

安全研究成果報告

S/NRA/R Research Report

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

Study on Risk Assessment Methods for Internal Fire and Other Events
in Nuclear Fuel Fabrication and Reprocessing Facilities

森 憲治 横塚 宗之 山口 晃範 瀧澤 真
古田 昌代 櫻井 智明 寺垣 俊男 久保田和雄
野島 康夫

MORI Kenji, YOKOTSUKA Muneyuki, YAMAGUCHI Akinori, TAKIZAWA Makoto,
FURUTA Masayo, SAKURAI Tomoaki, TERAGAKI Toshio, KUBOTA Kazuo, and
NOJIMA Yasuo

核燃料廃棄物研究部門

Division of Research for Nuclear Fuel Cycle and Radioactive Waste

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)

令和3年6月

June 2021

本報告は、原子力規制庁長官官房技術基盤グループが行った安全研究プロジェクトの活動内容・成果をとりまとめたものです。

なお、本報告の内容を規制基準、評価ガイド等として審査や検査に活用する場合には、別途原子力規制委員会の判断が行われることとなります。

本報告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 核燃料廃棄物研究部門
〒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：03-5114-2225
ファックス：03-5114-2235

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

原子力規制庁 長官官房技術基盤グループ
核燃料廃棄物研究部門

森 憲治 横塚 宗之 山口 晃範 瀧澤 真 古田 昌代
櫻井 智明 寺垣 俊男 久保田和雄 野島 康夫

要 旨

本研究プロジェクトでは、MOX 燃料加工施設及び再処理施設に係るリスク評価手法の整備を目的とし、内部火災を対象としたリスク評価手法の検討及び重大事故等に関する試験又は解析による検討を行った。

内部火災は MOX 燃料加工施設及び再処理施設においてリスク上重要な事象であるが、そのリスク評価手法は未整備である。このため、本研究では、幾つかの原子力発電所の内部火災リスク評価手法の調査と分析を行い、その結果を踏まえ、MOX 燃料加工施設及び再処理施設の内部火災リスク評価のための手順案を作成した。

一方、リスク評価では重大事故事象に至るシナリオ及び影響の大きさを把握することが重要であり、これらを評価するための手法の整備及び関係するデータの取得が必要である。このため、以下の事象に関する試験を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、その結果を踏まえた分析又は解析により、これらの事象の事故シナリオに係る科学的・技術的知見を取得した。

- ・ MOX 燃料加工施設及び再処理施設における火災事象（グローブボックス火災及び有機溶媒火災）
- ・ 再処理施設における蒸発乾固事象
- ・ 再処理施設における機器の経年変化

Study on Risk Assessment Methods for Internal Fire and Other Events
in Nuclear Fuel Fabrication and Reprocessing Facilities

MORI Kenji, YOKOTSUKA Muneyuki, YAMAGUCHI Akinori, TAKIZAWA Makoto, FURUTA Masayo, SAKURAI Tomoaki, TERAGAKI Toshio, KUBOTA Kazuo, and NOJIMA Yasuo
Division of Research for Nuclear Fuel Cycle and Radioactive Waste,
Regulatory Standard and Research Department,
Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R)

Abstract

In this safety research project, a study on risk assessment methods for internal fire and experimental or analytical studies on severe accidents in mixed-oxide (MOX) fuel fabrication and reprocessing facilities were conducted for the purpose of developing risk assessment methods.

Although, internal fire events are important in view of risk in these facilities, their risk assessment method has not yet been developed. In this study, therefore, several internal fire risk assessment methods for nuclear power plants were reviewed and analyzed, and based on the results, a draft procedure of internal fire risk assessment for MOX fuel fabrication and reprocessing facilities was developed.

In risk assessments, it is important to understand the event progression scenarios that lead to severe accidents as well as the magnitudes of the consequences. Therefore, it is necessary to prepare methods for analyzing these scenarios and consequences, and to acquire the related data for that. For this reason, experimental studies on the following events were also conducted by the Japan Atomic Energy Agency under the auspices of the Nuclear Regulation Authority.

- Fires such as glove box fires in MOX fuel fabrication facilities and organic solvent fires in reprocessing facilities
- Evaporation to dryness caused by boiling of high-level liquid waste in reprocessing facilities.
- Aging of components in reprocessing facilities

According to the analytical studies based on the results, the scientific and technical findings related to the scenarios leading to these events were obtained.

目次

1. 序論.....	1
1.1 背景.....	1
1.2 目的.....	5
1.3 全体行程.....	6
2. 本論.....	8
2.1 内部火災等を起因としたリスク評価手法の検討.....	8
2.1.1 研究の概要.....	8
2.1.2 内部火災リスク評価手法に関する参考文献の調査.....	8
2.1.3 MOX燃料加工施設及び再処理施設を対象とした内部火災リスク評価手順案の 作成.....	9
2.2 リスク評価に向けた重大事故等に関する技術的検討.....	13
2.2.1 火災又は爆発.....	13
2.2.2 蒸発乾固事象.....	39
2.2.3 機器の経年劣化.....	64
3. 結論.....	83
3.1 成果の要点.....	83
3.2 目的の達成状況.....	84
3.3 成果の公表等.....	84
3.3.1 原子力規制庁の職員が著者に含まれる公表.....	84
3.3.2 委託先による公表.....	84
3.4 成果の活用等.....	85
3.5 今後の課題等.....	86
参考文献一覧.....	87
執筆者一覧.....	92

表 目 次

表 1.1	平成 28 年度までに得られた科学的・技術的知見と本研究プロジェクトでの検討課題.....	4
表 2.2.1.1	火災解析コードの概要.....	15
表 2.2.1.2	代表シナリオ設定の条件.....	16
表 2.2.1.3	全シナリオ共通の前提条件.....	17
表 2.2.1.4	設計基準事故対策に基づくシナリオの例 (GB 内火災⇒GB 外火災)	18
表 2.2.1.5	重大事故対策に基づくシナリオの例 (GB 内火災⇒GB 外火災)	19
表 2.2.1.6	各試験材料の反応度ステージの定義の例.....	24
表 2.2.1.7	窒素雰囲気における反応速度データの例 (アクリル)	24
表 2.2.1.8	熱分解ガスの定量評価結果の例 (アクリル)	24
表 2.2.1.9	試験に用いた HEPA フィルタの仕様.....	30
表 2.2.1.10	GB パネル材料燃焼特性試験の研究展開の概要.....	31
表 2.2.2.1	蒸発乾固事象進展シナリオに応じた放射性物質移行挙動整理及びデータの取得状況	46
表 2.2.2.2	RuO ₄ 分解反応速度定数の一覧	47
表 2.2.3.1	除染作業が異材接合継手の劣化に及ぼす影響確認試験の概要.....	68
表 2.2.3.2	NaOH 溶液及び HNO ₃ 溶液の交互浸漬試験の試験条件.....	68
表 2.2.3.3	NaOH 溶液中における Ta の浸漬電位 (液温 : 80°C)	68
表 2.2.3.4	吸収水素脆化試験の試験条件.....	69

目 次

図 1.1	全体行程	7
図 2.1	内部火災リスク評価手順書の全体フロー	11
図 2.2.1.1	モデルプラントの系統図の例（設計基準事故対策のみ）	20
図 2.2.1.2	モデルプラントの系統図の例（重大事故対策を含む。）	20
図 2.2.1.3	GB 火災において考慮される事象の例	25
図 2.2.1.4	TG-DTA 測定結果の例（アクリル（窒素雰囲気条件））	25
図 2.2.1.5	限界酸素濃度測定試験、酸素指数測定試験及び消炎酸素濃度測定試験の試験装置概略図	26
図 2.2.1.6	ACUA の概略図	32
図 2.2.1.7	ACUA の外観図	32
図 2.2.1.8	時間平均の発熱速度 $H_{RR,av}$ に及ぼす燃焼面積 S の影響	33
図 2.2.1.9	時間平均の発熱速度 $H_{RR,av}$ に及ぼす重量減少速度 m_b の影響	33
図 2.2.1.10	PMMA 燃焼と PC 燃焼で放出されたばい煙の粒径分布の例	34
図 2.2.1.11	見かけのばい煙率 (G_D) に及ぼす燃焼セル 1 回換気に要する時間 (V/Fv) の影響	34
図 2.2.1.12	HEPA フィルタの単位面積当たりのばい煙負荷量と HEPA フィルタの差圧の関係の例	35
図 2.2.1.13	火炎の様子（PMMA パネル）	35
図 2.2.1.14	自然鎮火後の様子（PC パネル）	35
図 2.2.1.15	火炎の様子（PC パネル）	35
図 2.2.1.16	HEPA フィルタ単位ろ過面積当たりに負荷した浮遊粒子負荷重量と HEPA フィルタ差圧の関係	38
図 2.2.2.1	蒸発乾固事象の進展過程と放射性物質移行挙動の概念図	48
図 2.2.2.2	実廃液を用いた蒸発乾固事象時の各元素の積算気相移行割合	48
図 2.2.2.3	亜硝酸添加の影響を踏まえた揮発性 Ru 移行挙動の評価に用いた装置概要図	49
図 2.2.2.4	亜硝酸添加の影響を踏まえた Ru 移行挙動の試験結果の例	49
図 2.2.2.5	Ru エアロゾル生成挙動の評価に用いた装置概要図	50
図 2.2.2.6	Ru エアロゾル生成挙動試験結果の例	50
図 2.2.2.7	Ru に対する NO_2 及び NO のモル比評価試験結果	51
図 2.2.2.8	気相雰囲気中における RuO_4 の化学形変化挙動の評価に用いた装置概要図	52
図 2.2.2.9	HNO_3 が及ぼす RuO_4 分解挙動試験結果	52
図 2.2.2.10	NO_2 が及ぼす RuO_4 分解挙動試験結果	53
図 2.2.2.11	蒸気凝縮に伴う RuO_4 の移行挙動の評価に用いた装置概要図	53
図 2.2.2.12	蒸気凝縮に伴う Ru の移行挙動試験結果（ NO_2 添加）	54

図 2.2.2.13	蒸気凝縮に伴う RuO ₄ の移行挙動試験結果 (NO ₂ 無添加)	54
図 2.2.2.14	Ru 気液接触試験に用いた装置概要図	55
図 2.2.2.15	Ru 気液接触試験結果の例	55
図 2.2.2.16	気相部移行試験の SCHERN 解析結果と Ru 気液接触試験結果の比較	56
図 2.2.2.17	実機規模の仮想施設を対象にした試解析モデル	56
図 2.2.2.18	実機規模の仮想施設の解析結果の例	57
図 2.2.2.19	注水試験に用いた装置概要図	57
図 2.2.2.20	注水中における気相への Ru 移行割合の例	58
図 2.2.2.21	注水中における気相への Cs 移行割合の例	58
図 2.2.2.22	注水中における気相への Nd 及び Ba 移行割合の例	59
図 2.2.2.23	乾固物の例	60
図 2.2.2.24	乾固物の物性値の例	61
図 2.2.2.25	二次元解析モデルの概要図	62
図 2.2.2.26	乾固物の温度分布の経時変化の二次元解析結果の例	62
図 2.2.2.27	乾固物の温度の経時変化の一次元解析結果の例	63
図 2.2.3.1	NaOH と HNO ₃ との交互浸漬試験のフロー	69
図 2.2.3.2	浸漬試験装置	70
図 2.2.3.3	浸漬試験片外観	70
図 2.2.3.4	昇温脱離ガス分析装置外観	71
図 2.2.3.5	腐食挙動及び水素吸収挙動に及ぼす溶液濃度の影響	71
図 2.2.3.6	電気化学データ測定装置の構成模式図	72
図 2.2.3.7	Ta-SUS304 対で測定された Ta のガルバニック電流 (80°C)	72
図 2.2.3.8	Ta-Zr 対で測定された Ta のガルバニック電流 (80°C)	73
図 2.2.3.9	電位 pH 線図上の種々の濃度の NaOH 溶液中における Ta の腐食電位	73
図 2.2.3.10	引張試験試験片の外観	74
図 2.2.3.11	引張試験装置	74
図 2.2.3.12	熱時効装置 (管状電気炉)	75
図 2.2.3.13	電気化学的水素チャージした純 Ta 材試験片の応力-ひずみ曲線	76
図 2.2.3.14	引張試験において破断した電気化学的水素チャージ純 Ta 板試験片の外観	76
図 2.2.3.15	電気化学的水素チャージした 33%冷間圧延純 Ta 材の応力-ひずみ曲線	77
図 2.2.3.16	引張試験において破断した電気化学的水素チャージ 33%冷間圧延純 Ta 材試験片の外観	77
図 2.2.3.17	電気化学的水素チャージした 50%冷間圧延純 Ta 材試験片の応力-ひずみ曲線	78
図 2.2.3.18	引張試験において破断した電気化学的水素チャージした 50%冷間圧延純 Ta 板材試験片の外観	78
図 2.2.3.19	電気化学的水素チャージした異材接合材試験片の応力-ひずみ曲線	79

図 2.2.3.20	電気化学的水素チャージした異材接合材試験片の応力-ひずみ曲線	80
図 2.2.3.21	引張試験において破断した電気化学的水素チャージした異材接合材試験片の外観	81
図 2.2.3.22	NaOH 溶液浸漬した異材接合材試験片の応力-ひずみ曲線.....	81
図 2.2.3.23	引張試験において破断した NaOH 浸漬した異材接合材試験片の外観	82
図 2.2.3.24	SIMS 分析により得られた交互浸漬腐食試験後の異材接合材の Ta と Zr との界面近傍における水素の二次元分布	82

略 語 表

CFD	Computational Fluid Dynamics (数値流体力学)
EPRI	Electric Power Research Institute (米国電力研究所)
GB	Glove Box (グローブボックス)
HRR	Heat Release Rate (発熱速度)
IRSN	Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (放射線防護・原子力安全研究所 (仏国))
JAEA	Japan Atomic Energy Agency (国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)
JNES	Japan Nuclear Energy Safety Organization (独立行政法人原子力安全基盤機構)
MOX	Mixed Oxide (混合酸化物)
NRC	Nuclear Regulatory Commission (米国原子力規制委員会)
PRA	Probabilistic Risk Assessment (確率論的リスク評価)

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 22 条の 7 の 2 第 1 項では、「加工事業者は、原子力規制委員会規則で定めるところにより、当該加工施設における安全性の向上を図るため、原子力規制委員会規則で定める時期ごとに、当該加工施設の安全性について自ら評価をしなければならない。」（ここで、安全性の向上を図るため事業者が自ら行う評価を以下「安全性向上評価」という。）としており、加工事業者に対し安全性向上評価の実施を要求している。また、同法第 50 条の 4 の 2 第 1 項では、再処理事業者に対しても同様の要求をしている。

この安全性向上評価を運用するガイドとして、平成 25 年に原子力規制委員会が策定した「加工施設及び再処理施設の安全性向上評価に関する運用ガイド」^{1.1.1}（以下「運用ガイド」という。）では、「事故の発生及び拡大の防止措置を講じたにもかかわらず、重大事故の発生に至る可能性がある場合、その可能性」について調査及び分析する際の方法としては、「適切な評価方法」によりリスク評価を行うこととされている^(注1)。しかしながら、運用ガイドにおいても指摘されているように、加工施設及び再処理施設に係るリスク評価手法は現在その手法が必ずしも成熟しておらず、順次適切なリスク評価手法を検討していくことが重要である。

(1) リスク評価手法の検討

このような状況を踏まえ、平成 28 年度までに実施した安全研究では、「実用発電用原子炉の安全性向上評価に関する運用ガイド」^{1.1.2}に附属する参考資料を参考に、加工施設及び再処理施設における内部事象及び地震を対象としたリスク評価を実施する際の必要事項を検討した。しかし、これらの検討では、内部火災等の事象は対象として含まれておらず、加工施設及び再処理施設におけるリスク評価手法の対象事象を段階的に拡張する必要がある。本研究プロジェクトにおいては、加工施設及び再処理施設において重要な事象であり、かつ、先行して実施されている実用発電用原子炉（以下「発電炉」という。）における検討が参考になることから、内部火災を起因としたリスク評価実施手法を検討することを優先的に進めることとした。

^(注1) 平成 30 年 11 月 14 日に開催された平成 30 年度第 41 回原子力規制委員会において、ウラン加工施設は、実用発電用原子炉等に比して潜在的な危険性は低く、重大事故の発生は想定されていないことから、安全性向上評価において、リスク評価は適用しないことが決定され、平成 31 年 3 月 6 日に開催された平成 30 年度第 65 回原子力規制委員会において、この決定を踏まえた「ウラン加工施設の安全性向上評価に関する運用ガイド」^{1.1.3}が制定された。このような背景を踏まえ、本プロジェクトでは、加工施設については混合酸化物（MOX）燃料加工施設を対象とする。

(2) リスク評価に向けた重大事故等に関する技術的検討

リスク評価では、事故事象の進展シナリオ及び影響の大きさを把握することが重要であり、これらを解析・評価するための手法の整備又は関係するデータの取得が必要である。

加工施設及び再処理施設では様々な重大事故が想定されており、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、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ている。いずれの重大事故においてもその事故シナリオの把握は重要であるが、以下の①～③に示す理由により、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。）火災並びに再処理施設における有機溶媒火災及び蒸発乾固事象について科学的・技術的知見を取得することが特に重要である。また、④に示す理由により、再処理施設の機器の経年変化に関する科学的・技術的知見を取得することが重要である。

これらの事象について、平成 28 年度までに得られた知見と本研究プロジェクトで検討が必要な事項を表 1.1 に示す。

① 火災又は爆発

①-1 MOX 燃料加工施設における GB 火災

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直接の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有機材料を構成材料とし非密封の MOX 燃料粉末を内包する GB の火災が考えられる^(註2)。GB は施設内の広範な領域に多数基設置され、MOX 燃料加工施設の特徴となっている。また、GB 火災には、構成材料が有機材料である 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）は複雑になることが想定される。加えて、海外では GB の火災が多数報告されていることから^{1.1.4}、GB 火災を優先的に取り上げることが重要である。

①-2 再処理施設における有機溶媒火災

^(註2) 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^{1.1.5}

再処理施設で使用される有機溶媒（30%リン酸トリブチル（以下「TBP」という。）/70%ドデカン）の火災時には、ばい煙等が放出され、これらの負荷により HEPA フィルタの目詰まりと差圧の上昇が引き起こされる可能性がある。差圧上昇によって HEPA フィルタが損傷すると放射性物質に対する除染機能が低下し、公衆に対する影響の増大が引き起こされる可能性がある。したがって、火災事故時の安全性を評価するためには、HEPA フィルタの目詰まり及び差圧上昇挙動を把握することが重要である。

② 再処理施設における蒸発乾固事象

再処理施設の重大事故として挙げられている蒸発乾固事象、水素爆発及び使用済燃料の著しい損傷のうち、使用済燃料の著しい損傷については実用発電用原子炉と共通する重大事故であり、実用発電用原子炉の知見が活用できることが想定される^(注3)。蒸発乾固事象は、高レベル濃縮廃液がある一定温度を超えた際に揮発性物質の気相移行を示唆する知見が得られており^{1.1.6}、その気相移行割合は水素爆発時に想定される気相移行割合に比べて大きいことから、蒸発乾固事象による放射性物質の気相への移行挙動を把握することが重要であり、技術的検討を実施する必要がある。

③ 再処理施設の機器の経年劣化

再処理施設の機器の点検や補修等の保全活動を行うための除染作業時には、一般的にアルカリ溶液（水酸化ナトリウム）が使用される^{1.1.7}。タンタルは硝酸（発煙硝酸を除く。）に対しては優れた耐食性を示すがアルカリ水溶液中では腐食しやすく、また、水素を吸収して容易に脆化する金属として知られている^{1.1.8}。アルカリ腐食反応では水素が発生する可能性が高いことからインサート材としてタンタルを使用している異材接合継手は除染作業により劣化する可能性がある。本事象は、重大事故に位置付けられるものではないが、放射性溶液の漏えいの起因となり得るこれらの事象に係るデータを取得することが重要である。

^(注3) 臨界事故及び TBP の混入による急激な分解反応については、新規制基準適合性審査^{1.1.9}で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の、過去に他の施設での発生経験等を踏まえ、同重大事故の発生を想定したとしている。

表 1.1 平成 28 年度までに得られた科学的・技術的知見と本研究プロジェクトでの検討課題

Table 1.1 Scientific and technical findings obtained by the previous research conducted until FY2016 and issues examined in this research project.

対象事象	平成 28 年度までに得られた科学的・技術的知見	本研究プロジェクトで検討した事項
火災（GB 火災／有機溶媒火災）	<p>換気システムへの影響を考慮した試解析*を通して取得した加工施設及び再処理施設における火災影響評価に用いるデータ及び火災影響評価を行う上での留意点</p> <p>* 解析コードはフランス放射線防護原子力安全研究所（以下「IRSN」という。）が開発した SYLVIA コードを用いて実施した。</p>	<ul style="list-style-type: none"> ・ 火災影響評価又は火災時の放射性物質の漏えい量評価の不確かさ低減のため、加工施設及び再処理施設での特徴的な火災（GB 火災等）に対する解析コード適用の妥当性について ・ 有機溶媒火災について実機相当のフィルタの閉じ込め性能について ・ GB 火災について対象可燃物（GB の材質である高分子材料）の熱分解及び燃焼特性、ばい煙によるフィルタの閉じ込め機能への影響について
蒸発乾固事象	<p>高レベル濃縮廃液の蒸発乾固事象を対象に、事象進展の把握並びに核種の液相から気相への移行及び放出経路中での気相から液相への移行に伴う放射性物質（難揮発性物質及び揮発性ルテニウム（Ru））の放出量を評価するための基礎的なデータ（例：難揮発性物質の移行率、揮発性 Ru の移行率、水蒸気の凝縮等による揮発性 Ru の気相から液相への移行挙動等）及びこれらから得られた検討結果</p>	<p>蒸発乾固事象の進展に沿ってより精緻な評価を行うため、</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ NOx を含む様々な気相条件を対象とした際の揮発性 Ru の熱分解、水蒸気の凝縮等による揮発性 Ru の気相から液相への移行挙動について ・ 高レベル濃縮廃液中に共存し Ru の挙動に影響を与える可能性のある物質等について
機器の経年劣化	<p>機器の経年劣化に伴う放射性溶液（溶解液、プルトニウム溶液等）の漏えいについて、安全上重要な施設に該当する異材接合継手に使用されているジルコニウム及びタンタルの通常運転時の硝酸環境中において発生する放射線分解水素に起因する水素吸収脆化割れの可能性に関するデータ及びこれらから得られた検討結果</p>	<p>機器の点検や補修等の保全活動を行うための除染作業時にアルカリ溶液（水酸化ナトリウム）が使用される^{1,15}。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 異材接合継手にインサート材として使用されているタンタルはアルカリ水溶液中では腐食しやすく、また、水素を吸収して容易に脆化する金属として知られている^{1,1,9}ことから、アルカリ腐食により発生する水素に起因する水素吸収脆化割れについて ・ アルカリ溶液はタンタルを腐食させ、除染作業後に表面に再生した不動態皮膜には不純物が含まれることが懸念されることから、通常運転（硝酸環境中）における耐食性の低下について

1.2 目的

1.1 で述べた背景を踏まえ、本研究プロジェクトでは下記の検討に基づき、科学的・技術的知見を取得することを目的とする。

(1) 内部火災等を起因としたリスク評価手法の検討

加工施設及び再処理施設において重要な事象である内部火災を起因とするリスク評価実施手法の整備のため、当該評価手順の素案を検討する。

(2) リスク評価に向けた重大事故等に関する技術的検討

リスク評価では、事故シナリオをより適切なものとするとともに評価に伴う不確かさを低減するため、評価手法の整備又は関係するデータを取得し、これらの結果を用いた検討をする。

① 火災又は爆発

- 加工施設及び再処理施設での特徴的な火災である GB 火災による閉じ込め機能の喪失に係るデータ (GB の核燃料物質等を閉じ込める機能の喪失に係る GB パネル構成材料の熱分解特性データ及び GB パネル材の燃焼特性データ並びにばい煙による HEPA フィルタへの目詰まりデータ等) を取得するとともに、火災影響評価手法の整備のため、解析コード適用の妥当性を確認し、評価を行う上での留意点・着眼点及び課題点を抽出する。
- 有機溶媒火災について実機相当のフィルタを対象とした閉じ込め機能に関するデータ、GB 火災について対象可燃物 (GB の構成材料である高分子材料) の熱分解及び燃焼特性、ばい煙によるフィルタの閉じ込め機能への影響について関係するデータを取得する。

② 蒸発乾固事象

蒸発乾固事象全体にわたり事象の進展に沿ってより精緻な評価を行うため、NO_x を含む様々な気相条件を対象とした際の揮発性 Ru の熱分解、水蒸気の凝縮等による揮発性 Ru の気相から液相への移行挙動、高レベル濃縮廃液中に共存物質が影響を及ぼす Ru の液相から気相への移行挙動等に係るデータを取得する。

③ 機器の経年劣化

水酸化ナトリウムを用いた除染作業が放射性溶液 (溶解液、プルトニウム溶液等) の漏えいの原因となる可能性を評価する観点から、水酸化ナトリウム溶液中では腐食しやすく、また、水素を吸収して容易に脆化するタンタル^{11.6} をインサート材として用いた異材接合継手の機械的特性及び耐食性に及ぼす水酸化ナトリウムの影響を評価するデータを取得する。

1.3 全体行程

本研究は平成 29 年度から令和 2 年度にかけて実施したものであり、得られた成果を本報告書にまとめる。なお、リスク評価に向けた重大事故等に関する技術的検討において、グローブボックス火災に係る試験、有機溶媒火災に係わる試験、蒸発乾固事象に係る試験及び経年変化に係る試験は、JAEA に委託し、実施したものである。全体行程を図 1.1 に示す。

年度 (平成/令和)	29	30	1	2
(1) 内部火災等を 起因としたリスク 評価手法の検討	代表事故シナリオ の検討	施設の特徴の再整理、 前年度に得られた課題の抽出	解析実施に当た る課題の検討	リスク評価実施 手順の素案作成
	調査			
(2) リスク評価に 向けた重大事故等 に関する技術的検 討 ①火災又は爆発	対象可燃物火災 の試験の実施 (有機溶媒火 災、GB火災等)	対象可燃物火災の試験の実施 (GB火災等)		
	予備試験	熱分解・凝縮試験、 移行挙動試験、注水時の移行挙動試験	取得データから得られた知 見を取りまとめ、解析実施	取得データの整理
(3) 機器の経年劣化	a)腐食 試験装置の整備	表面皮膜確認試験、電気化学特性確認試験、腐食試験		
	b)水素脆化 試験装置の整備	吸収水素量測定試験、機械的特性確認試験		

図 1.1 全体行程

Fig. 1.1 Overall process.

2. 本論

2.1 内部火災等を起因としたリスク評価手法の検討

2.1.1 研究の概要

1.1 に記載したとおり、これまでに加工施設及び再処理施設における内部事象及び地震を対象としたリスク評価手法の検討を実施している^{2.1.1.1-2.1.1.3}。一方で、内部事象及び地震以外にも有意なリスクを生じる可能性のある事象（例：火災、溢水、竜巻、火山など）が存在し、それらの事象を対象としたリスク評価手法についてはまだ整備しておらず、施設全体のリスクを把握するためには、評価対象事象を段階的に拡張していく必要がある。

そこで、本研究では発電炉における各事象を対象としたリスク評価手法の整備状況等を踏まえ、内部火災を対象としたリスク評価手法の検討を行い、MOX 燃料加工施設及び再処理施設の内部火災リスク評価のための手順案を作成した。

なお、本報告で示す手順案については、MOX 燃料加工施設及び再処理施設の新規制基準適合性に係る審査の結果等を踏まえ、引き続き、その内容について検討がなされていくものである。

2.1.2 内部火災リスク評価手法に関する参考文献の調査

MOX 燃料加工施設及び再処理施設を対象とした内部火災リスク評価手法の検討に着手するに当たって、これらの施設の内部火災リスク評価手法に関する既往の文献を調査した。その結果、内部事象又は地震を対象としたリスク評価に関する実施基準、論文等^{2.1.2.1-2.1.2.6}は存在するものの、内部火災を対象とした文献は確認できなかった。そのため、発電炉を対象とした内部火災リスク評価手法に関する既往の文献についても調査し、それらの手法を参考に MOX 燃料加工施設及び再処理施設の評価手法を検討することとした。

発電炉では、旧 JNES が内部火災を対象とした PRA に関する実施手順書（以下「JNES 手順書」という。）^{2.1.2.7}を整備している。JNES 手順書は、施設情報に基づき火災シナリオを作成するフェーズ（JNES 手順書では「空間相互作用解析」という。）、作成した火災シナリオから定量的なスクリーニングにより安全上重要な火災シナリオを抽出するフェーズ（JNES 手順書では「スクリーニング解析」という。）及び抽出した火災シナリオをより詳細に細分化して炉心損傷頻度を評価するフェーズ（JNES 手順書では「詳細解析」という。）の3つのフェーズにより構成された手順書となっている。

また、リスク評価のためのガイドではないが、原子力規制委員会は発電炉を対象として「原子力発電所の内部火災影響評価ガイド」（以下「内部火災影響評価ガイド」という。）^{2.1.2.8}を制定しており、同ガイドにおける情報及びデータの収集・整理の手法は上述の JNES 手順書における手法と類似している。また、内部火災影響評価ガイドで示される火災伝播評価手法は、JNES 手順書には示されていないが、内部火災リスク評価にも活用できると考えられる。

以上の状況を踏まえた結果、JNES 手順書に加えて内部火災影響評価ガイドも参考にし

た上で、MOX 燃料加工施設及び再処理施設の特徴を考慮した手順を作成する方針とした。

なお、発電炉の内部火災に関するリスク評価手法については、上記文献の他にも日本原子力学会が策定した実施基準^{2.1.2.9}、米国で作成された火災 PRA 手法（以下「NUREG/CR-6850」という。）^{2.1.2.10}等が存在する。また、最近では電力中央研究所から新たな火災 PRA ガイド^{2.1.2.11}が公開されている。

2.1.3 MOX 燃料加工施設及び再処理施設を対象とした内部火災リスク評価手順案の作成

(1) 施設の特徴

内部火災リスク評価手順を検討するに当たって、MOX 燃料加工施設及び再処理施設の特徴を整理した。主な特徴は次のとおり。

- ・ 取り扱う核燃料物質の種類、量、その状態等が様々で工程ごとに複数の部屋や建屋に広く分布していることから、複数の工程で多種多様な事故が発生する可能性がある。
- ・ 発電炉に比べて温度、圧力等の環境が厳しくなく、これらの変化が比較的穏やかである。
- ・ 放射性物質の閉じ込めに係る機能としてセル、GB 等が存在する。、GB を構成するパネル、グローブ等は可燃性物質である。
- ・ 発電炉には存在しない火災源（ドデカン、TBP 等）を取り扱う。

(2) 評価範囲の整理

MOX 燃料加工施設及び再処理施設の内部火災リスク評価の手順書で示す評価範囲は、次のとおり設定した。

- ① 評価対象とする火災は、施設内で発生する内部火災のうち、機器の不具合などの内的要因によって生じる火災とし、地震などの外的要因によって発生する内部火災は評価対象外とする。また、森林火災などの施設外で発生する火災に起因する火災は評価対象外とする。
- ② 評価対象とする事象進展シナリオの範囲は、次のとおりとする。
 - a. 火災の発生から重大事故に至り、重大事故により放射性物質が環境に放出されるまでを評価対象とする。
 - b. 火災を起因とする事象進展シナリオを評価対象とする。内部事象が起因となり、その事象が進展して生じる火災は評価対象外とする。
 - c. 火災による単一の事象に起因するシナリオのうち、重大事故の発生を伴うものを評価対象とする。なお、火災による複数の起因事象の同時発生は評価対象外とする。

(3) 評価手順の概要

(2)で設定した評価範囲を踏まえた上で、内部火災リスク評価に関する評価手順案を作成

した。評価手順案の全体フローを図 2.1 に示す。

本全体フローは a.重大事故シナリオの整理、b.火災モデルの作成、c.火災の伝播解析、d.火災リスク評価、e.定量的スクリーニングアウト及び f.火災リスクの詳細分析という 6 つのタスクで構成されており、各タスクの概要は次のとおり。

a. 重大事故シナリオの整理

本タスクでは、重大事故のうち、内部火災により発生し得る評価対象の選定を行う。その後、評価対象として選定した重大事故に対し起因事象の選定を行い、選定した起因事象ごとに重大事故進展シナリオの構築及び重大事故進展シナリオに関連する事故緩和系を整理する。

b. 火災モデルの作成

本タスクでは、再処理施設、MOX 燃料加工施設を火災区域／区画に分割し、火災区画ごとに火災源、延焼の可能性のある機器、消火設備等の配置情報、損傷により内部火災特有の事故シナリオを引き起こす可能性のある回路を調査し火災区域／区画ごとの特性表を整理する。

c. 火災の伝播解析

本タスクでは、上記 b の情報により火災区域/区画内の全ての機器の機能喪失及び火災区画内の個別の可燃性物質の発火を想定して、火災の伝播の可能性及びそれに伴う重大事故への影響を確認し、火災による再処理施設及び MOX 燃料加工施設の重大事故への影響がない火災区域/区画をスクリーンアウトする。

d. 火災リスク評価

本タスクでは、リスク評価モデル（イベントツリー・フォールトツリー）を作成し、内部火災による重大事故について起因事象別に重大事故の発生頻度評価を行う。次に上述の重大事故に寄与する事故シナリオについて放射性物質の放出量評価を行う。さらに、重大事故頻度評価と放射性物質の放出量評価の積を用いて、重大事故の影響の観点から重要な事故シナリオ、事故緩和システムとサポートシステム、ケーブル及び機器を整理する。また、リスク評価モデルを用いて、重要度解析、不確実さ解析及び感度解析を実施する。

e. 定量的スクリーニングアウト

本タスクでは、上記 d のリスク評価結果から下記 f の詳細評価を効率的に実施するため、リスクに影響の小さい起因事象、事故シナリオ、火災区画、設備を定量的にスクリーニングアウトする。

f. 火災リスクの詳細分析

本タスクでは、必要に応じて、火災による影響で誤動作を起こす可能性のある機器に対する回路解析を実施する。また、回路解析以外にリスク評価結果に重要な影響を及ぼす事項があれば、詳細な解析を実施する。なお、詳細分析により新規の事故シナリオが確認されるなど、上記 d で実施したリスク評価結果が大きく変化することが想

定される場合には、詳細分析の結果を踏まえて火災リスク評価を再度実施する。
 なお、本手順の作成に当たっての主な条件を以下に示す。

- ・火災源は、発電炉と共通する火災源だけでなく施設特有の火災源（例えば、再処理施設だと TBP、ドデカン等の化学薬品）を考慮することとし、火災区画の情報を整理する火災区画特性表の中で、施設特有の火災源の情報を整理することとした。
- ・グローブボックスや計装系配管などの静的機器の火災による損傷の可能性を考慮する手順とした。
- ・火災発生頻度の評価は、発電炉のデータを用いる場合は適用可能性を検討する手順とした。
- ・火災区画のスクリーニングアウト基準として、本手順書案では、火災の伝播も踏まえた上で、確実に影響がないと考えられる火災区画のみをスクリーニングアウトすることとした。
- ・詳細解析を実施する場合、リスク評価モデルの規模が増すことが考えられる。このため、詳細解析実施前に、リスク評価の定量結果で影響が少ない基事象や事故シナリオ、起因事象のスクリーニングを実施することとした。ここで、回路解析は、現時点での成熟度を踏まえ、詳細解析の一部として実施することとした。また、定量的な解析を実施する前（上記 b 参照）に、回路の損傷が内部火災特有の事故シナリオを引き起こし、有意なリスクを与えるか否かを定性的に分析することとした。

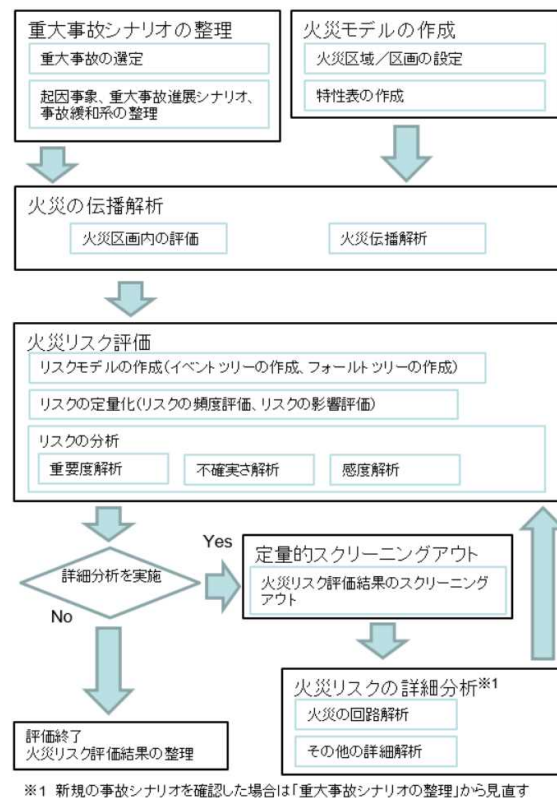


図 2.1 内部火災リスク評価手順書の全体フロー

Fig.2.1 Overall flow for internal fire risk assessment procedure.

(3) 内部火災リスク評価手順案に関する課題

本研究では発電炉を対象とした内部火災 PRA 手順を参考に、MOX 燃料加工施設及び再処理施設に適用する場合の評価範囲を明確にした上でこれらの施設の内部火災リスク評価手順案を作成した。今後、内部火災リスク評価の技術的な進展を踏まえ、必要に応じて手順を改訂していく必要がある。現時点で想定している課題の例は以下のとおり。

① 火災リスク評価に必要な情報の充実

火災源の発生頻度、過酷度因子を決定するための HRR や消火失敗確率等については現状 MOX 燃料加工施設及び再処理施設の情報が不足しており、軽水炉の情報を代替している。今後、当該施設の情報を充実していく必要がある。

② 複数の起因事象が発生した場合のリスク評価

火災により複数の起因事象が発生した場合のリスク評価手法について、環境への影響度及び技術的成熟度に応じて順次整備していく必要がある。

③ スクリーニングアウト基準の設定

今後、リスク評価結果への影響を有意に与えることがなく、かつ効率的な評価が可能となるスクリーニングアウト基準を整備する必要がある。

2.2 リスク評価に向けた重大事故等に関する技術的検討

リスク評価では、事故事象の進展シナリオ及び影響の大きさを把握することが重要であり、これらを解析・評価するための手法の整備又は関係するデータの取得が必要である。ここでは、表 1.1 及び 1.2「目的」示したように、MOX 燃料加工施設及び再処理施設の火災事象（MOX 燃料加工施設における GB 火災、再処理施設における有機溶媒火災）、再処理施設における蒸発乾固事象及び再処理施設の機器の経年変化に関する研究にて取得した科学的・技術的知見について示す。

2.2.1 火災又は爆発

MOX 燃料加工施設及び再処理施設の重大事故における内部火災リスク評価においては、火災影響評価又は火災時の放射性物質の漏えい量評価の不確かさの低減のため、火災解析コードを用いた評価を行うことが重要である。火災解析コードを用いる際には、対象とする火災への適用の妥当性を確認することが重要である。

このため本研究では、解析コードを用いた解析手法の整備を行うため、ベンチマーク解析により、解析モデル及び解析コードの適用範囲並びに特性について確認するとともに、MOX 燃料加工施設の代表的な火災である GB 火災のシナリオ（GB 火災による閉じ込め機能喪失）について、火災影響評価解析を実施し、GB 火災に係る火災事象評価方法に関する留意点・着眼点及び課題点を抽出した。その際、解析に必要なデータ及び知見の一部については JAEA へ委託した GB 火災試験から得た。また、再処理施設で特徴的な有機溶媒火災に関する知見を得るため、JAEA に有機溶媒火災に係る試験を委託し、同事象による閉じ込め機能喪失に関するデータを蓄積した。

(1) GB 火災解析

本解析では、MOX 燃料加工施設の代表的な火災シナリオとして GB 火災を対象とし、ベンチマーク解析により、解析コードの解析モデル及び解析コードの適用範囲並びに特性について確認したほか、仮想的な MOX 燃料加工施設を対象として作成した GB 火災シナリオに対して火災影響評価解析を実施し、GB 火災シナリオを対象とした火災影響解析の留意点・着眼点及び課題を整理した。

なお、ここでは、解析コードとして仏国 IRSN が開発したゾーンモデルコード SYLVIA 及び CFD コード ISIS 並びにそれらを組み合わせた SYLIS を使用し、換気系を含む火災室における火災のシミュレーションを実施した。表 2.2.1.1 に各コードの概要を示す。

SYLVIA は、火災領域を 2 層に分けて簡易解析を行うコードであるが給排気系統のモデル化が可能で、給排気による火災への影響、給排気系統やダクトを通じた熱流動の影響の伝播やばい煙の移行などの解析が可能である。ISIS は、火災室の詳細な三次元解析が可能であるが、給排気系統の模擬は難しい。SYLIS は SYLVIA と ISIS とを組み合わせて解析を

行うコードで、火災室の詳細な解析と、そこで生じた熱流動の給排気系統やダクトを通じた影響について解析が可能である。

解析に先立ち、文献調査から得られた火災試験の情報を基にベンチマーク解析を行い、GB 火災解析に対するこれらのコードの適用の妥当性及び留意点を確認した。具体的には、酸素濃度状態条件下での火災挙動に着目した試験^{2.2.1.5}、給気口高さ及び換気流量に着目した試験^{2.2.1.6、2.2.1.7}に関するベンチマーク解析を実施し、上述したコードについて酸素供給が制限された密閉空間内での火災事象への適用性、給気口の高さ及び換気流量の影響に対する適用性を確認した。

上記のベンチマーク解析で適用性を確認した解析コードを用いて、MOX 燃料加工施設の代表的な火災シナリオを対象とした試解析を実施した。実施した内容を次の①及び②に示す。

① MOX 燃料加工施設の代表的な火災シナリオの検討

代表的な GB 火災シナリオを検討するため、表 2.2.1.2 及び表 2.2.1.3 に示した仮想的な条件を設定した。この条件を踏まえ、GB 内火災及び GB 外火災を想定するとともに、設計基準事故対策及び重大事故対策をベースとしたモデルプラントにおける仮想的 GB 火災のシナリオの例を作成した。作成した GB 火災シナリオを表 2.2.1.4（設計基準事故対策に基づくシナリオ）及び表 2.2.1.5（重大事故対策に基づくシナリオ）に示す。また、モデルプラントの系統図の例を図 2.2.1.1 及び図 2.2.1.2 に示す。

② 代表的な火災シナリオを対象とした試解析

GB 火災の火災影響評価方法を整備するため、代表的な GB 火災のシナリオ（表 2.2.1.4 及び表 2.2.1.5 参照）を対象とした解析コードを用いた試解析を実施し、GB 火災の火災影響評価を実施する上での留意点・着眼点及び課題点をまとめた。

なお、解析に用いたデータ及び知見の一部は(2)で述べる JAEA へ委託した GB 火災試験から得たものを用いた。

表 2.2.1.1 火災解析コードの概要

Table 2.2.1.1 Summary of the fire analysis codes.

コード名	開発元	概要
SYLVIA ^{2.2.1.1,} 2.2.1.2	IRSN	<p>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。ゾーンモデルコードは、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、酸素濃度等を解析しており、解析時間が比較的短い。</p> <p>SYLVIA は、換気系のモデルが充実しており、換気系を詳細にモデル化できる。換気系は、圧力の評価や火災への酸素濃度低下の影響を評価する際に重要である。また、酸素濃度低下による火災源の HRR の減少を考慮する際に、複数の補正方法から選択することができる。</p>
ISIS ^{2.2.1.3}	IRSN	<p>ISIS コードは、IRSN が開発した火災影響解析用の CFD コードであり、火災が発生する部屋等を三次元的に解析可能である。ISIS コードの主な特徴を次に示す。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 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 ・ 液体燃料、気体燃料及び固体燃料の燃焼を取り扱うことが可能 ・ 内部メッシュ作成機能が組み込まれている。また任意の領域について局所的にメッシュを細かく設定可能 ・ 温度、圧力、熱流束評価等が可能
SYLIS ^{2.2.1.4}	IRSN	<p>SYLIS は、ISIS と SYLVIA の連成解析システムであり、火災室を ISIS、換気系を SYLVIA で計算することによってこれらの解析コードの特徴を互いに補完するものである。これにより、火災解析に換気系とその運用が及ぼす影響を考慮できるという特徴がある。</p>

表 2.2.1.2 代表シナリオ設定の条件

Table 2.2.1.2 Conditions for making representative scenarios.

<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"> ● 火災の発生以降の事象進展を対象とし、火災発生過程については取り扱わないこととした。 ● モデルプラント、火災事象の進展及び火災対策は、公開資料 2.2.1.8~2.2.1.12 を参考とした。 ● 本シナリオでは、火災事象の進展を幾つかのフェーズ（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設定）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することとした。 ● 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。なお、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した。
<p>(b) モデルプラントの概要（図 2.2.1.1 及び図 2.2.1.2 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）の組み合わせにより、核燃料物質（粉末状）を施設内に閉じ込める設計を想定する。 ● 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する。 ● 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。 ● 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。 ● 工程室内の GB の近傍に火災源となり得るもの（盤類又は潤滑油を内包する機器）が存在する。GB と可燃物の間には、延焼防止のための遮熱板等は設置されていないものとする。
<p>(c) 設計基準事故対策について</p> <ul style="list-style-type: none"> ● 火災感知器（GB 内火災用）が火災を感知すると GB 消火装置が起動する。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する。これらが完了したのちに、GB 消火装置から消火ガスが放出される。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を閉止する。当該ダンパの閉止後に GB 排風機を停止する。 ● 工程室内の火災感知器が火災を感知すると窒素消火装置が起動する。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。さらに、ダンパ類が閉止する。これらが完了したのちに、消火剤が放出される。
<p>(d) 重大事故対策について</p> <ul style="list-style-type: none"> ● 設計基準を超える火災が発生した場合には、給気設備の送風機、GB 排気設備、工程室排気設備及び建屋排気設備の排風機を停止するとともに、核燃料物質を建屋内に閉じ込めるため、ダンパ類を閉止する。 ● 火災感知器（GB 内火災用）が機能喪失した場合には、火災状況確認用温度計及び可搬型 GB 温度表示端末による GB の温度監視により、GB 内火災の有無を確認する。 ● GB 消火装置が機能喪失した場合には、遠隔消火装置による GB 内火災の消火を実施する。

表 2.2.1.3 全シナリオ共通の前提条件

Table 2.2.1.3 Common prerequisites for all scenarios.

- GB 内又は工程室内において単一の火災が発生し、事象進展が生ずるものとする。
- 本シナリオにおける対策は全て成功するものとする。
- 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、延焼はしないものとする。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ものとする。
- 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）ものとする。
- 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ものとする。
- 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ものとする。

表 2.2.1.4 設計基準事故対策に基づくシナリオの例 (GB 内火災⇒GB 外火災)

Table 2.2.1.4 Example of a scenario based on countermeasure for the design basis accident.

フェーズの移行	NO.	事象進展又は火災対策の内容	事象進展	対策	進展の判断基準	各設備の運転状態					
						GB排気設備 通常運転	GB給気系 運転 ^{注1}	工程室排気設備 通常運転	建屋排気設備 通常運転	給気設備 通常運転	感知・消火設備
フェーズ1: GB内火災	1-1	GB内で火災が発生。	○	-	なし	通常運転	通常運転	通常運転	通常運転	通常運転	-
	1-2	感知器によりGB内の火災を感知し、GB消火装置が起動する。	-	○	GB内温度が感知温度に到達	↓	↓	↓	↓	↓	火災の感知+ GB消火装置起動
	1-3	GB消火装置の起動に連動して、給気設備の送風機、工程室排風機、及び建屋排風機が停止する。また、ダンパ類 (GB給気系のピストンダンパ、自力式吸気弁、窒素循環設備のダクトの延焼防止ダンパ ^{注2} 、工程室の給気ダクトの延焼防止ダンパ及び工程室排気設備の延焼防止ダンパ) が閉止する。	-	○	なし (1-2の直後に実施すると仮定)	↓	停止 (排風機停止、ダンパ閉止)	停止 (排風機停止)	停止 (排風機停止)	停止 (送風機停止、ダンパ閉止)	↓
	1-4	GB消火装置により消火ガスを放出する。消火ガスの放出時は、GB内の過加圧防止のため、GB排風機の運転を継続するとともに、GB排気ダクトの延焼防止ダンパを開放状態に維持する。	-	○	なし (1-3の直後に実施すると仮定)	↓	↓	↓	↓	↓	GB消火装置による消火ガス放出開始
	1-5	消火ガスの放出完了後、GB排気設備の延焼防止ダンパを閉止する。	-	○	消火ガスの規定量を放出完了	延焼防止ダンパ閉止	↓	↓	↓	↓	消火ガスの放出完了
	1-6	GB排風機を停止する。	-	○	なし (1-5の直後に実施すると仮定)	なし	排風機停止	↓	↓	↓	-
フェーズ2: GBの内側パネルの熱分解、閉口部発生	1-7	GB内火災が継続し、GBの内側パネルの温度が上昇する。	○	-	なし (1-6の直後に生じると仮定)	↓	↓	↓	↓	↓	-
	1-8	GBの内側パネルの温度が熱分解温度に達し、当該パネルからの熱分解ガス放出が開始する。	○	-	GBの内側パネルが熱分解温度に到達	↓	↓	↓	↓	↓	-
	1-9	GBの内側パネルの熱分解が継続し、当該パネルに開口部が発生する。	○	-	GBの内側パネルの厚さが0になる。	↓	↓	↓	↓	↓	-
フェーズ3: GBの閉じ込め機能の喪失、GB外火災の発生	1-10	GBの外側パネルに延焼し、当該パネルに開口部が発生する。(GBの閉じ込め機能の喪失、GB外火災の発生)	○	-	なし (1-9の直後に生じると仮定)	↓	↓	↓	↓	↓	-
	1-11	工程室内の感知器により火災を感知し、窒素消火装置が起動する。	-	○	工程室内温度が感知温度に到達	↓	↓	↓	↓	↓	火災の感知+窒素消火装置起動
	1-12	窒素消火装置により消火ガスを放出する。	-	○	なし (1-11の直後に実施すると仮定)	↓	↓	↓	↓	↓	窒素消火装置による消火ガス放出開始
	1-13	消火ガスの放出完了後、GB排気設備、工程室排気設備、建屋排気設備及び給気設備における全てのダンパを閉止する。	-	○	消火ガスの規定量を放出完了	ダンパ閉止	↓	ダンパ閉止	ダンパ閉止	ダンパ閉止	消火ガス放出完了
	1-14	全ての対策完了、核燃料物質を建屋内に閉じ込める。	○	-	なし	閉じ込め	閉じ込め	閉じ込め	閉じ込め	閉じ込め	-

注1: 窒素循環設備の窒素循環ファンは、故障により停止。

注2: GB給気系のピストンダンパ、自力式吸気弁、窒素循環設備のダクトに設置する延焼防止ダンパの閉止により、GB内への給気を防ぐ。

表 2.2.1.5 重大事故対策に基づきシナリオの例 (GB 内火災⇒GB 外火災)

Table 2.2.1.5 Example of a scenario based on countermeasure for the severe accident.

フェーズの移行	NO.	事象進展又は火災対策の内容	事象進展	対策	進展の判断基準	各設備の運転状態					核燃料物質の回収等のための設備
						GB排気設備	GB給気系	工程室排気設備	建屋排気設備	給気設備	
フェーズ1: 地震発生、GB 内火災	3-1	基準地震動を超える地震動による地震の発生直後に、GB内火災が発生。 送排風機を停止するとともに、核燃料物質を建屋内に閉じ込めるため、ダンパ類 (GB給気系のピストンダンパ、自力式吸気弁、窒素循環設備のダクトの延焼防止ダンパ、GB排気設備手動ダンパ、工程室排気設備手動ダンパ、建屋排気設備手動ダンパ及び給気設備手動ダンパ) を閉止する。	○	-	なし	通常運転	通常運転	通常運転	通常運転	-	-
	3-2		-	○	なし (3-1の直後に実施すると仮定)	停止 (排風機停止、ダンパ閉止)	停止 (排風機停止、ダンパ閉止)	停止 (排風機停止、ダンパ閉止)	停止 (排風機停止、ダンパ閉止)	-	-
	3-3	火災状況確認用温度計及び可搬型GB温度表示端末によるGBの温度監視により、GB内火災の発生を確認。	-	○	なし (3-3の時点で火災発生と判断する温度に到達すると仮定)	↓	↓	↓	↓	↓	火災状況確認用温度計及び可搬型GB温度表示端末
	3-4	遠隔消火装置を起動し、GB内への消火剤の放出を開始する。	-	○	なし (3-3の直後に実施すると仮定)	↓	↓	↓	↓	↓	遠隔消火装置による消火剤放出開始
	3-5	遠隔消火装置による消火剤の放出完了。	-	○	なし 放出完了	↓	↓	↓	↓	↓	消火剤放出完了
フェーズ2: GBの内側パネルの熱分解、 開口部発生	3-6	GB内火災が継続し、GBの内側パネルの温度が上昇する。	○	-	なし (3-5の直後に発生すると仮定)	↓	↓	↓	↓	↓	-
	3-7	GBの内側パネルの温度が熱分解温度に達し、当該パネルからの熱分解ガス放出が開始する。	○	-	なし GBの内側パネルの熱分解温度に到達	↓	↓	↓	↓	↓	-
	3-8	GBの内側パネルの熱分解が継続し、当該パネルに開口部が発生する。	○	-	なし GBの内側パネルの厚さが0になる	↓	↓	↓	↓	↓	-
フェーズ3: GBの閉じ込め 機能の喪失、 GB外火災の発生	3-9	GBの外側パネルに延焼し、当該パネルに開口部が発生する。(GBの閉じ込め機能の喪失、GB外火災の発生)	○	-	なし (3-8の直後に発生すると仮定)	↓	↓	↓	↓	↓	-
	3-10	工程室内の感知器により火災を感知し、窒素消火装置が起動する。	-	○	なし 工程室内温度が感知温度に到達	↓	↓	↓	↓	↓	火災の感知 + 窒素消火装置起動
	3-11	窒素消火装置により消火ガスを放出する。	-	○	なし (3-10の直後に実施すると仮定)	↓	↓	↓	↓	↓	窒素消火装置による消火ガス放出開始
フェーズ4: 再燃防止及び 核燃料物質の 回収に係る対 策の実施	3-12	消火ガスの放出完了後、GB排気設備、工程室排気設備、建屋排気設備及び給気設備における全てのダンパを閉止する。	-	○	なし 消火ガスの規定量を放出完了	↓	↓	↓	↓	↓	消火ガス放出完了
	3-13	GB内火災及びGB外火災の消火並びにその確認。	○	-	なし GB内温度及び工程室内温度が消火と判断する温度まで低下	↓	↓	↓	↓	↓	-
	3-14	可搬型集じん機により、工程室内に飛散した核燃料物質を回収する。	-	○	なし (3-13の直後に実施すると仮定)	↓	↓	↓	↓	↓	可搬型集じん機による回収
3-15	施設の閉じ込め機能を回復させるため、可搬型排気フィルタを介した可搬型排風機による管理放出を実施する。	-	○	なし (3-14の直後に実施すると仮定)	↓	↓	↓	↓	↓	↓	可搬型排気フィルタを介した可搬型排風機による管理放出
	3-16	全ての列完了。	○	-	なし	閉じ込め	閉じ込め	閉じ込め	閉じ込め	閉じ込め	-

注1: 窒素循環設備の窒素循環ファンは、地震により停止。

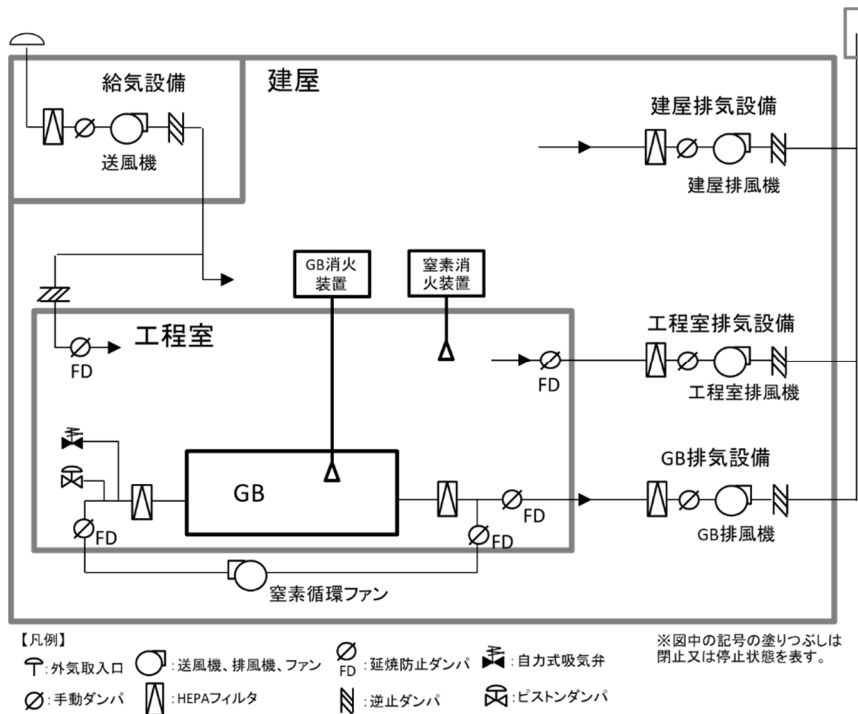


図 2.2.1.1 モデルプラントの系統図の例（設計基準事故対策のみ）

Fig. 2.2.1.1 Example of system diagram of the model plant (only countermeasure for design basis accidents).

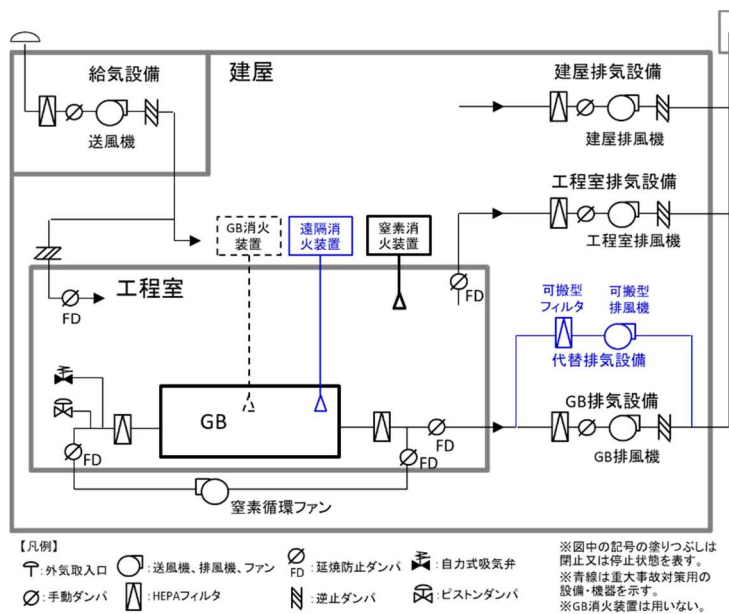


図 2.2.1.2 モデルプラントの系統図の例（重大事故対策を含む。）

Fig. 2.2.1.2 Example of system diagram of the model plant (including countermeasure for severe accidents).

(2) GB 火災評価試験

本試験は、GB 火災における事象進展評価や事故時の閉じ込め評価に必要なデータ等を取得することにより、火災解析評価に関する手法の整備を目的として実施した。図 2.2.1.3 に GB 火災において考慮される事象の例を示す。GB 火災事故時の放射性物質の施設内への閉じ込め機能としては、GB パネル材等の構成材料が担う静的閉じ込め機能と GB や工程室に接続している排気系が担う動的閉じ込め機能に大別できる。GB 構成材料の多くの部分は樹脂製材料から構成されているため、火災時には昇温によって熱分解が生じ、それによって静的閉じ込め機能の喪失が引き起こされる可能性がある。さらに、熱分解によって放出される可燃性ガスの燃焼が、GB 自体の燃焼と GB 構成材料の熱分解を促進する要因となることも考えられる。また、GB 構成材料の燃焼に伴って大量のばい煙が発生し、換気系に設置されている高性能粒子エアフィルタ（以下「HEPA フィルタ」という。）に負荷され、それによって目詰まりと差圧上昇が引き起こされ、HEPA フィルタの破損が生じるおそれがある。GB 火災時には GB 内部に存在する放射性物質がばい煙とともに放出されるため、このような場合には、放射性物質の施設外への放出が生じることになる。これらの観点を踏まえ、本研究では、GB 構成材料の熱分解挙動の把握及び GB パネル材料燃焼特性の 2 つの項目について研究を行うこととした。なお、本節の記載は平成 29 年度～平成 31 年度までに JAEA に委託して実施した GB 火災試験の報告書^{2.2.1.16~2.2.1.18}の内容を取りまとめたものである。

① GB 構成材料の熱分解挙動の把握

GB 構成材料熱分解特性試験においては、GB 構成材料（アクリル、難燃アクリル、ポリカーボネート及びクロロプレンゴム）の熱分解特性データ（a.昇温に伴う重量減少速度、b.熱分解ガス放出速度・組成及び c.熱分解ガスの燃焼性）を取得した。このうち、a 及び b のデータについては、アレニウス型の反応速度式による整理を実施し、ガス成分の放出速度式を導出した。また、c の熱分解ガスの燃焼性に関するデータについては、放出された各ガス成分の燃焼の可否の判断基準に関する試験及び検討を実施した。

a. 昇温に伴う重量減少速度データの取得

昇温に伴う重量減少速度データについては、熱天秤－質量分析装置（TG-DTA-MS: Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis and Mass Spectrometry）を用いて、GB 構成材料を複数の昇温速度条件（5、10、15 及び 20 °C/min）や酸素濃度条件下（窒素雰囲気及び空気雰囲気）で加熱し、熱分解に伴う吸発熱量、重量減少量などの熱的データを採取するとともに、放出される熱分解ガスのマススペクトルデータを取得した。また、マススペクトルデータから熱分解ガス中に含まれる有機成分を同定し、その化学組成を推定するとともに、当該有機成分について文献調査により引火性や燃焼熱に関する情報を収集した。図 2.2.1.4 に窒素雰囲気条件でのアクリルの TG-DTA 測定結果を示す。温度上昇に伴う重量減

少は、3つのステージに区分できることが分かる。表 2.2.1.6 に、試験結果を踏まえて定義した各構成材の反応度ステージの温度範囲を示す。

GB 材料の昇温に伴う重量減少速度 dT_G/dt を記述するアレニウス型方程式として次式を用いた。

$$\frac{dT_G}{dt} = A \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \dots \dots \dots (2.2.1.1)$$

ここで、 T_G は材料の初期重量に対する重量比 (g/g)、 t は時間 (s)、 A は熱分解反応の頻度因子 (1/s)、 E_a は熱分解反応の活性化エネルギー (J/mol)、 R は気体定数 (J/(K・mol))、 T は温度 (K) である。このうち A と E_a については、各 GB 材料について TG-DTA-MS 分析を実施し、その結果に基づき各 GB 材料の熱分解反応を上記 3 つのステージに区分し、各ステージについて固有の A と E_a の値を決定した。これらの反応速度データの具体的な値の例として、窒素雰囲気下でのアクリルの反応速度データを表 2.2.1.7 に示す。これらの A と E_a の値により、各 GB 材料について温度 T を基にして重量減少速度 dT_G/dt を推定できる。なお、窒素雰囲気下での試験では、発生した熱分解ガスと給気ガスが接触しても燃焼反応が生じないため、熱分解反応のみが生じている状態である。

b. 熱分解ガス放出速度・組成

a によって算出した重量減少速度 (g/s) の値は、そのまま熱分解ガス放出速度 (g/s) と見なすことができる。よって、放出される熱分解ガスの組成比 (g/g) が把握できれば、各熱分解ガス成分の放出速度を計算できることになる。

以上を踏まえて、各 GB 材料の熱分解ガス放出速度・組成を分析するために Py-GC-MS 分析試験^(注4)及び環状炉法分析試験^(注5)を実施し、各 GB 構成材料から放出される主な熱分解ガス成分について、その組成比を得た。表 2.2.1.8 に熱分解ガスの定量評価結果の例 (アクリル) を示す。

c. 熱分解ガスの燃焼性

前項より、GB 構成材料の温度変化を入力値として、GB 構成材料から生じる各熱分解ガス成分の放出速度を推定することが可能になった。これらの熱分解ガス成分のほとんどは可燃性であり、酸素と接触することで燃焼する可能性がある。熱分解ガスの燃焼が生じると熱量が発生し、その一部は GB 構成材料に伝達され、材料の温度を更に上昇させる。以上のように、GB 構成材料の温度には、熱分解ガスの燃焼を通して自らに正のフィードバックを与えるという因果関係のサイクルが存在する。

(注4) Py-GC-MS 分析試験：熱分解装置で発生したガスを一旦冷却してトラップし、蓄積した熱分解ガスをガスクロマトグラフィーと質量分析により分析を行う方法

(注5) 環状炉法分析試験：試料を環状炉内で加熱し、発生したガスに対し、目的とする成分に対する定量を行う方法。ここでは、各成分に対する定量方法として、カールフィッシャー法、イオンクロマトグラフィー及びガスクロマトグラフィーの 3 種類の方法のいずれかを使用した。

以上を踏まえ、放出された各ガス成分が燃焼するための判断基準について検討を行った。具体的には、各ガス成分が燃焼に至るための酸素濃度条件を調べるための試験として、(i) 限界酸素濃度測定試験、(ii) 酸素指数測定試験及び(iii) 消炎酸素濃度測定試験の3種類の試験を実施した。ここで、(i) 限界酸素濃度とは、可燃ガス-酸素-不活性ガス(窒素)の三成分系において、いかなる可燃ガス濃度においても燃焼反応が起こらなくなる酸素濃度を指す。(ii) 酸素指数とは、固体試料の継続燃焼が起こらなくなる酸素濃度を指す。(iii) 消炎酸素濃度測定試験は本研究において(ii) 酸素指数測定試験の代替試験として考案した手法で、対象物質の燃焼が継続しない酸素濃度を測定する試験で、その方法は酸素指数測定試験法及び JIS 規格 K7201 1999^{2.2.1.13}を参考に行っている。(ii) 酸素指数測定試験では液体試料及び燃えやすい固体試料(酸素指数 18 未満)に対しては適用することができなかったため、(iii) 消炎酸素濃度測定試験も併せて実施した。図 2.2.1.5 にこれらの試験の試験装置の概要を示す。(ii)と(iii)の試験装置は同じ装置を用いているが、(ii)では装置内で窒素及び酸素の混合ガスを導入させながら試料を鎮火するまで燃焼させ、酸素 100%下での重量減少量に対し重量減少量が 50%となる酸素濃度をサーベイするのに対し、(iii)では窒素及び酸素の混合ガスを導入させながら試料を燃焼させ、酸素濃度を小さくしながら燃焼が継続しなくなる酸素濃度をサーベイする試験である。なお、(i) 限界酸素濃度は、米国商務省国立標準技術研究所(NIST)が開発している火災 CFD 計算コード FDS (Fire Dynamics Simulator)^{2.2.1.14}では気相反応の境界条件の入力として使用されている。また、本試験で調べた酸素濃度の範囲は、アクリルの熱分解ガスの主成分であるメタクリル酸メチルの限界酸素濃度が含まれている。

ここでは(i)~(iii)の試験により、試料が燃焼するための条件を取得したが、これらはそれぞれ異なる指標であるため、これらの試験結果を関連付けるための検討を行った結果、(ii) 試験及び(iii)試験の結果から限界酸素濃度の値を推定できる可能性が示唆された。この結果により、上記試験検討等により各 GB 構成材料について限界酸素濃度を直接測定又は推定し、その燃焼性を評価することが可能になると考えられる。なお、限界酸素濃度についてある加成性が成り立つことについては、例えば Zlochower^{2.2.1.15}らによって実験的な支持が与えられている。

d. GB 構成材料の熱分解挙動試験のまとめ

a、b 及び c で述べたように、GB 構成材料の熱分解特性データを取得できた。本研究で得られたデータや解析モデルは、例えば、GB 内外で発生した火災の熱により GB 構成材料が熱分解する場合の閉じ込め機能喪失までの時間の推定や、熱分解により生じた可燃性熱分解ガスの発火又は鎮火の可能性の推定に活用でき、GB 火災事故の進展シナリオの検討や定量的評価に資することができる。

表 2.2.1.6 各試験材料の反応度ステージの定義の例

Table 2.2.1.6 Example of definition for reaction stages of each test material.

試験材料	温度範囲1	温度範囲2	温度範囲3
アクリル	150 °C～240 °C	240°C～310°C	310°C～440°C
難燃アクリル	150 °C～250°C	250°C～340°C	340°C～480°C
ポリカーボネート	440°C～500°C	500°C～600°C	600°C～650°C
クロロプレングム	120 °C～320 °C	320°C～520°C	520°C～710°C

出典) JAEA (2019) ^{2.2.1.17} 表 2.2

表 2.2.1.7 窒素雰囲気における反応速度データの例 (アクリル)

Table 2.2.1.7 Example of reaction rate data in nitrogen atmosphere (for acrylic).

反応ステージ	活性化エネルギー E_a (kJ/mol)	頻度因子A (1/s)
150°C～240°C	62 ±20	$10^3 \sim 10^5$
240°C～310°C	250±17	$10^{20} \sim 10^{21}$
310°C～440°C	265 ±10	$10^{18} \sim 10^{19}$

出典) JAEA (2018) ^{2.2.1.16} 表 3.3 の一部を修正

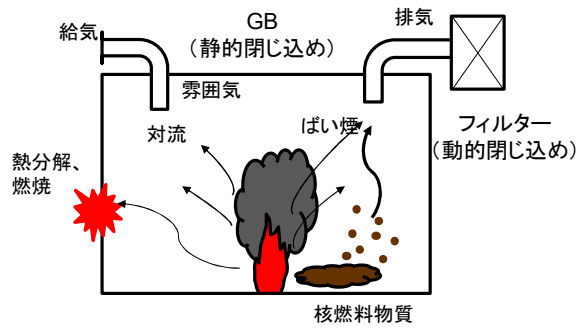
表 2.2.1.8 熱分解ガスの定量評価結果の例 (アクリル)

Table 2.2.1.8 Example of quantitative evaluation results of pyrolysis gas (for acrylic).

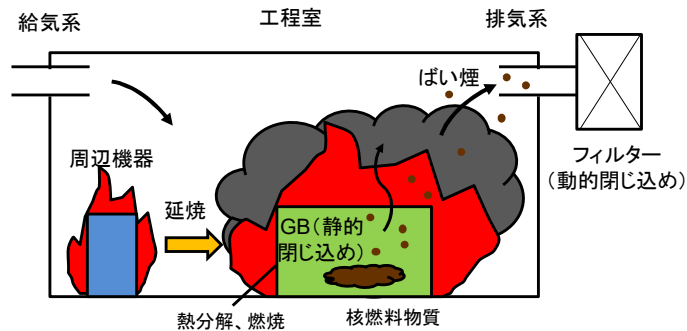
熱分解ガス成分		反応ステージ			合計
		150°C～ 240°C	240°C～ 310°C	310°C～ 440°C	
可燃性ガス	メタクリル 酸メチル	6.7	22.0	69.0	97.7
	トルエン	0.001	0.00004	0.001	0.002
	一酸化炭素	-	-	0.01	0.01
不燃性ガス	水、二酸化炭 素	0.003	0.002	0.1	0.1
固体残渣		-	-	-	3
合 計		-	-	-	100.8

- 定量限界以下

出典) JAEA (2019) ^{2.2.1.17} 表 2.6 の体裁を修正



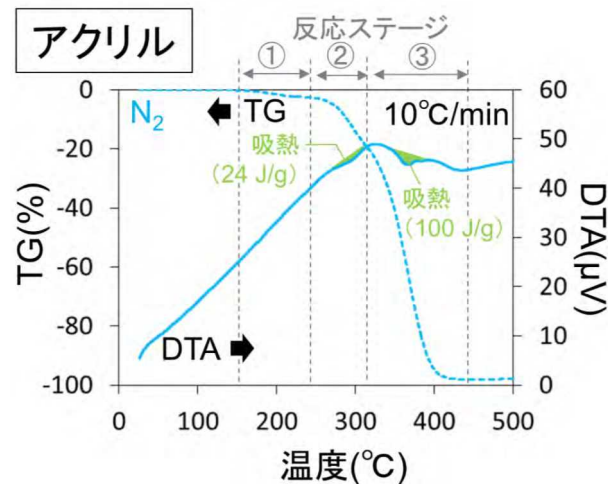
(a) GB 内火災のイメージ



(b) GB 外火災のイメージ

図 2.2.1.3 GB 火災において考慮される事象の例

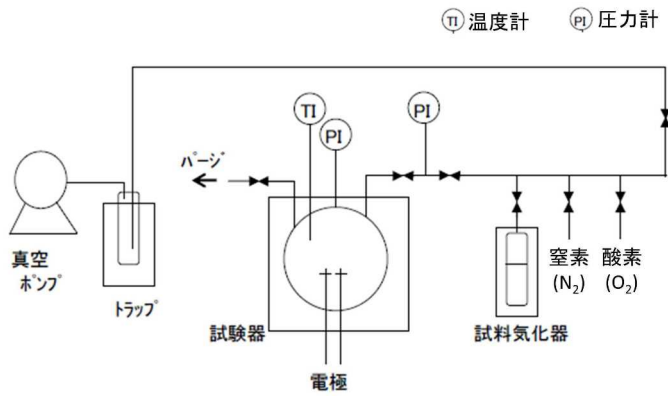
Fig. 2.2.1.3 Examples of events to be considered in GB fire accident.



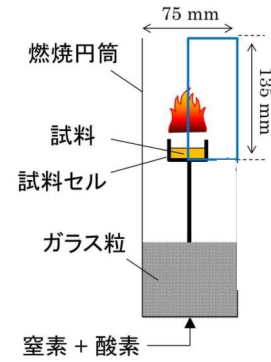
出典) JAEA (2018) 2.2.1.16

図 2.2.1.4 TG-DTA 測定結果の例 (アクリル (窒素雰囲気条件))

Fig. 2.2.1.4 Example of measure result of TG-DTA (for acrylic in nitrogen atmosphere).



限界酸素濃度測定試験



酸素指数測定試験及び
消炎酸素濃度測定試験

出典) JAEA (2020) 2.2.1.18

図 2.2.1.5 限界酸素濃度測定試験、酸素指数測定試験及びの試験装置概略図

Fig. 2.2.1.5 Summary figure of experiment apparatus for measurement for limiting oxygen concentration (left), oxygen index (right) and oxygen concentration at extinction (right).

② GB パネル材料燃焼特性評価試験

本 GB パネル材料燃焼特性試験では、実機サイズの高風量仕様 HEPA フィルタの装着が可能な大型の「火災時フィルタ目詰り挙動観察装置 (Apparatus for Evaluating Clogging Effect of HEPA Filter on Confinement Capability Under Fire Accident)」(以下「ACUA」という。図 2.2.1.6 及び図 2.2.1.7 参照。)により試験を実施した。なお、HEPA フィルタの仕様を表 2.2.1.9 に示す。試験では燃焼セルへの給気条件や燃焼面積をパラメータとして、GB パネル材 (アクリル (以下「PMMA」という。)、ポリカーボネート (以下「PC」という。)) 及び難燃 PMMA) の燃焼に伴う重量減少速度 m_b 、放熱速度 H_{RR} 、ばい煙放出速度 m_{smoke} 、ばい煙化率等の燃焼特性データを取得・整理した。また、GB パネル材の燃焼に伴い放出されるばい煙の負荷による HEPA フィルタの目詰まり挙動を観察した。なお、実際の GB では、生体遮蔽であるが可燃性である PMMA の外側を PC 等の難燃材で覆うことにより、耐火性を向上させることが考えられるため、PMMA と PC の GB パネル材単独系の燃焼特性データの取得に加えて、これらのパネルを横向きに上下に配置、又は、正対して縦置き (鉛直) に配置して燃焼させる複合系の燃焼特性データを取得し、単独系と複合系試験結果の比較を行うとことよって、PMMA の燃焼による PC への延焼の可能性を検討した。表 2.2.1.10 に本試験全体の概要を示す。

a. GB パネル材単独系燃焼特性試験

GB パネル材 (PMMA 又は PC 単独系) の燃焼特性データを取得・整理した。これらの燃焼特性は、供給される給気流量 (F) /燃焼面積 (S) 比が律速となる領域と燃焼面積 (S) のみが律速になる領域により異なるが、確認試験の結果、本試験での燃焼条件は、表面積律速段階であることが示唆されたことから、ここでは燃焼面積 (S) が律速となる (F/S 比に依存しない) 領域での試験を実施した。

火災解析では、発生する燃焼ガスや熱エネルギーの放出速度が重要なソースタームとなる。これらを決定するためには、重量減少速度 (m_b) が必要不可欠となる。PMMA 燃焼について、 m_b を S (=燃焼面積) の関数とした簡易的な評価式を得た。

$$m_b = 0.0152 \cdot S \cdots \cdots (2.2.1.2)$$

また、 $H_{RR,av}$ (=全面燃焼時間での時間平均で評価した発熱速度 (H_{RR})) についても、 m_b と $H_{RR,av}$ の関係を整理した (図 2.2.1.8、図 2.2.1.9 参照)。図 2.2.1.8 から分かるように $H_{RR,av}$ は S と線形の関係があり、 $H_{RR,av}$ は表面積律速で近似できることが示唆される。また、図 2.2.1.9 から $H_{RR,av}$ は m_b と線形の関係があることが示唆される。

本試験における換気条件 (F/S) の範囲内ではあるが、これらの簡易評価式を用いることで、 m_b 及び $H_{RR,av}$ を S から直接計算し評価できることになる。この手法は、解析コード等での熱流動解析のための入力項の評価・設定に対して活用できる。

PMMA 燃焼と PC 燃焼で発生したばい煙の粒径分布を比較した結果、同じ S 及び F_v (=燃焼セルへの体積基準の給気流量) 条件の下では、PC の燃焼に伴って発生するばい煙の最

頻度径は PMMA の場合より大きく、また、粒子個数濃度は高いことが分かった (図 2.2.1.10 参照)。

ここでは見かけのばい煙率をを評価した。見かけのばい煙化率は、燃焼セルの出口において捕集したばい煙量から評価した燃焼物の燃焼重量当たりのばい煙放出量である。見かけのばい煙化率 (G_D) ($=$ ばい煙捕集量/燃焼物試料の重量減少量 $\times 100$) と燃焼セルに対する換気回数の逆数すなわち燃焼セルを 1 回換気するのに要する時間 (V ($=$ 燃焼セル体積)/ F_v) との間には、 S によらず負の指数関数的な相関があり、その傾きは PMMA と PC でほぼ同じ値となることが分かった (図 2.2.1.11 参照)。これは、PC から発生するばい煙の沈着挙動が、PMMA と同様に取り扱える可能性があることを示唆しているものと考えられる。

また、PMMA と PC 燃焼における HEPA フィルタの単位面積当たりのばい煙負荷量 M と HEPA フィルタの差圧 ΔP の関係を得た (図 2.2.1.12 参照)。いずれの試験結果においても、 ΔP は M の増加に伴い増加した。PMMA と PC 燃焼で得られた M - ΔP 曲線を比べると、PMMA の方が PC よりも同じ M に対する ΔP が大きい結果となった。

さらに、縦置きした PMMA 又は PC に対して、燃焼物の高さ方向の燃焼の広がり方及び融解の進行 (開口部の形成等) を観察した。板の底辺部から着火した場合には、PMMA は最終的に全面で燃焼 (図 2.2.1.13 参照) したのに対して、PC は部分的な燃焼となった (図 2.2.1.14 参照)。また、PMMA、PC 共に板の上部に、熱分解ガスによる二次燃焼に起因する可能性がある不連続な延焼が観察された (図 2.2.1.15 参照)。

b. GB パネル材複合系燃焼特性試験

複数種類の GB パネル材 (PMMA、PC、難燃 PMMA) 複合系の燃焼試験を行い、燃焼時の影響評価上重要なソースタームデータを取得・整理した。試験では PMMA と PC を組み合わせ合わせた複合系の燃焼特性データを取得し、PMMA の燃焼による PC への延焼の可能性を検討した。

PMMA と PC を横置きかつ上下に設置し上部の PMMA に着火した試験では、燃焼による PMMA と PC の合計の重量の減少量が、上層の PMMA の重量相当となった時刻から、徐々に下層の PC の延焼が生じ、最終的には、初期重量に対して約 80% の PC が焼失することが分かった。

また、PMMA と PC を縦置きに正対させ PMMA に着火し PC への影響を観察する試験でも、PMMA と PC 間の板間距離が短い場合 (試験では 5cm) には PC に延焼することが分かった。なお、板間距離が 10cm から 40cm までの場合には、燃焼している PMMA からの入熱により、PMMA に対面した側の表面において気泡の発生や融解が確認された。このように、自己消炎性を有し難燃性材料として認識されている PC についても、条件によっては延焼又は形状の変形を生じる可能性があることが分かった。

PMMA と PC を横置きかつ上下に設置し上部の PMMA に着火する試験について、PMMA と PC が定常的に同時燃焼した場合のばい煙化率やばい煙の負荷による HEPA フィルタの

目詰まりに対する影響を観察するため、粒状の PMMA と PC を混合させた燃焼物（以下「粒状 PMMA/PC」という。）を用いた燃焼試験を行った。試験の結果、粒状 PMMA/PC の燃焼に伴うばい煙化率は 3.9% となり、同じ換気・燃焼面積条件下で実施した PMMA 及び PC 単独の燃焼に伴う試験結果（図 2.2.1.11 参照）（PMMA：1.4%、PC：9.1%）の中間の値となった。

一方、HEPA フィルタの単位面積当たりのばい煙負荷量 M と HEPA フィルタの差圧 ΔP との関係については、粒状 PMMA/PC の燃焼時の方が、PMMA 及び PC 単独並びに粒状 PC 単独の燃焼時に比べて、 ΔP が早期に上昇することを確認した。HEPA フィルタへのばい煙の負荷量 M 当たりの積算体積が HEPA フィルタの目詰まり挙動に影響する可能性を考え、それぞれの試験で得られたばい煙の粒径分布からこの値を算出し比較した結果、 M 当たりの積算体積の大小関係と ΔP の上昇割合の大小関係が一致することを見出した。

c. GB パネル材料燃焼特性評価試験の結果の活用

a 及び b で述べたように、GB パネル材料燃焼特性データを取得できた。本研究で得られたデータや解析モデルは、例えば、GB パネルが延焼により燃焼を始めた場合、その燃焼の継続時間、発生するばい煙の量及び HEPA フィルタの差圧の上昇による破損までの時間等の推定に活用できる。また、GB パネル間の複合燃焼試験のデータは、GB パネルへの延焼の挙動の検討の参考として活用できる。このような発生した火災の熱により GB 構成材料の熱分解する場合の閉じ込め機能喪失までの時間の推定や、熱分解により生じた可燃性熱分解ガスの発火又は鎮火の可能性の推定に活用でき、GB 火災事故の進展シナリオの検討や定量的評価に資することができる。

表 2.2.1.9 試験に用いた HEPA フィルタの仕様

Table 2.2.1.9 Specifications of the HEPA filter used in the experiments.

No.	種類	フィルタ型式*	開口部寸法 (mm)	ろ過面積 (m ²)	定格流量 (m ³ /min)
1	フルサイズ	1LEU-180-MFA	580×580	30	50
2	ハーフサイズ (参考)	1LEU-180-JLL1	292×580	16.5	25

出典) JAEA (2018) ^{2.2.1.16} 表 2.2 一部修正

*日本ケンブリッジフィルタ製。

表 2.2.1.10 GB パネル材料燃焼特性試験の研究展開の概要

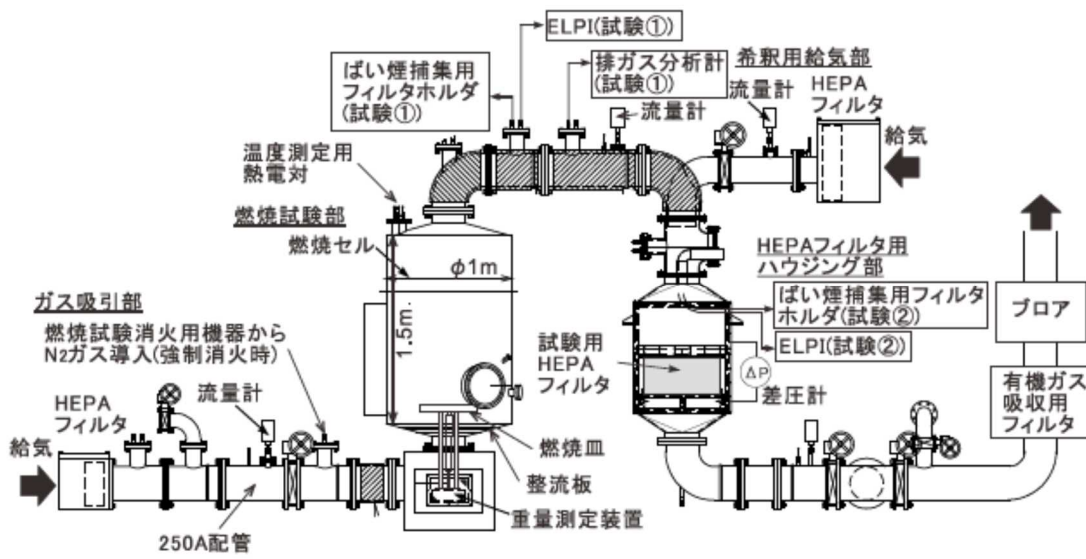
Table 2.2.1.10 Summary of research development for combustion characteristic experiment of GB panel material.

パネル材の設置条件		燃焼特性データ (※1) 取得	HEPA フィルタ閉 じ込め評価	PC への延焼性評 価
単 独 系	横置き (PMMA、難燃 PMMA、PC)	<ul style="list-style-type: none"> 基礎的な燃焼特性データ取得 (S、F ※2 の影響) ヒーター加熱により自己消炎性を有する PC が燃焼することを確認 	ばい煙負荷重量と差圧の関係を観察、燃焼物の違いの影響を観察	—
	縦置き (PMMA、PC)	燃え広がり方、温度分布、融解状況の観察	—	—
複 合 系	横置き <ul style="list-style-type: none"> (PMMA (上層)/PC (下層)) (PMMA (上層)/難燃 PMMA (下層)) 	燃焼特性データ取得 (PMMA 単独燃焼から PC との複合燃焼への遷移状況の考察)	ばい煙負荷重量と差圧の関係を観察、単独系横置き試験結果との比較検討	単独系での燃焼特性データとの違いより PC への延焼を観察
	縦置き (PMMA と PC を正対)	PC の燃え広がり方 (延焼した場合)、温度分布、融解状況の観察	—	板間距離をパラメータとし、延焼が生じる、また、影響が無視し得る離隔距離を評価

出典) JAEA (2020) 2.2.1.18 表 5.1 体裁を一部修正

※1: 燃焼特性データ: 燃焼速度 (重量減少速度 (m_b))、放熱速度 (H_{RR})、ばい煙発生挙動 (ばい煙発生速度 (m_{smoke}))、ばい煙化率、粒子径分布)

※2: S: 試料の燃焼面積、F: 燃焼セルへの質量基準の給気流量 (標準状態を仮定して体積基準の給気流量から換算)



出典) JAEA (2020) 2.2.1.18

図 2.2.1.6 ACUA の概略図

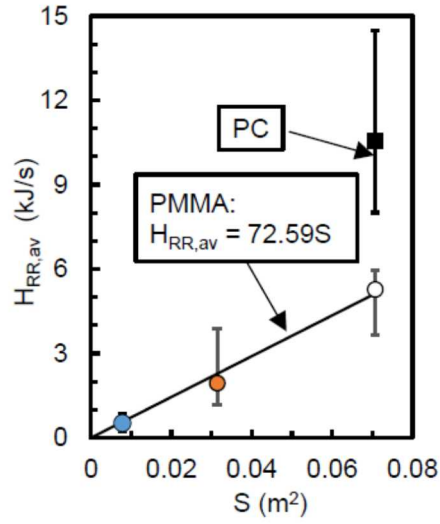
Fig. 2.2.1.6 Schematic of ACUA.



出典) JAEA (2020) 2.2.1.18

図 2.2.1.7 ACUA の外観図

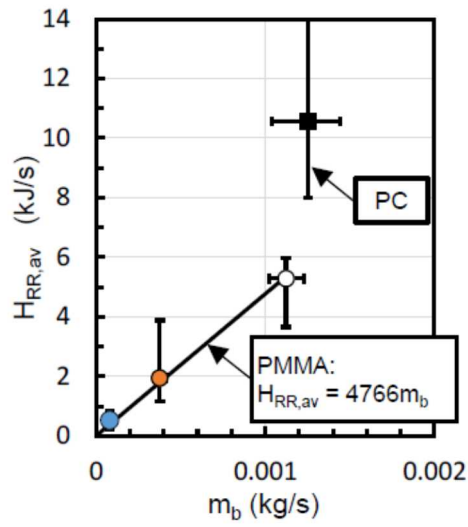
Fig. 2.2.1.7 External view of ACUA.



出典) JAEA (2020) 2.2.1.18

図 2.2.1.8 時間平均の発熱速度 $H_{RR,av}$ に及ぼす燃焼面積 S の影響

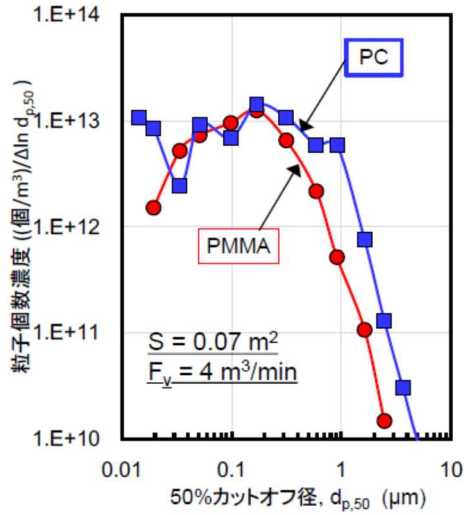
Fig. 2.2.1.8 Influences of S on $H_{RR,av}$.



出典) JAEA (2020) 2.2.1.18

図 2.2.1.9 時間平均の発熱速度 $H_{RR,av}$ に及ぼす重量減少速度 m_b の影響

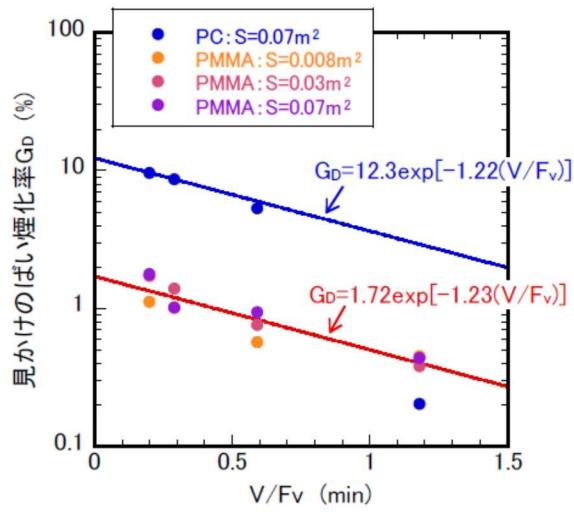
Fig. 2.2.1.9 Influences of m_b on $H_{RR,av}$.



出典) JAEA (2019) 2.2.2.17

図 2.2.1.10 PMMA 燃焼と PC 燃焼で放出されたばい煙の粒径分布の例

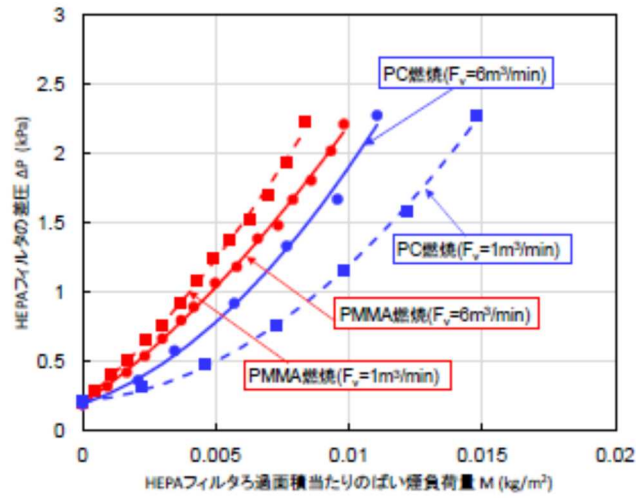
Fig. 2.2.1.10 Example of particle size distribution of soot emitted by PMMA combustion and PC combustion.



出典) JAEA (2019) 2.2.2.17

図 2.2.1.11 見かけのばい煙率 (G_D) に及ぼす燃焼セル 1 回換気に要する時間 (V/Fv) の影響

Fig. 2.2.1.11 Influences of V/Fv on G_D soot generation fraction G_D .



出典) JAEA (2019) 2.2.1.17

図 2.2.1.12 HEPA フィルタの単位面積当たりのばい煙負荷量と HEPA フィルタの差圧の関係の例

Fig. 2.2.1.12 Example of relationship between soot load per unit area of HEPA filter and differential pressure of HEPA filter.



図 2.2.1.13 火炎の様子 (PMMA パネル)

Fig. 2.2.1.13 Example of flame behavior (PMMA panel).



出典) JAEA (2020) 2.2.1.18

図 2.2.1.14 自然鎮火後の様子 (PC パネル)

Fig. 2.2.1.14 Example of status after natural fire extinguishing (PC panel).



図 2.2.1.15 火炎の様子 (PC パネル)

Fig. 2.2.1.15 Example of combustion behavior (panel).

(3) 有機溶媒火災

再処理施設で使用される有機溶媒（30%リン酸トリブチル（以下「TBP」という。）/70%ドデカン）の火災時には、ばい煙等が放出され、これらの負荷により HEPA フィルタの差圧の上昇が引き起こされる可能性がある。差圧上昇によって HEPA フィルタが損傷すると放射性物質に対する除染係数が低下し、公衆に対する影響の増大が引き起こされる可能性がある。したがって、火災事故時の安全性を評価するためには、HEPA フィルタへのばい煙などの負荷による差圧上昇挙動を把握することが重要である。なお、本節の記載は平成 29 年度に JAEA に委託して実施した有機溶媒火災試験の報告書^{2.2.1.16}の内容をまとめたものである。

① ドデカン燃焼下での HEPA フィルタへの TBP ミスト負荷試験

有機溶媒の燃焼後期には、HEPA フィルタの差圧の急激な上昇が引き起こされることを確認している^{2.2.1.19}。この原因として、有機溶媒の燃焼においては、燃焼溶媒から放出された TBP が一旦ガス化するが HEPA に到達する段階でミスト化し、ばい煙とともに HEPA フィルタに負荷されることで、HEPA フィルタのろ過面の閉塞-差圧上昇が生じるためと考えられる。このような現象を模擬するため、すなわち、ドデカン燃焼によるばい煙と TBP ミストを HEPA フィルタに連続的かつ同時に負荷させるため、ドデカンを単独で燃焼させながら同時に HEPA フィルタへの TBP ミスト負荷を行う試験を行った。

図 2.2.1.16 に試験結果を示す。30%TBP/ドデカン燃焼の場合（赤色）には、浮遊粒子（ばい煙と TBP ミスト等からなる。）負荷重量が $7 \times 10^{-3} \text{ kg/m}^2$ 付近から HEPA フィルタの差圧が急激に増加した。ドデカン燃焼 50 分以降 TBP 負荷条件（緑色）でも、鎮火直前において若干の差圧上昇の割合の増加が観測された。ドデカン単独燃焼（橙色）では、多量のばい煙の負荷（約 $9 \times 10^{-3} \text{ kg/m}^2$ 以上）により、急激な差圧上昇が生じた。ドデカン燃焼同時 TBP 負荷条件（青色）では、鎮火まで（負荷重量が約 $5 \times 10^{-3} \text{ kg/m}^2$ まで）に急激な差圧上昇は見られなかった。また、この浮遊粒子負荷重量よりも負荷重量が少ない領域（以下「燃焼初期から中期段階」という。）では、ドデカン単独燃焼を含め、各試験間での HEPA フィルタの差圧に大きな相違は観察されなかった。30%TBP/ドデカン燃焼の場合（赤色）とドデカン単独燃焼の場合（橙色）とでは、急激な差圧上昇が生じる浮遊粒子負荷重量が異なるが、それは、TBP ミストとばい煙とでは、HEPA フィルタろ過面の閉塞効果に対する影響が異なるためと推察される。

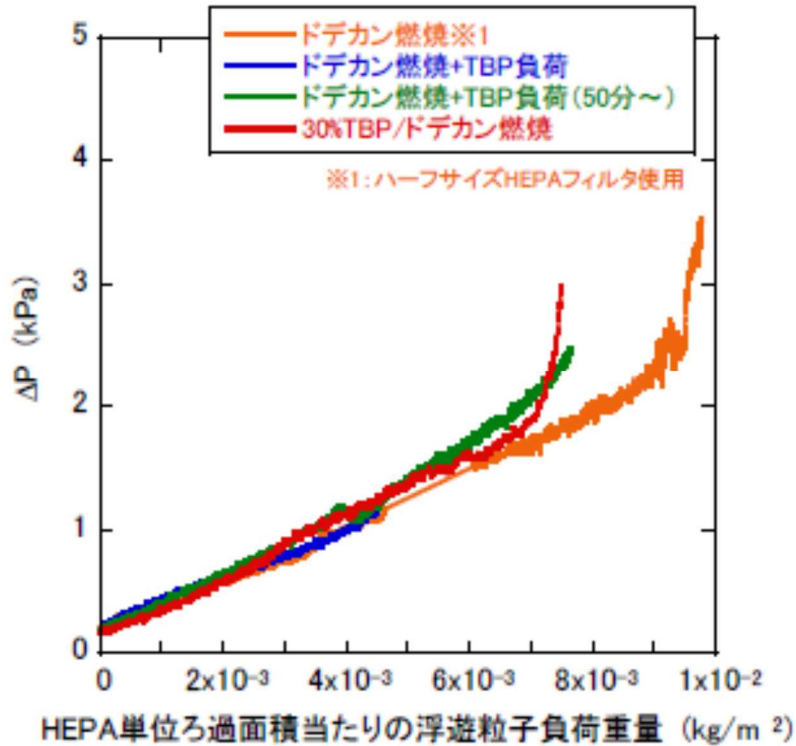
各試験において経時的に捕集された浮遊粒子重量をばい煙重量と TBP ミスト重量とに分離し、差圧上昇に対する TBP ミスト単独の影響を調べたところ、浮遊粒子重量が少ない領域では TBP ミスト重量が増加しても HEPA フィルタの差圧はほぼ一定であるが、浮遊粒子重量が増加し実質的なろ過面積が減少するに伴い、TBP ミスト負荷の影響が増大することが確認できた。すなわち、ばい煙と TBP ミストで構成される浮遊粒子の負荷によりろ過

面積が減少し、僅かの浮遊粒子の負荷の差圧への影響が大きくなっている状態で、更に TBP ミストの影響が加わることにより急激な差圧上昇が生じるものと考えられる。

② 有機溶媒火災における HEPA フィルタの差圧上昇試験結果の活用

本研究により、浮遊粒子負荷重量と HEPA フィルタの差圧上昇の関係が示された。

なお、有機溶媒火災時の浮遊粒子の発生速度と HEPA フィルタへの負荷割合が分かれば、有機溶媒火災発生から目詰まりによる HEPA フィルタ損傷までの時間の予想に図 2.2.1.16 を活用することができるものとする。



出典) JAEA (2018) 2.2.1.16

注) ドデカン燃焼: ドデカン単独での燃焼

なお、この試験のハーフサイズの HEPA フィルタを使用している。

ドデカン燃焼+TBP 負荷: ドデカンを単独で燃焼させるとともに同時に TBP を負荷

ドデカン燃焼+TBP 負荷 (50 分～): ドデカンを単独で燃焼させて 50 分後から TBP を負荷

30%TBP/ドデカン燃焼: 30%TBP とドデカンの同時燃焼

図 2.2.1.16 HEPA フィルタ単位ろ過面積当たりに負荷した浮遊粒子負荷重量と HEPA フィルタ差圧の関係

Fig. 2.2.1.16 Example of relationship between load weight of suspended particles loaded per unit filtration area of HEPA filter and differential pressure of HEPA filter.

2.2.2 蒸発乾固事象

再処理施設において最大の放射能インベントリーとなるものは、高レベル濃縮廃液貯槽（日本原燃㈱の再処理施設の場合、貯槽容量は1基当たり120m³）^{2.1.2.3}である。高レベル濃縮廃液は、核分裂生成物の崩壊熱を有するため常時冷却する必要がある。この冷却機能が喪失した場合には、高レベル濃縮廃液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、最終的に溶質が乾燥・固化に至る可能性がある。この一連の現象を蒸発乾固事象といい、再処理施設の重大事故の一つに挙げられている^{2.2.2.1}。

図2.2.2.1^(注6)に示すとおり、蒸発乾固事象は、事象進展段階として、「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」に分類され、各々の段階に応じて、環境条件（温度、硝酸濃度、蒸気・ガス組成等）やそれらによる放射性物質の移行挙動が大きく変化する^{1.1.6}。図2.2.2.2に示すとおり、高レベル濃縮廃液では、沸騰晩期以降でルテニウム（Ru）が揮発し、飛まつ同伴によりエアロゾルとして気相に移行する他の元素よりも高い割合で気相に移行する^{1.1.6}。揮発した気体状Ruの挙動は、エアロゾルとして移行した他の元素の挙動と全く異なる。

そのため、蒸発乾固事象を影響評価するに当たり、Ruの移行挙動を把握する必要があり、Ruの移行挙動評価のためには「高レベル濃縮廃液からのRuの気相への移行量」及び「揮発した気体状Ruの除去率」の評価が重要である。

そこで、高レベル濃縮廃液を対象に、事象進展に応じて変化する環境条件に留意しつつ、「沸騰初期段階」から「乾固段階」までにおけるRu等元素の移行挙動に係る試験データを取得してRu等元素の移行挙動を定量的に明らかにすることを目的とする試験をJAEAへの委託により、平成29年度から平成31年度に実施した^{2.2.2.2-2.2.2.4}。なお、表2.2.2.1は、これまでに取得した試験データ等を踏まえ、Ruの気相への移行機構、回収反応等に着目し、蒸発乾固事象進展段階シナリオに応じた放射性物質移行挙動整理及びデータの取得状況を取りまとめたものである。

上記試験により以下(1)から(3)に示す移行挙動や揮発抑制効果を把握することとした。

- (1) 沸騰初期段階における高レベル濃縮廃液（模擬廃液）中の亜硝酸のRu揮発抑制効果（表2.2.2.1に示すb）
- (2) 沸騰晩期段階における移行経路中における気体状Ruの移行挙動（表2.2.2.1に示すd、e、h、i、j、k）
- (3) 高レベル濃縮廃液（模擬廃液）への注水時における放射性物質（Ru、Cs及びその他のFP物質）の移行挙動

本報告では、上述のJAEAへの委託で取りまとめられた成果（委託報告書内での考察も含む。）の概要を以下(1)から(3)に示す。

^(注6) 図2.2.2.1の「乾固段階」は「乾固後の温度上昇段階」を含む。

(1) 沸騰初期における高レベル濃縮廃液（模擬廃液）中の亜硝酸の Ru 揮発抑制効果

放射性廃液では、放射線分解によって廃液中に亜硝酸が生成される。沸騰初期段階において廃液中に存在する亜硝酸により、揮発による Ru の気相への移行が抑制される可能性が示唆されている^{1.1.6}。本研究では、高レベル濃縮廃液（模擬廃液）に対して添加する亜硝酸濃度等をパラメータとして揮発による Ru の気相への移行挙動を把握するための試験を実施した。本試験装置の概要図を図 2.2.2.3 に、試験結果の例を図 2.2.2.4 に示す。

図 2.2.2.4 は、沸騰初期段階で想定される蒸気流速 1.3cm/s ^{1.1.6}における模擬廃液中の亜硝酸濃度をパラメータとした沸騰時における Ru 及び Cs（沸騰初期段階における難揮発性元素の代表として選出）の移行割合を示す。図 2.2.2.4 において、フィルタへの移行割合はエアロゾルとしての移行割合を、また、回収液中の移行割合はフィルタを通過した揮発性物質の移行割合を示す。亜硝酸濃度の増加に伴い回収液に移行する Ru が低下し、亜硝酸濃度 0.04mol/L を境としてそれより亜硝酸濃度が低ければ回収液中に Ru が検出され、それ以上では検出されなかった。一方、Cs についてはいずれの亜硝酸濃度においても回収液中においてはほとんど検出されなかった。これにより、廃液中の亜硝酸濃度と Ru 揮発抑制効果の関連性を定量的に確認することができた。

(2) 沸騰晩期段階における移行経路中における気体状 Ru の移行挙動

高レベル濃縮廃液が沸騰し、蒸発乾固に至るまでに生成される気体状 Ru は、四酸化ルテニウム (RuO_4) であると想定されている^{2.2.2.5}。 RuO_4 は環境条件（蒸気・ガス組成等）に応じて、(i) 熱分解せずそのまま気体状で移行、(ii) 熱分解によりエアロゾル状の RuO_2 へ変化し気相中を移行、(iii) 固体状の RuO_2 として経路表面へ沈着及び (iv) 硝酸含有水蒸気の凝縮に伴う凝縮液へ吸収されるという 4 種類の挙動を示すことが確認されている^{1.1.6, 2.2.2.6}。本研究では、 RuO_4 に対して、硝酸塩の分解によって生じる NO_2 及び NO を含む様々な環境条件における化学的・物理的変化挙動を定量的に把握するための試験を実施した。

① RuO_4 の熱分解による Ru エアロゾル生成挙動（前述の (i) 及び (ii) に係る試験）

RuO_4 、水蒸気及び空気を反応管内ガス流速が一定となるように供給し、生成した Ru エアロゾルを反応管後段に設置したフィルタで回収する試験装置を用い、温度及び水蒸気量（凝縮が生じない条件に調節）をパラメータとして、Ru エアロゾル生成試験を実施した。本試験装置の概要図を図 2.2.2.5 に、試験結果の例を図 2.2.2.6 に示す。

図 2.2.2.6 は、Ru に対する水蒸気当量をパラメータとした、フィルタでの Ru 回収率（すなわち Ru エアロゾル生成率）を示すものであり、本試験の温度と水蒸気量の範囲内では、温度及び水蒸気量の上昇に伴い、Ru エアロゾル生成率が増加することが分かる。

② 気相中における RuO_4 の化学形変化挙動（前述の (i) 及び (iii) に係る試験）

RuO_4 、硝酸蒸気を含んだ水蒸気（以下「硝酸含有水蒸気」という。）、 NO_2 及び NO を試験容器に密封した上で、蒸気凝縮が生じない温度条件下において、温度及び気相成分が気相中の RuO_4 の化学形変化挙動に及ぼす影響を調べる試験を実施した。気相成分は、

蒸発乾固の過程において、Ru の発生速度が最大となる Ru 濃度及び蒸気組成比 $(\text{Ru}/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O})^{2.2.2.6}$ 並びに図 2.2.2.7 に示す模擬廃液の加熱試験を実施して取得した Ru の発生速度が最大となる温度領域の NO_2 及び NO 組成比 $(\text{Ru}/\text{NO}_2/\text{NO})$ を考慮して設定した。本試験装置の概要図を図 2.2.2.8 に、試験開始時の RuO_4 の吸光度を 1 とした RuO_4 残存率経時変化の例を図 2.2.2.9 及び図 2.2.2.10 に示す。

また、各々の試験条件について、一次反応及び零次反応を仮定して RuO_4 分解反応速度定数を評価した結果を表 2.2.2.2 に示す。

図 2.2.2.9 は、 $\text{Ru}/\text{H}_2\text{O}$ のモル比を 1/500 程度、気相部温度を約 120°C に設定し、 HNO_3 の Ru に対する化学当量をパラメータとした場合の試験結果であり、図 2.2.2.10 は、 $\text{Ru}/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ のモル比を 1/0.1/500 程度に、気相部温度を約 120°C に設定し、 NO_2 の Ru に対する化学当量をパラメータとした場合の試験結果である。両者とも Ru に対する HNO_3 又は NO_2 の化学当量が増加するほど RuO_4 の分解速度が低下している。

図 2.2.2.9、図 2.2.2.10 及び表 2.2.2.2 より、本試験条件では硝酸蒸気、 NO_2 及び NO の全てに RuO_4 を気相中で安定化させる効果が認められた。反応速度定数への影響が大きいパラメータは、 HNO_3 当量、次いで NO_2 当量及び NO 当量である。ただし、 NO による影響は微弱であり、 NO の生成量が微量であることから、実事象の中では支配的な影響は無いものと考えられる。

③ 蒸気凝縮に伴う RuO_4 の移行挙動（前述の (i) 及び (iv) に係る試験）

蒸発乾固事象では、気相移行経路中での硝酸含有水蒸気の凝縮に伴い、 RuO_4 が凝縮液へ吸収される^{2.2.2.6}。本研究では、硝酸含有水蒸気凝縮時における RuO_4 の移行挙動に対して NO_2 及び NO が及ぼす影響を把握するため、以下の 2 種類の試験を実施した。

- a. RuO_4 、 NO_2 、 NO 及び硝酸含有水蒸気の混合ガスを一定速度で反応管に供給し、反応管内で水蒸気凝縮を生じさせ、凝縮液に移行する Ru 量を測定する試験（以下「Ru 気相部移行試験」という。）
- b. 亜硝酸を含む硝酸水溶液を鉛直に定置した筒状構造物（ぬれ壁塔）の内壁を覆うように上部から流下し、底部から RuO_4 を上部に向けて供給することにより、気液の接触面積を一定として RuO_4 の上記水溶液への吸収速度を測定する試験（以下「Ru 気液接触試験」という。）

a. Ru 気相部移行試験

RuO_4 、硝酸含有水蒸気、 NO_2 及び NO を図 2.2.2.11 に示す反応管に供給し、管内経路中で蒸気凝縮を生じさせた際の Ru の反応管回収分布データを取得した。試験結果の例を図 2.2.2.12 及び図 2.2.2.13 に示す。

図 2.2.2.12 及び図 2.2.2.13 は、それぞれ NO_2 添加及び無添加の場合において反応管内壁で回収した Ru 量を示すものであり、これらの比較から、 NO_2 が RuO_4 の回収液への吸収を促進することが示された。図 2.2.2.7 より、蒸発乾固の過程において Ru 放出速度が大である領域においては、Ru に対して NO_2 が 100 当量程度を生成することから、この

領域における Ru の移行挙動には、NO₂ が大きく寄与するものと考えられる。さらに、回収液の UV 吸収スペクトルによりニトロシルルテニウムが検出された。

本試験の結果より、RuO₄ の凝縮液への吸収プロセスとして、液相へ移行した NO₂ 由来の亜硝酸が、液相中へ移行した RuO₄ とニトロシルルテニウム化合物 (Ru(NO))NO₃)₃ 等を形成して液相で安定化するプロセスが存在することが考えられる。

b. Ru 気液接触試験

図 2.2.2.14 に示すぬれ壁塔を用いて、硝酸濃度及び亜硝酸濃度をパラメータとした硝酸水溶液に対する RuO₄ の上記水溶液への回収率及び物質移動係数を取得した。試験結果の例を図 2.2.2.15 に示す。

図 2.2.2.15 より、亜硝酸濃度の増大に伴って Ru 回収率及び物質移動係数が増大する傾向を示す。

上記により、凝縮液中の亜硝酸濃度と Ru の凝縮水への吸収速度の相関を示すデータを取得した。なお、Ru がぬれ壁塔でほぼ全量吸収された試験のデータでは、Ru の吸収反応に対し供給が不足することにより物質移動係数を過小評価している可能性があるため、今後の課題と考えられる。

c. Ru 移行挙動に及ぼす NO₂ の影響解明に係る実験のデータ整理

気相部移行試験では NO₂ が凝縮液に亜硝酸を生成し、Ru の凝縮水への吸収を促進することが示唆され、Ru 気液接触試験では液相中の亜硝酸濃度と Ru の凝縮水への吸収速度の相関を示すデータが取得された。これらの結果から、硝酸含有水蒸気の凝縮時における RuO₄ の移行挙動に及ぼす NO₂ の影響を定量的に解明するためには、試験装置内における NO₂ の濃度の変化を考慮することが重要であることが分かる。本研究では、気相部移行試験の試験結果を用いて、試験装置内の熱流動解析及びそれを境界条件とする NO₂ を含む窒素化合物の化学挙動解析を実施することで、気体状 Ru の凝縮水への吸収に係るデータを整理し、液相中の亜硝酸濃度と Ru の凝縮水への吸収速度の相関を明らかにした。熱流動解析では、MELCOR^{2.2.2.7} (炉心損傷で発生したエアロゾルの移行を伴う原子炉施設でのシビアアクシデント解析コード) を用いた解析により、試験装置内の温度、蒸気流量、ミスト量、凝縮液量等を評価した。化学挙動解析では、SCHERN^{2.2.2.8} (再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事象における NO_x の化学的挙動解析コードであり、開発に当たり本研究の試験データ等が活用された。) を用いた解析により、窒素化合物のモル濃度を評価した。解析結果の例を図 2.2.2.16 に示す。

図 2.2.2.16 は、液相 (亜硝酸を含む硝酸水溶液) 中の亜硝酸濃度と Ru の凝縮水への吸収速度の相関を示すものであり、解析結果と Ru 気液接触試験との比較から両者の直線的な関係性が確認された。すなわち、気相部移行試験及び Ru 気液接触試験の結果に基づき、Ru の凝縮水への吸収速度と液相中の亜硝酸濃度との相関式が導出された。

また、導出した相関式を用いて、実機規模の仮想施設を対象とした Ru の移行量の試験解析を実施した。解析モデルを図 2.2.2.17 に、解析結果を図 2.2.2.18 に示す。

図 2.2.2.18 は、左図が各区画内の液相中の Ru 残存量の変化を、また、右図がそれらを上流側の区画から順次加算した値の累積値を示したものであり、沸騰晩期（事象発生から約 4.5 日後）に揮発性 Ru の発生が増大する。本試解析によれば、上述の増大前には、発生した Ru がほぼ全量廃ガス処理セルで回収され、増大後は、それ以外の区画にも広がるものの、液相中の Ru 累積値が Ru 総発生量に等しく、貯槽で発生した Ru の全量が施設内にとどまることが示されている。

(3) 高レベル濃縮廃液（模擬廃液）への注水時における放射性物質（Ru、Cs 及びその他の FP 物質）の移行挙動及び乾固物の昇温特性

日本原燃㈱の六ヶ所再処理施設においては、蒸発乾固事象の発生時に放射性物質の放出を抑制し、及び事象の進行を緩和する方法として、Ru が気相へ大量移行する前（沸騰初期段階に相当）に高レベル濃縮廃液貯槽へ直接注水することにより沸騰晩期への移行を防止することが想定されている^{2.2.2.9}。仮に高レベル濃縮廃液貯槽への注水の時期が遅れ、沸騰晩期及び乾固段階に事象が進展した場合にも、注水により冷却することが事象を終息させるために有効な手段となる可能性があると考えられるが、一方、一旦乾固した高温の廃棄物に注水することによりかえって放射性物質の気相への再移行が生じる可能性も考えられる。乾固段階への注水時の放射性物質の移行プロセスとして、注水した水と乾固物中の硝酸塩が反応し、「高濃度の硝酸が生成され、高温かつ高濃度の硝酸により硝酸ニトロシルルテニウムが発生してそれが更に酸化され、RuO₄が気相へ移行する」こと、及び「硝酸塩等の水溶性の化合物を含む溶解液が生成され、溶解液が沸騰してその際に飛まつ同伴によりエアロゾルとして気相へ移行する」ことが考えられる^{2.2.2.2}。また、乾固段階の事象進展を評価するためには、硝酸塩の熱分解等を考慮した昇温特性を把握することが重要である。本研究では、①注水時における模擬放射性物質の気相への移行挙動及び②乾固物の昇温特性を把握するための熱解析に必要な物性値の取得試験を実施した。

① 注水時における模擬放射性物質の気相への移行挙動

加熱した試料（高レベル濃縮廃液の模擬廃液又は模擬廃液の乾固物）に対して注水を行い、注水開始時の試料温度、注水速度及び注水量をパラメータとして Ru 及び Cs 等難揮発性元素の移行挙動を把握する試験を実施した。

本試験装置の概要図を図 2.2.2.19 に、試験結果の例を図 2.2.2.20 から図 2.2.2.22 に示す。図 2.2.2.20 から図 2.2.2.22 は、それぞれ注水開始時試料温度をパラメータとした注水中における Ru、Cs、Nd 及び Ba の気相への移行割合を示す。これらの非揮発性元素は、硝酸塩の熱分解挙動が異なる^{1.1.6}ことから、移行挙動を比較して熱分解挙動との関連性を評価するため選定した。

Ru の移行割合（図 2.2.2.20 参照）は、130°C 又は 150°C で極大値を示し、それ以降の温度領域で減少する傾向を示した。これらは、130°C 及び 150°C の温度領域においては注水

中に RuO_4 の気相移行が生じていることを示唆している。それ以降の温度領域では、 RuO_4 の発生源である乾固物中の硝酸ニトロシルルテニウムが熱分解してしまうため、 RuO_4 が発生しないと考えられる。

Cs の移行割合（図 2.2.2.21 参照）は、上限試験温度 600°C に至るまで、温度の上昇に伴い増加する傾向を示す。注水後の模擬廃液試料（注水した水と乾固物の混合物）をろ過した液中に Cs の大部分が溶解していたことから、Cs は当該温度まで水溶性を保持し、その溶解液が沸騰して飛まつ同伴により移行したと考えられ、蒸気流速が大きいほど飛まつ同伴による移行割合が増加する^{1.1.6}ことから、温度の上昇に伴う Cs 移行割合の増加傾向は注水時の沸騰による蒸気流速が増加するため生じると考えられる。

Nd 及び Ba（図 2.2.2.22 参照）の場合、硝酸塩の熱分解の完了温度に至るまで温度の上昇に伴い移行割合が増加する傾向を示し、熱分解の完了温度以降では減少した。硝酸塩の熱分解の完了温度までの移行挙動は Cs と同様なプロセスが考えられ、熱分解の完了温度以降の移行挙動は熱分解により水に不溶又は難溶の化学形に変化したため飛まつ同伴による移行量が減少したものと考えられる。

以上により、沸騰晩期段階及び乾固段階への注水時における Ru 及び Cs 等難揮発性元素の移行挙動を確認した。なお、本試験で用いた模擬乾固物は厚さ 0.15cm 程度（ 150°C 物性値を用いた試算）であり、実際に想定される厚さ 26cm 程度（同試算）に比べて非常に薄い。このため、各元素の移行割合は、実際に想定される移行割合に比較して相当過大なものとなっている可能性がある。

② 乾固物の昇温特性

乾固物の昇温特性を把握するための熱解析に必要な物性値の取得試験を実施した。乾固物は、崩壊熱を熱源として温度上昇するが、硝酸塩の熱分解に伴い崩壊熱の一部が吸熱反応により消費されることや乾固物の物性が変化することによる温度上昇への影響が考えられる。主要な硝酸塩の熱分解データは報告されている^{1.1.6}。一方で、乾固物の熱伝導率、密度等の物性値は、 600°C まで加熱した模擬廃液乾固物の比熱が測定されているのみ^{1.1.6}で、参考となるデータがほとんど見当たらない。本研究では、乾固物の昇温特性を把握するために、高レベル濃縮廃液（模擬廃液）を加熱して作製した乾固物（図 2.2.2.23 参照）の熱伝導率等の物性値の測定試験を実施した。乾固物の作製温度における物性値を推定するためには、作製した温度により近い条件での測定値が必要であるため、作製時の最高温度により近い温度で物性値測定を行い、測定値を外挿することで、作製時の最高温度における物性値を取得した。試験結果として図 2.2.2.24 に、取得した物性値の例（熱伝導率及び比熱）を示す。

また、取得した物性値、吸熱反応の文献値等を用いて乾固物の熱解析を試行した。解析モデルを図 2.2.2.25 に示す。解析モデルは、二次元体系とし、乾固物及び SUS304 製貯槽（厚さ 0.03m ）から構成されており、円筒形の貯槽の底面に水平円板形状である乾固物が

あり、乾固物の側面と底面が貯槽に接していると仮定した。乾固物の寸法は、内径 7m の貯槽に保管されている廃液 120m³が乾固したと仮定(すなわち直径 7m の円筒形状と仮定)し、150°C における乾固物の密度を使用して計算し高さを 0.26m に設定した。解析結果の例として図 2.2.2.26 に乾固物の温度分布の経時変化の解析結果を示す。高さ方向の温度分布は中心底面から 0.16m の箇所が最高温度となり、上面及び底面に近づくにつれて温度が低下する結果が得られた。径方向においては廃液貯槽壁側面での冷却によって側面から約 0.2m の範囲に限り温度分布が見られた。

なお、硝酸塩の熱分解による吸熱反応の影響を確認するために、一次元モデル(断熱)を用いて、乾固物の温度上昇の解析を実施した。解析結果の例を図 2.2.2.27 に示す。図 2.2.2.27 は、それぞれ吸熱反応を考慮した場合と考慮しない場合の乾固物の温度上昇の相違を示すものであり、吸熱反応が昇温速度に及ぼす影響が大きいことが分かる。

表 2.2.2.1 蒸発乾固事象進展シナリオに応じた放射性物質移行挙動整理及びデータの取得状況

Table 2.2.2.1 Arrangement of radioactive material migration behavior according to event progress scenario and data acquisition status.

	非沸騰状態	沸騰初期	沸騰晩期	乾固
廃液又は乾固物の温度	104°C以下	104°C～120°C	120°C～170°C	170°C～300°C
廃液の硝酸濃度	2N	2N～6N	6N～14N	—
気相成分	空気、水蒸気	水蒸気、硝酸蒸気、空気	水蒸気、硝酸蒸気、空気、微量のNO ₂ 及びNO	空気、NO ₂ 及びNO* ²
Ruの気相への主要な移行機構、形態	飛まつ同伴 エアロゾル	飛まつ同伴 エアロゾル	ニトシルルテニウムの酸化・揮発 RuO ₄	Ru(NO ₃) ₃ の分解 RuO ₄
Ruの気相への移行量評価に必要なデータ	a. ARF又は飛まつ同伴率	a. ARF又は飛まつ同伴率 b. 亜硝酸による揮発性Ruの発生抑制効果 c. 廃液における亜硝酸濃度の評価	d. RuO ₄ の揮発率(発生率)	e. Ru(NO ₃) ₃ の分解率(発生率)
Ruの回収反応	f. エアロゾルの凝縮時の凝縮液への吸収 g. HEPAフィルタによる除去	f. エアロゾルの凝縮時の凝縮液への吸収 g. HEPAフィルタによる除去	h. RuO ₄ ⇒凝縮液への吸収 i. RuO ₄ ⇒RuO ₂ +フィルタ(高温) 硝酸蒸気、微量のNO ₂ 等による妨害作用の影響 k. RuO ₄ ⇒RuO ₂ +フィルタ(低温:凝縮器で低温化) 熱分解反応速度の低下	j. RuO ₄ ⇒RuO ₂ +フィルタ(高温) NO ₂ 等による妨害作用の影響 l. RuO ₄ ⇒RuO ₂ +フィルタ(低温:凝縮器で低温化) 熱分解反応速度の低下及びNO ₂ 等による妨害作用の影響
データの取得状況	a. 三者協定研究 ^{1.1.6} 及び文献 ^{2.2.2.10} f. MELCOR ^{2.2.2.7} 等解析コードにより個別に評価 g. 一般的にDF=10 ³ (1段)又は10 ⁵ (2段)	a. 三者協定研究 ^{1.1.6} 及び文献 ^{2.2.2.10} b. 本安全研究* ¹ c. 次期安全研究で取得予定 f. MELCOR ^{2.2.2.7} 等解析コードにより個別に評価 g. 一般的にDF=10 ³ (1段)又は10 ⁵ (2段)	d. 本安全研究* ¹ 、三者協定研究 ^{1.1.6} 、及び文献 ^{2.2.2.10} 、 ^{2.2.2.11} h. 本安全研究* ¹ 及び次期安全研究で取得予定 i. 本安全研究* ¹ k. 本安全研究* ¹	e. 本安全研究* ¹ 、三者協定研究 ^{1.1.6} 及び文献 ^{2.2.2.11} j. 次期安全研究で取得予定 l. 必要があれば次期安全研究で取得

*1：平成27年度及び平成28年度の安全研究を含む。

*2：本段階における気相成分については継続して検討中であり、適宜、次期安全研究計画に反映させる。

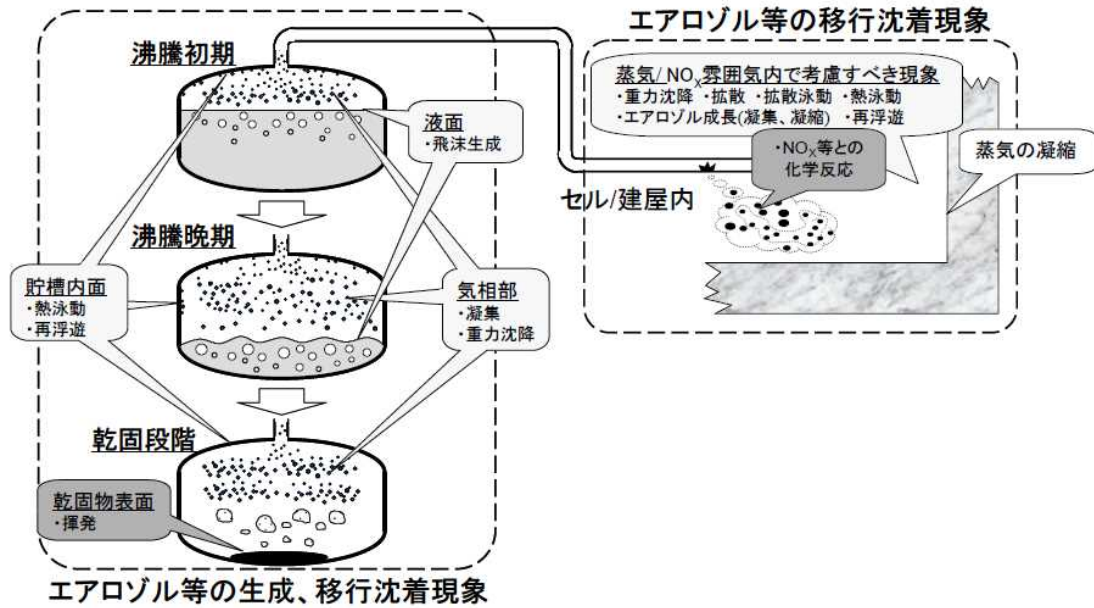
表 2.2.2.2 RuO₄ 分解反応速度定数の一覧

Table 2.2.2.2 List of RuO₄ decomposition reaction rate constants.

試験 番号	Ru 供給速度 [mol/min]	温度条件 [°C]	反応条件				反応速度定数	
			HNO ₃ [equiv. vs Ru]	H ₂ O [equiv. vs Ru]	NO ₂ [equiv. vs Ru]	NO [equiv. vs Ru]	1 次反応 [s ⁻¹]	零次反応 [mol · L ⁻¹ · s ⁻¹]
1	1.7×10 ⁻⁶	120	1	500	0	0	6.81 × 10 ⁻⁶	1.34 × 10 ⁻¹¹
2	1.7×10 ⁻⁶	120	0.1	500	0	0	6.26 × 10 ⁻⁶	1.15 × 10 ⁻¹⁰
3	1.7×10 ⁻⁶	120	0	500	0	0	2.95 × 10 ⁻⁴	6.55 × 10 ⁻¹⁰
4 ^{*1}	1.7×10 ⁻⁶	120	0.1	500	100	0	-	-
5	1.7×10 ⁻⁶	120	0.1	500	10	0	9.43 × 10 ⁻⁶	1.85 × 10 ⁻¹¹
6	1.7×10 ⁻⁶	120	0.1	500	7.5	0	2.24 × 10 ⁻⁵	4.75 × 10 ⁻¹¹
7	1.7×10 ⁻⁶	120	0.1	500	7.5	100	2.23 × 10 ⁻⁵	4.26 × 10 ⁻¹¹
8	1.7×10 ⁻⁶	120	0.1	500	7.5	10	1.82 × 10 ⁻⁵	4.07 × 10 ⁻¹¹
9	1.7×10 ⁻⁶	120	0.1	500	7.5	1	2.14 × 10 ⁻⁵	4.47 × 10 ⁻¹¹
10	1.7×10 ⁻⁶	90	0.1	500	0	0	1.21 × 10 ⁻⁵	1.79 × 10 ⁻¹¹
11	1.7×10 ⁻⁶	60	0.1	500	0	0	1.28 × 10 ⁻⁵	2.56 × 10 ⁻¹¹

出典：JAEA (2019) 2.2.2.3 を一部修正

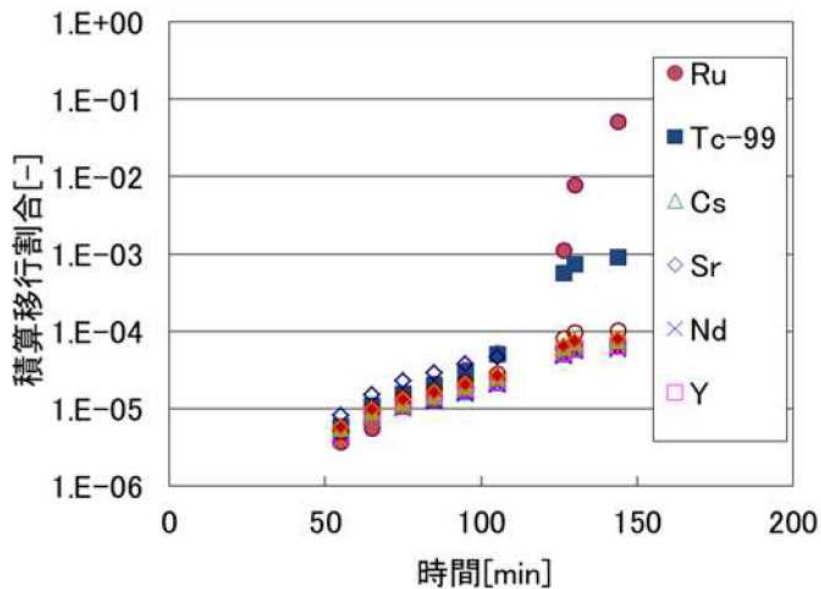
*1 試験番号 4 は、Ru に対する添加した NO₂ 化学当量が最も多い試験であり、NO₂ による測定妨害が大きく、RuO₄ の減少速度を定量的に評価することは困難であった。



出典：「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（2014）^{1.1.6}を一部修正

図 2.2.2.1 蒸発乾固事象の進展過程と放射性物質移行挙動の概念図

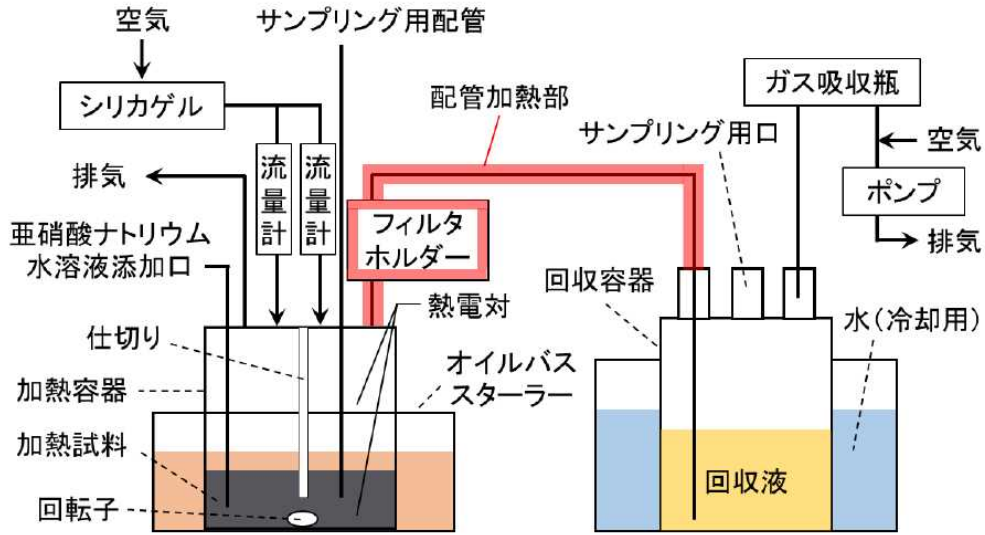
Fig. 2.2.2.1 Conceptual diagram of development progress and radioactive material migration behavior of evaporation to dryness event.



出典：「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(2014)^{1.1.6}を一部修正

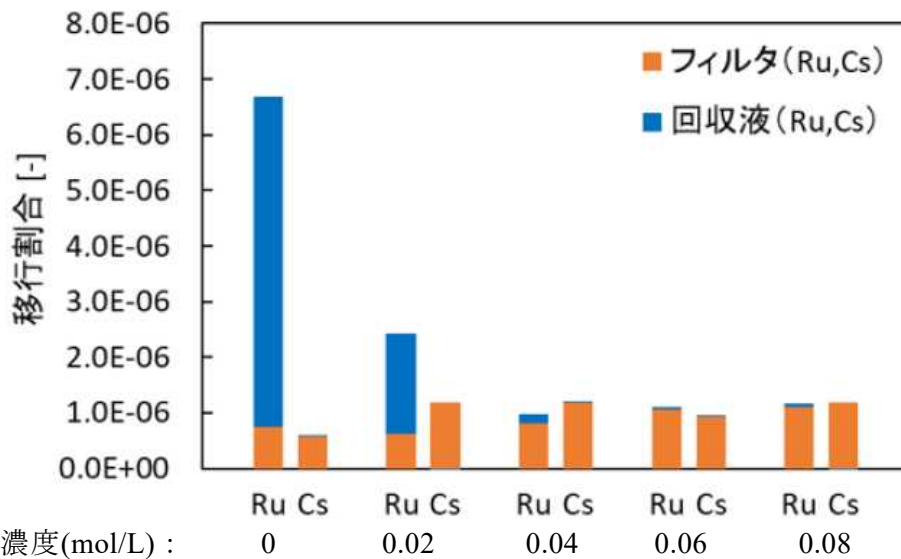
図 2.2.2.2 実廃液を用いた蒸発乾固事象時の各元素の積算気相移行割合

Fig. 2.2.2.2 Emission characteristics of Ru.



出典：JAEA (2019) 2.2.2.3

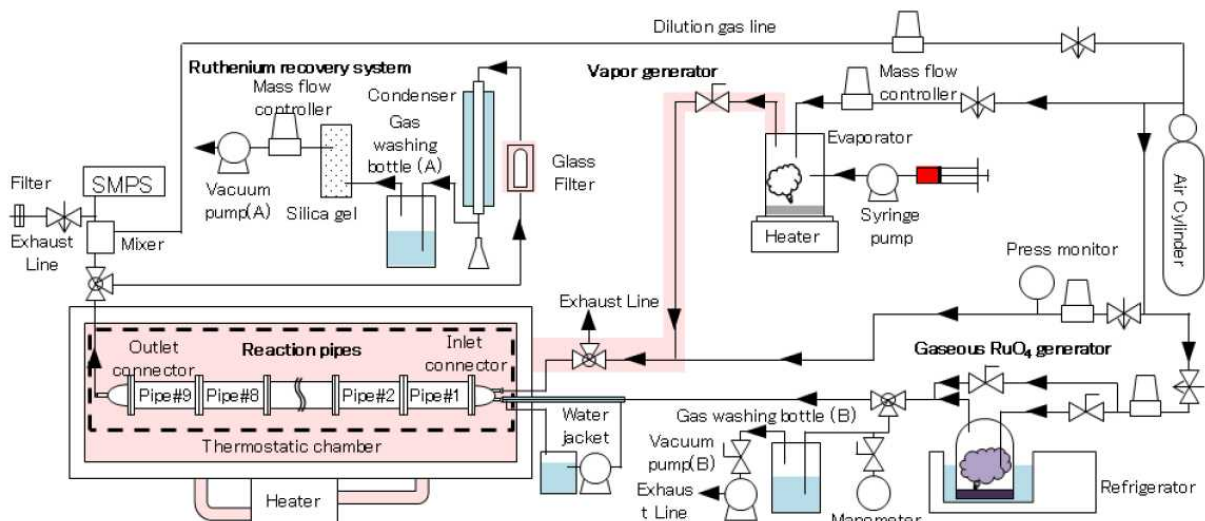
図 2.2.2.3 亜硝酸添加の影響を踏まえた揮発性 Ru 移行挙動の評価に用いた装置概要図
 Fig. 2.2.2.3 Schematic diagram of experimental apparatus for volatile Ru migration behavior on the effect of added nitrite.



亜硝酸の添加濃度(mol/L) :

出典：JAEA (2019) 2.2.2.3 を一部修正

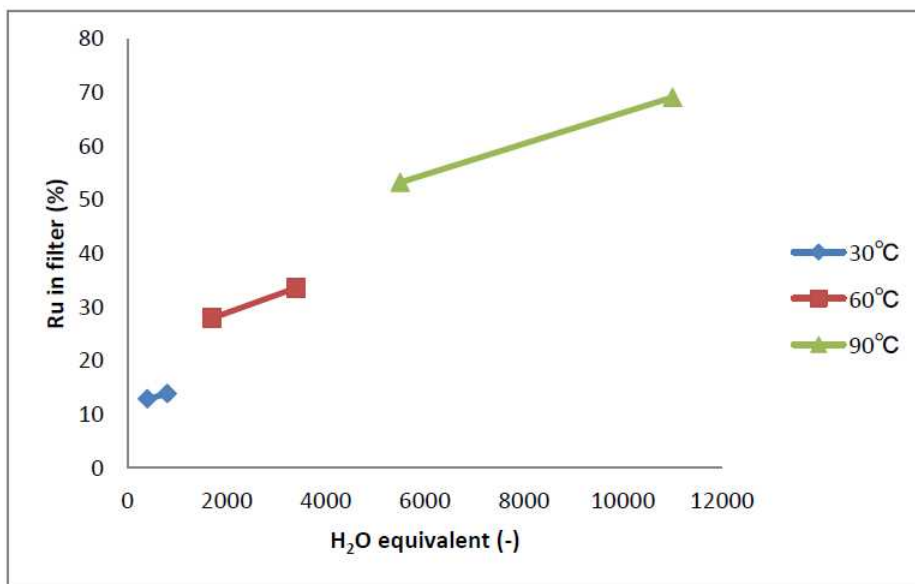
図 2.2.2.4 亜硝酸添加の影響を踏まえた Ru 移行挙動の試験結果の例
 Fig. 2.2.2.4 Example of results of Ru migration behavior on the effect of added nitrite.



出典：JAEA（2020）2.2.2.4

図 2.2.2.5 Ru エアロゾル生成挙動の評価に用いた装置概要図

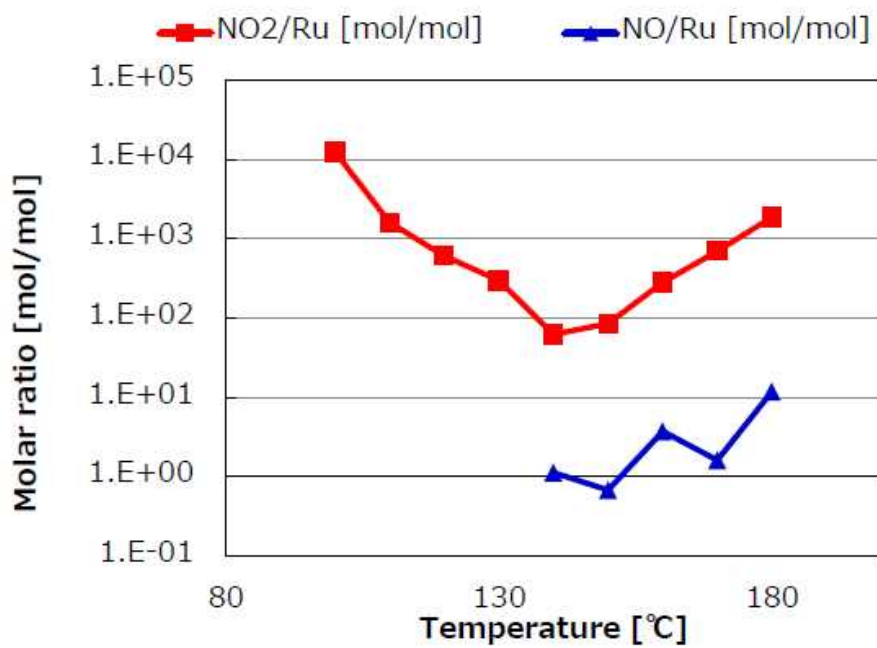
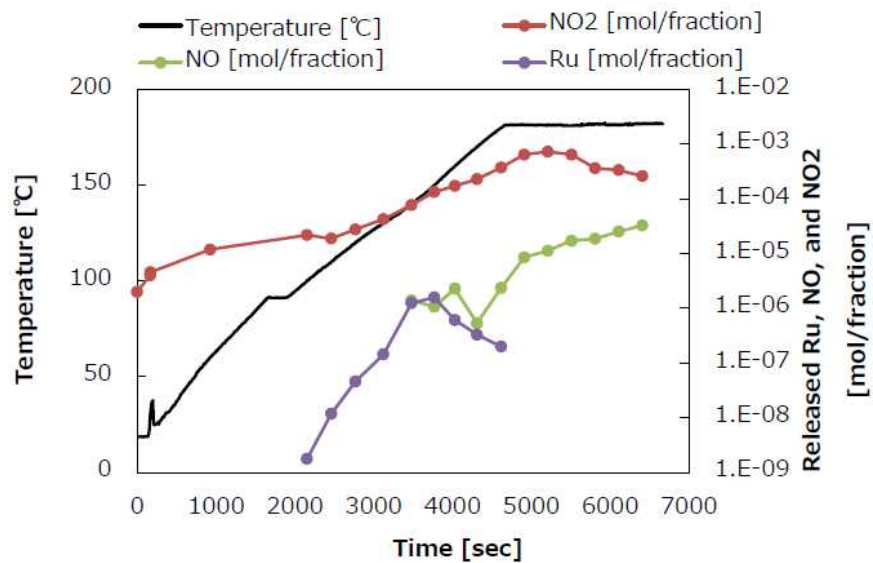
Fig. 2.2.2.5 Schematic diagram of experimental apparatus for evaluation of Ru aerosol generation behavior.



出典：JAEA（2020）2.2.2.4

図 2.2.2.6 Ru エアロゾル生成挙動試験結果の例

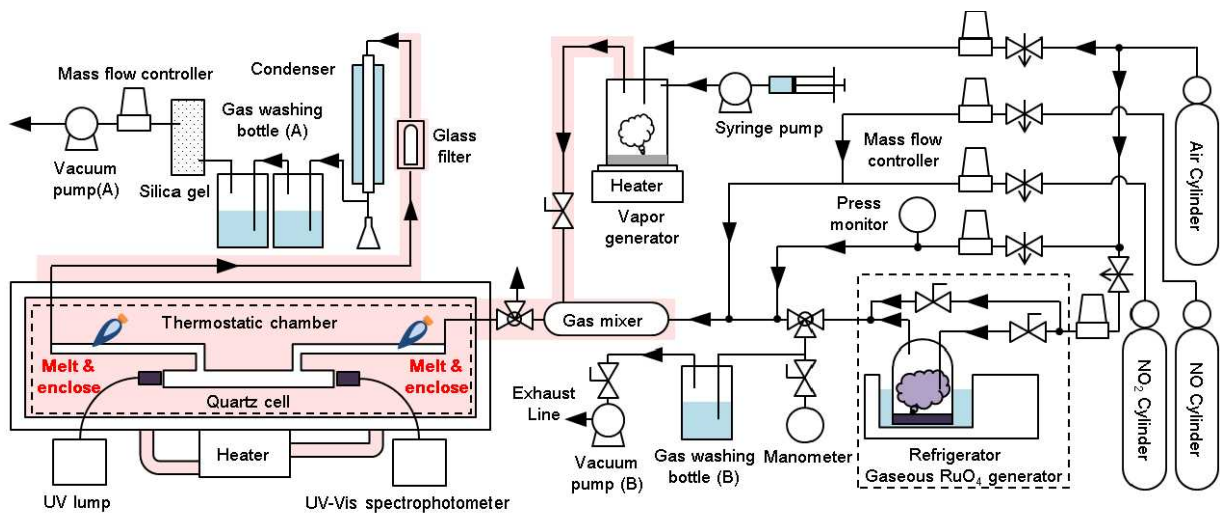
Fig. 2.2.2.6 Example of results of Ru aerosol generation behavior experiments.



出典：JAEA (2018) 2.2.2.2

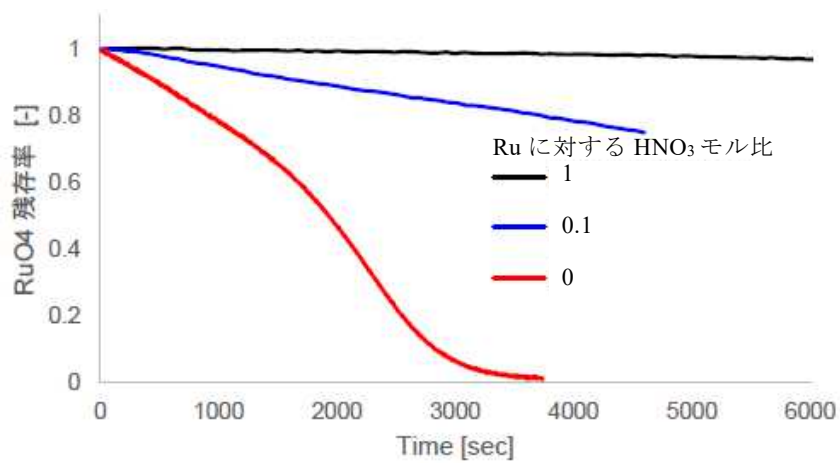
図 2.2.2.7 Ru に対する NO₂ 及び NO のモル比評価試験結果

Fig. 2.2.2.7 Results of NO₂ and NO to Ru mole ratio evaluation experiments.



出典：JAEA (2019) 2.2.2.3

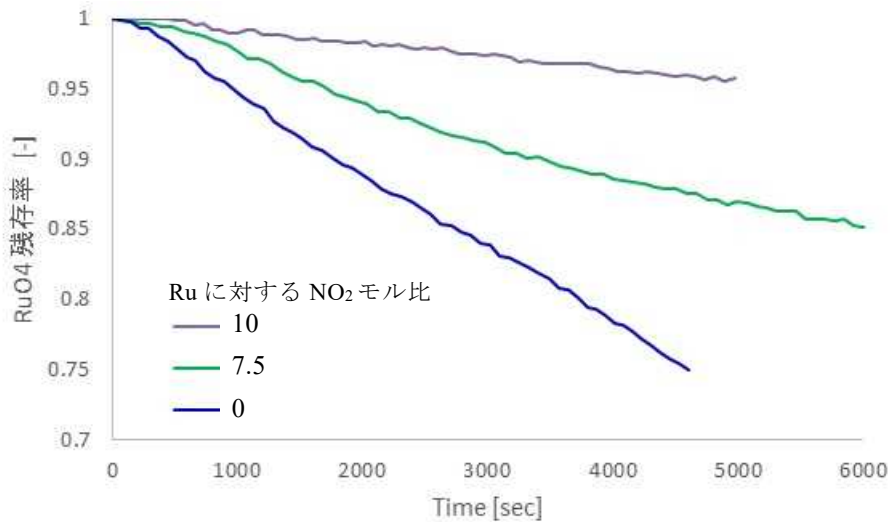
図 2.2.2.8 気相雰囲気中における RuO_4 の化学形変化挙動の評価に用いた装置概要図
 Fig. 2.2.2.8 Schematic diagram of experimental apparatus for evaluation of chemical behavior of RuO_4 .



出典：JAEA (2019) 2.2.2.3 を一部修正

図 2.2.2.9 HNO_3 が及ぼす RuO_4 分解挙動試験結果
 (試験条件： $\text{Ru}/\text{H}_2\text{O}$ のモル比：1/500 程度、気相部温度：約 120°C)

Fig. 2.2.2.9 Results of RuO_4 decomposition behavior experiments of nitric.
 (Experimental conditions: $\text{Ru}/\text{H}_2\text{O}$ molar ratio is about 1/500, gas phase temperature is about 120°C)



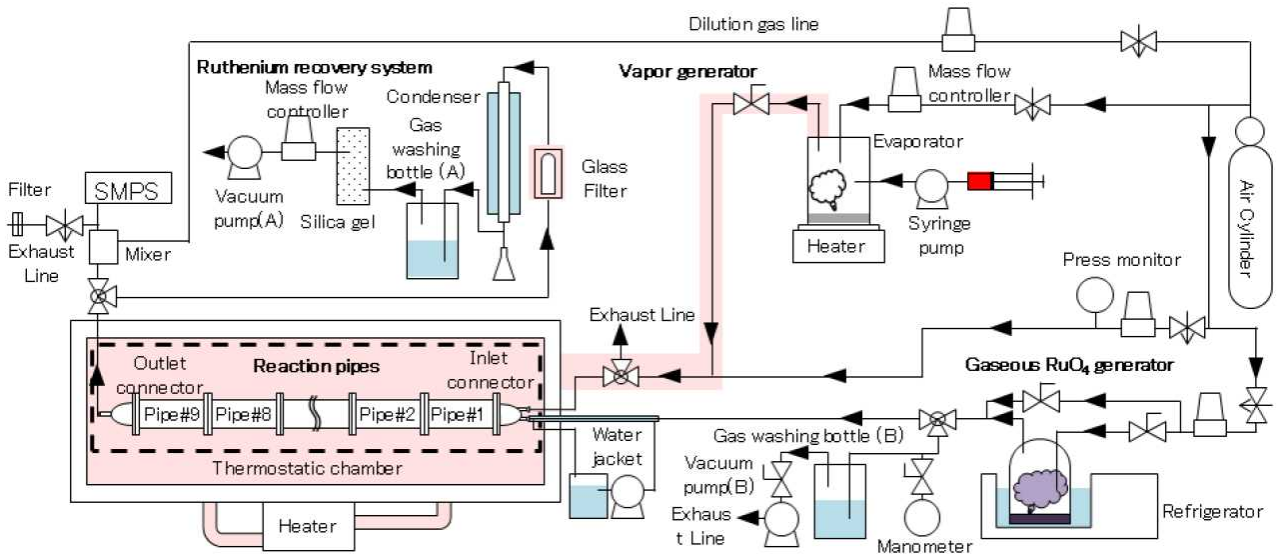
出典：JAEA (2019) 2.2.2.3 を一部修正

図 2.2.2.10 NO₂ が及ぼす RuO₄ 分解挙動試験結果

(試験条件：Ru/HNO₃/H₂O のモル比：1/0.1/500 程度、気相部温度：約 120°C)

Fig. 2.2.2.10 Results of RuO₄ decomposition behavior experiments of NO₂.

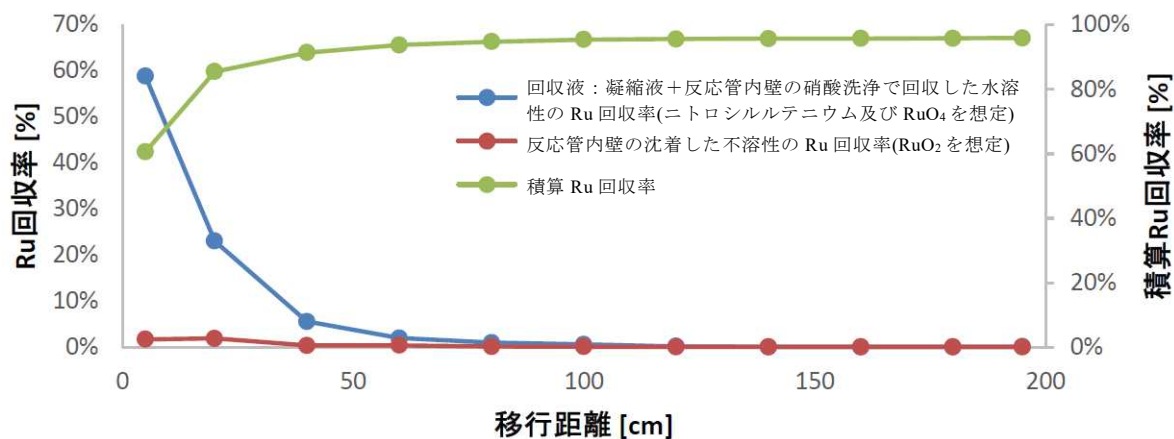
(Experimental conditions: Ru/HNO₃/H₂O molar ratio is about 1/0.1/500, gas phase temperature is about 120°C)



出典：JAEA (2018) 2.2.2.2

図 2.2.2.11 蒸気凝縮に伴う RuO₄ の移行挙動の評価に用いた装置概要図

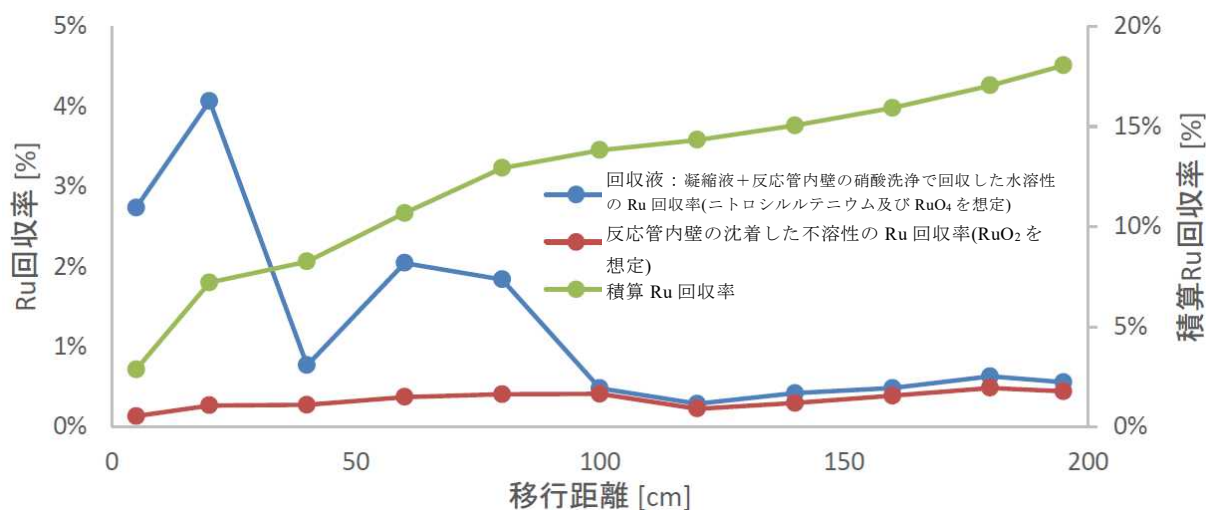
Fig. 2.2.2.11 Schematic diagram of experimental apparatus for RuO₄ migration behavior associated with vapor condensation.



出典：JAEA（2018）^{2.2.2.2}を一部修正

図 2.2.2.12 蒸気凝縮に伴う RuO₄ の移行挙動試験結果（NO₂ 添加）

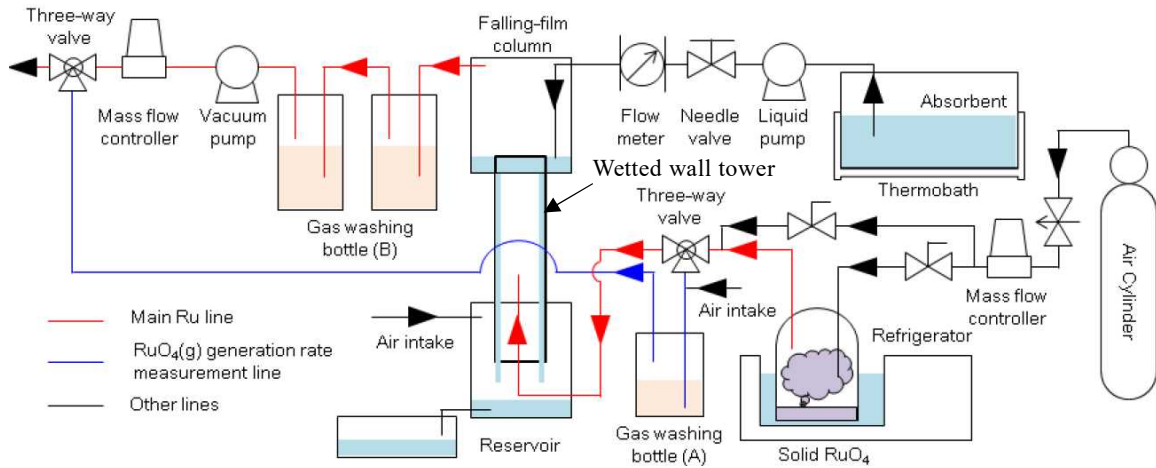
Fig. 2.2.2.12 Results of RuO₄ migration behavior associated with vapor condensation. (with NO₂ addition)



出典：JAEA（2018）^{2.2.2.2}を一部修正

図 2.2.2.13 蒸気凝縮に伴う RuO₄ の移行挙動試験結果（NO₂ 無添加）

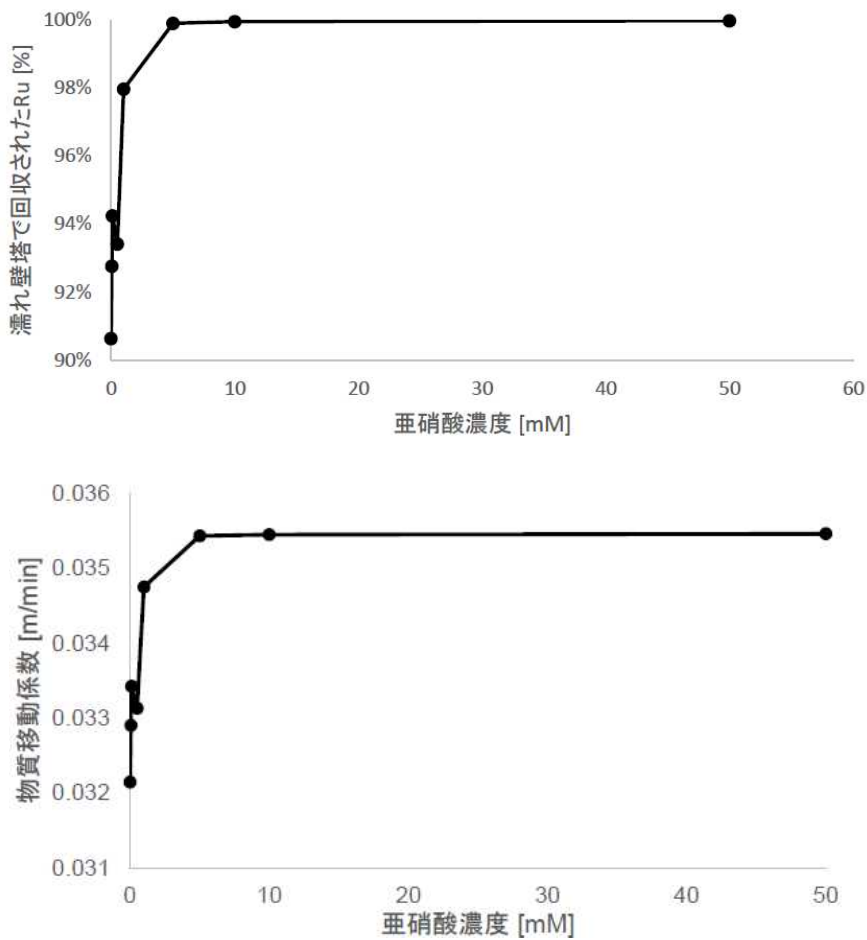
Fig. 2.2.2.13 Results of RuO₄ migration behavior associated with vapor condensation. (without NO₂ addition)



出典：JAEA（2020）^{2.2.2.4}を一部修正

図 2.2.2.14 Ru 気液接触試験に用いた装置概要図

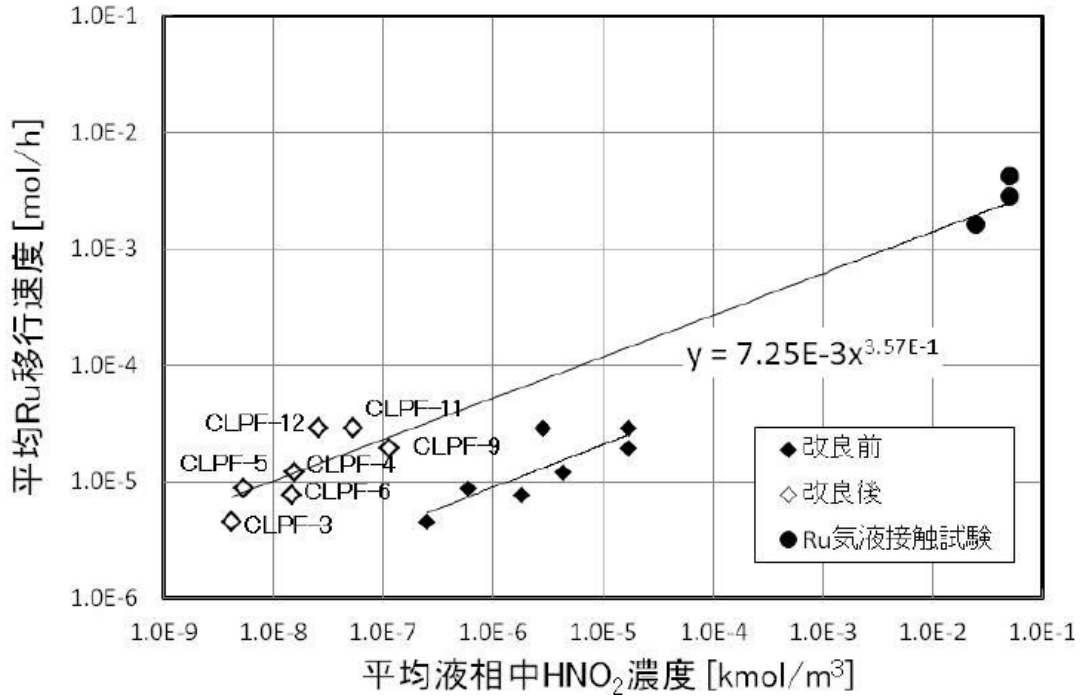
Fig. 2.2.2.14 Schematic diagram of experimental apparatus for the Ru gas-liquid contact.



出典：JAEA（2020）^{2.2.2.4}

図 2.2.2.15 Ru 気液接触試験結果の例

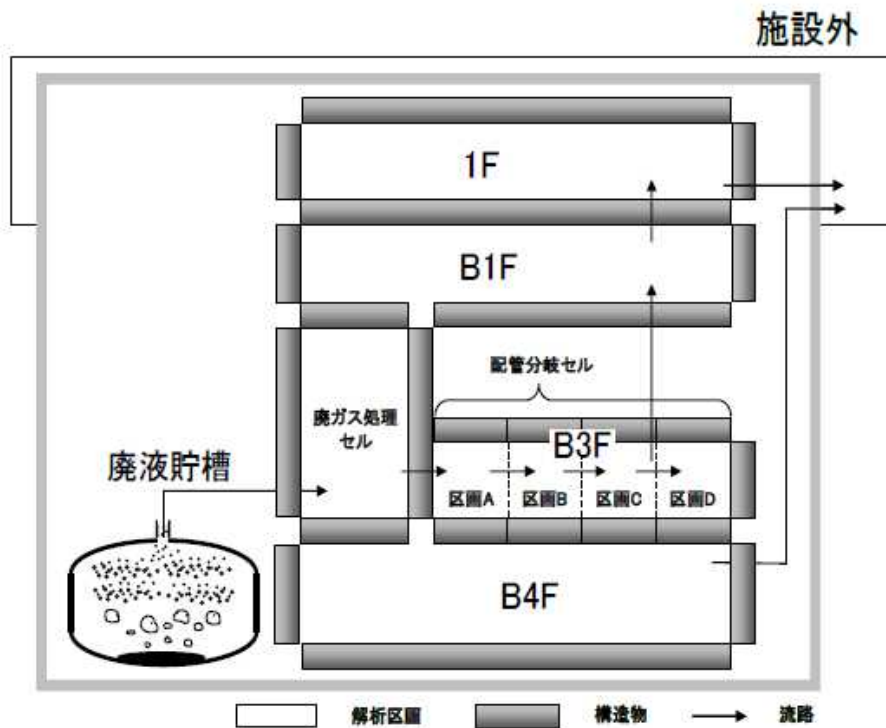
Fig. 2.2.2.15 Example of results of Ru gas-liquid contact.



出典：JAEA (2020) 2.2.2.4

図 2.2.2.16 気相部移行試験の SCHERN 解析結果と Ru 気液接触試験結果の比較

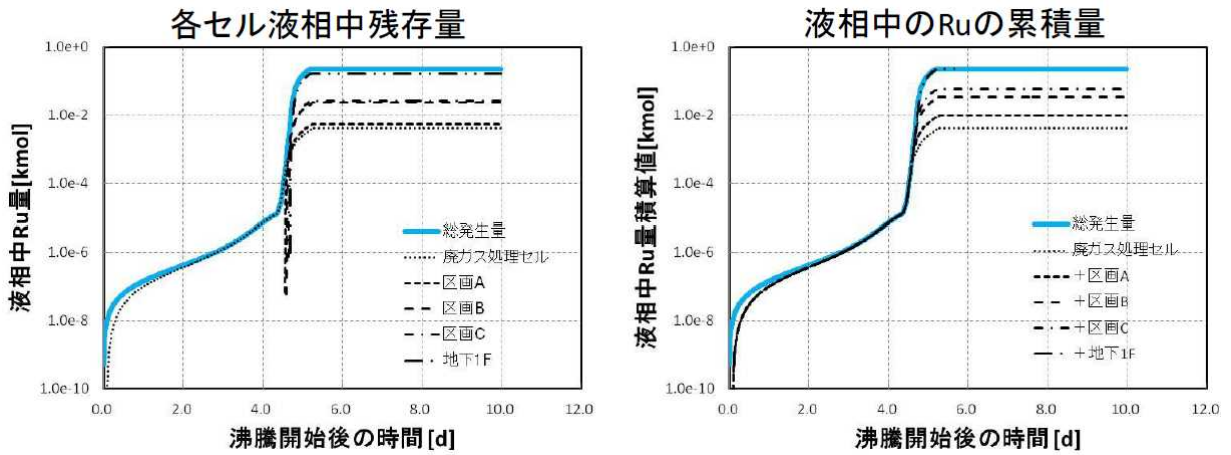
Fig. 2.2.2.16 Comparison of results of SCHERN analysis and Ru gas-liquid contact experiments.



出典：JAEA (2020) 2.2.2.4

図 2.2.2.17 実機規模の仮想施設を対象にした試解析モデル

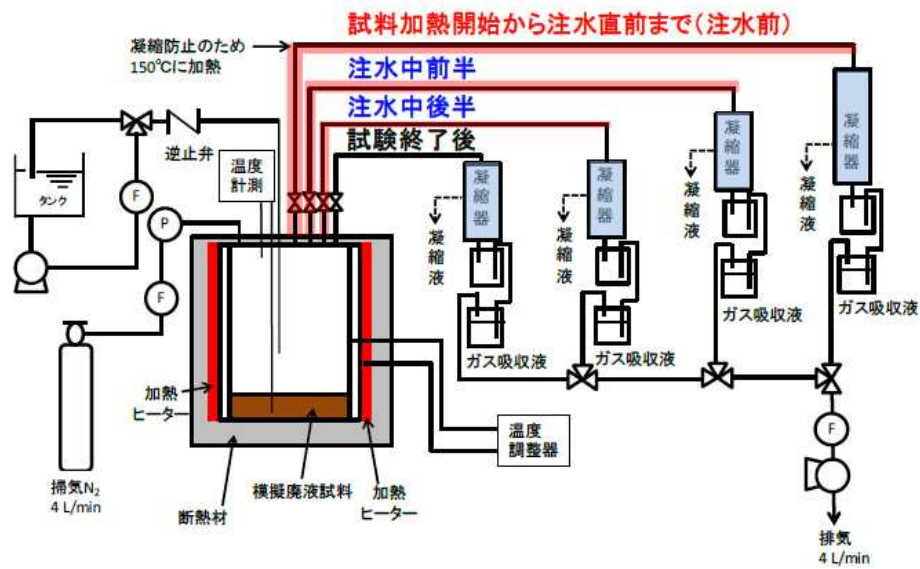
Fig. 2.2.2.17 Trial analysis model for full scale virtual facility.



出典：JAEA (2020) 2.2.2.4

図 2.2.2.18 実機規模の仮想施設の解析結果の例

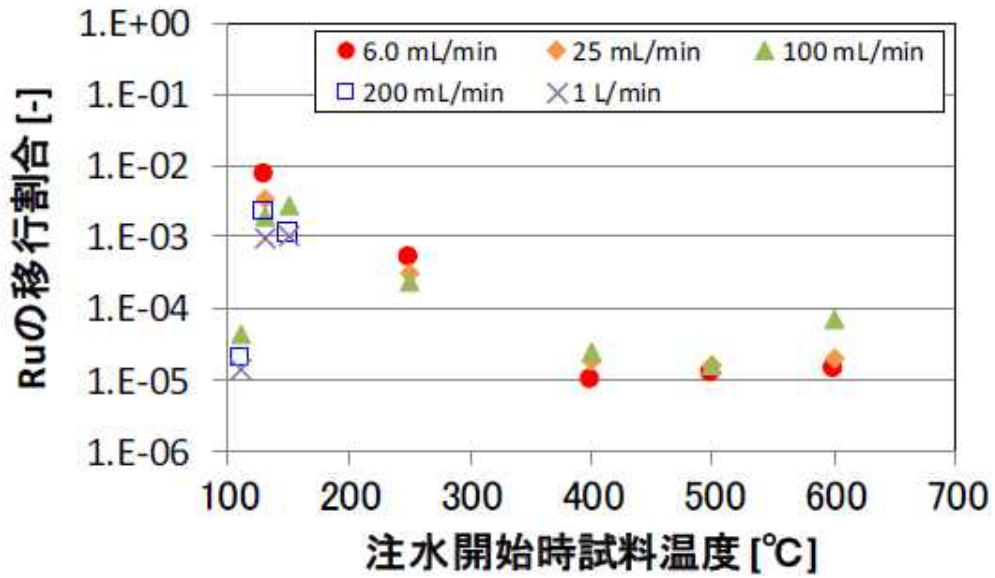
Fig. 2.2.2.18 Example of analysis results of full scale virtual facilities.



出典：JAEA (2020) 2.2.2.4

図 2.2.2.19 注水試験に用いた装置概要図

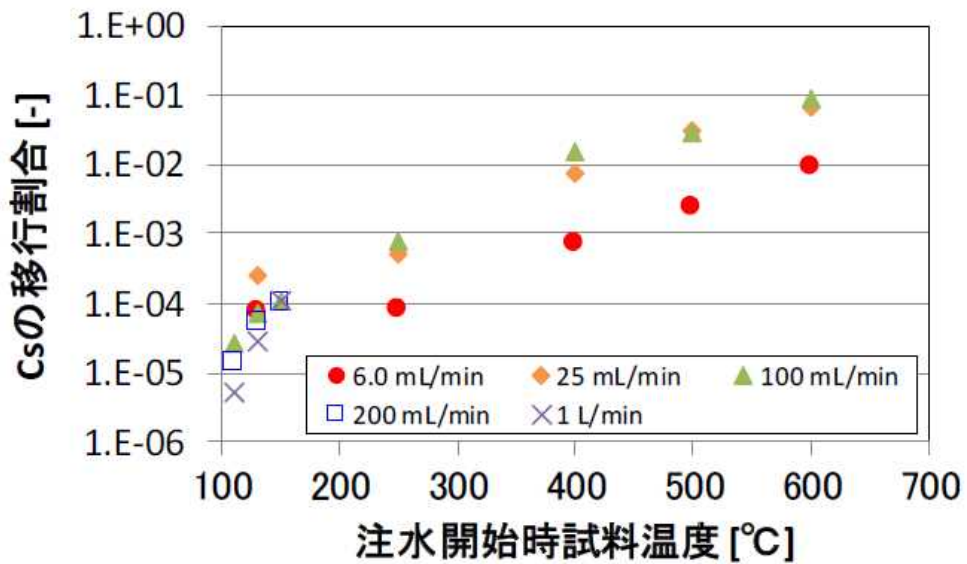
Fig. 2.2.2.19 Schematic diagram of apparatus for water supply.



出典：JAEA (2020) 2.2.2.4

図 2.2.2.20 注水中における気相への Ru 移行割合の例

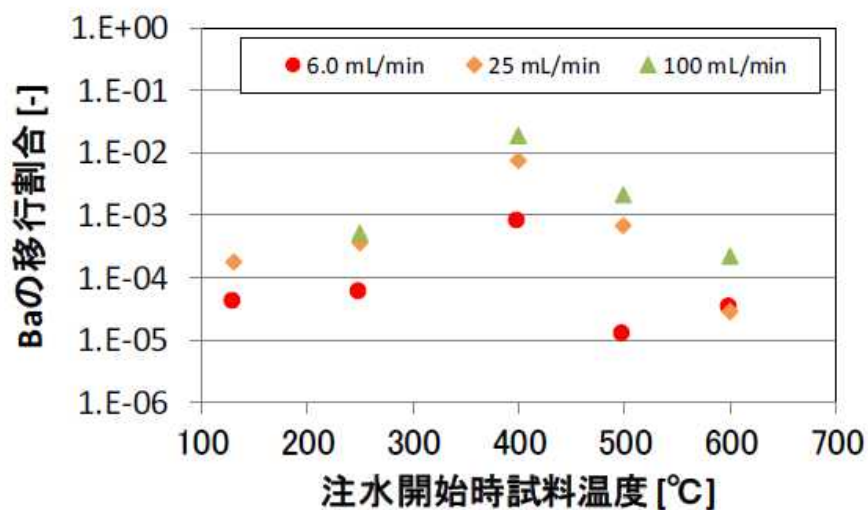
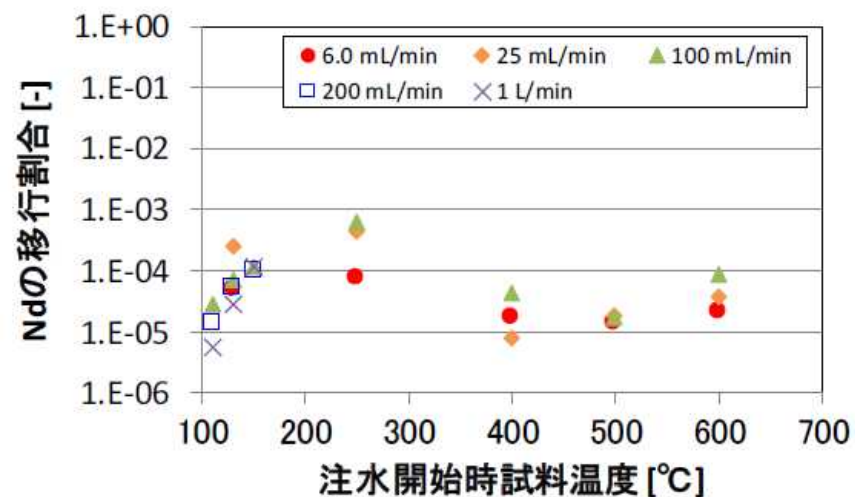
Fig. 2.2.2.20 Example of Ru migration rate to gas phase in water supply.



出典：JAEA (2020) 2.2.2.4

図 2.2.2.21 注水中における気相への Cs 移行割合の例

Fig. 2.2.2.21 Example of Cs migration rate to gas phase in water supply.



出典：JAEA (2020) 2.2.2.4

図 2.2.2.22 注水中における気相への Nd 及び Ba 移行割合の例

Fig. 2.2.2.22 Example of Nd and Ba migration rate to gas phase in water supply.



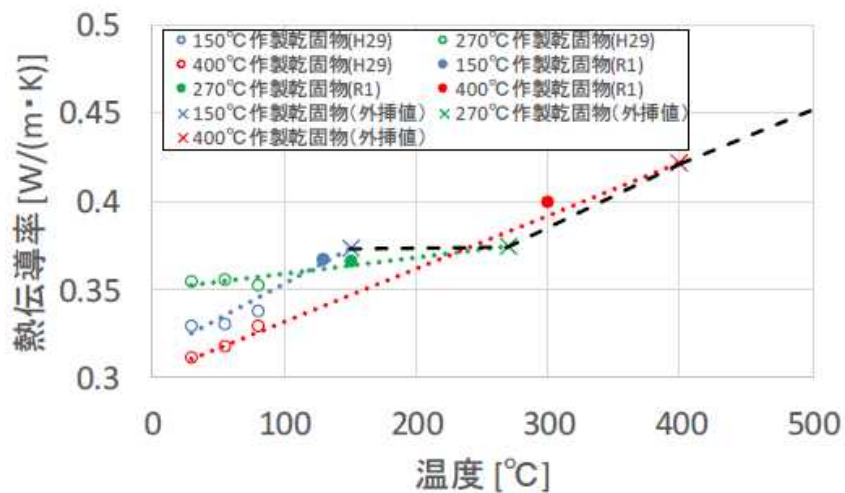
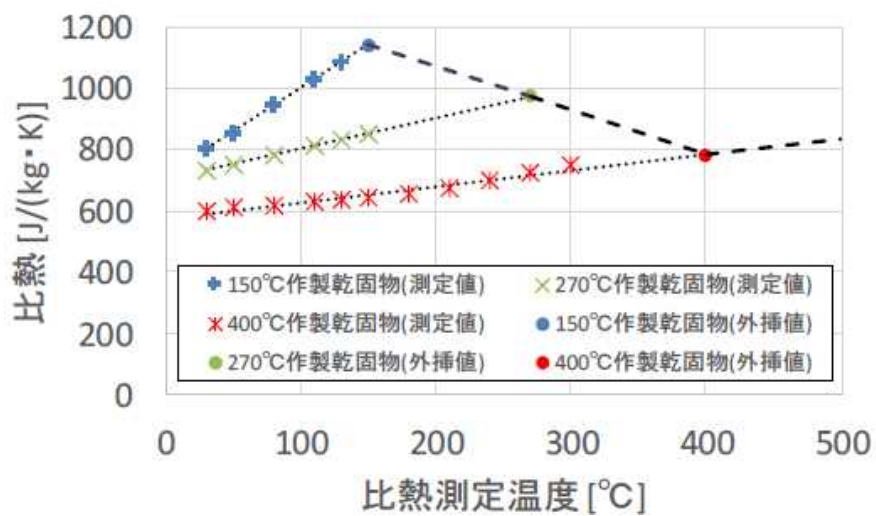
出典：JAEA（2018）^{2.2.2.2}

図 2.2.2.23 乾固物の例

（乾固物の作製温度。No.4：150°C、No.7：270°C、No.10：400°C）

Fig. 2.2.2.23 Example of dry matter.

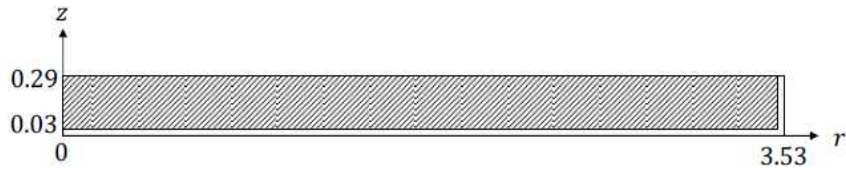
(Making temperature of dry matter. No.4: 150°C, No.7: 270°C, No.10: 400°C)



出典：JAEA (2019) 2.2.2.3

図 2.2.2.24 乾固物の物性値の例

Fig. 2.2.2.24 Example of physical property values of dry matter.



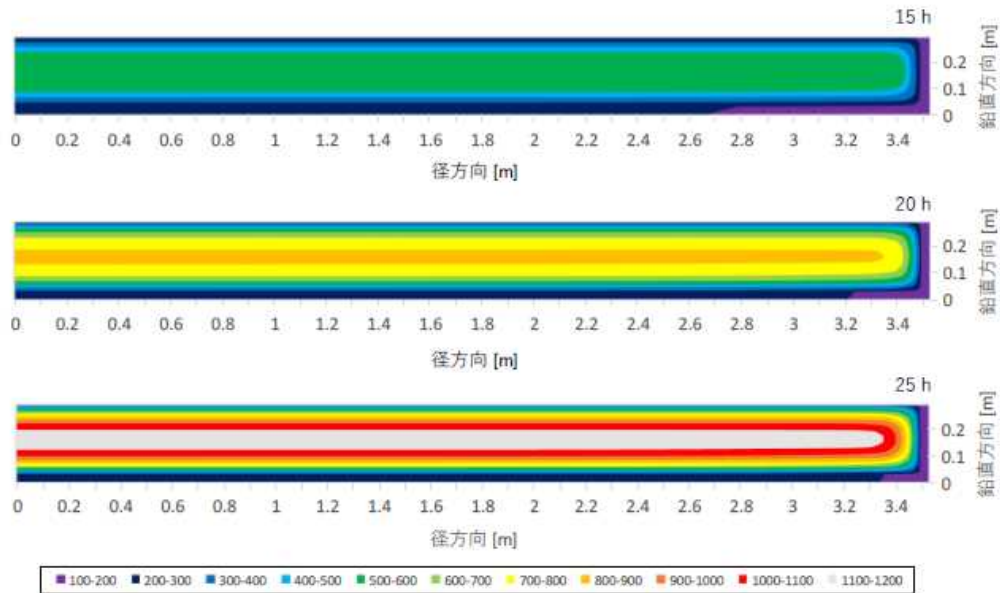
出典：JAEA（2020）^{2.2.2.4}

図 2.2.2.25 二次元解析モデルの概要図

(斜線部は乾固物、白色部は SUS304 製貯槽壁面を示す。)

Fig. 2.2.2.25 Schematic diagram of 2D analysis model.

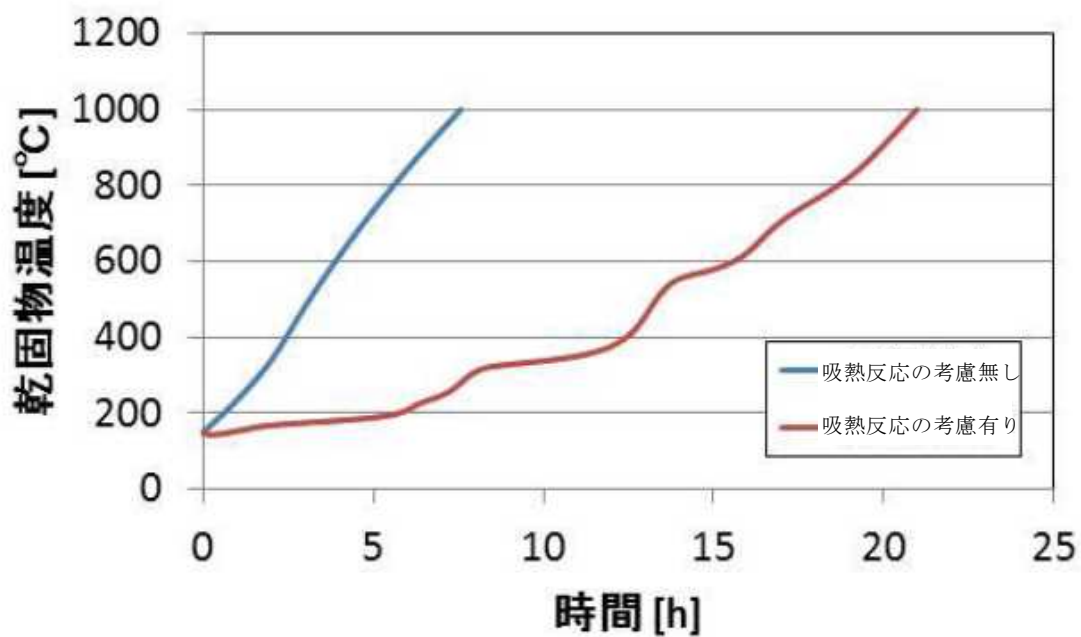
(The shaded area indicates the dry matter, and the white area indicates the wall surface of the SUS304 storage tank.)



出典：JAEA（2020）^{2.2.2.4}

図 2.2.2.26 乾固物の温度分布の経時変化の二次元解析結果の例

Fig. 2.2.2.26 Example of 2D analysis results of temperature distribution of dry matter.



出典：JAEA (2019) 2.2.2.3

図 2.2.2.27 乾固物の温度の経時変化の一次元解析結果の例

Fig. 2.2.2.27 Example of 1D analysis result of change in temperature of dry matter over time.

2.2.3 機器の経年劣化

再処理施設の機器の点検、補修等の保全活動を行うための除染作業時には除染剤として最初に水酸化ナトリウム (NaOH) 及び硝酸 (HNO₃) が交互に使用されることが一般的であり、その後除染状況に応じて更にその他の除染剤が使用される^{1.1.7}。除染作業は基本的に機器、配管の表面に付着している放射性物質を含む金属イオンのみを酸化溶解又は還元溶解して選択的に除去しつつ機器、配管の母材の劣化を避けることが求められる。我が国の商用再処理施設の主要な機器及び配管は再処理施設用ステンレス鋼 (R-SUS304ULC) 及びジルコニウム (Zr) が使用されており、ステンレス鋼配管及び Zr 製配管を接続するために異材接合継手を用いられている。この継手は R-SUS304ULC に Zr とのインサート材としてタンタル (Ta) を爆発接合後、Zr を爆発接合することで製作される^{2.2.3.1}。Ta は硝酸 (発煙硝酸を除く) に対しては優れた耐食性を示すが、アルカリ水溶液中では腐食しやすく、また、水素を吸収して容易に脆化する金属として知られている^{1.1.8}。放射性溶液 (溶解液、プルトニウム溶液等) の漏えいの原因となる可能性を評価する観点から NaOH を用いた除染作業が異材接合継手に及ぼす影響について調査するために以下の試験を計画し JAEA への委託により、平成 29 年度から令和 2 年度に実施した^{2.2.3.2-2.2.3.5}。表 2.2.3.1 に試験の概要を示す。

- (1) 水素吸収脆化試験 (NaOH 及び HNO₃ の交互浸漬が機械的特性に及ぼす影響の確認試験)
 - ① NaOH 及び HNO₃ の交互浸漬における水素吸収挙動
 - ② 水素吸収が機械的特性に及ぼす影響
- (2) 腐食試験 (NaOH 及び HNO₃ の交互浸漬が耐食性に及ぼす影響の確認試験)

本報告では、取得した試験データの概要を以下(1)及び(2)に示す。

- (1) 水素吸収脆化試験 (NaOH 及び HNO₃ の交互浸漬が機械的特性に及ぼす影響の確認試験)

腐食反応では条件 (温度、pH 及び電位) によって酸素又は水素が発生することから、Ta 材を使用している配管においては NaOH による除染に伴い水素を吸収し、機械的特性が低下することが懸念される。そこで、異材接合材試験片を対象に NaOH 溶液及び HNO₃ 溶液に交互浸漬させ、腐食挙動及び水素吸収挙動を調査した。また、NaOH 溶液に浸漬した試験片を対象に引張試験を実施し機械的特性に及ぼす影響を調査した。なお、比較材として腐食及び水素吸収挙動の調査では純 Ta 材試験片を、機械的特性に及ぼす影響の調査では電気化学的に水素チャージした純 Ta 材試験片に加えてひずみの影響を調査するために 33%冷間圧延純 Ta 材試験片及び 50%冷間圧延純 Ta 材試験片も試験に供した。

① NaOH 溶液及び HNO₃ 溶液の交互浸漬における水素吸収挙動

純 Ta 材及び実機相当（実機と同じ材質の材料を用いて同様の施工方法で製作）の異材接合材に対して NaOH と HNO₃ とを交互に浸漬する環境中において、溶液濃度及び浸漬温度をパラメータとした浸漬試験を実施した。試験条件を表 2.2.3.2 に示す。浸漬試験は NaOH 溶液浸漬-HNO₃ 溶液浸漬-NaOH 溶液浸漬-HNO₃ 溶液浸漬の順に各溶液で 48 時間実施し、各溶液での浸漬後腐食生成物が除去されないよう 1 分間の流水による水洗と室温の空気による乾燥を行った後に重量及び水素吸収量を評価し、これに及ぼす溶液濃度及び温度の影響について検討した。試験数は測定値のばらつきを考慮し 1 条件当たり 3 試料とした。交互浸漬試験の実施フローを図 2.2.3.1 に、浸漬試験装置の外観を図 2.2.3.2 に、試験片の外観を図 2.2.3.3 に、また、金属中水素量測定装置の外観を図 2.2.3.4 に、交互浸漬試験の試験条件を表 2.2.3.2 に、試験結果の例を図 2.2.3.5 に示す。

図 2.2.3.5 は、溶液温度 80°C において NaOH 溶液濃度及び HNO₃ 溶液の濃度をパラメータとした場合の交互浸漬時の試験片の Ta 部の腐食速度（腐食減量/Ta 部の表面積）及び交互浸漬後の試験片の平均水素濃度（試験片中の水素量/Ta 部の重量）の測定結果の平均値である。純 Ta 材試験片は腐食速度に比例して水素濃度も増加しており腐食反応で発生した水素を吸収していることを示しているが、異材接合材試験片は腐食するものの水素吸収が大きく抑制されていることを示している。交互浸漬試験の条件では同様の方法で測定した異材接合材試験片の浸漬試験前の水素濃度（7.8 mass ppm）と比較して試験後の水素濃度の増加は最大でも 1 mass ppm 程度であった。そこで、異材接合材の水素吸収の可能性をより明確に確認するために 7mol/L、温度 80°C の NaOH 水溶液中に 168hr 連続浸漬し、精密切断機により Ta 部のみを切り出し水素濃度を測定した。その結果、11.0、11.1 及び 12.8 mass ppm となった。同じ方法で測定した未浸漬の試験片の Ta 部の水素濃度は 6.8 mass ppm だったことから、異材接合材は長時間 NaOH 溶液に浸漬すれば水素を吸収することを示唆する結果を得た。

異材接合材は純 Ta 材に比較して水素吸収量が抑制される原因を検討するために浸漬試験と同条件の NaOH 溶液浸漬時の Ta 単体の自然浸漬電位並びに Ta と Zr 及び Ta とステンレス鋼（SUS304）とのカップリング時の Ta の電位及びガルバニック電流を測定した。試験片面積比は、Ta 対 Zr 及び Ta 対 SUS304 比として 1 : 10 とした。電気化学データ測定装置の構成模式図を図 2.2.3.6 に、また、試験結果の例を表 2.2.3.3、図 2.2.3.7 及び図 2.2.3.8 に示す。

表 2.2.3.3 は、80°C における Ta の浸漬電位の測定結果である。また、図 2.2.3.9 は NaOH 溶液中における Ta の電位-pH 線図である。測定された Ta の自然浸漬電位をこの電位-pH 線図で確認すると全て水素発生線より卑側（下）な電位にあり、浸漬するとカソード反応として水素が発生し、純 Ta 材試験片の交互浸漬試験による水素吸収挙動の結果と一致する。また、Ta 及び Zr 並びに Ta 及び SUS304 とのカップリング時の Ta の電位は Ta 単体の自然浸漬電位に比較して貴側に移行しており、Ta 部表面での水素発生や吸収が減少するこ

とを示唆する。一方、Ta 及び Zr 並びに Ta 及び SUS304 とのカップリング時の Ta のガルバニック電流については、NaOH 濃度が 7mol/L の条件の時に有意な値となる傾向が認められた。図 2.2.3.7 及び図 2.2.3.8 は 80°C における Ta 及び Zr 並びに Ta 及び SUS304 とのカップリング時の Ta のガルバニック電流の測定結果である。この結果は NaOH 溶液浸漬時に Ta が異材接合材の構成金属である SUS304 や Zr と接触するとこれらの金属が Ta より貴な腐食電位を有しカソード反応の一部を引き受けることから、Ta 部表面での水素発生や吸収が減少することを示唆する。交互浸漬試験後の異材接合材試験片の水素濃度が本試験条件の範囲内で 7mol/L の条件の時が最も小さくなったのはこの効果によるものと考えられる。

これらのことから交互浸漬試験において異材接合材試験片は腐食するものの水素吸収が抑制される結果となったのは Ta 部の電位が自然浸漬電位に比較して貴側に移行することとカソード反応の一部を Ta 以外の金属が引き受けることによるものと考えられる。

② 水素吸収が機械的特性に及ぼす影響

機械的特性評価の試験片としては、純 Ta 材試験片については異材接合材の製造時の爆着により導入されるひずみが熱時効に与える影響を検討するために 33 及び 50%の冷間圧延を施したものも供試し、電気化学的に強制的に水素チャージした。異材接合材試験片については水素チャージしたものと NaOH 溶液浸漬したものをを用いた。水素濃度が機械的特性に及ぼす影響を確認するために電気化学的水素チャージの場合については水素チャージ時間により、NaOH 溶液浸漬による場合については NaOH 溶液浸漬時間により水素濃度の調整を行い、大気中室温にて引張試験を実施し応力-変位曲線を取得した。また、試験片に吸収された水素が熱時効により機械的特性に及ぼす影響を検討するため、熱時効後の試験片についても引張試験を実施した。試験条件を表 2.2.3.4 に示す。

試験片の外観を図 2.2.3.10 に、引張試験装置の外観を図 2.2.3.11 に、熱時効装置の外観を図 2.2.3.12 に、試験結果の例を図 2.2.3.13 から図 2.2.3.23 に示す。また、交互浸漬腐食試験後の異材接合材の Ta と Zr との界面近傍における水素の二次元分布の分析結果の例を図 2.2.3.24 に示す。

図 2.2.3.13 から図 2.2.3.18 は 6 時間電気化学的に水素チャージし水素濃度が 99 mass ppm になった純 Ta 材試験片及び 71 mass ppm になった 33%冷間圧延純 Ta 材試験片並びに 100 mass ppm になった 50%冷間圧延純 Ta 材試験片の引張試験において取得した応力-変位曲線及び破断写真の例である。これらの試験結果はひずみが延性を低下させるように影響することは示してはいるものの、80°C の熱時効温度では、2000 時間までの熱時効において熱時効時間の違いによる応力-変位曲線の顕著な変化はみられなかった。また、100 mass ppm までの水素濃度では全ての試験片が降伏点を越えた塑性域での破断であった。

図 2.2.3.19 は 60 分間電気化学的に強制的に水素チャージした異材接合材試験片の引張試験において取得した応力-変位曲線である。未時効試験片の水素濃度は 36.8 mass ppm である。熱時効が機械的特性の劣化を進展させるのか回復させるのかについては確認できな

かったが、全ての試験片が降伏前の弾性域で破断し、破断部は Ta/Zr 界面接合部で脆性的に破断した。図 2.2.3.20 は 10 分間電気化学的に強制的に水素チャージした異材接合材試験片についても同様の引張試験を行い取得した応力-変位曲線である。未時効試験片の水素濃度は 9.9 mass ppm である。くびれを伴い高延性 Zr 部で破断した場合もあったが、図 2.2.3.20 に示すように降伏直後に Ta/Zr 接合界面部で脆性的に破断することもあった。

図 2.2.3.22 は 80°C、7mol/L の NaOH 溶液に 168hr 浸漬し熱時効させた異材接合材試験片及び未浸漬の異材接合材試験片の引張試験において取得した応力-変位曲線の例である。また、図 2.2.3.23 は降伏点付近で脆性的に破断した 168hr 時効の試験片の外観写真である。この浸漬試験片の水素濃度は 11.1 mass ppm である。なお、同じ浸漬条件でも時効無し試験片（水素濃度 12.8 mass ppm）及び 1000hr 時効の試験片（同 11.0 mass ppm）は延性破断であった。

よって、異材接合継手の Ta 部に水素吸収する可能性がある除染計画を評価する上では Ta 部に含有する水素濃度 10 mass ppm 前後が目安となる可能性がある。なお、才田ら^{2.2.3.1}は Ta に含有する水素が接合後に Ta/Zr 界面に拡散・集積することに着目して爆発接合前の Ta に含有する水素が接合後の Ta/Zr 接合界面での割れ発生に及ぼす影響について研究しており、標準的な爆発接合条件（爆薬量 6.0 kg/m²）では接合前の Ta の水素含有量が 10 mass ppm より多くなると水素脆化割れが発生する危険性が非常に高くなると報告している。

異材接合材が純 Ta 材に比較して少ない水素吸収で機械的特性に影響を及ぼす要因について検討するために交互浸漬腐食試験後の異材接合材の Ta と Zr との界面近傍における水素分布を二次イオン質量分析法（SIMS）により分析した。分析結果の例を図 2.2.3.24 に示す。水素分布は Zr と Ta との界面近傍の Zr と Ta とが両方存在する合金相で高くなっていることが示された。よって、異材接合材の Ta 部に吸収された水素は Ta 部に均一に分散するのではなく才田ら^{2.2.3.6}が報告しているように Ta と Zr との界面近傍に拡散・濃縮するために微量の水素であっても機械的特性に影響を及ぼすものと考えられる。

(2) 腐食試験（NaOH 及び HNO₃ の交互浸漬が耐食性に及ぼす影響の確認試験）

機器の点検や補修等の保全活動のための除染作業は再処理施設の運転期間に比較して非常に短期間であることから NaOH を使用した除染作業による腐食減肉量は有意なものにならないと考えられるが、除染作業により Ta の不動態皮膜が溶解した後に再生する表面皮膜に不純物が混入し通常運転（HNO₃ 環境中）条件において耐食性が除染作業前に比較して低下する可能性がある。そこで、アルカリ洗浄時に溶解するデポジットを模擬したモリブデンを添加した NaOH 溶液及び HNO₃ 溶液に交互浸漬させた異材接合材試験片と交互浸漬していない異材接合材試験片を対象に通常運転時の高酸化性金属イオンを含む HNO₃ 溶液を模擬したバナジウムを含む HNO₃ 溶液中で腐食試験を実施し、除染作業が異材接合材の耐食性に及ぼす影響を確認した。

表 2.2.3.1 除染作業が異材接合継手の劣化に及ぼす影響確認試験の概要

Table 2.2.3.1 Outline of experiment to confirm the effect of chemical decontamination works on the Zr/Ta/Stainless steel explosive-bonded joints deterioration.

試験	目的	取得データ	供試材	試験パラメータ
水素吸収脆化試験	NaOH 溶液及び HNO ₃ 溶液の交互浸漬における水素吸収挙動の確認	<ul style="list-style-type: none"> 腐食量 水素吸収量 電気化学特性 	<ul style="list-style-type: none"> 純 Ta 材 異材接合材 	<ul style="list-style-type: none"> NaOH 溶液及び HNO₃ の溶液濃度 液温 浸漬時間
	水素吸収が機械的特性に及ぼす影響の確認	<ul style="list-style-type: none"> 応力-ひずみ曲線 破断形状 	<ul style="list-style-type: none"> 純 Ta 材 33%冷間圧延純 Ta 材 50%冷間圧延純 Ta 材 異材接合材 	<ul style="list-style-type: none"> 水素チャージ量 熱時効温度 熱時効時間 ひずみ
腐食試験	除染作業が耐食性に及ぼす影響の確認	<ul style="list-style-type: none"> 腐食量 	<ul style="list-style-type: none"> 異材接合材 	<ul style="list-style-type: none"> モリブデン濃度

出典) JAEA (2018~2021) 2.2.3.2~2.2.3.5 を基に作成

表 2.2.3.2 NaOH 溶液及び HNO₃ 溶液の交互浸漬試験の試験条件

Table 2.2.3.2 Experimental conditions of alternating immersion test with NaOH and HNO₃.

項目	条件
溶液濃度 (mol/L)	1、3、7
溶液温度 (°C)	室温、50、80

出典) JAEA (2020) 2.2.3.4 を一部改変

表 2.2.3.3 NaOH 溶液中における Ta の浸漬電位 (液温 : 80°C)

Table 2.2.3.3 Immersion potentials of Ta in NaOH solution (Temp.: 80°C).

1mol/L			3mol/L			7mol/L		
自然浸漬	SUS 対	Zr 対	自然浸漬	SUS 対	Zr 対	自然浸漬	SUS 対	Zr 対
-1.21	-0.28	-1.10	-1.21	-0.59	-1.07	-1.30	-0.91	-1.09

(単位 : V vs. SSE)

出典) JAEA (2020) 2.2.3.4 を一部改変

表 2.2.3.4 吸収水素脆化試験の試験条件

Table 2.2.3.4 Experimental conditions of Hydrogen absorption embrittlement test.

項目	条件
水素チャージ (水素濃度)	電気化学的チャージ時間： 3 及び 6h (純 Ta 圧延材、33%冷間圧延純 Ta 材 及び 50%冷間圧延純 Ta 材) 10 及び 30 min (異材接合材) NaOH*連続浸漬時間： 0、24 及び 168h (異材接合材) * 濃度 7mol/L、液温 80°C
熱時効温度 (°C)	80、200
熱時効時間 (h)	24、168、1000 及び 2000

出典) JAEA (2018~2021) 2.2.3.2~2.2.3.5, 2.2.3.5 を基に作成



出典) JAEA (2020) 2.2.3.4

図 2.2.3.1 NaOH と HNO₃ との交互浸漬試験のフロー

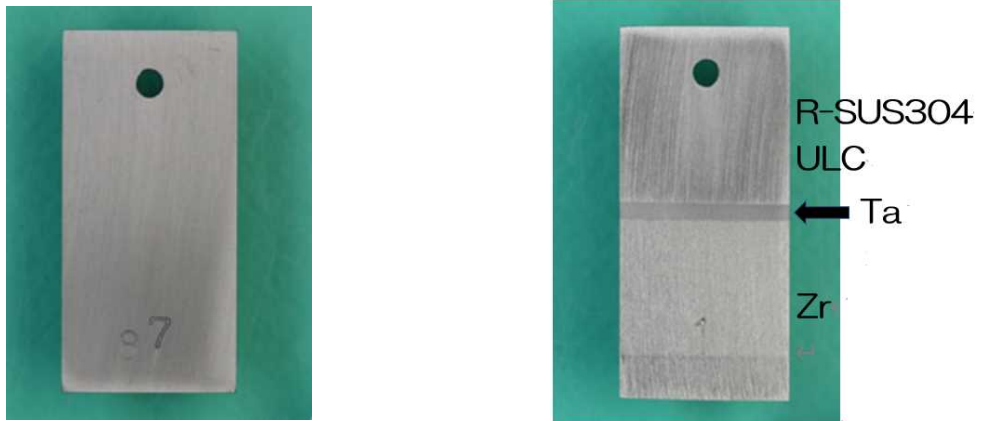
Fig. 2.2.3.1 Flow of alternating immersion test with NaOH and HNO₃.



出典) JAEA (2018) 2.2.3.2

図 2.2.3.2 浸漬試験装置

Fig. 2.2.3.2 Immersion test apparatus.



純 Ta 材

異材接合材

出典) JAEA (2020) 2.2.3.4

図 2.2.3.3 浸漬試験片外観

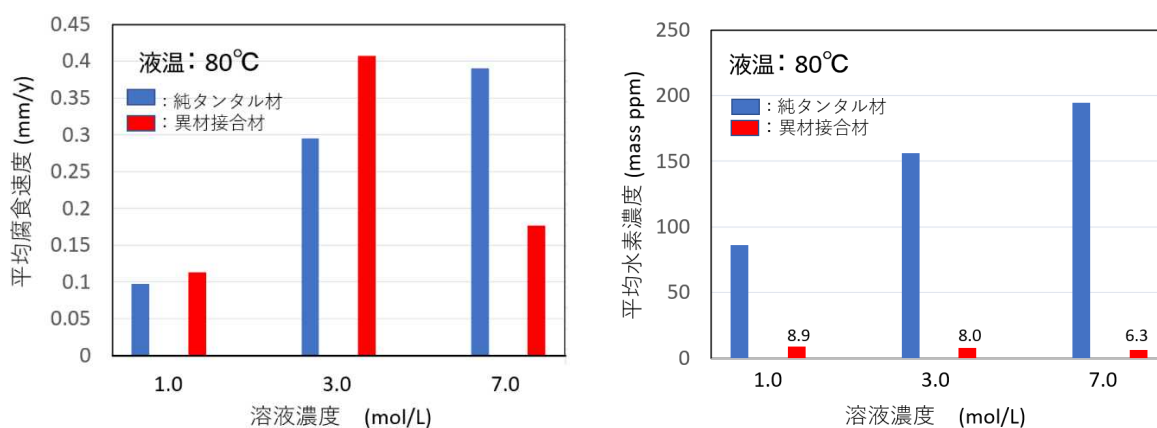
Fig. 2.2.3.3 Appearance of test specimens for immersion test.



出典) JAEA (2018) 2.2.3.2

図 2.2.3.4 昇温脱離ガス分析装置外観

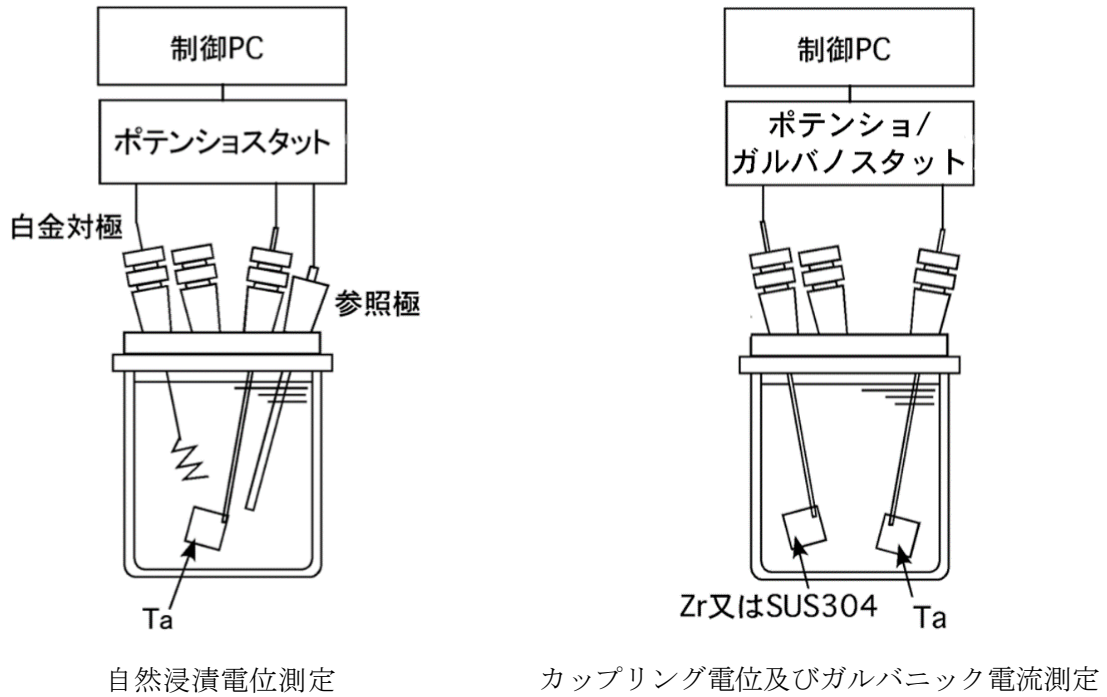
Fig. 2.2.3.4 Appearance of Thermal Desorption Spectroscopy.



出典) JAEA (2020) 2.2.2.4 (一部改変)

図 2.2.3.5 腐食挙動及び水素吸収挙動に及ぼす溶液濃度の影響

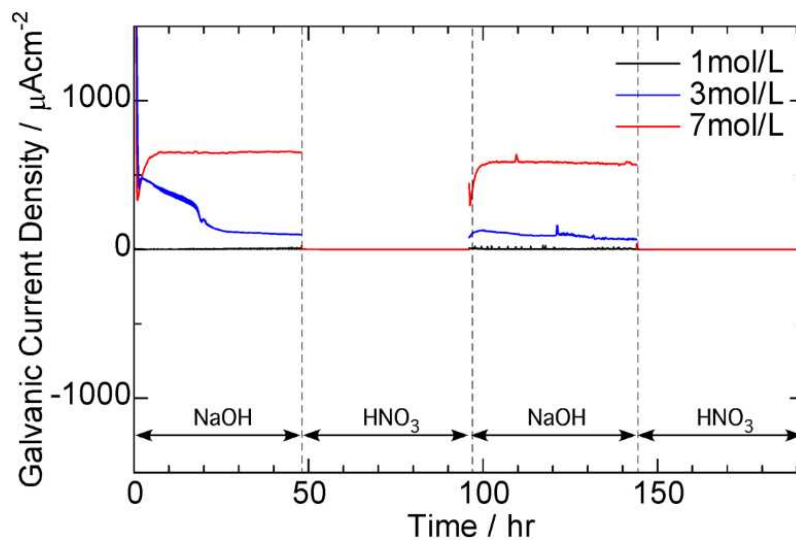
Fig. 2.2.3.5 Effect of solution concentration on corrosion rate and hydrogen absorption.



出典) JAEA (2020) 2.2.3.4

図 2.2.3.6 電気化学データ測定装置の構成模式図

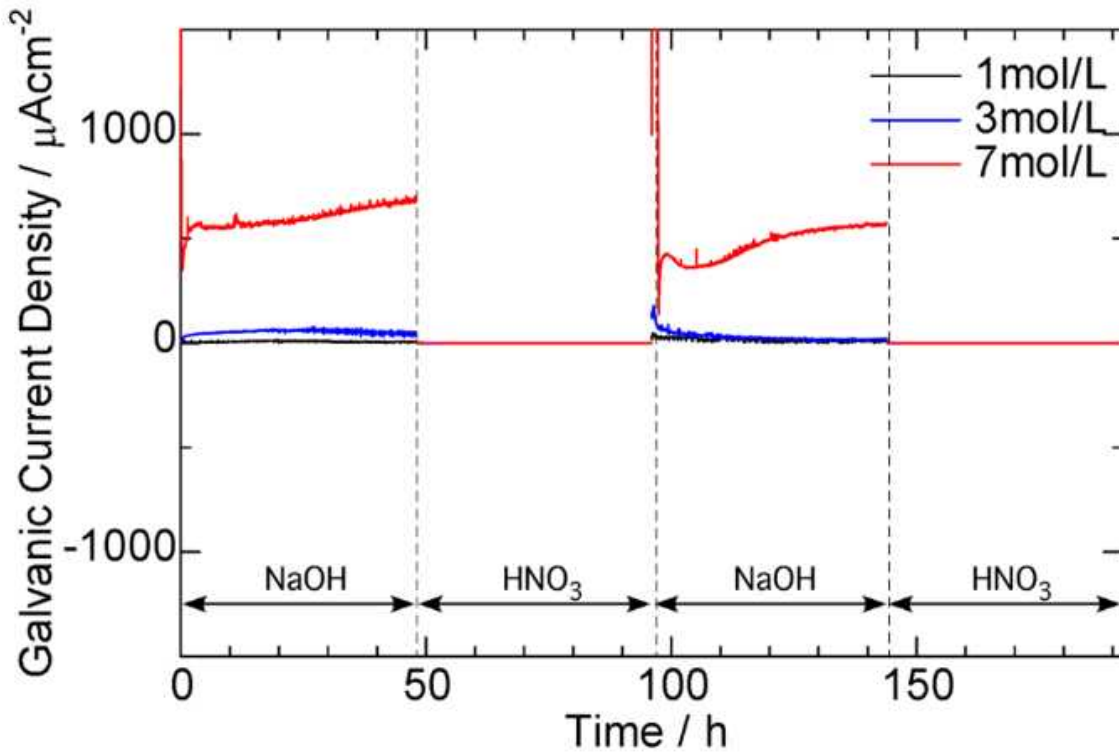
Fig.2.2.3.6 Schematic view of electrochemical test apparatus.



出典) JAEA (2020) 2.2.3.4

図 2.2.3.7 Ta-SUS304 対で測定された Ta のガルバニック電流 (80°C)

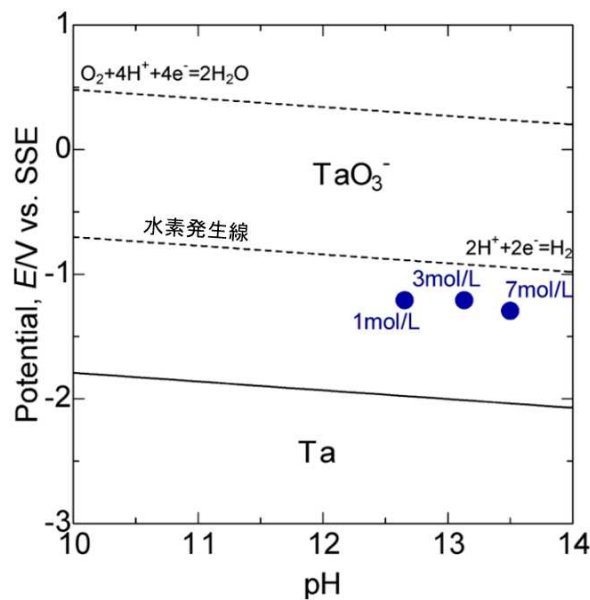
Fig. 2.2.3.7 Galvanic current of Ta measured with Ta/SUS304 coupling (Temp.: 80°C).



出典) JAEA (2020) 2.2.3.4

図 2.2.3.8 Ta-Zr 対で測定された Ta のガルバニック電流 (80°C)

Fig. 2.2.3.8 Galvanic current of Ta measured with Ta/Zr coupling (Temp.: 80°C).



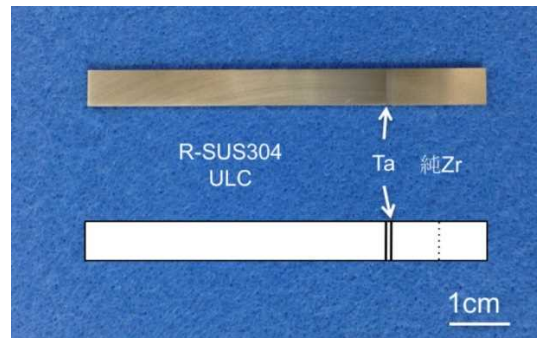
出典) JAEA (2020) 2.2.3.4 (一部改変)

図 2.2.3.9 電位 pH 線図上の種々の濃度の NaOH 溶液中における Ta の腐食電位 (液温 : 80°C)

Fig. 2.2.3.9 Corrosion potential of Ta in NaOH solutions of various concentrations on the Pourbaix diagram (Temp.: 80°C).



純 Ta 材



異材接合材

出典) JAEA (2020) 2.2.3.4 (一部改変)

図 2.2.3.10 引張試験試験片の外観

Fig. 2.2.3.10 Appearance of test specimens for tensile test.



出典) JAEA (2020) 2.2.3.4 (一部改変)

図 2.2.3.11 引張試験装置

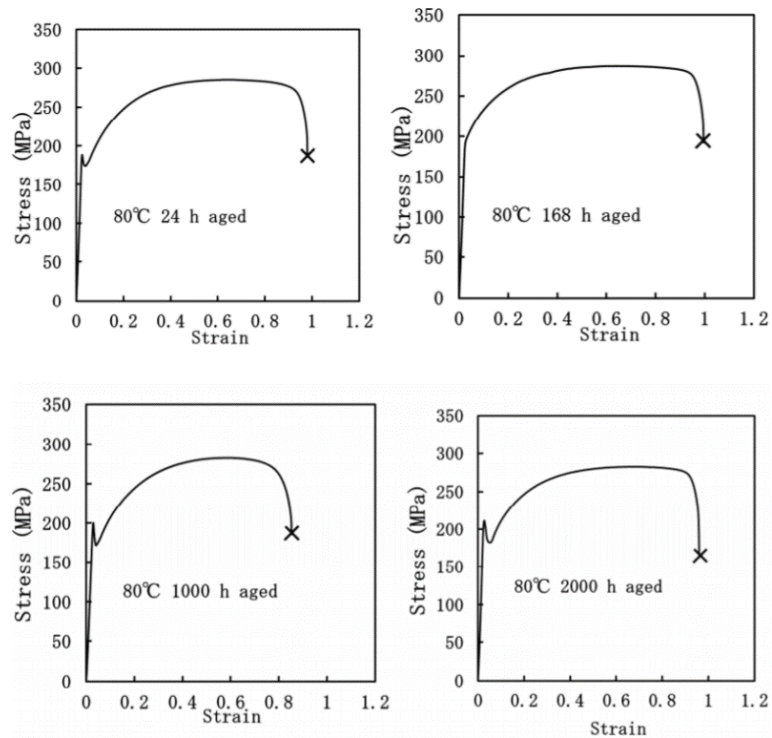
Fig. 2.2.3.11 tensile test machine.



出典) JAEA (2020) 2.2.3.4 (一部改変)

図 2.2.3.12 熱時効装置 (管状電気炉)

Fig. 2.2.3.12 Tubular electric furnace for thermal aging test.

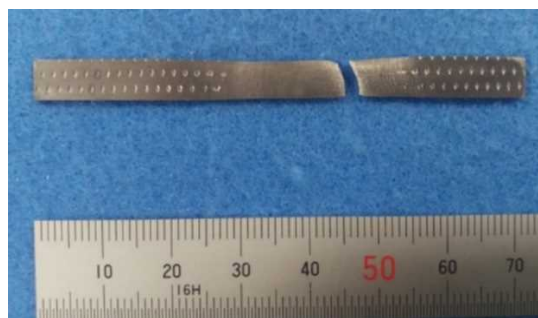


出典) JAEA (2019) 2.2.3.3

図 2.2.3.13 電気化学的水素チャージした純 Ta 材試験片の応力-ひずみ曲線
(チャージ時間 : 6h、水素濃度 : 99mass ppm、熱時効温度 80°C)

Fig. 2.2.3.13 Stress-strain diagram for pure Ta test specimens
with electrochemical hydrogen charge.

(hydrogen charging time : 6h, hydrogen concentration : 99mass ppm, thermal aging
temperature : 80°C)

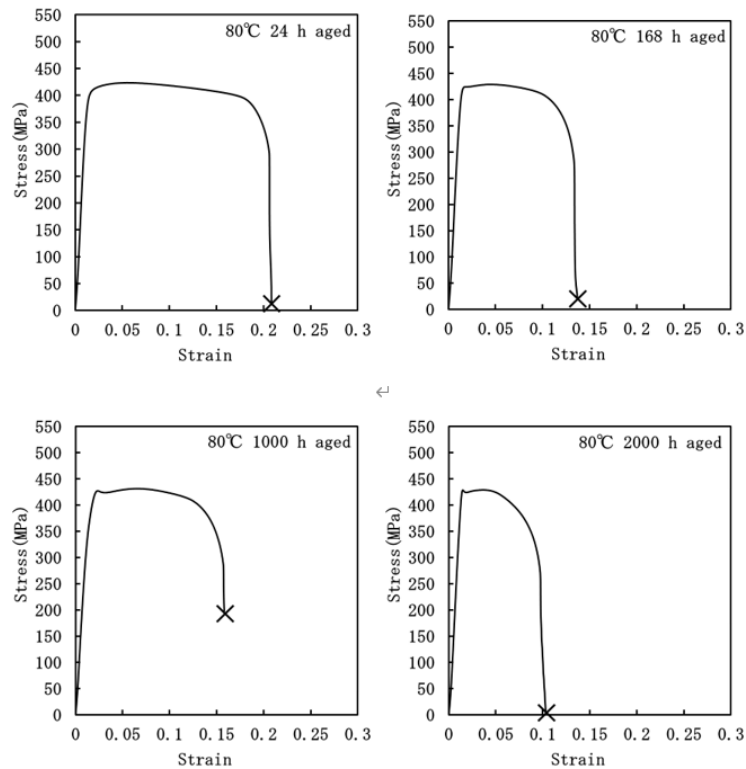


出典) JAEA (2019) 2.2.3.3

図 2.2.3.14 引張試験において破断した電気化学的水素チャージ純 Ta 板試験片の外観
(熱時効時間 : 2000h)

Fig. 2.2.3.14 Appearance of Fractured pure Ta test specimens
with electrochemical hydrogen charge in tensile test.

(thermal aging time : 2000h)

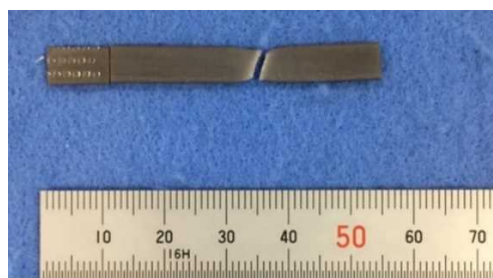


出典) JAEA (2020) 2.2.3.4

図 2.2.3.15 電気化学的水素チャージした 33%冷間圧延純 Ta 材の応力-ひずみ曲線
(チャージ時間 : 6h、水素濃度 : 71mass ppm、熱時効温度 80°C)

Fig. 2.2.3.15 Stress-strain diagram for pure 33% cold rolled Ta test specimens
with electrochemical hydrogen charge.

(hydrogen charging time : 6h, hydrogen concentration : 71mass ppm, thermal aging
temperature : 80°C)



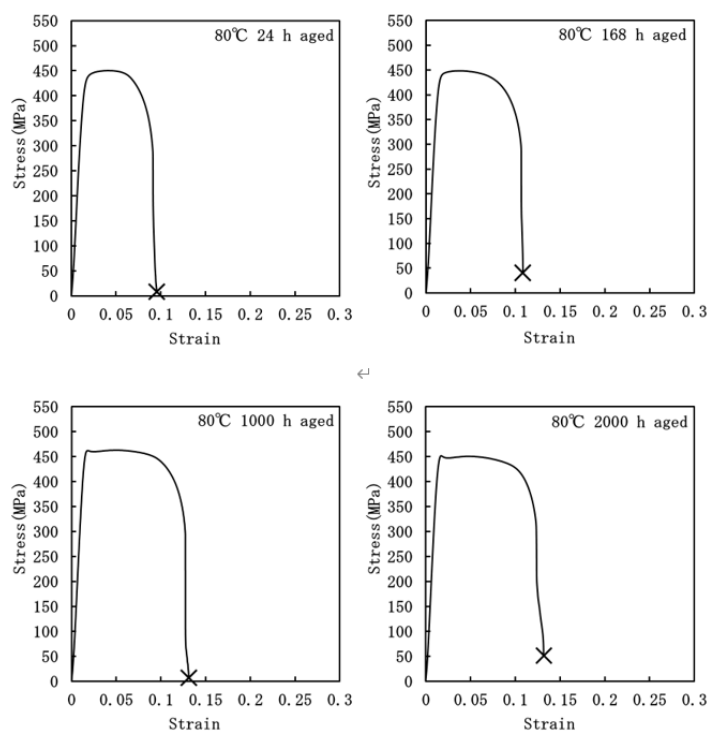
出典) JAEA (2020) 2.2.3.4

図 2.2.3.16 引張試験において破断した電気化学的水素チャージ 33%冷間圧延純 Ta 材
試験片の外観

(熱時効時間 : 2000h)

Fig. 2.2.3.16 Appearance of Fractured pure 33% cold rolled Ta test specimens
with electrochemical hydrogen charge in tensile test.

(thermal aging time : 2000h)

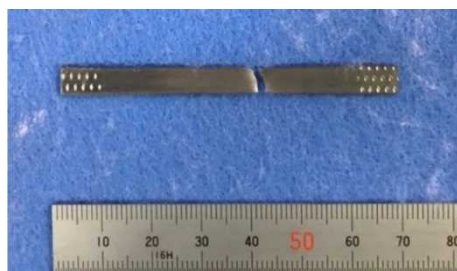


出典) JAEA (2020) 2.2.3.4

図 2.2.3.17 電気化学的水素チャージし 50%冷間圧延純 Ta 材試験片の応力-ひずみ曲線
(チャージ時間 : 6h、水素濃度 : 100mass ppm、熱時効温度 : 80°C)

Fig. 2.2.3.17 Stress-strain diagram for pure 50% cold rolled Ta test specimens
with electrochemical hydrogen charge.

(hydrogen charging time : 6h, hydrogen concentration : 100mass ppm, thermal aging
temperature : 80°C)

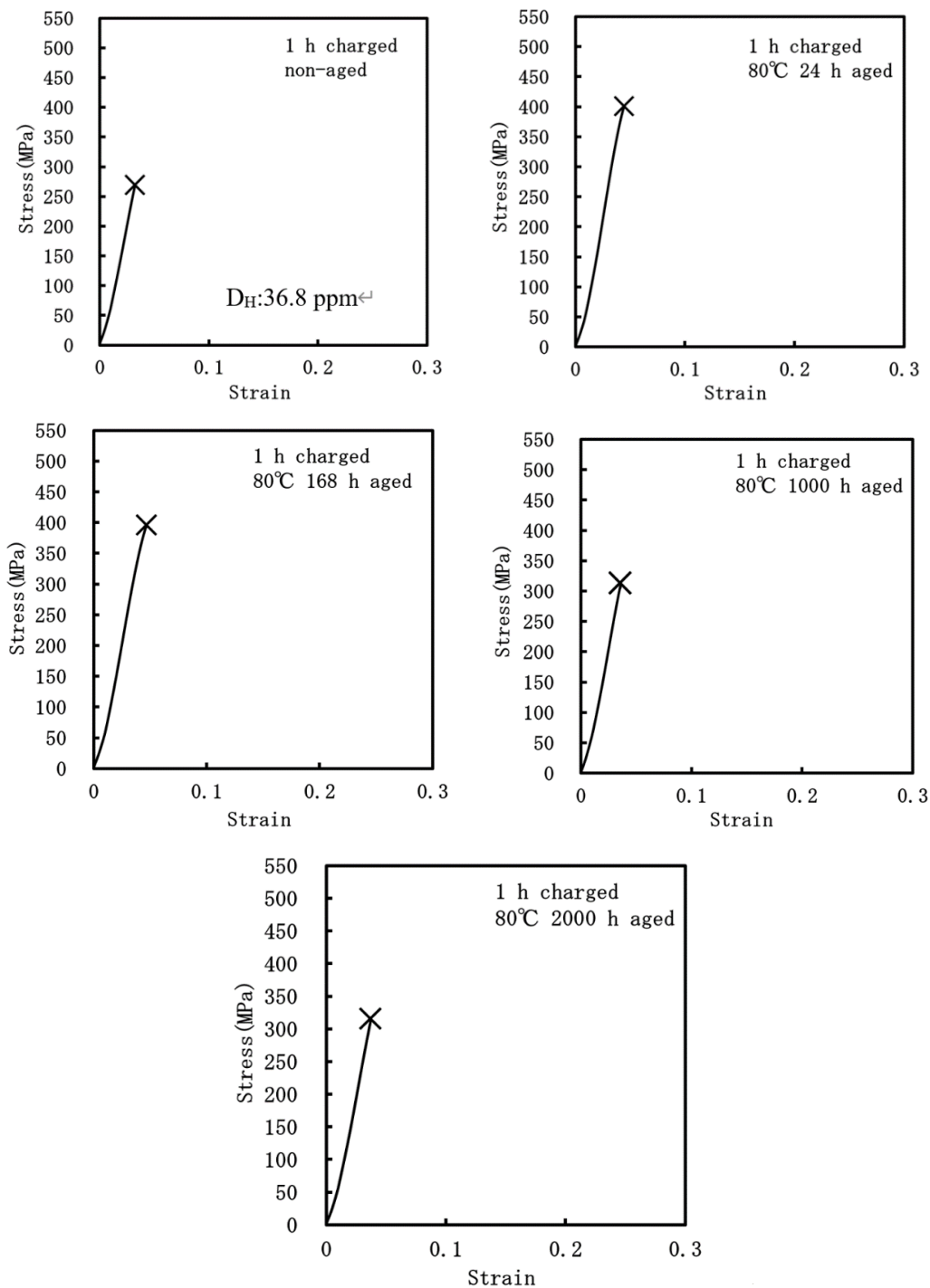


出典) JAEA (2020) 2.2.3.4

図 2.2.3.18 引張試験において破断した電気化学的水素チャージした 50%冷間圧延純 Ta
板材試験片の外観
(熱時効時間 : 2000h)

Fig. 2.2.3.18 Appearance of Fractured pure 50% cold rolled Ta test specimens
with electrochemical hydrogen charge in tensile test.

(thermal aging time : 2000h)

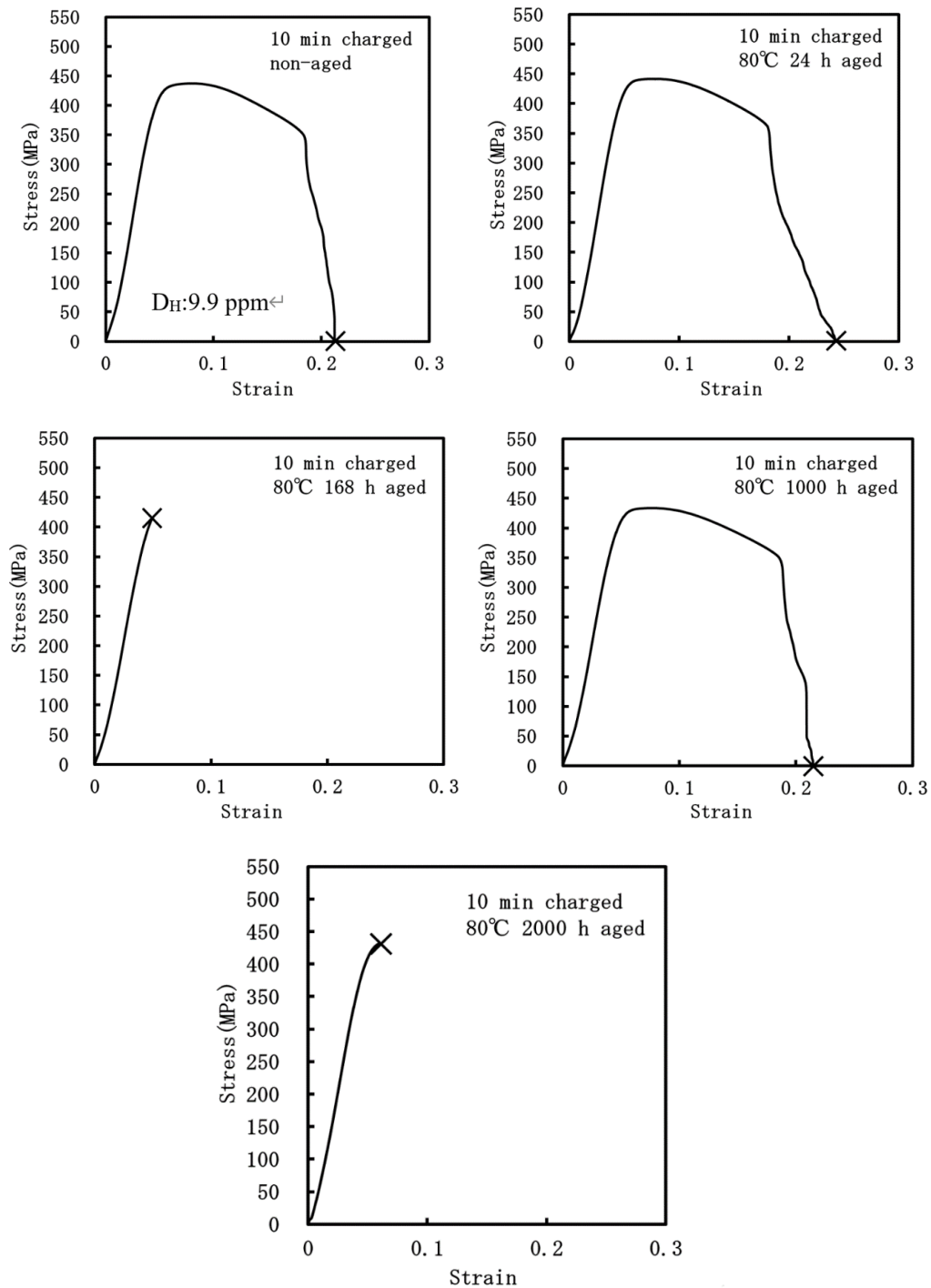


出典) JAEA (2020) 2.2.3.4

図 2.2.3.19 電気化学的水素チャージした異材接合材試験片の応力-ひずみ曲線
(チャージ時間 : 1h、水素濃度 : 36.8mass ppm、熱時効温度 : 80°C 時効)

Fig. 2.2.3.19 Stress-strain diagram for SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded joint test specimens with electrochemical hydrogen charge.

(hydrogen charging time : 1h, hydrogen concentration : 36.8mass ppm, thermal aging temperature : 80°C)

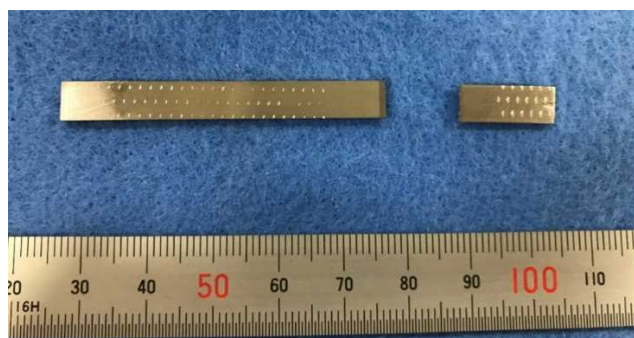


出典) JAEA (2020) 2.2.3.4

図 2.2.3.20 電気化学的水素チャージした異材接合材試験片の応力-ひずみ曲線
(チャージ時間 : 10min、水素濃度 : 9.9mass ppm、熱時効温度 : 80°C)

Fig. 2.2.3.20 Stress-strain diagram for SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded joint test specimens with electrochemical hydrogen charge.

(hydrogen charging time : 10min, hydrogen concentration : 9.9mass ppm, thermal aging temperature : 80°C)



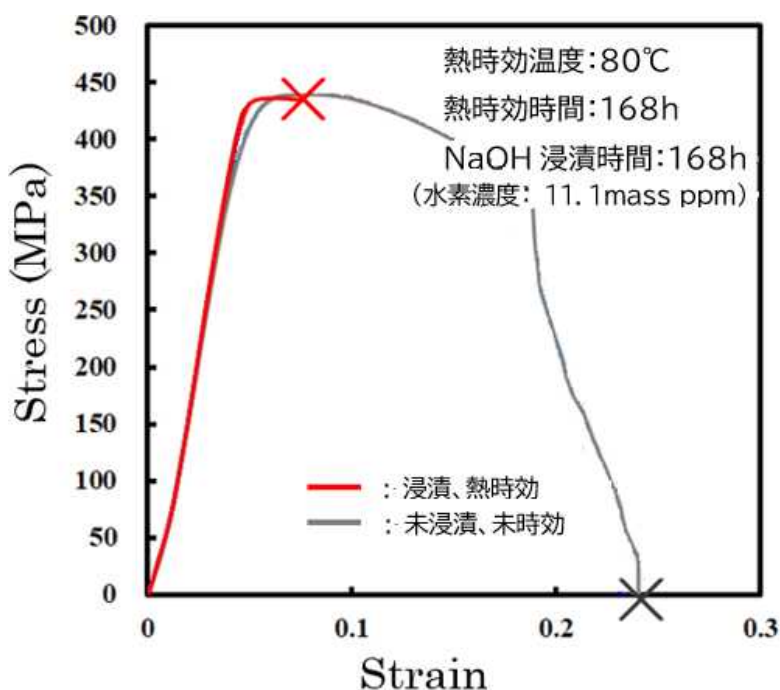
出典) JAEA (2020) 2.2.3.4

図 2.2.3.21 引張試験において破断した電気化学的水素チャージした異材接合材試験片の外観

(チャージ時間 : 10min、熱時効温度 : 80°C、熱時効時間 : 168h)

Fig. 2.2.3.21 Appearance of Fractured SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded joint test specimens with electrochemical hydrogen charge in tensile test.

(hydrogen charging time : 10min, thermal aging temperature : 80°C、thermal aging time : 168h)



出典) JAEA (2021) 2.2.3.5

図 2.2.3.22 NaOH 溶液浸漬した異材接合材試験片の応力-ひずみ曲線 (濃度 : 7mol/L、浸漬時間 : 168h)

Fig. 2.2.3.22 Stress-strain diagram for SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded joint test specimens immersed in NaOH solution.

(solution concentration : 7mol/L, immersion time : 168h)

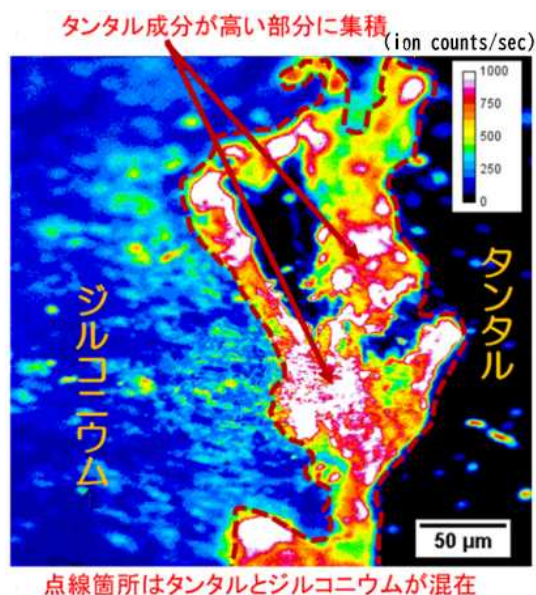


出典) JAEA (2021) 2.2.3.5

図 2.2.3.23 引張試験において破断した NaOH 浸漬した異材接合材試験片の外観
(浸漬時間 : 168h、熱時効温度 : 80°C、時効時間 : 168h)

Fig. 2.2.3.23 Appearance of Fractured SUS304ULC/Ta/Zr explosive bonded joint test specimens immersed in NaOH solution in tensile test.

(immersion time : 168h, thermal aging temperature : 80°C, aging time : 168h)



出典) JAEA (2020) 2.2.3.4 (一部改変)

図 2.2.3.24 SIMS 分析により得られた交互浸漬腐食試験後の異材接合材の Ta と Zr との
界面近傍における水素の二次元分布
(溶液濃度 : 7mol/L、溶液温度 : 80°C)

Fig. 2.2.3.24 SIMS images of the hydrogen distribution in surface of explosive-bonded joint specimens after alternating immersion test with NaOH and HNO₃.
(solution concentration : 7mol/L, solution temperature : 80°C)

3. 結論

3.1 成果の要点

(1) 内部火災等を起因としたリスク評価手法の検討

本研究では加工施設及び再処理施設におけるリスク評価手法の整備を目的とし、内部火災を対象としたリスク評価手法の検討を行い、MOX 燃料加工施設及び再処理施設の内部火災リスク評価のための手順案を作成した。

(2) リスク評価に向けた重大事故等に関する技術的検討

リスク評価では、事故事象の進展シナリオ及び影響の大きさを把握することが重要であり、これらを解析・評価するための解析手法の整備及び関係するデータの取得が必要である。ここでは、MOX 燃料加工施設における GB 火災、再処理施設における有機溶媒火災及び蒸発乾固事象並びに機器の経年劣化に着目し、試験又は解析等により下記に記す成果を得た。

① MOX 燃料加工施設における GB 火災

GB の核燃料物質等を閉じ込める機能の喪失に係る GB パネル構成材料の熱分解特性データ及び GB パネル材の燃焼特性データ並びにばい煙による HEPA フィルタへの目詰まりデータを取得し、これらのデータを分析することにより、熱分解及び燃焼による GB パネル材等の質量減少速度等の解析モデルを整備した^{2.2.1.16-2.2.1.18}。また、代表的な GB 火災シナリオを用いて、解析コードを用いた火災影響評価の試験解析を実施したことにより、火災影響評価を実施する上での留意点・着眼点及び課題点を抽出した。これらのデータや知見は、GB 火災における事象進展シナリオの検討や火災影響評価に資することができる。

② 再処理施設における有機溶媒火災

再処理施設で使用される有機溶媒の火災時に発生するばい煙の負荷による HEPA フィルタの差圧上昇に関するデータを取得した^{2.2.1.16}。これらのデータは、再処理施設の有機溶媒火災における事象進展シナリオの検討に資することができる。

③ 再処理施設における蒸発乾固事象

蒸発乾固事象では、NO_x を含む様々の気相条件を対象とした際の揮発性 Ru の熱分解、水蒸気の凝縮等による揮発性 Ru の気相から液相への移行挙動、高レベル濃縮廃液中に共存し Ru の挙動に影響を与える可能性のある物質等を考慮したデータを取得した^{2.2.2.2-2.2.2.4}。また、これらのデータを用い、蒸発乾固事象の事象進展シナリオに応じた放射性物質の移行挙動の特性を整理した。これらは蒸発乾固事象における事象進展シナリオの検討に資することができる。

④ 再処理施設の機器の経年劣化

機器の経年劣化では、NaOH 溶液によるタンタルのアルカリ腐食に伴って発生する水素が異材接合材の機械的特性に及ぼす影響を評価するデータ及びタンタルのアルカリ腐食が酸化性金属イオンを含む硝酸溶液中における異材接合材の耐食性に及ぼす影響を評価するデータを取得した^{2.2.3.2-2.2.3.5}。また、これらのデータを分析することによりその特徴を整理した。これらは再処理施設における異材接合材を用いた機器への除染作業による影響の検討に資することができる。

3.2 目的の達成状況

内部火災等を起因としたリスク評価手法の検討では、加工施設及び再処理施設の内部火災を起因とするリスク評価の実施手法の検討を行い、内部火災リスク評価の手順案を作成し、目的を達成した。

GB 火災については、GB の核燃料物質等を閉じ込める機能の喪失に係るデータを取得して熱分解及び燃焼による GB パネル材等の質量減少速度等の解析モデルを整備したとともに、GB 火災の火災影響評価手法の整備のため、解析コードの妥当性確認のほか、係る留意点・着眼点及び課題点を抽出し、目的を達成した。

有機溶媒火災については、有機溶媒の燃焼と HEPA フィルタの差圧上昇に関するデータを取得し、両者の関係を明確することにより実機相当のフィルタを対象とした閉じ込め性に関する知見を拡充し、目的を達成した。

蒸発乾固事象では、NO_x を含む様々の気相条件を対象とした際の揮発性 Ru の熱分解、水蒸気の凝縮等による揮発性 Ru の気相から液相への移行挙動、高レベル濃縮廃液中に共存し Ru の挙動に影響を与える可能性のある物質等を考慮したデータを取得し、放射性物質の移行挙動の特性を整理し、目的を達成した。

機器の経年劣化では、NaOH 溶液が異材接合材の機械的特性及び耐食性に及ぼす影響を評価するデータを取得し、これらのデータを分析することによりその特徴を整理し、目的を達成した。

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）

- ① 吉田、他、再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での FP 硝酸塩の脱硝に伴い発生する NO_x の化学的挙動解析、日本原子力学会和文論文誌、Vol.18、No.2、pp.69-80(2019).
- ② 吉田、他、Decomposition behavior of gaseous ruthenium tetroxide under atmospheric conditions assuming evaporation to dryness accident of high-level liquid waste、日本原子力学会英文論

文誌 Journal of Nuclear Science and Technology、2020.6.28

- ③ 吉田、他、Restraint effect of coexisting nitrite ion in simulates high level liquid waste on releasing volatile ruthenium under boiling condition、日本原子力学会英文論文誌 Journal of Nuclear Science and Technology、2020.12.12

(2) その他

- ① 入澤、他、Effect of oxidizing metallic ions on corrosion of stainless steel during concentration process simulating High-level Activity Liquid Waste (HALW) concentrator、European Corrosion Congress (EUROCORR2017)
- ② 金田 (九工大)、他、水素チャージ直後の Ta-Zr 合金の水素脆化挙動、日本金属学会 2017 年秋季講演大会 (第 161 回)
- ③ 石島、他、硝酸中 γ 線照射試験による異種金属接合材の放射線分解水素吸収挙動、QST 高崎サイエンスフェスタ 2017
- ④ 金田 (九工大)、他、水素吸収した Ta-Zr 合金の水素脆化挙動に及ぼす時効の影響、日本金属学会 2018 年春期大会
- ⑤ 金田 (九工大)、他、純 Ta の昇音水素放出挙動に及ぼす測定雰囲気の影響、日本金属学会 2018 年秋期大会
- ⑥ 石島、他、Ta の NaOH 水溶液中における腐食挙動の時間依存性、腐食防食学会 第 65 回材料と環境討論会
- ⑦ 檜山、他、SCHERN:再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での NO_x の化学挙動解析プログラム、JAEA-Data/Code 2019-006
- ⑧ 石島、他、Ta の NaOH 水溶液中における腐食挙動の温度依存性、腐食防食学会 第 66 回材料と環境討論会
- ⑨ 吉田、他、気体状四酸化ルテニウムの化学形変化挙動に与える窒素酸化物の影響、JAEA-Research 2020-014
- ⑩ 中鉢、他、Ta/Zr 爆発接合部の水素脆化挙動に及ぼす時効の影響、2020 年秋金属学会

3.4 成果の活用等

(1) プロジェクト期間内

本研究の成果は、日本原燃株式会社再処理事業所六ヶ所再処理施設^{3.1}^{3.3}及び同事業所 MOX燃料加工施設の新規制基準適合性に係る審査のための技術的な判断材料として活用された。

(2) 今後の見通し

本研究で得られた科学的・技術的知見は、再処理施設及び MOX 燃料加工施設を対象に実施される原子力規制検査等における確認の技術的根拠の一部として活用できるものと考えられる。

3.5 今後の課題等

GB 火災に係る研究では、本研究の成果として、小規模、中規模試験等により、「GB 構成材料の熱分解特性及び燃焼特性」、「ばい煙等のフィルタへの影響」等に関する基礎的な知見を取得した。一方、実規模の GB における燃焼挙動等に関する知見は得ていない。

また、蒸発乾固事象に係る研究では、R2 年度までの研究では、Ru の移行挙動に着目して、「沸騰初期段階」から「乾固段階」までにおける「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」等に関する一連の試験データ等を取得したただし、Ru の移行挙動及び化学吸収効果については、これらを取り巻く主要な環境条件下での知見であるが、全ての環境条件を網羅したものではない。また、「乾固後の温度上昇段階」の放射性物質（Cs 等）の移行挙動に関する知見は得ていない。

今後の研究にあたっては、これらの本研究における知見の取得状況や、再処理施設及び MOX 燃料加工施設の新規制基準適合性に係る審査の知見を踏まえた上で、施設全体でのリスクの所在等を考慮した知見の取得について、さらなる検討を進めていく必要がある。

参考文献一覧

- 1.1.1 原子力規制委員会、加工施設及び再処理施設の安全性向上評価に関する運用ガイド、原管研発第 1311279 号、平成 25 年 11 月 27 日。
- 1.1.2 原子力規制委員会、実用発電用原子炉の安全性向上評価に関する運用ガイド、制定 原規技発 1311273 号 平成 25 年 11 月 27 日、改正 原規規発第 20033110 号 令和 2 年 3 月 31 日。
- 1.1.3 原子力規制委員会、ウラン加工施設の安全性向上評価に関する運用ガイド、制定 原規規発第 1903062 号 平成 31 年 3 月 6 日、改正 原規規発第 20033110 号 令和 2 年 3 月 31 日。
- 1.1.4 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.
- 1.1.5 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：重大事故等の拡大防止等)、令和 2 年 7 月 27 日。
- 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 26 年 2 月。
- 1.1.7 榎彰:彰再処理工場のセル等における除染について”, 動燃技報, 52, pp. 86-93 (1984).
- 1.1.8 腐食防食協会編、腐食・防食ハンドブック (2000) .
- 1.1.9 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 44 条の 2 第 1 項第 2 号及び第 4 号関連)、令和 2 年 7 月 29 日。
- 2.1.1.1 高梨光博、横塚宗之、森憲治、山手一記、加工施設及び再処理施設に対するリスク評価手法に係る検討(1)リスク評価実施手法について、日本原子力学会 2016年秋の大会予稿集 2G18、2016年9月。
- 2.1.1.2 横塚宗之、高梨光博、佐々木憲明、山手一記、加工施設及び再処理施設に対するリスク評価手法に係る検討(2)複数の重大事故の同時発生について、日本原子力学会2016年秋の大会予稿集 2G19、2016年9月。
- 2.1.1.3 森 憲治、山田隆、山手一記、加工施設及び再処理施設に対するリスク評価手法に係る検討(3) 簡易ハイブリッド法の課題について、日本原子力学会2016年秋の大会予稿集 2G20、2016年9月。
- 2.1.2.1 一般社団法人日本原子力学会、日本原子力学会核燃料施設に対するリスク評価に関する実施基準：2018、AESJ-SC-P011:2018、2019年3月。
- 2.1.2.2 玉内義一、小路達郎、武部和巳他、六ヶ所再処理工場の確率論的安全評価、(I) プルトニウム濃縮液貯槽における水素掃気機能喪失の発生頻度評価(内的事

- 象)、日本原子力学会和文論文誌Vol.5, No.4, p.334-346, 2006.
- 2.1.2.3 宮田敬士、武部和巳、玉内義一他、六ヶ所再処理工場の確率論的安全評価、(Ⅱ)高レベル濃縮廃液沸とう事故の発生頻度評価(内的事象)、日本原子力学会和文論文誌Vol.7, No.2, p.85-98, 2008.
- 2.1.2.4 玉内義一、瀬川智史、林芳昭他、六ヶ所再処理工場の確率論的安全評価、(Ⅲ)セル内有機溶媒火災(内的事象)、日本原子力学会和文論文誌Vol.10, No.3, p.170-184, 2011.
- 2.1.2.5 瀬川智史、武部和巳、関根啓二、六ヶ所再処理工場の地震を起因とするリスク概観の把握(1)評価手法の把握、日本原子力学会2014年秋の大会予稿集 I06、2014年9月.
- 2.1.2.6 武部和巳、瀬川智史、関根啓二、六ヶ所再処理工場の地震を起因とするリスク概観の把握(2)評価事象の選定と評価結果、日本原子力学会2014年秋の大会予稿集 I07、2014年9月.
- 2.1.2.7 独立行政法人原子力安全基盤機構、平成21年度火災・溢水影響評価手法の整備、10原確報-0016、平成23年7月.
- 2.1.2.8 原子力規制委員会、原子力発電所の内部火災影響評価ガイド、原規技発第1707195号、平成29年7月改正.
- 2.1.2.9 一般社団法人日本原子力学会、日本原子力学会標準原子力発電所の内部火災を起因とした確率論的リスク評価に関する実施基準: 2014、AESJ-SC-RK007: 2014、2014年9月.
- 2.1.2.10 EPRI/NRC-RES, Fire PRA Methodology for Nuclear Power Facilities, NUREG/CR-6850, September 2005(Volume 1 and 2), September 2010(Supplement 1).
- 2.1.2.11 一般財団法人電力中央研究所、国内原子力発電プラントを対象とした火災PRAガイドの策定、o20001、2020年6月.
- 2.2.1.1 IRSN, Users guide of the SYLVIA v10 software.
- 2.2.1.2. SYLVIA Development Team, Physical modelling of the release v10 of the SYLVIA software, Rapport IRSN/2019-00270, June 2019.
- 2.2.1.3 IRSN, ISIS V5: Physical Modelling, Rapport no PSN-RES/SA2I/2017-00333.
- 2.2.1.4 J.-P. JORET, Documentation générale de SYLIS v1.0 Couplage ISIS/SYLVIA, Rapport no PSN-RES/SA2I/2013-00400, March 2014.
- 2.2.1.5 Matsuyama K. et al, Experimental Study on Fire Behavior in Compartment under Mechanical Ventilated Conditions - the Effects of Air Inlet Position - , Fire Science and Technology (2015), pp.111-119.
- 2.2.1.6 佐野理志、白井孝治、服部康男、須藤仁及び土野進、「換気系条件下における密閉空間内の火災影響挙動把握と火災予測手法の検討」、日本原子力学会和文論文誌、Vol. 12、No. 1、p. 32-42、2013年.

- 2.2.1.7 (独) 原子力安全基盤機構、「平成 23 年度核燃料施設火災防護等調査・試験に係わる調査報告書」、平成 25 年 1 月。
- 2.2.1.8 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。
- 2.2.1.9 日本原燃株式会社、「MOX燃料加工施設における新規基準への適合性について」、平成31年4月23日。
- 2.2.1.10 日本原燃株式会社、「MOX燃料加工施設における新規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。
- 2.2.1.11 日本原燃株式会社、「MOX燃料加工施設における新規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。
- 2.2.1.12 日本原燃株式会社、「MOX燃料加工施設における新規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。
- 2.2.1.13 日本産業規格(JIS, “プラスチック—酸素指数による燃焼性の試験方法”)、JISK7201 1999.
- 2.2.1.14 K. M. Grattan, S. Hostikka, R. M. Dermott, J. Floyd, M. Vanella, “Fire Dynamics Simulator User s Guide”, NIST Special Publication 1019 Sixth Edition (2013).
- 2.2.1.15 I. A. Zlochower, G. M. Green, “The limiting oxygen concentration and flammability limits of gases and gas mixtures”, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, 22, 4, 499-505 (2009).
- 2.2.1.16 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(再処理施設における火災事故時影響評価試験)事業受託業務成果報告書、平成30年3月。
- 2.2.1.17 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(再処理施設における火災事故時影響評価試験)事業報告書、平成31年3月。
- 2.2.1.18 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成31年度原子力施設等防災対策等委託費(再処理施設における火災事故時影響評価試験)事業報告書、令和2年3月。
- 2.2.1.19 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成28年度原子力施設等防災対策等委託費(再処理施設における火災事故時影響評価試験)事業報告書、平成29年3月。
- 2.2.2.1 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)第一条の三第二号。
- 2.2.2.2 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試験等)事業 事業報告書、平成30年3月。

- 2.2.2.3 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、平成31年3月。
- 2.2.2.4 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成31年度原子力施設等防災対策等委託費（再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等）事業 事業報告書、令和2年3月。
- 2.2.2.5 Kato, T., Usami, T., Tsukada, T., Shibata, Y. & Kodama, T. Study on volatilization mechanism of ruthenium tetroxide from nitrosyl ruthenium nitrate by using mass spectrometer. *J. Nucl. Mater.* Vol.479, 2016, pp.123–129.
- 2.2.2.6 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成28年度原子力施設等防災対策等委託費（再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等）事業 事業報告書、平成29年3月。
- 2.2.2.7 R. O. Gauntt et al., MELCOR Computer Code Manuals, Vol. 2: Reference Manuals, Version 1.8.5 May 2000, NUREG/CR-6119, Vol. 2, Rev. 2, SAND2000-2417/2 (2000).
- 2.2.2.8 桧山美奈他、“SCHERN：再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故でのNO_xの化学的挙動解析プログラム”、JAEA-Data/Code 2019-006（2019）。
- 2.2.2.9 日本原燃、第194回核燃料施設等の新規規制基準適合性に係る審査会合 資料3（2）【重大事故等対処施設】重大事故等への具体的対処と有効性評価（1／3）（2017）。
- 2.2.2.10 Philippe, M., Mercier, J. P., Gue, J. P., Behavior of ruthenium in the case of shutdown of the cooling system of HLLW storage tanks, *Proc. 21st DOE/NRC Nuclear Air Cleaning Conference*, 1991, pp.831–843.
- 2.2.2.11 Tashiro, S. et al. Release Characteristics of Ruthenium from Highly Active Liquid Waste in Drying Step [JAPANESE]. *Trans. At. Energy Soc. Japan* 14, 227 - 234（2015）。
- 2.2.3.1 才田一幸、藤本哲哉、西本和俊、“Ta/Zr 接合界面における水素脆化防止に対する施工指針の提案”、溶接学会論文集、28(2)、pp. 248-254、2010。
- 2.2.3.2 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（商用再処理施設の経年変化に関する研究）事業 事業報告書、平成30年3月。
- 2.2.3.3 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（商用再処理施設の経年変化に関する研究）事業 事業報告書、平成31年3月。
- 2.2.3.4 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成31年度原子力施設等防災対策等委託費（商用再処理施設の経年変化に関する研究）事業 事業報告書、令和2年3月。

- 2.2.3.5 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、令和2年度原子力施設等防災対策等委託費（商用再処理施設の経年変化に関する研究）事業 事業報告書、令和3年3月.
- 2.2.3.6 才田一幸、藤本哲哉、西本和俊、“Ta/Zr接合界面における水素拡散および水素化物析出の計算機シミュレーション”、溶接学会論文集、28(2)、pp. 236-247、2010.
- 3.1 日本原燃、第412回核燃料施設等の新規制基準適合性に係るヒアリング 資料1【重大事故等対処施設】経路放出及び管理放出の補足説明 (2019).
- 3.2 日本原燃、第294回核燃料施設等の新規制基準適合性に係る審査会合 資料3【重大事故等対処施設】重大事故対策に係る管理放出について(2019).
- 3.3 日本原燃、第257回核燃料施設等の新規制基準適合性に係る審査会合 資料2-2【重大事故等対処施設】第35条：蒸発乾固に係る評価の再整理(2019).

執筆者一覧

原子力規制庁	長官官房	技術基盤グループ	核燃料廃棄物研究部門
森	憲治	主任技術研究調査官	
横塚	宗之	技術研究調査官	
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	
寺垣	俊男	技術研究調査官	
久保田	和雄	統括技術研究調査官	
野島	康夫	技術参与	