令和5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6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。

1. はじめに
7 再我行送動に関する実験
<ol> <li>         - 一日的        </li></ol>
2.1 日口
<ol> <li>2.2 REARA 突厥表世の協会</li> <li>2.2 水蒸気 _ 砂素素団気にないて沈差したヨウ化センウムと</li> </ol>
2.5 小杰文 販売分四×にわいて优有したコットビンサムと 酸化エルブデン素気積との化学的な再表及送動を相定した加熱実験
(CSI+MOO3 円移1] 美碶)
2.3.1 美硕余件
2.3.2 夫映柏朱
2.4 £ 2 «)
3. 化学挙動に関するデータ取得
3.1 目的
3.2 水蒸気-酸素雰囲気における水酸化セシウム蒸気種及び
ヨウ化セシウム蒸気種と三酸化モリブデン蒸気種との高温化学反応
3.2.1 実験条件
3.2.2 実験結果
33 キレめ
4. 解析コードによる実施実験の解析
4.1 目的
4.2 CsI 気相移行化学種への Mo 影響に係る実験の解析
421 解析コード VICTORIA
4.2.2 解析条件
423 解析結果
<b>43 Csl </b> 沈差物への Mo 影響に係ろ実験の解析
4.1 解析冬性
4.2.2 解析結果
<b>7.</b>
<b>1.1</b> 入1日 回1日久心♡ノ久心里町1町℃ノノビ
4.4.1       不以心核てノル         4.4.2       化学エデルトキロ内核エデルの実施
4.4.2 1L子てフルと不以心核てフルの理病
4.4.5 木尺応核セブルの感度解析
4.5 MELCOK 実機解析による現芥余件の推定
4.5.1 事政シナリオ (SBU)
4.5.2 FP 分布及びブフントバフメータ

4.6 まとめ	 4-39
5. おわりに	 5-1
付録 A 会議等参加報告	 A- 1

# 1. はじめに

シビアアクシデントにおけるソースターム(環境中に放出される放射性物質(FP:Fission Product)の量や化学形、放出のタイミング)情報は、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。ソースタームの評価では、原子炉冷却系内や格 納容器内における炉心溶融進展、熱水力挙動及び燃料からの FP 放出とその後の移行挙動を 考慮する必要があり、一般にそれらをモデル化した数値解析コード(シビアアクシデント総 合解析コード)を用いる。シビアアクシデント総合解析コードにおいて一般的に考慮されて いる FP 移行挙動を図 1.1 に示す。シビアアクシデント総合解析コードを利用したソースタ ーム情報の活用には、各モデルの精度の低さや、未考慮・未解明の現象のモデル欠如等から 来る不確かさを含有するため、それらの不確かさを定量化するとともにその低減を図るこ とが重要である。

FP 移行挙動は、気体状 FP については化学吸着や冷却水への溶解現象、粒子状(エアロゾル) FP については凝集や重力沈降等に支配されるといったように、物理状態に強く依存する。大部分の FP は、蒸気圧が低いため原子力施設内でエアロゾル化し、環境へ放出されるまでの間に重力沈降や拡散泳動等の物理挙動の影響を受けて移行経路中に保持され、さらに、スクラビングやスプレイ等の安全設備により気相中からの低減が図られる。エアロゾル化しない気体状 FP としては希ガスであるキセノンや気体状ヨウ素化学種が挙げられ、希ガスについては原子力施設内での物理挙動による保持効果が小さいため格納容器が破損した場合にはほぼ全量が環境へ放出される。一方で、気体状ヨウ素の移行挙動については、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[1.1]、並びに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の観測[1.2,1.3]により生成・移行が示唆されているものの、その詳細な生成機構や生成割合について十分な知見は得られておらず、ソースターム評価における不確かさの要因となっている。

また、気体状ヨウ素に加えて、シビアアクシデント時に一旦保持された FP がその後の温 度上昇、流動条件の変化、流入する気体/液体の組成変化等により再び移行する現象、すな わち再移行挙動がソースタームに対して大きな不確かさをもたらすことが改めて認識され ている。例えば、経済協力開発機構/原子力機関(OECD/NEA)の事故分析・管理ワーキン ググループ(WGAMA)が2019年1月に開催したソースタームワークショップでは、1F事 故の分析から得られた知見やOECD/NEAのTHAI、STEM等のプロジェクト成果に基づき、 再移行挙動を重要な研究課題と位置付けている。また、このような議論を経て、OECD/NEA はソースタームにおける遅延放出メカニズムに関する実験プロジェクト ESTERを計画した (2020年に開始)。シビアアクシデント晩期での重要となる再移行挙動としては、沈着した エアロゾルの再蒸発、水素爆発時等でのエアロゾルの再浮遊、スクラビング時の飛沫同伴に よるエアロゾル生成、冷却水中の溶存気体の再揮発等が挙げられる(図1.2)。それらの一部 については既往研究とモデルがあるものの、知見は限られている。

以上を踏まえ、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、気体状ヨウ素挙動及び再移 行挙動に関する不確かさ低減に資する実験及び解析を実施した。より具体的には、以下を実施した。

 雨移行挙動に関する実験

FPの再移行(再浮遊、再蒸発、飛沫同伴、再揮発)挙動について、令和4年度までに実施した解析の結果で特に再蒸発現象の影響が大きいことが示されている[1.4-1.6]。再蒸発現象は熱や化学反応に起因するが、シビアアクシデント総合解析において化学的な再蒸発モデルは実装されていない。そこで、化学的な再蒸発が起こりうるモリブデン酸化物と模擬 FP であるヨウ化セシウムについて再移行実験を実施した。データ取得には日本原子力研究開発機構原子力科学研究所のFP 放出移行挙動再現装置(TeRRa: Test bench for FP Release and tRansport)を用いた。この実験では、ヨウ化セシウムを TeRRa 装置内にあらかじめ沈着させ、そこにモリブデン蒸気種を含むキャリアガスを輸送し再移行挙動を調べた。結果として得られる模擬 FP の加熱・沈着と沈着物との間で生成される化合物の化学形態や結晶構造等の分析し、その挙動を考察した。

② 化学挙動に関するデータ取得

シビアアクシデント時において、気相の反応場において共存元素のモリブデンが ガス状ヨウ素の発生を促進することが令和 4 年度までの個別効果実験の成果より明 らかとなっている[1.4-1.6]。一方で、実燃料インベントリで想定されるセシウム/ヨ ウ素比が高い条件で揮発性ヨウ素の発生に必要となるモリブデンがセシウムとの化 学反応により消費されるため、揮発性ヨウ素の発生が抑えられる可能性がある。しか し、該当する実験データは取得されていない。そのため、本年度はヨウ化セシウムと モリブデン酸化物だけでなく水酸化セシウムを供し、実際の炉心燃料内のインベン トリ比を考慮した条件で、気相での化学反応によるデータを TeRRa 装置により取得 した。なお、生成された化合物の化学形態や結晶構造等を①と同様に分析し、その影 響を評価した。

③ 解析コードによる実施実験の解析

上述の①及び②実験とも密接に関係している令和4年度までに実施した FP 同士 の化学反応によりガス状ヨウ素の発生が示唆される実験[1.4-1.6]を対象に、FP の化 学反応を考慮可能な VICTORIA コード[1.7]を用いた解析を実施し、FP 化学モデル の高度化に係る課題を検討・抽出した。加えて、シビアアクシデント総合解析コード MELCOR を用いて PWR のソースターム解析を実施し、①及び②の実験等で対象と するモリブデンによるヨウ素の移行促進現象について、主要な影響因子である酸素 濃度及び雰囲気温度等について実機で想定される情報を取得した。 参考文献

- [1.1] N. Girault et al., "Towards a Better Understanding of Iodine Chemistry in RCS of Nuclear Reactors," Nucl. Eng. Des., 239, 1162–1170, 2009.
- [1.2] 古田定昭 他,"福島第一原子力発電所事故に係る特別環境放射線モニタリング結果 中間報告 (空間線量率,空気中放射性物質濃度,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] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 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」、2021.
- [1.5] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 3 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」、2022.
- [1.6] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 4 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」、2023.
- [1.7] 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.



図 1.1 シビアアクシデント時に生じる放射性物質の移行挙動





図 1.2 本事業で対象とした再移行挙動

2. 再移行挙動に関する実験

2.1 目的

実用発電用原子炉におけるシビアアクシデントの影響評価、確率論的リスク評価、緊急時 防護対策の検討において、環境中に放出される Fission Product (FP)の量や化学形、放出の タイミングといった情報であるソースタームの評価は重要である。ソースターム評価では、 一般に FP 挙動をモデル化した数値解析コードにおいて実施されるが、各モデルの精度の低 さや、未考慮・未解明の現象のモデル欠如等から来る不確かさを含有するため、それらの不 確かさを定量化するとともにその低減を図ることが重要である。近年実施された経済協力 開発機構/原子力機関 (OECD/NEA)の事故分析・管理ワーキンググループ Working Group on Analysis and Management Accidents (WGAMA)のソースタームワークショップでは、福島第 一原子力発電所 (1F)事故の分析から得られた知見や OECD/NEA の Thermal-Hydraulics Hydrogen, Aerosols and Iodine Project (THAI)、Source Term Evaluation and Mitigation (STEM) 等のプロジェクト成果に基づき、再移行挙動を重要な研究課題と位置付けている。シビアア クシデント晩期での重要となる再移行挙動としては、沈着したエアロゾルの再蒸発、水素爆 発時等でのエアロゾルの再浮遊、スクラビング時の飛沫同伴によるエアロゾル生成、冷却水 中の溶存気体の再揮発等が挙げられる (図 2.1)。それらの一部については既往研究とモデ ルがあるものの、知見は限られており、実験及び解析的な知見の拡充が必要である。

再移行挙動に係る重要な現象の検討において、令和 4 年度までに実施した解析の結果か ら、公衆被ばくに対する影響を考慮する上では、再移行挙動(再浮遊、再蒸発、飛沫同伴、 再揮発)の内、再蒸発挙動が最も影響が大きいと予想された[2.1]。一方、解析で取り扱った 再蒸発挙動は、熱を起因とするもののみであり、化学的な再蒸発のモデルを含まない。そこ で、化学的な再蒸発挙動に関する知見を拡充するため、第 3 章"化学挙動に関するデータ取 得"で実施しているモリブデン酸化物(MoO<sub>3</sub>)と模擬 FP としてヨウ化セシウム(CsI)を用 いた系での実験を検討することにした。

令和3年度にFP放出移行挙動再現装置(TeRRa)を用いて実施したCsIとMoO3を同時 に蒸発させた加熱実験では、水蒸気のみの雰囲気下ではほとんど起こらなかった揮発性ヨ ウ素の生成が、水蒸気に酸素を含有した高酸素ポテンシャル雰囲気下での加熱実験(以下、 CsI+MoO3実験)では促進されることが確認されている[2.2]。一方、令和4年度"化学挙動に 関するデータ取得"で実施した同じ高酸素ポテンシャル雰囲気下でモリブデンを含まずCsI のみを蒸発させた加熱実験(以下、CsI実験)では、揮発性ヨウ素の生成は確認されず、高 い酸素ポテンシャルだけではヨウ素の低温部への移行はほとんど起こらないことがわかっ た。そのため、揮発性ヨウ素の生成のためには、高い酸素ポテンシャルとモリブデンが必要 であり、MoO3とCsIを用いた同様な高酸素ポテンシャル雰囲気下の系では、化学的な再蒸 発現象が起きる可能性があると考えられた。そこで、今年度の再移行実験では、CsI実験や CsI+MoO3実験と同じ高酸素ポテンシャル雰囲気でCsIのみを蒸発させ、TeRRa実験装置の 温度勾配管中のサンプリング管等にCsIを先に沈着させたあと、同じ酸素ポテンシャル雰囲 気、かつ、CsI+MoO3実験と同じ温度条件でMoO3のみを蒸発させ、モリブデン蒸気種を含 むキャリアガスをさらに輸送させる加熱実験(以下、CsI+MoO3再移行実験)を実施し、CsI 実験の結果[2.1]と比較することで、ヨウ素等の化学的な再蒸発挙動に対するモリブデンの影 響を調査することにした。そして、第3章"化学挙動に関するデータ取得"で実施している同様の分析方法、すなわち、TeRRa装置の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、ラマン分光等を実施することで、化合物の化学形態や結晶構造等に関する基礎データを取得することにした。

# 2.2 TeRRa 実験装置の概要[2.3,2.4]

FP 放出移行挙動再現装置(TeRRa)の模式図及び外観をそれぞれ図 2.2 及び図 2.3 に示す。 本装置は、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、充填されたステンレス鋼 (SS) 304L 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:0.8 μm)、PTFE メンブレンフィルタ (0.3 μm)によりエアロゾル粒子状の試料を捕集 する。令和5年度は、これまでと同様、焼結金属フィルタを通過したエアロゾル粒子を捕集 するために、焼結金属フィルタと PTFE メンブレンフィルタの間に金属リボンを配置し、FP の沈着物を捕集する。また、これらの下流側に設置されたガス捕集瓶中の水酸化ナトリウム 及びチオ硫酸ナトリウム溶液 (0.2 mol/L NaOH+0.02 mol/L Na<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)によりガス状の試料を 捕集することが可能である。

2.3 水蒸気-酸素雰囲気において沈着した CsI と MoO<sub>3</sub> 蒸気種との化学的な再蒸発挙動を想定した加熱実験(CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験)

2.3.1 実験条件

加熱実験には、高純度の CsI 粉末(和光純薬工業製、99.9%) 及び MoO3 粉末(三津和化 学、99.9999%)を供した。表 2.1 及び図 2.4 にそれぞれ加熱条件及び加熱体系を示す。CsI 沈 着実験及び翌々日に実施した MoO₃蒸気種との再移行実験は、いずれも図 2.5 に示す加熱温 度履歴で実施した。なお、比較のために表 2.1 には、令和4年度に実施した CsI 実験条件も 示す[2.1]。CsI 沈着実験では CsI 粉末約 1.3g、MoO3 蒸気種との再移行実験では MoO3 粉末約 1.3g を、電気抵抗炉を 1273 K まで加熱した場合の約 1190 K 及び約 1160 K の位置にそれぞ れ白金製る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)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 SS304L 製のサンプリング管、焼結金属フィル タ、メンブレンフィルタ等に沈着させた。雰囲気は、CsI 沈着実験、MoO3 蒸気種との再移 行実験ともにアルゴン(Ar)-1%酸素(O2)ガスフロー(2 L/min)に露点 60℃の水蒸気を 添加した条件で実施している。なお、焼結金属フィルタと PTFE メンブレンフィルタ、ガス 捕集瓶については、CsI 沈着実験終了後の翌日に交換している。また、サンプリング管中に 設置したクーポン(約10mm<sup>2</sup>)については、令和4年度の報告書[2.1]に記載しているよう に放電加工による作製時に切断面に付着した銅とヨウ素が化合物を形成していることがわ かったため、研磨紙を用いて除去している。そして、この除去が後述する CsI 沈着実験時の

揮発性ヨウ素の生成に影響した可能性がある。

MoO<sub>3</sub> 蒸気種との再移行実験終了後、白金製るつぼ、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)により測定し、加熱前後の重量変化から セシウム、モリブデン及びヨ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 中に設置したクーポン及び焼結金属フィルタと PTFE メンブレンフィルタの間に設置した 金属リボンにより捕集した沈着物を二次電子像観察、エネルギー分散型 X 線分析、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、元素分布、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態を評価した。

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、モリブデン-95 を対象とした。蒸発源である CsI の加熱後残存試料及び SS 製サンプリ ング管等に沈着したセシウム、ヨウ素及びモリブデン化合物を溶解させるため、サンプリン グ管等を、室温で 0.04 mol/L 水酸化ナトリウム溶液に 24 時間浸漬した後、室温で 3 mol/L 硝酸溶液に 3 時間浸漬し、さらに約 343 K で 0.15 mol/L 硝酸と 0.25 mol/L 硫酸の混合溶液に 3 時間浸漬した。蒸発源である MoO<sub>3</sub> の加熱後残存試料については、アルカリ融解法を用い て溶解した。すなわち、残存する MoO<sub>3</sub> の 2 倍程度の重量の炭酸ナトリウム (Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>) を添 加しマッフル炉で約 1220 K、5 分間加熱することで MoO<sub>3</sub> をモリブデン酸ナトリウム

(Na<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>)に変換する。そして、得られた溶融物(Na<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>+Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)を超純水で溶解した。蒸発源の残存試料及び沈着物を前述した方法で溶解後、得られた溶解液をそれぞれ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。二次電子像観察及びエネルギー分散型 X 線分析(JEOL 社製 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-Kα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 MRS-4500)は、不活性雰囲気において、レーザー波長 52.2 nm とした。測定温度はいずれも室温とした。

2.3.2 実験結果

(1) サンプリング管、焼結金属フィルタ等の重量変化

CsI実験及びCsI+MoO<sub>3</sub>再移行実験において電子天秤により測定したサンプリング管及び 焼結金属フィルタの加熱実験後の重量変化をそれぞれ図2.5及び図2.6に示す。また、蒸発源 るつぼの重量変化から推定した蒸発速度の結果を表2.1に示す。今年度実施したCsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験におけるCsIやMoO<sub>3</sub>の蒸発速度については、令和4年度に実施したCsI実験や令 和3年度に実施し第3章でも後述しているCsI+MoO<sub>3</sub>実験と同程度であることを確認してい る。サンプリング管の沈着物等による重量変化は、今年度実施したCsI+MoO<sub>3</sub>再移行実験で は、特に1000 K以上(温度勾配管入り口からの位置:<0 mm)では、CsI実験や後述して いるCsI+MoO<sub>3</sub>実験よりも大きな重量増加が認められた。おそらく、この重量増加は、 CsI+MoO<sub>3</sub>再移行実験では2回加熱、すなわち、保持時間が2倍のトータル120分加熱したこ とでステンレス鋼製サンプリング管の酸化がより厳しかったために大きくなったことが原 因であると考えられた。1000 K以下(温度勾配管入り口からの位置:>0 mm)の温度勾配 管での重量変化では、CsI実験、CsI+MoO<sub>3</sub>再移行実験ともに900K(温度勾配管入り口から の位置:350mm)付近で小さなピークを示しているが、CsI+MoO<sub>3</sub>再移行実験においてよ り高温側にピークがあるように見えるとともに、より大きな重量増加が認められた。そして、 後述するセシウム、ヨウ素及びモリブデン元素量の分布とも整合しているように見えた。焼 結金属フィルタの重量変化については、CsI+MoO<sub>3</sub>再移行実験ではCsI実験よりも小さかっ たが、後述する元素量ではCsI実験よりもCsI+MoO<sub>3</sub>再移行実験では増加した。したがって、 必ずしも金属フィルタの重量増加がセシウム、ヨウ素及びモリブデン元素量の増加と整合 するとは限らないことが分かった。

(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

CsI 実験及び CsI+MoO3 再移行実験において ICP-MS 分析により取得したサンプリング 管、及び、焼結金属フィルタ及びメンブレンフィルタへの沈着物中のセシウム、ヨウ素及び モリブデンの元素量をそれぞれ図 2.8 及び図 2.9 に示す。また、表 2.2 に CsI 蒸気種の高温 化学反応を想定した加熱実験(CsI実験)及び沈着した CsIと MoO3 蒸気種との化学的な再 蒸発挙動を想定した加熱実験(CsI+MoOュ再移行実験)における沈着割合を示す。表 2.2 に 示すように CsI+MoO3 再移行実験において大部分のヨウ素は、配管内及びガス捕集瓶に移 行しており、図 2.9 に示すヨウ素の元素量についても、サンプリング管への沈着はほとんど 起こっていないことから、下流の低温領域に移行していることが分かった。しかし、図 2.10 に示すように黄色~茶色に下流チューブが着色したのは、CsI を沈着させた1回目の加熱実 験時であった。令和 4 年度と同じ雰囲気・加熱温度条件で行った CsI 実験の際には、下流 チューブの外観は図 2.10 にも示されているように透明のままであった。同じ加熱条件で実 施しているにも関わらず、ヨウ素の挙動に違いが生じた原因の一つとして、CsI 実験で用い たクーポンは放電加工機を用いて切り出されたままの、すなわち、切断面に銅が付着したま まのクーポンを用いたが、今年度は銅を除去したクーポンを用いたことが考えられた。令和 4年度の報告書[2.1]にも記載しているようにヨウ化銅の生成が確認されたためである。しか し、図 2.8 や表 2.2 に示すように CsI 実験では、セシウムとヨウ素の挙動は酷似しているこ とからヨウ素の大部分は CsI の化学形態で移行していたと考えられ、ヨウ化銅の生成が図 2.10 に示されている下流チューブの外観の違いが生じるほどのヨウ素の挙動に違いが見ら れた直接の原因になったとは考えにくい。一方、CsI+MoO3 再移行実験では、CsI 実験で見 つかっていないクロム酸セシウム(Cs2CrO4)が後述するラマン分光分析よって検出されて いる。したがって、ヨウ素の挙動に違いが見られた原因は不明のままであるが、今年度実施 した CsI+MoO3 再移行実験における1回目の加熱実験である CsI 沈着実験では、何らかの原 因で CsI とステンレス鋼製のサンプリング管との間で化学的な相互作用が生じ、揮発性の ヨウ素が生成した可能性が高いのではないかと考えている。

CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験のセシウムの元素量については、CsI 実験で見られた 1050 K(温度 勾配管入り口からの位置:-50 mm)付近のピークの高さは大きく低下し、900 K(温度勾配 管入り口からの位置:350 mm)付近のピークは、より低温側の 800 K(温度勾配管入り口か らの位置:500 mm)付近に移動した。後述するサンプリング管等への沈着物の微細組織、 元素分布の結果では、740 K(温度勾配管入り口からの位置:660 mm)で針状のセシウムと モリブンデンを含む沈着物が見つかっていることから、キャリアガスで運ばれた MoO3 と沈着していたセシウム化合物との間で少なからず化学的な相互作用が生じたことが示唆された[2.5]。

CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験のモリブデンの元素量については、図 2.9 に示すようにセシウムや ヨウ素と比べて非常に大きくなっている。そのため、キャリアガスで運ばれた大部分の MoO<sub>3</sub>は、セシウムやヨウ素との化学的な反応には影響されずにサンプリング管に沈着する と考えられる。また、MoO<sub>3</sub> と CsI の蒸気圧は近く、多量体の分子が存在するといった共通 性もあることから、CsI 実験で見られた CsI の沈着挙動とほぼ同じ、すなわち、1050 K(温 度勾配管入り口からの位置:-50 mm)付近と 900 K(温度勾配管入り口からの位置:350 mm) 付近に二つのピークが現れるような沈着挙動になったのではないかと推察される。

# (3) サンプリング管等への沈着物の微細組織、元素分布

CsI 実験及び CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験において、二次電子像観察及びエネルギー分散型 X 線 分析により取得したサンプリング管 (クーポン) への沈着物の二次電子像及びセシウム、ヨ ウ素、モリブデンの元素分布を図 2.12 及び図 2.13 に示す。CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験における セシウムとモリブデンの元素分布については、740 K (温度勾配管入り口からの位置:660 mm) で針状のセシウムとモリブンデンを含む沈着物が見つかっているが、第 3 章で説明す る CsI+MoO<sub>3</sub> 実験で見つかったようなほぼすべての温度領域のサンプリング管内でセシウ ムとモリブデンが共存するような様相は示さなかった。一方、ヨウ素については、CsI+MoO<sub>3</sub> 実験では、サンプリング管内ではほとんど見つからなかったのに対し、CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実 験においては、CsI 実験と同様、450 K (温度勾配管入り口からの位置:1260 mm) でセシウ ムとヨウ素を含む数 μm 程度の大きさの粒状の沈着物が見つかっている。したがって、 CsI+MoO<sub>3</sub> 実験で想定される気相反応ほどには CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験においてモリブデンの 影響はなかったと考えられる。

(4) サンプリング管等への沈着物の結晶構造及び分子構造

CsI 実験及び CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験において X 線回折測定により取得したサンプリング管 への沈着物の X 線回折ピークをそれぞれ図 2.13 及び図 2.14 に示す。CsI 実験及び CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験においてともに、CsI に起因するピークが、それぞれ、550 K (10600 mm)、680 K (790 mm) 以下において CsI に起因するピークが検出されている。したがって、後述する CsI+MoO<sub>3</sub> 実験の X 線回折測定では CsI に起因するピークが見つかっていないことからも推 察されるように CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験においては、CsI+MoO<sub>3</sub> 実験で見られたような揮発性 ョウ素の生成ほどには起きていないことが示唆された。

ラマン分光法によって CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験におけるサンプリング管 (クーポン) 沈着物 で見つかったクロム酸セシウムのラマンスペクトルピークを図 2.15 に示す。前述したよう に令和4年度に実施した CsI 実験とは異なり、同じ雰囲気・温度条件で今年度実施したにも かかわらず CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験における 1 回目の加熱実験時にすでに揮発性のヨウ素が 生成した可能性が高い。そして、その原因の一つとして、サンプリング管に CsI を沈着させ る際に、何らかの原因で CsI とステンレス鋼製のサンプリング管に含まれるクロムとの間 で化学的な相互作用が生じ、揮発性のヨウ素が生成した可能性が高いのではないかと考えている。

2.4 まとめ

公衆被ばくに対する影響を考慮する上では、再移行挙動(再浮遊、再蒸発、飛沫同伴、 再揮発)の内、再蒸発挙動が最も影響が大きいと予想されている。一方で、解析で取り扱 った再蒸発挙動は、熱的のみであり、化学的な再蒸発のモデルを含まないため、不確かさ を含有している。そこで、化学的な再蒸発挙動に関する知見を拡充するため、第3章"化学 挙動に関するデータ取得"で実施している MoO<sub>3</sub> と模擬 FP としての CsI を用いた系での実 験を実施した。具体的には、これまで実施した経験のある水蒸気及び酸素を含む高酸素ポ テンシャル雰囲気下で CsI のみを蒸発させ、TeRRa 実験装置の温度勾配管中のサンプリン グ管等に CsI を沈着させたあと、同じく実施した経験のある雰囲気・温度条件で MoO<sub>3</sub>の みを蒸発させ、モリブデン蒸気種を含むキャリアガスをさらに輸送させる加熱実験を実施 した。そして、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するとともに、過去の実験結果と比較することにより、ヨウ素 等の化学的な再蒸発挙動に対するモリブデンの影響を調査した。以下に得られた知見を示 す。

サンプリング管等への沈着物の微細組織、元素分布の結果では、針状のセシウムとモリブ ンデンを含む沈着物が見つかっていることから、キャリアガスで運ばれた MoO<sub>3</sub> と沈着して いたセシウム化合物との間で化学的な相互作用が生じていることが確認された。しかし、 CsI を沈着させた1回目の加熱実験ですでに揮発性ヨウ素の生成が示唆され、再蒸発挙動に 対するモリブデンの影響を十分調査することはできなかった。一方、1回目の加熱実験です でに揮発性ヨウ素の生成が示唆された原因については、クロム酸セシウムの生成が確認さ れたことから、何らかの原因で CsI とステンレス鋼製のサンプリング管に含まれているク ロムとの間で化学的な相互作用が生じ、揮発性ヨウ素が生成した可能性が高いのではない かと考えられた。今後は、CsI の沈着方法について検討しなおし、再度、ヨウ素等の化学的 な再蒸発挙動に対するモリブデンの影響を調査する予定である。

参考文献

- [2.1] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和4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」、2023.
- [2.2] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3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」、2022.
- [2.3] S. Miwa, G. Takase, J. Imoto, S. Nishioka, N. Miyahara, M. Osaka, Boron chemistry during transportation in the high temperature region of a boiling water reactor under severe accident conditions, Journal of Nuclear Science and Technology, 57(3) (2020) 291–300.

- [2.4] N. Miyahara, S. Miwa, M. Gouello, J. Imoto, N. Horiguchi, I. Sato, Experimental study on transport behavior of cesium iodide in the reactor coolant system under LWR severe accident conditions, Journal of Nuclear Science and Technology, 57(12) (2020) 1287–1296.
- [2.5] M. Gouëllo, H. Mutelle, F. Cousin, S. Sobanska, E. Blanquet, Analysis of the iodine gas phase produced by interaction of CsI and MoO<sub>3</sub> vapours in flowing steam, Nuclear Engineering and Design, 263(2013)462–472.

表 2.1 水蒸気-酸素雰囲気におけるヨウ化セシウム蒸気種の高温化学反応を想定した 加熱実験(CsI実験)条件及び沈着したヨウ化セシウムと酸化モリブデン蒸気 種との化学的な再蒸発挙動を想定した加熱実験(CsI+MoO3 再移行実験)条件

		CsI 実験 [2.1]	CsI+ 再移	-MoO₃ 行実験
試料	化合物 装荷重量 (g)	CsI 1.3	CsI 1.3	MoO <sub>3</sub> 1.3
	試料装荷位置 : 温度勾 配管からの距離 (mm)	CsI : 226	CsI : 226	MoO <sub>3</sub> : 239
	加熱温度 (K) (試料加熱温度)	1273 (CsI : 1190)	1273 (CsI : 1190)	1273 (MoO <sub>3</sub> : 1160)
	昇温速度 (K/min)		10	
試料加熱	保持時間 (min)		60	
	ガスフロー雰囲気	Ar-1%O2+ 露点 60°C		
	ガスフロー流量 (L/min)		2	
	蒸発速度 (mol/s): 実験結果からの推定値 *	CsI : $1.6 \times 10^{-7}$ (Cs : $1.1 \times 10^{-7}$ , I : $1.1 \times 10^{-7}$ )	CsI : $2.3 \times 10^{-7}$ (Cs : $2.4 \times 10^{-7}$ , I : $3.9 \times 10^{-7}$ ) MoO <sub>3</sub> : $4.8 \times 10^{-7}$ (Mo : $4.4 \times 10^{-7}$ )	
	Mo/Cs: 実験結果からの推定値 *	-	2.2 (1.8)	
	Cs/I: 実験結果からの推定値 **	1.0	0	.62
温度勾配管 加熱	サンプリング管寸法	内径 39.4×100 mm:13 本		
	最高温度 (K)	1000		
	最低温度 (K)	400		
	温度分布	線形		

\*蒸発源の重量減少量からの推定(括弧は化学分析値からの推定値)

\*\*化学分析値からの推定値

		514121454647	
		CsI 実験 [2.1]	CsI+MoO3 再移行実験
Cs	サンプリング管(電気抵抗炉)	0.57	0.03
	サンプリング管(温度勾配管)	0.38	0.30
	焼結金属フィルタ等	0.00	0.04
	配管内 (金属フィルターガス捕集瓶間)	0.05	0.63
	ガス捕集瓶	0.00	0.00
Ι	サンプリング管(電気抵抗炉)	0.57	0.00
	サンプリング管(温度勾配管)	0.38	0.03
	焼結金属フィルタ等	0.00	0.02
	配管内 (金属フィルターガス捕集瓶間)	0.04	0.62
	ガス捕集瓶	0.00	0.33
Мо	サンプリング管(電気抵抗炉)	-	0.32
	サンプリング管(温度勾配管)	-	0.66
	焼結金属フィルタ等	-	0.01
	配管内 (金属フィルターガス捕集瓶間)	-	0.01
	ガス捕集瓶	-	0.00

表 2.2 水蒸気-酸素雰囲気におけるヨウ化セシウム蒸気種の高温化学反応を想定した加 熱実験(CsI 実験)及び沈着したヨウ化セシウムと酸化モリブデン蒸気種との化学 的な再蒸発挙動を想定した加熱実験(CsI+MoO3 再移行実験)における沈着割合





図 2.1 本事業で対象とした再移行挙動







図 2.3 FP 放出移行举動再現実験装置(TeRRa)外観写真



図 2.4 水蒸気-酸素雰囲気における沈着したヨウ化セシウムと酸化モリブデン蒸気種との再移行反応を想定した加熱実験の加熱体系



図 2.5 水蒸気-酸素雰囲気における CsI 実験及び CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験(CsI 沈着実験、 MoO<sub>3</sub>蒸気種との再移行実験)における電気抵抗炉の加熱温度履歴



図 2.6 CsI 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[2.5]



図 2.7 CsI+MoO3 再移行実験におけるサンプリング管及び焼結金属フィルタの重量変化





図 2.9 CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験におけるサンプリング管等への沈着物中の セシウム、ヨウ素及びモリブデン元素量



<u>CsI 実験</u>



- CSITMOO3 丹彻门关源(CSI 化有关源时)
- 図 2.10 CsI 実験及び CsI+MoO3 再移行実験における下流チューブの外観



図 2.11 CsI 実験におけるサンプリング管(クーポン)沈着物の二次電子像及びセシウム、ヨウ素、モリブデンの分布[2.1]



図 2.12 CsI+MoO3 再移行実験におけるサンプリング管(クーポン)沈着物の二次電子像及びセシウム、ヨウ素、モリブデンの分布



図 2.13 CsI 実験におけるサンプリング管(クーポン)沈着物の X 線回折ピーク[2.1]

2-19



2-20



図 2.15 CsI+MoO<sub>3</sub> 再移行実験におけるサンプリング管(クーポン)及び金属フィルタ 沈着物で見つかったクロム酸セシウムのラマンスペクトルピーク

3. 化学挙動に関するデータ取得

3.1 目的

VERDON 実験データにおいて推定されるセシウム、ヨウ素等の主要な化学反応を対象に、 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。化学平衡モデルを有する VICTORIA コードを用いて VERDON-5 実験解析を 行った結果 [3.1] では、主要な沈着物としてモリブデン酸セシウム (Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>) やニモリブ デン酸セシウム (Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub>) である可能性が示された。さらに、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可能な FP 放出移行挙動再現装置 (TeRRa: <u>Te</u>st bench for FP <u>R</u>elease and t<u>Ransport</u>) [3.2, 3.3]を用いて実施した令和 3 年度の加熱試験では、水蒸気雰囲 気下よりも 1%酸素を含んだ水蒸気雰囲気下で、下流の低温領域により多くのヨウ素が移行 しやすくなることが示された[3.4]。この移行促進現象の要因としては、モリブデンだけでな く酸素の影響もあることが分かったが、酸素の効果を示す十分な実験データは得られてい ない。そこで、令和 4 年度の加熱実験では、移行促進の駆動力として可能性がある酸素の影 響を明らかにするためモリブデンを含まない系での TeRRa 実験を実施した。その結果、酸 素だけではヨウ素の低温部への移行はほとんど起こらないことがわかった[3.5]。

シビアアクシデント時において、モリブデンが揮発性ヨウ素の発生を促進することが令 和4年度までの成果から明らかとなった。一方で、実燃料のインベントリで想定されるセシ ウム/ヨウ素比が高い条件では、揮発性ヨウ素の発生に必要となるモリブデンがセシウムと の化学反応により消費されるため、揮発性ヨウ素の発生が抑えられる可能性がある。しかし、 該当する実験データの取得は実施されていない。そのため、令和5年度はヨウ化セシウム (CsI)と三酸化モリブデン(MoO3)だけでなく水酸化セシウム(CsOH)を供し、実際の炉 心燃料内のインベントリ比を考慮した条件で、気相での化学反応によるデータを取得する ことにした。雰囲気条件は、令和3年度及び令和4年度と同様の高酸素ポテンシャル(Ar-20%H2O-0.8%O2)かつ燃料からのFP放出割合に近い条件とした。実験では、TeRRa装置を 用いて CsOH、CsI及び MoO3を供試材とし、水蒸気および酸素と反応させ、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、 ラマン分光等を実施することで、化合物の化学形態や結晶構造等に関する基礎データを取 得する。そして、これまでに実施した CsIのみを供したモリブデンや酸素を含む系での実験 結果と比較することで、セシウム/ヨウ素比が高い条件でのセシウム、ヨウ素の移行挙動や 化学反応に与えるモリブデンの影響等を評価することにした。

3.2 水蒸気-酸素雰囲気における水酸化セシウム蒸気種及びヨウ化セシウム蒸気種と三酸 化モリブデン蒸気種との高温化学反応

3.2.1 実験条件

加熱実験には、高純度の水酸化セシウム一水和物(CsOH・H<sub>2</sub>O)粉末(Alfa Aesar, metals basis 99.9%)、CsI 粉末(和光純薬工業製、99.9%)及び MoO<sub>3</sub>粉末(三津和化学、99.999%) を供した。表 3.1 及び図 3.1 にそれぞれ加熱条件及び加熱体系を示す。また、図 3.2 に加熱 温度履歴を示す。なお、比較のために表 3.1 には、令和 3 年度に実施した CsOH を含まない 系での加熱実験(以下、CsI+MoO<sub>3</sub>実験)条件も示す[3.4]。CsOH・H<sub>2</sub>O 粉末約 1.7g、CsI 粉 末約 1.3 g 及び MoO<sub>3</sub> 粉末約 1.3 g を、電気抵抗炉を 1273 K まで加熱した場合の約 1060 K、約 1190 K 及び約 1160 K の位置にそれぞれ白金製る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) として加熱実験(以下、CsOH+CsI+MoO<sub>3</sub>実験)1 ケースを行い、蒸発した試料を温度勾配管に充填されている SS304L 製のサンプリング管、焼結金属フィルタ、メンブレンフィルタ等に沈着させた。雰囲気は、アルゴン (Ar) -酸素 1% (Ar-1%O<sub>2</sub>) ガスフロー(2 L/min) に露点 60℃の水蒸気を添加した 1 条件とした。

加熱後、白金製るつぼ、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)により測定し、加熱前後の重量変化からセシウム及びヨウ素化合物の 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クーポン(約10 mm<sup>2</sup>)及び 焼結金属フィルタと PTFE メンブレンフィルタの間に設置した金属リボンにより捕集した 沈着物を二次電子像観察、エネルギー分散型 X 線分析、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、元素分布、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態を評価した。

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、モリブデン-95 を対象とした。蒸発源である CsI の加熱後残存試料及び SS 製サンプリ ング管等に沈着したセシウム、ヨウ素及びモリブデン化合物を溶解させるため、サンプリン グ管等を、室温で 0.04 mol/L 水酸化ナトリウム溶液に 24 時間浸漬した後、室温で 3 mol/L 硝酸溶液に 3 時間浸漬し、さらに約 343 K で 0.15 mol/L 硝酸と 0.25 mol/L 硫酸の混合溶液に 3 時間浸漬した。蒸発源の CsOH 残存試料については、超純水を用いて溶解した。蒸発源の MoO<sub>3</sub> 残存試料については、アルカリ融解法を用いて溶解した。すなわち、残存する MoO<sub>3</sub> の 2 倍程度の重量の炭酸ナトリウム(Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)を添加しマッフル炉で約 1220 K、5 分間加 熱することで MoO<sub>3</sub> をモリブデン酸ナトリウム(Na<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>)に変換する。そして、得られた 溶融物(Na<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>+Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)を超純水で溶解した。蒸発源の残存試料及び沈着物を前述した 方法で溶解後、得られた溶解液をそれぞれ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。二次電子像観察及びエネルギー分散型 X 線分析 (JEOL 社製 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-Kα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 MRS-4500)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。

# 3.2.2 実験結果

(1) サンプリング管、焼結金属フィルタ等の重量変化

CsI+MoO<sub>3</sub>実験及びCsOH+CsI+MoO<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3.3及び図3.4に示す。また、 蒸発源るつぼの重量変化から推定した蒸発速度の結果を表3.1に示す。CsOH+CsI+MoO<sub>3</sub>実験 の蒸発速度については、セシウム/ヨウ素比としては7倍程度の大きさであることがわかった。 サンプリング管の沈着物等による重量変化は、今年度実施したCsOH+CsI+MoO3実験では、 令和3年度に実施したCsI+MoO3実験と同様1000 K以上(温度勾配管入り口からの位置:<0 mm)で高温になるほど大きくなっているが、CsI+MoO3実験よりも大きな重量増加が認めら れた。この重量増加は、表3.1に示す蒸発速度や後述するサンプリング管への付着物中の元 素量等の結果からも示唆されるように鋼材に化学吸着しやすいCsOHの蒸発量が大きかっ たことと関係があると考えられた[3.6]。1000 K以下(温度勾配管入り口からの位置:>0 mm) の温度勾配管での重量変化は、CsI+MoO3実験ではほとんど見られなかった重量変化が CsOH+CsI+MoO3実験においては、950 K(温度勾配管入り口からの位置:200~300 mm)付 近で小さなピークを示した。一方、焼結金属フィルタの重量変化は、CsI+MoO3実験のよう な大きな重量変化は示さなかったことから、CsOH+CsI+MoO3実験においては、CsI+MoO3実験においては、950 K)

#### (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

CsI+MoO<sub>3</sub> 実験及び CsOH+CsI+MoO<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、焼結金属フィルタ及びメンブレンフィルタへの沈着物中のセシウム、ヨウ素 及びモリブデンの元素量をそれぞれ図 3.5 及び図 3.6 に示す。また、表 3.2 に CsI 蒸気種と MoO3 蒸気種の高温化学反応を想定した加熱実験(CsI+MoO3 実験)及び CsOH 蒸気種、CsI 蒸気種と MoO3 蒸気種の高温化学反応を想定した加熱実験(CsOH+CsI+MoO3 実験)におけ る沈着割合を示す。表 3.2 に示すように CsI+MoO3 実験においては、温度勾配管のサンプリ ング管内のセシウム、モリブデンの分布はよく似ており、ヨウ素については、温度勾配管の サンプリング管までの分布は微量で、大部分は配管内に沈着する結果を示した。また、図3.7 に示すように下流チューブも黄色~茶色に変色したことから、ヨウ素は下流の低温領域に 移行しやすくなることが示された。一方、CsOH+CsI+MoO3実験においては、大部分のセシ ウム、モリブデンは、電気抵抗炉のサンプリング管内に留まっており、ヨウ素の分布につい ても CsI+MoO3 実験のように下流の低温領域には移行しておらず、図 3.7 に示すように下流 チューブも透明のままであった。さらに、2 章の再移行実験における CsI 実験と似た分布、 すなわち、1050K(温度勾配管入り口からの位置:-50mm)付近と900K(温度勾配管入り 口からの位置:350 mm)付近にピークを持つような分布を示していることから、 CsOH+CsI+MoO3実験においては、ヨウ素の低温部への移行はほとんど起こらないと考えら れた。なお、セシウムについては、図 3.6 に示すように電気抵抗炉のサンプリング管内に多 く付着していることが分かったが、後述するようにステンレス鋼との化学吸着[3.6]が生じた 可能性が高いと考えられた。

(3) サンプリング管等への沈着物の微細組織、元素分布

CsI+MoO<sub>3</sub> 実験及び CsOH+CsI+MoO<sub>3</sub> 実験において、二次電子像観察及びエネルギー分散型 X 線分析により取得したサンプリング管(クーポン)への沈着物の二次電子像及びセシウム、ヨウ素、モリブデンの元素分布を図 3.8 及び図 3.9 に示す。CsI+MoO<sub>3</sub> 実験においては、1150 K (温度勾配管入り口からの位置:-65 mm)、740 K (温度勾配管入り口からの位置: 660 mm)、450 K (温度勾配管入り口からの位置:1260 mm)でセシウムとモリブデンを含む 数 10 μm の沈着物、針状の沈着物、球状の沈着物が観察されたが、全ての温度でヨウ素は ほとんど観察されなかった。そのほか、セシウムとモリブデンを含む微細な粒子は、金属フ ィルタ及びメンブレンフィルタでもサンプリング管と同様に観察され、金属リボンではヨ ウ素を含む数10µmの沈着物が観察されている。これらの様相から、1150K(温度勾配管入 り口からの位置:-65 mm)より高温ですでに MoO3 と CsI との反応によりモリブデン酸セシ ウム及びヨウ素化合物が生成し、下流側への移行に伴い、モリブデン酸セシウム蒸気種のス テンレス鋼への凝縮、エアロゾル粒子の生成とその沈着、さらにヨウ素化合物蒸気種の 400 Kより低い温度領域(温度勾配管入り口からの位置:1440mm)での金属リボンへの凝縮に 起因すると考えられた。一方、CsOH+CsI+MoO3 実験においては、CsI+MoO3 実験のように 金属フィルタやメンブレンフィルタでは、セシウムとモリブデンを含む微細な粒子は観察 されなかったが、図 3.9 に示すようにセシウムとモリブデンが 1150K(温度勾配管入り口か らの位置:-65 mm)、880 K(温度勾配管入り口からの位置:390 mm)、740 K(温度勾配管 入り口からの位置:660 mm)で共存している様子が観察されている。また、後述するよう に、CsOH+CsI+MoO3実験においては、電気抵抗炉内に装荷された MoO3蒸発源るつぼのと ころですでに上流側に置かれていた CsOH 蒸発源るつぼから放出された CsOH 蒸気との気 相反応により MoO3 の蒸発が抑制されている。したがって、揮発性ヨウ素の生成に必要な MoO<sub>3</sub>が CsOH との化学反応により少なくなってしまったことで、CsOH+CsI+MoO<sub>3</sub>実験に おいては、CsI+MoO3実験で見られたような揮発性ヨウ素の生成が起こりにくかったと考え られる。

(4) サンプリング管等への沈着物の結晶構造及び分子構造

CsI+MoO<sub>3</sub>実験及びCsOH+CsI+MoO<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3.10及び図3.11に示す。CsI+MoO<sub>3</sub>実験 においては、CsIに起因するピークは検出されなかったのに対し、CsOH+CsI+MoO<sub>3</sub>実験に おいては680K(790mm)以下においてすでにCsIに起因するピークが得られていた。した がって、X線回折測定の結果からもCsOH+CsI+MoO<sub>3</sub>実験においては、CsI+MoO<sub>3</sub>実験で見 られたような揮発性ヨウ素の生成はほとんど起こらずCsIの形態のまま下流側に移行して いることがわかった。ところで、揮発性ヨウ素の生成に必要と考えられたモリブデンの蒸発 速度が、表3.1からも分かるように大きく低下している。実験後のMoO<sub>3</sub>蒸発源を確認した ところ、図3.12及び図3.13に示すようにMoO<sub>3</sub>蒸発源るつぼの縁近くにレーザーラマン分 光測定によりモリブンデン酸セシウム(Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>)が付着していることが確認された。 CsOH+CsI+MoO<sub>3</sub>実験においては、図3.1に示すようにMoO<sub>3</sub>蒸発源るつぼの上流側にCsOH 蒸発源るつぼを設置していたため、MoO<sub>3</sub>蒸発源るつぼに水酸セシウム蒸気が混入し、MoO<sub>3</sub> よりも蒸気圧の低いCs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>が生成することで、モリブデンの蒸発が抑制された可能性が 高いと考えられた。図3.1に示すように蒸発源るつぼの仕切板は設けていたが、CsOH蒸気 の混入を防ぐには不十分であり、何らかの対策が必要である。

CsOH+CsI+MoO<sub>3</sub>実験においては、図 3.6 に示すようにセシウム元素量は 1000K を越える 温度領域に設置された電気抵抗炉のサンプリング管内で特に高い値を示しているが、X 線 回折測定などでは、セシウム化合物の存在を明らかにすることができなかった。しかし、二 次電子像観察及びエネルギー分散型 X 線分析によりセシウムが分布する領域をラマン分光 法を用いて調べた結果、図 3.14 に示すようにクロム酸セシウム(Cs<sub>2</sub>CrO<sub>4</sub>)が生成している ことを確認した。図 3.14 には、図 3.9 に示す 1150K の二次電子像観察を行った場所のクロ ム分布のほか 3 次元画像も示しているが、セシウムが分布する領域は、深部にあることが分 かった。図 3.14 に示すラマンスペクトルには、未知のピークが含まれているものの文献か ら得られる Cs<sub>2</sub>CrO<sub>4</sub> とほぼ一致していることやクロムの分布がセシウムの分布と一致する ような領域もあることから、Cs<sub>2</sub>CrO<sub>4</sub>が生成していると判断した。

ステンレス鋼と CsOH との化学吸着においては、ステンレス鋼表面の酸化層が二重構造 になっている場合、セシウムは第一層よりも内側の第二層の酸化層に分布することが知ら れている[3.6]。今回見つかったクロム酸セシウムも、たまたま表面が剥がれ落ちたような場 所で見つかっていることから、CsOH とステンレス鋼との化学吸着が原因で比較的高温領域 にある電気抵抗炉のサンプリング管にセシウムが多く付着した可能性が高いと考えられた。

令和4年度の報告書[3.5]で記載していたように CsI+MoO<sub>3</sub>実験において 700 K を超える温 度領域で見つかっているモリブデン酸セシウムの化学形については、ラマン分光測定を実 施しているが同定には至らなかった。しかし、前述したようにステンレス鋼との化学吸着の 可能性も考えられたことから鉄も含有したモリブデン酸セシウムも含めて文献調査した。 その結果、図 3.15 に示すように鉄を含有したモリブデン酸セシウム(CsFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>)のラマ ンスペクトルと一致することが分かった。CsI+MoO<sub>3</sub>実験においては、700 K を超える温度 領域ではモリブデン酸セシウムの可能性が高い未知のラマンスペクトルがまだ存在してお り、CsFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>とは異なる化学形の鉄を含有したモリブデン酸セシウムも存在する。今後 は、例えば、セシウムとモリブデンの比が 2:3 の化合物である鉄も含有したモリブデン酸 セシウム (Cs<sub>2</sub>Fe<sub>2</sub>(MoO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>)を合成し、ラマンスペクトルデータを取得するなどして、 CsI+MoO<sub>3</sub>実験において見つかっている未知のラマンスペクトルからモリブデン酸セシウム の化学形を明らかにすることを考えている。

3.3 まとめ

シビアアクシデント時において、モリブデンが揮発性ヨウ素の発生を促進することが令 和4年度までの成果から明らかとなったが、実燃料のインベントリで想定されるセシウム/ ヨウ素比が高い条件では、揮発性ヨウ素の発生に必要となるモリブデンがセシウムとの化 学反応により消費されるため、揮発性ヨウ素の発生が抑えられる可能性があると考えられ るが実験データの取得は未実施であった。このため、令和5年度はヨウ化セシウム(CsI) と三酸化モリブデン(MoO<sub>3</sub>)だけでなく水酸化セシウム(CsOH)も供し、実際の炉心燃 料内のインベントリ比に近い条件で、気相での化学反応に着目した加熱実験を行った。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 タを取得するとともに、同じ雰囲気下(Ar-1%O<sub>2</sub>+ 露点 60°C)で令和3年度に実施した CsI+MoO<sub>3</sub>実験の結果と比較することにより、セシウム、ヨウ素の移行挙動、化学挙動に 与えるモリブデンの影響に関する以下の知見を得た。

MoO3 蒸発源るつぼのところですでに上流側に置かれていた CsOH 蒸発源るつぼから飛

んできた CsOH 蒸気との気相反応によりモリブデン酸セシウム(Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>)が生成し、 MoO<sub>3</sub>の蒸発が抑制された。そのため、CsIのみと MoO<sub>3</sub> との気相反応を想定した実験より も揮発性ヨウ素の生成割合が大きく低下することが分かった。今後は、蒸発源るつぼが設 置されている領域ではなく、より下流側での CsOH と CsI と MoO<sub>3</sub> との気相反応が想定さ れる加熱実験を行うことでセシウム、ヨウ素の移行挙動、化学挙動に与えるモリブデンの 影響について調査する予定である。

参考文献

- [3.1] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「平成 31 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」、2020.
- [3.2] S. Miwa, G. Takase, J. Imoto, S. Nishioka, N. Miyahara, M. Osaka, Boron chemistry during transportation in the high temperature region of a boiling water reactor under severe accident conditions, Journal of Nuclear Science and Technology, 57(3) (2020) 291–300.
- [3.3] N. Miyahara, S. Miwa, M. Gouello, J. Imoto, N. Horiguchi, I. Sato, Experimental study on transport behavior of cesium iodide in the reactor coolant system under LWR severe accident conditions, Journal of Nuclear Science and Technology, 57(12) (2020) 1287–1296.
- [3.4] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3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」、2022.
- [3.5] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和4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」、2023.
- [3.6] M. Osaka, M. Gouello, K. Nakajima, Cesium chemistry in the LWR severe accident and towards the decommissioning of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Journal of Nuclear Science and Technology, 59(3) (2022) 292–305.

		CsI+MoO3 実験	CsOH+CsI+MoO <sub>3</sub>
		[3.4]	実験
		CsI 13	CsOH 1.7
試料	化合物 装荷重量 (g)	$M_0O_2 = 1.3$	CsI 1.3
			MoO <sub>3</sub> 1.3
	試料装荷位置:温度勾配 管からの距離 (mm)	CsI : 226 MoO <sub>3</sub> : 239	CsOH : 296
			CsI : 226
			$MoO_3 : 239$
	加熱温度 (K) (試料加熱温度)	1273 (CsI : 1190, MoO <sub>3</sub> : 1160)	12/3
			$C_{\rm sU1}$ · 1100
			$M_{0}O_{2} \div 1160)$
	昇温速度 (K/min)	1	0
	保持時間 (min)	60	
	ガフフロニ電田仁	A 10/0 上 雷古 (000	
試料加熱	カヘノロー分囲メ	Ar-1%O2 + 路点 60℃	
1-v1-17217771	ガスフロー流量 (L/min)	2	
	蒸発速度 (mol/s): 実験結果からの推定値*	CsI : $2.1 \times 10^{-7}$ (Cs : $1.9 \times 10^{-7}$ , I : $7.6 \times 10^{-8}$ ) MoO <sub>3</sub> : $4.4 \times 10^{-7}$ (Mo : $3.5 \times 10^{-7}$ )	CsOH : $1.1 \times 10^{-6}$
			$CsI : 1.7 \times 10^{-7}$
			$(Cs: 4.2 \times 10^{-7})$
			$I: 1.1 \times 10^{-7})$
			$MoO_3 : 1.6 \times 10^{-7}$
			$(Mo: 4.2 \times 10^{-8})$
	Mo/Cs :	2.1 (1.8)	0.10 (0.10)
	実験結果からの推定値*		
		1 (2.5)	7.2 (3.9)
	美験結末からの推進1		
温度勾配管加 熱	サンブリング管寸法	内径 39.4×10	00 mm:13 本
	最高温度 (K)	1000	
	最低温度 (K)	400	
	温度分布	線	形

表 3.1 水蒸気-酸素雰囲気におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の高 温化学反応を想定した加熱実験(CsI+MoO3実験)条件及び水酸化セシウム蒸気 種、ヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の高温化学反応を想定した加 熱実験(CsOH+CsI+MoO3実験)条件

\*蒸発源の重量減少量からの推定(括弧は化学分析値からの推定値)
			C OIL C LINE O
		Csl+MoO3 美颖	CsOH+CsI+MoO3 宝殿
		[3.4]	夫碶
	サンプリング管(電気抵抗炉)	0.39	0.87
Cs	サンプリング管(温度勾配管)	0.14	0.11
	焼結金属フィルタ等	0.39	0.00
	配管内 (金属フィルターガス捕集瓶間)	0.08	0.01
	ガス捕集瓶	0.00	0.00
	サンプリング管(電気抵抗炉)	0.00	0.49
	サンプリング管(温度勾配管)	0.04	0.33
Ι	焼結金属フィルタ等	0.17	0.00
-	配管内 (金属フィルターガス捕集瓶間)	0.57	0.18
	ガス捕集瓶	0.22	0.00
Мо	サンプリング管(電気抵抗炉)	0.51	0.91
	サンプリング管(温度勾配管)	0.14	0.07
	焼結金属フィルタ等	0.34	0.00
	配管内 (金属フィルターガス捕集瓶間)	0.01	0.01
	ガス捕集瓶	0.00	0.00

表 3.2 水蒸気-酸素雰囲気におけるヨウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の高 温化学反応を想定した加熱実験(CsI+MoO3実験)及び水酸化セシウム蒸気種、ヨ ウ化セシウム蒸気種と酸化モリブデン蒸気種の高温化学反応を想定した加熱実験 (CsOH+CsI+MoO3実験)における沈着割合



図 3.1 水蒸気-酸素雰囲気における水酸化セシウム蒸気種、ヨウ化セシウム蒸気種及び 酸化モリブデン蒸気種の高温化学反応を想定した加熱実験の加熱体系



図 3.2 水蒸気-酸素雰囲気における水酸化セシウム蒸気種、ヨウ化セシウム蒸気種の高 温化学反応及び酸化モリブデン蒸気種の高温化学反応を想定した加熱実験におけ る電気抵抗炉の加熱温度履歴



図 3.3 CsI+MoO3 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[3.4]



図 3.4 CsOH+CsI+MoO3 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



セシウム、ヨウ素及びモリブデン元素量[3.4]



図 3.6 CsOH+CsI+MoO<sub>3</sub>実験におけるサンプリング管等への沈着物中の セシウム、ヨウ素及びモリブデン元素量



CsI+MoO3 実験



CsOH+CsI+MoO3 実験 図 3.7 CsI+MoO3 実験及び CsOH+CsI+MoO3 実験における下流チューブの外観



図 3.8 CsI+MoO3実験におけるサンプリング管(クーポン)沈着物の二次電子像及びセシウム、ヨウ素、モリブデンの分布[3.4]



図 3.9 CsOH+CsI+MoO3実験におけるサンプリング管(クーポン)沈着物の二次電子像及びセシウム、ヨウ素、モリブデンの分布



図 3.10 CsI+MoO3 実験におけるサンプリング管(クーポン)沈着物の X 線回折ピーク[3.4]

3-15



図 3.11 CsOH+CsI+MoO3 実験におけるサンプリング管(クーポン)沈着物の X 線回折ピーク

3-16



CsOH+CsI+ MoO3 実験における蒸発源の外観



MoO3 蒸発源るつぼ縁近くの白色付着物

図 3.12 CsOH+CsI+MoO3 実験における酸化モリブデン蒸発源るつぼで見つかった白色の付着物



白色付着物のラマン分析箇所(10μm間隔で横20μm縦200μmの範囲をマッピング)



白色付着物のラマンスペクトル

図 3.13 CsOH+CsI+MoO3 実験における MoO3 蒸発源るつぼで見つかった白色付着物のラマン分析箇所とラマンスペクトル



図 3.9 に示す 1150 K 付近の二次電子像と同じ場所の 3 次元画像(ラマン分析箇所)とクロム分布



図 3.9 に示す 1150 K 付近の二次電子像と同じ場所で見つかったクロム酸セシウム Cs<sub>2</sub>CrO<sub>4</sub>のラマンスペクトル

図 3.14 CsOH+CsI+MoO3 実験の 1150 K 付近におけるサンプリング管(クーポン) で見つかったセシウム分布箇所の 3 次元画像 (ラマン分析箇所) とラマンスペクトル



図 3.15 CsI+MoO3 実験の 1150 K および 1250 K 付近におけるサンプリング管 (クーポン) 沈着物で見つかった鉄含有モリブデン酸セシウムのラマンスペクトル

4. 解析コードによる実施実験の解析

4.1. 目的

実用発電用原子炉のソースターム評価は、多様な現象を数値モデル化したシビアアクシ デント(SA)総合解析コードにより実施される。同コードには、各モデルの精度のばらつ きや、未考慮・未解明の現象のモデル欠如等から生じる不確かさを含有するため、それらの 不確かさを定量化するとともにその低減を図ることが重要である。核分裂生成物(FP)の挙 動において、不確かさが大きいとされる現象の一部として、FP 化学挙動と再移行挙動(エ アロゾルの再浮遊、再蒸発、飛沫同伴、再揮発)が挙げられる。

FP 化学挙動では、原子炉施設内での閉じ込め効果が比較的小さい気体状 FP の生成に係 る反応が特に重要である。令和 4 年度までの同受託内の実験成果であるモリブデンによる 気体状ョウ素の生成促進反応[4.1-4.3]はその1つである。一方で、同化学挙動を推定し得る 数値モデルの検討には至っていない。また再移行挙動では、構造物等に沈着した FP の再蒸 発の影響がSA 晩期において比較的大きいことが解析的に示されている[4.3]。この再蒸発は、 熱的な再蒸発と化学的な再蒸発の異なる駆動力による現象を含む。後者の化学的な再蒸発 は、広範に用いられている SA 総合解析コードでは実装されていない。

したがって本解析では、モリブデンによる気体状ヨウ素の生成促進反応を示した化学反応実験について、化学平衡論に基づいて化学反応を考慮可能な解析コード VICTORIA[4.4]を 用いた解析を実施し、化学モデルの適用性を検討した。また、モリブデンによる気体状ヨウ 素の生成促進反応は化学的な再蒸発の要因としても懸念されており、同受託内での実験(2 章)を実施している。本章では、この実験についても同様に VICTORIA コードによる化学 的な再蒸発実験の解析を実施し、その適用性を検討した。さらに、再蒸発実験の VICTORIA 解析から反応速度論の観点で化学モデル改良の余地が検討されたため、気相一固相反応の 反応量制御モデルの検討を進めた。また、実機レベルのソースターム評価への知見の適用に 向けて、モリブデンによる気体状ヨウ素の生成促進反応の重要な因子である酸素濃度等を SA 総合解析コードにより推定した。

## 4.2. CsI 気相移行化学種への Mo 影響に係る実験の解析

本解析では化学反応を考慮可能な VICTORIA コードを用い、3 章に示す実験条件の個別 要素実験である令和 3 年度の同受託事業で TeRRa 装置により実施された「CsI+MoO<sub>3</sub> 実験 ①」及び「CsI+MoO<sub>3</sub> 実験②」[4.2]を解析対象とした。両実験では、簡易的に経路を分割し た加熱炉で CsI 及び MoO<sub>3</sub> 粉末をそれぞれ蒸発させ温度勾配管に導入・混合し、その後の移 行挙動を調査している。「CsI+MoO<sub>3</sub> 実験①」と「CsI+MoO<sub>3</sub> 実験②」の実験条件は、雰囲気 条件が異なり、前者は水蒸気-アルゴン雰囲気、後者は水蒸気-アルゴン-酸素雰囲気であ る。同実験では、雰囲気の変化により、温度勾配管内の元素分布と最下流に到達する気体状 ヨウ素量が大きく異なることが示されおり、CsI に対する Mo 影響を示した典型的な実験と 言える。本章では、「CsI+MoO<sub>3</sub> 実験①」を CsI+MoO<sub>3</sub>(Ar+H<sub>2</sub>O)と、「CsI+MoO<sub>3</sub> 実験②」を CsI+MoO<sub>3</sub>(Ar+H<sub>2</sub>O+O<sub>2</sub>)と称する(表 4.2.1)。

# 表 4.2.1 解析ケース

Case Name	CsI+MoO <sub>3</sub> (Ar+H <sub>2</sub> O)	CsI+MoO <sub>3</sub> (Ar+H <sub>2</sub> O+O <sub>2</sub> )
Sample	CsI (0.22)	CsI (0.22)
(Max. Vaporized Rate, µmol/s)	Mo (0.13) Mo (0.23)	
Comion Coo	$Ar+H_2O$ (Dew 60°C)	Ar+1%O <sub>2</sub> + H <sub>2</sub> O (Dew 60°C)
Carrier Gas	2.0 L/min	2.0 L/min

## 4.2.1. 解析コード VICTORIA

本実験解析では、化学モデルを有する物質移行挙動解析コードである VICTORIA を行っ た。VICTORIA コードは、シビアアクシデント時の燃料からの FP 放出、FP 蒸気及びエアロ ゾルの原子炉冷却系内の移行・沈着挙動、FP の化学的挙動を解析するために、サンディア 国立研究所で開発している計算コード[4.4]である。本コードは燃料からの FP 放出、FP 蒸気 及びエアロゾルの移行、FP の化学的挙動等を含めた一連の解析が可能である。FP の化学挙 動は、化学平衡論に基づくものであり、流体 (バルク層)、構造物表面の境膜での化学反応 を取り扱う。

VICTORIA コードの計算は、気体とエアロゾル状の化学種に対する物質移行の支配方程 式に基づくものであり、境界条件として設定された流体の温度や流速、構造材の温度に従う 物質移行量を求める。また物質移行の支配方程式の計算後、ボリューム内化学種濃度を均質 と仮定し、化学平衡計算を実施する。化学平衡計算によって得られた化学反応の化学種モル 数の変化量は、デルタ関数形の化学種発生速度として次の物質移行計算に適応される。

4.2.2. 解析条件

図 4.2.1 に TeRRa 実験装置の俯瞰図及び解析で模擬した体系を示す。なお TeRRa 実験装置の詳細については、2 章を参照のこと。TeRRa 実験では 2 つの粉末試料をアルミナ(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 仕切り板で区切られた加熱炉でそれぞれ蒸発させ、温度勾配管入口にて混合・反応させてい る。本解析で使用する VICTORIA コードでは、分岐のない単一流路の解析のみに対応可能 なため、加熱炉での蒸発箇所を解析の対象から除いた。そのため、粉末試料からの蒸発化学 種を温度勾配管入口のノードに設定した。TeRRa 実験では加熱炉内で沈着・凝縮により質量 損失が測定されているため、解析では実験で得られた加熱炉内の沈着量を減じた値を温度 勾配管入口時点での蒸発量として設定した。また、温度勾配管は、実験のサンプリング範囲 に対応する 0.1 m 間隔で模擬した。解析体系の配管素材として、加熱炉は不活性素材、温度 勾配管はステンレス鋼 SUS304L の酸化物表面 (構成元素 92%Fe、0.5%Cr、5%Ni、2.5%Mn、 0.1%Si)を仮定した。ここで、VICTORIA コードにおける配管素材の選択は、配管表面素材 -FP 間で化学反応を考慮するかどうかに影響する因子である。つまり、温度勾配管では SUS304L 酸化物層との化学反応が考慮される。また、解析上の操作として、対象化学種が 装置に導入される時間以前において流体中の水蒸気等の酸化により酸化被膜をあらかじめ 作成し、実験での構造材表面状態を模擬している。

本解析では、実験と同様に、反応させる試料及び雰囲気をパラメータとし解析を実施した (表 4.2.1)。表 4.2.1 に示す蒸発速度は、加熱炉内での凝縮・沈着による質量損失を考慮し た温度勾配管入口での値である。具体的に、解析ケースで再現した蒸発履歴を図 4.2.2 に示 す。また、温度勾配管入口での化学形態として、セシウム元素(Cs)はヨウ化セシウム(CsI)、 水酸化セシウム(CsOH)、ヨウ素元素は CsI、モリブデン元素(Mo)は、モリブデン金属

(Mo) とした。CsI 及び CsOH は、実験に用いた試料粉末と同様の化学形であり、加熱・蒸発した際に想定される化学種と同じである。一方で、金属 Mo は、想定される蒸発化学種と異なる。これは、化学種は酸素分圧や共存元素によってその化学種が容易に変化するため、入力条件の設定が困難なためである。また化学平衡論に基づく化学モデルでは、解析対象/ ードで即座に安定な平衡組成を獲得でき、同一の元素組成比の場合一意の解を導く。そこで本解析では、金属 Mo として入力とし、化学モデルにより安定な化学種へ変化することを期待する設定とした。実際に、設定する Mo 化学種に計算結果が依存しないことと本設定が妥当であることを確認している。

解析で必要となる流体の温度は、円管における層流(Nu=4.0)熱伝達を仮定した計算値を 用いた。本解析で考慮した化学種を表 4.3.2 にまとめた。化学種名の末尾に付随する(c)と(g) はそれぞれ凝縮相、気体状の状態であることを示す。解析のオプションとして、構造材への 化学吸着(対象:CsOH、HI、I2のみ)を有効にした。解析のタイムステップは 0.05 秒とし た。(Intel(R) Core(TM) i7-10700K CPU @ 3.80GHz での解析で約1時間の実行時間となった。)









図 4.2.2 解析で設定した加熱炉 2 の温度及び粉末試料の蒸発履歴
 (a) Ar+H<sub>2</sub>O 雰囲気、(b) Ar+H<sub>2</sub>O+O<sub>2</sub> 雰囲気

# 表 4.2.2 VICTORIA 解析で考慮した化学種[4.4]

化学種名末尾の(c)、(g)はそれぞれ凝縮物状、気体状であることを示す

	2	species in VICTORI	A code	
CsI(c)	CsI(g)	CsOH(c)	CsOH(g)	Cs(g)
Cs <sub>2</sub> O(g)	$Cs_2O_2H_2(g)$	Cs(c)	$Cs_2O(c)$	Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> (c)
I(g)	$I_2(g)$	HI(g)	H(g)	$H_2(g)$
$H_2O(g)$	$O_2(g)$	O(g)	Fe(c)	Fe(g)
FeO(c)	FeO(g)	$Fe_2O_3(c)$	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> (c)	FeI <sub>2</sub> (c)
FeI <sub>2</sub> (g)	$Fe_2I_4(g)$	Mo(c)	Mo(g)	MoO(g)
$MoO_2(c)$	MoO <sub>2</sub> (g)	MoO <sub>3</sub> (c)	MoO <sub>3</sub> (g)	Cr(g)
Cr(c)	$Cr_2O_3(c)$	Mn(g)	Mn(c)	MnO(c)
Mn <sub>3</sub> O <sub>4</sub> (c)	Ni(g)	Ni(c)	NiO(c)	$H_2MoO_4(g)$
CsO(g)	Cs <sub>2</sub> (g)	CsH(g)	$Cs_2O_2(g)$	$Cs_2I_2(g)$
$Cs_2CrO_4(g)$	$Cs_2MoO_4(g)$	$Cs_2Cr_2O_7(c)$	$Cs_2CrO_4(c)$	$Cs_3CrO_4(c)$
Cs <sub>4</sub> CrO <sub>4</sub> (c)	IO(g)	HO(g)	HIOg	FeOH(g)
$FeO_2H_2(g)$	$FeO_2H_2(c)$	MoI <sub>4</sub> (c)	$MoI_3(c)$	$MoI_2(c)$
Mo <sub>2</sub> (g)	$Mo_2O_6(g)$	MoOH(g)	$MoH_2O_2(g)$	MoI(g)
MoI <sub>2</sub> (g)	MoI <sub>3</sub> (g)	$MoO_2I_2(g)$	$Mo_3O_9(g)$	$Mo_4O_{12}(g)$
$Mo_5O_{15}(g)$	MoI <sub>4</sub> (g)	CrOH(g)	$CrH_2O_2(g)$	CrO(g)
$CrO_2(g)$	CrO <sub>3</sub> (g)	CrI(g)	$CrI_2(c)$	CrI <sub>2</sub> (g)
MnO(g)	MnOH(g)	NiO(g)	NiOH(g)	$NiH_2O_2(g)$
NiI <sub>2</sub> (c)	Ar(g)	$Cs_2Mo_2O_7(c)$	$I_2O_4(c)$	$I_2O_5(c)$
$I_2(c)$				

Species in VICTORIA code

## 4.2.3. 解析結果

実験及び VICTORIA 解析で得られた TeRRa 実験装置内の元素分布を図 4.2.3 に示す。各 点は、上流より 1000、950、900、850、800、750、700、650、600、500、450、400 K の温度 勾配管ノードの壁面温度に対応する(ノード番号 5~17)。また温度勾配管入口からの距離 1.35 m の点は、フィルターやガス捕集瓶の値を総和したものであり、以降では捕集領域と称 する。図 4.2.3 の(a)に示す解析ケース CsI+MoO<sub>3</sub>(Ar+H<sub>2</sub>O)では、実験でのセシウム及びヨウ 素に特徴的な 850~800 K (温度勾配管の入口からの距離 0.35~0.45 m)の沈着ピークと捕集 領域での沈着量を定性的に再現した。また、モリブデンについても温度勾配管内で特徴的な ピークを有さないという点で定性的な一致を得た。酸素を含む CsI+MoO<sub>3</sub>(Ar+H<sub>2</sub>O+O<sub>2</sub>)解析 ケースでは、酸素を含まないケース CsI+MoO<sub>3</sub>(Ar+H<sub>2</sub>O)と比べ、セシウム及びヨウ素に特徴 的な 850~800 K のピークが消失する点及びヨウ素の温度勾配管での沈着量が著しく低下す る点で実験結果と一致した。

図 4.2.4 に VICTORIA 解析で得た最下流の捕集部に到達したセシウム、ヨウ素、モリブデ ンに係る化学種の積分値を示す。酸素を含まない解析ケース CsI+MoO<sub>3</sub>(Ar+H<sub>2</sub>O)では、加熱 炉での粉末試料の蒸発量が最も多い温度プラトー(120~180分)で凝縮物である CsI(c)と MoO<sub>3</sub>(c)として移行量が多くなった。次いで、気体状の HI(g)が増加する結果となった。また、 加熱炉からの粉末試料の蒸発量が低下する温度プラトー以降(≧180分)では、気体状の化 学種(HI(g)、MoO<sub>2</sub>I<sub>2</sub>(g)、I<sub>2</sub>(g))の移行量が増加した。これら気体状化学種は、沈着物から の熱分解に伴うものだと推定される。最終的に捕集部に到達した化学種の物理状態は、セシ ウムの 100%、ヨウ素の 94%、モリブデンの 98%がエアロゾル状であった。これらの移行化 学種として、実験での固相分析(XRD 及びラマン分光)で MoO<sub>2</sub>(c)が検出されており、モリ ブデンの移行化学種について一致している。捕集部においてセシウムとヨウ素の実験的な 化学形同定に至っていないが、捕集部直前の温度勾配管入口からの位置 1.25 m において CsI(c)が同定されており、妥当な結果だと推測される。

図 4.2.4 (b) に示す酸素を含む解析ケース CsI+MoO<sub>3</sub>(Ar+H<sub>2</sub>O+O<sub>2</sub>)では、移行化学種として 気体状 I<sub>2</sub>(g)、凝縮物 Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(c)、気体状 HIO(g)、凝縮物 MoO<sub>3</sub>(c)が多くなった。酸素を含 まない解析ケース CsI+MoO<sub>3</sub>(Ar+H<sub>2</sub>O)でセシウム及びヨウ素の主要な移行化学種である CsI(c)の移行量は大きく低減した。捕集部での化学種のエアロゾル割合は、セシウム 100%、 ヨウ素 0.5%、モリブデン 100%となった。実験の固相分析では、捕集部で Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(c)を XRD 及びラマン分光分析により検出し、上流の温度勾配管領域での XRD 分析で MoO<sub>3</sub>(c)を 同定しており、解析での移行化学種と一致した。

図 4.2.5 に解析終了時(260 分)の温度勾配管での沈着化学種分布を示す。酸素なしの解 析ケース CsI+MoO<sub>3</sub>(Ar+H<sub>2</sub>O)においてセシウムは、温度勾配管の入口からの距離 0.35 m よ りも上流で Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>(c)であり、下流で CsI(c)となった。また、酸素ありの解析ケース CsI+MoO<sub>3</sub>(Ar+H<sub>2</sub>O+O<sub>2</sub>)では、温度勾配管の高温域で Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>(c)が主要な化学種だが、温度 が低下すると Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(c)の割合が増加した。 以上より、解析においても実験結果より推定されている以下の反応が進行したと考えら れる。

$$2CsI(g) + nMoO_{3}(g) + H_{2}O(g) + O_{2}(g) = Cs_{2}Mo_{n}O_{3n+1}(c) + 2HIO(g)$$

$$(4.2.1)$$

$$4CsI(g) + 2nMoO_{3}(g) + O_{2}(g) = 2Cs_{2}Mo_{n}O_{3n+1}(c) + 2I_{2}(g)$$

したがって、モリブデンによる CsI からのガス状ヨウ素生成促進反応は、VICTORIA 等でモ デル化される化学平衡論に基づく化学モデルでその挙動を評価可能である。





図 4.2.4 最下流の捕集部に到達した化学種の積分値(a) Ar+H<sub>2</sub>O 雰囲気、(b) Ar+H<sub>2</sub>O+O<sub>2</sub> 雰囲気





図 4.2.5 解析終了時(260分)の温度勾配管での沈着物化学種の分布
 (a) Ar+H<sub>2</sub>O 雰囲気、(b) Ar+H<sub>2</sub>O+O<sub>2</sub> 雰囲気





図 4.2.6 温度プラトー時(150分)の温度勾配管におけるキャリアガス中の化学種変化 (a) Ar+H<sub>2</sub>O 雰囲気、(b) Ar+H<sub>2</sub>O+O<sub>2</sub> 雰囲気

# 4.3. Csl 沈着物への Mo 影響に係る実験の解析

再移行挙動に関する実験として実施した CsI 沈着物への Mo 影響に係る実験(2章)について、VICTORIA コードでブラインド解析を実施した。

Case Name	$CsI \rightarrow MoO_3(Ar+H_2O+O_2)$		
Sample	0~260 min : CsI (0.22)		
(Max. Vaporized Rate, µmol/s)	260~470 min: Mo (0.23)		
Comion Coo	Ar+1%O <sub>2</sub> + H <sub>2</sub> O (Dew 60°C)		
Carrier Gas	2.0 L/min		

# 4.3.1. 解析条件

解析条件は、4.2 節の CsI+MoO<sub>3</sub>(Ar+H<sub>2</sub>O+O<sub>2</sub>)解析ケースと同一の条件であると仮定し、CsI と MoO<sub>3</sub>の蒸発タイミングのみ変更している(図 4.3.1)。初期フェーズでは CsI のみが蒸発し、その一部が温度勾配管に沈着する。第2フェーズでは MoO<sub>3</sub> が蒸発し、沈着した CsI と モリブデン蒸気種の反応を解析する。



図 4.3.1 解析で設定した加熱炉 2 の温度及び粉末試料の蒸発履歴

#### 4.3.2. 解析結果

解析結果として、第1フェーズと第2フェーズの終了時の温度勾配管での元素分布を図 4.3.2 に示す。セシウムの温度勾配管での元素分布は、第1フェーズと第2フェーズでほと んど変化がないが、ヨウ素は第1フェーズでの沈着物が第2フェーズのモリブデンの流入 により大きく低減した。

図 4.3.3 に各フェーズの沈着物化学種を示す。第 1 フェーズでは、セシウムとヨウ素は CsI(c)として温度勾配管 850K (入口からの距離 0.35 m) 付近に沈着していることがわかる。 また、一部のセシウムが構造材と反応し Cs<sub>2</sub>CrO<sub>4</sub>(c)を生成する。第 2 フェーズにおいてモリ ブデンを導入すると、CsI(c)は高温領域で Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>(c)に、低温領域で Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(c)に変化し た。

図 4.3.4 に最下流の捕集部に到達した化学種の積算値を示す。図 4.3.3 の沈着物分布と同様に、第 1 フェーズではエアロゾル状の CsI(c)として移行し、第 2 フェーズでは気体状の I<sub>2</sub>(g)、エアロゾル状の Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>(c)、Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(c)として移行した。したがって、次の化学反応が生じたと考えられる。

$$\begin{aligned} 2CsI(c, g) + nMoO_3(c) + H_2O(g) + O_2(g) &= Cs_2Mo_nO_{3n+1}(c) + 2HIO(g) \\ & (4.3.1) \\ 4CsI(c, g) + 2nMoO_3(c) + O_2(g) &= 2Cs_2Mo_nO_{3n+1}(c) + 2I_2(g) \end{aligned}$$

また、生成した一部のヨウ素ガスは、構造物表面へ化学吸着した。

一方で、図 4.3.5 に示す温度勾配管内のヨウ素とモリブデンのモル数の経時変化をみると、 モリブデンの流入量とヨウ素の蒸発量がモル等量であることがわかる。式(4.3.1)に示す通 り本化学反応は気相-固相間の不均一化学反応であり反応速度による律速を受ける可能性 が考えられる。しかしながら、VICTORIA コードは反応速度無限大仮定の化学平衡論を用い ており、その反応量の過大評価する懸念がある。4.4 節において、気相-固相間の反応速度 を考慮したモデルの導入を検討する。



図 4.3.2 温度勾配管での元素分布 破線:時刻 260 分、実線:時刻 470 分





図 4.3.3 温度勾配管での沈着物の化学種分布(a)時刻 260 分、(b)時刻 470 分 \*I<sub>2</sub>(g)は構造物表面への吸着状態を示す



図 4.3.4 最下流の捕集部に到達した化学種の積分値



図 4.3.5 温度勾配管におけるヨウ素とモリブデンの質量変化

4.4. 気相-固相反応の反応量制御モデル

本節では、気相-固相反応の反応速度として最も簡単な未反応核モデルと化学モデル(平 衡論)を連携し、その反応量制御を検討した。気相-固相反応とは、A(g)+B(c)=C(c)のよう な反応気体 A(g)と反応固体 B(c)が反応し生成物固体 C(c)を生成するものである。4.4.1 項で は、未反応核モデル[4.5]について説明する。4.4.2 項では、具体的な連携方法と 4.4.2 項で示 された気相—固相反応式(4.4.1)に適応した結果を示す。また、未反応核モデルの各律速仮 定に着目した感度解析を 4.4.3 項で行う。

$$2CsI(c, g) + nMoO_{3}(c) + H_{2}O(g) + O_{2}(g) = Cs_{2}Mo_{n}O_{3n+1}(c) + 2HIO(g)$$

$$(4.4.1)$$

$$4CsI(c, g) + 2nMoO_{3}(c) + O_{2}(g) = 2Cs_{2}Mo_{n}O_{3n+1}(c) + 2I_{2}(g)$$

4.4.1. 未反応核モデル

未反応核モデルは、気体 A(g)と固体 B(c)が反応し新たな固体 C(c)を生成する過程の化学 反応及び物質伝達を考慮し、固体表面から中心に向かって徐々に反応が進むモデルである (図 4.4.1)。



図 4.4.1 未反応核モデルのモデル図

定常的に進行する気体 A(g)+固体 B(c)=固体 C(c)の反応について、反応気体 A(g)に着目し 定式化を行う。まず反応物である気体 A(g)は、バルクから固体粒子表面の気相境膜へ物質 伝達する。反応気体の固体粒子境膜への物質伝達速度 $R_G[mol/s]$ は、気相境膜中の物質移行 係数 $k_s[m/s]$ 、粒子径 $r_{surface}$ [m]、バルク層と固体表面での反応気体の濃度  $C_{A,Bulk}, C_{A,Surface}$ [mol/m<sup>3</sup>]を用いると次の通り示される。

$$R_G = 4\pi r_{surface}^2 k_s (C_{A,Bulk} - C_{A,Surface})$$
(4.4.2)

また固体表面に到達した反応気体 A(g)は、生成物である固体 C(c)中を拡散し、未反応固体 B(c)の表面まで物質伝達される。その際の反応気体 A(g)の物質移動速度 $R_D[mol/s]$ は、未反 応固体粒子 B(c)の半径 $r_{interface}[m]$ 及び、固体 C(c)中の気体 A(g)の有効拡散速度 $D_e[m^2/s]$ 、 未反応固体粒子表面での気体 A(g)の濃度 $C_{A,Interface}[mol/m^3]$ より、次式で示される。

$$R_D = 4\pi r_{interface}^2 \frac{D_e}{r_s - r_i} \left( C_{A,Surface} - C_{A,Interface} \right)$$
(4.4.3)

未反応固体表面に到達した反応気体 A(g)は、未反応固体 B(c)と気体-固体反応速度k<sub>r</sub>[m/s] で進行し、反応速度R<sub>R</sub>[mol/s]で消費される。気体--固体反応が1次反応と仮定する場合、反 応速度は次の通りである。

$$R_R = 4\pi r_{interface}^2 k_r C_{A,Interface}$$
(4.4.4)

定常状態  $(R^* = R_G = R_D = R_R)$  での総括反応速度 $R^*[mol/s]$ は、

$$R^* = \frac{4\pi C_{A,Bulk}}{\left\{1/r_{surface}{}^2k_s\right\} + \left\{\left(r_{surface}{}-r_{interface}\right)/r_{interface}{}^2D_e\right\} + \left\{1/r_{interface}{}^2k_r\right\}}$$
(4.4.5)

である。また、気体-固体反応の化学反応の A(g)と B(c)の反応量論比が 1 の場合、未反応 粒子 B(c)と反応気体 A(g)の消費量は等しくなるので、

$$R^* = -\frac{d}{dt} \left\{ \frac{4}{3} \pi r_{interface}{}^3 \rho_B \right\}$$
(4.4.6)

つまり、気相濃度 $C_{A,Bulk}[mol/m^3]$ の反応気体 A(g)と粒径r[m]の密度 $\rho_B[mol/m^3]$ の固体 B(c)の気体 – 固体反応の反応完了時間 $\tau$ は、次の通りである。

$$\tau = \frac{\rho_B r}{C_{A,Bulk}} \left( \frac{1}{3k_s} + \frac{r}{6D_e} + \frac{1}{k_r} \right) \tag{4.4.7}$$

例として、 $O_2(g) + 2Ni(c) \rightarrow 2NiO(c)$ 反応における、反応完了時間 $\tau$  [s]を表 4.4.1 に計算した。 なお、気相境膜の物質伝達速度は無限大とし無視し、有効拡散係数 $D_e[m^2/s]$ と反応速度  $k_r[m/s]$ による律速を受けるものとした。有効拡散係数と反応速度は、アレーニウス型の次 式[4.6]で与えた。今回使用した条件では、生成物中の拡散律速であり、粒径 1  $\mu$ m の室温で 数 10 秒の反応時間が必要となる。

$$\begin{aligned} D_e[m^2/s] &= 1.76 \times 10^{-5} exp(-31454.2/RT) \\ k_r[m/s] &= 3.27 \times 10^{-2} exp(-8854.1/RT) \\ \rho_B[mol/m^3] &= 1.5 \times 10^5 \end{aligned} \tag{4.4.8}$$

## 表 4.4.1 各粒径の反応完了時間τ [s]

				τ [s]	
T [K]	$D_e[m^2/s]$	$k_r[m/s]$	r=1 nm	$r = 1 \ \mu m$	r=1 mm
300	5.9E-11	9.4E-4	2.0E-2	7.4E+1	5.4E+7
500	9.1E-9	3.9E-3	2.0E-2	5.2E+0	3.5E+5
700	7.9E-8	7.1E-3	2.0E-2	2.7E+0	4.2E+4

4.4.2. 化学反応モデルと未反応核モデルの連携

空気雰囲気下でのモリブデン蒸気による CsI 固体粒子からのヨウ素再蒸発現象(式(4.4.1)) に対して、気相-固相反応の反応量制御モデルの1つである未反応核モデルと化学反応モ デルを連携させた。化学反応モデルは、原子力施設等のシビアアクシデントの汎用コードと して JAEA で整備している CHEMKEq コードの化学平衡論機能[4.2, 4.6]及び VICTORIA コ ードの熱力学データベース[4.4]を用いた。(CHEMKEq コードは、化学平衡論と化学反応速 度論を扱うことができる。)なお、CHMEKEq の予測性能を商用の統合型熱力学計算ソフト ウェア Thermo-Calc と汎用化合物用データベース SSUB6 (SGTE Substances Database v 6.0) [4.8]と比較し、その定性的な挙動に問題がないことを確認している(図 4.4.2)。データベー スの違いとして、VICTORIA は固相(s)と液相(l)を凝縮相(c)に集約しており、ポリモリブデ ン酸セシウム Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(c)を含むが、SSUB6 は固相(s)と液相(l)区別し Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(c)を含まな い。





共通条件: Ar 32.2 mol, H<sub>2</sub>O 7 mol, Mo 0.004 mol, O<sub>2</sub> 0.8 mol, CsI 0.002 mol

次に、化学反応モデルと未反応核モデルの連携方法を示す。

化学モデルでは境界条件として初期化学組成を与えるため、解析時間幅Δtにおける反応 率fを未反応核モデルの反応終了時間τにより計算し、初期化学組成を補正する。

$$f = \min\left\{\frac{\Delta t}{\tau}, 1.0\right\} \tag{4.4.9}$$

また、化学反応モデルと未反応核モデルの連携において、最大の課題は式(4.4.7)の未反応核の反応完了時間 $\tau$ を計算するために反応気体 A と反応固体 B を定義する必要がある点である。そこで、化学モデルを1度計算し、あらかじめ各化学種の理想的な反応量を推定し、反応気体 A の濃度 $C_{A,Bulk}$ と反応固体の密度 $\rho_B$ を決定することとした。その後、未反応核モデルにより反応完了時間を計算し、次いで反応率を取得し初期化学組成を補正し、再度化学モデルを実行する。2回目に化学モデルを実行した際の結果を、その時刻の化学組成解とする。時間進行に併せてこの手順を繰り返すことで、次第にその平衡点に近づく。

未反応核モデルと化学モデル CHEMKEq を連携した解析例を図 4.4.3 に示す。解析条件 は、化学モデルの検証に使用した化学組成 (Ar(g) 32.2 mol, H<sub>2</sub>O(g) 7 mol, Mo(g) 0.004 mol, O<sub>2</sub>(g) 0.8 mol, CsI(c) 0.002 mol)を用い、反応温度 500 K、CsI(c)粒子の粒径を 1.39  $\mu$ m とし た。また、有効拡散係数と反応速度は式 (4.4.8)を使用した。図 4.4.2 に示す通り同化学組 成では、CsI(c)粒子は MoO<sub>3</sub>(c)と O<sub>2</sub>(g)と反応することで、熱力学的に安定な Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(c)に 変化する。図 4.4.3 に示す通り、未反応核モデルとの連携により初期反応物である CsI(c)が 緩やかに Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(c)に変化させる結果が得られた。また、最終的な平衡点が未反応核モデ ルの連携しない際の平衡組成 (図 4.4.2 (b))と一致することを確認した。

連携した未反応核モデルと化学モデル CHEMKEq を用いて、化学反応式(4.4.1)におけ る反応完了時間に対する温度と粒径パラメータの感度解析結果を図4.4.4 に示す。解析条件 は、表4.4.2 にまとめた。反応物の CsI(c)の消費速度は、粒径が大きく、温度が低いほど遅 くなった。粒径0.12 µm では、温度による反応完了時間に対する差が比較的小さく、低温800 K においても約10分程度で反応が完了した。一方で、粒径1.39 µm では、温度差による反 応完了時間への影響が拡大し、800 K では約30分から500 K で約100分となった。



図 4.4.3 化学モデルと未反応核モデル連携した際の化学種質量の経時変化 (Ar(g) 32.2 mol, H<sub>2</sub>O(g) 7 mol, Mo(g) 0.004 mol, O<sub>2</sub>(g) 0.8 mol, CsI(c) 0.002 mol)

	Condition	
Initial Gas		
Ar(g)	$32.2 \text{ mol/m}^3$	
$H_2O(g)$	7.00 mol/m <sup>3</sup>	
Mo(g)	0.004 mol/m <sup>3</sup>	
$O_2(g)$	0.80 mol/m <sup>3</sup>	
Initial Aerosol		
$C_{cI}(a)$	0.002 mol/m <sup>3</sup>	
Csi(c)	(r= 0.12, 1.39 or 11.1 µm)	
Reaction Temperature	500, 800 K	
Pressure	1.0e5 Pa	

表 4.4.2 未反応核モデルの解析条件


(b)



図 4.4.4 未反応核モデル及び化学モデルによる反応物 CsI(c)の消費速度に対する 温度と粒径依存性(a) 500 K、(b) 800 K

 $(Ar(g)\ 32.2\ mol,\ H_2O(g)\ 7\ mol,\ Mo(g)\ 0.004\ mol,\ O_2(g)\ 0.8\ mol,\ CsI(c)\ 0.002\ mol)$ 

### 4.4.3. 未反応核モデルの感度解析

4.4.2 項で連携した未反応核モデルと化学モデル CHEMKEq を用いて、化学反応式(4.4.1) における反応完了時間(生成物中の拡散、化学反応速度)に対する各律速仮定の影響を解析した。具体的には、反応核の反応完了時間の式(4.4.7)の生成物中の拡散律速項r/6D<sub>e</sub>のみ、化学反応速度律速項1/k<sub>r</sub>のみを有効にした解析を実施した。その他解析の条件は表 4.4.2 と同一とした。

解析の結果を図 4.4.5 に示す。両反応温度(500,800 K)において、化学反応速度 $k_r[m/s]$ の律速を受ける場合に反応完了時間が大きく低下することがわかる。一方で、生成物中の拡散速度が律速の場合粒径依存性が非常に大きく、数 10 µm 以上でのみ反応完了時間への影響が表れた。これは、式(4.4.7)に示される通り、拡散速度の反応完了時間への影響は粒径の2 乗に比例し、化学反応速度は粒径の1 乗に比例する性質を反映したものである。(今回、解析は行っていないが、数 mm 粒子では生成物中の拡散速度が反応を支配すると予想される。)したがって、数 10 µm 以下の粒径では化学反応速度の律速を強くうけ、それ以上での粒径では拡散速度の支配を受けると考えられる。ただし、化学反応速度は、 $O_2(g)+2Ni(c) \rightarrow 2NiO(c)反応の速度を仮定したため、反応完了時間において実現象と差が生じるため、実験的な検証と反応速度に関する文献調査を進める必要がある。(定性的な傾向の変化はない。)$ 



(b)



図 4.4.5 未反応核モデル及び化学モデルによる反応物 CsI(c)の消費速度に対する 各律速段階の影響(a) 500 K、(b) 800 K

 $(Ar(g)\ 32.2\ mol,\ H_2O(g)\ 7\ mol,\ Mo(g)\ 0.004\ mol,\ O_2(g)\ 0.8\ mol,\ CsI(c)\ 0.002\ mol)$ 

### 4.5. MELCOR 実機解析による境界条件の推定

2~4 章の実験及び解析的な研究によりモリブデンのヨウ素に対する化学挙動は、反応温度、酸素分圧等の境界条件が重要であることが示されている。そこで、軽水炉での SA 時の 各プラントパラメータを SA 総合解析コードである MELCOR (Ver. 2.2-r2023.0) [4.9-10]により推定した。対象プラントは、4 ループ大型ドライ PWR である米国 Indian Point とした。基本的なプラント仕様を表 4.5.1 にまとめた。PWR を選定した理由は、モリブデンのヨウ素に対する化学挙動において最も重要な酸素濃度が格納容器を窒素置換する BWR よりも高いためである。

本解析でのプラントのボリューム分割図を図 4.5.1 に示す。一次冷却系は、原子炉容器の ほか加圧器を含む1つのループ(Aループ)とその他の3つのループをまとめたループ(B ループ)の2つのループで模擬した。炉心部は、それぞれ径方向に5、軸方向に14分割し た(うち燃料部は、径4、軸10の分割である)。そして各ループは、高温側配管と蒸気発生 器内Uチューブ上がりを模擬したボリュームと蒸気発生器内Uチューブ下りと低温側配管 を模擬したボリュームから構成される。また格納容器内の二次冷却系(蒸気発生器二次側か ら格納容器内の主蒸気管間)は本来4系統あるが、一次冷却系内のループと同様に、Aルー プと3ループを1つにまとめた Bループの2つのループでモデル化した。格納容器につい ては、図2に示すように、上部区画室、キャビティ、再循環サンプを含む下部区画及びアニ ュラ区画合わせた区画(下部区画と呼ぶこととする)の3ボリュームでモデル化した。

また事故シナリオは、工学的安全施設が作動しない最も単純な全交流電源喪失シナリオ (Station Blackout, SBO)の格納容器加圧破損モードを選定した。

# 4.5.1. 事故シナリオ (SBO)

スクラムから約1時間後に加圧器逃し安全弁(Power Operated Relief Valve, PORV)による 強制減圧により1次系の圧力が低下し、蓄圧器からの給水が実施される(図4.5.2)。その後、 崩壊熱により再度1次系圧力は上昇に転じるが、蒸気発生器での自然循環の除熱により燃 料温度の上昇は抑えられる。その際、蒸気発生器2次側の主蒸気逃し弁(Main Steam Relief Valve, MSRV)を経由した冷却材喪失が継続する。約13.4時間後に蒸気発生器の冷却水が枯 渇に至る(図4.5.3)。そのため、自然循環による1次系の燃料冷却機能が喪失し、炉心水位 の低下に続いて燃料温度の上昇が開始する(図4.5.4)。16.7時間には、炉心の損傷が開始し、 落下した溶融炉心により原子炉容器が破損する。また、温度上昇する燃料からは、高揮発性 FP(Xe、Cs、CsI、Te)が放出される(図4.5.5)。FP放出は、下部プレナムやキャビティに 落下した炉心溶融物からも継続する。本事故シナリオにおいて中揮発性の Mo や Ba は、大 部分がキャビティに落下した溶融物からの放出である。また、キャビティに落下した溶融物 は構造材のコンクリートとの相互作用(Molten Core Concrete Interaction, MCCI)に伴い H<sub>2</sub>、 H<sub>2</sub>O、CO、CO2ガスを生成し(図4.5.6)、格納容器を加圧する。約45時間後には、格納容 器が過圧破損に至る。

プラント仕様	值
熱出力	3045 MWt
原子炉運転圧力	157 kg/cm <sup>2</sup> G
ループ数	4
一次冷却材流量	6.18×10 <sup>8</sup> kg/hr
一次冷却材保有量	324 m <sup>3</sup>
原子炉入口冷却材温度	284 °C
原子炉出口冷却材温度	316 °C
主蒸気運転圧力	53.1 kg/cm <sup>2</sup> G
主蒸気流量	1.504×10 <sup>6</sup> kg/h/個
格納容器自由空間体積	73900 m <sup>3</sup>
格納容器設計圧力	3.30 kg/cm <sup>2</sup> G

表 4.5.1 主なプラント仕様



図 4.5.1 PWR のボリューム分割



図 4.5.2 1 次系と格納容器の圧力履歴



図 4.5.3 蒸気発生器 2 次側の水位履歴



図 4.5.4 燃料 UO2 最高温度と損傷割合の経時変化



図 4.5.5 各 FP の放出割合 (CORE+LWPL+CAVITY)



図 4.5.6 燃料 UO2 最高温度と損傷割合の経時変化

# 4.5.2. FP 分布及びプラントパラメータ

各 FP のプラント内元素分布の経時変化を図 4.5.7 に示す。希ガスの Xe は、初期インベン トリの約 40%が原子炉容器内で放出され、原子炉容器破損後に即座に格納容器へと移行す る。原子炉容器破損時に溶融物中に残存する Xe は、格納容器内での放出が継続される。そ の後、格納容器の破損により全量が環境中へ放出される。高揮発性の FP である Cs、CsI、 Te は、Xe と同様に約 40%が原子炉容器内で放出され、凝縮に伴うエアロゾル化やエアロゾ ルの構造物への沈着により約 30%が原子炉容器内に原子炉容器破損後も残存する。原子炉 容器は比較的高温に保たれるため、原子炉容器内の沈着 FP は再蒸発により徐々に格納容器 へ移行する。格納容器破損時に、気相に浮遊する約 20%の FP が瞬時に環境へ移行する。そ の後の緩やかな環境放出は、沈着した FP の再蒸発による再移行によるものである。また、 本 SBO シナリオは FP 放出開始から原子炉容器破損までの時間が短いため、中揮発性(Mo、 Ba) は格納容器に移行した溶融部からの放出が大部分である。そのため、放出されたほぼ全 量が格納容器内に残存した。



図 4.5.7 各 FP 元素分布の経時変化

図 4.5.8 に MELCOR 解析で得られた1次系の上部プレナム、格納容器の上部及び下部ボ リューム気相部の各化学種分圧と温度履歴を示した。1次系の上部プレナムは、通常運転時 水で満たされている部位であり、スクラム時の気体分圧はない。事故の進展に伴い崩壊熱に よって冷却水が蒸発(水蒸気分圧が増加)し、続いて被覆管酸化により水素分圧が上昇する。 約 18 時間の原子炉容器破損の直前では、最大の気相温度が 1500 K となった。原子炉容器破 損後、格納容器からの気体入流により酸素と窒素等の上部プレナム内の分圧が増加した。原 子炉容器破損により大部分の溶融物は格納容器へ移行するため、上部プレナム温度は約 800 K まで低下した。一方で格納容器の気相温度は、炉心溶融物の移行により 350 から 480 K まで増加する。格納容器破損(約 44.7 時間)するまでの間、MCCI の生成気体である CO、 CO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>O 分圧が上昇するが、気相温度の急激な上昇はない。格納容器破損後は、MCCI 生 成気体により格納容器の圧力が大気圧よりも高いため、酸素分圧が継続して減少した。

図 4.5.8 に示した酸素分圧と温度から計算した酸素ポテンシャルを図 4.5.9 に示す。また、 図 4.5.8 の気体分圧履歴から明らかなように MELCOR 解析の結果は、O<sub>2</sub> と未酸化の H<sub>2</sub> や CO 等が共存しており、O<sub>2</sub>による酸化反応の余地がある。そこで、気体中の酸化反応が十分 に進行した際の平衡時の酸素ポテンシャルも Thermo-Calc ソフトウェア[4.8]で計算した(図 4.5.10)。Thermo-Calc により平衡組成計算で対象とした時刻は、格納容器が健全で原子炉容 器破損後である 22.2 時間と、格納容器破損後の早期と晩期である 45、80 時間である。つま り図 4.5.9 と図 4.5.10 に示す酸素ポテンシャルは、それぞれ最も酸化的、還元的な状態を仮 定した値を示している。

図 4.5.9 及び 4.5.10 の共通した傾向として、原子炉容器と格納容器は酸素ポテンシャルの 観点から異なる反応場であることがわかる。具体的には、原子炉容器は低い酸素ポテンシャ ルで気相温度が高い(約 600~1200 K)反応場、格納容器は高い酸素ポテンシャルかつ低い 気相温度(約 300~600 K)である。また、同図には 2~3 章の実験で使用したキャリアガス の酸素ポテンシャルを紫色で示しており、本事故シーケンスの酸素ポテンシャルを模擬し ていると言える。したがって、CsI とモリブデンが接触した場合実験的に予想されたヨウ素 ガスの生成促進の可能性がある。

図 4.5.9 及び 4.5.10 において、モリブデン酸化物(MoO<sub>3</sub>(s)及び MoO<sub>2</sub>(s))の酸素ポテンシャルに着目すると、格納容器内では気相中の化学種により 6 価の MoO<sub>3</sub>(s)まで酸化可能なのに対して、原子炉容器内では状況によっては 4 価 MoO<sub>2</sub>(s)までしか酸化が進行しない場合がある。そのため、原子炉容器と格納容器のそれぞれの反応場の違いとして、モリブデン化学種の酸化状態が異なる可能性がある。(なお、図 4.5.7 よりモリブデンはほぼ全量が格納容器内に残存するが、MELCOR 解析で用いた放出モデルはモリブデンやバリウムと言った中揮発性 FP に対し大きな不確かさが含まれる[4.11]ため、原子容器内でのモリブデン存在も考慮することが望ましいと思われる。)モリブデン化学種の酸化状態がヨウ素ガス生成促進反応に与える影響をギブズ自由エネルギーから計算した結果(図 4.5.11)によると、MoO<sub>2</sub>(s)を反応物とした場合温度増加によるヨウ素ガス生成量の増分が微小に低下するものの、

MoO<sub>3</sub>(s)反応物の場合と同様の傾向である。また、図 4.5.11 より本反応はモリブデン酸化物 の酸化状態の影響よりも反応場の酸素ポテンシャルの影響を強く受けるとも言える。した がって、その他の事故シーケンスでの酸素ポテンシャルについても解析的に評価する必要 がある。

以上の SBO シナリオの MELCOR 結果より、モリブデンによる気体状ヨウ素生成促進反応で重要な酸素ポテンシャルは、原子炉容器と格納容器で大きく異なることが示された。原子炉容器では低い酸素ポテンシャルかつ高温であり、格納容器は高い酸素ポテンシャルで低い気相温度である。熱力学計算より両反応場ともにモリブデンによる気体状ヨウ素生成促進反応が進行することが示された。ただし、発生するヨウ素ガス量は酸素ポテンシャルに強く依存するため、原子炉容器のヨウ素ガスはその生成促進量が大きく低下、生成されにくいと考えられる。今後、その他事故シナリオについての酸素ポテンシャル推定も必要である。







図 4.5.9 全時刻の代表ボリューム(上部プレナム、格納容器上部、下部)における 酸素ポテンシャル(酸化反応前)

紫実線、破線は 2~3 章実験のキャリアガスの酸素ポテンシャルを示す。 (なお、Ar-20%H2O では高純度ガスの保証範囲の最大値である 0.1 vol.ppm O<sub>2</sub> を含む)



図 4.5.10 各時刻(22.2、45.0、80.0時間)の 代表ボリューム(上部プレナム、格納容器上部、下部)における 酸素ポテンシャル(酸化反応後) 紫実線、破線は 2~3 章実験のキャリアガスの酸素ポテンシャルを示す。 (なお、Ar-20%H2O では高純度ガスの保証範囲の最大値である 0.1 vol.ppm O<sub>2</sub>を含む)



図 4.5.11 CsI-Mo 酸化物反応に伴うヨウ素ガス生成量の温度、酸素ポテンシャル依存性

### 4.6. まとめ

本章では、モリブデンによる気体状ヨウ素の生成促進反応を示した化学反応実験(気相-気相反応、気相-固相反応)について、化学平衡に基づき化学反応を考慮可能な解析コード VICTORIA にて解析を実施し、化学モデルの適応性を検討した。その結果、実験で得られた 知見である気体状ヨウ素の生成促進反応のキャリアガス雰囲気の依存性、沈着物中の同定 化学種についての傾向が解析結果で再現されていることを確認した。したがって、化学平衡 に基づく化学モデルによりモリブデンによる気体状ヨウ素の生成促進反応は定性的な評価 が可能であると結論付けた。一方で、再移行反応で想定される気相一固相反応では、反応速 度を考慮しない化学平衡論での過大評価が懸念された。そこで、化学モデルの改良として、 気相-固相反応の反応量を制御する未反応核モデルを化学平衡論の化学モデルと連携し、 定量性の向上を試みた。簡易的な体系で評価した結果、数 10 µm の粒径では数時間程度の 反応遅延が予想された。今後、未反応核モデルのパラメータである反応速度の検討及び実験 解析に適応しその効果を評価する必要がある。

また、実機のソースターム評価への知見の適用に向けて、モリブデンによる気体状ヨウ素 の生成促進反応の重要な因子である酸素濃度等の境界条件を SA 総合解析コードにより推 定した。格納容器内に酸素を含む PWR の全交流電源喪失事故シナリオでは、1 次冷却系と 格納容器内で 2 つの異なる反応条件が想定された。前者の 1 次冷却系は、気相温度が高い が酸素ポテンシャルが低い条件である。格納容器の条件は、低い気相温度かつ高酸素ポテン シャルであった。これらの酸素ポテンシャル条件は同受託内の実験条件範囲に近いため、モ リブデンによる気体状ヨウ素の生成促進反応の可能性が想定される。今後、その他事故シナ リオでの境界条件の推定も必要である。 参考文献

- [4.1] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 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」、2021.
- [4.2] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 3 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」、2022.
- [4.3] 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 4 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」、2023.
- [4.4] 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.
- [4.5] 橋本健治, 「反応工学」, 培風館, ISBN978-4-563-04634-7(1979).
- [4.6] Ryu, et. al., "Oxidation and Reduction Characteristics of Oxygen Carrier Particles and Reaction Kinetics by Unreacted Core Mode," Korean J. Chem. Eng., 18, 6, 831-837 (2001).
- [4.7] 伊藤ら,「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(受託研究)」、JAEA、JAEA-Data/Code 2018-012 (2018).
- [4.8] Thermo-Calc Software, SSUB SGTE Substances Database version 6.0 (Sept. 2017).
- [4.9] L.L. Humphries, et. al., "MELCOR Computer Code Manuals Vol. 1:Primer and User's Guide Version 2.2 r2023.0," Sandia National Laboratories, SAND2023-10997O (2023).
- [4.10] L.L. Humphries, et. al., "MELCOR Computer Code Manuals Vol. 2: Reference Manual Version 2.2 r2023.0," Sandia National Laboratories, SAND2023-10994O (2023).
- [4.11] S. Nichenko, et. al., "Modelling of fission products release in VERDON-1 experiment with cGEMS: Coupling of severe accident code MELCOR with GEMS thermodynamic modelling package," Ann. Nucl. Energy, 152, 107972 (2021).

#### 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、気体状ヨウ素挙動及び再移行挙動に関す る不確かさ低減に資する実験及び解析を実施した。主な成果は以下のとおりである。

#### (1) 再移行挙動に係る実験

シビアアクシデント晩期のソースターム評価で重要な再移行挙動(再浮遊、再蒸発、飛沫 同伴、再揮発)の中で最も影響が大きい再蒸発について、化学反応を駆動力とする再蒸発に 係る知見拡充を目的とし、模擬 FP として用いたヨウ化セシウム(CsI)とモリブデンを共存 させた系に対して再蒸発実験を実施した。具体的には、水蒸気及び酸素を含む高酸素ポテン シャル雰囲気下で CsI のみを蒸発させ TeRRa 実験装置の温度勾配管中のサンプリング管等 に CsI を沈着させた後、三酸化モリブデン(MoO<sub>3</sub>)を蒸発させて沈着した CsI とモリブデ ン蒸気種の化学反応による再蒸発を調査した。

再移行実験後に得られた沈着物の微細組織及び元素分布より、セシウムとモリブンデン を含む針状の沈着物が確認され、沈着するセシウムとキャリアガス中を移行するモリブデ ン蒸気種の化学的な相互作用が示唆された。この化学反応は CsI 沈着物からのヨウ素再蒸発 の駆動力として期待されるが、CsI を TeRRa 装置内に沈着させる加熱期間ですでに揮発性 ヨウ素が生成し、再蒸発挙動に対するモリブデンの影響を十分調査することはできなかっ た。CsI のみの加熱期間で揮発性ヨウ素の生成した原因は、クロム酸セシウムの生成が確認 されたことから、何らかの原因で CsI とステンレス鋼製サンプリング管に含まれているク ロムが化学反応し、揮発性ヨウ素が生成したことによると考えられる。この現象については、 実験手順等を再検討し、データを拡充する必要がある。

#### (2) 化学挙動に関するデータ取得

シビアアクシデント研究より近年明らかとなっている高酸素ポテンシャルの気相雰囲気 でモリブデンが揮発性ヨウ素の発生を促進する現象について、実燃料のインベントリで想 定されるセシウム/ヨウ素比が高い条件での実験を実施し、その影響を調査した。実験では、 CsIと MoO3 に水酸化セシウム(CsOH)を供すことで高セシウム/ヨウ素比を模擬し、実機 事故に近い条件での気相化学反応の知見を得た。また、これら3つの試薬は TeRRa 装置内 の簡易的に流路を分割した加熱炉2系統に装荷した。装荷の組み合わせは反応性を考慮し 系統1に CsIと CsOH を、系統2に MoO3 とした。

実験の結果、CsOH が MoO<sub>3</sub> 蒸気種と優先的に反応し、令和4年度までに実施された低セ シウム/ヨウ素比の実験(CsI+MoO<sub>3</sub>)で生じた揮発性ヨウ素の生成割合が低下する可能性が 示唆された。しかしながら、3 試薬の装荷位置である流路分割した加熱炉において、仕切り の隙間等を通じた CsOH の流入により別系統内の MoO<sub>3</sub> 試薬るつぼでモリブデン酸セシウ ム (Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>)が生成した。これにより実験条件として設定した MoO<sub>3</sub>の蒸発が抑制され、 低セシウム/ヨウ素比の実験結果との定量的な比較には至らなかった。定量的な評価に向け て、装置への試薬の導入方法等検討・改良の後、本実験によるデータ取得が必要である。 (3) 解析コードによる実施実験の解析

実験(1)及び(2)で対象とするモリブデンによる気体状ヨウ素の生成促進反応を示した化学 反応について、化学平衡に基づき化学反応を考慮可能な解析コード VICTORIA にて解析を 実施し、化学モデルの適応性を検討した。その結果、実験で得られた知見である気体状ヨウ 素の生成促進反応のキャリアガス雰囲気の依存性、沈着物中の同定化学種についての傾向 が解析で再現されたことから、化学平衡に基づく化学モデルによりモリブデンによる気体 状ヨウ素の生成促進反応は定性的な評価が可能であると結論付けた。一方で、再移行反応で 想定される気相-固相反応では、反応速度を考慮しない化学平衡論での過大評価が懸念さ れた。そこで、化学モデルの改良として、気相一固相反応の反応量を制御する未反応核モデ ルを化学平衡論の化学モデルと連携し、定量性の向上を試みた。簡易的な体系で評価した結 果、数 10 μm の粒径では数時間程度の反応遅延が予想された。今後、未反応核モデルのパラ メータである反応速度の検討及び実験解析に適応しその効果を評価する必要がある。

また、実機のソースターム評価への知見の適用に向けて、モリブデンによる気体状ヨウ素 の生成促進反応の重要な因子である酸素濃度等の境界条件を SA 総合解析コードにより推 定した。格納容器内に酸素を含む PWR の全交流電源喪失事故シナリオでは、1 次冷却系と 格納容器内で 2 つの異なる反応条件が想定された。前者の 1 次冷却系は、気相温度が高い が酸素ポテンシャルが低い条件である。格納容器の条件は、低い気相温度かつ高酸素ポテン シャルであった。両反応条件は同受託内の実験条件範囲に近いため、モリブデンによる気体 状ヨウ素の生成促進反応の可能性が想定される。今後、その他事故シナリオでの境界条件の 推定も必要である。 付録 A 会議等参加報告

件名	MUSA 計画会合への出席
出張先	オンライン
期間	令和5年5月8日(月)~5月11日(木)
概要	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) $\mathcal{T} \square \tilde{\mathcal{V}} \bot \mathcal{I}$
	トの最終会合にフェローと研究員がそれぞれ 1 名参加した。情報収集を行
	うとともに、JAEA が本プロジェクトにおいて実施した解析の報告書を提出
	した。

件名	OECD/NEA/THEMIS 計画に関する会議への出席	
出張先	フランクフルト (ドイツ)	
期間	令和5年7月3日(月)~7月4日(火)	
概要	今回は第5回の会合であり、フランクフルト(ドイツ)で実施された。日本	
	からは原子力規制庁職員 1 名と機構職員2名が出席した。プロジェクト全	
	体において以下の 5 テーマが含まれており、これまでに 1)~4)に関する実	
	験は全て完了し、2)と3)の技術レポートは現在執筆中であり、本会合で5)	
	に関する実験条件等が議論された。	
	1) H <sub>2</sub> と CO 雰囲気における静的触媒式水素再結合器 (PAR)の性能	
	2) H <sub>2</sub> 、CO、水蒸気、空気を含む雰囲気における燃焼と火炎伝播挙動	
	3) ヨウ素酸化物 IOx の高温条件下の挙動及び空間中エアロゾルとの	
	相互作用(凝集等)	
	4) 気体がジェット状に注入される領域のプールスクラビングの除染	
	効果	
	5) H <sub>2</sub> と CO 雰囲気における IOx やエアロゾルとの相互作用を含む	
	PAR の性能	
	2)に関して 5 実験が行われ、ブラインドベンチマーク解析の対象実験	
	(HD-48)を除き、4 実験(HD-47, -49, -50, -51)の結果が報告された。	

出張先エクサンプロバンス (フランス)期間令和5年9月5日(火) ~ 9月7日(木)
期間 令和5年9月5日(火)~9月7日(木)
概要   ESTER 計画の第 5 回ミーティングが上記の日程でエクサンプロバン
(フランス)で行われた。日本からは機構職員1名と規制庁職員2名(現地
名、リモート1名)が参加した。PRG ミーティングでは、EPICUR、CHI
VERDONの3種の試験について進捗が共有された。共通の課題に対して
加機関が解析を試みる AWG の活動では、KINS と IRSN がフェーズ 2 の
析結果を報告した。MB では座長を NRA、司会進行を NEA がそれぞれ
当し、2025年3月末までの計画延長が提案され、全会一致で承認された

件名	日本原子力学会 2023 年秋の大会への参加
出張先	茨城大学日立キャンパス
期間	令和5年9月6日(水)~9月8日(金)
概要	本受託に関する情報収集を行った。収集した主な知見として、"FP 挙動"
	セッションで発表された FP 挙動モデルへの速度論的な化学反応モデルの
	適応研究で Cs-I-B-O-H 系で反応速度の考慮の重要性が示されている。