

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Ⅲ報告書

「再処理施設において想定される
事故のシナリオと影響評価の例」

令和6年3月19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	1-3
参考文献	1-4
2.リスク評価手法の概要	2-1
2.1 再処理施設とその安全対策の概要	2-1
2.2 リスク評価の目的	2-2
2.3 リスク評価の実施手順の考え方	2-3
2.3.1 核燃料施設の事故シナリオの特徴を踏まえた分析	2-3
2.3.2 事故シーケンスの特徴	2-4
2.3.3 リスク評価実施手順の枠組み	2-4
2.3.4 概略的なリスク評価の意義とそこでの最善のパラメータ選定	2-4
2.3.5 複数事象の重畳の考え方	2-5
2.3.6 ハザード分析及び事故シナリオの分析において 重要な見落としを避けるための留意事項	2-5
2.3.7 ヒューマンエラーの考慮	2-7
2.3.8 被ばく線量評価	2-8
2.4 地震リスク評価手法	2-10
2.5.事故影響評価の基本的な考え方	2-13
参考文献	2-27
3.蒸発乾固	3-1
3.1 事故の概要	3-1
3.1.1 システム概要	3-1
3.1.2 事故の概要	3-2
参考文献	3-4
3.2 影響評価	3-6
3.2.1 蒸発乾固事故に係る物理化学現象	3-6
3.2.2 蒸発乾固事故に係る実験知見	3-9
参考文献	3-56
3.2.3 蒸発乾固事故に係る影響評価モデル	3-65
3.2.4 蒸発乾固事故シナリオの解析事例	3-110
参考文献	3-112
3.3 まとめ	3-115

4.再処理工場における誤移送臨界事故のリスク評価例	4-1
4.1 はじめに	4-1
4.2 臨界事故発生頻度評価	4-4
4.2.1 事故シナリオ	4-4
4.2.2 イベントツリーおよびフォールトツリー	4-5
4.2.3 発生頻度および確率評価	4-7
4.2.4 影響緩和策／未臨界措置	4-8
4.3 核分裂出力の時間推移	4-9
4.3.1 計算の概要	4-9
4.3.2 計算手順	4-10
4.3.3 計算結果	4-12
4.4 被ばく線量評価	4-15
4.5 リスク評価	4-17
4.6 臨界に伴う水素発生と爆発可能性および被ばく影響の検討	4-18
4.7 地震誘因臨界事故発生の可能性検討	4-18
4.8 今後の課題	4-19
参考文献	4-20
5.おわりに	5-1
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
参考文献	A-3
付録 B 略語	B-1
付録 C 重要物理/化学現象ランキングテーブル	C-1
C.1 初めに	C-1
C.2 重要物理/化学現象ランキングテーブル (PIRT) 概要	C-2
C.2.1 PIRT とは	C-2
C.2.2 廃液の蒸発乾固事故に関する物理/化学現象	C-2
C.2.2.1 蒸発乾固事故の概要	C-2
C.2.2.2 物理/化学現象の分類と抽出	C-4
C.3	
C.3.1 「廃液沸騰・濃縮」に関する知識ベース	C-45
C.3.1.1 「廃液沸騰・濃縮」に関する実験	C-45
C.3.1.2 「廃液沸騰・濃縮」に関する個別現象評価モデル	C-46
C.3.1.3 「廃液沸騰・濃縮」に関する知識ベースの拡張余地	C-47
C.3.2 「硝酸・NO _x 反応」に関する知識ベース	C-49
C.3.2.1 「硝酸・NO _x 反応」に関する実験	C-49

C.3.2.2 「硝酸・NO _x 反応」に関する個別現象評価モデル	C-50
C.3.2.3 「硝酸・NO _x 反応」に関する知識ベースの拡張余地	C-50
C.3.3 「揮発性 Ru の移行」に関する知識ベース	C-52
C.3.3.1 「揮発性 Ru の移行」に関する実験	C-52
C.3.3.2 「揮発性 Ru の移行」に関する個別現象評価モデル	C-54
C.3.3.3 「揮発性 Ru の移行」に関する知識ベースの拡張余地	C-54
C.3.4 「難揮発性物質の移行」に関する知識ベース	C-56
C.3.4.1 「揮発性 Ru の移行」に関する実験	C-56
C.3.4.2 「揮発性 Ru の移行」に関する個別現象評価モデル	C-58
C.3.4.3 「揮発性 Ru の移行」に関する知識ベースの拡張余地	C-58
C.3.5 「キャリアガスのふるまい」に関する知識ベース	C-59
C.3.5.1 「キャリアガスのふるまい」に関する実験	C-59
C.3.5.2 「キャリアガスのふるまい」に関する個別現象評価モデル	C-61
C.3.5.3 「キャリアガスのふるまい」に関する知識ベースの拡張余地	C-62
C.3.6 「その他」に関する知識ベース	C-63
C.3.6.1 「その他」に関する実験	C-63
C.3.6.2 「その他」に関する個別現象評価モデル	C-63
C.3.6.3 「その他」に関する知識ベースの拡張余地	C-64
C.4 蒸発乾固 PIRT の整備	C-65
C.4.1 専門家投票による現象の重要度ランク付け	C-65
C.4.1.1 ランキング決定手法の概要	C-65
C.4.1.2 投票結果およびランキング分析・議論	C-66
C.4.2 蒸発乾固 PIRT	C-78
C.5 まとめ	C-80
参考文献	C-81

1. はじめに

1.1 活動の経緯と目的

福島第一原子力発電所事故の教訓を踏まえ、サイクル施設において対策の必要性を検討すべきシビアアクシデントを選定する方法を明らかにするため、再処理・リサイクル部会では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を設立し、活動（SAWG フェーズ 1：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）を実施した。フェーズ 1 の主たる成果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ことを指摘し、その適用方法を示したことであった。

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」の積で表される。サイクル施設のシビアアクシデントに対する「影響」の評価については世界的にも充分には検討されておらず、評価手法を体系的に調査・検討し、整理する必要があった。このため「SAWG フェーズ 2：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」では蒸発乾固、有機溶媒火災、臨界事故、放射線分解水素の爆発およ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、課題の把握およ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した。

これまでの両フェーズでの取り組みを展開し、適用段階でのモデル選択およびリスク評価手法例に関するガイドを与える試行研究が望まれている。さらに、今後のサイクル施設の安全性向上などへの活用では、地震などの外的事象の考慮が重要となり、そのリスク評価に関しては、同時発生事象の相互作用や物理現象間の相互依存性/相関性を適切に扱うことなど、新たな技術的課題が指摘されている。

原子力学会標準委員会では、所掌する実施基準の性能規程化、階層化の検討を進めており、2019 年 6 月に刊行された再処理施設などを対象とする「核燃料施設に対するリスク評価に関する実施基準：2018」においても、階層化における「技術レポート」に位置づけられる具体的なリスク評価のガイドの作成が望まれている。

また、次のような分野で運転段階での施設の安全管理を支援するためのリスク情報活用も必要である。

- ・継続的安全性向上：地震時の多重故障などを含め多様かつ重畳しうる事故に対するアクシデントマネジメント（AM）整備の必要性の評価
- ・地域防災計画支援のための情報提供：放出時刻や放出量、事故途中で提供できる情報などにつき、できる限り現実的評価が望まれる
- ・検査重要度設定のためのリスク重要度評価や検査前リスク評価に係る基盤整備

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い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。

こうした応用においては、極めてまれにしか発生しない厳しい条件を想定しつつも、施設および事故の条件を適切に反映したできる限り現実的な事故リスク評価が望まれている。

設立趣意

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」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課題となった。対策を講じるべきシビアアクシデントの選定と AM 策の整備に加え、運転段階での安全管理支援、地域防災計画の整備、新検査制度への対応などに対しても、リスク情報の活用が必要である。

再処理・リサイクル部会に設置された SAWG では、サイクル施設において想定しうる事故を体系的に検討し、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し（フェーズ 1）¹⁾、サイクル施設のシビアアクシデントの条件での評価手法を体系的に調査・検討し、整理する目的で、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、課題の把握およ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った（フェーズ 2）²⁾。

しかし、一般性があり、かつ、具体性に富む条件下での試行が未実施であり、適用段階でのモデル選択およびリスク評価手法例に関するガイドを与える試行研究が望まれている。さらに、今後の安全性向上などへの活用では、地震などの外的事象の考慮が重要となり、そのリスク評価に関しては、同時発生事象の相互作用や物理現象間の相互依存性／相関性を適切に扱うことなど、新たな技術的課題が指摘されている。

そこで、フェーズ 3 では、施設と事故条件の特徴を踏まえて現実的な条件のサンプル問題を設定し、試行研究を実施し、それを通して、上述のような技術的課題を検討すると共に、適用段階で生じうる実用上の課題を同定・検討し、フェーズ 2 報告書も素材として活用しつつ、得られた成果をできる限り体系的に整理する。本フェーズで取りまとめる報告書は、事故リスク評価の実務者のための手引きとなるだけでなく、事故リスク評価技術を学ぶうえでのテキストともなりうるものを目指す。

活動方針

- （１）蒸発乾固、臨界事故、水素爆発、その他を対象としてサンプル問題を作成し、評価モデルの設定を行い、リスク評価実施方法の検討を行う。
- （２）サンプル問題の作成では、施設や事故条件の特徴を踏まえ、起因事象（外的事象も考慮）と事故との関係に留意しつつ、できるだけシンプルな問題を設定する。
- （３）評価モデルを設定する際に検討すべきパラメータを明らかにし、その影響について検討する。例えば、五因子には明示的に表れないドライビングフォースや、その他の事象進展に影響するパラメータが主に検討対象となる。
- （４）リスク評価手法の検討を行うために必要な情報（パラメータ、考え方、事象進展）を整理する。

- (5) 蒸発乾固では Ru, 臨界では Xe などの希ガスおよびヨウ素, 事故ごとに着目する元素が異なる。これらの主要な元素の移行挙動について, 事象進展と影響するパラメータとを合わせて検討し, 再処理施設の事故の特徴をより明らかにする。
- (6) フェーズ 2 以降の新しい知見も積極的に取り入れる。
- (7) 検討し提案する評価手法を用いて得られるリスク評価結果を施設の運転, 保守, 緊急時計画など, 様々な意思決定に利用できるようにするためには, その結果に伴う不確実さの検討が適切になされていることが重要であることを考えて, サンプル問題に用いた影響評価には, 感度解析など可能な手法を用いて不確実さの検討を含める。
- (8) 再処理施設へのグレーデッドアプローチ適用のためのリスク評価に関する基本的考え方について検討する。
- (9) 報告書は, シビアアクシデントの特徴を踏まえて評価モデルの設定を行うための良いガイドとなるようにする。成果は学会和文論文誌に技術報告として投稿するとともに, 全体をまとめて ATOMOΣ の解説記事にすることを目指す。
- (10) 2 か月に 1 回の開催, 3 年程度の継続とし, リスク評価技術における中心的な組織として, 研究開発, 人材育成, 国際的学究活動を推進し, わが国のリスク評価に関する諸機関の研究者, 技術者, 実務者の交流の場を提供する。

表 1.1 にフェーズⅢの活動に参画した委員の名簿を示す。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Ⅲ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 5 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Ⅲの活動に至った経緯とフェーズⅢ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とともに, 各事故で共通となる考え方について説明している。

3 章では, 蒸発乾固のアクシデントマネジメント策として注水を考慮したシナリオとその影響評価について述べている。

4 章では, 臨界事故の人的過誤を考慮したシナリオとそのリスク評価について述べている。

5 章では, SAWG 活動の全体としての成果についてまとめている。

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並びに蒸発乾固について作成した PIRT 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」の選定方法と課題」, 2014 年年 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フェーズⅡ報告書「核燃料サイクル施設において想定される事故の影響評価手法の現状と課題」, 2017 年年 1 月 31 日.

表 1.1SAWG フェーズⅢの構成員

	氏名	所属機関
主 査	山根 祐一	日本原子力研究開発機構
副主査	村松 健	東京都市大学
幹 事	天野 祐希	日本原子力研究開発機構
〃	小玉 貴司	日本原燃（株）
〃	渡邊 友章	日本原子力研究開発機構
委 員	相澤 直人	東北大学
〃	浅沼 徳子	東海大学
〃	池田 泰久	東京工業大学
〃	江藤 淳二	（株）三菱総合研究所
〃	大野 卓也	日本原子力研究開発機構
〃	加藤 徹也	電力中央研究所
〃	岸本 和也	三菱重工業（株）
〃	京 久幸	（株）テプコシステムズ
〃	鈴木 達也	長岡技術科学大学
〃	関口 裕真	電力中央研究所
〃	竹澤 宏樹	東京都市大→長岡科学技術大学
〃	塚田 毅志	日本原燃（株）
〃	中嶋 結	エム・アール・アイ リサーチアソシエイツ（株）
〃	藤原 大資	（株）テプコシステムズ
〃	福田 航大	日本原子力研究開発機構
〃	松岡 伸吾	（株）UI 技研
〃	吉田 一雄	日本原子力研究開発機構
〃	吉田 尚生	日本原子力研究開発機構
〃	吉田 涼一朗	日本原子力研究開発機構

表 1.2 サブワーキングメンバー

事故	メンバー
高レベル廃液の蒸発乾固事故	浅沼 徳子 ◎天野 祐希 池田 泰久 大野 卓也 加藤 徹也 岸本 和也 京 久幸 小玉 貴司 鈴木 達也 関口 裕真 塚田 毅志 中嶋 結 藤原 大資 松岡 伸吾 山根 祐一 吉田 一雄 吉田 尚生 吉田 涼一郎
臨界事故	相澤 直人 江藤 淳二 小玉 貴司 竹澤 宏樹 福田 航大 松岡 伸吾 山根 祐一 吉田 涼一郎 ◎渡邊 友章
放射線分解水素の爆発	江藤 淳二 京 久幸 ◎小玉 貴司 塚田 毅志 藤原 大資 塚田 毅志 松岡 伸吾 村松 健

◎主担当

表 1.3 SAWG フェーズⅢの開催経緯*

	開催日	主な議論内容
第1回	令和2年12月18日	SAWGフェーズⅢ準備(趣意書,体制など)
第2回	令和3年1月29日	臨界事故サンプル問題案について, 蒸発乾固PIRT整備の必要性について
第3回	令和3年10月29日	蒸発乾固の章立てについて
第4回	令和3年12月22日	臨界事故シナリオ案について, 評価結果について
第5回	令和6年3月19日	報告書最終案

*すべてオンライン開催

表 1.4 SAWG フェーズⅢサブグループ会合の開催経緯*

臨界SG	開催日	主な議論内容
第1回	令和3年11月24日	臨界シナリオ及びシナリオに基づく影響評価解析例の報告
第2回	令和3年12月20日	シナリオの修正点及び修正シナリオに基づく解析結果の報告
第3回	令和4年12月8日	人間信頼性解析の取り組み例の紹介、シナリオ・解析結果のアップデート状況の報告
第4回	令和5年6月28日	報告書案の執筆状況の報告・確認
第5回	令和5年11月7日	報告書案の最終確認、原子力学会での発表に関する確認

蒸発乾固SG	開催日	主な議論内容
第1回	令和3年11月24日	臨界シナリオ及びシナリオに基づく影響評価解析例の報告
第2回	令和3年12月20日	シナリオの修正点及び修正シナリオに基づく解析結果の報告
第3回	令和4年12月8日	人間信頼性解析の取り組み例の紹介、シナリオ・解析結果のアップデート状況の報告
第4回	令和5年6月28日	報告書案の執筆状況の報告・確認
第5回	令和5年11月7日	報告書案の最終確認、原子力学会での発表に関する確認

2. リスク評価手法の概要

2.1 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_3 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。その他、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、セル内容媒火災に対しては、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。

このように核燃料施設についても、定量的なリスク評価が重要かつ必要であり、また原子力規制委員会から安全性向上評価においてリスク評価が求められていることから、客観的な実施基準が必要であると考え、実施基準を策定することとしたとしている。リスク評価実施基準は、事業者が自らの施設が有するリスクを把握し、継続的な安全性向上を進める上での参考情報を得るためのリスク評価について、現在の評価技術の水準を踏まえて的確に実施するための要求事項と具体的な手順が示されている。

また、次のような分野で運転段階での施設の安全管理を支援するためのリスク情報活用も有益であると考えられる。

- ・継続的安全性向上：地震時の多重故障などを含め多様かつ重畳しうる事故に対する AM 整備の必要性の評価
- ・地域防災計画支援のための情報提供：放出時刻や放出量、事故途中で提供できる情報などにつき、できる限り現実的評価が望まれる
- ・検査重要度設定のためのリスク重要度評価や検査前リスク評価に係る基盤整備

こうした応用においては、極めてまれにしか発生しない厳しい条件を想定しつつも、施設および事故の条件を適切に反映したできる限り現実的な事故リスク評価が望まれている。

2.3 リスク評価の実施手順の考え方

リスク評価実施基準では、その解説においてリスク評価の実施手順の考え方として以下の項目を挙げて解説している。以下に抜粋して転載する。

2.3.1 核燃料施設の事故シナリオの特徴を踏まえた分析

発電用原子炉施設を対象とした PRA では、冷却材喪失事故のような起因事象に対して、その緩和対策に着目し炉心損傷及び格納容器機能喪失に至るシナリオを分析して、その発生頻度と施設外への放射性物質の放出量を評価する。このような解析手順は、放射性物質が炉心に集中していることを前提としたものである。

これに対し核燃料施設では、放射性物質が施設内に非密封でかつ分散可能な形態（溶液、粉末など）で存在し、また、この危険源が施設外へ放出される原因となる事故も多様な形態（火災、爆発、臨界、沸騰など）が想定される。さらに、事故時に施設外へ移行する放射性物質の量だけでなく種類、化学形態により被ばく線量が変化する。これらのことから、施設の種類や規模が異なれば危険源と事故シナリオに大きな差異がある。また、同一施設でも事故の種類が異なれば同様である。

上述のような事故シナリオの特徴から核燃料施設のリスク評価では、放射性物質などの放出に至る事故の発生頻度評価に加えて、事故影響評価との組合せでリスクを評価することが重要である。また、核燃料施設の事故は、炉心損傷のような共通する状態を経ないため発電用原子炉施設のレベル 1PRA、レベル 2PRA のように事故進展を途中段階で分けて評価できない。このため、核燃料施設のリスク評価では、起因事象の発生から施設外への放射性物質放出に至る一連の事故シナリオを評価対象とする。

2.3.2 事故シーケンスの特徴

リスク評価実施基準で評価対象とする事故は、機器のランダム故障（人的過誤又は地震の発生により通常状態を維持する機能が喪失する事態（例えば、冷却機能喪失）を起点（起因事象）として、緩和対策の失敗により事故が顕在化する状態に至り、平常時を超える放射性物質が施設外へ放出される一連の事象である。起因事象から放射性物質の放出に至る事象の流れを事故シーケンスという。そのうち、事故が顕在化する状態から放射性物質の施設外への放出に至る部分を放射性物質放出シーケンス、それをイベントツリー形式で記述したものを放射性物質放出イベントツリーという。

2.3.3 リスク評価実施手順の枠組み

上述のような事故シナリオの特徴から核燃料施設のリスク評価は、当該施設に内在するハザードを体系的に可能な範囲で網羅的に分析し、以降の評価対象とすべき事故シナリオを同定するハザード分析と、事故シーケンス発生頻度及び放射性物質放出量とその影響の評価の二つの部分から成る実施手順である。前者のハザード分析では異常事象の抽出漏れがないことが重要であることから、合理的に可能な範囲で網羅的にその候補となる事象を同定する。これらの候補事象の中には、リスクレベルの異なる事故に進展する可能性のある多様な事故が含まれるため、後者の発生頻度及び放射性物質放出量評価では、その前段として事故シーケンスの発生の可能性とその影響の概略的な評価を基に相対的にリスクレベルの高い事故を選別するとともに施設全体のリスクプロファイルを把握する。そのため、この解析は概略的なリスク評価と捉えることができる。さらに、相対的なリスクレベルが高いと選別された事故に対しては、後段のリスク評価として、発電用原子炉施設の PRA に相当する詳細なリスク評価を実施する。この解析においては、それぞれの事故を対象に、詳細な事故シナリオを分析し、それに基づき、放射性物質の閉じ込め機能を有する構造物、系統及び機器の火災、爆発に伴う外力又は地震による機能喪失の可能性を評価し、事故シーケンスの発生頻度及び影響を評価するとともに重要度解析、不確かさ解析及び感度解析を実施しリスク低減のための施策に活用できるリスク情報を得る。このように、リスク評価実施基準で規定するリスク評価では、想定される事故のリスクレベルに応じた詳細さのリスク評価を行うグレーデッドアプローチの考え方を基本とする。

2.3.4 概略的なリスク評価の意義とそこでの最善のパラメータ選定

核燃料施設で想定される事故のリスクレベルは、特定の事故シーケンスがリスクの大部分を占め、その他の事故シーケンスのリスクは、相対的に小さいと考えられる。このような評価対象施設のリスクの特性を踏まえ、施設全体のリスクを簡便な評価方法により効率的に評価するためにグレーデッドアプローチの考え方に基づき、概略的なリスク評価を行うことの意義は、個々の事故シーケンスの相対関係を損なうことなく施設全体のリスクを効率的に評価することにある。一般的に概略評価では、保守的なパラメータを設定することが多いが、リスクの相対関係を適切に評価するために、評価に用いる種々のパラメータは、可能な範囲で最適な設定を行うこととする。

リスク評価実施基準で示されている“最善のパラメータ選定”とは、概略的なリスク評価で用いる種々のパラメータの選定に際して、原則として“最適な”パラメータを用いることを意味す

る。ただし“最適な”パラメータに関する情報がない場合には、“保守的な”パラメータで代用することも認められるとしている。

このような考え方は、発生頻度評価における ET あるいは FT を構成する要素の故障率等の選定、影響の概略的な評価における五因子法に基づく概略的なソースターム評価の選択に適用される。詳細なリスク評価において、計算プログラム等を用いた詳細なソースターム評価を行うことができない場合には、五因子法などの概略的な評価手法に頼ることになる。

2.3.5 複数事象の重畳の考え方

核燃料施設では、放射性物質などの危険源が施設内に種々の形態（溶液、粉末、ペレット、燃料棒など）で広く分散して存在している。また、これらの危険源が施設外へ放出される原因となる事故も多様な形態（火災、爆発、臨界、沸騰など）が想定される。

このように施設内に多様かつ多数の危険源が存在する場合には、複数の事象が同時に発生する可能性も考慮して、リスク評価がなされる必要がある。

事象の重畳には、次の四つに分類されると考えられる。

- a. 一つの事故シーケンスの進展過程における物理・化学的又は機能的影響による新たな事象の発生：例としては、臨界事故により、水素が急激に発生し水素爆発事象に至る事象がある。
- b. 同一原因による複数の起因事象の同時発生：例としては、地震による廃液貯槽冷却系機能喪失による蒸発乾固事象と有機溶媒漏えいによる火災発生の同時発生がある。
- c. 同一起因事象による複数の事故シーケンスの同時発生：例としては、地震による外部電源喪失に、非常用電源損傷が重畳することによる、廃液貯槽蒸発乾固事象及び水素爆発事象の同時発生がある。
- d. 異なる原因（複数の自然現象など）の同時発生による複数の事故の同時発生：例としては、地震による外部電源系送電線の損傷と、津波による非常用電源系の損傷の同時発生がある。

a)は、内的事象の評価及び地震に起因する事象の評価に共通である。また、地震に起因する事象に関する評価については、b)及び c)についての考慮が必要である。なお、核燃料施設リスク評価実施基準では、内的事象と地震だけを対象とするので、d)は含めていない。当該施設において津波も重要なリスク要因となると考えられる場合には、日本原子力学会では軽水炉を対象に津波に関する PRA 実施基準及び地震の PRA 実施基準を策定するとともに、地震 PRA 実施基準において地震起因の津波の考慮方法についても記載しているので、参考となる。

2.3.6 ハザード分析及び事故シナリオの分析において重要な見落としを避けるための留意事項

リスク評価の重要な意義の一つは、経験のみに頼るのではなく、過去に経験したことのない事項も含めて、論理的モデルや科学的／技術的に妥当な手法を組み合わせる網羅的／系統的な分析によって、リスクトリプレットの情報を明らかにし、それを基に施設を構成する設備や運転手順、保全のあり方などについて人や環境に与えるリスクとの関係を具体的／定量的に認識することである。このためハザード分析や事故シナリオの分析において、系統的な手法と経験的知識を組み合わせる用いることにより重要なシナリオを見逃さないことが重要である。

ハザード分析や事故シナリオ分析の系統的な方法としては、核燃料施設のリスク評価実施基準には次のような手法が紹介されている。

(1) トップダウン的手法

重要な事故影響の発生から始めて、逆算的にそのような事故影響が発生する原因を分類していく手法であり、マスターロジックダイアグラム手法 (MLD)、フォールトツリー (FT) 手法がある。MLD は FT の一種とも言える。

(2) ボトムアップ的手法

設備を構成する機器やその操作を個別に対象として、そこで故障や誤操作が起こった場合にどのような影響があるか、それに対応する手段が準備されているかなどを個別に確認していく方法である。そのためには HAZOP 手法、故障モード影響分析 (FMEA) 手法などがある。

ただし、これらの手法は、システムの設計段階で考慮されていない原因による外乱や意識されていない空間的従属性などを確実に捉えてくれるものではないので、同種施設の運転経験情報を収集し、それを参照して見落とししているシナリオがないかチェックすることや、プラントウオークダウンにより空間的な従属性を確認することなども有効であり、リスク評価の実施基準でもそれを推奨している。

特に、臨界事象は核燃料施設な特有なシナリオのタイプであり、日常的な常識からは想像／判断することが難しいので、特別の配慮が必要である。ここでは、上述の一般的な事項に加えて次のような方法が取られている。

- (a) 規制上定められた安全評価上の要求が考慮されていることを確認する。例えば、二重偶発性原理が守られていることを FMEA などにより確認すること、核燃料物質を入れた貯槽類が複数置かれている場合にはその間の空間的な相互干渉の影響を確認することなどがある。
- (b) 類似施設の臨界事故の経験を分析し類似の事故への配慮がなされているか確認する。また、この配慮による解析等の条件が、運転段階においてどのように実現され、維持されているかうオークダウンなどで確認する。
- (c) (a)(b)を踏まえたうえで、設計上の想定を超える、より厳しい条件で機器の故障、設備の地震等による損傷、人の誤操作などが発生する可能性、及びそれらが重畳して起こる可能性を考慮する。ただし、そのような厳しい事故条件をどこまで考えるかについては、そのシナリオが発生した場合の影響や、リスク評価の目的を考えて判断する。なお、評価を進める過程で、対象シナリオの重要性が低いとして評価から除外することをスクリーニングと呼ぶ。スクリーニングの条件としては、当該シナリオが発生した場合の影響又は発生頻度が十分小さい場合や、当該シナリオと同種のシナリオのグループがすでに考慮されており、発生頻度及び影響評価の観点から当該シナリオはそのシナリオのグループの一部としてまとめて考えてもよいと判断できる場合などがある。

2.3.7 ヒューマンエラーの考慮

核燃料施設の運転では、人による管理に依存している部分も大きいので、そのリスク評価ではヒューマンエラー（人的過誤）の影響の考慮も重要である。PRAでは、リスクに係る人的過誤事象を同定し、それをリスク評価のモデルに組み込むとともに、その発生確率を評価する作業を人間信頼性解析（Human Reliability Analysis, HRA）と呼ぶ。以下では、米国原子力規制委員会（NRC）のスタッフ向け研修教材、電力中央研究所によるガイド、NRCのHRAの良好事例に関する報告書などを参考にHRAの概要を説明する。

HRAの手法はいくつか提案されているが、ここでは、WASH 1400に適用され、現在も広く使われているTHERP（Technique for Human Error Probability）手法について述べる。Swainによる、そのハンドブックでは、原子力発電所のPRAで考慮すべき人間の多様な行動を体系的に分類し、失敗確率を評価する手法をまとめている。

PRAで考慮する過誤は、通常次の3種のカテゴリーに分類している。

A：起因事象発生前に発生し起因事象発生時に顕在化する過誤、

B：起因事象を発生させる過誤、

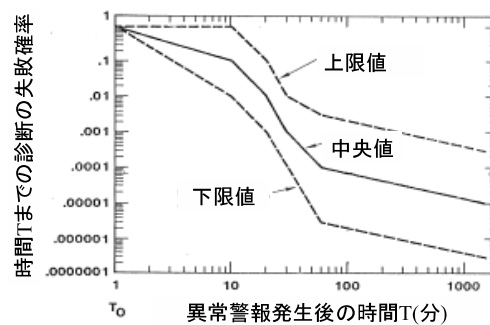
C：起因事象発生後の対応操作における過誤。

Aは、待機除外された設備の戻し忘れや計測器の校正ミスなどがある。Bの過誤は、通常時の運転操作のミスでスクラムに至る場合などであり、起因事象発生頻度のデータの中に含まれると考えられるので、通常、HRAの対象とするのはAとCである。再処理施設においては、必要があればBについてもモデルに入れることも考えられる。カテゴリーCには、事故時運転手順書等に定められた作業と臨機応変に対応して回復させるような作業がありうるが、後者については、通常は手順書や必要な設備等の利用可能性が明確な場合以外考慮しないとされてきたが、運転員等とのインタビューなどで十分信頼できる場合には考慮されている。THERPでは、ある目標を達成するために機能的に要求される作業のまとまった単位をタスクと呼び、このタスクの失敗確率を以下のような手順で評価する。

- (1) 全体タスクの把握：運転員等が行う作業の内容の全体および境界条件、PRAの他の評価作業との関係を明確にする。
- (2) タスク分析：タスクを要素となるサブタスク（ステップとも言う）に分解し、その内容と相互関係を論理的に整理する。サブタスクは、後述の手法で定量化ができる段階まで細分化する。
- (3) 過誤の同定：サブタスクごとに発生しうる過誤を洗い出す。
- (4) 過誤回復の可能性の分析：タスク分析結果や 手順書などを基に、失敗に気づき修正するメカニズム（過誤回復）があるか調査し、その可能性を検討する。
- (5) 行動形成因子の分析：サブタスクの失敗確率に影響しうる要因を分析し、大きい影響を与える可能性のある因子を同定し、関連する情報を整理する。
- (6) 定量化：過誤の発生確率、過誤回復の確率、作業全体の失敗確率およびこれらの不確かさ幅などを評価する。以上のうち、(6)の定量化では、サブタスクの失敗確率（HEP：Human Error Probability）を以下のように表す。

$$HEP = HEP_n \cdot \prod_{i=1}^n PSF_i \quad (2-1)$$

ここで、HEPn は代表的な条件での HEP（ノミナル値と呼ぶ）であり、PSF は行動形成因子の影響を表現する補正係数である。PSF の添字 i は PSF として考慮する個々の影響因子を表す。THERP において、ノミナル値 HEPn の評価法は、過誤の種類ごとに定められている。診断の過誤については、診断の余裕時間等の関数として与えられる。例を第 2.2 図に示す。



第 2.2 図 THERP で用いる診断の失敗確率の例（参考文献）

操作の過誤については、行動のタイプ（監視、データ読取り、制御室操作、現場操作など）、過誤のタイプ、手順書に則した操作か否かなどの分類に応じて定められる。また、行動形成因子 PSF については、運転員のストレスのレベル、熟練度、タスク遂行が段階的か否か（ステップバイステップで手順が定められているか意思決定を含む動的なものか）などの観点で分類して複数の係数が与えられている。なお、過誤回復を考慮する場合など、例えば、他の運転員の判断を信じて誤りに気付かない場合などのように、サブタスク間の従属性にも注意する必要があるため、そのための失敗確率の評価法も与えられている。THERP で使用する HEPn, PSFi などのパラメータやその不確実さ幅は Swain らにより原子力発電所等での過誤事例に基づき、専門家としての判断を加えて作成されたものであり、実際の適用段階でも解析者の判断が入るので、不確実さは小さくない。

PSF の設定においては、対象施設における実際の運転手順や慣行、運転経験などを熟知した関係者や HRA の専門家との議論を行いながら、実情を反映させるように務めるとともに、判断根拠となった情報を将来のさらなる分析や更新に備えて記録しておくことが重要である。このような情報は電力中央研究所のガイドでは「叙事知」(narrative) と呼び、その記録の重視性を指摘している。

また、THERP では、オMISSION エラー（やり忘れ、実行の失敗）を主たる対象としており、COMMISSION エラー（診断や判断の誤り：誤った操作を行ったり、別の機器を操作すること）により、誤った操作を行い、事態を悪化させる可能性については一般的に適用可能な手法がなく、現在も研究が継続されている。また国内のデータを整備して確認することも望まれる。しかしながら、HRA の技術は各国の PRA で継続的に使われ、PRA に基づく運転手順の改良も多数なされていることは、この手法は十分に理解して用いれば、有用な結果を与えると多くの専門家が認めていることを実績で示していると考えられることでもできよう。

THERP 手法は、原子力発電所に対応して整備されてきたものであるが、再処理施設においても適用可能と考えられており、核燃料施設リスク評価実施基準においても適用可能な方法として紹介されている。

2.3.8 被ばく線量評価

リスク評価実施基準の適用範囲については、“施設外への放射性物質などの放出に至る事故の発生頻度評価及び施設外へ放出される放射性物質などソースタームの評価（公衆の個人の被ばく線量の評価及び化学的影響の評価を含む）”であることを説明している。

公衆の健康影響や社会に対する経済的影響などの一般的な意味での環境影響を含むリスク評価は、リスク評価実施基準に従って評価されるソースタームを用いて確率論的環境影響評価を行うことで可能になる。しかし、確率論的環境影響評価の手法については、既に公開されている発電用原子炉施設のレベル3の確率論的リスク評価の実施基準がある。

一方、リスク評価実施基準では、上述のような意味での環境影響評価を含まないリスク評価であっても、事故の発生頻度とソースタームまでの評価に加えて、各事故シーケンスのソースタームのそれぞれに対する“敷地境界外における公衆の個人の最大被ばく線量”の評価を含めれば、様々な活用が期待できると考えて、このような限定された位置づけでの被ばく線量の評価を含めている。“敷地境界外における公衆の個人の最大被ばく線量”の評価を用いる理由として、次の二点を挙げている。

第1に、事故の影響の大きさを表現する際に、ソースタームの情報（放出される放射性物質の核種、量、化学形、放出形態、放出時刻、放出経路、放出される物質の持つ熱エネルギーなどの多くの属性をもつベクトル量である）だけでは、事故シーケンスごとの影響の大小を認識することや事故シーケンス間の相対的な重要度を比較しにくいとため、その情報を、事故影響を代表する1個のスカラー量に変換する必要があった。そのような指標は、詳細評価の対象とする事象の選別のために必須である。さらに様々なリスク指標の基礎となるものであり、リスク情報活用でも必要となる。

第2に、このための指標として従来から我が国及び国際社会において決定論的安全評価で用いられてきた指標に近いものを選定することは、リスク情報の活用の際に、従来の安全規制との関係を理解及び説明しやすくなるという大きいメリットとなる。

このような考え方に基づく“発電用原子炉施設の安全解析に係る気象指針”に基づく被ばく線量評価は、気象条件などのバラツキ要因や評価手法の不確実さを反映した確率分布ではなく、それらを包含できると考えられる保守的な手法により定める点推定値として表現される。

以上のように、リスク評価実施基準に従って行う被ばく線量評価は、公衆の実際の被ばく線量の確率分布を代表するためのものではないので、与えられたソースタームに対して、このような手法で被ばく線量を求めた結果と実際に公衆及び社会がうける健康リスクや経済リスクなどとの関係を理解しておくことが必要な場合には、同じソースタームを入力条件として発電用原子炉施設のレベル3の確率論的リスク評価の実施基準に従って環境影響評価を行うことが考えられる。

2.4 地震リスク評価手法

(1) 地震 PRA の流れ

本節では、地震による事故に関するリスク評価手法の概要を説明する。核燃料施設リスク評価手法の実施基準では、影響の小さい事故のみが想定される施設を対象とする簡略な評価手法と影響の大きい事故が起こりうる施設を対象とする確率論的リスク評価手法（PRA）が示されているが、ここでは PRA 手法に限って基本的な考え方を説明する。

地震 PRA の手順は、大きく 3 つの作業に分けて考えることができる。

地震ハザード評価： 施設の立地点においてどの程度の地震動がどの程度の頻度で発生するかを予測する。その結果は施設の地盤で発生する地震動の強さに対する超過発生頻度（それを超える地震動の発生頻度）で表す。

フラジリティ評価： 発生する地震動の強さに応じた機器や人間の操作の失敗確率を推定する。その評価結果は、入力地震動強さに対する条件付きの損傷確率として表す。

事故シーケンス評価： 地震動により発生しうる事故シナリオ（事故シーケンス）を ET/FT モデルにより表現するとともに、地震ハザード評価及びフラジリティ評価の結果を用いて事故シーケンスの発生頻度を定量化する。併せて、事故シーケンスごとにソースターム評価及び被ばく線量評価を行い、その結果と事故シーケンスごとの発生頻度の情報を用いて機器の損傷や人的過誤のリスク寄与度の情報を得る。

これらの関係を図 2.3 に示す。

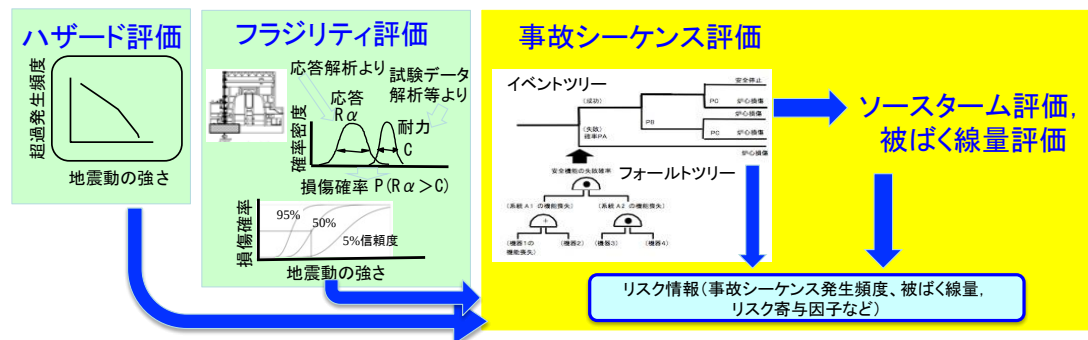


図 2.3 地震 PRA の流れ

地震 PRA の結果には、地震ハザードが極めてばらつきの大きい自然現象に関するものであること、機器の設計は大きい余裕を持たせて行われるので、機器が実際に損傷する地震動の予測には不確実さが伴うことなどから、地震 PRA の結果には相当な不確実さが含まれる。しかしそうではあっても、地震 PRA からは、設計基準地震動を超える領域の地震動が発生した場合にどの程度の地震動で、どのような事故シーケンスが想定されるかについての具体的な情報が得られ、さらにその頻度や影響などのある程度定量的な情報も得られるので、合理的に実行可能な範囲で安全性を継続的に高めていく上で、極めて有用な情報となる。

そのような観点で地震 PRA を使うときには、地震ハザード評価、 fragility 評価、事故シナリオ評価の各段階でどのような不確かさ要因が影響してくるかを明示的に捉えその影響を評価して置くことが有益である。このため地震 PRA では、各段階で不確かさ評価の手法が整備されている。

(2) 地震ハザード評価の概要

地震ハザードを評価するには、どこでどれだけの大きさの地震がどれだけの頻度で発生するかを予測する震源モデルとある地点で、ある大きさ（マグニチュード）の地震が発生したときにサイトで発生する地震動の強さを予測する地震動予測モデルが必要である（図 2.4 参照）。

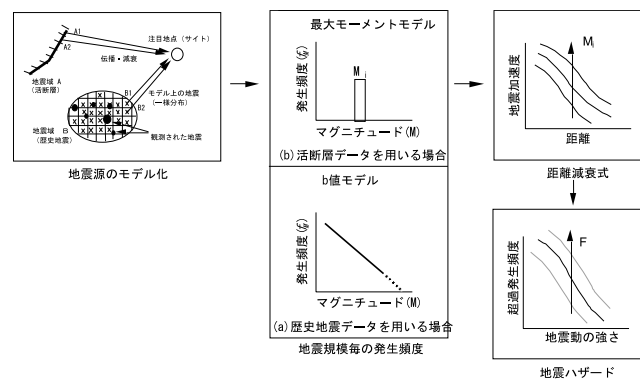


図 2.4 地震ハザード評価の概要

震源モデルは、サイト周辺の地震源情報として、活断層の情報や歴史上で観測された地震の情報、観測機器で測定された地震動の情報などを収集し、それをもとにモデルを構築する。活断層からはある大きさの地震がある頻度で発生すると仮定する。歴史地震には、ある領域内で空間的に一様に分布する震源から、ある法則に従った大きさと頻度の関係を持ちながら地震が発生すると仮定するモデルを適用する。地震動予測モデルでは、主としてサイトで発生する地震動の大きさや継続時間、スペクトルの特性などを経験的な相関式を用いて予測する距離減衰式が用いられる。これらのモデルを用いて、震源モデルで表現される多数の震源からの寄与を積分し、サイトでの地震動の大きさに応じた関数としての超過発生頻度を求める。この関数をプロットした曲線は地震ハザード曲線とも呼ばれる。

実際にモデルを設定する際には、震源モデルにも距離減衰式にも様々な不確かさ要因が含まれる。地震ハザード評価の結果は、多数のモデルの選択やモデル上のパラメータの選択、個々のモデルが持つ不確かさの推定結果の違いなどによって変わってくるので、取りうる選択の組み合わせに応じて多数のハザード曲線がありうることになる。その結果、地震ハザードは多数のハザード曲線の集まりとして表現したり、最大加速度ごとに取りうる超過発生頻度の確信度を一定とした等、確信度の点をプロットした曲線（フラクタルハザード曲線）などとして表現される。

(3) フラジリティ評価

各機器が実際に損傷する地震動強さは、地盤、建屋、機器の地震時の揺れの解析（地震応答解析と呼ぶ）や機器を構成する材料の強度などに不確かさがあるので一つの値として決めることはできない。このため地震 PRA の結果を用いようとする際に、その不確かさの影響が、個々の機器の強度や損傷可能性にどう影響しているかを明示するべきである。そこで図 2.5 のような形で、機器の耐力と応答を確率変数として表現したうえで、損傷確率を(1)式で計算する

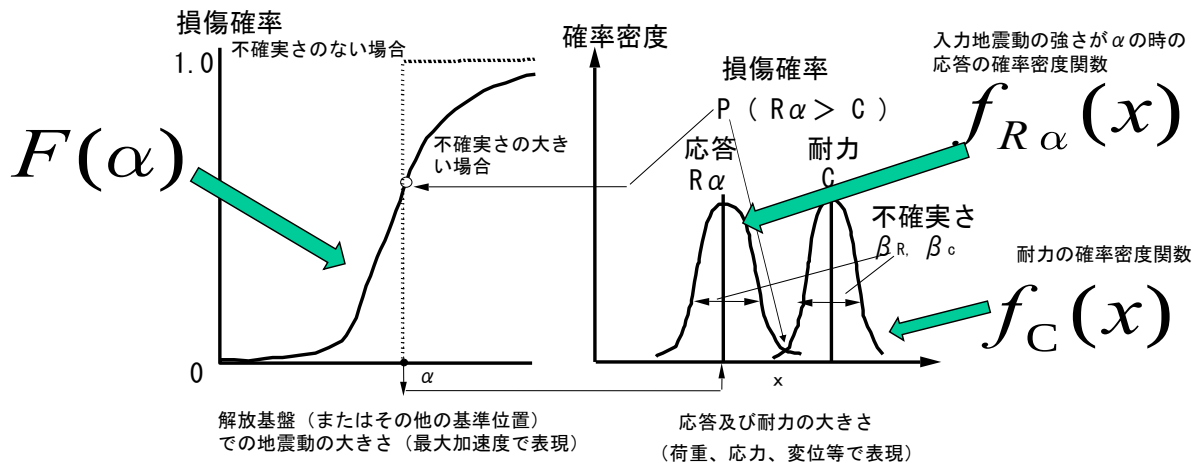


図 2.5 損傷確率

$$F(\alpha) = \int_0^{\infty} f_{R\alpha}(x_R) \left(\int_0^{x_R} f_C(x) dx \right) dx_R \quad (2-2)$$

で計算することとしている。

2.5 事故影響評価の基本的な考え方

(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 2.6 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 2.7 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 2.2 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 2.1 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。

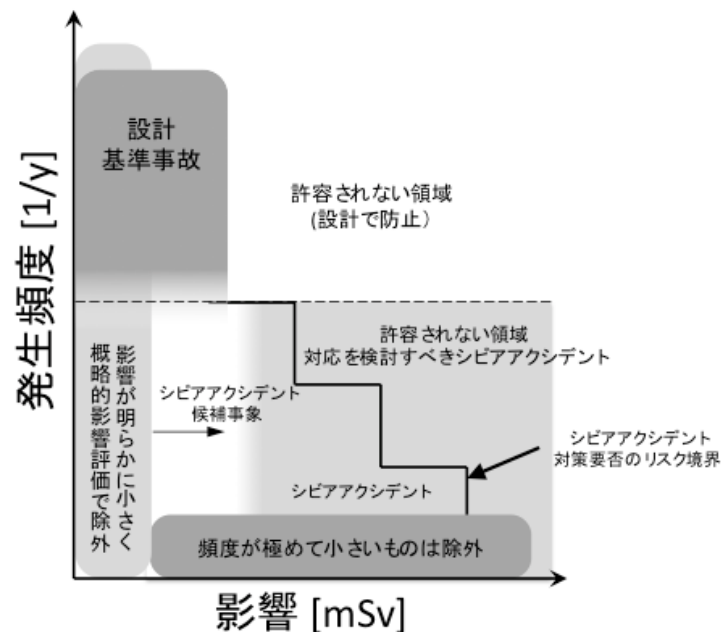
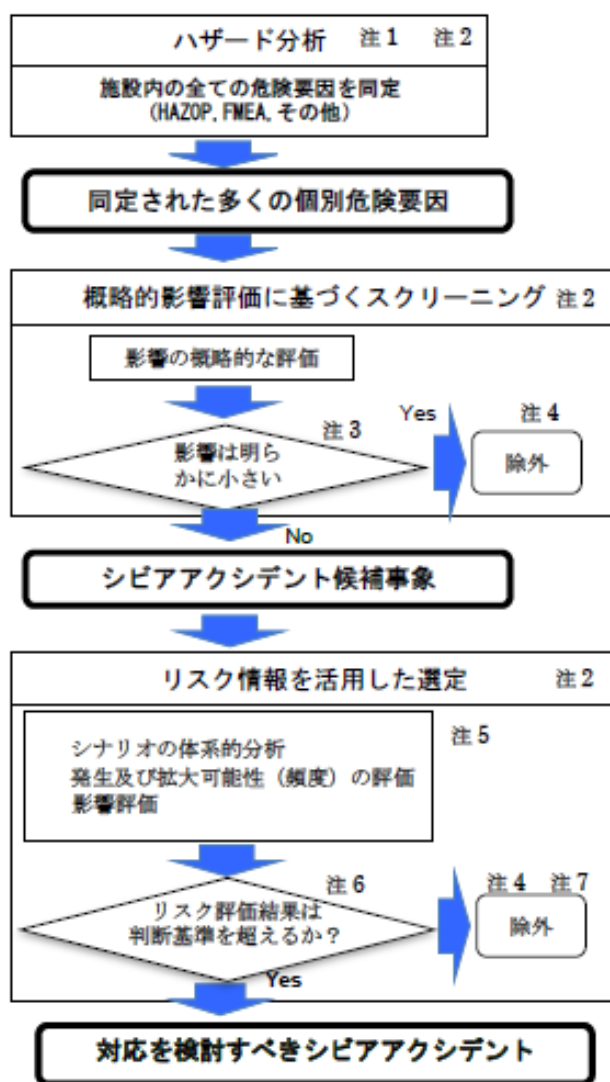


図 2.6 判断基準説明図（参考文献 1）より転載



注1：ハザード分析では、高影響事象の見落としを防ぐよう注意する。

注2：外的事象については、内的事象に関する結果を基に、誘因事象ごとに必要な分析を追加する。たとえば、地震では、構造物損傷や共通原因損傷等への考慮が必要。

注3：影響緩和機能を考慮しなくとも影響が十分小さいかを判断する。

注4：追跡性を確保するため、除外した事象をその根拠とともに記録する。

注5：リスク評価の手法は必要に応じて半定量的手法でも良い。類似事象は必要に応じてグループ化する。

注6：発生可能性（頻度）と影響に基づく判断基準を設定する。

注7：除外された事象であっても安全性向上の観点から合理的に実施可能な対応の検討が望まれる。

図 2.7 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 2.8 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(株)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。

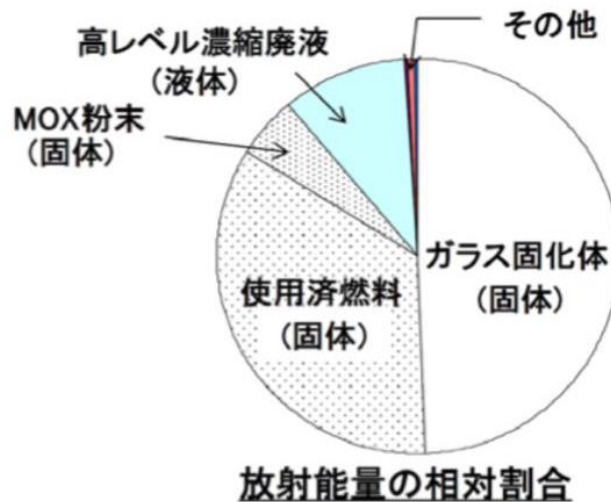


図 2.8 放射性物質の性状及び量の分布例（参考文献 2）のデータを参考に作成）

(2) 影響評価の方法

(a) 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 2.9 に示す。

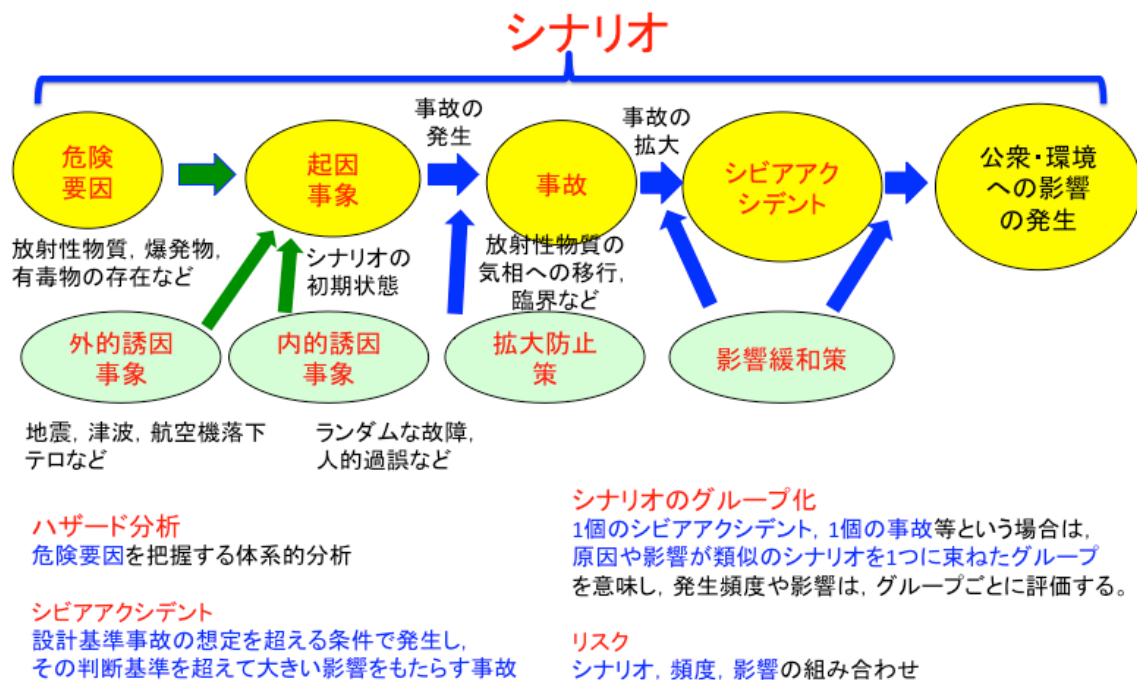


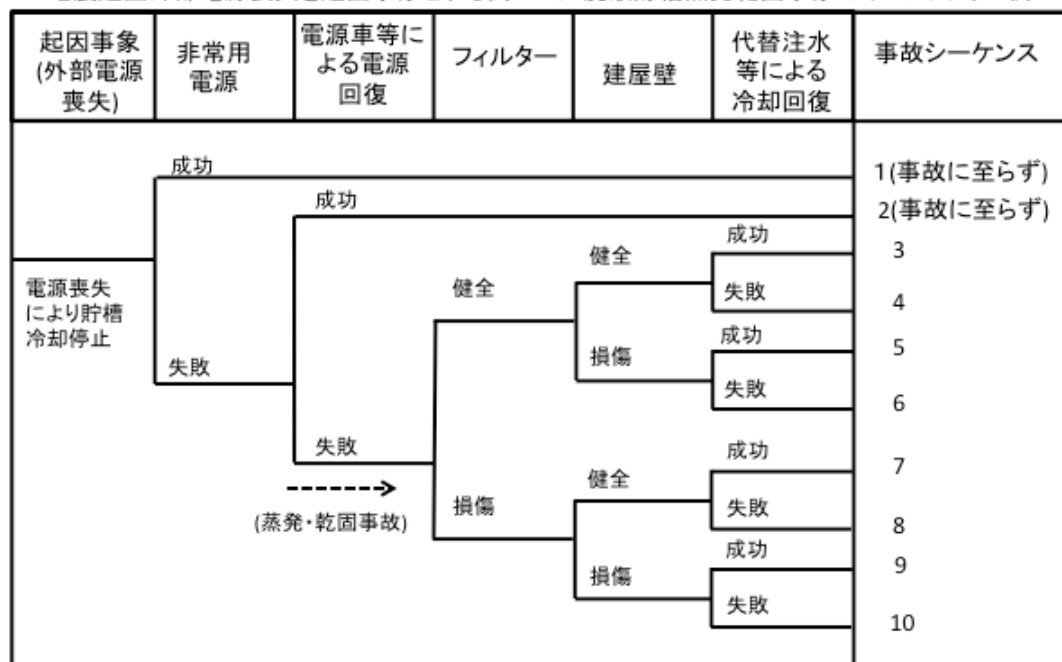
図 2.9 事故シナリオに関連する用語

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 2.10 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 2.10 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。

地震起因外部電源喪失を起因事象とする高レベル廃液貯槽蒸発乾固事象のイベントツリー例



(注意) ● 地震時には、上記以外の設備損傷もあり得るが簡略化のため省略した。
● 電源回復や冷却回復の時間により、シナリオ及び影響の大きさが大きく変わらう。
● 回復時間の影響が大きい場合には、回復時間の分岐を複数設定すれば、その影響をより詳細に表現できる。

図 2.10 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、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）に属するのがあるいは②（影響評価は必須ではない）に属するのかを図 2.1 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。

(b)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。

(c)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 μ m. (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 μ m 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 2.11 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、不確か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かさに関する 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かさが伴う。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、その不確か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。

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

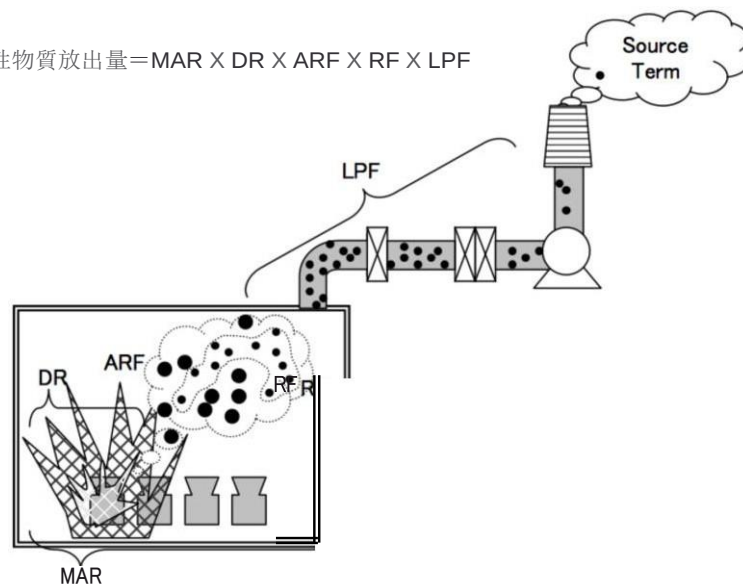


図2.11五因子法で想定する放射性物質の環境中への移行過程（参考文献⁹⁾より転載）

(3) PIRT による重要現象の抽出，及び知識レベルの見える化

事故影響評価を行うためには，対象とする事故シナリオに関する情報を把握した上で適切な解析手法を選定する必要がある。特に，放射性物質の移行・放出量評価については，物理/化学現象とアクシデントマネジメント策が絡み合う複雑な時間的/空間的振る舞いを取り扱う必要があり，用いる解析手法の妥当性，不確かさを把握した上で安全解析を行う必要がある。また，取り扱う現象の特性上，現時点における知識レベル（実験的知見，現象論的知見，評価モデルに関する知見等）を明らかにしつつ，継続的な知見拡充の取り組みを進めることが不可欠である。知見が不足する領域については，それが性能指標（FOM：Figure of Merit，再処理施設の事故進展評価の場合 ARF や LPF が性能指標となり得る）の不確かさに与える影響を推定する必要がある。

この背景の下，本章では上記の事故影響評価に用いる解析手法の適格性評価プロセスについて記す。

(a)解析手法の適格性評価プロセス

事故影響評価の内，放射性物質の移行・放出量評価は解析コードを用いて実施する事が想定され，それらコードは対象とする事故シナリオ，性能指標を明らかにした上で，妥当性確認・検証を行うことが必要となる。また，解析条件，及び解析モデルが内包する不確かさを定量化し，それらが性能指標の解析結果に与える影響を定量的に把握することが求められる。これら作業は解析コード適用性確認に位置付けられ，図 2.12 に示す統計的安全評価の手順の中に定められており，原子炉施設の安全設計コードの妥当性確認方法に関する米国安全審査指針の流れを汲むプロセスである。この中の「解析コード適格性評価」ステップにおいては，重要物理/化学現象のランキングテーブル（以降，PIRT：Phenomena Identification and Ranking Table）が必要となる。PIRT とは，着目する事象の中で生じる物理/化学現象を，物理領域毎に抽出し，性能指標への影

響度の大きさを尺度として分類した表である。「(6)解析コード適格性評価」ステップでは、想定する解析手法が、PIRT で列挙された重要現象、及び性能指標を適用範囲内で現実的に予測できること、またそれらに対して感度、及び不確かさ評価を実施する機能を有することが確認される。

なお、PIRT はそれ以降の「(7)評価マトリックスの作成」、「(9)解析コード・評価モデル不確かさの定量化」、及び「(11)入力データの不確かさの定量化」でも活用される。(7)では妥当性確認のための評価マトリックスの作成における対象試験データベースの選定において、(9)と(11)では入力データの不確かさを考慮する際の対象パラメータの選定において、PIRT との照合により着目する事象/性能指標に対し重要現象が網羅されていることが確認される。

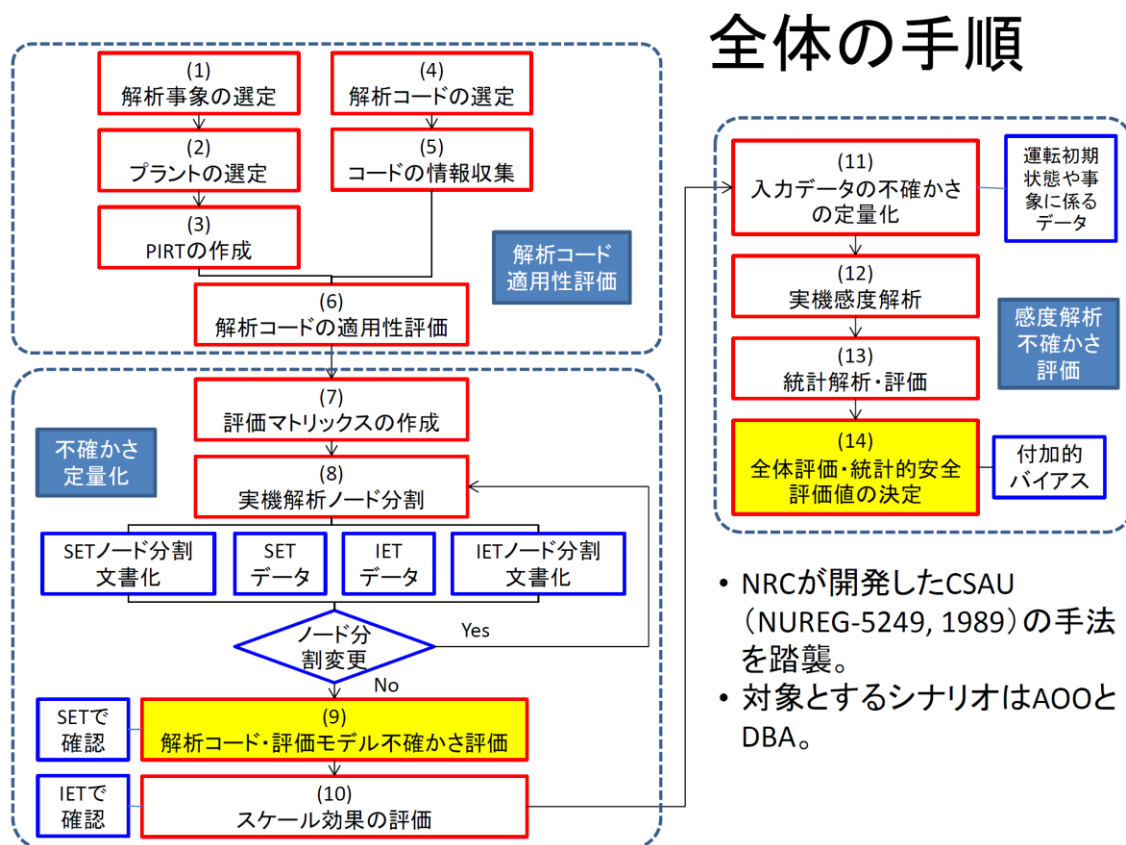


図2.12 統計的安全評価の手順（参考文献10）より転載）

PIRT の構成例を表 2.1 に示す。ここでは、着目する事象における領域/コンポーネント毎の現象をリストアップし、性能指標に対する重要度のランキングを併記している。重要度のランキングは通常 H/M/L の 3 段階とし、これら定義は表 2.2 に示すランク付けの尺度において“注目パラメータ”を性能指標に読み替えて参照する。なお、現象の重要度は着目する事象における時間スケールで変化することが考えられ、これについては現象をフェーズに分解し、フェーズ毎にランキングを設定することが必要となる。また、表 2.1 ではランキングに「Knowledge assessment（知識レベル）」も併記しており、各現象、各フェーズにおける実験的知見の完備性についても判定可能である。

表 2.1 PIRT の構成例（参考文献 11）より部分転載）

Phenomena title	Component	Importance rank		Knowledge assessment	
		Phase 1	Phase 2	Phase 1	Phase 2
H-3 generation and circulation in coolant inventory	—	I	L	N/A	3
Aerosol creation by nucleation	—	I	H	N/A	3
Aerosol growth by condensation	—	I	H	N/A	2
Jet discharge	Cavity	L	M	3	3
Break discharge and critical flow	Annular hot gas duct	L	I	4	N/A
Xenon and samarium buildup and oscillation	—	H	H	3	3
Annealing	Graphite core block	M	L	4	3
	Graphite structure	M	L	4	3
	Fuel compact	M	L	4	3
	Metal structures	I	I	N/A	N/A

表 2.2 重要度ランキング指標（参考文献 10）より転載）

ランク	定義	構成式に関わる計算モデルの要否
High (H)	注目パラメータに支配的な影響を及ぼす現象	試験解析及び信頼性が高い計算モデルが必須
Medium (M)	注目パラメータに中程度の影響を及ぼす現象	試験解析及び／又は信頼性が中程度の計算モデルが必要
Low (L)	注目パラメータへの影響が小さい現象	解析機能に関わる計算モデル間の従属関係を維持するためにモデル化を実施
Insignificant (I)	注目パラメータに影響を与えないか、又は影響が微小な現象	解析機能に関わる計算モデル間の従属関係が必要な場合に限りモデル化を実施

（出典：B. E. Boyack, G. E. Wilson, “Lessons Learned in Obtaining Efficient and Sufficient Applications of the PIRT Process”, ANS *International Meeting on Updates in Best Estimate Methods in Nuclear Installation Safety Analysis (BE-2004)*, Washington, D.C., Nov. 14-18, 2004, 222-230 (2004), Table II)

Copyright (2004) by the American Nuclear Society, La Grange Park, Illinois.

Insignificant の代わりに N/A(Not Applicable), 又は“—”で表記する場合もある

(b)PIRT 整備方法

PIRT 整備方法については、CSAU 手法が定められた NUREG/CR-5249(1989 年)発刊時以降幾つかの方法が提唱されており、ここではそれらに共通する作業ステップを表 2.3 に示す。以下に、いくつかの作業について留意事項を記す。

- ・現象の同定について：このステップでは、当該の時間領域/物理領域に含まれる現象を網羅的にリストアップする必要があるが、PIRT 整備の目的が解析コードの適格性評価である場合、工学的に実用的なレベルでの現象の同定に留めればよい。つまり、解析コードでモデル化されている物理/化学プロセスより下位の階層まで細分化して現象を同定する必要は無い。但し、

構成式に関わる計算モデルの欠落や未知の現象を伴う可能性が想定される場合はこの限りではない。なお、現象の同定の段階ではその重要度ランキングは意識したスクリーニングは必要無い。

- ・重要度のランク付けについて：ランク付けには専門家による PIRT チームを編成し，その中でブレインストーミング，及び階層分析法(AHP 法：Analytical Hierarchy Process)を用いた方法を採用することが一般的である。PIRT チーム編成は，十分な専門的知見，及び経験を有するメンバーで構成することが望まれ，試験，解析，設備運用，及び PRA 等の専門家が含まれ，且つ分野に偏ることの無い編成が重要である。AHP 法は，集団の意見を十分な形にまとめ，且つ重要度に一貫性を持たせるためのロバストな問題解決型の意味決定手法である。一方で，本手法では全ての同一階層の現象について一対ずつの重要度比較を行うことが求められ，現象が多い場合ランク付けに多大な労力を要することが想定される。

なお，ランキングは PIRT チームメンバーの主観的な判断に強く依存するものであるが，図 2.7 における後段のプロセス「(7)評価マトリックスの作成」，及び「(12)実機感度解析」等で得られた実験的・解析的知見をフィードバックすることも有効である（最初の段階から解析コードによる感度解析に頼らずランキングを決定しているのは，解析コードの適格性評価に用いる PIRT を，解析コードからのアウトプットのみで判断することを避けるためである）。

- ・知識レベルの集約について：この作業は f)の項目に含まれる。ここでは，各現象に係る実験的知見，及び解析モデルの整備状況をリストアップする作業が想定される。前者は図 2.12 の「(7)評価マトリックスの作成」に該当し，後者は「(6) 解析コードの適格性評価」において，モデルの網羅性判断に活用される。実験的知見については，それらが特定現象の理解に必要となる「個別効果試験(SET)」，「特定機器に対するコンポーネント試験(CET)」，若しくは「総合効果試験(IET)」のどれに相当するのか，またスケール歪みの有無について判断する必要がある。スケール歪み¹²⁾には，「時間スケール」，「物質スケール」，「幾何スケール」，及び「温度スケール」等が考えられる。
- ・文書化について：PIRT 作成結果の文書化においては，単に結果を表形式にまとめるのではなく，作成目的，想定する前提条件，作成時の現象同定やランキング決定に関する議論，及び作成チーム構成（各メンバーの専門分野など）を記録しておくことが重要となる。これは，PIRT が一度作成して終わりというものではなく，継続的にブラッシュアップして維持管理/改良していくものであるためであり，後年第三者が作成時の経緯を把握できることが求められるためである。これにより，PIRT の説明性，追跡可能性が向上し，PIRT の品質向上，及び効果的な運用に繋がる。

表 2.3 PIRT 作成手順（参考文献 10）

	項目	解説
a)	目的及び対象とする原子炉施設の確認	PIRT 作成の目的, 対象とする施設及び事象シナリオを確認し, 関連する情報を収集する。
b)	注目パラメータの設定	安全評価が目的の場合, 注目パラメータは安全評価パラメータ（性能指標）となる。注目パラメータは対象とする施設及び事象を考慮して設定する。最適コードの開発及び/又は改良が目的の場合, その目的に沿ったパラメータを設定する。
c)	時間領域の分割	対象となる事象シナリオの時間経過に伴って, 原子炉施設の挙動が変化し, 同定された諸現象の重要度が変化すると考えられる場合, 注目パラメータの挙動を支配する現象が継続する期間ごとに時間領域を分割する。
d)	物理領域の設定	上記各時間領域に対し, 解析する事象に応じて対象となる施設を構成する物理領域（機器を含む）を設定する。
e)	現象の同定	上記各時間領域に対し, 物理領域毎に生じると想定される現象の候補を漏れなく同定する。
f)	重要度のランク付け	注目パラメータへの影響度に応じて, 同定された現象の重要度のランク付けを行う。また, 各現象に対する知識レベルを評価する。
g)	文書化	PIRT 作成後, 結果をまとめ文書化する。この文書では, PIRT 作成のための前提条件を明確に記載する。

(c)PIRT 運用

PIRT のスキームは解析手法の適格性評価, 若しくはその解析手法を統計的安全評価に用いるために開発されたものであるが, 近年海外ではその使用目的が一般化されつつあり, 対象範囲の拡大が伺える。例えば, 解析コード開発計画, 現象の理解, 実験計画, 実験のための試験装置設計・製作, 及びリスク評価であり, 対象とする事象も建屋火災や崩壊熱評価といった幅広い目的で活用されている。このため, 再処理施設を対象に整備した PIRT も, 解析コードの適格性評価や統計的安全評価のみならず, 今後活用幅は拡大していく可能性が考えられる。但し, 整備済みの PIRT を作成時とは異なる目的で活用する際は, その適用性について判断することが重要となる。前節における記述の通り, 解析コードの適格性評価の目的で整備された PIRT は解析コードのモデルを念頭に現象を階層分解しており, 目的に応じてこれを変更することが肝要となる。

(d)PIRT 維持管理

PIRT は作成時点における現象, 設備, アクシデントマネジメント策, 及び知識レベルを反映したものであり, 継続的安全性向上に係る取り組みを通じてブラッシュアップされるべきものである。例えば, PIRT 整備後に新たな実験的知見が得られる可能性も考えられ, この場合現象の同定, ランキング設定, 及び知識レベル情報の更新を検討する必要がある。

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 [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 2010004 (2010).
- 10) 日本原子力学会標準「統計的安全評価の実施基準 : 2021」, AESJ-SC-S001:2021
- 11) RESULTS OF PHENOMENA IDENTIFICATION AND RANKING TABLE(PIRT) EXERCISE FOR A SEVERE ACCIDENT IN A SMALL MODULAR HIGH-TEMPERATURE GAS-COOLED REACTOR, CNL NUCLEAR REVIEW, p.159, 2019
- 12) A state-of-the-art report on scaling in system thermal-hydraulics applications to nuclear reactor safety and design, NEA/CSNI/R(2016)14

3. 蒸発乾固事故

3.1 事故の概要（フェーズⅡ報告書¹⁾ 4.1 節参照）

3.1.1 システム概要

(1) 高レベル濃縮廃液貯槽

高レベル濃縮廃液は、使用済燃料の硝酸溶解液からウランおよびプルトニウムを抽出した後の廃液をさらに、蒸発濃縮したものをいう。この廃液には、使用済燃料中の不溶解残渣を除く核分裂生成物およびマイナーアクチニドのほぼ全量が含まれる。高レベル濃縮廃液貯槽は、濃縮廃液をガラス固化前に必要に応じて一時的に貯蔵するバッファ槽のことである。1 基当たり 120 m³ の廃液が貯蔵でき、崩壊熱量は約 0.6 MW になる。このような貯槽は 3 基(内 1 基は高レベル廃液共用貯槽)設置している。

(2) 冷却水系統構成

文献²⁾ には六ヶ所再処理工場の高レベル濃縮廃液貯槽の冷却水系統の概要が示されている。それを図 3-1 に転載し、その性能および特徴の概要を次に引用する。

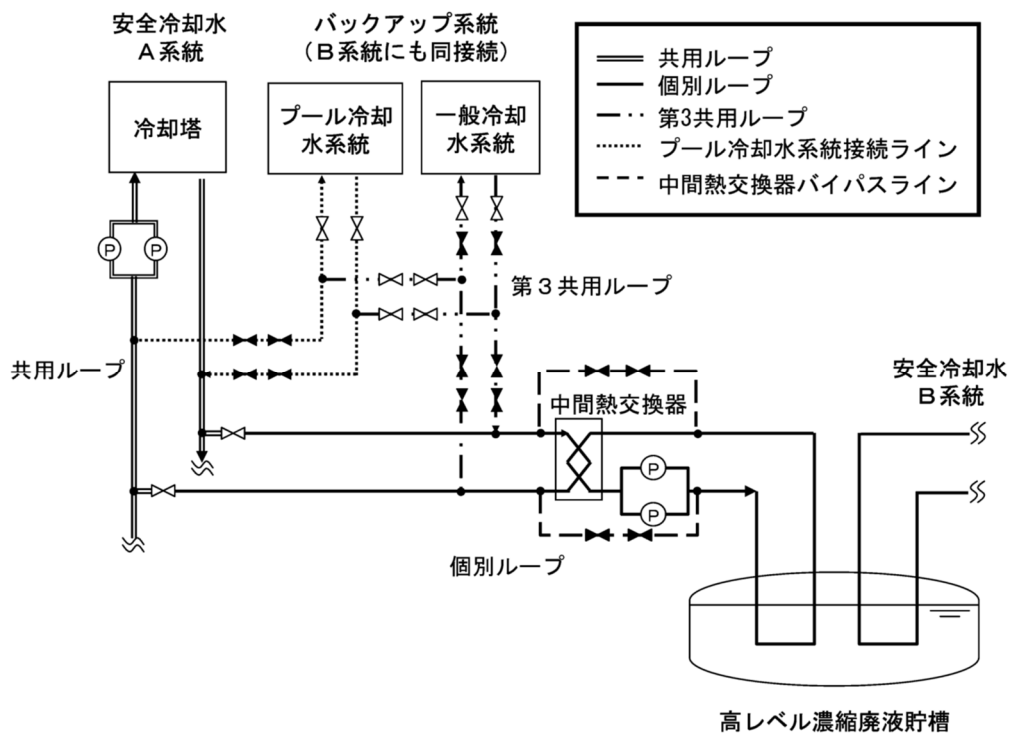


図 3-1 冷却系統の構成

a) 冷却は、高い信頼度を達成するために A および B の互いに独立した 2 系統の安全冷却水系統を用いて行う。これらは 1 系統でも、発生する崩壊熱を十分除去できる設計としている。各系統とも、共用ループおよび個別ループにより構成される。共用ループとは、沸とう防止を必要とする多数の貯槽に共通使用される冷却水系統部分であり、冷却塔、共用ループ循環ポンプおよび弁/配管で構成される。個別ループとは各貯槽個別に設置している部分であり、中間熱交換器、個別

ループ循環ポンプおよび弁/配管(貯槽内冷却コイル含む)で構成される。共用ループおよび個別ループの循環ポンプはいずれも各系統に各 2 台設置し、1 台稼動、1 台待機である。なお、第図 3-1 に示すように、個別ループの弁/配管には、共用ループ循環水を各貯槽の中間熱交換器まで導く弁/配管を含めることにする。また、共用ループと個別ループを隔離する弁は個別ループ側の弁に含まれる。

b) 中間熱交換器または個別ループ循環ポンプに異常が発生した場合には、これら機器のバイパス操作を、手動弁を開閉して行うことにより、共用ループの冷却水を個別ループに導入して貯槽の直接冷却が可能である（以下、「バイパス操作」という）。

c) 120 m³ 貯槽は 3 基設置し、相互に廃液の移送が可能なように各貯槽にスチームジェットポンプを設置している。個別ループの冷却機能喪失が発生した場合には、必要に応じてスチームジェットポンプを用いて他の貯槽に廃液を移送することが可能である（以下、「液移送操作」という）。

d) 安全冷却水系統の共用ループに故障が発生した場合には、一般冷却水系統(1 系統設置)およびプール冷却水系統(独立 2 系統設置)の冷却水を導入使用することが可能である（以下、「バックアップ系統の接続操作」といい、A、B いずれの系統にも接続可能）。これらの冷却水系統は第三の共用ループともいえる。なお、プール冷却水系統をバックアップ系統として使用する場合は、2 系統のうち 1 系統を安全冷却水系統に接続し、残りの 1 系統でプール水冷却を行う運用を仮定する。プール冷却水系統についても 1 系統で使用済燃料貯蔵プールの崩壊熱を除去できる設計としている。

e) 外部電源は 2 回線から受電している。安全冷却水系統 A および B には、ディーゼル発電機各 1 台を有する独立した 2 系統の母線から給電する。さらに、バックアップとしてのプール冷却水 2 系統および一般冷却水 1 系統の計 3 系統には、ディーゼル発電機各 1 台を有する別の独立した 3 母線より給電する。

f) 上記各冷却水系統の設備・機器の起動、制御および状態監視は互いに独立した各計測制御系統を用いて行う。安全上重要な施設としている設備・機器の故障、電源の故障には安全制御盤を介して、また、生産系と位置付けている設備・機器の故障および流量、温度、水位等のプロセス異常には分散型制御システムを介して警報あるいは注意報を中央制御室に発信する。

3.1.2 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、3.1.1 (2)に示すように六ヶ所再処理工場では、信頼度の高い独立 2 系統の安全冷却水系統を設置している²³⁾。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⁴⁾。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3-2に事故時の蒸気などの流れを示す。

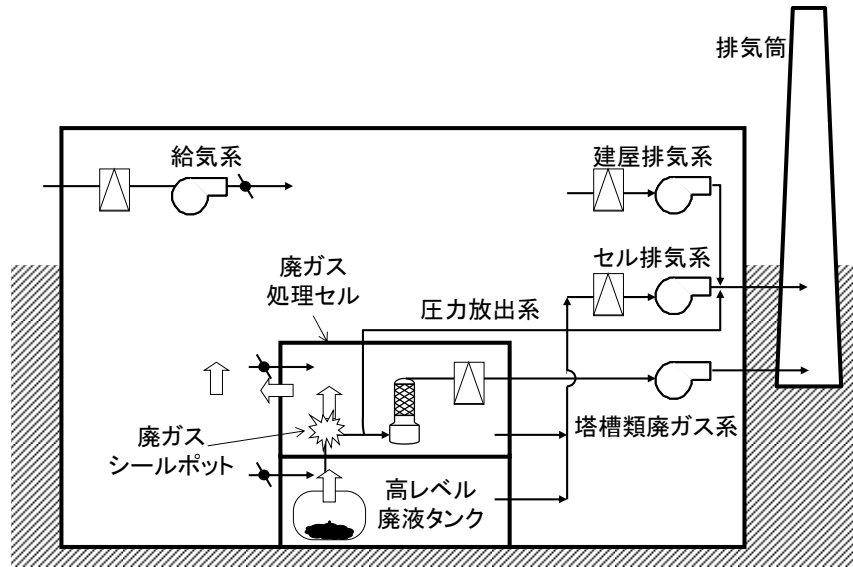


図 3-2 想定される放射性物質の移行経路（参考文献⁵⁾より転載）

参考文献⁶⁾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⁵⁾では、この解析結果に加え参考文献⁷⁾の実液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おり図3-3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℃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⁵⁾。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⁷⁾。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⁵⁾。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。

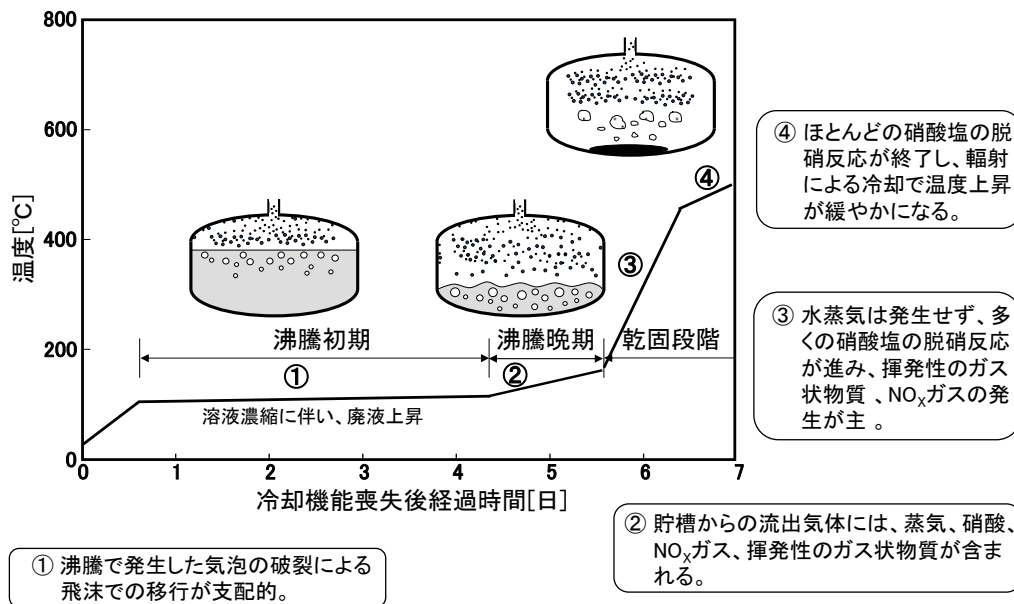


図 3-3 熱流動解析による事象進展予測結果（参考文献⁵⁾より転載）

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が重要となる。

参考文献

- 1) 池田泰久, 村松健, 青柳春樹, et al. 日本原子力学会再処理・リサイクル部会 核燃料サイクル施設シビアアクシデント研究 ワーキンググループ フェーズⅡ報告書「再処理施設において想定される事故の 影響評価手法の現状と課題」, 2017.
- 2) 宮田敬士, 武部和巳, 玉内義一, et al. 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. 2008;7:85-98.
- 3) 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）.
- 4) 関根啓二 et al. 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 年会・大会予稿集 vol. 2012f, E32 (広島, 2012).
- 5) 「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.

- 6) 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;2012-026.
- 7) Philippe M, Mercier JP, Gue JP. Behavior of ruthenium in the case of shutdown of the cooling system of HLLW storage tanks. 1991. p. 831–843. Report No.: CEA-CONF-10424.

3.2 影響評価

3.2.1 蒸発乾固事故に係る物理化学現象

蒸発乾固事故進展に係る物理/化学現象を同定する。この作業は、2.5 章(3)に記す PIRT 整備手順に準拠し作成した PIRT は付録 C に掲載する。本章では PIRT 作成の目的、FOM の選定、前提条件、及び現象の同定結果について記載し、作成時の現象同定やランキング決定に関する議論・結果については付録 C に委ねる。

(1) 本書における PIRT 整備の目的

本書における蒸発乾固事故 PIRT の整備目的は、「技術継承」、「解析コード整備」、「リスク情報の活用」、及び「知識レベルの把握・向上」と多方面と捉える（図 3-4 参照）。但し、現象の同定作業においては、解析コードでモデル化するレベルまでを想定する。蒸発乾固事故 PIRT の整備・活用を通じ、現状の知識レベルを俯瞰することが可能となる。これによって補強すべき実験的知見、評価モデル整備の項目が明確となり、再処理施設運用の安全性向上に資する研究や解析コード開発を促進するものと期待される。また、リスク情報活用における不確実さ評価という断面でも、不確実さパラメータ抽出の判断材料として PIRT 引用が考えられる。さらに現状の知識レベル俯瞰は、再処理分野の技術継承、ひいては人材育成に繋がることを期待する。

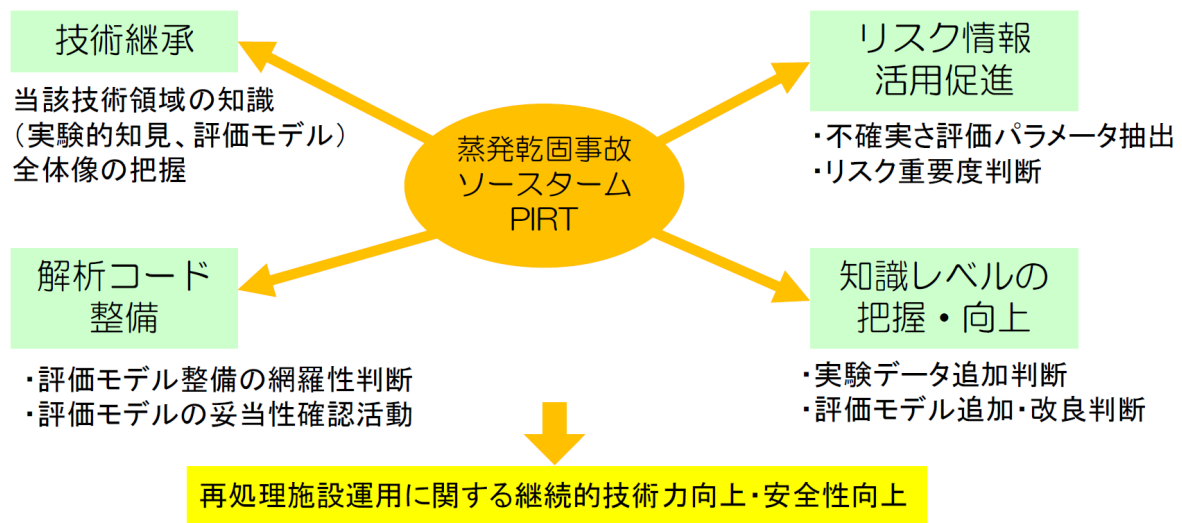


図 3-4 蒸発乾固事故 PIRT の活用方法

(2) 対象施設・事象・シナリオの選定

燃料再処理施設の内、高レベル廃液貯槽を有するプロセスにおける蒸発乾固事故を対象とする。現象の同定においては、事故発生後のアクシデントマネジメントに係る現象も含める。

(3) 注目パラメータ（性能指標：FOM）の選定

蒸発乾固事故で想定される放射性物質の環境放出では、難揮発性 FP（飛沫同伴によるエアロゾル発生）、及び揮発性 Ru (RuO_4) が重要なソースタームとなる。このため PIRT 作成における注目パラメータ（性能指標：FOM）は難揮発性 FP、及び揮発性 Ru の環境移行量とする。

(4) PIRT 整備における前提条件

再処理施設における蒸発乾固事故の PIRT 整備を行うに当たり、現象を同定する時間領域、物理領域を設定する。時間領域は、表 3-1 に示すとおり現象の構成が大きく異なる「沸騰早期フェーズ」、「沸騰晩期フェーズ」、及び「乾固期フェーズ」に分割し、それぞれのフェーズについて「難揮発性 FP の環境移行量」、及び「揮発性 Ru の環境移行量」に対する重要度ランキングを判定する。なお、物理領域については、大きくは「貯槽」及び「セル・建屋」に分類されるものの現象に依り双方に跨るものも存在するため、PIRT 整備は物理領域を明示することはしない。

表 3-1 各時間領域に対する事象概要

フェーズ	事象進展概要	備考
沸騰早期 (～120℃)	冷却機能喪失後、沸騰が始まると水分が蒸発し廃液が徐々に濃縮され、溶液温度は水・硝酸共沸温度に至る。この期間中、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。	環境への主な放射性物質移行：難揮発性 FP
沸騰晩期 (120～150℃)	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共に溶液の粘性の高い状態を経て約 150℃で溶液成分が殆ど消失する。この期間では徐々に飛沫同伴が抑制され、乾固期に近づく貯槽からの流出気体は、水蒸気、硝酸蒸気、NO _x 、酸素、揮発性 RuO ₄ 等となる。	環境への主な放射性物質移行：難揮発性 FP、揮発性 RuO ₄
乾固期 (150℃～)	乾固後は約 400℃までに多くの化学種の硝酸塩の脱硝反応が進む。この期間における貯槽からの流出気体は、揮発性のガス状物質を含む NO _x ガスが主であるが、更に温度が上昇すると難揮発性 FP の放出が開始される。	

(5) PIRT 作成チームの編成

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3」で編成された蒸発乾固サブワーキンググループを PIRT 作成チームとする。チームは産学の専門家で構成され、専門分野は試験、解析、設備運用、及びリスク評価等の多岐を網羅している。

(6) 現象の同定、及びランキング結果

蒸発乾固事故に含まれる現象の同定、及びランキング結果を表 3-2 に記す。ランキングは AHP、及びデルファイ法に基づく投票の結果を集計したものであり、解析コードによる感度解析の結果等をフィードバックしたものではない。作成時の現象同定やランキング決定に関する議論・結果については付録 C を参照のこと。また、各現象に対する知識レベルの集約も付録 C に掲載する。

表 3-2 蒸発乾固事故 PIRT

現象			ソースターム（難揮発性FP）			ソースターム（揮発性Ru）		
分類	大項目	小項目	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期
廃液沸騰・濃縮	発熱	崩壊熱	H	H	H		H	H
	熱物性	硝酸溶液物性	H	H	L		H	L
		乾固物物性	L	M	H		M	H
		貯槽構造物の伝熱	H	H	M		H	H
	硝酸溶液の沸騰	蒸気発生（蒸発、沸騰）	H	H	L		H	L
		廃液濃縮	H	H	L		M	L
		モル沸点上昇	H	M	L		M	L
		共沸	H	M	L		M	L
		塩効果	M	M	L		M	L
		硝酸活量	M	M	L		M	L
		硝酸解離度（電離度）	M	M	L		M	L
		結晶水脱水	L	M	M		L	L
		硝酸塩・酸化物析出	M	M	L		L	L
硝酸、NOx 反応	脱硝反応（乾固段階）	NOx、O2発生	L	M	H		M	H
		吸熱反応	L	M	M		M	H
	NOx挙動	化学平衡	L	M	L		M	M
		NO2の液相中への溶解	M	H	M		M	M
		気液中のNOx成分比変化	L	M	L		M	M
		NO2液相吸収に伴う亜硝酸生成	L	L	L		M	H
	放射線分解	放射線分解に伴う亜硝酸生成	M	H	M		H	M
	硝酸・壁面反応	コンクリート壁面との反応	M	M	L		M	M
		金属壁との反応	M	M	L		H	H
揮発性Ruの移行	RuO4生成	Ru酸化	L	M	L		H	H
		亜硝酸によるRu還元	L	L	L		H	M
		乾固物からの移行	L	L	L		M	H
	RuO4気相移行	気液平衡	L	M	L		H	H
		CeによるRu揮発性低減	L	L	L		H	H
	気相からのRuO4除去(LPF)	Ru還元	L	L	L		M	H
		RuO4分解	L	L	L		H	H
		壁面への沈着（化学吸着/物理吸着）	L	L	L		H	H
		液相吸収（化学吸収）	L	L	L		H	H
	工学的手段によるRuO4除去(LPF)	還元剤との反応	L	L	L		M	M
		スプレーによる除去	M	M	M		H	H
		凝縮器による除去	M	M	M		H	H
難揮発性物質の移行	飛沫同伴による粒子状FP生成	液面近傍における蒸気流速	H	H	M		L	L
		液相物性	H	H	M		L	L
		気相物性	M	M	M		L	L
		飛沫同伴	H	H	M		L	L
	RuO4還元による粒子状FP生成	RuO4還元による粒子状FP生成	L	L	L		H	H
		凝集	H	H	H		M	M
	粒子径分布	液滴蒸発	H	H	H		L	L
		重力沈降	H	H	H		L	L
	気相からの粒子状FP除去(LPF)	拡散泳動	H	M	M		L	L
		熱泳動	M	M	M		L	L
		慣性衝突	H	H	H		L	L
		気相物性	M	M	M		L	L
		吸湿性による粒子成長	H	H	H		L	L
		スプレーによる除去	H	H	H		M	M
	工学的手段による粒子状FP除去(LPF)	凝縮器による除去	H	H	H		M	L
		フィルタによる除去	H	H	H		L	L
キャリアガスの振る舞い	気相流動	壁面凝縮	H	M	M		M	M
		ミスト生成	H	H	M		M	M
		差圧移流	M	M	M		M	M
		自然循環	M	M	M		M	L
	工学的手段によるキャリアガスへの影響	成層化	M	L	L		M	L
		スプレーによる流速抑制	H	H	H		H	H
		凝縮器による流速抑制	H	H	H		H	H
その他	沈着物からの再放出	換気系作動	H	H	H		H	H
		再浮遊（再蒸発）	L	L	L		L	M
	高温の貯槽への注水時の放出	注水の影響	L	M	M		M	M

※揮発性Ruは沸騰初期（沸騰開始～廃液温度120℃）では発生しないとの既存知見より、「沸騰早期の揮発性Ruの環境放出量」はFOMから除外

3.2.2 蒸発乾固事故に係る実験知見

(1) 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) 仏国原子力庁にて行われた実験 (SAWG-2 報告書¹⁾より転載)

仏国原子力庁 (CEA: Commissariat à l'Energie Atomique) の旧原子力安全防護研究所 (IPSN: Institut de Protection et Sécurité 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²⁾。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 の顕著な揮発が始まり、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) 旧原子力安全基盤機構・日本原子力研究開発機構・日本原燃㈱にて行われた実験 (SAWG-2 報告書¹⁾より転載)

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㈱は、「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究」³⁾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。

- ・ 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 RuO₄ 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

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) 電力中央研究所にて行われた実験

電力中央研究所（電中研）においても、日本原燃(株)および欧州 JRC-Karlsruhe (JRC-KA) との共同研究で実廃液を用いた加熱試験が、JRC-KA のホットセル施設で行われている^{4,5)}。この試験では、燃焼度 60 GWd/tU まで照射した UO_2 燃料を硝酸に溶解し、U、Pu を回収する再処理を行って高レベル廃液を調製し、さらに加熱により所定の濃度まで FP (Fission Products) を濃縮して用いた。加熱試験に用いた高レベル濃縮廃液中の FP 濃度は 100 g-FPs/L-廃液、Ru 濃度は約 2600 ppm、硝酸濃度は 2.5 mol/L-廃液である。加熱試験の昇温プログラムは、崩壊熱による温度上昇を模擬して設定され、試験管に投入した廃液を 3 日程度かけて蒸発、乾固させた後、さらに 400℃まで昇温し脱硝した。加熱に伴い発生した水蒸気、硝酸蒸気を凝縮して回収し、Ru をはじめ各核種の凝縮液中および後段のスクラバー液中の濃度を分析し放出量を求めた。初期投入量に対する放出量の割合（(放出量/初期投入量)×100 (%)）で定義した Ru の放出率は 4%程度であった。同様の試験装置、試験手順で模擬廃液を用いた加熱試験も実施されており、3～6%の Ru 放出率が得られている⁶⁾。

一連の加熱試験では、実廃液に含まれる Am, Cm, Cs の放出率も取得している⁵⁾。これらの元素は 400℃までの加熱では揮発しないと考えられ、沸騰や脱硝に伴い生成した飛沫が凝縮液等へ移行したと考えられる。また、Ru 放出の抑制方法を検討するために、ショ糖 ($\text{C}_{12}\text{H}_{22}\text{O}_{11}$) を添加した試験も実施された⁴⁾。硝酸 (HNO_3) に対するモル比 ($\text{C}_{12}\text{H}_{22}\text{O}_{11}/\text{HNO}_3$) で 1/12 のショ糖を添加することで、Ru の放出率を添加しない場合に比べて 1/100 以下に低減できたことが示された。硝酸溶液中の Ru は加熱に伴って揮発性の RuO_4 に酸化されて気相に放出されることから、還元剤となるショ糖の添加により RuO_4 の生成が抑制されたと考えられる。還元剤等の添加剤と Ru や硝酸イオン (NO_3^-) との反応を検討することで、 NO_3^- を含む媒体中での Ru の酸化メカニズムの解明に繋がることも期待される。

上記のような実廃液あるいは模擬廃液の加熱試験では、凝縮液やスクラバー液を回収して Ru 等の放出挙動を分析するため、加熱温度や加熱時間に対して放出量や放出ガスの組成の変化を詳細に測定することが難しい。そこで、熱分析装置で少量の模擬廃液や混合硝酸塩の試料を加熱し、放出ガスを含むオフガスを質量分析計や赤外吸収分光光度計に連続的に導入して分析する研究も行われている⁷⁻¹⁶⁾。模擬廃液からの放出ガスが分析され、 RuO_4 だけでなく、硝酸蒸気や NO_2 , NO の放出温度域や放出量、放出ガス組成が得られ、 RuO_4 の放出挙動と硝酸の蒸発挙動、 NO_3^- の分解挙動との相関について検討されている（エラー! 参照元が見つかりません。および図 3-16 参照）^{9,10,14)}。また、Ru の放出挙動に与える共存元素の影響を調べるために、硝酸ニトロシル Ru ($\text{RuNO}(\text{NO}_3)_3$) と希土類元素などの模擬 FP の硝酸塩や遷移元素の硝酸塩との混合試料からの放出ガスについても分析された。共存する元素によって、 RuO_4 や NO_x ガスの放出温度域や組成が異なり、特に Ce や Zr の硝酸塩は脱硝時に RuO_4 の放出を増大させることが示された^{12,14)}。また、 RuO_4 の生成を抑制する効果が期待される還元剤のショ糖や中和剤のアルカリ水酸化物を添加

した試料の分析も実施されている^{11,13,16)}。これら還元剤や中和剤の添加量に対する RuO_4 や NO_x ガスの放出挙動の変化に基づいて、 RuO_4 の生成メカニズムが検討されている。

4) 原子力規制庁委託研究

JAEA では原子力規制庁委託研究である、原子力施設等防災対策等委託費（再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等）事業（以下、JAEA 受託研究という）を実施しており、研究対象は蒸発乾固事故に関するものが中心である¹⁷⁻²³⁾。一連の研究の中で、 RuO_4 の気相分解に関わる共存ガス（硝酸、 NO_x 、水蒸気等）の影響^{17-20,24-26)}や、 RuO_4 の気相分解により生ずる Ru エアロゾルの生成挙動¹⁹⁻²¹⁾、硝酸/水系蒸気の凝縮液に対する RuO_4 の液相移行挙動²⁰⁻²³⁾やそのモデル化²⁷⁻³⁰⁾、影響緩和策としての注水に伴う Cs 等の放出挙動¹⁹⁻²¹⁾、スプレーによる気体状 Ru の気相からの除去^{17,18)}、亜硝酸が Ru 放出に与える影響^{19,20)}、HLLW 乾固物からの Cs 等の移行挙動²¹⁻²³⁾に関する報告がなされている。

(2) 利用可能な試験データ

1) 廃液沸騰・濃縮

a 発熱

(a) 崩壊熱

吉田らは、MELCOR コードを用いて蒸発乾固事故事象の解析を行った^{31,32)}。その際に用いられた高レベル放射性廃液の崩壊熱による発熱は 5 W/L を仮定している。この値は、文献³³⁾に記載の、

“1 基当たり 120 m^3 の廃液が貯蔵でき、崩壊熱量は約 0.6 MW になる。” および、

“発熱量は、濃縮廃液発生量を使用済燃料 1 t 当たり 0.4 m^3 、処理する使用済燃料の冷却期間 6 年、燃焼度 45,000 MWd/t の条件のもとに算出した。事業指定上の冷却期間は 4 年以上であるが、現時点における受入れ時の平均冷却期間の実績およびプールでの平均貯蔵期間 3 年以上(プールの貯蔵容量 3,000 t および最大再処理量 800 t/y を最大限運用したと仮定すると使用済燃料の平均的な貯蔵期間は 3.75 年となる)を考慮し、評価上 6 年を仮定した。燃焼度は事業指定上再処理可能な 1 日平均最大値とした。”

を根拠としている。文献³¹⁾ではこの発熱量を総崩壊熱量とし、脱硝反応による吸熱、貯槽からの放熱を考慮した実効発熱量評価式を提示している。

b 熱物性

(a) 硝酸溶液物性

吉田らは多成分硝酸塩水溶液の気液平衡実験を行い、再処理廃液の組成を模擬した多成分硝酸塩水溶液を2種作成し、これらに関する気液平衡データを取得した³²⁾。取得されたデータは液相部の硝酸モル分率と試料溶液の沸点との関係および液相部と気相部の硝酸モル分率の関係である。硝酸塩モル分率が高いほど塩効果が大きくなり硝酸の揮発が促進されるとする既知の知見である塩効果の定性的な傾向が見て取れるとしている（図 3-5、図 3-6）^{34,35,2)}。

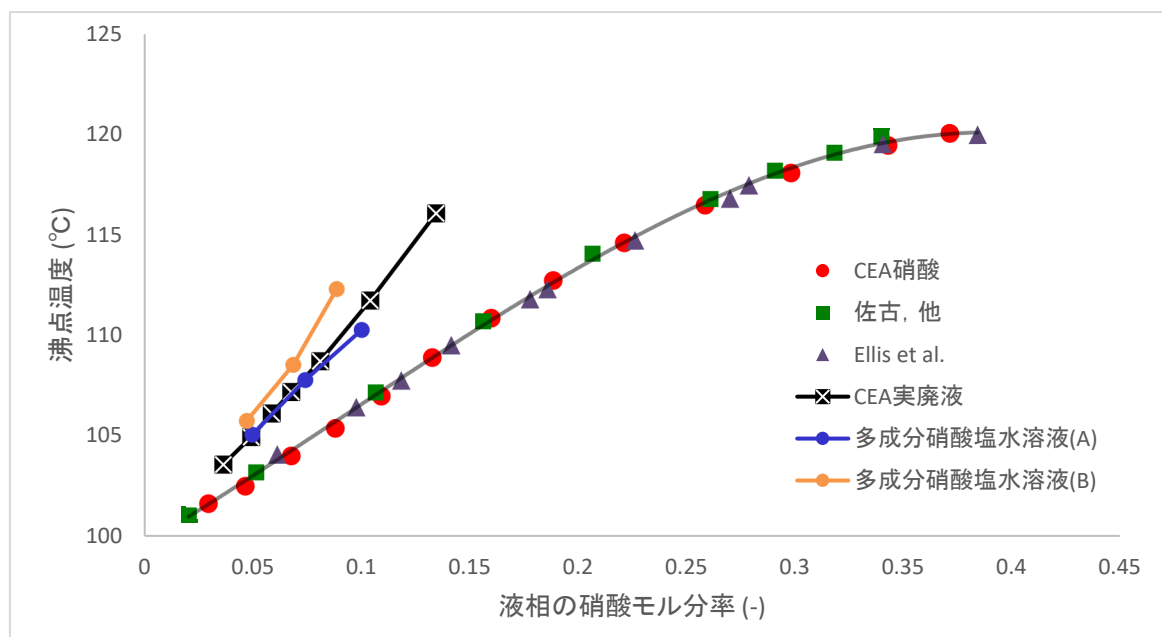


図 3-5 液相部の硝酸モル分率と試料溶液の沸点との関係（文献³²⁾より再構成）

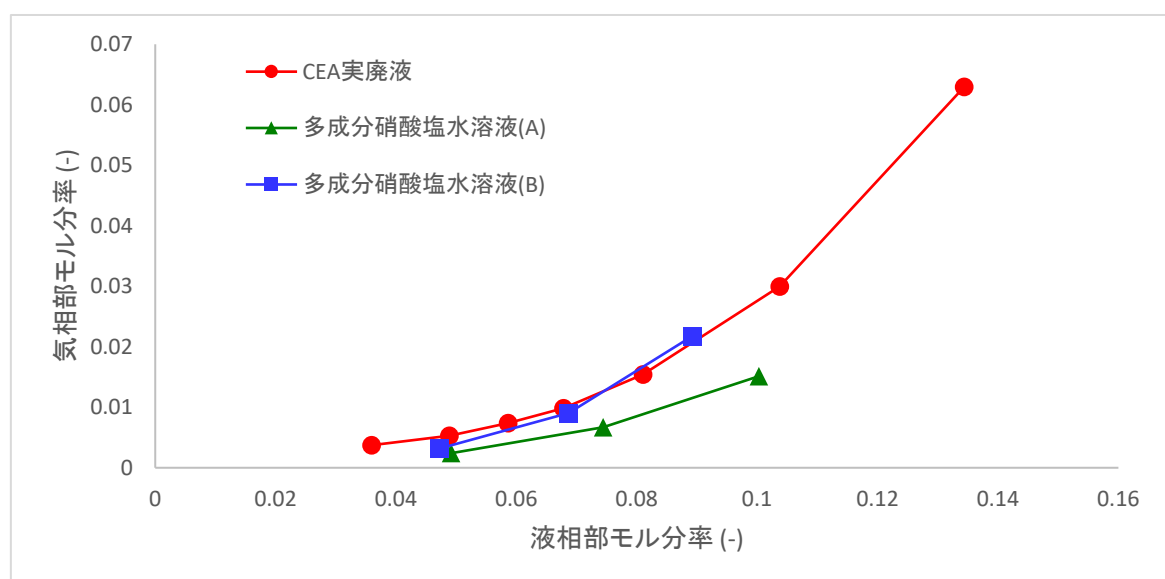


図 3-6 液相部および気相部の硝酸モル分率の関係（文献³²⁾より再構成）

(b) 乾固物物性

産官学共同研究³⁾において、600 °C まで加熱した模擬廃液乾固物試料（模擬乾固物）の DSC (Differential Scanning Calorimetry) 曲線を取得し、試料の 500 K における定圧比熱容量を $0.32 \text{ (J} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1})$ と算出した。著者らは、この値はランタノイド酸化物(約 $0.4 \text{ (J} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1})$)に近い値であると主張している。

原子力機構は、模擬乾固物の物性値（密度、比表面積、細孔容積、比熱、密度、熱拡散率、熱伝導率、熱伝導率（かさ密度使用））を取得している^{19,21)}。表 3-3 に模擬乾固物の物性値を示す。さらに模擬乾固物の比熱の温度依存性を調べた結果を表 3-4 に示す。温度の上昇に伴い熱分解が起こるため、重量減少が発生しない温度範囲で可能な限り温度を上げて比熱を測定した。測定時温度の上昇に伴い比熱が増加する傾向がみられた。文献³⁾では模擬乾固物の外観の一例が示されている。乾固状態では乾固物内部に空隙が生成されていることから、乾固段階における乾固物内部の伝熱を計算するには、物性値の温度依存性だけでなく空隙の生成も考慮する必要があると考えられる。

表 3-3 模擬乾固物の物性値（密度，比表面積，細孔容積，比熱，熱拡散率，熱伝導率）（文献¹⁹記載の表を統合）

試料 No.	試料作製 温度 (℃)	密度 (g/cm³)	比表面積 (m²/g)	細孔容積 (mL/g)	測定温度 (℃)	比熱 (J/(g·K))			熱拡散率測定試料 のかさ密度 (g/cm³)	熱拡散率 (cm²/s)			熱伝導率 (W/(m·K))		
1	150	2.61	15.5	0.001	30	0.727			2.25	1.04×10 ⁻³			0.170		
					55	0.792				1.00×10 ⁻³			0.178		
					80	0.897				8.69×10 ⁻⁴			0.175		
2		2.56	31.6	0.004	30	0.697			2.36	1.39×10 ⁻³			0.229		
					55	0.735				1.39×10 ⁻³			0.241		
					80	0.803				1.24×10 ⁻³			0.235		
3		2.61	13.3	0.003	30	0.728			2.57	1.35×10 ⁻³			0.253		
					55	0.785				1.30×10 ⁻³			0.262		
					80	0.887				1.07×10 ⁻³			0.244		
4		3.07	16.3	0.0005											
5		3.07	18.3	0.0001											
6		3.08	28.8	0.008											
7	270	3.43	42.5	0.091											
8		3.05	34.5	0.079											
9		3.45	42.3	0.091											
10	400	4.83	41.2	0.077											
11		4.85	37.3	0.84											
12		4.74	36.4	0.086											
13	150				30	0.688	0.688	0.704	2.92	1.54×10 ⁻³	1.55×10 ⁻³	1.55×10 ⁻³	0.309	0.311	0.319
					55	0.716	0.717	0.732		1.49×10 ⁻³	1.49×10 ⁻³	1.49×10 ⁻³	0.312	0.312	0.318
					80	0.777	0.782	0.801		1.41×10 ⁻³	1.40×10 ⁻³	1.38×10 ⁻³	0.320	0.320	0.323
14	270				30	0.606	0.611	0.632	3.23	1.75×10 ⁻³	1.73×10 ⁻³	1.74×10 ⁻³	0.343	0.341	0.355
					55	0.630	0.634	0.654		1.69×10 ⁻³	1.69×10 ⁻³	1.66×10 ⁻³	0.344	0.346	0.351
					80	0.662	0.667	0.690		1.60×10 ⁻³	1.59×10 ⁻³	1.56×10 ⁻³	0.342	0.343	0.348
15	400				30	0.447	0.444	0.455	3.54	1.43×10 ⁻³	1.45×10 ⁻³	1.45×10 ⁻³	0.226	0.228	0.234
					55	0.461	0.461	0.470		1.42×10 ⁻³	1.42×10 ⁻³	1.43×10 ⁻³	0.232	0.232	0.238
					80	0.482	0.483	0.492		1.41×10 ⁻³	1.41×10 ⁻³	1.41×10 ⁻³	0.241	0.241	0.246

表 3-4 模擬乾固物の物性値（比熱）（文献²¹⁾より）

試料作製温度 (°C)	測定温度 (°C)	比熱 (J/(g·K))
150	30	0.804
	50	0.856
	80	0.947
	110	1.030
	130	1.084
270	30	0.731
	50	0.750
	80	0.782
	110	0.814
	130	0.833
	150	0.851
400	30	0.601
	50	0.608
	80	0.618
	110	0.628
	130	0.635
	150	0.642
	180	0.656
	210	0.676
	240	0.697
	270	0.722
	300	0.748

(c) 貯槽構造物の伝熱（熱伝導，対流熱伝達，輻射）

この事象については，本項では取り扱わない。

c 硝酸溶液の沸騰

(a) 蒸気発生（蒸発，沸騰）

高レベル廃液は様々な溶質を含んだ硝酸水溶液であり，蒸気に変化した際には放射性物質のキャリアガスとなる。蒸発乾固事故を対象とした研究の中で蒸気発生そのものに着目したものは少なく，吉田らの報告³²⁾があるのみである。実験データとして 3.2.2(2)1)b(a)に記載のものが存在する他，吉田らは沸騰時の蒸発速度を計算する際に用いたデータとして，蒸気圧表の他，CEA で実施された実験²⁾の結果を用いている。また，実事故における加熱条件を模擬した，模擬廃液の加熱実験における凝縮液量と組成に関するデータがある³⁶⁾。

(b) 廃液濃縮

事故進展時には 3.2.2(2)1c(a)項に示したような水・硝酸蒸気が発生し、それに伴って廃液が濃縮される。廃液の濃縮には低沸点の溶媒である水が蒸発することで高沸点溶媒である硝酸の濃度が増大する現象（硝酸活量の変化 3.2.2(2)1c(f) および硝酸解離度（電離度）の変化 3.2.2(2)1c(g) が関連）と、溶媒の蒸発に伴って溶質の濃度が大きくなる現象（モル沸点上昇 3.2.2(2)1c(c)，共沸 3.2.2(2)1c(d)，塩効果 0，および硝酸塩・酸化物の析出 3.2.2(2)1c(i)が関連）が関与する^{37,38)}。

(c) モル沸点上昇

溶液中に不揮発性の物質が溶存する場合、溶媒の蒸気圧が下がり、沸点が上昇する。十分に希薄であれば、この沸点上昇幅は不揮発性物質の溶存濃度に依存する³⁹⁾。これは蒸発面の一部を不揮発性物質が覆い、蒸発を妨げるとイメージできる。一方、硝酸のように水との間に強い相互作用を及ぼす物質が溶存する場合は、上記の効果以上に沸点が上昇する⁴⁰⁾。この「相互作用」は、水分子と硝酸分子が電氣的に引っ張り合うことで蒸発を妨げるとイメージできる。この相互作用の効果は、「硝酸活量 3.2.2(2)1c(f)」にて後述される。

再処理施設における高レベル廃液では、水に溶存する物質として硝酸塩と硝酸が考えられる。ただし硝酸塩は、沸騰が進むにつれて析出・熱分解されること、また、硝酸塩同士の相互作用も予想されることから、沸点上昇に寄与する濃度は一定とならないと考えられる。このことから、水－単体の硝酸塩の溶液に対する沸点上昇の実験データは、塩の析出・熱分解・塩同士の相互作用の効果が含まれていないことに注意が必要となる。

CEA 実験²⁾、小玉ら⁴¹⁾に代表される廃液の沸騰実験では、廃液温度の上昇過程が計測されている。ただし、これらは不揮発性物質としての硝酸塩によるモル沸点上昇だけではなく、上述した硝酸塩の析出や熱分解、水と硝酸間の相互作用といった効果を全て含んだ結果である。

(d) 共沸

硝酸水溶液の加熱沸騰が継続した場合、水と硝酸はそれぞれの蒸気圧に応じた比率で蒸発し、硝酸-水系の共沸点（常圧下で 120.05 °C）に至る。この共沸点においては、水と硝酸は同じ割合で蒸発するし、気相と液相の硝酸の含有量（68.4wt%）は同一となる（図 3-7）。この物理現象を基として、そこから解離しうる要因について後述する^{32,34,35}。

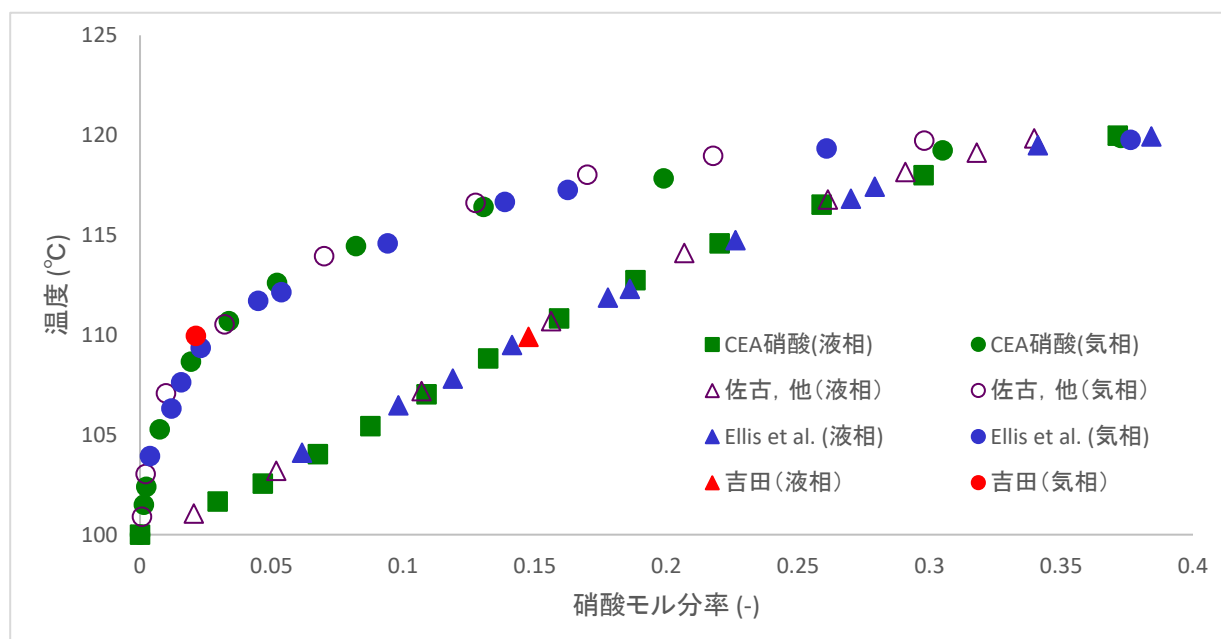


図 3-7 硝酸水溶液加熱時の気液平衡（文献³² 記載値より再構成）

(e) 塩効果

揮発性電解質（硝酸など）の水溶液に添加された不揮発性の塩類や有機物は、液相中の成分の活量を変化させるため気液平衡関係に大きな影響を与え、溶解した塩によって揮発性電解質の相対揮発度が増大することが知られている。これらの現象は気液平衡における「塩効果」と言われる^{37,38}。HLLW は FP に由来する硝酸塩を含む硝酸水溶液であるので、沸騰により廃液の濃縮が進むにつれて、FP 硝酸塩の塩効果が増大し硝酸の気化が促進されると考えられる。このような硝酸塩の気液平衡に係る特性から、廃液が沸騰乾固事故を精度良く模擬するには、塩効果を考慮した気液平衡データ（気液各相の硝酸モル分率）が不可欠であると考えられる。

しかしながら、文献³⁴では、硝酸塩モル分率が同程度でも成分が異なる場合には塩効果に大きな違いが生じる例が示されている。HLLW のような様々な硝酸塩を含み、個々の成分の濃度が必ずしも同一ではない溶液では、塩効果を個々の硝酸塩の塩効果から求めることは困難である。

吉田らは、多成分の硝酸塩を含む硝酸溶液の気液平衡に関するデータを取得するための現実的なアプローチとして、成分既知の種々の硝酸塩を含む硝酸溶液を作成し、気液平衡に関する実験データを実測することで、硝酸塩総モル分率をもとに気液各相のモル分率の相関を推定している³²。図 3-8、図 3-9 に結果の例を示す。

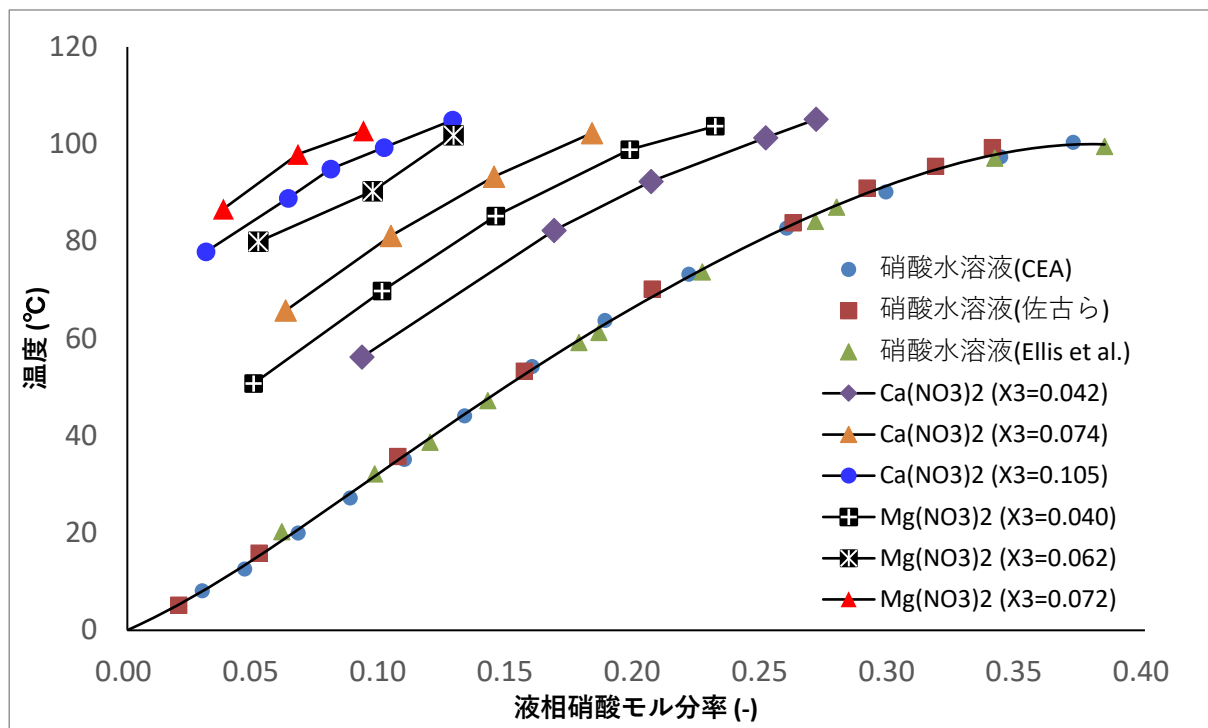


図 3-8 含有する不揮発性塩の種類およびモル分率の違いによる硝酸水溶液の沸点上昇の相異
(文献³²⁾ 記載値より再構成, X3 は 3 成分に対する塩のモル分率)

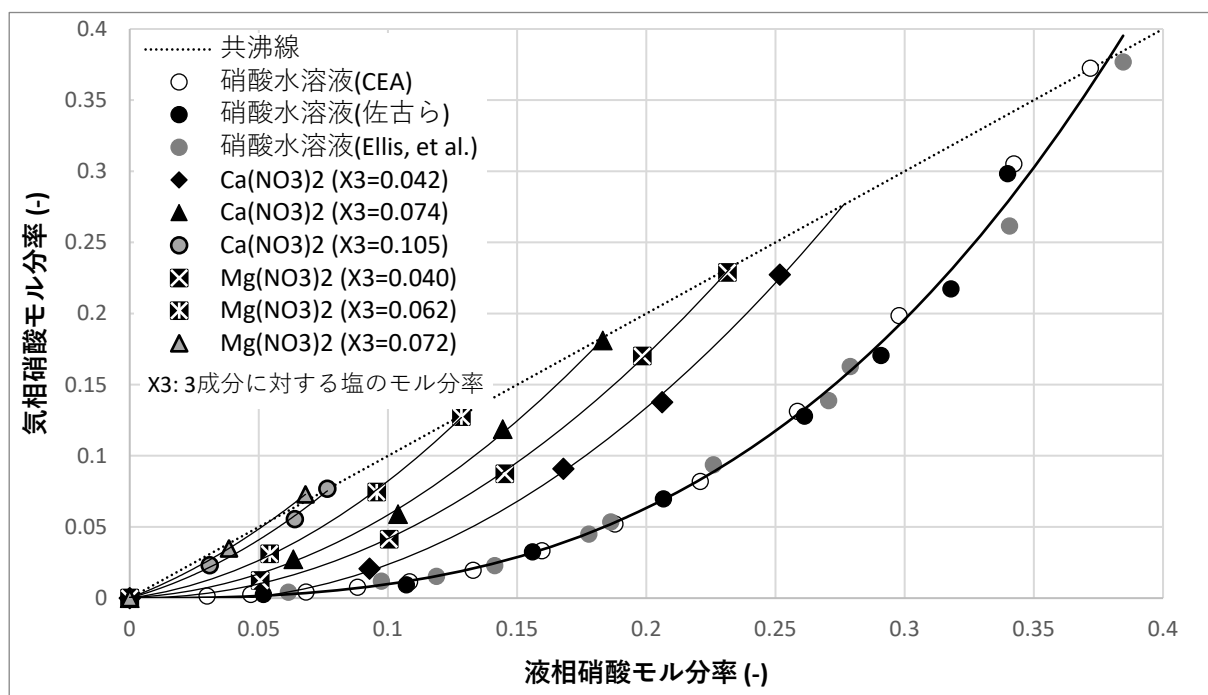


図 3-9 不揮発性塩を含む硝酸水溶液の気液平衡時の硝酸モル分率の関係に及ぼす塩効果 (文献³²⁾ 記載値より再構成)

(f) 硝酸活量

硝酸水溶液の活量係数については、文献⁴⁰⁾に詳述されている。本稿では廃液中の硝酸活量について述べる。Sasahira らは HLLW の濃縮過程での Ru の気相部への移行量は、硝酸濃度および硝酸活量で決定されるとし、硝酸溶液中の RuO_4 の生成速度式を提案している⁴²⁾。蒸発乾固事故時にもこの式が適用可能である場合には、硝酸活量は重要なデータとなる。吉田らは文献⁴³⁾において、CEA 実験²⁾で取得された実験結果を整理した。以下の4段階を経て硝酸および水の活量係数を計算している：①HLLW を加熱した際の凝縮液の組成を得る，②①から気相部の組成を得る，③②から硝酸蒸気及び水蒸気の分圧を求める，④ラウールの法則から活量を計算する。図 3-10 にその結果を示す。

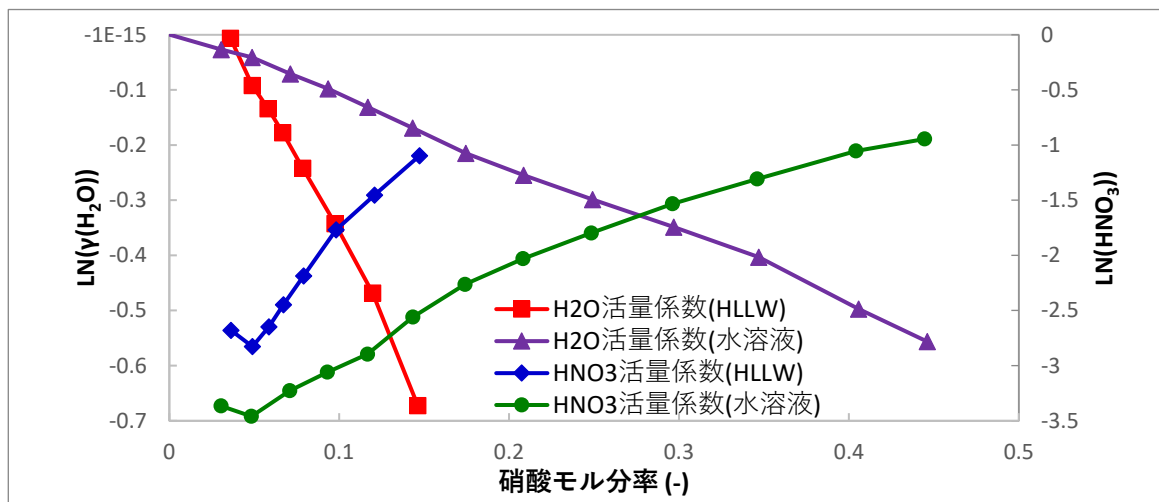


図 3-10 廃液および硝酸水溶液の硝酸および水の活量係数（文献⁴³⁾ 記載値より再構成）

また、同文献内で、蒸発乾固事故時の HLLW 中の硝酸の活量の取り扱いについて、以下のような記述がある。

“再処理廃液のような多成分系の硝酸水溶液の活量係数は、硝酸以外の溶質の成分および濃度によって変化する。（中略）文献⁴⁴⁾では多成分系の活量係数を理論的に推定する手法が提案され、実験データとの比較によりその有効性が示されている。しかし、再処理廃液のような 20 数種の金属硝酸塩を含む 100°C 以上の温度領域での沸騰時の活量係数の推定に適用することは多くの硝酸塩の物性値が必要であり現実的でない。（中略）文献⁴⁵⁾では、再処理における高レベル廃液の濃縮缶での濃縮に伴う塩析出効果を考慮した濃縮液の硝酸濃度および沸点の変化を模擬する手法が示されている。水—硝酸水溶液の硝酸モル分率と活量係数および気相部圧力をもとに、塩の平均水和数およびモル分率で補正した液相硝酸モル分率を用いて濃縮過程(6.7 kPa の減圧沸騰状態)の硝酸濃度および沸点の変化を模擬している。実験との比較では、計算値が実測値に一致するように平均水和数が決定されているが、個々の塩の水和数および析出量と平均水和数との定量的な関係について触れられていない。また、硝酸濃度の模擬結果から沸点を求める手順についても示されていない。この文献では、 25°C での水—硝酸水溶液の活量係数をもとに任意の温度での活量係数を推定する手法が示されているが、大気圧での 100°C 以上の温度領域でのこの手法の適用性は十分ではない。”（本稿に引用するにあたり文献番号を変更）

(g) 硝酸解離度（電離度）

硝酸の解離度については，文献⁴⁶⁾に濃度毎の解離度が示されている他，文献³⁷⁾に記載がある。HLLW は様々な硝酸塩類を含む溶液であり，蒸発乾固事故中にはそれらの濃度が高くなることや，事象進展に伴う濃縮によって硝酸の解離度は事象中に変化する。熱解離反応は吸熱反応であるから温度上昇に伴って解離度は大となる。解離度の定義は以下の通りである：

HNO_3 の初期濃度を C [mol/L] とすると，平衡時の濃度関係は

$$\begin{aligned}\text{HNO}_3 &\rightleftharpoons \text{H}^+ + \text{NO}_3^- \\ [\text{HNO}_3] &= C(1-\alpha), [\text{H}^+] = C\alpha, [\text{NO}_3^-] = C\alpha\end{aligned}$$

となる。ここで解離度は $\alpha(=[\text{H}^+]/[\text{HNO}_3]\text{初期})$ で定義される。表 3-5 に 25℃における硝酸の解離度を示す。

表 3-5 25℃における硝酸解離度⁴⁶⁾

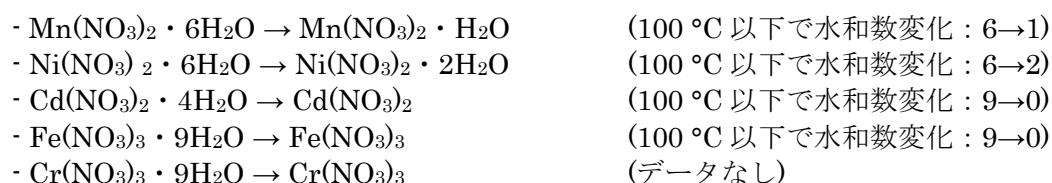
硝酸モル濃度 (mol/L)	0	5	10	14
解離度 α (-)	1.0	0.809	0.501	0.260

(h) 水和水の脱水

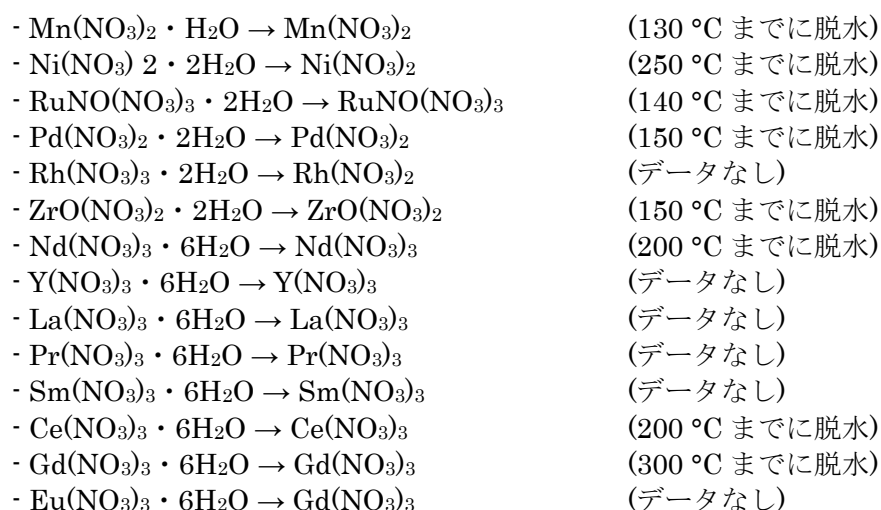
HLLW 中の硝酸塩に結合した結晶水（水和水）は、温度上昇に伴って脱離し、沸騰晩期においては溶液を希釈して硝酸濃度に影響し、乾固段階では蒸気となることで放射性物質のキャリアガスとなりうる。硝酸塩の脱水は、以下に示すように沸騰前と沸騰晩期後半の溶液から乾固物への遷移段階に起こると考えられる（参考文献³⁷⁾にある脱水反応のうち、類似元素の値を用いているものは”データなし”と記載）。なお、水和数は模擬廃液作成時に用いられた試薬等の組成から得た値である。HLLW 中の硝酸塩の組成や構造は明らかで無いものも多く、単一の成分であるかも不明であるし、脱水の中にはアコ錯体の脱水といった結晶水の脱水とは異なる反応が生じうる点に留意する必要がある。

・ 100℃ 以下(沸騰開始前)での脱水

Mn, Ni, Cd, Fe, Cr の硝酸塩結晶水は、以下の反応式に示すように分解し、全てまたは一部の結晶水が離脱すると考えられる。ここで生じた水は溶媒として考慮される。なお、以下は模擬廃液作成時の構造であり、実廃液中の硝酸塩類の化学構造を必ずしも反映しないことに注意する必要がある。



・ 100 °C 以上(沸騰開始後)での脱水 100 °C 以上では以下の脱水現象が起こると考えられる。ここで生じた水は水蒸気として放出されるものと考えられる。



また、脱水反応のみを評価した実験では無いが、天野らが実施した硝酸塩類の熱分解分析試験において、TG-DTA 曲線が取得されている（表 3-6）^{47,3)}。

表 3-6 硝酸塩等の熱分解分析試験結果（文献³⁾より）

金属・硝酸塩等	産学官共同研究 ³⁾ での結果	既往文献での反応と反応温度域
$\text{ZrO}(\text{NO}_3)_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$	約 170°C で反応開始し 260°C で終了。吸熱ピーク位置，質量減少の傾向はほぼ一致。	300°C までに脱硝し， ZrO_2 となる。
$\text{Pd}(\text{NO}_3)_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$	約 100°C で脱硝開始し 170°C で終了。吸熱ピーク位置，質量減少の傾向はほぼ一致。	200°C までに脱硝し， PdO_2 となる。
$\text{RuNO}(\text{NO}_3)_3$	約 140°C で脱硝開始し 300°C で終了。全体的に少し低温側に遷移しているが，吸熱ピーク位置，質量減少の傾向がほぼ一致。	400°C までに脱硝し， RuO_2 となる。 ⁴⁸⁾
$\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	約 230°C で脱硝開始し 300°C で終了。吸熱ピーク位置，質量減少の傾向がほぼ一致。	300°C までに脱硝し， CeO_2 となる。
$\text{Gd}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	約 300°C で脱硝開始し 520°C で終了。吸熱ピーク温度，質量減少の傾向がほぼ一致。ただし，吸熱ピークが少ない。	600°C までに脱硝し， GdO_2 となる。さらに，脱酸素して Gd_2O_3 となる。
$\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$	約 130°C で脱硝開始し 160°C で終了。吸熱ピーク温度，質量減少の傾向がほぼ一致。	200°C までに脱硝し， Fe_2O_3 となる。
$\text{Mn}(\text{NO}_3)_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$	約 140°C で脱硝開始し 230°C で終了。吸熱ピークが少し低温側に遷移している。	300°C までに脱硝し， MnO_2 となる。 ⁴⁹⁾
CsNO_3	400°C で融解し，550°C 過ぎで重量減少し始めて，完全に揮発する。	400°C で融解し，600°C 過ぎで重量減少し始めて，完全に揮発する。
$\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$	約 560°C で脱硝開始し 700°C で終了。吸熱ピーク温度，質量減少の傾向がほぼ一致。	700°C までに脱硝し， SrO となる。
$\text{Te}_2\text{O}_3(\text{OH})\text{NO}_3$	約 210°C で脱硝開始し 400°C で終了。700°C 過ぎから揮発する。	400°C までに脱硝し， TeO_2 となる。800°C 過ぎから揮発する。
$\text{Nd}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	約 360°C で脱硝開始し 560°C で終了。吸熱ピーク温度，質量減少の傾向がほぼ一致。ただし，Gd 同様，吸熱ピークが少ない。	600°C までに脱硝し， NdO_2 となる。700°C までに脱酸素して Nd_2O_3 となる。
Mo	約 400°C で酸化開始し 600°C で終了。700°C から揮発する。	600°C までに酸化されて MoO_3 となり，777°C を越えてから揮発する。 ⁵⁰⁾
$\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	約 270°C で脱硝開始し 350°C で終了。吸熱ピーク温度，質量減少の傾向がほぼ一致。	400°C までに脱硝し， NiO となる。 ⁵¹⁾

(i) 硝酸塩・酸化物析出

事故事象中には、HLLW の濃縮に伴って、溶質である硝酸塩類の析出が生ずると考えられる。吉田らによる沸騰模擬ツールの開発³⁷⁾にあたっては、個々の硝酸塩・酸化物の水に対する溶解度に基づき、データが不在のものは析出しないものとして扱うことや、溶媒の違い、析出物の水和数変化 (Mn, Ni, Cd) など一定の不確かさ要因を許容した上で、文献記載値の最大値を用いている (表 3-7)。

表 3-7 硝酸塩の溶解度データ (文献³⁷⁾の内容を一部抜粋し掲載)

化学種	溶解度 (g/100g-H ₂ O)	文献記載値の最大温度 (°C)	文献
AgNO ₃ (無水物)	88	100	52)
RbNO ₃ (無水物)	81.9	100	52)
SnNO ₂	No data	-	
CsNO ₃ (無水物)	66.3	100	52)
Sb ₂ O ₃ (無水物)	0.00085	25	52)
Sr(NO ₃) ₂ (無水物)	50.8	100	52)
Cd(NO ₃) ₂ (無水物)	82.3	80	52)
Ba(NO ₃) ₂ (無水物)	25.6	100	52)
ZrO(NO ₃) ₂	No data	-	-
Mo 金属	0.14	30	53)
Te ₂ O ₃ (OH)NO ₃	No data	-	-
Cr(NO ₃) ₃ (無水物)	47.5	35	52)
Y(NO ₃) ₃ (無水物)	66.6	60	52)
Tc	No data	-	-
La(NO ₃) ₃ (無水物)	75.04	60	52)
Mn(NO ₃) ₂ ・H ₂ O	83.3	75	52)
Ce(NO ₃) ₃ (無水物)	176	30	53)
Fe(NO ₃) ₃ (無水物)	51.18	45	52)
Pr(NO ₃) ₃ (無水物)	75.2	60	52)
Ru(NO ₃) ₂	No data	-	-
Nd(NO ₃) ₃ (無水物)	75.34	80	52)
Rh(NO ₃) ₃	No data	-	-
Sm(NO ₃) ₃ (無水物)	58.95	25	52)
Pd(NO ₃) ₂ (無水物)	58.1	100	52)
Eu(NO ₃) ₃ ・6H ₂ O	193		53)
Ni(NO ₃) ₂ (無水物)	69.2	100	52)
Gd(NO ₃) ₃ ・2H ₂ O	190	-	53)

2) 硝酸, NO_x 反応

a 脱硝反応 (乾固段階)

(a) NO_x , O_2 発生

産学官共同研究³⁾において、田代らは実事故と同じ時間スケールでの模擬廃液加熱実験を行い、 NO_x の生成挙動を評価した³⁶⁾(図 3-11) 他、山根らは実廃液を用いた実験において NO_x 生成挙動を評価している⁵⁴⁾。また、天野らは廃液中に存在すると考えられる硝酸塩類を加熱し、TG-DTA 曲線に併せて NO_x 放出量を測定した (図 3-12)⁴⁷⁾。

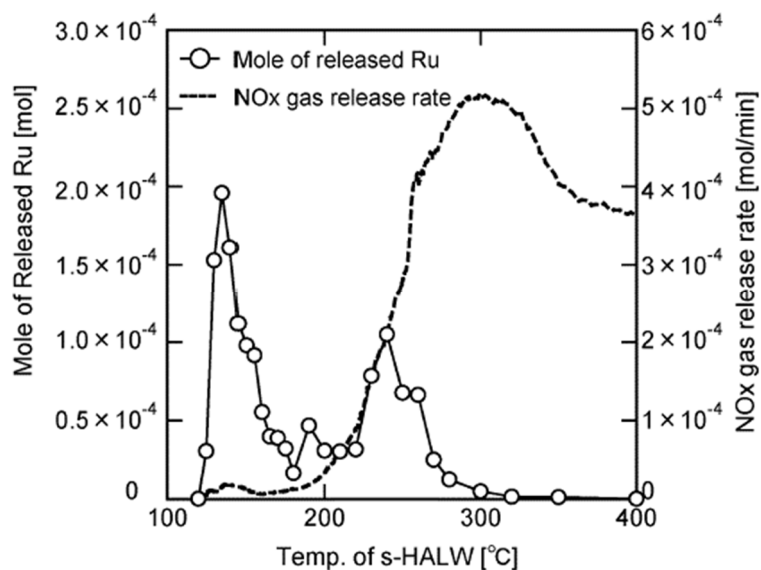


図 3-11 模擬廃液加熱時 (実時間スケール) での NO_x 発生挙動 (文献³⁶⁾より転載)

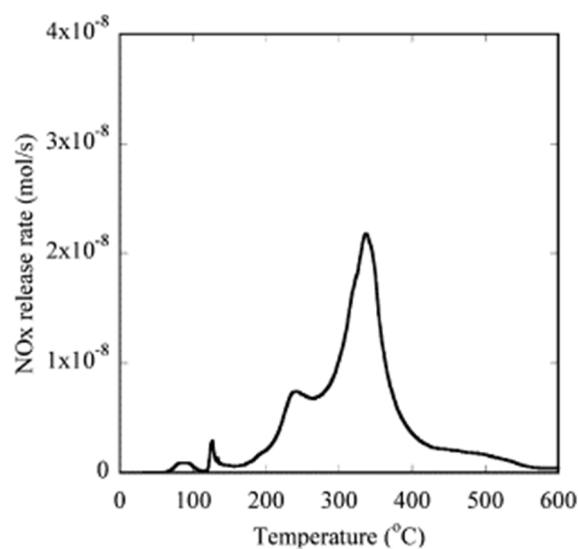


図 3-12 模擬廃液加熱時 (加速試験) での NO_x 発生挙動 (文献⁴⁷⁾より転載)

児玉らは、模擬廃液を加熱した際に生じる NO, NO₂ の生成量を実験的に評価し、その値から O₂ の生成量を計算する手法を報告している⁵⁵⁾。

関口らは、模擬廃液を熱分析装置で加熱し、そのオフガスを赤外吸光分光光度計により分析することで、脱硝反応における NO_x ガスの生成挙動を評価した¹⁶⁾。当該試験においては廃液を乾固させるため 393 K (120 °C) で 30 分間保持し、その後 5 K/min で 1073 K (800 °C) までの昇温を行った。硝酸蒸気、NO₂, NO で異なる温度域にピークを持つ。

また加藤らは、硝酸ニトロシルルテニウムを含む硝酸溶液を 80°C で乾固させた試料を質量分析計の真空チャンバー内で 450°C まで加熱し、発生ガスを分析した^{7,8)}。その結果を図 3-13 に示す。質量分析の結果はイオン化におけるフラグメントの影響を排除できていないが、NO_x ガスのフラグメントイオンに影響されにくい O₂ (m/z=32) の検出強度のプロファイルに、NO₂ (m/z=46) や NO (m/z=30) のピークに近い温度域でのピークが見られ、脱硝と同時に O₂ が放出されていると推定された。

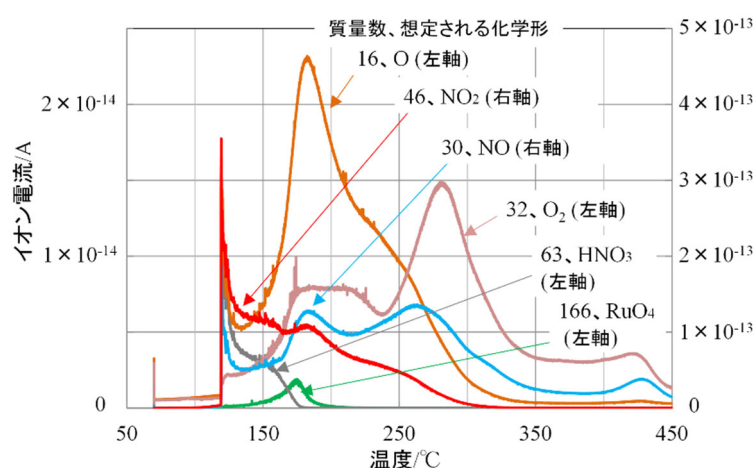


図 3-13 硝酸ニトロシルルテニウム硝酸溶液の乾固物の熱分解時の発生ガス分析結果 (文献¹⁰⁾より転載)

柴田らは、Ru などの硝酸塩を含む模擬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している⁵⁶⁾。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。

(b) 吸熱反応

産学官共同研究³⁾において、原子力機構は HLLW に含まれ得る幾つかの硝酸塩について TG-DTA 分析を行い、種々の熱分解反応データを取得している(表 3-8)。昇温速度一定の試験条件で示差熱-熱重量分析(TG-DTA)を行い、昇温に伴う重量変化および発生熱量を同時測定した。なお、実廃液中の化学構造は複数の形態を取る可能性があるし、Ru など廃液中の構造が不明確な元素も存在するため、暫定的なデータとして取り扱う必要があるものと考えられる。

表 3-8 熱分解反応データ (文献³⁾より転載)

硝酸塩類	反応温度域 (昇温速度 5 °C/min)	頻度因子 $A[\text{sec}^{-1}]$	活性化エネ ルギー E_a [kJ・mol ⁻¹]	吸発熱量 [kJ・mol ⁻¹]	備考 *反応式は反応終了質量に基づき推定
ZrO(NO ₃) ₂ ・xH ₂ O	166-213	1.57×10 ²⁴	227±8	-39.9	ZrO(NO ₃) ₂ → ZrO ₂ +2NO ₂ +1/2O ₂
	216-261	4.08×10 ¹⁹	213±9	-39.3	
Pd(NO ₃) ₂ ・xH ₂ O	99-156	2.55×10 ¹⁵	139±14	-158	100℃までに脱水する。 Pd(NO ₃) ₂ → PdO ₂ +2NO ₂
RuNO(NO ₃) ₃	136-172	8.57×10 ²²	203±20	-40	吸湿性である。140℃までに脱水する。 RuNO(NO ₃) ₃ → RuO ₂ +4NO ₂
	172-237	1.53×10 ¹⁶	150±12	40	
	237-302	2.93×10 ⁷	102±13	-62	
Ce(NO ₃) ₃ ・6H ₂ O	230-298	2.59×10 ⁹	124±3	-175	Ce(NO ₃) ₃ → CeO ₂ +3NO ₂ +1/2 O ₂
Gd(NO ₃) ₃ ・6H ₂ O	306-405	1.42×10 ¹¹	175±7	-183	Gd(NO ₃) ₃ → 1/2Gd ₂ O ₃ +NO ₂ +3/4O ₂
	414-522	8.84×10 ⁴	108±14		
Fe(NO ₃) ₃ ・9H ₂ O	130-159	6.11×10 ¹⁶	154±19	-63.2	Fe(NO ₃) ₃ → 1/2Fe ₂ O ₃ +3NO ₂ +3/4O ₂
Mn(NO ₃) ₂ ・xH ₂ O	142-187	3.96×10 ⁷	87.5±8.6	-52.2	140℃までに脱水する。 Mn(NO ₃) ₂ → MnO ₂ +2NO ₂
	187-228	4.30×10 ⁹	112±4	-17.5	
CsNO ₃	558-808	248	105±7	-749	昇華熱を含んでいる可能性がある。CsNO ₃ → 1/2Cs ₂ O+ NO ₂ +1/2O ₂
Sr(NO ₃) ₂	556-698	1.22×10 ⁹	200±47	-1080	融点 570 °Cのため、熱量は融解熱も含まれる。 Sr(NO ₃) ₂ → SrO+2NO ₂ +1/2O ₂
Te ₂ O ₃ (OH)(NO ₃)	212-256	4.20×10 ²²	244±4	-74.9	400℃までに脱硝し、800℃以上で揮発する。 Te ₂ O ₃ (OH)(NO ₃) → 2TeO ₂ +1/2H ₂ O+NO _x
	256-282	6.85×10 ²⁰	230±10		
	282-325	7.73×10 ⁵²	576±72	-25.1	
	325-404	6.47×10 ⁴⁸	595±47		
Nd(NO ₃) ₃ ・6H ₂ O	357-438	2.51×10 ⁵	106±22	-201	Nd(NO ₃) ₃ → 1/2Nd ₂ O ₃ +3NO ₂ +3/4O ₂
	438-556	1.68×10 ¹⁰	192±27	-28.5	
Mo	706-851	9.38×10 ⁸	315±56	-452	酸化モリブデン MoO ₃ の昇華である。
Ni(NO ₃) ₂ ・6H ₂ O	267-354	1.08×10 ¹⁰	123±9	-136	Ni(NO ₃) ₂ → NiO+2NO ₂

b NO_x 挙動

(a) 化学平衡

気相中における NO_x の化学平衡は複雑であり、文献⁵⁷⁾や文献⁵⁸⁾には反応式及び反応速度定数が示されている。再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での化学的挙動解析プログラム (SCHERN) では、表 3-9 に記載の文献値を用いている²⁸⁾。



表 3-9 気相部での化学反応の平衡定数，正方向及び逆方向の反応速度定数（文献²⁸⁾より）

反応	正方向反応速度定数： k_{iF}	平衡定数： K_i	逆方向反応速度定数： k_{iB}
(1)	$10^{(652.1/T^0.7356)} \times (RT/101.325)^2$ ^{a)}	-	-
(2)	10^9 ^{b)}	$10^{(2993/T^9.226)} \times (RT/101.325)$ ^{c)}	k_{2F}/K_2
(3)	10^9 ^{b)}	$10^{(2072/T^9.226)} \times (RT/101.325)$ ^{c)}	k_{3F}/K_3
(4)	4.1×10^4 ^{b)}	$10^{(-20.83/T^0.5012)}$ ^{d)}	k_{4F}/K_4
(5)	250 ^{b)}	$10^{(-965.5/T^0.5012)}$ ^{d)}	k_{5F}/K_5

a) : $\text{m}^6 \cdot \text{kmol}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, b) : $\text{m}^3 \cdot \text{kmol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, c) : $\text{m}^3 \cdot \text{kmol}^{-1}$, d) : (-), T : 気相温度(K), R=3.31446 ($\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)

(b) NO₂ の液相中への溶解

本事象については文献⁴⁰⁾等に詳述されているため、本稿では取り扱わない。

(c) 気液中の NO_x 成分比変化

NO_x は、事故事象中に 3.2.2(2)2b(a)に述べた気相での化学平衡の他、液相中への移行 3.2.2(2)2b(b)による物質移動と、液相中での化学平衡など、様々な経路を辿りうる。また、温度や組成の変化に伴って熱分解反応の状況が変化し、生成される NO_x の組成が変化することが考えられる。そのため、この事象を実験の中で取り扱うことは容易ではない。

文献⁵⁹⁾では、硝酸濃度をパラメータとした NO と NO₂ の平衡定数等が示されている他、SCHERN の解説書^{27,28)}の中で解説がなされている。

(d) NO₂ 液相吸収に伴う亜硝酸生成

この事象は、3.2.2(2)2b(b)に内包される。また文献⁴⁰⁾に詳述されている。

c 放射線分解

(a) 放射線分解に伴う亜硝酸生成

廃液中における放射線分解生成物のうち、Ru の移行に大きく寄与すると考えられるものとしては亜硝酸が挙げられる。なお、亜硝酸の Ru の移行に及ぼす効果に関しては 3.2.2(2)3a(b)に記載する。亜硝酸は放射線分解により生成されるため、廃液中に一定量存在すると考えられるが、その濃度は廃液の組成により異なると考えられる。以下、放射線分解による亜硝酸の生成量と実廃液中の亜硝酸濃度に関する報告について記載する。

単純な水-硝酸系における放射線分解による亜硝酸生成では、硝酸濃度が高くなるに従って亜硝酸の生成量が増加する傾向があり、例えば Precek らや Watanabe らの報告^{60,61)}では複数の報告について記載している。一方で、Kazanjian らによる報告⁶²⁾では、高濃度領域でβ線・γ線による生成 G 値(単位吸収線量あたりの生成量)が低下するという逆転現象が現れている(表 3-10)。この逆転現象に対しては、放射線種による各ラジカルの生成量の差とその後に生じる各素反応のモデルによる説明が試みられている。この点については、生成した亜硝酸はスパーでの反応後にも過酸化水素等と反応して減少するため、Kazanjian らによる報告⁶²⁾にあるプライマリ G 値は実際の収量(見かけの G 値)に対して大きいことが原因として挙げられる⁶³⁾。放射線分解による反応は短時間で起こるため、G 値の把握が難しく、Ru の移行量の評価に関わる実際の亜硝酸生成量の議論とは焦点が異なる。そのため、本項目では実施設で想定される廃液中の亜硝酸濃度に関する内容について記載し、放射線化学的に詳細な G 値に関する内容は扱わないものとする。

表 3-10 放射線による亜硝酸の生成 G 値に対する硝酸濃度の影響(文献⁶²⁾より)

硝酸濃度 [mol/L]	亜硝酸の生成 G 値 [個数/100eV]		
	α 線	β 線	γ 線
0.01	-	-	1.1
0.1	0.51	1.4	1.6
1	1.3	2.5	2.6
5	1.8	1.9	2.2
10	2.8	1.8	1.9

金属元素を含む体系での報告例として、Savel'ev ら⁶⁴⁾によるα線照射試験が挙げられる。この試験では、同じ硝酸根濃度の場合、HNO₃溶液よりもNaNO₃溶液のほうが亜硝酸の生成 G 値が大きくなる結果が得られている。しかし、実廃液のような多種類の金属元素を含む体系における放射線分解については JAEA における研究^{22,23)}で実施されているように、純粋な硝酸水溶液とは異なる挙動が見られているものの、現状では研究段階であり、実廃液中の亜硝酸濃度を評価するには至っていない。図 3-14 に模擬廃液を用いた試料における照射による亜硝酸イオン濃度の増加の図を示す²³⁾。この図では模擬廃液の 1/2～3 倍の金属イオン濃度を含む溶液について、照射前後の亜硝酸イオン増加分を濃度で示しており、縦軸の亜硝酸イオン濃度増加分で 6.0×10^{-3} mol/L が見かけの G 値換算で 1.0 [個数/100eV]に相当する。ただし、吸収線量を計算する際に溶液の重量を使用するため、図に示す亜硝酸イオン濃度の増加分と見かけの G 値は正確な比例関係ではない。

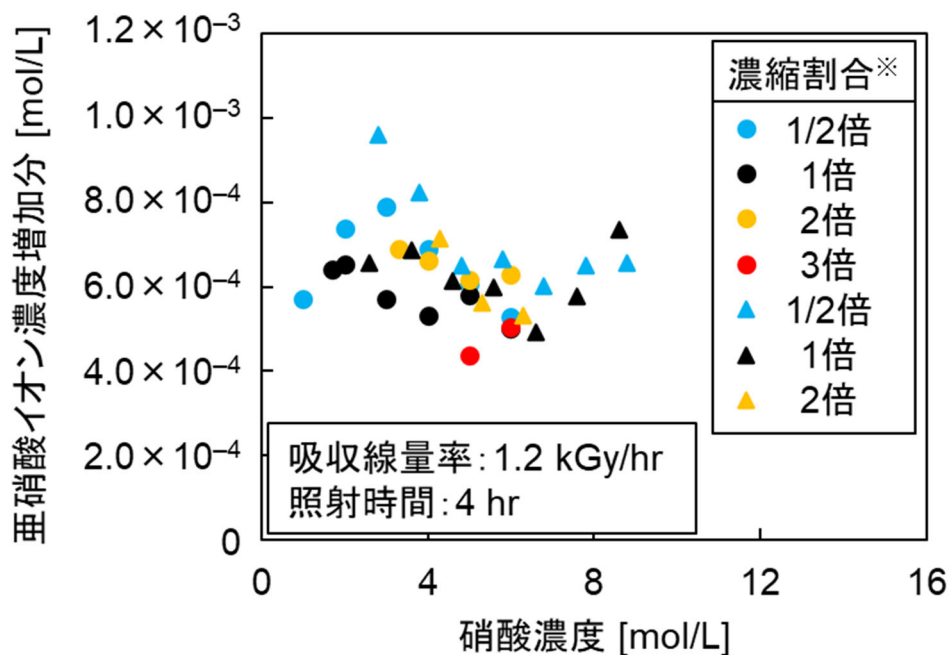


図 3-14 模擬廃液を用いた溶液における亜硝酸生成量 (23)における図 2.22 を編集)

※濃縮割合は模擬廃液に対する照射試料中の金属イオン濃度の比を表す

実廃液における亜硝酸濃度の公開情報は多くないが、例えば CEA で行われた試験²⁾ではコンデenserで回収された凝縮液についての亜硝酸濃度を測定しており、濃度を記載した図から $1.0 \times 10^{-2} \sim 3.0 \times 10^{-2}$ mol/L 程度と読み取れる。ただし、廃液から凝縮液に亜硝酸が移行する反応を化学量論的に考慮すると、廃液中の亜硝酸濃度は濃縮液の同量～4 倍以上と評価できる⁶⁵⁾。そのため、廃液中における亜硝酸濃度は 10^{-2} のオーダーであると推測される。亜硝酸濃度の実測値としては、東海再処理施設における廃液について、参考文献⁶⁶⁾において Pd 濃度 (2.1×10^{-2} mol/L) の 2 倍程度、参考文献⁶⁷⁾において 2.4×10^{-2} mol/L との記載がある。また、参考文献³⁾においては、ふげんの燃料を用いた再処理試験において発生した放射性廃液を用いており、その亜硝酸濃度は 7.7×10^{-2} mol/L との記載がある。ばらつきはあるものの、先の推測値とオーダーは一致している。

3) 揮発性 Ru の移行

a RuO₄ 生成

(a) Ru 酸化

硝酸溶液中から揮発する Ru の化学形は RuO₄ とされるが、実際に同定した例は少ない。参考文献⁷⁾には、質量分析計を用いて RuNO(NO₃)₃ 加熱時の Ru 揮発形態の測定を試み、発生ガスのマスペクトル（図 3-15 参照）から RuO₄ が検出されたことが報告されている。

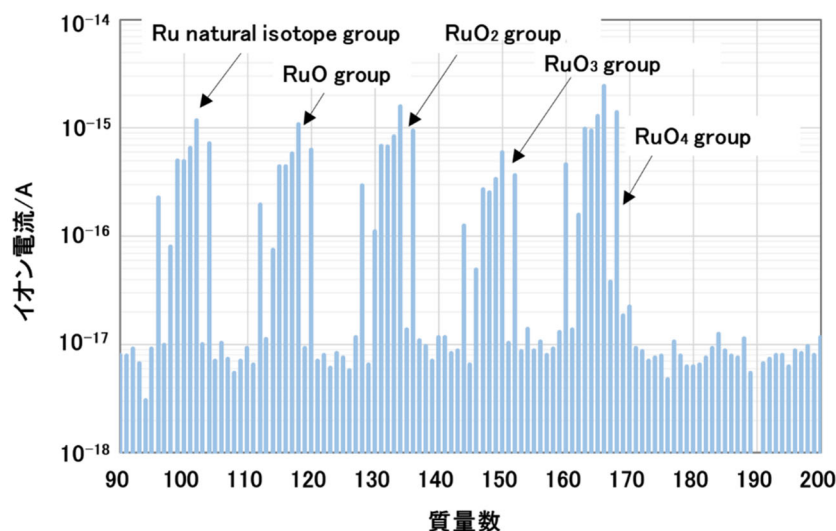


図 3-15 171℃における RuNO(NO₃)₃ 加熱時のマスペクトル（文献⁷⁾より再構成）

質量分析計を用いた分析では $m/z = 166$ のイオン電流を RuO₄ 揮発として代表させ、多様な条件での RuO₄ 生成挙動評価が実施されている⁸⁻¹³⁾。一例として、模擬廃液を熱分析装置で加熱し、その排気を質量分析計および赤外吸光分光光度計で分析した結果を図 3-16 に示す。120℃で 45 分間保持して廃液を乾固させた後、5℃/min で 800℃まで加熱しており、120℃での廃液乾固時および 150~350℃での乾固物の脱硝時に RuO₄ が放出されている。廃液の加熱時には RuO₄ 単独で生成する温度域はなく、硝酸蒸気や NO₂ と同時に放出されることがわかる。

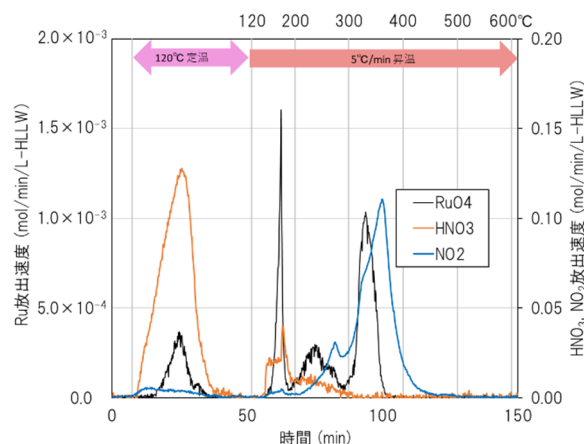


図 3-16 模擬廃液乾固時の RuO₄ 放出挙動と NO_x ガス放出挙動（文献¹⁵⁾より再構成）

(b) 亜硝酸による Ru 化学種の還元

硝酸の酸化力により廃液中の Ru 化合物から RuO_4 が生成されるのに対し、亜硝酸の還元力により RuO_4 の生成が抑制されると考えられる。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ため、亜硝酸による Ru 還元効果についても考慮する必要がある。CEA の実廃液を用いた蒸発乾固実験²⁾では、沸騰晩期段階に相当する、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が示されている。このため、実廃液では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³⁾ではそれぞれ放射性物質を含む廃液と、模擬廃液を使用した加熱試験を実施している。共に沸騰晩期段階において Ru の気化が顕著になるが、模擬廃液の方が沸騰後の 120 °C 以下の状態における Ru 移行割合が高く、僅かではあるが Ru の気化が示唆される結果が得られている。これは模擬廃液中の亜硝酸濃度が低いためと考えられた。これに対し、参考文献⁶⁸⁾では、模擬廃液に対して亜硝酸ナトリウムを添加することで亜硝酸濃度を維持しつつ加熱沸騰させる試験を実施しており、亜硝酸が存在することによって RuO_4 の生成の抑制が確認されている。

(c) 乾固物からの移行

硝酸が蒸発した乾固後も RuO_4 が乾固物から放出される⁹⁾。硝酸が存在しない条件での硝酸ニトロシル Ru から RuO_4 が放出される反応は不明である。阿部らは硝酸ニトロシル Ru を加熱した際の Ru 量を測定するとともに、測定結果から Ru 放出モデルを作成し提案している⁶⁹⁾。Ru 放出モデルはアレニウス型の Ru 放出速度定数としている。Ru 放出に係る活性化エネルギーは 76.9 kJ·mol⁻¹、頻度因子は $2.99 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ であるとしている。

b RuO_4 気相移行

(a) 気液平衡 (SAWG-2 報告書¹⁾より転載)

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^{3,70)}。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 3-11 に分析に用いた主要な実験条件及び結果を示す。

表 3-11 Ru の移行に関わる実験の主要な条件とその結果（文献 70）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 Conde nsate Liq.	Ave. Ratio of Ru in Conde nsate 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

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 4) 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。文献 3) 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 3) 。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。

Sasahira らは、RuO₄ の生成速度と気液平衡に関する実験を行い、種々の濃度・温度の硝酸水溶液に対する RuO₄ のヘンリー定数を取得している 71) 。

c 気相からの RuO_4 除去(LPF)

(a) 揮発性 Ru 生成における共存元素の影響

160℃までの廃液の沸騰・乾固過程での RuO_4 の生成は硝酸による酸化と考えられているが、共存元素の影響を系統的に調べた研究は行われていない。ただし、JAEA による報告⁷⁰⁾では廃液の沸騰・乾固過程における Ru 移行速度には腐食生成物である Fe や Ni が影響し得ることが示されている。一方、160～350℃の乾固物脱硝過程における RuO_4 放出については硝酸イオン (NO_3^-) の熱分解と同時に RuO_4 が生成されると考えられ、共存硝酸塩の影響が調査された。関口らにより、Ru-M 二元系 (M=Ce, Zr, Fe, Gd, Nd, Na) および模擬廃液に M'硝酸塩 (M'=Na, Fe) を添加した試料について、加熱時の RuO_4 生成量への共存元素の影響が質量分析計を用いた放出ガスの測定により検討された¹⁴⁾。二元系の試験では特に Ce や Zr の硝酸塩は Ru 生成量に顕著に影響する一方、Gd や Nd の硝酸塩はほとんど影響しないことが示されている。また Na や Fe といった核分裂生成物由来以外で廃液に混入し得る元素の硝酸塩も、二元系および模擬廃液への添加の双方で Ru 放出量を増大させることも示されている。

(b) Ru 還元

事故時に気相中に放出される気体状 Ru は RuO_4 と考えられている。 RuO_4 は強力な酸化剤⁷²⁾であり、反応性が高く、還元剤となる気相成分と接触した場合には RuO_2 等へ還元され、結果として気相から除去される。産官学共同研究³⁾において、150℃でガラス配管へ RuO_4 と水蒸気を供した際に、ガラス配管後段のガラスフィルタにおいて 29%の Ru が回収された(表 3-12 に後述)。この Ru は硝酸に溶解せず、ペルオキシ二硫酸カリウム溶液に溶解するという化学的特性から、 RuO_2 であると考察している。吉田らは同様の研究を行い、150℃、 $\text{Ru}:\text{H}_2\text{O} = 1:5000$ の条件下で、ガラスフィルタにおいて 21.1%の Ru が回収されたことを報告している²⁴⁾。

また、吉田らは RuO_4 と水蒸気を含む空気を分光セル内に封入し RuO_4 の分解挙動を観測する実験を行った。乾燥空気を用いた場合と比較して、水蒸気を添加した場合には RuO_4 の分解が促進されると報告している²⁵⁾。

また、Cains らは、気相に NO や亜硝酸が共存する場合には、 RuO_4 が急速に分解することを報告している⁷³⁾。

(c) RuO₄ 分解

RuO₄は反応性に富み不安定な物質であるが、共存ガスの影響によっては安定に存在し得ることが報告されている。吉田らは、NO および NO₂ が気相中に存在する場合、RuO₄ の分解が抑制されることを報告している（図 3-17）^{26,20}。城戸らは、量子化学計算を用いて RuO₄ と NO や NO₂ の相互作用を評価し、これらの NO_x が RuO₄ の分解を抑制する機構を考察している⁷⁴。

また、Kajan らは、RuO₂ を加熱し生じたガス状 Ru の移行挙動に関する実験を行い、NO₂ を添加した際には加湿空気を用いた際よりも Ru の移行割合は増大すると報告している⁷⁵。

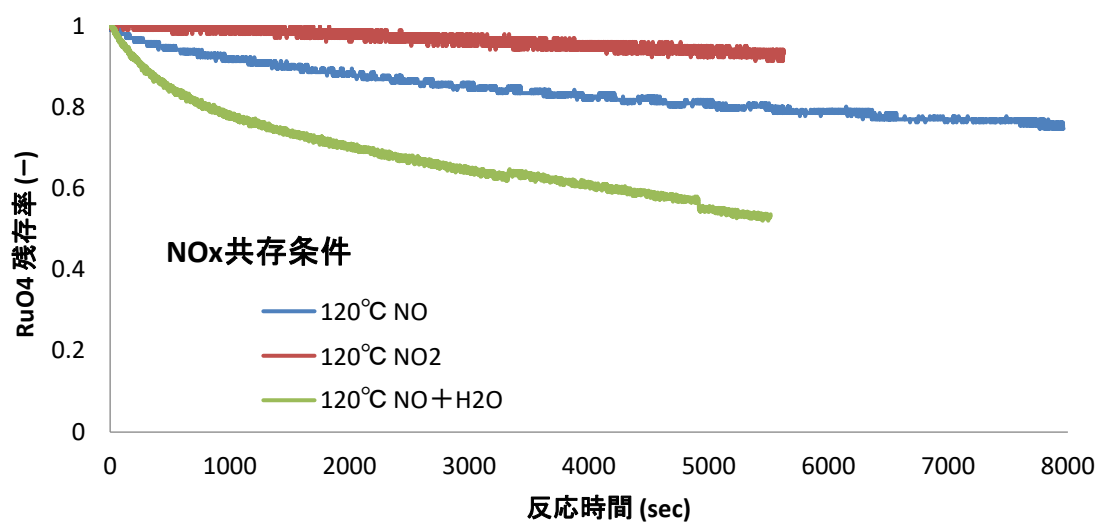


図 3-17 RuO₄ の分解挙動における NO_x ガスの影響（文献²⁶ より再構成）

吉田らは、硝酸蒸気が気相中に存在する場合、RuO₄ の分解が強く阻害され、その化学形が保持されることを報告している^{17,18,25}。RuO₄ に対する硝酸の化学当量をパラメータとした実験を行い、10 当量存在する場合には、RuO₄ の分解はほぼ観測されないことを報告した²⁵。

(d) 壁面への沈着（化学吸着/物理吸着）

気相中に放出された RuO_4 の物質移動の 1 つに、経路壁面への沈着が考えられる。気相中で RuO_2 に変化し、エアロゾルとなったものが壁面へ物理吸着することで沈着する経路の他、 RuO_4 が壁面材料に対し化学吸着することで沈着する経路が考えられる。

高レベル廃液の煅焼やガラス固化を対象とした研究の中で、Ru はシリカゲル、アルミナ、モレキュラーシーブス、金属、金属酸化物、金属炭酸塩、ポリエチレンなどに吸着されることが知られており⁷⁶⁾、これらの吸着剤の中で RuO_4 は物理吸着するか、または RuO_2 に変化し化学吸着するものと考えられる。実験上、両者を分けて観測することは難しく、これまで得られた結果は両者を併せて評価したものになると考えられる。

産官学共同研究において、窒素、窒素+水蒸気および窒素+ NO_2 を共存ガスとしガラス配管へ RuO_4 を供する実験した際には、いずれの実験においても Ru の壁面沈着が観測されている（表 3-12、図 3-18）³⁾。

表 3-12 ガラス管へ RuO_4 を供する実験結果（文献³⁾）

気相組成	N_2	$\text{H}_2\text{O}+\text{N}_2$	$\text{HNO}_3\text{aq}+\text{N}_2$ (3mol/L)	$\text{HNO}_3\text{aq}+\text{N}_2$ (10mol/L)	NO_2 500ppm+ N_2
反応管温度 (°C)	150	150	120	150	180
LPF (-)	0.003	0.29	1	0.99	0.7
フィルタ捕集 (%) HNO_3 溶解分	0.008	0	0.1	0.06	11
フィルタ捕集 (%) PO 溶解分	0.03	29	0.02	0.009	54
凝縮液 (%)	—	0	24	20	0
ガス吸収液 (%)	0	0	75	79	0

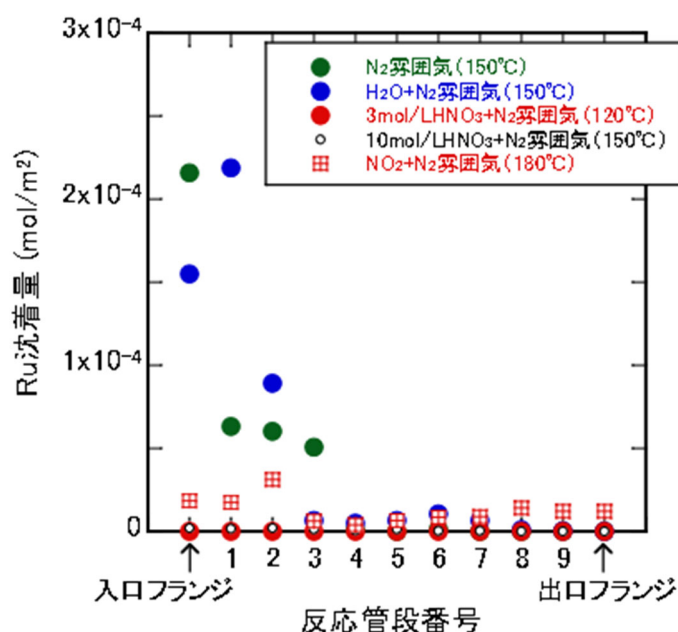


図 3-18 ガラス管へ RuO_4 を供する実験における沈着分布（文献³⁾）

児玉らは、模擬廃液を加熱した際のオフガスを、SUS 製の箱型の移行経路に供し、Ru 等の沈着挙動を評価した。その結果、移行経路に残存した Ru は硝酸に対して溶解する化学種であり、ごく一部の Ru のみが RuO₂ と考えられる黒色の沈着物であったと報告している（表 3-13）⁷⁷⁾。この実験では Ru の移行経路内で蒸気凝縮を発生させているため、凝縮液への吸収が Ru の主たる移行経路であり、凝縮液中で RuO₂ 以外の化学形に変化した可能性がある。

表 3-13 SUS 箱を用いた Ru-LPF 実験の結果（文献⁷⁷⁾）

Run no.*	Ru(μg)			LPF α/(α+β)
	Condensate	Box wall	Sum total	
	α	β	α+β	
Box-110	35	31,000	31,035	0.10%
Box-120	110	25,100	25,210	0.40%
Box-130	300	20,000	20,300	1.50%
Box-137	2000	26,000	28,000	7.10%
Box-145	5200	21,000	26,200	20%
Box-160	8400	18,000	26,400	32%
Box-200	11,000	11,000	22,000	50%

*‘nnn’ in the run name designates the temperature of the SUS box.

Kajan は、塩化ルテニウムの酸化反応によって発生させた RuO₄ を、壁面に使用されうる 3 種の金属材料（Zn, Cu, Al）に湿潤あるいは乾燥雰囲気下で接触させ、その際の沈着量の違いを調べている⁷⁸⁾。その結果、Al に対する沈着量が湿潤雰囲気下でとくに大きくなった。一方で、Zn と Cu では乾燥雰囲気下のほうが沈着量は大きくなった（表 3-14）。これらの沈着傾向の違いの原因として、①金属表面の酸化被膜の性状（Zn, Cu では表面酸素密度が小さく、Al では大きい）による RuO₄ との反応性の差、②酸化被膜の帯電性（Zn, Cu では小さく、Al では大きい）による電気的な分子吸着性の差、③気相中の水分による帯電除去効果、④金属表面に付着した水分による触媒作用が挙げられている。しかしながら、これらの要素の組合せにより沈着挙動をモデル的に説明するためには、さらなる実験知見の収集が必要だと考えられる。

表 3-14 3 種の金属表面への Ru 沈着量（文献⁷⁸⁾）

Run	雰囲気条件	Ru 沈着量 (μg/cm ²)		
		Zn	Cu	Al
1	乾燥	2.7±0.5	9.4±0.2	103.3±0.7
2	乾燥	0.76±0.02	0.4±0.1	86.6±0.6
3	乾燥	2.2±0.4	2.5±0.5	98.4±0.7
4	湿潤	15.3±0.3	18.0±0.3	31.6±0.6
5	湿潤	13.2±0.2	12.1±0.2	24.8±0.5
6	湿潤	18.5±0.3	19.2±0.4	38.9±0.7

(e) 液相吸収（化学吸収）

気体状 Ru, あるいは RuO₄ の液相吸収を対象とした研究としては, 英 Atomic Energy Research Establishment (AERE) や JAEA で実施した濡れ壁塔型の試験^{22,79)}, 旧動力炉・核燃料開発事業団 (PNC) や JAEA が報告したガス吸収瓶を用いた試験^{80,81)}, JAEA や JNFL が実施した装置内で蒸気凝縮を発生させる試験^{17-21,82)}, 静置した液相への吸収を測定する試験⁸³⁾, スプレー液への吸収を測定する試験¹⁸⁾, 洗浄塔（充填塔）での吸収を評価する試験⁸⁴⁾などが行われている。試験結果を元にしたモデル化については JAEA^{27,28)}や JNFL^{82,85,86)}による報告がある。

また, ガス吸収後の Ru の挙動として, 文献⁸⁷⁾では, 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 (SAWG-2 報告書¹⁾より転載)。

(f) 還元剤との反応

基本的には 3.2.2(2)3)c(d)の化学吸着と同様の現象となるが, 還元剤, あるいは触媒として気相中の RuO₄ と積極的に反応する場合, 一般的な化学吸着とは異なる挙動を示す可能性がある³⁾。なお, 本項目は後述の PIRT 表にある通り, モデルへの組み込みが可能な知見ではなく, 不確かさ要因の 1 つとして考慮される。

d 工学的手段による RuO₄ 除去(LPF)

(a) 凝縮器による除去

凝縮器で発生する基本的な物理現象および化学反応は, 3.2.2(2)3)c(e)項に同じである。

(b) スプレーによる除去

原子力機構は, 加熱した模擬廃液から発生した RuO₄ ガスをスプレー塔で除去する試験を行った^{17,18)}。液ガス比 (スプレー液流量とガス流量の比), 導入ガスおよびスプレー塔内温度だけでなく, 液性もパラメータとしており, スプレー液に硝酸または水酸化ナトリウムを含む場合に DF が増加することが報告されている。また, 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⁸³⁾。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 (SAWG-2 報告書¹⁾より転載)。

4) 難揮発性物質の移行

a 飛沫同伴による粒子状 FP 生成

(a) 液面近傍における蒸気流速

溶液沸騰に伴う水蒸気・硝酸蒸気の放出は飛沫同伴量に影響する。取得データは 3.2.2(2)1)c(a) 項に同じである。

(b) 液相物性

産官学共同研究³⁾において, 模擬廃液の物性値が報告されている。模擬廃液を加熱する過程で

変化する廃液の①表面張力，②密度，③動粘度，④温度，⑤廃液体積が経時的に測定された。また，廃液の状態を目視で観察し，沈殿物の生成等の状態変化と各物性値の関係を把握したと報告している（表 3-15）。

表 3-15 模擬廃液加熱時の液相物性（文献³⁾）

物性値	昇温前	留出 開始	200ml 留出	400ml 留出	600ml 留出	800ml 留出 ^{†2}	850ml 留出 ^{†3}
温度(°C)	20	103	106	109	116	127	136
表面張力(mN/m)	98	90.9	94.3	105	101	118	177
密度(g/cm ³)	1.3	1.26	1.36	1.47	1.66	2.06	—
動粘度(cSt ^{†1})	1.66	0.571	0.65	0.902	1.73	15.6	—

†1：cSt=mm²/s，†2：乾固前と判断，†3：参考値

(c) 気相物性

文献⁸⁸⁾では，エアロゾルの移行挙動に係る既往の速度式に含まれる雰囲気組成の物性値が影響し得るパラメータには，粘性係数，動粘性係数，気体の拡散係数，エアロゾルの拡散係数，熱伝導度があることを示している。また，エアロゾルの移行挙動に係る種々の速度は，気体の粘性係数および Lennard-Jones パラメータが決定できれば計算可能であるとしている。蒸発乾固事故を解析する上で必要となる粘性係数および Lennard-Jones パラメータを表 3-16 に示す。表中の値は，N₂O および NO については実測値⁸⁹⁾，その他の化学種については文献⁸⁸⁾における推算値である。

表 3-16 蒸発乾固事故解析に必要な粘性係数および Lennard-Jones パラメータ（文献⁸⁸⁾より）

化学種	粘性係数 [μP] @100°C	Lennard-Jones パラメータ	
		σ	ε/k
HNO ₃ ⁸⁸⁾	137.3	3.966	518.5
N ₂ O ⁸⁹⁾	182.6	3.828	232.4
NO ⁸⁹⁾	226.9	3.492	116.7
NO ₂ ⁸⁸⁾	98.4	4.810	469.8
N ₂ O ₄ ⁸⁸⁾	227.1	3.510	314.9

(d) 飛沫同伴（SAWG-2 報告書¹⁾より転載）

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）に対する割合が積算値として示されている^{3,90,91)}。

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。得られた実験結果の一部を以下に紹介する。

i) 平均的な移行速度

参考文献⁹²⁾には、図 3-19 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。

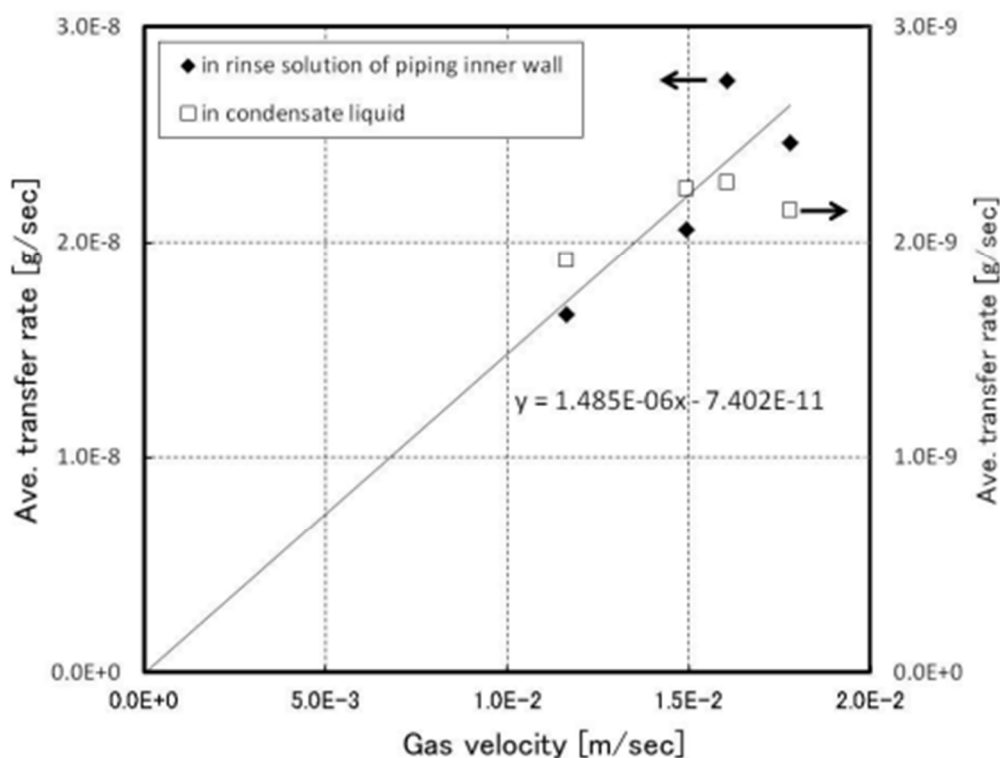


図 3-19 Cs の平均的な移行速度 (参考文献⁹²⁾より転載)

図 3-19 から分かるように経路洗浄液中への移行速度は、蒸気の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⁹²⁾には、図 3-20 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。

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⁴²⁾、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 3-20 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⁹²⁾。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 3-20 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⁹²⁾。

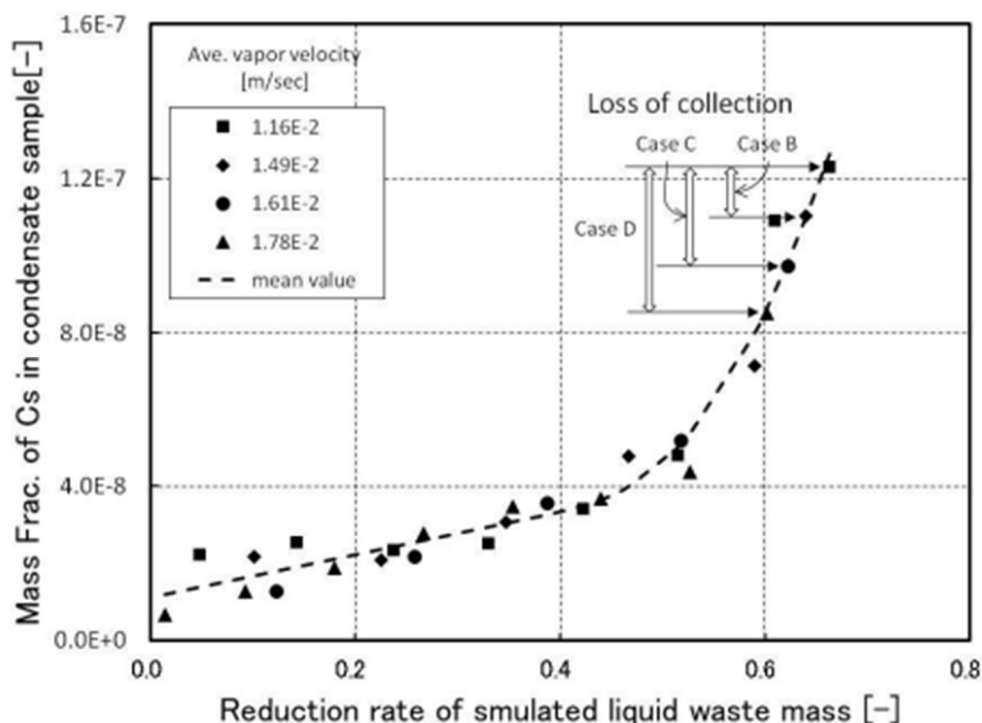


図 3-20 模擬廃液の減少率と凝縮液中の Cs の質量割合（参考文献⁹²⁾より転載）

b RuO₄還元による粒子状FP生成（凝集および液滴蒸発）

気相中の RuO₄ が分解・還元された際に、非揮発性の RuO₂ が生成し、エアロゾルとして移行する可能性がある。産官学共同研究において、水蒸気を共存ガスとして RuO₄ を流通式反応器へ供した際に、ガラスフィルタ上で Ru が捕集されたことを報告している³⁾。

吉田らは同様の実験を行い、3 割程度の Ru がガラスフィルタで捕集されたと報告している²⁴⁾。また、JAEA は SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) を用いて RuO₄ から生成するエアロゾルの粒径分布を測定した¹⁹⁻²¹⁾。その結果によれば、滞留時間の増大に伴って Ru エアロゾルが凝集した結果、粒子径が増大したと報告している（図 3-21）。また、30～90℃の温度条件では、高温の方がエアロゾルの粒子径も生成率も高かったと報告している（図 3-22）。

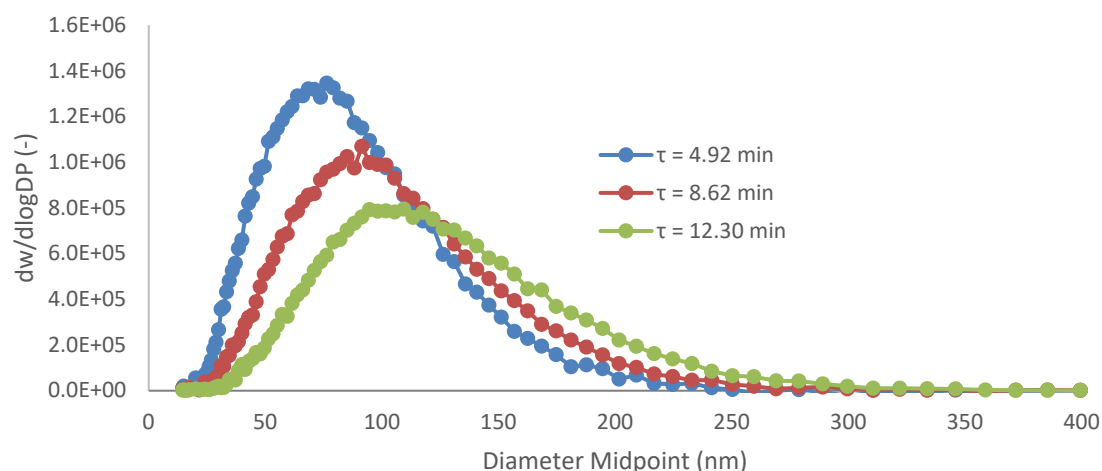


図 3-21 RuO₄ 分解物由来エアロゾルの粒径分布と滞留時間の関係（文献²⁰⁾より再構成）

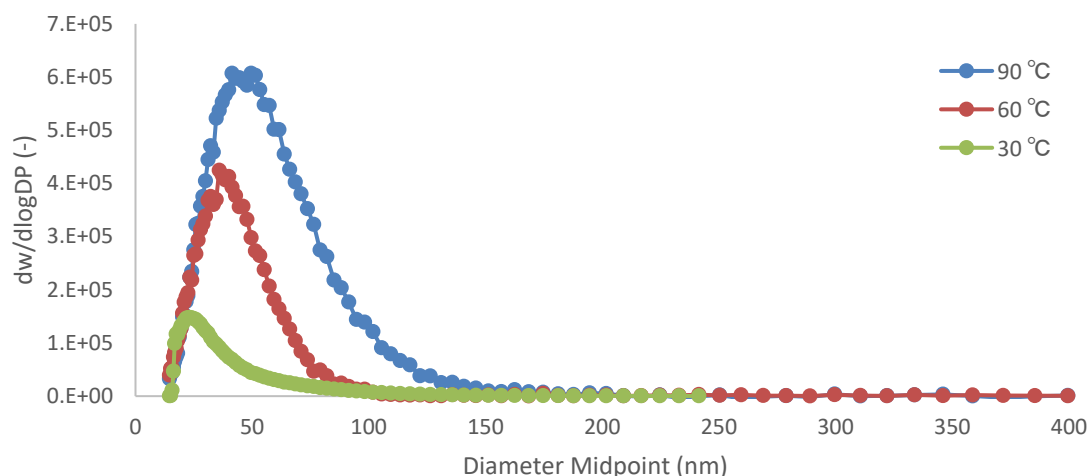


図 3-22 RuO₄ 分解物由来エアロゾルの粒径分布と温度の関係（文献²¹⁾より再構成）

c 粒子径分布 (SAWG-2 報告書¹⁾より転載)

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³⁾。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 3-23 に示す粒径の分布を推定している。

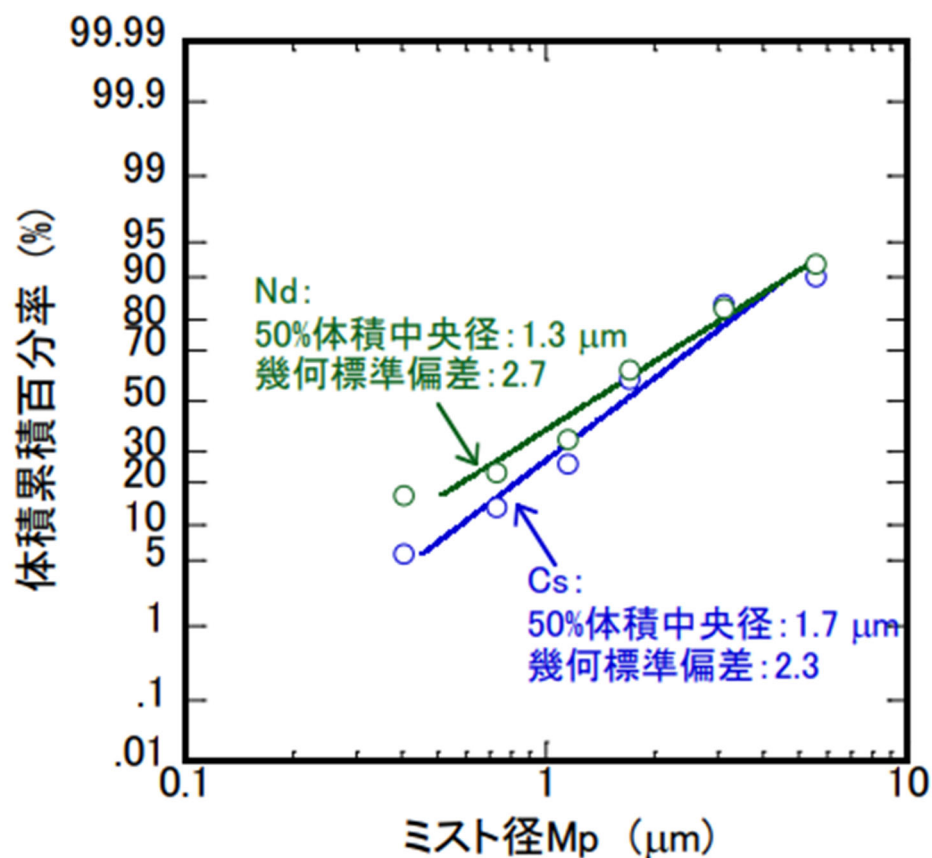


図 3-23 飛沫由来のエアロゾル粒径分布 (参考文献³⁾より転載)

d 気相からの粒子状 FP 除去(LPF)

(a) 重力沈降

蒸発乾固事故との関係としては間接的ではあるが、エアロゾル挙動の観測を目的とした大規模実験として ABCOVE (Aerosol Behavior Code Validation and Evaluation) プログラム⁹³⁾が知られている。このプログラムでは、高さ 20.3 m、直径 7.6 m、容積 852 m³の容器内に約 1 時間かけてエアロゾルを放出した後に 4~5 日間静置し、重力沈降による気相中のエアロゾル濃度の変化等が測定されている。容器内のエアロゾル濃度は、静置開始時には 10² g/m³のオーダーであったものが静置終了時には 10⁻³g/m³のオーダーまで減少した。また、試験では容器内床面への沈降量や壁面への付着量も測定されており、計算コードによる予測と比較されている。なお、実験が想定した事故シナリオはナトリウム火災にともなう FP の放出であり、サンプル粒子としてはナトリウム酸化物及びヨウ化ナトリウムの 2 種類が採用された。このうち、ナトリウム酸化物については、金属ナトリウムを容器内に直接導入し、燃焼させることで生成させている。

(b) 気相物性

3.2.2(2)4)a(c)項と同様の記載内容となるため、本項は割愛する。

e 工学的手段による粒子状 FP 除去(LPF)

(a) スプレーによる除去

原子力機構は、RuO₄ ガスだけでなく、模擬廃液の沸騰によって発生した粒子状 FP も対象としてスプレー塔で除去する試験を行っている。粒子状 FP を代表する元素として Nd を選択している。試験では液ガス比、導入ガスおよびスプレー塔内温度、スプレー液の成分もパラメータとしている。RuO₄ とは異なり、粒子状 FP の場合、スプレー液の成分による DF 増加の効果は見られないと報告されている^{17,18)}。

(b) フィルタによる除去

エアフィルタが発揮する粒子除去性能の評価手法の一例として、次式により定義される DF (Decontamination factor) を用いることができる。

$$DF = \frac{\text{フィルタ上流側における粒子濃度}(g/m^3)}{\text{フィルタ下流側における粒子濃度}(g/m^3)}$$

DF は捕集する粒子サイズ、捕集時の透過流量により影響を受けることが尾崎らによって実施された DOP 粒子の負荷試験⁹⁴⁾により示唆されている。同試験の報告書内では、当時使用されていた高性能エアフィルタ (HEPA フィルタ) では、最も DF が低下する粒径は $0.15\ \mu\text{m}$ 付近にあるものと考えられている。また、透過流量が大きくなるほど DF は低下する傾向が示唆されている (図 3-24)。

DF に対する温度による影響は DOP 粒子⁹⁴⁾と NaCl 粒子⁹⁵⁾の場合について尾崎らによって調べられており、どちらも温度が上昇するほど DF も大きくなる傾向を示した。ここには NaCl 粒子での結果を例示する (図 3-25)。

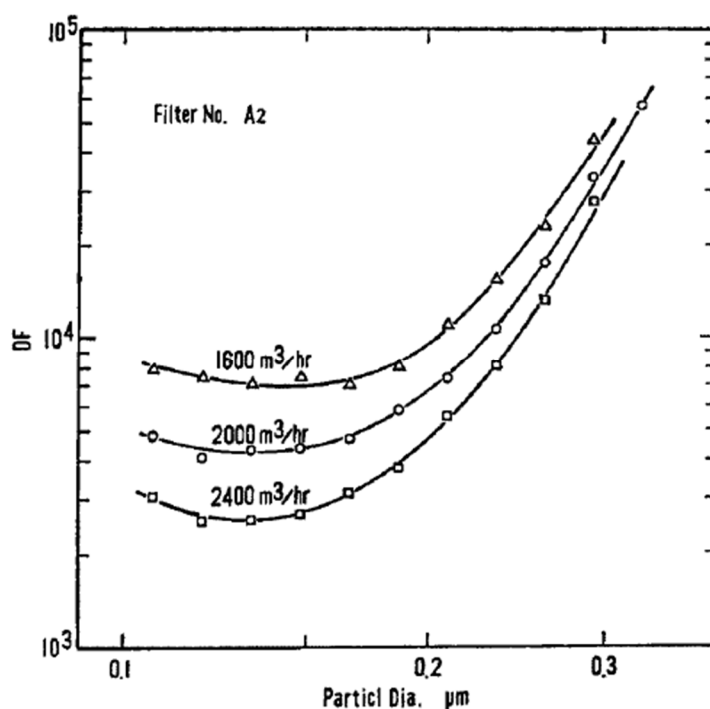


図 3-24 DF に対する粒子サイズと透過流量の影響 (文献⁹⁴⁾より転載)

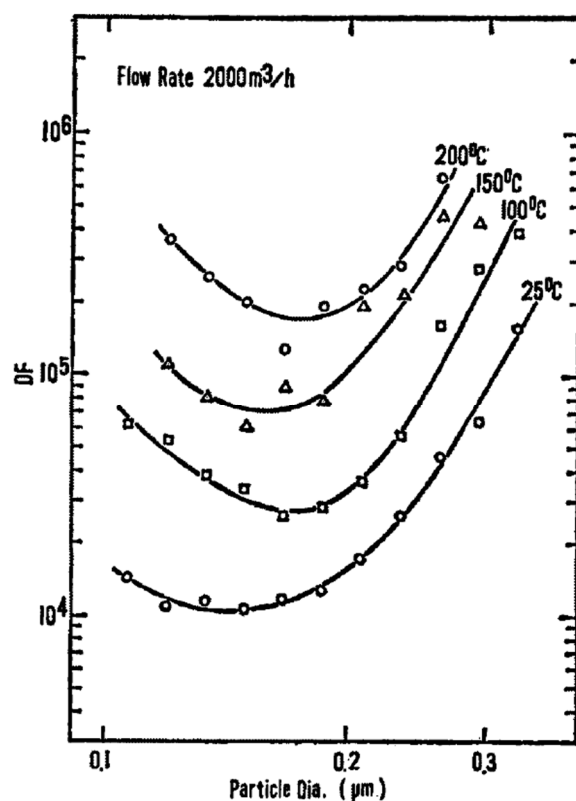


図 3-25 DF に対する温度の影響 (文献⁹⁶⁾ より転載)

DF に対する水分の影響は、キャリアガス中に含まれる水分量によって異なる。水分量が少なく飽和水蒸気量を越えていない場合、水分は水蒸気としてフィルタを透過する。この場合、DF への影響はフィルタを構成する素材の吸湿性によって変化することが尾崎らの試験によって示唆されている (図 3-26)⁹⁶⁾。一方で、水分量が飽和水蒸気量よりも多い場合、水分の一部は水ミストとしてフィルタに捕集される。このような場合、フィルタに負荷された水分量が多いほど DOP 粒子に対する DF は低下する傾向が尾崎ら及び山崎らの試験によって示唆されている^{96,97)}。

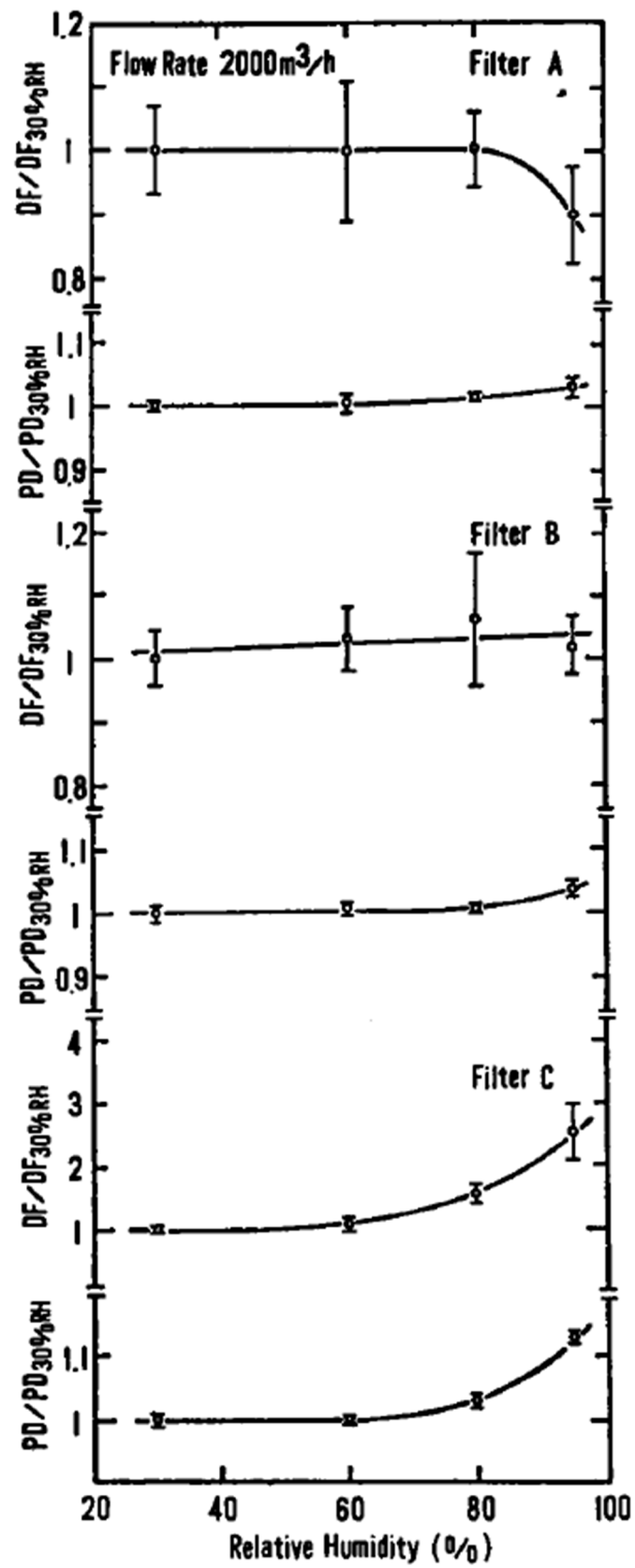


図 3-26 飽和水蒸気量以下の領域における DF に対する水分の影響 (文献⁹⁶より転載)

DFはフィルタへの粒子負荷量によっても変化することが示唆されている。ダスト(JIS 11種 関東ローム層粉体)を用いた負荷試験⁹⁸⁾では、負荷量の増加にともないフィルタ差圧が上昇すること(図 3-27)、及び、フィルタ差圧が上昇するとダストに対する DF も上昇すること(図 3-28)が確認されている。

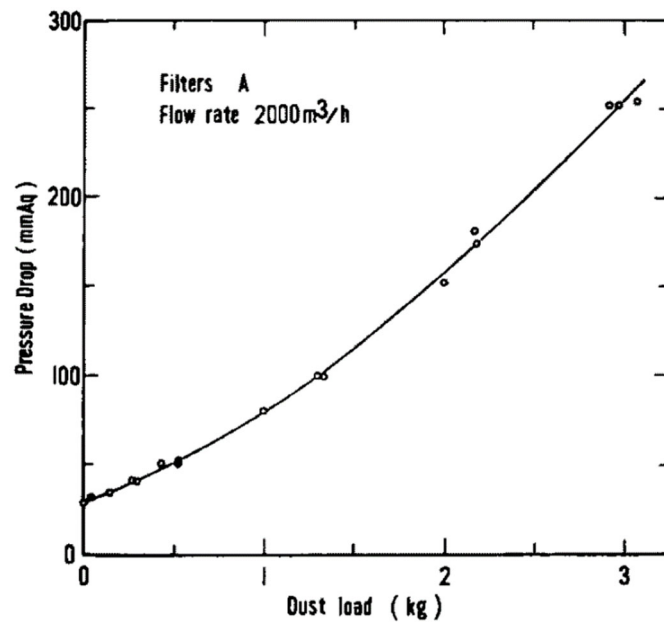


図 3-27 負荷量の増加にともなうフィルタ差圧の上昇 (文献⁹⁸⁾より転載)

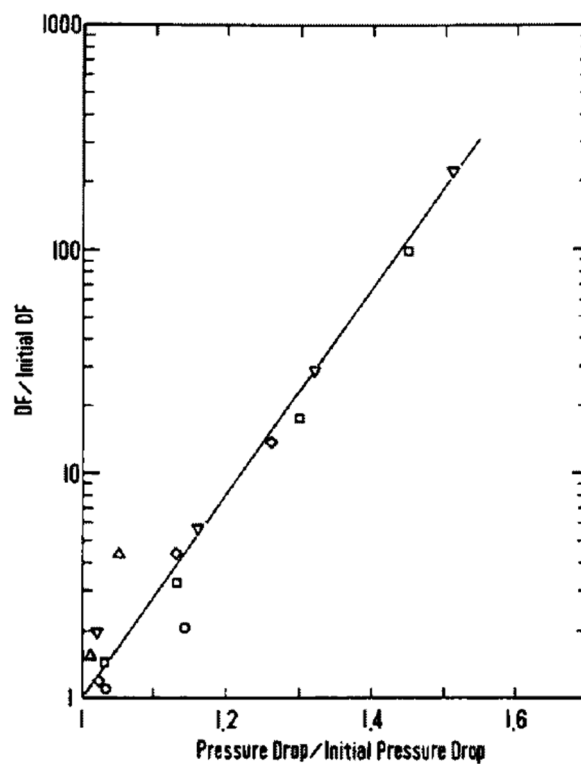


図 3-28 フィルタ差圧の上昇にともなう DF の上昇 (文献⁹⁸⁾より転載)

5) キャリアガスの振る舞い

a 気相流動

蒸発乾固事故との関係としては間接的ではあるが、シビアアクシデント分野における計算コードによる気相流動解析のためのベンチマークとして、ドイツの Heiss Dampf Reaktor (HDR) を利用した閉じ込め試験のデータが知られている。HDR は、もともとは実験炉であったものが転用され、軽水炉における事故時を模擬した安全性試験に供されるようになった施設であり、高さ 60 m, 直径 20 m, 容積 11,300 m³ の格納容器と内部構造を有していた。一連の閉じ込め試験のうち、例えば International Standard Problem 29 として知られる試験シナリオでは、この施設内部で水蒸気及び水素/ヘリウム混合ガスが放出された後、施設内各所での温度および各ガス濃度の変化が約 24 時間に渡って計測された。これらの計測データは複数区画から成る施設内での自然循環や気相の成層化を反映していると考えられ、CONTAIN や MELCOR といった計算コードのベンチマーク課題として利用されている。

6) その他

a 沈着物からの再放出

(a) 再浮遊（再蒸発）

Kajan は、ルテニウムを表面に沈着させたエポキシ塗料に湿潤雰囲気下及び乾燥雰囲気下でガンマ線照射を行い、ルテニウムの再揮発が生じるかを調べている⁷⁸⁾。この結果、乾燥雰囲気では再揮発は生じなかったが、湿潤雰囲気下では被照射線量の増加に従って再揮発量が増加する傾向が示唆された。これらの結果を踏まえて、RuO₂ と気相中の水分の反応によって RuO₄ が生成されることでルテニウムの再揮発が起こるとする仮説が提唱されている。

b 高温の貯槽への注水時の放出

(a) 注水の影響

原子力機構は、模擬廃液および模擬乾固物に注水した際の各元素の移行挙動を調査した²¹⁾。注水時に放出された水蒸気等を凝縮器およびガス吸収液で回収し、回収物中の元素量を分子、注水前の模擬廃液および模擬乾固物中の元素量を分母として元素ごとに移行割合を算出し評価している。試験パラメータは、注水速度および注水開始時の模擬乾固物試料温度である。模擬廃液に注水した試験は、沸騰初期と考えられる模擬廃液温度 110 °C、または沸騰晚期と考えられる模擬廃液 130 °C の条件で注水を開始した試験である。一方、模擬乾固物に注水した試験については、注水開始時の模擬乾固物試料温度をパラメータとして 150 °C～600 °C の範囲で行っている。

各試験での模擬 FP 放出挙動の特徴を以下に述べる。沸騰初期（110°C）で注水した場合、注水が進むと沸騰が止まるため、沸騰が止まるまでの間に模擬 FP が放出された。このとき Ru も難揮発性物質も同様の挙動を示したことから、Ru も難揮発性物質と同様に飛沫として放出されたものと考えられる。沸騰晚期（130 °C）～乾固（270 °C）で注水した場合、Ru の移行割合が Cs と比べて 1 桁以上大きい結果であった。これは、硝酸の濃縮が進行した模擬廃液または模擬乾固物からガス状の RuO₄ の放出が起きているところに注水したため、沸騰が収まるまでに放出された RuO₄ によるものと考えられる。模擬乾固物に注水した試験のうち、Ru の硝酸塩がほぼ全量 RuO₂ に分解したと予想される 300 °C よりも高温で注水開始した試験では、Ru の放出はごくわずかで

あった。 RuO_2 は水に対して不溶であるため、飛沫同伴による気相への移行が起きにくくなったと考察している。一方、Csは注水開始時の模擬乾固物試料温度が高くなるにつれて放出量が増加する傾向であると報告している。

参考文献

- 1) 池田泰久, 村松健, 青柳春樹, et al. 日本原子力学会再処理・リサイクル部会 核燃料サイクル施設シビアアクシデント研究 ワーキンググループ フェーズⅡ 報告書「再処理施設において想定される事故の 影響評価手法の現状と課題」. 2017.
- 2) Philippe M, Mercier JP, Gue JP. Behavior of ruthenium in the case of shutdown of the cooling system of HLLW storage tanks. 1991. p. 831–843. Report No.: CEA-CONF-10424.
- 3) 「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.
- 4) Ishio T, Shibata Y, Kodama T, et al. Study on radioactive material transport behavior from boiling/drying out high level liquid waste. France: Societe Francaise d'Energie Nucleaire; 2015. p. pp 1069-1075.
- 5) Ishio, T. et al. Experiment on release inhibition of ruthenium in dry out situation of high level liquid waste. in Proceedings of the 23th international conference on nuclear engineering (ICONE-23) 3737 (Japan, 2015).
- 6) 二木正一郎 et al. 高レベル濃縮廃液におけるルテニウムの揮発抑制に関する研究 (II) ホット試験に向けた装置作製と模擬廃液を用いた検証試験. 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2013F, M02 (八戸, 2013).
- 7) Kato T, Usami T, Tsukada T, et al. Study on volatilization mechanism of ruthenium tetroxide from nitrosyl ruthenium nitrate by using mass spectrometer. Journal of Nuclear Materials. 2016;479:123–129.
- 8) 加藤徹也, 宇佐見剛, 塚田毅志, 柴田勇木 & 小玉貴司. 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 年会・大会予稿集 vol. 2016S, 3F09 (仙台, 2016).
- 9) 加藤徹也, 宇佐見剛 & 塚田毅志. 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-模擬廃液の乾固・脱硝過程における四酸化ルテニウムの揮発挙動-. 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2017F, 2K18 (札幌, 2017).

- 10) 加藤徹也, 宇佐見剛 & 塚田毅志. 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-長時間の乾固過程における四酸化ルテニウムの揮発挙動-. in 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2017S 3I08 (湘南, 2017).
- 11) 加藤徹也, 宇佐見剛 & 塚田毅志. 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-ショ糖添加による四酸化ルテニウム生成の抑制-. 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2018F, 3J07 (岡山, 2018).
- 12) 加藤徹也, 宇佐見剛 & 塚田毅志. 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-四酸化ルテニウム生成に及ぼす共存硝酸塩の影響-. 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2019F, 3I12 (富山, 2019).
- 13) 加藤徹也, 関口裕真 & 宇佐見剛. 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-中和剤の添加による四酸化ルテニウム生成の抑制-. 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2021F, 2B08 (オンライン, 2021).
- 14) Sekiguchi, Y., Kato, T. & Usami, T. Study on effects of composition and heating rate on ruthenium volatilization during decomposition of nitrate mixtures. in GLOBAL 2022 - Sustainable Energy beyond the Pandemic vol. 096 (2022).
- 15) 関口裕真, 加藤徹也 & 宇佐見剛. RuO₄ 放出抑制策としてのゼオライトの適用性の検討 (1) ゼオライトとの接触による揮発性ルテニウム除去に伴う共存ガスの組成変化. 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2022F, 1D06 (日立, 2022).
- 16) Sekiguchi Y, Kato T, Uruga K, et al. Method to prevent accidental ruthenium volatilization from high-level liquid waste using alkaline earth hydroxide. J Radioanal Nucl Chem. 2024;333:347–355.
- 17) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構. 平成27年度原子力施設等防災対策等委託費(再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験) 事業 事業報告書. 原子力規制庁 技術基盤グループ 安全技術管理官 (核燃料廃棄物) ; 2016.
- 18) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構. 平成28年度原子力施設等防災対策等委託費(再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等) 事業 事業報告書. 2017.
- 19) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構. 平成29年度原子力施設等防災対策等委託費(再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る研究) 事業 事業報告書. 2018.
- 20) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構. 平成30年度原子力施設等防災対策等委託費(再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等) 事業 事業報告書. 2019.
- 21) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構. 平成31年度原子力施設等防災対策等委託費(再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等) 事業 事業報告書. 2020.

- 22) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構. 令和 3 年度原子力施設等防災対策等委託費（再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等）事業 事業報告書. 2022.
- 23) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構. 令和 4 年度原子力施設等防災対策等委託費（再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等）事業 事業報告書. 2023.
- 24) Yoshida N, Ohno T, Amano Y, et al. Migration behavior of gaseous ruthenium tetroxide under boiling and drying accident condition in reprocessing plant. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 2018;55:599–604.
- 25) Yoshida N, Ono T, Yoshida R, et al. Decomposition behavior of gaseous ruthenium tetroxide under atmospheric conditions assuming evaporation to dryness accident of high-level liquid waste. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 2020;57:1256–1264.
- 26) 吉田尚生, 天野祐希, 大野卓也, et al. 気体状四酸化ルテニウムの化学形変化挙動に与える窒素酸化物の影響. *JAEA-Research*. 2020;2020-014.
- 27) 桧山美奈, 玉置等史, 吉田一雄. SCHERN: 再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での NO_x の化学的挙動解析プログラム. *JAEA-Data/Code*. 2019;2019-006.
- 28) 吉田一雄, 玉置等史, 桧山美奈. SCHERN-V2: 再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での化学的挙動解析プログラム解説書. *JAEA-Data/Code*. 2021;2021-008.
- 29) 吉田一雄, 玉置等史, 吉田尚生, et al. 再処理施設の高レベル廃液の蒸発乾固事故での気体状ルテニウムの凝縮水への移行速度に係る相関式の導出. *JAEA-Research*. 2018;2017-015.
- 30) 吉田一雄, 玉置等史, 桧山美奈. 再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での NO_x の化学挙動を考慮した Ru の移行挙動解析. *JAEA-Research*. 2021;2021-005.
- 31) 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;2012-026.
- 32) 吉田一雄, 阿部仁. 多成分硝酸塩水溶液の気液平衡実験. *JAEA-Technology*. 2013;2013-035.
- 33) 宮田敬士, 武部和巳, 玉内義一, et al. 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*. 2008;7:85-98.
- 34) 佐古猛, 早野市郎, 白田利勝, et al. 硝酸-水系気液平衡関係に及ぼす塩効果について. *化学工学論文集*. 1985;11:267-271.
- 35) Ellis SRM, Thwaites JM. Vapour-liquid equilibria of nitric acid-water-sulphuric acid mixtures. *Journal of Applied Chemistry*. 1957;7:152–160.
- 36) 田代信介, 天野祐希, 吉田一雄, et al. 高レベル濃縮廃液の乾固過程におけるルテニウムの放

- 出特性. 日本原子力学会和文論文誌. 2015;14:227-234.
- 37) 石川淳, 吉田一雄. 再処理廃液の沸騰模擬ツールの開発. JAEA-Research. 2011;2011-030.
- 38) 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;2014-001.
- 39) 日本化学会 編, 化学便覧 基礎編 改訂 5 版. 丸善出版; 2004.
- 40) 再処理プロセス・化学ハンドブック検討委員会. 再処理プロセス・化学ハンドブック 第 3 版. JAEA-Review. 2008;2015-002.
- 41) Kodama T, Kinuhata H, Kumagai M, et al. Boiling and Drying Accident of High-Level Liquid Waste in a Reprocessing Plant: Examination of the Time-Dependent Temperature Increase of the Waste and of the Generation Rates of the Individual Components Released into the Gas Phase. Nuclear Technology. 2024;0:1-27.
- 42) Sasahira A, Hoshikawa A, Kamoshida M, et al. Transfer of ruthenium from a simulated reprocessing solution to gas phase during a continuous distillation. Journal of Nuclear Science and Technology. 1996;33:753-757.
- 43) 吉田一雄. 再処理廃液の沸騰実験の分析. JAEA-Research. 2011;2011-020.
- 44) Sander B, Fredenslund A, Rasmussen P. Calculation of vapour-liquid equilibria in mixed solvent/salt systems using an extended UNIQUAC equation. Chemical Engineering Science. 1986;41:1171-1183.
- 45) Takahashi M, Izumida T, Kawamura F, et al. Modeling on Evaporation Characteristics of a Reprocessing Plant High-Level Liquid Waste Concentrator. Nuclear Technology. 1990;92:238-242.
- 46) Davis W, De Bruin HJ. New activity coefficients of 0-100 per cent aqueous nitric acid. Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry. 1964;26:1069-1083.
- 47) 天野祐希, 渡邊浩二, 田代信介, et al. 高レベル濃縮廃液中硝酸塩の熱分解に伴う窒素酸化物発生挙動. 日本原子力学会和文論文誌. 2015;14:86-94.
- 48) 山下勝, 赤井智子, 山中裕, et al. 溶融廃棄物ガラス中のルテニウム化合物の電気伝導度に関する研究-高レベル放射性廃液固化研究報告-(先行基礎工学研究に関する共同研究報告書); 2003. Report No.: JNC TY8400 2003-004.
- 49) Gallagher PK, Schrey F, Prescott B. The thermal decomposition of aqueous manganese (II) nitrate solution. Thermochimica Acta. 1971;2:405-412.

- 50) Samant MS, Dharwadkar SR, Phadnis AB, et al. Thermoanalytical investigation on the solid state synthesis of pure zirconium molybdate (ZrMo_2O_8). *Materials Chemistry and Physics*. 1993;35:120–125.
- 51) Janković B, Mentus S, Jelić D. A kinetic study of non-isothermal decomposition process of anhydrous nickel nitrate under air atmosphere. *Physica B: Condensed Matter*. 2009;404:2263–2269.
- 52) 日本化学会 編, 化学便覧 基礎編 改訂 6 版. 丸善出版; 2021.
- 53) Lide DR. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 87th Edition. CRC Press; 2003.
- 54) Yamane Y, Amano Y, Tashiro S, et al. Release of radioactive materials from high active liquid waste in small-scale hot test for boiling accident in reprocessing plant. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 2016;53:783–789.
- 55) Kodama T, Kinuhata H, Shibata Y, et al. Boiling and drying accident of high-level liquid waste in a reprocessing plant: Examination of the NO_2 and NO generation using the simulated waste. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 2020;57:1101–1110.
- 56) 柴田勇木 et al. 模擬高レベル廃液蒸発乾固過程の NO_x 生成挙動. 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2015F, G46 (静岡, 2015).
- 57) Patwardhan JA, Joshi JB. Unified model for NO_x absorption in aqueous alkaline and dilute acidic solutions. *AIChE Journal*. 2003;49:2728–2748.
- 58) Loutet KG, Mahecha-Botero A, Boyd T, et al. Experimental Measurements and Mass Transfer/Reaction Modeling for an Industrial NO_x Absorption Process. *Ind Eng Chem Res*. 2011;50:2192–2203.
- 59) Carberry JJ. Some remarks on chemical equilibrium and kinetics in the nitrogen oxides-water system. *Chemical Engineering Science*. 1959;9:189–194.
- 60) Precek M, Paulenova A, Mincher BJ. Reduction of Np(VI) in Irradiated Solutions of Nitric Acid. *Procedia Chemistry*. 2012;7:51–58.
- 61) Watanabe D, Wada Y, Sasahira A, et al. Nitrous acid generation from radiolysis of nitric acid aqueous solution under gas flow condition. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 2017;54:182–187.
- 62) Kazanjian AR, Miner FJ, Brown AK, et al. Radiolysis of nitric acid solution : L.E.T. effects. *Trans Faraday Soc*. 1970;66:2192–2198.

- 63) Precek M, Paulenova A, Tkac P, et al. Effect of Gamma Irradiation on the Oxidation State of Neptunium in Nitric Acid in the Presence of Selected Scavengers. *Separation Science and Technology*. 2010;45:1699–1705.
- 64) Savel'ev YI, Ershova ZV, Vladimirova MV. ALPHA RADIOLYSIS OF AQUEOUS SOLUTIONS OF NITRIC ACID. *Radiokhimiya*, 9: 225-30(1967). 1967; Available from: <https://www.osti.gov/biblio/4331794>.
- 65) 日本原燃株式会社. 六ヶ所再処理施設に係る新規規制基準の適合性に関する事業者ヒアリング (183) 資料2 【重大事故等対処施設】 蒸発乾固の放出量評価に係る補足説明. 2016.
- 66) Kinuhata H, Shirato Y, Tomiyama M, 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. *Nuclear Technology*. 2015;189:122–132.
- 67) Kinuhata H, Yamamoto M, Taguchi S, 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. *Nuclear Technology*. 2015;192:155–159.
- 68) Yoshida R, Amano Y, Yoshida N, et al. Restraint effect of coexisting nitrite ion in simulated high level liquid waste on releasing volatile ruthenium under boiling condition. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 2020;0:1–6.
- 69) 阿部仁, 真崎智郎, 天野祐希, et al. 硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解に伴う揮発性ルテニウム化学種の放出挙動の検討. *JAEA-Research*. 2014; 2014-022.
- 70) 吉田一雄, 田代信介, 天野祐希, et al. 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*. 2014;13:155–166.
- 71) Sasahira A, Kawamura F. Formation rate and gas-liquid equilibrium of RuO₄. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 1988;25:472–478.
- 72) Griffith WP. Ruthenium oxidation complexes: their uses as homogenous organic catalysts. Dordrecht ; New York: Springer Science+Business Media; 2011.
- 73) Cains PW, Yewer KC, Waring S. Volatilization of Ruthenium, Caesium and Technetium from Nitrate Systems in Nuclear Fuel Processing and Waste Solidification. *Radiochimica Acta*. 1992;56:99–104.
- 74) Kido K. A theoretical investigation on the intermolecular potential curve between ruthenium tetroxide and NO_x (X = 1, 2). *Int J Quantum Chem*. 2021 ;121.

- 75) Kajan I, Kärkelä T, Auvinen A, et al. Effect of nitrogen compounds on transport of ruthenium through the RCS. *J Radioanal Nucl Chem.* 2017;311:2097–2109.
- 76) Spencer BB, Jubin RT, Bruffey SH, et al. Evaluation of Ruthenium Capture Methods for Tritium Pretreatment Off-Gas Streams. Oak Ridge National Lab. (ORNL), Oak Ridge, TN (United States); 2017. Report No.: ORNL/TM-2017/330.
- 77) Kodama T, Shibata Y, Takahashi N, 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. *Journal of Nuclear Science and Technology.* 2015;52:467–471.
- 78) Kajan I. Transport and Containment Chemistry of Ruthenium under Severe Accident Conditions in a Nuclear Power Plant. Chalmers University of Technology; 2016.
- 79) Cains PW, Barnes SJ, Frankish P, et al. Absorption of volatile ruthenium. 1988. Report No.: AERE-R-13197.
- 80) Igarashi H, Kato K, Takahashi T. Absorption Behaviour of Gaseous Ruthenium into Water. *Radiochimica Acta.* 1992;57:51–55.
- 81) Yoshida N, Ono T, Yoshida R, et al. Effect of nitrous acid on migration behavior of gaseous ruthenium tetroxide into liquid phase. *JAEA-Research.* 2022;2021–011.
- 82) 衣旗広志 et al. 高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究(6) 凝縮液への揮発性 Ru 吸収速度係数の測定実験. 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2020S, 2E09 (福島, 2020).
- 83) 柴田勇木, 小玉貴司, 大柿一史, 鈴木和則 & 熊谷幹郎. 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 年会・大会予稿集 vol. 2016S, 3P11 (仙台, 2016).
- 84) 寧堂野前, 敏克菅谷, 豊菊地, et al. 洗浄塔によるルテニウム除去特性試験. *JNC TN9410* 2002-014; 2002. p. 1-120.
- 85) 小玉貴司 et al. 高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究(5) 凝縮液への NO₂ 吸収速度係数の測定実験. 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2020S, 2E08 (福島, 2020).
- 86) 衣旗広志 et al. 高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究(7) 凝縮液への NO₂ および揮発 Ru 吸収速度係数の測定実験. 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2020F, 1F07 (オンライン, 2020).
- 87) 柴田勇木 et al. 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 年会・大会予稿集 vol. 2014F, D35 (一般社団法人 日本原子力学会, 京都, 2014).

- 88) 吉田一雄, 石川淳. 再処理施設の廃液沸騰事故でのエアロゾル移行挙動に影響する気体の熱力学物性値の推定. JAEA-Research. 2013;1-24.
- 89) Svehla RA. Estimated Viscosities and Thermal Conductivities of Gases at High Temperatures. OH, United States: NASA Lewis Research Center Cleveland; 1962. Report No.: R-132.
- 90) 吉田一雄. 極低速蒸気流での飛沫同伴率相関式の導出. JAEA-Research. 2011;2010-047.
- 91) Ginsberg T. Aerosol Generation by Liquid Breakup Resulting from Sparging of Molten Pools of Corium by Gases Released During Core/Concrete Interactions. Nuclear Science and Engineering. 1985;89:36-48.
- 92) 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. 2015;14:40-50.
- 93) Hilliard RK, Muhlestein LD. ABCOVE program: preliminary results of tests AB5 and AB6. [Aerosol Behavior Code Validation and Evaluation]. Report Number: HEDL-SA-3115-FP; CONF-8409112-2. Research Org.: Hanford Engineering Development Lab., Richland, WA (USA); 1984.
- 94) 尾崎誠, 金川昭. 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. 1985;27:626-636.
- 95) 尾崎誠, 残間徳吾, 金川昭. 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. 1986;28:90-97.
- 96) 尾崎誠, 杉本憲治, 金川昭. 高性能エアフィルタの苛酷時健全性試験(IV) -多湿試験. 日本原子力学会誌. 1986;28:551-558.
- 97) 山崎明, 島岡孝雄, 黒崎賢治. 高性能エアフィルタ 水ミスト負荷試験. 空気清浄: コンタミネーションコントロール. 2015;52:482-486.
- 98) 尾崎誠, 横井信司, 金川昭. 高性能エアフィルタの苛酷時健全性試験(II) -ダスト負荷試験. 日本原子力学会誌. 1985;27:1156-1163.

3.2.3 蒸発乾固事故に係る影響評価モデル

(1) SHAWED/MELCOR/SCHERN モデル

1) 解析コードの概要

SHAWED¹⁾はJAEAが開発した再処理廃液の沸騰を模擬する計算プログラム(コード)である。廃液中でのRuO₄生成速度は沸騰時の廃液の温度及び硝酸濃度との相関性があることから、沸騰時の廃液の温度及び硝酸濃度は極めて重要なパラメータである。廃液の沸騰・濃縮の進展に伴う温度などの熱水力パラメータや硝酸濃度の過渡的な定量的変化は、廃液の発熱量、硝酸濃度、FP硝酸塩の組成及び濃度等の条件に大きく依存する。SHAWEDはこれらの境界条件の多様な変動に対応できる汎用性のある計算コードである。

MELCOR²⁾は米国原子力委員会(U. S. Nuclear Regulatory Commission)が開発した原子炉の過酷事故解析コードである。MELCORは硝酸-水混合蒸気を扱えないが、蒸発乾固事故での熱流動の特徴を踏まえて解析モデルを工夫することで近似的に妥当な解析が可能である³⁾。

SCHERN^{4,5)}はJAEAが開発した計算コードで、蒸発乾固事故に特化した、硝酸-水混合蒸気、その凝縮水及びNO_xが存在する気相および液相で構成される系において想定される化学反応に伴う多様な化学種の濃度変化を、化学反応速度を考慮した連立一次微分方程式の数値解を求めるものである。

以上のSHAWED/MELCOR/SCHERNの連成による蒸発乾固事故評価手法が提案されている。

2) 計算の流れ

SHAWED/MELCOR/SCHERNによるソースターム解析の流れは、SHAWED、MELCOR、SCHERNの順である。まず、廃液貯槽の沸騰をSHAWEDで模擬する。このとき、廃液温度、硝酸-水混合蒸気発生量、RuO₄発生量、NO_x発生量及び飛沫発生量を解析する。模擬結果の蒸気発生量等を境界条件としてMELCORにより施設内の蒸気等の流れに沿って各区画内の熱流動状態を模擬する。このとき、セル等の区画内の温度、蒸気、ミスト量及び凝縮液量を解析する。さらに各区画内の熱流動状態を境界条件としてSCHERNを用いてRuを含む硝酸、NO_x等の化学挙動を模擬し、施設外への放射性物質の移行量を求める。このとき、蒸気の移動経路に沿って施設内の各区画の気液各相のNO_x、硝酸、亜硝酸、水、Ruの濃度を解析する。蒸気の流れの上流から下流に向け区画ごとに逐次的に解析する。

3) PIRTに対する解析モデル網羅性

重要現象に対するSHAWED/MELCOR/SCHERNモデルの網羅性を表3-18から表3-20にまとめる。各物理/化学現象に対応するSHAWED/MELCOR/SCHERNモデルを表中最右カラムに記す(各モデルの概要は次章「3.2.3(1)4)解析モデル」を参照)。これより、SHAWED/MELCOR/SCHERNモデルでは蒸発乾固事象に含まれる大部分の重要現象を網羅していることが分かる。

なお、2023年時点において、Hランク現象である、「放射線分解に伴う亜硝酸生成」、「金属壁との反応」、「CeによるRu揮発性低減」、「工学的手段によるRuO₄除去(スプレーによる除去、凝縮器による除去)」、「工学的手段による粒子状FP除去(凝縮器による除去)」、「慣性衝突」及び「凝縮器による流速抑制」については取り扱われていない。

表 3-18 PIRT に対する解析モデル網羅性(SHAWED/MELCOR/SCHERN) (1/3)

現象			ソースターム(難揮発性FP)			ソースターム(揮発性Ru)			SHAWED/MELCOR/SCHERNモデル		
分類	大項目	小項目	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期	SHAWED	MELCOR	SCHERN
廃液沸騰・濃縮	発熱	崩壊熱	H	H	H		H	H	硝酸および水の蒸発量の計算	-	-
	熱物性	硝酸溶液物性	H	H	L		H	L	硝酸および水の蒸発量の計算、廃液温度の計算、NO発生速度の計算	-	-
		乾固物物性	L	M	H		M	H	-	-	化学反応モデル
		貯槽構造物の伝熱	H	H	M		H	H	貯槽内の熱的挙動	-	-
	硝酸溶液の沸騰	蒸気発生(蒸発、沸騰)	H	H	L		H	L	硝酸および水の蒸発量の計算、廃液温度の計算	-	-
		廃液濃縮	H	H	L		M	L	廃液温度の計算	-	-
		モル沸点上昇	H	M	L		M	L	廃液温度の計算、廃液中および気相中の硝酸モル分率の計算	-	-
		共沸	H	M	L		M	L	貯槽内の熱的挙動	-	-
		塩効果	M	M	L		M	L	廃液温度の計算	-	-
		硝酸活量	M	M	L		M	L	硝酸活量の計算	-	-
		硝酸解離度(電離度)	M	M	L		M	L		-	-
		結晶水脱水	L	M	M		L	L		-	-
		硝酸塩・酸化物析出	M	M	L		L	L	-	-	-
硝酸、NO _x 反応	脱硝反応(乾固段階)	NO _x 、O ₂ 発生	L	M	H		M	H	NO発生速度の計算	-	化学反応モデル、気液間の移行のモデル
		吸熱反応	L	M	M		M	H		-	
	NO _x 挙動	化学平衡	L	M	L		M	M		-	
		NO ₂ の液相中への溶解	M	H	M		M	M		-	
		気液中のNO _x 成分比変化	L	M	L		M	M		-	
		NO ₂ 液相吸収に伴う亜硝酸生成	L	L	L		M	H		-	
	放射線分解	放射線分解に伴う亜硝酸生成	M	H	M		H	M	-	-	-
	硝酸-壁面反応	コンクリート壁面との反応	M	M	L		M	M	-	-	-
		金属壁との反応	M	M	L		H	H	-	-	-

表 3-19 PIRT に対する解析モデル網羅性(SHAWED/MELCOR/SCHERN) (2/3)

現象			ソースターム(難揮発性FP)			ソースターム(揮発性Ru)			SHAWED/MELCOR/SCHERNモデル		
分類	大項目	小項目	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期	SHAWED	MELCOR	SCHERN
揮発性Ru の移行	RuO4生成	Ru酸化	L	M	L		H	H	Ruの気化	-	-
		亜硝酸によるRu還元	L	L	L		H	M		-	-
		乾固物からの移行	L	L	L		M	H		-	-
	RuO4気相移行	気液平衡	L	M	L		H	H		-	Ruの気液間移行のモデル
		CeによるRu揮発性低減	L	L	L		H	H	-	-	
	気相からのRuO4除去(LPF)	Ru還元	L	L	L		M	H	-	-	Ruの気液間移行のモデル
		RuO4分解	L	L	L		H	H	-	-	
		壁面への沈着(化学吸着/物理吸着)	L	L	L		H	H	-	-	
		液相吸収(化学吸収)	L	L	L		H	H	-	-	
		還元剤との反応	L	L	L		M	M	-	-	
	工学的手段によるRuO4除去(LPF)	スプレーによる除去	M	M	M		H	H	-	-	-
		凝縮器による除去	M	M	M		H	H	-	-	-
難揮発性物質 の移行	飛沫同伴による粒子状FP生成	液面近傍における蒸気流速	H	H	M		L	L	飛沫同伴率の計算	-	-
		液相物性	H	H	M		L	L		-	-
		気相物性	M	M	M		L	L		-	-
		飛沫同伴	H	H	M		L	L		-	-
	RuO4還元による粒子状FP生成	RuO4還元による粒子状FP生成	L	L	L		H	H	-	-	-
	粒子径分布	凝集	H	H	H		M	M	-	エアロゾルの生成/沈着計算	-
		液滴蒸発	H	H	H		L	L	-		-
	気相からの粒子状FP除去(LPF)	重力沈降	H	H	H		L	L	-		-
		拡散泳動	H	M	M		L	L	-	-	-
		熱泳動	M	M	M		L	L	-	-	-
		慣性衝突	H	H	H		L	L	-	-	-
		気相物性	M	M	M		L	L	-	エアロゾルの生成/沈着計算、スプレーによる除去計算	-
		吸湿性による粒子成長	H	H	H		L	L	-		-
	工学的手段による粒子状FP除去(LPF)	スプレーによる除去	H	H	H		M	M	-	-	-
		凝縮器による除去	H	H	H		M	L	-	-	-
		フィルタによる除去	H	H	H		L	L	-	フィルタモデル	-

表 3-20 PIRT に対する解析モデル網羅性(SHAWED/MELCOR/SCHERN) (3/3)

現象			ソースターム(難揮発性FP)			ソースターム(揮発性Ru)			SHAWED/MELCOR/SCHERNモデル		
分類	大項目	小項目	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期	SHAWED	MELCOR	SCHERN
キャリアガスの振る舞い	気相流動	壁面凝縮	H	M	M		M	M	-	熱流動/熱水力計算	-
		ミスト生成	H	H	M		M	M	-		-
		差圧移流	M	M	M		M	M	-		-
		自然循環	M	M	M		M	L	-		-
		成層化	M	L	L		M	L	-		-
	工学的手段によるキャリアガスへの影響	スプレーによる流速抑制	H	H	H		H	H	-	スプレーによる除去計算	-
		凝縮器による流速抑制	H	H	H		H	H	-	-	-
		換気系作動	H	H	H		H	H	-	熱流動計算	-
その他	沈着物からの再放出	再浮遊(再蒸発)	L	L	L		L	M	-	-	-
	高温の貯槽への注水時の放出	注水の影響	L	M	M		M	M	-	-	-

4) 解析モデル

a SHAWED ¹⁾

溶液の沸騰は、気液各相が平衡に達するまで継続し平衡になると停止する。高レベル廃液貯槽のような緩慢な発熱が継続し、定常的に貯槽出口から蒸気が流出し大気圧が保持される系では、液相の蒸発により廃液の沸点が徐々に上昇し続けるので、気液平衡に極めて近い状態で沸騰が継続すると仮定できるとして、SHAWED では近似的に気液平衡状態で継続的に液相が蒸発するとして廃液の沸騰をモデル化している。

(a)硝酸および水の蒸発量の計算

単位時間あたりに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に等しくなる（ここでは、蒸発を早めるとの保守的な観点から、貯槽壁面からの除熱は無視する）。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。

(b)廃液温度の計算

(a) の結果から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) 廃液中および気相中の硝酸モル分率の計算

a) 沸点上昇度

硝酸水溶液の沸点上昇度： ΔT [K]は(3-1)式で与えられる。

$$\Delta T = k_w \times M - \Delta t \quad (3-1)$$

ここで、

ΔT : 沸点上昇度 [K]

M : 溶質の質量モル濃度[mol/kg]

k_w : 水のモル沸点上昇[K・kg/mol]

Δt : 気相の硝酸蒸気による水蒸気の飽和蒸気圧の低下に伴う飽和温度低下 [K]

溶質の質量モル濃度 M は未解離の硝酸、解離したプロトン及び硝酸イオンの質量モル濃度の和である。 M の算出には硝酸の解離($\text{HNO}_3 \rightleftharpoons \text{H}^+ + \text{NO}_3^-$)を考慮する必要がある。希薄水溶液の場合は完全に解離するが、硝酸モル分率の上昇とともに解離しにくくなる。一方、硝酸水溶液の沸騰では、硝酸も気化するため気相では、硝酸蒸気の分圧が生じ、その分だけ水の飽和蒸気圧が大気圧以下となりそれに伴い沸点は低下するため、その分を補正する必要があるが、SHAWED の近似では、 Δt の効果を含めて解離度を補正する方法を用いる。

b) 硝酸の解離

溶質の質量モル濃度 M は(3-2)式で表される。

$$M = \frac{X_1}{(1 - X_1)} \times \frac{1}{0.018} \times (1 + \alpha) \quad (3-2)$$

ここで,

X_1 : 水 1.0 kg の硝酸水溶液の硝酸モル分率[－]

α : 解離度 [－]

文献 ⑥では、簡単のため二成分系での曲線近似により解離度を(3-3)式で数式化し、温度の関数 ($T = \text{沸点} - 100$) で表した硝酸の解離度を用いている。

$$\alpha = -2.16414 \times 10^{-7} T^5 - 3.574 \times 10^{-6} T^4 + 1.56455 \times 10^{-4} T^3 \\ - 1.23017 \times 10^{-3} T^2 - 5.50725 \times 10^{-3} T + 1 \quad (T < 22.0) \quad (3-3)$$

$$\alpha = 0.0 \quad (22.0 \leq T)$$

c) モル沸点上昇における塩効果

硝酸塩のみの沸点上昇度 ΔT_0 は式(3-4)で表される。

$$\Delta T_0 = k_0(rX_3) \quad (3-4)$$

ここで,

k_0 : 水 1.0 kg の硝酸水溶液の硝酸モル分率[－]

X_3 : 硝酸、水及び硝酸塩のモル数の総和に対する硝酸塩モル数の比[－]

なお、典型的な模擬廃液の場合、 $r = 0.815$ としている。

d) 気液平衡における塩効果

共沸状態での硝酸モル分率 α_{azeo} は rX_3 を用いて (3-5)式で表せる。ここで r は、典型的な高レベル廃液の値として、 $r=0.815$ である。

$$\alpha_{azeo} = -4.1773(rX_3)^2 - 1.8853(rX_3) + 0.3795 \quad (3-5)$$

硝酸水溶液の平衡にある気液各相の硝酸モル分率の相関を表す平衡曲線の近似多項式は(3-6)式である⁶⁾。

$$Y_1 = 481.49X_1^6 - 594.07X_1^5 + 250.52X_1^4 - 36.025X_1^3 + 2.7840X_1^2 - 3.3117 \times 10^{-2}X_1 \quad (3-6)$$

(3-7)式から平衡状態での液相硝酸モル分率 X および気相硝酸モル分率 Y が求められる。

$$X = X_1 + X_0 \quad Y = Y_1 + Y_0 \quad (3-7)$$

なお、(3-8)式より典型的な模擬廃液 ($r=0.815$) の硝酸塩モル分率から共沸硝酸モル分率の差 $\Delta\alpha$ を求め、(3-9)式および(3-10)式より X_0 、 Y_0 を決める。

$$\Delta\alpha = 0.3795 - \alpha_{azeo} \quad (3-8)$$

$$X_0 = -0.1650 \times \Delta\alpha^2 + 0.5982 \times \Delta\alpha \quad (3-9)$$

$$Y_0 = -1.20933 \times \Delta\alpha^4 + 1.49767 \times \Delta\alpha^3 - 0.0481312 \times \Delta\alpha^2 + 0.0147554 \times \Delta\alpha \quad (3-10)$$

(d) 飛沫同伴率の計算

沸騰開始から溶液温度が約 120℃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に含まれて廃液中の放射性物質が上向蒸気流に同伴し気相へ移行しエアロゾル化する。SHAWED では、文献 7 で導出されているモデルを採用している。

文献 7 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) に替わりに移行率 (ARR : Airborne Release Rate) を用いることを提案している。ARR は(3-11)式に示す単位時間当たりの質量の比で定義される。

$$ARR \equiv \frac{\text{液面で発生し気相を移行する飛沫に含まれる難揮発性物質の質量}}{\text{沸騰で減少する廃液に含まれる難揮発性物質の質量}} \quad (3-11)$$

一方、飛沫同伴率 E_g 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 ARR とは(3-12)式の関係がある。

$$ARR(t) \cong \frac{\rho_{fc}}{\rho_f} E_{fg} \quad (3-12)$$

ここで、

ρ_f : 廃液の密度[kg/m³]

ρ_{fc} : 蒸発した硝酸及び水が凝縮したときの密度[kg/m³]

文献 7 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(3-13)式を求め、飛沫同伴率が上向蒸気流速 j_g に比例することを示している。係数 A は廃液の濃縮とともに変化し、文献 7 によれば廃液の質量減少割合が約 0.2 の時では、0.172 であるとしている。

$$E_{fg} = A \left(\frac{1}{\sigma} \right)^{\frac{1}{2}} (\mu_g \rho_g)^{\frac{1}{3}} \left(\frac{1}{g \Delta \rho} \right)^{\frac{1}{6}} j_g \quad (3-13)$$

ここで、

σ : 表面張力[N/m]

μ_g : 蒸気の粘性係数 [Pa・s]

ρ_g : 蒸気密度[kg/m³]

$\Delta \rho$: 飛沫と蒸気の密度差[kg/m³]

g : 重力加速度[m/s²]

沸騰に伴い廃液が濃縮する全過程において飛沫同伴率を求めるために、文献 7) は、模擬廃液沸騰実験の分析結果から(3-14)式を導出している。

$$E_{fg}(R_r) = \frac{K}{X_0}(1 - R_r)F(R_r) \quad (3-14)$$

ここで、

X_0 : 模擬廃液中の Cs の初期質量分率[－]

R_r : 廃液の質量減少率[－]

$F(R_r)$: 凝縮液中の Cs の質量分率[－]

実験では、沸騰で発生した蒸気を凝縮させて回収している。実験結果の分析から求めた関数 $F(R_r)$ は、廃液の質量減少率 R に対する回収した凝縮液中に含まれるセシウム (Cs) の質量分率の変化を表す。 K は凝縮液回収装置至る経路内に沈着、または回収漏れした量を補正する係数である。なお、補正係数 K は蒸気流速 j_g に比例し、(3-15)式で表される。

$$(K = 8.47 \times j_g) \quad (3-15)$$

(e) 硝酸活量の計算

文献 8) は、沸騰時の硝酸塩水溶液の硝酸活量 $a(\text{HNO}_3)$ を (3-16)式で求めている。

$$a(\text{HNO}_3) = \frac{P_{\text{HNO}_3}}{P_{\text{sat}}(T_{\text{boil}})} \quad (3-16)$$

ここで、

P_{HNO_3} : 気液平衡状態にある気相部の硝酸分圧 [kPa]

T_{boil} : 沸点 [°C]

P_{sat} : 沸点での 100%硝酸の飽和蒸気圧 [kPa]

ここでいう 100%硝酸の飽和蒸気圧は、(3-17)式で計算している。

$$P_{\text{sat}}(T) = 0.13332 \times 10^{\left(5.304 - \frac{483.9}{T+112.4}\right)} \quad (3-17)$$

(f) NO₂発生速度の計算

NO₂発生速度 $R(T)$ は(3-18)式で表される。

$$R(T) = 10.05 \times (V_t)^{0.8946} R_{50^\circ\text{C}}(T_c) \quad (3-18)$$

ここで,

V_t : 昇温速度[K/s]

T_c : (3-19)式で補正した模擬廃液試料温度[°C]

昇温速度 5.0°C/min のデータを基本ケースとして温度 T [°C] に対する NO₂発生速度の変化を $R_{50^\circ\text{C}}(T)$ [mol/(s・L)]とし, 任意の昇温速度での NO₂発生速度 $R(T)$ が得られる。 T_c は, (3-19)式により昇温速度に応じたピーク温度の差異を補正した模擬廃液試料温度であり, 廃液温度 T が 150°C 以下では補正の必要はない。

$$T_c = (T - 150)/(0.09079 \times \ln(V_t) + 1.216) + 150 \quad T \geq 150 \quad (3-19)$$

$$T_c = T \quad T \leq 150$$

なお, ((3-18)及び(3-19)式の適用範囲は, 実験条件を考慮して $1.0 \times 10^{-4} \leq V_t \leq 0.1$ としている。

(g) Ru の気化

文献⁸⁾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・HNO₃)]と定義し, 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, 文献⁹⁾で提案する速度式を参考に行っているが, パラメータの 1 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。2 種類の組成の異なる模擬廃液 A および模擬廃液 B を用いた実験結果から提案された移行速度式を(3-20)式及び(3-21)式に示す。(3-20)式は模擬廃液 A, (3-21)式は模擬廃液 B を対象としている。

$$V_A = 2.25 \times 10^{12} \times a(\text{HNO}_3)^{0.8} \times \exp(7.3 \times X_1) \times \exp\left(-\frac{130,000}{RT}\right) \quad (3-20)$$

$$V_B = 2.25 \times 10^{12} \times a(\text{HNO}_3)^{0.8} \times \exp(7.3 \times X_1) \times \exp\left(-\frac{125,000}{RT}\right) \quad (3-21)$$

ここで,

$a(\text{HNO}_3)$:	廃液中の硝酸活量[—]
X_1 :	廃液の硝酸モル分率[—]
R :	ガス定数[J/(mol · K)]
T :	廃液温度[K]

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。文献¹⁰⁾の実廃液を用いた沸騰乾固実験では、廃液温度が 120℃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が示されており、放射線分解で生成された亜硝酸による影響と考えられている。文献¹⁷⁾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現状ではない。このため SHAWED では、亜硝酸による Ru 気化の抑制効果は、廃液温度が 120℃に達するまでは RuO₄は発生しないことでモデル化している。

(h) 貯槽内の熱的挙動

廃液の沸騰が共沸状態になるまでの貯槽内の熱的挙動の進展は、硝酸及び水の蒸発量、廃液の温度、廃液中の硝酸モル分率、気相中の硝酸モル分率を、発熱量を起点として逐次近似的に各値が収束するまでの繰り返し計算によって求めることができる。一方、共沸状態到達後の廃液の温度上昇は、現状では機構論的な解析モデルが提案できない状況であるため、SHAWED では、模擬廃液を用いた実験で得られた廃液中の硝酸及び水の量と廃液温度の実測データから推定している。

a) 共沸状態到達までの変化

沸騰で蒸発する水及び硝酸の質量は、気液平衡を仮定することで廃液及び気相の硝酸モル分率との関係から決まる。貯槽壁面からの除熱を無視すれば、(3-22) 式のエネルギーの保存則が成り立つ。また、液相から気相への dm_{HNO_3} 及び $dm_{\text{H}_2\text{O}}$ の質量の移動後も各相の硝酸モル分率は、平衡関係が維持される。すなわち、気液各相の硝酸モル分率の相関を F で表すと dt 後の硝酸モル分率 X_1 及び Y_1 は、(3-23)式の関係を満たす必要がある。解析的に解を求めることはできないので、現時刻での ΔT 、 dm_{HNO_3} 及び $dm_{\text{H}_2\text{O}}$ を初期値として、次の時刻での各値を逐次的に繰り返し計算で収束解を求める。

$$Q_{net}dt = L_{H_2O}dm_{H_2O} + L_{HNO_3}dm_{HNO_3} + C_{pliq}\Delta T(M - dm_{H_2O} - dm_{HNO_3}) \quad (3-22)$$

$$Y_1 = F(X_1) \quad (3-23)$$

ここで,

Q_{net} :	廃液の自己発熱量 [J/s]
dt :	時間 [s]
dm_{HNO_3} :	dt [s]間に蒸発する硝酸の質量[kg]
dm_{H_2O} :	dt [s]間に蒸発する水の質量[kg]
L_{H_2O} :	水の蒸発潜熱 [kJ/kg]
L_{HNO_3} :	硝酸の蒸発潜熱 [kJ/kg]
M :	廃液の質量[kg]
ΔT :	廃液の温度上昇 [K]
C_{pliq} :	廃液の定圧比熱 [kJ/(kg · K)]
Y_1 :	気相の硝酸モル分率 [-]
X_1 :	液相の硝酸モル分率 [-]

ここで硝酸の蒸発潜熱は、625.9 [kJ/kg] at 20 °Cを基準値として、硝酸の臨界温度：520 [K]¹¹⁾を基に Watson の関係式¹²⁾を用いて温度 T [K]での硝酸の蒸発潜熱を(3-24)式で近似できる。

$$L_{HNO_3} = 625.9 \times \left(\frac{1 - T/520}{1 - 293.15/520} \right)^{0.375} \quad (3-24)$$

これらの式より廃液の硝酸及び水の減少量を求め、(3-22)式を満たす次の時刻の気液各相の硝酸モル分率を求める。これを用いて(3-21)式から ΔT を求め廃液温度を更新する。このような繰り返し計算の収束判定は、 dm_{HNO_3} 及び dm_{H_2O} の変動が 0.1%未満をもって行う。これを繰り返し継続することにより、共沸状態に達するまでの沸騰状態の遷移を模擬する。

b) 共沸状態到達以降の変化

共沸状態到達以降は a)のモデルで廃液温度は模擬できないので、文献の実験値を基に廃液からの蒸発量を計算し、そのときの蒸発潜熱及び脱硝反応熱を差し引いた熱が、廃液の温度上昇に寄与するとして廃液温度を推定する方法を用いている。なお、沸騰晩期での廃液の比熱は 3.0 J/(g · K)と仮定している。

b MELCOR

MELCOR ではコントロールボリューム内の熱水力・熱流動やエアロゾルの生成・沈着挙動等の物理現象を計算している。

(a) 熱流動計算 2)

コントロールボリューム内に流出入するガスや水といった流体の質量 $M_{i,m}$ と、内部エネルギー $E_{i,\varphi}$ は(3-25)式～(3-26)式で表される。

$$\frac{\partial M_{i,m}}{\partial t} = \sum_j \sigma_{ij} \alpha_{j,\varphi} \rho_{j,m} v_{j,\varphi} F_j A_j + \dot{M}_{i,m} \quad (3-25)$$

$$\frac{\partial E_{i,\varphi}}{\partial t} = \sum_j \sigma_{ij} \alpha_{j,\varphi} \left(\sum_m \rho_{j,m} h_{j,m} \right) v_{j,\varphi} F_j A_j + \dot{H}_{i,m} \quad (3-26)$$

ここで σ は流体の流出入方向（流入の場合は+1，流出の場合は-1）， α は物質の状態 φ （気体または液体）の体積比率[-]， ρ は流体密度[kg/m³]， v は各フローパスから流出入する流体の流速[m/s]， F はバルブ開度[-]， A はフローパスの流路面積[m²]， h は流体の比エンタルピー[J/kg]， $\dot{M}$ はコントロールボリューム内で流体が凝縮・蒸発したことによる質量変動[kg/s]， $\dot{H}$ は $\dot{M}$ による内部エネルギーの変動[J/s]，添字の i, j, m はコントロールボリュームのノード番号，フローパス番号，流体物質を表す。(3-25)式から(3-26)式における流速 v は(3-27)式に基づいた差分法によって計算される。

$$\begin{aligned} \alpha_{j,\varphi} \rho_{j,m} L_j \frac{\partial v_{j,\varphi}}{\partial t} = & \alpha_{j,\varphi} (P_j - P_k) + \alpha_{j,\varphi} (\rho g \Delta z)_{i,j} + \alpha_{j,\varphi} \Delta P_j \\ & - \frac{1}{2} K_{j,\varphi} \alpha_{j,\varphi} \rho_{j,m} |v_{j,\varphi}| v_{j,\varphi} - \alpha_{j,\varphi} \alpha_{j,-\varphi} f_{2,j} L_{2,j} (v_{j,\varphi} - v_{j,-\varphi}) \\ & + \alpha_{j,\varphi} \rho_{j,m} v_{j,\varphi} (\Delta v)_{j,\varphi} \end{aligned} \quad (3-27)$$

ここで P は各コントロールボリューム内の圧力[Pa]， L_j はフローパス j の配管長さ[m]， g は重力定数[m/s²]， Δz はコントロールボリューム間の鉛直方向の距離の差[m]， ΔP_j はフローパス j におけるポンプ等による圧力[Pa]， K は配管形状などによる損失項， f_2 は運動量交換に伴う相間力に関わる係数， L_2 は相間力が作用する配管長さの有効長[m]， $(\Delta v)_{j,\varphi}$ はフローパス j において発生する速度変化[m/s]，添字 k はコントロールボリューム i から流出していくフローパス番号を表す。(3-27)式の右辺第1項はコントロールボリューム間の差圧による駆動力，右辺第2項はコントロールボリュームの高低差による駆動力，右辺第3項はポンプなどの駆動力，右辺第4項は配管形状などによる圧損，右辺第5項は相間力による補正，右辺第6項は配管内の流速変化を表している。

(b) 熱水力計算²⁾

前述の熱流動計算結果を受け、コントロールボリューム内のガスおよび液体の熱水力挙動を計算する。その支配方程式を(3-28)式から(3-33)式に示す。

$$\rho = \frac{M}{V} \quad (3-28)$$

$$M_l + M_v = M_w \quad (3-29)$$

$$V_l + V_v = V \quad (3-30)$$

$$g_l(\rho_l, T) = g_v(\rho_v, T) \quad (3-31)$$

$$E = M_l e_l(\rho_l, T) + M_v e_v(\rho_v, T) + \sum_{i=4}^N M_i e_i(T) \quad (3-32)$$

$$P = P_v(\rho_v, T) + \sum_{i=4}^N \frac{M_i R_i T}{V_v} \quad (3-33)$$

ここで ρ はガスまたは液体の密度[kg/m³]、 M はガスまたは液体の質量[kg]、 V はガスまたは液体の体積[m³]、 g はギブス自由エネルギー[J/kg]、 E は内部エネルギー[J]、 e は比内部エネルギー[J/kg]、 T はコントロールボリューム内温度[K]、 P はコントロールボリューム内圧力[Pa]、 R は気体定数[J/kg/K]、添字の w,l,v,i はそれぞれ水（液体と気体）、水、水蒸気、非凝縮性ガスを表す。コントロールボリューム内の水および水蒸気は、同ボリューム内の温度に沿った蒸気圧に基づいて蒸発および凝縮が発生する。

(c) エアロゾルの生成/沈着計算¹³⁾

コントロールボリューム内は気相と液相の2相が存在するほか、熱構造物の存在も模擬されている。熱構造物は各コントロールボリューム内の気相・液相・熱構造物間の伝熱計算に用いられる他、その表面では水蒸気および後述するFPグループの蒸気の蒸発・凝縮の発生が考慮されている。

MELCORでは、表3-21に示すFPグループの蒸気やエアロゾルの挙動に関するモデルが取り扱われている。エアロゾルの挙動については、エアロゾル粒径分布を粒径の範囲ごとにセクション分割し、セクションごとに(3-34)式の連立方程式を解くことで、各コントロールボリューム内のエアロゾルの時間変化を計算している。

$$\begin{aligned} \frac{\partial n(v, t)}{\partial t} = & \frac{1}{2} \int_0^v \beta(u, v-u) \cdot n(u, v) \cdot n(u, v-u) du - \int_0^v \beta(u, v) \cdot n(u, t) \\ & \cdot n(v, t) du + \frac{\partial L}{\partial v} + S(v, t) - V_{dep}(v) \cdot \frac{A}{\Omega} \cdot (v, t) \end{aligned} \quad (3-34)$$

ここで n はエアロゾルの個数濃度[1/m³], v はエアロゾル体積[m³], t は時間[s], β は凝集定数[m³/s], $\frac{\partial L}{\partial v}$ は凝縮・蒸発によるエアロゾルの増加・減少に関する係数[(m⁶・s)⁻¹], S は化学反応や発生源から付加されるエアロゾルの係数[(m⁶・s)⁻¹], V_{dep} は沈着による除去速度[m/s], A は沈着面積[m²], Ω は空間体積[m³]を表す。(3-34)式の右辺第1項は凝集によって増加したそのセクションのエアロゾル個数, 第2項は凝集によってそのセクションを上回る大きさになったことで減少したエアロゾル個数, 第3項はエアロゾルの凝縮・蒸発による増加と減少, 第4項は化学反応および発生源によって新たに付加されるエアロゾル, 第5項は沈着による減少を表わしている。

凝集によるそのセクションのエアロゾル増加・減少はブラウン運動, 重力沈降速度差, 媒質の空間的な速度差と媒質の速度の時間変動による慣性によって発生すると仮定されている。エアロゾルの凝縮・蒸発による増加と減少は, 各セクションのエアロゾル質量をエアロゾル半径 r で表現し直した(3-35)式で表されている。

$$r \frac{dr}{dt} = \frac{S - S_r + \frac{S_r}{S} - 1}{\rho_p(a + b)} \quad (3-35)$$

ここで S は雰囲気中の蒸気の蒸気圧 P と雰囲気温度 T に対応する蒸気の飽和蒸気圧 P_{sat} の比 (P/P_{sat}), S_r はエアロゾル表面における蒸気圧 P_r と飽和蒸気圧 P_{sat} の比 (P_r/P_{sat}), ρ_p はエアロゾルの密度[kg/m³]を表す。また, (3-35)式の係数 a は熱流束項[m・s/kg], 係数 b は蒸気拡散項と呼ばれ, それぞれ(3-36)式と(3-37)式で表される。

$$a = \frac{M_v L^2}{k_v R T^2} \quad (3-36)$$

$$b = \frac{RT}{P_{sat} M_v D} \quad (3-37)$$

ここで M_v は蒸気の分子量[kg/mol], L は蒸気の凝縮潜熱[J/kg], k_v は蒸気の熱伝導率[W/m/K], R は気体定数[J/mol/K], D は蒸気の拡散係数[m²/s]を表す。RN パッケージでは, FP グループの凝縮・蒸発によるエアロゾルの増加・減少以外にも, エアロゾル表面の水蒸気が凝縮・蒸発することによるエアロゾル粒径分布の変化も考慮されている。また, エアロゾルが水溶性の場合, 湿分吸収によるエアロゾル粒径の増加を考慮する吸湿モデルもオプションとして利用可能である。

沈着によるそのセクションのエアロゾル減少は重力沈降, 熱泳動, 拡散泳動が考慮されており, 各々の沈着現象による除去速度 (重力沈降を V_G , 熱泳動を V_T , 拡散泳動を V_I) は(3-38)式~(3-40)

式で表される。

$$V_G = \frac{d_p \rho_p g C_m}{18 \mu \chi} \quad (3-38)$$

$$V_T = \frac{3 \mu C_m \left(c_t Kn + \frac{k_{gas}}{k_p} \right)}{2 \chi \rho_{gas} T \left(1 + 3 F_{srip} Kn \right) \left(1 + 2 c_t Kn + \frac{k_{gas}}{k_p} \right)} \quad (3-39)$$

$$V_I = \begin{cases} \frac{\sqrt{M_s}}{X_s \sqrt{M_s} + X_{NC} \sqrt{M_{NC}}} \cdot \frac{W_{cond}}{\rho_d} & [W_{cond} \geq 0] \\ \frac{W_{cond}}{\rho_s} & [W_{cond} < 0] \end{cases} \quad (3-40)$$

ここで、 d_p はエアロゾル直径[m]、 g は重力加速度[m/s²]、 C_m はカニンガムの補正係数、 μ は空気の粘性係数[Pa・s]、 χ はエアロゾルの動力的形状係数[-]、 c_t はエアロゾル表面での温度不連続性に関する補正係数[-]、 Kn はクヌーセン数[-]、 ρ_{gas} は雰囲気ガス密度[kg/m³]、 T は壁面温度[K]、 k_{gas} は空気の熱伝導率[W/m/K]、 k_p はエアロゾルの熱伝導率[W/m/K]、 F_{srip} はすべり係数[-]、 M_s は水蒸気モル質量[kg/mol]、 M_{NC} は非凝縮ガスモル質量[kg/mol]、 X_s は水蒸気モル比[-]、 X_{NC} は非凝縮ガスモル比[-]、 W_{cond} は水蒸気凝縮質量束[kg/s/m²]、 ρ_d はバルクガス密度[kg/m³]、 ρ_s は飽和水蒸気密度[kg/m³]を表す。

表 3-21 MELCOR で取り扱う FP グループ (参考文献²⁾より作成)

FP グループ名	代表元素	FP グループに属する元素
希ガス	Xe	He, Ne, Ar, Kr, Xe, Rn, H, N
アルカリ金属	Cs	Li, Na, K, Rb, Sc, Fr, Cu
アルカリ土類金属	Ba	Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Ra, Es, Fm
ハロゲン	I	F, Cl, Br, I, At
カルコゲン	Te	O, S, Se, Te, Po
白金属	Ru	Ru, Rh, Pd, Re, Os, Ir, Pt, Au, Ni
遷移元素	Ce	Ti, Zr, Hf, Ce, Th, Pa, Np, Pu, C
四価物	La	Al, Sc, Y, La, Ac, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Am, Cm, Bk, Cf
ウラン	U	U
中揮発性元素	Cd	Cd, Hg, Zn, As, Sb, Pb, Tl, Bi
難揮発性元素	Sn	Ga, Ge, In, Sn, Ag
ほう素	B	B, Si, P
水	H ₂ O	H ₂ O
コンクリート	-	-

c SCHERN ^{b)}

SCHERN では NO_x に係る気液各相での化学反応をモデル化している。反応に関わる化学種は NO, NO₂, N₂O₃, N₂O₄, HNO₂, HNO₃, H₂O, O₂ である。各化学反応の平衡定数及び反応速度定数は、プログラム内に組み込まれている。

(a) 化学反応のモデル

a) 気相部での化学反応

気相部でモデル化している化学反応式を(3-41)～(3-45)式に示す。表 3-22 に各化学反応の平衡定数，正方向及び逆方向の反応速度定数を示す。

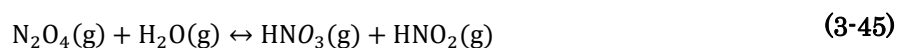


表 3-22 気相部での化学反応の平衡定数，正方向および逆方向の反応速度定数

反応式 番号	正方向反応速度定数： ki_F	平衡定数： K_i	逆方向反応速度定数： ki_B
3.1	$10^{(652.1/T-0.7356)} \times (RT/101.325)^2$ a)	—	—
3.2	10^9 b)	$10^{(2993/T-9.226)} \times (RT/101.325)$ c)	k_{2F}/K_2
3.3	10^9 b)	$10^{(2072/T-7.234)} \times (RT/101.325)$ c)	k_{3F}/K_3
3.4	4.1×10^4 b)	$10^{(-20.83/T-0.5012)}$ d)	k_{4F}/K_4
3.5	250 b)	$10^{(-965.5/T-1.481)}$ d)	k_{5F}/K_5

a): [(m³/kmol)²/s], b): [m³/kmol/s], c): [m³/kmol], d): [-], T: Gas phase temp. [K], R = 8.31446[J/(mol · K)]

b) 液相部での化学反応

液相部の化学反応式を(3-46)～(3-51)式に示す。表 3-23 に各化学反応の平衡定数，正方向及び逆方向の反応速度定数を示す。文献¹⁴⁾では(3-49)及び(3-50)式の反応は平衡反応としているのに対して文献¹⁵⁾では，不可逆反応としている。ここでは平衡反応を仮定する。また，(3-46)及び(3-47)式は文献¹⁴⁾のみに，(3-48)及び(3-51)式は文献¹⁵⁾のみに示されている。

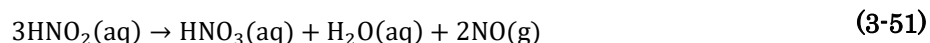
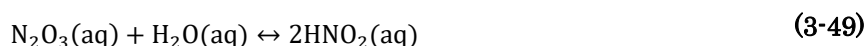


表 3-23 液相部での化学反応の平衡定数，正方向および逆方向の反応速度定数

反応式 番号	正方向反応速度定数： k_{iF}	平衡定数： K_i	逆方向反応速度定数： k_{iB}
3.6	$\cong k_{7F}$ a)	6.54×10^4 c)	k_{6F}/K_6
3.7	1.37×10^6 a)	1.37×10^4 c)	k_{7F}/K_7
3.8	$10^{4.67209}$ a)	—	—
3.9	868 b)	330 d)	k_{9F}/K_9
3.10	0.1572 b)	5.81×10^4 d)	k_{10F}/K_{10}
3.11	$10^{(-6200/T+20.1979)}$ e)	—	—

a): [m³/kmol/s], b): [m³/kmol/s], c): [m³/kmol], d): [-], e): [atm²m¹²/kmol⁴/s], T : Liquid phase temp. [K]

(b) 気液間の移行のモデル

a) 凝縮に伴う移行のモデル

凝縮液量は、ミスト及びプール水の和であると仮定し、それぞれの体積を V_{cond} , V_{mist} 及び V_{pool} とする。SCHERN で提案する液相への溶解のモデルでは、ミスト及び壁面液膜において瞬時に平衡状態となる溶解を仮定し、化学種が平衡状態で溶解したミスト及び壁面液膜水がプール水へ追加されることになる。このため単位時間当たりの各化学種の気相から液相水への移行量は、 V_{cond} の単位時間当たりの増加分に溶解する量としている。また、プール水と気相部は、Henry の法則に従う平衡にほぼ近い状態にあることから、凝縮水が増加する状況ではプール水界面を介しての移行はないと仮定する。

表 3-24 に NIST Chemistry WebBook¹⁶⁾ のサイトに掲載されている水に対する Henry 定数を定数項と温度依存項に分けて示す。Henry 定数は、これら 2 項の積で表される。化学種: X の Henry 定数: h_X [kmol/m³/kPa] に分圧: p_X [kPa] を乗ずれば液相中の平衡状態での化学種 X の濃度が求まるが、気液各相の濃度の経時変化を解析するためには、単位時間当たりの気液間の移行量が必要となる。蒸気凝縮に伴い発生するミスト及び液膜に溶解する化学種 X の移行速度: S_X [kmol/s] は、(3-52) 式で表される。同式の中辺の気相の化学種 X の濃度: $[X(g)]$ [kmol/m³] 以外の項をまとめて K_X [m³/s] とする。凝縮液量が減少する場合、即ち K_X が負の場合では、 S_X をゼロとし、凝縮液の減少による濃度増加を考慮する。

表 3-24 水に対する Henry 定数[kmol/m³/kPa]

化学種(X)	定数項(@298.15 K)	温度依存項
NO	1.84×10^{-5}	$\exp(1500(1/T - 1/298))$
NO ₂	1.18×10^{-4}	$\exp(2500(1/T - 1/298))$
N ₂ O ₃	5.98×10^{-3}	-
N ₂ O ₄	1.38×10^{-2}	-
O ₂	1.30×10^{-5}	$\exp(4800(1/T - 1/298))$
HNO ₂	4.80×10^{-1}	$\exp(1700(1/T - 1/298))$
HNO ₃	2.10×10^3	$\exp(8700(1/T - 1/298))$

$$S_X = h_X p_X \frac{d}{dt} V_{\text{cond}} = h_X \frac{[X(g)]}{M_{\text{tot}}} p_{\text{tot}} \frac{d}{dt} V_{\text{cond}} = [X(g)] \text{MIN}(K_X, 0.0) \quad (3-52)$$

ここで、気相部全圧: p_{tot} [kPa], 気相部全モル濃度: M_{tot} [kmol/m³] である。(3-52) 式で得られる値は、気相から液相への単位時間当たりの移動量 [kmol/s] である。一方、気液各相での各化学種の存在量は、濃度[kmol/m³] で表すため、気相から液相への移動に伴う気相部の濃度減少及び液相部(凝縮液)の濃度増加に換算するには、それぞれの体積(気相部体積: V_{stm} , 凝縮液体積: V_{cond}) で除する必要がある。

b) 分子拡散による移行のモデル

乾固後に蒸気の凝縮が生じない状態では、気液界面を介した化学種の移動が主体と考えられる。SCHERN では、このような現象を Whiteman の薄膜理論¹³⁾による気液界面での物質の移動を仮定してモデル化している。気液界面における化学物質の移動を分子拡散と考えると、化学種の移動量束： N [kmol/m²/s] は Fick の第一法則に従い (3-53)式で表される。

$$N = -D \frac{dC}{dz} \quad (3-53)$$

ここで、 C は濃度 [kmol/m³]、 D は拡散係数 [m²/s]、 z は移動方向の距離 [m]を表す。気液界面において、濃度勾配 dC/dz が一定であれば、(3-53)式は(3-54)式で表すことができる。 k は D/dz で定義される質量移動係数 [m/s]である。

$$N = k\Delta C \quad (3-54)$$

ここで、気相液相の界面を考える。 C_g は気相中の化学種の濃度 [kmol/m³]、 C_{sg} は気相境界層の気液界面での化学物質濃度[kmol/m³]、 C_{aq} は液相中の化学種の濃度 [kmol/m³] 及び、 C_{saq} は液相境界層の気液界面での化学種の濃度[kmol/m³]を表す。

界面の液相境界層での物質の移動量束： N_{saq} [kmol/m²/s] は(3-55)式で表される。

$$N_{saq} = k_{aq}(C_{aq} - C_{saq}) \quad (3-55)$$

ここで、 k_{aq} [m/s]は液相中の化学種の質量移動係数を表す。気相境界層での物質の移動量束： N_{sg} [kmol/m²/s] は、(3-56)式で表される。

$$N_{sg} = k_g(C_{sg} - C_g) \quad (3-56)$$

ここで、 k_g [m/s]は気相中の化学物質の質量移動係数である。

気液界面では平衡状態にあると仮定すれば C_{sg} と C_{saq} の間には Henry の法則が成立し、これら 2 つの濃度には (3-57) 式で示す関係が成り立つ。ここで、 K_{gaq} は Henry 定数から求まる値である。

$$C_{saq} = K_{gaq} C_{sg} \quad (3-57)$$

(3-56)式から、 C_{sg} は C_g と(3-58)式で関係付けられる。

$$C_{sg} = \frac{N_{sg}}{k_g} + C_g \quad (3-58)$$

したがって、(3-57)式と(3-58)式から、 C_{saq} は C_g と(3-59)式で関係付けられる。

$$C_{saq} = K_{gaq} \left(\frac{N_{sg}}{k_g} + C_g \right) \quad (3-59)$$

各境界層での化学種の移動量束は等しいため、これらを N とすれば、(3-55)式に(3-59)式を代入して(3-60)式が得られる。

$$N = k_{aq} \left(C_{aq} - K_{gaq} \left(\frac{N}{k_g} + C_g \right) \right) \quad (3-60)$$

(3-60)式を N について整理すると(3-61)式が得られる。

$$N = \frac{C_{aq} - C_g K_{gaq}}{1/k_{aq} + K_{gaq}/k_g} \quad (3-61)$$

文献 14)では気相及び液相中の物質の拡散係数は、それぞれ概ね 10^{-5} [m²/s]、 10^{-9} [m²/s]程度の値が示されている。本解析モデルでは、気相境界層及び液相境界層厚さを、それぞれ 10^{-2} [m]、 10^{-5} [m] と仮定し、SCHERN で扱うすべて化学種の k_g 及び k_{aq} を、それぞれ 10^{-3} [m/s]、 10^{-4} [m/s] としている。

(c) Ru の気液間移行のモデル

a) Ru 物質移動係数の相関式

文献 15)には、ガラス管内で Ru を含む硝酸-水混合蒸気の凝縮に伴う凝縮液への移行量を調べる実験の分析から、(3-62)式に示す Ru 物質移行係数にかかる相関式が提案され、実規模施設への適用可能性についても考察されている。相関式では、Ru 物質移行係数： Mtc_{Ru} [m/s] は、単位面積当たりの蒸気凝縮速度： $Vd_{cond-pa}$ [m³/s/m²] 及び単位体積当たりの供給蒸気体積流量： Fv_{stm-pa} [m³/s/m³] を用いて表される。

$$Mtc_{Ru} = 7.333 \times 10^9 \times (Vd_{cond-pa})^{1.788} \times (Fv_{stm-pa}/2.154 \times 10^{-3})^{-3.233} \quad (3-62)$$

b) 乾固後の取り扱い

(3-62)式は、物理的な吸収を表すと考ええる。施設内での蒸気の凝縮に伴う乾固前の期間では、同相関式で求まる物質移動係数に従い、区画内の濡れた壁面及びプール水面から液相に移行すると仮定する。文献 17)に示されている気液接触試験では、濡れ壁塔を流れ出しリザーバーに貯留される吸収液から、Ru の一部が再揮発したと思われる現象が確認されたとしている。このことから乾固後では蒸気凝縮がないので上述の(b)b)で示した分子拡散による移行のモデルに従い移行すると考えられるが、液相中での Ru と亜硝酸との化学変化については不明な点が多いことから、現状の SCHERN では、乾固後は気液間の移行は生じない取り扱いとしている。

5) 評価体系、ノード分割例 3)

MELCOR を用いた施設内の熱流動解析について説明する。当該事故時に貯槽から発生した蒸気が放射性物質とともに施設内を移動する経路をもとに施設内の各区画およびそれらの間をつなぐ流路で構成されるボリューム・フローパスの解析モデルを設定する。そのための入力データの作成手順を示す。さらに MELCOR を用いて当該事故を解析するにあたり仮定した解析条件が、結果に及ぼす影響について分析した結果も併せて示す。

ここでの MELCOR を用いた施設内の熱流動解析で想定する事故シナリオでは、廃ガスシールポットから廃ガス処理セル内に流出する場合を想定する。一般的には、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、また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。ここでは後者の移行経路を仮定する。図 3-30 に仮想的な実規模施設を対象とした MELCOR の分割モデルを示す。高レベル廃液貯槽は解析の境界条件である。廃ガス処理セルおよび廃ガス処理セルに近接する建屋区画（放射性配管分岐セル）の容積、壁表面積は文献[]に掲載された施設の平面図および立面図から推定している。それ以外の区画は、概略値を設定している。放射性配管分岐セルは、図 3-31 に示すように容積、コンクリート壁面が広いので、発生蒸気の移行可能な経路を考慮して 4 区画でモデル化している。

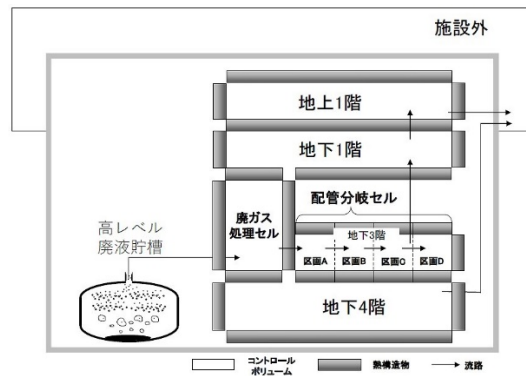


図 3-30 仮想的な実規模施設のボリューム分割図（参考文献³⁾から転載）

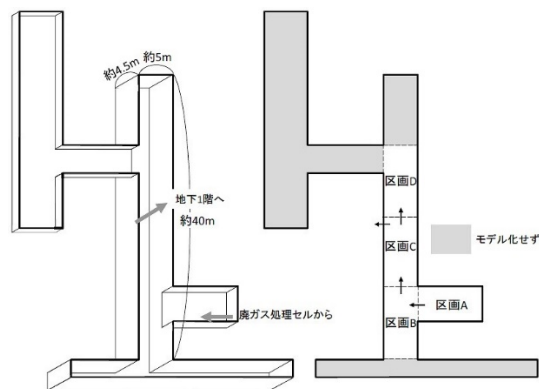


図 3-31 放射性配管分岐セルのコントロールボリューム分割（参考文献³⁾から転載）

当該事故の解析では、熱吸収源であるコンクリート壁での凝縮水の発生が重要である。廃ガス処理セル、放射性配管分岐セルでは図面から測った壁厚をできるだけ忠実に再現したが、それ以外の壁面の厚さは 2 m を仮定している。温度解析に必要な物性値は MELCOR 内蔵の値を用いている。全電源喪失による冷却機能喪失を想定するので、換気系の停止を仮定する。これにより事故時の建屋内への新たな空気の流入はないとする。

(2) FATE モデル

1) 解析コードの概要

FATE コードは、発電炉のシビアアクシデントコード MAAP の開発を担当する米国 FAUSUKE & ASSOCIATES LLC 社が Hanford 処分サイトの安全審査のため米国エネルギー省からの委託の下で開発してきたコードであり¹⁸⁾、硝酸水溶液の沸騰、凝縮、及びミスト生成を扱えるシビアアクシデントコードである。ノードジャンクション法に基づく伝熱流動解析モデル、飛沫同伴モデル、及びエアロゾル挙動評価モデルが具備され、ユーザ指定による任意の化学物質の取り扱いを可能とする。近年、蒸発乾固事象に特化した、廃液沸騰モデル、脱硝反応による NO_x 発生モデル、 RuO_4 放出モデル、凝縮液への NO_x / RuO_4 吸収モデル、及び乾固物析出モデルが組み込まれ、時々刻々のセル内条件を反映した現実的なエアロゾル、及び RuO_4 移行挙動の評価を可能とする。

2) 計算の流れ

FATE では、蒸発乾固事象における貯槽内、及び下流の移行経路内の物理/化学現象全般を扱い、時系列のエアロゾル、及び揮発性 RuO_4 の環境放出挙動をワンスルーで計算する。貯槽では、廃液の沸騰による水蒸気、硝酸蒸気の発生から、液滴の飛沫同伴、揮発性 RuO_4/NO_x の発生を扱い、移行経路では、水蒸気/硝酸蒸気の凝縮、揮発性 RuO_4/NO_x の凝縮液中への溶解、エアロゾルの除去を扱う。また、安全系（凝縮器、フィルタ、注水）についてもモデル化可能な仕様となっている。

3) PIRT に対する解析モデル網羅性

重要現象に対する FATE モデルの網羅性を表 3-25～表 3-27 にまとめる。各物理/化学現象に対応する FATE 評価モデルを表中最右カラムに記す。各モデルの概要は次章「(d) 解析モデル」を参照。これより、FATE コードでは蒸発乾固事象に含まれる大部分の重要現象を網羅していることが分かる。

なお、2023 年時点において、H ランク現象である「硝酸-壁面反応」、「揮発性 RuO_4 還元による粒子状 FP 生成」、「スプレーによる除去 (RuO_4 /粒子状 FP)」、及び「スプレーによる流速抑制」については取り扱われていない。この内、「揮発性 RuO_4 還元による粒子状 FP 生成」については、モデル化しないことで環境放出量を保守的に扱うこととなり、「スプレーによる除去 (RuO_4 /粒子状 FP)」、及び「スプレーによる流速抑制」については国内の再処理施設においてスプレー設備の設置が計画されていないことからモデル化されていないものである。

表 3-25 PIRT に対する解析モデル網羅性(FATE) (1/3)

現象			ソースターム（難揮発性FP）			ソースターム（揮発性Ru）			FATEコード評価モデル
分類	大項目	小項目	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期	
廃液沸騰・濃縮	発熱	崩壊熱	H	H	H		H	H	崩壊熱モデル
	熱物性	硝酸溶液物性	H	H	L		H	L	廃液の蒸発/沸騰モデル
		乾固物物性	L	M	H		M	H	
		貯槽構造物の伝熱	H	H	M		H	H	
	硝酸溶液の沸騰	蒸気発生（蒸発、沸騰）	H	H	L		H	L	
		廃液濃縮	H	H	L		M	L	
		モル沸点上昇	H	M	L		M	L	
		共沸	H	M	L		M	L	
		塩効果	M	M	L		M	L	
		硝酸活量	M	M	L		M	L	
		硝酸解離度（電離度）	M	M	L		M	L	
		結晶水脱水	L	M	M		L	L	
		硝酸塩・酸化物析出	M	M	L		L	L	
硝酸、NOx 反応	脱硝反応（乾固段階）	NOx、O2発生	L	M	H		M	H	NOx発生モデル
		吸熱反応	L	M	M		M	H	
	NOx挙動	化学平衡	L	M	L		M	M	
		NO2の液相中への溶解	M	H	M		M	M	
		気液中のNOx成分比変化	L	M	L		M	M	
		NO2液相吸収に伴う亜硝酸生成	L	L	L		M	H	
	放射線分解	放射線分解に伴う亜硝酸生成	M	H	M		H	M	
	硝酸-壁面反応	コンクリート壁面との反応	M	M	L		M	M	
		金属壁との反応	M	M	L		H	H	

表 3-26 PIRT に対する解析モデル網羅性(FATE) (2 / 3)

現象			ソースターム (難揮発性FP)			ソースターム (揮発性Ru)			FATEコード評価モデル
分類	大項目	小項目	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期	
揮発性Ru の移行	RuO ₄ 生成	Ru酸化	L	M	L		H	H	揮発性Ru放出モデル
		亜硝酸によるRu還元	L	L	L		H	M	
		乾固物からの移行	L	L	L		M	H	
	RuO ₄ 気相移行	気液平衡	L	M	L		H	H	
		CeによるRu揮発性低減	L	L	L		H	H	
	気相からのRuO ₄ 除去(LPF)	Ru還元	L	L	L		M	H	揮発性Ru除去モデル
		RuO ₄ 分解	L	L	L		H	H	
		壁面への沈着 (化学吸着/物理吸着)	L	L	L		H	H	
		液相吸収 (化学吸収)	L	L	L		H	H	
		還元剤との反応	L	L	L		M	M	
	工学的手段によるRuO ₄ 除去 (LPF)	スプレーによる除去	M	M	M		H	H	安全系モデル
		凝縮器による除去	M	M	M		H	H	
難揮発性物質 の移行	飛沫同伴による粒子状FP生成	液面近傍における蒸気流速	H	H	M		L	L	飛沫同伴モデル
		液相物性	H	H	M		L	L	
		気相物性	M	M	M		L	L	
		飛沫同伴	H	H	M		L	L	
	RuO ₄ 還元による粒子状FP生成	RuO ₄ 還元による粒子状FP生成	L	L	L		H	H	
	粒子径分布	凝集	H	H	H		M	M	粒子状FP除去モデル
		液滴蒸発	H	H	H		L	L	
	気相からの粒子状FP除去(LPF)	重力沈降	H	H	H		L	L	
		拡散泳動	H	M	M		L	L	
		熱泳動	M	M	M		L	L	
		慣性衝突	H	H	H		L	L	
		気相物性	M	M	M		L	L	
		吸湿性による粒子成長	H	H	H		L	L	
	工学的手段による粒子状FP除去 (LPF)	スプレーによる除去	H	H	H		M	M	安全系モデル
		凝縮器による除去	H	H	H		M	L	
		フィルタによる除去	H	H	H		L	L	

表 3-27 PIRT に対する解析モデル網羅性(FATE) (3 / 3)

現象			ソースターム (難揮発性FP)			ソースターム (揮発性Ru)			FATEコード評価モデル
分類	大項目	小項目	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期	
キャリアガス の振る舞い	気相流動	壁面凝縮	H	M	M		M	M	熱水力挙動に関する基礎方程式
		ミスト生成	H	H	M		M	M	
		差圧移流	M	M	M		M	M	
		自然循環	M	M	M		M	L	
		成層化	M	L	L		M	L	
	工学的手段によるキャリアガス への影響	スプレーによる流速抑制	H	H	H		H	H	安全系モデル
		凝縮器による流速抑制	H	H	H		H	H	
		換気系作動	H	H	H		H	H	
その他	沈着物からの再放出	再浮遊 (再蒸発)	L	L	L		L	M	
	高温の貯槽への注水時の放出	注水の影響	L	M	M		M	M	

4) 解析モデル

a 熱水力挙動に関する基礎方程式

FATE コードは貯槽、配管、セル、施設ルーム、ダクト等の機器をモデル化して解析することが可能であり、これらの機器はノードとジャンクションにより構成される。各ノードにおいて、気相、液相及びエアロゾルの存在量とエネルギーから状態方程式により温度、圧力及びエアロゾル濃度が計算され、ジャンクションにおいては流量が計算される。質量とエネルギーの変化率は、各ノード（領域）における物質ごとの質量及びエネルギーバランスより求められ、領域 r における物質 i の質量変化率は式(3-63)により求められる。

$$\frac{dm_{ir}}{dt} = \sum W_{ijr} + S_{ir} + \sum W_{ipr} \quad (3-63)$$

ここで、

m_{ir} :	領域 r における物質 i の質量[kg]
W_{ijr} :	ジャンクション j により領域 r に流入する物質 i の質量流量 [kg/s]
S_{ir} :	領域 r での物質 i の発生量 [kg/s]
W_{ipr} :	プロセス p による領域 r での物質 i の質量変化量 [kg/s]

領域 r におけるエネルギー変化率は式(3-64)により求められる。

$$\left(\frac{dU_r}{dt}\right) = \sum W_{ijr} h_{ijr} + \sum S_{ir} h_r + \sum W_{ipr} h_p \quad (3-64)$$

ここで、

U_r :	領域 r におけるエネルギー[kJ]
h_{ijr} :	ジャンクション j により領域 r に流入する物質 i の比エンタルピー [kJ/kg]
h_r :	領域 r の比エンタルピー [kJ/kg]
h_p :	プロセス p の比エンタルピー [kJ/kg]

式(3-63)と式(3-64)は気体と液体それぞれで求められ、気体と液体の各物質の質量は、上記の関係により保存される。FATE で扱う物質は、物性値をライブラリに設定することにより、ユーザが任意に定義する。また、FATE では液体は非圧縮性流体としてモデル化しており、固体という状態はなく固体も液体として扱われる。このため、気体が存在しない液体のみの領域は扱うことができない。

b 崩壊熱モデル

初期から乾固直前までは，入力で設定した崩壊熱が廃液全体に付与され，乾固以降は析出物に崩壊熱が付与される扱いとする。

c 廃液の蒸発/沸騰モデル

硝酸溶液の温度上昇，沸騰（蒸気発生）については式(3-65)に示す熱収支式¹⁹⁾で評価される。左辺は（溶液の熱容量） $[J/^\circ C]$ に温度変化率を乗じたものであり，単位時間当たりの溶液のエネルギー変化 $[W]$ を表す。右辺第一項は（崩壊熱） $[W]$ ，第二項は水と硝酸の蒸発に消費される潜熱を表す。右辺第三項の（化学反応熱） $[W]$ は，硝酸，及び硝酸塩の熱分解による吸熱反応熱であり，負の値となる。また，右辺第四項の（その他エネルギーロス） $[W]$ には，構造物への伝熱，貯槽壁面からの放熱，及び γ 線漏えいが含まれる。熱収支式の模式図を図 3-32 に示す。

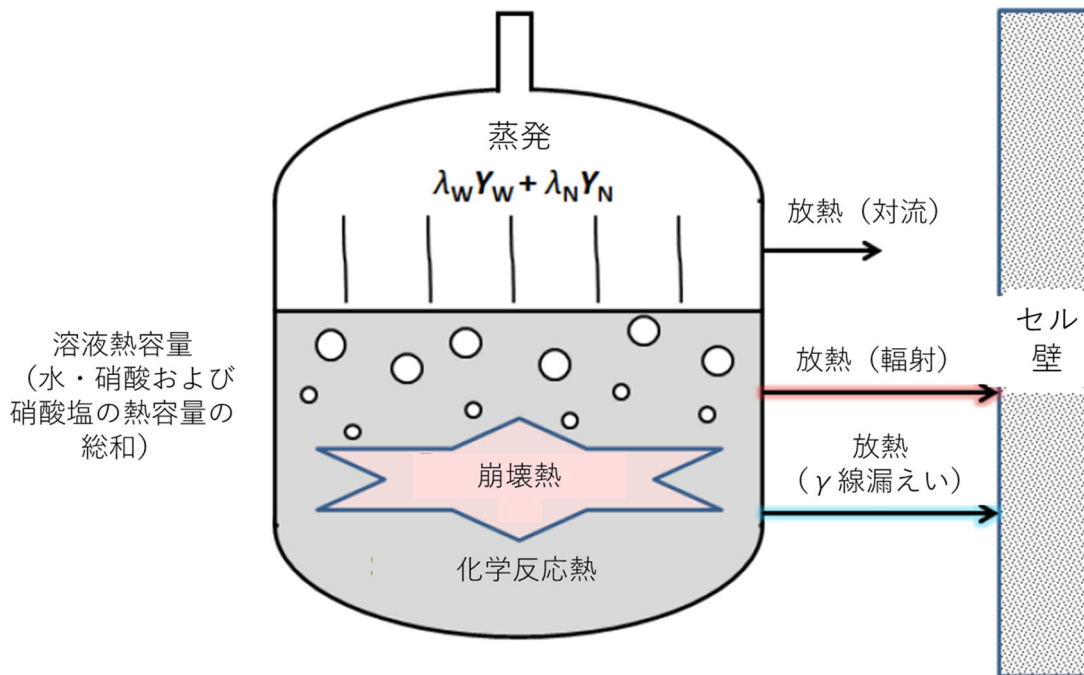


図 3-32 貯槽の熱収支式の模式図（参考文献¹⁹⁾を基に作成）

溶液の熱容量は，貯槽中の水，硝酸，及び溶質である溶存塩類（硝酸塩）の熱容量の総和とする。なお，硝酸塩は熱分解後，酸化物に変化するが，本評価モデルでは硝酸塩と酸化物の比熱を区別せず，やや小さめの値である酸化物の比熱を一貫して適用する。これは溶液の熱容量を若干小さめに見積もることになり，蒸発乾固の事故進展の観点からは保守的な扱いとなる。但し，貯槽全熱容量に対する硝酸塩の熱容量の値は十分に小さく，事故進展解析への影響は極めて小さい。

硝酸の蒸発潜熱 λ_N については，純粋な硝酸の潜熱に“水への溶解熱”を加算する必要がある。

る（硝酸は水に溶解する際に発熱する）。また、廃液からの水と硝酸の蒸発速度（ Y_w 及び Y_N ）は、実験で得られた溶液温度依存の相関式に基づき計算する。これは、廃液の蒸発挙動は“昇温速度及び廃液の硝酸塩成分に依存せず溶液温度で決まる”という実験知見に基づくものである。この蒸発速度相関式を適用することで、蒸発による硝酸濃度上昇、硝酸塩濃度上昇がモル沸点上昇につながり、また硝酸塩の熱分解で生成された酸化物が析出していく一連の複雑な過程における熱収支の扱いの簡素化を実現している。蒸発速度相関式の一例を図 3-33 に示す。

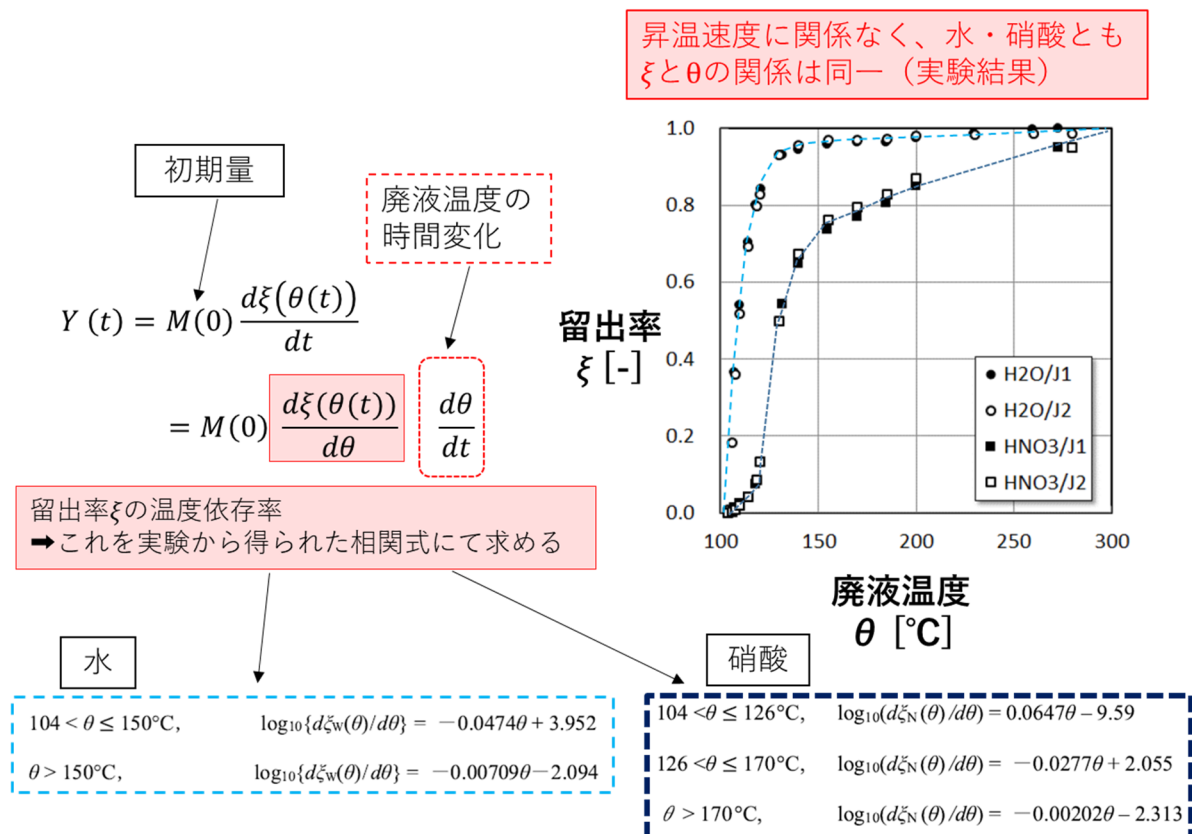


図 3-33 蒸発速度相関式の一例（参考文献 19）を基に作成）

$$\begin{aligned}
 & (\text{溶液の熱容量}) \frac{d\theta(t)}{dt} \quad \square \\
 & = (\text{崩壊熱}) - [\lambda_w(\theta(t))Y_w(t) + \lambda_N(\theta(t))Y_N(t)] \\
 & + (\text{化学反応熱}) - (\text{その他エネルギーロス})
 \end{aligned}
 \tag{3-65}$$

ここで,

t :	時間 [s]
$\theta(t)$:	溶液温度 [°C]
$Y_w(t)$:	水の蒸発速度 [mol/s]
$Y_N(t)$:	硝酸の蒸発速度 [mol/s]
$\lambda_w(\theta(t))$:	水の蒸発潜熱 [J/mol]
$\lambda_N(\theta(t))$:	硝酸の蒸発潜熱 [J/mol]

沸騰・蒸発が進むにつれて廃液が濃縮されると、これに伴って溶存硝酸塩の析出が起こる。また前述した硝酸および硝酸塩の脱硝反応が起こると、脱硝反応により生成した不溶性の酸化物の析出が起こる。これらの析出速度については以下の算出方法を採用²⁰⁾。

- ・硝酸塩析出速度： 各元素の硝酸塩の廃液中濃度と溶解度を時系列的に比較し、硝酸塩濃度が溶解度を上回った分だけ析出すると想定
- ・酸化物析出速度： 発生した酸化物は全て析出すると仮定し、酸化物発生速度は後述する NO_x 発生速度に基づき算出

d NO_x発生モデル

溶液が温度上昇、沸騰を経て乾固に至る過程では、硝酸及び硝酸塩の熱分解(脱硝反応)により NO_x (NO₂, NO) 及び O₂ が放出される。この反応は吸熱反応であり、発生した非凝縮性ガスは、放射性物質移行のキャリアガスとして振る舞うと共に、壁面凝縮熱伝達係数への影響、及び凝縮液への揮発性 RuO₄ 溶解挙動への影響など、他の多くの現象に関連する重要な物理化学現象である。硝酸の脱硝反応を式(3-66)に、硝酸塩(ここでは Nd について例示)の脱硝反応を式(3-67), (3-68)に示す。なお、硝酸塩の脱硝反応には式(3-69)に示す反応で NO_xではなく硝酸(HNO₃)を生成する反応も存在し、実験的知見から式(3-69)の反応で生成する硝酸量と式(3-66)の反応で分解する硝酸量がほぼ等しいことが確認されている²¹⁾。



なお、溶液中には多種の FP 金属元素の硝酸塩が含まれ、これらの脱硝反応が生じる温度帯、反応温度ピークは FP 金属元素により大きく異なることが知られている。このため、硝酸及び硝酸塩の脱硝反応による NO₂、NO 発生率は溶液温度に対し複雑な挙動を示し、これらは「硝酸、及び複数の FP 硝酸塩熱分解による発生分布の重ね合わせ」を考慮したアレニウス式でモデル化される。(NO₂発生率)[mol/s]、及び(NO発生率)[mol/s]の評価式²¹⁾を式(3-70)、及び式(3-71)に示す。ここでは、複数の反応温度ピークを5群(NO₂)及び2群(NO)のアレニウス式で表すものであり、式中の頻度因子 A_i 、及び活性化エネルギー E_i は溶液(硝酸濃度、溶存塩類)に応じて入力パラメータとして設定する。頻度因子 A_i 、及び活性化エネルギー E_i の一例を表 3-28 に示す。

$$(NO_2 \text{ 発生率}) = - \sum_{i=1}^5 \frac{dM^i(t)}{dt} = - \sum_{i=1}^5 A_i \exp \left[-\frac{E_i}{RT} \right] M^i(t) \quad (3-70)$$

$$(NO \text{ 発生率}) = - \sum_{i=6}^7 \frac{dM^i(t)}{dt} = - \sum_{i=6}^7 A_i \exp \left[-\frac{E_i}{RT} \right] M^i(t) \quad (3-71)$$

ここで、

M^i :	溶液中の窒素モル数 (第 i グループ) [mol]
A_i :	NO _x 生成のアレニウス式頻度因子 (第 i グループ) [1/s]
E_i :	NO _x 生成のアレニウス式活性化エネルギー (第 i グループ) [J/mol]
R :	気体定数 [J/K/mol] (=8.314)
T :	気相温度 [K]

表 3-28 アレニウス式の入力パラメータ設定例（参考文献²¹⁾より転載）

		Initial amount	Frequency factor A	Activation energy E
Group		mol m ⁻³	min ⁻¹	kJ mol ⁻¹
NO ₂	1	83	5.0E+17	150
	2	116	2.0E+13	140
	3	349	2.0E+10	120
	4	1,246	2.0E+12	150
	5	233	3.0E+10	140
NO	6	266	2.0E+06	100
	7	150	1.0E+12	200

前述の通り，NO_x発生には少なくとも式(3-66)～(3-68)の3つの脱硝反応が関係していると考えられ，これらの反応では NO_xと同時に O₂ が生成されることが分かる。(O₂発生率)[mol/s]は実験式(3-72)のとおり，(NO₂発生率)と(NO発生率)の関数で与えられる。

$$(O_2 \text{ 発生率}) = 0.25 \times (NO_2 \text{ 発生率}) + 0.75 \times (NO \text{ 発生率}) \quad (3-72)$$

ここで，

$$R_{O_2}: \quad O_2 \text{ 発生率}[\text{mol/s}]$$

硝酸・及び硝酸塩の熱分解（脱硝反応）は吸熱反応であり，この評価方法を以下に記す。前述のとおり，実験的知見から式(3-69)の反応で生成する硝酸量と式(3-66)の反応で分解する硝酸量がほぼ等しいことが確認されているため，脱硝反応の吸熱量は硝酸塩についてのみ考慮すれば良いことが分かる。硝酸塩の NO_x生成反応式(3-67)及び(3-68)より，これらの分解反応熱は式(3-73)及び(3-74)で与えられる（酸素等の単体分子の標準生成エンタルピはゼロである）。式中の各化学種の標準生成エンタルピをエラー！ 参照元が見つかりません。にまとめる（一部の化学種については仮定が含まれることに留意）。NO₂及びNOの生成量は，式(3-73)及び(3-74)で確定され，これと溶液中の溶存塩類成分の情報から，その脱硝反応に伴う吸熱量を評価することが可能となる¹⁹⁾。

$$\Delta_d^{NO_2} H = \frac{\Delta_f^{oxide} H}{2} + 3\Delta_f^{NO_2} H - \Delta_f^{nitrate} H \quad (3-73)$$

$$\Delta_d^{NO}H = \frac{\Delta_f^{oxide}H}{2} + 3\Delta_f^{NO}H - \Delta_f^{nitrate}H \quad (3-74)$$

ここで,

$\Delta_d^{NO_2}H$: NO_2 の生成吸熱量 [J/mol]

$\Delta_d^{NO}H$: NO の生成吸熱量 [J/mol]

$\Delta_f^{oxide}H$: FP 金属酸化物 (例: Nd_2O_3) の標準生成エンタルピー [J/mol]

$\Delta_f^{NO_2}H$: NO_2 の標準生成エンタルピー [J/mol]

$\Delta_f^{NO}H$: NO の標準生成エンタルピー [J/mol]

$\Delta_f^{nitrate}H$: FP 金属硝酸塩 (例: $\text{Nd}(\text{NO}_3)_3$) の標準生成エンタルピー [J/mol]

表 3-29 各化学種の標準生成エンタルピー (参考文献¹⁹⁾より転載)

Compound	$\Delta_f H^\circ$ kJ mol ⁻¹	Ref.	Oxide	$\Delta_f H^\circ$ kJ mol ⁻¹	$\Delta_{d1} H$ kJ mol ⁻¹	End product : NO ₂		Heat kJ L ⁻¹	$\Delta_{d2} H$ kJ mol ⁻¹	End product : NO		Heat kJ L ⁻¹
						$\Delta_{d1} H/\text{NO}_2$ kJ mol ⁻¹	NO ₂ mol L ⁻¹			$\Delta_{d2} H/\text{NO}$ kJ mol ⁻¹	NO mol L ⁻¹	
HNO ₃	-174	15)	NO ₂	33	64	64	0.51	33				
			NO	90					121	121	0.15	18
Cr(NO ₃) ₃	-652	a)	Cr ₂ O ₃	-1,140	182	61	0.016	1.0	353	118	0.004	0.5
Ni(NO ₃) ₂	-415	15)	NiO	-240	241	121	0.005	0.6	356	178	0.001	0.3
RbNO ₃	-495	14)	Rb ₂ O	-339	359	359	0.012	4.2	246	246	0.003	0.8
Sr(NO ₃) ₂	-978	15)	SrO	-593	452	226	0.051	11.6	566	283	0.015	4.1
Y(NO ₃) ₃	-1,172	a)	Y ₂ O ₃	-1,905	319	106	0.042	4.5	491	164	0.012	1.9
Mn(NO ₃) ₂	-576	15)	MnO	-385	257	129	0.080	10.2	372	186	0.022	4.2
Rh(NO ₃) ₃	-351	a)	Rh ₂ O ₃	-343	279	93	0.033	3.0	450	150	0.009	1.4
Pd(NO ₃) ₂	-233	a)	PdO	-85	214	107	0.012	1.3	328	164	0.003	0.6
AgNO ₃	-124	15)	Ag ₂ O	-31	142	142	0.002	0.2	184	184	0.000	0.1
Cd(NO ₃) ₂	-456	15)	CdO	-258	264	132	0.005	0.7	379	189	0.002	0.3
CsNO ₃	-506	15)	Cs ₂ O	-346	366	366	0.053	19.4	250	250	0.015	3.7
Ba(NO ₃) ₂	-992	15)	BaO	-548	510	255	0.062	15.9	625	312	0.018	5.5
La(NO ₃) ₃	-1,256	a)	La ₂ O ₃	-1,794	459	153	0.070	10.7	630	210	0.020	4.2
Ce(NO ₃) ₃	-1,226	15)	Ce ₂ O ₃	-1,796	427	142	0.234	33.3	599	200	0.066	13.2
Pr(NO ₃) ₃	-1,239	a)	Pr ₂ O ₃	-1,810	434	145	0.063	9.1	605	202	0.018	3.6
Nd(NO ₃) ₃	-1,097	a)	Nd ₂ O ₃	-1,808	293	98	0.225	22.0	464	155	0.063	9.8
Sm(NO ₃) ₃	-1,203	a)	Sm ₂ O ₃	-1,823	391	130	0.040	5.2	562	187	0.011	2.1
Eu(NO ₃) ₃	-1,097	a)	Eu ₂ O ₃	-1,650	372	124	0.008	1.0	543	181	0.002	0.4
Gd(NO ₃) ₃	-1,182	a)	Gd ₂ O ₃	-1,820	372	124	0.211	26.1	543	181	0.059	10.7
ZrO(NO ₃) ₂	—		ZrO ₂	—	—	120	0.072	8.6	—	176	0.020	3.6
RuNO(NO ₃) ₃	—		RuO ₂	—	—	120	0.048	5.8	—	176	0.014	2.4
Sum=						1.86	228		Sum=	0.52	91	

Mark a) in Ref. column shows that the value of $\Delta_f H^\circ$ was estimated from $\Delta_f H^\circ$ of chloride using Equation (10). Marks 14) and 15) shows the Ref. No.

e 揮発性 Ru 放出モデル

廃液貯槽内の溶液温度が上昇すると、硝酸塩の形で溶存していた FP が酸化される。この FP のうち一部の酸化物（主に RuO_4 ）は揮発性を有するため、溶液温度の上昇に伴って揮発し気相へ放出される。揮発性 Ru 放出量は溶液温度に依存し、溶液の蒸発が進行した約 $120\sim 160^\circ\text{C}$ 、及び、スラッジが発生する約 200°C 近傍の 2 温度点でピークを示す。FATE では、実験で得られた溶液温度依存の相関式に基づき、溶液からの揮発性 Ru 放出量が計算される。

f 飛沫同伴モデル

廃液貯槽内の溶液が沸騰する際、液面において気泡破裂が生じ、廃液内の溶存 FP を含む飛沫が気相中に飛散する。この飛沫は液相成分の蒸発に伴って粒子状 FP（エアロゾル）となり、気相流れに同伴され下流領域へ移行する。沸騰時の発生蒸気量に対し、気相流れに同伴される飛沫量の割合（飛沫同伴率）は、以下の式(3-75)で与えられる⁷⁾。

$$\text{飛沫同伴率} = \frac{\text{飛沫液滴の質量}}{\text{発生蒸気量}} = \frac{\rho_f J_{fe}}{\rho_g J_g} \quad (3-75)$$

ここで、

ρ_f :	溶液密度 [kg/m^3]
J_{fe} :	溶液飛沫の発生速度 [m^3/s]
ρ_g :	蒸気密度 [kg/m^3]
J_g :	蒸気発生速度 [m^3/s]

実験等で得られた飛沫同伴率を入力し、前述の蒸発速度モデル式(3-75)を用いれば、蒸気発生速度から飛沫液滴の発生速度を算出することができる。

g 凝縮液への NO_x 吸収モデル

沸騰晩期及び乾固フェーズに発生する NO_x ガスの内、 NO_2 は硝酸、亜硝酸生成反応により液相中で消費されるため、気相から液相への移行が顕著となる。この NO_2 ガスは、粒子状 FP 及び揮発性 FP のキャリアガスとしても振る舞うが、溶液中に亜硝酸を生成することで RuO_4 の液相吸収を促進する役割を果たす。

凝縮液への NO_2 吸収について、“ NO_2 の凝縮液への吸収（溶解）流束 ϕ_N [$\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$]” 及び“ NO_2 液相濃度差を推進力とする液相物質移行係数” $k_{L,N}$ [m/s] を導入すると、吸収流束 ϕ_N は式(3-76)で表される²²⁾。総括物質移行係数の評価式に含まれる NO_2 のヘンリー定数は文献値等を使用し、液相物質移動係数 $k_{L,N}$ については NO_2 吸収率計測実験結果を元に得られた相関式(3-77)を適用する。相関式(3-77)で算出した $k_{L,N}$ と実験結果との比較を図 3-34 に示す。

$$\phi_N = h_N k_{L,N} p_N \quad (3-76)$$

ここで,

ϕ_N : 凝縮液への NO₂ 吸収 (溶解) 流束 [mol/m²/s]

p_N : バルク気相中の NO₂ 分圧 [Pa]

$k_{L,N}$: 液相境膜の NO₂ 物質移行係数 [m/s]

h_N : NO₂ のヘンリー定数 [mol/Pa/m³]

$$k_{L,N} = \exp \left\{ 19.17 - 0.188C - \frac{9330}{T_f} \right\} \quad (3-77)$$

ここで,

C : 凝縮液中の硝酸濃度 [kmol/m³]

T_f : 凝縮液温度 [K]

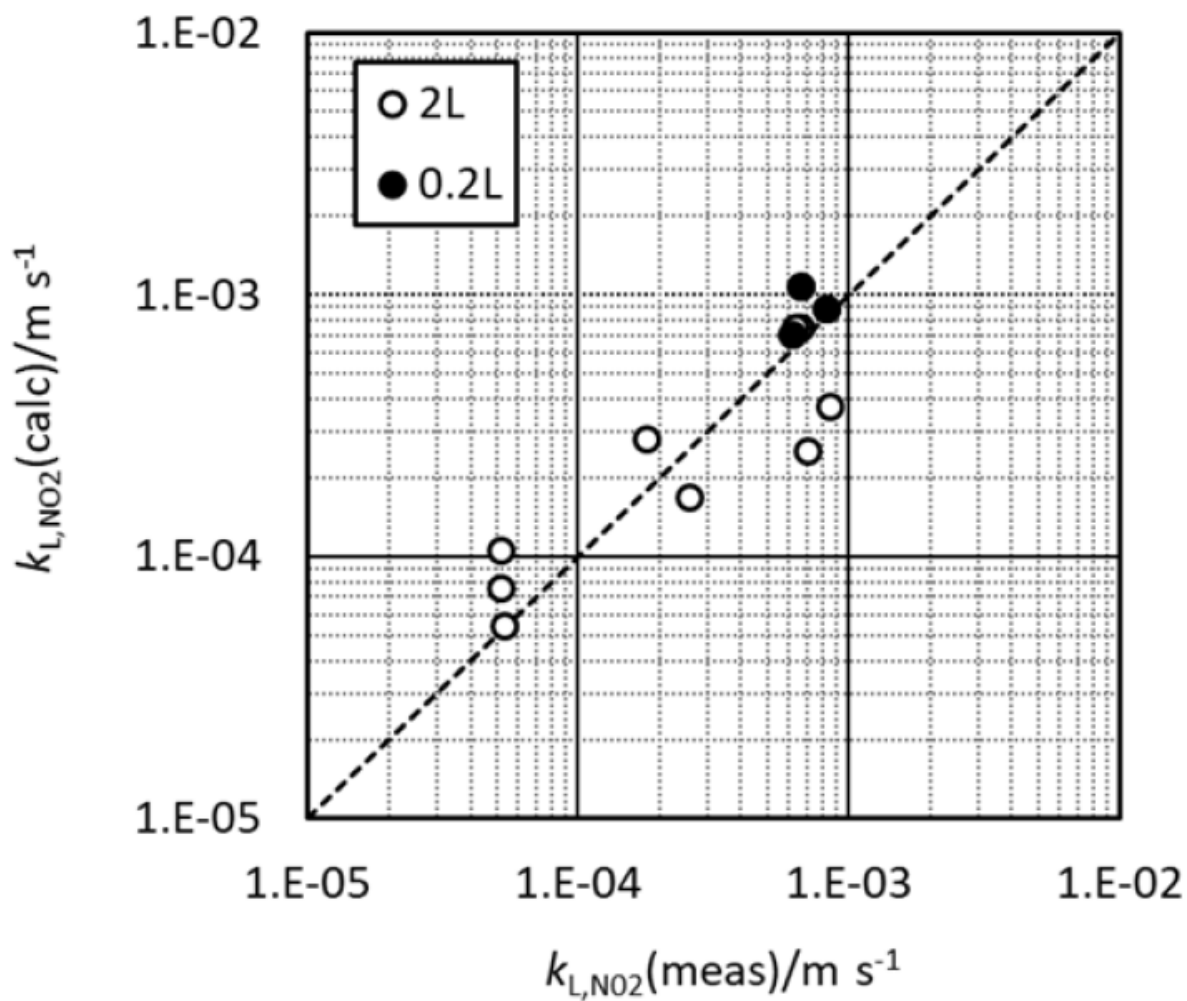


図 3-34 NO₂液相吸収速度係数の相関式計算値と実験値の比較 (参考文献²²⁾より転載)

h 揮発性 RuO₄ 除去モデル

揮発性 RuO₄ の気相中からの除去機構としては、移行経路中の凝縮液（壁面の液膜、床面の滞留水）への溶解、壁面への吸着（主に化学吸着）、及び気相中における難揮発性物質（RuO₂ 等）への還元が想定され得る。この内、現在の FATE コードに組み込まれているのは凝縮液への溶解のみである。

揮発性 RuO₄ は、温度及び NO₂ ガス濃度に依存して移行経路の凝縮液に溶解し、この現象は揮発性 RuO₄ の LPF 評価に重要となる。NO₂ 存在下では、NO₂ 溶解で生成された亜硝酸が液相中の RuO₄ を還元し、RuO₄ の液相への溶解を促進することとなる。

“RuO₄ の凝縮液への吸収（溶解）流束 ϕ_R [mol/m²/s]”，“RuO₄ 気相濃度差を推進力とする気相物質移行係数 $k_{G,R}$ [m/s]”，“RuO₄ 液相濃度差を推進力とする液相物質移行係数 $k_{L,R}$ [mol/m²/s]、及び“RuO₄ の総括物質移行係数 $K_{p,R}$ [mol/m²/s /Pa]”を導入すると、吸収流束 ϕ_R は式(3-78)で、総括物質移行係数 $K_{p,R}$ は式(3-79)で表される²²⁾。

総括物質移行係数の評価式に含まれる気相物質移動係数 $k_{G,R}$ については、熱と物質移動の相似を仮定して推定し、RuO₄ のヘンリー定数については文献値等を使用する。液相物質移動係数 $k_{L,R}$ については RuO₄ 吸収率計測実験結果に基づき導出された相関式(3-80)を適用する。相関式(3-80)で算出した $k_{L,R}$ と実験結果との比較を図 3-35 に示す。

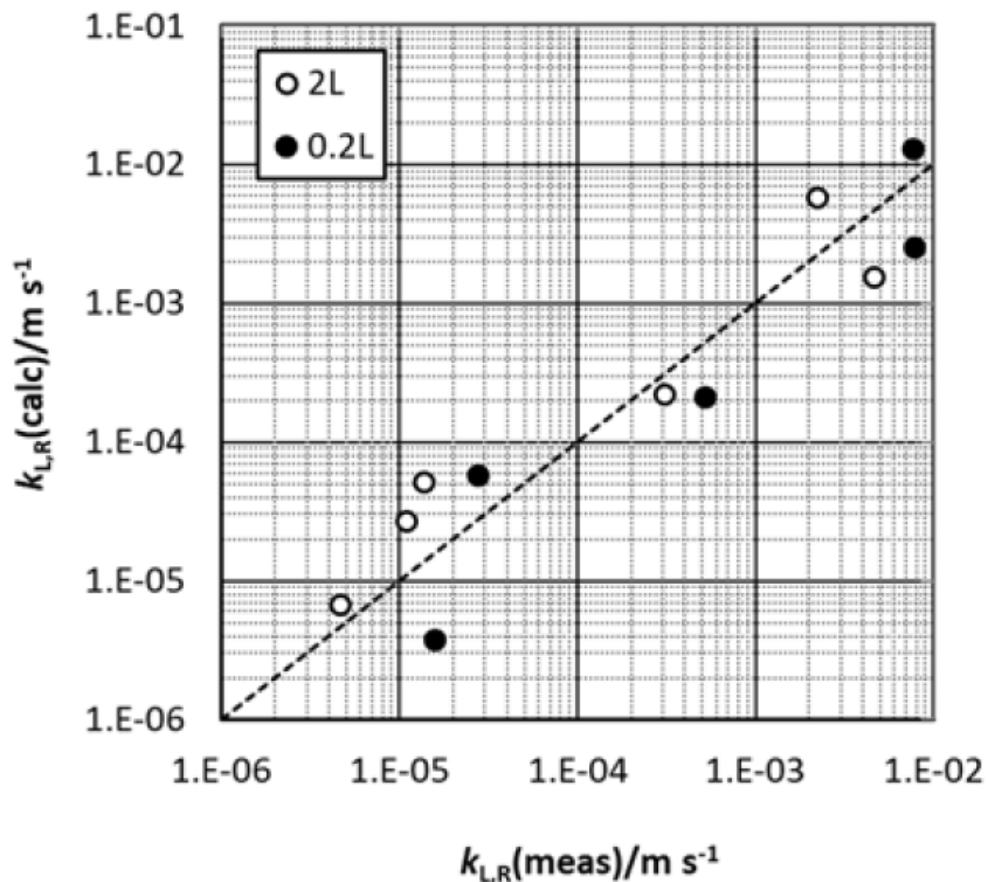


図 3-35 RuO₄ 液相吸収速度係数の相関式計算値と実験値の比較（参考文献²²⁾より転載）

$$\phi_R = K_{p,R} p_R \quad (3-78)$$

$$K_{p,R} = \frac{1}{\frac{1}{k_{G,R}} + \frac{1}{h_R k_{L,R}}} \quad (3-79)$$

$$k_{L,R} = \exp\{-16.20 - 0.402 \cdot C + 1.173 \cdot \ln[NO_2]\} \quad (3-80)$$

ここで,

ϕ_R :	凝縮液への RuO ₄ 吸収（溶解）流束 [mol/m ² /s]
p_R :	バルク気相中の RuO ₄ 分圧 [Pa]
$k_{G,R}$:	気相境膜の RuO ₄ 物質移行係数 [m/s]
$k_{L,R}$:	液相境膜の RuO ₄ 物質移行係数 [m/s]
$K_{p,R}$:	RuO ₄ 総括物質移行係数 [mol/m ² /s/Pa]
h_R :	RuO ₄ のヘンリー定数 [mol/Pa/m ³]
$[NO_2]$:	気相中の NO ₂ 濃度 [ppm]

なお、他の除去機構である「壁面吸着」及び「気相中における難揮発性物質（RuO₂ 等）への還元」については、現時点の FATE コードには組み込まれておらず、これは揮発性 RuO₄ を保守的に評価する傾向に繋がる。なお、前者の除去機構については最新の実験データに基づきモデル組み込みの必要性があると認識されている。特に、乾固フェーズにおいては、高温の NO_x ガスが下流セルに移行する際に壁面が乾燥状態となる状況が想定され、その状態における RuO₄ の LPF に大きく影響する可能性が考えられる。一方、後者の除去機構については、水蒸気、若しくは硝酸蒸気環境において RuO₄ が比較的安定に保持されるという実験データが得られつつあり、当面は除去機構として取り扱う計画はない。

i 粒子状 FP 除去モデル

図 3-36 に蒸発乾固事故時の粒子状 FP（エアロゾル）放出と、その粒子状 FP の移行経路における挙動のイメージを示す。図 3-36 に示す通り移行経路において、凝集あるいは蒸発/吸湿による粒子径分布の変化、重力沈降や拡散泳動等の自然除去、凝縮器やフィルタ等の工学的除去といった現象により、粒子状 FP の浮遊量に変化する。

これらの現象を扱うための FATE コード高度化方針として、以下のモデルの導入が発表されている²³⁾。

- ・凝集： 区間分割法を用いた粒子径分布モデル
- ・自然除去： 重力沈降，拡散泳動，熱泳動等のモデル
- ・工学的除去： 凝縮器，フィルタ等のモデル
- ・蒸発/吸着： Mason 方程式

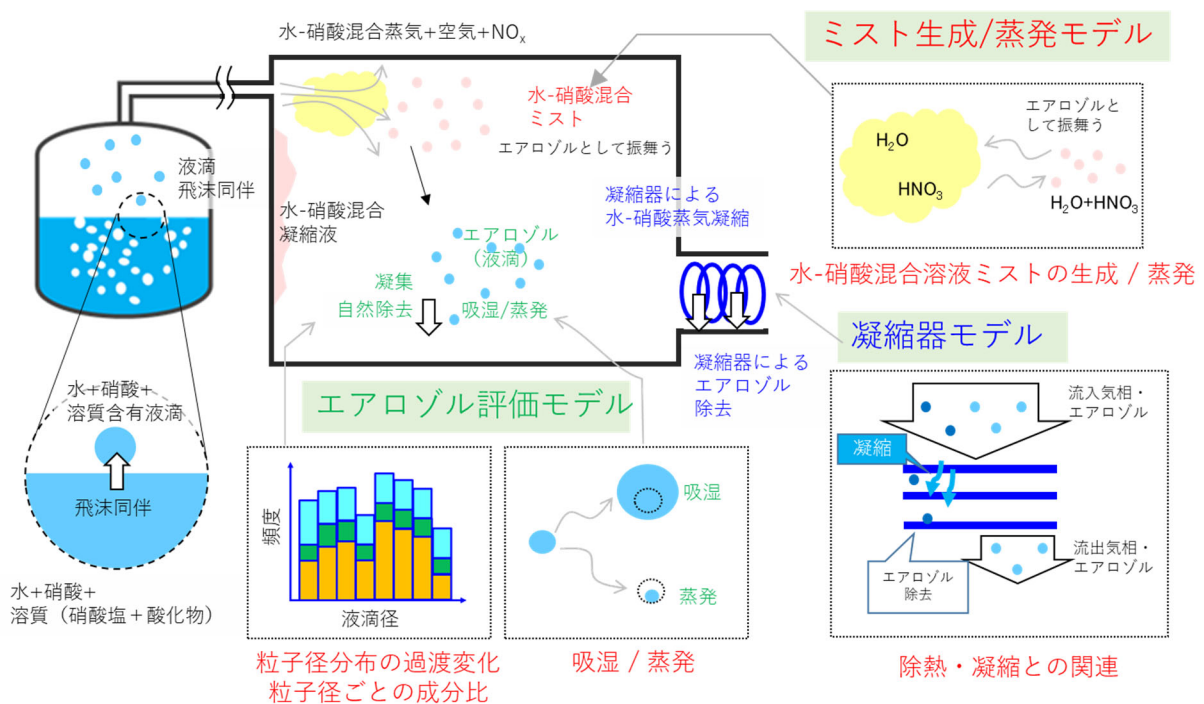


図 3-36 蒸発乾固事故時のエアロゾル挙動のイメージ（参考文献²³⁾を基に作成）

j 安全系モデル

FATE ではフィルタ，凝縮器，注水系，及び空気注入系（水素爆発防止のための掃気対策）などの安全系モデルが組み込まれている²⁴⁾。フィルタモデルについては，入力で除染因子（DF 値）を設定する簡易なモデルであり，フィルタへの除去物質集積に伴う圧損増大もモデル化可能である。凝縮器については，冷却水通水量は入力で指定され，実験に基づく除熱相関式を用いて，水蒸気，及び硝酸蒸気凝縮量に応じた除染因子が計算される。

貯槽への注水，空気注入については，任意のタイミング，貯槽への注水/注入がモデル化可能である。

k その他モデル

その他の現象として，高温乾固物，沈着物からの FP 蒸気放出，及び貯槽への冷却水注水時の急激な蒸気発生による FP 粉末の舞い上がりの可能性が考えられる。但し，現時点において FATE コードではこれらの現象は取り扱わない。

5) 評価体系，ノード分割例

文献³⁾を参考とした，FATE コードによる評価体系およびノード分割例を図 3-37 に示す。

当該文献で想定する蒸発乾固事故シナリオにおいては，廃液貯槽から放出される気体および FP が建屋内へ流出し，建屋の放出経路（セル，ダクト等）を経由して環境へ放出されることを想定している。このシナリオを踏まえ，ノードおよびジャンクションを設定した例が図 3-37 である。

図 3-37 に示す FATE 蒸発乾固事故進展解析モデルでは，廃液貯槽を 1 つのノードでモデル化し，ノードの設定として貯槽体積や高さ等を入力している。また，廃液貯槽ノードに貯槽構造物を模擬したヒートシンクを設けることで，貯槽から貯槽セル気相への放熱を考慮可能なモデル化としている。ヒートシンク設定としては厚さ，表面積，材質等を入力する。

移行経路となるセルについても基本的に 1 つのノードでモデル化するとともに，コンクリート壁を模擬したヒートシンクを設ける。移行経路となる配管やダクト等についてはジャンクションとしてモデル化し，ジャンクション設定として移行経路情報を基にした口径や長さ，流路抵抗等を入力する。

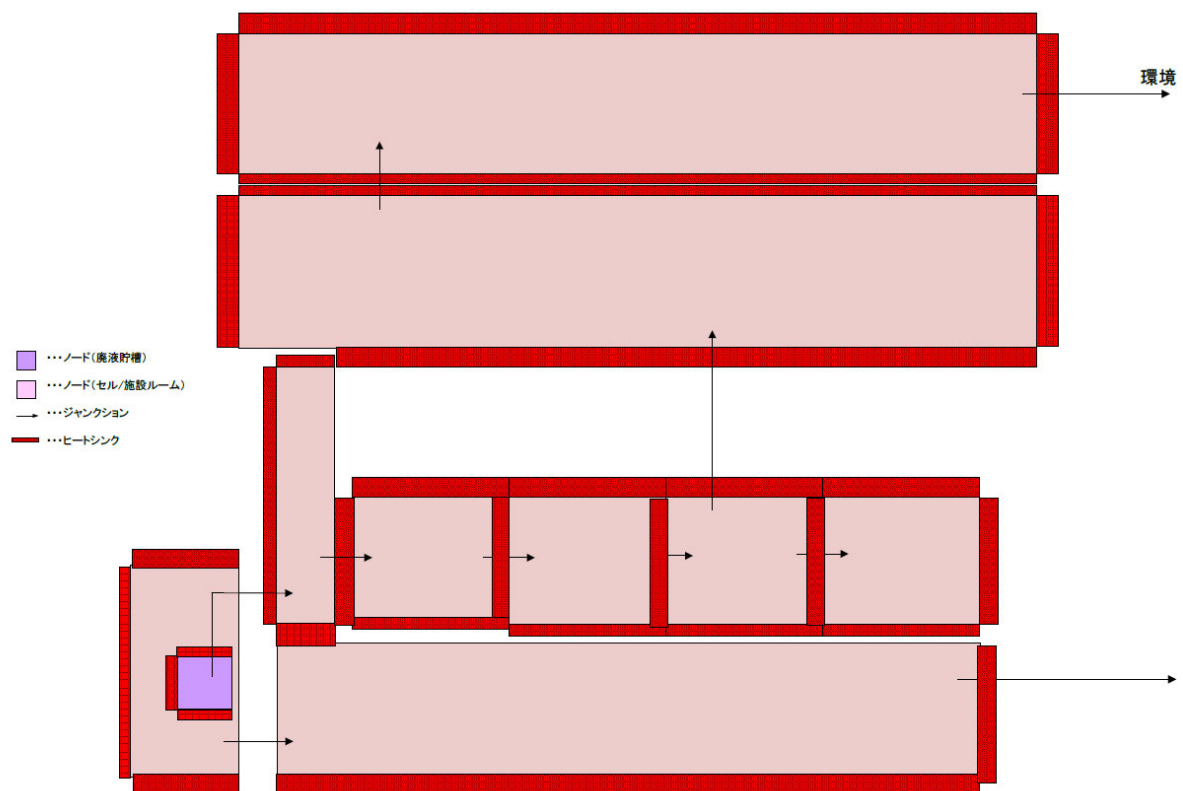


図 3-37 FATE コードによる評価体系・ノード分割例（参考文献³⁾を基に作成）

3.2.4 蒸発乾固事故シナリオの解析事例³⁾

(1) 解析モデルの体系

3.2.3(1)の SHAWED/MELCOR/SCHERN 評価モデルによる解析の実施例を説明する。発熱が 5 W/L の廃液 120 m³ を内包する 1 基の貯槽（内径：7 m，高さ：4.0 m）の冷却機能喪失事故である。

(2) 解析条件

廃液貯槽から廃ガス処理セルに至る流路の流量として SHAWED で計算される硝酸及び水蒸気の各流量，及び蒸気温度を MELCOR 解析の境界条件として設定する必要がある。解析では，硝酸と水の単位モル当たりの潜熱がほぼ等しいことから硝酸蒸気はモル数の等しい水蒸気として扱うモデルとしている。この仮定が Ru の移行に影響する凝縮水量に及ぼす効果を分析する。

MELCOR では，蒸気流量を解析の境界条件とする場合，蒸気を供給する時間依存ボリューム（Time-Specified Volumes, 蒸気供給ボリュームという。）と時間依存流路（Time Dependent Flow Path, 蒸気供給経路）を用いる。蒸気供給ボリュームでは，圧力[Pa]，温度[K]，蒸気分圧[Pa]，非凝縮ガスのモル比[-]およびボリューム体積[m³]（任意）の入力が必要である。圧力および蒸気分圧は大気圧，非凝縮ガスのモル分率はすべてゼロである。

温度は，蒸気がほぼ消失するまでは SHAWED の解析結果を時間依存のテーブル形式で入力する。それ以後の乾固段階では硝酸塩の熱分解に伴う脱硝反応で発生する NO_x および O₂ が放射性物質のキャリアガスとなるため，この段階の温度は，乾固物の温度を別途計算する必要がある。ここでは文献[]の解析結果を援用する。

蒸気供給流路は，蒸気流速[m/s]を時間依存のテーブル形式で入力する必要がある。SHAWED 解析で得られる流出蒸気流量[kg/s]を MELCOR の制御関数（Control Function）機能を用いて蒸気流速に変換する。SHAWED 解析の硝酸蒸気流量は，モル数の等しい水蒸気流量に換算し，水蒸気流量に加算する。

MELCOR では，非凝縮性の気体として N₂，O₂ および NO が既定の気体として設定され，水の蒸発および凝縮への影響を考慮するための取り扱いである。当該事故の SHAWED 解析では貯槽で発生する NO_x はすべて NO₂ であると仮定し，O₂ とともに発生するモデルとなっている。¹⁾ MELCOR では NO₂ の物性値を入力すれば考慮可能であるが，解析上は化学反応を考慮するわけではないので同モルの NO で代用する。

O₂ および NO の発生も時間依存ボリューム（非凝縮ガス供給ボリューム）で模擬する。状態量として圧力[Pa]，温度[K]，蒸気分圧[Pa]，非凝縮ガスのモル比[-]およびボリューム体積[m³]（任意）を入力する。圧力は大気圧，温度は蒸気供給ボリュームと同じ，蒸気分圧はゼロ，O₂ および NO のモル比は，廃液中の硝酸塩がすべてⅢ価であると仮定し 1：4 とする。

NO₂ の発生速度[mol/L s]は，文献¹⁾に示した相関式を制御関数で表現し求める。相関式では，昇温速度[K/s]の値も必要であるため，流出気体温度の時間依存テーブルから求める昇温速度を時間依存テーブルで入力する。さらに別の制御関数を用いて NO₂ の発生速度をもとに，貯槽 1 基分の廃液：120 m³ からの発生速度に換算し，非凝縮ガス供給ボリューム中の NO の濃度[mol/m³]

を用いて非凝縮ガス供給流路の流速[m/s]に換算する。

発生するエアロゾルの粒径分布および密度について述べる。文献¹⁷⁾では、大型の実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。それによれば、模擬廃液を沸騰させ、管体を約 150℃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タで回収し分析している。回収したエアロゾル中の Cs および Nd の量をもとに粒径の分布を推定している。2 種類の元素の実測値の平均値に対して粒径区分ごとのエアロゾルの体積に対して対数正規分布を仮定し、粒径分布の中央径は、1.6 μm 、幾何標準偏差は、2.4 であるとしている。測定したのは乾燥したエアロゾルの粒径である。文献¹⁾によれば、廃液が乾固すると体積は約 7.3%に減少したとしている。また、文献¹⁷⁾で示されている実験では乾固直前では体積は 10 分の 1 程度まで減少することが観測されている。これらの知見より乾燥エアロゾルの密度は模擬廃液の初期密度の 10 倍を仮定して $1.26 \times 10^4 \text{ kg/m}^3$ と仮定した。

(3) 解析結果

図 3-38 に各区画の気液各相での Ru 濃度の経時変化を示す。Ru の凝縮水への移行量は気相の Ru 濃度、濡れ壁を含む凝縮水液面の面積および Ru 物質移動係数の積で計算される。凝縮液中での HNO_2 濃度は 0.01 mol/L 以下のため、気液界面での液相への Ru のこのメカニズムによる移動は考慮していない。4 日以前では Ru の発生量が少ない。沸騰晩期で Ru の発生が増大すると気相濃度が急増するが発生のピークを過ぎると再び減少に転ずる。区画 B、C および地下 1 階で気相中の Ru 濃度は液相に移行した分だけ下流側ほど少なくなる傾向がある。約 5～5.2 日にかけてこれらの区画で気相中の Ru 濃度が一時的に増加に転じているのは、熱分解による脱硝反応で発生した NO_2 および O_2 により上流側から押し出された Ru による増加である。液相では、徐々に Ru が増加し、沸騰晩期の急増の後には、解析条件として乾固後の Ru 発生はなく、拡散による移行もゼロと仮定しているため凝縮水の減少に伴う濃度の微増のみとなる。凝縮がない状態では、分子拡散による移動、液相中での Ru と HNO_2 との化学変化による増減が想定されるが、今後の実験等による化学的な挙動の解明が待たれる。

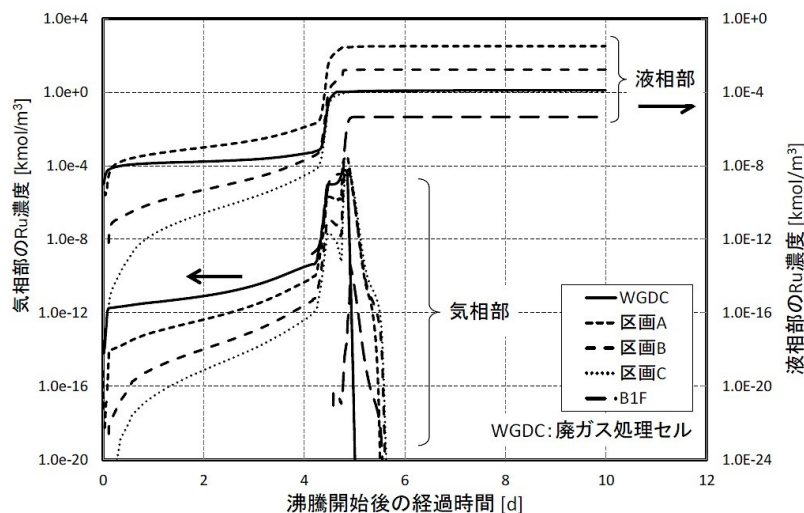


図 3-38 各区画内の気液各相中の Ru 濃度 (参考文献 9)より転載)

参考文献

- 1) 吉田一雄, 玉置等史, 桧山美奈. 再処理施設の高レベル廃液貯槽蒸発乾固事故解析のための廃液沸騰模擬計算プログラム; SHAWED の整備. JAEA-Research. 2022;2022-011.
- 2) Gauntt RO, Cole RK, Erickson CM, et al. MELCOR Computer Code Manuals: Reference Manuals Version 1.8.5 (NUREG/CR-6119, Volume 2, Revision 2). 2000.
- 3) 吉田一雄, 玉置等史, 桧山美奈. 再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故のソースターム解析手法の整備. JAEA-Research. 2023;2023-001:1-26.
- 4) 桧山美奈, 玉置等史, 吉田一雄. SCHERN: 再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での NOx の化学的挙動解析プログラム. JAEA-Data/Code. 2019;1-17.
- 5) 吉田一雄, 玉置等史, 桧山美奈. SCHERN-V2: 再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での化学的挙動解析プログラム解説書. JAEA-Data/Code. 2021;1-35.
- 6) 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;1-22.
- 7) 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. 2015;14:40-50.
- 8) 吉田一雄, 田代信介, 天野祐希, et al. 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. 2014;13:155-166.
- 9) Sasahira A, Hoshikawa A, Kamoshida M, et al. Transfer of ruthenium from a simulated

- reprocessing solution to gas phase during a continuous distillation. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 1996;33:753–757.
- 10) Philippe M, Mercier JP, Gue JP. Behavior of ruthenium in the case of shutdown of the cooling system of HLLW storage tanks. 1991. p. 831–843. Report No.: CEA-CONF-10424.
 - 11) Perry RH, Chilton CH. *Chemical engineers' handbook*. Ed. 5. Auckland: McGraw-Hill; 1974.
 - 12) 大江修造. 物性推算法. データブック出版社; 2002.
 - 13) 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. Available from: https://www.aesj.net/sp_committee/com_sasourceterm.
 - 14) Patwardhan JA, Joshi JB. Unified model for NO_x absorption in aqueous alkaline and dilute acidic solutions. *AIChE Journal*. 2003;49:2728–2748.
 - 15) Loutet KG, Mahecha-Botero A, Boyd T, et al. Experimental Measurements and Mass Transfer/Reaction Modeling for an Industrial NO_x Absorption Process. *Ind Eng Chem Res*. 2011;50:2192–2203.
 - 16) Linstrom P. NIST Chemistry WebBook, NIST Standard Reference Database 69.; 1997. Available from: <http://webbook.nist.gov/chemistry/>.
 - 17) 「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.
 - 18) Westinghouse Electric Company LLC. FATETM Software for Facility Process, Safety, and Decommissioning and Dismantling. NS-ES-0194; 2011.
 - 19) Kodama T, Kinuhata H, Kumagai M, et al. Boiling and Drying Accident of High-Level Liquid Waste in a Reprocessing Plant: Examination of the Time-Dependent Temperature Increase of the Waste and of the Generation Rates of the Individual Components Released into the Gas Phase. *Nuclear Technology*. 2024;0:1–27.
 - 20) 京久幸 et al. 再処理工場の重大事故に係る重要現象に関する評価手法の高度化(11)蒸発乾固事故時における廃液からの乾固物析出モデルの開発. 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2022F, 1D05 (日立, 2022).
 - 21) Kodama T, Kinuhata H, Shibata Y, et al. Boiling and drying accident of high-level liquid waste in a reprocessing plant: Examination of the NO₂ and NO generation using the simulated waste. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 2020;57:1101–1110.

- 22) 衣旗広志 et al. 高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究(7) 凝縮液への NO₂ および揮発 Ru 吸収速度係数の測定実験. 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2020F, 1F07 (オンライン, 2020).
- 23) 藤原大資 et al. 再処理工場の重大事故に係る重要現象に関する評価手法の高度化(8) FATE コードのエアロゾル・ミストモデル高度化検討. 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2021F, 2B07 (オンライン, 2021).
- 24) 藤原大資 et al. 再処理工場の重大事故に係る重要現象に関する評価手法の高度化 (D-9) PIRT に基づく FATE コード開発計画の現状と展望. 日本原子力学会 年会・大会予稿集 vol. 2023F, 2B15 (名古屋, 2023).

3.3 まとめ

本章では、蒸発乾固事故影響を評価する上で重要な現象に関する実験知見、解析手法などの研究の現状を調査した。以下にフェーズ 2 で挙げられた課題を示す。

- ・Ru の揮発性化学種である RuO₄ 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。
- ・RuO₄ 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。

これらの課題に対する進展及び残っている課題を以下に示す。

- ・RuO₄ への変化が廃液中の亜硝酸により抑制される効果について、沸騰開始直後の状態を対象とした試験を行い亜硝酸濃度の上昇に伴い RuO₄ の放出が抑制される結果が報告されている。亜硝酸が RuO₄ の放出抑制効果の原因であることが明らかになったが、メカニズムの解明及び定量化は途上であり、さらなる進展が望まれる。
- ・RuO₄ の凝縮を伴う水及び硝酸の蒸気雰囲気中での挙動については、凝縮液を模した液相への吸収試験による評価結果が報告されている。試験結果を基にしたモデル化の報告があり、定量的なモデル整備が進められている。実施設を対象とした解析に導入された例はないため、解析手法への導入が必要である。

- ・施設内での硝酸蒸気及び NO_x の化学的挙動を模擬する解析コード整備が進みつつある。当該の解析コードである SHAWED/MELCOR/SCHERN 及び FATE は、フェーズ 2 で課題として挙げられていた Ru 移行挙動を左右する重要現象（施設内での硝酸蒸気、 NO_x 及び RuO_4 の物理/化学的挙動）を取り扱うことが可能である。

以上より、気相へ移行した Ru の施設内での移行がある程度評価可能になったと判断できる。

4. 再処理工場における誤移送臨界事故のリスク評価例

4.1 はじめに

本章では、再処理工場において想定される臨界事故のリスク（発生頻度×公衆の被ばく線量^{a)}）評価のための手法を具体例に基づき説明する。すなわち、ある仮定した事故シナリオに基づいて発生頻度及び被ばく線量の評価例を示す。なお、用いたシナリオおよび得られた頻度および被ばく線量は既存工場に対応するものではなく、WG において手法説明を目的として検討した結果であることに留意する必要がある。

再処理施設は原子力発電所と比較すると安全関連のシステムがさほど複雑ではなく、このため事故に至る経路も同様である。再処理施設事故の中では最も複雑かつ潜在的影響の大きいと考えられる高レベル濃縮廃液貯槽の冷却機能喪失事故^{b)}の PRA（内的事象）は、英¹⁾、仏²⁾および日³⁾で実施され、結果が公表されているが、英ではフォールトツリーのみに頻度評価結果を示している。また、再処理施設向けリスク評価新手法（New risk assessment method for a reprocessing plant）と題する論文⁴⁾が公表されているが、臨界事故の PRA を Microsoft Excel software を用いて解析している。この新手法は臨界事故に限らず、再処理施設で想定される全ての事故に適用可能であり、適用された結果も公表されている⁵⁾。しかし、ここでは従来通りの一般性のある PRA 手法を説明する。PRA の実施に当たっては、後述のように原子力発電所 PRA で蓄積された知識と経験⁶⁾をとり入れ、細心の注意のもとに実施する必要がある。

再処理施設には、放射性物質が様々な工程中に様々な形態で存在し、放射性物質の取扱量及びその取扱い環境がそれぞれ異なる。このため、対応を検討すべきシビアアクシデントの選定においては、放射線又は放射性物質が閉じ込め境界を越えて環境に至るおそれ、いわゆる危険要因がどのような場所に存在するか、またどのような事故の種類が想定できるかを網羅的に分析し、抜け落ちなく同定する⁷⁾必要がある。さらに、この分析において、地震や津波等の外的誘因事象が、工程にどのような影響を与えるかについても考慮し分析を行う必要がある。

シビアアクシデントの選定は、以下の手順をもって行われる^{6,7)}。

- a) 上記のような作業が可能な知識と経験を有するメンバーから成るチームを構成する。
- b) チームは施設のハザード分析を行いシビアアクシデントの選定を行う。

^a 従事者被ばくについてのリスクの考え方は 4.3-2 節脚注 4 に説明する。

^b 原子力規制庁は、福島第一原子力発電所事故以降、本事故を“蒸発乾固事故”と名付けた。

以下に議論する誤移送臨界事故はこのような手順を経て選定された事象であるとする。

今までに発生した核燃料施設の臨界事故⁸⁾の中では人的過誤が関与する件数が最も多く^{8,9)}、また、再処理工場では運転員による操作が原子力発電所に比べて多いことから、本資料では人的過誤による Pu 溶液の誤移送臨界を取り上げる。なお、過去の事故 22 件（1953 年 Mayak 事故～1999 年の JCO 事故^{10,11)}）の多くは濃縮ウラン溶液の臨界であるが、Pu が関係する事故も 7 件（1 件は Pu インゴット取扱い事故）報告されている。これらの事故に対し、多くの場合核分裂数は生成 FP 等の事故後の定量から求められているが、本報告書ではシナリオに基づく臨界条件下での核分裂出力の時間推移に関する計算から求める。

なお、最近の商用工場では、過去の臨界事故の反省に基づき以下のような臨界安全管理が行われる。図 4.1-1 に示すように未臨界濃度を超えるおそれのあるプルトニウム溶液を取扱う Pu 精製設備¹²⁾の機器は、どのような濃度においても未臨界が維持されるよう全濃度安全形状寸法管理設計とされる。Pu 逆抽出後の Pu 濃度の低い溶液を扱うミキサーセトラーは全濃度安全形状容器ではない（図 4.1-1 参照）ので、Pu 濃度検出器により濃度が有意量以下であることを監視する設計⁴⁾とされる。また、後述するような安全管理を行う機器から臨界安全管理対象外の機器への回分液移送については、誤移送を防止するための施錠管理を行った上で、解錠前に Pu 濃度測定が実施される。分析は、標準試料との逐次並行分析が行われる。臨界防止に関する機器或いは分析は安全上重要と位置付けられて、複数機器の設置あるいは分析が実施される。臨界安全に対するこのような基本的事項は安全規制の要求事項でもある¹³⁾。

再処理工場分離施設でのプロセス異常に基づくミキサーセトラー（制限濃度安全形状寸法管理機器）での臨界事故のシナリオおよびリスク評価に関する概要は文献⁴⁾に報告されているので参考とすることができる。

なお、地震を誘因とする臨界事故の発生可能性については 4.6 節で検討する。

4.2 臨界事故発生頻度評価

4.2.1 事故シナリオ

誤移送による臨界事故は、Pu 精製設備（図 4.1-1）での下記起因事象およびその拡大により発生すると仮定する。

(1) 起因事象

Pu 精製設備に異常が発生し、2 日以上の運転停止に至る場合、パルスカラム内の水相および有機相中の Pu 濃度が縦方向に拡散均一化し、運転再開後の正常な運転を阻害する。このため、水相および有機相からなる液を一旦リワーク工程に移送する。このような運転停止が以下に示すように起因事象となる。

(2) 事故に至る事象の拡大

臨界事故に関係するリワークの貯槽構成を図 4.2-1 に示す。貯槽①～④は各々容量 3 m³ の円環型全濃度安全形状寸法槽であり、洗浄廃液を取扱う貯槽⑤のみが直径 2 m、容量 7 m³ の非安全形状円筒槽である。臨界事故に至るには、以下に示す人的過誤が重なる必要がある。以降、理解しやすいよう臨界に関係する水相に関わる操作を中心に説明する。

- a) 精製設備の機器内の Pu 溶液をリワークの貯槽①および②へ払い出す。これらの溶液には有機相と水相が混在しており、有機相中の Pu は硝酸ウラナス溶液を添加して水相に逆抽出する。
- b) 逆抽出操作後の①および②の水溶液を③へ移送し、③の溶液中 Pu 濃度を分析班が測定する。分析では、試料溶液に Ce(IV)を添加し Pu(VI)に変換して吸光光度定量法を用いる。水溶液中の Pu 濃度は、15 g/L（液量 1.5 m³）程度と予想されるが、吸光光度定量法の測定範囲は 5~20 mg/L であるので¹⁴⁾、1000 倍に希釈する。正常な値（15 mg/L × 1000 = 15 g/L 程度）を得た場合は溶液を貯槽④に移送し、起因事象修復後に Pu 精製設備に戻すことになるが、この時、十分低いとの誤った結果を出し、運転班に通知する。この分析失敗を「防止策 1 失敗」とする。十分低いとは臨界管理対象外濃度の 50 mg/L 以下とする。
- c) 貯槽③の臨界管理対象外溶液を貯槽⑤へ移送する場合、濃度誤認による誤移送は臨界事故に至るおそれがあることから、図 4.2-1 に示すように経路は施錠管理されている。運転班は解錠に当たり、濃度の再測定依頼書を分析班に出す。Pu 濃度が十分低いとの誤った結果を再度分析班が出し、運転班に通知する。運転班長は分析結果に基づき解錠指示書を作成する。運転班員 2 人は指示書に従い解錠して移送する。上記分析失敗を「防止策 2 失敗」とする。
- d) なお、運転班および分析班は、工場統括者に日々の作業計画およびその結果の報告を行う。工場統括者は a)および b)の過程に何らかの疑念・矛盾を見出した場合は調査を指示することができる。この指示により「防止策 1 および 2」に誤り

を見出し、臨界防止に至る可能性がある。これを「防止策 3 統括者のリカバリ」とする。

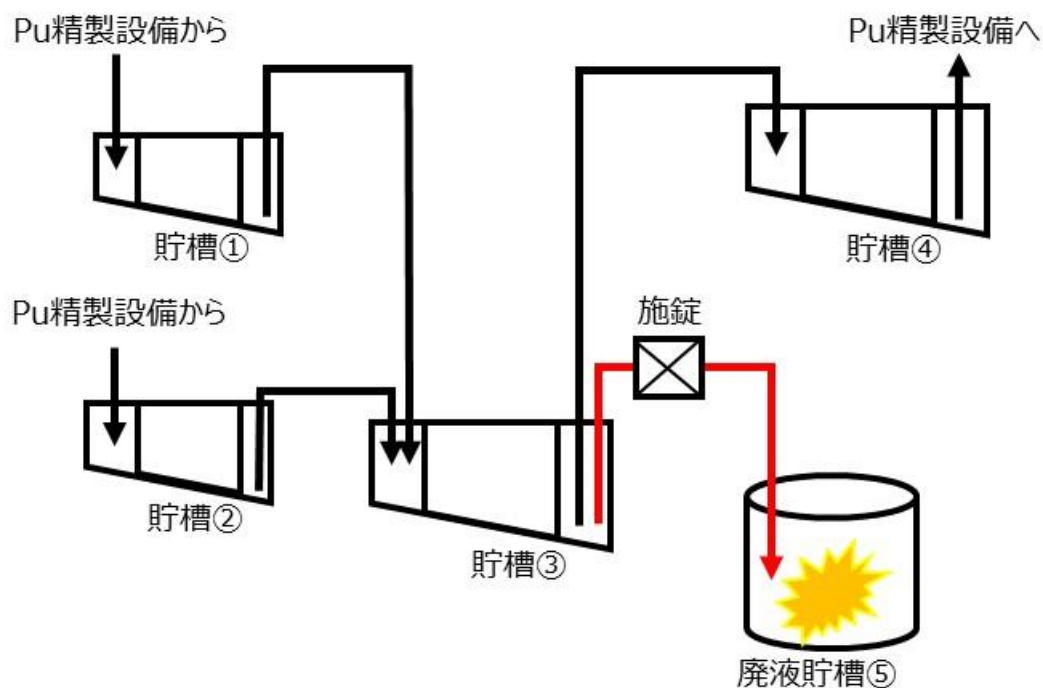


図 4.2-1 リワーク貯槽と誤移送臨界

4.2.2 イベントツリーおよびフォールトツリー表示

4.2.1 節で説明した起因事象から臨界事故に至る過程をイベントツリーで表し図 4.2-2 に示す。起因事象およびイベントツリーの各分岐点はフォールトツリーに展開される。下記 4.2.3 節に記載する検討結果を反映したフォールトツリーを図 4.2-3、図 4.2-4 に示す。

起因事象 (計画外 Pu 溶液発生)	防止策			誤移送臨界の 発生
	1. 安全形状貯 槽への移送	2. 施錠による 誤移送防止	3. 統括者の リカバリ	
→ 成功				なし
↓ 失敗				なし
				なし
				臨界事故

図 4.2-2 誤移送臨界のイベントツリー

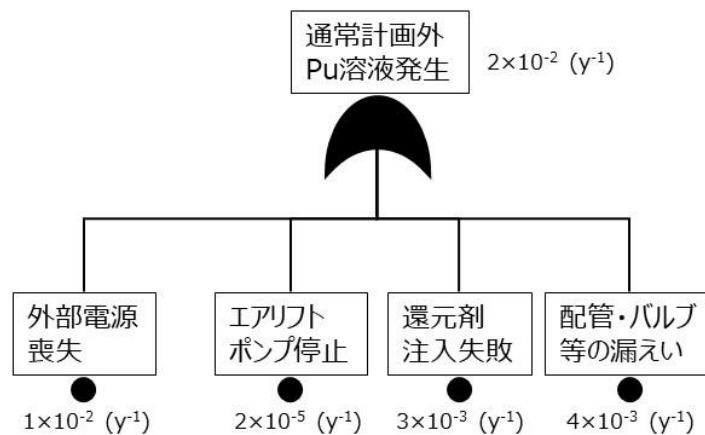
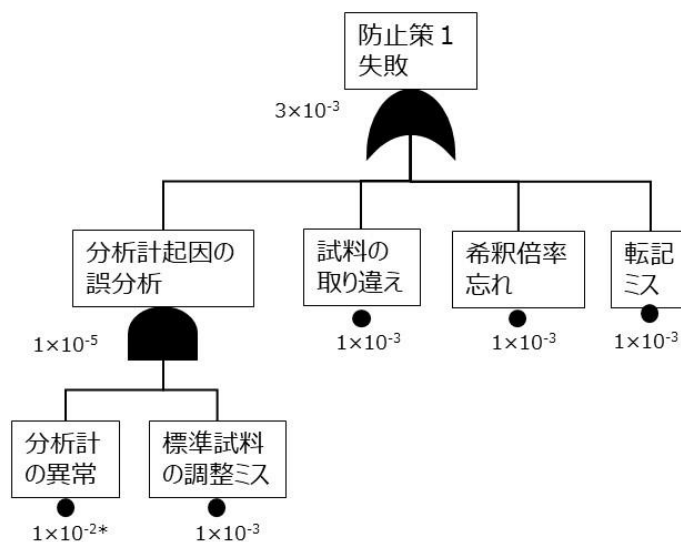
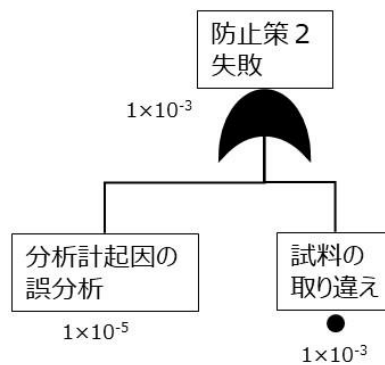


図 4.2-3 起因事象のフォールトツリー



*:一般的な機器故障の年当たりの故障値であり、誤指示を与える確率ではない。

(a) 防止策 1



(b) 防止策 2

図 4.2-4 防止策のフォールトツリー

4.2.3 発生頻度および確率評価

(1) 起因事象発生頻度

- a) 外部電源喪失：原子力発電所および再処理工場の外電は 2 回線受電として信頼性を向上させている。30 分以上の外電喪失頻度は $5 \times 10^{-2}/100 \text{ km/y}$ （変電所から工場までの距離の関数）と報告されている¹⁵⁾が 2 日以上の頻度の報告はない。今回、2 日以上の頻度を $1 \times 10^{-2}/\text{y}$ と仮定する。
- b) エアリフトポンプ不作動（圧縮空気喪失）：3 台（1 台運転，1 台自動待機，1 台予備）の空気圧縮機故障或いはバルブ等からの漏洩が主原因となる¹⁶⁾。故障頻度は同文献に $4 \times 10^{-3}/\text{y}$ と与えられている。今回のように 2 日間の修復余裕期間のある動的機器の故障確率にはその期間に応じた修復係数を乗ずることが可能である。このようにして， $4 \times 10^{-3}/\text{y}$ に故障が 2 日間修復されない確率 0.2³⁾を乗じた $8 \times 10^{-4}/\text{y}$ を用いる。
- c) 還元剤注入失敗：失敗頻度は文献⁴⁾に記載されている値 $3 \times 10^{-3}/\text{y}$ を用いる。
- d) バルブ等からの漏洩（エアリフトポンプ不作動の原因ともなっているが場所が異なる）：文献¹⁶⁾に記載されている値に 2 日間修復されない確率 0.2 を乗じた $8 \times 10^{-4}/\text{y}$ を用いる。
- e) 以上より，起因事象発生頻度 $f = 1 \times 10^{-2} + 8 \times 10^{-4} + 3 \times 10^{-3} + 8 \times 10^{-4} \approx 2 \times 10^{-2}/\text{y}$ となる。

(2) 事象の拡大確率

- a) 分析結果の誤りとしては，分析計の異常，試料のとり違い，希釈倍率忘れおよび転記ミスが考えられる。分析計の異常は，事前に標準試料を分析し，その後対象試料の分析を行うこと等を考慮すると，分析値が 3 桁程度小さくなる異常と人的過誤となる標準試料の調整ミスが重畳する場合となり，安全側に 1×10^{-5} と推定する。残る 3 件は人的過誤である。過誤確率のデータベースについては原子力発電所を対象としたもの¹⁷⁾およびサヴァンナ リバー サイト核施設のデータベース¹⁸⁾があるが，今回の分析操作に対応する過誤率は見当たらない。しかし，分析には手順書が定められていること，操作に時間余裕があること，試料は明確に区分されていることを勘案し，文献¹⁷⁾のデータを参考としつつ，ここでは 3 件いずれも 1×10^{-3} と推定する。以上より「防止策 1」の失敗確率 $p_1 = 1 \times 10^{-5} + 1 \times 10^{-3} + 1 \times 10^{-3} + 1 \times 10^{-3} = 3 \times 10^{-3}$ となる。
- b) 経路解錠に当たり運転班から依頼を受けた分析班が再度「濃度は十分低い」との結果を出す確率には，上記試料のとり違いおよび転記ミスを考慮する必要がある。2 回目には，低濃度確認のための分析であるから希釈操作を行わず実施するとスケールアウト

し、おかしいことに気づく。このため、希釈倍率忘れおよび転記ミスは考慮しない。試料のとり違えを考える。「防止策 2」の失敗確率 $p_2 = 1 \times 10^{-3}$ である。

注：解錠に当たり実施する分析は、安全上重要な分析であり、2 回実施されるが、第 1 回分析と今回の 2 回目分析で、2 回実施したとする。

- c) 作業手順化されていないリカバリについて、全体を把握する統括者が、自らあるいは班員からの問題提起により途中で誤りに気づく可能性がある。このリカバリは、貯槽⑤へ移送後であっても臨界に至るまで有効であり、「防止策 3」となるリカバリ失敗確率を $p_3 = 1 \times 10^{-2}$ と推定するなお、防止策 1, 2 および 3 の間の共通原因故障のようなものは、判断の時間余裕が 60 分以上あることから考慮しなかった¹⁷⁾。
- d) 以上より、拡大確率 $p = 3 \times 10^{-3} \times 1 \times 10^{-3} \times 1 \times 10^{-2} = 3 \times 10^{-8}$ となる。

(3) 臨界事故発生頻度

発生頻度 $F(y)$ は起因事象発生頻度 $f(y)$ および拡大確率 p を乗じて：

$$F = f \cdot p = 6 \times 10^{-10}/y \quad (4-1)$$

となる。

このように小さな頻度は影響評価の対象にならない可能性がある¹⁷⁾が、本章の目的はリスク評価の方法を具体例に基づいて示すことであり、得られた数値は大小にかかわらず重要視しないことから、4.3.1 節に核分裂出力の時間推移計算について、4.3.2 節に被ばく線量の評価について説明する。

4.2.4 影響緩和対策／未臨界措置

臨界事故検知には、貯槽⑤が設置されている部屋の放射線計測装置、放出経路となる排気筒の排気モニタ（2 台設置）、さらに屋外のモニタリングポストが有効であることから検知失敗は想定しない。警報等によりで臨界を検知すると、運転員は液移送を停止するとともにバルブを開放して貯槽⑤に重力流で Gd 溶液を注入する。いずれの操作も事故拡大防止措置＝影響緩和対策となる。注入後に放射線計測装置で未臨界となったことを確認する。このような未臨界措置作動に必要な時間を 0.5 時間とする。

液移送停止措置および未臨界措置の失敗確率は以下のように求められる。

- a) 液移送停止措置および未臨界措置についても、これらの措置後に行う有効性確認において放射線計測装置等を用いることから選択ミス等の人的過誤は想定しない。
- b) このことから、液移送停止失敗の原因はスイッチの故障またはエアリフトの空気供給弁の不作動がある。スイッチ故障は、現場操作盤での停止措置が可能であるため想定しない。空気供給を停止する弁は、圧縮空気貯槽の出口および各供給先配管に異なった弁が異なった 2 ヲ所に設置されているため、弁 1 個に対する故障確率 4×10^{-3} ¹⁶⁾ から液移送停止失敗確率は 2×10^{-5} となる。

- c) Gd 溶液の注入失敗は、注入配管のバルブの閉塞がある。注入配管の弁は二重化されているとする。弁不作動の確率および二重化に対する β ファクター（共通の原因で故障する割合）を 0.1 とする¹⁶⁾と注入失敗確率は、 4×10^{-4} となる。

4.3 公衆の被ばく線量評価

公衆の被ばく線量を求めるには、臨界に伴う核分裂出力の時間推移を知る必要がある。核分裂出力の時間推移から核分裂により新たに発生する各放射性核種の量、続いて環境に放出される核種と量、さらにはこれらに基づく公衆の被ばく線量を求めることができる。このため、下記 4.3.1 節では核分裂数の計算を、4.3.2 節では被ばく線量の計算を示す。

4.3.1 核分裂数の計算

(1) 計算の概要

Pu 濃度 15 g/L および液量 1.5 m^3 の溶液がエアリフトポンプにより $0.2 \text{ m}^3/\text{h}$ の速さで直径 2 m、高さ 2.5 m（容量 7 m^3 ）の円筒状の容器（図 4.2-1 の廃液貯槽⑤）に移送され、臨界事故が発生する。この時の核分裂の経時変化（核分裂出力）および累積核分裂数を計算により求めた。表 4.3-1 に主な計算条件を示す。なお、臨界発生から 10 分後に液移送停止措置、30 分後に未臨界措置（Gd 溶液の注入）を講ずると仮定し、それぞれの措置の実行又は非実行（成功又は失敗）を考慮した 3 つのケースで計算を行った。各ケースの概要は以下の通りである。

ケース 1：液移送停止措置・未臨界措置ともに実行。なお、本ケースの発生頻度は 4.2.3 節より $6 \times 10^{-10}/\text{y}$ である。

ケース 2：未臨界措置のみ実行。なお、本ケースの発生頻度は $2 \times 10^{-14}/\text{y}$ ($= 6 \times 10^{-10} \times 2 \times 10^{-5}$ ：4.2.3 節(3)および 4.2.4 節 b)参照) となる。

ケース 3：液移送停止措置・未臨界措置ともに実行しない。なお、本ケースの発生頻度は $3 \times 10^{-18}/\text{y}$ ($= 6 \times 10^{-10} \times 2 \times 10^{-5} \times 4 \times 10^{-4}$ ：4.2.3 節(3)および 4.2.4 節 c)参照) となる。

いずれの場合も臨界発生時を時刻 0 として臨界発生時点からの核分裂出力の推移を計算するが、次節で示す通り溶液量約 1 m^3 で臨界に至るため、誤移送開始から臨界発生までは約 5 時間経過する。

表 4.3-1 核分裂計算の条件

項目	条件
Pu 濃度*	15 gPu/L
HNO ₃ 濃度	1 mol/L
貯槽材質	SUS304
貯槽直径	2 m
貯槽肉厚	1 cm
移送速度	0.2 m ³ /h

*Pu 同位体組成比(wt%)¹²⁾ : Pu-239(71), Pu-240(17), Pu-241(12)

(2) 計算手順

まず、核分裂出力計算の初期条件となる臨界発生時点の溶液条件を臨界計算により評価した。表 4.3-1 に示す条件に基づき、Pu 溶液と貯槽容器の 2 つの物質から成る円筒体系で計算モデルを構築した。Pu 溶液の密度は桜井と舘盛により提案された密度式¹⁹⁾により算出し、各核種の原子個数密度を計算した。貯槽の構成材の成分等は文献²⁰⁾を参考として設定した。初期温度は 20℃とした。臨界計算は SRAC コード²¹⁾による実効断面積の作成と PARTISN コード²²⁾による二次元中性子輸送計算を組み合わせで行った。溶液体積を複数回変えて臨界計算を実施し、 $k_{\text{eff}} = 1$ の周りで得られた 4 点の結果を用いて 3 次式による内挿を行い、 $k_{\text{eff}} = 1$ となる条件を算出した。その結果、溶液体積 1.04 m³ で臨界になるという結果を得た。これは、移送速度 0.2 m³/h より、液移送開始より 5.2 時間で臨界となることに相当する。

この初期条件に基づき、核分裂出力の計算を行った。核分裂出力の主な計算手法については SAWG フェーズ II の報告書²³⁾において紹介されており、ここではそのうちの一つである準定常法を用いた。本手法は、溶液燃料の核分裂バースト時のボイド率と核分裂出力の実験相関式を用いて、核分裂バースト中の出力の平均値の挙動を計算する手法である。以下に計算手順²⁴⁾の概要を記載する。

- ① あるタイムステップ Δt 経過時における初期条件からの印加反応度 ρ_{in} 及び反応度ボイド係数 α_f からボイド率 f を求める。

$$f = \rho_{\text{in}} / \alpha_f \quad (4-2)$$

- ②-a. 溶液が沸騰状態に無い場合（温度が沸点に到達していない場合）、過去の実験に基づくボイド率 f と出力 Q の相関式から Q を求める。

$$aQ = f(1 - f) \quad (4-3)$$

a は溶液中の核分裂性物質濃度や酸濃度等で決まる係数である。そして、次式により

上昇温度 ΔT を求める。

$$\Delta T / \Delta t = KQ \quad (4-4)$$

K は溶液の熱容量や外部への熱伝達等に応じて決定する係数である。

- ②-b. 溶液が沸騰状態にある場合(温度が沸点に到達している場合), 過去の実験に基づく沸騰時の出力相関式により, 出力 Q を更新する。

$$Q = 7.96fV \quad (4-5)$$

V は溶液の体積である。

- ③ ボイド率 f を更新する。

$$f = (\rho_{in} - \alpha_T \cdot \Delta T) / \alpha_f \quad (4-6)$$

α_T は反応度温度係数である。

- ④ タイムステップを進めて②に戻る。これを繰り返し行う。

本手法は初期バースト等の核分裂出力のピークの計算やボイドの生成・消滅による出力の詳細な振動を計算することができないが, その一方で, 溶液沸騰時の出力を含む平均的な出力変動及び総核分裂数を精度よく予測できることが CRAC 実験や TRACY 実験の解析を通じて示されている²⁴⁾。したがって, 比較的長い時間臨界が継続する臨界事故や溶液が沸騰に至るような臨界事故の出力挙動及び総核分裂数の評価に適している。

また近年の研究により, 準定常法に基づき, 溶液の沸騰中における水分蒸発による燃料濃度及び体積の変動を考慮して, 沸騰中の出力変動を計算する手法が示されている²⁵⁾。今回の事故シナリオでは液移送が長時間継続し高い反応度が加わることにより溶液が沸騰に至ることが予想されることから, 文献²⁵⁾に基づく準定常法計算を行った。なお, 文献²⁵⁾ではウラン溶液における臨界超過実験や臨界事故の解析により総核分裂数及び出力挙動について妥当な結果が得られることが確認されている³⁾。

³⁾ 妥当性確認においては, プルトニウム溶液での妥当性確認は行われていないが, プルトニウム溶液での核分裂出力の実験結果は筆者の知る限り存在しないことから, 妥当性確認が困難という側面がある。また, 本手法では溶液モデルの簡略化(ボイドの生成等により溶液面が波打つことによる溶液形状の変化の無視や, 溶液内のボイドを溶液の密度及び体積を一律で変化させることで表現するなど)等に基づく不確かさが存在するが, 妥当性確認の結果が良好であることや, 影響評価における総核分裂数の評価は桁(スケール)のレベルで評価できることが重要であり, 厳密な精度を求める必要はないことを考慮すると, これらの不確かさによる大きな影響はないと考えられる。

(3) 計算結果

4.3.1 節(1)に示したケース 1～3 に対しそれぞれ計算を行った。得られた核分裂出力挙動を図 4.3-1 に示す。図中の Power が核分裂出力、Energy が総核分裂数を表す（エネルギーと核分裂数は等価な関係にあるため、いずれも MW 等のエネルギーの単位ではなく核分裂数で示している）。各ケースの計算結果の概要は以下の通りである。なお、4.2.4 節に記載する未臨界措置の有効性を考慮すると、臨界継続時間 0.5 時間（1,800 秒）以降の頻度はさらに 2×10^{-5} 下がることになる。

ケース 1：液移送停止措置・未臨界措置ともに実行（図 4.3-1(a)）

- 総核分裂数：約 3×10^{19}
- 臨界から約 100 秒で沸騰（蒸発開始）し、蒸発による状態変化（Pu 濃度上昇、体積減少）により出力は緩やかに低下する。
- 600 秒の移送停止後、出力は急激に低下。以後、外部冷却と釣り合うところで維持される。（出力：約 2×10^{14} ）
- 1,800 秒において未臨界措置が実行されることにより、1,800 秒までで計算は打ち切られている。その後は未臨界となり核分裂出力は 0 となる。

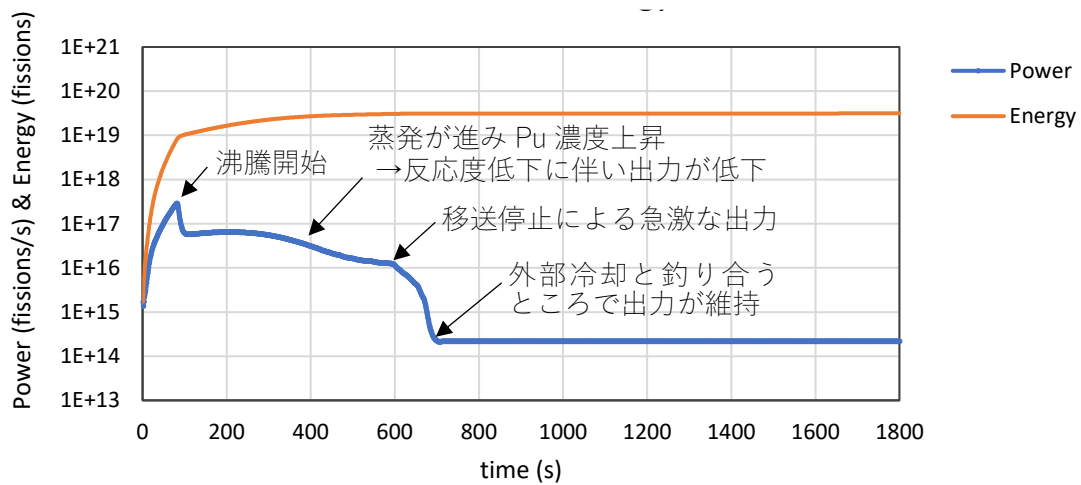
ケース 2：未臨界措置のみ実行、液移送停止措置は実行しない（図 4.3-1 (b)）

- 総核分裂数：約 4×10^{19}
- 600 秒以降、移送は継続しているが、沸騰による蒸発と移送がバランスし溶液はほぼ平衡状態にある（わずかに Pu 濃度上昇・体積減少しながら一定の反応度で推移）。このとき、出力は約 1×10^{16} となる。
- 1,800 秒にて未臨界措置が実行されるため、1,800 秒にて計算は打ち切られている。その後は未臨界となり核分裂出力は 0 となる。

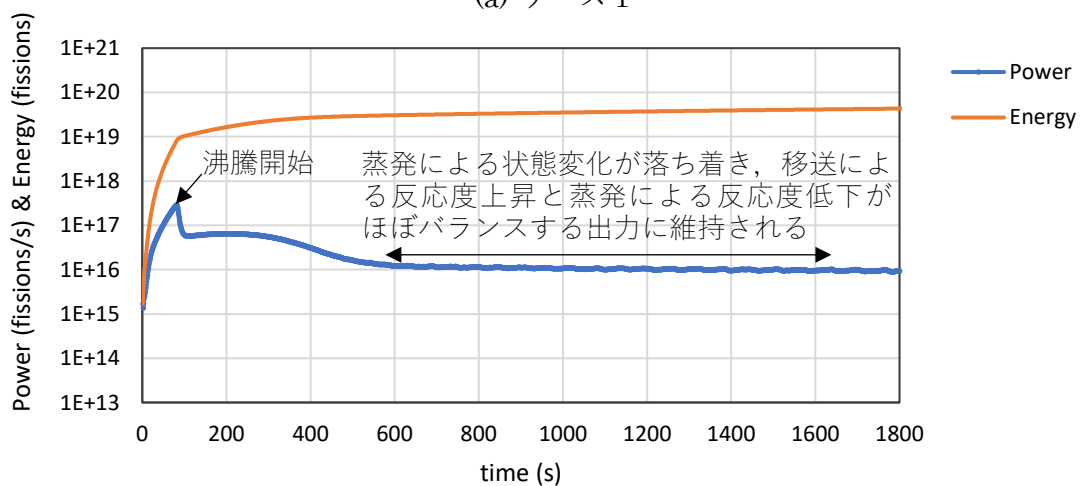
ケース 3：液移送停止措置・未臨界措置ともに実行しない（図 4.3-1 (c)）

- 総核分裂数：約 1×10^{20}
- 600 秒での液移送停止措置が実行されないためケース 2 と同様に出力は推移するが、1800 秒での未臨界措置が実行されないため、ケース 2 と異なり計算が継続する。臨界開始後約 8,300 秒で移送終了（全溶液移送）するまではケース 2 と同様の出力が継続する（出力：約 1×10^{16} ）。
- 移送終了後は出力が低下し、外部冷却と釣り合うところで維持・継続（出力：約 8×10^{13} ）する。総核分裂数は時間とともに増加するが、その速度は遅く 1×10^{19} (fissions) の増加に 35 時間を要する。計算は 10,000 秒で打ち切られているが、その後も出力は維

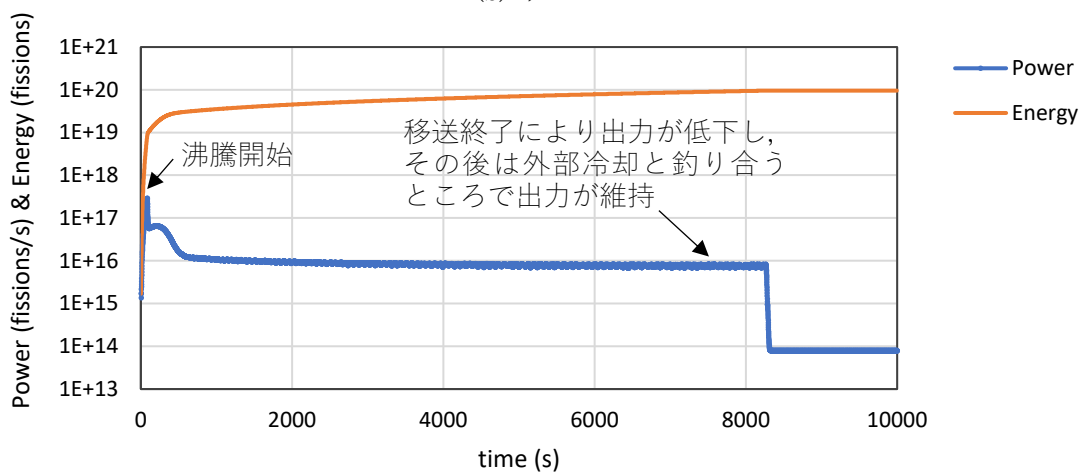
持される。なお、本計算条件では溶液外部の温度が 20℃で一定となっているため、外部冷却が機能し続け、出力が維持されるが、実際は外部環境の温度変化やその他考慮していない現象（溶液の自然蒸発や蒸発した水分や水滴が再び溶液内に戻る等）による出力の変動や未臨界への移行が生じ得ると考えられる。



(a) ケース 1



(b) ケース 2



(c) ケース 3

図 4.3-1 核分裂出力挙動計算結果

4.3.2 被ばく線量の計算

事故発生後換気系を閉止しないと仮定し、生成した放射性希ガスおよびヨウ素は減衰することなく全量が排気筒から放出されると仮定した。排気筒からの放射性物質の放出量を5因子法²⁶⁾を用いて評価し、旧原子力安全委員会の「発電用原子炉の安全解析に関する気象指針」²⁷⁾を用いて周辺公衆の被ばく線量⁴⁾を以下のように計算することができる。公衆への被ばく径路は、放射性雲からの外部被ばくおよび放射性エアロゾルの吸入による内部被ばくとした。放射性ガスの放出量を表 4.3-2-1 に、放射性エアロゾル放出量を表 4.3-2-2 に、これらの設定に用いたパラメータを表 4.3-2-3 に示す。なお、放射性ガスの生成量は、核分裂収率について文献²⁸⁾の recommended cumulative yield に核分裂数を掛けて設定した。放射性エアロゾルの放出量は、核分裂によるエネルギー(3.2×10^{-11} J/fission)が全て溶液の加熱・蒸発に用いられると仮定し、沸騰による発生飛沫の ARF(5因子法の Airborne Release Fraction)²⁶⁾を 5×10^{-5} ²⁹⁾とした。放出量は核分裂数に比例するため 1×10^{19} (fissions) に対する値を表 4.3-2-1 および表 4.3-2-2 では示している。

被ばく線量の計算結果を表 4.3-2-4 に示す。被ばく線量に寄与する核種は表 4.3-2-1 に示すように短半減期 (< 5 min) が主である。換気継続を仮定しているので線量は大きくなるが、停止すると 1/10 以下になる。

(1) 放射性雲からのガンマ線による外部被ばくに係る実効線量

$$D_{\gamma} = K \cdot D/Q \cdot Q_{\gamma} \quad (4-7)$$

ここで、

D_{γ} : 外部被ばくに係る線量当量(Sv)

K : 空気吸収線量から実効線量への換算係数(Sv/Gy)。本評価では1とした。

D/Q : 相対線量(Gy/Bq)。本評価では、 5.2×10^{-20} を用いた¹²⁾。

Q_{γ} : 事故期間中の放射性物質の大気放出量(Bq) (ガンマ線実効エネルギー 0.5 MeV 換算値)。換算には、核種毎に ICRP Pub38 の値を用いた。

(2) 放射性エアロゾル吸入による内部被ばくに係る実効線量

$$D_B = R \cdot \chi / Q \cdot \sum \{Q_i \cdot (H_{50})_i\} \quad (4-8)$$

ここで、

D_B : 内部被ばくに係る実効線量(Sv)

⁴ 臨界事故防止が重要視されたのは、当初従事者被ばくに伴う死亡事故が多く発生したことによる。これは、臨界事故が濃縮ウラン (^{235}U) 溶液或いはプルトニウム (^{239}Pu) 溶液により発生し、これら核種からはγ線が殆ど出てこないで遮蔽のない状態での取扱いがされていたからである。JCO の臨界事故¹¹⁾も同様である。しかし、再処理工場では、Pu 溶液はコンクリート厚み 1 m 前後の遮蔽壁を有するセル内で取り扱われるので、本報告書では従事者被ばくを考慮せず、公衆被ばくのみを対象とした。

- R : 成人の呼吸率(m^3/s)。本評価では、 3.33×10^{-4} ³¹⁾を用いた。
 χ / Q : 相対濃度(s/m^3)。本評価では、 1.2×10^{-6} ¹²⁾を用いた。
 Q_i : 核種 i の事故期間中の大気放出量(Bq)
 $(H_{50})_I$: 核種 i の吸入摂取による実効線量への換算係数(Sv/Bq)。本評価では、核種毎に ICRP Pub72 の値を用いた。

表 4.3-2-1 臨界時の放射性物質放出量 (希ガス等)

核種	半減期	生成量*1 Q^* (Bq)	放出量*1 Q (Bq)	放出量*1 Q_γ (Bq)
Kr-83m	1.83 h	3.1×10^{12}	3.1×10^{12}	1.6×10^{10}
Kr-85m	4.48 h	2.4×10^{12}	2.4×10^{12}	7.6×10^{11}
Kr-85	10.73 y	2.7×10^7	2.7×10^7	1.2×10^5
Kr-87	76.3 m	1.4×10^{13}	1.4×10^{13}	2.2×10^{13}
Kr-88	2.8 h	9.1×10^{12}	9.1×10^{12}	3.6×10^{13}
Kr-89	3.18 m	5.3×10^{14}	5.3×10^{14}	2.2×10^{15}
Xe-131m	11.9 d	3.4×10^9	3.4×10^9	1.4×10^8
Xe-133m	2.25 d	8.2×10^{10}	8.2×10^{10}	6.9×10^9
Xe-133	5.29 d	1.1×10^{12}	1.1×10^{12}	9.9×10^{10}
Xe-135m	15.65 m	1.2×10^{14}	1.2×10^{14}	1.0×10^{14}
Xe-135	9.083 h	1.6×10^{13}	1.6×10^{13}	8.0×10^{12}
Xe-137	3.83 m	1.9×10^{15}	1.9×10^{15}	6.9×10^{14}
Xe-138	14.17 m	4.0×10^{14}	4.0×10^{14}	9.5×10^{14}
I-131	8.06 d	3.7×10^{11}	3.7×10^9	7.1×10^{10}
I-132	2.28 h	4.5×10^{13}	4.5×10^{11}	2.0×10^{12}
I-133	20.8 h	6.4×10^{12}	6.4×10^{10}	7.8×10^{10}
I-134	52.6 m	1.6×10^{14}	1.6×10^{12}	8.8×10^{12}
I-135	6.61 h	1.8×10^{13}	1.8×10^{11}	5.9×10^{11}

*1 : 核分裂数 1×10^{19} 当たりの量

*2 : 核分裂による生成量は、文献 ²⁸⁾から求めた。

表 4.3-2-2 臨界時の放射性物質放出量 (エアロゾル)

核種	放出量 Q^* (Bq)
Pu-238	1.7×10^6
Pu-239	1.7×10^5
Pu-240	2.6×10^5
Pu-241	3.5×10^7

*核分裂数 1×10^{19} 当たりの量

表 4.3-2-3 放射性物質放出量の設定に用いた 5 因子²⁶⁾パラメータ

	MAR	DR	ARF	LPF	RF
希ガス	²³⁹ Pu の核分裂により生成 する放射性物質質量	1	1	1	-
ヨウ素		1	$1 \times 10^{-2*1}$	1	1
エアロゾル	硝酸 Pu 溶液中の量 ^{*2}	0.1^{*3}	$5 \times 10^{-5\ 29)}$	$1 \times 10^{-3*4}$	1

*1: TRACY 閉じ込め試験³⁰⁾の結果から設定。

*2: PWR 燃料(4.5wt%, 45GWd/tU, 38MW/tU)処理から得られた同位体組成比の Pu 硝酸溶液であり, 10あたり Pu 15g を含む 1.5m³とする。

*3 核分裂数 1×10^{19} の場合約 0.15m³ の溶液が蒸発することから設定。

*4 放出経路に除去率 99.9%²⁶⁾の高性能粒子フィルタ 1 段の設置を想定。

表 4.3-2-4 被ばく線量

	放射性雲からの被ばく (mSv)	実効線量計 (mSv)
ケース 1	0.63	0.63
ケース 2	0.84	0.84
ケース 3	2.1	2.1

4.4 リスク評価

誤移送臨界のリスクは, 発生頻度と被ばく線量の積により求められる。これまでの検討により得られた発生頻度, 被ばく線量及びリスク評価結果を表 4.4-1 に示す。なお, 繰り返しになるが, 本検討において評価された発生頻度は非常に小さく, このように小さな頻度は影響評価及びリスク評価の対象にならない可能性があるが, 本検討の目的はリスク評価の方法を具体例に基づいて示すことであることから, リスク評価までの一貫した評価例を示している。このようにして得られたリスク評価結果は, 例えば, 表 4.4-2 と比較して活用されるものである。

表 4.4-1 リスク評価結果

	発生頻度 (1/y)	被ばく線量 (Sv)	リスク (Sv/y)
ケース 1	6×10^{-10}	6.3×10^{-4}	4×10^{-13}
ケース 2	2×10^{-14}	8.4×10^{-4}	2×10^{-17}
ケース 3	3×10^{-18}	2.1×10^{-3}	7×10^{-21}

表 4.4-2 NRC の再処理施設に対する性能目標概念案（一般公衆の例）³²⁾

Consequence*1	発生可能性（事故当たりの頻度：1/y）			
	Very Highly Unlikely (<10 ⁻⁶)	Highly Unlikely (<10 ⁻⁵)	Unlikely (<10 ⁻⁴)	Not Unlikely (>10 ⁻⁴)
VHCE (> 1 Sv) PRA required	Acceptable	Not Acceptable	Not Acceptable	Not Acceptable
HCE (>0.25 Sv) PRA may be required	Acceptable	Acceptable	Not Acceptable	Not Acceptable
ICE (>0.05 Sv)	Acceptable	Acceptable	Acceptable*2	Not Acceptable
LCE (lesser effect)	Acceptable	Acceptable	Acceptable	Acceptable

*1 VHCE: Very-High-Consequence Event, HCE: High-Consequence Event, ICE: Intermediate-Consequence Event, LCE: Low-Consequence Event

*2 This category of accident sequences may involve both prevention (reduced likelihood) and mitigation (reduce consequence) strategies. Additional information may be necessary to show the workability of such approaches.

4.5 臨界に伴う水素発生と爆発可能性および被ばく影響の検討

事故発生時に槽類換気を止めない場合、短半減期の放射性の希ガスおよびヨウ素が外部に放出されるので公衆の被ばく線量は大きくなる（表 4.3-2-4 参照）が、水素爆発のおそれはない。

換気停止の場合は以下になる。4.3 節の結果から、核分裂出力 1×10^{16} (fissions/s) = 320 kW とすると、沸騰による水の蒸発速度は蒸発潜熱を 41 (kJ/mol) として、7.9 mol/s となる。ここで貯槽からの放熱約 7 kW を差し引いている。一方、水素発生速度は NUCEF 超臨界実験装置 (TRACY) の結果から得られた G 値 1.2 (molecules/100 eV)³³⁾を用いると、0.040 mol/s となる。これらの結果から蒸気により希釈された水素の濃度は 0.5% となり、燃焼下限濃度未満になる。

また溶液供給停止後においては 2×10^{14} (fissions/s) $\approx$ 7 kW となるため、沸騰による蒸気で希釈され難くなるが、水素濃度が燃焼下限濃度に達するまでには、約 5 時間を要する。この間、失敗確率 1×10^{-3} の未臨界措置を講じることが可能となる。

これらのことから、貯槽内で水素が爆発することは無視できる頻度となる。貯槽の換気系下流において水蒸気の 90% 以上が凝縮するような場合は、爆発下限濃度を超えるが、湿度 100% であり自然放電はないと考えられる。仮に爆発したとしても、水素量は小さく、貯槽後流に放射性物質は殆どないので、公衆への影響は限られる。

4.6 地震誘因臨界事故発生の可能性検討

地震誘因の臨界事故の可能性について検討する。地震発生による外電喪失は起因事象と

なり得るが、 $1 \times 10^{-2}/y$ に含まれていると考えることができる。地震は、この他プロセス機器の運転停止をもたらすが、停止するだけでは臨界事故には至らない。地震で破損した形状管理貯槽から溶液が漏えいする可能性は極めて小さいと考えられるが、仮に全量が漏洩しても、漏えい液受皿は臨界にならないよう設計される。配管が破損しても臨界量に至る溶液が漏洩することもない。これらのことから、地震誘因の臨界事故を本 WG では考慮しないが、実工場のリスク評価においては、詳細設計情報および運転情報に基づく綿密な検討が必要であることは言うまでもない。

4.7 今後の課題

本章では、臨界事故リスク評価を実施する際の参考となるような具体的な評価手順例を示すことを目的に、再処理工場での誤移送臨界を題材とした仮想的な事故シナリオを構築し、リスク評価の一連の流れについて示した。以上の検討過程を通じて、下記項目が今後の課題として位置づけられる。

(1) 再処理施設における人的過誤率の取扱い

今回取り扱った人的過誤は、過誤により異常が進展拡大し、過誤が積み重なると臨界事故に至る。人的操作をしなければ、臨界事故は発生しない。一方、原子力発電所向けに議論されている人的過誤は、放置すると異常が進展拡大し事故に至るのを防止するための操作に伴うものである。このため、前者では時間余裕が十分あり、多くの関係者が目を通すが、必ずしも予め手順書が用意されていない場合が多い。一方、後者では事故発生防止のための時間余裕が短く、限られた関係者が判断することから、手順書が不可欠である。このような違いを考慮した人的過誤率に対する検討が今後必要と考えられる。事故発生後の影響緩和対策に係る人的過誤については、発電所と類似しているが過誤があった場合でも事故拡大は緩やかであり、最終的には水の蒸発により未臨界になる。

(2) 低リスク事象の取扱い

SAWG Phase 1 では、核燃料サイクル施設の事故に対するグレーデッドアプローチの重要性が指摘され、この観点から対応要不要の裾切り値の調査を行った。英国では、保健安全執行部 (Health and Safety Executive) が核燃料施設に対する階段状の影響／発生頻度グラフを示すとともに、100 人以上の死亡が想定される事故頻度の目標値として $<1 \times 10^{-7}/y$ を示している⁷⁾。米国では、原子力規制委員会 (Nuclear Regulatory Commission) が MOX 燃料加工施設における公衆被ばく線量 0.25 Sv 以上の事故に対して $1 \times 10^{-5}/y/event$ 以下の頻度を求めた。本臨界事故は影響が 2.2 mSv 以下であるので、評価に当たっては、リスクレベルからどの程度の頻度まで検討の意味があるか否かを検

討する必要がある。SAWG Phase 1 では、裾切りに関する数値の提案は行わなかったが、得られた数値の信頼性を考慮した上で、具体的検討を英米のように今後進めることがグレーデッドアプローチを実現する上で重要である。

参考文献

- 1) P. W. Ball, G. Hensley, "Reliability analysis and the use of probabilistic risk assessment in the storage of highly radioactive liquid wastes," Paper presented at the Fourth EuReData Conf., Venice, Mar. 1983.
- 2) J. P. Mercier, F. Bonneval, M. Weber, Application of the Probabilistic Approach to the UP3-A Reprocessing Plant, IAEA-TECDOC-711, 95 (1993).
- 3) 宮田敬士, 武部和巳, 玉内義一 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**, 85 (2008).
- 4) Y. Tamauchi, T. Miyata, K. Takebe, et al., “New Risk Assessment Method for a Reprocessing Plant: Quantitative Safety Assessment,” Nucl. Technol., **181**, 303-316 (2013).
- 5) Y. Tamauchi, et al., “Improvement of Risk Assessment Method for Application of Risk Information at Rokkasho Reprocessing Plant,” Proceedings of international Conference Global 2011 Innovative Nuclear Energy Systems toward 2030 and beyond (2011).
- 6) 日本原子力学会標準委員会, 「核燃料施設に対するリスク評価に関する実施基準: 2018」, AESJ SC-P011:2018.
- 7) 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 (ATOMO Σ), **57**, 25 (2015).
- 8) T.P. McLaughlin, S.P. Monahan, N.L. Pruvost, V.V. Frolov, B.G. Ryazanov and V.I. Sviridov, “A Review of Criticality Accidents: 2000 Revision.” Los Alamos National Laboratory Report LA-13638 (May 2000).
- 9) 館盛勝一, 桜井聡, “核燃料取扱い施設における臨界事故例の解析,” JAERI-M 84-155 (1984).
- 10) 原子力安全委員会 ウラン加工工場臨界事故調査委員会報告の概要, 平成 11 年 12 月 24 日.
- 11) 柴田徳思, 日本物理学会誌, **55**, 579 (2000).
- 12) 再処理事業指定申請書 (平成元年 3 月), 日本原燃株式会社.
- 13) 改正 令和 3 年 4 月 21 日, 原規技発第 2104216 号, 原子力規制委員会決定, 再処理施設の位置, 構造及び設備の基準に関する規則の解釈の制定について.

- 14) 武藤博, 吉田善行, 青柳寿夫 他, “Pu(VI)-吸光光度法による硝酸溶液中プルトニウムの定量),” 日本原子力研究所 JAERI-M 86-032 (1986).
- 15) 外部電源等の信頼性について, 資源エネルギー庁 (昭和 63 年 5 月)
- 16) 玉内義一, 小路達郎, 武部和巳他, “六ヶ所再処理工場の確率論的安全評価, (I)プルトニウム濃縮液貯槽における水素掃気機能喪失の発生頻度評価(内的事象),” 日本原子力学会和文論文誌, 5, 334 (2006).
- 17) A. D. Swain, H. E. Guttmann, Handbook of Human Reliability Analysis with Emphasis on Nuclear Power Plant Applications, NUREG/CR-1278, Final Report (1983).
- 18) WSRC-TR-93-262 : “ SAVANNAH RIVER SITE GENERIC DATA BASE DEVELOPMENT(U),” DOE, June 1993
- 19) S. Sakurai, S. Tachimori, Density equation of aqueous solution containing plutonium (IV), Uranium (VI) and nitric acid. J Nucl Sci Technol. 33:187-189 (1996).
- 20) 須山賢也, 小室雄一, 高田友幸 他, 断面積セット作成プログラム MAIL3.1, JAERI-Data/Code 98-004 (1998).
- 21) K. Okumura, T. Kugo, K. Kaneko, K. Tsuchihashi. SRAC2006: A comprehensive neutronics calculation code system. Tokai-mura (Japan): Japan Atomic Energy Agency; 2007, (JAEA-Data/Code 2007-004).
- 22) R. E. Alcouffe, R. S. Baker, J. A. Dahl, et al., PARTISN: A time-dependent, parallel neutral particle transport code system. Los Alamos (NM): Los Alamos National Laboratory; 2005, (LA-UR-05-3925).
- 23) 核燃料サイクル施設 SA 研究 WG 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」, 再処理・リサイクル部会ホームページ.
- 24) K. Nakajima, T. Yamamoto, Y. Miyoshi, “Modified quasi-steady-state method to evaluate the mean power profiles of nuclear excursions in fissile solution,” J Nucl Sci Technol., **39**,1162 (2002).
- 25) T. Watanabe, Y. Yamane, Power profile analysis of criticality accidents involving fissile solution boiling with considering evaporation during boiling, J Nucl Sci Technol., (2023).
- 26) Science Applications International Corporation, “Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook,” NUREG/CR-6410, 1998.
- 27) 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. 1982, 2001 一部改訂.
- 28) MEEK, M. E. and RIDER, B. F. : Compilation of Fission Products Yields, Vallecitos Nuclear Center, NEDO-12154-1 (1974).
- 29) 「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).

- 30) 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-Technology 2015-044(2016).
- 31) 原子力安全委員会. 発電用軽水型原子炉施設の安全評価に関する審査指針. 1990, 2001 一部改訂.
- 32) U.S. Nuclear Regulatory Commission, “Reprocessing Rulemaking: Draft regulatory basis and Path Forward,” SECY-11-0163, 2011.
- 33) R. Yoshida, Y. Yamane, and H. Abe, “Estimation of hydrogen gas production at transient criticality in uranyl nitrate solution” , Proc. GLOBAL 2019, Seattle, USA, September 22-27 2019, p.408-414 (2019).

5. 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しうるが、「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。

フェーズⅡでの活動により得られた成果が、再処理施設再処理施設において想定される事故の影響評価事故の影響評価手法の信頼性の向上と更なる高度化に寄与することを願うとともに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。

フェーズⅢでは、施設と事故条件の特徴を踏まえて現実的な条件のサンプル問題を設定し、試行研究を実施し、それを通して、上述のような技術的課題を検討すると共に、適用段階で生じる実用上の課題を同定・検討し、フェーズⅡ報告書も素材として活用しつつ、得られた成果をできる限り体系的に整理した。サンプル問題は教材という意味づけだけでなく現実的かつ最新のものとなっている。

PIRT はオリジナリティがあり、多くの人の意見を集めて作成されている。今後情報を積み重ねていくことが必要であり、業者側と規制側の共通理解のベースとなりうる。

本フェーズで取りまとめる報告書は、事故リスク評価の実務者のための手引きとなるだけでなく、事故リスク評価技術を学ぶうえでのテキストともなりうるものを目指している。フェーズⅡ以降の新しい知見も取り入れることができ、初心者にとって使いやすいものとなっている。形あるものに残すことが大切であり、総合的な報告書となっている。リスクの説明性を高めることにも役立つことが期待される。

謝辞

臨界事故のシナリオ作成にあたり、電中研の桐本様、武田様に人間信頼性解析についての概要をご教示いただくとともに、かなり詳細な質問にも丁寧にご回答いただいた。作成したシナリオに人的過誤の考え方を取り込むことができ、世界的にも例のないものができた。

現実的な条件としつつできる限り簡単なシナリオを作ることは相反する条件を満たす必要があり簡単ではなかった。シナリオを作成するために検討を重ねたメンバーにこの場で謝意を述べたい。全体会合はわずか5回であったが、個別の検討を行うためにサブワーキング会合はのべ20回を超える。蒸発乾固においてPIRTを作成することができたのは、さまざまな分野からの参加者による人材交流の結果であり、フェーズⅢの目的を達成した一つの象徴といえる。

現場において初心者が重大事故のリスク評価を実施することになった場合や、大学においてリスク評価を学ぶ場合のテキストとして本報告書が活用されることを望む。

主査記す。

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

新規規制基準における重大事故。新規規制基準では、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）^{a)}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)

付録 C 重要物理/化学現象ランキングテーブル

C.1 はじめに

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（以下，SAWG）では，核燃料サイクル施設のリスク評価等に資する目的で，フェーズⅠⁱ，フェーズⅡⁱⁱと活動を行ってきた。2021年度より活動を開始した SAWG フェーズⅢでは，蒸発乾固事故，臨界事故および水素爆発事故の各事故についてサブグループを構成し，各サブグループで各事故のリスク評価モデルおよび評価手法に関する検討を行っている。

一方で近年，安全解析の品質向上や解析結果のレビューに PIRT（Phenomena Identification and Ranking Table）が活用される潮流がある。例として，欧州で PWR のシビアアクシデントを主な対象として PIRT を整備し，重要かつ知見が不足する現象を抽出している。日本でも BWR を対象とした事象進展解析の課題の抽出に PIRT が活用されているⁱⁱⁱほか，解析コード整備に際しては PIRT の活用が推奨されている^{iv}。

この PIRT の整備と活用は，SAWG フェーズⅢにて検討を進めているリスク評価においても，安全解析のための知識レベル完備性，評価モデル整備完備性の見える化といったメリットにつながる。再処理施設を対象とした PIRT 整備は世界初の取り組みであり，今後の再処理施設のリスク評価における技術開発，技術継承及びリスク評価技術の活用促進に大きく資するものと考えられる。

この背景の下，ここでは蒸発乾固事故を対象とする PIRT 整備について，作成時の現象同定やランキング決定に関する議論をまとめるものである。

C.2 重要物理/化学現象ランキングテーブル（PIRT）概要

C.2.1 PIRT とは

PIRT（Phenomena Identification Ranking Table/重要度ランキングテーブル）とは、着目する事象の中で生じる現象を抽出し、安全性評価指標（Figure of Merit, 以下 FOM）への影響度の大きさを尺度として分類し整理した表のことをいう。このときの影響度、重要度のランク付けは専門家投票により実施する。

欧州では PWR のシビアアクシデントを主な対象とし、多くのシビアアクシデント研究者によって PIRT 整備を実施した例がある。ここでは 1000 程度の現象を同定し、106 個の重要かつ知見不足の現象を抽出している[2-2]。

C.2.2 廃液の蒸発乾固事故に関する物理/化学現象

C.2.2.1 蒸発乾固事故の概要

蒸発乾固事故のシナリオは、冷却機能が喪失した状態が継続し、崩壊熱によって廃液が沸騰し、いずれ乾固するというものである。蒸発乾固事故に関する物理/化学現象のイメージを図 1 に示す。

沸騰開始から廃液温度約 120℃までの段階（以降、沸騰初期フェーズ）においては、廃液の沸騰の際に発生した飛沫が蒸気流に同伴され気相部へ移行、エアロゾル化し、これが主たるソースタームとなる。

廃液温度約 120℃から約 150℃の段階（以降、沸騰晩期フェーズ）及び、約 150℃以上の段階（以降、乾固フェーズ）においては、揮発性 Ru が主たるソースタームとなる。このフェーズでは、硝酸塩や硝酸の熱分解により NO_x や O₂ が発生し、これらが放射性物質のキャリアガスとして作用する。

貯槽から流出した気体に含まれる水蒸気、硝酸蒸気は、建屋区画内に流出すると、温度低下によって一部が壁面で凝縮する。この凝縮液に一部の揮発性 Ru や NO_x ガスが化学吸収されることが想定される。またエアロゾルについても、建屋区画内における重力沈降などの自然除去機構により沈着することが想定される。

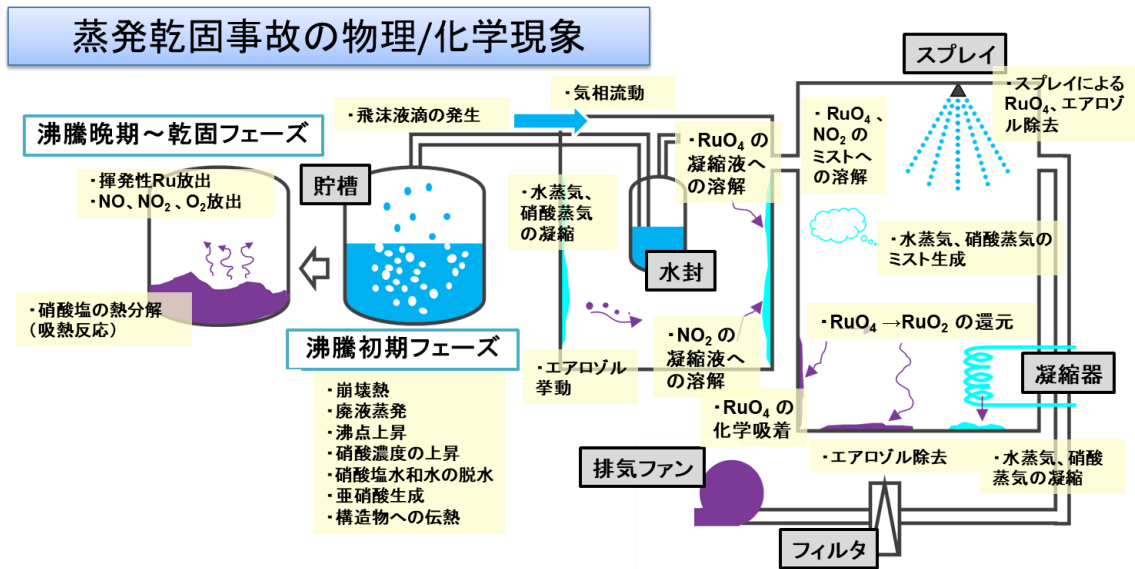


図 1 蒸発乾固事故シナリオに含まれる物理/化学現象のイメージ

C.2.2.2 物理/化学現象の分類と抽出

前項に示した蒸発乾固事故シナリオに含まれる物理/化学現象を下記の 6 つに分類する。本書ではこの 6 分類ごとに、物理/化学現象の概要、利用可能な基礎的データ等の整理を行うとともに、PIRT 整備時のランキング付けにも活用する。

- | | |
|--------------------------|--|
| - 廃液沸騰・濃縮： | 伝熱，溶液沸点上昇等 |
| - 硝酸・NO _x 反応： | NO _x 発生，NO _x 液相吸収等 |
| - 揮発性 Ru の移行： | Ru 酸化，亜硝酸による還元等 |
| - 難揮発性物質の移行： | エアロゾル挙動（重力沈降，熱泳動等） |
| - キャリアガスのふるまい： | 気相流動，凝縮等 |
| - その他： | FP 放出抑制策等 |

本ワーキングにおいては、重要な物理/化学現象の抽出に際し、複数専門家による勉強会として蒸発乾固サブワーキング合計 4 回で議論を行った。この抽出の過程で、各現象に対する現時点の知識レベル調査も併せて実施しており、これについては次章に詳述する。

(1)「廃液沸騰・濃縮」に分類される現象

「廃液沸騰・濃縮」に分類される現象を，3つの大項目「発熱」「熱物性」「硝酸溶液の沸騰」にさらに分ける。現象のイメージをエラー！参照元が見つかりません。に示す。

以下，各現象の概要をまとめる。

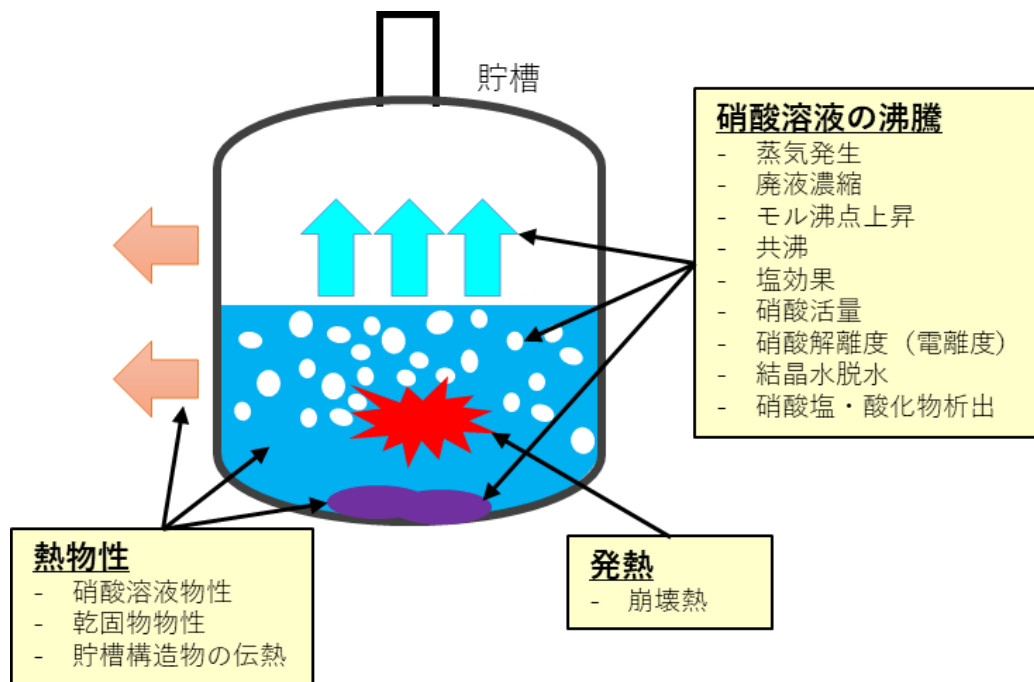


図 2 「廃液沸騰・濃縮」に分類される現象のイメージ図

大項目「発熱」

(1) 崩壊熱

蒸発乾固事故における廃液の発熱源は，廃液中の放射性元素の崩壊熱である。沸騰早期の段階では水・硝酸蒸気の発生に，沸騰晚期及び乾固期では NO_x 発生や揮発性 Ru の放出に，それぞれ熱の供給源として作用する。

難揮発性 FP の放出に対しては，蒸気発生による飛沫同伴（廃液から気相への移行の主要メカニズム）の原動力となる。また揮発性 Ru の放出に対しては，Ru 硝酸塩の分解を促進する役割を果たす。

大項目「熱物性」

(2) 硝酸溶液物性

硝酸水溶液及び廃液の潜熱，顕熱，密度，気液平衡データといった物性値は，蒸発乾固事故において貯槽の熱容量を左右し，沸騰開始までの時間，沸騰後の温度上昇速度，乾固に至るまでの時間に影響を及ぼす。

難揮発性 **FP** の放出に対しては，潜熱は蒸発速度，密度や表面張力等の物性値は発生する飛沫液滴の性状をそれぞれ決定する重要な要素となる。また揮発性 **Ru** の放出に対しては，温度上昇速度を左右することで化学反応時間の観点から間接的に影響する。

(3) 乾固物物性

乾固物の密度，熱伝導率，比熱といった物性値は，蒸発乾固事故，特に乾固フェーズにおいて貯槽の熱容量を左右し，沸騰開始までの時間，沸騰後の温度上昇速度，乾固に至るまでの時間に影響を及ぼす。

乾固フェーズにおいては廃液から気相への移行が少ないことから，難揮発性 **FP** の放出に対する影響は小さいと考えられる。一方，揮発性 **Ru** の放出に対しては，温度上昇速度を左右することで化学反応時間の観点から間接的に影響する。

(4) 貯槽構造物の伝熱

貯槽構造物－気相間の対流熱伝達，貯槽構造物－セル壁ないし廃液間の輻射熱伝達，貯槽構造物内の熱伝導といった伝熱現象は，蒸発乾固事故における貯槽の熱収支の大きな要素であり，沸騰開始までの時間，沸騰後の温度上昇速度，乾固に至るまでの時間に影響を及ぼす。

貯槽の熱収支への影響により，難揮発性 **FP** の放出に対しては蒸気発生速度，揮発性 **Ru** の放出に対して温度上昇速度及び化学反応時間の観点から，それぞれ影響を及ぼす。

大項目「硝酸溶液の沸騰」

(5) 蒸気発生（蒸発，沸騰）

廃液沸騰により発生する水および硝酸蒸気は，蒸発乾固事故，特に沸騰早期及び沸騰晩期フェーズで多く発生する。沸騰早期フェーズでは発生蒸気のほとんどを水が占めるが，沸騰晩期フェーズにかけて硝酸が占める割合が上昇する。乾固フェーズにおいては，硝酸塩の結晶水脱水により水蒸気，硝酸塩の熱分解により硝酸蒸気がそれぞれ発生するが，沸騰早期および晩期フェーズに比べて発生量は小さい。

発生した蒸気は難揮発性 **FP**，揮発性 **Ru** 双方のキャリアガスとして働く。また，難揮発性 **FP** の廃液から気相への移行には，蒸気発生速度が大きく影響する。加えて，硝酸蒸気は揮発性 **Ru** を気相中で安定保持する効果が確認されており，これは揮発性 **Ru** 放出に対しての間接的影響といえる。

(6) 廃液濃縮

廃液からの水および硝酸の蒸発により，廃液中の硝酸および硝酸塩濃度に変化する。この濃度変化は蒸発乾固事故，特に沸騰晩期フェーズで顕著となる。

飛沫同伴による液滴発生の際，廃液の硝酸塩濃度すなわち **FP** 濃度は，難揮発性 **FP** の気相への移行量に大きく影響する。揮発性 **Ru** 放出量に対しては，廃液中の硝酸濃度は **Ru** の酸化に直接的に影響する。

(7) モル沸点上昇

溶液中に難揮発性の物質が溶存する場合，溶媒の蒸気圧が下がり，沸点が上昇する。十分に希薄であれば，この沸点上昇幅は難揮発性物質の溶存濃度に依存する。これは蒸発面の一部を難揮発性物質が覆い，蒸発を妨げるとイメージできる。

一方，硝酸のように水との間に強い相互作用を及ぼす物質が溶存する場合は，上記の効果以上に沸点が上昇する。この「相互作用」は，水分子と硝酸分子が電氣的に引っ張り合うことで蒸発を妨げるとイメージできる。この相互作用の効果は，「硝酸の活量」にて後述される。

再処理施設における高レベル廃液では，難揮発性物質として硝酸塩，相互作用を及ぼす物質として硝酸が考えられる。ただし硝酸塩は，沸騰が進むにつれて析出，熱分解されることが予想され，濃度は一定とならないと考えられる。硝酸については上述の通り，水との相互作用が生じる。

CEA 実験等に代表される廃液の沸騰実験では，廃液温度の上昇過程が計測されている。ただし，これらは難揮発性物質としての硝酸塩によるモル沸点上昇だけではなく，上述した硝酸塩の析出や熱分解，水と硝酸間の相互作用といった効果を全て含んだ結果である。

モル沸点上昇は特に難揮発性 FP の放出に対して、発生する蒸気流速や成分を左右することで間接的に影響を及ぼすことが予想できる。

(8) 共沸

沸騰継続により初期段階（沸騰初期フェーズ）では、硝酸濃度が上昇しモル沸点上昇が生じるが、硝酸濃度が共沸点（約 120℃）に達すると、水と硝酸の蒸発速度が同じとなり、それ以上硝酸濃度は増大しない。

難揮発性 FP の放出に対しては、沸点の変化は発生する蒸気流速や成分を左右することで間接的に影響を及ぼす。揮発性 Ru 放出に対しては、共沸点を過ぎて以降に廃液からの放出が顕著となるため、共沸点は指標として重要と考えられる。

(9) 塩効果

硝酸水溶液への難揮発性塩類の溶存は、水及び硝酸の活量を変化させ、水に対する硝酸の相対揮発度（蒸留による水と硝酸の分離のしやすさを意味する）を変化させる。すなわち、蒸発乾固事故（特に沸騰初期フェーズ）では、発生する蒸気の成分を左右することになる。

難揮発性 FP の放出に対しては、沸点の変化は発生する蒸気流速や成分を左右することで間接的に影響を及ぼす。揮発性 Ru 放出量に対しては、廃液中の硝酸濃度を左右することにより、Ru 酸化へ間接的に寄与する形で影響を及ぼす。

(10) 硝酸活量

廃液中における硝酸の活量の変化はモル沸点上昇幅に影響し、それは硝酸の蒸発量および廃液中の硝酸濃度の変化につながる。すなわち、蒸発乾固事故（特に沸騰初期フェーズ）では、発生する蒸気の成分を左右することになる。

難揮発性 FP および揮発性 Ru 放出量に対し、硝酸活量はモル沸点上昇を通して間接的に影響を与えることから、これら放出量への影響は(7)の「モル沸点上昇」の記載を参照。

(11) 硝酸解離度（電離度）

廃液中における硝酸解離度の変化はモル沸点上昇幅に影響し、それは硝酸の蒸発量および廃液中の硝酸濃度の変化につながる。すなわち、蒸発乾固事故（特に沸騰初期フェーズ）では、発生する蒸気の成分を左右することになる。廃液においては硝酸のほかに硝酸塩も溶存するため、これによって硝酸解離度は影響を受ける。

難揮発性 FP および揮発性 Ru 放出量に対し、硝酸解離度はモル沸点上昇を通して間接的に影響を与えることから、これら放出量への影響は(7)の「モル沸点上昇」の記載を参照。

(12) 結晶水脱水

蒸発乾固事故の沸騰前～沸騰初期フェーズにおいて、廃液が均一に混合されている状態では、硝酸塩は結晶水を生成せず、すべて解離していると考えられる。蒸発乾固事故が進展し、析出が進む沸騰晩期フェーズ～乾固フェーズに入ると、硝酸塩の析出が顕著となり、この析出硝酸塩が結晶水を形成する。形成した結晶水は離脱して溶液の希釈、あるいは蒸気発生に寄与する。

難揮発性 FP の放出に対しては、特に沸騰晩期～乾固期フェーズにおいて、結晶水の脱水が発生蒸気の源となり得ることから、キャリアガスである蒸気の発生という形で影響を及ぼす。揮発性 Ru 放出に対しては、結晶水形成ないし脱水によって廃液の硝酸濃度を変化させることで、Ru 酸化に間接的に影響を及ぼす。

(13) 硝酸塩・酸化物析出

蒸発乾固事故、特に沸騰晩期から乾固期フェーズにかけては、NO_x 発生等の化学反応に伴い、硝酸塩や酸化物が析出する。これらの析出速度は溶液中の溶解度に左右されるが、蒸発が進むことで廃液が濃縮され、溶解度も変化する。また、一般に酸化物の溶解度は硝酸塩に比べて低い。

難揮発性 FP の放出は沸騰時の廃液中 FP 濃度に影響を受けるが、この濃度は硝酸塩および酸化物の析出に左右される。一方、揮発性 Ru の放出に対しては、揮発性 Ru は溶存硝酸塩に加えて析出硝酸塩も発生すると考えられ、廃液中の存在形態に左右されないことから、析出挙動による影響は小さいと考えられる。

(2)「硝酸・NO_x 反応」に分類される現象

「硝酸・NO_x 反応」に分類される現象を、4つの大項目「脱硝反応」「NO_x 挙動」「放射線分解」「硝酸 - 壁面反応」にさらに分ける。現象のイメージを図 3 に示す。

以下、各現象の概要をまとめる。

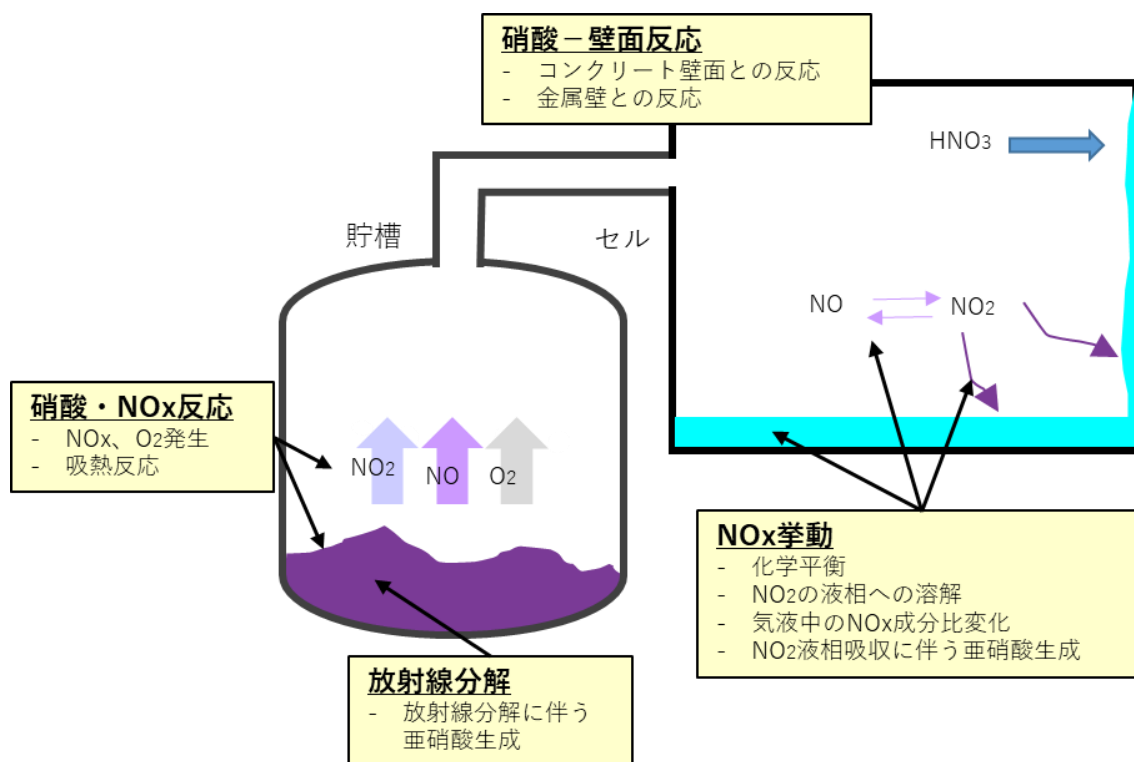


図 3 「硝酸・NO_x 反応」に分類される現象のイメージ図

大項目「脱硝反応」

(14) NO_x, O₂ 発生

廃液中の硝酸塩は、加熱されると分解して NO_x, O₂ を放出する。ただし、硝酸第二鉄のように硝酸を放出して分解する化合物もある。廃液に含まれる硝酸塩類それぞれの分解挙動は明確ではない。単独の粉末試薬の分解、硝酸溶液に溶解したときの分解、他の硝酸塩類を含むときの分解挙動が異なる化合物が大部分である。

昇温速度 0.2～1℃/min の既往実験知見から、NO_x 生成は 100℃付近から始まるが、130℃付近までその発生量は少なく、130℃付近～350℃付近の間で NO₂ 放出が活発となることが分かっている。また当該知見では、NO 放出が 200℃付近で始まり、400℃以上で活発化することが分かっている。

NO_x 生成と同時に O₂ が放出される。NO₂ 生成時はその 1/4, NO 生成時はその 3/4 の O₂ が生成する。

(15) 吸熱反応

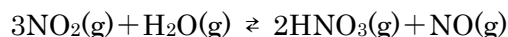
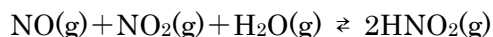
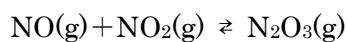
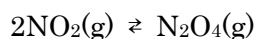
硝酸塩の分解反応は吸熱反応であり、廃液の温度上昇速度に大きく影響する。硝酸塩の種類によって生成エンタルピーが異なることから、分解する硝酸塩の種類によって吸熱量が異なることが予想される。しかしながら、廃液中の硝酸塩がどの温度域でどれだけ分解されるか、の実験知見は少ない。

一方で、硝酸塩の分解反応の結果発生する NO_x 量は、廃液中の分解反応をうかがい知る手がかりとなる。

大項目「NO_x 挙動」

(16) 化学平衡

NO_x の主要な成分は NO と NO₂ であるが、これら以外にも NO_x を構成する成分として N₂O₄, N₂O₃ が存在する。これらに加えて水 H₂O, 硝酸 HNO₃ の蒸気 2 成分、さらに H₂O と他成分との反応で生成する亜硝酸 HNO₂ も関係する。気相中ではこれらの成分間の以下に示す平衡反応が進む。



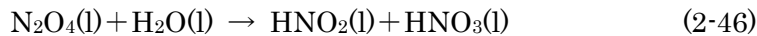
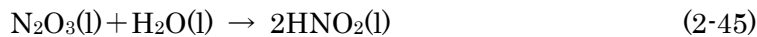
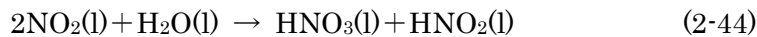
ここに、(g)は気相成分であることを示す。

(17) NO₂ の液相中への溶解

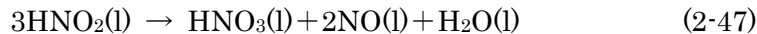
貯槽から排出された蒸気が低温のセルに移行し、低温の気体と混合するか、あるいは壁面との接触で冷やされると、水分、硝酸の一部が凝縮すると同時に、気相中 NO₂ の液相への溶解が起こる。

気液界面における水と硝酸の分圧は硝酸溶液上の飽和蒸気圧に等しい (図 2-32)。

液相中では下記の反応が進む。



液中の亜硝酸は分解して硝酸、NO を生成する。



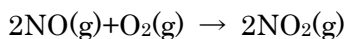
(l)は液相成分であることを示す。

反応(2-47)で生成した NO は、溶解度が小さいので気相に放散される。

式(2-39)～(2-47)が関係する反応を全て考慮したモデルであるが、関係する過程のほぼ全てが考慮されていることが逆にモデルを複雑化して見通しを悪くし、数多くの物質移動係数、Henry 定数などを全て与えることが容易ではないという問題点の原因となっている。また、貯槽廃液の沸騰、乾固時の廃液温度は沸騰温度の 104℃より高温であるが、硝酸製造の場合は低温ほど NO_x 吸収に有利であるために常温付近の研究が多く、高温条件の研究報告は無い。このためこれらのモデルを沸騰乾固現象に適用するには、高温での実験を行って係数値を推定する必要がある。

(18) 気液中の NO_x 成分比変化

反応(2-39)は非可逆反応である。反応(2-39)～(2-43)は平衡反応であり、気相中では各成分は瞬時平衡にあると考えられている。NO₂ の 2 量体である N₂O₄ は、NO₂ 分圧が低いか、あるいは温度が高いとその割合は小さい。



(19) NO₂ 液相吸収に伴う亜硝酸生成

亜硝酸は RuO₄ の還元剤として働くので、共存する可能性があるときは反応を考慮する必要がある。沸騰乾固時は、NO₂ 生成時に生じる亜硝酸、または次項に述べる硝酸の放射線分解で生じる亜硝酸によって RuO₄ 生成が阻害される。その機構としては、Ru の酸化反応の阻害または生成 RuO₄ の還元等が想定される。

移行経路では凝縮液に NO_2 が溶存し亜硝酸が生成する。これが同時に溶存する RuO_4 を還元して濃度を低下させるために、 RuO_4 の溶存速度を加速する。

大項目「放射線分解」

(20) 放射線分解に伴う亜硝酸生成

硝酸の放射線分解によって亜硝酸が生成することが報告されている。ただし、これらの報告は硝酸溶液の場合であり、硝酸塩が共存する濃縮廃液中の場合は、放射線分解速度は異なると予想される。(18)項で述べたとおり、亜硝酸は RuO_4 の挙動に大きく影響するので、放射線分解による亜硝酸生成速度を知ることは重要な課題である。

大項目「硝酸－壁面反応」

(21) コンクリート壁面との反応

移行経路のうちセル壁はコンクリートであるので、コンクリート表面で起こる現象を理解する必要がある。沸騰初期から晩期には貯槽から排出される気体には水蒸気と硝酸蒸気が大量に含まれており、これがコンクリート壁面と接触すると冷やされて凝縮が起こる。また、コンクリートはアルカリ性であるので硝酸と中和反応を起こし、中和熱が放出されることも予想できる。コンクリート中のアルカリ成分、例えば CaO と硝酸が反応すると $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ が生成するが、これは水溶性であるので凝縮液中に溶解し、砂粒の脱落などが起こり、コンクリート表面が浸食される。この現象をモデル化するには液体成分と固体との反応を扱う必要がある。

凝縮が起こらないときは、 RuO_4 はコンクリート表面に直接吸着され、残存する水、硝酸蒸気も吸着されると想定される。

(22) 金属壁との反応

移行経路中の配管、および設置が決まっている凝縮器内部の冷却管は SUS 製である。低温の SUS 表面と貯槽排出気体が接触すると、水蒸気と硝酸蒸気の凝縮が起こる。共存する NO_2 と RuO_4 の一部はこの凝縮液膜に吸収される。

凝縮が起こらないときは、 RuO_4 は SUS 表面に直接吸着され、残存する水、硝酸蒸気も吸着されると想定される。

(3) 「揮発性 Ru の移行」に分類される現象

「揮発性 Ru の移行」に分類される現象を、4つの大項目「RuO₄生成」「RuO₄気相移行」「気相からの RuO₄除去 (LPF)」「工学的手段による RuO₄除去 (LPF)」にさらに分ける。現象のイメージを図 4 に示す。

以下、各現象の概要をまとめる。

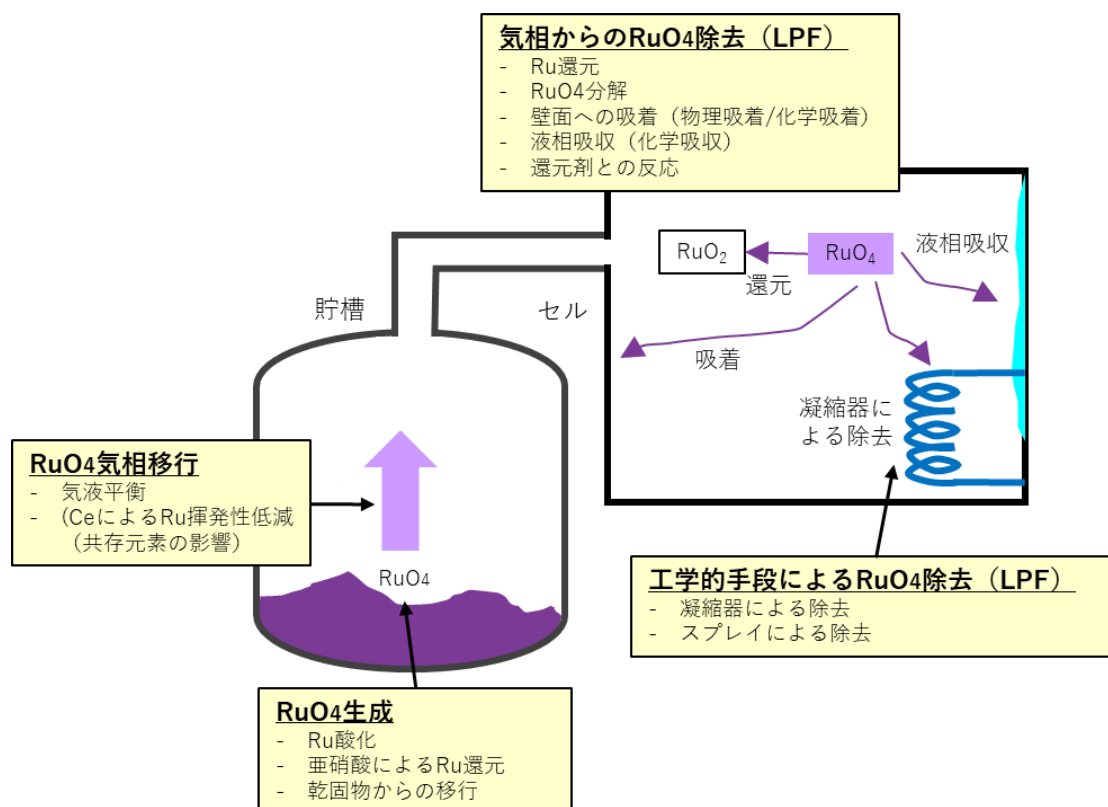


図 4 「揮発性 Ru の移行」に分類される現象のイメージ図

大項目「RuO₄生成」

(23) Ru 酸化

廃液中において Ru 元素は主に硝酸ニトロシル Ru のような錯体で存在すると、再処理プロセス・化学ハンドブックをはじめとした多数の文献で提唱されている。廃液の蒸発・沸騰が進み硝酸濃度が高くなると、硝酸の酸化力によって Ru 錯体が酸化され揮発性形態となり、気相中に移行する。揮発性の化学形態は 8 価の RuO₄であることが、既往実験知見にて確かめられている。

この現象は、沸騰・蒸発が進み廃液中の硝酸濃度が上昇した沸騰晩期フェーズにて顕著となることが予想される。一方、廃液中の硝酸がほぼ蒸発した乾固物からも揮発性 Ru が放出されることが既往実験知見で確かめられており、この現象は「乾固物からの移行」項目として後述する。

(24) 亜硝酸による Ru 還元

前述の通り、廃液中の Ru 化合物から RuO_4 が生成される要因は硝酸の酸化力と考えられる。一方で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が、この亜硝酸は還元効果を有するため、亜硝酸の還元力により RuO_4 の生成が抑制されることが考えられる。よって廃液からの RuO_4 生成を理解するためには、Ru 放出を亜硝酸による Ru 還元効果についても考慮する必要がある。

実廃液を用いた CEA 実験では、沸騰早期フェーズと沸騰晚期フェーズの境界に相当する廃液温度 120°C までは Ru 放出が抑えられる結果が得られている。また産官学共同研究では、放射性物質を含むホット廃液と模擬廃液を使用した加熱試験の比較が行われ、「模擬廃液の方が沸騰早期フェーズにおける Ru 移行割合が高い」との結果が得られている。この結果は、亜硝酸の効果による Ru 還元の効果を示唆する。

(25) 乾固物からの移行

廃液からの水・硝酸の蒸発がほぼ終わった乾固フェーズにおいては、Ru 錯体の酸化に寄与する硝酸は既に蒸発していることが予想される。一方で既往の模擬廃液加熱実験結果では、廃液温度が 200°C を超えた段階でも Ru 放出が観測されている。よって乾固フェーズにおける Ru 放出には、Ru 酸化以外の機構が作用している可能性が考えられる。

産官学共同研究にて、固体状の硝酸ニトロシル Ru を加熱し、Ru の気相放出を計測した実験が実施されている。当該実験では加熱温度が高いほど、Ru 放出割合の時間に対する増加率が大きくなる結果が得られており、この結果から「乾固フェーズにおける Ru の放出挙動は、硝酸ニトロシル Ru の熱分解反応のような化学反応と関係づけられる」との示唆を得ている。

大項目「 RuO_4 気相移行」

(26) 気液平衡

ここでいう「気液平衡」とは、気相中の RuO_4 が凝縮液へ RuO_4 の形態のまま溶解する挙動、すなわちヘンリーの法則に従った希薄気相成分の溶解を意味する。ヘンリーの法則に従えば、気相から凝縮液への RuO_4 移行量は気相中の RuO_4 濃度に比例した一定値に決まる（この時の比例定数がヘンリー定数）。すなわち、平衡状態となってそれ以上溶解しないことになる。既往研究にて、種々の濃度・温度の硝酸水溶液に対する RuO_4 のヘンリー定数が取得されている。

ただし規制庁公募研究（H28 年度）にて、凝縮液中に移行した Ru の化学形態は RuO_4 ではなくニトロシル Ru であるとの知見が得られている。この知見からは、Ru の気相から液相への移行は気液平衡（ヘンリーの法則に従った溶解）ではなく化学吸収で

あることが示唆される。つまり、平衡状態となって移行量が上限に達することは考えにくい。

(27) Ce による Ru 揮発性低減（共存元素の影響）

廃液中には 20 種類程度の元素の硝酸塩が溶存しており、これらが RuO_4 の移行に影響を及ぼす可能性が、既往実験から示唆されている。ここでは代表として Ce 元素を取り上げるが、Mo 等の他元素についても影響の可能性は考えられる。

例として日本原燃(株)実施研究では、Ce 非含有の模擬廃液と Ce 含有の模擬廃液を用いた Ru 放出実験を比較し、前者（Ce 非含有）の方が大きい Ru 放出割合を得ている。

大項目「気相からの RuO_4 除去（LPF）」

(28) Ru 還元

RuO_4 は化学反応性が高い物質であり、還元剤として働くような気相成分（例：NO）と接触すると還元されることが考えられる。既往実験知見にて、 RuO_4 が気相中で還元され、難揮発性の粒子状 RuO_2 となる現象が観測されている（例：規制庁公募研究

（H30 年度））。ガスである RuO_4 が粒子状となることは、後述する難揮発性 FP の除去機構（重力沈降や拡散泳動等）の効果を受けることになり、ソースタームである Ru 環境放出量を低減させると考えられる。

ただし同研究では、 RuO_4 の還元割合に数%～数十%の振れ幅があることが確認されており、不確かさの大きい現象であることが示唆される。

(29) RuO_4 分解

前述の通り RuO_4 は化学反応性が高い、すなわち不安定な物質であり、気相中では自発的に分解され RuO_2 となると考えられている（規制庁公募研究（H28 年度））。この現象は前述の「Ru 還元」同様、ソースタームである Ru 環境放出量を低減させると考えられる。

ただし規制庁公募研究では、硝酸蒸気の下では RuO_4 が還元されず安定保持されることが観測されている。蒸発乾固事故シナリオにおいて、 RuO_4 が放出される沸騰晩期フェーズには貯槽から硝酸蒸気が発生することが予想される。つまり RuO_4 はほとんどのケースで硝酸蒸気と共存すると考えられる。

また硝酸蒸気に比べると弱いものの、 NO_2 にも同様の安定保持効果があることが規制庁公募研究から示唆されている。

(30) 壁面への沈着（化学吸着/物理吸着）

気相中に放出された RuO_4 は経路壁面へ沈着することが考えられる。この「沈着」には、 RuO_4 がその形態を保ったまま、 RuO_4 分子と壁面材料との間に発生するファン・デ

ル・ワールス力によって捕らえられる物理吸着、および、 RuO_4 が壁面材料と反応してその形態を変え沈着する化学吸着の2経路が考えられる。前者に比べて後者は RuO_4 形態が変わっているため、再放出に必要なエネルギーが多く、再放出されにくい吸着形態といえる。

この両者は同時に起こり得ると考えられるため、実験上では両者を分けて観測することは難しく、既往実験知見はこの両者を併せて評価したものと考えられる。既往実験知見の例として、産官学共同研究において、窒素、窒素+水蒸気および、窒素+ NO_2 を共存ガスとしてガラス配管へ RuO_4 を供する実験が行われている。いずれの条件においてもRuの壁面沈着が観測されている。

なお、乾固フェーズでは水及び硝酸蒸気はほとんど発生せず、また高温の NO_x ガスが発生するため、移行経路のうち貯槽に近い領域では凝縮液が発生しにくいと予想される。このように凝縮液の発生が少ない状況では、後述する液相吸収がほとんど起こらず、壁面への吸着が主要な RuO_4 除去機構となることが考えられる。

(31) 液相吸収（化学吸収）

蒸発乾固事故時には硝酸含有水蒸気が RuO_4 と共に放出されると想定される。移行経路における壁面等の温度が露点よりも低い場合には、そこで蒸気の凝縮が発生し、発生した凝縮液へ気相中の RuO_4 が移行することが予想される。

ここで蒸発乾固事故時、特に沸騰晩期～乾固期フェーズでは、硝酸含有水蒸気や RuO_4 に加え、 NO_2 が放出される。 NO_2 は「 NO_2 の液相中への溶解」および「 NO_2 液相吸収に伴う亜硝酸生成」に前述の通り、凝縮液に吸収されて亜硝酸を生成する性質を有する。 NO_2 が RuO_4 と気相に共存しているケースでは、 RuO_4 が凝縮液に移行した際、 NO_2 由来の亜硝酸が RuO_4 と反応し、ニトロシルRu等の化合物を形成する可能性が考えられる。ここでは上記の挙動を「液相吸収（化学吸収）」と呼ぶ。

「気液平衡」で前述したが、規制庁公募研究（H28年度）にて、 RuO_4 の気相から液相への移行は気液平衡（ヘンリーの法則に従った溶解）ではなく液相吸収であることが示唆されている。また当該研究における RuO_4 移行試験結果では、 NO_2 共存条件で RuO_4 の大半が液相へ移行する結果が得られており、液相吸収は寄与の大きい RuO_4 除去機構と考えられる。

(32) 還元剤との反応

前述した「壁面への沈着」のうちの化学吸着に関連する現象であるが、壁面のような固相が還元剤としての作用を有する場合、化学吸着を助ける可能性が考えられる。またこの可能性を踏まえると、ゼオライトのような還元剤を RuO_4 移行経路に置いた場合、そこに RuO_4 が吸着され、環境への放出量が抑制されることも考えられる。

なお，本項目に関する既往知見は多くなく，現状では不確かさの要因の一つとして考慮し得る，という段階である。

大項目「工学的手段による RuO₄ 除去 (LPF)」

(33) 凝縮器による除去

廃液から移行するガス等の移行経路に凝縮器が設置され、凝縮器が設計通り機能する場合、水・硝酸蒸気の多くがそこで凝縮すると予想される。この場合、「液相吸収（化学吸収）」あるいは「気液平衡」に前述したものと同一機構で、RuO₄が凝縮液へ移行すると考えられる。

(34) スprayによる除去

廃液から移行するガス等の移行経路にてスプレイが実施された場合、スプレイ液滴への RuO₄ 移行、スプレイによる気相温度低下に伴って発生するミスト・凝縮液への RuO₄ 移行といった挙動により、RuO₄ が気相から除去されることが期待される。スプレイによる RuO₄ 除去機構は、「液相吸収（化学吸収）」に類似するが、粒子径の小さいスプレイ液滴やミストへの移行に際しては、粒子径の曲率の効果（Kelvin 効果）が発生する可能性が考えられる。

規制庁公募研究（H30 年度）では、スプレイ試験を実施し、その結果（スプレイによる RuO₄ 除去効果）を DF の形で整理している。

(4)「難揮発性物質の移行」に分類される現象

「難揮発性物質の移行」に分類される現象を、5つの大項目「飛沫同伴による粒子状FP生成」「 RuO_4 還元による粒子状FP生成」「粒子径分布」「気相からの粒子状FP除去 (LPF)」「工学的手段による粒子状FP除去 (LPF)」にさらに分ける。現象のイメージを図5に示す。

以下、各現象の概要をまとめる。

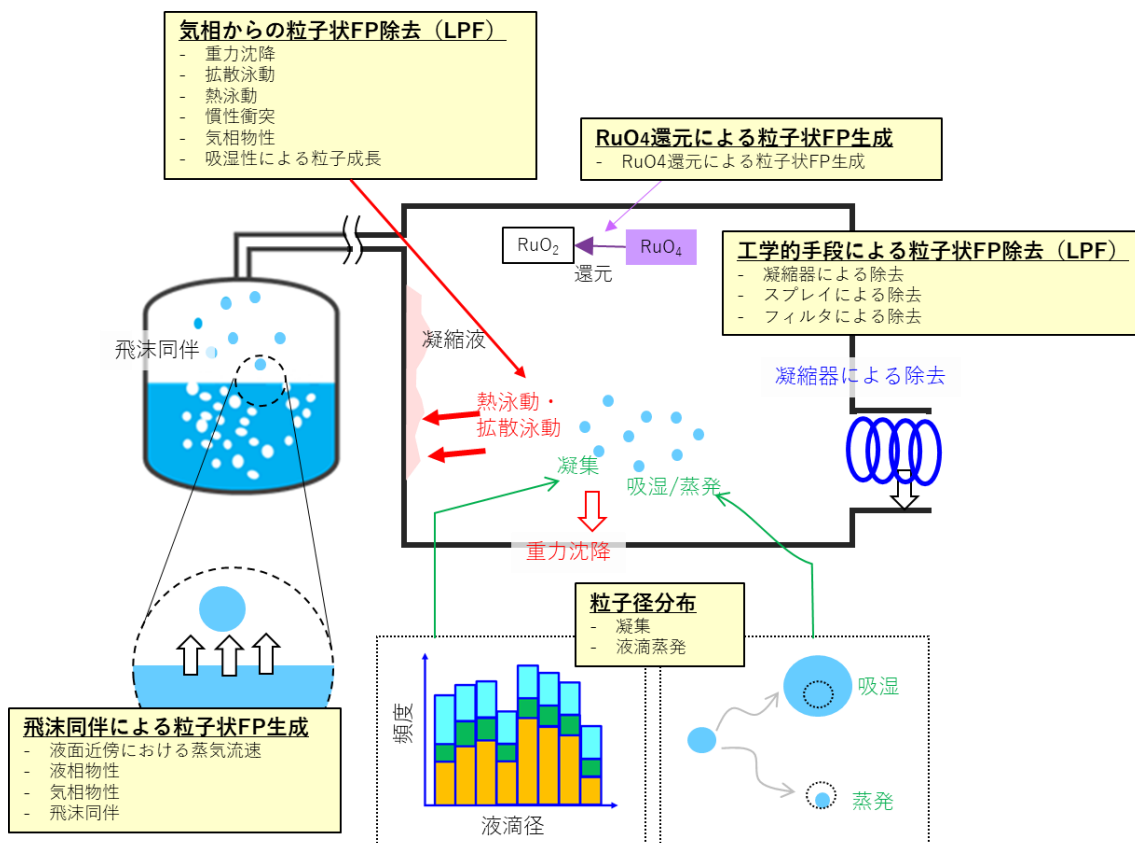


図5 「難揮発性物質の移行」に分類される現象のイメージ図

大項目「飛沫同伴による粒子状FP生成」

(35) 液面近傍における蒸気流速

ここでの「蒸気流速」は蒸気発生速度と同義である。飛沫同伴による粒子状FPの生成、すなわち液滴の発生は、沸騰で発生した蒸気が液中で気泡となり、その気泡が破裂することに起因する。つまり、蒸気発生速度、すなわち蒸気流速が、気泡の生成量および生成した液滴の運搬量を決めることになる。

(36) 液相物性

「液面近傍における蒸気流速」にて前述の通り、飛沫同伴による粒子状 FP の生成は、沸騰で発生した蒸気気泡の破裂に起因する。このとき発生する粒子状 FP（液滴）の大きさは発生蒸気気泡径に左右されると考えられ、さらにこの気泡径は密度、表面張力といった液相の物性に影響を受ける。

また、発生した粒子状 FP には浮力、重力および、液面近傍気相から受ける抵抗力が作用し、これらの力の大小関係によって当該液滴が落下するか、気相へ移行するかが決まる。上述した液相密度や表面張力は、発生液滴の大きさ、重力、抵抗力に影響するパラメータであることから、液相物性が粒子状 FP の気相への移行量へ影響することが言える。

蒸発乾固事故における飛沫同伴を考える際には、廃液の物性が必要となる。これに関する既往知見としては、産官学共同研究にて計測された模擬廃液の物性値が存在する。

(37) 気相物性

「液相物性」の項目でも述べたが、液面近傍で発生した粒子状 FP には浮力、重力および、液面近傍気相から受ける抵抗力が作用する。これらの作用力のうち浮力は気相密度、抵抗力は気相粘性係数により、それぞれ左右される。

蒸発乾固事故における飛沫同伴を考える際は、水蒸気・硝酸蒸気・NO_x・空気の混合気体の物性が必要となる。それぞれ単体の気相物性については一般的な文献値が既存する。

(38) 飛沫同伴

廃液内の崩壊熱により発生した水蒸気・硝酸蒸気は、廃液内で気泡を形成する。発生気泡は浮力により液面まで上昇、破裂するが、この気泡破裂時に液滴が発生する。発生した液滴には浮力、重力および抵抗力が作用し、その移動速度はストークス則に従った終端速度となることが予想される。

大項目「RuO₄還元による粒子状 FP 生成」

(39) RuO₄還元による粒子状 FP 生成

「Ru 還元」にて前述の通り、RuO₄が気相中で還元され、難揮発性の粒子状 RuO₂となる現象が、既往実験知見にて確認されている（例：規制庁公募研究（H30 年度））。難揮発性 FP の放出への影響としては、気相中に粒子が増えることで、後述する凝集を促進するような間接的なものが考えられる。

大項目「粒子径分布」

(40) 凝集

空間内に粒子径の異なる粒子（エアロゾル）が浮遊している際、それらの粒子同士が衝突・付着し、粒子径が大きくなる現象である。粒子同士を衝突させる駆動力としては、粒子のブラウン運動、粒子径の差異による落下速度差、気相流れ、静電気力、音波による振動等が挙げられる。

蒸発乾固事故シナリオでは発生液滴の帯電、音波付与は考えにくく、ブラウン運動、落下速度差および気相流れが主要な駆動力と考えられる。また、蒸発乾固シナリオで粒子状 FP が多く発生する沸騰早期フェーズでは、粒子状 FP と同時に蒸気が多く移行経路へ放出されるが、蒸気からミストが発生した場合はミストとの凝集も発生し得る。

凝集による粒子径の増大は、重力沈降による除去を促進することで、難揮発性 FP 環境放出量へ影響する。

(41) 液滴蒸発

「飛沫同伴」の項で前述の通り、粒子状 FP は液滴の形で貯槽から放出される。移行経路下流が乾燥環境にある場合、液滴に含まれる水や硝酸が蒸発し、液滴がやせ細ることが想定される。液滴からの蒸発は、その粒子径による曲率にも影響を受けることが知られている（Kelvin 効果）。

一方で、蒸発乾固事故で発生する液滴には水、硝酸および硝酸塩が含まれており、前述の「塩効果」や「モル沸点上昇」等により、硝酸や硝酸塩の存在が蒸発を抑制することが予想される。

蒸発乾固シナリオで粒子状 FP が多く発生する沸騰早期フェーズでは、粒子状 FP と同時に蒸気が多く存在するため、移行経路は飽和環境に近く、やせ細りは起こりにくいと予想される。一方で乾固期フェーズに発生する高温の NO_x ガスが移行経路へ流入する際、当該経路の気相中に残存する粒子状 FP がやせ細り、下流へ移行されやすくなる可能性が考えられる。

大項目「気相からの粒子状 FP 除去 (LPF)」

(42) 重力沈降

粒子状 FP には浮力、重力および、気相から受ける抵抗力が作用し、下向きの重力が勝った粒子状 FP は空間床に落下する。粒子径や粒子密度が大きいものほど落下しやすい（すなわち除去されやすい）。

また同じ粒子であっても、存在する空間の高さが小さいほど床に到達するまでの時間が短くなるため、気相流れによって下流へ運ばれにくく、除去されやすい。この時間の観点からは、その空間に滞在する時間（以下、滞在時間）も重要な要素であり、滞在時間が長いほど多くの粒子が落下する。

上記から、蒸発乾固事故シナリオにおける移行経路に、空間容積が大きく滞在時間が長くなりやすい大区画、あるいは空間高さの小さい水平ダクトのような区画が存在する場合、粒子状の難揮発性 FP の環境放出量は小さくなる可能性が考えられる。

(43) 拡散泳動

空間内に粒子、蒸気、非凝縮性ガスが存在し、かつ当該空間内の壁面で凝縮が発生する場合を想定する。この場合、壁面近傍における蒸気濃度はバルク気相のそれよりも小さくなるため、壁面近傍—バルク気相間の濃度差による拡散を駆動力として、蒸気がバルク気相から壁面へ移動する。この蒸気の移動により、壁面へ向かって粒子が運ばれて沈着する挙動が拡散泳動である。

一方で、壁面近傍における非凝縮性ガス濃度はバルク気相のそれよりも大きいいため、蒸気とは逆に、非凝縮性ガスは壁面近傍からバルク気相へ拡散することになる。このとき壁面近傍では、蒸気凝縮および非凝縮性ガスの拡散を補うよう、壁面近傍に向かう気相の供給が起こる。この気相の供給流れをステファン流と呼び、ステファン流によっても粒子が壁面へ向かって運ばれ沈着する。ステファン流は空気力学的な流れであり、濃度差による拡散流れに比べて圧倒的に大きい。発電炉側の事故進展解析コードの中には、ステファン流による粒子の移動のみを拡散泳動と呼称するものも存在する。

蒸発乾固事故シナリオの沸騰早期フェーズでは、粒子状 FP とともに蒸気が貯槽から経路へ放出され、その蒸気が経路壁面で凝縮する際、この拡散泳動による粒子状 FP の除去が起こると予想できる。

(44) 熱泳動

空間内の気相に温度分布が生じる状況、例えば気相温度よりも低温の壁面が存在する場合、高温側の気相中に浮遊する粒子は、低温側に比べて大きい運動量を有する。この運動量の差が駆動力となり、高温側から低温側へ粒子が移動する（上記の例であれば、高温のバルク気相から低温の壁面近傍へ向かって粒子が移動する）。

前述の「拡散泳動」は主として凝縮に伴う現象であるのに対し、この熱泳動は凝縮の発生しない状況でも発生する現象である。蒸発乾固事故シナリオで考えれば、乾固期フェーズのように蒸気が少なく、高温の NO_x ガスが主たるキャリアガスとなる状況で、気相中の粒子状 FP を除去する機構となると予想される。

(45) 慣性衝突

流体中に障害物がある際、流体に随伴していた粒子が慣性の法則に従ってその障害物にぶつかり、沈着する現象である。粒子に作用する慣性力が大きいほど、流体の流

れに慣性力が勝って沈着しやすくなるため、慣性力が大きくなる大粒子径の粒子ほど、また流体の流速が大きいほど、粒子が除去されやすい。

蒸発乾固事故シナリオでは、移行経路における配管・ダクトの折れ曲がり部でこの現象が起きやすいと予想できる。

(46) 気相物性

大項目「飛沫同伴による粒子状 FP 生成」にて前述の通り、粒子状 FP に作用する浮力、重力および、気相から受ける抵抗力が作用し、そのうち浮力は気相密度、抵抗力は気相粘性係数により、それぞれ左右される。また前述の「凝集」においても、浮力や抵抗力を介して気相物性が影響を与える。

(47) 吸湿性による粒子成長

前述した「液滴蒸発」とは逆に、粒子状 FP の移行経路に蒸気が多く存在し凝縮がさかんに発生するような場合、粒子状 FP にも蒸気が凝縮（吸湿）し、液滴が成長することが想定される。蒸発乾固事故で発生する液滴には水、硝酸および硝酸塩が含まれており、前述の「塩効果」や「モル沸点上昇」等により、硝酸や硝酸塩の存在が蒸気の凝縮を促進することが予想される。「液滴蒸発」と同様、粒子への吸湿はその粒子径による曲率にも影響を受けることが知られている（Kelvin 効果）。

蒸発乾固シナリオで粒子状 FP が多く発生する沸騰早期フェーズでは、粒子状 FP と同時に蒸気が多く存在するため、移行経路は飽和環境に近く、吸湿が起こり得ると予想できる。粒子成長は「重力沈降」で前述の通り、粒子状 FP の除去を促進し、環境放出量を抑制すると考えられる。

大項目「工学的手段による粒子状 FP 除去 (LPF)」

(48) スプレーによる除去

廃液から移行するガス等の移行経路にてスプレーが実施された場合、浮遊する粒子状 FP が気相中から除去される。この除去は、下記のメカニズムによって起こる。

- スプレー液滴による気相流れの流線のさえぎり
- 慣性衝突（スプレー液滴が、前述の「慣性衝突」における障害物として働く）
- 粒子のブラウン運動によるスプレー液滴への衝突
- スプレー液滴への蒸気凝縮による拡散泳動

さえぎりや慣性衝突、ブラウン運動は、スプレー液滴径と除去される粒子径のほか、粒子密度や気相物性によっても影響を受ける。拡散泳動は凝縮に伴う現象であることから、上記に加えてスプレー液滴と気相温度との差も重要となる。

(49) 凝縮器による除去

廃液から移行するガス等の移行経路に凝縮器が設置され、凝縮器が設計通り機能する場合、水・硝酸蒸気の多くがそこで凝縮すると予想される。この場合主に、前述した「拡散泳動」によって粒子状 FP が気相から凝縮液へ移行する。

(50) フィルタによる除去

廃液から移行するガス等の移行経路にフィルタが設置される場合、粒子状 FP は前述の「慣性衝突」によってフィルタに衝突、沈着し、気相から除去される。フィルタへの沈着効率は粒子径や気相流速によって変化する。高湿度の条件下であれば、フィルタにミストが付着することの影響もある。

また、フィルタにミストや粒子が継続的に付着していけば、フィルタの流路面積が小さくなり（フィルタの目が詰まり）、フィルタの圧損が変化し、それがフィルタを通過する気相流速も変化させることが予想される。フィルタの圧損の増大量や強度によっては、フィルタの部分破損も起こり、これもフィルタへの沈着効率を変化させる要因である。

(5)「キャリアガスのふるまい」に分類される現象

「キャリアガスの振る舞い」に分類される現象を、2つの大項目「気相流動」「工学的手段によるキャリアガスへの影響」にさらに分ける。現象のイメージを図6に示す。

以下、各現象の概要をまとめる。

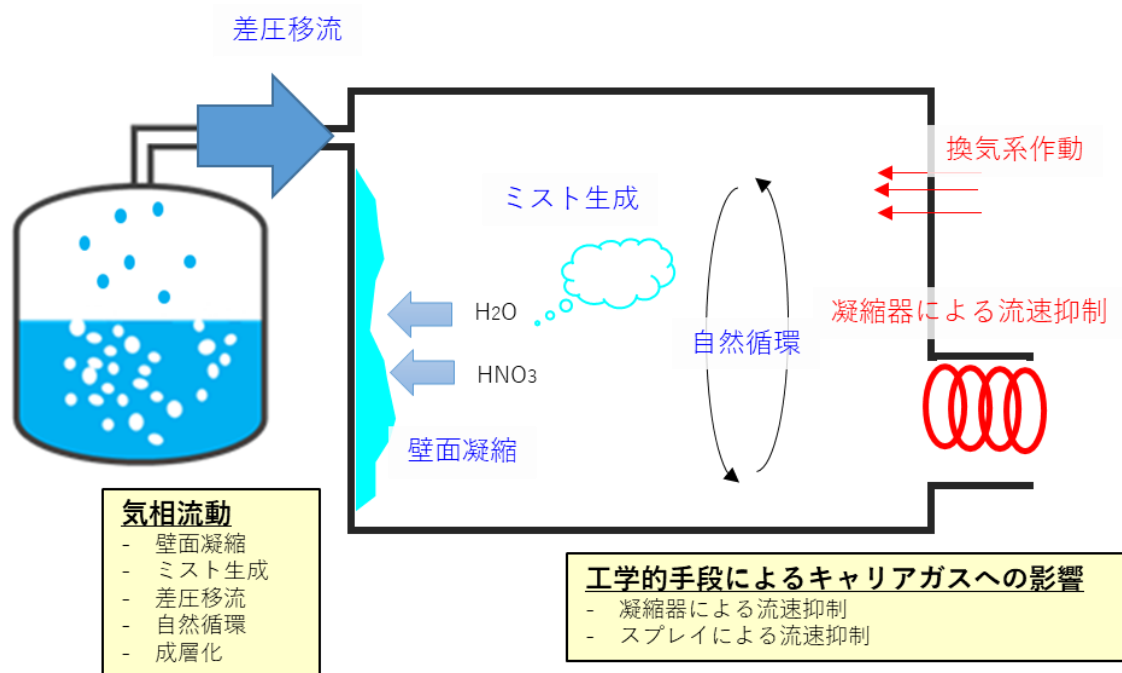


図6 「キャリアガスの振る舞い」に分類される現象のイメージ図

大項目「工学的手段による粒子状FP除去（LPF）」

(51) 壁面凝縮

蒸発乾固事故シナリオにおいては、貯槽から水蒸気、硝酸蒸気、NO_xを含むガスが建屋内の移行経路へ放出されたのち、移行経路に存在するコンクリート壁面あるいは配管・ダクト壁面で除熱される。この除熱によって一部の水蒸気および硝酸蒸気が凝縮し、凝縮面近傍では水・硝酸・非凝縮性ガスの3成分系の気液共存状態（気液平衡状態）を形成する。一般的には、複数の凝縮成分および非凝縮性成分を含む場合、凝縮面近傍で凝縮成分濃度が低くなり、凝縮が進みにくくなる。しかし水と硝酸の場合は「硝酸活量」で前述した通り、相互作用により凝縮を促進すると考えられる。

蒸発乾固事故の事象進展は比較的緩やかであるため、特に建屋セルのような大空間においては、空間内の気相流速は大きくないと予想される。これを踏まえて凝縮面近傍の気相流れに注目すると、凝縮面近傍とバルク気相との成分濃度差による拡散、除熱され気相密度が大きくなった気相の下降、分子量が大きい硝酸の凝縮によって気相密度が小

さくなくなった気相の上昇が考えられる。これら凝縮面近傍の気相流れは、凝縮が起こる空間の大きさに依存し、また気相からの除熱量を左右する重要な要素である。

水・硝酸・非凝縮性ガスの 3 成分系の気液平衡については、活量係数や気液平衡曲線のような基礎データが既存する。一方で凝縮面近傍の気相流れについては、水・硝酸・非凝縮性ガス系かつ実機相当の大空間での実験知見が存在せず、知見拡張が望まれる点の 1 つである。

蒸気の壁面凝縮は、凝縮液膜の形成による揮発性 Ru の液相吸収促進、拡散泳動による粒子状 FP 除去、キャリアガス量の減少による滞在時間の増大等、揮発性 Ru・難揮発性 FP 双方の環境放出量低減に大きく影響する現象である。

(52) ミスト生成

低温の非凝縮性ガスとの混合等によって蒸気を含む気相が冷却された場合、蒸気が気相中で凝縮し、液滴（ミスト）を生成する。ミストの生成には、気相温度低下により過飽和となった分の蒸気が凝縮する挙動と、既存するミストや粒子表面へ凝縮し成長させる挙動の 2 つのメカニズムが考えられるが、後者は前述した「吸湿性による粒子成長」とほぼ同じ現象である。蒸発乾固事故シナリオにおいては、水蒸気と硝酸蒸気が混在するため、上記の 2 メカニズムとも「壁面凝縮」で前述したのと同様、水と硝酸の相互作用を考慮する必要がある。

揮発性 Ru・難揮発性 FP の環境放出量の観点からは、ミストが生成される場合、ミストへの揮発性 Ru 液相吸収、凝集等による粒子状 FP の成長促進といった形で、環境放出量の低減に影響する。

(53) 差圧移流

蒸発乾固事故においては、廃液貯槽の冷却機能が喪失し、崩壊熱によって廃液が沸騰・蒸発し、また NO_x ガスが発生していくことを想定する。このとき貯槽に注目すると、温度上昇および、蒸気・NO_x 発生による貯槽内のガス量増加によって、貯槽内の圧力は上昇する。

貯槽と貯槽外部とが配管のような小口径の流路で接続されている場合では、貯槽と貯槽外部との間に圧力差が生じ、貯槽で生じたガスはこの圧力差を駆動源とした差圧移流によって貯槽外部へ移行する。差圧移流の流量は主に、上下流の区画の圧力差と、流路における圧力損失によって決まる。

ここでは例として貯槽を挙げているが、移行経路となる建屋セルにおいても同様に、差圧移流がキャリアガス移行の主要な駆動源となる。ただし区画同士が大開口で接続されている場合には、この差圧移流に加えて気相密度差による対向流もキャリアガス移行の駆動源となる。

(54) 自然循環

空間のバルク気相温度よりも低温の構造物が存在し、その周辺気相が除熱・冷却される状況を考える。このような状況では、バルク気相よりも構造物周辺の気相は低温となり、気相密度が大きくなる。こうした気相の密度差が生じる状況では、高温・低密度の気相が空間上部へ、低温・高密度の気相が空間下部へそれぞれ移動する。

(55) 成層化

「自然循環」にて前述したような空間中の気相密度差が生じ、高温・低密度の気相が空間上部へ、低温・高密度の気相が空間下部へそれぞれ移動する状況が継続すると、空間上部は高温、空間下部は低温の層を形成することが考えられる。

大項目「工学的手段によるキャリアガスへの影響」

(56) スプレーによる流速抑制

廃液から移行するガス等の移行経路にてスプレーが実施された場合、気相中の蒸気が凝縮されることで、キャリアガス量が除去されて少なくなり、流速の抑制が期待できる。この流速の抑制は、スプレー液滴の吸熱量に依存するため、スプレー液滴、スプレー水温と気相温度の差、スプレー流量が重要な因子となる。

スプレーによる流速抑制が顕著となるのは、キャリアガス中に蒸気が多く含まれる場合、すなわち沸騰早期～沸騰晩期フェーズであると予想される。乾固期フェーズでは主要な気相成分は非凝縮性の NO_x ガスであり、スプレーによる流速抑制効果は小さくなると予想される。

(57) 凝縮器による流速抑制

廃液から移行するガス等の移行経路に凝縮器が設置され、凝縮器が設計通り機能する場合、水・硝酸蒸気の多くがそこで凝縮すると予想される。蒸気が気相に多く含まれる沸騰早期フェーズ～沸騰晩期フェーズでは、凝縮器が機能するとキャリアガスの多くが除去されることになり、気相流速が大きく抑制される可能性が高い。

一方、乾固期フェーズでは主要な気相成分は非凝縮性の NO_x ガスであり、凝縮器による流速抑制効果は小さくなると予想される。

(58) 換気系作動

換気系の作動は、貯槽および移行経路に非凝縮性ガスである空気を流入させることになり、非凝縮性ガスの混在による凝縮の抑制、キャリアガス量の増加によって難揮発性 FP・揮発性 Ru の放出を促進する効果が考えられる。一方で、相対的に温度の低い空気の混入によるミスト生成促進、凝縮の促進によるキャリアガス減少を介して、環境放出を抑制する効果も考えられる。

(6)「その他」に分類される現象

便宜上、本章で前述した 5 つの分類（廃液沸騰・蒸発、硝酸・NO_x 反応、揮発性 Ru の移行、難揮発性物質の移行、キャリアガスの振る舞い）に含めない現象として、「再浮遊（再蒸発）」および「注水の影響」がある。以下、これらの現象の概要をまとめる。

(59) 再浮遊（再蒸発）

重力沈降等により沈着した難揮発性 FP（エアロゾル）、あるいは物理・化学吸着された揮発性 Ru が、大きな流速の流れ、高温ガスの流入等に起因する温度上昇といった要因により、気相中へ再度移行する現象を、ここでは再浮遊と呼ぶ。

ただし難揮発性 FP の再浮遊については、蒸発乾固事故シナリオが比較的緩やかに進行するため、大きな流速が発生する可能性は考えにくい。

(60) 注水の影響

崩壊熱により温度が上昇している貯槽へ注水が行われると、温度の急激な低下、廃液が薄まることによる沸騰挙動の変化が考えられる。また、蒸発がすでに進行し乾固物のみが残っている状況での注水であれば、瞬間的に多量の蒸気が発生し、それがエアロゾルの形で FP を放出させることにつながる可能性も考えられる。

C.3 知識ベースの整理

本章では、前章にて抽出および分類した蒸発乾固事故の物理/化学現象に関連する、現時点における実験データ、個別現象評価モデル等の知識ベースについて述べる。

蒸発乾固事故に関する実験は、仏国原子力庁（Commissariat à l'Énergie Atomique, 以下 CEA）、日本原子力研究開発機構（以下 JAEA）、日本原燃株（以下 JNFL）等、複数の機関によって実施されている。また、個別現象評価モデルについても同様である。

こうした背景を踏まえ、本ワーキングでは上述した複数機関より発表された文献（表 1、表 2 参照）を調査し、物理/化学現象ごとに実験データ、個別現象評価モデルの概要を整理した。整理結果を表 3～表 13 に示す。なお本章において、調査対象とした文献については表 1、表 2 に示した略称を用いて表現する。

また本章の 4.1 項～4.6 項にて、蒸発乾固事故シナリオに含まれる物理/化学現象の 6 分類「廃液沸騰・濃縮」、「硝酸・NO_x 反応」、「揮発性 Ru の移行」、「難揮発性物質の移行」、「キャリアガスのふるまい」および「その他」ごとに、代表的な実験、個別現象評価モデル、知識ベースの拡張余地について述べる。

表 1 調査対象文献リスト (1/2)

記号	文献
JAEA-H27	H27 原子力施設等防災対策等委託費（再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等）事業 事業報告書
JAEA-H28	H28 原子力施設等防災対策等委託費（再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等）事業 事業報告書
JAEA-H29	H29 原子力施設等防災対策等委託費（再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等）事業 事業報告書
JAEA-H30	H30 原子力施設等防災対策等委託費（再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等）事業 事業報告書
JAEA-H31	H31 原子力施設等防災対策等委託費（再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等）事業 事業報告書
MFND-H26	H26 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「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
JR-2010-047	JAEA Research 2010-047 極低速蒸気流での飛沫同伴率相関式の導出
JR-2011-020	JAEA Research 2011-020 再処理廃液の沸騰実験の分析
JR-2011-030	JAEA Research 2011-030 再処理廃液の沸騰模擬ツールの開発
JR-2012-026	JAEA Research 2012-026 MELCORコードを用いた再処理施設の廃液沸騰事象解析
JR-2013-013	JAEA Research 2013-013 再処理施設の廃液沸騰事故でのエアロゾル移行挙動に影響する気体の熱力学物性値の推定
JT-2013-035	JAEA Technology 2013-035 多成分硝酸塩水溶液の気液平衡実験
JR-2014-001	JAEA Research 2014-001 多成分硝酸塩水溶液の気液平衡状態推定法の提案
JR-2014-022	JAEA Research 2014-022 硝酸ニトロシルルテニウムの熱分解に伴う揮発性ルテニウム化学種の放出挙動の検討
JR-2016-004	JAEA Research 2016-004 重大事故対処策を考慮した愛処理施設の蒸発乾固事故解析
JR-2016-012	JAEA Research 2016-012 再処理施設の蒸発乾固事故解析での気体状Ruの移行挙動に影響する硝酸-水混合蒸気の凝縮のモデル化
JR-2017-015	JAEA Research 2017-015 再処理施設の高レベル廃液の蒸発乾固事故での気体状ルテニウムの凝縮水への移行速度に係る相関式の導出
JR-2020-014	JAEA Research 2020-014 気体状四酸化ルテニウムの化学形変化挙動に与える窒素酸化物の影響
JR-2021-005	JAEA Research 2021-005 再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故でのNO _x の化学挙動を考慮したRuの移行挙動解析
JD-2021-008	JAEA Data/Code 2021-008 SCHERN-V2: 再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での化学的挙動解析プログラム解説書
JR-2022-011	JAEA Research 2022-011 再処理施設の高レベル廃液貯槽蒸発乾固事故解析のための廃液沸騰模擬計算プログラム: SHAWEDの整備
JAEA-PPT-R3-1	令和3年度 原子力規制庁技術基盤グループ-原子力機構安全研究・防災支援部門 合同研究成果報告会 量子化学計算を用いたガス状ルテニウムとNO _x の相互作用解析 —シビアクデント時の放射性核種移行モデル精緻化を目指して—, 城戸
JAEA-PPT-R3-2	令和3年度 原子力規制庁技術基盤グループ-原子力機構安全研究・防災支援部門 合同研究成果報告会 再処理施設の重大事故における安全性評価研究 —蒸発乾固事故時の放射性物質移行研究—, 天野
paper-JAEA-2020	J. NUCL. SCI. TECH., 2020, VOL. 57, NO. 11, 1256-1264, Decomposition behavior of gaseous ruthenium tetroxide under atmospheric conditions assuming evaporation to dryness accident of high-level liquid waste
JNFL-UI-Report-2024	UI技研研究報告書
paper-UI-1	Boiling and drying accident of high-level liquid waste in a reprocessing plant: Examination of the time-dependent temperature increase of the waste and of the generation rates of the accompanying components released into the gas-phase
paper-UI-2	Boiling and drying accident of high-level liquid waste in a reprocessing plant: Examination of the NO ₂ and NO generation using the simulated waste
UI-AESJ-2020Fall	高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究 (7)凝縮液へのNO ₂ および揮発Ru吸収速度係数の測定実験
UI-AESJ-2020Spring-5	高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究 (5)凝縮液へのNO ₂ 吸収速度係数の測定実験
UI-AESJ-2020Spring-6	高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究 (6)凝縮液への揮発性Ru吸収速度係数の測定実験

表 2 調査対象文献リスト (2/2)

記号	文献
NUREG/CP-0116	Philippe, NUREG/CP-0116 DOE/NRC nuclear air cleaning conference; San Diego, CA (USA); 13-16 Aug 1990
AESJ-H22	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 H22 日本原子力学会
MAAP-manual	MAAP5 – Modular Accident Analysis Program for LWR Power Plants EPRI
ABCOVE-report	AEROSOL BEHAVIOR CODE VALIDATION AND EVALUATION (ABCOVE) PRELIMINARY RESULTS OF TEST AB5
ACE-report	ACE MCCI実験レポート
SURC-4-report	SURC MCCI実験レポート
NEA-report-1	NEA/CSNI/R(93)4 International Standard Problem 29 Distribution of hydrogen within the HDR Containment Under Severe Accident Conditions
NEA-report-2	NEA/CSNI/R(2009)5 State-of-the-art Report on Nuclear Aerosols
NEA-report-3	THAI experiment report
paper-JNST-VOL55No6	Migration behavior of gaseous ruthenium tetroxide under boiling and drying accident condition in reprocessing plant
paper-AESJ-2015-1	高レベル濃縮廃液の乾固過程におけるルテニウムの放出特性, 田代, 天野, 2015
paper-AESJ-2015-2	高レベル濃縮廃液中硝酸塩の熱分解に伴う窒素酸化物発生挙動, 天野, 渡邊, 2015
paper-AESJ-2019-1	高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究(1)模擬廃液を用いたNO ₂ , NO およびO ₂ 生成挙動の検討
paper-AESJ-2019-2	高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究(2)模擬廃液から生成するNO ₂ およびNO の生成源
paper-JNFL-UI-2015	J. Nucl. Sci. Technol., 2015 Vol. 52, No. 4, 467-471, 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
paper-HEPA-1	Performance of HEPA Filters under Severe Conditions(I), Makoto Ozaki: Collection Efficiency of DOP aerosol
paper-HEPA-2	Performance of HEPA Filters under Severe Conditions(II), Makoto Ozaki: Dust loading test
paper-HEPA-3	Performance of HEPA Filters under Severe Conditions(III), Makoto Ozaki: High temperature test
paper-HEPA-4	Performance of HEPA Filters under Severe Conditions(IV), Makoto Ozaki: Moist air test
paper-HEPA-5	Performance of HEPA Filters under Severe Conditions(V), Makoto Ozaki: Shock transients test
paper-HEPA-6	Performance of HEPA Filters under Severe Conditions(VI), Makoto Ozaki: Seismic test
paper-HEPA-7	Performance of HEPA Filters under Severe Conditions(VII), Makoto Ozaki: Pressure transients test
paper-HEPA-8	High Efficiency Particulate Air Filter Water Mist Load Testing, Akira Yamazaki, Japan, 2014
SAWG-II-report	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WG 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」H29
CRIEPI-2016-1	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–
CRIEPI-2017-1	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 –長時間の乾固過程における四酸化ルテニウムの揮発挙動–
CRIEPI-2017-2	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 –模擬廃液の乾固・脱硝過程における四酸化ルテニウムの揮発挙動–
CRIEPI-2018-1	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 –ショ糖添加による四酸化ルテニウム生成の抑制–
CRIEPI-2019-1	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 –四酸化ルテニウム生成に及ぼす共存硝酸塩の影響–
paper-JNFL-CRIEPI-2016	J. Nucl. Mater., 479 (2016) pp123-129, Study on volatilization mechanism of ruthenium tetroxide from nitrosyl ruthenium nitrate by using mass spectrometer
paper-JNFL-CRIEPI-2020	J. NUCL. SCI. TECH., 2020, VOL. 57, NO. 11, 1256-1264, Decomposition behavior of gaseous ruthenium tetroxide under atmospheric conditions assuming evaporation to dryness accident of high-level liquid waste
REACTOR-paper-1983-1	Aerosol Generation by Liquid Breakup Resulting from Sparging of Molten Pools of Corium by Gases Released During Core/Concrete Interactions, T. Ginsberg, NUCLEAR SCIENCE AND ENGINEERING: 89. 36-48 (1985)
REACTOR-paper-2016-1	TRANSPORT AND CONTAINMENT CHEMISTRY OF RUTHENIUM UNDER SEVERE ACCIDENT CONDITIONS IN A NUCLEAR POWER PLANT, Ivan Kajan, Sweden
REACTOR-paper-2017-1	Effect of nitrogen compounds on transport of ruthenium through the RCS, J Radioanal Nucl Chem, Ivan Kajan, Sweden
paper-Sasahira	A. Sasahira, et al., "Transfer of Ruthenium from a Simulated Reprocessing Solution to Gas Phase during a Continuous Distillation"

表 3 「廃液沸騰・濃縮」に分類される現象の知識ベース整理（1/2）

現象				実験データ	評価モデル	備考
分類	大項目	小項目	解説			
廃液沸騰・濃縮	発熱	崩壊熱	不確かさ小さい	-	・ORIGEN等に基づく JR-2012-026/JR-2016-004 MELCORによる廃液沸騰事故解析 ・脱硝反応による吸熱、貯槽からの放熱を考慮した実効発熱量評価式の提示	モデルとしては不確かさ小さいが、使用済み燃料の諸元により変化する
		硝酸溶液物性	潜熱、顕熱、密度、気液平衡データ	JT-2013-035 多成分硝酸塩水溶液の気液平衡実験 ・2種類の多成分硝酸塩水溶液を気液平衡データを取得⇒液相中の硝酸塩モル分率から気相部硝酸モル分率を予測するため ・硝酸モル分率と温度の関係を計測 ・気相部モル分率と液相部モル分率を比較	JR-2014-001 多成分硝酸塩水溶液の気液平衡状態推定法 ・単成分の硝酸塩水溶液の塩効果に係る実験データから、硝酸塩モル分率、沸点上昇、及び平衡状態での気液各相の硝酸モル分率の間に明確な相関関係があることを報告 ・多成分硝酸塩水溶液の気液平衡データを用いて、液相の硝酸モル分率と硝酸塩モル分率から気相の硝酸モル分率を推定するモデルを提示 JR-2016-012 硝酸-水混合蒸気の凝縮のモデル化 ・質量、圧力バランスの式の提示 ・ラウール則＋活量係数の式の提示（活量係数と液組成の関係：Wilson式） ・表4.1.4.2 水、硝酸の蒸気圧推算式（Antoineの推算式） ・硝酸水溶液の気液平衡データ⇒硝酸モル分率vs温度のグラフ ・硝酸水溶液の熱物性（蒸発潜熱、定圧比熱）近似式の提示 paper-UI-2 ・蒸発潜熱評価式を提示 →温度毎の水蒸気及び硝酸濃度をPerry等のハンドブックの値を掲載 →近似式を導出 →水と硝酸について温度依存の蒸発潜熱曲線を掲載 →近似式を導出 ・硝酸溶液物性についても検討： 貯槽中の廃液には適用できないが、留出液には使える	
	熱物性	乾固物物性	密度、熱伝導率、比熱	JNFL-UI-Report-2024 添付資料1 1-1 乾固物質の物性測定 ・密度、熱伝導率の計測（1.5g/cm3,0.097W/m/K） ・JNFL模擬廃液による乾固物は泡立ちによる膨らみが少ない JNFL-UI-Report-2024 添付資料1 1-2 乾固物熱伝導率測定 ・1000℃以上の高温域における物性計測 ・密度、熱伝導率の計測（0.5g/cm3(ボーズ状乾固物)~1.5g/cm3（粉末乾固物）,0.1W/m/K） JNFL-UI-Report-2024 添付資料1 1-3 乾固物膨張の確認 ・乾固物が膨張する温度帯は130~150℃、160℃以上では膨張は生じない ・Moは膨張を抑制する ・蒸発時間が長い方がより膨張する	左記計測データは解析コードの入力に用いることができる。 paper-UI-2 ・25℃より高温の硝酸溶液の熱容量推算法としては、指定温度における純水の熱容量を求め、硝酸の熱容量は25℃の値を用いて計算する方法が現状の最善の推定法とのこと ・多種類の硝酸塩を含む硝酸溶液の比熱の推定方法を提示→溶存塩類の熱容量への寄与は不明であるが、沸騰開始前から金属酸化物熱容量と同等の寄与があると仮定	乾固物の密度の不確かさ幅が把握できる
				MFND-H26 3.5.2章 模擬廃液乾固物の定圧比熱計測 ・脱硝反応が完了している試料を計測 ・表3.5-4「模擬廃液に含まれる元素の酸化物の定圧モル熱容量及び定圧比熱容量」		
				JAFA-H29 7章 乾固物物性計測 ・乾固物の物性値として、密度、比表面積、細孔容積分布、熱伝導率、比熱、熱拡散率を計測		
		貯槽構造物の伝熱（熱伝導、対流熱伝達、輻射）	複雑な構造物については、簡易的にこれを取り扱い放熱量を保守的に評価	-	既存の熱流動解析コードのモデルを利用可能	

表 4 「廃液沸騰・濃縮」に分類される現象の知識ベース整理 (2/2)

現象				実験データ	評価モデル	備考
分類	大項目	小項目	解説			
廃液沸騰・濃縮	硝酸溶液の沸騰	蒸気発生 (蒸発、沸騰)	・放射性物質のキャリアガス ・硝酸蒸気の発生⇒RuO4移行挙動に影響	JR-2011-030 3章 溶液沸騰計算モデルの概要 ・表3.5 硝酸-水2成分系での硝酸及び水の蒸気圧 (Perry Chemical Engineer's Handbookより)	JR-2011-030 3章 溶液沸騰計算モデルの概要 ・硝酸の蒸発潜熱は、任意の温度における飽和蒸気圧を基に、ヒルデブランドの法則を佐藤が蒸発潜熱に適用した式を用いて算出 JR-2012-026/JR-2016-004 MELCORによる廃液沸騰事故解析 ・沸騰時の液相減少量計算式を提示 ・蒸気の水-硝酸モル分率は気液平衡にある気相のモル分率に等しいと仮定 ・実効発熱量が潜熱に等しいと仮定 ・水-硝酸の蒸発潜熱はWatson式で計算 JR-2022-011 廃液沸騰模擬計算プログラムSHAWED 4～6章 ・上記の研究をもとに、沸騰模擬ツールを「SHAWED」の名前で整備 ・沸点上昇、硝酸乖離、気液平衡、塩効果等を考慮したモデル ・共沸点までの温度挙動をカバーするもの	ここで示されている式は無極性液体に適用可能な式であり改良の余地あり。
		廃液濃縮	沸騰による硝酸濃度、硝酸塩濃度の上昇	JT-2013-035 多成分硝酸塩水溶液の気液平衡実験 ・2種類の多成分硝酸塩水溶液を気液平衡データを取得 ⇒液相中の硝酸塩モル分率から気相部硝酸モル分率を予測するため ・硝酸モル分率と温度の関係を計測 ・気相部モル分率と液相部モル分率を比較	JR-2012-026/JR-2016-004 MELCORによる廃液沸騰事故解析 ・廃液濃縮計算式の提示	
		モル沸点上昇	沸騰により溶質濃度が上昇し、蒸気圧降下が生じる⇒沸点上昇	NUREG/CP-0116 ・実廃液試験 (Pu富化度5%のMOX使用済燃料を再処理) ・乾固するまでの放射性物質の気相への移行量を計測 ・溶液温度、硝酸濃度、凝縮水体積、亜硝酸濃度の関係の推移計測 paper-UI-2 ・2種類の組成 (SHLLW-JおよびK) の模擬廃液の沸騰実験を実施 SHLLW-Jは20種類程度の元素を含む模擬廃液、Kは溶存元素の少ない簡易模擬廃液 ・SHLLW-Kに対しては、複数の昇温速度で実験実施 ・廃液からの水、硝酸の留出率と、廃液温度との関係を測定 ⇒この関係が昇温速度に依らないことを確認	paper-UI-2 ・2種類の組成 (SHLLW-JおよびK) の模擬廃液の沸騰実験に基づき、廃液中の水、硝酸の蒸発速度計算式 (相関式) を提示 ・実験結果に基づく相関式であり、廃液濃縮、モル沸点上昇等の効果も含んだ蒸発速度が与えられる。 ただし、廃液組成がSHLLW-JおよびKから大きく異なる廃液への適用は難しい。 JR-2011-030 3章 溶液沸騰計算モデルの概要 ・沸点上昇度は、重量モル濃度 (= 溶質のモル数 / 溶媒質量) と水のモル沸点上昇 (= 0.515 [K・kg / mol]) の積 JR-2014-001 多成分硝酸塩水溶液の気液平衡状態推定法 ・単成分の硝酸塩水溶液の塩効果に係る実験データから、硝酸塩モル分率、沸点上昇、及び平衡状態での気液各相の硝酸モル分率の間に明確な相関関係があることを報告 ・多成分硝酸塩水溶液の気液平衡データを用いて、液相の硝酸モル分率と硝酸塩モル分率から気相の硝酸モル分率を推定するモデルを提示	評価対象とする多成分硝酸塩について、少なくとも一点の気液平衡データを実測する必要がある。
		共沸	沸騰継続により初期段階では硝酸濃度が上昇しモル沸点上昇が生じるが、硝酸濃度が共沸点に達するとそれ以上硝酸濃度は増大しない (水と硝酸の蒸発速度が同じになる)。			
		塩効果	不揮発性の塩類は溶液中成分の活量を変化させ、揮発性電解質の相対揮発度を増大する。			
		硝酸活量	モル沸点上昇量に影響する		JR-2011-020 3章 沸騰時の廃液の物性の推定 ・Philippeの実験の分析方法の解説 ・硝酸活量係数の推定方法 ・水及び硝酸の飽和蒸気圧近似式	
		硝酸解離度 (電離度)	・モル沸点上昇量に影響する ・塩溶解に伴う硝酸解離度への影響を考慮する必要がある	JR-2011-030 3章 溶液沸騰計算モデルの概要 ・表3.2 25℃における硝酸解離度	JR-2011-030 3章 溶液沸騰計算モデルの概要 ・改訂第4 版化学便覧基礎編II-322の解離定数を使用 ・平衡状態の硝酸イオン濃度が2次方程式の解で与えられることを解説	
		結晶水脱水	・温度上昇に伴う硝酸塩結晶水脱水で全てまたは一部の結晶水が離脱し溶液が希釈される ・沸騰前と沸騰晩期後半の溶液から乾固物への遷移段階に起こる		JR-2011-030 3章 溶液沸騰計算モデルの概要 ・沸騰前と沸騰開始後の脱水反応の整理 ・各反応が生じる温度を整理	
		硝酸塩・酸化物析出	硝酸塩・酸化物の溶解度に基づく。硝酸濃度の変化を考慮する必要がある。	硝酸塩の溶解度データはあまり多くない JR-2011-030 3章 溶液沸騰計算モデルの概要 ・表3.3 硝酸水溶液の沸点に合うように補正した解離係数及び解離定数 ・表3.4 硝酸塩の溶解度データ	JR-2011-030 3章 溶液沸騰計算モデルの概要 ・再処理廃液に含まれる代表的な無機塩の水に対する溶解度の文献記載値のうち最大温度での溶解度を用いて濃縮に伴う塩の溶解量を計算	物性値に不明な点が多数あり ・塩の硝酸への溶解度が水と同等であると仮定 ・溶解度データが無いものは析出しないと仮定 ・析出物の水和数が不明

表 5 「硝酸・NOx 反応」に分類される現象の知識ベース整理

現象				実験データ	評価モデル	備考
分類	大項目	小項目	解説			
硝酸、NOx反応	脱硝反応 (乾固段階)	NOx、O2発生	・酸化物の脱硝反応/フリー硝酸の脱硝反応 ・NOxガスはFP放出キャリアガスとしてふるまう ・脱硝反応は吸熱反応であり、熱分解反応とも称される	JNFL-UI-Report-2024 添付資料2 昇温時の吸熱及び発熱反応並びに重量変化の把握 ・模擬廃液、昇温速度1～20℃/min、空気雰囲気は空気or窒素 ・各硝酸塩がどの温度域で熱分解反応を生じるか計測 ・各硝酸塩単独、模擬廃液の昇温実験で熱分解の挙動は異なる(表2.5-1) MFND-H26 3章 コールド基礎試験 ・脱硝反応の反応速度定数計測(単体硝酸塩、模擬廃液の熱分解データ) ・TG-TDA分析装置+NOx計(NO、NO2の合計を計測) ・温度に対するNOx発生量を整理 ・単体硝酸塩のNOx発生量の総和が模擬廃液で再現されるわけではなく、NOx発生温度ピークが大きくシフトする。 (加成性が成立しない) － Fe硝酸塩/Ru硝酸塩:熱分解の際に硝酸塩の硝酸基が水和水と結合し、NOxではなく硝酸として放出される機構 － Ce硝酸塩/Gd硝酸塩:これらランタニド硝酸塩は混合により熱分解反応温度域がシフトする(Ce:高温側へ、Gd:低温側へ) ・加熱速度によりNOx発生量が大きく異なる:ゆっくり加熱すると化学反応が進みやすく反応温度ピークが低温側にシフトする MFND-H26 3.2.6章 コールド基礎試験 ・分解反応において、模擬廃液中のどの物質がどの温度帯で分解したのかを同定	JAEA-Research 2012-026 MELCORによる廃液沸騰事故解析 ・脱硝時Noxガス発生モデルを提示 ・各化学種の脱硝反応は完全独立を仮定 ・反応が複数段となる化学種は簡略的に一段で扱う paper-AESJ-2019-1 ・NOx発生起源となる物質を7群に分け、各群毎にアレニウスの反応式を導出 ・NO、NO2発生量予測から、O2発生量を推定可能 MFND-H26 6.3章 廃液からの気体の発生速度及び積算量の試算 ・NOx発生起源となる物質を13群に分け、各群毎にアレニウスの反応速度式を導出 ・熱分解で発生するNOxはNO2のみと仮定 ・昇温速度の異なるNOx発生量計測結果を再現 JAEA-H31 4章 硝酸-水混合蒸気の凝縮時での気体状Ruの移行挙動に及ぼすNOxの影響解明に係る実験のデータ整理 ・MELCOR/SCHERNコードでNOxの生成・移行・化学反応(気相中、液相中)挙動の総合的な計算を実施	
		吸熱反応		JAEA-Research 2012-026 MELCORによる廃液沸騰事故解析 ・表4.7-1「再処理廃液中の主要な化学種の脱硝反応に係る諸量」にて各化学種の脱硝反応時の吸熱量、NO2発生量、O2発生量、反応速度情報を提示 paper-UI-1 脱硝試験 ・昇温速度0.2,1.5℃/minとし、沸騰乾固事象後半の温度上昇速度を網羅 ・NO、NO2発生量を個別に計測 paper-AESJ-2015-2 ・乾固過程の各温度におけるNOx発生率を計測(NOとNO2は分離されていない) paper-AESJ-2019-2 ・分解反応において、模擬廃液中のどの物質がどの温度帯で分解したのかを同定 ・180℃くらいまで:硝酸基全てがNOxになる訳ではなく、多くは硝酸蒸気生成に寄与 ・600℃くらいまで:硝酸基に含まれるNよりも多くのNOxが生成される。 フリー硝酸由来と考えられる。	paper-UI-2 硝酸塩の分解熱 ・分解熱の計算方法を提示 ・仮定が多いため、何らかの保守性について考察する必要あり	乾固までの分解熱総和は蒸発潜熱の1/10のオーダーであるが、乾固後は潜熱がなくなり昇温挙動への影響が大きくなる
	NOx挙動	化学平衡	・NO、NO2の化学平衡	-	JAEA-H29 5章 硝酸-水混合蒸気の凝縮時での気体状Ruの移行挙動に及ぼすNOxの影響解明に係る実験のデータ整理 ・気液におけるNOxの化学反応について、連立1次微分方程式が示されている JD-2021-008 SCHERNコードモデル ・気相中の化学変化(過渡変化)に依るNOx成分変化、ヘンリー則による液相中への溶解モデル	
		NO2の液相中への溶解	・ヘンリーの法則 ・NO2は溶解しやすい ・液相中でNO2が化学変化 ➡ NO2が継続的に溶解する	UI-AESJ-2020Spring-5 凝縮液へのNO2吸収速度係数の測定実験 UI-AESJ-2020Fall 凝縮液へのNO2および揮発性Ru吸収速度係数の測定実験 ・0.2Lないし2Lのガラスフラスコに、水蒸気、硝酸蒸気およびNOxを注入 ・凝縮液を複数回に分けて回収し、その温度、成分を計測 ・フラスコ外へ流出したNO2量から、凝縮液へのNO2吸収率を算出 ・フラスコ外部温度、注入気相成分を変えて複数ケース実験	UI-AESJ-2020Spring-5 凝縮液へのNO2吸収速度係数の測定実験 UI-AESJ-2020Fall 凝縮液へのNO2および揮発性Ru吸収速度係数の測定実験 ・凝縮液相へのRuO4吸収速度を気相物質移行係数、液相物質移行係数の相関式と共に整理。 液相物質移行係数は液相の硝酸濃度・液相温度の関数。	
		気液中のNOx成分比変化	各種 NOx(NO、NO2、N2O3、N2O4)、HNO2、HNO3、H2O、N2、O2の成分比変化	JAEA-H29 5章 硝酸-水混合蒸気の凝縮時での気体状Ruの移行挙動に及ぼすNOxの影響解明に係る実験のデータ整理 ・MELCOR/DVODEコードを用いた化学反応解析 ・測定された酸濃度はHNO3濃度に等しいと仮定できる ・液相中のHNO3濃度はHNO2濃度に影響しない	JD-2021-008 SCHERNコードモデル ・気相中の化学変化(過渡変化)に依るNOx成分変化	本検討は更なるブラッシュアップが望まれる。 ・NOx発生量を定量化が必要 ・Henryの法則で瞬時平衡を想定したため、気液間の移行族度の定量化が必要
		NO2液相吸収に伴う亜硝酸生成	NO2が液相中に溶解することによる亜硝酸生成	「揮発性RuのLPF/気相からのRuO4除去(LPF)/液相吸収(化学吸収)」を参照		
	放射線分解	放射線分解に伴う亜硝酸生成	・硝酸の放射線分解で亜硝酸生成 ・亜硝酸とNOxは平衡状態で共存	MFND-H26 5章 ホット試験 ・ホット試験であり放射線分解で亜硝酸生成 ・溶液中の亜硝酸濃度が時系列で計測されている	JD-2021-008 SCHERNコードモデル ・液相中の化学変化(過渡変化)に依るNOx成分変化、亜硝酸生成	
	硝酸-壁面反応	コンクリート壁面との反応	硝酸-コンクリート反応による硝酸濃度変化、非凝縮性ガス発生	-	-	
		金属壁との反応	硝酸-金属反応による硝酸濃度変化、非凝縮性ガス発生	-	-	

表 6 「揮発性 Ru の移行」に分類される現象の知識ベース整理 (1/4)

現象				実験データ	評価モデル	備考
分類	大項目	小項目	解説			
揮発性Ru の移行	RuO4生成	Ru酸化	廃液からのニトロシルRu 錯体の酸化・熱分解 ⇒8価のRu生成	<u>paper-JNFL-CRIEPI-2016</u> <u>CRIEPI-2016-1 質量分析装置を用いた揮発ルテニウムの測定</u> ・質量分析装置でRu 含有硝酸溶液の加熱で発生するRuの化学形をRuO4と同定 <u>CRIEPI-2019-1 四酸化ルテニウム生成に及ぼす共存硝酸塩の影響</u> ・Ru揮発性に関する共存硝酸塩の影響を硝酸塩の種類毎に計測 <u>NUREG/CP-0116</u> ・実廃液試験 (Pu 富化度5%のMOX使用済燃料を再処理) ・乾固するまでの放射性物質の気相への移行量を計測 → 最終的なRu放出割合は約12% <u>paper-Sasahira</u> ・沸騰前のRu発生に関する知見 ・RuO4のHenry定数を計測 <u>JNFL-UI-Report-2024 添付資料3-1 Ru元素揮発発生挙動</u> ・温度区間毎のRu揮発量を計測 (125℃、125-160℃、160-400℃) ・沸騰濃縮期間でも0.01-0.1%のRu揮発が発生するが、 主要なRu揮発は乾固時 (120-160℃) で2～10%の揮発割合 ・NOx発生時にRu揮発が抑制される <u>paper-JNFL-CRIEPI-2020</u> ・実液に近い廃液試料を加熱、Ru放出率を測定 ・使用済燃料を硝酸Iに溶解、得られた残渣を濃縮および脱硝して廃液試料を調製 ・使用済燃料は60 GWd/t-U まで照、U と Pu は残渣から除去 ・Ru 放出率: 120℃までの加熱で0.4 %、160～400℃までの加熱で4 % これより、Ru放出ピークは120～160℃の温度域と推定 <u>MFND-H26 3.3章 ARF測定試験</u> ・沸騰初期、晩期の揮発性RuのARFを計測 ・蒸気流速、加熱出力、廃液濃度、亜硝酸の影響等について実験マトリクスを構成 ・加熱速度が速くARFが低いことが後に判明 (短時間ではRuO4発生反応が十分に進まず) ・加熱速度を遅くした試験 (3.3.3章(2))では8.8%とARF大きめ ・亜硝酸を硝酸溶液に添加するとすぐに反応しNO2が発生⇒どれくらいがRuO4 発生抑制に寄与しているか不明 <u>paper-AESJ-2015-1 沸騰~乾固までのRuO4放出率測定</u> ・沸騰~乾固物生成~乾固物昇温(400℃)までの温度毎のRuO4放出率を測定 ・2つのピークが見られる (第一ピーク: 120~170℃、第二ピーク: 220~270℃) ・300℃以上ではRuO4発生しない ・積算放出割合: 8.8%	<u>JR-2011-020 4章 気相部へのRu移行量の推定</u> ・Sasahiraの式は沸騰前を対象としたものであったが、この式の適用範囲について 検討 (沸騰開始から硝酸濃度が⁶9mol/ℓ 程度までに濃縮される間のRu の揮発量 の推定には適用可能) ・Sasahiraの計測したヘンリー定数を外挿 ・Ru移行量を評価する数値積分式提示 <u>MFND-H26 6.2章 沸騰晩期段階でのRuの気相への移行データに関する整理</u> ・マッチングファント実験結果を整理し、アレニウス型の気体状Ruの気相移行 反応速度式を提示。	Philippeの実験結果と比較し、概ね整合した結果が 得られている。(MFND-H26 図6.2-2)
		亜硝酸によるRu還元	RuO4生成の抑制 (8価のRuが4価に還元され 非揮発性のRuO2 or 硝酸ニトロシルルテニウ ムとなる)	<u>JNFL-UI-Report-2024 添付資料3-2 Ru-ARFに対する亜硝酸影響試験</u> ・Ru移行率はNdとほぼ同じ⇒揮発していない ・γ線照射による亜硝酸生成と亜硝酸Na添加の2パターンで共にRuの揮発性が抑えられることを確認 <u>JAEA-H29 6章 亜硝酸を高レベル濃縮廃液の模擬廃液に添加</u> ・亜硝酸添加により、加熱中に気相へ移行するガス状Ruの発生を遅延・減少 ・亜硝酸ナトリウム添加により、硝酸濃度が低減されることを確認 (亜硝酸が硝酸と反応→NOxとなり硝酸濃度低 下) <u>JAEA-H30 5章 高レベル濃縮廃液(模擬廃液)中の共存物質の影響等を踏まえた揮発性Ru の移行挙 動の把握</u> ・亜硝酸濃度0.04 mol/L 程度で揮発性Ru の発生が顕著に少なくなる ・亜硝酸濃度0.06 mol/L 以上では揮発性Ru の発生が抑制される ・蒸発速度が速い条件では、高い亜硝酸濃度条件でもRu移行を十分に抑制できない <u>JR-2011-020 4章 気相部へのRu移行量の推定</u> ・Philippeの実験の分析 ・計測された揮発性Ru量がSasahiraの式に基づく推定量の1/200 ・実験でも亜硝酸が溶液中に測定されており、これによる揮発性Ruの還元が生じている可能性について言及	-	評価モデル、解析コードへの取り込み方法につい て言及なし。

表 7 「揮発性 Ru の移行」に分類される現象の知識ベース整理 (2/4)

現象				実験データ	評価モデル	備考
分類	大項目	小項目	解説			
揮発性Ru の移行	気相からのRuO4除去(LPF)	Ru還元	気相中で還元されると粒子状RuO2へ変化	JNFL-UI-Report-2024 添付資料3-5 揮発性物質移行挙動 ・模擬廃液を加熱⇒温度帯によりキャリアガスに硝酸が含まれる ・移行経路におけるRu回収率を計測	-	解析モデルのV&Vに利用できる可能性
				MFND-H26 3.4.2章 RuO4分解挙動試験 ・同伴ガス: N2、N2+NO2、N2+NO2+水蒸気(硝酸含有ではない) ・実験温度: 86℃～120℃ ・壁面でのRuO4ガス分解が生じている可能性あり	MFND-H26 3.4.2章 RuO4分解挙動試験 ・RuO4の気相中における分解反応速度定数を導出 ・文献値 (Oriens de Bettencourt & Jouan(1969)よりも反応速度早め)	
				paper-JAEA-2020 ・乾燥空気ないし水蒸気内ではRuO4の分解が確認 JAEA-H28 3.2.4.4章 気体状Ruの蒸気凝縮に伴うLPF実験 ・硝酸含有水蒸気環境(凝縮なし)ではRuO4が安定的に存在 ・RuO4の除去時定数は10～6～10～5[s]程度(半減期20～100h) ・ガラスフィルタで捕集されたRuO2はRu供給量の10%以下(表3.2～14) JAEA-H29 3章 気体状Ru由来Ruエアロゾルの生成挙動 ・観測されたRuエアロゾルは供給したRuO4の約5% JAEA-H30 3章 気体状Ru 化合物に由来したRu エアロゾルの生成挙動の実験的評価 ・観測されたRuエアロゾルは供給したRuO4の約3.5～30% JAEA-H31 2章 気体状Ru 化合物に由来したRu エアロゾルの生成挙動の評価 ・エアロゾルの生成は温度および空気中の水分量に大きく影響を受ける ・90℃・湿度80%条件では、供給Ru 量の約7 割がエアロゾル化	JAEA-H28 2.4.6章 アレニウスプロット ・Exp.1,7,8のアレニウスプロットにより反応速度定数が導出されている。	RuO4→RuO2によるLPFの改善効果は小さいため、評価に含めない選択肢も考えられる。反応速度のアレニウスプロットはR2値も示されており、不確かさを含めた説明が可能。
		RuO4分解	NOxガスによりRuO4が安定に保持される機構	JAEA-H29 2章 NOxが共存した際の気体状Ruの熱分解反応等の把握 ・NOx(NO,NO2)を注入→NOは還元性であるが硝酸含有水蒸気環境ではRuO4はその化学形を保持	-	硝酸含有水蒸気環境ではNOxはRuO4の熱分解に寄与しない。
				JR-2014-022 硝酸ニトロシルRuの熱分解に伴う揮発性Ru放出 ・NOガス共存下ではRuO4回収量が少ない(硝酸蒸気環境ではないことに留意)が、これは熱分解が抑制されたのではなく発生したRuO4がRuO2に還元された可能性あり JR-2020-014 NOxのRUO4安定化効果 ・NOx ガスを用いた試験におけるRuO4(g)の分解速度は、乾燥空気及び水蒸気を用いた試験よりも遅く、NOxがRuO4(g)の安定化に寄与している。RuO4(g)に対するNO2 の安定化効果は、モル比で考えた場合HNO3 よりも一桁以上弱い。	-	その後、NOxがRuO4を安定化する知見が得られている。ここでのRuO4発生抑制の効果は、NOxの液相への溶解がNO2を生じたことに依る可能性が考えられる。
				paper-JAEA-2020 JAEA-H30 2章 NOx が共存した際の気体状Ru の熱分解反応等の把握 JAEA-PPT-R3-1 JAEA研究成果報告会 ・NO,NO2共存下でRuO4が安定化する効果あり(分解され難くなる) JAEA-PPT-R3-2 JAEA研究成果報告会 ・量子化学(電子配置に基づき、RuO4とNOxとの相互作用を分析)により説明 REACTOR-paper-2016-1/2017-1 ・NOx共存下で、RuO4のLPFが増大する効果を実験で確認 ・発電炉SAを想定しており、NOxの気相中濃度は極めて低い	-	発電炉の知見は実験条件が再処理SAを想定したものではないが、参考として掲載
				paper-JAEA-2020 JAEA-H27 2章 気相中におけるRuO4化学変化挙動実験 ・硝酸含有水蒸気環境⇒窒素環境、水蒸気環境では不安定なRuO4が硝酸含有水蒸気環境では安定的に保持される(蒸気凝縮や壁面との反応が 無い場合) ・これまで指摘されてきた気体状の硝酸ニトロシルルテニウムは確認されず ・RuO4の反応速度定数 0～2.0×10～6[1/s]を確認 JAEA-H28 2.3章 気体状Ruの蒸気凝縮に伴うLPF実験 ・硝酸含有水蒸気環境における再酸化反応機構について推定	-	・反応機構は作業仮設(推定)であり、何らかの補強が望ましい。
		RuO4分解	RuO4分解			

表 8 「揮発性 Ru の移行」に分類される現象の知識ベース整理 (3/4)

現象				実験データ	評価モデル	備考
分類	大項目	小項目	解説			
揮発性Ru の移行	気相からのRuO4除去(LPF)	壁面への沈着(化学吸着/物理吸着)	RuO2 or 硝酸ニトロシルルテニウムとしての固相への沈着	paper-JNFL-UI-2015 (BOX試験) ・模擬廃液による総合試験 ・SUS製の箱(約10Lの体積)へRuを流入させ、LPF計測 ・模擬廃液60mLを室温(25℃)から400℃まで加熱 ・BOX温度は一定に保ち、温度を変えて複数ケース実施 → BOX温度: 110、120、130、137、145、160、200℃ ・Ru LPF=0.1%(BOX温度110℃)、50%(BOX温度200℃) JNFL-UI-Report-2024 添付資料-5 付着と再浮遊 ・セメント、SUS表面に沈着したRuを加熱(280～400℃) ・ターゲットは再浮遊であるが、BOX実験のようなSUS表面に加えてコンクリート面への吸着に関する貴重なデータともいえる JAEA-H28 2.3章 気体状Ruの化学的物理的変化挙動の把握 ・Exp.1～Exp.16でRuO4の硝酸含有水蒸気環境における除去挙動を実験計測 MFND-H26 4章 コールド工学試験 ・N2、N2+水蒸気、N2+硝酸、N2+NO2雰囲気におけるRuO4沈着挙動を計測 ・硝酸含有雰囲気: 殆ど沈着せず ・NO2雰囲気: 共存するNOによる還元作用でRuO2が生成されている可能性	JAEA-H28 2.4章 反応機構の推定 ・RuO4とHNO2が反応し、ニトロシルルテニウムが固相に生じるものと推定	paper-JNFL-UI-2015 BOX試験 揮発性、難揮発性元素のLPF総合試験として重要な実験
				REACTOR-paper-2016-1 ・発電炉SAIにおけるRuO4壁面化学吸着実験 ・壁面材による吸着挙動依存性を把握(銅/アルミ/亜鉛):RuO4よりも前に沈着しているFPの影響あり ・壁面沈着後のガンマ線照射: RuO4再揮発なし	-	発電炉の知見は実験条件が再処理SAを想定したものではないが、参考として掲載
		液相吸収(化学吸収)	液相中の亜硝酸によりRuO4の液相への吸収が促進される	JAEA-H27 3章 気相中における気体状Ru及び難揮発性元素の蒸気凝縮等に伴う移行挙動の把握 ・経路温度とLPFの関係を計測(3.2章 RuO4発生/3.3章 模擬廃液) ・LPFの値が報告されており、解析コードのV&VIに利用できる可能性 JAEA-H28 3.2章 気体状Ruの蒸気凝縮に伴うLPF実験 ・ガスの組成比を変化させて気体状Ruの補修割合を確認している。 →凝縮量大→LPF小 →硝酸含有水蒸気量大→LPF小 JAEA-H29 4章 硝酸含有水蒸気の蒸気凝縮及びNOxが気体状Ruの移行挙動に与える影響 ・NO2は気相中ではRuO4に影響しないが、液相中に溶解することで液相中に亜硝酸を生じる ・この亜硝酸が液相に移行したRuO4と反応して硝酸ニトロシルルテニウムを生成 ・当該研究にて、上記の硝酸ニトロシルルテニウム生成反応を推定 JAEA-H30 4章 蒸気凝縮時の気体状Ru の液相への移行挙動の把握 ・濡れ壁塔試験でRu吸収速度を計測 ・液相中HNO3濃度への吸収速度依存性 ・液相中ではRuO4は硝酸ニトロシルルテニウムの形態をとると想定(UV 吸収スペクトルの測定結果より) ・RuO4 の液相への移行は、化学形を変化させない溶解が主な移行の駆動力ではなく化学吸収が主なもの JAEA-H31 3章 蒸気凝縮時の気体状Ru の液相への移行挙動の把握 ・硝酸水溶液のみならず、水にも多くの割合のRu が移行し得る	JAEA-H28 3.2.4.5章 凝縮液に対するRuO4の化学吸収反応の推定 ・RuO4の化学形態をとどめたまま溶解しているのではなく、RuO4と亜硝酸から硝酸ニトロシルルテニウムが生成されていることが推定される(化学反応式が提示されている)。ヘンリーの法則によるものは支配的ではない。 JAEA-H28 3.3.6章 試験データの整理 ・実験データをMELCORコードで分析し 「凝縮速度[g/h] vs.凝縮液へのRu移行速度[mol/h]」相関式を導出している。 ・反応式は推定であるが、相関式は線形であり実験結果を十分に説明できるものである。 JD-2021-008 SCHERNコードモデル ・Ru気液物質移動モデル	
				MFND-H26 3.4.4章 Ru凝縮移行試験 ・模擬廃液の沸騰初期～晩期における下流側冷却管内のLPFを計測 ・冷却管温度が低いとLPFが非常に小さくなることが確認された	JR-2017-015 気体状Ruの凝縮水への移行速度相関式 ・凝縮量とRu移行速度との関係を元に、相関式を導出	
				UI-AESJ-2020Fall 凝縮液へのNO2および揮発性Ru吸収速度係数の測定実験 UI-AESJ-2020Spring-6 凝縮液への揮発性Ru吸収速度係数の測定実験 ・0.2Lないし2Lのガラスフラスコに、水蒸気、硝酸蒸気、NOx、Ruを注入 ・凝縮液を複数回収し、その温度、成分を計測 ・フラスコ外へ流出したRu量から、凝縮液へのRu吸収率を算出 ・フラスコ外部温度、注入気相成分を変えて複数ケース実験	UI-AESJ-2020Fall 凝縮液へのNO2および揮発Ru吸収速度係数の測定実験 UI-AESJ-2020Spring-6 凝縮液への揮発性Ru吸収速度係数の測定実験 ・凝縮液相へのRuO4吸収速度を気相物質移行係数、液相物質移行係数の相関式と共に整理。 液相物質移行係数は気相中NO2濃度・液相の硝酸濃度・液相温度の関数。	
		還元剤との反応	固相の還元剤がRuO4を還元しRuO3、RuO2を生成	MFND-H26 3.4.3章 Ru沈着挙動試験 ・ガラスよりもSUSの方がやや沈着量が多いことを確認。	JAEA-H28 2.4章 反応機構の推定 ・系中のごく微量の物質が還元剤としてRu反応に寄与する可能性について言及。反応式を例示。	可能性について言及したものであり、評価モデルへの組み込みが可能な知見ではない。但し、不確かさ要因の一つとして考えるべき項目か。

表 9 「揮発性 Ru の移行」に分類される現象の知識ベース整理 (4/4)

現象				実験データ	評価モデル	備考
分類	大項目	小項目	解説			
揮発性 Ru の移行	工学的手段による RuO4除去(LPF)	凝縮器による除去	凝縮器によるRuO4放出抑制効果(凝縮液への液相吸収)	発電炉のドライウェルクーラ実験が参考となるが、再処理SA環境における実験なし。	発電炉のドライウェルクーラモデルが参考となるが、再処理SAに特化したモデル整備必要。	
		スプレーによる除去	スプレーによるRuO4放出抑制効果	JAEA-H27 3.3.2章 スプレー効果試験 ・液ガス比(スプレー体積流量/ガス体積流量)に対し、パラメトリックにスプレーDFを計測。 JAEA-H28 3.4.5章 スプレーによる難揮発性、気体状Ru除去実験 ・スプレーブース内滞留時間とRuO4に対するスプレーDFとの関係を実験で計測。 ・スプレー液粒子径、ガス流量、ガス温度に対するDF値への影響度合いも計測。 ・スプレー液を水、HNO3溶液、NaOH溶液とした場合のDF値への影響度合いも計測。(液成分をNaOHとするとRuO4のDFIは改善するが非揮発性物質のDFIは悪化する)	JAEA-H27 3.3.2章 スプレー効果試験 ・液ガス比 vs. スプレーDFを評価モデルで適用可能。 JAEA-H28 3.4.5章 スプレーによる難揮発性、気体状Ru除去実験 ・スプレーによるRuO4に対するDF効果をHTU(Height of Transfer Unit)で整理 ・スプレー液成分、スプレー粒子径、ガス流量、ガス温度に対するHTUへの感度整理	JAEA-H28ではスプレー流量に関するDF値の感度が整理されていないが、実験そのものは液ガス比(スプレー体積流量/ガス体積流量)に対しパラメトリックに実施されており、JAEA-H27と同じくスプレー流量に対するデータ整理が可能(JAEA-H27 p.98図3-83参照)。

表 10 「難揮発性 FP の移行」に分類される現象の知識ベース整理 (1/2)

現象				実験データ	評価モデル	備考
分類	大項目	小項目	解説			
難揮発性物質 の移行	飛沫同伴による 粒子状FP生成	液面近傍における蒸 気流速	飛沫同伴量に影響	-	硝酸溶液の沸騰を適切に扱うことにより、蒸気流速も適切に扱うことができる	
		液相物性	密度、表面張力	-	JR-2010-047 極低速蒸気流での飛沫同伴率式の導出 ・水の表面張力を適用	
		気相物性	密度、粘性	-	JR-2013-013 粘性係数を求める主要な理論式および経験式 ・Lennard-Jones/パラメータから粘性係数を算出する方法を提示	
		飛沫同伴	エントレインメントによる液滴飛散	JNFL-UI-Report-2024 添付資料-4 飛沫同伴への気泡径影響 ・蒸発乾固事故を模した低流速の飛沫同伴実験 ・窒素バブリングと沸騰ではARFが異なった（液の粘性が異なること が要因の可能性） ・飛沫同伴率は気泡径に反比例、ガス流速の0.7乗に比例 ・突沸を除くと、蒸気流速1.3cm/sに対する同伴率は0.5～0.9x10 ⁻⁵	JNFL-UI-Report-2024 添付資料-4 飛沫同伴への気泡径影響 ・難揮発性元素のARF評価式の提示 ・気泡成長評価式の提示	
				※上記のほか、模擬廃液ではない一般的な物質の水溶液を用いた飛沫同伴実験はいくつか現存。 例： Jerome O. Cosandey, et al., “Transport of salts and micron-sized particles entrained from a boiling water pool”	JR-2010-047 2章 極低速蒸気流での飛沫同伴式の導出 ・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 ・Kataoka-Ishii式（NUREG/CR-3304）の適用範囲外（Stokes領域）であり、 これを拡張したもの REACTOR-paper-1983-1 ・Kataoka-Ishii式とその他評価式を比較 ・上記各評価式導出に使用された実験データを整理	
	RuO ₄ 還元による粒子状FP生成		気相中RuO ₄ が還元されることで非揮発性の RuO ₂ が生成	-	JR-2012-026/JR-2016-004 MELCORによる廃液沸騰事故解析 ・RuO ₄ 発生量はPhilippeの実験を参考に気相への移行量を推定 ・気相中に移行したRuO ₄ は瞬時にRuO ₂ エアロゾルに変化すると仮定	RuO ₂ 移行量を保守的に見積もる仮定
	粒子径分布	凝集	・粒子の凝集成長→粒子径分布 ・ミストとの凝集	MFND-H26 3.3.1(6) 沸騰初期段階における模擬廃液ミストの粒子径分布データの取得 ・模擬廃液を加熱し、その下流でカスケードインパクタにより粒子径計測を実施 ・ミストが発生した領域で計測しており、エアロゾル以外のミストも計測している ⇒この粒子径分布は参考とすることができない。	既存のSAコードのモデルを利用可能	
		液滴蒸発	・液滴が蒸発することによるやせ細り ・蒸発乾固では下流が飽和蒸気環境になるた めやせ細りは生じにくいと考えられる ・下流が乾燥環境にある状況では、やせ細りが 重要		JR-2012-026/JR-2016-004 MELCORによる廃液沸騰事故解析 ・マッチングファンド実験で計測された乾燥エアロゾル粒子径分布から、 液滴発生時の粒子径中央値を16 μ mと推定 ・下流まで移行した際には液相蒸発によるやせ細りが発生するが、 MELCORではエアロゾルのやせ細りを評価することはできない	

表 11 「難揮発性 FP の移行」に分類される現象の知識ベース整理 (2/2)

現象				実験データ	評価モデル	備考
分類	大項目	小項目	解説			
難揮発性物質 の移行	気相からの粒子状 FP除去(LPF)	重力沈降	重力による粒子の降下	ABCOVE-report ・ナトリウムエアロゾルを閉空間に噴霧 ・重力沈降による浮遊エアロゾル濃度減衰挙動を計測	MAAP-manual: ABCOVE Benchmark ・無次元化相関式を定義し、ABCOVE実験から相関係数を決定	発電炉SAIに適用されている
		拡散泳動	キャリアガス濃度差による拡散、冷却面におけるステファン流による移行	-	既存の熱流動解析コードのモデルを利用可能	
		熱泳動	温度差により粒子が冷温側に移行	-	既存の熱流動解析コードのモデルを利用可能	
		慣性衝突	障害物や配管曲り部への衝突による沈着	-	既存の熱流動解析コードのモデルを利用可能	
	気相からの粒子状 FP除去(LPF)	気相物性	水蒸気、硝酸蒸気、非凝縮性ガス(N2,O2,NOx)の拡散係数、粘性	JR-2013-013 エアロゾル移行挙動に影響する気体の熱力学物性値の推定 ・表4.1「主要な化学種の粘性計算と推算に必要な物性値」においてガス成分のLennard-Jonesパラメータを提示	JR-2013-013 エアロゾル移行挙動に影響する気体の熱力学物性値の推定 ・気相の粘性、拡散係数が各エアロゾル挙動にどのように影響するか分析 ・表4.1「主要な化学種の粘性計算と推算に必要な物性値」においてガス成分のLennard-Jonesパラメータを提示 ・Lennard-Joensパラメータから硝酸蒸気の拡散係数及び粘性係数を算出する評価式を提示	
		吸湿性による粒子成長	吸湿性物質は重力沈降に影響する		MAAP-manual HYGROサブルーチンマニュアル ・吸湿性エアロゾルの粒子重量変化計算モデル	
	工学的手段による 粒子状FP除去 (LPF)	スプレーによる除去	スプレーによるさえぎり、叩き落とし	JAEA-H28 3.4.5章 スプレーによる難揮発性元素の除去実験 ・スプレーによるDFをNdlについて計測 ・ガス温度、及びスプレー液滴径についてパラメトリックにDFを計測 AESJ-H22 3.3章 格納容器スプレイ試験 ・NUPECにより、GIRAFFE-FP 試験装置を用いて実施 ・MELCORコード検証のため ・エアロゾル除去率、熱吸収率に関する実験結果あり	-	JAEA-H28 DFの値が報告されているが解析コードへの組み込みが可能な情報なし。解析コードのV&Vには利用できる。
		凝縮器による除去	凝縮器による粒子状FP除去(拡散泳動)	発電炉のドライウェルクーラ実験が参考となるが、再処理SA環境における実験なし。	AESJ-H22 3.3章 格納容器スプレイ試験 ・実験に基づきMELCORに組み込むモデルが提唱されている	AESJ-H22 MAAPにも同等のモデルが組み込まれている
		フィルタによる除去	フィルタにおける慣性衝突による粒子状FP除去	paper-HEPA-1～8 ・DF値の粒子径分布依存性 ・DF値の流量依存性 ・高湿度、ミスト付着、エアロゾル付着による圧損、DF値の変化 ・ピンホール、一部損傷時のDF値の変化 ・再乾燥後の影響: 圧損、DF、引張強度への残存影響	paper-HEPA-1～8 ・DF値: Kirshの式について言及 ・ピンホール存在時のDF値: Dormannのモデルについて言及	

表 12 「キャリアガスのふるまい」に分類される現象の知識ベース整理

現象				実験データ	評価モデル	備考
分類	大項目	小項目	解説			
キャリア ガスの振る舞い	気相流動	壁面凝縮	水蒸気、硝酸蒸気の凝縮。硝酸物性、ラウール則、壁面熱伝達で説明される。	-	JR-2016-012 硝酸-水混合蒸気の凝縮のモデル化 ・質量、圧力バランスの式の提示 ・ラウール則＋活量係数の式の提示（活量係数と液組成の関係：Wilson式） ・表4.1.4.2 水、硝酸の蒸気圧推算式（Antoineの推算式） ・硝酸水溶液の気液平衡データ⇒硝酸モル分率vs温度のグラフ ・硝酸水溶液の熱物性（蒸発潜熱、定圧比熱）近似式の提示	
		ミスト生成		-		
		差圧移流	貯槽外部との差圧による流出	-	既存の熱流動解析コードのモデルを利用可能	妥当性確認は不要
		自然循環	密度差による自然循環	NEA-report-1 HDR実験 ・廃炉となったドイツHDR炉を用いて実施された試験 ・蒸気放出＋水素・ヘリウムの放出 ・成層化、自然循環による混合挙動検証のための試験	MAAP-manual HDR試験Benchmark ・MAAPコードでHDR試験をトレースし、成層化循環流が適切に再現されることを確認	
		成層化	密度差による成層化			
	工学的手段による キャリアガスへの影響	スプレイによる流速抑制	スプレイにより蒸気が凝縮し、キャリアガス流速の抑制につながる	AESJ-H22 3.3章 格納容器スプレイ試験 ・NUPECにより、GIRAFFE-FP 試験装置を用いて実施 ・MELCORコード検証のため ・エアロゾル除去率、熱吸収率に関する実験結果あり	AESJ-H22 3.3章 格納容器スプレイ試験 ・実験に基づきMELCORに組み込むモデルが提唱されている	AESJ-H22 MAAPにも同等のモデルが組み込まれている
		凝縮器による流速抑制	凝縮器により蒸気が凝縮し、キャリアガス流速の抑制につながる	発電炉のドライウェルクーラ実験が参考となるが、再処理SA環境における実験なし。	発電炉のドライウェルクーラモデルが参考となるが、再処理SAに特化したモデル整備必要。	
		換気系作動	-	-	既存の熱流動解析コードのモデルを利用可能	妥当性確認は不要

表 13 「その他」に分類される現象の知識ベース整理

現象				実験データ	評価モデル	備考
分類	大項目	小項目	解説			
その他	沈着物からの再放出	再浮遊(再蒸発)	固体表面に沈着したRuが、加熱、化学反応により再度気相中に移行	JNFL-UI-Report-2024 添付資料-5 付着と再浮遊 ・セメント、SUS表面に沈着したRuを加熱(280～400℃) ・通気ガス: 空気、NOx ・セメントの場合、空気通気条件では保持率が高い一方、NOx通気条件では保持率が大きく低下 ・SUSの場合、空気、NOx通期条件共に保持率低い	-	メカニズムは不明であるが、揮発性Ru再放出に関する貴重な知見
	高温の貯槽への注水時の放出	注水の影響	大量に発生した蒸気がキャリアガスとして振舞う	JAEA-H31 5章 高レベル濃縮廃液(模擬廃液)への注水時における放射性物質の移行挙動の把握 ・乾固物が高温であるほどFP移行量増大 ・注水量が多い程FP移行量増大	JAEA-H31 6章 高レベル濃縮廃液(模擬廃液)への注水時における放射性物質の移行挙動の把握 ・蒸気流速とFP移行速度の相関式を導出	AM策の負の影響を把握するという点で、重要な知見

C.3.1 「廃液沸騰・濃縮」に関する知識ベース

本項では「廃液沸騰・濃縮」に関する主要な知識ベースを、下記の3項目に分けてまとめる。次項以降（4.2項～4.6項）についても同様の構成とする。

- ・ 実験 : 4.1.1 項
- ・ 個別現象評価モデル : 4.1.2 項
- ・ 知識ベースの拡張余地 : 4.1.3 項

C.3.1.1 「廃液沸騰・濃縮」に関する実験

「廃液沸騰・濃縮」に関係する、現存の代表的な実験知見の概要を下記にまとめる。

実廃液を用いたビーカースケール沸騰実験（CEA 実験）： NUREG/CP-0116

CEA は実廃液を用い、蒸発乾固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。ここでいう実廃液は、Pu 富化度 5 %の MOX 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ものである。廃液中のフリー硝酸濃度は 1.8 mol/L、硝酸根濃度（主要核種は Mo, Zr, Fe および Ru）は 8.1 mol/L である。

本実験では 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 160℃まで加熱し、沸騰で発生した蒸気を凝縮器及び捕集ビンで捕集している。加熱開始から約 5 時間程度で蒸発が始まり、約 70 時間後に廃液体積約 22mL の乾固状態に達している。捕集した蒸気は凝縮水の形となり、その体積および硝酸濃度が計測されている（70 時間後で凝縮水体積は約 370mL、硝酸濃度は約 11mol/L）。

また本実験では、蒸気とともに気相に移行した Cs, Ru などの放射性物質についても捕集、計測を行っている。これらの放射性物質移行についての実験結果等は 4.3 項にて別途後述する。

模擬廃液を用いたビーカースケール沸騰実験： paper-UI-2

JNFL および株式会社 UI 技研（以下、UI 技研）は、組成の異なる模擬廃液 2 種類（SHLLW-J, SHLLW-K）を用いて蒸発乾固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。いずれの模擬廃液もフリー硝酸濃度は 2 mol/L、硝酸塩濃度（主要核種は Mo, Zr, Ce）は約 1 mol/L であるが、SHLLW-J では合計 27 種類、SHLLW-K では合計 11 種類の硝酸塩を溶解している。

本実験では 120 mL の模擬廃液を公称容量 500mL のガラス製フラスコに入れ、異なる昇温速度で SHLLW-J を 2 ケース、SHLLW-K を 5 ケース、300℃まで加熱している。沸騰で発生した蒸気を凝縮器及び捕集ビンで捕集し、蒸発した水及び硝酸の量を測定し、水及び硝酸の留出率（＝蒸発により廃液外へ出た量/廃液中の初期存在量）の形で整理している。

本実験の結果として、異なる廃液成分（SHLLW-J, SHLLW-K）、異なる昇温速度に対しても、廃液温度に対する水及び硝酸の留出率は同じ挙動を示す、という重要な知見が得られている。

多成分硝酸塩の気液平衡実験： JT-2013-035

JAEA は、再処理廃液の組成を模擬した異なる 2 種類の多成分硝酸塩水溶液の気液平衡データ（気液各相の硝酸モル分率）の取得を試みている。2 種類（A および B）多成分硝酸塩水溶液の成分は下記の通りである。

A：硝酸濃度 1.976 mol/L，密度 1.257 g/mL，

初期総硝酸塩モル量 0.2112 mol，初期総硝酸塩重量：56.12 g

B：硝酸濃度 1.956 mol/L，密度 1.303 g/mL，

初期総硝酸塩モル量 0.2772 mol，初期総硝酸塩重量：70.22 g

本報では試料とする水溶液約 190mL を加熱し、凝縮液の出始めから約 6 時間ごとに 3 点，資料水溶液からサンプルを取得して，硝酸モル分率を求めている。

結果として，約 105℃～約 112℃の範囲で液相および気相中の硝酸モル分率が算出されている。液相中の硝酸モル分率はいずれも水－硝酸水溶液の気液平衡曲線（縦軸：温度，横軸：液相中の硝酸モル分率）より上部に位置しており，硝酸塩の存在によって沸点が硝酸水溶液よりも上昇する効果が見て取れる。

乾固物の物性計測： JAEA-H29

JAEA は，模擬廃液を 150℃，270℃および 400℃まで加熱し得られた乾固物の熱拡散率，熱伝導率及び密度といった物性値を測定している。この物性値は，廃液乾固物への注水時における放射性物質の気相への移行を考える上で，注水直前の乾固物内部温度分布の推定に必要となる。なお，物性値のうち熱伝導率については，かさ密度および成型粉末を測定した密度の両方から算出している。

本報では，各物性値について以下を結論としている。

- ・密度，比表面積及び細孔容積は乾固物作製温度の上昇に伴い増加した。
- ・熱伝導率は今回の測定試料温度の範囲（30℃～80℃）においてほぼ一定であった。
- ・試料作製温度が 150℃から 270℃まで上昇すると熱伝導率は増加し，270℃から 400℃まで上昇すると減少する傾向が見られた。

C.3.1.2 「廃液沸騰・濃縮」に関する個別現象評価モデル

「廃液沸騰・濃縮」に係る，現存の代表的な個別現象評価モデルの概要を下記にまとめる。

共沸点までをカバーした機構論モデル（SHAWED）： JR-2022-011, JR-2011-030

JAEA は，4.1.1 項に前述した CEA 実験に基づき，蒸発乾固事故の沸騰開始から完全蒸発に至るまでの期間において，沸騰濃縮現象での気相部の蒸気圧力（雰囲気組成），温度，硝酸濃度，液位，存在量等の変化などを算出するツール「SHAWED」を開発している。

SHAWED は，沸騰時の硝酸と水の蒸発量（モル数）は，蒸気圧（温度及び硝酸濃度に依存）の比に従うとして計算する。このとき，塩の硝酸水溶液への溶解度は水への溶解度と同様，溶解している硝酸塩は完全電離と仮定し，硝酸塩の析出の模擬，沸点上昇度の計算を行う。また，沸騰までの塩の結晶水の脱水を考慮して（遷移段階の脱水は未考慮），廃液中の水分量を計算す

る。水および硝酸の混合蒸気の上昇速度については、気相内の混合蒸気の蒸気圧から状態方程式を用いて蒸気密度を求めて計算する。

また SHAWED では、廃液からのニトロシル Ru 錯体の酸化に伴う Ru の放出を想定した Ru 放出量計算も可能である。

模擬廃液沸騰実験の実測値に基づくモデル： paper-UI-2

JNFL および UI 技研は、組成の異なる模擬廃液 2 種類（SHLLW-J, SHLLW-K）を用いたビーカースケール沸騰実験結果に基づく、水および硝酸の蒸発速度を与えるモデルを提案している。これは 4.1.1 項に前述したように、異なる廃液成分（SHLLW-J, SHLLW-K）、異なる昇温速度に対し、廃液温度と水及び硝酸の留出率の関係が同じであることを利用し、廃液温度の時間変化率と蒸発挙動とを分離したものである。本報では下式の「留出率の温度微分」を廃液温度の関数として、実験結果から得られた相関式で表したモデルが提案されている。

$$\text{蒸発速度}[\text{mol/s}] = \text{初期量}[\text{mol}] \times \text{留出率の温度微分}[1/\text{K}] \times \text{廃液温度の時間変化率}[\text{K/s}]$$

このモデルは、実験での廃液試料加熱範囲である 300℃までの温度域をカバーしつつ、廃液濃縮、モル沸点上昇、共沸、塩効果等の現象を全て「実験で得られた相関式」として考慮に含めたものとなっている。

また当該モデルについては、4.1.1 項に前述した CEA 実験との比較計算によりその妥当性も確認できている。

C.3.1.3 「廃液沸騰・濃縮」に関する知識ベースの拡張余地

「廃液沸騰・濃縮」に係る現存の知識ベースについて、それらの拡張余地（課題）を下記にまとめる。

●廃液組成の適用範囲に限界がある可能性

4.1.1 項に前述した沸騰実験に使用された廃液の組成は、硝酸濃度約 2mol/L、塩濃度約 1mol/L に近い。例として廃液貯槽に注水がなされた場合を考えると、硝酸が一定量蒸発したのちの注水であれば、硝酸濃度と塩濃度のバランスが変化すると想定される。4.1.2 項に前述した評価モデルはいずれも特定の廃液組成の実験データに基づくものであるため、注水を想定する場合、このモデルの適用範囲を外れる可能性がある。

よって、硝酸濃度と塩濃度のバランスが異なる廃液での沸騰実験データがあり、それに基づいて 4.1.2 項に前述したモデルの拡張ができれば、貯槽注水時における再沸騰挙動、蒸発挙動の評価が可能と考えられる。

●高温域における蒸発挙動計測実験データの不足

4.1.2 項に前述した評価モデルはいずれも、CEA 実験を対象に妥当性確認を実施済みであるが、高温域（共沸点 120℃を超えた温度域）では実験データが不足している。

●析出挙動に関する知見の不足

沸騰挙動の中で、硝酸塩は廃液濃縮、酸化といった現象により析出するが、この析出挙動は元素ごとに異なる。この析出挙動は飛沫に含まれる FP 量に影響するため、ひいては難揮発性 FP の放出量に影響する。現状、各元素の析出タイミング、温度域に関する知見は十分ではないため、酸化物のみ析出する、あるいは酸化物・硝酸塩の両方が析出するといった「元素を区別せずまとめて扱う」方法が考えられる。

仮に、各元素の析出タイミング、温度域に関する知見が実験等により得られれば、析出が難揮発性 FP の放出量に及ぼす影響を、より定量的、精緻に実施することが可能と考えられる。

C.3.2 「硝酸・NO_x 反応」に関する知識ベース

本項では「硝酸・NO_x 反応」に関する主要な知識ベースを、下記の3項目に分けてまとめる。

- ・実験 : C.3.2.1 項
- ・個別現象評価モデル : C.3.2.2 項
- ・知識ベースの拡張余地 : C.3.2.3 項

C.3.2.1 「硝酸・NO_x 反応」に関する実験

「硝酸・NO_x 反応」に関係する、現存の代表的な実験知見の概要を下記にまとめる。

単体硝酸塩溶液・模擬廃液を用いた NO_x 発生実験（産官学共同研究）： MFND-H26

産官学共同研究では、単体硝酸塩溶液および模擬廃液を使用した小規模な NO_x 発生実験を行っている。前項に述べた通り、NO_x としては主に NO₂ と NO の2種類が発生するが、当該実験では TG-TDA 分析装置と NO_x 計を使用し、NO および NO₂ の合計を計測している。

単体硝酸塩溶液を用いた実験で得られた重要な知見は、「NO_x 発生量の総和が模擬廃液で再現されず、また、NO_x 発生温度ピークが大きくシフトする」という点である。この知見から、単体硝酸塩の実験結果の総和では模擬廃液の挙動を再現できない、すなわち加成性が成立しないことがわかる。

また、Fe や Ru 硝酸塩は熱分解の際に硝酸塩の硝酸基が水和水と結合し、NO_x ではなく硝酸として放出される機構が示唆されている。この機構は、前述した沸騰・蒸発に対する硝酸の影響についても、解明をより難しくする要因となる。Ce や Gd のようなランタニド硝酸塩は、混合により熱分解反応温度域がシフトすることも示唆されている（Ce：高温側へ、Gd：低温側へ）。

模擬廃液からの NO_x 発生量に注目すると、加熱速度（5℃/min および 20℃/min）により NO_x 発生量が大きく異なることも重要な知見である。加熱速度が小さい場合、化学反応時間が長くなり、脱硝反応が進みやすくなることで、反応温度ピーク（NO_x 発生がピークとなる温度）が低温側にシフトする。

模擬廃液を用いた小規模 NO_x 発生実験： paper-UI-2

JNFL および UI 技研は、模擬廃液を加熱速度 0.2℃/min または 1℃/min で昇温し、NO_x 発生速度を計測している。この加熱速度は、沸騰早期から沸騰晩期・乾固期までの廃液の温度上昇速度をカバーしている。加熱の上限温度として 600℃を設定し、沸騰晩期・乾固期の温度をカバーしている。

また、この実験では NO と NO₂ 発生量を個別に計測しており、400℃程度までは NO₂ が、500℃を超えたあたりから NO がそれぞれ主に発生する結果が得られている。

加えて本実験では、170℃および 300℃時点での廃液中元素組成を比較しており、温度域で反応する硝酸塩を知るうえで貴重な手がかりを与えている。

凝縮液への NO₂ 吸収実験： UI-AESJ-2020Fall

JNFL および UI 技研は、0.2L ないし 2L のガラスフラスコに、130℃に加熱した混合気相（水蒸気、硝酸蒸気および NO_x）を注入させ、出口気相および発生した凝縮液の温度・成分から、NO₂ の液相への吸収量を推定している。ガラスフラスコ外部の温度をコントロールすることで、凝縮液温度を間接的に振った実験結果を得ている。

気相が高温（100℃近く）の条件での NO₂ 吸収実験知見は非常に限られており、本実験は貴重なデータといえる。

C.3.2.2 「硝酸・NO_x 反応」に関する個別現象評価モデル

「硝酸・NO_x 反応」に関係する、現存の代表的な個別現象評価モデルの概要を下記にまとめる。

NO_x 発生速度の相関式モデル： JR-2022-011

JAEA は、前述した産官学共同研究実験結果に基づき、アレニウス式の形で NO_x 発生速度を与える相関式モデルを導出している。当該モデルは、JAEA が開発した廃液沸騰模擬ツール SHAWED に取り込まれており、廃液からの NO_x 発生速度を与えている。

NO_x 発生速度の相関式モデル： paper-UI-2

JNFL および UI 技研は、前述した自らの実験結果に基づき、アレニウス式の形で NO_x 発生速度を与える相関式モデルを導出している。上述の JAEA モデルと同じアプローチであるが、当該実験では NO₂ と NO それぞれの発生速度が計測されており、それに基づいて NO₂ と NO の発生速度を分けて計算可能なモデルである。

また当該検討では、化学反応式に基づいて NO₂ と NO それぞれの発生速度から O₂ の発生速度を算出する方法も提案されている。

凝縮液への NO₂ 吸収モデル： UI-AESJ-2020Fall

JNFL および UI 技研は、前述した実験結果に基づく NO₂ 吸収速度相関式を導出している。面積当たりの吸収速度（単位 mol/m²/s）を、気相中の NO₂ 分圧（単位 Pa）と物質移行係数（単位 mol/m²/s/Pa）の積で表し、この物質移行係数を実験結果から得られた相関式で与えるというものである。物質移行係数の相関式は、凝縮液中の硝酸濃度および気相温度の関数として与えられている。

C.3.2.3 「硝酸・NO_x 反応」に関する知識ベースの拡張余地

「硝酸・NO_x 反応」に関係する現存の知識ベースについて、それらの拡張余地（課題）を下記にまとめる。

●NO_x 発生実験データの拡張

前項にて述べた通り、NO_x 発生速度の算出モデルは実験結果に基づくアレニウス型の相関式である。現状、0.2°C/min から 20°C/min までの昇温速度での実験結果が既存するが、廃液の崩壊熱によってはさらに遅い昇温速度となる場合も考えられる。昇温速度が遅い場合、化学反応時間が長くなることにより NO_x 発生挙動が変化することが予想される。

こうしたシナリオの評価のためには、遅い昇温速度に対する既存相関式の適用性確認が必要となる。この適用性確認のため、より遅い昇温速度における NO_x 発生実験データの取得が望まれる。

●NO₂ 液相吸収データの拡張

前述の通り、気相が高温（100°C 近く）の条件での NO₂ 吸収実験知見は非常に限られており、JNFL および UI 技研の実験結果がほぼ唯一の知見である。一方、NO₂ を吸収する凝縮液は、注入させた蒸気を凝縮させることで得ているため、凝縮液温度や成分のばらつきが生じ、その結果として NO₂ 吸収実験結果にはややばらつきが見られる。

この結果のばらつきを踏まえると、NO₂ 液相吸収モデルの妥当性確認等のため NO₂ 吸収データの拡張が望まれる。

C.3.3 「揮発性 Ru の移行」に関する知識ベース

本項では「揮発性 Ru の移行」に関する主要な知識ベースを、下記の 3 項目に分けてまとめる。

- ・ 実験 : C.3.3.1 項
- ・ 個別現象評価モデル : C.3.3.2 項
- ・ 知識ベースの拡張余地 : C.3.3.3 項

C.3.3.1 「揮発性 Ru の移行」に関する実験

「揮発性 Ru の移行」に関係する、現存の代表的な実験知見の概要を下記にまとめる。

実廃液を用いたビーカースケール沸騰実験 (CEA 実験) : NUREG/CP-0116

CEA は実廃液を用い、蒸発乾固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 (実験条件は C.3.1.1 項にて前述)。本実験では 400 mL の実廃液を 160℃まで加熱し、廃液から放出された元素を凝縮器及び捕集ビンで捕集し分析している。温度上限が 160℃であることから、本実験は沸騰晩期フェーズまでをカバーする実験と言える。揮発性元素として Ru、難揮発性元素の代表として Cs の移行量の時間変化が、分析結果として文献に記載されている。

加熱開始から約 5 時間程度で蒸発が始まり、約 60 時間後に廃液温度が約 120℃に達する。約 120℃までは、Ru と Cs の移行割合はほぼ同じ推移を見せている。この結果から、約 120℃までの温度域において Ru は揮発ではなく、難揮発性の Cs 同様に飛沫同伴によって移行していることが示唆される。一方で廃液温度が約 120℃を超えて以降は、Ru の移行割合が Cs よりも明確に大きくなり、揮発性 Ru 放出が起こっていることが示唆される。最終的な Ru 移行割合は約 12% である。

また、本実験は実廃液を使用しており、放射線分解によって発生した亜硝酸が廃液中に存在することが予想される。すなわち、本実験で得られた Ru 放出結果は、亜硝酸による Ru 放出の抑制効果が含まれると考えられる。

模擬廃液を用いた Ru 放出実験 (産官学共同研究) : Paper-AESJ-2015-1

JAEA は産官学共同研究にて、約 200mL の模擬廃液を 400℃まで加熱し放出 Ru 量を計測する実験を行っている。前述の CEA 実験は沸騰晩期フェーズまでをカバーするが、本実験は 400℃までの加熱であり、乾固期フェーズもカバーする実験といえる。

模擬廃液温度 120℃を始点とし、約 150℃まで約 30 時間、そこから 200℃過ぎまで約 10 時間の加熱条件であり、廃液温度が上がるにつれて温度上昇速度は速くなっている。発生した Ru は、廃液温度を指標として 5℃程度おきに発生凝縮液を回収することで、Ru 放出量が多い温度域を特定している。

結果として、Ru の放出量は模擬廃液温度 120℃を過ぎてから増加を始め、約 140℃でピークを示したのち、約 170℃にかけて減少している。その後放出量は再び上昇に転じ、約 240℃でピークを示したのち、約 300℃に至るまで減少を示した。300℃を過ぎたのちは、Ru 放出が計測されなかった。

当該論文 (Paper-AESJ-2015-1) では、最初 (廃液温度 120～170℃) の温度域での放出は Ru 化合物の酸化、二番目 (廃液温度 200～300℃) の放出は硝酸塩の熱分解によるのではないかと、との考察がなされている。

水・硝酸蒸気凝縮および Ru 液相吸収実験 (規制庁公募研究) : JAEA-H27～H30

JAEA は、規制庁公募研究 (H27～H31) にて、恒温槽に設置して外部温度をコントロールした口径 20cm 程度のガラス製反応管に、水蒸気・硝酸蒸気・揮発性 Ru をキャリアガス (窒素) とともに流入させ、凝縮液量、凝縮液中の硝酸濃度分布、Ru 吸収量を測定している。このとき、流入気相の成分を複数パターンに振って実験を実施し、Ru 吸収量に対する液成分の影響を分析している。

この規制庁公募研究は 5 年間にわたり実施され、この Ru 吸収実験も 10 ケース以上の実験が行われているが、ここでは代表として H28 年度の実験 (ケース名 : CLPF-1～9) を取り上げる。流入させる揮発性 Ru 量を基準に、流入させる水蒸気量を揮発性 Ru の 500 倍～20 万倍、流入させる硝酸蒸気量を揮発性 Ru の 100～40000 倍でそれぞれ幅を決め、その幅の中で組み合わせを行い、9 ケースを実施している。

H28 年度の実験での Ru-LPF は、 10^{-3} オーダーから約 0.9 まで幅があるが、蒸気流量が多いほど、また同じ蒸気流量でも硝酸の割合が大きいほど、LPF は小さくなる傾向を示している。

凝縮液への RuO₄ 吸収実験 : UI-AESJ-2020Fall/UI-AESJ-2020Spring-6

JNFL および UI 技研は、0.2L ないし 2L のガラスフラスコに、130℃に加熱した混合気相 (水蒸気、硝酸蒸気、NO_x および RuO₄) を注入させ、出口気相および発生した凝縮液の温度・成分から、RuO₄ の液相への吸収量を推定している。ガラスフラスコ外部の温度をコントロールすることで、凝縮液温度を間接的に振った実験結果を得ている。

SUS 製の Box を用いた Ru-LPF 計測実験 : PaperJNFL-UI-2015

JNFL および UI 技研は、容積約 10L の SUS 製の Box を用いて、その周辺温度をコントロールした状態で、模擬廃液の沸騰により発生させた気相を流入させ、Ru の LPF を計測している。この実験では模擬廃液を室温から 400℃まで加熱し、Box 周辺温度は 110℃から 200℃までの幅で、7 条件で LPF 測定を行っている。Ru-LPF は周辺温度 110℃で 0.001 オーダー、200℃で約 0.5 との結果を得ている。

当該実験は、揮発性 Ru の環境放出量評価に対する総合的な実験の一つの候補となり得る。ただし、蒸気の凝縮等の現象に空間のスケールが与える影響は、10L すなわち数十 cm オーダーの当該実験では十分に模擬できていない可能性も考えられ、さらなるデータの拡張が望まれる。

気相中における RuO₄ 還元・粒子状 Ru 生成実験 (規制庁公募研究) : JAEA-H30～H31

JAEA は、規制庁公募研究 (H30～H31) にて、上述のガラス製反応管に揮発性 Ru (RuO₄) と水蒸気を流入させ、気相中における RuO₄ の還元による粒子状 Ru 生成を計測している。当該実験では、粒子状 Ru の粒子径分布の時間変化も計測されている。

当該実験の結果では、注入 RuO_4 量に対する粒子状 FP の量にはばらつきがあり（数%～数十%）、気相中における粒子状 Ru 生成の現象は不確かさが大きい現象であることが示唆される。

スプレーによる Ru 除去試験（規制庁公募研究）： JAEA-H27/H28

JAEA は規制庁公募研究（H27 および H28）にて、加熱した模擬廃液から発生させた RuO_4 をスプレー塔で除去する試験を行っている。ここでは液ガス比（スプレー液流量とガス流量の比）、導入ガスおよびスプレー塔内温度、スプレー液物性（スプレー液に硝酸または水酸化ナトリウムを含める）をパラメータとして DF を計測している。

C.3.3.2 「揮発性 Ru の移行」に関する個別現象評価モデル

「揮発性 Ru の移行」に関係する、現存の代表的な個別現象評価モデルの概要を下記にまとめる。

沸騰晩期フェーズにおける Ru 放出速度相関式モデル（産官学共同研究）： MFND-H26

JAEA は、前述した産官学共同研究実験結果に基づき、沸騰晩期フェーズを対象にアレニウス式の形で揮発性 Ru 発生速度を与える相関式モデルを導出している。当該モデルは、CEA 実験における Ru 放出データとも整合することを確認している。

凝縮液への RuO_4 吸収モデル： UI-AESJ-2020Fall/UI-AESJ-2020Spring-6

JNFL および UI 技研は、前述した実験結果に基づく RuO_4 吸収速度相関式を導出している。面積当たりの吸収速度（単位 $\text{mol/m}^2/\text{s}$ ）を、気相中の RuO_4 分圧（単位 Pa）と物質移行係数（単位 $\text{mol/m}^2/\text{s}/\text{Pa}$ ）の積で表し、この物質移行係数を実験結果から得られた相関式で与えるというものである。

RuO_4 物質移行係数の相関式は、凝縮液中の硝酸濃度、気相温度および、気相中の NO_2 濃度の関数として与えられている。これは、気相中の NO_2 が凝縮液に溶解して亜硝酸を形成し、その亜硝酸が RuO_4 吸収を促進する効果を表現しているといえる。

C.3.3.3 「揮発性 Ru の移行」に関する知識ベースの拡張余地

「揮発性 Ru の移行」に関係する現存の知識ベースについて、それらの拡張余地（課題）を下記にまとめる。

●総合効果実験データの必要性

蒸発乾固事故評価における最終的な評価指標は、揮発性 Ru もしくは難揮発性 FP の環境放出量である。蒸発乾固事故シナリオに含まれる各現象に対し、その現象に対する個別の知見は多く整備されていることを、本章では記載している。

一方、これらの個別知見を取り込んだ評価手法（SA コード等）の総合的な妥当性確認のため、総合効果実験が必要となる。既存のビーカースケールよりも一段階大きい体系（例えば 1m³ スケールの、移行セルを模擬した空間）に模擬廃液沸騰で出てくるガスや揮発性 Ru を流入させ、そこから外部に漏出する Ru 量を測定するような実験である。

●NO_x 発生と揮発性 Ru 放出を同時測定した実験データの拡張

前項にて述べた通り、NO_x の存在は揮発性 Ru の環境放出量に対し、キャリアガスとしての放出促進効果、および、液相への Ru 溶解促進による放出抑制効果の二面がある。また、揮発性 Ru が放出される現象を考えると、特に乾固フェーズでは Ru 硝酸塩の熱分解によって発生する可能性が示唆されており、NO_x 発生と連動した現象であると予想できる。

よって、Ru 放出の挙動をより理解するためには、NO_x 発生速度と揮発性 Ru 放出速度を同時に計測した実験データの整備が望まれる。

●RuO₄ 液相吸収データの拡張

RuO₄ 液相吸収実験は複数の実験知見が既存するが、RuO₄ を吸収する凝縮液を注入させた蒸気の凝縮で得ている実験が多い。このため凝縮液温度や成分のばらつきが生じ、その結果として RuO₄ 吸収実験結果にはややばらつきが見られる。

この結果のばらつきを踏まえると、RuO₄ 液相吸収モデルの妥当性確認等のため RuO₄ 吸収データの拡張が望まれる。

●RuO₄ 吸着データの整備および吸着モデル整備

RuO₄ 液相吸収が凝縮環境で主に起きる一方、吸着は乾燥環境で主要な Ru 除去機構となることが予想される。蒸発乾固事故シナリオの乾固期フェーズでは、高温の NO_x ガスが多く発生するために乾燥環境となることが予想され、吸着が重要な除去機構となると考えられる。

一方、既存する Ru 除去に関する実験知見および個別評価モデルは液相吸収に関するものが多く、吸着に関する知見は少ないのが現状である。

C.3.4 「難揮発性物質の移行」に関する知識ベース

本項では「難揮発性物質の移行」に関する主要な知識ベースを、下記の3項目に分けてまとめる。

- ・ 実験 : C.3.4.1 項
- ・ 個別現象評価モデル : C.3.4.2 項
- ・ 知識ベースの拡張余地 : C.3.4.3 項

C.3.4.1 「難揮発性物質の移行」に関する実験

「難揮発性物質の移行」に関係する、現存の代表的な実験知見の概要を下記にまとめる。

模擬廃液を用いた難揮発性 FP 移行量測定実験（産官学共同研究）： MFND-H26

産官学共同研究では、難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に達するまでの段階に着目し、ビーカースケールの模擬廃液沸騰実験を行い、難揮発性 FP の代表として Cs 移行量を測定している。当該検討では計測された Cs 移行総量から、下記の仮定をもとに、蒸気流速と Cs 平均移行速度がおおよそ比例関係にあることが示されている。加えて、この実験で Cs の ARF が 10^{-5} オーダーで得られている。

- ・ 移行 Cs 総量： 洗浄液中の Cs 質量、複数の凝縮液サンプル中の Cs 質量の総和
- ・ Cs 移行平均速度： 移行 Cs 総量／沸騰初期段階の継続時間
- ・ 沸騰開始時刻： 凝縮液がゼロから増え始める時刻
- ・ 蒸気流速： 発生蒸気の体積／加熱容器の断面積
- ・ 発生蒸气体積： 廃液温度と同温の 1 気圧の理想気体仮定
凝縮液中の硝酸及び水のモル量から算出
- ・ 凝縮液中の硝酸及び水のモル量： 各凝縮液サンプルの質量及び酸濃度から推定

また、産官学共同研究では、工学規模スケールで模擬廃液を沸騰させ、難揮発性物質の飛沫同伴率を測定している。この実験では、模擬廃液加熱部の上部にエアロゾル沈着を想定する管体（数十 cm オーダーの径）を 1 段または 4 段置き、その上部から発生気相を回収して、回収した気相中の難揮発性元素量を測定している。この実験で Cs の ARF が 10^{-5} オーダーで得られている。

模擬廃液および亜硝酸 Na 液を用いた飛沫同伴実験：JNFL-UI-Report-2024 添付資料-4

JNFL および UI 技研は、2L サイズのフラスコに入れた模擬廃液ないし亜硝酸 Na 水溶液を用いて、飛沫同伴率を測定している。いずれの液についても空気を流入させて泡を発生させ、泡の破裂時に起こる飛沫同伴によって液から放出される難揮発性物質の量を測定している。

亜硝酸 Na 水溶液を使用した実験では、流入空気を穴径の異なる散気板に通すことで発生気泡の径を変えた、気泡径の大きさによる影響の分析が行われ、小さい径の泡ほど破裂頻度が多く飛沫同伴が小さい傾向が見られている。また、流入空気流量を変え、流量と飛沫同伴の関係も分析され、流量が大きいほど飛沫同伴も増える傾向が確認されている。

ABCOVE (Aerosol Behavior Code Validation and Evaluation) 実験：ABCOVE-report

エアロゾル挙動の観測を目的とした大規模実験として、ABCOVE 実験が知られている。高さ約 20 m、直径約 8 m、容積約 850 m³ の容器内に、約 1 時間でナトリウム酸化物及びヨウ化ナトリウムからなるエアロゾルを放出し、4～5 日間静置する、という実験である。エアロゾル放出から静置の間、重力沈降による気相中のエアロゾル濃度の変化等が測定されている。

この実験では複数のケースが実施されており、非凝縮性ガスに加えて蒸気を流入させているケースもあるため、重力沈降、熱泳動に加え拡散泳動による除去も発生していると考えられる。容器内床面への沈降量や壁面・天井面への付着量も測定されており、特に壁・天井への付着は熱泳動あるいは拡散泳動によるものと考えられる。

ABCOVE 実験は MAAP, MELCOR 等の既存 SA コードの妥当性確認に広く使用されている。

HEPA フィルタによる粒子除去実験：Paper-HEAPA-1～8

フィルタによる粒子除去性能指標の一つとして、DF (Decontamination factor) がある。DF は、フィルタ下流側における粒子濃度に対する、フィルタ上流側での粒子濃度で定義される。

Ozaki らはこの DF に対する、捕集粒子サイズ、捕集時の透過流量、透過気相の温度・湿度、ミストの発生量、フィルタに付着した粒子によるフィルタ圧損の増加といったパラメータの影響を、HEPA フィルタを用いた実験にて計測している。結果概要を下記にまとめる。

- ・最も DF が低下する粒径は 0.15 μm 付近
- ・フィルタの透過流量が大きいほど DF 低下
- ・透過気相温度および湿度が上昇するほど DF 低下
- ・フィルタに粒子が付くと圧損が増大し、圧損が増大すると DF 上昇

スプレーによる難揮発性 FP 除去試験 (規制庁公募研究)：JAEA-H28

JAEA は規制庁公募研究 (H28) にて、加熱した模擬廃液から発生させた難揮発性 FP (Nd を代表元素として選出) をスプレー塔で除去する試験を行っている。ここでは液ガス比 (スプレー液流量とガス流量の比)、導入ガスおよびスプレー塔内温度、スプレー液物性 (スプレー液に硝酸または水酸化ナトリウムを含める) をパラメータとして DF を計測している。

C.3.4.2 「難揮発性物質の移行」に関する個別現象評価モデル

「難揮発性物質の移行」に関する、現存の代表的な個別現象評価モデルの概要を下記にまとめる。

Kataoka-Ishii モデルを拡張した飛沫同伴率算出モデル：JR-2010-047

JAEA は、比較的流速の大きい条件において飛沫同伴率を算出する Kataoka-Ishii モデル (NUREG/CR-3304) を、蒸発乾固事故で予想される極低速の蒸気流速に拡張し、蒸気流速および粒子径の関数として飛沫同伴率を算出するモデルを検討している。

既存の SA コードに搭載の粒子径分布・気相からの除去モデル

難揮発性 FP の移行に関連する、粒子径分布や気相からの自然除去・工学的除去については、MAAP や MELCOR に代表される既存の SA コードにモデルが現存する (AESJ-H22)。

粒子径分布については、MELCOR コードに粒子径分布を陽に扱うモデル (区分分割法) が搭載されている。MAAP コードでは粒子径分布を陽には扱っていないものの、一定時間経過後に粒子径分布が一定に近づくことに基づき、暗に考慮した形をとっている。

重力沈降や熱泳動、拡散泳動といった自然除去については、MAAP・MELCOR とともにモデルが搭載されている。フィルタやスプレイのような工学的除去についても、これらの設備の DF (Decontamination factor) を与えることでモデル化している。

飛沫同伴による液滴 (エアロゾル) 発生については、飛沫同伴率をユーザ入力もしくは別途内部計算して、それをガス流速に乗ずる形で発生量を算出している。

液滴蒸発や吸湿性についても Mason 方程式 (雲の生成・消失をモデル化するため考案されたもの) をベースとしたモデルが搭載されているが、これは「凝縮成分は水のみ」が想定されたモデルであり、かつ発電炉 SA における「比較的水蒸気の多い環境」に適用されている。このため、凝縮成分として水のほかに硝酸が存在し、また乾燥環境も存在することが想定される再処理施設の蒸発乾固事故評価に適用する際に課題がある。

C.3.4.3 「難揮発性物質の移行」に関する知識ベースの拡張余地

「難揮発性物質の移行」に関する現存の知識ベースについて、それらの拡張余地 (課題) を下記にまとめる。

●廃液から発生した液滴の蒸発・吸湿に関する知見整備の必要性

蒸発乾固事故シナリオでは、廃液から飛沫同伴で発生した液滴は、最初は蒸気の多い気相中を運ばれていくと予想されるが、移行経路の途中で蒸気が凝縮により減少し、移行経路下流においては蒸気が少ない乾燥環境に存在する可能性が考えられる。この蒸気環境～乾燥環境の違いは、液滴の吸湿・蒸発により液滴径を変化させ、ひいては経路における除去割合を変え得る。

前述した既存の SA コードに搭載のエアロゾル挙動モデルは液滴の吸湿・蒸発を扱えるが、これは「凝縮成分は水のみ」が想定されたモデルであり、かつ発電炉 SA における「比較的水蒸気の多い環境」に適用されている。

このため、再処理施設の蒸発乾固事故にこのモデルを適用する際は、硝酸蒸気を含むこと、比較的水蒸気が少ない環境へも適用されることを踏まえたモデル拡張が必要となる。加えて、拡張したモデルの妥当性確認のための実験データ拡張も必要となる。

●「凝縮器によるエアロゾル除去」に関する知見整備の必要性

廃液から移行するガス等の移行経路に凝縮器が設置され、凝縮器が設計通り機能する場合、水・硝酸蒸気の多くがそこで凝縮すると予想される。その際、蒸気により運ばれていたエアロゾルも拡散泳動を主とした現象により、凝縮器で除去されることが期待される。

蒸発乾固事故シナリオでの凝縮器挙動を考えると、硝酸蒸気を含む水蒸気の凝縮、NO_x や揮発性 Ru の液相への溶解、冷却材流量・温度、凝縮器形状といった要素が、除熱性能へ影響を与えることが予想される。これらがエアロゾル除去性能に与える影響については、実験データの拡張により確認していくことが不可欠と考えられる。

●総合効果実験データの必要性

蒸発乾固事故評価における最終的な評価指標は、揮発性 Ru もしくは難揮発性 FP の環境放出量である。蒸発乾固事故シナリオに含まれる各現象に対し、その現象に対する個別の知見は多く整備されていることを、本章では記載している。

一方、「揮発性 Ru の移行」の項でも述べているが、これらの個別知見を取り込んだ評価手法（SA コード等）の総合的な妥当性確認のため、総合効果実験が必要となる。既存のビーカースケールよりも一段階大きい体系（例えば 1m³ スケールの、移行セルを模擬した空間）に模擬廃液沸騰で出てくるガスや FP を流入させ、そこから外部に漏出する FP 量を測定するような実験である。

C.3.5 「キャリアガスのふるまい」に関する知識ベース

本項では「キャリアガスのふるまい」に関する主要な知識ベースを、下記の 3 項目に分けてまとめる。

- ・ 実験 : C.3.5.1 項
- ・ 個別現象評価モデル : C.3.5.2 項
- ・ 知識ベースの拡張余地 : C.3.5.3 項

C.3.5.1 「キャリアガスのふるまい」に関する実験

「キャリアガスのふるまい」に関係する、現存の代表的な個別現象評価モデルの概要を下記にまとめる。

水・硝酸蒸気凝縮および Ru 液相吸収実験（規制庁公募研究）：JAEA-H27～H30

JAEA は、規制庁公募研究（H27～H30）にて、恒温槽に設置して外部温度をコントロールした口径 20cm 程度のガラス製反応管に、水蒸気・硝酸蒸気・揮発性 Ru をキャリアガス（窒素）とともに流入させ、凝縮液量、凝縮液中の硝酸濃度分布、Ru 吸収量を測定している。このとき、流入気相の成分を複数パターンに振って実験を実施し、Ru 吸収量に対する液成分の影響を分析している。

この実験の主眼は Ru 吸収量であるが、Ru 量は水蒸気・硝酸蒸気に比べて著しく割合が小さく（濃度で 1/1000 オーダー）、水蒸気・硝酸蒸気の凝縮にほぼ影響しないと考えられる。よって、この実験結果は「水蒸気・硝酸蒸気の凝縮」モデルの妥当性確認に活用できると考えられる。

ただし、上記のとおりこの実験のスケールは数十 cm であり、凝縮挙動を左右し得る気相流れの効果は、実機の経路とは異なると予想される。このため、実機相当の自然対流の効果を含めての妥当性確認には使用できない。

大規模空間での水蒸気・水素・ヘリウム流動実験（HDR 実験）：NEA-Report-1

ドイツの Heiss Dampf Reaktor（HDR）を利用した、大規模空間における気相流動実験が、International Standard Problem 29 にて実施されている。じ詰め試験のデータが知られている。HDR は元々実験炉で、高さ 60 m、直径 20 m、容積 11,300 m³ の鋼製ライナー付き格納容器構造を有し、またその内部は複数の部屋に分けられている。このうち中間部にある一部屋に水蒸気・水素・ヘリウムが注入され、各部屋における気相温度や水素・ヘリウム濃度が約 24 時間にわたって計測されている。この実験における計測結果、例えば気相温度は上部区画では高く、下部区画では低い傾向を示しており、複数区画から成る施設内での自然循環や気相の成層化を反映していると考えられる。

この実験は、気相流動に関する現象の総合的な実験の一つであり、水蒸気・非凝縮性ガス共存条件での気相流動モデルの妥当性確認に活用できると考えられる。ただ、硝酸蒸気の混在の効果の妥当性確認には使用できない。

模擬格納容器スプレイ試験（NUPEC）：AESJ-H22

旧（財）原子力発電技術機構（NUPEC）は、体積約 12m³、高さ 18m の模擬格納容器を用いて、スプレイによる気相除熱およびエアロゾル除去性能を測定するスプレイ試験を実施している。この試験では、除熱性能に注目した分離効果試験、PWR ないし BWR における代表的な事故シナリオを想定したシステム挙動試験が行われている。

前者の分離効果試験では模擬格納容器内部を 0.25MPa、水蒸気 100%かつほぼ飽和状態としたのち、およそ 10 時間にわたり 1 L/min 及び 5 L/min の流量で、30℃の水を用いたスプレイを実施している。液滴径はノズル直下 1m で約 6 および 2mm である。分離効果試験では、このスプレイ条件でスプレイ液滴の熱吸収率はほぼ 100%であることが確認されている。

後者のシステム挙動試験では、BWR の代表事故シナリオとして過渡事象起因の低圧炉心損傷（TQUV）、PWR の代表事故シナリオとして大 LOCA 時の炉心損傷・圧力容器損傷を想定している。システム挙動試験ではスプレイによるエアロゾル除去にも注目するため、模擬エアロゾル

として CsI 溶液を過熱蒸気で噴霧化している。模擬格納容器圧力は、BWR 想定条件で 0.3MPa、PWR 想定条件では 0.52MPa であり、分離効果試験同様に内部はほぼ飽和である。ただし気相成分については、BWR 条件では蒸気分圧約 75%、PWR 条件では水蒸気 100%である。スプレイ流量は 3L/分/2 ノズル (BWR 条件)、もしくは 16.7L/分/1 ノズル (PWR 条件)である。

システム挙動試験ではエアロゾル除去に注目しており、主にスプレイ後のエアロゾル濃度変化が計測されているが、圧力変化も計測されておりこのデータで除熱効果を間接的に知る手がかりとなる。

硝酸・水の気液平衡データまとめ： JR-2016-012

JAEA は、硝酸－水混合蒸気の凝縮モデルの基礎となる、1 気圧以下の圧力における硝酸水溶液の気液平衡データ実測値を整理している。具体的には、異なる 3 つの圧力（大気圧，26.66 kPa および 4.0 kPa）での温度、硝酸の気相モル分率および液相モル分率である。

なお、1 気圧未満の圧力における気液平衡データは「空間圧力から非凝縮性ガスの分圧を差し引いた値を混合蒸気分圧とする」ことで、凝縮の起こる飽和温度や気相・液相中の硝酸モル分率の推定に使用されている（規制庁公募研究/JAEA-H28）。

本報には上述の気液平衡の実測データをもとにした、Wilson 式に基づく水、硝酸の活量係数の推算式も併せて記載されている。

C.3.5.2 「キャリアガスのふるまい」に関する個別現象評価モデル

「キャリアガスのふるまい」に関係する、現存の代表的な個別現象評価モデルの概要を下記にまとめる。

既存 SA コードに搭載の気相流動・工学的手段モデル

「キャリアガスのふるまい」に関連する現象（壁面凝縮，ミスト生成，差圧移流，自然循環，成層化，換気系作動等）については、MAAP、MELCOR、FATE といった既存の SA コードにモデルが現存する。また、工学的手段のうちスプレイについても、前述した模擬格納容器スプレイ試験結果に基づき提案されたモデルが、MAAP や MELCOR コードに搭載されている（文献 AESJ-H22）。

ただし、FATE コードを除くこれらの SA コードのほとんどは「水蒸気・非凝縮性ガス」の体系を想定しており、「水蒸気・硝酸蒸気・非凝縮性ガス」の混在が予想される蒸発乾固事故に適用する際には、例えば熱流動解析に際しては硝酸を水に近似する（本文 3. 章中の MELCOR コードを用いた評価例における仮定）といった方法が必要となる。一方で、本文 3. 章に記載している FATE コードは「水蒸気・硝酸蒸気・非凝縮性ガス」の 3 成分混在を扱える SA コードである。

C.3.5.3 「キャリアガスのふるまい」に関する知識ベースの拡張余地

「キャリアガスのふるまい」に関係する現存の知識ベースについて、それらの拡張余地（課題）を下記にまとめる。

●「凝縮器モデルによる除熱」に関する知見整備の必要性

廃液から移行するガス等の移行経路に凝縮器が設置され、凝縮器が設計通り機能する場合、水・硝酸蒸気の多くがそこで凝縮すると予想される。ただし、水蒸気・硝酸蒸気・非凝縮性ガスの3成分が混在した場合における凝縮器実験知見は十分ではなく、知見整備が求められる部分である。

蒸発乾固事故シナリオでの凝縮器挙動を考えると、水蒸気・硝酸蒸気・非凝縮性ガスの3成分の凝縮のみならず、NO_x・揮発性Ruの混在およびそれらの液相への溶解による除熱性能への影響、冷却材流量・温度の違いによる除熱性能への影響、凝縮器形状による除熱性能への影響も考えられ、これらを評価に考慮する際には実験データの拡張が不可欠と考えられる。

●水・硝酸凝縮の中規模体系実験

前章に述べた通り、蒸発乾固事故時のガス移行経路における凝縮面近傍で発生する流れ（凝縮面近傍とバルク気相との成分濃度差，除熱による気相密度増加，分子量が大きい硝酸の凝縮による気相密度減少等による）は，凝縮が起こる空間の大きさに依存し，また気相からの除熱量を左右する重要な要素である。つまり，凝縮モデルの妥当性確認を行う際，凝縮挙動を左右し得る気相流れの効果を考えると，実際の移行経路のスケールに近い体系での実験が必要となる。

一方で，現存する知見は規制庁公募研究における凝縮液量・濃度分布計測データ（文献JAEA-H27～30）に代表されるようなビーカースケールの実験であり，もう一段階大きいスケール（例えば1m³スケール）での水蒸気・硝酸蒸気・非凝縮性ガスを用いた凝縮実験知見が求められる。

C.3.6 「その他」に関する知識ベース

本項では「その他」に分類された 2 つの現象「再浮遊」「貯槽への注水」に対する知識ベースを、下記の 3 項目に分けてまとめる。

- ・ 実験 : C.3.6.1 項
- ・ 個別現象評価モデル : C.3.6.2 項
- ・ 知識ベースの拡張余地 : C.3.6.3 項

C.3.6.1 「その他」に関する実験

「再浮遊」「貯槽への注水」に関係する、現存の代表的な実験知見の概要を下記にまとめる。

セメントおよび SUS 表面における Ru 再放出実験 : JNFL-UI-Report-2024 添付資料 5

日本原燃および UI 技研は、表面に Ru が吸着されたセメントおよび SUS 試験片を加熱し、再放出された Ru 量を計測している。セメントおよび SUS の二つの比較で、材料物性の影響を確認する。

このとき空気および NO_x を通気させ、共存ガスの違いによる再放出への影響も比較している。SUS は空気・NO_x 環境いずれにおいても再放出は少ない一方、セメント試験片の場合では NO_x 環境で再放出が見られている。

注水時における放射性物質移行実験（規制庁公募研究）: JAEA-H31

JAEA は規制庁公募研究（H31 年度）にて、模擬廃液を加熱した乾固物への注水を実施し、それによって放出される FP 量を測定している。

C.3.6.2 「その他」に関する個別現象評価モデル

「再浮遊」には吸着された Ru の再浮遊（再放出）と、沈着されたエアロゾルの再浮遊が考えられる。いずれの現象についても、蒸発乾固事故を対象としたモデルは現状未整備であるが、前者の Ru の再浮遊（再放出）については、前述の Ru 吸着の逆反応をモデル化することが考えられる。後者の沈着エアロゾルについては、蒸発乾固事故シナリオにおける気相流速は比較的小さいことが予想されるため、再浮遊の可能性は低い。

「貯槽への注水」についても、上述の規制庁公募研究（JAEA-H31）にて蒸気流速と FP 移行率の関係式が検討されている。ただし、「貯槽への注水」は直接の FP 移行のみならず、貯槽内の廃液成分、廃液温度を変えるアクションであり、前述する「廃液沸騰・濃縮」「硝酸・NO_x 反応」をはじめとした多くの現象へも影響が考えられる。これらについての評価が可能なモデルは現存しない。

C.3.6.3 「その他」に関する知識ベースの拡張余地

「再浮遊」「貯槽への注水」に係る現存の知識ベースについて、それらの拡張余地（課題）を下記にまとめる。

●再浮遊（再放出）に関する実験データの拡張

再浮遊（再放出）に関する実験を前述したが、当該現象に関する既往実験は限られている現状であり、データの拡張が望まれる。

●貯槽への注水に関する実験データの拡張・事故進展への影響モデル整備

貯槽への注水に関する実験を前述したが、当該現象に関する既往実験は限られている現状であり、データの拡張が望まれる。

また前項に述べた通り、「廃液沸騰・濃縮」「硝酸・NO_x 反応」をはじめとした蒸発乾固事故シナリオに含まれる多くの現象へも影響が考えられる。これらについての評価が可能なモデルの整備が求められる。

C.4 蒸発乾固 PIRT の整備

C.2 章にて、蒸発乾固事故シナリオに含まれる重要物理/化学現象を抽出した。抽出した現象に対し、PIRT 作成チーム内で AHP 法・デルファイ法を用いた重要度ランキング投票を実施し、PIRT を整備した。本章ではその整備過程を詳述する。

C.4.1 専門家投票による現象の重要度ランク付け

評価指標（FOM）は難揮発性 FP 及び揮発性 Ru のソースタームを事故進展フェーズで分けた下記の 5 つとし、AHP（階層分析法）を用いてランキングを決定する。

- 沸騰早期-難揮発性 FP ソースターム
- 沸騰晚期-揮発性 Ru ソースターム
- 沸騰晚期-難揮発性 FP ソースターム
- 乾固期-揮発性 Ru ソースターム
- 乾固期-難揮発性 FP ソースターム

投票に際してはデルファイ法を参考とし、一度専門家間で投票を実施したのち、その投票結果を全員に共有して再投票を実施する。

C.4.1.1 ランキング決定手法の概要

AHP（階層分析法）を用いて投票結果からランキングを決定する。また、より多くの参加者の投票を集める目的のもと、デルファイ法を参考とした再投票を実施する。

<AHP 法>

AHP 法（Analytic Hierarchy Process, 階層分析法）は、複雑な意思決定を支援するために開発された手法であり、1971 年にアメリカの数学者トーマス・L・サーティによって提唱されている。AHP 法は特に複数の基準を考慮する必要がある場合、すなわち今回の PIRT のランキング決定のような意思決定の支援に適している。AHP 法の大まかなプロセスは以下の通りである。

(1)問題の階層化

意思決定問題を階層構造に分解する。例えば最上層に目標、中間層に評価基準、最下層に選択肢といった配置である。今回の例であれば、最上層に分類、中間層に大項目、最下層に小項目（個別現象）を配置している。

(2)ペア比較

各階層内の要素をペア（1 対 1）で比較し、どちらがどれだけ重要かを評価する。通常はこの評価に定量的な尺度を使用する。今回の例では 5 段階スケールで評価とする。

(3)重要度の算出

ペア比較の結果から、各要素の相対的な重要度を算出する。比較の結果を行列にまとめ、その固有ベクトルを計算することで行う。

(4)合成重要度の計算

最後に、すべての階層にわたって重要度を合成する。合成重要度は幾何平均の形で数値として算出され、この幾何平均を比較することで順位が決まり、その順位に応じて現象に **H/M/L** のランクを付ける。

<デルファイ法>

デルファイ法 (Delphi Method) は、将来の予測、問題解決、計画立案などに広く用いられるコミュニケーション手法である。この方法は、複数専門家による意見の集約を通じて合意形成を目指す際に使用される。デルファイ法の大まかなプロセスは以下の通りである。

(1)専門家パネルの選定

特定の主題や問題に精通している専門家を集める。今回の例は本ワーキングがこれに該当する。

(2)初回のアンケート回答

専門家パネルを構成する各専門家が、個別にアンケート回答する。今回の例では、1 回目の AHP 法を用いた投票がこれに該当する。

(3)回答の集約とフィードバック

初回の回答を集約し、専門家パネルに共有する。今回の例では、1 回目の投票結果をワーキング内で共有し実施した議論がこれに該当する。

(4)繰り返し回答

専門家パネルを構成する各専門家は、集約された回答を見た後、自分の意見を再評価し、必要に応じて修正する。今回の例では、2 回目の投票がこれに該当する。

(5)最終合意

繰り返し回答の結果を再度パネル内で共有し、合意形成を図る。今回の例では、2 回目の投票結果をワーキング内で共有し実施した議論がこれに該当する。

C.4.1.2 投票結果およびランキング分析・議論

本項では、前述した 5 つの評価指標に対する投票結果とその分析をまとめる。

投票結果の分析・議論に際しては、まず AHP 法の第一階層である 6 種類の分類（廃液沸騰・蒸発、硝酸・NO_x 反応、揮発性 Ru の移行、難揮発性物質の移行、キャリアガスの振る舞い、その他）についてのランキングを分析・議論する。第一階層のランキングが最下層に位置する個

別現象のランキングを大きく左右するため、第一階層の分析・議論で合理的な結果が得られていることを確認したのち、個別現象のランキング分析・議論を実施するものである。

第一階層である 6 種類の分類のランキング（ドーナツグラフ）を図 7～図 11 に示す。当該ドーナツグラフにて、各分類の重要度の大小を視覚的に判別できる。

また、最下層である個別現象のランキングを表 14～表 18 に示す。前項の AHP 法の概要で述べた「合成重要度（幾何平均）」が投票結果から決まり、それに基づいた順位とランク

（H/M/L）が表 14～表 18 に示されている。なお、PIRT 作成チーム内の事前議論から、順位は評価指標ごとではなく、物質（難揮発性 FP/揮発性 Ru）ごとに付けている。¹

5 種類のソースタームとの対応は以下の通りである。第一階層のランキング分析、および、個別現象のランキング分析を以下に詳述する。

- 沸騰早期-難揮発性 FP： 図 7・表 14
- 沸騰晚期-揮発性 Ru： 図 8・表 15
- 沸騰晚期-難揮発性 FP： 図 9・表 16
- 乾固期-揮発性 Ru： 図 10・表 17
- 乾固期-難揮発性 FP： 図 11・表 18

¹ 今回の PIRT 整備では 60 種類の現象を抽出しているが、難揮発性 FP を例にとると、60 種類×3 フェーズ（沸騰早期/沸騰晚期/乾固期）＝180 個に対して順位を付けている。例として、難揮発性 FP ソースタームに対し「乾固物物性」は、沸騰早期では 129 位、乾固期では 54 位となる。

<第一階層（分類）のランキング分析>

沸騰早期の難揮発性 FP ソースターム（図 7 参照）に注目すると、重要度ランキング最上位の分類は「難揮発性物質の移行」であり、「廃液沸騰・蒸発」「キャリアガスの振る舞い」が続く。放出物質である難揮発性 FP の挙動現象「難揮発性物質の移行」が最上位であることは合理的な結果と考えられる。また、難揮発性 FP の貯槽からの移行駆動力は飛沫同伴が主であることを踏まえると、「廃液沸騰・蒸発」が次点となることも合理的と考えられる。

この傾向は沸騰晩期の難揮発性 FP ソースターム（図 9 図 7 参照）においても同様であるが、図 9 では「硝酸・NO_x 反応」の重要度が図 7 よりも大きくなっている。沸騰晩期では NO_x 発生が起り始め、その NO_x がキャリアガスとして難揮発性 FP 放出に寄与する可能性を考慮すると、沸騰晩期で「硝酸・NO_x 反応」の重要度が高くなることは妥当な傾向と考えられる。

乾固期の難揮発性 FP ソースターム（図 11 図 7 参照）では沸騰早期・沸騰晩期とはやや異なり、「廃液沸騰・蒸発」の重要度が下がって「硝酸・NO_x 反応」の重要度が高くなっている。乾固期では水・硝酸の蒸発がほとんどなくなる一方、NO_x 発生がよりさかんになることが考えられることから、「廃液沸騰・蒸発」と「硝酸・NO_x 反応」の重要度が逆転することも妥当と判断できる。

揮発性 Ru ソースタームに目を転じると、沸騰晩期（図 8 参照）での重要度ランキング最上位の分類は「揮発性 Ru の移行」であり、「廃液沸騰・蒸発」「キャリアガスの振る舞い」「硝酸・NO_x 反応」が続く。難揮発性 FP の場合同様、放出物質である揮発性 Ru の挙動現象「揮発性 Ru の移行」が最上位であることは合理的な結果と考えられる。また、同じ沸騰晩期における難揮発性 FP ソースタームの場合と比べると、「硝酸・NO_x 反応」の重要度が少し高くなっていることが、図 8 と図 9 の比較から分かる。揮発性 Ru 環境放出に際しては、NO_x ガスがキャリアガスとしての作用に加えて、気相からの除去を助ける作用も有することから、「硝酸・NO_x 反応」の重要度が高くなることは妥当と考えられる。

乾固期の揮発性 Ru ソースターム（図 10 図 7 参照）では、「硝酸・NO_x 反応」の重要度が沸騰晩期よりもさらに高くなっている。上述した NO_x が Ru の環境放出に及ぼす作用、および、乾固期では NO_x 発生がさかんになることから、「硝酸・NO_x 反応」の重要度の高さは妥当な投票結果と判断できる。

以上の分析内容を PIRT 作成チーム内で共有・議論し、第一階層（分類）の投票結果については合理的・妥当な投票結果が得られている、との結論に至った。この結論を踏まえ、最下層すなわち個別現象のランキングについて分析・議論を行った。

<最下層（個別現象）のランキング分析>

個別現象のランキングに対しては「各個別現象に付いた H/M/L ランクが妥当・合理的か」の観点で分析・議論を行う。

まず、沸騰早期の難揮発性 FP ソースターム（表 14 参照）に注目すると「崩壊熱」「伝熱」「蒸気発生」といった「廃液沸騰・蒸発」に関する現象、「飛沫同伴」「重力沈降」「凝集」といった「難揮発性物質の移行」に関する現象、および、「壁面凝縮」「凝縮器による流速抑制」といった「キャリアガスの振る舞い」に関する現象が H ランクに分類されている。難揮発性 FP は貯槽から蒸気発生による飛沫同伴で気相へ移行し、蒸気をはじめとしたキャリアガスによって運ばれ、その途中の移行経路にて重力沈降等の自然除去機構、凝縮器等の工学的除去機構で除去されることを考えると、上記の現象が重要度の高い H ランクに分類されることは妥当と考えられる。

この傾向は沸騰晩期の難揮発性 FP ソースターム（表 16 図 7 参照）においても同様であるが、表 16 では「NO_x, O₂ 発生」「NO₂ の液相中への溶解」といった「硝酸・NO_x 反応」に関連する現象が M ランクに分類されている。前述の通り沸騰晩期では NO_x 発生が起り始め、その NO_x がキャリアガスとして難揮発性 FP 放出に寄与する可能性を考慮すると、これらの現象の重要度が高くなることは妥当な傾向と考えられる。

上述の「NO_x, O₂ 発生」の重要度は、乾固期の難揮発性 FP ソースターム（表 18 図 7 参照）ではさらに高くなり、H ランクに分類されている。また沸騰早期・沸騰晩期とは異なり、「伝熱」「蒸気発生」といった「廃液沸騰・蒸発」に関する現象の大半が L ランクとなっており、これも蒸発がほとんど完了した乾固期では妥当な重要度ランキングと判断できる。

揮発性 Ru ソースタームに目を転じると、沸騰晩期（表 15 参照）での重要度ランキング最上位の分類は「揮発性 Ru の移行」であり、「崩壊熱」「伝熱」「蒸気発生」といった「廃液沸騰・蒸発」に関する現象、および、「Ru 酸化」「亜硝酸による還元」「壁面への沈着」といった「揮発性 Ru の移行」に関する現象が H ランクに分類されている。特に後者の「揮発性 Ru の移行」に関する現象は大半が H ランクである。第一階層（分類）での議論同様、放出物質である揮発性 Ru の挙動現象であるこれらが H ランクとなることは合理的な結果と考えられる。

乾固期の揮発性 Ru ソースターム（表 17 図 7 参照）で沸騰晩期と同様の傾向が見られるが、「乾固物への移行」が H ランクとなり、「Ru 酸化」「亜硝酸による還元」がそれぞれ M および L ランクに下がっている。乾固期では硝酸がほとんど蒸発し、揮発性 Ru 放出は酸化ではなく熱分解反応によると考えられることから、硝酸の存在が必要な「Ru 酸化」「亜硝酸による還元」の重要度が下がることは妥当と考えられる。また第一階層（分類）での議論同様、「硝酸・NO_x 反応」に関する「NO_x, O₂ 発生」が H ランクに分類されることも合理的な結果といえる。

以上の分析内容を PIRT 作成チーム内で共有・議論し、個別現象の H/M/L ランク分類の投票結果についても概ね合理的・妥当な投票結果が得られている、との結論に至った。ただし、難揮発性 FP ソースタームに対し H ランクに分類されていた「Ru 還元による粒子状 FP 生成」については、凝集先となる粒子を増やして除去されやすくする間接的な効果のみと考えられ、H ランクとするほどの重要度ではない、との議論があり、最終的な PIRT にはこれを反映することとした。

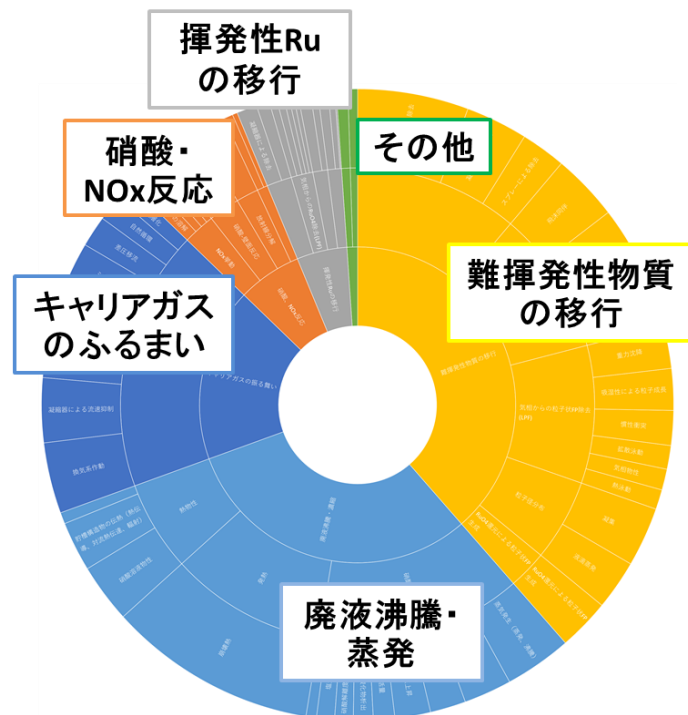


図 7 難揮発性 FP ソースターム（沸騰早期）に対する分類の投票結果

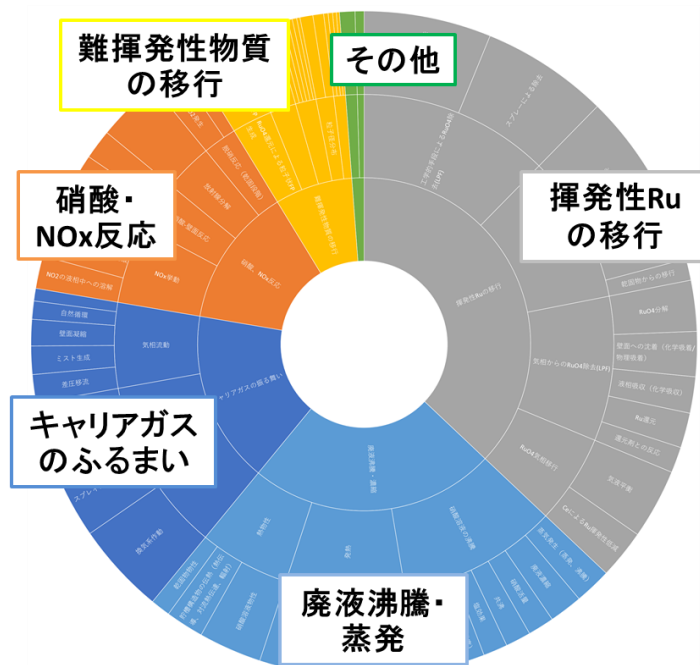


図 8 揮発性 Ru ソースターム（沸騰晚期）に対する分類の投票結果

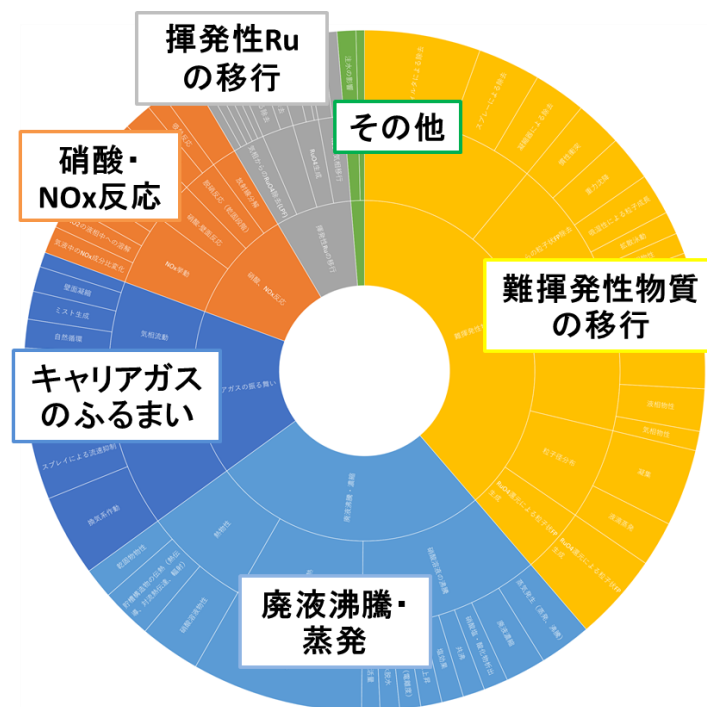


図 9 難揮発性 FP ソースターム（沸騰晩期）に対する分類の投票結果

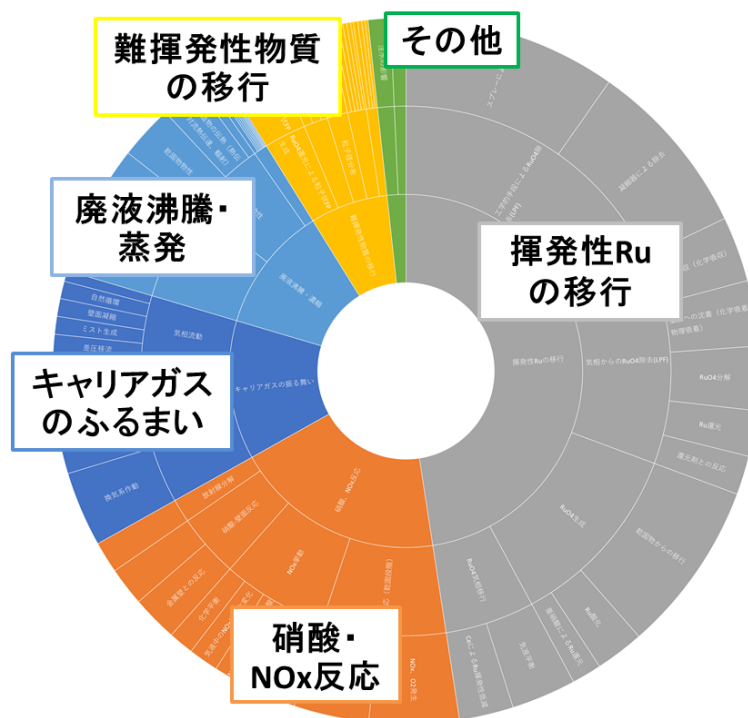


図 10 揮発性 Ru ソースターム（乾固期）に対する分類の投票結果

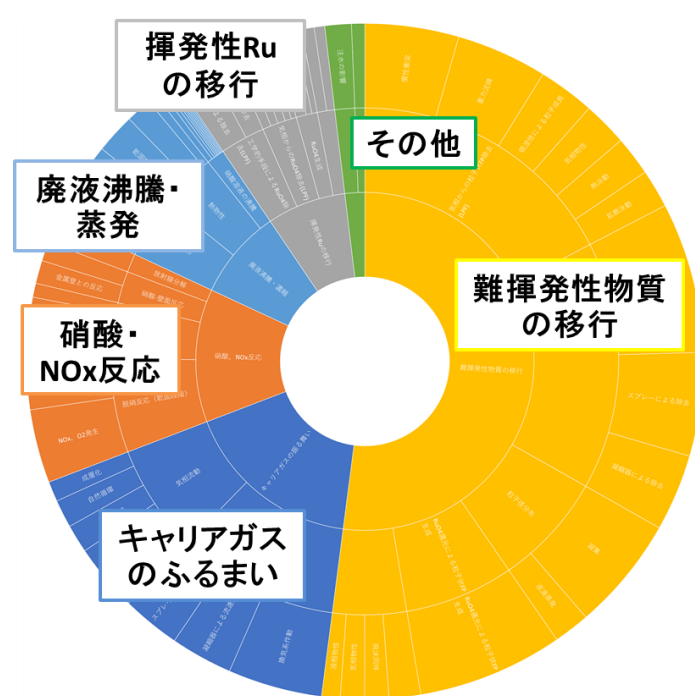


図 11 難揮発性 FP ソースターム（乾固期）に対する分類の投票結果

表 14 難揮発性 FP ソースターム（沸騰早期）に対する現象の投票結果

FOM	分類	現象		幾何平均	順位	ランク
		大項目	小項目			
難揮発性FP_沸騰早期	廃液沸騰・濃縮	発熱	崩壊熱	1.02	1	H
			硝酸溶液物性	0.27	22	H
		熱物性	乾固物物性	0.05	129	L
			貯槽構造物の伝熱（熱伝導、対流熱伝達、輻射）	0.20	38	H
		硝酸溶液の沸騰	蒸気発生（蒸発、沸騰）	0.30	14	H
			廃液濃縮	0.20	40	H
			モル沸点上昇	0.15	53	H
			共沸	0.13	60	H
			塩効果	0.09	90	M
			硝酸活量	0.11	70	M
			硝酸解離度（電離度）	0.08	95	M
			結晶水脱水	0.05	135	L
			硝酸塩・酸化物析出	0.08	99	M
			NOx、O2発生	0.04	138	L
	硝酸、NOx反応	脱硝反応（乾固段階）	吸熱反応	0.02	169	L
			化学平衡	0.04	137	L
		NOx挙動	NO2の液相中への溶解	0.07	110	M
			気液中のNOx成分比変化	0.05	136	L
			NO2液相吸収に伴う亜硝酸生成	0.03	154	L
			放射線分解に伴う亜硝酸生成	0.11	65	M
		硝酸-壁面反応	コンクリート壁面との反応	0.09	80	M
			金属壁との反応	0.09	80	M
	揮発性Ruの移行	RuO4生成	Ru酸化	0.03	160	L
			亜硝酸によるRu還元	0.04	141	L
			乾固物からの移行	0.01	175	L
		RuO4気相移行	気液平衡	0.05	132	L
			CeによるRu揮発性低減	0.03	159	L
		気相からのRuO4除去(LPF)	Ru還元	0.02	168	L
			RuO4分解	0.02	166	L
			壁面への沈着（化学吸着/物理吸着）	0.03	152	L
			液相吸収（化学吸収）	0.03	156	L
			還元剤との反応	0.02	167	L
		工学的手段によるRuO4除去(LPF)	スプレーによる除去	0.07	119	M
			凝縮器による除去	0.08	104	M
	難揮発性物質の移行	飛沫同伴による粒子状FP生成	液面近傍における蒸気流速	0.25	25	H
			液相物性	0.20	41	H
			気相物性	0.09	88	M
			飛沫同伴	0.29	18	H
		RuO4還元による粒子状FP生成	RuO4還元による粒子状FP生成	0.24	27	H
		粒子径分布	凝集	0.30	12	H
			液滴蒸発	0.20	39	H
		気相からの粒子状FP除去(LPF)	重力沈降	0.20	36	H
			拡散泳動	0.11	66	M
			熱泳動	0.09	92	M
			慣性衝突	0.16	51	H
			気相物性	0.09	86	M
			吸湿性による粒子成長	0.18	47	H
			スプレーによる除去	0.26	24	H
		工学的手段による粒子状FP除去(LPF)	凝縮器による除去	0.33	11	H
			フィルタによる除去	0.41	5	H
	キャリアガスの振る舞い	気相流動	壁面凝縮	0.15	52	H
			ミスト生成	0.14	58	H
			差圧移流	0.13	62	M
			自然循環	0.09	82	M
			成層化	0.06	120	M
		工学的手段によるキャリアガスへの影響	スプレーによる流速抑制	0.27	21	H
			凝縮器による流速抑制	0.29	16	H
			換気系作動	0.30	13	H
	その他	沈着物からの再放出	再浮遊（再蒸発）	0.04	145	L
		高温の貯槽への注水時の放出	注水の影響	0.05	127	L

表 15 揮発性 Ru ソースタム（沸騰晩期）に対する現象の投票結果

FOM	分類	現象		幾何平均	順位	ランク	
		大項目	小項目				
揮発性Ru_沸騰 晩期	廃液沸騰・濃縮	発熱	崩壊熱	0.68	1	H	
			熱物性	硝酸溶液物性	0.22	21	H
			乾固物物性	0.06	68	M	
			貯槽構造物の伝熱（熱伝導、対流熱伝達、輻射）	0.13	37	H	
		硝酸溶液の沸騰	蒸気発生（蒸発、沸騰）	0.13	40	H	
			廃液濃縮	0.11	52	M	
			モル沸点上昇	0.07	67	M	
			共沸	0.09	60	M	
			塩効果	0.10	53	M	
			硝酸活量	0.09	57	M	
			硝酸解離度（電離度）	0.08	62	M	
			結晶水脱水	0.04	85	L	
			硝酸塩・酸化物析出	0.04	81	L	
			硝酸、NOx反応	脱硝反応（乾固段階）	NOx、O2発生	0.11	49
	吸熱反応	0.07			66	M	
	NOx挙動	化学平衡		0.08	63	M	
		NO2の液相中への溶解		0.11	48	M	
		気液中のNOx成分比変化		0.09	59	M	
		NO2液相吸収に伴う亜硝酸生成		0.12	41	M	
	放射線分解	放射線分解に伴う亜硝酸生成		0.29	12	H	
	硝酸-壁面反応	コンクリート壁面との反応		0.12	45	M	
		金属壁との反応		0.15	33	H	
	揮発性Ruの移行	RuO4生成		Ru酸化	0.49	5	H
			亜硝酸によるRu還元	0.26	13	H	
			乾固物からの移行	0.11	51	M	
			気液平衡	0.34	9	H	
		RuO4気相移行	CeによるRu揮発性低減	0.22	19	H	
			Ru還元	0.12	46	M	
		気相からのRuO4除去(LPF)	RuO4分解	0.18	29	H	
			壁面への沈着（化学吸着/物理吸着）	0.16	32	H	
			液相吸収（化学吸収）	0.15	34	H	
			還元剤との反応	0.09	58	M	
		工学的手段によるRuO4除去(LPF)	スプレーによる除去	0.51	4	H	
			凝縮器による除去	0.45	7	H	
		難揮発性物質の移行	飛沫同伴による粒子状FP生成	液面近傍における蒸気流速	0.02	95	L
				液相物性	0.02	97	L
	気相物性			0.02	103	L	
	飛沫同伴			0.03	93	L	
	RuO4還元による粒子状FP生成		RuO4還元による粒子状FP生成	0.19	25	H	
			凝集	0.05	78	M	
	粒子径分布		液滴蒸発	0.04	84	L	
			重力沈降	0.02	96	L	
	気相からの粒子状FP除去(LPF)		拡散泳動	0.02	99	L	
			熱泳動	0.02	101	L	
			慣性衝突	0.02	94	L	
			気相物性	0.02	105	L	
			吸湿性による粒子成長	0.02	99	L	
			スプレーによる除去	0.06	69	M	
			凝縮器による除去	0.05	77	M	
	キャリアガスの振る舞い		気相流動	壁面凝縮	0.10	55	M
				ミスト生成	0.08	64	M
			差圧移流	0.09	56	M	
		自然循環	0.05	75	M		
		成層化	0.05	80	M		
		工学的手段によるキャリアガスへの影響	スプレイによる流速抑制	0.25	15	H	
	その他	沈着物からの再放出	再浮遊（再蒸発）	0.03	90	L	
		高温の貯槽への注水時の放出	注水の影響	0.06	70	M	

表 16 難揮発性 FP ソースターム（沸騰晩期）に対する現象の投票結果

FOM	分類	現象		幾何平均	順位	ランク
		大項目	小項目			
難揮発性FP_沸騰晩期	廃液沸騰・濃縮	発熱	崩壊熱	0.61	2	H
			硝酸溶液物性	0.20	35	H
		熱物性	乾固物物性	0.08	101	M
			貯槽構造物の伝熱（熱伝導、対流熱伝達、輻射）	0.17	49	H
		硝酸溶液の沸騰	蒸気発生（蒸発、沸騰）	0.19	44	H
			廃液濃縮	0.13	59	H
			モル沸点上昇	0.08	103	M
			共沸	0.08	98	M
			塩効果	0.08	106	M
			硝酸活量	0.07	112	M
			硝酸解離度（電離度）	0.07	114	M
			結晶水脱水	0.06	123	L
			硝酸塩・酸化物析出	0.08	100	M
			NOx、O2発生	0.09	79	M
	硝酸、NOx反応	脱硝反応（乾固段階）	吸熱反応	0.05	128	L
			化学平衡	0.08	105	M
		NOx挙動	NO2の液相中への溶解	0.10	78	M
			気液中のNOx成分比変化	0.09	89	M
			NO2液相吸収に伴う亜硝酸生成	0.06	122	L
			放射線分解に伴う亜硝酸生成	0.14	57	H
		硝酸-壁面反応	コンクリート壁面との反応	0.10	76	M
			金属壁との反応	0.11	68	M
	揮発性Ruの移行	RuO4生成	Ru酸化	0.08	102	M
			亜硝酸によるRu還元	0.05	131	L
			乾固物からの移行	0.02	164	L
		RuO4気相移行	気液平衡	0.07	116	M
			CeによるRu揮発性低減	0.05	130	L
		気相からのRuO4除去(LPF)	Ru還元	0.03	148	L
			RuO4分解	0.04	144	L
			壁面への沈着（化学吸着/物理吸着）	0.03	155	L
			液相吸収（化学吸収）	0.03	158	L
			還元剤との反応	0.03	162	L
		工学的手段によるRuO4除去(LPF)	スプレーによる除去	0.12	63	M
			凝縮器による除去	0.08	94	M
	難揮発性物質の移行	飛沫同伴による粒子状FP生成	液面近傍における蒸気流速	0.23	30	H
			液相物性	0.16	50	H
			気相物性	0.08	96	M
			飛沫同伴	0.25	26	H
		RuO4還元による粒子状FP生成	RuO4還元による粒子状FP生成	0.40	6	H
		粒子径分布	凝集	0.36	7	H
			液滴蒸発	0.18	45	H
		気相からの粒子状FP除去(LPF)	重力沈降	0.19	43	H
			拡散泳動	0.10	73	M
			熱泳動	0.08	97	M
			慣性衝突	0.18	46	H
			気相物性	0.08	93	M
			吸湿性による粒子成長	0.17	48	H
		工学的手段による粒子状FP除去(LPF)	スプレーによる除去	0.33	10	H
			凝縮器による除去	0.29	19	H
			フィルタによる除去	0.42	4	H
	キャリアガスの振る舞い	気相流動	壁面凝縮	0.11	71	M
			ミスト生成	0.10	72	M
			差圧移流	0.12	64	M
			自然循環	0.09	87	M
			成層化	0.05	133	L
		工学的手段によるキャリアガスへの影響	スプレーによる流速抑制	0.24	28	H
			凝縮器による流速抑制	0.23	29	H
			換気系作動	0.29	17	H
	その他	沈着物からの再放出	再浮遊（再蒸発）	0.03	147	L
		高温の貯槽への注水時の放出	注水の影響	0.07	115	M

表 17 揮発性 Ru ソースターム（乾固期）に対する現象の投票結果

FOM	分類	現象		幾何平均	順位	ランク	
		大項目	小項目				
揮発性Ru_乾固期	廃液沸騰・濃縮	発熱	崩壊熱	0.44	8	H	
		熱物性	硝酸溶液物性	0.04	88	L	
			乾固物物性	0.19	24	H	
			貯槽構造物の伝熱（熱伝導、対流熱伝達、輻射）	0.13	38	H	
		硝酸溶液の沸騰	蒸気発生（蒸発、沸騰）	0.01	113	L	
			廃液濃縮	0.01	118	L	
			モル沸点上昇	0.01	117	L	
			共沸	0.01	119	L	
			塩効果	0.01	114	L	
			硝酸活量	0.01	116	L	
			硝酸解離度（電離度）	0.01	120	L	
			結晶水脱水	0.03	92	L	
			硝酸塩・酸化物析出	0.01	110	L	
			硝酸、NOx反応	脱硝反応（乾固段階）	NOx、O2発生	0.32	10
		吸熱反応			0.25	14	H
		NOx挙動		化学平衡	0.08	61	M
				NO2の液相中への溶解	0.12	43	M
				気液中のNOx成分比変化	0.10	54	M
				NO2液相吸収に伴う亜硝酸生成	0.14	36	H
		放射線分解		放射線分解に伴う亜硝酸生成	0.11	50	M
	硝酸-壁面反応	コンクリート壁面との反応		0.11	47	M	
		金属壁との反応	0.13	39	H		
	揮発性Ruの移行	RuO4生成	Ru酸化	0.19	26	H	
			亜硝酸によるRu還元	0.12	44	M	
			乾固物からの移行	0.58	3	H	
		RuO4気相移行	気液平衡	0.23	18	H	
			CeによるRu揮発性低減	0.18	28	H	
		気相からのRuO4除去(LPF)	Ru還元	0.15	35	H	
			RuO4分解	0.17	30	H	
			壁面への沈着（化学吸着/物理吸着）	0.20	22	H	
			液相吸収（化学吸収）	0.19	27	H	
			還元剤との反応	0.12	42	M	
		工学的手段によるRuO4除去(LPF)	スプレーによる除去	0.62	2	H	
			凝縮器による除去	0.48	6	H	
			難揮発性物質の移行	飛沫同伴による粒子状FP生成	液面近傍における蒸気流速	0.01	108
		液相物性			0.01	112	L
		気相物性			0.02	102	L
		飛沫同伴			0.01	111	L
		RuO4還元による粒子状FP生成		RuO4還元による粒子状FP生成	0.20	23	H
		粒子径分布		凝集	0.05	76	M
	液滴蒸発			0.04	87	L	
	気相からの粒子状FP除去(LPF)	重力沈降		0.02	98	L	
		拡散泳動		0.01	109	L	
		熱泳動		0.02	107	L	
		慣性衝突	0.02	106	L		
		気相物性	0.01	115	L		
		吸湿性による粒子成長	0.02	104	L		
		工学的手段による粒子状FP除去(LPF)	スプレーによる除去	0.05	73	M	
			凝縮器による除去	0.04	86	L	
	フィルタによる除去		0.04	82	L		
	キャリアガスの振る舞い	気相流動	壁面凝縮	0.05	74	M	
			ミスト生成	0.06	71	M	
			差圧移流	0.07	65	M	
			自然循環	0.04	83	L	
			成層化	0.03	91	L	
			工学的手段によるキャリアガスへの影響	スプレイによる流速抑制	0.24	16	H
		凝縮器による流速抑制	0.17	31	H		
		換気系作動	0.24	16	H		
		その他	沈着物からの再放出	再浮遊（再蒸発）	0.05	79	M
			高温の貯槽への注水時の放出	注水の影響	0.06	72	M

表 18 難揮発性 FP ソースターム（乾固期）に対する現象の投票結果

FOM	分類	現象		幾何平均	順位	ランク
		大項目	小項目			
難揮発性FP_乾固期	廃液沸騰・濃縮	発熱	崩壊熱	0.35	8	H
			硝酸溶液物性	0.04	143	L
		熱物性	乾固物物性	0.14	54	H
			貯槽構造物の伝熱（熱伝導、対流熱伝達、輻射）	0.09	84	M
		硝酸溶液の沸騰	蒸気発生（蒸発、沸騰）	0.01	173	L
			廃液濃縮	0.01	176	L
			モル沸点上昇	0.01	179	L
			共沸	0.01	178	L
			塩効果	0.01	174	L
			硝酸活量	0.01	177	L
			硝酸解離度（電離度）	0.01	180	L
			結晶水脱水	0.03	163	L
			硝酸塩・酸化物析出	0.02	172	L
	硝酸、NOx反応	脱硝反応（乾固段階）	NOx、O2発生	0.20	37	H
			吸熱反応	0.13	61	M
		NOx挙動	化学平衡	0.04	139	L
			NO2の液相中への溶解	0.07	118	M
			気液中のNOx成分比変化	0.05	125	L
			NO2液相吸収に伴う亜硝酸生成	0.04	142	L
		放射線分解	放射線分解に伴う亜硝酸生成	0.07	117	M
		硝酸-壁面反応	コンクリート壁面との反応	0.04	140	L
			金属壁との反応	0.05	126	L
	揮発性Ruの移行	RuO4生成	Ru酸化	0.02	165	L
			亜硝酸によるRu還元	0.03	157	L
			乾固物からの移行	0.05	134	L
		RuO4気相移行	気液平衡	0.04	146	L
			CeによるRu揮発性低減	0.03	151	L
		気相からのRuO4除去(LPF)	Ru還元	0.03	161	L
			RuO4分解	0.03	150	L
			壁面への沈着（化学吸着/物理吸着）	0.03	153	L
			液相吸収（化学吸収）	0.02	170	L
			還元剤との反応	0.02	171	L
		工学的手段によるRuO4除去(LPF)	スプレーによる除去	0.11	67	M
			凝縮器による除去	0.08	108	M
	難揮発性物質の移行	飛沫同伴による粒子状FP生成	液面近傍における蒸気流速	0.10	74	M
			液相物性	0.06	121	L
			気相物性	0.07	111	M
			飛沫同伴	0.08	109	M
		RuO4還元による粒子状FP生成	RuO4還元による粒子状FP生成	0.42	3	H
		粒子径分布	凝集	0.28	20	H
			液滴蒸発	0.14	56	H
		気相からの粒子状FP除去(LPF)	重力沈降	0.21	34	H
			拡散泳動	0.09	83	M
			熱泳動	0.10	77	M
			慣性衝突	0.20	42	H
			気相物性	0.10	75	M
			吸湿性による粒子成長	0.14	55	H
		工学的手段による粒子状FP除去(LPF)	スプレーによる除去	0.26	23	H
			凝縮器による除去	0.21	33	H
			フィルタによる除去	0.34	9	H
	キャリアガスの振る舞い	気相流動	壁面凝縮	0.09	91	M
			ミスト生成	0.09	85	M
			差圧移流	0.11	69	M
			自然循環	0.07	113	M
			成層化	0.05	124	L
		工学的手段によるキャリアガスへの影響	スプレーによる流速抑制	0.21	32	H
			凝縮器による流速抑制	0.22	31	H
			換気系作動	0.30	15	H
	その他	沈着物からの再放出	再浮遊（再蒸発）	0.03	149	L
		高温の貯槽への注水時の放出	注水の影響	0.08	107	M

C.4.2 蒸発乾固 PIRT

前項に示した PIRT 作成チーム内の投票と，投票結果の分析・議論を反映した蒸発乾固 PIRT を表 19 に示す。

表 19 蒸発乾固 PIRT

現象			ソースターム（難揮発性FP）			ソースターム（揮発性Ru）		
分類	大項目	小項目	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期	沸騰早期	沸騰晩期	乾固期
廃液沸騰・濃縮	発熱	崩壊熱	H	H	H		H	H
	熱物性	硝酸溶液物性	H	H	L		H	L
		乾固物物性	L	M	H		M	H
		貯槽構造物の伝熱	H	H	M		H	H
	硝酸溶液の沸騰	蒸気発生（蒸発、沸騰）	H	H	L		H	L
		廃液濃縮	H	H	L		M	L
		モル沸点上昇	H	M	L		M	L
		共沸	H	M	L		M	L
		塩効果	M	M	L		M	L
		硝酸活量	M	M	L		M	L
		硝酸解離度（電離度）	M	M	L		M	L
		結晶水脱水	L	M	M		L	L
		硝酸塩・酸化物析出	M	M	L		L	L
硝酸、NOx 反応	脱硝反応（乾固段階）	NOx、O2発生	L	M	H		M	H
	NOx挙動	吸熱反応	L	M	M		M	H
		化学平衡	L	M	L		M	M
		NO2の液相中への溶解	M	H	M		M	M
		気液中のNOx成分比変化	L	M	L		M	M
		NO2液相吸収に伴う亜硝酸生成	L	L	L		M	H
	放射線分解	放射線分解に伴う亜硝酸生成	M	H	M		H	M
	硝酸-壁面反応	コンクリート壁面との反応	M	M	L		M	M
		金属壁との反応	M	M	L		H	H
揮発性Ruの移行	RuO4生成	Ru酸化	L	M	L		H	H
		亜硝酸によるRu還元	L	L	L		H	M
		乾固物からの移行	L	L	L		M	H
	RuO4気相移行	気液平衡	L	M	L		H	H
		CeによるRu揮発性低減	L	L	L		H	H
	気相からのRuO4除去(LPF)	Ru還元	L	L	L		M	H
		RuO4分解	L	L	L		H	H
		壁面への沈着（化学吸着/物理吸着）	L	L	L		H	H
		液相吸収（化学吸収）	L	L	L		H	H
		還元剤との反応	L	L	L		M	M
難揮発性物質の移行	飛沫同伴による粒子状FP生成	液面近傍における蒸気流速	H	H	M		L	L
		液相物性	H	H	M		L	L
		気相物性	M	M	M		L	L
		飛沫同伴	H	H	M		L	L
	RuO4還元による粒子状FP生成	RuO4還元による粒子状FP生成	L	L	L		H	H
	粒子径分布	凝集	H	H	H		M	M
		液滴蒸発	H	H	H		L	L
	気相からの粒子状FP除去(LPF)	重力沈降	H	H	H		L	L
		拡散泳動	H	M	M		L	L
		熱泳動	M	M	M		L	L
		慣性衝突	H	H	H		L	L
		気相物性	M	M	M		L	L
	工学的手段による粒子状FP除去(LPF)	吸湿性による粒子成長	H	H	H		L	L
		スプレーによる除去	H	H	H		M	M
		凝縮器による除去	H	H	H		M	L
		フィルタによる除去	H	H	H		L	L
キャリアガスの振る舞い	気相流動	壁面凝縮	H	M	M		M	M
		ミスト生成	H	H	M		M	M
		差圧移流	M	M	M		M	M
		自然循環	M	M	M		M	L
		成層化	M	L	L		M	L
	工学的手段によるキャリアガスへの影響	スプレーによる流速抑制	H	H	H		H	H
		凝縮器による流速抑制	H	H	H		H	H
		換気系作動	H	H	H		H	H
その他	沈着物からの再放出	再浮遊（再蒸発）	L	L	L		L	M
	高温の貯槽への注水時の放出	注水の影響	L	M	M		M	M

※揮発性Ruは沸騰初期（沸騰開始～廃液温度120℃）では発生しないとの既存知見より、「沸騰早期の揮発性Ruの環境放出量」はFOMから除外

C.5 まとめ

蒸発乾固事故 PIRT 整備のため、事故シナリオに含まれる重要な物理/化学現象の抽出（本書 2.章）、および、現時点での知識ベース整理を実施した（本書 3.章）。この上で、各現象がソースターム（難揮発性 FP/揮発性 Ru）に及ぼす影響度ランキング決定のため、専門家投票を実施した（本書 4.章）。

PIRT で掲げている物理/化学現象とそれに付記した知識ベースは現状のものであり、将来の研究開発の進展、PIRT 利用先の拡大、及び運用事例の蓄積からのフィードバックにより適宜更新していくことが必須となる。PIRT 及び知識ベースは業界全体の財産であり、維持管理を継続するための体制整備が必要となる。

C.6 参考文献

-
- i 日本原子力学会再処理・リサイクル部核燃料施設シビア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).
 - ii 日本原子力学会再処理・リサイクル部核燃料サイクル施設シビアアクシデント研究ワーキンググループ フェーズⅡ 報告書「再処理施設において想定される事故の影響評価手法の現状と課題」(2017).
 - iii 日本原子力学会「シビアアクシデント評価」研究専門委員会「シビアアクシデント評価に関する調査研究報告書」(2014).
 - iv 日本原子力学会「シミュレーションの信頼性確保に関するガイドライン (AESJ-SC-A008:2015)