

[R3-3]

シビアアクシデント時の FP 移行に関する VVUQ (検証、妥当性確認と不確かさ定量化) の検討

Investigation of VVUQ (Verification, Validation, and Uncertainty Quantification) on FP transportation in the severe accident

Pellegrini Marco^{A)}, 内藤正則^{B)}, 三輪周平^{#,C)}
Pellegrini Marco^{A)}, Masanori Naito^{B)}, Shuhei Miwa^{#,C)}

^{A)} Tokyo University

^{B)} Advance Soft Corporation

^{C)} Japan Atomic Energy Agency

Abstract

In this collaborative research, in addition to development of the VVUQ (Verification, Validation, and Uncertainty Quantification) methodology for analysis of fission product (FP) transportation, we improved severe accident (SA) analysis code with large uncertainty. In this year, we implemented improved models of cesium chemisorption onto stainless steel and pool scrubbing which have revealed as important phenomena by the analysis for SA of TEPCO Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station.

As a result of the experimental analyses with improved model, it was found that the analyses results differed depending on the physical property and hydraulic conditions used in FIPRA and JAEA analyses. In pool scrubbing, the validity and application limits of the model were investigated by experimental analysis for SPARC-90, and it was found that more detailed aerosol conditions in SA are necessary to improve the model.

Keyword: severe accident analysis code, fission product, VVUQ, cesium, Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station

1. 背景・目的

1.1 背景

東京電力福島第一原子力発電所 (1F) 等の軽水炉のシビアアクシデント (SA) 時における公衆・作業員被ばくや炉内の汚染状況を予測するためには、セシウム等の核分裂生成物 (FP) の移行挙動をより精度高く評価することが必要である。

FP 移行挙動は、複雑な構造である原子炉内において温度、雰囲気等の熱水力変化や化学反応等が重畳するため、非常に複雑となる。このため、空間分解能が粗いノードジャンクション法を採用し、挙動を簡素化したモデルを適用している SA 総合解析コードでは、実機プラントを想定した複雑な条件における局所的な FP 移行挙動の把握は困難である[1]。

そこで、我々の研究グループでは、これらの空間分解能に起因する課題を解決する方法として、物理現象を忠実に解くことのできる多相の数値流体力学 (CFD) コードを利用することを考案した。ここで課題となるのが、CFD コードの検証、妥当性確認と不確かさ定量化 (VVUQ) である。すなわち、検証と妥当性確認 (V&V) のプロセスを経ることで CFD コードにより物理現象を忠実に解いていることを確認し、その不確かさを定量化することが必要となる。そこで、CFD の分野で広く実施されてきた VVUQ の手法[2]を、SA 解析の分野に適用すべく 2021 年に検討を開始した。

一方、モデルの簡素化に起因する課題を解決する方法として複雑な条件に対する物理化学現象のモデル化が必要となる。これは、CFD コードはもちろん SA 総合解析コードにおいても予測精度向上に向けた重要な課題である。

1.2 目的

本共同研究における 2021 年度は、1F 事故解析による国内外のレビューを参考に FP 移行挙動評価における課題解決方法を検討・整理するとともに、不確かさが大きい挙動の一つであるプールのスクラビングを対象に VVUQ 手法を検討した[3]。

2022 年度は、FP 移行挙動、特に 1F 事故を受けて明らかとなった不確かさが大きいと考えられるセシウムと構造材料との反応とプールのスクラビング挙動等を対象として、複雑な条件における挙動を解析できるように FP 移行挙動評価技術の高度化として、SA 総合解析コードに新たなモデルを導入する。

2. FP 移行挙動評価技術の高度化

2.1 SA 総合解析コードの改良

2.1.1 FP 移行挙動解析コード FIPRA について

現在、アドバンスソフト社において SA 総合解析コード ISAAP の開発が進められており、その一環として FP の移行挙動を解析するモジュール FIPRA (Fission Product transport Analysis module) を開発し、

miwa.shuhei@jaea.go.jp

[R3-3]

ベータ版が完成した。

FIPRA は ISAAP のモジュールの 1 つとして設計されており、燃料から放出される FP の核種・放出量及び熱水力的挙動は ISAAP の他モジュールの結果を取り込んで使用することを考慮にいて設計されている。そのため、燃料等から放出される FP の核種・放出量及び気体・流体の熱水力的挙動は、ISAAP の他のモジュールによる計算結果等、FIPRA コード外で得られた値を取り込んで解析を行う。

2.1.2 FP の移行挙動

FP 移行に関する主な挙動として、まず熱水力的な流体の流れに沿っての移動が挙げられる。これは気相中に存在するガス状 FP 及び気相中を浮遊するエアロゾル状 FP において適用できる。液相においては溶解した FP 及び懸濁状態となった不溶性の FP が移動する。また、気液間の移行挙動としてガス状 FP は溶解、エアロゾル状 FP は液相への沈殿・溶解等を考慮している。

FIPRA ではこれらの流体の流れに沿う FP の移行挙動を、前述した外部から得られた熱水力的挙動データを用いて解く。

その他の FP 移行に関する主な挙動の概要を Fig.1 に表す。現在、実線で囲った枠内における素過程は FIPRA ベータ版で考慮されており、破線の枠内にある素過程においては今後組込みを予定している。

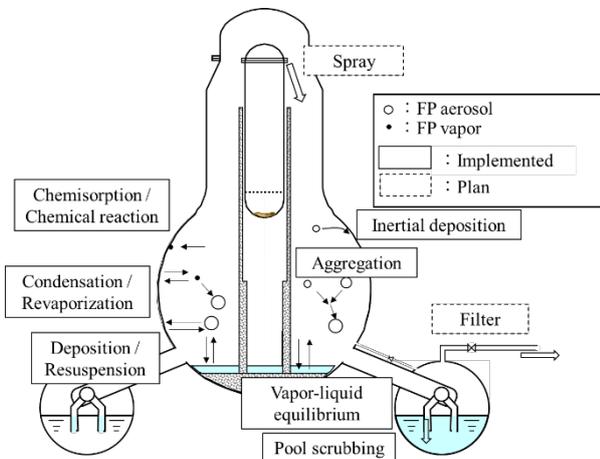


Fig. 1 FP transport behavior calculated by FIPRA

2.1.3 FIPRA が考慮するガス状 FP 挙動

FIPRA で考慮しているガス状 FP の移行挙動には前述した流体による移行挙動の他に構造物表面への凝縮、蒸発、化学吸着挙動及びエアロゾル FP 表面への凝縮、蒸発挙動が挙げられる。

2.1.3.1 凝縮・蒸発挙動

ガス状 FP の凝縮挙動は燃料等から発生した高温の FP が冷却される、または低温の構造物及びエアロゾルの表面に接触するなどして引き起こされる。FIPRA では FP の飽和蒸気圧が気相の分圧を下回っ

た場合に発生するよう実装されている。また、飽和蒸気圧と分圧の大きさが逆転すると発生する再蒸発挙動も実装されている。

2.1.3.2 化学反応・吸着挙動

高温の FP は構造物と接触すると構造物の成分と反応し吸着する現象が知られている。これらの反応機構は複雑であるため、FIPRA では主に実験によって得られたモデルを実装している。さらに、CsOH の吸着に関してはより詳細なモデルとして JAEA によって得られた化学吸着モデル[4]を実装した。

2.1.4 FIPRA が考慮するエアロゾル FP 挙動

FIPRA で考慮しているエアロゾル状 FP の移行挙動として、構造物表面への堆積、堆積したエアロゾルの再浮遊・懸濁、エアロゾル同士の凝集が挙げられる。

2.1.4.1 堆積挙動

エアロゾルは微粒子であるためガス状 FP と異なり構造物表面等に堆積する。

堆積を発生させる現象は複数あるが、FIPRA が実装しているモデルは重力沈降による堆積挙動、熱泳動による堆積挙動、拡散泳動による堆積挙動、流動時にブラウン運動や乱流場で受ける慣性によって拡散することで発生する堆積挙動、曲げ配管などの構造物の形状によって発生する慣性衝突による堆積挙動である。

また、堆積したエアロゾル FP は流体によって強い力がかかることで再浮遊、再懸濁する。そのため FIPRA においてもエアロゾルの再浮遊、再懸濁モデルが実装されている。

2.1.4.2 凝集挙動

エアロゾル表面にガス状 FP が凝縮する挙動は前述したが、エアロゾル同士が衝突し凝集する挙動も存在する。エアロゾル FP の移行挙動は粒子サイズに依存する 경우가多く、解析に重要であるため FIPRA に実装した。

エアロゾル同士が衝突する現象は複数あり、FIPRA が実装している現象モデルは重力沈降速度差による凝集挙動、ブラウン運動に由来する凝集挙動、乱流場において流体から異なる方向の力を受けることによる衝突や同方向に力を受けた場合に粒子サイズの違いによる抗力の差によって発生する衝突による凝集挙動となる。

2.1.5 FIPRA が考慮する FP 除去設備による FP の移行挙動

原子炉において事故時に FP を除去するための安全設備が備わっている。これらによる FP の移行挙動を詳細に評価するため各設備に対する FP 移行挙動モデルが提唱されている。安全設備にはブルスクラビング、スプレー、フィルターなどが挙げられる。FIPRA によって現在考慮されている挙動はブルスクラビングのみであり、他の移行挙動モデルは今後実装する予定である。

[R3-3]

2.1.6 FIPRA 開発まとめ

FP 移行挙動解析コード FIPRA の開発を進め、ベータ版を完成させた。このコードはガス状 FP、エアロゾル FP の多くの移行挙動を考慮し、実装されている。今後実験解析等による検証を深めるとともに実機解析を通してモデル追加・改良等の整備を進める。

2.2 化学吸着モデルの改良・実験解析による妥当性確認

2.2.1 SAMPSON による実験解析

改良した化学吸着モデルは、1073 K と 1273 K における実験結果に基づいて構築され、以下の式で表される[4]。

$$v_d = \frac{7.027}{C_g^{0.5225}} \sqrt{C_B} \exp(-6.552 \times 10^3 / T)$$

ここで v_d は吸着速度(m/s)、 C_g は CsOH 濃度(kg/m³)、 C_B は SUS 構造物の Si 濃度(%）、 T は温度(K)である。この化学吸着モデルを SA 総合解析コードに組み込み、実験解析により妥当性を確認した。

実験解析は JAEA の TeRRa (Test bench for FP Release and tRansport) を用いた化学吸着実験を対象とした。SA において、炉心の高温環境下でガス状の FP が燃料から放出され、下流に移行し、そこでガス温度が低下してエアロゾル粒子を形成する。TeRRa は、温度勾配管を有しており、これらの現象を実験的に再現可能である。TeRRa の温度勾配管の直径は約 43 mm、全長は 2.4 m であり、温度勾配管中の 1273K、973K、873K、773K、673K となる箇所にて 10 × 10 × 2 mm のステンレス鋼試験片を設置した。これら試料の上流において CsOH を約 3 時間加熱し、ステンレス鋼試験片と反応させ、化学分析により Cs 吸着量を求めた[4]。

非水溶性 Cs 吸着量を Table 1 に、また Cs 吸着量の実験値と解析値の比較を Fig. 2 に示す。約 1000 K を超えるガス温度 (Cs 蒸発源からの距離 : 105 mm、455 mm) に関しては、計算により化学吸着モデルの誤差範囲内で実験値を再現した。

Table 1 Analysis results of chemisorbed Cs amount

node	Distance from Cs source (mm)	Water-insoluble chemisorbed Cs amount (mg)		
		Exp.	JAEA anal.	FIPRA anal.
8	105	4.33E+00	4.24E+00	1.621E+00
		3.88E+00		
27	455	5.90E-01	8.16E-01	3.750E-01
		4.80E-01		
31	695	4.30E-01	9.42E-02	1.350E-01
		3.00E-01		
34	845	4.40E-02	1.98E-02	2.966E-02
		1.20E-01		
38	1075	7.80E-03	1.07E-03	2.476E-03
		3.00E-02		

2.2.2 FIPRA による実験解析

前述した FIPRA コードに化学吸着モデルを組み込み、実験解析を実施した。解析条件は 2.2.1 と同様である。解析結果を Table 1 及び Fig. 2 に示す。実験値とはおおむね同じ傾向を示しているが、全体的に過小評価となっていることが確認された。

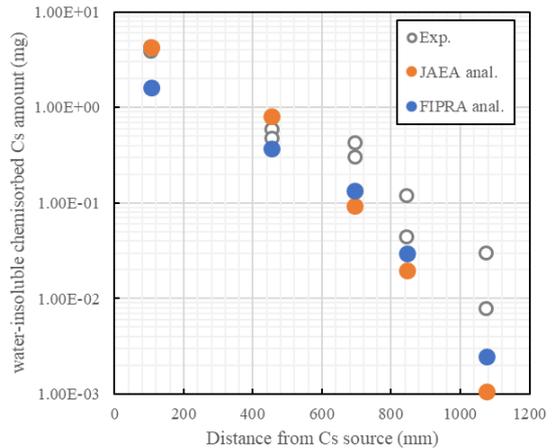


Fig. 2 Analysis results of chemisorbed Cs amount

2.2.3 解析結果の比較

JAEA 解析と FIPRA 解析で、Table 1 及び Fig. 2 に示すように、Cs の化学吸着量に差が生じた。この差異の原因として、以下の 2 点が考えられる。

① 保存量の考え方が異なる；

FIPRA 解析では、SA 解析と同様に、CsOH 上記の発生速度 $srcc (= dm_0/dt)$ を一定としている。一方、JAEA 解析では、発生ノードで CsOH は飽和蒸気圧となっているため、CsOH 濃度 $C_{g0} (= srcc/Q_0)$ を一定とした。ここで、 m は質量、 V は体積、 Q はキャリアガス流量とする。

CsOH 発生速度一定とした場合の CsOH 濃度は、以下の通りとなる。

解析ノード j でのキャリアガス通過時間；

$$t_j = V_j/Q_j$$

解析ノード j での CsOH 量；

$$m_j = (srcc) \cdot t_j = (srcc)/Q_j \cdot V_j$$

解析ノード j での CsOH 濃度；

$$C_{gj} = m_j/V_j = srcc/Q_j$$

一方、CsOH 濃度を一定とした場合の CsOH 濃度は、 $C_{gj} = srcc/Q_0$ となる。解析ノード j でのガス温度 T_j が CsOH 発生ノード 0 でのガス温度 T_0 より高い場合は、キャリアガス流量 Q_j は Q_0 より大きくなる。したがって、CsOH 発生速度を一定とした場合の $C_{gj} (= srcc/Q_j)$ は、CsOH 濃度を一定とした場合の $C_{gj} (= srcc/Q_0)$ より小さくなる。化学吸着速度は、 C_g のほぼ平方根に比例するので、CsOH 発生速度を一定とした場合の吸着量は、CsOH 濃度を一定とした場合より少なくなる。これは、Table 1 の解析ノード 8

[R3-3]

と 27 での両者の違いに相当するものと考えられる。

② CsOH 飽和蒸気圧の計算式が異なる;

解析ノード j でのガス温度 T_j が CsOH 発生ノードでのガス温度 T_0 より低い場合は、CsOH 濃度 C_g は CsOH 飽和蒸気圧を用いて計算する。CsOH 蒸気圧の計算式は、FIPRA 解析では VICTORIA で用いられている式[5]を参照し、JAEA 解析では、R.G.J. Ball らによる式[6]を参照している。VICTORIA による計算値の方が蒸気圧は約 3 倍高いため、化学吸着量も FIPRA 解析値の方がおおくなる。これは、Table 1 の解析ノード 34 と 38 での両者の違いに相当するものと考えられる。

なお、解析ノード 31 では、FIPRA 解析では、CsOH 飽和蒸気圧を JAEA 解析より高く評価することと、上記①での CsOH 濃度の評価の違いから、CsOH 濃度は CsOH 飽和時の濃度より低くなる。このため、FIPRA 解析では上記①で求める C_g を使い、JAEA 解析では CsOH 飽和蒸気圧を用いた C_g を使っている。このように、FIPRA 解析と JAEA 解析との差は主として上記①に示したモデリングの違いと②に示した飽和蒸気圧計算式の違いによるものと考えられる。

2.3 プールスクラビングモデルの改良

福島第一原子力発電所のような沸騰水型軽水炉プラントには、事故時における格納容器の過圧を抑えるための安全防護設備として圧力抑制プール (S/P) が設置されている。事故時に原子炉圧力容器から噴出した高温・高圧の蒸気を S/P に導いて凝縮させることにより格納容器の圧力上昇を抑える仕組みである。このとき、S/P に導かれる蒸気には、放射性核分裂生成物 (FP) が同伴する。蒸気に同伴した FP は S/P の水中で補足 (プールスクラビング) され、プール上部の空間に放出される FP の量を低減する効果も期待されている。

ここでは、世界で広く使用されているシビアアクシデントのシステム解析コード MELCOR で採用されているプールスクラビングモデル SPARC-90[7]を取り上げ、既往のいくつかの実験解析によって同モデルの妥当性や適用限界を検討した。既往実験の結果及び解析結果の検討にあたっては、昨年度実施した基礎実験と CFD 解析で得られた知見[3]も参照した。

2.3.1 MELCOR の SPARC-90 モデル

MELCOR では、放射性エアロゾルを含むガスがプールに注入されると、まずベント出口で大きな気泡が形成され、その後、上昇する際に分裂が始まり、最後に群気泡が発生するとしている。この理想的なプロセスに従い、Fig. 3 に示すように、流れ場をベント出口領域、遷移領域、スウォーム上昇領域の 3 つに分割している[8]。

ベント出口から放出されたガスはベント出口径と放出流量に依存して一定の直径を持つ不安定で大きな球体 (グロービュール) を形成する。移行領域では、

グロービュールが上昇するにつれて、等価球径が一定の小さな扁平球状気泡の群れに分裂し始める。主グローブ径は、初期グロービュール径の 12 倍の距離でゼロまで直線的に減少すると仮定している。気泡の上昇領域では、気泡は不規則に上昇する間に絶えず合体し、再分散する。

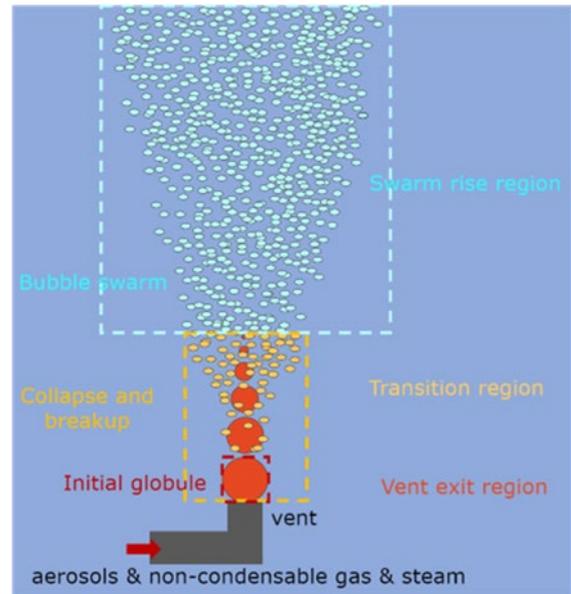


Fig. 3 Schematic view of pool scrubbing process in MELCOR code

以上に述べた流動のモデルに対して、各領域におけるプールスクラビングの効果を除染係数 (DF: Decontamination Factor) によって定義している。DF は、FP の質量流量に関して入口の値と出口の値との比として定義され、プールの水温、圧力、水深、FP の出口速度、粘度、放出口直径、エアロゾルの場合の密度と直径、等の関数として機構論的な考え方でモデル化されている。

MELCOR コードでは、プールスクラビングは空間的な離散を反復して評価される。プールはいくつかのセグメントに分割されるため、分割されたセグメントの数に応じて、各領域の時間間隔と空間間隔が作成されることになる。

2.3.2 実験解析

MELCOR に搭載されている SPARC-90 モデルを用いて、既往のいくつかの実験を解析し、モデルの妥当性を検討した。

(1) POSEIDON-II 実験[9]の解析

実験では、エアロゾル FP を酸化錫 (SnO) で模擬し、窒素ガスに同伴させて水中に放出した。水深をパラメータとした PA10~PA13 の実験を解析した結果を Fig. 4 に示す。

[R3-3]

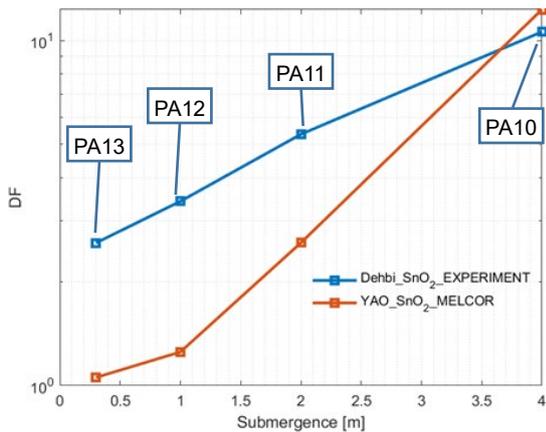


Fig. 4 Analysis results of POSEIDON-II experiment

水深の影響について定性的な傾向は再現できているが、水深が浅くなるとモデルは DF を過小評価することが分かる。

(2) Koch らの実験[10]の解析

Koch と Weber は、窒素ガスで運ばれたナノ粒子の DF を調べる実験を行った。エアロゾル粒子として、カーボンナノ粒子と球状の塩化ナトリウム (NaCl) を使用したが、粒子径はそれぞれ 0.075 μm と 0.078 μm で超微粒子である。

Fig. 5 に示すように、解析結果と実験結果には大きな差があった。実験では水深が深くなるにつれて DF が大きくなっていくのに対し、解析では粒子径が非常に小さいため、水深が深くなっても DF がほとんど変化しなかった。この比較結果は、ナノ粒子が存在する状況下での MELCOR の適用に限界があることを示している。

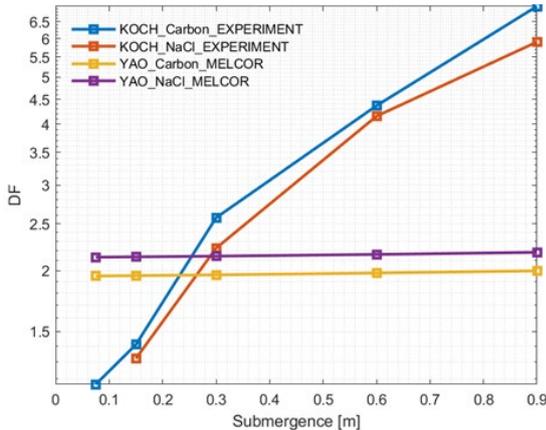


Fig. 5 Analysis results of experiment by Koch

(3) Kim らの実験[11, 12]の解析

Kim らは、空気に同伴させた 0.7 μm の球状二酸化ケイ素粒子の DF を調べる実験を実施し、POSCAR

コードと比較検討した。

Fig. 6 は、DF に対する水深の影響を実験値、POSCAR 解析値、MELCOR 解析値と比較したものである。両コードとも、水深が大きくなるにつれて、DF は増加する傾向を示している。MELCOR は、POSCAR と比較して、高水位下で保守的な結果を示し、より優れた予測性能を示した。

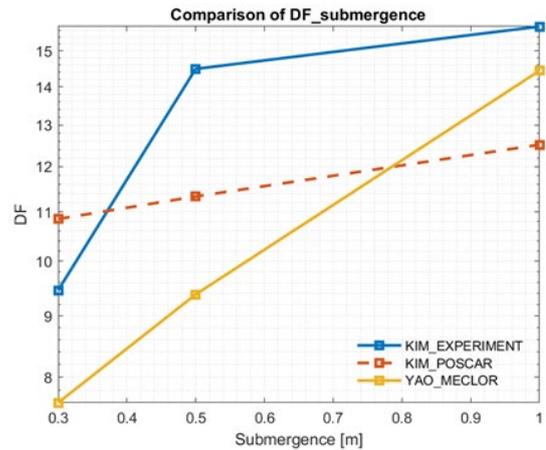


Fig. 6 Analysis results of experiment by Kim

Fig. 7 は、ガス流量をパラメータとした Kim らの実験結果と解析値との比較である。Fig. 6 の結果と同様に、定性的には両コードとも実験で得られた傾向を再現している。MELCOR は高流量でより良い一致を示していることが分かる。

POSEIDON-II の実験、Koch らの実験、Kim らの実験と合わせて評価すると、一般に DF は水深と流量が増加するにつれて増加すると結論づけられ、MELCOR コードもこの傾向をよく再現している。

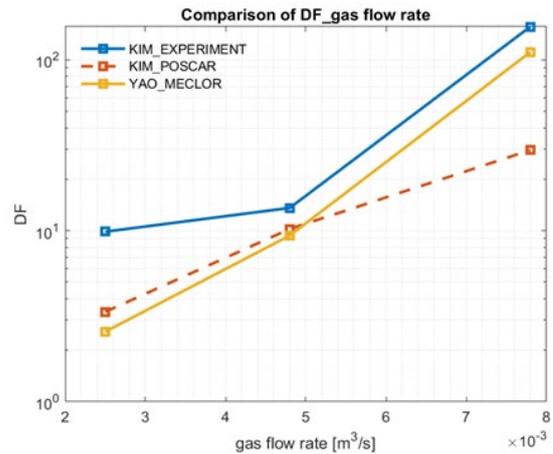


Fig. 7 Analysis results of experiment by Kim depending gas flow rate

(4) 金井らの実験[13]の解析

[R3-3]

金井らは、空気に同伴させた硫酸バリウム (BaSO_4) のエアロゾル粒子を用いて、粒子径 ($0.3\sim 0.9\ \mu\text{m}$) 及びガス流量 ($1000\sim 2500\ \text{l/min}$) をパラメータとして DF を策定した。Fig. 8 に粒子径 $0.9\ \mu\text{m}$ の DF を実験値と解析値とで比較して示す。

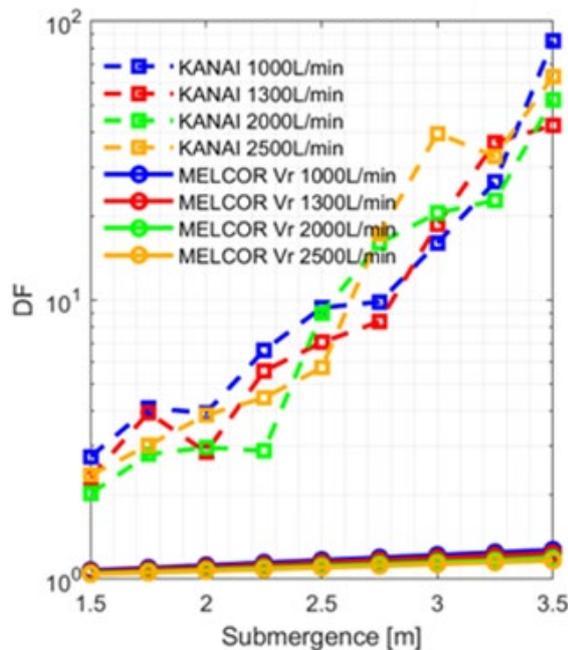


Fig. 8 Analysis results of experiment by Kanai et al.

図から明らかなように、水深が浅い場合には解析値は実験で得られた DF の $1/2\sim 1/3$ 程度であるが、水深が深くなると概ね 2 桁ほど過小評価している。この傾向は、異なる粒径の場合も同様であった。

2.3.3 プールスクラビングモデル改良の課題

世界で広く使用されているシビアアクシデントのシステム解析コード MELCOR に搭載されているプールスクラビングモデル SPARC-90 について、4 種類の実験解析によりその適用性を検討した。結果は以下のとおりである。

- プールスクラビングのエアロゾル (粒子) 除去効果には、水深とガス流量が大きく影響する。
- 概して、MELCOR は実験値に対して DF を過小評価する傾向が強い。
- 今回 4 つの異なる条件下での実験を MELCOR で解析したが、解析値と実験値との差が数十%程度から 2 桁近い差まで、大きな幅があり、解析値の不確かさを特定できるには至らなかった。
- 今後、実機の事故条件下でのエアロゾルの性状に対する推定の深度を深める必要がある。
- 加えて、DF に対する影響因子とその程度をより深く検討し、SPARC-90 モデルの高度化が必要と考えられる。

3. まとめ

2022 年度は、FP 移行挙動、特に 1F 事故を受けて明らかとなった不確かさが大きいと考えられるセシウムと構造材料との反応とプールスクラビング挙動等を対象として、複雑な条件における挙動を解析できるように FP 移行挙動評価技術の高度化として、SA 総合解析コードに新たなモデルを導入した。

Cs 化学吸着については、改良したモデルを組込んで実験解析を行った結果、FIPRA 解析と JAEA 解析においてコード間で使用する物性値や熱水力条件の違いにより結果が異なることが分かった。

プールスクラビングでは、SPARC-90 を対象に既往の実験解析によって同モデルの妥当性や適用限界に関する検討を行い、より詳細なエアロゾルの性状が必要であることが分かった。

参考文献

- [1] M. Pellegrini, et al., "Main Findings, Remaining Uncertainties and Lessons Learned from the OECD/NEA BSAF Project", Nuclear Technology, 206, 9 (2020) 1449-1463.
- [2] M. Acton, E. Baglietto, "Addressing the usage of CFD within the CSAU framework for nuclear reactor safety analysis simulations", Proc. NURETH-18, Portland, Oregon, USA, August 18-23, 2019, 4780-4794.
- [3] Pellegrini Marco, 内藤正則、三輪周平、"シビアアクシデント時の FP 移行に関する VVUQ (検証、妥当性確認と不確かさ定量化) の検討", 2021 年度連携重点研究成果報告書[R3-3].
- [4] S. Miwa, et al., "Improvement of Model for Cesium Chemisorption onto Stainless Steel in Severe Accident Analysis Code SAMPSON (Joint Research)", JAEA-Data/Code 2021-022, Jan. 2023.
- [5] N. E. Bixler, "VICTORIA 2.0: A Mechanistic Model for Radionuclide Behavior in a Nuclear Reactor Coolant System Under Severe Accident Conditions", NUREG/CR-6131, 1998.
- [6] R. G. J. Ball, et al., "Thermochemical data acquisition", AEA-TRS--5068, 1991.
- [7] P. C. Owczarski, et al., "SPARC-90: A code for calculating fission product capture in suppression pools", NUREG/CR-5765, 1991.
- [8] R. O. Gauntt, et al. "MELCOR computer code manuals", NUREG/CR 6119, 2000.
- [9] A. Dehbi, et al., "Aerosol Retention Behavior of Hot Pools under Realistic Accident Conditions". Proceedings of an OECD/CSNI workshop on Nuclear Aerosols in Reactor Safety, NEA/CSNI/R(98)4, 1998.
- [10] K. Dagmar, et al., "Separation of gas-borne nanoparticles in bubble columns." J. aerosol science 53, pp61-75, 2012.
- [11] Y. H. Kim, et al., "Effect of pool height and injection gas flow rate on aerosol particle removal in pool scrubbing." Transactions of the Korean Nuclear Society Virtual Autumn Meeting, October 21-22, 2021.
- [12] Y. H. Kim, et al., "The importance of representative aerosol

[R3-3]

diameter and bubble size distribution in pool scrubbing.”, Ann. Nucl. Energy 147, 107712, 2020.

- [13] T. Kanai, et al. “Development of an aerosol decontamination factor evaluation method using an aerosol spectrometer”, Nucl. Eng. Des. 303, pp58-67, 2016.