

共同研究成果報告書

気体状 FP 移行挙動モデルの不確かさ低減に関する研究

原子力規制委員会原子力規制庁

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

令和 7 年 9 月

1. 研究目的

既存のシビアアクシデント総合解析コードにおいて、モデル化への知見が不足している核分裂生成物（FP：Fission Product）等の放射性物質の移行挙動について、基礎実験、モデル開発及び数値解析を実施し、ソースターム評価における不確実さを低減することを目的とする。モデル化への知見が不足している移行挙動として、原子炉施設内での除染係数が比較的小さい気体状の放射性物質に関する次の二つの現象に着目する。

一つ目として、格納容器内での気液二相流条件下における溶存ヨウ素化学種の気相への再揮発現象に着目する。この現象は、特に事故後期（炉心損傷が進展し、炉外放出が生じた後の段階以降）における放射性物質放出に影響を及ぼす可能性を含んでいるが、気液界面における物質移行現象について実験的知見が不足している。

二つ目として、原子炉冷却系内等の高温領域において放射性物質の気体状割合を増加させる化学反応に着目する。化学反応によって放射性物質の気体状割合が増加（エアロゾル状割合の減少）は事故初期の環境放出量に大きく影響を及ぼすが、高温領域での化学反応機構に関する基礎データ（生成化学種、反応速度、反応経路等）に関する実験的知見が不足している。

これら二つの現象について体系的な研究を実施しモデル化していくことで、ソースターム評価における不確実さの低減を目指す。

2. 研究内容

気体状放射性物質の移行挙動モデルの不確実さ要因として挙げられる、格納容器内での二相流条件下におけるヨウ素化学種の再揮発現象及び原子炉冷却系内等の高温領域における気体状放射性物質の生成現象を研究の対象とした。

格納容器内での二相流条件下におけるヨウ素化学種の再揮発現象については、サブプレッションプール等の液相において放射線分解によって生成され得る気体状ヨウ素化学種の気相への再揮発が挙げられる。プール静水面からの移行は既存のシビアアクシデント総合解析コードで一部考慮されている場合があるが、減圧沸騰やスクラビング等によって発生する気泡界面における影響は考慮されていない。この現象により気体状放射性物質の環境への放出量が増加する可能性があるものの、同現象が実機体系に与える影響を評価するためには、気泡流中における気液接触面を通した物質移動現象を定量的に把握する必要がある。気液間の物質移動現象は、主として気液接触面積、物質移動係数及び気液間の濃度差によって記述することができるが、各パラメータについて実験的な知見が不足している。そこで本研究ではこれらパラメータのうち物質移動係数に着目し、二相流条件下における同パラメータを推定する実験手法を考案し、同手法の妥当性を実験により検証した。検証によって確認したモデルを用いて、ヨウ素化学種の二相流条件下における物質移動係数の推定を試みた。

また、原子炉冷却系内等の高温領域における気体状放射性物質の生成現象については、原

子炉圧力容器上部等の 200 °C以上の高温領域において、放射性物質が周囲の制御材や構造材等と化学反応することで生じるものである。具体的には、エアロゾル化するヨウ化セシウムがホウ素との化学反応により気体状ヨウ素に変化する現象等が挙げられる。シビアアクシデント総合解析コードでは、一般的に放射性物質の気体状とエアロゾル状割合（すなわち蒸気圧）を任意の値に仮定しその後の移行挙動を推定しており、このような移行挙動を変化し得る化学変化が起きる条件では推定する放射性物質の環境放出量に不確実さを含むと考えられる。一方で、炉心損傷後の高温条件下における化学形の変化については、実験的な知見が不足しており、既存のシビアアクシデント総合解析コードにおいてモデル化が十分になされていない。特に、高温気相での化学反応の経路、生成割合及び反応速度について議論・モデル検証に活用できる実験的な知見は実験・測定の難しさから限定的である。そこで本研究では、高温領域での化学挙動に係る定量的な実験知見を取得するため、示差熱天秤、反応炉及びガスクロマトグラフ質量分析計からなる高温化学反応実験装置を用いて、高温領域における化学反応の進行速度と反応により生成される化学種の定量的な情報を同時に取得する測定手法の確立に向けて検討を行った。

3. 実施方法

3.1 格納容器内放射性物質挙動に係る実験

二相流条件下で気液接触面積を測定せずに気液間の物質移動係数を推定するための理論モデルを構築した。本モデルの適用にあたっては、二つの気体成分の液相濃度の時間変化を同時に測定する。同一条件下で得られた濃度変化を用いることで、上昇する気泡界面における気体成分の気液間物質移動は、同一の気液接触面にて行われると見なすことができる。このことにより、気液接触面積等の実験条件に依存せずに物質移動係数の値を得ることが可能となる。その場合、二つの気体成分の液相濃度の変化率の比から得られる物質移動速度の比は、各気体成分の拡散係数の比と等しくなる。これらの関係を利用し、任意の気体状物質の二相流条件下での物質移動係数を推定する。構築した理論モデルの妥当性を検証するため、物性値が既知である酸素及び二酸化炭素を用いた実験を実施した。実験では、これら二つの気体を含む水溶液を作成し、そこに窒素ガスを注入することで液相中から両気体成分を同時に脱気し、脱気過程における各気体成分の液相濃度の経時変化を測定した。実験で得られた液相濃度の時間変化データを理論モデルに適用し、物質移動係数を算出した。算出された値と既知の物性値から予測される値を比較し、本手法の妥当性を検証した。

3.2 原子炉冷却系内放射性物質挙動に係る基礎実験

原子炉冷却系内等の高温領域における化学反応挙動を解明するため、示差熱天秤（二系統）、反応炉、ガスクロマトグラフ質量分析計からなる高温化学反応実験装置を製作した。本装置は、二種類の固体サンプルを示差熱天秤で蒸発させ、反応炉にて反応させ、下流のガスクロマトグラフ質量分析計で分子量毎のイオン強度をオンラインで同時測定するものである。また、固体試料気化部に示差熱天秤を採用したことにより反応炉に導入される気体サ

サンプル量が既知となり詳細な化学挙動の検討が行えることに加え、導入量の制御も容易となる。また、測定部に採用したガスクロマトグラフ質量分析計は、気体分子をイオン化し四重極の電場により質量分離し高感度に検出するものである。一方で、同測定手法は一般に凝縮性（エアロゾル状）の化学種の測定は困難である。そこで、検出可能化学種を拡張するため、従来の質量分析計では検出が困難であった凝縮性化学種（CsI、Cs 等）についても分析可能とする改良を検討した。検討の結果、イオン源の温度が検出感度に重要な因子であることを特定し、質量分析計内イオン源に局所ヒーターを設計・製作し、設置した。

4. 研究実施分担

項目	原子力規制庁	日本原子力 研究開発機構
(1) 格納容器内放射性物質挙動に係る実験	◎	○
(2) 原子炉冷却系内放射性物質挙動に係る基礎実験	○	◎
(5) 研究取りまとめ	◎	◎

（◎：主担当、○：副担当）

5. 共同研究参加者（本共同研究終了時の体制）

所属部局	本研究における役割
原子力規制庁長官官房技術基盤グループシビアアクシデント研究部門 栃尾 大輔 坂田 光太郎	研究計画の管理・取りまとめ 実験実施、数値解析、モデル開発
日本原子力研究開発機構原子力安全・防災研究所安全研究センターシビアアクシデント研究グループ 柴本 泰照 城戸 健太郎 塩津 弘之 大友 隆 同センター 熱水力安全研究グループ 孫 昊旻	研究計画の立案 結果考察支援 実験実施、数値解析、モデル開発 実験室・機材の保守 実験実施、数値解析、モデル開発

6. 研究実施工程

項目	令和 4 年度				令和 5 年度				令和 6 年度			
(1) 格納容器内放射性物質 挙動に係る実験	モデルの構築				データ取得				数値解析			
(2) 原子炉冷却系内放射性 物質挙動に係る基礎実験	実験手法・モデルの構築				装置設計・整備				データ取得・数値解析			

7. 成果概要

本研究では、シビアアクシデント時のソースターム評価における不確実さ低減を目的として、以下の成果を得た。

格納容器内放射性物質挙動については、二相流条件下における気液間物質移動係数を推定する新たな手法を開発した。本手法では、二つの気体成分の液相濃度の時間変化を同時に測定することで、気液接触面積を直接測定することなく物質移動係数を推定することが可能となる。酸素及び二酸化炭素を用いた検証実験を実施し、実験で得られた液相濃度の時間変化データを本手法の理論モデルに適用し、物質移動係数を算出した。算出された値は、既知の物性値から予測される値と良好な一致を示し、本手法の妥当性が確認された。この検証結果を踏まえ、単一気泡におけるヨウ素化学種の物質移動係数を推定した¹⁾。なお、検証実験は一部の実験条件でのみ実施されたため、今後は温度や流動条件への依存性を検証する必要がある。

原子炉冷却系内放射性物質挙動については、高温気相化学反応実験装置を開発した。本装置は、示差熱天秤（二系統）、反応炉、ガスクロマトグラフ質量分析計から構成され、高温環境下での化学反応挙動をオンラインで測定することが可能である。特に、測定部の質量分析計イオン源近傍に局所ヒーターを設置することで、従来検出が困難であった凝縮性化学種（CsI、Cs 等）の分析を可能とした。この改良により、同装置で得られる化学種情報が最大化され、高温気相における化学反応機構の解明に必要な反応生成物を詳細に定量計測することが可能となった。今後は温度や雰囲気条件を変更した実験を実施し、反応物の生成量の変化から化学反応機構の検証を行う。

8. 公表成果一覧

- 1) Nanjo, K., Shiotsu, H., Maruyama, Y., Sugiyama, T., Okamoto, K., “Estimation for mass transfer coefficient under two-phase flow conditions using two gas components“, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 60, No 7, pp. 816–823, 2023. doi:10.1080/00223131.2022.2146015