

BWR4/Mark-I プラントのヨウ素化学挙動を考慮した 格納容器内ソースターム評価に係わる検討

Investigation for Evaluating Containment Source Term of BWR4/Mark-I Plant Considering Iodine Chemistry in Suppression Pool

石川 淳 森山 清史

Jun ISHIKAWA and Kiyofumi MORIYAMA

安全研究センターサイクル施設等安全研究ユニット

Fuel Cycle Safety Research Unit Nuclear Safety Research Center

February 2011

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。 本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。 なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ(http://www.jaea.go.jp) より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課 $\overline{}$ $\overline{}$

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department, Japan Atomic Energy Agency 2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2011

BWR4/Mark-I プラントのヨウ素化学挙動を考慮した 格納容器内ソースターム評価に係わる検討

日本原子力研究開発機構 安全研究センター サイクル施設等安全研究ユニット 石川 淳、森山 清史

(2010年11月26日 受理)

シビアアクシデント晩期では、事故初期段階において圧力抑制プール水中に溶解していたョウ素が放射線場での化学反応によりガス状ョウ素として雰囲気に再放出される可能性がある。本検討では、ガス状ョウ素の再放出によるソースタームへの影響を把握することを目的に、シビアアクシデント解析コード THALES2 とョウ素化学解析コード Kiche の連携解析手法を整備した。次に、本手法を用いて BWR4/Mark-I プラントの代表的な 4 つの事故シナリオを対象に格納容器内環境条件の検討とソースターム評価を実施し、ョウ素化学反応のソースタームへの影響について検討した。これより、シビアアクシデント晩期のガス状ョウ素の雰囲気への再放出は、事故シーケンスの違いによる影響は小さいが、pH の影響を大きく受けること、事故開始 50 時間後における雰囲気への I_2 の再放出割合(対初期炉内内蔵量)は、pH=5/7/9 でそれぞれ $10^{-2}\sim10^{-1}$ 、 10^{-3} 及び 10^{-5} 程度となり、pH が低下するほど増加することが明らかになった。

本報告には、(独)原子力安全基盤機構からの受託研究「平成 20 年度シビアアクシデント晩期の格納容器閉じ込め機能の維持に関する研究」の成果の一部が含まれる。

原子力科学研究所(駐在):〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

Investigation for Evaluating Containment Source Term of BWR4/Mark-I Plant Considering Iodine Chemistry in Suppression Pool

Jun ISHIKAWA and Kiyofumi MORIYAMA

Fuel Cycle Safety Research Unit Nuclear Safety Research Center Japan Atomic Energy Agency Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received November 26, 2010)

At the late phase of severe accident, there is a possibility that gaseous iodine species which dissolved in the pool water at the early phase of accident are released to the containment atmosphere due to radiation chemical reactions. In order to evaluate the influence on the containment source terms considering iodine chemistry, a coupling analysis method of severe accident analysis code THALES2 and iodine chemistry analysis code Kiche was developed. The evaluation of thermal-hydraulics conditions and source term in the containment at the late phase of severe accident was conducted for 4 representative accident scenarios of BWR4/Mark-I by using this coupling method. Based on the results of this analysis, as for the re-vaporization of iodine to the containment atmosphere at the late phase of severe accident, the influence of pH of the water pool is larger than that of difference of accident sequences. Total release fractions of I_2 to the containment atmosphere at 50 hour for pH=5,7 and 9 were $10^{-2} \sim 10^{-1}$, 10^{-3} and 10^{-5} for the initial core inventory, respectively. The lower the pH was, the larger the release fraction of I_2 was.

Keywords: BWR, Mark-I, Severe Accident, Source Term, Iodine Chemistry

This report includes the results of work performed Japan Atomic Energy Agency(JAEA) under contract with Japan Nuclear Energy Safety Organization(JNES).

目 次

1.	は	:じめに	1
2.	計	- 算コードの概要及び連携解析手法	2
	2.1	THALES2 コードの概要	2
	2.2	ョウ素化学解析コード Kiche の概要	2
	2.3	連携解析手法	3
3.	解	X析対象プラント及び解析条件	9
	3. 1	解析対象プラント	9
	3. 2	解析対象とした事故シナリオ	9
	3.3	解析ケース及び解析条件	10
4.	解	7析結果	14
	4.1	化学反応なしのケース	14
	4.2	格納容器内環境条件の検討	19
	4.3	ョウ素化学挙動に及ぼす pH の影響	20
	4.4	事故シーケンスの相違による格納容器内ソースタームへの影響	22
5.	まと	: b)	40
参	考文	献	41
付	録 -		42

Contents

1.	Intr	oduction	I
2.	Des	scription of Severe Accident Analysis Codes and Collaborative Calculation Method	2
	2.1	Description of THALES2 Code	2
	2.2	Description of Kinetics of Iodine Chemistry Code Kiche	2
	2.3	Collaborative Calculation Method	3
3.	Pla	nt and Accident Conditions Analyzed	9
	3.1	Plant Description	9
	3.2	Accident Scenarios Considered	9
	3.3	Calculation Cases and Conditions	10
4.	Cal	culation Results	14
	4.1	Results of Thermal-hydraulics and Radio-nuclides Behavior	
		without Chemical Reaction of Iodine	14
	4.2	Accident Conditions in Containment on Late Phase of Severe Accident	19
	4.3	Dependency of Iodine Chemistry Behavior on pH Conditions	20
	4.4	Dependency of Containment Source Term on Accident Sequences	22
5.	Sur	nmary	40
Re	feren	ces	41
Αp	pend	ix	42

図表一覧

- 表 2-1 Kiche コードのヨウ素化学挙動に係わる水相反応及び移行モデル
- 表 2-2 従来計算と連携解析計算の比較
- 表 3-1 BWR4/Mark-I (Browns Ferry プラント)の主要な諸元
- 表 3-2 解析の対象とする事故シナリオ
- 表 3-3 解析ケース
- 表 3-4 ヨウ素化学反応に係わる解析条件
- 表 4-1 事故進展結果
- 表 4-2 圧力容器破損直前での CsI の存在割合(化学反応なしケース)
- 表 4-3 計算終了時での CsI の存在割合(化学反応なしケース)
- 表 4-4 シビアアクシデント晩期における格納容器内環境条件に関する検討結果
- 表 4-5 核種グルーピングとグループ別エネルギ付与率
- 表 4-6 計算終了時の格納容器内ヨウ素存在割合(事故開始 50h 後結果)
- 付録1 THALES2 コードの主要な FP 挙動計算モデルの概要
- 図 2-1 THALES2 コードにおける FP 移行挙動の模式図
- 図 2-2 THALES2 と Kiche の連携解析手法
- 図 3-1 BWR4/Mark-I のボリューム分割
- 図 4-1 事故進展及び FP 挙動結果(S2E シーケンス、化学反応なし)
- 図 4-2 事故進展及び FP 挙動結果(AE シーケンス、化学反応なし)
- 図 4-3 事故進展及び FP 挙動結果 (TQUV シーケンス、化学反応なし)
- 図 4-4 事故進展及び FP 挙動結果 (TB シーケンス、化学反応なし)
- 図 4-5 格納容器内環境条件の検討結果
- 図 4-6 S/P 内の I^- /その他 I イオン間の化学平衡の関係(S2E シーケンス)
- 図 4-7 W/W 内の I₂の気液平衡の関係(S2E シーケンス)
- 図 4-8 S/P 水温度と気液分配係数の関係(S2E シーケンス)
- 図 4-9 D/W 内 I₂の気液平衡の関係(S2E シーケンス)
- 図 4-10 D/W 内 I₂の気液平衡の関係 (AE シーケンス)
- 図 4-11 D/W 内 I₂の気液平衡の関係(TQUV シーケンス)
- 図 4-12 D/W 内 I₂の気液平衡の関係(TB シーケンス)
- 図 4-13 計算終了時(50h)の格納容器内ヨウ素存在割合

This is a blank page.

1. はじめに

炉心損傷により炉心から格納容器に放出されたヨウ素の大半は水溶性が高く不揮発性の CsI であり、シビアアクシデント時の事故初期段階においては、圧力抑制プール等の水に溶解して保持されると考えられるが、事故終息期のシビアアクシデント晩期において、放射線場での化学反応により CsI がガス状ョウ素に変化し、雰囲気に再放出される可能性がある。

軽水炉シビアアクシデント時の事故進展及びソースタームの評価には、一般的に THALES2^[1-1]、MELCOR^[1-2]、MAAP^[1-3]といった熱水力挙動と放射性物質(以下、核分裂生成物 Fission Product という意味で FP と略す)の移行挙動を総合して計算可能なシビアアクシデント解析コードが利用されている。シビアアクシデント解析コードによる従来のソースターム評価では、ヨウ素化学挙動に係わる知見が十分でなく、その結果、解析モデルも開発段階にあったことから、これらの現象を十分に考慮していなかった。それ故、ヨウ素が再放出される現象は、格納容器内のソースタームの不確実さの要因となっており、これにより事故終息後の住民避難解除の判断基準が明確になっていないなど原子力防災計画上の課題の1つとなっている。また、原子力安全委員会の立地指針等検討小委員会において立地評価用ソースターム改訂に向けた検討が進められており、ヨウ素化学挙動を考慮した格納容器内ソースターム評価の重要性が高まっている。

日本原子力開発機構(原子力機構)では、本現象の不確実さの低減を目的にガス状ョウ素の再放出学動試験を 2005 年から 6 年計画で実施しており、ヨウ素の再放出に関する基礎データを取得するとともにヨウ素化学解析コード Kiche の開発及びこれを用いた格納容器内ソースターム評価を実施している[1-4],[1-5]。実機の格納容器内ソースタームの評価にこれらの成果を反映させるために、原子力機構が別途開発した総合的なシビアアクシデント解析コード THALES2 とヨウ素化学解析コード Kiche の連携解析手法を構築し、これによりヨウ素化学挙動を考慮したソースタームの評価が可能となった[1-6],[1-7]。 さらに、この解析手法を用いて、BWR4/Mark-I プラントを対象とした実機試解析を実施し、シビアアクシデント晩期における格納容器内の熱水力条件などヨウ素化学反応への影響因子に関する検討及びソースタームへのヨウ素化学反応の影響を検討したので報告する。本報告書では、2 章にコード概要及び連携解析手法、3 章及び 4 章で解析対象プラント及び解析条件と解析結果について述べる。

2. 計算コードの概要及び連携解析手法

従来のソースターム評価では、放射線場における液相からのガス状ョウ素の再放出挙動を模擬していないのでソースタームを過小評価していた。そこで、ソースターム評価におけるョウ素挙動に係わる不確実さ低減を図るためシビアアクシデント解析コード THALES2 とョウ素化学解析 Kiche の連携解析手法の構築を実施した。本章では、本連携に用いた THALES2 及び Kiche の概要と 2 コードの連携解析手法について述べる。

2.1 THALES2 コードの概要^[1-1]

THALES2コードは、軽水炉プラント全体を模擬し、シビアアクシデント時のプラント内の熱水力 的な現象とFP挙動を一括して考慮可能な確率論的安全評価(PSA:Probabilistic Safety Assessment)用の総合的なシビアアクシデント解析コードである。THALES2 コードのBWR版は、BWR の原子炉冷却系、格納容器系及び原子炉建屋における熱水力学的な現象とFP移行挙動を模擬する モデルとともに、非常用炉心冷却系(ECCS)やその他の様々な工学的安全設備のモデル及びそれら を作動/停止させる制御ロジックのモデルを備えている。THLAES2 コードにおける熱水力モデルは、 いわゆるボリューム-ジャンクションモデルに基づいて構築されている。冷却水の量と圧力、水位、 ボイド率、壁及び流体(気相及び液相)の温度等のパラメータは、質量とエネルギーの保存を考慮 してボリューム毎に計算される。炉心は、半径方向と軸方向の2次元に区分された領域ごとに燃 料棒及び被覆管の温度、燃料溶融による下方への移動が計算される。また炉心損傷事故時に発生 する物理現象のうちジルコニウム/水反応による水素の発生、圧力容器下部へッドの損傷、格納容 器内での水素燃焼、溶融炉心/コンクリート反応による格納容器床の侵食とガス発生等を考慮して いる。一方、水素の爆轟や水蒸気爆発、格納容器直接加熱などのいわゆるエナジェティック事象 は解析できない。THALES2のFP 放出及び移行は、ART コードのモデル[2-1]をベースとしている。 THALES2における主要なFP 移行挙動の模式図を図2-1 に示す(主要な計算モデルの概要について は**付録1**を参照のこと)。このモデルは、燃料からのFP放出とプラント内でのガス及びエアロゾル 状FPの壁及び床への沈着、水溶液としてのFPの移行挙動を考慮している。また、THALES2では、エ アロゾルを粒径分布を持つ多成分エアロゾルとして扱っており、凝集、FPや水蒸気の凝縮/蒸発に よるエアロゾル成長、重力沈降や熱泳動などエアロゾルの様々な沈着機構による壁や床への沈着 挙動が考慮可能である。また、ガス状FPの壁やエアロゾルへの凝縮/蒸発、化学吸着、気液間移行、 スプレイやフィルタによるFP除去、FPを含むエアロゾルのプールにおけるスクラビング除去等が 考慮可能である。なお、Kicheと連携させない従来の計算では、ヨウ素の化学形としてCsIのみを 扱い、ヨウ素化学反応については開発段階にあったことから考慮していない。

2.2 ヨウ素化学解析コード Kiche の概要^[1-4]

Kiche コードは、原子力機構が開発しているヨウ素化学解析コードであり、その解析モデルは、

ョウ素化学挙動に関する機構論的モデルの1つであるカナダ原子力公社(AECL)の Wren らが構築した LIRIC3. 2^[2-2]の反応モデル及び原子力安全システム研究所(INSS)の飯塚らによる IODIC3M^[2-3]の解析手法を参考に、反応系の種類毎(水の放射線反応、無機ョウ素反応、有機ョウ素反応及び不純物の影響など)に他の文献等を参照し見直しを行ったものである。さらに、格納容器内ョウ素挙動に関する OECD/NEA における研究協力 BIP(Behavior of Iodine Project)計画から得られた情報や原子力機構で実施しているガス状ョウ素の再放出挙動試験結果に基づき、化学反応モデルの検討及び改良等を行っている。

Kiche コードのヨウ素化学挙動に係わる水相反応及び移行モデルを表 2-1 に示す。水相反応と して水の放射線分解反応、無機ヨウ素反応、有機ヨウ素反応を考慮しており、化学反応式及び反 応速度定数のデータベースから反応速度論に関する連立常微分方程式を構成し、それを解いて各 化学種の濃度の時系列変化を計算する。水の放射線分解反応は、プライマリ生成物の生成反応(H₂O $\rightarrow e_{a_0}^-$, ·H, ·OH, H⁺, H₂O₂等)及びプライマリ生成物による相互間の反応(生成物: ·HO₂, ·O₂⁻, OH⁻等) の2つに分類でき、ここでは約50個程度の反応を考慮している。ここで・は、熱などの影響によ り反応性が高い不対電子を持った分子やイオンなどの化学種(ラジカル)を指し、·H は H ラジカル を表す。元素状ヨウ素 I2の生成反応を含む無機ヨウ素反応では、水の放射線分解生成物(主にラ ジカル)によるヨウ素化学種の酸化・還元反応(・0H による Γ の酸化反応: $\Gamma \rightarrow \bullet I \rightarrow I_0$ 、 $\cdot 0_0$ によ る I₂の還元反応: I₂→・I₂¯→2I¯)及び I₂の加水分解(OH¯による分解: I₂←→・I₂OH¯←→H0I+I¯)等 を考慮している。これらの反応は、反応速度論に基づく化学平衡により決定され、反応の向きは 事故条件(境界条件)により異なる。水の放射線分解については、臨界温度付近の高温までの G 値 及び反応速度等のデータベース [2-4],[2-5] を有し、無機ヨウ素化学反応についても不純物の影響を 除き主要なメカニズムについてはほぼ確立[2-2],[2-6],[2-7]されており、Kiche に組み込まれている。 その他、既存の LIRIC3.2 の有機ヨウ素反応モデルと遷移金属による触媒効果(ラジカル濃度に影 響)等の解析モデルを有している。ただし、LIRICモデルでは、有機ヨウ素反応に係わる有機物分 解機構が非常に単純化されており、PWR のような空気雰囲気条件においては、試験結果を比較的 良く再現できることが示されているが、BWR のような低酸素雰囲気に適用すると、有機物分解過 程における中間生成物である有機ラジカル濃度を過大評価するため、有機ヨウ素の再放出量を過 大評価する傾向があることが確認されている[1-5]。現在、原子力機構ではガス状ヨウ素の再放出試 験結果に基づき低酸素濃度条件にも適用可能な有機ヨウ素反応モデルを開発中である。それ故、 本報告で示す評価では有機ヨウ素の生成反応は考慮していない。なお、化学反応以外の解析モデ ルとして、ヨウ素化学種の気液界面移行や壁面での吸着等を考慮している。

2.3 連携解析手法[1-6]

THALES2コードのヨウ素化学種の取扱いに関する従来計算と連携解析計算の比較を表2-2に示す。 従来計算では、ヨウ素の化学形としてCsIのみを扱っており、ヨウ素の化学反応は考慮していなかった。それ故、CsIの化学変化を想定しない場合、一旦、液相中に移行したCsIは、水溶性が高い ことから気相への再放出がない不揮発性のヨウ素化学種として取り扱っていた。気相中のCsI濃度は、壁及び浮遊するエアロゾル表面間での凝縮/再蒸発、液面への移行などに基づく平衡状態により計算されるので、ヨウ素化学反応を考慮しない従来計算ではソースタームを過小評価することになる。それ故、ソースターム評価におけるヨウ素挙動に係わる不確実さ低減を図るため、上記、2コードの連携解析手法の構築を実施した。本連携において、2.2節で述べたヨウ素化学挙動をプラント全体で考慮させると、計算時間を大幅に増大させることになり、発生頻度の評価で抽出された多数の事故シナリオに対する系統的な事故解析の実施を想定したPSA用のコードとしては実用的ではなくなる。それ故、ここで提案する連携においては、ヨウ素化学挙動を考慮するボリュームの限定とコード間の受け渡しデータを最小限に抑え、解析作業の効率化と計算コストの抑制を図っている。

連携解析手法の概念図を図2-2に示す。 インターフェース部が両コード間のデータの授受を制御 する。コード連携によりヨウ素化学反応を考慮する場合においては、物量としてドライウェル (D/W)液相など圧力抑制プール(S/P)以外の水はS/P水に比べ少なく、ヨウ素の化学反応はS/P内が 支配的となるので、化学反応の計算はS/P中のみに限定させた。THAELS2で取り扱うヨウ素化学種 として、従来の不揮発性のCsIに加えて、揮発性化学種である元素状ヨウ素I。のみを追加し、各ボ リュームの熱水力挙動、放射性物質のスプレイ除去や沈着挙動、そしてボリューム間移行につい ては従来どおりTHALES2で計算する。コード連携によりヨウ素化学反応を考慮する場合において、 形状データに加え、圧力や温度などの熱水力条件についてはインターフェース部を介してKiche にそのまま受け渡す。CsIの原子炉冷却系(RCS)から逃がし弁経由でのS/Pへの移行など、CsIがS/P へ移行した場合にインターフェース部でCs[†]及びI⁻に電離させ、イオンとして取り扱う。Kicheへは I⁻やI₂の流入として渡し、これらを基点にヨウ素化学計算を実施する。Kicheでは、S/P中の化学反 応(水の放射線分解、無機ヨウ素反応、有機ヨウ素反応)だけでなく、THALES2では考慮できない雰 囲気ガスの液相への溶解(溶存酸素が化学反応へ影響)や液相壁へのヨウ素吸着などを計算する。 また、事故緩和策として想定したS/Pを水源とする格納容器スプレイの作動時には、通常、S/P内 に存在する全ての化学種及びイオンに対し、ボリューム間移行を考慮する必要がある。本連携で は、ドライウェル(D/W)への水の移動とベント管経由でのS/Pへの戻りがほぼ同等であることから、 スプレイ水とともに移動するのはCsI及びIoに限定し、HOIなどの不揮発性ヨウ素やその他のイオ ンなどの化学種は、計算上、S/Pから移動しないものとした。

Kicheで計算した結果をインターフェースを介してTHALES2 へ渡す際には、I-はCsI として、 I_2 はそのまま渡し、その他の不揮発性のヨウ素化学種やイオンなどの物量データは渡さず、次ステップのKiche 計算に使用するためモル数を保存しておく。ここで、THALES2側に渡さないインターフェースに保存されたヨウ素化学種の物量データは、プロット用データとして抽出し、出力結果におけるヨウ素のマスバランスを確保させる。また、 I_2 の気液間移行及び壁への吸着は、D/Wなどプラント内全体で考慮させる必要があることから、これらの計算モデルはTHALES2側に移植し取り扱うことにした。これより、THALES2 側ではKiche から受け取ったCsI及び I_2 に対し、他のFP と

同様に、全ての沈着機構、工学的安全設備による除去やボリューム間移行などを計算することが可能となる。以上のような連携解析手法を構築することにより、解析作業の効率化と計算コストの抑制を図った。なお、インターフェース部ではpHに影響するCsOHのイオン化のモデルも有しているが、pHを感度解析パラメータとしpH固定で実施した本解析では本モデルは使用していない。

表 2-1 Kiche コードのヨウ素化学挙動に係わる水相反応及び移行モデル(1/2)

分類	主な反応	参考文献
水の放射 線分解	プライマリ生成物の生成 $(H_2O\rightarrow e_{aq}^-, H^+, \bullet OH, \bullet H, H_2, H_2O_2)$ 、各生成物の G 値とその温度依存性 プライマリ生成物による反応 $(約40反応)(300^\circ C$ までのデータあり) (生成物: $\bullet HO_2, HO_2^-, \bullet O^-, \bullet O_2^-, OH^-, O_2, O_3^- \rightarrow $ 化学反応に寄与)	Elliotら,AECL- 11073,1994. 勝村,放射線化学,81,2, 2006.
無機ヨウ素反応	水の放射線分解生成物による酸化・還元(放射線反応) $I^-+\bullet OH \to \bullet I + OH^-; 2\bullet I \to I_2$ $I_2+\bullet O_2^- \to \bullet I_2^- + O_2; \bullet I_2^- + \bullet O_2^- \to 2I^- + O_2$ I_2 の加水分解 $I_2+OH^- \longleftrightarrow I_2OH^- \longleftrightarrow HOI+I^ H_2O_2$ による還元 $I_2OH^- + H_2O_2 \longleftrightarrow HIO_2 + I^-; HIO_2 + OH^- \to I^- + O_2$ 他に多数反応があるが、上記のようなものが主な寄与	Wrenら, Rad. Phys. Chem. 60, 577, 2001. (LIRIC) Taghipourら, Nucl. Tech. 137, 181, 2002. (トロント大) Dickinsonら, Nucl. Tech. 129, 374, 2000. (INSPECT)
有機ヨウ 素反応	既存のLIRIC3.2(カナダ,AECL)のモデルを有するが BWRのような低酸素雰囲気条件では、有機ヨウ素の再揮発化を 大幅に過大評価する可能性 → 現在、モデル開発中	

表 2-1 Kiche コードのヨウ素化学挙動に係わる水相反応及び移行モデル(2/2)

分類	主な過程	参考文献等
気液界面 移行	揮発性のヨウ素化学種として I_2 、有機ヨウ素を考慮、その他の揮発性化学種(有機物、 CO_2 、雰囲気 $(N_2,O_2,H_2$ 等))も同様	Wrenら, Rad. Phys. Chem. 60, 577, 2001. (LIRIC) 気液界面移行係数は流動状
	$ \frac{dC_g}{dt} = K_{mt} \frac{A_{\text{int}}}{V_g} \left(C_{aq} - H_p C_g \right) $ $ \frac{dC_{aq}}{dt} = K_{mt} \frac{A_{\text{int}}}{V_{aq}} \left(H_p C_g - C_{aq} \right) $ $ \frac{dC_{aq}}{dt} = K_{mt} \frac{A_{\text{int}}}{V_{aq}} \left(H_p C_g - C_{aq} \right) $ $ \frac{K_{\text{int}} : \text{気液界面積}}{K_{\text{mt}} : \text{気液界面移行係数}} $ $ \frac{K_{\text{mt}} : \text{気液分配係数} (\text{平衡時} C_{\text{aq}} / C_g) $	況や系の大きさに依存する。
壁面 吸脱着	I_2 の SUS 壁及び有機ペイント壁への吸脱着は顕著。当面、経験的モデルで扱われている。ペイント壁へは不可逆的吸着が顕著。 $\frac{dC}{dt} = -v_{ad}C \left(1 - \frac{C_{ad}}{C_{ad,sat}}\right) + k_{de}\frac{A}{V}C_{ad}$ $V:$ 均質相、壁面濃度 $V:$ 均質相体積 $A:$ 壁面積 $V:$ 地質相体積 $V:$ 地質相体積 $V:$ 大田	Wrenら, Rad. Phys. Chem. 60, 577, 2001. (LIRIC) Rosenbergら,BMI-1863, 1969. (SUS壁、有機ペイント壁への吸脱着データ) Wrenら,Nucl.Tech. 133, 33, 2001. (SUS壁への吸脱着の詳細モデル)
その他	ペイント壁からの有機物溶出: AECLの研究で有機反応を支配するとの説、他機関のモデルでも採用されつつある模様。溶出速度については一般性のある知見があるが、総溶出量の取扱に課題。 $\frac{dC}{dt} = k_{dis}(C_{\infty} - C)$ $C:$ 液相有機物濃度 C_{∞} : 濃度の終端値 C_{∞} : 濃度の終端値 C_{∞} : 濃度の終端値 C_{∞} : 激出速度係数	Wrenら, Rad. Phys. Chem. 60, 577, 2001. (LIRIC) Wrenら, Can. J. Chem.78, 464, 2001. (ペイント溶剤溶出データ)

表 2-2 従来計算と連携解析計算の比較

		従来計算	連携解析		
ョウ素の	気相	CsI	CsI, I ₂		
化学形	液相	CsI	I , HOI, I ₂ , I ₂ OH ⁻ 等		
気相中の	CsI	- 壁及びエア	プロゾル表面へのCsI沈着/蒸発、床沈着		
ヨウ素濃		- プール液面	ĪへのCsI凝縮		
度計算 - ガス及び粒子状CsIのスプレイによる低減効果*、					
		(水溶性が高	高いCsIは液相からの再放出を考慮しない**)		
	I ₂	未考慮	I_2 の壁吸着、スプレイ低減効果 $*$ 、気液間移行 $*$		
液相中化学	夕反応	未考慮	- 水の放射線分解(プライマリ生成物の生成、		
			プライマリ生成物による反応)		
			- 無機ヨウ素反応(水の放射性分解生成物		
		による酸化・還元、I ₂ の加水分解、			
			H ₂ O ₂ による還元など)など		

^{*} 移行率は気液分配係数及び気液界面移行係数に基づき計算 ** CsIの気液分配係数として、液相から再放出しないような大きな値を採用

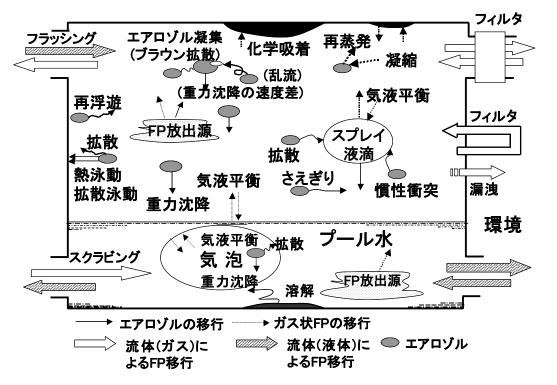


図 2-1 THALES2 コードにおける FP 移行挙動の模式図[1-1]

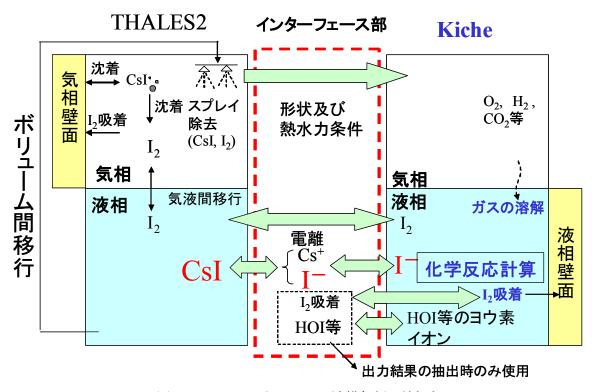


図 2-2 THALES2 と Kiche の連携解析手法[1-6]

3. 解析対象プラント及び解析条件

本章では、解析に係わる諸条件について述べる。3.1 節に解析対象プラントの概要、3.2 節に解析の対象とする事故シナリオ、そして 3.3 節に解析ケース及びョウ素化学挙動に係わる解析条件について述べる。

3.1 解析対象プラント

解析対象プラントは、ヨウ素化学挙動のソースタームへの影響が大きいプラントを基準に選定した。ガス状ヨウ素の再放出は、pHの影響が大きく、pH低下に伴い再放出が促進される傾向がある。PWR プラントでは、格納容器スプレイ作動時において、スプレイ水へのアルカリ性添加物の付加を想定しており、pH低下が顕著となる事故の発生頻度は低いことから、本解析ではBWRプラントを評価対象に選定した。なお、シビアアクシデント晩期の格納容器内では、格納容器内壁のペイント溶剤である有機物が放射線分解し、酸などを生成することによりpHが低下すると考えられている。ペイント壁は、格納容器の形状としてMark-I型ではウェットウェル壁にペイント壁を有しているが、Mark-I型では採用していない。これらの情報から解析対象プラントとして、国内BWRプラントにおいて設置数が多く、pH低下によりヨウ素が再放出される可能性があるBWR4/Mark-I(米国 Browns Ferry)を解析対象プラントに選定した。

解析対象プラントの諸元を表 3-1 に示す。THALES2 コードでは、プラント全体を複数のボリュームに分割してモデル化する。本解析における Browns Ferry プラントのボリューム分割を図 3-1 に示す。原子炉冷却系は、炉心部(CORE)、上部プレナム(UPPL)、蒸気ドーム(STMD)、ダウンカマ (DC)、下部プレナム(LWPL)、再循環ループ A (LOPA)、再循環ループ B (LOPB)の 7 つのボリュームに分割した。また、格納容器系はドライウェル(D/W)、ペデスタル、ベント管及びウェットウェル (W/W)の4つのボリュームに分割した。その他、復水貯蔵タンクまたは圧力抑制プール(S/P)を水源とする各種の注水設備、格納容器から原子炉建家(RB)への漏洩と非常用ガス処理系による FP 除去及び格納容器破損による環境への放出等を考慮するためのボリュームと流路を設けた。

3.2 解析対象とした事故シナリオ

まず、事故のシナリオを表す用語を定義する。炉心損傷事故シーケンスは、起因事象を起点とした緩和設備等の成功・失敗の組み合わせにより、圧力容器破損までの事故の流れ(シナリオ)を表し、格納容器破損モードは、格納容器の過圧破損など格納容器の閉じ込め機能に着目した最終的な破損状態を表すものとして定義している。本報告書では、炉心損傷事故シーケンスと格納容器破損モードの組み合わせで決定される事故の発端から結末に至るまでの事故のシナリオを事故シナリオと呼ぶことにする。

解析の対象とする事故シナリオを**表 3-2** に示す。本研究では、シビアアクシデント晩期の格納容器内ソースターム評価を主たる目的としていることから、炉心損傷頻度が高く、事故緩和操作

により事故終息が可能な4つの炉心損傷事故シーケンス(TQUV、S2E、AE、TB)を選定した。ここで、TB は全交流電源喪失であり、それ以外は全ECCS作動失敗において、再循環配管の破断なしのTQUV、小破断 LOCA(冷却材喪失事故 LOCA: Loss of Coolant Accident)である S2E、大破断 LOCAの AE を表す。また、格納容器破損モードとしては、格納容器の健全性が維持され、事故が終息する事故終息シナリオを選定した。事故の終息に必要な事故緩和操作としては、外部水源を用いた代替スプレイの作動及び事故後 20h での残留熱除去系 (RHR)を用いた再循環モードでの格納容器スプレイ(以下では再循環スプレイと略す)の復旧の2つを想定した。ただし、全交流電源喪失のTBシーケンスでは、交流電源が必要な代替スプレイは作動できない。それ故、TBでは、事故開始後 21hでの電源復旧を想定し、その後の再循環スプレイの作動を想定した。なお、代替注入系は消火ポンプの利用を想定しているので、流量は定格の1/10程度であるが、この流量では圧力抑制プール水位高となり注水継続が不可能となる。それ故、本解析では定格の1/20での作動を想定した。

3.3 解析ケース及び解析条件

解析ケースは、上記 4 つの事故シナリオに対し、化学反応なしのケースと化学反応ありで pH 条件(固定で 5/7/9)を変えた合計 4 ケースを選定した(表 3-3 参照)。また、ヨウ素化学反応に係わる解析条件を表 3-4 に示す。雰囲気条件は、国内 BWR の酸素を僅かに含む雰囲気条件(N_2 :98%、 0_2 :2%) $^{[3-1]}$ とした。ヨウ素の気液間移行の計算に必要な気液界面移行係数は、液相で生じる揮発性ヨウ素が充分速く気相へ移行し、ほぼ気液平衡状態で現象が推移するような保守的な値を採用した。また、壁面吸着についても Rosenberg らのエポキシ系ペイントに関する試験データ $^{[3-2]}$ を参考に、吸着を過小評価させるような保守的な値を用いた。化学反応ありのケースで考慮した化学反応は、水の放射線分解、無機ヨウ素反応及び遷移金属による触媒効果等であるが、前述したように有機物の放射線分解を含めた有機ヨウ素反応については、現在、モデル開発中であることから本解析では考慮できない。本現象は、pH 低下の重要因子の 1 つであるので、本解析では pH 固定の条件でパラメータ解析を実施している。

表 3-1 BWR4/Mark-I (Browns Ferry プラント)の主要な諸元

プラント諸元	値		
熱出力(MWt)	3293		
ドライウェル自由空間体積(m³)	4500		
圧力抑制プール自由空間体積(m³)	3370		
圧力抑制プール液相体積(m³)	3823		
運転圧力(kg/cm ² g)	71. 7		
運転温度(℃)	294		
燃料集合体数			
個数	764		
燃料棒の配置	7×7		
燃料有効長(m)	3. 66		
格納容器			
設計圧力(kg/cm²a)	4. 97		
設計漏洩率(%/day)	2.00		
ガス処理系によるフィルタ除去	希ガス:100%放出、他 99%除去		

表 3-2 解析の対象とする事故シナリオ

女 0 2 万円 シバ 外 こ チ の チ 以 シ ノ ノ ハ					
事故シーケンス	事故条件				
S2E シーケンス	- 再循環配管 2 インチ破断				
(小破断 LOCA、ECCS 失敗)	- 全 ECCS 作動失敗				
	- 代替スプレイ:外部水源を利用し、格納容器設計圧				
	で作動(ポンプ容量:定格流量の1/20)				
	- 再循環モード運転による格納容器スプレイ復旧				
	代替スプレイ停止 (20 h)				
	→ 事故終息				
AE シーケンス	- 再循環配管 6 インチ破断				
(大破断 LOCA、ECCS 失敗)	- その他は同上				
TQUV シーケンス	- 全 ECCS 作動失敗				
(ECCS 失敗)	- 代替スプレイ(外部水源、定格流量の 1/20)				
	- 再循環モード運転による格納容器スプレイ復旧				
	代替スプレイ停止 (20 h)				
	→ 事故終息				
TB シーケンス	- 全交流電源喪失				
(全交流電源喪失)	- 原子炉隔離時冷却系(RCIC)による炉心注水				
	- 10 時間後にバッテリー枯渇(RCIC 停止)				
	- 電源復旧 (21 h)				
	- 再循環モード運転による格納容器スプレイ作動				
	→ 事故終息				

表3-3 解析ケース

ケース No	解析ケース			
1	1 化学反応なし(S/P 内の吸収線量率=0 として計算)			
2	化学反応あり(pH=5 固定)			
3	化学反応あり(pH=7 固定)			
4	化学反応あり(pH=9 固定)			

表 3-4 ヨウ素化学反応に係わる解析条件

20 1 2 20 10 1 20 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10					
パラメータ及び解析条件					
雰囲気条件(初期)	BWR 条件 (N ₂ :98%、0 ₂ :2%)				
気液界面移行係数[dm/s]	1×10^{-3}				
壁面吸着速度[dm/s]	I ₂ 気相壁:1×10 ⁻² 、I 液相壁:1×10 ⁻⁴				
ペイント壁からの有機物溶出	なし				
化学反応	水の放射線分解、無機ヨウ素反応、遷移金属によ				
(化学反応ありのケース)	る触媒効果(OECD 国際標準問題 ISP-41 推奨値、初				
	期 Fe ²⁺ /Fe ³⁺ 濃度:各 5×10 ⁻⁵ [M]) などを考慮				

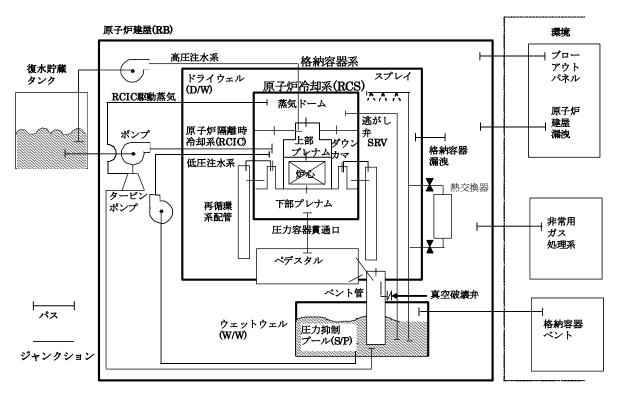


図 3-1 BWR4/Mark-I のボリューム分割

4. 解析結果

本章では解析結果について述べる。4.1 節では化学反応を考慮しない計算結果を基に、事故シーケンス毎に共通で基本的な事故進展及び放射性物質(Xe, CsI)の移行挙動について概説し、ヨウ素化学挙動に係わる重要な事項について述べる。4.2 節以降にコード連携による解析結果を示す。ヨウ素化学挙動に影響すると考えられる格納容器内環境条件を事故シーケンス毎に比較した結果を4.2 節に示す。また、pH はヨウ素化学挙動への影響因子の1つと考えられているので、ヨウ素化学挙動へのpH 及び事故シーケンスの影響についての分析結果を、それぞれ、4.3 節及び4.4 節に述べる。

4.1 化学反応なしのケース

解析の対象とする事故シーケンス(S2E、AE、TQUV、TB)の事故終息シナリオに対する主な事故進展及びプラント内放射性物質挙動の挙動について、化学反応なしケースの結果を用いて説明する。 事故進展時刻結果、圧力容器破損時点及び計算終了時(50h)における CsI の初期炉内内蔵量に対する各ボリューム内での存在割合を表 4-1~表 4-3 に整理した。

(1) S2E シーケンス(化学反応なし)

S2E シーケンスは、小破断 L0CA 時に全ての炉心注入系の作動に失敗する事故シーケンスである。 S2E の事故進展挙動及び FP 挙動 (Xe、CsI) の結果を以下に示す。なお、FP 挙動の図において、THALES2 では、各ボリューム内での FP の存在形態として、a) ガス状 FP、b) 雰囲気内に浮遊するエアロゾル、c) 液相内に溶解したもの又は床面に沈降したもの、d) 壁に付着したエアロゾル、e) 壁への凝縮、f) 壁面への化学吸着と 6 つに分類して取り扱っている。なお、CsI は、化学的に活性であるので、プラント内では、蒸気、エアロゾル、壁や床への沈着及び水溶液へ溶解するなど様々な存在形態をとる。ここでは理解促進のため FP 図は、以下の 2 つに整理し示した。

浮遊:雰囲気中に浮遊(上記において a) +b)に相当)

沈着 : 壁や床又は液相中に沈着(上記において c) + d) + e) + f) に相当)

a) 事故進展

S2E の熱水力挙動を図 4-1(a)~(f)に示す。原子炉停止には成功するが、L0CA と炉心への注水失敗によって原子炉圧力と水位が低下し、事故開始後 0.9h 程度に被覆管破損及び炉心溶融が開始する(図 4-1(a)参照)。これにより、被覆管やチャンネルボックスの金属・水反応による大量の水素の発生や溶融燃料の溶融落下が起こるが、事故の初期段階での事故緩和策が実施されないため事故開始後 2.4h に圧力容器破損に至る。格納容器の圧力を図 4-1(c)に示す。格納容器の圧力は、炉外へ放出された炉心デブリによる格納容器内に蓄積された L0CA 水の蒸発やデブリ中の未酸化

Zr の酸化に伴う水素の発生、そしてコア・コンクリート反応に伴う非凝縮性ガスの発生により上昇する。事故開始後8h程度で格納容器圧力が設計圧力に到達すると代替スプレイが作動し、格納容器内の蒸気凝縮及びデブリ冷却が開始されるが、一定期間はデブリの潜熱が大きいため発生蒸気によって格納容器の圧力は一時的に上昇する。その後、図4-1(e)に示すようにデブリ温度が低下し、スプレイによる除熱量が崩壊熱を上回ると蒸気凝縮が促進されるので格納容器圧力は減圧に転じる。また、デブリの冷却によりデブリ温度がコンクリート分解温度(1500K)以下になるとコンクリート浸食及び分解ガス発生が停止する。事故開始後20hに再循環スプレイが復旧し、格納容器(特にS/P水)からの崩壊熱除去の促進と格納容器圧力のさらなる低下により、40h以降に熱水力的な安定状態となり事故終息に至る(図4-1(c)~(f))。なお、図4-1(f)に示すように代替スプレイの作動時には、外部水源の利用によりW/W水位の上昇がみられたが、スプレイ水源をS/Pへ切り替えた再循環スプレイの作動により、格納容器の加圧要因の1つであったS/P水位の上昇は停止する。

b) FP 挙動

S2E シーケンスの Xe 及び CsI のプラント挙動を以下に示す。シビアアクシデント晩期における S/P からのヨウ素の再放出は、気液間のヨウ素濃度に基づく気液平衡が係わるので、雰囲気中の ヨウ素濃度に影響を及ぼす格納容器内の流動が重要となる。プラント内のガスの流動について、 希ガスである Xe の挙動を用いて説明する。

プラント内 Xe 挙動

S2E シーケンスの Xe 挙動を図 4-1(g) に示す。事故開始後 0.8h 程度に被覆管が損傷し、炉心溶融が開始すると燃料から Xe の放出が開始される。希ガスについては、圧力容器破損までに燃料から放出された Xe の大部分が、W/W に放出され、その一部が真空破壊弁経由で D/W へ移行する。事故開始後 8h に代替スプレイが作動すると、D/W 圧力の低下によって W/W に浮遊する Xe の一部が真空破壊弁経由で D/W に移行するため D/W 浮遊割合が増加している。また、代替スプレイ作動は外部水源を利用するので、W/W 水位の上昇に伴い Xe の W/W から D/W への移行が継続する。本移行は、再循環スプレイ復旧後に緩やかとなるが、D/W での蒸気凝縮が継続するので、Xe の W/W から D/W への移行も続く。また、原子炉冷却系(RCS)内では、残存 FP の崩壊熱レベルの低下によってRCS 内温度も低下すると、それに伴う体積収縮によって D/W から RCS への Xe の流入が起こる。ガス状ヨウ素の再放出は気液分配係数に基づく化学平衡により決定されることから、代替スプレイ作動後のプラント内の W/W から D/W へのガスの流れは、ガス状ヨウ素の再放出に影響を及ぼす可能性があることから重要である。

プラント内 CsI 挙動

S2E シーケンスの CsI 挙動を図 4-1(h)に示す。 炉心で発生した CsI は、LOCA 破断口による原子

炉減圧と RCS 内の流動変化により、逃がし弁経由での W/W への移行が抑制される。圧力容器破損 時点における RCS 内、D/W、S/P への移行割合は、表 4-2 より、それぞれ、50%、12%及び 17%程度 となり、他の事故シーケンスに比べ S/P への移行割合が最も少ない。D/W に浮遊する CsI は、圧 力容器破損後の炉外放出により増加するが、デブリ中の CsI 残存量減少に伴い放出率が低下する と、重力沈降によって徐々に床に沈着していく。その後、事故開始後8hに代替スプレイ作動、そ して 20h に再循環スプレイが復旧するが、これらの作動は、事故初期段階でプラント内に移行し た CsI を再配置させる効果がある。D/W に浮遊する CsI は代替スプレイ作動により低減され、D/W 液相に移行するが、移行した CsI はスプレイ水の流れとともにベント管経由で S/P へ移行する。 これより、代替スプレイの作動は、格納容器内に存在する CsI を S/P へ集約させることになる。 また、再循環スプレイの作動は、S/P を水源に実施されるので、S/P 中のヨウ素はスプレイ水とと もに格納容器内を循環することになる。また、スプレイ作動による蒸気凝縮効果で D/W 圧力の低 下が著しいと、RCS内に沈着した CsIの再蒸発や浮遊する CsIを炉外に放出させる可能性もある。 本事故シーケンスでは、スプレイ作動後の D/W の減圧が比較的緩やかであるので、RCS 内 CsI の 炉外への放出は殆どない。なお、RCS 内に浮遊していた CsI は、崩壊熱低下に伴う RCS 温度の低 下により、事故開始後 35h ごろには壁や床に沈着している。なお、スプレイ作動による最終的な S/P への CsI の移行割合は 28%となった(表 4-3 を参照)。S/P 水への CsI の移行は、ヨウ素の移行 だけでなく、化学反応の進行に必要なプール水中の吸収線量率に影響を及ぼすので、ヨウ素化学 反応を検討する上で重要となる。

(2) AE シーケンス(化学反応なし)

AE シーケンスは、大破断 LOCA 時に全ての ECCS の作動に失敗する事故シーケンスである。AE の事故進展挙動及び FP 挙動 (Xe、CsI) の結果を以下に示す。

a) 事故進展

AE シーケンスの熱水力挙動を図 4-2(a)~(f) に示す。小破断 LOCA である S2E の図 4-1 と比較し明らかなように、AE の事故進展は S2E よりも若干、早くなるが、それ以外の挙動はぼぼ同様である。 ただし、RCS 内に残存する CsI が S2E に比べ減少するので、図 4-2(b) に示す RCS 気相温度が S2E よりも低下している。詳細については以下のプラント内 CsI 挙動を参照のこと。

b) FP 挙動

プラント内 Xe 挙動

AE シーケンスの Xe 挙動を**図 4-2(g)**に示す。事故進展と同様、Xe の基本的なプラント内挙動についても S2E とほぼ同様である。

プラント内 CsI 挙動

S2E シーケンスの CsI 挙動を図 4-2 (h) に示す。事故進展及び Xe のプラント挙動は、S2E とほぼ同様となるが、CsI 挙動については圧力容器破損までのプラント内への分配挙動が若干異なる。 表 4-2 の圧力容器破損直前での結果に示すように大破断 LCOA では、小破断 LOCA に比べて RCS 内から D/W への CsI 放出が促進されるので RCS 内に存在する割合は S2E の 50%程度から 17%程度へ低下している。この影響により、RCS 温度が S2E よりも低く抑えられ、事故の初期段階での RCS 内沈着量が増加している (図 4-1 (b) 及び図 4-2 (b) の RCS 内雰囲気温度を参照)。また、S/P への移行割合についても、D/W 経由での W/W への移行が促進され、圧力容器破損時点で 27%程度と若干増加している。なお、代替スプレイ作動時の減圧によって RCS 内に沈着していた CsI の一部が再蒸発されるが、RCS 温度の低下により 20h 以降に再び沈着している。その後の CsI の挙動については、S2E とほぼ同様である。S/P への CsI の移行割合は圧力容器破損時点で 3 割程度であったが、最終的な移行割合は 63%とスプレイの作動により倍増している (表 4-2 及び表 4-3 参照)。

(3) TQUV シーケンス(化学反応なし)

TQUV の事故進展挙動及び FP 挙動 (Xe、CsI) の結果を以下に示す。

a) 事故進展

TQUV シーケンスの熱水力挙動を図 4-3(a)~(f)に示す。TQUV シーケンスは、LOCA ではない過渡事象において全ての炉心冷却系の作動に失敗する事故シーケンスである。炉心への注水失敗と自動減圧系の作動によって原子炉圧力及び水位が低下する。事故緩和策が取られないので事故開始後 0.9h 程度に炉心溶融が開始し、2.8h に圧力容器破損に至る。圧力容器破損以降の事故進展挙動は、上記 2 つの事故シーケンス (S2E 及び AE) とほぼ同様であり、事故開始後 11h と 20h での代替スプレイ作動と再循環スプレイの復旧によって事故終息に至る。

b) FP 挙動

TQUV シーケンス(化学反応なし)の Xe 及び CsI のプラント挙動を以下に示す。

プラント内 Xe 挙動

TQUV シーケンスの Xe の挙動を図 4-3(g) に示す。Xe の基本的なプラント内挙動は、S2E 及び AE の挙動(図 4-1(g) 及び図 4-2(g) を参照) とほぼ同様だが、RCS から格納容器への Xe の移行経路が若干異なる。上記 2 つの事故シーケンスでは、RCS から D/W への Xe の移行は LOCA 破断口経由での放出が多いのに対し、冷却材喪失事故ではない TQUV では、逃がし弁及び W/W を経由し D/W へ移行する。それ故、代替スプレイ作動までの W/W 中の存在量は、S2E 及び AE の 7 割程度に対し、TQUVでは 8 割程度と多くなる。

プラント内 CsI 挙動

TQUV シーケンスの CsI の挙動を図 4-3 (h) に示す。 TQUV では、炉心で発生した CsI の逃がし弁経由での W/W への移行が促進され、圧力容器破損までに初期炉内内蔵量の 60%程度が S/P へ移行する (表 4-2 参照)。また、S2E 及び AE とは異なり、LOCA 破断口経由での炉外放出がないので、D/W への移行も 10^{-5} 程度と大幅に低下している。その後、代替スプレイの作動に伴う減圧によって、RCS 内に沈着した CsI の一部が再蒸発され、炉外への放出により D/W 存在割合が急上昇しているが、炉外への放出が減少してくるとスプレイによる低減効果により D/W に浮遊する CsI は低下する。また、再循環スプレイの復旧後は、スプレイ水に含まれる CsI の影響で D/W 液相中の CsI に該当する D/W 沈着割合が振動している。なお、表 4-3 に示すように最終的な S/P への CsI の移行割合は 76%程度となった。

(4) TB シーケンス (化学反応なし)

TBの事故進展挙動及びFP挙動(Xe、CsI)の結果を以下に示す。

a) 事故進展

TB シーケンスの熱水力挙動を図 4-4(a)~(f)に示す。TB は、トランジェント時に全ての交流電源(所内及び外部電源)が喪失する事故シーケンスである。本事象では、交流電源が必要な高圧及び低圧注水系は使用できないので、所内バッテリ電源とタービン駆動のポンプを利用した原子炉隔離時冷却系(RCIC)により原子炉水位が維持される。その後、事故開始後 10hに RCIC 制御に必要なバッテリ電源が枯渇すると、RCIC が停止し、事故開始後 13h 程度に炉心溶融が開始する。他の事故シーケンスと同様、事故緩和策が実施されないので事故開始後 15hに圧力容器破損に至る。なお、本事故シーケンスは、圧力容器が高圧状態で破損に至るので、これより格納容器圧力は急上昇している(RCS 及び D/W 圧力の図、図 4-4(a) 及び図 4-4(c)参照)。また、コア・コンクリート反応等による非凝縮性ガスの発生により格納容器圧力は上昇するが、交流電源が必要な代替スプレイは作動できない。その後、事故開始後 21h での電源復旧により再循環スプレイが作動し、格納容器圧力の低下とデブリ冷却によるコア・コンクリート反応の停止によって事故終息に至る。

b) FP 挙動

TB シーケンスの Xe 及び CsI のプラント挙動を以下に示す。

プラント内 Xe 挙動

事故開始後13h程度に被覆管が損傷し、炉心溶融が開始すると燃料からXeの放出が開始される。Xe は、圧力容器破損までに大部分が燃料から放出されるが、高圧シーケンスであるTBでは、炉内に留まる割合が多くW/Wへの移行は少ない。その後、炉心支持板の破損により、溶融した炉心が下部の冷却水に落下して発生した蒸気によって、原子炉冷却系内のXeは逃がし弁経由でW/Wに

放出されるとともに、その一部は真空破壊弁を介して D/W へ移行する。事故開始後 21h の電源復旧によって再循環スプレイが作動すると、蒸気凝縮効果によって D/W 圧力が急激に低下するので、W/W 中の Xe は真空破壊弁を経由し D/W に移行する。また、RCS 内温度の低下により、D/W から RCS へ Xe が流入する。再循環スプレイ作動後のプラント内のガスの流れは、W/W 水位上昇を伴う代替スプレイが作動する TB 以外の事故シナリオに比べて緩やかとなるが、Xe の W/W から D/W への移行は同様に継続する。

プラント内 CsI 挙動

代替スプレイ作動に伴う CsI の移行挙動を除き、その他の基本的な CsI のプラント内挙動はほぼ同等である。圧力容器破損時点及びスプレイ作動後の最終的な S/P への移行割合は、それぞれ67%及び 88%程度となった。

4.2 格納容器内環境条件の検討

ョウ素化学挙動には、化学平衡に基づく化学反応が関係する。本節では、化学反応に影響を及ぼす熱水力条件、S/P 水中のョウ素濃度や吸収線量率などについて事故シーケンスによる比較を行い、シビアアクシデント晩期における格納容器内の環境条件について検討した。事故シーケンスに対する比較図及び本検討結果を整理した表を図 4-5 及び表 4-4 に示す。THALES2 では、化学反応に影響を及ぼす S/P 内の吸収線量率を入力として与える必要がある。本検討結果は、化学反応を考慮した解析の入力情報となるだけでなく、原子力機構で実施しているガス状ョウ素放出挙動試験の試験条件検討における参考情報として利用されている。

(1) 格納容器内圧力

格納容器圧力の事故シーケンスによる比較を**図 4-5 (a)**に示す。代替スプレイの作動圧は 0.5MPa 程度であるが、スプレイが作動した初期段階ではデブリの潜熱が大きく格納容器圧力は 0.8MPa 程度まで上昇している。その後のデブリ温度の低下及び再循環スプレイの作動による蒸気凝縮効果により、格納容器の圧力は 0.4MPa 程度まで低下し、事故終息に至る。これより、シビアアクシデント晩期における格納容器の圧力範囲は、0.3~0.8 MPa 程度となった。事故進展時刻の違いにより格納容器の圧力上昇のタイミングは若干異なるが、本評価では格納容器破損モードとして、事故終息のシナリオを想定しているので、格納容器内の圧力変動に大きな差はない。

(2) 圧力抑制プール水温度

S/P 水液相温度の事故シーケンスによる比較を**図 4-5(b)**に示す。S/P 水温度については、代替スプレイが作動しない TB シーケンスで最大 130 C に達するが、その他の事故シーケンスでは 100 C 程度である。その後、再循環スプレイ作動による格納容器からの崩壊熱除去により、S/P 温度は低下し、事故開始 50h 後には、60 C 程度まで低下する。これより、事故晩期における圧力抑制プ

ール水の温度は、60~130℃程度となった。

(3) S/P 内ヨウ素濃度

S/P 内ョウ素濃度の事故シーケンスごとの比較を**図 4-5 (c)**に示す。S/P への CsI 移行量と液相体積から算出した CsI 濃度は、 7×10^{-6} ~ 3×10^{-5} [M] となり、事故シーケンスによる違いは比較的小さい。ョウ素濃度は、S2E が最も小さく、TB が最も高い結果となった。これは、S2E は S/P への CsI の移行割合が 28%程度と最も少なく、TB は代替スプレイが作動できないので、外部水源が注水されずョウ素が希釈されないことによる。

(4) S/P 内吸収線量率

S/P 内吸収線量率は、水の放射線分解などョウ素化学反応に必要な化学種の生成に寄与するものである。本パラメータの算出については、液相中の FP 核種の β 及び γ 線エネルギが全て水に吸収されるとした計算式が Weber ら [4-1]により提案されている。時間 Δ t における全核種のエネルギ付与率は、核種グループ別のエネルギ付与率(表 4-5 参照)を用いて以下の式で与えられる。表 4-5 に示されるように、吸収線量率へのョウ素の寄与が他の元素に比べ 2 桁程度高く、S/P 内における吸収線量率は、ほぼョウ素の存在量で決定されると考えてよい。

 $E_{dep} = \dot{E}_{dep} \Delta t = \Delta t \sum_{j} m_{j} \dot{\epsilon}_{j}$

ここで、

Δt = 時間[h]

Eden = FP 崩壊による全エネルギ付与率[MeV/h]

 m_i = プール中の核種グループ j の質量[g]

 $\dot{\epsilon}_i$ = 核種グループの単位質量当たりのエネルギ付与率[MeV/s·g]

S/P 中の吸収線量率[kGy/h]は、上記、全エネルギ付与率 \dot{E}_{dep} と S/P 水質量[kg] から算出した。 S/P 内吸収線量率の事故シーケンスごとの比較を $\mathbf Z$ 4-5(d)に示す。吸収線量率は $0.5\sim2[kGy/h]$ 程度となり、事故シーケンスによる違いは小さい。なお、本結果は BWR 圧力抑制プールで 1[kGy/h] のオーダという Beahm らの既存知見[4-2] とほぼ同等の値となっている。なお、化学反応を考慮した解析では、本結果に基づき吸収線量率をテーブルデータで与えた。

4.3 ヨウ素化学挙動に及ぼす pH の影響

S/P 水の pH は、放射線場でのヨウ素化学反応による I_2 生成や壁ペイント溶剤の放射線分解による酸生成などによって低下すると考えられている。ヨウ素化学挙動に及ぼす pH の影響を検討するために、pH 条件が異なる 3 ケース (pH=5/7/9) の解析を実施している。ここでは、S2E シーケンスの pH=5 及び 9 の結果を用いて pH の影響について説明する。

(1) S/P 中の I₂生成反応

CsI 等の放射性物質の S/P への移行によって S/P 内の吸収線量率が上昇し、それに伴い水の放射線分解及び無機ョウ素化学反応が開始される。CsI が S/P 水に移行し、溶解すると Cs^+ と I^- に電離するが、ョウ素化学反応はこの I^- を起点に計算される。

pH 条件の違いによる S/P 内の I¯とその他の I イオンの化学平衡の関係を**図 4-6** に示す。また、W/W 内 I_2 の気液平衡の関係を示す図として、W/W 内の液相及び気相、そして壁に吸着した I_2 の存在割合を**図 4-7** 示す。pH が低下する程、液相内でのヨウ素の酸化反応(I^- →その他の I イオン→ I_2)が促進される。pH=7 の結果については、本図には示していないが、pH=5 及び 7 の間に位置するが、中間よりは僅かに高めとなる。なお、その他の I イオンとは、 I_2 生成前の中間生成物である HOI、・ I_2 OH¯などの不揮発性ヨウ素化学種を総称したものであり、揮発性化学種の I_2 に比べ重要度が低いことから本図では積算値として 1 つにまとめて整理している。また、無機ヨウ素反応が pH の影響を受けるのは、 I_2 の加水分解反応(I_2 +OH $^-$ ←→ I_2 OH $^-$)に OH $^-$ が深く係わるためである。温度条件にもよるが、pH 低下、即ち、OH $^-$ 濃度の低下は I_2 の加水分解反応を抑制させることとなり、液相内 I_2 濃度の上昇を招くことになる。

(2) 気相への揮発性 I2の放出

気相への揮発性ョウ素 I_2 の放出は、気液間の濃度 [M] の比 $(=C_{Liq}/C_{Gas})$ で表される気液分配係数により決定される。元素状ョウ素 I_2 の気液分配係数 H[-] は温度の影響が大きく、温度の関数である次式 [4-1] で与えられる。

$$H = 10^t$$

$$t = \frac{204.9}{(T-198.5)} - 0.203$$
 (T:液相温度[K])

S2E の事故シナリオにおける S/P 水温度と I_2 の気液分配係数の関係を図 4-8 示す。 I_2 は液温が高くなるほど気液分配係数が低下し、揮発され易い傾向があることが理解できる。この気液分配係数により図 4-7 における I_2 の気相間移行が計算される。なお、 I_2 は、壁に吸着し易い性質を有するので、壁への吸着量が時間と伴に増加する。また、液相濃度は、化学反応により決定されるのに対し、気相濃度は格納容器内の流動が係わるので事故進展の影響を受けることになる。 4.1 節(1)の Xe の挙動で述べたが、事故開始後 8h 以降、スプレイ作動の副次的効果としてプラント内に流動が生じ、W/W から D/W へのガスの流れが継続している。D/W 内 I_2 の気液平衡の関係を図 4-9 示す。代替スプレイ作動以降、W/W から D/W への I_2 の移行が継続し、D/W 内の I_2 浮遊量と壁への沈着量が徐々に増加する。また、本移行によって W/W 気相の I_2 濃度の低下を招き、S/P からの I_2 の再放出が促進することになる。また、事故開始後 20h での再循環スプレイの作動は、スプレイ水に I_2 を含む S/P 水が使用されるので、D/W 液相中の I_2 存在割合が上昇している。再循環モードでの格納容器スプレイの運転は、D/W 液相に移行したスプレイ水が、ある一定高さ(ベント管頂部高さ)を上回るとベント管経由で W/W に戻り、再びスプレイ水として再利用できるよう設計されて

4.4 事故シーケンスの相違による格納容器内ソースタームへの影響

格納容器内ソースターム評価の結果として、事故開始後 50h における格納容器内の CsI 及び I_2 の存在割合を事故シーケンス別に整理したものを**図 4-13** に示す。 I_2 については、格納容器雰囲気への最終的な再放出割合を表す浮遊と沈着の積算割合と浮遊割合について、化学反応なしと化学反応を考慮し pH 条件 (pH=5/7/9) を変えた 4 つの結果を示した。なお、本結果には RCS 内に存在する I_2 も無視できないことから加算している。化学反応なしのケースは、 I_2 の生成反応は起きないので CsI の値のみである。浮遊する CsI については、ヨウ素化学挙動に係わらないので同一の事故シーケンスではほぼ同等の値であり、また、事故シーケンスの違いによる影響も小さい。これは、スプレイの長期継続によって格納容器に浮遊する CsI がスプレイでは除去できないサイズまで低下することによる。これより、4 つの事故シーケンスにおける格納容器内の CsI 浮遊割合は 10^{-6} 程度とほぼ同様の値となっている。また、揮発性ヨウ素 (I_2) の再放出割合 (浮遊+沈着)は、pH=5/7/9 でそれぞれ $0.01\sim0.1$ [-]、 10^{-3} 及び 10^{-5} 程度と pH が低下するほど再放出が促進される結果となった。また、再放出された I_2 のうち概ね $40\sim50\%$ 程度は壁へ吸着している。その結果として、格納容器内に浮遊する I_2 は、それぞれ 10^{-2} 、 10^{-3} 及び 10^{-5} 程度となり、事故シーケンスの違いよりも pH の影響が大きい結果となった。

表 4-1 事故進展結果

事故シーケンス	主要イベント	解析結果		
S2E シーケンス (小破断 LOCA、ECCS 作動失敗)	再循環配管 2 インチ破断 →高圧及び低圧の ECCS 作動失敗 →炉心溶融開始 →低圧状態で圧力容器破損 →格納容器圧力 Pd にて代替スプレイ開始(定格流量の 1/20) →再循環運転によるスプレイ復旧(20h) →事故終息	燃料被覆管破損 0.85 h 炉心溶融 0.85 h 圧力容器破損 2.4 h 代替スプレイ開始 8.0 h 再循環スプレイ復旧 20.0 h (代替スプレイ停止)		
AE シーケンス (大破断 LOCA、 ECCS 作動失敗)	再循環配管 6 インチ破断 →高圧及び低圧の ECCS 作動失敗 →炉心溶融開始 →低圧状態で圧力容器破損 →格納容器圧力 Pd にて代替スプレイ開始(定格流量の 1/20) →再循環運転によるスプレイ復旧(20h) →事故終息	燃料被覆管破損 0.38 h 炉心溶融 0.38 h 圧力容器破損 1.5 h 代替スプレイ開始 7.0 h 再循環スプレイ復旧 20.0 h (代替スプレイ停止)		
TQUV シーケンス (ECCS 作動失敗)	トランジェント →高圧の ECCS 作動失敗 →原子炉手動減圧成功 →低圧の ECCS 作動失敗 →炉心溶融開始 →低圧状態で圧力容器破損 →格納容器圧力 Pd にて代替スプレイ開始(定格流量の 1/20) →再循環運転によるスプレイ復旧(20h) →事故終息	燃料被覆管破損 0.88 h 炉心溶融 0.88 h 圧力容器破損 2.8 h 代替スプレイ開始 11.3 h 再循環スプレイ復旧 20.0 h (代替スプレイ停止)		
TB シーケンス (全交流電源喪失)	全交流電源喪失 →給水喪失、MSIV 全閉 →原子炉水位低で RCIC 起動 →10 時間後にバッテリー枯渇 RCIC 停止 →炉心溶融開始 →高圧状態で圧力容器破損 →電源復旧 (21 h) →再循環運転によるスプレイ作動	燃料被覆管破損 13.0 h 炉心溶融 13.0 h 圧力容器破損 15.0 h 電源復旧 21.0 h 再循環スプレイ作動 21.0 h		

表 4-2 圧力容器破損直前での CsI の存在割合(化学反応なしケース)

	RCS 合計	D/W 合計	W/W 合計	RB 合計	環境合計	燃料中
S2E	5. 55E-01	1. 21E-01	1. 71E-01	1.26E-05	1. 70E-07	1.54E-01
AE	1. 68E-01	2.87E-01	2.67E-01	2.00E-05	7.84E-09	2. 78E-01
TQUV	3. 61E-01	1.84E-05	6.06E-01	4.68E-09	4. 02E-12	3. 26E-02
TB	1. 72E-01	2. 36E-05	6. 72E-01	1.05E-08	6. 77E-12	1.57E-01

合計値:浮遊と沈着の合計値

表 4-3 計算終了時での CsI の存在割合(化学反応なしケース)

	RCS 合計	D/W 合計	W/W 液相	RB 合計	環境合計	燃料中
S2E	6. 27E-01	8. 46E-02	2.84E-01	2. 43E-07	8. 01E-07	4. 34E-03
AE	2.82E-01	7. 35E-02	6.34E-01	2. 61E-05	1. 22E-06	1.05E-02
TQUV	2. 30E-01	1. 00E-02	7. 58E-01	2.64E-06	1.99E-07	1. 95E-03
ТВ	1. 11E-01	1. 20E-02	8.75E-01	5.89E-06	2.75E-07	2.00E-03

合計値:浮遊と沈着の合計値

表 4-4 シビアアクシデント晩期における格納容器内環境条件に関する検討結果

	パラメータの範囲
格納容器圧力[MPa]	0.3~0.8
S/P 水温度[℃]	60~130
S/P 内のヨウ素濃度[M]	$7 \times 10^{-6} \sim 3 \times 10^{-5}$
S/P内の吸収線量率[kGy/h]	0.5~2

表 4-5 核種グルーピングとグループ別エネルギ付与率[4-2]

グループ 番号:j	代表元素	所属する元素	エネルギ付与率 $\dot{arepsilon}_j imes 10^{-13} (ext{MeV/s} \cdot ext{g})$
1	I	I, Br	111.2*
2	Cs	Cs, Rb	1.006
3	Те	Te, Se	3.497
4	Sr	Sr	7.879
5	Ba	Ва	2.348
6	Ru	Ru, Tc, Rh, Mo	1.706
7	Ce	Ce, Pu, Np	0.407
8	La	La, Am, Cm, Y, Pr, Nd, Pm, Sm,	6.523
		Eu, Zr, Nb	
9	Xe	Xe, Kr	0.721

^{*} I-131, I-132, I-133 から放出される β 線及び γ 線のエネルギーから算出したもの

表 4-6 計算終了時の格納容器内ョウ素存在割合(事故開始 50h 後結果)

			存在割合[-](対初期炉内内蔵量)	内蔵量)	総揮発量に対する壁吸
		CsI 浮遊	I ₂ 浮遊+沈着	Π_2 译遊	着割合[-]
S2E	化学反応なし	4. 91E-6	ı	I	I
(小破断 LOCA、	化学反応あり (pH=5)	4. 28E-6	2.85E-2	1.30E-2	0.54
ECCS 作動失敗)	化学反応あり (pH=7)	4. 28E-6	2. 43E-3	1.14E-3	0.53
	化学反応あり (pH=9)	6.02E-6	5.45E-5	3. 21E–5	0.41
AE	化学反応なし	3. 67E-6	ı	ı	ı
(大破断 LOCA、	化学反応あり (pH=5)	3. 49E-6	5.72E-2	1.16E-2	0.80
ECCS 作動失敗)	化学反応あり (pH=7)	3.65E-6	5. 72E-3	1.51E-3	0.74
	化学反応あり (pH=9)	3.69E-6	3.17E-5	1.23E-5	0.61
TQUV	化学反応なし	4.85E-6	ı	ı	I
(ECCS 作動失敗)	化学反応あり (pH=5)	3. 28E-6	1.34E-1	4.89E-2	0.64
	化学反応あり (pH=7)	3.39E-6	9. 19E-3	4. 29E-3	0.53
	化学反応あり (pH=9)	3.47E-6	6.03E-5	2. 71E-5	0.55
TB	化学反応なし	1.15E-6	ı	ı	-
(全交流電源喪失)	化学反応あり (pH=5)	4. 12E-7	5.26E-3	3. 21E-3	0.39
	化学反応あり (pH=7)	1.04E-6	1.71E-3	9.37E-4	0.45
	化学反応あり (pH=9)	1. 71E-6	1.70E-5	9.37E-6	0.45

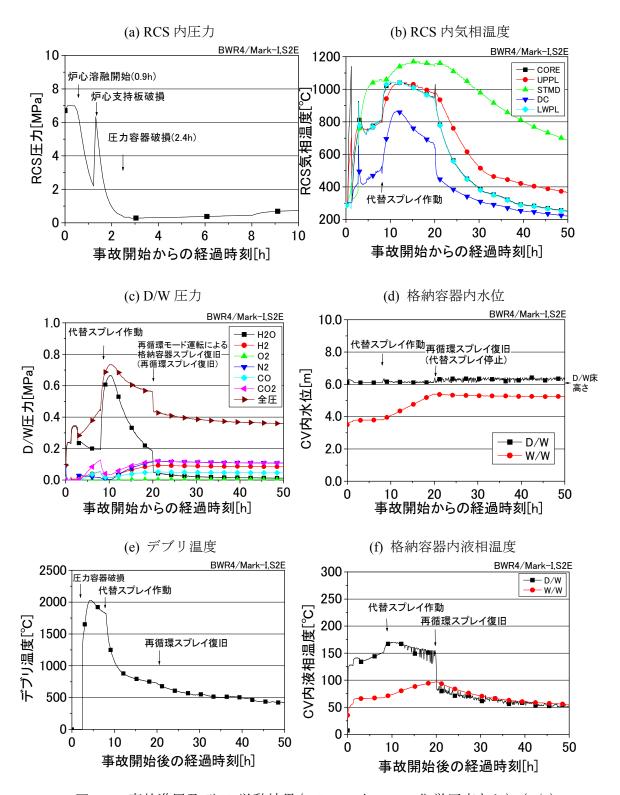
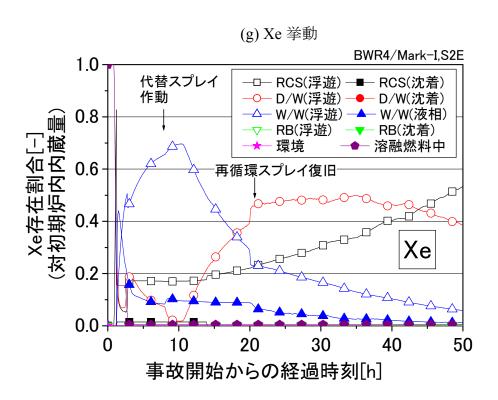


図 4-1 事故進展及び FP 挙動結果 (S2E シーケンス、化学反応なし) (1/2)



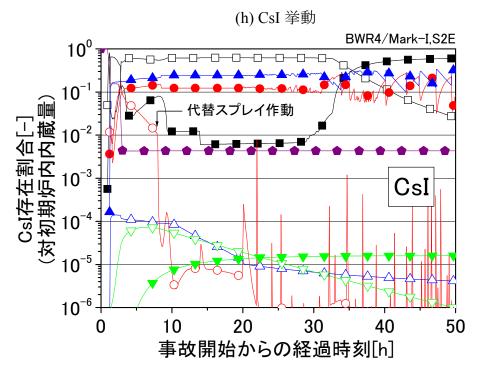


図 4-1 事故進展及び FP 挙動結果 (S2E シーケンス、化学反応なし) (2/2)

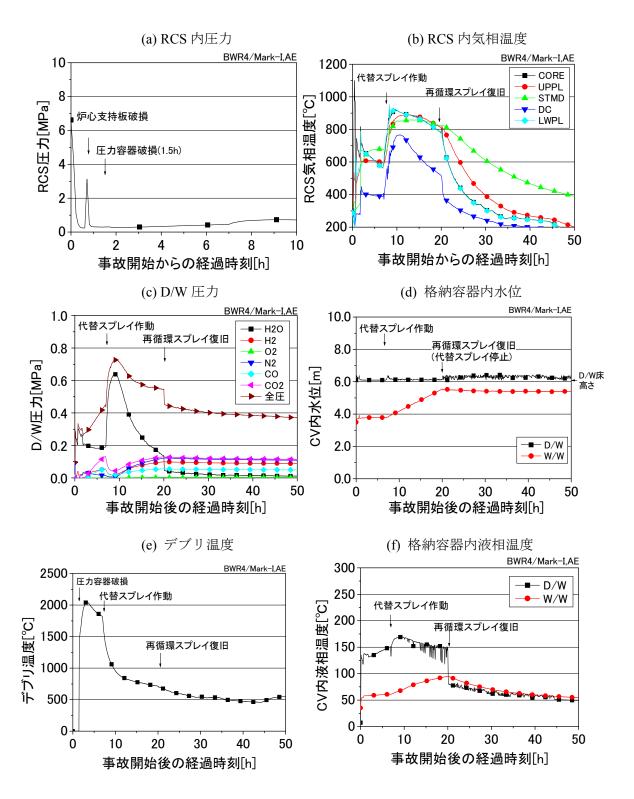
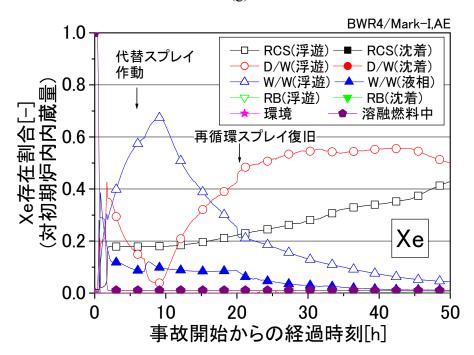


図 4-2 事故進展及び FP 挙動結果 (AE シーケンス、化学反応なし) (1/2)

(g) Xe 挙動



(h) CsI 挙動

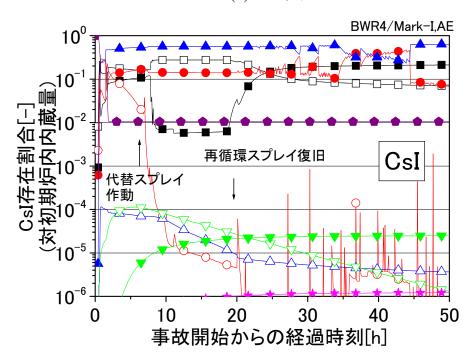


図 4-2 事故進展及び FP 挙動結果(AE シーケンス、化学反応なし) (2/2)

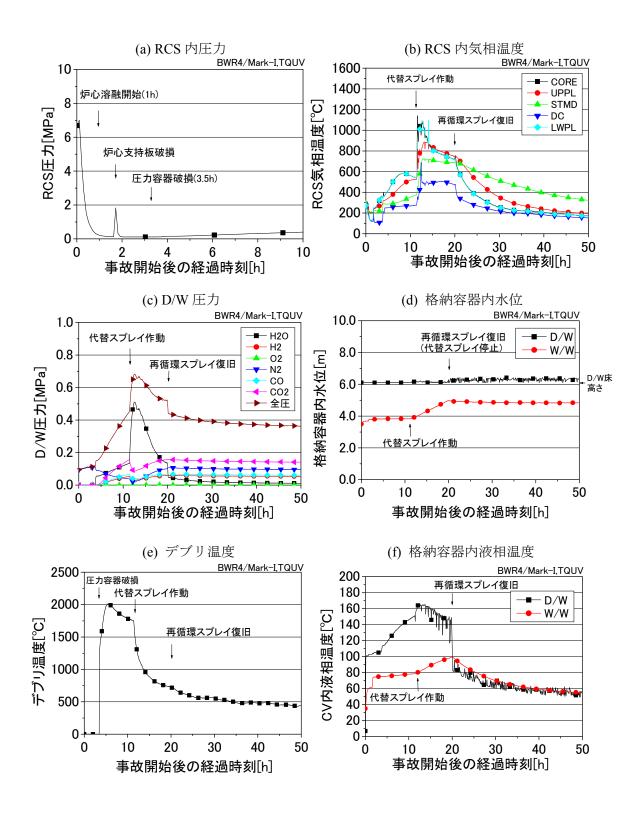


図 4-3 事故進展及び FP 挙動結果 (TQUV シーケンス、化学反応なし) (1/2)

(g) Xe 挙動

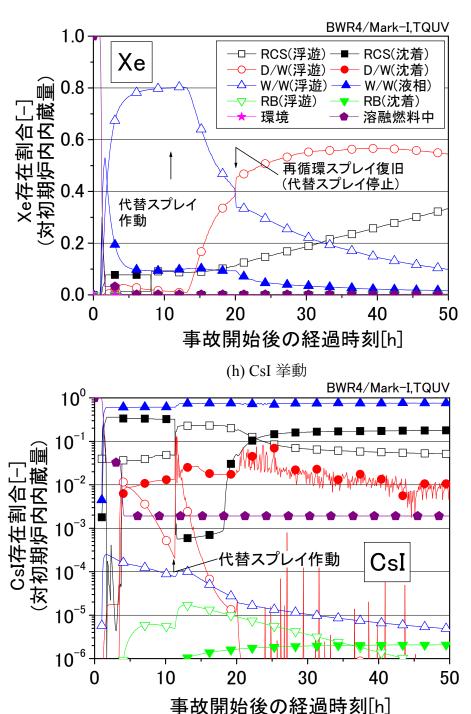


図 4-3 事故進展及び FP 挙動結果 (TQUV シーケンス、化学反応なし) (2/2)

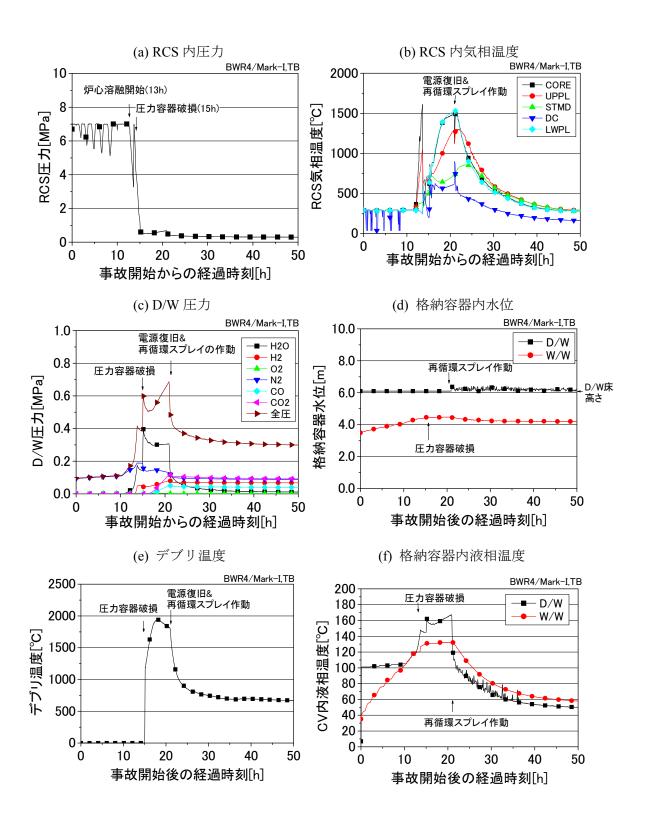
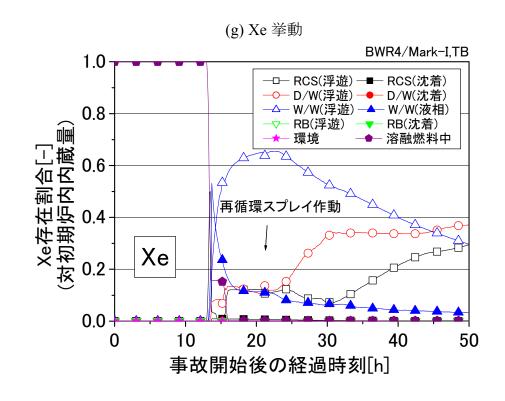


図 4-4 事故進展及び FP 挙動結果 (TB シーケンス、化学反応なし) (1/2)



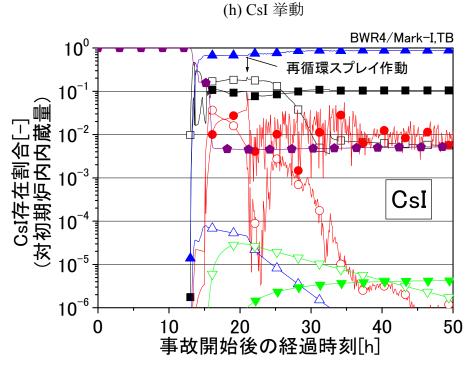


図 4-4 事故進展及び FP 挙動結果(TB シーケンス、化学反応なし) (2/2)

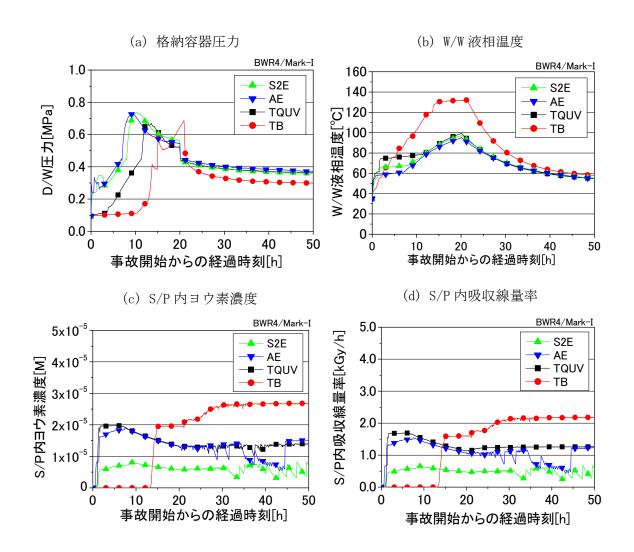


図 4-5 格納容器内環境条件の検討結果

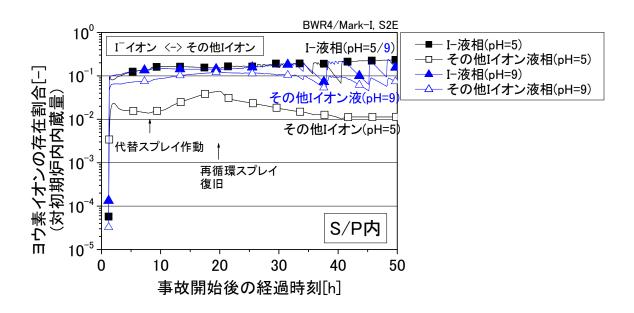


図 4-6 S/P 内の I^- /その他 I イオン間の化学平衡の関係(S2E シーケンス)

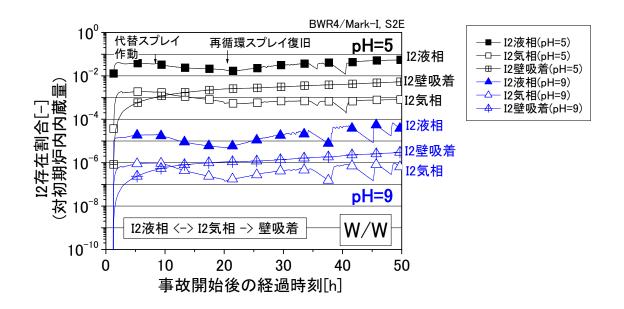


図 4-7 W/W 内の I_2 の気液平衡の関係 (S2E シーケンス)

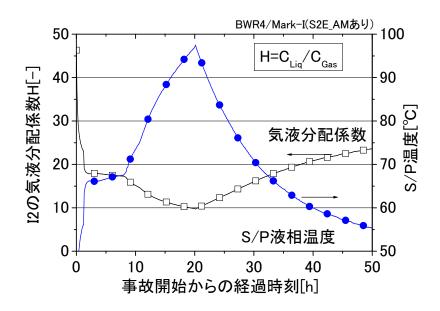


図 4-8 S/P 水温度と気液分配係数の関係(S2E シーケンス)

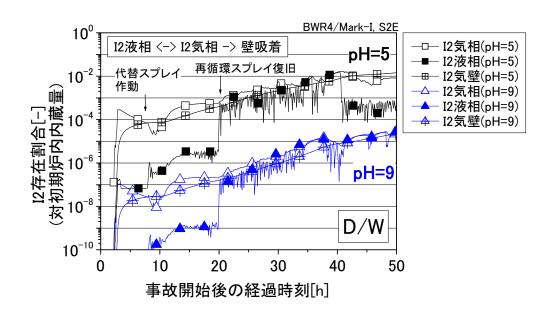


図 4-9 D/W内 I_2 の気液平衡の関係(S2E シーケンス)

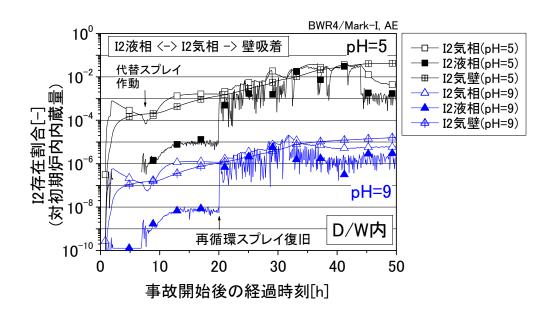


図 4-10 D/W 内 I2の気液平衡の関係(AE シーケンス)

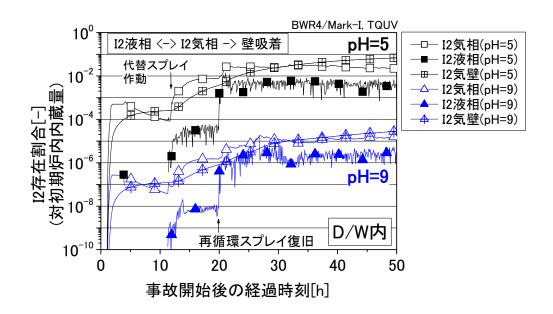


図 4-11 D/W 内 I_2 の気液平衡の関係 (TQUV シーケンス)

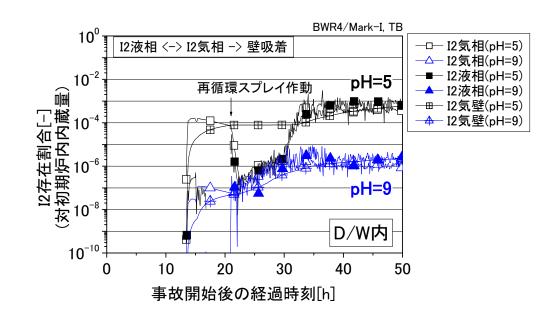


図 4-12 D/W 内 I_2 の気液平衡の関係 (TB シーケンス)

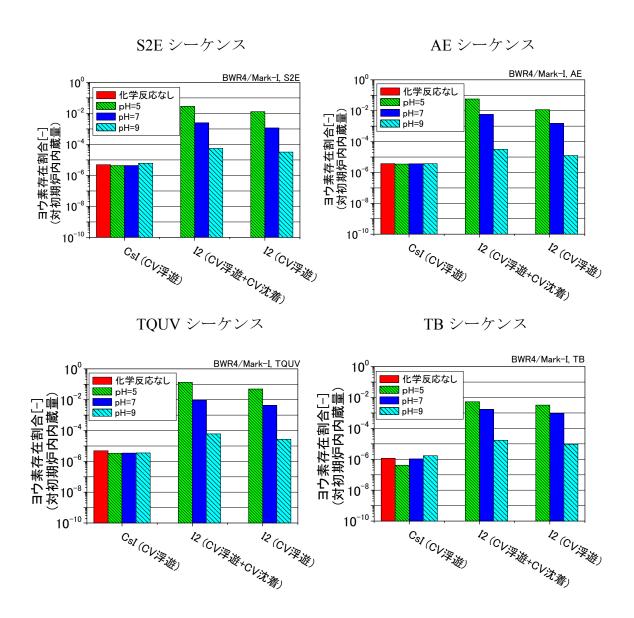


図 4-13 計算終了時(50h)の格納容器内ヨウ素存在割合

5. まとめ

軽水炉シビアアクシデント晩期のガス状ョウ素の再放出によるソースタームへの影響を把握することを目的に、シビアアクシデント解析コード THALES2 とョウ素化学解析コード Kiche の連携解析方法について検討し、BWR4/Mark-I プラントの代表的な事故終息シナリオを対象に格納容器内ソースタームの評価を実施した。本結果より次のことがわかった。

- ▶ 構築した本連携解析手法を用いたコード連携により、軽水炉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要因の1つであったガス状ョウ素の再放出挙動を考慮した評価が可能となった。
- ▶ 格納容器に浮遊する CsI については、スプレイの長期継続によりスプレイでは除去できないサイズまで低下するので、事故シーケンスの違いによる影響は小さく 10⁻⁶程度とほぼ同等の値となった。
- ▶ シビアアクシデント晩期のガス状ョウ素(I₂)の格納容器雰囲気への再放出は、事故シーケンスの違いによる影響は小さいが、pHの影響を大きく受ける。
- Arr Arr
- ightharpoonup W/W 液相中で生成されたガス状ョウ素 (I_2) は、格納容器スプレイの作動によって格納容器内の流動が大きく変化する場合、化学平衡状態が崩れるために、その後のョウ素化学反応が促進する。また、再循環モード運転による格納容器スプレイの作動は、デブリの存在により D/W 液相中の I_2 濃度を濃縮させる効果があり、ガス状ョウ素の再放出を促進させる可能性があることが明らかになった。

本結果は、原子力安全委員会の立地指針等検討小委員会において検討中の立地評価用ソースターム改訂に向けた参考情報となりうる。ただし、本評価では有機ヨウ素の生成反応については考慮していない。本影響については、原子力機構で実施しているガス状ヨウ素放出試験結果に基づき、壁ペイント溶剤である有機物の溶出モデルを含めた有機ヨウ素化学反応モデルを開発中であり、その後に検討予定である。

参考文献

- [1-1] : 石川 淳 他, THALES-2 コードによる BWR Mark-II を対象としたレベル 3PSA のための系統的なソースターム解析, JAERI-Research 2005-021(2005).
- [1-2] : Gauntt, R.O., Cole, R.K., Erickson, C.M., Gido, R.G., Gasser, R.D., Rodriguez, S.B., Young, M.F., MELCOR computer code manuals: vol.2 Reference manuals, version 1.8.5, NUREG/CR-6119 vol.2, SAND2000-2417/2, Sandia National Laboratories, (2000).
- [1-3] : Fauske & Associates Inc., "MAAP(3.0) Modular Accident Analysis Program Users Manual", 1987.
- [1-4] : (独)原子力安全基盤機構,平成 20 年度 シビアアクシデント晩期の格納容器閉じ込め機能の維持に関する研究報告書,09 原シ報-0002(2010).
- [1-5] : 森山清史他,シビアアクシデント晩期の格納容器内ソースターム評価 -3. 格納容器内のヨウ素化学挙動解析-,日本原子力学会 2007 年春の大会予稿集,C25(2007).
- [1-6] : 石川淳他, シビアアクシデント晩期の格納容器内ソースターム評価 -13. シビアアクシデント解析コード THALES2 とヨウ素化学コード Kiche の連携による実機試解析-, 日本原子力学会 2009 年秋の大会予稿集,E15(2009).
- [2-2] : Wren, J. C., Ball, J. M., LIRIC 3.2 an updated model for iodine behaviour in the presence of organic impurities, Radiation Physics and Chemistry, vol.60, pp.577-596 (2001).
- [2-3] : 飯塚弘之, シビアアクシデント時の格納容器内ヨウ素挙動解析コードの開発と 国際標準問題 ISP-41 への適用, INSS Journal ((株)原子力安全システム研究所), vol.11, pp.256-266 (2004).
- [2-4] : 勝村庸介, 原子力工学にかかわる水溶液の放射線化学研究, 放射線化学, vol.81, pp.2-7(2006).
- [2-5] : Elliot, A.J., Rate constants and G-values for the simulation of the radiolysis of light water over the range 0--300°oC, AECL-11073, COG-94-167, Atomic Energy of Canada,Ltd.(1994).
- [2-6] : Taghipour 5 16, Taghipour, F., Evans, G.J., Iodine behavior under conditions relating to nuclear reactor accidents, Nuclear Technology, vol.137, pp.181-193 (2002).
- [2-7] : Dickinson, S., Sims, H. E., Development of the INSPECT model for the prediction of iodine volatility from irradiated solutions, Nuclear Technology, vol.129, pp.374-386(2000).
- [3-1] : 小林敬, 村野兼司, 宮田浩一 et al., 静的可燃性ガス再結合装置の BWR プラントへの適用性,日本原子力学会和文論文誌, vol.1, pp.80-89(2002).
- [3-2] : Rosenberg, H.S., Genco, J.M., Morrison, D.L., Fission-product deposition and its enhancement under reactor accident conditions: deposition on containment-system surfaces, BMI-1865, Battelle Memorial Institute(1969).
- [4-1] : Weber, C.F., Beahm, E.C., Kress, T.S., Iodine chemical forms in LWR severe accidents, Proc. 3rd CSNI Workshop on Iodine Chemistry in Reactor Safety, Tokai-mura, Japan, (JAERI-M 92-012) (1992).
- [4-2] : Beahm, E.C., Weber, C.F., Kress, T.S., Iodine chemical forms in LWR severe accidents, NUREG/CR-5732, ORNL/TM-11861, Oak Ridge National Laboratory(1991).

付録

付録 1 THALES2 コードの主要な FP 挙動計算モデルの概要^[1-1]

FP 挙動に関する現象			計算モデルの概要
ボリューム内 FP の存在形態			各ボリューム内の FP の存在形態は以下の6つの形態を考慮している。
71.7 I I I I I I I I I I I I I I I I I I I			①ガス状 FP、②雰囲気内に浮遊するエアロゾル、③液相内に溶解又は床面に沈降、④壁に付
			着したエアロゾル、⑤壁への凝縮、⑥壁面への化学吸着
FP 放出 燃料からの		燃料からの	燃料からの FP の放出及び炉内構造物の放出は、Oak Ridge 国立研究所と Karlsruhe 原子力研
		放出	究所の実験に基づき Battelle Columbus 研究所で開発された CORSOR-M モデルで計算。
		燃料以外か	炉外の FP 放出は、炉内と同様に CORSOR-M、エアロゾル発生量は NUREG-0772 のモデルで計算。
		らの放出	
FP	生成/成長	核形成	上記モデルで計算した放出量は、以下の対数正規分布に従い放出(BMI-2104, NUREG-0772)さ
エ			れるとする。放出後は、多成分エアロゾルとして取り扱い、0.05-12.8μmを8分割した粒径
ア			区分に基づき移行・沈着挙動が計算される。
口			炉内:平均径 0.12μm、幾何標準偏差 1.7
ゾ			炉外: 平均径 1.0μm、幾何標準偏差 2.0
ル		成長(凝集)	以下の3つの凝集メカニズムが独立に起こると仮定し計算する。ブラウン運動による凝集は、
			衝突頻度を Brown 運動を仮定した Swift らの拡散律速モデル、乱流場による凝集は、流体速
			度を正規分布と見なした Saffman らのエアロゾル衝突頻度のモデル、重力沈降の速度差によ
			る凝集は、エアロゾル同士の重力沈降に関する速度差と衝突断面積から与えられる衝突頻度
		h == 01=013	より計算される。
		成長(凝縮)	ガス状物質及び水蒸気のエアロゾルへの凝縮を考慮している。幅広い Kn 数に適用可能な
	4. 4		Fuchs 及び Sutugin が提案したエアロゾルへの付着確率に基づく式で計算。
	移行/除去	拡散沈着	流れがない場合: 拡散境界層厚さとエアロゾル粒子の拡散係数 Dp (Stokes-Einstein の式)を
	(自然除去)	(対流)	用いた式よりブラウン拡散を計算。
			流れがある場合(平板形状)
			層流の場合は、平板に対する H. Schlichting の実験式、乱流の場合は、渦拡散及び Browon
			拡散を考慮した Davies モデル(1μm以下)と慣性衝突が支配的となる Friedlander のモデル
			(1μm以上)などを組み合わせた TRAP-MELT2 のモデルを使用。
			流れがある場合(配管形状)
			層流の場合は、P.G. Gormely, M. Kennedy の配管内の層流下における放射線型速度分布を仮定し、エアゾロル移行率を通過率で表した式(拡散方程式の解析解)、乱流の場合は、平板形状
			と同様に TRAP-MELT2 のモデルを使用。
		熱泳動	Knudsen 数 Kn<0.2(粒径大:表面近傍に温度差あり)の場合、エアロゾル表面での気体分子の
		W(1/V 30)	衝突係数に補正を行った Brock のモデル。 $Kn \ge 0.2$ (粒径小:雰囲気との温度差なし)の場
			合、気体分子運動論による Waldmann のモデルを使用する。
		拡散泳動	濃度勾配による非凝縮性気体分子の反跳と蒸気凝縮により生じる気流の流れを考慮した式
		1/2/10(1):293	を用いる。
		重力沈降	気体の粘性力と比較し慣性力が無視できる Stokes 領域においては、すべり補正を考慮した
			Stokes の重力沈降式。慣性力と比較し気体の粘性力が無視できる Newton 領域では、摩擦因
			子と Re の関係より沈着速度を計算する。
		再浮遊	モデルは有しているが使用していない。流体から受ける効力≧表面張力+摩擦力の場合に再
			浮遊する。
	移行/除去	スプレイ	ガス状 FP の除去については、気液分配係数で決まるスプレイ液滴の気液平衡濃度に対し、
	(工学的安		液滴が落下する間に吸収した気体分子の量が平衡濃度の何割に達するかというスプレイ液
	全設備)		滴の飽和度に基づく Postma らのモデル。エアロゾル除去については、ブラウン拡散、慣性
			衝突、さえぎりが独立であると仮定し、Postma らのモデルで計算。
		スクラビン	プールスクラビングの除染係数をエアロゾル粒子径、プール表面の圧力、スクラビング深さ
		グ	及びキャリアガスに含まれる蒸気の比率をパラメータとし定数部を実験データに基づいて
			決定した電力共通研究における実験式。
FP	移行/除去	凝縮・再蒸	雰囲気温度でのガス状 FP の分圧が壁面やエアロゾルの表面温度での飽和蒸気圧より高くな
蒸	(自然除去)	発	ると、壁面やエアロゾル表面に凝縮する(蒸発は凝縮の逆)。
気		化学吸着	CsI は Battelle Columbus 研究所の実験式、CsOH 及び Te に対しては Sandia 研究所の実験式
			に基づき計算する。
		気液平衡	気液分配係数に応じて移行。
ヨウ	素化学モデル		感度解析用として、簡易的なヨウ素化学モデル(無機ヨウ素反応のみ)を備えている。

国際単位系(SI)

表 1. SI 基本単位

基本量	SI 基本 ¹	単位
巫平里	名称	記号
長さ	メートル	m
質 量	キログラム	kg
時 間	秒	s
電 流	アンペア	Α
熱力学温度	ケルビン	K
物 質 量	モル	mol
光 度	カンデラ	cd

表 2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位			
和立里	名称	記号		
面積	平方メートル	m ²		
体積	立法メートル	m ³		
速 さ , 速 度	メートル毎秒	m/s		
加 速 度	メートル毎秒毎秒	m/s ²		
波 数	毎メートル	m ^{·1}		
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³		
面 積 密 度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²		
比 体 積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg		
電 流 密 度	アンペア毎平方メートル	A/m ²		
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m		
量濃度 ^(a) ,濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³		
質 量 濃 度	キログラム毎立法メートル	kg/m ³		
輝 度		cd/m ²		
屈 折 率 (b)	(1		
比 透 磁 率 (b)	(数字の) 1	1		

- (a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。 (b) これらは海沢元量かるいは次元1をもっ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

双 5 .	固有の名称と記す	7 (1)(0		
			SI 組立単位	
組立量	名称 記号	他のSI単位による	SI基本単位による	
		記方	表し方	表し方
平 面 角	ラジアン ^(b)	rad	1 (p)	m/m
立 体 角	ステラジアン ^(b)	sr ^(c)	1 (b)	$m^{2/}m^2$
周 波 数	ヘルツ ^(d)	$_{ m Hz}$		s^{-1}
力	ニュートン	N		m kg s ⁻²
圧 力 , 応 力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N m	$m^2 \text{ kg s}^{-2}$
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	$m^2 \text{ kg s}^{-3}$
電 荷 , 電 気 量	クーロン	С		s A
電位差 (電圧),起電力	ボルト	V	W/A	$m^2 kg s^{-3} A^{-1}$
静 電 容 量	ファラド	F	C/V	$m^{-2} kg^{-1} s^4 A^2$
	オーム	Ω	V/A	$m^2 kg s^{-3} A^{-2}$
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	$m^{-2} kg^{-1} s^3 A^2$
磁東	ウエーバ	Wb	Vs	$m^2 kg s^{-2} A^{-1}$
	テスラ	Т	Wb/m ²	$kg s^{-2} A^{-1}$
	ヘンリー	Н	Wb/A	$m^2 \text{ kg s}^{-2} \text{ A}^{-2}$
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	$^{\circ}$ C		K
光	ルーメン	lm	$\mathrm{cd}\;\mathrm{sr}^{\mathrm{(c)}}$	cd
	ルクス	lx	lm/m ²	m ⁻² cd
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s^{-1}
吸収線量,比エネルギー分与,	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
カーマ	/ - 1	dy	o/kg	m s
線量当量, 周辺線量当量, 方向	シーベルト ^(g)	G	T/I	2 -2
性線量当量,個人線量当量	シーベルト(g)	Sv	J/kg	$m^2 s^{-2}$
酸 素 活 性	カタール	kat		s ⁻¹ mol

(a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはや

コニーレントではない。 したリントではない。 (b)ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。 実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明

実際には、使用する時には応ぎては及び客か用いられるが、管償としく無払単位としていた方である数子の「は対 示されない。 (a)無火学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。 (d)へルツはは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性技種の総計的過程についてのみ使用される。 (e)セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの 単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。 (放射性技術の放射能(citvity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。 (g)単位シーベルト (PV,2002,70,205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表 4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

		[組立単位	T-> 1/2
組立量	名称	記号	SI 基本単位による 表し方
粘	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
力のモーメント	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
表 面 張 力	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角 速 度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
	ラジアン毎秒毎秒	rad/s^2	m m ⁻¹ s ⁻² =s ⁻²
熱流密度,放射照度	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
熱容量、エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比熱容量, 比エントロピー		J/(kg K)	$m^2 s^{-2} K^{-1}$
	ジュール毎キログラム	J/kg	$m^2 s^2$
熱 伝 導 率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電界の強き	ボルト毎メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電 荷 密 度	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ sA
	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² sA
	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² sA
	ファラド毎メートル	F/m	$m^{-3} kg^{-1} s^4 A^2$
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ sA
吸 収 線 量 率	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放 射 強 度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ =m ² kg s ⁻³
放 射 輝 度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	$W/(m^2 sr)$	m ² m ⁻² kg s ⁻³ =kg s ⁻³
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m³	m ⁻³ s ⁻¹ mol

表 5. SI 接頭語							
乗数	接頭語	接頭語 記号		接頭語	記号		
10^{24}	ヨ タ	Y	10 ⁻¹	デシ	d		
10^{21}	ゼタ	Z	10 ⁻²	センチ	c		
10^{18}	エクサ	Е	10 ⁻³	₹ <u>リ</u>	m		
10^{15}	ペタ	Р	10 ⁻⁶	マイクロ	μ		
10^{12}	テラ	Т	10 ⁻⁹	ナーノ	n		
10^{9}	ギガ	G	10^{-12}	ピコ	p		
10^{6}	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f		
10^{3}	丰 口	k	10 ⁻¹⁸	アト	a		
10^{2}	ヘクト	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z		
-10^{1}	デ カ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	У		

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位					
名称	記号	SI 単位による値			
分	min	1 min=60s			
時	h	1h =60 min=3600 s			
日	d	1 d=24 h=86 400 s			
度	۰	1°=(π/180) rad			
分	,	1'=(1/60)°=(п/10800) rad			
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648000) rad			
ヘクタール	ha	1ha=1hm ² =10 ⁴ m ²			
リットル	L, l	1L=11=1dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³			
トン	t	$1t=10^3 \text{ kg}$			

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で 表される数値が実験的に得られるもの

名称 記号 SI 単位で表される数値 電子ボル eV 1eV=1.602 176 53(14)×10⁻¹⁹J 1Da=1.660 538 86(28)×10⁻²⁷kg H. ルト Da 統一原子質量単位 1u=1 Da u 天 文 単 位 1ua=1.495 978 706 91(6)×10¹¹m ua

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位							
名称	記号	SI 単位で表される数値					
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=10 ⁵ Pa					
水銀柱ミリメートル	mmHg	1mmHg=133.322Pa					
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m					
海里	M	1 M=1852m					
バーン	b	1 b=100fm ² =(10 ⁻¹² cm)2=10 ⁻²⁸ m ²					
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s					
ネ ー パ	Np	CI光体しの料体的な関係は					
ベル	В	SI単位との数値的な関係は、 対数量の定義に依存。					
デ ジ ベ ル	dB ∽	713/2=17/23/1-17/10					

表 9. 固作	りの名称	をもつCGS組立単位
名称	記号	SI 単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダ イ ン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s
ストークス	St	$1 \text{ St} = 1 \text{cm}^2 \text{ s}^{-1} = 10^{-4} \text{m}^2 \text{ s}^{-1}$
スチルブ	sb	1 sb =1cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フ ォ ト	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² 10 ⁴ lx
ガル	Gal	1 Gal =1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	$1 \text{ Mx} = 1 \text{G cm}^2 = 10^{-8} \text{Wb}$
ガ ウ ス	G	1 G =1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(c)	Oe	1 Oe ≙ (10³/4π)A m ⁻¹

(c) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 🎍 」 は対応関係を示すものである。

	いその他	の単位の例	

	近10. B1(に周とないとの) 10. B1(に周とないと) 10. B1(に同ないと) 10. B1(に同ないと)							
名称					記号	SI 単位で表される数値		
丰	ユ		リ	ĺ	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq		
レ	ン	ト	ゲ	ン	R	$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{C/kg}$		
ラ				k	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy		
レ				A	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv		
ガ		ン		7	γ	1 γ =1 nT=10-9T		
フ	工		ル	13		1フェルミ=1 fm=10-15m		
メー	ートル	不	カラ:	ット		1メートル系カラット = 200 mg = 2×10-4kg		
}				ル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa		
標	準	大	気	圧	atm	1 atm = 101 325 Pa		
カ	П		IJ	Į	cal	1cal=4.1858J(「15℃」カロリー),4.1868J (「IT」カロリー)4.184J(「熱化学」カロリー)		
3	ク		口	ン	μ	$1 \mu = 1 \mu m = 10^{-6} m$		