

核燃料サイクル施設における重大事故影響評価研究の現状と今後の展開

(1) セル内有機溶媒火災試験研究

Study Plan of Severe Accidents Consequence Assessment in Fuel Cycle Facilities

(1) Organic Solvent Fire Accident in Cell

サイクル安全研究グループ ○天野祐希、田代信介、渡邊浩二、吉田尚生、阿部 仁

目的:セル内有機溶媒火災(核燃料サイクル施設に対して新たに定義された重大事故を含む)に伴う公衆に対する影響を定量的に評価するためのデータ等を取得する。

原子力機構における火災試験研究の現状:

○グローブボックス火災時影響評価試験

グローブボックス構成材(アクリル、ポリカーボネート等)及びケーブルシース材の熱分解特性データ、燃焼に伴うソースタームデータ(質量減少速度、発熱量、煤煙化率)及び煤煙負荷によるHEPAフィルタ目詰まり特性データの取得

○有機溶媒火災時影響評価試験

抽出有機溶媒(30%TBP/ドデカン)の燃焼に伴うソースタームデータ及びHEPAフィルタ目詰まり特性データの取得

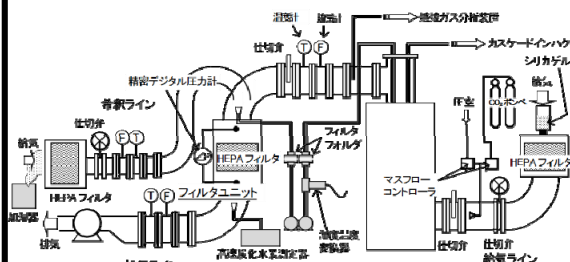


図1 火災時ソースターム実験装置 (FSEEA)の概要

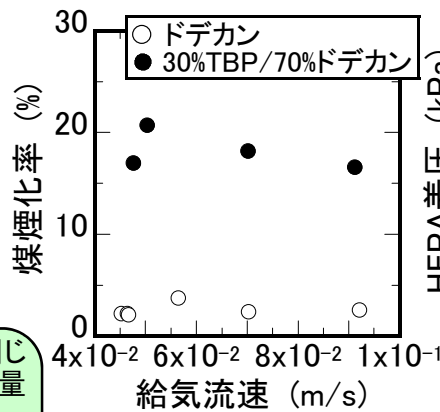


図2 有機溶媒燃焼に伴う煤煙化率

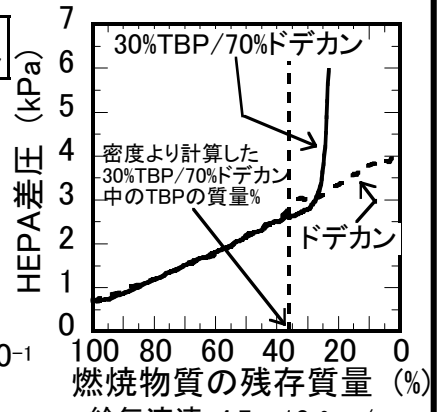


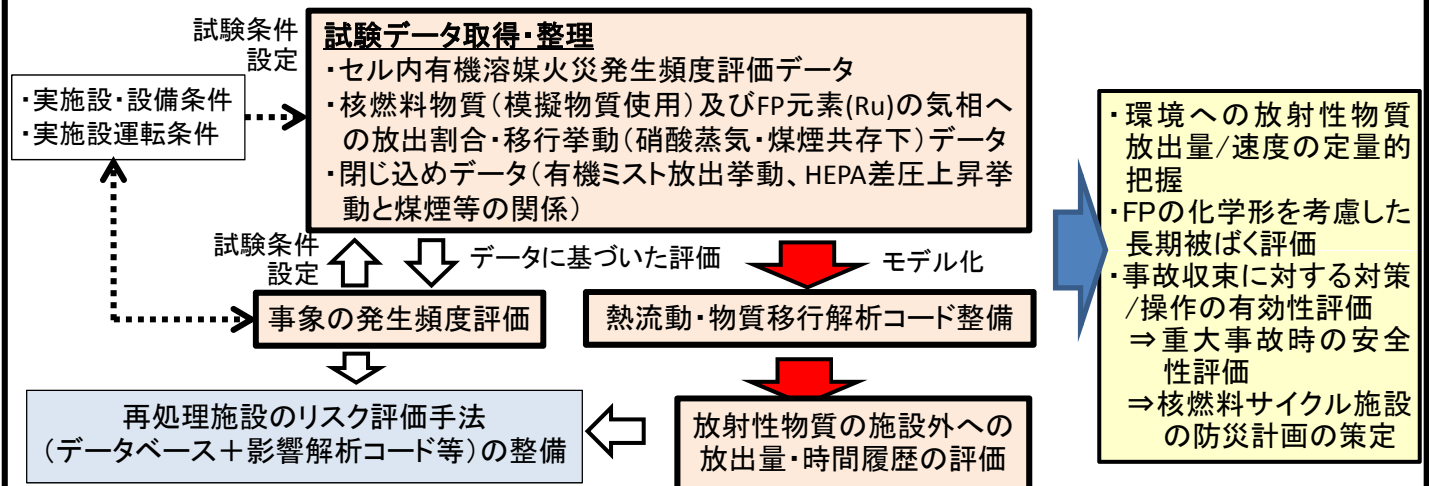
図3 有機溶媒燃焼に伴うHEPAフィルタ差圧上昇挙動

- ・具体的な事故シナリオに基づく火災時の閉じ込め機能喪失に至るまでの猶予時間の定量的評価への活用が期待。
- ・有機溶媒(30%TBP/ドデカン)の燃焼後期において急激なHEPAフィルタ差圧の上昇が生じることを確認した(これまで報告されていない新しい知見)。

核燃料サイクル施設における重大事故(セル内有機溶媒火災)研究計画:

福島第1原子力発電所の事故を踏まえ、核燃料サイクル施設に対しても**重大事故**(設計上定める条件より厳しい条件の下において発生する事故)が定義され、重大事故に対する対策が規制要求されることになった。

核燃料サイクル施設の安全評価に資するため、重大事故の発生可能性及び影響評価並びに事故対策の有効性評価に係る実験データを取得するとともに解析コードを整備する。



核燃料サイクル施設における重大事故影響評価研究の現状と今後の展開

(2) 蒸発乾固試験研究

サイクル安全研究Gr. ○吉田尚生、真崎智郎、天野祐希、吉田一雄、阿部 仁

目的: 高レベル濃縮廃液の蒸発乾固事故に対する対策有効性評価・防災対策の策定

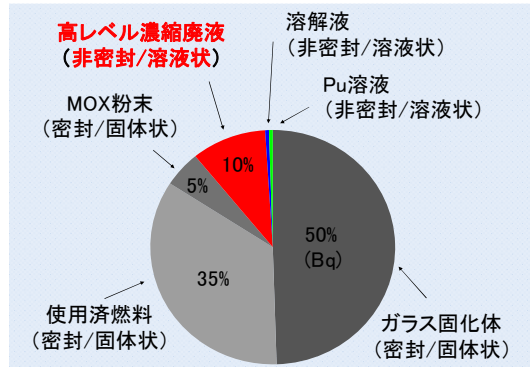


Fig. 1 再処理施設内の放射性物質形態とインベントリ [1]
[1] 東京電力株式会社福島第一原子力発電所における事故を踏まえた六ヶ所再処理施設の安全性に関する総合的評価に係る報告書(使用前検査期間中の状態を対象とした評価)【公開版】2012年4月27日、日本原燃株式会社

溶液状の放射性物質は高レベル濃縮廃液に集中

高レベル濃縮廃液冷却機能の長期間の喪失

昇温・蒸発や乾固に伴う放射性物質放出の可能性

再処理施設のリスク評価手法(データベース+影響解析コード等)の整備
事故対策有効性評価, 防災対策策定



Fig. 2 本研究の展開

研究項目1 Ru放出メカニズムの定量的把握(①, ④)

蒸発乾固事故時のRu放出機構を明らかにするため、乾固物からのRu放出特性や、乾固物の化学的特性、共存する硝酸・亜硝酸の影響などを評価する。またAM策として提案されている、貯槽への注水について、各段階(沸騰中、沸騰初期、乾固後など)で発生する現象と、それに伴う放射性物質の放出量を評価する。

- ✓ HEPAフィルタによる捕集とその健全性
- ✓ 反応機構の推定
- ✓ 揮発性成分の形成速度
- ✓ 注水(AM策)の影響
- ✓ 亜硝酸による放出抑制

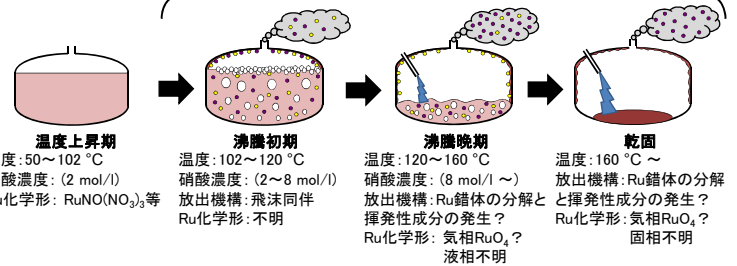


Fig. 3 Ru移行事象進展の推定イメージ

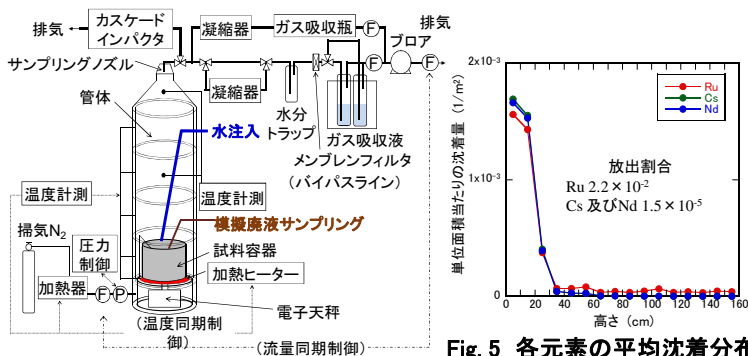


Fig. 4 総合試験装置の概要

Fig. 5 各元素の平均沈着分布

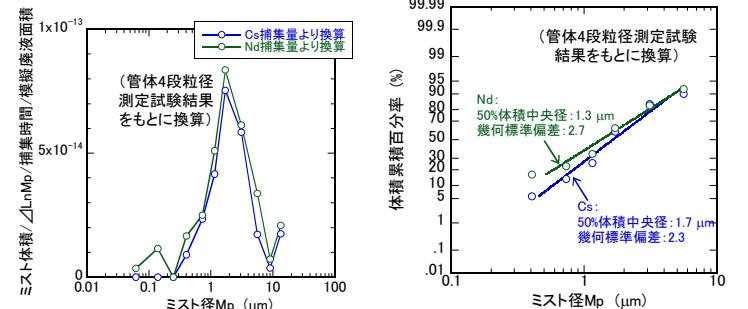


Fig. 6 ミスト体積分布推定結果

Fig. 7 ミスト体積分布の対数確率分布

- ・管体内壁への沈着挙動を考慮した管体から配管へ移行する各元素の放出割合を取得。
- ・模擬廃液沸騰時に放出されるミスト(放射性物質を含有)径分布を推定⇒放射性物質移行挙動を計算コードを用いて解析する場合の入力データ及び検証データとしての活用を予定。

研究項目2 Ru移行メカニズムの定量的把握(②, ③)

気相へ放出されたガス状Ruは施設内を化学形の変化を伴いながら施設外へ移行するものと考えられる。ガス状Ruについて、化学形の同定、共存ガス(水、硝酸、NO_x)の影響、移行中の分解、壁面材質(コンクリート、ペイント、SUS等)との反応や沈着について定量的に分析を行い、速度論的評価を行う。

- ✓ 共存ガス凝縮に伴うRu捕集と気相成分変化
- ✓ RuO₄の熱分解における共存ガス、経路温度の影響
- ✓ 壁面材料との化学反応

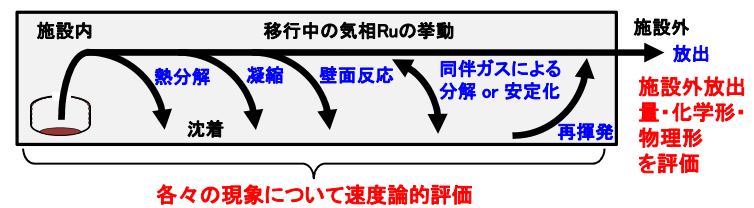


Fig. 8 気相移行中のRuの挙動

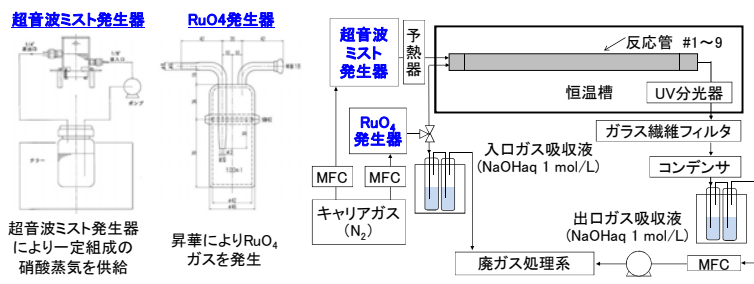


Fig. 9 Ru気相部移行試験装置の概要

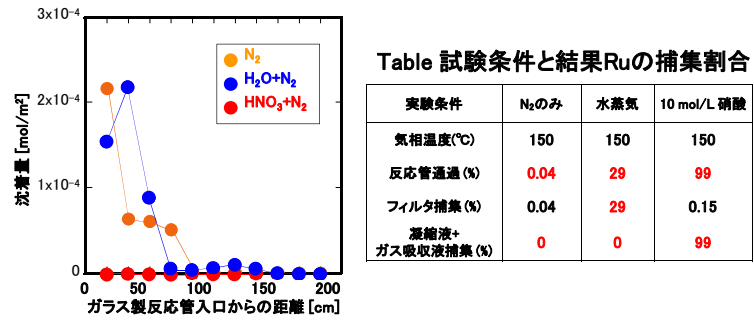


Fig. 10 Ru沈着分布

Table 試験条件と結果Ruの捕集割合

実験条件	N ₂ のみ	水蒸気	10 mol/L 硝酸
気相温度(°C)	150	150	150
反応管通過(%)	0.04	29	99
フィルタ捕集(%)	0.04	29	0.15
凝縮液+ガス吸収液捕集(%)	0	0	99

窒素ガス中ではRuO₄はRuO₂へ熱分解し流路中に沈着。一方硝酸蒸気中では流路に沈着せずフィルタを通過した。硝酸蒸気の影響が、熱分解反応に影響するとともに同熱分解以外の反応を生じさせる可能性を示唆。

研究項目3 蒸発乾固事故の進展評価モデルの作成

得られた試験データを用い、種々の条件下での蒸発乾固に伴う廃液乾固物の昇温、熱流動、NO_x発生、Ru及び難揮発性物質の放出・移行・沈着等を評価しうる評価モデルを構築する。

発表 :核燃料サイクル施設における重大事故影響評価研究の現状と今後の展開
(1) セル内有機溶媒火災試験研究

Study Plan of Severe Accidents Consequence Assessment in Fuel Cycle Facilities
(1) Organic Solvent Fire Accident in Cell
サイクル安全研究グループ 天野祐希、田代信介、渡邊浩二、吉田尚生、阿部 仁

発表 :核燃料サイクル施設における重大事故影響評価研究の現状と今後の展開
(2) 蒸発乾固試験研究

Study Plan of Severe Accidents Consequence Assessment in Fuel Cycle Facilities
(2) Boiling Accident
サイクル安全研究グループ 吉田尚生、真崎智郎、天野祐希、吉田一雄、阿部 仁

1. 緒言

福島第1原子力発電所の事故を踏まえ、核燃料サイクル施設に対しても重大事故(設計上定める条件より厳しい条件の下において発生する事故)が定義され、重大事故に対する対策が規制要求されることになった。重大事故時の安全性を定量的に評価するためには、事故の発生の可能性を検討することに加え、事故に伴う環境への放射性物質の放出量や放出速度及び放出された放射性物質の物理形・化学形を定量的に把握することが必要である。また、事故収束のための対策及び操作の有効性に係る定量的な評価も重要となる。このような背景を踏まえ、新規制基準で定義された重大事故のうち、セル内有機溶媒火災及び蒸発乾固の2つの事故を取り上げ、上記の研究課題の解決に必要な実験データを取得するとともに、得られた知見をまとめることで事故影響を評価するための解析コードを整備することとしている。これらの研究成果は、重大事故時の安全性の定量的な評価のみならず、核燃料サイクル施設の防災計画の策定等への活用も期待される。

当 Gr では、これまで上記の事故時の安全性を確認するための試験研究を行ってきた。本発表では、これまで実施してきた研究の現状を紹介するとともに、これを踏まえた今後の研究の展開に係る報告を行う。

2. セル内有機溶媒火災試験研究(発表)

2.1 概要

核燃料サイクル施設に存在する可燃性物質である、グローブボックス構成材(アクリル、ポリカーボネート等)及びケーブルシース材並びに再処理抽出工程で使用される有機溶媒(30%リン酸トリブチル(TBP)/ドデカン)を取り上げ、これらの燃焼に伴うソースタームデータ(質量減少速度、発熱量、煤煙化率)及び煤煙負荷による高性能粒子エア(HEPA)フィルタの目詰まり特性データを取得してきた。また、これらデータを組み合わせることで、各可燃性物質の燃焼に伴う HEPA フィルタの差圧上昇挙動を評価するモデルを構築してきた。これらの研究で新たに明らかになった知見を踏まえ、従来の設計基準事象としての評価において考慮されておらず、かつ、公衆に対する影響の観点から重要なポイントとなると考えられる課題を抽出し、これらに着目した研究計画の策定を行っている。

2.2 研究の現状(これまでの研究成果)

主に火災時ソースターム実験装置(FSEEA)を用いて、上記の可燃性物質を対象とした燃焼試験を実施した。FSEEA は、燃焼セル、配管系(配管、流量調節弁、フロア、酸素濃度調整系)、計測系(温度・流量・差圧計、制御盤)、煤煙サンプリング系、燃焼ガス分析装置、フィルタユニット、ハロゲンスポットヒータ

ー及びデータ処理装置から構成され、可燃性物質の燃焼に伴うソースタームデータ(質量減少速度、発熱量、煤煙化率)や煤煙負荷によるHEPAフィルタの目詰まり特性データを相互に関連付けながら取得できる装置である(図1参照)。

研究成果の一例として、有機溶媒の燃焼に伴う煤煙化率(=煤煙発生量/有機溶媒燃焼量×100)と煤煙負荷によるHEPAフィルタの差圧上昇挙動に係る試験結果を、それぞれ図2及び図3に示す。ドデカン単独の場合は、煤煙化率は約3%と比較的低く、HEPAフィルタの差圧も燃焼の進展とともにほぼ直線的に上昇した。それに対して再処理施設において一般的に使用されている抽出溶媒である30%TBP/ドデカンでは、煤煙化率が約20%程度と高く、なおかつ、HEPAフィルタの差圧が燃焼後期に急上昇することが分かった。従来の報告では、ドデカン単独と30%TBP/ドデカンの燃焼に伴うHEPAフィルタの差圧上昇挙動には差がなく、これらを平均化することで差圧上昇を評価する経験式を導出しており、この経験式が火災事故時の安全性の評価に広く採用されてきた。図3の結果は、従来の報告と大きく異なる新たな知見であり、具体的な事故シナリオに基づく火災時の閉じ込め機能喪失に至るまでの猶予時間の定量的評価を行う上で重要な知見である。

2.3 今後の試験計画

事故時の放射性物質の施設外への放出を評価するためには、具体的な施設・運転情報や事故発生頻度等を踏まえた事故条件下での放射性物質の放出・移行・閉じ込めデータを取得する必要がある。これらの知見を集約することで、事象進展を解析できる計算コードを整備し、事故時の施設外への放射性物質の放出量及び時間履歴を定量的に評価し、最大影響を見積もるとともに、放射性物質の放出に係るリスクを定量的に把握する。

セル内有機溶媒火災は再処理施設の重大事故の一つとして挙げられている。2.2で述べたHEPAフィルタの差圧上昇に関しては、従来の設計基準事象としての評価では考慮されていない事象である。HEPAフィルタの健全性は放射性物質の閉じ込めに対して非常に大きなファクタであることを鑑み、30%TBP/ドデカンの燃焼後期を対象として、放出される煤煙や有機溶媒ミストの量や粒径分布、あるいは含水率等を、HEPAフィルタの差圧上昇挙動と関連付けて取得することで、この現象が生じるメカニズムを定量的に考察することを予定している。

機器からは火源となる有機溶媒とともに水相(硝酸水溶液)も漏えいする。有機溶媒の燃焼が進行するにつれてTBPの濃縮や分解が進行する。両相が2層に重なった状態で上層の有機溶媒が燃焼した場合には、これらの現象が生じると、水相中に存在するFP元素が有機相へ移行し、有機溶媒の燃焼に伴って気相へ放出される割合が増大する可能性が考えられる。また、両相がそれぞれ単独で存在する場合には、有機溶媒の燃焼による熱によって、水相の温度上昇が生じ、硝酸蒸気とともに水相中の揮発性の核分裂生成物(以下、FP)元素が気相へ放出される可能性がある。特にRuは、硝酸蒸気が共存すると壁面への沈着や粒子状への変化を経ずにガス状として気相中を移行する可能性があり、仮にその状態でHEPAフィルタまで移行した場合には、HEPAフィルタによる捕集は期待できない可能性がある。そこで、有機溶媒の燃焼に伴う有機溶媒組成やFP元素の分配係数の変化を把握するとともに、FP元素(Ru)の気相への放出割合データ、また、硝酸蒸気、煤煙、有機溶媒ミスト等が共存する条件の下での気相へ放出されたRuの移行データを所得することを予定している。

3. 蒸発乾固試験研究(発表)

3.1 概要

高レベル濃縮廃液(以下「廃液」という。)中には様々な核種が溶解しており、崩壊熱による温度上昇を

防止するために廃液は常に冷却されている。しかし、何らかの原因によって同機能が喪失した場合には、廃液温度の上昇により廃液の沸騰・乾固が生じ、廃液中に溶解している各核種の放出が引き起こされる恐れがある。既往の研究により、沸騰初期段階では、主に飛沫同伴により各元素の放出が行われるが、沸騰晩期以降には揮発性の Ru 化合物が生じ、他元素よりも大量に放出されることが知られている。この現象は公衆への影響評価上重要であることから、揮発性 Ru 化合物の発生に至るメカニズムや、移行挙動に与えるガス温度、同伴ガスの影響等を把握する必要がある。今回の報告では、これまで当グループで行ってきた、蒸発乾固事故における Ru 化合物の放出・移行現象に関する研究の現状と今後の展開について述べる。

3.2 研究の現状(これまでの研究成果)

放出挙動に関する情報を得るための実験として、実施設を模擬した「総合試験装置」を製作し、種々の条件下で模擬廃液を加熱した際に発生する成分についてデータを取得した。装置にはカスケードインパクタが接続されており、発生したミストの粒径分布も測定可能である。移行挙動の評価は、揮発性 Ru 化合物として RuO₄ を用い、硝酸等の共存ガスを供給しながらガラス配管(実施設配管を模擬)へ供給することが可能な「気相部移行試験装置」を製作しデータを得た。総合試験装置を用いた実験では、Ru 化合物と非揮発性元素の放出割合(ARF, Airborne Release Fraction)について評価を行った。Ru の ARF は既往の研究とほぼ同様の 2.2×10^{-2} であった。装置壁面への各元素の沈着量を評価した結果、気相中に放出された難揮発性元素は約 70% が沈着している一方、Ru のそれは約 0.5% であった。また、気相中での難揮発性元素の移行挙動を把握するため、模擬廃液沸騰時に発生するエアロゾルの粒径分布を評価した。気相部移行試験装置を用いた実験では、窒素ガスを共存ガスとして経路へ導入した場合には速やかに RuO₄ は分解され経路に沈着した。一方、硝酸蒸気を共存ガスとして用いた場合には、RuO₄ は分解せずに経路を通過するという結果を得た。

3.3 今後の試験計画

全体的な研究の展開は発表 と共通である。放射性物質の放出・移行・閉じ込めに関する知見を得た上で、事象進展を解析する計算コードを整備し、放射性物質の放出に係るリスクを定量的に把握する。本研究では、特に公衆影響を評価する上で重要な元素である Ru 化合物について、廃液からの放出・沈着・移行の各挙動を定量的に評価することを計画している。例えば、気相中に存在する RuO₄ は、熱分解や同伴ガスとの反応により RuO₂ まで分解されることから、存在する雰囲気によってその安定性が大きく異なることが知られている。そこで RuO₄ を様々な雰囲気下(硝酸・水・NO_x)でガスセル中に閉じ込め、分光器(UV/Vis など)を用いてスペクトルの経時変化を測定し、RuO₄ の熱分解挙動に係る速度論的データを取得することを予定している。各成分の濃度や温度をパラメータとして得られた結果を用い、熱力学的理論を踏まえた計算モデルと比較検討することで、理論的考察を行う予定である。また、廃液中の亜硝酸が還元剤となり、揮発性 Ru 化合物の形成が抑えられる“放出抑制効果”や、アクシデントマネジメント策として考えられている、貯槽への注水・還元剤の投入などの効果を評価することを計画している。加えて、事故時に Ru 化合物を含んだ蒸気が建屋内に移行した場合を想定し、硝酸蒸気の凝縮に伴う Ru の捕集効果や、Ru 化合物の建屋壁面材質との反応についても検討する予定である。

本発表は「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究に関する協定」(JAEA、JNFL、JNES で締結)に基づき実施したものを含む。