

核分裂生成物化学挙動の解明に向けた基礎基盤研究

(3) ヨウ素及びセシウム蒸気種の化学形態評価における速度論適用の効果検討

Fundamental Research on Fission Product Chemistry

(3) Effect of chemical reaction kinetics on the chemical forms of iodine and cesium vapor species

*堀口 直樹¹, 宮原 直哉¹, 三輪 周平¹, 逢坂 正彦¹¹原子力機構

軽水炉シビアアクシデント時の燃料近傍(2500 K)から冷却系(700 K)への移行時を対象に、ヨウ素及びセシウム蒸気種の化学形態評価における速度論適用の効果を検討した。BWR 制御材ホウ素を含むセシウム蒸気種において速度論を適用する効果が大きく表れることが分かった。

キーワード: ヨウ素, セシウム, 化学反応速度論, 化学形態

1. 緒言

軽水炉シビアアクシデント時のヨウ素 (I) 及びセシウム (Cs) 等のソースターム評価精度向上のためには、核分裂生成物の放出移行に大きな影響を与える化学挙動を評価する必要がある。化学挙動評価において、炉内の比較的低温が低い箇所 (< 1000 K) では、化学反応速度論を考慮することが必要であり、関連する研究が主に欧州で実施されてきた^[1]。しかしながら、I 及び Cs の化学挙動に影響を与える BWR 制御材ホウ素 (B) ^[2]を含めた系における化学反応速度に関する研究はほぼ皆無である。そこで、本研究では、I、Cs、B、O、H を含む系における化学反応速度論適用の効果を明らかにすることを目的に、化学反応速度論を考慮して温度勾配下を移行する I、Cs 蒸気種の化学挙動を解析し、化学平衡計算 (瞬時に化学平衡に達すると仮定した計算) による結果と比較した。

2. 化学反応速度論適用による効果の検討

I、Cs、B、O、H を含む系の素反応に対する化学反応速度定数は文献値、あるいは文献値が存在しないものについては第一原理計算を用いた遷移状態解析により計算した値を用いた。解析モデルは、2500 K から 700 K まで直線的に温度が低下する円管 (図 1) とし、プラグフローにおける定常状態を仮定した。流体は、50 vol.%H₂O-Ar ガス (1 NL/min、1 atm) に微量 (1×10⁻⁸ mol) の CsI、H₃BO₃ を含むものとした。主要な I、Cs 蒸気種のモル分率の解析結果を、化学平衡計算結果と比較した例を図 1 に示す。

B を含まない化学種については、化学反応/化学平衡の両計算結果の差異は概ね 1000K 以下で表れている。

一方、Cs と B の化学反応により生成する CsBO₂ の場合、1500 K 以下の温度領域で化学反応/化学平衡の両計算結果は大きく異なっており、より高温まで化学反応速度論の効果が表われていることが分かる。すなわち、B を含む系においても化学反応速度論を適用することが不可欠であると言える。

3. 結論

軽水炉 SA 時炉内の比較的低温部における Cs 及び I 蒸気種の化学形態の評価において、B を含む系に対する化学反応速度論の適用要否はこれまで未検討であったが、本研究でその適用の必要性を確認した。

参考文献

[1]例: L. Cantrel, et.al., Annals of Nuclear Energy, 2013, 61, 170. [2] S. Miwa, et.al., Progress in Nuclear Energy, 2016, 92, 254.

*Naoki Horiguchi¹, Naoya Miyahara¹, Shuhei Miwa¹ and Masahiko Osaka¹

¹Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

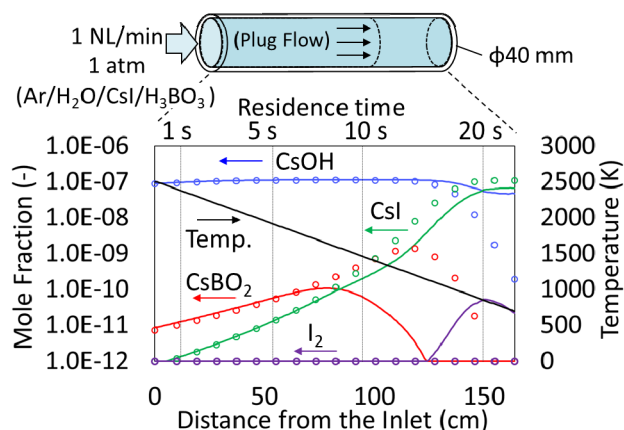


図 1 I 及び Cs 蒸気種のモル分率の解析結果
(実線: 化学反応計算、プロット: 化学平衡計算)