

平成 31 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

国立研究開発法人  
日本原子力研究開発機構  
令和 2 年 3 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。

## 目次

1. はじめに	1-1
2. VERDON 実験データの分析	
2.1 VERDON 実験後試料分析データの入手	2-2
2.1.1 X線回折法	2-3
2.1.2 ラマン分光法	2-3
2.2 VICTORIA コードによる実験データ分析	2-7
2.2.1 解析条件	2-7
2.2.2 解析結果	2-7
2.3 知見の整理	2-9
3. VERDON 実験データを補完する基礎実験	
3.1 目的	3-1
3.2 実験装置	3-1
3.2.1 AGF/FP 移行挙動模擬試験装置	3-1
3.2.2 FP 放出移行挙動再現装置 (TeRRa)	3-2
3.3 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	3-2
3.3.1 実験条件	3-2
3.3.2 実験結果	3-3
3.4 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	3-4
3.4.1 実験条件	3-4
3.4.2 実験結果	3-5
3.5 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	3-6
3.5.1 実験条件	3-6
3.5.2 実験結果	3-7
3.6 まとめ	3-8
3.7 VERDON 及び補完実験で得られた知見の整理	3-9
3.7.1 VERDON 実験	3-9
3.7.2 AGF 及び TeRRa 装置を用いた高温化学実験	3-10
3.7.3 まとめ	3-10

4. ソースターム評価手法の検討	
4.1 熱力学平衡計算機能の予測性能評価	4-1
4.1.1 AGF 実験における FP 放出挙動の評価	4-1
4.1.2 AGF 実験における熱力学化学平衡計算機能の予測性能評価	4-2
4.1.3 1次元 FP 移流コードと化学モデルの練成	4-5
4.2 BWR ソースターム解析	4-11
4.2.1 シビアアクシデント総合解析コードへの FP 化学形予測モデルの導入	4-11
4.2.2 FP 化学種平衡組成予測モデルの高度化	4-12
4.2.3 FP 化学種平衡組成予測モデルの評価	4-12
4.2.4 BWR ソースターム解析	4-14
4.2.5 まとめ	4-16
4.3 ソースターム評価技術の高度化に係る知見の整理	4-26
5. おわりに	5-1
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では化学形及びその存在比をユーザーが仮定して解析を行う。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）の形態をとるヨウ化セシウム（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<sub>4</sub>C）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。日本原子力研究開発機構（原子力機構）が整備す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 号機の事故解析では、一旦 S/C の液相内に陰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<sub>2</sub>）や有機ヨウ素（CH<sub>3</sub>I）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した。

本事業における実験でデータを取得した範囲を図 1.2 に示す。フランス原子力・代替エネルギー庁（CEA）との協力で実施した VERDON 実験\*では、主に水蒸気雰囲気における FP 放出・移行時の化学反応及び FP 含有沈着物の気相への再移行においてホウ素が与える影響

に関するデータを取得した。また、原子力機構原子力科学研究所のFP放出移行挙動再現装置 (TeRRa: Test bench for FP Release and tRansport)、大洗研究所の照射燃料試験施設 (AGF: Alpha Gamma Facility) のFP放出移行試験装置 (AGF ホット試験装置) 及びFP移行挙動模擬試験装置 (AGF コールド試験装置) を用いた実験では、VERDON 実験と同様の水蒸気雰囲気に加え、炉内構造物の酸化等により生じ得る水素雰囲気条件におけるセシウム、ヨウ素、ホウ素蒸気種の高温気相化学反応や、セシウム、ヨウ素の沈着物とホウ素蒸気種の固相反応に着目したデータを取得した。

\* 国際協力により VERDON-5 実験並びに VERDON-2 及び-5 実験試料の分析を実施。

本年度の事業においては、①照射済み燃料を用いた VERDON 実験データに基づきホウ酸含有雰囲気での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によりデータベースの拡張を図るとともに、③シビアアクシデント時FP挙動解析コードの予測性能評価及びFP化学モデルを導入した THALES2 コードによる実機ソースターム試験解析を行い、ソースターム評価技術の高度化に関して得られた知見を取りまとめた。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 CEA が中心になって実施したFP移行実験 VERDON-2 及び 5 の実験後試料分析に係る詳細データを入手するとともに、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 [1.7]を用いて VERDON-5 実験条件における温度勾配管 (TGT: Thermal Gradient Tube) へのFP沈着・再移行に関する解析を実施した。これにより、ホウ酸含有の水蒸気雰囲気条件下及び空気混入条件下におけるセシウム及びヨウ素に係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取得し、とりまとめた。
- ② VERDON 実験データを補完するため、非放射性のヨウ素、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) を原子力科学研究所の TeRRa 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。また、VERDON 実験を含む本事業の実験により取得した高温化学実験の結果をとりまとめ、様々な雰囲気条件下における主要FPの移行時の化学挙動に係る技術的知見を整理した。
- ③ 原子力機構の AGF ホット試験装置で照射済み燃料を対象として実施された加熱実験の解析により、熱力学平衡計算によるFP移行挙動の予測性能を評価するとともに、化学反応速度を考慮できる解析手法の開発に向けた検討を行った。また、シビアアクシデント総合解析コード THALES2 のFP化学計算機能の強化として、従来の代替統計モデルに加えて化学組成評価コード CHEMKEq を直接利用する機能を追加し、

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た。さらに、ソースターム評価技術の高度化に係る知見を整理してとりまとめた。

#### 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.

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>

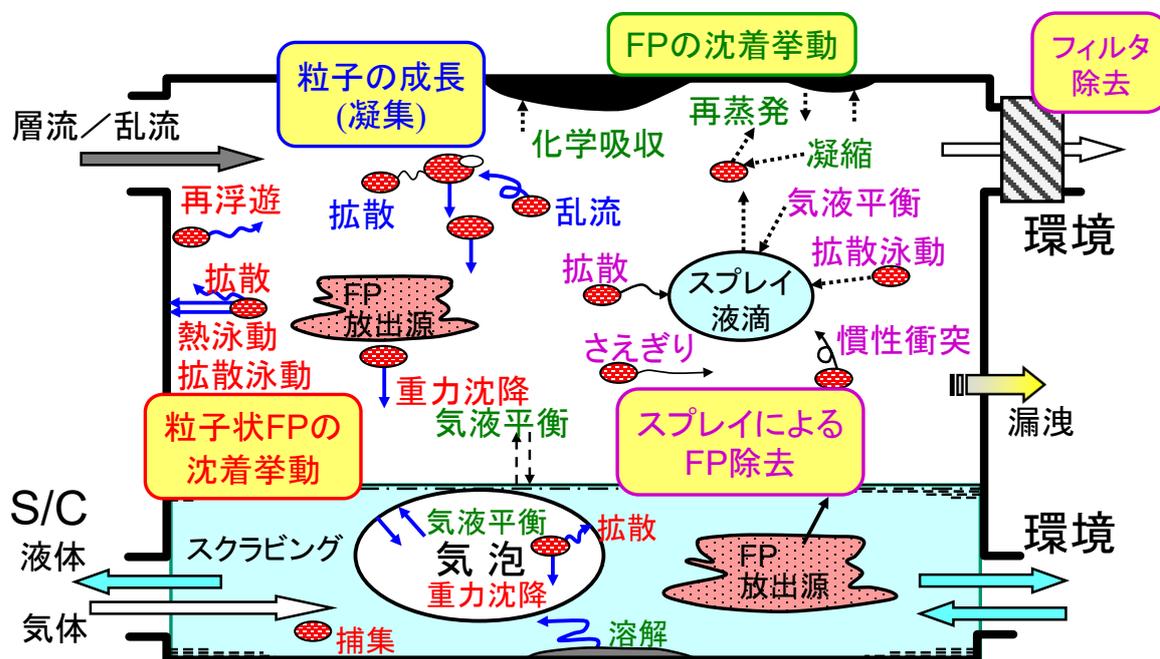


図 1.1 シビリアクシデント時に生じる放射性物質の移行挙動

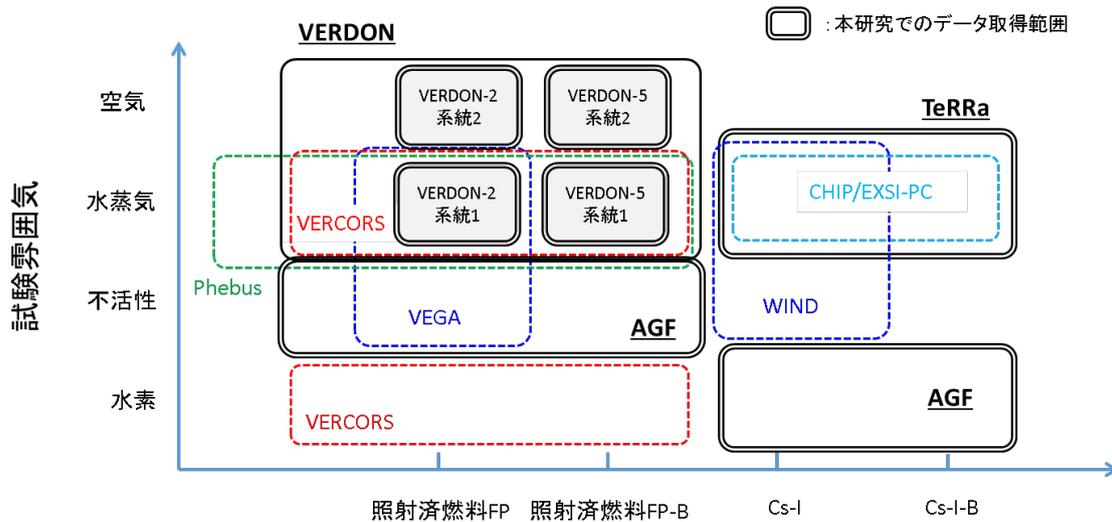


図 1.2 本事業で対象としたデータ取得範囲

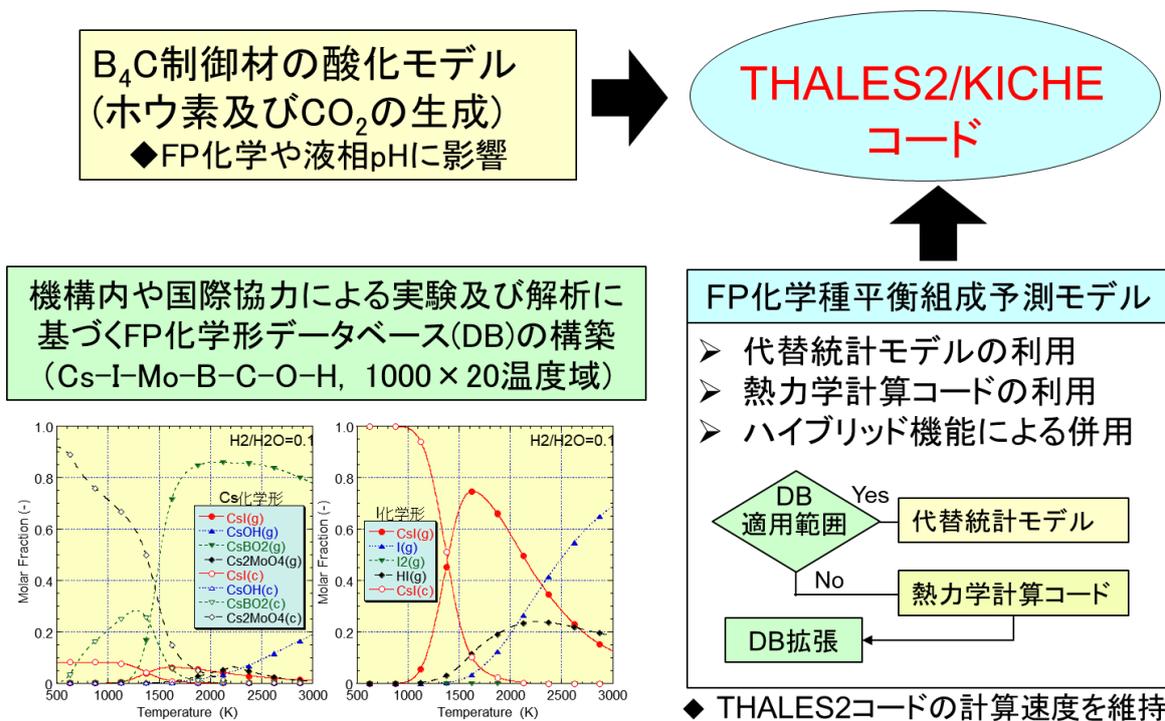


図 1.3 THALES2/KICHE コードの高度化 (原子炉冷却系内 FP 化学解析機能の導入)

## 2. VERDON 実験データの分析

本事業では、照射済み燃料から放出される FP の化学形を同定するとともに、燃料から放出された後の経路における移行挙動を明らかにすることを目的として、フランス原子力・代替エネルギー庁（CEA）がカダラッシュ研究所に設置した、放射性物質放出・移行再現実験装置 VERDON を用いた加熱実験及び試料分析を実施した。

同装置は、燃料を設置する高周波誘導加熱炉より下流の装置構成を変更することで、燃料からの放射性物質放出若しくは放出された放射性物質の移行挙動に特化した実験を実施可能である。放射性物質の移行挙動に着目した際の装置構成は、燃料熔融温度まで加熱可能な高周波誘導加熱炉、973～423 K で線形的な温度勾配を付けた（複数系統の）温度勾配管、エアロゾルフィルタ、気体状ヨウ素を捕集する May-pack フィルタ、放射性物質や B 蒸気種を捕集するコンデンサー、気体状の Ru 酸化物を捕集する P4VP フィルタ、放射性物質ガスを測定するためのガスクロマトグラフィ装置である。移行挙動データ取得用の VERDON 体系において特徴的な複数系統の温度勾配管は、各実験条件（シーケンス）で切り替えそれぞれの温度勾配管での放射性物質分布を比較することで、各実験条件の放射性物質挙動に与える影響の推定を可能にしている。オンラインで測定可能なデータは、加熱炉の燃料装荷部、エアロゾルフィルタ及び May-pack フィルタ部位に配置している  $\gamma$  線スペクトロメーターによる  $\gamma$  線放出核種の放出速度、エアロゾルの沈着・再蒸発速度及び気体状ヨウ素の生成量である。また、実験後に温度勾配管を含む各部位の  $\gamma$  線スペクトル測定を行うことにより、 $\gamma$  線放出核種量及びその分布を取得している。

これまでに、温度勾配管を有する移行挙動データ取得用構成の同装置によるホウ素含有条件の VERDON-5 実験を CEA、放射線防護・原子力安全研究所（IRSN）、フランス電力公社（EDF）及び ENGIE 社の多機関と共同で実施し、ホウ素存在下での燃料から放出される各放射性物質の移行挙動に係るデータを取得した。さらに、ホウ素非含有条件かつその他の実験条件が VERDON-5 実験と類似する既往実験 VERDON-2 のデータを取得し、両実験の結果を比較することで放射性物質移行挙動に対するホウ素の影響を推定している。ここで VERDON-2 実験は、国際ソースタームプログラム（ISTP: International Source Term Program）の枠組みにおいて 2012 年 6 月に実施されたものであり、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わるデータベースを拡充・改良することを目的としたものである。

加熱実験に供した燃料試料は、VERDON-2 実験で燃焼度 60 GWd/t の被覆管付き MOX 燃料、VERDON-5 実験で燃焼度 70 GWd/t の  $\text{UO}_2$  燃料であり、燃料内に短半減期放射性物質を生成させるために、加熱実験直前に研究炉 OSIRIS において短期間の再照射を実施した。高周波誘導加熱炉に設置した燃料から放出された放射性物質ガスは、キャリアガスに混合されて移行し、温度勾配管の入口直前で 2 系統に分岐し、常時 2 系統の温度勾配管へと流れ込む。温度勾配管は 4 本設置し、各 phase で 2 本ずつ放射性物質が流入するよう、切り替えて使用した。phase-1 ～ phase-3 の水蒸気条件において系統 1 及び系統 2、phase-4 の空気条件では系統 2 及び系統 3 を使用した。したがって、温度勾配管の各系統の条件変化は以下となる。

- 系統1：水蒸気条件（ホウ素蒸気含有）
- 系統2：水蒸気条件（ホウ素蒸気含有）→空気条件
- 系統3：空気条件

なお、VERDON-2 及び VERDON-5 の実験過程における相違点は、phase-2 の水蒸気条件におけるホウ素蒸気の有無である。ホウ素蒸気はホウ酸溶液を蒸発させて生成した。

平成 31 年度事業では、VERDON-2 及び VERDON-5 実験における FP 化学形を同定するために、温度勾配管中の沈着物に対する X 線回折測定及びラマン分光計測を新たに実施することで、沈着物等の化学形に係るデータを拡充した。さらに、VERDON-5 実験に関する VICTORIA 解析を実施し、解析的に予測される化学挙動を調査した。

## 2.1 VERDON 実験後試料分析データの入手

原子力機構と CEA 間の二者協定 JAEA-CEA/DEN4689 の枠組みにおいて、VERDON-2 及び VERDON-5[2.1.1-2]の温度勾配管における沈着物試料について X 線回折測定とラマン分光計測を実施し、化学形に係るデータを取得した[2.1.3-4]。ここで、X 線回折測定とラマン分光計測により、それぞれ沈着物中の結晶構造を有する化学形の情報として結晶構造や分子の化学結合に係るデータを取得することができる。

試料は、FP が付着した温度勾配管を短冊状に切り出して分析に供した。温度勾配管から切り出した短冊の寸法は温度勾配の軸方向に対して約 60 mm であり、沈着量が多い位置の計 8 試料（VERDON-2：4 サンプル、VERDON-5：4 サンプル）を測定対象とした。なお、選定した各温度勾配管範囲を S1~S10 と称し、各対象範囲の主な選定方針を以下に示す。

- 温度勾配管系統1の水蒸気雰囲気中のセシウム沈着物について、VERDON-2 で特徴的な2つの沈着ピーク（S4 及び S5）と VERDON-5 で特徴的な2つの沈着ピーク（S1 及び S3）を選定した。各ピーク重なりはない。
- VERDON-2 実験において水蒸気雰囲気のみ（温度勾配管系統1）で特徴的な2つのヨウ素沈着ピーク（s5 及び s6）とその後の空気雰囲気条件の沈着物の再蒸発により増加したと想定される沈着ピーク（s7）の1つを選定した。試料 s6 と s7 は、温度勾配管位置は同じであり、温度勾配管の系統のみが異なる。
- VERDON-5 実験において水蒸気雰囲気（温度勾配管系統1）で特徴的なヨウ素沈着ピーク（S8）を選定した。

原子力機構—CEA 間のウェブ会合を令和元年 11 月 7 日に行い、取得データに関する説明を CEA から受け、質疑応答を行うとともに、当該試料に対してさらなる分析を実施することで有効な知見を得られる可能性について協議した。

### 2.1.1 X線回折測定

X線回折測定では、ホットセル内に設置された GE inspection Technologis 製 XRD3001 を用いた。共通の測定条件として、Cu の  $K\alpha$  特性 X 線 ( $\lambda=1.5418\text{\AA}$ ) を使用し、管電圧と管電流はそれぞれ 40 kV、40 mA を設定した。また、表面近傍の微量化合物に起因するピークを取得するために、微小角入射 X 線回折法を用いて測定を行った。対象反射と非対称反射測定における測定範囲、測定ステップ及び積算時間は、それぞれ  $2\theta=5\sim 140^\circ$ 、 $5\sim 40^\circ$ 、 $\Delta 2\theta=0.04^\circ$ 、 $0.04^\circ$ 、21 秒、120 秒である。また、得られた回折ピークについて、MATCH! ソフトを用いた結晶相の同定も試みた。相同定の信頼度については、同ソフトの同定時に計算される FoM (figure-of-merit) 値を参照した。

測定の結果、S1～S8 の全ての試料において、高回折角  $2\theta\geq 40$  に温度勾配管の鋼製部材である Inconel-600 に由来する強いピークを得た。構造材由来として確認したピークは、Ni、Fe、 $\text{FeNi}_3$ 、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 、 $\text{Cr}_2\text{FeO}_4$ 、 $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  である。また、低回折角  $2\theta\leq 40$  に VERDON-2 及び VERDON-5 実験で燃料から放出された FP 沈着物由来と思われるピークが得られた。一方で、FP 沈着物由来のピーク強度は非常に弱いため、相同定では比較する対象のデータベース中の  $K\alpha 1$  線のみを用いる等の方法で慎重に調査した。CEA との共同研究契約に基づき研究成果の公開に制限があるため、ここでは、セシウム及びヨウ素に係る主要な同定結果のみを以下にまとめる。今後、化学形を同定するためには、電子線マイクロアナライザー (EPMA) 等による組成分析が必要であると考えられる。

- 試料 S2～S5 において、斜方晶系の空間群  $Pnma$  構造の  $\text{CsIO}_4$  (COD ID : 1521182、図 2.1.1) と類似の構造を有する化合物であると同定された。格子定数は、 $a=5.8630\text{\AA}$ 、 $b=6.0350\text{\AA}$ 、 $c=14.3770\text{\AA}$  である。なお、FoM 値は、0.52～0.62 である。
- 試料 S4、S5 について、斜方晶系の空間群  $Pnma$  構造の  $\text{CsI}$  (COD ID : 9016261、図 2.1.2) と類似の構造を有する化合物であると同定された。格子定数は、 $a=5.8380\text{\AA}$ 、 $b=6.0140\text{\AA}$ 、 $c=14.3640\text{\AA}$  である。なお、FoM 値は、0.52～0.62 である。
- 試料 S1、S2、S6 について、六方晶の空間群  $P63/m$  構造の  $\text{BI}_3$  (COD ID : 4331445、図 2.1.3) と類似の構造を有する化合物であると同定された。格子定数は、 $a=7.0000\text{\AA}$ 、 $c=7.4600\text{\AA}$  である。なお、FoM 値は、0.55～0.62 である。

### 2.1.2 ラマン分光計測

ラマン分光計測では、HORIBA 製顕微レーザーラマン分光装置 LabRAM HR-800 を用いた。使用したレーザーの仕様は、焦点距離 800 mm、最大出力 300mW、波長 532 nm である。またラマン分光計測に際し、可視光による沈着物形状を取得した。点及び面での測定は、各温度勾配管に対して約 30 回実施した。計測の結果、Inconel-600 とは別の化合物に起因するピークが取得されたが、セシウム及びヨウ素に関する化学結合を同定することはできなかった。一方で未同定のピークもあるため、XRD の分析結果と併せた検討が必要である。

#### 参考文献

- [2.1.1] A. Gallais-During et al., “Performance and first results of fission product release and transport provided by the VERDON facility,” *Nucl. Eng. Design*, *277*, 117-123, 2014.
- [2.1.2] A. Gallais-During et al., “Overview of the VERDON-ISTP Program and main insights from the VERDON-2 air ingress test,” *Annals of Nuclear Energy*, *101*, March 2017, 109-117.
- [2.1.3] F. Audubert et al., “VERDON-2 and VERDON-5 TGTM analysis Report n°1,” NT DEC/SA3E/LAMIR/NT/2018-001, CEA.
- [2.1.4] S. Miro and J. Delrieu, “Raman spectroscopy characterization of the tiles from Verdon-2 and Verdon-5 TGTM tests,” DEN/MAR/DE2D/SEVT/NT/2019-38, CEA.
- [2.1.5] <http://crystallography.net/cod/index.php>

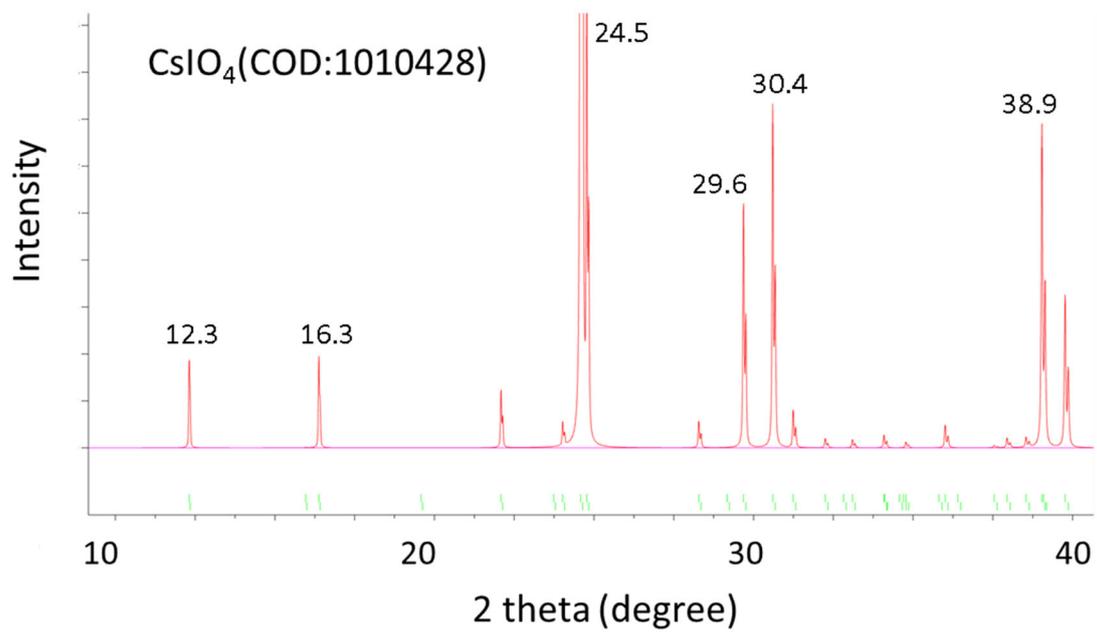


図 2.1.1  $\text{CsIO}_4$  (COD ID : 1010428[2.1.5]) の参照 X 線回折パターン

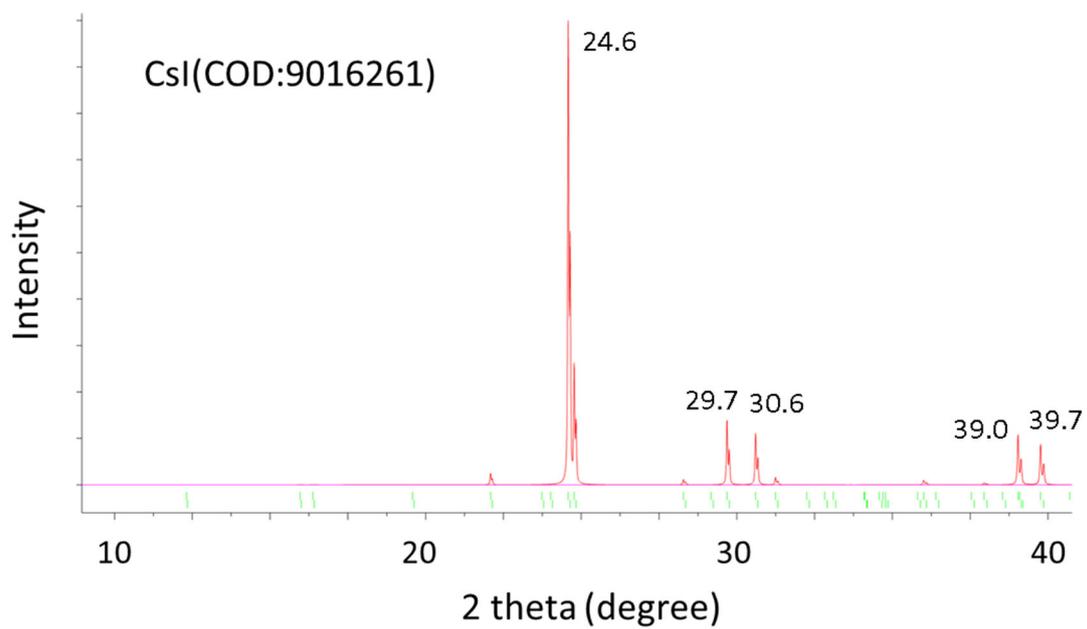


図 2.1.2  $\text{CsI}$  (COD ID : 9016261[2.1.5]) の参照 X 線回折パターン

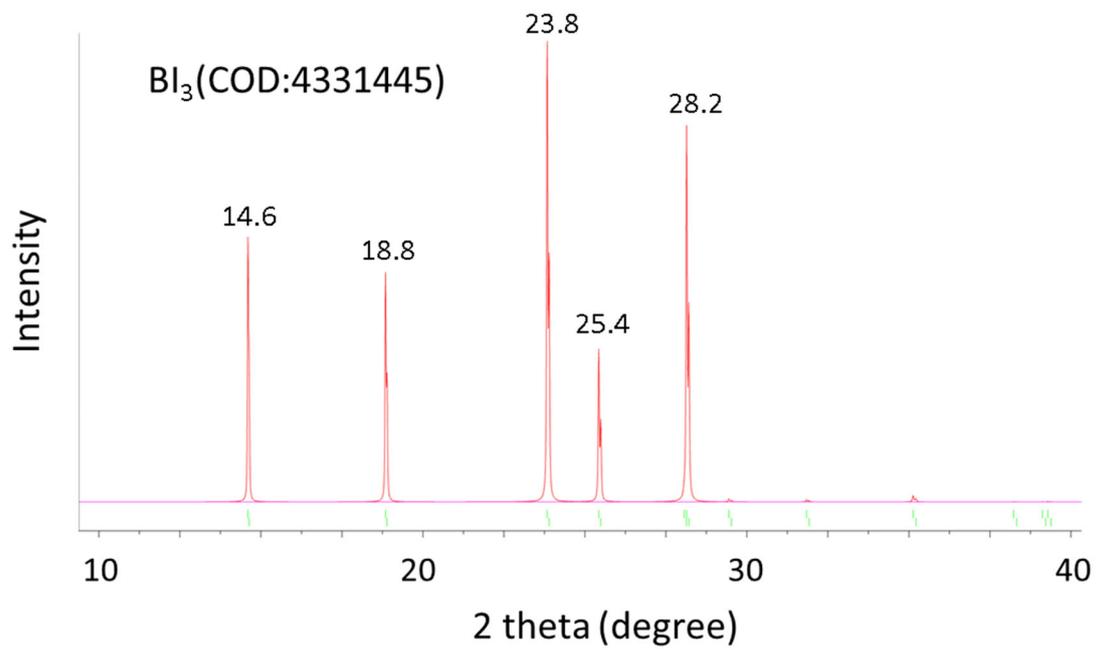


図 2.1.3 BI<sub>3</sub> (COD ID : 4331445[2.1.5]) の参照 X 線回折パターン

## 2.2 VICTORIA コードによる実験データ分析

VERDON-5 実験の最終レポート[2.2.1]に基づき、化学平衡モデルを有する VICTORIA コード[2.2.2]による解析を実施し、VERDON-5 実験における FP 化学挙動を分析した。本事業においては、これまでに VERDON-2 解析[2.2.3]と速報版レポート[2.2.4]に基づく一部の VERDON-5 解析[2.2.5]を実施している。

### 2.2.1 解析条件

VICTORIA 解析で模擬した VERDON 装置の体系を図 2.2.1(a)に示す。上流より加熱炉を 1 分割、700°C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°C加熱ループを鉛直方向とし、温度勾配管を水平方向として設定した。700°C加熱ループでは VICTORIA 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た。なお、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を実施している (図 2.2.1(b))。実験では 700°C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、解析で模擬した温度勾配管は、VICTORIA 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、実装置体系での 2 系統温度勾配管を 1 配管で模擬している。模擬 TGT 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を 1 nm と仮定し、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した。

各構造材温度は、実験データ[2.2.1]を参考に決定した。また、加熱炉での構造材温度は、各実験過程での昇温/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。

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[2.2.1]を参考に決定した。VICTORIA 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 放出速度は入力値として与えている。本解析で対象とする FP は、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) である。また、燃料からの放出時の化学形は、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。

また、上記条件に対して、ホウ素を含まない解析を感度解析として実施した。

## 2.2.2 解析結果

### 2.2.2.1 セシウム

VICTORIA コードを用いた VERDON-5 実験解析で得られた温度勾配管の各系統における Cs 分布を図 2.2.2 に示す。縦軸の”Fraction”は、初期インベントリに対する各セルの質量存在割合を意味する。温度勾配管系統 1 では明瞭な極大値はなく左肩上がり沈着傾向

であるのに対して、系統 2 では約 800 K で沈着物が増加し極大値を持つ分布に変化した。温度勾配管系統 2 での約 800 K における Cs 沈着物の増加は、実験と同様の傾向であり、空気条件で移行した Cs 化学種の挙動を概ね再現していると考えられる。一方で、VERDON-5 実験での温度勾配管系統 1 で特徴的な約 1000K の沈着ピークは再現できていない。これは、温度勾配管の上流に位置する接続ループでの温度の設定とノーディングが適切でなく、接続ループでの沈着量を過大評価しているためだと考えられる。

VERDON-5 実験条件からホウ素を除いた感度解析の結果を図 2.2.3 に示す。ここで、VERDON-5 からホウ素を除いた場合の条件は VERDON-2 実験の条件と類似している。図 2.2.2 と 2.2.3 を比較すると、ホウ素を含まない場合で温度勾配管系統 1 の壁面温度 600 K に沈着ピークが新たに得られた。同様の 600 K での沈着ピークが VERDON-2 実験でも確認されており、本 VERDON 解析では VERDON-5 実験でのホウ素含有条件での移行挙動を再現していると考えられる。

VICTORIA 解析で予測された各温度勾配管における Cs 沈着物の化学形の変化を図 2.2.4 に示す。実験初期 6,000~10,000 秒では 925~822 K における CsBO<sub>2</sub> 沈着が有意であった。10,000 秒以降において Cs は、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> として 925 K 以下の温度で沈着したことが示唆される。なお、925~822 K において既に構造物上に沈着していた CsBO<sub>2</sub> は、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> に変化したものと考えられる。同様の沈着物の化学変化は、空気条件に切り替えた際 (約 17,000 秒) にも見られた。この時の反応は、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> 及び CsI からの Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> への変化であった。ただし、VICTORIA 解析モデルでは固体化学種も即座に平衡になる仮定のため、沈着物の化学変化の速度を過大評価している点に注意が必要である。図 2.2.5 にホウ素を含まない感度解析で予測された各温度勾配管における Cs 沈着物の化学形の変化を示した。ホウ素非含有系で特徴的な約 630 K の Cs 沈着物は、実験初期に放出された CsOH であることがわかる。その他の傾向は、ホウ素含有系と同様であった。

以上より、ホウ素 Cs に対して、燃料放出初期の移行する化学形変化に影響を及ぼすと考えられる。具体的には、ホウ素含有系では蒸気圧の低い CsBO<sub>2</sub> として、非含有系では蒸気圧の高い CsOH として移行すると考えられる。

#### 2.2.2.2 ヨウ素

VICTORIA コードを用いた VERDON-5 実験解析で得られた温度勾配管の各系統における I 分布を図 2.2.6 に示す。温度勾配管系統 1 では、750 K の位置に沈着ピークが得られた。一方で、温度勾配管系統 2 では全ての沈着物が再移行し温度勾配管内での分布が得られなかった。感度解析 (ホウ素なし) の結果も同様である (図 2.2.7)。また、図 2.2.4 に示したように温度勾配管 系統 1 で見られた沈着物の化学種は CsI であった。同じく図 2.2.4 より、温度勾配管系統 2 での沈着物の再移行は、主に CsI から Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> への変化によるものだと考えられる。

以上で得られた分析結果より VERDON-2 及び VERDON-5 実験における Cs 及び I 挙動の概要を図 2.2.8 に整理した。

### 2.3 知見の整理

VERDON 実験から得られた知見は、補完実験から得られた知見と合わせて 3.7 節において整理する。

#### 参考文献

- [2.2.1] S. Bernard et al., “VERDON 5 test: Fission Product Release and Transport from UO<sub>2</sub> fuel under air ingress conditions Final Report,” NT CEA/DEN/DEC/SA3E/LAMIR 18-002, CEA, 2018.
- [2.2.2] 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.
- [2.2.3] 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29 年3 月
- [2.2.4] S. Bernard et al., “Quick Look Report VERDON 5 test: Fission Product Release and Transport from UO<sub>2</sub> fuel under air ingress conditions,” NT CEA/DEN/DEC/SA3E/LAMIR 16-003, CEA, 2016.
- [2.2.5] 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，日本原子力研究開発機構，平成29 年3 月



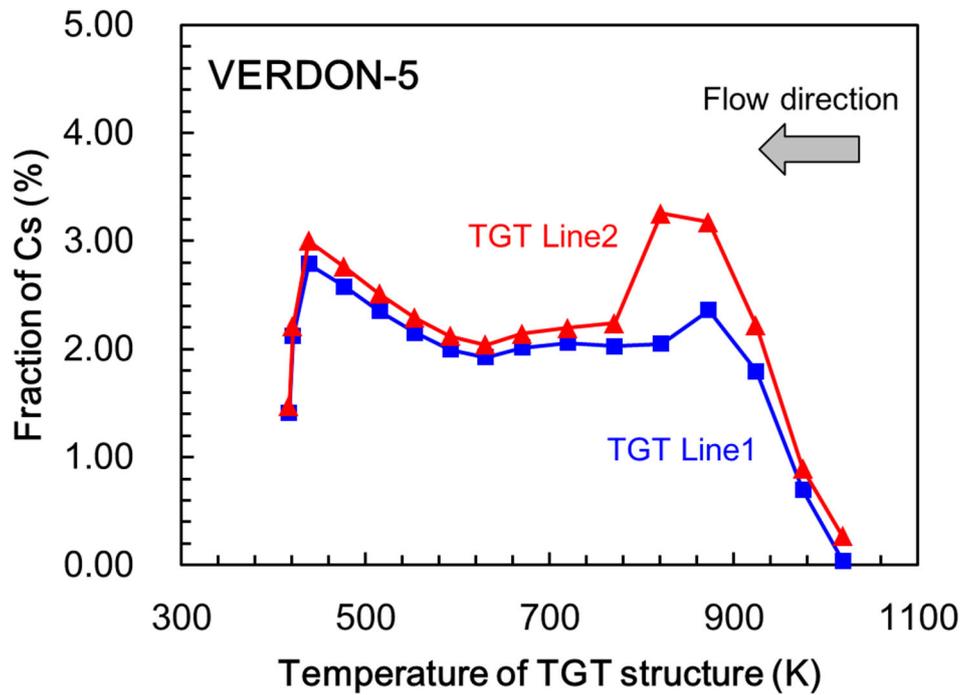


図 2.2.2 VERDON-5 解析における温度勾配管系統 1 及び 2 の Cs 分布

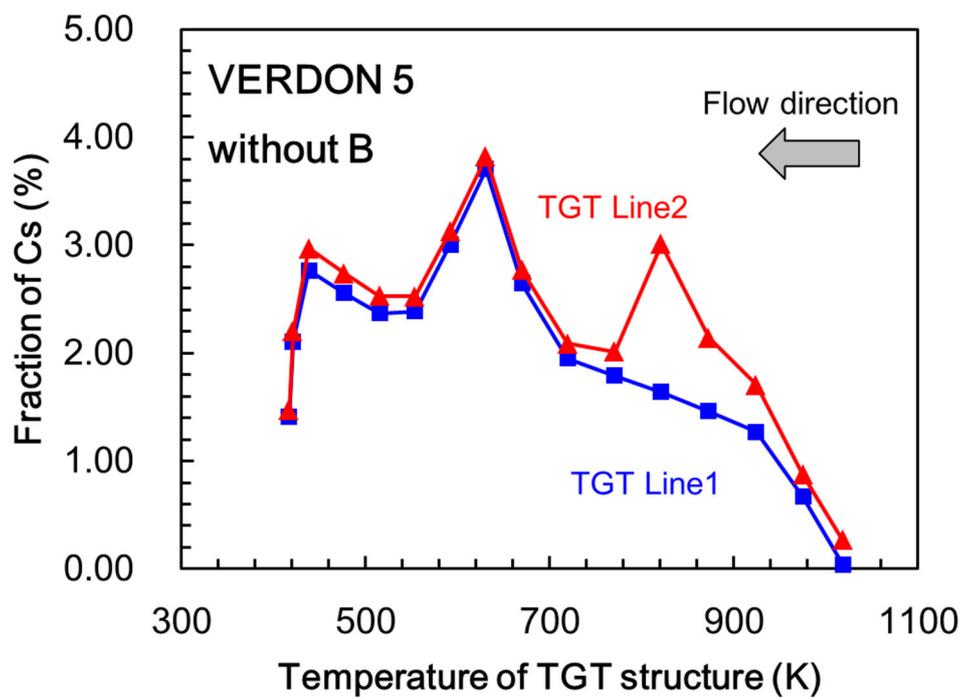


図 2.2.3 感度解析(B なし)における温度勾配管系統 1 及び 2 の Cs 分布

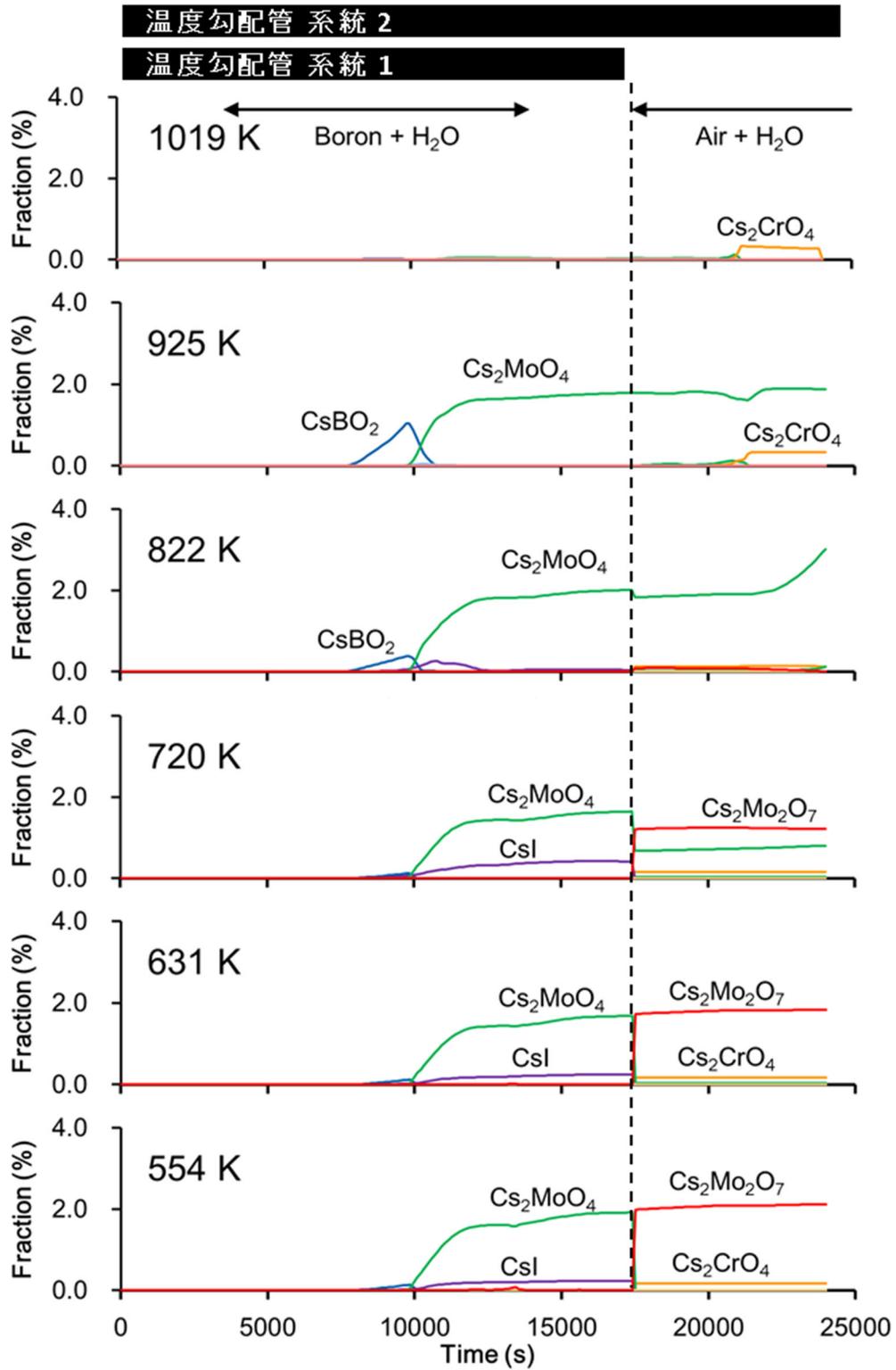


図 2.2.4 VERDON-5 解析における温度勾配管の Cs 沈着物の経時変化

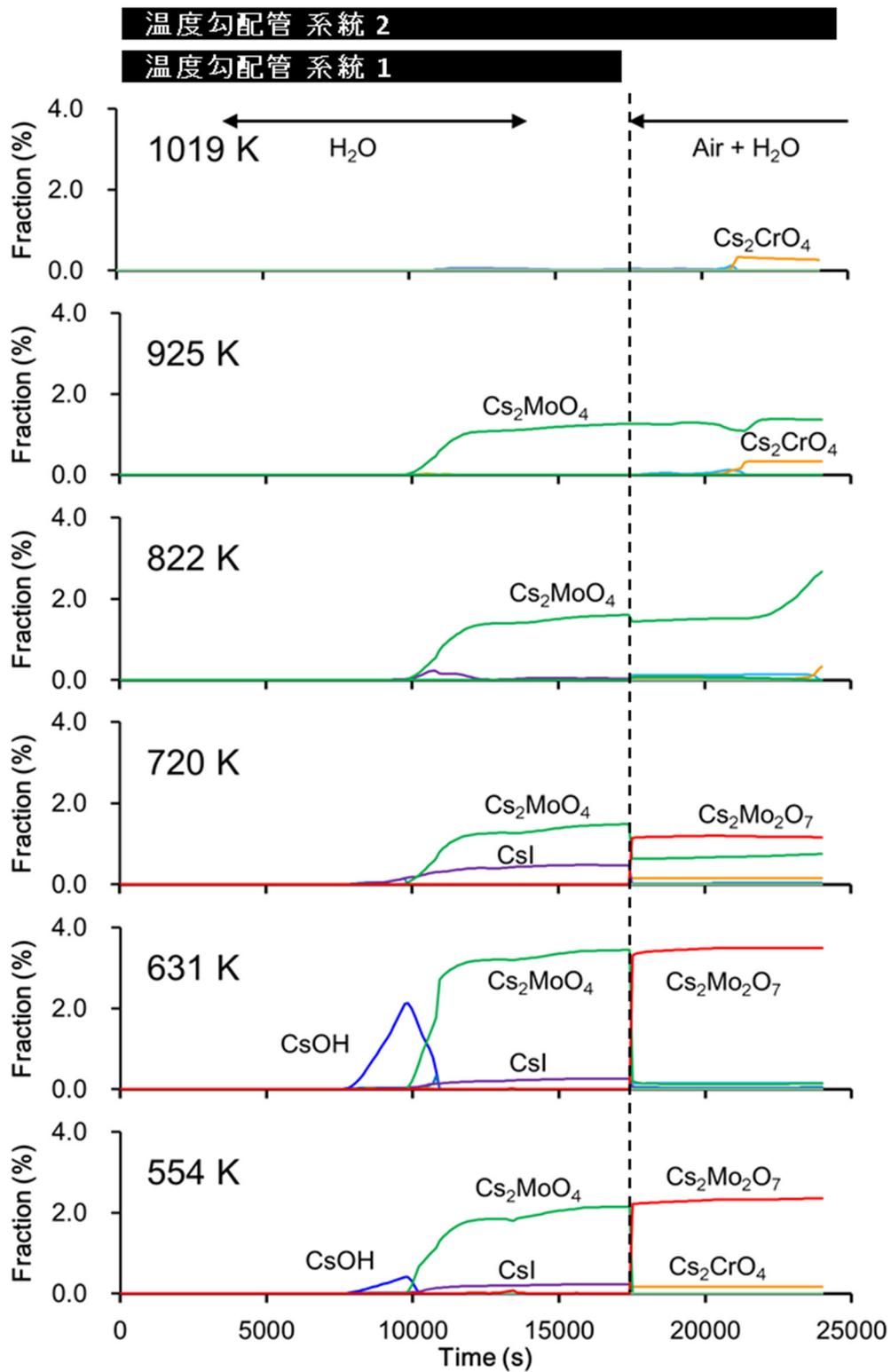


図 2.2.5 感度解析(B なし)における温度勾配管の Cs 沈着物の経時変化

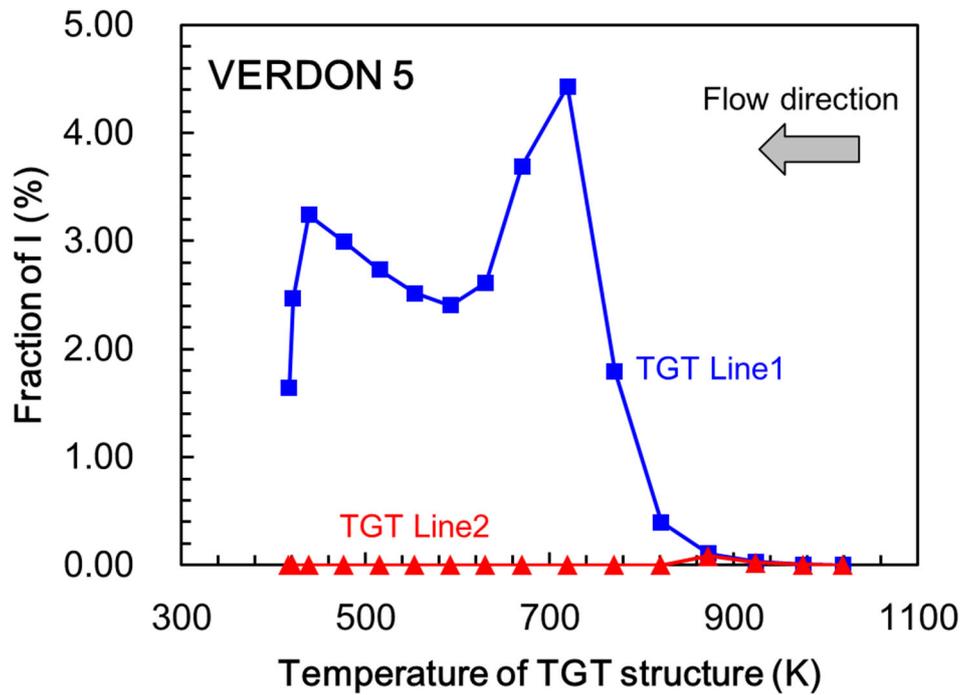


図 2.2.6 VERDON-5 解析における温度勾配管系統 1 及び 2 の I 分布

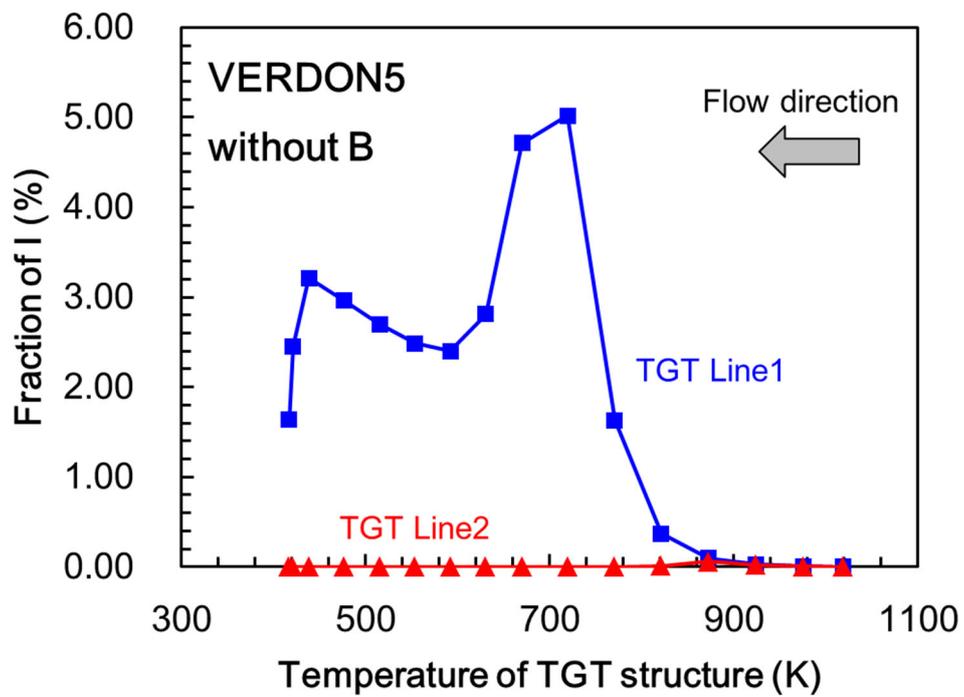


図 2.2.7 感度解析(Bなし)における温度勾配管系統 1 及び 2 の I 分布

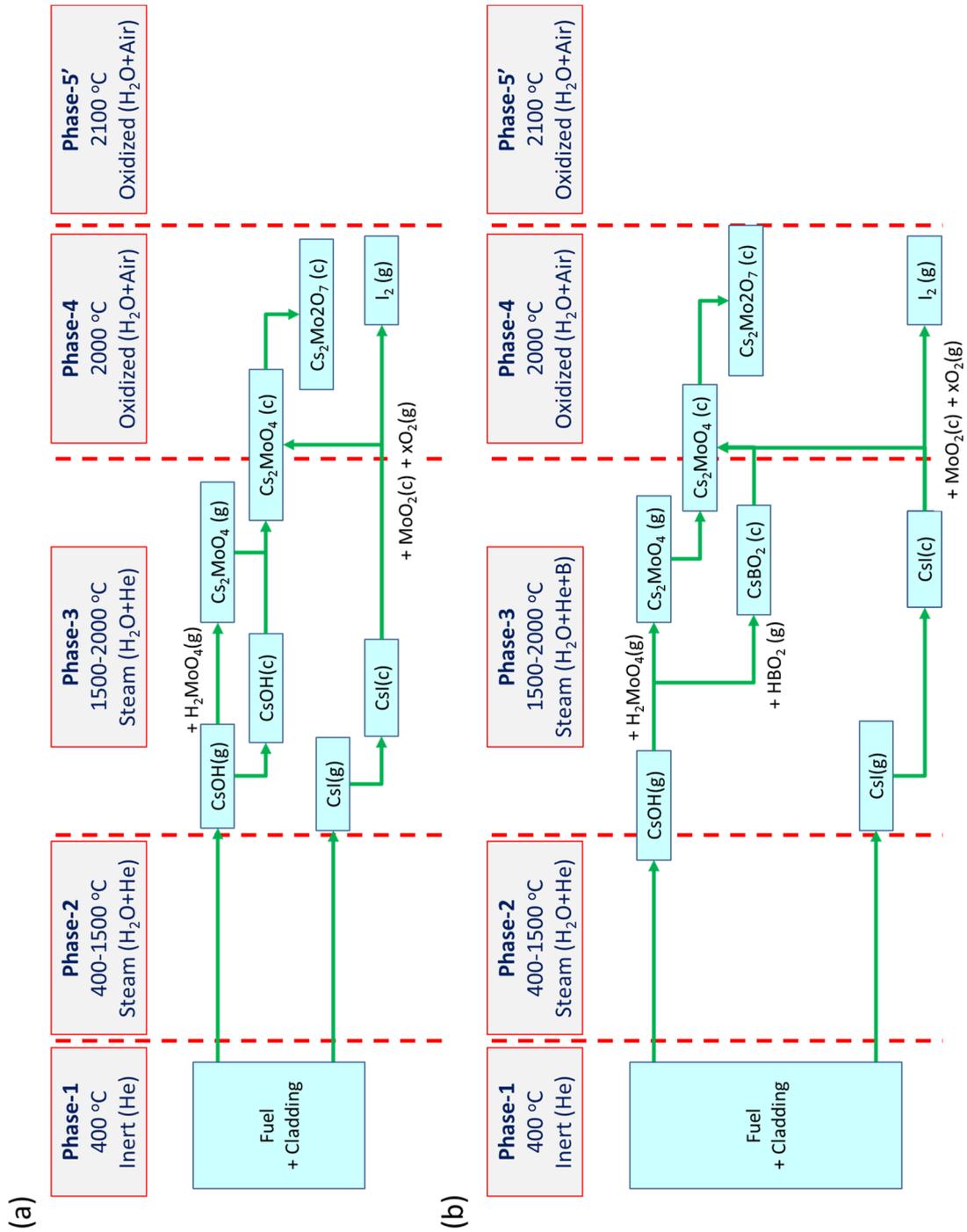


図 2.2.8 VICTORIA コードで分析した VERDON-2(a)及び VERDON-5(b)実験での Cs/I 挙動

### 3. VERDON 実験データを補完する基礎実験

#### 3.1 目的

VERDON 実験データを補完し、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。

実験には、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）及び FP 放出移行挙動再現装置（TeRRa : Test bench for FP Release and tRansport）を用いる。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[3.1]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、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に付着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することで、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。着目した雰囲気条件や想定する高温化学反応は以下の通りである。

- ・ 水素雰囲気中の気相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：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置を使用（3.3 項）
- ・ 水蒸気雰囲気中の気相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：FP 放出移行挙動再現装置（TeRRa）を使用（3.4 項）
- ・ 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：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置（3.5 項）

水素雰囲気中の気相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関しては、平成 30 年度に実施した雰囲気ガス流量を変化させた加熱実験において得られた試料の化学分析等を行うことにより、揮発性ヨウ素化合物の生成に係る速度論的なデータを取得する。また、水蒸気雰囲気中の気相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関しては、平成 30 年度と同様に雰囲気ガス流量を変化させるとともにセシウムに対するホウ素量を変化させて加熱実験を行うことにより、揮発性のヨウ素化合物の生成に与えるホウ素の影響に係るデータを取得する。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関しては、平成 30 年度に実施したホウ素単独での加熱実験において得られた試料の化学分析を行うことにより、揮発性のヨウ素化合物の生成に与えるホウ素の影響に係るデータを取得する。

#### 3.2 実験装置

##### 3.2.1 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 3.1 及び図 3.2 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<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。

### 3.2.2 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 3.3 及び図 3.4 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  $\mu\text{m}$ ）、PTFE メンブレンフィルタ（0.3  $\mu\text{m}$ ）によりエアロゾル粒子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。

## 3.3 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）

### 3.3.1 実験条件

平成 30 年度に実施した加熱実験には、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 3.5 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 3.1 及び図 3.6 にそれぞれ加熱条件及び加熱体系を示す。また、図 3.7 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ぼ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）で流量が異なる水素含有アルゴン（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に沈着させた。これまで、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。

今年度は、重量測定したサンプリング管を二等分に輪切りし、一方は焼結金属フィルタ、下流側の配管内、メンブレンフィルタに沈着した試料やガス捕集液とともに ICP-MS 分析に供し、沈着物中に含まれる元素量を定量した。もう一方のサンプリング管は鉛直方向に二

等分に縦割りし、それぞれ X 線回折測定及びラマン分光計測に供することにより、結晶構造や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（アジレントテクノロジー社製 7900 ICP-MS）では、Cs-133、I-127、B-10 及び B-11 を対象とした。SS 製サンプリング管等に沈着した Cs、I、B 化合物を溶解させるため、サンプリング管等をテフロン製ビーカーに入れ、0.04 mol/L 水酸化ナトリウム溶液を 20 ml 添加後、24 時間室温で静置した。沈着物の溶解後、50 ml 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。なお、本装置を用いた Cs-133、I-127、B-10 及び B-11 測定の定量下限値はそれぞれ 0.02 µg、0.83 µg、0.89 µg 及び 0.63 µg であり、変動係数 CV 値は、それぞれ 3.2%、4.0%、6.0% 及び 6.3% であった。

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 30 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。

### 3.3.2 実験結果

#### (1) 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

水素含有アルゴンガスフロー流量を 0.5 L/min、0.25 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、焼結金属フィルタ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 3.8、図 3.9 及び図 3.10、図 3.11 に示す。サンプリング管への沈着物については、0.5 L/min の場合の方が、0.25 L/min の場合よりもセシウム、ヨウ素、ホウ素の各元素量は高い値を示した。一方で、セシウム、ヨウ素の元素量の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。ホウ素の元素量については、低温側ほど増加した。各沈着物中におけるセシウムとヨウ素の元素量はほぼ同じであった。また、フィルタへの沈着物については、セシウム、ヨウ素は 0.5 L/min の場合の方が 0.25 L/min の場合よりも高い値を示す一方で、ホウ素は 0.25 L/min の場合の方が高い値を示した。メッシュサイズ 43 µm のフィルタでセシウムの元素量に比べヨウ素の元素量が有意に減少した。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装荷量に対する各領域への沈着物の割合を表 3.2 に示す。平成 29 年度に実施した 1 L/min における実験結果も合わせて示す。ヨウ素に関しては有意量がフィルタを通過して配管内・ガス捕集瓶で捕集されており、揮発性の高いヨウ素化合物が生成したことが分かった。さらに、1 L/min の結果と比較すると、流量が低くなることで、配管内のヨウ素の割合は増加し、最下流に設置されたガス捕集瓶で捕集されたヨウ素の割合は低くなった。

#### (2) サンプリング管、焼結金属フィルタ等への付着物の結晶構造及び分子構造

水素含有アルゴンガスフロー流量を 0.5 L/min、0.25 L/min とした CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験において、X 線回折測定により得られたサンプリング管の沈着物の X 線回折ピークをそれぞれ図 3.12 及び図 3.13 に示す。0.5 L/min 及び 0.25 L/min の場合において、ともにサンプリング管材料である SS に起因するピークの外、841 K 以下においてヨウ化セシウムに起因するピークのみが得られており、それ以外のピークは見られなかった。

水素含有アルゴンガスフロー流量を 0.5 L/min、0.25 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それぞれ図 3.14 及び図 3.15 に示す。0.5 L/min 及び 0.25 L/min の場合において、ともにヨウ化セシウムに起因するピーク、酸化クロム ( $\text{Cr}_2\text{O}_3$ )、クロマイト ( $\text{FeCr}_2\text{O}_4$ ) 等、SS の酸化やホウ素化合物に起因すると考えられるピークが得られた。それ以外のピークに関しては同定には至らなかった。

### (3) 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素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し、エアロゾル粒子状のセシウム化合物と揮発性の高いヨウ素化合物が生成することが分かった。しかしながら、サンプリング管及びフィルタへの沈着物において、ヨウ化セシウム以外の化学形の同定には至らなかった。

流量による変化としては、表 3.2 より揮発性の高いヨウ素化合物の割合、特に最下流に設置されたガス捕集瓶に捕集されるヨウ素の割合は、流量が低くなることで低くなり、反応時間が長くなることで揮発性の低いヨウ素化合物に変化した可能性が考えられる。

## 3.4 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)

### 3.4.1 実験条件

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 3.3 及び図 3.16 にそれぞれ加熱条件及び加熱体系を示す。また、図 3.17 に加熱温度履歴を示す。ヨウ化セシウム粉末約 1.0 g 及び酸化ホウ素粉末約 0.5 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 の位置に白金製のつぼに入れて装荷した。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アルゴン (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に沈着させた。加熱後、白金製のつぼ、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。また、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。さらに、サンプリング管中に設置したカーボン (約 10 mm<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 (アジレントテクノロジー社製 7900 ICP-MS) 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。3.3.1 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、24 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 もしくは JSM-IT100) 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。

### 3.4.2 実験結果

#### (1) 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 の水蒸気を含むアルゴン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 3.18、図 3.19 及び図 3.20 に示す。サンプリング管の沈着物等による重量変化は、1000 K 以上 (< 0 mm) では流量が低くなるに伴って大きくなった。1000 K 以下 (> 0 mm) の重量変化ピーク位置は、700 ~ 900 K (250 ~ 650 mm) 付近で高く、流量が低くなるに伴って高温側にシフトする一方で、重量変化量において流量による変化は見られなかった。焼結金属フィルタの重量変化は、流量が低くなるに伴って小さくなる傾向を示した。

#### (2) 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 の水蒸気を含むアルゴン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 3.21、図 3.22 及び図 3.23 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、サンプリング管及び焼結金属フィルタにおいてほとんど沈着していなかった。上記の(1)で観察されたサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化とセシウム、ヨウ素の元素量の傾向は良く一致した。また、1000 K 以上の重量増加についてはセシウム、ヨウ素、ホウ素の元素が検出されていないこと、また(3)の X 線回折測定結果にてこれらを含む化合物が検出されていないことから、SS の酸化に起因するものであると考えられる。

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 3.4 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近傍において沈着が見られた。一方、焼結金属フィルタを通過して下流まで移行するものもあり、1 L/min で高い値を示した。ヨウ素に関しては、酸化ホウ素用のろつぼで沈着が見られない一方で、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しており、その量はセシウムよりも高い傾向を示した。平成 30 年度では、配管内において約 0.16 ~ 0.21 の高い割合でヨウ素が沈着しており、今年度の結果における 0.03 ~ 0.15 の割合から、この揮発性のヨウ素化合物の生成は少なかったものと考えられる。

### (3) 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の水蒸気を含むアルゴン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 3.24、図 3.25 及び図 3.26 に示す。1230 K においては、各流量にて局所的に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 ~ 数 10 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、流量が低下するに従い、粒径が大きくなった (2 L/min: ~1 µm、0.5 L/min: 1 ~ 4 µm)。1230 K においては、平成 30 年度にも観察されたホウ素化合物の高温での化学反応の様相を示しているものと考えられる。800 K においては、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、400 K においては、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 3.27、図 3.28 及び図 3.29 に示す。サンプリング管材料である SS に起因するピークの外、1230 K では 1 L/min 及び 0.5 L/min で酸化鉄 (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) に起因するピークが得られた。800 K 以下においては、ヨウ化セシウムに起因するピークが得られた。

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 3.30、図 3.31 及び図 3.32 に示す。ヨウ化セシウムに起因するピークの外、酸化クロム (Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、クロマイト (FeCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) 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、一部でホウ酸に起因すると考えられるピークが得られた。

### (4) 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

平成 30 年度は、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、これ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することを示した結果が得られた。また、ホウ素が高温にて SS と有意に反応する結果が得られた。しかしながら、今年度はそのような結果は得られなかった。理由としては、蒸発したホウ素の量が非常に少なく、それに伴い、セシウムに対するホウ素の割合が低くなった (2 L/min で平成 30 年度: 1.3、今年度: 0.7) ため、セシウムとホウ素の反応が有意に起こらなかった可能性が考えられる。このことは、ホウ素濃度が低い場合に、ホウ素による揮発性のヨウ素化合物の生成は抑制される可能性を示している。

## 3.5 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)

### 3.5.1 実験条件

平成 30 年に実施した加熱実験では、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 3.5、図 3.33 及び図 3.34 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と同じ条件にて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（ $B_2O_3$  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を取得する加熱実験である。

平成 30 年度に実施した加熱実験においては、先ずタングステン製る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）で水素含有アルゴン（Ar+4% $H_2$ ）ガスフロー（1 L/min）雰囲気下で加熱した。加熱後、タングステン製るつぼ、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グステン製るつぼに入れ、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水素含有アルゴンガスフロー（1 L/min）雰囲気とした。これまで、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。

今年度は、重量測定したサンプリング管を二等分に輪切りし、一方を焼結金属フィルタ、下流側の配管内、メンブレンフィルタに沈着した試料やガス捕集液とともに ICP-MS 分析に供し、沈着物中に含まれる元素量を定量した。

ICP-MS 分析（アジレントテクノロジー社製 7900 ICP-MS）では、Cs-133、I-127、B-10 及び B-11 を対象とした。SS 製サンプリング管等に沈着した Cs、I、B 化合物を溶解させるため、サンプリング管等をテフロン製ビーカーに入れ、0.04 mol/L 水酸化ナトリウム溶液を 20 ml 添加後、24 時間室温で静置した。沈着物の溶解後、50 ml 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。なお、本装置を用いた Cs-133、I-127、B-10 及び B-11 測定の定量下限値はそれぞれ 0.02  $\mu\text{g}$ 、0.83  $\mu\text{g}$ 、0.89  $\mu\text{g}$  及び 0.63  $\mu\text{g}$  であり、変動係数 CV 値は、それぞれ 3.2%、4.0%、6.0%及び 6.3%であった。

### 3.5.2 実験結果

#### (1) 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

ICP-MS 分析により取得した  $B_2O_3$  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 3.35 及び図 3.36 に示す。サンプリング管への沈着物については、ホウ素の元素量は温度低下に従い、高くなった。焼結金属フィルタへの沈着物については、公称ろ過精度 43  $\mu\text{m}$  において最も多くなった。

(2) 水素雰囲気での固相：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のまとめ

平成 29 年度までの結果において、ヨウ化セシウム沈着物と酸化ホウ素蒸気種が水素雰囲気にて固相間での反応を起こすことにより、ヨウ化セシウムは異なる化学形に変化する可能性があることが分かった。今年度の実験結果において、サンプリング管及び金属焼結フィルタへの沈着量は少ないものの、サンプリング管及び金属焼結フィルタにおけるホウ素の沈着履歴は平成 29 年度と同様であった。このことは、ヨウ化セシウム沈着物との固相間の反応において、ホウ素の沈着に与える影響が無かったことを示している。

### 3.6 まとめ

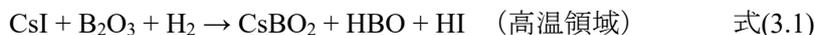
VERDON 実験データを補完し、シビアアクシデント解析コードに組み込まれる物理モデルの構築や改良に必要な基礎データを取得するため、シビアアクシデント時の原子炉冷却系までの温度範囲を再現した AGF/FP 移行挙動模擬試験装置及び FP 放出移行挙動再現装置 (TeRRa) を用いて、下記の高温化学反応に着目した加熱実験を行い、温度勾配管中のサンプリング管、焼結金属フィルタ等で捕集した反応生成物の化学分析、X 線回折、ラマン分光計測等を行うことで、化合物の化学形や結晶構造等に関する基礎データを取得した。

- ・ 水素雰囲気で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)
- ・ 水蒸気雰囲気で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)
- ・ 水素雰囲気での固相：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)

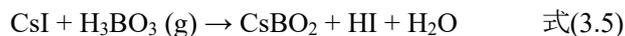
水素雰囲気での気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応に関しては、平成 30 年度に実施した雰囲気ガス流量を変化させた加熱実験において得られた試料の化学分析等を行うことにより、揮発性ヨウ素化合物の生成に係る速度論的なデータを取得する。また、水蒸気雰囲気での気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応に関しては、平成 30 年度と同様に雰囲気ガス流量を変化させるとともにセシウムに対するホウ素量を変化させて加熱実験を行うことにより、揮発性のヨウ素化合物の生成に与えるホウ素の影響に係るデータを取得する。水素雰囲気での固相：ヨウ化セシウム沈着物-気相：酸化ホウ素蒸気種間における高温化学反応に関しては、平成 30 年度に実施したホウ素単独での加熱実験において得られた試料の化学分析を行うことにより、揮発性のヨウ素化合物の生成に与えるホウ素の影響に係るデータを取得する。

水素雰囲気で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関しては、水素雰囲気においても、ヨウ化セシウム蒸気種とホウ素蒸気種の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、雰囲気ガス流量によりヨウ素の移行挙動が異なる可能性が示された。水素雰囲気における化学反応については今まで提唱されたものはないが、例えば、以下の式(3.1)～式(3.3)のような反応が生じた可能性が考えられる。この場合、雰囲気ガス流量が低い、すなわち反応時間が長い場合に、式(3.3)の反応が

進むことで、より揮発性であるヨウ化水素量が多くなる。これは、雰囲気ガス流量が低い今年度の加熱実験において最下流のガス捕集瓶で捕集したヨウ素割合が低くなったことを説明できる。このことは、セシウム、ヨウ素の移行挙動に関して速度論的な評価が必要である可能性を示している。



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関しては、従来、水蒸気雰囲気において、以下で示される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[3.1 – 3.3]により揮発性のヨウ素化合物が生成する可能性が示されていた。しかしながら、今回の結果から、ホウ素濃度が低い場合においては、揮発性のヨウ素化合物の有意な生成は見られないことが分かった。このことは、セシウムに対してホウ素濃度が低い条件において、揮発性のヨウ素化合物の生成は抑制される可能性を示している。



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関しては、ヨウ化セシウム沈着物と酸化ホウ素蒸気種が固気間での反応を起こすことにより、ヨウ化セシウムが異なる化学形に変化する可能性があることが示されていたが、ホウ素の沈着に与える影響が無いことが分かった。このことは、固気反応により生成するホウ素化合物の挙動が、酸化ホウ素蒸気種と大きく変わらない可能性を示している。

### 3.7 VERDON 及び補完実験で得られた知見の整理

平成 27 年度から平成 30 年度の事業[3.4-3.7]並びに平成 31 年度事業の VERDON のデータ分析 (2.1~2.2 節) 及び高温化学実験 (3.1~3.6 節) を通じて、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揮発性ヨウ素化合物の生成等、化学的特性を含めた FP の放出・移行に係る技術的知見を取得した。これらの知見を以下の通り整理した。

#### 3.7.1 VERDON 実験

CEA との研究協力で取得したデータ (VERDON-5 実験データ並びに VERDON-2 及び-5 実験試料の分析データ) を公開情報である VERDON-2 実験結果[3.8-3.9]と対比し、ホウ素の影響に関する主な結果をまとめた。

- 水蒸気雰囲気でのセシウム化学形に対するホウ素の影響  
温度勾配管系統 1 のセシウム沈着分布について、ホウ素蒸気含有の VERDON-5 は VERDON-2 に比べて高温領域での沈着量が増加した。VERDON-5 ではホウ素の影響によって、高温領域において VERDON-2 に比べて飽和蒸気圧の低いセシウム化学種が生成した可能性がある。VICTORIA コードによる分析から、ホウ素蒸気含有の VERDON-5 条件では燃料からの FP 放出初期に低い蒸気圧のホウ酸セシウム ( $\text{CsBO}_2$ ) として移行するのに対し、ホウ素蒸気非含有の VERDON-2 条件では高い蒸気圧の水酸化セシウム ( $\text{CsOH}$ ) として移行したと考えられる。
- セシウム沈着物の空気雰囲気下での再移行に対するホウ素の影響  
ホウ素蒸気含有の VERDON-5 において、水蒸気雰囲気の温度勾配管系統 1 と、途中から空気雰囲気にした系統 2 のセシウム沈着分布を比較すると、系統 2 の沈着量が減少しており、空気雰囲気に変化することにより再移行することが確認された。一方、ホウ素蒸気非含有の VERDON-2 では系統 1 と 2 のセシウム沈着分布に大きな違いは無く、再移行は確認されていない。これより、ホウ素を含有すると考えられる沈着物中のセシウム化学種は、空気雰囲気に変化することにより揮発性の化学種に変化した可能性が考えられる。
- 水蒸気雰囲気でのヨウ素化学形に対するホウ素の影響  
温度勾配管系統 1 のヨウ素沈着分布について、VERDON-2 と VERDON-5 を比較すると、どちらも中温領域に沈着の極大ピークが得られた。ただし、この沈着量のピークは温度ピーク位置とは若干のズレが見られた。沈着物の分析により、ヨウ化セシウム ( $\text{CsI}$ )、過ヨウ素酸セシウム ( $\text{CsIO}_4$ )、三ヨウ化ホウ素 ( $\text{BI}_3$ ) の結晶構造を有する化合物が含まれる可能性が示された。一方で沈着物が微量であるため、分析結果の信頼性を向上させるために、電子線マイクロアナリシス (EPMA)、質量分析 (ICP-MS) 等による組成分析の実施が望まれる。
- ヨウ素沈着物の空気雰囲気下での再移行に対するホウ素の影響  
温度勾配管系統 2 の結果から、沈着物中のヨウ素化学種は、ホウ素有無によらず空気雰囲気に変化することにより、再移行しやすい化学種に変化すると予想される。VICTORIA コードによる分析によると、ヨウ化セシウムからの二モリブデン酸セシウ

ム ( $\text{Cs}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ ) への化学反応に伴い分子状ヨウ素 ( $\text{I}_2$ ) として移行した可能性が考えられる。

### 3.7.2 TeRRa 装置及び AGF 装置を用いた高温化学実験

- 不活性雰囲気におけるセシウム、ヨウ素、ホウ素の気相反応  
AGF ホット試験装置を用いた不活性雰囲気中の気相におけるセシウム、ヨウ素、ホウ素の高温化学反応に着目した加熱実験において、VERDON-5 実験における水蒸気雰囲気のみならず不活性雰囲気でもホウ素蒸気種との化学反応により高温領域でセシウム化合物が沈着することが確認された。
- 水蒸気雰囲気におけるセシウム、ヨウ素、ホウ素の気相反応  
TeRRa を用いた水蒸気雰囲気中の気相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において、ホウ素蒸気種との化学反応により高温領域でセシウム化合物が沈着することが確認されており、同水蒸気雰囲気でも実施された VERDON-5 実験結果を再現するものである。さらに、同化学反応により、ヨウ素はより揮発性の高いヨウ素化合物として低温領域まで移行していく可能性が示された。VICTORIA コードによる分析の結果、高温領域でホウ酸セシウムと共に生成した分子状ヨウ素が下流まで移行した可能性が考えられる。また、流量を変化させた加熱実験により、特に低温領域まで移行するヨウ素の形態が流量により変化する傾向が示され、評価において化学反応速度論の適用が必要である可能性を示した。
- 水素雰囲気におけるセシウム、ヨウ素、ホウ素の気相反応  
また、AGF コールド試験装置を用いた水素雰囲気中の気相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において、ホウ素蒸気種との化学反応による揮発性ヨウ素化合物の生成は、水蒸気雰囲気のみならず水素雰囲気でも生じることが示された。また、流量を変化させた加熱実験により、水蒸気雰囲気と同様にヨウ素の形態が流量により変化する傾向が示され、評価において化学反応速度論の適用が必要である可能性を示した。
- セシウム、ヨウ素、ホウ素の固気反応  
AGF コールド試験装置を用いた固相（ヨウ化セシウム沈着物）と気相（酸化ホウ素蒸気種）間における高温化学反応に着目した実験により、一旦沈着したセシウム、ヨウ素化合物とホウ素蒸気種間の反応によりセシウム、ヨウ素化合物の化学形が変化する可能性が示された。

### 3.7.3 まとめ

上記の取得したデータにより、モデル構築に資する実験的データベースを拡張した。

ホウ素によるセシウムやヨウ素等の化学挙動に対する影響に関して、高温領域における気相中のホウ素とセシウムの化学反応による低い蒸気圧の化合物の生成は、雰囲気条件（水蒸気、不活性、水素雰囲気）に依らず起こり得ることが示唆された。また、この反応により、揮発性ヨウ素の有意な生成が生じる可能性が示され、この評価において化学反応

速度論の適用が必要である可能性を示した。以上のことから、ホウ素は、事故時で想定される各雰囲気条件においてセシウム、ヨウ素の化学種を変化させることが示された。

また、一旦沈着したセシウムやヨウ素等の沈着物に対して、雰囲気変化（水蒸気雰囲気から空気変化）や蒸気種的作用（ホウ素蒸気種との反応）により、セシウムやヨウ素の再移行が有意に生じることが示された。これらは多様な事故シーケンスにおけるソースターム評価において重要な挙動であり、さらに事故晩期以降でのソースターム評価においても考慮が必要になる挙動であると考えられる。

#### 参考文献

- [3.1] K. Minato, “Thermodynamic analysis of cesium and iodine behavior in severe light water reactor accidents,” J. Nucl. Mater., 185, 154-158, 1991.
- [3.2] 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.
- [3.3] E.H.P. Cordfunke et al., “Recent Thermochemical Research on Reactor Materials and Fission Products,” J. Nucl. Mater., 167, 205-212, 1989.
- [3.4] 平成27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28年3月
- [3.5] 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
- [3.6] 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
- [3.7] 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 改訂版，日本原子力研究開発機構，平成31年4月
- [3.8] A. Gallais-During et al., “Performance and first results of fission product release and transport provided by the VERDON facility,” Nucl. Eng. Design, 277, 117-123, 2014.
- [3.9] A. Gallais-During et al., “Overview of the VERDON-ISTP Program and main insights from the VERDON-2 air ingress test,” Annals of Nuclear Energy, [101](#), March 2017, 109-117.

表 3.1 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	CsI	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
	装荷重量 (mg)	150	300
	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	
試料加熱	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	
	蒸発速度 (mol/s) : 実験結果からの推定値	CsI : $4.3 \times 10^{-8}$ B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : $4.6 \times 10^{-8}$ (0.5 L/min) CsI : $2.3 \times 10^{-8}$ B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : $4.9 \times 10^{-8}$ (0.25 L/min) 参考：CsI : $1.8 \times 10^{-8}$ B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : $3.5 \times 10^{-8}$ (1 L/min)	
	B/Cs : 実験結果からの推定値	約 2.1 (0.5 L/min) 約 4.2 (0.25 L/min) 参考：約 3.7 (1 L/min)	
	サンプリング管寸法	内径 6.2×30 mm : 14 本	
温度勾配管加熱	最高温度 (K)	1023	
	最低温度 (K)	423	
	温度分布	線形	

表 3.2 水素雰囲気中の気相中反応実験における沈着割合（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

		1 L/min (平成 29 年度)	0.5 L/min (平成 30 年度)	0.25 L/min (平成 30 年度)
Cs	サンプリング管	0.27	0.39	0.26
	焼結金属フィルタ	0.67	0.52	0.64
	メンブレンフィルタ	0.00	0.00	0.00
	配管内	0.00	0.00	0.00
	ガス捕集瓶	0.00	0.00	0.00
I	サンプリング管	0.30	0.48	0.33
	焼結金属フィルタ	0.38	0.53	0.32
	メンブレンフィルタ	0.00	0.00	0.00
	配管内	0.02	0.02	0.08
	ガス捕集瓶	0.18	0.01	0.02

表 3.3 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 1.0	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 0.5
	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) : 実験結果からの推定値	CsI : $2.4 \times 10^{-7}$ B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : $2.5 \times 10^{-8}$ (2 L/min) CsI : $1.9 \times 10^{-7}$ B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : $1.7 \times 10^{-8}$ (1 L/min) CsI : $1.9 \times 10^{-7}$ B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : $1.0 \times 10^{-8}$ (0.5 L/min)	
	B/Cs : 実験結果からの推定値	約 0.2 (2 L/min) 約 0.2 (1 L/min) 約 0.1 (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 3.4 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	0.03	0.03	0.03
	サンプリング管	0.40	0.40	0.49
	焼結金属フィルタ	0.49	0.20	0.23
	配管内	0.02	0.12	0.01
	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	0.46	0.48	0.57
	焼結金属フィルタ	0.52	0.22	0.28
	配管内	0.03	0.15	0.04
	ガス捕集瓶	0.00	0.00	0.00

表 3.5 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
試料加熱	試料装荷位置：温度勾配管からの距離 (mm)	253	
	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
温度勾配管加熱	サンプリング管寸法	内径 4.2 mm × 30 mm : 14 本	
	最高温度 (K)	1023	1023
	最低温度 (K)	423	423
	温度分布	線形	線形

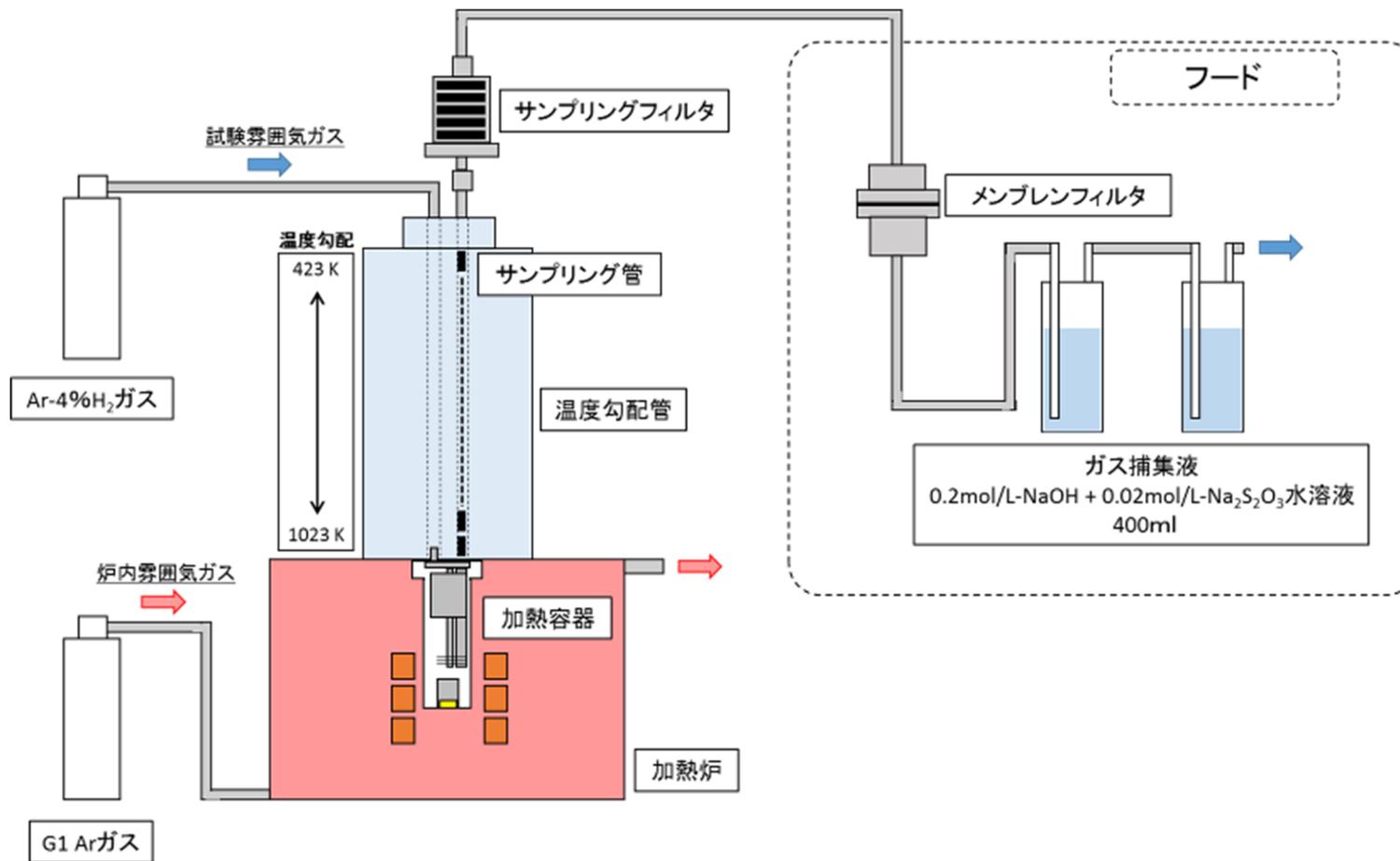


図 3.1 AGF/FP 移行挙動模擬試験装置模式図

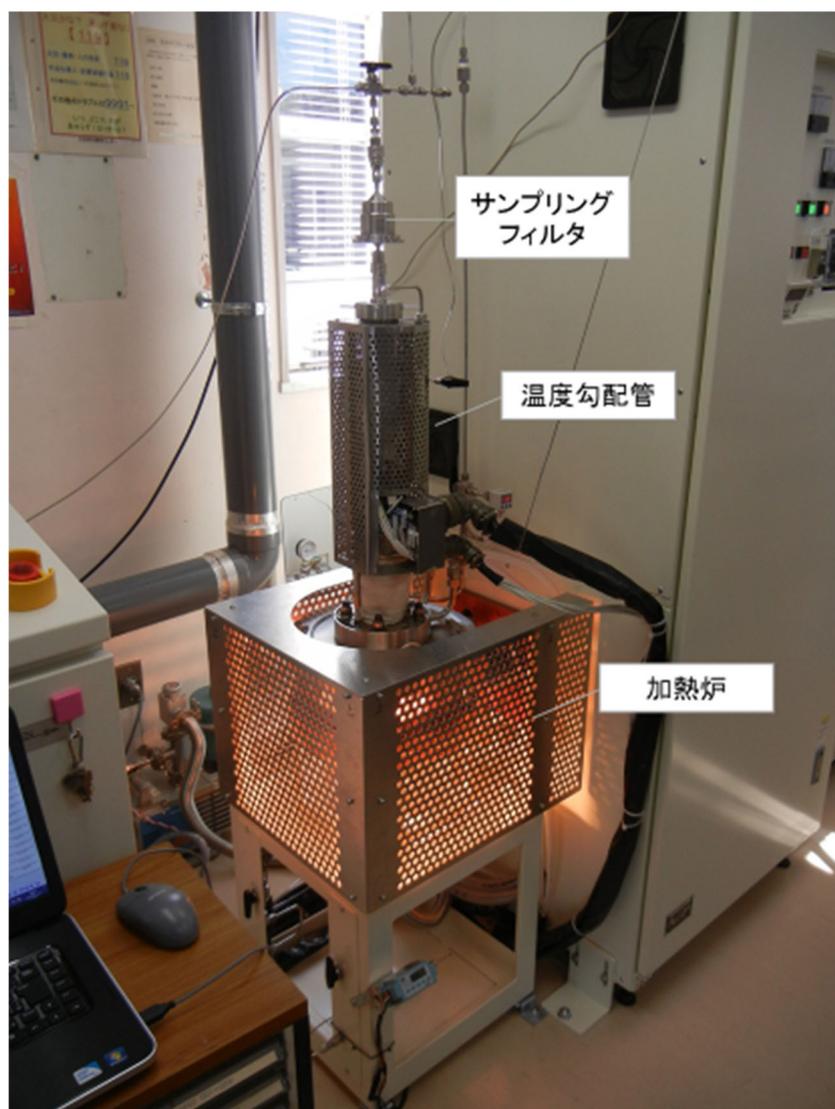


図 3.2 AGF/FP 移行挙動模擬試験装置外観写真

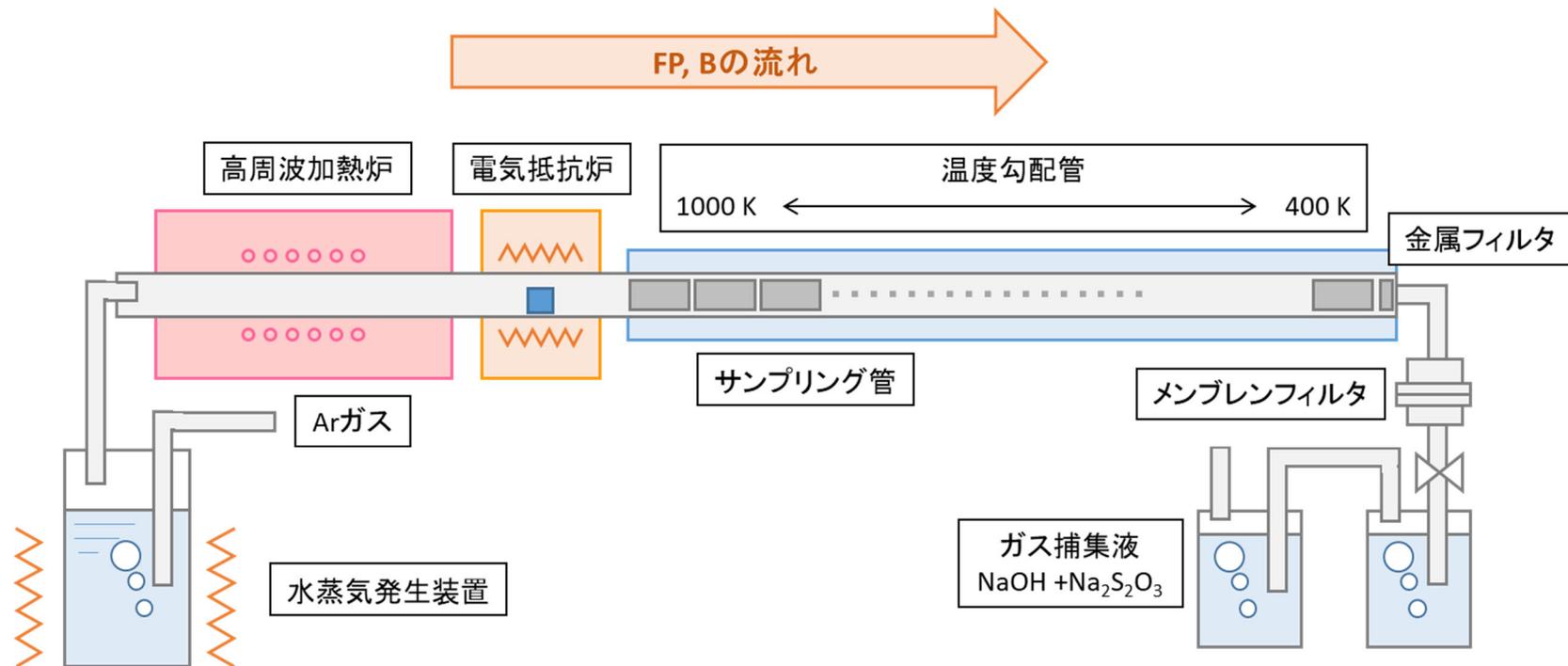


図 3.3 FP 放出移行挙動再現実験装置 (TeRRa) 模式図

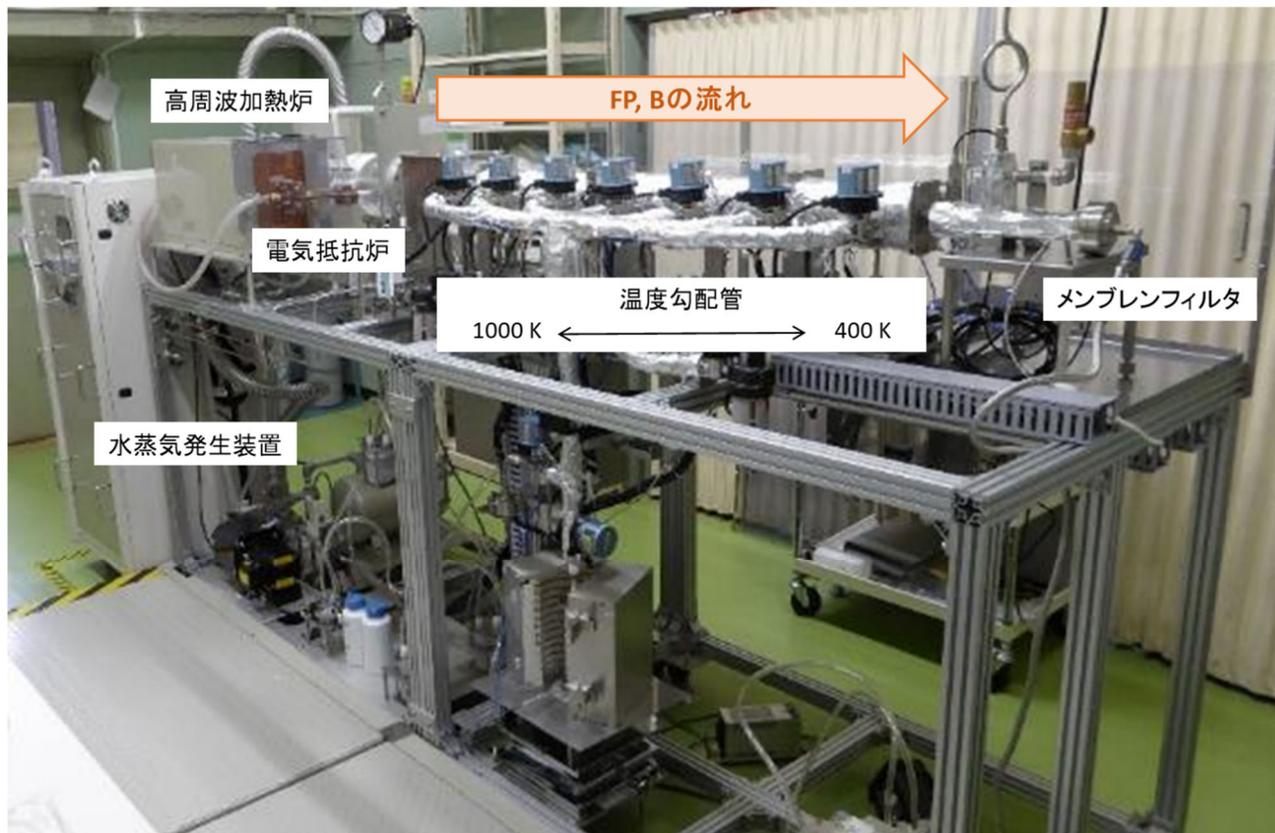


図 3.4 FP 放出移行挙動再現実験装置 (TeRRa) 外観写真

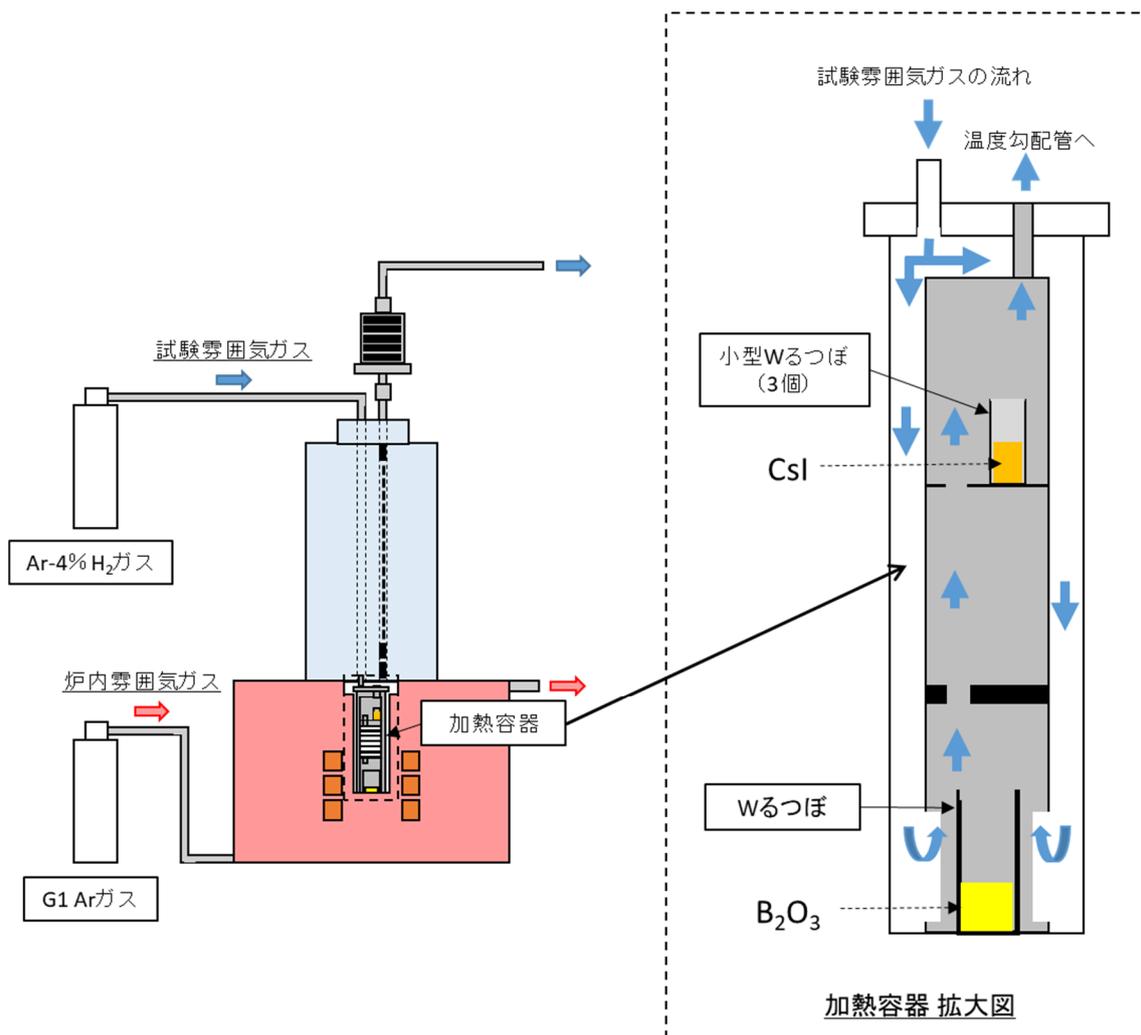


図 3.5 気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温度化学反応のための加熱試料の概要図（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

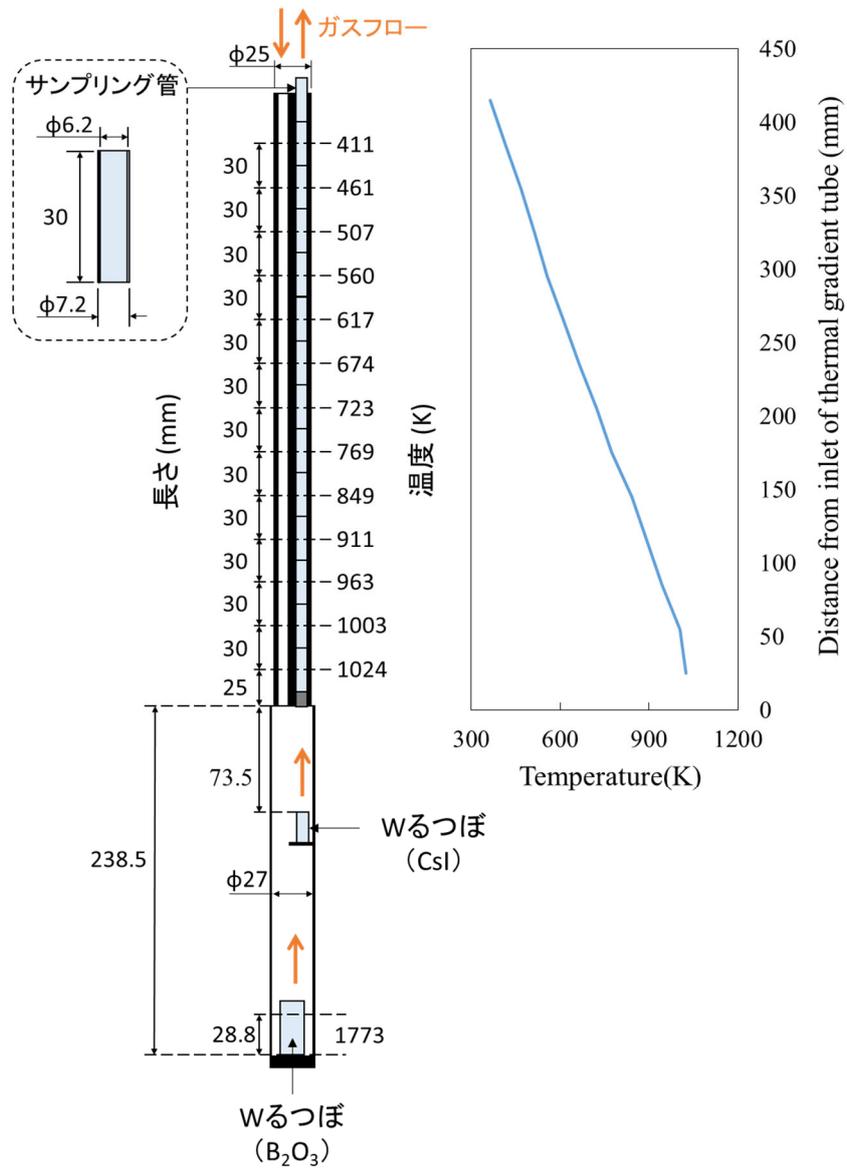


図 3.6 気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温度化学反応のための加熱体系（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

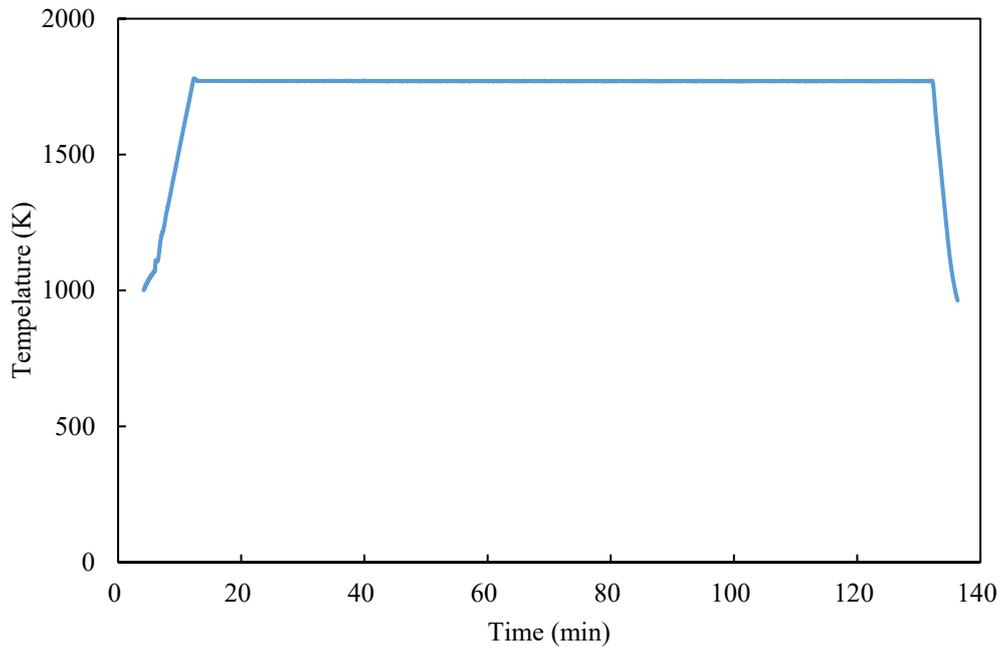


図 3.7 気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応の加熱温度履歴（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

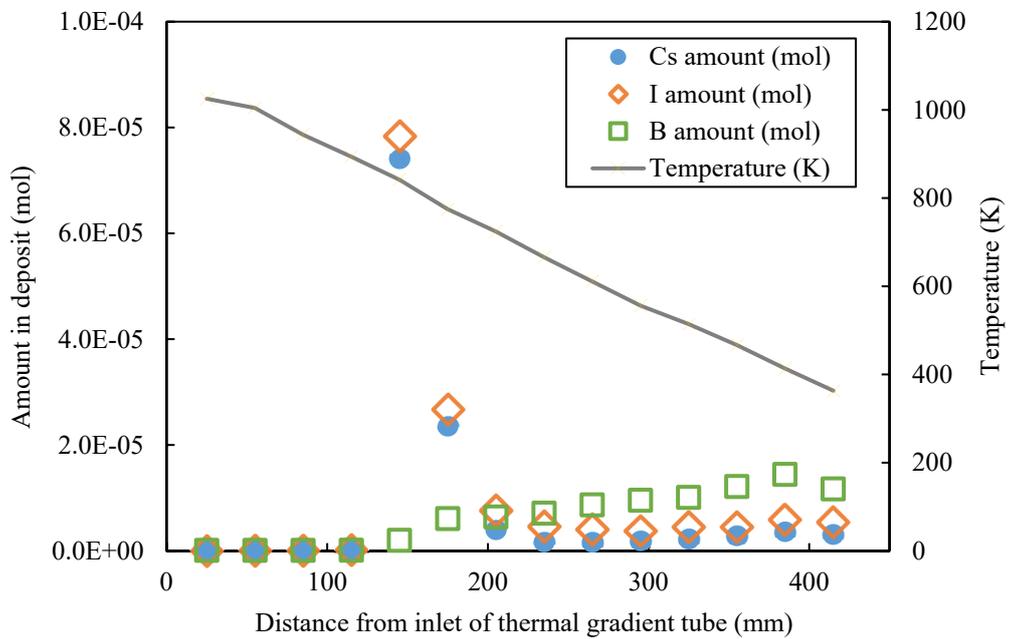


図 3.8 水素雰囲気中の気相中反応実験におけるサンプリング管への沈着物中のセシウム、ヨウ素及びホウ素の元素量：0.5 L/min（変動計数 CV 値：Cs-133 3.2%、I-127 4.0%、B-10 6.0%、B-11 6.3%）（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

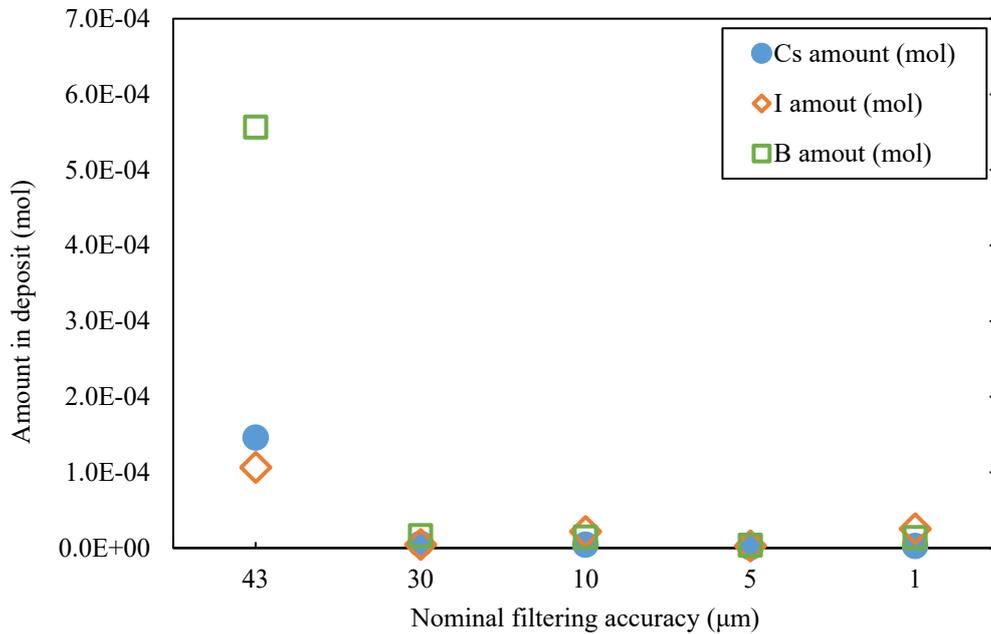


図 3.9 水素雰囲気中の気相中反応実験における焼結金属フィルタへの沈着物中のセシウム、ヨウ素及びホウ素の元素量:0.5 L/min(変動計数 CV 値:Cs-133 3.2%、I-127 4.0%、B-10 6.0%、B-11 6.3%) (使用装置: AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

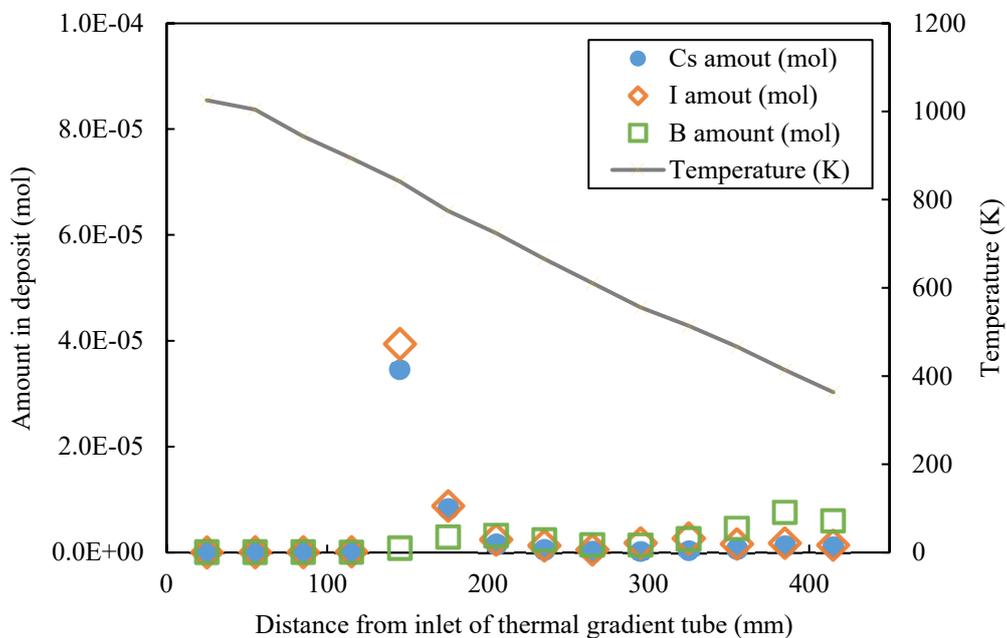


図 3.10 水素雰囲気中の気相中反応実験におけるサンプリング管への沈着物中のセシウム、ヨウ素及びホウ素の元素量:0.25 L/min(変動計数 CV 値:Cs-133 3.2%、I-127 4.0%、B-10 6.0%、B-11 6.3%) (使用装置: AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

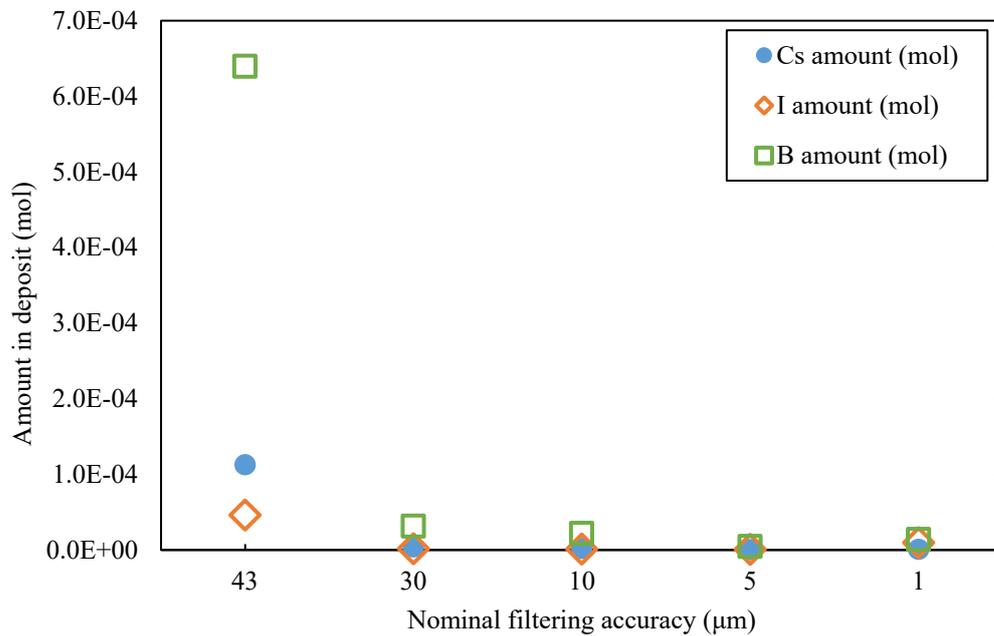


図 3.11 水素雰囲気中の気相中反応実験における焼結金属フィルタへの沈着物中のセシウム、ヨウ素及びホウ素の元素量:0.25 L/min(変動計数 CV 値:Cs-133 3.2%、I-127 4.0%、B-10 6.0%、B-11 6.3%) (使用装置: AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

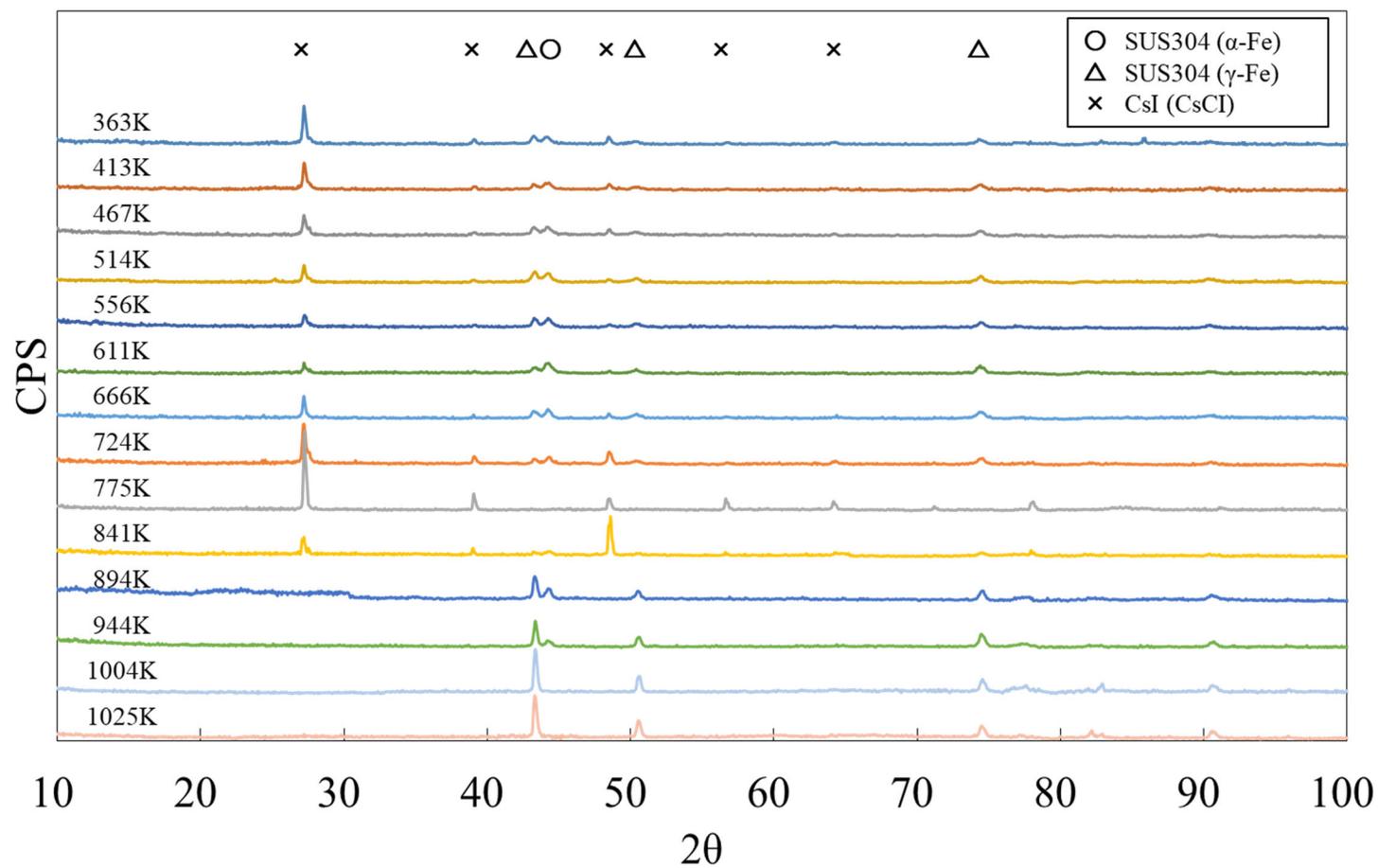


図 3.12 水素雰囲気中の気相中反応実験におけるサンプリング管への沈着物の X 線回折ピーク : 0.5 L/min  
(使用装置 : AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

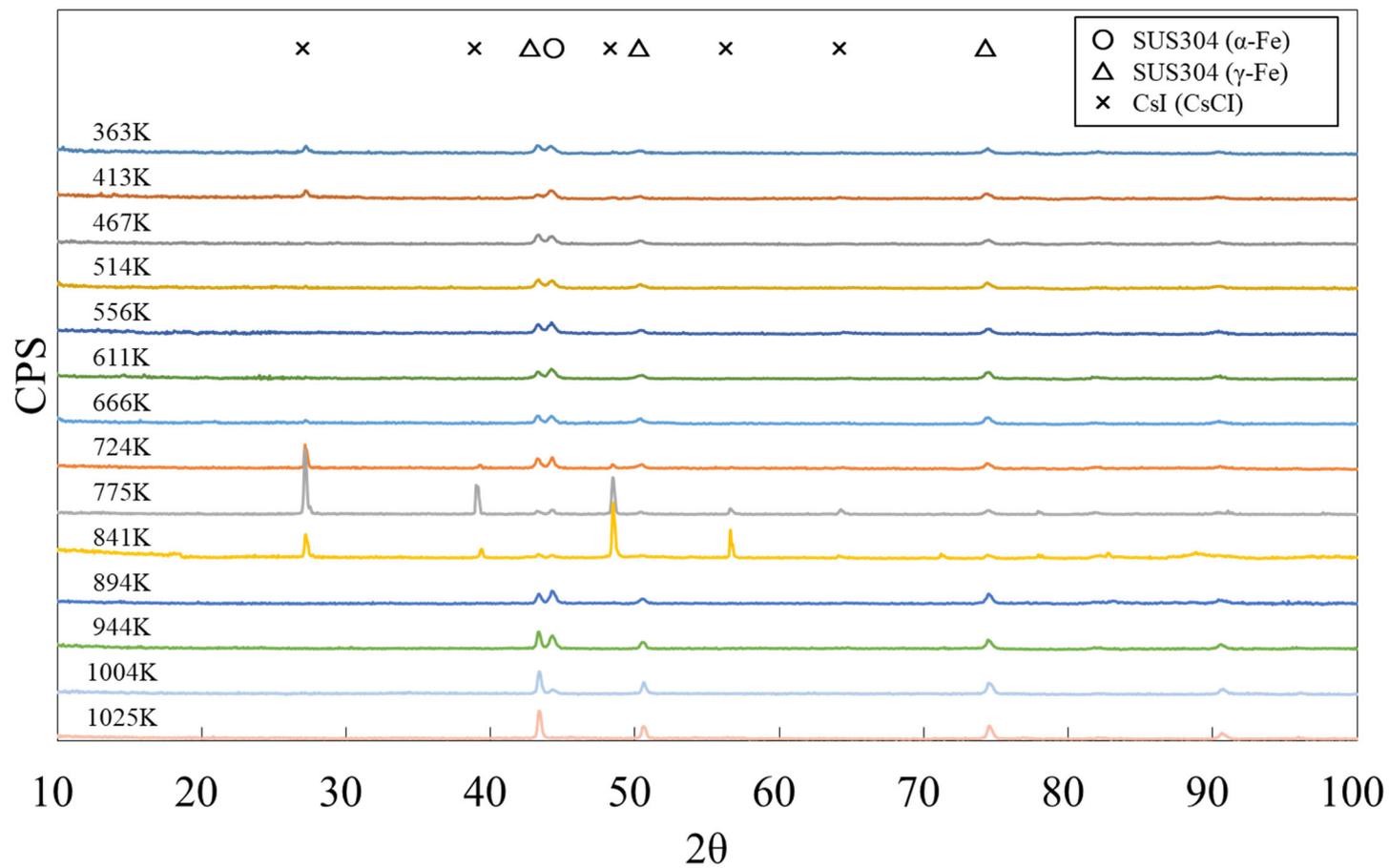


図 3.13 水素雰囲気中の気相中反応実験におけるサンプリング管沈着物の X 線回折ピーク : 0.25 L/min  
(使用装置 : AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

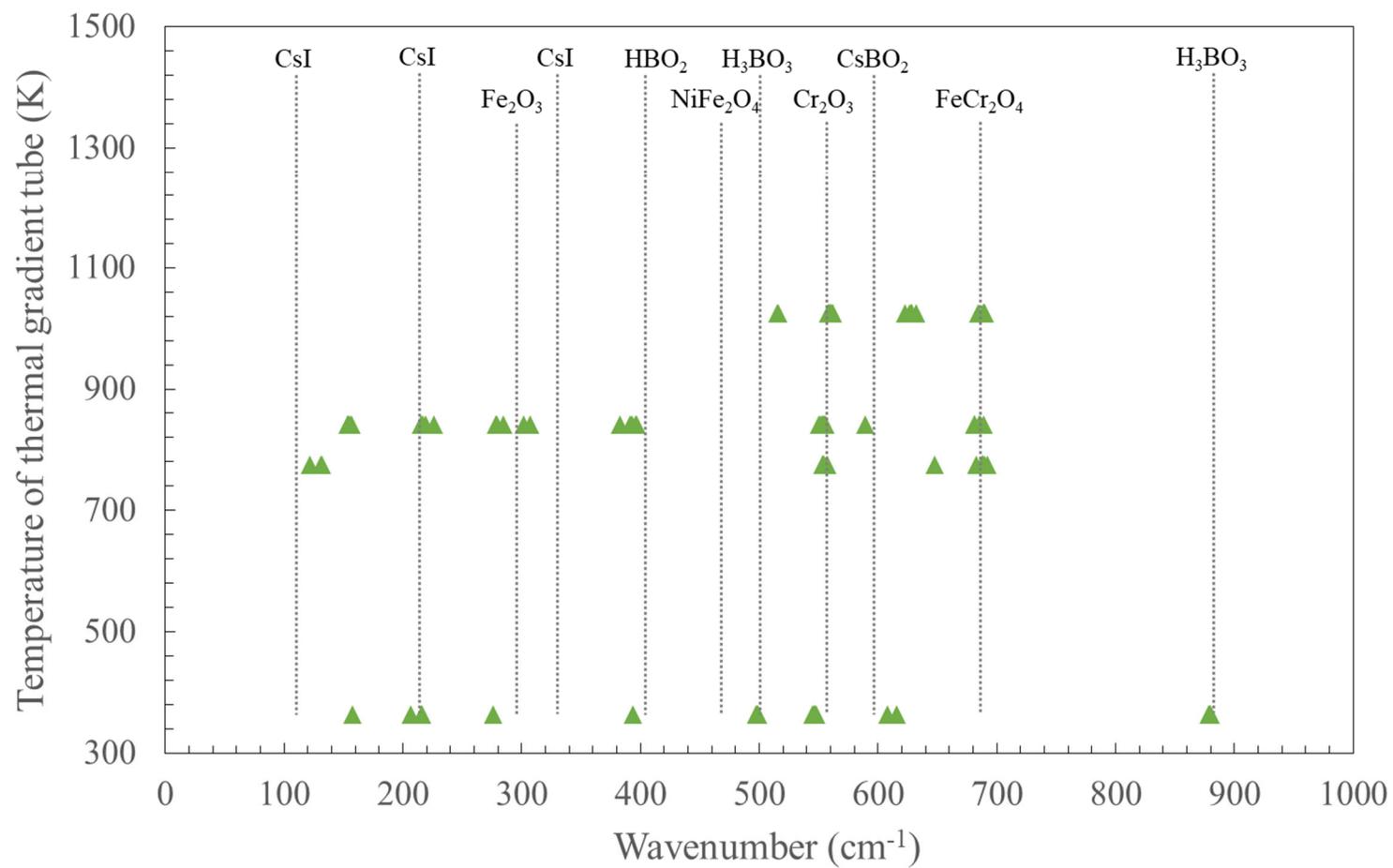


図 3.14 水素雰囲気中の気相中反応実験におけるサンプリング管への沈着物のラマンスペクトルピーク位置：0.5 L/min  
(使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)

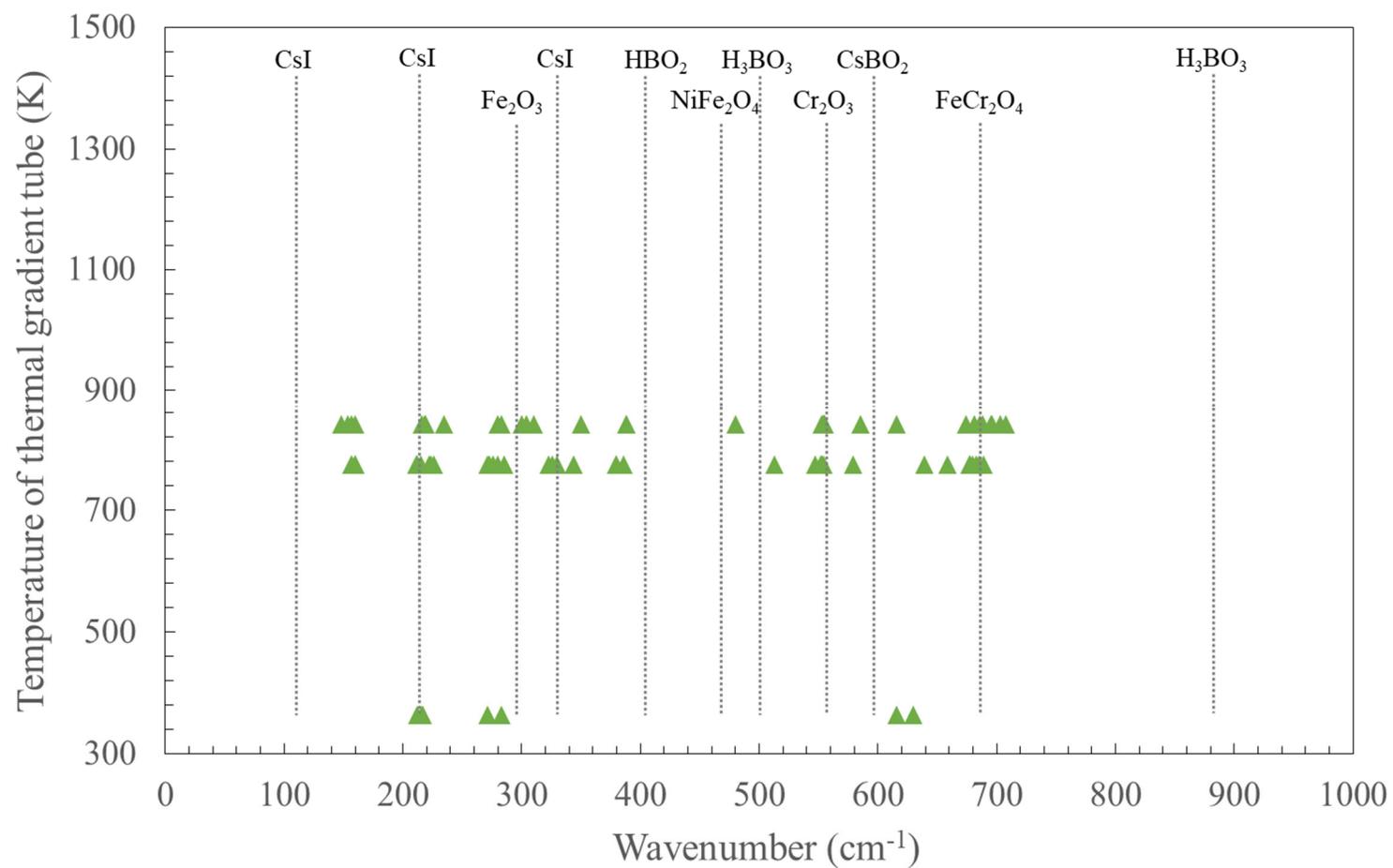


図 3.15 水素雰囲気中の気相中反応実験におけるサンプリング管への沈着物のラマンスペクトルピーク位置：0.25 L/min  
(使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置)



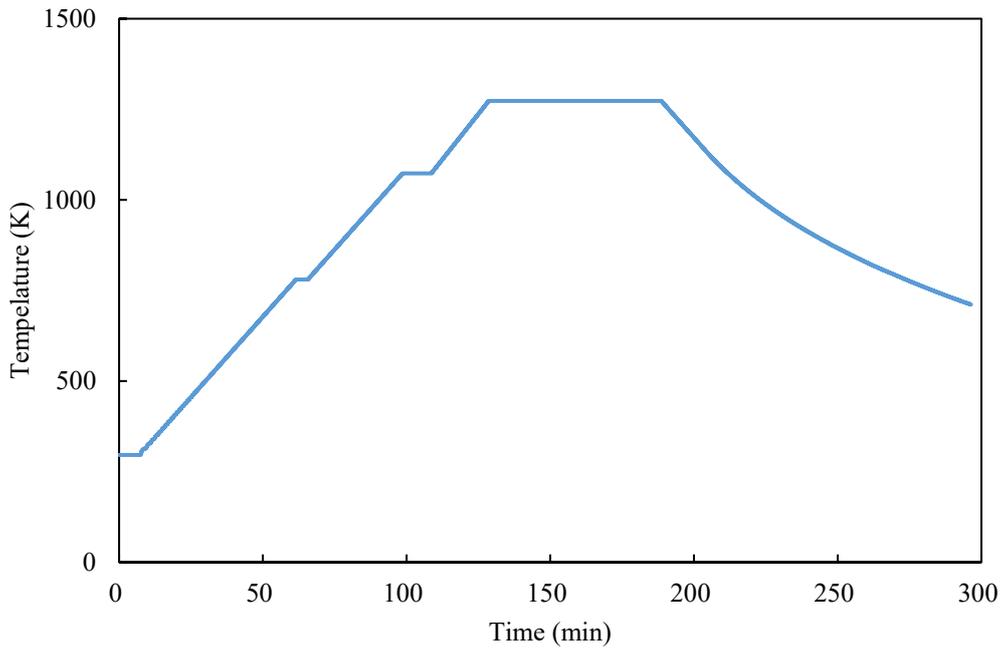


図 3.17 水蒸気雰囲気中の気相中におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化ホウ素蒸気種の高温化学反応の加熱温度履歴（使用装置：TeRRa）

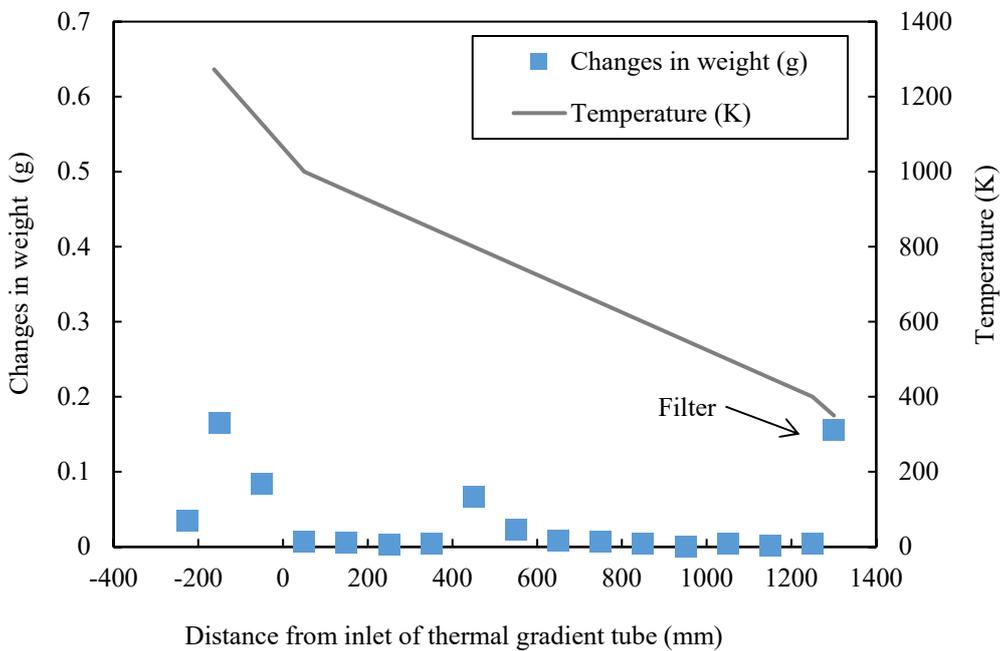


図 3.18 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化：2 L/min（変動係数 CV 値：0.04%）（使用装置：TeRRa）

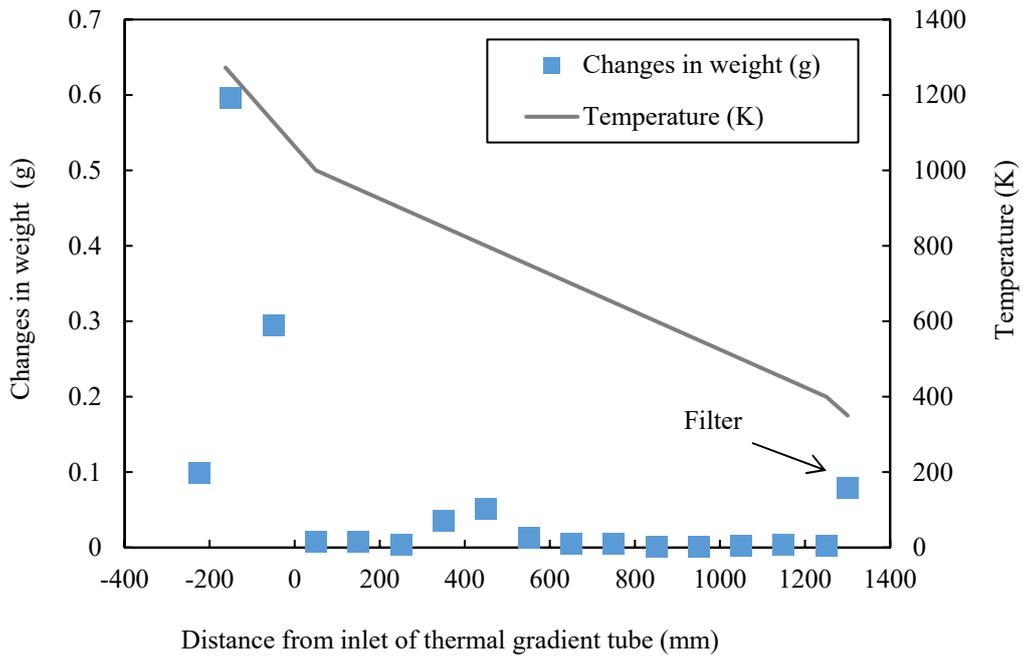


図 3.19 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化：1 L/min（変動係数 CV 値：0.04%）（使用装置：TeRRa）

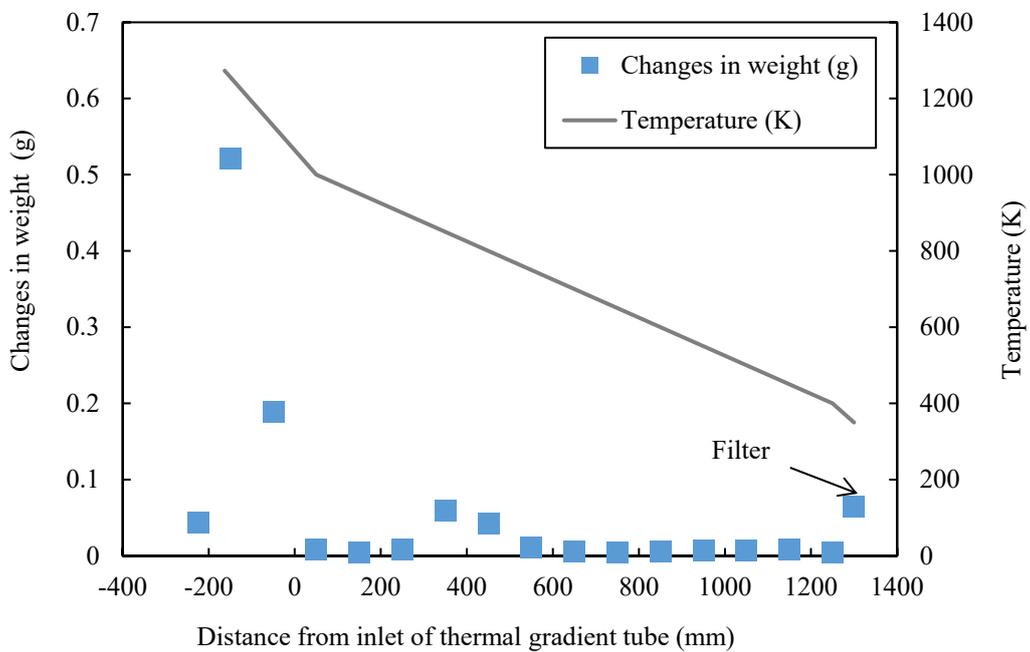


図 3.20 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化：0.5 L/min（変動係数 CV 値：0.04%）（使用装置：TeRRa）

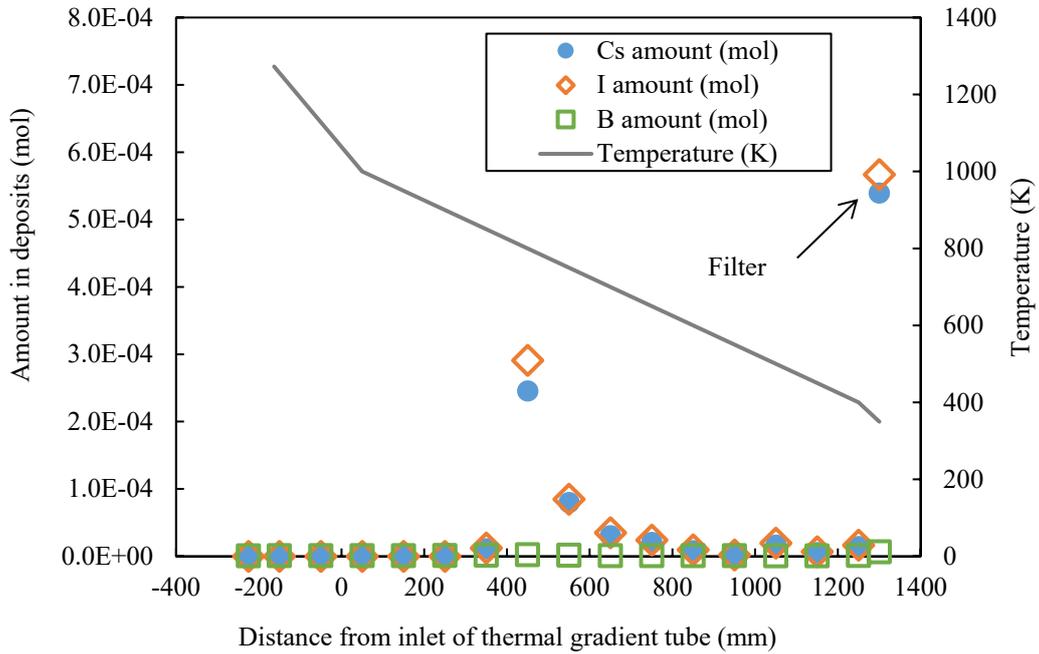


図 3.21 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物中のセシウム及びヨウ素元素量: 2 L/min (変動計数 CV 値: Cs-133 3.2%、I-127 4.0%、B-10 6.0%、B-11 6.3%) (使用装置: TeRRa)

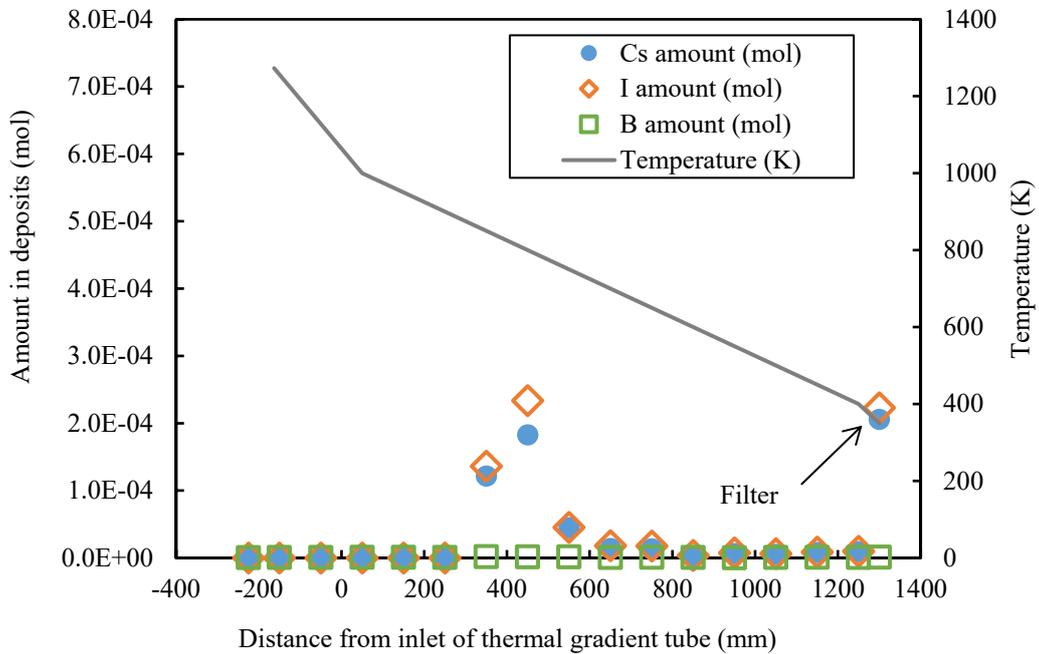


図 3.22 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物中のセシウム及びヨウ素元素量: 1 L/min (変動計数 CV 値: Cs-133 3.2%、I-127 4.0%、B-10 6.0%、B-11 6.3%) (使用装置: TeRRa)

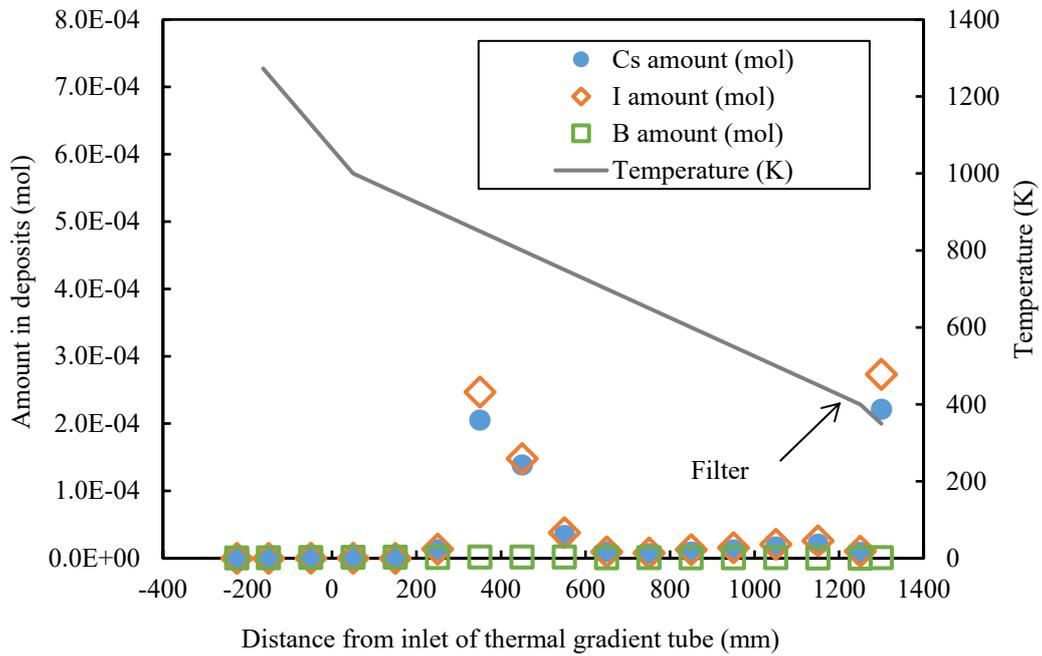


図 3.23 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物中のセシウム及びヨウ素元素量：0.5 L/min（変動計数 CV 値：Cs-133 3.2%、I-127 4.0%、B-10 6.0%、B-11 6.3%）（使用装置：TeRRa）

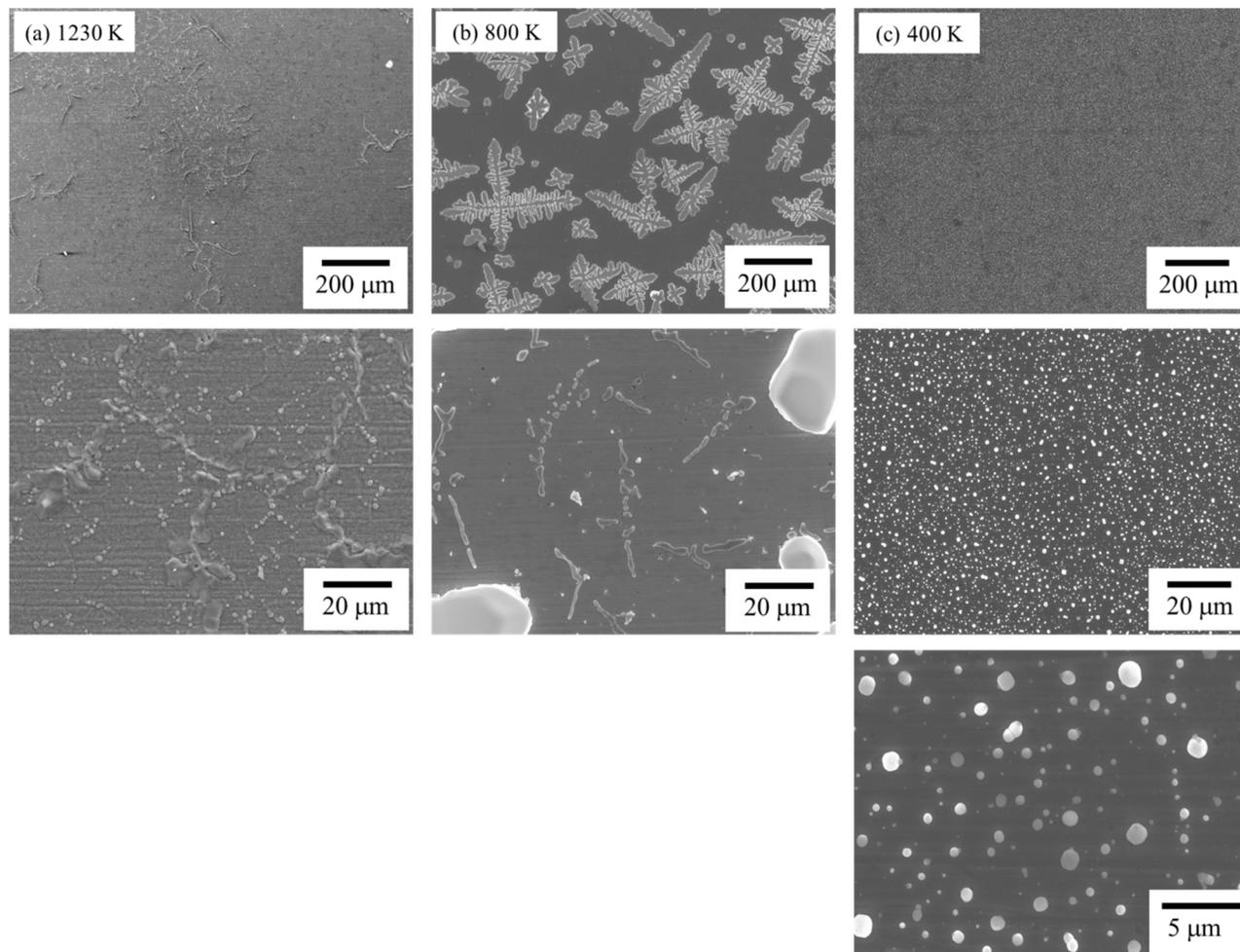


図 3.24 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の  $\text{CsI}+\text{B}_2\text{O}_3$  実験におけるサンプリング管沈着物の二次電子像：2 L/min  
(使用装置：TeRRa)

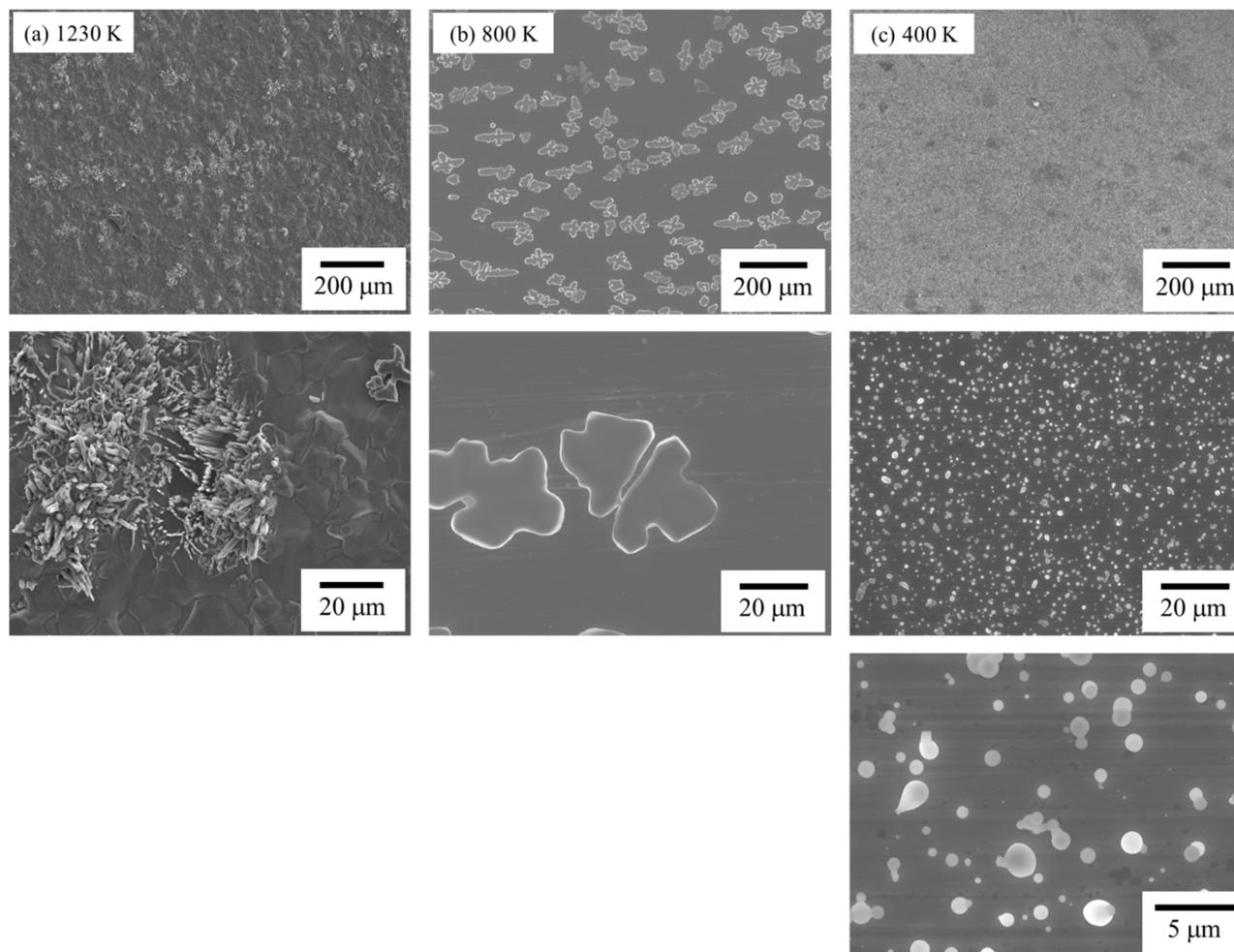


図 3.25 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物の二次電子像：1 L/min  
(使用装置：TeRRa)

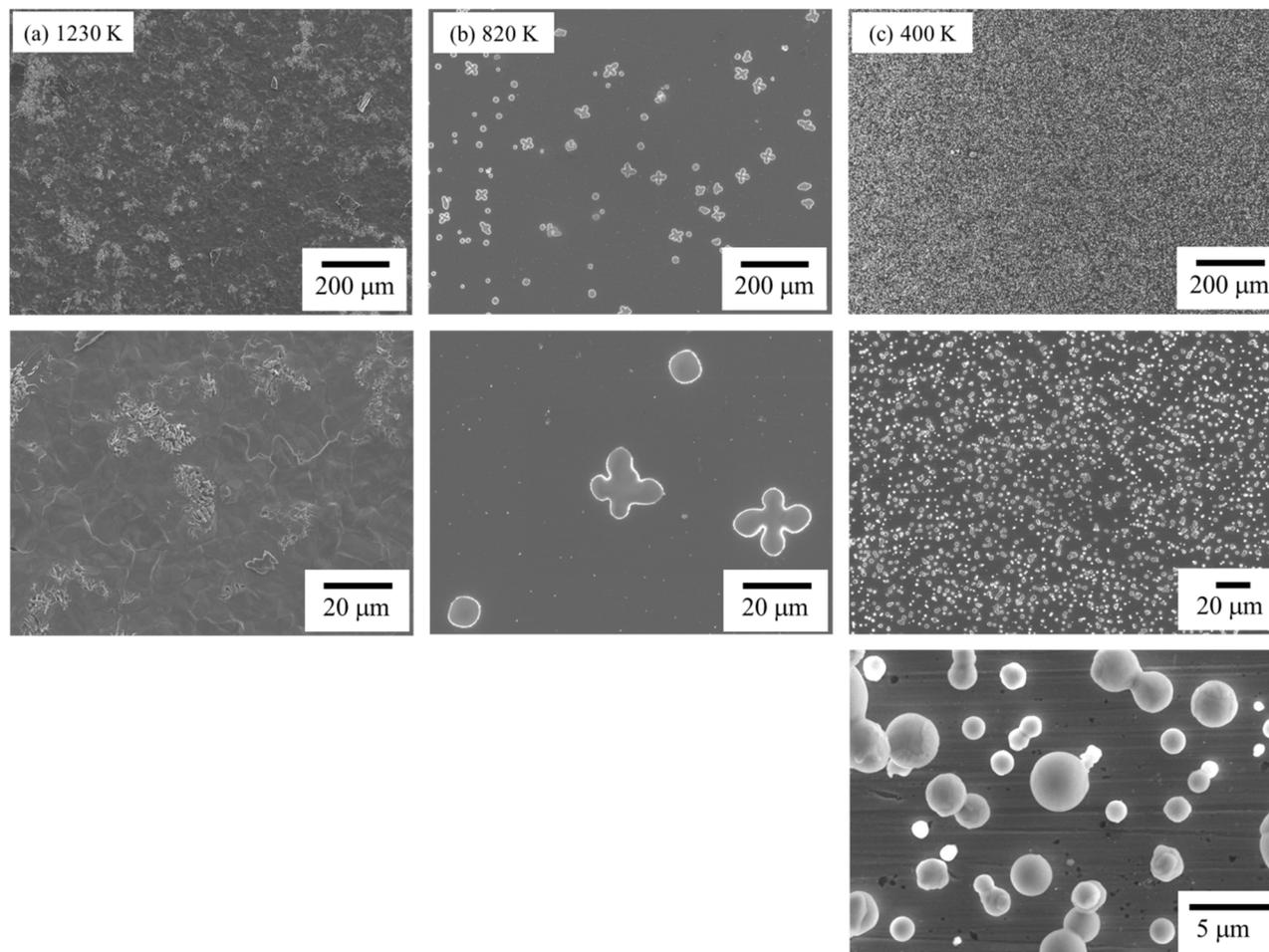


図 3.26 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の  $\text{CsI}+\text{B}_2\text{O}_3$  実験におけるサンプリング管沈着物の二次電子像 : 0.5 L/min  
(使用装置 : TeRRa)

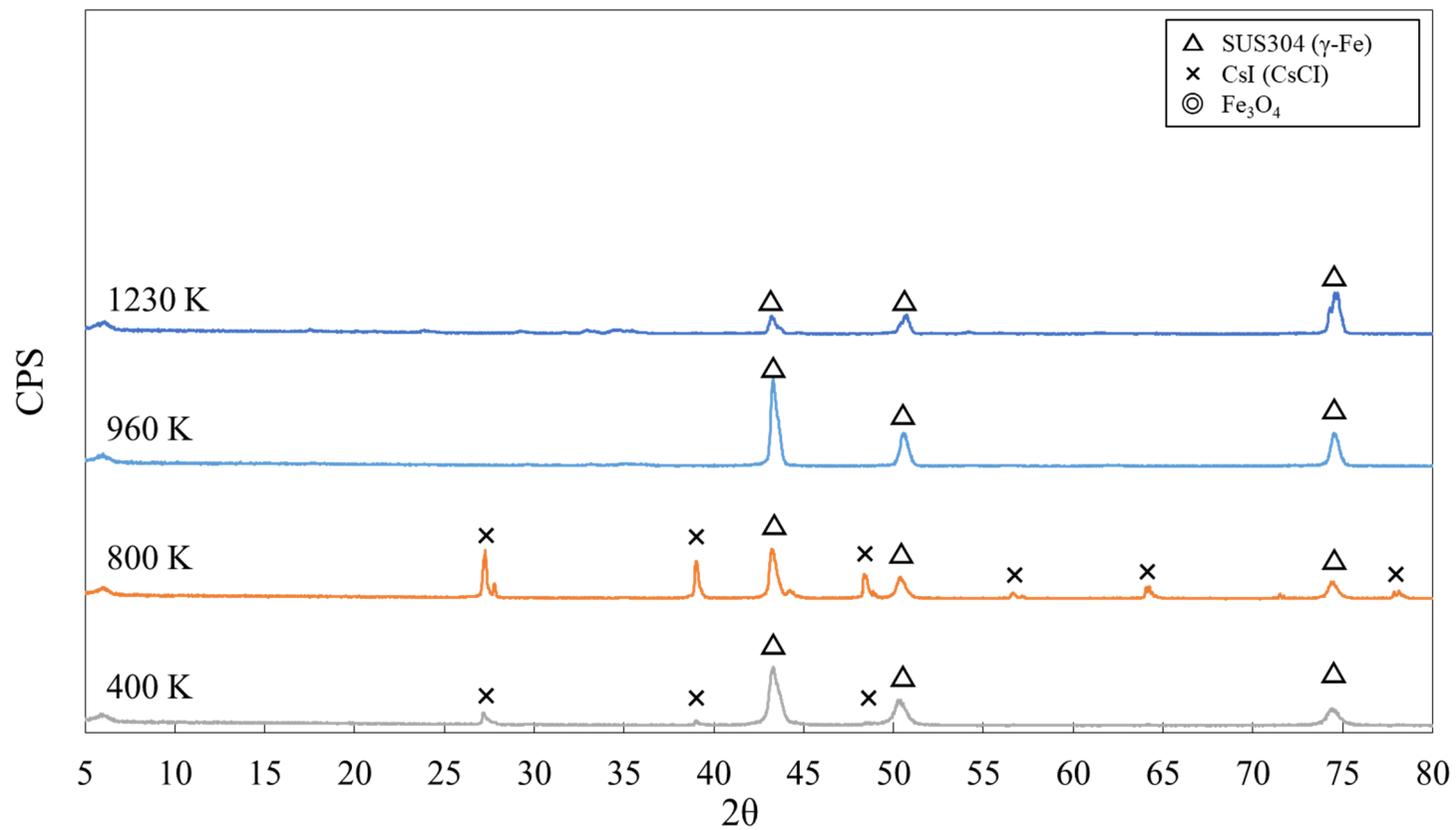


図 3.27 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の  $\text{CsI} + \text{B}_2\text{O}_3$  実験におけるサンプリング管沈着物の X 線回折ピーク：2 L/min  
(使用装置：TeRRa)

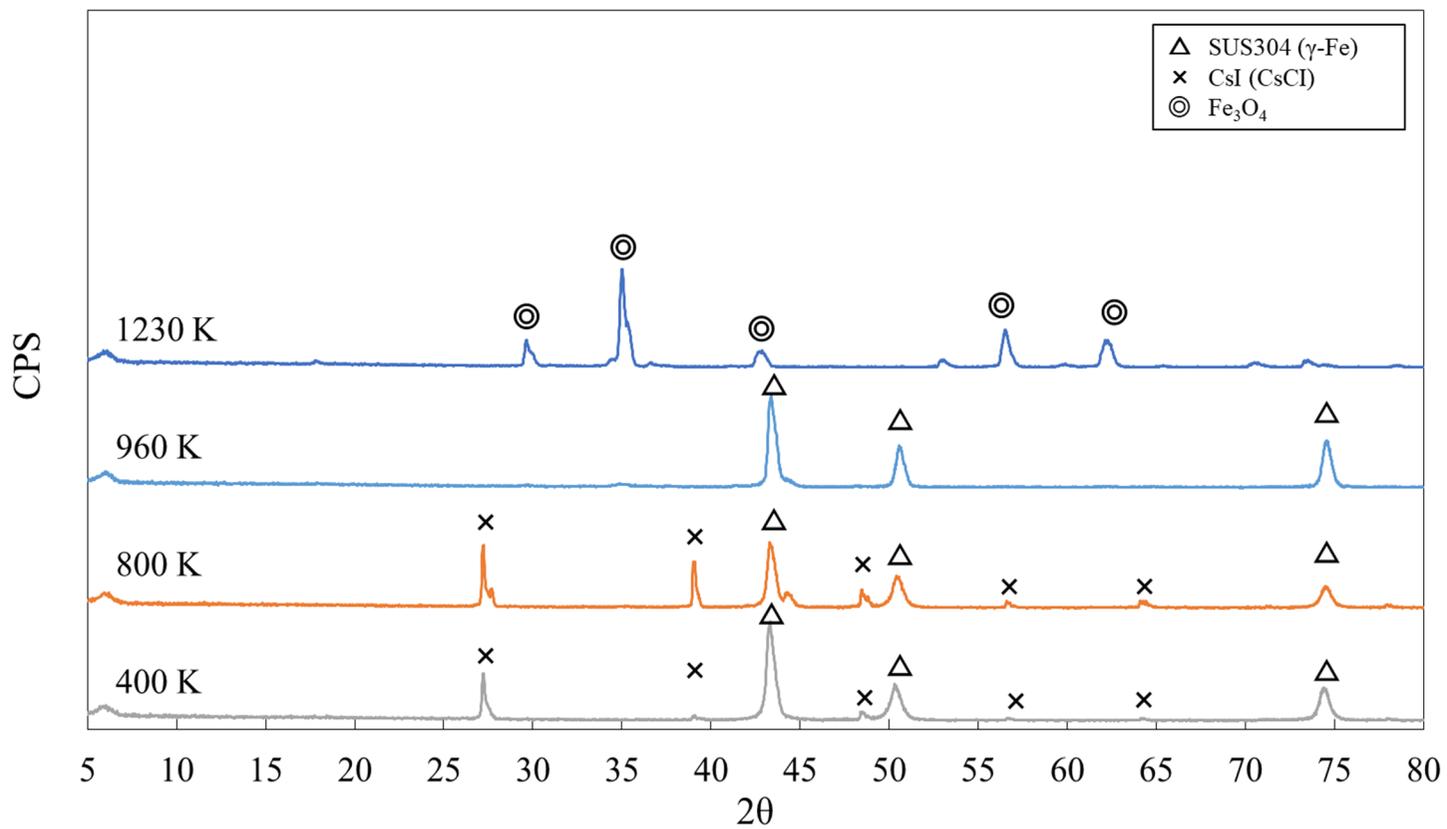


図 3.28 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の  $\text{CsI} + \text{B}_2\text{O}_3$  実験におけるサンプリング管沈着物の X 線回折ピーク：1 L/min  
(使用装置：TeRRa)

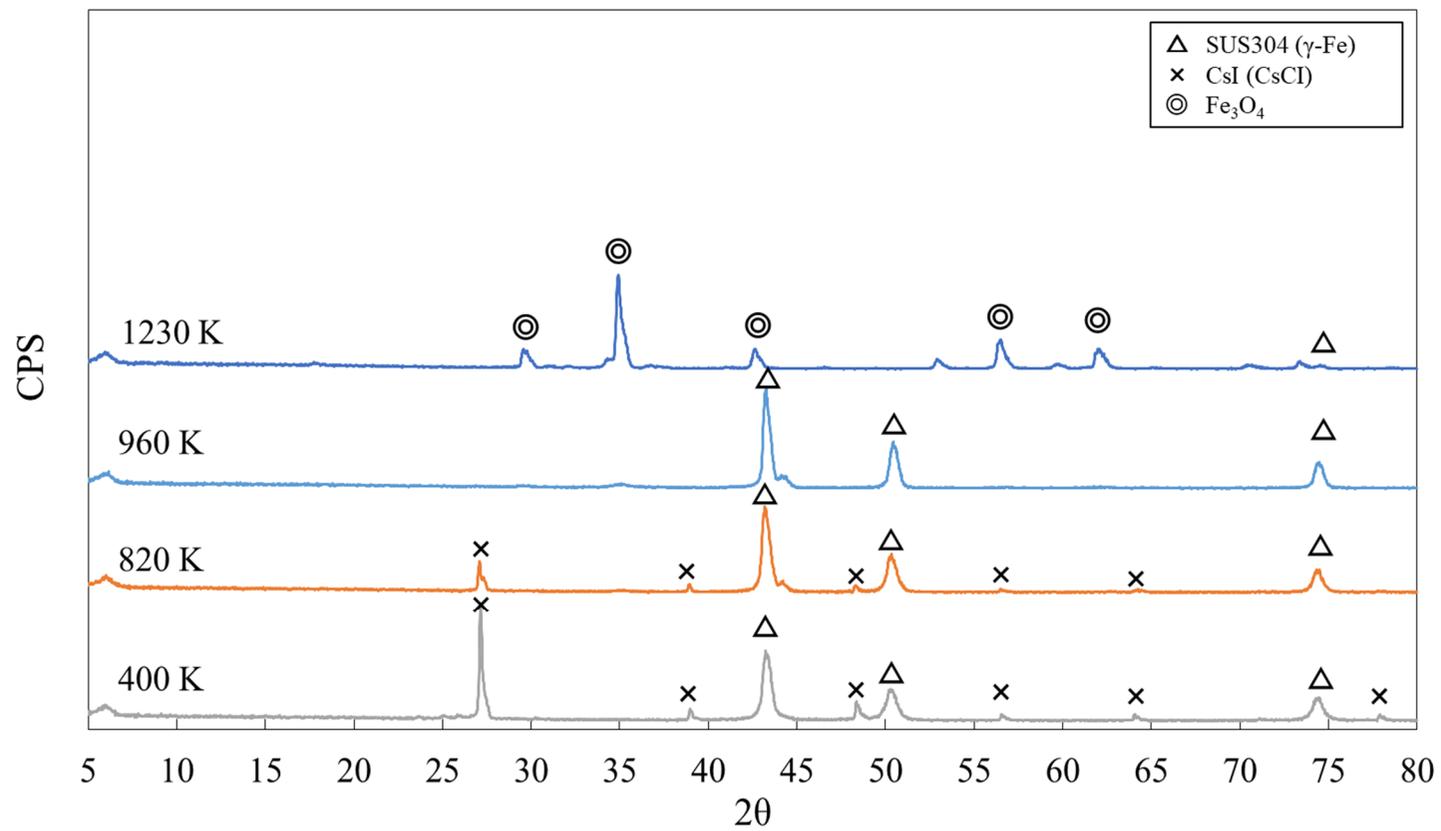


図 3.29 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の  $\text{CsI} + \text{B}_2\text{O}_3$  実験におけるサンプリング管沈着物の X 線回折ピーク : 0.5 L/min  
(使用装置 : TeRRa)

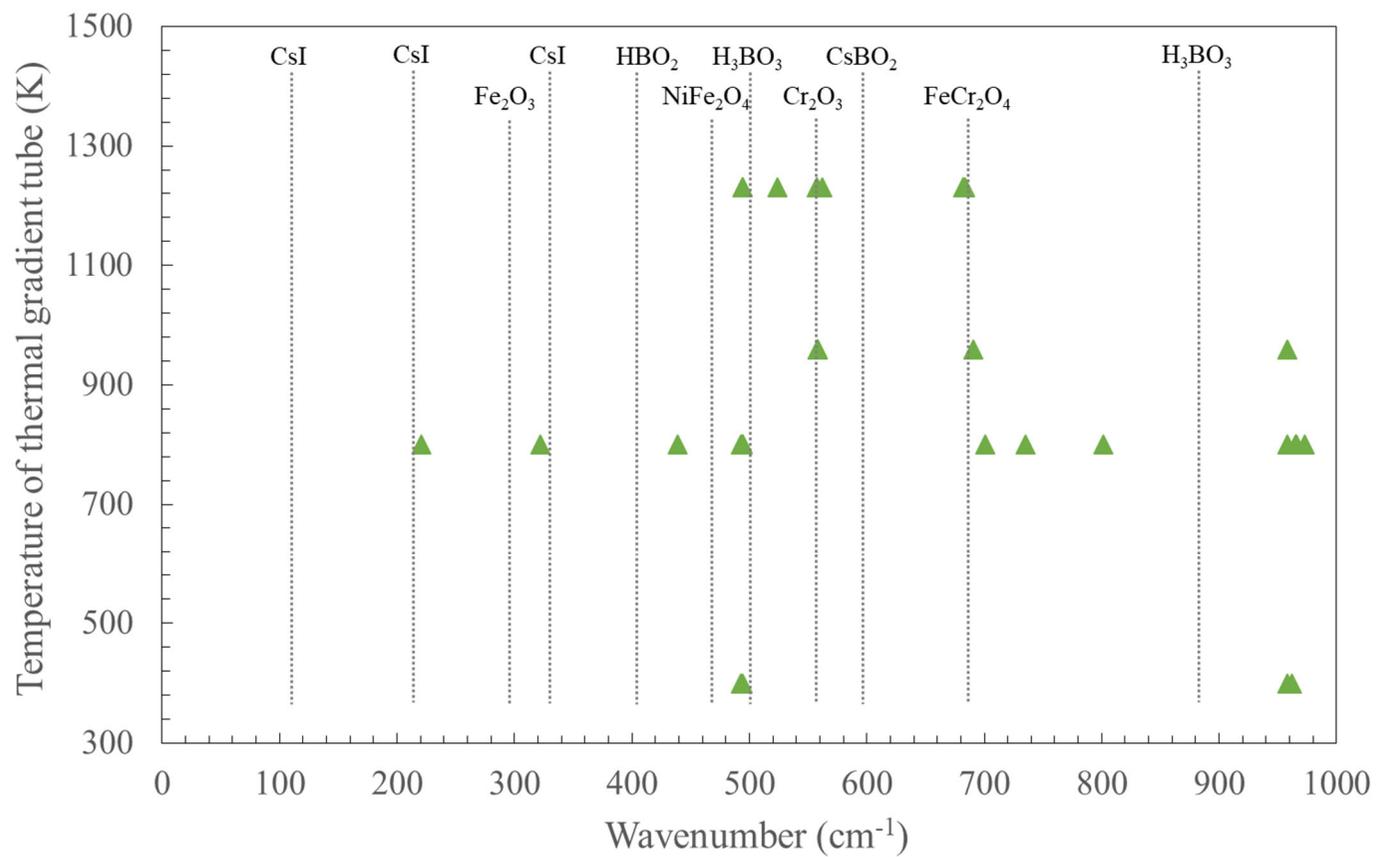


図 3.30 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物のラマンスペクトルピーク位置：2 L/min  
(使用装置：TeRRa)

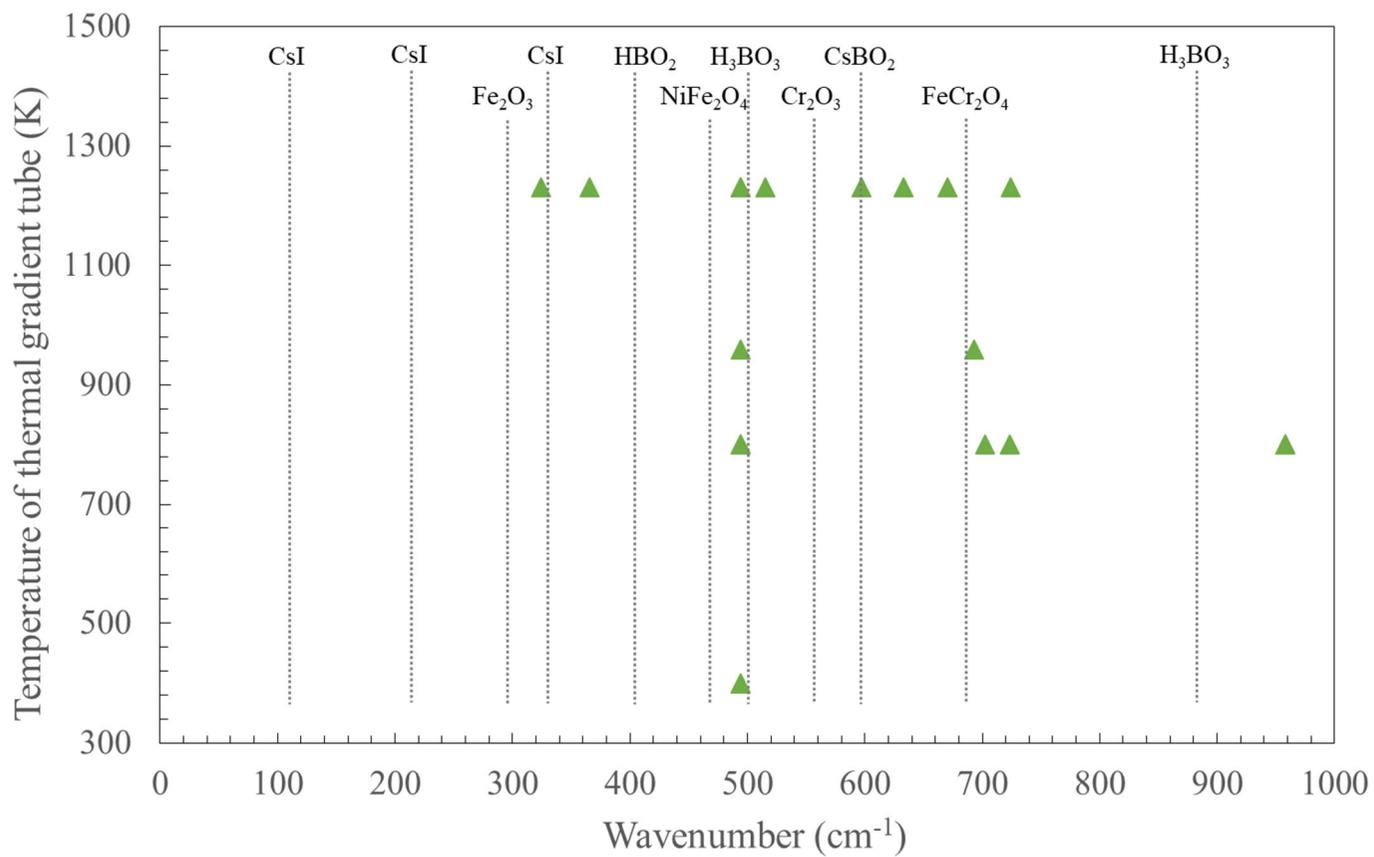


図 3.31 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物のラマンスペクトルピーク位置：1 L/min  
(使用装置：TeRRa)

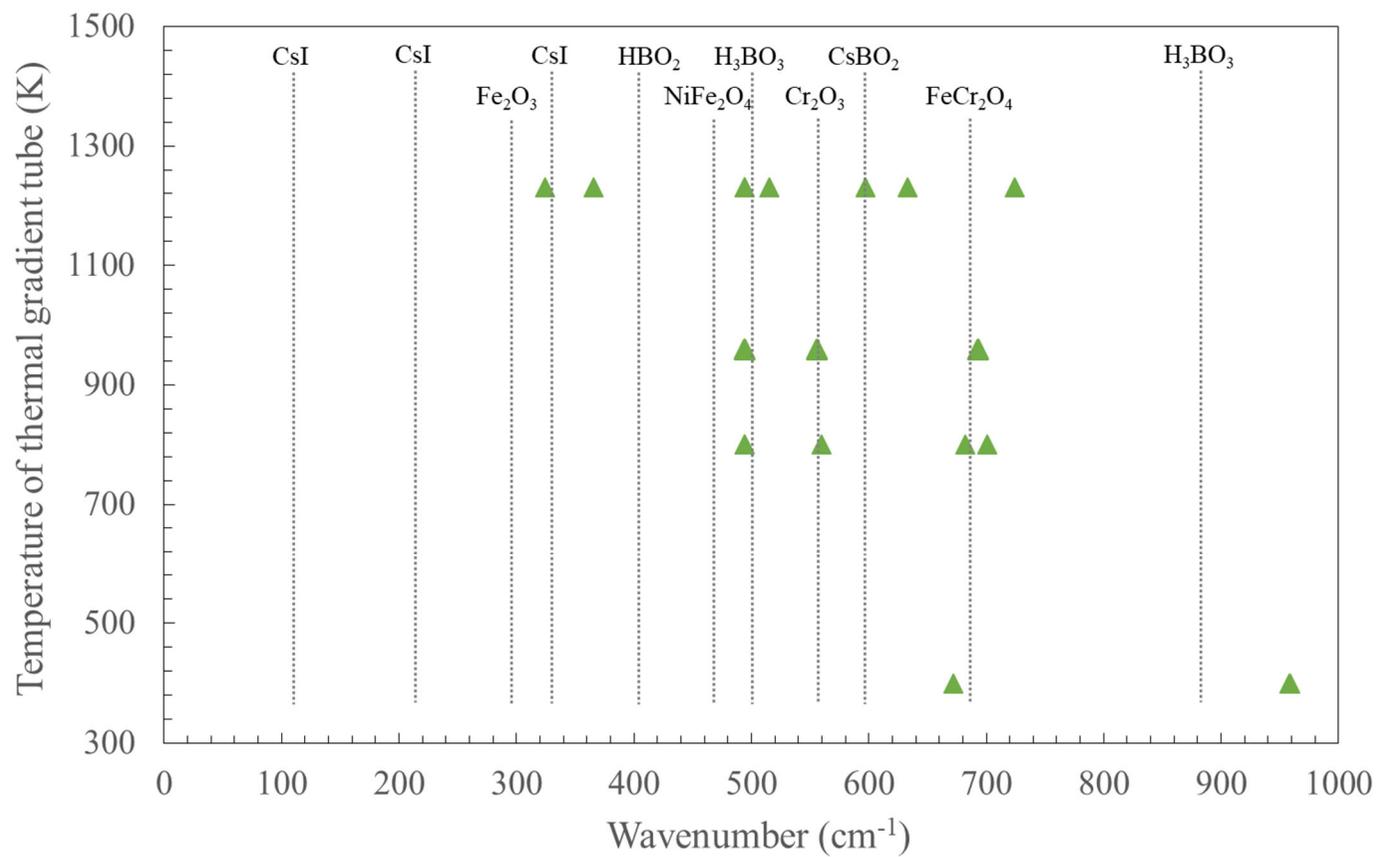


図 3.32 水蒸気雰囲気中の気相中反応実験の CsI+B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 実験におけるサンプリング管沈着物のラマンスペクトルピーク位置 : 0.5 L/min  
(使用装置 : TeRRa)

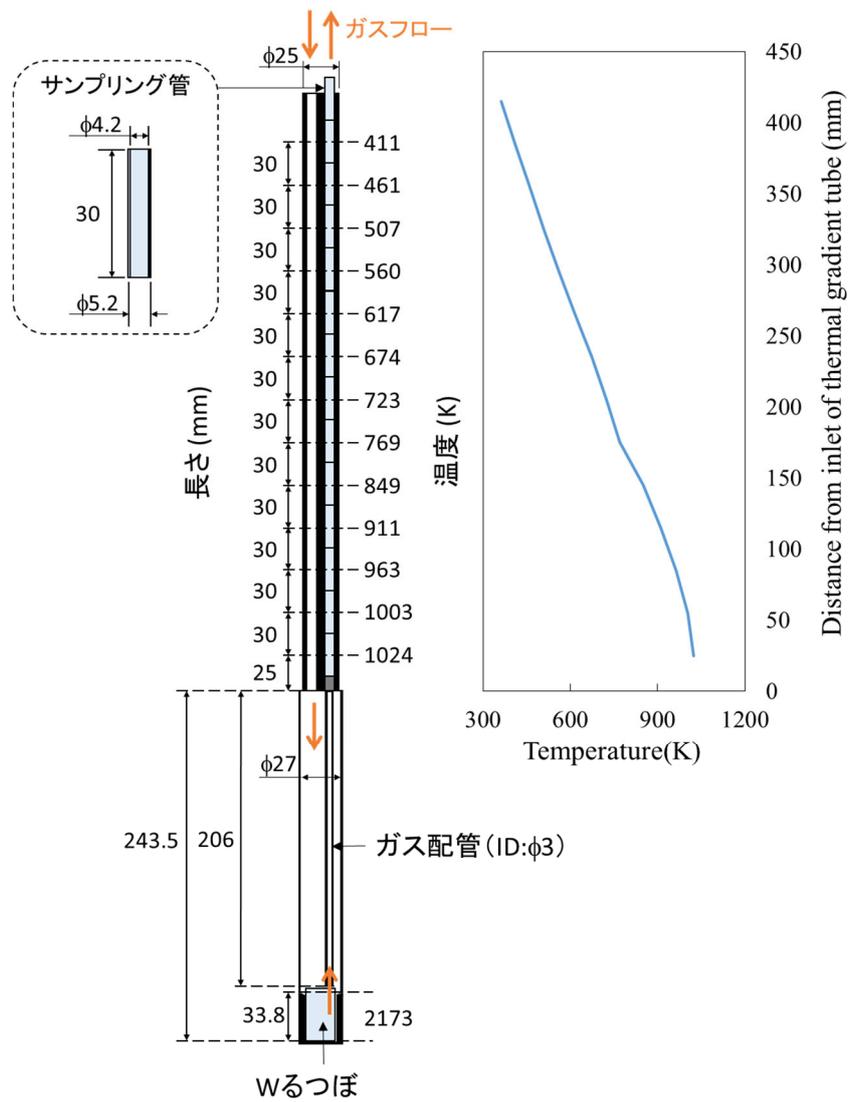


図 3.33 水素雰囲気中の固相：ヨウ化セシウム沈着物-気相：酸化ホウ素蒸気種間における高温化学反応に着目した加熱実験の加熱体系（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

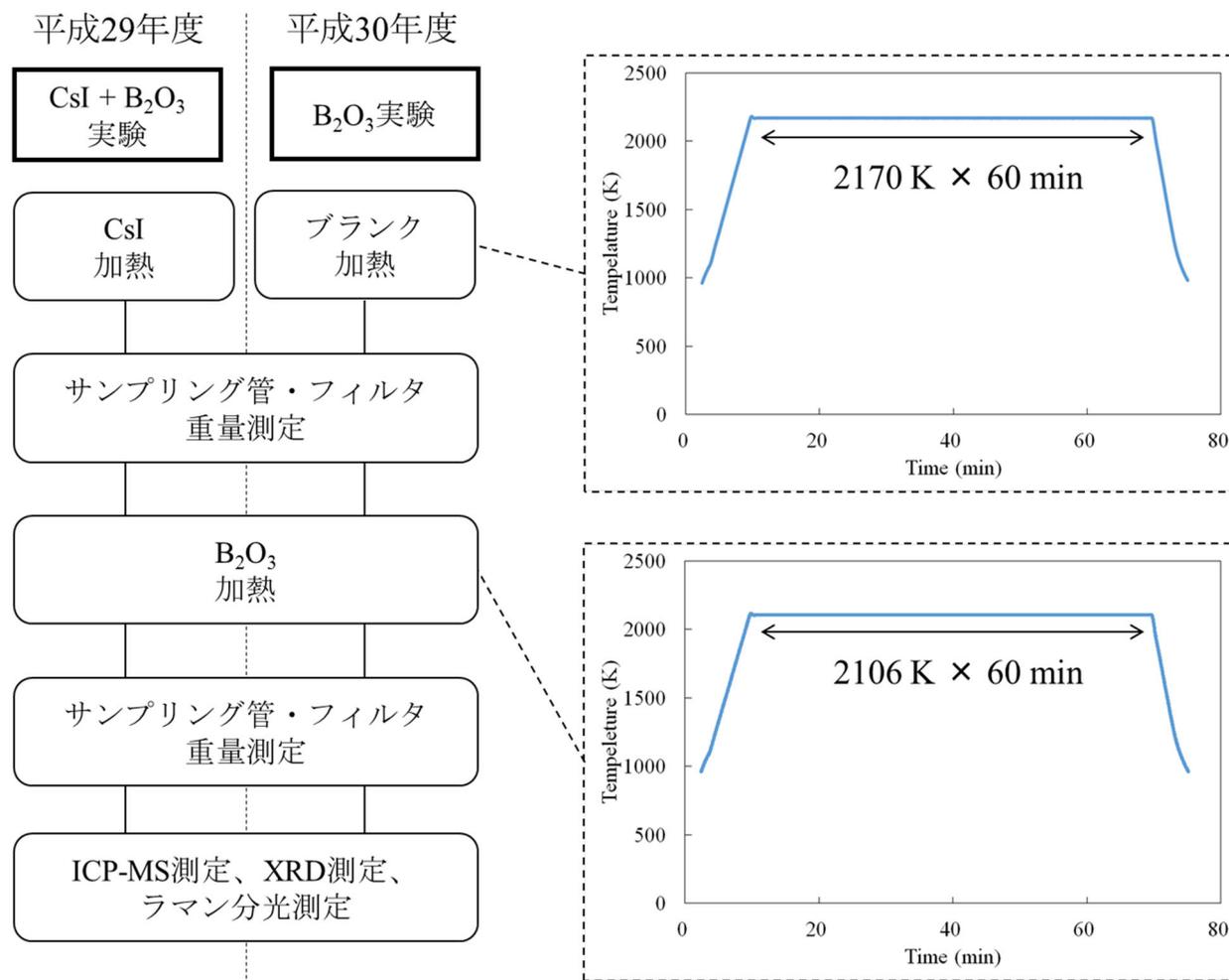


図 3.34 水素雰囲気中の固相：ヨウ化セシウム沈着物-気相：酸化ホウ素蒸気種間における高温化学反応に着目した加熱実験の実験フロー及び加熱履歴（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

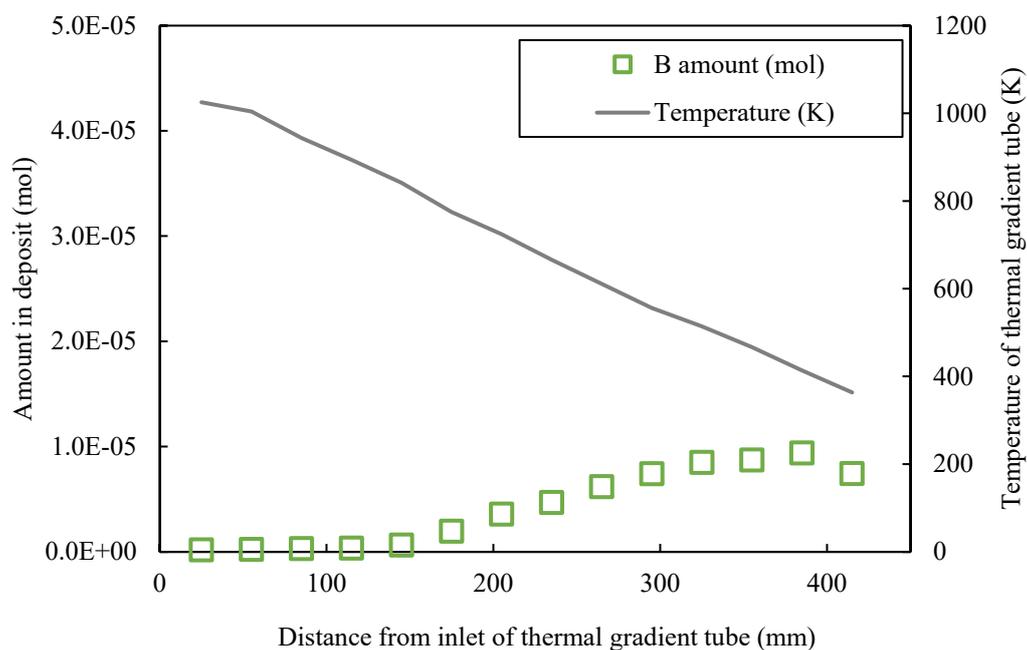


図3.35 水素雰囲気中の固相-気相間反応実験の $B_2O_3$ 実験におけるサンプリング管への付着物中のホウ素元素量（変動計数 CV 値：B-10 6.0%、B-11 6.3%）（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

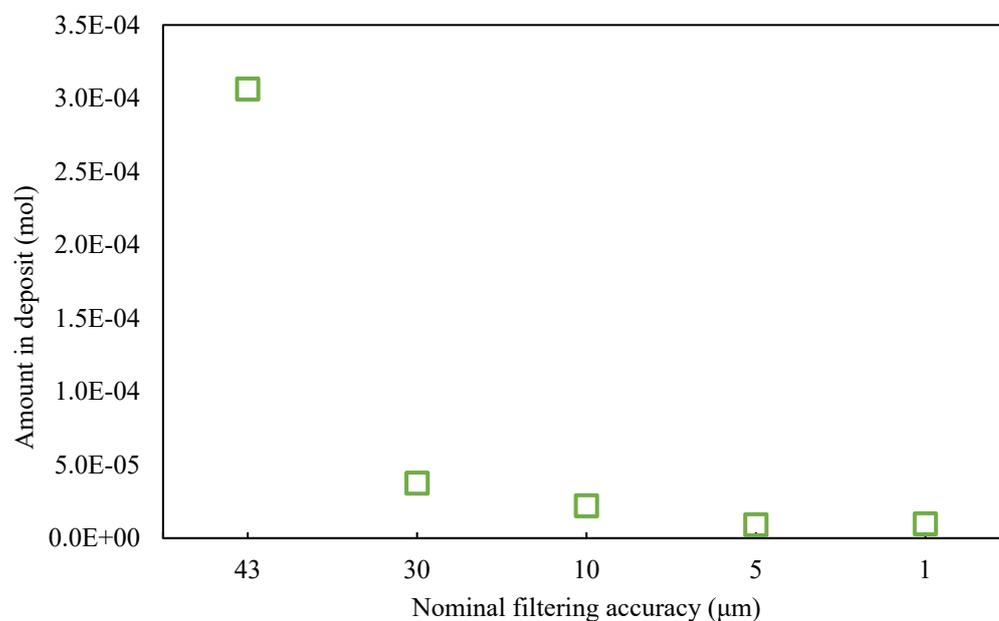


図3.36 水素雰囲気中の固相-気相間反応実験の $B_2O_3$ 実験における焼結金属フィルタへの沈着物中のホウ素元素量（変動計数 CV 値：B-10 6.0%、B-11 6.3%）（使用装置：AGF/FP 移行挙動模擬試験装置）

#### 4. ソースターム評価手法の検討

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 AGF ホット試験装置を用いて実施した照射済み燃料の加熱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[4.1.1]と 1 次元 FP 移流コード ART[4.1.2]の連成を図った。また、セシウム及びヨウ素に係る簡易 FP 化学モデルを導入した THALES2/KICHE コードを用いて 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。

##### 4.1 熱力学化学平衡計算機能の予測性能評価

本年度の事業では、VICTORIA コードにより照射済み燃料を用いた AGF 加熱実験の解析を行い、熱力学化学平衡計算機能の予測性能評価を評価した。これまで実施してきた熱力学化学平衡計算機能の予測性能評価では、実験で取得された燃料からの FP 放出速度や熱流動条件を境界条件とし、可能な限り VICTORIA コード[4.1.3]による解析の入力不確かさを低減した上で実施してきた[4.1.4-4.1.7]。一方で、照射済み燃料を使用した AGF 装置による加熱実験では、希ガス及びセシウムの燃料からの放出速度のみが得られており、その他 FP の放出速度が不明である。そこで、AGF 装置による加熱実験を解析するにあたり VICTORIA によりその他 FP の放出挙動を別途解析しその妥当性を確認 (4.1.1 項) した上で、熱力学化学平衡計算機能の予測性能評価を実施した (4.1.2 項)。

また平成 29 及び 30 年度の同事業において、熱力学化学平衡計算機能の予測性能を低下させる要因として化学反応速度を考慮できないというモデル上の限界が挙げられた[4.1.6-4.1.7]。そこで、同影響を評価するために熱力学化学平衡モデル及び化学反応速度モデルを取り扱うことができる CHEMKEq を 1 次元 FP 移流コード ART との連成を図った (4.1.3 項)。

##### 4.1.1 AGF ホット実験における FP 放出挙動の解析

###### (1) 解析条件

解析体系は、燃料を装荷したるつぼを模擬したセル 1 つのみである (図 4.1.1)。るつぼセルは、直径 7 mm、高さ 33 mm である。実験で使用した燃料は、ペレットを粉砕して使用しているが、本解析では粉砕前の燃料ペレット形状 (直径 12.4 mm、高さ 13 mm) を用いて解析している。解析で対象とする元素は、燃料由来のウラン、酸素、及び FP であるバリウム、セシウム、ヨウ素、ストロンチウム、ジルコニウム、テルル、クリプトン、キセノン、モリブデン、ルテニウム、スズ、アンチモンの全 12 元素とした。初期インベントリは、ORIGEN2 v2.2[4.1.8]で計算したものをを用いた。VICTORIA コードの燃料からの FP 放出モデルは、燃料結晶粒内での拡散を考慮する Booth モデルが採用されており、本解析で使用した拡散パラメータは、ORNL-Booth の推奨値[4.1.9]である。それぞれの拡散速度 ( $\text{m}^2/\text{s}$ ) は、以下のとおりである。

バリウム $6.4 \times 10^{-10}$	セシウム $1.6 \times 10^{-6}$	ヨウ素 $1.0 \times 10^{-6}$
ストロンチウム $2.0 \times 10^{-6}$	ジルコニウム $1.4 \times 10^{-5}$	テルル $1.0 \times 10^{-6}$
クリプトン $1.6 \times 10^{-6}$	キセノン $1.6 \times 10^{-6}$	モリブデン $1.0 \times 10^{-7}$
ルテニウム $6.4 \times 10^{-10}$	スズ $2.56 \times 10^{-7}$	アンチモン $4.0 \times 10^{-7}$

ここで、燃料結晶粒径は  $6 \mu\text{m}$  とした。燃料温度は、入力境界条件とし、実験データを使用した(図 4.1.2)。なお、燃料から放出された FP は、キャリアガスであるアルゴン  $1.0 \text{ L/min}$  によつてろつぼセルから流出する。

## (2) 解析結果

本解析で得られた FP 放出傾向を図 4.1.3 及び図 4.1.4 に示した。高一中揮発性の FP は、燃料温度が約  $1500 \text{ K}$  (解析時間 10 分時点) になると燃料から放出が始まった。同様に、実験終盤の降温により燃料温度が約  $1500 \text{ K}$  を下回ると FP 放出総量の変化はなくなった。高一中揮発性の FP について、初期インベントリに対する最終的な放出割合は、クリプトン 86.1%、キセノン 86.1%、セシウム 80.3%、ヨウ素 64.9%、テルル 60.1% であった。酸化還元条件に依存するモリブデンの放出は、なかった。これは、AGF 実験が不活性で行われたためである。また、低揮発性 FP の放出割合は、アンチモン 2.0%、ストロンチウム 0.7%、バリウム 0.2% であった。

実験で得られたセシウムの放出履歴を解析結果と比較すると、放出初期の放出量を過大評価したものの最終的な放出量はよい一致を得た。したがって、本解析で得られた FP 放出履歴は妥当であると考えられる。同放出履歴を用いた熱力学化学平衡計算機能の予測性能評価を 4.1.2 項に示す。

### 4.1.2 AGF ホット実験における熱力学化学平衡計算機能の予測性能評価

#### (1) 解析条件

解析体系は、実験装置のろつぼから温度勾配管の末端までを全 16 分割した。各実験装置構成部位の分割数は、加熱炉を 1 分割 (ろつぼを含む)、温度勾配管を 14 分割、環境セルを 1 分割とした。各ボリューム内での化学種濃度などの化学的条件や温度、圧力といった熱流動条件は一定と仮定し、沈着物の詳細な化学分析が行われた温度勾配管は重点的に細分化した。また、各分割ボリュームの構造材はステンレス鋼 (SS) とし、FP-SS 間の化学的な相互作用も考慮している。

各セル内の構造材温度には実験値を用いた。また、各ボリュームの雰囲気温度及び流速は、実験より得られた構造材温度とキャリアガス流量を用いた簡易的な熱伝達計算により決定した。キャリアガス流量は、 $1.0 \text{ L/min}$  のアルゴンガスとした。また、実験で使用したガス純度 (G1 規格) に合わせて不純物である  $0.1 \text{ vol.ppm}$  酸素  $\text{O}_2$  も考慮した。解析のタイムステップ  $1.0 \times 10^{-2} \text{ s}$  とした。

解析で模擬した実験手順に関する温度履歴を図 4.1.2 に示す。解析で模擬した実験手順は、 $3.0 \text{ K/s}$  で昇温し、燃料温度が  $2173 \text{ K}$  に到達した約 30 分保持した後に降温を行っている。実際の実験では、実験開始から約 20 分後に温度勾配管の系統を切り替えているが、

VICTORIA コードでは系統の切り替えができないため、温度勾配管の系統切り替えを行わないものとして解析を実施した。ここで、温度勾配管 A 系統の FP 分布は、解析時間の 20 分時点の分布とし、温度勾配管 B 系統の FP 分布は、解析終了時間の FP 沈着量から温度勾配管 A 系統の沈着量（解析時間 20 分時点）を差し引いたものであると仮定した。

解析の主なパラメータは、加熱炉へのホウ素注入の有無である。なお、ホウ素を含む条件での解析は平成 28 年度の本事業での AGF 実験に対応し、ホウ素を含まない条件での解析は平成 29 年度の本事業での AGF 実験に対応する。ホウ素の蒸発速度は、実験条件設定時に仮定したホウ素蒸発速度を用いた。

## (2) 解析結果

### (a) A 系統

#### ホウ素なし

ホウ素なし条件での温度勾配管 A 系統について、VICTORIA 解析で得られたセシウム、ヨウ素、テルルの分布を図 4.1.5 に示す。なお、本解析では加熱炉の模擬体系の解像度が粗く、温度勾配管の上流 2 セル（温度勾配管の壁面温度 1024、1003 K）に過剰な沈着物が予想したため、図から除外している。

セシウムは、温度勾配管の壁面温度の約 769 K 及び 411 K において沈着ピークが得られた。約 769 K の沈着ピークは実験と同様である。一方で、約 411 K の沈着ピークは実験では確認されていない。VICTORIA コードで予測された約 411 K の沈着物の駆動力は、約 61% がエアロゾルによる沈着及び約 39% 気体の壁面での凝縮によるものであった。エアロゾル沈着の主な駆動力は、熱泳動拡散によるものであった。VICTORIA コードにおいて、エアロゾルの熱泳動拡散と壁面凝縮のどちらのモデルも温度境界層厚さの影響を大きく受ける。温度境界層厚さは、ユーザーが設定した壁面温度と流体温度条件によって決定される。したがって、約 411 K の沈着ピークを誤って予測した要因は、入力の不確かさの影響であり、熱力学平衡計算機能の予測精度とは別問題であると考えられる。

実験結果と一致した約 769 K の沈着ピークについて、VICTORIA コードで予測された主要な化合物のセシウムに対する割合は 65%CsI、26%Cs<sub>2</sub>Te、6%Cs<sub>2</sub>O、3%Cs<sub>3</sub>CrO<sub>4</sub> であった。本結果は、平成 30 年度事業での本実験の解釈[4.1.5]と同様である。

ヨウ素は、温度勾配管の A 系統において、約 769 K のみに沈着ピークが予測された。実験でも同温度域の沈着ピークのみが得られており、VICTORIA コードは良い精度でヨウ素挙動を予測できていると考えられる。沈着物の構成化合物のヨウ素に対する割合は、100% CsI であった。

#### ホウ素あり

ホウ素あり条件での温度勾配管 A 系統について、VICTORIA 解析で得られたセシウム、ヨウ素、テルル、ホウ素の分布を図 4.1.6 に示す。実験では A 系統においてホウ素の沈着が確認されておらず、本解析結果と異なる。これは実験条件の設計時で想定したホウ素放出速度（A 系統での放出速度が大きい）を用いた解析を行ったためである。詳細については、平成 29 年度の同事業報告書[4.1.4]を確認の事。したがって、適切なホウ素放出速度を用い

た場合は、ホウ素を含まない A 系統の沈着分布（図 4.1.5）と類似傾向があると想定される。実際に、A 系統のセシウム、ヨウ素、テルルの沈着分布は、ホウ素の有無をパラメータとした実験間で同様である。

#### (b) B 系統

##### ホウ素なし

ホウ素なし条件での温度勾配管 B 系統について、VICTORIA 解析で得られたセシウム、ヨウ素、テルルの分布を図 4.1.7 に示す。なお、4.1.2 項(2) 解析条件に示した通り、VICTORIA コードの仕様のため、温度勾配管の切り替えを行わず同一配管で解析を実施している。そのため、B 系統の沈着分布は最終解析時間の沈着分布から A 系統の沈着量を除したものである。本仮定において A 系統での沈着物が再蒸発した場合、系統 B の分布に影響する点に留意されたい。実際に、最終解析時間の沈着量を系統 A の沈着量で除した際、本仮定の影響と思われる負値を示す箇所が数か所あった。

セシウムは、温度勾配管の壁面温度の約 723 K 及び 350 K において沈着ピークが得られた。約 723 K の沈着ピークは実験と同様である。一方で、約 350 K の沈着ピークは実験では確認されていない。実験結果と一致した約 723 K の沈着ピークについて、VICTORIA コードで予測された化合物のセシウムに対する割合は 62%CsI、28%Cs<sub>2</sub>Te、7%Cs<sub>2</sub>TeO<sub>3</sub>、4%Cs<sub>3</sub>CrO<sub>4</sub>であった。また 350 K での沈着物は、63%Cs、23%Cs<sub>2</sub>Te、10%CsI、4%Cs<sub>2</sub>O であると予想された。金属 Cs は大気圧の常温でも比較的反応性が高い化合物であるため、非現実的な結果であると考えられる。そのため、入力不確かさ等による同解析の予測精度低下が疑われる。入力条件再検討が必要であると考えられる。具体的には、VICTORIA コードのオプション“Frozen Chemistry”を 500 K 以下で有効にして解析した影響と思われる。ここで、“Frozen Chemistry”が有効の場合は、化学変化による化学種変化は行わず、気体-凝縮物間の相変化のみが許容される。

ヨウ素は、温度勾配管の B 系統において、約 723 K のみに沈着ピークが予測された。実験でも同温度域の沈着ピークのみが得られており、VICTORIA コードは良い精度でヨウ素挙動を予測できていると考えられる。沈着物の構成化合物は、100% CsI であった。

##### ホウ素あり

ホウ素あり条件での温度勾配管 B 系統について、VICTORIA 解析で得られたセシウム、ヨウ素、テルル、ホウ素の分布を図 4.1.8 に示す。

セシウムは、温度勾配管の壁面温度の約 911 K 及び 769 K において沈着ピークが得られた。また、600~500 K にブロードな沈着も見られた。約 723 K の沈着ピークと 600~500 K におけるブロードな沈着は実験と同様である。一方で、約 911 K の沈着ピークは実験では確認されていない。実験結果と一致した約 769 K の沈着ピークについて、VICTORIA コードで予測された化合物のセシウムに対する割合は 37%CsI、38%Cs<sub>2</sub>Te、25%CsBO<sub>2</sub>であった。また 560 K での沈着物は、50%CsBO<sub>2</sub>、36%Cs<sub>2</sub>Te、14%CsI であると予想された。本結果は、平成 30 年度事業での本実験の解釈[4.1.5]と同様である。また、実験で確認されていない解析における約 911 K の沈着ピークは、91%が CsBO<sub>2</sub>であった。A 系統のホウ素なし解析結果に示した

通り、本解析ではホウ素放出速度が適切に与えられていないため、同入力不確かさの影響であると推定される。

ヨウ素は、温度勾配管の B 系統において、約 769 K のみに沈着ピークが予測された。実験でも同温度域の沈着ピークのみが得られており、VICTORIA コードは良い精度でヨウ素挙動を予測できていると考えられる。沈着物の構成化合物は、100% CsI であった。

#### 4.1.3 FP 移流コードと機構論化学モデルの連成

本項では、これまで原子炉冷却系における化学モデルを考慮できなかった FP 移行挙動評価コード ART[4.1.2]へ機構論的な化学モデル（平衡論、反応速度論）の導入を図った。化学モデルの導入においては、以下のプログラム構造上の課題を有する。なお ART コードと同様の FP 移行挙動モデルを有する数値解析コード（例：MELCOR[4.1.10]）についても、機構論的な化学モデルを導入する場合同様の課題を有すると考えられる。

##### ① 取り扱い FP 数の増加（数十 → 数百）

従来の FP 移行挙動評価コードでは、計算コストを削減するために化学・物理挙動が類似する FP 元素を 1 つのクラスとして定義しており、約 15 のクラス数まで取り扱っている。また、ソースターム評価上で重要かつ、特有の化学・物理挙動を示す化合物（例：CsI や Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>）の場合、新規のクラスを定義し個別の対応が行われている。このように従来の FP 移行挙動評価コードで想定される FP 数は、せいぜい数十種である。一方で、化学モデルを使用している VICTORIA コードでは、26 元素に対して 288 の化学種が登録されている[4.1.3]。したがって、化学モデルを導入するにあたり、数百種の FP を扱うことができるプログラム構造が必要である。具体的には、計算コストとプログラム保守管理の点である。

##### ② 微分方程式の硬さの増加

従来の FP 移行挙動評価コードでは、各 FP クラスの各状態（気体、エアロゾル、セル番号等）の質量に関する微分方程式を陽的オイラー法等により  $\Delta t$  秒後の FP 分布を計算している。一般に物理現象の質量変化速度の時間スケールは、数ミリ～数秒である。一方で化学反応速度は、数ナノ～数マイクロ秒の幅広い時間スケールの速度を持つ。したがって、化学モデルと FP 移行挙動評価コードを連成した場合、微分方程式の硬さが増加する（安定解を得るためにより小さな  $\Delta t$  が必要になる）と想定され、広い数値計算の安定領域を有する微分方程式アルゴリズムの使用又は、物理現象モデルと化学モデルのそれぞれ独立した取り扱いが求められる。

本項で連成した ART コードでは、①の対策としてオブジェクト指向の導入及び、取り扱い FP 元素/化学種情報を外部データベースにより定義する構造とした。②の対策としては、VICTORIA コードと同様に物理現象モデルと化学モデルをそれぞれ独立の取り扱いとした。

#### 参考文献

- [4.1.1] 伊藤, 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.
- [4.1.2] 石神, 他, 炉心溶融事故時 FP 移行挙動解析コード ART の使用手引き, JAERI-M 88-093, 1998 年 5 月.
- [4.1.3] 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.
- [4.1.4] 平成27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28年3月.
- [4.1.5] 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.
- [4.1.6] 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.
- [4.1.7] 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 改訂版, 日本原子力研究開発機構, 平成31年4月.
- [4.1.8] A. G. Groff, "A User's Manual for the ORIGINE2 Computer Code," ORNL/TM-7175, 1980.
- [4.1.9] K. Ross et al., "MELCOR Best Practices as Applied in the State-of-the-Art Reactor Consequence Analysis (SOARCA) Project," NUREG/CR-7008, U.S.NRC, Aug 2014.
- [4.1.10] L. L. Humphries et al., "MELCOR Computer Code Manuals Vol. 2: Reference Manual Version 2.2.9541," SAND2017-0876 O, U.S.NRC, Aug 2017.

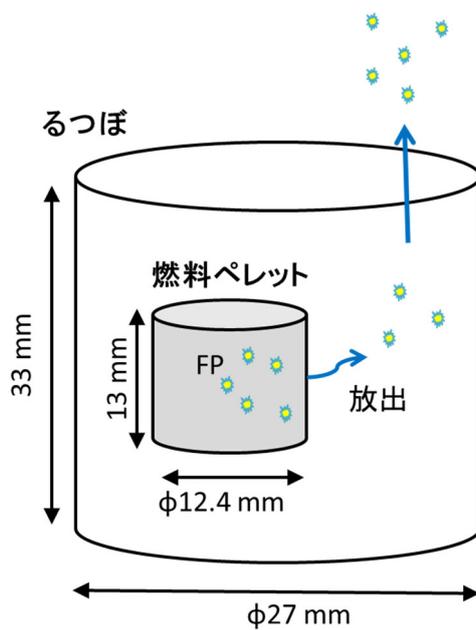


図 4.1.1 AGF ホット試験装置を用いた加熱実験の解析体系 (FP 放出速度)

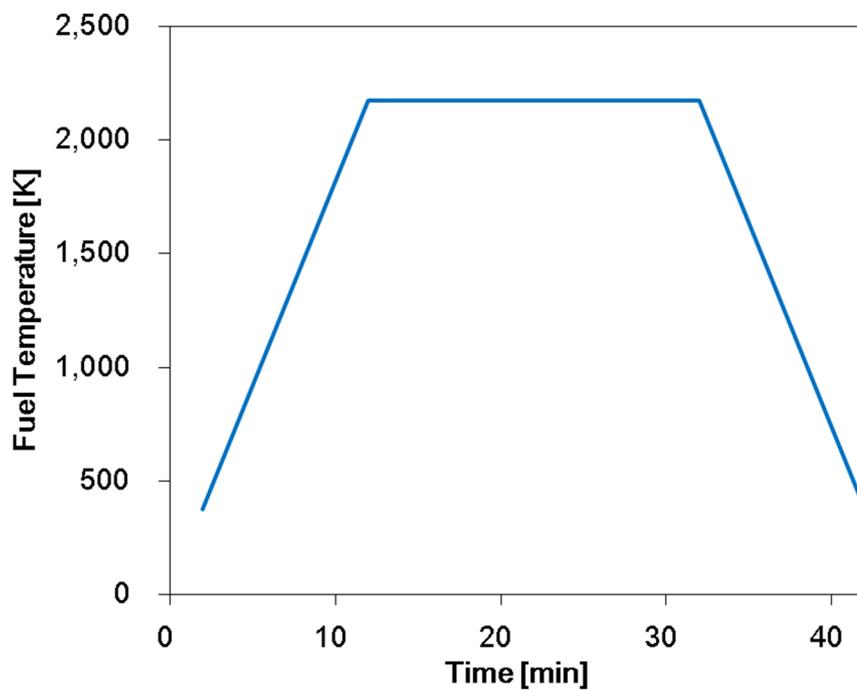


図 4.1.2 AGF ホット試験装置を用いた加熱実験の解析における燃料温度履歴

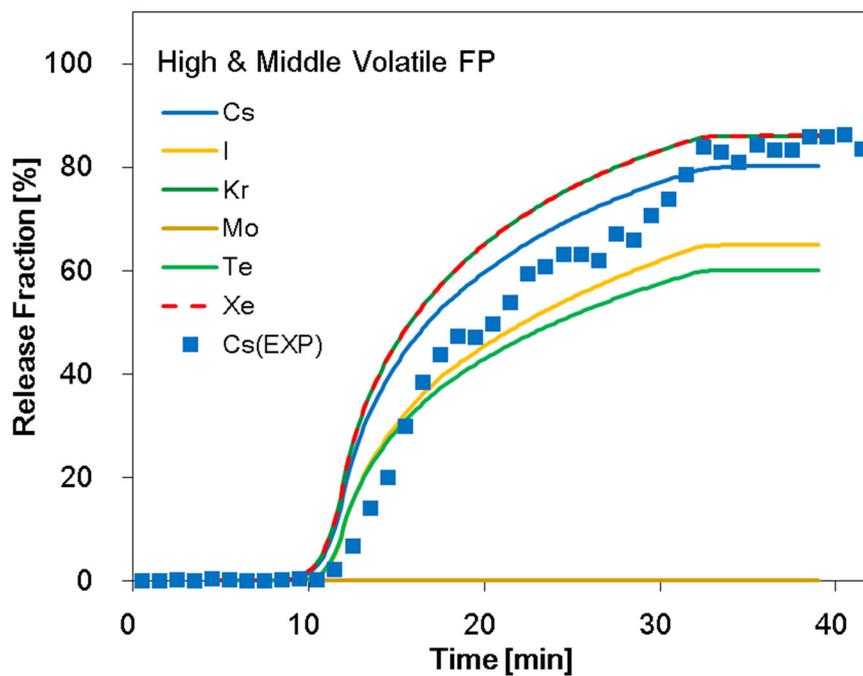


図 4.1.3 VICTORIA コードによる高-中揮発性 FP の積算放出量の経時変化

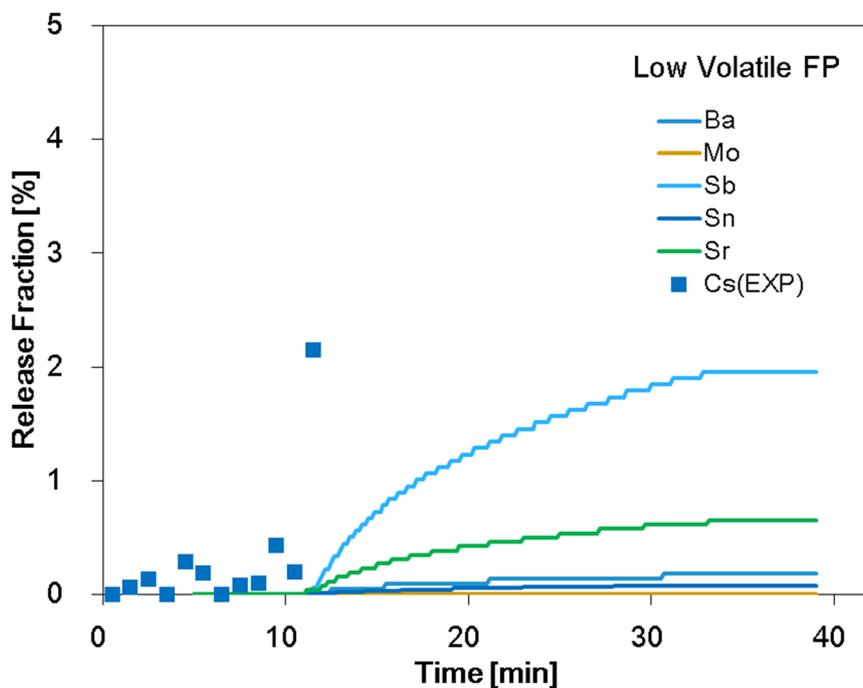


図 4.1.4 VICTORIA コードによる低揮発性 FP の積算放出量の経時変化

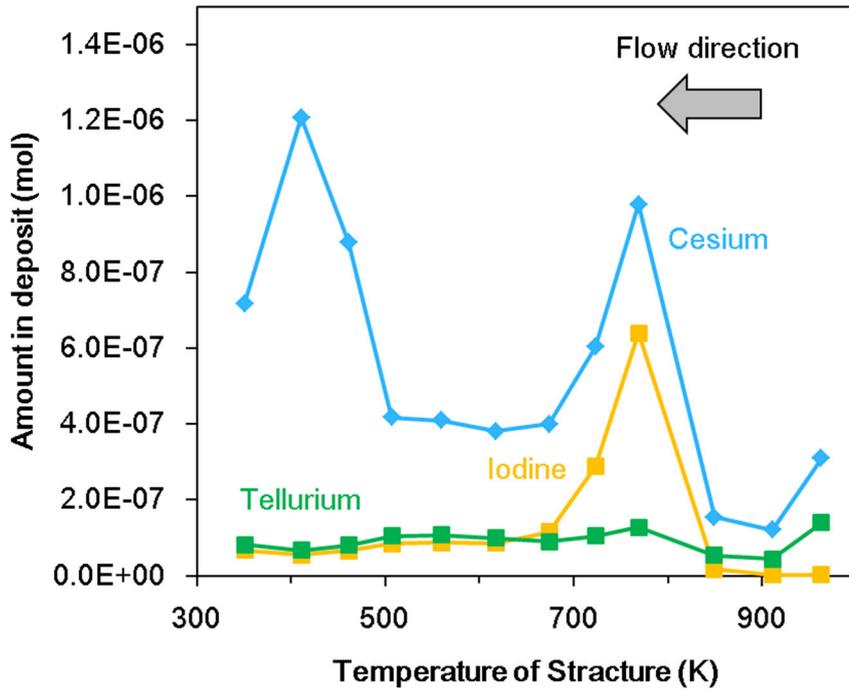


図 4.1.5 VICTORIA 解析（ホウ素なし）による温度勾配管 A 系統での FP 沈着量

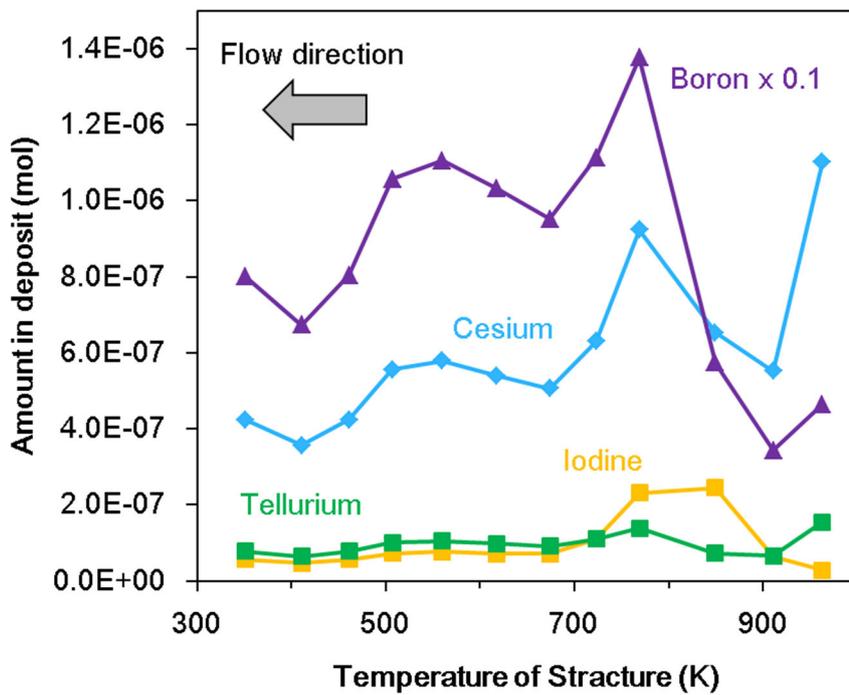


図 4.1.6 VICTORIA 解析（ホウ素あり）による温度勾配管 A 系統での FP 沈着量

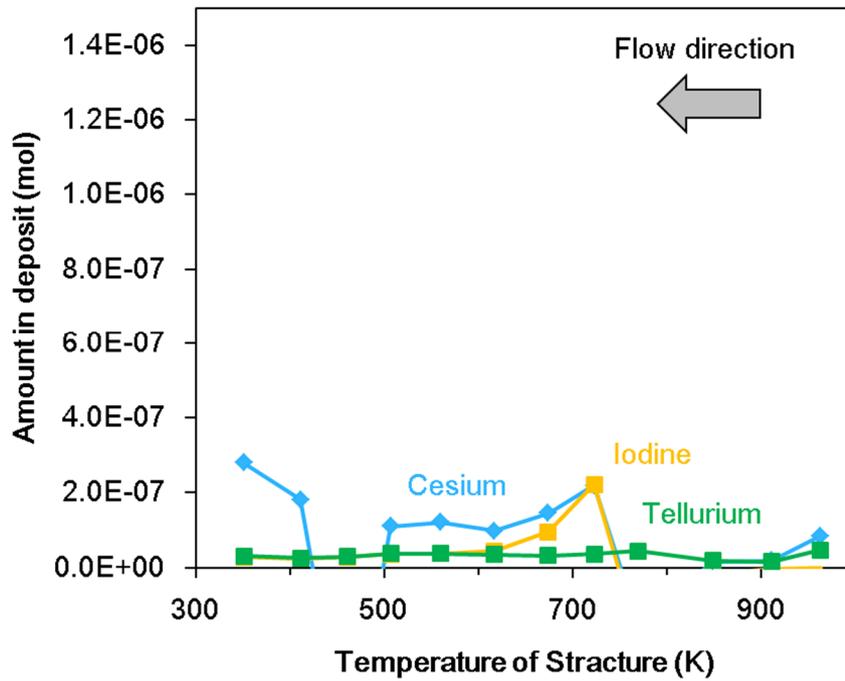


図 4.1.7 VICTORIA 解析（ホウ素なし）による温度勾配管 B 系統での FP 沈着量

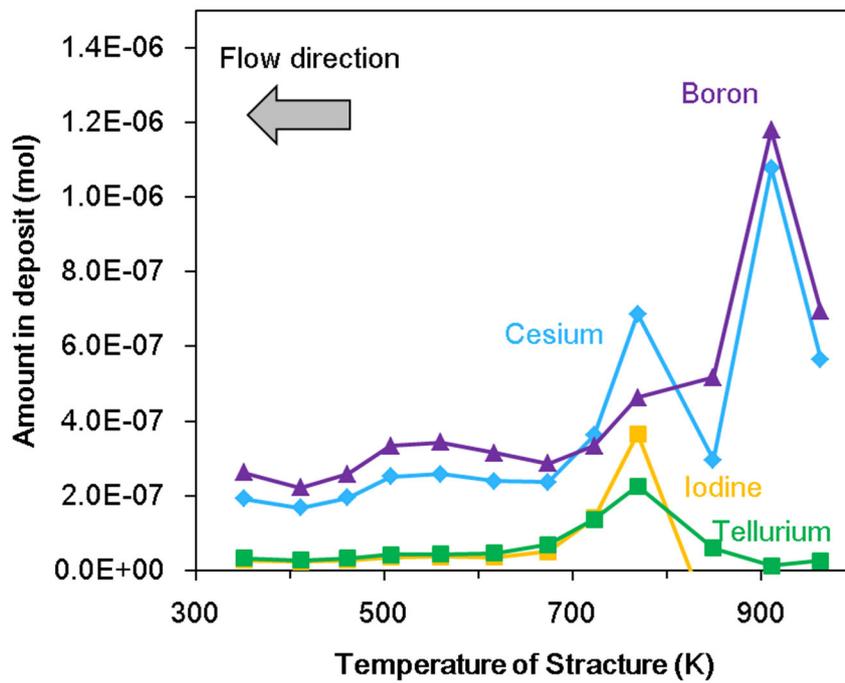


図 4.1.8 VICTORIA 解析（ホウ素なし）による温度勾配管 B 系統での FP 沈着量

## 4.2 BWR ソースターム解析

### 4.2.1 シビアアクシデント総合解析コードへの FP 化学形予測モデルの導入

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。それ故、平成 30 年度までの事業において、原子力機構内及び国際協力で実施した実験及び解析に基づいた核分裂生成物 (FP) 化学形の予測モデルを構築し、THALES2/KICHE [4.2.1 - 4.2.2]に導入するとともに、本コードを実機 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した。

平成 30 年度[4.2.3 - 4.2.4]までに得られた知見を以下に示す。

- ▶ 昨年度は FP 化学形の簡易予測モデル (FP 化学種平衡組成予測モデル) を導入した THALES2/KICHE を用いて、BWR4/Mark-I の代表的な事故シナリオ (炉心冷却機能喪失 TQUV 及び全交流電源喪失 TB のドライウェル過圧破損、並びに格納容器ベント作動のシナリオ) に適用し、ソースタームへの影響について検討した。なお、格納容器形状が異なる BWR5/Mark-II に対して炉心損傷事故シーケンスは限定的だが実施した。
- ▶ 原子炉冷却系内 FP 挙動において、ホウ素は、ヨウ素及びセシウムの FP 的挙動に影響を及ぼし、ヨウ化セシウム CsI、ホウ酸セシウム CsBO<sub>2</sub>、モリブデン酸セシウム 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。格納容器へ移行化学種として、従来、考えられてきた強塩基の水酸化セシウム CsOH の化学形で移行するのではなく、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> 及び CsBO<sub>2</sub> など弱塩基性の化学種での移行が顕著となることで、CsOH での移行を想定した場合よりも格納容器 pH が 1 程度低下する可能性がある。
- ▶ pH の低下により、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示唆されたが、昨年度の解析結果では、環境放出は CsI が主であり、ガス状ヨウ素の顕著な放出とはなっていない。セシウム化学種については、原子炉冷却系内 FP 化学により、CsOH よりも飽和蒸気圧が低い CsBO<sub>2</sub> や Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> となることで、原子炉建屋などの移行経路で沈着が促進され、セシウムのソースタームは低減する傾向がある。
- ▶ 上記傾向は、現状では解析の対象とした事故シーケンスは限定されており、事故シーケンスの拡張した検討が必要となる。THALES2 への導入した FP 化学種平衡組成予測モデルの予測精度はデータベースが関わっている。本モデルは、原子炉冷却系内を対象としており、これまでの解析に対しては影響がないが、格納容器バイパス事象などで想定される原子炉建屋など低濃度条件へ適用すると予測精度が低下する恐れがある。予測モデルの適用範囲の拡張には、代替統計モデルのデータベースの拡張などが必要と考えられる。

#### 4.2.2 FP 化学種平衡組成予測モデルの高度化

シビアアクシデント総合解析コードで原子炉冷却系内 FP 化学を考慮するには、化学平衡組成計算コードを総合コードに直接組み込む方法と代替統計モデルを利用する方法が考えられる。本事業では、化学平衡組成計算コードとして当初は VICTORIA [4.2.5] を使用したが、著作権上の理由から同コードを直接 THALES2 に導入することが出来ず、VICTORIA 解析で作成したデータベースに基づいて構築した代替統計モデルを THALES2 コードに導入する方法を採用した経緯がある。その後、化学組成評価コード CHEMKEq [4.2.6] を原子力機構で開発したことにより THALES2 コードに直接 FP 化学モデルを組み込むことが可能になったが、CHEMKEq は開発途上であり、不確かさ解析や感度解析への適用を見越した場合に計算時間の短縮を図ることが望ましいことも考慮し、代替統計モデルを用いるアプローチも継続している。

代替統計モデルとしては、予め用意したデータベースから K 近傍法により近似解を抽出する手法を採用している。本モデルの性格上、計算精度はデータベースに依存し、また、適用範囲の拡張には代替統計モデルの機械学習を含めたデータベースの拡張が必要である。THALES2 に導入した代替統計モデルでは、原子炉冷却系内を想定し、適用下限値をヨウ素濃度  $1.0 \times 10^{-2}$  (mol/m<sup>3</sup>) 程度とした。しかし、压力容器破損後の原子炉冷却系内、格納容器や原子炉建屋内などではヨウ素濃度が下限値以下となり予測精度が大幅に低下するため、これらの解析に適用するにはデータベースの拡張が必要である。

一方、原子力機構は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 CHEMKEq コードを開発した。現時点において反応速度論モデルは未だ開発段階にあるため利用できるのは化学平衡論モデルのみであるが、これを THALES2 コードに組み込み、機能を直接利用できるようにした。この場合、より広い範囲の条件に対して予測精度を確保できるが、代替統計モデルよりも計算時間を要する。

上に示した 2 つのモデルを目的や適用条件に応じてユーザーが使い分けることが可能であるが、これに加えて、代替統計モデルの精度が落ちる領域（適用範囲外）が呼び出された場合のみ CHEMKEq コードを利用することで計算速度維持と精度の両立を図るハイブリッドモードを用意した。その概念図を図 4.2.1 に示す。

#### 4.2.3 FP 化学種平衡組成予測モデルの評価

FP 化学種平衡組成予測モデルとして導入した CHEMKEq コードの傾向把握と予測性能検証計算について述べる。

##### (1) データベース及び代替統計モデルの概要

代替統計モデルは、予め用意したデータベースに基づき、比較的単純な演算により高速で近似値を得るための手法である。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の作成にあたり、原子力機構が開発を進めている化学組成評価コード CHEMKEq を利用して原子炉冷却系内の実機事故条件（約 2 万点）に対する多ケース解析を実施した。データベースの入出力情報及び想定化学種を表 4.2.1 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といった 6 個のパラメータを入力

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。本事業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代替統計モデルを構築した [4.2.3]。K 近傍法によるデータ抽出例を図 4.2.2 に示す。FP 化学組成を求める条件は 6 個の入力パラメータ（すなわち、6 次元空間上の座標）で指定される。この入力点に近いデータ点をデータベースから K 個（10 個程度）抽出し、これらの線形回帰により入力点に対する近似解を予測する。なお、この手順で評価できる化学種は 1 つなので、評価したい化学種の数だけデータベースを用意し、上記の評価を繰り返す。

近傍データの抽出では 6 次元空間での距離（ユークリッド距離）を判定に利用する。しかし、6 個の入力パラメータの数値のオーダーが異なるため、距離に対して特定のパラメータが大きな感度を持つことを防止するには各入力パラメータに適切な重みを設定する必要がある。この重みの決定には機械学習の技術を適用した。

## (2) CHEMKEq コードの傾向把握

CHEMKEq コードは原子力機構が開発中の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であるが、反応速度論は未だ開発段階にあることから、本事業では化学平衡論のモデルのみを利用した。

THALES2コードへのCHEMKEqコード導入に向けた傾向把握のために試解析を実施した。その解析条件を表4.2.2に示す。元素濃度や雰囲気条件など基本的な解析条件は、THALES2の全交流電源喪失TBシーケンスの結果を参考に設定した。なお、ヨウ素及びセシウム化学種の平衡組成はホウ素濃度によって傾向が異なることから、解析ケースとしてホウ素あり、なしの2ケースを実施した。CHEMKEq計算では、CsI、Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>、CsBO<sub>2</sub>などのFP化学種平衡組成予測モデルで採用した主要な化学種以外にCs<sub>2</sub>I<sub>2</sub> (g)、単体Cs(g)など多数の化学種を扱っているが、その大半は組成比としては0.1%以下であり少ない。ここでは想定した500~2500 Kの温度域で存在割合1%以上の化学種（表4.2.3参照）を抽出し、化学種組成の温度依存性を図4.2.3に整理した。上段がヨウ素化学種、下段の図がセシウム化学種の結果を表し、左側がホウ素なし条件、右側がホウ素あり条件での化学種組成の傾向を示している。ヨウ素化学種は、低温域ではCsI、高温ではIの化学形が支配的である。高温においては、ホウ素が存在する場合、反応式(3.1)から式(3.5)によりHIが生成される。セシウム化学種については、ホウ素なし条件では、低温域ではCs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>、高温域ではCsOHが支配的となるが、ホウ素あり条件では高温域ではCsBO<sub>2</sub>の化学形が支配的となる傾向が示された。

## (3) FP 化学種平衡組成予測モデルの検証

FP 化学種平衡組成予測において、代替統計モデルに加えて、熱力学計算コード(CHEMKEq)を直接利用できるよう改造を行った。ただし、熱力学計算コードの直接利用は計算時間の増大を引き起こすことから、通常は代替統計モデルを利用し、データベース適用範囲外ではCHEMKEqに切り替えるハイブリッドモードを設けた。

検証のためデータベース 1000 K に属する 1000 個のデータセットを利用した。1000 個の入力条件に対し、FP 化学種平衡組成予測モデル (代替統計モデルのみ使用) と CHEMKEq との結果の比較を図 4.2.4 に示す。本図には、結果の例として温度域 1000 K で支配的となる CsI と Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> に対する比較を示した。横軸が CHEMKEq 結果、縦軸が代替統計モデルの結果であり、傾き 1 のラインに近づくほど精度が良いことを表す。低濃度条件では予測精度が低下する傾向が確認できる。低濃度 ( $1.0 \times 10^{-3}$  mol/m<sup>3</sup> 以下) で CHEMKEq に切り替えるハイブリッド機能を利用した結果比較を図 4.2.5 に示す。全化学種に対して大幅に精度が向上していることが確認できた。これにより、低濃度での予測精度の向上を図るとともに、原子炉冷却系以外のボリュームや小規模体実験系への適用解析が可能となった。また、CHEMKEq コードを使った際の結果をデータベースに追加することで、代替統計モデルのデータベースの拡張も同時に進めることが可能となる。

なお、THALES2 導入前の CHEMKEq 単体テストでは、1000 ケースの計算を代替統計モデルが 0.2 秒で終了するのにに対し、CHEMKEq では Cs-I-Mo=B-C-O-H システムに属する 135 化学種の熱力学平衡計算に 8 分程度を要している。

#### 4.2.4 BWR ソースターム解析

FP 化学種組成予測モデルとして CHEMKEq を直接利用し、THALES2/KHCE を用いて BWR4/Mark-I プラントを対象にソースターム解析を実施した。本プラント諸元及び解析シナリオに関わる条件を図 4.2.5 及び表 4.2.4 に示す。解析シナリオとして、全交流電源喪失事故シーケンスのドライウェル過圧破損を選定した。本シナリオの下で原子炉冷却系内 FP 化学に関わる感度解析を実施した。表 4.2.5 に示すように、原子炉冷却系内 FP 化学を考慮しない場合と、3 通りの方法 (代替統計モデル、CHEMKEq、ハイブリッド) で考慮する場合の合計 4 ケースを実施した。

##### (1) 熱水力挙動の概要

最初に、解析のベースとなる BWR4/Mark-I プラント、全交流電源喪失シーケンス (TB) 過圧破損ケースの熱水力挙動について述べる (図 4.2.7 参照)。TB シーケンスでは、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 (RCIC) による炉心注水が継続する。その後、8 時間で制御用電源である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 4.2.6 事象進展時刻を参照)。本事故シーケンスでは制御用電源が枯渇するため、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。さらに、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 19 時間程度で格納容器が過圧破損に至る。

##### (2) プラント全体の FP 挙動

FP 挙動に関わる理解促進のため、プラント全体でのヨウ素及びセシウムの挙動の概要を説明する。TB シーケンス過圧破損ケースの (a)ヨウ素及び (b)セシウム挙動を図 4.2.8 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。原子炉冷却系 (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得る。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。18 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 18%が RCS 内に沈着し、残りの大部分 (74%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路でドライウェル (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路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、16%程度のヨウ素が RCS 内に存在し、残り 75%程度が W/W に移行する結果となった。

### (3) RCS 内 FP 化学に関わる感度解析

RCS 内 FP 化学に関する感度解析として、RCS 内 FP 化学を考慮しない場合と RCS 内 FP 化学を考慮した場合で FP 化学種平衡組成予測モデルが異なる 3 ケース(代替統計モデル、CHEMKEq 熱化学平衡計算利用、ハイブリッド利用)の合計 4 ケースを実施した (表 4.2.5 解析ケース参照)。ここで RCS 内 FP 化学なしケースとは、ヨウ素及びセシウムの化学形として CsI 及び CsOH を仮定したものである。なお、RCS 内 FP 化学計算は原子炉冷却系内のボリュームに限定している。また、化学変化の対象は雰囲気中に浮遊するガス及びエアロゾルに対して考慮し、壁や床に沈着した化学種に対しては実験でその効果が確認できていないため考慮しないこととした。ホウ素の影響を含む RCS 内 FP 化学の考慮することで、化学反応により様々な化学形となり、プラント内を移行する。

#### 1) 格納容器移行化学種への影響

ヨウ素及びセシウム化学種の格納容器への移行を図 4.2.9 及び図 4.2.10 に示す。本結果は初期炉内インベントリに対する割合で示した。ヨウ素については、RCS 内 FP 化学を考慮することにより、CsI に加えて、ガス状ヨウ素 HI での格納容器への移行が増加している。なお、元素状ヨウ素 I は、図 4.2.3 に示すように 1000K 以上など高温域ほど存在割合が増加する。炉心溶融時には一時的に蒸気ドームは 1000K を超えるが、殆どが 1000K 以下となるため格納容器への移行は CsI 又は HI で移行が主である。FP 化学種平衡組成予測モデルの違いについては、ハイブリッド使用ケースが CHEMKEq の結果に近く、代替統計モデルよりも精度が向上していることが確認できる。ただしその違いは小さく、ほぼ同等と考えて良い。

セシウム化学種については、FP 化学なしでは CsOH として挙動するのに対し、RCS 内 FP 化学の考慮することにより、1000K 以下で比較的安定な Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> 化学種への置換が促進される。ヨウ素化学種と同様に、FP 化学種平衡組成予測モデルの違いは小さい。

#### 2) 格納容器 pH への影響

格納容器 pH への影響を図 4.2.11 に示した。pH は移行化学種だけでなく、温度にも影響

される。炉心損傷前の 12 時間程度まで pH が低下するのは、RCIC 継続により W/W の水温が上昇することによる。常温では pH=7 が中性だが、温度が上昇すると中性の pH 値が低下、炉心損傷前の 12 時間程度で pH は 6 程度まで低下する。RCS 内 FP 化学を考慮しないケースでは、強塩基性の CsOH の化学形で格納容器に移行するため pH は炉心損傷前と比べ 1 程度上昇する。RCS 内 FP 化学を考慮することにより、強酸 HI や弱塩基性の Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> などの化学種で移行することで、CsOH と仮定した場合より pH が低下する。CHEMKEq 及びハイブリッド使用ケースに対して、代替統計モデルでは計算精度の影響により移行化学種の僅かな違いにより pH に差が生じている。しかしながら、FP 化学を考慮しないケースと比べ、結果の傾向は再現できている。

### 3) ソースタームへの影響

ヨウ素化学種の環境への移行割合を図 4.2.12 に示す。RCS 内 FP 化学を考慮しない場合、CsI 化学種のみ移行となる。RCS 内 FP 化学の考慮することで、CsI の一部が HI に転じ、CsI のソースタームは低下する結果となった。これは、HI が液相に吸収されやすいこと、pH 低下に至ったとしても環境へのヨウ素の放出は CsI が支配的であり、有意な分子状ヨウ素 (I<sub>2</sub>) や有機ヨウ素 (Org-I) の放出増加にはなっていないことによる。また、セシウム化学種の環境への移行割合を図 4.2.13 に示す。RCS 内 FP 化学を考慮することで、飽和蒸気圧が低い CsBO<sub>2</sub> や Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> などの化学種が生じる。RCS 内 FP 化学を考慮せず CsOH のみを仮定した場合と比べると、原子炉建屋などの移行経路上での沈着が増えることでセシウムの環境放出が低下する傾向が示された。

### 4.2.5 まとめ

原子力機構が開発した化学組成評価コード CHEMKEq をシビアアクシデント総合解析コード THALES2 に導入した。これにより、原子炉冷却系内の FP 化学種平衡組成予測モデルとして、以前導入した代替統計モデルに加えて、CHEMKEq 利用及び代替統計モデルと CHEMKEq のハイブリッド利用が可能になった。また、今回は機能拡張した THALES2 コードを全交流電源喪失事故シーケンスのソースターム解析に適用したが、FP 化学種平衡組成予測モデルの適用範囲の拡大により、原子炉冷却系外での FP 化学挙動が重要になるケースへの適用 (例えば、格納容器バイパスなどの事故シナリオ) が可能となった。

CHEMKEq を使用した場合、計算時間が代替統計モデルを使用した場合の 3 倍程度に増加している (表 4.2.7 参照)。FP 化学種平衡組成予測モデルの選定については、適用条件や計算コストなどを考慮し、総合的に判断することが望ましい。

#### 参考文献

- [4.2.1] 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.
- [4.2.2] 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.
- [4.2.3] 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.
- [4.2.4] 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 改訂版, 日本原子力研究開発機構, 平成 31 年 4 月.
- [4.2.5] 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.
- [4.2.6] 伊藤, 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.

表 4.2.1 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(-)	同上
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 4.2.2 CHEMKEq 計算条件

解析ケース	I濃度 (kmol/L)	Cs濃度 (kmol/L)	Mo濃度 (kmol/L)	B濃度 (kmol/L)	全圧 (MPa)	雰囲気濃度比 (H <sub>2</sub> O/H <sub>2</sub> )
ホウ素無し	0.01	0.1	0.1	B無(=0.0)	0.1	100
ホウ素あり	0.01	0.1	0.1	B有(=1.0)	0.1	100

表4.2.3 CHEMKEq結果の整理(主要な化学種抽出)

化学種	主要	整理 (g: ガス, s: 固相)
ヨウ素	① CsI	CsI(s)+CsI(g)
	② I	I(g)
	③ HI	HI(g)
セシウム	① CsI	CsI(s) + CsI(g)
	② Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub>	Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> (s) + Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> (g)
	③ CsBO <sub>2</sub>	CsBO <sub>2</sub> (s) + CsBO <sub>2</sub> (g)
	④ CsOH	CsOH(s) + CsOH(g)

表 4.2.4 プラント仕様及び事故シナリオに関する条件

プラント	BWR4/Mark-I
熱出力 (万 kWe)	78.4
直流電源容量	8 時間
格納容器設計圧 (kgf/cm <sup>2</sup> g)	3.92
格納容器破損圧力	設計圧×2 倍
格納容器破損位置及びサイズ	ドライウエル気相部、0.01 m <sup>2</sup>

表 4.2.5 解析ケース

解析ケース	RCS内FP化学計算モデル
1	FP化学なし
2	FP化学あり(代替統計モデル利用) <sup>#1</sup>
3	FP化学あり(CHEMKEq利用) <sup>#1</sup>
4	FP化学あり(ハイブリッド利用) <sup>#1 #2</sup>

#1: RCS内FP化学計算は原子炉冷却系内のボリュームに限定

#2: 代替統計モデルを使用するが適用限界 $1.0 \times 10^{-3}$  (mol/m<sup>3</sup>)以下ではCHEMKEqに切り換え

表 4.2.6 イベント時刻 (BWR4/Mark-I、全交流電源喪失事故シーケンス)

イベント事象	炉停止後の時刻 (hours)
ギャップ放出開始*	12.2
炉心損傷開始**	12.8
下部炉心支持板破損	13.7
圧力容器破損	17.8
格納容器破損 (過圧破損)	18.6

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

表 4.2.7 解析ケースの計算時間

FP化学種平衡組成予測モデル	代替統計モデルに対する比 (-)
代替統計モデル利用	1.0
CHEMKEq利用	2.8
ハイブリッド利用	2.6 #2

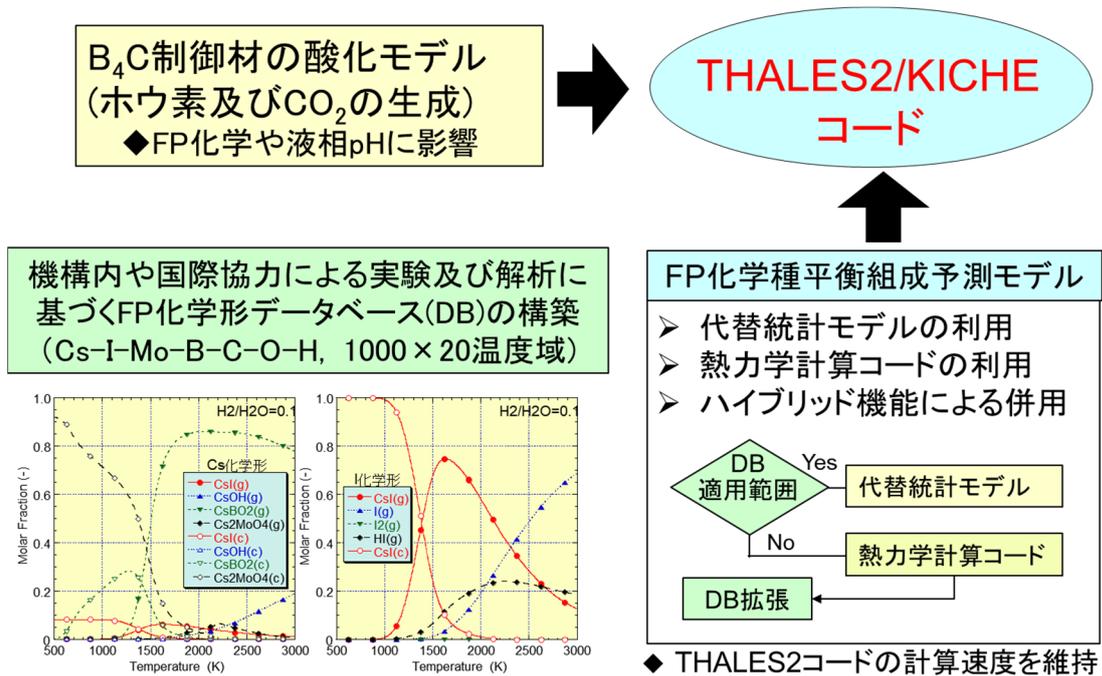


図 4.2.1 原子炉冷却系内 FP 化学に関わる解析手法

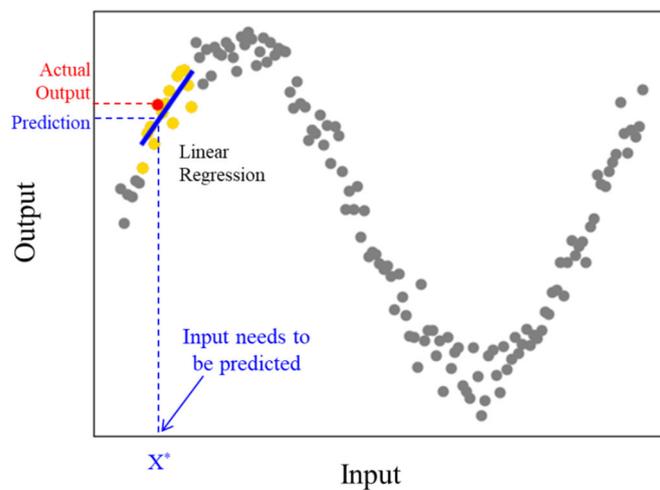


図 4.2.2 K 近傍法によるデータ抽出と化学種組成の予測

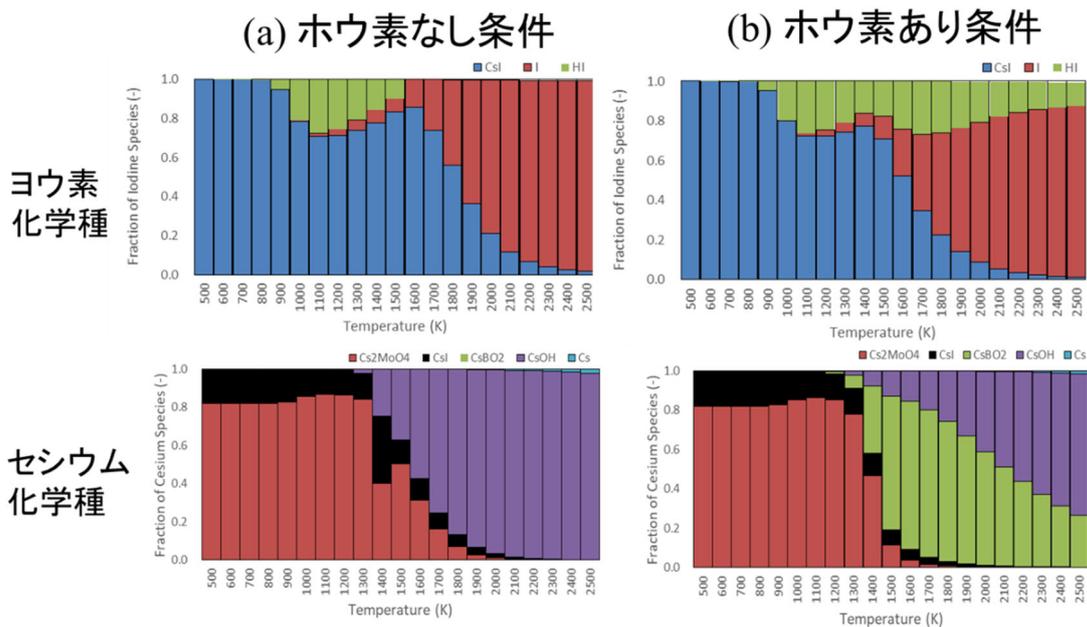


図 4.2.3 ヨウ素及びセシウム化学種の温度依存性

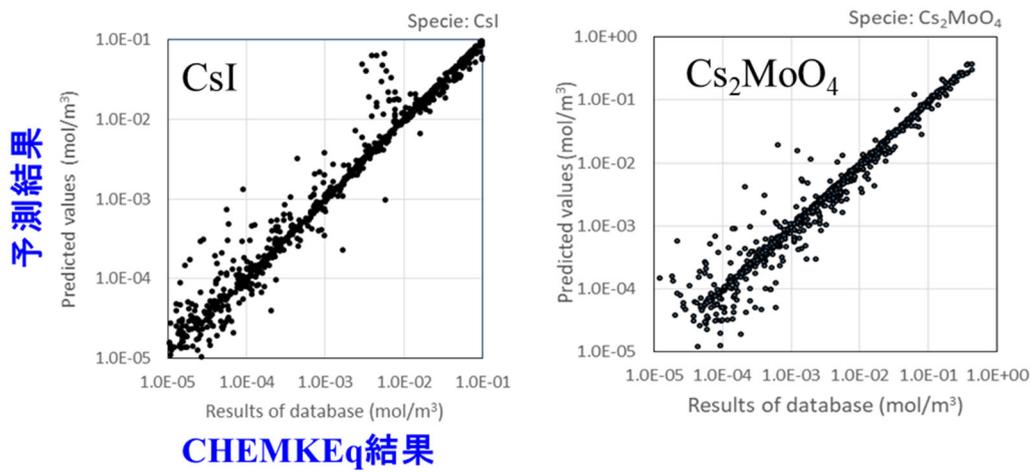


図 4.2.4 代替統計モデルと CHEMKEq との結果の比較

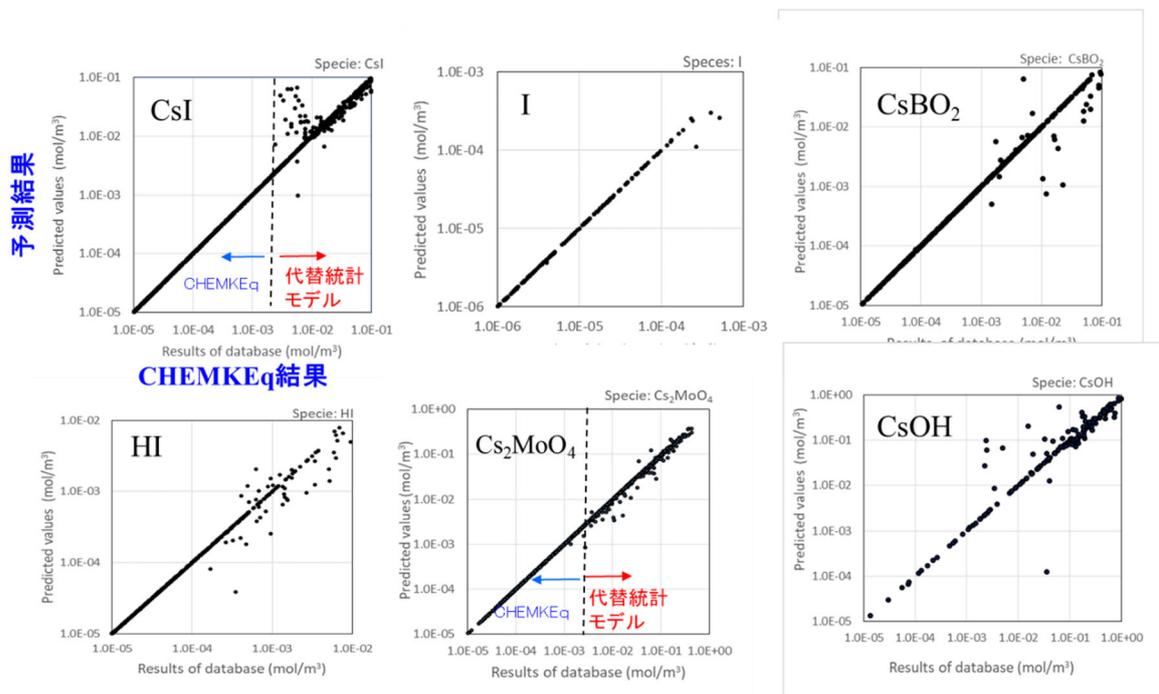


図 4.2.5 FP 化学種平衡組成予測モデルと CHEMKEq の結果比較

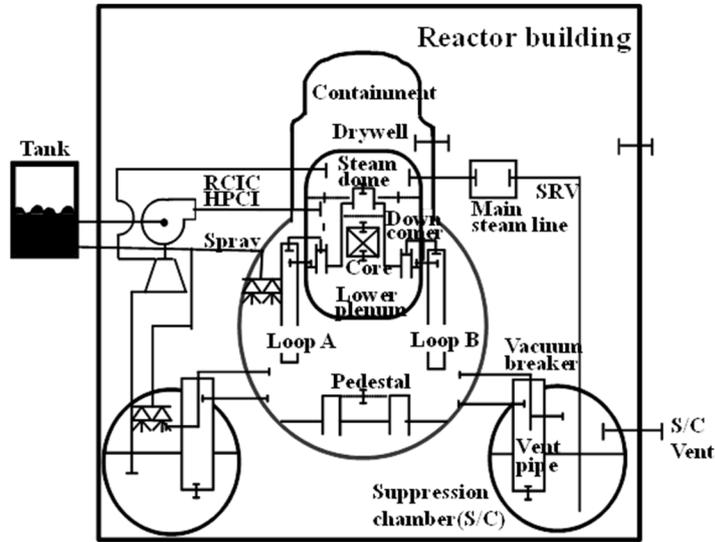


図 4.2.6 解析対象プラント

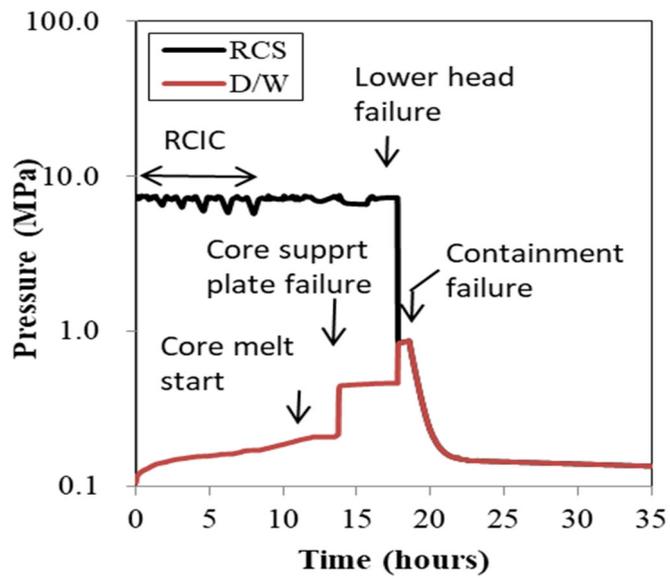
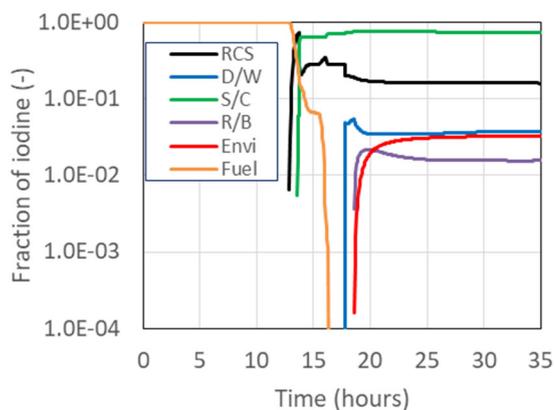
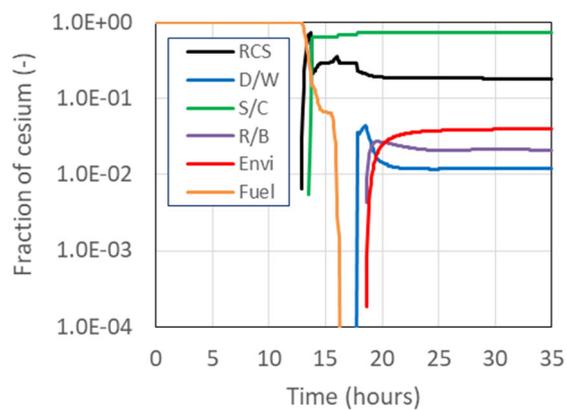


図 4.2.7 原子炉及び格納容器圧力 (全交流電源喪失事故シーケンス)

(a)ヨウ素



(b)セシウム



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 4.2.8 ヨウ素及びセシウムの全体挙動 (化学種合計、浮遊+沈着)

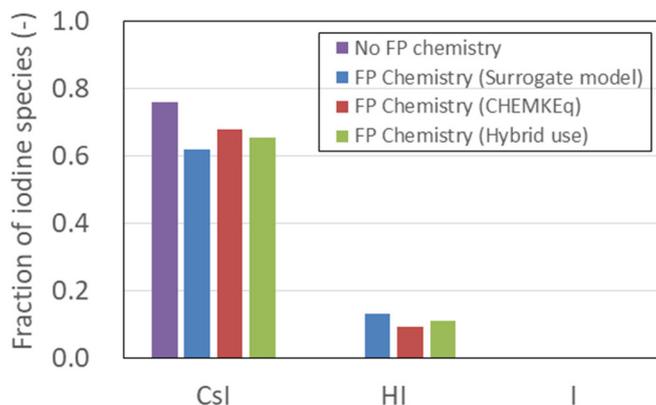


図 4.2.9 ヨウ素化学種の格納容器への移行割合 (全交流電源喪失シーケンス)

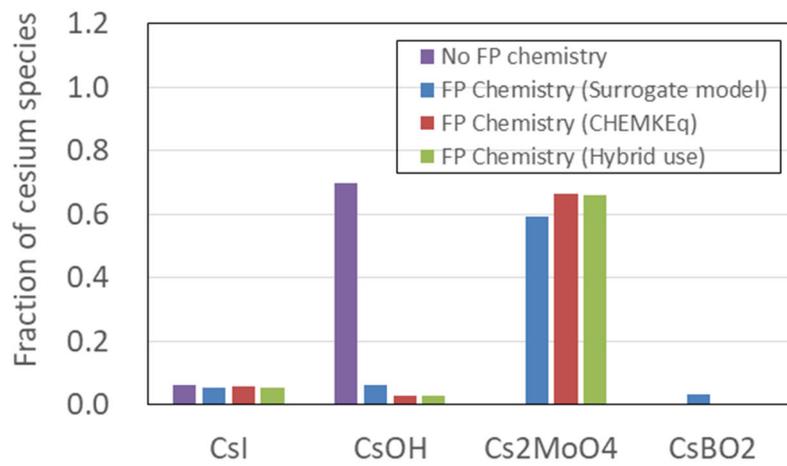


図 4.2.10 セシウム化学種の格納容器への移行割合 (全交流電源喪失シーケンス)

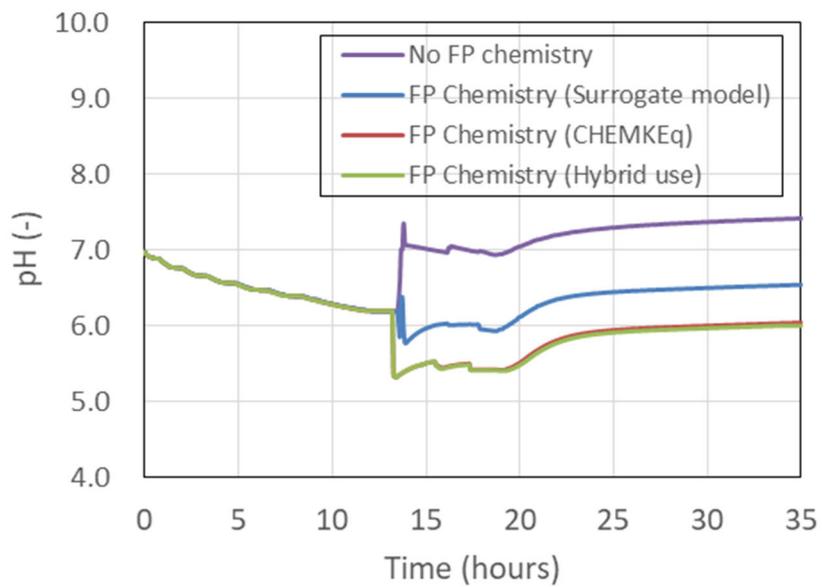


図 4.2.11 格納容器 pH への影響 (全交流電源喪失シーケンス)

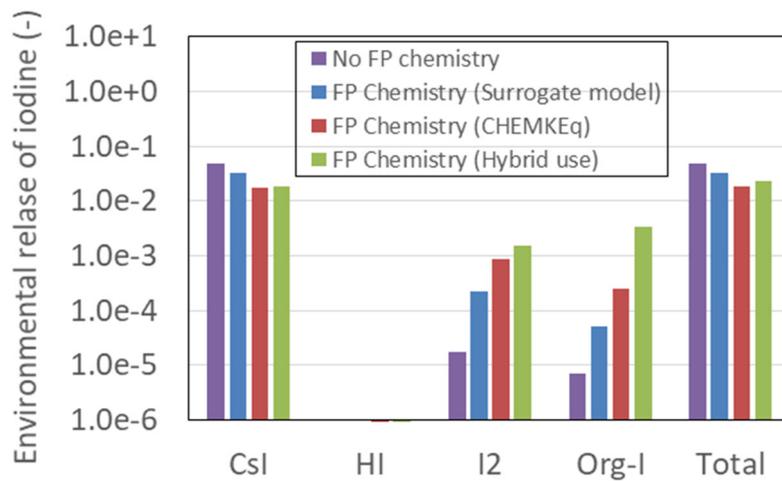


図 4.2.12 ヨウ素化学種の環境への放出割合（全交流電源喪失シーケンス）

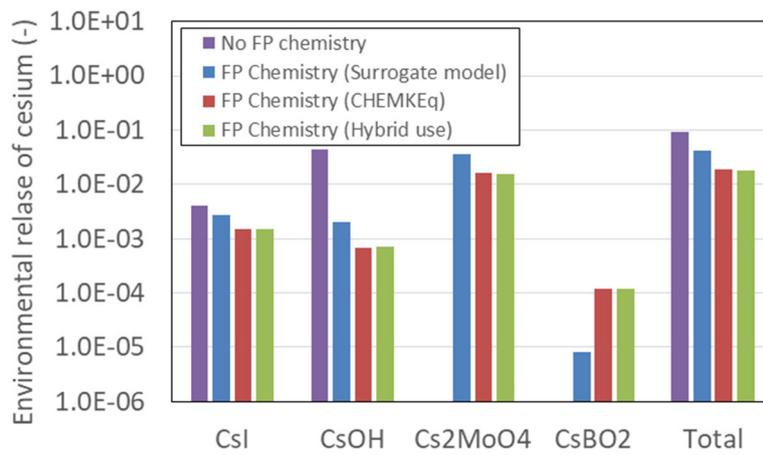


図 4.2.13 セシウム化学種の環境への放出割合（全交流電源喪失シーケンス）

### 4.3 ソースターム評価技術の高度化に係る知見の整理

#### 4.3.1 ソースターム評価技術の高度化とは

第1章で述べたように、ソースタームとは事故時に環境中に放出される放射性物質（核分裂生成物 FP、核燃料物質等）の①量、②物理・化学形態、③放出のタイミング・継続時間、等の総合的な情報であり、レベル 2PRA における評価の指標、レベル 3PRA への入力情報、防災計画における前提条件となるものである。いずれの局面においても被ばく線量と関連付けられるため①量が最も基本的な情報となることは自明だが、放射性物質が、原子炉燃料→原子炉冷却系→原子炉格納容器→原子炉建屋→環境→公衆→臓器と移行する過程における物理的・化学的挙動やそれらを利用した事故対策により最終的な被ばく線量は大きく変わり得るため、上流段階における②物理・化学形態もまた重要な情報である。さらに、③放出のタイミング・継続時間は、公衆の屋内退避や避難の意思決定に際し重要な情報となる。

上記の移行過程のうち、原子炉建屋から放出されるまでの範囲は一般にシビアアクシデント総合解析コード（SA 解析コード）で評価されるため、その高度化によりソースターム評価技術の高度化が達成され得る。①及び③は事故進展挙動の評価精度に依存し、その高度化は MELCOR に代表される全ての SA 解析コード（原子力機構の THALES2 を含む）の開発において推進されているが、本事業においては②物理・化学形態の評価に特化して技術開発を行い、全ての SA 解析コードの高度化に活用され得る技術的知見を取得・発信することを目指した。

#### 4.3.2 必要な技術的知見及び取得状況

##### 1) セシウム及びヨウ素に係る物理・化学形態の既存知見と課題

既往のソースターム評価では、実験や解析の知見に基づき、表 4.3.1 に示すようにセシウム及びヨウ素の主要な化学形及び物理状態を仮定している[4.3.1 – 4.3.4]。これらの化学形は最新知見の反映により適宜更新され、近年では  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$  のような構造材との影響を考慮した化学形も考慮されている[4.3.5]。一方で、1993～2004 年に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、制御材として  $\text{B}_4\text{C}$  が存在する場合に気体状のヨウ素の放出割合が従来の仮定である 5%より増加する可能性が示された[4.3.6]。しかしながら、その化学形や増加の機構は不明であるため、この知見のソースターム評価への反映は積極的には行われていない。

##### 2) セシウム及びヨウ素に係る物理・化学形態に係る知見の取得状況

本事業では、PHEBUS-FP 計画における  $\text{B}_4\text{C}$  制御材の FP 化学形に対する影響が、主にホウ素によるものだと推定し、図 4.3.1 に示す範囲で FP 移行時の化学反応及び FP 含有沈着物の気相への再移行に対してホウ素が与える影響に関するデータを取得した。その結果、高温領域における気相中でのホウ素とセシウムの化学反応により、蒸気圧の低い化合物（ $\text{CsBO}_2$  等）の生成が雰囲気条件（水蒸気、不活性、水素雰囲気）に依らず起こり得ることを示した。この反応により有意な量の気体状ヨウ素化学種が生じたことを示す実験データも取得している。

これらの実験の解析により、蒸気圧の低い CsBO<sub>2</sub> の生成量は熱力学平衡論を適用することで概ね評価できることを確認した。一方で、気体状ヨウ素の生成量を評価するためには熱力学平衡論では不十分であり、化学反応速度論の適用が必要であるとの認識に至った。しかしながら、化学反応速度論を取り扱うことができる既存の機構論的 FP 移行挙動解析コードがなかったため、熱力学平衡論と化学反応速度論の混合モデルにより化学組成を評価する CHEMKEq コードを本事業で開発した。さらに、本年度より CHEMKEq コードと原子力機構の FP 移行挙動解析コード ART とを連成させるための改良を進めており、先の実験解析に適用することで、化学反応速度論の考慮がヨウ素化学挙動の予測精度向上に有効であることを検証する予定である。

また、SA 解析コードに上記の知見を反映するために CHEMKEq のような機構論的コードを直接組み込むことが考えられるが、計算コストの増大によりソースターム評価ツールとしての実用性を低下させる可能性がある。そこで、機構論的コードの機能を代替統計モデルに置き換えて SA 解析コードに導入することで、機能拡張と計算コスト抑制の両立を図る方法を試みている。

#### 4.3.3 本事業の成果の活用先

実用発電用原子炉の安全性評価と東京電力福島第一原子力発電所の事故分析の観点から、本事業の成果が活用され得る局面を示す。

##### 1) 実用発電用原子炉の安全性評価

“実用発電用原子炉の安全性向上評価に関する運用ガイド” [4.3.7] の確率論的リスク評価 (PRA) 実施手法の例では、リスク指標の対象として (1) 炉心損傷頻度、(2) 格納容器機能喪失頻度、(3) 事故時の Cs-137 の放出量が 100T Bq を超えるような事故の発生頻度、(4) 敷地境界における実効線量が挙げられている。本事業で開発した FP 化学形評価モデルは原子炉内での FP 化学形を適宜予測することで、FP 移行挙動を評価する上で重要な FP 性状の特定 (表 4.3.2, 4.3.3 [4.3.8]) を可能にすると期待される。FP 化学形評価モデルの活用により評価の高度化が期待される安全性向上評価の項目を示す。

(1) 炉心損傷頻度： 該当なし

(2) 格納容器機能喪失頻度：

(f) 放出カテゴリの分類

格納容器機能装置に至る全ての事故シーケンスをプラント損傷状態、格納容器機能喪失モード及び放出経路の組み合わせから、環境へ放出される放射性物質の放出挙動が類似した放出カテゴリに分類する

(g) 不確実さ解析及び感度解析

(3) 事故時の Cs-137 の放出量が 100T Bq を超えるような事故の発生頻度：

(a) 放出カテゴリのソースターム (性状、放出量、放出開始時期、放出継続時間

- 及び放出エネルギー) 解析  
(b) 不確かさ解析及び感度解析

- (4) 敷地境界における実効線量：  
(a) ソースタームの設定  
(c) 大気拡散及び沈着の評価  
(d) 被ばく線量評価

ここで、(2)～(3)の評価において放出量が比較的多いと想定されるセシウム等の FP が重要であることは自明であるが、(4)の実効線量評価では特定の臓器に蓄積しやすいヨウ素等の FP に対する評価も重要となる。

## 2) 東京電力福島第一原子力発電所の事故分析

福島第一原子力発電所の事故分析では、プラント内核種移行挙動の把握を目的としたサンプル（水試料、固体試料）の取得及び分析が計画されている [4.3.9]。FP 移行経路の特定に効果的なサンプル取得場所や、そのサンプルの分析において着目すべき核種・元素に関する情報を取得するために、FP 化学形評価モデルを備えた SA 解析コードが活用されている。

#### 参考文献

- [4.3.1] J. J. DiNunno, et al., Calculation of Distance Factors for Power and Test Reactor Sites - Technical Information Document, TID14844, 1962.
- [4.3.2] R. L. Ritzman, et al., Appendix VII to Reactor Safety Study: An Assessment of Accident Risks in U.S. Commercial Nuclear Power Plants, WASH-1400 (NUREG-75/014), Appendices VII - X, 1975.
- [4.3.3] L. Soffer, et al., Accident Source Terms for Light-Water Nuclear Power Plants, NUREG-1465, 1995.
- [4.3.4] R. Chang, et al, State-of-the-Art Reactor Consequence Analyses (SOARCA) Report, NUREG-1935, 2012.
- [4.3.5] U.S.NRC, Findings and Use of Results From PHEBUS-FP Test to Validate the NRC's MELCOR Sever Accident Code and Revised Accident Source Term (NUREG-1465), Research Information Letter (RIL) 1301, 2013.
- [4.3.6] N.Girault, et al., "Towards a better understanding of iodine chemistry in RCS of nuclear reactors," Nucl. Eng. Des., 239, 1162–1170, 2009.
- [4.3.7] 原子力規制委員会, “実用発電用原子炉の安全性向上評価に関する運用ガイドの制定について,” 原規規発第17032914号, 平成29年3月29日
- [4.3.8] “CRC Handbook of Chemistry and Physics,” CRC Press, 2003.
- [4.3.9] 平成31年度原子力施設等防災対策等委託費（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）事業成果報告書, 日本原子力研究開発機構, 令和2年3月

表 4.3.1 ソースターム評価におけるセシウム及びヨウ素の物理・化学形態

冷却系から格納容器に移行する物理・化学形態				
セシウム			ヨウ素	
1962 TID-14844 [4.3.1]			I <sub>2</sub>	気体状
1975 WASH-1400 [4.3.2]	CsOH	エアロゾル状		
1995 NUREG-1465 [4.3.3]			95% CsI	エアロゾル状
2012 US-SOARCA [4.3.4]	Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub>	エアロゾル状	+ 5% HI/I	気体状

表 4.3.2 セシウム化学種の性状 [4.3.8]

性状	CsOH	Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub>	CsBO <sub>2</sub>
CAS No.	21351-79-1	13597-64-3	92141-86-1
融点 [°C]	342.3	956.3	732
沸点 [°C]	-	-	-
密度 [g/cm <sup>3</sup> ]	4.85	-	~3.7
溶解度 [g/L]	2.6	67	-

表 4.3.3 ヨウ素化学種の性状 [4.3.8]

性状	CsI	I <sub>2</sub>	HI	CH <sub>3</sub> I
CAS No.	7789-17-5	7553-56-2	10034-85-2	74-88-4
融点 [°C]	632	113.7	-50.76	-66.4
沸点 [°C]	~1280	184.4	-35.55	42.43
密度 [g/cm <sup>3</sup> ]	4.51	-	-	-
溶解度 [g/L]	84.8	0.03	(very soluble)	(slightly soluble)

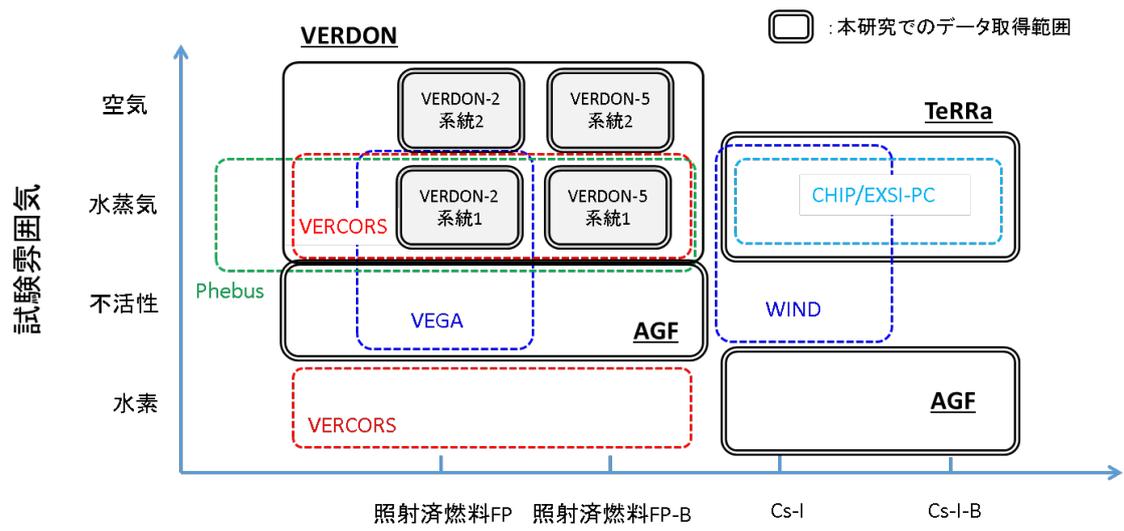


図 4.3.1 本事業で対象としたデータ取得範囲

## 5. おわりに

本事業では、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学種の移行挙動に着目した実験及び解析を実施してきた。本年度の主な成果は以下のとおりである。

### (1) VERDON 実験データの分析

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 CEA が中心になって実施した FP 移行実験 VERDON-2 及び 5 の実験後試料分析に係る詳細データを入手するとともに、入手情報を活用して VERDON-5 実験の解析を実施した。この解析により、ホウ酸含有の水蒸気雰囲気条件下及び空気混入条件下におけるセシウム及びヨウ素に係る移行時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取得した。これらの知見を (2) で取得した知見と併せて整理した。

### (2) VERDON 実験データを補完する基礎実験の実施

VERDON 実験を補完し、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、非放射性の試料を用いて大洗研究所 AGF コールド試験装置において実施した「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」に係る実験で得られた試料の解析を行った。さらに、原子力科学研究所の TeRRa 装置において「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、セシウム、ヨウ素に係わる移行時の化学形や気体状ヨウ素の生成等に関するデータを拡充した。これらに実験によりホウ素の影響や速度論的な影響に係る技術的知見を取得し、ホウ素濃度が高い場合に有意に生成される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との結果を得た。

また、VERDON 実験及び非放射性物質等を用いた高温化学実験の結果をもとに、セシウム、ヨウ素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。ホウ素により、雰囲気によらず低い蒸気圧を有するセシウム化学種が生成されることを明らかにし、また、これにより生成されるヨウ素化学種の移行挙動評価においては化学反応速度論の考慮が必要である可能性を示した。さらに、雰囲気変化や蒸気種的作用により沈着物の再移行が有意に生じることが示され、ソースタームの評価において考慮が必要である可能性を示した。

### (3) FP 化学及び移行に係わる解析

大洗研究所 AGF ホット試験装置において照射済み燃料を対象として実施された実験の解析により、VICTORIA コードを用いた熱力学平衡計算による FP 移行挙動の予測性能を評価するとともに、化学反応速度を考慮できる解析手法の開発に向けて FP 移行挙動評価コードと機構論的モデルを連成させる際の課題を整理した。

シビアアクシデント総合解析コード THALES2 の FP 化学種平衡組成予測モデルとして、

FP 化学組成データベースに基づく代替統計モデルに加えて、化学組成評価コード CHEMKEq を直接利用する機能を追加した。このモデルを導入した THALES2 コードを用いて 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、原子炉冷却系から原子炉格納容器への FP 移行量及び環境放出量を評価した。このモデル導入により FP 化学モデルの適用範囲を拡大したことで、格納容器バイパス等、原子炉冷却系外での FP 化学挙動が重要となる事故シナリオへの適用が可能となった。

また、ソースターム評価技術の高度化に係る知見について、本事業で対象とする高度化の範囲、従来知見及び本事業で取得した知見等を整理してとりまとめた。

## 付録 A 出張報告

国内出張 (1)

件名	日本原子力学会 2019 年秋の大会における口頭発表
出張先	富山大学五福キャンパス (富山市)
期間	令和元年 9 月 11 日 (水) ~ 9 月 13 日 (金)
出張者	研究員 1 名
概要	<p>VERDON-2 実験で確認された空気混入条件でのヨウ素沈着物の再揮発現象を明らかにすることを目的に、平衡を仮定する化学反応モデルを有する VICTORIA コードによる解析結果を日本原子力学会 2019 年会秋の大会にて 1 件口頭発表した。</p> <p>[1G07] 空気雰囲気条件におけるヨウ素沈着物の再揮発現象に係る解析的検討 塩津 弘之、伊藤 裕人、杉山 智之、丸山 結 (原子力機構)</p>

外国出張（1）

件名	THAI-3 計画会合及び IPRESKA 計画会合への出席
出張先	ドイツ フランクフルト
期間	令和元年 6 月 23 日（日）～6 月 29 日（土）
出張者	副センター長 1 名
概要	<p>OECD/NEA の国際協力研究計画である THAI-3 計画の第 6 回技術検討会議及び運営会議に参加し、シビアアクシデント時のソースタームに係わる実験の結果及び計画の運営 管理について検討を行うとともに、THAI-3 計画の後継計画に係わる技術的な議論を行った。また、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スクラビングに係わる IPRESKA 計画会合を通じて技術情報を収集するとともに、同プロジェクト内で実施されたベンチマーク解析に参加した結果について報告した。</p>

外国出張（2）

件名	MUSA 計画会合への出席
出張先	スペイン マドリード
期間	令和元年7月9日（火）～7月13日（土）
出張者	副センター長1名
概要	<p>欧州共同体における Horison2020 の下で開始されたシビアアクシデントの管理及び不確かさに 係わる MUSA (Management and Uncertainties in Severe Accident) プロジェクトのキックオフ 会合に参加し、シビアアクシデント時のソースターム評価における不確かさの定量化に関する技術 的な活動方針や今後の計画等について議論した。</p>

外国出張 (3)

件名	IRSN-JAEA-S/NRA/R Scientific Seminar 2019 への出席
出張先	フランス エクス・アン・プロヴァンス
期間	令和元年 11 月 10 日 (日) ~ 11 月 16 日(土)
出張者	研究員 1 名
概要	フランス放射線防護原子力安全研究所 (IRSN)、原子力規制委員会原子力規制庁 (S/NRA/R) 及び安全研究センターで IRSN-JAEA-S/NRA/R Scientific Seminar 2019 を開催し、安全研究に関する三者間の協力を推進するため、シビアアクシデント、燃料安全、材料劣化、熱水力安全、等の分野における各機関の最新知見や研究計画等の情報交換を行うとともに、今後の三者間の研究協力の枠組み等について協議を行った。

外国出張 (4)

件名	OECD/NEA/STEM2 計画に関する会議への出席
出張先	フランス パリ
期間	令和元年 11 月 18 日(月) ~ 11 月 21 日(木)
出張者	研究員 2 名
概要	<p>NRA (原子力規制庁) の受託事業である「原子力施設等防災等対策等委託費 (シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)」事業の一環として、FP 挙動に関する最新知見の収集と意見交換を行うため、ソースタームに関する経済協力開発機構/原子力機関(OECD/NEA) Source Term Evaluation and Mitigation phase 2 (STEM2) 計画の会議へ出席した。本会議にはアメリカ(NRC)、カナダ(CNL)、フランス(IRSN 及び EDF)、フィンランド(VTT)、ドイツ(GRS)、イギリス(NNL)、韓国 (KINS) 及び日本(JAEA 及び NRA)から約 30 名の専門家が参加した。日本からは JAEA2 名に加え、NRA から 2 名が出席した。</p>

外国出張 (5)

件名	不確かさ解析プロジェクト MUSA 会合への出席
出張先	ドイツ ケルン
期間	令和2年1月19日(日)～1月22日(水)
出張者	研究員2名
概要	<p>欧州研究・イノベーション枠組計画 Horizon2020 の下で開始された MUSA (Management and Uncertainties of Severe Accident) プロジェクトのワークパッケージ2及び3の第1回進捗会合に参加し、シビアアクシデント時のソースターム評価に係る重要な影響因子について情報収集を行うとともに、不確かさ解析手法・ツールのレビューに関する技術的な検討と今後の計画について議論した。</p>