

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

(3) 熱力学データセット

Development of fission product chemistry database ECUME for improved source term estimation method
(3) Thermodynamic dataset

*中島 邦久¹, 鈴木 恵理子¹, 西岡 俊一郎¹, 三輪 周平¹, 堀口 直樹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

核分裂生成物化学挙動データベース ECUME の熱力学データセットには、セシウムとホウ素やケイ素との化合物等の熱力学データを収納している。これにより、炉内高温領域におけるセシウム化合物の化学形態や割合、鋼材に化学吸着したセシウムの再蒸発挙動をより正確に評価することが可能となる。ECUME をシビアアクシデント解析コード等へ適用することにより、核分裂生成物の放出移行挙動に影響を及ぼす化学挙動を考慮できるようになり、ソースターム評価手法の高度化への貢献が期待される。

キーワード: セシウム, 熱力学, ケイ素, ホウ素

1. 熱力学データセット概要

セシウム (Cs) 化合物の揮発特性や構造材との化学反応による固着性は化合物の種類によって大きく異なるため、軽水炉シビアアクシデント (SA) 時の Cs の放出移行挙動評価には、Cs 化合物の化学形態や割合に関する情報が不可欠である。特に、SA 時に化学平衡が成立するような炉内高温領域では、熱力学的な解析手法が Cs 化合物の化学形態や割合の決定に有効となる。現行 ECUME の熱力学データセット (TD: ThermoDynamic dataset) には、SA 時の Cs の主な化学形の一つと考えられている気体ホウ酸セシウム $\text{CsBO}_2(\text{g})$ や、気体水酸化セシウム $\text{CsOH}(\text{g})$ と鋼材との化学吸着により生成する固体ケイ酸セシウム $\text{CsFeSiO}_4(\text{s})$ 等の熱力学データが整備されている。

$\text{CsBO}_2(\text{g})$ の熱力学データについては、高精度な CsBO_2 の平衡蒸気圧データを取得することで不確かさを 5% 以上から 1% 程度まで低減している[1]。一方、 $\text{CsFeSiO}_4(\text{s})$ 等の測定値の無い熱力学データについては、絶対 0 度付近から室温近くまでの低温熱容量測定データや第一原理計算等を用いて評価している[2]。

2. 熱力学データセット適用の効果

図 1 に一例として福島第一原子力発電所 (1F) 1 号機事故条件を想定した条件下での化学平衡計算結果を示すが、本 TD に収納された $\text{CsBO}_2(\text{g})$ の熱力学データを用いることで、これまでよりも Cs 化合物の化学形態や割合を 5 程度精度よく評価できるようになった。一方、 $\text{CsFeSiO}_4(\text{s})$ 等の熱力学データを新たに整備することで、鋼材に化学吸着した Cs の再蒸発挙動[3]を定量的に評価できるようになった。

3. 結言

これまで化学挙動の取扱が不十分であった SA 解析コード等に対して ECUME に基づくモデル、例えば、低温領域に至るまでの Cs 化合物の化学形態や割合、また様々な化学条件を考慮可能な構造材への化学吸着モデル等を適用することにより、SA 時の Cs の放出移行過程における化学挙動をシミュレーションすることができるようになり、ソースターム評価手法の高度化への貢献が期待される。

参考文献

[1] K. Nakajima, Mass Spectrom (Tokyo) (2016) S0055. [2] F. Miradji et al., Proceedings of ERMSAR2019. [3] 中島他、原子力学会 2018 年春の年会[2M12]

* Kunihiisa Nakajima¹, Eriko Suzuki¹, Shunichiro Nishioka¹, Shuhei Miwa¹, Naoki Horiguchi¹, Junpei Imoto¹, Liu Jiazhan¹, Hidetoshi Karasawa¹ and Masahiko Osaka¹ ¹Japan Atomic Energy Agency

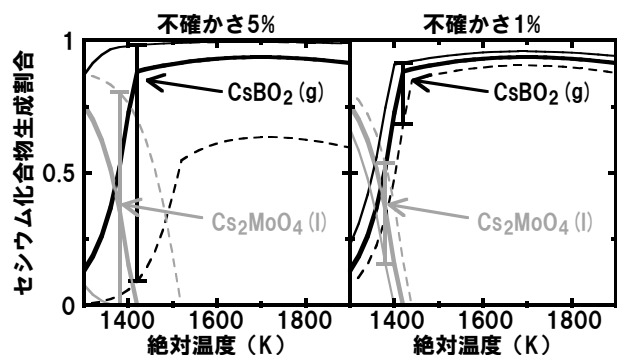


図 1 1F1 号機事故条件($\text{H}_2/\text{H}_2\text{O}=0.1$)下での Cs 化合物生成割合 (g: 気相, l: 液相)