技術報告

412. 600 MWt 級高温ガス炉ガスタービンシステム内高温ヘリウムガス冷却材中の FP 化合物生成とエアロゾル凝縮メカニズムによる FP プレートアウト現象に関する解析試験

石山 新太郎^{1,*}

FP Plate-out and Compound Formation Analysis in Hot Helium Coolant of 600 MWt GTHTR300 System by FP Concentration Difference Diffusion and Aerosol-Condensation Mechanism

Shintaro ISHIYAMA

To estimate FP deposition rate on the typical turbomachinery, including gas turbine of GTHTR300 and exposure dose limit at its maintenance, FP plate-out analysis was been carried out using FP compound formation theory and FP concentration controlled diffusion mechanism.

As the results, following conclusions were derived;

- (1) It is found that the analysis data computed by the VICTORIA code with assumption of the correct thickness of reactive zone exhibits very good correlation with the experimental data obtained by simulated FP plate-out experiment.
- (2) ^{137}Cs , $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{137}Cs ($^{131}+^{133}$)I compound are major fission products deposited on the surface of turbomachinery.
- (3) Deposition rates of major FPs on the surface of gas turbine blade and disk are $^{(131+133)}\text{I} > ^{137}\text{Cs} > ^{110\text{m}}\text{Ag}$.
- (4) Total dose rate and allowable work time at turbine of GTHTR300 are given as 19.2 mSv/h and 2.6 h by VICTORIA code analysis and these values are conservative than that given by simple code analysis.

KEYWORDS: HTGR-GT, gas turbine, fission products, plat-out, contamination, FP compound, contamination

I. 緒 言

日本原子力研究所は、Fig. 1 に示す 600 MWt 級高温ガス炉ガスタービンプラント (以下 GTHTR300 と称する) のフィジビリティスタディを進め、この中で本プラントの基本設計を実施している¹⁻⁴⁾。この発電プラントの主要構成機器は、高温ガス炉、ヘリウムガスタービン、再生熱交換

器、冷却器、圧縮機および発電機であり、各機器のガス温度条件は、炉心出口で 1,123 K、タービン出口で約 783 K、再生熱交換器で約 423~783 K、前置冷却器で 308~423 K であるとともに、これら主要機器のうちタービンおよび圧縮機は分解点検など高頻度のメンテナンスが必要な機器であり、したがってこれらの機器の保守点検作業手順を検討する上で、これらの機器への FP 沈着による作業中被曝が問題として考えられる。

そこで、プラント基本設計における原子炉の FP ソースターム解析の結果⁴⁾、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 、 $^{(134+137)}\text{Cs}$ および $^{(131+133)}\text{I}$ がメジャーな FP 核種となることが明らかとなっており、これらの核種のタービン、配管および熱交換器への FP 沈着量の詳細な評価を実施する必要がある。

しかしながら、本システムの保守を必要とする各機器全体の運転温度範囲は極めて広い (308~1,173 K) ことから、ヘリウム不活性ガス中の上記 FP 核種のガス状ないしエアロゾル化等の状態変化のみならず、AgI、CsI 等の化合物の生成、さらには構造材等からの蒸発した構成元素との FeI_2 や NiI_2 化合物化が考えられ、そのためシステム機器へのこれら FP 核種およびその化合物のプレートアウト形態は極めて複雑な様相を呈するものと考えられる。

過去、FP のプレートアウト現象を解析するため、配管・機器表面への吸着・脱離として扱う Kress と Neill と

Fig. 1 Concept design of GTHTR300 system

¹ 日本原子力研究所大洗研究所 (Oarai Res. Establishment, Japan At. Energy Res. Inst.)

(2003年 1月16日 受理; 2003年 10月10日 査読通過)

* 著者連絡先: Tel. 029-264-8736, Fax. 029-264-8741, E-mail: ishiyama@popsvr.tokai.jaeri.go.jp

デルや吸-脱着の他の流路壁への侵入-拡散を考慮する Iniotakis モデル等ならびにこれら FP 沈着機構モデルを改良した PLAIN コード⁵⁾などが開発され、高温ガス炉運転条件におけるプレートアウトに関する研究評価が実施されたが⁶⁻⁹⁾、これら開発コードでは、分析対象核種間および配管材料とで新たに生成する化合物に関する評価ができないこと、解析上において、例えば母材中への FP 侵入係数のペネトレーション係数などの定義に任意性があることなどから、分析対象核種数や解析手法に限界があり、高温ガス炉の高温構造機器での FP の詳細な挙動については、現在のところ明確にはわかっていない。

一方、軽水炉プラントのシビアアクシデント時における FP 挙動を明らかにするため開発された VICTORIA コードシリーズでは¹⁰⁾、原子炉から発生した個別核種の沈着のみならず、発生核種間の化合物ならびに構造材元素との化合物生成ならびにその沈着を扱うことができるとともに、化学反応および相変化、エアロゾル生成、エアロゾルと蒸気の輸送および沈着、沈着エアロゾルの再浮遊、FP 崩壊熱の影響について評価できる。また、豊富な実験を基に決められた信頼性の高い物理定数の採用や生成化合物の表面沈着現象を濃度拡散による凝縮沈着モデルによって解くので、解析上の任意性が極めて少ない¹¹⁾。

そこで、本研究では VICTORIA コードにより、FP 化合物生成に関する化学平衡計算を行うことによる化合物生成核種の同定とこれら FP 濃度差拡散凝縮モデルを適用した GTHT300 プラント各種構造機器内の FP プレートアウト挙動に関する解析の実施と Ag を用いた模擬 FP プレートアウト試験の実施により、本コードの凝縮モデル計算精度の検証を行った。

II. 解析方法

1. 解析条件

(1) 化合物生成/沈着モデル

Fig. 2 に本解析で仮定した化合物生成メカニズムおよび濃度差拡散による凝縮沈着モデルを示す。図中では

Fig. 2 Concept of FP compound formation and plate-out mechanism

^{110m}Ag および ¹³¹I 核種を FP 代表核種例としている。

ここで、構造材表面には数～数 10 μm の構造材反応層（構成元素は、構成材と同一）と、そこから蒸発する構成元素（例えば Ni など）濃度の濃い部分（フィルム層）が存在するものと考えられることから、構造材表面には構造材と同一の構成元素からなる特定の厚みを有する反応層とそれを含むフィルム層を仮定し、これら構造材蒸発元素と FP との化合物化（図中では Ni¹³¹I）および、この化合物の濃度拡散による構造材表面への沈着を解析対象に加えた。ここで、仮定した反応層の構成元素は構造材料組成と同一とし、例えば代表的構造機器のタービンロータ部では、Inconel-600 (76%Ni-16%Cr-8%Fe) 材を、それ以外のノード番号では 304 ステンレス鋼 (71.7%Fe-18.4%Cr-8.7%Ni-1.2%Mn) を選択し、解析においてはこれらの元素が反応層（以下、反応厚みとして d で定義）に存在するとして、この厚みをパラメータとして化学平衡計算を実施した。

高温ガス炉炉心から個別に発生した ^{110m}Ag および ¹³¹I は、原子炉出口から高温ヘリウムガス中 (1,123 K, 7 MPa, 440 kg/s) をガス状態（図中核種状態を (g) : ガス状態, A-B : 化合物状態, (c) : 凝縮状態と表記）で原子炉配管や各種機器内に流入する。その際化学平衡状態で ^{110m}Ag (¹³¹+¹³³)I 化合物や構造物元素とから Ni(¹³¹+¹³³)I 等が特定濃度で生成するとともに、プラント中の配管・機器内の温度-圧力-流速状態により、これらヘリウム中の核種および化合物のガス層と濃縮層の濃度勾配がヘリウム流れ方向から配管・機器構造材表面方向に向かって生じ、この濃度差により構造材表面への拡散・沈着が促進される。ただし、ヘリウムガス温度 > 壁温度あるいは、フィルム層内における凝縮層の混合により飽和蒸気圧の低下は生じるが、蒸気層 FP 分圧がこの低下した飽和蒸気圧より低ければ濃度低下は起きないこと、すなわち蒸気層の方が濃度が低くなるので、濃度勾配によるフィルム層への FP 移行は生じないものとした。

本研究では、このように原子炉から発生した個別核種として ¹³⁷Cs, ^{110m}Ag, (¹³¹+¹³³)I を解析対象核種とし^{4,5)}、その沈着のみならず、発生核種間の化合物ならびに構造材元素との化合物の沈着を扱うものとし、化学反応および相変化、エアロゾル生成、エアロゾルと蒸気の輸送および沈着、沈着エアロゾルの再浮遊、FP 崩壊熱の影響について FP 挙動解析用コード VICTORIA2.0 による評価を行った¹¹⁻¹³⁾。

本解析における化合物生成量に関する計算は、不活性ヘリウムガス雰囲気中の放出物が ¹³⁷Cs, ^{110m}Ag および (¹³¹+¹³³)I であるので、VICTORIA2.0 コードで取り扱えるこれら対象核種に関する化合物生成について化学平衡計算（各瞬間に成立するものと仮定して）を行い、その結果に従って各化合物の生成量は保存されるという拘束条件のもとで各生成化合物間で分配することにより行った。

このコード内で取り扱える本解析に関する核種および

化合物として、下記のものがある。

(a) 凝縮相として

CsI, Cs, Ag, AgI および FeI₂, CrI₂, NiI₂, Mn

(b) ガス相として

CsI, Cs, Cs₂, I, I₂, Cs₂I₂, Ag, AgI および FeI₂, Fe₂I₄, CrI, CrI₂, Fe, Cr, Ni, Mg

ヘリウムガスとフィルム層間の FP の移動は、エアロゾル沈着を除くとガスの濃度差によって生じる拡散によって起こり、各解析箇所のガス-フィルム層間において化学平衡計算を行うので、初期にフィルム層内のみにあった構造材を含む化合物がヘリウムガス中にも存在することになる。

(2) FP 拡散モデル^{13~15)}

VICTORIA コードでは、濃度差拡散によるガス状化学種の移行は下記拡散方程式により計算を行っている。

燃料薄膜(f), バルクガス(g), 構造物薄膜(s)間のガス状化学種(i)の移行は、以下の2次元円筒座標系の輸送方程式で表される。

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} c(i) = & \frac{1}{A_r} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left[A_r D(i) \frac{\partial}{\partial r} c(i) - A_r u c(i) \right] \\ & + \frac{1}{A_z} \cdot \frac{\partial}{\partial z} \left[A_z D(i) \frac{\partial}{\partial z} c(i) - A_z v c(i) \right] \\ & + \frac{S_F + S_C + S_S}{V_B} \end{aligned} \quad (1)$$

ただし、初期条件は、

$$t = t_0 \text{ の際, } c(i) = c_0(i) \text{ および } \partial c(i) / \partial t = 0 \quad (\text{全境界領域})$$

ここで、 t : 時間(s)

$c(i)$: 化学種 i の濃度

r : 半径方向

z : 軸方向

A_r : 半径方向の流れおよび拡散領域

A_z : 軸方向の流れおよび拡散領域

$D(i)$: 混合ガス中の化学種 i の拡散係数

u : 半径方向速度

v : 軸方向速度

S_F : 燃料層からのソースターム

S_C : 制御棒層からのソースターム

S_S : 構造物表面層からのソースターム

V_B : バルクガスサブ領域の体積

0 : 初期条件時の参照サブスクリプト

ただし、(1)式中の拡散係数は、下記式により与えた。

$$D(i, j) = \frac{0.018824 \sqrt{T^3 \left(\frac{1}{M(i)} + \frac{1}{M(j)} \right)}}{P \sigma_{ij} \Omega_{D, ij}} \quad (2)$$

$$\sigma_{ij} = \frac{1}{2} (\sigma_i + \sigma_j) \quad (3)$$

$$\Omega_{D, ij} = \sqrt{\varepsilon_i \varepsilon_j} \quad (4)$$

ここで、 $D(i, j)$: 化学種 j に対する化学種 i の拡散係数 (m²/s)

Table 1 Total dose and allowable work time estimation to FP contaminated gas turbine of 600 MWt HTGR-GT plant

	Fission products			
	¹³⁷ Cs	^{110m} Ag	¹³¹ I	¹³³ I
Source term (Bq)	7.9E12	5.1E11	5.6E12	3.1E12
Plate-out in turbine (Bq)	1.2E9 (1.6E12)	2.1E10 (8.9E9)	1.6E11 (—)	9.3E10 (—)
Conversion factor ²³⁾ (mSv/h/Bq)	6.5E-11 (9.7E-11)	2.8E-10 (4.5E-10)	4.4E-11 (—)	6.56E-11 (—)
Dose equivalent (mSv/h)	7.8E-2 (155.8)	5.9 (3.96)	7.2 (—)	6.1 (—)
Total Dose (mSv/h)	19.2(159.8)			
Allowable work time (h)	2.6 (0.3)			

() Ret. 6)

$M(i)$: 化学種 i のモル重量(kg/kg-mol)

P : 全圧(Pa)

σ_{ij} : 化学種 i の化学種 j に対する衝突代表直径(Å)

σ_i : Lennard-Jonnes パラメータ^{13~15)}における化学種 i の代表直径(Å)

$\Omega_{D, ij}$: 混合化学種 i と j の体積拡散の衝突積分値

ε_i : Lennard-Jones パラメータにおける化学種 i の自己反応エネルギー

また、(1)式中 S_F および S_C は、燃料からの放出率 (Table 1) と 0 をそれぞれ入力値として直接指定した。 S_S については下記式により与えた。

$$S_S = K_S(i) A_S [\chi_S(i) - \chi(i)] \quad (5)$$

ここで、 $K(i)$: 化学種 i の物質移動係数(kg/m²・s)

A : 物質移動を生じるの表面積(m²)

$\chi(i)$: 化学種 i のモル分率

ただし、 $K(i)$ は下記(6)式により定義されたものである。

$$K(i) = \frac{M(i) D(i)}{\delta_m} \sum_{j \in G} C(j) \quad (6)$$

ここで、 $M(i)$: 化学種 i の分子量(kg/kg-mol)

$C(j)$: 化学種 j のモル集中密度(kg-mol/m³)

G : VICTORIA 内蔵のガス種別のデータベースセット

(3) FP 沈着メカニズム

FP 沈着量を支配する沈着メカニズムとしてはエアロゾル粒子の動力学モデルから、主に下記の(a)重力沈降、(b)熱泳動現象について下記モデルパラメータを用いて解析を実施した。また、VICTORIA コード内では乱流沈着および層流沈着(ブラウン拡散沈着)についても自動的に計算を行っている。

(a) 重力沈降^{13~15)}

エアロゾルの重力沈降速度の導出式ならびにパラメータ

は、下記式と値を用いた。

重力沈降速度: u_G

$$u_G = g m B$$

g : 重力加速度

m : エアロゾル質量

$$B = \frac{C_n}{6\pi\chi_d\mu_g r_p}$$

χ_d : 動的形状因子: エアロゾルが非球形の影響を表すファクタで $\chi_d=1.0$ は球形と仮定。

μ_g : 粘性係数

r_p : エアロゾル半径

C_n : Cunningham 補正係数

$$C_n = 1 + k_a Kn + k_q Kn \cdot \exp(-k_b/Kn)$$

Kn : Knudsen 数

k_a, k_q, k_b : 経験的無次元係数 (1.25, 0.41, 0.88 : Davies の論文¹⁶⁾より)

(b) 熱泳動^{13~16)}

熱泳動沈着速度は、下記式およびパラメータ値を用いた。

熱泳動沈着速度: u_{Ts}

$$u_{Ts}(r_p) = \frac{-2C_s \left(\frac{k_g}{k_p} + C_t Kn(r_p) \right) \frac{C_n \mu_g}{\rho_g} \frac{T - T_s}{T \Delta T}}{(1 + 3C_m Kn(r_p)) \left(1 + 2 \frac{k_g}{k_p} + 2C_t Kn(r_p) \right)}$$

ΔT : 熱境界層厚さ

k_g/k_p : 伝導率比

C_s : 熱スリップ係数: 1.17

C_t : 温度の不連続性の補正因子: 2.18

C_m : 運動量の補正因子: 1.14

(C_s, C_t, C_m の値は Talbot¹⁷⁾による)

2. プラントモデル

解析に用いた原子炉プラント全体を単純直配管で模擬し、

Fig. 3 に示す全25ノードに分割した。すなわち、ノード番号1: 原子炉からの配管, 2~11: 8段ガスタービン(2および11は入口スクロールおよび出口ディフューザ), 12~14: タービンから再生熱交換器への配管, 15~24: 再生熱交換器, 25: 前置冷却器である。Fig. 4 にプラントモデルで想定される運転条件を示す。これによると、シ

Fig. 3 GTHT300 plant analysis model and node points

ステム内温度ならびに圧力変化は、Fig. 4(a)に示すように、原子炉配管から前置冷却器にかけて徐々に低下し、前置冷却器部(ノード番号25)では室温レベルまで温度が低下する。ヘリウムガス流速およびガス密度(Fig. 4(b))については、流速はガスタービン部(ノード番号2~12)で急激に上昇するほかは、下流側になるに従って単調に低下す

Fig. 4 Operation conditions of GTHT300 plant; (a) temperature and pressure distribution along node point, (b) Helium gas velocity and gas density distribution along node points and (c) surface area and cross section of typical component

る一方、ガス密度はガスタービン出口まで急激に低下するが、再生熱交換器(ノード番号15~24)以降、再び増加する傾向を示した。Fig. 4(c)は、ヘリウムガス流れ方向に平行ならびに垂直方向の各機器の表面積ならびに断面積を示す。ガスタービン部(2~12)表面積ならびに断面積に比べて、再生熱交換器および前置冷却器(15~25)の表面積ならびに断面積が圧倒的に大きいことがわかる。

以上のことから、ガス温度ならびにガス流速が極めて高く表面積の小さなタービン部(ノード番号2~11)では各種FPはヘリウム-FPガス混合状態にあることから、プレートアウトは起こりにくい条件にある。これに対して、ガス温度ならびに流速が低く表面積の極めて大きな再生熱交換器部以降(ノード番号15~)の機器については、FPエアロゾルからの凝縮によるプレートアウトが顕著に生じるものと推定される。

3. 解析条件

(1) FP放出線源量

^{137}Cs および $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の放出線源量については、 ^{137}Cs および $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の炉心からの放出割合が GTHTR300 プラントの730日運転の積算放出量^{4,6)}からそれぞれ、 $3.92 \times 10^{-11} \text{ kg/s}$ および $4.64 \times 10^{-14} \text{ kg/s}$ とした。ここで、 ^{134}Cs 核種の放出割合は極めて少ないことから解析対象からはずした。

また、ヨウ素(^{131}I および ^{133}I)の放出割合は、燃焼初期では全部が ^{235}U から放出されるが、一方、燃焼終期ではウラン全燃料の40%が ^{239}Pu となり、この ^{239}Pu からのヨウ素放出分も同時に勘案する必要があるが、 ^{235}U および ^{239}Pu とからの収率はあまり変わらないことから、ヨウ素全部が ^{235}U からのものと仮定し、文献⁴⁾からの ^{131}I および ^{133}I の放出割合/生成率(R/B 比)を用いてそれぞれ $1.93 \times 10^{-14} \text{ kg/s}$ および $1.19 \times 10^{-15} \text{ kg/s}$ とした。なお、Iの放射能換算は文献¹⁷⁾を参考に行った。

III. 実験方法

1. ガスタービン翼モデルによるFPプレートアウト試験

上記 VICTORIA コードによるFPプレートアウト解析の信頼性を確認するため、GTHTR300のヘリウムガスタービン内の流速、圧力勾配およびタービン翼表面積を模擬したガスタービン翼モデルによる銀蒸気のプレートアウト試験を行い、その結果を基にプレートアウト解析を実施した。

Fig. 5に模擬FPプレートアウト試験装置を示す。本装置は、①高温ガス発生系、②銀粒子発生系、③ガスタービン翼モデル試験部、④冷却系から構成されている。

(1) 高温ガス発生系

高温ガス発生系は、窒素発生装置(神戸製鋼所製 Air mate screw compressor AM3PD-5 およびボンベダッシ

Fig. 5 Lay-out of FP plate-out test device with simulated gas turbine blade test section

ュ 3; 窒素ガス純度×最大発生量, $99.99\% \text{ N}_2 \times 1.2 \text{ Nm}^3/\text{h}$ と加熱部(高周波加熱装置($200 \text{ V} \times 7.5 \text{ kVA}$, 最高温度 $1,273 \text{ K}$ (図中 Heater 1)))から構成されている。本加熱部では、窒素発生装置から供給される高純度窒素ガスをコイル管に導き、その外周を取り巻くように敷設した高周波加熱用コイル(直径 $\phi 115 \text{ mm}$)で加熱することによって最高 $1,273 \text{ K}$ までの高温窒素ガスを得た。

(2) 銀蒸気発生系

銀蒸気発生系は、銀蒸気発生装置と加熱部(高周波加熱装置($200 \text{ V} \times 7.5 \text{ kVA}$, 最高温度 $1,373 \text{ K}$ (図中 Heater 2)))から構成されている。銀蒸気発生部装置(Fig. 5)の直管内中央部(直径 $\phi 34 \text{ mm}$)に上記高温ガス発生系加熱部から出てくる高温窒素ガスを取り込み、銀発生部に高温窒素ガスを導く構造とした。銀の蒸発は融点以下の温度でできるだけ微細蒸発粒を得るため、ハステロイ配管内にセラミックス製ホルダとレデューサを取り付け、これらの中にアルミナ製のるつぼ(外径×高さ, $\phi 6 \text{ mm} \times 10 \text{ mmH}$)を置き、このるつぼの中に銀メッシュ(線径×メッシュ, $\phi 0.25 \text{ mm} \times 23$)を約 $1 \text{ cm} \times 4 \text{ cm}$ (約 500 mg)を切り取り、これを巻いてアルミナのるつぼに入れた。

銀の蒸発温度の計測/制御は、るつぼホルダ底部ならびに配管側面の2箇所で行った。

(3) ガスタービン翼モデル試験部

Fig. 6(a)にガスタービン翼モデル試験部(全長×直径, 約 $402 \text{ mm} \times \phi 50 \text{ mm}$)の詳細を示す。本試験部に上述のハステロイ X 合金粉末を焼結した多孔質耐熱フィルタ(一種のポーラスメディア)¹⁷⁾を2枚図の位置に挟み込むように取り付け、これらのフィルタをそれぞれガスタービン実機翼と見立てることにより、各フィルタ前後の高温窒素ガスの温度や圧力の計測を行った。ここで、耐熱フィルタはハステロイ X 製構成粒子粉末直径 $20 \mu\text{m}$, 充填率60%, 厚み 1.6 mm , ガス通過面積 $\phi 40 \text{ mm}$ のフィルタである。Fig. 6(b)に本試験部全体の外観を示す。蒸気銀のフィルタ以外の箇所への付着を調べるため、本試験部内に

Fig. 6 (a) Simulated gas turbine blade test section in FP plate-out test device and (b) photo of the test section

SUS316 製モニタ用捕集筒を取り付け、試験終了後これらを取り外すことにより捕集筒内表面に付着している銀元素の定量分析を行った。モニタ用捕集筒の寸法および配置位置はそれぞれ、①るつば出口(外径×長さ、φ9.4 mm×120 mm)、②フィルタ入口(外径×長さ、φ9.4 mm×180 mm)、③フィルタ 1 段目(外径×長さ、φ40 mm×98 mm)、④フィルタ 2 段目(外径×長さ、φ40 mm×98 mm)、⑤フィルタ 3 段目(外径×長さ、φ40 mm×98 mm)である。

(4) 冷却系

冷却系は、Fig. 5(a)に示すように、二段の水冷式冷却器(図中 Cooler 1 および 2)および空冷式で内筒に Filter trap(SUS316 製)を取り付け、試験終了後にこのトラップを取り外し、元素分析を行った。

2. FP プレートアウト試験条件

(1) 供給窒素ガス流量および温度条件

供給窒素ガスの純度ならびに供給流量を、それぞれ 99.99% および 1.6 l/min とした。この流量設定は、耐熱フィルタメディア表面流速で約 10 m/min に相当する。

また、フィルタ試験部内窒素ガス温度を GTHTR300 システム実機条件と同等の 1,123 K~1,173 K±10 K で制御しつつ、上述の流速で約 8 時間、高純度窒素ガスを連続供給し続けることにより実験を継続した。

(2) 銀蒸気発生条件

銀蒸発部からできるだけ微細な銀蒸気を得るため、るつば最高温度を銀融点(1,233.5 K)¹⁸⁾に対して 1,163~1,223 K±2 K で温度制御しつつ、同上の期間で連続的に銀蒸気を供給し続けた。

実験中のキャリアガス中の銀密度の最大値を評価するため、銀の蒸気圧を次式で算出した¹⁹⁾。

$$\log_{10} P = -A/T + B + C \log_{10} T + 2.125$$

ここで、 P : 銀蒸気圧、 T : 温度、 $A=14,710$ 、 $B=11.66$ 、 $C=-0.755$ である。

(3) 銀の付着量の定量分析

(a) 前処理

コニカルビーカーに 1 mol/l 硝酸溶液 500 ml を加え、各種モニタ捕集筒および SUS316 製メッシュフィルタの全体を浸漬し、超音波洗浄を 318 K で 30 min 間行った。洗浄液からモニタ捕集筒を取り出し、洗浄液を加熱濃縮後、純水で 50 ml に定容し試料溶液とした。

(b) 定量分析

FP 捕集試験で高温 FP フィルタに捕集された銀の量ならびに、装置内に飛散した銀の付着状況を調べるため、各モニタ捕集筒などからサンプリングした上記試料溶液中の銀の量を ICP 発光分析法(島津製作所製、高周波プラズマ発光分析装置 ICPS-1000III)により分析した。計測ポイントは Fig. 5(a)に示す 2 枚の耐熱フィルタのほか、①るつば出口、②フィルタ入口、③フィルタ 1 段目、④フィルタ 2 段目、⑤フィルタ 3 段目、⑥冷却器部(SUS316 製

網, 外径×長さ, $\phi 20 \times 200$ mm)の全9箇所である。

IV. 結 果

1. 銀蒸気のプレートアウト特性

(1) 装置内温度/圧力分布

耐熱フィルタ試験温度×銀蒸気温度, $1,153 \text{ K} \times 1,243 \text{ K}$ を目標とした試験装置内各部での定常状態における温度, 圧力分布および銀蒸気プレートアウト比率(=プレートアウト量/銀蒸気量)を Fig. 7(a), (b)に示す。ただし, 図中の距離は Fig. 5(a)における A-A 基準点からの各部距離を表しており, 図中 #1~#4 は, それぞれ耐熱フィルタ試験部における温度ならびに圧力の計測点である。これによると, 窒素ガスの入口温度は $1,243 \text{ K}$ で高温加熱されており, フィルタ試験部に導入された後, #1~#4 の温度計測点において約 $1,153 \text{ K}$ の定格温度となっていることがわかる。

なお, 装置入口における高温窒素ガス圧力は, 0.014 MPa であるのに対して, フィルタ試験部のフィルタ 1 の上流部の #2 においては, フィルタ試験部入口 #1 に対して若干の圧力上昇が見られるものの, フィルタ 1 および 2 の前後での圧力が急激に減少する傾向を示した。これは, フィルタによる圧損が主要原因であり, 長時間運転試験の間でこれらの関係ならびに絶対値に大きな変化は認められなかった。

(2) 銀蒸気各試験部へのプレートアウト

模擬 FP プレートアウト試験装置の上記試験条件による連続運転条件後, 各部系統を分解し, フィルタのほか計 7 箇所の各配管内に設置した各種モニタ用捕集筒などを取り出して, これらのモニタに付着した銀元素の定量分析を装置全体にわたり実施した結果を Fig. 7(a)に, また耐熱フィルタ試験部近傍のプレートアウトの詳細を Fig. 7(b) (平均値で表示)にそれぞれ示す。

これによると, Fig. 7(a)に示すように, 蒸発銀の約 20~40 wt% がろつば出口ならびに FP フィルタ試験部入口付近でプレートアウトすることがわかる。これは, 本装置を垂直配置させてあるため, 銀蒸気段階で発生する各種銀粒径のうち, 粗大で重いものが主に重量沈降の効果によりろつば近傍でキャリアガスから脱離後, 配管表面にプレートアウトしたものと考えられ, このことからフィルタ試験部にはかなり微細な銀粒子が選択的にキャリアガスとともに流入しているものと考えられる。

次に, 耐熱フィルタ試験部においては, Fig. 7(b)に示すように, 蒸発ろつばからフィルタ試験部入口におけるプレートアウト量はほぼ温度分布に比例して減少しており, 2 枚のフィルタにおいて若干のプレートアウトが認められる。さらに, 各 FP フィルタには, 同試験部の配管部 #2~#4 の数倍の数 wt% のプレートアウトが観察され, さらに初段 1 段のフィルタのプレートアウト量が次段 2 段のものより多い結果となった。これは, 本装置では銀粒子

(a)

(b)

Fig. 7 (a) Distribution of temperature and plate-out of Ag vapor with experimental data and calculation by VICTORIA code, and (b) high magnification of these test sections

発生器の加熱温度よりキャリアガスの加熱温度を低めに運転するため, 銀蒸気はガス雰囲気中で凝縮し, 熔融温度以下では固体粒子のエアロゾル(フューム)として振舞い, 本試験においてキャリアガス温度が低温化するに伴って銀微粒子間の固着によるクラスタ化や再結合により平均粒径が粗大化し, これら粗大粒子がまず初段フィルタにより除去され, 次段フィルタ上流部にはこれより微細なサブナノ級粒子が流入することになる。その結果, 次段におけるプレートアウト量は, 初段のものに比べて小さな値となったものと考えられる。

最後に, FP フィルタ試験部を通過した蒸発銀は, ほぼすべてがこれより下流の冷却器において凝縮沈着することになる。

2. ガスタービン翼モデルにおけるプレートアウト特性解析

(1) ガスタービン翼模擬 FP フィルタの特徴

GTHTR300 ガスタービン翼面上への FP プレートアウト

ト現象をFPフィルタ多孔体によって模擬するためには、少なくとも(a)ガスタービン各段での圧力損失特性が同等であるとともに、(b)フィルタ細孔内部の平均流速をガスタービン翼面流速に近い値とする必要ならびに(c)細孔全表面積がガスタービン翼表面積に近い値を取る必要がある。

(a) 圧力損失特性

本試験で用いた高温FPフィルタの圧力損失特性を評価するため、ここではガスタービン実機1段と本フィルタの圧力損失比 $\Delta P/L$ (ここで ΔP : 圧力損失, L : ガスター

ビン段幅およびフィルタ厚み)を比較する。

Fig. 8(a)~(c)に GTHTR300 実機の6段ガスタービン概念設計(静翼(図中N)/動翼(図中B)の組合せ)、各翼段における温度変化、圧力および速度変化をそれぞれ示す。ここで、各段幅を0.4 mとする。これによると、各段での圧力損失は平均で約0.5 MPaであることから $\Delta P/L=1.25$ MPa/mである。

これに対して、FPプレートアウト試験時の2枚の耐熱フィルタ前後の圧力分布から、2枚の平均圧力損失 ΔP は

(a)

(b)

(c)

Fig. 8 (a) Design of the gas turbine for GTHTR300, (b) total pressure and temperature in gas turbine and (c) velocity triangle in gas turbine

0.0065 MPa であり, フィルタ厚み 1.6 mm より, $\Delta P/L = 4.1 \text{ MPa/m}$ と評価できることから, 上述のガスタービン 1 段とはほぼ同等の圧力損失比となっていることがわかる。

(b) 細孔内流速

一般に通気性物質(ポーラスメディア)内の流速 U は, ダルシーの式²⁰⁾から下記のように表せる。

$$\Delta P/L = \mu \varepsilon / K \times U \quad (7)$$

ここで, μ : 流体の粘性, ε : 気孔率, K : 透過率である。

さらに, 透過率 K は,

$$K = \varepsilon^3 / 2Ca_p^2 \quad (8)$$

$$a_p = 6(1 - \varepsilon) / \phi_s D_p \quad (9)$$

ここで, C : 曲がり係数(〜2), ϕ_s : 形状係数, D_p : 体積等価直径で同一の体積となる球直径である。

一方, エルガン²¹⁾の式から,

$$\Delta P/L = 150(1 - \varepsilon)^2 \mu U_0 / (\varepsilon^3 (\phi_s D_p)^2) + 1.75(1 - \varepsilon) \rho U_0^2 / (\varepsilon^3 (\phi_s D_p)) \quad (10)$$

であることから, (10)式より IV-1(1)のフィルタの $\Delta P/L$ 値を用いて(9)式中の $\phi_s D_p$ 値を求めた。ただし, U_0 は高温 FP フィルタ前の高温窒素ガス流速(50〜60 m/s)である。

さらに, (8), (9)式より K を求めることにより, (7)式より細孔内平均流速 U は, $\mu = 46.9 \times 10^{-6} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ (N_2 at 1,200 K) より,

$$U = K / \mu \varepsilon \times \Delta P/L \\ = 130 \sim 156 \text{ m/s}$$

と推定され, 層流条件における流速プロファイルから細孔内最高流速 $U_T (=2U)$ は, 約 260〜312 m/s に達するものと推定される。

一方, ガスタービン実機の各段における流速三角形を Fig. 8(c)に示す。これによると, 各段動静翼出口における絶対流速は 150〜510 m/s 程度(平均 330 m/s)であることから, 上述の高温 FP フィルタ細孔内最高速度 U_T とはほぼ同程度であることがわかる。

以上の結果から, 本試験で用いた高温 FP フィルタ内に流入する高温窒素ガス流体の流動条件は, ガスタービン各段でのものをほぼ模擬した試験条件であると考えられる。

(c) プレートアウト表面積

本試験で用いた耐熱フィルタの反応表面積を求めるため, ここでは, フィルタ内部に直径×長さ, $\phi 50 \times 10^{-6} \text{ m} \times 1.6 \times 10^{-3} \text{ m}$ の細孔が空いているものと仮定すると, FP フィルタ空孔率40%であることから, 細孔表面積は約 0.16 m^2 (直径×長さ(=フィルタ厚み)×細孔個数)と見積もられる。一方, ヘリウムガスタービン実機翼一枚の表面積は, 約 0.02 m^2 で(ガスタービンディスク(直径約 $\phi 1.8 \text{ m}$))で翼高さ約 0.2 m のディスクがディスク全周に約300枚あることからすると, 本試験に用いた高温 FP フィルタ1枚の細孔内表面積は, ガスタービン翼8枚分に相当することになる。

以上の結果から, 本試験条件において FP フィルタ多孔体によりほぼガスタービン翼周りのガス流体流動条件を近似しているものと考えられる。

(2) ガスタービン翼モデル試験部のプレートアウト解析

プレートアウト解析は, VICTORIA コードにより上述の装置全体の各試験部流速, 各種配管直径×長さならびに温度, 圧力の計測データをそれぞれ入力し, 反応層厚み $d = 5 \mu\text{m}$ について実施した。

ただし, 高温 FP フィルタについては, 直径 $\phi 50 \mu\text{m}$ の円筒状細孔がフィルタ厚み方向に配列したポーラスメディアと仮定した。

Fig. 7(a)図中に解析で得られた装置全体における各試験部でのプレートアウト比率を1点鎖線で示す。これによると, 装置全体にわたり銀蒸気プレートアウト実験値と解析値でよい一致を示した。

これらの結果のうち, 特にガスタービン翼モデル試験部における2枚のおおの耐熱フィルタ位置でのプレートアウト比率は, Fig. 7(b)に示すように, 実験値と解析値に比較的良好な相関が得られ, それぞれに約16%程度のピーク値を示した。これは, 温度条件が同じであれば, その場の表面積と流量にはほぼ比例してプレートアウト量が決まることに起因している。すなわち, フィルタ内細孔の面積密度(細孔表面積/フィルタ体積)が約 $8,000 \text{ m}^2/\text{m}^3$ に対して, フィルタ試験部入口などにおける面積密度は $80 \text{ m}^2/\text{m}^3$ 程度であり, したがってフィルタ内細孔で約100倍の面積密度を有する一方, 入口部のキャリアガス流速は 80 m/s であるのに対して上述の IV-2(1)(b)項からフィルタ細孔内流速が 300 m/s で, 入口部の約6倍の速度となることから, 同図中のガスタービン翼モデル試験部入口でのプレートアウト量(約1%)に対して, 各フィルタでのプレートアウト量は約17倍程度(=100倍(面積密度比)/6倍(流速比))となるものと予想され, 実験および解析による各フィルタのプレートアウト量もこの値に近い数値を示しているものと考えられる。

3. GTHTR300 実機における FP プレートアウト解析

銀蒸気による模擬 FP プレートアウト試験の結果, 銀蒸気のプレートアウト実験値と VICTORIA コードによる解析結果とに良好な関係が得られたことから, ここでは解析対象を GTHTR300 実機へと拡大するとともに, ソースターム(解析核種)も ^{137}Cs , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, $^{(131+133)}\text{I}$ の3種に増やすことにより, 各種対象機器(ガスタービン, 圧縮機, 配管および熱交換器)におけるこれら核種の化合物生成状態(ヘリウムガス中およびフィルム層内)ならびに, これら化合物の対象機器への沈着量の推定を VICTORIA コードにより実施した。ただし, ここでは, 上述 II-1(1)項の解析モデルにおいて反応層厚み d を $50 \mu\text{m}$ と仮定した場合

の①ヘリウムガス中浮遊濃度, ②フィルム層内FP化合物濃度および③FP化学種別沈着濃度に関する解析結果を示す。

(1) ヘリウムガス中浮遊濃度

(a) FP化合物

原子炉から発生する ^{137}Cs , $^{110\text{m}}\text{Ag}$ および $(^{131}+^{133})\text{I}$ の3核種間で生成する化合物とそのヘリウムガス中濃度を各解析ノード点について Fig. 9(a)~(c)に示す。図中(S)および(C)は, それぞれガス状態および凝縮相状態であることを意味する。

これによると, ガス状 ^{137}Cs は出口配管から前置冷却器までの間(ノード番号2~25)でかなりの高濃度で均一分布しているのに対してガス状の $^{137}\text{Cs}(^{131}+^{133})\text{I}$ 化合物濃度は, 比較的システム上流部から高く, Fig. 4(a)のGTHTR300システム系内温度分布において, 再生熱交換器内の約600 Kまでガス温度が低下した段階からその濃度が下がる傾向を示した。これは, CsとCsI化合物のそれぞれの融点の差異によるものである。

一方, ^{137}Cs および $^{137}\text{Cs}(^{131}+^{133})\text{I}$ の凝縮相濃度の急激な増加が Fig. 4(b)のシステム内流速が急激に低下するガスタービン最終段付近(ノード番号11~12, 第8段およびディフィーザ部)から生じている。その他, 上流で生成したガス状 $^{137}\text{Cs}_2$ および $^{137}\text{Cs}_2(^{131}+^{133})\text{I}_2$ の濃度変化はほとんどなく, 融点の高い後者について再生熱交換器部(ノード番号21~24)で濃度が低下する傾向がある。

$^{110\text{m}}\text{Ag}$ 系化合物では, Fig. 9(b)に示すように, 高濃度のガス状 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 濃度は, Fig. 4(a)に示す系内温度分布で銀の融点温度(約1,253 K)以下の約800 K以下のガスタービン最終段近傍から低下傾向を示し, 再生熱交換器および前置冷却器で急激に減少した。

一方, $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 凝縮相濃度は, 上述の ^{137}Cs および $^{137}\text{Cs}(^{131}+^{133})\text{I}$ の凝縮相同様, システム内流速が急激に低下するガスタービン最終段付近から生じた。

また, $^{110\text{m}}\text{Ag}(^{131}+^{133})\text{I}$ 化合物の凝縮相は上流で生成し, 同化合物融点以下の温度領域から前置冷却器部まで単調に減少した。

ガス状 $(^{131}+^{137})\text{I}$ 濃度分布は, I元素が高温において上述のCs, Ag元素のほか, 後述のFe, Ni, Cr構造材元素との化合物を生じるため, Fig. 9(c)に示すように, 全解析対象域において単調に減少し, 特に再生熱交換器部で急激に減少していくことがわかる。また, ガス状 $(^{131}+^{137})\text{I}_2$ も, 生成量は低いものの $(^{131}+^{137})\text{I}$ とほぼ同様な傾向を示した。

(b) 構造材元素化合物

次に, ここでは構造材元素(Fe, Cr, Mn, Ni)に係わる化合物生成濃度分布を示す。ガス状Feは, Fig. 10に示すように, 高濃度で上流の原子炉出口配管部から発生し, 上述の ^{137}Cs と同様, ガスタービン出口近傍から急激な濃度低下傾向を示した。これに対して, Fe凝縮相濃度はガス

Fig. 9 Density of (a) Cs, (b) Ag and (c) I composite in helium gas

Fig. 10 Density of Fe composites in helium gas

タービン出口近傍から急激に増え、以降ガスタービン部内のガス状Fe同等の高濃度で分布することがわかる。 $\text{Fe}_{(131+137)}\text{I}_2$ は上流部で凝縮し、タービン出口近傍から濃度が低下した。一方、ガス状 $\text{Fe}_{(131+137)}\text{I}_2$ および $\text{Fe}_{2(131+137)}\text{I}_4$ は、無視できる程低濃度となった。Cr系化合物について、ガス状Cr、 $\text{Cr}_{(131+133)}\text{I}$ および $\text{Cr}_{(131+133)}\text{I}_2$ の急激な濃度変化が、上述のFeと同様高濃度でガスタービン出口前後で生じ、これに対して、同じ箇所から高濃度のCr凝縮相が生じた。 $\text{Cr}_{(131+137)}\text{I}_2$ 凝縮相濃度は無視できるほど低い値となった。さらに、MnおよびNi元素化合物については、Cr化合物同様、ガス状MnおよびNi元素濃度は、ガスタービン出口付近で同元素の凝縮相濃度と逆転した。一方、 $\text{Ni}_{(131+137)}\text{I}_2$ の生成量は無視できる程低い値となった。

(2) フィルム層内 FP 化合物濃度

(a) FP 化合物

フィルム層内の ^{137}Cs 化合物濃度をFig. 11(a)に示す。これによると、上述した ^{137}Cs 化合物のヘリウムガス中浮遊濃度分布と異なり、高濃度の ^{137}Cs および $^{137}\text{Cs}_{(131+133)}\text{I}$ 凝縮相が解析全範囲においてほぼ均一に分布している。これは、フィルム層内の流速ならびに圧力が上述のガス中のような極端な変化をしないためである。

一方、その他の化合物濃度は、主にFig. 4(a)に示すシステム中の温度分布の減少とともに減少していく傾向を示した。

^{110m}Ag 化合物のガス相および凝縮相濃度は、Fig. 11(b)に示すように、主に上述の ^{137}Cs 化合物と同様の濃度変化を示した。

$^{131+133}\text{I}$ および $^{131+133}\text{I}_2$ ガス相濃度は、Fig. 11(c)に示すように、上述のガス中浮遊濃度分布とほぼ同じ傾向を示した。

(b) 構造材元素化合物

Fe, Cr, NiおよびMn系化合物濃度分布については、Fig. 12に代表例としてFeのケースを示す。これによると、フィルム層内では構造材に近接していることから、こ

Fig. 11 FP density of (a) Cs, (b) Ag and (c) I composites in structure film

れら元素濃度が高いものの、システム系内でも濃度分布変化は、上述(a)のFP化合物のものと基本的に顕著な差異は認められなかった。

Fig. 12 FP density of Fe composites in structure film

V. 考 察

1. FP プレートアウト解析における反応層厚みの影響

本節では、Fig. 2に示すプレートアウト概念モデルを用いて構造材表面に沈着するFP沈着量の解析値と、解析の際、仮定した反応層厚みとの関係を明らかにするための、①模擬FP蒸発銀の実験および②GTHTR300実機システムについて、Fig. 2に示すプレートアウト概念モデルを用いて反応層厚み、 d を変えた下記ケースについて解析を実施した。

ケースI : $d = 0 \mu\text{m}$

ケースII : $d = 5 \mu\text{m}$

ケースIII : $d = 50 \mu\text{m}$

(1) 模擬FP蒸発銀のプレートアウト試験

上記各解析ケースで得られた模擬FPプレートアウト試験装置内の銀のプレートアウト量と各ケースごとの解析値とをFig. 12(b)に示す。これによると、ケースIの場合、銀蒸発するつばより下流からガスタービン翼模擬試験部までの箇所において銀蒸気のプレートアウトは認められなかった。これに対して、ケースIIおよびIIIにおけるこの領域でのプレートアウト量は実験値をより一致を示すとともに、両ケースではほとんど差異は認められなかった。これは、ケースIの場合、反応層を仮定していないことから装置の構造材構成元素(主にSUS316)の窒素ガス中への拡散が生じず、蒸発銀-構造材元素間の化合物が生成せずかつ、構造フィルム層への構造材元素ガス拡散による蒸発銀飽和蒸気圧の低下が起こりにくいため、構造材表面への銀元素の濃度拡散が促進されなかったものと考えられる。これに対して、反応層を仮定したケースIIおよびIIIでは、構造フィルム層内の構造材元素濃度が高くなり、その結果、蒸発銀のプレートアウトが対象領域各所で生じたものと考えられる。

また、本実験におけるプレートアウトを解析する上である程度の反応層厚み d を仮定することにより、解析によ

り良い結果が得られることがわかった。

(2) GTHTR300実機における核種別FPプレートアウト

本項では、上述の反応層厚みの仮定値を最適化するため、Fig. 3のGTHTR300実機モデルにおいて核種別FPプレートアウトの解析を、反応厚み d を上述(1)項同様に仮定することにより実施した。

これによると、各解析ノード点においてこれらの解析ケースで得られた ^{137}Cs 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ および $(^{131}+^{133})\text{I}$ の沈着量を評価した結果をFig. 13に示す。また、比較のため同図中に簡易解析した結果(文献6))も示した。

これによると、ケースIIおよびIIIでは ^{137}Cs (Fig. 13(a))および $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (Fig. 13(b))の沈着量分布が、温度分布の低くなるガスタービン上流から下流の前置冷却器にかけて増加する傾向を示す一方、 $(^{131}+^{133})\text{I}$ では(Fig. 13(c))、再生熱交換器以降の機器において濃度が低下する傾向を示した。また、ガスタービン上段部で ^{137}Cs および $(^{131}+^{133})\text{I}$ の沈着量は、ケースIII>ケースII、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ においてはケースII=ケースIIIであった。

これは、反応層が厚くなるに比例して、構造フィルム層内の構造材元素濃度が高くなり、その結果、 $\text{Fe}(^{131}+^{133})\text{I}_2$ 等の化合物濃度が高くなるとともに、特に ^{137}Cs および $(^{131}+^{133})\text{I}$ 核種の飽和蒸気圧が低下し、FP濃度拡散が促進されるからである。これに対して、ケースIではガスタービン部においてFP沈着が認められず、いずれの核種も再生熱交換器低温部から沈着が始まっていることがわかる。これは、ケースIでは反応層を仮定していないため構造材構成元素のヘリウムガス中への拡散が起こらず、FP構造材元素化合物の生成が生じないとともに、構造フィルム層への構造材元素ガス拡散によるFP飽和蒸気圧の低下が起こりにくく、構造材表面への濃度拡散が促進されなかったためである。

文献6)と比較すると、 ^{137}Cs および $^{110\text{m}}\text{Ag}$ についていずれもタービン部で文献6)の評価値がケースI~IIIより高く、反対に再生熱交換器部でケースII、IIIのほうが高くなっている。このような差異が生じた理由として下記理由が考えられる。

PLAINコードによる文献6)の解析では、構造フィルム層への蒸気相FPのガス拡散による蒸気相濃度低下の割合を α と仮定して、これを入力パラメータとして設定しており、 α 値は温度のみの関数でFP蒸気濃度に依存しないとしている。一方、本解析では、フィルム層内における凝縮相の混合等により飽和蒸気圧の低下は生じるものの、蒸気相FP分圧が、低下した飽和蒸気圧より低ければ濃度低下は生じず、そのため蒸気相濃度が低くなるため濃度勾配による構造フィルム層へのFPの移行が生じない場合がある。特に本解析では、FP放出量が少ないため、もともとFP浮遊濃度の絶対値が特にCsおよびIの場合に飽和蒸気圧に対して小さいので、この効果により文献6)と比

べて FP 沈着の評価値を低くしたものと考えられる。

以上の結果から、解析上で仮定すべき反応層厚み d は、 $5 \sim 50 \mu\text{m}$ 以下でも十分であることから、本研究ではこの反応厚みを $50 \mu\text{m}$ と想定することにより、以下の解析を実施することとした。

Fig. 13 Plate-out of (a) ^{137}Cs , (b) $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and (c) $(^{131}+^{133})\text{I}$ in GTHTR300 plant as a function of reactive layer thickness

2. GTHTR300 実機における放射線量評価

本節では、上記解析仮定も基で GTHTR300 実機の各対象機器で想定される核種別 FP のプレートアウトならびにこれら対象機器のメンテナンスにおいて予想される作業員の被曝線量評価を行った²³⁾。

(1) FP 化学種別沈着濃度

本節では、核種別 FP 化合物の解析対象機器表面に沈着した沈着量の評価を行った結果を Fig. 14 にまとめて示す。

(a) ^{137}Cs 系 FP

沈着核種は、主に ^{137}Cs ならびに $^{137}\text{Cs}(^{131}+^{133})\text{I}$ の凝縮相であり、ほぼ全解析範囲の機器部において高濃度の均一な沈着が認められる。

(b) $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 系 FP

$^{110\text{m}}\text{Ag}$ 系化合物では、全解析範囲で $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 凝縮相の高濃度の沈着が見られる一方、 $^{110\text{m}}\text{Ag}(^{131}+^{133})\text{I}$ 凝縮相は、上流から下流にかけて沈着濃度が低下する傾向を示した。

(c) $(^{131}+^{133})\text{I}$ 系 FP

$(^{131}+^{133})\text{I}$ 系 FP は、Cr、Fe および Ni とそれぞれ化合物を生成し、 $\text{Cr}(^{131}+^{133})\text{I}_2$ 、 $\text{Fe}(^{131}+^{133})\text{I}_2$ および $\text{Ni}(^{131}+^{133})\text{I}_2$ 凝縮相は、低濃度で上流から下流にかけて沈着量が低下する傾向を示した。

(2) システム系内における放射線量の評価

以上の結果から本項では、ケース III の FP 沈着量評価結果を基に GTHTR300 プラント対象機器やガスタービン部における ^{137}Cs 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ および $(^{131}+^{133})\text{I}$ 核種の全線量、線量当量率ならびに許容作業時間に関する検討を行った。ただし、入口スクロール部およびディフィーザ部は除いた。Table 1 にタービン部に沈着する FP 全線量、当量線量率ならびにタービン表面近傍における許容作業時間を示した。

なお、比較のため文献6)で評価した値を同表中()内の数値として表す。

これによると、文献6)と比較して ^{137}Cs および $^{110\text{m}}\text{Ag}$ のタービン部への沈着が極めて少ないことがわかる。それに対して文献6)で評価しなかった $(^{131}+^{133})\text{I}$ の沈着が全放出ヨウ素の約30%に当たることがわかった。

Fig. 14 Total FP plate-out in GTHTR300 system

以上の結果から、タービン部の保守点検に許容される作業時間を評価するとタービン表面(=線源)から距離1 m、遮蔽なしで空間を空気と想定した場合、2.6 h(文献6)の場合、0.3 h)と比較的長い時間となり、さらに実際の作業時の遮蔽処置等により、タービン部保守点検の際の実作業時間を十分に確保できるものと考えられる。

以上の結果、VICTORIAと簡易コードによるそれぞれの評価法により得られた評価線量には、各対象機器にプレートアウトする核種やその量に差異があることから、その評価線量に極めて大きな差異が生じることが明らかとなるとともに、VICTORIAによる解析解のほうが簡易コードによるものより保守的な結果が得られた。おのおのの解析解に差異が生じた原因は、主に簡易コードにおいてFP核種の化合物とそのプレートアウトに関する情報が得られないことに起因する。そのため、VICTORIAコードによる線量評価は、簡易コードに対して保守的ではあるが高い解析解を与えるものと考えられる。

VI. 結 言

GTHT300プラントにおける各保守点検機器部において生成するFP化合物の形態ならびにこれらの各機器への沈着量の評価をVICTORIAコードによって行うことにより、本プラントにおいて最もメンテナンス頻度の高いガスタービンにおける作業性の検討を行った。その結果、下記の結論が得られた。

- (1) VICTORIAコードによる銀蒸気のプレートアウト模擬試験をガスタービン模擬翼要素により実施した結果、コードに適当な反応層厚みを仮定することで、実験値とよく一致する解析解を得ることができた。
- (2) FP化合物生成では、ソースタームである ^{137}Cs 系についてはCs単体のほか $\text{Cs}_{(131+133)}\text{I}$ 、 $\text{Cs}_{(131+133)}\text{I}_2$ および Cs_2 が生成する。 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 系では、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 単体のほか、 $\text{Ag}_{(131+133)}\text{I}$ が生成する。 $^{(131+133)}\text{I}$ 系では、 $^{(131+133)}\text{I}$ および $^{(131+133)}\text{I}_2$ の他、構造材元素の蒸発により $\text{Fe}_{(131+133)}\text{I}_2$ 、 $\text{Fe}_{(131+133)}\text{I}_4$ 、 $\text{Cr}_{(131+133)}\text{I}$ 、 $\text{Cr}_{(131+133)}\text{I}_2$ ならびに $\text{Ni}_{(131+133)}\text{I}_2$ が生成する。
- これらの化合物核種は対象機器部の温度と圧力条件においてガス層ならびに凝縮相の状態で存在する。
- (3) 温配管～ガスタービン～再生熱交換器～前置冷却器までの解析対象範囲において、主要なプレートアウトFP化合物は、 ^{137}Cs 、 $^{137}\text{Cs}_{(131+133)}\text{I}$ ならびに $^{110\text{m}}\text{Ag}$ である。
- (4) 沈着核種間での沈着量は、 $^{(131+133)}\text{I} > ^{137}\text{Cs} > ^{110\text{m}}\text{Ag}$ であった。
- (5) さらにこれら核種の沈着量は、解析モデル中の反応層厚みに依存し、層厚みが薄いほど沈着量は減少した。

- (6) 作業被曝線量評価からGTHT300プラント730日運転後のガスタービン部表面から1 mの箇所遮蔽なしで空間を空気と仮定した場合の許容作業時間は2.6 hと評価された。

本研究は文部科学省から日本原子力研究所への委託により、平成12年度に実施された電源特会「核熱利用システムの技術開発」の「高温発電システム」の成果である。

一 参考文献

- 1) 高田昌二, 滝塚貴和, 国富一彦, Xing Yan, 片西昌司, 小杉山真一, 皆月 巧, 三好保行, 原子力と文論文誌, 1[4], 341~351 (2002).
- 2) 国富一彦, 片西昌司, 高田昌二, 滝塚貴和, 中田哲夫, Xing Yan, 武井正信, 小杉山真一, 塩沢周策, 原子力と文論文誌, 1[4], 352~360 (2002).
- 3) 片西昌司, 国富一彦, 武井正信, 中田哲夫, 渡部 隆, 泉谷徹, 原子力と文論文誌, 1[4], 373~383 (2002).
- 4) JAERI-data/Code-99-034.
- 5) 馬場 治, 露崎典平, 沢 和弘, JAERI-M88-266, (1989).
- 6) Y. Muto, S. Ishiyama, S. Shiozawa, "Study of fission product release, plate-out and maintenance in helium turbomachinery," IAEA Technical Committee Meeting, Palo Alto, Nov. 14~16, 2000.
- 7) K. Sawa, et al., Nucl. Technol., 118, 123~131 (1997).
- 8) F. E. Vanslager, L. D. Mears, GA-10460, (1971).
- 9) D. L. Hanso, N. L. Baldwin, W. E. Selph, GA-A14161, (1976).
- 10) N. E. Bixler, VICTORIA2.0: A Mechanistic Model for Radionuclide Behavior in a Nuclear Reactor Coolant System under Severe Accident Conditions, NUREG/CR-6131 SAND93-2301, (1998).
- 11) 日高昭秀, JAERI-Research99-066, (1999).
- 12) B. J. Lewis, Nucl. Technol., 99, 330~342 (1992).
- 13) W. C. ハインズ, エアロゾルテクノロジー, 井上書院, (1994).
- 14) S. K. フリードランナー, エアロゾルの科学, 産業図書, (1993).
- 15) 高橋幹二, 基礎エアロゾル工学, 養賢堂, (1982).
- 16) C. N. Davies, Aerosol Science, Academic Press, London, (1966).
- 17) 石山新太郎, 武藤 康, 文沢元雄, 塚崎和生, 原子力と文論文誌, 1[2], 164~176 (2002).
- 18) 岩波書店, 理化学辞典(第3版増補版), (1982).
- 19) 日本金属学会編, 金属便覧(改訂4版), 丸善, (1982).
- 20) 大中逸雄, コンピュータ伝熱・凝固解析入門, 丸善, (1991).
- 21) S. Ergun, Chem. Eng. Prog., 48, 89~95 (1952).
- 22) L. Talbot, K. Cheng, R. W. Schefer, et al., "Thermophoresis of particles in a heated boundary layer," J. Fluid Mech., 101m, Part 4, 737~758, (1980).
- 23) 原子力安全委員会安全審査指針集(改訂9版), (2001).