FP 放出量評価等に関する検討

1. 除染係数 (DF) の解析及び実験的知見からの考察

(1) IFR bubble code について

燃料から放出された FP が、冷却材を経由してカバーガス領域まで移行する割合(除染係数 DF の逆数)については、米国の検討事例^[1]における IFR bubble code の評価結果をもと に、「常陽」体系での値を算出している。

IFR bubble code 自体は非公開であるが、その物理モデルについては FR17 国際会議で公開されている^[2]。考慮している物理現象としては、ブラウン運動に伴うエアロゾル粒子の拡散、慣性衝突、重力沈降および気相化した場合の凝縮である。また計算高速化のため、上記 モデルを簡略化したツールとなっている。

一般にエアロゾル挙動および、気泡界面での冷却材への移行挙動を考慮した場合、上記に 加え、エアロゾルの熱泳動、凝集、気泡の非球形化に伴う界面積の増加、気泡の揺動、流れ 場の影響を考慮する必要がある。これらはエアロゾルの冷却材への移行を促進する効果が あり、IFR bubble code は保守的な仮定により、カバーガス領域までの移行割合を高く(除 染係数を低め)評価する。従って、IFR bubble code の評価結果を用いることは、保守性の 観点で妥当である。

他方、実験的な知見と比較すると、保守性が大きいため、以下のとおり、既存の実験結果 等から、最適ベースでの移行割合を検討した。

(2) 既存の実験的知見からの考察

ナトリウム冷却高速炉における燃料損傷時のソースターム評価に関する実験については、 Miyagi 等^[3]によって表1のようにまとめられている。また Miyagi 等も、高速炉上部プレナ ムを模した体系を用い、エアロゾルを含有する気泡がどの程度冷却材側に移行するかにつ いて、水を用いた実験を行っている^{[3], [4], [5]}。これらの実験結果からの除染係数の設定につ いて検討する(なお、表1において、Clough, Nelson, Miyahara 等の実験は本検討と対象 が異なるため割愛する)。

表1燃料損傷時のソースターム評価に関する実験^[3]

著作権の問題により公開できません。

① Berthoud 等の実験^[6]

Berthoud 等は複数の装置を使った実験を行っているが、FAST および FAUST-2A, -2B 試験 装置にてナトリウムを用いた炉心崩壊事象(Core Disruptive Accident, CDA)も模擬した 形で気泡中エアロゾル等のカバーガスへの移行に関する実験を行っている。

FAST 試験装置の概要を図1に示す。

著作権の問題により公開できません。

図1 FAST 試験装置(上)および CDA 模擬蒸発部(下)^[6]

試験装置の容器は直径約 0.6m、高さ約 1.83m であり、実験では蒸発部の位置をパラメ ータとしている(約-0.3m~1m、負値は蒸発部がカバーガス空間上)。蒸発部は UO₂ 17g をキ セノンガスで封入し、急速加熱することで UO₂エアロゾルを含んだ気泡を形成する。実験結果を図2に示す。



図 2 は、カバーガス中で計測された UO₂ 質量であり、初期装荷量(17g)から除染係数が 評価できる。ナトリウム中で行った実験ではいずれも 0.1g 以下であり、DF は 170(=17/0.1) と「常陽」での設定値である 10 を大きく上回る。また、実験的知見から除染係数は概ね 100 程度と推定される。

FAUST-2A 及び-2B 試験装置の概要を図3に示す。



FAUST 試験では予めエアロゾル粒子を配置、アルゴンガスで加圧し、ラプチャーディスク を破損させることでナトリウム中にエアロゾルを含んだ気泡が供給される。実験結果を表2 に示す。



実験では保持因子(RF)で評価されており、その定義はFAUST-2A については除染係数(DF) と同じとなっている(=初期重量/カバーガス中の質量)。FAUST-2B についても同じ定義と 考えられるが文献中に明確な記載はない。

FAUST-2A 実験結果ではヨウ素を除き非常に高い RF(=DF)となっている。ヨウ素について は FAUST-2B 実験では大きく上昇しており、ナトリウム量の増加に伴い RF 値も増加したと 実験では考察されている。他の成分種についても高い RF 値となっている。

実際の事故時での条件やスケール効果も含め、必ずしも実験での値が常陽に直接適用で きるものではないが、ナトリウム中でのセシウムの保持率は 10³オーダー(移行割合 0.1% オーダー)となっている。

FAUST-2A での最小除染係数 (DF) はヨウ素ガスの 7.95 であるが、実験体系が非常に小さいため、FAUST-2B での最小値(同じくヨウ素ガスで 113)を勘案して 100 程度と推定される。なお、ヨウ素以外の成分については実験体系に関わらず DF は概ね 10³以上となっており、DF = 100 は十分に保守性を有していると考えられる。

Miyagi 等の実験^{[4], [5]}

Miyagi 等は水を用いた体形ではあるが、ナトリウム冷却高速炉の炉心上部機構を模擬(大型炉の1/2 スケール、30°セクター)し、燃料集合体上部から放出されるエアロゾルを含む

気泡の水への移行割合について実験を行っている。図4に水実験での可視化例を、図5に 実験結果を示す。



実験では模擬粒子(セバシン酸ジオクチル、粒子径 0.32~2.7 µm)を用いたものであり、 直接実機体系との比較は難しいが、液深 3.0m でいずれも 100 を超える除染係数(DF)とな っている。

т

実際の事故時での条件やナトリウムの効果も含め、必ずしも実験での値が「常陽」に直接 適用できるものではないが、「常陽」の液深は約4mであることから、除染係数を100程度に 設定することは概ね妥当と考えられる。

以上、過去に行われた実験知見を踏まえた除染係数(DF)は100(カバーガスへの移行割 合は1%)と設定する。

(3) 米国のナトリウム冷却炉の事故で得られた知見からの考察

米国における FP の冷却材中への放出に至った事故の調査^[7]において、表 3 に示すように カバーガス空間でのセシウムの検出には至っていないことが報告されており、実機の燃料 破損条件においても、セシウムの大部分は冷却材中に保持される知見が得られている。

また、表3のとおり、原子炉冷却材ナトリウムと接する原子炉冷却材バウンダリを構成す る構造物にも付着し、プレートアウトする知見があるが、本評価ではこの機構を無視してお り、保守的である。

さらに、「常陽」の照射済燃料を用いた試験により、燃料から放出されたセシウム(Cs)及びその化合物(CsI等)は周辺の低温部に速やかに沈降し、構造部を通過時に多量に付着する知見^[8]があるが、本評価ではこの機構も無視しており、保守的である。

著作権の問題により公開できません。	 	
著作権の問題により公開できません。		
	著作権の問題により公開できません。	

表3米国における FPの冷却材中への放出事故における FP存在分布^[7]

2. ナトリウム液面からの蒸発の影響

ナトリウム液面からの蒸発に伴う FP 放出については、固体粒子とナトリウム中に溶解した FP の2 形態が考えられる。

(1) ナトリウム中に存在する固体粒子 FP の蒸発

ナトリウム中に存在する固体粒子は、沸騰等に伴うナトリウム液面揺動の結果、飛沫とし て飛散した液滴の蒸発に伴い雰囲気中に移行する。原子炉停止機能喪失型事象の評価では、 図6に示すように、カバーガス領域近傍のナトリウム温度は約600℃までの上昇である。こ の温度では、飛沫液滴の蒸発も少なく、また飛沫液滴の総量も設定した格納容器(床上)へ の移行量(230kg)に比べるとはるかに少なくなると予想されるため、固体粒子の蒸発に伴 う影響はない。



図6 解析終了時での上部プレナムナトリウム温度(原子炉停止機能喪失型事象)

(2) ナトリウム中に溶解した FP の蒸発

ナトリウム中に溶解した成分についてはヨウ素とセシウムについてその影響を考察する。 ヨウ素およびセシウムのナトリウムの蒸発に伴うカバーガス領域への移行については、以 下の評価式をもとに移行係数((1)式中の*Kd*)に関する実験が行われている^[9]。

$$\dot{m}_i = \dot{m}_{Na} \cdot K d_i \cdot X m_i \tag{1}$$

ここで、*m* はカバーガス領域への移行速度、*Kd*は溶解した FP 成分のナトリウム溶液中から蒸発ナトリウム中に含まれる比率(移行係数)であり、*Km*は溶解した FP 成分の溶液中の 質量分率である。下付添字 *i*は FP 成分種を、*Na*は液体ナトリウムを示す。図7にヨウ素お よびセシウムの Kd 値を示す。

図7に示す通り、ヨウ素についてはKdが1以下と小さいが、セシウムについてはナトリウム温度の低下と共に増加し概ね10~100程度のオーダーとなっている。ただし、本係数はナトリウム蒸気の移行に対する比率であり、(1)式に示す通り、移行量自体はナトリウムの蒸発量に依存する。

今回の評価では、カバーガス界面近傍でのナトリウム温度は約600℃であり、ナトリウム の飽和蒸気圧は約0.03気圧程度^[10]と蒸発速度そのものが小さく、また現象継続時間も比較 的短いため、カバーガスへの放出量は小さい。また、事象発生直後に遮へいプラグの気密性 が回復するため、蒸発により発生したセシウムはカバーガス空間に閉じ込められるか、凝縮 しナトリウム中に再度移行する。



以上より、原子炉停止機能喪失型事象ではセシウムの蒸発による影響は無視できる。

図7 ナトリウムの蒸発に伴うヨウ素およびセシウムの移行係数(Kd)^[9]

セシウムについて、米国におけるナトリウム冷却高速炉でのソースターム評価技術に関 する検討事例^{[7],[11]}をもとに保持性について検討する。セシウムはナトリウムに対する溶 解度が高い一方で、ナトリウムの保持性は低く、保持因子(Retention Factor (RF)、ガ ス中の存在濃度/液相中の存在濃度)は、図8に示すように低い^[12]。

ナトリウムを冷却材とした場合、セシウムの雰囲気への放出に関しては、セシウムのナト リウム中への溶解度が高く、一度溶解したセシウムがナトリウム液面界面で再蒸発するが、 ー度蒸発したセシウムは雰囲気の温度が低い場合は凝縮し、結果的にガス層に移行する量 は低くなる。

例えば、ALMR (Advanced Liquid Metal Reactor) において、仮想的に金属燃料の FP が全 てナトリウム中に放出され、原子炉容器の健全性が確保された状態でのカバーガス空間へ の移行割合を熱力学計算により評価した場合^[13]、ナトリウム温度をほぼ沸点(1156K)とし た場合においても、表4に示す通りセシウムのカバーガス空間への移行割合は1×10⁻³以下

 (0.56×10^{-3}) と評価されている。この計算は、セシウムの様々な溶解状態(混合相、Mix phase)を考慮した場合であり、Mix phase を無視した計算では、表 5 に示すように移行割合は 0.61 まで上昇する。







表 5 熱力学計算を用いた ALMR における FP のカバーガス放出割合^[13]

【参考文献】

- Argonne National Laboratory, "Regulatory Technology Development Plan Sodium Fast Reactor Mechanistic Source Term – Trial Calculation", ANL-ART-49 Vol. 1, 2016.
- [2] M. Bucknor, et al., "An Assessment of Fission Product Scrubbing in Sodium Pools Following a Core Damage Event in a Sodium Cooled Fast Reactor", International Conference on Fast Reactors and Related fuel Cycles: Next Generation Nuclear Systems for Sustainable Development (FR17), IAEA-CN245-055, Yekaterinburg, Russian Federation, 26-29 June, 2017.
- [3] K. Miyagi and N. Sagawa, "Development of Aerosols Released under Simulated Conditions of Fuel Failure in LMFRs: Development of Analytical model in Fuel Coolant Channel", J. Aerosol Res. Jpn., 16(4), 289-298, 2001.
- [4] K. Miyagi, et al., "Development of Aerosols Released under Simulated Conditions of Fuel Failure in LMFRs: Experimental Study of Air Bubbles-and-Aerosols Behavior in a Water Pool", J. Aerosol Res. Jpn., 16(1), 49-56, 2001."
- [5] K. Miyagi, et al., "Development of Aerosols Released under Simulated Conditions of Fuel Failure in LMFRs: Development of Analytical model in Upper Coolant Pool", J. Aerosol Res. Jpn., 16(4), 299-304, 2001."
- [6] G. Berthoud, et al., "Experiments on Liquid-Metal Fast Breeder Reactor Aerosol Source Terms after Severe Accidents", Nuclear Technology, 81, 257-277, 1988.
- [7] D. Grabaskas, et al., "Regulatory Technology Development Plan, Sodium Fast Reactor, Mechanistic Source Term Development", Argonne National Laboratory, ANL-ART-3, 2015.
- [8] 核燃料サイクル開発機構, "照射 MOX 燃料を用いた FP 放出挙動試験", JNC TN9430 2001-002, 2001.
- [9] M. Nishimura, et al., "Evaporation Release Behavior of Volatile Fission Products (Iodine, Cesium, and Tellurium) from Liquid Sodium Pool to the Inert Cover Gas", IWGFR-92, p.141-159, 1996.
- [10] 核燃サイクル開発機構,"ナトリウム技術読本", JNC TN9410 2005-011, 2005.
- [11] A. J. Brunett, et al., "Toward a Mechanistic Source Term in Advanced Reactors: Characterization of Radionuclide Transport and Retention in a Sodium Cooled Fast Reactor", International Congress on Advances in Nuclear Power Plant (ICAPP2016), San Francisco, CA, USA, April 17-20, 2016.
- [12] M. Koch et al., "A Code for the Prediction of Sodium and Volatile Fission Product Release from a Liquid Pool into an Inert Gas Atmosphere", J. Aerosol Sci., 22, 1, pp. S709-S712, 1991.
- [13] R. P. C. Schram, et al., "Source Term Calculations of the ALMR", ECN-R--95-021, 1995.