

## 「核分裂生成物（FP）挙動」研究専門委員会の設立に向けての活動状況

「FP 挙動」研究専門委員会準備会  
エネルギー総合工学研究所 内田俊介

### 1. 背景

核分裂生成物（FP, fission product）の挙動は、原子炉固有の課題で、原子炉工学の重要な技術項目として活発な研究がなされてきました。特に、TMI-2 とチェルノビル事故を契機に、過酷事故に対する備えが重要視され、欧州を中心に、Phébus FP プロジェクトでの原子炉を用いた FP 挙動のモックアップ実験が大々的に実施されるなど、大きな盛り上がりを見せました。しかし、2000 年に入ると過酷事故に対する設備増強などの機運にかげりが見え、特に日米では、FP 関連研究の予算が縮小され、関連研究プロジェクトの縮小、技術者の減少が顕著になりました。水化学の分野でも同様に、初期のボーンマス水化学国際会議では、ヨウ素化学のセッションがあり、関係する水化学分野の研究者、技術者が熱心に議論する姿が見られましたが、いつの間にかヨウ素化学セッションも見られなくなってしまいました。それと同時に、我が国でも著名な FP 関連の研究者が、第一線を退き、技術伝承が危ぶまれております。

上記した Phébus FP プロジェクトを含め、かつての事故時のソースタームとしては、甲状腺被ばくが問題となるヨウ素の挙動について詳細な議論がなされてきましたが、半減期が長く、長期間にわたって影響を及ぼすセシウムについてはあまり着目されてこなかった様に思います。特に、従来の研究では、セシウムは CsI または CsOH の化学形を取るとされておりましたが、福島事故では炉心材料等の微粒子に付着したセシウムなどもサイト外で観測されております。また、Phébus FP プロジェクト実験を含む従来の過酷事故研究では、多くが格納容器内の現象を対象としておりましたが、福島事故では原子炉建屋まで汚染水が漏れ出し、評価対象とすべき領域が拡大しました。しかも、炉心インベントリに対して無視できない量の放射性物質が汚染水中に溶け込んで原子炉から外部に出ております。こういった挙動を解明することによって、福島事故時の炉内や格納容器内あるいは原子炉建屋内で何が起こり、それがどのようにソースタームに影響したのかをより正確に把握することができるものと考えます。また、その結果をソースタームの予測技術の向上に反映させることによって、リスク評価技術の向上、ひいては原子炉の安全性向上に繋がると考えています。

福島第一原子力発電所の廃炉は、今後 40 年余にわたって継続される息の長い事業となります。この間、発電所周辺環境の放射能再汚染の防止、除染等の環境修復が進められております。原子炉から燃料デブリを取り出して、廃炉作業を進めるに当たっては、作業従事者の放射線被ばくの抑制、浮遊 FP による内部被ばく抑制が必須の課題となります。このためには、燃料デブリの取扱と併せて、超ウラン元素（TRU, Trans-Uranium）を含めた長半減期また低揮発性の FP 挙動の把握と対策が重要となり、作業計画および実施においては FP に対する十分な知見が欠かせません。

FP 研究の衰退期を経て、今後長期にわたり、FP 研究を復活させ、技術を再立ち上げして、長期間にわたりこの技術を維持、継続するためには、計画的な FP 関連研究者、技術者の養成と技術継続が必須で、技術の継続のためには、新たな研究課題の策定が必要となります。

## 2. 核分裂生成物挙動に関する水化学部会の役割

日本原子力学会の「福島第一原子力発電所事故に関する調査委員会」（事故調と略記する）では、委員会メンバーが各部会から選出され、出身部会のサポートの基に、アカデミアからの視点での事故原因の究明と今後の対応が議論されました。水化学部会からは2名の委員（塚田隆氏と筆者）が参画し、主として汚染水の調査とその対応策の検討と評価に当たりました。この対応状況は、水化学部会の定例研究会でも進捗状況を逐次報告しており、全体の成果は、「福島第一原子力発電所事故に関する調査委員会」報告書<sup>1</sup>として発刊されております。

汚染水のマスバランスでは、公表された汚染水のデータベースを用いて、原子炉に初期存在していたセシウムのうち40%強が汚染水として処理されたことを示しました<sup>2</sup>。汚染水中のセシウム及びトリチウム濃度は、事故後しばらくは、低下しましたが、5年余経過した現在では、ほぼ一定値を保持しております（図1）<sup>3</sup>。

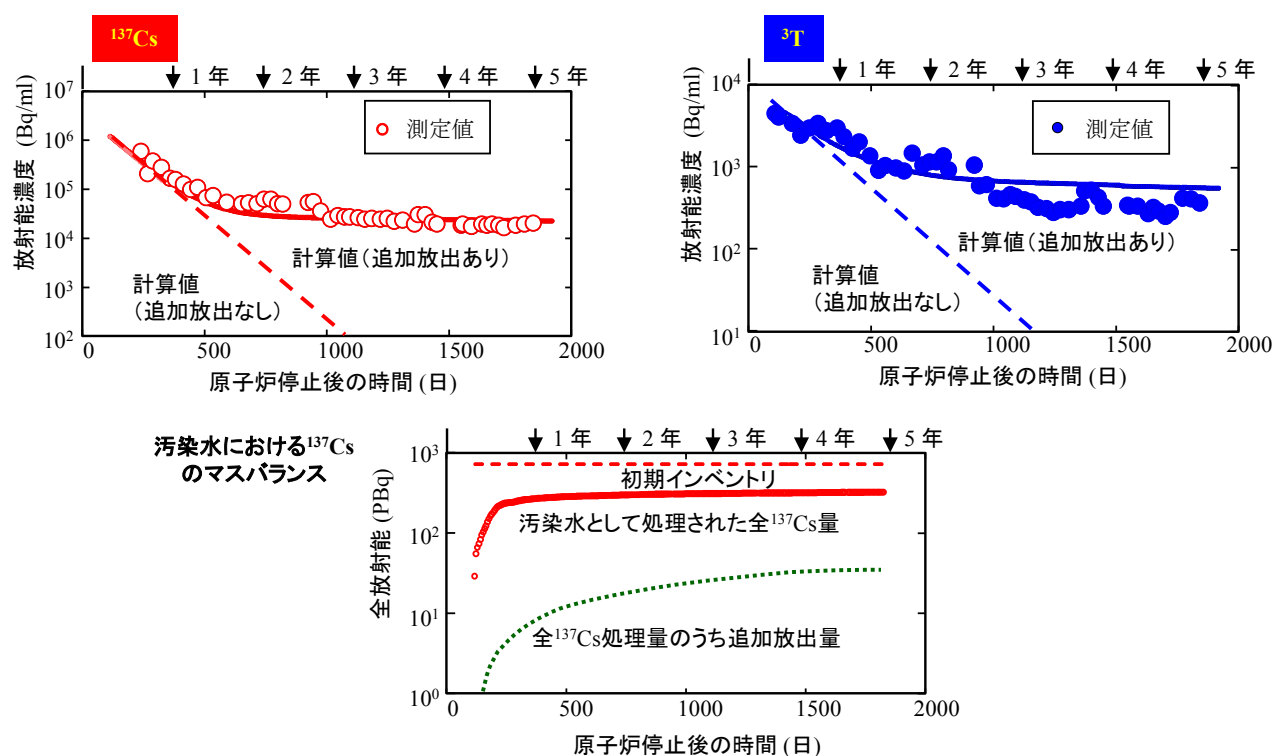


図1 汚染水のマスバランス評価結果 [5.5年間の汚染水処理(学会事故調報告プラス)]

また、現状の技術では除去できないトリチウムの取扱については、時期を見て、周辺住民、組織、自治体の他、周辺国とも連携をとりながら、希釈放出するのが妥当との見解を示しました（表1）。本見解は日本原子力学会のプレスリリースとして公開されております<sup>4</sup>。

<sup>1</sup> 一般社団法人日本原子力学会 東京電力福島第一原子力発電所事故に関する調査委員会、福島第一原子力発電所事故 その全貌と明日に向けた提言 一学会事故調 最終報告書一、2014年3月11日、丸善出版、ISBN978-4-621-08743-5

<sup>2</sup> Uchida, S., Naitoh, M., Suzuki, H. and Okada, H. "Evaluation of Accumulated Fission Products in the Contaminated Water at the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant", *Nucl. Technol.*, 188 (2014), 252-265.

<sup>3</sup> S. Uchida, A. Itoh, M. Naitoh, H. Okada, M. Pellegrini and Haruyasu Nagai, "Evaluation of fission product behavior in Fukushima Daiichi NPP under severe accident – Understanding their behavior based on coupling of the forward and backward evaluation procedures", *Int. Conf. On Water Chemistry of Nuclear power Systems, NPC2016*, Oct. 2-7, 2016, Brighton, UK, Nuclear Institute (2016) (CD).

<sup>4</sup> 日本原子力学会プレスリリース「福島第一原子力発電所の汚染水の処理について」（2013年8月21日）  
<http://www.aesj.net/document/press20130821.pdf>

表1 トリチウムの取扱

対応策	概要	課題	現実性	判断
1. サイト内貯蔵	放出せずに保管	地下水汚染のポテンシャル大	○	△
2. トリチウム除去と濃縮	トリチウム濃縮装置の適用 (各種同位体交換法の適用)	工学的には困難 [現実的な除染係数:10]		
2.1 除去水の放出	放出基準濃度以下して放出能 放出するのであれば希釈も同じ		△	△
2.2 高濃縮減容保管	大半のトリチウムを濃縮・減容 残りを希釈放出		△	△
3. 希釈放出*2	トリチウム以外の核種は除去 トリチウムは希釈放出	総量規制に抵触*1	○	△
*1 保安規定との整合性	福島第1の保安規定: 再処理施設の保安規定:	放出基準濃度: 20 Bq/g[法的には60 Bq/g] 総量規制: 22 TBq/y 放出基準濃度: 20 Bq/g[法的には60 Bq/g] 総量規制: 18 PBq/y		
*2	復水器冷却用海水ポンプを用いて希釈排出可能			

本事故調の調査報告書においては、委員長見解として、事故時のソースタームの評価に従来の評価ベースでは、説明できない事象が散見されことにより、今後重点的に議論する必要性が明記されました。このため、本事故調を引き継いだ、原子力学会の「廃炉検討委員会」（以下廃炉委と略記します）においても、ソースターム評価を中心とした FP 挙動を重要課題の一つとして取り扱っております。なお、廃炉委では、汚染水対応は、国が主導する各種機関、委員会でハード対応を含めた対応が進められており、学会が先頭に立つ必然性もないため、水化学部会としても、先の積み残しである FP 挙動評価に軸足を置いた活動を進めています。

FP 挙動に関しては、原子力学会では、2014 年年会及び 2016 年年会の二度にわたって、FP 挙動に関する合同企画セッション（核燃料部会、熱流動部会、計算科学部会、保健物理・環境科学部会、水化学部会共催）を開催しました。2014 年の合同企画セッションでは、FP 挙動研究には「部会の委枠を超えた新たな横断的な検討組織の設置と研究人材の育成が必須である」という結論を得ました。2016 年のセッションでは、この課題をさらに掘り下げて議論し、5 分会を代表した講演者からソースタームに関して以下の発表がなされました。

#### 1) FP の生成、蓄積と燃料からの放出

[核燃料部会]

過去の研究の蓄積が膨大にあり、発生量は、ORIGEN コード他に集大成されている。燃料温度の上昇と共に、その融点を超えた高揮発性 FP の過半は気相中へ放出され、温度の低下と共に一部が微粒子化して固液界面に沈着、または溶液中に溶解する。融点が高い固体状 FP の大部分は燃料体に残る。ただし、上記では燃料の形状（比表面積）変化や非平衡状態をとる可能性があり、下記移行評価における予測と現実の乖離を説明するためには、これらの挙動を加味する必要があるものとする。

#### 2) 原子炉冷却系、格納容器内の液相・気相中の FP 移行と除去 [熱流動、計算科学技術、水化学部会]

冷却水の流動解析により、気液の移動を解析し、流れに沿ってのガス状、粒子状、可溶性の FP を評価する。評価手法は過酷事故解析コードに集大成されている、コードの妥当性評価は Phébus FP プロジェクト他の模擬実験のデータを用いて実施されている。残念ながら、現状では福島第一原子

力発電所の原子炉、格納容器内での FP に関する実測値が少なく、過酷事故解析コードの妥当性を直接立証することは難しい。

3) 格納容器から建屋内外、環境への放出 [保健物理/環境科学、水化学部会]

環境での測定データに基づく原子炉建屋からの放出 FP 量の評価、汚染水として処理される FP 量の評価を通して、格納容器、原子炉建屋からの放出量の把握が進んでいる。格納容器外での FP データに基づいて、格納容器内部の挙動評価の妥当性評価を行い、過酷事故解析コードの妥当性確認と必要な改良を行うことが有益である。

上記の様な各部会からの視点に基づいて議論した結論は、FP 挙動は各部会を横断する課題として取り上げることが重要で、議論を活発にするために、新しい部会横断型の研究専門委員会の設置が望ましいという結論に達しました。

### 3. 部会横断型の研究専門委員会の設立

部会横断型の研究専門委員会を立ち上げるためには、各部会と十分に協議して、目標、アプローチを議論して、透明性の高い委員会を作ることが必要ですが、もう一つ重要な点は、FP 挙動に関する技術データベースを共有し、議論の基盤を同じくすることです。また、水化学部会内においても、FP 挙動に関する失われた期間の技術ギャップを埋める技術テキストが必要と考えました。このため、部会横断型の「FP 挙動」研究専門委員会を設立するに当たって、以下のステップを踏むことにしました。

①FP 挙動に関わる技術ドキュメントをまとめる。

- ・この方策として、欧州で大々的に推進された Phébus FP プロジェクトの成果、知見を十分に学び、FP 挙動の基礎事項に関する知見を共有すること
- ・さらにその知見をドキュメントとしてまとめ、共有化すると共に、技術を確実に TT する道具として活用する
- ・Phébus FP プロジェクトの概要は次の章にまとめます。

②上記技術テキストを持って、各部会の責任者と

議論し、共通のターゲットを明確にして研究専門委員会を設立する

この技術テキスト作成のため、水化学部会内に「FP 挙動」研究専門委員会準備会（委員長：勝村庸介先生）（表 2）を設立し、2 年間にわたって 17 回の準備会を重ねました。この活動では、Phébus FP プロジェクト実験に関する公開文献の調査に基づいて、議論を重ねました。その結果、原子炉インパイルループによる小型模擬実験の結果と福島第一原子力発電所事故との対比を明確にした上で、Phébus FP プロジェクト実験の結果を実機事故の評価、今後の廃炉作業にどう生かせるのかを明確にして、技術報告書のドラフトを

表2「核分裂生成物挙動」研究専門委員会準備会

委員長	勝村 庸介（日本アイソトープ協会）
委員	青木 政徳（関西電力）
	石原 伸夫（三菱重工）
	伊藤 あゆみ（エネルギー総合工学研究所）
	内田 俊介（エネルギー総合工学研究所）幹事
	逢坂正彦（日本原子力研究開発機構）
	高阪裕二（ニュークリアデベロップメント）
	唐沢 英年（エネルギー総合工学研究所）
	桐島 陽（東北大学）
	鈴木 晶大（日本核燃料開発）
	荘田 泰彦（三菱重工）
	高木 純一（東芝）
	中野 純一（原子力損害賠償・廃炉等支援機構）
	中野 佑介（日本原子力発電）
	中村 康一（電力中央研究所）
	橋本 資教（電力中央研究所）
	埴 悟史（日本原子力研究開発機構）
	久宗 健志（日本原子力発電）
	古川 徹（東京電力）
	三輪 周平（日本原子力研究開発機構）
	和田 陽一（日立製作所）

完成させることができました。本報告書は、引用文献、資料からの図表の使用許諾権の確保はまだ残されており、4月には部会報告書として発刊を予定しております。

#### 4. Phébus FP プロジェクトの概要

Phébus FP プロジェクト（設立：1988年）は、フランス放射線防護原子力安全研究所 [IRSN、Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire、] と欧州共同体 (EC/JRC, Joint Research Center of the European Commission) が共同で主催、運営したものです<sup>5</sup>。IRSN の指揮のもと、仏国原子力庁 (CEA, Commissariat à l’Energie Atomique) が実験を実施しました。本プロジェクトの実験には、仏国の EDF、米国の USNRC、カナダの CANDU Owners Group, (COG)、日本の JNES と JAEA、韓国の原子力研究所 (KAERI)、スイスの Federal Nuclear Safety Inspectorate (ENSI) と Paul Scherrer Institute (PSI) が協力しました。1993年12月から2004年11月にかけて計5回の積分実験 (integral experiments) が実施されました。一連の実験で、燃料の溶融の進展、その後の放射性核種と構造材物質の放出、格納容器までの移行と局所蓄積が詳細に測定されました。実験で得られた成果のうち、オリジナルの詳細データはプロジェクト内にクローズされていますが、多くの成果が論文として公開されています<sup>6</sup>。本実験結果に基づいて、環境への放射性物質の放出、いわゆるソースターム、の組成を決定することで、軽水炉の事故解析コードの改良、改善のためのデータベースを提供することができました。こういった知識ベースは福島第一原子力発電所事故を含む過酷事故の要因解析にも適用され、適切な過酷事故のマネジメント手段適用の確立による大惨事の防止と影響の緩和のために有用であったと考えられています。

Phébus-FP 計画における実験装置の概要を図2に、また炉心の断面を図3に示します。

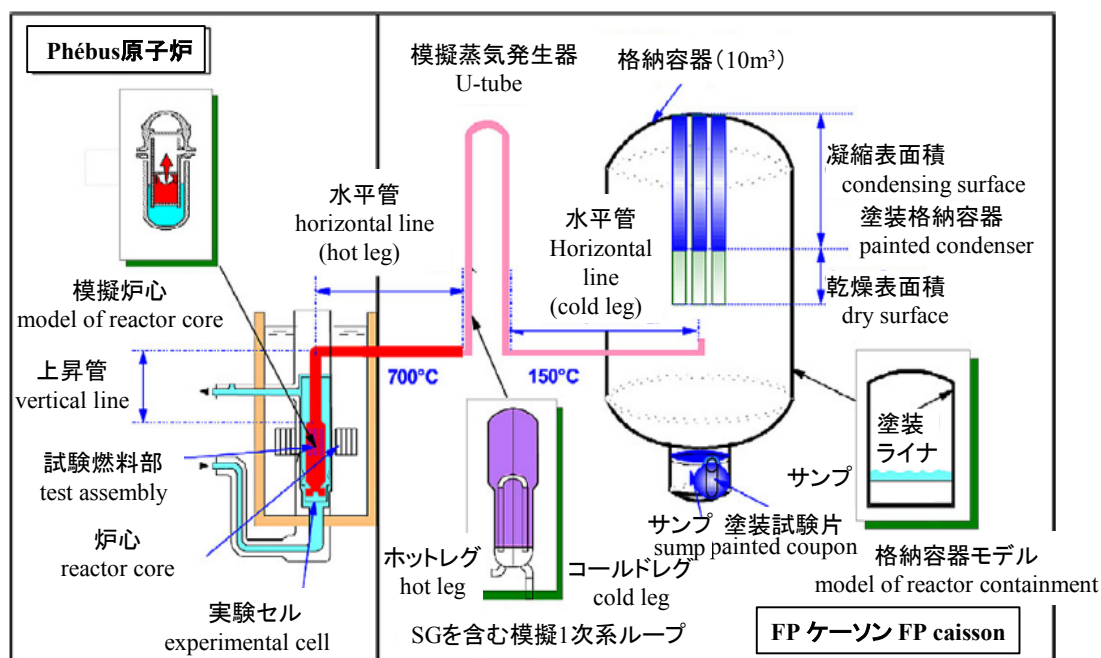


図2 Phébus FPプロジェクト 実験施設の概要(FPT0～FPT3実験)

<sup>5</sup> Schwarz, M., “Forward”, Annals of Nuclear Energy, 61, 1-3 (2013).

<sup>6</sup> Clement, B., et al., “LWA severe accident simulation: Synthesis of the results and interpretation of the first Phébus experiment FPT0”, Nucl. Eng. Design, 226, 5-82 (2003). ほか

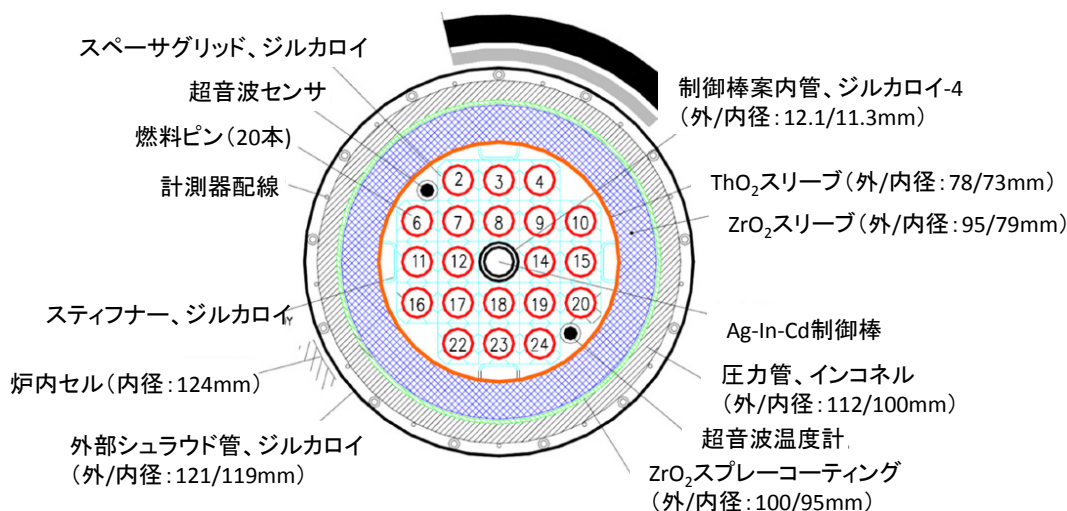


図3 Phébus FPプロジェクト 実験施設の概要(FPT0~FPT3試験部断面図)

実験に用いる燃料体をあらかじめ原子炉で照射し、原子炉の炉心部に挿入された燃料体を、原子炉で中性子照射によって駆動、発熱させ、燃料を溶融にまで至らせ、燃料体に蓄積していた FP を燃料体から放出させ、上昇管、水平管、模擬蒸気発生器伝熱管を通して、模擬格納容器まで移行させ、途中の配管への FP の付着量をオンラインγ線スペクトロメータで測定しました。一連の実験後、システムを除染し、FP の蓄積状況についての詳細なデータを得ています。

実施された 5 回の実験の目的と実験条件の概要を表 3 に示します。未照射燃料を用いた第 1 回目の FPT0 試験が 1993 年 12 月に、第 2 回目の FPT1 試験は照射済燃料を用いて 1996 年 7 月に実施された。FPT0 試験と FPT1 試験では、燃料やヨウ素の挙動についてはほぼ同様の結果が得られている。燃料の溶融は、予想された酸化ウランの融点以下で開始し、炉心の下端には溶融プールが形成されました。未照射燃料よりも照射燃料の方がより低温で溶融を開始しています。

表3 Phébus FP プロジェクトの試験マトリックス

試験#	燃料集合体	燃料劣化と研究目的	研究主目的(1次系)	研究目的(格納容器)	実験日
FPT0	新燃料棒20本 AgInCd制御棒1体 (9日間予備照射)	燃料溶融まで出力増大 低圧・高蒸気雰囲気 でFP放出	配管・SG管までの FP滞留 付着量評価	エアロゾル評価 ヨウ素放射化学 サンプル水pHの影響	1993/12/2
FPT1	BR3燃料 (~23GWD/t) AgInCd制御棒1体 (6日間予備照射)	FPT0に同じ	FPT0に同じ	FPT0に同じ	1996/7/26
FPT2	BR3燃料 (~23GWD/t) AgInCd制御棒1体 (9日間予備照射)	FPT0に同じ ただし高蒸気雰囲気	FPT0に同じ エアロゾルに及ぼす ホウ酸の影響評価	FPT0に同じ サンプル水pH: 9一定	2000/10/12
FPT3	FPT2に同じ BR3燃料 (~24GWD/t) B <sub>4</sub> C制御棒1体	FPT2に同じ	FPT2に同じ	FPT2に同じ	2004 pH:5 H <sub>2</sub> 再結合クーポン
FPT4	UO <sub>2</sub> -ZrO <sub>2</sub> 粒子 EDF燃料 エアロゾルの滞留 (~38GWD/t) 制御棒、追照射無	デブリベッドでの 溶解進展	in-pile上部フィルタへの		1999/7/22
FPT5	FPT1に同じ	燃料劣化 空気混入下のFP放出	空気混入下のFP 付着とその化学形態	FPT1/ FPT2に同じ (後日決定)	2007 (未実施)

Phébus FP プロジェクトで行われた FPT 0~4 で燃料棒 (模擬炉心) から放出された FP について測定された結果の一例を図 4 に示します。

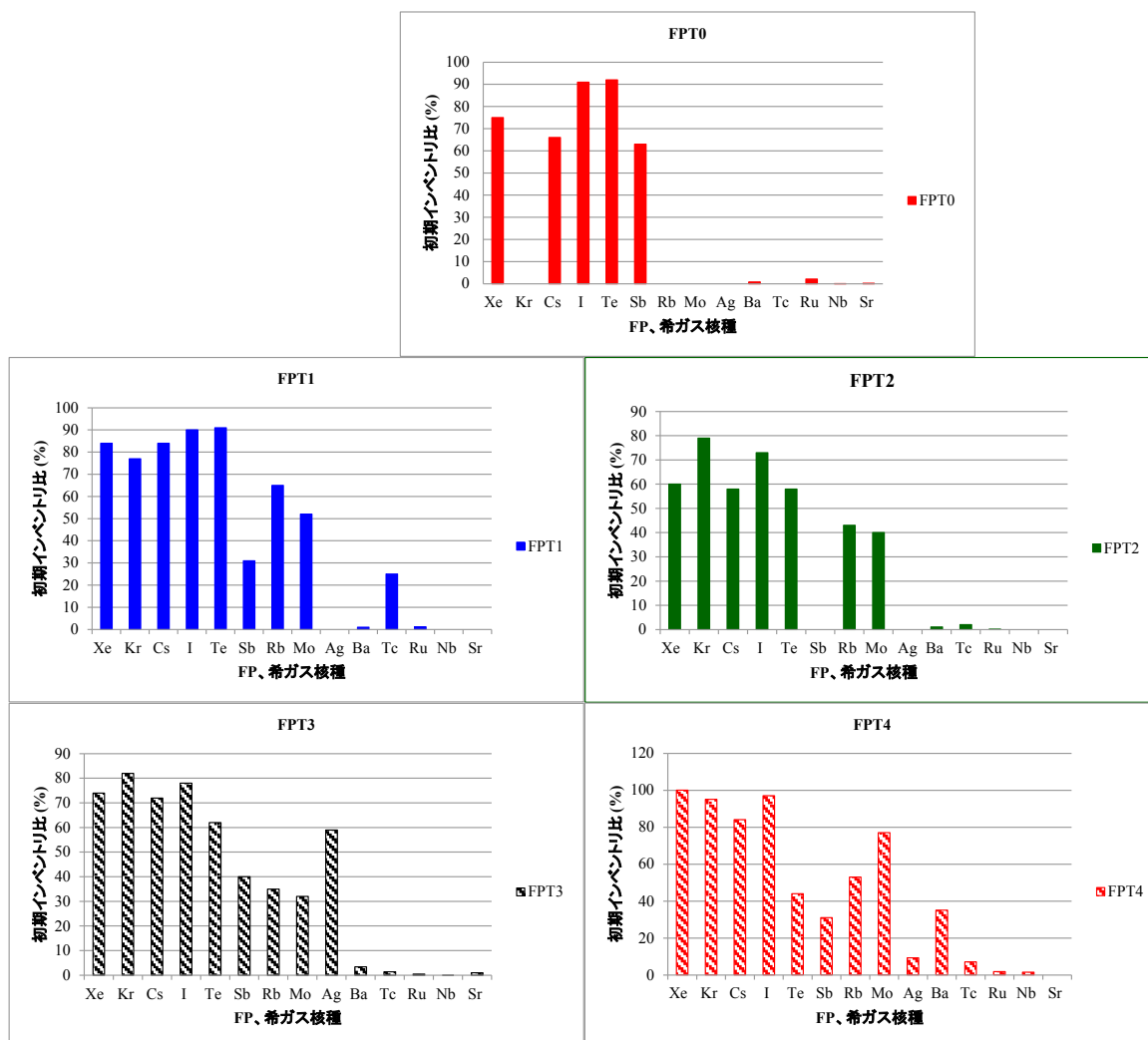


図4 Phébus FPプロジェクトから得られたFP挙動の実験結果の一例(FPループ、格納容器への放出量)

放出するFPは放出割合が高い順に、希ガス（Xe, Kr）、揮発性元素（I, Cs, Te, Sb, Rb, Mo）、半揮発性元素（Ru, Ba, La）、ほとんど放出しない燃料（Pu, U）に分類されました。

Phébus FPプロジェクトの成果をレビューし、議論した結果に、FPの基礎事象に関する知見を加えて、現在技術報告書（表4）にまとめています。データの詳細とその評価については、「FP挙動」研究専門委員会準備会の技術報告書 [「Phébus FPプロジェクトにおける核分裂生成物挙動のまとめ - 福島プラント廃炉計画および過酷事故解析への適用」（仮題）] に記載されております。

表4 技術報告概要

題目:	Phébus FPプロジェクトにおける核分裂生成物挙動のまとめ - 福島プラント廃炉計画および過酷事故解析への適用(仮題)
目次:	要旨 はじめに 1. 緒言 2. FPの基礎とFP研究の歴史の変遷 3. 通常運転時のFP挙動の概要 4. Phébus FPプロジェクトの主要成果のまとめ 4.1 Phébus FPプロジェクトの概要 4.2 FPT0の主要成果 4.3 FPT1の主要成果 4.4 FPT2の主要成果 4.5 FPT3の主要成果 4.6 FPT4の主要成果 4.7 Phébus FPプロジェクト全体を通して得られたもの 5. 福島第一原子力発電所事故時のFP挙動 6. 実機事故とPhébus FPプロジェクトの結果比較 7. 実験結果を用いた解析コードの評価 8. 今後に残された課題 9. 結言 おわりに

## 5. 現状と今後の対応

上記報告書は、4月発刊を目指し、現在報告書まとめの最終段階にあります。本報告書の原稿を持参し、各部会の責任者と専門委員会の設立と運営の折衝に入る段階にあります。既に、「燃料デブリ」研究専門委員会（主査：阿部弘亮氏、2016年6月-2018年3月、関連部会：核燃料部会）が設立され、活動を開始しておりますが、FP挙動に関する研究専門委員会は、「燃料デブリ」研究専門委員会とはある意味で、今後の廃炉活動を進める上での両輪技術と考えており、連携しながら活動してゆくことが重要と考えます。

報告書の内容は3月1日の水化学部会第29回定例研究会で報告し、部会内での周知を図る予定です。新しい「核分裂生成物挙動」研究専門委員会は4月発足の予定で準備しておりますが、FP関連研究者、技術者の裾野を広げるため、技術報告書については、大学他でも積極的に活用頂き、若い人にFPの特性とその挙動に馴染んで頂けるように、工夫して参りたいと考えております。

(2017年2月1日)