

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」

平成 29 年 1 月 31 日

目 次

1. はじめに	1-1
1.1 活動の経緯と目的	1-1
1.2 報告書の構成	1-2
参考文献	1-3
2. 再処理施設とその安全対策の概要	2-1
3. 事故影響評価の基本的な考え方	3-1
3.1 影響評価の対象としたシビアアクシデント事象	3-1
3.2 影響評価の方法	3-4
参考文献	3-9
4. 高レベル廃液の蒸発乾固事故	4-1
4.1 事故の概要	4-1
4.2 想定される事故シナリオ	4-3
4.3 廃液の蒸発乾固事故に関する実験	4-4
4.4 利用可能な基礎的データ	4-6
4.5 沸騰段階の MAR 及び DR	4-12
4.6 機構論的モデルに基づく ARF の評価	4-14
4.7 施設外へのエアロゾルの移行挙動解析に基づく LPF の評価	4-18
4.8 まとめ	4-22
参考文献	4-24
5. セル内での溶媒火災及び TBP などを配位した錯体の急激な分解反応	5-1
5.1 セル内有機溶媒火災	5-1
5.2 TBP などを配位した錯体の急激な分解反応	5-15
5.3 五因子法による評価	5-17
5.4 火災時の放射性物質移行挙動評価のための解析コード	5-18
5.5 まとめ	5-20
参考文献	5-22
6. 臨界事故	6-1
6.1 事故の概要	6-1
6.2 想定される事故シナリオ	6-5
6.3 影響評価手法	6-13
6.4 まとめ	6-23
参考文献	6-25
7. 放射線分解水素の爆発	7-1

7.1 事故の概要	7-1
7.2 想定される事故シナリオ	7-3
7.3 影響評価手法の検討	7-5
7.4 放射線分解水素の爆発の影響評価に適用する ARF	7-6
7.5 放射線分解水素の爆発の影響評価に適用する LPF	7-20
7.6 高レベル放射性廃液からの放射線分解水素に関わる調査	7-28
7.7 まとめ	7-41
参考文献	7-44

8. 使用済燃料の損傷（プール水喪失）	8-1
8.1 事故の概要	8-1
8.2 想定される事故シナリオ	8-2
8.3 事故解析と五因子法との対比	8-3
8.4 燃料の損傷の評価事例（DR の評価）	8-3
8.5 気相への移行量の評価（ARF の評価）	8-4
8.6 熔融燃料とコンクリートとの反応	8-7
8.7 スプレー水による冷却及びエアロゾルなどの除去効果（LPF の評価）	8-8
8.8 プール水位低下に伴う直接線及びスカイシャイン線の評価	8-10
8.9 まとめ	8-11
参考文献	8-12

9. おわりに	9-1
---------	-----

付録 A シビアアクシデント及びリスク評価に関する用語	A-1
-----------------------------	-----

付録 B 略語	B-1
---------	-----

1. はじめに

1.1 活動の経緯と目的

我が国では、福島第一原子力発電所事故の教訓を踏まえて、発電用原子炉施設を除く核燃料サイクル施設（以下「サイクル施設」という）についても「シビアアクシデント」^(注)のリスクを検討し、これに基づいて安全確保のあり方を見直し、深層防護の強化を図り一層の安全性向上について検討することが、喫緊の課題となった。

一般社団法人日本原子力学会 再処理・リサイクル部会は、再処理施設などの建設、運転、安全評価、研究開発、人材育成などに係わる多様な組織の研究者、技術者により構成される部会である。この特質を活かして、部会員が有する最新の知見及び専門的経験に基づき、技術的観点から上記課題を検討し、その成果を発信することは当部会の使命と認識する。これにより、科学的合理性の高い安全確保及び安全規制並びにそれらに係る社会への説明責任の達成に資することができる。

再処理・リサイクル部会では、サイクル施設において想定される事故を体系的に検討し、その中からシビアアクシデントとして認識し、対策の必要性を含めて検討すべき事故を科学的・技術的観点から選定する方法を明らかにすることが重要な課題であると考え、その課題を検討することを目的として、平成 25 年 4 月に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（以下「SAWG」という）を設置した。SAWG の活動を進めるに当たっては、再処理・リサイクル部会員以外の安全設計や安全評価の専門家もメンバーに加え、幅広い観点から検討するよう努めた。

SAWG は、平成 26 年 9 月にフェーズⅠの活動を終了した。その成果を「核燃料サイクル施設における対応を検討すべきシビアアクシデントの選定方法と課題」¹⁾と題して HP 上に公表するとともに、その要旨を解説記事として、平成 27 年 5 月に日本原子力学会誌 ATOMOS に掲載した²⁾。

フェーズⅠの主たる成果の一つは、事故に必要とされる安全対策のレベルはそのリスクの大きさに応じて行う、すなわち、グレーデッドアプローチの適用が科学的合理性に適っていると指摘したことであった。グレーデッドアプローチを実施するには、事故のリスクを評価する必要がある。リスクは事故の「発生頻度」とその「影響」で表される。

サイクル施設における事故の「発生頻度」は、基本的には原子力発電施設のために開発された確率論的リスク評価（PRA, Probabilistic Risk Assessment）手法又はサイクル施設のうち比較的低リスクの施設を対象に米国で開発された総合安全解析（ISA, Integrated Safety Analysis）手法における発生頻度の評価手法を適切に組み合わせて適用することにより評価が可能と考えられる。また、そのような手法を調査、整理することによりサイクル施設に関するリスク評価の実施手順を日本原子力学会標準として取りまとめる活動が、標準委員会リスク専門部会の核燃料施

注：「シビアアクシデント」の定義

サイクル施設においては、発電用原子炉施設のようなシビアアクシデントという用語はこれまで使われていなかった。本報告書で用いる“サイクル施設のシビアアクシデント”とは、“設計基準事故の想定を超える条件で発生し、その判断基準を超えて大きな影響をもたらす事故”と定義することとする。ここでは、新規制基準での“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」とし 6 種の具体的な事故形態が定義されている）と区別して用いている。この 2 つの用語は、福島第一原子力発電所事故の教訓を踏まえ、重大な影響を与える事故の発生を防止するという目的では一致しているが、同定する方法が異なるので異なる用語を用いることとした。

設リスク評価分科会において進められている。しかし、「影響」の評価については、サイクル施設のシビアアクシデントの条件での評価は、世界的にも広くは検討されておらず、評価手法を体系的に調査・検討し、整理する必要がある。

このため、フェーズⅡでは、再処理施設で発生が想定される事故の影響評価方法に関する現状の整理、課題の把握及び課題解決の方法について、客観的かつ専門的視点から検討を行い、その結果をまとめることを目的に、平成 27 年 5 月に活動を開始し、平成 29 年 1 月までの間に計 17 回の会合を開催してきた。

具体的には、再処理施設で想定される蒸発乾固、有機溶媒火災、臨界、放射線分解水素の爆発及び使用済燃料の著しい損傷事故の影響評価方法に関する現状の整理、課題の把握及び課題解決の方法について、影響評価に必要なデータ、モデル、適用例、試験研究を調査し、影響評価手法を検討することとした。

検討に際しては、リスク評価における影響評価技術のニーズを考慮することとした。具体的には、リスク情報を活用する上で重要となる事故とは、影響及び頻度が相対的に大きい事象であること、また、頻度は低くとも影響が大きい事象を見逃さないことも重要であることを考慮して、可能な範囲で広く調査を行うこととした。ただし、SAWG の資源の有効活用を考え、頻度の大きい事象は既に決定論的な安全評価の枠組みに組み入れられており影響評価の手法も整備されていることに留意し、高影響事象に関する新しい知見に優先度を与えることとした。

本報告書は、このような考え方に基づいて、a)高レベル廃液の蒸発乾固事故、b)セル内での溶媒火災及び TBP（リン酸トリブチル）などを配位した錯体の急激な分解反応、c)臨界事故、d)放射線分解水素の爆発、e)使用済燃料の損傷（プール水喪失）の 5 種の事故について、影響評価方法を調査・検討した結果を記したものである。

表 1.1 にフェーズⅡの活動に参画した委員、オブザーバの名簿を示す。また、事故毎に表 1.2 に示すサブ WG を組織し、より詳細な調査、検討を実施するとともに当該章の原案の執筆を担当した。表 1.3 には、本 SAWG フェーズⅡの開催経緯を示す。

1.2 報告書の構成

本報告書は、次のように全 9 章より成っている。

1 章では、調査・検討の目的として、フェーズⅡの活動に至った経緯とフェーズⅡの調査・検討の目的を述べている。

2 章では、再処理施設とその安全対策の概要を説明している。

3 章では、調査・検討の対象とした事象の選定の考え方について説明するとともに、影響評価の基本的な考え方、手法、注意事項などを述べている。

4 章から 8 章では、上述の a)から e)の 5 種の事故それぞれについて、事故の概要、想定されるシナリオ、影響評価手法について述べている。また、各章の最後に“まとめ”として、各事故に関する評価手法の主要項目をまとめるとともに、今後の手法改善の課題を整理して示している。

9 章では、フェーズⅡの活動の全体としての成果、並びに今後の課題として特筆すべき事項をまとめている。

最後に、付録として、シビアアクシデント及びリスク評価に関する用語の説明及び略語の定義を示している。

参考文献

- 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報告書「核燃料サイクル施設における対応を検討すべきシビアアクシデントの選定方法と課題」，2014 年 9 月 30 日．
- 2) 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，「核燃料サイクル施設における対応を検討すべきシビアアクシデントの選定方法と課題」，日本原子力学会誌，**57**[5]，331-329 (2015)．

表 1.1 SAWG フェーズ II の構成員

	氏 名	所 属 機 関	備 考
主 査	池田 泰久	東京工業大学	
副主査	村松 健	東京都市大学	
幹 事	青柳 春樹	－（元 日本原燃(株)）	
〃	浅沼 徳子	東海大学	
〃	阿部 仁	日本原子力研究開発機構	
〃	石尾 貴宏	日本原燃(株)	平成 28 年 8 月 9 日から
〃	小玉 貴司	日本原燃(株)	平成 28 年 8 月 8 日まで
〃	深澤 哲生	日立 GE ニュークリア・エナジー(株)	
〃	松岡 伸吾	－（元 日本原燃(株)）	
〃	眞部 文聡	三菱重工業(株)	
〃	山根 祐一	日本原子力研究開発機構	
〃	吉田 一雄	日本原子力研究開発機構	
委 員	天野 祐希	日本原子力研究開発機構	
〃	池田 昭	(株)東芝	平成 28 年 11 月 9 日まで
〃	大森 武	電気事業連合会	平成 28 年 8 月 9 日から
〃	加藤 徹也	電力中央研究所	
〃	木村 公英	関西電力(株)	
〃	澤田 佳代	名古屋大学	
〃	鈴木 達也	長岡技術科学大学	
〃	鷹尾 康一朗	東京工業大学	
〃	塚田 毅志	電力中央研究所	
〃	塚原 剛彦	東京工業大学	
〃	中島 健	京都大学	
〃	中村 芳信	日本原子力研究開発機構	
〃	野上 雅伸	近畿大学	
〃	畠山 郁朗	(株)東芝	平成 28 年 11 月 10 日から
〃	林 昭宏	電気事業連合会	平成 28 年 8 月 8 日まで
〃	平野 光将	電力中央研究所	
〃	藤井 俊行	京都大学→大阪大学	
〃	藤田 玲子	科学技術振興機構	
〃	藤原 大資	(株)テプコシステムズ	
〃	森岡 信男	三菱マテリアル(株)	
〃	山村 朝雄	東北大学	
〃	吉田 尚生	日本原子力研究開発機構	

オブザーバー	井上 正	電力中央研究所	平成 27 年 7 月 31 日から
〃	小倉 逸也	(株)東芝	平成 27 年 6 月 25 日から
〃	衣旗 広志	日本原燃(株)	平成 28 年 8 月 9 日から
〃	柴田 勇木	日本原燃(株)	平成 28 年 8 月 8 日まで
〃	武田 和仁	東京電力ホールディングス(株)	平成 27 年 6 月 25 日から
〃	鳥居 伸彦	三菱重工業(株)	
〃	松浦 治明	東京都市大学	平成 27 年 7 月 8 日から
〃	森田 泰治	日本原子力研究開発機構	

表 1.2 サブ WG メンバー

事故	メンバー					
高レベル廃液の蒸発 乾固事故	浅沼 徳子 鷹尾 康一郎	池田 泰久 藤原 大資	加藤 徹也 森田 泰治	衣旗 広志 ◎吉田 一雄	柴田 勇木 吉田 尚生	
セル内での溶媒火災 及び TBP を配 位した錯体の急激な 分解反応	◎阿部 仁 眞部 文聡	鳥居 信彦 村松 健	野上 雅伸 山村 朝雄	藤井 俊行	藤田 玲子	
臨界事故	青柳 春樹 畠山 郁朗	池田 昭 ◎山根 祐一	井上 正	小倉 逸也	中島 健	
放射線分解水素の爆 発	天野 祐希 深澤 哲生	◎石尾 貴宏 松岡 伸吾	小玉 貴司 村松 健	澤田 佳代 森岡 信男	塚田 毅志	
使用済燃料の損傷 (プール水喪失)	大森 武 平野 光将	木村 公英 藤原 大資	武田 和仁 松浦 治明	塚原 剛彦 ◎吉田 一雄	林 昭宏	
その他の事故*	◎青柳 春樹	鈴木 達也	中村 芳信	松岡 伸吾		

◎主担当, * : 3.1 節において, その他の事故について説明

表 1.3 SAWG フェーズ II の開催経緯

	開 催 日	場 所	主な議論内容
——	平成 27 年 2 月 18 日	秋葉原 UDX ビル	SAWG フェーズ II 準備(趣意書, 体制など)
第 1 回	平成 27 年 5 月 20 日	秋葉原ダイビル	SAWG フェーズ II 活動方針
第 2 回	平成 27 年 6 月 25 日	秋葉原ダイビル	検討スケジュール
第 3 回	平成 27 年 7 月 8 日	秋葉原ダイビル	高レベル廃液蒸発乾固
第 4 回	平成 27 年 7 月 31 日	秋葉原ダイビル	高レベル廃液蒸発乾固
第 5 回	平成 27 年 8 月 27 日	電中研大手町	セル内有機溶媒火災
第 6 回	平成 27 年 9 月 18 日	電中研大手町	放射線分解水素
第 7 回	平成 27 年 10 月 30 日	電中研大手町	燃料プール事故時安全性向上
第 8 回	平成 27 年 11 月 27 日	電中研大手町	水素爆発
第 9 回	平成 27 年 12 月 24 日	電中研大手町	臨界
第 10 回	平成 28 年 1 月 29 日	電中研大手町	臨界, 六ヶ所事例
第 11 回	平成 28 年 2 月 25 日	日本原燃日比谷	高レベル廃液蒸発乾固
第 12 回	平成 28 年 3 月 29 日	原子力学会	Ru 揮発, HEPA, 報告書骨子案
第 13 回	平成 28 年 4 月 27 日	東工大田町	サブ WG 活動
第 14 回	平成 28 年 5 月 26 日	電中研大手町	サブ WG 活動, 報告書案
第 15 回	平成 28 年 8 月 9 日	秋葉原ダイビル	報告書案
——	平成 28 年 9 月 7 日	久留米シティプラザ	原子力学会発表
——	平成 28 年 10 月 24 日	東北大萩ホール	ANUP2016 国際会議発表
第 16 回	平成 28 年 11 月 10 日	電中研大手町	報告書案
——	平成 28 年 12 月 26 日	東工大蔵前会館	再処理・リサイクル部会セミナー発表
第 17 回	平成 29 年 1 月 13 日	電中研大手町	報告書最終案

ANUP : アジアの原子力展望 (Asian Nuclear Prospects)

2. 再処理施設とその安全対策の概要

再処理施設は、放射性物質を取り扱う巨大な化学工場である。具体的には、使用済燃料のせん断、せん断燃料片の硝酸による溶解、溶解液からの U・Pu と核分裂生成物・マイナーアクチニドとの分離、U と Pu の分離・精製、精製された硝酸ウラニル溶液及び硝酸ウラニル・プルトニウム溶液の脱硝 (UO_2 及び UO_2/PuO_2 製品)、高レベル廃液のガラス固化 (製品) など多数の工程から構成される。図 2.1 に再処理施設とそこで想定される事故の概要を示す。

再処理施設は、このように色々な工程で多様な放射性物質を取り扱うため、周辺公衆及び従事者を守るために放射性物質を適切に閉じ込めることが最も重要な安全機能となる。そのためには、この閉じ込め機能を損なうおそれを防止する以下の安全対策を確実に実施する必要がある。具体的には、核分裂性物質が臨界量以上存在する工程では、臨界事故の防止を図る必要がある。高濃度の放射性溶液が存在する工程では、冷却機能喪失時の崩壊熱による蒸発乾固事故、掃気機能喪失時の放射線分解水素爆発事故の防止が必要となる。この他、化学工場に特徴的な火災・爆発事故、重量物の落下あるいは腐食に伴う放射性物質を含む溶液の漏えいなど閉じ込め機能の喪失に繋がる事故の防止が重要となる。

再処理施設の安全対策は、旧原子力安全委員会の「再処理施設安全審査指針」に従い、周辺公衆保護を目的とした深層防護の考え方に基づいて、レベル 1：異常の発生防止、レベル 2：異常の事故への拡大防止、レベル 3：事故の影響緩和の 3 段階に分けて計画・設計されてきた。

例えば、セル内溶媒火災に対しては、レベル 1 では、漏えい防止や溶媒の温度管理、異常な発熱の防止などの対策を採る。レベル 2 では、漏えい発生や溶媒温度の異常を早期に発見し、漏えい箇所の隔離や異常を検知して工程を停止する操作が可能な設計とする。レベル 3 では溶媒火災の発生を想定して消火設備を準備する。

さらに、各種の異常や事故に共通の安全対策として、施設を多数の部屋(セル)に区分してコンクリートの壁で仕切ること、セル毎に HEPA (High Efficiency Particulate Air) フィルタを備えたセル換気系を置くこと、建屋全体に対して HEPA フィルタを備えた建屋換気系を置くこと、重要な安全機能をもつ設備に対しては外部電源喪失時にも機能するよう多重性を持たせた非常用電源系を備えることなどの対策を行っている。これらは、異常の拡大防止及び影響緩和に重要な役割を果たしている。

その後、福島第一原子力発電所事故を経て、現在では新規規制基準により、レベル 3 の対策を超える事故(重大事故)の発生を防止する対策の強化及び重大事故の発生を想定した事故影響緩和対策が求められることとなっている。

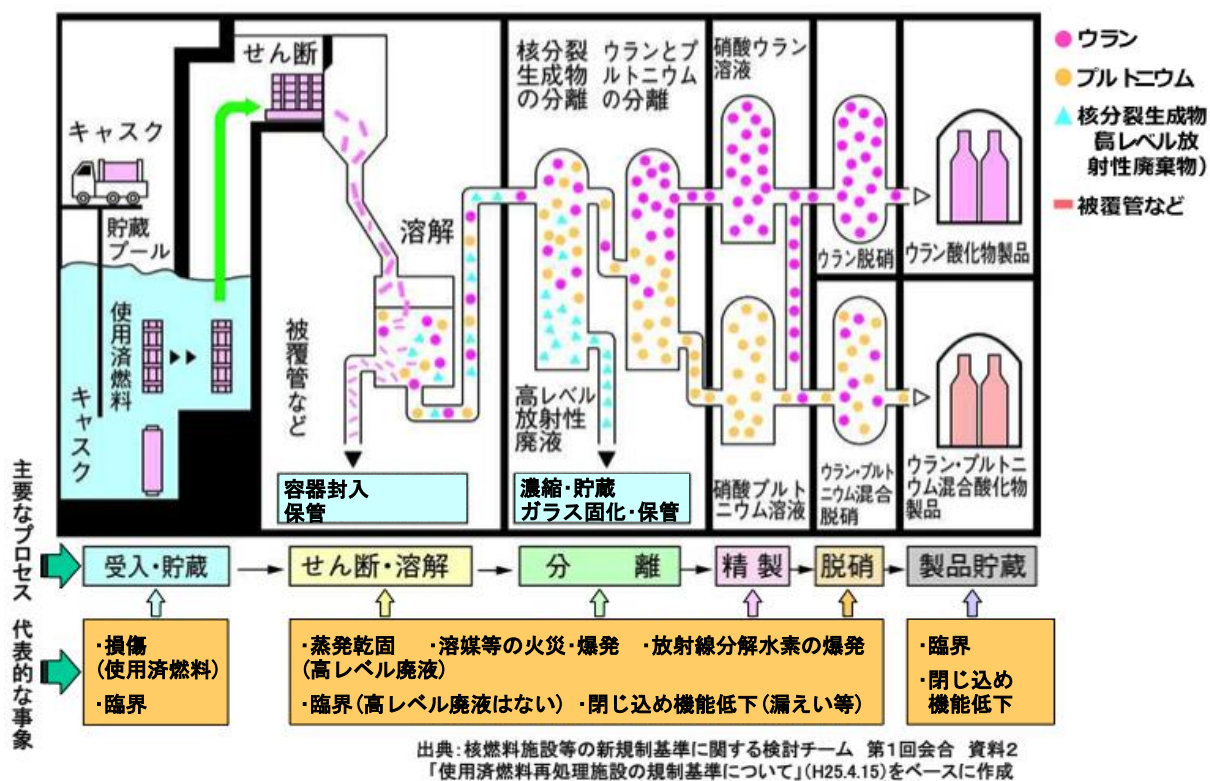


図 2.1 再処理施設とそこで想定される事故の概要

3. 事故影響評価の基本的な考え方

3.1 影響評価の対象としたシビアアクシデント事象

SAWG フェーズ I の報告書¹⁾では、対応を検討すべきシビアアクシデントを体系的に抽出する方法として、リスク評価の手法と図 3.1 に示す事故の発生頻度及び公衆への放射線被ばく影響を用いた 2 次元の定量的な判断基準を用いることを提案した。そこでは、選定されたシビアアクシデントに対して計画又は実施された安全対策が許容範囲にあるか否かを、評価された定量的リスク（頻度と影響の組み合わせ）の大きさに基づいて判断するための考え方が記載されている。また、多数の工程を有する再処理施設では効率的な作業手順が求められるため、図 3.2 に示すように、定量的なリスク評価の前に、危険要因を特定するためのハザード分析と概略的影響評価に基づく事故シナリオのスクリーニングを行い、その上で有意な影響をもたらす可能性のある事故シナリオだけについてリスク評価を行い、判断基準を適用するという手順となっている。

本報告書で扱う影響評価の手法とは、図 3.2 中の「概略的影響評価に基づくスクリーニング」及び「リスク情報を活用した事故の選定」の両ステップの中で必要となる影響評価に対応する手法である。

図 3.1 の判断基準を用いてシビアアクシデントを種類分けすると、以下の 3 種類になる。

- ① 安全設計で想定した設計基準事故を超える影響を与えるおそれがあるが、安全対策や技術的知見により評価されたリスクが判断基準内にあると判断できる事故。
- ② 発生頻度が極めて低いことから、影響評価が必須ではない事故。
- ③ リスクが判断基準を超える事故。このような事故は許容されないので、安全対策を強化して①あるいは②とする必要がある。

なお、②は設計情報などから発生頻度が無視し得る場合、あるいは極めて稀な外的要因によると容易に判断される場合は、影響評価は要さないという意味である。

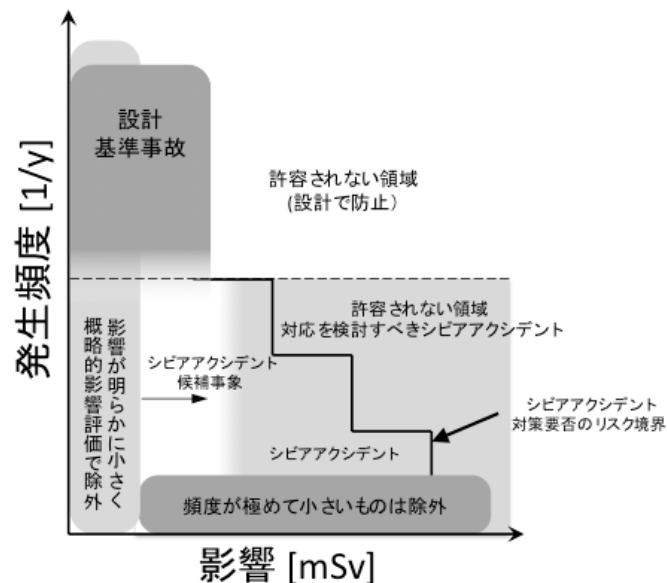


図 3.1 判断基準説明図（参考文献 1）より転載）

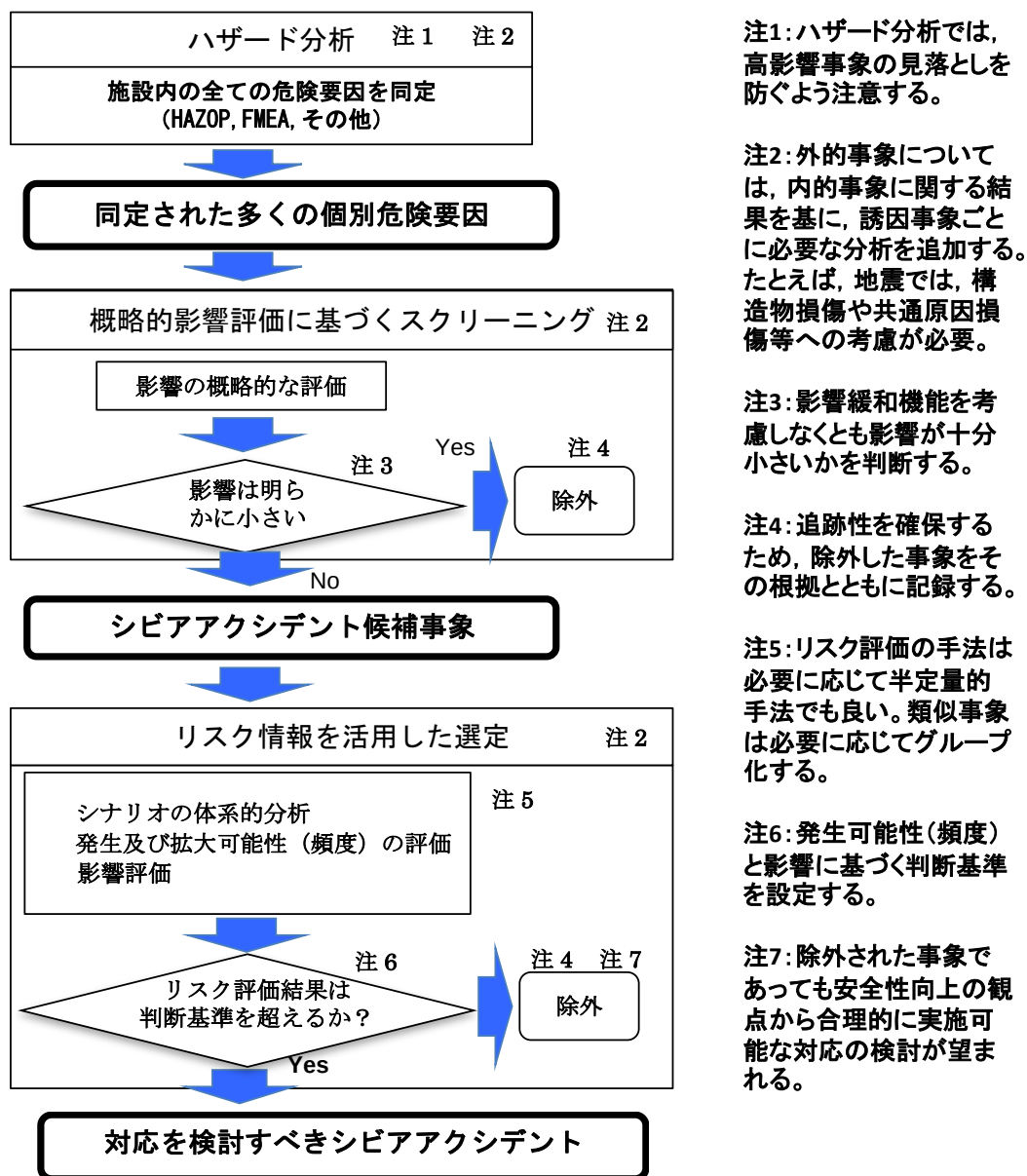


図 3.2 対応を検討すべきシビアアクシデントの選定手順(参考文献 1)より転載)

本報告書では、現在の商用再処理施設に一般的と考えられる安全対策や六ヶ所再処理工場の設計基準事故（安全設計で想定する運転時の異常な過渡変化や事故）の選定及び改正された「使用済燃料の再処理の事業に関する規則」に規定された重大事故に関する定義を参考に、下記 5 事故を影響評価手法の調査対象とした。

- a) 高レベル廃液の蒸発乾固事故
- b) セル内での溶媒火災及び TBP などを配位した錯体の急激な分解反応
- c) 臨界事故
- d) 放射線分解水素の爆発
- e) 使用済燃料の損傷（プール水喪失）

上記の 5 事故以外の①に属するシビアアクシデントの存在の可能性については、実工場における立地条件、安全設計、運転員対応に関する詳細な情報に基づき検討する必要がある。しかし、

今回の調査においては、概略的な検討に基づいて、比較的重要度が低い（上記②の範疇）と考え、詳細な調査を行わないこととした。

上記 5 事故以外のシビアアクシデント選定に関する検討例を次に示す。

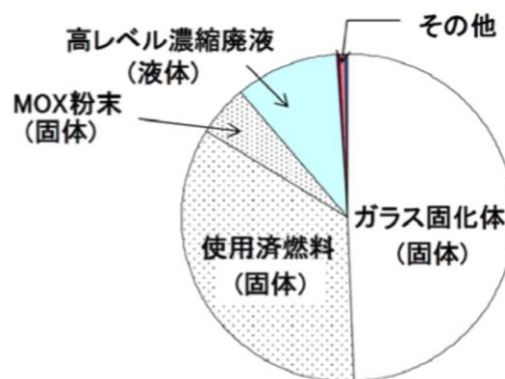
対象とするのは①に属する可能性のあるシビアアクシデントである。再処理施設における事故の潜在的影響は、放射性物質と直接関係することから、放射性物質の分布に着目した。図 3.3 は、設計上の最大量が存在する場合の六ヶ所再処理工場における放射性物質の性状及び量の分布を例示したものであり、公開文献を参考にした²⁾。

最大量の放射性物質が存在するのは、ガラス固化体貯蔵施設である。ガラス固化体貯蔵施設と使用済燃料貯蔵施設には、放射性物質全体の 8 割以上が存在し、シビアアクシデントによる放射性物質の放出に関連する崩壊熱除去が、特に重要な施設である。使用済燃料貯蔵施設については、5 事故の内の e) として 8 章で取り扱われているので、ここではガラス固化体貯蔵施設の安全機能喪失事故を取り上げる。

ガラス固化体貯蔵施設では、SUS 容器に溶接密封されたガラス固化体の崩壊熱除去と放射線遮蔽が主たる安全機能である。崩壊熱除去は、崩壊熱により生じる空気の温度差を利用した自然対流による。地下貯蔵のガラス固化体からの放射線遮蔽は、主に鉄板及びコンクリート壁による。これらはいずれも静的機能であり、耐震設計における重要度の分類において最高位にある S クラスで余裕を持って設計される。したがって、S クラスに対する設計用地震動をある程度超える地震を想定した場合でも、コンクリート部位にクラックが入ることは考えられるが、遮蔽壁や耐震壁が倒壊することは考えられない。

日本原燃が公表しているストレステスト³⁾の結果では、「遮蔽壁は相当なクラックが入っても遮蔽機能の低下は殆どないことが確認されており⁴⁾、一方、崩壊熱除去についてクラック発生時剥離片が冷却風流路に落下し、仮に 8 割程度閉塞してもガラス固化体は熱的に健全に維持されることが確認されている。」と説明している。したがって、これらは上記②の領域に属する可能性が高いと考えられる。

それゆえ、本報告書では調査の優先度の観点から、具体的な評価手法の調査を行わなかった。ただし、上記はストレステストの結果を踏まえて半定量的に評価したものであり、こうした静的機能に係る評価を確実なものとするためには、再処理施設における地震 PRA の整備の進展が望まれる。



放射性物質量の相対割合

図 3.3 放射性物質の性状及び量の分布例(参考文献 2)のデータを参考に作成)

3.2 影響評価の方法

(1) 事故影響の事故シナリオ（事故シーケンス）への依存性

事故の影響を評価するには事故シナリオを体系的に分類・整理しておく必要がある。事故シナリオとは、故障や過誤により引き起こされる起因事象から事故あるいはシビアアクシデントに至り、施設外へ想定外の放射性物質が放出されるまでの一連の事象のつながりである。事故は、環境への放射性物質の異常なレベルの放出の可能性のある状態とし、シビアアクシデントは、設計基準を超える影響を与える環境への大量の放射性物質の放出の可能性のある状態とする。

2 章で述べたように、再処理施設では故障や過誤が発生しても事故に拡大しないように拡大防止対策が整備されており、それらが機能せず事故に進展しても、それが環境に大きな影響を及ぼさないように影響緩和のための方策が整備されている。また、事故が更に拡大してもシビアアクシデントへの拡大の防止又はその影響緩和のための対策も施されている。そこで、これらの事故の段階的な進展を踏まえて、本報告書では事故の進展段階を、「起因事象」、「事故」、「シビアアクシデント」の3種に分類した。これらの関係を図 3.4 に示す。

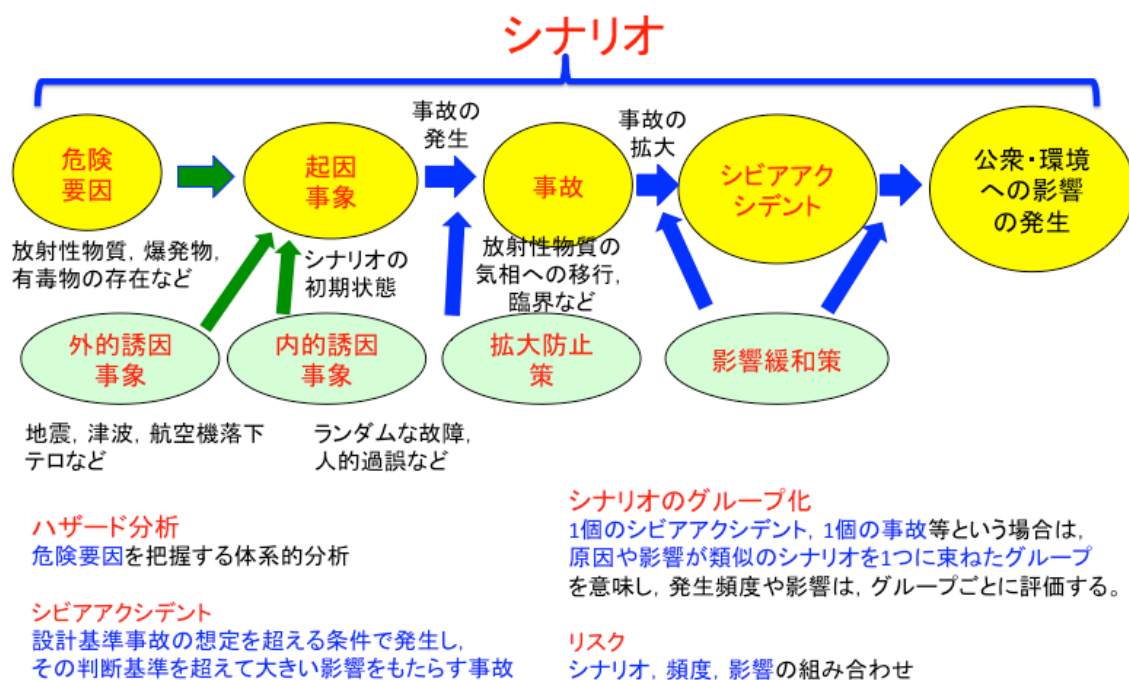


図 3.4 事故シナリオに関連する用語

再処理施設において想定される事故のシナリオ数は、事故の種類と発生する場所（工程）の組合せにより非常に多くなる。このため、起因事象により引き起こされる故障や人的過誤の種類を含め、その後の異常状態の進展の経路、必要になる対策などの類似したものを集めてグループ化し、発生頻度評価及び影響評価については、そのグループの代表事象に対し行えば良いように、シナリオを適切に分類する必要がある。

適切なシナリオ分類には、PRA で用いられるイベントツリーの手法が有用である。この手法では、起因事象の後に必要となる拡大防止策や影響緩和策を順に並べ、それらが成功するか失敗す

るかでシナリオを分岐させていく手法である。事故のシナリオをこのような樹状図(ツリー図)で表したものをイベントツリーと呼ぶ。イベントツリーの例を図 3.5 に示す。この例では、起因事象を地震の発生とその影響により外部電源が喪失する事象としている。この図では、地震起因による影響のうち、外部電源系、非常用電源系及びそれに対する対処手段の内、代替電源と外部からの注水機能の失敗だけを考えているが、実際には、その他の設備の損傷もあり得るので、より複雑なツリーになるが、概念だけを示すために省略している。

ツリー図の葉に相当するのが分類された事故のシナリオである。このように起因事象と拡大防止対策及び影響緩和対策の成功・失敗の組み合わせで表現された事故のシナリオを事故シーケンスと呼ぶ(図 3.5 参照)。影響評価は、事故シナリオの分析から得られる事故シーケンスごとに行われる。

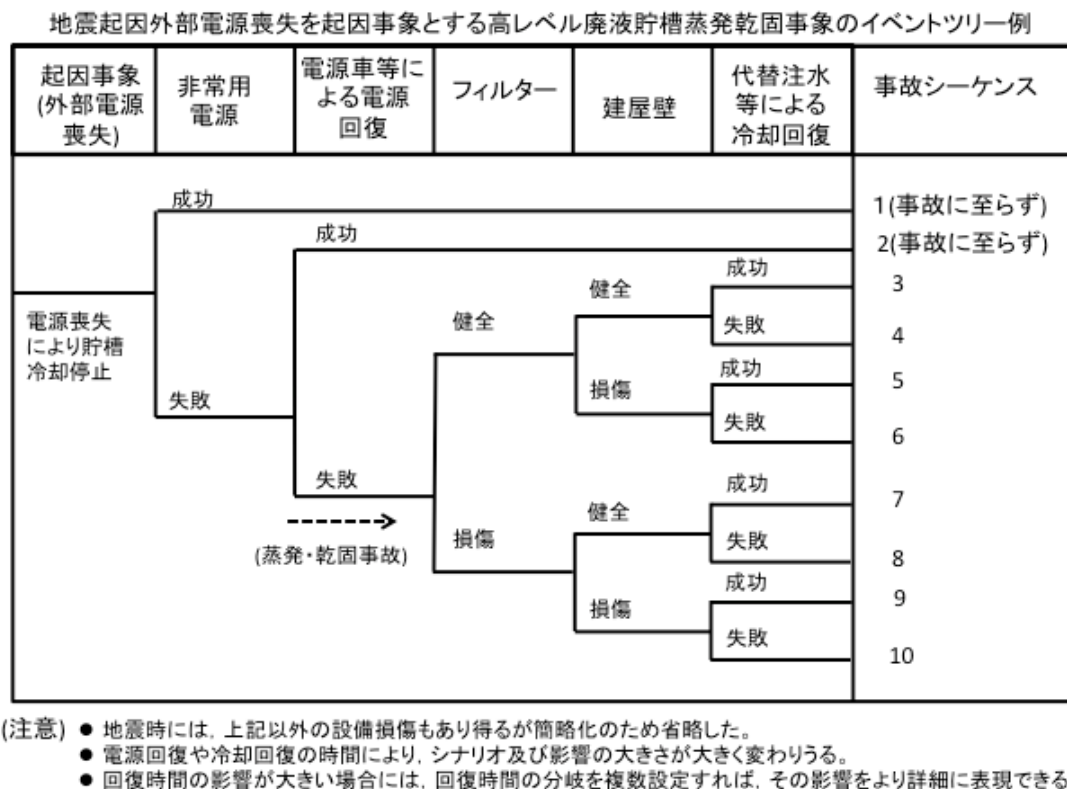


図 3.5 イベントツリーの概念図

起因事象の発生の頻度や緩和対策の成功・失敗の発生確率が分かれば、事故シーケンスの発生頻度を評価することも可能となる。このようにして、どこまで拡大した事故シーケンスがシビアアクシデントの分類①(影響評価が必須)に属するのか、あるいは②(影響評価は必須ではない)に属するのかを図 3.1 の判断基準を用いて知ることができる。

特に注意せねばならないのは、電源の回復や注水による冷却の回復の可能性は時間の関数であって、地震が大きな被害を与えたとしても、長時間の後には、いつかは収束すると考えられる。したがって、事故が厳しい方向に拡大していく可能性(確率)は、事故の収束手段により制限され、厳しい事故ほど発生頻度は低くなると考えられる。事故の影響を評価するには、収束までの間にどの程度まで進展し、どのような現象が起こりうるかを考える必要がある。再処理施設では影響の拡大が原子力発電所に比較すると緩やかである場合が多いので、事故経過時間とともに影

響は大きくなるものの発生頻度が下がり、リスクは小さくなる可能性がある。また、シビアアクシデントの種類①から②へ移行する可能性もある。影響評価に当たってはこのようなことに留意する必要がある。

さらに、回復までの時間には不確実さが伴うが、複数の回復時間を設定してリスク評価を行うか、又は感度解析を行えば、その影響を検討することができる。

本報告書では、再処理施設で想定される事故を、事故時に発生する特徴的な物理・化学的な現象の観点から代表するようなシナリオを選び、影響評価のためのモデルや関連するデータを、原子力発電所のシビアアクシデント評価で検討されている手法も含め幅広く調査し提示する。このため、再処理施設の立地条件、安全設計、運転員対応によっては、事故影響評価を必須としない②に属する事故シーケンスに関する評価手法になる場合もある。逆に、紹介されていない影響評価手法であっても、その事故シーケンスが①に属する場合には、記載外の手法が必要となる。

現実の再処理施設のリスク評価で現れる事故シーケンスは、本報告書で扱う事故条件よりも複雑なものとなりうるが、多くの場合、ここで示す手法を組み合わせることや、適切な感度解析を併用することにより、有用な結果を得ることができると期待される。

(2) 事故影響の指標

原子力施設の事故の影響は、公衆の放射線被ばくによる影響として評価されるものであり、放射性物質の放出による公衆の被ばく線量については、「発電用原子炉の安全解析に関する気象指針」に基づく評価手法⁵⁾や、発電用原子炉施設のレベル 3 の PRA 手法⁶⁾が整備されている。

「発電用原子炉の安全解析に関する気象指針」に基づく評価手法は、安全設計及び立地の妥当性を判断するために、97%の出現頻度の気象条件を基に、敷地周辺での被ばく線量を評価する。この評価では、放射性プルーム通過時の公衆個人に対する吸入による内部被ばくと外部被ばくのみを対象としている。

一方、レベル 3PRA の手法は、評価対象施設での全方位の風向及び風速などの気象条件の出現頻度と着目地点での被ばく線量のセットで公衆のリスクを評価する。被ばく経路には、放射性プルームからの外部被ばく、呼吸による内部被ばくに加えて、地表に沈着した放射性物質からの外部被ばく、再浮遊による吸入、食物摂取による内部被ばくなどの長期的影響も考慮される。また、必要に応じて環境影響、経済的影響の評価がなされる場合もある。

両手法は、軽水炉に関する安全評価又はリスク評価手法開発の中で整備されてきたものであるが、環境への放射性物質の放出量、いわゆるソースタームが適切に評価できれば、基本的にはサイクル施設一般にも適用可能である。そのため、本報告書では、それらの評価に必要となるソースタームを評価する手法を調査し、提示することとした。

(3) 五因子法による放射性物質ソースタームの評価

放射性物質の放出量を推定するには、サイクル施設に蓄積された放射性物質を気体又はエアロゾルの状態として浮遊させ、施設外に気体の流れとして移動させ、さらに大気中で拡散していく状態とするような物理的メカニズムを明らかにして、その現象を数学モデルとして表現し、シミュレーションにより推定するという方法が最も基本的なアプローチである。原子力発電所では、このような考え方に基づいて、炉心に蓄積された放射性物質の移行過程の解析コードが開発され用いられてきている⁷⁾。

しかし、サイクル施設では、放射性物質の種類及び存在形態が多様であり、ソースターム

を支配する物理、化学的現象も多岐にわたることから、数学的なモデルに基づくコードを開発するというアプローチを採らず、放出性物質の存在量のうち大気中に放出される割合を、主として実験データに基づく工学的判断により定めるという考え方が採られてきた。サイクル施設を対象とした米国の事故解析ハンドブック（AAH: Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook）⁸⁾では、この考え方に基づいて確立された五因子法及びそこで用いる係数の具体的な推奨値について、詳細に解説されている。

五因子法では、放射性物質の施設外への移行過程を段階的に区分し、放射性物質の放出量（ST: Source Term）を次式のように5つのパラメータの積として表す。

$$ST = MAR \times DR \times ARF \times RF \times LPF$$

事故解析ハンドブック⁸⁾によれば、各パラメータの名称と定義は次の通りである。

MAR (Material at Risk):

The MAR is the amount of hazardous material available to be acted on by a given physical stress.

DR (Damage Ratio):

The DR is the fraction of MAR actually impacted by a given physical stress from a specific event.

ARF (Airborne Release Fraction):

The ARF is the fraction of impacted material (MAR x DR) that can be suspended to become available for airborne transport following a specific set of induced physical stresses.

RF (Respirable Factor):

The RF is the fraction of the material-of-concern initially suspended in the air and present as particles that can be inhaled into the human respiratory system. It is commonly assumed to include particles with AEDs that are 10 μm. (3.9 x 10⁻⁴ in) or less.

LPF (Leak Path Factor):

The LPF is the fraction of airborne "material-of-concern" that leaves the confinement/containment barrier after consideration of depletion mechanisms such as precipitation, settling because of the action of gravity or because of agglomeration or filtration (filter or rubble).

ただし、本報告書では、次のように定義することとし、かつ各章で補足説明を付記した。

ST： 環境へ放出される放射性物質質量(Bq)

MAR：放射性物質の存在量(Bq)

DR： MAR のうち事故の影響を受ける物質の割合

ARF： 事故の影響を受ける物質のうち気中に保持され移行できる物質の割合

RF： 気相に移行する物質のうち呼吸により体内へ取り込まれうる微粒子の割合（一般に10 μm以下の粒子とされている）

LPF： 気相に移行する微粒子のうち放出経路で除去されずに環境に放出される割合

この方法の概念を図 3.6 に示す。

この方法は、事故時の放射性物質の移行・放出挙動を考える場合に必要な因子と因子間の関係を整理し明確化するという意味で有用であり、我が国ではサイクル施設の事故影響の評価に広く用いられている。シビアアクシデントの影響評価にも使用可能である。

パラメータの選定に際し、評価対象条件に適合した信頼性の高い実験データ・解析データを用いて定めることが理想的であるが、そのようなデータが存在しない場合は、参考文献 3) などから条件が最も近いと考えられる推奨値を選択する方法がある。なお、各因子の現象をベンチマーク実験などで確認された数学モデルとして表現し、シミュレーションを行って推定することができれば、原子力発電所と同レベルの評価が可能である。必要な評価レベルに応じた対応が必要である。

五因子法の利用においては、次のような点に留意する必要がある。

(a) パラメータの根拠データと想定する事故条件の対応

AAHなどを基にパラメータを設定する場合は、その根拠となっているデータの実験条件や解析条件が、想定する事故条件に相応しいものであるかに留意し、条件に異なる部分がある場合には、その条件の影響を考察しておくことが必要である。スケール効果を初めとして、施設の実際の条件と実験の条件が完全に一致することはあり得ないので、大きく影響する可能性のある因子については、その影響を考察し、記録することにより、影響評価結果を用いる際に、不確実さの要因として認識できるようにする必要がある。

(b) 実験で測定されたパラメータと五因子法のパラメータの定義の対応

五因子法のパラメータを実験により定める場合には、測定可能な物理パラメータに技術的な制約があるために、上述の定義通りのパラメータを測定できない場合がある。そのような場合には、実験などから得られた文献のデータを、五因子法のパラメータの定義を踏まえ、必要に応じて、補正や変換を行いながら適用する必要がある。

(c) 時間依存性の考慮

サイクル施設では、事故の進展が緩慢であり、放出が長時間に及び、放出速度が時間とともに変化する場合もある。また、その間に事故が収束されることも考えられる。このような場合、例えば、蒸発乾固事故においては、ARFの代わりに単位時間当たりの移行率（ARR：Airborne Release Rate）を用いるよう、五因子法では提案されている。

(d) パラメータの推定の保守性と不確実さに関する取り扱い方針

文献に定められた五因子のパラメータを用いる場合であっても、あるいは解析により五因子の一部を評価する場合であっても、設定するパラメータには、モデルと現実の違いによる不確実さが伴う。また、解析で想定する事故条件は、事故シナリオを分類しグループ化したものを代表する条件であるため、そのグループ内での様々な条件のバラツキがあることを考慮しなければならない。一方近年、再処理施設にも適用されつつあるPRAにおいては、可能な限り現実的な値を推定し、その不確実さの推定結果とともに提示することが望ましいと考えられている。

これらのことを考慮して、パラメータの選定に当たっては、保守的に行うのか、最善の推定値を求めようとするのかの方針を決めておくべきである。

$$\text{放射性物質放出量} = \text{MAR} \times \text{DR} \times \text{ARF} \times \text{RF} \times \text{LPF}$$

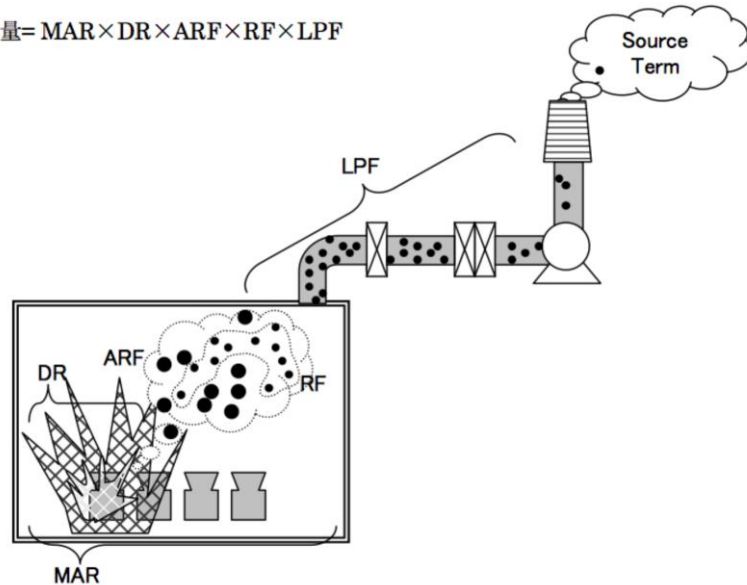


図 3.6 五因子法で想定する放射性物質の環境中への移行過程(参考文献 9)より転載)

参考文献

- 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報告書「核燃料サイクル施設における対応を検討すべきシビアアクシデントの選定方法と課題」, 2014 年 9 月 30 日.
- 2) 日本原燃株式会社, 「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)」, 2012 年 4 月 27 日.
- 3) 日本原燃株式会社, 「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廃棄物管理施設の安全性に関する総合的評価に係る報告書」, 2012 年 4 月 27 日.
- 4) K. Sekine *et al.*, “Study on Radiation Shielding Performance of Reinforced Concrete Wall After the Earthquake”, *J. Disaster Research*, **5**[4], 361-368 (2010).
- 5) 原子力安全委員会, 「発電用原子炉施設の安全解析に関する気象指針」, 昭和 57 年 1 月 28 日 原子力安全委員会決定, 平成 13 年 3 月 29 日改訂.
- 6) 日本原子力学会標準委員会, 「原子力発電所の確率論的安全評価に関する実施基準: 2008 (レベル 3PSA 編)」, AESJ-SC-P010:2008.
- 7) 日本原子力学会標準委員会, 「原子力発電所の出力運転状態を対象とした確率論的安全評価に関する実施基準: 2008 (レベル 2PSA 編)」, AESJ-SC-P009:2008.
- 8) Science Applications International Corporation, *Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook*, NUREG/CR-6410, 1998.
- 9) 玉置 等史, 吉田 一雄, 「MOX 燃料加工施設 PSA 実施手順書」, JAEA-Technology 2010-004 (2010).

4. 高レベル廃液の蒸発乾固事故

4.1 事故の概要

再処理施設の機器には、放射性物質の崩壊熱により内包する溶液の温度が沸点まで上昇するものがある。このような機器の沸騰を防止するために、例えば六ヶ所再処理工場では、信頼度の高い独立 2 系統の安全冷却水システムを設置している^{1),2)}。また、このような対策にもかかわらず、冷却機能が全喪失した場合でも沸騰までに時間余裕があり、種々の対策を施すことで沸騰を防止できる。高レベル廃液（以下、廃液という）の蒸発乾固事故では、これらの対策が失敗し冷却機能が全喪失した状態が継続すると廃液が沸騰しいずれ乾固する。乾固時には、含有硝酸塩の脱硝反応が進行し NO_x ガスが発生すると考えられる。なお、本事故は廃液の「沸騰」により顕在化するが、廃液の濃縮につれ沸騰とは言い難い状態に至るため広義の「蒸発」の用語を用いて「蒸発乾固事故」という。

廃液の沸騰及び脱硝反応に伴い発生する気体（水蒸気、硝酸蒸気あるいは NO_x ガス）とともに貯槽から放出される放射性物質は、貯槽の圧力上昇を防止する目的で設置される廃ガスシールポットから廃ガス処理セル内に流出することとなる³⁾。セルに流出した放射性物質を含む気体は、セル排気系から排気筒放出されるか、又はセルから建屋内へ逆流し建屋排気系を経由し排気筒から放出される。図 4.1 に事故時の蒸気などの流れを示す。

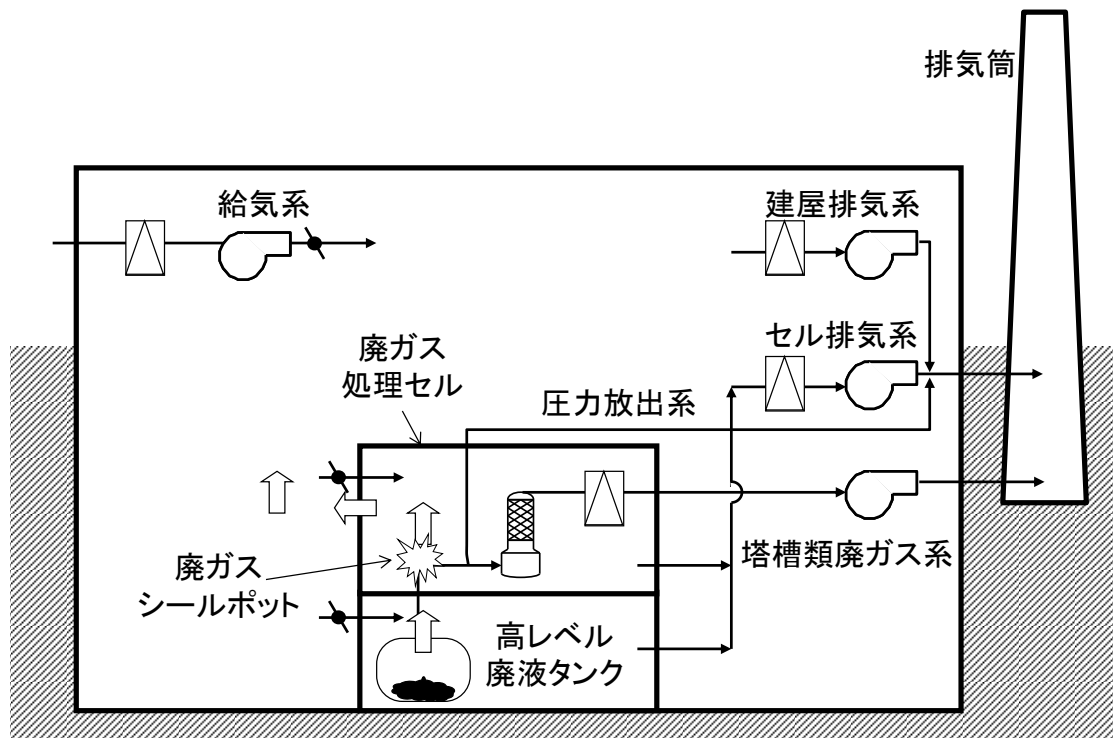


図 4.1 想定される放射性物質の移行経路（参考文献 4）より転載）

参考文献 5)には、当該事象での 5 W/L の崩壊熱の廃液 120 m³ を内蔵した貯槽及びセル内の温度挙動に関する解析結果が示されている。参考文献 4)では、この解析結果に加え参考文献 6)の実験を用いた実験結果も参考に推定した廃液の温度挙動の概要が図示されている。図 4.2 に転載する。沸騰が始まると水分が蒸発し廃液が徐々に濃縮され、それにつれて廃液温度は上昇し約

120℃程度に至る。本章では、沸騰開始から廃液温度約120℃の共沸状態（共沸とは、液体の混合物が沸騰する際に、気液各相が同じ組成になる現象をいう。120℃は硝酸水溶液の共沸点。）に到達するまでの期間を沸騰初期という。この期間では、廃液の沸騰で発生した気泡の破裂で生じる飛沫が上向蒸気流に同伴される。主としてこのメカニズムにより放射性物質が気相部へ移行しエアロゾル化（気体中の浮遊する固体あるいは液体の粒子状物質）する。

沸騰晩期（共沸状態到達以降の約120～約150℃）では、廃液中の溶液成分である水、硝酸の蒸発が進み溶解物の一部が析出するとともに溶液の粘性の高い状態を経て約160℃で溶液成分がほとんど消失し乾固に至る⁴⁾。この期間の放射性物質の気相部への移行は、Ruの揮発性のガス状物質が主になると想定される⁶⁾。この期間での貯槽からの流出気体には、水蒸気、硝酸、NO_xガス、揮発性のガス状物質が含まれる。これらの気体に加え、廃ガス処理セル以降の建屋区画内での温度低下による凝縮水を含めた物質間での化学反応により揮発性のガス状物質は不揮発性の物質に変化し、気体からエアロゾル、液相へ移行、あるいはコンクリート壁面への沈着が想定される。

乾固後（150℃以上）は約400℃までに多くの化学種の硝酸塩の脱硝反応が進む⁴⁾。貯槽内で発生した放射性物質を含む蒸気などが、セル内へ流出し、換気系を経由して建屋内の区画へ移行する。この期間での貯槽からの流出気体は、揮発性のガス状物質を含むNO_xガスが主である。廃ガス処理セルあるいは直近の建屋区画内では、高温のNO_xガスの流入でコンクリート壁面の温度が上昇し、沈着した物質が再浮遊あるいはガス化する可能性がある。一方、下流側の建屋内区画では、温度が低下したNO_xガスが流入してくるため、建屋区画内の気相部の温度上昇は起こらず、沸騰晩期と同様に、凝縮水を含めた物質間での化学反応により揮発性ガスは不揮発性の物質へ変化し、ガスからエアロゾル、液相へ移行、あるいはコンクリート壁面への沈着が継続すると考えられる。

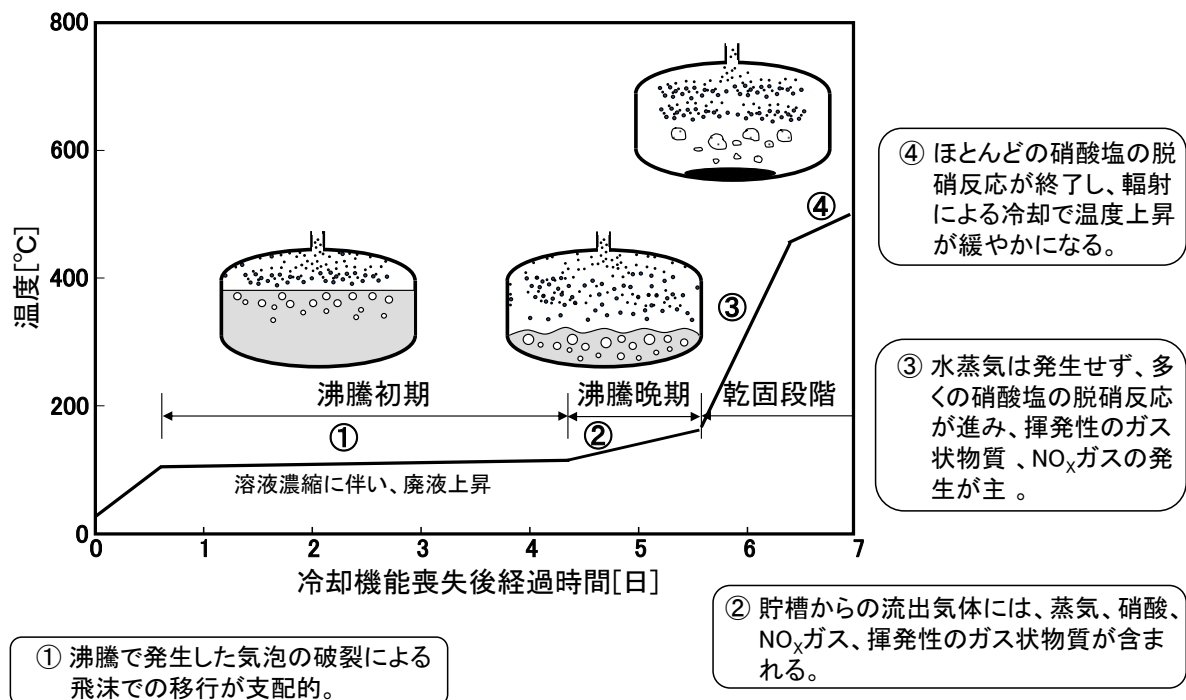


図 4.2 熱流動解析による事象進展予測結果（参考文献 4）より転載）

貯槽内で発生した放射性物質を含む蒸気などが、セル内へ流出し、換気系を経由して建屋内の区画へ移行するシナリオを想定した場合の廃液貯槽での放射性物質の気相部移行現象及びセル、建屋内での熱流動現象の特徴を図 4.3 に示す。

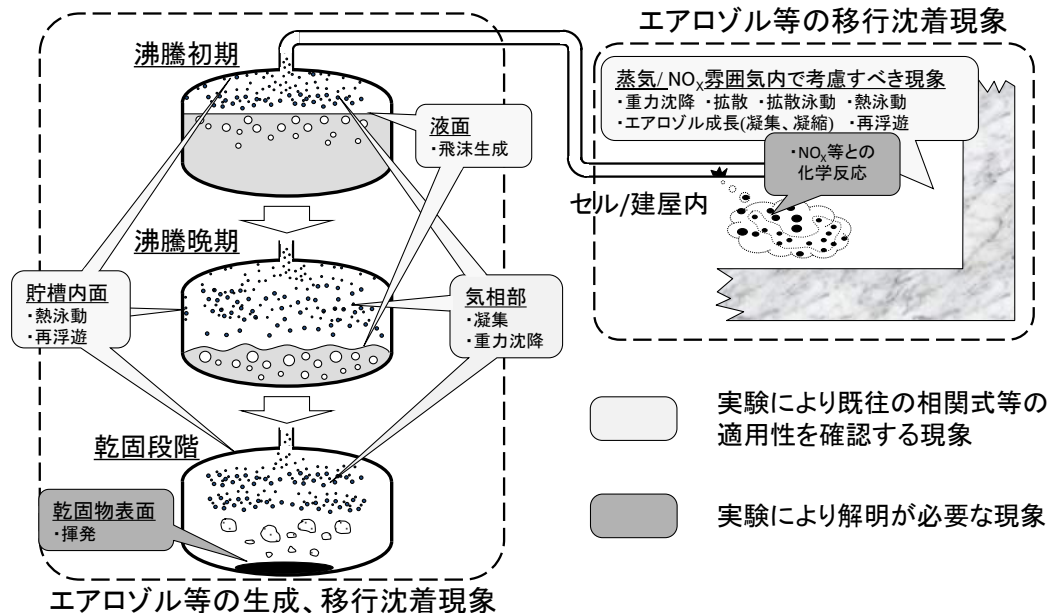


図 4.3 放射性物質の移行を支配する主要な現象（参考文献 4）より転載）

4.2 想定される事故シナリオ

廃液貯槽の冷却機能が全喪失すれば廃液の沸騰に至る。ここで想定する事故シナリオは沸騰開始以降を対象とする。上述のように廃液の沸騰段階での放射性物質の気相部への移行のメカニズムとしては、液面での気泡の破裂によって生成される飛沫のうち比較的小さい粒径の飛沫としてのエアロゾル化と、温度上昇に伴う揮発性物質の気化による移行が想定される。前者のエアロゾル化による移行は、沸騰開始から廃液温度が約 120 °C までの沸騰初期段階で支配的であり、沸騰が進み、廃液温度が 120 °C 以上に上昇する沸騰晩期では Ru の気化による移行が顕著となり、環境への影響は後者が桁違いに大きい^{4),6)}。このことから、注水により廃液の温度上昇を抑え、発生する蒸気を施設外へ移行させないことが事故の拡大防止及び影響緩和に繋がる。このような対策が奏功すれば、Ru の放出が抑制され放射性物質の大量放出は回避されるが、飛沫同伴による移行は長期化する。対策が失敗すれば廃液温度が 120 °C を超えて、貯槽内の気相部に Ru が大量に移行し、乾固に至る。

一方、地震により廃液貯槽が損傷した場合、廃液はセル内床面に漏えいする。床面はステンレスのライニングが施されているので、硝酸によるコンクリートの腐食は生じない。放射性物質の気相への移行のメカニズムは、貯槽に保持される場合と同様である。

以上より、本章では、沸騰開始から注水により長時間に亘り継続する飛沫同伴による放射性物質が移行する事故シナリオを想定し、移行量の定量的な評価手法をレビューする。さらに、この事故シナリオでは、飛沫同伴に因る放射性物質の気相への移行が長期化することで移行量が時間の経過とともに増加する。それゆえ、施設外へ放出される放射性物質量を評価するには、建屋内の熱流動条件を境界条件としてエアロゾルの移行を模擬できる計算コードを用いたエアロゾルの

移行挙動解析が重要であり、このような事故解析事例も合わせて調査した。

廃液温度が 120 °C を超えて、Ru の大量放出及び乾固に至る場合、Ru が気相へ移行した後の挙動に関わる実験及び解析モデルが提案されていることから、これらを調査するとともに実機への適用において考慮すべき条件についても言及する。

4.3 廃液の蒸発乾固事故に関する実験

廃液の蒸発乾固事故を模擬し、放射性物質の気相への移行に関わる基礎的なデータの取得を目指した代表的な実験を次に示す。

(1) 実廃液を用いた実験

仏国原子力庁（CEA : Commissariat à l’Energie Atomique）の原子力安全防護研究所（IPSN : Institut de Protection et Sûreté Nucléaire）では、実廃液を用い、当該事象での崩壊熱による温度上昇を模擬した実験を実施している⁶⁾。実験では、Pu 富化度 5 % の MOX の使用済燃料を再処理し、300 L/ton（使用済燃料 1 ton を再処理して発生した廃液を 300 L まで濃縮）相当まで濃縮して得た実廃液を用いている。400 mL の実廃液を発熱密度換算で 20 ± 4 W/L となるヒータ出力 (8 ± 1.6 W) で加熱し、沸騰で発生した蒸気とともに気相に移行した Cs, Ru などの放射性物質を凝縮器及び捕集ビンで捕集している。用いられた実廃液中の初期量は Cs : 2.62×10^{-2} mol/L, Ru : 4.03×10^{-2} mol/L である。この試験の結果、119 °C 以上（廃液の 75 % が蒸発）で Ru の顕著な揮発が始り、それ以前では、飛沫同伴による移行が主であり、不揮発性の Cs と Ru の移行割合はほぼ同等であること、最終温度の 160 °C までに Ru は 12 % が放出されたこと、Ru のほとんどが凝縮液、装置壁などへの付着、沈殿となって除去されたことが示された。また、揮発性 Ru は NO_x などと反応し、RuO₂（固体）になると考えられている。CEA の試験での最高温度が 160 °C であり、それ以降の Ru の放出挙動に関しては扱われていない。

(2) 模擬廃液及び実廃液を用いた実験

旧原子力安全基盤機構、日本原子力研究開発機構及び日本原燃(株)は、「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究」⁴⁾を実施した（以下、産官学共同研究という）。実験では、模擬廃液及び実廃液を用いて廃液に含有される元素を、揮発性の化学形を取り得る Ru とそれ以外の非揮発性元素に大別し、それぞれの気相への移行挙動及び気相中での移行挙動に関わるデータを取得している。実施した主要な実験は次のとおりである。

- ・ コールド基礎試験

ビーカースケールの小型試験装置を用いて、模擬廃液の蒸発から乾固に至る過程での Ru 及び他の難揮発性元素の移行量を測定する実験

- ・ 総合試験

実施設で想定される貯槽の形状や流動条件を念頭において設計・製作した工学規模の試験装置を用いて、模擬廃液及び乾固物から気相へ移行した各元素の移行挙動に対する上述の空間的影響に関わるデータを取得する実験

- ・ 気相部移行試験

雰囲気温度や同伴ガス組成を一定条件で制御・維持できる気相部移行試験装置を用い

て、模擬廃液乾固物から気相へ移行する際の Ru の化学形と予想される RuO_4 の移行経路での低減率データを取得する実験

・ホット試験

コールド基礎試験と同等の小型の実験装置を用いて実廃液からの各元素の移行量を測定する実験 7)

産官学共同研究ではこれらの主要な実験と並行して、廃液の乾固の進行に伴って生じる硝酸塩の脱硝反応の吸発熱量や NO_x 発生量の測定、あるいはそれに伴う揮発性 Ru 種の乾固物からの気相への移行などの様々な現象を理解するための試験も実施している。

(3) 関連する実験

本事故に関連して報告されている実験を次に示す。

(a) Ru の気相への移行に関わる実験

a) 硝酸の影響を確認する実験

参考文献 8)には、照射されたウラン酸化物燃料を再処理して調製した実高レベル濃縮廃液に有機還元剤であるショ糖を添加し硝酸を分解することで、硝酸の Ru の揮発性化学種への変化に及ぼす効果を確認する実験が報告されている。ショ糖が無添加での Ru の気相への移行割合に対して、廃液中の硝酸とショ糖のモル比が 48 : 1 では明確な減少はみられなかったものの、モル比が 24 : 1 で 1/20 以下、モル比 12 : 1 で 1/100 以下まで移行割合が減少したことが示されている。

b) 硝酸水溶液から揮発する Ru の化学種を同定する実験

硝酸溶液中から揮発する Ru の化学形は RuO_4 とされるが、実際に同定した例は少ない。参考文献 9)、10)には、質量分析装置を用いて揮発 Ru の測定を試み、 RuO_4 が検出されたことが報告されている。実験では、硝酸ニトロシル Ru を濃硝酸に溶解した後、80 °C で湿分を乾燥させた試料を真空中で 450 °C まで加熱し、発生ガスを質量分析装置に導入している。その測定結果の一例として、図 4.4 に主な発生ガス種のイオン電流を温度に対して示す。

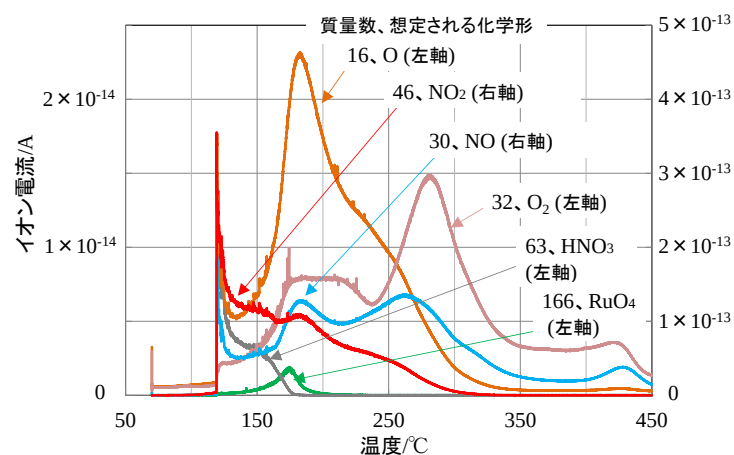


図 4.4 質量分析測定により検出された主なガス種のイオン電流
(昇温速度: 5 K/min, Ru 投入量: 0.39 mg) (参考文献 9)より転載)

130～220 °Cにかけて RuO₄ のイオン電流にピークが見られる。また、RuO₄ の発生ピーク温度が HNO₃ より明らかに高いことから、HNO₃ 以外の硝酸塩が Ru の RuO₄ への酸化反応に寄与することを指摘している。RuO₄ の生成機構の解明は今後の課題の一つである。

(b) 施設内での放射性物質の移行に関わる実験

a) 模擬セルでの Ru の除去率の測定実験

参考文献 11)では、蒸発乾固事象を模擬して発生した気体を、セルを模して一定温度に維持した反応容器内に導入し、模擬セル内での揮発 Ru の除去率を測定した実験が示されている。模擬セル内の温度が硝酸沸点より高い場合は LPF が 10⁻¹ オーダー、沸点近傍の 110 °C, 120 °C では LPF が 10⁻³ オーダーとなったとしている。

b) 硝酸-亜硝酸水溶液中の RuO₄ の化学変化に関わる実験

参考文献 12)には、硝酸-亜硝酸水溶液に吸収させた RuO₄ の化学形の時間変化を吸光光度計で測定した結果が示されている。そこでは、溶液中に溶解した RuO₄ は多段階で還元され、亜硝酸と Ru のモル比が 4 以上の場合、Ru が速やかに 3 価まで還元されることが示されている。

c) HEPA フィルタの水ミスト負荷実験

JIS-Z-4812 に準拠した HEPA フィルタの性能試験が行われている¹³⁾。その結果、3.5 及び 9 kg/h の水ミストを 7 日間連続的に負荷した場合、性能が低下すること、捕集効率は最低 99.7 %まで低下したが 9 kg/h の水を負荷した場合でもフィルタは破損に至らないことが確認された。

(c) 乾固時の NO_x の発生挙動に関わる実験

Ru などの硝酸塩を含む模擬高レベル廃液を試料とした乾固過程における NO_x 発生挙動を確認した試験が報告されている¹⁴⁾。それによれば、乾固時には 200～300 °C で乾固過程の大部分の NO_x が放出されるとのことである。

(d) 施設外での RuO₄ ガスの放水シャワーによる除去の評価

放水シャワーによる揮発 Ru の吸収挙動が検討されている¹⁵⁾。ここでは、硝酸中への RuO₄ ガスの溶解実験の結果を基に、放水シャワーによる RuO₄ ガスの除去を計算評価している。液滴径、シャワー流量、水温が支配的なパラメータで、必要シャワー流量が液滴径の 2 乗に比例することが報告されている。

4.4 利用可能な基礎的データ

4.3 で示した主要な実験の成果から、放射性物質の気相への移行に関わる基礎的データを整理する。

(1) CEA 実験での移行割合データ

CEA 実験では、沸騰開始から乾固に至る過程で廃液の沸騰により発生した蒸気とともに気相に移行した Ru などの放射性物質を凝縮器及び捕集ビンで捕集している。凝縮液に移行した放射性物質のうち、難揮発性物質の代表として Cs、揮発性の化学種に変化して気相に移行する Ru の凝

縮液中の質量が計測され、廃液中の初期量 (Ru : 4.03×10^{-2} mol/L, Cs : 2.62×10^{-2} mol/L) に対する割合が、図 4.5 に示すように積算値として示されている。

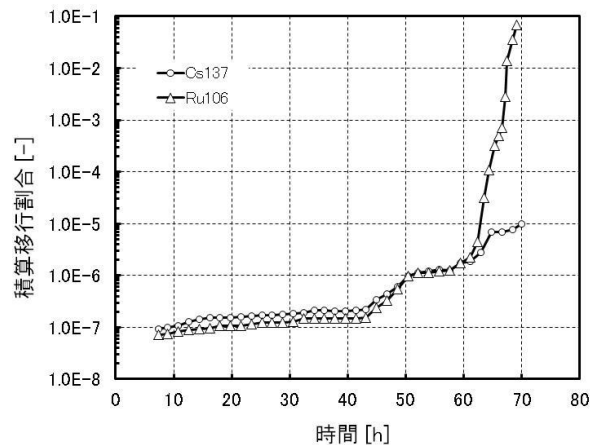


図 4.5 CEA 実験での Cs 及び Ru の凝縮液への積算移行割合 (参考文献 6)より編集し転載)

(2) 産官学共同研究で得られたデータ

(a) 廃液温度 120 °C までの不揮発性元素の移行量

産官学共同研究では、不揮発性物質を含む飛沫のエアロゾル化による移行が支配的である沸騰開始から廃液温度が 120 °C に達するまでの沸騰初期段階に着目した実験を実施している。

a) 実験方法

実験では、100 mL の模擬廃液を入れたガラス製の容器 (加熱容器と呼ぶ) を、電気ヒータで底面及び側面から加熱し、模擬廃液温度が 120 °C になるまで加熱している。加熱容器の底面を加熱するヒータの出力を 4 通りに変化させ、平均蒸気流速が異なる 4 ケースの実験 (蒸気流速の遅い方から順にケース A, B, C 及び D とする) を実施している。気相への移行量を調べるため加熱容器から流出する蒸気は冷却管に導いて凝縮させる。それを一定時間間隔で廃液温度が 120 °C に達するまで捕集している。廃液温度が 120 °C に到達後は、発生する蒸気を別系統の冷却捕集系に導くことで、沸騰初期段階での蒸発及び移行経路内の積算の沈着質量を切り分けて測定している。

捕集した凝縮液は、体積、質量、酸濃度を測定するとともに凝縮液中の元素量を ICP-MS 分析により定量している。試験後に移行経路配管内、エアフィルタを適切な方法で洗浄し、ICP-MS 分析により定量している。分析の結果、エアフィルタ及びガス吸収瓶への Cs の移行は認められなかったとしている。実験の詳細は、参考文献 4) を参照されたい。

b) 実験結果

i) 平均的な移行速度

参考文献 16) には、図 4.6 に転載した蒸気流速と難揮発性物質の代表として Cs の平均移行速度の関係が示されている。平均移行速度は、洗浄液中の Cs 質量及び複数の凝縮液サンプル中の Cs 質量の総和を、それぞれ、沸騰初期段階の継続時間で除して求めた。また、凝縮液の積算値が時間とともに直線的に増加することから、凝縮液がゼロである時刻を推定し沸騰開始時刻とした。上向蒸気流速は、蒸気の体積を加熱容器の断面積で除して算出した。蒸気体積は、廃液温度と同

温の 1 気圧の理想気体を仮定して、各凝縮液サンプルの質量及び酸濃度から推定した凝縮液中の硝酸及び水のモル量を用いて求めた。

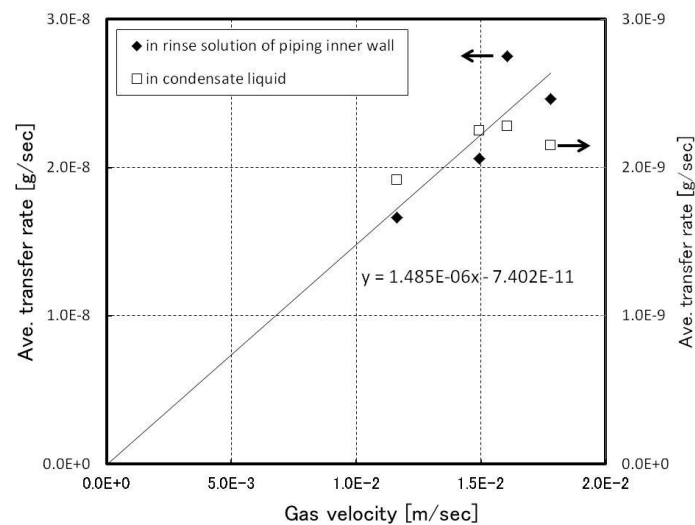


図 4.6 Cs の平均的な移行速度 (参考文献 16)より転載)

図 4.6 から分かるように経路洗浄液中への移行速度は、蒸気平均流速にほぼ比例して増加するのに対して、凝縮液中の移行速度に明瞭な比例関係が見られない。これは、各凝縮液サンプルは、冷却器から流れ落ちる水滴を回収することで得るため、凝縮液質量及び Cs 質量のバラツキが経路洗浄液中の Cs 質量のバラツキに比べて大きくなるためと考えられる。

ii) 廃液の濃縮に伴う凝縮液中 Cs の質量分率の変化

参考文献 16)には、図 4.7 に転載した廃液の濃縮に伴う凝縮液中の Cs の質量分率の変化が示されている。濃縮の尺度として用いた質量減少率は、それまでに採取した凝縮液サンプルの質量の積算値を廃液の初期質量で除した値である。

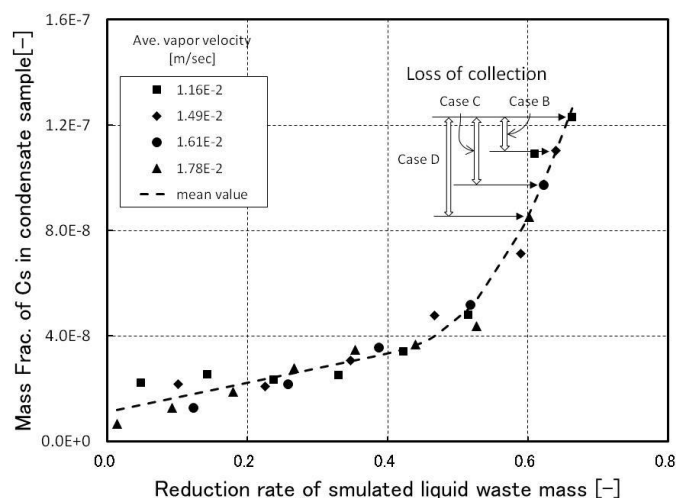


図 4.7 模擬廃液の減少率と凝縮液中の Cs の質量割合 (参考文献 16)より転載)

Cs の質量分率は、各凝縮液サンプル中の Cs の質量を凝縮液質量で除した値とした。若干のデータのバラツキはあるものの、両者の関係は、蒸気流速への顕著な依存性は見られない。Cs の質量分率は濃縮が進むにつれて徐々に増加し、質量減少率が 0.5 以上では急激な増加に転ずる。増加の原因として、濃縮に伴い廃液の粘性及び密度が増加したことによる気液界面近傍での飛沫の個数密度、質量密度（単位気相体積中の飛沫の質量）の増加、あるいは粒径個数分布の変化などが考えられる。

実験では廃液温度が、120 °C に達した時点で凝縮液の回収を終了している。多成分硝酸塩水溶液である廃液の沸騰では、蒸発により減少する硝酸及び水の質量（凝縮液質量に等しい）から沸点が決まるため、蒸気の発生速度に関係なく 120 °C での凝縮液質量は一定であり¹⁹⁾、実験の各ケースの最終的な質量減少率（グラフ中の各ケースの一番右端のデータ点）は同じでなければならない。ところが、図 4.7 に示すように最終的な質量減少率は蒸気流速が大きくなるほど小さくなっている。このことから、蒸気発生速度が大きい実験ほど多くの凝縮液の回収漏れがあることを示唆している。この理由として、蒸気流速が速いケースでは昇温が速いため、廃液温度が 120 °C に達した時点で凝縮液の回収を中断することにより 120 °C 未満で発生した蒸気が回収されなかったためとしている¹⁶⁾。凝縮液の回収漏れが大きくなることで、ケース A に比べて、それ以外のケースでは図 4.7 の白矢印で示す分だけ Cs の回収漏れがあることが分かるとしている¹⁶⁾。

(b) 発生するエアロゾルの粒径分布

産官学共同研究では、大型の総合試験装置を用いて沸騰時に発生する飛沫に由来するエアロゾルの粒径分布を測定した結果が示されている⁴⁾。それによれば、模擬廃液を沸騰させ、管体を約 150 °C に加熱した高さ約 2 m、内径 0.2 m の管内を蒸気とともに上昇する飛沫が水分を失って、乾燥したエアロゾルになる。それをカスケードインパクトで回収し分析している。回収したエアロゾル中の Cs 及び Nd の量を基に図 4.8 に示す粒径の分布を推定している。

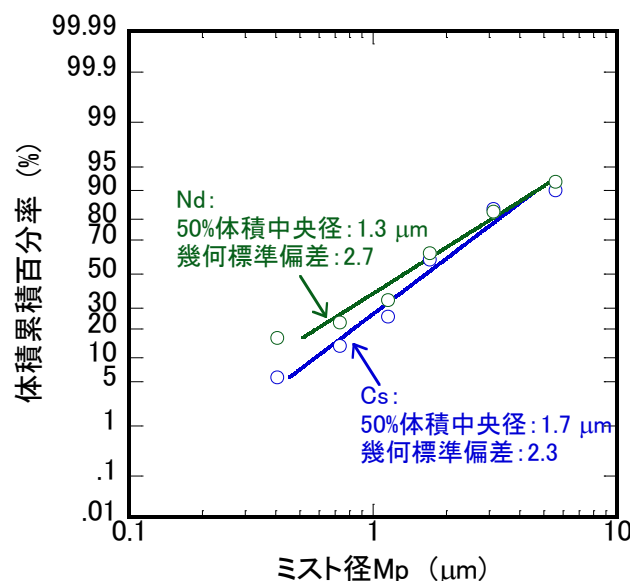


図 4.8 飛沫由来のエアロゾル粒径分布（参考文献 4）より転載）

(c) Ru の気相への移行量

産官学共同研究では、コールド基礎試験で初期廃液量、加熱ヒータ出力及び模擬廃液の希釈倍率をパラメータにして多くの実験を実施している。Ru の気相への移行に関わる ARF を分析するには、模擬廃液を希釈した実験、気相部の温度が 120 °C 以上に保持されず実験装置内で凝縮が生じている可能性のある実験を除く必要がある。この理由は、模擬廃液を希釈して用いた実験では、塩効果が異なり模擬廃液の温度と硝酸モル分率（=廃液中硝酸モル量／(廃液中硝酸モル量+廃液中水モル量)）の関係に影響を及ぼすためである。また、加熱容器内の気相部温度が共沸状態での沸点である 120 °C 以下では、気相の硝酸モル分率が液相より低くなり気液平衡を維持するため硝酸と水の混合気体の一部が凝縮する可能性があり、硝酸が凝縮すると一度気化した Ru が凝縮液とともに模擬廃液中に還流する恐れがあるためである。表 4.1 に分析に用いた主要な実験条件及び結果を示す。

実廃液では、硝酸の放射線分解により亜硝酸が生成される。参考文献 6) の実廃液を用いた蒸発乾固実験では、廃液温度が 120 °C 以上になると Ru の気化が顕在化し、それより低温では、Ru の気化が抑制される実験結果（図 4.5 参照）が示されている。模擬廃液を用いた実験では 120 °C 以下でも僅かではあるが Ru の気化が測定されていることから、実廃液では放射線分解により生成された亜硝酸の影響により 120 °C 以下での気化が抑制されると考えられている。参考文献 4) でも模擬廃液に亜硝酸を添加する実験が実施され亜硝酸による Ru の気化の抑制が確認されている。しかし、廃液中の亜硝酸濃度と気化抑制効果の定量的な関係を示すデータはない。

一方、RuO₄ は、凝縮を伴う水及び硝酸の蒸気雰囲気中では、固体の RuO₂ に変化したり、凝縮液中に移行することが実験で確認されている⁴⁾。事故時のセルなどの建屋内は、水及び硝酸の蒸気雰囲気であり、壁面などでこれらの蒸気は凝縮することが想定される。このため Ru の施設外への移行量を評価する上では、これらの現象のメカニズムとそれに基づく定量的なモデル化が必要であるが、現状では十分なデータがない。

表 4.1 Ru の移行に関わる実験の主要な条件とその結果 (参考文献 19)より転載)

Exp. Grp	Exp. No.	liquid waste type	Volume [mL]	Mass [g]	Heater Power [W]	Heated Time ¹⁾ [min]	Final Temp. [°C]	Total Ru in Condensate Liq. [g] ²⁾	Ru in Rinse Sol. [g] ³⁾	Ratio of Ru in Condensate Liquid	Ave. Ratio of Ru in Condensate Liq.
—	20	A	100	129.4	700	47.2	299	2.11×10^{-3}	NA	—	
—	21	A	100	129.7	700	35.6	194	6.46×10^{-3}	NA	—	
1	22	A	100	129.4	900	38.8	300	9.55×10^{-3}	1.26×10^{-3}	0.88	0.92 at 300°C
	23	A	100	129.8	500	57.2	279	1.62×10^{-2}	1.22×10^{-3}	0.93	
	25	A	100	128.7	700	42.9	300	1.81×10^{-2}	6.64×10^{-4}	0.96	
	26	A	100	129.2	500	54.3	300	1.51×10^{-2}	1.28×10^{-3}	0.92	
	35	A	100	128.8	350	61.1	300	2.10×10^{-2}	2.21×10^{-3}	0.90	
—	13	A	100	128.5	700	33.7	148	1.17×10^{-3}	NA	—	
—	18	A	100	128.5	700	32.9	154	2.63×10^{-3}	NA	—	
2	27	A	100	128.9	900	29.3	150	2.70×10^{-3}	5.27×10^{-4}	0.84	0.85 at 150°C
	28	A	100	129.1	300	46.6	150	1.93×10^{-3}	5.78×10^{-4}	0.77	
	29	A	100	129.3	500	36.0	150	2.35×10^{-3}	4.09×10^{-4}	0.85	
	30	A	100	129.1	700	33.1	150	1.20×10^{-2}	8.85×10^{-4}	0.93	
3	44	B	100	125.5	200	121.8	300	1.62×10^{-2}	1.21×10^{-3}	0.93	0.78 at 300°C
	69	B	200	252.2	300	103.3	301	9.92×10^{-3}	3.64×10^{-3}	0.73	
	73	B	200	250.8	200	125.9	303	1.53×10^{-2}	6.47×10^{-3}	0.70	
	75	B	400	492.3	700	109.3	300	1.59×10^{-2}	5.20×10^{-3}	0.75	
4	89	B	100	123.5	700	35.4	120	1.06×10^{-4}	1.52×10^{-5}	0.87	0.90 at 120°C
	90	B	100	125.4	900	31.7	122	9.87×10^{-5}	negative	—	
	91	B	100	124.4	450	47.8	120	1.34×10^{-4}	8.25×10^{-6}	0.94	
	92	B	100	123.8	600	37.9	121	1.21×10^{-4}	1.58×10^{-5}	0.88	

1) : Elapsed time from boiling start to reaching final temperature of liquid waste

2) : Total of gas oriented Ru mass in each condensate liquid samples

3) : Gas oriented Ru mass in rinse solution of piping inner wall

4.5 沸騰段階の MAR 及び DR

(1) MAR 及び DR の考え方

米国 NRC が刊行した「核燃料施設事故解析ハンドブック 17」(NUREG/CR-6410 という)における MAR 及び DR の定義を 4.2 節の事故シナリオに適用する。定義中の"a given physical stress" (誘起された物理的外力) は崩壊熱に起因する沸騰現象及び化学反応などである。事故で流出する放射性物質も MAR に含まれることを考慮すると、MAR 及び DR は次のように設定することができる。

MAR: 事故発生時の廃液貯槽内の総放射性物質質量

DR: MAR のうち崩壊熱に起因する沸騰現象及び化学反応などの影響を受ける範囲

事故期間中に放射性物質が流入する場合は、その量を MAR に含める。DR については、MAR 全量 (DR = 1) とする考え方 (モデル 1) と、飛沫同伴が液面における気泡の破裂により発生することから、単位時間に蒸発する廃液に着目することで DR の時間分画 $dr(t)$ を導入する考え方 (モデル 2) がある。両者の取扱いは数学的に等価であるが、各因子の物理的意味が異なるため混在させることはできず、使用する際はいずれか一方に統一する必要がある。 $dr(t)$ の具体的な取扱いは ARR(t) の定義と関係するため次項に示す。

NUREG/CR-6410 における MAR 及び DR の定義

MAR: The MAR is the amount of hazardous material available to be acted on by a given physical stress.

DR: The DR is the fraction of MAR actually impacted by a given physical stress from a specific event.

(2) MAR 及び DR の定義を反映した ARF の定義

NUREG/CR-6410 における五因子法の各因子は一つの事故あたりで定義された値であり、(1) 項と同様に定義を 4.2 節の事故シナリオに適用すると ARF は次のとおり定義される。

モデル 1 では、

ARF: MAR×DR のうち誘起された物理的外力により気中に保持され移行できる物質の割合

なお、実験的に ARF を与える際に「気中に保持され移行できる物質の量」を直接測定することが困難な場合、MAR×DR を含む領域から領域外部に移行する量を測定し、領域外から環境までを放出経路とすることで ARF を与えることができる。また、領域を 1 次閉じ込め(貯槽など)とした場合、事故の発生箇所ごとに ARF は異なる。

モデル 2 の場合、基本的な考え方は同じであるが、上記の考え方を時系列的に計算することとなる。モデル 1 とモデル 2 の相違を RF 及び LPF を除いた 3 因子で比較すると以下の対応関係がある。ここで、単位時間当たりの移行率 (ARR: Airborne Release Rate) を用いる。下式では、モデル 1 及び 2 に対応して記号に添え字 1,2 を付した。なお、各モデルの ARR の定義を下の箱囲みに示した。

$$MAR \cdot DR \cdot ARF = MAR \cdot DR \cdot \int_0^T ARR_1(t) dt = MAR \cdot \int_0^T dr_2(t) \cdot ARR_2(t) dt \quad (4.1)$$

表 4.2 飛沫同伴への適用例

モデル名称	dr(t)	ARR(t)
モデル 1	- (dr(t)は定義されない)	定義： $ARR_1 = \frac{\text{単位時間あたりに気相へ移行し保持される非揮発成分の量}}{\text{MAR} \times \text{DR}}$ $= \frac{m_g(t)C_f(t)}{\rho_f(t)V_0C_f^0}E_{fg} = \frac{m_g(t)}{V_0\rho_f^0 - m_g(t)t} \cdot \frac{\rho_f^0}{\rho_f(t)}E_{fg}(t) \quad [1/sec]$ 単純化†： $ARR_1 = \frac{1}{T_a - t} \cdot \frac{\rho_f^0}{\rho_f}E_{fg} \left(= \frac{1}{1 - R_r} \cdot \frac{1}{T_a} \cdot \frac{\rho_f^0}{\rho_f}E_{fg} \right)$
モデル 2	定義： $dr(t) = \frac{\rho_g(t)j_g(t)A}{M_0 - \rho_g(t)j_g(t)At}$ $= \frac{m_g(t)}{\rho_f^0V_0 - m_g(t)t} \quad [1/s]$ 単純化†： $dr(t) = \frac{1}{V_0\rho_f^0/m_g - t} = \frac{1}{T_a - t}$	定義： $ARR_2 = \frac{\text{単位時間に発生し気相を移行する飛沫中の物質の質量}}{\text{単位時間に沸騰で減少する廃液に含まれる物質の質量}}$ $\approx \frac{\rho_d(t)}{\rho_f(t)}E_{fg}(t) \quad [-]$

記号：(放射能濃度はモル濃度ないし質量濃度に換算可能)

$E_{fg}(t)$ [-] 液滴同伴率.蒸気質量流量に対する液
 滴質量流量の比 ($E_{fg} \equiv m_f/m_g$)
 $m_f(t)$ [kg/s] 液滴の質量流量
 $m_g(t)$ [kg/s] 蒸気の質量流量
 $\rho_f(t)$ [kg/m³] 廃液密度
 $\rho_d(t)$ [kg/m³] 凝縮液の密度
 $\rho_g(t)$ [kg/m³] 蒸気密度

$C_d(t)$ [Bq/m³] 凝縮液中の放射性物質濃度
 $C_f(t)$ [Bq/m³] 廃液中の放射性物質濃度
 C_f^0 [Bq/m³] 廃液中の初期放射性物質濃度
 t [s] 沸騰開始からの経過時間
 T_1 [s] 120℃に達するまでの時間
 T_a [s] 見かけの乾固時間(= $V_0\rho_f^0/m_g$)

M_0 [kg] 廃液の初期質量
 V_0 [m³] 事象開始時点の廃液量
 $j_g(t)$ [m/s] 蒸気流速
 R_r [-] 質量減少率ないし質量基準留出率。積算
 凝縮液重量に対する初期溶液重量の比
 A [m²] 貯槽断面積

† m_g 一定とし、見かけの乾固時間^{*1} T_a (= $V_0\rho_f^0/m_g$)を用いて式を単純化した。

なお、飛沫同伴に両モデルを適用した場合の例を表 4.2 に示す。また、4.6 節以降で解説されている参考文献 16) はモデル 2 の立場であることに留意されたい。

NUREG/CR-6410 における ARF 及び ARR の定義(モデル 1)

ARF: The ARF is the fraction of impacted material (MAR x DR) that can be suspended to become available for airborne transport following a specific set of induced physical stresses.

ARR: The ARR is expressed as the fraction of the total available material being suspended per unit time. The ARF is the ARR integrated over the total duration of the event.

モデル 2 における ARR の定義

$$ARR_2 = \frac{\text{単位時間に液面で発生し気相を移行する飛沫中の難揮発性物質の質量}}{\text{単位時間に沸騰で減少する廃液に含まれる難揮発性物質の質量}}$$

4.6 機構論的モデルに基づく ARF の評価

(1) 飛沫同伴の相関式

沸騰開始から廃液温度が約 120 °C に至る沸騰初期では、廃液の沸騰で発生した気泡の破裂で生じる飛沫が上向蒸気流に同伴することで廃液中の放射性物質が気相部へ移行しエアロゾル化する。事故影響の評価には、このようなメカニズムによる放射性物質の移行を定量的に評価する必要がある。参考文献 16) では、4.4 (1) 及び 4.4 (2) (a) で示した実験結果を基に飛沫同伴に基づく気相への移行率に関わる機構論的な相関式を導出した過程が示されている。当該文献では、蒸発乾固事故の飛沫同伴による放射性物質の移行を評価するには、五因子法での気相への移行割合(ARF)に替わりに単位時間当たりの移行率(ARR)を用いることを提案している。参考文献 16) では、4.5 で示した ARR_2 を ARR としている。 ARR は (4.2) 式に示す単位時間当たりの質量の比で定義される。

$$ARR = \frac{\text{液面で発生し気相を移行する飛沫に含まれる難揮発性物質の質量}}{\text{沸騰で減少する廃液に含まれる難揮発性物質の質量}} \quad (4.2)$$

一方、飛沫同伴率： E_{fg} は、上向きの蒸気質量流束に対する同伴する飛沫の質量流束の比で定義され両者には(4.3) 式の関係がある。ここで、廃液の密度： ρ_f 、蒸発した硝酸及び水が凝縮したときの密度： ρ_g である。

$$ARR(T) \cong \frac{\rho_g}{\rho_f} E_{fg} \quad (4.3)$$

参考文献 16) では、上向蒸気流中の飛沫の運動のメカニズムに着目し、解析的に相関式の基本となる式を求め、4.4 (1) 及び 4.4 (2) (a) で示した実験結果から求めた飛沫同伴率と規格化した臨界粒径（上向流中を流速と同じ速度で移動する粒子の最大径）と蒸気流速の積との相関関係（図 4.9 に示す）から(4.4) 式を導出し、飛沫同伴率が蒸気流速に比例することを解析的に示している。係数：K は廃液の濃縮とともに変化し、例えば、廃液の質量減少率が約 0.2 の時では、0.172 であ

る。(4.4) 式中, 表面張力: σ [N/m], 蒸気の粘性係数: μ_g [Pa·s], 蒸気密度: ρ_g [kg/m³], 飛沫と蒸気の密度差: $\Delta\rho$ [kg/m³]及び重力加速度: g [m/s²]である。

$$E_{fg} = K \left(\frac{1}{\sigma} \right)^{\frac{1}{2}} (\mu_g \rho_g)^{\frac{1}{3}} \left(\frac{1}{g \Delta \rho} \right)^{\frac{1}{6}} j_g \quad (4.4)$$

参考文献 16)ではさらに, 図 4.7 に示す C_s の移行量と廃液質量減少率: R_r との関係を基に廃液の濃縮の進展に伴う蒸気流速が 0.012 m/s の場合の E_{fg} 及び ARR の変化を示している(図 4.10)。この関係を基に廃液の質量減少率から飛沫同伴率を求め, (4.3) 式により ARR が計算できる。 ARR もまた蒸気流速に比例するので, 蒸気流速が 0.012 m/s の場合を基準として異なる蒸気流速での ARR も計算可能である。

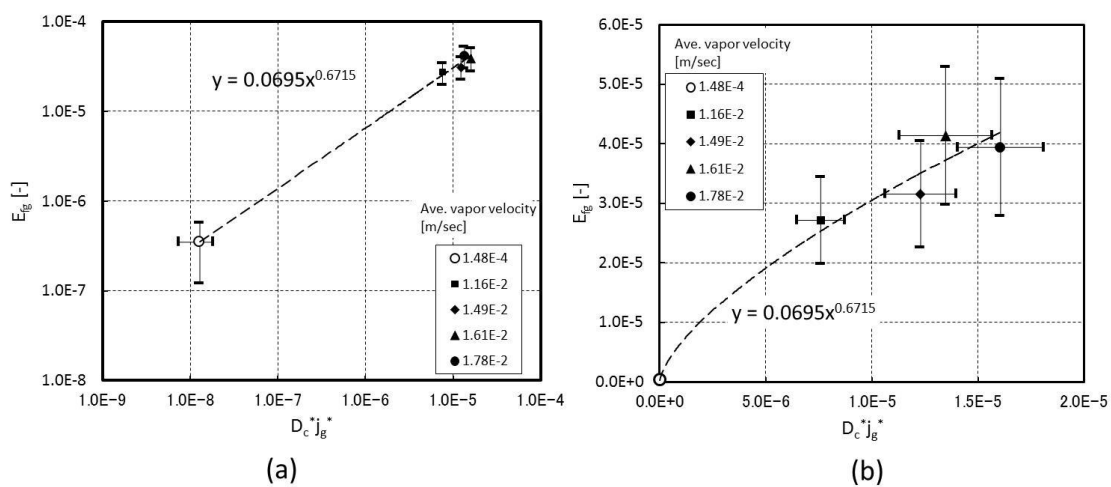


図 4.9 規格化した臨界粒径と蒸気流速の積に対する飛沫同伴率の相関関係
(参考文献 16)より転載)

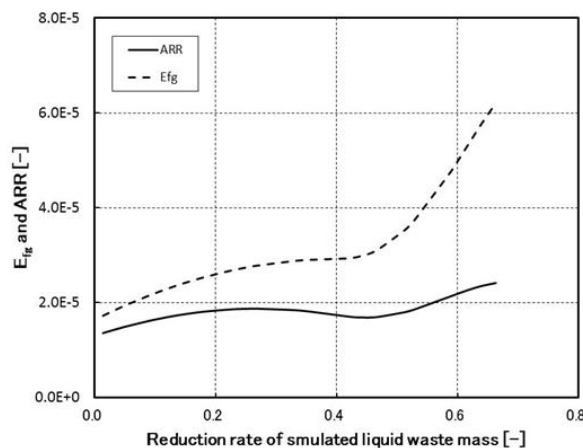


図 4.10 蒸気流速が 0.012 m/s の時の廃液質量減少率と E_{fg} 及び ARR の関係
(参考文献 16)より転載)

さらに, 上述の(4.3)式が適用可能な期間を T_B とすれば, ARR の定義から, 時刻 t での難揮発性物質 a の移行速度 $m_a(t)$ [kg/s] は次式で求められるとしている。(4.5)式中の A は貯槽の液面

積である。

$$m_a(t) = \frac{M_0 X_{a0}}{M_0 - \rho_g j_g A t} \times j_g \rho_g A \times ARR(\Delta\rho(t), \sigma(t)) \quad (t \leq T_B) \quad (4.5)$$

m_a をエアロゾル発生項として、貯槽内及びその後の移行経路での沈着（すなわち LPF）を評価することになる。また、NUREG/CR-6410 の五因子法の定義に準じた放射性物質の気相への移行が継続する期間でのトータルの移行割合である沸騰開始から時刻 T までの期間の $ARF(T)$ との関係は、 ARR 及び $j_g \rho_g$ が沸騰初期段階では概ね一定であるので(4.6)式で表される。これより、 ARF は、沸騰で蒸発した質量に見合った分だけ大きくなる関係にあると解釈できる。

$$ARF(T) \equiv \frac{1}{M_0 X_{a0}} \int_0^T m_a(t) dt = ARR \times \ln \left(\frac{M_0}{M_0 - \rho_g j_g A T} \right) \quad (T \leq T_B) \quad (4.6)$$

参考文献 18) には、(4.3)式及び(4.4)式を用いて CEA 実験の模擬が試みられ、沸騰初期段階での Cs の移行割合を精度良く模擬できることが示されている。

(2) 実験データに基づく Ru の移行速度相関式

沸騰晩期（約 120～約 150 °C）では、Ru の揮発性のガス状物質の発生が顕在化し、放射性物質の気相部への主要な移行形態となる。参考文献 19) では、再処理廃液中の Ru は 3 価のニトシル錯体 $Ru(NO)$ で存在するが、廃液中の活性な硝酸の中間体の生成を仮定し、これにより酸化され、揮発性を示す 8 価の RuO_4 に変化し気相部に移行する。その移行速度は、廃液中の Ru 量に依存せず、硝酸の中間生成物の生成速度が律速になっているとしている。これを参考に、参考文献 20) では廃液中の単位硝酸モル量当たりの Ru 発生量を Ru 移行速度： $V[g/s/mol \cdot HNO_3]$ と定義し、4.4 (2) (b) で示した模擬廃液を用いた沸騰実験での Ru 移行量の実測値を整理したデータに基づき Ru 移行速度式を提案している。速度式は、参考文献 19) で提案する速度式を参考にして、パラメータの一つである廃液の硝酸濃度 $[mol/L]$ に替えて廃液の硝酸モル分率を用いることで、沸騰時の廃液体積の推定による不確実さを回避している。

典型的な模擬廃液組成での Ru 移行速度を(4.7) 式に示す。速度式中の各変数は、廃液中の硝酸活量： $a(HNO_3)$ 、廃液の硝酸モル分率： F 、廃液温度： $T[K]$ 、及びガス定数： $R[J/mol/K]$ である。参考文献 20) では、典型的な組成の模擬廃液及びそれに Fe 及び Ni を増量した模擬廃液の 2 種類の模擬廃液を用いている。後者の移行速度式の活性化エネルギー項は、125,000 J/mol であった。CEA 実験の実廃液は、Fe 及び Ni 成分が多い。図 4.11 に 4.4 (1) に示した CEA 実験での Ru の移行量を二つの実験式で模擬した結果を示す。Fe 及び Ni 成分が多い実験式（図 4.11 中の A 式）が実験値との一致が良いことを不確実さ幅とともに示している。

$$V = 2.25 \times 10^{12} \times a(HNO_3)^{0.8} \times \exp(7.3 \times F) \times \exp\left(-\frac{130,000}{RT}\right) \quad (4.7)$$

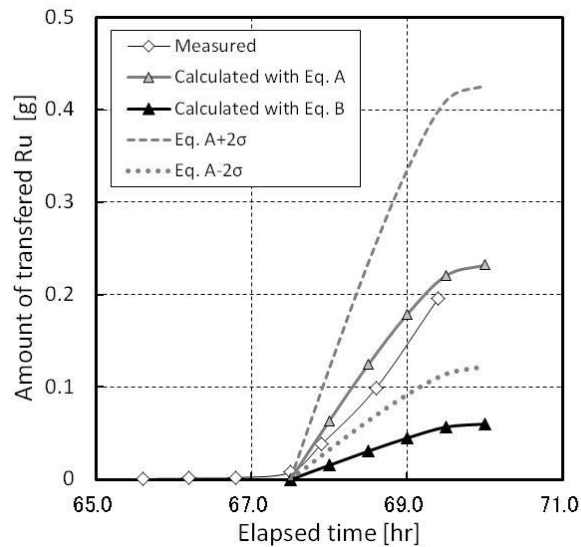


図 4.11 CEA 実験での Ru の移行量の実測値と計算値の比較（参考文献 20）より転載）

(3) 廃液貯槽内部での廃液沸騰及び放射性物質の移行の模擬

日本原子力研究開発機構では、高レベル廃液の沸騰を解析対象とする計算プログラム（以下沸騰模擬ツールという）を開発している²¹⁾。廃液の沸騰は、近似的に気液平衡状態で継続的に液相が蒸発すると仮定して廃液の沸騰をモデル化している。沸騰模擬ツールでは 4.6 で示した飛沫同伴の相関式及び Ru の移行速度式を用いた計算に必要なパラメータを、廃液の発熱量及び多成分硝酸塩水溶液である廃液の硝酸の気液平衡データを基に求めている。その有効性は実廃液の沸騰実験などの模擬で検証されている¹⁸⁾。その計算のスキームを図 4.12 に示すとともに参考文献 18) を基に以下に概説する。

(a) 硝酸及び水の蒸発量の計算

単位時間当たりの沸騰により蒸発する硝酸及び水量は、それぞれの値に蒸発潜熱を乗じた値の和が廃液中の放射性物質の崩壊による発熱量から廃液の顕熱を差し引いた値に等しくなるとして、評価できる（ここでは、貯槽壁面からの除熱を考慮しないことは、蒸発を早めるとの保守的な観点から無視する）。一方、蒸発により硝酸及び水が気相へ移動するので、その前後で気液各相の硝酸モル分率は変化するが、平衡状態は維持される。熱収支と気液平衡条件を満足する蒸発量を逐次近似で求める。計算の基となる任意の濃度の廃液の気液平衡に関わる経験的な相関式は、参考文献 22) に詳述されている。

(b) 廃液温度の計算

(a) の結果、廃液中の硝酸及び水の量が決まる。硝酸塩の塩効果を考慮してモル沸点上昇モデルにより新たな廃液温度を求める。

(c) 廃液から気相への放射性物質の移行量の計算

沸騰中の廃液からの硝酸及び水蒸気の発生量、廃液の温度、硝酸モル分率及び硝酸活量を基に飛沫同伴率及び Ru の移行速度を計算する。

i) 飛沫同伴率の計算

(a)の結果, 蒸発する硝酸及び水の量が決まる。これにより上向蒸気流速が求まり同伴する飛沫量が計算できる。

ii) Ru の移行速度の計算

廃液温度は (b)で求められる。硝酸モル分率は, (a)の結果である廃液中の硝酸及び水の量から求められる。硝酸活量は, 温度の関数である 100 % 硝酸の飽和蒸気圧に対する気相部の硝酸蒸気分圧の比で定義され, 気相部の硝酸蒸気分圧は気相部の硝酸モル分率から求められる。これらのパラメータ値を用いて(4.7) 式により Ru の移行速度が計算できる。

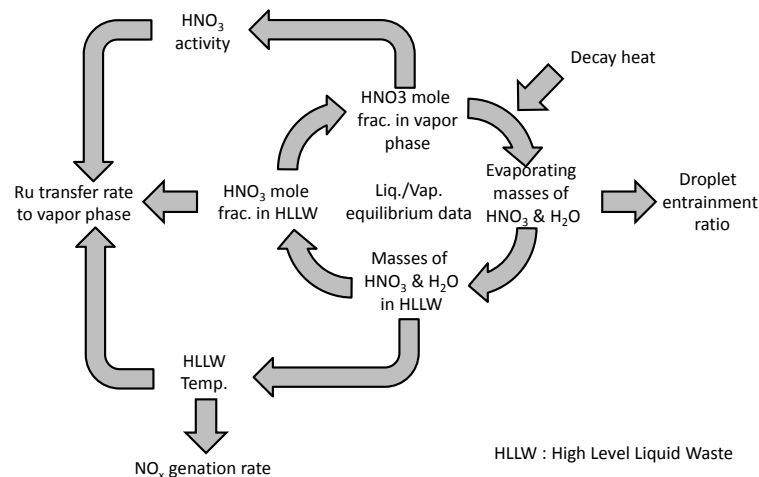


図 4.12 廃液沸騰時の主要パラメータの計算スキーム (参考文献 18) より転載)

4.7 施設外へのエアロゾルの移行挙動解析に基づく LPF の評価

貯槽から建屋内に流出した放射性物質はエアロゾルあるいは気体として移行する。4.4 (2) (c)で述べたように, 気体の RuO_4 は, 凝縮を伴う水及び硝酸の蒸気雰囲気中では, 固体の RuO_2 に変化したり, 凝縮液中に移行することが実験で確認されている⁴⁾。このため Ru の施設外への移行量を評価する上では, これらの現象のメカニズムとそれに基づく定量的なモデル化が必要であるが, 現状では十分な情報がない現状である。ここでは, エアロゾルの移行に着目した解析事例を示す。

(1) MAAP による建屋内の熱流動及びエアロゾル移行挙動解析

MAAP (Modular Accident Analysis Program) コード²³⁾ (以下 MAAP という) で再処理施設における事故時放射性物質移行量を解析し, 7 日間に亘る LPF の時間変化を評価した例²⁴⁾を示す。

(a) MAAP の概要

MAAP は, 炉心損傷で発生したエアロゾルの移行を伴う原子炉施設でのシビアアクシデントを解析するために開発された計算コードである。1980 年代に米国産業界が実施した IDCOR (Industry Degraded Core Rulemaking) 及び米国 EPRI (Electric Power Research Institute) を中心とした MUG (MAAP User's Group) の下で, 米国 FAI 社 (Fauske & Associates, Inc.) により開発されてきている。評価モデルの概要は参考文献 23), 24) 及び 25) で確認することができる。原子炉施設を対象に開発されているため, 放射性物質の硝酸塩を含む再処理廃液の沸騰及

び関連する化学反応を模擬する機能は内蔵されていないが、蒸気、凝縮性ガス及び放射性物質の移行挙動をコントロールボリュームとフローパスでモデル化する方法は、再処理施設内の熱流動解析にも適応可能である。なお、エアロゾルの粒子径分布及び沈着挙動は無次元化相関式を用いて評価され、時々刻々のセル内条件を反映したエアロゾル特性が計算される。

(b) 解析の体系及び条件

事故シナリオとしては、貯槽の冷却機能喪失により廃液沸騰に至るものの、断続的な注水により廃液の減少を補う拡大防止策を想定する。廃液沸騰事象における環境への放射性物質移行挙動評価について、図 4.13 に概略図を、図 4.14 に建屋内移行経路図を示す。ここでは、各貯槽から発生したエアロゾルは、配管を通じてセル内に移行し、複数のダクト及びセルを介して最終的に環境に放出される。なお、フィルタの除染性能には期待せず、移行経路以外への漏えいを防ぐために排風機の作動を仮定する。各貯槽は個別にモデル化し、貯槽内の硝酸塩水溶液は水として扱う。MAAP では、廃液沸騰に伴うエアロゾル発生を機構論的に評価することができないため、エアロゾルの発生は境界条件として設定し、崩壊熱に相当する熱量を貯槽の水に付与することで沸騰挙動を評価する。移行経路には壁面に相当するヒートシンクを設定し、移行経路における蒸気凝縮及びエアロゾル除去を模擬する。

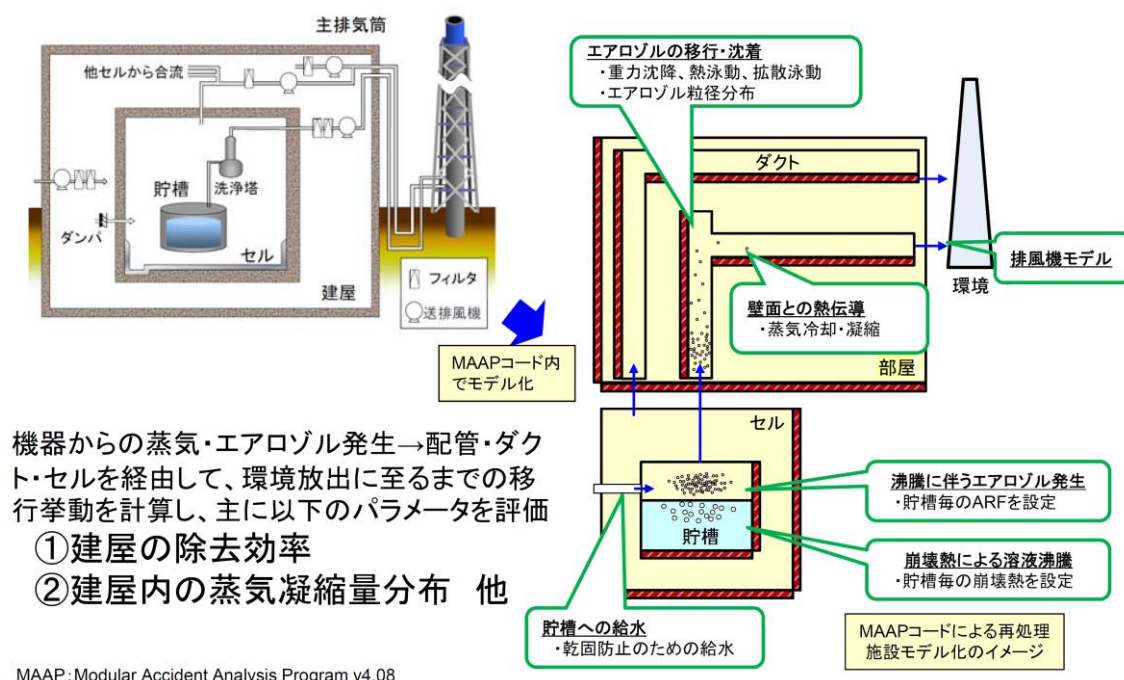


図 4.13 廃液沸騰事象評価の概略図（参考文献 24）より転載）

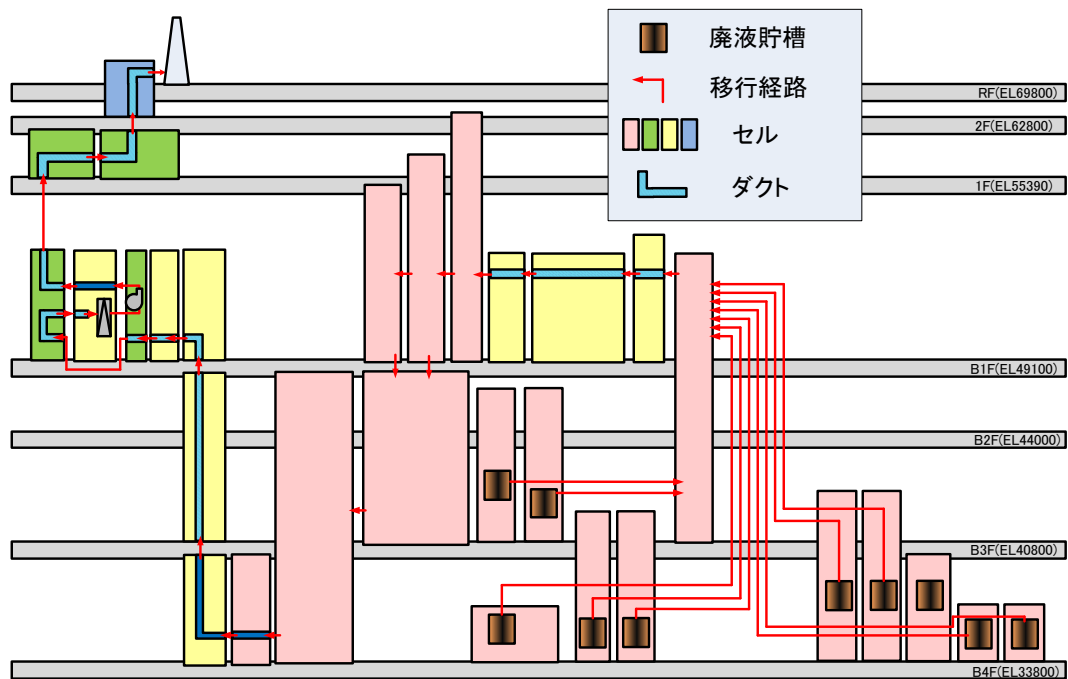


図 4.14 廃液沸騰事象評価の建屋内移行経路図（参考文献 24）より転載）

(c) 解析結果

7 日間の貯槽からの放射性物質放出量、環境への移行量及び LPF の変化を図 4.15～図 4.17 に示す。沸騰開始時点で移行量がステップ状に上昇する挙動が見られるが、これは移行経路に非凝縮性ガスである空気が多く存在する期間は、蒸気凝縮で環境放出流量が抑制される効果が十分ではないためである。その後、移行経路における蒸気割合が増大するとともに、環境放出流量が抑制され、貯槽から放出される気相の建屋内滞在期間が増大することで、気相中からのエアロゾル除去が促進される。従って、LPF も沸騰開始時点でピークを有し、その後は急速に低下することとなる。

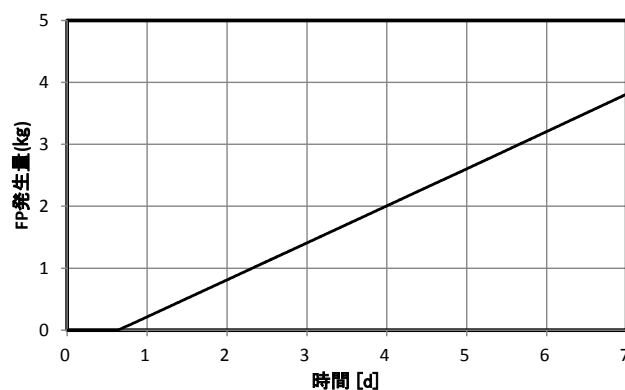


図 4.15 廃液沸騰事象評価の FP 発生量評価例（参考文献 24）より転載）

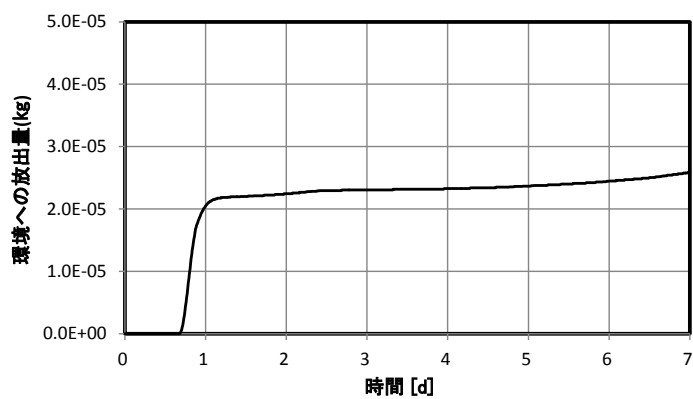


図 4.16 廃液沸騰事象評価の環境への FP 放出量評価例（参考文献 24）より転載）

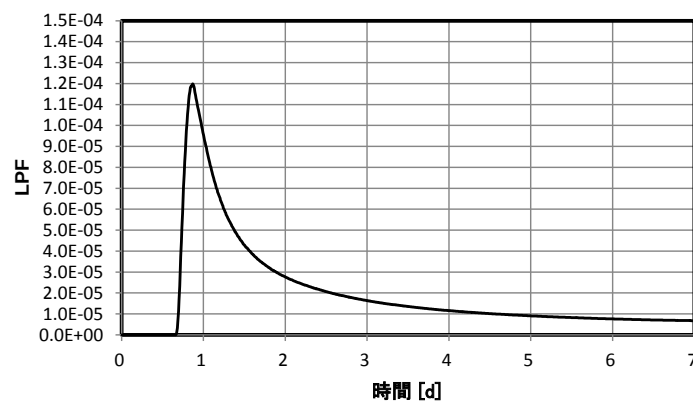


図 4.17 廃液沸騰事象評価の LPF 評価例（参考文献 24）より転載）

4.8 まとめ

廃液の蒸発乾固事故での事故の影響を評価する手法として、施設外への放射性物質の放出量の評価に利用可能な実験データ、解析手法などの研究の現状を調査し、以下の結論を得た。主要な調査項目を表 4.3 に整理する。

- ・ 沸騰初期段階での飛沫同伴による放射性物質の気相への移行及び沸騰晩期以降の Ru の揮発性化学種の気相への移行量に関しては、多くの実験が実施され、それらを実評価するための機構論的な相関式及び実験結果に基づく移行速度式が提案され、傾向として実験結果と良い一致が見られることが確認されている。
- ・ 飛沫同伴に由来しエアロゾルの形態で施設内を移行する放射性物質の挙動は、発電用原子炉施設のシビアアクシデント解析で利用実績のある解析コードを用いることで解析可能である。

今後解決すべき課題としては次が挙げられる。課題解決に向けた実験の実施及びそれに基づくメカニズムの解明及び定量的なモデルの開発が望まれる。

- ・ Ru の揮発性化学種である RuO_4 への変化が、放射線分解などで発生した廃液中の亜硝酸によって特定の温度まで抑制されることが確認されているが、そのメカニズムと定量化に必要なデータの取得が必要である。
- ・ RuO_4 の凝縮を伴う水及び硝酸の蒸気雰囲気中での挙動は、施設外への移行量を評価する上で重要であり、この挙動を支配する現象のメカニズムの解明と温度、気液各相の硝酸濃度及び NO_x 濃度などをパラメータとする定量的なモデル整備が必要である。
- ・ Ru の施設内での移行挙動の模擬に関連して、施設内での硝酸蒸気及び NO_x の物理的・化学的挙動を模擬する熱流動解析コードの整備も必要である。

以上より、沸騰初期段階での飛沫同伴により気相へ移行し、エアロゾル化した放射性物質の施設内での移行は評価可能と判断できる。

表 4.3 実験データ及び解析手法などのまとめ

取り上げた 評価項目	対応する 五因子法 パラメータ	調査内容	課題
事故の影響 を受ける量	MAR, DR	MAR の取り方で, DR, ARF が 変化する。	
沸騰初期の 飛沫同伴	<u>ARF</u>	<u>CEA 実験</u> ・沸騰初期の Cs, Ru の移行割 合 <u>産官学共同研究</u> ・廃液温度が 120℃に達するま での Cs の移行量 ・飛沫由来のエアロゾル粒径分 布 <u>機構論的な飛沫同伴式</u> <u>沸騰模擬ソール</u> 機構論的な相関式による CEA 実験の模擬は, 実験結果 と良い一致が見られることが 確認	
沸騰晩期の Ru の気化	ARF	<u>CEA 実験</u> ・沸騰晩期の Ru 移行割合 <u>産官学共同研究</u> ・沸騰晩期の Ru の移行量 実験結果に基づく移行速度式 による CEA 実験の模擬は, 実 験結果と良い一致が見られる ことが確認 <u>Ru の気相への移行速度式</u> <u>その他の実験</u> ・硝酸の影響を確認する実験 ・硝酸水溶液から揮発する Ru の化学種を同定する実験	Ru の気化が廃液中の亜硝酸 によって抑制される効果のメ カニズムと定量化に必要なデ ータの取得が必要。
建屋内エア ロゾル移行 挙動	LPF	原子炉シビアアクシデント解析 コード (MAAP) による解析例	
建屋内 Ru 移 行挙動	LPF	・模擬セルでの Ru の除去率の 測定実験 ・硝酸・亜硝酸水溶液中の RuO ₄ の化学変化に関わる実験 ・乾固時の NO _x の発生挙動に 関わる実験	・ RuO ₄ の凝縮を伴う水及び 硝酸の蒸気雰囲気中での挙 動を支配する現象のメカニ ズムの解明と定量的なモデ ル整備が必要。 ・施設内での硝酸蒸気及び NO _x の物理的・化学的挙動を 模擬する熱流動解析コード の整備が必要
HEPA フィ ルタ	LPF	水ミスト負荷試験	
	LPF	施設外での RuO ₄ ガスの放水シャ ワーによる除去の評価	

参考文献

- 1) 宮田 敬士 他, 「六ヶ所再処理工場の確率論的安全評価, (II) 高レベル濃縮廃液沸とう事故の発生頻度評価 (内的事象)」, 日本原子力学会和文論文誌, 7[2], 85-98 (2008).
- 2) 日本原燃(株), 「再処理事業指定申請書及び同添付書類」, 平成元年 3 月申請 (平成 8 年 4 月, 同 13 年 7 月, 同 16 年 10 月変更許可申請) .
- 3) 関根 啓二 他, 「再処理施設における放射性物質の移行挙動に関する研究 (2) 高レベル濃縮廃液の冷却システムと冷却機能喪失事象」 日本原子力学会 2012 年秋の大会予稿集 E32 (2012).
- 4) 「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).
- 5) 吉田 一雄, 石川 淳, 「MELCOR コードを用いた再処理施設の廃液沸騰事象解析」, JAEA Research 2012-026 (2012).
- 6) M. Philippe *et al*, "Behavior of Ruthenium in the Case of Shutdown of the Cooling System of HLLW Storage Tanks," *Proc. 21st DOE/NRC Nucl. Air Cleaning Conf.*, San Diego, CA, Aug., 1990, NUREG/CP-0116 Vol.2., 831-843 (1990).
- 7) Y. Yamane *et al*, "Release of Radioactive Materials from High Active Liquid Waste in Small Scale Hot Test for Boiling Accident in Reprocessing Plant", *J. Nucl. Sci. Technol.*, 53[6], 783-789 (2016).
- 8) T. Ishio *et al*, "Study on radioactive material transport behavior from boiling/ drying out high level liquid waste", *Proc. of Global 2015*, 5164 (2015).
- 9) 加藤 徹也 他, 「硝酸ニトロシルルテニウム硝酸溶液からの蒸発・乾固にともなうルテニウムの揮発挙動 ―質量分析装置を用いた揮発ルテニウムの測定―」, 日本原子力学会 「2016 年春の年会」 予稿集 3F09 (2016).
- 10) T. Kato *et al*, "Study on volatilization mechanism of ruthenium tetroxide from nitrosyl ruthenium nitrate by using mass spectrometer", *J. Nucl. Mater.*, 479, 123-129 (2016).
- 11) T. Kodama *et al*, "Experiments on the leak path factor of ruthenium volatilized from high-level liquid waste tanks in a reprocessing plant in case of the boiling and drying accident", *J. Nucl. Sci. Technol.*, 52[4], 467-471 (2015).
- 12) 柴田 勇木 他, 「亜硝酸―硝酸水溶液の揮発性 Ru の化学形態変化」, 日本原子力学会 「2014 年秋の大会」 予稿集 D35 (2014).
- 13) 山崎 明 他, 「高性能エアフィルタ 水ミスト負荷試験」, 空気清浄 56[6] 59-63 (2015).
- 14) 柴田 勇木 他, 「模擬高レベル濃縮廃液蒸発乾固過程の NO_x 生成挙動」, 日本原子力学会 「2015 年秋の大会」 予稿集 G46 (2015).
- 15) 柴田 勇木 他, 「純水中への四酸化ルテニウムの吸収評価」, 日本原子力学会 「2016 年春の年会」 予稿集 3P11 (2016).
- 16) 吉田 一雄, 「再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故における飛沫同伴による移行率の機構論的相関式の導出」, 日本原子力学会和文論文誌, 14[1], 40-50 (2015).
- 17) Science Applications International Corporation, *Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook*, NUREG/CR-6410 (1998).

- 18) 吉田 一雄, 石川 淳, 阿部 仁, 「再処理施設の蒸発乾固事故での放射性物質の移行挙動解析」, 日本原子力学会和文論文誌, **14**[4], 213-226 (2015).
- 19) A. Sasahira *et al.*, "Transfer of Ruthenium from a Simulated Reprocessing Solution to Gas Phase during a Continuous Distillation," *J. Nucl. Sci. Technol.*, **33**[10], 753-757 (1996).
- 20) 吉田 一雄 他, 「再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故における気相への Ru 移行速度の導出」, 日本原子力学会和文論文誌, **13**[4], 155-166 (2014).
- 21) 石川 淳, 城戸 健太郎, 吉田 一雄, 「再処理廃液の沸騰乾固模擬ツールの開発」, 日本原子力学会和文論文誌, **12**[2], 165-174 (2013).
- 22) 吉田 一雄, 阿部 仁, 「多成分硝酸塩水溶液の気液平衡状態推定法の提案」, JAEA-Research 2014-001 (2014).
- 23) 東京電力株式会社, 「MAAP コードの概要」, http://www.tepco.co.jp/cc/press/betu14_j/images/140806j0104.pdf (2016).
- 24) 日本原燃(株), 「【公開版】六ヶ所再処理施設における新規制基準に対する適合性【重大事故等対処施設】「設計上定める条件より厳しい条件において発生する事故 (B-DBA)」の重畳 (その2) 高レベル廃液ガラス固化建屋において発生が想定される B-DBA の重畳 (B-DBA への対処の有効性評価) (補足資料)」, <https://www.nsr.go.jp/data/000134169.pdf> (2016).
- 25) 日本原子力学会, 「シビアアクシデント時の格納容器内の現実的ソースターム評価」 (2010).

鎮火条件，燃焼に伴う放射性物質及びばい煙の放出挙動評価，これらの移行挙動評価に必要な移行経路中での熱流動解析の境界条件である燃焼に伴う質量（燃焼ガス）やエネルギーの放出挙動評価，ならびに，ばい煙の負荷による HEPA フィルタの差圧上昇挙動評価に関わるデータ及び評価モデルが必要となると考えられる。これらの各項目について調査・整理し(3)にまとめた。また，必要でありながら現状で欠けていると考えられる点についても言及した。

(2) 想定される事故シナリオ

(1)で述べたように，セル内有機溶媒火災が発生するには，有機溶媒の漏えい，溶媒の引火点以上への加熱及び着火源の存在の 3 条件が成立する必要がある。したがって，セル内有機溶媒火災は，有機溶媒がセル内に漏えいし，更に，漏えいした有機溶媒を回収する機能が喪失した状態で有機溶媒が引火点以上に加熱され，着火することにより発生することが想定される。3 条件について想定される事象としては，例えば以下のようなものが考えられる。

- ・ 有機溶媒の漏えい
 - ・ 有機溶媒を内包する機器及び接続配管の破損（閉じ込め機能喪失）
- ・ 溶媒の引火点以上への加熱
 - ・ 漏えい溶媒中の放射性物質の崩壊熱
 - ・ プロセスでの異常加熱発生時の漏えい
 - ・ 漏えい溶媒回収時のスチームジェットポンプ蒸気との接触
 - ・ 温水配管の破損による加熱された水との接触
- ・ 着火源
 - ・ 静電気
 - ・ セル内ケーブルの破損によるスパーク（特に，地震時）
 - ・ 破損した弱電ケーブルへの通電（特に，地震後の復旧時）

有機溶媒の漏えいの発生については，耐震性が相対的に低い耐震クラスの配管の破損などについても着目すべきと考えられる。有機溶媒の漏えい量(MAR×DR)は，機器や配管からの漏えい流量と漏えい時間の掛け算によって求められる。有機溶媒の漏えい時間は，有機溶媒の漏えいを検知するための装置と漏えい液を回収する設備の機能が健全か否か（その場合，多重化されているか否か（安全上重要な施設か否か），耐震性を有しているか否かなどを考慮）によって左右されるものと考えられる。例えば，有機溶媒の漏えいを検知するための装置の機能が健全であった場合には，漏えいを検知し比較的速やかにプロセス運転を停止して漏えいの拡大を防止させる操作をとることが可能であるが，一方で，機能が喪失している場合には，運転員が漏えいを認識するまでに比較的長い時間を要することが想定される。また，漏えい液を回収する設備の機能が健全であれば，仮に有機溶媒の漏えいが生じて，速やかに回収することができるため，重大な事故には進展しないものと想定できる。

事故に対する影響緩和策としては，ガス消火装置の起動による消火，防火ダンパの閉止などによりセルに対する給気を停止することによる窒息消火が考えられる。

火災が発生すると，抽出有機溶媒中に存在する放射性物質やばい煙が放出され，換気系あるい

は建屋内を移行し、最終的に HEPA フィルタによる捕集を経て、施設外へ放出される。放射性物質やばい煙は、火災によって気相に放出された質量（燃焼ガス）やエネルギーがソース項となつて、換気系や建屋内での流体の熱流動に伴い移行する。HEPA フィルタは、火災事故時の放射性物質の施設内への閉じ込めバウンダリを担う重要な設備である。火災によって大量に放出されたばい煙の負荷によって、HEPA フィルタの目詰まりとそれに起因する差圧上昇が生じ、最悪の場合には、HEPA フィルタの破損により、捕集されるべき放射性物質の施設外への放出が引き起こされる可能性がある。

(3) 利用可能な基礎的データ

(a) 事故発生・終息条件

a) 有機溶媒の着火及び燃焼条件

六ヶ所再処理工場で使用される TBP 及び *n*-ドデカン²⁾は、共に、70～200℃までの温度に引火点を持つ引火性液体として、消防法では、危険物第四類第3種石油類危険等級Ⅲに分類されている²⁾。なお、六ヶ所再処理工場においては、塔内の有機溶媒の温度に関する最大許容限度として74℃が用いられている³⁾。

揮発性有機溶剤の蒸気は空気と適当な濃度で混ざると爆発性混合気となる。引火点は、物質が揮発して空気と可燃性の混合物を作ることができる最低温度であり、この温度で燃焼が始まるためにはなんらかの着火源が必要となる。*n*-ドデカンのデータはないが、爆発危険性の高い液化ガス及び引火性液体の最小着火エネルギーは、0.2～0.3 mJ となっている⁴⁾。また、崔らは、噴霧ミストの着火試験装置を試作し、静電気放電による低引火性液体の噴霧状における着火特性について測定を行っている⁵⁾。その結果、液体が蒸気状の条件では、最小着火エネルギーは温度が上昇するほど低下した。いずれの試料も引火点に顕著に依存し、100℃になると約1 mJ 以下、140℃になると約0.3 mJ 以下で着火すると報告している⁵⁾。ちなみに、0.2～0.3 mJ のエネルギー値は、人体が2 kV に帯電した場合、すなわち、少しでも痛みを伴う放電があるような静電気エネルギーにほぼ等しいとの報告がある⁴⁾。

実際のセル内での有機溶媒の着火に対しては、気相雰囲気中の湿度や気相の流れなど、上記のデータを取得した条件以外のファクタも大きく影響しているものと考えられる。また、放射線劣化による有機溶媒の分子量の低下の影響についても検討する必要がある。リスク評価の精度向上には、このような実条件を踏まえた着火の条件に係る科学的知見の整備が重要と考えられる。

b) 鎮火条件

火災規模は漏えい溶媒の量と火災発生後の消火操作に依存する。セル内火災は空気の流入を停止できれば、セル内酸素の濃度が減少し13%以下になれば消火する⁶⁾。内的事象の確率論的リスク評価（PRA）事例では、セルには換気口以外に空気の出入口がないとして、セル給気口に設置されている防火ダンパの閉止、セル排風機の停止による窒息消火のシナリオを想定している。地震時には、防火ダンパの閉止不全が考えられるが、この場合でも、セル給気口の閉塞ができれば窒息消火が有効であると考えられる。

旧日本原子力研究所（現日本原子力研究開発機構）（以下、「旧原研」という。）が実施した「再処理施設排気フィルタ事故時安全性実証試験」（昭和56年～昭和60年、科学技術庁委託研究）で

は、モデルプラントである再処理施設の分離第1セルを模擬した大型の火災事故時フィルタ実証試験装置（燃焼セル体積：20 m³）及び小型予備試験装置（同体積：0.5 m³）を用いて、セル内有機溶媒（*n*-ドデカン及び30 %TBP/*n*-ドデカン）火災時の火災持続条件やばい煙及び模擬放射性物質放出挙動データ、ばい煙の付加による HEPA フィルタ目詰まりデータなどを取得している⁷⁾⁹⁾。燃焼面積と燃焼セルに対する換気回数をパラメータとした燃焼試験を行い、*n*-ドデカン及び30 %TBP/*n*-ドデカンに対する燃焼持続領域を表すフィッティング式として、 $n \geq 0.309 s^{1.6}$ 及び $n \geq 2.01 s^{1.2}$ (n : 換気回数 [回/h], s : 抽出段相当段) を報告している。ここで s は、燃焼皿の面積（すなわち燃焼面積）を抽出器の段数に相当する段数として換算したものである。火災事故時フィルタ実証試験装置及び小型予備試験装置では、使用した燃焼皿1段当たりの面積は、それぞれ0.0768 m² 及び0.00191 m² である。これらの値は、燃焼セル体積当たりで換算すると、模擬したモデルプラントとほぼ同値（約0.00383 m⁻¹）となるように考慮されている。この結果を任意の形状の燃焼セルに適用する場合、対象とする燃焼セルの s を以下の式を用いて求めることを提案している⁸⁾。

$$s = 261/(V/A)$$

ここで、 V 及び A は対象とする燃焼セルの体積 [m³] 及び燃焼面積 [m²] であり、式中の261は実証試験装置の燃焼面積 (A_0) に対する燃焼セル体積 (V_0) の比 (=1/0.00383) である。任意の形状を有する燃焼セルに対しては、この式を適用することで s を計算し、上述の燃焼持続領域に当てはめることで、燃焼の持続性を評価することができるとしている。これらの結果から、燃焼性の低いTBPを含む混合溶媒は、*n*-ドデカン単独の場合と比べて、燃焼が持続するためには、より大きな換気回数が必要、すなわち、より多くの酸素供給が必要であることが分かる。

抽出塔から漏えいした有機溶媒や硝酸水溶液がセル内漏えい液受皿の集液部に流入し、漏えいした両相が2層に重なった状態で上層の有機溶媒が燃焼した場合、時間経過とともに下層の水相の温度が上昇し沸騰に至る。この場合、沸騰による水蒸気の放出とともに多量の溶媒ガスが放出してセル内で爆発的な引火を引き起こし、その爆風とセル内の酸素の欠乏によって鎮火する。セル内における有機溶媒火災の鎮火現象としては、気相中の酸素濃度の低下によるものに加えて、このボイルオーバー燃焼による鎮火も想定される⁸⁾。ボイルオーバー燃焼が生じると、気相中での爆発的な燃焼によるセル内の急激な圧力上昇が生じる。また、沸騰による両相の飛散により、両相に含有している放射性物質の放出も引き起こされる可能性がある。この場合のARFは、通常の燃焼時よりも高い値となることも予想される。ボイルオーバー燃焼を想定したセル内有機溶媒火災時の影響を評価する場合には、これらの点についても考慮するべきと考える。

(b) 放射性物質放出挙動評価

再処理抽出有機溶媒の燃焼に伴い、溶媒中に存在する放射性物質がばい煙とともに放出される。米国の事故解析ハンドブック (NUREG/CR-6410) においては、有機溶媒中に溶解している揮発性及び非揮発性化合物の燃焼に伴う ARF として以下のように示している¹⁾。

・ Volatile Compounds Dissolved in Organic Liquid : 1.0

- ・ non-Volatile Compounds Dissolved in Organic Liquid :
- ・ solution burns to self-extinguishment, no significant surface turbulence : 0.01
- ・ solution burns vigorously with surface turbulence to self-extinguishment : 0.03
- ・ vigorous burning with surface turbulence, to complete dryness : 0.1

再処理施設の安全性評価に使用されている基礎データとして、ANSI (American National Standards Institute) No.46.5, “Criteria for Safety-Related Features on Nuclear Fuel Cycle Facilities”の中で、放射性物質の放出により施設の敷地境界外での公衆の個人が受ける最大被ばく線量の評価のために参考にするべきデータとして挙げられているものがある。この標準データの基になったものに、E.Walker がまとめた報告書、BNFO-81-2 がある¹⁰⁾。この報告書では、公刊された報告書や技術論文が収集整理されており安全解析用基礎データ（測定範囲、使用例、推奨値）としてまとめられている。火災に伴う ARF に係る推奨値を以下に示す。

- ・ 希ガス : 1.0
- ・ ハロゲン : 1.0
- ・ 揮発性固体, 非揮発性固体, 飛散媒 : 0.01

上述の旧原研における実証試験でも 30 %TBP/*n*-ドデカンの燃焼に伴う放射性物質（模擬放射性物質を使用）の放出挙動データを取得している。有機溶媒中に含有している模擬放射性物質の気相への同伴係数 (= 模擬放射性物質の気相への移行速度 / (模擬放射性物質の有機溶媒中の濃度 × 有機溶媒の蒸発速度)) として、非揮発性である Sr で 0.05～0.5 %, 揮発性である Ru で 1～30 % とそれぞれ報告している⁸⁾。

有機溶媒火災に伴う放射性物質の放出挙動は、火災の激しさや規模に依存するものと考えられる。これらは、火災が生じているコンパートメント内の雰囲気中の酸素濃度や火災源に対する流速など、燃焼条件によって影響をうけることが予想される。上述の火災に伴う放射性物質の放出割合データは、必ずしもこれらのファクタに依存した形でまとめられているわけではない。燃焼条件を考慮したより詳細な解析・評価を実施するためにこれらのデータを適用する場合には、この点について考慮する必要があると考えられる。

燃焼に伴い放出される放射性物質は、ばい煙に付着し共に移行すると仮定して評価する場合がある。一方、有機溶媒の燃焼によって放出された放射性物質の内、ルテニウムなどの揮発性の高い化合物を形成する元素については、ばい煙に付着することなく、ガスとして移行経路中を移行する可能性もあると考えられる。この場合、HEPA フィルタによる捕集割合も低下する可能性があると考えられるため、検討が必要である。

(c) 熱流動及びばい煙移行評価

a) ばい煙放出挙動評価

米国のサイクル施設事故解析ハンドブック（以下、「NUREG-1320」という。）¹¹⁾では、火災事故時の簡易評価手法として、Tewarson のモデルに基づく評価手法（以下、「Hand Calculation モデル」という。）の使用を推奨している。可燃性物質の燃焼に伴うばい煙放出速度 $\dot{G}_s$ [kg/s] につい

ても、Hand Calculation モデルにおいて記載されている。後述の 5.1.3.3(2)(b)で示した $\dot{m}_{fu}$ に燃焼物質ごとのばい煙化率 Y_s [－] を乗ずることで計算できる。ケロシンに対しては、0.002～0.087 を推奨している。

上述の旧原研で実施した実証試験では、30 %TBP/*n*-ドデカンの燃焼に伴うばい煙化率として 5 % と報告している⁷⁾⁸⁾⁹⁾。この値は、試験に用いた大型の火災事故時フィルタ実証試験装置の燃焼セルからの排気の一部をサンプリングし測定したばい煙量から計算されたものである。したがって、燃焼セル内でのばい煙の沈着ロス分が含まれた値となっている点に注意するべきと考える。また、日本原子力研究開発機構（以下、「原子力機構」という。）が実施した「火災時エアロゾル評価試験」（平成 20 年～平成 22 年、旧原子力安全基盤機構（現原子力規制庁）委託研究）では、小規模試験装置を用いて、グローブボックスパネル材や再処理抽出有機溶媒（100 % *n*-ドデカンと 30 %TBP/*n*-ドデカン）の燃焼に伴うエネルギー放出速度や質量消費速度及びばい煙化率（＝ばい煙発生速度/質量消費速度）並びに HEPA フィルタの目詰まり係数などのデータを取得している¹²⁾。その結果では、30 %TBP/*n*-ドデカンと 100% *n*-ドデカンで質量消費速度には差がなかったが、ばい煙化率は 30 %TBP/*n*-ドデカンでは約 17 %、100 % *n*-ドデカンでは約 3 % という結果となったと報告している。原子力機構の試験では、小規模試験装置を用いて、燃焼物質の近傍から直接ばい煙を捕集しているため、旧原研の実証試験結果より高めの結果となっているものと考えられる。

ばい煙は、放射性物質の施設内への閉じ込めバウンダリを担う HEPA フィルタの目詰まりと差圧上昇を引き起こす可能性がある。HEPA フィルタへのばい煙の到達量を評価するためには、移行経路でのばい煙の沈着挙動を評価する必要がある。配管内でのばい煙の沈着挙動はばい煙の粒子径によって影響を受けるものと推察される。また、ばい煙の負荷に伴う HEPA フィルタの差圧上昇挙動も、HEPA フィルタに捕集されるばい煙の粒子径によって変化することが報告されている。したがって、火災時の HEPA フィルタの健全性を評価するためには、放出されるばい煙の粒子径に関する情報も必要となる。原子力機構の小規模試験では、30 %TBP/*n*-ドデカンの燃焼に伴って放出されるばい煙について重量基準の粒子径分布の経時変化を測定し報告している¹²⁾。結果を図 5.2 に示す。それによると、*n*-ドデカンの燃焼に伴うばい煙の質量中央径（ $d_{m50\%}$ ）は 0.10 μm であり、30 %TBP/*n*-ドデカンの燃焼に伴う質量中央径である 0.31 μm よりも小さい。HEPA フィルタの目詰まりによる差圧上昇に関しては、負荷するばい煙の粒子径が小さいほどその効果が大きくなる傾向があるとの結果が得られている。したがって、同じばい煙負荷重量で比較すると、*n*-ドデカンの燃焼に伴い放出されるばい煙の方が 30 %TBP/*n*-ドデカンの燃焼によるばい煙よりも早く HEPA フィルタの差圧上昇を引き起こす。ただし、ばい煙化率は 30 %TBP/*n*-ドデカンの方が大きいので、溶媒の燃焼量当たりで比較すれば、HEPA フィルタの差圧上昇に対する効果は、両者ではほぼ同じになる結果となったとしている。また、30 %TBP/*n*-ドデカンの燃焼に伴う個数基準の粒径分布は、燃焼が進行し、溶媒中に燃焼性が低い TBP が濃縮してくるにつれて、粒径が大きくなる方向にシフトすることを報告している。燃焼後期のばい煙をサンプリングしたところ、強い有機臭がしたことを踏まえると、燃焼後期には、ばい煙とともに高い濃度の TBP を含有した有機ミスト様の空輸性物質が放出される可能性を示唆している。

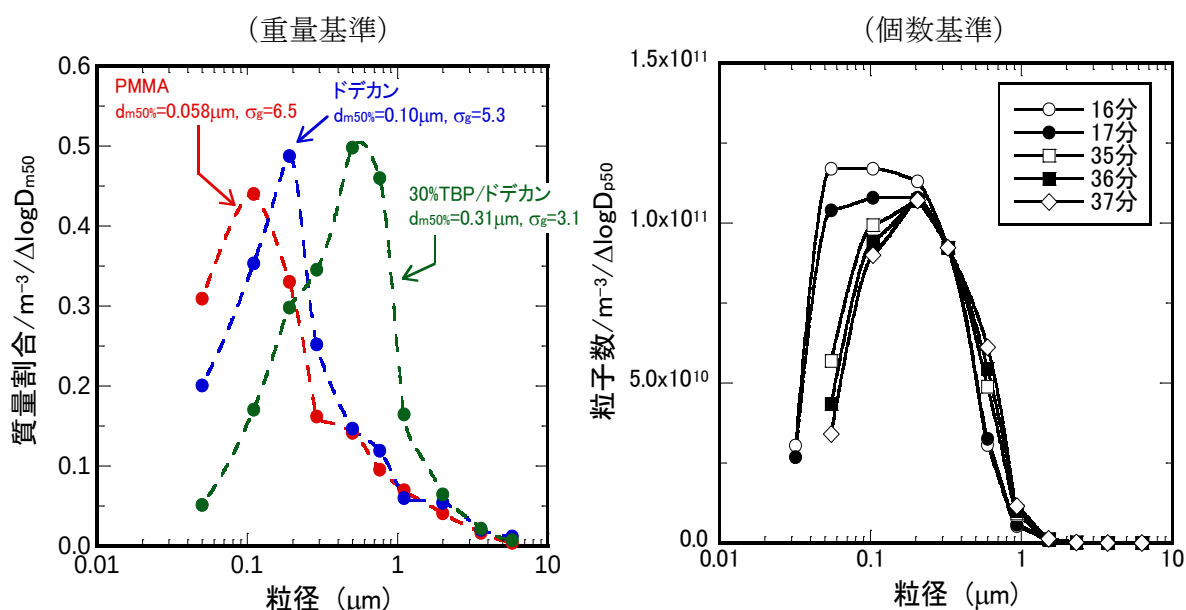


図 5.2 有機溶媒燃焼に伴う放出ばい煙の粒子径分布測定結果（参考文献 12）より転載）

b) 燃焼に伴う質量（燃焼ガス）及びエネルギー放出挙動評価

放射性物質やばい煙の移行経路中での移行挙動を評価するためには、境界条件として、質量消費速度やエネルギー放出速度、燃焼に伴う発熱量、ばい煙放出速度などの情報が必要となる。Hand Calculation モデル¹¹⁾では、燃焼に伴うエネルギー放出速度及びばい煙放出速度は、燃焼物質の質量消費速度にそれぞれ、発熱量及びばい煙化率を乗ずることで計算する。この考え方に基くと、熱流動及びばい煙移流計算を行うためには、燃焼物質の燃焼に伴う質量消費速度を設定することが必要となる。有機溶媒火災の場合には、質量消費速度は液面効果速度として実験的に測定することができる。また、質量消費速度を計算する Hand Calculation モデルを含めたいくつかのモデルが報告されており、これらを使用して計算によって求めることもできる。以下、報告されているいくつかの計算モデルについて紹介する¹³⁾。なお文献 13)では、ここで紹介する各評価モデル間の比較検討を行うため、比較的単純な標準的な問題として、 n -ドデカン（あるいはケロシン）のプール火災事象を取り上げ、各評価モデルから計算される燃焼面積に対する液面降下速度を比較している。各評価モデルを適用して質量消費速度やエネルギー放出速度を計算する際に、それぞれの評価モデルが示す保守性などを検討する際には参考になるものとする。

i) 拡張 Spalding の B ファクタモデル⁷⁾⁹⁾

5.1(3)で述べた旧原研で実施された実証試験において作成された火災時の液面燃焼モデルである。油滴の燃焼モデルである Spalding の B ファクタモデルを拡張し、溶媒抽出器における液面燃焼に適用した。評価対象を、溶媒相領域、溶媒蒸発領域（A 領域）、燃焼ガス移動領域（B 領域）に分けてモデル化している。抽出器内の有機溶媒は、火炎面からの熱流（＝対流＋輻射）と燃焼皿からの伝熱によって蒸発し、A 領域を通り、A 領域と B 領域境界面で形成される火炎面で燃焼した後、燃焼ガスとして B 領域へ移行する。モデル化に当たっては、①定常燃焼、②火炎面での燃焼の反応速度は無限大、③ガスの熱容量 C_p 、熱伝導率 λ 、拡散係数 D は全領域で一様、④ルイ

ス数 $Le (= \lambda / \rho C_p D)$ は 1.0 (ρ はガスの密度)，⑤A 領域では溶媒蒸気のみの移動を考慮（酸素は火炎面で消費されるため A 領域には存在しないと仮定），B 領域では酸素，燃焼ガス，ばい煙，未燃焼溶媒蒸気の移動を考慮することなどを仮定する。その上で，以下のような A，B 各領域及び溶媒相/A/B 領域間の物質移動，エネルギー移動を考慮した酸素の質量保存式，エネルギー保存式を連立させる。

[質量保存式（連続の式）]

$$(\dot{m}_{fu})_A + (\dot{m}_{H_2O})_A + (\dot{m}_{ox})_A = (\dot{m}_{fu})_B + (\dot{m}_{H_2O})_B + (\dot{m}_{pr})_B + (\dot{m}_{ox})_B \quad (5.1)$$

[領域 A におけるエネルギー保存式]

$$\begin{aligned} & (\dot{m}_{fu} h_{fu})_A + (\dot{m}_{H_2O} h_{H_2O})_A - \dot{q} \\ & = (\dot{m}_{fu} h_{fu})_{X=0} + (\dot{m}_{H_2O} h_{H_2O})_{X=0} - (\dot{q})_{X=0} \end{aligned} \quad (5.2)$$

[領域 B におけるエネルギー保存式]

$$\begin{aligned} & (\dot{m}_{fu} h_{fu})_B + (\dot{m}_{H_2O} h_{H_2O})_B + (\dot{m}_{pr} h_{pr})_B + (\dot{m}_{ox} h_{ox})_B - \dot{q}_{es} \\ & = (\dot{m}_{fu} h_{fu})_{X=0} + (\dot{m}_{H_2O} h_{H_2O})_{X=0} - (\dot{q})_{X=0} + \dot{m}_b \Delta H \end{aligned} \quad (5.3)$$

ここで，

- $\dot{m}_{fu}$: 溶媒の蒸発速度 (=溶媒の質量消費速度) [kg/s]
- $\dot{m}_{H_2O}$: 水の蒸発速度 [kg/s]
- $\dot{m}_{pr}$: 燃焼ガスの発生速度 [kg/s]
- $\dot{m}_{ox}$: 酸素の発生速度 [kg/s]
- h_{fu} : 溶媒のエンタルピー [J/kg]
- h_{H_2O} : 水のエンタルピー [J/kg]
- h_{pr} : 燃焼ガスのエンタルピー [J/kg]
- h_{ox} : 水のエンタルピー [J/kg]
- $\dot{q}$: 火炎から溶媒方向への熱流量 [J/s]
- $\dot{q}_{es}$: B 領域から外部へ逃げた熱流量 [J/s]
- $\dot{m}_b$: 溶媒の燃焼速度 [kg/s]
- ΔH : 溶媒の燃焼熱 [J/kg]

である。また，添え字 A，B 及び $X = 0$ はそれぞれ A 領域，B 領域及び溶媒表面における値であることを意味する（ $(\dot{q})_{X=0}$ は溶媒表面に入る熱流量 [J/s] を意味する。）。燃焼パラメータ ($\xi, \varepsilon, \psi, \gamma, f, d, Y_{ox}$) を導入し，これらの式を連立することで溶媒の燃焼速度 $\dot{m}_b$ の評価式として以下の式を得る。

$$\dot{m}_b = \xi (\dot{m}_{fu})_A = \frac{\pi D_b^2 h}{4(1+\delta) C_{p, fu}} \ln \{ (1+\delta) \varepsilon B + 1 \} \quad (5.4)$$

$$B = \frac{C_{p, fu}(T_{\infty} - T_s) + f \Delta H (1 - \gamma) Y_{ox}}{L_{fu}(1 - \psi)} \quad (5.5)$$

$$h = \frac{\lambda}{D_b} \left[3.106 + 0.14 (Gr \cdot Pr)^{1/3} \{1 - \exp(-1.72 D_b)\} \right] \quad (5.6)$$

ここで,

- D_b : 溶媒液面の円相当直径 [m]
- h : 火炎から溶媒面へ熱伝達係数 [$\text{J}/\text{m}^2\text{sK}$]
- $C_{p, fu}$: 溶媒の熱容量 [J/kgK]
- T_{∞} : ∞ 位置の気相温度 [K]
- T_s : 溶媒液面温度 [K]
- ΔH : 溶媒の燃焼熱 [J/kg]
- L_{fu} : 溶媒の蒸発潜熱 [J/kg]
- λ : ガス相の熱伝導率 [J/msK]
- Gr : グラスホフ数 [–] ($= (g D_b^3 \beta \Delta T \rho^2) / \mu^2$)
- ΔT : 溶媒液面温度と ∞ 位置の気相温度との差 ($T_s - T_{\infty}$) [K]
- Pr : プラントル数 [–] ($= \mu C_{p, g} / \lambda$)
- $C_{p, g}$: 気体の熱容量 [J/kgK]
- β : 体膨張率 [$1/\text{K}$]
- ρ : 気体の密度 [kg/m^3]
- μ : 粘性係数 [$\text{Pa} \cdot \text{s}$]

である。また、各燃焼パラメータは、実験に基づいて決定されたもので、以下のように定義される⁷⁾。

- ξ : 1.0 (大気火災)
 $\exp[0.889 \ln(F/S) + 1.175]$ ($F/S \leq 0.15$)
 $\exp[0.128 \ln(F/S) - 0.268]$ ($F/S > 0.15$)
- ε : 0.3~0.4
- ψ : $0.85 - 0.46 \exp(-4.2 D_b)$
- γ : 0.15
- f : 0.288 (n -ドデカン), 0.333 (30 %TBP/ n -ドデカン)
- δ : 0.1 (大気火災), 0 (セル内火災)
- Y_{ox} : 0.232 (大気火災), $0.232 \exp[-28.8(V_B/V_C)]$ (セル内火災)

ここで

- F : 換気流量 [kg/s]
- S : 燃焼面積 (溶媒の断面積) [m^2]

V_f : 火炎体積 [m³]

V_c : セル体積 [m³]

である。さらに、溶媒燃焼に伴う質量放出速度 $\dot{M}_s$ [kg/s]とエネルギー放出速度 $\dot{E}_s$ [J/s]は以下の式から算出される。

$$\dot{M}_s = (1 + \delta)m_{fu} \quad (5.7)$$

$$\dot{E}_s = \Delta H \xi m_{fu} (1 - \gamma) \quad (5.8)$$

ii) NUREG-1320 における Hand Calculation モデル 11)

NUREG-1320 では、サイクル施設で想定される火災、爆発、漏えい、竜巻、臨界、故障（設備の破損、制御システムの喪失など）時の放射性物質の放出移行評価を行う際に必要な評価手法と推奨データが具体的なサンプル問題とともに示されている。評価手法としては、詳細評価手法とともに簡易評価手法が記載されており、記載されている推奨データと簡易評価手法を適宜組み合わせることで、極めて簡便に事故時の安全性を評価することが可能である。火災事故に関しては、様々な可燃性物質の燃焼時の発熱速度やばい煙発生率などのデータ、質量・エネルギー放出速度の評価式、さらに、燃焼時の放射性物質の放出速度の評価式などが記載されている。

上述のように、NUREG-1320 では、火災事故時の簡易評価手法として、Tewarson のモデルに基づく Hand Calculation モデルの使用を推奨している。これは、以下のような定常燃焼時の熱収支に基づいた評価式より、溶媒の質量消費速度 (= 溶媒の蒸発速度) $\dot{m}_{fu}$ [kg/s]を求め、更に、エネルギー放出速度 $\dot{E}_s$ [J/s]を評価するモデルである。

$$\dot{m}_{fu} = (\dot{q}_e'' + \dot{q}_{fc}'' + \dot{q}_{fr}'' - \dot{q}_{rr}'')A/L \quad (5.9)$$

$$\dot{E}_s = X_a H_t \dot{m}_{fu} \quad (5.10)$$

ここで、

$\dot{q}_e''$: 溶媒の単位表面積当たりの外部からの熱流 [kW/m²]

$\dot{q}_{fc}''$: 溶媒の単位表面積当たりの火炎対流熱流束 [kW/m²]

$\dot{q}_{fr}''$: 溶媒の単位表面積当たりの火炎輻射熱流束 [kW/m²]

$\dot{q}_{rr}''$: 溶媒の単位表面積当たりの輻射熱損失 [kW/m²]

A : 溶媒の燃焼表面積 [m²]

L : 溶媒の蒸発潜熱 [kJ/g]

H_t : 溶媒の燃焼熱 [kJ/g]

X_a : 理論的な溶媒の燃焼熱の内、実際に放出される熱の割合 [—]

である。なお、 $\dot{q}_e''$ は省略可能であるとしている。NUREG-1320 ではいくつかの可燃性物質ごとにこれらパラメータを記載している。ケロシンに対するパラメータを抜粋して以下に記す。

L : 2.4 [kJ/g]

$$\begin{aligned}
\dot{q}_{rr}'' &: 8 \text{ [kW/m}^2\text{]} \\
\dot{q}_{fc}'' &: 11 \text{ [kW/m}^2\text{]} \\
\dot{q}_{fr}'' &: 14 \text{ [kW/m}^2\text{]} \\
H_t &: 46 \sim 47.9 \text{ [kJ/g]} \\
X_a &: 0.91 \text{ [-]}
\end{aligned}$$

NUREG-1320 では、記載していない可燃物については、化学的・物理的特性、加熱されたときの融け方や焦げ方を記載した物質と比較し、最も類似している物質についての値を適用することを推奨している。

Hand Calculation モデルを用いることで、極めて簡便に事故時のソースターム評価を行うことができ、迅速な施設の安全性の評価を行うことが可能となる。しかしながら Hand Calculation モデルは、十分な酸素の存在を仮定しているなど、コンパートメント内の過渡的变化の評価は不可であり、あくまでも小規模かつ基本的な火災シナリオに対しての使用が推奨されている簡易評価手法であることを念頭に置くべきである。NUREG-1320 では、より複雑な事象のソースターム評価には、火災によるばい煙及び放射性粒子の放出ソースタームを評価する目的で開発された計算コードである FIRIN などの使用を推奨している。

iii) FIRE SOURCE SIMULATION モデル¹⁴⁾

米国原子力規制委員会（NRC）の要請に基づき、ロスアラモス国立研究所において提案されている評価モデルである（以下、「FSS モデル」という。）。強制換気条件下での火災の進展を、数値的に定義（火災室内での燃焼物の位置、燃焼面積、初期排気流量、酸素供給（欠乏）条件を設定）するとともに、火災タイプを 12 種類に細分類し、それぞれの場合について燃焼パラメータをリストアップしている。FSS モデルでは、質量燃焼速度（mass burning rate）を「単位時間に蒸発し火炎に入る燃料の質量」と考え、火災タイプごとの燃焼パラメータを適用するとともに以下の式を連立することで、火災タイプごとの質量燃焼速度を評価することとしている。

$$\dot{m}_1 = \sum_{i=1}^I \left(b_{1i} - b_{2i} \times \exp \left(-\frac{B \times A_{Bi}}{b_{3i}} \right) \right) A_{Bi} \times B \quad (5.11)$$

$$\beta_1 = \chi_{a1} \frac{H_T}{13} \quad , \quad H_T = \frac{\sum_{i=1}^I H_{Ti} \times A_{Bi}}{\sum_{i=1}^I A_{Bi}}$$

$$\chi_{a1} = \frac{1}{\dot{m}_1} \sum_{i=1}^I \chi_{ai} \left\{ b_{1i} - b_{2i} \times \exp \left(-\frac{B \times A_{Bi}}{b_{3i}} \right) \right\} A_{Bi} \times B$$

ここで、

$\dot{m}_1$: 質量燃焼速度 [g/s]

i	: i パッケージ中の燃料要素番号 ($i=1,2,\dots,I$)
b_{1i}	: 質量燃焼速度の輻射上限 [g/sm ²]
b_{2i}	: 小規模燃焼面積に対する対流による加熱の結果としての質量放出 [g/sm ²]
b_{3i}	: 輻射制御された質量燃焼速度に対する参照面積 [m ²]
A_{Bi}	: 燃料パッケージ i の燃焼面積 [m ²]
B	: 位置ファクタ (= 1 : ゾーンの中央, = 2 : 壁の中央, = 4 : コーナー)
Z	: 天井高さ [m]
H_{Ti}	: タイプ “ i ” の火災の燃焼熱 [kJ/g]
ρ_a	: 流入空気の密度 [g/L]
χ_{ai}	: 燃料パッケージコンポーネントの熱放出効率 [—]

である。FSS モデルでは、火炎に対して与えられる酸素供給量の限界により燃焼が制限されるモデルについても提案されている。この場合の質量燃焼速度 $\dot{m}_e$ は、以下の式から算出される。したがって、FSS モデルでは、 $\dot{m}_i$ 及び $\dot{m}_e$ のうち小さい方の値を質量燃焼速度 $\dot{m}$ [g/s] として採用する。

$$\dot{m}_e = \frac{0.233}{\beta_1} \rho_a \left(\frac{Z}{0.166} \right)^{2.5} \quad (5.12)$$

FSS モデルで記載されている燃焼パラメータの内、プール火災に対するものを抜粋して以下に記す。なお、FSS モデルでは、この他、スプレー、水平及び垂直状態の固体（プラスチック、セルローズ）に対するパラメータが記載されている。

- ・ きれいな燃焼 (Clean burning)

$$b_{1i} = 80.0, \quad b_{2i} = 72.3, \quad b_{3i} = 0.33, \quad \chi_{ai} = 0.95, \quad H_{Ti} = 30.5$$

- ・ 中程度のばい煙発生を伴う燃焼 (Moderately smoky)

$$b_{1i} = 80.0, \quad b_{2i} = 72.3, \quad b_{3i} = 0.33, \quad \chi_{ai} = 0.85, \quad H_{Ti} = 44.6$$

- ・ 大量のばい煙発生を伴う燃焼 (Very smoky)

$$b_{1i} = 80.0, \quad b_{2i} = 72.3, \quad b_{3i} = 0.33, \quad \chi_{ai} = 0.35, \quad H_{Ti} = 41.8$$

iv) 有機溶媒燃焼時の溶媒燃焼速度データ ¹⁵⁾

1977 年から、独国科学技術省 (German Ministry of Research and Technology) の要請のもとで、Dornier System 社が溶媒火災、ジルカロイ火災、レッドオイル爆発 (TBP などを配位した錯体の急激な分解反応を指す)、臨界など、再処理施設での主な事故についての検討を実施し、これら事故における主な支配因子としての物理化学的、工学的条件のモデル化を検討している。その検討では、確率論的手法を用いて、再処理施設における事故のシナリオ評価を実施しており、その結果、溶媒火災に関しては、スプレーされたエアロゾル状の溶媒の爆燃 (燃焼による爆発の内、膨張速度 (炎の伝播速度) が音速に達しないもの) とプール火災が考えられたが、通常運転の条

件では、溶媒のスプレーの形成の確率は低いと判断されることから、後者のプール火災のモデル化を検討することとしている（以下、「Solvent Fire モデル」という。）。この検討では、プール火災に伴う液面降下速度の実験値（ケロシンを用いた実験）を引用し、燃焼セル体系をモデル化して、セル内の温度、圧力、排気ダクト内の流量の経時変化などを評価している。

プール火災に係る実験値に基づく考察としては、次項が挙げられている。

- ①エネルギー放出速度は溶媒によって覆われた面積（この場合ケロシンの表面積）と燃焼速度（燃焼面積で除することで液面降下速度に換算される。以下同じ。）に依存すること。
- ②大気下における容器内でのケロシンの燃焼に伴う液面降下速度は、約 1～4 mm/min であること。
- ③閉じた容器内の燃焼速度は大気下での燃焼速度より約 40 %低く、燃焼面直径 1 m までの範囲では、液面降下速度は 1.5 mm/min であること。
- ④セル内の燃焼の進行に伴い、酸素の消費と燃焼生成物（CO₂、H₂O など）濃度の上昇により、セル内雰囲気の不活性化が進行し、酸素濃度が 13%に達したところで自然鎮火すること。
- ⑤TBP とケロシン混合系の燃焼に対しては、TBP の燃焼に伴うばい煙発生率の上昇、レッドオイルの形成及び熱分解など、事象が複雑であるため今後の検討課題であること。

c) HEPA フィルタの差圧上昇挙動評価

可燃性物質の燃焼に伴って放出されるばい煙などの空輸性物質は、配管などの移行経路での沈着を経て、HEPA フィルタに捕集される。HEPA フィルタに大量のばい煙が負荷すると目詰まりにより差圧が上昇し、場合によっては HEPA フィルタの破損が生じる可能性がある。HEPA フィルタは、放射性物質の施設内への閉じ込めバウンダリを担っている重要な設備であるため、HEPA フィルタの破損に至るまでの現象を把握し、破損に至るまでの時間的猶予を定量的に評価しておくことは、事故時の安全対応の策定を含めた、安全性を確認する上で重要である。

上述の旧原研の実証試験において、*n*-ドデカン及び 30 %TBP/*n*-ドデカンの燃焼に伴う HEPA フィルタの目詰まり挙動データが取得されている。実証試験では、フィルタチャンバーに、6 個のハーフサイズ（610 mm×305 mm×292 mm）の HEPA フィルタをそれぞれ上下 2 段設置している。フィルタチャンバーを流れる流量は 4380 m³/h であった。この条件下で、それぞれの組成の溶媒燃焼の進行に伴う HEPA フィルタの差圧（ ΔP [mmAq]）を測定し、HEPA フィルタに対するばい煙の負荷重量（ L_s [g/台]）との関係を整理した結果、以下の関係式を得たとしている⁷⁾⁸⁾⁹⁾。

$$\Delta P = 0.00065 L_s^2 + 0.2761 L_s + 22.5753$$

なお、ばい煙の負荷量については、実測値ではなく、(b)i)で述べた拡張 Spalding の B ファクタモデルを用いて計算した溶媒の燃焼速度 $\dot{m}_b$ の時間積分値に、a)で述べたばい煙化率 5 %を乗じることで求めている点に注意が必要である。このことは、溶媒を燃焼させた燃焼セルから HEPA フィルタまでの配管中でのばい煙の沈着割合は無視していることになる。これは、上記の関係式は、あくまでも実証試験装置の形状によるファクタを考慮したうえで、HEPA フィルタの差圧上昇を $\dot{m}_b$ との関係で把握することを目的としたためであると推察される。一方で、この実証試験では、配管（直径：0.14 m、長さ：20.3 m）内を移行（流速：2.3 m/s）する過程でのばい煙の沈着割合

についても検討しており、ばい煙の浮遊率が約 50 %に低下したことも報告している。このことを考慮すると、上記の関係式の基になった HEPA フィルタの差圧上昇は、実際には、より少ないばい煙の負荷によって引き起こされている可能性があることを意味するとも考えられる。ばい煙の負荷重量から HEPA フィルタの差圧の関係を求める際に上記の関係式を適用する際にはこの点に注意する必要があると考える。

その他、高濃度ダスト、高温、多湿、衝撃波、大風量などの苛酷条件下での HEPA フィルタの性能に関するデータが取得されている¹⁶⁾。試験では旧動力炉・核燃料開発事業団（現原子力機構）の東海再処理工場のセル換気系で使用されている HEPA フィルタを使用している。JIS11 種ダスト（重量中位径：1.2 μm ）、NaCl 粒子（同：0.2 μm ）を 100 mg/m^3 の高濃度で HEPA フィルタに負荷させた試験では、HEPA フィルタの差圧が 460 mmAq 前後でリークが確認されている。なお、Gunn らは、リークが発生する差圧として 750 mmAq を報告している¹⁷⁾。対象とする HEPA フィルタの最高使用温度 200 $^{\circ}\text{C}$ まで加熱した試験では、一部のフィルタに除染係数（DF：Decontamination Factor）への効果において、DF が $10^4 \sim 10^5$ の大きさでの微小なリークが冷却時に発生した。この温度を超えた加熱条件（240 $^{\circ}\text{C}$ 、6 時間加熱）では、DF が 10^3 を維持できないリークの発生が冷却時に確認された。この原因として、冷却時に密封材のシリコン樹脂に亀裂が生じたためとしている。また、水ミストを負荷させた試験では、ろ紙の引張強度の低下により、差圧が 250 mmAq を超えたところからリークが観察されている。

このように、HEPA フィルタのばい煙による目詰まり挙動や苛酷条件下での性能については、系統的なデータが取得されてきている。しかしながら、これらの試験で使用された HEPA フィルタは、試験当時の原子力プラントで採用されていた標準風量タイプのものであり、現在採用されている大風量タイプのものとは構造が異なる。これらの知見を施設の安全性の評価に適用する場合には、この点を念頭に置く必要があるものと考えられる。

ばい煙などの空輸性物質の負荷による HEPA フィルタの差圧上昇の詳細なモデル化については、目詰まりの機構の複雑性の観点から非常に困難である。Mocho らは、HEPA フィルタに対する NaCl エアロゾルの負荷試験で得られた差圧上昇挙動結果を踏まえ、HEPA フィルタの差圧上昇の領域を 3 領域に分けて議論している¹⁸⁾。それによると、3 領域として、

第 1 領域：フィルタを形成するメディアによる内部での捕集

第 2 領域：粒子ケーキの形成による表面捕集

第 3 領域：顕著な差圧上昇を引き起こすことで特徴づけられる表面積の減少

に分けている。このように、NaCl のような湿潤エアロゾルの場合、HEPA フィルタへの負荷が進行すると急激な目詰まりと差圧上昇を引き起こす可能性がある。この HEPA フィルタの急激な差圧上昇については、30 %TBP/*n*-ドデカンを対象とした原子力機構が実施した小規模試験においても観察されている¹²⁾。燃焼後期のばい煙をサンプリングしたところ、強い有機臭がしたことを踏まえると、燃焼後期には、ばい煙とともに高い濃度の TBP を含有した有機ミスト様の空輸性物質が放出されたものと考えられる。HEPA フィルタに対して有機ミストが付着すると一気に目詰まりが進み、差圧上昇が引き起こされる可能性がある。なおこの試験では、現在サイクル施設において使用されている仕様の HEPA フィルタを、フィルタ内部の形状を変えずに小型化したものを

使用している。

5.2 TBPなどを配位した錯体の急激な分解反応

(1) 事故の概要

図 5.3 に TBP などを配位した錯体の急激な分解反応時の放射性物質放出量評価において考慮される評価項目の概要を示す。なお、ここでは、六ヶ所再処理工場の設計基準事故の代表事象¹⁹⁾の一つであるプルトニウム濃縮缶における事故を例として取り上げている。プルトニウム濃縮缶などに TBP などの有機物が多量に混入した場合、これらは硝酸又は硝酸プルトニウムと錯体を形成し、高温（135℃以上）に加熱されると錯体の急激な熱分解が生じる可能性がある。錯体の急激な熱分解反応に伴ってエネルギーが気相へ放出されるため、濃縮缶などの閉鎖空間中の体積が爆発的に急膨張し、場合によっては、濃縮缶の破損と溶液中の放射性物質の装置外への放出が引き起こされるおそれがある。

TBP などを配位した錯体の急激な熱分解反応時の影響を評価するためには、濃縮缶内での事故発生・進展評価（圧力評価）のための錯体の熱分解反応速度や反応熱などのデータと、濃縮缶が破損した場合の放射性物質の放出挙動に関わるデータが必要となるものと考えられる。これらの各項目について調査・整理し、(3)にまとめた。なお、仮に濃縮缶の破損によって濃縮缶外へ放射性物質が移行した場合でも、これら物質の移行経路における沈降・沈着挙動評価については、セル内有機溶媒火災と同様の解析モデルが適用可能であると考えられる。したがって、利用可能な基礎的データとしては、事故発生・進展評価及び放射性物質放出挙動評価に着目することとした。

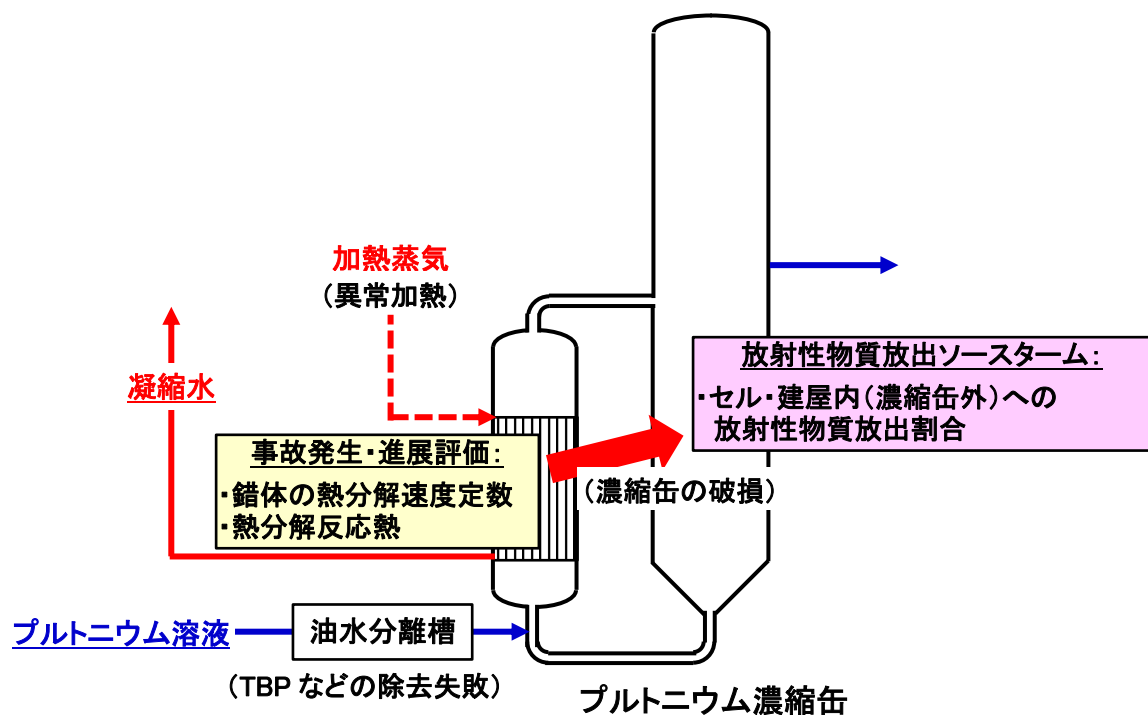


図 5.3 TBP などを配位した錯体の急激な分解反応時の放射性物質放出量評価において考慮される評価項目の概要（例：プルトニウム濃縮缶における事故）

(2) 想定される事故シナリオ

TBP 及びその分解生成物である DBP (リン酸ジブチル), MBP (リン酸モノブチル) が蒸発缶などに多量に混入して硝酸などの錯体を形成し, 加熱蒸気温度の上昇 (異常加熱) と濃縮缶での溶液の過濃縮による沸点上昇により錯体の温度が 135 °C 以上に上昇すると錯体の急激な熱分解が生じる可能性がある。TBP などを配位した錯体の急激な分解反応が生じるための条件としては, 例えば以下のようなものが考えられる。

- ・濃縮缶への TBP などの有機溶媒が大量に流入
 - TBP 洗浄器及び油水分離槽での TBP などの除去失敗
- ・熱的制限値 (135 °C) 以上への過加熱
 - プルトニウム濃縮缶の加熱蒸気が異常加熱した場合の温度検出失敗
 - インターロックによる蒸気発生器への一次蒸気の供給遮断の失敗
 - インターロックによるプルトニウム濃縮缶への加熱蒸気の供給遮断の失敗

(3) 利用可能な基礎的データ

(a) 事故発生条件

旧原研において, TBP などを配位した錯体の急激な分解反応に関わる反応速度式ならびに反応熱データが取得されている²⁰⁾。

a) 反応速度式

Ar 又は He ガスを流通させた反応槽において, 硝酸あるいは硝酸ウランを含む TBP/*n*-ドデカン溶媒を攪拌しながら加熱し, 熱分解により生成する熱分解ガス量を計測した。その結果, 有機溶媒中に抽出された硝酸濃度と熱分解ガス積算生成量の間に関係を確認した。さらに, 熱分解反応が溶媒中の硝酸濃度に対して一次であると仮定し, 定温法 (反応槽温度を一定) 及び昇温法 (同温度を一定速度で加熱) の 2 種類の方法を用いて反応速度定数 (頻度因子 $S[\text{min}^{-1}]$, 活性化エネルギー $\Delta E[\text{kJ/mol}]$) を導出した。その結果, 定温法で, $S=2.19 \times 10^{14} \text{ min}^{-1}$, $\Delta E=122.6 \text{ kJ/mol}$, 昇温法で, $S=5.38 \times 10^{14} \text{ min}^{-1}$, $\Delta E=125.4 \text{ kJ/mol}$ と, 両方法でほぼ一致する結果を得ている。

b) 反応熱

示差熱分析装置 (DTA) 及び示差走査熱量分析装置 (DSC) を使用し, 有機溶媒と硝酸の反応熱を測定した。その結果, 以下を得たとしている。

- ・100 %TBP では, TBP 中の硝酸濃度に対して直線的に増加 (飽和条件: 1,500 kJ/kg-TBP)
- ・*n*-ドデカン希釈に伴い高温/低温側に発熱ピーク発現
- ・硝酸飽和 TBP に硝酸水溶液が存在する場合, 存在しない場合より高い発熱量 (4,100 kJ/kg-TBP (at 7 mol/L 硝酸水溶液))
- ・*n*-ドデカンと硝酸水溶液混合系では, 硝酸/*n*-ドデカンのモル比が 15 までは増加しそれ以上で一定。
- ・硝酸と硝酸ウランが配位した 100 %TBP の重量当たりの反応熱は, 硝酸のみが配位した場合よ

りも小。

(b) 放射性物質放出挙動評価

旧原研で実施した“再処理溶媒と硝酸との熱分解反応に関わるエアロゾル発生試験”において、TBPなどを配位した錯体の急激な分解反応に伴う模擬放射性物質の放出挙動データが取得されている²¹⁾。試験は、以下のとおりである。

- ・ 模擬放射性物質として Ce を使用。
- ・ ラプチャーディスク付反応容器中で、ガンマ線照射（～2,000 kGy）により劣化させた 30 %TBP/*n*-ドデカンと硝酸を電気ヒーターで加熱。生成した TBPなどを配位した錯体を含む溶媒の熱分解によって発生する熱分解ガスなどが反応容器内に蓄積し、所定の圧力（実験パラメータ：2.9～6.9 MPa）に到達するとラプチャーディスクが破裂し、Ce、熱分解ガス、水蒸気、溶媒ミストが反応容器外（第1モデルセル）へ放出。
- ・ 第1モデルセルには着火源を設置。燃焼条件が満たされると溶媒ミストは燃焼。
- ・ 反応容器から放出されたエアロゾル濃度と粒径分布を取得。Ce 浮遊率を評価。

その結果、Ce 浮遊率は、溶媒着火が生じた条件で 2.3～6.3 %，溶媒着火が生じない条件で 0.07～0.03 %となり、ラプチャーディスク破裂後に溶媒着火が生じた場合のほうが、40 倍ほど大きな値となったと報告している。

5.3 五因子法による評価

以上の調査結果を踏まえ、五因子法による影響評価を行う上での留意点についてまとめる。

- ・ セル内有機溶媒火災では、機器から漏えいした有機溶媒中に含有された放射性物質量が、また、TBPなどを配位した錯体の急激な分解反応では、プルトニウム濃縮缶中に存在する放射性物質量が、それぞれ MAR に相当するものと考えられる。後者の事故の場合、放射性物質は、濃縮缶の破損によって短時間で機器外へ放出されるため、DR としては、保守側に 1 と想定しても矛盾はないものと考えられる。一方、前者の事故の場合には、燃焼面積や継続時間などによって燃焼に関与する有機溶媒量が異なる。これらの因子は、セル形状や有機溶媒の漏えい量、あるいは、事故対応策の内容及び効果などによって決まる。そのため、DR については、これらの因子を考慮したうえで、値設定を行うことが必要と考えられる。
- ・ セル内有機溶媒火災及び TBPなどを配位した錯体の急激な分解反応ともに、ARF については、機構論的評価モデルは存在しない。そのため、放射性物質の放出挙動に関わる実験データやハンドブック推奨値を適用することになる。TBPなどを配位した錯体の急激な分解反応時の ARF については、報告例が少ないため、値の設定に際しては注意が必要であると考えられる。
- ・ LPF を解析的に求めるためには、有機溶媒燃焼に伴う質量・エネルギー放出速度を境界条件とした熱流動解析を実施する必要がある。また、エアロゾル状放射性物質の移行は、なんらかの沈降・沈着モデルを適用して評価することになる。なお、セル内有機溶媒火災及び TBPなどを配位した錯体の急激な分解反応ともに、LPF については、同様のアプローチを行うことが可能

と考えられる。ただし、セル内有機溶媒火災時において、有機溶媒とともに漏えいした水相中に含有された揮発性放射性核種が、水相の加熱によって気相中に揮発した場合、これらはガス状として移行する可能性がある。これら核種については、上記の沈降・沈着モデルで解析評価可能か、検討する必要があると考えられる。

- ・特に大量のばい煙が発生するセル内有機溶媒火災においては、HEPA フィルタの健全性評価のために、ばい煙の放出・移行挙動及び HEPA フィルタのばい煙の目詰まりによる差圧上昇挙動評価が必要である。

5.4 火災時の放射性物質移行挙動評価のための解析コード

上述のように、事故時の影響を評価するためには、放射性物質の移行挙動を解析することが必要である。放射性物質は、火災によって気相に放出された質量（燃焼ガス）やエネルギーがソース項となって、換気系や建屋内での流体の熱流動に伴い移行する。そのため、放射性物質の移行挙動を解析するためには、事故時の熱流動と連動して、放射性物質の移流を計算する必要がある。火災時の熱流動・物質移流を解析コードは数多く存在する。ここでは、いくつかの解析コードを取り上げ、解説する。

(1) CFAST

CFAST (Consolidated Model of Fire Growth and Smoke Transport) は、米国商務省国立標準技術研究所（以下、「NIST」という。）において開発されたゾーンモデル（ばい煙や温度の分布を考慮して解析対象とするコンパートメント内を単層もしくは二層とみなし、気体の質量や熱的なバランスを計算する手法）の熱流動・ばい煙移行解析コードであり、汎用的な火災シュミレーションコードとして火災事象の評価に用いられている²²⁾。CFAST では、任意のテキストエディタを使用してテキストデータを入力することにより、入力データファイルを作成する。ノードの種類には、燃焼室などの区画、及び環境ノードがある。また、ブランチの種類としては、ダクト、ファン（ブローア）、開口部（ドア、窓など）を設定することができる。ノードの設定項目として、ノードの寸法及びノードの位置を決定する座標を入力する。ノードは 2 ゾーンモデルになっており、高温領域と低温領域に分けられる。ブランチの設定項目では、ノードの設定項目と同様にブランチの寸法及びブランチの接続位置を入力する。熱流動計算のソースタームは、大気下において計測された熱放出割合（Heat Release Rate）（以下、「HRR」という。）及び大気下において計測された質量減少速度（Pyrolysis rate）を設定する。CFAST では、ネットワーク機器としてフィルタを選択・設定することができない。そのため、HEPA フィルタのばい煙の目詰まりによる差圧上昇挙動を評価することはできない。

(2) FDS

FDS (Fire Dynamics Simulator) は、NIST において開発されたフィールドモデル（有限要素法を用いて解析対象の空間をモデル化し、熱流動や物質移流を解析する手法）の熱流動解析コードであり、汎用的な火災シュミレーションコードとして火災事象の評価に用いられている²³⁾。FDS コードは、有限要素法を用いた 3 次元の熱流動解析コードで、セル内での熱流動及び物質移流を解析し、火災事象の進展を詳細に評価することができる。一方で、詳細なメッシュ数を設定

した場合には、膨大な計算時間を要する。

(3) SYLVIA

SYLVIA (Software system for analyzing ventilation, fire and air-borne contamination) は、仏国放射線防護・原子力安全研究所 (IRSN) において開発された非公開のゾーンモデルの熱流動及び物質移行解析コードである。

SYLVIA では、入力データ作成エディタを起動することにより、ノード及びブランチをマウスで選択して、換気系ネットワークを構築することができる。ノードの種類には、ゾーン及び燃焼源を設定する燃焼室、配管などの合流点などに用いる領域 (部屋)、及び環境ノードがある。また、ブランチの種類としては、流動抵抗を設定する機器として、ダクト、フィルタ、ファン (ブロア)、バルブ、ドアなどを選択することができる。ノードに対しては、ノードの寸法及びノードの位置を決定する座標や計算開始時における初期圧力及び初期温度を入力する。また、ブランチに対しては、ノードの設定項目と同様にブランチの寸法及びブランチの位置を決定する座標や計算開始時における流量条件などを入力する。ノードのうち、燃焼ゾーンについては、1 ゾーンあるいは 2 ゾーン (ノード上層とノード下層に分けてモデル化) のいずれかの方法でモデル化する。熱流動計算のソースタームの設定方法としては、

- ・大気下において計測された HRR を設定する場合 (Fixed heat release rate)
- ・大気下において計測された質量減少速度を設定する場合 (Gas burner)
- ・プール火災反応として設定する場合 (Pool Fire)
- ・キャビネット火災設定する場合 (Electrical cabinet fire)

の 4 つの機能から選択する。フィルタの目詰まり係数の評価式は、

- ・フラットフィルタの場合
- ・溶媒の燃焼により生じたばい煙の捕集に用いるブリーツフィルタの場合
- ・固体の燃焼により生じたばい煙の捕集に用いるブリーツフィルタの場合
- ・その他の場合

の 4 つから選択する。

このように SYLVIA では、HEPA フィルタのばい煙の目詰まりによる差圧上昇挙動を評価する際には、燃焼物質の形態ごとに、評価式を選択する。解析対象としている溶媒火災実証試験のように、有機溶媒の燃焼に対して適用することになる目詰まり評価式については、燃焼物質が受け取る熱流束の評価が困難であるため、固体の燃焼に対して適用される評価式ベースとして改良した式を適用することを推奨している。

(4) CELVA-1D

CELVA-1D (Cell Ventilation System Analysis-one dimensional) は、再処理施設のセル内で想定される火災・爆発時における放射性物質閉じ込め効果を評価するために、旧原研で開発された²⁴⁾。セル、ダクト、流体機器、HEPA フィルタなどが複雑に絡み合ったネットワーク内部を一次元でモデル化し、火災・爆発事故時のネットワーク内での熱流動 (圧力、温度、流速の伝播) 及び放射性物質の移行挙動を計算する。

(5) FEVER

FEVER (Fire Effect in Ventilation System and Room) は、旧三菱原子力工業（現三菱重工業）が作成した解析コードであり、六ヶ所再処理工場におけるセル内有機溶媒火災時のセル内での圧力や温度解析に使用された実績がある²⁵⁾。FEVER は、室内火災時の燃焼挙動を、換気系を含めたモデルで換気風量に応じて解析し、室内及び換気系各部の圧力、温度、流量、差圧の時間変化を計算する。

5.5 まとめ

サイクル施設におけるセル内有機溶媒火災時の放射性物質放出量評価を行う上で必要な項目を整理した。表 5.1 に本章において取り上げた事故時の放射性物質放出量評価に利用可能な基礎データをまとめて示す。本章で取り上げた内容だけでは必ずしも十分ではないと思われる。さらに、取り上げていない技術的知見を取り込み、内容を充実させていくことが重要である。

表 5.1 実験データ及び解析手法などのまとめ

取り上げた 評価項目	対応する 五因子法 パラメータ	調査内容	課題
事故発生・終 息条件	—	(セル内有機溶媒火災) <u>有機溶媒の着火及び燃焼条件</u> ・有機溶媒火災発生の 3 条件 ・有機溶媒の引火点 ・最小着火エネルギー <u>鎮火条件</u> ・燃焼持続 (セルに対する換気回数と燃焼面積の関係) ・ボイルオーバー燃焼鎮火現象 (TBP などを配位した錯体の急激な分解反応) ・反応速度式及び反応熱	・気相雰囲気中の湿度や気相の流れ、放射線劣化などの実条件を踏まえた着火の条件の検討 ・有機溶媒の最小着火エネルギーと具体的な着火源エネルギーとの関係の考察 ・ボイルオーバー燃焼時のセル内の急激な圧力上昇の評価
放射性物質 放出挙動評価	ARF	(セル内有機溶媒火災) ・米国の事故解析ハンドブック推奨値 ・BNFO-81-2 安全解析パラメータ ・旧原研実証試験結果 (Sr, Ru) (TBP などを配位した錯体の急激な分解反応) ・急激な熱分解反応に伴うエアロゾル放出試験結果	・ARF に対する酸素濃度や火災源に対する流速などの影響の把握 ・放射性物質の移行形態 (ばい煙に付着, ガス状など) の把握 ・ボイルオーバー燃焼時の ARF の増大の可能性の検討 ・錯体の急激な分解反応に伴う ARF データが少ない。
熱流動及びば い煙移行評価 (セル内有機 溶媒火災)	LPF	<u>ばい煙放出挙動評価:</u> ・ばい煙放出速度 ・ばい煙化率 ・ばい煙粒径分布データ <u>質量消費速度評価モデル:</u> <u>熱流動評価に必要な入力項:</u> ・質量放出速度 (燃焼ガスなど) ・エネルギー放出速度	・経路中での移行挙動及び HEPA フィルタに対する目詰まり挙動へばい煙粒径の影響の把握 ・30%TBP/<i>n</i>-ドデカン燃焼後期での有機ミストの飛散可能性把握 ・各解析モデルが有する特徴 (仮定, 保守性) を踏まえた適用の重要性
HEPA フィル タの差圧上昇 挙動評価 (セ ル内有機溶媒 火災)		<u>ばい煙の目詰まりによる差圧上昇 挙動評価:</u> ・HEPA フィルタ目詰まり係数 ・苛酷条件下での HEPA フィルタの健全性 (破損に至る差圧)	・燃焼後期における顕著な差圧上昇挙動の評価 ・HEPA フィルタのタイプ (標準風量タイプ, 多風量タイプ) の違いによる影響の評価

参考文献

- 1) Science Applications International Corporation, *Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook*, NUREG/CR-6410, (1998).
- 2) H. Ikeda, “Safety design of purex liquids system the flash and fire points”, *J.Nucl.Sci.Technol*, **41**[4], 534-536 (2004).
- 3) 玉内 義一 他, 「六ヶ所再処理工場の確率論的安全評価, (Ⅲ)・セル内有機溶媒火災(内的事象) -」, 原子力学会和文論文誌, **10**[3], 170-184 (2011).
- 4) 「産業安全研究所安全ガイド 圧縮空気駆動式小型研磨器の静電気対策 -電撃及び可燃性物質への着火防止法-」, NIIS-SG-NO.2 (2004).
- 5) 崔 光石 他, 「4.静電気放電による噴霧液体の着火特性(その1)」, Specific Research Reports of the National Institute of Occupational Safety and Health」, JNIOH-SRR-No.38 (2008).
- 6) J. W. Rose *et al.*, *Technical data on fuel*, The British National Committee World Energy Conference (1977).
- 7) 西尾 軍治, 「再処理施設の事故時における排気フィルタ設備の安全性実証試験」, 空気清浄, **25**,[6], 16-31 (1988).
- 8) 「再処理施設排気フィルタ事故時安全性実証試験に関する研究成果最終報告書(科学技術庁委託事業)」日本原子力研究所 (1986).
- 9) M. Y. Ballinger *et al.*, “Aerosols Released in Accidents in Reprocessing Plants”, *Nucl. Technol.*, **81**, 278-292 (1988).
- 10) E. Walker, *A Summary of Parameters Affecting the Release and Transport of Radioactive Material from an unplanned Incident*, BNFO-81-2, Bechtel National Inc., (1978).
- 11) J. E. Ayer *et al.*, *Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook*, NUREG-1320, U. S. Nuclear Regulatory Commission (1988).
- 12) 阿部 仁 他, 「核燃料サイクル施設における可燃性物質の燃焼時の閉じ込め効果評価試験(受託研究)」, JAEA-Research 2012-035 (2013).
- 13) 阿部 仁 他, 「核燃料施設の事故影響評価手法に関する調査(Ⅳ) 火災爆発事象の影響評価手法の検討」, 日本原子力学会和文論文誌, **9**[1], 82-95 (2010).
- 14) F. R. Krause, “FIRE SOURCE SIMULATION”, *Proc. CSNI Specialist Meeting on Interaction of Fire and Explosion with Ventilation System in Nuclear Facilities*, Los Alamos, New Mexico, April 25-28, 1983, 57-80 (1983).
- 15) E. Hörmann, “ANALYSIS OF FIRE AND EXPLOSION ACCIDENTS IN A FUEL REPROCESSING PLANT”, *Proc. CSNI Specialist Meeting on Interaction of Fire and Explosion with Ventilation System in Nuclear Facilities*, Los Alamos, New Mexico, April 25-28, 1983, 137-152 (1983).
- 16) 尾崎 誠 他, 「高性能エアフィルタの苛酷条件下における性能」, 空気清浄, **25**[6], 1-15 (1988).
- 17) G. A. Gunn *et al.*, “Filter performance comparative study”, *Proc. 14th ERDA air Cleaning Conf.*, Sun Valley Idaho, 630 (1977).
- 18) V. M. Mocho *et al.*, “Clogging of industrial pleated high efficiency particle air (HEPA) filters in the event of fire”, *Nuclear Engineering and Design*, **241**, 1785-1794 (2011).

- 19) 日本原燃㈱, 「再処理事業指定申請書及び同添付書類」, 平成元年 3 月申請 (平成 26 年 1 月変更許可申請 (平成 27 年 12 月一部補正申請)) .
- 20) 小池忠雄 他, 「再処理施設における有機溶媒と硝酸の熱分解反応に関する安全性実証試験 (受託研究)」, JAERI-Tech 95-005 (1995).
- 21) 塚本導雄 他, 「再処理溶媒と硝酸との熱分解反応に関わるエアロゾル発生試験 (受託研究)」, JAERI-Tech 2000-036 (2000).
- 22) R. D. Peacock *et al.*, *CFAST – Consolidated Model of Fire Growth and Smoke Transport (Version 5)*, NIST Special Publication 1034, National Institute of Standards and Technology (2005).
- 23) K. McGrattan, *Fire Dynamics Simulator (Version 4) Technical Reference Guide*, NIST Special Publication 1018, National Institute of Standards and Technology (2005).
- 24) 西尾軍治 他, 「再処理施設の火災・爆発時におけるセル換気系の安全性解析コード (CELVA-1D) (受託研究)」, JAERI-Data/Code 98-017 (1998).
- 25) 「FEVER コードの概要」, MAPI-3001, 三菱原子力工業株式会社 (1989).

6. 臨界事故

6.1 事故の概要

核燃料物質を取り扱う際に臨界にならないようにすることは、サイクル施設に要求される最も基本的な要件であり、設計の段階から十分に考慮されていることである。臨界事故時の核分裂によって新たに放射性物質が生成されること、核分裂で生じる中性子線やガンマ線が、従業員等の外部被ばくに直接寄与することは、その他の SA と大きく異なる臨界事故の特徴である。臨界事故の影響評価は、このような臨界事故の特性を踏まえて実施する必要がある。本節では、影響の最適評価を実施する上で理解しておくべき基礎的事項について説明する。

(1) 事象の概要

米国の報告書¹⁾では、サイクル施設のプロセスで生じた 22 例の臨界事故が紹介されている。それらのほとんどは 1960 年を中心とする 10 年間に集中して起きている²⁾。事例の多い条件は、高濃縮ウランの溶液系の質量管理失敗である。容器は縦置き円筒形状で、規則・管理上の問題により定常作業で生じた例が多い³⁾。生じた核分裂数は、ほぼ $10^{15} \sim 10^{18}$ の程度であったが、 4×10^{19} に達した例が米国であった。

これらの事例を踏まえて、国内のサイクル施設についてこれまでに行われた安全審査では、以下のように臨界事故事象を想定して安全評価を行っている。例えば六ヶ所再処理工場では、「設計基準事故」としての臨界事故により 1×10^{19} の核分裂が生じると想定し、敷地境界で 5 mSv 以下、すなわち、公衆に著しい放射線被ばくのリスクを与えないことを確認している⁴⁾。また、旧「再処理施設安全審査指針について」が求めている「立地評価事故」として 1×10^{20} を想定し、一般公衆との隔離距離が妥当（集団線量が 2 万人 Sv 以下など）であることを確認している。

IAEA は、臨界について「核燃料物質がちょうど自立的な核連鎖反応を生じている状態（反応度がゼロの状態）。反応度がゼロより大きい状態について言及する場合にも、やや厳密さに欠けるもののしばしば用いられる。」^{*}と記述している⁵⁾。ここでの核分裂連鎖反応とは、核分裂によって生じた中性子が別の核分裂性物質に吸収されて新たな核分裂が生じるということを繰り返す反応のことである。反応度は中性子の増倍率を換算したもので、臨界時ゼロ、臨界を超えた状態では正、未臨界では負となる。

ウランなどの核分裂性物質は、速度の遅い中性子（例えば秒速 2 km/s 程度）に対して核分裂反応を起こし易い。1 回の核分裂で 2～3 個の中性子が放出されるが、その速度は約 20,000 km/s であり、核分裂を起こし易い中性子に比べて非常に大きなエネルギーを持っている。核分裂連鎖反応を仲立ちする中性子は、高いエネルギーを持って核分裂により放出された（即発中性子）後、周囲の物質と衝突を繰り返して減速し（エネルギーを失い）、一部は衝突の際に吸収されるか、核

* Criticality –IAEA Glossary

The state of a nuclear chain reacting medium when the chain reaction is just self-sustaining (or critical), i.e. when the reactivity is zero.

Often used, slightly more loosely, to refer to states in which the reactivity is greater than zero⁵⁾.

分裂性物質の存在する領域の外へ飛び出して行くことで失われ、残った中性子が次の核分裂を生じさせるということを繰り返す。中性子が生じてから次の反応を引き起こすまでの時間（即発中性子寿命）は非常に短く、 10^{-5} 秒程度である。この他に、核分裂片からゆっくり放出される中性子（遅発中性子）が存在する。中性子全体に対する遅発中性子の割合（実効遅発中性子割合 β_{eff} ）は ^{235}U の場合で0.8%にも満たない程度であるが、核分裂が生じてから遅発中性子が放出されるまでの時定数が長いため、これを考慮した中性子全体の平均寿命は0.1秒程度となる⁶⁾。

臨界時（反応度ゼロ）には、大雑把には、1個の中性子が生じさせる1回の核分裂あたり平均2.4個の中性子が放出され、そのうちの平均1.4個が減速途中で吸収されるか体系外に漏れ出ることによって消失し、残った1個が次の核分裂を生じさせる。このようなサイクルを繰り返すため、単位時間当たりの平均的な核分裂数は変化しない。臨界事故では、多量の核分裂性物質が一处に集まる、溶液中の核分裂性物質の濃度が高まるなどすることで、核分裂に寄与しないで消失する中性子の割合が少なくなり、結果として中性子数が増大する。例えば、消失する中性子数が平均1.40から1.39になったとすると、1個の中性子が次のサイクルでは平均1.01個（ $=2.40 - 1.39$ ）となる。この倍率は、実効中性子増倍率 k_{eff} として知られている。反応度はこの k_{eff} を用いて（ $\rho = (k_{\text{eff}} - 1)/k_{\text{eff}}$ ）と定義される。 k_{eff} の範囲が $0 \sim \infty$ なので、 ρ の範囲は $-\infty \sim 1$ となる。臨界時、 $\rho = 0$ （ $k_{\text{eff}} = 1$ ）である。 ρ が β_{eff} より大きいかわかりは臨界事故時の出力挙動に大きな関係があるので、分かり易いように ρ を β_{eff} で除した値（ $\rho_{\text{B}} = \rho/\beta_{\text{eff}}$ ）が用いられることがある（単位：ドル）。このドル単位の反応度が1ドルを超えるような状態を即発超臨界と呼ぶ。

臨界事故時には多数の核分裂が生じるが、その理由は、一時的に反応度が大きい状態になるためである。上記の例にならって、中性子数（またはそれが引き起こす核分裂数）が1サイクル当たり1.01倍になると仮定する。この場合、反応度は0.99%となり、実効遅発中性子割合（例えば0.8%など）を上回っている、すなわち、ドル単位の反応度としては1ドルを超えており、即発超臨界の状態である。仮に反応度が1ドル未満の値（ $\rho = 0.7\%$ ）であるとする、臨界状態であるためには遅発中性子が必要であるため、中性子の平均寿命が0.1秒であることを考慮すると、 $k_{\text{eff}} = 1/(1 - 0.007) = 1.007$ より、単位時間当たりの核分裂数（出力）は1秒ごとに（ $1.007^{(1/0.1)} = 1.07$ ）倍になる。しかし、即発超臨界である（例えば中性子数が1サイクル当たり1.01倍になる）場合には、即発中性子だけで臨界状態（即発臨界）を維持できるため、1サイクルの平均時間は 10^{-5} 秒程度となる。この場合、出力は0.1秒ごとに（ $1.01^{(0.1/0.00001)} =$ ）約 10^{43} 倍になる。多くの臨界事故では、一時的に即発超臨界状態になるために、瞬時に多量の核分裂が生じる。

多くの臨界事故では、発生後に反応度を抑制するような負のフィードバックが働く。その主要なもの筆頭は、温度上昇によるものである。核物質の温度が上昇すると、中性子に対する反応断面積が変化する（ドップラー効果）。例えば3%濃縮ウランでは97%がほとんど核分裂しない ^{238}U だが、その温度が上昇するとドップラー効果により、減速途中の中性子をより多く吸収するようになる。この他、温度上昇による膨張（密度低下）は、核分裂し易い低エネルギーの中性子（熱中性子）の割合を減少させる。温度フィードバック反応度（ β ）の上昇温度（ $^{\circ}\text{C}$ ）に対する割合を反応度温度係数（ $\beta/^{\circ}\text{C}$ ）という。

溶液系では、放射線分解ガスや沸騰によって溶液中に気泡（ボイド）が生じる。この気泡が生じることによる密度低下も、熱中性子の割合を減少させるため、負の反応度フィードバックを与える。ボイドフィードバック反応度（ β ）のボイド率（%）に対する割合を反応度ボイド係数（ $\beta/\%$ ）

という。

再処理施設で扱う燃料形態は、固体、粉体、液体及びそれらの混合体と多岐にわたっているが、本節の初めで述べたように、過去の臨界事故事例の多くは溶液系（スラリーを含む）である。溶液系は、水分子を構成する水素原子が中性子を効率よく減速するため、核分裂を起こし易い熱中性子の割合が多くなることで臨界になり易い。このため、溶液系を対象とした臨界事故評価に関する研究が数多くなされている。以下では、溶液系を主として記述するとともに、1例ではあるが金属燃料の臨界事故も発生しているの⁷⁾、金属燃料との関係についても言及する。

核燃料物質の温度や密度変化（体積膨張とボイド）による臨界性へのフィードバック機構の観点から、臨界事故時の事象の進展は大きく二つに分けられる。一つは、初期添加反応度が小さく、温度フィードバック反応度だけで相殺されることで、沸騰が生じない場合である。この場合、主なフィードバック機構は温度上昇によるドップラー効果と膨張（密度低下）であり、核分裂数等の評価ではこれらを考慮しなければならない。この他には、放射線分解ガスは出力の大きい初期において出力振動を生じさせるなど、平均の出力を低減する効果がある。伝熱による冷却はプラトー（バースト（後述）後の出力が安定している期間）の出力に影響する。酸化燃料など固体燃料の場合にもこれが当てはまる。周りが空気であれば、固体燃料の温度上昇のみを考慮すれば良いが、水の場合には、高温になった燃料固体に接触している水が沸騰するため、その沸騰ボイドを考慮する必要がある。

沸騰に至らない場合の出力挙動は、図 6.1 に示すように⁷⁾、急激な上昇及び下降（第 1 ピーク）の後、単調に減少する（この全体を出力バーストと呼ぶ）。燃料溶液タンクやその周りの構造材への熱伝達等によって冷却される場合、その冷却力に応じた出力が維持される（プラトー）。自然な冷却であれば、出力は通常小さいため、暫定的に臨界が終息したとみなされる。JCO 臨界事故⁸⁾では、燃料溶液が強制冷却されていたため、高い出力が維持された。この場合臨界終息のためには、冷却を止めるなどの措置が必要となる。いずれにせよ、確実に未臨界状態を維持するためには、ボロンなどの中性子毒物を投入するなどの措置が必要である。

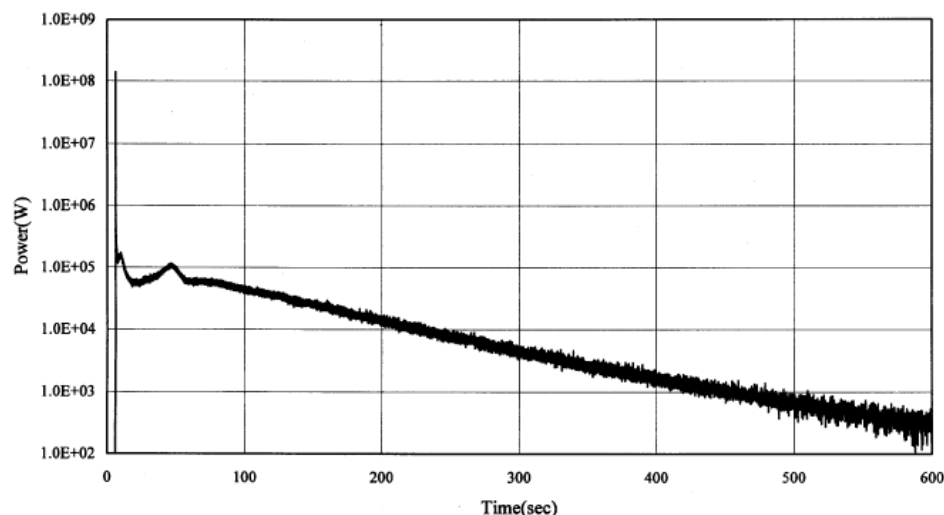


図 6.1 TRACY を用いた過渡臨界実験（R166 パルス引き抜き 1.5\$添加）
（参考文献 7）より転載）

燃料溶液が沸騰に至るような事象進展は、初期添加反応度が大きい、希薄プルトニウム溶液など温度フィードバック反応度が正もしくはゼロに近い条件で生じる可能性がある。この場合、反応度添加直後は温度上昇と放射線分解ガスボイドによるフィードバックが強く働くが、溶液の温度が沸点に達した後は、沸騰ボイドが主なフィードバック機構となる。出力挙動は⁹⁾、沸騰に至るまでの過渡的な出力変化の後、安定的な沸騰状態（プラトー）が続く。沸騰による水分蒸発で、中性子減速材を失うことで臨界が終息する。有意な冷却がある場合には、除去される熱に応じた分の出力の増加が見込まれる。容器が密閉されているような場合には、蒸発した水分が凝縮により核燃料溶液に戻るため、高い出力での臨界が長時間維持される可能性が考えられる。

臨界事故による被ばくは、核分裂生成物による外部・内部被ばくと、核分裂と同時に放出される中性子線による外部被ばくが主である。このため、被ばく評価のためには、核分裂数や出力（最大、プラトー）を精度よく評価する必要がある。

以下では、2つの事故事例について、フィードバック機構の観点から説明する。

1999年に日本で発生した臨界事故では、形状管理されていない容器に核燃料溶液をバケツで流し込み、臨界となった。ガンマ線エリアモニタのデータから推定された出力挙動によると¹⁰⁾、臨界到達後にバーストと呼ばれる出力の上昇下降があり、温度上昇によって一時的に未臨界になったと推定される。しかし、冷却器が作動していたため、溶液の温度が低下して再び臨界となった。再臨界後は、冷却器の冷却能力に応じた出力が維持されていた（プラトー）。冷却を停止したが、出力がある程度低下した程度で臨界が継続していたため、配管を破壊して冷却水を取り除くことで臨界終息となった。

1959年に米国で発生した臨界事故では、空気圧ゲージの故障により空気圧が高くなったために、サイフォン効果で200 Lのウラン溶液が形状管理されていないタンクに流入して臨界になった。沸騰が15～20分継続し、約半分の溶液が蒸発したところで臨界が終息した。この事例では、沸騰状態で高い出力が継続したために、最終的に 4×10^{19} という臨界事故事例としては最大の核分裂を生じた¹⁾。

(2) 臨界事故の特徴

臨界事故影響の最適評価を行う上で考慮すべき特徴（図 6.2 参照）は、以下のとおりである。

- ・設計基準事故として（火災や水素爆発と同様に）多重防護（発生防止、拡大抑制、影響緩和）の有効性が検討されている。SAとしての臨界の想定には、設計基準を超える状態の想定が必要であり、シナリオ設定やリスク評価に、従来とは異なる考え方を要する。
- ・ソースタームとなる核種（希ガス、FP核種）が核分裂により生成されるため、その総量が予め決まっていない（核分裂数に依存する）。移行中にガス状からエアロゾル状に変化する核種がある。短半減期の核種が生じる。
- ・放射性物質の飛散による被ばくに加えて、核分裂で生じる放射線による被ばく（主に従業員）を考慮する必要がある。臨界事故で考慮すべき放射線には直接線とスカイシャイン線があるが、ここでは直接線について言及する。
- ・実施で想定されている条件（溶解槽、Pu貯槽）に対応したデータが少ない。溶解槽で固体燃料が残っていない条件に対しては、TRACY実験などのデータが活用できるが、希薄プルトニウム溶液などの実験データは存在しない。一方で、解析的評価手法は十分に開発が進んでい

いため、過去の事例の検討や保守的仮定が必要である。

- ・放射線分解ガスが発生する。水分子が分解されて水素ガス及び酸素ガスが発生することが知られている。水素ガスの濃度が安全なレベルを超えないことを確認する必要がある。
- ・安全審査では Cs 換算などを用いて主に長期被ばくを重視しているが、その前提は、臨界事故の際に短寿命の核種が十分に減衰するまで外部に放出させないことである。SA においても閉じ込め性能が担保されるかどうかの検討が必要である。

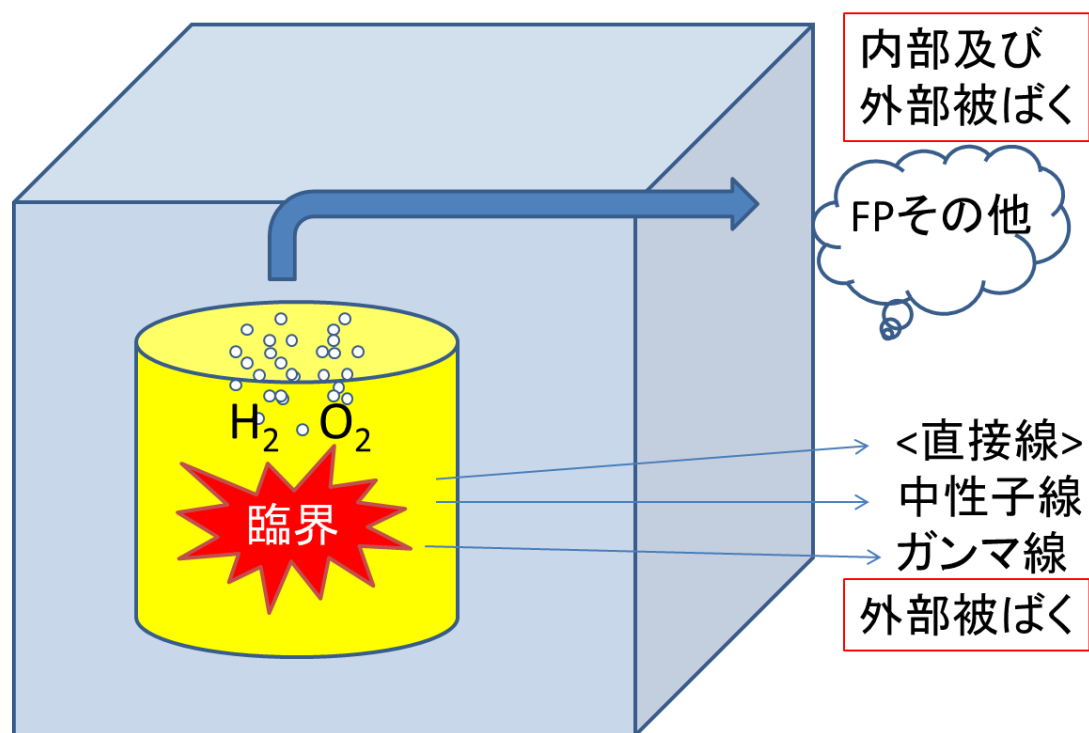


図 6.2 臨界事故で生じる被ばくとその要因

6.2 想定される事故シナリオ

再処理施設における SA としての臨界事故を考えるためには、再処理施設の臨界安全設計を十分把握した上で、発生の可能性は極僅かであっても、影響の無視しえない臨界事故の有無を精査する必要がある。

再処理施設の臨界安全については、旧原子力安全委員会の再処理施設安全審査指針で、十分な裕度をもった核的制限値の設定や、設計・運転管理への単一故障基準（単一の原因によって一つの機器が所定の安全機能を失うこと（単一故障）を仮定しても重要な系統全体としてはその安全機能を損なわないように設計すること）の要求等があり、これを厳格に適用する臨界安全設計と運転管理により事故の発生の可能性を極めて低くすることができると考えられてきた。

再処理施設の特徴を踏まえると、その臨界安全は、臨界事故防止対策の類似性、換言すればそ

れが損なわれた場合の事故形態の類似性から、大きく以下の 3 グループに分類できると考えられる。

- (a) 核燃料物質を再処理プロセス内で連続的に取り扱う工程の臨界安全
- (b) 核燃料物質を臨界安全形状機器から回分で一般形状機器へ移送する場合の臨界安全
- (c) 固体状の核燃料物質（使用済燃料集合体及び混合酸化物貯蔵容器）及び形状寸法管理機器に関する臨界安全

こうしたグルーピングを念頭に、リスクの観点から故障や失敗（操作ミス）など考慮すべきシナリオを抽出する考え方を示す。それに先立ち、事例として六ヶ所再処理工場の臨界設計とそれに基づく設計基準事故想定を紹介する。

(1) 再処理施設の臨界安全設計

(a) 核燃料物質を再処理プロセス内で連続的に取り扱う工程の臨界安全設計

このような工程では、臨界安全の観点から監視を要するプロセスパラメータ（臨界因子）を、核的制限値を設定する臨界管理因子に指定し、その監視対策には単一故障基準を適用し、多重化又は多様化した安全上重要な施設で監視・制御することにより、臨界安全を確保している。深層防護の観点からみると、プロセスパラメータの維持管理が異常の発生防止対策に相当し、実績のある工程監視システムと細心の運転管理の組み合わせが発生防止対策の中心となるが、洋の東西を問わず、再処理運転者の共通認識である「Good operation is the primary control for criticality」のとおり、これらが最も重要な対策である。その上でさらに、異常を見逃さず事故への進展を阻止する拡大防止対策として、上記のように単一故障基準を適用したハードワイアードで構成した安全系を追加し、臨界事故防止の信頼性を確保したのが六ヶ所再処理工場の臨界安全設計の特徴である。

また、プルトニウム濃度がプロセス上変動する抽出工程や蒸発工程を含む分離施設、精製施設及び脱硝施設におけるプルトニウムの主流路を構成する機器は、全て全濃度安全形状寸法管理を適用し、臨界のリスクを断つ設計としている。さらに、通常運転時のプルトニウム濃度が未臨界濃度を超える機器を設置するセルのドリフトレイは、仮に溶液が全量漏えいした場合でも臨界のおそれのない液厚となるよう、床面積を確保するレイアウト設計としている。

(b) 核燃料物質を臨界安全形状機器から回分で一般形状機器へ移送する場合の臨界安全設計

再処理施設では、通常運転でも一旦再処理プロセスを止めて、プロセス液の性状を確かめてから下流へ移送する箇所が少なからずある。これを連続プロセスに対してバッチ（回分）プロセスと呼ぶ。また、再処理施設で何らかの異常が発生すると、プロセス中の溶液を、一旦、一時処理設備（リワーク）に移送し、再調整後にプロセスに戻し運転を再開することになる。特に、こうした異常時にはバッチ（回分）操作が頻繁となり、プルトニウムを含む溶液の移送には臨界安全の観点から細心の注意が必要となる。

このような工程では、溶液の移送機器にハード及び/又はソフトの施錠管理が行われ、予想されるプルトニウム濃度に応じて、単一故障基準の考え方を反映した対策が採られている。具体的には、核燃料物質を含む溶液の移送に当たっては、リスクの多寡に応じて予め定められた手続きに従い、分析による濃度確認後、移送機器は開錠される。施錠管理の信頼性を高めるため、分析に当たっては標準試料との並行分析及び複数回の測定、並びに、複数の運転員による分析データと核的制限値との照合が行われている。

**(c) 固体状の核燃料物質（使用済燃料集合体、混合酸化物貯蔵容器等）貯蔵庫及び
液体状の核燃料物質を収納する貯槽の形状寸法管理機器に関する臨界安全設計**

これらは稼働時に運転員による特別な管理を要さない静的機能で臨界安全を確保する設備である。したがって、設計時に臨界安全に係る安全裕度を十分確保し、それに基づき確実に製作・検査され、いかなる場合でも臨界安全を損なわないよう形状を維持することが最も重要となる。具体的には、耐震 S クラスあるいは基準地震動に確実に耐える耐震設計とするとともに、腐食度を適切に設定するなど構造強度に十分な余裕を確保する設計としている。このように臨界設計に当たっては、外的要因や使用条件を精査し、個々の計算パラメータに技術的合理性のある安全裕度を設定し、臨界設計全体として十分な安全裕度が確保されていることを把握しながら進めることが重要である。以上の考え方に基づく六ヶ所再処理工場の臨界安全設計の概要を図 6.3 に示す¹¹⁾。

(2) 再処理施設の設計基準事故選定

六ヶ所再処理工場の安全評価では、旧再処理施設安全審査指針 3 の「発生の可能性の観点」に基づきリスクの視点を取り入れた図 6.4 に示すフロー¹²⁾に従い、網羅的に設計基準事故を選定している。この中で、リスクの視点で重要な事故選定の判断指標は、「十分な事故防止対策と事象の進展速度が遅い」場合と「十分な事故防止対策に加え十分な点検管理で健全性が確認できる」場合の定性的判断である。

六ヶ所再処理工場の臨界安全設計は上述のように、特に手厚く安全対策を講じたことから、全施設にわたって「発生の可能性の観点」から評価すべき設計基準事故はなかったとしている。ただし、臨界特有の被ばく形態等を考慮し、周辺公衆への影響を評価するため、複数の臨界管理を行う溶解槽で臨界事故を想定したとしている。以下、六ヶ所再処理工場の事業指定申請書記載の臨界事故説明¹³⁾から要点を示す。

(3) 設計基準事故「溶解槽における臨界」の想定

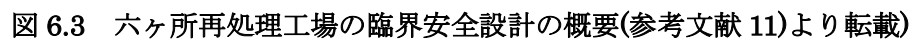
溶解槽は、形状寸法管理、濃度管理、質量管理及び中性子吸収材管理という複数の手法を組み合わせることにより、臨界安全管理を行う代表的臨界安全管理機器であり、これら個々の臨界管理には、技術的にみて想定されるいかなる場合にも臨界に至らないよう、単一故障基準の適用など万全の対策を講じているが、安全設計の妥当性を評価する観点から、溶解槽での臨界を評価事象としている。以下、溶解槽での臨界事故を評価する上で、事故規模 1.0×10^{19} の想定が十分な保守性を有しているとの説明を再処理事業指定申請書¹³⁾の記載から紹介する。

溶解槽の運転モードとしては、可溶性中性子吸収材を使用しない運転と使用する運転がある。特に、可溶性中性子吸収材を使用しない運転モードにおいて、可溶性中性子吸収材を必要とする使用済燃料集合体を誤ってせん断しないために、また、可溶性中性子吸収材を使用する運転モードにおいて、溶解槽内の可溶性中性子吸収材濃度を確実に維持するために、以下に示す厳重な対策を講ずるとしている。

前者の使用済燃料集合体の誤認に対して、

- ① 使用済燃料集合体受入れ時において、燃料集合体番号の確認は複数の運転員によって行い、燃焼度は多様化した燃焼度計測装置によって測定し、その結果は管理用計算機に自動入力されて保存される。

- ② 上記測定結果については、原子炉施設からの移動通知書の内容（燃料集合体番号、燃焼度等）と整合性を確認する。
- ③ 使用済燃料集合体の所在番地及び溶解時の可溶性中性子吸収材要否の情報は、管理用計算機により常時管理し、可溶性中性子吸収材を使用しない運転時における可溶性中性子吸収材を必要とする使用済燃料集合体の誤った移送指示を受け付けない設計とする。
- ④ せん断直前の燃料供給セルにおいて、燃料集合体番号を複数の運転員により確認する。
- ⑤ 燃料供給セルに設置する光学的文字読み取り装置の読み取り結果が、複数の運転員により確認した番号と一致しない場合、又は、再処理計画上予定されている燃料集合体番号と一致しない場合は、警報を発する設計とする。



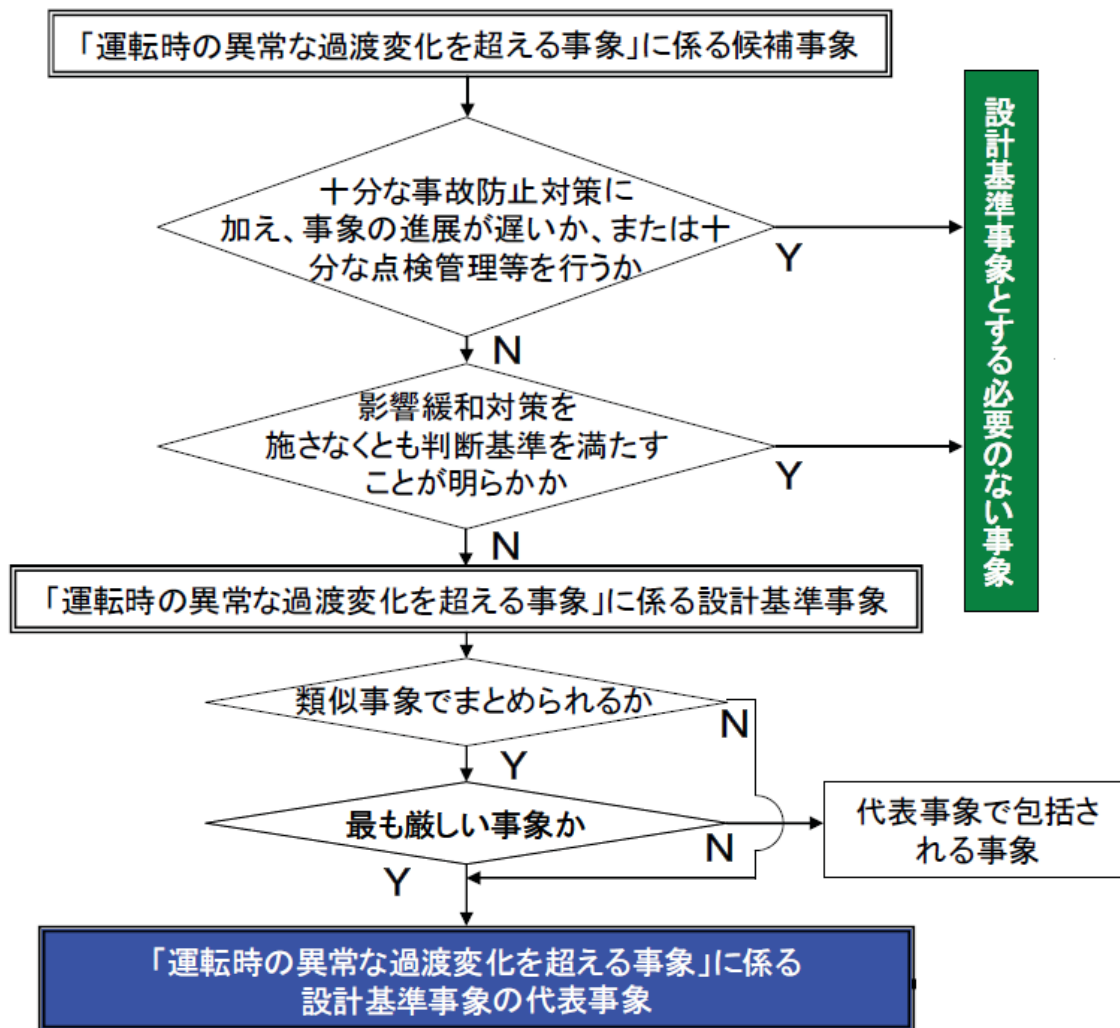


図 6.4 六ヶ所再処理工場における設計基準事故選定フロー(参考文献 12)より抜粋)

また、後者の溶解槽内の可溶性中性子吸収材濃度を確実に維持するために、

- ⑥ 使用済燃料集合体は、受入れ時の燃焼度計測装置の測定結果により可溶性中性子吸収材の要否が判断され、せん断前に燃料集合体番号を確認し、可溶性中性子吸収材を必要とする使用済燃料集合体に対しては、確実に可溶性中性子吸収材を用いて溶解する。
- ⑦ 硝酸調整槽での試薬調整においては、硝酸と硝酸ガドリニウム溶液の混合比をそれぞれの流量で管理することにより、必要な可溶性中性子吸収材濃度を確保する。
- ⑧ 硝酸調整槽では分析による可溶性中性子吸収材の濃度確認を2回行い、硝酸供給槽への液移送ラインは施錠管理を行う。
- ⑨ 可溶性中性子吸収材濃度は、可溶性中性子吸収材濃度計により連続監視し、濃度低信号で警報を発する設計とする。

以上の対策を施すことにより、使用済燃料集合体の誤認や可溶性中性子吸収材の濃度低下の可能性を極めて低く抑える設計としている。

したがって、評価事象としては、可溶性中性子吸収材を使用しない運転モードにおいて、せん断・溶解条件の異常に起因する事象の中から、実効増倍率(k_{eff})が最も大きくなる硝酸濃度の低下を選んでいく。

JACSコードシステムでの解析の結果は、 $k_{\text{eff}}+3\sigma$ で0.980であり、推定臨界増倍率0.996(非均質-U低濃縮グループ)に対しては下回るが、推定臨界下限増倍率0.978(非均質-U低濃縮グループ)に対しては超えるので、その差0.002の臨界超過を仮定している。なお、実効増倍率の算出に当たっては以下の計算条件を用いている。燃料組成及び燃料装荷量については、可溶性中性子吸収材を使用しない運転モードにおいて、それぞれ最も厳しい仮想的組み合わせである初期濃縮度2.9 wt%のPWRの未照射燃料215 kg・ UO_2 の組み合わせとしている。溶解槽内の溶液については、硝酸濃度の低下を模擬するものとして水を仮定している。また、溶解槽は沸騰状態で運転するので、溶液の温度は水の沸点100℃としている。

実効増倍率で0.002の臨界超過分は、プルトニウムの生成を考慮して遅発中性子生成率を保守的に0.004とすると、50セントの過剰反応度としており、これだと即発臨界未満である。評価においては、過剰反応度とつり合う負の反応度を与えるボイド率に相当する蒸気が発生して、一定の臨界核出力になるものとしている。50セントの過剰反応度を相殺するボイド率は約1%であり、溶液の発熱でこのボイド率を実現するためには、溶解槽から周辺への放熱分も考慮すると約35 kW (1.1×10^{15} fission/s に相当する。)の熱出力が必要であるとしている。

一方、溶解槽の臨界は可溶性中性子吸収材緊急供給回路の放射線検出器で検知され、直ちに可溶性中性子吸収材緊急供給系から必要十分量の硝酸ガドリニウム溶液が溶解槽に注入されることにより未臨界となる設計としている。硝酸ガドリニウム溶液の注入は3.5分以内で完了する設計であり、その間前記の一定の臨界核出力が継続するものとする仮定すると、全核分裂数は 2.3×10^{17} となる。以上のことから、溶解槽で仮に臨界が生じたとしても、可溶性中性子吸収材緊急供給系の作動で直ちに未臨界となり、一般公衆の放射線被ばくのリスクを評価するための設計基準事故の規模として、全核分裂数に 1.0×10^{19} を想定することは十分な保守性を有するものであるとしている。

一方、一般公衆の放射線被ばくのリスク評価に関わる換気系の健全性については、臨界に伴う溶液の蒸発量は、前記熱出力全量が蒸発に使われたと見積もっても約3.5 kgとしている。この程度の蒸気は途中のオフガス設備の配管内で殆ど凝縮し、しかも除去効率99%のミストフィルタが設置されているので、せん断処理・溶解廃ガス処理設備の高性能粒子フィルタの健全性は維持されるところとしている。また、蒸気が溶解槽セルに漏えいしたとしても、溶解槽セルの換気設備の高性能粒子フィルタは容量が大きく、この程度の蒸気で健全性が損なわれることはないとしている。

以上のことから、溶解槽で仮に臨界が生じたとしても、可溶性中性子吸収材緊急供給系の作動で直ちに未臨界となり、せん断処理・溶解廃ガス処理設備及び溶解槽セルに係る前処理建屋換気設備も健全性は維持されるので、一般公衆の放射線被ばくのリスクを評価するための設計基準事故の規模として、全核分裂数に 1.0×10^{19} を想定することは十分な保守性を有するものであるとしている。

上記の事故想定のもと、前章記載の評価手法と同様な手法による影響評価の結果、敷地境界での一般公衆の線量当量は0.57 mSvであり、著しい放射線被ばくのリスクを与えないことを確認したとしている。

(4) SA としての臨界事故シナリオ想定の方の例示と課題

設計基準事故評価では、(3)で示したように、使用済燃料集合体の誤認や可溶性中性子吸収材の濃度低下など発生の可能性を極めて低く抑える設計としている場合は事故の想定から除外するものであった。すなわち一定の発生頻度を念頭に定性的に設計基準事故を選定したものであった。具体的には、先に分類した3グループの臨界安全設計について見ると、(a)のグループは単一故障基準に適合した監視制御系の設置とこれらが機能するに十分な時間余裕がある場合は、図 6.4 の選定フローの「十分な事故防止対策と事象の進展速度が遅い」に該当し、(b)のグループについては単一故障基準の考え方を施錠管理のハードとソフトに厳格に反映した場合は、同様に「十分な事故防止対策に加え十分な点検管理で健全性が確認できる」に該当するとして、同選定フローに従い「発生の可能性」の観点から設計基準事故として評価を要しないとしてきたものである。一方、(c)のグループは、主に地震に対して「その破損又は機能喪失により臨界事故を起こすおそれのある施設」(旧再処理指針 13) を特定し、炉と同様、設計用最強地震 S1 又は設計用限界地震 S2 (耐震指針改定後は Ss に統合) に十分耐える設計とすることで、地震による設計基準事故の想定は要しないとしてきた。この判断は、図 6.4 の選定フローでは、最初の定性的判断指標の「物理的・化学的に発生の条件が整うか」に該当する。

今回の活動は、こうした設計基準事故より「発生の可能性」がより小さくても影響が大きい SA を見逃さず抽出し、その対策に資することが目的である。

そこで、臨界に係る SA 抽出方法の例示として、上記の設計基準事故の網羅的選定方法をベースとして、「発生の可能性」のより小さい SA 抽出の考え方を紹介する。

決定論的手法としては、図 6.4 の選定フローの発生頻度に関するリスクの視点の判断指標「十分な事故防止対策と事象の進展速度が遅い」と「十分な事故防止対策に加え十分な点検管理で健全性が確認できる」を否定することである。具体的には、(a)のグループでは単一故障基準に適合した監視制御系の複数の機器の多重故障であり、(b)のグループでは、同様に複数の運転員に係る多重の人的過誤の想定である。

一方、(c)のグループでは、歴史的資料や地質構造等の検討範囲の拡大による発生頻度のより小さい設計基準地震動への見直しがなされ、これによる耐震性再評価結果に基づき、図 6.4 の選定フロー「物理的・化学的に発生の条件が整うか」で判断することが考えられる。

上記、決定論的手法の問題点としては、本 SAWG の先の報告書で提案したリスクの視点が希薄となり、事故発生頻度に関して青天井になるおそれがあることである。また、発生の可能性の非常に低い SA の評価においては、個々の因子の喪失仮定をあまりに保守的にすると、影響評価目的では問題は小さいが、本来の効果的 SA 対策抽出の観点からは、システム全体の中での本質的な因子が曖昧となり、結果として取るべき対策を見誤るおそれがある。

そこで、今後の課題としては、グループ(a)及び(b)については確率論的手法、グループ(c)については特に地震に関する確率論的手法を整備し、決定論的手法にリスクの視点から補完することが望まれる。その際、グループ(a)については、拡大防止対策である安全系の多重故障のみではなく、発生防止対策に位置付けられている様々な生産系システム・管理を、適切に考慮する必要がある。また、グループ(b)については、施錠管理システムのみならず、上流での核物質濃度の異常を引き起こすプロセス異常も適切に考慮する必要がある。さらに、グループ(c)については、リスクの視点を導入するためには、サイト固有の地震ハザードカーブや再処理機器の脆弱性データを

着実に整備することが必要である。

6.3 影響評価手法

(1) シナリオの選定

これまでに示した世界的な背景や臨界事故の特徴及び国内の再処理施設の安全評価の状況に鑑みれば、固体や粉末よりも核燃料溶液を対象とした臨界事故評価手法の検討が優先すべき課題となる。核燃料溶液には、中性子の減速材・反射材となる水素原子を多く含むため、固体等と比べてより少量の核燃料で臨界となりうることで、容器に合わせて容易に形状が変わりうることで、固体よりも核分裂生成物の体系外への移行が容易であることなどの特徴があるためである。

臨界事故は、核燃料物質が未臨界（反応度 $\rho < 0$ ）の状態（初期状態）から、起因事象によって、臨界（もしくは超臨界）（ $\rho \geq 0$ ）の状態に変化する（反応度が添加されるという）ことで生じる。初期状態は、臨界安全管理されている状態（質量管理、濃度管理、形状管理等のうち一つもしくは二つ以上の複合管理がなされている状態）であり、起因事象によりこの管理が一つもしくは二つ以上外れる状態に移行するために臨界事故が生じると考える。反応度がどのように添加されるか（単位時間当たりの反応度添加量など）は、臨界に達した後の出力挙動や核分裂数に影響するため、影響評価を精度よく実施するためには、これをできるだけ正確に評価しなければならない。

本節では、ウランやプルトニウムの溶液の臨界事故を想定して、影響評価手法を整理する。起因事象としては、形状の変化による反応度添加を主として取り扱う。このシナリオの特徴は、想定している核燃料物質単独で臨界になるために比較的単純である（混合により濃度が変化するような場合には、2種類以上の濃度の異なる溶液が必要である）。例えば、操作の失敗や機器の故障により臨界安全管理されている上流側から、臨界安全管理されていない容器に核燃料溶液が誤って流入する場合や、設計基準を超える巨大地震によって耐震 S クラスの容器が変形する場合もしくは破壊されて溶液が流出し、安全でない形状のところに集まる場合など、このシナリオは応用範囲が広い。

前節で述べたように、再処理施設には多様な形態の核燃料物質が存在するため、起因事象も多様である。形状の変化以外の起因事象（質量、濃度の変化）についてもそれぞれの項目の中で適用性について可能な限り説明する。酸化物粉末燃料の臨界事故に関しては、6.1 節で述べたように、溶液系の臨界事故と共通する部分があるので、個別の項目の中で手法の適用性や留意点を説明する。

(2) 影響評価手法と留意事項

五因子法を用いた評価では、MAR を炉物理分野の知見に基づいて評価し、その他の因子については、DOE ハンドブック¹⁴⁾や NUREG/CR-6410¹⁵⁾等に記載された方法で評価する¹⁶⁾。短半減期核種の取り扱いなど、注意すべき点や今後の課題については後述する¹⁶⁾。また、直接線による被ばくの評価について簡単に述べる。

(a) MAR の評価

MAR の評価手順は、①臨界計算、②核分裂数の評価、③放射性物質量の評価の3段階で行う。①臨界計算では、中性子と反応（核分裂、吸収、散乱）する物質の原子個数密度と形状のデータを用いて、核燃料物質とその容器、反射材等を含む検討対象全体についての、中性子実効増倍率

k_{eff} 、即発中性子寿命等の動特性パラメータ、反応度温度係数及びボイド係数等を求める。②核分裂数の評価では、これらの値を用いて、動特性解析等の手法により、時刻 t までに生じる核分裂数を求める。③放射性物質量の評価では、②で求めた核分裂数から、求めたい放射性物質の生成量を求める。

(b) 臨界計算（中性子実効増倍率、動特性パラメータ等の計算）

初めに臨界計算で、中性子実効増倍率 k_{eff} 、添加反応度に関する数値（添加量と添加率）、動特性パラメータ（即発中性子寿命、実効遅発中性子割合）を計算する。臨界に達するかどうかの判断基準についての詳細は、臨界安全ハンドブック¹⁷⁾に詳しく記述されている。

臨界計算で用いられる手法の一つがモンテカルロ計算である。米国では MCNP¹⁸⁾、SCALE¹⁹⁾、日本では MVP²⁰⁾などのコードが開発されている。複雑な形状でも詳細に入力することが可能で、中性子実効増倍率を精度よく評価することができるが、統計誤差を低減するためには相応の計算時間を要する。

動特性パラメータの評価は、決定論的手法（SRAC²¹⁾、DANTSYS²²⁾など）を用いて計算するのが一般的である。ただし、決定論的手法を用いたコードの多くは、複雑な体系の入力できないため、円筒体系などに単純化して計算する必要がある。近年ではモンテカルロ法によって動特性パラメータを評価する試みもなされている。

反応度温度係数を求めるには、想定される温度の範囲の数点について、臨界計算を行い、それぞれの温度における中性子実効増倍率の値を求める必要がある。通常は、常温から溶液の沸点までのうち 5～10 °C 程度の間隔で計算するが、この温度間隔での中性子実効増倍率の変化は小さく、モンテカルロ計算では統計誤差のために精度良い評価が難しい。このため、決定論的手法を用いて計算するのが一般的である。反応度ボイド係数については、想定されるボイドの割合（全体積に対してのボイド体積のパーセンテージ）を含む範囲で数点（例えば、3 %、6 %、9 %...など）を定めて、原子個数密度と体積を求め、その条件での k_{eff} を計算する。温度係数及びボイド係数は、これらの k_{eff} の値から反応度差を算出し、温度やボイド割合をパラメータとして直線もしくは 2 次曲線でフィッティングする（図 6.5 参照）²³⁾ことで、各係数进行评估する。

動特性計算で必要となる反応度の添加率を求めるには、適当な時間間隔で中性子実効増倍率を計算する。例えば、溶液の流入によって臨界になる場合、時々刻々の液位で臨界計算を行う。得られた中性子実効増倍率を反応度に換算し、それを直線もしくは曲線で近似する。反応度の添加の仕方は、後の出力挙動に影響するため、近似の程度は要求される計算精度に依存する。保守的な計算としては、想定される全ての溶液が流入し終わった状態に瞬時になった（瞬時反応度添加）とした計算を行う。水などに濃い溶液が混入して臨界に達するような場合、液位と濃度を変えながら同様の計算を行う。溶液及びそれ以外の形態の場合で、形状や濃度の変化で反応度が添加される場合の反応度添加率の計算も同様で、時々刻々の状態における k_{eff} を算出して評価する。

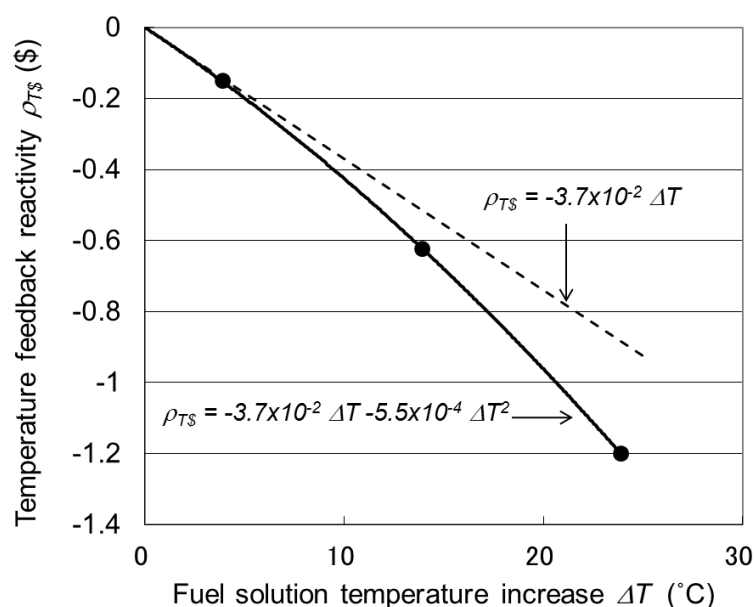


図 6.5 計算点（黒丸）に 2 次曲線をフィッティングして反応度温度係数を求めている例
(参考文献 23)より転載)

(c) バースト時の核分裂数の評価

核燃料物質が臨界に達した時, 通常は出力 (単位時間あたりに核分裂で放出されるエネルギー) が急激に上昇し, 温度上昇等のフィードバックにより未臨界となって, 出力が下降する。この過渡的な出力の変化を出力バーストと呼ぶ。金属燃料では単純な出力の上昇下降となるが, 核燃料溶液の場合, 沸点以上に温度が上昇することはない, 放射線分解ガスボイドによる細かな出力振動を伴う。沸騰に至らず, かつ強制冷却などが無い条件で, 臨界事故が出力バーストだけで終息した例が多くある。

臨界事故時の出力挙動と添加反応度等の関係を知るためのウラン水溶液を燃料として用いた過渡臨界実験には, TRACY (低濃縮硝酸ウラニル) ^{24)・29)}, KEWB (高濃縮硫酸ウラニル) ^{30)・31)}, CRAC (高濃縮硝酸ウラニル) ^{9)・32)}, SILENE (同左) ^{33)・34)} などがある。

出力バーストの評価には, 動特性解析 ^{35)・41)}, 準定常法 ^{42)・43)}, 簡易評価式 ^{44)・49)}, 一点炉動特性方程式等の解析解 ^{23), 50)・52)} といった手法が提案されている ⁵³⁾。最も汎用性に優れた手法は動特性解析であり, 数値計算によって一点炉動特性方程式を解くもの ^{35)・40)} が多く, 中性子輸送方程式を解くもの ⁴¹⁾ もある。これらの多くは, 溶液燃料を対象として熱伝導や放射線分解ガス等の影響を考慮するものだが, 金属 (もしくは粉末状) 燃料を対象としたもの ^{54)・55)} もあり, さまざまな条件を考慮した計算コードが提案されている。

一点炉動特性コードの例として, AGNES コード ³⁵⁾ について説明する。全反応度を $\rho(\cdot)$, 実効遅発中性子割合を $\beta(\cdot)$, 中性子世代時間を $\Lambda(\text{s})$, 第 i 群の遅発中性子先行核の崩壊定数を λ_i , 中性子源強度を $S (\text{W/s/m}^3)$ とすると, 出力密度 $P (\text{W/m}^3)$ と第 i 群の遅発中性子先行核濃度 $C_i (\text{m}^{-3})$ は以下の一点炉動特性方程式を満たす。

$$\frac{dP}{dt} = \frac{\rho - \beta}{\Lambda} P + \sum_{i=1}^6 \lambda_i C_i + S, \quad \frac{dC_i}{dt} = \frac{\beta_i}{\Lambda} P - \lambda_i C_i. \quad (6.1)$$

ここで,

$$\begin{aligned} \rho &= \rho_0 + \rho_T + \rho_V, \\ \rho_T &= \alpha_{T1} T + \alpha_{T2} T^2, \\ \rho_V &= \alpha_{V1} V + \alpha_{V2} V^2. \end{aligned}$$

ρ_0 : 添加反応度, ρ_T : 温度フィードバック反応度, ρ_V : ボイドフィードバック反応度, α_{xn} : 各フィードバック反応度の係数 ($x = T, v, n = 1, 2$) である。

熱計算は, 3つの領域 (燃料領域 ($j=1$), タンク壁 ($j=2$) 及び冷却材領域 ($j=3$)) について以下の熱バランス方程式を用いる。

$$\begin{aligned} V_i(\rho C_p)_j \frac{\partial T_i}{\partial t} &= \gamma_j P V_i + (hA)_{i-1}(T_{i-1} - T_i) - (hA)_i(T_i - T_{i+1}) \quad \text{for } j=1,2, \\ V_i(\rho C_p)_3 \frac{\partial T_i}{\partial t} &= \gamma_3 P V_i + (hA)_{i-1}(T_{i-1} - T_i) - \sigma C_{p3}(T_{out} - T_{in}). \end{aligned} \quad (6.2)$$

ここで, V_i : 第 i 領域の体積 (詳細は参考文献 35) 参照)。これらの方程式により時々刻々の出力, 温度などを数値計算する。

溶液燃料が沸騰に至る場合には, 安定的な沸騰に至るまでの間も放射線分解ガスボイドによる出力振動が継続的に生じる⁹⁾。このような場合には, 準定常法が適している。準定常法の手順は以下のとおりである⁴³⁾。

- | | | |
|--|--|-------|
| ① 添加反応度 $\rho_m(t)$ からボイド率 $f(-)$ を求める | $f = \rho_{in}/\alpha_f$ | (6.3) |
| ② ボイド率 f から出力 $Q(t)$ を求める | $aQ = f(1 - f)$ | (6.4) |
| ③ 上昇温度 $d\Delta T$ を求める | $\frac{d\Delta T}{dt} = KQ$ | (6.5) |
| ④ ボイド率 f を求める | $f = (\rho_{in} - \alpha_T \cdot \Delta T)/\alpha_f$ | (6.6) |
| ② から ④ を繰り返す | | |

ここで, α_f は反応度ボイド係数である。

準定常法の手順で数值的に解かれる式を連立させて近似的に解くことで得られる解として, 平均の出力やエネルギーを時間の関数として表す式が提案されている⁵²⁾。簡易評価式は, 特定の (燃料濃度, 容器形状等の) 条件において, それらの数値を用いて簡易的に核分裂数の包絡的な値を求めることを目的としている。一点炉動特性方程式の解析解を用いた手法は, 強力な冷却などの極端な条件がない条件で, 動特性解析と同等の結果を, 数値計算コードを用いないで得られる。

(d) プラトー時出力と核分裂数の評価

核燃料溶液の臨界事故では, 出力バーストで溶液温度が沸点に達した後, 安定的な沸騰状態が継続する。このような出力バーストに続く安定した臨界状態をプラトーと呼ぶ。JCO 臨界事故の

場合には、沸騰には至らなかったが、核燃料溶液が入っていた容器が強制冷却されていたため、冷却で奪われる熱にバランスする出力が長時間維持された。プラトールが問題となるのは、高い出力が維持される場合である。空気中の金属燃料の臨界事故のように、冷却されにくい条件でも、長い時間の後では温度が下がって再臨界となる可能性があるが、再臨界後の出力は低く、総核分裂数への寄与は小さいと考えられる。

沸騰時の出力評価には、準定常法が適している。ウランもしくはプルトニウムの硝酸溶液の沸騰時出力 Q と沸騰時ボイド率 f の関係として、 $Q = 7.96fV$ (V : 体積) が提案されている³²⁾。

六ヶ所再処理工場の安全評価⁵⁶⁾ではプラトール期の核分裂率 (fission/s) を過去の事例に基づいて推定している。基準のケースを 1×10^{15} とし、その 1/10 又は 10 倍を想定した場合の影響を確認している。ここでバースト期については 1×10^{18} としている。

(e) 各放射性物質の MAR の評価

セシウムやヨウ素などといった放射性物質の生成量は、求めた総核分裂数を基に計算する。ORIGEN⁵⁷⁾や SWAT⁵⁸⁾コードが利用できる。DOE-HB¹⁴⁾や NUREG/CR-6410¹⁵⁾ には、ORIGEN コードで計算した 10^{19} の核分裂に対する各放射性物質の生成量がまとめられているが (表 6.1 参照)、これらの数値は計算条件に依存するので、異なる計算条件に対して精度よく評価するためには、個別に計算する必要がある。臨界事故発生前から入っていた放射性物質についても、考慮する必要がある。

(f) 各放射性物質のその他の五因子法パラメータの評価

核燃料溶液の臨界事故に対して、DOE-HB、NUREG/CR-6410 では、DR、RF の値はガス状物質、エアロゾルともに保守的に 1 としている。ARF については表 6.2 のように、希ガスは 1、放射性ヨウ素は 0.05 などと種類別に値を設定しているが、いずれも保守的な値を提案している。また、いずれの放射性物質についても LPF は 1 としている。これらの値は、程度の差があるものの過大な値と考えられる。今後実験データの充実と計算モデルの検討が進めば最適な値が提案される可能性があるが、現状ではこれらの数値を用いる。金属や粉末など、核燃料が固体状の場合、希ガスを除くほとんどの核分裂片は固体内に留まると予想される上、放射性物質を建屋外に押し出すドライビングフォースとなる放射線分解ガス等が発生しないため、建屋外への影響は小さいと推定される。粉末で潤滑剤にステアリン酸亜鉛が用いられている場合には、これが熱分解を起こしてガスを発生することが報告されている⁵⁹⁾。

(g) 直接線による被ばくの評価

核分裂に伴って放出される中性子線及びガンマ線による空間線量率は、上述のモンテカルロ計算コードや輸送計算コード ANISN⁶⁰⁾ などを用いて計算することができる。線源 (単位時間当たり核分裂数 (出力)) の強度、線源としての核燃料から作業場所までの距離と、その間の遮蔽物としてのコンクリート壁等の厚さを入力として用いる。

時々刻々の線源の強度の評価には、動特性解析コードを用いることができる。溶液燃料で沸騰に至らない場合や固体状、粉末状等の場合の第 1 ピーク出力の評価には、一点炉動特性方程式の解析解を用いることができる。沸騰に至るような、大きい反応度が添加されて激しい出力振動が

生じる場合のバースト時には、平均の出力 Q と放射線分解ガスボイドの割合 f との関係について

$$f(1-f) = \frac{(1-0.36C_N^{0.45})(2.25-0.2C_N^{0.33})+0.15+0.17C_N^{0.7}}{S \cdot v_{\infty}} 2.82 \cdot Q \quad (6.7)$$

が提案されている⁴²⁾。ここで S はタンクの断面積(m²)、 v_{∞} は気泡の上昇速度 (～5 cm/s) である。

表 6.1 使用済燃料 (²³⁵U 濃度 5%未満) の臨界事故で放出される重要な核種
(参考文献 14)より転載)

Nuclide	Half-life ^(b)	Radioactivity, Ci ^(a)		
		0 to 0.5 hr	0.5 to 8 hr	Total
Kr-83m	1.8 h	3.7E+0	3.3E+1	3.7E+1
Kr-85m	4.5 yr	1.6E+1	1.5E+2	1.7E+2
Kr-85	1.7 yr	1.5E-4	1.4E-3	1.6E-3
Kr-87	76.3 m	1.0E+2	9.0E+2	1.0E+3
Kr-88	2.8 h	6.5E+1	5.9E+2	6.6E+2
Kr-89	3.2 m	4.1E+3	3.7E+4	4.1E+4
Xe-131m	11.9 d	3.8E-4	3.5E-3	3.9E-3
Xe-133m	2.0 d	5.5E-2	1.9E+0	2.2E+0
Xe-133	5.2 d	1.3E+0	2.3E+1	2.7E+1
Xe-135m	15.6 m	1.1E+1	2.8E+3	3.3E+3
Xe-135	9.1 h	1.6E+1	3.5E+2	4.1E+2
Xe-137	3.8 m	3.8E+3	4.2E+4	4.9E+4
Xe-138	14.2 m	1.2E+3	9.5E+3	1.1E+4
I-129	2E+7y	3.9E-10	4.3E-10	4.3E-10
I-131	8.1 d	1.8E-1	1.6E+0	1.8E+0
I-132	2.3 h	6.7E-1	6.1E+0	6.7E+0
I-133	0.8 h	3.5E+0	3.1E+1	3.5E+1
I-134	52.6 m	4.8E+1	4.3E+2	4.8E+2
I-135	6.6 h	1.2E+1	1.0E+2	1.2E+2

プラトーの出力の評価については、溶液が沸騰している場合には⁴³⁾

$$Q = 7.96fV \quad (6.8)$$

沸騰していない場合には、伝熱や自然対流、強制冷却等によって燃料から奪われる熱に相当する出力となる。

表 6.2 加熱された使用済燃料から放出される化学種の割合(参考文献 14)より転載)

Group #	Group Name	Rep. Ele.	Elements in Group	ARF
1	Noble Gases	Xe	Xe, Kr, He, Ne, Ar, Rn, H	5E-1
2	Alkali Metals	Cs	Cs, Rb, Li, K, Fr, Na	2E-1
3	Alkali Earths	Ba	Ba, Sr, Mg, Ca, Ra, Be	3E-2
4	Halogens	I	I, F, Cl, Br, At	5E-2
5	Chalogens	Te	Te, S, Se, O, Po, N	7E-2
6	Platinoids	Ru	Ru, Rh, Pd, Os, Ir, Pt, Au, Ni	2E-3
7	Transition Metals	Mo	Mo, V, Cr, Fe, Co, Mn, Nb, Tc	3E-2
8	Tetravalent	Ce	Ce, Ti, Zr, Hf, Th, Pa, U, Np Pu	4E-4
9	Trivalent	La	La, Al, Sc, Y, Ac, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Am, Bk, Cf	6E-4
10	Main Group I	Cd	Cd, Hg, Zn, As, Sb, Pd, Tl, Bi	4E-3
11	Main Group II	Sn	Sn, Ca, In, Ag	4E-3
12	Boron	B	B, Si, P, C	6E-4

(3) 影響評価に関する残された課題

以下では、最適推定を行うために五因子法の各因子を評価する場合の、今後の課題について述べる。設計基準事故もしくは立地評価事故としての臨界事故の影響評価では、影響が十分小さいことが確認できればよいために、過大な評価でも十分に役立っていた。SA に対しては、アクシデントマネジメント策を講じる必要性から、できる限り精度良い評価方法が必要である。過大すぎる評価に基づいた場合、誤った判断に至る可能性があるためである。

NUREG/CR-6410 などでは DR, RF, LPF は 1 とされており、ARF については種別ごとに値が設定されている。近年の実験データは、これらの値が過大もしくは誤差が大きいことを示唆しているものの、定量的な評価には不十分である。実験データが拡充されるとともに、広範な条件に適用可能な評価モデルが整備されて、より精度の高い評価が可能となる因子の値が提案されることが期待される。

(a) MAR の経時変化

核燃料溶液の臨界事故で沸騰に至らなかった場合や固体状燃料の場合に、臨界事故はバーストのみで一時的に終息する場合が多く、数分から数十分以内に出力が無視できる程度に小さくなる(放置しておくとも再臨界となる可能性がある)。一方で、臨界事故において核分裂で生じる放射性物質は、核分裂片の崩壊系列として知られている一連の崩壊によって生じる。この崩壊系列をたどるのに時間がかかるため、臨界事故発生直後から相当の時間が過ぎた後で、検討対象となる放射性物質が発生することが考えられる。例えば、¹³¹I は臨界事故発生の 1~2 時間後に気相中に急

増すること（図 6.6 参照）が報告されている⁶¹⁾。また、崩壊系列に沿って希ガスからエアロゾルになる場合がある。希ガスは他の物質と反応し難く、フィルタにもかからないために建屋外に移行するのが容易である。 ^{138}Xe (半減期 14.08 min)のように崩壊定数が長い場合、生成直後はガス状で、建屋外に放出された後でエアロゾル化する可能性がある。

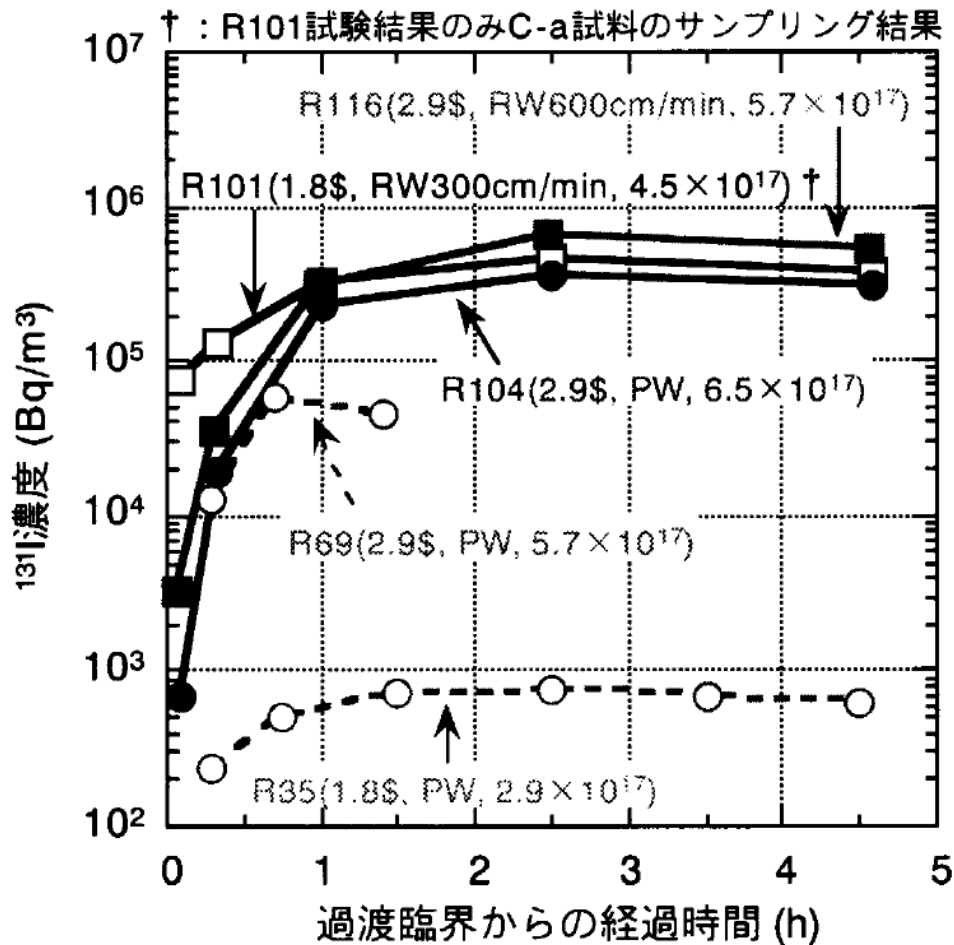


図 6.6 気相中の ^{131}I 濃度の経時変化(参考文献 61)より転載)

(b) ドライビングフォース

放射性物質が生成されても、それを建屋外へ押し出す力（ドライビングフォース）がなければ、ほとんどの放射性物質は建屋内に留まると考えられる。そのため、どのようなドライビングフォースがどのタイミングでどの程度の時間作用するのかは、ARF 及び LPF の値を決定する上で重要である。

臨界事故において、放射性物質を移行させるドライビングフォースとしては、放射線分解ガス、 NO_x ガス、水蒸気が考えられる。特に、沸騰時には水蒸気が発生し続けることを考慮する必要がある。

ある。放射線分解ガスと NO_x ガスについては、TRACY の実験データ⁵¹⁾があるものの、さまざまな条件での定量的な評価に用いることができるような汎用性の高いモデルは整備されておらず、また、そのための実験データが少ない。

(c) ARF 及び RF

ARF についても継時的な変化があり得る上、条件に応じて異なった値となる可能性がある。¹³¹I、¹³³I の放出割合 (ARF) の経時的データ (図 6.7 参照) が TRACY 実験により取得されている⁶¹⁾、⁶²⁾が、そこでは添加反応度に応じて実験ごとに異なった値で推移していることが報告されている。

核燃料溶液の臨界事故において、放射線分解ガス等の気泡が液面で破裂することによりミストが飛散する。沸騰時にはミストの飛散が継続するので、エアロゾルの ARF は沸騰時に大きくなると考えられるが、これを確認もしくは否定するような実験データは得られていない。

ミストがエアロゾル化して移行する場合には、その大きさによって RF が異なるが、希ガスがエアロゾル化した物質は、粒子が細かく吸引し易い (RF~1) と考えられる。

(d) LPF 及び DR

主な物質のうち、Cs については、原子炉の事故のような高温でのデータは存在するが、そのようなデータの再処理施設の事故への適用性については検討されていない。ヨウ素については、I₂ が吸着性を示すことが知られているが、TRACY 実験では、放出されたヨウ素の 6 割が有機ヨウ素であったとする報告がある⁶²⁾。放出されるヨウ素の化学形とその条件については、より多くの実験データによる確認が必要である。ヨウ素については、気相中で有機ヨウ素 (例: CH₃I) と I₂ が測定されている。有機ヨウ素は配管等に付着し難い (LPF~1) が、I₂ は付着し易い (LPF が低い) 性質がある。このため、その割合 (DR) は被ばく評価に重要である。

また、沸騰時には、気相中に硝酸と水の蒸気が混在すると考えられるが、そのような雰囲気ではヨウ素の化学形が変化するかどうかについての知見は得られていない。以上のように、Cs やヨウ素については LPF = 1 が過大であることを示唆するデータはあるものの、具体的な値を設定するにはより検討を進める必要がある。Ru については、その吸着性が考慮されるべきである。蒸発乾固事故に関する研究により得られたデータが適用可能と考えられる。

(e) 水素発生について

水の放射線分解によって生成されるガスは水素と酸素であるため、硝酸ウラニル水溶液など、核燃料の水溶液の臨界事故時には水素ガスが発生する。水素ガスは、一定の条件下で火災や爆発につながる危険があるため、その発生量は事故影響評価上、重要である。過渡臨界実験で得られた、水素ガスの G 値については、条件に依存して 0.6~1.8 の範囲であるとの報告がある^{9), 63)}。

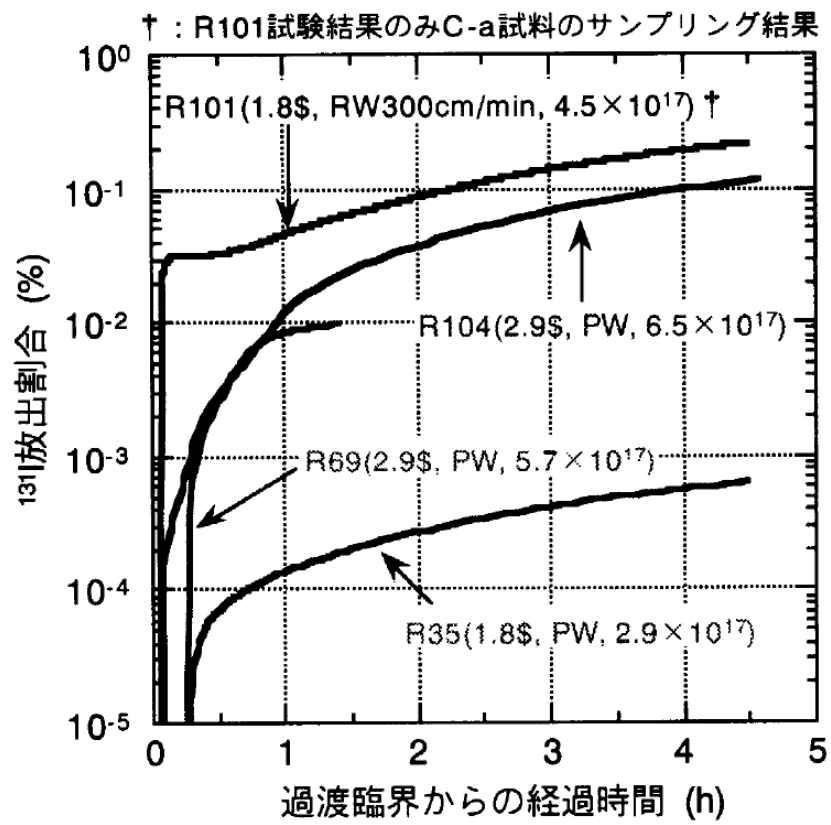


図 6.7 ^{131}I の放出割合(参考文献 61)より転載)

6.4 まとめ

核燃料サイクル施設における臨界事故時の放射性物質放出量評価を行う上で必要な項目を整理した。表 6.3 に本稿において取り上げた事故時の放射性物質放出量評価に利用可能な実験データと解析手法及び課題をまとめて示す。

表 6.3 実験データ及び解析手法等のまとめ

取り上げた 評価項目	対応する 五因子法 パラメータ	調査内容	課題
放射性物質の 生成	MAR	<u>実験データ</u> <u>TRACY</u> JAERI-Data/Code 2002-005,6,7 Procs. ICNC2003, ICNC2011 OECD/NEA No.06285 JAERI-Tech 99-067 <u>KEWB</u> NAA-SR-5415, 7087 <u>CRAC</u> Y-CDC-12 <u>SILENE</u> SRSC No.223, Nucl. Sci. Engineering161.p160 <u>解析手法</u> <u>臨界計算</u> モンテカルロ法:MCNP, SCALE, MVP 決定論コード: SRAC, DANTSYS <u>動特性計算</u> 一点炉コード:AGNES, TRACE, CREST, CRITEX, SKINATH, FELIX 輸送計算コード: FETCH 準定常法:Nakajima 解析解:Yamane 簡易法:Tuck, Olsen, Barbry, Nomura, Duluc <u>放射性物質生成量計算</u> DOE-Handbook NUREG-CR/6410 ORIGEN コード SWAT コード	・経時的に変化する短半減期核種の生成量の評価精度向上のためには動特性計算と生成量計算との連成が必要 ・放射線分解ガスの生成量の評価には G 値と事故条件（例えば溶液の濃度，酸濃度，出力等）との関係を明らかにすることが必要
ドライビング フォース	—	JAERI-Tech 99-067	・NO_x ガス及び放射線分解ガスの生成量の評価には G 値と事故条件との関係を明らかにすることが必要

表 6.3 実験データ及び解析手法等のまとめ（続き）

取り上げた 評価項目	対応する 五因子法 パラメータ	調査内容	課題
その他	DR	DOE-Handbook NUREG-CR/6410 JAERI-Tech 99-067	・生成される有機ヨウ素と無機ヨウ素の割合に関する実験データが少ない
	ARF	DOE-Handbook NUREG-CR/6410 JAERI-Tech 99-067	・沸騰時と非沸騰時の移行率 (ARR) のデータが少ない ・エアロゾルでも溶液から気相へ移行する際にはガス状のもののデータが少ない
	RF	DOE-Handbook NUREG-CR/6410 JAERI-Tech 99-067	・エアロゾルの粒径分布に関するデータが少ない
	LPF	DOE-Handbook NUREG-CR/6410	・炉の条件（高温）のデータを再処理施設の条件（低温）に適用可能か、検討が必要
直接線の影響	—	ANISN コード	—

参考文献

- 1) T.P. McLaughlin, S.P. Monahan, N.L. Pruvost, V.V. Frolov, B.G. Ryazanov, V.I. Sviridov. *A review of criticality accidents 2000 revision*, LA-13638, Los Alamos National Laboratory, (2000).
- 2) K. Nakajima, “Application of simplified methods to evaluate consequences of criticality accident using past accident data.” *Proc. International Conference on Nuclear Criticality Safety ICNC 2003*, pp. 171–176, Tokai-mura, (2003).
- 3) 吉田 一雄, 阿部 仁, 山根 祐一, 田代 信介, 村松 健, 「核燃料施設の確率論的安全評価に関する調査(II)」, JAEA-Research 2007-002, Japan Atomic Energy Agency, (2007).
- 4) 原子力安全委員会, 「安全審査指針の体系化について」, 平成 15 年 2 月.
- 5) <https://www.iaea.org/ns/tutorials/regcontrol/intro/glossaryc.htm>.
- 6) J.J. Duderstadt, L.J. Hamilton, *Nuclear Reactor Analysis*, John Wiley & Sons, (1976).
- 7) K. Nakajima *et al.*, JAERI-Data/Code 2002-005, (2002).
- 8) 日本原子力学会 JCO 事故調査委員会 「JCO 臨界事故その全貌の解明・事実・要因・対応」, (2005).
- 9) F. Y. Barbry, D. Mangin, H. Revol, C.R.A.C., Recapitulation of Experiment Results, Rapport S.E.E.S.N.C. No. 116, Department de Sûreté Nucléaire, Commissariat à l’Energie Atomique, (1973), [in French].
- 10) K. Tonoike *et al.*, “Power Profile Evaluation of the JCO Precipitation Vessel based on the Record of the Gamma-ray Monitor,” *Nucl. Technol.*, **143**[3], 364-372 (2003).
- 11) 原子力規制委員会, 「核燃料施設等の新規制基準適合性に係る審査会合 (第 42 回) 資料 1」, (2015).
- 12) 日本原燃株式会社, 「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工場の安全性に関する総合的評価に係る報告書 (使用済燃料のせん断・溶解等を行う場合の状態を対象とした評価)」, (2013).
- 13) 「再処理事業所再処理事業指定申請書」, 日本原燃株, (1989).
- 14) DOE-HDBK-3010-94, *AIRBORNE RELEASE FRACTIONS/RATES AND RESPIRABLE FRACTIONS FOR NONREACTOR NUCLEAR FACILITIES*, (2013).
- 15) Science Applications International Corporation, *Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook*, NUREG/CR-6410, (1998).
- 16) Y. Yamane, H. Abe, “Development of Standard Procedure for Consequence Analysis of Criticality Accident in Fuel Cycle Facilities.” *Proc. CSNI Workshop on Developments in Fuel Cycle Facilities (FCFs) after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (NPS) Accident, Aomori-city, Japan*, Nov.15-17, (2016).
- 17) 「臨界安全ハンドブック第 2 版」, JAERI 1340, (1999).
- 18) MCNP Monte Carlo Team. *MCNP-a general Monte Carlo N-Particle transport code, version 5*, La-UR-031987, Los Alamos National Laboratory, (2003).
- 19) B.T. Rearden, M.A. Jessee, Eds., *SCALE Code System*, ORNL/TM-2005/39, Version 6.2, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, 2016. Available from Radiation

- Safety Information Computational Center as CCC-834, (2016).
- 20) Y. Nagaya, K. Okumura, T. Mori, M. Nakagawa. *MVP/GMVPII: general Monte Carlo codes for neutron and photon transport calculations based on continuous energy and multi-group methods*, JAERI 1348, (2005).
 - 21) K. Okamura, K. Kaneko, K. Tsuchihashi, *SRAC95: General purpose neutronics code system*, Tokai(Japan): Japan Atomic Research Institute; 1996, JAERI-Data/Code 96-015, (1996).
 - 22) R.E. Alcouffe, R.S. Baker, F.W. Brinkley, D.R. Marr, R.D. O'Dell, W.F. Walters. *DANTSYS: A diffusion accelerated neutral particle transport code system*, New Mexico (USA): Los Alamos National Laboratory; 1995, LA-12969-M (1995).
 - 23) Y. Yamane, "Improvement in estimation of first peak power based on non-linear temperature feedback reactivity in criticality accident with instantaneous reactivity insertion," *J. Nucl. Sci. Technol.* **52**[11], 1425-1435, (2015).
 - 24) K. Nakajima *et al.*, *Tracy transient experiment databook 1) pulse withdrawal experiment*, JAERI Data Code 2002-005, (2002).
 - 25) K. Nakajima *et al.*, *Tracy transient experiment databook 2) ramp withdrawal experiment*, JAERI Data Code 2002-006, (2002).
 - 26) K. Nakajima *et al.*, *Tracy transient experiment databook 3) ramp feed experiment*, JAERI Data Code 2002-007, (2002).
 - 27) Y. Yamane *et al.*, "Transient Characteristics Observed in TRACY Supercritical Experiments." *Proc. Int. Conf. on Nuclear Criticality Safety ICNC 2003*, pp. 791-796, Tokai-mura, Japan, (2003).
 - 28) Y. Yamane *et al.*, "Final series of TRACY experiments." *Proc. Int. Conf. on Nuclear Criticality ICNC 2011*, paper 6-09, Edinburgh, Scotland, (2011).
 - 29) Y. MIYOSHI *et al.* *Inter-code Comparison Exercise for Criticality Excursion Analysis: Benchmarks Phase I: Pulse Mode Experiments with Uranyl Nitrate Solution Using the TRACY and SILENE Experimental Facilities*, OECD NEA report n°06285 (ISBN: 978-92-64-99073-9), (2009).
 - 30) J. W. Flora *et al.*, *Kinetic experiments on water boilers "A" core report – Part I Program history, facility description, and experimental results*, NAA-SR-5415, (1962).
 - 31) M. S. Dunenfeld, R. K. Stitt, *Summary review of the kinetics experiments on water boilers*, NAA-SR-7087, (1963).
 - 32) P. Lecorche, R. L. Seale, *Review of the Experiments Performed to Determine the Radiological Consequences of a Criticality Accident*, Oak Ridge, TN., Y-CDC-12, (1973).
 - 33) F. Barbry, *SILENE Reactor: Results of Selected Typical Experiments*, SRSC n°223, (1994).
 - 34) F. Barbry *et al.*, "Review of the CRAC and SILENE Criticality Accident Studies," *Nucl. Sci. Eng.*, **161**[2], 160-187, (2009).
 - 35) K. Nakajima, Y. Yamane, Y. Miyoshi. *A kinetics code for criticality accident analysis of fissile solution systems: AGNES2*, JAERI-Data/Code 2002-004; (2002).
 - 36) B. Basoglu, T. Yamamoto, H. Okuno, Y. Nomura. *Development of a new simulation code for evaluation of criticality transients involving fissile solution boiling*, JAERI Data/Code 98-

- 011; (1998).
- 37) R. Kato, T. Nakamura, Y. Senda. "The code CREST to simulate criticality accident power excursion in fuel solution." *Proc. Safety Margin in Critical Safety*, 1989 Nov 26–30, San Francisco, (1989).
 - 38) D.J. Mather, R.J. Shaw. *CRITEX – A computer program to calculate criticality excursions in fissile liquid systems*, SRD R 380; (1984).
 - 39) H.L. Dodds, R.M. Westfall. *SKINATH – A computer program for solving the reactor point kinetics equations with sample thermal hydraulic feedback*, ORNL/ CSD/ TM – 210; (1984).
 - 40) B. Gmal, J. Weber. *FELIX – A computer code for simulation of criticality excursions in liquid fissile solutions*, In: K. Ebert, R.V. Ammon. editors. *Safety of the nuclear fuel cycle*. Deerfield Bch: VCH Publishers, (1989).
 - 41) C.C. Pain, C.R.E. deOliveira, A.J.H. Goddard, A.P. Umpleby. "Transient criticality in fissile solutions compressibility effects." *Nucl. Sci. Eng.*, **138**[1], 78–95, (2001)
 - 42) T. Schulenberg, J. D'ohler, "Heating-up, nucleation and boiling of a critical solution of fissile material," *Int. J. Multiphase Flow*, **12**[5], 759-770, (1986).
 - 43) K. Nakajima, T. Yamamoto, Y. Miyoshi. "Modified quasisteady-state method to evaluate the mean power profiles of nuclear excursions in fissile solution." *J. Nucl. Sci. Technol.*, **39**[11], 1162-1168, (2002).
 - 44) G. Tuck. "Simplified methods of estimating the results of accidental solution excursions." *Nucl. Technol.*, **23**[2], 177-188, (1974).
 - 45) A.R. Olsen, R.L. Hooper, V.O. Uotinen, C.L. Brown. "Empirical model to estimate energy release from accidental criticality." *Trans Am, Nucl. Soc.*, **19**, 189-191, (1974).
 - 46) F. Barbry, J.P. Rozain, R. Ratel, J.C. Manaranche. "Criticality accident studies in France: experimental programs and modelisation." *Proc. International Seminar on Nuclear Criticality Safety, ISCS'87*, p.423, Tokyo, Japan, (1987).
 - 47) Y. Nomura, H. Okuno. "Simplified evaluation models for total fission number in a criticality accident." *Nucl. Technol.*, **109**[1], 142–152, (1995).
 - 48) Y. Nomura, H. Okuno, Y. Miyoshi. "Validation of simplified evaluation models for first peak power, energy, and total fissions of a criticality accident in a nuclear fuel processing facility by TRACY experiments." *Nucl. Technol.*, **148**[3], 235–243, (2004).
 - 49) M. Duluc. "New improvement in simplified methods of estimating the number of fissions during a criticality accident in solution." *Proc. Topl. Mtg. Nuclear Criticality Safety Division* (NCSD2009; 2009 Sep13–17; Richland, Washington (DC), (2009).
 - 50) 山根 祐一, 「非線形の温度フィードバック反応度に基づく臨界事故時の第1ピークエネルギーの近似式」, 日本原子力学会「2015 春の年会」予稿集 J25, (2015).
 - 51) 山根 祐一, 「非線形の温度フィードバックを有する体系の瞬時反応度添加による臨界事故時放出エネルギー」, 日本原子力学会「2016 春の年会」予稿集 1O08, (2016).
 - 52) 山根 祐一, 「放射線分解ガスボイドによって揺らぐ臨界事故時放出エネルギーの平均的挙動」, 日本原子力学会「2016 秋の大会」予稿集 2H13, (2016).
 - 53) Y. Naito, T. Yamamoto, T. Misawa, Y. Yamane, "Review of studies on criticality safety

- evaluation and criticality experiment methods,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **50**[11], 1045-1061, (2013).
- 54) Y. Yamane *et al.*, JAERI-Conf 2003-019, (2003).
- 55) D. J. Mather , A. M. Bickley, *POWDER, a computer code to model the transient criticality behaviour of a bed of wetted uranium dioxide powder*, AEA/SRD R 549 (may 1991)
- 56) 日本原燃株式会社, 「六ヶ所再処理施設における新規規制基準に対する適合性「溶解槽における臨界事故」への対処の有効性評価」, <http://www.nsr.go.jp/data/000129269.pdf>, (2015).
- 57) S.B. Ludwig, A.G. Croff, *Revision to ORIGEN2 – Version 2.2*, Transmittal memo of CCC-0371/17, Oak Ridge National Laboratory (2002).
- 58) 鹿島 陽夫, 須山 賢也, 高田 友幸, 「連続エネルギーモンテカルロコード MVP, MCNP 及び核計算コード SRAC を使用する統合化燃焼計算コードシステム－SWAT4.0」, JAEA-Data/Code 2014-028, (2014).
- 59) 山根 祐一 他, 「MOX 粉体系の過渡臨界事象評価のための物性値データ－MOX 及びステアリン酸亜鉛粉末の物性値－（受託研究）」, JAERI-Data/Code 2006-021, 2006.
- 60) W. Ward. Engle, Jr., *A Users Manual for ANISN: A One Dimensional Discrete Ordinates Transport Code with Anisotropic Scattering*, K-1693, (1967).
- 61) 阿部 仁 他, 「溶液燃料の過渡臨界事象に伴う放射性ヨウ素及び希ガス等の放出挙動の検討」, JAERI-Tech 99-067, (1999).
- 62) 田代 信介, 阿部 仁, 「溶液燃料臨界事故時における放射性ヨウ素の気相への移行挙動」, JAEA-Tech 2015-044,(2015).
- 63) 田 涼一郎, 山根 祐一, 阿部 仁, 「硝酸ウラニル水溶液の過渡臨界における水素ガス発生量の推定」, 日本原子力学会「2016 秋の大会」予稿集 2G22, (2016).

7. 放射線分解水素の爆発

7.1 事故の概要

(1) 水素爆発事故

再処理施設の機器には、内包する溶液の放射線分解により水素が発生するものがあり、機器内に蓄積する可能性がある。このような機器では、発生する水素の蓄積を避けるために、常時圧縮空気(以下、「圧空」という。)を供給することにより機器内の水素を掃気している。

したがって、万一、この掃気機能が喪失して水素が爆発下限濃度(4 vol%)以上に蓄積し、さらに着火源の存在を想定すると、水素爆発が発生する可能性がある。その場合、機器内気相部への放射性物質移行量が増加し、排気系を介して外気へ放出される放射性物質量が平常時より増加する可能性がある。また、水素爆発により機器が破損する場合や、急激な圧力変動により水封が損なわれた場合は、セル換気系や建屋換気系を介して放射性物質が放出されることも考えられる。再処理施設で想定されるシナリオを図7.1に示す。

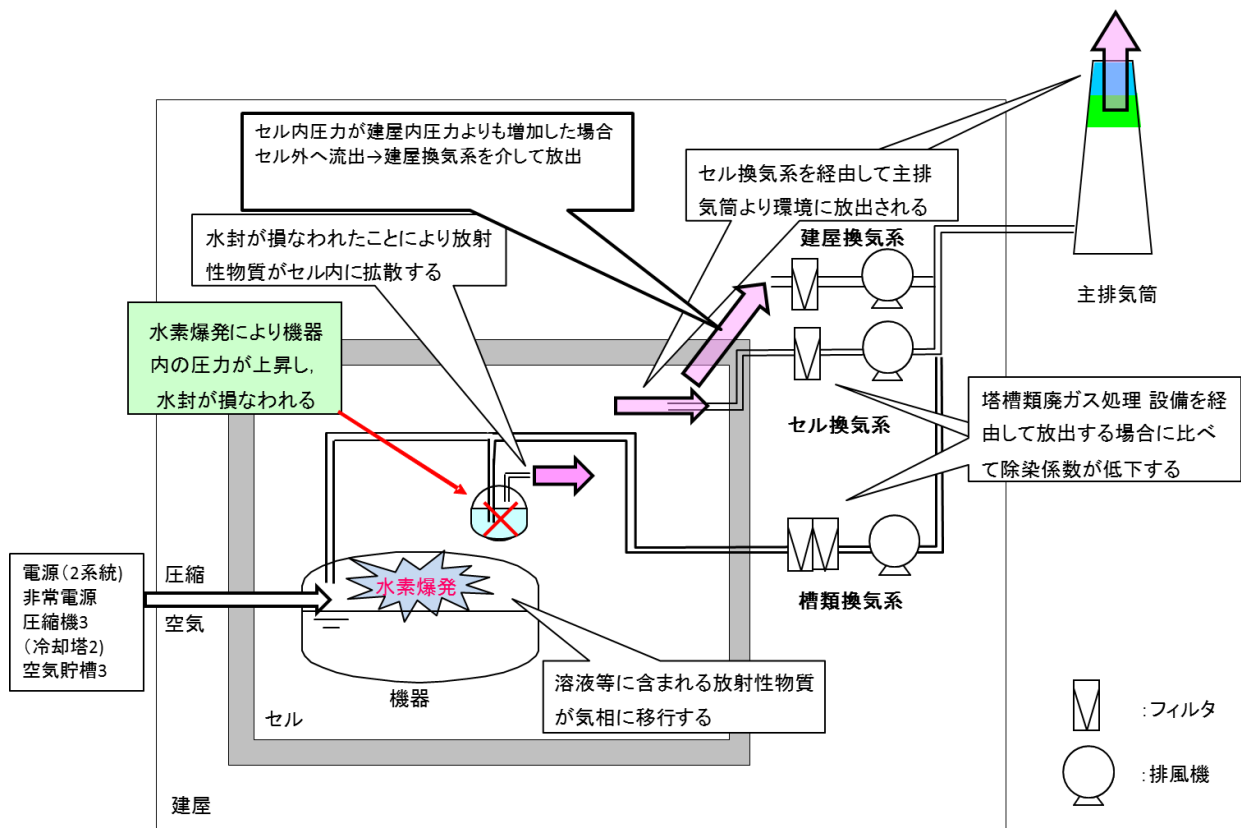


図7.1 再処理施設で想定される水素爆発シナリオ
(参考文献1)より一部変更し転載)

(2) 安全対策

再処理施設の機器内の主要な水素蓄積防止対策の概要を図7.2に示す。六ヶ所再処理工場では、圧空の供給が停止したときに、放射線分解により発生する水素の濃度が爆発下限濃度に達するまでの時間余裕が小さい機器を対象に、安全圧空系から圧空を供給することにより、発生する水素の濃度を爆発下限濃度未満に抑制する設計となっている。安全圧空系の系統構成については、3台の空気圧縮機及び3基の空気貯槽から構成されており、水素掃気用の空気貯槽から圧空を供給することで、放射線分解によって発生した水素が蓄積しない設計としている。空気圧縮機は、1台でも必要な圧空を供給する容量を有しており、空気圧縮機の運転に必要な冷却水は、安全冷却水系の外部ループから供給されている。万一、空気圧縮機などの動的機器の単一故障を仮定しても、その安全機能が確保できるように多重化されている。また、外部電源が喪失した場合は、非常用ディーゼル発電機から安全圧空系に給電できる設計としており、さらに短時間の全交流動力電源の喪失が発生した場合でも、水素の蓄積防止の機能を確保できる容量を確保している。

また、静電気の発生のおそれのある機器は、接地を行うなどにより着火源を排除する対策が施されている。

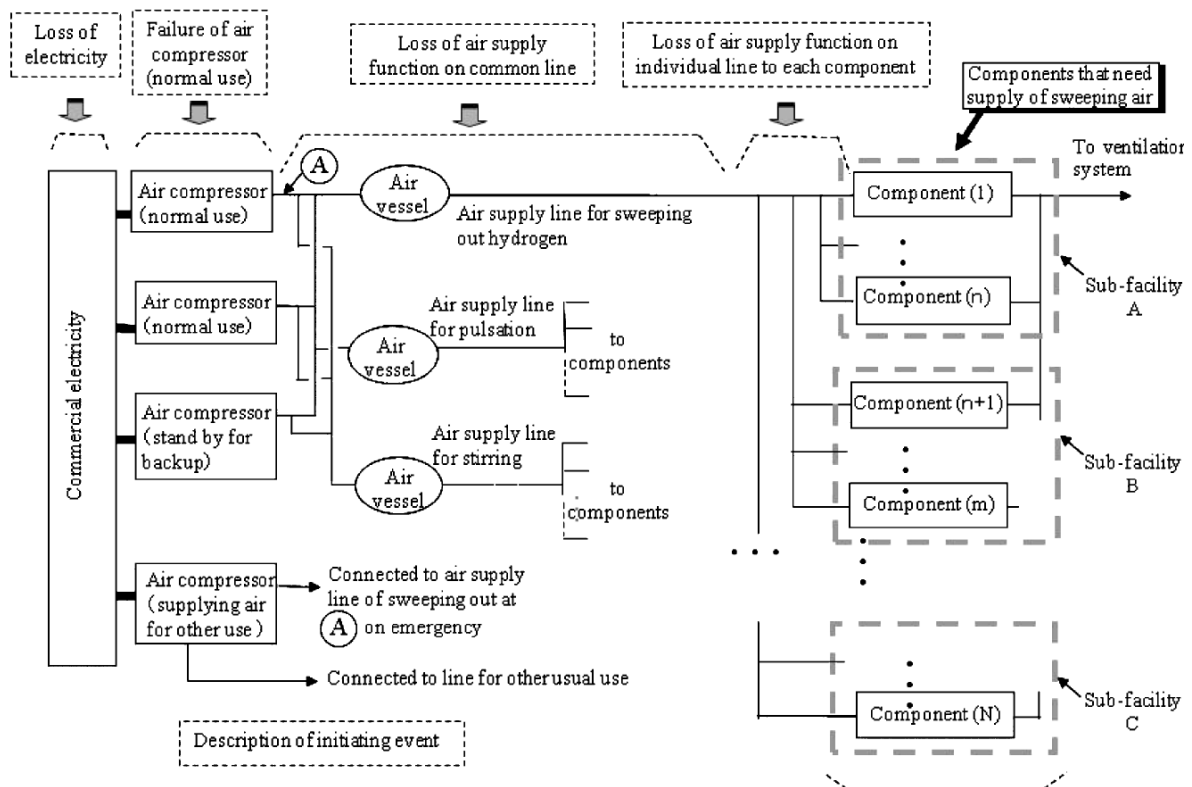


図 7.2 再処理施設の機器内の主要な水素蓄積防止対策の概要（参考文献 2）より転載）

7.2 想定される事故シナリオ

水素爆発事象において想定される事故進展シナリオを図7.3に示す。水素爆発における事故の進展は大きく「(1)水素の蓄積防止の機能喪失などから爆発下限濃度までの上昇」，「(2)水素爆発，再爆発」，「(3)水素爆発による影響」の3つに分けられる。

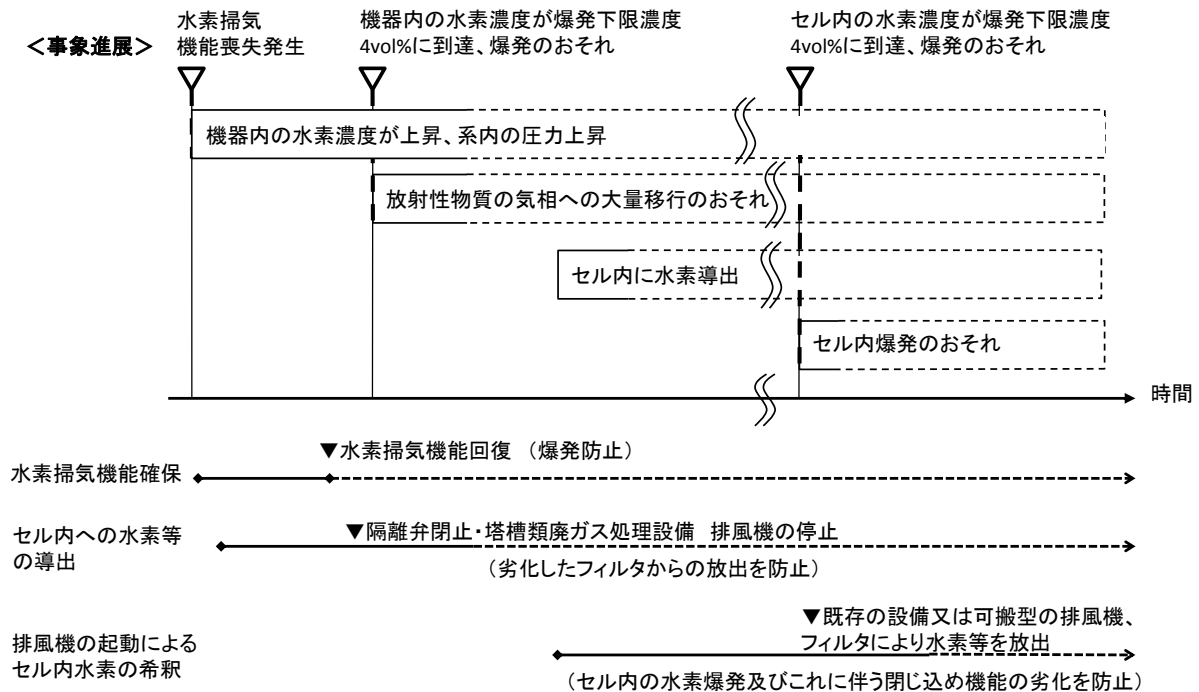


図 7.3 想定される事故進展及び対策のシナリオ

(1) 水素の蓄積防止の機能喪失などから爆発下限濃度までの上昇

7.1(2)で述べたように放射性分解水素による水素爆発が発生するためには、水素蓄積を防止するための掃気用の圧空の喪失かつ着火源の存在が成立する必要がある。

上記の条件について想定される事象としては、例えば以下のようなものが考えられる。

①掃気用圧空の喪失

- ・空気圧縮機自体の喪失（圧縮機故障，電源断など）
- ・圧空供給配管の損傷

②着火源

- ・電源ケーブルの破損によるスパーク（建屋）
- ・施工時の切削屑の流動による火花（配管など）
- ・静電気

①が発生することにより，放射線分解によって発生する水素が機器内に蓄積し始める。機器内の水素が爆発下限濃度(4 vol%)に至るまでの時間余裕は，溶液の性状（ α ・ β 壊変，放射能濃度，硝酸濃度）並びに塔槽類の溶液貯蔵量及び気相容積に依存し，計算で評価することが可能である。

放射線分解ガスの蓄積による水素爆発シナリオにおいて，爆発下限濃度に至るまでの時間余

裕は、水素発生量算出に用いるG値（試料に吸収された放射線エネルギー100 eV当りに生成された水素の分子数）により異なることから、水素G値を適切に設定する必要がある。

(2) 水素爆発，再爆発

水素濃度が爆発下限濃度(4 vol%)以上に蓄積し，②の着火源が存在する場合，水素爆発を引き起こす可能性がある。着火の確率は発生頻度に影響を与えるため，着火の要因，及び着火確率については今後調査をする必要がある。水素爆発が発生した後の水素濃度は一時的に低下すると考えられるが，放射線分解によって水素の発生は継続されるため再度水素濃度は上昇し，再び爆発する可能性がある(図7.4)。

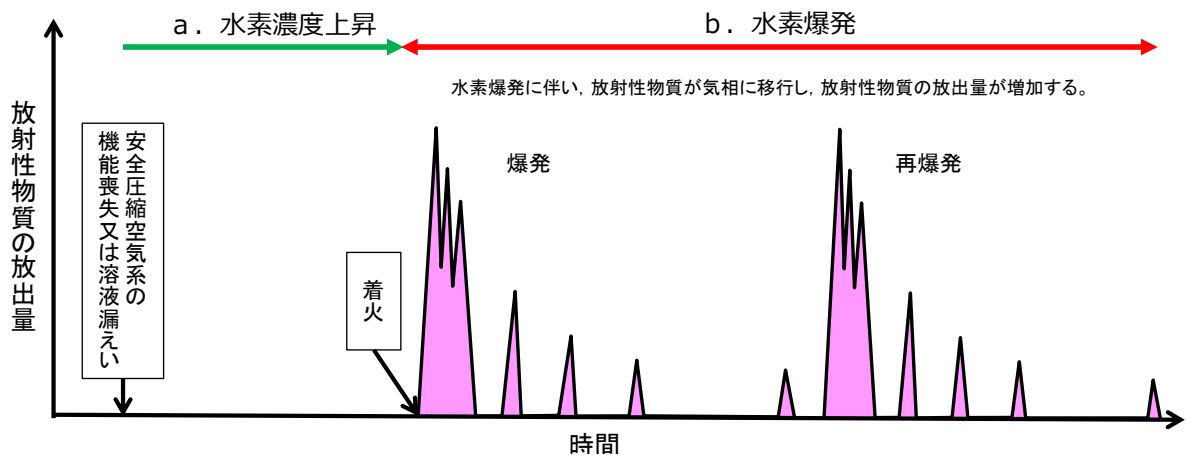


図 7.4 放射線分解水素の爆発，再爆発のイメージ
(参考文献 3)より一部変更し転載)

(3) 水素爆発による影響

水素爆発による影響は，爆風及び圧力変動時によるガスの溶存・放出による溶液の気相への移行，また移行経路である排気系の破損による放射性物質の環境への移行などが考えられる。

爆発時の溶液の気相への移行メカニズムとして以下が考えられる(図7.5)。

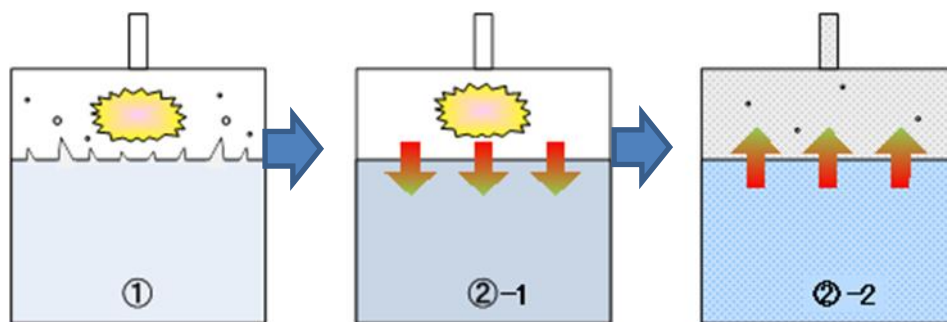


図 7.5 水素爆発による溶液の気相への移行

- ① 爆発によって貯槽内の圧力が急上昇し，液面が変動・剥離・飛散する。
- ②-1 貯槽内圧力が上昇し，溶液中へガスが溶け込む（溶存ガス）。

②-2 貯槽内圧力が緩和され、溶存ガス（気泡）が放出され、この際に飛沫（ミスト）も同時に放出される。

気相へ移行した溶液はエアロゾルとして排気系へ放出されることになる。このエアロゾルを除去するものは高性能粒子フィルタがある。また、エアロゾルの一般的な挙動として重力沈降などによる除去が考えられる。

水素爆発時における放射性物質の放出経路は、図7.1に示すとおり、槽類換気系を介して放出されるが、水素爆発により急激な圧力変動が起きて機器が破損する場合は、一部の放射性物質がセル内に流出しセル換気系を介して外部に放出される。また、急激な圧力変動により水封が損なわれ、セル内圧力が建屋内圧力よりも増加する場合は、一部の放射性物質はセル外に流出することもある。その場合は、建屋換気系を介して外部に放出されることとなる。したがって、水素爆発によって機器の健全性が担保されるかどうか、さらに、機器の健全性が担保されない場合においては、セル及び各部屋に与える圧力変動の影響を踏まえて、放出ルートを適切に設定の上影響評価を行うことが重要である。

7.3 影響評価手法の検討

(1) 影響評価手法の調査（現状整理）

水素爆発事故の影響は、施設外へ放出される放射性物質の放出経路とエアロゾル量により決定される。施設外へ放出される放射性物質の量は、放射性溶液を含む貯槽内での水素爆発に伴うエアロゾル発生量から、発生したエアロゾルが施設外へ移行する過程で除去される量を差し引くことで算出される。ここでは放射性物質放出量の評価手法として、放射性物質のエアロゾル化割合に関する数多くの実験データを基に、簡易的に放射性物質の放出量を評価する「五因子法」を用いることとする。

(2) 各因子における現状の知見について

MAR：発生機器内の放射性物質質量であり、放射線分解水素による水素爆発を起こすおそれのある対象機器が決まれば、決定することができる。

DR：MAR のうち事象の影響を受ける割合を指し、水素爆発や発生規模に依存するが、どの程度損傷するかについて定量的に評価をするのは困難であるため、保守的な設定(1.0)にすることが考えられる。

ARF：気相への移行割合であり、過去に実施された研究結果などにより適切な数値を設定することになる。本件については、過去の研究結果や最近の知見を調査した結果を 7.4 項に示す。

RF：吸入され得る粒子の割合であり、粒径分布及び吸入粒子径以下の割合を把握する必要があるが、これらの情報を調査するのは難しいため、保守的な設定(1.0)にすることが考えられる。

LPF：放出経路で除去されずに環境に放出される割合であり、放出経路及びその状況、フィルタの損傷の有無、排気系統 内での放射性エアロゾルの沈着を考慮する必要がある。また、貯槽内の圧力上昇により換気系設備などが損傷を受けた場合、通常の放出経路と異なる経路でエアロゾルが施設外へ放出される可能性があることから、水素爆発による系内の圧力上昇を検討し、放出経路を適切に設定することが重要である。放出経路内での低減効果として調査した結果については 7.5 項に示す。

7.4 放射線分解水素の爆発の影響評価に適用するARF

(1) これまでに提案されている ARF の整理と課題

爆発事象の ARF については、実験における実測値や実際に起こった事故の調査結果が幾つか報告されており、いわゆる Walker 報告書 (BNFO-81-2) ⁴⁾ や AAH (Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook, NUREG/CR-6410) ⁵⁾ などにまとめられ、安全評価に用いる際の推奨値が提示されている。また、再処理施設安全評価用基礎データ (JAERI-M 90-127) ⁶⁾ では、Walker 報告書の記載データを整理するとともに、その導出根拠を元の文献に立ち返って調査している。

ここでは、再処理施設安全評価用基礎データの調査結果に基づく Walker 報告書の内容及び AAH を中心に ARF の推奨値や実測値を整理し、放射線分解水素の爆発に適用する際の適用限界や課題などを述べる。

(a) 再処理施設安全評価用基礎データ (Walker 報告書) ⁶⁾

Walker 報告書では、表 7.1 に示すように爆発による ARF、気相中の浮遊物質濃度などについて、実測値 (測定範囲)、使用例 (サイクル施設の安全評価における使用例) 及び推奨値が示されている。

表 7.1 Walker 報告書による測定範囲・使用例・推奨値 (参考文献 6)より転載)

核種	測定範囲	使用例	推奨値
(a) Noble gas	-	1.00	1.00
(b) Halogens	-	1.00	1.00
(c) Volatile Solids	-	0.001	0.01
(d) Non-Volatile Solide	9.5×10^{-5} - 0.14	0.01	0.01*
(e) Airborne Material (time > 100 sec.)	1.0 - 71 mg/m ³	10 - 100 mg/m ³	100 mg/m ³ (d)
(f) Airborne Particle Size [μ]	-	<10 - <30	<10

* (d) Applicable to particulate material only, not to gas or volatile material release

表 7.1 の(a)～(d)が ARF の値であるが、実測値が唯一調査された非揮発性核種も含めて、その推奨値は既存又は計画されたサイクル施設の安全評価での使用例を参照して決められている。非揮発性核種の実測値は全て実際に起こった事故の調査に基づくものであるが、元文献の記載内容が不十分なため、その数値を確認できないものが多いとされている。最大実測値の 0.14 は、ORNL Radiochemical Processing Pilot Plant における Pu 硝酸水溶液の蒸発缶の洗浄操作中に起きた爆発事故のデータであるが、セル内への飛散量で換気系及び屋外への移行量を割った値として求められており、爆発した蒸発缶内のインベントリに対する ARF ではない。インベントリに対する ARF は 0.003 と計算され、推奨値の 0.01 より小さい値となる。このように、実測値の内容を吟味すれば推奨値の設定に矛盾があることを確認できることもある。Walker 報告書の中では ARF の実験的裏付けが殆どなされていないため、実験などによる補充が必要とされている。

気相中の浮遊物質濃度は ARF そのものではないが、爆発により生じた浮遊物質の広がる範囲（空間容積）を適切に設定出来れば、浮遊物質濃度との積により気相中への移行量、すなわち $MAR \times DR \times ARF$ が求められるため、有用である。Walker 報告書で調査された浮遊物質濃度の実測値 $1.0 \sim 71 \text{ mg/m}^3$ は、 UO_2 及び PuO_2 粉末に対する爆発実験のデータ（100 秒以降に適用する値）であり、推奨値はこれを上回る 100 mg/m^3 としていることから概ね妥当な値と言える。但し、実測値は液体に対する爆発実験のデータではないため、高レベル放射性廃液(HLLW)やプルトニウム溶液などからの放射線分解水素の爆発に適用することは、過度に保守側の措置と考えられる。

以上のように、爆発の ARF に関しては全般に実測値が不足しており、適切な実験によるデータの補充が必要である。

(b) Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook (AAH) ⁵⁾

放射線分解水素の爆発による溶液からの気相移行に適用できる ARF の推奨値（上限値）としては、過度の圧力上昇による容器破損（液面より上方からの気体の放出）に伴う急激な圧力低下事象に対して設定されたものであり、以下のとおりとされている(表 7.2)。

表 7.2 AAH による ARF 推奨値(上限値)（参考文献 5)より転載）

圧力範囲	ARF 上限値
<0.35 MPaG	5×10^{-5}
0.35～3.5 MPaG	2×10^{-3}
>3.5 MPaG	$1.28MF_g^{0.827}$

* : MF_g は、溶存気体のモル分率

急激な圧力低下に伴い、溶存気体が気泡となって液面を離脱する際にエアロゾルが発生するメカニズムから、ARF は溶存ガス量の関数で表されるものと仮定。

表 7.2 のうち、<0.35 MPaG 及び 0.35～3.5 MPaG に適用する ARF 上限値は、3.5 MPaG 以下の圧力で実験を行った Sutter などの実験データ (NUREG/CR-3093) ⁷⁾ に基づいている。一方、>3.5 MPaG に適用する ARF 上限値 ($1.28MF_g^{0.827}$) は Ballinger などの実験データ (NUREG/CR-4779) ⁸⁾ に加えて NUREG/CR-3093 に基づいている。そのため、 $1.28MF_g^{0.827}$ は、<0.35 MPaG 及び 0.35～3.5 MPaG の ARF 上限値としても適用可能である。なお、図 7.6 に示すとおり、 MF_g をパラメータとした ARF については上限値 (Upper Bound) の他に最適値 (Best Fit) 及び下限値 (Lower Bound) が求められており、それぞれ以下のとおりである。

上限値 : $1.28MF_g^{0.827}$

最適値 : $0.115MF_g^{0.827}$

下限値 : $2.23 \times 10^{-3} MF_g^{0.827}$

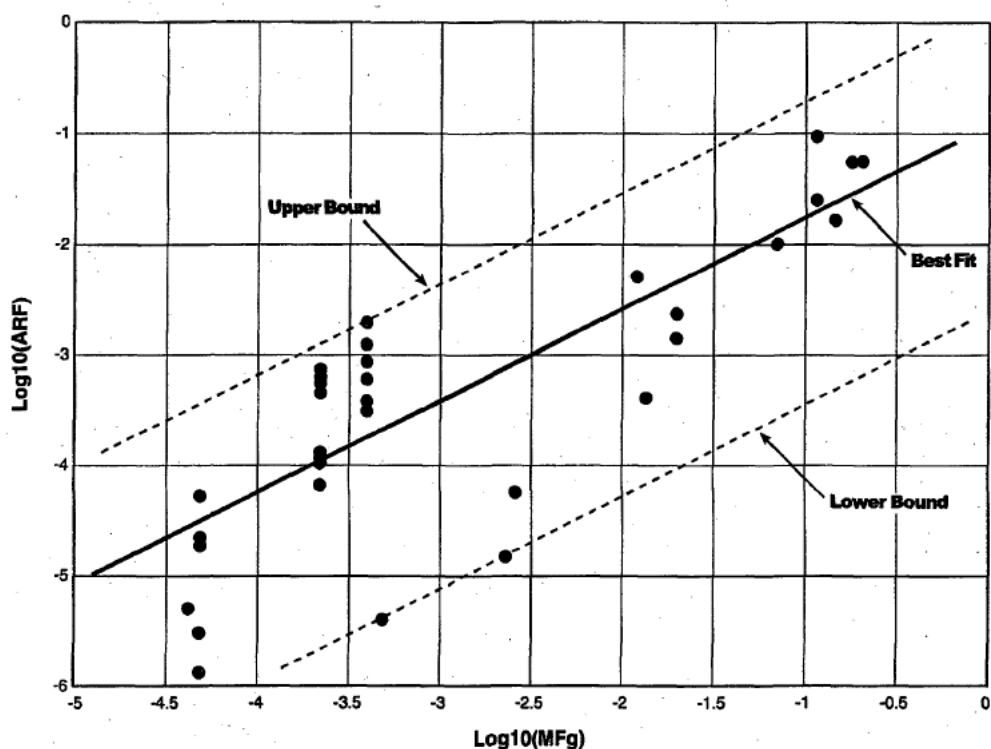


図 7.6 ARF 上限値・最適値・下限値（参考文献 5）より転載）

NUREG/CR-3093⁷⁾では、硝酸ウラニル溶液（密度：1.54 g/cm³）又はウラニン溶液（密度：0.99 g/cm³）を入れた容器内に空気を封入・加圧し、ラプチャディスクの破裂により圧力解放した際に気相中に移行したエアロゾルをハイボリュームサンプラーで捕集し、エアロゾル重量及び容器内に入れた溶液に対する重量割合（エアロゾル飛散率）を求めている。試験装置を図 7.7 及び図 7.8 に示す。

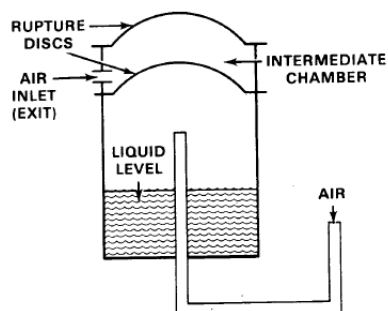


図 7.7 NUREG/CR-3093 における試験装置の概要図
（参考文献 7）より転載）

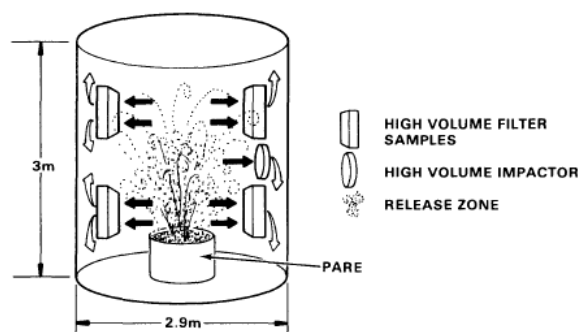


図 7.8 NUREG/CR-3093 における試験装置の回収部概要図
（参考文献 7）より転載）

NUREG/CR-3093 では上記 2 種類の溶液について、100 cm³、350 cm³ の溶液量、50 psiG (0.34 MPaG)、250 psiG (1.72 MPaG)、500 psiG (3.45 MPaG) の印加圧力にて試験を実施している。エアロゾル飛散率の測定結果（複数 RUN の平均値）を表 7.3 及び図 7.9 に示す。

表 7.3 NUREG/CR-3093 における飛散量結果（参考文献 7）より転載）

Pressure, psig	350 cm ³ Source		100 cm ³ Source	
	Uranine	UNH	Uranine	UNH
500	0.05	0.025	0.15	0.08
250	0.01	0.01	0.06	0.05
50	0.0008	0.0004	0.005	0.002

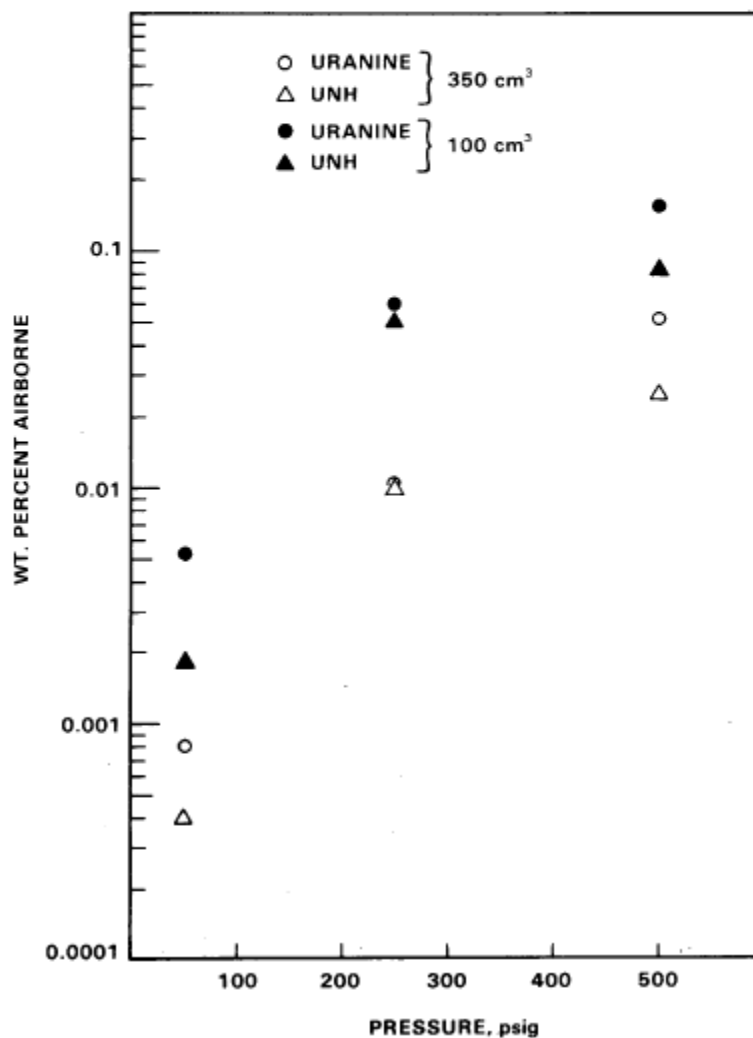


図 7.9 NUREG/CR-3093 における飛散量結果（参考文献 7）より転載）

圧力が高いほど、あるいは、容器に入れる溶液量が小さいほどエアロゾル飛散率は大きくなる傾向にある。また、硝酸ウラニル溶液とウラニン溶液を比較すると、250 psiG の結果を除き密度の低いウラニン溶液の方がエアロゾル飛散率は大きい。この結果から、AAH においては、<0.35

MPaG については、100 cm³ のウラン溶液の 50 psiG (0.34 MPaG) での実測値である 5×10^{-5} を、0.35～3.5 MPaG については、100 cm³ のウラン溶液の 500 psiG (3.45 MPaG) での実測値 1.5×10^{-3} を若干上回る 2×10^{-3} を ARF の推奨値としており、妥当と言える。

NUREG/CR-4779⁸⁾は、NUREG/CR-3093 の続報であり、加圧気体に空気よりも溶解率の高い CO₂ を用いたケース（以降、本ケースを「CO₂/ウラン」という）、Flashing-Spray Release Experiment として加圧・過熱下で試験を行ったケース（以降、本ケースを「Flashing-Spray」という）について報告している。CO₂/ウランでは 100 cm³、350 cm³ の溶液量に対して 50 psiG (0.34 MPaG)、250 psiG (1.72 MPaG)、500 psiG (3.45 MPaG) の印加圧力、Flashing-Spray では 100 cm³、350 cm³、700 cm³ の溶液量に対してそれぞれ 57 psiG (0.39 MPaG)、124 psiG (0.85 MPaG)、240 psiG (1.65 MPaG) の印加圧力で試験を行っている。試験結果は、NUREG/CR-3093 の結果とともに図 7.10 に示すとおり、溶存気体のモル分率に対するエアロゾル飛散率（複数 RUN の平均値）として整理されており、AAH に掲載されている図 7.6 に対応している。

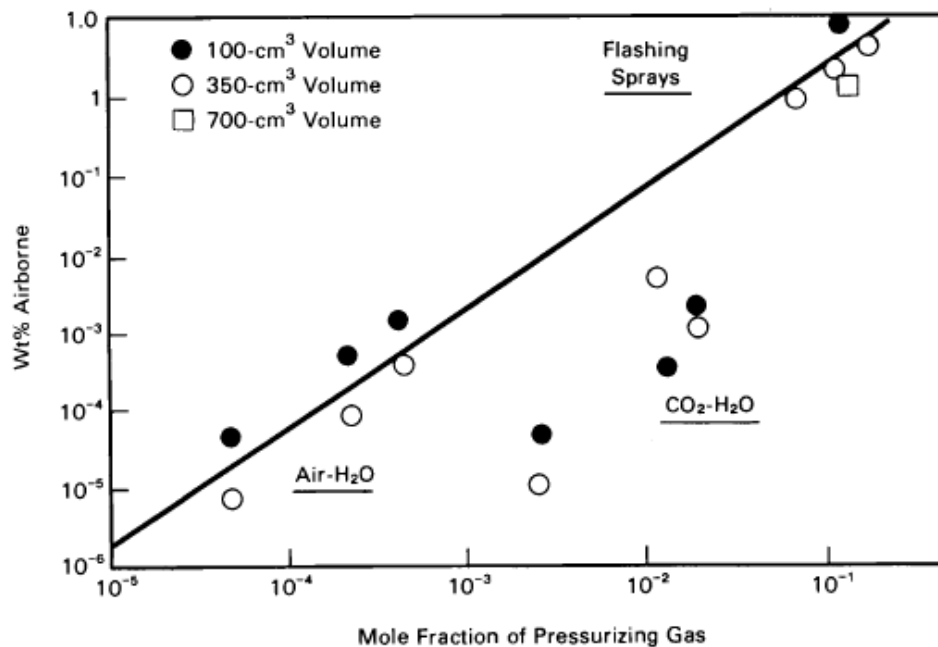


図 7.10 NUREG/CR-4779 試験結果（参考文献 8）より転載）

なお、水素爆発に関わる放射性物質放出の解析手順を示している旧 JNES 報告書 (JNES/SAE05-025)⁹⁾においても、 $ARF = 1.28 MF_g^{0.827}$ を使用している。具体的な解析手順として、水素爆発による塔槽内最大圧力を、断熱、密封系で、水素燃焼熱の全量が塔槽内気相中の気体内部エネルギーに変換されると仮定して算出している。解析手順を図 7.11 に示す。MF（参考文献 5）における MF_g に相当）は、水に対する空気の溶解度 0.0286 (0 °C, 1 atm ベース) と上記最大圧力から、溶存過飽和と空気の体積をヘンリーの法則より $0.0286 \times (\text{爆発圧力値})$ で求め、モル数に換算している。解析手順を図 7.12 に示す。

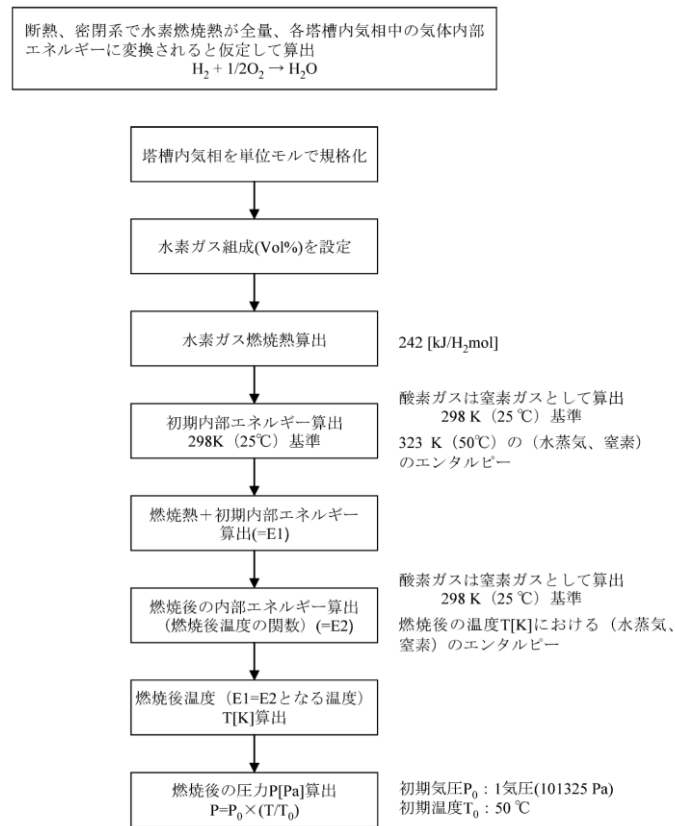


図 7.11 旧 JNES 報告書による塔槽内最大圧力算出手順 (参考文献 9)より転載)

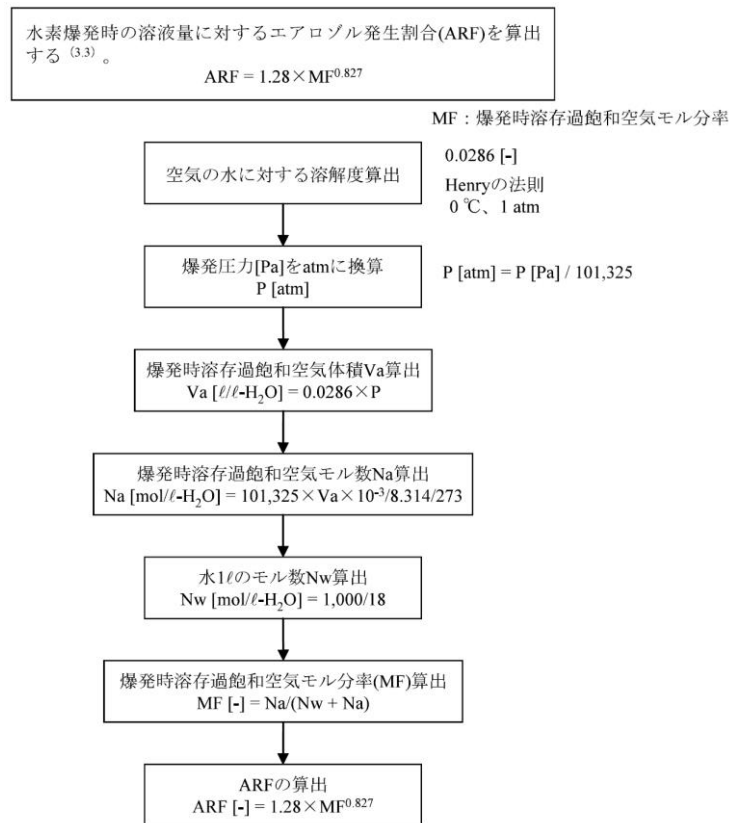


図 7.12 旧 JNES 報告書による ARF 解析手順 (参考文献 9)より転載)

(c) これまでに提案されている ARF に対する課題

以上より、放射線分解水素の爆発の影響評価で使用する ARF としては、現段階においては AAH で上限値として推奨されている $ARF = 1.28MF_g^{0.827}$ を使用することが適切と考えられるが、その根拠となった実験と実機における条件には下記のとおり差異があるため、これらの影響を把握するべく、更なる実験データの充足及びそれに基づく ARF 算出式の適正化が望まれる。

a) 圧力保持時間

NUREG/CR-3093, NUREG/CR-4779 には、試験装置の空間を加圧してから圧力解放までの時間、すなわち圧力保持時間についての記載はないが、これらを引用している AAH には、基本的に溶存ガスについて気液平衡に達している旨の記載があり、十分な圧力保持時間が確保されているものと推測される。

一方、現実の水素爆発では最高圧力が保持される時間は極めて短く、平衡に達する前に溶存気体が気泡として放出されるものと考えられる。そのため、上記 ARF 上限値を水素爆発に適用すると過度に保守側となる可能性がある。

b) 機器の大きさ、形状

NUREG/CR-3093, NUREG/CR-4779 とともに、容器に入れる溶液量が小さいほど ARF 実測値は概ね大きくなっている（実験装置の容器は円筒形であるため、これは溶液深さが小さいほど ARF が大きくなることを意味している）。そのため、AAH で推奨されている ARF 上限値は、実験条件として最小容量の 100 cm^3 での結果を包絡するよう設定されている。

一方、水素爆発が想定される機器の容量は一般的にこれより大きく、ARF 上限値を実機に適用すると過度に保守側となる可能性がある。また、円筒形以外の形状の機器への適用についても検討する必要がある。

(2) 最近の放射性物質の移行率に関する実験

(a) 小型容器試験

参考文献 10)では、ARF を算出する式の元となっている NUREG/CR-3093 の実験結果では、異なる 2 種類の試料で 350 cm^3 と 100 cm^3 の溶液量に対して放出量を測定しているが、いずれの実験結果も放出量が同じ様な値をとるため、ARF は溶液深さに反比例すると予想している。NUREG/CR-3093 では溶液深さが示されていないため、溶液深さを変えた実験を行うことで ARF の関係を確認すると報告している。また、NUREG/CR-3093 での加圧試験における液滴の粒径について、実験結果では粒径が大きいため、浮遊性が低く放出量は極めて小さくなると見込まれると報告している(表 7.4)。

表 7.4 NUREG/CR-3093 試験結果 (参考文献 7), 10)より転載)

chamber pressure (psig.)	溶液量: 350cm ³ 放出率(%)		溶液量: 100cm ³ 放出率(%)	
	Uranine	UNH	Uranine	UNH
500	0.05	0.025	0.15	0.08
250	0.01	0.01	0.06	0.05
50	0.0008	0.0004	0.005	0.002

chamber pressure (psig.)	溶液量: 350cm ³ 放出量(g)		溶液量: 100cm ³ 放出量(g)	
	Uranine	UNH	Uranine	UNH
500	0.17	0.13	0.15	0.13
250	0.03	0.05	0.06	0.08
50	0.003	0.002	0.005	0.003

chamber pressure (psig.)	溶液量: 350cm ³ 粒径(μ m)		溶液量: 100cm ³ 粒径(μ m)	
	Uranine	UNH	Uranine	UNH
500	4	16	4	14
250	4	29	3	13
50	2	4	2	7

参考文献 11), 12)によると, 参考文献 10)の報告を踏まえ NUREG/CR-3093 に基づいて製作した試験装置を用い, 気相部に空気を所定圧力で充填一定時間保持した後に圧力を開放し, 試験チャンバーに飛散した液滴量を測定している。その結果を以下の(7.1)式に示す「ミスト飛散率」と称して報告している。

$$\text{ミスト飛散率} = \frac{(\text{試験チャンバー内へ移行した溶質量})}{(\text{容器に投入した初期溶質量})} \quad (7.1)$$

実験では, 「圧力」「保持時間」「溶液量」「溶液深さ」「表面積」そして「硝酸セリウム濃度」を ARF に影響を与えるパラメータとして調べており, 特に圧力の高い場合に, NUREG の報告値と比較して放出率が小さい結果となっている。また, 所定圧力到達～圧力開放までの保持時間を 3,600 秒としても, NUREG の報告値よりも小さい ARF となったことを報告している。この実験結果を見る限りでは, 小型加圧容器を用いた時の ARF は, 保持時間を 1 秒とした場合は, 約 1×10^{-5} 程度, 保持時間を 3,600 秒とした場合で約 1×10^{-4} 程度となるが, 実際の水素爆発は, 加圧～圧力開放までの時間は一瞬で進行することから, 実際の水素爆発における ARF は更に小さくなることが予想されると報告している (図 7.13～7.15)。

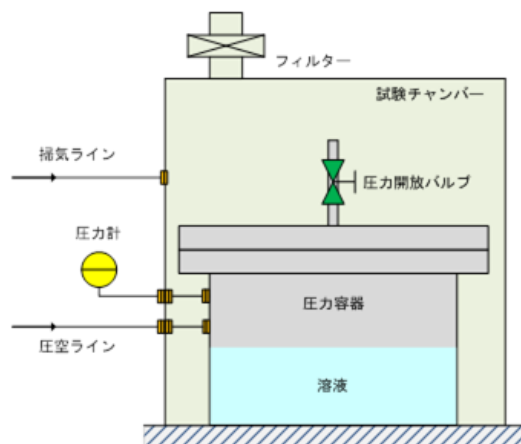


図 7.13 NUREG/CR-3093 に基づいた試験装置 (参考文献 11)より転載)

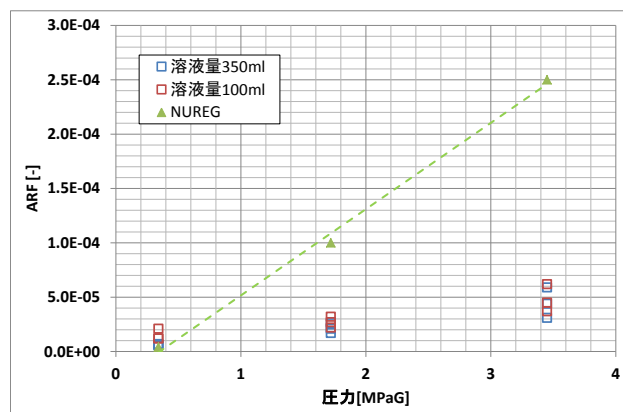


図 7.14 圧力による ARF の影響 (保持時間 1 秒) (参考文献 12)より転載)

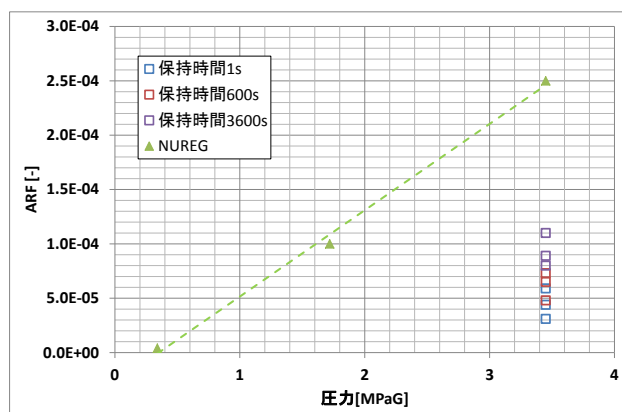


図 7.15 保持時間による ARF の影響(溶液量 350 cm³, 圧力 3.45 MPaG)
(参考文献 12)より転載)

(b) 環状容器試験

参考文献 13)-15)の報告では、Pu 濃縮液貯槽の気相部を模擬した直径約 3.8 m、内容積 86 L のドーナツ形状の環状容器（図 7.16）に硝酸セリウム水溶液を張り、容器内気相部で水素爆発を発生させ、その際に廃ガス系に移行する溶液量を測定し、容器内の圧力変化や(a)小型容器試験と同様に「ミスト飛散率」を評価している。

これらの報告では¹³⁾⁻¹⁵⁾、図 7.16 の実験装置において、着火点 A・廃ガス出口配管(配管 A)長さ 2 m・曲がり角の数 1 個・水素濃度 30 vol%を基本条件として、基本条件から着火点、廃ガス出口配管の長さ・曲がり角の数、水素濃度をパラメータとして変化させた結果、ARF は 10^{-10} ～ 10^{-6} となり、 10^{-6} を超えるデータは無かったことを報告している（図 7.17）。そして、爆発時の圧力挙動は水素濃度 30 vol%時と 20 vol%以下ではピークの挙動が異なっており、水素濃度 30 vol%では、0.04 秒前後に鋭いピーク形状が確認されるが、水素濃度 20 vol%では、0.09 秒前後に緩やかな小さいピークがあるだけで圧力の影響は 20 vol%のほうが少ない（図 7.18, 7.19）。また、上記パラメータと「ミスト飛散率」に関係性が確認されず、メカニズムについても不明な点が残っているが、「ミスト飛散率」の結果は前述の(a)小型容器試験よりも更に小さな値であったと報告している。

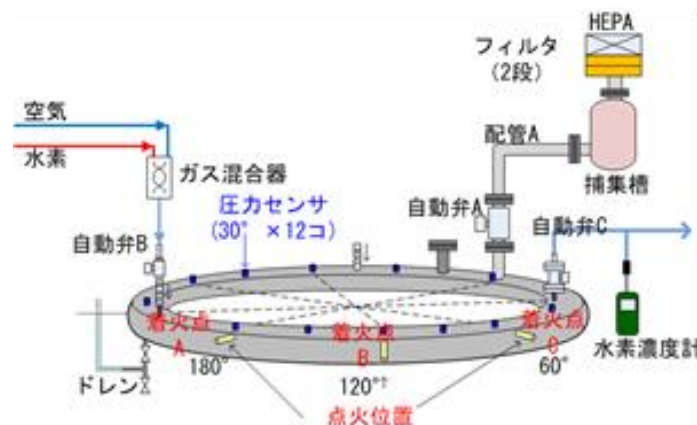


図 7.16 環状容器による水素試験装置（参考文献 14)より転載）

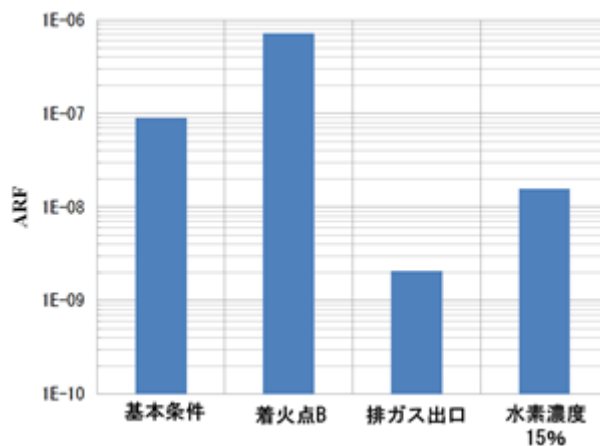


図 7.17 環状容器水素爆発試験における ARF（参考文献 14)より転載）

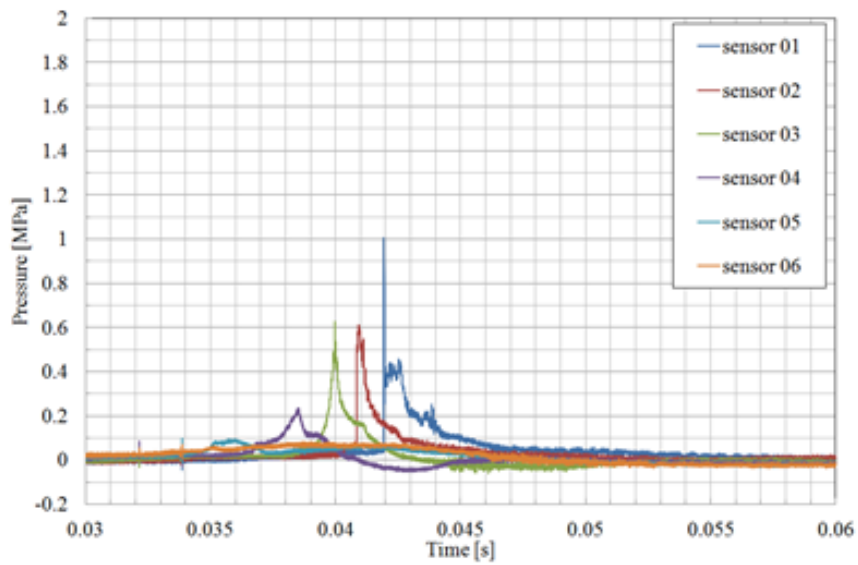


図 7.18 基本条件(水素濃度 30 vol%)での爆発後圧力ピーク (参考文献 15)より転載)

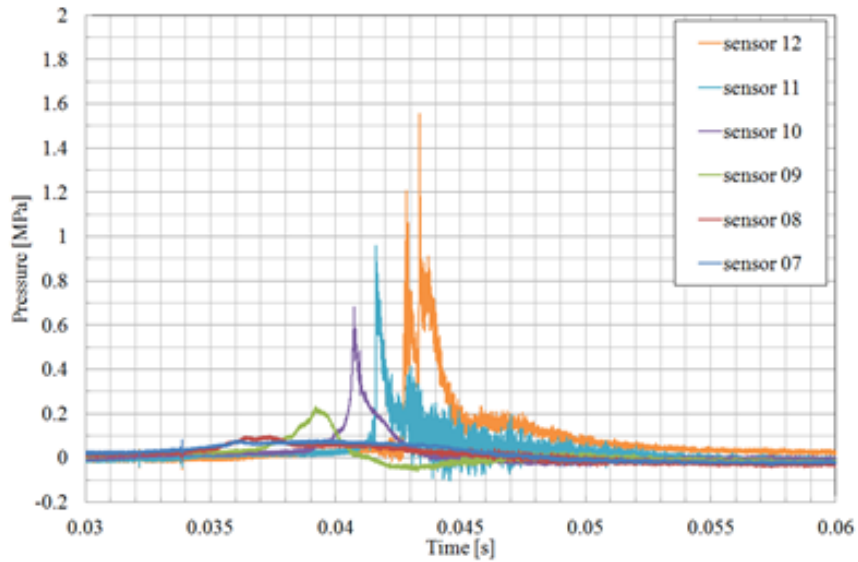


図 7.19 水素濃度 20 vol%での爆発後圧力ピーク (参考文献 15)より転載)

(3) 今後の課題

(a) 放出メカニズム

現状の知見として水素爆発時の ARF に関するデータは以上のものに限定されており、幅広い測定・評価が行われていないのが現状である。

7.2(3)項 図 7.5 でも述べたように、水素爆発による放射性物質の放出メカニズムは、以下のよう考えられる。

- ① 爆発によって貯槽内の圧力が急上昇し、液面が変動・剥離・飛散する。
- ②-1 貯槽内圧力が上昇し、溶液中へガスが溶け込む（溶存ガス）。
- ②-2 貯槽内圧力が緩和され、溶存ガス（気泡）が放出され、この際に飛沫（ミスト）も同時に放出される。

このメカニズムによる①～②-2 のプロセスは瞬時に進行すると考えられるが、ARF を算出する式の元となっている NUREG/CR-3093 の実験では、前述のとおり容器内に空気を封入・加圧し、ラプチャディスクを破裂させた際に容器外に放出される溶液を回収して、気相への移行割合を算出している。よって、加圧による圧力保持時間が長くなり、溶存空気量が多くなるものと考えられる。その点が NUREG/CR-3093 の実験結果は保守的であると考えられる（図 7.20）。

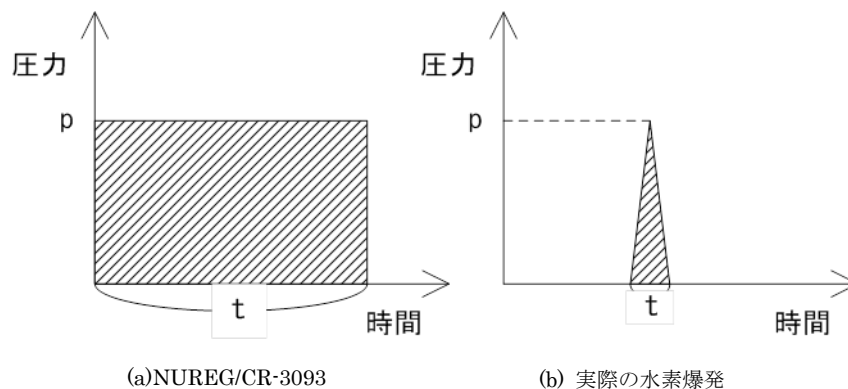


図 7.20 NUREG/CR-3093 と実際の水素爆発時の加圧イメージ

一方、参考文献 11), 12)による NUREG/CR-3093 の再現性確認では、上記の加圧による圧力保持時間による保守性は残るものの、圧力や保持時間について相関性は確認出来ており、以下のようにつまめられている。

- 移行率は圧力に比例して増加した
- 移行率は保持時間が長くなるほど増加した
- 移行率は Ce 濃度（密度）に比例して減少した。
- 移行率は、容器の液深さが深くなるにつれて減少した。
- 移行率全体として、過去の報告値（NUREG/CR-3093）よりも 1～2 桁小さい数値となった。

上記の結論から、移行率が溶存ガス量の影響を受けること、時間の影響を受けること、液深さの影響を受けることから、液相部への気相の移行メカニズムとしてヘンリーの法則に基づく「溶解」と液表面で溶解したガスの液相での「拡散」が寄与していると考えられる。図 7.21 に「溶解」と「拡散」のイメージを示す。

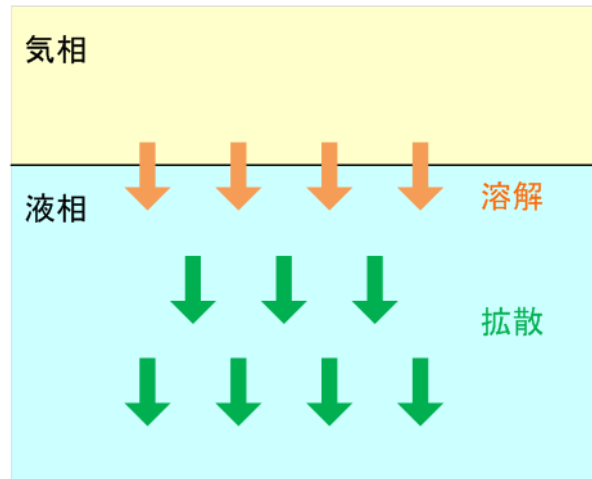


図 7.21 液相中へのガスの移行メカニズムのイメージ
(NUREG/CR-3093 のような加圧条件下の場合)

参考文献 11), 12)による NUREG/CR-3093 の再現性確認試験では、圧力保持時間が最小でも 1 秒と実際の水素爆発よりも長く保持している点が保守的ではあるが、ARF として適用するには、過去の NUREG/CR-3093 の結果と比較すると、それよりは現実的に評価していると思われる。保守的な部分を解消するためには、この小型容器を用い、水素爆発をさせて ARF を測定するなど、圧力保持時間の現実的な条件での実験や「拡散」に関するメカニズムが更に解明されれば、より現実的なデータが取得できるものと期待される。

一方、参考文献 13)-15)による環状容器試験（水素爆発）のミスト飛散率は $10^{-10} \sim 10^{-6}$ と小型容器試験（加圧解放）よりも更に小さな値であったが、パラメータとミスト飛散率に関係性が確認されず、メカニズムについても不明な点が残っている。図 7.5 に示す移行メカニズムに基づいて仮定すると、水素爆発時における圧力加圧時間は 1 秒よりも小さくなり、それを考慮すると $10^{-10} \sim 10^{-6}$ という数値は非現実的な ARF ではないと考えられるが、溶存ガスによる放出以外の他の要因（機器形状など）が作用していることも否定出来ず、今後の課題と言える。

NUREG/CR-3093 再現性確認のデータと環状容器のデータは、試験容器の形状も大きく異なるため、これらをつなぐためのデータ（例えば小型容器を用いた水素爆発実験を行い、ARF を測定するなど）を採取し、メカニズムの解明が進むことが望まれる。

(b) 文献結果・実験結果から得られた ARF の実機への適用

参考文献 11), 12)による NUREG/CR-3093 の再現性確認では、前述したとおり、「移行率は、容器の液深さが深くなるにつれて減少した」と報告されている。

水素爆発時の液相から気相への移行メカニズムが図 7.5 のようなメカニズムで進行し、ガスの溶解が図 7.21 のメカニズムで進むと仮定すれば、実際の貯槽は、今回の実験体系よりも液深が深

いため、実際の ARF は更に小さくなると予想される。

(c) ARF と LPF の境界について

米国 NRC による AAH (NUREG/CR-6410) において、ARF は以下のように記載されている。

ARF : MAR×DR のうち誘起された物理的外力により気中に保持され移行できる物質の割合

The ARF is the fraction of impacted material (MAR x DR) that can be suspended to become available for airborne transport following a specific set of induced physical stress.

なお、実験的に ARF を与える際には「気中に保持され移行できる物質の量」を直接測定することが困難な場合、MAR×DR を含む領域から領域外部に移行する量を測定し、領域外から環境までを放出経路とすることで ARF を与えることができる。また、領域を 1 次閉じ込め（貯槽など）と同じにした場合、事故の発生と ARF が 1 対 1 対応となる。

ここで紹介した NUREG/CR-3093 の実験、参考文献 11), 12) による NUREG/CR-3093 再現性確認試験と環状容器による水素爆発実験いずれの実験についても、ARF は前述の(7.1)式により評価されている。

ただし、(気相へ移行した溶液量)として、容器内部での気相のサンプリングからの評価、試験容器(圧力容器)から外の容器(試験チャンバー)へ放出された溶液量の評価、廃ガス系に移行する量からの評価とさまざまである。

よって、これらの試験結果を基に ARF を決定するには、貯槽のどこまでの範囲を ARF の対象とするか設定する必要がある。すなわち、ARF を定義するためには元の実験条件を確認した上で、適切な ARF と LPF の境界点を設定することが重要である。

しかし、このような ARF の考え方の場合、液表面～機器外までの空間の内部構造物による影響を排除することができないため、機器の形状によって ARF の数値が変化するおそれがある。機器の形状に対する改善策は、限りなく実機に近い条件での水素爆発 ARF データを取得するのが理想ではあるが、それができない場合はその不確かさに対する裕度を設けて ARF として評価することになる。

7.5 放射線分解水素の爆発の影響評価に適用するLPF

(1) 既存の知見

LPF は、貯槽外に放出される放射性物質が環境に放出されるまでの移行経路中で減少する割合であり、移行経路並びに経路を移行するガスの組成及び風量に依存する。LPF の要因は、機器・配管・セル壁・建屋内部付着、ミストフィルタ、凝縮器、U 字ポット、スクラバ、放水銃などが挙げられるが、実験で取得されたデータとしては HEPA フィルタ^{16)・18)}のみである。

既存の文献で報告されている LPF の評価手法は、AAH (Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook, NUREG/CR-6410)⁵⁾に計算方法の記載がある。また、水素爆発に関わる放射性物質放出の解析手順を示している旧 JNES 報告書 (JNES/SAE05-025)⁹⁾においては、想定する経路の HEPA フィルタについて健全性を評価し、HEPA フィルタの DF (除染係数) から LPF を評価している。

(a) 旧 JNES 報告書 (JNES/SAE05-025)⁹⁾

本報告書では、HEPA フィルタ以外での放射性物質の減少は起きないものと考えている。図 7.22 に水素爆発に関わる放射性物質放出量算出の手順を示す。LPF 設定の手順として、まず爆発時の塔槽内の圧力、塔槽内の流量及び流体の温度から塔槽類廃ガス処理系 HEPA フィルタの健全性が維持されるか否か評価する。同時に圧力、流量及び温度の条件により、水封の開閉についての評価も合わせて行い、開く場合にセル換気系側のフィルタの健全性についても評価を行う。これに加えて、建屋からの地上放散が考えられる場合はその割合を求め、これらを全て考慮して LPF を設定している。

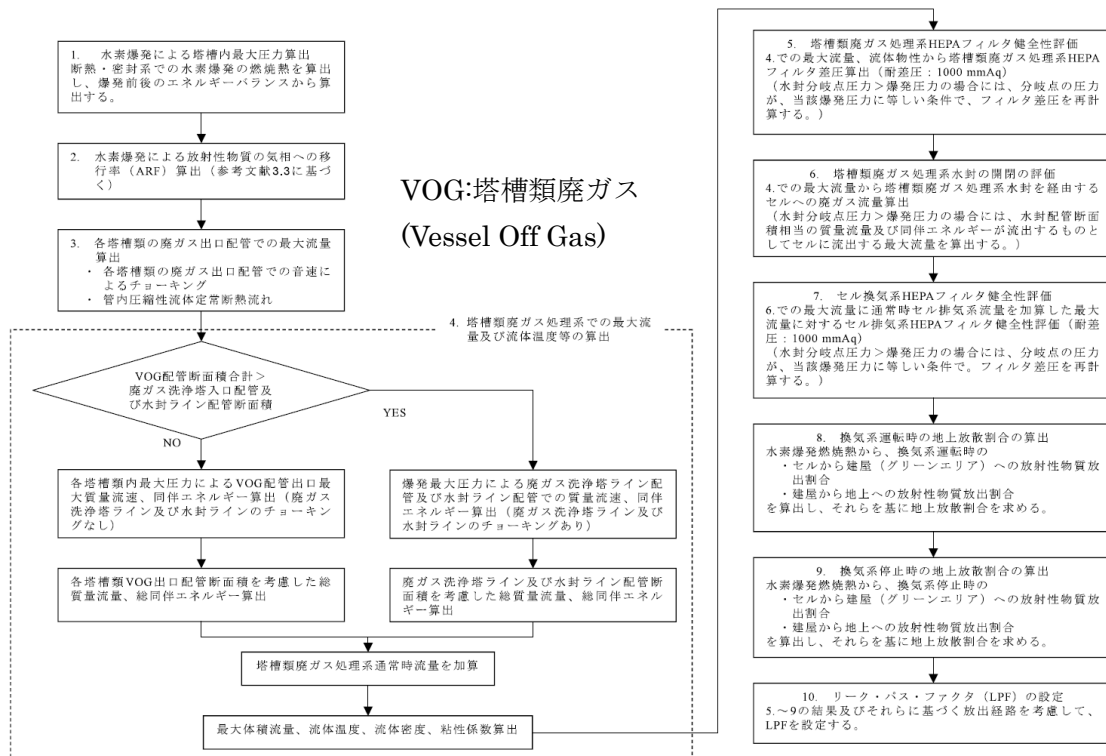


図 7.22 水素爆発に関わる放射性物質放出量算出の手順 (参考文献 9)より転載)

LPF 設定の手順のうち、塔槽類廃ガス処理系 HEPA フィルタ健全性評価の概要を図 7.23 に示す。図 7.22 中の 4 で算出した最大体積流量、流体密度及び流体粘性係数を用いている。まず、最大体積流量を設定する。次に、差圧を計算するが、セルに流れる流量を少なくし HEPA フィルタへ流れる流量が大きくなるように算出する。圧力損失式より HEPA フィルタの圧力損失を算出し、フィルタ 1 段当たりの圧力損失を算出する。HEPA フィルタ 1 段当たりの圧力損失が 1,000 mmAq を上回るか否かで各 HEPA フィルタの健全性を判断している。この根拠は、TBP などを配位した錯体の急激な分解反応事象の報告書¹⁹⁾に記載されているように、尾崎らの報告¹⁸⁾での破損した HEPA フィルタによる実験データを参考に HEPA フィルタの圧力損失が 1000 mmAq を超えた場合に DF を 10 と設定している。このように、HEPA フィルタの健全性評価については、実験データに基づいた値を評価基準としている。塔槽類廃ガス処理系 HEPA フィルタ 2 段の DF は、健全時で 10^5 、破損時は 1 段当たり 10 として合計 10^2 としている。なお、セル換気系及び建屋換気系 HEPA フィルタ 1 段の DF は、健全時で 10^3 、破損時で 10 としている。

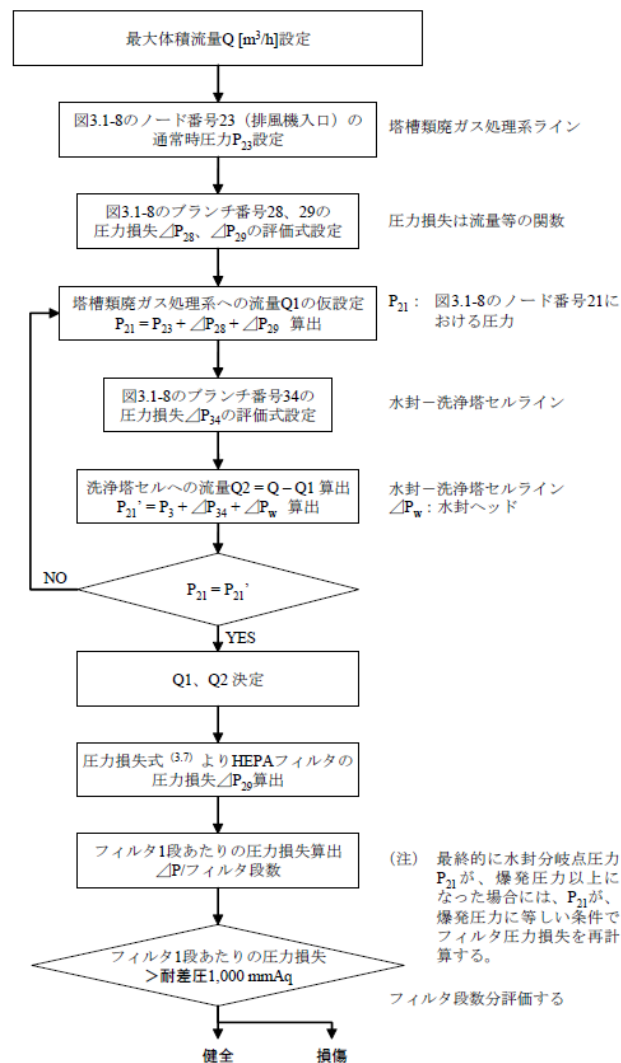


図 7.23 大流量に対する塔槽類廃ガス処理系 HEPA フィルタ健全性評価の手順
(参考文献 9)より転載)

(b) Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook (AAH)⁶⁾

本ハンドブックでは、LPF について時間依存の LPF (TdLPF) 及び時間に依存しない LPF (TiLPF) を定義している。時間に依存した放出又は線量の計算をする場合、TdLPF を計算する必要がある。(7.2)式に TdLPF の式を示す。事象開始から時間 t' まで積算した環境への漏えい量が分子、時間 t' までに気相へ移行した総量が分母である。 Q_0 が放射性物質を含むガス流出速度(m^3/s)、 C_0 が放射性物質の濃度(kg/m^3)、 $m(t)$ が発生速度(kg/s)である。

$$TdLPF = \int_0^{t'} C_0 Q_0 dt / \int_0^{t'} m(t) dt \quad (7.2)$$

式から明らかであるが、 C_0 、 Q_0 及び $m(t)$ が単純な関数であれば計算は容易になる。そうでない場合は計算コードを必要とする。

流量一定かつ発生量が最初の一回もしくは時間を置いて一定量が数度といった場合であれば、TiLPF の計算は TdLPF よりも容易である。なお、TiLPF は TdLPF の t' を無限大とした場合の値となる。この定義の意味は、長時間経過後には気相中の放射性物質の濃度が 0 になるか、ドライビングフォースがなくなり Q_0 が 0 になるということである。

次に、移行に関わるドライビングフォース、流路、流量を定義する。ドライビングフォースとして、換気系、火災、他の化学反応、爆発、外部からの風圧が挙げられている。流量の定義には発生源と建屋の間の流路設定に関わる流体抵抗の計算や、ドライビングフォースと流れ方の影響評価が含まれる。流量の計算については、単純かつ変動がない場合のみ適用可能である簡易な方法と、計算コードによる方法が述べられている。爆発などの大流量のガスが発生する場合には簡易な方法では適切に表現できないため、計算コードが使用される。核燃料サイクル施設換気系に適用可能な計算コードとして MELCOR 及び爆発用の EXPAC などが挙げられている。なお、MELCOR は爆轟（気体の急激な熱膨張の速度が音速を超え衝撃波を伴いながら燃焼する現象）に対応していないとも述べられている。

さらに、流路における気相中物質の減衰を考える必要がある。AAH では気相中物質としてエアロゾル及び化学物質それぞれについて述べているが、ここではエアロゾルのみ述べる。エアロゾルの減衰の要素としては上に述べたように、機器・配管・セル壁・建屋内部付着、ミストフィルタ、凝縮器、U 字ポット、スクラバ、放水銃などが挙げられる。但し、AAH では流路壁面におけるエアロゾルの沈着及びフィルタによる捕集による減衰のみを対象としている。得られたドライビングフォース、流路、流量及び流路での減衰から LPF を計算する。

(c) 高性能エアフィルタの苛酷時健全性試験 ^{16)・18)}

東海再処理工場セル換気系に使用されているものと同様の HEPA フィルタ (610×610×292 mm) を用い、HEPA フィルタの安全評価の基礎データが取得されている。7 報の論文が公開されているが、ここでは (I) DOP エアロゾルの捕集性能 ¹⁶⁾、(III) 高温負荷 ¹⁷⁾ 及び (VII) 圧力変化試験 ¹⁸⁾ について取り上げる。

(I) では定格流量での DF の粒径依存性に関する試験など、HEPA フィルタの基本的な粒子捕集性能を把握している。4 種類の HEPA フィルタについてデータを取得しており、A は一般用、

B, C 及び D は東海再処理仕様である。この文献の大部分はレーザスペクトロメータにより粒径分布の測定を行ったものである。レーザスペクトロメータにより測定した定格流量 ($2,000 \text{ m}^3/\text{h}$) における DF の粒径依存性を図 7.24 に示す。DF の絶対値はフィルタにより 1 桁以上異なっているが、粒径に対する DF の変化は各フィルタともほぼ同じ傾向を示し、粒径 $0.1 \sim 0.15 \mu\text{m}$ の間にフィルタを最も透過し易い粒径のあることが示されている。このレーザスペクトロメータの可測最小粒径は $0.09 \mu\text{m}$ であり、 $0.09 \mu\text{m}$ 以下のエアロゾルに対する粒子捕集性能を求めるため、ディフュージョンバッテリー及び核凝縮測定装置(以下, CNC/DB という)が用いられている。図 7.25 に同装置で測定した定格流量における DF の粒径依存性を示す。粒径 $0.13 \sim 0.18 \mu\text{m}$ 付近に最も HEPA フィルタを透過し易い粒径があり、また $0.1 \mu\text{m}$ 以下の粒子に対して、大粒径側と同様に DF が高くなっていくことが示されている。DF の最低値は約 2×10^3 である。なお、図 7.25 にあるように、同一メーカー製のフィルタ (B2 と B3 又は D2 と D3) を比較すると、DF が最小となる粒径は変わらないが、DF の値が異なる結果が得られている。文献に明記されていないものの、この DF の粒径依存性の差異は個体差によるものと思われる。

また、DF と風量の関係についても調査されている。試験風量を $1,600$, $2,000$ 及び $2,400 \text{ m}^3/\text{h}$ に変化させた時の粒径別 DF 測定値及び DF 対風量の関係を図 7.26 に示す。小粒径のエアロゾルほど風量の影響を受け、DF がより低下していることが分かる。

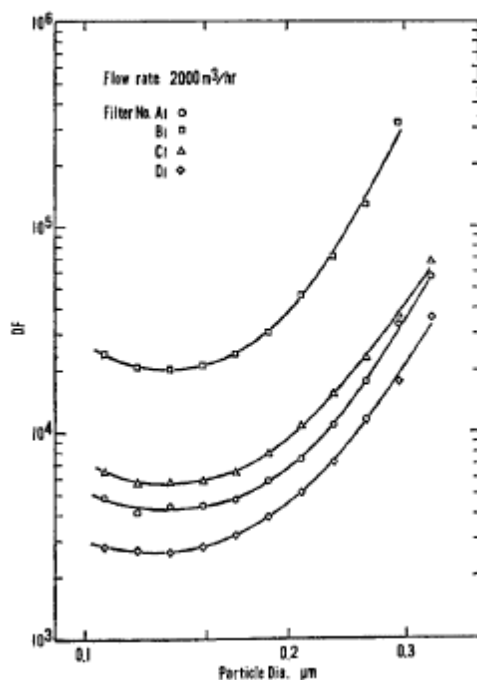


図 7.24 定格流量における DF の粒径依存性
(レーザスペクトロメータ)
(参考文献 16) より転載)

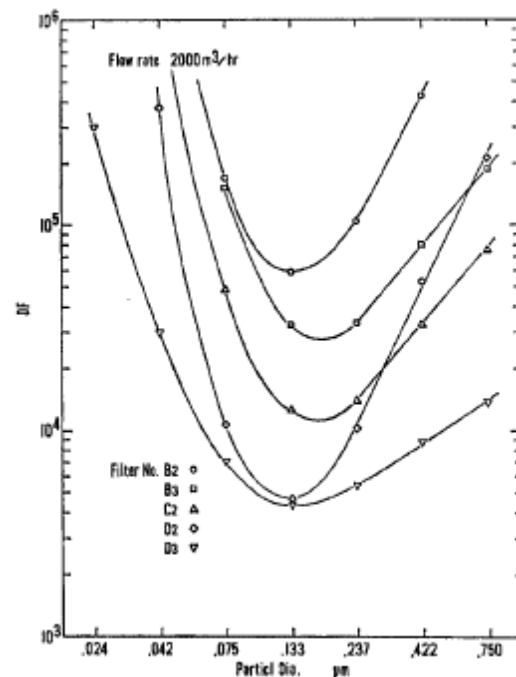


図 7.25 定格流量における DF の粒径依存性
(CNC/DB)
(参考文献 16) より転載)

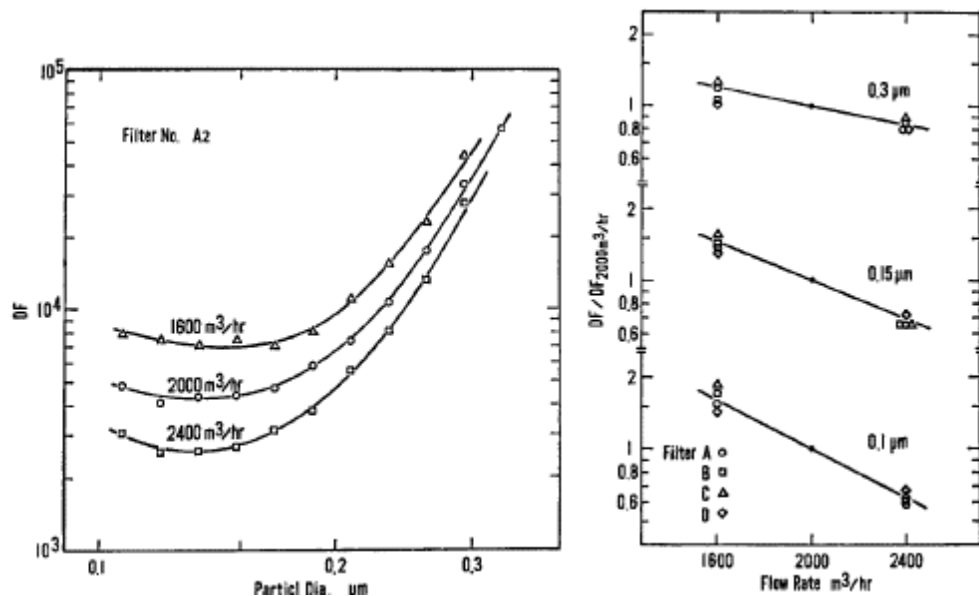


図 7.26 (左) 粒径別 DF 測定値, (右) 各風量での DF と 2,000 m³/h における DF の比対風量の関係 (参考文献 16)より転載)

(Ⅲ) では、高温下での捕集性能の粒径依存性についてデータを取得している。図 7.27 に温度の関数としての DF を示す。DF は温度の上昇とともに高くなり、200 °Cでは常温に比して約 1 桁高くなっていること、また HEPA フィルタを最も透過し易い粒径が大粒径側に移動していることが分かる。ただし、フィルタは個体差があるため、データの適切な比較が求められる。データを処理し、温度と単一繊維捕集効率との関係としてプロットしたグラフが図 7.28 である。単一繊維捕集効率は温度に比例していることが分かる。この結果から、粒径 0.125, 0.15, 0.2, 0.3 μm における高温下での DF を温度の関数として整理しており、温度の DF への影響は粒径が小さいほど大きいと述べている。

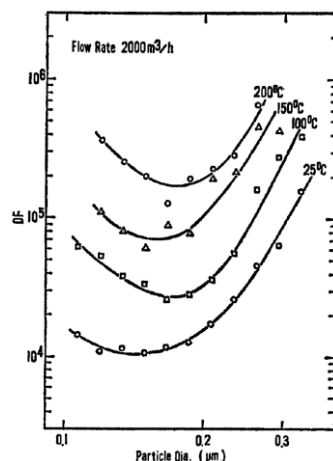


図 7.27 温度の関数としての DF
(参考文献 17) より転載)

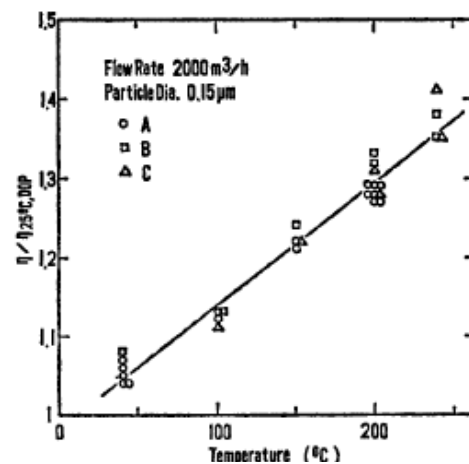


図 7.28 温度と単一繊維捕集効率との関係
(参考文献 17) より転載)

(Ⅶ) では、風量変動に伴う圧力変化を負荷し、圧力変化に対する HEPA フィルタの安全評価の基礎データを取得している。試験に供した HEPA フィルタは 3 社から購入している (フィルタ

A, B, C)。なお、JIS Z 4812 仕様の HEPA フィルタ（フィルタ D）についても試験を行っている。苛酷状態を考え、差圧上昇速度を変えた風量変動をフィルタに負荷し、リーク発生差圧と差圧上昇速度との関係を求めている。図 7.29 に各フィルタについて求めた差圧上昇速度とリーク発生差圧の関係を示す。リーク発生差圧はフィルタによって異なり、9.5～18 kPa である。このフィルタ A の値は約 1,000 mmAq である。この値が旧 JNES 報告書⁹⁾において HEPA フィルタの健全性評価に使用されている。

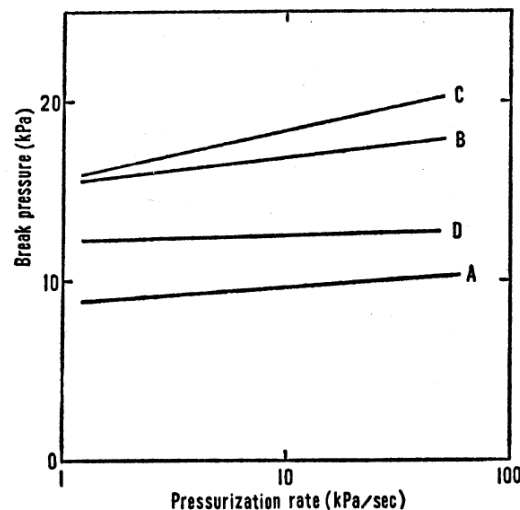


図 7.29 差圧上昇速度とリーク発生差圧の関係（参考文献 18）より転載）

また、定格流量（2,000 m³/h）に比べて大風量（300～600 m³/min）の場合の DF の低下について報告している。フィルタ B 及び C に関する大風量下における DF の定格風量時からの変化を図 7.30 に示す。大風量時には粒径 0.1 μm エアロゾルの DF が 2 桁、粒径 0.2 μm エアロゾルの DF が 1 桁低下していることが分かる。DF の風量依存性をより明確にするため、小型フィルタ（305×305×150 mm）を用いた定常状態での定格の約 10 倍までの風量下における DF が測定されている。その結果が図 7.31 である。大風量下における小粒径エアロゾルに対する DF の低下、大粒径エアロゾルに対する DF の上昇を示している。この結果に基づき、図 7.30 の直線を大粒径側にそのまま外挿出来たとすると、0.3 μm 径以上のエアロゾルに対しては、大風量下での DF の低下はあまり問題にならないと述べている。

さらに、リークの発生したフィルタにより求めたリーク部長さとリーク部を透過した粒子による DF との関係を報告している。図 7.32 にリーク部長さと DF との関係を示す。リーク部を透過する粒子の DF に粒径依存性がなく、どの粒径においても同じ DF を示すことが分かる。リーク発生フィルタの DF は、リーク部長さに反比例することが報告されている。図の直線がリーク部長さ 100 cm まで外挿すると DF は約 10 になり、旧 JNES 報告書に記載されている破損フィルタの DF = 10 に近い値となる。

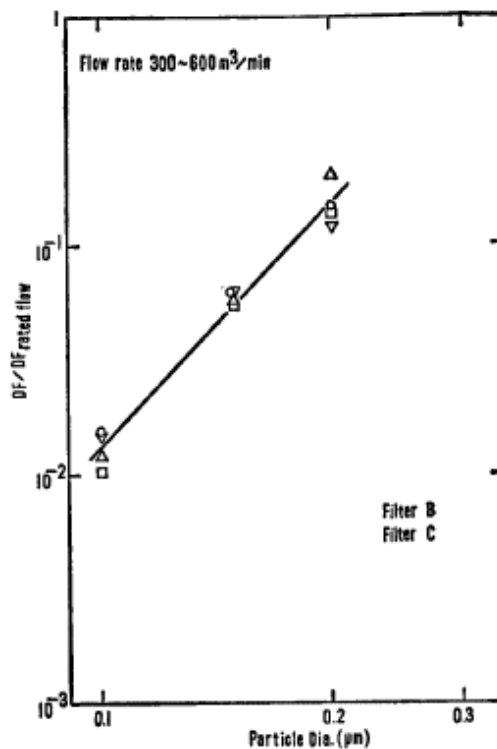


図 7.30 大風量下における DF の定格風量時からの変化 (参考文献 18) より転載)

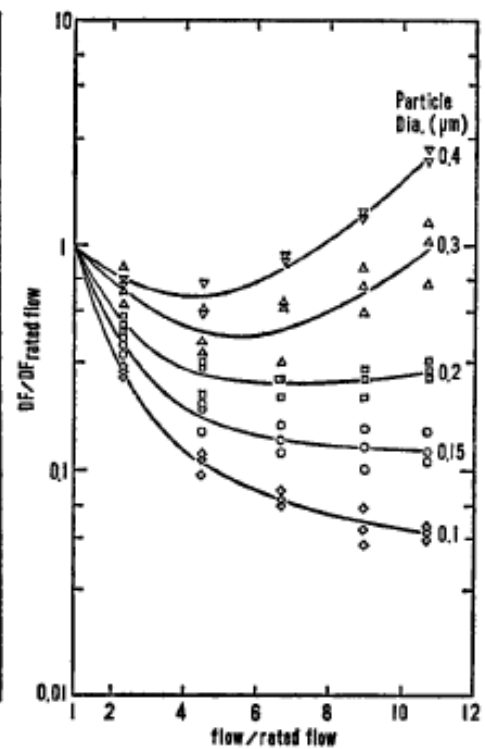


図 7.31 DF と流量の関係 (参考文献 18) より転載)

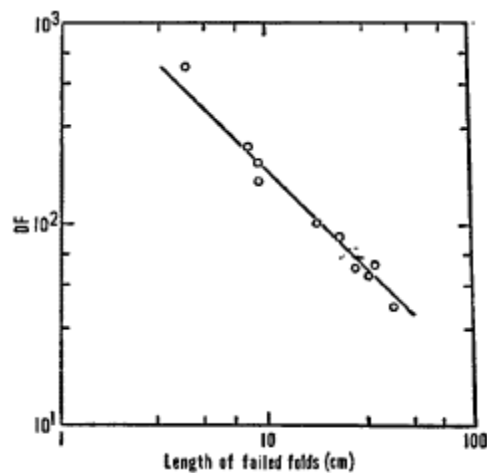


図 7.32 リーク長さと DF の関係 (参考文献 18) より転載)

(d) 計算コード

蒸発乾固と同様に MELCOR によるエアロゾルの移行解析が可能と思われるが、(b)で述べたように MELCOR は爆轟に対応していないため、注意が必要である。また、発生エアロゾルの粒径分布について設定する必要があるが、参考とする実験的なデータがない点が課題である。

水素爆発においては、爆発による配管、HEPA フィルタの破損など、閉じ込め機能の喪失の可能性があるため、閉じ込め機能の健全性評価を行う必要がある。構造応答解析に使用されている

計算コードとして LS-DYNA, Autodyn が挙げられる。LS-DYNA は原子炉における水蒸気爆発解析において原子炉支持構造材の構造応答解析に使用されている。Autodyn は核燃料加工施設におけるグローブボックス内火災及び爆発事象²⁴⁾や、汚染水処理用の使用済セシウム吸着塔保管時における水素燃焼・爆発事故の解析²⁵⁾に使用されている。なお、後述の(e)においては、HEPA フィルタの健全性評価に FLUENT が使用されている²⁰⁾。また、環状槽における水素爆発について燃焼解析に FLUENT、貯槽の構造解析に LS-DYNA が使用されている²³⁾。

(e) 最近の研究事例^{11)・15), 20)・23)}

日本原燃(株)及び三菱マテリアル(株)は水素爆発に関する研究を行っている。換気系フィルタ健全性に関する検討²⁰⁾では燃焼解析によりフィルタの健全性を評価している。水素濃度 30 % の場合の円筒型貯槽及び環状型貯槽の解析結果を図 7.33 及び図 7.34 に示す。円筒型貯槽の場合、フィルタ 1 において差圧が一時的に判断基準の 0.01 MPa を超え、フィルタ 2 では判断基準を下回った。なお、ガス温度は 200 °C を超えた。一方、環状型貯槽の場合、差圧及びガス温度ともに判断基準を下回った。円筒型貯槽については水素濃度 30 % に達するまでは十分な時間余裕があるため、DF が低下するような事象が発生する可能性は極めて低いと述べている。

また、7.4(2)で紹介した放射性物質移行率の調査^{11)・15)}、燃焼挙動の調査^{21)・23)}が行われている。これらの試験では爆発時の ARF だけでなく圧力のデータも取得していることから、LPF の計算に必要な圧力に関する情報として利用できると思われる。

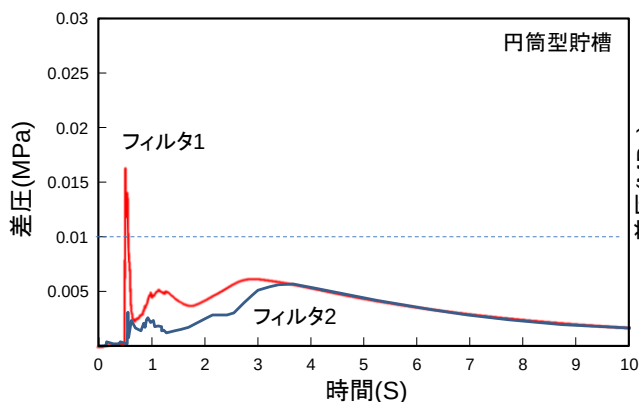


図 7.33 円筒型貯槽のフィルタ差圧
(参考文献 20) より転載)

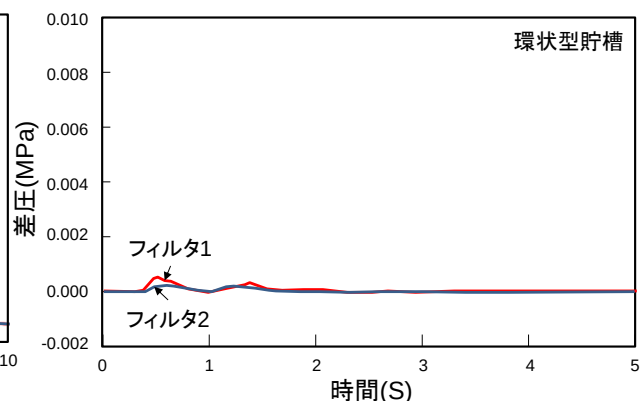


図 7.34 環状型貯槽のフィルタ差圧
(参考文献 20) より転載)

(2) 課題

水素爆発に関わるこれまでの LPF の評価では、エアロゾルの一般的な挙動である重力沈降などによる除去は考えられていない。「重力沈降などのエアロゾルの挙動に基づく評価」に必要な、水素爆発によるエアロゾルのデータが取得されていないことなどから適用されていない。エアロゾルの流路における減衰を評価するため、流路に放出されるエアロゾルの粒径分布を実験的に取得する必要がある。

現状では、LPF の要素として流路壁面及び HEPA フィルタによる減衰のみを考えており、これら以外の要素による減衰を必要に応じて評価する必要がある。

水素爆発時には通常時より温度の高い大流量のガスが HEPA フィルタに一時的に流入する可能

性があると考えられるため、高温かつ大流量条件下での HEPA フィルタ健全性に関する評価が必要になると思われる。

7.6 高レベル放射性廃液からの放射線分解水素に関わる調査

水素掃気対象貯槽の一つである高レベル濃縮廃液について、廃液に含まれる主要 FP の一つである Pd が溶解していれば、その触媒効果により水素発生が大幅に抑制されるという一連の報告がされている。このような抑制現象は、1970 年代の旧西独の KfK の論文・資料に既に報告されており、仏国ではこの現象を取り込んだ再処理工場の安全評価が行われているとの報告がある³⁾。水素爆発の評価においては、本結果を参考とすることでより適切な G 値設定が可能になるなど、現実的な進展シナリオを作成することが可能となることから、SAWG においても、本効果の重要性に鑑み、HLLW からの放射線分解水素に関わる調査を行った。

(1) 旧 KfK による報告²⁶⁾

HLLW から発生する水素に関する調査は古くから行われており、特に旧 KfK(独国・カールスルーエ原子力研究センター 現 KIT カールスルーエ工科大学)による報告がある。

そこでは、純水と FP 模擬溶液における水素 G 値の測定及び独国・WAK 再処理工場にて換気システムを停止させた状態での水素濃度測定が行われており、表 7.5 に示すように硝酸溶液及び FP 模擬溶液における G 値は純水よりも小さいと報告されている。

特に、5.3 mol/L 硝酸を含む FP 模擬廃液における G 値は、 $G(H_2) = 1.9 \times 10^{-3}$ であったと記載されている。この要因として、ステンレス鋼の腐食生成物ならびに廃液に含まれる既存の貴金属が、触媒として H_2 から H_2O への直接的な再結合に有利に働きうることを挙げている。また、WAK における実際の HLLW を内包するタンク (HLLW タンク) における実測の水素濃度データは、換気停止時においても 2.8~5.6 ppm の間で揺れ動き、有意な増加傾向がないことを示している。

表 7.5 放射線分解による H_2 測定結果の比較 (参考文献 26)より一部変更して転載)

水		DL = 1.6 W/L	$G(H_2) =$	4.4×10^{-1}
5 M HNO_3		DL = 6.4 W/L	$G(H_2) =$	2.7×10^{-2}
F.P.溶液 (模擬廃液)	5.3 M HNO_3	DL = 6.4 W/L	$G(H_2) =$	1.9×10^{-3}
F.P.溶液 (模擬廃液)	> 0.4 M HNO_3	DL = ?	$G(H_2) <$	3×10^{-3}
燃料溶液	4 M HNO_3	DL = 1.95 W/L	$G(H_2) =$	1.4×10^{-3}
HLLW タンク	1~2 M HNO_3	DL = ?	H_2 濃度 <	100 ppm*
HLLW タンク	5 M HNO_3	DL = 1.45 W/L	H_2 濃度 <	500 ppm*
HLLW タンク	5 M HNO_3	DL = 1.45 W/L	H_2 濃度 <	20 ppm*
HLLW タンク	5 M HNO_3	DL = 1.62 W/L	H_2 濃度 =	5 ppm

*検出限界により H_2 の検出、評価なし

(注)DLは Dosis Leistung の略であり、英語では Dose rate となるが、単位が W/L となっているため、ここでの意味は、模擬廃液については照射した線源に対応する熱出力、実廃液については崩壊熱を意味する。

(2) 旧原研高崎研究所（現 QST 高崎量子応用研究所）による報告²⁷⁾⁻³⁰⁾

国内でも HLLW からの放射線分解水素に関わる調査は行われている²⁷⁾⁻³⁰⁾。その中で、高レベル濃縮廃液では α 線及び $\beta \cdot \gamma$ 線による溶液の放射線分解によって水素が発生するが、発生した水素が液の深いところから気相へ放出するまでの間に溶液中の水素濃度が減少する現象があり、これを「液深効果」と称している。参考文献 28)-31)では、模擬高レベル廃液(SHLLW)を用いた放射線分解による水素及び酸素の放出に関わる実験結果を報告している。また、これら成果を調査した結果が、日本原子力学会和文論文誌²⁾に纏められている。その内容は、次のとおりである。

- SHLLW と 5 M 硝酸水溶液の水素放出 G 値の違いを明らかにするために、照射直後の溶液中の溶存水素濃度を調べた結果、水素はほとんど溶存していないことが分かった。
- 溶存水素濃度は、液深が増すにつれ始めは増加し、約 10 cm で最大となった後急減し、25 cm 以上の液深では約 0.07 mmol/L(純 5 M 硝酸水溶液の 1/185 以下)となった。SHLLW 中に生成した水素が溶液中で分解されたため、SHLLW の水素放出 G 値が、純 5 M 硝酸水溶液の水素放出 G 値に比べ小さくなる原因と考えられる。
- SHLLW が水素を分解する能力を有するかどうかを確認するため、水素を含む Ar ガスを、非照射下で強制的に吹き込み、気相中の濃度の変化を調べた結果、ガス吹き込みと同時に水素濃度は低減し始め、吹き込みを続けている間では水素濃度は減少することが分かったとしている。この結果は SHLLW が水素を分解する能力を有することを明らかに支持できるとしている。

以上のことから中吉らは、液深効果は放射線分解で生成した活性種と水素との反応及び水素が金属化合物によって分解されることによるものであるとしている。しかし近年、純 2.5 M 硝酸水溶液に関わるデータ²⁸⁾が再検討されている³¹⁾。それによると、放出された水素と液中に留まっている水素の総和は放射線分解により生成した水素の量と同じであることが確認され、水素が液相に滞留している間に消滅することはないとの結果から、放射線分解で生成した活性種と水素の反応に帰する根拠はない(すなわち、金属化合物による分解であることを示唆している)と提案されている。

そこで、最近の研究状況についても調査を行った。その結果を 7.6(3)項に報告する。

(3) 最近の研究状況 (32)-35)

参考文献 26) では、FP 模擬溶液における G 値は純水よりも小さい要因は、ステンレス鋼の腐食生成物ならびに廃液に含まれる既存の貴金属触媒として作用し、生成した H_2 から H_2O への直接的な再結合に有利に働きうることを示唆している。参考文献 32)-35) では、廃液成分中の Pd に着目し、いわゆる Pd による水素消滅の効果 (Pd 効果) を確認するための試験を行っている。ここでは、これらの論文を以下の構成でまとめ直すとともに、課題などを検討した。

- (a) 水素発生量評価モデル
- (b) コールド試験によるパラメータの取得
- (c) ^{60}Co による照射試験
- (d) 実高レベル廃液を用いた試験
- (e) 東海再処理工場高レベル廃液貯槽掃気系での水素濃度の測定
- (f) 今後の課題

(a) 水素発生量評価モデル

高レベル濃縮廃液タンク回りの水素の挙動を評価するモデルが検討されている。基本式から、水素消費速度定数 λ を評価するためのモデルや、廃液タンクの安全評価用のモデルへ展開されている。

a) 基本モデル

高レベル濃縮廃液タンクにおける水素のマスバランスを模式的に図 7.35 に示す。気相部と液相部における水素濃度を均一と仮定すると、水素のマスバランスは、(7.3)式と(7.4)式で表される。

$$V_G dC_G/dt = \alpha S C_L - \beta S C_G - f C_G \quad (7.3)$$

$$V_L dC_L/dt = \beta S C_G - \alpha S C_L - \lambda C_L V_L + G D \rho V_L / A \quad (7.4)$$

ここで、 C_G と C_L は気相及び液相中の水素濃度 (mol/m^3)、 V_G と V_L は気相及び液相体積 (m^3)、 α と β は液相から気相へ及び気相から液相への水素の移行速度定数 (m/s) ($\beta/\alpha = h$: ヘンリー数)、 S は液相と気相の界面積 (バブルの表面積も含む) (m^2)、 λ は水素消費速度定数 (s^{-1})、 D は線量率 (Gy/s)、 ρ は溶液の密度 (kg/m^3)、 G は水素生成の G 値 (分子数/100 eV)、 A はアボガドロ定数、 f はタンクから抜けていく掃気空気流量 (m^3/s) である。

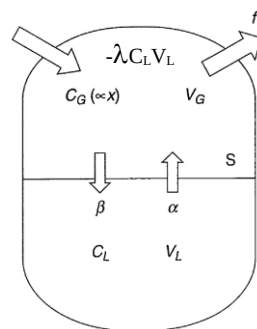


図 7.35 高レベル濃縮廃液タンク回りの水素のマスバランス
(参考文献 34)より転載)

b) 水素消費速度定数 λ を求めるための評価式

模擬廃液を入れたアンブルあるいは試験容器へ水素を含む気体を封入し、震とうあるいは攪拌を行い、気相中の水素濃度の変化から水素消費速度定数 λ を評価する試験を行っている((b) a)参照)。この場合、基本式において(7.3)式では $f=0$ 、(7.4)式では $D=0$ となる。また、激しく震とうしているため $\alpha/V_L \gg \beta/V_G$ が成り立ち、初期条件 $C_L(0)=0$ から、

$$C_G(t) \approx C_G(0) \exp\{(-\alpha h \lambda / V_G t) / (\alpha / V_L + \lambda)\} \quad (7.5)$$

が得られる。水相において水素が消費されるよりも、水相から気相へ移行する速度が速い場合には、 $\alpha/V_L \gg \lambda$ となり、(7.5)式は以下となる。

$$C_G(t) \approx C_G(0) \exp(-V_L h \lambda t / V_G) \quad (7.6)$$

試験結果を最もよく表す λ を求めることにより、 λ の値が決定できる。

c) 実高レベル廃液試験におけるモデル

東海再処理工場の実際の HLLW を用いた試験では、少量の廃液に空気を循環させて供給(廃液をバブリングしながら)し、空気中の水素濃度の経時変化を調べた((d)参照)。この場合、空気を閉じた経路で循環させているため、(7.3)式で $f=0$ となる。また、定常状態では、水相中で発生する水素と消費される水素が等しくなり、(7.4)式より $GD_p V_L / A = \lambda C_L V_L$ となり、(7.3)式に、 $C_L(t) = GD_p / A \lambda$ を代入することにより、 C_G のみの式となり、(7.7)式が得られる。

$$C_G(t) = GD_p / A \lambda h \{1 - \exp(-\beta S / V_G t)\} \quad (7.7)$$

十分に時間が経過した後は濃度一定となり、その値は(7.8)式で示される。

$$C_G(t) = GD_p / A \lambda h \quad (7.8)$$

d) 高レベル濃縮廃液タンクの安全評価のためのモデルなど

実際の高レベル濃縮廃液タンクに関する安全評価のためのモデルも、基本的には(7.3)式と(7.4)式に従う。しかし、安全評価では、最終的に水素濃度が爆発限界の4%を超えるかどうかが重要であるため、直接(7.3)式と(7.4)式の微分方程式を解かなくても評価できる。掃気空気が停止すると、 C_G は時間とともに上昇するがある一定値に到達し、水素濃度 C_G のガスとしてタンクから逃げていく。この場合の関係は以下となる。

$$-\lambda C_L V_L + GD_p V_L / A = \alpha S C_L - \beta S C_G = dC_G / dt V_G + f C_G > 0 \quad (7.9)$$

水素が液相から気相へ移行する場合には $\alpha S C_L - \beta S C_G$ が正になっているため、以下の関係となる。

$$C_L \leq GD_p / (\lambda A) \quad (7.10)$$

また、 C_G と C_L が定常値に達しても、 $\alpha S C_L - \beta S C_G$ が正なので、 C_G は C_L に対して平衡には達しておらず、 $C_L / C_G > h$ となっているため、

$$C_G \leq C_L / h \leq GD_p / (A h \lambda) \quad (7.11)$$

の関係が得られる。このモデルから気相中の最大可能水素濃度が評価できる。等号が成り立つ場合は(7.8)式と同一となる。なお、(7.10)式の関係は、(a) c)での仮定と同じく、定常状態において水相中で発生する水素と消費される水素が等しくなると仮定すると、(7.4)式より $GD_p V_L / A = \lambda C_L V_L$ となり、(7.10)式の等号が成り立つ。

$$C_L = GD_p / (\lambda A) \quad (7.12)$$

ここで得られた(7.8)式や(7.11)式に、試験などで評価された G 、 D 、 p 、 λ 、 h の値を代入して定常状態の水素濃度を評価している。その結果、掃気が停止した場合の気相部における水素濃度

は 0.027～0.3 %程度にしかならず、爆発限界の 4 %よりかなり低い値となると評価している。

(b) コールド試験によるパラメータの取得

模擬廃液を用いたコールド試験により、(a)で示したモデルに必要なパラメータの値を取得している。特に、Pd 効果を評価する時に必要な水素消費速度定数 λ に関しては詳細に検討されている。

a) 水素消費速度定数 λ の評価

水素消費速度定数 λ を評価するために、ガラスアンプル中で水素と模擬廃液を震とう・混合させ、気相中の水素濃度の変化から(7.6)式を用いて λ の値を求めている。

i) 試験

図 7.36 に示す様なアンプルへ模擬廃液(SHLLW-1)を入れ、気相部を 1.2 %H₂/air ガスで置換する。アンプルを封印した後、震とう器により震とうし、ある一定間隔で気相部のガスをサンプルし、ガスクロマトグラフィにより H₂ 濃度を測定している。

ii) 試験結果

図 7.37 に、白金族元素を含む模擬廃液を用いた試験における、震とう時間と気相中の H₂ 濃度の関係を示す。白金族元素を含む模擬廃液としては、全体を攪拌して得られた溶液(SHLLW-1(S+V+P), P:沈殿物)、上部の透明な溶液(同(S)), 真ん中の濃度が濃く粘度の高い溶液(同(V))の 3 種類の結果を示す。比較のために、純水、白金族元素を含まない模擬廃液(SHLLW-0(S+V+P))の結果も示す。純水と白金族元素を含まない模擬廃液の場合には、H₂ 濃度の低下が起きないが、白金族元素を含む模擬廃液では、顕著に H₂ 濃度が低下している。(7.6) 式による図 7.37 の結果のフッティングから、最適な水素消費速度定数 λ を評価すると、 $\lambda = 0.0057\text{s}^{-1}$ が求まる。

図 7.38 には、白金族元素を含む 1 mol/L HNO₃ 溶液で行った時の結果を示す。比較のために純水と白金族元素を含む SHLLW-1 の結果も示す。この試験では、アンプル上部の気相を 1.2 %H₂/Ar ガスで置換しているが、図 7.37 と同じような結果となっているため、水素消費反応に対しては、酸素の影響はないことが分かる。さらに、Pd を含む溶液のみで H₂ の減少が見られていることから、水素消費反応には Pd のみが関与していると考えられる。

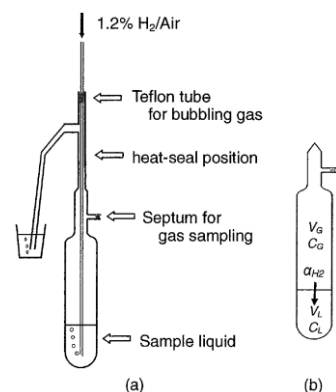


図 7.36 水素消費速度測定に用いるガラスアンプル(a)熱シール前、(b) シール後 (参考文献 32)より転載)

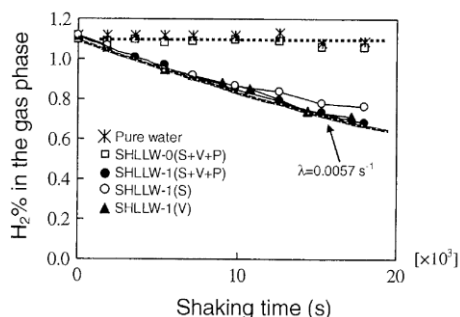


図 7.37 模擬廃液 SHLLW-0, 及び SHLLW-1 を用いた水素消費試験の結果 (参考文献 32)より転載)

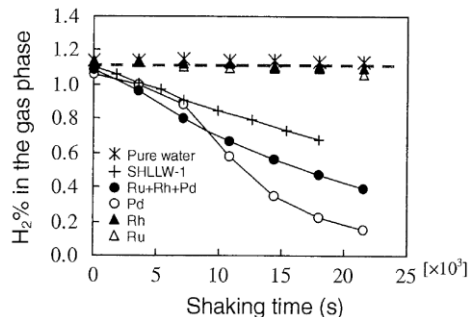


図 7.38 Ru, Rh, Pd をそれぞれ含む 1 mol/L HNO₃ 溶液, 及び, 全て含む溶液を用いた結果(参考に純水と模擬廃液 SHLLW-0 の結果も示す) (参考文献 32)より転載)

Pd 濃度の影響を調べるために、SHLLW-1 を 2 mol/L HNO₃ を用いて 1:40 倍まで希釈した溶液を用いてλの値を測定した結果を図 7.39 に示す。試験希釈倍率，すなわち，Pd イオン濃度の減少にともない，log-log の関係で水素消費速度定数λも減少することが分かる。

図 7.40 には，温度との関係を示す。模擬廃液は，⁶⁰Co 照射試験で用いる模擬廃液 SHLLW-2 を用いている。震とう器を恒温槽中に設置して試験を実施した。温度 297 K でλ = 0.015 s⁻¹ となるように見直したアレニウス式は以下となる。

$$\lambda = 2.59 \times 10^8 \exp(-7,000/T) \quad (7.13)$$

後述する(c) a)の照射試験の結果を評価する場合には，この式より，温度 297 K におけるλ=0.015 s⁻¹を用いた。図中□は，以前の試験で得られた値であり，温度の測定方法に誤差があり，今回得られた式の方がより現実に合わせていると考えられる。

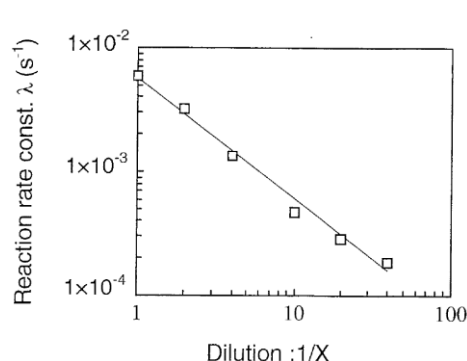


図 7.39 水素消費速度定数λに及ぼす Pd イオン濃度の影響
(参考文献 32)より転載)

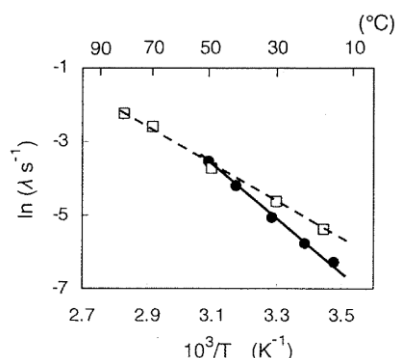


図 7.40 今回の試験(●)と以前の試験(□)で得られたλのアレニウスプロット
(参考文献 33)より転載)

b) 東海再処理工場高レベル廃液の模擬廃液を用いた試験

東海再処理工場の HLLW 貯槽排気系で測定された水素濃度の結果を評価するために必要なλなどのデータを，同工場の HLLW を模擬した溶液(SHLLW-3)を用いて測定した。NO₂濃度を Pd²⁺濃度と同一の 22.5 mmol/L とし(後述するようにこの条件の時にλの値は最大値をとる)，a)と同じ方法で，温度を変数としてλの値を測定した結果を図 7.41 に示す。これらの結果から，以下のアレニウス式が導かれる。

$$\lambda = 1.3 \times 10^9 \exp(-7,700/T) \quad (7.14)$$

λの値は，Pd²⁺濃度や NO₂濃度に依存し，NO₂濃度は，照射線量に影響される((c) b)参照)。これらを考慮すると，(7.13) 式と(7.14) 式は良い一致を示す。

NaNO₂ を添加することにより，模擬廃液中の NO₂濃度を変化させ，対応するλの値を温度 298 K で測定した。以前の模擬廃液(SHLLW-2, Pd²⁺濃度 45 mmol/L)についても行った。図 7.43 に，λの値と NO₂との関係を示す(白抜き)。はじめ NO₂濃度が増加するとλの値も増加し，Pd²⁺濃度と同等な濃度で最大値をとった後は，減少に転じる。NO₂濃度が Pd²⁺の濃度を超えると，Pd(NO₂)⁺を消費しながら，Pd(NO₂)₂ が生成される。Pd(NO₂)₂ の触媒効果は，Pd(NO₂)⁺ よりもかなり小さいため，このような現象が起きる。水素消費反応の速度を決定するステップは，水素と錯体の反応であると思われる。

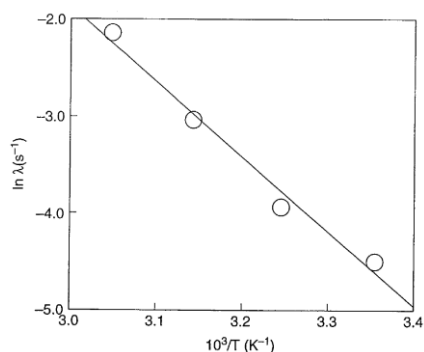


図 7.41 模擬廃液 SHLLW-3 における λ のアレニウスプロット
(参考文献 34)より転載)

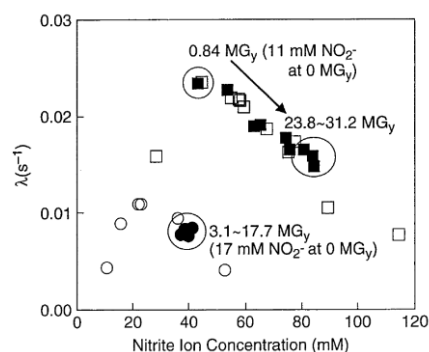


図 7.42 λ に及ぼす NO_2^- 濃度の影響(○:SHLLW-3, □:SHLLW-2; NaNO_2 の添加, ●: SHLLW-3, ■:SHLLW-2;照射試験)
(参考文献 34)より転載)

(c) ^{60}Co による照射試験

a) 模擬廃液の照射試験

^{60}Co 照射施設において模擬廃液 (SHLLW-2)の照射試験を実施し Pd 効果を確認した。

i) 試験

図 7.43 に示すステンレス製の容器へ溶液を入れ、気相部の初期ガス成分としては、空気、1.2 % H_2 含有空気、50 % O_2 +50 % N_2 混合気体の 3 種類を用いた。発生したガス(H_2 , O_2 , 及び NO_x)の気相部への移動を促進させるために、初期の 19 時間を除いて、マグネットスターラで溶液を攪拌した。比較のために静置した試験も行った。ある一定間隔で照射を停止し、ガスのサンプリングを行い、ガスクロマトグラフィを用いて、 H_2 , O_2 , N_2 の濃度を測定した。合わせて、2~5 mL のガスを注射器で抜き取り、照射中の容器内圧力を 0~10 kPa の一定に保った。

線量率はアラニン線量計で測定され、各試験サンプルの線量率は、空気系で 1.53 Gy/s, 1.2 % H_2 含有空気系で 1.60 Gy/s, 50 % O_2 +50 % N_2 混合気体系で 1.56 Gy/s であった。照射中の各サンプルの溶液の温度は容器の底に設置された熱電対で測定され、照射時の温度は、空気系で 308 K, 1.2 % H_2 含有空気系で 304 K, 50 % O_2 +50 % N_2 混合気体系で 307 K であった。水素消費反応速度定数 λ は、温度に依存しているため、全てのデータは、温度の違いを適切に補正する必要がある。

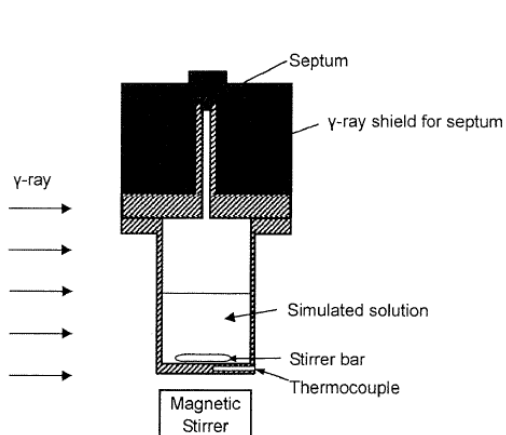


図 7.43 模擬廃液の照射に用いた試験装置
(参考文献 33)より転載)

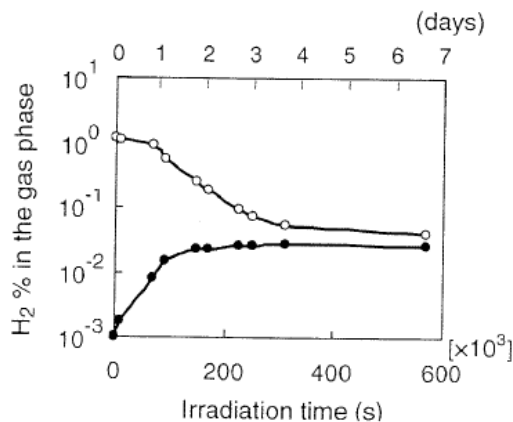


図 7.44 ガンマ線照射中の気相中 H_2 濃度の変化, 空気/SHELLW-2 サンプル(●), 1.2 % H_2 /SHELLW-2 サンプル(○)
(参考文献 33)より転載)

ii) 測定結果

初期の気相部が空気及び 1.2 %H₂ 含有空気の場合の気相部 H₂ 濃度推移を図 7.45 に示す。攪拌により(19 時間後) H₂ 濃度の増加あるいは減少が加速されている。ただし、遅い変化であり、3 日後には、どちらも～0.03 %一定に到達し、7 日後の H₂ 濃度は、空気系で 0.027 %, 1.2 %H₂ 含有空気系で 0.040 %であった。後者の値を、前者の温度と照射量で補正すると 0.028 %となり、よい一致を示す。

図 7.45 に、初期の気相部が空気と 1.2 %H₂ 含有空気の場合における O₂ 濃度の推移を示す。いずれも初期にわずかに上昇し、その後上昇速度は低下する。このことから、照射を続けることによりいずれ定常に近づくことが予想される。O₂ 濃度が定常値に到達することを確認するために、50 % O₂+50 %N₂ を用いた試験も実施した。初期に少し増加し一定となる。空気サンプルにおいても、照射を続けることにより、O₂ 濃度 < 50 %で一定となると判断できる。

以上の観察結果から、放射線による生成物が再結合して、元々の分子を再生する傾向があることばかりでなく、照射の後期では、ガスの生成がほとんどなく、水素が希釈される要因となる。上で述べた定常状態では、気相中の水素濃度は、水相中の濃度と十分に平衡になっている必要がある。

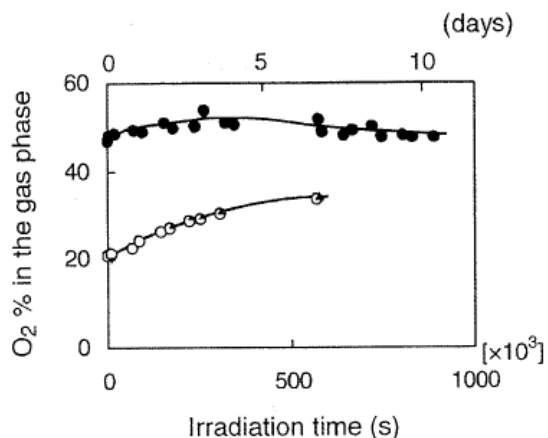


図 7.45 ガンマ線照射中の気相中 O₂ 濃度の変化、空気/SHLLW-2 サンプル(○)、1.2%水素/SHLLW-2 サンプル(◆)、50%O₂+50%N₂/SHLLW-2 サンプル(●) (参考文献 33)より転載)

iii) 考察

① 水素濃度評価モデルとの比較

模擬廃液の照射試験から得られた知見を基に、水素掃気機能喪失時のタンク内気相部の水素濃度が定常状態に達した時の

濃度 C_G を、(7.8) 式により検討する。試験条件である、 $G = 0.021$ molecules/ガンマ線照射 100 eV = 水素生成の G 値、 $D = 1.53$ Gy/s、 $\rho = 1.29$ kg/L、 $A = 6.022 \times 10^{23}$ mol⁻¹、 $h = 0.001$ 、 $\lambda = 0.035$ s⁻¹(温度 308 K)を代入して求められる C_G (mol/m³)を、(7.15)式により%に換算する(f_H (%))。

$$f_H = 8.31TC_G \quad (7.15)$$

温度 308 K の場合 0.029 %となり、図 7.44 に示す 0.027 %及び 0.028 %とよい一致を示す。試験結果とよく一致しており、(7.8) 式の有効性が示された。

② 反応機構の検討

濃硝酸や硝酸溶液中では、放射線による H₂ の生成は少ないことが知られている。初期段階では、溶液中の NO₃⁻から、O₂、HNO₂/NO₂⁻ が生成され、HNO₂は平衡反応により、NO と NO₂に分解される。模擬廃液中では、生成した H₂は、Pd の触媒反応により酸化が継続するため、生成物の蓄積に伴い、他の二次反応が起きているはずである。図 7.45 に示したように O₂ 濃度が一定となることから、対応する HNO₂や NO₂も定常となると示唆される。これらの結果から、以下の逆反応が起きて、HNO₃が再生されていると推測できる。



図 7.45 に示す空気/SHLLW-2 サンプルの定常状態のデータは、水相での放射線による O_2 生成速度の約半分である。残りは、(7.17) 式により水相中で消費されているはずである。

b) 水素消費速度定数 λ に対する照射の影響確認試験

実 HLLW では、放射線により連続的に亜硝酸イオンが生成されており、ある一定の濃度となっていると考えられる。実 HLLW の模擬廃液(SHLLW-3)の照射により、定常状態の NO_2 濃度を確認する試験とその時の λ の値を評価した。

NO_2 濃度 17 mmol/L の模擬廃液をガラスアンプル(内径 20 mm, 高さ 420 mm)に入れ、 ^{60}Co 照射施設で照射した。3 つのアンプルは、線量率 5.4 Gy/s により、3.1~17.7 MGy まで照射され、一つは、線量率 5.4 Gy/s により 11.9 MGy まで照射し、0.75 Gy/s により 13.5 MGy まで照射された。照射試験後に、 λ の値と NO_2 濃度を温度 293 K で測定した。同様な試験を初期の NO_2 濃度 11 mmol/L の模擬廃液 SHLLW-2 を用いて行った。線量率は 5.4 Gy/s であり、0.84~31.2 MGy まで照射した。

図 7.42 の●:SHLLW-3, ■:SHLLW-2 により結果を示す。SHLLW-3 を用いた試験では、線量が増加すると NO_2 濃度は定常値で一定となる。また、線量率を変えた試験においても、線量が増加すると NO_2 濃度は同じ値 41 mmol/L の定常値になることがわかり、線量率の影響は小さい。この値は、 Pd^{2+} 濃度(22.5 mmol/L)の約 2 倍である。この時の λ は、最大値の時の約 75 %である。この結果と、(7.14)式より、東海再処理工場の実 HLLW の λ は、温度 305 K の場合 0.011 s^{-1} と評価できる。SHLLW-2 を用いた試験の結果も、線量が増加すると NO_2 濃度は、 Pd^{2+} の濃度(45 mmol/L)の 2 倍程度で一定となる。この時の λ は、最大値の時の約 75 %であり、SHLLW-3 の結果と同一である。

(d) 実高レベル廃液を用いた試験

東海再処理工場の実 HLLW に空気を循環させる試験により、発生する水素の挙動を調べた。

a) 試験

図 7.46 に示す試験装置を用い、ステンレス容器に実 HLLW を入れ、容器を閉じてから容器内のガスを 4.5 mL/s の速度でポンプを用いて循環させた。循環するガスは、容器底部のステンレス製フィルタを通して溶液をバブリングする。バブリングにより、発生した H_2 の気相への移行を促進させ平衡到達時間を短縮させる。途中で、循環しているガスの 0.1 mL をロータリーバルブで採取し、ガスクロマトグラフィで H_2 濃度測定を行う。溶液の温度はヒーティングプレートで制御し、温度は抵抗温度計で測定した。2 規定硝酸で希釈し抽出廃液相当の濃度とした溶液の試験も行った。ガンマ線測定により ^{137}Cs の濃度を測定 ($2.8 \times 10^{15} \text{ Bq/m}^3$) し、ORIGEN79 により ^{137}Cs 濃度を評価することにより、その他核種の濃度を推定した。 Pd 濃度を ICP-AES で、 NO_2 濃度を吸光光度計で試験中に測定した。各試験における崩壊熱、 Pd^{2+} 濃度、 NO_2 濃度、温度を表 7.6 に示す。

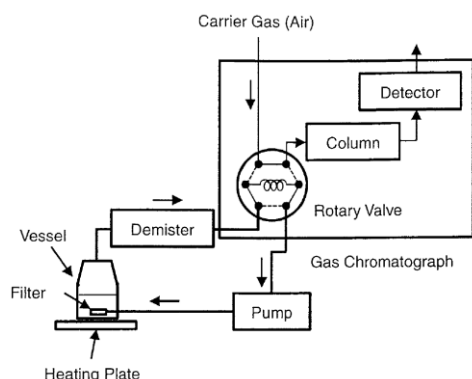


図 7.46 東海再処理工場の実廃液を用いた閉システムでの水素濃度測定用装置 (参考文献 35)より転載)

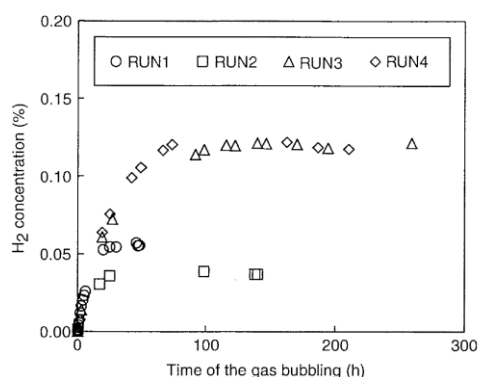


図 7.47 試験装置気相部の H₂ 濃度の時間変化 (参考文献 35)より転載)

図 7.47 に各試験における H₂ 濃度の推移を示す。温度 316 K において、初期は増加し、その後、それぞれで一定の値となった。定常状態となった時の値を表 7.6 に示す。

c) 考察

(7.14)式で求まる λ 値、仮定した G 値($\alpha:0.26$, $\beta:0.050$)、さらに表 7.6 の試験条件から、(7.8)式を用いることにより定常状態での気相中水素濃度 C_G が求まり、以下の(7.19) 式で%に換算できる。

$$f_H = 8.31 \times 10^{-3} T C_G = 8.31 \times 10^{-3} T \frac{G D \rho}{\lambda h} \quad (7.19)$$

表 7.6 HLLW と希釈した HLLW のパラメータ (参考文献 35)より転載)

Run Number	Solution	Temperature (°C)	Decay Heat (W/m ³) ^a		Concentration (mmol/l) ^a		Steady-State H ₂ Concentration (%) ^b	
			Alpha Rays	Beta Rays	Pd ²⁺	NO ₂ ⁻	Measured	Calculated
0	Before experiments	—	61	470	14	24	—	—
1	HLLW	28 ± 1	64	480	(15) ^c	21	0.050	0.12
2	HLLW	28 ± 1	70	540	(16) ^c	28	0.037	0.13
3	HLLW	23 ± 1	83	630	19	36	0.12	0.19
4	Diluted HLLW	23 ± 1	10	76	2.3	4.0	0.12	0.29

^a During the experiments solution was concentrated with the because the bubbled gas cooled and the condensate was not returned to the vessel. Accordingly, decay heat also increased.

^b The steady-state H₂ concentration in percent is obtained from the concentration C_G in mol/m³ using Eq 17 in the text.

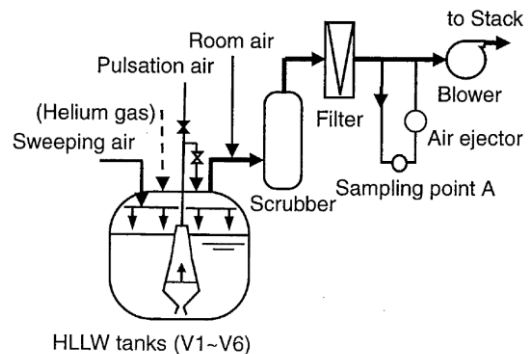
^c The concentration was obtained interpolating the values of runs 0 and 3.

ただし、(7.14)式のアレニウス式に示される頻度因子($A = 1.3 \times 10^9$)は、Pd²⁺と NO₂⁻濃度がどちらも 22.5 mmol/L の場合に求めたものである。 λ 値は、Pd²⁺濃度に比例するが、NO₂⁻濃度に対しては別の依存性を示す。そのため、頻度因子は、表 7.6 に示すパラメータで調節する必要がある([Pd²⁺] = [NO₂⁻])における λ は最大値を取るが、どちらが多くなっても λ は減少するため、[NO₂⁻]/[Pd²⁺]の値により、 λ がどのように変化するかを実測値 (図 7.42) から確認し補正する)。T と H の値も表 7.6 に示されている。

計算式より評価された水素濃度(%)を表 7.6 に示す。試験で得られた結果と比較すると、測定値は評価結果の半分程度となっている。 λ や G 値の不確実性が原因であると考えられる。今回は、 α 線及び β 線のエネルギーは全て溶液に吸収されると仮定したが、 β 線の一部は容器の壁に吸収される。また、水素発生にかかわる α 線による G 値として 0.19 を用いたが、他の報告³⁶⁾では、水素発生にかかわる α 線による G 値として 0.008 (3.5 mol/L の NO_3 溶液)が提示されている。この値を用いて評価すると、評価値は 1/1.3 倍程度に減少する。

(e) 東海再処理工場高レベル廃液貯槽掃気系での水素濃度の測定

東海再処理工場の HLLW 貯槽タンク系の換気空气中水素濃度を測定した。これまでの模擬廃液から得られたパラメータから計算される値と比較し、測定値の妥当性を検討した。



a) 測定方法

東海再処理工場 HLLW 貯槽系のタンクの配置と換気系の系統図を図 7.48 に示す。容量 120 m³のタンクが 6 基あり、一つは予備である。水素掃気用の空気、沈殿物の沈降防止用のパルスエアー、溶液のレベル及び密度測定用の 3 系統から空気が送られている。水素掃気用空気は連続的に供給されているが、パルスエアーは、各タンクに 1 時間に 10 回、各 1 分間供給される。各タンクへの空気の流量を表 7.7 に示す。

図 7.48 HLLW タンク及び換気システムの概略図
(参考文献 33)より転載)

表 7.7 東海再処理工場 HLLW 貯蔵タンクと換気システムに関するパラメータ
(参考文献 34)より転載)

Parameters on Tokai HLLW Tanks and Ventilation System*								
Tank Number	HLLW Volume (m ³)	Decay Heat (W/m ³)	Ventilated Air Flow Rate (m ³ /h)					
			Pulsation mode			Pulsation stopped mode		
			Sweeping Air	Pulsation Air	Room Air	Sweeping Air	Pulsation Air	Room Air
1	78	970	25	16	81	25	0	126
2	71	920	5	14		20		
3	69	650	5	14		8		
4	78	930	5	16		7		
5	72	1120	5	14		14		
6	0	0	5	0		5		
Other tanks		0	10	0		10		

*The volume of tank No. i is 139 m³, and its capacity is 120 m³; the mean decay heat is 920 W/m³; the HLLW temperature is 305 K; the ventilated air flow rate is 215 m³/h (0.060 m³/s) at its temperature of 303 K.

V1～5 までのタンクにパルスエアーを 1 分間隔で与えるパルスモードと、今回の試験のために特別に 4.5 時間の間パルスエアーを停止したモードの 2 種類の条件で水素濃度を測定した。どちらも、タンク V5 へのパルスが終了してからの時間に応じて、空気取り出し口 A から掃気空気の一部を採取し、ガスクロマトグラフィで H₂ 濃度を測定した。バックグラウンドの H₂ 濃度も測定した。

b) 試験結果

パルスモードにおける測定結果を図 7.49 に示す。パルスから 30 秒後に最大値が現れている。

タンクからサンプリングポイントまでの距離によるものである。パルスから 30 秒後の平均値は 1.6 ppm であった。この値をパルスモードでの H_2 濃度とする。

パルス停止モードにおける結果を図 7.50 に示す。 H_2 濃度は減少し、ある一定値に落ち着く。パルスの停止により全体の掃気空気流量が減少するためとパルスの停止による影響である。

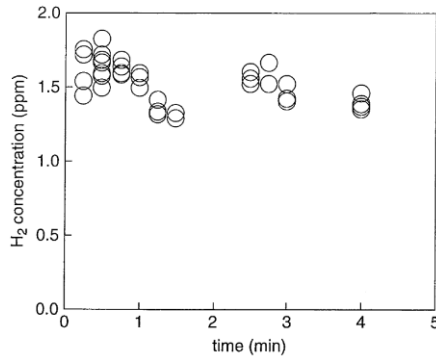


図 7.49 排気空气中 H_2 濃度(パルスモード)
(バックグラウンド濃度(0.6 ppm)を差し
引いた濃度) (参考文献 34)より転載)

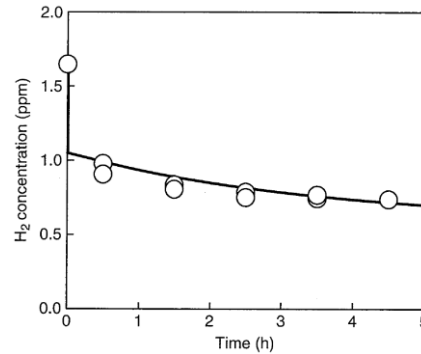


図 7.50 排気空气中 H_2 濃度(パルス停止モード)
(バックグラウンド濃度を差し引いた濃度、
実線は理論的に求めた曲線)
(参考文献 34)より転載)

c) 考察

パルス停止モードで定常となった時の H_2 濃度 $y(\infty) = 0.6 \text{ ppm}$ の値を用い、水素放出速度を評価する。空気の流量 $F = 0.060 \text{ m}^3/\text{s}$ から、総水素放出速度 $P_T (\text{m}^3/\text{s})$ は以下ようになる。

$$P_T = 10^{-6} y(\infty) F = 3.6 \times 10^{-8} \quad (7.20)$$

また、HLLW 液面から放出される水素量を基に評価した G 値を G_R と定義すると、一つのタンクから放出される水素の G_R 値は、以下の(7.21)式より得られる。

$$G_R = (P_U A / E) \times 1.60 \times 10^{-17} / (25.2 \times 10^{-3}) = 3.8 \times 10^8 (P_U / E) \quad (7.21)$$

ここで、 A はアボガドロ定数、 $P_U (= P_T/5)$ は一つのタンクからの水素放出速度、 $E (\text{watt})$ は $E = H V_L = 9,200 V_L$ 得られる吸収エネルギーである。 H は体積当たりの平均崩壊熱であり、 920 W/m^3 である。HLLW の体積 V_L は、タンクが満液の状態を仮定し、 120 m^3 である。(7.20)式と(7.21)式を用いて、

$$G_R = 2.5 \times 10^{-5} \quad (7.22)$$

となる。この G_R の値は、 α 線による水素生成の $G_P = 0.032$ の $1/1,000$ 程度の値になる。

d) 模擬廃液 SHLLW から得られたパラメータによる試験結果の評価

c) 考察で評価した、測定値から求めた水素放出速度 $P_U (\text{m}^3/\text{s})$ や放出水素の G_R 値を、これまで SHLLW 試験から求められたパラメータを用いたモデルにより評価した。

i) 水素放出速度の評価

水素放出速度 $P_U (\text{m}^3/\text{s})$ は以下で得られる。

$$P_U = 25.2 \times 10^{-3} \alpha S C_L \quad (7.23)$$

ここで、 α は液相から気相への水素移行係数 (m/s)、 C_L は液相中の水素濃度 (mol/m^3) である。

α と C_L を以下のように評価し、それらを用いて P_U を算出した。

・ HLLW 中の水素濃度(C_L)

定常状態では、液中で生成する水素は全て消費されるため、生成速度と消費速度は等しくなる。

C_L は以下の(7.24)式から得られる。

$$C_L = G_P' D_P / \lambda = 3.4 \times 10^{-4} \quad (7.24)$$

ここで、 G_P' は水素生成 G 値($G_P = 0.032$)の単位を分子数/100eV から mol/J に変換したものであり、 3.3×10^{-9} mol/J である。 λ は、HLLW における水素消費速度定数 (模擬廃液を用いた試験から得られた値((c) b)参照)であり、 0.011 (s⁻¹)である。また、 D_P は $1,120$ (W/m³)である (D は線量率(Gy/s), ρ は密度(m³/L)であり、 D_P は H (W/m³)となる)。

・ 水素移行率(α)

HLLW と同じ温度や亜硝酸濃度の場合における α の値として以下が得られている(α 及び β を求めるモデル及び試験の詳細は省略する)。

$$\text{静置条件: } \alpha = 7.7 \times 10^{-6}, \quad \text{攪拌条件: } \alpha = 3.3 \times 10^{-3}$$

・ 水素放出速度(P_U)

タンク断面積が液表面積と同一とすると $S = 36$ m² となる。これまで得られた α , S , C_L を(7.23)式に代入すると、静置条件、及び攪拌条件における水素放出速度(m³/s)が評価できる。

$$\text{静置条件: } P_U = 2.3 \times 10^{-9}, \quad P_T = 5P_U = 1.2 \times 10^{-8}$$

$$\text{攪拌条件: } P_U = 1.0 \times 10^{-8}, \quad P_T = 5P_U = 5.0 \times 10^{-8}$$

ii) 水素放出 G 値

(7.23)式で得られた P_U と吸収エネルギー E から、(7.20) 式より満液時の G_R が評価できる。

$$\text{静置条件: } G_R = 6.6 \times 10^{-6}, \quad \text{攪拌条件: } G_R = 2.8 \times 10^{-5}$$

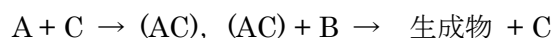
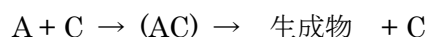
e) 実プラントでの測定値と模擬廃液から得られた結果との比較

東海再処理工場の HLLW タンクにおいて、パルス停止モードで得られた水素放出速度 P_r (m³/s) は 3.6×10^{-8} であり、それに対し、SHLLW から得られたパラメータを用いたモデルによる評価では、静止条件においては 1.2×10^{-8} 、攪拌条件においては 5.0×10^{-8} が得られた。実際のタンクから評価された値は、静止条件の SHLLW から得られた値より少し大きい、よく一致している。実際のタンクでは、パルスが停止しても崩壊熱により液の対流が起き、また熱が冷却水で除去されているためである。

測定値、あるいは、モデルから評価した水素放出 G 値(G_R)は、 $7 \times 10^{-6} \sim 3 \times 10^{-5}$ の値をとり、WAK で測定された値 $< 5 \times 10^{-5}$ を満足している。我が国の安全審査で用いられている水素放出 G 値、すなわち、 $G_R = 0.01 \sim 0.06$ と比較しても、今回得られた値は 1/1,000 程度である。

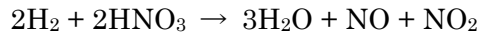
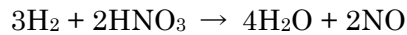
(f) 今後の課題

触媒には、全部の反応が同一の相で進む均質触媒作用と、2 相の境界面ですすむ不均質触媒作用とがあり、固体触媒による不均質触媒作用は接触触媒作用(Pd 金属はこちら)とも言う。さらに、均質触媒には、金属錯体、酸塩基触媒、酵素などがあるが³⁷⁾、ここで扱った Pd 効果は均質触媒の一つである。均質触媒は反応物と中間体を作り、中間体は第 2 の反応物と反応して生成物となるか分解して直接生成物になる。抽象的に示すと以下のようなになる³⁸⁾。



ここで C は触媒を表す。触媒は反応機構のある段階で入ってきて次の段階で出ていくだけであり、触媒作用の本質は、入ってくることではなく、何事もなく外へ出ていくところにある。

これまでの論文では，“Pd の触媒効果により水素が消費される”と述べているが，上で示したような機構が解明されていない。水素が消費される反応については，以下に示すような化学反応式を検討しているが Pd の触媒としての作用も考慮すべきである。



最近の報告では，Pd・NO_x 錯体での配位子構造及び各反応経路における活性化エネルギーを計算し，反応経路を推定することが試みられている³⁹⁾。このような，機構論的な検討を更に深める必要がある。

7.7 まとめ

核燃料サイクル施設における放射性分解水素の爆発に関する影響評価を行う上で必要な項目を整理した。表7.8に本稿で取り上げた事故時の影響評価に利用可能な基礎データを纏めて示す。

表7.8 実験データ及び解析手法などのまとめ（水素爆発）

取り上げた 評価項目	対応する 五因子法 パラメータ	調査内容	課題
水素掃気機能 喪失～爆発下 限濃度までの 上昇		（水素爆発のための発生条件） ①掃気用圧空の喪失 ・ 空気圧縮機自体の喪失 ・ 圧空供給配管の損傷 ②着火源 ・ 電源ケーブルの破損によるスパーク ・ 施行時の切削屑の流動による火花 ・ 静電気 （爆発下限濃度に至るまでの時間余裕） ・ G値の設定・・・溶液の性状に依存（放射能濃度，硝酸濃度） ・ 高レベル放射性廃液については，独国での実測データの研究報告あり。 ⇒換気停止時の水素濃度は，有意な増加傾向なし。 ・ 中吉らの報告による液深効果 ⇒溶存水素濃度は液深が増すにつれて濃度が減少する。 ⇒一方，純硝酸溶液中では液深効果はないとの報告もあり。 ・ Pdの触媒効果によって水素が消滅する減少（Pd効果） ⇒模擬廃液実験結果と実プラントの測定結果の比較により，モデルから評価された水素G値は，WAKで想定された数値を満足していることを確認。 ⇒実廃液のG値は，純硝酸の1/1,000程度になる見込み。	沸騰時と非沸騰時の水素G値設定の考え方についての調査は必要 ・ 水素消費速度などの速度論的なデータを比較して，反応機構論についてはまだ議論の余地がある。 ・ Pd効果について，水素の消費反応についてはある程度の想定はできるが，Pdの触媒としての反応機構について議論が深まることにより，Pd効果による水素消費が広く認識されることが期待される。

取り上げた 評価項目	対応する 五因子法 パラメータ	調査内容	課題
水素爆発，再 爆発		(水素爆発) ・着火の確率 (再爆発) ・爆発後の水素濃度の推移 ⇒一旦低下するが，再度分解により水素発生の可能性あり	・着火確率，爆発後における水素濃度上昇の可能性については調査が必要。
影響事象	ARF	(既往の文献) ・ Walker報告書 ⇒Pu濃縮缶洗浄操作中に起きた爆発事故データなど ・ AAH(NUREG/CR-6410)の推奨値 ⇒溶液を入れた容器を加圧・開放によって飛散したエアロゾル量を測定した実験(NUREG/CR-3093など)からフィッティング式を算出・・・JNES報告書でも引用 (最近の報告) ・ 小林・石尾らの報告 ⇒NUREG/CR-3093の装置情報を基に，移行率に影響を与えると考えられるパラメータ影響について調査 NUREG/CR-3093における報告値よりも1～2桁小さい移行率であったことを報告 ⇒環状容器における水素爆発実験を行い，気相への移行率を調査 ミスト飛散率は10^{-10}～10^{-6}程度であったと報告	・ 裏付けとなる実験データが殆どない。 ・ 実際の水素爆発と比べて，圧力保持時間の観点で過度に保守側となる可能性あり ・ 最小容器データを包含するようにARF上限値を設定しているため，実機と比較すると保守性が高い ・ 圧力などパラメータの相関性については確認できるが，実際の水素爆発と比べると圧力保持時間による保守性は残る。 ・ 実際に水素爆発を起こしているのので，現実的とも考えられるが，飛散メカニズムについて不明な点が残ることが課題。 ・ 実際の貯槽の液深さは実験体系よりも深いため，実際のARFは小さくなる可能性が高い。

取り上げた 評価項目	対応する 五因子法 パラメータ	調査内容	課題
	LPF	(既往の文献) ・旧JNES報告書 ⇒爆発時の圧力などを計算し、HEPAフィルタの健全性維持の判定。温度・流量・水封の維持の評価も行いLPFを設定 ・AAHに記載される推奨式 ⇒濃度，流量，ドライビングフォースなどのパラメータを決定するために計算コードが必要。MELCORは爆轟に対応していない。 ・想定する経路のHEPAフィルタ健全性評価 ・計算コード (最近の研究事例) ・燃焼解析によるフィルタ健全性評価 ・換気系フィルタの健全性に関する検討 ・燃焼挙動の調査・機器健全性確認の実験	水素爆発時に発生するエアロゾルの粒径分布のデータが現状ないため、重力沈降などの評価ができない。実験的にデータが取得できるのが望ましい。 現状は、この影響については保守側に考慮するしかない。

参考文献

- 1) 日本原燃株式会社, 「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(使用済燃料のせん断・溶解などを行う場合の状態を対象とした評価)」(2013).
- 2) 石田 倫彦 他, 「核燃料施設の事故影響評価手法に関する調査(III) 放射線分解水素爆発事象の事故影響評価手法に関する基礎的データ」, 日本原子力学会論文誌, **9**[1], 71-81 (2010).
- 3) 日本原燃株式会社, 「【公開版】六ヶ所再処理施設における新規規制基準に対する適合性【重大事故等対処施設】「重大事故等への対処の基本方針及び想定する条件(放射線分解により発生する水素による爆発)」, <http://www.nsr.go.jp/data/000114984.pdf> (2015).
- 4) E. Walker, *A Summary of Parameters Affecting the Release and Transport of Radioactive Material from an unplanned Incident*, BNFO-81-2, Bechtel National Inc., (1978).
- 5) Science Applications International Corporation, *Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook*, NUREG/CR-6410, (1998).
- 6) 野村 靖 他, 「再処理施設安全評価用基礎データ」, JAERI-M 90-127 (1990).
- 7) S. L. Sutter, *Aerosols Generated by Releases of Pressurized Powders and Solutions in Static Air*, NUREG/CR-3093, PNL-4566 (1983).
- 8) M. Y. Batlinger, S. L. Sutter, W. H. Hodgson, *New Data for Aerosols Generated by Releases of Pressurized Powders and Solutions in Static Air*, NUREG/CR-4779, PNL-6065 (1987).
- 9) 独立行政法人 原子力安全基盤機構, 「再処理施設の確率論的安全評価手法の整備＝水素爆発事象の解析手順＝」, JNES/SAE05-025 (2005).
- 10) 小玉 貴司 他, 「再処理工場水素爆発事故時における放射性物質移行率の調査 (1) 背景・全体計画」, 日本原子力学会「2015 年秋の大会」予稿集, G47, 356 (2015).
- 11) 小林 卓志 他, 「再処理工場水素爆発事故時における放射性物質移行率の調査 (2) 小型試験」, 日本原子力学会「2015 年秋の大会」予稿集, G48, 357 (2015).
- 12) 石尾 貴宏 他, 「再処理工場水素爆発事故時における放射性物質移行率の調査 (4) 小型試験 その 2」, 日本原子力学会「2016 年春の年会」予稿集, 3P12 (2016).
- 13) 石尾 貴宏 他, 「再処理工場水素爆発事故時における放射性物質移行率の調査 (3) 環状容器試験」, 日本原子力学会「2015 年秋の大会」予稿集, G49, 358 (2015).
- 14) 小林 卓志 他, 「再処理工場水素爆発事故時における放射性物質移行率の調査 (5) 環状容器試験 その 2」, 日本原子力学会「2016 年春の年会」予稿集, 3P13 (2016).
- 15) T. Ishio *et al.*, “Experiment on airborne release fraction in hydrogen explosion accident at Reprocessing plant” *Proc. OECD-NEA CSNI Workshop on Developments in Fuel Cycle Facilities (FCFs) after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (NPS) Accident*, Aomori, Japan, Nov. 15-18, 2016, (2016) (to be published).
- 16) 尾崎 誠 他, 「高性能エアフィルタの苛酷時健全性試験, (I) DOPエアロゾルの捕集性能」, 日本原子力学会誌, **27**[7], 626-636 (1985).
- 17) 尾崎 誠 他, 「高性能エアフィルタの苛酷時健全性試験, (III) 高温負荷」, 日本原子力学会誌, **28**[1], 90-97 (1988).

- 18) 尾崎 誠 他, 「高性能エアフィルタの苛酷時健全性試験, (Ⅶ) 圧力変化試験」, 日本原子力学会誌, **30**[4], 365-371 (1988).
- 19) 独立行政法人 原子力安全基盤機構, 「再処理施設の確率論的安全評価手法の整備=TBPなどの急激な分解反応事象の解析手順=」, JNES/SAE06-011 (2006).
- 20) 玉内 義一 他, 「再処理工場における水素爆発を想定する機器内での水素爆発発生時の換気系フィルタ健全性に関する検討」, 日本原子力学会「2015年秋の大会」予稿集, F12, 266 (2015).
- 21) 玉内 義一 他, 「再処理工場における放射線分解による水素爆発発生時の燃焼挙動の調査 (1) 全体概要」, 日本原子力学会「2016年春の年会」予稿集, 3P14 (2016).
- 22) 玉内 義一 他, 「再処理工場における放射線分解による水素爆発発生時の燃焼挙動の調査 (2) 環状槽等の爆発試験」, 日本原子力学会「2016年春の年会」予稿集, 3P15 (2016).
- 23) 戴 文斌 他, 「再処理工場における放射線分解による水素爆発発生時の燃焼挙動の調査 (3) 環状槽の燃焼解析、構造解析」, 3P16 (2016).
- 24) 独立行政法人 原子力安全基盤機構, 「核燃料施設火災・爆発事故解析コードの改良整備==FACE-VENT2 / PHOENICS / AUTODYNによる解析 ==」, JNES/SAE05-051 (2005).
- 25) 寺田敦彦 他, 「廃ゼオライトの長期保管方策の検討—水素拡散／燃焼影響評価解析システムの整備—」, JAEA-Data/Code 2013-011 (2013).
- 26) S. Specht, “Bemerkungen zur Wasserstoff-Freisetzung aus Salpetersauren Spaltproduktlösungen,” **KfK-2940**, 196-215, Kernforschungszentrum Karlsruhe (1980) [in Germany].
- 27) 中吉 直隆 他, 「高レベル廃液からの放射線分解発生水素量の評価, (Ⅰ) 各種濃度の硝酸水溶液の γ 線分解」, 日本原子力学会誌, **36**[8], 744-751 (1994).
- 28) 中吉 直隆 他, 「高レベル廃液からの放射線分解発生水素量の評価, (Ⅱ) 静置状態の硝酸水溶液から放出される水素量の液深依存性」, 日本原子力学会誌, **37**[12], 1119-1127 (1995).
- 29) 中吉 直隆 他, 「高レベル廃液からの放射線分解発生水素量の評価, (Ⅲ) 硝酸水溶液の γ 線分解発生水素量に及ぼす共存金属成分の影響」, 日本原子力学会誌, **38**[12], 992-1000 (1996).
- 30) 中吉 直隆 他, 「高レベル廃液からの放射線分解発生水素量の評価, (Ⅳ) 模擬高レベル廃液の γ 線分解発生水素量」, 日本原子力学会誌, **39**[12], 1062-1068 (1997).
- 31) 小玉 貴司 他, 「高レベル濃縮廃液からの放出水素の抑制効果」, 日本原子力学会「2007年秋の大会」予稿集, O46, 865 (2007).
- 32) T. Kodama *et al.*, “Study on the Behavior of Radiolytically Produced Hydrogen in a High-Level Liquid Waste Tank of a Reprocessing Plant: Hydrogen Consumption Reaction Catalyzed by Pd Ions in the Simulated Solution”, *Nucl. Technol.*, **172**, 77-87 (2010).
- 33) T. Kodama *et al.*, “The Behavior of Radiolytically Produced Hydrogen in a High-Level Liquid Waste Tank of a Reprocessing Plant: Hydrogen Concentration under Gamma Irradiation of the Simulated Solution”, *Nucl. Technol.*, **180**, 103-110 (2012).
- 34) H. Kinuhata *et al.*, “The Behavior of Radiolytically Produced Hydrogen in a High-Level Liquid Waste Tank of a Reprocessing Plant: Hydrogen Concentration in the Ventilated Tank Air”, *Nucl. Technol.*, **189**, 122-132 (2015).

- 35) H. Kinuhata *et al.*, “Study on the Behavior of Radiolytically Produced Hydrogen in a High-Level Liquid Waste Tank of a Reprocessing Plant: Comparison between Actual and Simulated Solutions”, *Nucl. Technol.*, **192**, 155-159 (2015).
- 36) J. C. Sheppard, *Alpha Radiolysis of Plutonium(IV) Nitric Acid Solutions*, USAEC Report BNWL-751 (1968).
- 37) http://www.d7.dion.ne.jp/~shinri/nyumon_C.html
- 38) ムーア, 「基礎物理化学(上)」, 東京化学同人(1985).
- 39) 塚本 泰介 他, 「再処理工場水素爆発事故時における放射性物質移行率の調査 (1) 水素消費反応メカニズムの検討」, 日本原子力学会「2016年秋の大会」予稿集, 1H17(2016).

8. 使用済燃料の損傷（プール水喪失）

8.1 事故の概要

(1) 設備の概要

再処理施設の使用済燃料プール（以下、SFP：Spent Fuel Pool という）の概要として、六ヶ所再処理工場の当該設備²⁾を例示する。図 8.1 に燃料貯蔵プールの鳥瞰図と燃料保管設備の一例として低残留濃縮度 BWR（Boiling Water Reactor：沸騰水型発電用原子炉）燃料貯蔵ラックを示す。BWR 燃料用、PWR（Pressurized Water Reactor：加圧水型発電用原子炉）燃料用及び両者共用の 3 基の燃料貯蔵プールに最大 1000 t・U_{pr} の燃料が貯蔵可能である。燃料貯蔵ラックには、BWR 燃料及び PWR 燃料ごとに平均濃縮度が 2.0 wt%を超える燃料とそれ以下の 2 種類に分けて保管する都合 4 タイプがある。

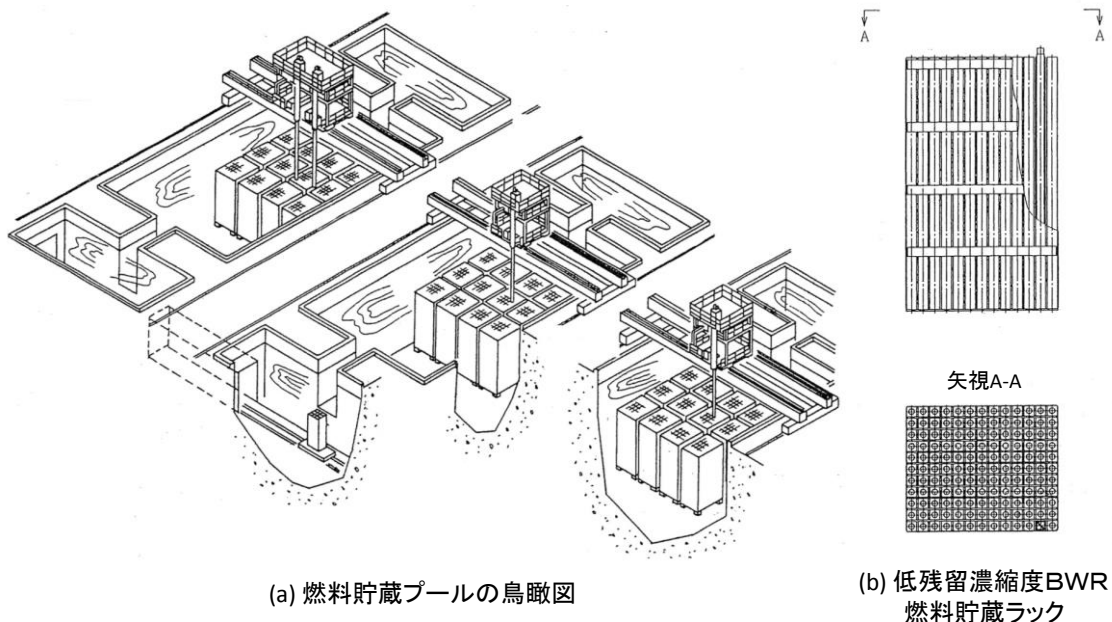


図 8.1 六ヶ所再処理工場の燃料貯蔵プールの鳥瞰図と
低残留濃縮度 BWR 燃料貯蔵ラック
(参考文献 2)より転載)

(2) 事故の概要

図 8.2 に想定される事故の概要を示す。地震など何らかの原因で、SFP の冷却機能が喪失する場合、又は SFP の損傷などによりプール水が喪失する場合、使用済燃料がプール水から露出し温度上昇により損傷に至る可能性がある。冷却機能喪失は、地震などによる全交流電源喪失、あるいは SFP 冷却系が故障した場合に起こる。冷却材であるプール水喪失は、地震による SFP 本体の損壊或いは冷却系配管の損傷によるサイホン現象によるプール水の流出で発生する。

冷却機能の回復あるいは SFP への給水に失敗すると使用済燃料の崩壊熱でプール水の温度が上昇して沸騰が開始し、プール水が蒸発し SFP の水位が低下する。やがて燃料が露出すると燃料

温度が上昇し、高温に至ると Zr －水反応及び Zr 酸化反応による反応熱も加わって燃料棒被覆管の損傷に至る。被ばく評価上重要な短半減期のヨウ素は消滅しており、燃料が損傷すると希ガスが放出される。燃料の温度上昇に伴いそれ以外の放射性核種もエアロゾルとして気相へ移行する。酸素が存在する状況では揮発性 Ru が発生しやすいという知見もある²⁾。また、 Zr －水反応により水素が発生する。建屋排気系が停止していれば施設の一部空間に水素が停留し水素爆発の可能性もある。さらに事故が進展し燃料の溶融に至ると SFP 床面へのリロケーション、その後の溶融燃料とコンクリートの反応（原子炉での炉心損傷時に想定される MCCI : Molten Core Concrete Interaction と呼ばれる現象と同じ）の可能性がある。一方、高温による燃料貯蔵ラックの損傷あるいは燃料の溶融に伴う床面での堆積に伴い再臨界の可能性もある。

事故対策として、SFP へのスプレー放水による冷却が想定されているが、高温の燃料集合体内に流入したスプレー水の蒸発に伴う上向蒸気流によるスプレー水の流入の阻害の可能性もある。

なお、参考文献 2) には、発電用原子炉施設の SFP での冷却機能喪失又は冷却材喪失事故時の燃料損傷事故評価に関わる最新の情報が整理されており、再処理施設の SFP での同種の事故の影響評価に参考となる有益な情報が多く含まれている。

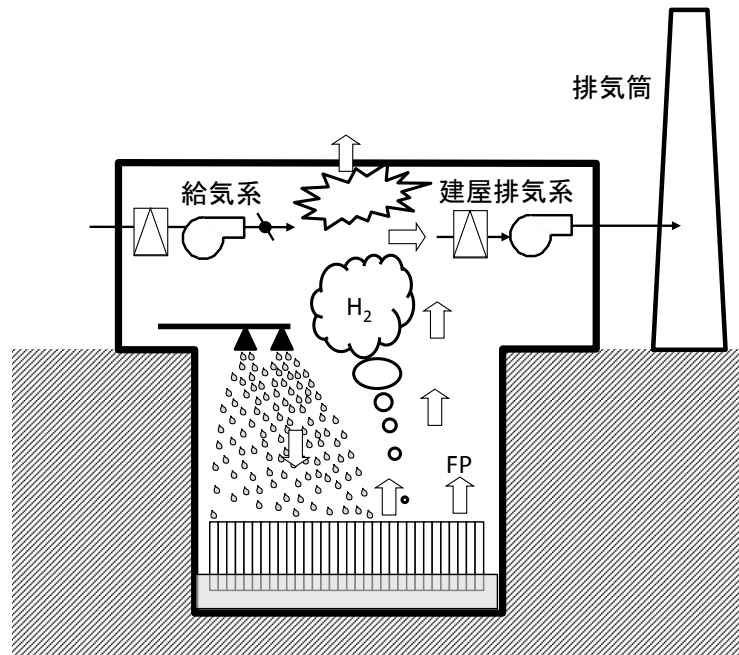


図 8.2 想定される事故の概要

8.2 想定される事故シナリオ

冷却機能の回復あるいは SFP への給水に失敗すると使用済燃料の崩壊熱でプール水の温度が上昇して沸騰が開始し、プール水が蒸発し SFP の水位が低下する。やがて燃料が露出すると燃料温度が上昇し、 Zr の水及び酸化反応による反応熱も加わって燃料の損傷に至る。また、 Zr －水反応により水素が発生し、水素爆発の可能性もある。さらに事故が進展すると燃料は溶融し、SFP 床面に堆積する。高温の溶融燃料はコンクリートと反応し、デブリ（溶融した燃料、燃料集合体を形成する構造物、放射性物質、コンクリート成分などが混合した物質）を形成し SFP 床面を浸食する。事故対策として、SFP へのスプレー放水による冷却が想定される。

なお、水素爆発により構築物（建屋）が損傷し、放射性物質の移行経路に変化が生じる可能性があるが、爆発による構築物の損傷は、一般産業でも発生する事故であり、これらの損傷に関わる解析事例は多いので本報告では取り扱わない。また、再臨界の可能性については、燃料棒の損傷に伴う核燃料物質の移動、形状の変化が推定不能であり、不確定要素が多すぎるため考慮すべき事象には含めない。

8.3 事故解析と五因子法との対比

「8.4 燃料の損傷の評価事例（DR の評価）」では、冷却機能喪失あるいは冷却材喪失により燃料の破損に至る過程を計算コードにより解析した事例を示す。これにより「DR：事故の影響を受ける割合」が評価できる。「8.5 気相への移行量の評価（ARF の評価）」及び「8.6 溶融燃料とコンクリートとの反応」で示す方法により、「ARF：気中に保持され移行できる物質の割合」に相当する情報を求めることができる。「8.7 スプレー水による冷却及びエアロゾルなどの除去効果（LPF の評価）」の前半部では、燃料損傷の評価において考慮すべきスプレー水による冷却について、後半では MELCOR コード（以下、MELCOR という）及び MAAP コード（以下、MAAP という）などによる「LPF：環境に放出される割合」に係わる解析において考慮すべきスプレー水のエアロゾルなどの除去効果について述べる。

8.4 燃料の損傷の評価事例（DR の評価）

参考文献 3)では、シビアアクシデント解析コード MAAP (Modular Accident Analysis Program) を用い、BWR の SFP での全交流電源喪失あるいは SFP 冷却系の故障に伴う冷却機能喪失及びプラント大規模損傷に伴うプール水喪失といった事故時の過渡解析を実施した結果が示されている。また、参考文献 4)には、MELCOR を用いた福島第一原子力発電所 4 号機の SFP の解析結果が示されている。次に示す解析例では、解析事例の具体的な解析結果を紹介するのではなく、再処理施設の SFP における冷却機能喪失あるいは冷却材であるプール水喪失事故時で想定される主要な現象に対する解析機能について概説する。発電用原子炉施設の SFP に比して再処理施設の SFP は規模が大きいため、プールの中心部では自然循環による冷却の可能性は低い可能性があり、プール大きさを考慮した自然循環に関わるモデル化の工夫などが必要になると考えられる。

MAAP は、米国電力研究所が開発したシビアアクシデント評価用の統合解析コードであり、軽水炉におけるシビアアクシデント発生時の原子炉冷却系の熱流動、炉心の過熱と崩壊及びリロケーション、原子炉圧力容器破損、原子炉格納容器破損から溶融炉心－コンクリート反応、さらには核分裂生成物（FP）の発生と移行及び環境への放出に至る事故シーケンス全般を取り扱うことができるとしている。Ver.5.0.1 以降に導入された SFP モデルでは、

- ・プール水が沸騰するまでの時間
- ・使用済燃料集合体が露出するまでの時間
- ・使用済燃料集合体の過熱挙動（燃料集合体間及びプール壁面との輻射を含む）
- ・使用済燃料集合体のスプレー冷却
- ・Zr－水反応及び空気中の酸素によるジルコニウム酸化反応（ジルコニウム火災）
- ・使用済燃料からの FP 放出及び FP 移行挙動（揮発性 Ru 発生挙動を含む）

- ・使用済燃料集合体の溶融進展（SFP 床でのコリウムプール形成及び MCCI を含む）

を計算することができる。SFP モデルは、MAAP の格納容器（原子炉建屋）モデルをベースとして、そこに水プールを設定することにより取り扱われる。現状の SFP モデルでは、使用済燃料ラック内のプール水の自然循環はモデル化されていない。

参考文献 3)には、MAAP5 に付属する BWR 用サンプルデータの SFP 体系を用いて解析を実施した結果が示されている。ここでは、SFP の冷却機能喪失及びプール水喪失事故を対象に、崩壊熱及び燃料配置パターンが露出後の燃料冷却性能に与える影響について評価している。前者では、崩壊熱をパラメトリックに変化させて解析し、空冷で燃料損傷防止が達成可能となる崩壊熱を推定している。また、初期水位が燃料冷却に与える影響についても解析し、燃料下部の水位が気相の自然循環を阻害し、冷却性が低下する効果を確認している。後者については、燃料配置パターンが冷却性能に与える影響を検討すると共に、MAAP で燃料配置パターンを扱う際の注意点について言及している。

8.5 気相への移行量の評価（ARF の評価）

発電用原子炉施設での炉心損傷事故時での放射性物質の放出・移行の解析モデルの主要なモデルの概要を示す。原子炉圧力容器内での燃料又はデブリからの放射性物質の放出は、事故の進展によって異なった機構で生じるが、主要な放出機構のモデルは、多くの発電用原子炉施設シビアアクシデント解析コードで類似しており、再処理施設の SFP での解析にも適用できる。

(1) 事象進展に伴う放出挙動の変化

(a) 燃料被覆管破裂時の放出

炉心に装荷されている燃料の冷却が十分でなく燃料温度が上昇して燃料被覆管が破損すると、燃料被覆管ギャップに蓄積していた放射性物質が放出される。このときの放出は、希ガス及びヨウ素が主であるが、原子炉停止から 1 年を経過すると、燃料中の希ガス及びヨウ素の量は、それぞれ 10^{-5} 及び 10^{-7} 倍程度まで減少し、(c)で後述する炉心で燃料が溶融する場合の放出量と比べるとわずかである。しかし、再処理施設の SFP に保管されている使用済燃料集合体数は多いので、損傷する燃料棒の本数によっては、有意な量になる可能性がある。

(b) 燃料加熱時の放出

燃料被覆管破損後に、さらに燃料の加熱が続くと、燃料中の放射性物質は拡散によって燃料表面まで運ばれ、原子炉冷却系内に放出される。また、放射性物質以外にも燃料及び炉心構造物の一部も放出される。MELCOR は、この時期の放出量の計算に、8.5 (2)で示す米国オークリッジ国立研究所（ORNL : Oak Ridge National Laboratory）の実験結果から得られたアレニウス型の放出率計算モデルを適用している。MAAP は、核種グループごとに炉心温度に対する放出速度の相違を考慮した放出速度で放出されるモデルを適用している。

(c) 溶融燃料からの放出

燃料が溶融すると、もはや固体中の拡散は律速ではなくなるが、MELCOR では、引き続き、この時期の放出量の計算にもアレニウス型の放出率計算モデルを適用する。アレニウス型のモデルに含まれる活性エネルギーと拡散定数は、いずれも融点以下の実験から得られた放出量から決め

ている。

(d) 溶融燃料・コンクリート相互作用時のデブリからの放出

SFP 床面へ堆積した溶融燃料を含むデブリは、コンクリートと相互作用（MCCI と同じ現象）する。この時、コンクリートの分解ガスである H_2O 及び CO_2 がデブリ中の放射性物質を含む未酸化金属と反応して、揮発性の比較的高い放射性物質がデブリ表面からガスで放出される。その後、急速に冷却されてエアロゾル化する。また、放射性物質の一部は、デブリ・コンクリート相互作用の時に、エントレインメントで形成された微粒子に付着して、デブリ表面から直接放出される。

a) エアロゾルの放出

デブリ・コンクリート相互作用時のデブリからのエアロゾルの放出量は、炉外へ放出されるデブリの量及び組成（特に未酸化金属の量）、コンクリート成分、金属反応及びコンクリート分解ガスの発生量によって異なる。

b) 解析モデル

MELCOR 及び MAAP では、放射性物質の放出率は化学熱力学的平衡モデルで、コンクリート成分のエアロゾルの放出率はデブリ温度及び分解ガス流量などに依存するモデルで計算する。MELCOR の解析モデルは、対象とする化学反応の種類も多い。また、コンクリート成分のエアロゾルの放出率は、米国サンディア国立研究所の実験で得られたデブリ表面の温度及びガス流速を助変数とする相関式で、デブリ温度及び分解ガス流量などに依存するモデルで計算する。MELCOR には、核形成によるエアロゾル発生モデルも組み込まれている。

(2) 燃料からの放射性物質放出モデル

参考文献 5) の「附属書 V（参考）燃料からの放射性物質放出挙動」には、軽水炉シビアアクシデント時のソースターム評価研究で良く利用されている放射性物質の放出予測モデルの概要が示されている。そこでは、ある時刻における燃料内の放射性物質の存在量を M で表すと、燃料中の放射性物質質量及び放出量は放出率速度係数 k を用いて(8.1)式及び(8.2)式で計算できるとしている。

$$\frac{dM}{dt} = -k(T)M \quad (8.1)$$

$$\frac{dF}{dt} = k(T)M \quad (8.2)$$

k	: 放出率速度係数	(1/s)
M	: 燃料内の放射性物質質量	(kg)
F	: 燃料からの放出量	(kg)
T	: 燃料温度	(K)

放出率速度係数 k は、実燃料を用いた実験結果に基づき計算モデルが提案されている。主なものとして、ORNL 及び独国旧カールスルーエ原子力研究所（KfK : Kernforschungszentrum

Karlsruhe GmbH)の試験結果(被覆材なし)に基づく経験的な NUREG-0772 モデル⁶⁾, NUREG-0772 モデルをアレニウス型で整理した半経験的な CORSOR-M モデル⁷⁾, ORNL の HI 及び VI 実験の結果(被覆材あり)を反映した CORSOR-O モデル⁸⁾などがある。それぞれのモデルを(8.3)式及び(8.4)式に示す。NUREG-0772 モデル及び CORSOR-M モデルは、同じ実験データに基づいているが、データの近似に相違があるため、算出される速度係数は同じではない。CORSOR-O モデルは、基になる実験が異なるのに加え、難揮発性核種を中心にデータ整理している特徴がある。放出率速度係数の解析モデルは、以下のとおりである。

$$k = A \cdot \exp(B \cdot (T - 273.15)) \quad (\text{NUREG-0772 モデル}) \quad (8.3)$$

$$k = k_0 \exp\left(-\frac{Q}{R_g T}\right) \quad (\text{CORSOR-M 及び CORSOR-O モデル}) \quad (8.4)$$

A, B : 実験から決めた定数

k_0 : 核種に固有な放出率速度定数 (1/s)

Q : 活性化エネルギー (J/mol)

R_g : ガス定数 (J/mol · K)

また、参考として CORSOR-M モデルの放出率速度定数を図 8.3 に示す。これらのモデルは、900 °C 以上、燃焼度が約 5 万 MWd/t までの範囲で適用可能であるとしている。ORNL の研究⁸⁾では、放出率速度係数 k を用いた解析モデルは燃料のヒートアップ時間が継続する場合の放出量を過大評価する傾向があり、使用上の課題となっている。このため、時間経過による結晶粒内の放射性物質の濃度勾配の変化を考慮できる拡散モデルが推奨されている。

拡散モデルの代表的な例として、Booth の近似式 (UO_2 結晶粒内初期濃度一様、粒表面濃度 = 0 として導出) に基づいた拡散係数 D を用いる ORNL-Booth モデル⁸⁾がある。上述の放出率速度係数 k を用いた解析モデルは、放出源の形状パラメータを含まない。燃料内の結晶粒半径をパラメータにした UO_2 結晶粒内の拡散律速モデルを用いることで放出源の形状が考慮できる。

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{Q}{R_g T}\right) \quad (8.5)$$

この場合、燃料からの放出割合は、以下のようにして求める。

$$f = 6\sqrt{\frac{Dt}{\pi a^2}} - 3\frac{Dt}{a^2} \quad (Dt/a^2 \leq 0.1547) \quad (8.6)$$

$$f = 1 - \frac{6}{\pi^2} \exp\left[-\frac{\pi^2 Dt}{a^2}\right] \quad (Dt/a^2 > 0.1547) \quad (8.7)$$

D : 拡散係数 (m²/s)
 D_0 : 核種に固有な拡散係数 (m²/s)
 a : 結晶粒半径 (m)

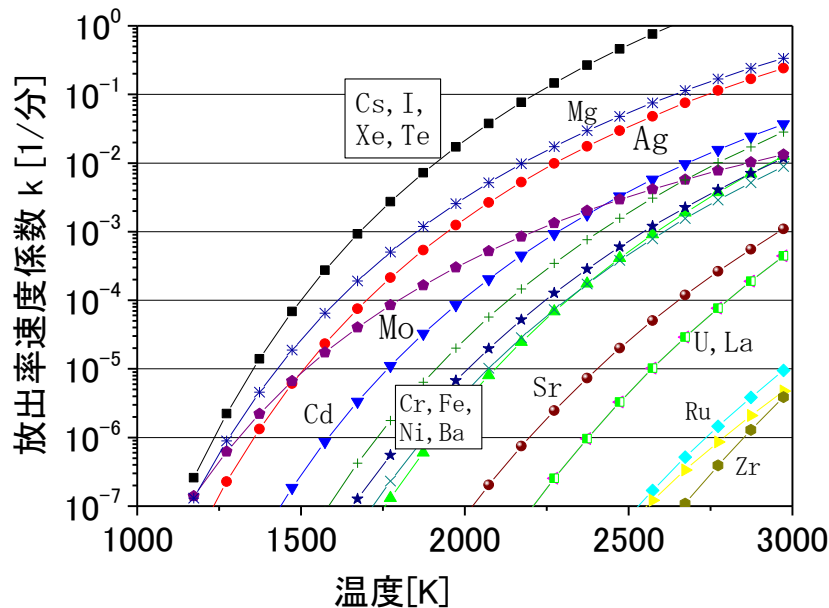


図 8.3 CORSOR-M モデルの放出率速度定数

8.6 溶融燃料とコンクリートとの反応

溶融した燃料は、燃料集合体を形成する構造物、放射性物質、コンクリート成分などと混合しデブリを形成する。参考文献 5)には、デブリ・コンクリート相互作用モデル及び作用時のデブリからの放射性物質の放出率に関わるモデルが示されている。再処理施設の SFP での燃料損傷事故において溶融燃料とコンクリートとの反応は、この段階におけるエアロゾルの発生量、それらの施設外へ移行させる駆動力を評価する上で重要な考慮事項の一つである。

(1) デブリ・コンクリート相互作用モデル

原子炉圧力容器破損時に格納容器内へ放出されるデブリによってコンクリートが分解され、非凝縮性ガス及び水蒸気などが発生し、格納容器内の温度・圧力挙動に影響する。MELCOR 及び MAAP とともに、基本的な考え方は同様であり、デブリからコンクリート、気相（あるいは液相）、構造物への伝熱を考慮し、コンクリートへの伝熱量からコンクリートの分解量及び侵食深さを計算する。

(a) コンクリート分解反応

コンクリート分解によって発生する水蒸気・非凝縮性ガスはデブリを通過する際にデブリ中の金属と反応するものとし、デブリの状態（温度、組成など）変化、気相・液相の状態変化を計算する。デブリからコンクリートへの伝熱は MAAP では熱伝達係数を入力で指定する。

MELCOR 及び MAAP はコンクリート凝固温度を境界条件にして、熱流速を詳細に計算する。コンクリートの成分については、いずれの解析コードも組成を入力で設定する。代表的な例は、石灰岩系及び玄武岩系のコンクリートである。

(b) コンクリート侵食

MELCOR 及び MAAP は、コンクリートの深さ方向と横方向の侵食を計算する。さらに、それぞれの解析コードともに、デブリ中に存在する多数の金属成分を対象にして、様々な化学反応（金属反応）を計算する。ただし、計算の対象とする金属の種類及び化学反応の優先順が解析コードによって異なる。その結果、吸熱反応と発熱反応の順によって、コンクリート侵食の時期の計算に若干の差があるとしている。

(2) デブリ・コンクリート相互作用時のデブリからの放出率

(a) エアロゾルの放出

デブリ・コンクリート相互作用時のデブリからのエアロゾルの放出量は、炉外へ放出されるデブリの量及び組成（特に未酸化金属の量）、コンクリート成分、金属反応及びコンクリート分解ガスの発生量によって異なる。

(b) 解析モデル

MELCOR 及び MAAP では、放射性物質の放出率は、化学熱力学的平衡モデルで計算する。MELCOR の解析モデルは、対象とする化学反応の種類も多い。また、コンクリート成分のエアロゾルの放出率は、デブリ温度及び分解ガス流量などに依存するモデルで計算する。MELCOR には、核形成によるエアロゾル発生モデルも組み込まれている。

8.7 スプレー水による冷却及びエアロゾルなどの除去効果（LPF の評価）

事故対策として、SFP へのスプレー放水による冷却が想定されているが、事故の拡大防止及び影響緩和の観点でのスプレー水の正及び負の効果として次の事項を挙げることができる。

○正の効果

- ・ スプレー水の冷却効果による燃料損傷の防止
- ・ 燃料の損傷で生じるエアロゾルの除去
- ・ 建屋内の気相部のかくはんによる局所的水素滞留の解消
- ・ 多量の水蒸気発生により水蒸気の水素濃度が上昇することによる水素の燃焼性の低下

○負の効果

- ・ 過熱状態にある燃料へのスプレーによる水素発生への助長
- ・ 水蒸気の凝縮により水素及び酸素の濃度が上昇することによる水素の燃焼性の増大
- ・ 水蒸気が凝縮し建屋内圧が低下し外気が流入することによる酸素濃度の増大

上述のスプレーの効果のうち、事故の拡大防止及び影響緩和の観点からスプレー水による冷却及びエアロゾル除去効果に関わる解析についての参考情報を次に示す。

(1) スプレー水による冷却

プール水から露出した使用済燃料は、プール水下にある燃料の崩壊熱で蒸発した蒸気により冷却される。このような状態でスプレー水を燃料集合体上部から散布すると、燃料集合体上部出口において上向蒸気流によりスプレー水の液滴の一部が吹き飛ばされ、燃料集合体内に流入できず燃料の冷却に寄与できなくなる CCFL（Counter Current Flow Limiting）による冷却不全となる

可能性がある。同様の現象は、BWR の冷却材喪失事故（LOCA : Loss of Coolant Accident）時に
おいて、原子炉圧力容器内の炉心上部に設置されている炉心スプレーによる冷却においても想定
される。参考文献 9)では、炉心スプレーの CCFL 計算モデル及びスプレー水による冷却モデルが
提案されている。その概要を次に示す。

(a) CCFL 計算モデル

参考文献 9)では、実験に基づく (8.8)式に示す Wallis の相関式¹⁰⁾を用いて炉心に流入するス
プレー水を計算している。(8.8)式において V_x : 気液各層の流速, D : 炉心出口の等価直径, ρ_x : 気
液各層の密度, g : 重力加速度である。 k_1 及び k_2 は出口形状に依存した相関式のパラメータであ
るとし、炉心出口では、それぞれ、1.0 及び 0.46 を用いている。

$$\sqrt{V_g \sqrt{\rho_g / g D (\rho_f - \rho_g)}} + k_1 \sqrt{V_f \sqrt{\rho_f / g D (\rho_f - \rho_g)}} = k_2 \quad (8.8)$$

(b) スプレー冷却モデル

図 8.4 に参考文献 9)で提案している BWR の炉心スプレーの冷却モデルを示す。炉心スプレー
作動時には、下部プレナムから冷却材が流入し再冠水した炉心下端部の領域、スプレー水が燃料
棒表面に付着し炉心上部から降下してくる液膜により濡れた領域、及び蒸気雰囲気に曝される高
温の領域に分かれる。

i) 熱伝達係数

再冠水領域での熱伝達は、熱流束に依存して膜沸騰或いは核沸騰の冷却モードを想定する。液
膜濡れ領域での熱伝達係数は、1,000 Btu/h/ft²/F を仮定している。蒸気雰囲気領域の熱伝達係数
は、スプレー作動時に熱伝達係数を米国 General Electric 社が実施した FLECHT (Full-Length
Emergency Cooling Heat Transfer) 実験¹¹⁾で求めた値 (図 8.4 に示すように燃料集合体内を 9
領域に分割し、三つの値を割り当てている)を用いている。これらの値は、この領域での、蒸気
冷却、輻射冷却及びスプレー液滴冷却の効果を含む値である。

ii) 燃料集合体内でのスプレー水の質量バランス

図 8.4 に示すように燃料集合体に流入したスプレー流量: W は、液膜として燃料被覆管表面を
下降する量: W_l 、液膜から蒸発する量: W_{sl} 及び液膜前縁部から飛沫として落下する量: W_d の和
に等しいとしている。 W は、集合体出口に降り注ぐスプレー流量と(8.8)式で求めた V_f から求め
た流量を比較し小さい方に等しいとする。液膜前縁部の降下速度は、燃料棒表面及びチャンネル
ボックス表面で、それぞれ、内部発熱の補正項を含む Duffey-Porthouse 相関式及び Anderson 相
関式で求めている。 W_l は、Wallis の方法¹⁰⁾により液膜前縁部降下速度に液膜厚さ、液膜円周長
及び液相密度の積として求めている。 W_{sl} は、液膜による除熱量 (H_{wet} に液膜で覆われた面積及び
被覆管表面温度と飽和温度との差を乗じた値)を蒸発潜熱で除して求める。 W_d は、 W から、 W_l
及び W_{sl} を差し引いた量となる。詳細は、参考文献 9)を参照されたい。

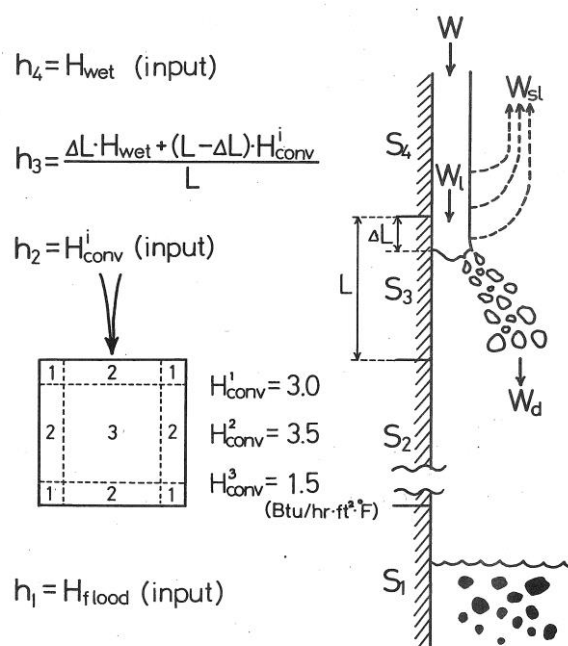


図 8.4 BWR の LOCA 解析でのスプレー冷却モデル (参考文献 9)より転載)

(2) スプレーによるエアロゾルなどの除去効果

損傷した燃料から放出される放射性物質は、気体あるいはエアロゾルの形態をとる。これらのスプレーによる除去効果は、MELCOR 及び MAAP などで行うことができる。MELCOR では、スプレー流量と、スプレー液滴の平均径を基に、冷却効果とエアロゾル除去効果を解析する。参考文献 5)の「附属書 W (参考) シビアアクシデント時の放射性物質挙動」では次のように記載されている。

(a) エアロゾル

スプレーによるエアロゾル除去の主な除去機構は、拡散、差動沈降、さえぎり、慣性衝突、拡散泳動である。スプレー液滴とエアロゾルとの衝突から計算する。計算の方法は、エアロゾルの凝集の場合と同じである。

(b) ガス状の放射性物質

スプレーによる気体状の放射性物質の除去の主な機構は、拡散、凝縮・蒸発である。化合物の溶解度、pH、スプレー液滴内での加水分解反応によって、スプレー液滴に吸収されるガス状の放射性物質の割合は大きく変化する。スプレー液滴表面への付着速度、溶解、液滴内での拡散速度及び液滴表面での質量流束から除去速度を計算する。

8.8 プール水位低下に伴う直接線及びスカイシャイン線の評価

参考文献 12)には、臨界事故での敷地境界での直接線（建屋側壁からの放射線¹³⁾）及びスカイシャイン線（天井を透過した放射線が上空で大気中の分子と衝突して方向を変えて再び地上に到達する放射線¹³⁾）による被ばく線量の評価手法が示されている。 γ 線源を使用済燃料中の FP などに置き換えれば、SFP での水位低下によるプール水の遮へい機能の低下に伴う敷地境界におけ

る γ 線による被ばく線量の評価に利用可能である。

例示されている評価手法では、ANISN コードにより、全線源が1つの球線源（建屋中心）に集中しているとして直接線の評価（散乱線を含む）することにより、直接線及びスカイシャイン線を同時に評価できるとしている。解析では、建屋の壁及び天井での遮へい効果は同様であると仮定し、点線源の周りに、建屋内の空気層、コンクリート層及び施設外の空気層を設けて評価地点での線量を評価する解析体系が示されている。敷地境界までの距離、施設内の空気層の厚さ、コンクリートの厚さ、密度などは施設の設計情報などに基づいて設定する。

SFP の冷却材であるプール水の喪失時では、点線源の周りに水の層を設け、時間と共に水層の厚さが減少するような解析条件とする必要がある。求めた敷地境界での γ 線量を基に γ 線実効線量換算係数を用いて被ばく線量を求める。

8.9 まとめ

再処理施設の「使用済燃料の損傷」事故は、発電用原子炉施設の炉心損傷事故及びSFPのプール水喪失事故と共通する部分が多い。発電用原子炉施設での類似の事故時のソースタームを評価するための解析コード、解析モデルの整備は進んでおり、それらの多くは再処理施設の「使用済燃料の損傷」事故の評価に利用可能と考えられる。調査結果を表 8.1 にまとめる。

再処理施設の使用済燃料プールは、原子炉施設のプールに比べ規模が大きいため、プールの中心部と周辺部では、燃料が露出後の空気の流入による自然循環による冷却に差異があると考えられ、解析モデルの工夫の必要性がある。

また、Zr-水反応で発生する水素の爆発に対する構築物（建屋）の健全性評価については、本章では言及していないが、放射性物質の施設外への放出を評価する上で重要な課題の一つと考えられる。

表 8.1 実験データ、解析手法などのまとめ

取り上げた評価項目	対応する五因子法パラメータ	調査内容	課題
事故の影響を受ける量	DR	原子炉シビアアクシデント解析コード (MELCOR, MAAP) による燃料棒損傷解析例 スプレー水による冷却及びエアロゾルなどの除去効果	再処理施設の使用済燃料プールは、原子炉施設のプールに比べ規模が大きいため、プールの中心部と周辺部では、燃料が露出後の空気の流入による自然循環による冷却に差異があると考えられ、解析モデルの工夫が必要
損傷燃料	ARF	軽水炉シビアアクシデント時の損傷炉心からの放射性物質の放出予測モデル ・ NUREG-0772 モデル ・ CORSOR-M モデル ・ CORSOR-O モデル	
溶融燃料		溶融燃料とコンクリートとの反応 MELCOR, MAAP の解析モデル	
建屋内エアロゾル移行挙動	LPF	原子炉シビアアクシデント解析コード (MELCOR, MAAP) による解析例 スプレー水によるエアロゾルなどの除去効果	水素爆発時の構築物（建屋）の健全性評価
直接線などによる被ばく	その他	臨界事故での敷地境界での直接線及びスカイシャイン線による被ばく線量の評価手法	

参考文献

- 1) 日本原燃(株), 「再処理事業指定申請書及び同添付書類」, 平成元年 3 月申請 (平成 8 年 4 月, 同 13 年 7 月, 同 16 年 10 月変更許可申請).
- 2) OECD/NEA, *Status Report on Spent Fuel Pools under Loss-of-Cooling and Loss-of Coolant Accident Conditions Final Report*, NEA/CSNI/R(2015)2 (2015).
- 3) 電力中央研究所, “使用済燃料プールの事故時冷却特性評価 –MAAP コードを用いた冷却機能及び冷却材喪失事故解析–” 研究報告 : L12007, 平成 25 年 5 月 (2013).
- 4) R. Gauntt *et al.*, *Fukushima Daiichi Accident Study (Status as of April 2012)*, SANDIA Report SAND2012-6173 (2012).
- 5) 一般社団法人 日本原子力学会, “日本原子力学会標準 原子力発電所の出力運転状態を対象とした確率論的安全評価に関する実施基準 (レベル 2 PRA 編) : 2016”, AESJ-SC-P009 : 2016 (2017).
- 6) U. S. Nuclear Regulatory Commission, *Technical Bases for Estimating Fission Product Behavior During LWR Accidents*, NUREG-0772 (1981).

- 7) M.R. Kuhlman *et al.*, *CORSOR User's Manual*, NUREG/CR-4173 (1985).
- 8) R.A. Lorenz *et al.*, *A Summary of ORNL Fission Product Release Tests with Recommended Release Rates and Diffusion Coefficients*, NUREG/CR-6261 (1995).
- 9) K. Yoshida *et al.*, *RELAP4/MOD6/U4/J3 a JAERI Improved Version of RELAP4/MOD6 for Transient Thermal-Hydraulic Analysis of LWR Including Effects of BWR Core Spray*, JAERI-M 9394 (1981).
- 10) G.B. Wallis, *One Dimensional Two-Phase Flow*, McGraw-Hill, New York (1969).
- 11) G.E. Dix *et al.*, *General Electric Company Analytical Model for Loss-of-Coolant Analysis in Accordance with 10 CFR 50 Appendix K*, NEDO-20566 (1976).
- 12) 独立行政法人原子力安全基盤機構, 「再処理施設の確率論的安全評価手法の整備＝臨界事象の解析手順 (その 2) ーに関する報告書」, JNES-RE-2012-0015 (2012).
- 13) 日本原子力学会 遮蔽ハンドブック研究専門委員会, 「放射線遮蔽ハンドブックー基礎編ー」, 2015 年 3 月.

9. おわりに

本 SAWG は、サイクル施設において想定される事故を体系的に検討し、その中からシビアアクシデントとして認識し、対策の必要性を含めて検討すべき事故を科学的・技術的観点から選定する方法を明らかにすることが重要な課題であると考え、その課題を検討することを目的として、平成 25 年 4 月より活動してきた。

平成 26 年 9 月にフェーズ I の活動を終了し、その成果を「核燃料サイクル施設における対応を検討すべきシビアアクシデントの選定方法と課題」と題する報告書にまとめ、公表した。

フェーズ I では、“対応を検討すべきシビアアクシデント”の選定手順を提案し、「発生頻度」と「影響の大きさ」を軸とする 2 次元平面上の階段状の線として表現される判断基準が適切であること、事故に必要とされる安全対策の検討において、そのリスクの大きさに応じて行うグレーデッドアプローチを適用することが科学的合理的であると指摘した。ただし、サイクル施設における事故の「発生頻度」については、既存の評価手法を適切に組み合わせて適用することで評価するが、「影響の大きさ」については、世界的にも十分検討されておらず、評価手法を体系的に調査・検討し、整理する必要があることが課題とされた。

そのような背景の基、フェーズ II では、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について、客観的かつ専門的視点から検討を行い、その結果をまとめることを目的として、平成 27 年 5 月から活動してきた。具体的には、高レベル廃液の蒸発乾固事故、セル内での有機溶媒火災及び TBP などを配位した錯体の急激な分解反応、臨界事故、放射線分解水素の爆発、使用済燃料の損傷（プール水喪失）を対象に、影響評価手法の現状と課題について、平成 29 年 1 月までの間に計 17 回の会合を開催し、調査・検討を行ってきた。

その結果として、従来から我が国を含めて広く用いられてきた米国のサイクル施設事故解析ハンドブック (NUREG/CR-6410) で用いられた五因子法の考え方や試験データなどを踏まえつつ、近年我が国を中心になされた実験及び解析的研究の成果、解析コードなどの情報を多数取り入れ、上記想定事故における影響評価に必要な項目に沿って現状で利用可能な手法やデータを提示するとともに、適用上留意すべき事項や今後の検討課題を整理した。それらの中でも特筆すべき課題として、次の事項が挙げられる。

- 高レベル廃液の蒸発乾固事故：Ru の揮発性化学種である RuO_4 の生成機構の解明、硝酸を含む水蒸気雰囲気での挙動、及びそれらの定量的な解析モデルの整備に必要なデータの取得
- セル内での溶媒火災及び TBP などを配位した錯体の急激な分解反応：ARF の定量化に必要なデータの取得と評価モデルの構築及び LPF を解析的に求めるためのモデルと評価
- 臨界事故：生成される放射性核種の化学形及び NO_x ガス、放射線分解ガスの生成量と事故条件との関係、沸騰時と非沸騰時の移行率などに関するデータの取得
- 放射線分解水素の爆発：水素消費に及ぼす Pd の触媒効果の機構把握、ARF や LPF の評価に必要なとなる実験的データの取得・信頼性向上
- 使用済燃料の損傷（プール水喪失）：発電用原子炉施設と比較して再処理施設の使用済燃料プールが大きいことを考慮した自然循環による冷却の解析モデルの高度化

以上のように、フェーズ II における目的に対し、十分とまでは言えないが、最新データを含めて調査・検討ができたと考える。

フェーズⅡでの活動により得られた成果が、再処理施設において想定される事故の影響評価手法の信頼性向上と更なる高度化に寄与することを願うとともに、本報告書が規制機関、事業者及び学术界での核燃料サイクル施設の科学的合理性の高い安全確保対策の検討、及び更なる安全性向上に役立つことを期待したい。

付録 A シビアアクシデント及びリスク評価に関する用語

報告書で用いるシビアアクシデント及びリスク評価などに関連する用語の定義を述べ、必要に応じ補足情報を追記する。発電用原子炉施設分野で開発されたリスク手法に言及することもあるため、発電用原子炉施設に関する用語も核燃料サイクル分野の読者の参考として加えている。

重大事故

新規制基準における重大事故。新規制基準では、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であって、核燃料サイクル施設では、放射性物質の閉じ込め系の機能喪失を伴う、火災、爆発、溶液の蒸発乾固、漏えい、臨界事故など、と定義されている。なお、影響についての明確な定義は示されていない。

シビアアクシデント

核燃料サイクル施設においては、発電用原子炉施設のようなシビアアクシデントという用語はこれまで使われていなかった。本報告書では、サイクル施設のシビアアクシデントを、“設計基準事故の想定を超える条件で発生し、その判断基準を超えて大きい影響をもたらす事故”と定義する。

危険要因

通常、評価対象施設に内在する放射線又は放射性物質をいう。リスク評価では、「評価対象施設に内在し、閉じ込め境界を越えると人間、財産及び環境に影響を与える放射線又は放射性物質、その引き金となる異常事象及びその異常事象の発生から環境などに影響を及ぼすまでの状況の進展（粗いシナリオ）の3つの要素の組み合わせ」と定義する。サイクル施設のリスク評価では、一般的に「ハザード」と呼ぶ。

外的誘因事象

地震、津波、テロなどのように施設において事故を発生させる可能性のある外的な事象。

外的ハザード

リスク評価の分野での呼び方で、外的誘因事象の発生頻度とそれが施設にもたらす影響の強さの関係を評価した結果、または影響の強さ。対象とする外的誘因事象の名称を冠して、地震ハザード、津波ハザードなどと呼ぶことがある。

ハザード分析（危険要因分析）

評価対象施設に内包する危険要因を体系的かつ網羅的に分析し抽出すること。化学工場一般では危険要因を分析することをハザード分析と呼んでいる。

ハザード評価

リスク評価の分野での呼び方で、外的誘因事象の発生頻度とそれが施設にもたらす影響の強さの関係を評価すること。対象とする外的誘因事象の種類によって、地震ハザード評価、津波ハザード評価などと呼ぶ。

リスク

ハザード分析により抽出したハザードが顕在化する事象の連鎖（シナリオ）、顕在化する可能性（頻度）、顕在化したときの影響（公衆の被ばく線量など）の組み合わせ。

リスク評価

リスクを定量的あるいは定性的に記述し、リスクの支配因子や各寄与因子の重要度、リスクの不確かさなどを明らかにすることにより、リスクの現状の把握や比較、低減などに活用できる情報を得ること。

総合安全解析

米国原子力規制委員会が、臨界量を超えて核物質を取り扱う施設を対象とする連邦規則法典（10 CFR Part70）の 2000 年に実施した改訂に際して、事業者を実施を要求した簡易的なリスク評価。原語は Integrated Safety Analysis で、省略形は ISA。ここで、“Integrated”とする意味合いは、放射線の影響だけでなく、化学的毒性によるリスクも含めて評価する点にある。国内では、ISA を簡易的あるいは概略的なリスク評価の代名詞として用いる傾向がある。

確率論的リスク評価

リスク評価の一手法であり、ハザード分析により抽出したハザードが顕在化する事象の連鎖（シナリオ）、顕在化する可能性（頻度）、顕在化したときの影響（公衆の被ばく線量など）の組み合わせを体系的かつ定量的に評価する手法。英語では Probabilistic Risk Assessment で、PRA と略される。ハザードが顕在化するシナリオを構成する機器の故障、運転員の過誤などを、成功／失敗の分岐で表す事象（イベント）の繋がり因果関係をイベントツリー（ET : Event Tree）で表し、各イベントの頻度あるいは確率をそれらの発生に係わる要素を樹状型の因果関係をフォールトツリー（FT : Fault Tree）で展開し、各要素の頻度あるいは確率の合成により ET の個々のパスの頻度を求めることが多い。また、個々の ET のパスで表されるシナリオでの放射性物質の放出量は、シナリオで想定される放射性物質の発生、移行挙動をモデル化した計算プログラムなどを用いた詳細解析で評価することが多い。再処理施設においては、各種事故のシナリオを定式化する Event Tree 及び Fault Tree が比較的単純であること、同一の事象で発生に係わる設備構成が同等であることが多いことなどの特徴を活かして、PRA と同様の評価内容を維持しつつ、効率的な評価が行えるように開発された確率論的リスク評価手法の一つとして QSA（Quantitative Safety Assessment）^{a1)}がある。

なお、PRA は、定義としては、その一部としてハザード分析を含むが、本報告書では、ハザード分析だけを先に行う手順を提案するので別に扱っている。なお、福島第一原子力発電所事故以前では、PRA と同義の用語として PSA（Probabilistic Safety Assessment）を用いてきたが、本報告書では、日本原子力学会標準委員会の見解を受けて PRA に統一している。

レベル 1PRA

発電用原子炉施設での炉心損傷に至る事故シナリオを同定するとともに、そのシナリオの発生頻度を評価するPRAのこと ^{a2)}。

レベル 2PRA

発電用原子炉施設での炉心損傷レベル 1PRA に加え、格納容器から大量の放射性物質が放散する事故シナリオを同定するとともに、同シナリオの原子炉冷却系内及び格納容器内の事象の進展及び放射性物

質の挙動を予測し、環境中に放出される放射性物質の種類、量、放出のタイミング及びその頻度を評価する PRA のこと ^{a3)}。

レベル 3PRA

発電用原子炉施設でのレベル 2PRA に加え、気象条件などを考慮して原子炉施設から放出される放射性物質の環境中移行を予測するとともに、環境中の放射性物質からの放射線被ばくによる一般公衆の健康影響を評価する PRA のこと ^{a4)}。

グレーデッドアプローチ

対象施設がもつ潜在的な危険性のレベルあるいは施設の特性に応じて、事業者が、安全対策のために投入する資源を適正に配分したり、規制要求の範囲、厳しさを適正に選択したりする考え方であり、リスク評価の過程においても、対象施設の潜在的な危険性、施設の特性に応じて、評価の詳細さあるいは正確さレベルを適正に選択する考え方をいう。原語は Graded Approach。

参考文献

- a1) Y. Tamauchi *et al.*, “New Risk Assessment Method for a Reprocessing Plant: Quantitative Safety Assessment,” *Nucl. Technol.*, **181**, 303-316 (2013).
- a2) 日本原子力学会標準委員会, 「原子力発電所の出力運転状態を対象とした確率論的安全評価に関する実施基準：2008(レベル 1PSA 編)」, AESJ-SC-P008:2008 (2008).
- a3) 日本原子力学会標準委員会, 「原子力発電所の出力運転状態を対象とした確率論的安全評価に関する実施基準：2008(レベル 2PSA 編)」, AESJ-SC-P009:2008 (2008).
- a4) 日本原子力学会標準委員会, 「原子力発電所の確率論的安全評価に関する実施基準：2008(レベル 3PSA 編)」, AESJ-SC-P010:2008 (2008).

付録 B 略語

AAH: Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook (事故解析ハンドブック)
AED: Aerodynamic Equivalent Diameter (空気力学的等価直径)
AIChE: American Institute of Chemical Engineers (米国化学工学技術者協会)
ALARP: As Low As Reasonably Practicable (「合理的に実施可能な限りリスクを下げる」というリスク低減に関する基本的な考え方)
ANSI: American National Standards Institute (米国国家規格協会)
ARF: Airborne Release Fraction (事故の影響を受ける物質のうち気中に保持され移行で
きる物質の割合)
ARR: Airborne Release Rate (単位時間当たりの移行率)
BNFL: British Nuclear Fuels Limited (英国核燃料会社)
BSL: Basic Safety Level (英国安全評価原則 (SAP) で規定される基本安全レベル)
BSO: Basic Safety Objective (英国安全評価原則 (SAP) で規定される基本安全目標)
BWR: Boiling Water Reactor (沸騰水型発電用原子炉)
CCFL: Counter Current Flow Limiting (対向流制限現象)
CDF: Core Damage Frequency (炉心損傷頻度)
CEA: Commissariat à l'Energie Atomique (仏国原子力庁), 現在の名称は Commissariat
à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives (仏国原子力・代替エネルギー庁)
CFF: Containment Failure Frequency (格納容器破損頻度)
DBP: Dibutyl Phosphate (リン酸ジブチル)
DF: Decontamination Factor (除染係数)
DOE: Department of Energy (米国エネルギー省)
DOE-HB: DOE-Handbook (DOE (米国エネルギー省) ハンドブック)
DOP: Dioctyl Phthalate (フタル酸ジオクチル)
DR: Damage Ratio (MAR のうち事故の影響を受ける物質の割合)
DSC: Differential Scanning Calorimetry (示差走査熱量分析装置)
DTA: Differential Thermal Analysis (示差熱分析装置)
EPRI: Electric Power Research Institute (米国電力研究所)
ETA: Event Tree Analysis (イベントツリー分析)
ET: Event Tree (イベントツリー)
FMEA: Failure Mode and Effect Analysis (故障モード影響解析)
FP: Fission Products (核分裂生成物)
FTA: Fault Tree Analysis (フォールトツリー分析)
FT: Fault Tree (フォールトツリー)
FLECHT: Full-Length Emergency Cooling Heat Transfer (LOCA 時の再冠水熱伝達実
験)
HAZOP: Hazard and Operability Analysis (ハザードと運転分析)
HEPA: High Efficiency Particulate Air (Filter) (高性能エア (フィルタ))
HLLW: High Level Liquid Waste (高レベル放射性廃液)

HPA: Health Protection Agency (英国健康保護局)

HRR: Heat Release Rate (熱放出割合)

HSE: Health and Safety Executive (英国保健安全執行部)

IAEA: International Atomic Energy Agency (国際原子力機関)

ICP-AES: Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry (誘導結合プラズマ発光分光分析装置)

ICP-MS: Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (誘導結合プラズマ質量分析装置)

IDCOR: Industry Degraded Core Rulemaking (産業界におけ損傷炉心規制プログラム)

IPEEE: Individual Plant Examination for External Events (外的事象に対する個別プラントの体系的な安全解析)

IROFS: Items Relied on for Safety (安全確保要件)

IRSN: Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (仏国放射線防護・原子力安全研究所)

ISA: Integrated Safety Analysis (総合安全解析)

JAEA: Japan Atomic Energy Agency (日本原子力研究開発機構)

JAERI: Japan Atomic Energy Research Institute (日本原子力研究所, 現 JAEA)

JNES: Japan Nuclear Energy Safety Organization (原子力安全基盤機構, 現原子力規制庁)

KEWB: Kinetic Experiment Water Boiler (沸騰水型動特性試験炉)

KfK: Kernforschungszentrum Karlsruhe (カールスルーエ原子力研究センター, 現 KIT)

KIT: Karlsruhe Institute of Technology (カールスルーエ工科大学)

LOCA: Loss of Coolant Accident (冷却材喪失事故)

LPF: Leak Path Factor (気相に移行する微粒子のうち放出経路で除去されずに環境に放出される割合)

MAR: Material at Risk (放射性物質の存在量 (Bq))

MBP: Monobutyl Phosphate (リン酸モノブチル)

MCCI: Molten Core Concrete Interaction (溶融炉心・コンクリート相互作用)

MF: Mole Fraction (モル分率)

NII: Nuclear Installations Inspectorate (英国原子力施設検査局)

NIST: National Institute of Standards and Technology (米国商務省国立標準技術研究所)

NRC: Nuclear Regulatory Commission (米国原子力規制委員会)

NUCEF: NUclear fuel Cycle safety Engineering research Facility (燃料サイクル安全工学研究施設)

ORNL: Oak Ridge National Laboratory (オークリッジ国立研究所)

PRA: Probabilistic Risk Assessment (確率論的リスク評価)

PSA: Probabilistic Safety Assessment (確率論的安全評価)

PWR: Pressurized Water Reactor (加圧水型発電用原子炉)

QA: Quality Assurance (品質管理)

QSA: Quantitative Safety Assessment (定量的安全評価)

QST: National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology (量子科学技術研究開発機構)

RF: Respirable Factor (気相に移行する物質のうち呼吸により体内へ取り込まれうる微粒子の割合 (一般に 10 μm 以下の粒子とされている))

SA: Severe Accident (シビアアクシデント)

SAP: Safety Assessment Principles (英国安全評価原則)

SAWG: Severe Accident Working Group (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)

SFP: Spent Fuel Pool (使用済燃料プール)

SHLLW: Simulated High Level Liquid Waste (模擬高レベル廃液)

SRP: Standard Review Plan (標準審査計画)

SSC: Structure, System and Component (構築物, 系統及び機器)

ST: Source Term (環境へ放出される放射性物質質量 (Bq))

SUS: Stainless Steel (ステンレス鋼, JIS の表記)

TBP: Tributyl Phosphate (リン酸トリブチル)

TEDE: Total Effective Dose Equivalent (全実効線量当量)

TOR: Tolerability of Risk from nuclear power station (リスクの受忍可能性)

TRACY: Transient Experiment Critical Facility (過渡臨界実験装置)

UNH: Uranyl Nitrate Hydrate (硝酸ウラニル)

VOG: Vessel Off Gas (塔槽類廃ガス)

WAK: Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (カールスルーエ再処理工場)