



Japan Atomic Energy Agency

再処理施設の重大事故時における 安全評価に関する研究 -蒸発乾固事故時におけるルテニウムの移行挙動-

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

吉田 涼一郎

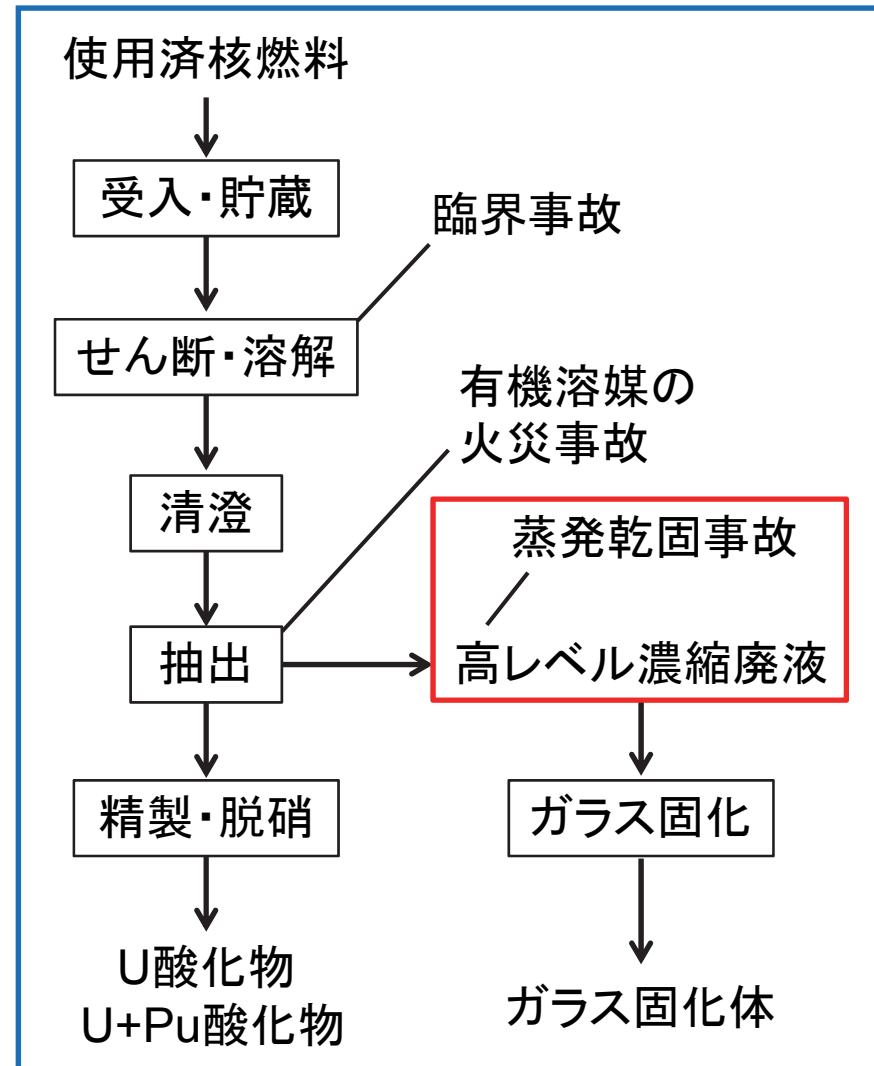
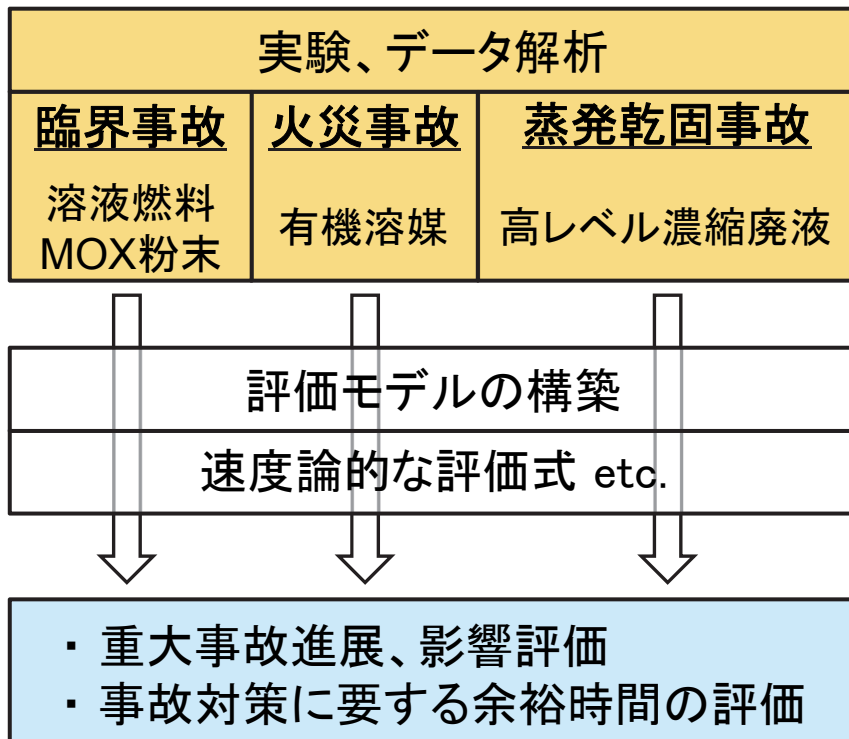
令和元年度 安全研究センター報告会
令和元年11月26日
富士ソフト アキバプラザ

本件は、原子力規制庁から受託した平成30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)事業の成果を含む

サイクル安全研究グループの研究概要

研究内容:

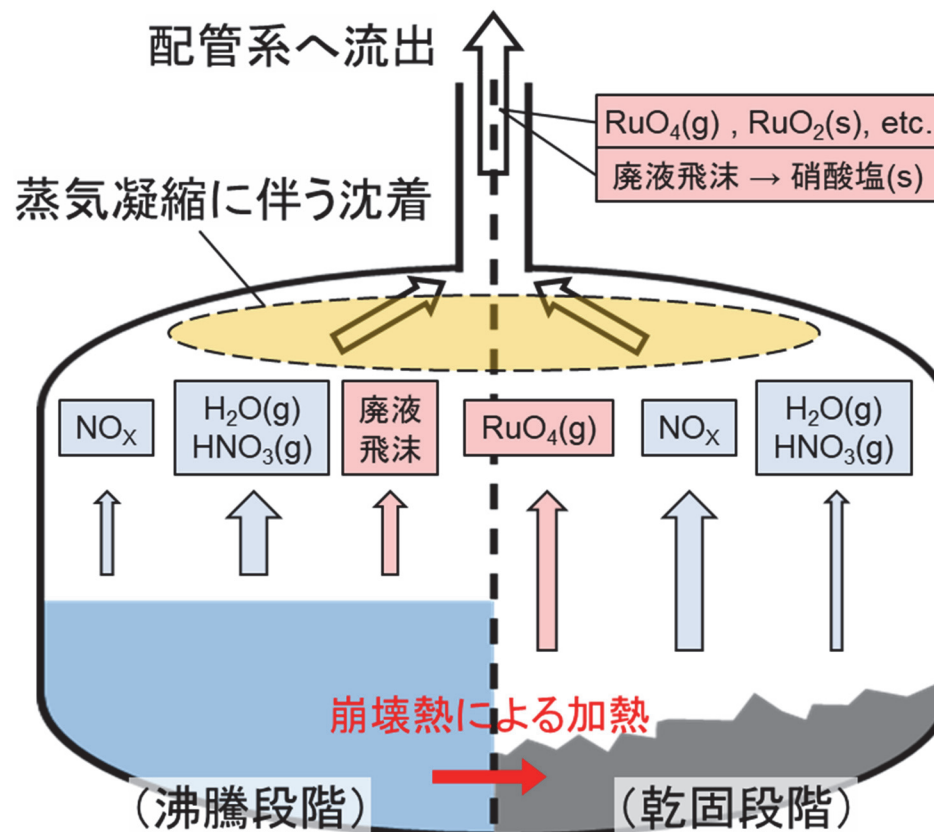
再処理施設の重大事故を対象とした安全評価に関する研究を実施



蒸発乾固事故の概要

蒸発乾固事故の概要:

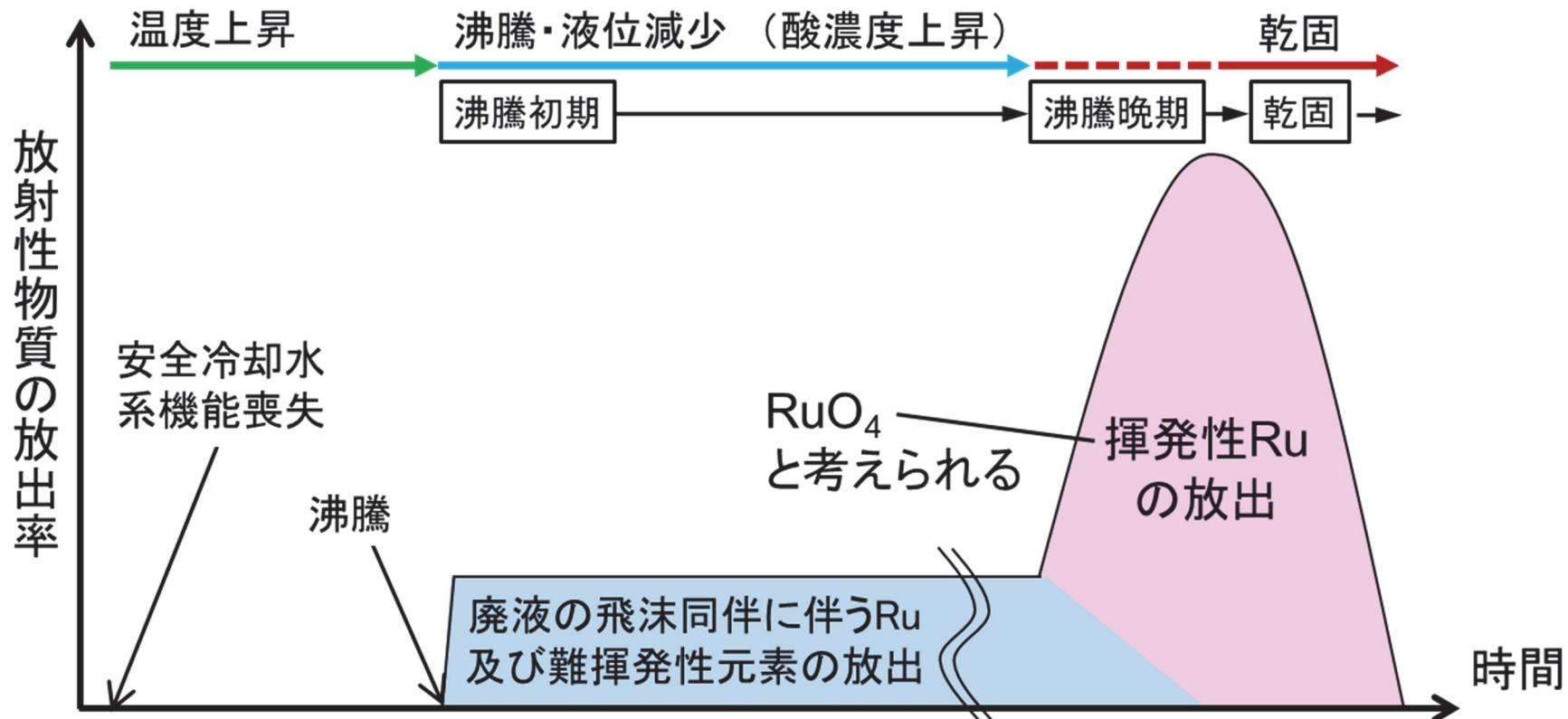
- ・ 冷却機能の喪失によって発生すると想定される、放射性物質を含む溶液が蒸発、乾固に至る事故
- ・ 高レベル濃縮廃液は再処理施設全体の放射能の約5%を占め、非密封としては放射能が最大
- ・ 廃液タンクに一時保管された高レベル濃縮廃液は、崩壊熱の除去のため常に冷却
- ・ 冷却機能が喪失すると、崩壊熱により廃液が加熱され、沸騰、乾固へ進展するおそれ



蒸発乾固事故における
廃液タンクからの放射性物質等の放出

⇒ 放射性物質として環境へ放出される可能性がある、難揮発性元素と揮発性ルテニウム (Ru) が重要

蒸発乾固事故の進展と特徴



蒸発乾固事故における事象進展の概要

気相中におけるRuO₄の移行挙動についての従来の知見:

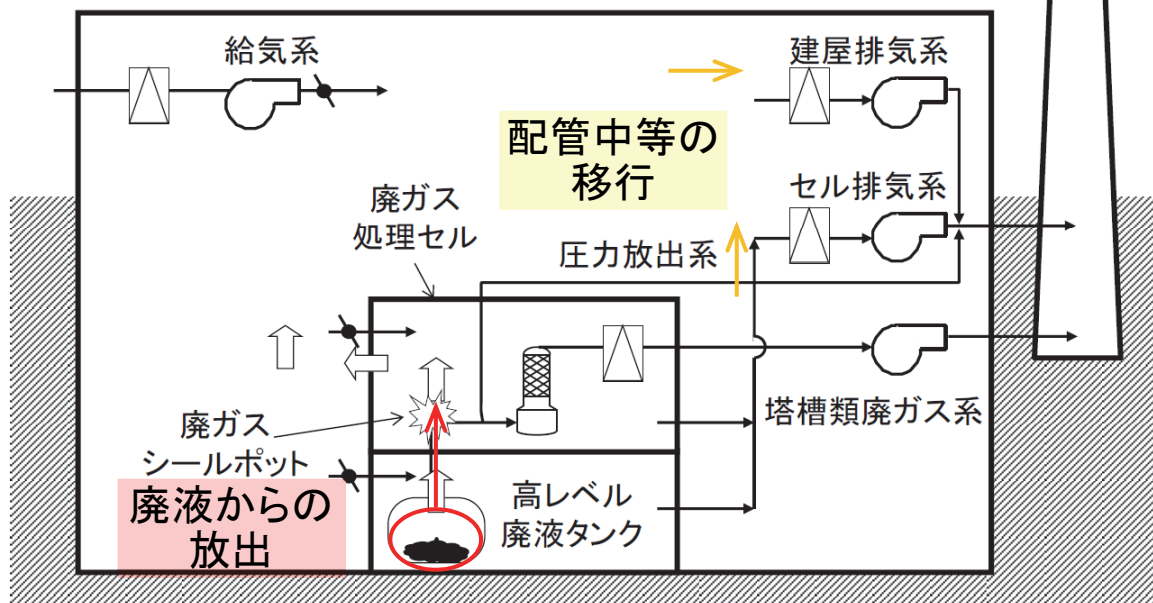
- ・ RuO₄は120°C程度の空気中において速やかにRuO₂に分解する
- ・ 水蒸気が存在するとRuO₄の分解反応が促進される

蒸発乾固事故時のRuO₄の移行挙動の評価のためにはさらなる知見が必要

放射性物質の移行経路と研究の概要

- ・ RuO₄ (気体) が RuO₂ (固体) となることにより環境への影響が小さくなる
- ・ 放射性物質の放出とともに、HNO₃ 蒸気や NO_x が放出 (再処理施設特有の条件)

⇒ 蒸発乾固事故における条件を想定した RuO₄ の移行挙動の評価が重要



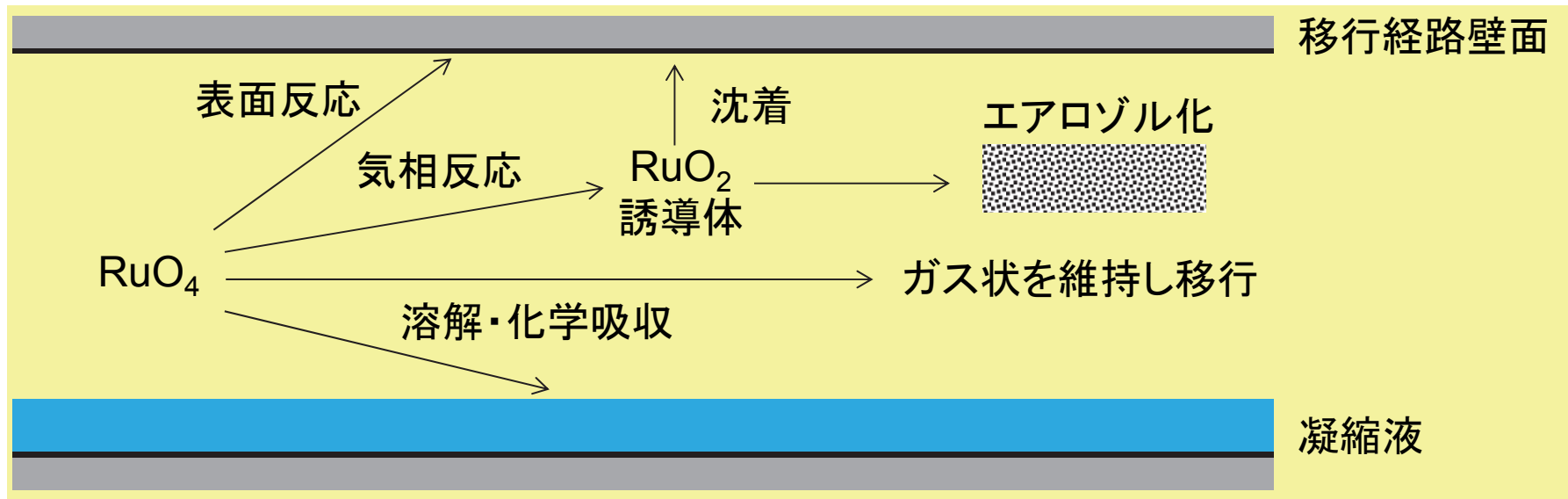
放射性物質の移行経路の一例^[1]

環境中への放出

<p>蒸発乾固事故の研究内容</p> <p>Ruの放出挙動評価:</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ Ru放出特性 (化学形、硝酸濃度) ・ 亜硝酸によるRuの放出抑制
<p>Ruの移行挙動評価:</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ Ruの移行化学形 (RuO₄分解速度) ・ 蒸気凝縮に伴うRuの除去 ・ Ruの溶解速度
<p>影響緩和策の有効性評価:</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 注水の影響 ・ スプレーによるRu除去

[1] 日本原子力学会再処理・リサイクル部会 核燃料サイクル施設シビアアクシデント研究ワーキンググループ フェーズⅡ報告書, "再処理施設において想定される事故の影響評価手法の現状と課題" (2017).

気相中におけるRuO₄の移行挙動



蒸発乾固事故時の移行経路内において想定されるRuO₄の移行挙動

想定されるRuO₄の移行挙動:

- ・ 配管等の表面における反応(配管等に沈着)
 - ・ 凝縮液への移行(凝縮液への溶解、化学吸収)
 - ・ 気相中での反応(配管等に沈着又はエアロゾルとして移行)
 - ・ RuO₄のまま移行
- } Ruの環境放出減少

蒸発乾固事故(沸騰晩期)を想定した条件において実施した、以下の2試験を紹介

- ・ 気相へ放出されたRuO₄の移行挙動を評価した「Ru移行挙動試験」
- ・ 様々な気相条件におけるRuO₄の分解挙動を評価した「Ru気相反応試験」

Ru移行挙動試験の目的と内容

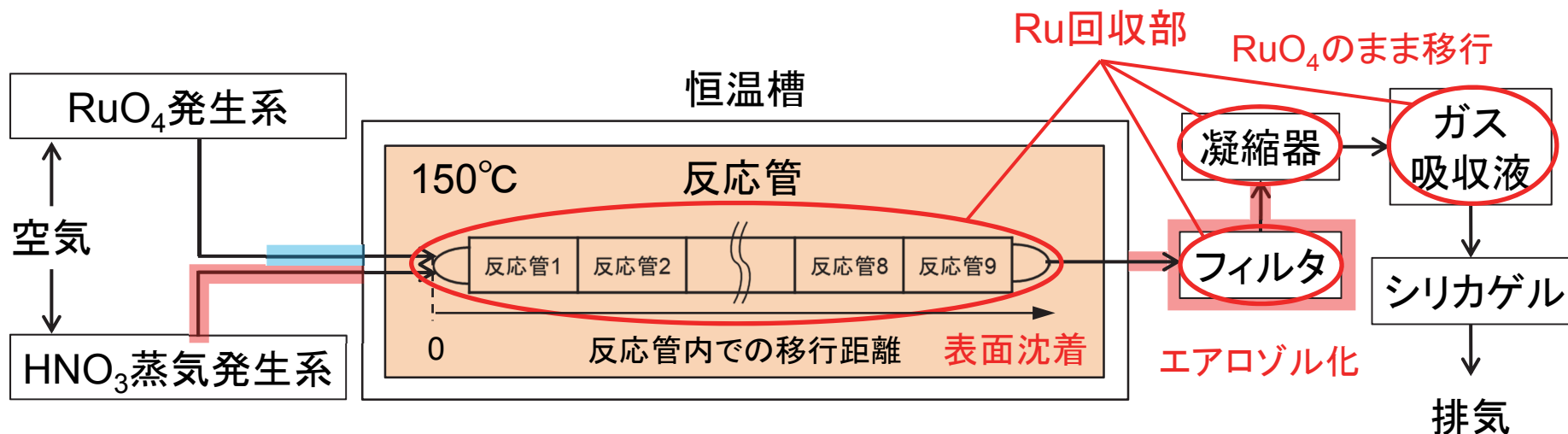
目的:

蒸発乾固事故における条件を想定し、気相におけるRuO₄の移行挙動を評価する。

実施内容:

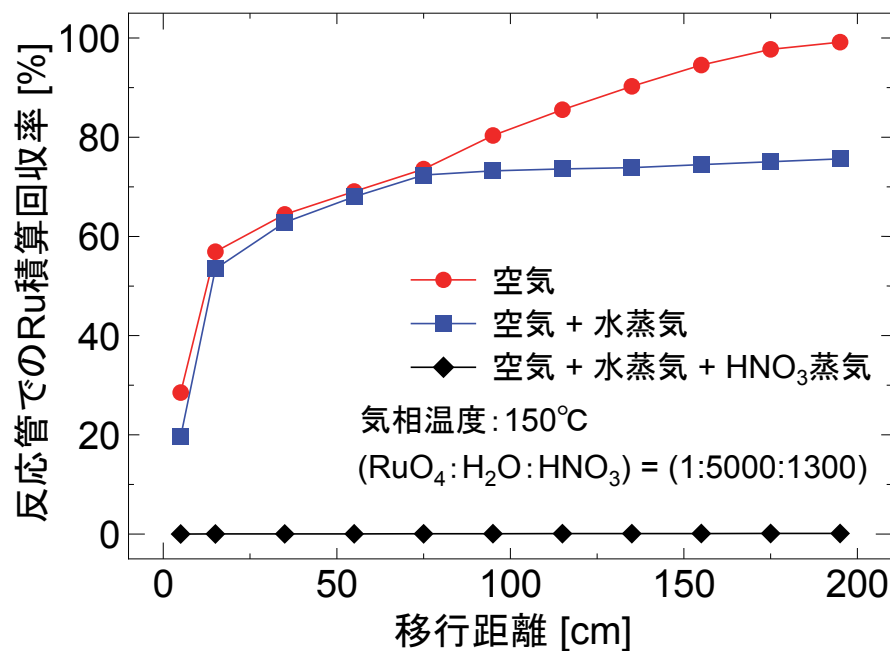
- ・ 温度、ガスの組成を一定とした気相雰囲気において、ガラス配管中にRuO₄を含むガスを供給し、各回収部から得られたRu量から移行挙動を評価した。
- ・ 基礎的なデータを得るための試験として、(空気)条件、(空気+水蒸気)条件を、蒸発乾固事故での気相雰囲気を模擬した試験として(空気+水蒸気+HNO₃蒸気)条件を実施した。
- ・ (空気+水蒸気+HNO₃蒸気)条件においては、廃液加熱時にRuO₄の放出が多くなる際の気相の組成を想定し、気相における(RuO₄:水蒸気:HNO₃蒸気)のモル比が(1:5000:1300)となるように設定した。

Ru移行挙動試験の試験装置と方法

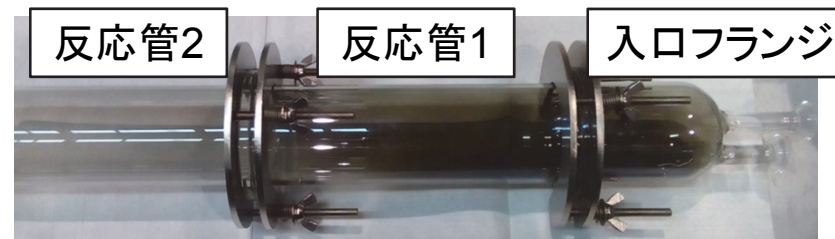


1. 反応管(内外)及び配管の一部を恒温状態に保持
 2. 空気とともに、RuO₄、HNO₃含有水蒸気をそれぞれ一定速度で供給(20分)
 3. 各Ru回収部におけるRu量をICP-MSにより測定
- ・ 反応管、フィルタ、凝縮器で回収されるRuはそれぞれ異なる反応機構によるものであり、RuO₄がどの形態で移行、沈着したかを確認できる。
 - ・ 反応管は入口、出口フランジと、9つの反応管に分けられ、反応管入口からの距離に対するRuO₄の沈着挙動を確認できる。

RuO₄の移行挙動に対するガス成分の影響



全Ru回収量に対する反応管内でのRu回収率



試験後(空気)の反応管

RuO₂と想定される黒色沈着物



試験後(空気+水蒸気)のガラスフィルタ

- ・ (空気)条件では、Ruのほぼ全量が反応管へ沈着
- ・ (空気+水蒸気)条件では、Ruの多くが反応管へ沈着、残りの約30%はフィルタで回収
⇒ 水蒸気によってRuの微粒子の形成(エアロゾル化)が促進
- ・ (空気+水蒸気+HNO₃蒸気)条件では、Ruは反応管、フィルタではほぼ回収されず
⇒ HNO₃蒸気がRuO₄を安定化

Ru気相反応試験の目的と内容

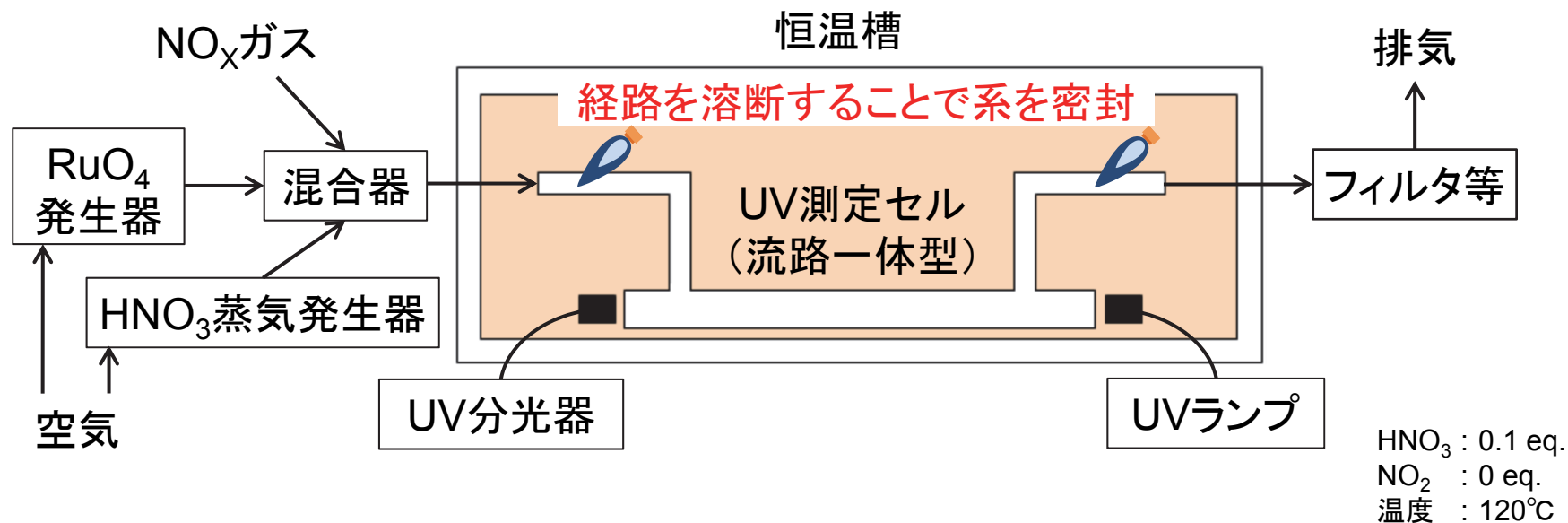
目的:

蒸発乾固事故で想定される、 HNO_3 蒸気や NO_x ガスが存在する様々な気相条件における RuO_4 の分解挙動を評価する。

実施内容:

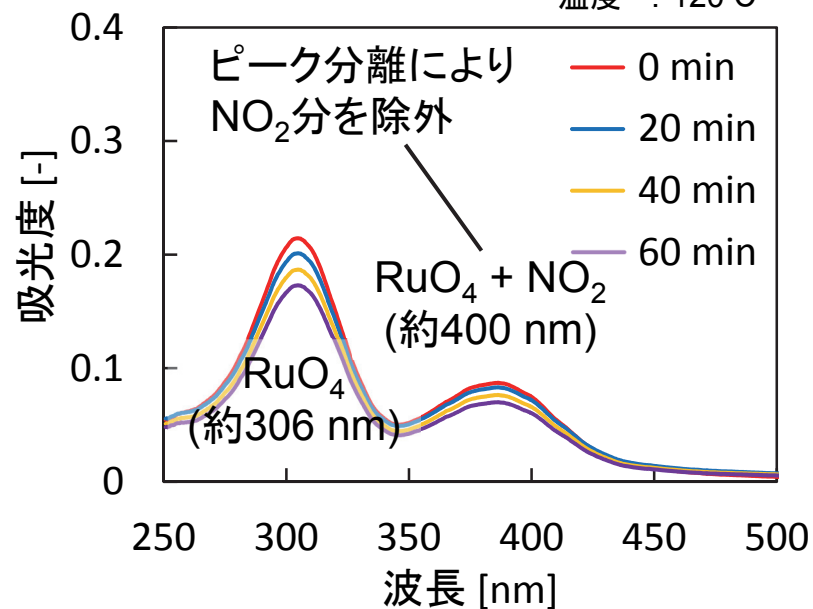
- ・ 温度、ガスの組成を一定とした気相雰囲気条件としたガラス製のセル内に RuO_4 を含むガスを供給した後、セル内における RuO_4 の濃度変化(分解速度)を測定した。
- ・ 気相における RuO_4 の分解を評価するため、蒸気の凝縮がない温度、湿度条件で試験を実施した。
- ・ 気相における HNO_3 蒸気、 NO_x ガスの濃度及び温度をパラメータとして、 RuO_4 の分解速度に対するそれぞれの影響を確認した。
- ・ HNO_3 蒸気の濃度が薄くなる気相条件を想定し、 RuO_4 の分解が生じる HNO_3 蒸気濃度条件を確認した。

Ru気相反応試験の試験装置と方法

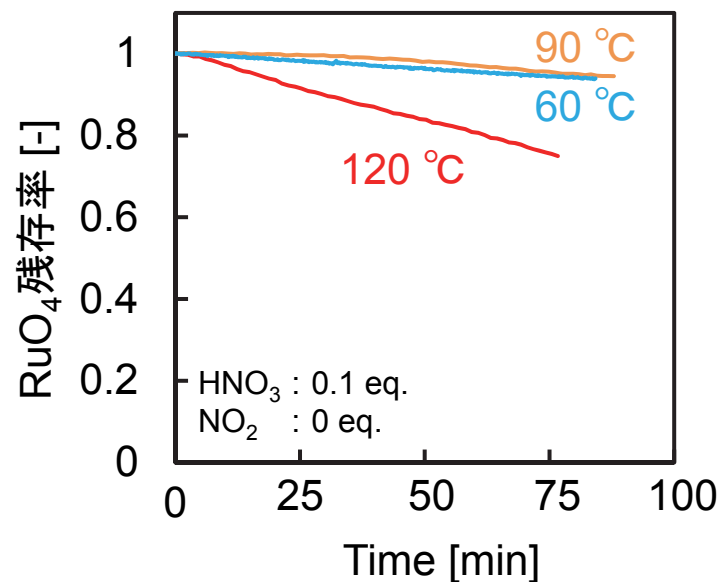
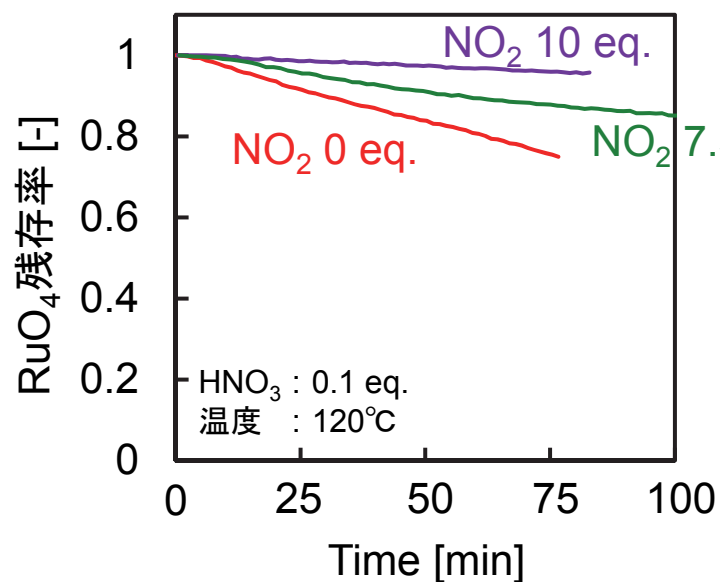
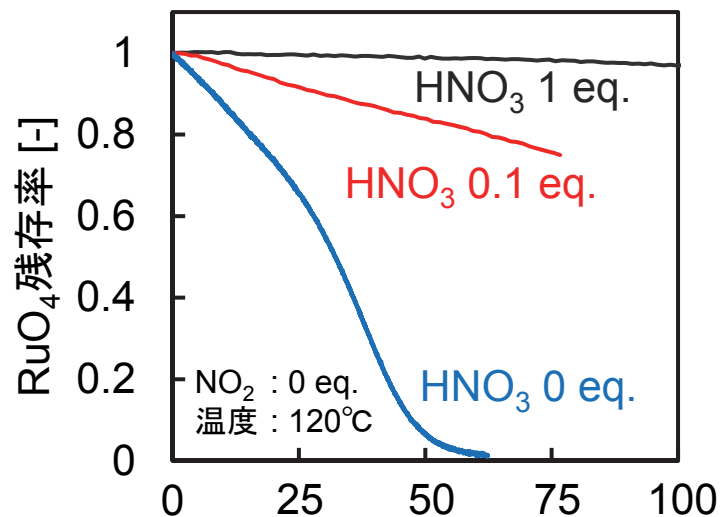


1. UV測定セル全体を恒温状態に保持
2. RuO₄、HNO₃含有水蒸気、NO_xガスをそれぞれ一定速度で供給
3. UV測定セルの経路を溶断し、系を密封
4. セル内気相におけるUVスペクトルの経時変化を測定

・ RuO₄を直接、非破壊で連続的に測定



RuO₄の分解に対するHNO₃、NO_x、温度の影響



「eq.」はRuO₄に対してのモル比を表す

- ・ HNO₃蒸気、NO₂にはRuO₄を安定化する効果が見られた(効果の大きさはHNO₃ > NO₂)
- ・ HNO₃蒸気が1 eq.ではRuO₄の分解がほとんど見られないのに対し、0.1 eq.以下では分解が進むことが分かった
- ・ ある温度を超えると分解が早くなる？

まとめ

Ru移行挙動試験:

- ・ 蒸発乾固事故(沸騰晩期)時に廃液から放出されると考えられる濃度の HNO_3 蒸気が含まれる場合において、 RuO_4 の移行挙動を確認した。
移行経路の表面への沈着やエアロゾル化がほとんど見られず、 RuO_4 のまま移行する可能性を示唆する結果が得られた。

Ru気相反応試験:

- ・ 気相中の HNO_3 蒸気、 NO_2 濃度及び温度条件による RuO_4 の分解に対する影響を確認した。
蒸発乾固事故で想定される、 HNO_3 蒸気や NO_2 の濃度がある程度高い条件下では、 RuO_4 のまま配管等に移行する可能性を示唆する結果が得られた。

蒸発乾固事故(沸騰晩期)時の再処理施設からの
ソースターム評価において重要な研究成果

今後の課題

データの取得及び数値計算による事故進展評価:

- ・ 様々な気相条件 (H_2O 、 HNO_3 、 NO_x 濃度や温度等)における RuO_4 の分解速度、エアロゾル化割合(エアロゾル粒径分布)、 RuO_4 の凝縮液への移行速度等の基礎データの把握及びモデル化
⇒ 熱流動計算コードとの組み合わせにより、**Ru化合物(ガス状、エアロゾル)の施設内における移行挙動の定量的な評価**(環境中への放出までの事象進展を評価)

廃液からの RuO_4 の放出挙動の把握:

- ・ 廃液中の亜硝酸イオン(放射線分解により生成)による RuO_4 の気相への放出抑制効果の確認
- ・ 実廃液中における亜硝酸イオン濃度の評価

乾固物の温度分布解析:

- ・ 乾固物の熱伝導率等の物性値の実測
- ・ 乾固物の昇温が継続した場合の乾固物内温度分布の評価(実測した物性値の適用)
⇒ 事故事象進展の把握、事故終息のための対策の有効性評価