

SA 時の FP 挙動モデルの評価 (6) Cs-I-Ag-In-Cd 系の化学反応データセットの整備

Evaluation of FP Behavior Models in SAs

(6) Construction of dataset for chemical reaction kinetics on Cs-I-Ag-In-Cd system

*三輪 周平, 唐澤 英年

JAEA

軽水炉シビアアクシデント (SA) 時における核分裂生成物挙動解析のための化学挙動データベース ECUME の開発の一環として、セシウムやヨウ素の化学挙動に与える PWR 制御材の影響を速度論的に評価できるように銀-インジウム-カドミウムを含む化学反応データセットを整備した。

キーワード: ソースターム、セシウム、ヨウ素、PWR、ECUME

1. 緒言

軽水炉シビアアクシデント (SA) 時のソースタームの評価技術高度化に向けて、SA 時の放出移行時における核分裂生成物 (FP) の化学挙動を解明し、化学挙動評価に必要なデータセットやモデルをデータベース化することを目的とした基礎基盤研究を実施している。この中で PWR 制御材である銀 (Ag)、インジウム (In)、カドミウム (Cd) は、SA 時の炉内や冷却配管内においてヨウ素 (I) との化学反応により、揮発性の異なる蒸気種を形成し、ソースタームに影響を与える可能性が考えられる。ヨウ素に係る反応は速度論的な解析が必要であることから[1]、化学挙動を評価するためには、これらの化学反応データセットが必要となる。そこで、ヨウ素との反応に関わるセシウム (Cs) やモリブデン (Mo) も加えた Cs-I-Mo-Ag-In-Cd 系における化学反応データセットを整備することを目的に、主要な素反応の反応速度定数を求め、整理した。

2. 反応速度定数の解析手法

まず、Cs-I-Mo-Ag-In-Cd 系化学種において様々な SA 時の温度、雰囲気条件にて化学平衡計算を行い、安定な蒸気種を選定した。この安定な蒸気種を生成物とする素反応として、すでに化学挙動データベース ECUME [2]に格納されている Cs-I-Mo-B 系の反応式 252 式に加え、新たに 122 式を選定した。量子化学計算により Nudged Elastic Band 法を用いた反応の最小エネルギー経路を決定し、遷移状態における分配関数を求めることで、これらの素反応式における化学反応速度定数を導出した[2]。

3. 検証方法及び結果

素反応から成る化学反応データセットでは、主要な化学反応式に抜けがないことが前提となる。そこで、Cs-I-Mo-Ag-In-Cd 系における所定のモル分率、温度条件において、長時間の化学反応速度計算と化学平衡計算 (反応時間が ∞ と仮定した計算) の結果を比較した。化学反応計算、化学平衡計算はそれぞれ、Cantera、Thermo-Calc ソフトウェアを用いた。比較した結果を図 1 に示す。これより、FP である Cs、I の蒸気種は両計算において同じ値となり、主要な素反応で抜けがないことを確認した。

4. 結論

PWR の SA 時のソースターム評価技術高度化に向けて、Cs-I-Mo-Ag-In-Cd 系における化学反応データセットを整備した。今後、実験解析等を進め、本化学反応データセットの反応速度の妥当性を確認していく。

参考文献

[1] L. Cantrel, et al., Nucl. Technol., 144(1), pp.1-15 (2003) [2] S. Miwa et al., JAEA-Data/Code 2019-017, 59 Pages, 2020/03

*Shuhei Miwa and Hidetoshi Karasawa

JAEA

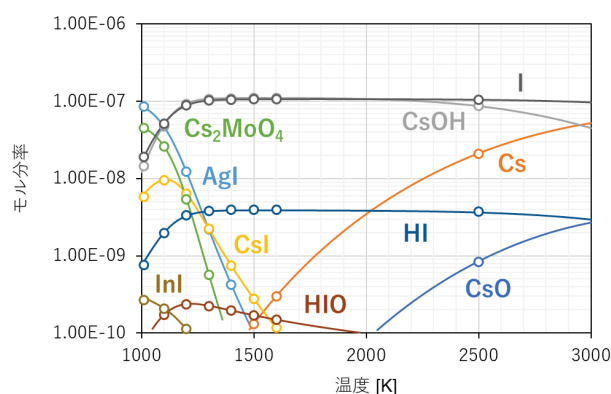


図 1 Cs-I-Mo-Ag-In-Cd 系における長時間の化学反応計算 (プロット) と化学平衡計算 (線) の比較