

核分裂生成物化学挙動の解明に向けた基礎基盤研究 (4) 炉内冷却系移行時におけるホウ素の化学挙動の評価

Fundamental Research on Fission Product Chemistry

(4) Evaluation of Boron chemical behavior during transport in reactor coolant system

*三輪 周平¹, 宮原 直哉¹, 堀口 直樹¹, 井元 純平¹, 中島 邦久¹, 逢坂 正彦¹

¹ 日本原子力研究開発機構

軽水炉シビアアクシデント時の炉内冷却系等高温部における BWR 制御材ホウ素の化学挙動を、ヨウ素及びセシウムの移行挙動への影響の観点も含めて評価した。水蒸気欠乏雰囲気下では、水蒸気雰囲気下に比べてホウ素の炉心からの放出量は低下し、低温部への移行量が低下すること等が分かった。

キーワード：ホウ素、セシウム、ヨウ素、化学挙動

1. 緒言

軽水炉シビアアクシデント (SA) 時のソースタームや福島第一原子力発電所 (1F) 炉内の放射性物質分布の評価精度を向上するために、SA 時の放出移行時における核分裂生成物 (FP) の化学挙動を解明し、モデル化することを目的とした基礎基盤研究を実施している。この中で BWR 制御材ホウ素 (B) は、セシウム (Cs) と化学反応を生じる可能性や冷却系配管に堆積して移行が阻害されること等、ヨウ素 (I) や Cs の移行挙動に影響を与えることが示されているものの[1]、その知見は僅少である。そこで、炉内冷却系移行時の B の移行挙動を明らかにすることを目的に、化学平衡計算により移行時の B の化学形を予測し、I 及び Cs の移行挙動への影響の観点も含めて、これまで得られた研究成果と合わせて化学挙動を評価した。

2. ホウ素の化学挙動の整理と考察 (丸括弧：本シリーズ発表番号、各括弧：参考文献)

水蒸気もしくは水蒸気欠乏雰囲気において炉心から放出した B、I 及び Cs が[2]、炉心冷却系を移行 (1350 K から 400 K) すると想定し、150 K 毎の化学平衡計算により移行時の B 化学形を予測した。この計算結果に、これまで得られた研究成果を合わせて、B の化学挙動を整理し、考察した。

水蒸気雰囲気において、炉心からの B の放出速度は、制御材溶融・崩落時のステンレス鋼等との反応による酸化速度の低下や安定な化合物 (Fe-B-O 化合物) の生成に起因して抑制される (1)。高温で放出を開始した B は、モリブデン (Mo) の放出が水蒸気雰囲気における酸化物形成により促進された (2) 後の Cs 放出後期において凝縮性の高い CsBO₂ 蒸気種を形成するが[2]、大部分は HBO₂、H₃BO₃ 等の蒸気種となる。このため、下図中の表に示すように 750 K 程度まで B の大部分は気相において移行する。ただし、移行時の CsBO₂ 蒸気種量は化学平衡計算ではその生成量を過大評価しており (3)、実際はより多くの B が H₃BO₃ 等として低温まで移行する可能性が考えられる。

水蒸気欠乏雰囲気において、炉心からの B 放出は、より安定な化合物 (Fe-B [2]) が生成されることにより抑制される。放出される B 量が少ない上、下図のように比較的高温部で B₂O₃ や CsBO₂ として凝縮を開始するために、化学平衡計算による B 蒸気種の過大評価を考慮しても、750 K 以下で移行量は大きく低下する。また、これらの B₂O₃ 蒸気種/エアロゾルは、水蒸気欠乏雰囲気で生成される CsI 沈着物[2]に作用して、ガス状の I を再蒸発させる可能性が示されている[3]。

3. 結言

B は、水蒸気雰囲気において大部分が低温部に移行していく一方で、水蒸気欠乏雰囲気下においては、放出量は低下し、Cs 化合物等として凝縮する等により低温部への移行量が低下することが分かった。

参考文献

[1] 例えば、T. Haste, et al., *Annals Nucl. Energy.* 61 (2013) 102, [2] S. Miwa, et al., *PNE* 92 (2016) 254, [3] 三輪ら, 原子力学会秋 2016, 2G14.

*Shuhei Miwa¹, Naoya Miyahara¹, Naoki Horiguchi¹, Junpei Imoto¹, Kunihiisa Nakajima¹, Masahiko Osaka¹

¹Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

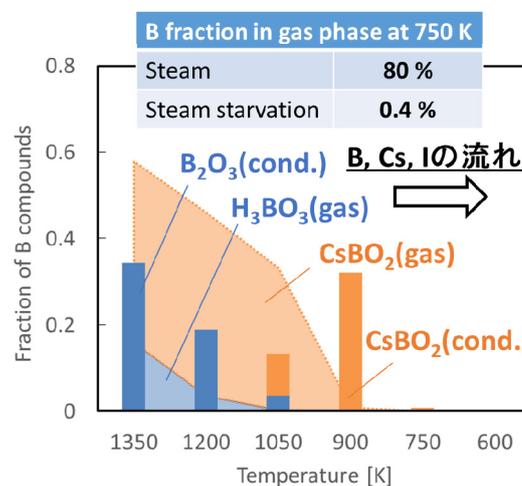


図1 水蒸気欠乏雰囲気における移行時の B の化学形 (蒸気種 : gas、凝縮相 : cond.)