

再処理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事故に関する研究

サイクル安全研究Gr. ○大野卓也、田代信介、渡邊浩二、天野祐希、阿部 仁

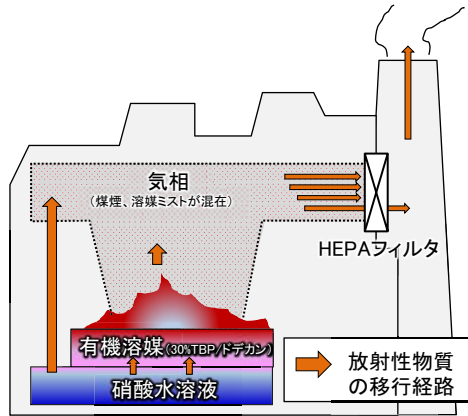
研究背景:セル内有機溶媒火災で想定されるシナリオ

HEPAフィルタの目詰まり

- 煤煙と溶媒ミストによるHEPAフィルタ目詰まり
- フィルタ差圧の上昇によるHEPAフィルタ破過
- 放射性物質の漏洩

放射性物質の異常放出

- 通常時とは量・化学種が異なる放射性物質の放出
- HEPAフィルタを透過する放射性物質が増量



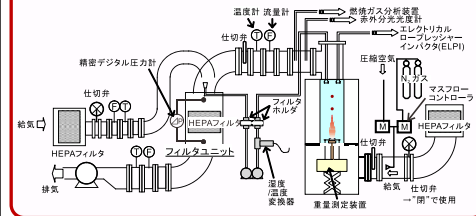
研究の目的と展開

大目的: 火災防護対策の有効性評価手法の確立

小目的: 火災による物質放出・移行モデルの確立

本発表

試験によるソースタームデータの取得

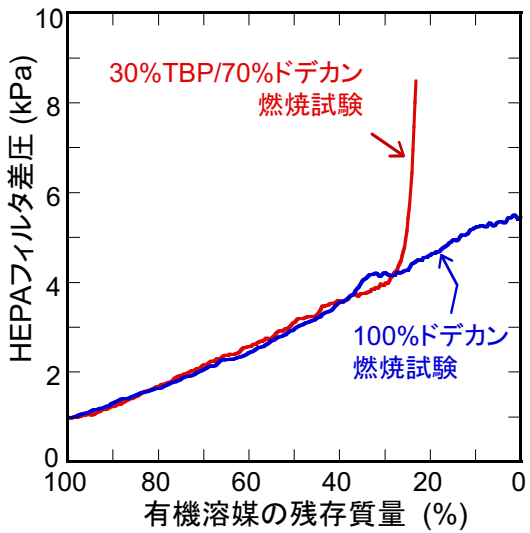


基礎的コードによる計算

文献調査

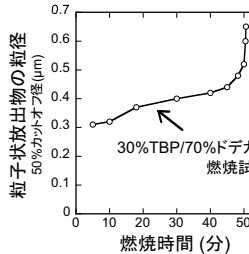
HEPAフィルタ目詰まり挙動に関して得られた知見

混合溶媒の燃焼後期に急速なフィルタ目詰まりが生じる



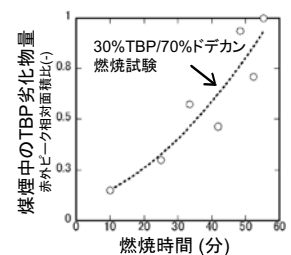
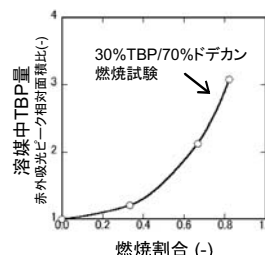
- TBP/ドデカン混合溶媒の燃焼では燃焼後期に差圧が急上昇することを初確認
- HEPAフィルタの差圧挙動データは、フィルタ目詰まりの進行度やフィルタ破過 (~10kPa)に達するまでの時間的猶予の見積りに有用である

放出物の粒子径変化が急速なフィルタ目詰まりの一因か



- 混合溶媒燃焼時の粒子状放出物(煤煙および溶媒ミスト)の粒径は燃焼後期に大きくなる
- 粒子状放出物の粒径変化はフィルタ差圧の挙動と調和的
- 粒子状放出物の粒径がフィルタ差圧挙動のファクタである可能性が高い

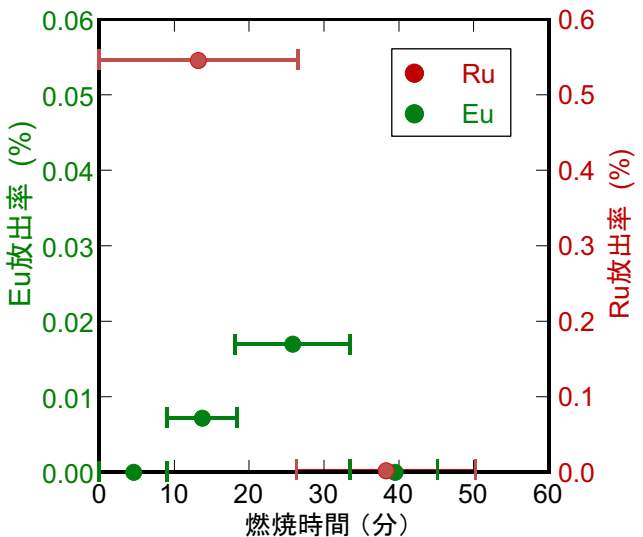
燃焼にともない、TBPの溶媒中濃度と放出量が増加する



- ドデカンの選択的燃焼により、溶媒中のTBP濃度が上昇していく
- これにともない、燃焼後期のほうがTBP劣化物(溶媒ミスト)の放出量が増加

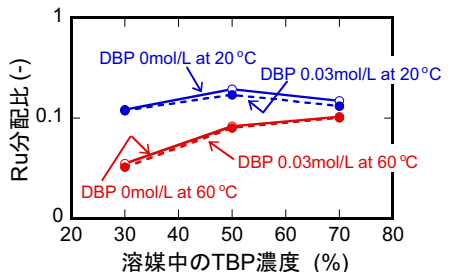
放射性物質の放出挙動に関して得られた知見

揮発性化合物を作るRuが燃焼前期に顕著に放出される



- 放出率 = $\frac{\text{煤煙とともに気相中から捕集された物質質量}}{\text{有機溶媒中の物質質量初期値}}$
- Euと比べRuの放出率が大きく、燃焼による揮発性化合物の生成が示唆される

燃焼による溶媒劣化はRu分配比に大きく影響しない



- TBP/ドデカン混合溶媒にDBP(TBP劣化物)を添加して、硝酸水溶液からのRu抽出試験を実施
- 分配比 = $\frac{\text{混合溶媒中の試験後Ru濃度}}{\text{硝酸水溶液中の試験後Ru濃度}}$

展望と課題

- 燃焼規模の異なる試験での再現性の確認
- 急速なフィルタ目詰りの要因物質の特定と定量
- 燃焼により放出されるRuの化学形の推定

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

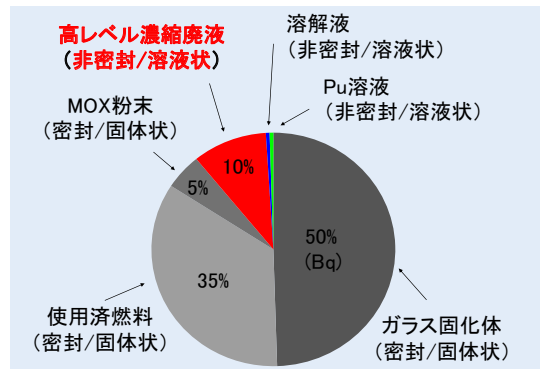
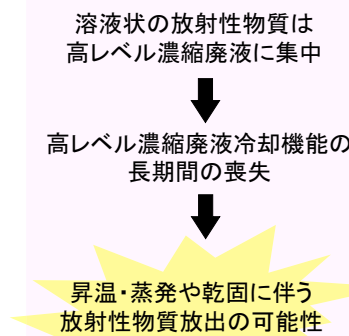


Fig. 1 再処理施設内の放射性物質形態とインベントリ [1]

[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プルトニウム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



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

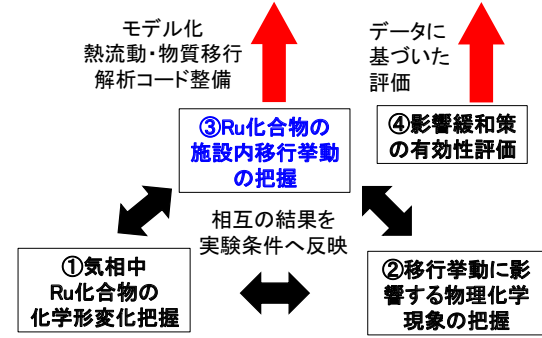


Fig. 2 本研究の展開

Ru化合物の施設内移行挙動の把握

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、NO₂)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 Ru捕集と気相成分変化の化学反応

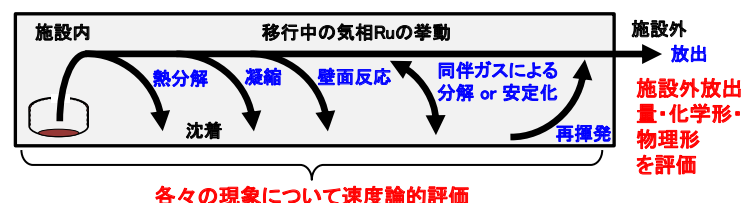


Fig. 3 気相移行中のRuの挙動

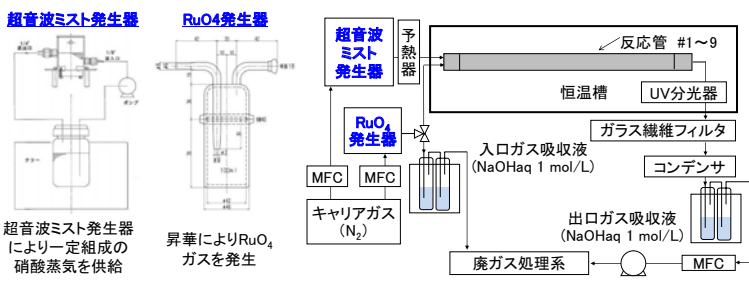
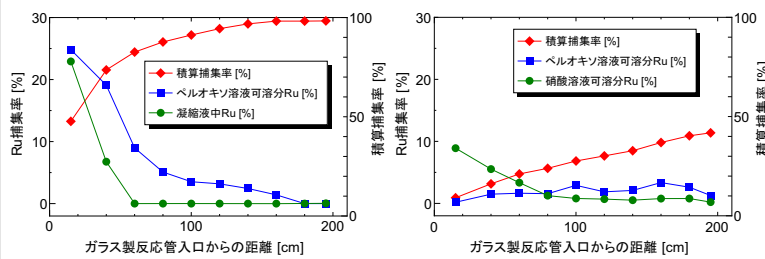


Fig. 4 Ru気相移行試験装置の概要

試験結果

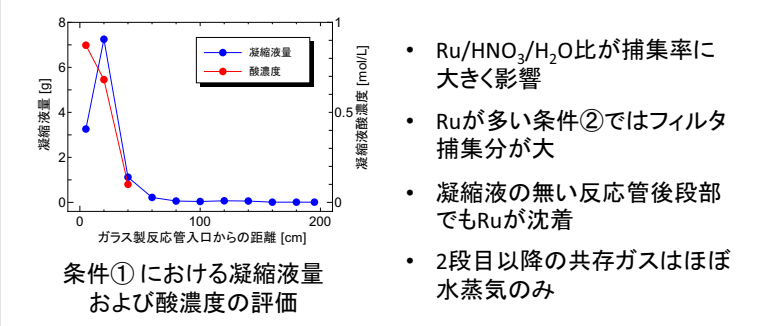
Table 2 気体状Ruの蒸気凝縮に伴う移行挙動の把握 実験結果

実験条件	実験①	実験②
反応管捕集 [%]	96	45
フィルタ捕集 [%]	2	43
凝縮液 + ガス吸収液捕集 [%]	0	12



沸騰初期模擬条件(実験①)におけるRu沈着分布

沸騰中期模擬条件(実験②)におけるRu沈着分布



条件①における凝縮液量および酸濃度の評価

- Ru/HNO₃/H₂O比が捕集率に大きく影響
- Ruが多い条件②ではフィルタ捕集分が大
- 凝縮液の無い反応管後段部でもRuが沈着
- 2段目以降の共存ガスはほぼ水蒸気のみ

気体状Ruの蒸気凝縮に伴う移行挙動の把握

試験条件

- Ruを含む硝酸含有水蒸気(150℃)を60℃のガラス配管へ供給し蒸気凝縮を発生。
- 凝縮液中のRu量をICP-MSを用い分析。凝縮液における重量・酸濃度・Ru量の分布を評価。
- 配管に沈着したRu量はRu溶出液^[2](5g/L K₂S₂O₈ in 0.2 mol/L KOH)を用い回収。

[2] Mun C, Cantrel L, Madic C. Study of RuO₄ decomposition in dry and moist air. *Radiochim Acta*. 2007;95:643-656.

Table 1 気体状Ruの蒸気凝縮に伴う移行挙動の把握 実験条件

実験条件	実験①	実験②
気相組成	N ₂ + HNO ₃ + H ₂ O	
温度 [°C]	60	
Ru供給速 [mol/min]	2.8 × 10 ⁻⁷	1.3 × 10 ⁻⁶
HNO ₃ 供給速度 [mol/min]	2.6 × 10 ⁻⁴	7.9 × 10 ⁻⁴
H ₂ O供給速度 [mol/min]	2.3 × 10 ⁻²	1.3 × 10 ⁻²
HNO ₃ /Ru [-]	930	590
H ₂ O/Ru [-]	85,000	10,000

今後の展開

制御された雰囲気条件(共存硝酸蒸気組成、温度等)の下におけるRu化合物(供給化学形: RuO₄)の移行挙動データを取得。

- ① 気相中における気体状Ruの化学形変化挙動の把握
 - 蒸発乾固事故において放出されると予想されるRuO₄ガスの気相中における化学形変化の挙動データを取得(化学形変化に係る反応速度定数等の導出を含む)。
- ② 気相中における気体状Ru及び難揮発性元素の蒸気凝縮等に伴う移行挙動の把握
 - ① 気体状Ruの蒸気凝縮に伴う移行挙動の把握
 - 気体状Ruの蒸気凝縮に伴う凝縮液及び配管壁面への移行挙動データを取得。
 - ② 模擬廃液から発生するRu等元素の蒸気凝縮等に伴う移行挙動の把握
 - 模擬廃液を加熱・沸騰・乾固に伴って放出されるRu及び他の非揮発性元素(以下、「Ru等元素」という。)の蒸気凝縮に伴う移行挙動データを取得。

発表①: 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 ○大野卓也、田代信介、渡邊浩二、天野祐希、阿部 仁

発表②: 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になっている。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①)

2.1 概要

再処理施設で使用される有機溶媒(30%TBP/70%ドデカン)中には様々な放射性核種が抽出されている。有機溶媒を扱うセル内で火災が発生した場合、煤煙、溶媒ミストおよび水分が施設内気相に大量に放出される。これにより、施設換気系の HEPA フィルタが目詰まりを起こす。フィルタ目詰まりが進行し、差圧の上昇によりフィルタが破過すると、燃焼によって気相へ放出された放射性核種の施設外への放出が引き起こされる可能性がある。

以上の事故シナリオに対する再処理施設の安全性評価の手法の確立には、火災事象のモデル化と各種ソースタームデータ(質量減少速度、発熱量、煤煙化率など)の取得が必要である。本研究グループでは、有機溶媒の燃焼試験を通じた HEPA フィルタの目詰まり挙動データおよび有機溶媒の燃焼にともなう物質放出・移行挙動データの取得を実施し、事象のモデル化を目指している。本報告では、これまでの研究成果と今後の展開について述べる。

2.2 研究の現状(これまでの研究成果)

本研究グループが所有する燃焼試験装置(火災時ソースターム実験装置)では様々な物質の燃焼に伴

うソースタームデータと煤煙負荷による 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。これまでに、この試験装置を用いた有機溶媒の燃焼試験を実施し、以下の通り、前述の事故シナリオに対応する以下の 2 つの視点から火災事象に関する知見を得た。

(1) HEPA フィルタの目詰まり挙動

TBP/ドデカンの混合溶媒が燃焼する場合、燃焼後期に HEPA フィルタの差圧が急激に上昇する可能性があることがわかった。これは、従来の再処理施設に対する設計基準事故評価では考慮されていない現象である。燃焼に伴って放出される煤煙等の浮遊粒子の粒径分布を経時的に測定した結果、燃焼後期にはその粒径が増大すること、また、燃焼の進行により溶媒中に TBP が濃縮されていき、燃焼が進行するほど TBP の気相放出量が増加することを確認した。これらを踏まえると、燃焼後期の HEPA フィルタの差圧の急上昇は、粒子状放出物の粒径変化や TBP の気相放出と関連付けられる可能性が高いと考えられる。

(2) 燃焼にともなう放射性核種の放出・移行挙動

放射性核種の模擬・代表物質として Ru および Eu を抽出させた有機溶媒を燃焼させ、気相中から煤煙等とともに回収される Ru および Eu 量の経時変化を調べた。その結果、Ru は Eu と比較して放出率(=気相からの回収物質質量/有機溶媒中の初期物質質量)が 10 倍程度大きい傾向が得られた。Ru は揮発性化合物を作りやすい放射性核種であることが知られており、有機溶媒の燃焼事象でも揮発性化合物が生成・放出される可能性が示唆される。また、(1)で測定した TBP の気相放出の傾向とは異なり、Ru および Eu とともに燃焼前期ほど放出率が大きくなる傾向を示した。

2.3 今後の試験計画

今回使用した燃焼試験装置は実施設の換気系と比較して小規模の配管系から構成されている。そのため、得られた知見が実規模での火災事象についても応用可能であるか検討する必要がある。今後は、実規模の配管系を再現した試験装置の整備を進めるとともに、以下の 2 点について調査を行う計画である。

(1) HEPA フィルタ差圧が急上昇するメカニズムの解明

今回の試験により、TBP/ドデカン混合溶媒の燃焼では、燃焼後期に HEPA フィルタの差圧が急上昇する現象が確認された。この現象のメカニズムを理解することは、HEPA フィルタ破過までの時間的猶予を見積もるモデルを構築するために必要不可欠である。モデル構築には次の 2 つの観点から調査を行う必要がある。

(a) 差圧が急上昇し始めるタイミングを決定する要因は何か

30%TBP/70%ドデカンの燃焼試験では燃焼割合がおおよそ 70%に達した時点から差圧が急上昇したこと、燃焼進行にともない溶媒中の TBP 濃縮が進んだこと等から、候補となるのは TBP/ドデカンの混合比である。混合比を変化させた有機溶媒で燃焼試験を実施する。

(b) 急上昇開始後の差圧上昇速度を決定する物質＝目詰まりの要因物質は何か

燃焼により大量に放出され、フィルタで捕集される物質としては煤煙、溶媒ミスト、水分が考えられる。これらの物質の放出量を個別に定量し、フィルタ差圧の挙動と関連付けるべく、サンプリング温度をコントロールした燃焼試験やより詳細な赤外分光分析を実施する。

(2) 有機溶媒の燃焼により放出される揮発性放射性核種の定量と移行挙動の理解

今回の試験により、有機溶媒の燃焼にともない放射性物質が揮発性化合物として放出される可能性が示唆された。この揮発性化合物は HEPA フィルタを容易に透過する可能性が考えられ、その放出量と移行挙動を把握することは HEPA フィルタ健在時の放射性物質の漏洩予測モデルの構築に必要である。フ

フィルタ越しに気体状の化合物種のみをサンプリングする手法や、酸やアルカリへの溶解度の差を利用して化合物種ごとに定量する手法を用いた試験を実施する計画である。

3. 蒸発乾固試験研究(発表②)

3.1 概要

再処理施設で処理される高レベル濃縮廃液(以下「廃液」という)中には、様々な放射性核種が溶解しており、その崩壊熱により廃液は常に加熱された状態にある。廃液の温度上昇を防止するために廃液タンク内は常に冷却されているが、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。この事象は「蒸発乾固事故」として、再処理施設に対する新たな規制基準における「重大事故」の一つに定義されており、評価手法を整備するための基礎的な試験データの必要性が高まっている。既往の研究により、沸騰事象の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 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、同伴ガス組成や経路温度などの諸現象が移行挙動に与える影響を把握する必要がある。今回の報告では、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

移行挙動の評価は、揮発性 Ru 化合物として RuO_4 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」を製作し試験を行った。昨年度までの研究成果として、揮発性 Ru 化合物の移行挙動について、以下の3点の知見を得ている:①窒素ガス雰囲気では速やかに配管表面に沈着する、②水蒸気雰囲気では70%程度が配管に沈着するが、残りの Ru はエアロゾルとして配管を通過する、③硝酸含有水蒸気雰囲気では、Ru は配管にほとんど沈着せず気体状のまま移行する。今回の報告では、硝酸含有水蒸気を共存ガスとし蒸気凝縮が発生する場合の揮発性 Ru 化合物の移行挙動に関する試験結果を報告する。今回の一連の試験によって、配管温度が同じ条件であっても、投入する Ru/ HNO_3 / H_2O モル比が異なる場合には経路内での捕集率に大きな差が生じることが明らかになった。

3.3 今後の試験計画

全体的な研究の展開は発表①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 RuO_4 は、熱分解や同伴ガスとの反応により RuO_2 まで分解されるが、気相の雰囲気によってその挙動が大きく異なることが知られている。そこで RuO_4 を様々な雰囲気下(硝酸・水・ NO_x)でセル中に封入し、分光器(UV/Vis 等)を用いてスペクトルの経時変化を測定することで、 RuO_4 の熱分解挙動に係る速度論的データの取得を試みている。各成分の濃度や温度をパラメータとして試験を行い、得られた結果を用いて理論的考察や計算モデルの作成を行う予定である。また、廃液中の硝酸が熱分解や放射線分解して生じた亜硝酸が還元剤となることで揮発性 Ru 化合物の形成が抑えられる“放出抑制効果”や、影響緩和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、揮発性 Ru 化合物移行経路内の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。