

ソースターム評価手法の高度化に向けた核分裂生成物化学挙動データベース ECUME の開発

(1) 化学反応速度データセット

Development of fission product chemistry database ECUME for improved source term estimation method
(1) Dataset for chemical reaction kinetics

*三輪 周平¹, 堀口 直樹¹, 宮原 直哉¹, 中島 邦久¹, 鈴木 恵理子¹, 井元 純平¹, 劉 家占¹,
唐澤 英年¹, 逢坂 正彦¹

¹原子力機構

軽水炉等シビアアクシデント時における核分裂生成物化学挙動を評価するためのデータベース ECUME (Effective Chemistry database of fission products Under Multiphase rEaction) を開発した。ECUME の化学反応速度データセットにより、セシウム化学挙動へ与える BWR 制御材ホウ素の影響等を速度論的に評価できるようになるため、環境への放出に至るまでの化学形態や割合の予測精度の向上が期待される。

キーワード: 核分裂生成物, シビアアクシデント解析コード, セシウム, ホウ素

1. 化学挙動データベース ECUME 概要

軽水炉シビアアクシデント (SA) 時のソースターム評価手法の高度化に資するため、核分裂生成物 (FP) の核燃料からの放出挙動や炉内移行挙動に大きな影響を与える化学挙動を評価するためのデータベース ECUME を開発した。ECUME には、特に低温領域で重要となる速度論的な評価を可能とするための化学反応速度データセット (CRK: Dataset for Chemical Reaction Kinetics)、FP 挙動を評価するための要素過程モデルセット (本シリーズ発表 2 件目)、それらに使用する熱力学データセット (本シリーズ発表 3 件目) を格納している。ECUME は、これらのデータセットをもとに実用的な化学挙動モデルを構築することで、SA 解析コードの改良に反映することができる。

2. 化学反応速度データセット概要

化学反応速度データセットは主要な化学反応と化学反応速度定数から成り、被ばくの観点で重要なセシウム (Cs) やヨウ素 (I)、これらの化学挙動に大きな影響を与えるモリブデン (Mo) や BWR 制御材ホウ素 (B) 等のデータを取り込んでいることに特徴を有する。また、再処理施設事故においても重要となるルテニウム (Ru) を含む Ru-N-O-H 系も対象としている。気相化学反応については、文献値をレビューして反応速度定数を整備し、Cs と B の反応等、文献値の無いものについては、第一原理計算を用いてエネルギーが最も低い反応経路における遷移状態の分配関数より化学反応速度定数を算出した[1]。気相-固相間の化学反応についても整備する予定であり、これらは種々の化学条件をパラメータとした要素過程実験により整備する。

3. 化学反応速度データセット適用の効果・結言

CRK を用いて約 2500 K から約 700 K の領域を約 25 秒間で移行する仮想的な SA 条件で、化学反応速度論を考慮して CHEMKIN ソフトウェアにより Cs 化学種の存在量を解析し、既往の SA 解析コードで適用されている平衡条件での解析結果と比較した。平衡状態を仮定した場合の各 Cs 化学種の存在量は、低温側に移行するにつれ、CRK を用いた場合と大きく乖離することが分かった。この結果は、環境への放出に至る炉内低温領域までの化学形態や割合を評価するためには、化学反応速度論の適用が必要であり、CRK によりこれらの予測精度の向上が期待できることを示している。

参考文献

[1] 例えば、N. Miyahara, et al., JNST, 56(2) (2019) 228-240.

*Shuhei Miwa¹, Naoki Horiguchi¹, Naoya Miyahara¹, Kunihisa Nakajima¹, Eriko Suzuki¹, Junpei Imoto¹, Liu Jiazhan¹, Hidetoshi Karasawa¹ and Masahiko Osaka¹

¹Japan Atomic Energy Agency

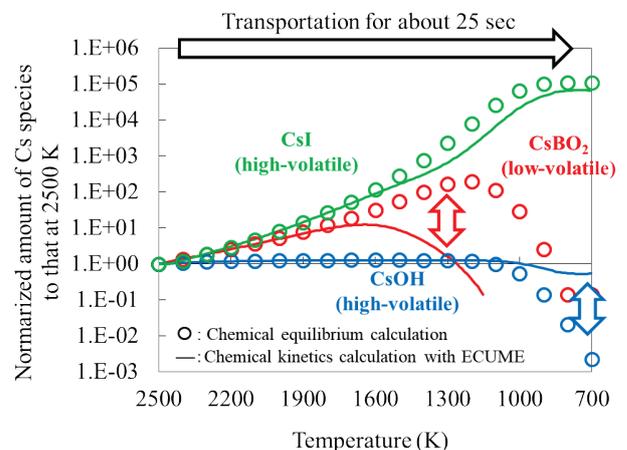


図1 低温側に移行していく場合の各 Cs 化学種の存在量 (2500 K の値で規格化)