

令和5年度

原子力機構安全研究・防災支援部門-原子力規制庁技術基盤グループ
合同研究成果報告会

再処理施設における高レベル濃縮廃液の 蒸発乾固時の事象進展の整理

令和5年11月21日

原子力規制庁長官官房技術基盤グループ
システム安全研究部門
山口 晃範

本報告は、以下に示す著者で作成した日本原子力学会和文論文誌21巻(2022)4号掲載の総説(本タイトル)をまとめたものであり、平成27年度から平成31年度の原子力施設等防災対策等委託費(再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等)事業の成果を含む。

【NRA】山口 晃範, 横塚 宗之, 古田 昌代, 久保田 和雄, 藤根 幸雄, 森 憲治
【JAEA安全研究センター】吉田 尚生, 天野 祐希, 阿部 仁



目次

1. 背景
2. 目的と研究プロセス
3. 蒸発乾固事象の概要
4. 事象進展に応じた放射性物質の移行挙動の概要
5. 移行挙動解明に必要な課題
6. まとめ



背 景

- 原子力施設では、リスク情報を活用することで潜在的なリスクを把握し、安全性を向上させる取組が行われている。
- 原子力規制庁では、リスク情報を原子力規制検査等の規制活動に活用することとしている。
- 再処理施設におけるリスク情報として、ここでは、施設の設備構成、事故シナリオ(事故の進展やその対策)、放射性物質の環境への放出、事故の発生頻度等に関する情報を指す。



背 景

- 再処理施設では、重大事故又はそれに関連する事故として様々な事象（蒸発乾固、水素爆発、燃料貯蔵プールの冷却機能喪失等）が想定されている。
- これらの事故のうち、重大事故の一つとして挙げられる蒸発乾固事象は、特に放射性物質の気相への移行割合が大きいと考えられるため、優先的にリスク情報の整理を実施することが重要である。
- このようなリスク情報を得るに当たっては、想定される事故シナリオの不確かさを低減※させることが重要である。
- 不確かさの低減においては、事故シナリオを適切に構築するためのデータや解析コードが必要になる。

※本資料における不確かさを低減とは、注目する事故の事象に係る物理化学的挙動を把握することにより、発生する現象、影響の大きさや範囲、進展速度等の事象進展の精度を向上させることを指す。



目的と研究プロセス

事故シナリオの不確かさの低減には、事故シナリオの適切な構築が必要であるが、蒸発乾固事象については、事象進展や放射性物質の移行挙動が整理されておらず、事象進展と放射性物質の移行挙動との関係がよくわかっていない。さらに放射性物質の移行挙動に係るデータが不足している。

蒸発乾固時の事象進展や放射性物質の移行挙動を整理することで、事象進展と放射性物質の移行挙動との関係を明らかにする。さらに、放射性物質の移行挙動の正確な評価に必要なデータを取得する。

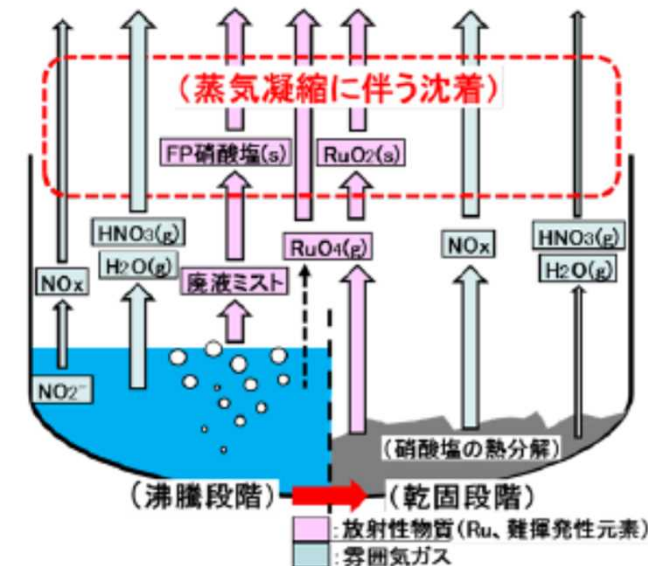
① 蒸発乾固時の事象進展の分析・整理

② 放射性物質の移行挙動評価に必要なデータの取得

③ 事象進展に応じた放射性物質の移行挙動の関連付け

④ 事象進展解析コードの整備(長期的な目標)

・ 不確かさの低減
・ 事故シナリオの構築



蒸発乾固時の事象進展に応じた放射性物質等の移行挙動の概念図^[1]

参考文献:

[1] (国研)日本原子力研究開発機構, 平成31年度原子力規制庁委託成果報告書 再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験, 令和2年3月(2020)



蒸発乾固事象の概要

- 再処理施設では、使用済燃料を溶解した放射性溶液（以下「溶液」という）を一時貯蔵し、溶液の崩壊熱を除去するため常に冷却している。
- 仮に冷却機能が喪失した場合、沸騰（蒸発）し、やがて乾固に至る。
- また、この過程では、通常時を超える放射性物質が気相に移行する。^[2]
- 既往の研究を踏まえた放射性物質の移行過程は、「飛沫同伴によるエアロゾルとしての移行」と「揮発による気体状としての移行」に大別される。

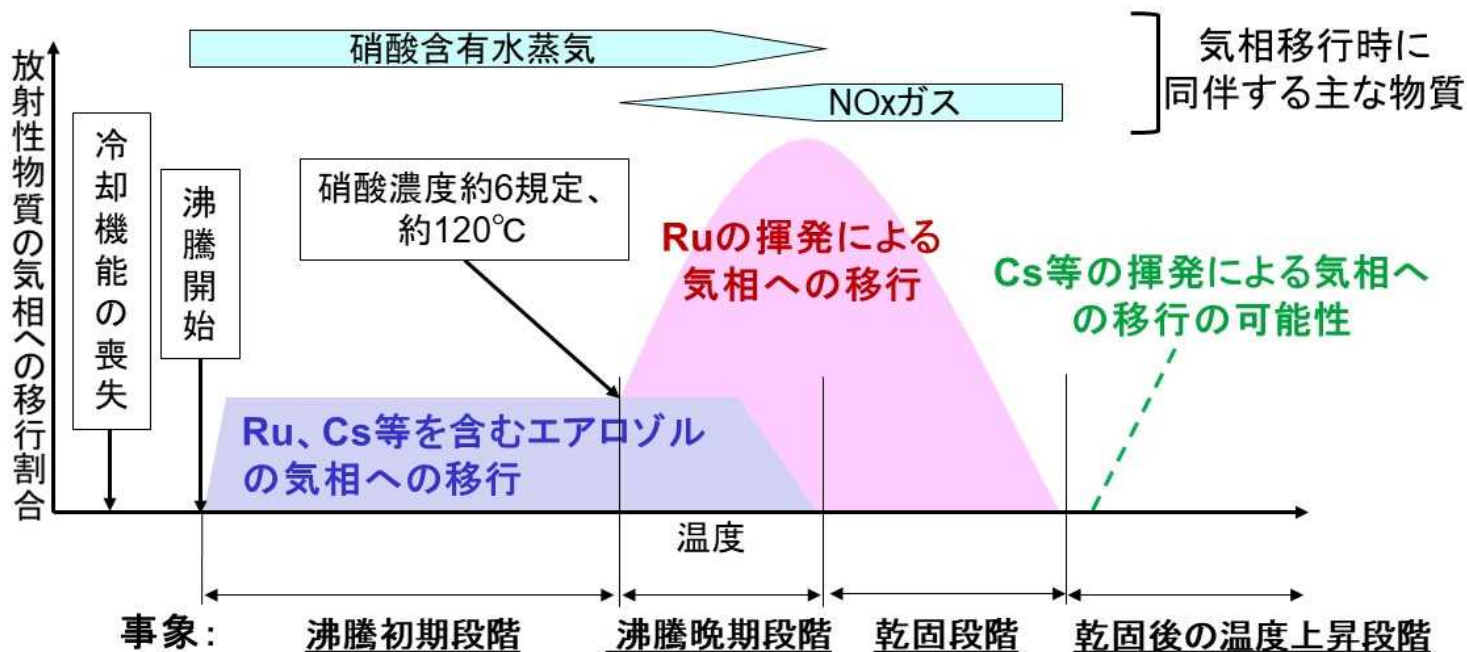
参考文献:

[2]「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究」運営管理グループ, 再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究報告書, 平成26年2月(2014)



事象進展に応じた放射性物質の移行挙動の概要[2]

- 仮に冷却機能が喪失した場合、沸騰に至ると、放射性エアロゾルが発生し、気相への移行割合が増加する。
- Ruを含む高レベル濃縮廃液においては、沸騰の継続により硝酸濃度が約6規定以上、かつ、温度が約120°C以上に至ると、Ruが揮発し、気相への移行割合がさらに増加する。
- さらに、水分が蒸発し、乾燥・固化に至ると、Ru以外の元素(Cs等)が揮発する可能性がある。



溶液・物質の状態や放射性物質の移行挙動を踏まえ、同事象進展を4つの段階に大別^[2,3]
⇒大別した各段階で放射性物質の移行挙動評価に必要なデータを分析・整理

参考文献:

[2] 「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究」運営管理グループ, 再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究報告書, 平成26年2月(2014)

[3] K. Yoshida, J. Ishikawa and H. Abe, "Analysis of release and transport of aerial radioactive materials in accident of evaporation to dryness caused by boiling of reprocessed high-level liquid waste," *Tran. At. Energy Soc. Jpn*, 14[4], 213-226(2015), DOI: 10.3327/taesj.J15.002 [in Japanese]



事象進展に応じた放射性物質の移行挙動評価に必要なデータ

	沸騰初期段階	沸騰晩期段階	乾固段階	乾固後の温度上昇段階
廃液又は乾固物の温度	104～120℃ ^[4]	120～170℃ ^[4,5]	170～270℃ (又は300℃) ^[5,6]	270℃(又は300℃)～ ^[5,6]
主な気相成分	硝酸含有水蒸気	硝酸含有水蒸気 NO ₂ , NO	NO ₂ , NO	—
評価に必要なデータ	① エアロゾルの気相への移行率 ② 気相移行後のエアロゾルの気相からの除去率	③ Ru揮発時の気相への移行率 ④ 気相移行後のRuの気相からの除去率		⑤ Cs等の揮発時の気相への移行率 ⑥ 気相移行後の気体状Cs等の気相からの除去率

評価に必要なデータの取得方法:

- 沸騰硝酸環境中で試験を実施できる施設・設備が整備されていること
- 沸騰硝酸溶液の取扱技術を有していること
- 上記のような再処理施設環境下での揮発性Ru等の移行挙動を把握するために必要な知見及びノウハウを有していること

⇒これらの条件を満たす、JAEA安全研究センターに委託等により試験を実施

参考文献:

[4] M. Philippe, J.P. Mercier, J.P. Gue, "Behavior of ruthenium in the case of shutdown of the cooling system of HLLW storage tanks," Proc. 21st DOE/NRC Nuclear Air Cleaning Conference, San Diego, CA, Aug., 1990, NUREG/CP-0116, 2, 831-843(1991).

[5] S. Tashiro et al., "Release Characteristics of Ruthenium from Highly Active Liquid Waste in Drying Step," Tran. At. Energy Soc. Jpn, 14[4], 227-234 (2015)

[6] Y. Amano et al., "Study on release and transport of aerial radioactive materials in reprocessing plant," Proc. Global 2013, Salt lake City, USA., Sep. 29-Oct. 3, 2013 (2013)



必要なデータの取得状況と総説の狙い

年度	規制庁(又はJNES)が携わった研究の経緯 (いずれの実験も実施主体はJAEA安全研究センター)
H21~ H25	沸騰後の事象進展を対象とした基礎的なデータの取得 ①、②エアロゾルの移行挙動全般 ③Ruの揮発時の気相への移行率
H27~ R1	Ruの揮発時に想定される様々な気相条件を考慮したデータの取得 ④気相移行後の気体状Ruの気相からの除去率

【総説の狙い(R1年度作成)】

R1年度までのデータ取得状況を、事象進展と放射性物質の移行挙動を関連付けて分析・整理するとともに、R2年度以降に優先して取り組むべき課題として、現状不確かさの大きい現象を抽出すること。

↓ 総説で抽出した課題を踏まえて……

R3~ R7	現状不確かさの大きい現象を解明するためのデータの取得 ④気相移行後の気体状Ruの気相からの除去率 ⑤、⑥Cs等の揮発に係る移行挙動
-----------	---



沸騰初期段階におけるエアロゾルの移行挙動

廃液の温度域: 104~120°C

(1) 気相への物質の移行挙動

➤ 放射性エアロゾルの気相移行が支配的: 沸騰に伴う飛まつ同伴

✓ 評価に活用できるデータの例(以降【】内に記載)

【既往の研究※において、工学規模の試験装置を用いて、模擬の高レベル濃縮廃液を250°Cまで加熱し、Cs等を含むエアロゾルの気相移行割合に関するデータを取得^[2]】

約 1.5×10^{-5} [-]

※本報告では「規制庁(又はJNES)が携わった研究」を「既往の研究」と記載。

(2) 気相移行後の物質の挙動

➤ 凝縮液への溶解【MELCOR^[7]やMAAPコードを応用した評価事例】

➤ HEPAフィルタによる捕集(蒸気による性能低下の可能性がある場合にはその影響の考慮が必要)^[8,9]

参考文献:

[2] 「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究」運営管理グループ, 再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究報告書, 平成26年2月(2014)

[7] K. Yoshida, J. Ishikawa, *Thermal-Hydraulic Analysis of Boiling Event of Reprocessed Liquid Wastes with MELCOR Code*, JAEA-Research 2012-026(2012)

[8] 日本工業規格 JIS Z 4812-1995.

[9] (独)原子力安全基盤機構, 再処理施設の確率論的安全評価手法の整備=溶液沸騰事象の解析手順=に関する報告書, JNES/SAE05-026, 平成17年10月(2005)



沸騰晩期段階におけるRuの移行挙動(1/2)

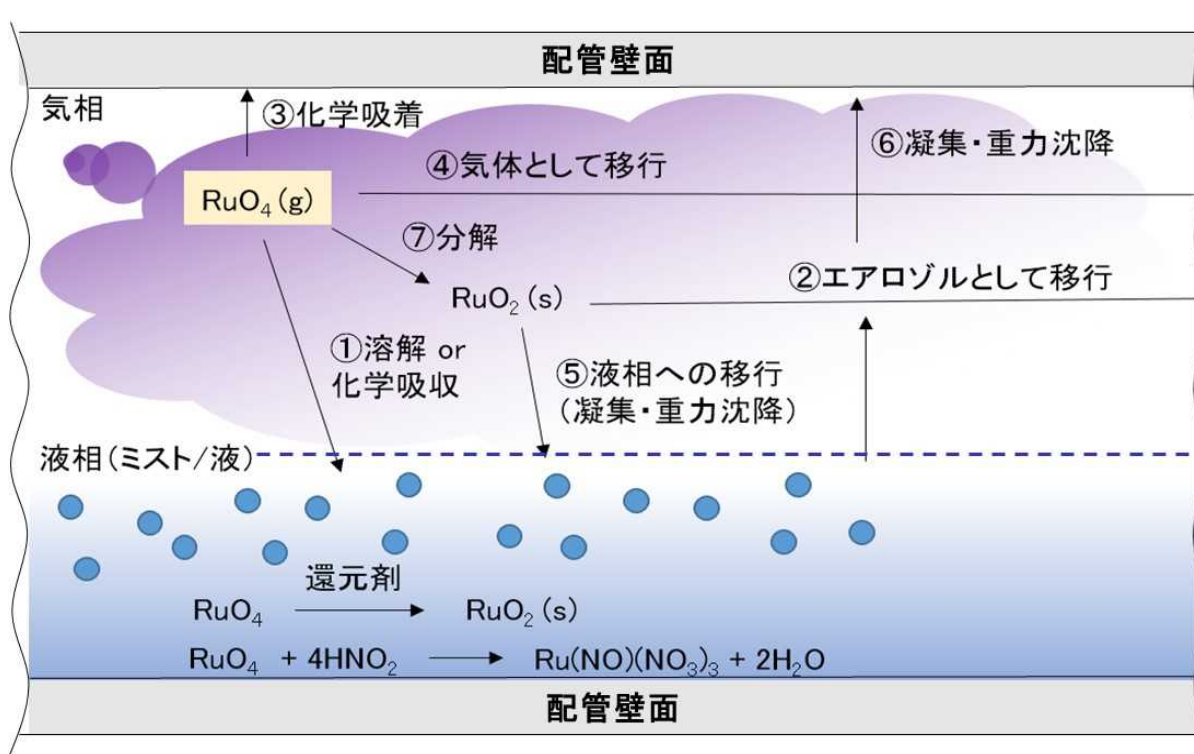
廃液の温度域: 120~170°C

(1) 気相への物質の移行挙動

- Ruの揮発が開始: 廃液中のRuが硝酸に酸化されることで揮発したと考えられる。

(2) 気相移行後の物質の挙動

- 気相中の成分 水蒸気、硝酸蒸気、二酸化窒素(NO_2)及び一酸化窒素(NO)
- 化学種の想定 気体状Ru: RuO_4 、 RuO_4 の分解生成物: RuO_2 ^[1]



【既往の研究で取得したデータの例】

①溶解又は化学吸収
硝酸含有水蒸気中の NO_2 濃度が高いほど、蒸気凝縮時に RuO_4 の凝縮液への吸収を促進^[10]

⑦分解

- 温度が高く、かつ水蒸気量が多いほどエアロゾル化を促進^[1]
- 硝酸濃度が高くなるほど、エアロゾル化を阻害^[11]

参考文献:

- [1] (国研)日本原子力研究開発機構, 平成31年度原子力規制庁委託成果報告書 再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験, 令和2年3月(2020),
 [10] (国研)日本原子力研究開発機構, 平成30年度原子力規制庁委託成果報告書 再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験, 平成31年3月(2019)
 [11] (国研)日本原子力研究開発機構, 平成29年度原子力規制庁委託成果報告書 再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験, 平成30年3月(2018)



沸騰晩期段階におけるRuの移行挙動(2/2)

廃液の温度域: 120~170°C

(2) 気相移行後の物質の挙動【試験結果の一例】

<p>①溶解又は化学吸収 凝縮液への移行に関して、硝酸蒸気中のNO₂濃度が高いほど、蒸気凝縮時にRuO₄の凝縮液への吸収が促進された。</p>	<p>⑦分解 温度が高く、かつ水蒸気量が多いほど、エアロゾル生成率が高かった。</p>	<p>⑦分解 硝酸濃度が高くなるほど、気体状RuO₄の残存率が高かった。</p>
<p>硝酸蒸気 + NO₂ 同伴環境下での凝縮液へ移行するRu率^[10]</p>	<p>水蒸気同伴環境(非凝縮)下でのエアロゾル化率^[1]</p>	<p>硝酸蒸気同伴環境(非凝縮)下での気体状RuO₄の残存率^[11]</p>

参考文献:

[1] (国研)日本原子力研究開発機構, 平成31年度原子力規制庁委託成果報告書 再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験, 令和2年3月(2020),

[10] (国研)日本原子力研究開発機構, 平成30年度原子力規制庁委託成果報告書 再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験, 平成31年3月(2019)

[11] (国研)日本原子力研究開発機構, 平成29年度原子力規制庁委託成果報告書 再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験, 平成30年3月(2018)



乾固段階におけるRuの移行挙動

乾固物の温度域: 170~270°C (又は 300°C)

(1) 気相への物質の移行挙動

- 田代らによる研究における報告^[5]
- Ruの気相移行が一旦減少するものの、温度上昇に伴い再び気相移行が増加した【約240°Cで極大を示し、約300°C付近で終息した】。
- この段階ではRu硝酸塩の熱分解によりRuO₄のような揮発性Ru化学種が生成したと考察される。

(2) 気相移行後の物質の挙動

- 前段階と同様である。
- ただし、温度条件や気相組成が大きく異なる(水蒸気がほぼ発生しない。主要な硝酸塩の熱分解に伴う窒素酸化物が多く発生する)。



乾固後の温度上昇段階におけるCs等の移行挙動

乾固物の温度域: 270°C (又は 300°C) ~

- Ruの気相移行は終了する
- Ru以外の元素の揮発の可能性について考慮する必要が生じる。

既往の研究で取得した、高レベル濃縮廃液に含まれる
主な単体硝酸塩等の熱分解特性データ^[2]

揮発した元素	揮発の開始温度
Cs	約550°C
Te	約700°C
Mo	約700°C

- 特に、Csは高レベル濃縮廃液中における放射能インベントリが高く、着目すべき元素である。
⇒この段階におけるCsの移行挙動の解明は課題の一つである。

参考文献:

[2] 「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究」運営管理グループ, 再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究報告書, 平成26年2月(2014)



移行挙動解明に必要な課題

- 「沸騰初期段階」及び「沸騰晩期段階」については事象進展の過程で発生する現象を分析するために十分な知見を得ることができた。

以下の項目は、十分なデータがなく特に課題と考えられる。

- 「乾固段階」における、NO_xによるRuO₄の熱分解阻害反応
- 「乾固後の温度上昇段階」におけるRu以外の元素(Cs等)の揮発挙動



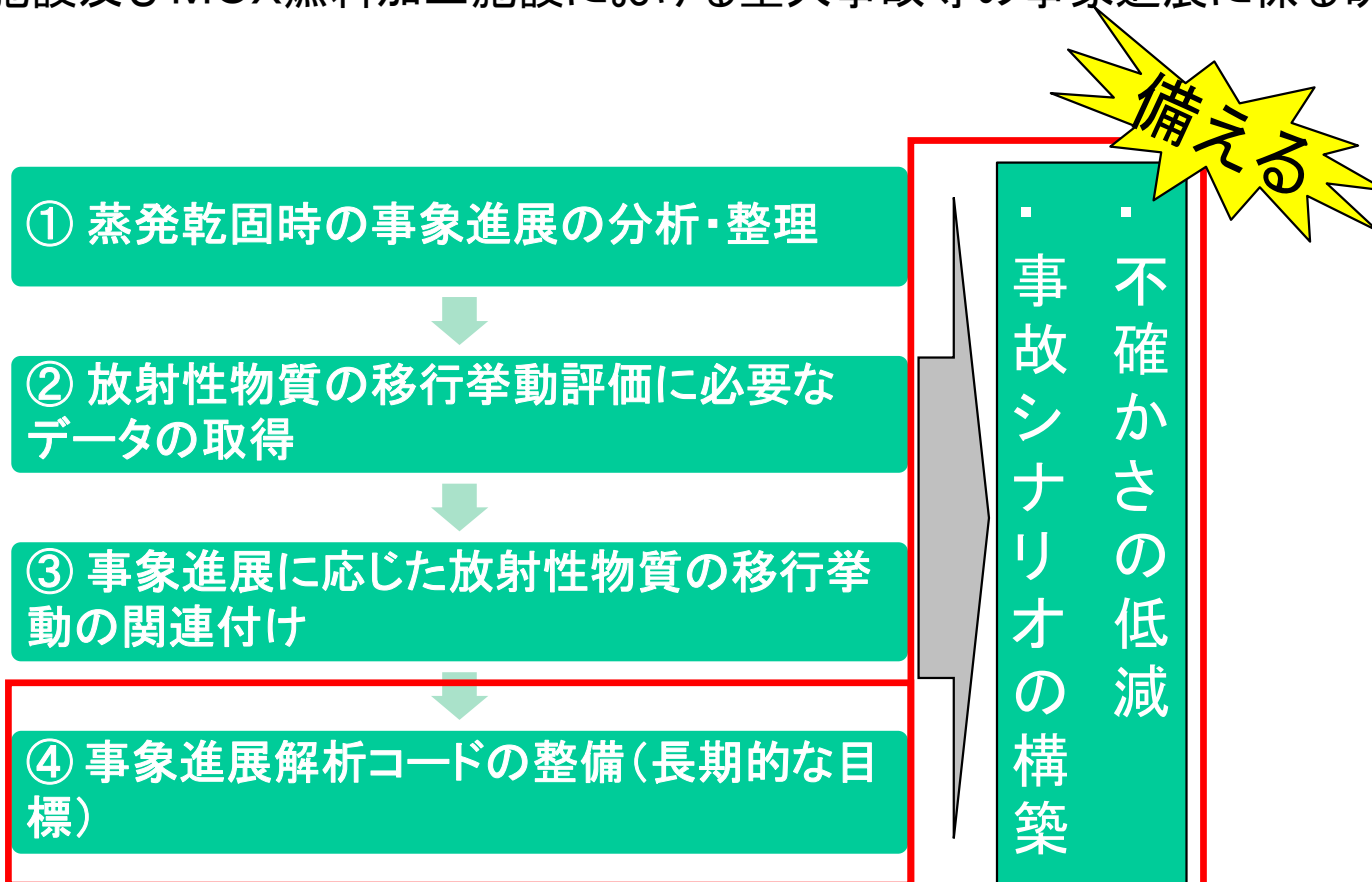
まとめ

残る課題へ取組

R3~R7年度の安全研究PJ※において、以下に関するデータの取得を進める。

- ・ 「乾固段階」におけるNOxによるRuO₄の熱分解阻害反応
- ・ 「乾固後の温度上昇段階」におけるRu以外の元素(Cs等)の揮発挙動

※再処理施設及びMOX燃料加工施設における重大事故等の事象進展に係る研究





参考文献の一覧

[1]	(国研)日本原子力研究開発機構, 平成31年度原子力規制庁委託成果報告書 再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験, 令和2年3月(2020)
[2]	「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究」運営管理グループ, 再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究報告書, 平成26年2月(2014)
[3]	K. Yoshida, J. Ishikawa and H. Abe, “Analysis of release and transport of aerial radioactive materials in accident of evaporation to dryness caused by boiling of reprocessed high-level liquid waste,” <i>Tran. At. Energy Soc. Jpn</i> , 14[4], 213-226(2015)
[4]	M. Philippe, J.P. Mercier, J.P. Gue, “Behavior of ruthenium in the case of shutdown of the cooling system of HLLW storage tanks,” Proc. 21st DOE/NRC Nuclear Air Cleaning Conference, San Diego, CA, Aug., 1990, NUREG/CP-0116, 2, 831–843(1991).
[5]	S. Tashiro et al., “Release Characteristics of Ruthenium from Highly Active Liquid Waste in Drying Step,” <i>Tran. At. Energy Soc. Jpn</i> , 14[4], 227-234 (2015)
[6]	Y. Amano et al., “Study on release and transport of aerial radioactive materials in reprocessing plant,” Proc. Global 2013, Salt lake City, USA., Sep. 29-Oct. 3, 2013 (2013)
[7]	K. Yoshida, J. Ishikawa, Thermal-Hydraulic Analysis of Boiling Event of Reprocessed Liquid Wastes with MELCOR Code, JAEA-Research 2012-026(2012)
[8]	日本工業規格 JIS Z 4812-1995.
[9]	(独)原子力安全基盤機構, 再処理施設の確率論的安全評価手法の整備＝溶液沸騰事象の解析手順＝に関する報告書, JNES/SAE05-026, 平成17年10月(2005)
[10]	(国研)日本原子力研究開発機構, 平成30年度原子力規制庁委託成果報告書 再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験, 平成31年3月(2019)
[11]	(国研)日本原子力研究開発機構, 平成29年度原子力規制庁委託成果報告書 再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験, 平成30年3月(2018)