



Japan Atomic Energy Agency

再処理施設における蒸発乾固事故時の 放射性物質移行挙動研究

日本原子力研究開発機構
安全研究・防災支援部門
安全研究センター
燃料サイクル安全研究ディビジョン
サイクル安全研究グループ

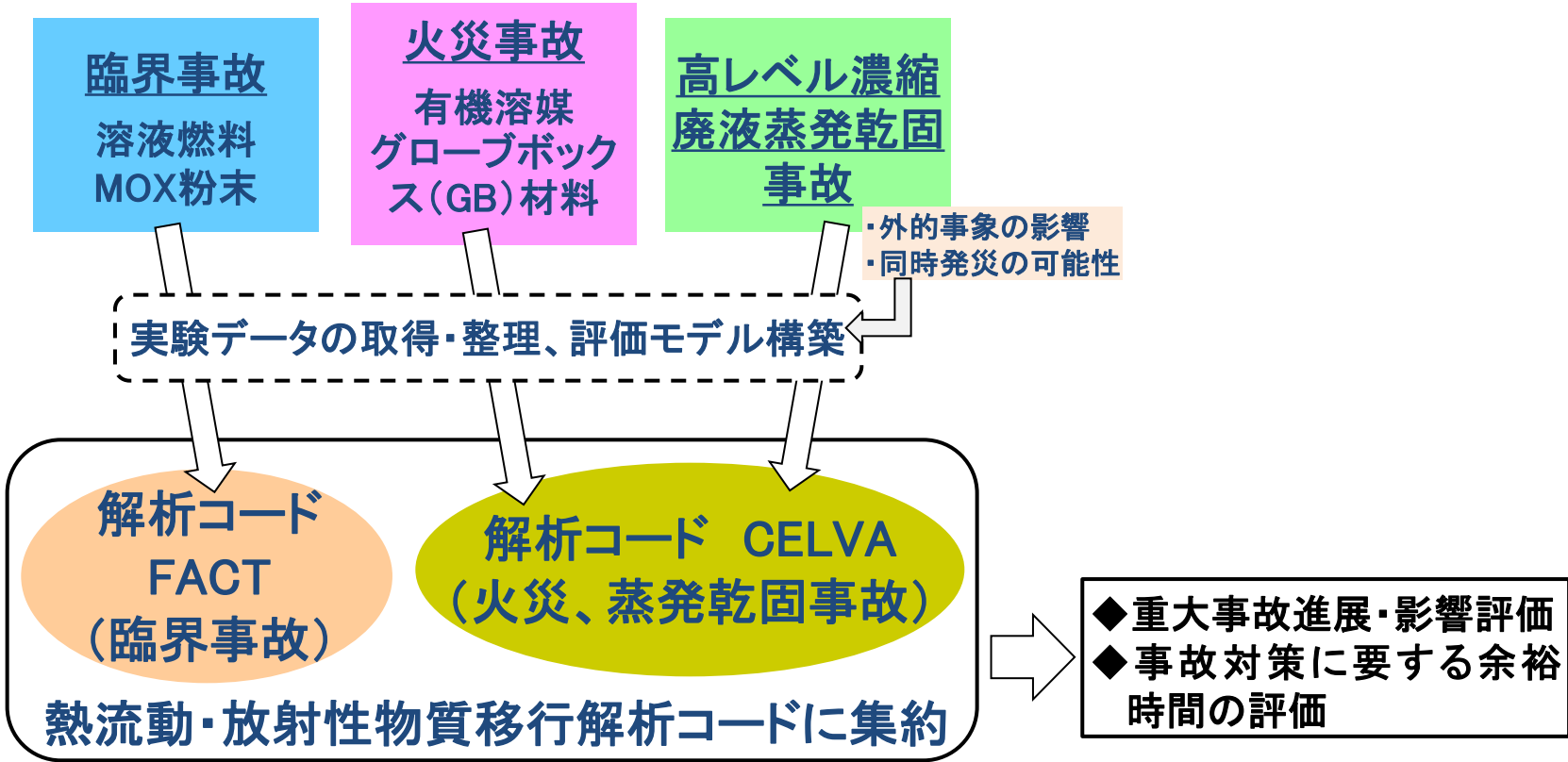
天野 祐希

平成28年度 安全研究センター報告会
平成28年11月22日
富士ソフト アキバプラザ

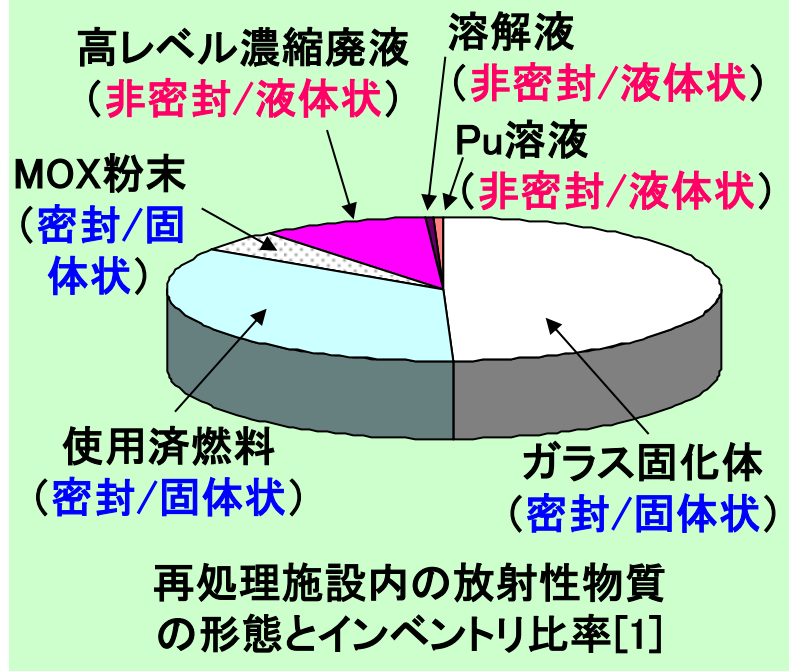
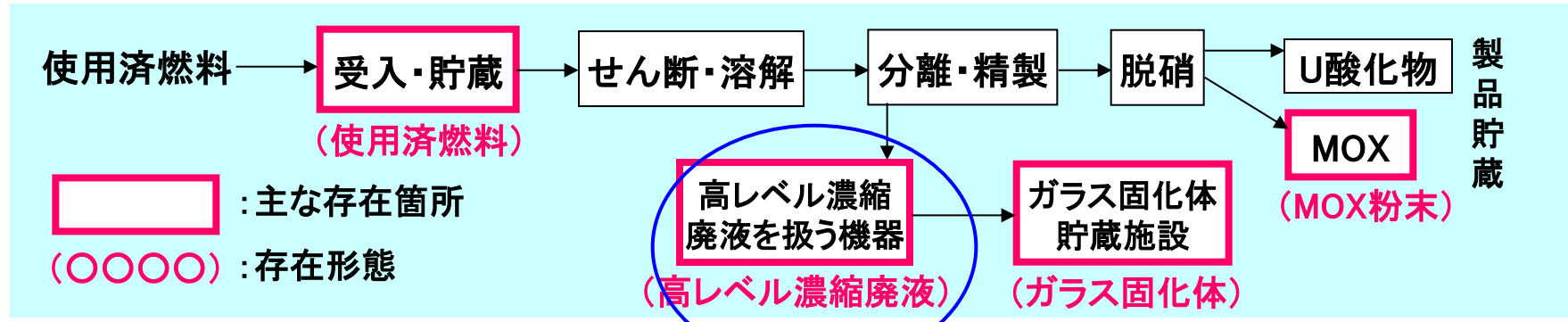
核燃料サイクル施設に対する新規規制基準で新たに想定された重大事故

- ・設計上定める条件より厳しい条件において発生(⇒多重故障・誤操作、同時発災、外的事象との関係を考慮)
- ・セル内有機溶媒火災、**高レベル濃縮廃液蒸発乾固事故**、臨界事故、等

重大事故時のリスクを定量化するため、重大事故に発展する可能性・条件及び最大影響を評価するために必要なデータの取得及び解析コードの整備



再処理施設内の放射性物質の分布



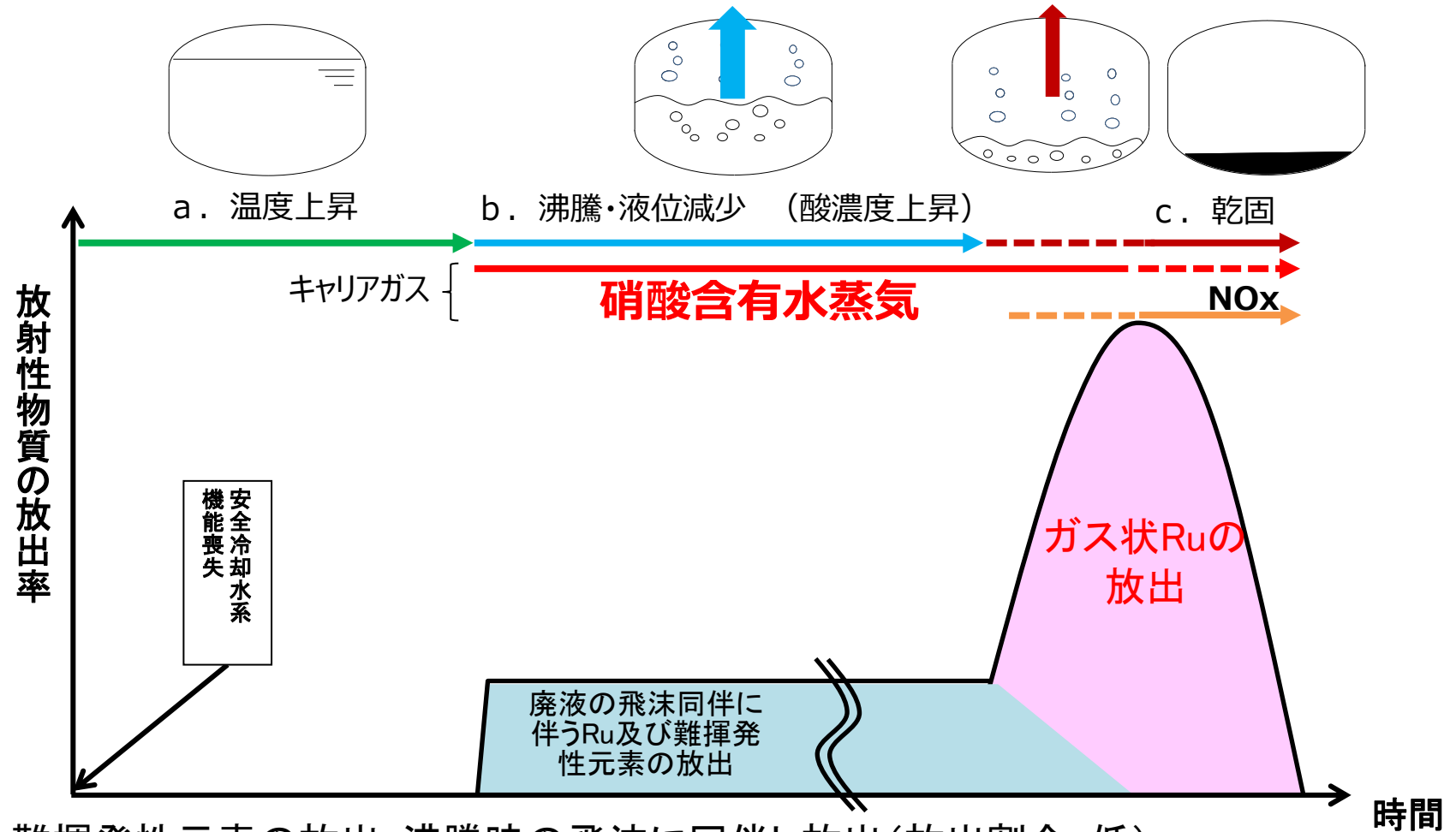
冷却機能の
長期間の喪失(外的事象との関係)

高レベル濃縮廃液の昇温・蒸発や乾固に伴う揮発性及び難揮発性放射性物質の放出の可能性

➤ 再処理施設の重大事故のうち、蒸発乾固が影響最大^[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 (<http://www.jnfl.co.jp/press/pressj2012/20120427a-1.pdf>)

高レベル濃縮廃液の蒸発乾固事故の特徴

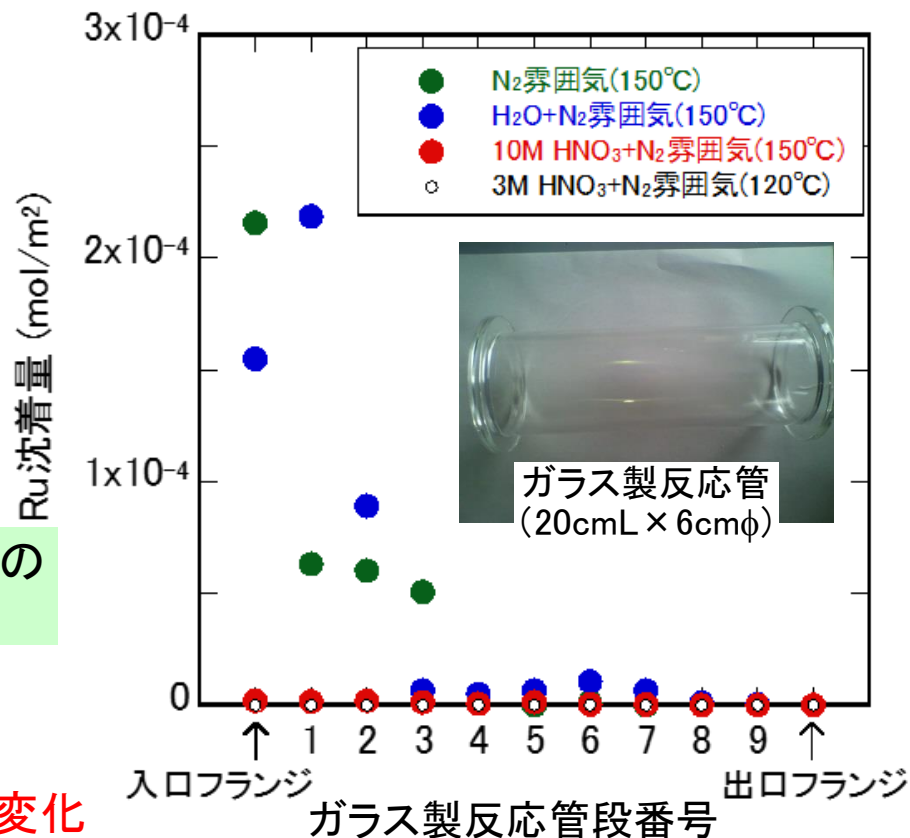
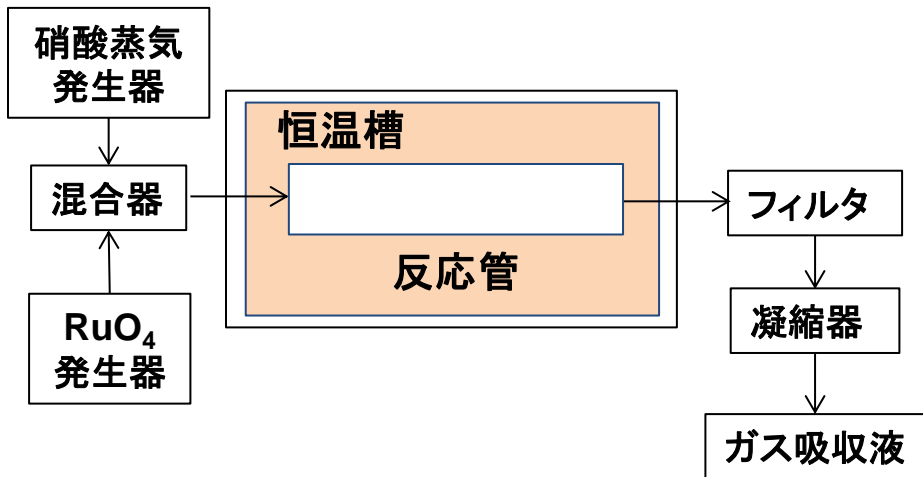


- 難揮発性元素の放出: 沸騰時の飛沫に同伴し放出 (放出割合: 低)
- Ru: 揮発性化合物を形成、ガス状として放出 (放出割合: 大)

➡ 事故時の環境に対する影響を評価する上では、揮発性Ru化合物の放出・移行挙動を定量的に把握することが極めて重要

ガス状Ruの移行挙動試験 (JNFL/JNES/JAEA共同研究)^[1]

- 従来の報告: RuO₄は120°C程度で速やかにRuO₂へ熱分解(H₂Oの触媒反応で促進^[2])
- 硝酸含有水蒸気(再処理特有の条件)共存下での試験を実施



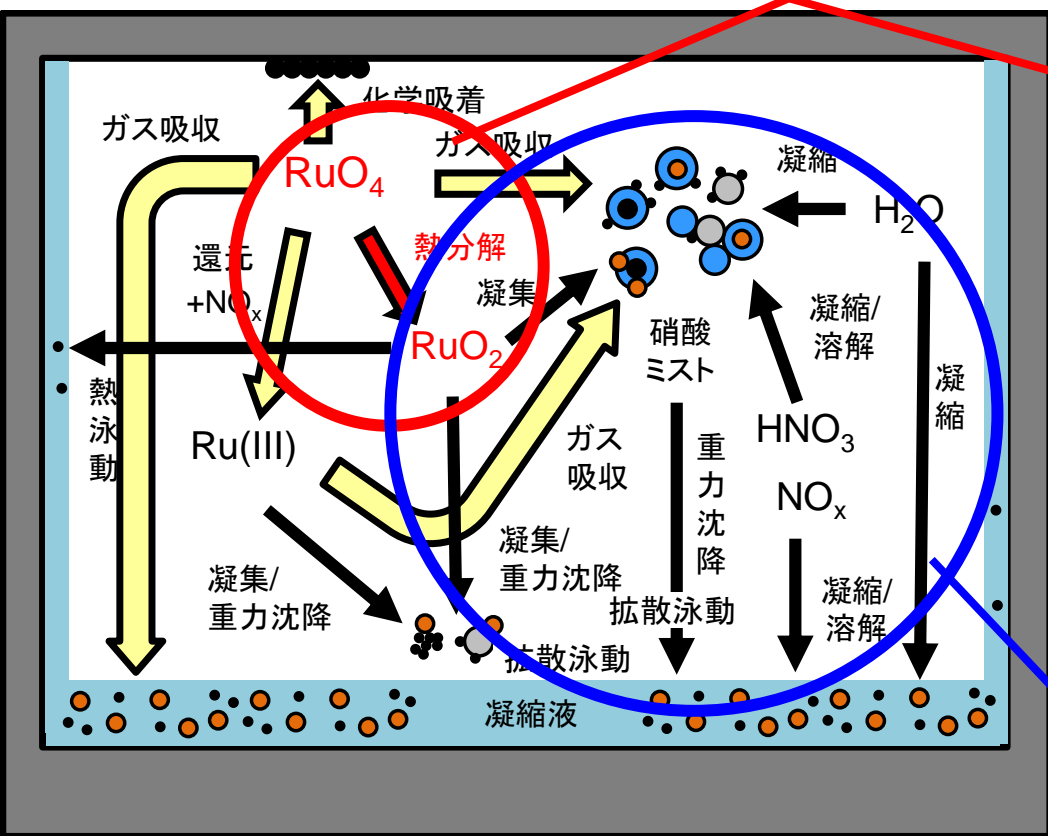
Ru(RuO₄として供給)は壁面への沈着及びRuO₂の生成(熱分解)を経ずに気相中を移行

- ガス状Ruの化学形が不明
- 非凝縮条件での試験(気相中でのRuO₄の変化を観察することが目的)

[1] 「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”(2014).

[2] C.Mun, et al., “Study of RuO₄ decomposition in dry and moist air”, Radiochim.Acta., 95, pp.643-656(2007).

蒸発乾固事故におけるRu化合物の経路中移行挙動



- 硝酸ミスト
- Ru(III): Ru(NO)(NO₃)₃等
- RuO₂
- RuO₂+硝酸ミスト
- エアロゾル

Ru化合物の化学形・物理形 (ガス状orエアロゾル状):

- 経路内移行挙動 (蒸気凝縮に伴う除去、HEPAフィルタ捕集)
- 被ばく評価 (線量換算係数の違い)

硝酸含有水蒸気 (再処理特有の条件) 共存下でのRuO₄ (ガス状Ru) の化学形変化 (熱分解速度定数) の把握

Ru及び難揮発性元素の移行経路中での移行挙動:

- 施設内への閉じ込め評価 (経路内移行割合)

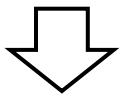
蒸気凝縮に伴う壁面への沈着挙動 (気相からの除去) の把握:

硝酸含有水蒸気共存下でのガス状Ruの化学形変化の把握

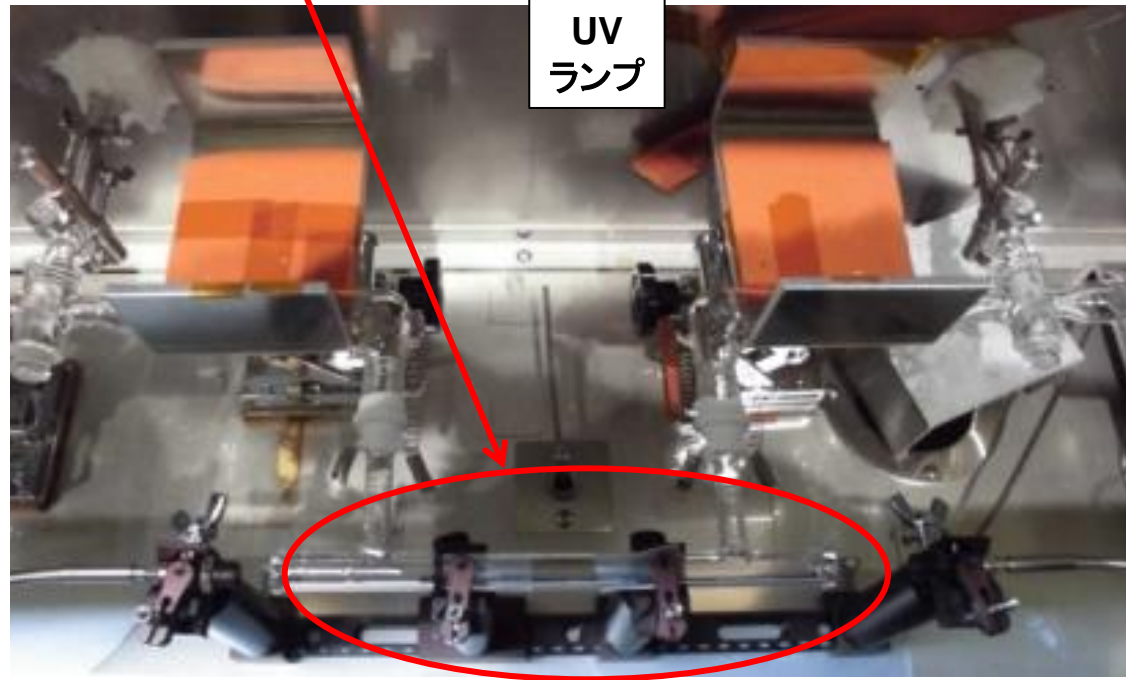
試験装置



- RuO₄、硝酸含有水蒸気を定量的に発生
- 反応系(UV測定セル)全体を恒温状態に保持

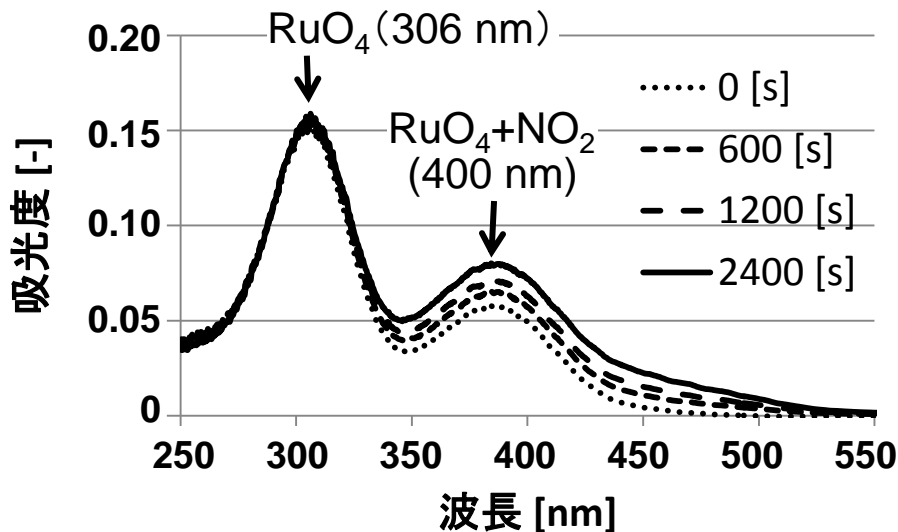


- 気相中のRuO₄の直接、非破壊での測定を検討(UV分光器の適用)

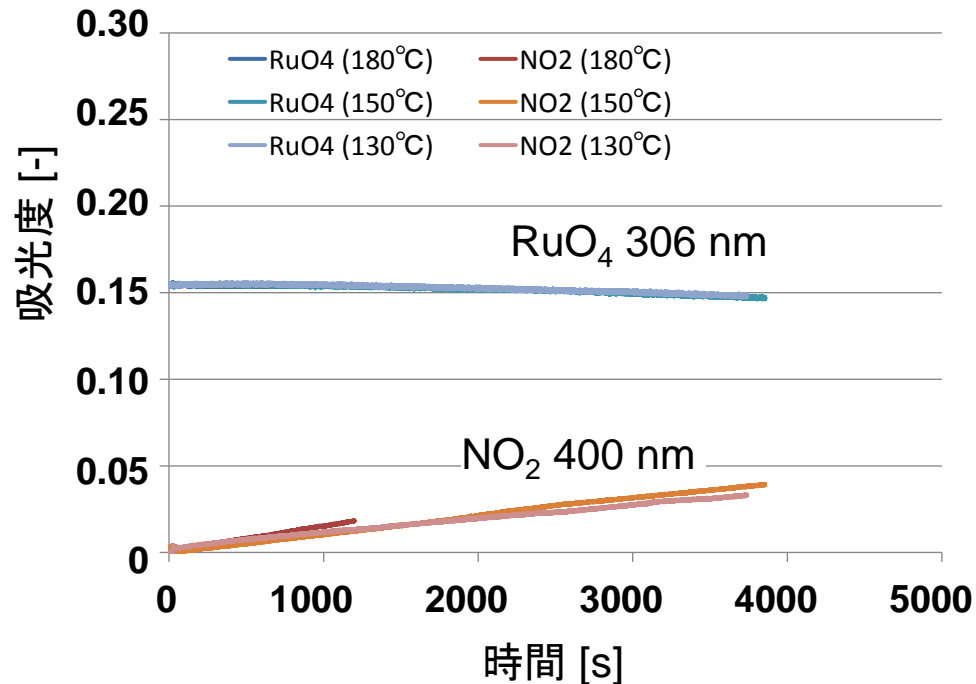


硝酸含有水蒸気共存下でのガス状Ruの化学形変化の把握

試験結果



UV吸収スペクトル経時変化の一例(150 °C)^[1]



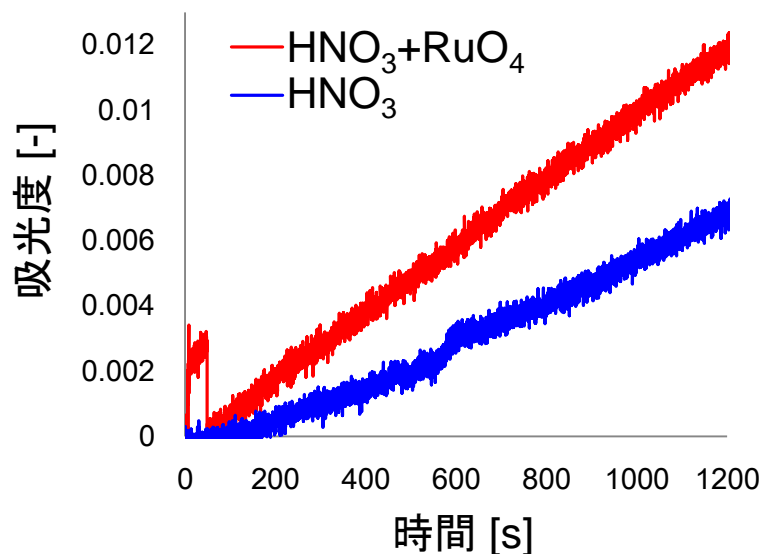
RuO₄とNO₂のピークを分離した後の吸光度の経時変化^[1]

- 気相中のRuO₄を直接・非破壊で測定可能
- RuO₄は殆ど分解せず系中に残存していることを確認
 - ⇒ 熱分解反応速度定数 ($< 2 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$) (1次反応と仮定)
 - (測定系内のリークの可能性を検証)

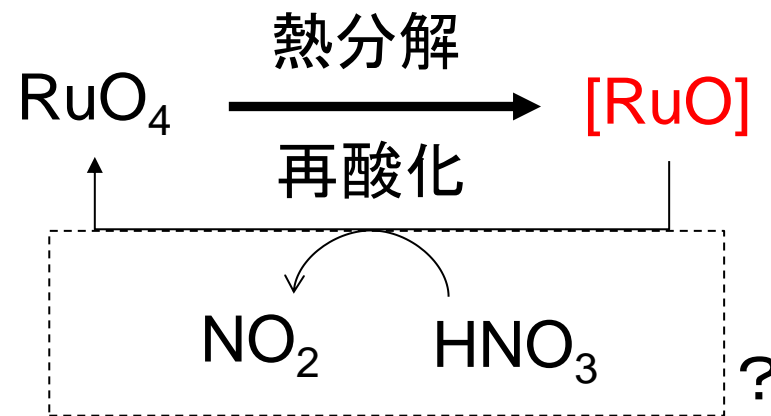
[1] 日本原子力研究開発機構, “平成27年度原子力施設等防災対策等委託費(再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等)事業 事業報告書”(2016).

硝酸含有水蒸気共存下でのガス状Ruの化学形変化の把握

試験結果



400 nm吸光度に対するRuO₄の影響
(恒温槽温度150 °C)^[1]



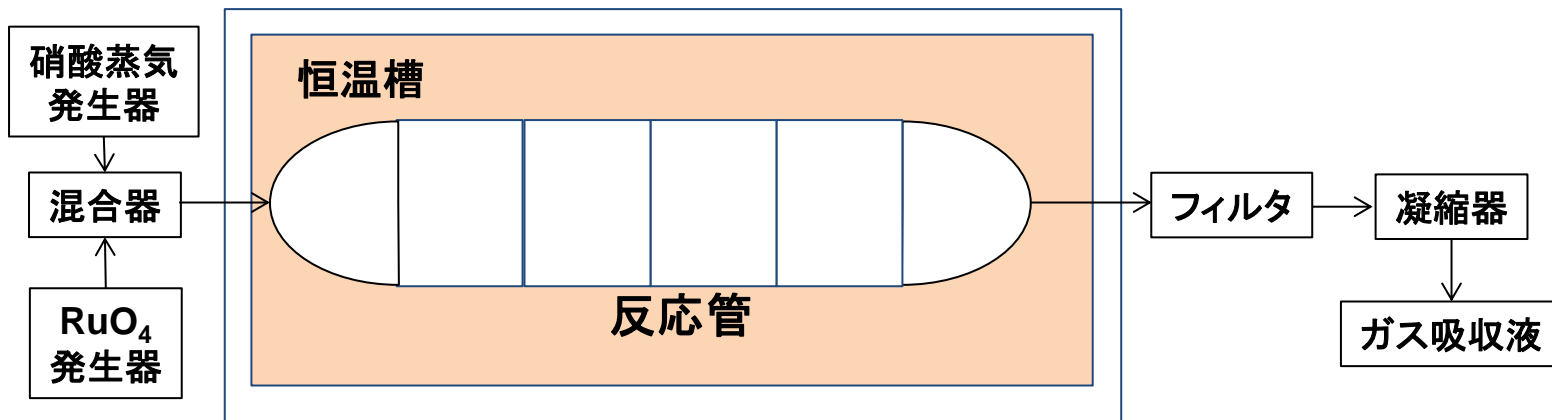
RuO₄の硝酸による再酸化機構の仮説

- RuO₄が共存する場合にNO₂の増加を確認 ⇨ RuO₄の反応機構の解明が課題

[1] 日本原子力研究開発機構, “平成27年度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 事業報告書”(2016).

蒸気凝縮に伴う壁面への沈着挙動の把握

試験装置



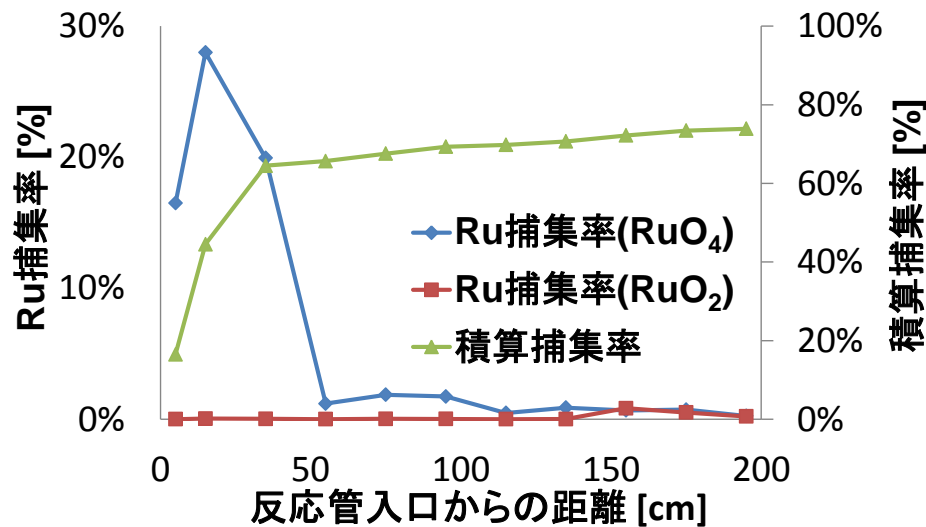
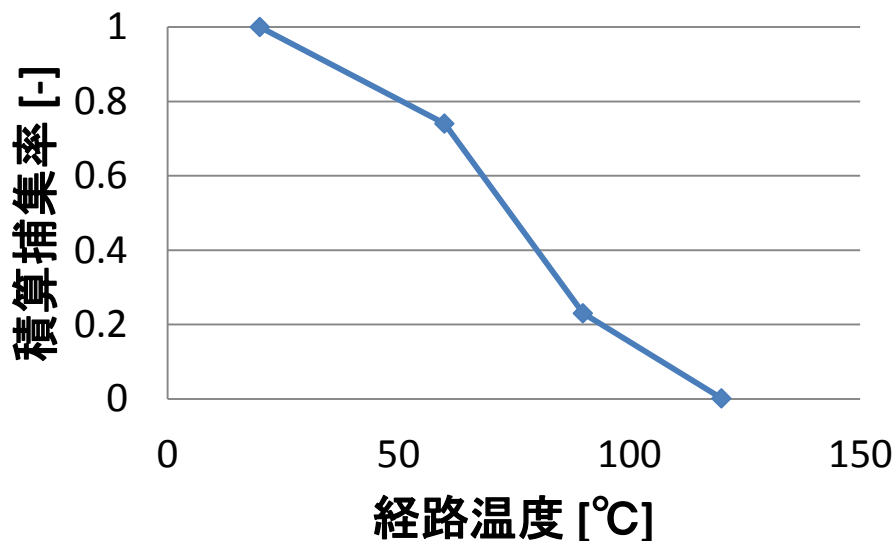
- RuO₄、硝酸含有水蒸気を定量的に発生
- 反応管(6cmφ×10cmL、凝縮液溜付)を9本直列に接続
- 反応管全体を恒温状態に保持
- 反応管を通過したRuをエアロゾル状(フィルタで捕集)及びガス状(凝縮器、ガス吸収液)で分別捕集



- 反応管温度をパラメータとしてRu沈着分布・凝縮液量の分布を測定
- 反応管内に沈着したRuの化学形同定

蒸気凝縮に伴う壁面への沈着挙動の把握

試験結果



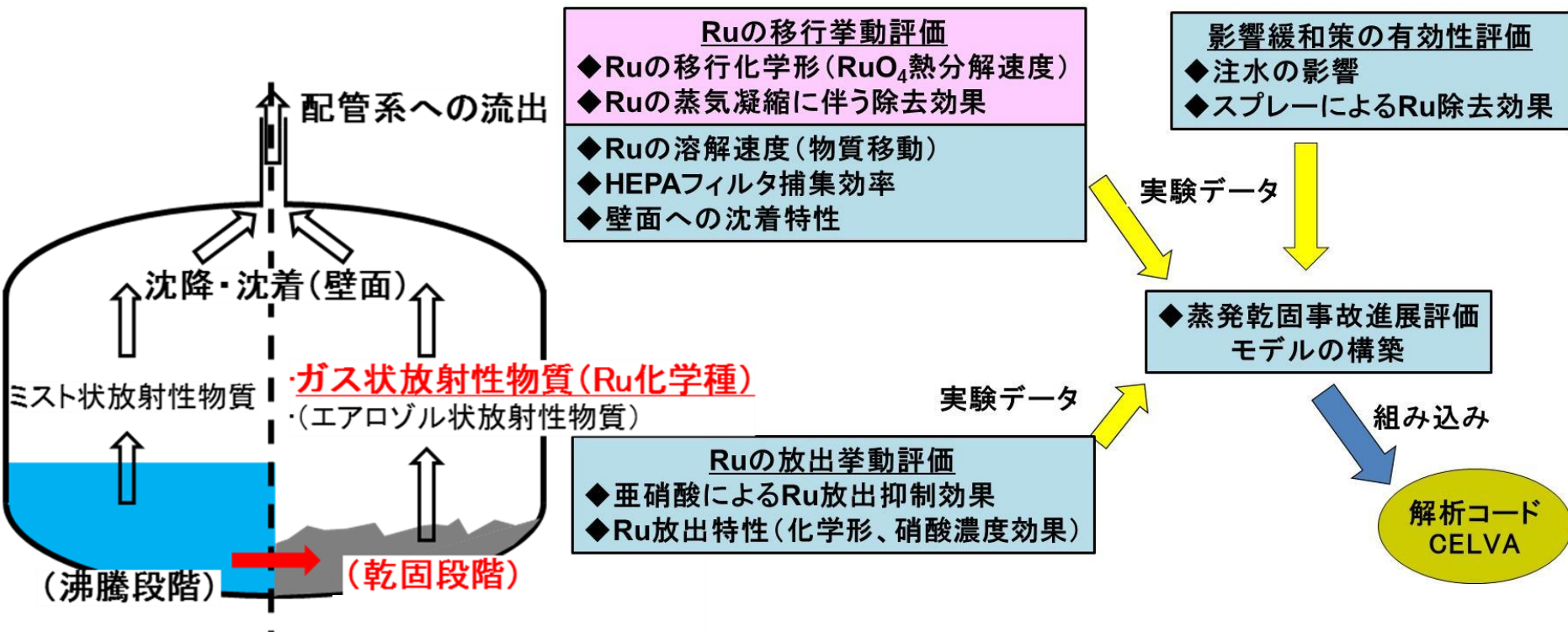
配管温度と積算捕集率の関係

- 反応管温度が低いほど、Ruがより多く反応管内で捕集される傾向
 - ⇨ 反応管温度が60°Cのような場合には、蒸気凝縮が生じてもある程度の割合のRuが沈着せず移行
- RuO₂としての沈着は60°C反応管後段で若干検出
 - ⇨ 気相中の硝酸濃度の低下により熱分解が進行した可能性
 - ⇨ RuO₄の移行挙動(熱分解、蒸気凝縮に伴う沈着)を把握するためには、気相組成(硝酸蒸気/水蒸気比)の変化を評価することが必要
- 解析コードの整備にはこれらの現象の解明とそれに基づくモデル化が必要

まとめ

- 高レベル濃縮廃液の蒸発乾固事故を対象とした解析コードの整備に必要なモデルを構築するため、ガス状Ruの移行挙動に着目した試験を行った。
- 再処理施設における事故時の特徴である硝酸含有水蒸気が共存する場合には、 RuO_4 の RuO_2 への熱分解速度は小さいことがわかった。
 - ⇒ 気相組成条件によっては、 RuO_4 はエアロゾル化することなく、ガス状のまま移行する可能性
 - ⇒ RuO_4 の反応機構の解明が課題(NO_2 の増加がヒント)
- Ruの蒸気凝縮に伴う除去効果について温度をパラメータとした試験を行い、温度が低いほどより多くのRuが反応管で除去される結果を得た。
 - ⇒ 反応管温度によっては蒸気凝縮が生じてもある程度の割合のRuが沈着せずに移行する可能性
 - ⇒ RuO_4 の移行挙動(熱分解、蒸気凝縮に伴う沈着)を把握するためには、気相組成(硝酸蒸気/水蒸気比)の変化を評価することが必要
 - ⇒ RuO_4 の移行挙動に係る機構の解明及びモデル化が課題

蒸発乾固事故研究の展開



スケジュール

	2016	2017	2018	2019
Ruの移行挙動評価	Ruの移行化学形			
	Ruの蒸気凝縮に伴う除去効果			
		Ruの溶解速度		
		HEPAフィルタ捕集効率		
		壁面への沈着特性		
Ruの放出挙動評価		亜硝酸によるRu放出抑制効果		
		Ru放出特性		
影響緩和策の有効性評価	スプレーによるRu除去効果			
		注水の影響		