

## 原子力施設の重大事故時における Ru 化学挙動のデータベース構築

Development of Ru chemistry database under severe accident conditions of nuclear facilities

\*宮原 直哉<sup>1</sup>, 三輪 周平<sup>1</sup>, ミラジ ファウラ<sup>1</sup>, 劉 家占<sup>1</sup>, 堀口 直樹<sup>1</sup>, 逢坂 正彦<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 日本原子力研究開発機構

原子力施設の重大事故におけるソースターム評価の高度化に資するため、気相中の Ru-N-O-H 系化学反応速度定数のデータベースを構築し、試解析により Ru 化学形態評価に適用可能であることを確認した。

**キーワード:** 原子力施設、重大事故、化学、データベース、ルテニウム

### 1. 緒言

軽水炉や再処理施設等の原子力施設の重大事故時に放出される Ru は化学形態ごとに揮発性等の性質が異なるため、ソースターム評価においては、その化学形態を正確に取り扱う必要がある。Ru 化学形態は、雰囲気中の HNO<sub>3</sub> や NO<sub>x</sub> 等の N-O-H 系化学種に大きく影響される[1]。また、化学平衡到達までに長時間を要する中～低温領域 (< 1000 K) においては、化学反応速度を考慮した Ru 化学形態の評価が必要である。従って、重大事故時に放出される Ru 化学形態を正確に評価するためには、Ru-N-O-H 系化学反応速度定数のデータベースが必要である。そこで本研究では、気相中の化学反応に着目した Ru-N-O-H 系化学反応速度定数のデータベースを構築し、試解析により、その適用性を確認した。

### 2. 化学反応速度定数データ整備及び試解析

主要な Ru-N-O-H 系化学種を含む化学反応を対象とし、文献値、また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[2]に基づき、化学反応速度定数のデータを整備した。構築したデータベースを用いた試解析として、一様な空間内 (10<sup>5</sup> Pa) における Ru 化学形態を、温度をパラメータとして解析した。初期組成として、空気と水蒸気の混合雰囲気中に少量の RuO<sub>2</sub> が存在するものとした (Air : H<sub>2</sub>O : RuO<sub>2</sub> = 0.5 : 0.5 : 10<sup>-8</sup>)。一例として、1000 K での Ru 化学形態を図 1 に示す。化学反応により RuO<sub>2</sub> の化学形態が徐々に RuO<sub>3</sub> 及び RuO<sub>4</sub> に変化し、一定値 (化学平衡) に近づく結果が得られた。また、考慮すべき化学反応に抜けがないことを確認するため、各温度における化学平衡到達後の組成を化学平衡計算結果と比較した結果、両者はほぼ一致した (図 2)。以上より、構築したデータベースは Ru-N-O-H 系化学反応速度を考慮した Ru 化学形態評価に適用可能であることが分かった。

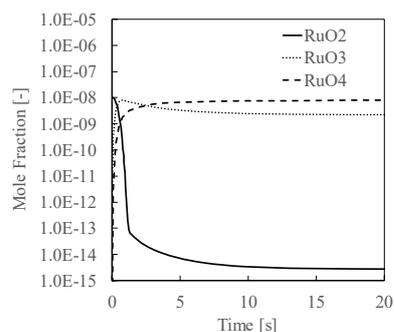


図1 一様な空間内におけるRu化学形態 (1000 K)

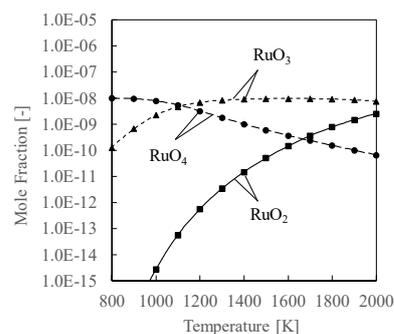


図2 化学平衡到達後のRu化学形態  
(プロット: 化学反応速度考慮、線: 化学平衡計算)

### 3. 結論

原子力施設の重大事故におけるソースターム評価の高度化に資するため、気相中の Ru-N-O-H 系化学反応速度定数のデータベースを構築した。試解析により、構築したデータベースが化学反応速度を考慮した Ru 化学形態評価に適用可能であることを確認した。今後は実験結果等を用いてデータベースに含まれるデータを検証・改良すると共に、固体状 RuO<sub>2</sub> と HNO<sub>3</sub>、NO<sub>x</sub> との反応等の気相-固相反応を追加する。

[1] I. Kajan, et. al., J. Radioanal. Nucl. Chem., 311, 2097 (2017). [2] N. Miyahara, et. al., J. Nucl. Sci. Technol., 56, 228 (2019).

\*Naoya Miyahara<sup>1</sup>, Shuhei Miwa<sup>1</sup>, Faoulat Miradji<sup>1</sup>, Jiazhan Liu<sup>1</sup>, Naoki Horiguchi<sup>1</sup> and Masahiko Osaka<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Japan Atomic Energy Agency