

2001-027



溶液燃料過渡臨界事故時における 放射性希ガスの放出挙動の検討

(受託研究)

2001年3月

阿部 仁・田代 信介・小池 忠雄・岡川 誠吾・内山 軍藏

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問い合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越し下さい。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複数による実費頒布を行っております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 〒319-1195, Japan.

溶液燃料過渡臨界事故時における放射性希ガスの放出挙動の検討
(受託研究)

日本原子力研究所東海研究所安全性試験研究センター燃料サイクル安全工学部
阿部 仁・田代 信介・小池 忠雄
岡川 誠吾・内山 軍蔵

(2001年2月19日受理)

溶液燃料過渡臨界事故時における放射性物質の施設内への閉じ込め効果を検討するため、NUCEF の TRACY を用いて、溶液燃料臨界事故時放射性物質閉じ込め試験を実施している。放射性希ガス核種は高い揮発性を有するため、他の非揮発性核種と比べると施設外へ放出されやすく、公衆の被曝量評価の観点からは放射性希ガス核種の放出挙動に関する定量的なデータが重要となる。そこで放射性希ガスとして ^{140}Xe に着目し、気相への放出係数を考慮した評価モデルを用いることで、気相への放出割合を評価した。また、逆炉周期と放出係数との間に相関関係を見いだすことができ、両者の関係を表す相関式を導出した。さらに、二重境膜説をもとに放出係数と放射線分解ガス気泡径の関係を検討し、その結果を用いて、逆炉周期と気液接触面積との定性的な相関関係を示すことができた。

本報告書は、電源開発促進対策特別会計法に基づき、原研が科学技術庁から委託されて実施した「再処理施設臨界安全技術開発」の研究成果の一部である。
東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

Studies on Release Behavior of Radioactive Noble Gases from Fuel Solution
to Gas Phase under Simulated Nuclear Criticality Accident
(Contract Research)

Hitoshi ABE, Shinsuke TASHIRO, Tadao KOIKE
Seigo OKAGAWA and Gunzo UCHIYAMA

Department of Fuel Cycle Safety Research
Nuclear Safety Research Center
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received February 19, 2001)

To investigate confinement capability for radioactive materials of the ventilation system under the criticality accident in fuel solution, simulation experiments for verifying the capability in NUCEF-TRACY have been performed. Since radioactive noble gases as fission products have relatively high volatility, release ratio of the nuclides is larger than the ratio of the other non-volatile nuclides. Therefore, quantitative estimation data about release behavior of the radioactive noble gases is important for evaluating public dose under the accident. By adopting the calculation model for evaluating the release behavior considering release coefficient (1/s) of ^{140}Xe , release ratio (%) of the nuclide from the fuel solution could be evaluated. Moreover, correlation between the coefficient of ^{140}Xe and inverse period was measured and the correlation equation between them was induced. Furthermore, relationship between the coefficient of ^{140}Xe and diameter of bubble generated by radiolysis of the fuel solution was investigated on the basis of the double film theory and qualitative correlation between the coefficient and interfacial area at gas and liquid phase was obtained.

Keywords : NUCEF, TRACY, Fuel Solution, Criticality Accident,
Radioactive Noble Gas, Release Behavior, Confinement,
Radiolysis Gas Bubble, Double Film Theory

This work was carried out by Japan Atomic Energy Research Institute under the auspices of the Science & Technology Agency of Japan.

目 次

1. 緒言	1
2. 試験	2
2.1 試験装置及び方法	2
2.2 試験条件	3
3. 結果及び考察	3
3.1 放射性希ガス核種の放出係数及び放出割合の評価結果	3
3.2 放射性希ガス核種の放出挙動と出力上昇挙動との相関性の検討	5
3.3 放射性希ガス核種の放出係数と放射線分解ガス気泡径との関係の検討	5
4. 結言	10
謝 辞	11
参考文献	11

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	2
2.1 Experimental Devices and Methods	2
2.2 Experimental Conditions	3
3. Results and Discussion	3
3.1 Evaluation of Release Coefficient and Ratio of Radioactive Noble Gases	3
3.2 Investigation of Correlation between Release Behavior of Radioactive Noble Gases and Rise of Power	5
3.3 Investigation of Relationship between Release Coefficient of Radioactive Noble Gases and Diameter of Radiolysis Gas Bubbles	5
4. Conclusion	10
Acknowledgment	11
References	11

This is a blank page.

1. 緒言

再処理工程では溶液状燃料を取り扱うため、異常な過渡変化を越える事象の一つとして想定されている溶解槽の臨界事故時には、溶液中の放射性物質が気相中へ放出されるとともに槽ベント系へと移行していくことが予想される。このような臨界事故時においても槽ベント系の安全性能が維持できることを実証するため、NUCEF(Nuclear Fuel Cycle Safety Engineering Research Facility)のTRACY(Transient Experimental Critical Facility)を用いて、これらの放出機構(ソースターム)及び移行機構を核的出力と関連づけて収集している。図1にTRACYにおける放射性物質閉じ込め機能試験の概要を示す。TRACY閉じ込め試験では、希ガスやヨウ素等の揮発性放射性核種、放射線分解ガス気泡の溶液表面での破裂に起因して放出されるミストに含有された非揮発性放射性物質、そしてH₂やNO_x等の放射線分解ガスの放出挙動を観察し、ヨウ素捕集材性能試験やミスト放出挙動観察試験等のバックアップ試験から得られるヨウ素捕集材の捕集性能評価結果やミスト放出及び気泡生成機構のモデルを用いて、放射性物質に関しては放出割合や放出係数、放射線分解ガスに関しては放出G値のような施設形状や換気条件等に依存しない汎用性の高いソースタームデータの導出を検討している。さらにこれら実験的に得られた知見を集約し、放射性物質の放出・移行挙動を換気系内の熱流動とリンクして解析することで換気系内での滞留効果を考慮した放射性物質の施設外への放出挙動を評価できる放射性物質移行解析コードFACTの開発・整備を進めている。

放射性希ガス及びヨウ素種は、高い揮発性を有するため、溶液から気相への放出率が大きいばかりでなく、HEPA フィルタでの捕集効率が低く、他の非揮発性放射性物質と比べると施設外への放出量が比較的大きくなることが予想される。実際にJCO施設での臨界事故の際には、非揮発性核種は施設内に閉じ込められ、施設外へ放出された放射性物質は実質的に放射性希ガス及びヨウ素核種のみであった¹⁾。このように臨界事故時の放射性物質の施設内閉じこめ安全性を評価する際には、放射性希ガス及びヨウ素の放出挙動をいかに定量的に評価するかがきわめて重要である。本試験でもこの考え方に基づき、これら核種の気相への放出割合の評価を行ってきた。図2に本試験におけるこれら揮発性放射性物質放出機構解析の全体的な流れを示す。これまでTRACY閉じ込め試験結果を基に、これら核種の溶液燃料から気相への放出係数 ξ (1/s)及びベントガスによる炉心タンク気相部の希釈・換気係数 ψ (1/s)を考慮した放出機構モデルを用いることで、これら核種の気相への放出割合R(%)を評価してきた²⁾³⁾。

溶液燃料の臨界事象を対象とした動特性解析を実施する場合には、溶液中に生成する気泡の性状、特に気泡径が重要なパラメータとなる。揮発性核種の溶液相から気相への移行速度の大きさに対しては、溶液内部の攪拌効果や核種自

身の揮発性に加えて、溶液相/気相間の気液接触面積の大きさが一つの重要な因子であるものと考えられる。溶液燃料中では核分裂に伴って放射線分解ガス気泡が大量に生成し、これが気液接触面積の増大に寄与している。したがって、TRACY試験から得られる ξ と放射線分解ガス気泡径 d_p 及び出力上昇挙動を表すなんらかのパラメータとの関係を導くことができれば、 ξ を仲立ちにして、出力上昇挙動と d_p の関係が評価でき、これらの関係を相互に組み合わせることにより過渡臨界事象の動特性と揮発性放射性核種の気相への放出特性を総合的に解析し得る評価手法を構築することができる。

このうち本報では、TRACY試験結果を基にした放射性希ガス核種の ξ 及びRの評価結果とこれらと出力上昇挙動との相関性の検討結果、また、 ξ と d_p との関係を表す評価モデルの検討結果について述べる。

2. 試験

2.1 試験装置及び方法

図3にTRACYの概要を示す。TRACY炉心タンクにはベントガスラインが設置しており、ベントガスが循環している。溶液燃料から気相中に放出された放射性物質と放射線分解ガスは過渡臨界に伴って同ラインに流出する。TRACY炉心タンク中の気相部及び燃料溶液相の体積はそれぞれ約0.12(m³)及び0.27(m³)である。希釈タンクを含む同ラインの総体積は約11.5(m³)である。

放射性物質ならびに放射線分解ガスの放出挙動を観察することを目的に、同ラインには、放射性エアロゾル及びヨウ素種の捕集のためのカスケードインパクタ(Mst及びC)及びメイパックサンプラ(M)と放射線分解ガスの計測のためのガス濃度測定装置が設置してある。Mstサンプラは、1枚のメンブレンフィルタとミストの捕集を目的とした液溜付きの4段のインパクタから、またCサンプラは、1枚のメンブレンフィルタと液溜が付いていない7段のインパクタから構成される。Mサンプラは、1枚のメンブレンフィルタと5枚の銀蒸着ろ紙(無機状ヨウ素)と2段の硝酸銀添着アルミナベット(有機ヨウ素)から成るヨウ素捕集フィルタエレメントとから構成される。なおMst及びCサンプラにもヨウ素捕集フィルタエレメントが装着されている。サンプリングの後、それぞれのサンプラはそれぞれの構成要素に解体され、 γ 線測定によってそれらに捕集された放射性物質を定量する。放射性物質の量については核データライブラリ⁴⁾を用いて各サンプリング時刻に崩壊補正する。さらに試験前後の溶液燃料中に存在する放射性物質量を同様に γ 線測定により定量する。本報では溶液燃料から気相への放射性希ガスの放出挙動を溶液燃料中の存在量に関する測定結果を基に評価した。

2.2 試験条件

溶液燃料中の初期ウラン及び硝酸濃度はそれぞれ約 400 g/dm^3 及び 0.7 mol/dm^3 であった。ベントガスの体積流量は約 $0.27 \text{ m}^3/\text{min}$ であった。 ^{131}I の様な放射性ヨウ素はある程度時間遅れを持って溶液燃料中に生成してくるため、溶液燃料を過渡臨界後 5 時間炉心タンク内に保持した。TRACY では、調整トランジエント棒のランプ引抜きモード(RW、可変反応度添加速度)、パルス引抜きモード(PW)、そしてランプ給液モードの 3 つの異なる反応度添加モードによって溶液燃料に反応度を添加できる。ここでは、溶液燃料の体積をできる限り変えないことを念頭において、RW 及び PW モードについて考慮した。RW モードでは核分裂率の経時変化は振動し幾つかのピークを示したのに対して、PW モードでは数十ミリ秒の時間幅を有する一つの鋭敏なピークが観察された。核分裂率の経時変化の例を図 4 及び図 5 に示す。反応度添加量を 0.7 から 2.9\$まで変化させた。

3. 結果及び考察

3.1 放射性希ガス核種の放出係数及び放出割合の評価結果

図 6 に質量数 140 を有する核種を含む放射崩壊系列を示す。試験後の溶液燃料中に存在する核種の内 ^{140}Ba は、信頼性の高い定量に適当な半減期と比放射能を有するため、試験後の溶液燃料中の ^{140}Ba の存在量を用いることで、親核種である ^{140}Xe の放出挙動の評価を行った。

図 7 に過渡臨界から 5 時間後における溶液燃料中の ^{140}Ba の放射能濃度を示す。 ^{140}Ba の放射能濃度は総核分裂数が増大するにつれて増加した。総核分裂数が比較的大きい領域では、PW モードでの濃度が RW モードでの濃度よりも小さい傾向が見られる。これは同じ総核分裂数で見た場合、PW モードの場合の溶液燃料から気相部への ^{140}Xe の放出割合が RW モードの場合の放出割合よりも大きいことを意味している。

放射性希ガス核種の溶液燃料相から気相への放出挙動を定量的に把握するため、図 8 に示すような計算モデルを用いて ^{140}Xe の放出挙動を評価した。このモデルでは、核分裂に伴って溶液燃料中に生成した ^{140}Xe は放出係数 ξ_{Xe} ($1/\text{s}$)をもって溶液燃料から炉心タンク気相部へ放出され、ベントガスの換気効果に基づく換気系数 ψ ($1/\text{s}$)に依存して炉心タンクからベントガスラインへ流出するものと仮定した。これら係数と各核種の放射崩壊定数 λ ($1/\text{s}$)を用いて、溶液燃料中及び炉心タンク気相中の各核種の原子数の経時変化を以下の微分方程式を連立して解くことによって計算した。

(溶液燃料中)

$$\begin{aligned} dP_{sol}/dt &= Fs \times \eta_P + \kappa_{P'} \times \lambda_{P'} \times P'_{sol} - \lambda_P \times P_{sol} \\ dX_{sol}/dt &= Fs \times \eta_X + \kappa_P \times \lambda_P \times P_{sol} - (\lambda_X + \xi_X) \times X_{sol} \\ dD_{sol}/dt &= Fs \times \eta_D + \kappa_X \times \lambda_X \times X_{sol} - \lambda_D \times D_{sol} \end{aligned}$$

(炉心タンク気相中)

$$\begin{aligned} dX_{gas}/dt &= \xi_X \times X_{sol} - (\lambda_X + \psi) \times X_{gas} \\ dD_{gas}/dt &= \kappa_X \times \lambda_X \times X_{gas} - (\lambda_D + \psi) \times D_{gas} \end{aligned}$$

ここで、Fs (fissions/s)は図4及び図5で示した核分裂率、そして κ (-)は分岐比である。下付き添え字P、X及びDはそれぞれ親核種(P'はPの親核種)、着目している揮発性核種(ここでは ^{140}Xe)、及び娘核種を意味している。またsol及びgasはその値が溶液燃料中及び炉心タンク気相中の値であることを意味している。ここでは揮発性を有し溶液燃料から気相へ放出される核種はX核種のみであり、他の核種(P、P'及びD)は溶液中に残留しているものと仮定している。さらに以下のX原子数の減衰とベントガスによる換気効果を消去した微分方程式を連立することで、溶液燃料中及び炉心タンク気相中でのX原子の時間積算量を計算するとともにX原子の溶液燃料から炉心タンク気相部への放出割合 R_X (%)を評価した。

(溶液燃料中)

$$dX^*_{sol}/dt = Fs \times \eta_X + \kappa_P \times \lambda_P \times P_{sol}$$

(炉心タンク気相中)

$$dX^*_{gas}/dt = \xi_X \times X_{sol}$$

(X原子の放出割合)

$$R_X = (X^*_{gas}/X^*_{sol}) \times 100$$

ここで、アスタリスクは時間積算原子数であることを意味する。 R_X はX原子の全生成量に対する全放出量として定義されている。ここでは、 ξ_{Xe} (= ξ_X)をパラメータとして上述の微分方程式を連立して解き、過渡臨界から5時間後の溶液燃料中の ^{140}Ba の放射能濃度を計算した。 ^{140}Xe は過渡臨界直後に気相中に放出されるものと考え、 ξ_{Xe} を平均値として一定値として取り扱えるものと仮定した。また、 ^{140}Xe の親核種である ^{140}I は、半減期が極めて短いため、気相中へは放出されず、全量が溶液中に存在するものと仮定した(図6参照)。 ψ については

TRACY 炉心タンクと同じディメンジョンを有する模擬装置を用いて、装置内のエアロゾルの減衰の経時変化から実験的に求めた 0.016 (1/s) を用いた。 ^{140}Ba の計算値が図 7 に示した測定値と一致するまで収束計算し、 ξ_{Xe} と R_{Xe} ($=R_X$) を算出した。

一例として、2.9\$、PW モード、総核分裂数 5.7×10^{17} の試験条件で得られたデータに関して行った ξ_{Xe} と R_{Xe} の評価結果を図 9 に示す。溶液燃料中の ^{140}Ba の濃度の計算結果は ξ_{Xe} の増大とともに減少した。この場合、 ξ_{Xe} を 2.5 (1/s) とすると計算結果は測定結果と一致し、 R_{Xe} は 98 (%) と算出された。

3.2 放射性希ガス核種の放出挙動と出力上昇挙動との相関性の検討

溶液燃料からの揮発性核種の放出速度は、出力(あるいは核分裂率)の大きさのみならず、ピーク出力の大きさの関数であるものと推察できる。出力(あるいは核分裂率)の増加割合を表す炉特性として、炉周期 T (s) が用いられる。これは出力が e ($=2.72$) 倍になるのに要する時間として定義される。TRACY の過渡臨界試験から、逆炉周期 ω (1/s) ($=1/T$) とピーク出力の間には比例関係があることが報告されている⁹⁾。このことは、 ω は、出力(あるいは核分裂率)の増加割合の大きさばかりでなく、ピーク出力の大きさをも表現しうる炉特性パラメータであることを意味する。そこで、評価された ξ_{Xe} 及び R_{Xe} を各試験での ω に対してプロットした。結果を図 10 及び図 11 に示す。同じ総核分裂数で比較した場合、RW モード試験での ω は PW モード試験での値より小さく評価された。図 10 から ω と ξ_{Xe} の間には、以下に示すような相関式で表される直線的な相関関係を見いただすことができた。

$$\xi_{\text{Xe}} = 0.41 + 0.0058 \times \omega \quad (R=0.94) \quad (1)$$

この関係式を用いることで、出力の上昇挙動から放射性希ガスの ξ を見積もることが可能となる。また図 11 で見られる様に、 ω の増大とともに R_{Xe} は急激に増加することがわかった。 ω が 20 (1/s) 以上の場合、 R_{Xe} は 90 (%) 以上となった。

3.3 放射性希ガス核種の放出係数と放射線分解ガス気泡径との関係の検討

放射性希ガス核種の溶液燃料相から気相への放出機構として二重境膜説に基づく評価モデルを考え、放射性希ガス核種の ξ を放射線分解ガス気泡径 d_p との関係で整理し算出することを試みた。

Xe の気相への放出機構に関して図 12 に示すようなモデルを考える。核分裂によって燃料溶液中で生成する Xe の気相への放出は、溶液から放射線分解ガス気泡中への拡散機構が律速となるものと仮定し、 Xe は放射線分解ガス気泡と

もに炉心タンク気相へ放出されるものとする。その場合、Xe の気泡内への移動速度を w (mol/s) とすると、液相内及び気相内ではそれぞれ以下の式が成り立つ。

$$\text{液相内 : } w/A = k_L \times (C - C_i), \quad k_L = D_L/X_L \quad (2)$$

$$\text{気相内 : } w/A = k_G \times (p_i - p), \quad k_G = D_G/X_G \quad (3)$$

ここで、

A : 気液接触面積 (m^2)

C : 濃度 (mol/m^3)

D_G : 気相中の拡散係数 (m^2/s)

D_L : 溶液中の拡散係数 (m^2/s)

X_G : 気相側の境膜の厚さ (m)

X_L : 溶液側の境膜の厚さ (m)

k_G : 気相側の物質移動係数 ($mol/m^2 s Pa$)

k_L : 溶液側の物質移動係数 (m/s)

である。気液接触面における溶解抵抗は拡散抵抗に比べて小さく無視しうるものと考え、 C_i と p_i はヘンリー則に準じて平衡関係を満足するものと仮定する。また、 p と平衡関係にある濃度を C^* とおくと、ヘンリイ一定数 H を用いて両者は以下の様に表すことができる。

$$p = C^*/H \quad (4)$$

(4)式と(2)式を連立することで、以下の式を得る。

$$w = A \times K_L \times (C - C^*) \quad (5)$$

K_L (m/s) は溶液側の物質移動の総括係数であり以下の式から計算される。

$$K_L = 1/(H/k_G + 1/k_L) \quad (6)$$

ここで以下の仮定を行う。

① Xe のヘンリイ一定数 ($mol/m^3 Pa$) が十分小さい (溶解度が小さい)。

すなわち、 $K_L \approx k_L$ である⁶⁾。

② 気相中の Xe の分圧が十分小さい。すなわち、 $C^* \approx 0$ である。

すると(5)式は以下のように書き直せる。

$$w = A \times k_L \times C \quad (7)$$

Xe の放出係数 ξ_{Xe} (1/s) は、溶液中の Xe のモル数 M_{Xe} (mol) と溶液体積 V_{sol} (m^3) を用いて以下のように表すことができる。

$$\begin{aligned} w &= M_{Xe} \times \xi_{Xe} = A \times k_L \times M_{Xe} / V_{sol} \\ \xi_{Xe} &= A \times k_L / V_{sol} \end{aligned} \quad (8)$$

k_L は、代表長さとして気泡径 d_p を用いて、シャーウッド数 Sh (-) と溶液側の Xe の拡散係数 D_L (m^2/s) から以下の式にて計算される⁶⁾。

$$k_L = Sh \times D_L / d_p \quad (9)$$

溶液中を上昇する気泡と溶液間の気液界面の接線方向の速度を考慮した場合、 Sh はペクレ数 Pe (-)、シュミット数 Sc (-)、レイノルズ数 Re (-)、エトベス数 Eo (-) 及びモルトン数 M (-) を用いて以下の式から計算できる⁶⁾。

$$Sh = 1.13 \times Pe^{1/2} \quad (10)$$

$$Pe = Re \times Sc \quad (11)$$

$$Re^2 = (4 \times C_D / 3)(Eo^3 / M)^{1/2} = (d_p \times u \times \rho_L / \mu_L)^2 \quad (12)$$

$$Eo = g \times \Delta \rho \times d_p^2 / \sigma \quad (13)$$

$$M = g \times \Delta \rho \times \mu_L^4 / (\rho_L^2 \sigma^3) \quad (14)$$

ここで、

μ_L : 溶液の粘性係数 (Pa s)

ρ_L : 溶液の密度 (kg/m^3)

σ : 表面張力 (N/m)

$\Delta \rho$: 気液密度差 (kg/m^3)

u : 気泡上昇速度 (m/s)

g : 重力加速度 (m/s^2)

(10)式は、気液界面の接線方向の速度(界面速度)を考慮とともにポテンシャル流れを仮定した場合に用いられる。文献中では Re が約 1 以上の条件に対して計算結果が示されている⁶⁾。抵抗係数 C_D (-) は、気液界面の汚染が中程度である

場合($Re \geq 43$)の下式を用いて計算した⁶⁾。

$$C_D = \max[\min\{24(1+0.15Re^{0.68})/Re, 72/Re\}, 8Eo/\{3(Eo+4)\}] \quad (15)$$

今回の解析モデルでは、(10)～(15)式を連立し収束計算によって Sh を求めた。溶液側の Xe の拡散係数 D_L は以下の Wilke-chang の推定式を用いて計算した⁷⁾。

$$D_L (\text{m}^2/\text{s}) = 7.4 \times 10^{-12} \times [(\phi \times M_L)^{1/2} \times T] / (\mu_L \times V_{Xe}^{0.6}) \quad (16)$$

ここで、

ϕ : 会合定数 (-)

M_L : 溶媒の分子量 (g/mol) (=18)

T : 温度 (K)

V_{Xe} : 標準沸点における Xe の分子容 (cm³/g-mol)

V_{Xe} は Tyn-Calus 式を用いて以下のように計算される⁷⁾。

$$V_{Xe} = 0.285 \times V_C^{1.048}$$

V_C は臨界容積であり Xe の V_C は 118 cm³/g-mol である。なお、ここでは、 ϕ 及び M_L については、水の値($\phi=2.6$ 及び $M_L=18$)を使用して計算した。

また今回は、 ρ_L 、 μ_L そして σ について以下の考え方に基づき、温度変化を考慮した。

① ρ_L :

臨界安全ハンドブックに記載されている以下の式から計算した⁸⁾。

$$\rho_L = (1.0125 \times \rho_{L25} + 0.000145 \times t - 0.0005 \times \rho_{L25} \times t - 0.0036) \times 10^3 \quad (17)$$

$$\rho_{L25} = 1.0171 + 1.2944 \times 10^{-3} \times C_U + 0.0289 \times C_{HN}$$

ここで、

t : 溶液温度 (°C)

ρ_{L25} : 25 °Cにおける溶液の密度 (g/cm³)

C_U : ウラン濃度 (g/l)

C_{HN} : 酸性度 (mol/l)

② μ_L :

今回は以下の水に対する温度変化式を用いた⁹⁾。

$$\mu_L = 1.26 \times 10^{-5} \times \exp\{(1 - 5.81 \times 10^{-3} \times T) / (1.13 \times 10^{-3} \times T - 5.72 \times 10^{-6} \times T^2)\} \quad (18)$$

ここで、

T : 溶液温度 (K)

③ σ :

今回は以下の Halkim らが提案している極性液体に対する温度依存性を表す式を用いた⁷⁾。

$$\sigma = P_C^{2/3} \times T_C^{1/3} \times Q_p \{(1 - T/T_c)/0.4\}^m \times 10^{-3} \quad (19)$$

ここで、

P_C : 臨界圧力 (atm)

T_C : 臨界温度 (K)

Q_p : $= 0.1574 + 0.359\omega - 1.769X - 13.69X^2 - 0.510\omega^2 + 1.298\omega X$

m : $= 1.210 + 0.5358\omega - 14.61X - 32.07X^2 - 1.656\omega^2 + 22.03\omega X$

X : Stiel の極性因子

ω : 偏心因子

ここでは便宜上、各パラメータとして水の値($P_C=217.6$ 、 $T_c=647.3$ 、 $X=0.023$ 、 $\omega=0.344$)を用いた。この式を用いて 25 °Cにおける σ を計算すると、 7.8×10^{-2} N/m を得る。文献より同温度における水の σ は 7.2×10^{-2} N/m と読み取れるので⁹⁾、(19)式を用いて計算される σ は同じ温度の水の σ よりも若干大きめとなると考えられる。なお、これらの計算式については、より適した関数式の探索を行い、順次よりよい関数式に置き換えていく予定である。

(10)～(19)式を連立して解くとともに、(9)式から物質移動係数 k_L をまた(8)式から ^{140}Xe の気相への放出係数 ξ_{Xe} を気泡径 d_p の関数として計算した。なお、気液接触面積 A については、溶液の放射線分解によって発生する分解ガスの体積を V_{Rg} (m³)を用いて以下の式から計算した。

$$A = 4\pi(d_p/2)^2 \times (6V_{Rg}/(\pi d_p^3)) = 6V_{Rg}/d_p \quad (20)$$

なお V_{Rg} としては添加反応度 2.9\$(PW モード)、総核分裂数 5.7×10^{17} の試験条

件で得られた過渡臨界後 1,000 秒間の水素の積算量(0.03 m^3)を用いた。この時間幅は、調整トランジエント棒の引抜き後にベントガス中の水素濃度が最大となる最初のメインピーク幅とほぼ一致する²⁾³⁾。

計算結果を図 13 に示す。 ξ_{Xe} は d_p の減少と溶液温度の上昇に伴って大きくなつた。特に d_p の減少による増大の割合は大きく、これは d_p が小さくなると気液接触面積が大きくなり、希ガスの溶液燃料相から気相への移行速度が急激に大きくなることを意味している。なお、図 10 に示した TRACY 試験結果から評価した各 ξ_{Xe} に対応する d_p を図 13 から読み取ると、約 0.4~3 mm となつた。

図 10 に示したように、 ξ_{Xe} と ω との間には相関関係が見いだされている。そこで、出力挙動と気液接触面積 A の関係を観察するために、図 10 と図 13 の結果を用いて ω と A の関係をプロットした。結果を図 14 に示す。溶液の温度は 50°C と仮定した。 ω と A の間には傾きが負の直線的な関係を見いだすことができた。これは、 ω が大きくなると単位時間当たりの溶液燃料中での放射線分解ガスの生成量が増大するためであると考えられる。参考までに両者の関係から相関式を導くと以下のような式を得ることができる。

$$A = 2.9 \times 10^{-5} - \omega^{-0.61} \quad (R = 0.99) \quad (21)$$

ただし、この相関式を導出する過程では幾つかの仮定を行つておつり、それによる不確からしさが(21)式には含まれることに注意が必要である。この点については、今後さらにモデルの検討・改良を行い、その知見を取り入れることで、よりよい形に整理していく予定である。

4. 結言

TRACY 試験結果をもとに、溶液燃料臨界事故時の放射性希ガスの溶液燃料から気相への放出挙動を定量的に評価した。放射性希ガスとして ^{140}Xe に着目し、気相への放出係数を考慮した評価モデルを用いることで、気相への放出割合を見積もることができた。また、逆炉周期と放出係数との間に相関関係を見いだすことができ、相関式を導出した。また、二重境膜説をもとに放出係数と放射線分解ガス気泡径の関係を検討し、その結果を用いて、逆炉周期と放射線分解ガス気泡径との定性的な相関関係を示すことができた。ただし、今回考察した二重境膜説を基にした放出係数評価モデルでは、放射線分解ガス気泡の形状として单一気泡であると仮定しているが、実際には過渡臨界時には微小な気泡が群となって溶液中に生成していることが、TRACY 炉心内溶液のビデオ撮影映像からわかっている¹⁰⁾。したがつて今後は特に気泡群に対する物質移動モデルを考察し、今回の評価モデルを発展させていくことが必要となる。

この点を含め、今後は以下の点に着目して試験解析を実施し、解析結果を相互に組み合わせることで、過渡臨界事象の動特性と揮発性放射性核種の気相への放出特性を総合的に解析し得る評価手法を構築していきたい。

- (1) 過渡臨界時の実際の気泡の発生状況を把握するとともに気泡性状の定量的な評価を試みる。
- (2) 所内外で開発されている動特性解析コードの気泡生成モデルについて調査し、本解析にフィードバックする。
- (3) 半減期の異なる希ガス核種に着目して、放出係数及び放出割合を評価することで、逆解析的に溶液中の気泡発生等の化学工学的現象の影響を推定する。
- (4) 溶液の物性値計算式について、より実際の溶液条件に近い適用範囲の関数式を導入する。
- (5) 放射線分解ガス気泡を单一気泡としてではなく、気泡群としてとらえ、揮発性核種の移行挙動を定量的に評価しうる手法を考察する。
- (6) 放射性ヨウ素核種についても放出挙動を評価する。

謝 辞

本報告書は、電源開発促進対策会計法に基づき、日本原子力研究所が科学技術庁から委託されて実施した「再処理施設臨界安全技術開発」の研究成果の一部を含む。本試験計画及び試験結果全般にわたって貴重なご意見及びコメントを頂戴した「臨界事故時放射性物質閉じ込め専門部会」を構成する各委員の方々に深く感謝いたします。また本報告書の作成にあたって、貴重なコメントを頂いた、プロセス安全研究室 副主任研究員 峯尾 英章氏に感謝いたします。

参考文献

- 1) JCO 臨界事故調査支援原研タスクグループ, "JCO 臨界事故における原研の活動", JAERI-Tech 2000-074 (2000.9).
- 2) 阿部, 田代, 永井, 小池, 岡川, 村田, "溶液燃料の過渡臨界事象に伴う放射性ヨウ素及び希ガス等の放出挙動の検討(受託研究)", JAERI-Tech 99-067 (1999.9).

- 3) H.Abe, S.Tashiro, H.Nagai, T.Koike, S.Okagawa and M.Murata, "Studies on source term release behavior from fuel solution under simulated nuclear criticality accident", Proceeding of ICNC'99, Vol.3, p1293 (1999.9).
- 4) K.Tasaka, J.Katakura, H.Ihara, T.Yoshida, S.Iijima, R.Nakasima, T.Nakagawa and H.Takano, "JNDC Nuclear data library of fission products -second version-", JAERI 1320 (1990).
- 5) K.Ogawa, K.Nakajima, H.Yanagisawa, H.Sono, E.Aizawa, T.Morita, S.Sugikawa, K.Sakuraba and A.Ohno, "Measurement of the power profile during nuclear excursions initiated by various reactivity additions using TRACY", Proceeding of ICNC'99, Vol.3, p1277 (1999.9).
- 6) 化学工学会, "化学工学便覧", 丸善 (1999).
- 7) R.C.Reid, J.M.Prausnitz, T.K.Sherwood, 平田光穂監訳, "気体, 液体の物性推算ハンドブック", マグロウヒルブック (1985).
- 8) 日本原子力研究所核燃料施設安全性研究委員会臨界安全性専門部会臨界安全性実験データ検討ワーキンググループ, "臨界安全ハンドブック第2版", JAERI 1340 (1999.3).
- 9) 日本化学会, "改訂3版化学便覧基礎編II", 丸善 (1987).
- 10) K.Ogawa, T.Morita, H.Yanagisawa, E.Aizawa, K.Sakuraba, S.Sugawara and A.Ohno, "Development of solution behavior observation system under criticality accident conditions in TRACY", J.Nucl.Sci.Technol, Vol.37, No.12, p.1088-1097 (2000).

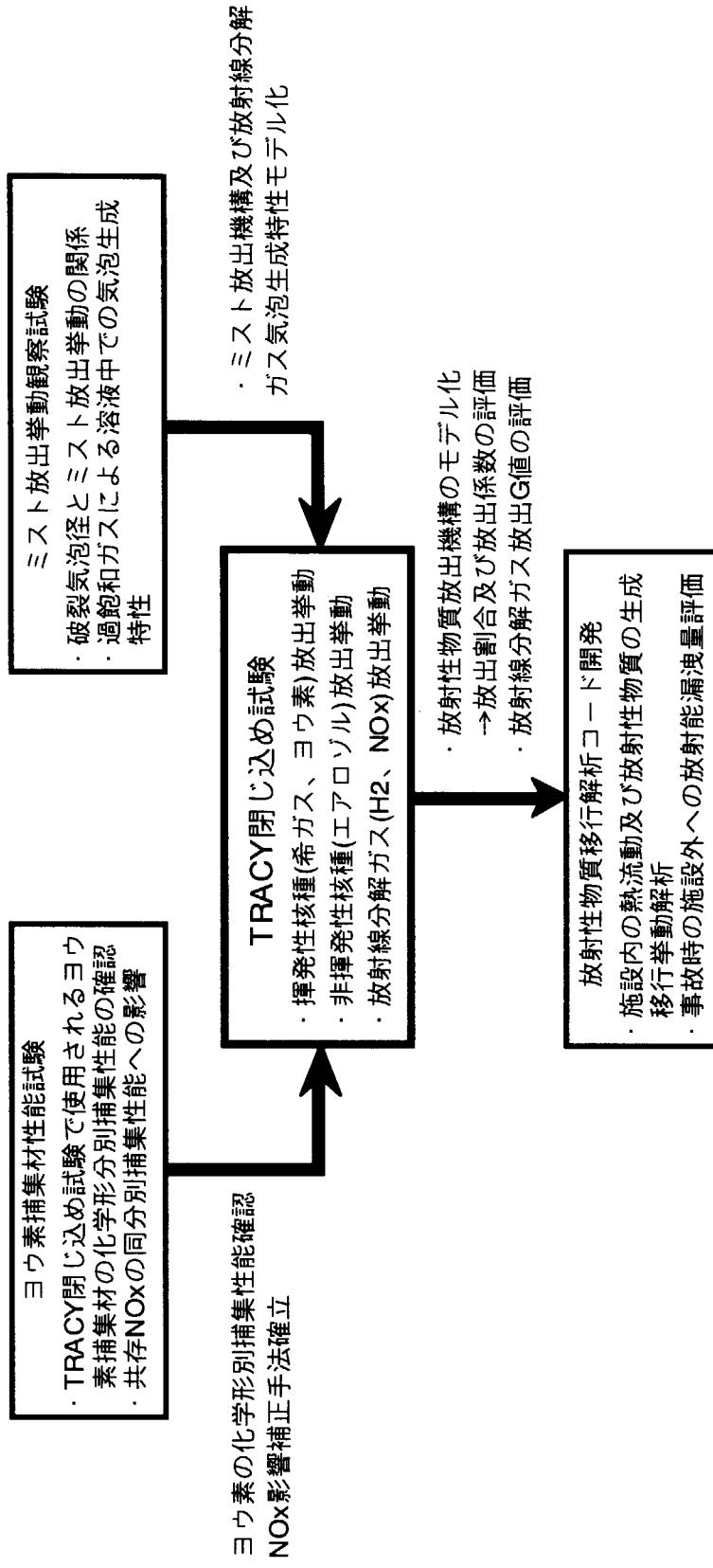


図 1 TRACY を用いた溶液燃料臨界事故時の放射性物質閉じ込め試験の概要

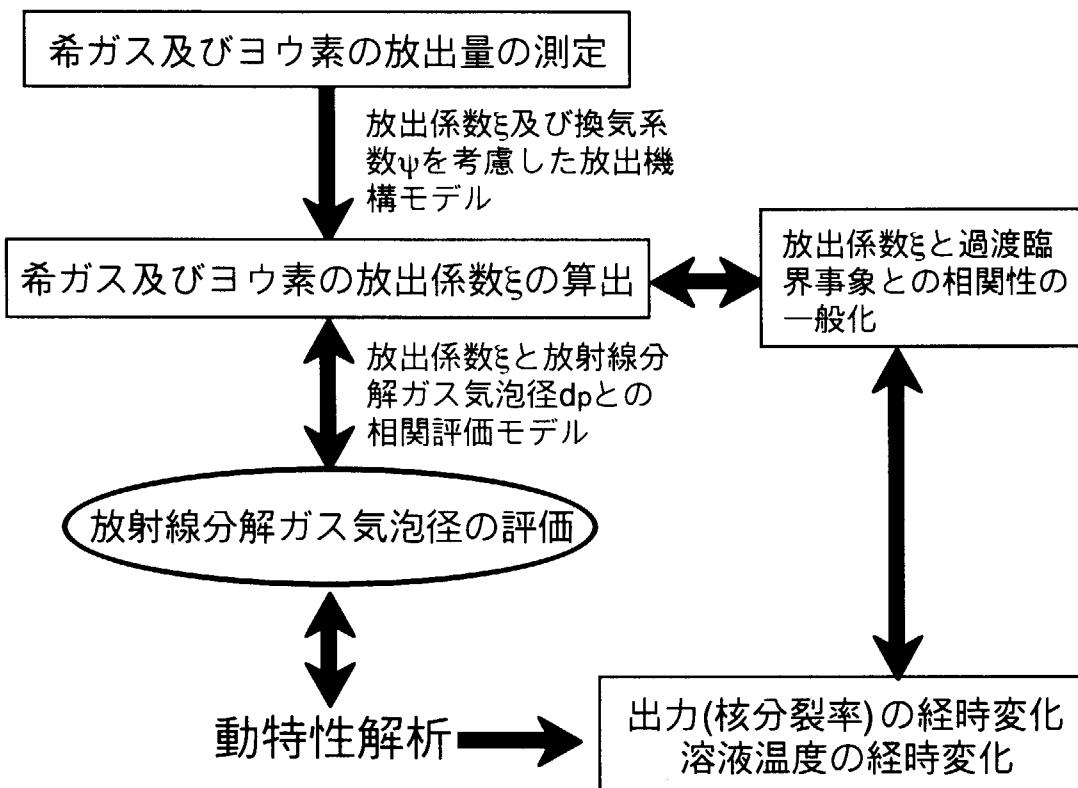


図 2 挥発性放射性核種の放出機構解析の全体的な流れ

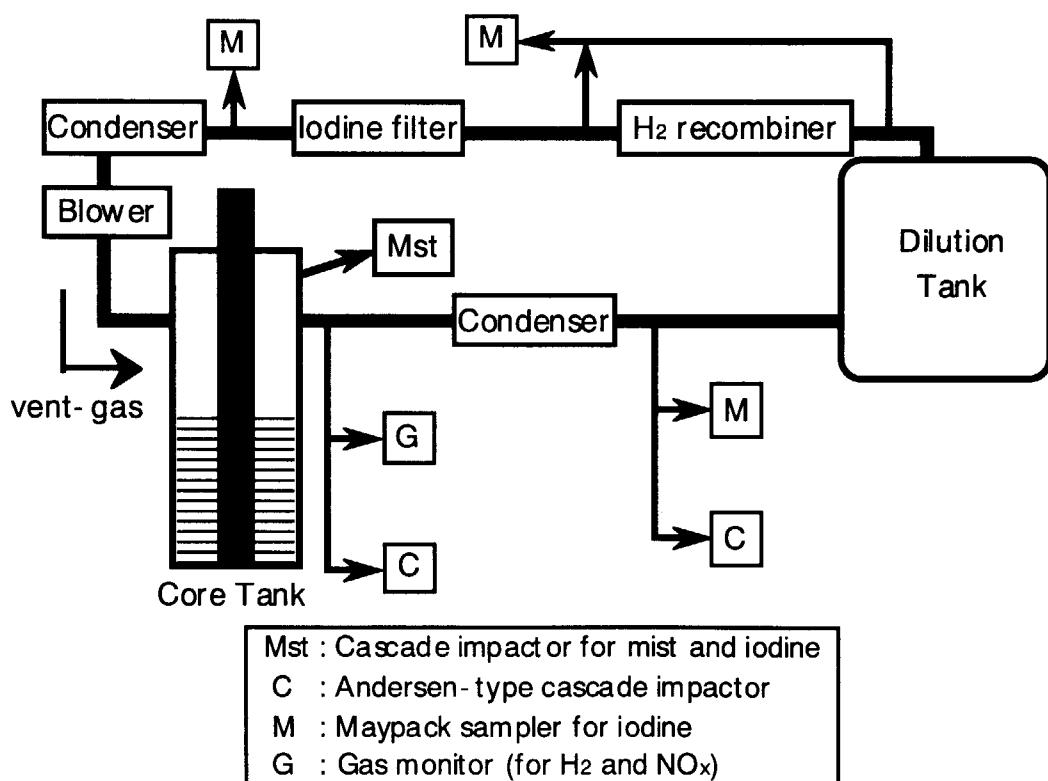


図 3 TRACY 試験装置の概要

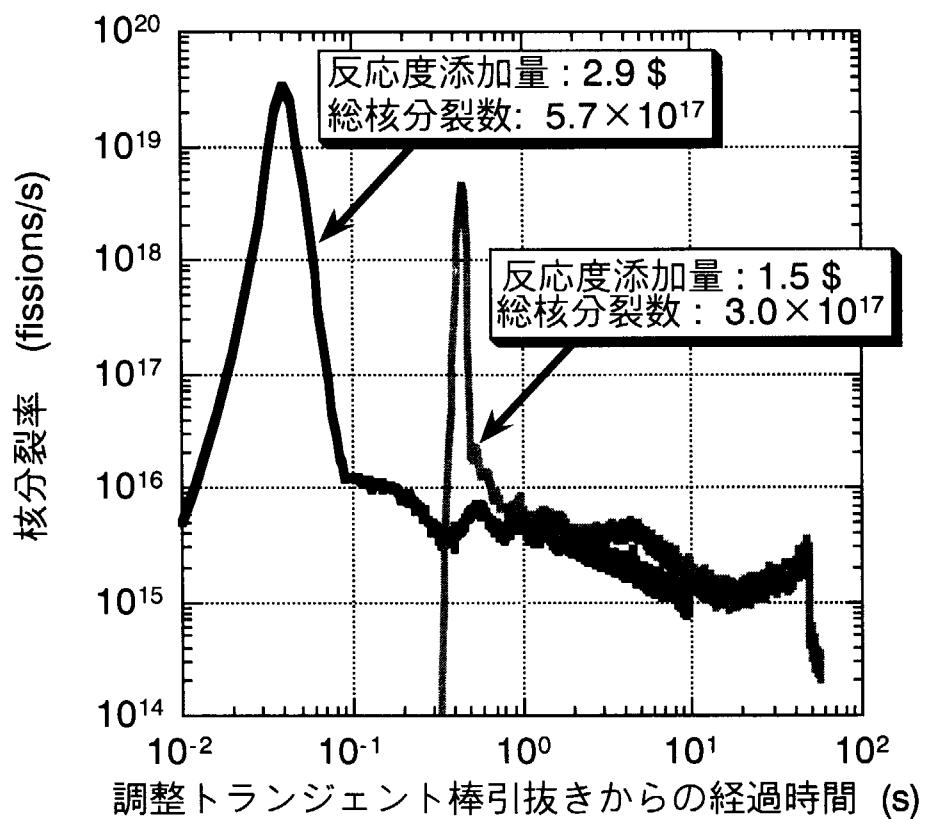


図 4 核分裂率の経時変化の例(PW モード)

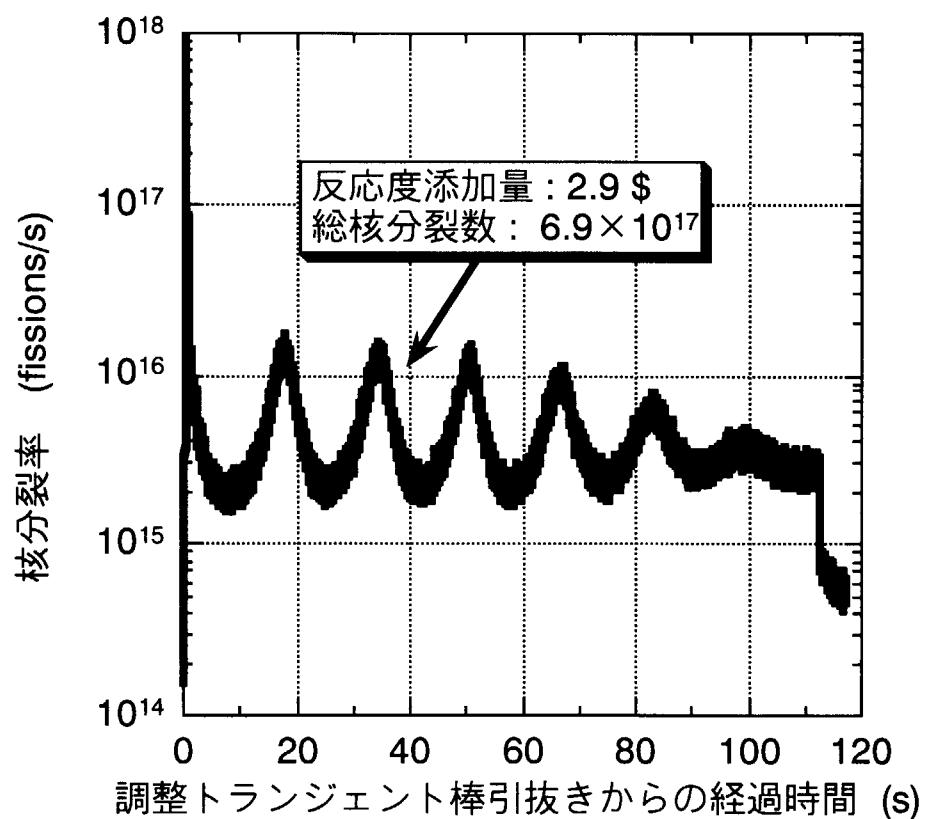


図 5 核分裂率の経時変化の例(RW モード)

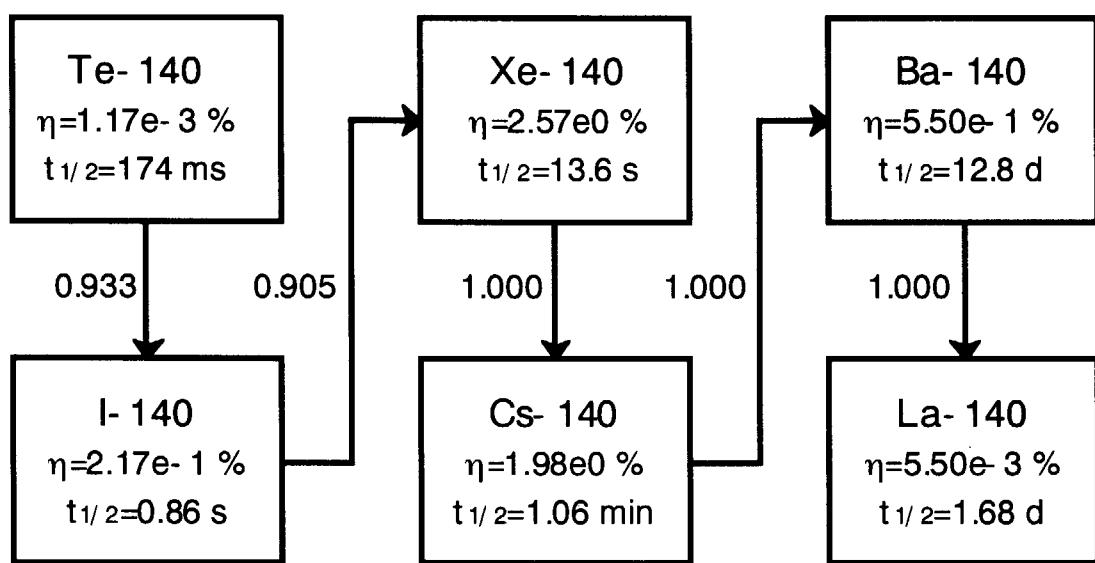
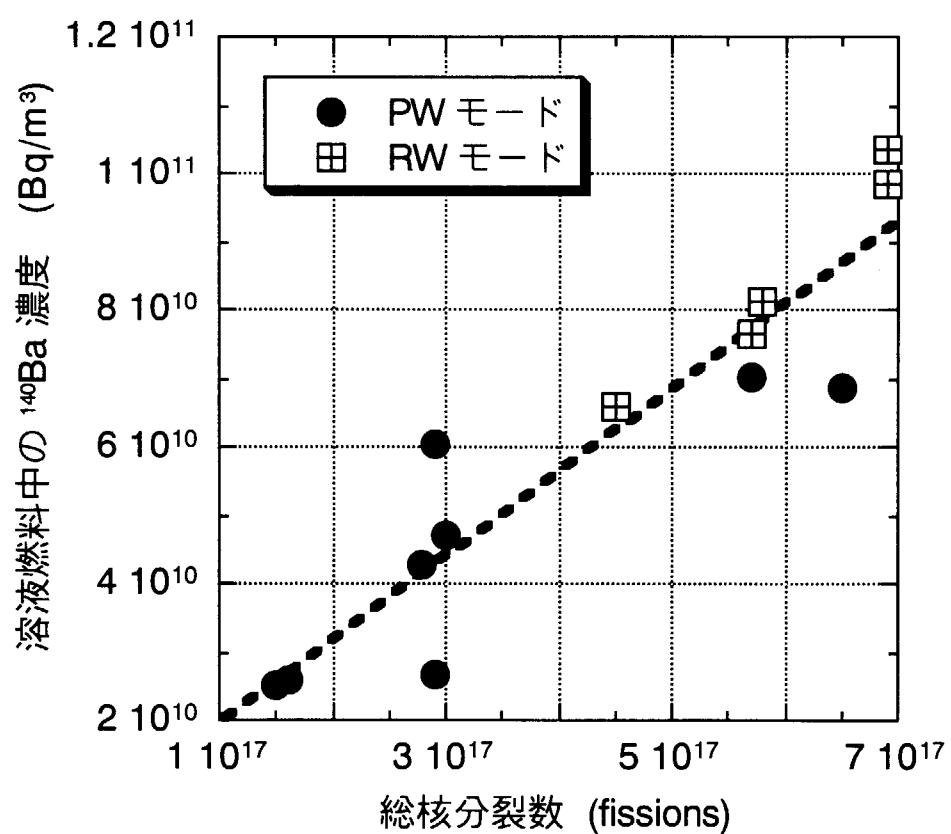


図 6 質量数 140 を有する核種の放射崩壊系列

図 7 調整トランジエント棒引抜きから 5 時間後における
溶液燃料中の ¹⁴⁰Ba の放射能濃度

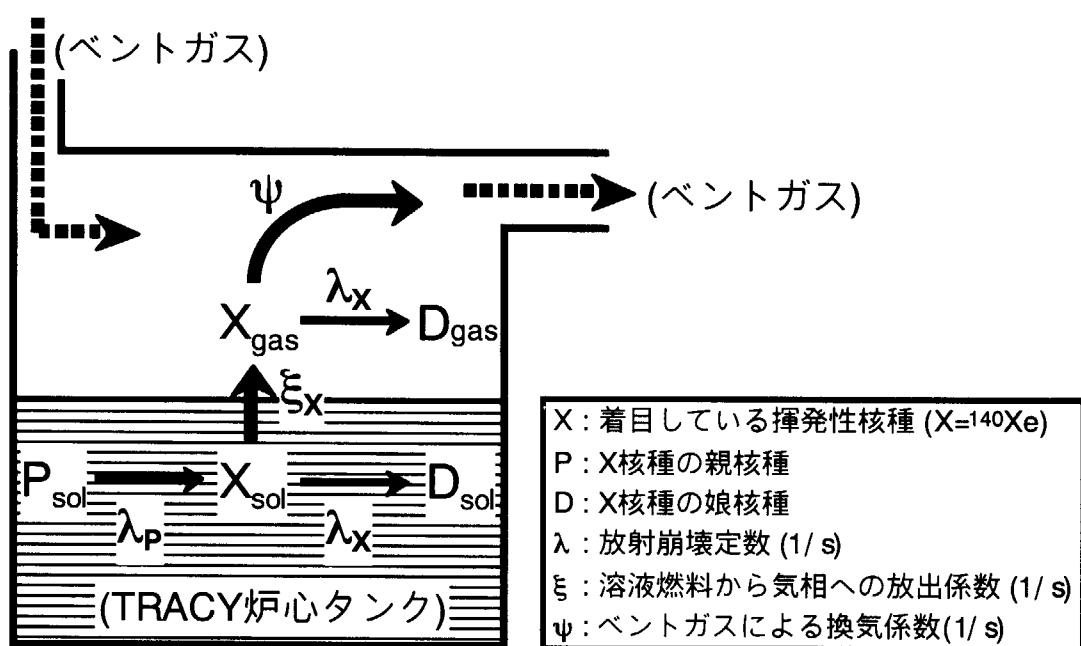
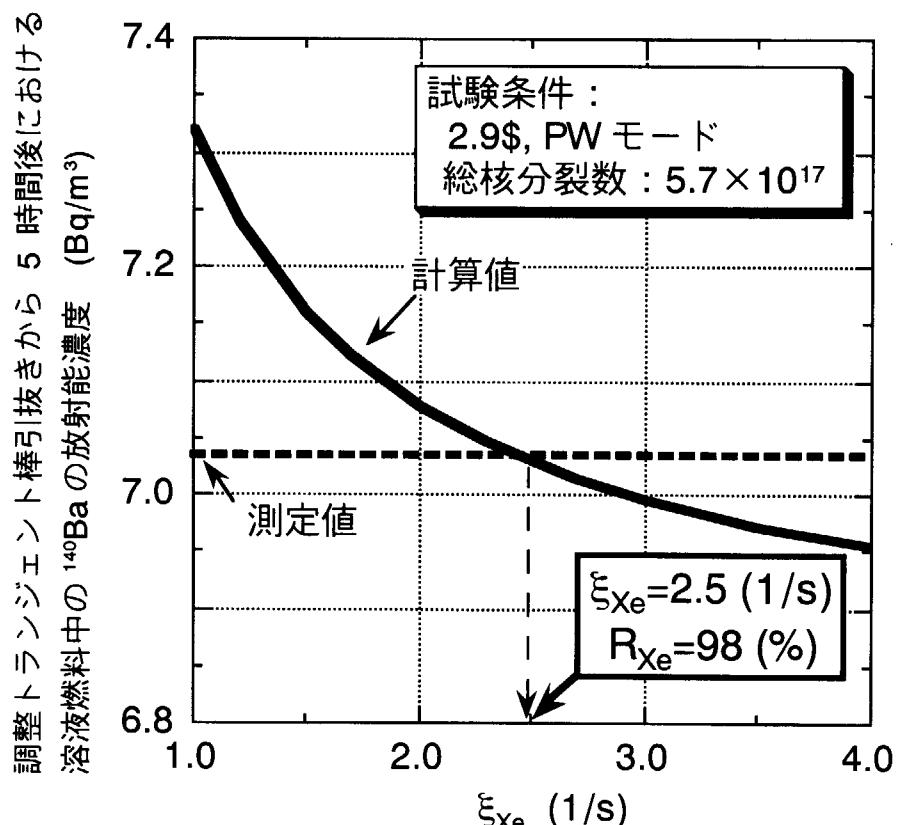
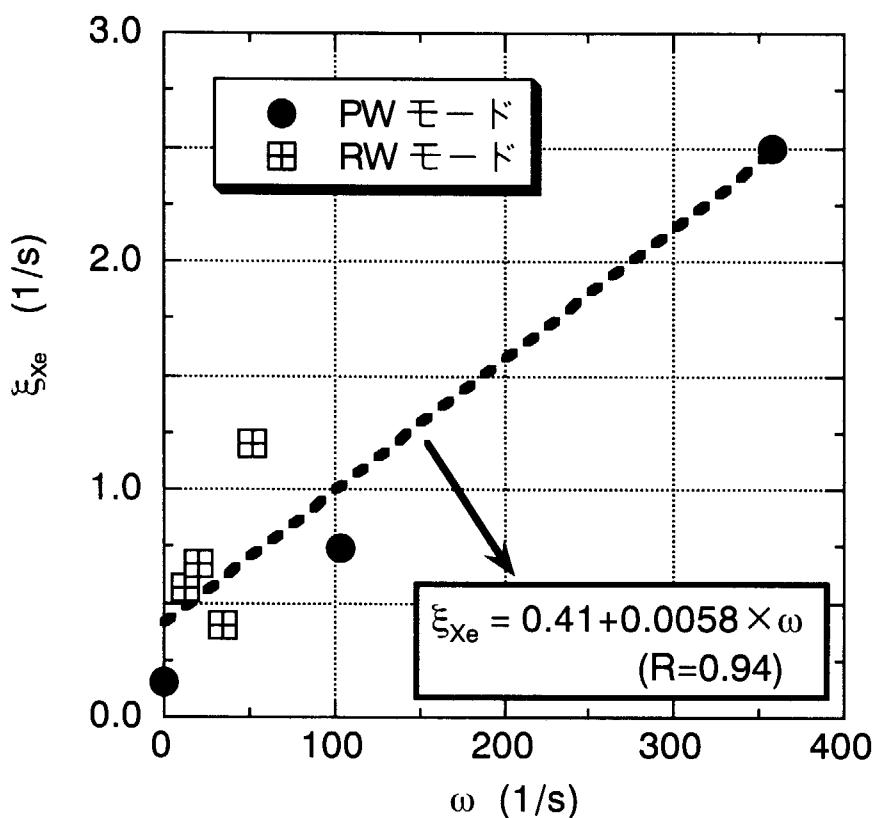
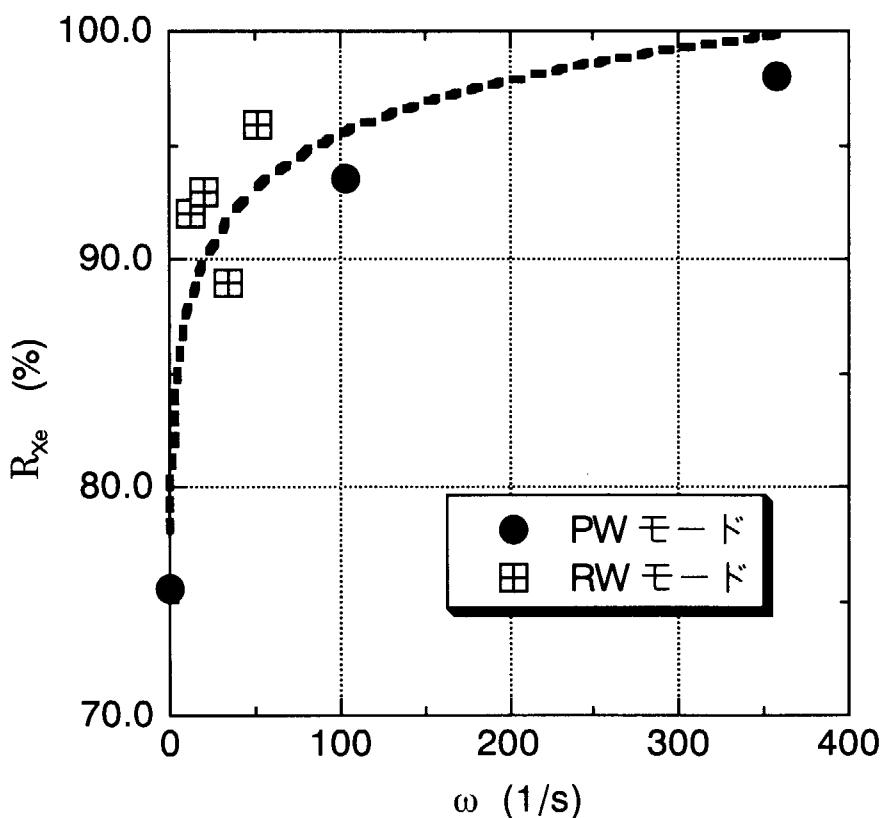


図 8 放射性希ガスの溶液燃料から気相への放出機構のモデル化

図 9 ξ_{Xe} と R_{Xe} の評価結果例

図 10 ω と ξ_{Xe} の関係図 11 ω と R_{Xe} の関係

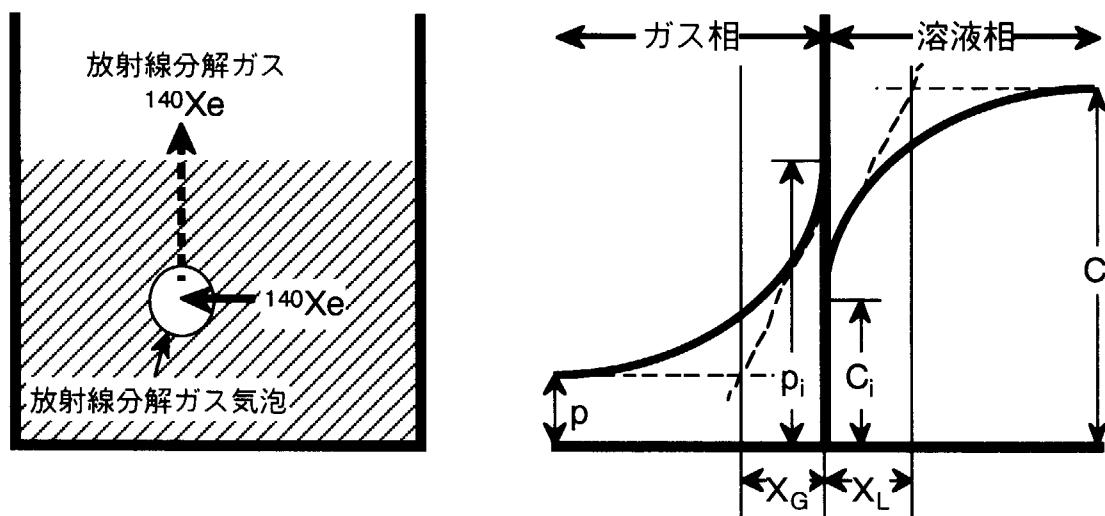


図 12 挥発性核種の溶液燃料相から気相への移行機構モデル

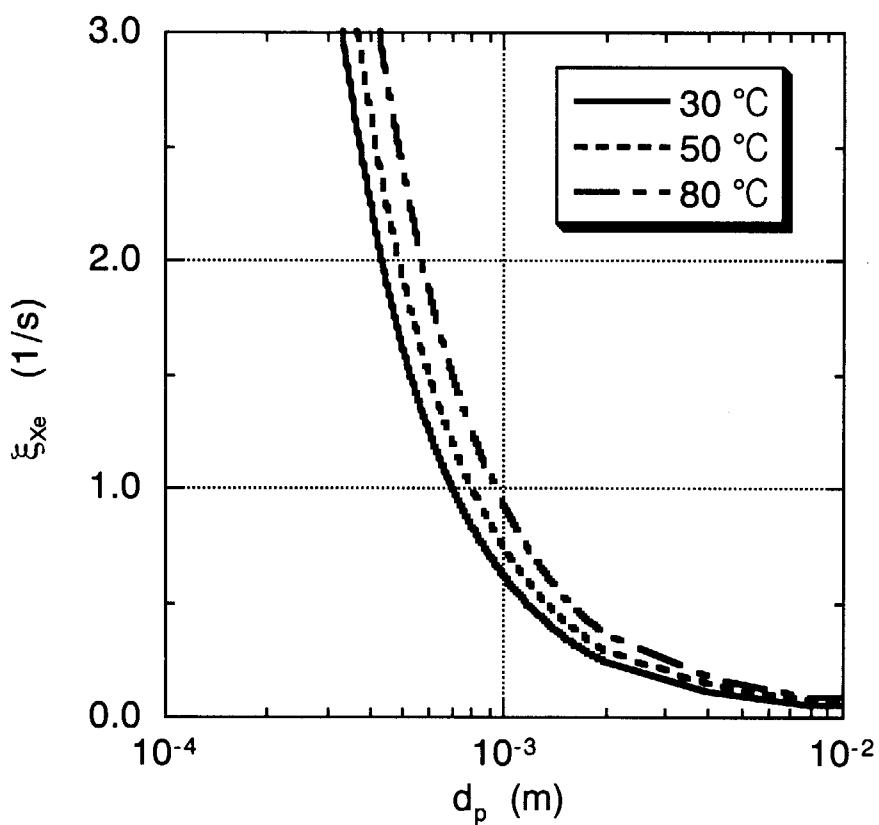


図 13 d_p と ξ_{Xe} の関係(評価結果)

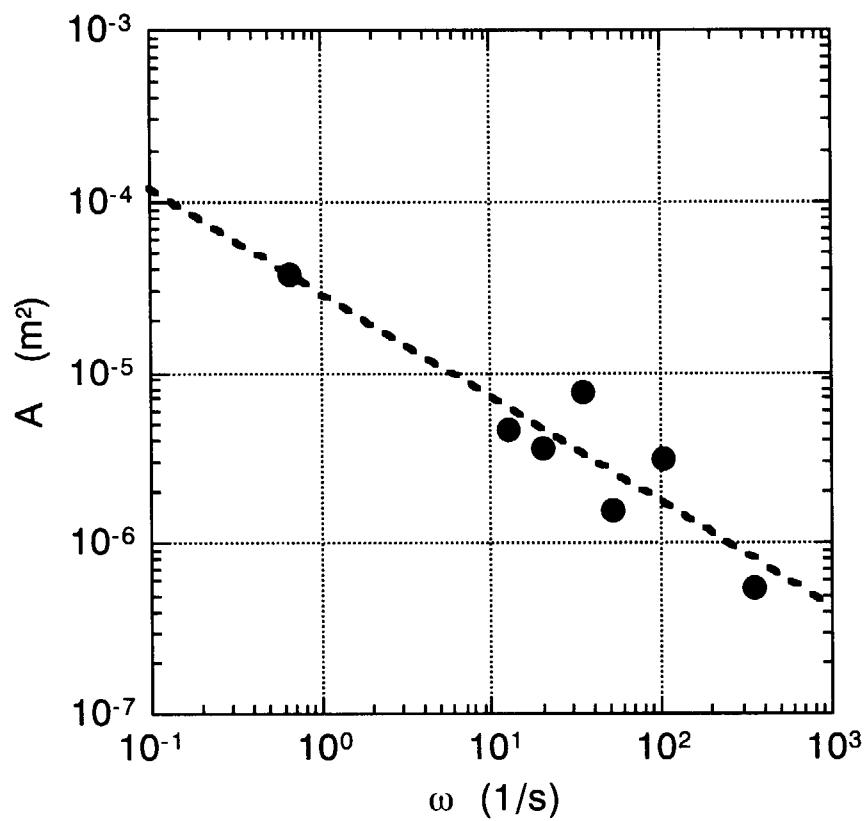


図 14 ω と A の関係(評価結果)

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	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	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光强度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s^{-1}
力	ニュートン	N	$m \cdot kg/s^2$
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m^2
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	$N \cdot m$
功率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	$A \cdot s$
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	$V \cdot s$
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束度	ルーメン	lm	$cd \cdot sr$
照度	ルクス	lx	lm/m^2
放射能	ベクレル	Bq	s^{-1}
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ′, ″
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10^{18}	エクサ	E
10^{15}	ペタ	P
10^{12}	テラ	T
10^9	ギガ	G
10^6	メガ	M
10^3	キロ	k
10^2	ヘクト	h
10^1	デカ	da
10^{-1}	デシ	d
10^{-2}	センチ	c
10^{-3}	ミリ	m
10^{-6}	マイクロ	μ
10^{-9}	ナノ	n
10^{-12}	ピコ	p
10^{-15}	フェムト	f
10^{-18}	アト	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N(=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
9.80665		1	2.20462
4.44822	0.453592		1

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s} (\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P(ボアズ)} (\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストークス)} (\text{cm}^2/\text{s})$$

圧力	MPa(=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062×10^3	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10^{-4}	1.35951×10^{-3}	1.31579×10^{-3}	1	1.93368×10^{-2}
	6.89476×10^{-3}	7.03070×10^{-2}	6.80460×10^{-2}	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV	1 cal = 4.18605 J(計量法)
	1	0.101972	2.77778×10^{-7}	0.238889	9.47813×10^{-4}	0.737562	6.24150×10^{-18}	= 4.184 J(熱化学)
9.80665		1	2.72407×10^{-6}	2.34270	9.29487×10^{-3}	7.23301	6.12082×10^{-19}	= 4.1855 J(15 °C)
3.6×10^6	3.67098×10^5	1	8.59999×10^{-5}	3412.13	2.65522×10^{-6}	2.24694×10^{-25}		= 4.1868 J(国際蒸気表)
4.18605	0.426858	1.16279×10^{-6}	1	3.96759×10^{-3}	3.08747	2.61272×10^{-19}	仕事率 1 PS(仮馬力)	
1055.06	107.586	2.93072×10^{-4}	252.042	1	778.172	6.58515×10^{21}	= 75 kgf·m/s	
1.35582	0.138255	3.76616×10^{-7}	0.323890	1.28506×10^{-3}	1	8.46233×10^{18}	= 735.499 W	
1.60218×10^{-19}	1.63377×10^{-20}	4.45050×10^{-26}	3.82743×10^{-20}	1.51857×10^{-22}	1.18171×10^{-19}	1		

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad
	1	2.70270×10^{-11}		1	100
	3.7×10^{10}	1		0.01	1

照 射 線 量	C/kg	R	線 量 當 量	Sv	rem
	1	3876		1	2.58×10^{-4}
				0.01	1

(86年12月26日現在)

溶液燃料過渡臨界事故時における放射性希ガスの放出挙動の検討（受託研究）