

安全研究成果報告（中間）（案）

安全研究プロジェクトの中間評価用資料
(核燃料サイクル技術評価検討会資料)

再処理施設及びMOX燃料加工施設における
重大事故等の事象進展に係る研究

Study on the Event Progression of Severe Accidents at Reprocessing Facilities
and MOX Fuel Fabrication Facilities

山口 晃範 瀧澤 真 古田 昌代 櫻井 智明 森 憲治
久保田 和雄

YAMAGUCHI Akinori, TAKIZAWA Makoto, FURUTA Masayo, SAKURAI Tomoaki,
MORI Kenji, and KUBOTA Kazuo

システム安全研究部門

Division of Research for Reactor System Safety

原子力規制庁

長官官房技術基盤グループ

Regulatory Standard and Research Department,

Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R)

本資料は、原子力規制庁長官官房技術基盤グループで実施している安全研究プロジェクトの中間評価で使用するため、安全研究プロジェクトの活動内容、途中段階における成果等を取りまとめたものです。このため、今後の研究進捗によって、考察、結論等が変更となる可能性があります。なお、最終的な成果報告書は、プロジェクト終了後に別途取りまとめて公表する予定です。

本資料の内容に関するご質問は、下記にお問い合わせください。

原子力規制庁 長官官房 技術基盤グループ システム安全研究部門
〒106-8450 東京都港区六本木 1-9-9 六本木ファーストビル
電話：03-5114-2223
ファックス：03-5114-2233

再処理施設及び MOX 燃料加工施設における重大事故等の事象進展に係る研究

原子力規制庁 長官官房技術基盤グループ
システム安全研究部門

山口 晃範 瀧澤 真 古田 昌代 櫻井 智明 森 憲治
久保田 和雄

要 旨

本安全研究プロジェクト（再処理施設及びMOX燃料加工施設における重大事故等の事象進展に係る研究（実施期間令和3年度～令和7年度））は、再処理施設及び混合酸化物燃料（以下「MOX燃料」という。）加工施設における原子力規制検査に資するため、重大事故等の事象進展に係るリスク情報の蓄積を図るものであり、それぞれの施設の重大事故に関連する重要な事象とされる、再処理施設における蒸発乾固事象及びMOX燃料加工施設におけるグローブボックス（以下「GB」という。）火災に着目し、研究を行っている。

再処理施設における蒸発乾固事象に係る研究では、高レベル廃液の沸騰段階から乾固段階、さらには乾固後の温度上昇の段階における放射性物質の挙動に関する知見の取得を目的としている。この課題に関する先行安全研究プロジェクト（再処理施設のリスク評価に係る研究（平成24年度～平成28年度）、加工施設及び再処理施設の内部火災等に関するリスク評価手法に関する研究（平成29年度～令和2年度））において、主に沸騰段階から乾固段階までの放射性物質の挙動に関する知見を取得している。本安全研究プロジェクトでは、先行安全研究プロジェクトの結果を踏まえて課題として抽出した乾固後の温度上昇の段階における「準揮発性物質の移行挙動」及び沸騰段階から乾固段階に係る「重大事故対策の緩和対策やその際に想定される機器設備の環境を踏まえた条件での放射性物質移行挙動」と「凝縮液へのRuの化学吸収効果」を研究対象とする。これらの課題に関する試験は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構に委託することにより実施し、試験条件の検討及び予備試験・解析を終え、現在、本格試験と知見収集を計画どおり進めている。また、長期的な目標としている事象進展解析コードの整備については、整備方針を検討している。

MOX燃料加工施設におけるGB火災については、GBを構成する材料の燃焼挙動から

実規模の GB の燃焼挙動までを対象とする。先行安全研究プロジェクトにおいて、GB を構成するパネル等の燃焼挙動や火災解析コードの GB 火災適用に関する知見を取得した。本安全研究プロジェクトでは、実規模の GB 火災に関する知見の取得を目的として、中規模の GB 火災を模擬した試験データに基づく解析を計画どおり実施している。また、火災防護対策を考慮した仮想的な GB 火災シナリオを対象として、火災解析コードを用いた解析を行っている。

以上の試験及び解析から得た結果を踏まえた分析により、これらの事象進展に係るリスク情報となる科学的・技術的知見を取得している。

Study on the Event Progression of Severe Accidents at Reprocessing Facilities and MOX Fuel
Fabrication Facilities

YAMAGUCHI Akinori, TAKIZAWA Makoto, FURUTA Masayo,
SAKURAI Tomoaki, MORI Kenji, and KUBOTA Kazuo

Division of Research for Reactor System Safety,
Regulatory Standard and Research Department,
Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R)

Abstract

To contribute to nuclear regulatory inspections at reprocessing and mixed oxide (MOX) fuel fabrication facilities, this safety research project (“Study on the Event Progression of Severe Accidents at Reprocessing Facilities and MOX Fuel Fabrication Facilities (2021~2025)”) aims to collect key risk information related to the event progression of severe accidents at these facilities. For risk information, this study focuses on evaporation to dryness events at reprocessing facilities and glove box (GB) fires at MOX fuel fabrication facilities.

In the research of the secretariat on evaporation to dryness events at reprocessing facilities, the purpose is to acquire knowledge about the behavior of radioactive materials during the boiling stage, the drying stage, and the temperature rising stage after drying of high-level liquid waste. Through the previous safety research project (“Research on Risk Assessment for Reprocessing Facilities (2012~2016)”, “Study on Risk Assessment Methods for Internal Fire and Other Events in Nuclear Fuel Fabrication and Reprocessing Facilities (2017~2020)”) for this subject, knowledge has been acquired on the behavior of radioactive materials mainly for the boiling stage to the drying stage. The ongoing research project aims to address the issues highlighted in the previous project, such as the radioactive material migration behavior based on actual facility conditions, migration behavior of semivolatile substances, chemical absorption effect of Ru on the condensate water. Experiments concerning these issues are performed by entrusting to the Japan Atomic Energy Agency. After consideration of experiment conditions, preliminary experiments and analysis have been completed, main experiments are currently underway and knowledge is being collected as planned. In addition, the development policy is being considered for the event progression analysis code which is a long-term goal of this issue.

The research of GB fires at MOX fuel fabrication facilities focuses on the combustion behavior of GB constituent materials and the combustion behavior of full-scale GBs. In the previous

project, knowledge was acquired about the combustion behavior of the panels that make up the GB and the application of the fire analysis code to the GB fire. The purpose of this ongoing research is to obtain information on a full-scale GB fire. At present, analysis based on test data simulating a medium-scale GB fire is progressed as planned. In addition, a hypothetical GB fire scenario considering fire safety measures is analyzed using a fire simulation code.

Based on the results obtained from the above experiments and analyses, scientific and technical findings are obtained regarding risk information related to the development of these events.

目次

1. 序論.....	1
1.1 背景	1
1.2 加工施設及び再処理施設に係るリスク評価に関する既往の研究の成果.....	3
1.3 目的	5
1.4 全体行程	7
2. 本論.....	8
2.1 蒸発乾固事象に関する研究.....	8
2.1.1 研究の概要	9
2.1.2 亜硝酸による Ru の気相への移行抑制効果.....	9
2.1.3 NO _x 含有気相における気体状 Ru 化合物の分解挙動	19
2.1.4 凝縮液への Ru の化学吸収挙動の把握	30
2.1.5 準揮発性物質の移行挙動の把握.....	35
2.1.6 事象進展解析コードの整備に向けた課題の分析	45
2.2 GB 火災に関する研究	51
2.2.1 研究の概要	51
2.2.2 GB 火災の挙動に関する知見の取得（実規模 GB 火災に関する知見）	54
2.2.3 GB 火災の挙動に関する知見の取得（火災防護対策に関する知見）	54
2.2.4 実規模 GB 火災等の試験データに基づく火災解析.....	89
3. 結論.....	90
3.1 成果の要点	90
3.1.1 蒸発乾固事象に関する研究.....	90
3.1.2 GB 火災に関する研究.....	90
3.2 目的の達成状況.....	90
3.3 成果の公表等	91
3.3.1 原子力規制庁の職員が著者に含まれる公表	91
3.3.2 委託先による公表.....	91
3.4 成果の活用等	91
3.5 今後の課題等	91
参考文献一覧	93
執筆者一覧	98

表 目 次

表 2.1.1 模擬廃液の組成.....	13
表 2.1.2 亜硝酸添加試験の条件.....	14
表 2.1.3 亜硝酸添加試験における装置の概要.....	14
表 2.1.4 放射線照射試験条件.....	15
表 2.1.5 Ru 気相反応試験条件.....	23
表 2.1.6 Ru 気相反応試験の結果.....	23
表 2.1.7 Ru 分解反応試験条件.....	24
表 2.1.8 各試験での試験装置各部における Ru 捕集率.....	25
表 2.1.9 流通式試験と回分式試験の Ru 残存率比較.....	26
表 2.1.10 Ru 気液接触試験条件.....	33
表 2.1.11 乾固物中に形成される可能性がある Cs 化合物等の融点及び沸点.....	39
表 2.1.12 Re 添加模擬廃液の組成.....	40
表 2.1.13 Cs 等元素移行挙動試験条件一覧.....	41
表 2.1.14 Cs 化合物等の融解エンタルピー.....	41
表 2.1.15 高レベル濃縮廃液貯槽内で発生する事象の整理.....	48
表 2.1.16 移行経路内で発生する事象の整理.....	49
表 2.1.17 影響緩和対策由来の事象の整理.....	50
表 2.2.1 GB 内火災及び GB 外火災の特徴.....	53
表 2.2.2 解析及び分析の対象とする項目.....	53
表 2.2.3 代表シナリオの設定に関する基本的な条件.....	61
表 2.2.4 代表シナリオの前提条件.....	62
表 2.2.5 代表シナリオの Phase 1 を対象とした火災解析の方針と前提条件.....	63
表 2.2.6 SYLVIA の特徴.....	64
表 2.2.7 解析対象とした GB の条件.....	65
表 2.2.8 GB 及び可燃物の物性値.....	66
表 2.2.9 解析ケース.....	66
表 2.2.10 換気系モデルに関する設定（ノード）（その 1）.....	67
表 2.2.11 換気系モデルに関する設定（ノード）（その 2）.....	68
表 2.2.12 換気系モデルに関する設定（ブランチ）.....	69
表 2.2.13 各対策のタイミング.....	70
表 2.2.14 火災対策の条件を対象とした感度解析の解析ケース.....	70

目 次

図 1.2.1 蒸発乾固事故の事象進展に応じた放射性物質等の移行挙動の概要図	4
図 1.2.2 GB 火災における試験規模の推移	5
図 1.4.1 全体行程	7
図 2.1.1 亜硝酸ナトリウム添加試験装置の概略図	15
図 2.1.2 使用した加熱容器の写真	16
図 2.1.3 加熱試験溶液中の Cs の濃度変化	16
図 2.1.4 加熱試験溶液中の硝酸の濃度変化	17
図 2.1.5 加熱試験溶液中の亜硝酸の濃度変化	17
図 2.1.6 回収液に移行した気体状 Ru 量	18
図 2.1.7 Co-60 ガンマ線照射装置の概略図	18
図 2.1.8 照射体系の概略	19
図 2.1.9 放射線照射による亜硝酸濃度の増加分	19
図 2.1.10 Ru 気相反応試験装置の概略図	26
図 2.1.11 温度が RuO ₄ 分解に与える影響(Run1～4 比較)	27
図 2.1.12 温度が RuO ₄ 分解に与える影響(Run5 及び 6 の比較)	27
図 2.1.13 NO _x 濃度が RuO ₄ 分解に与える影響(Run2 及び 5 の比較)	28
図 2.1.14 硝酸濃度が RuO ₄ 分解に与える影響(Run2 及び 7 の比較)	28
図 2.1.15 亜硝酸濃度が RuO ₄ 分解に与える影響(Run5 及び 8 の比較)	29
図 2.1.16 Ru 気相部移行試験装置の概略図	29
図 2.1.17 Ru 気相部移行試験装置の概略図 (UV 分光器追加版)	30
図 2.1.18 Ru 気液接触試験装置の概略図	33
図 2.1.19 Ru 気液接触試験装置の写真	34
図 2.1.20 物質移動係数と温度・亜硝酸濃度の関係	34
図 2.1.21 模擬乾固物及び Re 添加模擬乾固物の TG 曲線	42
図 2.1.22 Cs 等移行挙動試験装置の写真	42
図 2.1.23 Cs 等元素の ARF (模擬乾固物)	43
図 2.1.24 模擬乾固物から発生した Cs 等元素の LPF	43
図 2.1.25 Cs 等元素の ARF (Re 添加模擬乾固物)	44
図 2.1.26 Re 添加模擬乾固物から発生した Cs 等元素の LPF	44
図 2.1.27 解析モデルの概要図	45
図 2.1.28 解析モデルの改良案の概要図	45
図 2.2.1 代表的な GB 火災シナリオ	71
図 2.2.2 モデルプラントの系統図	71
図 2.2.3 Phase 1 を対象とした解析の対象範囲 (赤色で示す)	72
図 2.2.4 モデルプラントにおける GB の模式図	72

図 2.2.5 GB の寸法（正面図）	73
図 2.2.6 GB の寸法（側面図）	73
図 2.2.7 換気系ネットワークモデル	74
図 2.2.8 GB 排風機のモデル化において設定したファンの特性曲線	74
図 2.2.9 GB の解析モデル	75
図 2.2.10 GB パネル温度の出力位置	75
図 2.2.11 本解析で入力したエタノール燃焼時の燃焼面積の時間変化	76
図 2.2.12 Peatross and Beyler 則に基づく補正係数	76
図 2.2.13 HRR の時間変化.....	77
図 2.2.14 GB 内酸素モル分率の時間変化.....	77
図 2.2.15 GB 内圧力の時間変化	78
図 2.2.16 GB 内への給気流量の時間変化.....	78
図 2.2.17 GB 内の高温層温度及び低温層温度の時間変化	79
図 2.2.18 GB パネル温度の時間変化	79
図 2.2.19 HRR の時間変化（弁及びダンパ閉止時の流路抵抗の効果）	80
図 2.2.20 GB 内酸素モル分率の時間変化（弁及びダンパ閉止時の流路抵抗の効果）	80
図 2.2.21 GB 内圧力の時間変化（弁及びダンパ閉止時の流路抵抗の効果）	81
図 2.2.22 GB 内への給気流量の時間変化（弁及びダンパ閉止時の流路抵抗の効果）	81
図 2.2.23 GB 内の高温層温度の時間変化（弁及びダンパ閉止時の流路抵抗の効果）	82
図 2.2.24 GB パネル温度の時間変化（弁及びダンパ閉止時の流路抵抗の効果）	82
図 2.2.25 HRR の時間変化（消火ガスの供給流量の効果）	83
図 2.2.26 GB 内酸素モル分率の時間変化（消火ガスの供給流量の効果）	83
図 2.2.27 GB 内圧力の時間変化（消火ガスの供給流量の効果）	84
図 2.2.28 GB 内への給気流量の時間変化（消火ガスの供給流量の効果）	84
図 2.2.29 GB 内の高温層の時間変化（消火ガスの供給流量の効果）	85
図 2.2.30 GB パネル温度の時間変化（消火ガスの供給流量の効果）	85
図 2.2.31 HRR の時間変化（消火ガス供給の継続時間の効果）	86
図 2.2.32 GB 内酸素モル分率の時間変化（消火ガス供給の継続時間の効果）	86
図 2.2.33 GB 内圧力の時間変化（消火ガス供給の継続時間の効果）	87
図 2.2.34 GB 内への給気流量の時間変化（消火ガス供給の継続時間の効果）	87
図 2.2.35 GB 内の高温層温度の時間変化（消火ガス供給の継続時間の効果）	88
図 2.2.36 GB パネル温度の時間変化（消火ガス供給の継続時間の効果）	88

1. 序論

1.1 背景

核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律（昭和 32 年法律第 166 号。以下「原子炉等規制法」という。）第 61 条の 2 の 2 第 1 項 4 号ロにおいて、原子力事業者及び核原料物質を使用する者は、保安のために必要な措置について、原子力規制委員会が行う検査を受けなければならないとされている。これを踏まえた新たな検査制度（以下「原子力規制検査」という。）が令和 2 年 4 月から施行された。原子力規制検査を実施するに当たり策定された原子力規制検査等実施要領^{1,1,1}においては、検査の実施方針の作成、検査指摘事項の重要度評価等において、合理的な範囲でリスク情報を活用し、効率的かつ効果的な検査の実施に努めることとされている。同要領において、リスク情報とは、各監視領域に関連する活動目的を達成できていない可能性又は状況及びその程度を検討・評価するために有用な原子力施設の状態及び事業者の安全活動状況等に関する情報であり、直接的なものだけでなく、その可能性等の要因の特定や影響の大きさ等を含んでいるものとされ、また、従来用いている安全上の重要度、運転経験及び不適合情報等の定性的な情報に加え、確率論的リスク評価（PRA）により得られる計算結果や知見等の定量的な情報とされている。なお、本安全研究プロジェクトでは、このようなリスク情報のうち、主に「その可能性等の要因の特定や影響の大きさ」を対象とする。

このようなリスク情報を得るに当たっては、想定される事故シナリオ^(注1)、特に重大事故シナリオの不確かさを低減することが重要である。ここで不確かさの低減とは、対象とする事象の物理化学的挙動を把握することにより、発生する事象、影響の大きさや範囲、事象進展の速さ（余裕時間）等の事象進展シナリオに係るリスク情報の精度を高めることのほか、得られた結果から新たな事象や有効な事故対策が確認できる場合には、既存の事故シナリオの修正や新たなシナリオの抽出を意味することとする。これらの不確かさの低減においては、事故シナリオを過度に保守的となることなく定量的に構築するためのデータや解析コード（以下「データ等」という。）が必要になる。既往の安全研究プロジェクト^(注2)においてもこのようなデータ等の整備を行ってきたが、既往の安全研究プロジェクトで

(注1) ここでの事故シナリオには事故対策を講じなかった場合の事故シナリオを含むものとする。核燃料施設では、重大事故を含め事故に対して対策が講じられ、新規制基準適合性の審査においてその有効性が確認されている。原子力規制検査ではこのような対策に関係する機器・設備が対象となるが、これらの機器・設備は施設の種類により、その数が多数に上る場合がある。このため、検査対象となる機器・設備について、対策に対する貢献の度合い（重要度）を評価できれば、検査に優先順位を設けるなど、効率的な検査が可能になるものとする。このような重要度評価の方法の一つとして、対策を講じなかった場合の事故シナリオの影響の大きさを定量的に評価することが考えられ、そのシナリオの最終状態（これは、対策が施されていれば到達することはない状態である。）まで考慮することにより、当該対策に関連する機器の潜在的な重要度が明確になるものとする。

(注2) 加工施設のリスク評価に係る研究(平成 24 年度～平成 28 年度)^{1,1,2}、再処理施設のリス

網羅されておらず、かつ影響度の大きい事故シナリオの整備から得られたデータ等と、既に得られているデータ等とを合わせて得られるリスク情報は、検査の実施方針の作成及び検査指摘事項の重要度評価結果に含まれる不確かさの低減に活用できることから、効率的かつ効果的な検査の実施のために重要である。

再処理施設及び混合酸化物燃料（以下「MOX 燃料」という。）加工施設における重大事故としては様々な事象が想定されており、使用済燃料の再処理の事業に関する規則（昭和四十六年総理府令第十号）では、「臨界事故」、「冷却機能の喪失による蒸発乾固」、「放射線分解により発生する水素による爆発」、「有機溶媒等による火災又は爆発」、「使用済燃料貯蔵槽に貯蔵する燃料の損傷」及び「放射性物質の漏えい」が挙げられ、核燃料物質の加工の事業に関する規則（昭和四十一年総理府令第三十七号）では「臨界事故」及び「核燃料物質等を閉じ込める機能の喪失」が挙げられている。これまで実施してきた加工施設及び再処理施設に係るリスク評価に関する安全研究プロジェクトでは、上に挙げた事象のうち、再処理施設については高レベル廃液の蒸発乾固事象を、MOX 燃料加工施設ではグローブボックス（以下「GB」という。）火災を重大事故に関連する事象として、その現象理解のための研究を実施してきた。これらの事象を安全研究プロジェクトの対象とした理由は以下のとおりである。

○再処理施設において冷却機能の喪失による蒸発乾固事象を対象とした理由

実施設の新規制基準適合性審査結果^{1.1.3}によると、設計基準を超える厳しい条件下での発生を仮定した重大事故として、高レベル廃液等を含む貯槽及び濃縮缶の冷却機能喪失事象及び水素掃気機能喪失事象並びに燃料貯蔵プール等の冷却等の機能喪失が挙げられている^(注3)。これらの事象に対してはいずれも重大事故対策がとられているが、これらの対策をとらなかった場合、冷却機能喪失事象では高レベル廃液の蒸発乾固事象の発生、水素掃気機能喪失事象では放射性分解により発生する水素による爆発の発生、また、燃料貯蔵プール等の冷却等の機能喪失事象では使用済燃料の著しい損傷に至る可能性がある。このうち、使用済燃料の著しい損傷についての振る舞いに対する理解には実用発電用原子炉の知見が活用できるものと考えられる。このため安全研究の対象として、冷却機能喪失事象における蒸発乾固事象及び水素掃気機能喪失事象における水素爆発に着目されるが、蒸発乾固事象については、高レベル廃液等がある一定温度を超えた際に放射性的揮発性物質の気相への移行を示唆する知見が得られており、この知見から、蒸発乾固事象における気相への移行割合は水素爆発時に想定される飛まつ同伴による放射性物質の気相への移行割合に比べ

ク評価に係る研究(平成 24 年度～平成 28 年度)^{1.1.4}、加工施設及び再処理施設の内部火災等に関するリスク評価手法に関する研究(平成 29 年度～令和 2 年度)^{1.1.5}

^(注3) 他の重大事故の候補として挙げられる臨界及び TBP 等の錯体の急激な分解反応については、新規制基準適合性審査^{1.1.3}において、設定された設計基準を超える厳しい条件下での発生は想定されないものとされている。

て大きいものと考えられる^{1.1.6, 1.1.7}。以上から、本研究における再処理施設の重大事故に関連する事象として、蒸発乾固事象を取り上げた。

○MOX 燃料加工施設において GB 火災を対象とした理由

国内の MOX 燃料加工施設においては、核燃料物質を原則として乾式で取り扱うことなどから臨界事故は想定されておらず、仮に発生したとしても、臨界バーストは継続せず直接放射線は施設の構造物で遮蔽され、一般公衆の被ばくという観点からは相対的な影響は大きくないものと考えられる。一方、閉じ込め機能の喪失では、MOX 燃料粉末の環境への放出が想定されるが、その駆動力を与える事象として MOX 燃料粉末を内包する GB の火災が考えられる^(注4)。GB は可燃性のアクリルや難燃性のポリカーボネート（以下「PC」という。）等の有機材料で構成されており、GB 内外において火災が発生した場合は、GB に延焼し、GB 自体が火災源となるおそれがある。GB については施設内の広範な領域に多数基設置されるものと考えられ、MOX 燃料加工施設の特徴の一つとなっている。また、GB 火災は、有機材料で構成される GB パネルの熱分解及び燃焼、それに伴う熱流動、燃焼に伴うばい煙の発生等といった現象があり、GB 間での延焼による規模の拡大も想定されることから、事象進展に伴う火災の挙動（火災による事故シナリオ）は一般に複雑になると考えられる。加えて、海外では GB の火災が多数報告されており^{1.1.8}、フランス放射線防護原子力安全研究所（IRSN）では GB 火災に関する試験が進行中である^{1.1.9}。このような理由から、MOX 燃料加工施設の重大事故である閉じ込め機能の喪失に関連する事象として GB 火災を取り上げた。

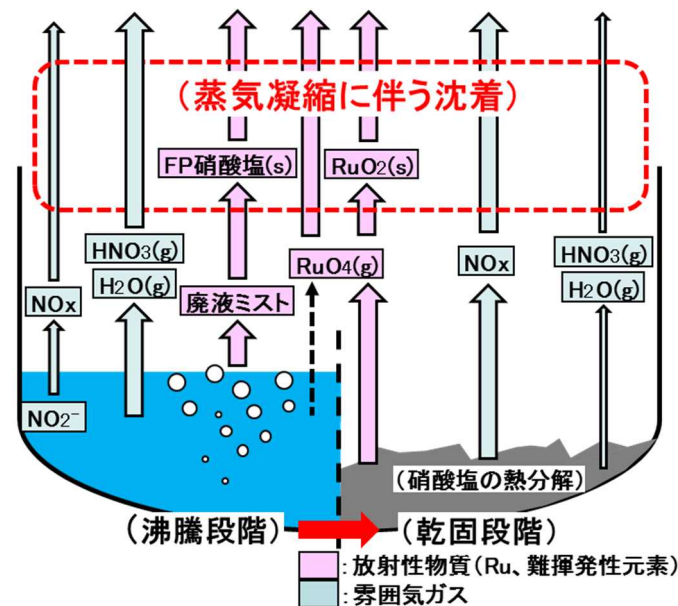
1.2 加工施設及び再処理施設に係るリスク評価に関する既往の研究の成果

(1) 蒸発乾固事象に関する研究

蒸発乾固事象とは、高レベル廃液等の冷却機能が喪失し、事故対策がとられなかった場合に、高レベル廃液等の沸騰により溶液中の水分が蒸発し、やがて水分が無くなり、最終的には溶質が乾燥・固化に至るまでの一連の現象をいう。図 1.2.1 に示す概念図のとおり、蒸発乾固事象では沸騰段階や乾固段階といった事象進展に応じて、放射性物質の挙動や環境条件（蒸気・ガス組成等）が大きく変化する。特に再処理施設内の溶液状の放射性物質の放射能インベントリの大半は高レベル濃縮廃液貯槽に存在しているため、蒸発乾固事象発生時の影響の大きさを適切に評価する観点から、同貯槽内での蒸発乾固時の事象進展に応じた放射性物質の移行挙動を解明することが重要である。既往の研究では、仏国の Philippe らによる高レベル廃液等の沸騰に伴う揮発性 Ru の発生温度に関する研究^{1.1.10}、「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究」運営管理グループによる高レベル廃液の温度

^(注4) 国内の MOX 燃料加工施設においては、重大事故（閉じ込め機能の喪失）の要因として GB 火災が挙げられている^{1.1.11}。

に対する放射性揮発性物質の気相への移行挙動に関する研究等が実施されている。原子力規制庁では、これらで得られた知見を踏まえ、既往の安全研究プロジェクト^{1.1.5}において、「沸騰初期段階」から「乾固段階」にかけて発生する主な揮発性放射性物質である Ru の移行挙動に着目して、当該の範囲の段階における「液相から気相への放射性物質移行挙動」、「放出経路中での放射性物質移行挙動」等に関するより詳細な、一連の試験データ等を取得した^{1.1.12、1.1.13}。



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 31 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等、令和 2 年 3 月より引用^{1.1.11}

図 1.2.1 蒸発乾固事故の事象進展に応じた放射性物質等の移行挙動の概要図

Fig. 1.2.1 Overview diagram of the migration behavior of radioactive substances, etc. according to the event progression of the evaporation to dryness accident

(2) GB 火災に関する研究

MOX 燃料加工施設での重大事故(核燃料物質等を閉じ込める機能の喪失)に関連する事象である GB 火災について、既往の研究として、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の阿部らにより、GB の構成材材料の基礎的な熱特性試験が実施されており^{1.1.14、1.1.15}、また、フランス IRSN では、実規模の GB の燃焼試験が進行中である^{1.1.9}。原子力規制庁では、既往の安全研究プロジェクト^{1.1.16}において、これらの試験で得られた知見を踏まえつつ、GB を構成するパネル等の材料片を用いた小規模試験及びパネル単体を用いた中規模試験等(図 1.2.2 参照)により、施設の閉じ込め性能に重要となるこれらの熱分解特性及び燃焼特性に関するデータを取得した(これらのデータは、GB 火災の燃焼挙動のシミュ

レーションに用いる。)。また、同試験では、これらの燃焼に伴って発生するばい煙等のフィルタへの影響等に関するデータを取得・分析した。

この他、IRSN が開発した SYLVIA コード (ゾーンモデルコード) 及び CFD (Computational Fluid Dynamics) コードを用いて GB 火災について解析を行い、解析コードの適用に関する妥当性を確認するとともに、関連する換気システムの影響を含めた火災進展に関する知見を収集・蓄積した。

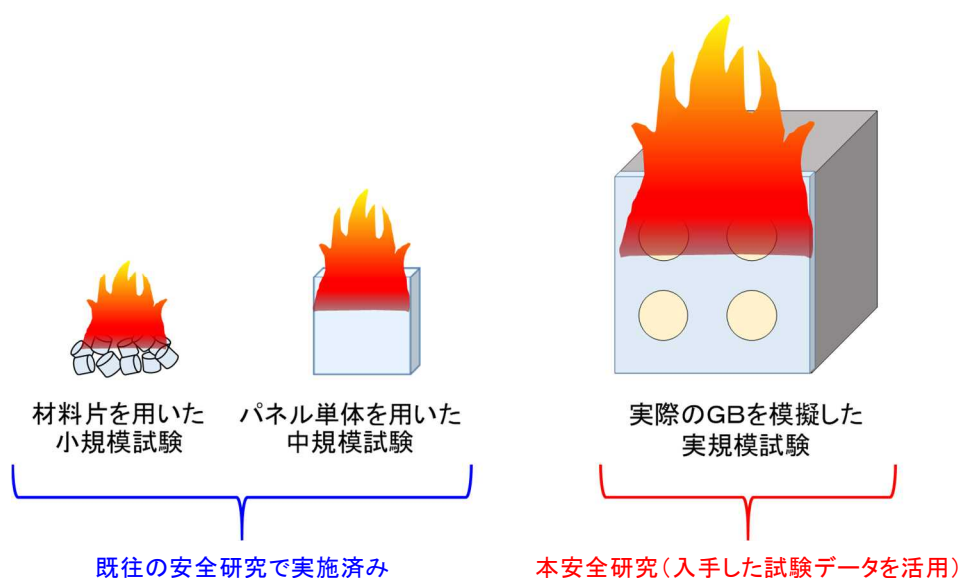


図 1.2.2 GB 火災における試験規模の推移

Fig. 1.2.2 Gradual escalation of test scale of GB fire test

1.3 目的

核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律第 61 条の 2 の 2 第 1 項 4 号ロで規定している事項 (保安のために必要な措置) に係る原子力規制検査を実施する際の技術基盤に資するために行うものである。

原子力規制検査制度では、検査の実施方針、検査指摘事項の重要度を検討するためのリスク情報が重要である。このようなリスク情報を得るに当たっては想定される事故シナリオ (特に重大事故シナリオ) を、その不確かさを低減することにより明確にする必要がある。これを踏まえ、再処理施設及び MOX 燃料加工施設における事故シナリオの不確かさの低減を目的として、既往の安全研究で網羅されておらず、かつ影響度の大きい事故シナリオに係るデータ等を整備し、既往の安全研究で得られているデータ等と合わせて得られる必要なリスク情報を蓄積するため、以下の項目の技術的検討を行う。

(1) 蒸発乾固事象に関する研究

既往の安全研究では、「沸騰初期段階」から「乾固段階」までにおける試験データを取得したが、「乾固後の温度上昇段階」における条件下については、十分な試験データは取得で

きていない。「乾固後の温度上昇段階」では、高温で揮発する可能性があり^{1.1.6}、また、被ばく線量への影響が大きい Cs の移行挙動が重要である。このため、本安全研究プロジェクトでは、「乾固後の温度上昇段階」に拡張した Cs の移行挙動データを取得する必要がある。また、「沸騰初期段階」、「沸騰晩期段階」及び「乾固段階」において、最新の再処理施設の重大事故対策や実施環境を踏まえて想定される条件下に拡張した Ru の移行挙動データ（亜硝酸による気相への移行抑制効果及び NOx 含有気相における分解挙動）を取得するとともに、先行研究での研究成果により、「放出経路中での放射性物質移行挙動」を把握するために重要な現象であることが示唆された凝縮液への Ru の化学吸収効果について、この現象をより詳細に把握するためのデータの拡充を行う必要がある。さらに、長期的な目標として事象進展解析コードの整備のために検討を進めていく必要がある。これを踏まえて本安全研究プロジェクトでは、これらのデータの取得及びコード整備のための検討を実施する。

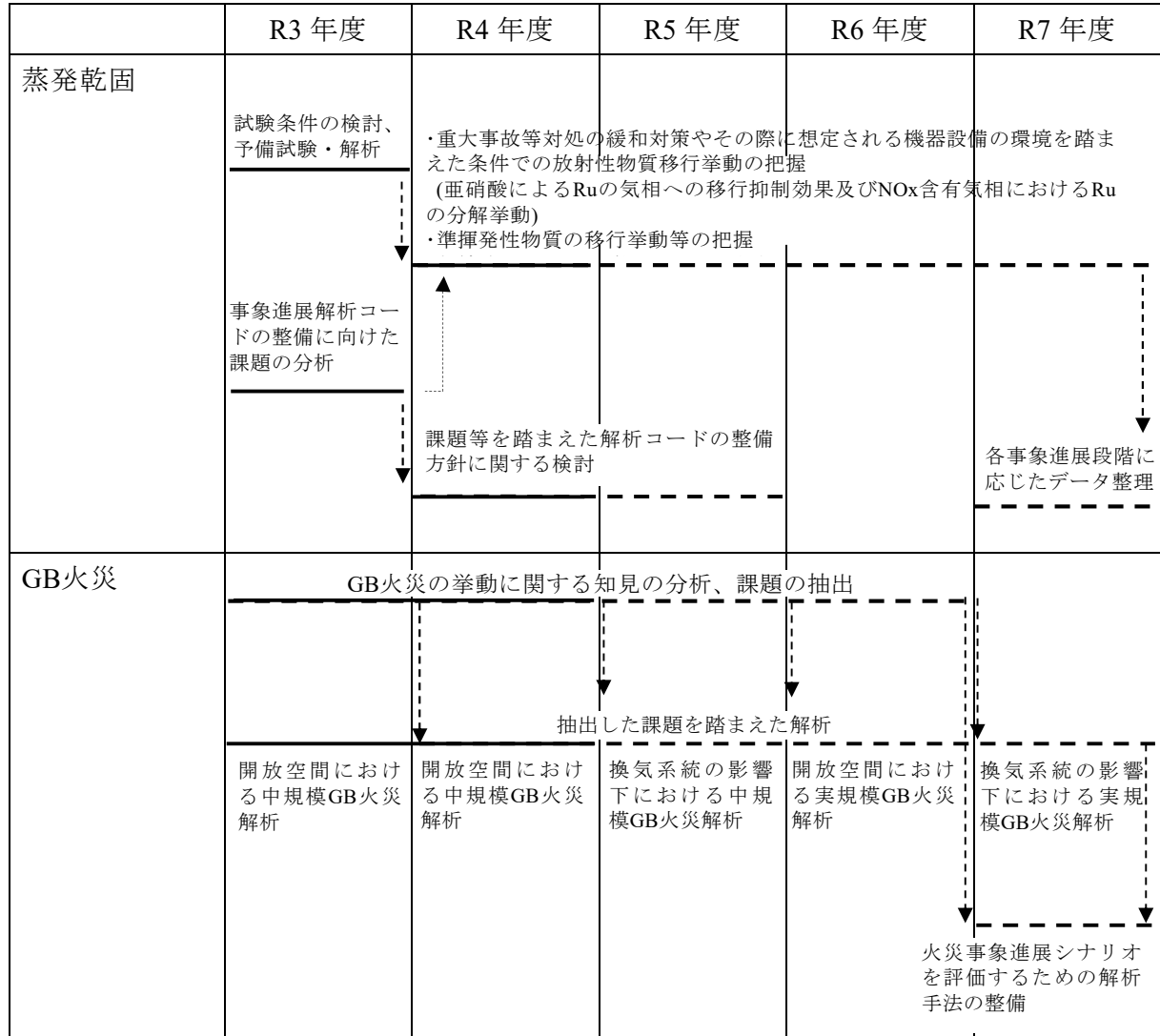
(2) GB 火災に関する研究

既往の研究により小規模、中規模試験等により GB 火災に関する基礎的な知見を取得したが、GB 火災の燃焼挙動は、GB 自体の大きさ及び構成（材料パネルの設置位置、開口部の有無等）に大きく影響される。これは、GB パネルのスケール効果や GB 内外の熱流動の影響が大きくなるためであり、実際の GB 火災の事象進展に関する知見が必須である。しかし、これらの知見は十分に得られておらず、実際の GB を模擬した実規模の試験データ（以下「実規模 GB 火災の試験データ」という。）に基づく解析等により、当該知見を取得する必要がある。本安全研究プロジェクトでは、これらのデータ及び知見の取得を実施する^(注5)。図 1.2.2 にこれまでの実績を踏まえた GB 火災試験の試験規模の推移を示す。

(注5) 原子力規制庁は IRSN と研究協定「RESEARCH AGREEMENT ON THE IRSN GLOVE BOX FIRES PROGRAM」(2019年～2023年)を締結しており、試験データとして、IRSNが実施している実規模の GB 火災試験^{1.1.9}のデータを用いる。

1.4 全体行程

本安全研究プロジェクトの全体行程を図 1.4.1 に示す。なお、蒸発乾固事象の試験については、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構への委託事業として実施した。



実線：実施済み

破線：計画

図 1.4.1 全体行程

Fig. 1.4.1 Overall process of project

2. 本論

2.1 蒸発乾固事象に関する研究

図 1.2.1 に示す概念図のとおり、蒸発乾固事象では沸騰段階から乾固段階といった事象進展に応じて、放射性物質の挙動や環境条件（蒸気・ガス組成等）が大きく変化する。本報告では、事象進展を「非沸騰段階」、「沸騰初期段階」、「沸騰晩期段階」、「乾固段階」及び「乾固後の温度上昇段階」に分けて整理した。本報告における各段階の定義は文献^{1.1.13}を参考に、次のとおりとした。

非沸騰段階	高レベル濃縮廃液の液量がほぼ不変(廃液の温度域：104 °C未満) ^{1.1.10} 。放射性物質の気相への移行はかくはん・計装空気への飛まつ同伴による微量なものである。
沸騰初期段階	沸騰が始まり主に水分が蒸発して徐々に廃液が濃縮する。沸騰温度は濃縮に伴い上昇し廃液の共沸点に至る（廃液の温度域：104～120 °C） ^{1.1.10} 。Ru の急激な気相への移行が開始する前である。
沸騰晩期段階(1)	沸騰が継続し、高レベル濃縮廃液の主な溶媒である自由水及び自由硝酸の蒸発が進む（廃液の温度域：120～170 °C） ^{1.1.10、2.1.1} 。Ru は揮発することにより急激な気相への移行を開始する。
沸騰晩期段階(2)	基本的に前段階と同じだが、自由水及び自由硝酸の蒸発が進みほぼ消失する（廃液の温度域：120～170 °C） ^{1.1.10、2.1.1} 。硝酸の分解による NO _x の放出が増大し始める。
乾固段階(1)	自由水及び自由硝酸が消失し乾固物を形成する（乾固物の温度域：170～220 °C） ^{2.1.1、2.1.2} 。Ru の気相への移行がほぼなくなる。硝酸塩の分解由来の NO _x が放出されるとともに、結晶水の蒸発より微量の水蒸気が発生する。
乾固段階(2)	基本的に前段階と同じだが、Ru 硝酸塩が分解し Ru の気相への移行が増大する（乾固物の温度域：220～270 °C又は 300 °C） ^{2.1.1、2.1.2} 。
乾固後の温度上昇段階(1)	Ru 硝酸塩の分解が終了する。その他の硝酸塩の分解が継続する（乾固物の温度域：270 又は 300 ～500 °C又は 550 °C） ^{2.1.1、2.1.2、2.1.17} 。
乾固後の温度上昇段階(2)	Cs 硝酸塩が分解し Cs が揮発する（Cs 硝酸塩の分解が開始する乾固物の温度域：500 °C又は 550 °C～） ^{2.1.1、2.1.2、2.1.17} 。Tc 存在下では CsTcO ₄ として揮発促進する ^{2.1.22、2.1.25} 。

2.1.1 研究の概要

本研究では、令和3年度から令和7年度にかけて、以下に示す項目を対象に放射性物質の移行挙動に関する知見を取得する。令和3年度及び令和4年度においては着実に試験研究を進めた。なお、本研究に係るデータ取得は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構への委託事業として実施した^{2.1.3、2.1.4}。

(1) 重大事故等対処の緩和対策やその際に想定される機器設備の環境を踏まえた条件での放射性物質移行挙動の把握

① 亜硝酸によるRuの気相への移行抑制効果

Ruの揮発抑制効果がある亜硝酸について、重大事故等対処の緩和対策やその際に想定される機器設備の環境を踏まえた高濃度硝酸条件における亜硝酸効果及び亜硝酸濃度の変動を把握するためのデータを取得する。

② NOx含有気相における気体状Ru化合物の分解挙動

再処理施設で想定される重大事故等対処の緩和対策やその際に想定される機器設備の環境を踏まえた条件下（気相温度、NOxガスの影響等）における気体状Ru化合物の移行挙動を把握するためのデータを取得する。

(2) 凝縮液へのRuの化学吸収挙動の把握

凝縮液へのRuの化学吸収効果に関して、より広範な条件（亜硝酸濃度、温度等）下での試験及び必要に応じて解析を実施し、関連するデータを拡充する。

(3) 準揮発性物質の移行挙動の把握

乾固後の温度上昇段階での準揮発性物質（Cs等）の挙動を把握するためのデータを取得する。また、乾固物の温度挙動を把握するための解析モデルを整備する。

(4) 事象進展解析コードの整備に向けた課題の分析

これまでに得られた研究成果等を踏まえた上で、蒸発乾固事象の事象進展解析コードの整備のために課題を分析する。

2.1.2 亜硝酸による Ru の気相への移行抑制効果

気体状 Ru は、廃液中の Ru 硝酸塩が硝酸に酸化されることで発生すると推測される^{1.1.6}。一方、放射線分解により生成する亜硝酸が還元剤として作用することで気体状 Ru の発生を抑制していると考えられている^{2.1.5}。

しかしながら、気体状 Ru の発生の抑制に必要な亜硝酸の量や廃液中の亜硝酸濃度に関する知見はほぼない^{1.1.10、2.1.6}。したがって、廃液状態によっては、「沸騰初期段階」においても亜硝酸による抑制効果が作用せず気体状 Ru が発生する可能性がある。このため、この段階で想定される「高濃度硝酸条件における亜硝酸効果」及び「廃液中で想定される亜硝酸濃度の変動」に関するデータを取得した。

(1) 高濃度硝酸条件における亜硝酸効果把握試験

重大事故等対処の緩和対策を踏まえた蒸発乾固時の事象進展を想定した場合、濃縮や注水に伴う廃液状態（硝酸、金属イオン濃度等）の変化が想定されることから、高濃度硝酸条件における亜硝酸による Ru の気相への移行抑制効果を把握するための試験を実施した。試験においては、廃液の冷却機能喪失を想定し、沸騰継続に伴う廃液の濃縮割合（硝酸、亜硝酸や金属イオン濃度変化）をパラメータとした模擬廃液（使用済燃料 1 t(45,000 MWd/t、6 年冷却) の処理で 0.4 m³ の高レベル濃縮廃液が生成されると仮定して算出した組成^{2.1.7}を模擬した非放射性の模擬廃液を使用) の加熱試験を実施して、気体状 Ru の放出挙動を観察した。

① 試験条件

模擬廃液の基本組成は先行研究^{2.1.8}と同様に文献^{2.1.4}を参考に決定した。その組成を表 2.1.1 に示す。また、表 2.1.2 に実施した 5 試験での廃液の濃縮割合（模擬廃液原液中に含まれる金属イオン濃度に対する比）、目標硝酸濃度及び目標亜硝酸濃度を示す。試験番号は Run で記す。③で後述するとおり、廃液の濃縮割合は金属イオンの代表元素として測定した Cs の濃度変化に比例すると仮定して算出した。目標硝酸濃度については模擬廃液を廃液の濃縮割合となるまで加熱濃縮した際の硝酸濃度を設定した。目標亜硝酸濃度については先行研究^{2.1.8}において気体状 Ru の放出がほぼ抑制された 0.04 mol/L を基準に 3 水準 (0.02、0.04 及び 0.06 mol/L) をそれぞれ設定した。

② 試験装置

試験装置として、先行研究^{2.1.8}に硝酸水溶液添加口を加えた図 2.1.1 に示す亜硝酸ナトリウム添加試験装置を用いた。また、使用する加熱容器の外観を図 2.1.2 に示す。本装置は、試験溶液の沸騰に伴い発生するエアロゾル状又は気体状の元素を、ポンプを用いて空気と共に移行させることによってフィルタでエアロゾル状の元素を除去した上で、回収液中で気体状の元素を捕集するものである。本試験における条件と装置の概要を表 2.1.3 に示す。装置には、水溶液添加により加熱中の試験溶液の量や濃度を一定にするための工夫、水溶液添加時の飛まつの影響を低減するための工夫や試験溶液を速やかに均一にするための工夫がなされている（委託報告書参照^{2.1.3、2.1.4}）。

③ 試験溶液の調製

各 Run の試験溶液は、加熱濃縮した模擬廃液に適当な濃度の硝酸水溶液を添加することで、表 2.1.2 に示す濃縮割合及び硝酸濃度を目標の値に希釈して調製した。濃縮割合は、加熱濃縮中ほぼ廃液から放出しないと考えられる Cs の濃度変化に比例すると仮定して求めた。

④ 試験方法

前項で調製した試験溶液 200 ml を入れた加熱容器をオイルバス内に設置し、試験装置の温度等を所定の条件に設定した後、オイルバスによる加熱を開始した。沸騰が開始する加熱開始 20 min 後から 5 min 間隔で試験溶液と回収液を経時的にサンプリングし、各液中の元素濃度（Ru 及び Cs）、亜硝酸濃度及び硝酸濃度を測定した。

⑤ 試験結果及び考察

a. 加熱試験溶液中の組成の経時変化

Cs、硝酸濃度及び亜硝酸の濃度の測定結果をそれぞれ図 2.1.3、図 2.1.4 及び図 2.1.5 に示す。いずれの濃度も時間変化で大きく変化せず、目標値付近でほぼ一定の濃度に制御できていることを確認した。

b. 回収液に移行した元素量

回収液に移行した気体状 Ru 量を図 2.1.6 に示す。

Run2 では Run1 と比べて気体状 Ru 量が減少し、Run3 ではより亜硝酸濃度が高いものの気体状 Ru 量が増加した。同様に、Run4 に比べて Run5 は亜硝酸濃度が高いものの気体状 Ru 量が増加した。本試験結果は模擬廃液（原液）を加熱した先行研究の結果^{2.1.8}とは異なる傾向を示しており、先行研究よりも高い濃度の硝酸水溶液を添加したこと等が気体状 Ru 量に影響した可能性が考えられる。

なお、Cs についてはいずれの試験でも有意に検出されず、移行していないことを確認した。

(2) 廃液中で想定される亜硝酸濃度変動試験

廃液中の亜硝酸は、硝酸塩の放射性分解により生成するが、同時に分解し NO_x として廃液から放出される^{2.1.34}。このような亜硝酸の生成と分解による平衡関係を踏まえ、廃液の状態による亜硝酸濃度に関する知見を取得する。

そこで、まずは、模擬廃液のような多種類の金属イオンを含む硝酸水溶液に対してガンマ線照射試験（密封系）を行い放射線分解による亜硝酸の生成量を評価した。本試験では NO_x の気相への移行が少ない密閉系での試験実施となる。

① 試験条件

表 2.1.4 に実施した 8 試験での廃液の濃縮割合、硝酸濃度及び全硝酸イオン濃度を示す。複数の照射試料に対してまとめて照射を行った。照射条件は、吸収線量が約 1.2 kGy/h、照射時間が装置上限の 4 時間とした。Run1～4 は廃液の濃縮や希釈条件を想定し設定した。Run5～8 は、放射線分解の対象である硝酸イオン源である硝酸と金属硝酸塩を合わせた全硝酸イオン濃度をパラメータとして設定し、硝酸イオン濃度が結果の整理において用いることができるか検討した。模擬廃液に含まれる金属イオンは主に硝酸塩由来であり、金属硝酸塩由来の硝酸イオンが約 2.4 mol/L 含まれると推定される。なお、加熱濃縮した試験溶液の影響を確認するため模擬廃液原液に対しても照射試験を行った。

② 試験装置及び方法

試験装置は、図 2.1.7 に示す国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が所有する「Co-60 ガンマ線照射装置」を用いた。照射試料 10 mL を容量 20 mL のガラスバイアルに添加し、図 2.1.8 に示すようにバイアル固定器具に入れ、Co-60 ガンマ線照射装置に設置した。

照射は図 2.1.8 に示すような密封系で行い、照射前後の亜硝酸イオン濃度を測定することで亜硝酸濃度の生成量を観測した。

Run1 における照射試料は 2.1.2(1)と同様の模擬廃液を超純水と混合させて調製しており、Run2～7 における照射試料は 2.1.2(1)で加熱濃縮した模擬廃液を適当な濃度の硝酸と混合させて調製している。

③ 試験結果及び考察

図 2.1.9 に放射線照射による亜硝酸濃度の増加分を示す。照射により有意な亜硝酸濃度の増加が見られた。また、金属イオンが含まれない Run8 を除いた Run1～7 の試験では、全体的に金属イオン及び硝酸（又は全硝酸イオン）の濃度影響は顕著に見られず、ほぼ同様の亜硝酸濃度の増加分であった。放射線分解の対象である硝酸イオン濃度が上昇したにもかかわらず亜硝酸濃度の増加分に差がない結果となった。金属イオンを含まない硝酸(4～11 mol/L)の Run8 の試験では硝酸濃度が高くなるにつれて亜硝酸濃度の増加分が大きくなったことを踏まえると、金属イオン濃度がある程度存在する条件では金属イオン及び硝酸（又は全硝酸イオン）の濃度の影響が小さくなったこと等が考えられる。

また、模擬廃液原液と加熱濃縮後に希釈調製した試験溶液 (Run6) の結果を比較すると、同じ硝酸及び金属イオンの濃度条件下であるにも関わらず、亜硝酸濃度の増加分に大きな差が見られた。初期の亜硝酸濃度は、模擬廃液原液 (-3 乗のオーダー) に比べて加熱濃縮後に希釈調製した試験溶液 (-4 乗のオーダー) のほうが低い。これは加熱濃縮に伴い亜硝酸が分解するためと考えられるが、照射による亜硝酸増加分の差との関係は明らかでない。

(3) 総括

亜硝酸による Ru の気相への移行抑制効果及び廃液中での亜硝酸濃度の挙動を把握するために試験を実施した。試験結果の概要を以下にまとめる。

【(1)亜硝酸による Ru の気相への移行抑制効果】

- ・ 今回の試験範囲（廃液の濃縮割合 3 倍（硝酸濃度 5 mol/L）及び亜硝酸濃度 0.04 mol/L 程度）では、それぞれの濃度をほぼ一定に制御した加熱試験を実施することができた。
- ・ 沸騰継続による濃縮の進行（この場合は濃縮割合 2 及び 3 倍）を想定した本試験結果は模擬廃液（原液）を加熱した先行研究の結果^{2,1.8}とは異なる傾向を示しており、加熱試験中の硝酸濃度を維持するために、先行研究よりも高い濃度の硝酸水溶液等を添加したことが気体状 Ru 量に影響した可能性が考えられるが、今後さらに検討する。

【(2)廃液中での亜硝酸生成挙動の評価】

- ・ Co-60 ガンマ線照射装置を用いた照射試験を実施し、模擬廃液中における放射線分解により亜硝酸の生成量が測定できることを確認した。また、その生成量について、硝酸や金属イオンの濃度条件により差異が存在することを有意に確認できた。
- ・ 金属イオンを含まない硝酸(4～11 mol/L)の試験では硝酸濃度が高くなるにつれて亜硝酸濃度の増加分が大きくなった。これは、放射線分解の対象である硝酸イオン濃度が上昇したためである。
- ・ 全体的に金属イオン及び硝酸（又は全硝酸イオン）の濃度影響は顕著に見られず、ほぼ同様の亜硝酸濃度の増加分であった。放射線分解の対象である硝酸イオン濃度が上

昇したにもかかわらず亜硝酸濃度が増加しない結果となった。これは金属イオン濃度がある程度存在する条件では金属イオン及び硝酸（又は全硝酸イオン）の濃度の影響が小さくなったこと等が考えられるが、今後さらに検討を実施する。

- ・ 模擬廃液原液と加熱濃縮後に希釈調製した試験溶液ではほぼ同じ硝酸及び金属イオンの濃度でも亜硝酸濃度の増加分に大きな差が生じた。模擬廃液原液に比べて希釈調製した試験溶液は初期の亜硝酸濃度が低い。これは加熱濃縮に伴い亜硝酸が分解するためと考えられるが、照射による亜硝酸増加分の差との関係は明らかでなく、今後さらに検討を実施する。
- ・ 廃液からの NO_x の放出について、本試験では NO_x の気相への移行が少ない密封系で試験を実施した。開放系での試験を行う必要があると考えられるため、今後試験方法等を検討する。

表 2.1.1 模擬廃液の組成

Table 2.1.1 Composition of s-HLLW

元素	使用試薬	濃度 [mol/L]	元素	使用試薬	濃度 [mol/L]
H	HNO ₃	2.00	Ag	AgNO ₃	2.20×10 ⁻³
P	H ₃ PO ₄	3.50×10 ⁻³	Cd	Cd(NO ₃) ₂ ・4H ₂ O	3.50×10 ⁻³
Cr	Cr(NO ₃) ₃	6.80×10 ⁻³	Sn	SnO ₂	2.40×10 ⁻³
Mn	Mn(NO ₃) ₂ ・6H ₂ O	5.10×10 ⁻²	Sb	Sb ₂ O ₃	6.30×10 ⁻⁴
Fe	Fe(NO ₃) ₃ ・9H ₂ O	2.50×10 ⁻²	Te	TeO ₂	1.60×10 ⁻²
Ni	Ni(NO ₃) ₂ ・6H ₂ O	3.30×10 ⁻²	Cs	CsNO ₃	6.80×10 ⁻²
Rb	RbNO ₃	1.50×10 ⁻²	Ba	Ba(NO ₃) ₂	4.00×10 ⁻²
Sr	Sr(NO ₃) ₂	3.30×10 ⁻²	La	La(NO ₃) ₃ ・6H ₂ O	3.00×10 ⁻²
Y	Y(NO ₃) ₃ ・6H ₂ O	1.80×10 ⁻²	Ce	Ce(NO ₃) ₃ ・6H ₂ O	0.100
Zr	ZrO(NO ₃) ₂	0.180	Pr	Pr(NO ₃) ₃ ・6H ₂ O	2.70×10 ⁻²
Mo	金属 Mo*	0.120	Nd	Nd(NO ₃) ₃ ・6H ₂ O	9.60×10 ⁻²
Ru	RuNO(NO ₃) ₃	9.10×10 ⁻²	Sm	Sm(NO ₃) ₃ ・6H ₂ O	1.70×10 ⁻²
Rh	Rh(NO ₃) ₃	1.40×10 ⁻²	Eu	Eu(NO ₃) ₃ ・6H ₂ O	3.40×10 ⁻³
Pd	Pd(NO ₃) ₂	4.50×10 ⁻²	Gd	Gd(NO ₃) ₃ ・6H ₂ O	9.00×10 ⁻²

* 固体の Mo 硝酸塩は常温で分解が進むため、模擬廃液を調製する際には金属 Mo を使用。模擬廃液中では硝酸塩（MoO₂(NO₃)₂）として存在すると推定。

出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月。^{2,1,3} より引用 (一部改変)

表 2.1.2 亜硝酸添加試験の条件

Table 2.1.2 Conditions for nitrite addition experiments

Run	廃液の濃縮割合*	目標硝酸濃度[mol/L]	目標亜硝酸濃度[mol/L]
1	2 倍	4	0.02
2			0.04
3			0.06
4	3 倍	5	0.02
5			0.04
6			0.06
7	4 倍	5	0.02
8			0.04
9			0.06

* 模擬廃液原液中に含まれる金属イオン濃度に対する比

出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2,1,4} より引用 (一部改変)

表 2.1.3 亜硝酸添加試験における装置の概要

Table 2.1.3 Overview of apparatus for nitrite addition experiments

試験溶液	模擬廃液を加熱濃縮等した溶液。
回収液	2 mol/L の NaOH 水溶液。
加熱容器	1000 mL セパラブルフラスコを使用。 内部に仕切りを設けた容器に試験溶液。
回収容器	1000 mL セパラブルフラスコを使用。 回収液を入れ、水を張ったチラー (10 °C設定) 内に設置。
加熱機器	オイルバススターラーを使用。
配管	テフロンチューブ又はシリコンチューブを使用。 加熱容器と回収容器間の配管はテフロンチューブを用い、 配管外部からリボンヒータにより 120 °C程度に加熱。
フィルタ	直径 47 mm のシリカろ紙を使用。 PFA 製のフィルタホルダーを使用し、外部からリボンヒータにより 120 °C程度に加熱。
温度計測	熱電対を用いて試験溶液温度を測定。
加熱容器に流入させる空気の流量	流量計の測定値を各 0.5 L/min 程度に調製。 流入させる空気はシリカゲルを通して乾燥。
硝酸/NaNO ₂ 水溶液	試薬を超純水で適当な濃度に希釈して調製。 ダイヤフラムポンプを用いて試験溶液中に連続的に添加。

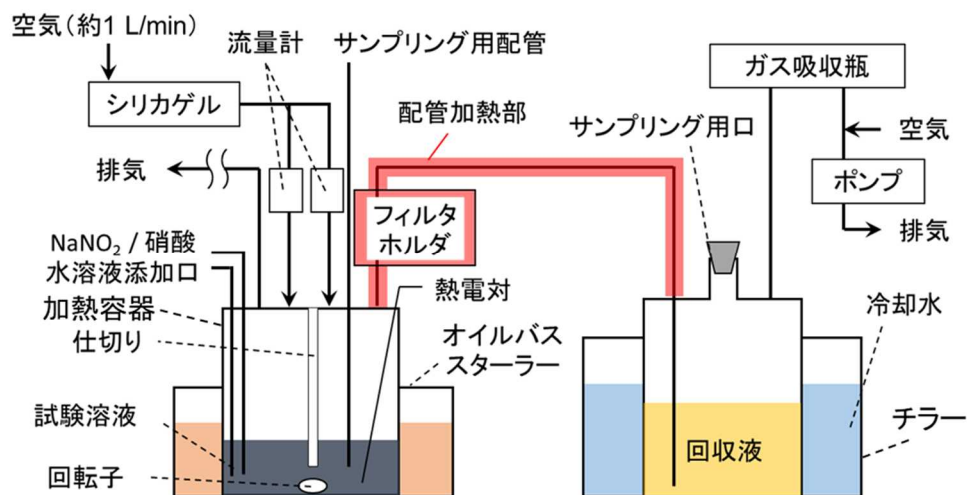
出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2,1,3} より引用 (一部改変)

表 2.1.4 放射線照射試験条件

Table 2.1.4 Conditions for radiation irradiation experiments

Run	照射線量の組成		
	廃液の濃縮割合	目標硝酸濃度 [mol/L]	目標全硝酸イオン濃度 [mol/L]
1	1/2 倍	1、2、3、4、5、6	-
2	1 倍	2、3、4、5、6	-
3	2 倍	4、5、6	-
4	3 倍	5、6	-
5	1/2 倍	2.8、3.8、4.8、5.8、6.8	4、5、6、7、8
6	1 倍	2.6、3.6、4.6、5.6、6.6、 7.6、8.6	5、6、7、8、9、10、11
7	2 倍	4.3、5.3、6.3	9、10、11
8	硝酸水溶液	4、5、6、7、8、9、10、11	

出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2.1.4} より引用 (一部改変)



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2.1.4} より引用 (一部改変)

図 2.1.1 亜硝酸ナトリウム添加試験装置の概略図

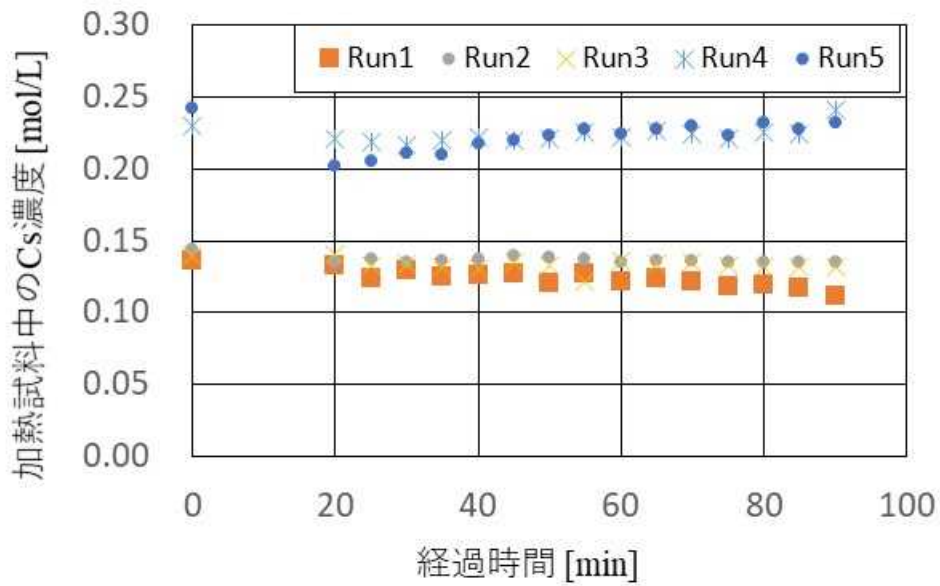
Fig2.1.1 Schematic diagram of sodium nitrite adding experimental apparatus



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2.1.3}より引用

図 2.1.2 使用した加熱容器の写真

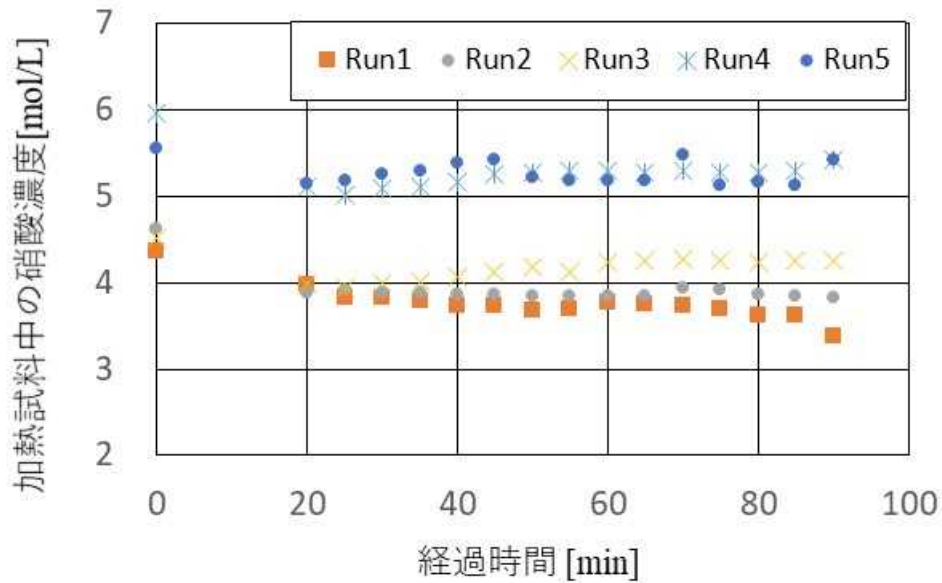
Fig.2.1.2 Photo of heating vessel



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2.1.4}より引用 (一部改変)

図 2.1.3 加熱試験溶液中の Cs の濃度変化

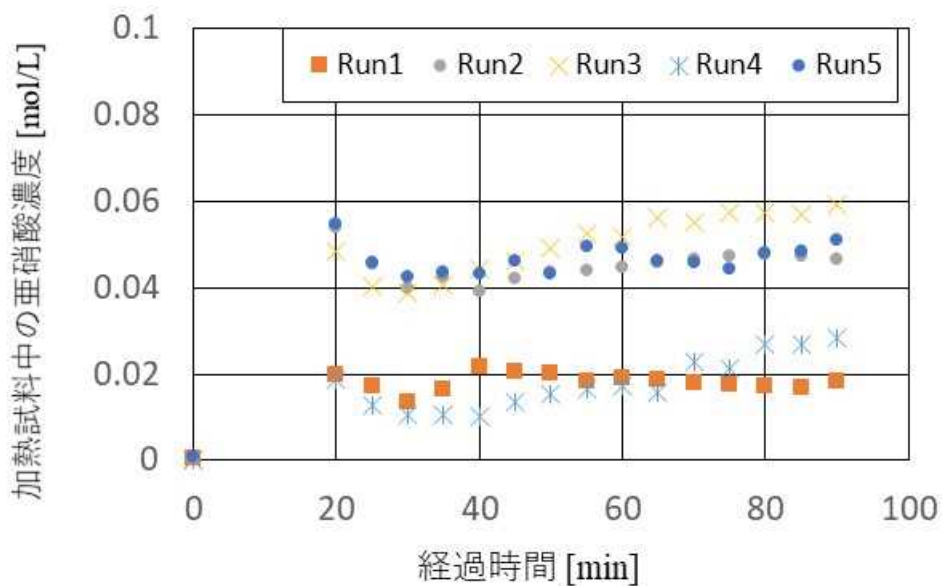
Fig.2.1.3 Transients of concentration of Cs in heated experimental liquids



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2,14} より引用 (一部改変)

図 2.1.4 加熱試験溶液中の硝酸の濃度変化

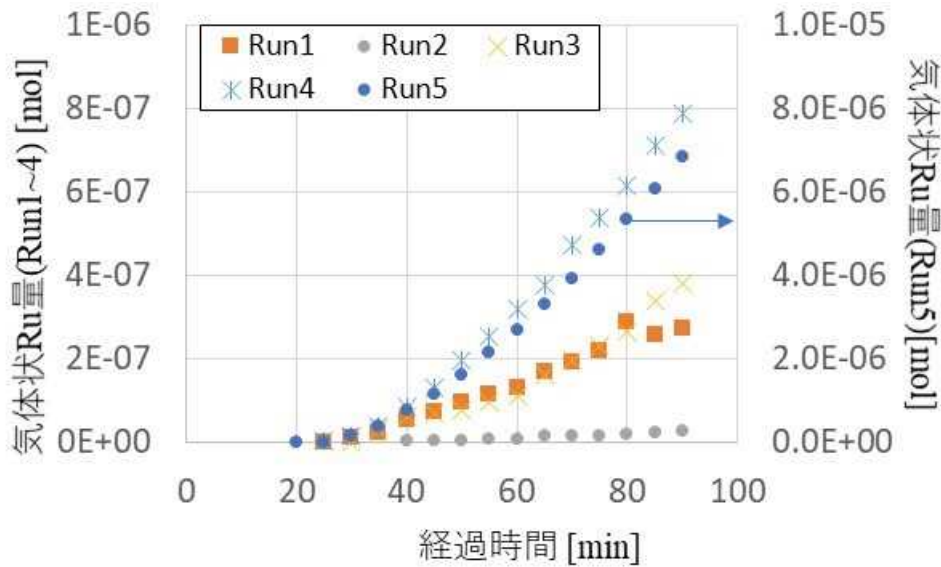
Fig.2.1.4 Transients of concentration of nitric acid in heated experimental liquids



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2,14} より引用 (一部改変)

図 2.1.5 加熱試験溶液中の亜硝酸の濃度変化

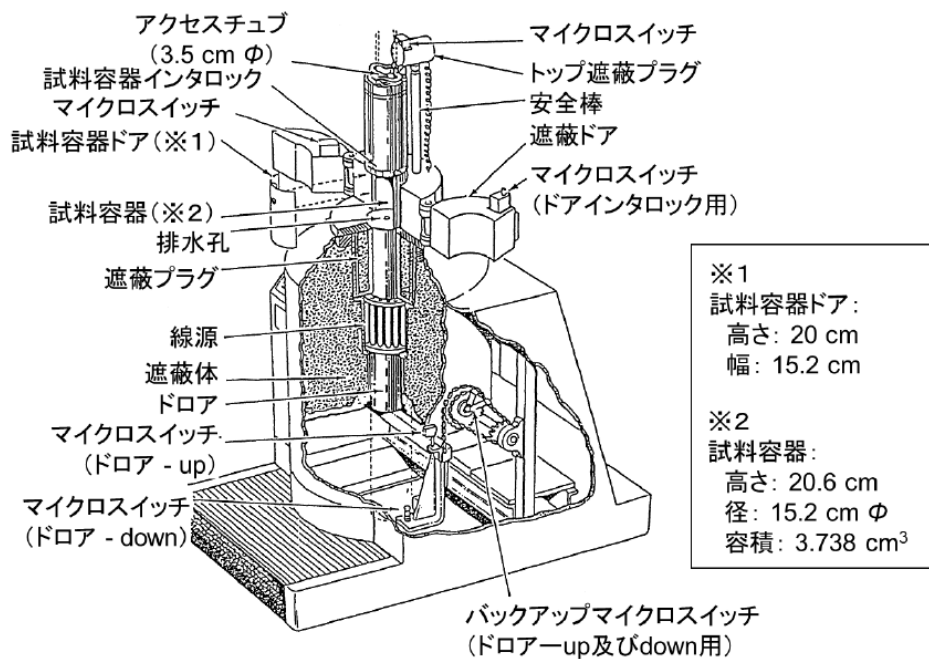
Fig.2.1.5 Transients of concentration of nitrite addition in heated experimental liquids



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2,1,4} より引用 (一部改変)

図 2.1.6 回収液に移行した気体状 Ru 量

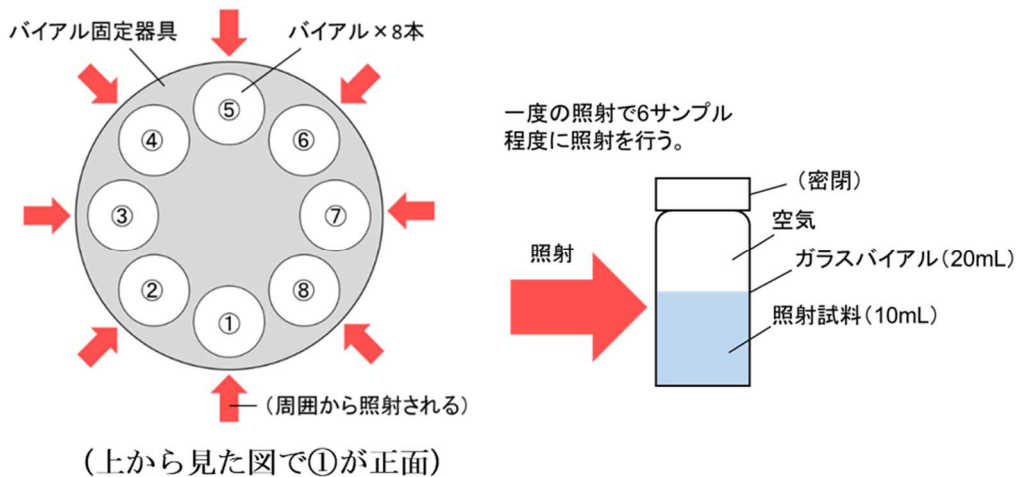
Fig.2.1.6 Migration of gaseous Ru to the collected liquid



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2,1,3} より引用

図 2.1.7 Co-60 ガンマ線照射装置の概略図

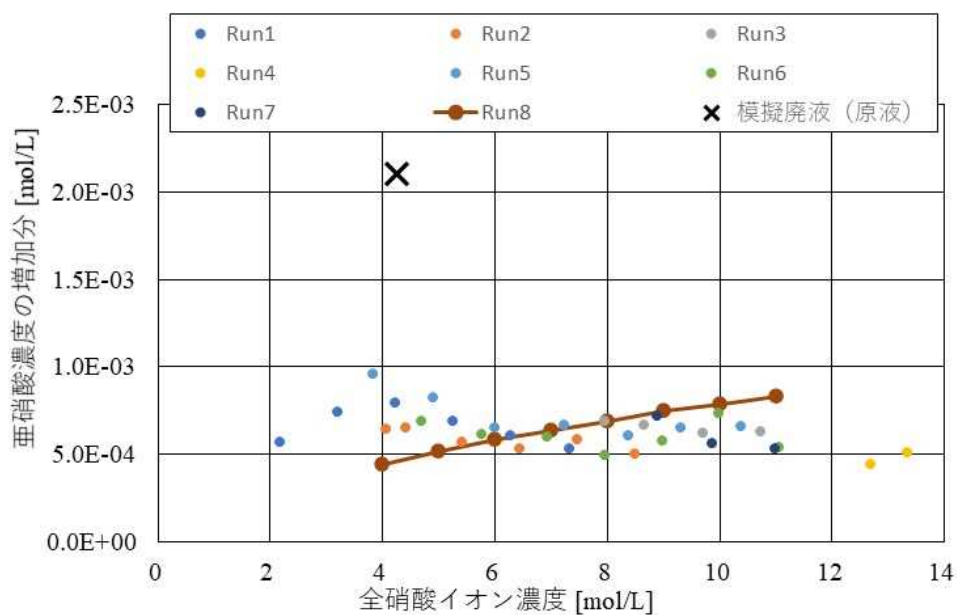
Fig.2.1.7 Schematic diagram of the Co-60 gamma irradiation experimental apparatus



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和3年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和4年3月.^{2.1.3} より引用 (一部改変)

図 2.1.8 照射体系の概略

Fig.2.1.8 Schematic of irradiation experimental system



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和4年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和5年3月.^{2.1.4} より引用 (一部改変)

図 2.1.9 放射線照射による亜硝酸濃度の増加分

Fig.2.1.9 Radiation irradiation increase in nitrite addition concentrations

2.1.3 NO_x 含有気相における気体状 Ru 化合物の分解挙動

蒸発乾固事象では、高レベル濃縮廃液の沸騰・濃縮に伴って、RuO₄ と想定される気体状 Ru が気相中に放出されると考えられている^{1.1.10}。既往の研究では、気体状 RuO₄ を NO や

NO₂ を共存させた試験を実施しているが、結果として気体状 RuO₄ の分解を抑制する効果が得られている^{2.1.10}。

180 °Cまでの温度領域では、温度が高い方が RuO₄ の分解が速いとの報告がある一方で、上述のとおり、NO_x ガスは気相中の RuO₄ を安定化するとの報告がある^{2.1.10、2.1.11}。この2つの観測事実を考慮した場合、乾固段階では高温かつ自由水及び自由硝酸が消失し乾固物を形成し、硝酸塩の分解由来の NO_x が放出されるとともに結晶水の蒸発による微量の水蒸気が発生することから、相反する効果が現れることが考えられる。

このような、乾固段階を考慮した RuO₄ の気相中での分解挙動に関しては実験データが少なく、知見が不十分な状態にある。そこで、既往の試験結果及び移行経路における熱流動解析結果等^{2.1.12}に基づき、乾固段階の気相条件として想定される気相温度や NO_x ガス濃度を評価し、RuO₄ の分解挙動（化学形の変化やエアロゾルの生成）を定量的に把握するために必要な試験を実施した。

(1) RuO₄ の分解速度の検討

① 試験条件

表 2.1.5 に実施した 10 試験での Ru 供給速度、温度並びに硝酸、亜硝酸、NO₂ 及び NO の濃度を示す。沸騰晩期段階を対象にした先行研究^{2.1.8、2.1.10}の試験条件を基に、より高温かつ NO_x 濃度が高い試験条件を設定した。NO₂/NO=10/1 の比は文献値^{2.1.8、2.1.10}を利用した。温度条件は 180~300 °Cとし、装置の性能上限及び試験結果に応じて設定した。NO_x/Ru の化学当量は、装置性能及び試験結果から、先行研究^{2.1.8、2.1.10}の 5 倍量を上限とした。単純な試験系である Run1 を基準とし、温度並びに硝酸、亜硝酸、NO₂ 及び NO の濃度を変更した。

② 試験装置

様々な気相条件における RuO₄ の化学形変化挙動を観察するため、「Ru 気相反応試験装置」を用いた(図 2.1.10)。本装置は気体状 RuO₄ 発生器(Refrigerator Gaseous RuO₄ generator)、蒸気発生器(Vapor generator)、ガス混合器(Gas mixer)、フローセル(Quartz cell)、UV 分光器(UV-vis spectrophotometer)、恒温槽(Thermostatic chamber)及び Ru 回収部(Gas washing bottle)の 7 部分から構成される回文式の反応器である。検体ガスをフローセル内に閉じ込めた後、UV 分光器による分析を行う仕様である(委託報告書参照^{2.1.8、2.1.10})。

③ 試験結果及び考察

Run1~10 の結果を表 2.1.6 にまとめた。従来得られていた試験データ^{2.1.8}より高い温度領域である 200 °C程度においても、NO_x による RuO₄ の分解抑制効果が観測された。RuO₄ の分解は NO_x 雰囲気下でも温度に大きい影響を受け、300 °Cの試験では RuO₄ は速やかに分解した。乾固段階で想定されるような希薄な硝酸蒸気による影響は不明瞭であった。なお、本試験で得られた結果では、途中で反応速度が大きくなるなど、一次反応で整理できない反応が生じている。そのため、表 2.1.6 で整理した反応速度定数は、反応の様相を比較するための便宜上の数字であることに注意されたい。

a. 温度の影響

NO_x が含まれる気相条件における RuO₄ の分解に温度が与える影響を評価するため、各試験で得られた RuO₄ 残存率を図 2.1.11 及び図 2.1.12 で比較した。図 2.1.11 には、既往の研究^{2.1.10}で得た 120 °C で NO₂/Ru を 100 当量添加した試験結果も加えている。RuO₄ の分解速度は温度が高くなるにつれて大きくなる傾向が観測された。300 °C の試験では RuO₄ の急激な分解が観測されたことから、NO₂ 及び NO は RuO₄ を安定化する一方で、温度上昇に伴う分解反応の活性化を抑えられる領域には限界があるものと考察される。

b. NO_x の化学当量の影響

NO_x の添加量が RuO₄ の分解挙動に与える影響を評価するため、図 2.1.13 に、同一試験温度で、NO_x 添加量が異なる Run2 と 5 の結果を比較した。両者の試験結果はほぼ同じ分解速度を示した。既往の研究^{2.1.8, 2.1.10}では、NO₂/Ru の化学当量を 0、7.5、10 当量で比較し、分解速度の差を見出していることから、今回実施したような大過剰量の NO_x を含む系では、試験結果に大きな差が生じなかったものと考察される。

c. 硝酸含有水蒸気の影響

300 °C未満の温度領域における硝酸含有水蒸気が RuO₄ の分解挙動に与える影響を評価するため、硝酸含有水蒸気の添加の有無を比較した Run2 と 7、Run5 と 8 を、それぞれ図 2.1.14 及び図 2.1.15 に示す。Run7 は Run2 と比べて、硝酸含有水蒸気を添加した試験であり、約 2500 s 付近までは硝酸による安定化効果が見られたが、分解が加速し、約 3800 s 以降は残存 RuO₄ の量が低くなった。これは、何らかの原因で RuO₄ の分解が促進されたと思われる。RuO₂ による自己触媒的な分解^{2.1.11, 2.1.13}の促進、あるいは硝酸の分解が生じた等の原因が考えられる。一方で Run8 は Run5 と比べて、RuO₄ の分解は遅く、今回試験したような温度領域であっても、硝酸による安定化効果が見られることが示された。

(2) RuO₄ の分解反応の検討

分解反応が気相中で完結してエアロゾル化していたのであれば、RuO₄ の分解速度等の情報をパラメータとしてモデル化に直接適用できるが、分解が反応容器の表面で生じていた場合には、比表面積や材料表面との反応性等を考慮しなければならない。そこで、RuO₄ の分解が生ずる試験系において、エアロゾルを回収可能な流通式反応器を用いて試験データを取得し、前項の回分式反応器の試験データと比較することで、気相と表面のどちらで分解が起きているかを検討した。

① 試験条件

表 2.1.7 に実施した 11 試験での Ru 供給速度、温度、硝酸、亜硝酸、NO₂ 及び NO の濃度を示す。Run1~10 は、(1)RuO₄ の分解速度の検討と同様な条件で実施し、流通式と回文式の試験結果を比較できるようにした。Run11 については Run1 と同じ条件で、UV 分光器を用いて反応管通過後の検体ガス分析を行った。

② 試験装置

気体状 RuO₄ 及び任意の組成の硝酸含有水蒸気を定常的に発生させることができる「Ru 気相移行試験装置」及び「Ru 気相移行試験装置 (UV 分光器追加版)」を用いた (図 2.1.16 及び図 2.1.17)。反応管内の沈着 Ru の分布を観測する。

③ 試験結果及び考察

各 Run での試験装置各部における Ru 捕集率を表 2.1.8 に、流通式試験の Ru 残存率を比較試験である回分式の試験結果とともに表 2.1.9 に示す。

表 2.1.8 より、流通式試験では、温度条件が 230 °C 以下の試験では Ru はガラスフィルタで捕集された (表の赤字部分)。反応管内で回収された Ru の沈着密度はほぼ均一であった。また、Run11 の UV 分析より反応管を通過した検体ガスには RuO₄ が含まれていた。温度 300 °C の試験では Ru は反応管で捕集された (表の青字部分)。

表 2.1.9 より、回分式と流通式の反応器で比表面積の差は大きい、230 °C 以下の試験では RuO₄ の残存率に大きな差は観測されなかった (流通式試験の方が若干低い。表中の赤字部分)。一方、300 °C では流通式試験の方が残存率が高い (表中の青字部分)。

以下の作業仮説を立てることで、本試験結果を説明可能であった。

- ① Ru の沈着反応は主に表面で起こる。
- ② 初期沈着反応と沈着拡張反応の 2 段階がある。
- ③ NO_x は初期沈着反応を阻害しないが、沈着拡張反応は阻害する。この阻害効果は 300 °C では弱まった。

(3) 総括

乾固段階を想定した気相条件における、RuO₄ の化学形変化やエアロゾル生成挙動を定量化する試験では、温度範囲を 300 °C 以下及び NO₂/Ru が 100 当量以下の範囲で評価した。また、本試験結果を踏まえ、RuO₄ の分解について、今後仮説の検証を行う。

表 2.1.5 Ru 気相反応試験条件

Table 2.1.5 Conditions for Ru gas phase reaction experiments

Run	Ru 供給速度 [mol/min]	温度条件 [°C]	Ru に対する組成比 [equiv. vs Ru]					
			HNO ₃	H ₂ O	NO ₂	NO		
1	1.7×10 ⁻⁶	180	0	0	100	10		
2		200						
3		230						
4		300						
5		200	48*	100*	500	50		
6		300			100	10		
7		200						
8		300					500	50
9							100	10
10		500			50			

* 硝酸水溶液供給速度の値 (0.7 L/min) 及び濃硝酸 (13 mol/L) の HNO₃/H₂O 比より決定
出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告
書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2,1,3} より引用 (一部改変)

表 2.1.6 Ru 気相反応試験の結果

Table 2.1.6 Results of Ru gas phase reaction experiments

Run	一次反応を仮定した 反応速度定数(1/s)	試験結果 (RuO ₄ の分解挙動)
1	1.93	7200 s で 80%程度残存
2	9.56	7200 s で 40%程度残存
3	1.38	2000 s でほぼ全量が分解
4	測定限界以上	RuO ₄ 供給後速やかに分解
5	1.11	7200 s で 80%程度残存
6	> 5.94	RuO ₄ 供給後速やかに分解
7	一次反応との乖離が 大きく算出不可	4000~5000 秒でほぼ全量が分解、 途中で分解が加速
8	≒ 0	分解は観測されず
9	測定限界以上	RuO ₄ 供給後速やかに分解
10	測定限界以上	RuO ₄ 供給後速やかに分解

出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告
書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2,1,3} より引用 (一部改変)

表 2.1.7 Ru 分解反応試験条件

Table 2.1.7 Conditions for Ru decomposition reaction experiments

Run	Ru 供給速度 [mol/min]	温度条件 [°C]	Ru に対する組成比 [equiv. vs Ru]				UV 分析	
			HNO ₃	H ₂ O	NO ₂	NO		
1	1.7×10 ⁻⁶	180	0	0	100	10	なし	
2		200						
3		230						
4		300						
5		200	48	100	500	50		
6		300			100	10		
7		200			500	50		
8		300	300	48	100	100		10
9						500		50
10		300	180	0	0	100		10

出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2.1.4} より引用 (一部改変)

表 2.1.8 各試験での試験装置各部における Ru 捕集率

Table 2.1.8 Ru collection rate in each part of the experimental apparatus in each experiment

部位	Run1	Run2	Run3	Run4	Run5	Run6	Run7	Run8	Run9	Run10	Run11	
Pipe#In	1.98	2.95	2.07	(93.62)*	0.92	委託報告書参照 2.1.4	0.74	1.46	23.84	14.72	0.79	
Pipe#1	2.58	5.16	3.23	0.75	1.78		2.08	2.91	60.97	22.29	1.08	
Pipe#2	2.30	5.51	3.07	0.65	1.87		1.45	2.87	3.76	14.85	1.12	
Pipe#3	3.30	4.31	2.72	0.16	1.80		2.33	2.49	0.65	17.30	1.03	
Pipe#4	3.83	5.07	3.12	0.07	1.61		1.96	2.34	0.11	0.09	0.99	
Pipe#5	3.78	4.18	3.55	0.04	1.87		2.57	2.18	0.07	0.10	1.19	
Pipe#6	2.72	4.03	3.73	0.10	1.93		2.30	2.46	0.09	0.10	1.00	
Pipe#Out	3.70	8.75	7.57	2.10	4.26		2.06	1.97	1.14	1.42	5.21	
Quartz cell	-	-	-	-	-		-	-	-	-	-	39.67
Glass filter	74.36	59.94	70.94	2.51	83.80		81.98	46.93	9.39	27.32	47.81	
Gas washing bottle(A)	1.45	0.10	0.00	0.00	0.15		2.53	34.39	0.00	1.81	0.10	
合計 (%)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100		

*Ru 固着により未回収分あり。Ru 供給総量が他の試験での平均値と同量であり、反応管初段で未回収分の Ru が沈着したと仮定した場合の見込み沈着量。

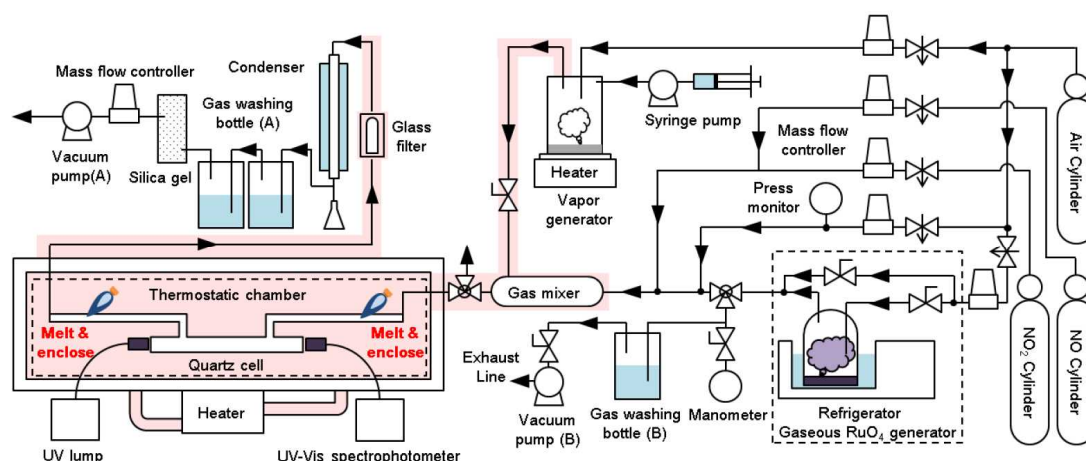
出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2,1,4} より引用 (一部改変)

表 2.1.9 流通式試験と回分式試験の Ru 残存率比較

Table 2.1.9 Comparison of Ru residuals between distribution and batch experiments

Run	回分式 (反応時間 20 分)	流通式 反応管通過分 (滞留時間約 20 分)
1	90 %	79.5 %
2	80 %	68.8 %
3	80 %	78.5 %
4	0 %	4.6 %
5	80~85 %	88.2 %
6	委託報告書参照 ^{2.1.4}	
7	90~95 %	86.6 %
8	100 %	83.3 %
9	0 %	10.5 %
10	0 %	30.5 %

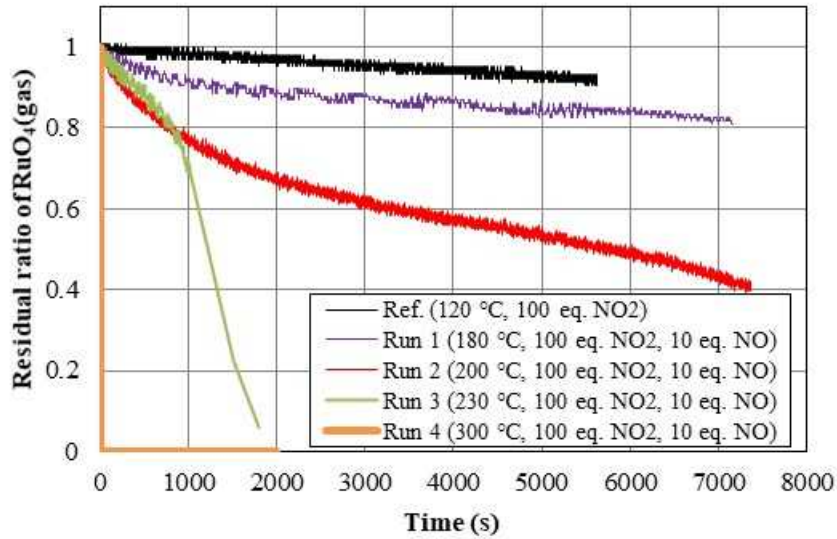
出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2.1.4} より引用 (一部改変)



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2.1.3} より引用

図 2.1.10 Ru 気相反応試験装置の概略図

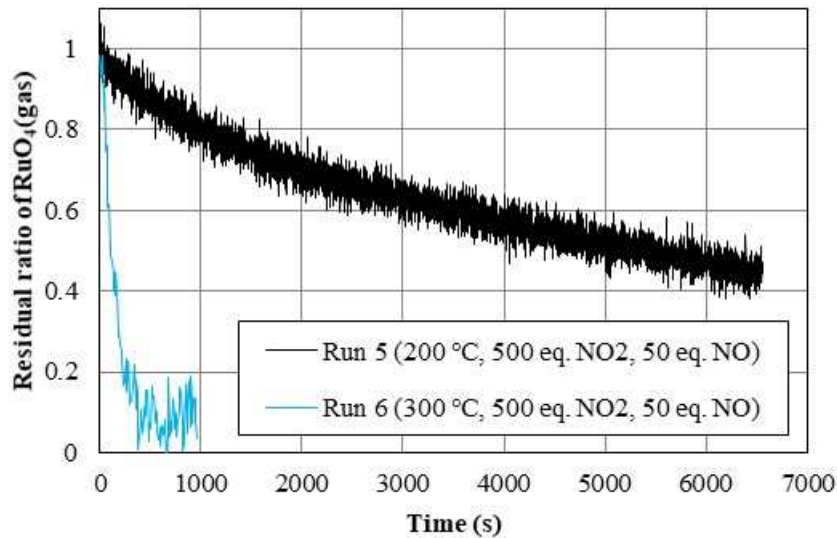
Fig.2.1.10 Schematic diagram of Ru gas phase reactor experimental apparatus



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2,1,3}より引用

図 2.1.11 温度が RuO₄ 分解に与える影響(Run1~4 比較)

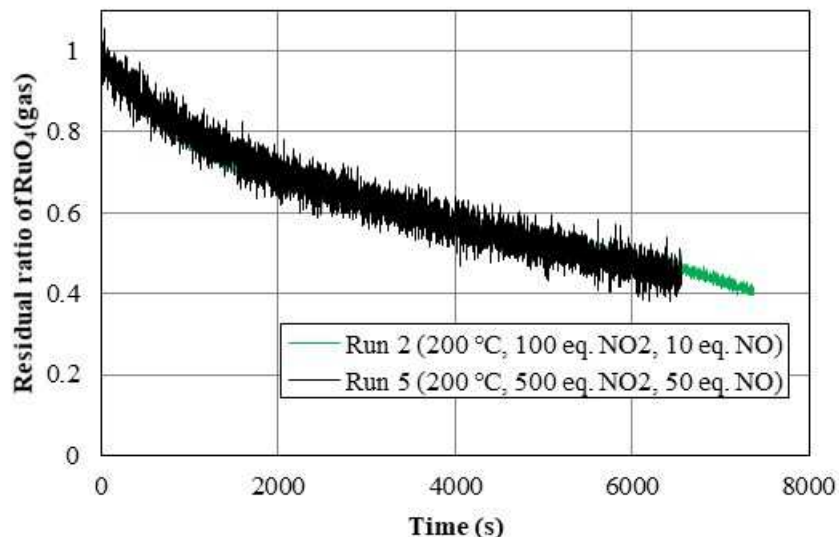
Fig.2.1.11 Effect of temperature on residual ratio of RuO₄(Comparison of Run1~4)



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2,1,3}より引用

図 2.1.12 温度が RuO₄ 分解に与える影響(Run5 及び 6 の比較)

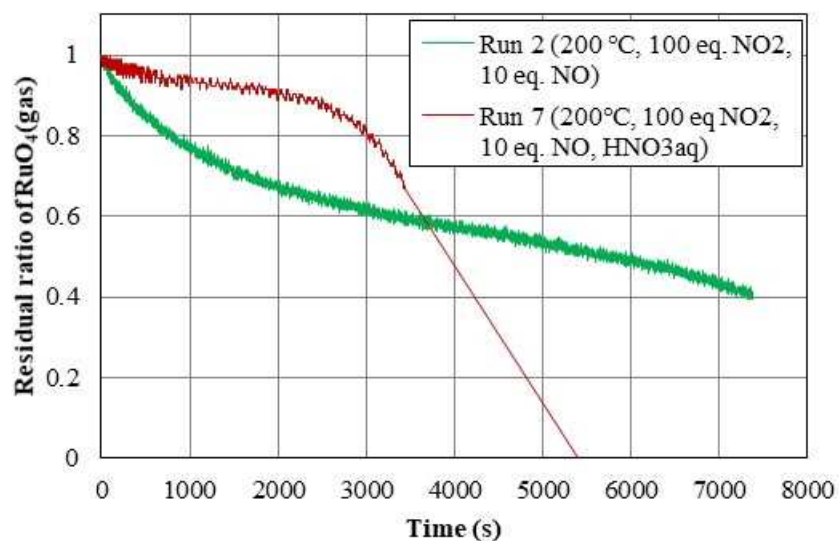
Fig.2.1.12 Effect of temperature on residual ratio of RuO₄(Comparisons of Run5 and 6)



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2,1,3}より引用

図 2.1.13 NO_x 濃度が RuO₄ 分解に与える影響(Run2 及び 5 の比較)

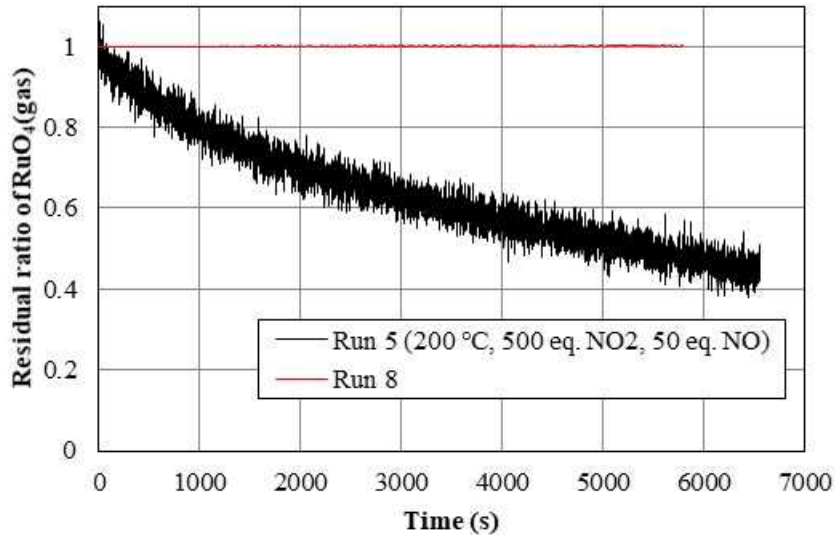
Fig.2.1.13 Effect of NO_x concentration on residual ratio of RuO₄(Comparisons of Run2 and 5)



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2,1,3}より引用

図 2.1.14 硝酸濃度が RuO₄ 分解に与える影響(Run2 及び 7 の比較)

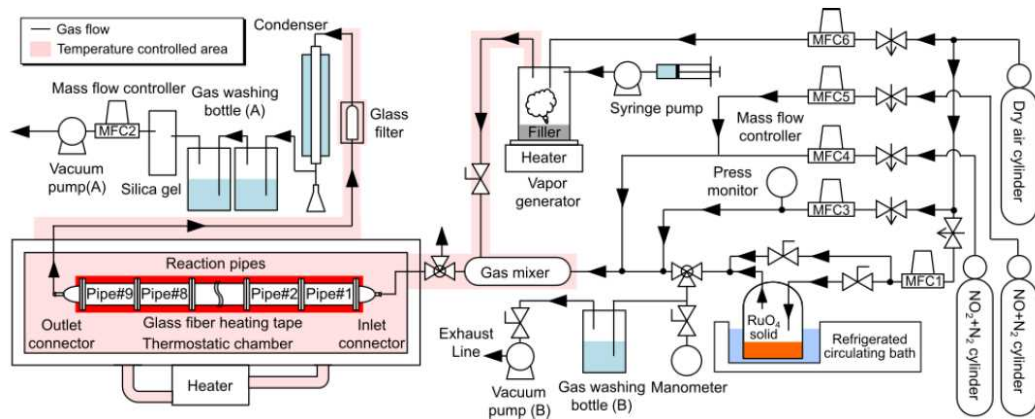
Fig.2.1.14 Effect of nitric acid concentration on residual ratio of RuO₄(Comparisons of Run2 and 7)



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2.1.3}より引用

図 2.1.15 亜硝酸濃度が RuO₄ 分解に与える影響(Run5 及び 8 の比較)

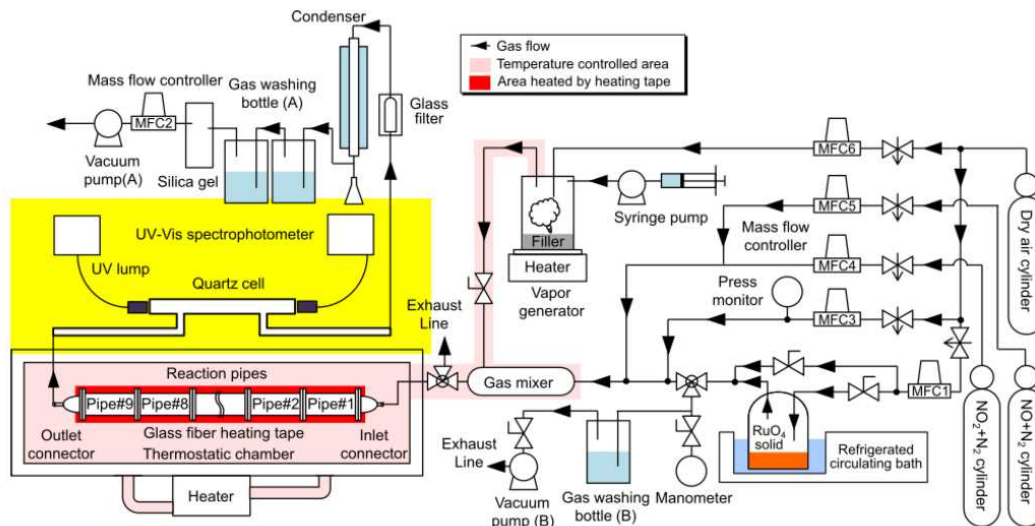
Fig.2.1.15 Effect of nitrite addition concentration on residual ratio of RuO₄(Comparisons of Run5 and 8)



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2.1.4}より引用

図 2.1.16 Ru 気相部移行試験装置の概略図

Fig.2.1.16 Schematic diagram of Ru gas phase migration experimental apparatus



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2.1.4}より引用

図 2.1.17 Ru 気相部移行試験装置の概略図 (UV 分光器追加版)

Fig.2.1.17 Schematic diagram of Ru gas phase migration experimental apparatus (Add UV spectrometer)

2.1.4 凝縮液への Ru の化学吸収挙動の把握

蒸発乾固事象の際には、硝酸含有水蒸気が気体状 Ru (RuO_4) とともに放出されると想定されている。その際、移行経路の温度が露点よりも低い場合には、蒸気の凝縮が発生し、それに伴って気相中の Ru が凝縮液中へ移行することが予想される。先行研究において、Ru の移行挙動への経路温度、蒸気量、蒸気組成及び NO_x の存在の影響について検討してきた^{1.1.12, 2.1.8, 2.1.9}。これらの成果では、蒸気凝縮速度が比較的大きい場合には、Ru の液相移行には共存する NO_x の影響が大きいとの結果が報告されている^{2.1.14}。また、 NO_x が凝縮水に溶解し亜硝酸へ変化したものが、液相中へ移行した RuO_4 と反応し、ニトロシルルテニウム化合物を形成する化学吸収が行われたと考察されている^{2.1.14}。そこで本研究では、これらの知見を活かし、凝縮液への Ru の吸収挙動についてモデル化するうえで必要なデータを取得するため以下を実施した。

- (1) 凝縮液への Ru の吸収挙動についてモデルの検討
- (2) Ru 気液接触試験

(1) 凝縮液への Ru の吸収挙動についてモデルの検討

RuO_4 の亜硝酸を含む凝縮液への吸収について、以下の 3 点を仮定し、「迅速擬 1 次反応」としてモデル化を試みた。

- ・ 化学反応を伴う吸収反応である。
- ・ 液相には RuO_4 に対して亜硝酸が大過剰に存在する。

・反応吸収に係る化学反応の速度は速い。

迅速擬 1 次反応の場合、気液単位接触面積あたりの吸収速度 N ($\text{mol}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$) は式(2.1.1) で計算できる。式の整理は化学工学便覧 8 章の「ガス吸収・気液接触操作」^{2.1.34} を基に行った。後述の(2)Ru 気液接触試験から N 及び k_G を取得する。

$$N = \frac{P_{\text{RuO}_4}}{\frac{1}{k_G} + \frac{H}{\sqrt{k_2 C_{\text{HNO}_2} L D_{\text{RuO}_4}}}} \dots \dots \dots (2.1.1)$$

P_{RuO_4} : RuO_4 分圧。所与の条件。

$C_{\text{HNO}_2 L}$: HNO_2 濃度。所与の条件。

H : ヘンリー定数。Sasahira らの試験結果から相関式を得てそれを用いる^{2.1.15}。

k_G : 気相物質移動係数。二重境膜モデルの式より算出^{2.1.16}。

D_{RuO_4} : 液相中での RuO_4 の拡散係数。日本原子力学会での報告実績を用いる。

k_2 : RuO_4 が液相で化学変化する際の反応速度定数。未知数であり測定が必要である。

(2) Ru 気液接触試験

① 試験方法

濡れ壁塔に相当する試験装置である「Ru 気液接触試験装置」(図 2.1.18 及び図 2.1.19) を作製し、試験に用いた。吸収セル (Absorption cell) 内へ吸収液と RuO_4 を含む空気を流し、吸収液への Ru の移行量を測定する。吸収セルを通過した RuO_4 は後段のガス吸収瓶 (B) (Absorbent(B)) にて全量が回収される。

一般的に温度が低い方が液体に対するガスの溶解度は高いが、一方で化学吸収が Ru の気液間物質移行に重要である場合には、系の温度に応じて反応が促進され、結果として物質移行が促進される可能性がある。そこで、各硝酸・亜硝酸濃度の吸収液に対して温度をパラメータとした試験を実施し、吸収速度との関係性を評価した。表 2.1.10 に実施した 49 試験での温度、硝酸濃度及び亜硝酸濃度を示す。温度は 5~55 °C までの 5 °C ごと、硝酸は 0、100、1000 mmol/L 及び亜硝酸濃度は 0、2、5、10 mmol/L に設定した。また、実事象を考慮し、自由水・自由硝酸が全量蒸発し全量凝縮した状態を想定した硝酸 2 mol/L 及び亜硝酸 100 mmol/L の試験も実施した。

② 試験データの整理方法

試験後、ガス吸収瓶(B)の吸収液中の Ru 濃度 (mol/L) とセル内気相の Ru の滞留時間 (min) から、Ru 吸収速度 (mol/min) を得た。得られた Ru 吸収速度を、セル内の気液接触面積 (m^2) で除し、物質移動流束 ($\text{mol}/\text{m}^2 \cdot \text{min}$) を得た。物質移動流束を Ru の気相中濃度 (mol/m^3) で除し、物質移動係数 (m/min) を得た。

試験条件毎に得られた物質移動係数を比較・整理することで、Ru の液相への移行挙動に関する考察を行った。なお、本試験では 2 種の物質移動係数を算出した。1 つは吸収液で回収された Ru のみから算出した値で、もう 1 つは壁面沈着分も含めた値である。

③ 試験結果及び考察

吸収液の全量回収分から、壁面沈着分を考慮して計算した物質移動係数を図 2.1.20 に示す。亜硝酸を含まない試験系では温度上昇につれて物質移動係数は低下し、亜硝酸濃度 2 mmol/L 以上の試験系では増加又は横ばいの傾向が見られた。また、各温度条件とも物質移動係数は亜硝酸濃度の上昇につれておおむね増大する傾向が見られた。2 種の物質移動係数の算出について、両者はおおむね一致しているが、希薄な亜硝酸が含まれる領域で比較的差が大きかった。

したがって、本研究で実施した一連の試験により、液相中に亜硝酸 (2 mmol/L 以上) が存在する場合、物質移動係数が増大することが分かった。このことから、亜硝酸が関与する化学吸収の存在が示された。既往の研究^{2.1.14}において、定性的試験を実施し亜硝酸水溶液に RuO₄ を供した場合、RuO₄ は消失したと報告されている。この報告では、RuO₄ が亜硝酸水溶液中で生じる可能性がある 2 種類の反応を提案している。



本研究では、希薄な亜硝酸を含む試験条件の際に、Ru の壁面沈着量が比較的大きかった。式(2.1.2)の反応が比較的多く発生し、RuO₂ が沈殿した結果、吸収液に回収されずに壁面沈着分の Ru として回収されたと推察される。また、一連の試験結果から、作業仮説として、Ru のガス吸収には次の 3 つの状態があることが推察される。

- (a) 亜硝酸を含まない試験系では、RuO₄ は液相に溶解する。
- (b) 希薄な亜硝酸を含む試験系では、RuO₄ は液相に反応吸収され、化学形を変化させるが、その一部が RuO₂ として析出する。
- (c) 一定以上の亜硝酸を含む試験系では、RuO₄ は液相に反応吸収され、ニトロシルルテニウム(Ru(NO)(NO₃)₃)等、水溶性の成分に化学形を変化させる。

(3) 総括

凝縮液への Ru の吸収挙動について「迅速擬 1 次反応」としてモデル化を試み、必要なデータの取得を実施した。試験は、移行速度が比較的大きい系でも物質移動係数を測定できる試験装置を製作し、温度や硝酸・亜硝酸濃度などをパラメータとした。結果として、亜硝酸の存在が RuO₄ の凝縮液への物質移動に対して大きく影響することを示唆する結果を得た。

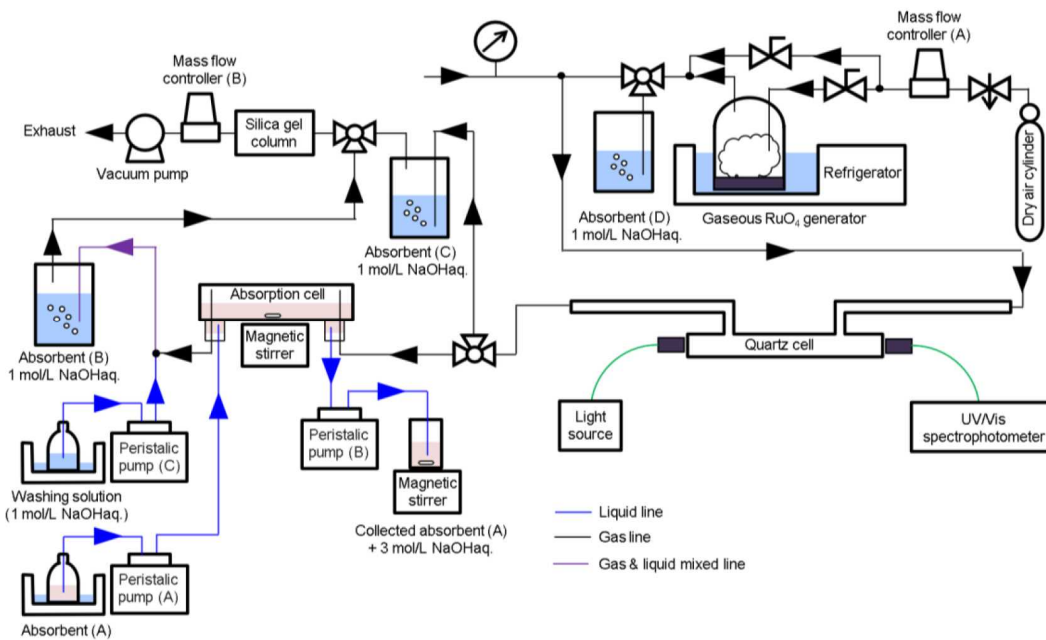
表 2.1.10 Ru 気液接触試験条件

Table 2.1.10 Conditions for Ru gas-liquid contact experiments

温度[°C]	HNO ₃ [mmol/L]	HNO ₂ [mmol/L]	
5~40 (5 °C毎 に試験を 実施)	0	0	
	1000		
	100		2
			5
			10
55*	2000	100	

*自由水及び硝酸が全量蒸発し全量凝縮した状態を想定

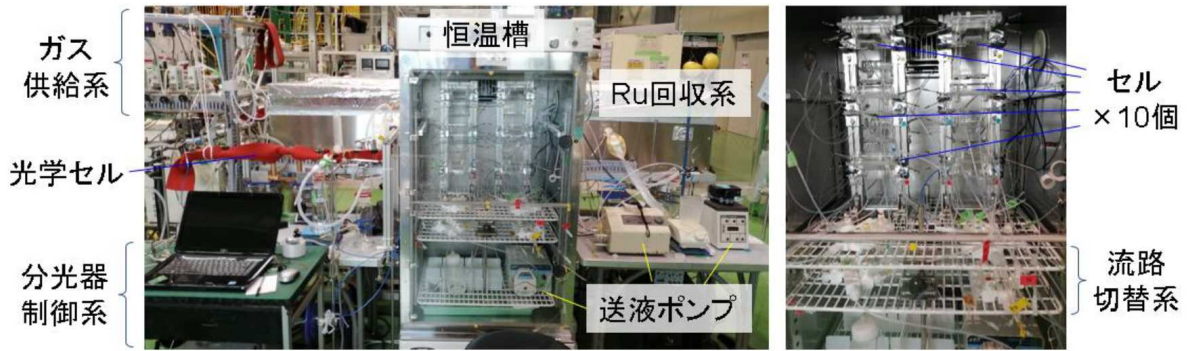
出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2.1.4} より引用 (一部改変)



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2.1.3} より引用

図 2.1.18 Ru 気液接触試験装置の概略図

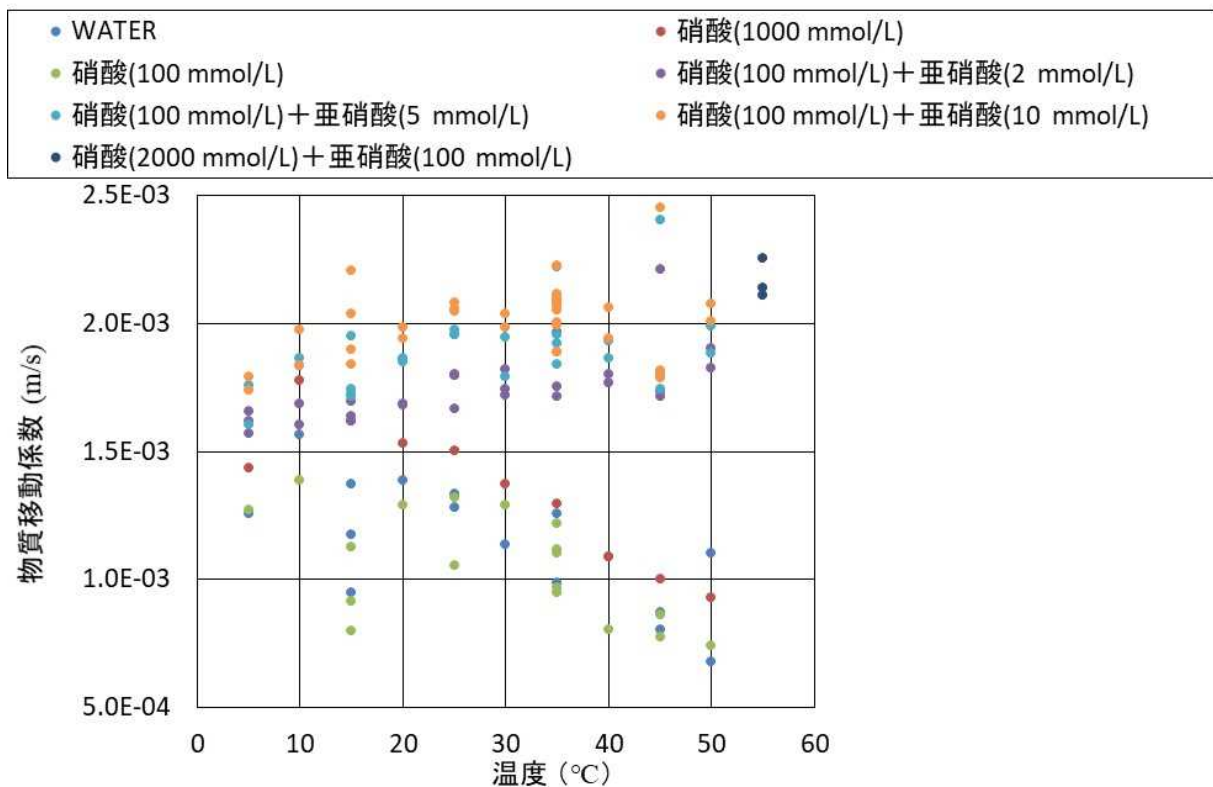
Fig.2.1.18 Schematic diagram of Ru gas-liquid contact experimental apparatus



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2,1,3}より引用

図 2.1.19 Ru 気液接触試験装置の写真

Fig.2.1.19 Photo of Ru gas-liquid contact experimental apparatus



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2,1,4}より引用

図 2.1.20 物質移動係数と温度・亜硝酸濃度の関係

Fig.2.1.20 Relationship between mass transfer coefficient in relation to temperature and nitrite addition concentration

2.1.5 準揮発性物質の移行挙動の把握

蒸発乾固事象が進展して「乾固後の温度上昇段階」まで達した場合には、Cs 化合物等が揮発し、気相へ移行する可能性が考えられることから、当該段階における Cs 化合物等の移行挙動に関する知見を取得する。

そこで、高温に加熱した模擬廃液乾固物からの Cs 化合物等の移行挙動の把握するための試験を実施した。また、この挙動を把握するためには、乾固物で想定される温度挙動を把握することが重要であるため、既往の研究における乾固物温度解析モデルの改良（物性値データの取得を含む。）を実施した。

(1) 高温となった乾固物からの Cs 化合物等の移行挙動の把握

表 2.1.11 に示す乾固物中に形成される可能性がある Cs 化合物等の融点及び沸点の文献調査結果、図 2.1.21 に示す示差熱重量分析を用いた模擬廃液乾固物の加熱試験結果（以下「TG-DTA 試験結果」という。）及び後述する③試験結果より、1350℃までの条件下では、廃液中に存在する Cs に加えて Rb、Mo 及び Re (Tc の代替物質^(注6)) が揮発すること、Cs 及び Rb は自身の揮発性に加えて廃液中の共存元素である Mo、Re 等と複酸化物（図 2.1.21 の下矢印で示す化合物）を形成し、Cs 及び Rb の揮発開始温度が低温側に遷移することを推定した（委託報告書参照^{2.1.3、2.1.4}）。

上記の Cs 化合物等の揮発特性を踏まえ、高温となった乾固物からの Cs 化合物等の移行挙動を把握する試験を実施した。

① 試料

2.1.2(1)で述べた模擬廃液及び Tc の代替物質である Re 添加した模擬廃液（以下「Re 添加模擬廃液」という。）を、それぞれ Cs 化合物等の揮発が生じない 800℃及び 550℃まで加熱し乾固物試料を作製した。Re 添加模擬廃液の組成を表 2.1.12 に示す。Re 濃度の決定には、既往の文献^{2.1.22}を参考にした。

② 試験方法

表 2.1.13 に実施した 10 試験での温度条件、ガス流速等を示す。一定温度に制御した移行経路の壁面温度をパラメータとして経路下流のフィルタを通過した元素を測定した。また、Run7～10 は、フィルタの位置を変更することで滞留時間もパラメータにした。

水平に設置した石英管内で揮発した Cs 化合物等が経路内壁に沈着した量、フィルタで捕集された量及びフィルタを通過した量を把握できる「Cs 等移行挙動試験装置」を用いた（図 2.1.22）。Cs 化合物発生電気炉に乾固物を設置して所定の条件で加熱した。

^(注6) Tc は安定同位体が存在しないため、本試験では Tc の代替物質として Tc と同様に 7 価の陰イオンを形成する Re を使用して Re 添加模擬乾固物を用いている。Re 添加模擬乾固物中では Tc と同様に過レニウム酸塩が生成されると考えられる。過テクネチウム酸塩と過レニウム酸塩の融点はともに約 600℃である。

加熱により放出された元素は気相への移行率（ARF：Airborne Release Fraction）及び移行経路での低減率（LPF：Leak Path Factor）として評価した。ARF は式(2.1.4)、LPF は式(2.1.5)で算出した。

$$(ARF) = \frac{\text{(乾固物試料中を除いた試験系内での全回収量)}}{\text{(乾固物試料中の量)}} \dots\dots\dots(2.1.4)$$

$$(LPF) = \frac{\text{(フィルタ下流及びガス吸収液での回収量)}}{\text{(温度一定区間以降での回収量)}} \dots\dots\dots(2.1.5)$$

③ 試験結果

a. 模擬乾固物（Run1～4）

図 2.1.23 に Run1 での Cs 等元素の ARF を示す。模擬乾固物からは Cs、Rb、Mo 及び Ru が放出される結果となった。Ru は、RuO₂ から RuO₄ 等の化学形で放出されたと考えられる^{2.1.24}。Cs、Rb 及び Mo、模擬乾固物の TG-DTA 試験結果から推定した化合物 Cs₂MoO₄、Rb₂MoO₄ 及び MoO₃ の量とほぼ一致した。

Cs/Mo が 2 より小さいことから、Cs₂MoO₄ 及び Rb₂MoO₄ 以外の Mo 化合物が放出されたことを示している。これは、1000 °C で放出される可能性がある Mo 化合物を示していることから、ZrMo₂O の分解に伴う MoO₃^{2.1.19} の放出と考えられる。他の Run においてもおおむね同じ傾向を示した。

模擬乾固物から発生した Cs 等元素の LPF（Run1～4）の結果を図 2.1.24 に示す。1000 °C の試験では Cs 及び Mo の LPF が約 0.9 で大半の Cs₂MoO₄ がフィルタを通過する結果となった。400 °C では Cs の LPF は約 4×10⁻⁴ まで減少した。一方、Ru の LPF は 800 °C では約 1 であったが、温度の低下に伴い 600 °C から低下し、400 °C では約 0.23 まで低下した。これは、ガスとして放出された Ru 化合物と Cs 化合物とでエアロゾルの生成挙動が異なることを示している。

b. 添加模擬乾固物（Run5～10）

図 2.1.25 に Run5 での Cs 等元素の ARF を示す。Re 添加模擬乾固物から Cs、Re 及び Rb が放出される結果が得られた。加熱により放出された元素は、Re 添加模擬乾固物の TG-DTA 試験結果から推定した化合物 CsReO₄ 及び RbReO₄ と一致した。なお、Mo は揮発前の温度条件での試験であるため、検出されなかった。

Run5 では、Cs の放出量と Re の放出量のモル比が約 1.2 となった。既往の報告では、600 °C で模擬廃液を加熱した際の放出物について Cs と Tc のモル比が 1.13 とある^{2.1.25}。Run5 で得られた値と既往の報告がおおよそ一致したことから、Cs は CsReO₄ として放出されたと考えられる。Rb も Cs と同様に RbReO₄ として放出されたと考えられる。Run5 での Cs と Rb 比は約 16 となり、文献で述べている放出時の CsTcO₄ と RbTcO₄ のモル比 20^{2.1.23} に近い値が得られた。他の Run においても ARF はおおむね同じ傾向を示した。

Re 添加模擬乾固物から発生した Cs 等元素の LPF を図 2.1.26 に示す。800 °C の試験では Cs、Rb 及び Re の LPF が約 1 であったが、100 °C では LPF が約 5×10^{-3} まで低下する結果となった。特に、LPF の低下は 600~400 °C 間が大きく、CsReO₄ 及び RbReO₄ の融点である約 600 °C を下回ると特に顕著であった。

(2) 乾固物温度解析モデルの整備

既往の研究^{1.1.12}で整備した乾固物温度挙動解析モデルの精度向上に加え、乾固物の温度変化挙動をより定量的に評価するために必要な事項を整理するとともに、適用可能な解析モデルの調査・検討を行うことが重要となる。

既往の研究で整備した乾固物温度挙動解析モデルは 2 次元円柱座標系(r, z)の固体を対象としたものである^{1.1.12}。乾固物が昇温すると低融点化合物の融解や熱分解ガスの発生等の現象が生じ、体系が変化することが予想される。また、乾固物の冷却のために注水操作を行う場合には、乾固物内部への冷却水の浸透などの評価も必要になるものと考えられる。

よって、乾固物の温度変化挙動をより定量的に評価するために必要な事項の整理と適用可能な解析モデルの調査・検討した。さらに、改良した解析モデルを用いた試解析を実施した(委託報告書参照^{2.1.4})。

① 乾固物温度解析モデルの改良点の検討

既往の研究で整備された図 2.1.27 に解析モデルの概要図を示す^{1.1.12}。高レベル濃縮廃液乾固物及び乾固物に接する貯槽壁面(SUS304)のみで構成された体系である。考慮されていない貯槽内外での伝熱機構を考慮した解析モデルの改良案の概要図を図 2.1.28 に示す。貯槽内外での自然対流熱伝達及び輻射並びに貯槽セル壁内部の熱伝導を考慮した。セル外側は大規模空間であることから、セル壁外側を境界条件(温度一定)とした。

② モデル改良に資すると考えられる事項

(a) 融解エンタルピー

2.1.5(1)で示したように 400 °C 以上で起きる現象は、硝酸塩の熱分解だけでなく CsTcO₄ 等の融解も挙げられる。現状の乾固物温度解析モデルで硝酸塩の脱硝反応に伴う吸熱量は考慮しているものの、Cs 化合物等の融解については考慮されていない。よって、CsTcO₄ 及び RbTcO₄ の融解を解析に組み込むにあたり、代替として CsReO₄ 及び RbReO₄ の融解エンタルピーを検討した。CsTcO₄ 等の融解エンタルピーを表 2.1.14 に示す^{2.1.20, 2.1.21}。なお、Cs₂MoO₄ の値^{2.1.26}も参考として示す。融解エンタルピーは、Cs の場合では CsTcO₄ と比較して約-3 %、Rb の場合では RbTcO₄ と比較して約+10 %となった。

(b) 乾固物の物性値

乾固物の物性値(密度、比熱容量及び熱伝導率)が必要である。現状では模擬廃液乾固物について 400 °C まで加熱して作製した場合の値が存在する^{1.1.12}。なお、熱伝導率は 600 °C まで加熱した模擬乾固物の測定報告がある^{2.1.27}。

約 600 °C 以上では Cs 化合物等の融解が発生する温度領域においても以下の方法で物性値測定は可能であると考えられる。密度は常温でガス膨張法による測定が可能である。た

だし、試料を作製する際の最高温度や加熱時間によって試料中の Cs 等の残存量が変動する可能性があるため、試料中の Cs 等の残存量を把握する必要がある。比熱容量は CsReO₄ 等の揮発が顕著に発生しない温度までであれば、断熱連続法により可能である。熱伝導率については、測定中に Cs 化合物等の融解が起きても熱線法による熱伝導率測定が可能である。

③ 適用可能な解析モデルの調査・検討

MELCOR は米国原子力規制委員会 (U.S. Nuclear Regulatory Commission) 及びサンディア国立研究所において開発されている原子炉の過酷事故解析コードである^{2.1.28, 2.1.29}。蒸発乾固事故については、MELCOR で考慮できない箇所を別途開発した解析コード (沸騰乾固模擬ツール、SCHERN) を組み合わせて解析している^{2.1.30~2.1.32}。よって、乾固物温度解析への MELCOR の適用可能性を調査した。

まず、乾固物の温度上昇に伴い、CsTcO₄、Cs₂MoO₄ 等の揮発が起きると予想されるため、これらの揮発について確認した。MELCOR では Cs 等の揮発のモデルが整備されており、Cs₂MoO₄ は整備済みのデータに含まれている。Cs₂MoO₄ の揮発の場合、次式のとおりである。

$$\log_{10}(P) = -\frac{13600}{T} + 8.895 \quad (600K < T < 1229.5K) \quad \dots\dots\dots(2.1.6)$$

$$\log_{10}(P) = -\frac{12100}{T} + 7.675 \quad (T > 1229.5K) \quad \dots\dots\dots(2.1.7)$$

P は蒸気圧 (mmHg)、T は絶対温度 (K) である。CsTcO₄ などの整備されていない物質については、利用者が揮発モデル式を入力することができる。CsTcO₄ の代替として CsReO₄ を使用し Cs₂MoO₄ と同様の式で CsReO₄ の揮発をモデル化する場合、真空熱天びんによる蒸気圧測定^{2.1.33}を行い、その測定結果を用いて整備する方法が考えられる。

図 2.1.28 のように乾固物、セル貯槽及びセル壁面を考慮する場合、構造材料の SUS304 及びコンクリートの物性値 (密度、比熱容量、熱伝導率) については整備されている。乾固物の物性値 (密度、比熱容量、熱伝導率) については整備されていないものの、利用者が乾固物の物性値を入力して使用することが可能である。

乾固物中の温度分布への適用を検討したところ、MELCOR には既に多くの解析に必要なデータ (構造材、コンクリートの物性値等) が整備されており、さらに整備されていない乾固物物性値データを別途入力で設定することにより適用可能であると考えられる。

(3) 総括

【(1)高温となった乾固物からの Cs 化合物等の移行挙動の把握】

Cs 化合物等の移行挙動を把握するために試験して得られた結果を以下にまとめる。

- Cs 化合物等の LPF は移行経路内壁温度の低下に伴い減少する結果となった。これは、温度低下に伴いエアロゾルの生成量が増加したためと考えられる。

- ・模擬廃液に Re 添加することにより、乾固物からの CsReO₄ 等の揮発温度が低い側に遷移した。また、揮発量が増加するとともに、移行経路中での沈着割合も低くなった。

【(2)乾固物温度解析モデルの整備】

乾固物の温度挙動を把握するために、既往の研究における解析モデルの改良（物性値データの取得を含む。）が必要と考えられる。以下の事項を整理し、改良した解析モデルで試解析を実施した。

- ・乾固物温度解析モデルの改良点を検討し、改良モデルを反映した解析モデルで試解析を実施した。
- ・より高温の乾固物の物性値測定手法を検討した。
- ・乾固物温度分布解析に適用可能な解析モデルの調査・検討を行った。

表 2.1.11 乾固物中に形成される可能性がある Cs 化合物等の融点及び沸点

Table 2.1.11 Melting and boiling points of Cs compounds, etc. that possibly form in dried s-HLLW

化合物	融点[°C]	沸点[°C]	文献調査の結果
CsNO ₃ ^{2.1.17}	415	—	500 °Cで一定速度の揮発を観測
RbNO ₃ ^{2.1.17}	315	—	450 °Cで一定速度の揮発を観測
CsMoO ₄ ^{2.1.18}	956.3	—	—
Rb ₂ MoO ₄ ^{2.1.18}	958	—	—
ZrMo ₂ O ₈ ^{2.1.19}	—	—	950 °Cから分解し MoO ₃ (g)を放出
MoO ₃ ^{2.1.18}	802	1155	—
CsReO ₄ ^{2.1.20}	620	—	—
RbReO ₄ ^{2.1.21}	605	—	—
Re ₂ O ₇ ^{2.1.20}	297	363	—
CsTcO ₄ ^{2.1.20}	595	—	—
RbTcO ₄ ^{2.1.20}	581	—	—
Tc ₂ O ₇ ^{2.1.20}	118.4	310.6	—

出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月。^{2.1.3} より引用 (一部改変)

表 2.1.12 Re 添加模擬廃液の組成

Table 2.1.12 Composition of Re added s-HLLW

元素	使用試薬	濃度 [mol/L]	元素	使用試薬	濃度 [mol/L]
H	HNO ₃	2.24	Cd	Cd(NO ₃) ₂ · 4H ₂ O	3.50×10 ⁻³
P	H ₃ PO ₄	3.89×10 ⁻³	Sn	SnO ₂	2.40×10 ⁻³
Cr	Cr(NO ₃) ₃	7.00×10 ⁻³	Sb	Sb ₂ O ₃	7.10×10 ⁻⁴
Mn	Mn(NO ₃) ₂ · 6H ₂ O	5.00×10 ⁻²	Te	TeO ₂	1.59×10 ⁻²
Fe	Fe(NO ₃) ₃ · 9H ₂ O	2.59×10 ⁻²	Cs	CsNO ₃	6.60×10 ⁻²
Ni	Ni(NO ₃) ₂ · 6H ₂ O	3.37×10 ⁻²	Ba	Ba(NO ₃) ₂	3.23×10 ⁻²
Rb	RbNO ₃	1.55×10 ⁻²	La	La(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O	2.96×10 ⁻²
Sr	Sr(NO ₃) ₂	3.30×10 ⁻²	Ce	Ce(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O	0.100
Y	Y(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O	1.78×10 ⁻²	Pr	Pr(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O	3.00×10 ⁻²
Zr	ZrO(NO ₃) ₂	0.180	Nd	Nd(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O	9.63×10 ⁻²
Mo	金属 Mo	0.120	Sm	Sm(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O	1.80×10 ⁻²
Ru	RuNO(NO ₃) ₃	9.10×10 ⁻²	Eu	Eu(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O	3.47×10 ⁻³
Rh	Rh(NO ₃) ₃	1.45×10 ⁻²	Gd	Gd(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O	9.00×10 ⁻²
Pd	Pd(NO ₃) ₂	4.53×10 ⁻²	Re	HreO ₄	3.00×10 ⁻²
Ag	AgNO ₃	2.09×10 ⁻³	—	—	—

出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和3年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和4年3月.^{2,1,3}より引用(一部改変)

表 2.1.13 Cs 等元素移行挙動試験条件一覧

Table 2.1.13 List of conditions for Cs, etc elements migration behavior experiments

Run	試料	乾固物試料の温度 [°C]	温度一定区間の壁面温度 [°C]	滞留時間 [s]	試験時間 [h]
1	模擬乾固物	1000	1000	10	5
2			800		
3			600		
4			400		
5	Re 添加 模擬乾固物	800	800	10、20、40	1
6			600		
7			400		
8			300		
9			200		
10			100		

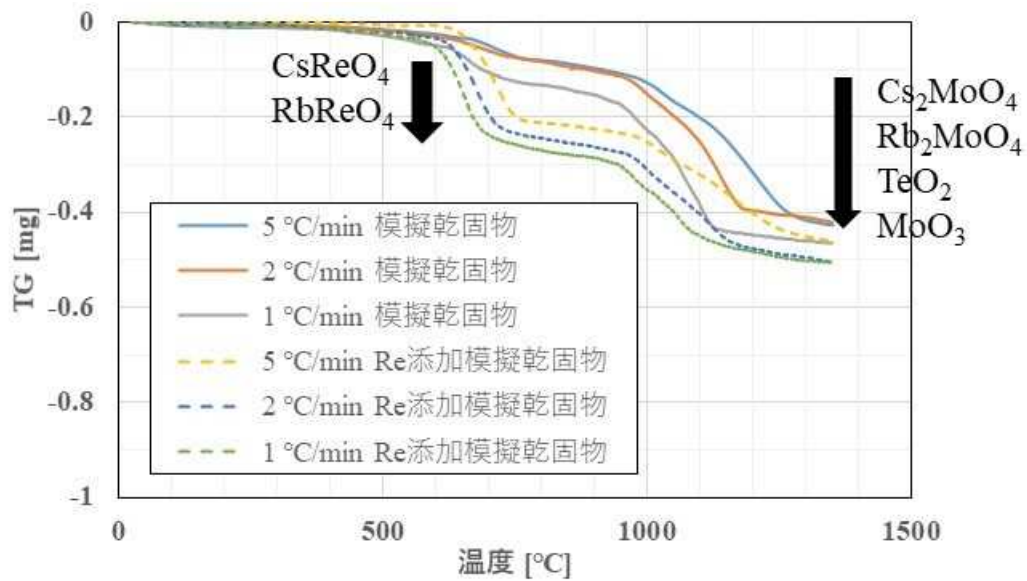
出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2.1.3}及び令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2.1.4}より引用 (一部改変)

表 2.1.14 Cs 化合物等の融解エンタルピー

Table 2.1.14 Melting enthalpy of Cs compounds, etc.

試料	融解熱[kJ/mol]	参考文献
CsTcO ₄	35	2.1.24)
RbTcO ₄	31	2.1.24)
CsReO ₄	34	2.1.24)、2.1.25)
RbReO ₄	34	2.1.25)
Cs ₂ MoO ₄	30	2.1.33)

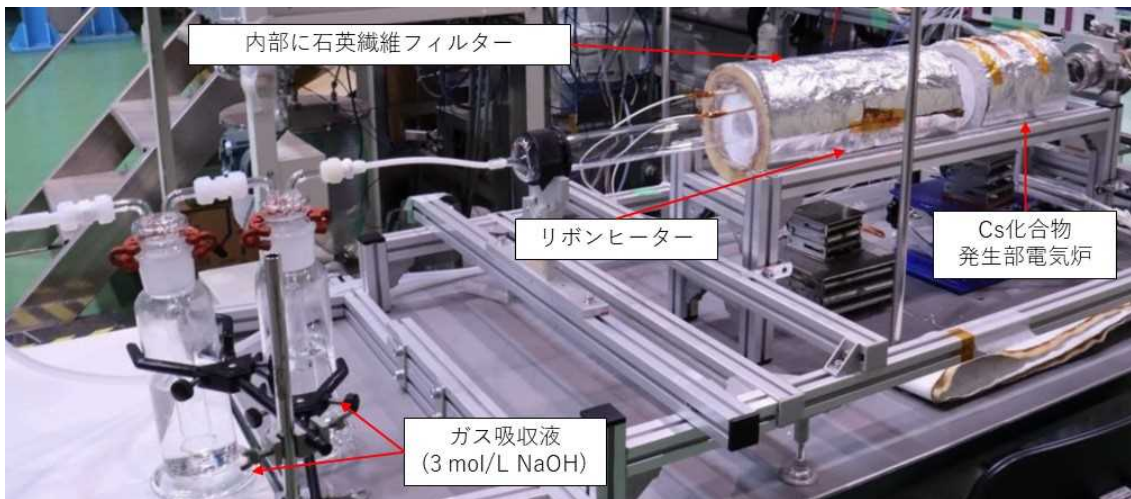
出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2.1.3}より引用 (一部改変)



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和3年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和4年3月.^{2,1,3}より引用(一部改変)

図 2.1.21 模擬乾固物及び Re 添加模擬乾固物の TG 曲線

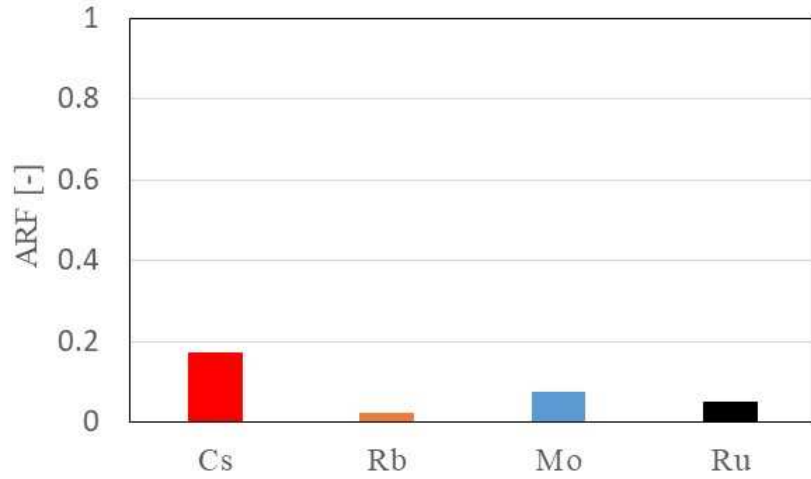
Fig.2.1.21 TG curves for dried s-HLLW and Re added dried s-HLLW



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和3年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和4年3月.^{2,1,3}より引用

図 2.1.22 Cs 等移行挙動試験装置の写真

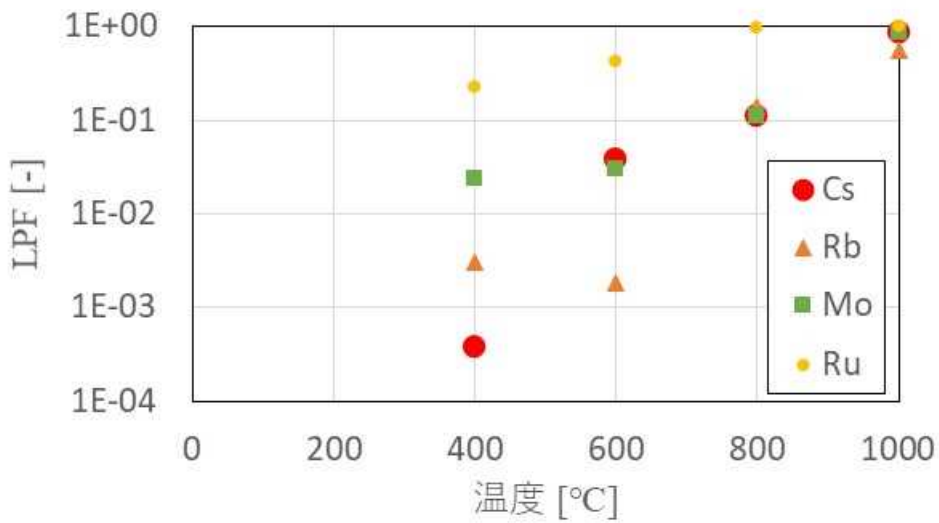
Fig.2.1.22 Photo of the experimental apparatus for migration of Cs, etc



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2.1.3} より引用

図 2.1.23 Cs 等元素の ARF (模擬乾固物)

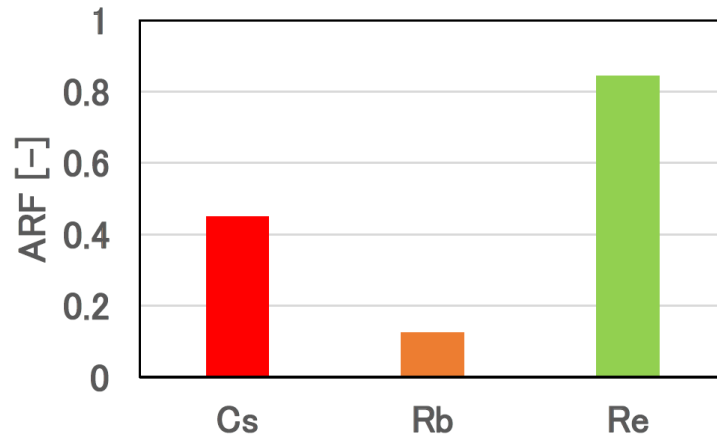
Fig.2.1.23 ARF of Cs, etc elements (Dried s-HLLW)



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2.1.3} より引用

図 2.1.24 模擬乾固物から発生した Cs 等元素の LPF

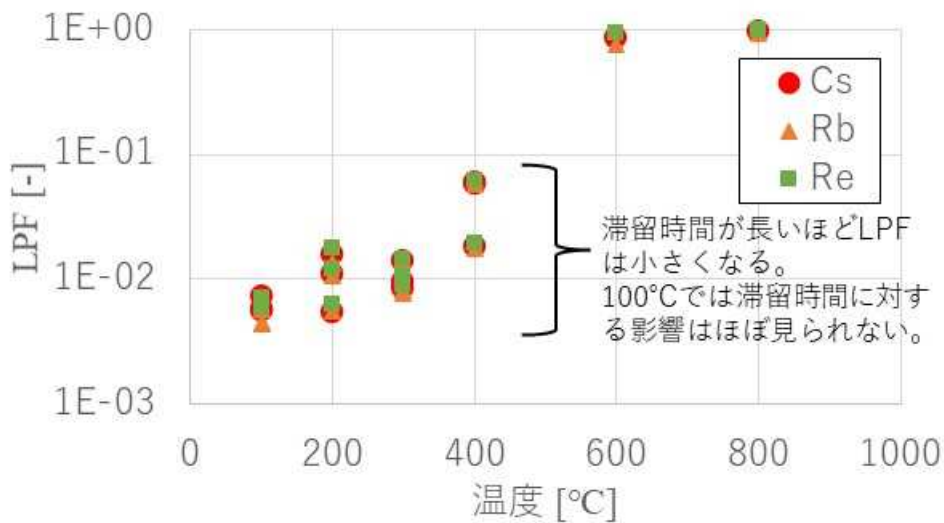
Fig.2.1.24 LPF of Cs, etc elements released from dried s-HLLW



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2.1.3}より引用

図 2.1.25 Cs 等元素の ARF (Re 添加模擬乾固物)

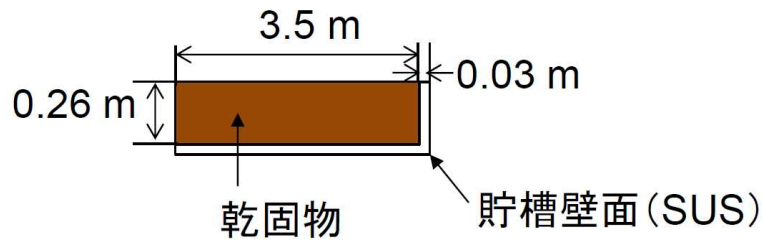
Fig.2.1.25 ARF of Cs, etc elements (Re added dried s-HLLW)



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和 3 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 4 年 3 月.^{2.1.3}より引用及び令和 4 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和 5 年 3 月.^{2.1.4}より引用 (一部改変)

図 2.1.26 Re 添加模擬乾固物から発生した Cs 等元素の LPF

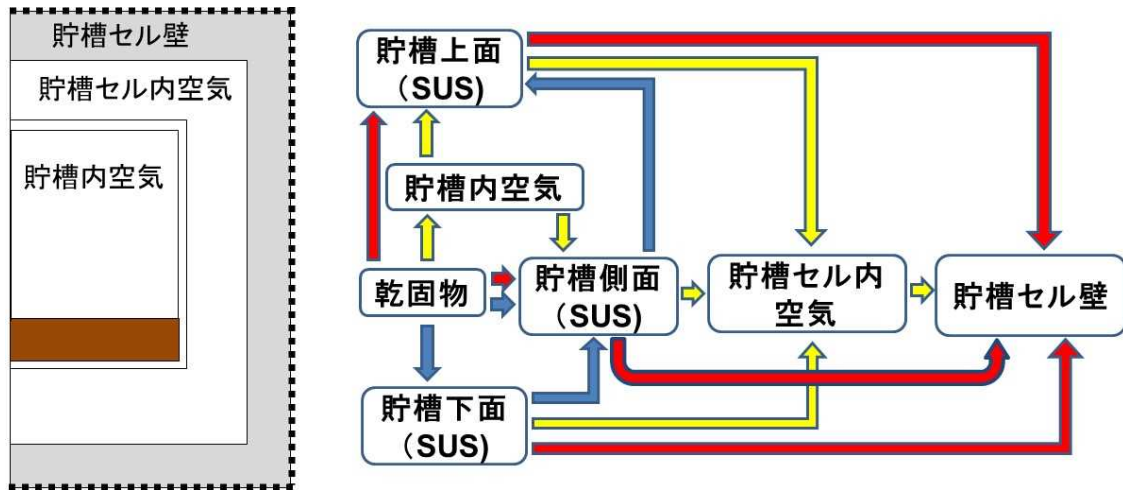
Fig.2.3.26 LPF of Cs, etc elements released from Re added dried s-HLLW



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和3年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和4年3月.^{2.1.3}より引用

図 2.1.27 解析モデルの概要図

Fig.2.1.27 Schematic diagram of the numerical analysis model



出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和4年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和5年3月.^{2.1.4}より引用

図 2.1.28 解析モデルの改良案の概要図

Fig.2.1.28 Schematic of improvements to the numerical analysis model

2.1.6 事象進展解析コードの整備に向けた課題の分析

蒸発乾固事象を対象とした総合的な事象進展解析コードを整備するためには、廃液の沸騰から乾固までの各段階で生じる項目に着目した実験データの取得とモデル化が重要と考えられる。既往の研究成果等における事象進展解析モデルの整備状況を踏まえ、解析コードを整備する上での課題、課題解決に必要な試験データ等について分析した。

分析にあたり、(1)貯槽内で発生する事象、(2)移行経路で発生する事象及び(3)影響緩和対策由来の事象の3つに分けて整理した。

(1) 貯槽内で発生する事象

表 2.1.15に貯槽内で発生する事象を事象進展段階に区分して整理することにした。

例えば、乾固後の温度上昇段階(2)では、2.1.5で述べたようにCsやRb等の準揮発性元素の放出が開始する。また、Tcが共存すると過テクネチウム酸塩 ($CsTcO_4$ 及び $RbTcO_4$) を形成することで、Tcが存在しない場合と比べてこれら元素の放出開始温度が大幅に低下する可能性がある。

表 2.1.15に重要と考えられる事象を挙げ、その事象の中で評価項目及び変数も記載した。表中の○は、着目した各事象及び評価項目が対応すると考えられる事象進展段階に付した。たとえば、自由水の蒸発に伴う硝酸濃縮では硝酸濃度を評価する。沸騰晩期(1)まではこれを考慮する必要があるが、沸騰晩期(2)以降は自由水・硝酸の存在がないため、考慮する必要がない。事象としては、廃液・乾固物の温度上昇、自由水の蒸発に伴う硝酸濃縮、水蒸気の発生、硝酸蒸気の発生、飛まつ同伴によるミスト/エアロゾルの発生、水の蒸発・加熱・酸濃度上昇に伴う沈殿の発生、気体状Ruの発生、その他準揮発性元素 (Cs、Tc等) の発生、化学平衡+放射線分解により生成した亜硝酸による気体状Ruの発生の抑制、化学平衡+放射線分解による硝酸由来の亜硝酸・NO_xの発生量と揮発量、硝酸塩・錯体の熱分解+放射線分解に伴う亜硝酸・NO_xの発生量と揮発量及び廃液・乾固物の物性変化を挙げている。

(2) 移行経路で発生する事象

表 2.1.16に移行経路内で発生する事象を整理して示す。着目している箇所が移行経路内であるから、壁面温度の上昇や移行経路内での水蒸気及び硝酸蒸気の凝縮等を対象とする。事象としては、壁面温度の上昇、気相温度の上昇、気相組成の変化、蒸気凝縮の発生 (硝酸/水)、凝縮液への気体状Ruの移行、気相組成変化に伴う気体状Ruの化学形変化 (熱分解)、気相中成分 (水・硝酸・Ru) 由来のエアロゾルの形成、ミスト/エアロゾルの経路中の移動現象、気体状Ruの経路表面との化学反応による沈着及び壁面材料へ沈着・凝縮液へ溶解したRuの加熱による再揮発を挙げている。

(3) 影響緩和対策由来の事象

表 2.1.17に影響緩和策由来の事象を整理して示す。事象としては、飛まつ同伴によるミストの発生、酸濃度低下、冷却による沈殿生成、気体状Ruの発生への影響、難揮発性元素の放出、HEPAフィルタによるRu捕集及びスプレーによる放射性物質除去を挙げている。

(4) 総括

蒸発乾固事象を対象とした総合的な事象進展解析コードを整備するため、既往の研究成果等における事象進展解析モデルの整備状況を踏まえ、解析コードを整備する上での課題、課題解決に必要な試験データ等について分析した。その結果、貯槽内で発生する事象、移行経路で発生する事象及び影響緩和策由来の事象の3つに分けて、発生する事象を事象の進展段階に分けて体系的に整理することができた。

蒸発乾固事象を対象とした総合的な事象進展解析コードを整備に資するため、今後の方針としては、個々の重要と考えられる事象に関して、必要な試験データが取得されているも

については既往の基礎式に基づくデータの整理（熱流動、物質移行基本式を導出）を行い、データが不足しているものについては必要に応じて追加データ取得を行う。

表 2.1.15 高レベル濃縮廃液貯槽内で発生する事象の整理

Table 2.1.15 Organizing events that occur in the high-level liquid waste, storage tank

発生事象	No.	評価項目	事象発生の段階								現象のモデル化に必要と考えられる項目 (朱記は一部でも検討に着手している項目)		
			非沸騰状態	沸騰初期	沸騰晩期(1)	沸騰晩期(2)	乾固(1)	乾固(2)	乾固後の温度上昇(1)	乾固後の温度上昇(2)			
廃液・乾固物の温度上昇	1	温度	○	○	○	○	○	○	○	○	○	廃液温度、乾固物の温度経時変化	
自由水の蒸発に伴う硝酸濃縮	2	硝酸濃度	○	○	○	-	-	-	-	-	-	加熱中の廃液の硝酸濃度経時変化	
水蒸気の発生	3	水蒸気発生速度 (自由水由来)	○	○	○	-	-	-	-	-	-	各液温度での水蒸気発生速度経時変化	
	4	水蒸気発生速度 (結晶水・錯体由来)	-	-	-	○	○	○	○	○	○	乾固物の分解により発生する水蒸気の発生速度経時変化	
硝酸蒸気の発生	5	硝酸発生速度 (自由硝酸由来)	○	○	○	-	-	-	-	-	-	各廃液温度での硝酸蒸気発生速度経時変化	
	6	硝酸発生速度 (錯体・塩由来)	-	-	-	○	○	○	○	○	○	乾固物の分解により発生する硝酸の発生速度経時変化	
飛沫同伴によるミスト/エアロゾルの発生	7	ミスト・エアロゾル発生速度(粒子個数密度)										各廃液温度・廃液濃縮度での飛まつ同伴によるミスト・エアロゾル発生速度経時変化、粒子個数密度	
	8	事象進展に伴うミスト・エアロゾルの化学組成変化	○	○	○	-	-	-	-	-	-	各廃液温度・廃液濃縮度での飛まつ同伴により発生するミスト・エアロゾルの化学組成とその経時変化	
	9	事象進展に伴うミスト・エアロゾルの粒径分布変化										各廃液温度・廃液濃縮度での飛まつ同伴により発生するミスト・エアロゾルの粒径分布とその経時変化	
	10	加熱履歴(事象進展速度)と飛沫同伴による物質移行量の関係										異なる加熱時間(沸騰継続時間)とミスト・エアロゾルによる物質移行量の関係	
水の蒸発・加熱・酸濃度上昇に伴う沈殿の発生	11	事象進展に伴う液相組成の変化	○	○	○	-	-	-	-	-	-	各廃液温度・廃液濃縮度での液相の化学組成(元素比、各元素の化学形)の経時変化	
	12	事象進展に伴う固相組成の変化	-	○	○	○	○	○	○	○	○	各廃液温度・廃液濃縮度での固相の化学組成(元素比、各元素の化学形)の経時変化	
	13	事象進展に伴う沈殿量の変化										各廃液温度・廃液濃縮度での沈殿量、固液比経時変化	
	14	沈殿発生に至る反応機構(モリブデン酸ジルコニウムの形成機構など)	○	○	○	-	-	-	-	-	-	-	
気体状 Ru の発生	15	気体状 Ru の発生速度										廃液加熱に伴う、各廃液温度・廃液濃縮度での気体状 Ru の発生速度経時変化	
	16	気体状 Ru の化学形										廃液から発生する気体状 Ru の化学構造	
	17	加熱履歴(事象進展速度)と気体状 Ru 発生総量の関係	-	○	○	○	-	○	-	○	-	○	各加熱条件での気体状 Ru の発生量経時変化
	18	発生に至る反応機構											
その他揮発性元素の発生(Cs、Tc等)	19	Ru以外の化学種について、15~18の評価を行う	-	-	○	○	-	-	-	-	○	蒸発乾固時のCs、Tcの放出割合	
化学平衡+放射線分解により生成した亜硝酸による気体状 Ru の発生の抑制	20	有るのか。有るならどれくらいか。	○	○	-	-	-	-	-	-	-	亜硝酸添加時の気体状 Ru 発生速度	
	21	効果有りならばその反応機構										-	
化学平衡+放射線分解による硝酸由来亜硝酸・NOxの発生量と揮発量	22	廃液中の亜硝酸濃度	○	○	○	-	-	-	-	-	-	廃液中亜硝酸生成速度とその経時変化	
	23	廃液からの気相への亜硝酸・NOx放出速度										廃液からの気相への亜硝酸放出速度とその経時変化	
硝酸塩・錯体の熱分解+放射線分解に伴う亜硝酸・NOxの発生量と揮発量	24	乾固物からの気相へのNOx放出速度										乾固物からの気相へのNOx放出速度とその経時変化	
	25	発生するNOxの化学種、発生量、発生速度	-	-	-	○	○	○	○	○	○	乾固物の温度、昇温速度と発生量、発生速度との定量的関係	
廃液・乾固物の物性変化	26	事象進展に伴う変化	○	○	○	○	○	○	○	○	○	廃液の粘性、密度、乾固物の密度、熱伝導率	

出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和3年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和4年3月^{2,1,3}より引用(一部改変)

表 2.1.16 移行経路内で発生する事象の整理

Table 2.1.16 Organize events occurring within the migrations route

発生事象	No.	評価項目	事象発生段階								現象のモデル化に必要と考えられる項目 (朱記は一部でも検討に着手している項目)
			非沸騰状態	沸騰初期	沸騰晩期(1)	沸騰晩期(2)	乾固(1)	乾固(2)	乾固後の温度上昇(1)	乾固後の温度上昇(2)	
壁面温度の上昇	1	壁面温度	○	○	○	○	○	○	○	○	実験装置壁面温度の経時変化
気相温度の上昇	2	気相温度	○	○	○	○	○	○	○	○	実験装置内気相温度の経時変化
気相組成の変化	3	気相組成	○	○	○	○	○	○	○	○	移行経路中の気相組成の経時変化 (水蒸気/硝酸蒸気/Ru/NOx/エアロゾル)
蒸気凝縮の発生 (硝酸/水)	4	凝縮液量	-	○	○	○	-	-	-	-	移行経路中の凝縮液量の分布
	5	凝縮液の硝酸濃度	-	○	○	○	-	-	-	-	各条件の凝縮液中の硝酸濃度分布
凝縮液への気体状 Ru の移行	6	各組成の凝縮液への Ru 吸収速度	-	○	○	○	○	○	-	-	様々な濃度の硝酸水溶液への Ru の溶解 + 化学吸収速度
	7	各凝縮液組成の溶液中の Ru の化学形	-	○	○	○	○	○	-	-	諸条件下での凝縮液中の Ru 化学形
気相組成変化に伴う気体状 Ru の化学形変化 (熱分解)	8	各気相条件での化学形・物理形変化速度	-	○	○	○	○	○	○	○	RuO ₄ →RuO ₂ の変化速度。硝酸蒸気中での新たな気体状 Ru の生成反応が有る場合にはその生成速度
	9	RuO ₄ 放射線分解	-	○	○	○	○	○	○	○	放射線照射/非照射条件下での RuO ₄ の分解速度
	10	各気相条件での化学形・物理形変化の生成物	-	○	○	○	○	○	○	○	熱分解生成物の化学構造、新規気体状 Ru の化学構造
気相中成分 (水・硝酸・Ru)由来のエアロゾルの形成	11	エアロゾル量	-	○	○	○	○	○	○	-	各気相条件下での気相成分由来のエアロゾル生成速度とその経時(滞留時間)変化
	12	エアロゾル化学形・組成	-	○	○	○	○	○	○	-	各気相条件下で新規に生成したエアロゾルの化学組成とその経時(滞留時間)変化
	13	エアロゾル粒径分布	-	○	○	○	○	○	○	-	気相中で新規に生成するエアロゾルの粒径分布
ミスト/エアロゾルの経路中の移動現象	14	熱泳動による固相、液相への移行量	-	○	○	○	○	○	○	-	ミスト・エアロゾルの固相沈着量、液相への移行量
	15	移行中のエアロゾル化学組成変化	-	○	○	○	○	○	○	-	ミスト・エアロゾルの様々な気相条件・滞留時間での化学組成
	16	移行中のエアロゾルの物性変化	-	○	○	○	○	○	○	-	ミスト・エアロゾルの様々な気相条件・滞留時間での粒径分布
気体状 Ru の経路表面との化学反応による沈着	17	コンクリート、ペイント材等への沈着速度	-	○	○	○	○	○	○	○	気体状 Ru のコンクリート・ペイント剤への沈着速度
	18	事象進展に伴うコンクリート・ペイント材等の化学変化と Ru 沈着への影響	-	○	○	○	○	○	○	○	硝酸との接触や加熱により化学変化したペイント剤・コンクリート表面に対する気体状 Ru の沈着速度
	19	Ru のコンクリート、ペイント材等への沈着化学形	-	○	○	○	○	○	○	○	壁面材料へ沈着した Ru の化学形
壁面材料へ沈着・凝縮液へ溶解した Ru の加熱による再揮発	20	液→気発生条件と発生速度、発生機構	-	○	○	○	○	○	○	○	Ru の溶解した硝酸溶液の加熱による気体状 Ru の発生速度
	21	固→気発生条件と発生速度、発生機構	-	○	○	○	○	○	○	○	Ru が沈着した様々な壁面材料の加熱による気体状 Ru の発生速度

出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和3年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和4年3月.^{2,1,3}より引用(一部改変)

表 2.1.17 影響緩和対策由来の事象の整理

Table 2.1.17 Organize events derived from accident management

発生事象	No.	評価項目	事象発生段階								現象のモデル化に必要と考えられる項目 (朱記は一部でも検討に着手している項目)
			非沸騰状態	沸騰初期	沸騰晩期(1)	沸騰晩期(2)	乾固(1)	乾固(2)	乾固後の温度上昇(1)	乾固後の温度上昇(2)	
飛まつ同伴によるミストの発生	1	ミスト・エアロゾル発生量と注水量、注水速度、注水時の濃縮度、温度の関係	-	○	○	○	-	-	-	-	異なる注水条件下でのミスト発生量と経時変化
	2	ミスト・エアロゾルの化学組成と注水量、注水速度、注水時の濃縮度、温度の関係	-	○	○	○	-	-	-	-	異なる注水条件下で発生するミストの化学組成とその経時変化
酸濃度低下、冷却による沈殿生成	3	沈殿発生量と注水量、注水速度、注水時の廃液濃縮度、温度の関係	-	○	-	-	-	-	-	-	異なる注水条件下での沈殿量とその経時変化
	4	沈殿の化学組成と注水量、注水速度、注水時の廃液濃縮度、温度の関係	-	○	-	-	-	-	-	-	異なる注水条件下で発生する沈殿の化学組成とその経時変化
気体状 Ru の発生への影響	5	気体状 Ru 発生量と注水量、注水速度、注水時の廃液濃縮度、温度の関係	-	-	○	○	○	○	-	-	異なる注水条件下での気体状 Ru の発生速度とその経時変化
難揮発性元素の放出	6	注水時乾固物温度、注水量、注水速度との関係	-	-	-	-	○	○	○	○	異なる注水条件下での難揮発性元素放出の経時変化
	7	放出元素の化学的性質との関係	-	-	-	-	○	○	○	○	放出元素化合物の化学形と水溶性との関係整理
	8	注水による乾固物温度変化	-	-	-	-	○	○	○	○	乾固物の生成条件と比表面積、細孔容積分布、水の浸透性
HEPA フィルタによる Ru 捕集	9	Ru の捕集効果	-	○	○	○	○	○	○	○	気体状/エアロゾル状 Ru 組成と捕集効率の関係、HEPA フィルタでの蒸気凝縮との関係
	10	蒸気負荷によるフィルタへの影響	-	○	○	○	○	○	○	○	大量の水蒸気負荷条件下での HEPA フィルタの健全性
スプレーによる放射物質除去	11	スプレーによるエアロゾルの除去効果	-	○	○	○	○	○	○	○	エアロゾルのスプレーによる除去割合
	12	スプレーによる気体状 Ru の除去効果	-	○	○	○	○	○	-	-	気体状 Ru のスプレーによる除去割合

出典) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構、令和3年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での蒸発乾固事象に関する試験等、令和4年3月^{2.1.3}より引用(一部改変)

2.2 GB 火災に関する研究

GB 火災では、有機材料で構成される GB パネルの熱分解及び燃焼、それに伴う熱流動、燃焼に伴うばい煙の発生等の現象が生じ、さらに GB 間での延焼による規模の拡大も想定されることから、事象進展に伴う火災の挙動（火災による事象進展シナリオ）は複雑になることが想定される。そのため、現実的な GB 火災の事象進展シナリオを構築するためには、GB 火災の事象進展に関する知見を取得しておくことは重要である。

また、GB 火災は、GB の内部での火災（以下「GB 内火災」という。）と GB の外部での火災（以下「GB 外火災」という。）に大別される。これらの事象においては、表 2.2.1 に示すように、可燃物、閉じ込め機能を担う設備・機器・構築物（以下「SSC」という。）及び火災防護対策がそれぞれ異なる。そのため、GB 火災の事象進展シナリオの評価には、各事象の特徴を考慮した解析手法が必要となる。本解析手法の整備に当たっては、GB 火災の事象進展において発生する現象や火災防護対策を行うことによって生じる現象を把握した上で、どのような解析モデルが適切かを検討する必要がある。この検討に資するため、GB 火災の事象進展及び火災防護対策の閉じ込め機能に対する影響に関する知見の蓄積が重要となる。なお、本解析手法は、GB の内外で発生した火災事象による施設の閉じ込め機能への影響、事象進展の速さ（余裕時間）等を評価することにより、事象進展シナリオの適切性等の確認に活用できると考える。

このことを踏まえ、原子力規制庁では、リスク情報に基づく検査に関連する GB 火災の事象進展シナリオの検討・構築において必要となる「GB 火災の事象進展に関する知見（GB の大きさ及び構成が燃焼挙動に及ぼす影響等）」を取得するとともに、「GB 火災の事象進展シナリオを評価するための解析手法」の整備を実施している。

2.2.1 研究の概要

(1) GB 火災の事象進展に関する知見の取得

① GB 火災の挙動に関する知見等の取得、分析及び課題の抽出

GB 火災の事象進展に関する知見を拡充することを目的として、先行研究までに未取得又は拡充が必要な GB 火災の挙動に関する試験データ・知見を取得する。具体的な項目を次に示す。

- ・ 実規模 GB 火災の試験データ・知見
- ・ 火災防護対策の閉じ込め機能に対する影響に関する知見

これらの試験データ・知見を分析するとともに課題を抽出する。実規模 GB 火災の知見等の分析に当たっては、表 2.2.2 に示す項目を対象とする。

なお、実規模 GB 火災の試験データは、主に IRSN と原子力規制庁との間で締結された協定「RESEARCH AGREEMENT ON THE IRSN GLOVE BOX FIRES PROGRAM」^{1.1.9}に基づいて 2019 年から 2023 年までの期間で実施されている GB 火災試験（FIGARO プロジェク

ト) で得られる試験データを活用する。本協定における GB 火災試験は、IRSN が実施している。

令和 3 年度及び令和 4 年度では、実規模 GB 火災の試験データを取得し、「開放空間における中規模 GB 火災の挙動」及び「換気系統の影響下における中規模 GB 火災の挙動」に関する知見を分析し、課題を抽出した (2.2.2 参照)。

また、火災防護対策の閉じ込め機能に対する影響に関する知見を取得するため、既往の安全研究において作成した火災防護対策を含む GB 火災のシナリオを対象とした火災解析を実施した (2.2.3 参照)。

②実規模 GB 火災の試験データに基づく解析

①で取得した実規模 GB 火災の試験データに基づく解析を実施し、GB 火災の事象進展に関する知見を取得する。当該解析は、表 2.2.2 に示す項目を対象とし、①で取得した課題を踏まえて実施する。

令和 3 年度及び令和 4 年度では、開放空間における中規模 GB 火災の試験データに基づく解析を実施し、GB 火災の事象進展に関する知見を取得した (2.2.4 参照)。

(2) 火災事象進展シナリオを評価するための解析手法の整備

(1)で取得した「GB 火災の事象進展に関する知見」を踏まえて、火災事象進展シナリオを評価するための解析手法の整備を行う。本作業は、令和 7 年度に実施予定である。

表 2.2.1 GB 内火災及び GB 外火災の特徴

Table 2.2.1 Characteristics of fire inside GB and outside GB

	GB 内火災	GB 外火災
主な可燃物	機械油、アルコール	GB、電気盤、ケーブル
閉じ込め機能を担う SSC	GB、GB 換気系 (GB 排風機、HEPA フィルタ等)	工程室、防火扉、工程室換気系 (工程室排風機、HEPA フィルタ等)
主な火災対策	<ul style="list-style-type: none"> ・ GB 換気系におけるダンパの閉止 ・ GB 内への消火ガスの供給 	<ul style="list-style-type: none"> ・ 工程室換気系におけるダンパの閉止 ・ 工程室内への消火ガスの供給

表 2.2.2 解析及び分析の対象とする項目

Table 2.2.2 Contents of the target of fire simulation and analysis for full-scale GB fires

(a) 分析の対象
<ul style="list-style-type: none"> ・ 開放空間における中規模 GB*火災の挙動 ・ 換気系統の影響下における中規模 GB*火災の挙動 ・ 開放空間における実規模 GB 火災の挙動 ・ 換気系統の影響下における実規模 GB 火災の挙動 ・ 核燃料物質 (粉末) への火勢の影響 ・ GB パネル材の燃焼挙動
(b) 解析項目
<ul style="list-style-type: none"> ・ 開放空間における中規模 GB*火災 ・ 換気系統の影響下における中規模 GB*火災 ・ 開放空間における実規模 GB 火災 ・ 換気系統の影響下における実規模 GB 火災

*中規模 GB は、容量が実規模 GB の半分の大きさの GB を示す。

2.2.2 GB 火災の挙動に関する知見の取得（実規模 GB 火災に関する知見）

FIGARO プロジェクトにおいて実規模 GB 火災の挙動に関する試験データを取得した。主な試験データの項目を次に示す。

- ・ 開放空間における中規模 GB の燃焼試験（主な試験データ：発熱速度（Heat Release Rate: HRR）、可燃物の重量減少等の時間変化）
- ・ 換気条件下における中規模 GB の燃焼試験（主な試験データ：HRR、可燃物の重量減少等の時間変化）

上記の試験データを踏まえ、GB 火災の挙動に関する知見の分析を行い、火災解析における課題を抽出した。GB 火災の挙動に関する知見及び抽出した課題の一例を次に示す。

● GB 火災の挙動に関する知見及び抽出した課題の一例

中規模 GB の燃焼試験の結果から、GB の構成（GB パネルの材料やその組合せ、グローブの穴の有無）の違いは、GB パネルの溶融に伴う開口部の発生までの時間等の GB 火災の事象進展に対して、影響を及ぼすことが確認された。また、GB パネルの溶融に伴い開口部が発生した際には、開口部からの GB 内への空気流入により、発熱量の増大が確認された。

この「GB パネルの溶融に伴う開口部の発生」及び「開口部からの GB 内への空気流入」は、GB 火災の事象進展において重要であると考えられる。ただし、この現象を評価するためには、開口部が発生するまでの時間の評価に加えて、開口部の発生及び開口部からの空気の流入を評価する必要がある。この現象に関する評価については、解析方法を含めて今後の課題として検討する。

2.2.3 GB 火災の挙動に関する知見の取得（火災防護対策に関する知見）

GB 火災の挙動に関する知見の取得の一環として、火災防護対策による GB 等の閉じ込め機能に対する影響に関する知見を取得するため、火災防護対策を含む GB 火災のシナリオを対象とした火災解析を実施した。

(1) 火災防護対策を考慮した解析において対象とした GB 火災の事象進展シナリオ

本解析では、既往の安全研究において作成した、火災防護対策を含む MOX 燃料加工施設の GB 火災を想定した代表的な事象進展シナリオ^{1.1.5}（以下「代表シナリオ」という。）のうち、GB 内火災の事象進展及び火災防護対策を対象とした。図 2.2.1 に代表シナリオを示す。また、表 2.2.3 及び表 2.2.4 に代表シナリオの設定に関する基本的な条件及び前提条件をそれぞれ示す。図 2.2.2 に本シナリオの検討に当たって想定した仮想的な MOX 燃料加工施設（以下「モデルプラント」という。）の系統図を示す。なお、本シナリオの検討に当たっては、公開資料^{2.2.1-2.2.5}を参考とした。

(2) 代表的な GB 火災シナリオの Phase1（GB 内火災）を対象とした火災解析

本解析では、代表火災シナリオのうち、Phase1（GB 内火災）における事象進展及び火災

防護対策を抽出して火災解析を行った。Phase1（GB 内火災）を選定した理由は、Phase1 の時点では一部の換気系統の運転が継続しており、火災防護対策による換気系への影響を評価できると考えたためである。

①本解析の方針及び前提条件

表 2.2.5 及び図 2.2.3 に本解析の方針及び前提条件を示す。

②本解析で使用した解析コード^{2.2.6, 2.2.7}

本解析では、GB 内火災の特徴を踏まえ、換気条件下の GB 内温度・圧力の変動、換気系の応答を評価できる火災解析コード SYLVIA を用いた。SYLVIA は、IRSN において開発されたゾーンモデルの熱流動及び物質移行解析コードである。当該解析コードの特徴を表 2.2.6 に示す。

③解析条件

a. 本解析における主な条件

表 2.2.7 に解析対象とした GB の条件を示す。図 2.2.4 に解析対象とした GB の模式図を示す。図 2.2.5 及び図 2.2.6 に GB の寸法を示す。表 2.2.8 に本解析で用いた各物質の物性値を示す。なお、GB 内の初期雰囲気は空気とした。

また、表 2.2.9 に解析ケースを示す。本解析では、表 2.2.9 に示した火災防護対策を設定しないケース（SY-1（基本ケース））及び当該対策を設定したケース（SY-2）を実施し、これらのケースの結果を比較することにより、火災防護対策の影響について検討した。

b. 解析モデル

(a) SYLVIA における換気系ネットワークモデルの設定

SYLVIA では、ノード及びブランチを組み合わせて換気系ネットワークモデルを構築して、火災解析を行うことにより、大規模かつ複雑な換気系に対する火災の影響を評価できる。

ノードは、火災が発生する部屋（ROOM2Z）、火災が発生しない部屋（ROOM1Z）、境界条件（BCONDIT）等をモデル化するためのものである。ROOM2Z は、部屋内を高温層と低温層の 2 層に分割して、各層の平均温度や酸素モル分率等を評価できる。また、各種ノードでは、空気以外のガスの流入を設定することができ、この機能により消火ガスの供給をモデル化できる。空気以外の流入については、そのガスの組成、ノード内への流量及び流入の時間を任意に設定できる。

一方、ブランチは、ファン（FAN）、弁・ダンパ（VALVE）、フィルタ（FILTER）等の換気系における機器・設備をモデル化するためのものがある。ブランチにおける流量は、FAN 等の解析者が指定するものを除いて、ブランチの前後のノードの圧力差とブランチにおけ

る流路抵抗から計算される。一例として、VALVE モデルにおける流量の計算式を式(2.2.1)に示す^{2.2.6, 2.2.7}。

$$\Delta P = -\text{sgn}(Q_m)R(t)\frac{Q_m^2}{\rho} \dots\dots\dots(2.2.1)$$

ここで、 Q_m はブランチにおける質量流量 (kg/s)、 ΔP はブランチの前後のノード同士の圧力差 (Pa) を示す。 R はブランチの流路抵抗 (m^4) を表し、任意の時間において任意の値に変わるように設定できる。これにより、弁及びダンパの閉止を模擬できる。なお、FAN モデルについては、ファンの流量と圧力差の関係を示す特性曲線を定義し、これに基づいて流量が計算される。

(b) 本解析における換気系ネットワークモデルの設定

本解析における換気系ネットワークモデルは、モデルプラントの GB 換気系の条件に基づいて構築した。当該換気系モデルを図 2.2.7 に示す。また、本換気系モデルに関する設定を表 2.2.10、表 2.2.11 及び表 2.2.12 に示す。なお、GB 排風機については FAN モデルを適用し、図 2.2.8 に示す特性曲線を設定した。

GB は、ROOM2Z を用いてモデル化し、表 2.2.8 に示す壁等の物性値を設定した。GB の解析モデルを図 2.2.9 に示す。また、本解析モデルでは、GB パネルの内側表面温度が出力されるように設定した。GB パネル温度の出力位置を図 2.2.10 に示す。

c. 火災源の設定

SYLVIA では、液体燃料の燃焼により発生する HRR は、可燃物の質量減少速度（火災が発生する部屋に供給される可燃物の供給速度）と当該可燃物の燃焼時の発熱量を掛け合わせることで計算される^{2.2.6, 2.2.7}。前者については、よく換気された条件下での液体燃料の単位燃焼面積当たりの質量減少速度（試験データ等）と燃焼面積の時間履歴（解析者が入力）を掛け合わせることで計算される。本解析においては、エタノールの燃焼面積の時間履歴は、試験データ^{2.2.8}を踏まえて、燃焼開始から全面燃焼に至るまでの時間を 1 秒間とし、全面燃焼に到達した後は、全面燃焼が継続すると想定した。本解析で入力したエタノール燃焼時の燃焼面積の時間変化を図 2.2.11 に示す。

SYLVIA では、燃焼時の質量減少速度に対して、酸素のモル分率変化を考慮した補正機能が実装されている^{2.2.6, 2.2.7}。当該補正は、Peatross and Beyler 則^{2.2.9}に基づくものであり、式(2.2.2)で示される。本解析では、本補正機能を適用して解析を実施した。

$$\dot{m} = \dot{m}_0(10X_{O_2} - 1.1) \dots\dots\dots(2.2.2)$$

ここで、 \dot{m}_0 は空気の酸素モル分率 0.21 における燃料の質量減少速度、 X_{O_2} は燃焼反応に寄与する酸素モル分率、 \dot{m} は酸素モル分率による補正後の質量減少速度である。燃焼反応による発熱量や生成物の量等の計算には \dot{m} が用いられる。図 2.2.12 に式(2.2.2)における酸

素モル分率と質量減少速度に対する補正係数の関係を示す。

さらに SYLVIA では、燃焼下限界酸素モル分率を設定し、火災が発生している部屋内の酸素モル分率が燃焼下限界の値を下回ると消炎したと判断される。本解析では、燃焼下限界の酸素モル分率として、SYLVIA のデフォルト値である 0.11 を設定した。

d. 火災防護対策の設定

SY-2（対策を設定したケース）においては、次のように各火災防護対策を設定した。また、表 2.2.13 に各対策のタイミング及びその設定の考え方を示す。

- ・ 対策 i (GB 給気系の自力式吸気弁の閉止) : 図 2.2.7 のブランチ B1 (VALVE モデル) の流路抵抗を 10^7 m^4 に変化させた。
- ・ 対策 ii (GB 内への消火ガスの供給) : 図 2.2.7 のノード N3 (ROOM2Z モデル) において、GB 内への消火ガスの流入を設定。流量は、事業者の公開資料^{2.2.1-2.2.5}を参考に $179 \text{ m}^3/\text{h}$ とした。消火ガスについては、事業者の公開資料^{2.2.1-2.2.5}に基づき、窒素を設定した。
- ・ 対策 iii (GB 排気設備の延焼防止ダンパの閉止及び GB 排風機の停止) : ブランチ B4 (VALVE モデル) の流路抵抗を 10^7 m^4 に変化させるとともに、ブランチ B7 (FAN モデル) の流量を $0 \text{ m}^3/\text{h}$ とした。

④Phase 1 (GB 内火災) を対象とした解析結果

a. 解析結果

図 2.2.13 から図 2.2.18 に HRR、GB 内酸素モル分率、GB 内圧力、GB への給気流量、GB 内温度（高温層及び低温層）及び GB パネル温度を示す。

SY-2（火災防護対策あり）において、火災防護対策 i 及び ii による GB 内の酸素モル分率の低下に伴い、HRR は SY-1（火災防護対策なし）の場合に比べて低くなる。このことから燃焼反応の抑制が確認された。また、発熱速度の低下に伴い、SY-1 に比べて GB 内温度及び GB パネル温度が低下した。SY-2 においては、GB 内の酸素モル分率が燃焼下限界を下回ったことにより消炎した（HRR が 0 kW となった）。

SY-2 の GB 内圧力は、SY-1 と比較して最高値が 4 倍程度高くなった。これは、消火ガスの供給及び GB 内の圧力上昇に伴う給気側の換気系への逆流の量（給気流量が負の値）が、給気側ダンパの閉止により低下するためである。このことから、対策 i 及び ii は GB 内圧力を上昇させる可能性があることが分かった。

また、SY-1 及び SY-2 のいずれのケースにおいても、GB 内の最高圧力がモデルプラントで想定した工程室内圧力 (-100 PaG) を超えるとともに、GB 給気側への逆流（給気流量が負の値）が確認された。

b. まとめ

GB 火災の挙動に関する知見の取得の一環として、火災防護対策が GB の閉じ込め機能に与える影響に関する知見を取得するため、火災防護対策を考慮した火災シナリオを対象とした火災解析を実施した。本解析では、表 2.2.5 に示した GB 内から GB 外へのリークを考慮しない等の前提条件の下、解析を実施した。本解析から得られた知見を以下に示す。

- ・ 火災防護対策は、HRR、GB 内酸素モル分率、GB 内の温度及び GB パネル温度を低下させる。
- ・ 火災防護対策は、GB 内圧力を上昇させる可能性があるとして評価された。GB 内圧力の上昇は、GB の損傷の要因となる可能性がある。
- ・ 火災防護対策により、GB 内の酸素モル分率が低下し、燃焼物が全て消費される前に消炎する可能性がある。その場合、消炎後において、GB 内の酸素モル分率が燃焼限界値を上回り、かつ着火源が燃焼物の近傍に存在する場合には、再着火する可能性がある。
- ・ 火災時に GB と工程室の圧力が逆転するため、GB に開口部や亀裂等の損傷がある場合には、GB 内の核燃料物質が工程室に漏えいする可能性がある。
- ・ 火災発生時において、いずれのケースにおいても GB 内圧力の上昇に伴う給気側への逆流が確認された。このことから、給気側の HEPA フィルタについても、流入するガスの温度やフィルタの前後の差圧を適切に評価する必要がある。
- ・ GB 内圧力の上昇に伴い GB 内雰囲気給気側に逆流した場合、給気側の弁の閉止により、その逆流時の流量を減少させ、給気側の HEPA フィルタ等への影響を軽減することができる。

⑤火災防護対策に関する感度解析

④の解析結果で示したように、火災防護対策は、GB の閉じ込め機能の評価に関連する解析結果に対して、大きな影響を及ぼすことが確認された。このため、火災防護対策の影響に関する知見の拡充を目的として、火災防護対策の条件を対象として感度解析を実施した。感度解析の検討項目は次のとおりとした。

- ・ 弁及びダンパ閉止時の流路抵抗
- ・ 消火ガスの供給流量
- ・ 消火ガス供給の継続時間

a. 感度解析の解析条件

表 2.2.14 に感度解析の解析ケースを示す。表 2.2.14 以外の設定については、SY-2 と同じとした。

b. 感度解析の結果

(a) 弁及びダンパ閉止時の流路抵抗

図 2.2.19 から図 2.2.24 に、流路抵抗のみを変化させた SY-MS-1 から SY-MS-3 の場合の HRR、GB 内酸素モル分率、GB 内圧力、GB への給気流量、GB 内温度（高温層）及び GB パネル温度の解析結果を示す。

流路抵抗が大きいほど、GB 給気側における逆流時の流量が小さくなり、GB 内圧力の最大値が大きくなった。一方、HRR、GB 内酸素モル分率、GB 内温度及び GB パネル温度は、流路抵抗によらずほぼ同じ結果となった。

(b) 消火ガスの供給流量

図 2.2.25 から図 2.2.30 に、消火ガスの供給流量のみを変化させた SY-MS-4 から SY-MS-6 の場合の HRR、GB 内酸素モル分率、GB 内圧力、GB への給気流量、GB 内温度（高温層）及び GB パネル温度の解析結果を示す。

消火ガスの供給流量が大きいほど、HRR 及び GB 内の酸素モル分率の低下が促進されることから、燃焼反応の抑制効果が大きくなることが確認された。一方、GB 内圧力の最大値は、消火ガスの供給流量が大きいほど高くなった。

また図 2.2.25 より、消火ガスの供給流量が小さい場合（SY-MS-4 及び SY-MS-5）には、HRR が 0 kW まで低下せず、燃焼が継続していることが分かる。このことから、消火ガスの供給流量が小さい場合には、燃焼反応の抑制効果は期待できるものの、燃焼物の消費速度の低下によって燃焼継続時間が長くなる可能性があると考えられる。

(c) 消火ガス供給の継続時間

図 2.2.31 から図 2.2.36 に、消火ガス供給の継続時間のみを変化させた SY-MS-7 及び SY-MS-8 の場合の HRR、GB 内酸素モル分率、GB 内圧力、GB への給気流量、GB 内温度（高温層）及び GB パネル温度の解析結果を示す。

消火ガス供給の継続時間が短い場合（SY-MS-7）は、GB 内酸素モル分率が燃焼下限界値まで低下せず（図 2.2.32）、燃焼が継続した。これは、消火ガスの供給流量が小さい場合と同様である。GB 内圧力の最大値については、消火ガス供給の継続時間の違いによらず、ほぼ同じ結果となった。

c. 感度解析のまとめ

火災防護対策が GB の閉じ込め機能に与える影響に関する知見の拡充を目的として、火災防護対策の条件を対象とした感度解析を実施した。本感度解析から以下の知見が得られた。

- ・ 弁及びダンパ閉止時の流路抵抗が大きいほど、GB 内圧力が大きくなる。一方、HRR、GB 内酸素モル分率、GB 内温度及び GB パネル温度に対する影響は小さい。
- ・ 消火ガスの供給流量が大きいほど、燃焼反応の抑制効果が大きくなるが、GB 内圧力は高くなる。

- ・ 消火ガスの供給流量が小さい又は継続時間が短い場合には、消炎に至らず、対策を実施しない場合に比べて燃焼継続時間が長くなる可能性がある。

表 2.2.3 代表シナリオの設定に関する基本的な条件

Table 2.2.3 Basic conditions for making typical scenario

<p>(a) 代表火災シナリオの検討の考え方・方針</p> <ul style="list-style-type: none"> ● 本シナリオでは、モデルプラントにおける GB 火災（GB 内火災及び GB 外火災）の事象進展及び火災防護対策を対象とした。 ● モデルプラント、火災事象の進展及び火災防護対策は、公開資料^{2.2.1-2.2.5}を参考とした。 ● 本シナリオでは、火災の発生以降の事象進展を対象とし、火災の発生に至る過程は取り扱わないこととした。 ● 火災の発生場所の変化（GB 内火災及び GB 外火災）、延焼や閉じ込め機能の喪失等の火災の規模や境界条件等が大きく変化する時点を踏まえて、シナリオをいくつかのフェーズに区切って設定した。 ● シナリオ進展の判断基準は、対策や火災現象の進展の内容を踏まえて設定した。 ● 対策による事象進展収束の判断は、火災影響解析結果等を踏まえて評価するものとし、本検討では各対策の有効性にかかわらずシナリオが進展していくものと仮定した。
<p>(b) モデルプラントの概要（図 2.2.2 参照）</p> <ul style="list-style-type: none"> ● モデルプラントは、静的閉じ込め機能（GB、工程室及び建屋）及び動的閉じ込め機能（排気設備等）の組合せにより、核燃料物質（粉末状）を施設内に閉じ込める設計を想定した。 ● GB パネルは、GB の内側に難燃性材料、外側に可燃性材料を想定した。 ● GB 内には、非密封の核燃料物質（粉末状）が存在し、可燃物として潤滑油等を有する機器、アルコール及びケーブルが存在すると想定した。 ● 平常時においては、GB 内は窒素循環設備によって窒素ガスを供給・循環させるとともに負圧を維持すると想定した。したがって、平常時の GB 内は窒素雰囲気とした。 ● 窒素循環設備が故障等により機能喪失した場合には、GB 内への窒素ガスの供給が停止するが、GB 内の負圧を維持するために GB からの排気は継続すると想定した。その際、GB 内の過負圧による GB の損傷を防ぐため、GB 給気系から工程室内の空気が GB 内に流入すると想定した。したがって、窒素循環設備が機能喪失した場合には、GB 内は空気雰囲気となると想定した。
<p>(c) 本シナリオで想定した火災防護対策</p> <ul style="list-style-type: none"> ● 火災感知器（GB 内火災用）が火災を感知した場合には、以下のように火災防護対策が行われると想定した。 <ol style="list-style-type: none"> ① 火災感知器（GB 内火災用）が火災を感知した後、GB 消火装置が起動。 ② GB 消火装置の起動と連動して、給気設備の送風機、工程室排気設備の排風機及び建屋排気設備の排風機が自動で停止するとともにダンパ類が閉止。 ③ GB 消火装置から消火ガスが GB 内に放出される。GB 消火装置による消火ガスの放出完了後、GB 排気設備の延焼防止ダンパが閉止し、GB 排風機が停止。 ● 工程室内の火災感知器が火災を感知した場合には、以下のように火災防護対策が行われると想定した。 <ol style="list-style-type: none"> ① 火災感知器（GB 内火災用）が火災を感知した後、窒素消火装置が起動。 ② 窒素消火装置の起動と連動して、給気設備の送風機、工程室排気設備の排風機及び建屋排気設備の排風機が自動で停止するとともにダンパ類が閉止。 ③ 窒素消火装置により消火剤を工程室内に放出。

出典) 原子力規制庁、安全研究成果報告 加工施設及び再処理施設の内部火災等に関するリスク評価手法に関する研究、RREP-2021-3003、令和 3 年 6 月。^{1.1.5}より引用（一部改変）

表 2.2.4 代表シナリオの前提条件

Table 2.2.4 Prerequisites for the typical scenario

<ul style="list-style-type: none"> ● GB 内又は工程室内において単一の火災が発生し、事象が進展すると想定した。 ● 本シナリオにおける対策は全て成功すると想定した。 ● 窒素循環設備は故障等により GB 内への窒素の供給が停止しており、GB 内が空気雰 囲気であると想定した。また、本シナリオにおいては、窒素循環設備は復旧しない ものと想定した。 ● GB の内側パネルは難燃性材料のため、パネル温度が熱分解温度に達すると熱分解 ガスを放出するが、延焼はしないと想定した。ただし、内側パネルの熱分解が継続 し、開口部が発生した場合には、外側パネルは直ちに燃焼を開始すると想定した。 ● GB 外火災における可燃物としては、GB パネルを想定した。これは GB パネルが閉 じ込め機能を担う一方で火災源となり得るためである。 ● GB 外火災において、GB の外側パネルは可燃性材料のため、パネル温度が熱分解温 度に達すると熱分解ガスを放出するとともに燃焼を開始する（延焼する）と想定し た。 ● GB の内側パネルは外側パネルに近接しているため、外側パネルが燃焼した場合 には内側パネルも同時に燃焼すると想定した。 GB の外側パネルが燃焼した場合、当該パネルは形状を維持できず、直ちに開口部が 発生すると想定した。 ● 本シナリオの発端となる GB 内火災については、次の①から③が発生することによ り生じると想定した。 <ul style="list-style-type: none"> ① 窒素循環設備が故障により停止し、GB 内への窒素の供給が停止する。 ② GB の過負圧による GB の損傷を防止するため、GB 給気系から GB 内に工程室内 空気を取り込み、GB 内が空気雰囲気となる。 ③ GB 内のケーブルの過電流により火花が生じ、その火花によって GB 内の可燃物 （アルコール）が燃焼する。
--

出典) 原子力規制庁、安全研究成果報告 加工施設及び再処理施設の内部火災等に関するリ
スク評価手法に関する研究、RREP-2021-3003、令和3年6月^{1.1.5}より引用（一部改変）

表 2.2.5 代表シナリオの Phase 1 を対象とした火災解析の方針と前提条件

Table 2.2.5 Policies and prerequisites for the fire analysis for Phase 1 in typical scenario

<p>(a) 火災解析の基本的な方針</p>
<ul style="list-style-type: none"> ● 解析モデルは、可能な限り、モデルプラントの条件（GB の構造や換気条件等）を模擬した。 ● 本解析では、GB の閉じ込め機能に関連する次の項目を主な評価対象とした。 <ul style="list-style-type: none"> - GB 内圧力 - GB のパネル温度 - 火災の継続時間 - GB 内温度 - 換気系の挙動（流量、逆流の有無等）
<p>(b) 火災解析の前提条件</p>
<ul style="list-style-type: none"> ● 解析時間 0 秒から燃料の燃焼が開始。 ● GB 内の初期雰囲気は、空気雰囲気とした。 ● GB への空気の流入出は、給気口及び排気口からのみとした。つまり、GB 内から GB 外（工程室）へのリークは考慮しない。 ● GB のグローブ等の構成物は考慮せず、GB は、GB パネル、ステンレス鋼製の板のみで構成されると想定した。GB パネルについては、Phase 1 では、GB 内での火災に留まるため、内側のパネルのみを解析対象とした。 ● GB の壁の外側は断熱ではなく、外気への放熱を考慮する条件とし、GB 外（工程室内）温度は 26.85 °C で一定とした。 ● 本解析において考慮する対策は、図 2.2.1 の Phase 1 に基づき、次の 3 つとした。 <ul style="list-style-type: none"> ➢ 対策 i : GB 給気系自力式吸気弁の閉止 ➢ 対策 ii : 消火ガスの供給 ➢ 対策 iii : GB 排気設備延焼防止ダンパの閉止及び GB 排風機の停止 ● 本解析では、GB 内での火災のみを対象とし、GB 外（工程室内）への火災の進展・拡大は対象外とした。解析モデルの対象範囲は GB、GB 給気系及び GB 排気設備のみとした（図 2.2.3 に赤色で示す範囲）。

表 2.2.6 SYLVIA の特徴

Table 2.2.6 Characteristics of SYLVIA

- 空間を高温層と低温層の 2 層に分けて各層中の平均化したガス温度、酸素濃度等を評価。
- 酸素濃度低下による火災源の HRR の低下及び燃焼に伴う燃料の重量の減少を考慮するための補正方法が実装されている。
- SYLVIA には定常計算モードと非定常計算モードが用意されている。定常計算モードでは、可燃物の燃焼は計算せずに、主に換気系の解析モデルにおける流量のバランスや圧力の確認に使用される。定常計算の結果は後続の非定常計算の初期条件インプットになる。非定常計算モードでは、定常計算の結果をインプットとして、可燃物の燃焼を含む計算をする。
- 解析に要する時間が CFD コードと比較して短い。

表 2.2.7 解析対象とした GB の条件

Table 2.2.7 Analytical conditions of the GB

	項目	設定	備考
GB	寸法	3.1 m×3.1 m×3.1 m	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
	体積	29.791 m ³	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
	平常運転時の換気流量	179 m ³ /h	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
	初期圧力	-400 PaG	・左記はゲージ圧。 ・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
	パネルの材質	PC	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
	パネル材の厚さ	0.01 m	・実物大 GB 火災内試験 ^{2.2.11} の試験条件を参考に設定
	缶体（側面及び上下面）の材質	ステンレス鋼	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
	側面及び上下面の厚さ	0.004 m	・実物大 GB 火災内試験 ^{2.2.11} の試験条件を参考に設定
	給気口、排気口の寸法	0.1 m×0.1 m (0.01 m ²)	・仮定
	給気口、排気口の高さ	2.8 m	・給気口及び排気口の位置関係は、事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を基に推定。 ・高さの値は仮定
	初期温度	26.85 °C (300 K)	・仮定
初期雰囲気	空気	・仮定	
火災源	可燃物	エタノール	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
	燃焼物の量	4.74 kg	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
	燃焼皿の面積	0.25 m ²	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
GB 外 (工程室内)	温度	26.85 °C (300 K)	・仮定
	圧力	-100 PaG	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定

表 2.2.8 GB 及び可燃物の物性値

Table 2.2.8 Physical properties of the GB and combustible

	物質	項目	設定値
GB パネル	PC	密度	1200 kg/m ³
		比熱	1220 J/kg
		熱伝導率	0.19 W/K/m
		放射率	0.96
GB 缶体	ステンレス 鋼	密度	7920 kg/m ³
		比熱	499 J/kg
		熱伝導率	16.0 W/K/m
		放射率	0.4
可燃物	エタノール	密度	790 kg/m ³
		燃焼熱	2.68×10 ⁷ J/kg

表 2.2.9 解析ケース

Table 2.2.9 Analytical cases

ケース No.	対策の有無	備考
SY-1	無し	基本ケース
SY-2	有り	-

表 2.2.10 換気系モデルに関する設定（ノード）（その1）

Table 2.2.10 Setting of the ventilation model (Node) (Part 1)

No.	機器、 設備等	モデル タイプ	主な設定 項目	設定値	備考
N1	給気側境 界条件	BCONDIT	圧力	-100 PaG	・ 工程室からの給気を想定し、工程室内圧力を設定 ・ 一定値を設定
			温度	26.85 °C (300 K)	・ 一定値を設定
N2	ダクト接 続部分	ROOM1Z	寸法	0.1 m×0.1 m×0.1 m	・ 仮定
			高さ	2.8 m	・ GB の給気口の高さと合わせる。
			初期圧力	-110 PaG	・ GB 内圧、各ブランチにおける流量が想定した値になるように定常計算時に調整した。
			初期温度	26.85 °C (300 K)	・ 仮定
N3	GB	ROOM2Z	初期圧力	-400 PaG	・ 事業者の公開資料 2.2.1~2.2.5 を参考に設定
			初期温度	26.85 °C (300 K)	・ 仮定
			消火ガス 流量	停止時： 0 m ³ /h ガス供給時： 179 m ³ /h	・ ガス供給時の流量は事業者の公開資料を参考に設定。
			消火ガス 供給のタイ ミング	13~313 秒	・ 表 2.2.13 参照
N4	ダクト接 続部分	ROOM1Z	寸法	0.1 m×0.1 m×0.1 m	・ 仮定
			高さ	2.8 m	・ GB の排気口の高さと合わせた。
			初期圧力	-690 PaG	・ GB 内圧、各ブランチにおける流量が想定した値になるように定常計算時に調整した。
			初期温度	26.85 °C (300 K)	・ 仮定
N5	ダクト接 続部分	ROOM1Z	寸法	0.1 m×0.1 m×0.1 m	・ 仮定
			高さ	2.8 m	・ GB の排気口の高さと合わせた。
			初期圧力	-700 PaG	・ GB 内圧、各ブランチにおける流量が想定した値になるように定常計算時に調整した。
			初期温度	26.85 °C (300 K)	・ 仮定

表 2.2.11 換気系モデルに関する設定（ノード）（その2）

Table 2.2.11 Setting of the ventilation model (Node) (Part 2)

No.	機器、 設備等	モデル タイプ	主な設定 項目	設定値	備考
N6	ダクト接 続部分	ROOM1Z	寸法	0.1 m×0.1 m×0.1 m	・ 仮定
			高さ	2.8 m	・ GB の排気口の高さと合 わせた。
			初期圧力	-990 PaG	・ GB 内圧、各ブランチに おける流量が想定した値 になるように定常計算時 に調整した。
			初期温度	26.85 °C (300 K)	・ 仮定
N7	ダクト接 続部分	ROOM1Z	寸法	0.1 m×0.1 m×0.1 m	・ 仮定
			高さ	2.8 m	・ GB の排気口の高さと合 わせた。
			初期圧力	-1000 PaG	・ GB 内圧、各ブランチに おける流量が想定した値 になるように定常計算時 に調整した。
			初期温度	26.85 °C (300 K)	・ 仮定
N8	ダクト接 続部分	ROOM1Z	寸法	0.1 m×0.1 m×0.1 m	・ 仮定
			高さ	2.8 m	・ GB の排気口の高さと合 わせた。
			初期圧力	-1010 PaG	・ GB 内圧、各ブランチに おける流量が想定した値 になるように定常計算時 に調整した。
			初期温度	26.85 °C (300 K)	・ 仮定
N9	排気側境 界条件	BCONDIT	圧力	-1020 PaG	・ GB 内圧、各ブランチに おける流量が想定した値 になるように定常計算時 に調整した。 ・ 一定値を設定
			温度	26.85 °C (300 K)	・ 仮定

表 2.2.12 換気系モデルに関する設定（ブランチ）

Table 2.2.12 Setting of the ventilation model (Branch)

No.	機器、 設備等	モデル タイプ	主な設定項 目	設定値	備考
B1	自力式 吸気弁	VALVE	初期流量	179 m ³ /h	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
			流路抵抗 (開放時)	3403 m ⁻⁴	・SYLVIA の流路抵抗の計 算機能により算出。
			流路抵抗 (閉止時)	10 ⁷ m ⁻⁴	・仮定
			閉止のタイ ミング	12 秒	・表 2.2.13 参照
B2	GB 給気 系 HEPA フィルタ	FILTER	初期流量	179 m ³ /h	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
			流路抵抗	5890 m ⁻⁴	・SYLVIA の流路抵抗の計 算機能により算出。
B3	GB 排気 系 1 次 HEPA フ ィルタ	FILTER	初期流量	179 m ³ /h	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
			流路抵抗	5890 m ⁻⁴	・SYLVIA の流路抵抗の計 算機能により算出。
B4	延焼防 止ダン パ	VALVE	初期流量	179 m ³ /h	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
			流路抵抗 (開放時)	3403 m ⁻⁴	・SYLVIA の流路抵抗の計 算機能により算出。
			流路抵抗 (閉止時)	10 ⁷ m ⁻⁴	・仮定
			閉止のタイ ミング	314 秒	・表 2.2.13 参照
B5	GB 排気 系 2 次 HEPA フ ィルタ	FILTER	初期流量	179 m ³ /h	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
			流路抵抗	5890 m ⁻⁴	・SYLVIA の流路抵抗の計 算機能により算出。
B6	手動ダン ンパ	VALVE	初期流量	179 m ³ /h	
			流路抵抗 (開放時)	3403 m ⁻⁴	・SYLVIA の流路抵抗の計 算機能により算出。
B7	GB 排風 機	FAN	流量	運転時： 179 m ³ /h 停止時： 0 m ³ /h	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
			停止のタイ ミング	314 秒	・表 2.2.13 参照
B8	逆止弁	BACKDAM P	初期流量	179 m ³ /h	・事業者の公開資料 ^{2.2.1~2.2.5} を参考に設定
			流路抵抗 (上流から 下流への流 れ)	45 m ⁻⁴	・SYLVIA の流路抵抗の計 算機能により算出。
			流路抵抗 (逆流時)	1×10 ⁹ m ⁻⁴	SYLVIA のデフォルト値。

表 2.2.13 各対策のタイミング

Table 2.2.13 Timing of the fire measures

火災防護対策	実施のタイミング	各対策のタイミングの設定の考え方
対策 i	12 秒	<ul style="list-style-type: none"> SYLVIA による基本ケース (SY-1) の解析結果における、GB 内の高温層温度が 60 °C に達した時刻に基づいて設定。
対策 ii	13~313 秒	<ul style="list-style-type: none"> 対策 ii の開始のタイミングは、対策 i の 1 秒後と仮定した。 消火ガス供給の継続時間は、GB 内の酸素モル分率の初期値 (0.21) 及び燃焼下限限界値 (0.11) を踏まえ、GB 体積 (29.791 m³) に対して、その半分の体積に相当する窒素ガスの供給を想定して、300 秒間と仮定。
対策 iii	314 秒	<ul style="list-style-type: none"> 対策 ii の供給終了の 1 秒後と仮定。

表 2.2.14 火災対策の条件を対象とした感度解析の解析ケース

Table 2.2.14 Analytical conditions in sensitivity analysis for setting of fire measures

NO.	弁・ダンパ閉止時の 流路抵抗[m ⁴]	消火ガスの 供給流量 [m ³ /h]	消火ガス供給の 継続時間 [s]
SY-2	10 ⁷	179	300
SY-MS-1	10 ⁵	179	300
SY-MS-2	10 ⁶	179	300
SY-MS-3	10 ⁸	179	300
SY-MS-4	10 ⁷	45	300
SY-MS-5	10 ⁷	90	300
SY-MS-6	10 ⁷	360	300
SY-MS-7	10 ⁷	179	120
SY-MS-8	10 ⁷	179	600

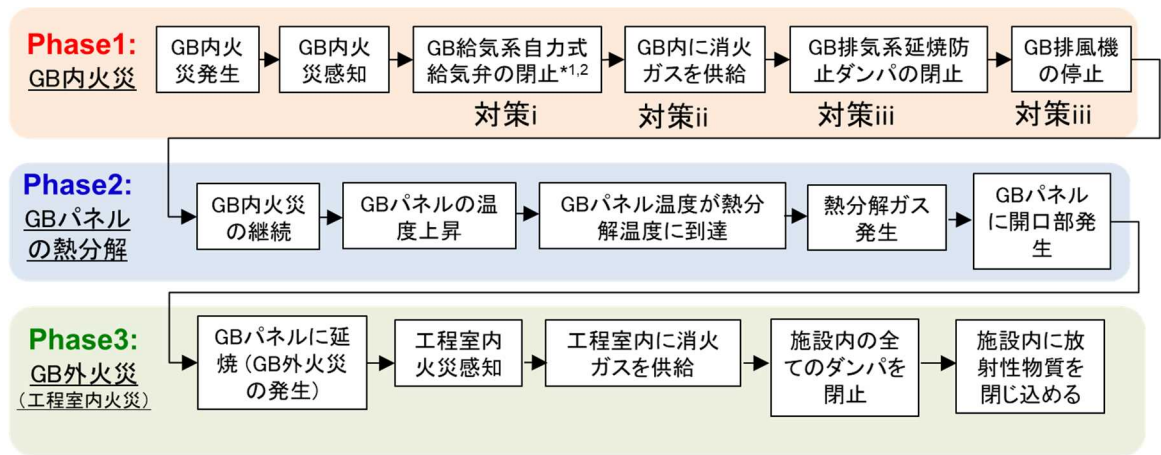
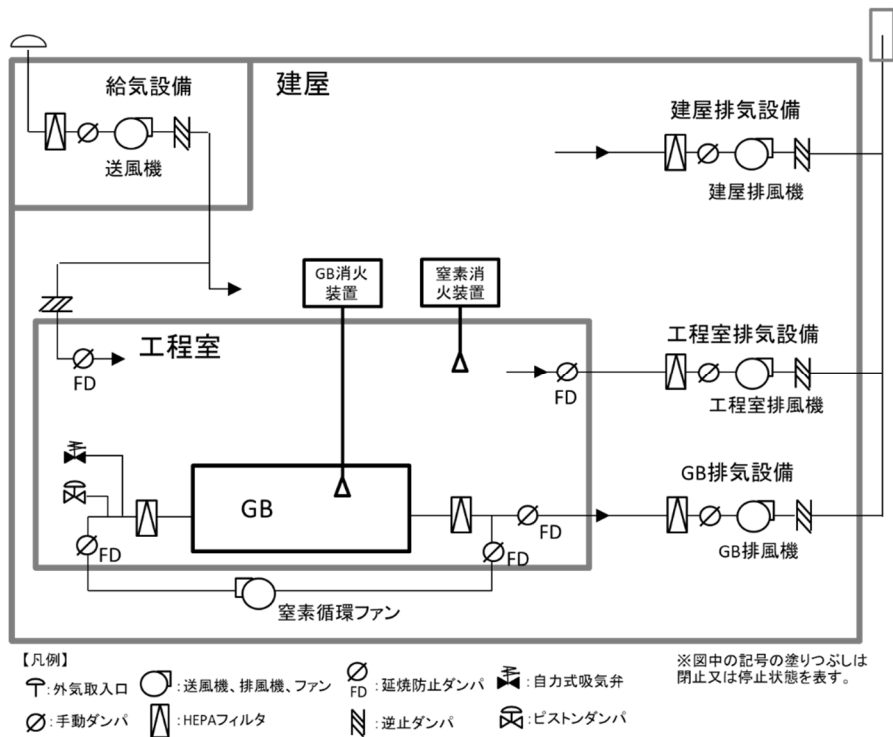


図 2.2.1 代表的な GB 火災シナリオ

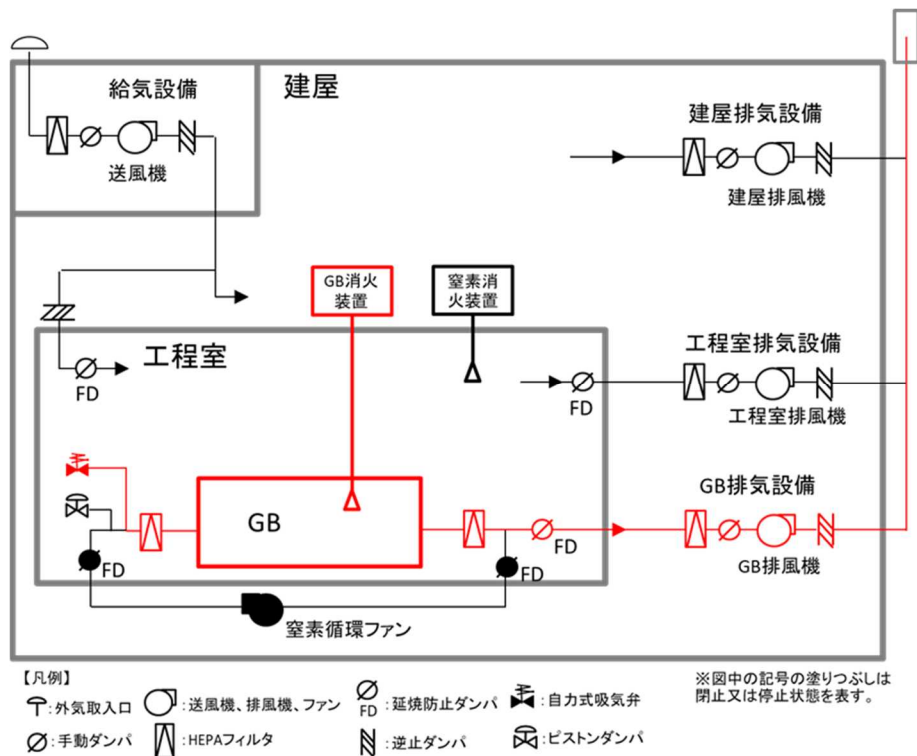
Fig.2.2.1 Typical GB fire scenario



出典) 原子力規制庁、安全研究成果報告 加工施設及び再処理施設の内部火災等に関するリスク評価手法に関する研究、RREP-2021-3003、令和3年6月、^{1.1.5}より引用

図 2.2.2 モデルプラントの系統図

Fig.2.2.2 System diagram of the model plant



出典) 原子力規制庁、安全研究成果報告 加工施設及び再処理施設の内部火災等に関するリスク評価手法に関する研究、RREP-2021-3003、令和3年6月^{1.1.5}より引用(一部改変)

図 2.2.3 Phase 1 を対象とした解析の対象範囲(赤色で示す)

Fig.2.2.3 Scope of the fire analysis for Phase 1 as shown red

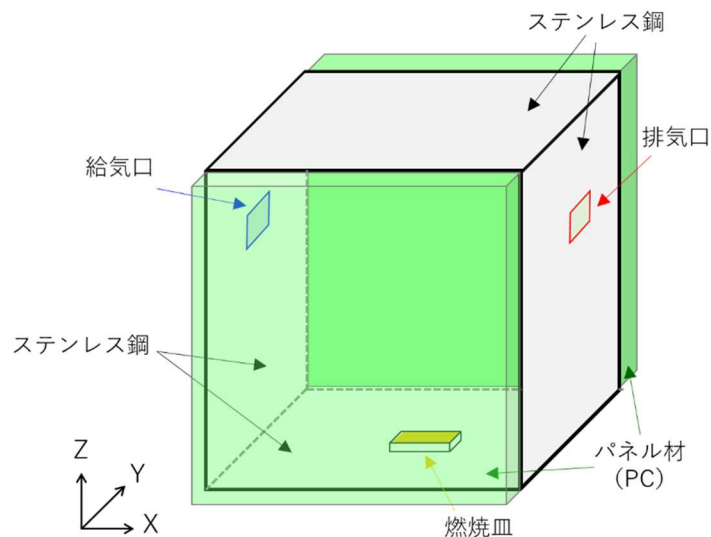


図 2.2.4 モデルプラントにおける GB の模式図

Fig.2.2.4 Schematic diagram of the GB in the model plant

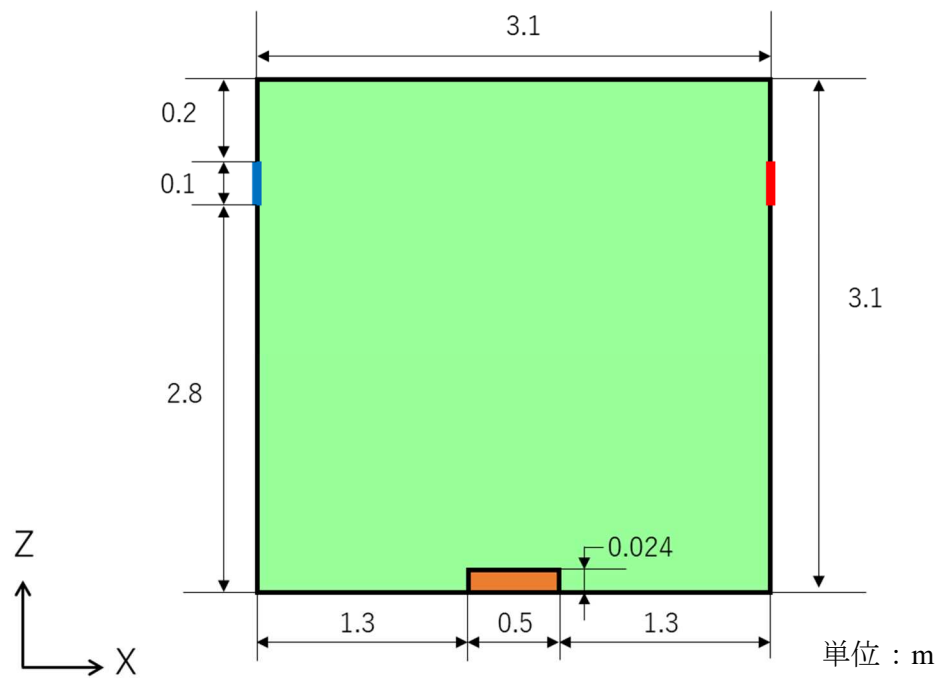


図 2.2.5 GB の寸法 (正面図)

Fig.2.2.5 Dimensions of the GB (front view)

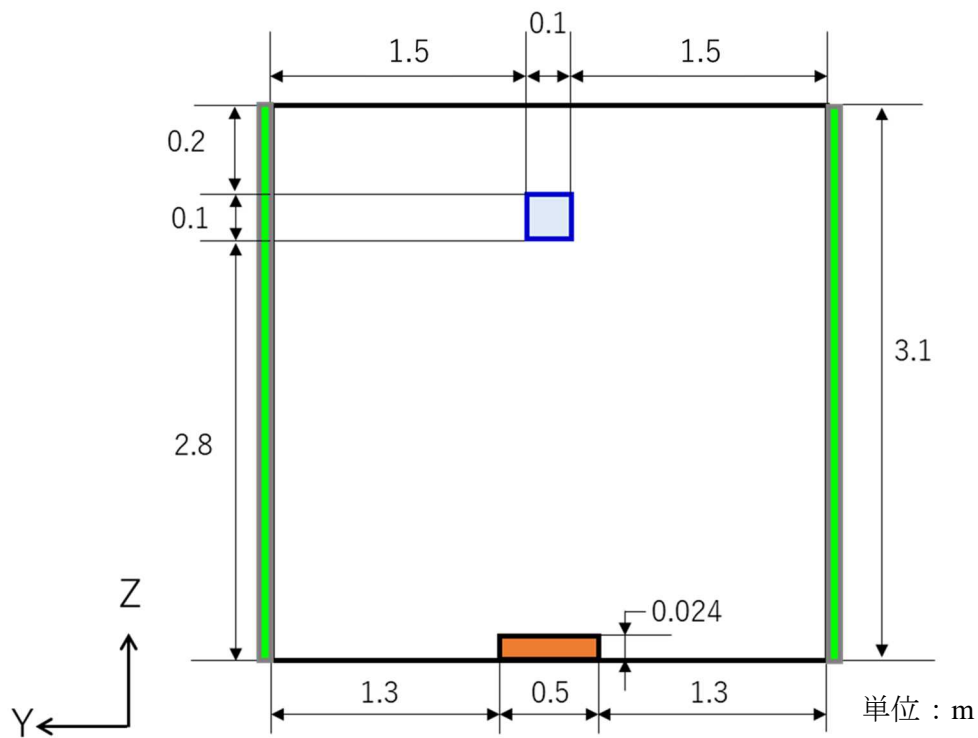


図 2.2.6 GB の寸法 (側面図)

Fig.2.2.6 Dimensions of the GB (side view)

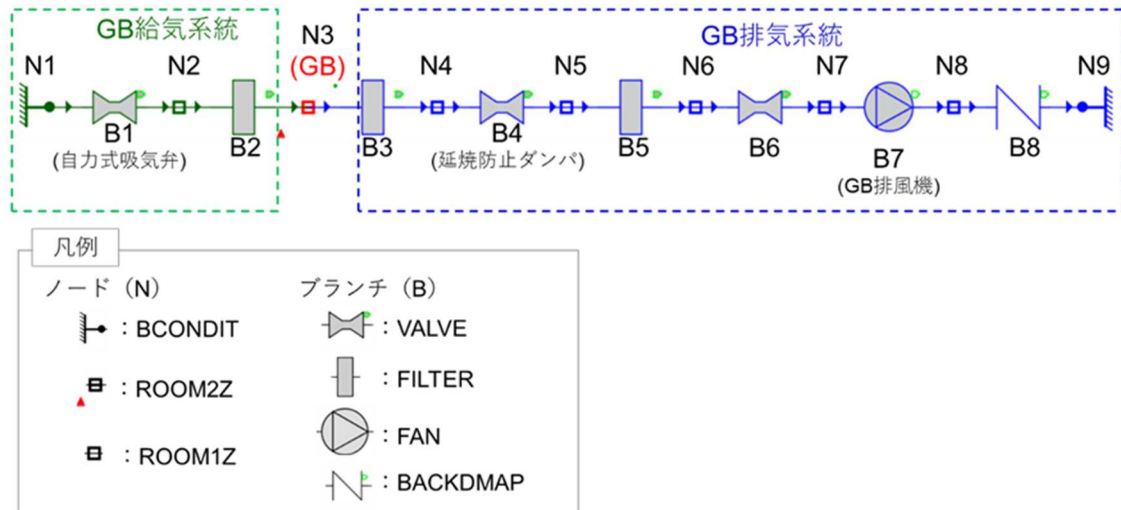


図 2.2.7 換気系ネットワークモデル

Fig.2.2.7 Ventilation net work model

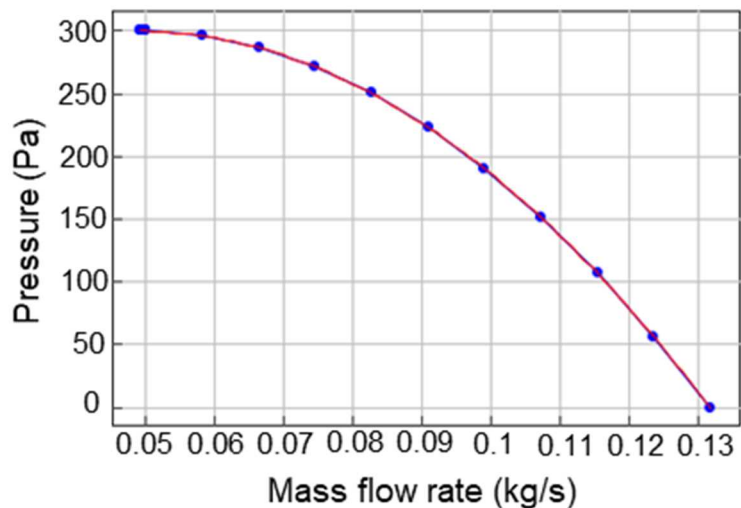


図 2.2.8 GB 排風機のモデル化において設定したファンの特性曲線

Fig.2.2.8 Fan curve used in modelling of GB fan

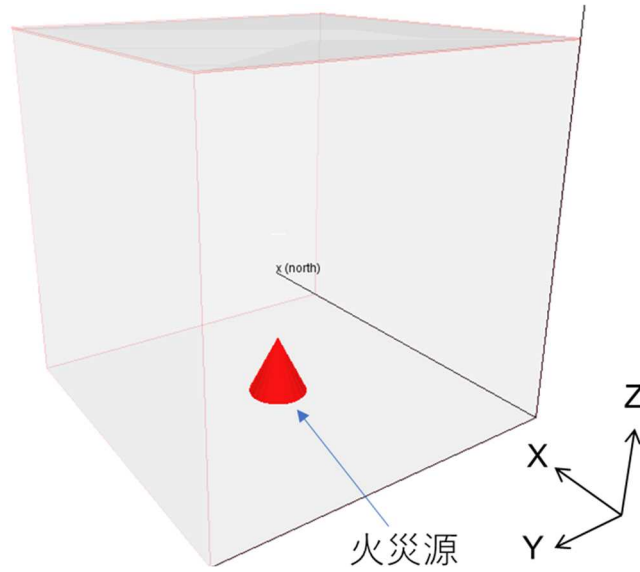


図 2.2.9 GB の解析モデル

Fig.2.2.9 Analytical model of the GB

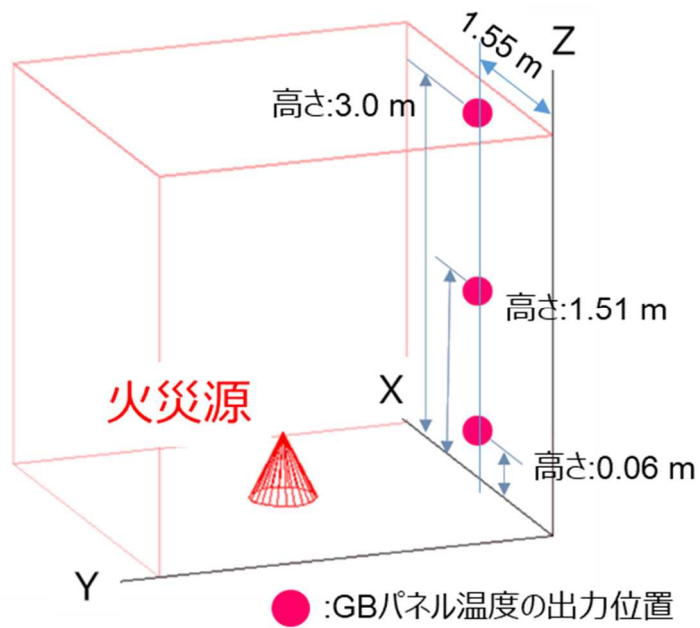


図 2.2.10 GB パネル温度の出力位置

Fig.2.2.10 Measurement points of GB panel temperature

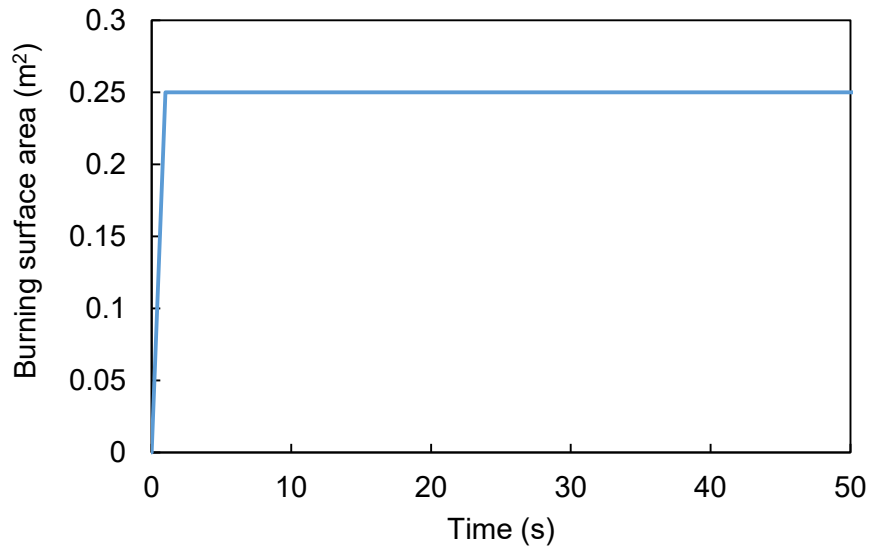


図 2.2.11 本解析で入力したエタノール燃焼時の燃焼面積の時間変化

Fig.2.2.11 Time variation of burning surface area in the fire analysis

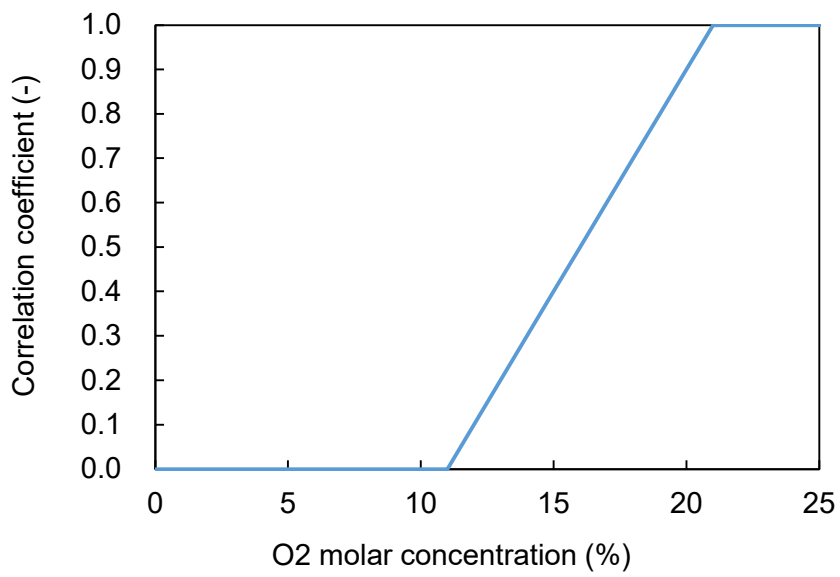


図 2.2.12 Peatross and Beyler 則に基づく補正係数

Fig.2.2.12 Correlation coefficient in Peatross and Beyler correlation

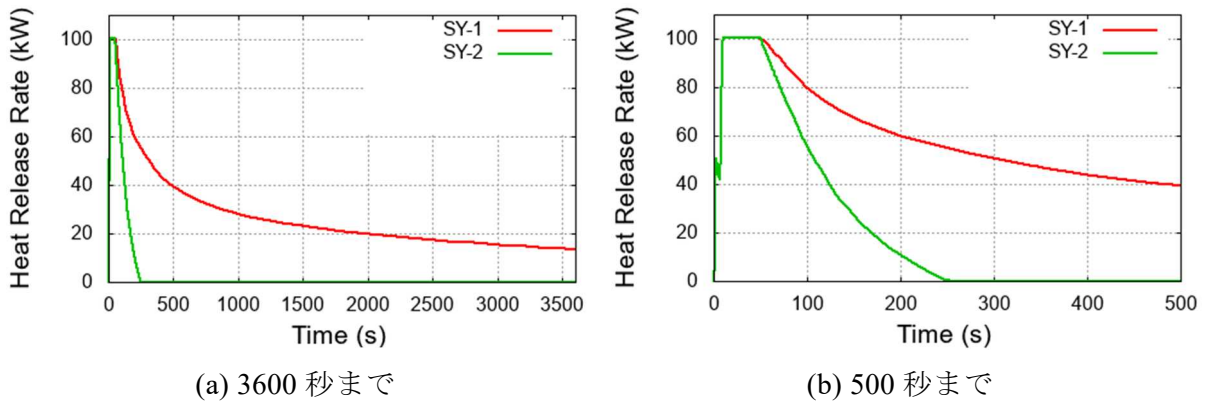


図 2.2.13 HRR の時間変化

(SY-1 : 対策を考慮しない、SY-2 : 対策を考慮する)

Fig.2.2.13 Calculation results of time variation of HRR

(SY-1 : fire measures are considered, SY-2 : fire measures are not considered)

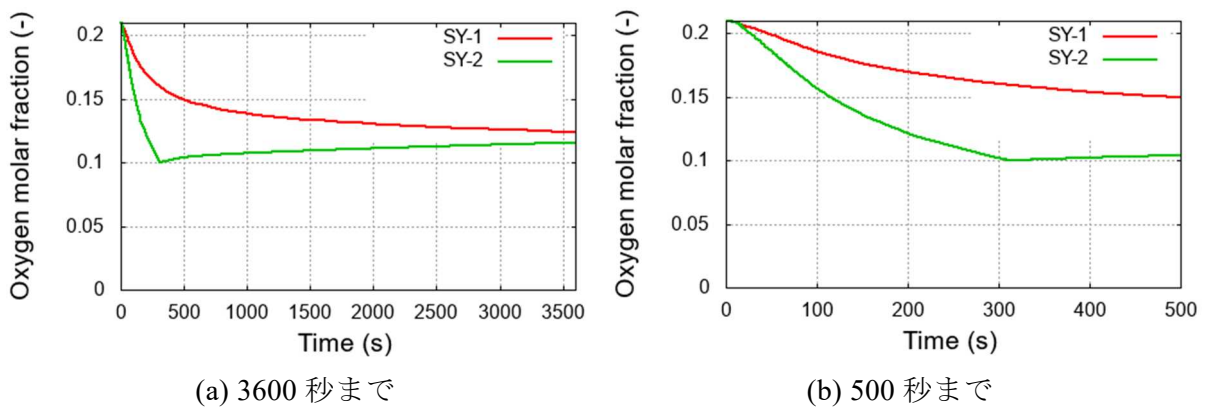
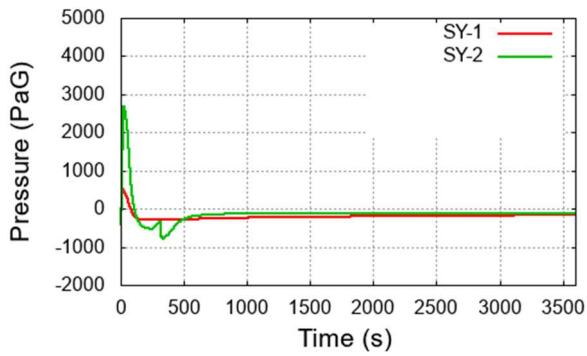


図 2.2.14 GB 内酸素モル分率の時間変化

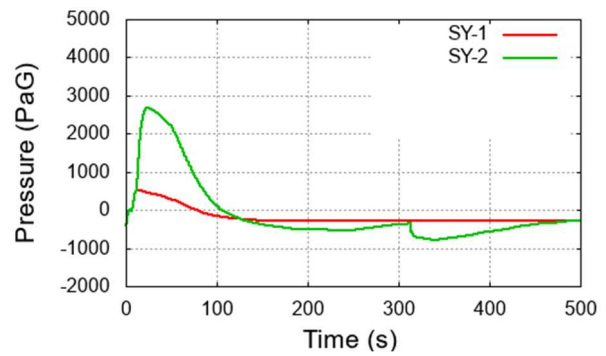
(SY-1 : 対策を考慮しない、SY-2 : 対策を考慮する)

Fig.2.2.14 Calculation results of time variation of oxygen molar fraction in the GB

(SY-1 : fire measures are considered, SY-2 : fire measures are not considered)



(a) 3600 秒まで



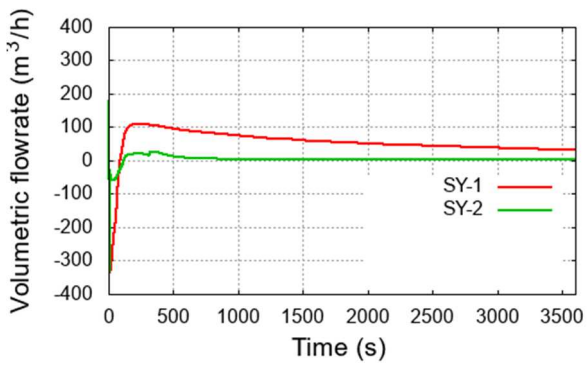
(b) 500 秒まで

図 2.2.15 GB 内圧力の時間変化

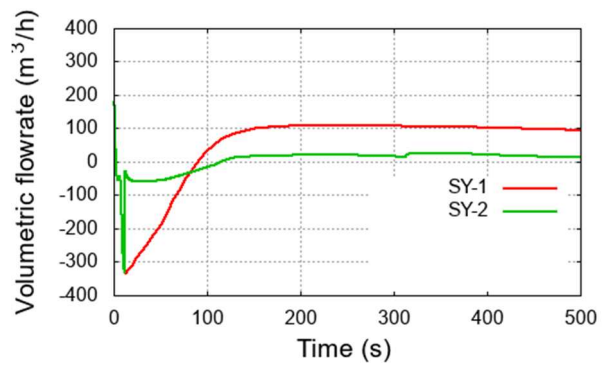
(SY-1 : 対策を考慮しない、SY-2 : 対策を考慮する)

Fig.2.2.15 Calculation results of time variation of pressure in the GB

(SY-1 : fire measures are considered, SY-2 : fire measures are not considered)



(a) 3600 秒まで



(b) 500 秒まで

図 2.2.16 GB 内への給気流量の時間変化

(SY-1 : 対策を考慮しない、SY-2 : 対策を考慮する)

Fig.2.2.16 Calculation results of time variation of volumetric flow rate at inlet

(SY-1 : fire measures are considered, SY-2 : fire measures are not considered)

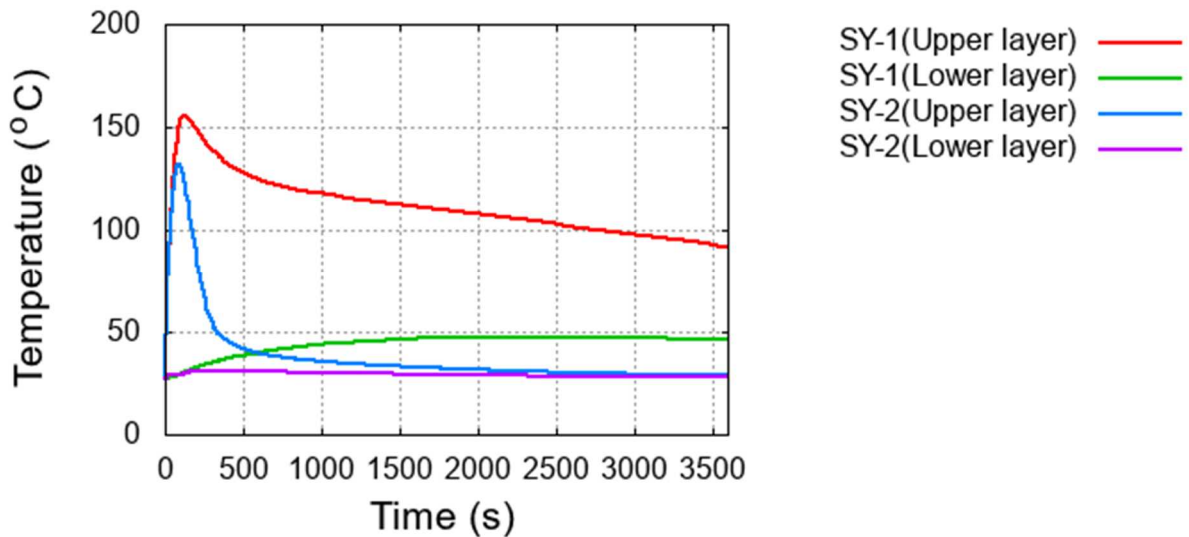


図 2.2.17 GB 内の高温層温度及び低温層温度の時間変化
 (SY-1 : 対策を考慮しない、SY-2 : 対策を考慮する)

Fig.2.2.17 Calculation results of time variation of temperature of upper layer and lower layer
 (SY-1 : fire measures are considered, SY-2 : fire measures are not considered)

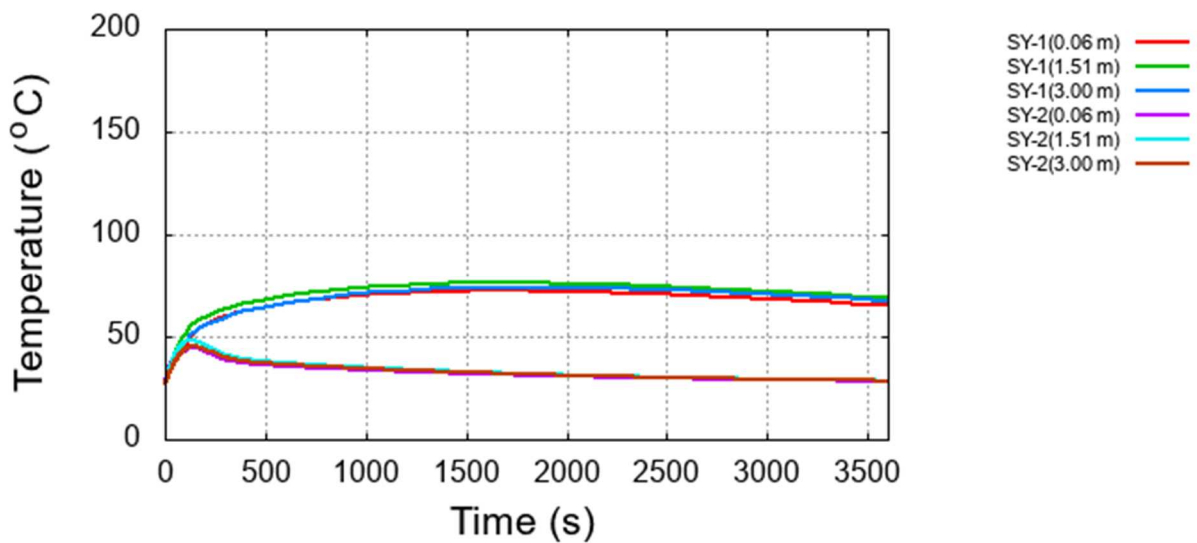
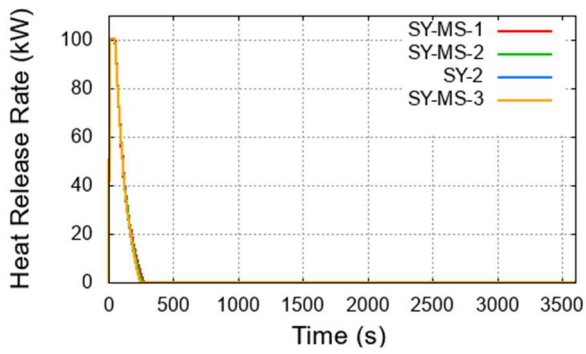


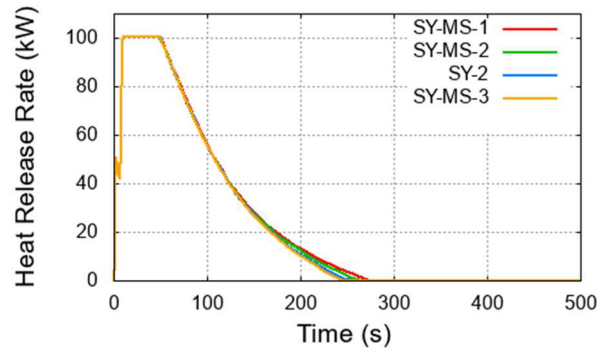
図 2.2.18 GB パネル温度の時間変化

(SY-1 : 対策を考慮しない、SY-2 : 対策を考慮する)

Fig.2.2.18 Calculation results of time variation of temperature of GB panel
 (SY-1 : fire measures are considered, SY-2 : fire measures are not considered)



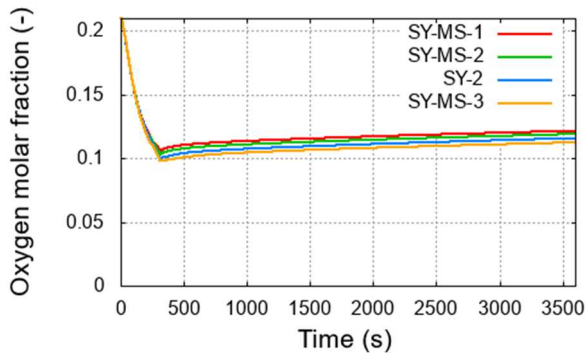
(a) 3600 秒まで



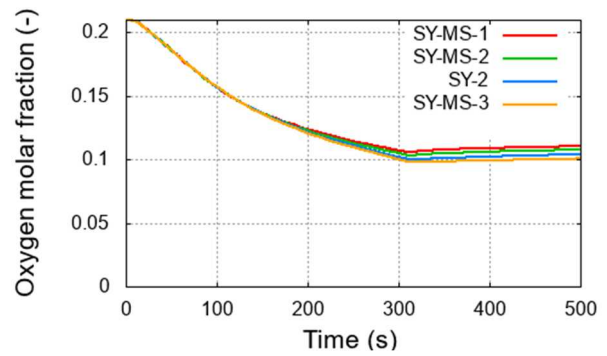
(b) 500 秒まで

図 2.2.19 HRR の時間変化 (弁及びダンパ閉止時の流路抵抗の効果)

Fig.2.2.19 Calculation results of time variation of HRR (Effect of resistance of closed valve and damper)



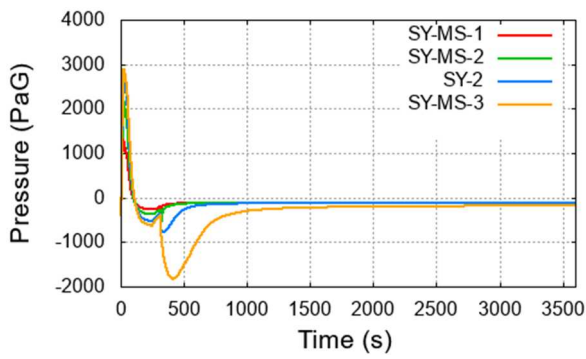
(a) 3600 秒まで



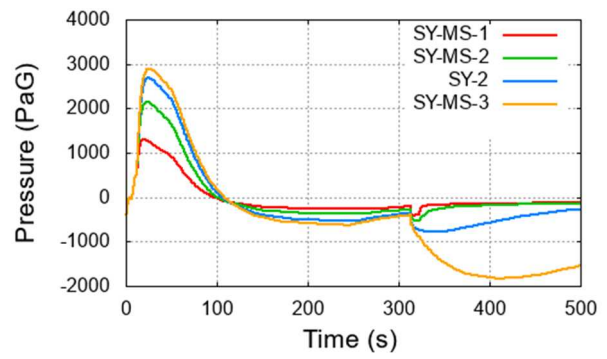
(b) 500 秒まで

図 2.2.20 GB 内酸素モル分率の時間変化 (弁及びダンパ閉止時の流路抵抗の効果)

Fig.2.2.20 Calculation results of time variation of oxygen molar fraction in the GB (Effect of resistance of closed valve and damper)



(a) 3600 秒まで

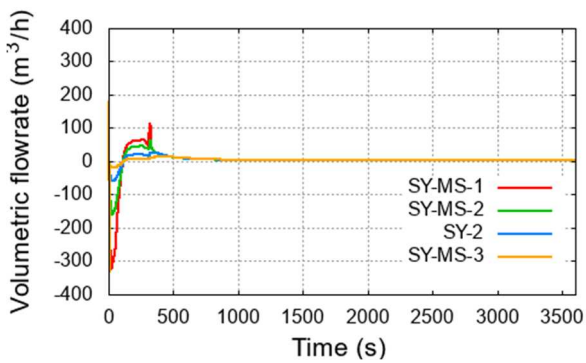


(b) 500 秒まで

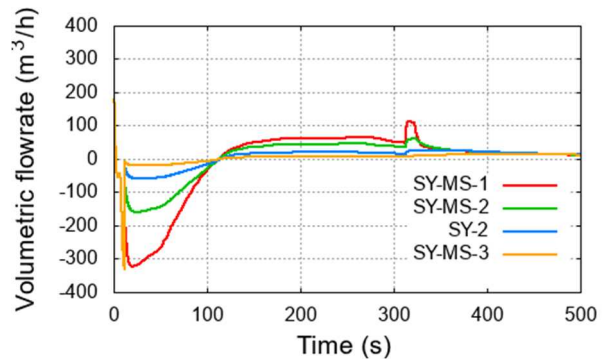
図 2.2.21 GB 内圧力の時間変化（弁及びダンパ閉止時の流路抵抗の効果）

Fig.2.2.21 Calculation results of time variation of pressure in the GB

(Effect of resistance of closed valve and damper)



(a) 3600 秒まで



(b) 500 秒まで

図 2.2.22 GB 内への給気流量の時間変化（弁及びダンパ閉止時の流路抵抗の効果）

Fig.2.2.22 Calculation results of time variation of volumetric flow rate at inlet

(Effect of resistance of closed valve and damper)

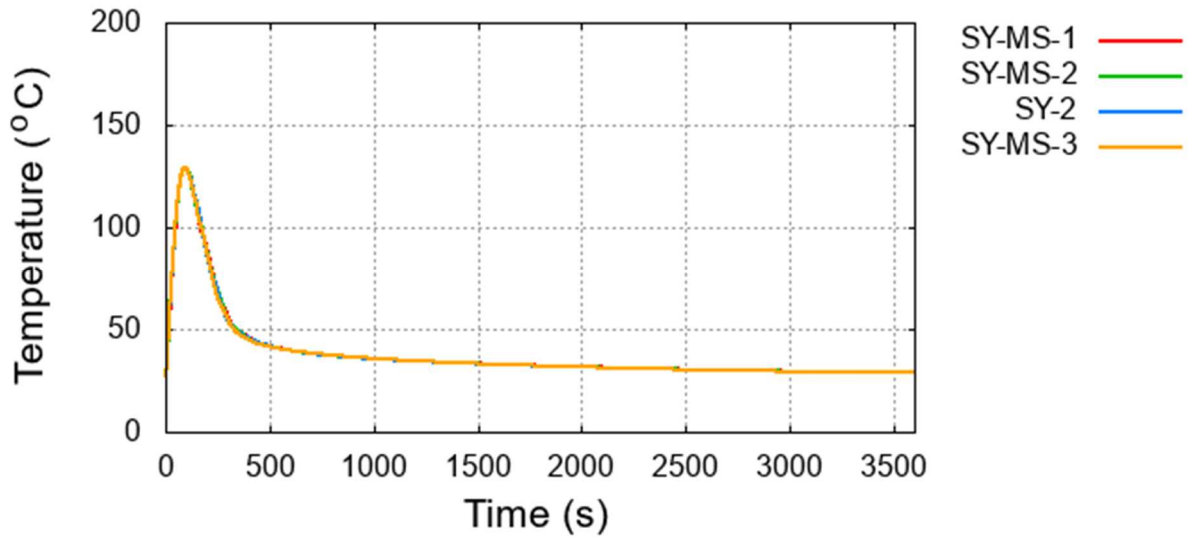


図 2.2.23 GB 内の高温層温度の時間変化（弁及びダンパ閉止時の流路抵抗の効果）

Fig.2.2.23 Calculation results of time variation of temperature of upper layer
(Effect of resistance of closed valve and damper)

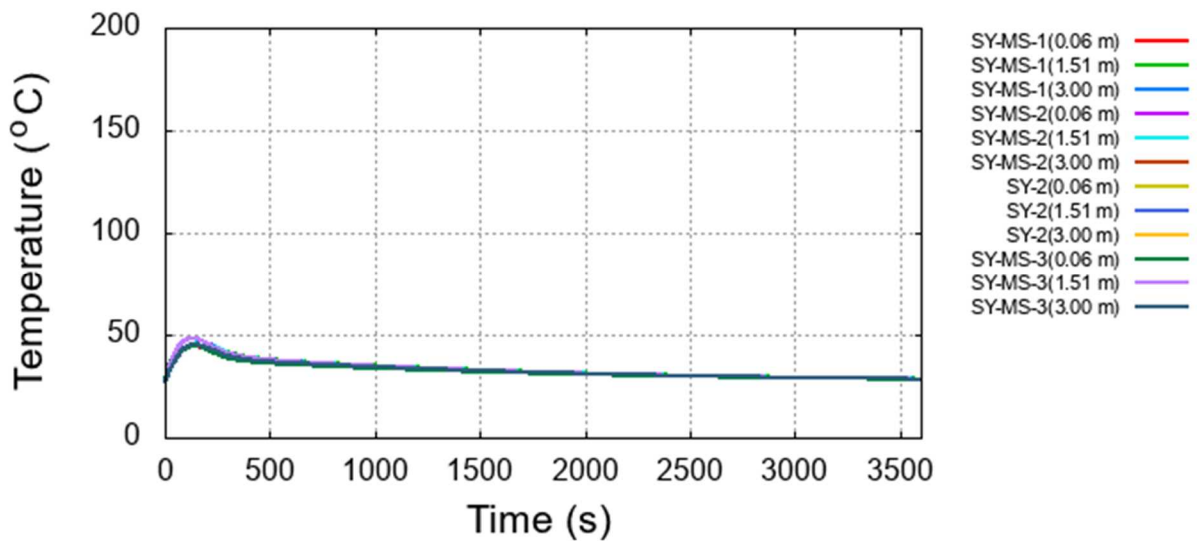
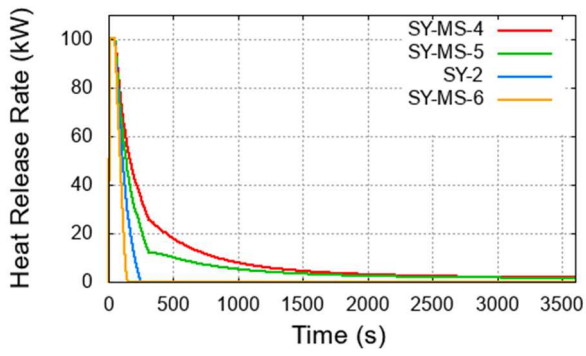
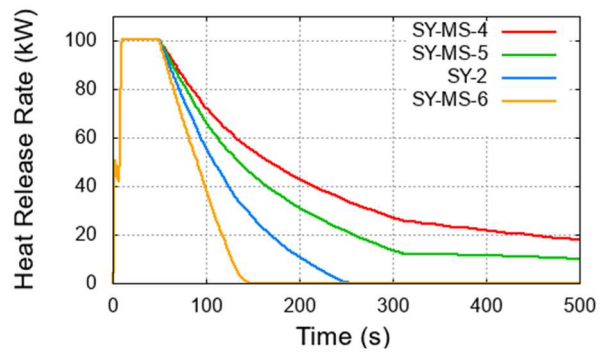


図 2.2.24 GB パネル温度の時間変化（弁及びダンパ閉止時の流路抵抗の効果）

Fig.2.2.24 Calculation results of time variation of temperature of GB panel
(Effect of resistance of closed valve and damper)



(a) 3600 秒まで

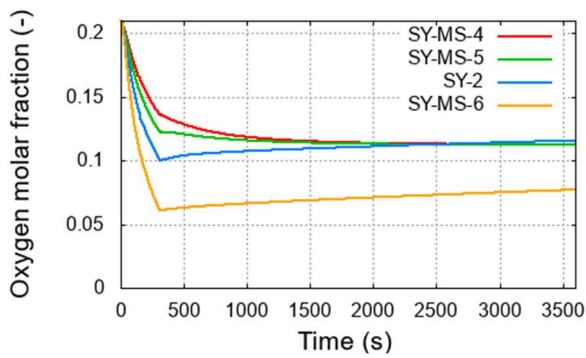


(b) 500 秒まで

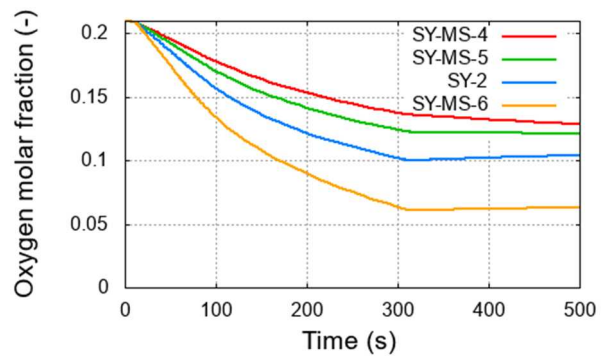
図 2.2.25 HRR の時間変化 (消火ガスの供給流量の効果)

Fig.2.2.25 Calculation results of time variation of HRR

(Effect of flowrate of extinguishing gas into the GB)



(a) 3600 秒まで

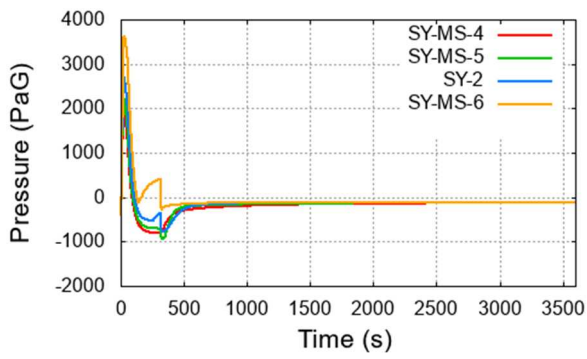


(b) 500 秒まで

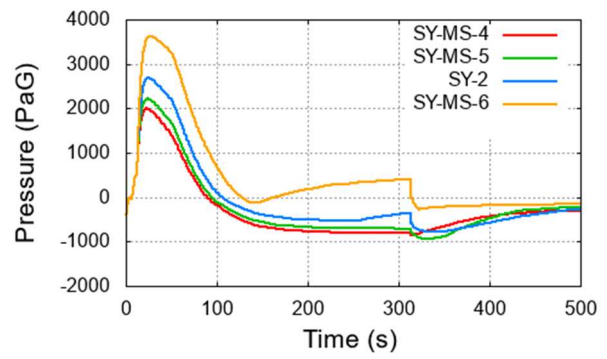
図 2.2.26 GB 内酸素モル分率の時間変化 (消火ガスの供給流量の効果)

Fig.2.2.26 Calculation results of time variation of oxygen molar fraction in the GB

(Effect of flowrate of extinguishing gas into the GB)



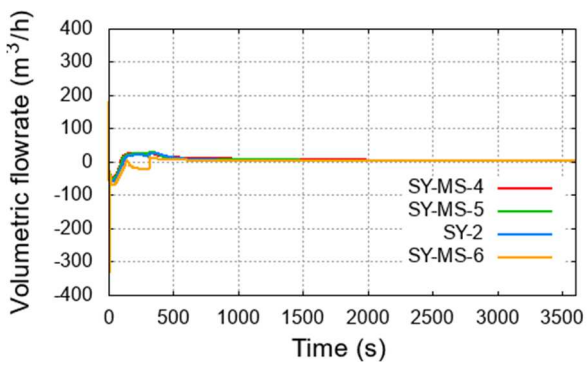
(a) 3600 秒まで



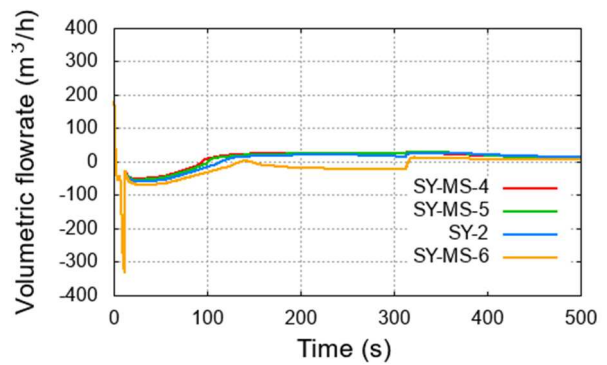
(b) 500 秒まで

図 2.2.27 GB 内圧力の時間変化（消火ガスの供給流量の効果）

Fig.2.2.27 Calculation results of time variation of pressure in the GB
(Effect of flowrate of extinguishing gas into the GB)



(a) 3600 秒まで



(b) 500 秒まで

図 2.2.28 GB 内への給気流量の時間変化（消火ガスの供給流量の効果）

Fig.2.2.28 Calculation results of time variation of volumetric flow rate at inlet
(Effect of flowrate of extinguishing gas into the GB)

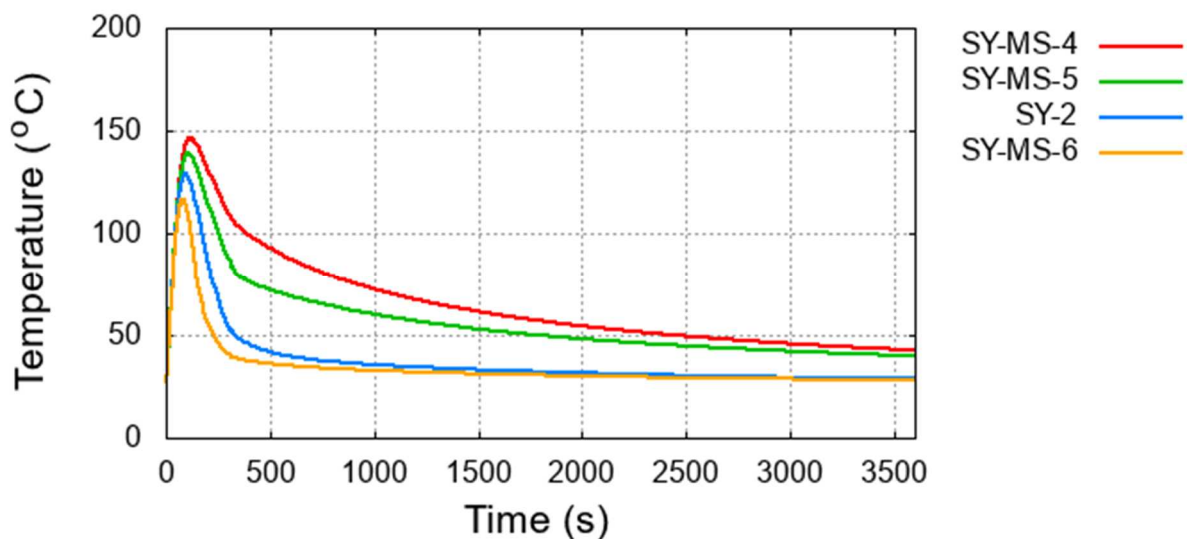


図 2.2.29 GB 内の高温層の時間変化（消火ガスの供給流量の効果）

Fig.2.2.29 Calculation results of time variation of temperature of upper layer
(Effect of flowrate of extinguishing gas into the GB)

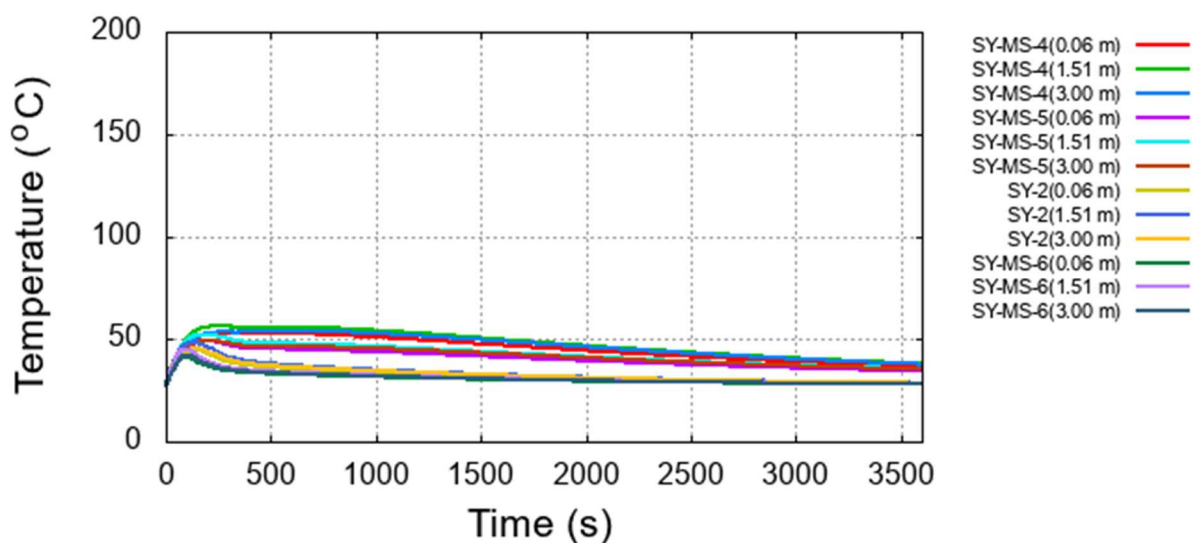
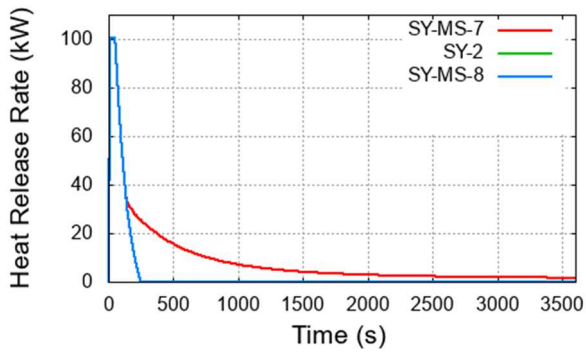
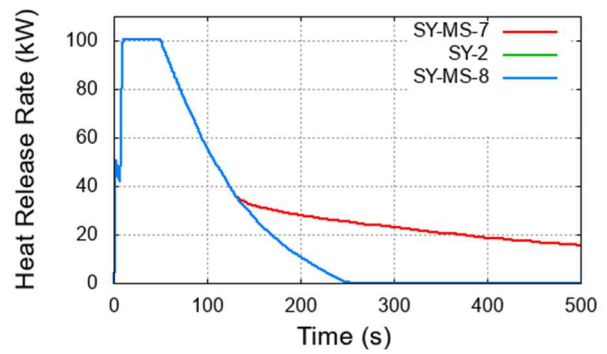


図 2.2.30 GB パネル温度の時間変化（消火ガスの供給流量の効果）

Fig.2.2.30 Calculation results of time variation of temperature of GB panel
(Effect of flowrate of extinguishing gas into the GB)



(a) 3600 秒まで

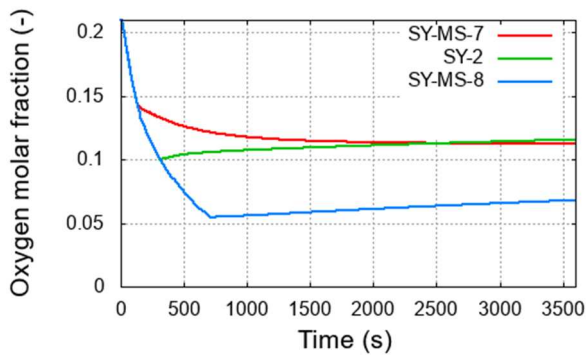


(b) 500 秒まで

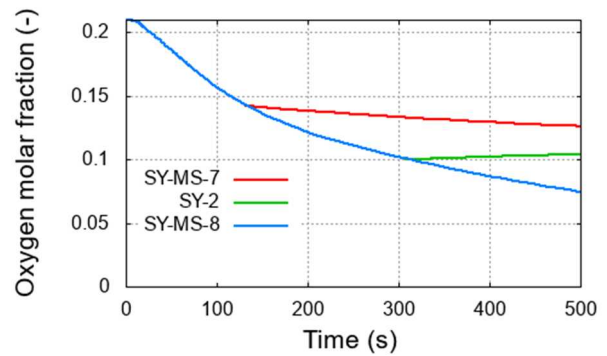
図 2.2.31 HRR の時間変化 (消火ガス供給の継続時間の効果)

Fig.2.2.31 Calculation results of time variation of HRR

(Effect of duration of injection of extinguishing gas into the GB)



(a) 3600 秒まで

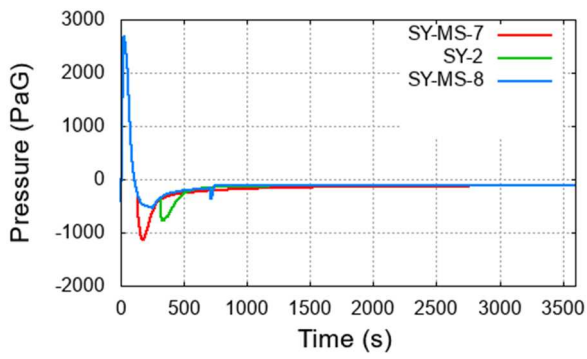


(b) 500 秒まで

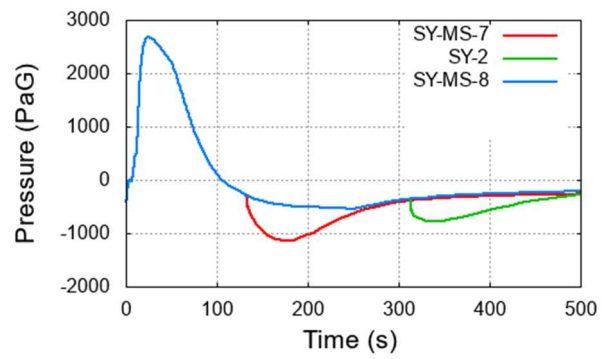
図 2.2.32 GB 内酸素モル分率の時間変化 (消火ガス供給の継続時間の効果)

Fig.2.2.32 Calculation results of time variation of oxygen molar fraction in the GB

(Effect of duration of injection of extinguishing gas into the GB)



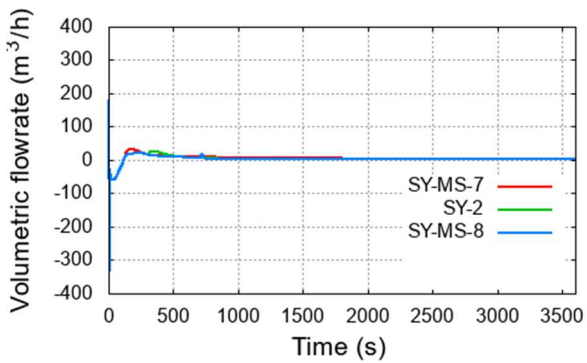
(a) 3600 秒まで



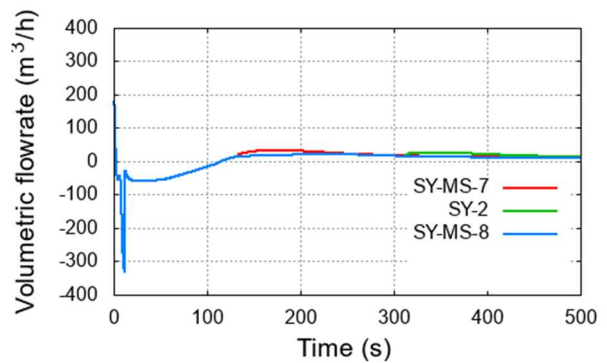
(b) 500 秒まで

図 2.2.33 GB 内圧力の時間変化 (消火ガス供給の継続時間の効果)

Fig.2.2.33 Calculation results of time variation of pressure in the GB
(Effect of duration of injection of extinguishing gas into the GB)



(a) 3600 秒まで



(b) 500 秒まで

図 2.2.34 GB 内への給気流量の時間変化 (消火ガス供給の継続時間の効果)

Fig.2.2.34 Calculation results of time variation of volumetric flow rate at inlet
(Effect of duration of injection of extinguishing gas into the GB)

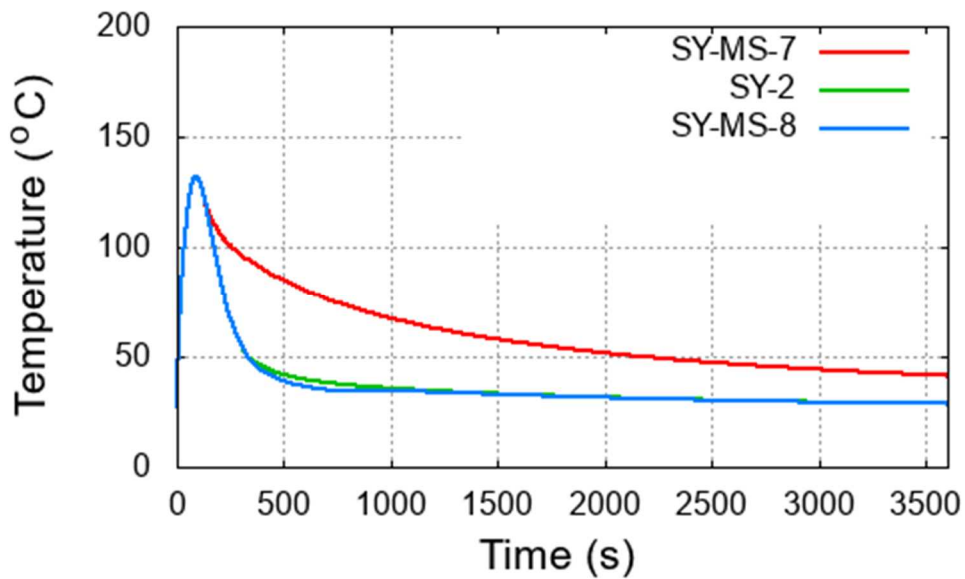


図 2.2.35 GB 内の高温層温度の時間変化（消火ガス供給の継続時間の効果）
 Fig.2.2.35 Calculation results of time variation of temperature of upper layer
 (Effect of duration of injection of extinguishing gas into the GB)

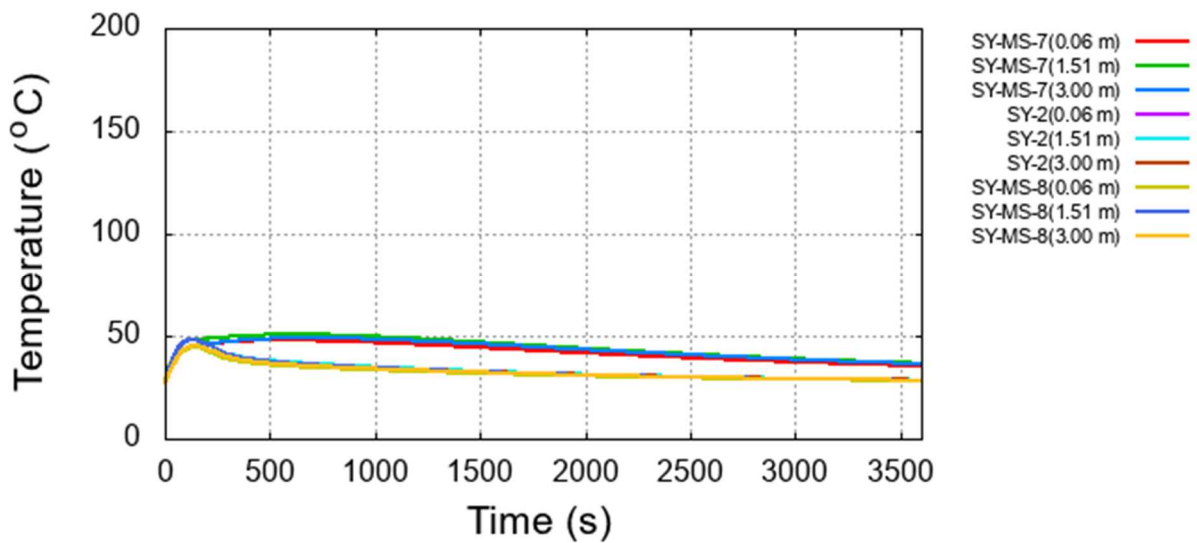


図 2.2.36 GB パネル温度の時間変化（消火ガス供給の継続時間の効果）
 Fig.2.2.36 Calculation results of time variation of temperature of GB panel
 (Effect of duration of injection of extinguishing gas into the GB)

2.2.4 実規模 GB 火災等の試験データに基づく火災解析

GB 火災の事象進展に関する知見の取得に加えて、GB 火災におけるパネル材の燃焼挙動に対する IRSN が開発した火災解析用の CFD コード ISIS^(注7)の適用性の確認を目的として、開放空間における中規模 GB の燃焼試験のデータに基づくベンチマーク解析を実施した。

解析対象とした試験では、燃焼試験用の中規模 GB のパネル材 (PC) を開放空間で燃焼させ、HRR や PC の重量減少等の GB 火災時の燃焼挙動に関するデータを取得した。本解析では、ISIS を用いて、中規模 GB の形状を模擬し、ISIS に実装されている固体燃料の熱分解・燃焼モデルを適用して、解析を実施した。

本解析における HRR 等の解析結果は、概ね試験結果と同じになることが確認された。また、解析結果を基に、GB 火災の事象進展に関する知見を取得した。知見の一例を次に示す。

- 本解析により取得した GB 火災の事象進展に関する知見の一例

本解析では、GB パネル材の外側表面が燃焼することを模擬したが、燃焼によって生じた高温のガスの一部がグローブの穴から GB 内に流入することが確認された。このことから、GB パネル材の燃焼時には、高温ガスの流入により GB 内の温度が上昇するとともに、GB 内の流動状態が大きく変化する可能性があるとして評価された。

(注7) ISIS コードの主な特徴は以下のとおり 2.2.10。

- ・ 火災が発生する部屋等を三次元的に解析可能
- ・ 開放空間、開口部がある部屋内、換気された部屋内等での火災事象の解析が可能
- ・ 固体燃料、液体燃料及び気体燃料の燃焼を取り扱うことが可能

3. 結論

3.1 成果の要点

3.1.1 蒸発乾固事象に関する研究

本研究は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構への委託事業として実施した。

「重大事故等対処の緩和対策やその際に想定される機器設備の環境を踏まえた条件での放射性物質移行挙動」、「準揮発性物質の移行挙動」及び「凝縮液への Ru の化学吸収効果」を把握するためのデータを取得した。具体的には、廃液の濃縮割合に応じた気体状 Ru の発生の抑制に必要な亜硝酸の量、乾固物中の共存物質が乾固後の温度上昇段階における Cs 化合物の気相への移行挙動等に及ぼす影響に関するデータを取得した。

さらに、長期的な目標として事象進展解析コードの整備に資するため、既往の研究成果等を踏まえ解析コードを整備する上での課題、課題解決に必要な試験データ等について分析・整理するとともに整備方針を検討した。

3.1.2 GB 火災に関する研究

FIGARO プロジェクトで得られた実際の GB を模擬した実規模の試験データを踏まえ、「開放空間における中規模 GB 火災の挙動及び換気系統の影響下における中規模 GB 火災の挙動に関する知見の分析・課題の抽出」を行うとともに、「開放空間における中規模 GB 火災の試験データに基づく解析」を実施した。本解析から、GB の構成（GB パネルの材料等）の違いが GB パネルの溶融に伴う開口部の発生までの時間等に及ぼす影響に関する知見を取得した。

また、上記の GB 火災の挙動に関する知見の取得の一環として、火災防護対策を考慮した火災解析を実施した。本解析から、火災防護対策は燃焼反応を抑制する効果を示したが、その一方で、GB 内圧力を上昇させる可能性があると評価された。このように、火災防護対策による影響に関する知見を取得した。

3.2 目的の達成状況

蒸発乾固事象については、高レベル廃液の沸騰段階から乾固段階、さらには乾固後の温度上昇の段階における放射性物質の挙動に関するデータ等を取得するために、本安全研究プロジェクトで計画している全ての試験について、必要な試験装置の整備が完了し、想定される環境条件下（温度、共存物質の存在等）での試験に着手したほか、乾固物の温度挙動の解析に着手した。また、事象進展解析コードを整備する上での課題、課題解決に必要な試験データ等について分析した。

GB 火災については、GB 火災の事象進展に関する知見取得のために実施を計画した、実規模 GB 火災の試験データに基づく分析及び解析のうち、「開放空間における中規模 GB 火災の挙動及び換気系統の影響下における中規模 GB 火災の挙動に関する知見の分析等」

を行うとともに、「開放空間における中規模 GB 火災の試験データ等に基づく解析」を実施した。

3.3 成果の公表等

3.3.1 原子力規制庁の職員が著者に含まれる公表

なし。

3.3.2 委託先による公表

(1) 論文（査読付）

なし。

(2) 国際会議のプロシーディング（査読付）

なし。

(3) その他

なし。

3.4 成果の活用等

原子力規制検査制度では、検査の実施方針、検査指摘事項の重要度を検討するためのリスク情報が重要である。このようなリスク情報を得るに当たっては想定される事故シナリオを明確にする必要がある。これを踏まえ、再処理施設及び MOX 燃料加工施設のリスク情報に基づく検査に資することの一環として、既往の安全研究で網羅されておらず、かつ影響度の大きい事故シナリオに係るデータ等を整備し、既往の安全研究で得られているデータ等と合わせて得られるリスク情報の蓄積を目的として以下の項目の技術的検討を行った。

(1) 蒸発乾固事象に関する放射性物質移行挙動

(2) GB 火災に関する燃焼挙動

本安全研究で得られた知見は、原子力規制検査制度に基づく再処理施設及び MOX 加工施設の検査において、検査の実施方針の作成、検査指摘事項の重要度評価等を実施する際の参考として活用できるものとする。

3.5 今後の課題等

蒸発乾固事象に係る研究では、Cs 等の移行挙動等に係る試験データを一部取得するとともに、課題等を踏まえた事象進展解析コードの整備方針に関する検討を実施し、蒸発乾固時の事象進展に関する知見を取得した。今後は、再処理施設で想定される環境条件下での Cs 等の移行挙動等に係る必要なデータ等を着実に取得するとともに、これまでの試験で明

らかになった課題（放射線分解による廃液中の亜硝酸生成挙動に及ぼす金属イオン濃度の影響等）を解決するための試験を実施し、蒸発乾固事象に関する知見を拡充する。

GB 火災に係る研究では、試験データ及び火災防護対策を含むシナリオに基づく火災解析の一部を実施し、GB 火災の事象進展及び火災防護対策の影響に関する知見を取得した。今後は、実規模の GB 火災試験データに基づく解析及び試験データの分析については、「換気条件下における中規模 GB の火災試験」、「開放空間における実規模 GB の火災試験」及び「換気条件下における実規模 GB 火災試験」を対象とした解析を行い、GB 火災の事象進展に関する知見を拡充する。また、これらの解析等で取得した GB 火災の事象進展に関する知見を踏まえ、GB 火災の事象進展シナリオを評価するための解析手法の整備を行う。

参考文献一覧

- 1.1.1 原子力規制庁、原子力規制検査等実施要領、原規規発第 1912257 号-1、令和元年 1 2 月。
- 1.1.2 原子力規制庁、安全研究成果報告 加工施設のリスク評価に係る研究、RREP-2018-3002、平成 30 年 11 月。
- 1.1.3 原子力規制委員会、日本原燃株式会社再処理事業所における再処理の事業の変更許可申請書に関する審査書（核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律第 4 4 条の 2 第 1 項第 2 号及び第 4 号関連）、令和 2 年 7 月 2 9 日。
- 1.1.4 原子力規制庁、安全研究成果報告再処理施設のリスク評価に係る研究、RREP-2018-3003、平成 30 年 11 月。
- 1.1.5 原子力規制庁、安全研究成果報告 加工施設及び再処理施設の内部火災等に関するリスク評価手法に関する研究、RREP-2021-3003、令和 3 年 6 月。
- 1.1.6 「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、平成 2 6 年 2 月。
- 1.1.7 NRC, “Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook”, NUREG/CR-6410, March 1998.
- 1.1.8 Coutin M. and Audouin L., “Glove box fire behaviour in free atmosphere”, 24th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology (SMiRT 24) -15th International Post-Conference Seminar on “FIRE SAFETY IN NUCLEAR POWER PLANTS AND INSTALLATIONS”, 6/10/2017.
- 1.1.9 IRSN, “Glovebox fire: first results for IRSN research”, program https://www.irsn.fr/EN/newsroom/News/Pages/20181120_Glovebox-fire-IRSN-research.aspx, 20/11/2018.
- 1.1.10 M. Philippe, J.P. Mercier, J.P. Gue, “Behavior of ruthenium in the case of shutdown of the cooling system of HLLW storage tanks,” *Proc. 21st DOE/NRC Nuclear Air Cleaning Conference*, San Diego, CA, Aug., 1990, NUREG/CP-0116, 2, 831–843(1991).
- 1.1.11 日本原燃株式会社、MOX 燃料加工施設における新規制基準に対する適合性（第 22 条：重大事故等の拡大防止等）、令和 2 年 7 月 27 日。
- 1.1.12 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 31 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等、令和 2 年 3 月。
- 1.1.13 Y. Akinori, Y. Muneyuki, M. Furuta et al., “Overview of Event Progression of Evaporation to Dryness Caused by Boiling of High-Level Liquid Waste in Reprocessing Facilities,” *Tran. At. Energy Soc. Jpn*, 21[4], 173-182(2022).
- 1.1.14 阿部仁；渡邊浩二；田代信介；内山軍蔵. 火災事故時のグローブボックスの閉

- じ込め性能評価に関する研究. JAEA-Research 2006-054, 2006 年 9 月.
- 1.1.15 阿部仁; 渡邊浩二; 田代信介; 内山軍蔵. 火災事故時のグローブボックスの閉じ込め性能評価に関する研究 (II) . JAEA-Research 2007-075, 2007 年 11 月.
- 1.1.16 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 31 年度原子力規制庁委託成果報告書再処理施設等における火災事故時影響評価試験、令和 2 年 3 月.
- 2.1.1 田代信介; 天野祐希; 吉田一雄; 山根祐一; 内山軍蔵; 阿部仁. 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 (4),227–234.
- 2.1.2 Y. Amano, S. Tashiro, G. Uchiyama et al., “Study on release and transport of aerial radioactive materials in reprocessing plant,” Proc. Global 2013, Salt lake City, U. S. A., Sep. 29-Oct. 3, 2013 (2013), [CD-ROM].
- 2.1.3 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.
- 2.1.4 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.
- 2.1.5 A.O. Bettencourt, Antonio Jouan, Rapport CEA-R-3663(1) (1969), [in French].
- 2.1.6 M.Precek et al., “Reduction of Np(IV) in irradiated solutions of nitric acid”, Procedia Chemistry, 7, 51(2012)
- 2.1.7 T. Kodama, M. Nakano, K. Fujita et al., “The Behavior of Radiolytically Produced Hydrogen in a High-Level Liquid Waste Tank of a Reprocessing Plant: Hydrogen Concentration Under Gamma Irradiation of the Simulated Solution,” Nuclear Technology, 180, 103–110 (2012).
- 2.1.8 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.
- 2.1.9 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.
- 2.1.10 吉田尚生;天野祐希;大野卓也;吉田涼一郎;阿部仁. 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, 2020; pp 1–33.
- 2.1.11 Yoshida, N.; Ono, T.; Yoshida, R.; Amano, Y.; Abe, H. 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 (11), 1256–1264.
- 2.1.12 Yoshida, K.; Ishikawa, J. Thermal-Hydraulic Analysis of Boiling Event of Reprocessed Liquid Wastes with MELCOR Code. *JAEA-Research* 2012, 026.
- 2.1.13 Mun, C.; Cantrel, L.; Madic, C. Study of RuO₄ Decomposition in Dry and Moist Air. *Radiochimica Acta* 2007, 95 (11), 643–656.
- 2.1.14 Yoshida, N., Ono, T., Yoshida, R., Amano, Y., Abe, H. Effect of nitrous acid on migration behavior of gaseous ruthenium tetroxide into liquid phase. 1–12 (2022)
- 2.1.15 Sasahira, A. & Kawamura, F. Formation rate and gas-liquid equilibrium of RuO₄. *J. Nucl. Sci. Technol.* 25,472–478 (1988).
- 2.1.16 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 2016 春の学会, 11 (2016).
- 2.1.17 Hardy CJ, Field BO, The Volatility of Nitrates and Nitrites of the Alkali Metals. *J Chem Soc.* 1963:5130-5134.
- 2.1.18 Lide DR. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*. 90th ed. Boca Raton (FL): CRC Press; 2009.
- 2.1.19 Samant MS, Dharwadkar SR, Phadnis AB, et al., Thermoanalytical investigation on the solid state synthesis of pure zirconium molybdate (ZrMo₂O₈). *Mater Chem Phys.* 1993;35:120-125.
- 2.1.20 Langowski MH, Darab JG, Smith PA. Volatility Literature of Chlorine, Iodine, Cesium, Strontium, Technetium, and Rhenium; Technetium and Rhenium Volatility Testing. Richland (WA): Pacific Northwest National Laboratory (US); 1996. (PNNL-11052).
- 2.1.21 Lukas W, Gaune-Escard M., Temperatures and enthalpies of melting of alkalimetal perrhenates. *J Chem Thermodyn.* 1982;14:593-597.
- 2.1.22 F. Baumgärtner, J. Heitz, K. Krebs, et al. "Investigation of the volatilization behaviour of fission products from high level waste at temperature up to 1100 °C," *Nukleare Entsorgung*, 3, pp.291-321 [GERMAN] (1986).
- 2.1.23 Kim D, Kruger AA. Volatile species of technetium and rhenium during waste vitrification. *J Non Cryst Solids.* 2018;481:41-50.
- 2.1.24 Backman U, Lipponen M, Auvinen A et al. Ruthenium Behaviour in Severe Nuclear Accident Conditions Final Report. Finland; 2004. (NKS-100).
- 2.1.25 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.

- 2.1.26 Yamawaki M, Oka T, Yasumoto M, et al. Thermodynamics of vaporization of cesium molybdate by means of mass spectrometry. J Nucl Mater. 1993;201:257- 260.
- 2.1.27 F. Baumgärtner, F. Heil. "The thermal conductivity of a HAW-salt-cake in the temperature range from 150 to 800oC," Nukleare Entsorgung, 1, pp.309-315 [GERMAN] (1981).
- 2.1.28 MELCOR Computer Code Manuals Vol. 1: Primer and Users' Guide Version 2.2.9541 2017. Albuquerque (NM): Sandia National Laboratories (US); 2017. (SAND2017-0455 O).
- 2.1.29 MELCOR Computer Code Manuals Vol. 2: Reference Manual Version 2.2.9541 2017. Albuquerque (NM): Sandia National Laboratories (US); 2017. (SAND2017- 0876 O).
- 2.1.30 吉田 一雄他, 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 2021-005, (2021).
- 2.1.31 石川 淳他, 再処理廃液の沸騰乾固模擬ツールの開発, 日本原子力学会和文論文誌,12(2), 165–174 (2013).
- 2.1.32 吉田 一雄他, 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 2021-008, (2021).
- 2.1.33 八田一郎, 最新熱測定 : 基礎から応用まで: アグネ技術センター; 2003.
- 2.1.34 改訂七版 化学工学便覧、化学工学会、2011年9月
- 2.2.1 日本原燃株式会社、MOX 燃料加工施設における新規性基準に対する適合性(第22条：重大事故等の拡大防止等)、令和2年5月26日。
- 2.2.2 日本原燃株式会社、「MOX 燃料加工施設における新規制基準への適合性について」、平成31年4月23日。
- 2.2.3 日本原燃株式会社、「MOX 燃料加工施設における新規制基準に対する適合性(第5条：火災等による損傷の防止)」、令和2年5月26日。
- 2.2.4 日本原燃株式会社、「MOX 燃料加工施設における新規制基準に対する適合性(第15条：設計基準事故の拡大の防止)」、令和2年5月26日。
- 2.2.5 日本原燃株式会社、「MOX 燃料加工施設における新規制基準に対する適合性(第22条：重大事故等の拡大の防止等)」、令和2年5月26日。
- 2.2.6 IRSN, Users guide of the SYLVIA v11 software, 2019.
- 2.2.7 IRSN, Physical modelling of the release v11 of the SYLVIA software, 2019.
- 2.2.8 M.B. Raida, G.J. Hoetmer, A.A.Konnov, J.A. van Oijen, L.P.H. de Goey, Laminar burning velocity measurements of ethanol + air and methanol + air flames at atmospheric and elevated pressures using a new Heat Flux setup, Combustion and Flame 230, 2021
- 2.2.9 M.J. Peatross and C.L. Beyler, Ventilation effect on compartment fire characterization.

Fire Safety Science Proceedings of 5th international symposium, pages 403–414, 1996.

2.2.10 IRSN, “CALIF3S-ISIS V6: PHYSICAL MODELLING”, 2021.

2.2.11 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成19年度MOX燃料加工施設閉じ込め性能等調査・試験グローブボックスの閉じ込め性能に係る調査報告書」、平成20年8月

執筆者一覧

原子力規制庁	長官官房技術基盤グループ	システム安全研究部門
山口 晃範	技術研究調査官	
瀧澤 真	技術研究調査官	
古田 昌代	技術研究調査官	
櫻井 智明	技術研究調査官	
森 憲治	上席技術研究調査官	
久保田和雄	技術参与	