

核燃料部会、熱流動部会、計算科学技術部会、保健物理・環境科学部会、水化学部会
合同セッション

**福島第一原子力発電所事故時の核分裂生成物挙動
—事故時のFP挙動の概要と今後の総合的ソースターム解析への道—**

Behavior of fission products in Fukushima Daiichi NPP under severe accidents
- Overview of FP behavior under accidents and approaches toward advanced source term analysis -

*内藤 正則¹ *永井 晴康² *内田 俊介¹ *逢坂 正彦² 越塚 誠一³

¹エネ総研, ²JAEA, ³東大

1. はじめに

「福島第一原子力発電所事故に関する調査委員会」における調査活動およびその議論において、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た。廃炉検討委員会においても、ソースターム評価を重要課題の一つとして取り扱っている。本合同企画セッションでは、各部会での最近の活動状況を紹介し、先の合同企画セッションの結論である「部会の枠を越えた新たな検討組織設立と研究人材の育成」に向けた建設的な意見交換を行うことを目的として、企画されたものである。

ソースタームを、発生・移行経路に沿ってみると、以下のように大きく3つに分けられる。

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PHEBUS 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。

本セッションでは、部会に固有の視点から、実機事故の評価に基づく、FP挙動評価における新しい知見、問題点を集め、議論することにより、事故時のFP挙動を把握、整理すると共に、複数の部会にまたがる境界領域の課題として、今後の総合的なソースターム解析への道筋を明確し、新しい研究計画立案に資する。

*Masanori Naitoh¹ Haruyasu Nagai², Shunsuke Uchida¹, Masahiko Oshaka² and Seiichi Koshizuka³

¹Institute of Applied Energy, ²Japan Atomic Energy Agency, ³University of Tokyo.

2. 事故時のFP挙動評価の概要 (Evaluation of FP behavior under accidents)

2-1. SAMPSON コードにおけるFP挙動の評価手法

① FP インベントリ：ORIGEN をベースとした JAEA データ (JAEA-Data/Code 2012-18)

② 燃料ペレットからの FP 放出：

(a) 結晶粒内は濃度拡散で移動し、粒界に到達した FP は直ちに燃料ペレットと被覆管のギャップに蓄積される。

(b) 被覆管が損傷あるいは溶融すると、ギャップに存在していた FP は冷却材中に放出される。

③ 放出された FP の移行

(c) FP 核種の沈着などの移行過程と、物質の流れによって運ばれる輸送過程を評価。このとき、以下の現象を考慮する。

- 核形成による気体状 FP 核種から粒子への変換
- 自由エネルギー最小化法による化学形態変化過程 (FP 化合物：CsOH, CsI, I₂, HI, HOI, Te₂, H₂Te)
- 多成分エアロゾルの成長
- 構造物表面への FP 核種の凝縮や吸着
- スプレイによるエアロゾル除去
- エアロゾルの壁面や床への沈着、壁面からの再蒸発、再浮遊
- 冷却材中への FP 核種の溶解
- スクラビングによるエアロゾル除去

2-2. 結果 (1号機の例)

図 1, 2 に SAMPSON による 1 号機解析の結果を示す。

2-3. 課題

SAMPSON で解析された FP の環境への放出量は、環境 MP 等での実測値に基づく逆計算の結果より桁違いに少ない。この原因は主に、(a) FP の壁面付着量と (b) サプレッションプール(S/P)におけるスクラビング効果を過大評価している点にあると考えられる。特に後者については次の点を考慮して物理モデルの改良あるいは新規追加が必要と考えている。

S/P では温度成層化により、上部の水温はほぼ飽和温度に達していたと考えられる。この場合、S/P に放出された蒸気(FP を含む)は不完全凝縮を起す。また、ウェットウェルメントの際には、減圧沸騰に伴う液滴のエントレインメントが無視できない。このような現象を考慮してスクラビング効果のモデルを検討する必要がある。

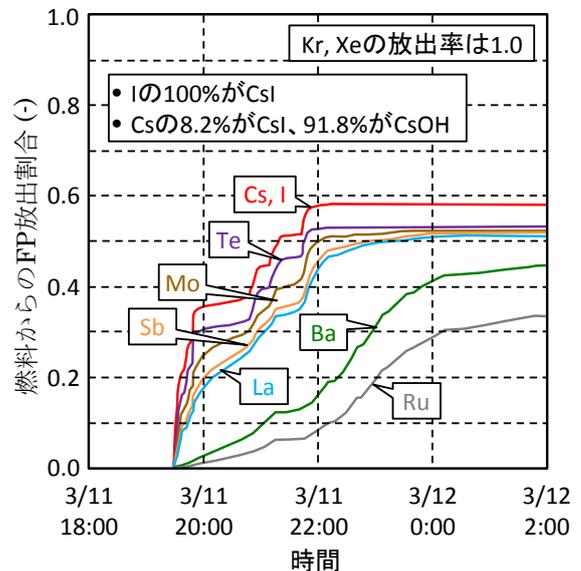


図 1 燃料からの FP 放出

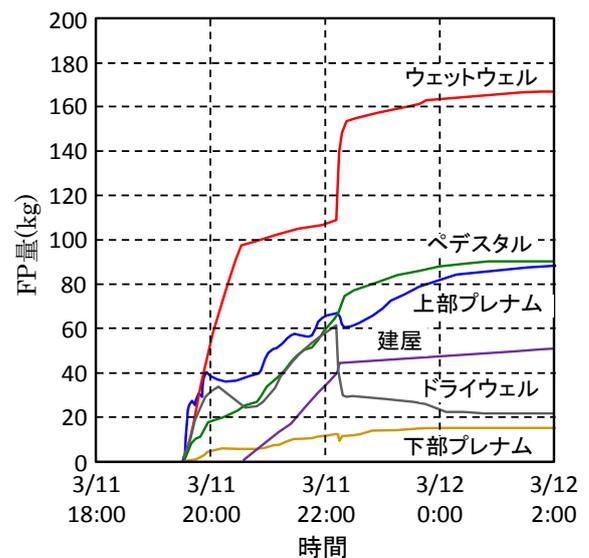


図 2 FP 移行挙動

[内藤 正則]

3. 環境測定に基づく放出量評価 (Evaluation of FP release based on the environment data)

3-1. 緒言

2011年3月に起きた福島第一原発事故による環境影響や公衆の被ばく線量を評価する上で、放射性物質の大気中への放出量と拡散状況を明らかにすることは重要である。原子力機構では、環境モニタリングデータと緊急時大気拡散予測システム WSPEEDI を用いた大気拡散シミュレーションに基づき、放射性物質の大気放出量推定と大気拡散解析を行ってきた[3-1 - 3-4]。また、海洋中放射性核種移行モデル SEA-GEARN を用いた海洋拡散シミュレーション結果から、大気放出量の補正を試みた[3-5]。この放出量推定結果は、他の推定結果との比較や多くの大気拡散モデルの入力として用いることで妥当性が確認され、国連科学委員会 (UNSCEAR) 2013年レポートにおいて、モニタリング結果に最も即した放出源情報として事故影響評価に利用された。しかし、UNSCEAR2013 レポートで今後の課題として指摘されているように、この放出量推定には不確実性があり、さらなる新規データの利用や解析手法の改良により改善する必要がある。そこで、新たな環境モニタリングデータの利用と WSPEEDI の沈着過程の精緻化により詳細な放出量推定を行った[3-6]。この推定放出量を用いた大気拡散計算によって、航空サーベイによる放射性ヨウ素・セシウム沈着量分布が良好に再現された。さらに、環境モニタリングデータと炉内インベントリの ^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能比を比較することで、各原子炉における期間ごとの放出状況の推定を試みた。

3-2. 手法

炉内インベントリの ^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能比は、燃料の燃焼度により異なることから、福島第一原発の1、2、3号機の炉内インベントリは、それぞれ固有の ^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能比を持っている。西原ら[3-7]の炉内インベントリ解析で得られた放射能比が炉内で一様に分布すると仮定し、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の環境放出から大気拡散、地表沈着、土壤中移行までのプロセスが同等であることを考えると、三上ら[3-8]の環境モニタリングによる沈着量測定における ^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能比から、その地表汚染への各原子炉からの放出の寄与を評価することができる。この関係と上記推定放出量[3-6]を用いた WSPEEDI の大気拡散シミュレーション結果を比較するとともに、東京電力の事故報告書[3-9]の事象進展も参考にして、放出量が増加した期間について放出に寄与した原子炉を推定した。

3-3. 結果

本推定結果から、福島県東部の高汚染地域は、3月15日の2号機と3号機からの放出によるものであり、主たる放出源は時間帯により異なることが示唆された。また、岩手県と宮城県の県境、及び霞ヶ浦周辺で3月20～21日に降水による汚染が形成され、前者は3号機、後者は2号機からの放出が原因と考えられる。

[参考文献]

[3-1] M. Chino et al., J. Nucl. Sci. Technol., 48, 1129-1134 (2011)., [3-2] G. Katata et al., J. Environ. Radioact., 109, 103-113 (2012)., [3-3] G. Katata et al., J. Environ. Radioact., 111, 2-12 (2012)., [3-4] H. Terada et al., J. Environ. Radioact., 112, 141-154 (2012)., [3-5] Kobayashi et al., J. Nucl. Sci., Technol., 50, 255-264 (2013)., [3-6] G. Katata et al., Atmospheric Chemistry and Physics, 15, 1029-1070 (2015)., [3-7] 西原ら, JAEA-Data/Code 2012-018 (2012)., [3-8] S. Mikami et al., J. Environ. Radioact., 139, 320-343 (2015)., [3-9] 東京電力, 福島原子力事故調査報告書 平成24年6月20日 (2012).

[永井 晴康]

4. マスバランス評価に基づくプラント全体での挙動把握 (FP behavior based on mass balance)

4-1. Phebus FP プロジェクトから得られた知見と福島第一原子力発電所事故からの知見のギャップの解消

水化学部会としては、学会事故調に引き続き、廃炉検討委員会においても、汚染水評価を担当すると共に、2014年の4部会合同企画セッションで議論されたFP挙動評価を担当している。特に、FP挙動評価では、FP挙動に係る人材の発掘と育成を目指し、将来の複数の部会よりなる研究専門委員会設立を見据えて、部会内に「FP挙動」研究専門委員会準備会を組織した。これまで出版・公開されているPhebus FPプロジェクト関連の100余件論文を読み合わせ、プロジェクト全体の成果を教育用資料としてコンパクトにまとめると共に、これまでの知見と実際に福島第一原子力発電所で見られた事象の差異を検討し、まとめつつある。本成果は、部会報告書として2016年度に出版する予定である。

4-2. 前進法と後進法を結合したFP挙動解析の提案

福島第一原子力発電所での過酷事故解析およびプラント内外でのFPに関する測定が進み、両者の比較検討が少しずつ進められている。残念ながら、原子炉建屋内、格納容器内など発生源に近い箇所での測定は、まだ様々な制約があり、ごく一部のデータしか得られていないのが実情である。原子炉の燃料から放出されたFPの移行、放出については過酷事故解析コードで解析、評価されている。詳細は本稿の第2章でも記載されているが、図4.1に模式的に示すように、事故の進展に沿って、現象を定量化して、FPの移行、放出を定量化するものである[4-1]。いわゆる、前進法解析(FEP: Forward Evaluation Procedures)である。一方で、環境側では、本稿3章に記載されているように、膨大な環境中の放射能、線量率データに基づき、プラントからの放出量の経時変化が求められている。また、汚染水として処理されているセシウムを中心とする放射能データの蓄積も進んでいる。まだ評価途上ではあるが、格納容器、サプレッションプールに設けられたCAM(S: Containment Atmosphere Monitoring System)で測定された線量率、原子炉建屋内で測定された線量率などから、原子炉、格納容器内のデブリ中の主要核種の量、サプレッションプール水中に残留する福島第一原子力発電所、建屋床面、壁面に付着、蓄積する主要核種の量を推定することができる。こういった事故の結果事象データに基づいて、逆に移行量を求める手法[FEPに対して後進法解析(BEP: Backward Evaluation Procedures)と称する]を

組み合わせると、FEPを適正に補完し、その評価精度を向上させることができると共に、プラントでのFP挙動の全貌を描画することが可能となる。もちろん、これだけでは十分ではないが、前進法と後進法を合わせて、新たな測定データを加え、FP挙動の実態把握を進めると共に、推測に頼らざるを得ない原子炉、格納容器ほかの、主要部の主要核種の残存量を明らかにして、今後のデブリ取出し、廃炉作業に少しでも寄与することを目指す。

4-3. マスバランス評価

環境データ、汚染水データそして線量率データより求めた放出量、残存量の和は、ORIGEN 2 コードで求めた初期インベントリの過半を超えている。最終的には、両アプローチからの値が合致することを目指す。

[参考文献][4-1] S. Uchida, et al., “An approach toward Evaluation of FP Behavior in NPPs under severe accidents”, 16th Int. Topical Mtg. on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-16), Chicago, IL, USA, August 30-September 4, 2015 [内田俊介]

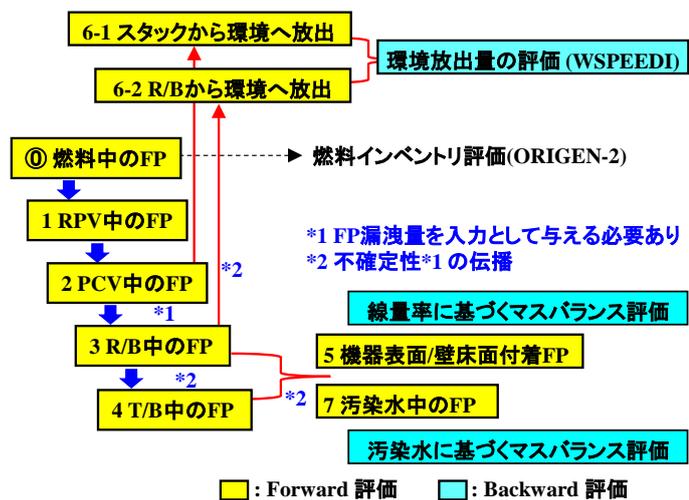


図4-1 FP移行の主要プロセス

5. FP挙動に係わる基礎事象と新たな研究への挑戦 (Fundamental aspects of FP behavior and challenge toward further research subjects)

福島第一原発（1F）廃止措置に向けたデブリ取出しや廃棄物処理処分のための技術開発においては、1F炉内外におけるセシウム（Cs）等のFPの分布と性状に関する知見を整備する必要がある。このためには、1Fシビアアクシデント（SA）事象解明を通じた炉内状況把握や環境動態評価の高度化等において重要なインプットとなる炉内ソースターム評価の精度向上が不可欠である。そこで我々はソースターム評価精度の向上のために必須となるFP放出移行挙動評価の高度化に向けて、放出移行挙動を支配するFPの化学挙動に着目した基礎研究をすすめている。本研究においては、FPの炉内各所での付着状況や環境放出において境界点となる格納容器内でのFPエアロゾル組成等、FP性状に関する知見やデータを取得する。

ソースタームやFP放出移行に関する研究ではこれまでも多くの知見が得られてきているものの、未解明の事象・挙動も多い。そこで既往研究のレビューを行った結果に基づき、特にBWR-SAにおいて不確かさが大きい B_4 制御棒ブレード熔融崩落挙動、Cs等の炉内付着挙動、水蒸気欠乏雰囲気及ぼすFP挙動への化学的影響等の1F特有の事象に着目して以下の課題をまず設定した。C

1. ホウ素放出速度及び熱水力条件の変化がFP化学挙動に与える影響の体系的評価
2. 圧力容器上部等構造材高温部へのCs化学吸着・反応挙動解明
3. 炉内で生成するFP化合物の熱力学/物性データベースの整備
4. FP放出移行再現実験技術及びFP化学形直接測定技術の開発

FPは複雑多元系である燃料から放出され、炉内構造材と相互作用を生じつつ、連続的に変化する温度・雰囲気条件下で非平衡的に複雑な化学挙動を示しながら炉内を移行していく。このようなFPの化学挙動の解明に向けて、我々の基礎研究では熱流動等の影響を極力排した単純な系においてFP放出移行を再現する実験を行い、測定により直接的にFPの化学形を取得し、それらの反応速度論を考慮した解析によりFP化学挙動に係わる知見やデータを蓄積する（図5-1）。これを基に、実際の複雑な条件を考慮してデータベースを拡張し、化学モデルの構築や高度化を行う。ほとんど知見が無いが炉内構造物に付着して線源となる可能性があるCs化学吸着のメカニズム解明に関する研究等、FP挙動の重要な素過程についても調べる。

現在までに、CsはFeや不純物のSiと化学反応を生じて構造材に吸着し、付着特性は温度や雰囲気依存すること、またCsやヨウ素の化学挙動を決める制御棒ブレード熔融崩落時のホウ素の存在形態（ガス状ホウ素の放出速度）に不確かさが大きいこと等を明らかにした。FP放出移行再現装置のセットアップが完了したことから、今後は様々な試料を用

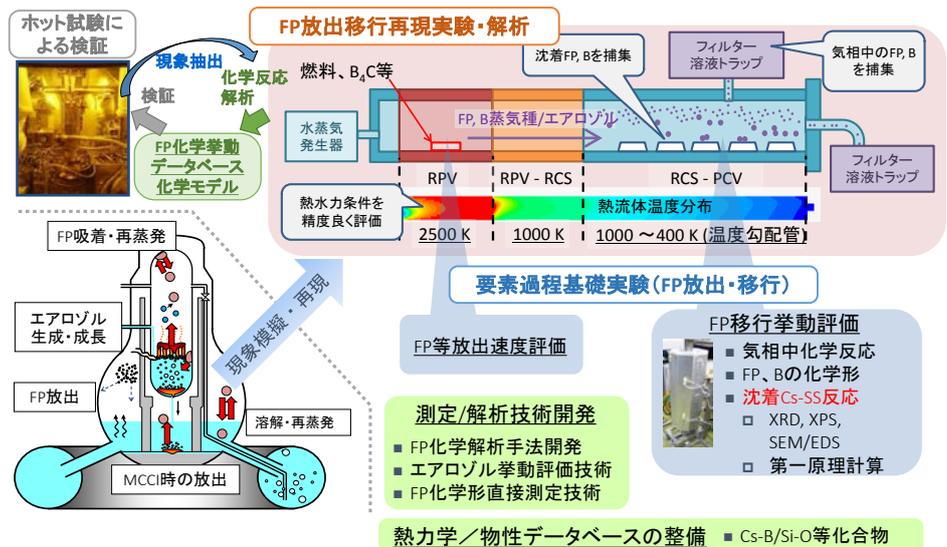


図5-1 FP化学挙動解明に向けた基礎研究

いた再現実験を行ってデータの取得と解析を行い、FP化学挙動に関する知見の整備を進める。

[逢坂 正彦、三輪周平, 中島邦久, DiLemma Fidelma-Giulia, 鈴木知史, 永瀬文久]

6. おわりに

各部会においてそれぞれ独自にソースタームについての議論が進んでいるが、原子力プラントの過酷事故というスケールの大きな課題に対しては、総合的かつ俯瞰的な視点での解析評価が不可欠である。事故を多角的に見つめ、全体としてバランスの取れた評価が求められる。一方で、本稿の2. - 5. の記載にも見られるように、まだ十分に解明されていない事象、現状で把握できていないデータも多い。こういった課題に対しては、今回参加した部会に留まらず、さらに多くの部会、学会員が参画できる総合的な研究専門委員会など、新しい受け皿を準備することで、ベテランから新人まで、様々な分野、階層の技術者、研究者が一同に介して、議論し、その結果をまとめることが肝要で、こういった活動を通して、ソースタームの予測技術の向上が期待され、ひいては原子炉の安全性向上に繋がるものと考えている。あわせて、懸案となっている技術転移の促進も期待できる。