

令和元年度原子力規制庁委託成果報告書

シビアアクシデント時放射線水分解特性調査

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
2. 事業内容.....	2
2.1 目的.....	2
2.2 実施計画.....	2
3. 実施内容.....	4
3.1 照射下水素発生に関する既往研究による技術的知見の整理.....	4
3.2 溶融燃料からの水素発生評価手法の検討.....	15
3.3 今後の検討課題に関する整理.....	46
4. おわりに.....	49

1. はじめに

水の放射線分解は爆発の原因となりうる水素 (H_2) や構造材料腐食の原因となりうる過酸化水素 (H_2O_2) の発生源となることから、原子力や放射線利用の分野において長年の重要な課題となっている。運転中の一次冷却水等においては、水質が良く管理され、大きな問題とならないような対策が取られている。しかし、シビアアクシデント時等では水質のコントロールが極めて困難な事態になることも想定されるため、事前の評価や対策の立案が重要となる。福島第一電子力発電所事故においては被覆管と水蒸気の反応が主な H_2 発生源であったとされているが、水分解による H_2 発生はこのような反応とは独立して起こりうること、影響が比較的長期間に及ぶと考えられることから、その重要性は依然として変わらない。

本事業では、シビアアクシデント時に炉心燃料が溶融し、原子炉キャビティ等に移行した状態で冷却水に浸漬している状態を想定し、この状態における様々な水分解現象についての調査を行う。また、調査結果を踏まえた H_2 発生量の評価を実施する。本報告書は、令和元年度に実施した調査及び評価結果についてまとめたものである。

2. 事業内容

2.1 目的

本事業では、シビアアクシデント時に炉心燃料が溶融し、原子炉キャビティ等へ移行した後冷却水プール水（以下、冷却水）に浸漬している状態を想定し、燃料デブリ等から放出される放射線による冷却水の放射線分解挙動（ H_2 の発生挙動）を調査する。

上述の目的のため、以下の3点を実施する。各項目の概要を2.2 実施計画に記す。

- (1) 照射下水素発生に関する既往研究による技術的知見の整理
- (2) 溶融燃料からの水素発生評価手法の検討
- (3) 今後の検討課題に関する整理

2.2 実施計画

(1) 照射下水素発生に関する既往研究による技術的知見の整理

シビアアクシデント及びそれに類する環境を想定した放射線分解に関する既往研究の知見を調査して、その要点や支配的要素を体系的に整理する。調査に当たっては国内外の学術誌に掲載されている論文、研究機関等が発行している報告書等を範囲として、関連する文献を複写、購入等して入手し、実験及び解析による知見をまとめる。整理にあたっては、水プール中に放射線源（アルファ線源、ガンマ線源等）が浸漬している状態を対象とすることに特に留意し、これら知見が提供する事実と今後の検討課題を明確に分離して整理することに配慮する。また、知見の発行元、得られた年代を明らかにするとともに、知見が提供する事実の根拠を可能な限り明示して整理する。

上記の実施のため、想定される環境における放射線分解に影響を与える要素を網羅的に洗い出し、対象となる要素に関する既往文献を収集のうえ調査し、溶融燃料存在下の冷却水の放射線分解現象を評価するうえで支配的な要素を整理する。

調査や評価の際に必要な水の放射線分解の基礎知識について整理した後に、水の状態、放射線の状態、溶融燃料の状態それぞれについて放射線分解に関する既往知見を整理する。放射線分解発生源としては、ガンマ線に加えて、アルファ線、ベータ線の影響や燃料表面の効果についても考慮する。調査に用いた文献について、各項の末尾に発行元、年代を明記のうえリストアップする。

(2) 溶融燃料からの H_2 発生評価手法の検討

上記で整理した情報に基づき、現状の知見の範囲で考慮可能な H_2 発生評価手法を検討する。評価手法の検討に際して、既存の解析コード等を活用する場合には入手し、解析に用いる。入出力等の情報資産が本研究以外の情報資産と混同することを防ぐために、当該解析コード等を使用するPC等の計算機を併せて調達する。 H_2 発生評価手法の検討にあたっては、当該評価手法の根拠となる知見との関連を明らかにするとともに、その適用範囲(温度、沸騰の有無、放射線源の状態等)を明示する。

ここでは、実施した文献調査結果に基づき、想定環境での冷却水の放射線分解における H₂ 発生量を推定するための評価手法を検討し、予備的な評価を実施する。

H₂ 発生量の評価に当たっては、(1) において分類整理した各因子（線質や表面効果）の影響毎に定式化することにより、各因子がどのような条件でどの程度寄与するかという情報を抜き出せるように配慮する。評価の実施に当たり適用した各因子のパラメータの範囲についても明示する。

(3) 今後の検討課題に関する整理

上記知見の整理及び水素発生評価手法の検討を踏まえて、知見の不足等今後の課題となる事項がある場合には、これを整理する。特に、評価手法の根拠とするデータの充足性に課題があると考えられる場合には、今後実施すべき実験等の素案を提示する。素案においては放射線源を使用した実験等を含め、仕様を検討する施設・装置の操作性を考慮した現実的な案とするように配慮する。

既往知見の不足のため評価の際に設定した各仮定を整理し、これらの仮定による評価結果の誤差を排除または低減するために実施すべき実験の素案を提示する。

3. 実施内容

3.1 照射下水素発生に関する既往研究による技術的知見の整理

3.1.1 調査対象の検討

シビアアクシデント時に炉心燃料が溶融し、原子炉キャビティ等へ移行した後に冷却水プール水（以下、冷却水）に浸漬している状態を想定する。この時、冷却水の放射線分解に影響を与える因子として、以下の項目（図 3.1.1-1）が考えられる。なお、燃料デブリはアルファ線・ベータ線源を含むとともに、このような酸化物表面において照射下で水分解が起こることが知られている。

- ・ 冷却水の状態（不純物、温度、pH）
- ・ 放射線（線質、線量率、空間分布）の影響
- ・ 燃料デブリの状態

以下、水の放射線分解の基礎に関する記述の後に、各項目に関する文献調査結果を報告する。

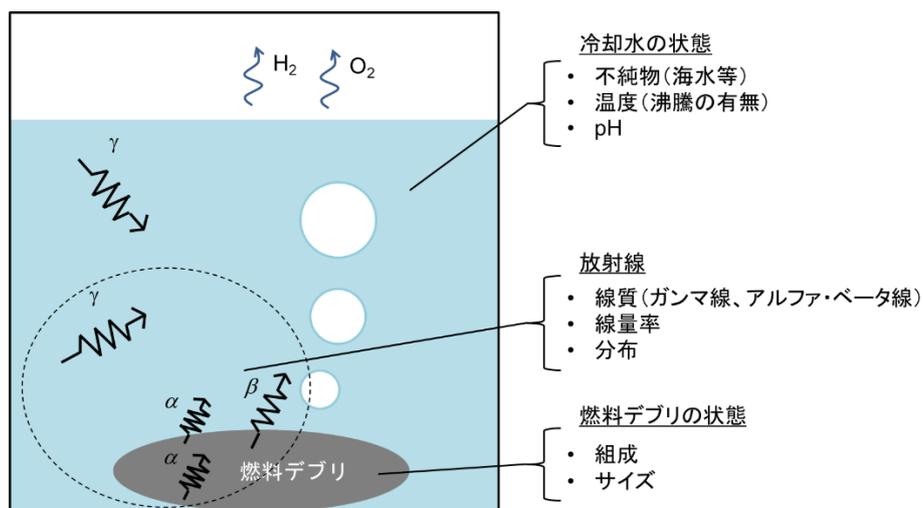


図 3.1.1-1 冷却水の放射線分解への影響因子

3.1.2 調査結果

3.1.2.1 水の放射線分解の基礎

水に放射線が照射されると放射線のエネルギーを受けて水分子が電離（イオン化）または励起する。水分解のプロセスを図 3.1.2.1-1 に示す。電離により飛び出した電子は二次電子として後続の放射線分解に寄与し、徐々にエネルギーを失ってやがて熱平衡に達する。この時周りに水分子が配位してポテンシャルの井戸に入り込んだ状態になり、比較的安定な状態となる。この水分子配位した電子は水和電子 (e_{aq}^-) と呼ばれる。一方、電離や励起した水分子は OH ラジカル ($\bullet OH$)、H ラジカル ($H\bullet$)、 H_3O^+ (H^+) 等に変化する。ここまでのプロセスは放射線通過後約 10^{-12} 秒の間に起こる。この段階では、これら活性種は放射線の秘跡に沿って高密度に分布している。この領域はスパーと呼ばれる。その後 10^{-7} 秒～ 10^{-6} 秒かけて活性種は相互に反応しながらスパー外へ拡散していき、やがて水中に一様に分布した状態となる。この段階における化学種の収率はプライマリ収率と呼ばれる。活性種はさらに化学反応を繰り返し、水への再結合や水分解生成物 (H_2 、 O_2 、 H_2O_2) の発生へと至る。水分解による化学反応はデータセットとしてまとめられている [3.1.2-1、3.1.2-2]。一例を表 3.1.2.1-1 に整理する [3.1.2-1]。

表 3.1.2.1-1 水分解による化学反応データ[3.1.2-1]

No.	水のラジオリシスにおける化学反応式	速度定数(k) / M ⁻¹ s ⁻¹
1	OH + H ₂ → H + H ₂ O	3.74E+07
2	OH + HO ₂ ⁻ → HO ₂ + OH ⁻	5.00E+09
3	OH + H ₂ O ₂ → HO ₂ + H ₂ O	3.80E+07
4	OH + O ₂ ⁻ → O ₂ + OH ⁻	9.96E+09
5	OH + HO ₂ → O ₂ + H ₂ O	7.10E+09
6	OH + OH → H ₂ O ₂	5.30E+09
7	OH + e ⁻ → OH ⁻	3.00E+10
8	H + O ₂ → HO ₂	2.00E+10
9	H + O ₂ ⁻ → HO ₂ ⁻	2.00E+10
10	H + HO ₂ → H ₂ O ₂	2.00E+10
11	H + H ₂ O ₂ → OH + H ₂ O	3.44E+07
12	H + OH → H ₂ O	7.00E+09
13	H + H → H ₂	7.90E+09
14	e ⁻ + O ₂ → O ₂ ⁻	1.94E+10
15	e ⁻ + O ₂ ⁻ (+ H ₂ O) → HO ₂ ⁻ + OH ⁻	1.30E+10
16	e ⁻ + HO ₂ → HO ₂ ⁻	2.00E+10
17	e ⁻ + H (+H ₂ O) → H ₂ + OH ⁻	2.50E+10
18	e ⁻ + H ₂ O ₂ → OH + OH ⁻	1.14E+10
19	e ⁻ + H ⁺ → H	2.30E+10
20	e ⁻ + e ⁻ (+ H ₂ O + H ₂ O) → H ₂ + OH ⁻ + OH ⁻	5.60E+09
21	HO ₂ + O ₂ ⁻ → O ₂ + HO ₂ ⁻	9.50E+07
22	HO ₂ + HO ₂ → O ₂ + H ₂ O ₂	8.10E+05
23	HO ₂ + H ₂ O ₂ → O ₂ + OH + H ₂ O	3.70E+00
24	HO ₂ → H ⁺ + O ₂ ⁻	7.00E+05
25	H ⁺ + O ₂ ⁻ → HO ₂	4.50E+10
26	H ₂ O ₂ → H ⁺ + HO ₂ ⁻	3.56E-02
27	H ⁺ + HO ₂ ⁻ → H ₂ O ₂	2.00E+10
28	H ⁺ + OH ⁻ → H ₂ O	1.40E+11
29	H ₂ O → H ⁺ + OH ⁻	2.50E-05
30	H + OH ⁻ → e ⁻ + H ₂ O	1.80E+07
31	O ₂ ⁻ + O ₂ ⁻ (+ H ₂ O) → O ₂ + HO ₂ ⁻ + OH ⁻	3.00E-01
32	O ₂ ⁻ + H ₂ O ₂ → O ₂ + OH ⁻ + OH ⁻	1.60E+01

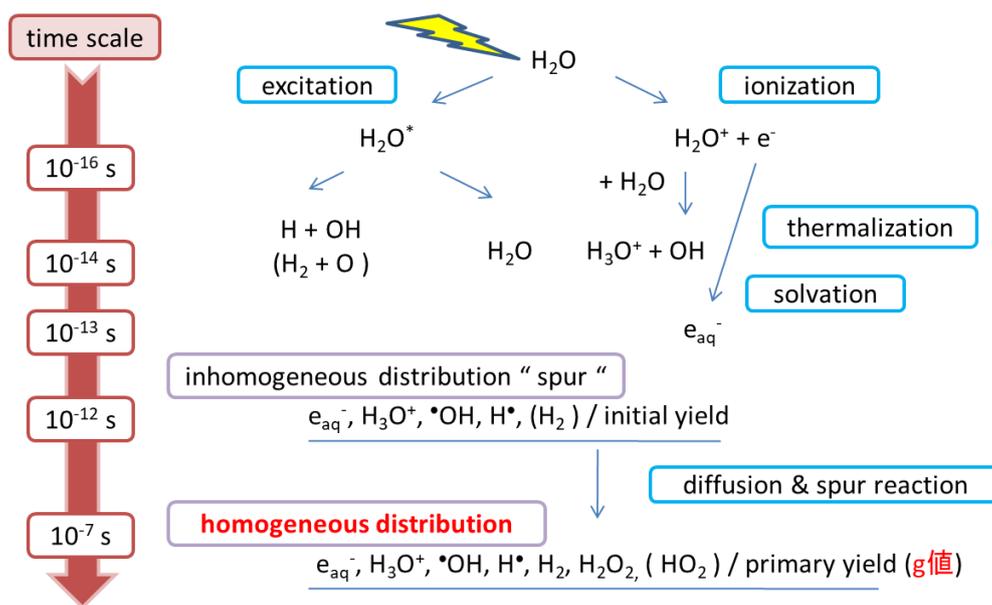


図 3.1.2.1-1 放射線による水分解のプロセス

3.1.2.2 冷却水の状態

(1) 不純物の影響

想定される事故時の環境において冷却水に混入しうる不純物としては、事故前の冷却水にすでに注入されている薬剤等及び事故時・事故後に冷却水中に入り込む物質（意図的なものも含む）が考えられる。健全な原子炉における水化学管理においては水素が代表的な添加物として考えられる。一方、事故時・事故後に入り込む物質としては、福島第一原子力発電所（1F）事故においても炉心の緊急冷却用に注入された海水（正確には海水に含まれる各成分）などが考えられる。

水素注入は照射下で酸化剤の増加による腐食電位の上昇を抑え、系内を還元雰囲気を保つ等の目的で実施される。H₂ は水の放射線分解生成物であり、その放射線分解過程における挙動には十分な知見がある。H₂ は水の放射線分解の初期過程（プライマリ収率として）においてその大部分が発生する。その後の化学反応においては主に・OH による酸化を受け、H₂O に戻ることになる。水素注入は定性的には上述のように系内を還元雰囲気に保つことと理解されるが、放射線分解反応の視点では、図 3.1.2.2-1 に示す連鎖反応の促進による H₂O₂ の分解促進としても理解される。H₂ は H・同士の二次反応によっても生成するが、このようなラジカル同士の反応にはラジカルが高濃度に存在している必要がある。スパー内反応においては有効であるが、均一分布後にはこのような反応は起こりにくくなる。ラジカルは長寿命の H₂O₂ 等の分子状生成物との反応によって主に消費されると考えられる。

1F 事故時には上述のように海水注入が実施された。海水の組成は地域による若干の違いがあるが、代表的な例を表 3.1.2.2-1 に示す[3.1.2-3]。1F 事故後には水の放射線分解への海水影響について調べた各実験や解析が実施された。熊谷らの実験では、ガンマ線による未希

積海水の放射線分解により高い水素発生収率 ($G(\text{H}_2) = 0.46$ 個/100eV) が報告されている [3.1.2-4]。これはガンマ線照射下での H_2 のプライマリ収率 (0.45 個/100eV) と同程度であり、このことは放射線分解初期過程において発生した H_2 がその後の化学反応によって分解されないことを示唆している。表 3.1.2.1-1 に示したように水の放射線分解反応において H_2 は $\cdot\text{OH}$ にのみ捕捉されると考えられている。海水中で H_2 が分解されないことの原因として、 Cl^- 等の海水成分が $\cdot\text{OH}$ を捕捉しているためであると推察された。端らは海水の放射線分解について、ラジオリシス計算による解析的評価を行い、海水の放射線分解による H_2 発生は海水中に微量に含まれる Br^- が $\cdot\text{OH}$ を捕捉しているためであると結論付けている [3.1.2-5]。一方、ラジオリシスへの Cl^- の寄与はほとんどないと考えられている。 Cl^- 、 Br^- の主な反応を図 3.1.2.2-2 に整理する。この結果は、十分な $\cdot\text{OH}$ 捕捉剤が存在する状況であれば、不純物の種類に依らずプライマリ収率に相当する高い H_2 発生収率となることを示している。また、 Cl^- や Br^- 等の海水成分の照射下での反応において、更なる H_2 発生をもたらす反応はこれまでのところ報告されていない。このことは、プライマリ収率を超える H_2 収率となる可能性は極めて低いことを示している。

表 3.1.2.2-1 海水の主な組成[3.1.2-3]

化学種	濃度 (nmol/L)	化学種	濃度 (nmol/L)
Cl^-	5.47×10^8	Br^-	8.4×10^5
Na^+	4.70×10^8	N_2	5.9×10^5
Mg^{2+}	5.3×10^7	$\text{B}(\text{OH})_3$	4.2×10^5
SO_4^{2-}	2.80×10^7	O_2	2.0×10^5
K^+	1.0×10^7	Sr^{2+}	8.9×10^4
Ca^{2+}	1.0×10^7	Li^+	2.6×10^4
HCO_3^-	2.0×10^6	Ar	1.6×10^4

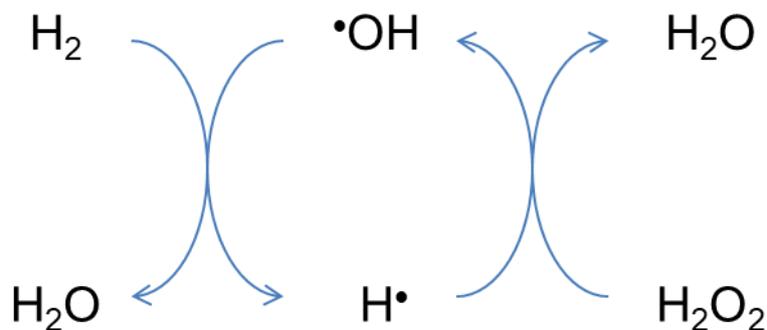


図 3.1.2.2-1 H_2 、 H_2O_2 の反応プロセス

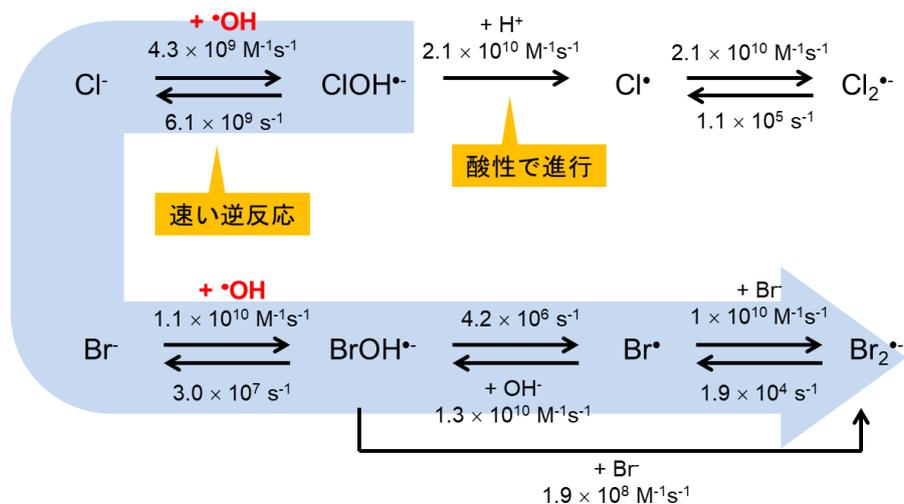


図 3.1.2.2-2 水の放射線分解における Cl⁻、Br⁻の主な反応

(2) 温度・pH の影響

本章においてこれまで示した反応速度定数は室温での値である。一般的に反応速度定数は温度上昇に伴いアレニウスの式 (式 3.1.2.2-1) に従って増加する。

$$k = A \exp(-E/RT) \quad (3.1.2.2-1)$$

表 3.1.2.1-1 に示した水分解反応に対しては、 E (活性化エネルギー) は化学反応毎に測定または推定されている。一方、Br⁻等の不純物の反応の温度依存性に関する知見はほとんどない。また、一部の化学反応については温度上昇に伴いアレニウスの式に従わなくなるものも存在する。水分解反応の温度依存性については参考文献 (3.1.2-2) に詳細にまとめられている。反応速度定数の温度依存性は化学種のプライマリ収率にも影響を与える。参考文献 (3.1.2-2) に示されたプライマリ収率の温度依存性の経験式により計算された 20~100°C での H₂ 収率を表 3.1.2.2-2 に示す。H₂ 収率の温度依存性は極めて軽微であるといえる。

表 3.1.2.2-2 H₂ のプライマリ収率の温度依存性

t (C°)	$g(\text{H}_2)$
20	0.43
25	0.44
40	0.45
60	0.46
80	0.46
100	0.47

圧力容器の損傷などにより系内の気圧が低下すると冷却水は温度上昇により沸騰する可能性がある。沸騰時の気相中の H₂ 発生濃度は非沸騰時より 100 倍程度高くなることが 1F 事故後に山下らによって報告されている [3.1.2-6]。この原因は放射線分解プロセスに依るものではなく、気液界面の表面積の増加による気相への放出の促進であると考えられている。また、水分解のプライマリ収率は pH に対してほぼ一定であることが知られている [3.1.2-7]。

以上、冷却水の状態が H₂ 発生に与える影響を以下に整理する。

- 不純物等により H₂ 発生量が増加する可能性があるが、プライマリ収率を超えた H₂ 発生が起こることは無いと考えられる。
- プライマリ収率は温度や pH にあまり依存しない。

これにより、シビアアクシデント時に想定される水質においては、「H₂ の発生収率」 = 「H₂ のプライマリ収率」と考えることが保守的な評価になると言える。

3.1.2.3 放射線（線質、線量率、空間分布）の影響

想定される環境における放射線の種類としては、飛散した ¹³⁷Cs に由来するガンマ線及び燃料デブリに含まれる放射性核種からのアルファ線、ベータ線を考える必要がある。1F 事故を例に考えると、ガンマ線源となる核種は建屋内に飛散していること、さらにガンマ線の飛程が長いこともあって、ガンマ線の影響は空間に広く分布している。一方、アルファ線、ベータ線は飛程が短く、燃料デブリ周辺にのみ影響が及ぶものと考えられる。

これらの放射線は水中を進みながら水分子にエネルギーを付与し、水の放射線分解を引き起こす。アルファ線はベータ線、ガンマ線と比べて高密度にエネルギー付与が起こり、スパーの重なりによりラジカル間のスパー内反応が促進される。そのため各化学種のプライマリ収率が変化する。一般的にはアルファ線の方がガンマ線より H₂O₂、H₂ 等の分子状生成物収率が増加し、OH ラジカルや H ラジカル等の活性種の収率が減少する。プライマリ収率は放射線の種類の違いだけでなく、エネルギーにも依存する。種類の異なる放射線による化学種のプライマリ収率を表 3.1.2.3-1 に [3.1.2-7]、He イオンビームのエネルギーの違いによる化学収率の変化を表 3.1.2.3-2 に示す [3.1.2-8]。

平成 30 年に報告された 1F 炉内調査では、数 Gy/h～数十 Gy/h の空間線量率となっている [3.1.2-9]。事故時にはこれ以上のガンマ線の線量率となることが想定されるが、事故の規模や状況に大きく依存する。また、アルファ線やベータ線の線量率は燃料の状態に大きく依存する。3.2 において実施する評価においては、1F 事故解析に関する報告等を参考に妥当な環境を設定する。

表 3.1.2.3-1 種類の異なる放射線による化学種のプライマリ収率

放射線の種類	エネルギー (MeV)	- H ₂ O	e _{aq} ⁻	•OH	H•	H ₂	H ₂ O ₂	HO ₂
ガンマ線	-	4.08	2.63	2.72	0.55	0.45	0.68	0.008
D ⁺ (重水素)	18	3.46	1.48	1.78	0.62	0.68	0.84	-
He ⁺	32	3.01	0.72	0.91	0.42	0.96	1.00	0.05
He ²⁺	12	2.84	0.42	0.54	0.27	1.11	1.08	0.07

表 3.1.2.3-2 エネルギーの異なる He イオンビームによる H₂ プライマリ収率の変化

⁴ He ²⁺ のエネルギー (MeV)	H ₂ のプライマリ収率 (個/100eV)
5	1.20 ± 0.12
14.7	1.12 ± 0.11
22.5	0.88 ± 0.09
27.6	0.99 ± 0.10
39.5	0.83 ± 0.08
62.2	0.79 ± 0.08
64.7	0.9 ± 0.09

3.1.2.4 燃料デブリの状態

燃料デブリは複雑な状態となることが想定されるが、主に UO₂ や被覆管材料が混ざり合った金属酸化物と考えられる。金属酸化物存在下の放射線分解については 90 年ごろから盛んに研究がすすめられており、酸化物に吸収された放射線のエネルギーが表面に移動し、吸着水の分解を促進させる反応が知られている。

(1) 酸化物表面での水分解のメカニズム

ZrO₂ 表面での H₂ 発生について調べた Petrik らの研究において、水分子の吸着状態と H₂ 発生量との関係が調べられている。彼らは表面に水を吸着させた ZrO₂ を段階的に加熱することにより物理吸着水、化学吸着水の順で蒸発させ、各段階においてガンマ線を照射した際の H₂ 発生量を測定した。物理吸着水蒸発時点では高い H₂ 発生量が維持されていたが、化学吸着水蒸発後には H₂ 発生量がほとんど見られなくなった。これにより、ZrO₂ に化学吸着した水分子 (約 10 個/nm²) が、酸化物に吸収されたエネルギーによって分解しているものと考えられている (図 3.1.2.4-1)。

H₂ 発生収率は酸化物の種類に大きく依存し、水分子の O-H 間の結合エネルギー (4.8 eV) 相当のバンドギャップを持つ材料で H₂ 発生効率が最も高くなる [3.1.2-10]。UO₂ のバンド

ギャップはこれより低く、1.8 eV 程度とされている[3.1.2-11]。そのため UO_2 からの H_2 発生はほとんどないものと考えられる。一方、被覆管において主に使用されているジルカロイの主成分である Zr の酸化物 ZrO_2 はバンドギャップが 5eV 前後であり[3.1.2-12、3.1.2-13]、特に単斜晶において高い H_2 発生収率となることが知られている[3.1.2-14]。酸化物中のドーパントも H_2 発生収率に大きな影響を与える。4 価の Zr^{4+} に対して、 Nb^{5+} 添加により電子のトラップサイトが増加し、 H_2 発生が抑制される。また、価数の低い Li^+ 等が添加されると H_2 発生が促進される[3.1.2-10]。最大でどの程度増加しうるかということについては明確な知見は得られていない。粒子線による照射損傷もトラップサイトを増加させるため、 H_2 発生収率の抑制に寄与することが示されている[3.1.2-15]。

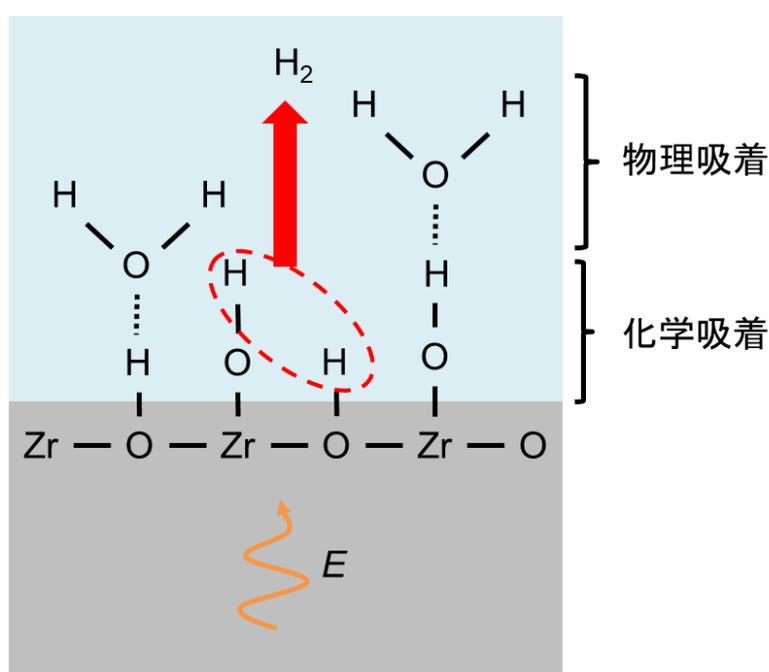


図 3.1.2.4-1 酸化剤表面からの H_2 発生イメージ

(2) サイズ効果

上述のように、酸化物からの H_2 発生は材料表面での現象であるため、全体の H_2 発生量の評価に当たっては、酸化物の形状（表面積）が重要なパラメータとなる。単位グラム当たりの酸化物表面積と H_2 発生量との関係については Petrik らの測定により線形に変化することが調べられている[3.1.2-10]。粒子が大きい場合は酸化物内部に吸収されたエネルギーの一部が表面まで移動できないため、ある深さまでの層に吸収されたエネルギーだけが H_2 発生に寄与することになり、表面積の増加に伴い H_2 発生量が増加することになる。一方、表面積が大きく（粒子径が小さく）なると、ある大きさ（半径）以降、酸化物に吸収された全エネルギーが H_2 発生に寄与することになる。そのため、 H_2 発生量は表面積に依存しなくなり一定値に近づく（図 3.1.2.4-2 参照）。Petrik らの測定では、表面積が非常に大きくな

る ($10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上) と線形性からずれ、 H_2 発生量が相対的に小さくなるという結果が示されている。

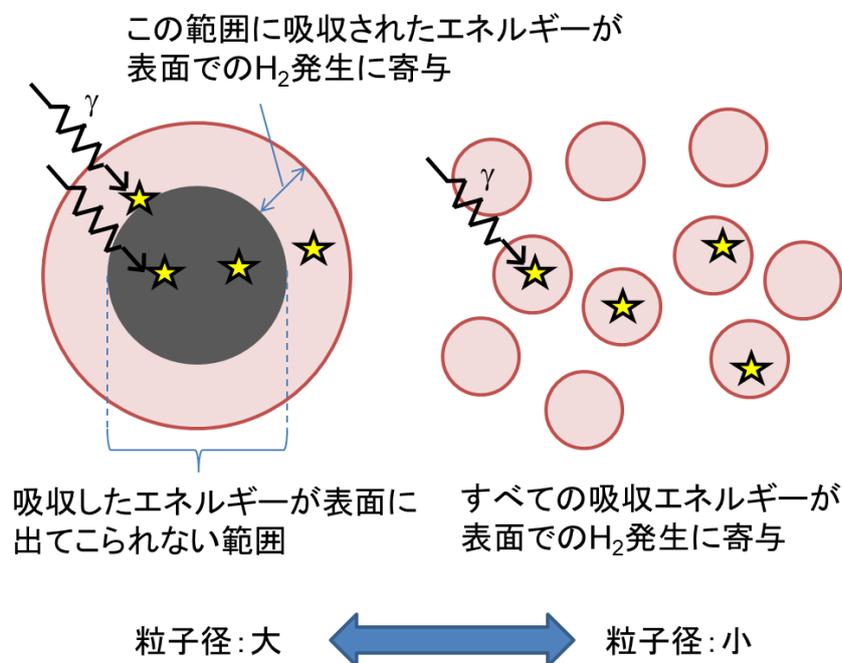


図 3.1.2.4-2 H_2 発生に対する粒子サイズの影響

【参考文献】

- [3.1.2-1] B.G. Ershov and A.V. Gordeev, Radiation Physics and Chemistry, 77. pp.928, 2008.
- [3.1.2-2] A.J. Elliot and D.M. Bartels, AECL EACL 153-127160-450-001, 2009.
- [3.1.2-3] 国立天文台編、理科年表 平成 30 年、丸善出版.
- [3.1.2-4] Y. Kumagai, et al., Journal of Nuclear Science and Technology, 50, pp.130, 2013.
- [3.1.2-5] K. Hata, et al., Journal of Nuclear Science and Technology, 54, pp.1183, 2016.
- [3.1.2-6] 山下真一ら、講演番号 E14、日本原子力学会「2011 年秋の大会」、2011.
- [3.1.2-7] 日本放射線化学会編、放射線化学のすすめ、学会出版センター、2006.
- [3.1.2-8] F. Crumière, et al., Radiation Physics and Chemistry, 82. pp.74, 2013.
- [3.1.2-9] 東京電力ホールディングス株式会社、「福島第一原子力発電所 2 号機原子炉格納容器内部調査実施結果 (速報) (URL: http://www.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/reference/pdf/2019/1h/rf_20190213_1.pdf)
- [3.1.2-10] N.G. Petrik, et al., Journal of Physical Chemistry B, 105, pp.5935, 2001.
- [3.1.2-11] J. Schoenes, Journal of the Chemical Society, Faraday transactions II, 83 pp.613, 1987.
- [3.1.2-12] R.H. French, et al., Rhysical Review B Condenced Matter, 49, pp.5133, 1994.

[3.3.2-13] J.A. LaVerne, Chapter 16 in Charged Particle and Photon Interactions with Matter, Recent Advances, Applications, and Interfaces (eds: Y. Hatano, Y. katsumura, and A. Mozumder), pp.425, 2011.

[3.1.2-14] J.A. LaVerne, Journal of Physical Chemistry B, 109, pp.5395, 2005.

[3.1.2-15] J.A. LaVerne and L. Tandon, Journal of Physical Chemistry B, 106, pp.380, 2002.

3.2 溶融燃料からの水素発生評価手法の検討

3.2.1 評価式の概念

本項では、3.1において調査した各 H₂ 発生源に対して、全体の H₂ 発生量への寄与の大きさを評価する。これにより、シビアアクシデント時の水の放射線分解において考慮すべき適切な H₂ 発生収率に関する知見を整備することを目的とする。H₂ 発生源としては、①ガンマ線、②ベータ線、③アルファ線による水分解及び④燃料デブリ表面における吸着水の分解を対象とする。評価式の概要は次式のようになる。

$$\begin{aligned} & \text{(シビアアクシデント時の H}_2 \text{ 発生量)} \\ & = \text{(ガンマ線によるバルク水中からの H}_2 \text{ 発生量)} \\ & \quad + \text{(ベータ線による燃料デブリ近傍からの H}_2 \text{ 発生量)} \\ & \quad \quad + \text{(アルファ線による燃料デブリ近傍からの H}_2 \text{ 発生量)} \\ & \quad \quad \quad + \text{(燃料デブリ表面からの H}_2 \text{ 発生量)} \quad (3.2.1-1) \end{aligned}$$

各放射線による H₂ 発生量を見積もるためには、照射実験やラジオリス計算により H₂ 発生収率を調べる必要がある。しかし、3.1.1.2においてプライマリ収率を超えた H₂ 発生収率となる可能性は極めて低いと考えられたため、本評価においては各放射線に対するプライマリ収率の値を発生収率として使用することとする。

3.2.2 評価式の整備

本項では式 3.2.1-1 の右辺の項毎に、評価式の詳細を検討する。

3.2.2.1 ガンマ線によるバルク水中からの H₂ 発生量の評価

ガンマ線によるバルク水中からの H₂ 発生量は「ガンマ線による H₂ 発生収率」と「バルクの水が吸収したエネルギー ($E_{\gamma_{H_2O}}$)」で表される。前者にはプライマリ収率 ($g(H_2) = 0.45$ 個/100eV) を用いる。後者は想定する系全体 (水+燃料デブリ) に吸収されたガンマ線のエネルギー ($E_{\gamma_{total}}$) のうち、水が吸収した分となる。水が吸収したエネルギーは次式にて得られる。

$$E_{\gamma_{H_2O}} = E_{\gamma_{total}} \times (w_{H_2O}) / (w_{H_2O} + w_d) \quad (3.2.2.1-1)$$

w_{H_2O} : 水の重量

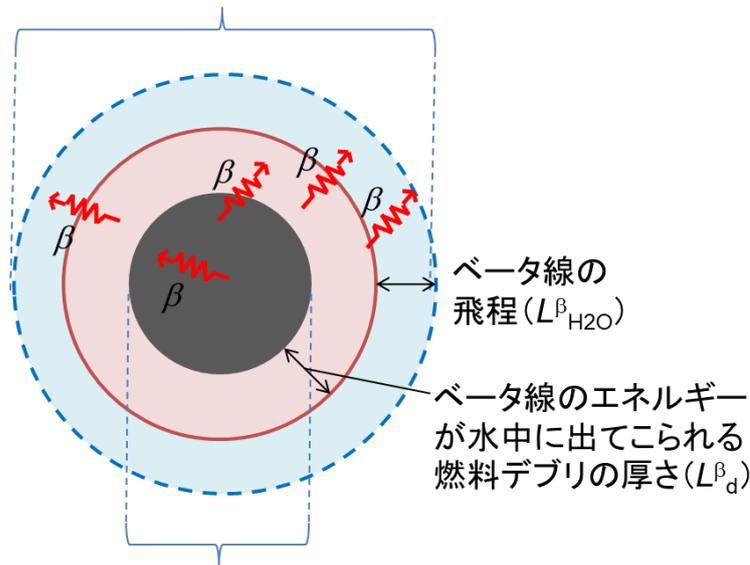
w_d : 燃料デブリの重量

3.2.2.2 ベータ線による燃料デブリ近傍からの H₂ 発生量の評価

ベータ線による H₂ 発生収率はガンマ線によるものと同程度であるが、飛程が短いため、線源近傍の領域にのみ作用する。H₂ 発生量は「ベータ線による H₂ 発生収率」と「飛程内の水が吸収したエネルギー ($E_{\beta_{H_2O}}$)」で表される。前者にはガンマ線と同じプライマリ収率 ($g(H_2) = 0.45$ 個/100eV) を用いた。後者を考えるには、図 3.2.2.1-1 のように、燃料デブリから水中で出てこられるベータ線のエネルギーとベータ線が届きうる水の範囲を決定する必要がある。

水中にエネルギーを付与するベータ線は、燃料デブリ粒子 1 個から放出される全ベータ線 (エネルギー: $E_{\beta_{all}}$) のうち L_{β_d} の厚さの範囲にある燃料デブリから放出される分のみを考えればよい。 $E_{\beta_{all}}$ にこの領域の体積比を掛け、さらに粒子数 (n) 倍することにより水に付与されるエネルギーを計算することができる。 $E_{\beta_{all}}$ 、 L_{β_d} 、 $L_{\beta_{H_2O}}$ の値については、3.2.2.4 において詳述する。

ベータ線によって水分解が生じる範囲



ベータ線のエネルギーが水中に出てこられない範囲

図 3.2.2.1-1 燃料デブリから放出されるベータ線のイメージ

3.2.2.3 アルファ線による燃料デブリ近傍からの H_2 発生量の評価

アルファ線による H_2 発生量の評価には、ベータ線と全く同じ考え方を用いることができる。燃料中のアルファ核種から放出されるアルファ線のエネルギーは 5 MeV 程度であることから、 H_2 発生収率には、表 3.1.2.3-2 のうち 1.20 個/100eV を用いることにする。実際には水へのエネルギー付与の大きさは径方向に一様ではないが、本検討では径方向の分布を無視することにする。

3.2.2.4 アルファ線、ベータ線に関する各パラメータの検討

(1) 燃料デブリ中のアルファ核種、ベータ核種の評価

燃料デブリ中の全アルファ線、ベータ線のエネルギー (E_{all}^{α} , E_{all}^{β}) の評価にあたり、燃料デブリのインベントリの推定を行った。本検討では Yamamoto らによる福島第一原子力発電所 2、3 号機 (78.4 万 kw) のインベントリ評価結果を参考にした[3.2.2-1]。しかし、炉型、燃料の種類、運転履歴等によって状況が大きく異なることため、検討結果の解釈の際には注意する必要がある。Yamamoto らによる ORIGEN2.2 を用いた計算結果のうち、アルファ核種として ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{242}Cm 、 ^{244}Cm の 6 核種、ベータ核種として ^{241}Pu 、 ^{90}Sr 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の 4 核種を抽出した。Yamamoto らの計算結果の全核種及び相当量の酸素を合わせた重量を燃料デブリの重量とし、燃料デブリ 1 g あたりの各核種の放射能を計算した結果を表 3.2.2.4-1 にまとめた。燃料デブリには被覆管等の材料も混ざりこんで

いると考えられるが、単位質量中の組成をすべて燃料と仮定することで、放射エネルギーが大きく（保守的に）なるように見積もっている。

表 3.2.2.4-1 福島第一原子力発電所 2、3 号機の燃料インベントリ計算結果に基づいた
アルファ核種、ベータ核種の放射能評価結果

	核種	半減期	放射線の エネルギー (MeV)	デブリ 1g あたりの放射能 (Bq/g[debris])
アルファ 核種	^{238}Pu	87.7y	5.5	4.88E+07
	^{239}Pu	24110y	5.157	7.94E+06
	^{240}Pu	6563y	5.168	9.36E+06
	^{241}Am	432.6y	5.638	3.93E+06
	^{242}Cm	162.94d	6.1	7.80E+08
	^{244}Cm	18.11y	5.902	3.17E+07
ベータ 核種	^{241}Pu	14.299y	0.0208	2.43E+09
	^{90}Sr	29.79y	0.546	1.40E+09
	^{134}Cs	2.0652y	2.059	2.21E+09
	^{137}Cs	30.08y	0.512	1.91E+09

(2) アルファ線、ベータ線の媒質中の移動距離

アルファ線及びベータ線の媒質中の移動距離 (L^{α_d} , $L^{\alpha_{\text{H}_2\text{O}}}$, L^{β_d} , $L^{\beta_{\text{H}_2\text{O}}}$) を見積もるため、5.5 MeV のアルファ線、2.1 MeV のベータ線について、水中及び燃料デブリ中の輸送計算を行った。計算には放射線輸送計算コード PHITS 3.17 を利用した[3.2.2-2]。なお、ここでの計算においては、燃料デブリの組成を 100% ZrO_2 と仮定した。 UO_2 より低密度であるため、燃料デブリ中の移動距離が大きく評価され、より内側の放射線も水分解に寄与することになり、より保守的な評価となる。計算体系の 2D イメージ及び 3D イメージを図 3.2.2.4-1、2 に示す。厚さ 10 mm、半径 10 mm の燃料体を仮定し、燃料体中に表 3.2.2.4-1 に示した核種を満遍なく配置したうえで、燃料デブリと水との境界における z 軸方向の線量分布を計算した。5.5 MeV アルファ線及び 2.1 MeV ベータ線の計算結果を図 3.2.2.4-3、3.2.2.4-4 に示す。 $L^{\alpha_{\text{H}_2\text{O}}}$ は約 40 μm 、 $L^{\beta_{\text{H}_2\text{O}}}$ は約 1 cm と評価された。燃料デブリ中の移動距離を計算するには、同じ体系を使用し、水の領域を燃料デブリ (ZrO_2) の領域に置き換えて計算を行った。その結果、アルファ線及びベータ線の燃料デブリ中の移動距離（水中に抜け出せる最大深さ） L^{α_d} は約 15 μm 、 L^{β_d} は約 2 mm と評価された。

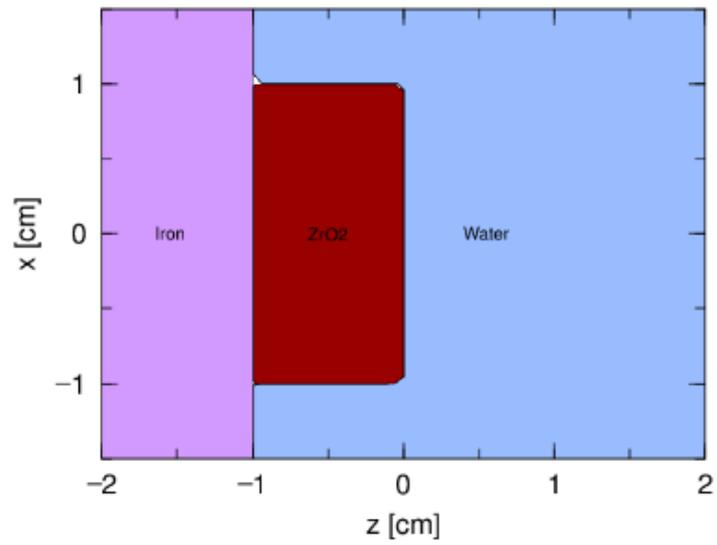


図 3.2.2.4-1 PHITS コードによる計算体系の 2D イメージ

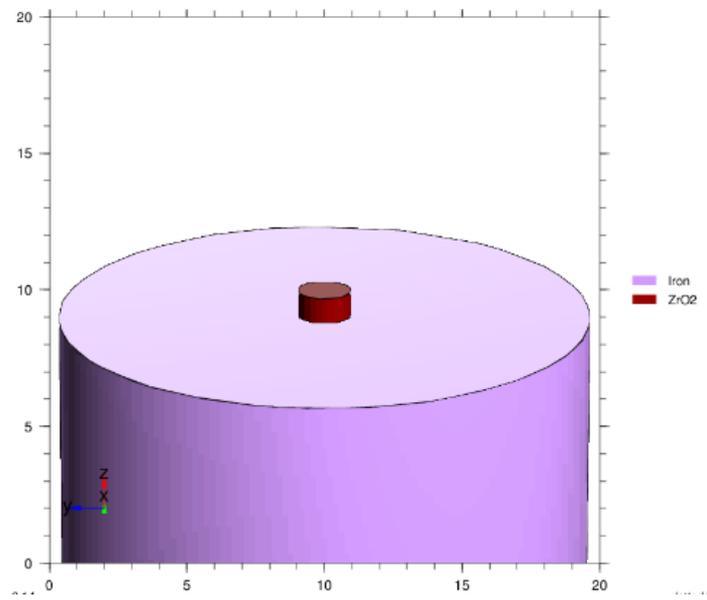


図 3.2.2.4-2 PHITS コードによる計算体系の 2D イメージ

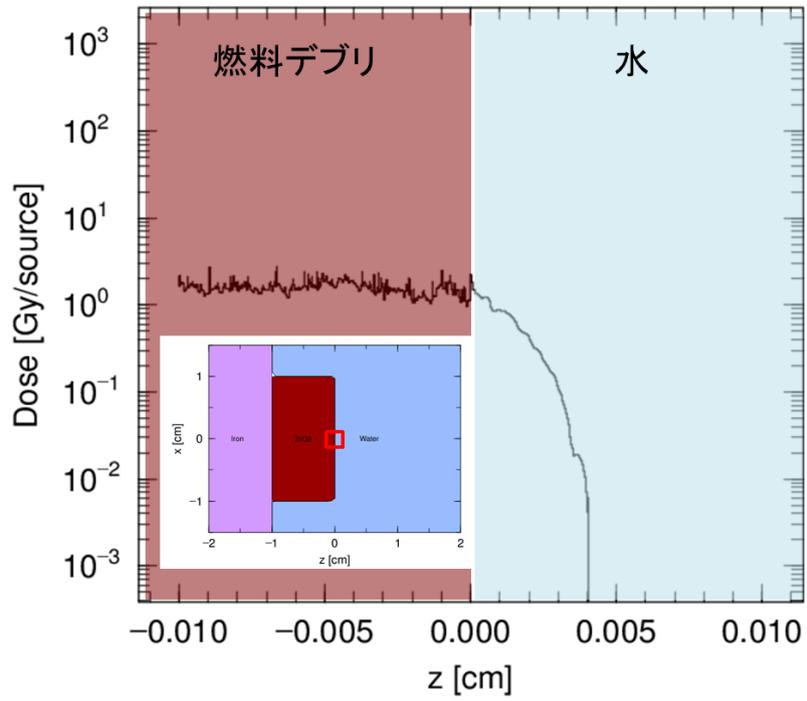


図 3.2.2.4-3 アルファ線の水中移動距離計算結果

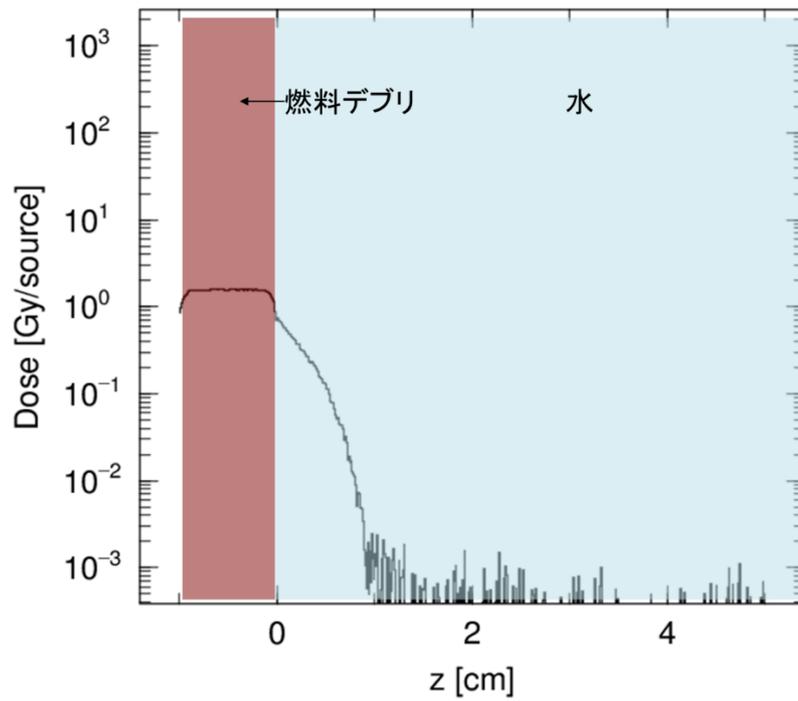


図 3.2.2.4-4 ベータ線の水中移動距離計算結果

3.2.2.5 燃料デブリ表面からの H₂ 発生量の評価

燃料デブリ表面からの H₂ 発生量は「燃料デブリ表面での H₂ 発生収率 ($G^d_{H_2}$)」と「表面効果に寄与するエネルギー ($E^d_{H_2O}$)」の積で表される。

燃料デブリ表面での H₂ 発生収率 ($G^d_{H_2}$) を見積もるにあたり、まず単位表面積当たりの H₂ 発生収率 ($G^{d0}_{H_2}$) の推定を行った。既往研究により、UO₂ 表面より ZrO₂ 表面のほうが H₂ 発生効率が良いことが知られている。ここでは、より保守的な評価とするため、燃料デブリを 100% ZrO₂ と仮定した。Petrik らによって得られた ZrO₂ の表面積と H₂ 発生量との関係に対して[3.2.2-2]、図 3.1.2.4-2 の考え方に基づき立式し、フィッティングを行った。立式にあたり、燃料デブリ表面までエネルギーを伝達できる最大深さ (L^d_j) は Petrik らの推定値 5 nm を用い、 $G^{d0}_{H_2}$ をフィッティングパラメータとした。Petrik らの測定点 6 点のデータに対して最小二乗法により $G^{d0}_{H_2}$ を評価したところ、 $G^{d0}_{H_2} = 0.66$ 個/100eV と得られた。本評価により得られた表面積と H₂ 発生量の関係を Petrik らの結果とともに図 3.2.2.4-5 に示す。

表面効果に寄与するエネルギー ($E^d_{H_2O}$) については、式 3.2.2.1-1 と同様の考え方に基づいて計算される燃料デブリ全体に吸収されたエネルギーのうち、厚さ 5 nm の表層部が吸収した分として計算した。

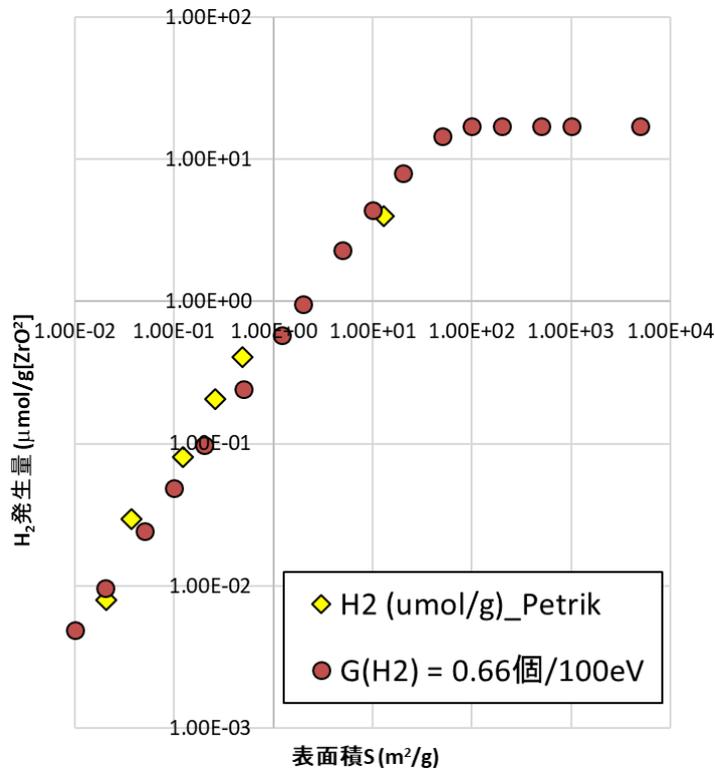


図 3.2.2.4-5 表面積と H₂ 発生量の関係

【参考文献】

[3.2.2-1] T. Yamamoto, et al., Journal of Nuclear Science and Technology, 55, pp.1496, 2018.

[3.2.2-2] T. Sato, et al., Journal of Nuclear Science and Technology 55, pp.684, 2018.

[3.2.2-3] N.G. Petrik, et al., Journal of Physical Chemistry B, 105, pp.5935, 2001.

3.2.3 H₂発生量評価の実施

3.2.3.1 評価結果

3.2.2 で整備した評価式を用い、各 H₂ 発生源に由来する H₂ 発生量を見積もった。評価に用いた入力パラメータを表 3.2.3.1-1 に示す。計算結果を図 3.2.3.1-1 ~ 3.2.3.1-40 に示す。計算結果の縦軸は各 H₂ 発生源からの H₂ 発生速度 (μmol/h) とした。各図の概要は以下のとおりである。

図 3.2.3.1-1 ~ 3.2.3.1-5 :

燃料デブリ 100 kg に対し、水の量を 100 kg から 1,000,000 kg まで段階的に変化
(線量率 : 1 kGy/h)

図 3.2.3.1-6 ~ 3.2.3.1-10 :

燃料デブリ 1,000 kg に対し、水の量を 100 kg から 1,000,000 kg まで段階的に変化
(線量率 : 1 kGy/h)

図 3.2.3.1-11 ~ 3.2.3.1-15 :

燃料デブリ 10,000 kg に対し、水の量を 100 kg から 1,000,000 kg まで段階的に変化
(線量率 : 1 kGy/h)

図 3.2.3.1-16 ~ 3.2.3.1-20 :

燃料デブリ 100,000 kg に対し、水の量を 100 kg から 1,000,000 kg まで段階的に変化
(線量率 : 1 kGy/h)

図 3.2.3.1-21 ~ 3.2.3.1-25 :

燃料デブリ 100 kg に対し、水の量を 100 kg から 1,000,000 kg まで段階的に変化
(線量率 : 10 kGy/h)

図 3.2.3.1-26 ~ 3.2.3.1-30 :

燃料デブリ 1,000 kg に対し、水の量を 100 kg から 1,000,000 kg まで段階的に変化
(線量率 : 10 kGy/h)

図 3.2.3.1-31 ~ 3.2.3.1-35 :

燃料デブリ 10,000 kg に対し、水の量を 100 kg から 1,000,000 kg まで段階的に変化
(線量率 : 10 kGy/h)

図 3.2.3.1-36 ~ 3.2.3.1-40 :

燃料デブリ 100,000 kg に対し、水の量を 100 kg から 1,000,000 kg まで段階的に変化
(線量率 : 10 kGy/h)

すべての図において、横軸は燃料デブリ粒子の半径とした。なお、各図において最も粒子径の大きい点は、燃料デブリが 1 個の塊となっているときのものである。

表 3.2.3.1-1 評価式に使用した入力変数

変数名	値の範囲
ガンマ線、ベータ線による H ₂ 発生収率	0.45 (個/100eV)
アルファ線による H ₂ 発生収率	1.20 (個/100eV)
燃料デブリ表面からの H ₂ 発生収率	0.66 (個/100eV)
ガンマ線量率	1、10 (kGy/h)
燃料デブリの量	1 × 10 ² ~ 1 × 10 ⁵ (kg)
水の量	1 × 10 ² ~ 1 × 10 ⁶ (kg)
燃料デブリ粒子の半径*	1 × 10 ⁻⁶ < (m)

※ 燃料デブリの量（密度は ZrO₂ 相当）と粒子数の最小値（1 個）との関係から最大値を決定

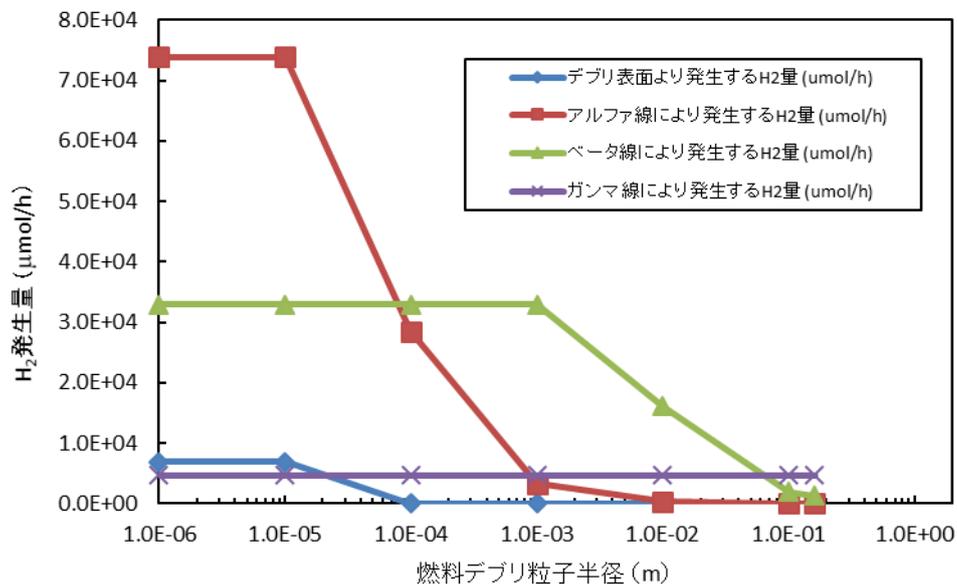


図 3.2.3.1-1 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：100 kg、水の量：100 kg)

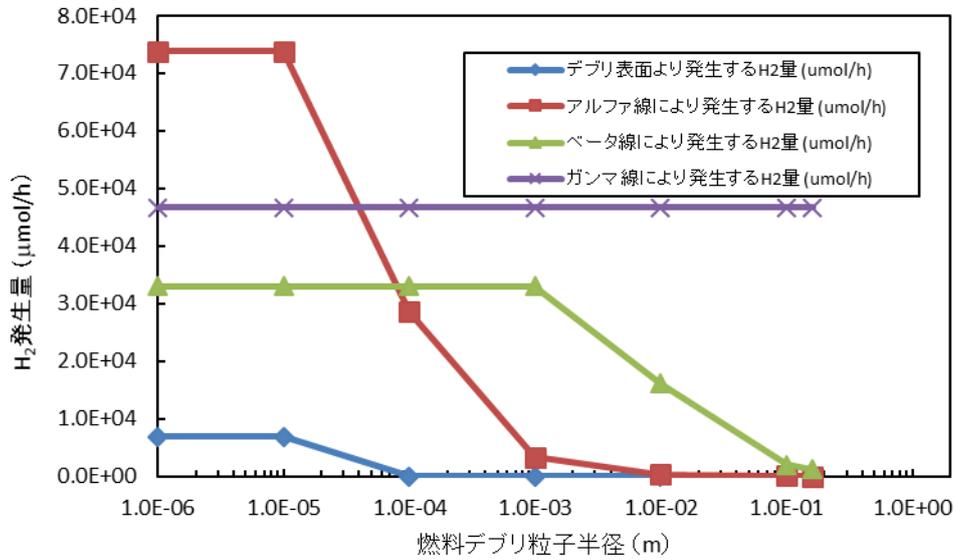


図 3.2.3.1-2 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：100 kg、水の量：1,000 kg)

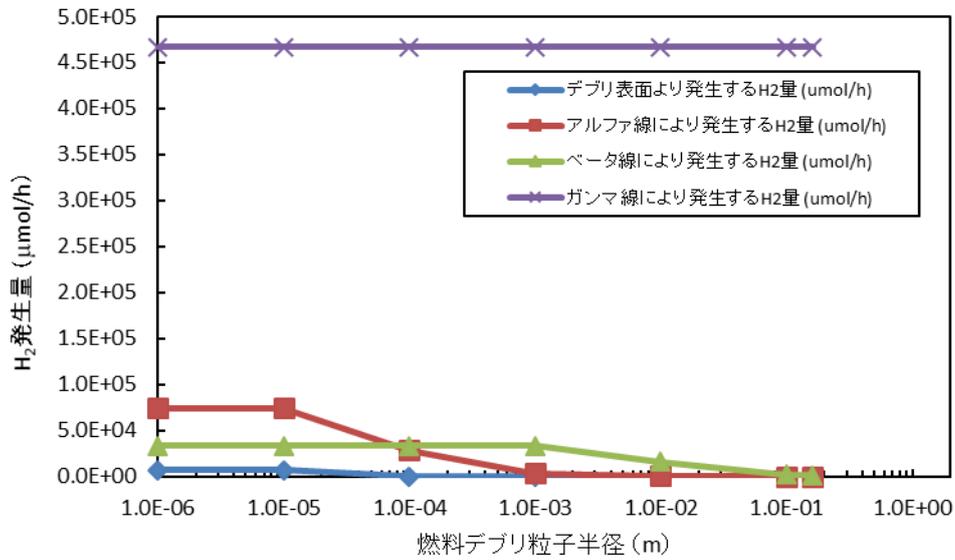


図 3.2.3.1-3 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：100 kg、水の量：10,000 kg)

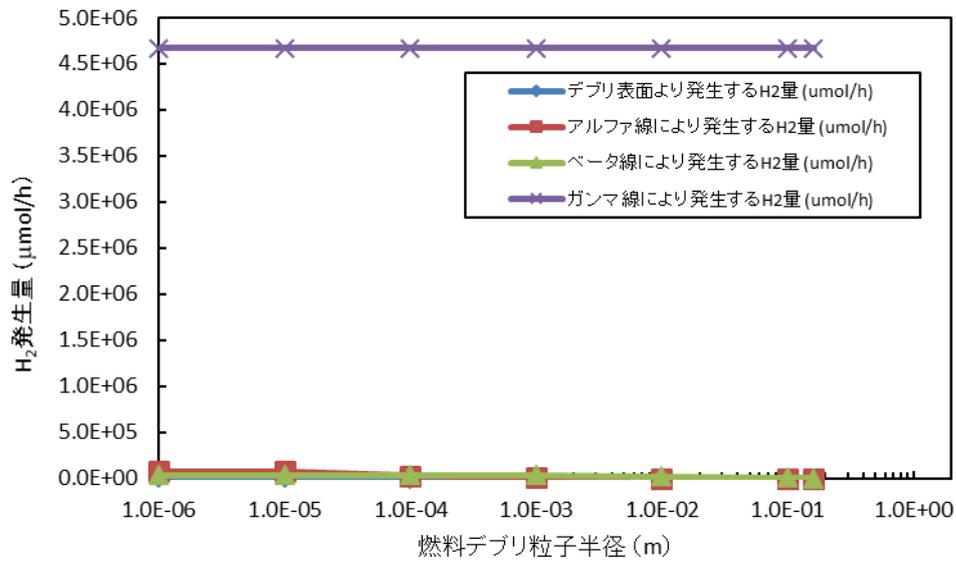


図 3.2.3.1-4 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
 (線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：100 kg、水の量：100,000 kg)

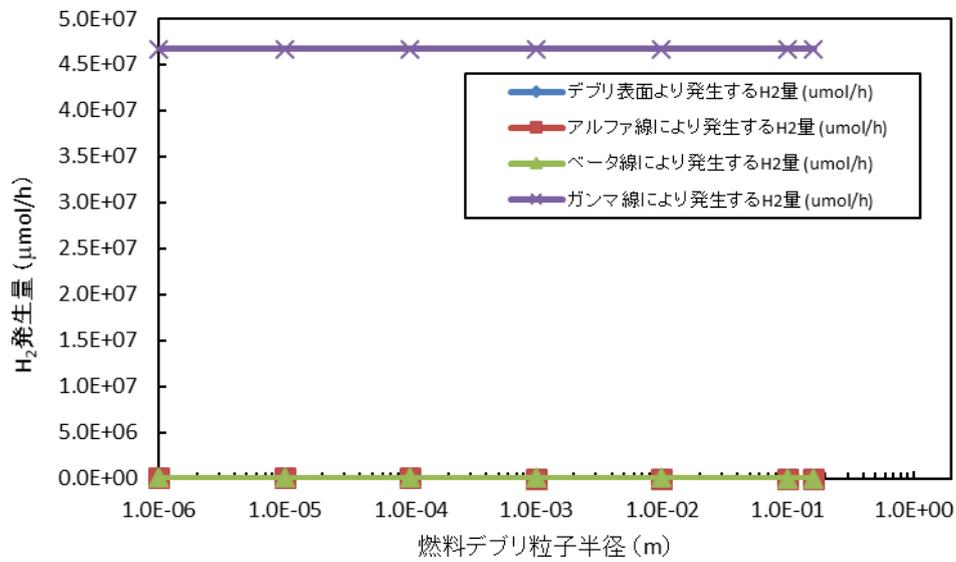


図 3.2.3.1-5 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
 (線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：100 kg、水の量：1,000,000 kg)

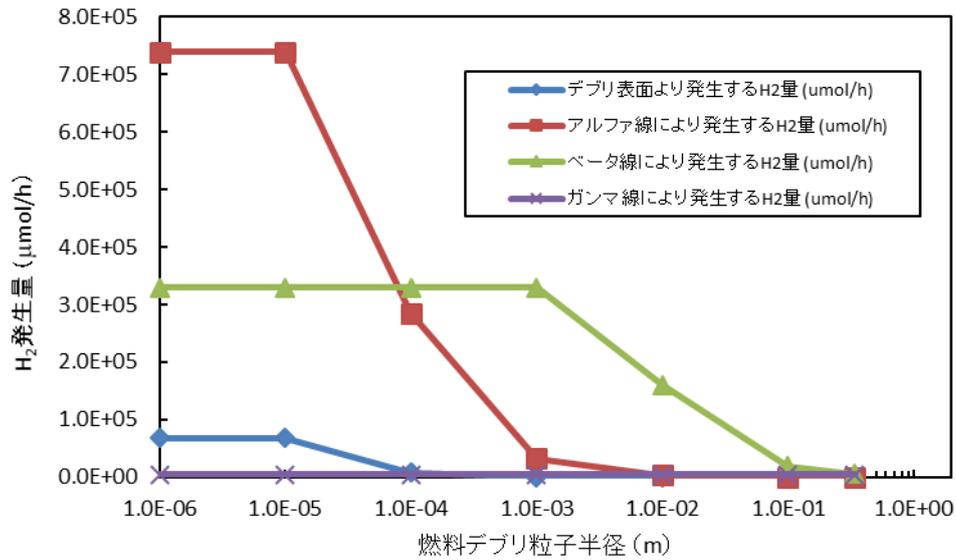


図 3.2.3.1-6 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：1,000 kg、水の量：100 kg)

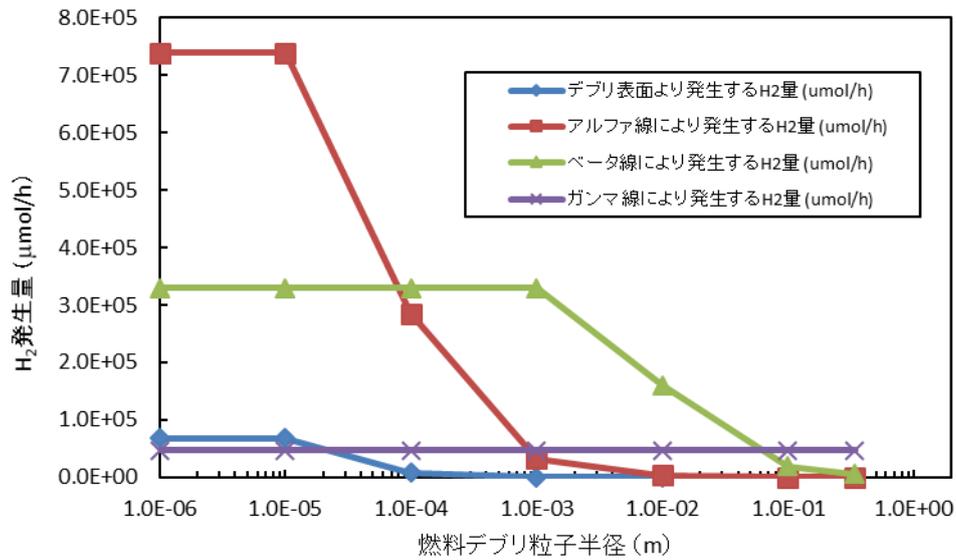


図 3.2.3.1-7 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：1,000 kg、水の量：1,000 kg)

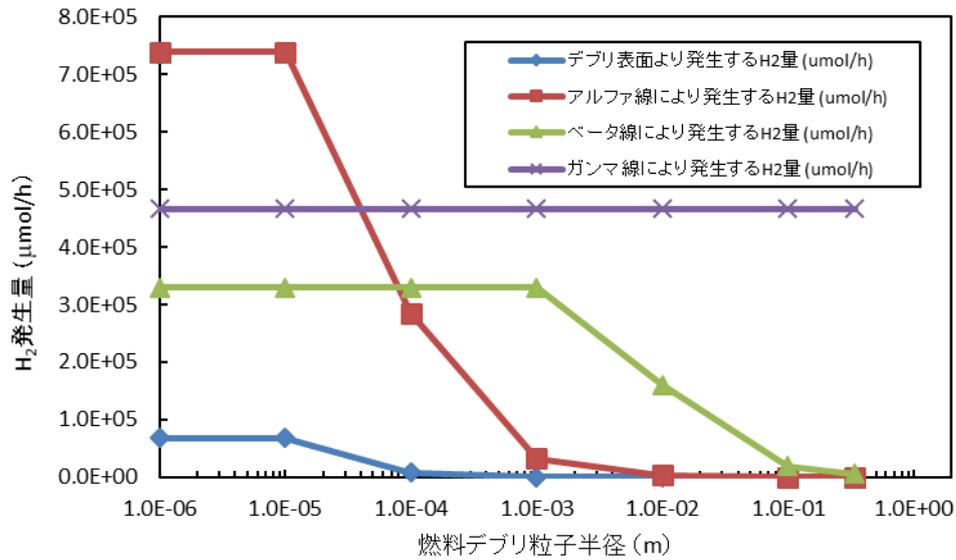


図 3.2.3.1-8 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：1,000 kg、水の量：10,000 kg)

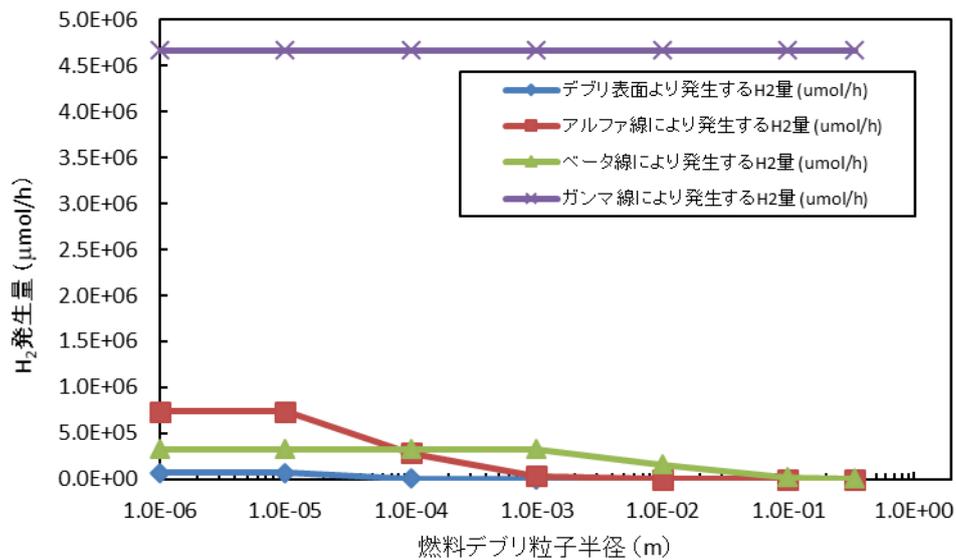


図 3.2.3.1-9 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：1,000 kg、水の量：100,000 kg)

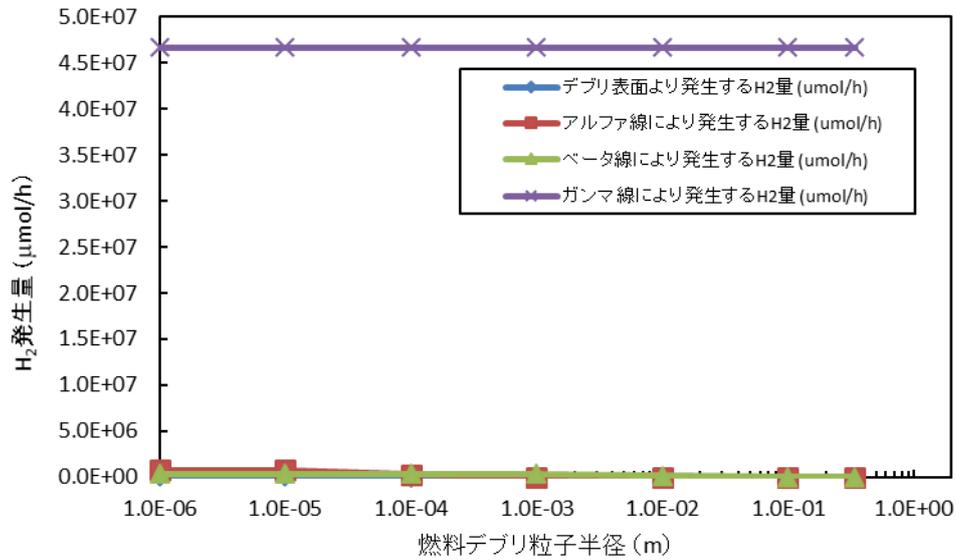


図 3.2.3.1-10 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：1,000 kg、水の量：1,000,000 kg)

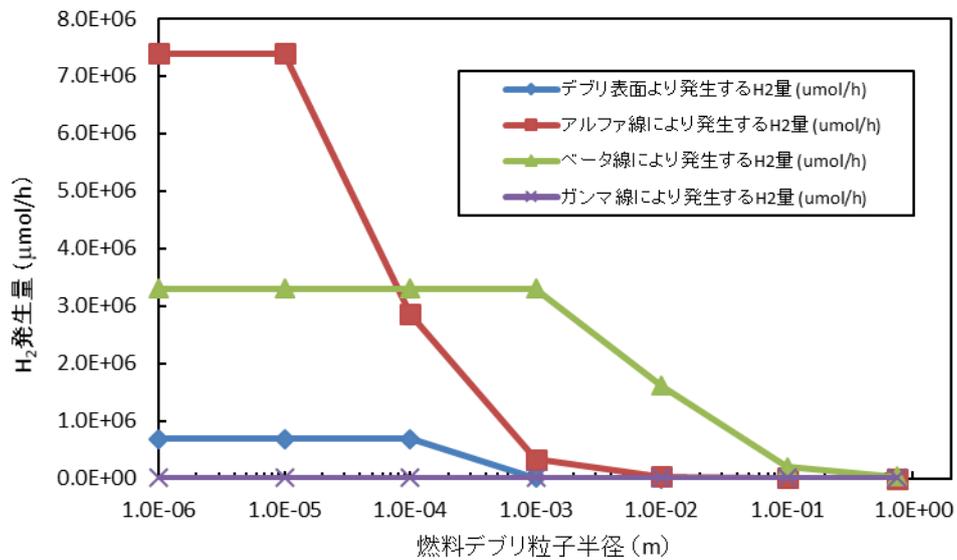


図 3.2.3.1-11 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：10,000 kg、水の量：100 kg)

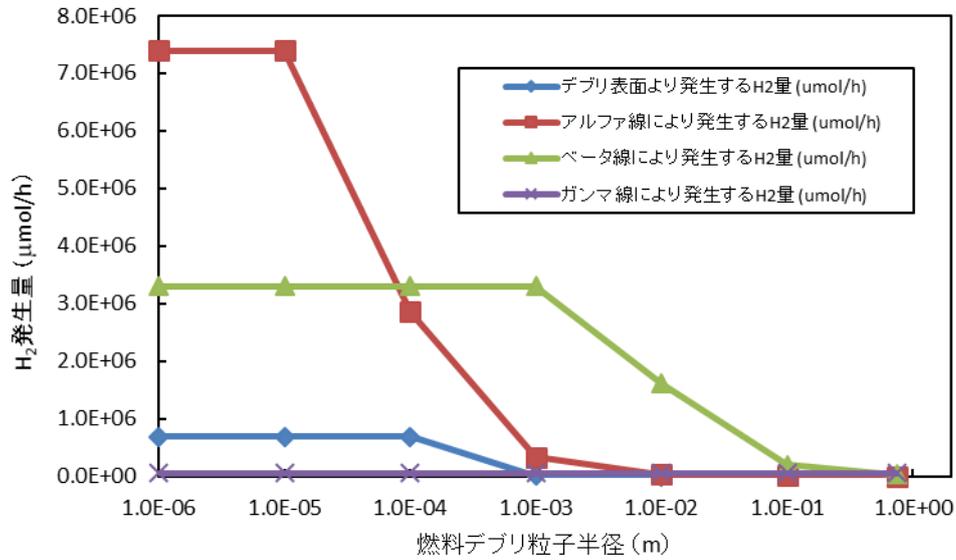


図 3.2.3.1-12 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：10,000 kg、水の量：1,000 kg)

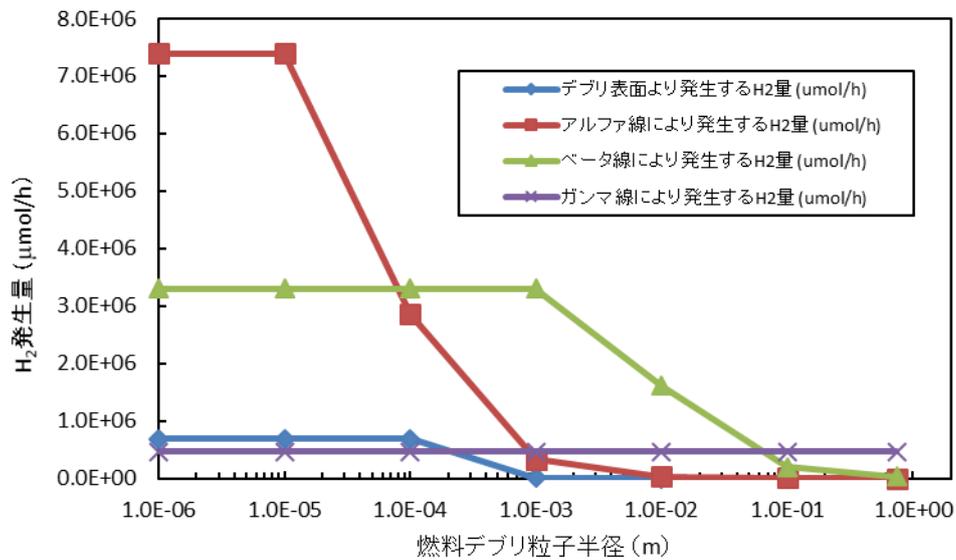


図 3.2.3.1-13 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：10,000 kg、水の量：10,000 kg)

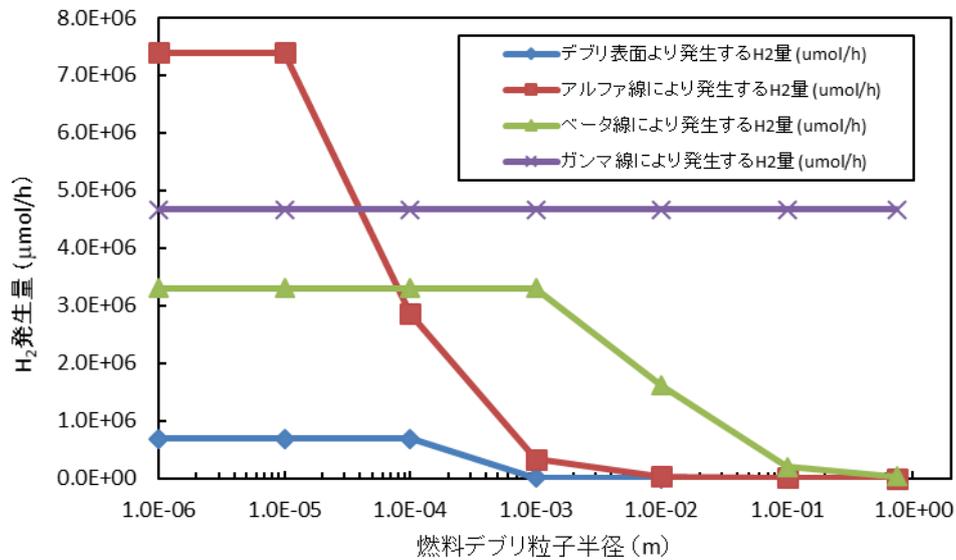


図 3.2.3.1-14 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率 : 1 kGy/h、燃料デブリの量 : 10,000 kg、水の量 : 100,000 kg)

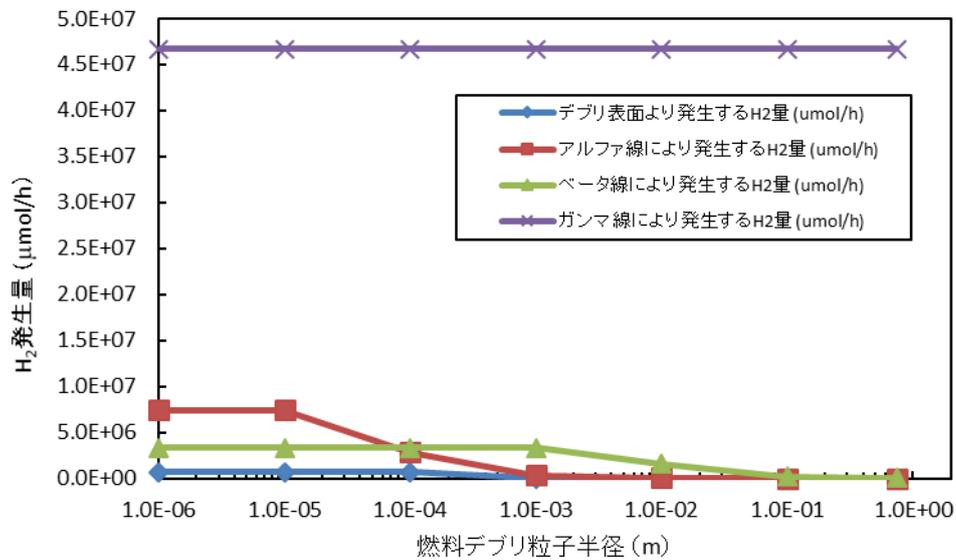


図 3.2.3.1-15 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率 : 1 kGy/h、燃料デブリの量 : 10,000 kg、水の量 : 1,000,000 kg)

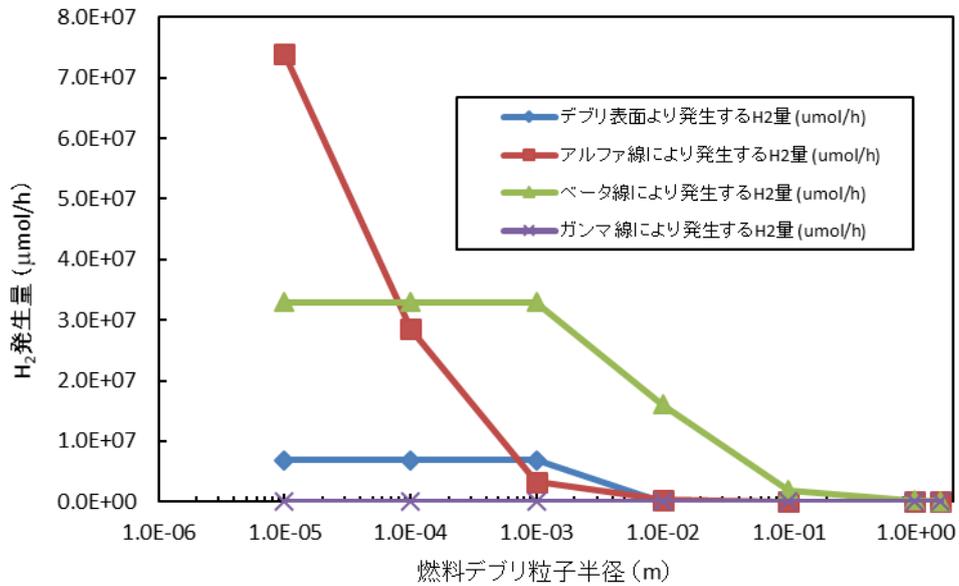


図 3.2.3.1-16 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：100,000 kg、水の量：100 kg)

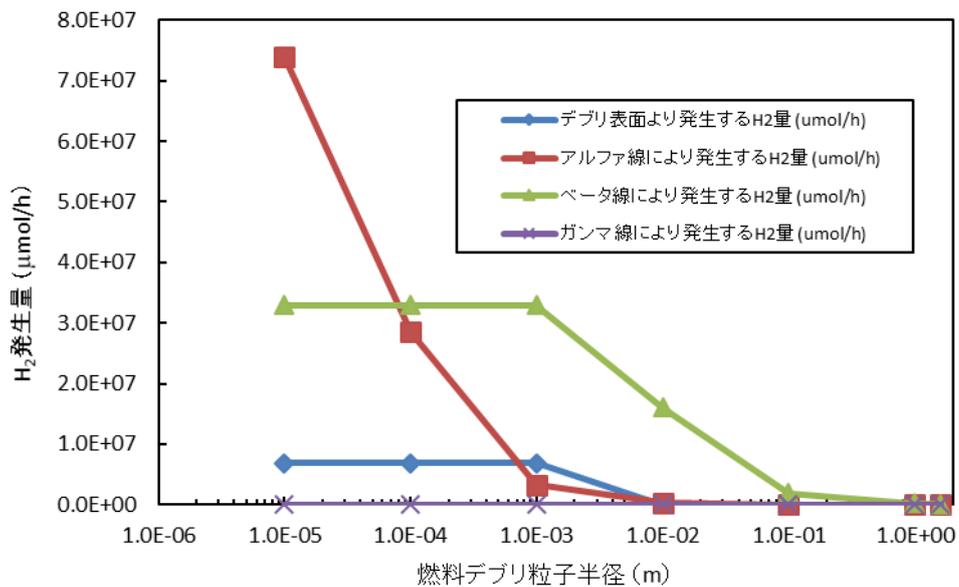


図 3.2.3.1-17 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：100,000 kg、水の量：1,000 kg)

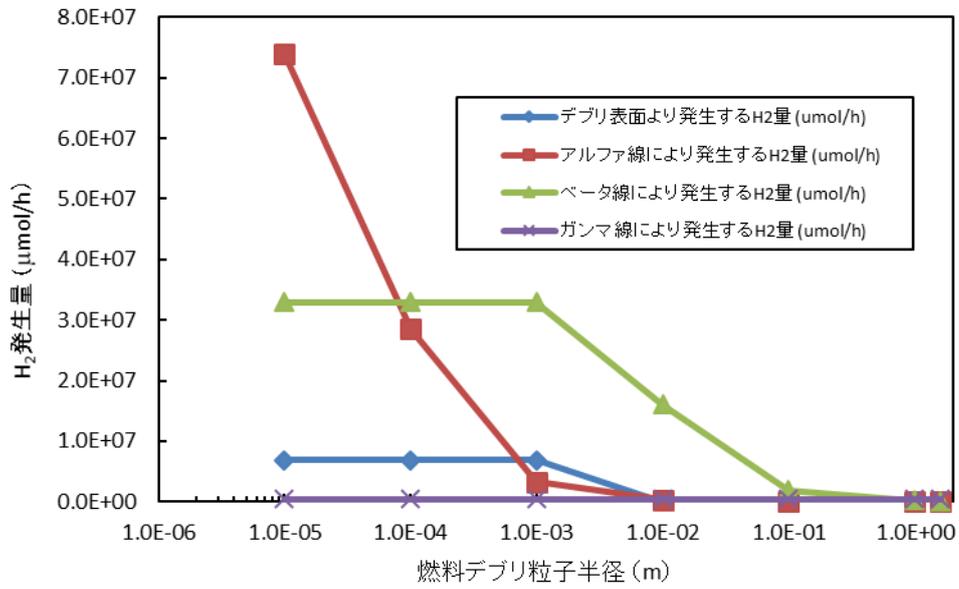


図 3.2.3.1-18 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：100,000 kg、水の量：10,000 kg)

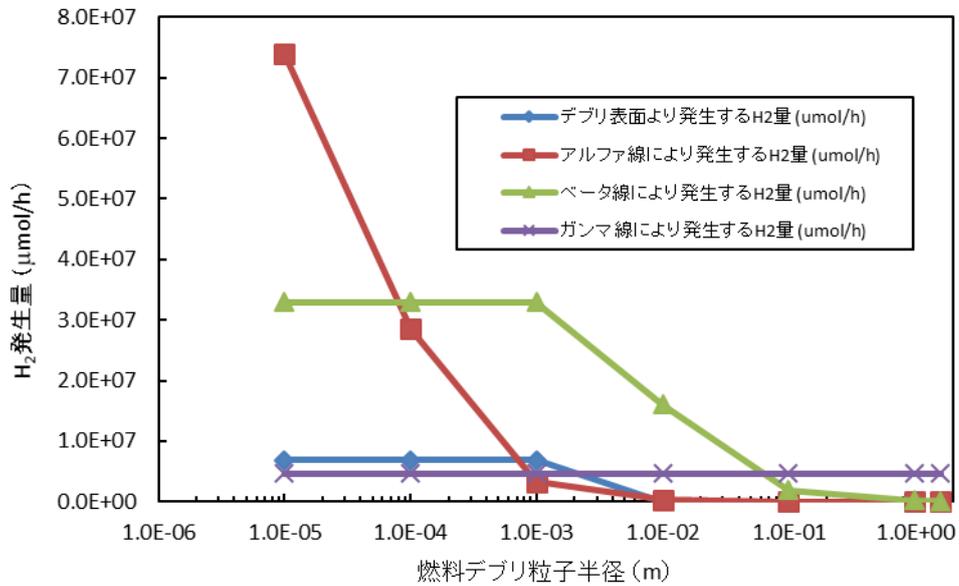


図 3.2.3.1-19 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：100,000 kg、水の量：100,000 kg)

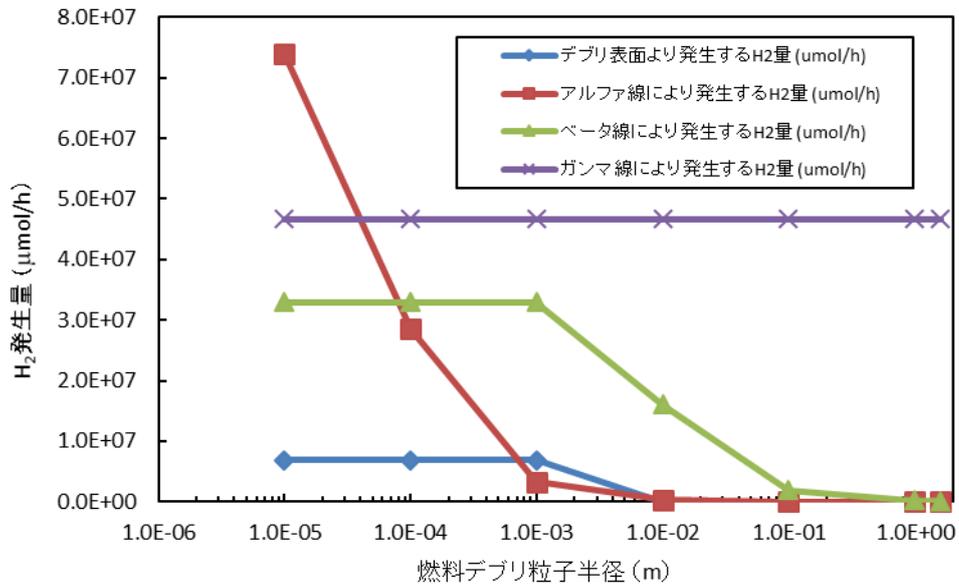


図 3.2.3.1-20 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：1 kGy/h、燃料デブリの量：100,000 kg、水の量：1,000,000 kg)

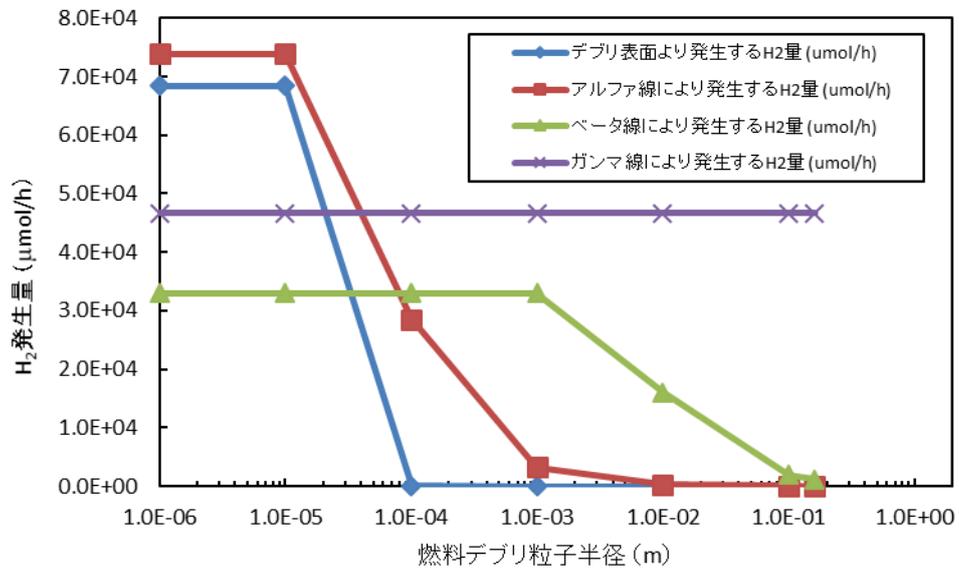


図 3.2.3.1-21 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：100 kg、水の量：100 kg)

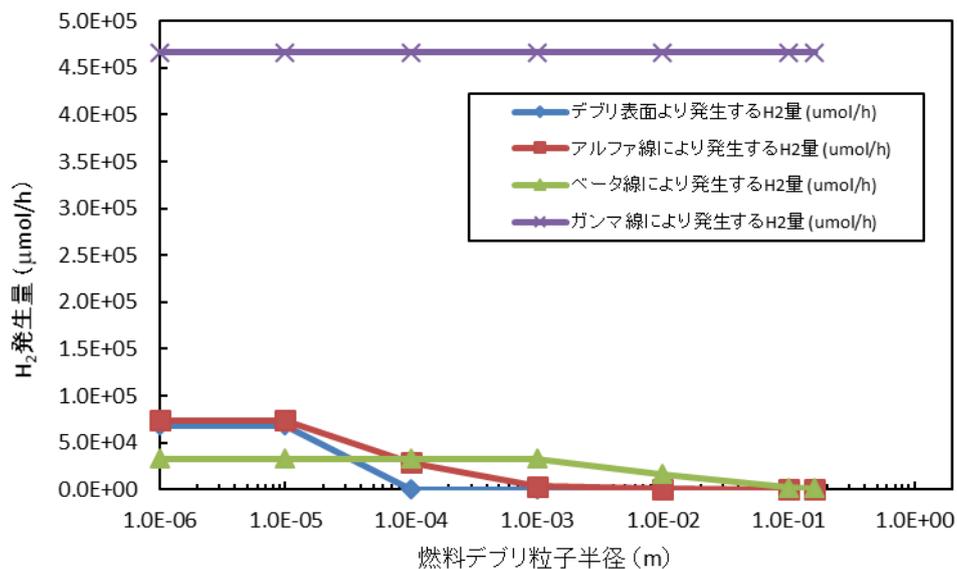


図 3.2.3.1-22 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：100 kg、水の量：1,000 kg)

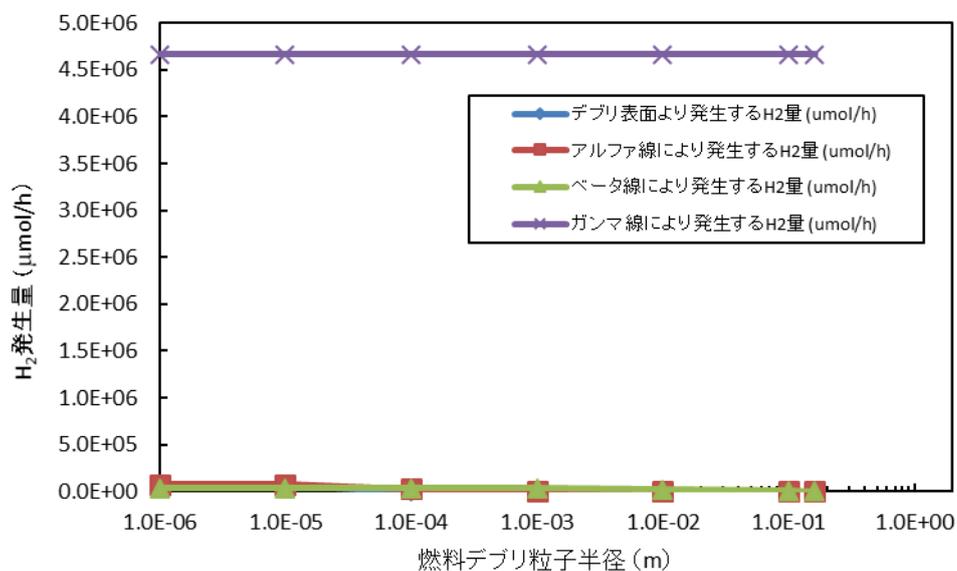


図 3.2.3.1-23 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：100 kg、水の量：10,000 kg)

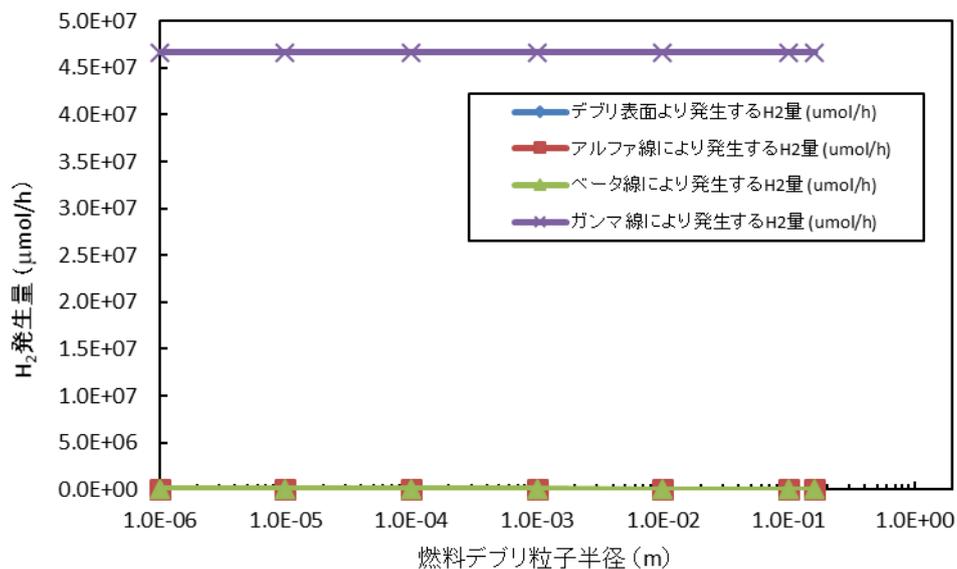


図 3.2.3.1-24 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：100 kg、水の量：100,000 kg)

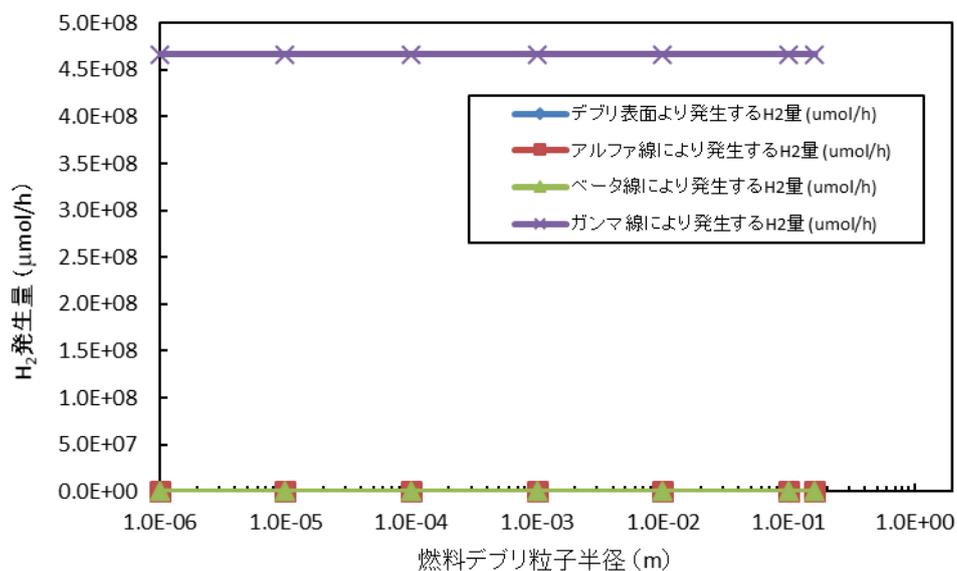


図 3.2.3.1-25 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：100 kg、水の量：1,000,000 kg)

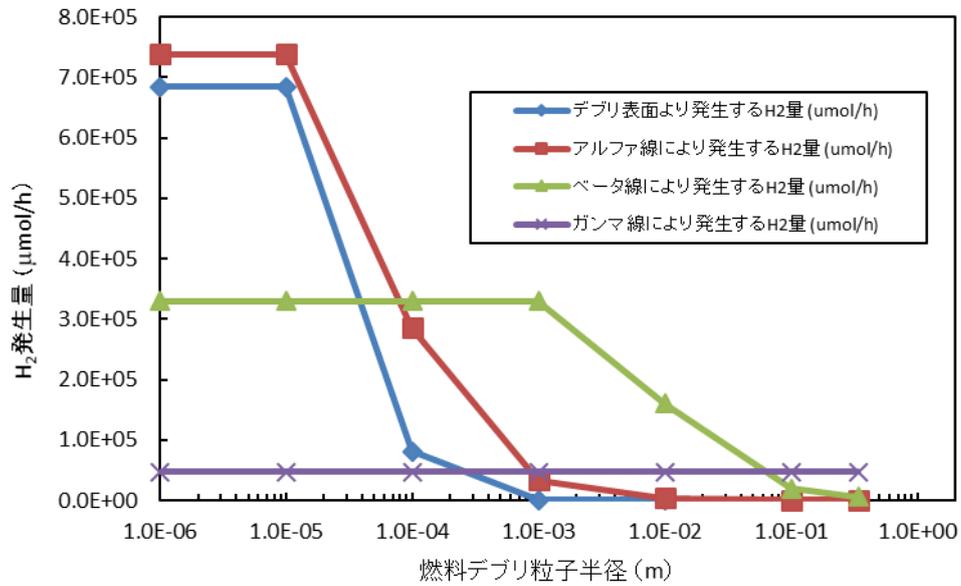


図 3.2.3.1-26 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：1,000 kg、水の量：100 kg)

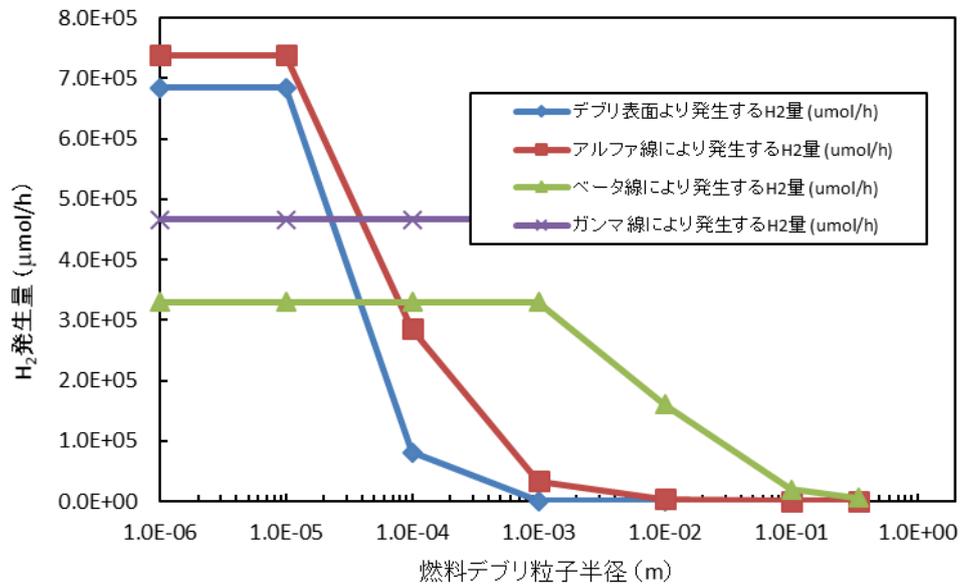


図 3.2.3.1-27 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：1,000 kg、水の量：1,000 kg)

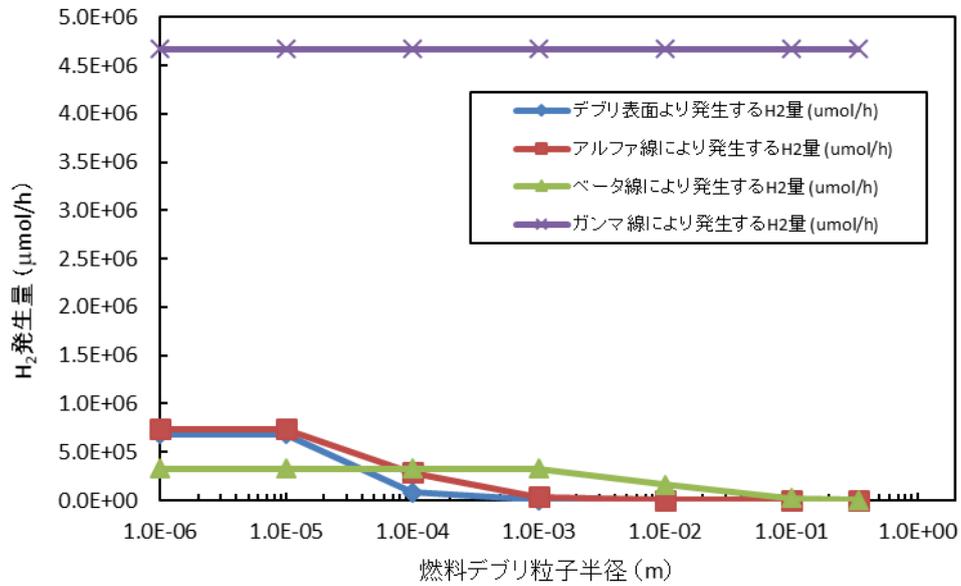


図 3.2.3.1-28 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：1,000 kg、水の量：10,000 kg)

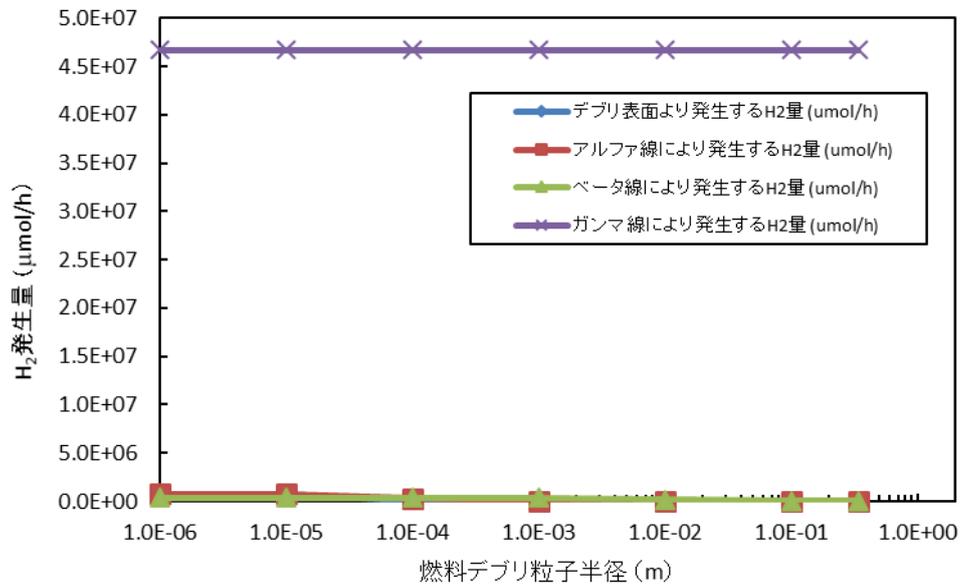


図 3.2.3.1-29 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：1,000 kg、水の量：100,000 kg)

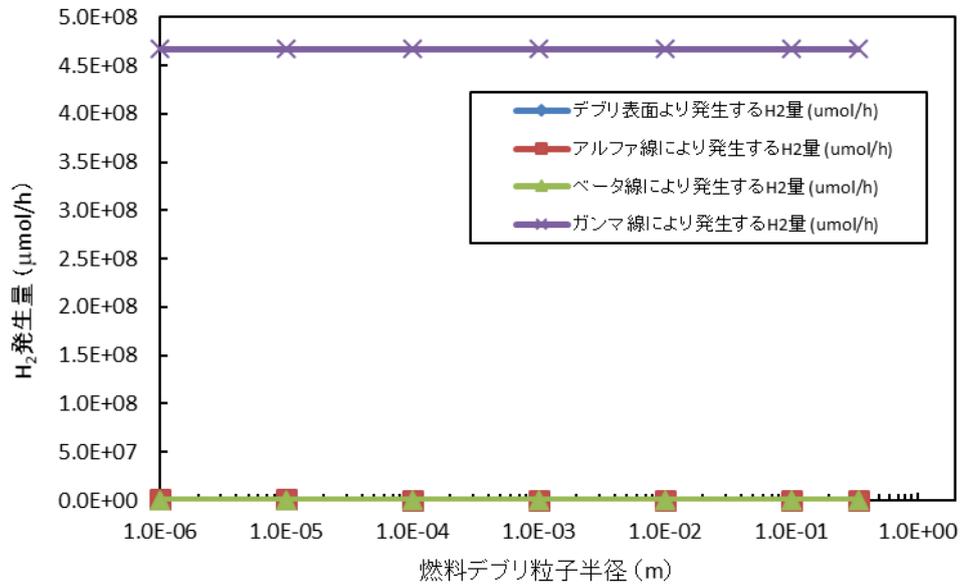


図 3.2.3.1-30 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：1,000 kg、水の量：1,000,000 kg)

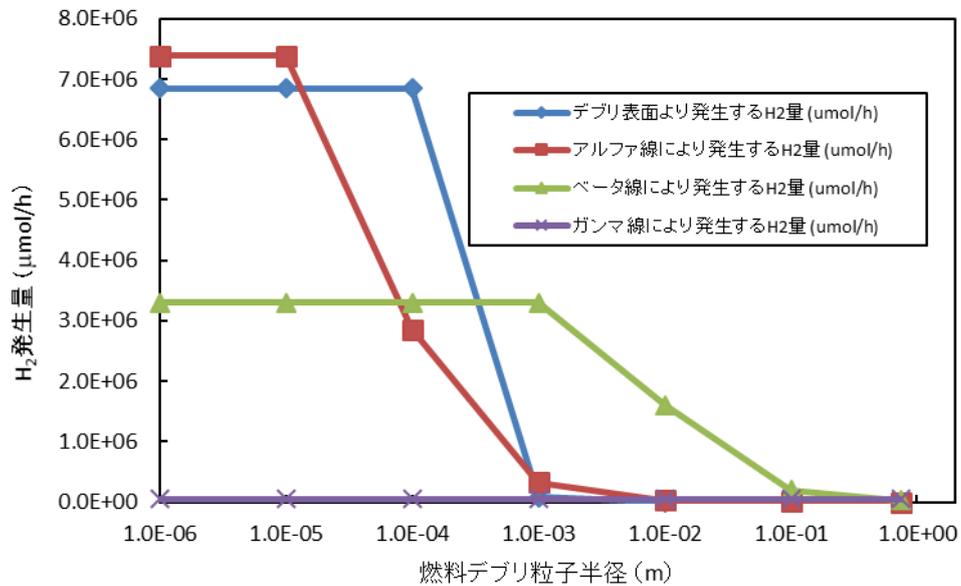


図 3.2.3.1-31 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：10,000 kg、水の量：100 kg)

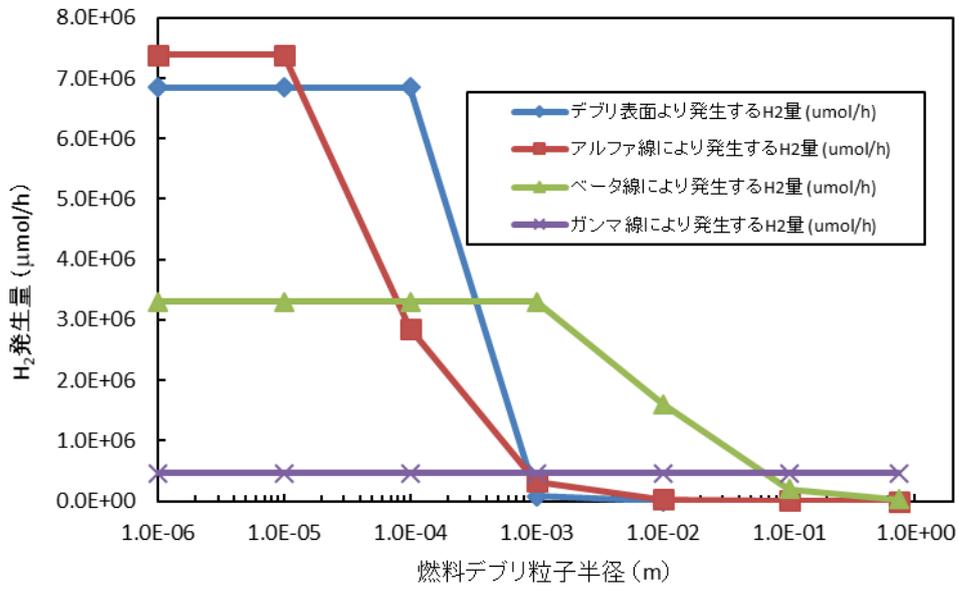


図 3.2.3.1-32 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：10,000 kg、水の量：1,000 kg)

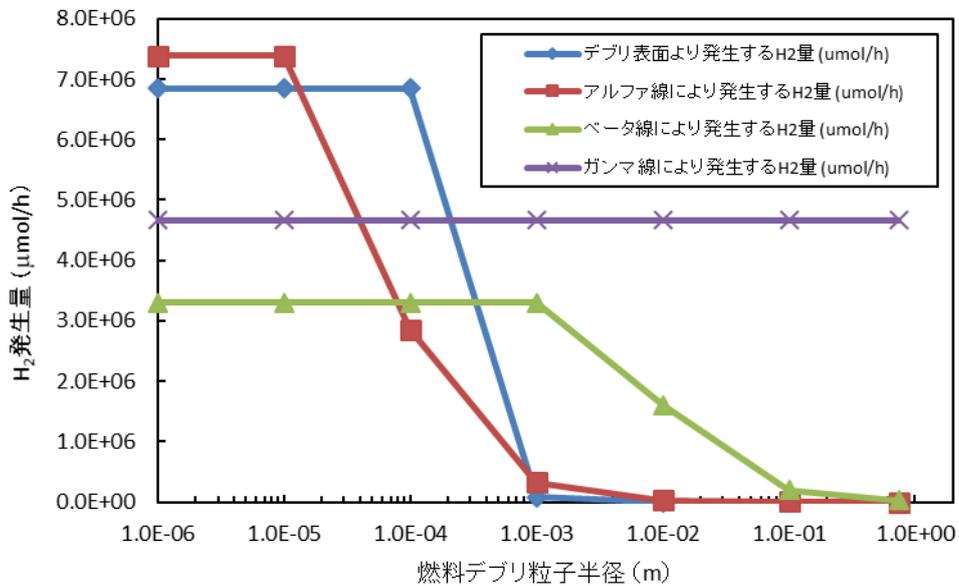


図 3.2.3.1-33 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：10,000 kg、水の量：10,000 kg)

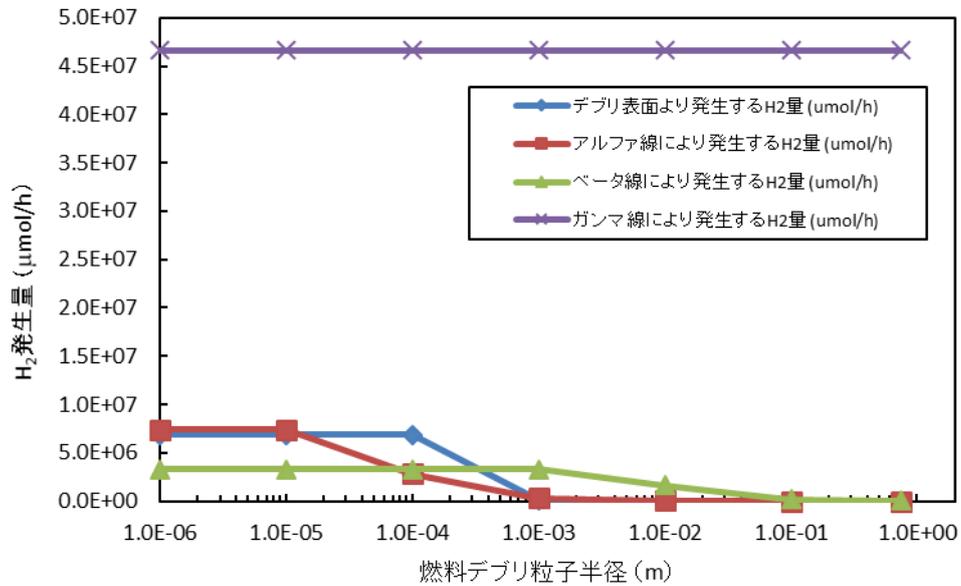


図 3.2.3.1-34 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：10,000 kg、水の量：100,000 kg)

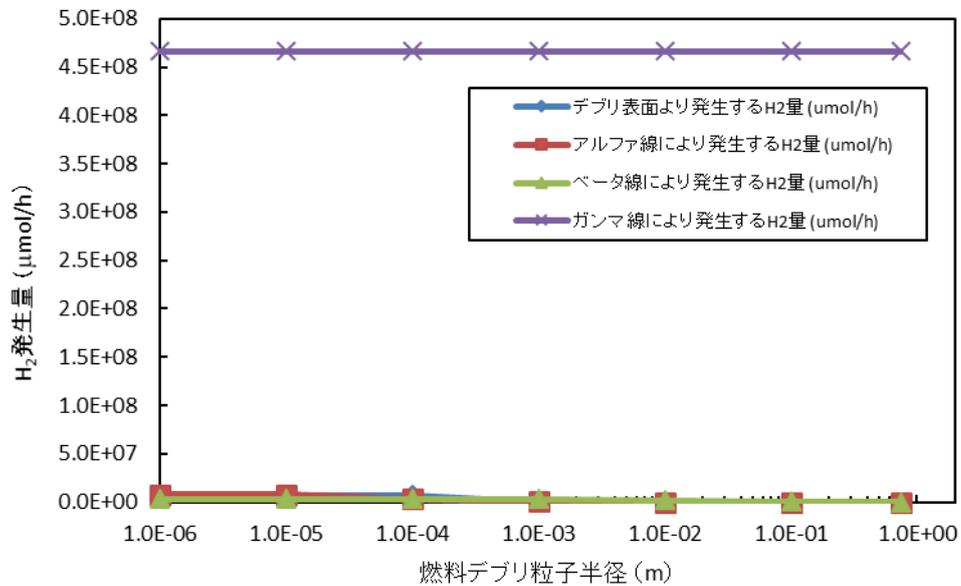


図 3.2.3.1-35 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：10,000 kg、水の量：1,000,000 kg)

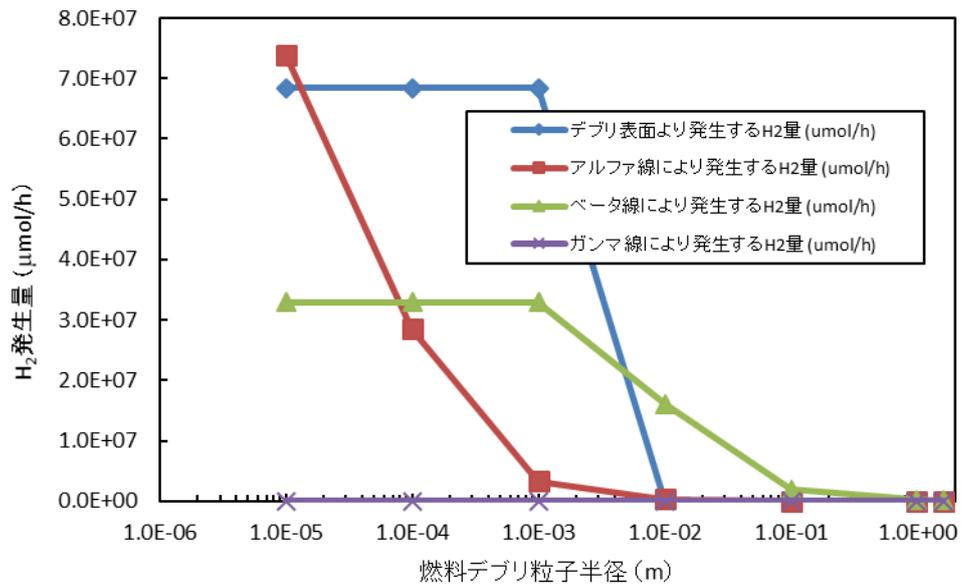


図 3.2.3.1-36 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：100,000 kg、水の量：100 kg)

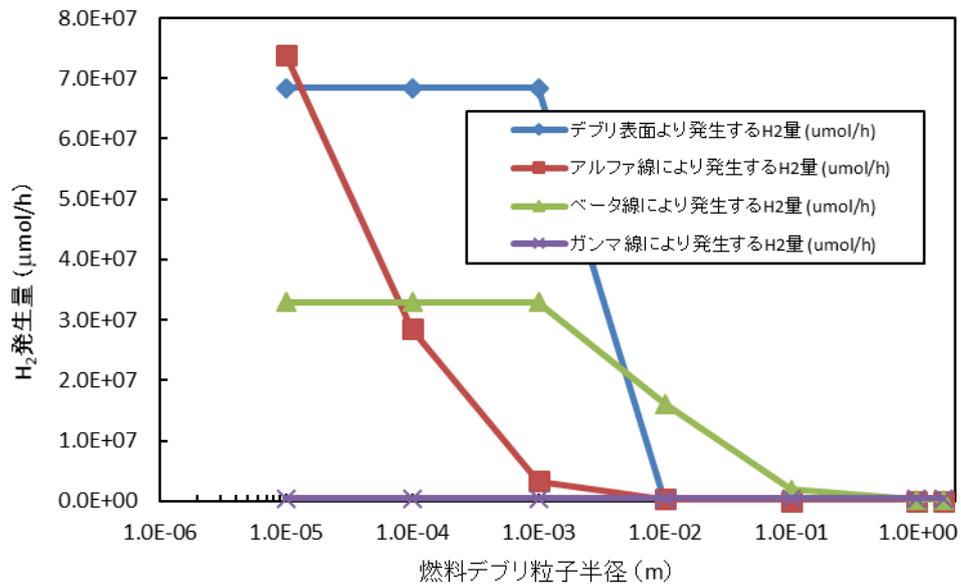


図 3.2.3.1-37 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：100,000 kg、水の量：1,000 kg)

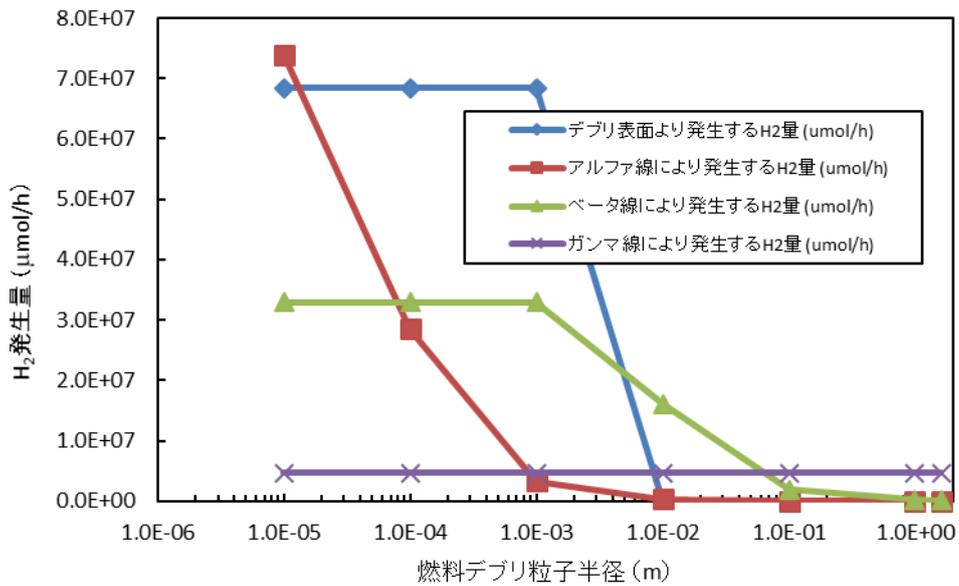


図 3.2.3.1-38 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：100,000 kg、水の量：10,000 kg)

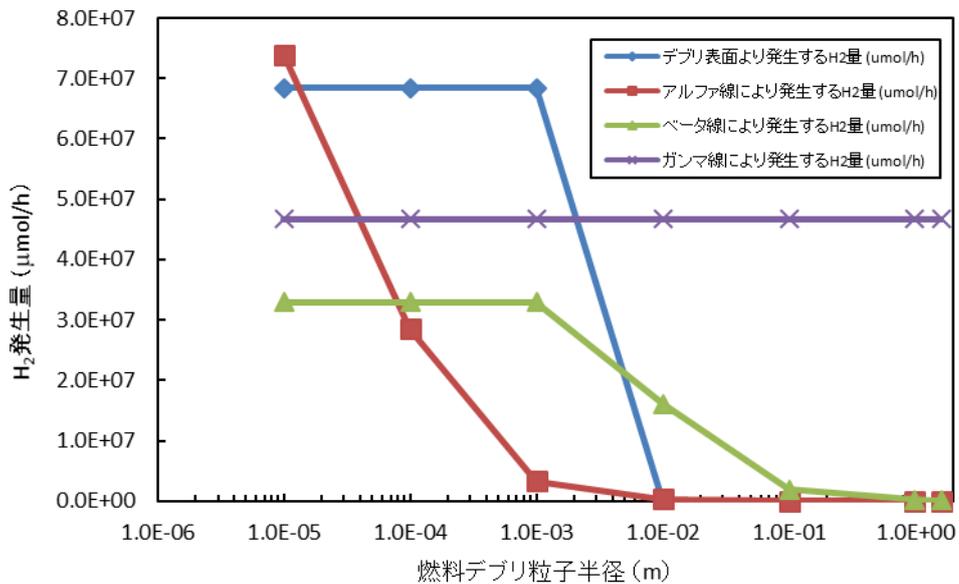


図 3.2.3.1-39 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
(線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：100,000 kg、水の量：100,000 kg)

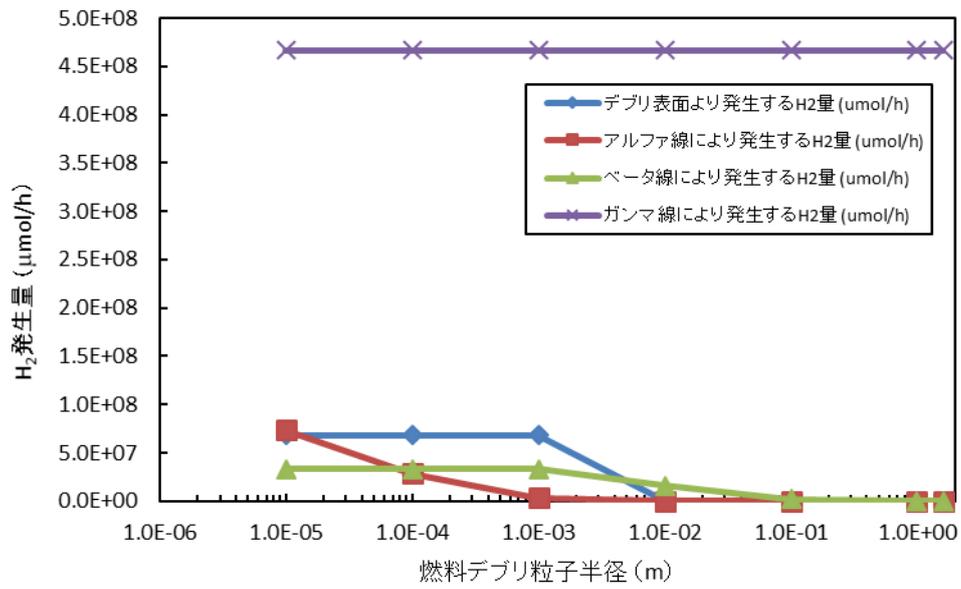


図 3.2.3.1-40 各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の粒子径依存性
 (線量率：10 kGy/h、燃料デブリの量：100,000 kg、水の量：1,000,000 kg)

3.2.3.2 結果の解釈

図 3.2.3.1-1 から 3.2.3.1-20 までの図から以下のことを確認できる。

- ① 燃料デブリ粒子サイズの変化は燃料デブリ表面の効果、アルファ線の効果、ベータ線の効果に影響を与える。一方、ガンマ線による効果は粒子サイズの影響を受けない。
- ② 燃料デブリ表面の効果は、線量率に対して線形に変化する。
- ③ アルファ線の効果、ベータ線の効果は、燃料デブリの量に対して線形に変化する。
- ④ ガンマ線による効果は、水の量及び線量率に対して線形に変化する。
- ⑤ 燃料デブリ表面の効果の最大値は燃料デブリの量に対して線形に変化する。また、効果が顕著に現れるようになる粒子サイズの閾値は燃料デブリの量に依存して大きくなる。(燃料デブリ 100 kg のとき、粒子サイズの閾値： 10^{-4} m、燃料デブリ 100,000 kg のとき、粒子サイズの閾値： 10^{-2} m)
- ⑥ 線量率 10 kGy/h のときは燃料デブリに対して 10 倍以上の重量(体積で評価すると 100 倍程度)の水、線量率 1 kGy/h のときは 100 倍以上の重量の水があれば、ガンマ線による効果 ($G(\text{H}_2) = 0.45$ 個/100eV に相当) に対して、デブリ表面の効果、アルファ線の効果、ベータ線の影響が粒子サイズに依らず十分に小さくなる。ただし、アルファ線、ベータ線の影響は事故時の燃料の状態に大きく依存する。

3.3 今後の検討課題に関する整理

3.3.1 評価手法の妥当性に関する考察

3.2.3 における評価の結果、水／燃料デブリ重量比が十分大きければ（線量率 10 kGy/h のときは重量比 10 以上）、ほぼガンマ線の寄与のみを考えればよい（ H_2 発生収率を 0.45 個/100eV としてよい）が、十分な水がない場合には、アルファ線、ベータ線、燃料デブリ表面の効果が顕在化する（ H_2 発生収率が 0.45 個/100eV を超える）可能性があることが示唆された。しかし、今回の評価では、以下のような仮定を含んでいることに留意する必要がある。

- ① 燃料デブリ表面からの H_2 発生効率を ZrO_2 によるものとしたこと。（ UO_2 の場合は表面の効果は極めて小さくなる。 Zr と U の混合酸化物についてはほとんど情報はない）
- ② 燃料デブリ表面からの H_2 発生に対して、ドーパントの寄与を考慮していないこと。（微量な不純物や添加物がドーパントとなる可能性が考えられる。ドーパントの種類によっては燃料デブリ表面の影響がより大きくなる可能性がある。）
- ③ 燃料デブリ表面からの H_2 発生に関して、アルファ線による照射損傷の影響を考慮していないこと。（アルファ線による照射損傷が電子のトラップサイトとなることで、表面へのエネルギーの移動が制限される可能性がある。）
- ④ 放射線分解による H_2 発生収率は、ガンマ線、アルファ線、ベータ線すべてに対して H_2 のプライマリ収率を用いていること。（純海水や沸騰水においてはこのような高い H_2 発生収率となることが見込まれるが、実環境ではラジオリシスの影響により低い H_2 発生収率となる可能性がある。）

本評価はこのような不確実な要素を多く含む状況の中、極力保守的な評価となるように条件を設定し、計算を実施した。

上述の仮定の①～③について、 ZrO_2 に関しては 3.2 において紹介したように既往研究において十分なデータが得られている。一方、 UO_2 に関しては、バンドギャップエネルギーの点で H_2 発生量が ZrO_2 より低くなることが示唆されている程度である。また、近年福島第一原子力発電所における燃料デブリ収納缶開発において、使用済み燃料を用いた H_2 発生量の評価が行われている[3.3.1-1]。しかし、被覆管材料と燃料が混ざり合った燃料デブリに対しては、表面での H_2 発生に関する知見はほとんどない。評価結果の妥当性確認のためには、模擬デブリ等を用いた実験データの取得が必要である。

④に関連する既往研究として、福島第一原子力発電所の燃料デブリ取出しを想定し、燃料デブリからのアルファ線による H_2 発生とバルク中のガンマ線による H_2 発生を考慮したラ

ジオリシス計算が報告されている[3.3.1-2]。しかし、燃料表面の効果やベータ線については考慮されていない。また、このような計算結果をサポートする実験データもほとんど得られたことは無い。

以上により、本研究で実施した評価結果の妥当性確認を既往研究データに基づいて実施するのは困難である。そこで、本項では、以下に評価手法妥当性確認のための実験方法の提案を行う。

【参考文献】

[3.3.1-1] 例えば、宮本和ら、講演番号 3C15、日本原子力学会「2018 年秋の大会」、2018.

[3.3.1-2] J. Takagi and S. Yamamoto, Proceedings of Symposium on Water Chemistry and Corrosion in Nuclear Power plants in Asia-2017, pp.43, Shenyang, China, Sep. 2017.

3.3.2 実験方法の提案

実規模の実験を行うことは困難であるが、3.2における評価において、水と燃料デブリの重量比に対する各 H₂ 発生源の影響の大きさに相似性が見られたことから、規模を縮小した実験でも十分に評価手法の確認ができるものと考えられる。

放射線分解の寄与の確認には、表面積が既知のアルファ核種及びベータ核種を試料として使用する。試料を水溶液中に浸漬させた状態で発生するガスを捕集し、ガスクロマトグラフ等を用いて成分分析を行う。水溶液は純水または NaBr 水溶液等を使用する。NaBr は数ミリ mol/l 程度の濃度で OH ラジカルを十分に捕捉できるため[3.3.2-1]、H₂ のプライマリ収率相当の H₂ 発生を実現できると考えられる。これらの実験の実施に当たっては RI 使用施設が必要となる。

燃料デブリ表面からの H₂ 発生量の妥当性確認には、系外からのエネルギー付与（ガンマ線照射）を行う場合、ホット試料の取り扱いが制限されるため、コールド試料を用いた模擬試験が有効である。福島第一原子力発電所事故における燃料デブリ取出し作業に関する技術開発のため、コールド模擬デブリの研究開発も行われているが、機械的特性等が重要な要素となっている。今回提案する試験に用いるにあたっては照射下での化学的特性が重要である。先行研究としては、UO₂ 燃料模擬試料として CeO₂ を用いた報告もあり[3.3.2-2、3.3.2-3]、これら既往研究を活用した技術開発が必要となる。このような試料を作製し、水溶液中に浸漬させた状態でガンマ線照射を行い、H₂ 発生量を評価することで、燃料デブリ表面の実際の H₂ 発生量を見積もることができると考えられる。模擬デブリに加速器を用いた He イオンを事前に照射しておくことで、③に挙げた照射損傷の影響評価を行うことも可能である。本実験を実施するにあたっては、重粒子線加速器及びガンマ線照射施設が必要となる。

【参考文献】

[3.3.2-1] K. Hata, et al., Journal of Nuclear Science and Technology, 54, pp.1183, 2016.

[3.3.2-2] J.A. LaVerne and L. Tandon, Journal of Physical Chemistry B, 106, pp.380, 2002.

[3.3.2-3] J.A. LaVerne, Chapter 16 in Charged Particle and Photon Interactions with Matter, Recent Advances, Applications, and Interfaces (eds: Y. Hatano, Y. katsumura, and A. Mozumder), pp.425, 2011.

4. おわりに

本研究では、シビアアクシデント時に炉心燃料が溶融し、原子炉キャビティ等へ移行した後冷却水プール水（以下、冷却水）に浸漬している状態を想定し、デブリ等から放出される放射線による冷却水の放射線分解挙動（主に水素の発生挙動）を調査した。さらに、調査結果に基づき各 H₂ 発生源からの H₂ 発生量の評価を行った。

評価結果では、燃料デブリの粒子径がある程度小さくなると、ガンマ線によるバルクの水からの H₂ 発生量に対して、アルファ線、ベータ線、燃料デブリ表面からの H₂ 発生が有意に大きくなることが示唆された。また、線量率や水/燃料デブリ重量比が十分に大きくはない場合、粒子サイズによってはアルファ線、ベータ線、燃料デブリ表面による H₂ 発生の寄与が顕在化する可能性が示唆された。

評価結果の妥当性確認のためには、模擬デブリ等を浸漬させた水溶液を対象とした照射実験が必要である。実環境に近い条件で実験を実施することは難しいが、コールド試料等を活用して個別の H₂ 発生源の効果を調べることにより、評価結果の妥当性を検証することは可能であると思われる。