

総合講演 報告2

「シビアアクシデント時の核分裂生成物挙動」研究専門委員会活動報告

Reports on Latest Activities of Research Committee on

Fission Product Behavior under Severe Accident

2. Phébus-FP実験から得られた知見と廃炉計画への反映（準備会活動の総括）

2. Major information obtained from Phébus FP Projects and

its application on Fukushima plant decommissioning

*唐澤 英年¹¹エネ総研

本研究専門委員会設立までの準備会において、Phébus FP 関連の論文 71 編を調査した。本発表では、準備会活動の成果としてまとめた技術報告書「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シビアアクシデント解析への適用—」[1]の内容を紹介する。

キーワード：Phébus FP 実験、核分裂生成物、福島第一原子力発電所、廃炉計画

Phébus FP プロジェクトは 1988 年に設立され、1993 年から 2004 年にかけて仏 Cadarache 原子力センターの Phebus 実験炉を用いて大規模 FP 放出・移行実験が計 5 回実施された。Phébus FP 実験は、900MW-PWR を模擬した 1/5000 スケールの体系で、模擬炉心、上昇管、水平管（ホットレグ HL、700℃に保持）、蒸気発生器を模擬した U 字管(SG)、水平管（コールドレグ CL、150℃に保持）、模擬格納容器(PCV)から構成された。

模擬炉心には、中央に制御棒を配し、その周りに 18 本の照射済燃料と 2 本の新燃料を装荷した。水蒸気を模擬炉心下部より供給し、炉出力を燃料が溶融するまで増加させた。燃料から放出した FP は一次系に沈着・移行して、PCV に蓄積した。その後 PCV を隔離して、エアロゾルとヨウ素の挙動を調べた。これら FP 挙動を評価するため、温度・圧力などの熱水力データを取得し、 γ 線スペクトロメータにより FP 濃度の経時変化をオンラインで測定した。また、エアロゾル濃度やヨウ素化学形もオンラインで測定した。実験後には、燃料領域に残存した放射能と上昇管に付着した放射能を測定し、 γ 線放出核種のマスバランスを求めた。

各実験の実験マトリックスを、表 1 に示す。各実験で得られた主な知見を、以下に示す。

➤ Phébus FPT0

- ・本実験装置でシビアアクシデント時に予測される現象を模擬できることを実証
- ・燃料は UO_2 の融点(3,110 K)より 500 K 低い温度で溶融、再配置
- ・水素の発生率および発生量の予測値は過大評価
- ・低揮発性および不揮発性 FP の放出率の予測値は過大評価

➤ Phébus FPT1

- ・制御棒破損温度は約 1,350 °C
- ・Cs は初期内臓量の約 84 % 放出し、その化学形は CsI, Cs_2O , CsOH, Cs_2MoO_4 と評価
- ・実験後の SEM 観察から、PCV 内のエアロゾルは球形で直径は 0.1~2 μm
- ・I は初期内臓量の約 90 % 放出し、0.4 % はガス状で PCV へ移行
- ・ペイントした凝縮器をソースとする有機ヨウ素生成

➤ Phébus FPT2

- ・低水蒸気流量のため、炉心上部の損傷は比較的少ない
- ・Te と Mo の放出は燃料被覆管が完全に酸化され、水素発生が低下した時点で開始
- ・燃料上部での最高到達温度は約 1,650 °C と比較的 low だったため、FP(Cs, I, Te, Mo など)が燃料棒上部の周辺領域に顕著に付着
- ・ガス状ヨウ素の割合は FPT1 より増加し、一次系の酸化還元状態の依存性は小
- ・PCV 内ではガス状ヨウ素が主で、有機ヨウ素は全ヨウ素の 30 % 以下

*Hidetoshi Karasawa¹¹The Institute of Applied Energy

- Phébus FPT3
 - ・ B₄C 制御棒のため低粘性の B₂O₃ を含む溶融体が生成し、制御棒損傷を加速
 - ・ 制御棒崩落時に CO 及び CO₂ が放出されたが、B の放出は遅れ放出割合も C に比べ低下
 - ・ B 化合物が CL 入口で多量に沈着し、配管の一部を閉塞
 - ・ 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、ガス状ヨウ素の割合が増加
 - ・ PCV 内の有機ヨウ素の割合はガス状ヨウ素全体に対して 20 %以下で、B₄C の酸化で生成する CH₄ の寄与はペイントへの反応と比べて小
- Phébus FPT4
 - ・ Ba は UO₂-ZrO₂ の酸化が十分なため放出量が増加
 - ・ マイナーアクチノイドは、上部プレナムに燃料粒子として付着
 - ・ Cs の再蒸発は高温(700~900 °C)で顕著で、水蒸気雰囲気では 14 %、水素雰囲気では 26 %が再蒸発
 - ・ 再蒸発割合は Mo で 20~30 %、Rb で 7~8 %、Sn は水蒸気雰囲気では再蒸発しやすい
 - ・ 少量の燃料成分が蒸気雰囲気では再蒸発

表 1 Phébus FP 実験の実験マトリックス

	目的	流入条件	燃料	格納容器
FPT-0	・炉心溶融進展 ・FP放出挙動	水蒸気 < 3.0 g/s (酸化条件)	・ 9日間照射新燃料 ・ Ag-In-Cd 制御棒	酸性サンブ 90°C
FPT-1	・炉心溶融進展 ・FP放出挙動	水蒸気 < 2.2 g/s (酸化条件)	・ BR3 23 GWd/tU ・ Ag-In-Cd 制御棒	酸性サンブ 90°C
FPT-2	・炉心溶融進展 ・FP放出挙動	水蒸気 < 0.5 g/s + ホウ酸 (蒸気枯渇条件)	・ BR3 32 GWd/tU ・ Ag-In-Cd 制御棒	アルカリ性サンブ 90°C (化学反応フェーズ 120°C)
FPT-3	・炉心溶融進展 ・FP放出挙動 ・制御棒材料の違い	水蒸気 < 0.5 g/s (蒸気枯渇条件)	・ BR3 23 GWd/tU ・ B ₄ C 制御棒	酸性サンブ 90°C (化学反応フェーズ 120°C) + 再結合器
FPT-4	・デブリからの低揮発性 FPとアクチノイドの放出	水蒸気 0.5 g/s + H ₂ (デブリヘッド形成条件)	・ デブリ塊 38GWd/tU ・ 酸化した被覆管破片	—

Phébus FP 実験で得られた知見から、熱水力と FP 挙動モデルの見直しが行われた。熱水力では、「B₄C 酸化モデル」、「物理—化学相互作用モデル」、「溶融プール形成モデル・酸化モデル」が見直され、FP 挙動では、「FP 放出モデル」、「FP 移行モデル」、「化学反応モデル」が見直され、シビアアクシデント解析コードの改良が行われた。

Phébus FP 実験全体で得られた FP 挙動に関する主な知見は、①燃料溶融時に揮発性 FP は 100 %放出する、②Ba, Te, Ce, La の燃料からの放出割合は従来知見より少く Ru, Mo は従来知見より多い、③Cs の化学形に Cs₂MoO₄ を考慮する必要がある、④PCV 内のヨウ素の化学形には不確定性が大きい、である。廃炉計画には、崩壊熱の評価が重要である。表 2 に、事故後 10 年での主な FP の崩壊熱と放出割合を示す。Phébus FP プロジェクトで得られた知見をベースに実機との相違に考慮して、原子炉内での FP 分布を評価し、廃炉計画に役立てていく。

表 2 10 年後崩壊熱に寄与する FP の燃料からの放出割合

FP	半減期 (年)	10年後崩壊熱[2] (GBq/core)	燃料からの積算放出量(初期内臓量に対する割合)				
			FPT0 (%)	FPT1 (%)	FPT2 (%)	FPT3 (%)	FPT4 (%)
Kr-85	10.8	1.21E+07	No data	77	79	82	90-100
Sr-90	28.9	1.18E+08	>0.23			1	1.4
Cs-134	2.1	6.63E+06	>66	84	58	72	84
Cs-137	30.2	1.61E+08					
Eu-154	8.6	3.85E+06					0.33
Eu-155	4.8	1.48E+06					

<参考文献>

[1] 水化学部会、「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シビアアクシデント解析への適用—」、日本原子力学会、2017.

[2] 西原、岩本、須山、「福島第一原子力発電所の燃料組成評価」、JAEA-Data/Code 2012-018.