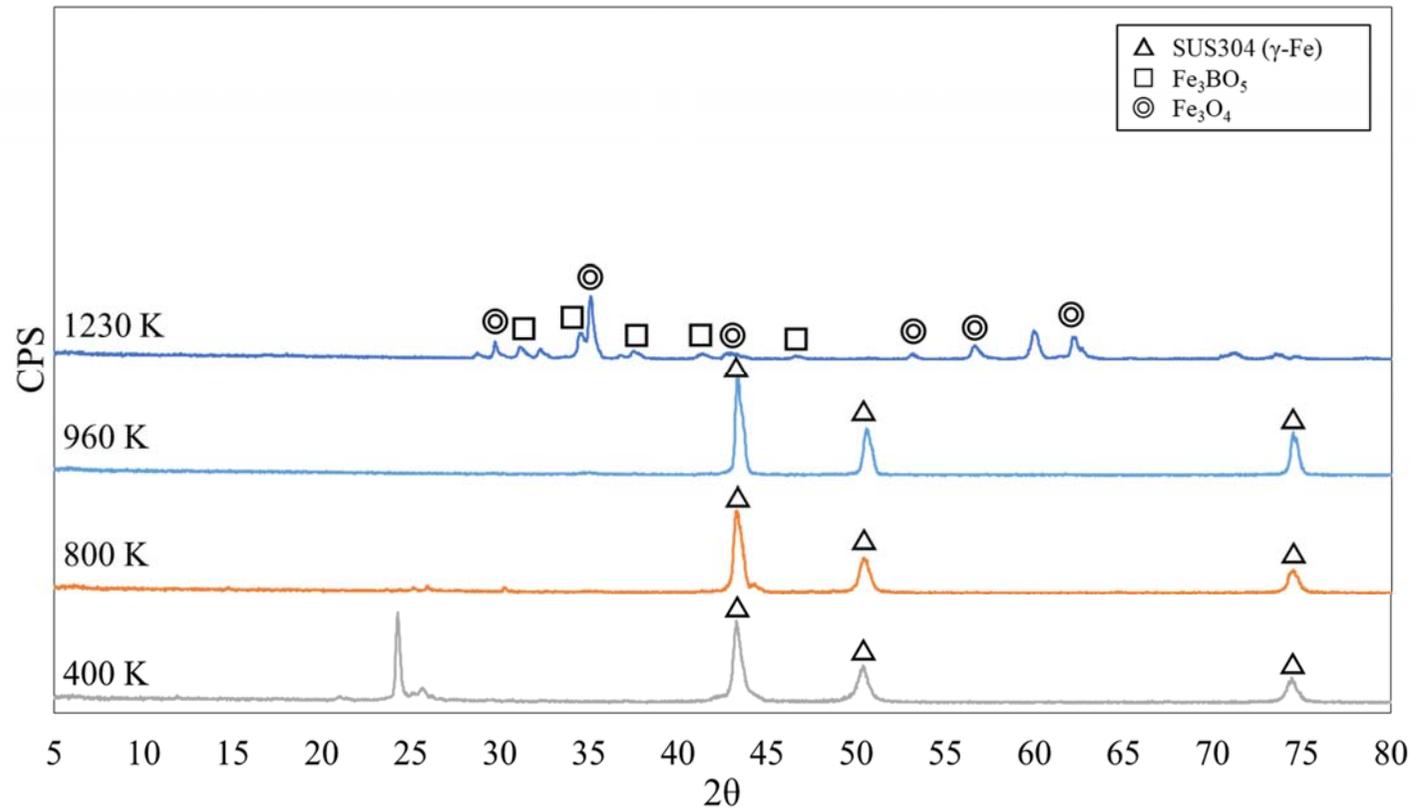


図 2.2.2.26 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の  $\text{CsI} + \text{B}_2\text{O}_3$  実験におけるサンプリング管沈着物の X 線回折ピーク：1 L/min（使用装置：TeRRa）

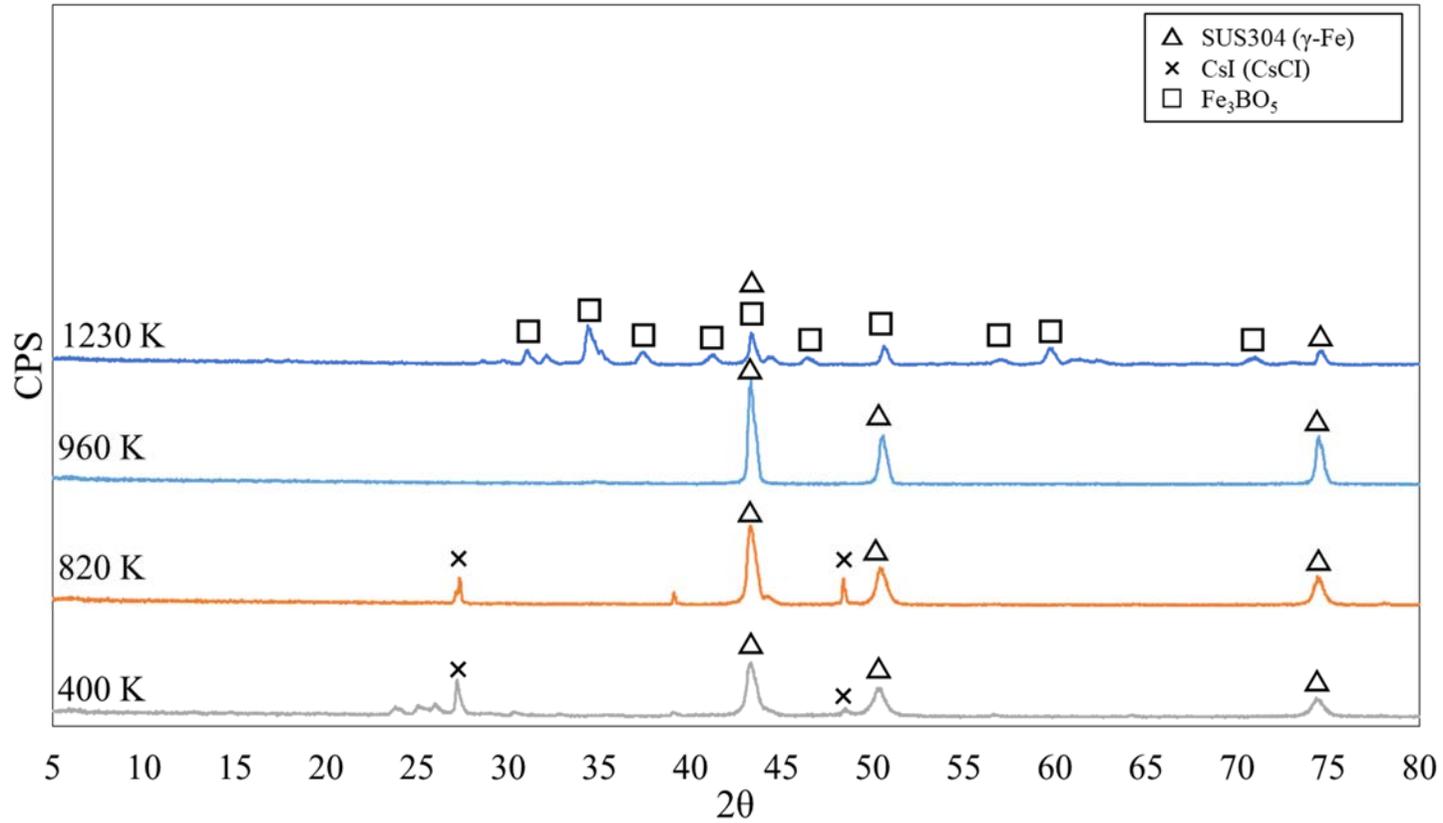


図 2.2.2.27 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の  $\text{CsI}+\text{B}_2\text{O}_3$  実験におけるサンプリング管沈着物の X 線回折ピーク : 0.5 L/min (使用装置 : TeRRa)

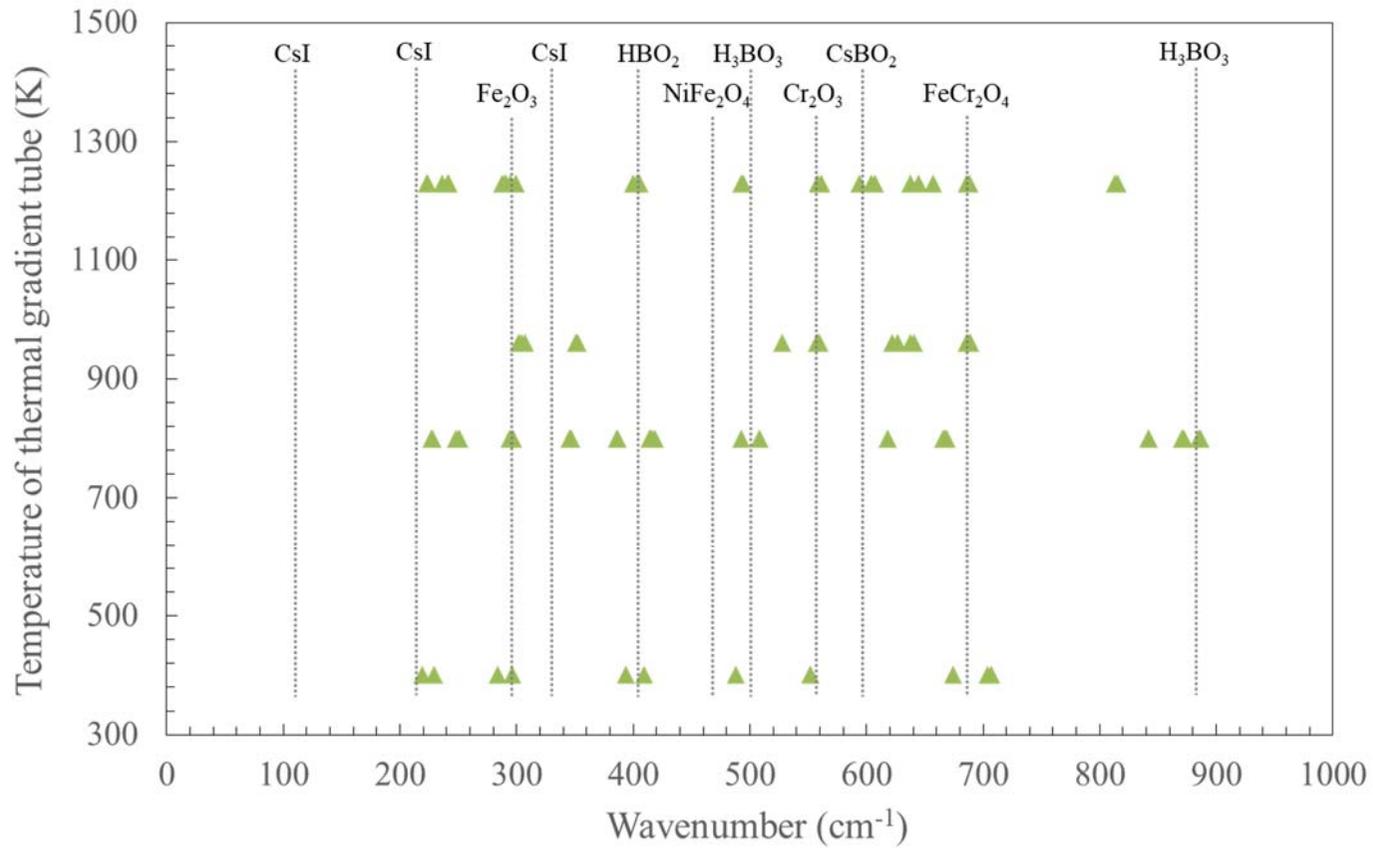


図 2.2.2.28 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物のラマンスペクトルピーク位置：2 L/min  
(使用装置：TeRRa)

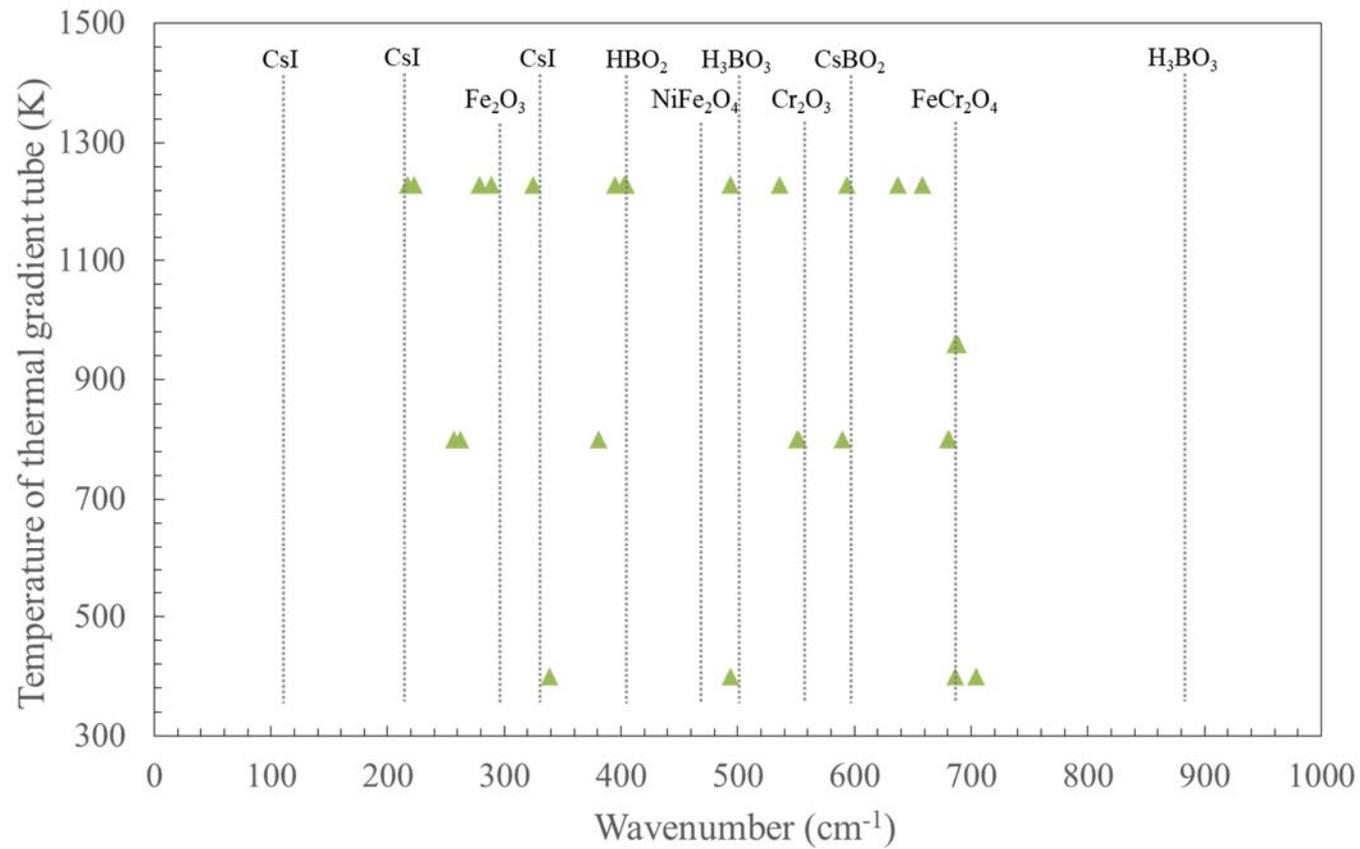


図 2.2.2.29 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物のラマンスペクトルピーク位置：1 L/min  
(使用装置：TeRRa)

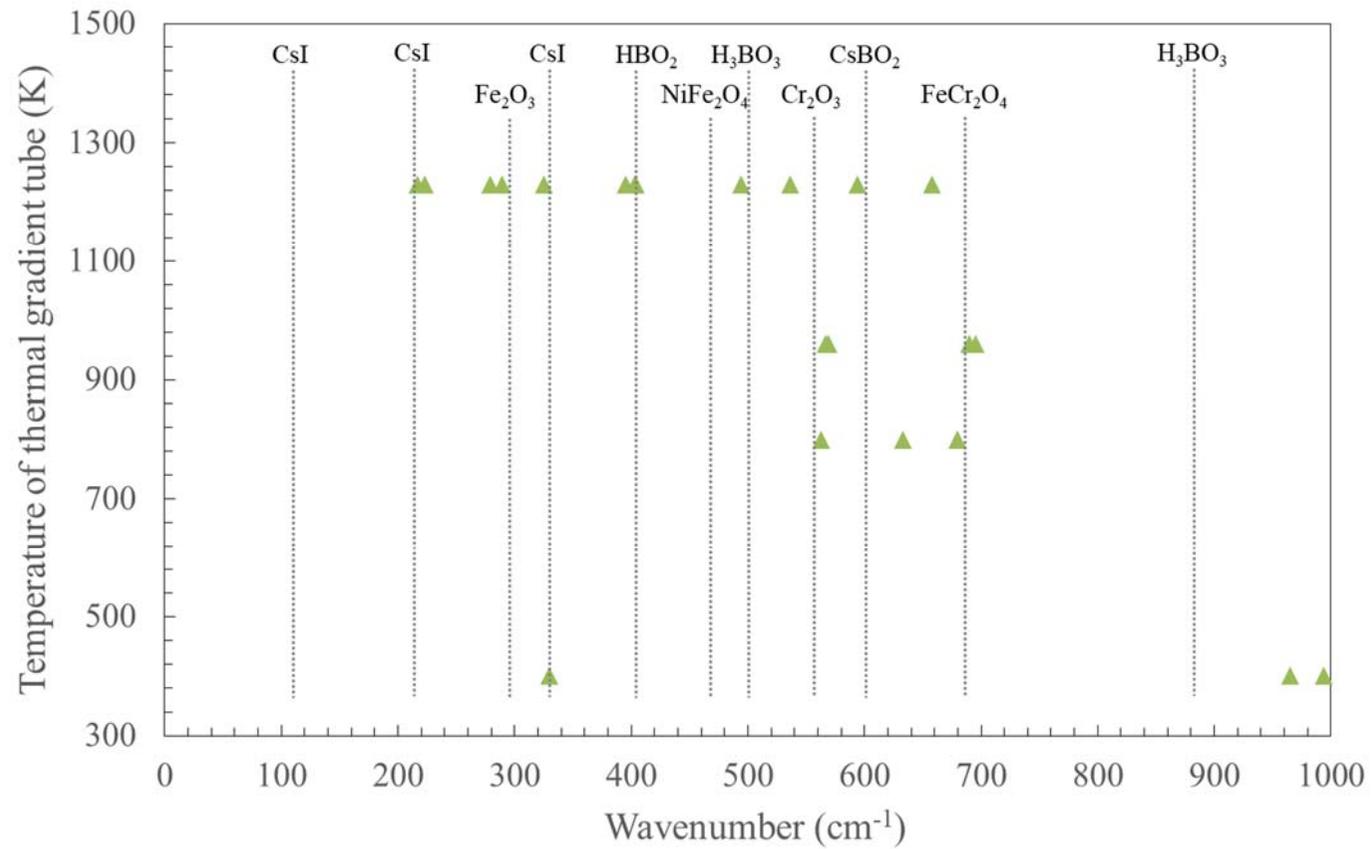


図 2.2.2.30 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物のラマンスペクトルピーク位置：0.5 L/min  
(使用装置：TeRRa)

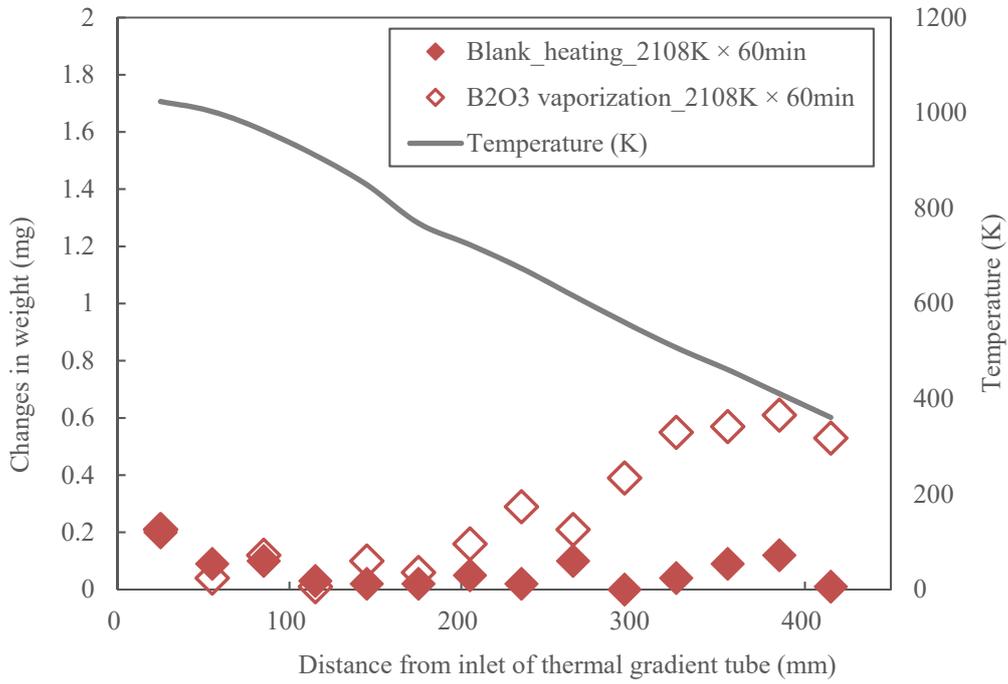


図 2.2.2.31 水素雰囲気での固相-気相間反応実験の B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管の重量変化 (変動係数 CV 値 : 0.004%) (使用装置 : AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

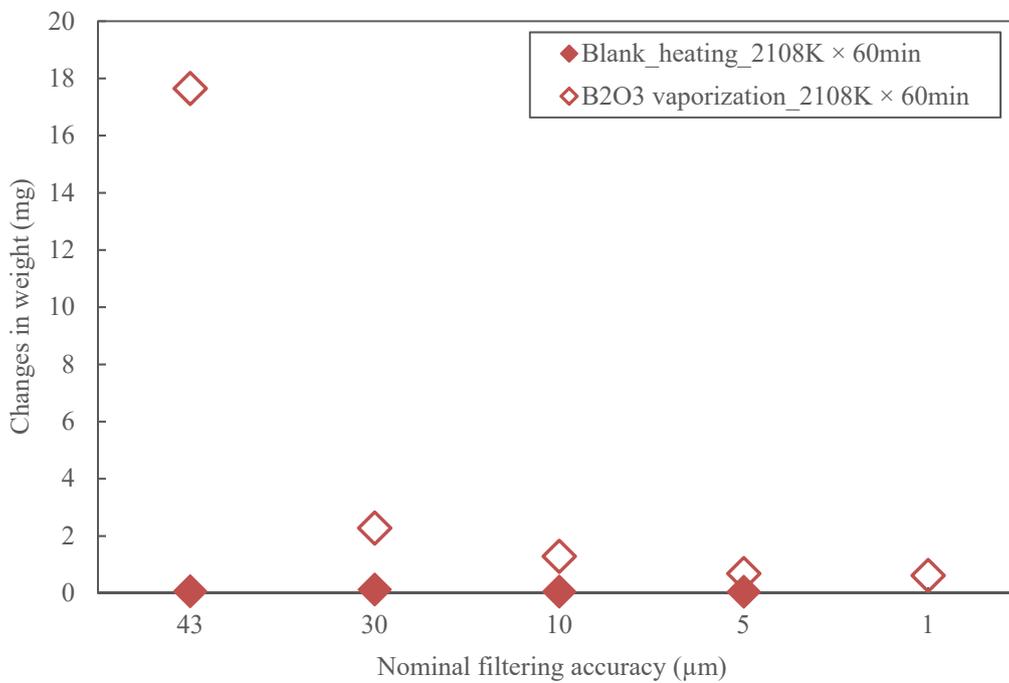


図 2.2.2.32 水素雰囲気での固相-気相間反応実験の B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験における焼結金属フィルタの重量変化 (変動係数 CV 値 : 0.004%) (使用装置 : AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

## 2.3 FP 化学及び移行に係わる解析

### 2.3.1 熱力学平衡計算による FP 移行挙動の予測性能評価

#### 2.3.1.1 目的

シビアアクシデントにおいて燃料から放出される核分裂生成物 (FP) の化学形は、それら特有の物性値 (飽和蒸気圧等) により原子炉内での移行挙動に大きく影響し得る。これまで、ASTEC[2.3.1.1]や VICTORIA2.0[2.3.1.2]の一部のシビアアクシデント総合解析コードでは、化学分野で一般的に使用される化学モデルである熱力学平衡に基づきその影響を評価している。しかしながら、近年着目されている BWR の制御材等に使用されるホウ素 (B) を考慮した FP 化学挙動についての妥当性は十分に評価されていない。そこで本解析では、B 含有条件の各実験を対象に、熱力学平衡計算機能を有するシビアアクシデント総合解析コード VICTORIA2.0 による解析を実施し、その予測性能を評価を進めている。本年度は、FP 移行挙動模擬試験装置 (TeRRa) を用い水蒸気条件でのセシウム (Cs) 及びヨウ素 (I) と B の相互作用に着目した実験 (同事業内で平成 29 年度に実施[2.3.1.3]) を対象とし、その妥当性を評価した。さらに、TeRRa 実験解析の結果及び、過去に実施した熱力学平衡計算の FP 移行挙動に係る予想性能の評価結果を整理した。

#### 2.3.1.2 TeRRa 実験解析

##### (1) 解析条件

解析で模擬した TeRRa 装置の体系を図 2.3.1.1 に示す。対象は、ヨウ化セシウム (CsI) を設置する加熱炉内のるつぼ位置から温度勾配管の出口までとした。セル 1 から導入されたキャリアガスによって蒸発した FP は、温度勾配管を通過し、フィルターや液相トラップを模擬する環境セルに流入する。加熱炉セルは、CsI と酸化ホウ素 ( $B_2O_3$ ) のるつぼ装荷位置と加熱炉—温度勾配管間のコールドスポットを模擬できるように計 4 セルに分割している。また、温度勾配管に該当するセルは総計 13 セルとした。温度勾配管の各セルあたりの内径と長さは、それぞれ 38、100 mm である。このセルサイズは、ICP-MS による実験分析を実施した際のサイズと同一である。

境界条件として使用する加熱炉内での壁面温度履歴を図 2.3.1.1 に示す。ここで、4 セルで構成される加熱炉内の温度は、炉の特性により均一の壁面温度でなく、上流より 2 つ目のセルに温度の極大値を持つ。図 2.3.1.1 では、壁面温度が極大値となる点の温度を示している。実験と同様に、解析では、低温から 10 K/min で 1273 K まで昇温し、60 分間 1273 K を保持する。その後の 7.5 K/min での降温期間の一部までを解析対象とした。また、温度勾配管に該当する各セルの壁面温度は、解析中常に一定とし、図 2.3.1.1 のセル上部に示す温度を与えている。

キャリアガスは、露点 60 °C 相当の  $H_2O$  で加湿した Ar をセル 1 の上流より導入している。ガス流速は、解析中常に 2.0 L/min (室温換算) となるように設定した。また、各解析セルにおけるキャリアガス温度は、層流 (ヌセルト数  $Nu=4.0$ ) と仮定し、簡易的な熱伝達計算で決定した。最高温度 1273 K の温度プラトーにおいて、温度勾配管セルの雰囲気温度は、

壁面温度よりも約 15~30 K 高い温度を示す。各セルにおける雰囲気流速は、計算で得られた雰囲気温度とキャリアガス体積流量から大気圧を仮定して決定している。

CsI および B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の蒸発速度は、実験で得られた実験前後のるつぼ内の試料重量変化と各化合物の蒸発に係る活性化エネルギー[2.3.1.4]より温度を変数とするアレニウス型の蒸発速度式を作成し、その式で推定された蒸発量を境界条件とし与えた。なお、蒸発物の導入位置は、各試料で異なり、セル 1 に CsI (g) をセル 2 に B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (g) が発生するように設定している。

VICTORIA2.0 コードに関するその他解析条件として、エアロゾル粒径範囲を  $1.0 \times 10^{-18} \sim 1.0 \times 10^{-9}$  kg とし、その範囲を 13 分割している。また、本実験は気相反応に着目したものであるため、壁面素材は不活性とし、壁面素材との化学的な相互作用は考慮しないものとした。解析の時間ステップは、0.2 秒である。

解析のパラメータとして、B が Cs 及び I の移行挙動に与える影響に着目するために、実験パラメータと同様に、CsI のみを装荷したケースと CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を装荷したケースの解析を行った。

## (2) 解析結果

### (a) CsI 実験に係る解析

CsI のみを装荷したケースでの Cs 装置内蓄積分布の経時変化に係る解析結果を図 2.3.1.3 に示す。Cs 及び I は、加熱炉内の最高温度 1273 K で著しくるつぼより蒸発し、約 61% が温度勾配管内に凝縮/沈着し、残りの 39% が最下流の捕集領域へ移行した。また、解析において Cs と I の移行量/装置内分布は、常に等量であった。実験分析で得られた装置内分布の割合 (温度勾配管で 47%、捕集領域で 53% [2.3.1.3]) と比較すると、概ねの移行挙動を予測できていると考えられる。

解析終了時における温度勾配管内での Cs 及び I の分布について、実験と比較した結果を図 2.3.1.4 に示す。解析では、温度勾配管入り口からの距離 400~500 mm (壁面温度 800 K に相当) に該当するセルで Cs 及び I の存在量が最大であった。この傾向は、実験と一致しており、定量誤差も 10% より小さく、非常によく Cs 及び I の挙動を予測できていることが示された。また、解析において、最下流の捕集領域に到達した 40% の Cs 及び I の物理状態は、100% がエアロゾル状であり、この傾向についても実験との一致を得ている。また、VICTORIA2.0 解析結果における温度勾配管内の沈着物及び捕集領域のエアロゾルの化学形を分析したところ、ほぼ全ての沈着物が CsI であることが示された。この結果は、同沈着物の X 線解析ピーク分析において CsI 構造を検出した実験結果 [2.3.1.3] よりもサポートされており、妥当であると考えられる。

TeRRa 装置内の移行する気体状化学種に係る解析結果をまとめたものを図 2.3.1.5 に示す。なお図 2.3.1.5 は、最高温度プラトーにおける各セル内の気体状の化学種濃度をプロットした物であり、るつぼより蒸発したプルーム内の組成変化を示すものでない点に留意すべきである。横軸の負値は、温度勾配管よりも上流に位置する加熱炉セルを意味する。図 2.3.1.5 より加熱炉セルでは、気体状の CsI と数% オーダーの原子状 I と CsOH として移行していると予想される。また、温度勾配管入り口からの距離が 300 mm 以上では、気体状 CsI の壁面

凝縮によりその濃度が急激に減少し、温度勾配管出口では気体状の化学種が存在しないことが示された。

以上より、水蒸気雰囲気における Cs 及び I の移行/化学挙動は、熱力学平衡計算と気体/エアロゾルに係る物理的な移行モデルの組み合わせで予測し得ることが示された。また、VICTORIA2.0 コードを用いた本系での予測の誤差範囲は 10%以下と実験誤差に近い範囲であり、十分な精度であると言える。

#### (b) CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験に係る解析

CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を装荷したケースでの各元素の装置内分布の経時変化に係る解析結果を図 2.3.1.6 に示す。Cs 及び I は、CsI のみの解析と同様に、加熱炉内の最高温度 1273 K に著しくつぼより蒸発した。解析終了時の Cs の装置内分布は、64%が温度勾配管内に存在し、残りの 36%が最下流の捕集領域へ移行した。また、実験分析で得られた装置内分布の割合は、加熱炉内で 30%、温度勾配管で 30%、捕集領域で 27%[2.3.1.3]) であり、本解析結果は加熱炉内での Cs 沈着/凝縮量を実験よりも 30%少なく評価した。さらに、上流での Cs 沈着/凝縮量の過小評価したため、下流に位置する温度勾配管への流入する Cs 量や温度勾配管内の沈着/凝縮量を過大評価したと考えられる。また、I の装置内分布に係る解析結果は、温度勾配管に 63%、捕集領域に 37%であり、Cs と同様に、実験結果（温度勾配管で 33%、捕集領域で 67%[2.3.1.3]) と大きく異なった。実験での捕集領域における I の物理状態は、捕集領域での総量 67%の内 31%が気体状、36%がエアロゾル状であるのに対し、解析では捕集領域での総量 36%の内、気体状の I は 1%、35%がエアロゾル状であった。つまり、解析では、約 30%の気体状 I の移行を過小評価していることが分かった。

温度勾配管での Cs 及び I の分布について実験と比較した結果を図 2.3.1.7 に示した。実験と解析の両結果において、温度勾配管入り口からの距離 400~500 mm（壁面温度 800 K に相当）での Cs 及び I の沈着/凝縮ピークが示された。また解析では、温度勾配管での沈着/凝縮量の極大値について Cs 及び I 共に 10%程度の実験よりも多く評価された。上述した通り、この誤差は、Cs に関して上流に位置する加熱炉での沈着/凝縮量の過小評価、I について最下流の捕集領域への気体状 I としての移行量を過小評価しているためだと考えられる。また、VICTORIA2.0 解析結果における温度勾配管内の沈着物及び捕集領域のエアロゾルの化学形を分析したところ、ほぼ全ての沈着物が CsI であることが示された。この結果は、同沈着物の X 線解析ピーク分析において CsI 構造を検出した実験結果[2.3.1.3]よりもサポートされており、妥当であると考えられる。

TeRRa 装置内の移行する気体状化学種に係る解析結果をまとめたものを図 2.3.1.8 に示す。なお図 2.3.1.8 は、図 2.3.1.5 と同様に、最高温度プラトーにおける各セル内の気体状の化学種濃度をプロットした物である。図 2.3.1.8 より加熱炉セルでは、気体状の CsI、ホウ酸セシウム (CsBO<sub>2</sub>)、原子状 I が同程度の濃度で存在していることが予想された。加熱炉セルで生成している CsBO<sub>2</sub> と原子状 I は、温度勾配管の入り口からの距離が大きくなるにつれて減少した。また、温度勾配管入り口からの距離-100~300 mm での CsBO<sub>2</sub> の濃度減少量は、原子状 I の減少量とおおむね等しい (モル等量)。気体状 CsI は、温度勾配管入り口からの距離が 300 mm 以上での壁面凝縮によりその濃度が急激に減少している。また、温度勾配管

出口において気体状の化学形は、ヨウ化水素 (HI) やガス状ヨウ素 (I<sub>2</sub>) であることが示された。したがって、解析で捕集領域に到達した 1% の気体状 I は、HI や I<sub>2</sub> の化学形であると予想される。

#### (c) 水蒸気雰囲気における Cs 及び I 移行挙動に対する B の影響評価

TeRRa 装置を用いた水蒸気雰囲気での Cs 及び I 移行挙動に対する B の影響評価実験での最大の成果は、B 含有系で低温領域での気体状 I が有意に増加すること (捕集領域における気体状 I の割合 B 無 : 3%、B 有 : 31%) を示した点である。同項(a)及び(b)に示した通り、熱力学平衡計算機能を用いた評価による捕集領域での気体状 I の割合は、B 無の場合 0%、B 有の場合 1% と B 含有による増加が予測されている。したがって、熱力学平衡計算により B の Cs 及び I に対する影響を定性的に評価し得ると考えられる。一方で、その増加量は実験に比べて非常に小さく、熱力学平衡計算による評価は定量性に課題があると考えられる。

課題の特定に向けて、本解析結果を用いて B による気体状 I の増加のメカニズムを推定した。メカニズムの推定にあたり、解析で予想された TeRRa 装置内の気体状化学種の変容 (図 2.3.1.5、2.3.1.8) について着目する。図 2.3.1.5、2.3.1.8 の比較により明らかなように、B の有無によって加熱炉内での化学組成が大きく異なる。B が無い場合では CsI が主要な化学種なのに対し、B がある場合では CsI、CsBO<sub>2</sub>、原子状 I の組成である。つまり、B によって CsI が一部 CsBO<sub>2</sub> に変化したと考えられる。CsI から CsBO<sub>2</sub> への変化反応について、原子状 I や HI の割合も B 含有系で増加していることを考慮すると下記の反応が予想される。



ここで、化学種名に付随する(g)は、気体状の化学種であることを意味している。式(2.3.1.1)及び(2.3.1.2)の反応は、加熱炉等の高温領域でのみ自発的に進行するが、低温部では I(g)や CsBO<sub>2</sub>(g)が不安定であるため、逆反応が進行する。これらの推定反応は、温度勾配管入り口からの距離-100~300 mm での CsBO<sub>2</sub> 及び原子状 I の濃度減少に伴う CsI 濃度の増加の傾向と一致しており妥当であると考えられる。したがって、B 含有によって増加した気体状 I は、CsBO<sub>2</sub> の生成反応に伴って生成したことが示唆される。

Cs 及び I に対する B の影響反応の一部である式(2.3.1.2)は、HI の生成や分解を示すものである。この反応は、I—O—H 系において反応速度が比較的遅く (数秒から数 100 秒のオーダー) 化学組成に影響を与える重要な因子であることが報告されている[2.3.1.5]。したがって、本解析系においても式(2.3.1.2)の逆反応が遅く高温部から低温部に移行する際の CsBO<sub>2</sub>→CsI への化学反応が十分に進行していない可能性が考えられる。熱力学平衡計算は、瞬時に平衡状態 (組成) になると仮定しており、反応速度の効果を考慮できない。そのため、本解析で予測された気体状 I 割合の誤差が大きくなったと推定される。

### 2.3.1.3 熱力学平衡計算による FP 移行挙動の予測に関する知見の整理

本事業において、熱力学平衡計算の予測性能を評価するために、同機能を有する VICTORIA2.0 コードを用いて実験解析を実施している。対象とした実験は、仏 CEA が主導して実施した VERDON-2 及び-5 実験、JAEA の AGF/FP 移行挙動模擬試験装置及び TeRRa 装置を用いた実験である。各実験装置はその体系が異なっており、それぞれの予測精度を単純に比較することが困難である。そのため、下記の 2 項目を設定し予測性能を評価した。

#### (1) 温度勾配管における元素分布

予測性能評価で対象とする各実験装置は、共通して約 1000~400 K の温度勾配管を有しており、その中で元素分布が測定されている。この元素分布は、移行する化学種の凝縮しやすさの違いにより現れたものである。したがって、温度勾配管での元素分布の傾向を実験一解析間で比較することで、約 1000~400 K で移行化学種をどの程度表現できているかを評価することが可能であると考えられる。ただし、この元素分布の比較では、約 1000~400 K の温度範囲で非凝縮性（気体状）として移行する化学形は評価することができない。非凝縮性の化学種の予測性能については、同項(2)について評価を行う。

温度勾配管の元素分布に係る評価では、温度勾配管の任意の点での元素量について横軸に実験値、縦軸に解析値をプロットし、全データ点に対して回帰直線  $y = ax + b$  とし、相関係数  $R^2$  を計算した（図 2.3.1.9~2.3.1.15）。つまり、評価した  $R^2$  が 1.0 に近いほど、温度勾配管内でのピーク位置やピーク比が定性的な傾向が正しいことを示す。

#### (2) 非凝縮性の化学種

予測性能評価で対象とする各実験装置は、再下流に捕集領域（VERDON 装置：カスケードインパクター + MayPack フィルター、AGF/TeRRa 装置：メンブレンフィルター + NaOH 溶液トラップ）を有しており、再下流に到達した化学種をエアロゾル状と気体状に分離し、定量している。そこで、再下流に到達したガス状の（初期インベントリに対する）割合について、絶対誤差を評価した（表 2.3.1.1）。なお本評価では、実験値を真の値と仮定する。

主要な FP である Cs 及び I の評価項目(1)及び(2)の結果について、雰囲気条件ごとに整理したものを表 2.3.1.1 に示した。評価の結果、相関係数  $R^2 \leq 0.1$  のようなその傾向を著しく評価できていないものは少ないことがわかった。また、 $UO_2$  や MOX 燃料を使用する複雑な実験の解析では、CsI 等の既知の試料を使用した実験の解析に比べて、その予測精度が低くなった。また、水蒸気雰囲気において Cs 及び I は、B を含まない解析に比べ B を含む解析では予測性能が悪化する傾向にあることが示された。直接の悪化要因は、各実験解析の分析結果から特定されておらず、今後検討する必要があると考えられる。同様に、I についての非凝縮性の化学種の評価誤差が大きい点も課題である。また、エアロゾルの沈着等のモデルにより相関係数が低下している可能性もあるため、化学モデル以外のその他モデルの影響考慮して化学モデルの予測性能を評価する必要があると考えられる。

参考文献

- [2.3.1.1] P. Chatelard et al., “ASTEC V2 severe accident integral code main features, current V2.0 modelling status, perspectives”, Nucl. Eng. Des., 272, p.119-135, 2014.
- [2.3.1.2] N. E. Bixler, “VICTORIA2.0, A Mechanical Model for Radionuclide Behavior in a Nuclear Reactor Coolant System under Severe Accident Conditions,”NUREG/CR-6131, 1998.
- [2.3.1.3] 平成 29 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）事業成果報告書，日本原子力研究開発機構，平成 30 年 9 月
- [2.3.1.4] CsI 蒸発の活性化エネルギー
- [2.3.1.5] B. Xerri et al., “Ab initio calculation and iodine kinetic modeling in the reactor coolant system of a pressurized water reactor in case of severe nuclear accident,” Comput. Theor. Chem.; 990, 194-208, 2012.
- [2.3.1.6] 平成 28 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）事業成果報告書，日本原子力研究開発機構，平成 29 年 3 月

表 2.3.1.1 熱力学平衡計算による FP 移行挙動予測結果

	水蒸気雰囲気①		水蒸気雰囲気②		酸化条件		還元条件		不活性条件	
	H <sub>2</sub> O	H <sub>2</sub> O+B	Ar+H <sub>2</sub> O	Ar+H <sub>2</sub> O	H <sub>2</sub> O+Air	H <sub>2</sub> O+Air+B	Ar+H <sub>2</sub>	Ar+H <sub>2</sub>	Ar	Ar
対象実験名	VERDON-2 (Phase 1-3)	VERDON-5 (Phase 1-3)	TeRRa_CsI	TeRRa_CsI+B	VERDON-2 (Phase 1-5')	VERDON-5 (Phase 1-5')	AGF_CsI	AGF_CsI+B	AGF_MOX	AGF_MOX+B
試料	MOX	UO <sub>2</sub>	CsI	CsI+B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MOX	UO <sub>2</sub>	CsI	CsI+B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MOX	MOX+B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
ホウ素の有無	×	○	×	○	×	○	×	○	×	○
Cs	1, TGT 内分布の 相関係数 R <sup>2</sup>	0.56	0.26	0.96	0.07	0.14		0.69	0.68	
	2, 非凝縮性化学 種割合の絶対誤差	EXP:N.D.	EXP:N.D.	EXP:N.D.	EXP:N.D.	EXP:N.D.		EXP:N.D.	EXP:N.D.	
I	1, TGT 内分布の 相関係数 R <sup>2</sup>	0.46	0.11	0.97	0.91	0.03		0.69	0.65	
	2, 非凝縮性化学 種割合の絶対誤差	—	—	-3.1%	-30%	20%		—		
	参考文献	2.1.2 項	[2.3.1.3]	2.3.1.2 項	2.3.1.2 項	2.1.2 項		[2.3.1.6]	[2.3.1.6]	

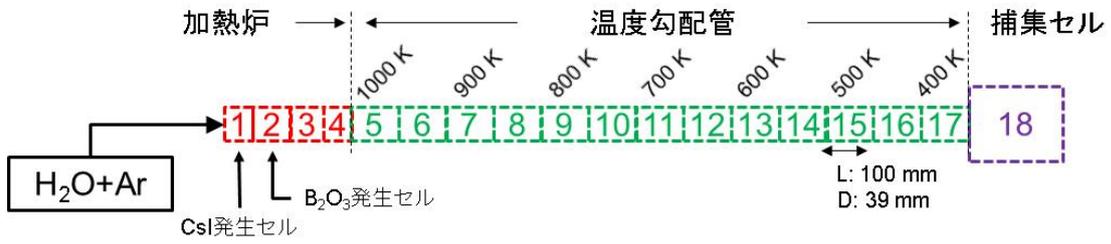


図 2.3.1.1 TeRRa 実験解析の体系

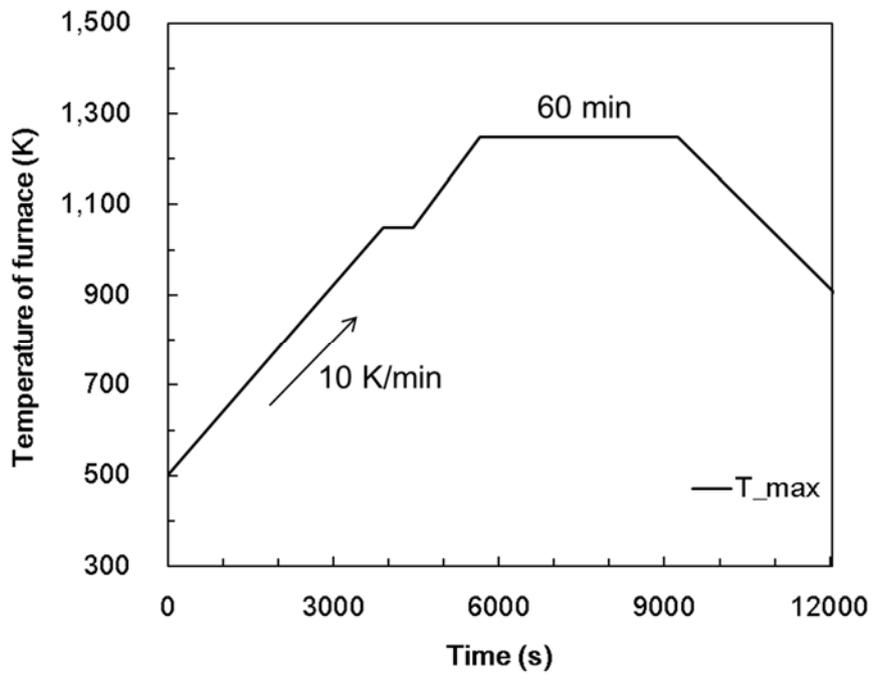


図 2.3.1.2 加熱炉内の温度履歴

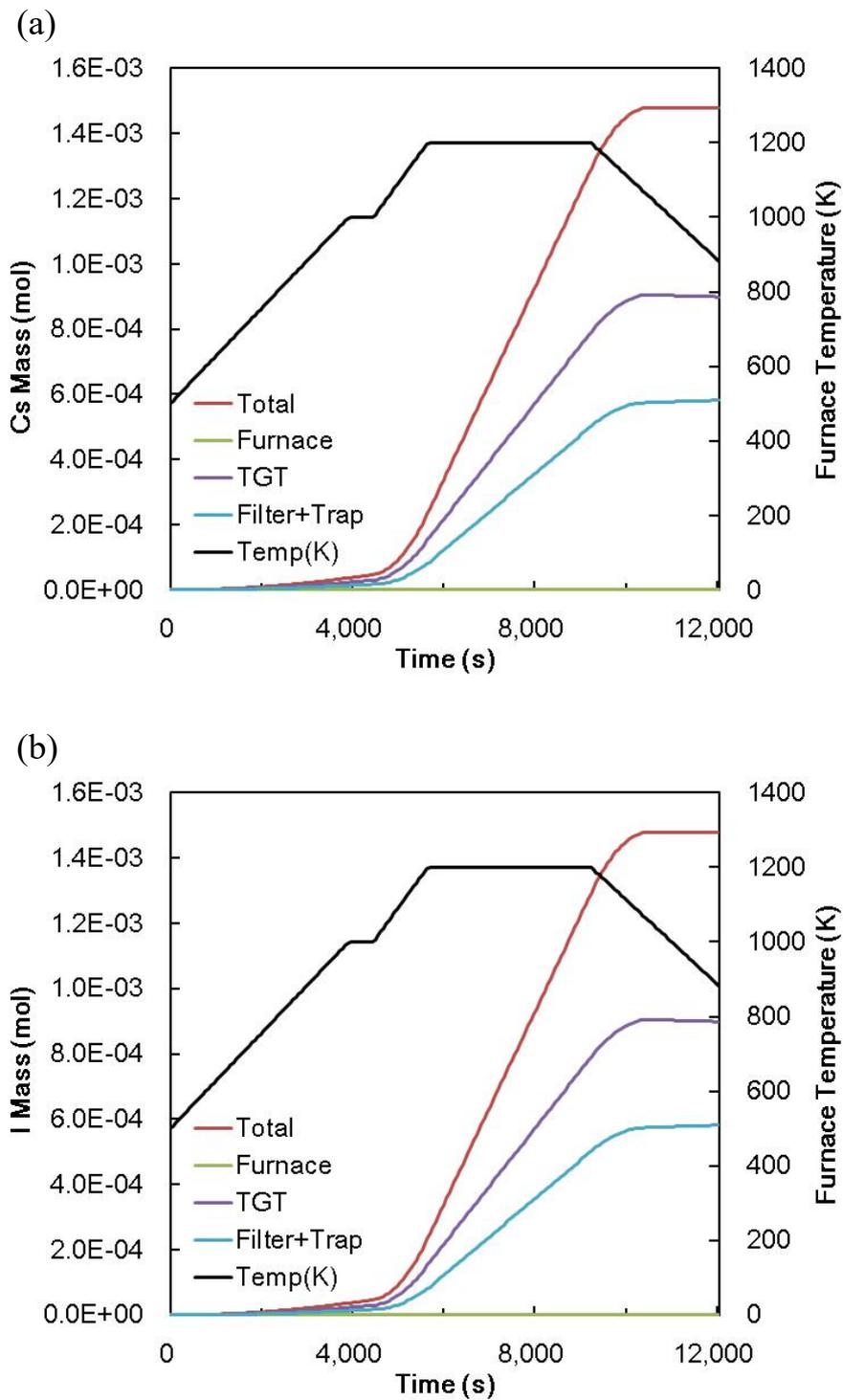
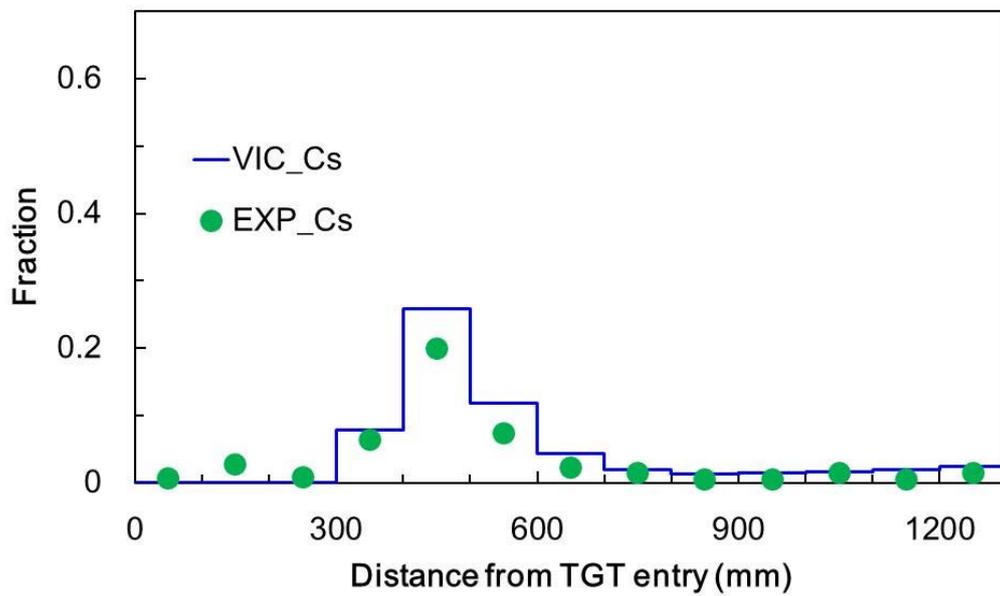


図 2.3.1.3 CsI のみを装荷した解析ケースでの(a)Cs 及び(b)I の装置内蓄積分布の経時変化

(a)



(b)

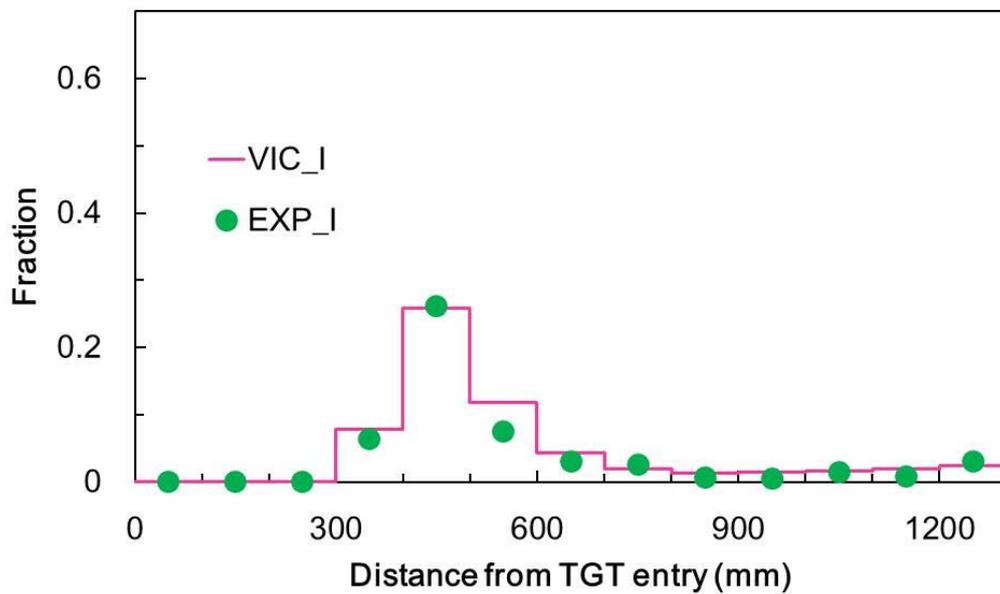


図 2.3.1.4 CsI のみを装荷した解析ケースでの(a)Cs 及び(b)I の温度勾配管内の蓄積分布  
実線：解析結果、●シンボル：実験結果

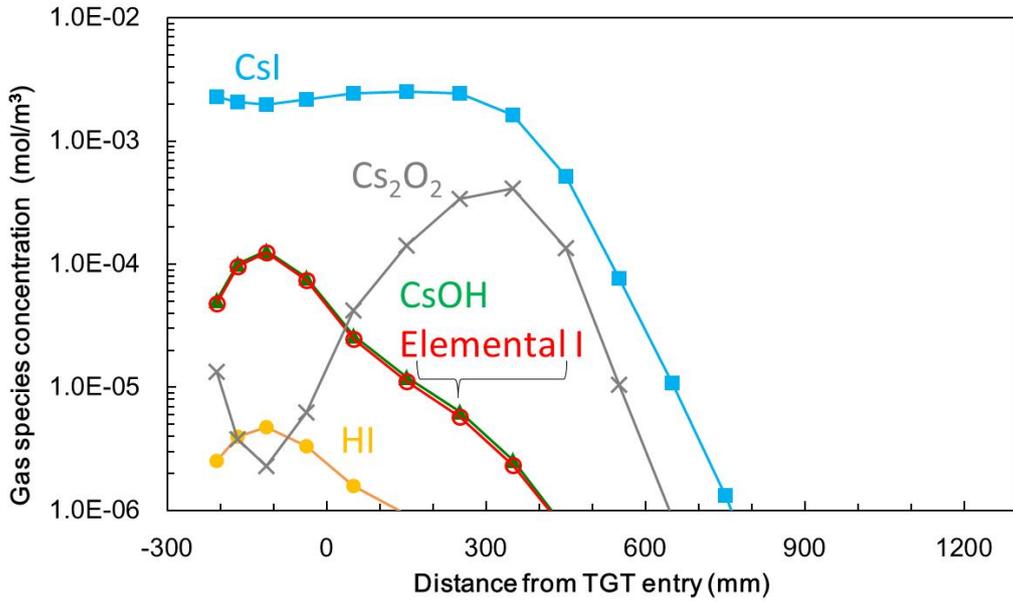


図 2.3.1.5 CsI のみを装荷した解析ケースでの装置内を移行する Cs 及び I の気体状化学種

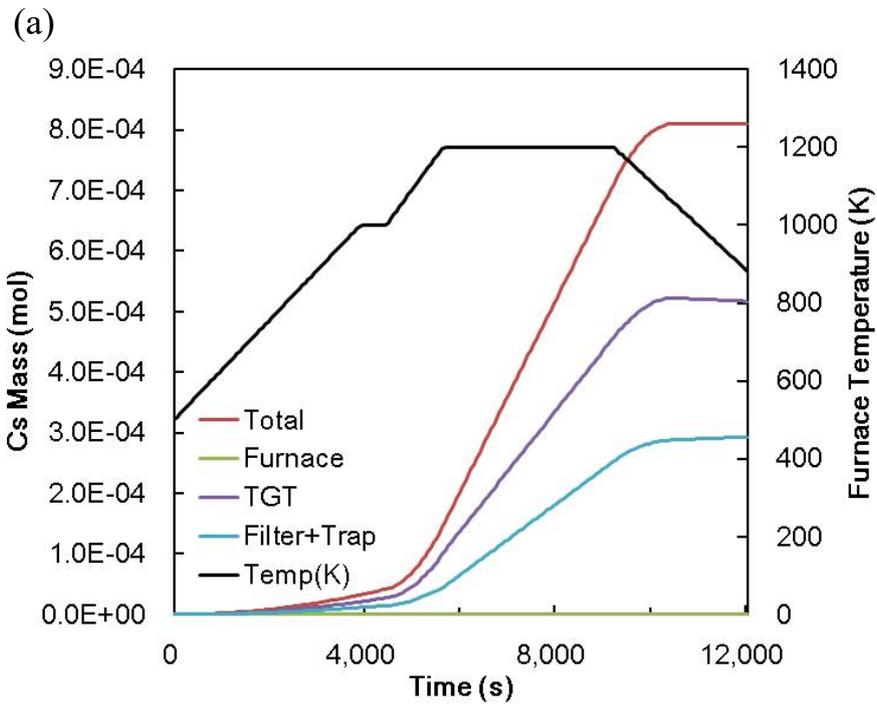


図 2.3.1.6 CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を装荷した解析ケースでの  
(a)Cs、(b)I 及び(c)B の装置内蓄積分布の経時変化

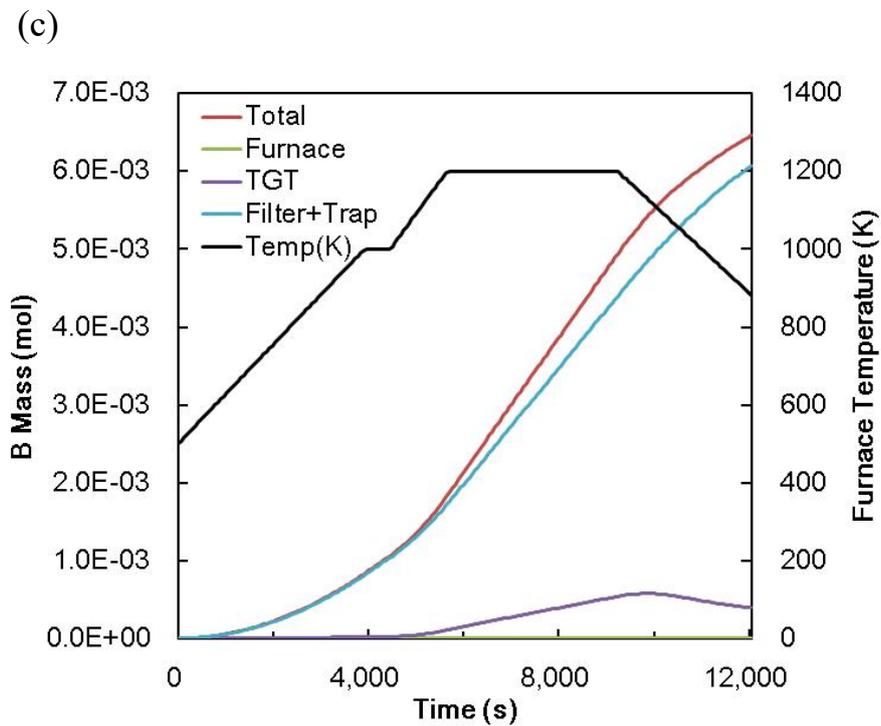
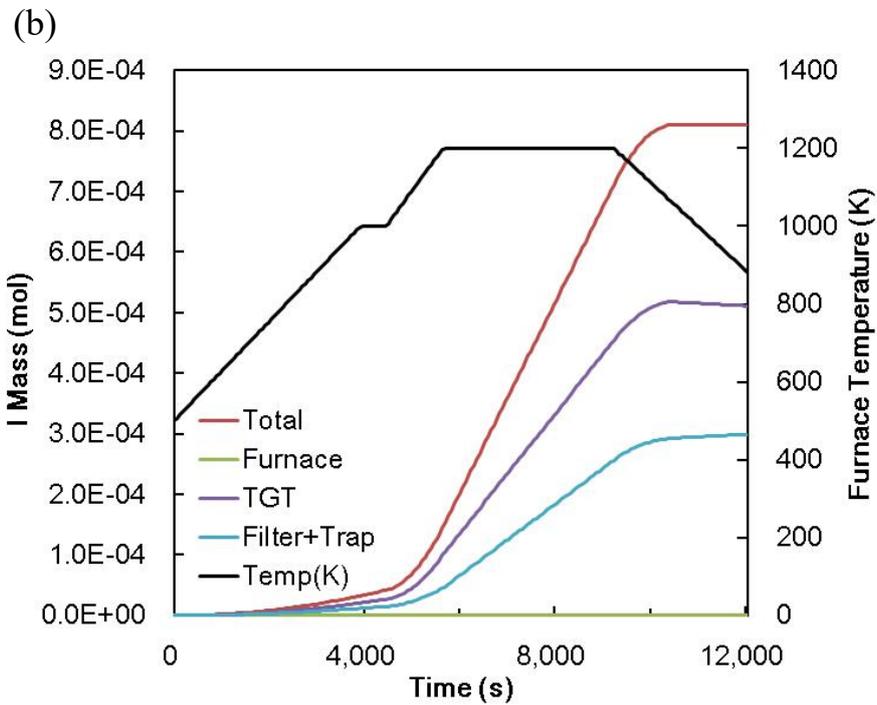
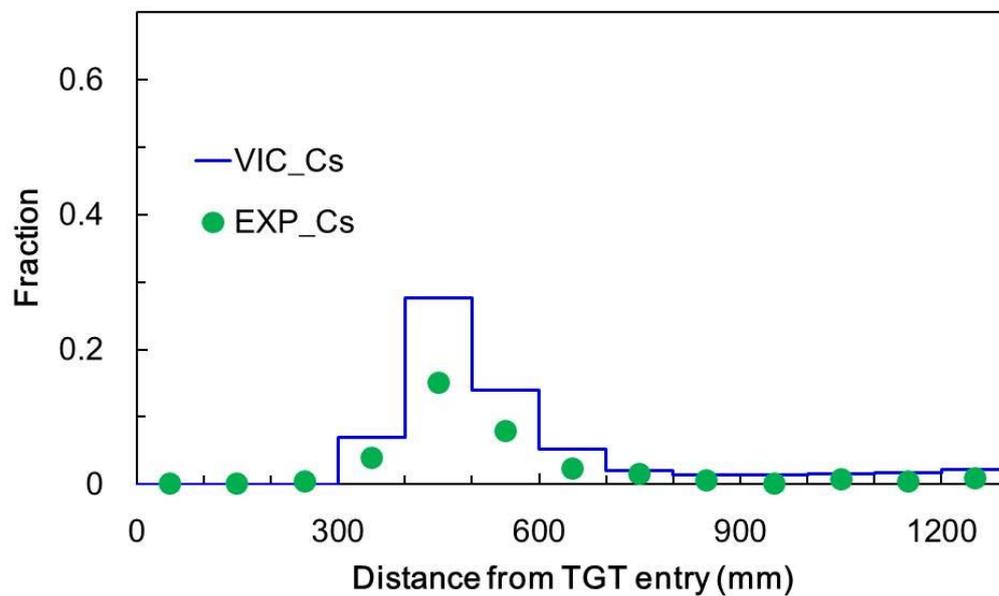


図 2.3.1.6 CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を装荷した解析ケースでの  
(a)Cs、(b)I 及び(c)B の装置内蓄積分布の経時変化 (続き)

(a)



(b)

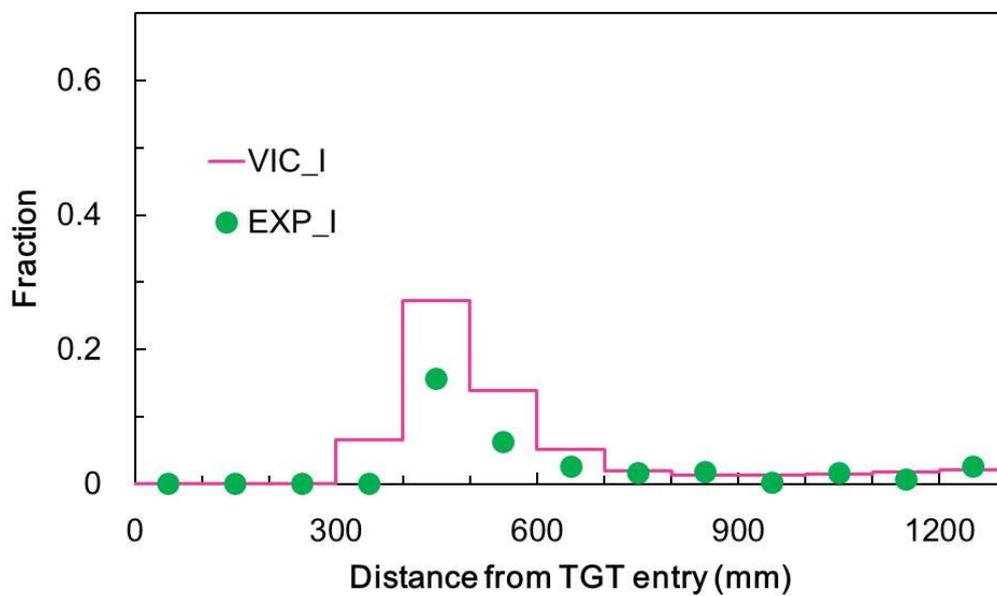


図 2.3.1.7 CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を装荷した解析ケースでの(a)Cs 及び(b)I の温度勾配管内の蓄積分布  
実線：解析結果、●シンボル：実験結果

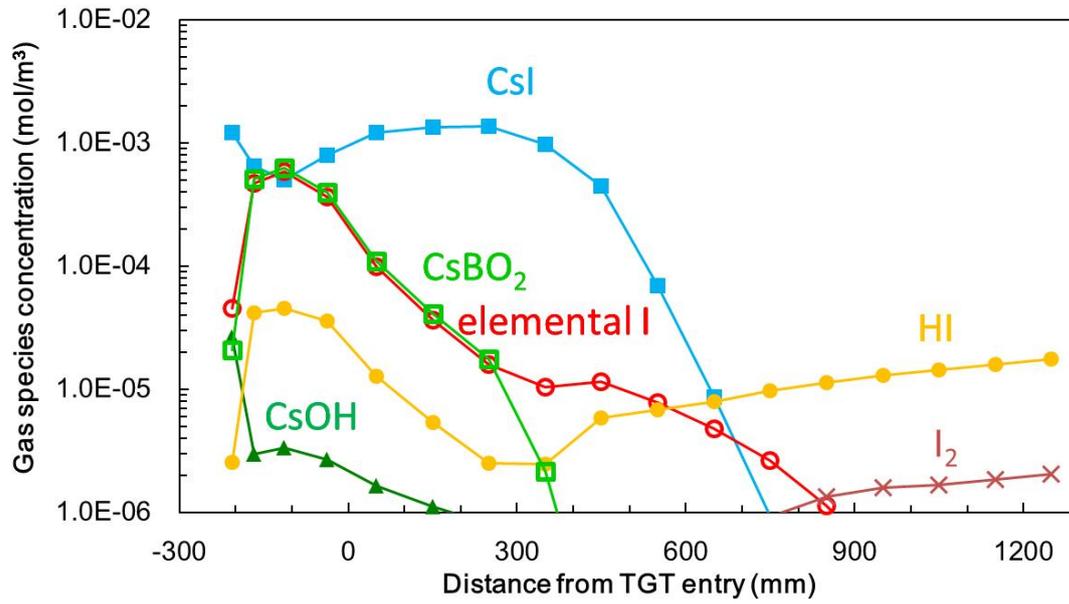
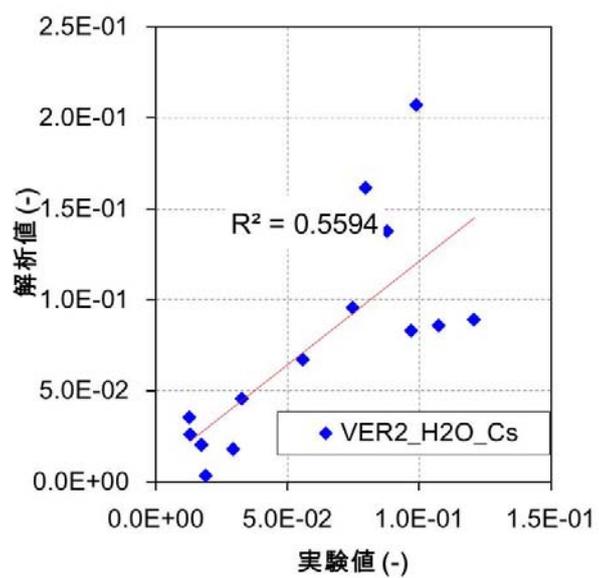


図 2.3.1.8 CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を装荷した解析ケースでの装置内を移行する Cs 及び I の気体状化学種

(a)



(b)

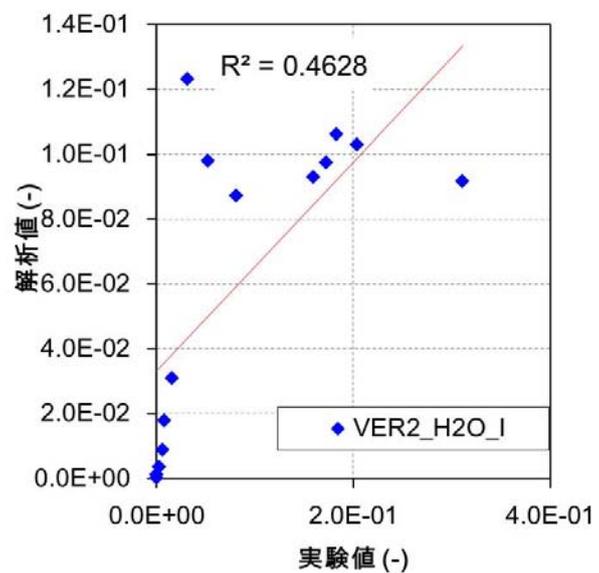
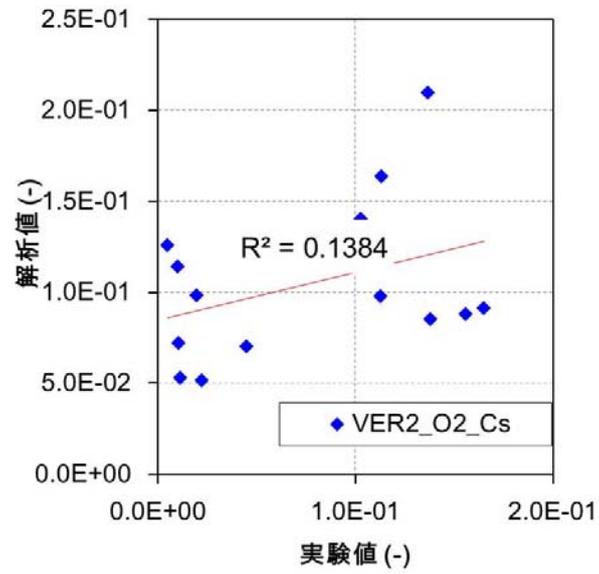


図 2.3.1.9 VERDON-2 実験の水蒸気雰囲気における温度勾配管内元素蓄積分布の予測精度  
(a) Cs、(b)I

(a)



(b)

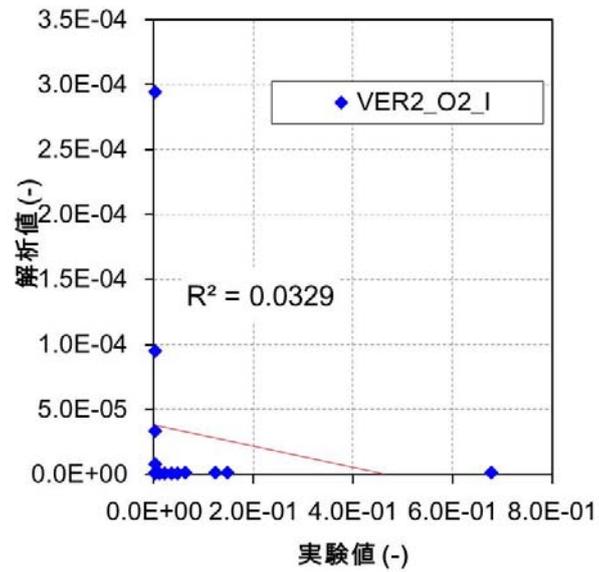
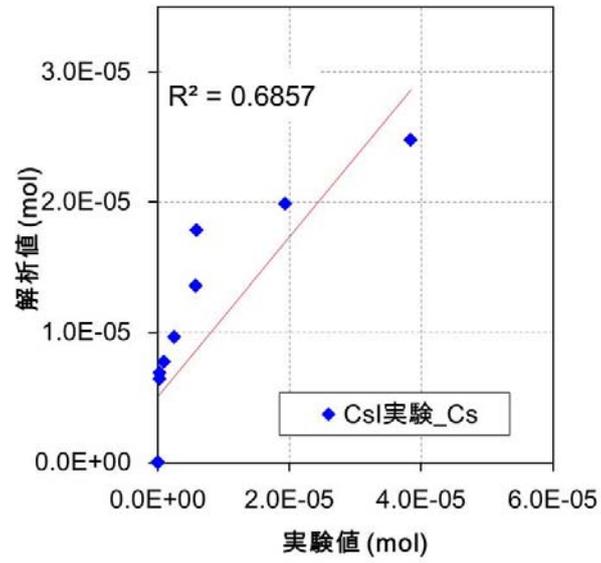


図 2.3.1.10 VERDON-2 実験の空気雰囲気における温度勾配管内元素蓄積分布の予測精度  
(a) Cs、(b)I



(a)



(b)

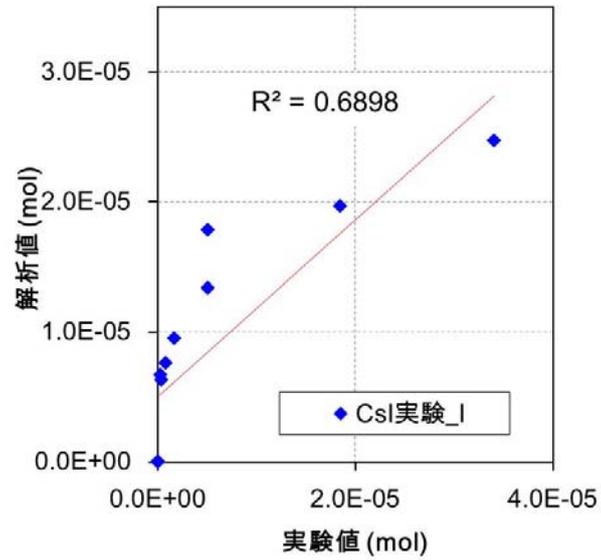
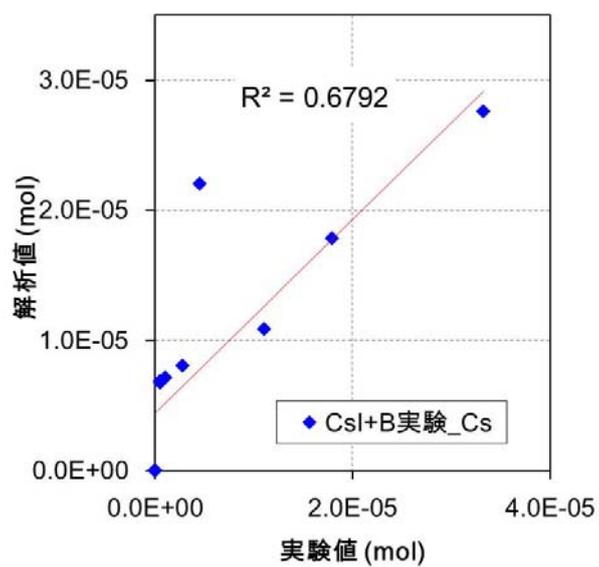


図 2.3.1.12 AGF 装置を用いた CsI 実験に係る温度勾配管内元素蓄積分布の予測精度  
(a) Cs、(b)I

(a)



(b)

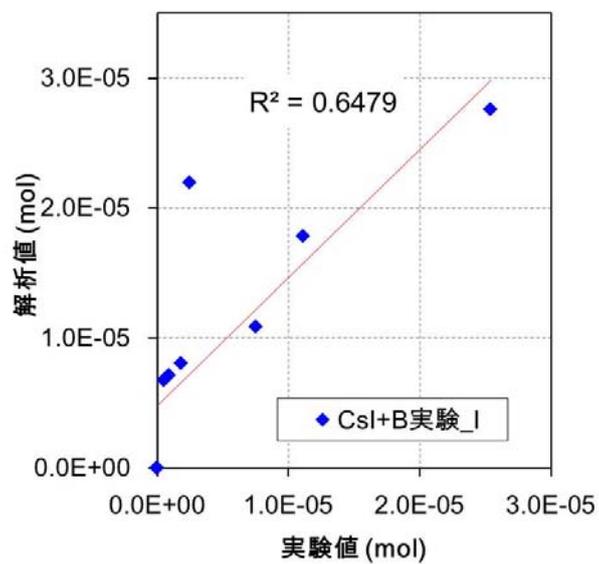
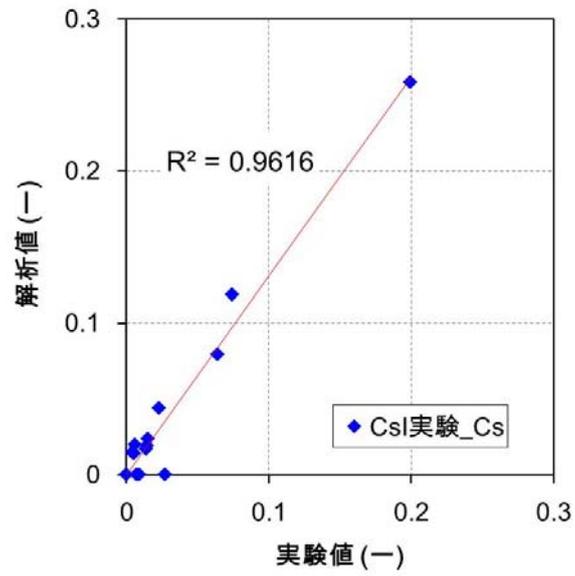


図 2.3.1.13 AGF 装置を用いた CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験に係る温度勾配管内元素蓄積分布の予測精度  
(a) Cs、(b) I

(a)



(b)

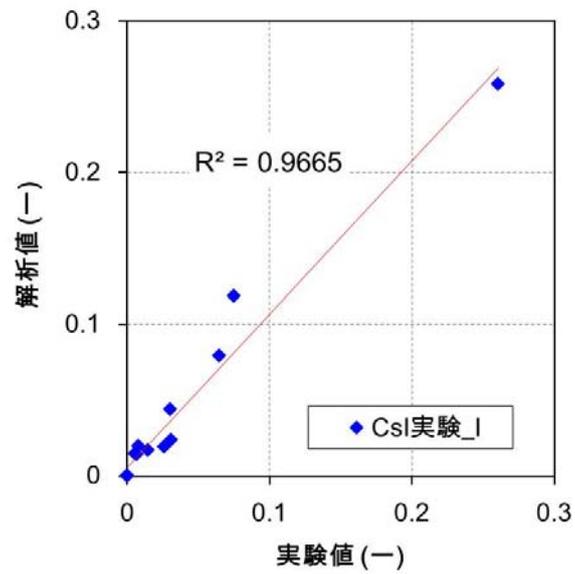
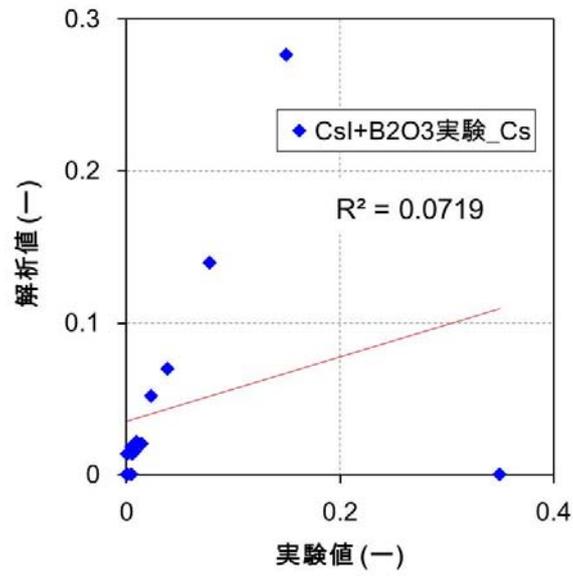


図 2.3.1.14 TeRRa 装置を用いた CsI 実験に係る温度勾配管内元素蓄積分布の予測精度  
(a) Cs、(b)I

(a)



(b)

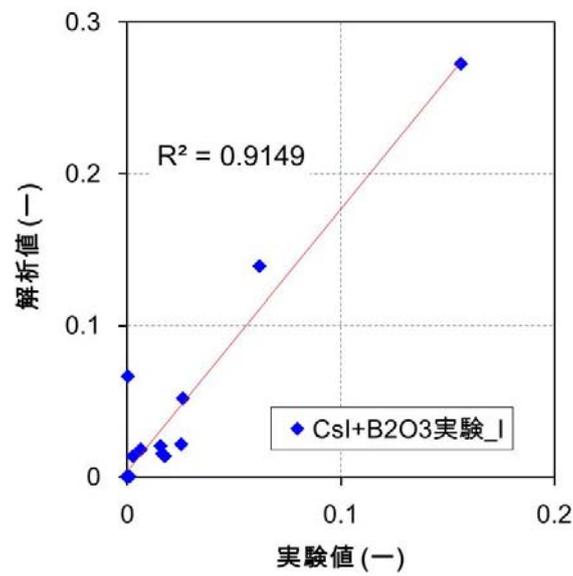


図 2.3.1.15 TeRRa 装置を用いた CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験に係る温度勾配管内元素蓄積分布の予測精度  
(a) Cs、(b)I

## 2.3.2 ソースターム評価手法における化学モデルの改良検討

### 2.3.2.1 目的

シビアアクシデントにおいて燃料から放出される核分裂生成物 (FP) の内、公衆に対する被ばくを考える上で特に重要なヨウ素 (I) の化学形は、熱力学平衡計算では十分な予測が難しことが明らかとなっている。また、2.3.1 節に示した TeRRa 実験の解析や ASTEC コードによる Phebus 実験の解析[2.3.2.1]では、動的な化学組成評価を行う反応速度論の必要性が示唆されている。しかしながら、反応速度論を取り扱い可能なシビアアクシデントコードは限られており、その影響は十分に評価されていない。そこで本項では、反応速度論を取り扱い可能なシビアアクシデントコードを整備し、反応速度論の適応により I 化学挙動の予測精度が向上するかを検討した。

#### 2.3.2.1 反応速度計算機能を有する FP 移行挙動評価コードの整備

##### (1) 1次元の FP 移流コード ART と汎用化学モデル CHEMKEq の連成

反応速度論及びその他の化学モデルは、膨大な化学種/反応数や収束計算のアルゴリズムを扱う必要があるため、比較的大きな計算コストを要する。また、シビアアクシデントコードでは、解析結果の不確かさ等を評価するために膨大な解析数の実施が想定される。したがって、化学モデルを取り扱えるシビアアクシデントコードの構築にあたり、計算コストを可能な限り削減することが必要であると考えられる。平成 29 年度の同事業では、独自の数値解法アルゴリズムを使用し、計算コストを削減させた汎用化学モデル CHEMKEq の整備を行っている。本項では、汎用化学モデル CHEMKEq の連成先として、気体及びエアロゾルの移行挙動を機構論的に扱える 1次元移流コード ART を選定し、反応速度計算機能を有する FP 移行挙動評価コードの整備を実施した。ART コードは、シビアアクシデント総合解析コード THALES-2 の 1つのモジュールであり、エアロゾル挙動との実験解析による実績を有する。

##### (2) 反応速度論データベースの構築

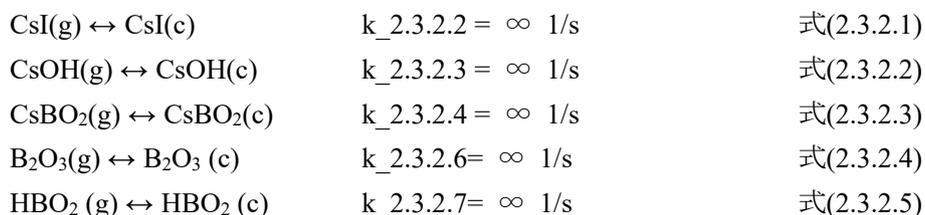
反応速度論データベースの構築では、JAEA の宮原らによって整備した反応速度論データベース ECUME を参考とした[2.3.2.2]。ECUME は、セシウム (Cs)、I、ホウ素 (B)、モリブデン (Mo)、酸素 (O)、水素 (H) 系の反応について、論文調査や不足する反応速度の理論的な推定を系統的に実施し構築したものである。ART/CHEMKEq で使用するデータベースの構築では、反応速度が比較的遅い 3 体反応を除いた 119 の反応を対象とした(表 2.3.2.1)。また ECUME は CHEMKIN-PRO[2.3.2.3]用のデータベース様式を採用しているため、CHEMKEq 様式への変更を一部実施した。CHEMKIN-PRO では、付随する熱力学反応より逆反応速度を自動的に推定するため、逆反応の速度をユーザーが意図的に設定する必要はない。一方で、CHEMKEq は、同様の機能を有していないため、逆反応を設定する必要がある。そこで、アレニウス型の逆反応速度を反応の平衡定数より推定した。

### 2.3.2.2 TeRRa 実験解析

#### (1) 解析条件

2.3.2.1 で整備された ART/CHEMKEq コードを用い、TeRRa 実験の解析を行った。本解析では、Cs-I (-B) -O-H で構成されるプルーフが TeRRa 装置内を移行する際のプルーフ温度変化によりその化学組成がどのように変化するかを評価した。なお、純粋な速度論の影響を評価するために、TeRRa 装置を移行するプルーフの質量は常に保存すると仮定している。そのため、エアロゾルの沈着や壁面への凝縮に伴うプルーフ内から外部への除去効果は考慮していない。

プルーフ温度の変化は、2.3.1 節に示した TeRRa 実験の解析で用いた雰囲気温度とキャリアガス流量より決定した (図 2.3.2.1)。解析の対象とした加熱炉から温度勾配管出口までの通過に係る時間は、約 23 秒である。またプルーフ内の初期組成は、熱力学平衡計算による TeRRa 実験解析の結果を参考に決定した (表 2.3.2.2)。解析対象は、ヨウ化セシウム (CsI) 実験及び CsI+酸化ホウ素 (B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 実験である。さらに化学モデルの比較のため、化学平衡論のみを用いた解析と反応速度論を用いた解析を行った。なお、反応速度論の計算では、データベースとして 2.3.2.1 項で整備した ECUME データセット (表 2.3.2.1) を用いているが、ECUME データセットは気体状から液体状や固体状への相変化の反応セットが定義されていないため、CHEMKEq コードの熱力学平衡論及び反応速度論に基づく混合モデルを使用し、相変化の反応を同モデル内の熱力学平衡計算により考慮した。ここで、混合モデルを使用した解析で考慮した相変化は、反応速度∞、すなわち瞬時に平衡状態になると仮定することとなる。混合モデルにおいて相変化で考慮する主な平衡反応は、以下である。



ここで、化学種名に付随する(g)及び(c)は、それぞれ気体状及び凝縮状の化学種であることを意味している。

#### (2) 解析結果

##### (a) CsI 実験に係る解析

各化学モデルを使用して計算した CsI のみを装荷したケースでのプルーフ内の組成変化に係る結果を図 2.3.2.2 に示す。平衡論のみを用いた解析における主要な Cs 及び I 化学種は、高温部 (滞留時間 0~5 秒に相当) で気体状の CsI(g) であり、低温部 (滞留時間 ≥ 5 秒に相当) でエアロゾル状の CsI(c) であった。また、高温部で数%オーダーの気体状の水酸化セシウム (CsOH(g)) やガス状ヨウ素 (I(g)) が予想された。この結果は、移流を考慮した VICTORIA2.0 解析の結果 (2.3.1 項の図 2.3.1.5) と類似しており、プルーフを用いた手法に

より簡易的に組成変化を評価し得ることが示された。反応速度論を用いた解析では、主要な化学種である CsI の傾向について大きな変化は見られなかった。一方で、マイナー化学種の化学組成については、平衡論と反応速度論の化学モデル間で相違が見られた。平衡論では、高温部で生成する気体状の I(g)や CsOH(g)がプルームの温度低下に伴い即座に CsI への変化するが、反応速度論では CsI への変化速度は数秒遅延した。

#### (b) CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験に係る解析

各化学モデルを使用して計算した CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を装荷したケースでのプルーム内の組成変化に係る結果を図 2.3.2.3 に示す。平衡論を用いた解析では、2.3.1 項に示した VICTORIA2.0 解析と同様に、上流（滞留時間：5 秒以下）でホウ酸セシウム (CsBO<sub>2</sub>(g)) と原子状ヨウ素 (I(g)) が生成し、下流の低温部に移行すると CsI(g)及び CsI(c)へと化学形が変化した。速度論を用いた解析では、CsBO<sub>2</sub>(g)と I(g)から CsI(g)及び CsI(c)へ緩やかに変化することが予想された。したがって、速度論を用いる手法は、ガス状ヨウ素の生成に係る予測精度を向上させ得ると考えられる。今後、速度論データベースの改善を含めて検討を進めていく必要がある。

#### 参考文献

- [2.3.2.1] B. Xerri et al., “Ab initio calculation and iodine kinetic modeling in the reactor coolant system of a pressurized water reactor in case of severe nuclear accident,” *Comput. Theor. Chem.*; 990, 194-208, 2012.
- [2.3.2.2] N. Miyahara et al., “Chemical reaction kinetics dataset of Cs-I-B-Mo-O-H system for evaluation of fission product chemistry under LWR severe accident conditions,” *J. Nucl. Sci. Technol.* 56, 2, 228-240, 2019.
- [2.3.2.3] ANSYS CHEMKIN 17.0 (15151). ANSYS Reaction Design: San Diego, 2016.

表 2.3.2.1 ECUME データセット[2.3.1.2]より考慮した反応データセット

No	Reactants		Products
1	[I(g)] + [H2(g)]	→	[HI(g)] + [H(g)]
2	[I(g)] + [H2O(g)]	→	[HI(g)] + [OH(g)]
3	[I(g)] + [HI(g)]	→	[H(g)] + [I2(g)]
4	[I(g)] + [OH(g)]	→	[HI(g)] + [O(g)]
5	[H2(g)] + [IO(g)]	→	[HIO(g)] + [H(g)]
6	[I(g)] + [HIO(g)]	→	[HI(g)] + [IO(g)]
7	[OH(g)] + [IO(g)]	→	[HIO(g)] + [O(g)]
8	[OH(g)] + [HIO(g)]	→	[IO(g)] + [H2O(g)]
9	[I(g)] + [HO2(g)]	→	[HI(g)] + [O2(g)]
10	[HO2(g)] + [IO(g)]	→	[HIO(g)] + [O2(g)]
11	[O(g)] + [I2(g)]	→	[I(g)] + [IO(g)]
12	[I2(g)] + [H2(g)]	→	2[HI(g)]
13	[O(g)] + [IO(g)]	→	[I(g)] + [O2(g)]
14	[HIO(g)] + [H(g)]	→	[I(g)] + [H2O(g)]
15	[I2(g)] + [OH(g)]	→	[HIO(g)] + [I(g)]
16	[OH(g)] + [HI(g)]	→	[HIO(g)] + [H(g)]
17	[OH(g)] + [I(g)]	→	[IO(g)] + [H(g)]
18	[HO2(g)] + [I(g)]	→	[OH(g)] + [IO(g)]
19	[HIO(g)] + [HI(g)]	→	[I2(g)] + [H2O(g)]
20	[Cs(g)] + [HI(g)]	→	[CsI(g)] + [H(g)]
21	[Cs(g)] + [H2O(g)]	→	[CsOH(g)] + [H(g)]
22	[CsOH(g)] + [HI(g)]	→	[CsI(g)] + [H2O(g)]
23	[CsI(g)] + [OH(g)]	→	[I(g)] + [CsOH(g)]
24	[IO(g)] + [HI(g)]	→	[I2(g)] + [OH(g)]
25	[I2(g)] + [CsOH(g)]	→	[HIO(g)] + [CsI(g)]
26	[IO(g)] + [H(g)]	→	[O(g)] + [HI(g)]
27	[IO(g)] + [H2(g)]	→	[OH(g)] + [HI(g)]
28	[IO(g)] + [OH(g)]	→	[O2(g)] + [HI(g)]
29	[HIO(g)] + [O(g)]	→	[O2(g)] + [HI(g)]
30	[HIO(g)] + [H2(g)]	→	[HI(g)] + [H2O(g)]

表 2.3.2.1 ECUME データセット[2.3.1.2]より考慮した反応データセット (続き)

No	Reactants		Products
31	[IO(g)] + [Cs(g)]	→	[O(g)] + [CsI(g)]
32	2[IO(g)]	→	[O <sub>2</sub> (g)] + [I <sub>2</sub> (g)]
33	[HIO(g)] + [Cs(g)]	→	[OH(g)] + [CsI(g)]
34	[HIO(g)] + [Cs(g)]	→	[I(g)] + [CsOH(g)]
35	[I <sub>2</sub> (g)] + [Cs(g)]	→	[I(g)] + [CsI(g)]
36	[IO(g)] + [H <sub>2</sub> (g)]	→	[I(g)] + [H <sub>2</sub> O(g)]
37	2[OH(g)]	→	[H <sub>2</sub> O(g)] + [O(g)]
38	[OH(g)] + [H <sub>2</sub> (g)]	→	[H <sub>2</sub> O(g)] + [H(g)]
39	[O(g)] + [H <sub>2</sub> (g)]	→	[OH(g)] + [H(g)]
40	[O(g)] + [OH(g)]	→	[O <sub>2</sub> (g)] + [H(g)]
41	[HO <sub>2</sub> (g)] + [H(g)]	→	[H <sub>2</sub> (g)] + [O <sub>2</sub> (g)]
42	[HO <sub>2</sub> (g)] + [H(g)]	→	[H <sub>2</sub> O(g)] + [O(g)]
43	[HO <sub>2</sub> (g)] + [H(g)]	→	2[OH(g)]
44	[HO <sub>2</sub> (g)] + [OH(g)]	→	[H <sub>2</sub> O(g)] + [O <sub>2</sub> (g)]
45	[HO <sub>2</sub> (g)] + [O(g)]	→	[OH(g)] + [O <sub>2</sub> (g)]
46	2[HO <sub>2</sub> (g)]	→	[H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (g)] + [O <sub>2</sub> (g)]
47	[H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (g)] + [H(g)]	→	[H <sub>2</sub> O(g)] + [OH(g)]
48	[H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (g)] + [H(g)]	→	[H <sub>2</sub> (g)] + [HO <sub>2</sub> (g)]
49	[H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (g)] + [O(g)]	→	[HO <sub>2</sub> (g)] + [OH(g)]
50	[H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (g)] + [OH(g)]	→	[HO <sub>2</sub> (g)] + [H <sub>2</sub> O(g)]
51	2[OH(g)]	→	[O <sub>2</sub> (g)] + [H <sub>2</sub> (g)]
52	[B(g)] + [O <sub>2</sub> (g)]	→	[BO(g)] + [O(g)]
53	[BO(g)] + [O <sub>2</sub> (g)]	→	[BO <sub>2</sub> (g)] + [O(g)]
54	[B(g)] + [BO <sub>2</sub> (g)]	→	2[BO(g)]
55	2[BO <sub>2</sub> (g)]	→	[B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (g)] + [O(g)]
56	[B(g)] + [OH(g)]	→	[BO(g)] + [H(g)]
57	[BO(g)] + [OH(g)]	→	[BO <sub>2</sub> (g)] + [H(g)]
58	[BO(g)] + [H <sub>2</sub> O(g)]	→	[HBO <sub>2</sub> (g)] + [H(g)]
59	[BO <sub>2</sub> (g)] + [OH(g)]	→	[HBO <sub>2</sub> (g)] + [O(g)]
60	[BO <sub>2</sub> (g)] + [H <sub>2</sub> (g)]	→	[HBO <sub>2</sub> (g)] + [H(g)]

表 2.3.2.1 ECUME データセット[2.3.1.2]より考慮した反応データセット (続き)

No	Reactants		Products
61	[HBO2(g)] + [OH(g)]	→	[BO2(g)] + [H2O(g)]
62	[B2O3(g)] + [H2O(g)]	→	2[HBO2(g)]
63	[BO(g)] + [H2(g)]	→	[HBO(g)] + [H(g)]
64	[BO(g)] + [OH(g)]	→	[HBO(g)] + [O(g)]
65	[HBO(g)] + [O(g)]	→	[BO2(g)] + [H(g)]
66	[HBO(g)] + [OH(g)]	→	[BO(g)] + [H2O(g)]
67	[HBO(g)] + [OH(g)]	→	[HBO2(g)] + [H(g)]
68	[HBO(g)] + [OH(g)]	→	[BO2(g)] + [H2(g)]
69	[HBO(g)] + [O2(g)]	→	[BO2(g)] + [OH(g)]
70	[B2O2(g)] + [H(g)]	→	[HBO(g)] + [BO(g)]
71	[B2O2(g)] + [O(g)]	→	[BO(g)] + [BO2(g)]
72	[B2O2(g)] + [OH(g)]	→	[BO(g)] + [HBO2(g)]
73	[B2O2(g)] + [OH(g)]	→	[BO2(g)] + [HBO(g)]
74	[B2O2(g)] + [O2(g)]	→	2[BO2(g)]
75	[B(g)] + [H2O(g)]	→	[HBO(g)] + [H(g)]
76	[HBO(g)] + [BO2(g)]	→	[HBO2(g)] + [BO(g)]
77	[HBO(g)] + [BO2(g)]	→	[B2O3(g)] + [H(g)]
78	[HBO2(g)] + [BO(g)]	→	[B2O3(g)] + [H(g)]
79	[B(g)] + [H2O(g)]	→	[BOH(g)] + [H(g)]
80	[BH(g)] + [O(g)]	→	[BO(g)] + [H(g)]
81	[BH(g)] + [O2(g)]	→	[HBO(g)] + [O(g)]
82	[BH(g)] + [H2O(g)]	→	[HBO(g)] + [H2(g)]
83	[BH(g)] + [OH(g)]	→	[HBO(g)] + [H(g)]
84	[BH(g)] + [BO2(g)]	→	[HBO(g)] + [BO(g)]
85	[BH(g)] + [BO(g)]	→	[HBO(g)] + [B(g)]
86	[BH(g)] + [HBO2(g)]	→	2[HBO(g)]
87	[BH2(g)] + [BO(g)]	→	[HBO(g)] + [BH(g)]
88	[BH2(g)] + [O(g)]	→	[HBO(g)] + [H(g)]
89	[BH2(g)] + [O(g)]	→	[BH(g)] + [OH(g)]
90	[BH2(g)] + [OH(g)]	→	[BH(g)] + [H2O(g)]

表 2.3.2.1 ECUME データセット[2.3.1.2]より考慮した反応データセット (続き)

No	Reactants		Products
91	[HBO(g)] + [O2(g)]	→	[HBO2(g)] + [O(g)]
92	[HBO(g)] + [H2O(g)]	→	[HBO2(g)] + [H2(g)]
93	[HBO(g)] + [HO2(g)]	→	[HBO2(g)] + [OH(g)]
94	[BO(g)] + [H2(g)]	→	[BOH(g)] + [H(g)]
95	[BOH(g)] + [BO2(g)]	→	[HBO2(g)] + [BO(g)]
96	[BOH(g)] + [O2(g)]	→	[HBO2(g)] + [O(g)]
97	[BOH(g)] + [OH(g)]	→	[HBO2(g)] + [H(g)]
98	[BOH(g)] + [H2O(g)]	→	[HBO2(g)] + [H2(g)]
99	[BOH(g)] + [O(g)]	→	[BO2(g)] + [H(g)]
100	[BOH(g)] + [HBO2(g)]	→	[B2O3(g)] + [H2(g)]
101	[BOH(g)] + [OH(g)]	→	[BO(g)] + [H2O(g)]
102	[BOH(g)] + [O(g)]	→	[BO(g)] + [OH(g)]
103	[BO2(g)] + [BH(g)]	→	[HBO2(g)] + [B(g)]
104	[BO2(g)] + [BH2(g)]	→	[HBO2(g)] + [BH(g)]
105	[HBO2(g)] + [HBO(g)]	→	[B2O3(g)] + [H2(g)]
106	[B2O2(g)] + [H(g)]	→	[BOH(g)] + [BO(g)]
107	[B2O2(g)] + [OH(g)]	→	[B2O3(g)] + [H(g)]
108	[B2O2(g)] + [H2O(g)]	→	[B2O3(g)] + [H2(g)]
109	[B2O2(g)] + [BO2(g)]	→	[B2O3(g)] + [BO(g)]
110	[BO(g)] + [H3BO3(g)]	→	[HBO2(g)] + [B(OH)2(g)]
111	[B(OH)2(g)] + [H2O(g)]	→	[H3BO3(g)] + [H(g)]
112	[B(g)] + [H3BO3(g)]	→	[BOH(g)] + [B(OH)2(g)]
113	2[B(OH)2(g)]	→	[BOH(g)] + [H3BO3(g)]
114	[B(g)] + [H3BO3(g)]	→	[HBO(g)] + [B(OH)2(g)]
115	2[B(OH)2(g)]	→	[HBO(g)] + [H3BO3(g)]
116	[CsBO2(g)] + [H(g)]	→	[HBO2(g)] + [Cs(g)]
117	[BO(g)] + [CsBO2(g)]	→	[B2O3(g)] + [Cs(g)]
118	[B(g)] + [CsBO2(g)]	→	[B2O2(g)] + [Cs(g)]
119	[B(OH)2(g)] + [Cs(g)]	→	[CsBO2(g)] + [H2(g)]

表 2.3.2.2 FP プルーフの初期組成

化学種名	濃度 [mol/m <sup>3</sup> ]	
	CsI 実験	CsI+B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 実験
CsI(g)	2.08E-03	6.52E-04
CsOH(g)	1.00E-04	2.97E-06
Cs(g)	1.28E-08	8.13E-10
I(g)	9.61E-05	4.72E-04
I <sub>2</sub> (g)	1.42E-08	3.42E-07
HI(g)	3.99E-06	4.20E-05
H(g)	4.21E-09	9.03E-09
HO(g)		5.02E-07
H <sub>2</sub> (g)	5.23E-05	2.41E-04
H <sub>2</sub> O(g)	1.73E+00	1.72E+00
O <sub>2</sub> (g)	1.53E-06	7.19E-08
O(g)	8.91E-11	1.93E-11
Ar(g)	1.02e+01	1.02e+01
IO(g)	1.28E-07	2.97E-11
HIO(g)	5.52E-07	1.49E-07
HBO <sub>2</sub> (g) +H <sub>3</sub> B <sub>3</sub> O <sub>6</sub> (g)		2.86E-03
H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> (g)		1.07E-03
CsBO <sub>2</sub> (g)		5.11E-04

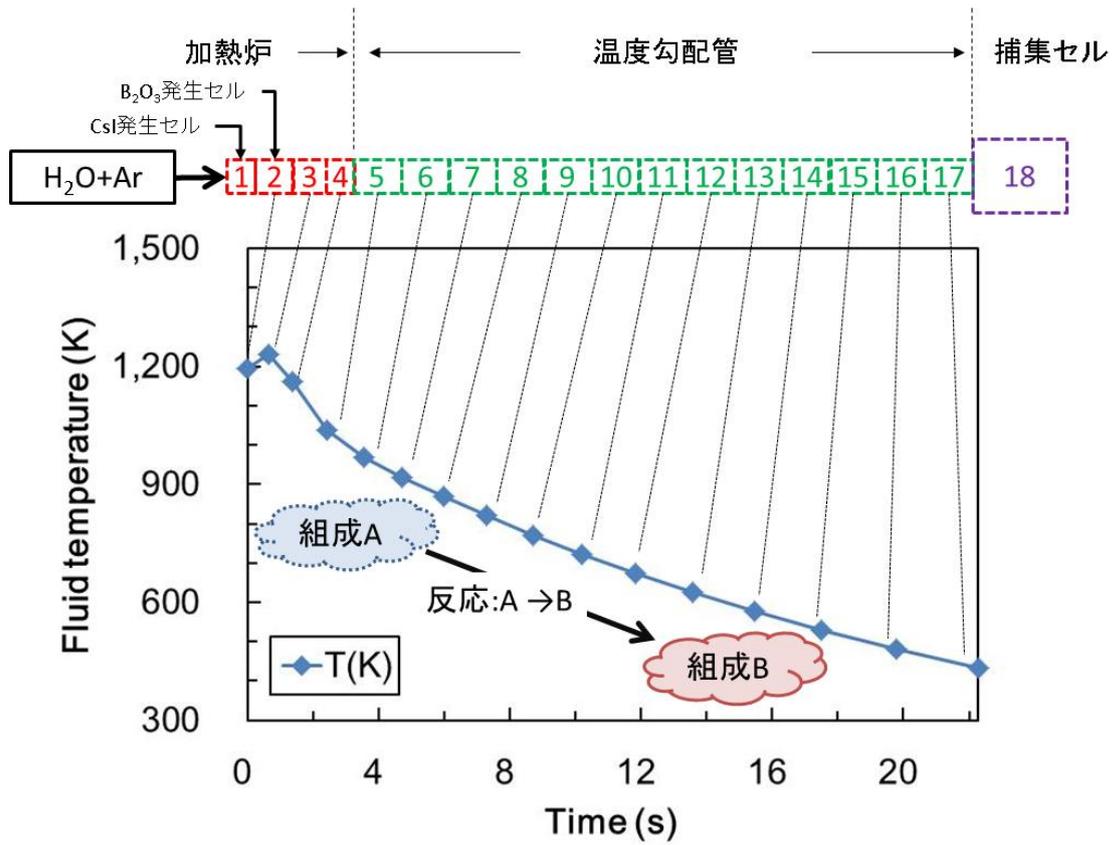


図 2.3.2.1 TeRRa 実験に係る速度論解析の体系

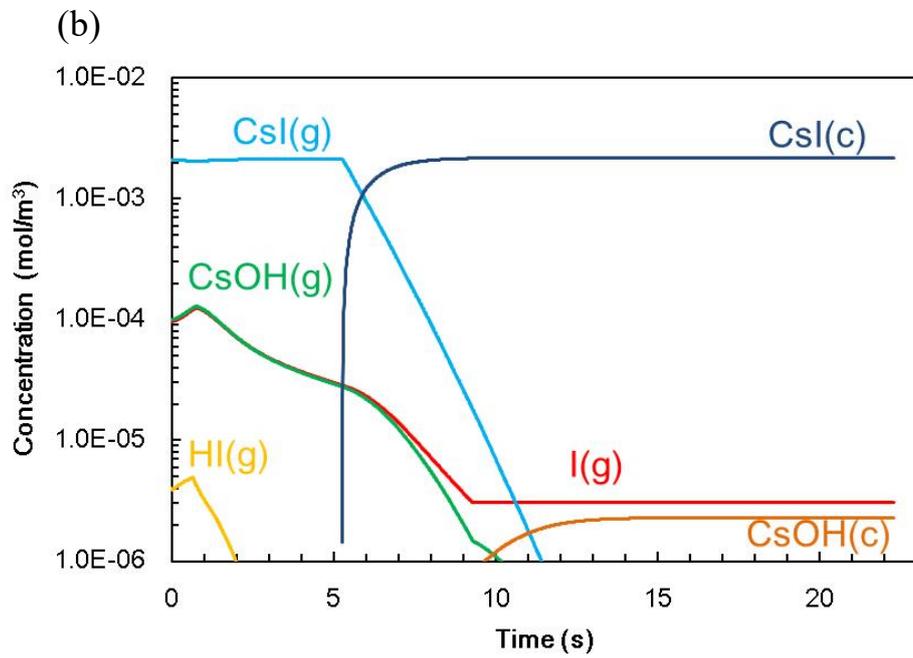
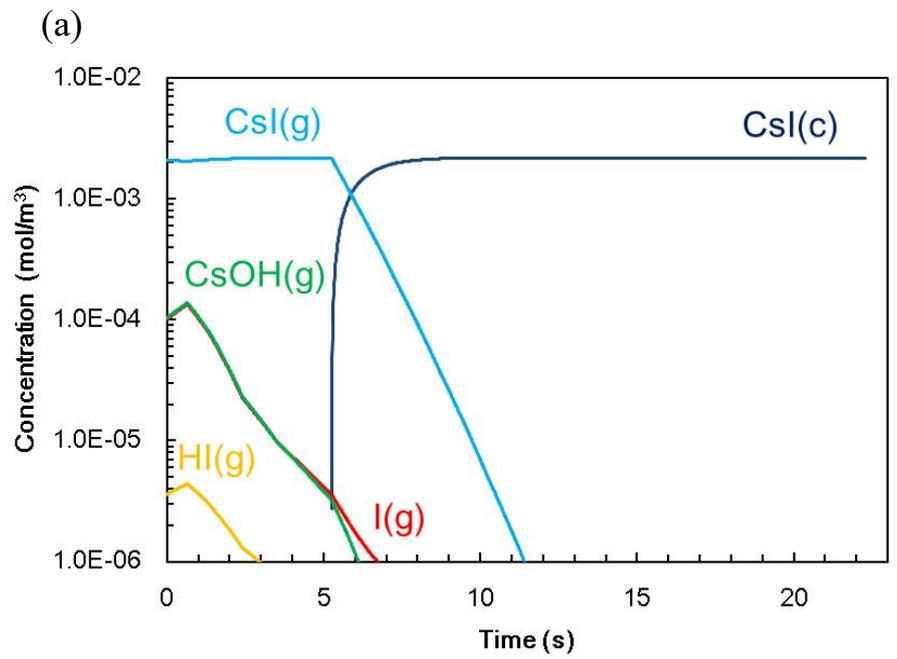


図 2.3.2.2 CsI 実験に係るプルーム内の Cs 及び I 化学種の変化  
 (a)化学平衡、(b)反応速度(混合モデル)

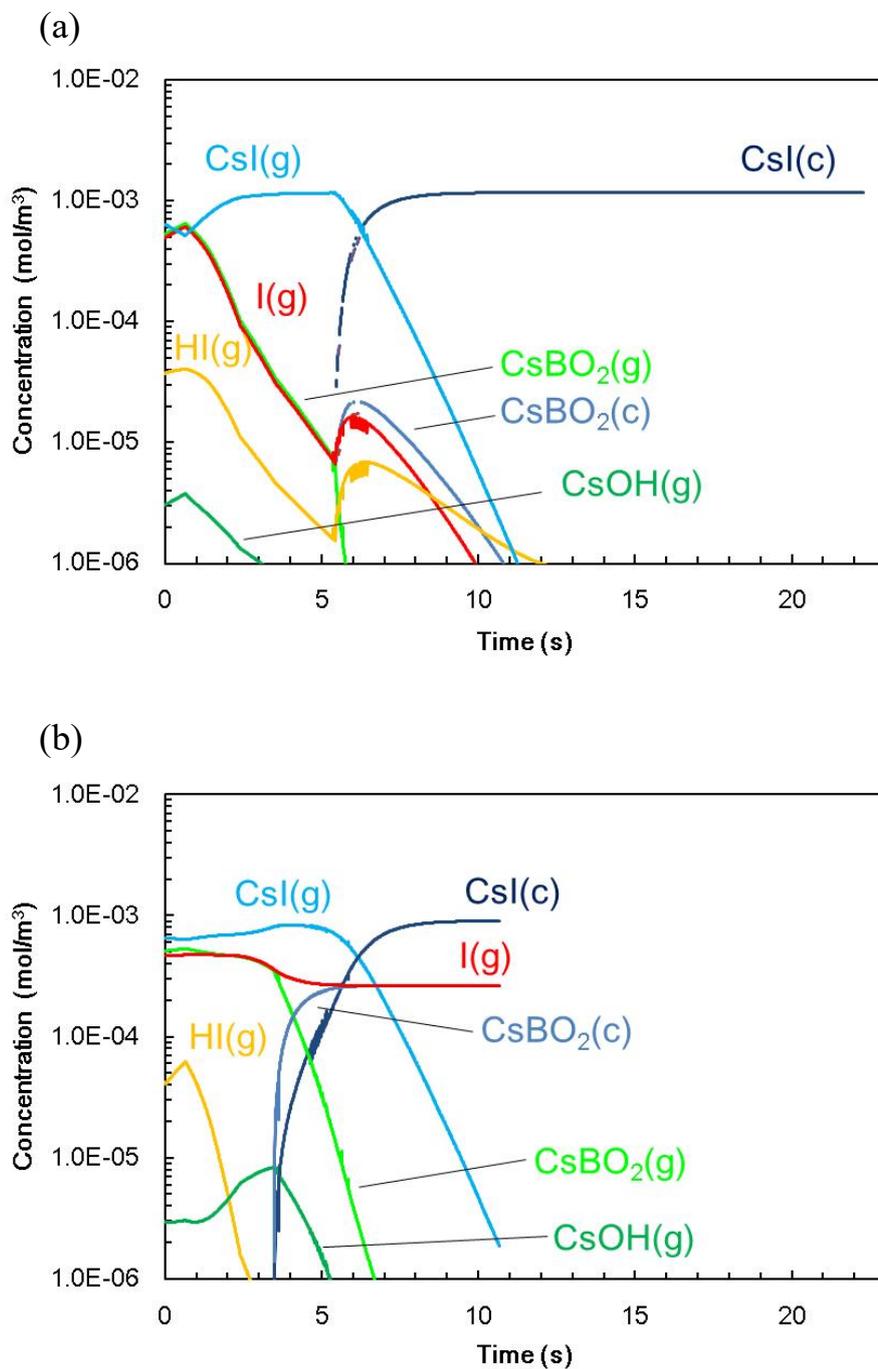


図 2.3.2.3 CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験に係るプルーム内の Cs 及び I 化学種の変化  
(a)化学平衡、(b)反応速度(混合モデル)

## 2.3.3 原子炉冷却系内 FP 化学を考慮した実機 BWR ソースターム解析

### 2.3.3.1 目的

軽水炉シビアアクシデント時の原子炉冷却系内の放射性物質の化学的挙動において、B<sub>4</sub>C 制御材を有する BWR プラントでは、ヨウ素及びセシウム化学種として、従来、想定してきた CsI や CsOH とは異なる化学形で存在する可能性がある。格納容器に移行する際の化学形が異なることにより格納容器内のヨウ素化学反応において支配的なパラメータである pH が変化し、その結果、特にヨウ素のソースタームに影響を及ぼす。例えば、格納容器に移行する際のセシウムの化学形は CsOH が支配的であると仮定される場合があるが、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> が支配的であった場合、強塩基からほぼ中性の化学種での移行となることで格納容器液相内 pH の増加が抑制され、ヨウ素化学反応により液相中のガス状ヨウ素(分子状ヨウ素及び有機ヨウ素)の生成と気相への放出が促進され得る。このような状況で格納容器の健全性が喪失した場合、環境へのヨウ素の放出が増大する可能性がある。しかしながら、THALES2 [2.3.3.1] や MELCOR [2.3.3.2] など一般的に利用されているシビアアクシデント総合解析コードでは、原子炉冷却系内 FP 化学を十分には考慮しておらずソースターム評価上の課題となっている。それ故、本節では、昨年度(平成 29 年度)に導入した FP 化学形簡易予測モデルを導入した THALES2/KICHE を実機 BWR のソースターム評価に適用し、原子炉冷却系内の FP 化学がプラント内移行挙動やソースタームに及ぼす影響について検討する。2.3.3.2 節に原子炉冷却系内 FP 化学計算機能の概要、2.3.3.3 節に原子炉冷却系内 FP 化学を考慮した実機 BWR ソースターム解析について述べる。

### 2.3.3.2 原子炉冷却系内 FP 化学計算機能

原子炉冷却系内の FP 化学計算機能のシビアアクシデント総合解析コード THALES2/KICHE [2.3.3.1, 2.3.3.3]への導入を実施している[2.3.3.4, 2.3.3.5]。本導入は、昨年度(平成 29 年度)に実施したものだが、予測精度向上のため取り扱い化学種の変更した(データベースは変更せず同一のものを使用)。平成 29 年度版の FP 化学組成予測モデルでは、セシウム化学種として 2500K 以上の高温時に有意となる単体 Cs を含めていたが、炉心より下流側の移行経路では著しく高温には達しないこと、また予測精度の向上に殆ど寄与していないことから除外することとした。

原子炉冷却系内の FP 化学を総合コードに導入するための概念図を図 2.3.3.1 に示す。本研究では、シビアアクシデント総合解析コードに熱化学平衡理論を直接導入するのではなく、同コードが有する高速な計算機能を維持するために、熱力学計算コード結果を集約したヨウ素やセシウム化学種の平衡組成データベースを活用した評価手法を採用した。化学種の平衡組成を計算する熱力学計算コードは、既存研究の知見及び本事業内を含む原子力機構内及び国際協力の下で実施した実験結果を活用し、熱化学平衡計算コードの化学反応データベースの構築及び検証を進めている。熱化学平衡計算コードとしては、米国サンディア国立研究所が開発した VICTORIA コード及び原子力機構が開発している CHEMKEq コードを利用している。原子炉冷却系内の実機事故条件(約 2 万)に対する CHEMKEq コードを用いた

多ケース解析を実施し、ヨウ素及びセシウム化学種の平衡組成に関わるデータベースを構築した。データベースの入出力情報及び想定化学種を表 2.3.3.1 に示す。本データベースは、ヨウ素、セシウム及びホウ素などの元素濃度、雰囲気組成や温度条件を入力とし、その条件下での安定化学種の濃度が出力となる。

前述したように本データベースは 2 万を超える大規模データベースであり、化学種の化学変化の計算に活用するためには効率的なデータ抽出の方法が必要である。本研究ではデータ抽出方法として、K 近傍法を利用し、化学種の平衡組成を予測するモデル(代替統計モデル)を構築している[2.3.3.4]。K 近傍法によるデータ抽出例を図 2.3.3.2 に示す。広範なデータが有する場合、元素濃度や温度など FP 化学計算の入力となる条件の近い近傍データをデータベースから 10 個程度抽出する。これら抽出したデータから化学種別に平衡組成濃度を予測する回帰曲線をモデル内で導出し、それを用いて予測している。近傍データの抽出には、複数の入力パラメータ間の距離(ユークリッド距離)を判定に利用している。データベースの入出力変数の相関などを分析し、精度良くデータ抽出ができるようにモデル構築の際に機械学習を行っている。

熱化学平衡組成データベースの傾向について記載する。ヨウ素及びセシウム化学種の平衡組成の温度依存性を図 2.3.3.3 に示した。横軸が温度、縦軸が平衡組成比を表し、ヨウ素及びセシウム化学種は、温度依存性があることが確認。ヨウ素化学種は、低温では CsI が安定だが高温では HI や I が増加する。セシウム化学種については、低温時にはホウ素濃度に関わらず Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> が安定だが、高温時にはホウ素の影響により安定化学種が異なる。高温でかつ低ホウ素濃度条件では、CsOH が安定となるが、ホウ素濃度が有意な条件では、セシウムとホウ素の反応が進み CsBO<sub>2</sub> が安定化学種となる(中性子吸収材にホウ素酸化物を採用していない PWR では低ホウ素濃度条件と同等と考えられる)。

なお、熱力学平衡計算により、水蒸気雰囲気において CsOH 及び Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> として移行する Cs の挙動は定性的に良く評価できることが実験解析を通じて明らかとなっている。しかしながら、ヨウ素の化学的挙動については、ガス状ヨウ素の生成反応に関わる実験結果の一部が熱力学平衡計算では再現できておらず課題となっており、本データベースの予測精度に影響する。

### 2.3.3.3 BWR 実機ソースターム解析

FP 化学組成計算モデルを導入した THALES2/KICHE を用いて、BWR プラントの代表的な事故シーケンスを対象にソースターム解析を実施した[2.3.3.6]。解析プラント及び解析ケースを表 2.3.3.2 に示す。解析は、BWR4/Mark-I プラントに対しては、炉心損傷事故シーケンス及び格納容器破損モードが異なる 4 ケースを選定した。全交流電源喪失と炉心冷却機能喪失の 2 つの炉心損傷事故シーケンスに対して、格納容器過圧破損と格納容器ベント作動のケースを実施し、ソースタームへの炉心損傷事故シーケンス及び格納容器破損モードの影響について検討した。更に、プラント形状の違いによる影響を検討するために、BWR5/Mark-II プラントの解析を実施した。解析シナリオは、全交流電源喪失事故シーケン

ス TB のドライウエル気相部の過圧破損ケースを選定した。解析対象プラントの模式図を図 2.3.3.4 に示す。Mark-I 型格納容器 は、福島第一原子力発電所と同型であり、ウェットウエル(W/W)はドーナツ状の形状を有している。Mark-II 型ではドライウエル(D/W)床の下に W/W が存在するなど格納容器の形状が異なる。

事故シナリオに関わる解析条件を表 2.3.3.3 に示す。格納容器機能喪失条件として、ドライウエル気相部からの過圧破損と格納容器ベントの作動を選定した。格納容器破損圧及び格納容器ベント作動条件は、ともに格納容器設計圧の 2 倍、破損サイズ又はベントのサイズは  $0.01\text{m}^2$  を仮定した。ただし、BWR5/Mark-II の解析では格納容器設計圧が低いことから 2.5 倍での格納容器破損を想定した。

FP 化学の計算に関わる仮定を以下に示す。

- FP 化学計算は、比較的高温となる RCS 内のボリュームを対象とした。
- FP 化学による化学種変化は、雰囲気中に存在する化学種(浮遊ガス及び浮遊エアロゾル)を対象。
- 化学反応に関わる  $\text{B}_4\text{C}$  制御材の酸化に伴うホウ素の生成を考慮した( $\text{B}_4\text{C}$ /スチール共晶溶融、 $\text{B}_4\text{C}$  酸化に伴うホウ素酸化物及びガス( $\text{H}_2$ 、 $\text{CO}_2$ 、 $\text{CO}$  など)生成を考慮)
- RCS 内 FP 化学によって  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ 、 $\text{CsBO}_2$ 、 $\text{CsOH}$ 、 $\text{HI}$  など様々な化学種に化学変化し、格納容器に移行することで pH 及び  $\text{I}_2$  や有機ヨウ素などのガス状ヨウ素の放出挙動に影響を及ぼす可能性がある。本解析では、これらの影響を含めてソースタームへの影響を検討するため、RCS 内 FP 化学に加え、格納容器内ヨウ素化学反応を考慮した。
- Mark-I 型格納容器内の W/W はペイント壁であり、ガス状ヨウ素  $\text{I}_2$  及び有機ヨウ素の生成を考慮している。しかし、Mark-II 型の W/W 壁はペイントされていないため、スチール壁で模擬した。それ故、Mark-II 型でのガス状ヨウ素の生成は  $\text{I}_2$  のみを想定した。

上記、解析モデルの適用範囲については THALES2/KICHE の FP 挙動実験への適用を通して検討を進めていく必要があり、本年度の改造で実験解析への適用に関わる制御機能の拡張を図っており、これを通じて解析コード及びモデルの検証を進めている。

FP 化学組成計算モデルを導入した THALES2/KICHE を用いて、ソースターム評価を実施し、原子炉冷却系内 FP 化学のソースタームへ影響について検討した。以下に解析結果を述べるが、本報告書では、結果例として、代表的な 1 ケース(表 2.3.3.2 のケース 1: BWR4/Mark-I、全交流電源喪失の D/W 気相部過圧破損)の結果について説明する。次に、炉心損傷事故シーケンス、格納容器機能喪失シナリオ、格納容器形状の違いについて述べる。

#### 1) 熱水力挙動の概要

最初に BWR4/Mark-I プラントの事故進展の概要について述べる。全交流電源喪失 TB と炉心冷却機能喪失事故シーケンス TQUV の原子炉及び格納容器の圧力挙動を図 2.3.3.5(a)及

び(b)に示す。TB シーケンスは、事故開始後一定期間の間は、炉心で発生した蒸気を駆動とする原子炉隔離時冷却系による炉心注水が開始する。その後、8 時間で直流電源が枯渇することで炉心への注水が停止し、原子炉水位が低下、事故開始後 12 時間程度で炉心損傷開始に至る(表 2.3.3.4 事象進展時刻を参照)。本事故シーケンスは制御用電源が枯渇しているため、運転員による原子炉の減圧操作ができず、原子炉は高圧状態で炉心損傷及び圧力容器破損に至る。更に、格納容器からの崩壊熱除去にも失敗するので、事故開始後 22 時間程度で格納容器が過圧破損に至る。それに対して、冷却機能喪失事故シーケンス TQUV は、高圧炉心注入系の機能喪失後に運転員の手動減圧には成功するが、低圧炉心注入系の作動に失敗するため、早期に炉心が損傷し、事故開始後 6 時間程度で圧力容器破損に至る。TQUV シーケンスは、全ての炉心注水機能が喪失しているため、格納容器への崩壊熱の移行が抑制される。それ故、28 時間程度で格納容器破損に至るなど全交流源喪失シーケンスよりも破損時期が遅い。

## 2) FP 挙動

### プラント内全体挙動

FP 挙動の理解促進のため、プラント全体での FP 挙動の概要を説明する。TB シーケンス過圧破損ケースのセシウム挙動を図 2.3.3.6 に示す。横軸に事故開始からの時間、縦軸に炉内初期インベントリに対するボリューム内存在割合(浮遊及び沈着量の合計値)を示す。RCS 内 FP 化学の考慮により、ヨウ素及びセシウム化学種は CsI、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>、CsOH など様々な化学形となりうる。本図では、全体的なボリューム間の移行挙動の理解しやすいように、セシウム化学種を原子炉冷却系内など位置別に集計し示した。TB シーケンスでは、炉心損傷により燃料からの FP 放出が開始される。17 時間程度の圧力容器破損までに、セシウムインベントリの約 33%が原子炉冷却系(RCS)内に沈着し、残りの大部分(67%程度)はウェットウェル(W/W)に移行し、プールスクラビング効果によって液相中に捕集され溶解している。スクラビングされなかった Cs は、W/W 気相中に放出され、一部は真空破壊弁経由でドライウェル(D/W)に移行する。格納容器破損に至ると、D/W 内浮遊及び RCS 内に存在するセシウムの一部が建屋経由で環境に放出される。本図から明らかなように、ヨウ素挙動はセシウムと同様の傾向を示している。本結果では圧力容器破損までに、36%程度のヨウ素が RCS 内に存在し、残り 64%程度が W/W に移行する結果となった。

### 格納容器への移行化学種及び pH への影響

格納容器へ移行する化学種について検討する。全体挙動(図 2.3.3.6) から明らかなように、格納容器へのヨウ素及びセシウムの格納容器内の移行先は W/W ボリューム(液相中に溶解)が支配的となる。RCS 内 FP 化学の格納容器への移行化学種に及ぼす影響を検討するため感度解析を実施した。FP 化学を考慮しないケース(without FP chemistry)では、ヨウ素及びセシウム化学種として CsI と CsOH を仮定した。FP 化学を考慮したケース(with FP chemistry)では、移行経路において、FP 化学組成計算モデルによって雰囲気条件に基づき化学形の変化が計算される。そしてガスの流れを移行媒体に格納容器に移行する。W/W 液相に移行する

と、本来、水溶性が高いヨウ素やセシウム化学種は解離し、 $I^-$ や  $Cs^+$ などイオンとなるが、ここでは、移行化学種の相違及び格納容器 pH への影響を検討するために、W/W への移行量を化学種別に集計し示した。RCS 内 FP 化学の考慮による格納容器への移行化学種の違いを図 2.3.3.7 に示す。RCS 内 FP 化学を考慮しない従来の評価では、工学的判断によりセシウム及びヨウ素の移行化学種を  $CsI$  及び  $CsOH$  と仮定していたが、RCS 内 FP 化学を考慮することにより  $CsI$ 、 $CsBO_2$  や  $Cs_2MoO_4$  の化学形として格納容器へ移行する可能性が示された。

格納容器へ化学種が移行することで、格納容器液相の pH が変化する。pH は THALES2 内のヨウ素化学計算部 KICHE の化学反応データベースにより計算する。昨年度(平成 29 年度)の高度化において、RCS 内 FP 化学の関連化学種の解離反応(表 2.3.3.5 参照)を KICHE 化学反応データベースに追加しており、格納容器への FP 移行に伴い pH 計算に反映される。

格納容器の pH(初期値 7)は、液相温度や移行する化学種により変化する。RCS 内 FP 化学を考慮しないケースでは、化学形  $CsOH$  での移行することで pH が 6 から 8.5 程度まで上昇した。それに対して、RCS 内 FP 化学を考慮したケースでは、格納容器に移行する Cs 化学種が強塩基性の  $CsOH$  から弱塩基性の化学種である  $CsBO_2$  や  $Cs_2MoO_4$  の化学種に変化することで pH 上昇が 7 程度まで抑えられる結果となった。格納容器 pH の上昇が抑制されることで、条件によってはガス状ヨウ素( $I_2$  及び有機ヨウ素)の生成及び雰囲気への再放出挙動に影響を及ぼす可能性がある。

### 3) ソースタームへの影響検討

全交流電源喪失 TB シーケンスの過圧破損ケースの結果について説明する。環境への放出は、プラント内全体挙動図 2.3.3.6 に示されるように、格納容器破損により格納容器内(一部原子炉冷却系内)に浮遊していたヨウ素及びセシウムが建屋経由で環境に放出される。TB シーケンスの D/W 過圧破損ケースでは、初期インベントリの 2%程度のヨウ素、3%程度のセシウムが環境に放出される結果となった。計算終了時の化学種内訳と RCS 内 FP 化学の考慮の有無によるソースタームへの影響を図 2.3.3.8(a)及び(b)に示した。RCS 内 FP 化学を考慮した場合、環境への放出割合はヨウ素及びセシウムともに減少した。また、環境への放出化学種としては、 $CsOH$  から  $Cs_2MoO_4$  や  $CsBO_2$  の化学形で放出される結果となった。これは、RCS 内 FP 化学の考慮することで  $CsOH$  から蒸気圧が低い他の Cs 化学種に変化することで、建屋などの移行経路での沈着が促進されることによる。また、図 2.3.3.8(a)及び(b)に環境放出の時間変化を化学種別に示した。RCS 内 FP 化学の考慮により、格納容器 pH の低下がみられたが、格納容器内ヨウ素化学反応から生成される  $I_2$  の環境放出は限定的となった。これは Mark-I 型格納容器では、コア・コンクリート反応による非凝縮性ガスがドライウエルで継続して発生している。その影響により、格納容器破損位置としてドライウエル気相部を仮定した本ケースでは、ウェットウエルからのドライウエルへの  $I_2$  の移行が限定されたと考えられる。

以下に、表 2.3.3.2 に示した解析ケースに基づき、炉心損傷事故シーケンス、格納容器機

能喪失シナリオ、格納容器形状の違いによるソースタームへの影響について述べる。解析ケース毎のヨウ素及びセシウム化学種のソースターム結果を表 2.3.3.6 に整理した。

#### 炉心損傷事故シーケンスの違いによる FP 挙動影響

TB シーケンスの結果と同様に、炉心冷却機能喪失 TQUV シーケンスの D/W 過圧破損の結果一式(ヨウ素及びセシウムの全体挙動、RCS 内 FP 化学による格納容器移行化学種及び pH への影響、環境放出)を図 2.3.3.9~図 2.3.3.11 に示す。主な傾向を以下に示す。

- TQUV は運転員による原子炉減圧操作を実施している。これにより格納容器へヨウ素及びセシウムの移行が TB に比べて促進される。インベントリに対して 95%以上のヨウ素及びセシウムが格納容器に移行した(図 2.3.3.9 参照)。これにより、pH の上昇が TB と比較し高くなった。
- 移行化学種としては、減圧操作により、比較的高温の状態では化学種の格納容器への移行が進んだため、 $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$  よりも高温時に安定な  $\text{CsBO}_2$  化学種での移行が増加する傾向がある。
- TQUV は炉心冷却機能喪失により TB と比べて格納容器への崩壊熱移行が少なく、格納容器破損時期が遅くなる。ドライウェルでの FP 沈着が促進されることで、ソースタームは TB よりも小さくなる傾向がある。

#### 格納容器機能喪失シナリオの違いによる FP 挙動への影響

結果の一例として、全交流電源喪失 TB シーケンスの格納容器ベント作動ケースの結果一式(ヨウ素及びセシウムの全体挙動、環境放出)を図 2.3.3.12 及び図 2.3.3.13 に示す。RCS 内 FP 化学による格納容器移行化学種及び pH への影響については、ベント作動までの事故進展は共通のため過圧破損の結果(図 2.3.3.7)と同様である。主な傾向を以下に示す。

格納容器ベントは、非常用ガス処理系の一部のラインを併用し、格納容器の雰囲気(ウェットウェル気相部)を排気塔経由で放出することで格納容器過圧破損を防止するシビアアクシデント対策の 1 つである。環境放出前に一度、ウェットウェル液相部を通過することでヨウ素やセシウムなどの水溶性が高い化学種の低減効果が期待できる。

- ウェットウェル液相でのプールスクラビングによる除去効果により、ドライウェル過圧破損ケースと比較してヨウ素及びセシウムの環境放出割合は低下する。
- ガス状ヨウ素の生成及び再放出が顕著となるウェットウェルの気相部からベントすることで、 $\text{I}_2$  の環境放出は過圧破損ケースと比べ 2 倍程度(0.01%)まで増加した。ただし、全ヨウ素放出量 0.1%程度に対する寄与としては限定的であった。ベント作動時により環境放出が増加するものの、その後のウェットウェル水の蒸発及びベントライン経由でのガスの移行が限定的であったためと考えられる。
- 本傾向は、炉心冷却機能喪失事故シーケンス TQUV においても同様であった。

### 格納容器機形状の違いによる FP 挙動への影響

BWR5/Mark-II の全交流電源喪失 TB シーケンスの D/W 過圧破損の結果一式(ヨウ素及びセシウムの全体挙動、RCS 内 FP 化学による格納容器移行化学種及び pH への影響、環境放出)を図 2.3.3.15~図 2.3.3.17 に示す。

- 圧力容器破損までにインベントリの 50%程度のヨウ素及びセシウムが格納容器に移行。  
CsBO<sub>2</sub>、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> 及び CsOH の化学形で格納容器に移行で pH は 7 程度で推移する。
- 環境へのヨウ素の放出は CsI が支配的だが、BWR5/Mark-II プラントでは、RCS 内 FP 化学を考慮することで、I<sub>2</sub> の環境放出割合が 2 桁程度増加した(図 2.3.3.17(a)参照) その要因については、Mark-II 型格納容器では、ペDESTAL床が破損することで熔融炉心が W/W に落下する。これにより W/W 水の蒸発が促進され環境への I<sub>2</sub> 放出が促進されたと考えられる(図 2.3.3.18 参照)

### まとめ

昨年度(平成 29 年度)に整備した FP 化学形簡易予測モデルを導入した THALES2/KICHE を用いて実機 BWR の代表的な事故シーケンスに対するソースターム解析に適用し、原子炉冷却系内の FP 化学がプラント内移行挙動やソースタームに及ぼす影響について検討した。

B<sub>4</sub>C 制御材を有する BWR においては、ホウ素が原子炉冷却系内 FP 化学に影響を及ぼし、CsI、CsBO<sub>2</sub> や Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> など様々な化学形で格納容器へ移行することが示された。格納容器への移行する Cs 化学種が強塩基性 CsOH から弱塩基性の化学種に変化することで、格納容器液相の pH を CsOH での移行を想定した場合よりも 1 程度低下させることが示された。これよりガス状ヨウ素(I<sub>2</sub> 及び有機ヨウ素)のソースタームを増加させる可能性がある。

本解析では環境に放出されるヨウ素は CsI が支配的であり、ガス状ヨウ素の影響は限定的となる結果が得られた。しなしながら、熱力学平衡計算コードを用いた実験解析において、熱力学化学平衡の仮定の下ではガス状ヨウ素(I や HI)の生成量を過小評価しており、課題となっている。それ故、本ソースターム解析に用いた FP 化学形予測モデルのヨウ素の予測精度にも同様の課題が存在するので、ヨウ素のソースタームへの影響についてはヨウ素の反応に関わる現象解明と合わせて継続して検討する必要がある。

#### 参考文献

- [2.3.3.1] 石川 他, “THALES-2 コードによる BWR Mark-II を対象としたレベル 3PSA のための系統的なソースターム解析”, JAERI-Research 2005-021, 2005.
- [2.3.3.2] R. O. Gauntt, et al., MELCOR Computer Code Manuals, Vol. 1: Primer and User's Guide, Version 1.8.6. NUREG/CR-6119, Vol. 1, Rev. 3, Sandia National Laboratory, 2005.
- [2.3.3.3] K. Moriyama, et al., A Simulation Tool for Kinetics of Iodine Chemistry in the Containment of Light Water Reactors under Severe Accident Conditions, JAEA-Data/Code 2010-034, 2010.
- [2.3.3.4] 平成29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）事業成果報告書, 日本原子力研究開発機構, 平成30年9月.
- [2.3.3.5] 石川他, 原子炉冷却系内 FP 化学を考慮したソースターム解析手法の構築, 日本原子力学会 2018 年秋の大会, 2P18, 2018.
- [2.3.3.6] J.Ishikawa, et.al. Evaluation of Chemical Speciation of Iodine and Cesium considering Fission Product Chemistry in Reactor Coolant System, Asian Symposium on Risk Assessment and Management (ASRAM), ASRAM2018-034, 2018.
- [2.3.3.7] H.Shitsu et. al., Parametric Study for Impact of In-Vessel Chemical Forms of Cesium and Iodine on Source Term and pH of Aqueous Phase, ICON23-2085, 2015.
- [2.3.3.8] Kitamura, A., et al., “JAEA Thermodynamic Database for Performance Assessment of Geological Disposal of High-level and TRU Wastes: Selection of Thermodynamic Data of Molybdenum,” JAEA-Review 2010-010, 2010.
- [2.3.3.9] Wagman, D. D., et al., “The NBS tables of chemical thermodynamic properties Selected values for inorganic and C1 and C2 organic substances in SI units,” J. Phys. Chem. Ref. Data, Vol. 11, 1982.

表 2.3.3.1 データベースの入出力情報及び想定化学種

入力パラメータ		出力パラメータ	
元素濃度 (kmol/L)	Cs, I, Mo, B	各化学種の平衡濃度 (kmol/L)	ヨウ素 : CsI、HI、I セシウム : CsI、CsOH、Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> 、CsBO <sub>2</sub> ホウ素 : CsBO <sub>2</sub> 、HBO <sub>2</sub> * モリブデン : Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> 、単体 Mo
雰囲気組成比(-)	H <sub>2</sub> O/H <sub>2</sub>	元素別の組成比(-)	
温度(K)	雰囲気温度		

\*制御材 B<sub>4</sub>C 酸化からの生成化学種

表 2.3.3.2 解析プラント及び解析ケース

ケース	プラント	炉心損傷事故シーケンス	格納容器機能喪失シナリオ
1	BWR4/Mark-I	全交流電源喪失 TB	ドライウェル気相部過圧破損
2	同上	炉心冷却機能喪失 TQUV	同上
3	同上	全交流電源喪失 TB	格納容器ベント作動
4	同上	炉心冷却機能喪失 TQUV	同上
5	BWR5/Mark-II	全交流電源喪失 TB	ドライウェル気相部過圧破損

表 2.3.3.3 事故シナリオに関わる計算条件

	BWR4/Mark-I	BWR5/Mark-II
熱出力 (万 kWe)	78.4	110
格納容器設計圧 (kgf/cm <sup>2</sup> g)	3.92	2.85
格納容器破損圧力	設計圧×2 倍	設計圧×2.5 倍*
格納容器破損位置及びサイズ	D/W 気相部、0.01 m <sup>2</sup>	D/W 気相部、0.01 m <sup>2</sup>
格納容器ベントの作動条件	設計圧×2 倍	-
格納容器ベントサイズ (m <sup>2</sup> )	0.01	

\* BWR4/Mark-I より格納容器設計圧が低いため 2.5 倍を仮定

表 2.3.3.4(a) イベント時刻 (BWR4/Mark-I)

時刻(時間)	全交流電源喪失	炉心冷却機能喪失
	TB	TQUV
ギャップ放出開始*	11.9	0.6
炉心損傷開始**	12.4	0.8
下部炉心支持板破損	13.5	1.9
圧力容器破損	17.2	6.0
格納容器破損 (過圧破損ケースの場合)	21.7	27.8
格納容器ベント作動 (ベントケースの場合)	22.5	28.1

\*: 被覆管最高温度 1173 K 到達、\*\*:被覆管最高温度 2098 K 到達

表 2.3.3.4(b) イベント時刻 (BWR5/Mark-II)

時刻(時間)	全交流電源喪失
	TB
ギャップ放出開始*	10.0
炉心損傷開始**	10.2
下部炉心支持板破損	12.4
圧力容器破損	19.1
格納容器破損 (過圧破損ケース)	22.2
ペデスタル破損	26.2

\*: 被覆管最高温度 1173 K 到達、\*\*:被覆管最高温度 2098 K 到達

表 2.3.3.5 RCS 内 FP 化学関連化学種の解離反応

化学種	化学反応
CsI	$\text{CsI} \rightarrow \text{Cs}^+ + \text{I}^-$
HI	$\text{HI} \rightarrow \text{H}^+ + \text{I}^-$
CsOH	$\text{CsOH} \rightarrow \text{Cs}^+ + \text{OH}^-$
Cs	$\text{Cs} \rightarrow \text{Cs}^+ + \text{e}^-$
$\text{Cs}_2\text{MoO}_4$	$\text{Cs}_2\text{MoO}_4 \rightarrow 2 \text{Cs}^+ + \text{MoO}_4^{2-}$ $\text{H}^+ + \text{MoO}_4^{2-} \rightleftharpoons \text{HMoO}_4^-$ $2\text{H}^+ + \text{MoO}_4^{2-} \rightleftharpoons \text{H}_2\text{MoO}_4$
CsBO <sub>2</sub> (HBO <sub>2</sub> は B <sub>4</sub> C 酸化での生成物)	$\text{CsBO}_2 + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Cs}^+ + \text{B}(\text{OH})_4^-$ $\text{H}^+ + \text{B}(\text{OH})_4^- \rightleftharpoons \text{B}(\text{OH})_3 + \text{H}_2\text{O}$ $\text{HBO}_2 + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{B}(\text{OH})_3$
CO <sub>2</sub> 関連 (B <sub>4</sub> C 酸化関連)	$\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{H}^+ + \text{HCO}_3^-$ $\text{HCO}_3^- \rightleftharpoons \text{H}^+ + \text{CO}_3^{2-}$

化学反応	$\Delta H$ [kJmol <sup>-1</sup> ]	$\Delta S$ [Jmol <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> ]	文献
$\text{H}^+ + \text{MoO}_4^{2-} \rightleftharpoons \text{HMoO}_4^-$	21	105	[2.3.3.7], [2.3.3.8]
$2\text{H}^+ + \text{MoO}_4^{2-} \rightleftharpoons \text{H}_2\text{MoO}_4$	-27	-33	[2.3.3.7], [2.3.3.8]
$\text{B}(\text{OH})_3 + \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{H}^+ + \text{B}(\text{OH})_4^-$	14.12	-129.7	[2.3.3.9]

表 2.3.3.6 ソースターム解析結果  
ヨウ素化学種

ケース		CsI	HI	I <sub>2</sub>	Org-I	Total
1 TB 過圧破損 (BWR4/Mark-I)	FP 化学なし	5.11E-02	0.00E+00	1.03E-05	1.23E-05	5.11E-02
	FP 化学考慮	1.81E-02	1.10E-05	2.84E-05	1.00E-05	1.82E-02
2 TQUV 過圧破損 (BWR4/Mark-I)	FP 化学なし	1.27E-03	0.00E+00	2.45E-06	1.05E-07	1.27E-03
	FP 化学考慮	3.58E-04	8.35E-06	4.67E-06	4.68E-07	3.72E-04
3 TB ベント作動 (BWR4/Mark-I)	FP 化学なし	8.93E-04	0.00E+00	2.01E-05	2.29E-05	9.36E-04
	FP 化学考慮	4.38E-04	4.37E-06	8.20E-05	2.59E-05	5.51E-04
4 TQUV ベント作動 (BWR4/Mark-I)	FP 化学なし	1.19E-05	0.00E+00	2.05E-05	5.27E-07	3.29E-05
	FP 化学考慮	2.41E-04	9.21E-05	7.06E-05	1.18E-06	4.05E-04
5 TB 過圧破損作動 (BWR5/Mark-II)	FP 化学なし	7.59E-03	0.00E+00	3.12E-05	0.00E+00	7.62E-03
	FP 化学考慮	3.52E-02	2.39E-04	1.18E-02	0.00E+00	4.73E-02

セシウム化学種

ケース		CsI	Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub>	CsBO <sub>2</sub>	CsOH	Total
1 TB 過圧破損 (BWR4/Mark-I)	FP 化学なし	4.29E-03	0.00E+00	0.00E+00	7.32E-02	7.74E-02
	FP 化学考慮	1.52E-03	7.15E-03	1.25E-02	1.31E-02	3.43E-02
2 TQUV 過圧破損 (BWR4/Mark-I)	FP 化学なし	1.06E-04	0.00E+00	0.00E+00	3.42E-04	4.49E-04
	FP 化学考慮	3.01E-05	4.65E-05	3.66E-05	2.33E-05	1.36E-04
3 TB ベント作動 (BWR4/Mark-I)	FP 化学なし	7.50E-05	0.00E+00	0.00E+00	7.96E-04	8.71E-04
	FP 化学考慮	3.68E-05	2.83E-04	2.63E-04	6.40E-05	6.47E-04
4 TQUV ベント作動 (BWR4/Mark-I)	FP 化学なし	9.98E-07	0.00E+00	0.00E+00	1.56E-05	1.66E-05
	FP 化学考慮	2.03E-05	3.29E-06	2.13E-05	1.10E-05	5.59E-05
5 TB 過圧破損作動 (BWR5/Mark-II)	FP 化学なし	6.37E-04	0.00E+00	0.00E+00	6.00E-03	6.64E-03
	FP 化学考慮	2.96E-03	2.61E-03	6.93E-03	3.30E-02	4.55E-02

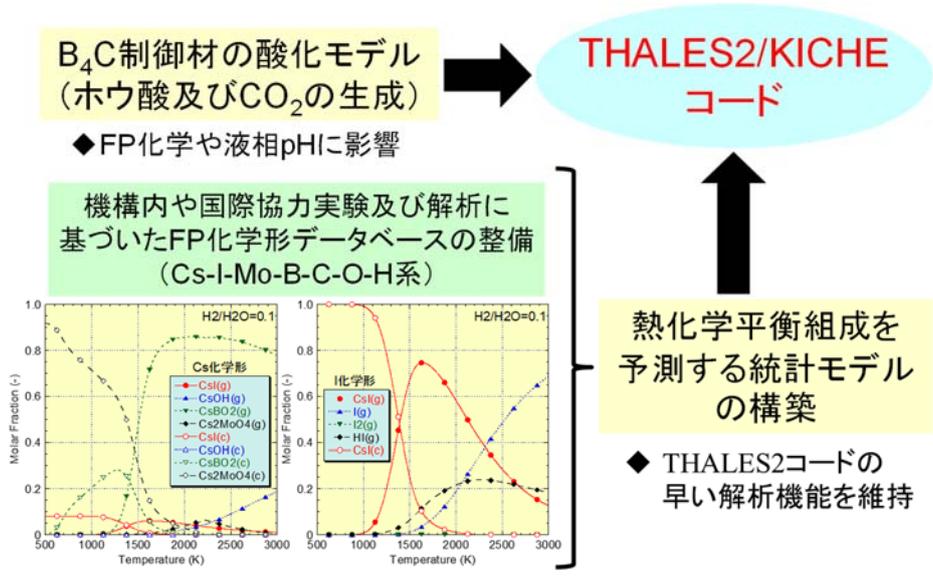


図 2.3.3.1 原子炉冷却系内の FP 化学を総合コードに導入するための概念図

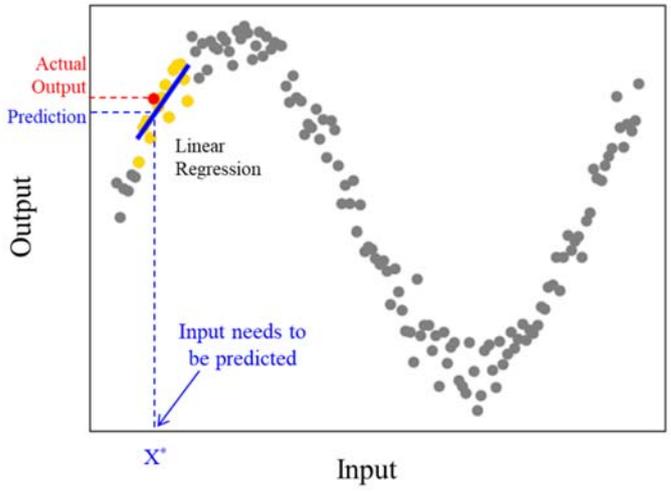
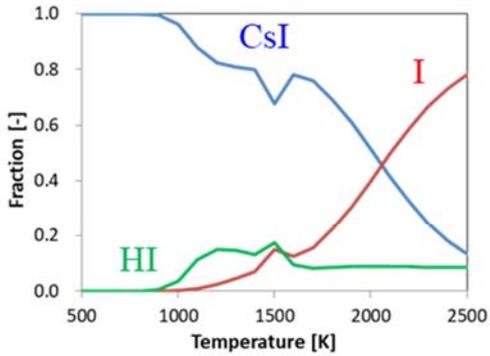


図 2.3.3.2 K 近傍法によるデータ抽出と化学種組成の予測 (抽出した K 個の近傍データからの線形回帰曲線の導出と予測計算への適用)

(a) ヨウ素化学種

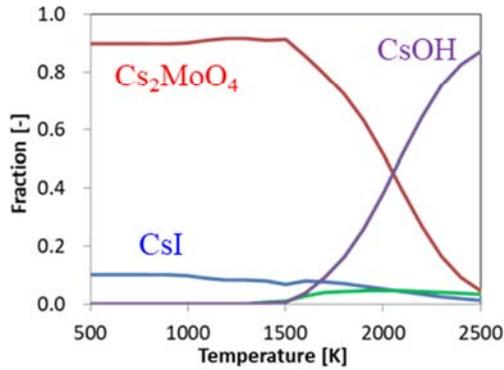


濃度条件(kmol/L)

#1 Cs:I:Mo:B=0.1:0.01:0.1: 0.1、 $H_2O/H_2=100$

#2 Cs:I:Mo:B=0.1:0.01:0.1: 1.0、 $H_2O/H_2=100$

(b1) セシウム化学種  
(低B濃度条件#1)



(b2) セシウム化学種  
(高B濃度条件#2)

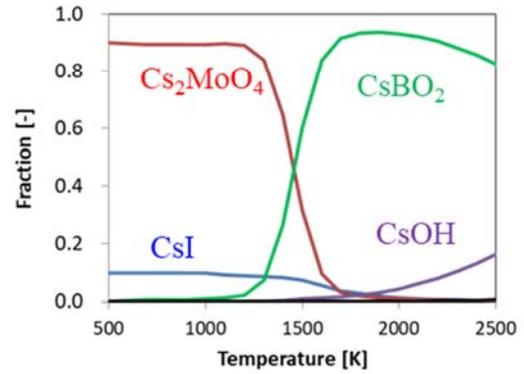
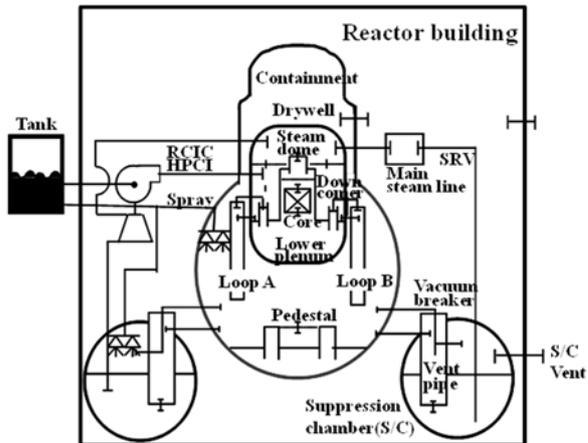


図 2.3.3.3 熱化学平衡組成計算モデルの傾向

(a) BWR4/Mark-I 型



(b) BWR5/Mark-II

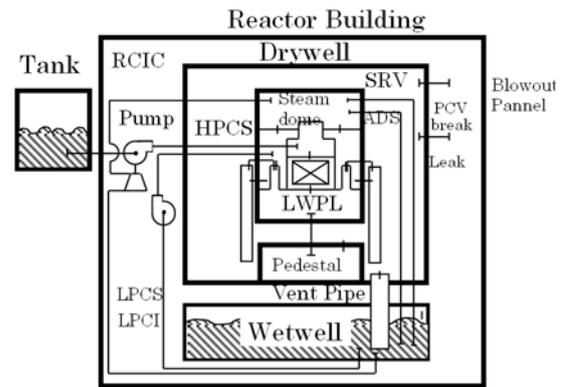
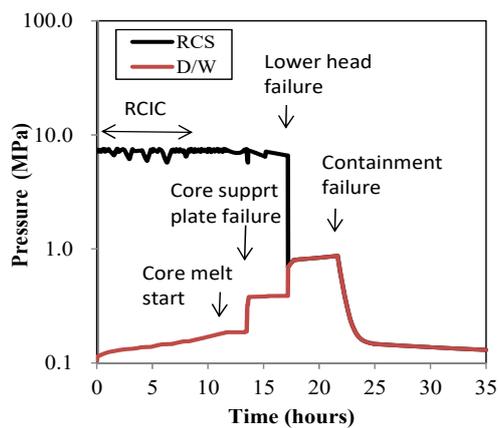
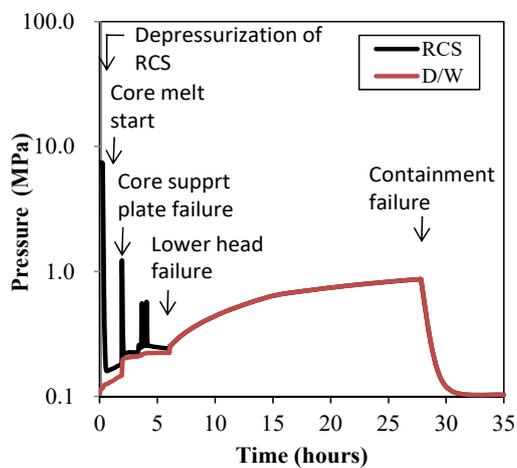


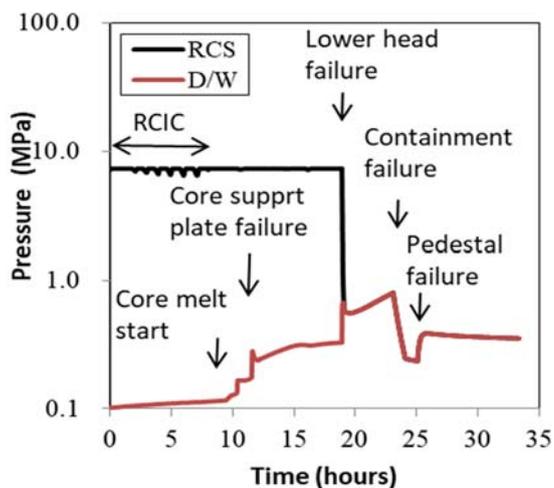
図 2.3.3.4 解析対象プラント



(a) TB シーケンス D/W 過圧破損(BWR4/Mark-I)

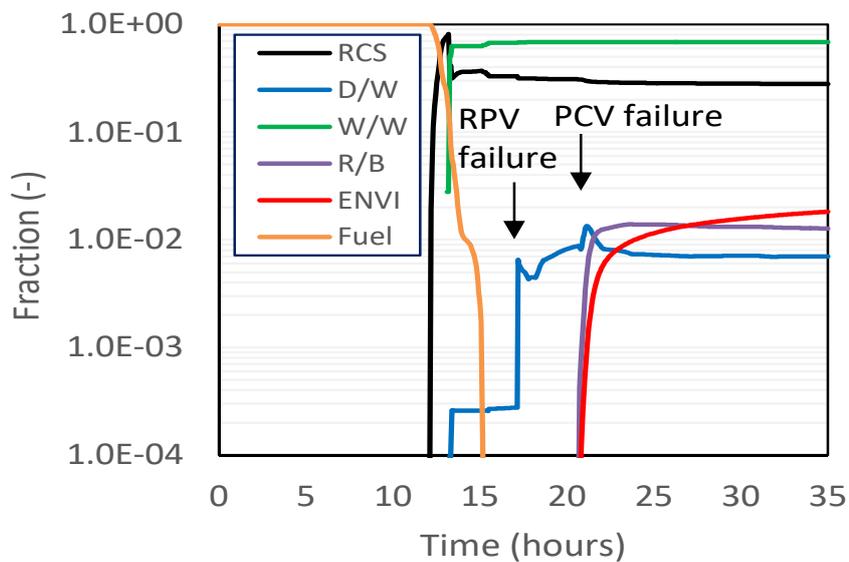


(b) TQUV シーケンス D/W 過圧破損(BWR4/Mark-I)

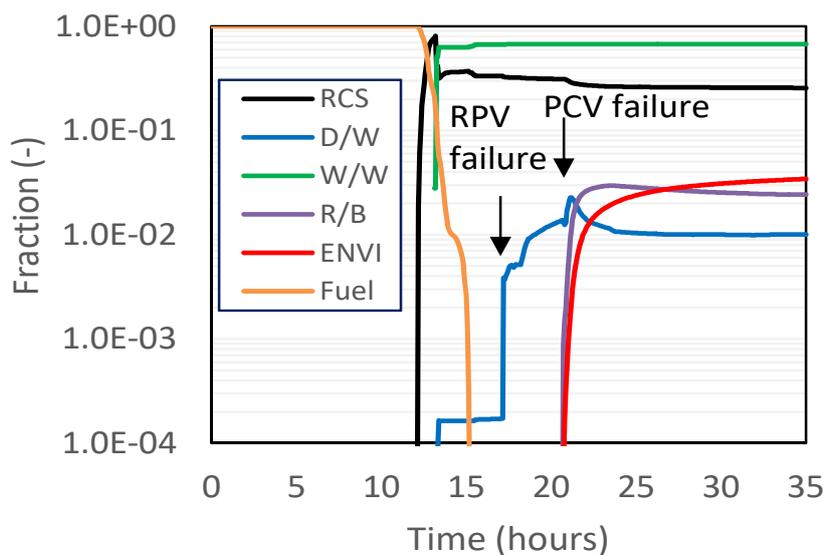


(c) TB-D/W 過圧破損(BWR5/Mark-II)

図 2.3.3.5 原子炉及び格納容器圧力



(a) ヨウ素の全体挙動

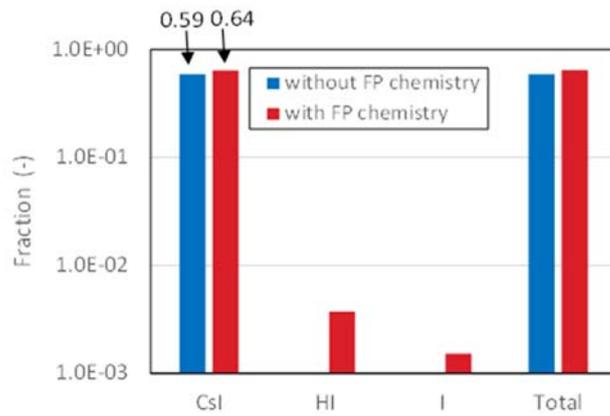


(b) セシウムの全体挙動

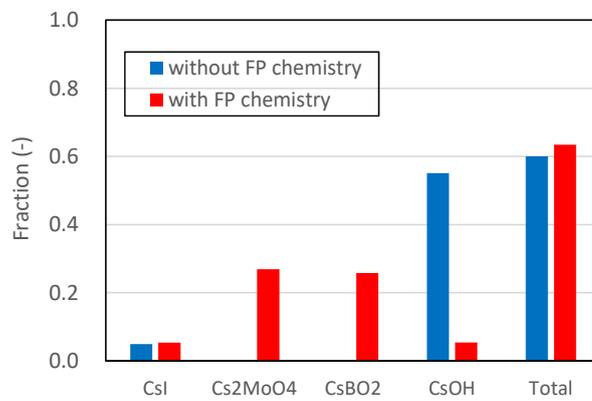
ヨウ素の値：全ヨウ素化学種合計値 (CsI + HI + I<sub>2</sub> + Org-I + I イオン)

セシウムの値：全 Cs 化学種合計値 (CsI + Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> + CsBO<sub>2</sub> + CsOH + Cs イオン)

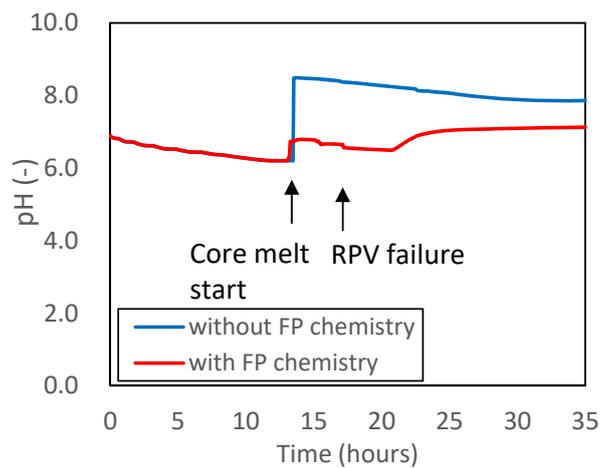
図 2.3.3.6 ヨウ素及びセシウムの全体挙動 (化学種合計、浮遊+沈着)  
(全交流電源喪失 TB シーケンス D/W 過圧破損ケース、BWR4/Mark-I)



(a) ヨウ素化学種の PCV 移行量(RPV 破損時)

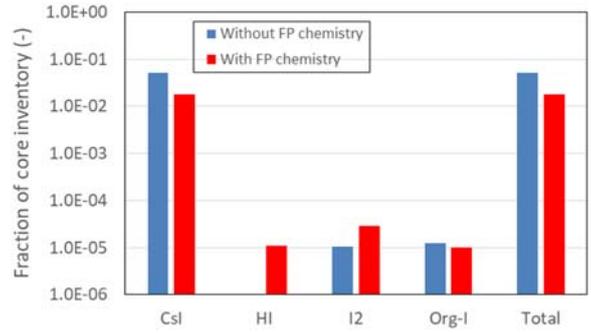


(b) セシウム化学種の PCV 移行量(RPV 破損時)

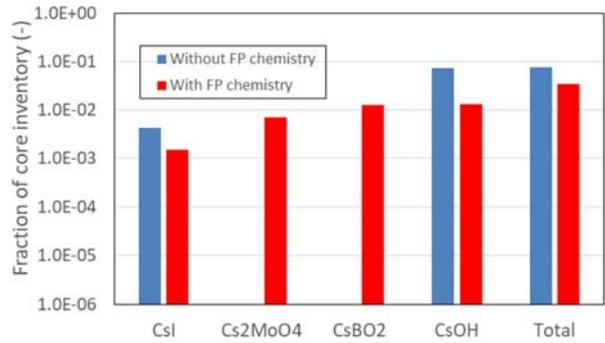


(c) 格納容器 pH

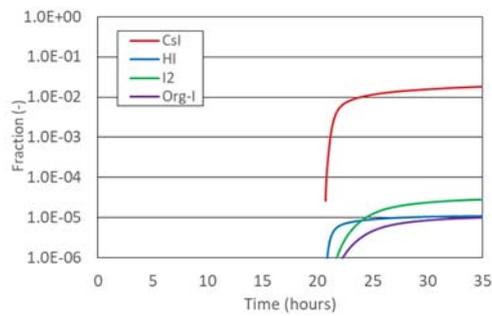
図 2.3.3.7 RCS 内 FP 化学による格納容器移行化学種及び pH への影響 (TB シーケンス共通、BWR4/Mark-I)



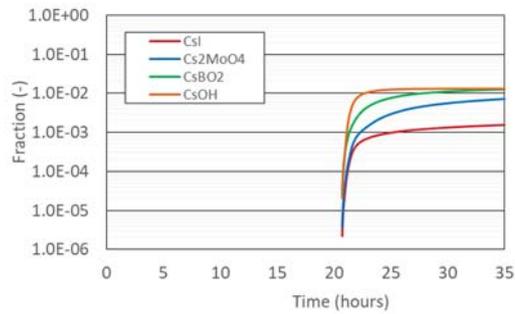
(a) ヨウ素化学種 (計算終了時)



(b) セシウム化学種 (計算終了時)

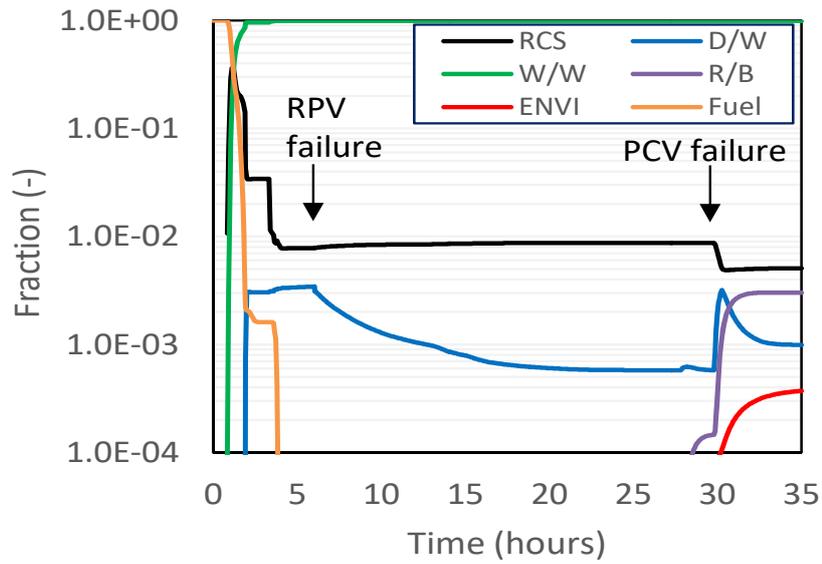


(c) ヨウ素化学種 (時系列情報)

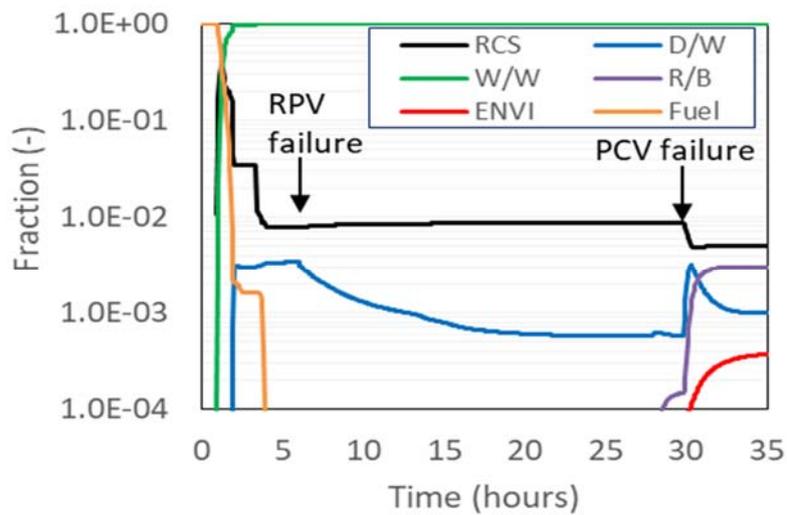


(d) セシウム化学種 (時系列情報)

図 2.3.3.8 RCS 内 FP 化学によるソースタームへの影響 (TB-D/W 過圧破損ケース、BWR4/Mark-I)



(a) ヨウ素の全体挙動

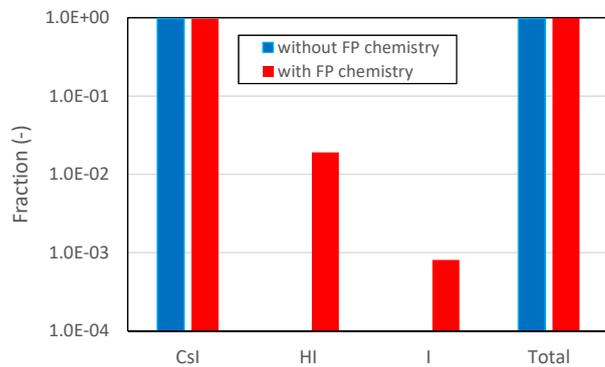


(b) セシウムの全体挙動

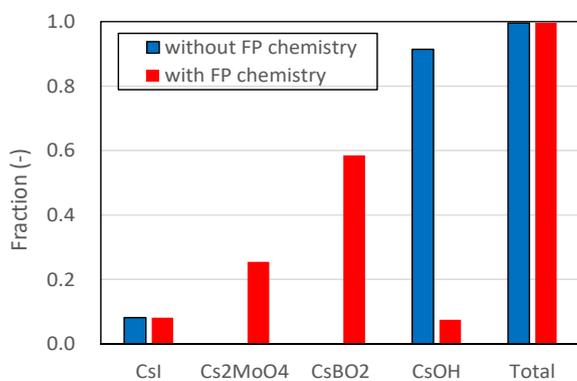
ヨウ素の値：全ヨウ素化学種合計値 (CsI + HI + I<sub>2</sub> + Org-I + I イオン)

セシウムの値：全 Cs 化学種合計値 (CsI + Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> + CsBO<sub>2</sub> + CsOH + Cs イオン)

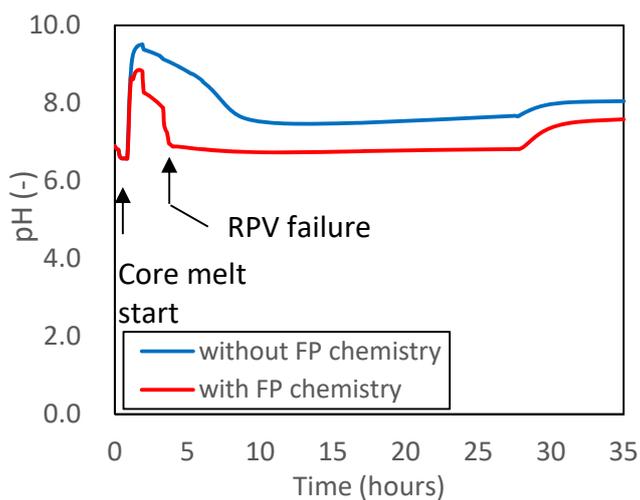
図 2.3.3.9 ヨウ素及びセシウムの全体挙動 (化学種合計、浮遊+沈着)  
(炉心冷却機能喪失 TQUV シーケンス、D/W 過圧破損ケース、BWR4/Mark-I)



(a) ヨウ素化学種の PCV 移行量 (RPV 破損時)

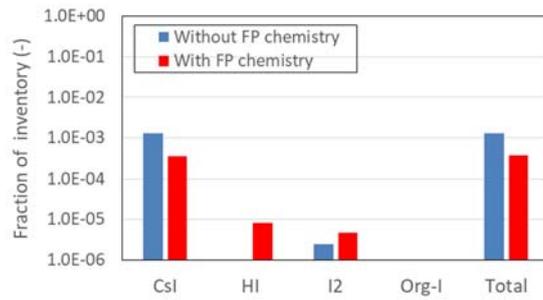


(b) セシウム化学種の PCV 移行量(RPV 破損時)

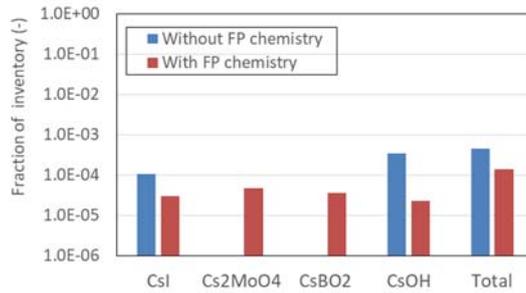


(c) 格納容器 pH

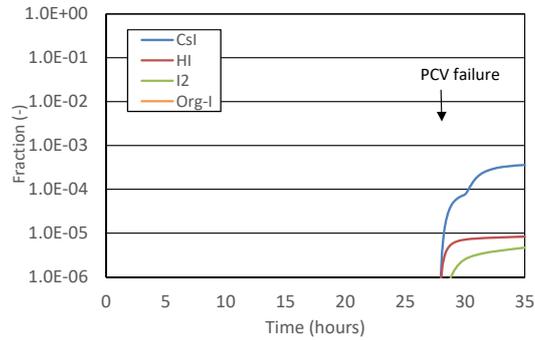
図 2.3.3.10 RCS 内 FP 化学による格納容器移行化学種及び pH への影響 (TQUV シーケンス共通、BWR4/Mark-I)



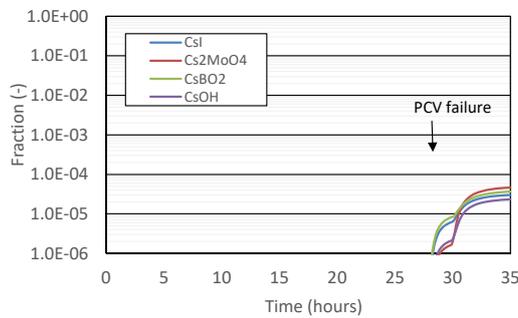
(a) ヨウ素化学種の環境放出 (計算終了時)



(b) セシウム化学種 (計算終了時)

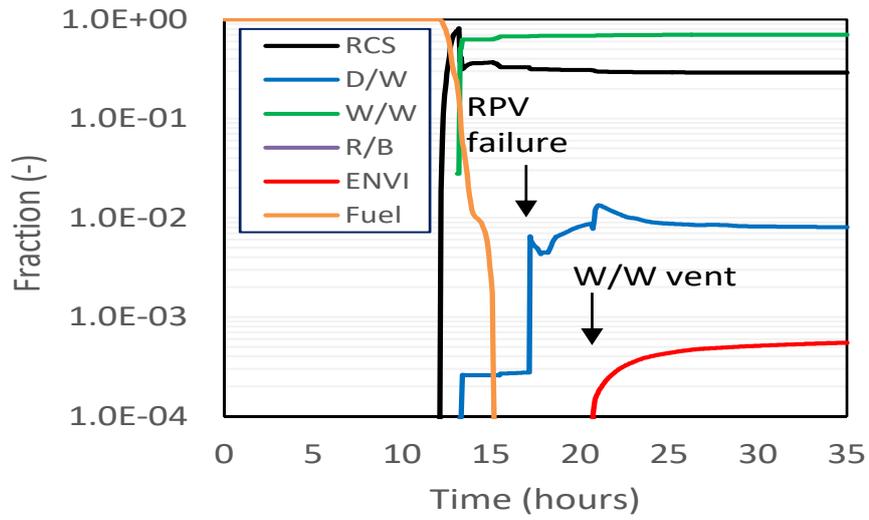


(c) ヨウ素化学種 (時系列情報)

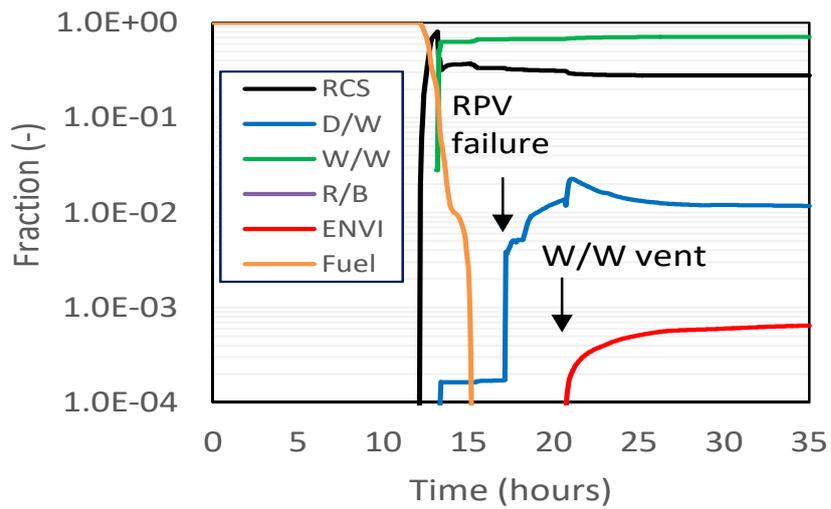


(d) セシウム化学種 (時系列情報)

図 2.3.3.11 RCS 内 FP 化学によるソースタームへの影響 (TQUV-D/W 過圧破損ケース、BWR4/Mark-I)

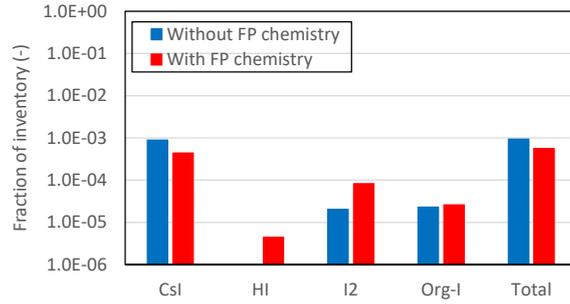


(a) ヨウ素の全体挙動

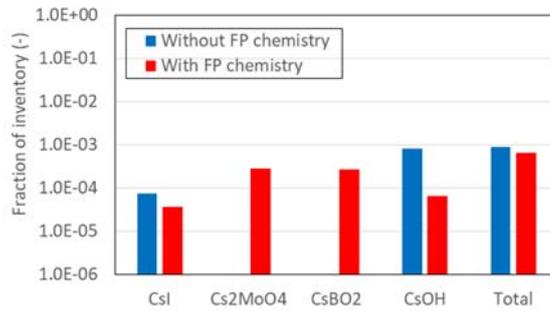


(b) セシウムの全体挙動

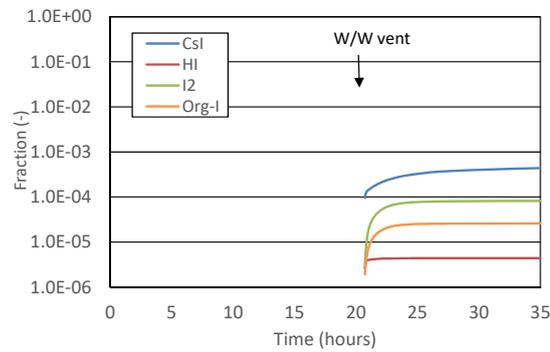
図 2.3.3.12 ヨウ素及びセシウムの全体挙動 (化学種合計、浮遊+沈着)  
(全交流電源喪失 TB シーケンス、格納容器ベント作動ケース、BWR4/Mark-I)



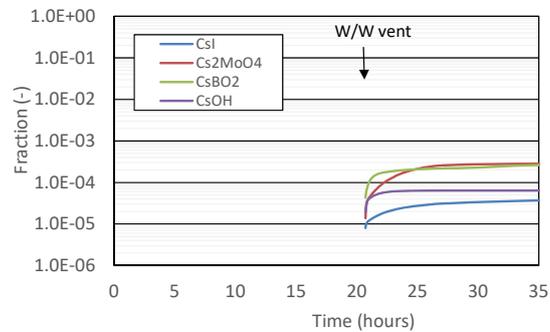
(a) ヨウ素化学種の環境放出割合 (計算終了時)



(b) セシウム化学種の環境放出割合 (計算終了時)

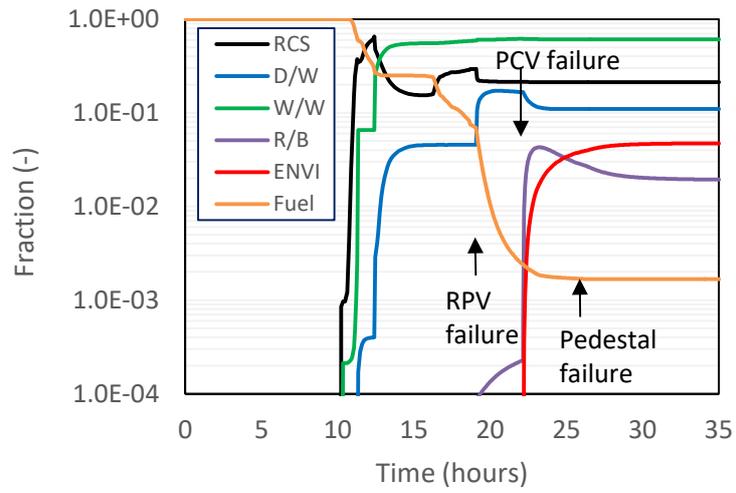


(c) ヨウ素化学種の環境放出割合 (時系列情報)

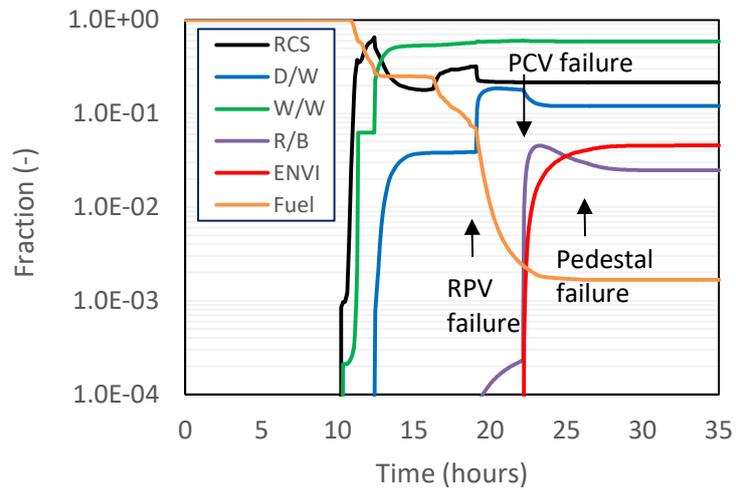


(d) セシウム化学種の環境放出割合 (時系列情報)

図 2.3.3.14 RCS 内 FP 化学によるソースタームへの影響 (TB-格納容器ベントケース、BWR4/Mark-I)

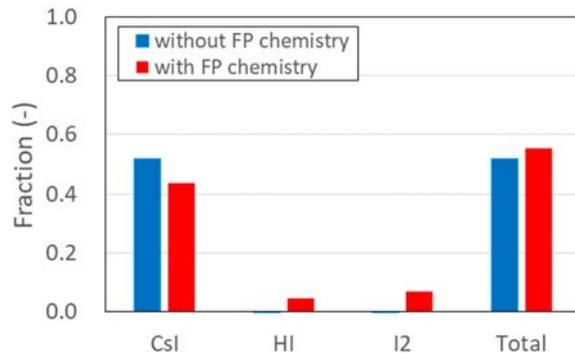


(a) ヨウ素の全体挙動

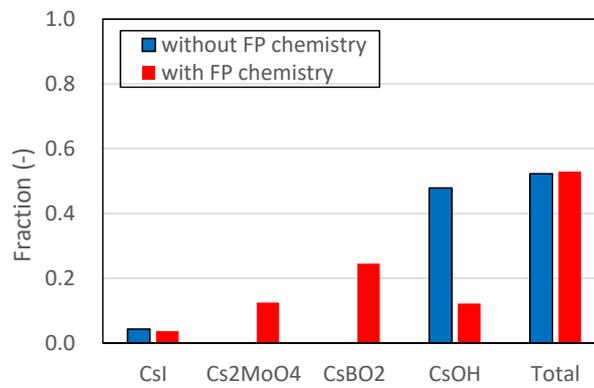


(b) セシウムの全体挙動

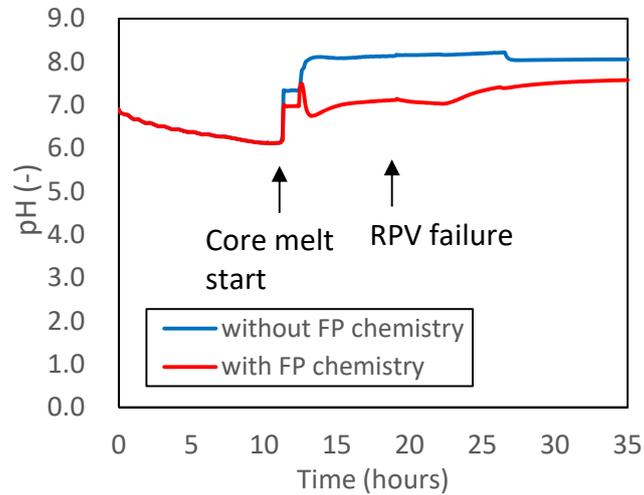
図 2.3.3.15 ヨウ素及びセシウムの全体挙動 (化学種合計、浮遊+沈着)  
(全交流電源喪失 TB シーケンス、D/W 過圧破損、BWR5/Mark-II)



(a) ヨウ素化学種の PCV 移行量 (RPV 破損時)

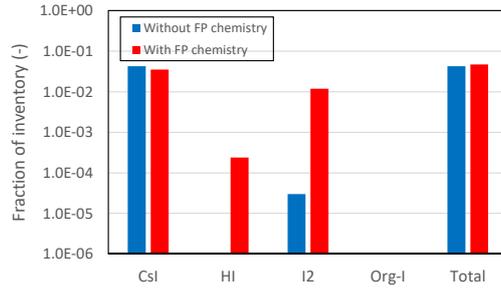


(b) セシウム化学種の PCV 移行量(RPV 破損時)

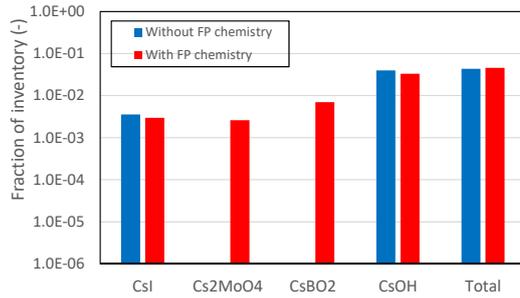


(c) 格納容器 pH

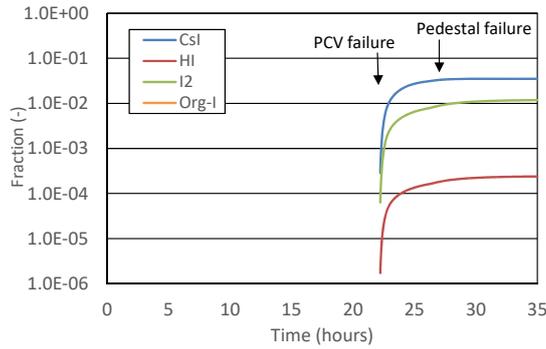
図 2.3.3.16 RCS 内 FP 化学による格納容器移行化学種及び pH への影響 (TB シーケンス共通、BWR5/Mark-II)



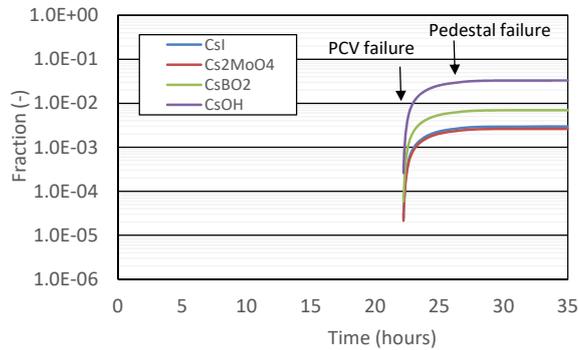
(a) ヨウ素化学種 (計算終了時)



(b) セシウム化学種 (計算終了時)



(c) ヨウ素化学種(時系列情報)



(d) セシウム化学種(時系列情報)

図 2.3.3.17 RCS 内 FP 化学によるソースタームへの影響 (TB-D/W 過圧破損ケース、BWR5/Mark-II)

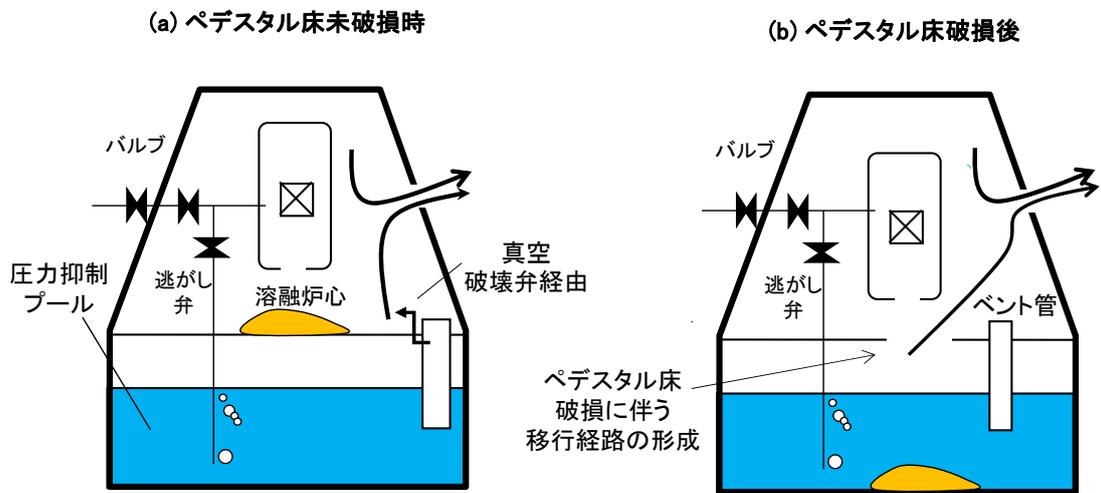


図 2.3.3.18 Mark-I 型格納容器のペDESTAL破損前後のガスの流れ

### 3. 1F プラント内核種移行調査

1F プラント内における核種の移行に関する公開情報の収集及び整理を行うとともに、平成 29 年度「東京電力福島第一原子力発電所プラント内核種移行に関する調査」事業において作成した分析計画を踏まえて、上記ソースターム評価に有益と考えられるプラント内核種移行挙動の把握を目的とした水や固体試料の分析及び今後の試料入手に向けた準備等を実施する。さらに、整理した情報及び取得した知見を 1F 事故分析に係る経済協力開発機構／原子力機関（OECD/NEA）プロジェクトに提供するためのデータベースを作成する。

具体的には、以下に示す①公開情報の収集及び整理、②プラント内試料の分析及び今後の試料入手に向けた準備等、③1F 事故分析に係る OECD/NEA プロジェクトに知見を提供するためのデータベース作成を実施した。

- ① プラント内における核種の濃度や分布に関連する公開情報の収集及び整理を行い、現時点で把握可能な核種の移行挙動について取りまとめた。調査対象は、1F サイト内の汚染水、建屋内線量、がれき、土壌等を分析した結果の公開情報、OECD/NEA の 1F 関連プロジェクト等とした。
- ② プラント内の核種移行挙動を把握するため、水試料を入手し分析を実施した。また、今後の試料入手に向けて、固相試料の分析前処理方法について検討するとともに、分析を行う施設の使用許可取得等に向けた準備を進めた。
- ③ ①で整理した情報及び②の分析等で取得した知見を OECD/NEA の 1F 事故分析に係るプロジェクトに提供するためのデータベースを作成した。

#### 3.1 公開情報の収集及び整理

##### 3.1.1 公開情報データベースの更新

これまでに東京電力、日本原子力研究開発機構（JAEA）、国際廃炉研究開発機構（IRID）から公開された、1F サイト内の汚染水、建屋内線量、がれき、土壌等に係る分析データに加えて、OECD/NEA の 1F 関連プロジェクト（BSAF-2 等）から収集した情報を整理するとともに、整理した情報から、現時点で把握可能な核種の移行挙動について取りまとめた。

2016（平成 28）年 3 月末までに東京電力、JAEA、IRID が公開した分析データについては、浅見ら[3.1.1]によって整理されている（以下「浅見らによる分析データ集」という。）ことから、昨年度（2017（平成 29）年度）は、浅見らによる分析データ集以後の 2016（平成 28）年 3 月以降の公開の情報源として、「特定原子力施設・監視・評価委員会」、「原子力規制庁面談記録（2016（平成 28）年 3 月以降）」、「たまり水週報」、「廃炉・汚染水対策福島評議会」、「廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議」、「IRID 情報」、「JAEA 情報」、「BSAF 情報」を対象に、ウェブページから情報を収集するとともに、6 つのキーワード（A：水試料、B：固相試料データ、C：線量、D：セシウム以外の元素・核種、E：試料の輸送、F：格納容器/原子炉建屋）を定めて情報を検索できるようにした。

また、収集した情報のうち、事故当時における核種移行に関する情報が得られる又は傍証となり得る可能性のある試料（以下「有用な試料」という。）を整理した。

固相試料としては、原子炉建屋内で採取された構造材であるコンクリート、保温材、塗膜や格納容器内で採取された堆積物や調査装置への付着物を選定するとともに、これら試料についての核種分析データから、現時点で把握可能な核種の分布状況として、1～3号機の建屋内や格納容器内における試料採取場所と検出された核種を整理した。

水試料としては、事故時に滞留水中に大量に溶出したと考えられる放射性ヨウ素及び放射性セシウムのうち、吸着性が極めて低くかつ半減期が極めて長いI-129に着目し、I-129が事故当時のままの濃度に近い濃度で現在も存在している可能性のある滞留水や貯留水の候補として、復水器内貯留水、3号機格納容器内の滞留水のうち水底近くの水及び3号機原子炉建屋のHPCI室等の高放射能濃度滞留水を選定した。

今年度（2018（平成30）年度）は、2018（平成30）年3月以降の公開の情報源として、「特定原子力施設・監視・評価委員会」、「原子力規制庁面談記録（2018（平成30）年3月以降）」、「たまり水週報」、「廃炉・汚染水対策福島評議会」、「廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議」、「IRID情報」、「JAEA情報」、「BSAF情報」、「東京電力資料」、「水処理設備の放射能濃度測定結果」、「タービン建屋地下階たまり水の核種分析結果」を対象に、ウェブページから情報を収集した。

収集した情報は、情報源ごとにフォルダを作成し日付でソートできるようにして収録するとともに、エクセルファイルの一覧表を作成した。情報を収録したフォルダ及び一覧表のエクセルファイルはDVD-ROMに収納した。

一覧表（添付資料1を参照）では、昨年度と同様に6つのキーワード（A：水試料、B：固相試料データ、C：線量、D：セシウム以外の元素・核種、E：試料の輸送、F：格納容器/原子炉建屋）を定め、情報の中に該当するキーワードがあれば○を付け、キーワードに関係する情報（資料）を検索できるようにした。これらのキーワードのうち、特にDとFは、シビアアクシデント時の対策や安全評価手法並びに安全対策の高度化に関連する技術的知見を取得する観点で、今後の調査対象とすべき核種や構造材元素の優先順位付けを行うことを念頭に設定したものである。

また、昨年度の検討では、有用な固相試料の特徴として、以下のような点が挙げられたことから、今年度は、このような特徴を有する固相試料データとして、特に2号機の固相試料データに着目し、2号機に係る固相データについては、2018（平成30）年3月以降に加えて、2011（平成23）年の事故当時からのデータについても収集した。

- ・分析結果と事故当時の位置情報を関連付ける観点から、それ自体が移動するものではなく、建屋や構造の一部を採取したものであること。
- ・試料の位置に気相または液相で到達した核種が分析時点まで保持されていることに期待するため、コンクリートのような多孔質または化学的に結合しやすい表面を有しており、かつ、事故から試料採取までの期間中に風雨にさらされていないこと。

### 3.1.2 把握可能な核種移行挙動の整理

#### (1) 固相試料

2号機は、水素爆発による建屋の損壊が起きておらず、事故時に放出された核種が最上階まで気相として移行し壁などに付着し、事故当時の状態が保存されている可能性が高いと考えられる。したがって、今年度（2018（平成30）年度）は、有用な固相試料として、2号機原子炉建屋内で採取された試料に着目した。

これまでに採取された試料の試料名、採取場所、採取時期、分析場所、形状、材質等及び線量率について取りまとめ、表 3.1.2-1～表 3.1.2-3 に示す。また、ガンマ線、ベータ線及びアルファ線の分析が実施された試料について、それらの結果を表 3.1.2-4～表 3.1.2-8 にまとめた。なお、Rで始まる試料名については、浅見らによる分析データ集に記載されている番号であり、分析結果の試料名の前に付与した。

表 3.1.2-1 2号機原子炉建屋 (R/B) 内で採取された試料 (1/3)

採取場所	採取時期	分析場所	試料名	形状, 材質等	線量率 ( $\mu\text{Sv/h}$ )	文献 番号
1F TIP 室 PCV TIP 配管	2013 (平成 25) 年 7 月	1F 内, JAEA 大洗, NFD	2RB-PCV-TIP	(ケーブル先端に付 着したサンプル)	200,000 (最大、 $\beta + \gamma$ )	[3.1.2 ~ 3.1.6]
1F PCV 制御棒駆動 機構交換レール	2017 (平成 29) 年 2 月	JAEA 大洗 NFD	2RB-PCV-付着物	(綿棒 2 本で採取)	(記載無し)	[3.1.3 ~ 3.1.5]
1F 北西コーナー・床 パーソナルエアロック室 入口	2012 (平成 24) 年 6 月 30 日	JAEA 大洗	R14_①_Flannel_cloth	粒状 遊離性汚染サンプル	2,500	[3.1.1, 3.1.7 ~ 3.1.9]
			R15_①_Strippable_paint	ペイント 固着性汚染サンプル	3,700	
			R16_2号機①_Boring_core	コンクリートコア 151.9 g	3,800	
2F 北側通路・床 RCW Hx 近傍	2012 (平成 24) 年 6 月 30 日	JAEA 大洗	R17_③_Flannel_cloth	粒状 遊離性汚染サンプル	5,700	[3.1.1, 3.1.7, 3.1.9]
			R18_③_Strippable_paint	ペイント 固着性汚染サンプル	1,900	
3F 北側・床 RCW ポンプ近傍	2012 (平成 24) 年 6 月 30 日	JAEA 大洗	R19_④_Flannel_cloth	粒状 遊離性汚染サンプル	3,400	[3.1.1, 3.1.7, 3.1.9]
			R20_④_Strippable_paint	ペイント 固着性汚染サンプル	3,400	

表 3.1.2-2 2号機原子炉建屋 (R/B) 内で採取された試料 (2/3)

採取場所	採取時期	分析場所	試料名	形状, 材質等	線量率 ( $\mu\text{Sv/h}$ )	文献 番号
5F シールドプラグ 東側床	2014 (平成 26) 年 5月14日*	JAEA 大洗 FMF	R21_2RB-DE-C2	コンクリートコア 表面塗膜 5.0 g	73	[3.1.1, 3.1.10, 3.1.11]
	2014 (平成 26) 年 3月22日	JAEA 大洗 FMF	2RB-OP-養生シート	シート状	100,000 ( $\beta+\gamma$ ) 60,000 ( $\gamma$ )	[3.1.5, 3.1.6, 3.1.12, 3.1.13]
5F 天井部	2014 (平成 26) 年 1~2月	JAEA 原科研, NDC	2RB-DE-D1	デッキプレート 59 g	11	[3.1.14]
			2RB-DE-D2	デッキプレート 58 g	3.6	
			2RB-DE-D3	デッキプレート 57 g	26	
			2RB-DE-D4	デッキプレート 59 g	3.0	
			2RB-DE-D5	デッキプレート 57 g	18	

\* コアサンプル自体は 2014 (平成 26 年) 3 月 21 日に採取されている [3.1.12]。

表 3.1.2-3 2号機原子炉建屋 (R/B) 内で採取された試料 (3/3)

採取場所	採取時期	分析場所	試料名	形状, 材質等	線量率 ( $\mu\text{Sv/h}$ )	文献 番号
5F オペレーティングフロ ア	2018 (平成 30) 年 4月 16, 17 日	1F 内	2RB-OP-1	スミア (コンクリートコア)	(記載無し)	[3.1.15]
			2RB-OP-2			
			2RB-OP-3			
			2RB-OP-4			
			2RB-OP-5			
			2RB-OP-6			
			2RB-OP-7			
			2RB-OP-8			
			2RB-OP-9			
5F オペレーティングフロ ア	2018 (平成 30) 年 7月	1F 内	①床	スミア	(記載無し)	[3.1.16]
			②床			
			③床			
			④床			
			⑤床			
			⑥床			
			⑦壁			
			⑧壁			
			⑨壁			

表 3.1.2-4 主なガンマ核種の分析結果 (1/2)

試料名	60Co	94Nb	110mAg	125Sb	134Cs	137Cs	152Eu	154Eu
2RB-PCV-TIP	○							
R14_① _Flannel_cloth	-	-	○	○	○	○	-	-
R16_2号機① _Boring_core	< 8E-01 Bq/cm <sup>2</sup>	-				3.8E+03 Bq/cm <sup>2</sup>	-	-
R17_③ _Flannel_cloth						○		
R19_④ _Flannel_cloth						○		
R21_2RB -DE-C2	1.1E+03 Bq/g	-				1.1E+06 Bq/g	-	3.5E+02 Bq/g
2RB-OP -養生シート	3.9E-08～ 8.7E-7 μg			2.8E-04～ 7.1E-04 μg	1.7E-04～ 9.4E-03 μg	1.9E-04～ 1.2E+00 μg		-
2RB-DE-D1	(8.1±1.1)E-02 Bq/g	-				(4.5±0.1)E+03 Bq/g	-	-
2RB-DE-D2	-	-				(1.8±0.1)E+03 Bq/g	-	-
2RB-DE-D3	(5.0±0.4)E-01 Bq/g	-				(2.1±0.1)E+04 Bq/g	-	-
2RB-DE-D4	(1.4±0.5)E-01 Bq/g	-				(9.7±0.1)E+01 Bq/g	-	-
2RB-DE-D5	(7.6±0.4)E-01 Bq/g	-				(1.4±0.1)E+04 Bq/g	-	-

○：明確な数値が示されていないものの検出された核種、-：検出限界以下、空欄：未実施

表 3.1.2-5 主なガンマ核種の分析結果 (2/2)

(単位 : Bq/cm<sup>2</sup>)

試料名	60Co	94Nb	110mAg	125Sb	134Cs	137Cs	152Eu	154Eu
2RB-OP-1	4.2E-01			2.8E+01	1.9E+01	1.6E+02		
2RB-OP-2	-			-	-	3.6E-01		
2RB-OP-3	3.4E-01			2.5E+01	1.2E+01	1.1E+02		
2RB-OP-4	-			1.1E+01	4.8E+00	4.3E+01		
2RB-OP-5	-			1.9E+01	1.7E+01	1.4E+02		
2RB-OP-6	-			3.2E+00	3.6E+00	3.1E+01		
2RB-OP-7	-			-	8.6E-01	7.6E+00		
2RB-OP-8	-			-	1.9E+00	1.7E+01		
2RB-OP-9	-			-	-	-		
①床	3.2E+01			3.2E+03	2.4E+03	2.3E+04		
②床	1.5E+01			1.1E+03	9.7E+02	8.9E+03		
③床	1.7E+01			1.3E+03	1.1E+03	1.0E+04		
④床	5.4E+01			3.0E+03	3.0E+03	2.8E+04		
⑤床	4.0E+01			1.8E+03	7.7E+03	7.2E+04		
⑥床	6.4E+01			5.6E+03	5.1E+03	4.8E+04		
⑦壁	1.1E-01			1.7E+00	2.9E+01	2.4E+02		
⑧壁	7.6E-02			6.0E+00	6.5E+00	5.8E+01		
⑨壁	1.5E-01			8.5E+00	2.7E+01	2.3E+02		

- : 検出限界以下、空欄 : 未実施

表 3.1.2-6 主なベータ核種の分析結果

試料名	3H	14C	36Cl	59Ni	63Ni	79Se	90Sr	99Tc	126Sn	129I
R16_2号機① _Boring_core	(8.6±1.1)E-01 Bq/cm <sup>2</sup>	-	-				(4.0±0.1)E+01 Bq/cm <sup>2</sup>	-		-
R21_2RB -DE-C2	3.5E+02 Bq/g	2.5E+01 Bq/g	-		2.3E+02 Bq/g	4.7E+00 Bq/g	2.1E+04 Bq/g	7.6E+01 Bq/g		-
2RB-DE-D1	(9.7±0.2)E+00 Bq/g	(1.5±0.1)E-01 Bq/g	-	-	-	-	(6.1±0.1)E+00 Bq/g	(1.2±0.2)E-02 Bq/g		-
2RB-DE-D2	(6.1±0.2)E+00 Bq/g	(3.3±1.0)E-02 Bq/g	-	-	-	-	(2.8±0.1)E+00 Bq/g	(1.5±0.2)E-02 Bq/g		-
2RB-DE-D3	(9.9±0.2)E+00 Bq/g	(3.9±1.0)E-02 Bq/g	-	-	-	-	(1.4±0.1)E+01 Bq/g	(2.5±0.2)E-02 Bq/g		-
2RB-DE-D4	(1.5±0.1)E+01 Bq/g	(2.4±0.2)E-01 Bq/g	-	-	-	-	(5.5±0.1)E-01 Bq/g	(1.0±0.1)E-01 Bq/g		-
2RB-DE-D5	(6.6±0.2)E+00 Bq/g	(6.4±1.1)E-02 Bq/g	-	-	-	-	(2.2±0.1)E+01 Bq/g	(9.9±0.3)E-02 Bq/g		-

- : 検出限界以下、空欄 : 未実施

表 3.1.2-7 主なアルファ核種の分析結果 (1/2)

試料名	233U	234U	235U	236U	238U
R16_2号機①_Boring_core					
R21_2RB-DE-C2					
2RB-OP-養生シート	-	-	2.9E-04～9.3E-03 μg	4.5E-04～1.6E-03 μg	1.6E-02～5.0E-01μg
2RB-DE-D1	-	-	(1.6±0.1)E-05 Bq/g	-	(9.3±0.1)E-05 Bq/g
2RB-DE-D2	-	-	(8.4±0.2)E-06 Bq/g	-	(8.1±0.1)E-05 Bq/g
2RB-DE-D3	-	-	(1.6±0.1)E-05 Bq/g	-	(8.3±0.1)E-05 Bq/g
2RB-DE-D4	-	-	(2.3±0.2)E-05 Bq/g	-	(4.1±0.1)E-05 Bq/g
2RB-DE-D5	-	-	(2.9±0.1)E-05 Bq/g	-	(8.5±0.1)E-05 Bq/g

- : 検出限界以下、空欄 : 未実施

表 3.1.2-8 主なアルファ核種の分析結果 (2/2)

試料名	<sup>237</sup> Np	<sup>238</sup> Pu	<sup>239</sup> + <sup>240</sup> Pu	<sup>242</sup> Pu	<sup>241</sup> Am	<sup>243</sup> Am	<sup>244</sup> Cm
R16_2号機①_Boring_core		-	-		-		-
R21_2RB-DE-C2		6.1E+01 Bq/g	2.5E+01 Bq/g		2.4E+01 Bq/g		5.1E+01 Bq/g
2RB-OP-養生シート			1.6E-01~ 1.7E+00 μg (239のみ)		2.7E-02~2.0E+00 μg		-
2RB-DE-D1	-	(1.6±0.4)E-03 Bq/g	-	-	-	-	(1.3±0.4)E-03 Bq/g
2RB-DE-D2	-	(2.3±0.5)E-03 Bq/g	-	-	-	-	(1.0±0.4)E-03 Bq/g
2RB-DE-D3	-	(1.4±0.4)E-03 Bq/g	-	-	-	-	(2.4±0.5)E-03 Bq/g
2RB-DE-D4	-	-	-	-	-	-	(1.3±0.4)E-03 Bq/g
2RB-DE-D5	-	(1.6±0.4)E-03 Bq/g	-	-	(4.6±0.8)E-03 Bq/g	-	(3.5±0.6)E-03 Bq/g

- : 検出限界以下、空欄 : 未実施

### 「2RB-PCV-TIP」について

表 3.1.2-1 に示される「2RB-PCV-TIP」の TIP (移動式炉心内計装系 : Traversing Incore Probe) 配管は、原子炉炉心部に直接つながっている配管である。TIP 配管内をファイバースコープで観察した結果、閉塞があることが確認されている。その閉塞について、ダミー TIP ケーブルを用いて閉塞の貫通及び閉塞物の除去を試みた際に、ケーブルの先端に閉塞物が付着し、回収されている。この「2RB-PCV-TIP」を分析することにより、明らかになるとと思われる情報について、東京電力は以下のように推定している[3.1.3]。

- ・ TIP 配管はステンレス鋼製であり、燃料の熔融温度より低い温度で破損している可能性がある。そのため、事故初期に放出された核分裂生成物 (FP) 成分が流入し、閉塞したものと推定される。この閉塞物を分析することで、事故進展を推定する情報を得ることができる可能性がある。
- ・ 2013 (平成 25) 年に発電所内で閉塞物の簡易蛍光 X 線分析を実施したところ、Mo が検出された。この起源については、TIP 配管内の潤滑剤、構造材、燃料内の析出物などが考えられるが、いずれに起因するのかについては、判明していない。Mo は  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$  の形態として化合しやすいことが知られており、どの形態で Mo が存在するかについて判明すれば、格納容器内外のセシウム分布の推定に役立つと考えられる。
- ・ 閉塞物にウラン等が確認されれば、廃炉の作業時の安全確保、工法検討の参考に情報となり得る。
- ・ 球状の不溶性セシウム粒子は、2号機由来である可能性が指摘されている。これが閉塞物に含まれ、その組成が確認されれば、事故進展の時間帯の特定などの情報となり、炉内状況の把握に役立つ。
- ・ SEM-EDX (走査型電子顕微鏡・エネルギー分散型 X 線分析分光法 : Scanning Electron Microscope-Energy Dispersive X-ray Spectroscopy) で閉塞物の形状観察や、表面の構成元素を分析することで、事故初期に放出された FP の挙動・沈着に関する情報が得られる可能性がある。

分析結果概要[3.1.5]によれば、「2RB-PCV-TIP」を輸送する際に、ガンマ線を測定したところ、Co-60 が支配的であることが確認されている。また、JAEA 大洗研究開発センターで実施された SEM-EDS 分析の結果[3.1.5]によれば、サンプル全体でウラン粒子は確認されていない。セシウムについては、6 サンプル中 1 サンプルが 0.01 At% (原子数比) と示され、それ以外は全て 0.00 At% と示されている。

### 「2RB-PCV-付着物」について

東京電力は、2号機格納容器 (PCV) 内の制御棒駆動機構 (CRD) 等へのデブリ落下状況等を確認する目的で、格納容器貫通孔 (X-6 ペネトレーション) から CRD 交換用レールを経て内部へ自走式調査装置を投入した。その際に、CRD 交換用レール部に堆積物が確認されている[3.1.17]。

東京電力は、2017（平成 29）年 2 月に堆積物除去装置を用いて、この堆積物を除去し、堆積物除去装置が通過した配管（ガイドパイプ）内下部より綿棒でサンプル（「2RB-PCV-付着物」）を採取した。JAEA 大洗研究開発センターで実施された SEM-EDS 分析の結果 [3.1.5]によれば、鉄さび上にウラン含有粒子が混在していることが確認されている。そのウラン含有粒子の観察により、ウランと同位置に Zr、近傍に Fe、Cr、Ni 等が見られている。X-6 ペネトレーションからの PCV 内部調査は、2018（平成 30）年度下期にも予定されており、同様に装置の付着物が採取される可能性がある [3.1.18]。また、2019（平成 31）年度には PCV 底部の堆積物の少量サンプリングも計画されている [3.1.18]。

#### 「R14 ① Flannel cloth」～「R20 ④ Strippable paint」について

表 3.1.2-1 に示す、2012（平成 24）年 6 月 30 日に採取された「R14\_①\_Flannel\_cloth」から「R20\_④\_Strippable\_paint」は、国の研究開発プロジェクト（国プロ）として 2 号機原子炉建屋の 1, 2 及び 3 階で採取され、JAEA 大洗研究開発センターで分析されている。

サンプルは、建家の床・壁（コンクリート）の表面から採取され、汚染形態ごとに 3 段階に分けて採取されている。最初に遊離性汚染がハケ・ウェスで回収され、その後、ストリップャブルペイントを用いて表面の固着性汚染が採取され、最後にボーリングによりコアが採集されている。なお、「R14\_①\_Flannel\_cloth」のサンプルは、綿の布であり、Ge 半導体検出器によるガンマ線エネルギースペクトル分析結果が公開されている [3.1.9]。ストリップャブルペイントは、株式会社日本環境調査研究所で開発されたアララ SD（旧製品名：アララデコン）と呼ばれる除染材である [3.1.9]。

#### 「R21 2RB-DE-C2」及び「2RB-OP-養生シート」について

表 3.1.2-2 に示される「R21\_2RB-DE-C2」は、2 号機原子炉建屋の 5 階オペレーティングフロアでロボット（三菱製 MEISTeR）により、床面のコンクリートコアとして採取され、JAEA 大洗研究開発センター照射燃料集合体試験施設（FMF）で分析されている。Pu-238 及び Pu-(239+240)の分析結果によれば、「R21\_2RB-DE-C2」は、1 号機原子炉建屋 1 階及び 3 号機原子炉建屋 1 階で採取されたコンクリート片より 2～3 桁高い放射能濃度が示されている [3.1.10]。

一方「2RB-OP-養生シート」については、当初、3 カ所からコアサンプルを採取する予定とされていた。しかしながら、フェンス切断作業の 2 カ所目（フロア中央部）でロボットがバランスを崩し、半転倒状態となったため、作業続行が断念されている [3.1.19]。そのため、サンプリング計画が変更され、代わりに 3 つのコンクリートコアと養生シートが採取されている。養生シートは 3 つの約 1 cm 角に切り取られ、イオン交換水又は硝酸に浸漬後、40 mL に希釈したものを測定用試料とされている [3.1.5]。

同じフロアの近い位置で採取された「R21\_2RB-DE-C2」と比較すると、線量率は「2RB-OP-養生シート」の方が 800 倍以上高い（表 3.1.2-2）。しかしながら、前述の「R21\_2RB-DE-C2」のガンマ線核種分析結果（Cs-137: 1E+06 Bq/g） [3.1.10]から計算すると、サンプル量 5 g に対し、Cs-137 は 1.6 µg に相当し、「2RB-OP-養生シート」のイオン交換水のサンプルの中に含まれている Cs-137 の量、最大で 1.2 µg とほぼ一致している。

また、硝酸溶液のサンプルにおいて Pu-239 が最大で 1.7  $\mu\text{g}$  含まれており、これは「R21\_2RB-DE-C2」に高い放射能濃度の Pu-238 及び Pu-(239+240)が見られたことと一致している。

#### 「2RB-DE-D1～5」について

表 3.1.2-2 に示す「2RB-DE-D1～5」は、2 号機原子炉建屋 5 階の天井部にあるデッキプレート（波形の金属鋼板）である。サンプルは、JAEA 原子力科学研究所（原科研）及びニュークリア・ディベロップメント株式会社（NDC）で分析されており、Co-60、Cs-137 のガンマ核種、H-3、C-14、Sr-90、Tc-99 のベータ核種、U-235、U-238、Pu-238、Am-241、Cm-244 のアルファ核種が検出されている。事故時に放出された核種が 5 階の天井まで到達していることが示されている（表 3.1.2-4、表 3.1.2-6、表 3.1.2-7 及び表 3.1.2-8）。

#### 「2RB-OP-1～9」について

2 号機では、使用済燃料プール内の燃料取り出しに向けて、5 階オペレーティングフロア内へアクセスするための開口設置作業が行われており、原子炉建屋の西側外壁から調査用のコア「2RB-OP-1～9」が採取されている[3.1.16]。コア表面について、スミア法により汚染密度が測定されている。西側壁開口後、同じフロアの床及び壁面についてもスミア法により表面汚染密度が測定されている。この測定結果をグラフに示す（図 3.1.2-1 及び図 3.1.2-2）。フロアの④床～⑥床の表面汚染密度が高く、ウェルプラグから南西方向に、汚染が広がっているように見える（図 3.1.2-1）。これは、表面線量率測定結果とも整合している。東京電力が、ウェルプラグが主な線源と推定している[3.1.16]のは、これらの結果から、妥当であると思われる。表面線量率測定は、 $\gamma + \beta$  線線量率と  $\gamma$  線線量率の 2 種類について行われている。 $\gamma + \beta$  線線量率の方が  $\gamma$  線線量率よりも 1 桁近く高い線量率が得られている。この結果について、東京電力は、Sr-90 等のエネルギーの高いベータ核種が表面上に存在していると推定している[3.1.16]。今後、採取したコア「2RB-OP-1～9」の詳細分析が予定されている。

#### 核種移行の痕跡について

2 号機原子炉建屋内で検出された核種を表 3.1.2-9～表 3.1.2-11 にまとめる。炉内構成物の放射化による生成核種（放射化生成物：C-14, Co-60, Sb-125, Eu-154 等）と核分裂生成物や燃料由来の核種（FP 等核種：Sr-90, C-137, アルファ核種等）に分類して 2 号機の原子炉建屋内の核種移行について考察した。2 階と 3 階については、Cs-137 のみが測定されているため、その他の核種の移行について言及することは難しい。1 階については、R14\_①\_Flannel\_cloth と R16\_2 号機①\_Boring\_core の 2 サンプルが採取されており、それらの分析結果（表 3.1.2-4、表 3.1.2-6、表 3.1.2-7 及び表 3.1.2-8）から判断すると、放射化生成物及び FP 等核種がそれぞれ検出されているが、R16\_2 号機①\_Boring\_core の分析結果を見ると、放射化生成物が検出限界以下であるのに対し、FP 等核種である Sr-90 や Cs-137 の単位面積あたりの放射能が顕著に示されている。アルファ核種については、U の分析は未実施であるが、Pu や Am、Cm は検出限界以下である。これらのことから、2 号機 1 階

における核種の移行は、溶融した燃料のうち、揮発しやすい核種が格納容器から漏れ出したことによるものが主であると考えられる。

2号機5階については、放射化生成物及びFP等核種それぞれ検出されているが、FP等核種の方がより高い濃度で検出されている。前述したように、2号機5階の汚染は、ウェルプラグから放出された可能性が高く、天井(2RB-DE-D1~5)まで到達している。ウェルプラグ付近(R21\_2RB-DE-C2)と比べて、天井の方が低い核種濃度で分布している。ウェルプラグ付近では、Cs-137の濃度に対し、アルファ核種の濃度は5桁小さいが、天井では6~7桁小さく、アルファ核種は天井まで到達しにくいと言える。この傾向は、Sr-90の濃度に対するアルファ核種の濃度を比較した場合においても同じである。

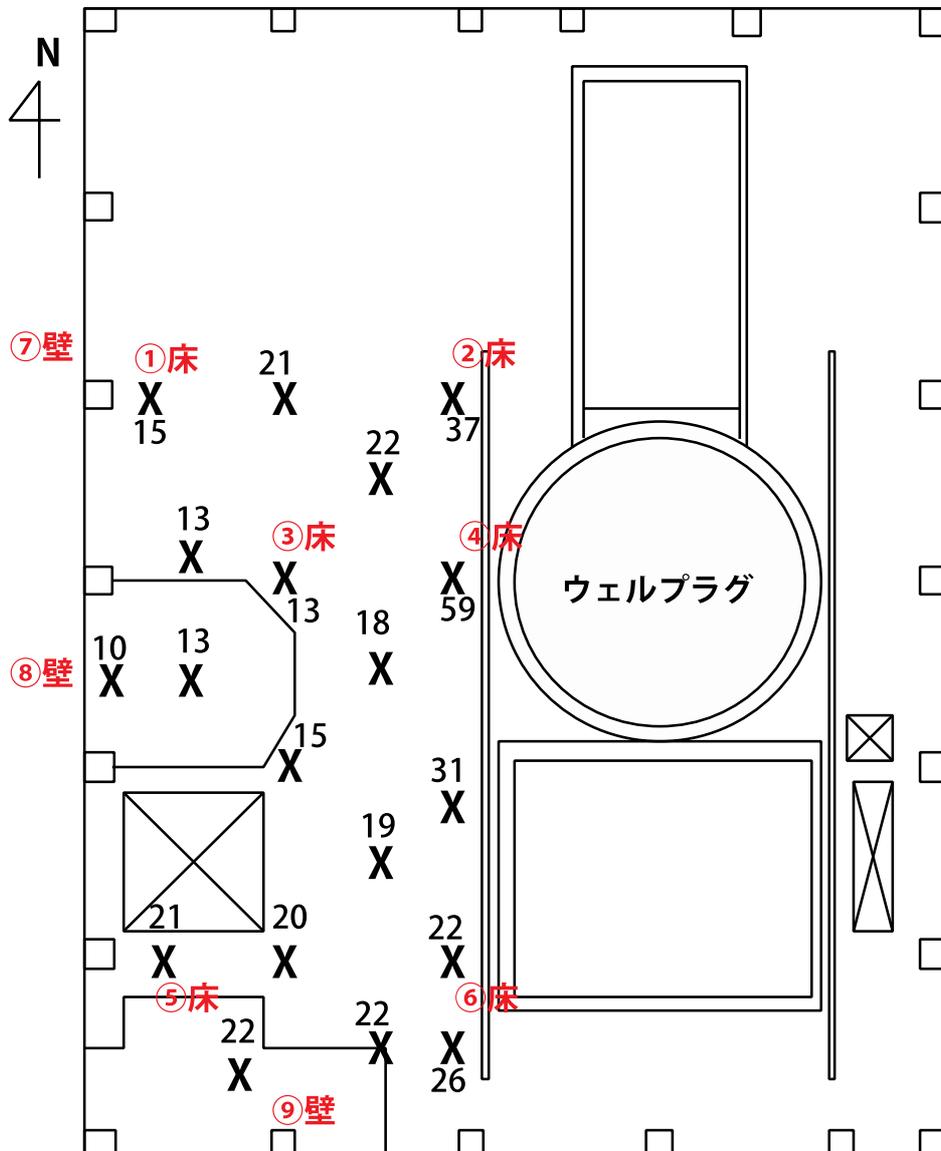


図 3.1.2-1 2号機原子炉建屋オペレーティングフロアの線量率測定点 (X印、数値は線量率 (mSv/h) を示す) 及びスミア採取点 (文献 3.1.16 を基に作成)

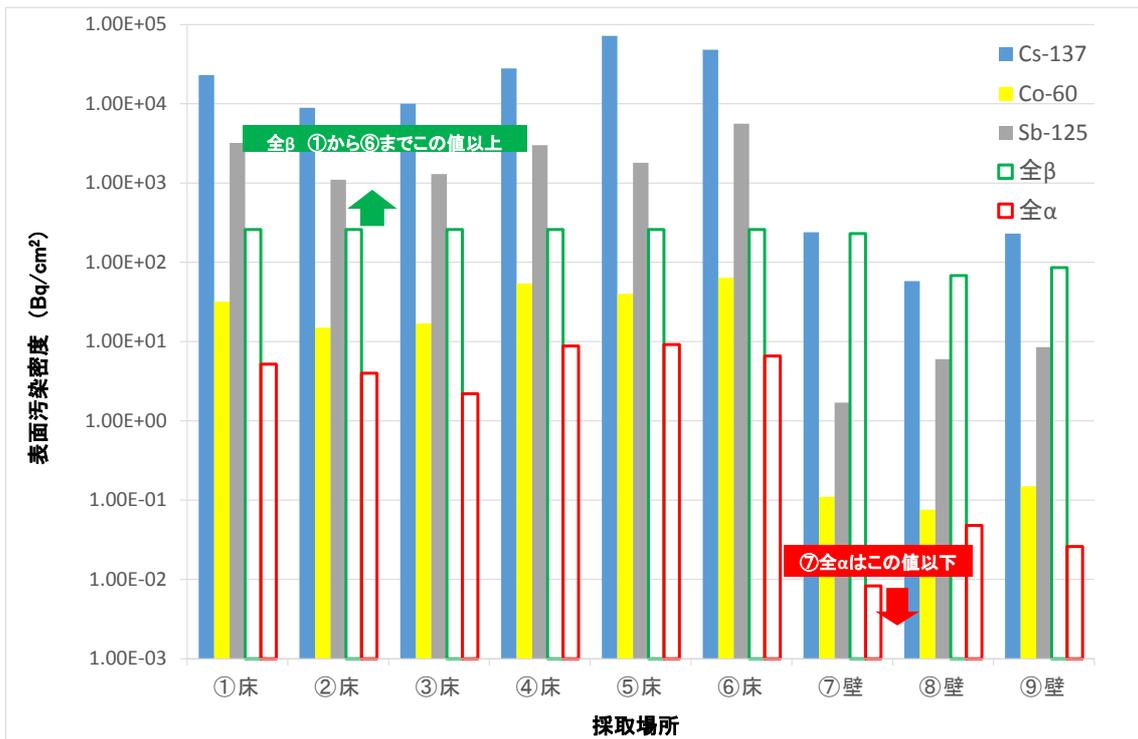


図 3.1.2-2 2号機原子炉建屋オペレーティングフロアで採取された床及び壁面の表面汚染密度のグラフ

表 3.1.2-9 2号機原子炉建屋内で検出された核種 (ガンマ核種)

2号機 原子炉建屋	60Co	110mAg	125Sb	134Cs	137Cs	154Eu
1階	○	○	○	○	○	
5階	○		○	○	○	○

表 3.1.2-10 2号機原子炉建屋内で検出された核種 (ベータ核種)

2号機 原子炉建屋	3H	14C	63Ni	79Se	90Sr	99Tc
1階	○				○	
5階	○	○	○	○	○	○

表 3.1.2-11 2号機原子炉建屋内で検出された核種 (アルファ核種)

2号機 原子炉建屋	235U	236U	238U	238Pu	239+240Pu	241Am	244Cm
1階							
5階	○	○	○	○	○	○	○

## (2) 水試料

1, 2, 3 号機の原子炉建屋及びタービン建屋に大量の汚染水が発生したことは、事故時に格納容器の一部が破損し、原子炉を冷却するために注入された水が格納容器内にとどまらずに原子炉建屋、さらにはタービン建屋へ流出したことを示している。

この汚染水については、これまでセシウム吸着装置、第二セシウム吸着装置、除染装置等の水処理設備によって処理がなされてきており、これら水処理後の汚染水は事故発生直後の汚染水と同じものではなくっており、現在の汚染水試料を分析しても、事故時の核種移行挙動について有用な情報が得られることは期待できない。

昨年度（2017（平成 29）年度）に取りまとめた「東京電力福島第一原子力発電所プラント内核種移行に関する調査」報告書（以下「2017 年度報告書」という。）では、原子炉を冷却するために注入された水に溶け出たと考えられる放射性ヨウ素及び放射性セシウムのうち、吸着性が極めて低くかつ半減期が極めて長い I-129 に着目し、I-129 が事故当時のままの濃度に近い濃度で現在も存在している可能性のある滞留水や貯留水を、事故当時における核種移行に関する情報又は傍証が得られる可能性のある水試料（以下「有用な水試料」という。）と考え、その一次候補として、以下の a) ～e) を選定した。

- a) 復水器内貯留水
- b) タービン建屋の孤立したエリアの滞留水
- c) 格納容器内の滞留水のうち水底近くの水（3 号機水深 6.5 m）
- d) 2016（平成 28）年 10 月以降のプロセス主建屋の滞留水
- e) 3 号機原子炉建屋の HPCI 室等の高濃度滞留水

1F プラントにおける滞留水移送装置の系統図については図 3.1.2-3 に、a) ～c) 及び e) の滞留水等が存在する場所を図 3.1.2-4 及び図 3.1.2-5 に示す。

2017 年度報告書では、a) ～e) のうち、b) のタービン建屋の孤立したエリアとして、電気マンホール室の滞留水を選定したが、東京電力による分析結果から、タービン建屋内の滞留水と同程度の希釈を受けている可能性が高く、事故当時の核種濃度等の情報が保存されている可能性が低いと考え、候補から除外した。また、d) はプロセス主建屋の滞留水であり、a) の復水器内貯留水の処理及びプロセス主建屋への移送が行われた時期に滞留水が採取され、事故当時における核種濃度等の情報が保存されている可能性があったものの、e) の 3 号機原子炉建屋の放射能濃度の高い滞留水の影響もを受けている可能性が高いと考えられたため、候補から除外した。

以上を踏まえて 2017 年度報告書では、a)、c) 及び e) を有用な水試料として選定した。

このうち、a) の汚染水については、すでに除去されており、新たに採取することはできず、水試料として保管されている可能性はあるが、分析結果は公表されていない。c) の格納容器内の滞留水については、新たに採取されていない。そのため今年度は、「e) 3 号機原子炉建屋の HPCI 室等の高放射能濃度滞留水」についての情報を整理した。

e) に該当する水試料としては、東京電力によりバッチ油タンク室及び消火ポンプ室、電気油制御室（位置不明）の滞留水の分析が行われている[3.1.20]。これらの水試料は、分析計画名称として、「2～4号機孤立エリア滞留水」と称されており、図 3.1.2-5 に示すような孤立エリアの滞留水とされている。測定対象核種は H-3, Sr-90, Cs-134, Cs-137, I-129, Ru-106, Sb-125, Mn-54, Co-60 であり、このうち I-129 のほか Ru-106, Sb-125, Mn-54, Co-60 が検出限界以下となっている（I-129 は、バッチ油タンク室  $<59,160$  Bq/mL、消火ポンプ室  $<66,210$  Bq/mL とあり、Ge 半導体検出器で測定されている）。なお、I-129 の事故当時の濃度は、浅見らによる分析データ集によれば、 $8E-02 \sim 1E+00$  Bq/mL である。孤立エリアではないが、3号機原子建屋地下滞留水[3.1.21]の I-129 濃度が測定されており、その濃度は  $1.7E-01 \sim 1.8E-01$  Bq/mL である。また、Cs-137 濃度は、約  $5E+05$  Bq/mL と他の 3号機原子炉建屋内の高放射性濃度滞留水（孤立エリア滞留水）とほぼ同じである。このことから、表 3.1.2-12 に示す孤立エリアの滞留水についても、I-129 が事故当時のままの濃度に近い濃度で現在も存在している可能性があり、ICP-MS 等の極低濃度までヨウ素を測定できる高性能の分析機器を用いて分析する意義がある。

表 3.1.2-12 3号機原子炉建屋内の高放射能濃度滞留水分析結果 (Bq/mL)

採取場所	採取日	3H	90Sr	137Cs	文献 番号
トーラス室	2017 (平成 29) 年 12月13日	8.60E+03	5.28E+04	5.90E+05	
南東コーナー (階段下)	2017 (平成 29) 年 12月13日	1.09E+04	5.74E+04	7.39E+05	
HPCI室	2017 (平成 29) 年 4月20日	5.73E+03	3.42E+04	4.45E+05	
バッチ油 タンク室	2018 (平成 30) 年 3月20日	未測定	未測定	1.85E+05	
消火ポンプ室	2018 (平成 30) 年 3月20日	未測定	未測定	1.32E+05	
消火ポンプ室	2018 (平成 30) 年 5月8日	1.73E+02	未測定	4.44E+04	[3.1.20]
電気油制御室	2018 (平成 30) 年 5月8日	1.01E+03	未測定	1.16E+05	
【参考】3号機 PCV器内滞留水 (水面近傍)	2015 (平成 27) 年 10月22日	2.71E-01	7.41E+03	1.64E+03	
【参考】1号機 原子炉建屋滞留水	2018 (平成 30) 年 5月9日	2.27E+03	8.67E+03	7.07E+04	
【参考】2号機 原子炉建屋滞留水	2018 (平成 30) 年 5月9日	1.45E+03	2.00E+04	1.45E+04	
【参考】3号機 原子炉建屋滞留水	2018 (平成 30) 年 5月9日	5.87E+03	3.45E+04	3.84E+05	

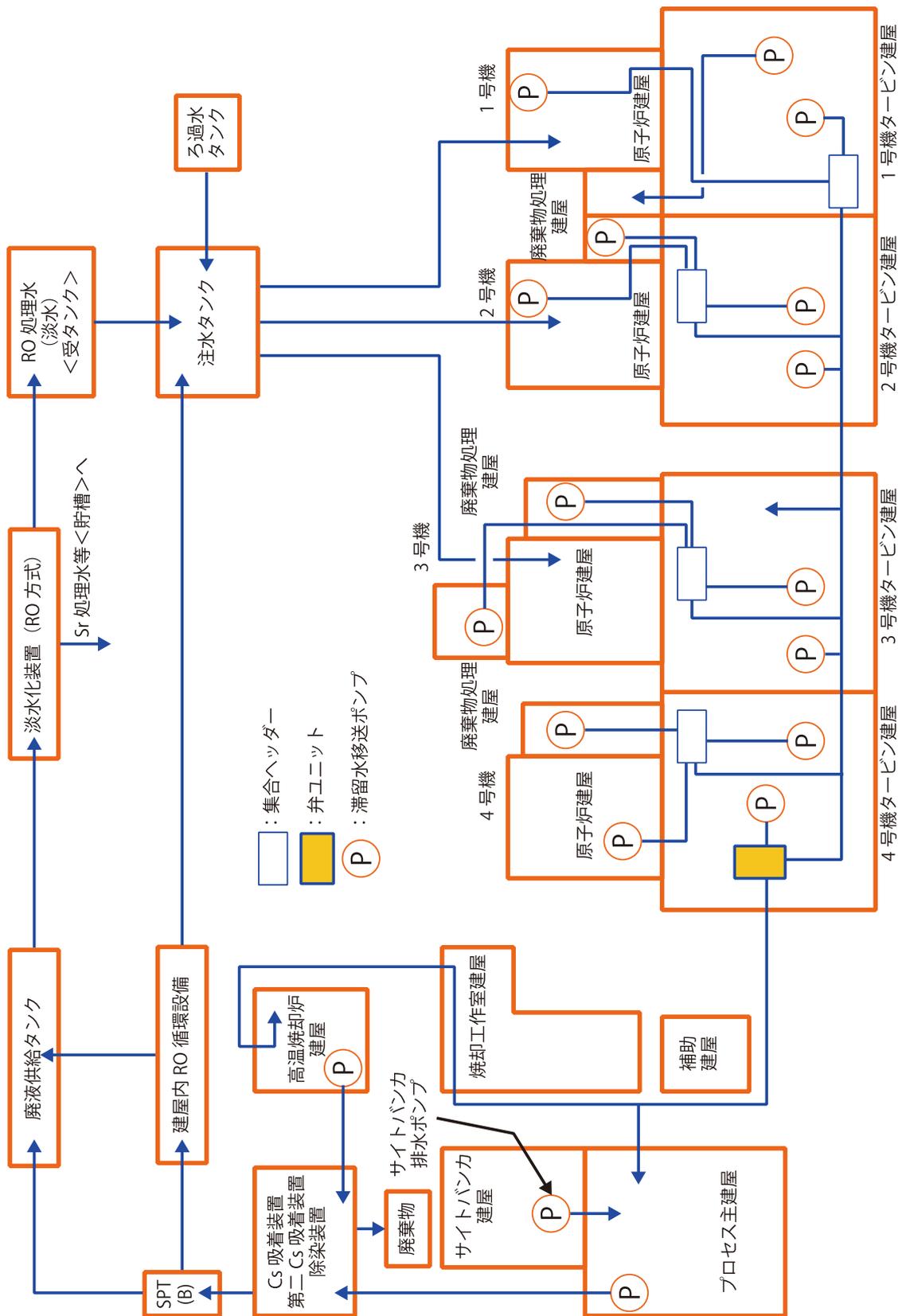


図 3.1.2-3 滞留水移送装置の系統図

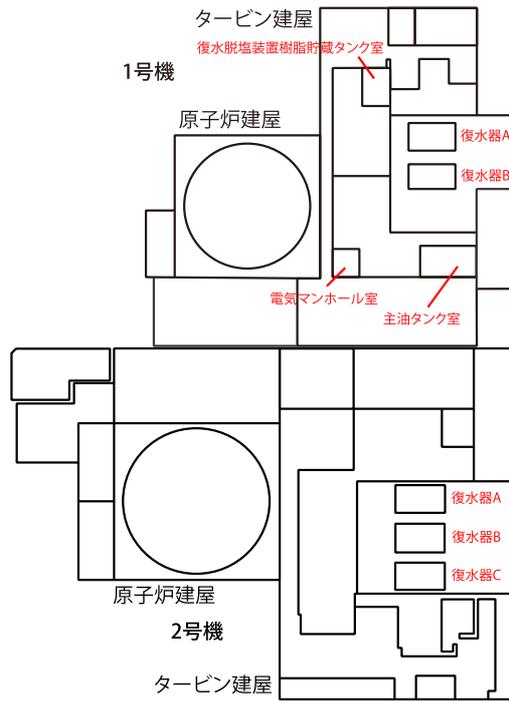


図 3.1.2-4 1F プラントにおける a) ~c) 及び e) の滞留水等が存在する場所 (1号機及び2号機とその周辺)

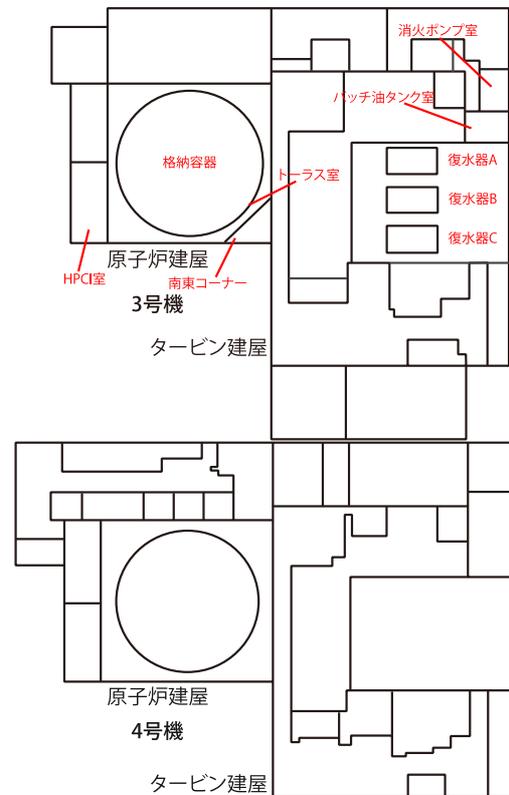


図 3.1.2-5 1F プラントにおける a) ~c) 及び e) の滞留水等が存在する場所 (3号機及び4号機とその周辺)

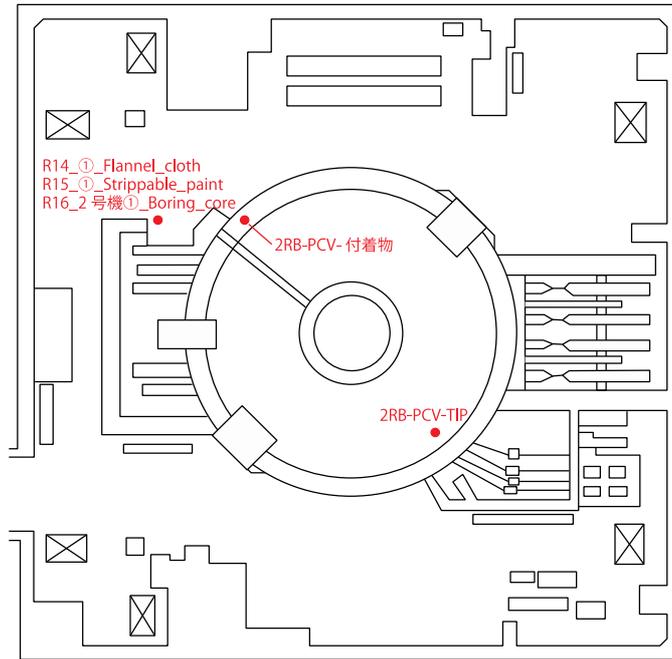


图 3.1.2-6 2号機原子炉建屋1階

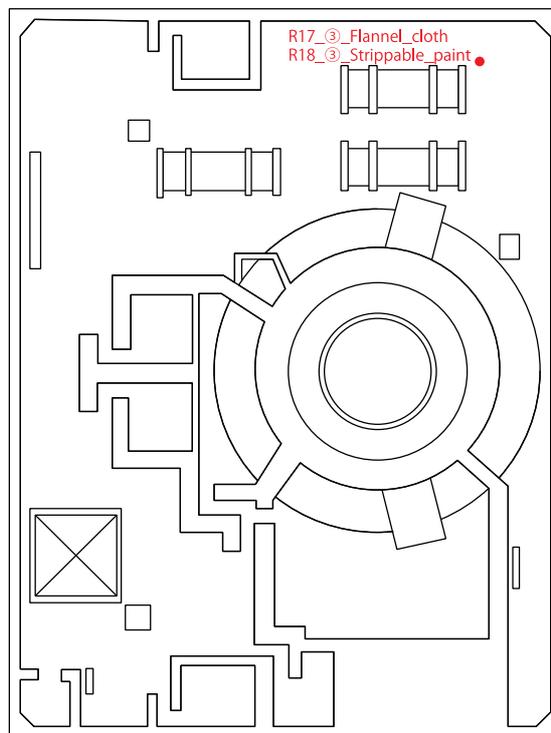


图 3.1.2-7 2号機原子炉建屋2階

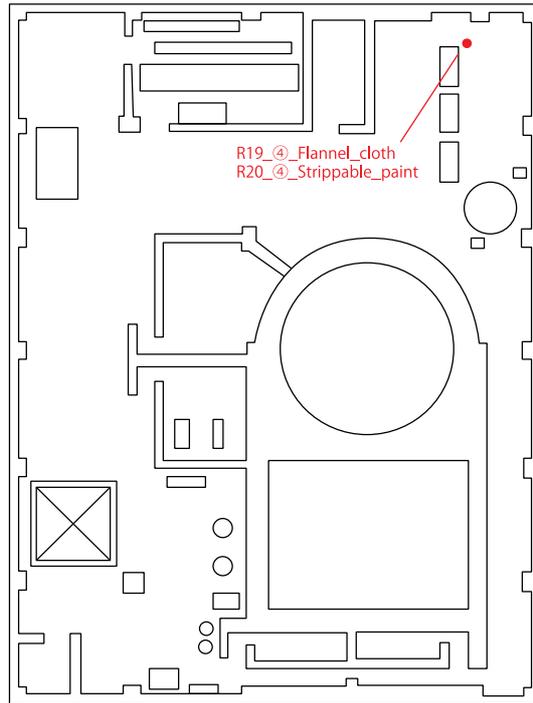


図 3.1.2-8 2号機原子炉建屋3階

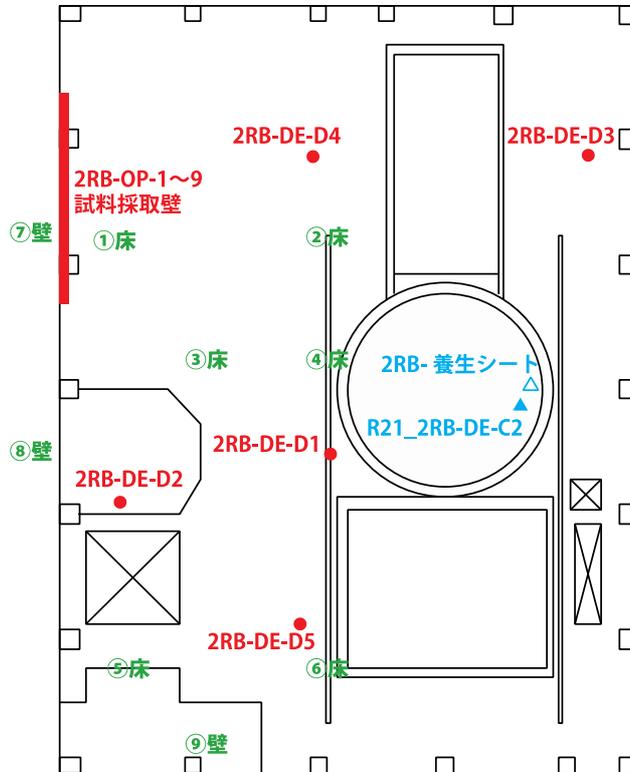


図 3.1.2-9 2号機原子炉建屋5階

### (3) その他

その他、今後取得される予定があり、事故時の情報が保持されていると思われる試料（の位置）として、AC（Atmospheric Control）配管が挙げられる。これはプラント運転中、不活性ガス（窒素ガス）が格納容器（PCV）中に満たされるように供給され、停止中は外気が供給される配管である。1号機原子炉建屋では、事故時にS/C（Suppression Chamber：圧力抑制室）ベント（ウェットウェルベントとも呼ばれる）が行われ、その際に高線量の蒸気がAC配管内に流入し、配管内表面に放射性物質が付着し、線源となっている[3.1.22]。

AC配管はTIP（Traversing In-core Probe：移動式炉心内計測装置）室を通っており、TIP室のX-6ペネからPCV内部の調査を実施する際にAC配管からの高線量が作業の妨害をしている。そのため、廃炉作業を行う上での線量低減措置として、AC配管の洗浄が検討されている[3.1.23]。

## 参考文献

- [3.1.1] 浅見誠, 高島容子, 明道栄人, 飛田剛志, 小林究, 早川美彩, 薄井由香, 綿引博美, 柴田淳広, 野村和則, 駒義和: 東京電力福島第一原子力発電所において採取された汚染水および瓦礫等の分析データ集. JAEA-Data/Code 2017-001 (2017).
- [3.1.2] 東京電力: 2号機 TIP 案内管付着物の簡易金属分析結果について. 東京電力福島第一原子力発電所廃炉対策推進会議/事務局会議 (第10回), 平成25年11月28日(2013).
- [3.1.3] 東京電力: 福島第一原子力発電所のサンプル分析について. 特定原子力施設監視・評価検討会 (第56回), 平成29年10月30日(2017).
- [3.1.4] 東京電力: 福島第一原子力発電所で採取した試料の構外での分析について. 報道配布資料, 平成29年11月17日(2017).
- [3.1.5] 東京電力: 1~3号機原子炉格納容器内部調査関連サンプル等の分析結果. 廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議 (第56回), 平成30年7月26日(2018).
- [3.1.6] 東京電力: 福島第一原子力発電所で採取された比較的線量の高い分析サンプルの輸送について. 被規制者等との面談概要・資料, 原子力規制庁, 平成28年11月11日(2016).
- [3.1.7] 東京電力: 研究開発プロジェクト「建屋内の遠隔除染技術の開発」原子炉建屋汚染サンプルの分析結果について. 東京電力福島第一原子力発電所廃炉対策推進会議 (第1回), 平成25年3月7日(2013).
- [3.1.8] JAEA: 原子炉建屋コアボーリング試料の放射能分析. 東京電力福島第一原子力発電所廃炉対策推進会議/事務局会議 (第7回), 平成25年8月28日(2013).
- [3.1.9] Maeda, K. et al.: Distribution of radioactive nuclides of boring core samples extracted from concrete structures of reactor buildings in the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. J. Nucl. Sci. Eng. 51(7-8), 1006-1023 (2014).
- [3.1.10] IRID, JAEA: 福島第一原子力発電所構内で採取した建屋内瓦礫、立木、落葉及び土壌の放射能分析. 廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議 (第16回), 平成27年3月26日(2015).
- [3.1.11] IRID, JAEA: 福島第一原子力発電所構内で採取した建屋内瓦礫の放射能分析. 廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議 (第22回), 平成27年10月1日(2015).
- [3.1.12] 東京電力: 2号機原子炉建屋オペレーティングフロアフェンス撤去およびコアサンプル採取について (結果報告). 廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議 (第4回), 平成26年3月27日(2014).
- [3.1.13] 東京電力: 分析対象として検討している福島第一原子力発電所で採取されたサンプルについて. 被規制者等との面談概要・資料, 原子力規制庁, 平成28年8月24日(2016).
- [3.1.14] IRID, JAEA: 福島第一原子力発電所構内で採取した瓦礫の分析. 廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議 (第29回), 平成28年4月28日(2016).
- [3.1.15] 東京電力: 2号機原子炉建屋西側外壁開口工事及びオペフロ調査等について. 廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議 (第54回), 平成30年5月31日(2018).

- [3.1.16] 東京電力: 2号機原子炉建屋オペフロの残置物片付作業の開始について. 廃炉・汚染水対策チーム会合／事務局会議 (第57回), 平成30年9月6日(2018).
- [3.1.17] 東京電力: 2号機原子炉格納容器内部における堆積物除去作業の実施結果.  
<http://photo.tepco.co.jp/date/2017/201702-j/170209-01j.html> (last visited at Feb., 2019).
- [3.1.18] 東京電力: 原子炉格納容器内部調査、サンプリング及び分析の検討状況について. 廃炉・汚染水対策チーム会合／事務局会議(第56回), 平成30年7月26日(2018).
- [3.1.19] 東京電力: 国プロ「原子炉建屋内の遠隔除染技術の開発」2号機原子炉建屋オペレーティングフロア調査計画について. 東京電力福島第一原子力発電所廃炉対策推進会議／事務局会議 (第2回), 平成26年1月30日(2014).
- [3.1.20] 東京電力: 福島第一原子力発電所における日々の放射性物質の分析結果 IV. 滞留水・建屋内汚染水. [http://www.tepco.co.jp/decommission/planaction/monitoring2/2018/retained\\_water/index-j.html](http://www.tepco.co.jp/decommission/planaction/monitoring2/2018/retained_water/index-j.html) (last visited at Feb., 2019).
- [3.1.21] IRID, JAEA: 廃棄物試料の分析結果 (水処理設備処理二次廃棄物・滞留水) . 廃炉・汚染水対策チーム会合／事務局会議 (第52回), 平成30年3月29日(2018).
- [3.1.22] 東京電力: 1号機原子炉建屋1階TIP室、主蒸気弁室、エアロック室調査について.  
[http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/images/d151001\\_08-j.pdf](http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/images/d151001_08-j.pdf)  
(last visited at Feb., 2019).
- [3.1.23] 東京電力: リスクマップの検討指示事項に対する対応状況について. 特定原子力施設監視・評価検討会 (第60回), 平成30年5月18日(2018).

## 3.2 プラント内試料の分析及び今後の試料入手に向けた準備等

シビアアクシデント時における核種の移行挙動は、事故の規模や建屋の構造など様々な因子に影響を受けると考えられるが、放出された核種の化学形態も移行に影響を及ぼす可能性がある。したがって放出された核種の主な化学形態を特定することができれば、より信頼性の高いソースターム評価が可能となる。ここでは3.1.2(1)及び(2)項に示した有用な固相試料や水試料に付着もしくは溶存した核種の化学形態を同定するための分析手法の検討を行った。また、原科研を対象に、有用な試料の分析を実施するために必要となる施設の使用許可取得等に向けた準備を進めた。

### 3.2.1 水試料の分析

3.1.2(2)に示した水試料を始め、今後有用な水試料が採取された場合に、塩水成分共存下で $I^-$ 、 $IO_3^-$ 、有機形ヨウ素( $CH_3I$ )を個別に定量可能となるような手法を整備することを目的として、固相抽出剤(Anion-SR、図3.2.1-1参照)を活用したヨウ素の分離法の検討を行った。検討にあたっては、実際の汚染水を模擬した水試料(以下「模擬汚染水試料」という。)を調製し使用した。



図 3.2.1-1 Anion-SR

分離式ろ過装置にセットし、吸引ろ過を行うことで分離を行う

#### (1) Anion-SR によるヨウ素の化学形態分離の概要と課題

I<sup>-</sup>は pH1~14 においてほぼ 100%が Anion-SR に吸着すると報告されている[3.2.1]。一方、3 M NaOH 溶液からの IO<sub>3</sub><sup>-</sup>の回収率は 2.3±1.9%と報告されており[3.2.2]、IO<sub>3</sub><sup>-</sup>はほとんど Anion-SR に吸着しないと考えられる。また、Anion-SR は陰イオン交換性能を持つディスクであることから、中性である有機形ヨウ素は抽出しないと予想される。これらのことから、Anion-SR により I<sup>-</sup>を IO<sub>3</sub><sup>-</sup>や有機形ヨウ素から分離可能であると考えられる。

I<sup>-</sup>の分離条件として、I<sup>-</sup>はアルカリ性溶液中には安定して溶存するが、酸性溶液中では I<sub>2</sub>となり、揮発するため、アルカリ溶液が適切であると考えられる。しかし、アルカリ濃度が高い場合には、I<sup>-</sup>の回収溶液にアルカリイオンが残留し、測定に影響を及ぼすことも考えられるため、アルカリ濃度条件や洗浄条件の最適化が課題である。

また、I<sup>-</sup>が分離された後の通過液中には IO<sub>3</sub><sup>-</sup>と有機形ヨウ素が含まれていると考えられるが、IO<sub>3</sub><sup>-</sup>を還元剤で I<sup>-</sup>に還元した後に Anion-SR へ通液することで、IO<sub>3</sub><sup>-</sup>起源のヨウ素を有機形ヨウ素から分離可能であると考えられる。IO<sub>3</sub><sup>-</sup>を I<sup>-</sup>に還元する試薬としては Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>や K<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>などが知られているが、還元能力が pH に依存するため、適切な pH 条件を検討する必要がある。

I<sup>-</sup>と IO<sub>3</sub><sup>-</sup>が分離された通過液には、有機形ヨウ素が残っている。ヨウ素の定量は四重極質量分析計(ICP-MS)により実施するが、C や S、P などが試料溶液中に共存する場合、ヨ

ウ素の感度が増感するとの報告がある[3.2.3]。そこで、有機形ヨウ素を定量するために、分解して $I^-$ とし、Anion-SRにより有機物や還元剤由来のS等から分離・精製する手法を検討した。なお、有機形ヨウ素の分解法としては、K. A. Schwehrらの手法を参考に[3.2.4]、NaOHやエタノールを添加して超音波照射を行う手法を検討した。

上述の通り、 $I^-$ と $IO_3^-$ 、有機形ヨウ素を逐次分離するスキームと検討項目を図3.2.1-2にまとめた。

また、今回の試験を通じて、回収率は下記の式により求めた。

$$\text{回収率} = \frac{\text{対象とするフラクションで回収された対象元素の量}(\mu\text{g})}{\text{初期試料中の対象元素の量}(\mu\text{g})} \times 100$$

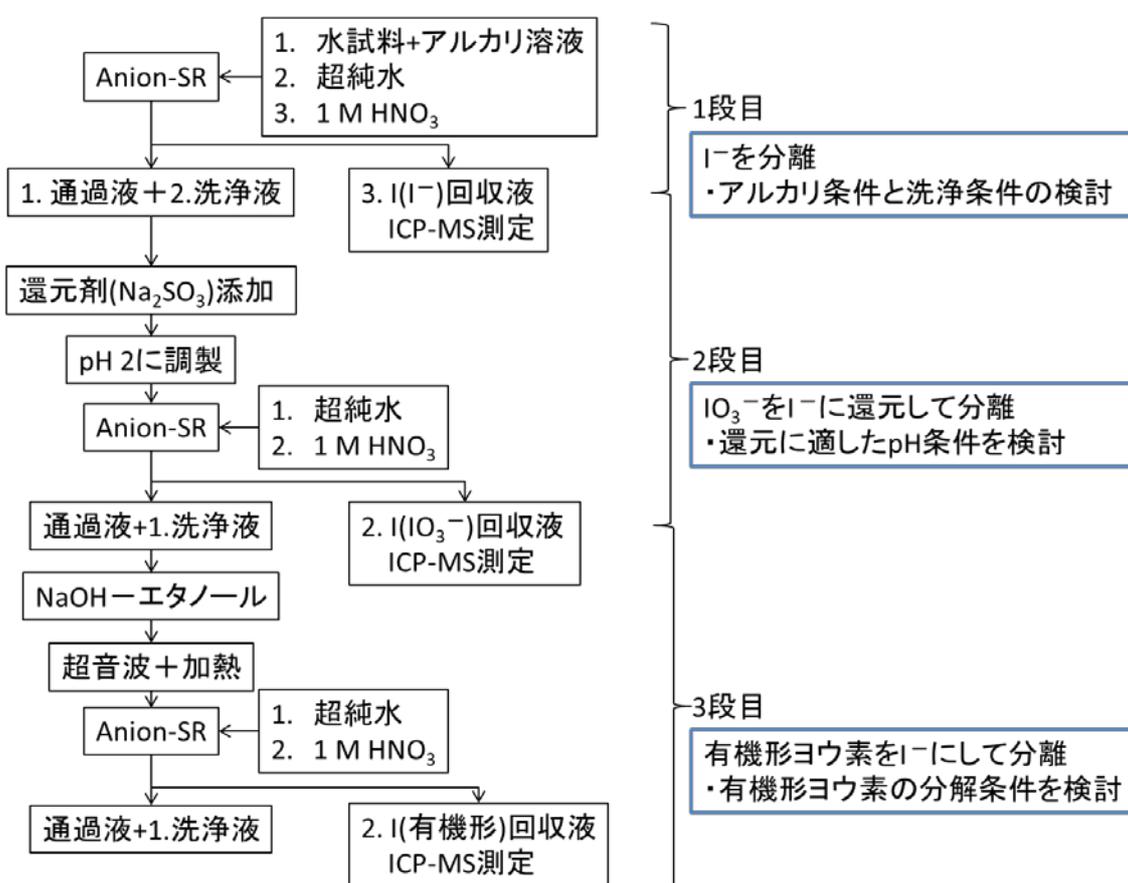


図 3.2.1-2  $I^-$ と $IO_3^-$ 、有機形ヨウ素の逐次分離スキームとその課題

## (2) 検討結果

### a) アルカリ条件と洗浄条件の検討

$I^-$ を抽出するのに適切なアルカリ条件を求めるために、NaOH濃度を0、0.01、0.1、1Mと変化させ、Iとして $1\mu\text{g}$ のKIと0.1MのNaClを含む試料10mlをAnion-SRに通液し、回収率を求めたところ、いずれも96~101%と良好な回収率が得られた。そこで、添加物量の低減の観点から0.01M NaOHをアルカリ条件として選択した。また、0.01M

NaOH 条件において、KI の代わりに KIO<sub>3</sub> または CH<sub>3</sub>I を添加して Anion-SR に通液し、回収率を求めたところ、それぞれ 3.2% と 5.1% であり、ほぼ回収されないことが確認された。

次に、試料溶液中の Na を洗浄するのに必要な洗浄溶液の液量を調べた。ここでは、0.1 M NaCl、1 M NaOH、ヨウ素として 1 μg 相当の KI を含む 10 ml の試料溶液を Anion-SR に通液した後、超純水を 10 ml ずつ 5 回通液し、各フラクションに含まれる Na の回収率を求めた。その結果を図 3.2.1-3 に示す。

なお、この試験は 2 回行い、2 回の実験結果の誤差をエラーバーとして付した。Na は Anion-SR にほとんど抽出されず、導入時に 86% が溶出し、その後、洗浄により徐々に濃度が低下し、5 回目の洗浄液中に残る Na は 0.1% 程度となった。しかし、試料中の Na 濃度が約 2300 ppm と高いため、0.1% でも 2 ppm ほどとなる。高性能の ICP-MS で精度を維持するためにはマトリックス濃度が 10 ppm 以下となることが望ましいため、洗浄溶液を 50 ml とすることとした。

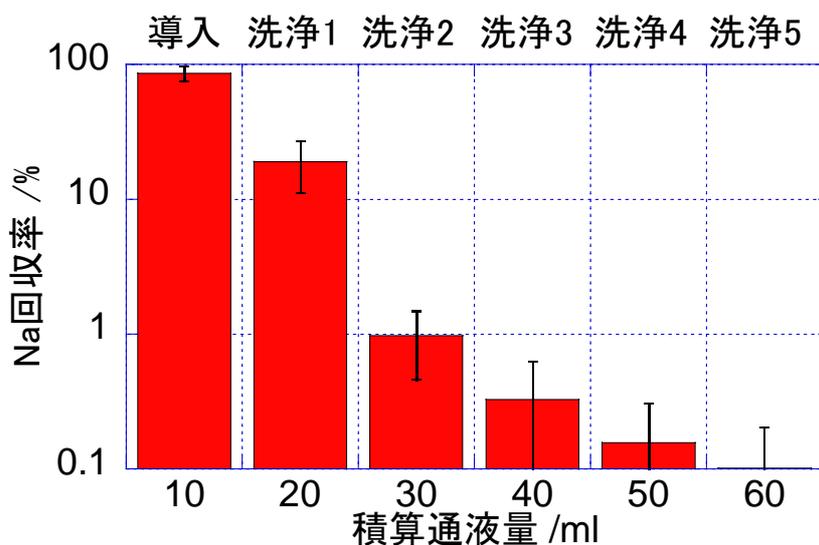


図 3.2.1-3 Anion-SR への Na の残留の洗浄による低減の度合い

#### b) 還元に適した pH 条件の検討

SO<sub>3</sub><sup>2-</sup> を含む試薬は下記の反応により IO<sub>3</sub><sup>-</sup> を I<sup>-</sup> に還元することが知られている。



しかし、3 M NaOH 溶液中の KIO<sub>3</sub> は、NaHSO<sub>3</sub> を添加しても Anion-SR で回収できなかったことから、高アルカリ条件では I<sup>-</sup> に還元されないことがうかがえる。そこで、還元剤が有効に働く pH 条件を求める実験を行った。ここでは、各 pH での回収率そのものの精度は求めず、pH の変化に対し回収率がどのように変化するかという傾向を調べる試験であるため、調査する pH の数を増やし、各 pH での実験数は 1 回とした。

ヨウ素として 1 μg/10 ml 相当の KIO<sub>3</sub> と 1 M NaCl、還元剤として 0.01 M の Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> あるいは K<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> を含む溶液の pH を NaOH と HCl により 1~13 に調整し、10 ml を試料として Anion-SR へ通液した。20 ml の超純水で洗浄した後、9.5 ml の 1 M 硝酸溶液で

Anion-SR に吸着したヨウ素を回収した。試料溶液に含まれるヨウ素量に対する回収溶液中のヨウ素量の百分率を回収率として求め、試料溶液の pH に対して図 3.2-1-4 にプロットした。

pH6 以下では 56-91%の回収率が得られたが、pH7 以上ではほとんど回収されなかった。このことから、 $\text{IO}_3^-$ を  $\text{I}^-$ に還元するためには pH6 以下でなければならないことが分かった。pH1-6 の範囲では、pH が低い方がやや回収率が高い傾向がみられるものの、回収率がばらついていることから、回収溶液の量が不十分であったことが考えられる。そこで、以降の実験においては 19 ml の 1 M 硝酸を回収液として用いることにした。また、還元剤として  $\text{Na}_2\text{SO}_3$ を用いた場合と  $\text{K}_2\text{SO}_3$ を用いた場合で同程度の回収率が得られたことから、これらの還元剤の還元能力に有意な差はないと考えられる。

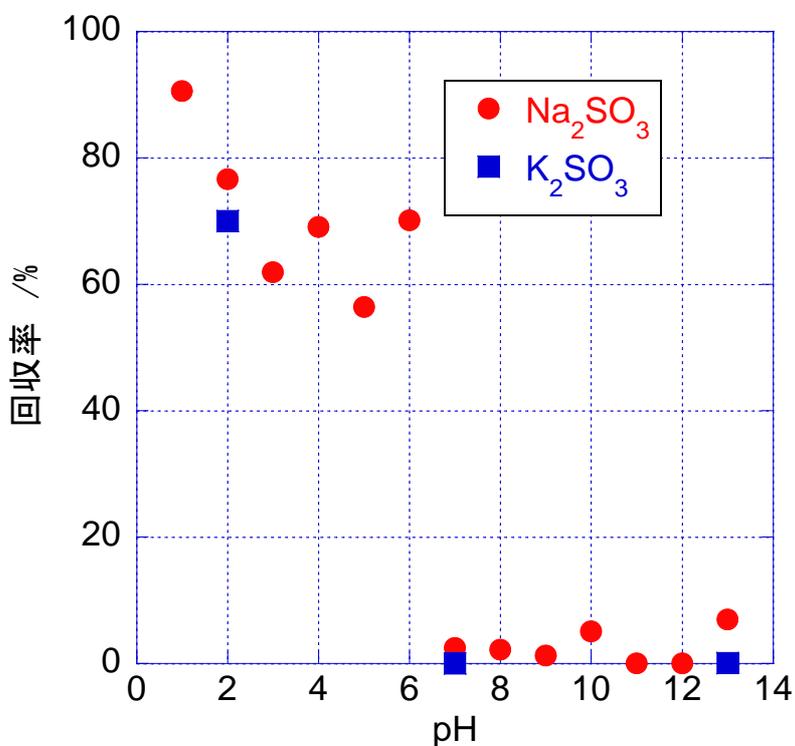


図 3.2.1-4  $\text{IO}_3^-$ 由来の  $\text{I}^-$ 回収率の pH 依存性

#### c) 有機形ヨウ素の分離条件の検討

試料溶液中にグリセロールやクエン酸、硫酸、リン酸等を添加することで C や S、P を共存させると、ICP のプラズマ内における I のイオン化が促進され、その結果カウントが増大すると報じられている[3.2.5, 3.2.6]。これは、I は第一イオン化エネルギーが高く陽イオン化されにくい元素であるが、C 等が試料液中に存在する場合、I と C 等との間で電荷移動が起こり、I のイオン化が促進されるためではないかと推察されている。そこで、KI、 $\text{KIO}_3$ 、 $\text{CH}_3\text{I}$ を用いて同濃度のヨウ素を含む試料溶液を調製して測定したところ、KI 由来のヨウ素に対し  $\text{KIO}_3$ 由来のヨウ素のカウントは同程度であったが、 $\text{CH}_3\text{I}$ 由来のヨウ素のカウントは 13 倍ほどになることが分かった。

他の化学形態に比べ、有機形ヨウ素の感度が高い場合、有機形ヨウ素を過剰に見積もってしまうことになるため、同条件で定量可能とするために、有機物を分解してヨウ素を $I^-$ とし、Anion-SRで $I^-$ を抽出し、分解後の有機成分等から分離精製する検討を行った。

K. A. Schwehrらは、環境試料中に含まれる有機形ヨウ素を対象に以下の手順に沿った分解法を提案している。

- ①NaOH とエタノールの添加
- ②65°Cで3時間超音波照射
- ③一晩放置
- ④還元剤添加
- ⑤溶液を酸性下
- ⑥45°Cで1.5時間超音波照射
- ⑦冷凍後、解凍
- ⑧沸騰湯浴で温め、エタノールを除去
- ⑨徐冷後、EmporeC18ディスクへ通液し、有機物を除去

ここで、Schwehrらの対象としている有機形ヨウ素と比べ、 $CH_3I$ はメチル化剤として知られる試薬であり、比較的容易に $I^-$ へ分解されると考えられたため、Schwehrらの手法の①～③を参考に、NaOHとエタノールの添加と超音波照射による分解を試みた。しかし、測定試料中から $CH_3I$ は検出されなかった。この原因としては、 $CH_3I$ の沸点が42.43°Cと低いため、③の手順に沿って加熱後に一晩放置したことにより試料中の $CH_3I$ が揮発したことが推察された。

#### d) 模擬汚染水試料の分析

模擬汚染水試料として、表3.2.1-1に示すように、KIまたは $KIO_3$ あるいは $CH_3I$ を含む試料溶液とこれらの混合溶液とを各10 ml調製し、図3.2.1-5に示す分離法に従ってヨウ素の化学形態分離を試験した。

表 3.2.1-1 模擬汚染水試料の組成

試料 1	試料 2	試料 3	試料 4
KI(I として 1 $\mu\text{g}$ ) 0.1 M NaCl 0.01 M NaOH	KIO <sub>3</sub> (I として 1 $\mu\text{g}$ ) 0.1 M NaCl 0.01 M NaOH	CH <sub>3</sub> I(I として 1 $\mu\text{g}$ ) 0.1 M NaCl 0.01 M NaOH	KI(I として 1 $\mu\text{g}$ ) KIO <sub>3</sub> (I として 1 $\mu\text{g}$ ) CH <sub>3</sub> I(I として 1 $\mu\text{g}$ ) 0.1 M NaCl 0.01 M NaOH

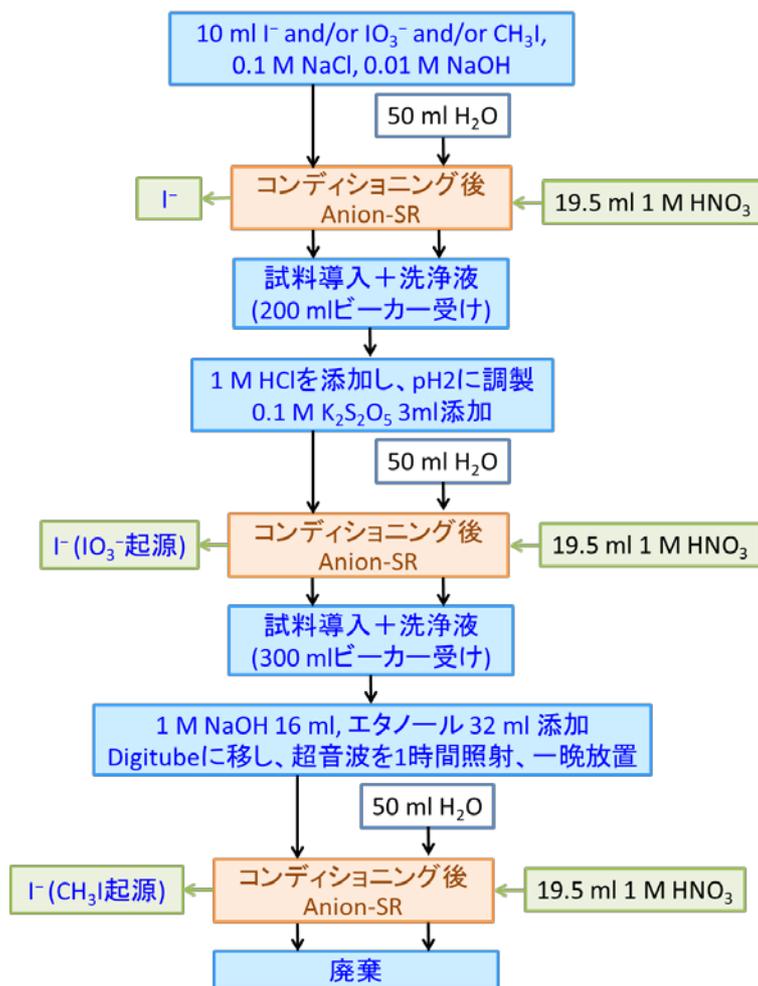


図 3.2.1-5 模擬汚染水試料の分離試験

各模擬汚染水試料を用いた通液試験における、各ヨウ素回収フラクションでのヨウ素の回収率を表 3.2.1-2 にまとめた。

表 3.2.1-2 化学形態別ヨウ素回収試験の結果  
各フラクションにおけるヨウ素回収率 %

	試料1	試料2	試料3	試料4
I <sup>-</sup> 回収フラクション	6	0	0	8
IO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 回収フラクション	0	61	0	66
CH <sub>3</sub> I回収フラクション	0	0	2	0

試料 1、2、3 は個別の化学形態のみを含む試料の試験であるが、各化学形態の回収フラクション以外のところでは有意な回収率が出ておらず、また、試料 4 の回収率が対応する化学形態の回収率と近い値をとっていることから、化学形態毎に分離はできたと考えられる。しかし、I<sup>-</sup>起源と CH<sub>3</sub>I 起源のヨウ素の回収率が著しく低い結果となった。I<sup>-</sup>に関しては、吸着したまま溶出できていない可能性が考えられる。また、CH<sub>3</sub>I に関しては揮発による損失が考えられる。

今回の試験ではすべて安定ヨウ素の <sup>127</sup>I を用いたが、<sup>129</sup>I で標識することで化学形態を識別できるようにすることで精度の向上が期待できる。

### (3) 今後の課題

傾向を調査するための試験では、条件を変化させたときの変化の様子から結果の妥当性を判断できるため、1 条件につき 1 回の試験で実施しているが、採用した条件については複数回の試験を行っている。しかし、同条件で実施しているにもかかわらず、安定した回収率が得られないことがある。Anion-SR のヨウ素に対する交換容量が 40 mg であるのに対し、今回の実験で使用したヨウ素量は 1 µg であり、ヨウ素に対して過剰量の吸着サイトが存在するため吸着が強すぎて溶出していないなどの原因が考えられる。ただし、<sup>129</sup>I を分析する観点から、<sup>127</sup>I の量を増加させることは望ましくないため、I が溶離しやすい条件で吸着させることなどの検討が必要である。

別の要因として、試験から測定までの試料の間の保管期間が長くなった場合、化学形態が変化し、I<sub>2</sub>ガスが生じて揮発するなど定量結果に影響を及ぼす可能性があるため、分離後は期間を置かずに測定を行うことが望ましい。

なお、本調査とは別の事業 <sup>\*</sup>1 で実施した同様の試験においては、c) の③に沿った一晩放置の工程を経ずに測定を行うことにより、CH<sub>3</sub>I の高い回収率が得られることが確認されている。

また、更なる分析手法の高度化のために、CH<sub>3</sub>I をはじめ、CH<sub>3</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>I 等のヨウ化アルキルの分解法についても検討するとともに、<sup>129</sup>I で I<sup>-</sup>、<sup>127</sup>I で IO<sub>3</sub><sup>-</sup> と化学形態毎に核種で標識して実験を行い、分離性能を確認することが有益と考える。その際、低濃度の <sup>129</sup>I

※1 平成 30 年度原子力規制庁請負「原子力安全基盤データ取得に係る試験等」のうち「溶液中の対象元素の事故時移行挙動に係る試験」

を精度よく測定するため、定量下限値の低い質量分析装置の導入が必要である。

### 3.2.2 固相試料の分析前処理方法の検討

1F 事故において、放射性 Cs がどのような化学形態で放出されたのかは明らかになっていないものの、降雨等にさらされていない 2 号機の壁や天井等のコンクリート内には事故当時の化学形態を保持した状態で Cs が付着している可能性がある。したがって、コンクリートに付着した Cs 化合物の化学形態を明らかにすることができれば、事故時に、Cs が CsI の形態で放出されたのか、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>の形態で放出されたのか、あるいはホウ素 (B) と化合した状態で放出されたのか、といったソースタームの放出形態を類推する上で有用な情報が得られる可能性がある。このような観点で、コンクリートに付着した Cs 化合物の化学形態分を行うためのコンクリート固相試料の分析前処理方法について検討を行い、以下の(1)及び(2)に示す 2 つの方法を提案した。

#### (1) Cs 化合物の揮発条件を利用する方法

コンクリートに付着した CsI や Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>が揮発する温度条件が異なる場合、コンクリート試料からの Cs の揮発温度によって付着している化合物の形態を推定できる可能性がある。このため、以下の試験を行う。

- ① CsI あるいは Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>等の Cs 化合物を電気炉で加熱して揮発させ、それを下流でトラップし、濃度を測定する
- ② 揮発した Cs 化合物をコンクリート試験体に付着させ、試料を調製する
- ③ ②で調製した試料を用い、付着した Cs 化合物がコンクリート試験体から揮発する温度条件を化学形態毎に調べる

#### (2) Cs と化合物を生成する可能性のある元素の分布を調べる方法

コンクリート表面における Cs-137 濃度の高い部分や低い部分において、Mo や B の濃度と Cs 濃度との間に正の相関があるかどうかを確認する。この際、コンクリート試料中にもともと不純物として含まれる Mo や B の BG を考慮する必要がある。

Cs-137 やコンクリート試料中元素としての B や Mo、並びに試料の表面状態に係る情報としてコンクリート及び塗膜について、濃度分析を行うための試料の前処理方法、適用可能な分析装置及び分析手法をまとめたものを図 3.2.2-1 に示す。

図 3.2.2-1 に示した核種や元素の分析に必要な試料量は、ICP-MS や Si 半導体検出器といった分析装置の検出下限や前処理工程等を踏まえて決定する必要がある。検出下限は測定条件等によって変わり、例えば一般的な ICP-MS での検出下限は数十 ppt 程度であるが、実試料の分析を行う場合には試料量が限られることから、より低い検出下限の分析装置が必要となる。また、Si 半導体検出器の場合、4 時間測定で数～数十 mBq 程度が検出下限となる。

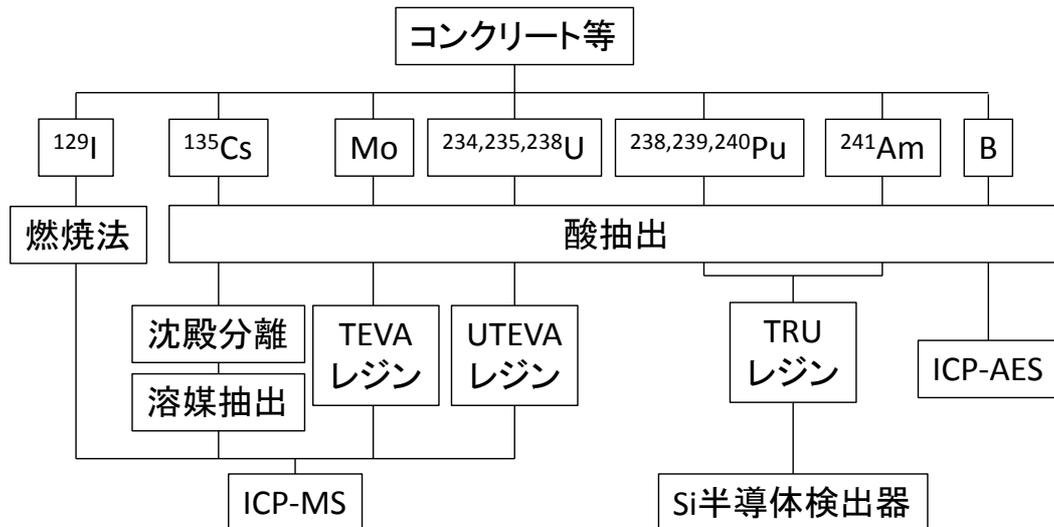


図 3.2.2-1 コンクリート等試料の分析フロー図 [3.2.7-3.2.9]

### 3.2.3 分析を行う施設の使用許可取得等に向けた準備

3.1.2(1)項に示した有用な試料である 2 号機原子炉建屋内で採取された試料の分析や、2 号機原子炉建屋内の壁や天井等のコンクリート固相試料について 3.2.2 に示した分析を実施するために必要となる施設の使用許可取得等に向けた準備として、原科研を対象とした検討を行った。

原科研では、1F の分析サンプルに関する計量管理要領が定められている。1F からの搬出時の放射線測定において、アルファ線が検出された場合、計量管理が必要となる。また、アルファ線が検出されず、原科研へ搬入後、分析により核燃料物質が検出された場合についても、計量管理が必要となる。このように原科研において、2 号機の固相試料を分析しようとした場合、分析結果によっては、核燃料物質の受入れ及び使用の許可が必要となるため、核燃料物質の使用の変更の許可申請書（許認可）を確認しておくことが重要である。

核燃料物質の許認可については、Pu, U, Th 及び使用済燃料の受入れや使用等が該当する。1F の分析サンプル（以下「1F 汚染物」という。）を受入れ、使用する際には、1F 汚染物の放射エネルギーと使用場所の使用済燃料の放射エネルギーの合計が使用場所の最大取扱量以下であることを事前に確認する必要がある。

まず、1F 汚染物を原科研の設備（燃料試験施設、BECKY、WASTEF 及び第 4 研究棟）へ受入れが可能かどうかについて調査した。4 施設とも瓦礫、植物、金属試料、有機材料、滞留水、構造物、吸着材、汚染処理に伴う二次廃棄物等といった固相試料を受入れることが、現状の許認可上、可能であることを確認した。

このうち、BECKY 施設の設備（表 3.2.3-1）を例に、2 号機の固相試料の分析前処理や分析を実施することを想定した許認可等についての確認を行った。

計量管理を要する試料の場合、実験室VIのフード（H-15, H-16）については使用済燃料の使用の許可があるため測定試料の調整等を行える一方で、分析装置を設置している精密測定室については許可が無いことから、試料の濃度測定等の分析を行うことができない。このため、精密測定室についての使用の変更許可等の手続きが必要となる。

次に、2号機の固相試料(表 3.1.2-4～表 3.1.2-8 の試料)に含まれる核種や放射エネルギー(Bq)を踏まえて、現時点での実験室VIのフード（H-15, H-16）への受入れの可否について確認した。試料の重量(g)、拭き取り面積(Bg/cm<sup>2</sup>)、核種の放射エネルギー(Bq)等の具体的な情報が分かっている試料については、現在、実験室VIのフード（H-15, H-16）で使用済燃料を使用していないため、試料に含まれる核種の放射エネルギーを合算し、使用済燃料の許可量を下回っていれば、使用することができる。具体的には、2RB-DE-D1、2RB-DE-D2、2RB-DE-D3、2DB-DE-D4、2RB-DE-D5 のデッキプレート及び 2RB-OP-養生シートが、実験室VIのフード（H-15, H-16）への受入れ及び使用が可能である。

また、BECKY 設備での固相試料の保管については、水分量が 16%以下であることが確認出来れば貯蔵庫への保管が可能である。

表 3.2.3-1 BECKY 施設の設定の例（グローブボックス：GB、フード等）

使用場所	使用の許可				主要設備等	使用条件
	Pu	U	Th	使用済燃料		
実験室VI（室内）	有	有	無	無	液体シンチレーションカウンタ、Ge 半導体検出器	封入
A-8 GB	有	有	有	有		
A-9 GB	有	有	有	有		
H-15 フード	無	有	有	有		
H-16 フード	無	有	有	有		
実験室VIII（室内）	無	無	無	無		
A-10 GB	有	有	有	無		
A-11 GB	有	有	有	無		
A-12 GB	有	有	有	無	Ar ガス雰囲気 GB	
A-13 GB	有	有	有	無	Ar ガス雰囲気 GB	
精密測定室（室内）	有	有	有	無	X 線光電子分析装置（XPS）， ICP-MS	焼き付け

### 3.2.4 シビアアクシデント解析に基づく分析試料の検討

#### (1) 検討の進め方

効果的な分析対象試料の選定に資するために、シビアアクシデント総合解析コード THALES2[3.2.11]を用いて各号機に対する詳細な核種移行推定を行った。この解析では、現時点で最も確からしいと認識されている事故クロノロジー[3.2.12]及び境界条件を入力情報として、原子炉格納容器から放出され原子炉建屋内を移行する核種（主としてセシウム、ヨウ素といった核分裂生成物）について、放出量の履歴や化学種などを推定した。この解析結果に基づき以下を実施することで効率の良い知見取得が期待される。

- a) 主な核種移行経路と推定された位置から採取された試料を優先的に分析する。
- b) 主な核種移行経路でないと推定された位置から採取された試料についても適宜分析を実施し、放射性物質の量について a)と比較することで、推定した移行経路の信頼性を確認する。
- c) 上記に必要な試料が十分に採取されていない場合、新規の採取を提案する。
- d) a)の分析において核種の化学種を特定し、解析結果と比較することで、推定した事故進展過程の信頼性を確認する。
- e) 上記に基づき事故クロノロジー及び境界条件を調整し、新たな解析を実施し、分析結果と再度比較する。

#### (2) シビアアクシデント解析結果の例

THALES2 コードを用いた解析の一例として、平成 29 年度の検討[3.2.13]において分析対象として有望と考えられた福島第一原子力発電所 2 号機に対する核種移行の推定結果を示す。同文献に述べられているように 2 号機では原子炉建屋の水素爆発が生じていないため、建屋内の試料は事故から採取までの期間に風雨に晒されていない可能性が高く、推定結果との比較に適している。

解析における区画の分割及び全体の構造を図 3.2.4-1 に示す。また、THALES2 コードでは制御材に含まれる炭化ホウ素 ( $B_4C$ ) の酸化及び原子炉冷却系の FP 化学が考慮されている。原子炉スクラムを起点とする主だったイベントの発生時刻は以下の通りである。

- 76.4 時間: 燃料ペレット-被覆管ギャップからの放出開始 (被覆管温度 > 1173K)
- 77.3 時間: 炉心損傷開始 (被覆管温度 > 2098K)
- 79.5 時間: 炉心支持板破損
- 88.0 時間: ウエットウェル液相部の破損

図 3.2.4-2(a)及び(b)は、各区画におけるセシウム及びヨウ素の初期インベントリに対する沈着量の割合を示す。セシウムとヨウ素の初期インベントリは、それぞれ 147.9 kg 及び 11.9 kg である。これらの図から明らかなように、セシウムとヨウ素の分布及びその経時変化はよく似ている。建屋内の分布は約 150 時間までにはほぼ決まり、その後はほとんど変化しな

い。格納容器フランジからのリークのため、セシウム、ヨウ素ともにオペレーティングフロア（OPFL）への漏洩が最も早く起こる。ウエットウェル液相部の破損（88.0時間）により、放射性物質の大部分がトラス室及び原子炉建屋地下（ここでは、建屋損傷部からの地下水への漏えいも含む）へ移行する。その後、原子炉建屋1～4階及びオペレーティングフロアの順に移行する。そのため、存在する割合もその順に小さくなる。原子炉建屋2階と3階の間に大きな差が見られ、建屋内に沈着しているセシウム及びヨウ素は多くが原子炉建屋1階と2階に分布する。

THALES2 コードは、重力沈降の影響を受ける床面への沈着と壁面への沈着を区別して評価することが可能である。図 3.2.4-3 にセシウム及びヨウ素の沈着量を、床面と壁面に分けて示す。また、原子炉スクラムから 450 時間後の沈着量を表 3.2.4-1 にまとめる。ここで、それぞれの値は初期インベントリに対する割合である。これらの結果より、全体的な傾向としては区画によらず壁面への吸着が支配的であることが判る。これは、ウエットウェル液相部によるスクラビングの効果により、建屋内の各区画に移行するエアロゾルではスクラビングで除去されにくい小粒径のものが多くを占めるため、重力沈降の影響を受けにくく、床と壁への分配割合が面積比に依存したものになったからと解釈される。ただし、セシウムとヨウ素で異なる傾向も示されている。まず、セシウムはどの区画においても床面より壁面への吸着が支配的である。一方、ヨウ素は原子炉建屋からオペレーティングフロアに向けて上昇するに従い壁面への吸着が指数関数的に減少するが、床面の沈着の減少は相対的に緩やかであり、オペレーティングフロアにおいては壁面と床面の違いが3倍以内になっている。

さらに、THALES2 コードは、温度、圧力、元素存在比等の条件に応じて生成される化学種を考慮することが可能である。図 3.2.4-4～図 3.2.4-9 に、各区画の床面及び壁面におけるセシウム及びヨウ素の沈着量を化学種別に示す。また、各区画における沈着割合の高い化学種を表 3.2.4-2 に示す。オペレーティングフロアを除く全ての区画で CsI、CsBO<sub>2</sub>、CsOH が高い割合を占めており、エアロゾルとして存在することを示唆している。全区画でヨウ素は CsI として存在するが、これはヨウ素化学種の多くが揮発性のため、吸着せず環境へ移行しやすいためである。

上に示した THALES2 解析の結果を活用することで、プラント内の核種移行経路や放射性物質の分布について解像度の高い推定が期待される。しかしながら、THALES2 コード自体が開発途上であり、解析結果には大きな不確かさが含まれる。判断に用いる際には、この点を十分に認識する必要がある。

表 3.2.4-1 区画ごとの壁面及び床面における核分裂生成物の沈着量  
(初期インベントリに対する割合, 原子炉スクラムの 450 時間後)

区画	セシウム / $10^{-4}$		ヨウ素 / $10^{-4}$	
	壁面	床面	壁面	床面
原子炉建屋 1 階	21	0.49	65	6.6
原子炉建屋 2 階	10	0.12	31	3.8
原子炉建屋 3 階	3.6	0.35	10	2.7
原子炉建屋 4 階	3.0	0.013	7.2	1.5
オペレーティング フロア	1.9	0.026	3.5	1.3

表 3.2.4-2 区画ごとの沈着割合の高い化学種  
(原子炉スクラムの 450 時間後)

区画	化学種
原子炉建屋 1 階	CsI, CsBO <sub>2</sub> , CsOH
原子炉建屋 2 階	CsI, CsBO <sub>2</sub> , CsOH
原子炉建屋 3 階	CsI, CsBO <sub>2</sub> , CsOH
原子炉建屋 4 階	CsI, CsBO <sub>2</sub> , CsOH
オペレーティング フロア	CsI, CsBO <sub>2</sub>

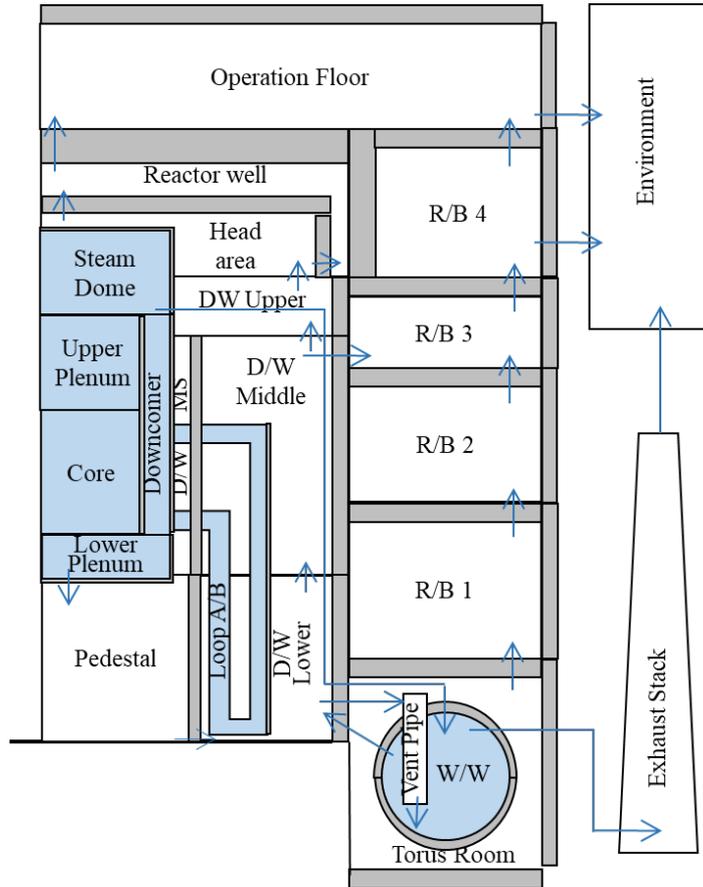


図 3.2.4-1 福島第一原子力発電所 2 号機に関する解析区画の分割

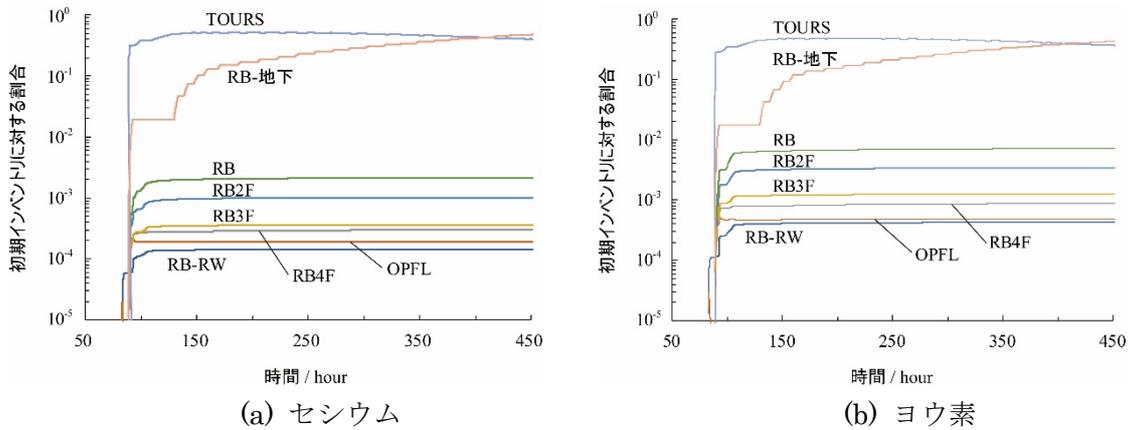
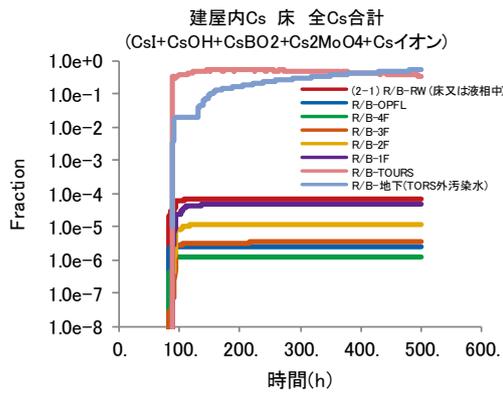
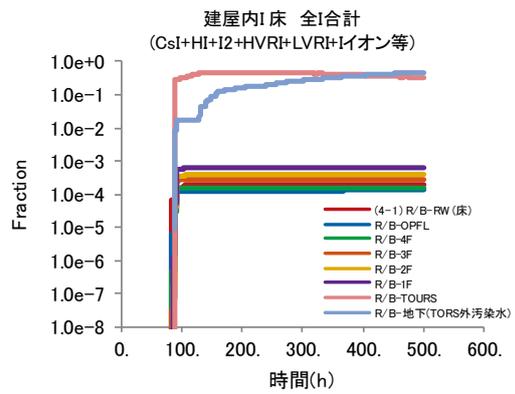


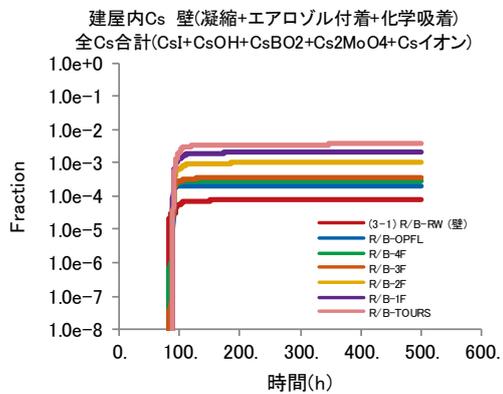
図 3.2.4-2 各区画における沈着量の時間変化（全化学種の合計）



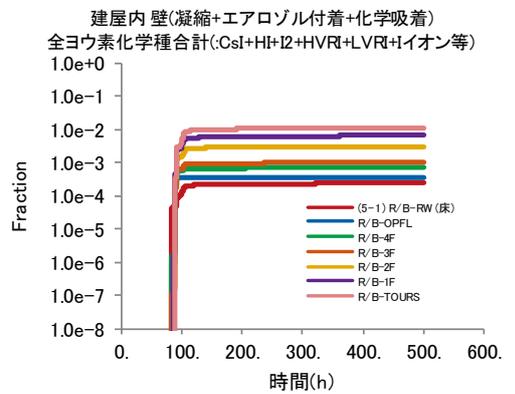
(a) セシウム 床面



(b) ヨウ素 床面

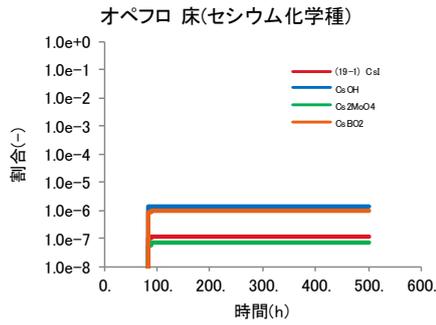


(c) セシウム 壁面

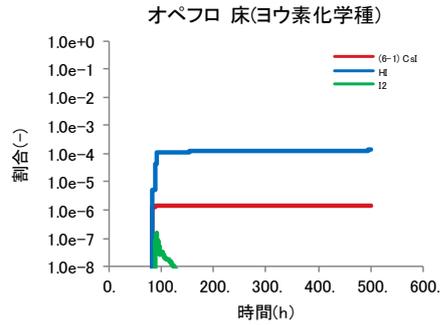


(d) ヨウ素 壁面

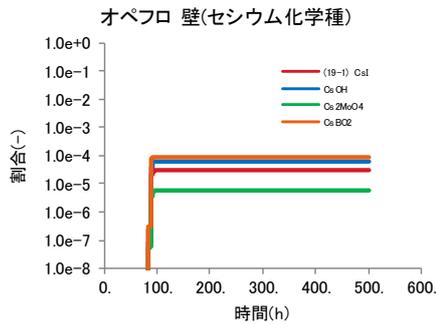
図 3.2.4-3 各区画における沈着量の時間変化 (全化学種の合計)



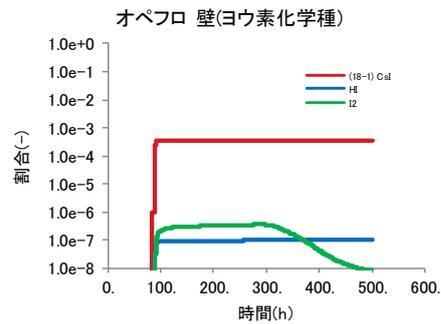
(a) セシウム 床面



(b) ヨウ素 床面

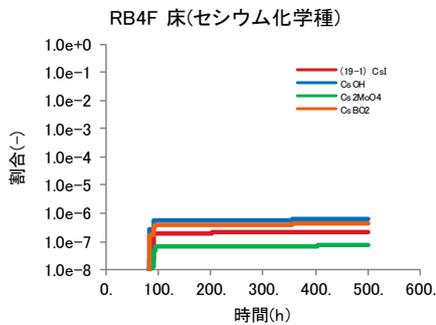


(c) セシウム 壁面

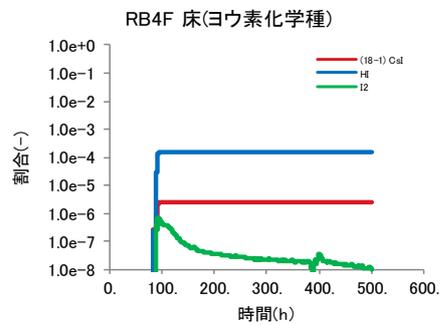


(d) ヨウ素 壁面

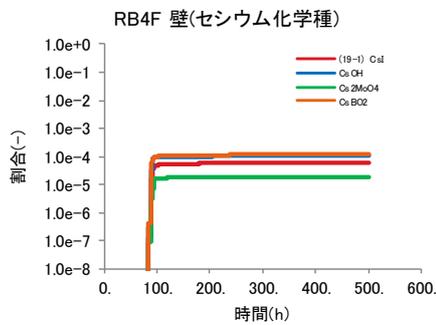
図 3.2.4-4 オペレーティングフロアにおける沈着量の時間変化（化学種別）



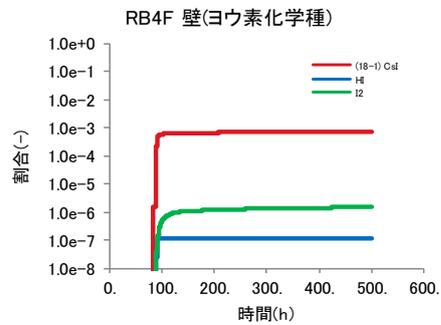
(a) セシウム 床面



(b) ヨウ素 床面

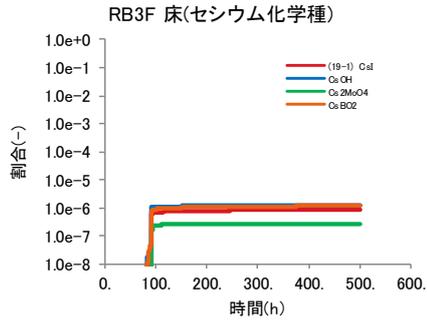


(c) セシウム 壁面

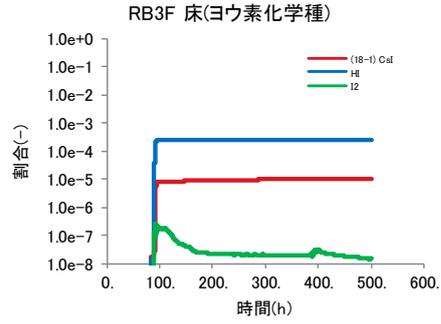


(d) ヨウ素 壁面

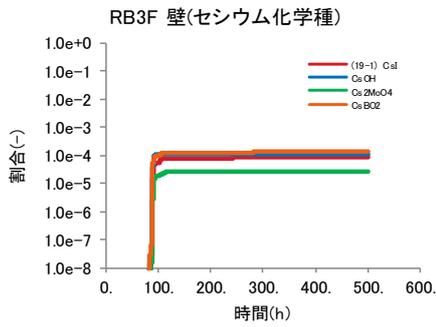
図 3.2.4-5 原子炉建屋 4 階における沈着量の時間変化（化学種別）



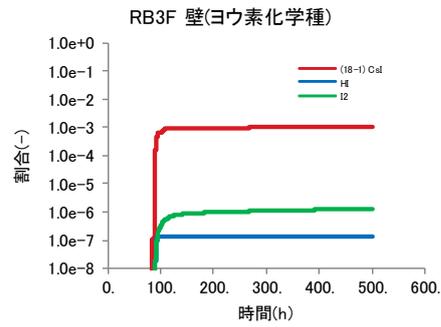
(a) セシウム 床面



(b) ヨウ素 床面

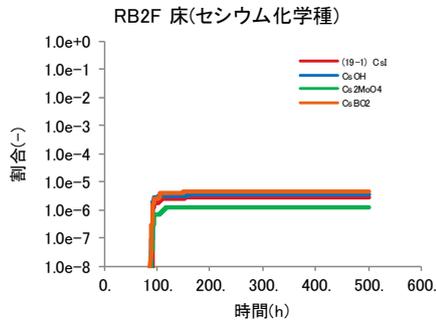


(c) セシウム 壁面

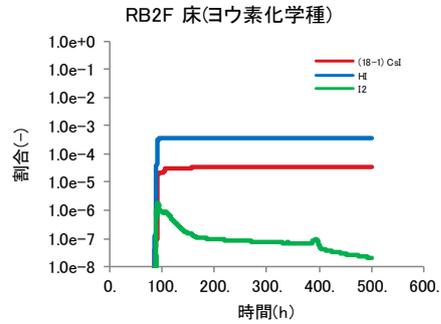


(d) ヨウ素 壁面

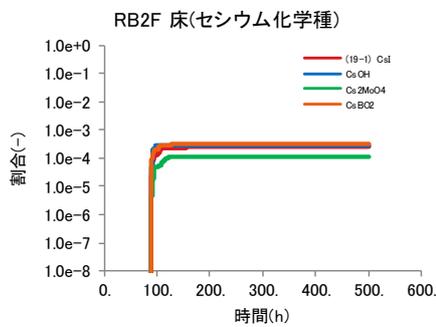
図 3.2.4-6 原子炉建屋 3 階における沈着量の時間変化 (化学種別)



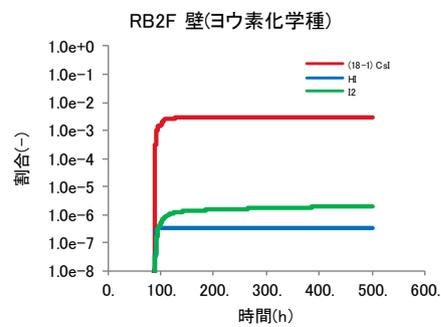
(a) セシウム 床面



(b) ヨウ素 床面

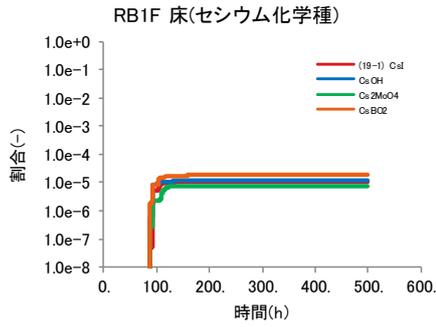


(c) セシウム 壁面

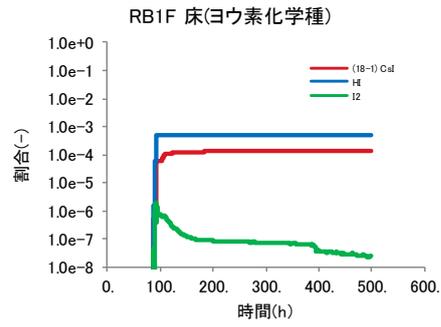


(d) ヨウ素 壁面

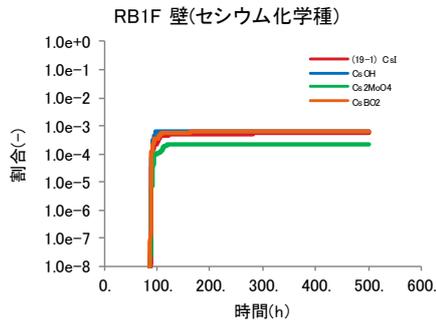
図 3.2.4-7 原子炉建屋 2 階における沈着量の時間変化 (化学種別)



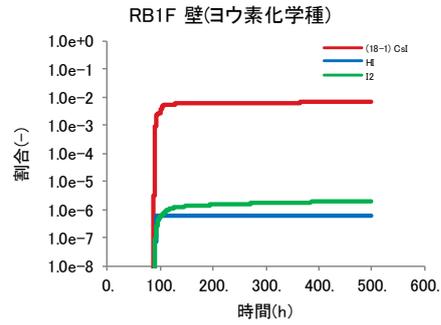
(a) セシウム 床面



(b) ヨウ素 床面

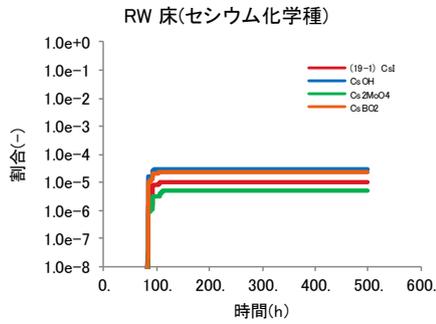


(c) セシウム 壁面

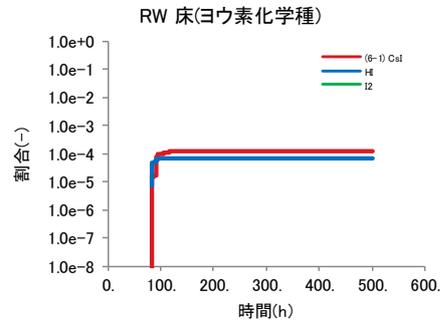


(d) ヨウ素 壁面

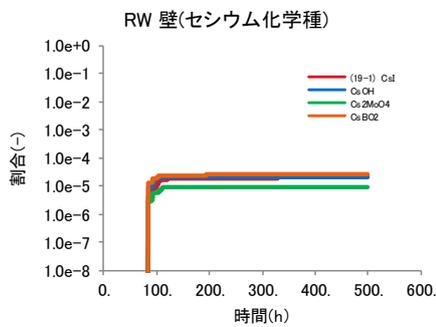
図 3.2.4-8 原子炉建屋1階における沈着量の時間変化(化学種別)



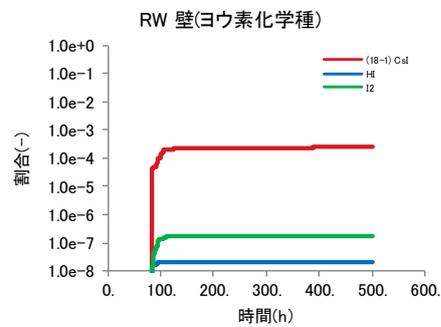
(a) セシウム 床面



(b) ヨウ素 床面



(c) セシウム 壁面



(d) ヨウ素 壁面

図 3.2.4-9 原子炉ウエルにおける沈着量の時間変化(化学種別)

#### 参考文献

- [3.2.1] 文部科学省、環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法、放射能測定シリーズ 32、平成 16 年.
- [3.2.2] Shimada,A. et al.: Nuclear Back-end and transmutation technology for waste disposal, 311 (2015).
- [3.2.3] Grindlay,G. et al: Spectrochim. Acta B, 8,115, (2016).
- [3.2.4] Schwehr,K. A. et al.:Limnol. Oceanogr. Meth., 3 ,326, (2005).
- [3.2.5] G. Grindlay, L. Gras, J. Mora, M. T.C. de Loos-Vollebregt, Spectrochim. Acta Part B, 115, 8-15 (2016).
- [3.2.6] G. Grindlay, J. Mora, M. de Loos-Vollebregt, F. Vanhaecke, Spectrochim. Acta Part B, 86, 42-49 (2013).
- [3.2.7] 亀尾裕, 島田亜佐子, 石森健一郎, 原賀智子, 片山淳, 星亜紀子, 中島幹雄: 研究施設等廃棄物に含まれる放射性核種の簡易・迅速分析法 (分析指針) .
- [3.2.8] JAEA-Technology 2009-051 (2009).
- [3.2.9] Tanaka, K. et al.: Radiochemical analysis of rubble and trees collected from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. J. Nucl. Sci. Technol. 51(7-8), 1032-1043 (2014).
- [3.2.10] Shimada, A. et al.: Development of a Separation Method for Molybdenum from Zirconium, Niobium, and Major Elements of Rubble Samples. J. Chromatogr. A. 1371, 163-167 (2014).
- [3.2.11] 石川, 他, THALES-2 コードによる BWR Mark-II を対象としたレベル 3PSA のための系統的なソースターム解析, JAERI-Research 2005-021, 2005.
- [3.2.12] 東京電力: 福島原子力事故発生後の詳細な進展メカニズムに関する未確認・未解明事項の調査・検討結果「第 5 回進捗報告」について, [http://www.tepco.co.jp/press/release/2017/1470526\\_8706.html](http://www.tepco.co.jp/press/release/2017/1470526_8706.html), 平成 29 年 12 月 25 日(2017).
- [3.2.13] 日本原子力研究開発機構: 平成 29 年度原子力規制庁委託成果報告書 東京電力福島第一原子力発電所プラント内核種移行に関する調査, 平成 30 年 3 月 (2018).

### 3.3 1F 事故分析に係る OECD/NEA プロジェクトに知見を提供するためのデータベース作成

3.1 で収集・整理した公開情報と、3.2 で実施したヨウ素の化学形態分離の検討内容について、英語版のデータベース等を作成し、2019（平成 31）年 1 月 22 日に開催された OECD/NEA の 1F 事故分析に係るプロジェクト；ARC-F 会合（The first meeting of the programme review）において報告した。報告した内容を次ページ以降に示す。

ヨウ素の化学形態分離に関しては、会合主席者から、得られた分析結果から事故時点における状態を予測する方法についての質問があった。これについては、ある程度保管状態の良い試料で、事故後に I 濃度あるいは全ヨウ素濃度の測定データが存在する試料に関して、同じ手法と化学形態分離まで実施した手法とで分析を行い、比較を行うことで時間変化による影響を求めることができれば、推定可能であると考えられる。

## 3.4 Status and plan of Task 2

### Compilation and management of data and information

Tomoyuki Sugiyama, Asako Shimada  
Nuclear Safety Research Center  
Japan Atomic Energy Agency

This work is funded by the Secretariat of Nuclear Regulation Authority, Japan.

#### Objectives of Task 2

- Compilation and analyses of data and information from past, ongoing and future examinations and R&D studies for the Fukushima Daiichi NPS.
- Obtaining supplementary data and information through chemical and radionuclide analyses of various types of samples taken from various locations of the Fukushima Daiichi NPS.

Therefore, the following two sub tasks are performed in Task 2.

- Task 2a : Collection and compilation of data and information
- Task 2b : Analysis of samples

### Task 2a: Collection and compilation of data and information

- The existing data and information relevant to Task 1 and to understanding of the status of structures and components of the damaged units are collected as much as feasible.
- The collected data and information are compiled and analyzed to interpret so as to be suitable for the project objectives, and properly managed by the operating agent.
- The supposed data and information include thermal-hydraulic measurement, on-site dose measurement, radionuclide and chemical analyses of on-site samples such as contaminated water, rubbles and particulates, and so on.

### Sources of data and information

1. TEPCO: Information from TEPCO
2. TEPCO: Nuclide analysis results of water at the water treatment facility
3. TEPCO: Nuclide analysis results of accumulated water in the basement floor of T/B
4. TEPCO: Situation of Storage and Treatment of Accumulated Water including Highly Concentrated Radioactive Materials at Fukushima Daiichi NPS
5. NRA: The Commission on Supervision and Evaluation of the Specified Nuclear Facilities
6. NRA: Records of meetings with licensees
7. METI: Secretariat of the Team for Countermeasures for Decommissioning and Contaminated Water Treatment
8. IRID: Information from IRID
9. JAEA: JAEA report
10. OECD/NEA: BSAF/BSAF2 projects

### Web sites (1/2)

	Japanese web site*	English web site	Example of English web site*
1	<a href="https://www4.tepco.co.jp/decommission/information/">https://www4.tepco.co.jp/decommission/information/</a>	Partly	<a href="https://www7.tepco.co.jp/responsibility/decommissioning/1f_newsroom/index-e.html">https://www7.tepco.co.jp/responsibility/decommissioning/1f_newsroom/index-e.html</a> ( <a href="https://www4.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/handouts/2017/images/handouts_171117_01-e.pdf">https://www4.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/handouts/2017/images/handouts_171117_01-e.pdf</a> )
2	<a href="https://www4.tepco.co.jp/decommission/data/analysis/index-j.html">https://www4.tepco.co.jp/decommission/data/analysis/index-j.html</a>	YES	<a href="https://www4.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/f1/smp/index-e.html">https://www4.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/f1/smp/index-e.html</a> ( <a href="https://www4.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/f1/smp/2018/images/water_form-e.pdf">https://www4.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/f1/smp/2018/images/water_form-e.pdf</a> )
3		-	-
4	<a href="https://www4.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/watermanagement/pdf/2018/watermanagement_20181105-j.pdf">https://www4.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/watermanagement/pdf/2018/watermanagement_20181105-j.pdf</a> ( <a href="https://www4.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/watermanagement/index-j.html">https://www4.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/watermanagement/index-j.html</a> )	Partly	<a href="https://www7.tepco.co.jp/wp-content/uploads/handouts_181105_02-e.pdf">https://www7.tepco.co.jp/wp-content/uploads/handouts_181105_02-e.pdf</a> ( <a href="https://www7.tepco.co.jp/responsibility/decommissioning/1f_newsroom/handouts/index-e.html">https://www7.tepco.co.jp/responsibility/decommissioning/1f_newsroom/handouts/index-e.html</a> )
5	<a href="http://www.nsr.go.jp/disclosure/committee/yuushikisya/tokutei_kanshi/">http://www.nsr.go.jp/disclosure/committee/yuushikisya/tokutei_kanshi/</a>	Partly	<a href="http://www.nsr.go.jp/data/000230482.pdf">http://www.nsr.go.jp/data/000230482.pdf</a>

\* As of 12th December 2018

### Web sites (2/2)

	Japanese web site*	English web site	Example of English web site*
6	<a href="http://www2.nsr.go.jp/disclosure/meeting/FAM/index.html">http://www2.nsr.go.jp/disclosure/meeting/FAM/index.html</a>	Partly informed at TEPCO's web site	<a href="https://www4.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/handouts/2018/images/handouts_180119_01-e.pdf">https://www4.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/handouts/2018/images/handouts_180119_01-e.pdf</a>
7	<a href="http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning.html">http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning.html</a>	Partly informed at TEPCO's web site	<a href="https://photo.tepco.co.jp/en/date/2017/201702-e/170209-01e.html">https://photo.tepco.co.jp/en/date/2017/201702-e/170209-01e.html</a>
8	<a href="http://irid.or.jp/press/">http://irid.or.jp/press/</a>	Partly informed at TEPCO's web site	<a href="https://www4.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/handouts/2017/images/handouts_170727_03-e.pdf">https://www4.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/handouts/2017/images/handouts_170727_03-e.pdf</a>
9	<a href="https://jopss.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Data-Code-2017-001.pdf">https://jopss.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Data-Code-2017-001.pdf</a>	-	-
10	-	Yes	<a href="https://fdada.info/en/home2/graph2/cg_unit2-en/">https://fdada.info/en/home2/graph2/cg_unit2-en/</a>

\* As of 12th December 2018

## Compilation of data and information

Classification of data by six keywords

A: water samples, B: solid samples, C: dose rates, D: elements and radionuclides other than Cs, E: transportation of samples, F: containment vessels and reactor buildings

Example of compilation about “Information from TEPCO” (in Japanese)

Data	Pages	Japanese web site	A	B	C	D	E	F
Map of accumulated water including radioactive materials	9	<a href="http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts_110530_03-j.pdf">http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts_110530_03-j.pdf</a>	X		X			
Analysis results of radioactive materials sampled in Naraha	12	<a href="http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2014/images/handouts_140212_04-j.pdf">http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2014/images/handouts_140212_04-j.pdf</a>		X	X	X		
Transportation of samples with relatively high radioactivity	11	<a href="https://www.nsr.go.jp/data/000169471.pdf">https://www.nsr.go.jp/data/000169471.pdf</a>		X	X	X	X	
Sample analysis performed outside of the FDNPS	1	<a href="http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2017/images2/handouts_170921_08-j.pdf">http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2017/images2/handouts_170921_08-j.pdf</a>		X	X	X	X	
Sample analysis performed outside of the FDNPS	1	<a href="http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2017/images2/handouts_171117_01-j.pdf">http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2017/images2/handouts_171117_01-j.pdf</a>						X
Analysis results of drainage water	1	<a href="http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/f1/smp/2018/images1/drainage_180125-j.pdf">http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/f1/smp/2018/images1/drainage_180125-j.pdf</a>	X		X	X		
Sampling results of discharge channels of Units 1 and 2	1	<a href="http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/f1/smp/2018/images1/drain_1u2u_18012601-j.pdf">http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/f1/smp/2018/images1/drain_1u2u_18012601-j.pdf</a>	X			X		X
Status of contaminated water and measures	9	<a href="https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/251829.pdf">https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/251829.pdf</a>	X					
Work to create an opening in the outer west wall of Unit 2	3	<a href="http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2018/images1/handouts_180412_07-j.pdf">http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2018/images1/handouts_180412_07-j.pdf</a>						X
Status of the work to create an opening in the outer west wall of Unit 2	4	<a href="http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/2018/images1/d180426_07-j.pdf#page=15">http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/2018/images1/d180426_07-j.pdf#page=15</a>			X			X
Status of Units 1 to 4	2	<a href="https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/267711.pdf">https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/267711.pdf</a>		X				X
Nuclear Safety Reform Plan	70	<a href="http://www.tepco.co.jp/press/release/2018/pdf2/181112j0102.pdf">http://www.tepco.co.jp/press/release/2018/pdf2/181112j0102.pdf</a>	X					X

## Provision of data and information relevant to Task 1

Data and information to be provided should be beneficial to obtain technical aspects for source-term analysis in severe accident situations.

- Sample from R/B or its structure (Keywords related : F)
- Sample has not moved since the accident
  - : From the viewpoint of associating the sample analysis results with the position information at the time of the accident
- Nuclides have not migrated
  - : Adherent nuclides are retained until analysis



Solid samples collected in the unit 2 R/B meets the following conditions.

- Porous (like concrete) or high chemical reactivity surfaces
- NOT been exposed to wind and rain since the accident until sampling

### Examples of Collected Data: Unit 2 R/B 5F

Sampling location	Sampling date	Sample name	Material	Dose rates (μSv/h)
Shield plugs east-side floor	14th May 2014	R21_2RB-DE-C2	Concrete core surface coating film 5.0 g	73
	22th March 2014	2RB-OP-Curing sheet	Sheet type	100,000 (β+γ) 60,000 (γ)
Ceiling	January and February 2014	2RB-DE-D1	Steel plate 59 g	11
		2RB-DE-D2	Steel plate 58 g	3.6
		2RB-DE-D3	Steel plate 57 g	26
		2RB-DE-D4	Steel plate 59 g	3.0
		2RB-DE-D5	Steel plate 57 g	18
Operating floor	16th to 17th April 2018	2RB-OP-1 to 9	Smear (Concrete core)	N/M
	July 2018	Floor 1 to 6 Wall 7 to 9	Smear	N/M

N/M: Not measured

### Examples of Collected Data: Unit 2 R/B 5F Ceiling

#### γ-nuclides

Sampling point	<sup>60</sup> Co	<sup>94</sup> Nb	<sup>137</sup> Cs	<sup>152</sup> Eu	<sup>154</sup> Eu
2RB-DE-D1	X	N/D	X	N/D	N/D
2RB-DE-D2	N/D	N/D	X	N/D	N/D
2RB-DE-D3	X	N/D	X	N/D	N/D
2RB-DE-D4	X	N/D	X	N/D	N/D
2RB-DE-D5	X	N/D	X	N/D	N/D

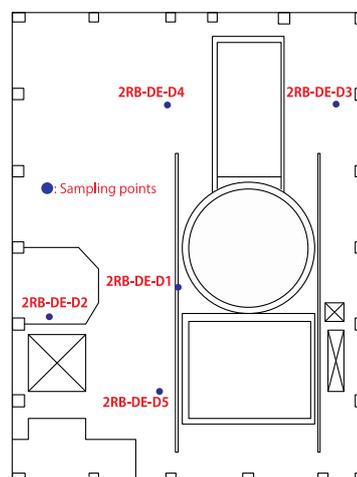
#### β-nuclides

Sampling point	<sup>3</sup> H	<sup>14</sup> C	<sup>36</sup> Cl	<sup>59</sup> Ni	<sup>63</sup> Ni	<sup>76</sup> Se	<sup>90</sup> Sr	<sup>99</sup> Tc	<sup>129</sup> I
2RB-DE-D1	X	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X	X	N/D
2RB-DE-D2	X	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X	X	N/D
2RB-DE-D3	X	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X	X	N/D
2RB-DE-D4	X	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X	X	N/D
2RB-DE-D5	X	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X	X	N/D

#### α-nuclides

Sampling point	<sup>233</sup> U	<sup>234</sup> U	<sup>235</sup> U	<sup>236</sup> U	<sup>238</sup> U	<sup>237</sup> Np	<sup>238</sup> Pu	<sup>239+240</sup> Pu	<sup>242</sup> Pu	<sup>241</sup> Am	<sup>243</sup> Am	<sup>244</sup> Cm
2RB-DE-D1	N/D	N/D	X	N/D	X	N/D	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X
2RB-DE-D2	N/D	N/D	X	N/D	X	N/D	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X
2RB-DE-D3	N/D	N/D	X	N/D	X	N/D	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X
2RB-DE-D4	N/D	N/D	X	N/D	X	N/D	N/D	N/D	N/D	N/D	N/D	X
2RB-DE-D5	N/D	N/D	X	N/D	X	N/D	X	N/D	N/D	X	N/D	X

X: Detected, N/D: Not detected



### Examples of Collected Data: Unit 1 R/B 1F

Sampling location	Sampling date	Sample name	Material	Dose rates (μSv/h)
Around entrance*	October 2013	1RB-AS-R2	Concrete 4 g	32
		1RB-AS-R5	Surface coating film 17 g	1,500
		1PB-AS-R7	Lagging material* 11 g	800
		1RB-AS-R8	Lagging material* 23 g	750
		1RB-AS-R9	Concrete 5 g	52
		1RB-AS-R11	Lagging material* 24 g	870
		1RB-DE-C1	Concrete core surface coating film 10 g (resin surface 12.56 cm <sup>2</sup> )	14

\* Translated by NSRC, JAEA

### Examples of Collected Data: Unit 1 R/B 1F

#### γ-nuclides

Sample name	<sup>60</sup> Co	<sup>94</sup> Nb	<sup>137</sup> Cs	<sup>152</sup> Eu	<sup>154</sup> Eu
1RB-AS-R2	X	N/D	X	N/D	N/D
1RB-AS-R5	X	N/D	X	N/D	N/D
1PB-AS-R7	X	N/D	X	N/D	X
1RB-AS-R8	X	N/D	X	N/D	X
1RB-AS-R9	X	N/D	X	N/D	N/D
1RB-AS-R11	X	N/D	X	N/D	X
1RB-DE-C1	X	N/D	X	N/D	N/D

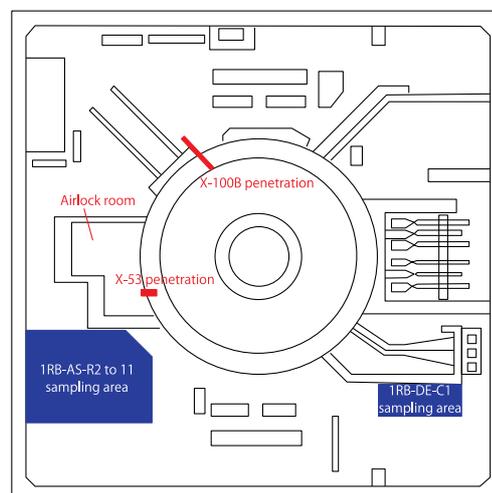
#### β-nuclides

Sample name	<sup>3</sup> H	<sup>14</sup> C	<sup>36</sup> Cl	<sup>59</sup> Ni	<sup>63</sup> Ni	<sup>79</sup> Se	<sup>90</sup> Sr	<sup>99</sup> Tc	<sup>129</sup> I
1RB-AS-R2	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	X	N/M	N/M
1RB-AS-R5	X	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X	N/D	X
1PB-AS-R7	X	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X	X	X
1RB-AS-R8	X	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X	X	X
1RB-AS-R9	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	X	N/M	N/M
1RB-AS-R11	X	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X	X	X
1RB-DE-C1	X	X	N/M	N/M	N/M	N/D	X	N/M	N/M

#### α-nuclides

Sample name	<sup>233</sup> U	<sup>234</sup> U	<sup>235</sup> U	<sup>236</sup> U	<sup>238</sup> U	<sup>237</sup> Np	<sup>238</sup> Pu	<sup>239+240</sup> Pu	<sup>242</sup> Pu	<sup>241</sup> Am	<sup>243</sup> Am	<sup>244</sup> Cm
1RB-AS-R2	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M
1RB-AS-R5	N/D	X	X	N/D	X	N/D	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X
1PB-AS-R7	N/D	X	X	N/D	X	N/D	X	N/D	N/D	N/D	N/D	N/D
1RB-AS-R8	N/D	X	X	N/D	X	N/D	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X
1RB-AS-R9	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M
1RB-AS-R11	N/D	X	X	N/D	X	N/D	X	X	N/D	N/D	N/D	X
1RB-DE-C1	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M

X: Detected, N/D: Not detected, N/M: Not measured



Examples of Collected Data: Unit 3 R/B 1F

Sampling location	Sampling date	Sample name	Material	Dose rates (μSv/h)
Around entrance	March 2014	3RB-AS-R1	Concrete 25 g	22
		3RB-AS-R2	Concrete 17 g	57
		3RB-AS-R5	Concrete 24 g	25
		3RB-AS-R7	Concrete 9 g	31
		3RB-AS-R9	Concrete 23 g	530
		3RB-AS-R10	Concrete 15 g	30
		3RB-AS-R11	Lagging material 21 g	1,200

Examples of Collected Data: Unit 3 R/B 1F

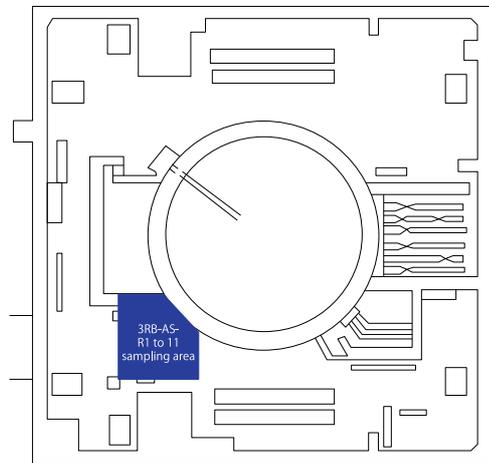
Sample name	<sup>60</sup> Co	<sup>94</sup> Nb	<sup>137</sup> Cs	<sup>152</sup> Eu	<sup>154</sup> Eu
3RB-AS-R1	X	N/D	X	N/D	N/D
3RB-AS-R2	X	N/D	X	N/D	N/D
3RB-AS-R5	X	N/D	X	N/D	N/D
3RB-AS-R7	X	N/D	X	N/D	N/D
3RB-AS-R9	X	N/D	X	N/D	N/D
3RB-AS-R10	X	N/D	X	N/D	N/D
3RB-AS-R11	X	N/D	X	N/D	X

β-nuclides

Sample name	<sup>3</sup> H	<sup>14</sup> C	<sup>36</sup> Cl	<sup>59</sup> Ni	<sup>63</sup> Ni	<sup>79</sup> Se	<sup>90</sup> Sr	<sup>99</sup> Tc	<sup>129</sup> I
3RB-AS-R1	X	X	N/D	N/M	N/M	N/D	X	N/D	N/D
3RB-AS-R2	X	X	N/D	N/M	N/M	N/D	X	X	X
3RB-AS-R5	X	X	N/D	N/M	N/M	N/D	X	N/D	N/D
3RB-AS-R7	X	X	N/M	N/M	N/M	X	X	X	N/M
3RB-AS-R9	X	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X	X	X
3RB-AS-R10	X	X	N/D	N/M	N/M	N/D	X	X	N/D
3RB-AS-R11	X	X	N/D	N/D	N/D	N/D	X	X	X

α-nuclides

Sample name	<sup>233</sup> U	<sup>234</sup> U	<sup>235</sup> U	<sup>236</sup> U	<sup>238</sup> U	<sup>237</sup> Np	<sup>238</sup> Pu	<sup>239+240</sup> Pu	<sup>242</sup> Pu	<sup>241</sup> Am	<sup>243</sup> Am	<sup>244</sup> Cm
3RB-AS-R1	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M
3RB-AS-R2	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M
3RB-AS-R5	N/N	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M
3RB-AS-R7	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M
3RB-AS-R9	N/D	X	X	N/D	X	N/D	X	X	N/D	N/D	N/D	X
3RB-AS-R10	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M	N/M
3RB-AS-R11	N/D	X	X	N/D	X	N/D	X	X	N/D	N/D	N/D	X



X: Detected, N/D: Not detected, N/M: Not measured

## Task 2b : Analysis of samples

- Many on-site samples are still available to perform additional analyses to support the activities in Task 1.
- The first target is to analyze amounts or concentrations of key FPs (iodine as I-129, cesium, strontium, molybdenum, and so on) and actinides in contaminated water and on solid samples such as rubbles of RB structures.
- The analysis for organic materials resulting mainly from CV paint in contaminated water could be a scope since those have a large influence on the iodine chemistry.
- Additionally, the identification of chemical forms of key FPs and the characterization of their elution from solid samples become candidates to be considered in this sub task.

### Identification of chemical forms of iodine: Rapid analytical method to measure

Anion-SR:

a poly(styrene-divinylbenzene)  
copolymer that has been modified with  
quaternary ammonium groups

→having anion exchange properties

the disk format provides a large  
surface area

→fast flow rate (200 ml/min) is possible



### Analysis of I using Anion-SR: Reported method and tasks

- Recovery rate of I<sup>-</sup> (10 mg) at pH 2-14 is approximately 100% [1]
- Extraction of IO<sub>3</sub><sup>-</sup> was 2.3±1.9% from 3 M NaOH [2]
  - ※ I<sup>-</sup> is expected to be separated from IO<sub>3</sub><sup>-</sup>
  - separation condition should be optimized
- Exchange capacity for I<sup>-</sup> is 40 mg [1]
- Extraction of I<sup>-</sup> was not affected by the addition of 1000 mg of F<sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, Br<sup>-</sup>, and 500 mg of CO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> [1]
  - ※ It is suggested that sea water is possible to load directly
- 1 ml of 5w/v% of Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> was added to convert IO<sub>3</sub><sup>-</sup> to I<sup>-</sup> [1]
  - It was not confirmed that IO<sub>3</sub><sup>-</sup> was converted to I<sup>-</sup>
- IO<sub>3</sub><sup>-</sup> was reduced to I<sup>-</sup> by NaHSO<sub>3</sub> at pH 2 but 3 M NaOH [2]
  - pH condition has to study to reduce IO<sub>3</sub><sup>-</sup> to I<sup>-</sup>
- In order to inhibit radio colloids behavior of tracer concentration of radioiodine, 10 mg of stable isotope, carrier, is added [1]
  - Increase of memory effect

[1] Radioactivity measurement series 32

[2] A. Shimada et al., Nuclear Back-end and Transmutation Technology for Waste Disposal, (2015) 311.

### Digestion and measurement of organic iodine: Reported method and tasks

K. A. Schwehr et al., Limnol. Oceanogr. Meth., 3 (2005) 326.

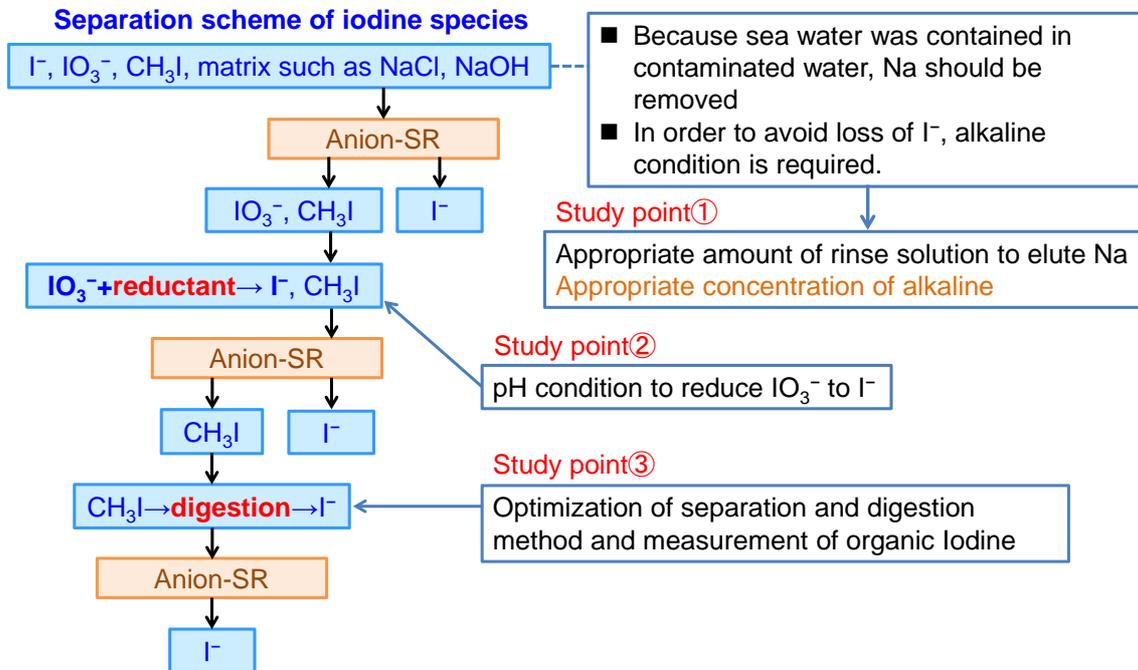
1. Addition of NaOH(4 g/1 L sample) and ethanol (200 ml/1 L sample)
2. Ultrasonic irradiation for 3 h at 65°C
3. Standing over night
4. Addition of reductant
5. Acidify
6. Ultrasonic irradiation for 1.5 h at 45°C
7. Freeze
8. Dipping in hot water bath for 2~3 h (evaporation of ethanol)
9. Passing through Empore C<sub>18</sub>(purification of I<sup>-</sup>)

G. Grindlay et al., Spectrochim. Acta B, 115 (2016) 8-15.

C, S, and P enhance the intensity of I at the measurement of ICP-MS  
→ Organic iodine must be purified from organic component and reductant

**No results about analysis of organic iodine with Anion-SR**

## Tactics



### ① Appropriate amount of rinse solution to elute Na

#### Experimental conditions

sample 10 ml

0.1 M NaCl

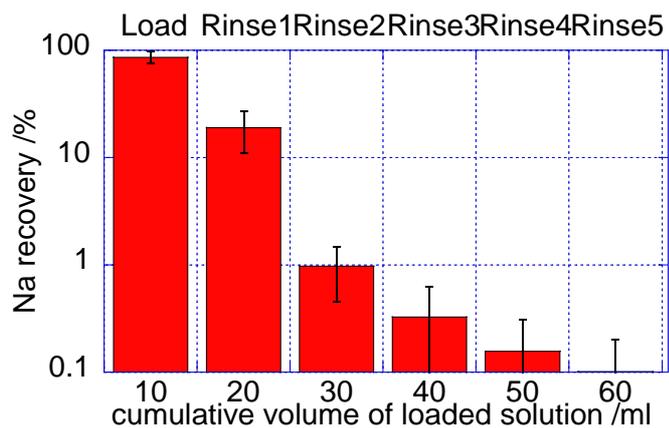
1 M NaOH

KI ( $I=1 \mu g$ )

(Na : 2299ppm, Cl : 3545ppm)

Load: sample solution 10 ml

Rinse1-5: ultrapure water 10 ml



Concentration of remaining Na is decreased to 1/1000 by rinsing with 50 ml of ultrapure water  
 → Molar level will be ppm level → OK to measure  
 However, the concentration of NaOH should be as low as possible

## ②pH condition to reduce IO<sub>3</sub><sup>-</sup> to I<sup>-</sup>

### Experimental conditions

NaCl concentration in seawater ~3.4%

→Na<sup>+</sup> 0.46 M

(Cl<sup>-</sup> 0.16 g)

Simulated sample solution 10 ml

1 M NaCl, KIO<sub>3</sub> (1 µg I),

0.01 M Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> or K<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> ←reductant

pH 1~13 (adjusted by NaOH and HCl)

Separation using Anion-SR (Φ47mm)

After conditioning

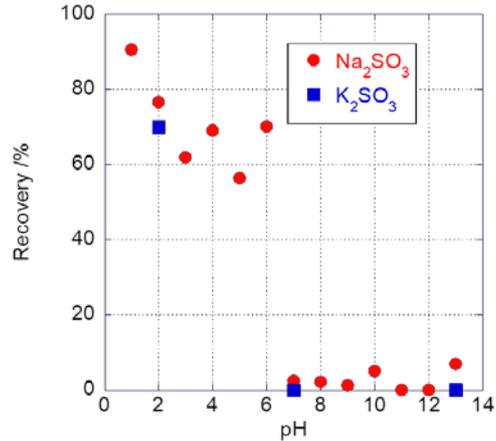
sample: 10 ml

rinse: 20 ml ultrapure water

recovery: 9.5 ml 1 M HNO<sub>3</sub>

added 50 µl NaClO, 50 µl 2ppmCs

Measurement: ICP-MS



Insufficient (70%) and varied recovery is considered due to insufficient amount of 1 M HNO<sub>3</sub>

→Amount of 1 M HNO<sub>3</sub> to recover I will increase from 9.5 ml to 19.5 ml

IO<sub>3</sub><sup>-</sup> was reduced in pH 1-6 solutions but in pH 7-13 solutions

→acidic condition is required to reduce IO<sub>3</sub><sup>-</sup> to I<sup>-</sup>

### Next steps

- Compilation of data and information will be continued.
- The way to share the database is to be determined and established.
  - e.g. Establishing a member's area on the server of JAEA, OECD/NEA or others.
- The proposed method to identify iodine chemical forms will be applied to water samples from the FDNPS.
- Separation and digestion methods for organic iodine will be studied.

#### 4. おわりに

本事業においては、シビアアクシデント時ソースターム評価手法の高度化を図り、規制判断等に活用できる技術的知見を取得することを目的に、BWRの原子炉冷却系内におけるFP（主にヨウ素及びセシウム）化学に及ぼすB<sub>4</sub>C制御材の影響や生成された化合物の移行挙動に着目した実験及び解析を実施する。本年度の事業では、照射済み燃料から放出されるFPの化学形や移行挙動に関する総合実験の解析を実施し、これらの実験データを補完するために非放射性試料を用いた基礎実験によりデータを拡充するとともに、原子炉冷却系内のFP化学計算のための代替統計モデルを備えたTHALES2コードを用いて実機事故条件に対するソースターム評価解析を実施した。主な成果は以下のとおりである。

##### (1) ホウ酸がFP移行挙動に及ぼす影響に係る技術的知見の整理

照射済み燃料からのFPの放出、化学的特性及び移行挙動に関する総合的なデータ取得を目的としたフランス原子力・代替エネルギー庁（CEA）のFP移行実験VERDON-2及び5に関する取得済データを活用し、原子炉冷却系内放射性物質移行挙動解析コードVICTORIA2.0を用いてVERDON-2実験解析を実施した。また、これまでに実施した解析結果と合わせて、ホウ酸を含む水蒸気雰囲気及び空気雰囲気条件下における主要なFPに係わる移行時の化学形や気体状ヨウ素の生成等、化学的特性に係る技術的知見を整理した。

##### (2) FP化学及び移行に係わる実験

シビアアクシデント解析コードに組み込むモデルの構築や改良に必要な基礎データを取得するために、日本原子力研究開発機構大洗研究所の照射燃料試験施設（AGF）ホットセル内において、不活性雰囲気条件下での照射済み燃料からのFP放出及び移行挙動に関する実験を実施した。また、非放射性の試料を用いた実験として、AGFのFP移行挙動模擬試験装置において、「水素雰囲気中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応」及び「水素雰囲気中におけるヨウ化セシウム沈着物と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応」に着目した実験を行うとともに、日本原子力研究開発機構原子力科学研究所のFP放出移行挙動再現装置（TeRRa）において「水蒸気雰囲気中のヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応」に着目した実験を行い、データを拡充した。これらの実験結果により、気体状ヨウ素化学種の移行挙動に関しては速度論的な評価が必要であることが示唆された。

##### (3) FP化学及び移行に係わる解析

熱力学平衡計算によるFP移行挙動の予測性能評価を目的としてTeRRa実験の解析を実施し、水蒸気雰囲気中にヨウ素を加えた場合に下流に到達する気体状ヨウ素化学種の割合が増大するという実験結果を解析により定性的に再現し、この現象の機構に対する理解を深めるとともに速度論的な取り扱いの必要性を改めて認識した。これに関連し、熱力学平衡計算に加えて化学反応速度を考慮できる解析手法の開発として汎用化学モデルCHEMKEqと1次元FP移流コードARTの連成を進めた。

FP 化学組成データベースに基づく代替統計モデルを導入した THALES2/KICHE コードを用いて BWR4/Mark-I プラントの全交流電源喪失 (TB) 及び炉心冷却機能喪失事故 (TQUV) の 2 シーケンスについて、それぞれ、格納容器破損ケースと破損前に格納容器ベントを実施したケースのソースターム (原子炉冷却系から原子炉格納容器への FP 移行量及び環境への FP 放出量) 評価を行った。加えて、BWR5/Mark-II プラントの TB シーケンスについてソースターム評価を行い、型式の違いの影響を確認した。

また、上記に加えて、東京電力福島第一原子力発電所 (1F) 廃止措置の過程で取得される様々な試料に関する公開情報の収集及び整理を行うとともに、汚染水や固体試料の分析及び今後の試料入手に向けた準備等を実施し、整理した情報及び取得した知見をデータベースにとりまとめた。主な成果は以下のとおりである。

#### (4) 1F プラント内核種移行に関する公開情報の収集及び整理

1F サイト内の汚染水、建屋内線量、がれき、土壌等の分析結果、OECD/NEA の 1F 関連プロジェクト等の報告といった公開情報から、プラント内における核種の濃度や分布に関連する情報の収集及び整理を行い、現時点で把握可能な核種の移行挙動について取りまとめた。

#### (5) プラント内試料の分析及び今後の試料入手に向けた準備等

プラント内の核種移行挙動の把握を目的として、水試料の分析手法を検討するとともに、同手法を検証するための分析を実施した。今後の試料入手に向けて、固相試料の分析前処理方法について検討するとともに、分析を行う施設の使用許可取得等に向けた準備を進めた。また、分析対象とする試料の選定を合理的に行うため、シビアアクシデント解析結果の活用について検討を行った。

#### (6) 1F 事故分析に係るデータベース作成

上で取得した知見を OECD/NEA の 1F 事故分析に係るプロジェクトに提供するためのデータベースを作成した。

## 付録 A 出張報告

国内出張 (1)

件名	日本原子力学会 2018 年秋の大会における口頭発表
出張先	岡山大学津島キャンパス (岡山市)
期間	平成 30 年 9 月 5 日 (水) ~平成 30 年 9 月 7 日 (金)
出張者	研究員 2 名
概要	<p>シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化の研究成果から、実験データ取得及び核分裂生成物 (FP) 化学モデルを導入したシビアアクシデント総合解析に関して日本原子力学会 2017 年会秋の大会にてそれぞれ 1 件の口頭発表を行った。</p> <p>[2P21] シビアアクシデント時の原子炉冷却系条件におけるセシウム及びヨウ素の気相化学反応に与えるホウ素の影響 三輪 周平、塩津 弘之、逢坂 正彦、杉山 智之、丸山 結 (原子力機構)</p> <p>[2P18] 原子炉冷却系内 FP 化学を考慮したソースターム解析手法の構築 石川 淳、鄭 嘯宇、塩津 弘之、杉山 智之 (原子力機構)</p>

国内出張 (2)

件名	日本原子力学会 2019 年春の年会における口頭発表
出張先	茨城大学水戸キャンパス (水戸市)
期間	平成 31 年 3 月 20 日 (水) ~平成 31 年 3 月 22 日 (金)
出張者	研究員 1 名
概要	<p>シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化の研究成果から、気体状ヨウ素化学種の生成に及ぼすホウ素の影響に関する解析について 1 件の口頭発表を行った。</p> <p>[3L06]          ホウ素含有水蒸気条件での非凝縮性ヨウ素の生成促進現象に対する化学平衡論解析          塩津 弘之、三輪 周平、逢坂 正彦、杉山 智之、丸山 結 (原子力機構)</p>

## 国内出張 (3)

## 【1F プラント内核種移行調査に係る出張】

件名	東京電力福島第一原子力発電所訪問
出張先	東京電力福島第一原子力発電所（福島県双葉郡大熊町）
期間	平成 30 年 6 月 25 日（月）
出張者	研究主席 4 名、技術主幹 1 名
概要	東京電力福島第一原子力発電所を訪問し、廃止措置の状況を把握するとともに、1F プラント内核種移行調査に係る情報収集を行った。

## 国内出張（4）

## 【1F プラント内核種移行調査に係る出張】

件名	日本原子力研究開発機構 平成 30 年度福島研究開発部門 成果報告会
出張先	いわき芸術文化交流館アリオス（福島県いわき市）
期間	平成 31 年 2 月 20 日（水）
出張者	研究主席 1 名、研究員 1 名
概要	日本原子力研究開発機構の福島研究開発部門が毎年開催する成果報告会に参加し、本事業の成果の一部に関するポスター発表を行うとともに、福島事故や廃止措置に関連した情報収集を行った。

## 国内出張 (5)

## 【1F プラント内核種移行調査に係る出張】

件名	OECD/NEA PreADES 計画会合への参加
出張先	ホテルフクラシア晴海（東京都中央区晴海 3-8-1）
期間	平成 30 年 7 月 4 日（水）～平成 30 年 7 月 6 日（金）
出張者	研究主席 2 名、技術主幹 1 名
概要	東京で開催された OECD/NEA の福島第一原子力発電所燃料デブリに関する予備的研究（PreADES）計画に参加し、1F プラント内核種移行調査に係る情報を入手した。

外国出張 (1)

件名	OECD/NEA BIP3 及び STEM2 計画会議への出席
出張先	フランス OECD/NEA
期間	平成 30 年 6 月 25 日 (月) ~平成 30 年 6 月 29 日 (金)
出張者	研究員 2 名
概要	<p>格納容器内のヨウ素挙動に関する OECD/NEA BIP3 (Behaviour of Iodine Project, Phase 3) 計画及びソースタームに関する同 STEM2 (Source Term Evaluation and Mitigation project, Phase 2) 計画の会議に出席し、FP 挙動に関する最新情報の収集を行った。7 カ国からの参加があり、日本については原子力規制庁から 1 名、JAEA から 2 名が参加した。</p>

外国出張 (2)

件名	VERDON プロジェクトに関する国際セミナーへの出席
出張先	フランス エクサンプロバンス
期間	平成 30 年 9 月 23 日 (日) ~平成 30 年 9 月 27 日 (木)
出張者	研究副主幹 1 名、研究員 1 名
概要	<p>VERDON 実験を実施しているフランス原子力・代替エネルギー庁 (CEA) が主催した国際 VERDON セミナーに出席し、JAEA で実施している核分裂生成物 (FP) 挙動実験及び VERDON 実験解析の成果の一部を報告するとともに、同プロジェクトや各国の FP 挙動研究に関する最新情報を収集した。仏国、米国、カナダ、スイス、欧州共同体、日本から 16 件の発表が行われた。90 名以上が参加し、日本については原子力規制庁から 1 名、JAEA から 4 名 (報告者 2 名を含む)、三菱重工業から 1 名が出席した。</p>

外国出張 (3)

件名	THAI3 計画会合及び IPRESCA 計画会合への出席
出張先	ドイツ フランクフルト
期間	平成 30 年 9 月 30 日 (日) ~平成 30 日 10 月 5 日(金)
出張者	研究主席 1 名
概要	<p>OECD/NEA の国際協力研究計画である THAI-3 (Thermal-hydraulics, Hydrogen, Aerosols, Iodine project, Phase 3) 計画の第 5 回技術検討会議に参加し、シビアアクシデント時のソースターム等に係わる実験の条件や結果に係わる技術的な検討等を行なうとともに情報収集を行った。約 50 名が参加し、日本については原子力規制庁から 1 名、原子力機構から 1 名が参加した。</p> <p>合わせて、欧州の研究ネットワークである NUGENIA の下で実施されているシビアアクシデント時のプールのスクラビングに関する IPRESCA 計画に参加して技術情報を収集した。14 カ国 34 機関が参加しており、今回の会合に日本からは、原子力規制庁から 1 名、電力中央研究所から 1 名、エネルギー総合工学研究所から 1 名、JAEA から 3 名 (報告者含む) が参加した。JAEA からは、安全研究センターで実施しているエアロゾルのプールのスクラビングに係る研究成果を発表した。</p>

外国出張（4）

件名	OECD/NEA BIP3 及び STEM2 計画会議への出席
出張先	フランス OECD/NEA
期間	平成 31 年 3 月 12 日（火）～平成 31 年 3 月 16 日（土）
出張者	研究員 2 名
概要	格納容器内のヨウ素挙動に関する OECD/NEA BIP3 計画及びソースタームに関する同 STEM2 計画の会議に出席し、FP 挙動に関する最新情報の収集を行った。日本からは原子力規制庁 1 名、JAEA1 名が参加した。

件名	OECD/NEA 福島関連会合への出席
出張先	フランス OECD/NEA
期間	平成 31 年 1 月 20 日 (日) ~平成 31 年 1 月 29 日 (木)
出張者	研究主席 2 名、研究主幹 1 名、研究副主幹 2 名
概要	<p>東京電力福島第一原子力発電所事故に関する OECD/NEA 主催の会合に出席し、1F プラント内核種移行に係る技術情報を取得した。</p> <p>ソースタームワークショップ：21(月), 22(火)AM          専門家による詳細な議論を通じてソースタームに係わる主な知識ギャップ及び不確かさ因子を同定することを目的として開催された。15 ヶ国及び OECD/NEA から 50 名以上が参加者し、日本からは原子力規制庁 2 名、電力中央研究所 1 名、JAEA2 名（報告者のうち研究主席 2 名）が参加した。</p> <p>ARC-F 計画キックオフ会合：22(火)PM, 23(水)          1F 格納容器及び原子炉建屋からの情報を分析し事故解析を行うプロジェクトであり、JAEA 安全研究センターが実施機関を務める。約 50 名が参加し、日本からは電力中央研究所 2 名、エネルギー総合工学研究所 1 名、東京電力 1 名、JAEA8 名（出張者 5 名を含む）が参加した。</p> <p>福島関連計画ジョイント WS：24(木)          1F 廃止措置及び関連するプロジェクト等の情報を共有することを目的として開催された。前後の日程で開催された ARC-F 及び PreADES 計画の参加者を中心に 70 名以上の参加があった。東京電力、原子力損害賠償・廃炉等支援機構 (NDF)、国際廃炉研究開発機構 (IRID) より活動状況や計画が紹介され、続いて、ARC-F 計画、PreADES 計画、TCOFF 計画（燃料デブリと FP の化学的特性に関する熱力学解析プロジェクト）等に関する活動状況が紹介された。出張者の研究主席 2 名、研究主幹 1 名、研究副主幹 1 名が出席した。</p> <p>PreADES 計画会合：25(金), 28(月), 29(火)AM          燃料デブリの予備的研究に関するプロジェクトであり、7 ヶ国及び欧州共同体から約 40 名が参加者した。日本からは電力中央研究所 2 名、IRID1 名、東京電力 1 名、原子力機構 9 名（出張者のうち研究主席 1 名を含む）が参加した。</p>