



# 高レベル濃縮廃液沸騰・乾固に伴う 放射性物質移行挙動に係る研究

安全研究センター  
サイクル安全研究グループ  
田代 信介

# 本発表の内容



## ■本研究\*の背景

## ■本研究\*の概要ならびに得られた知見

### ➤本研究\*の概要

### ➤非揮発性物質ならびに揮発性物質の気相への移行として得られた知見

## ■まとめ

\*本研究は「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)に基づき実施しているものである。

確率論的安全評価(PSA)手順の整備や既存施設に対する解析等が、国内各機関(JAEA, JNFL, JNES)で行われている。

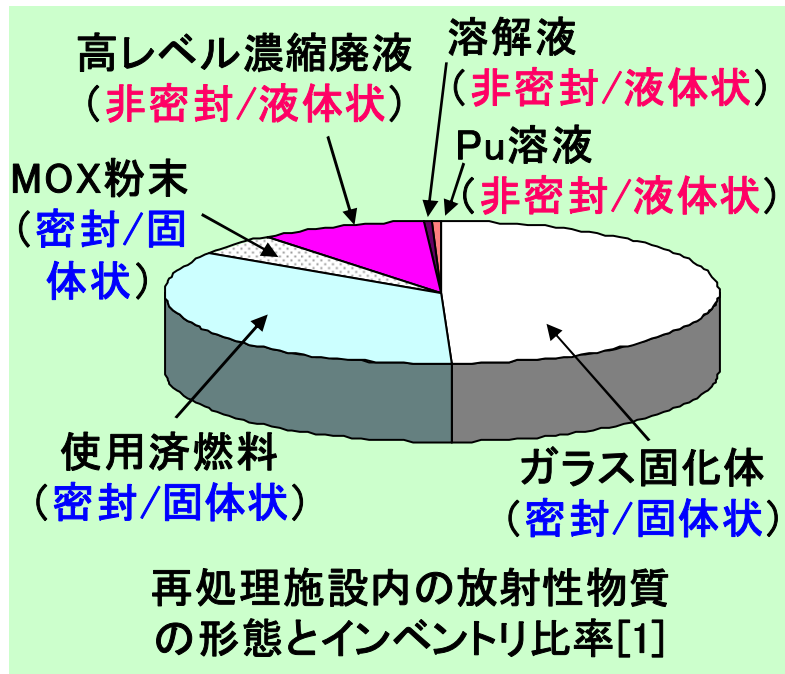
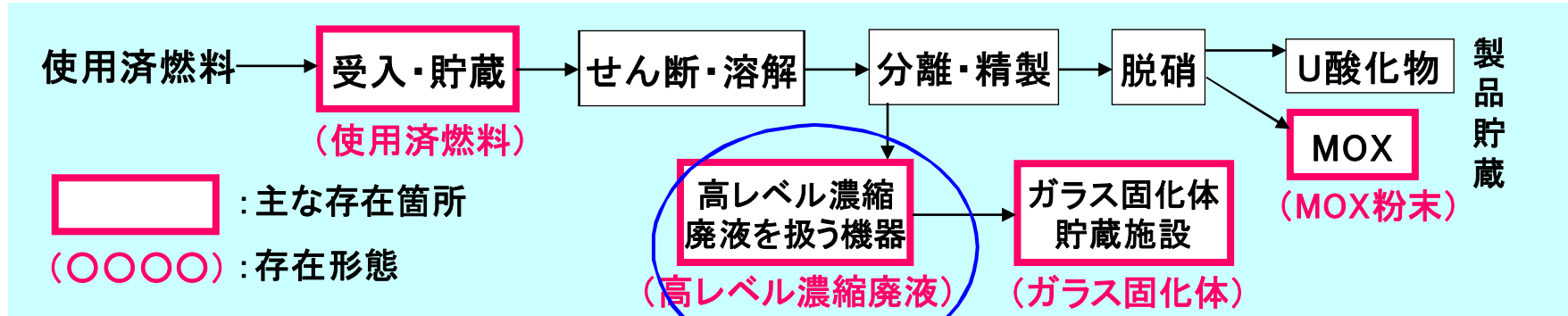
## 課題

- 再処理施設は、原子力発電所に比べ、事象の進展が比較的緩慢であるという特性を踏まえつつ、PSA手法やリスク情報活用を検討していく必要がある。
- 今後の重要な課題として、**頻度は極めて低い**が**影響の大きい**と考えられる事象や**リスク評価上重要な事象の評価に必要なデータの取得**。

重大事故に対する対応を検討する上でもデータ取得は重要。

東京電力福島第一原子力発電所の事故以降の動向

## 再処理施設内の放射性物質の分布

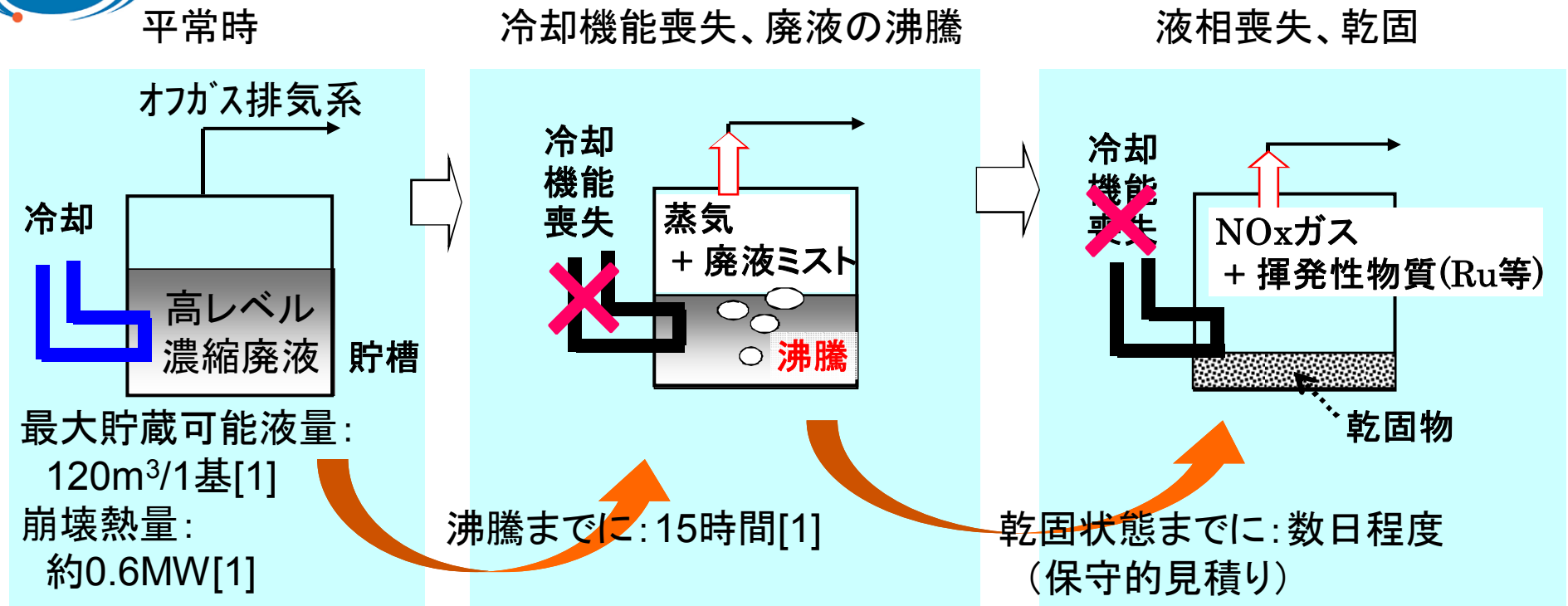


冷却機能の  
長期間の喪失

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

[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>)

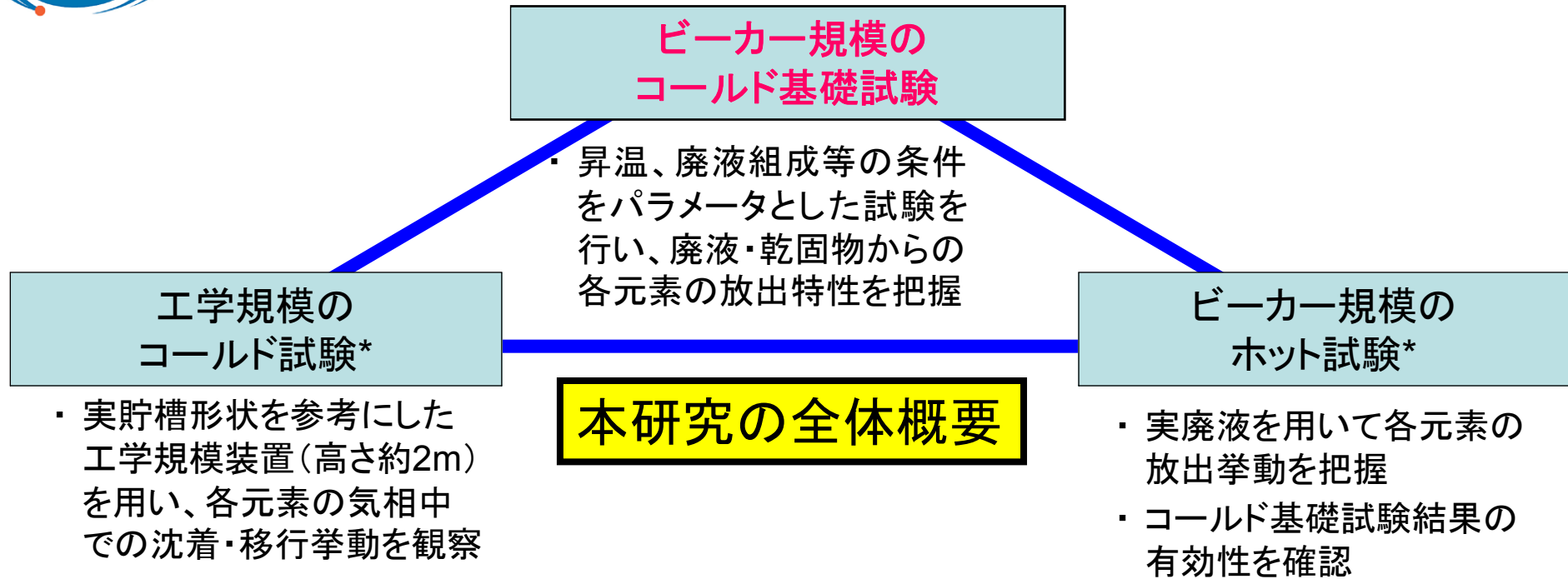
# 背景 高レベル濃縮廃液の蒸発乾固事象



## 沸騰・乾固の影響評価上、把握すべき点

- ・揮発性元素 ( $\text{RuO}_4$ ) の気相への積算移行割合・放出パターン
  - ⇒ 乾固の進行段階での気相への積算移行割合の測定
  - ⇒ 沸騰時の溶液中の放射線による酸化・還元反応の影響
- ・非揮発性元素 ( $\alpha$ 核種) の気相への積算移行割合
  - ⇒ 沸騰時の気泡破裂に伴う同伴との関係

# 研究計画の概要

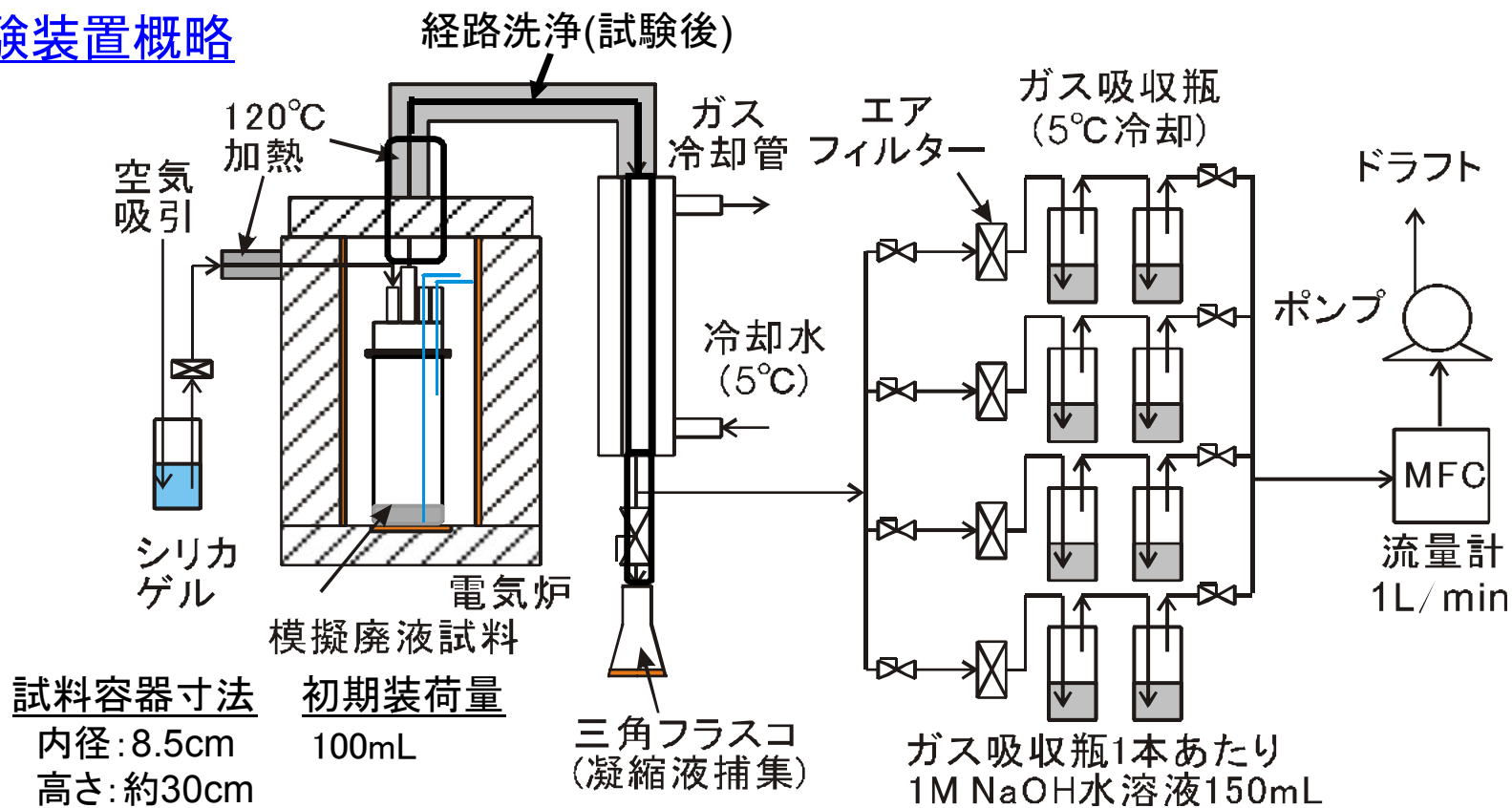


## 高レベル濃縮模擬廃液による試験内容

- 沸騰初期段階における非揮発性元素の気相への積算移行割合の測定(蒸気流速との関係)
- 沸騰初期～乾固段階におけるRuの気相への積算移行割合の測定及び放出パターンの把握
- 沸騰初期段階におけるRuの放出に対する亜硝酸イオンの影響の検討(放射線の影響の模擬)

# 試験試料・試験装置・試験方法

## 試験装置概略



模擬FP元素の気相への移行量 ICP-MS分析により定量

模擬廃液試料 高レベル濃縮廃液を模擬するため、  
27元素を硝酸溶液に溶解させ、酸濃度を2Mに調製 ⇒ 次ページ

# 模擬廃液の組成

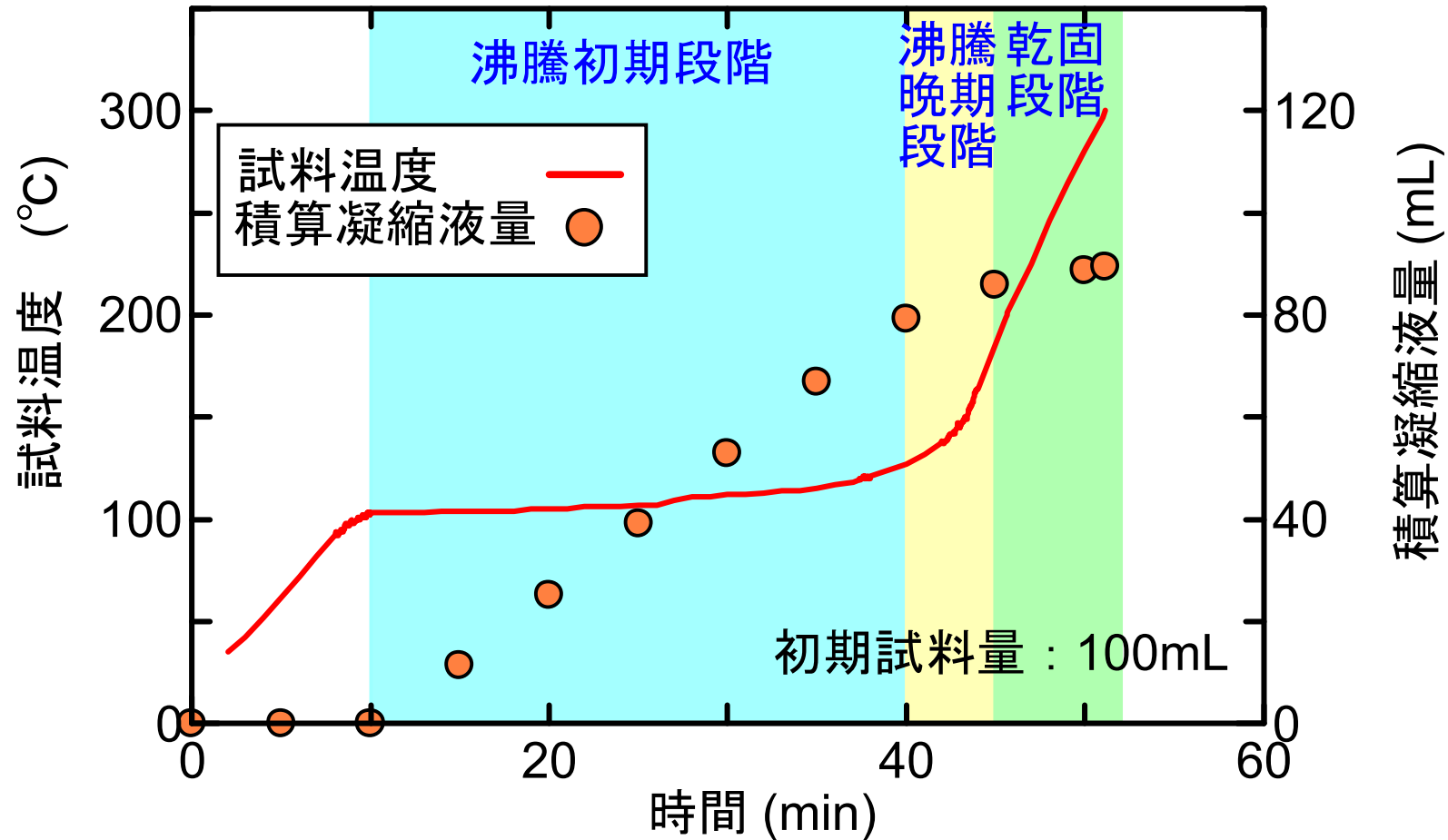
再処理施設の施設情報による組成[1] (元素の種類、添加濃度)を基に調製。

元素	添加試薬	濃度 (mol/L)	元素	添加試薬	濃度 (mol/L)	元素	添加試薬	濃度 (mol/L)
H	HNO <sub>3</sub>	1.96	Mn	Mn(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> ·6H <sub>2</sub> O	5.00 × 10 <sup>-2</sup>	Ba	Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	3.23 × 10 <sup>-2</sup>
P	H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub>	3.89 × 10 <sup>-3</sup>	<b>Ru</b>	<b>RuNO(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub></b>	<b>9.10 × 10<sup>-1</sup></b>	La	La(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O	2.96 × 10 <sup>-2</sup>
Cr	Cr(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	7.00 × 10 <sup>-3</sup>	Rh	Rh(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	1.45 × 10 <sup>-2</sup>	Ce	Ce(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O	1.00 × 10 <sup>-1</sup>
Fe	Fe(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·9H <sub>2</sub> O	2.59 × 10 <sup>-2</sup>	Pd	Pd(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	4.53 × 10 <sup>-2</sup>	Pr	Pr(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O	3.00 × 10 <sup>-2</sup>
Ni	Ni(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> ·6H <sub>2</sub> O	3.37 × 10 <sup>-3</sup>	Ag	AgNO <sub>3</sub>	2.09 × 10 <sup>-2</sup>	<b>Nd</b>	<b>Nd(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O</b>	<b>9.63 × 10<sup>-2</sup></b>
Rb	RbNO <sub>3</sub>	1.55 × 10 <sup>-2</sup>	Cd	Cd(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> ·4H <sub>2</sub> O	3.50 × 10 <sup>-3</sup>	Sm	Sm(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O	1.80 × 10 <sup>-2</sup>
Sr	Sr(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	3.30 × 10 <sup>-2</sup>	Sn	SnO <sub>2</sub>	2.40 × 10 <sup>-3</sup>	Eu	Eu(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O	3.47 × 10 <sup>-3</sup>
Y	Y(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O	1.78 × 10 <sup>-2</sup>	Sb	Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7.10 × 10 <sup>-4</sup>	Gd	Gd(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O	9.00 × 10 <sup>-2</sup>
Zr	ZrO(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	1.80 × 10 <sup>-1</sup>	Te	TeO <sub>2</sub>	1.59 × 10 <sup>-2</sup>			
Mo	金属Mo	1.20 × 10 <sup>-1</sup>	<b>Cs</b>	<b>CsNO<sub>3</sub></b>	<b>6.60 × 10<sup>-2</sup></b>			

[1] Nuclear Technology, 172, 77 (2010).

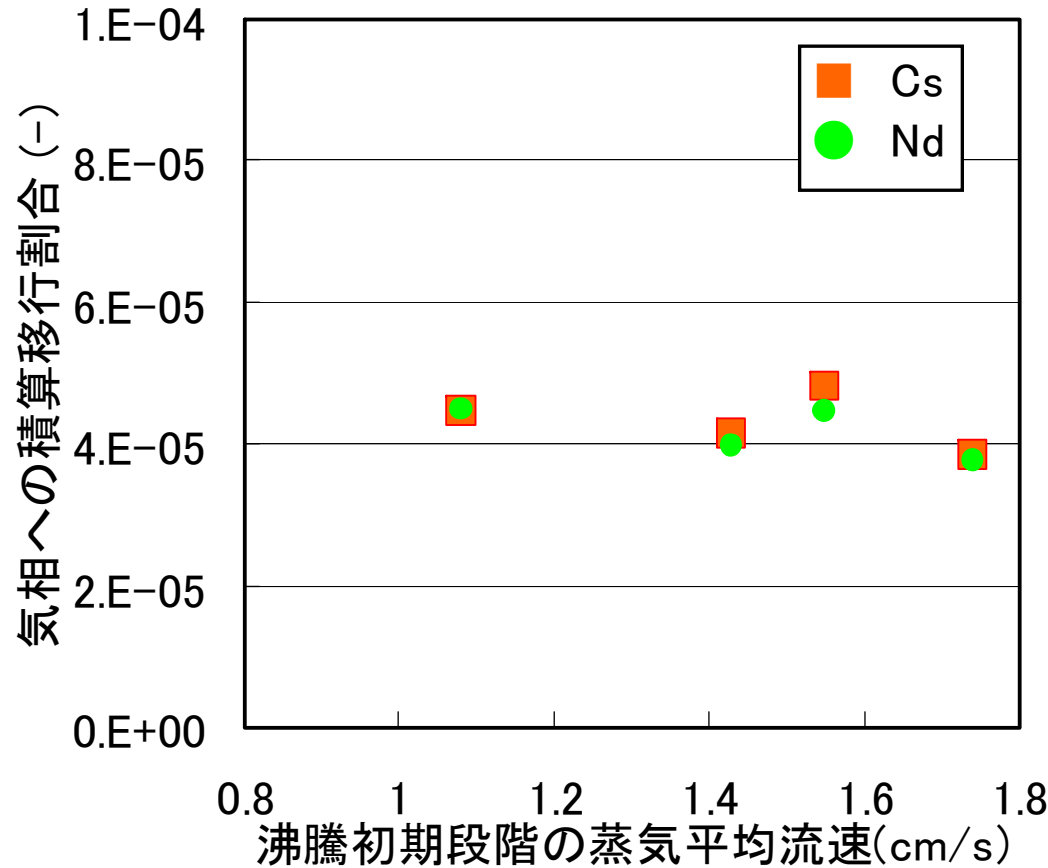


# 模擬廃液試料の温度と凝縮液の推移 (各段階の定義)



- 積算凝縮液量の傾きと試料容器気相断面積から、試料容器の気相内を上昇する蒸気の平均流速を算出
- 沸騰初期段階では、蒸気平均流速をパラメータとした

# 沸騰初期における非揮発性物質の積算移行割合



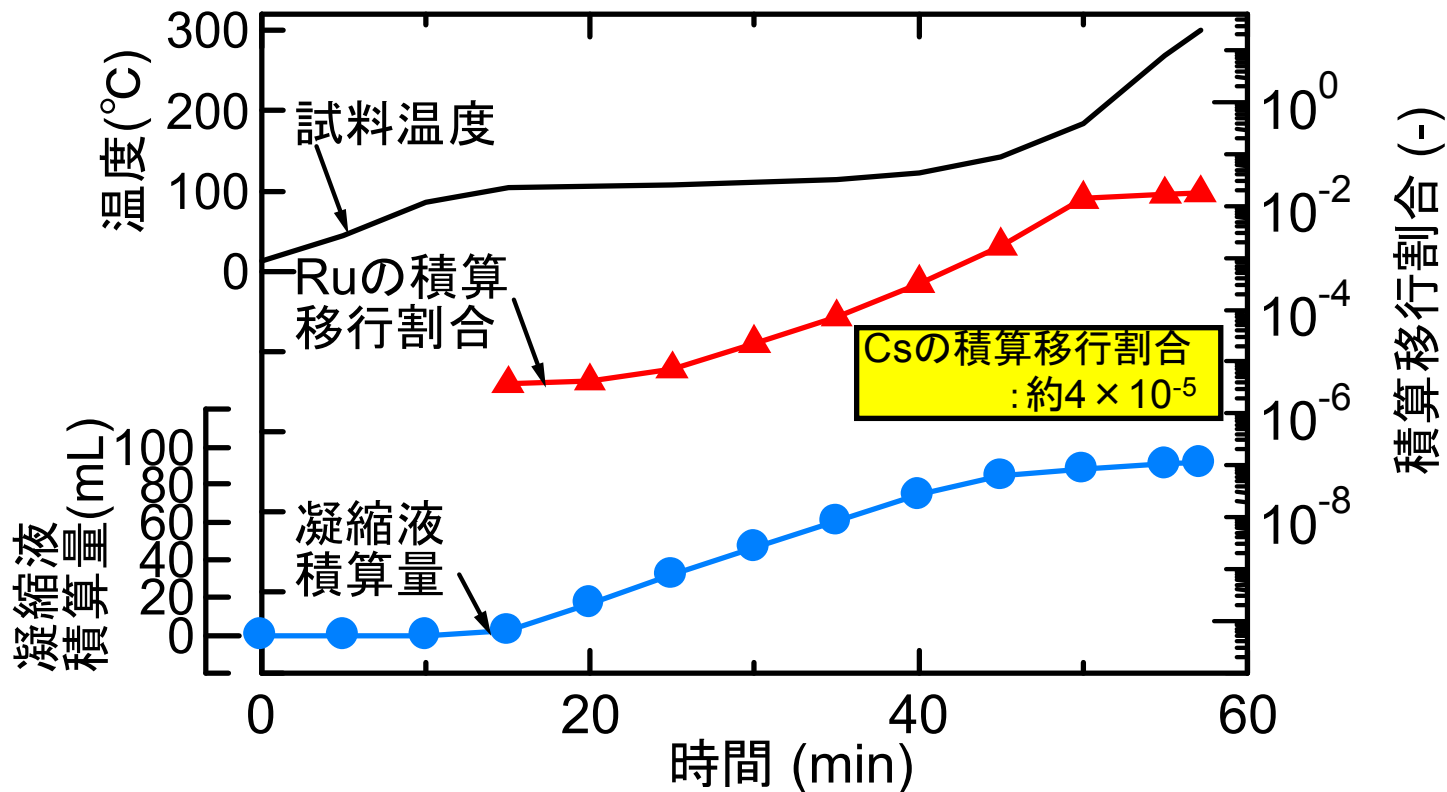
- 沸騰初期の蒸気平均流速は非常に小さい
- 積算移行割合は蒸気平均流速によらず約  $4 \times 10^{-5}$  (-)

$$\text{気相への積算移行割合} = \frac{\text{試料容器出口より下流で回収された元素量}}{\text{模擬廃液中の初期元素量}}$$

# Ruの積算移行割合の推移

## Ruの積算移行割合の経時変化

(凝縮液試料からの評価例)



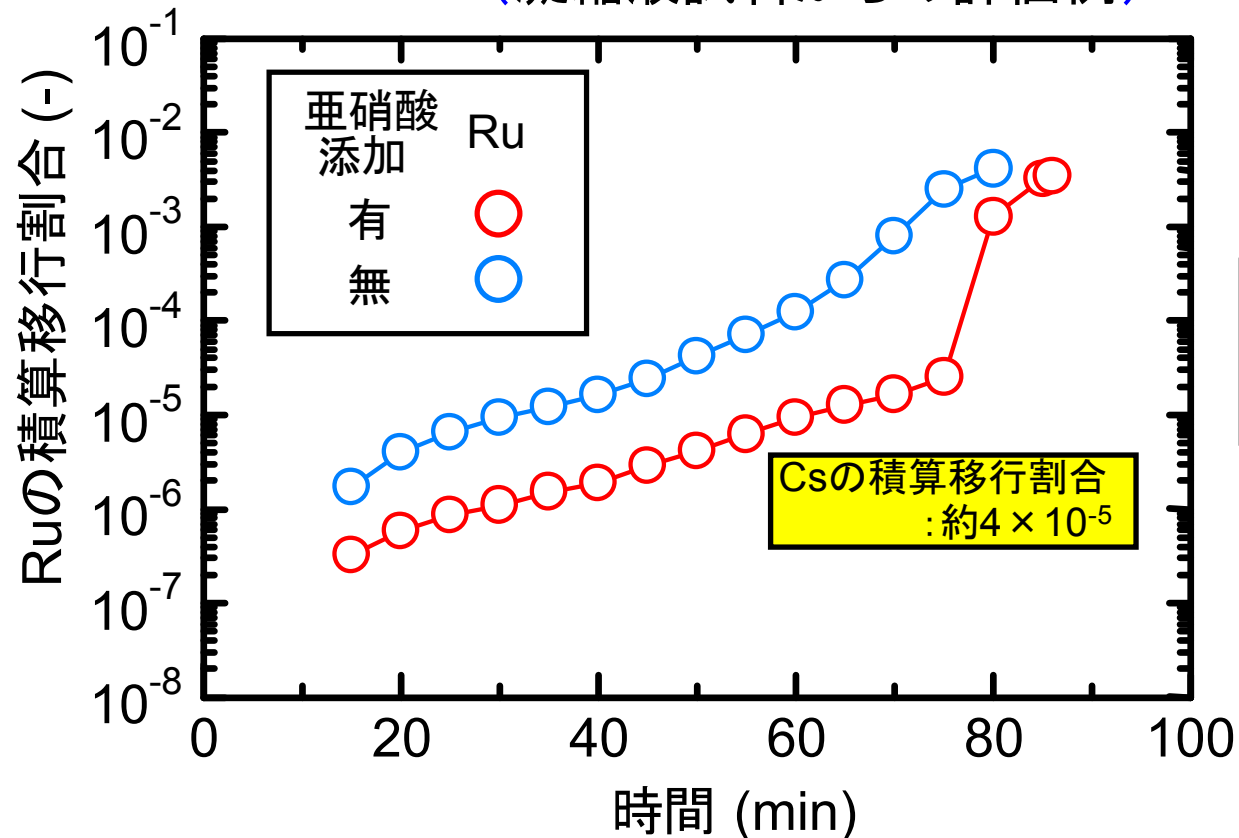
### Ruの移行挙動の特徴

- 沸騰晩期以降に顕著に放出が始まる (300°Cまでにはほぼ一定)
- 積算放出割合は非揮発性元素(Cs)より約3桁程大きい

# 亜硝酸イオンのRuの気相移行割合への影響

## Ruの積算移行割合

(凝縮液試料からの評価例)



模擬廃液中の亜硝酸濃度  
 添加有: 約0.04M  
 添加無: 約0.006M

Csの積算移行割合  
 : 約 $4 \times 10^{-5}$

- 亜硝酸イオン濃度が高いと、Ruの気相への移行が抑制される  
 ➡硝酸ニトロシルRu→揮発性RuO<sub>4</sub>への酸化が抑制されるためと考えられる
- ホット試験結果との整合性を確認

# まとめ

- 実廃液貯槽の沸騰事故での蒸気流速を模擬したビーカー規模試験では、**非揮発性元素**の気相への積算割合 = 約 $4 \times 10^{-5}$ であり、試験条件の範囲では蒸気流速の影響は見られなかった。
  - 非揮発性元素( $\alpha$ 核種等)の放出による影響評価のソースタームデータとして活用
- 揮発性である**RuO<sub>4</sub>**の気相への放出パターンを把握した。
  - 沸騰初期段階では、廃液中の亜硝酸イオン濃度に依存することを確認すると共に、実廃液で考慮される放射線の影響によって、同段階でのRuの放出が抑制されることを明らかにした。
  - 乾固に近づくにつれて顕著な放出が生じることを明らかにした。特に、非揮発性元素と比べ、気相への積算移行割合は、約3桁程大きくなることを明らかにした。

## データ、知見の活用先

- 再処理施設におけるリスク情報への活用
  - 高レベル濃縮廃液の沸騰・乾固事象に係るリスク評価ツール(計算コード等)を用いたリスク評価検討のための基礎データとして活用
- 規制審査基準に基づいた審査時の基礎データとして活用