日本原子力学会「水化学」部会 第29回定例研究会 2017年3月1日(水) 日本原子力発電(株)本店

Phébus FP プロジェクトで得られた 核分裂生成物挙動

「過酷事故時の核分裂生成物(FP)挙動」研究専門委員会設立 に向けての活動状況

日本原子力研究開発機構 内田 俊介

背 景

- ・核分裂生成物(FP)の挙動は、原子炉固有の課題[原子炉工学の重要な技術項目]
 ・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
 ・欧州を中心に、Phébus FP プロジェクトで原子炉を用いたFP挙動モックアップ実験を実施
- 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、
 ・日米では、FP関連研究予算が縮小され、関連研究プロジェクト衰退。技術者の減少が顕著
- ・水化学の分野でも同様。著名な研究者が第一線を退き、技術伝承を危惧
- Phébus FP Proを含め事故時のソースタームでは、ヨウ素が中心。格納容器内挙動が主
 ・半減期が長く、長期間にわたって影響を及ぼすセシウムの議論はわずか。
 ・福島事故では、微粒子に付着したセシウムの環境に拡散、大量の汚染水が生成
 ・事故時の炉内/格納容器内、原子炉建屋内でのFP挙動把握が必須
- ・廃炉作業は、今後40年余にわって継続される息の長い事業。
 ・燃料デブリ取出し、廃炉作業を推進に当り、作業者の被ばくの抑制、内部被ばく抑制が必須課題。
 ・燃料デブリの取扱と併せて、作業計画および実施においてはFPに対する十分な知見不可欠。
- FP研究の復活、技術の再立ち上げ、長期間にわたる技術を維持、継続が必須
 計画的なFP関連研究者、技術者の養成と技術継続が必須
 技術継続のためには、新たな研究課題の策定が必要。
- ・原子力学会に複数の部会にまたがる研究専門委員会の設立を目指す

核分裂生成物(FP)の挙動に関する研究経緯

・核分裂生成物(FP)の挙動は、原子炉固有の課題

- ・燃料棒内に閉じ込める: 燃料破損に伴い放出、再処理時に放出(適正管理で対応)
- ・燃料棒内での挙動: 生成、燃焼、拡散などを精緻に究明。反応度への影響(ORIGENほか)
- TMI-2、チェルノビル事故後過酷事故対応(1980年代)
 ・事故時の対応:格納容器がFPの放出拡散抑制に有効[水素制御他に注力]
 ・過酷事故の燃料、FP挙動の国際プロジェクト(Phébus FPプロジェクト):In-pile模擬実験
 ・過酷事故を想定した深層防護:設計事象を超えた事象への対応
- ・2000年代に入り、特に日米で、過酷事故対応が下火 ・過酷事故対応が退行:水素燃焼対応、フィルタベントの設置は先延べ。非常用電源重視
- ・水化学におけるFP挙動研究
- ・破損燃料対応の水化学(被ばく線源への影響、破損燃料検出):燃料信頼性の大幅向上により退行 通常運転時のFP挙動(特にBWRにおける、FP挙動)研究は消失
 ・ヨウ素挙動、特に照射下のヨウ素挙動研究:ラジオリシス研究は続行
 ・一般FP挙動の研究者は、高年齢化。世代交代が難しく、関係研究者人口漸減
 ・他の部会も状況もほぼ同じ状況と推察される
- ・福島事故後のFP研究/技術ニーズ
- ・汚染水処理の水化学
- ・廃炉作業のための長寿命FP対応:今後40年間の技術を支える基盤技術の確立
- ・新規制、基準対応のためのFP化学(フィルタベント対応、深層防護レベル4対応のFP技術)
 - => FP関連技術のリバイバル、適切なTT推進(TTの基となる技術の集大成)

通常運転時のFP挙動(BWR)



No.3

事故時のFP移行プロセスとカテゴリ

水化学でカバーする領域



No.4

過酷事故時のFP移行の主要プロセス

No.5



核分裂生成物の生成と壊変スキーム

質量数	₅₀ Sn	₅₁ Sb	₅₂ Te	₅₃ I	₅₄ Xe	₅₅ Cs	₅₆ Ba	₅₇ La	₅₈ C2	質量数	
130	2.6m <	6.4m	st	[12.5h] →	st					130	
131	65s →	23m	30h ↓ 24.8m	8.06d <	[12d] ↓ st		半減期:s:和			131	
132	50s <	45s 3.1m	77.7h →	2.28h \rightarrow	st		St: 安定種	- , y. -		132	
133	$39s \rightarrow$	2.6m <	$\begin{array}{c} 52m \\ \downarrow \\ 12.4m \end{array} $	20.8h <	[54.2h] ↓ 5.27d	st				133	
134	$\sim 20s \longrightarrow$	$<1.5s$ \rightarrow	$43m \rightarrow$	52.8 m →	st	$ \stackrel{\downarrow (\mathbf{n}, \boldsymbol{\gamma})}{[(2.05y)]} - $	► st			134	
135		1.9m \rightarrow	29.5 →	6.75h <	15.7m ↓ 9.16h →	$\begin{array}{c} [53m] \\ \downarrow \\ 2e6y \end{array} \rightarrow$	[28.7h] ↓ st			135	
136				83s \rightarrow	st	[(13.5d)] →	st			136	
137				24.2s \rightarrow	3.9m \rightarrow	29.7y	2.5/m			137	
138				6.3s \rightarrow	14m \rightarrow	32.2m →	st st			138	
139				2.0m \rightarrow	40s \rightarrow	9.48m →	8.29m \→	st		139	
140					13 <u>.3m</u> →	<u>65s</u> →	12.80d	<u>40.23h</u> →	st	140	
					FPチ	ェインで	生成 🗌	安定なF	Pの放	τ射化で	で生成
短期·中	期·長期的	な観点で	重要となる	主な核分	·裂生成物		2.0				
短	期		期	4	 長期						
FP	半減期	FP	半減期	FP	半減期		D 1.5				
⁸⁸ Kr	2.8 h	⁹⁵ Zr	64 d	⁸⁵ Kr	10.7 y	- -	н I				
⁹¹ Sr	9.5 h	⁹⁹ Mo	2.8 d	⁹⁰ Sr	28.6 y			_	X		
97 Zr	17 h	105 Ru	39 d	¹⁰⁶ Ru	1.0 y	137,					
105 Ru	4.4 h	¹²⁷ Sb	3.8 d	^{110m} Ag	0.7 y				$\sim \lambda$		
133 I	20.8 h	131I	8.0 d	¹²⁵ Sb	2.8 y	5	5 0.5	/ 树桩	由レ134		比の相関
¹³⁵ Xe	6.6 h	¹³² Te	3.2 d	134Cs	2.1 y	-			文C		
¹⁴³ Ce	1.4 d	131Xe	5.2 d	$^{13}/Cs$	30.1 y		0 -	10	20	30	40 50
		$ _{140}Ba$	12.8 d	144Ce	284 d		U	10	20	30	40 50
		¹⁴¹ Ce	32 d	¹⁴⁴ Eu	8.6 y			燃	焼度 (0	GWd/toi	1)

燃料中の核分裂生成物の総量と放射能 [ORIGEN2コードによる計算値(1-3号炉の合計)]



出典[1] K. Nishihara, H. Iwmoto and K. Suyama, "Estimation of Fuel Compositions in Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant", Japan Atomic Energy Agency, *JAEA-Data/Code* 2012-018 (2012).

マスバランスに基づく蓄積量の評価

循環浄化評価の基礎式



ε: 初期放出率(-)、f:除染係数(-)、ζ:溶出率(1/s)、λ:壊変定数(0.693/T_{1/2})
 [¹³⁴Cs], [¹³⁷Cs]: 原子炉からのζ(1-ε) S_{134Cs}とζ(1-ε) S_{137Cs}が発生項
 [³T]: 原子炉からのζ(1-ε) S_{3T}が発生項 除去項がない分、C_{us}=0で希釈



原子力学会「福島第一原子力発電所事故に関する調査委員会」における水化学部会担当分野

出典[2] S. Uchida, et al., "Evaluation of Accumulated Fission Products in the Contaminated Water at the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant", *Nucl. Technol.*, 188, 252 (2014)

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+)



原子力学会「福島第一原子力発電所事故に関する調査委員会」における水化学部会担当分野

出典 [3] S. Uchida, et at., "Latest Activities of the AESJ Investigation Committee on the Nuclear Accident at the Fukushima Daiichi NPP", Int. Conf. on Water Chemistry of Nuclear power Systems, NPC2014, Oct. 26-30, 2014, Sapporo, Japan, AESJ (2014).

環境に放出されたFP量の評価結果

WSPEEDI: 1. 仮想放出量に対し、気象データベースに基づく空間分散解析 => 仮想FP分布 2. 環境測定データに基づく絶対放出量

3. 上記1の放出量を上記2の絶対放出量で規格化」

4. 時間依存FP汚染分布マップの作成



出典 [4] H. Nagai, et al., "Source Term Estimation for the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Accident by Combined Analysis of Environmental Monitoring and Plant Data through Atmospheric Dispersion", Proc. 16th Int. Topical Meeting Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-16), Hyatt Regency Chicago, Chicago, IL, USA, August 30-September 4 (in CD).

¹³⁷Csを主対象としたマスバランス



新しいデータに基づき,適宜リバイスする必要がある

- •福島廃炉関係には、汚染水処理、除染他、実務ベースで水化学部会メンバーの多くが関与
- 部会として寄与できるのは、FPに関わる基礎的な技術伝承
 - •FP関連の基礎テキスト作成と研究専門委員会を立ち上げてより実用的なテキスト作成
- •水化学ロードマップIIIでは、基盤技術に「FPの発生と移行」を追加

出典 [5] S. Uchida, et at., "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)

FP挙動研究専門委員会 水化学ロードマップIIIでの位置づけと活動状況

水化学ロードマップ	「「「字勁」「「小字」」安良云华调云
小心子ロードメソン	委員長 勝村 庸介(日本RI協会)
日候:小儿子による原ナガ光电ノブノトの	委員 青木 政徳(関電)
安全性・信頼性維持への貢献	石原 伸夫(三菱重工)
- ・構造材料の高信頼化	伊藤 あゆみ(エネ総研)
	内田 俊介(エネ総研)*1 幹事
☆応 力 腐良割れ	│ 逢坂 正彦(原子力機構) *¹
☆配管減肉	高阪 裕二(NDC) *1
☆SC長期信頼性確保	唐沢 英年(エネ総研)
☆	鈴木 晶大(NFD) *1
- ・燃料の高信頼化	荘田 泰彦(三菱重工)
☆被覆管の健全性	高木 純一(東芝)
	中野 純一(NDF)
交任能維持(CIPS)	
- ・環境負荷軽減	中村 康一(電中研)
☆プラント内被げく低減	橋本 資教(電中研)
	塙 悟史(原子力機構)
☆埬垷訫窨辁沨	久宗 健志(原電)
☆福島対応技術	古川 徹(東電)
- • 其般技術	三輪 周平(原子力機構) *1
上府今の甘泉ナキ	和田 陽一(日立)
∇腐良の季盛技術	
☆過酷事故時のFP挙動	*1 核燃料部会

*2 BE部会

「FD兴新」四方古明禾吕人淮岸人

• Phébus FP プロジェクト関連70余件の公開論文を精査

・17回の委員会で実験結果の相互比較

・技術報告書執筆、C&R、雑誌社からの図表の引用許諾を得て4月発行予定

Phébus FP Projectの狙いと原子炉事象との相違点

Phébus FPプロジェクト(設立:1988年)

- ・フランス放射線防護原子力安全研究所(IRSN)と欧州共同体(EC/JRC)が共同で主催
- カダラシュ研究所のPhébus研究炉を用いた過酷事故時の燃料損傷とFP放出移行に関する 大規模な総合実験 JNES、AEA(日本)、KAERI(韓国)、USNRC(米国)、CANDU Owners Group (カナダ)、 JNES、AEA(日本)、KAERI(韓国)、Federal Nuclear Safety Inspectorate, PSI(スイス)



Phébus FP プロジェクトを支えるプログラム



COBE,CIT, ENTHALPY, COLOSS: Core degradation and materials interaction 材料相互作用、デブリベッド等のモデル開発

PHEBEN, PHEBEN2, THENPHEBISP: Model development and code calculations for the interruption of Phebus FPモデル開発



Phébus FPプロジェクト 実験施設の概要 (FPT0~FPT3試験部断面図とサンプリング条件)



- ・X線トモグラフィ
- ・エミッションCT

⑤水平管コールドレグ ・オンラインγスペクトロスコピー 試験後yスキャン、化学分析

 ・オンラインγスペクトロスコピー ・サンプリング(γ測定、化学分析)

FP移行についての測定

計測点設置位置	パラメータ	計測機器
A 炉心部上部プレナム	温度	24 TC PHEBUS Reactor Phebus containment
B 燃料集合体	温度	45 TC 2 超音波温度計
	中性子束	4 フィッションチェンバ t 模擬SG細管
C ループ:SG入口部	温度	11 TC
	圧力	
	流量	3 組合せTC
	酸素ポテンシャル	
	γ線	
	FP	
		4 キャプセル,1 熱勾配管 Phebus reactor core hot leg coupon Model of reactor core
	エアロゾル密度	1 光学式オンラインモニタ 核出力ドライブで燃料溶融 vinuery circuit team contentator
F 蒸気発生器(SG)	温度	25 TC
	γ 線	1 γ線スペクトロメータ (+5 NaI チンチレータ)
	FP	SG 配管(破壊測定)
G ループ:SG出口部	温度	3 TC
	圧力	2 差圧伝送器
	γ 線	1 γ線スペクトロメータ
	FP	7 フィルタ,2 インパクタ,4 キャプセル
Η 格納容器	温度	31 TC + 27 TC (コンデンサ管内)
	圧力	4 差圧伝送器(ガス中)
	湿分	2 湿分セル
	水位	4 レベル計
	酸素ポテンシャル	2 酸素センサ,2水素センサ
	γ 線	3γ線スペクトロメータ(うち1個はMaypack)
	サンプ水pH	2 pH 計
	サンプ水pI	2ヨウ素電極、うち、一つはon-line
	FP	8 フィルタ、4 インパクタ、5 ヨウ素選択フィルタ(Maypacks) 1 on-line
		12 ガスカプセル,8 液体カプセル,8 付着クーポン,1 塗装サンプクーポン

Phébus FP プロジェクトの試験マトリックス

試験#	試験# 燃料集合体 燃料劣化と実験条件		研究目的	実験日		
			(1次系)	(格納容器)		
FPT0	新燃料棒20体	燃料溶融まで出力増大	配管-SG管までの	エアロゾル評価	1993/12/2	
	(9日間予備照射)	低圧·高蒸気雰囲気	FP滞留	ヨウ素放射化学		
	AgInCd制御棒1体	でFP放出	付着量評価	サンプ水pHの影響		
FPT1	BR3燃料(~23GWD/t)	FPT0に同じ	FPT0に同じ	FPT0に同じ	1996/7/26	
	(6日間予備照射)					
	<u>AgInCd制御棒1体</u>					
FPT2	BR3燃料(~23GWD/t)	FPT0に同じ	FPT0に同じ	FPT0に同じ	2000/10/12	
	AgInCd制御棒1体	ただし高蒸気雰囲気	エアロゾルに及ぼす	サンプ水pH: 9一足		
			ホウ酸の影響評価			
FPT3	BR3燃料(~24GWD/t)	FPT2に同じ	FPT2に同じ	FPT2に同じ	2004/11/18	
	B ₄ C制御棒1体					
				H2 冉 祜 台 ク ー ホン	1000/5/00	
FPT4		テノリペットでの	ルーノ上部ノイルタ		1999/7/22	
	EDF燃料(~38GWD/t)	浴所進展	でのエアロソル滞留			
	AgInCd制御俸 1本		上記の試験後検査			
FP15	FPTIに同し	空気混入下のFP放出	FP何看、化子形態	FPT1/FPT2に同し	木美池	
		2	0	<u> </u>		
	FPTO ? 3	FPT1	\sim FPT2	$1 = \frac{4}{2} = \frac{8}{2}$ FPT3		
					炉出力, 13)	
£ 4 □			$\mathbf{F}_{\mathbf{H}}^{4}$		←	
最 ²			或 ² /水蒸 <u>気流量</u>			
	$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	0 = + - +	$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$	0 12 14 16 18 20	
5 2	実験開始後の時間(ks)	実験開始後の時間 (ks)	実験開始後の時間 (ks)	実験開始後	の時間 (ks)	

FPT0-4の実験条件の比較(流動条件)

Phébus FP プロジェクトFPT1の成果例



Phébus FP プロジェクトFPT2の成果例

FPT2:PWR仕様でAgInCd制御棒使用:格納容器サンプのpHは9



図4.4-16 FPT2の燃料加熱フェーズにおけるヨウ素および セシウムの付着量分布の壁面湿度 (サンプリング開始時および終了時)依存性

FPT3では制御棒に B_4 Cを使用:ボロンの影響増大、Agの影響緩和

 挙動	結果概要
被覆管の酸化と 水素発生	 水素発生速度はFPT2実験と同様で 水蒸気雰囲気の結果よりも低い
燃料リロケーシ ョン	 B₄C制御材において高温で低粘性の 酸化ホウ素(B₂0₃)溶融体が形成さ れ、これにより制御棒損傷が加速さ れた
FP 及び制御材の 放出挙動	 燃料上部グリッド箇所にCs, I等の 揮発性FPが沈着した 制御棒破損時にC0, C0₂が放出した た
FP及び制御材の 移行/付着挙動	 ・ Ag-In-Cdが存在しないため、ヨウ素のエアロゾル形成が抑制され、ガス状のヨウ素の割合が高くなった ・ B化合物がコールドレグ入口で多量に沈着し、配管を一部閉塞した ・ ヨウ素(エアロゾル状)はB化合物の配管閉塞により格納容器への移行割合が低くなった
	 エアロゾルにBが含まれている以外、エアロゾルの組成は他の実験とほぼ同じであった 格納容器内のヨウ素は主にガス状であった。
ヨウ素化学	 一次冷却系条件においてガス状 ヨウ素の生成割合が高かった 凝縮器ペイント材に吸着したガス 状ヨウ素がペイントと反応して有 機ヨウ素を生成した



格納容器に放出されたエアロゾル成分



Phébus FP プロジェクトFPT4の成果例

FPT4では燃料損傷晩期での燃料の気化、低揮発性FPの放出挙動に着目



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 No.26 (水素発生量、エアロゾルの成分)





格納容器に流入したエアロゾルの組成(全物質)

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 No.27 (FPループ、格納容器への放出量)



得られたデータの再評価が必須。 Phébus FPクトの全貌が把握出来た段階で すべてのオリジナルデータが開示されてはいない。 再評価は今後の課題



技術報告書概要

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研究の歴史的変遷

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の概要と主要成果

4.3 FPT1の概要と主要成果

4.4 FPT2の概要と主要成果

4.5 FPT3の概要と主要成果

4.6 FPT4の概要と主要成果

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

・水化学部会技術報告書として4月末発行の予定

「過酷事故時の核分裂生成物挙動」研究専門委員会発足予定(4月末を予定)
 本報告書を共通のデータベースとして、現象の掘り下げ、過酷事故コードの検証他に活用