

# 再処理施設及びMOX燃料加工施設における 重大事故等の事象進展に係る研究

中間評価 説明資料

令和5年4月 原子力規制庁長官官房技術基盤グループ システム安全研究部門



### 目次

- 1. 背景•目的
- 2. 研究概要
- 3. 研究期間を通じた主要成果
- 4. まとめ
- 5. 成果の活用について
- 6. 成果の公表等
- 7. 成果目標に対する達成状況
- 8. 今後の展開



# 1. 背景•目的(1/2)

- 令和2年度4月から施行された原子力規制検査では、検査の実施方針、検査指摘事項の重要度評価等において、合理的な範囲でリスク情報を活用し、効率的かつ効果的な検査の実施に努めることとされている。
- このようなリスク情報を得るに当たっては、想定される重大事故シナリオの不確かさ を低減することが重要である。
- ➤ 不確かさの低減においては、事故シナリオを過度に保守的となることなく定量的に 構築するためのデータや解析コード(以下「データ等」という。)が必要になる。
- ▶ 既往の安全研究プロジェクトにおいても不確かさを低減したデータ等の整備を行ってきたが、既往の安全研究プロジェクトでは網羅されておらず、かつ影響度の大きい事故シナリオの整備から得られたデータ等と、既に得られているデータ等とを合わせて得られるリスク情報は、検査の実施方針の作成及び検査指摘事項の重要度評価結果に含まれる不確かさの低減に活用できることから、効率的かつ効果的な検査の実施のために重要である。



# 1.背景•目的(2/2)

▶ 以上を踏まえ、再処理施設及びMOX燃料加工施設における事故シナリオの不確かさの 低減を目的として、以下の理由で、蒸発乾固事象とグローブボックス(GB)火災を研究 対象とした。

### (1) 蒸発乾固事象に関する研究

再処理施設における重大事故の一つとして「高レベル廃液等を含む貯槽及び濃縮缶の 冷却機能喪失事象」が挙げられており、対策が取られていなかった場合、高レベル廃液 の蒸発乾固事象の発生に至るおそれがある。蒸発乾固事象は他の事象と比較して放 射性物質の気相への移行割合が大きいものと考えられる又は他の原子力施設とは異 なる知見が必要である、などから他の事象よりも研究の優先度が高いと判断した。

### (2) GB火災に関する研究

加工施設における重大事故の一つとして「核燃料物質等を閉じ込める機能の喪失」が挙げられている。MOX燃料加工施設での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、その駆動力としてMOX燃料粉末を内包するGBの火災が考えられる。GBは有機材料で構成されており火災源となるおそれがあり、また、施設内の広範な領域に多数基設置されていることから、研究の優先度が高いと判断した。



# 2. 研究の概要(1/3)

先述の目的のため既往の安全研究プロジェクトで網羅されていない下記データ等の取得を実施する。

#### (1) 蒸発乾固事象に関する研究

- ▶ 「沸騰初期段階」、「沸騰晩期段階」及び「乾固段階」において、再処理施設の重大事故対策の緩和対策やその際に想定される機器設備の環境を踏まえた条件下でのRu移行挙動データを取得するとともに、放出経路中での移行挙動において重要である凝縮液へのRuの化学吸収効果について、データの拡充を行う。
  - ◆ 気相温度、NOx等共存ガス、壁面の影響等を考慮した気体状Ruの熱分解の把握試験
  - ◆ Ruの気相への移行抑制に及ぼす亜硝酸の影響及び廃液中の亜硝酸濃度の把握試験
  - ◆ より広範な条件(液相組成、温度等)下における凝縮液へのRuの化学吸収効果の把握試験
- ▶ 既往の安全研究では十分なデータを取得していない、「乾固後の温度上昇段階」におけるCsの移行挙動データを取得する。
  - ◆ 乾固後の温度上昇段階を想定した準揮発性物質(Cs等)の挙動把握試験
  - ◆ 乾固物の温度挙動を把握するための乾固物物性値測定及び解析
- ▶ 長期的な目標として事象進展解析コードの整備のために検討を進めていく必要がある。これを踏まえて、これらのデータの取得及びコード整備のための検討を実施する。



# 2. 研究の概要(2/3)

### (2)GB火災に関する研究

▶ 既往の研究において、小規模・中規模試験により、GB火災に関する基礎的な知見を取得したが、GB火災の燃焼挙動は、GB自体の大きさ及び構成(材料パネルの設置位置、開口部の有無等)に大きく影響される。しかし、これらの知見は十分に得られておらず、実際のGBを模擬した実規模の試験データに基づく解析等により、当該知見を取得する必要がある。本安全研究プロジェクトでは、以下の分析及び解析により、これらのデータ及び知見の取得を実施する。

#### ◆ 分析の対象

開放空間における中規模GB<sup>※</sup>火災の挙動/換気系統の影響下における中規模GB火災の挙動/開放空間における実規模GB火災の挙動/換気系統の影響下における実規模GB火災の挙動/核燃料物質(粉末)への火勢の影響/GBパネル材の燃焼挙動

#### ◆ 解析項目

開放空間における中規模GB火災/換気系統の影響下における中規模GB火災/開放空間における実規模GB火災/換気系統の影響下における実規模GB火災

(※中規模GBは、容量が実規模GBの半分の大きさのGBを示す。)



実施済み

### 2. 研究の概要 (3/3) 全体行程

計画

			工作门往		
	R3年度	R4年度	R5年度	R6年度	R7年度
蒸発乾固	試験条件の検討、予 備試験・解析	性物質移行挙動の把握	目への移行抑制効果及び 及収挙動の把握		
	事象進展解析コード の整備に向けた課題 の分析	課題等を踏まえた解析: する検討	ロードの整備方針に関		各事象進展段階に 応じたデータ整理 ▼
G B 火災		GB火災の挙動に関する	和見の分析、課題の抽出		_
	,	抽	▼ 出した課題を踏まえた解 <sup>2</sup>	<b>人</b> 折	
	開放空間における 中規模GB火災解析	開放空間における中 規模GB火災解析	1777/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/	開放空間における実規 模GB火災解析	換気系統の影響下に おける実規模GB火 災解析
		火災事	象進展シナリオを評価する	ための解析手法の整備	

\*: R4年度までの蒸発乾固に係る研究は国立研究開発法人日本原子力研究開発機構への委託事業として実施した。



#### (1) 蒸発乾固事象に関する研究

#### > 概要

リスク情報に基づく検査に関連する蒸発乾固事象の進展シナリオの検討・構築において必要となる「蒸発乾固の事象進展に伴う放射性物質の移行挙動に関する知見」を取得するため、以下の項目を(国研)日本原子力研究開発機構への委託研究により実施した。

### 【実施項目】

- ① <u>重大事故等対処の緩和対策やその際に想定される機器設備の環境を踏まえた</u> 条件下での放射性物質移行挙動の把握
  - A) 亜硝酸によるRuの気相への移行抑制効果
  - B) NOx含有気相における気体状Ru化合物の分解挙動
- ② 凝縮液へのRuの化学吸収挙動の把握
- ③ <u>準揮発性物質の移行挙動の把握</u>
- ④ 事象進展解析コードの整備に向けた課題の分析



- (1) 蒸発乾固事象に関する研究
- ①重大事故等対処の緩和対策やその際に想定される機器設備の環境を踏まえた条件 下での放射性物質移行挙動の把握

### A)亜硝酸によるRuの気相への移行抑制効果

● 亜硝酸を添加した模擬廃液を沸騰させた際のRu移行挙動に関するデータを取得した。試験では、蒸発乾固の事象進展を想定して廃液の濃縮割合をパラメータとした。

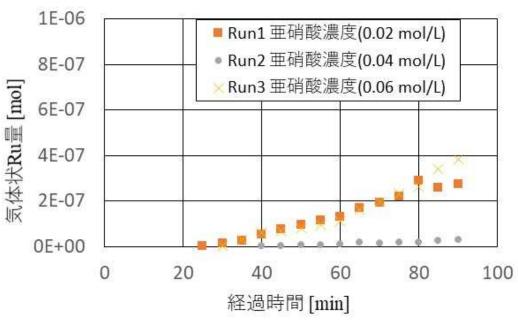


図 回収液に移行した気体状Ru量 (廃液の濃縮割合2倍を想定) [取得した試験データの一例]

#### > 試験結果

亜硝酸濃度0.02mol/Lから0.04mol/Lの増加に伴い気体状Ru量が減少したが、0.06mol/Lでは増加した。

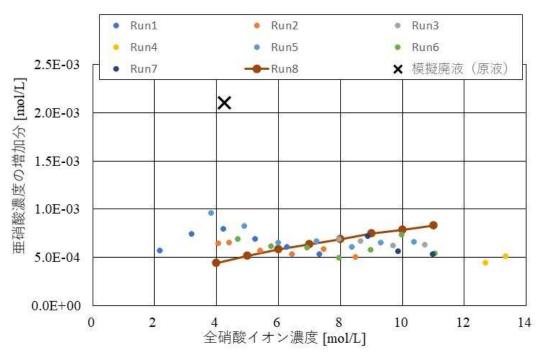
#### > 今後検討が必要な主な事項

本試験結果は、模擬廃液(原液)を用いた先行研究結果(亜硝酸濃度の増加とともに気体 状Ru量が減少)とは異なる傾向を示した。

これは、試験方法として先行研究よりも高濃度の硝酸水溶液を添加していること等が影響 した可能性が考えられる。



- (1) 蒸発乾固事象に関する研究
- ①重大事故等対処の緩和対策やその際に想定される機器設備の環境を踏まえた条件 下での放射性物質移行挙動の把握
- A)亜硝酸によるRuの気相への移行抑制効果(その2)
- 模擬廃液をガンマ線照射し、硝酸イオンの放射線分解による亜硝酸の生成挙動デ 一タを取得した。試験溶液は、模擬廃液(原液)を加熱濃縮後に希釈することにより 調製し、全硝酸イオン濃度をパラメータとした。



#### 放射線照射による亜硝酸濃度の増加分

#### 試験結果

模擬廃液を用いた試験(Run1~7):全体として硝酸イ オン濃度に対して有意な差は見られなった。

硝酸水溶液の試験(Run8)では、硝酸濃度が高くなる につれて亜硝酸濃度の増加分が大きくなった。

#### 今後検討が必要な主な事項

ある程度の金属イオン濃度が存在する条件では亜 硝酸生成源である硝酸イオン濃度の影響が小さくな る可能性が考えられる。

模擬廃液(原液)を用いた試験では加熱濃縮後に希 釈調整した試験溶液と比較して亜硝酸濃度の増加 分に有意差があった。



- (1) 蒸発乾固事象に関する研究
- ①重大事故等対処の緩和対策やその際に想定される機器設備の環境を踏まえた条件 下での放射性物質移行挙動の把握
- B) NOx含有気相における気体状Ru化合物の分解挙動
- 乾固段階における気相成分である硝酸塩の分解によって生じるNOxを含む様々な環境条件下でのRu移行挙動データを取得することを目的に、温度、NOx濃度等をパラメータとした試験を実施した。

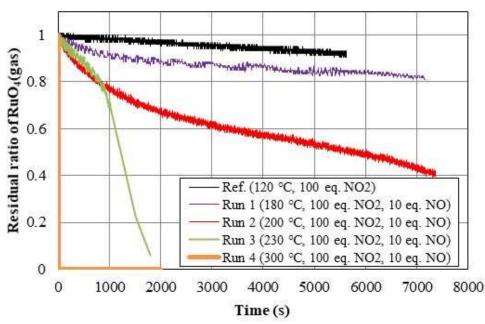


図 温度がRuO<sub>4</sub>分解に与える影響 「取得した試験データの一例]

- RuO<sub>4</sub>の分解は温度が高くなるにつれて早くなる傾向が観測された。
- ・ 従来得られていた試験データより高い温度 領域である200℃程度においても、NOxに よるRuO₄の分解抑制効果が観測された。
- ー方、300℃の試験(Run4)ではRuO₄の急激な分解が観測されたことから、NO₂及びNOはRuO₄を安定化する一方で、温度上昇に伴う分解反応を抑制できる領域には限界があるものと考えられる。



### (1) 蒸発乾固事象に関する研究

### ②凝縮液へのRuの化学吸収挙動の把握

- 濡れ壁塔に相当する試験装置を用いて、吸収液へのRuの移行量を測定するとともに、「迅速擬1次反応」としてのモデル化を検討した。
  - WATER
- 硝酸(100 mmol/L)
- 硝酸(100 mmol/L)+亜硝酸(5 mmol/L)
- 硝酸(2000 mmol/L)+亜硝酸(100 mmol/L)
- 硝酸(1000 mmol/L)
- 硝酸(100 mmol/L)+亜硝酸(2 mmol/L)
- 硝酸(100 mmol/L) + 亜硝酸(10 mmol/L)

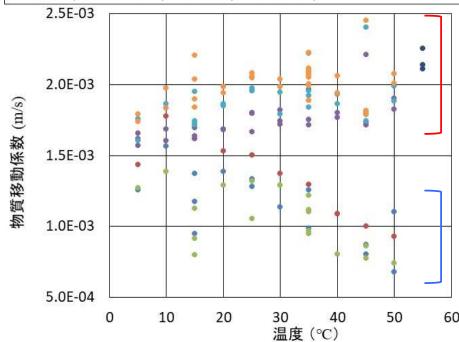


図 吸収液へのRu移行量から計算した物質移動係数 [取得した試験データの一例]

- ・各温度条件とも、物質移動係数は亜硝酸 濃度の上昇につれておおむね増大傾向
- **亜硝酸を含む試験系**: 温度上昇につれて物質移行係数は増加又 は横ばいの傾向
- <u>亜硝酸を含まない試験系</u>: 温度上昇につれて物質移行係数は低下
- 一連の試験結果より、液相中の亜硝酸が関 与するRuの化学吸収の存在が示された。



### (1) 蒸発乾固事象に関する研究

#### ③準揮発性物質の移行挙動の把握

● 模擬廃液乾固物の加熱試験を実施しCs化合物等の移行量を測定するとともに、過年度に整備した乾固物温度解析モデルを改良して系外への熱漏洩等を考慮した解析を実施した。

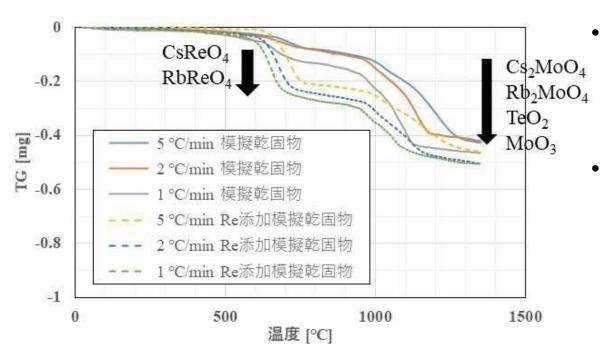


図 模擬乾固物及びRe添加模擬乾固物のTG曲線 [取得した試験データの一例]

- Re(Tcの代替物質)を共存させた場合、Reを共存させない場合に比べて重量減少の開始温度が低く、量も多くなることが分かった。
- また、別の試験で、重量減少した元素を観測した。観測された元素は、重量減少が生じる温度で揮発することが知られている化合物(図中の下矢印)を仮定しても矛盾しないことを確認した。



### (1) 蒸発乾固事象に関する研究

### ④事象進展解析コードの整備に向けた課題の分析

- 既往の研究成果等を踏まえ、解析コードを整備する上での課題、課題解決に必要な 試験データ等について分析した。
- > 分析結果

分析にあたり、(1)貯槽内で発生する事象、(2)移行経路で発生する事象及び(3)影響緩和対策由来の事象の3つに分け、各事象を事象進展段階に区分した。

表 (1) 貯槽内で発生する事象の分析結果の一例

		評価項目	事象発生の段階								
発生事象	No.		非沸騰 状態	沸騰初期	沸騰晚期(1)	沸騰晚 期(2)	乾固(1)	乾固(2)	乾 固 後 の 温 度 上昇(1)	の温度	<b>現象のモデル化に必要と考えられる項目</b>
<b>5 4 4 5 6</b>	15	気体状Ruの発生速度		0	0	0		0	_	0	廃液加熱に伴う、各廃液温度・廃液濃縮度でのガス状 Ruの発生速度経時変化
		気体状Ruの化学形									廃液から発生する気体状Ruの化学構造
気体状Ruの発生		加熱履歴(事象進展速度)と気体状Ru発生総量の関係									各加熱条件での気体状Ruの発生量経時変化
	18	発生に至る反応機構									_
Ru以外の揮発性元素 (Cs、Tc等)	19	Ru以外の化学種について、15~18の評価を行う	_	0	0	0	_	_		0	蒸発乾固時のCs、Tcの放出割合



### (2) GB火災に関する研究

#### ▶ 概要

リスク情報に基づく検査に関連するGB火災の事象進展シナリオの検討・構築において必要となる「GB火災の事象進展に関する知見(GBの大きさ及び構成が燃焼挙動に及ぼす影響等)」を取得するため、実際のGBを模擬した実規模の試験データ(実規模GB火災の試験データ)※の分析、火災解析等を実施した。

### 【実施項目】

- ①GB火災の挙動に関する知見等の取得、分析及び課題の抽出
  - A) 実規模GB火災の試験データ 知見
  - B) 火災防護対策の閉じ込め機能に対する影響に関する知見
- ②実規模GB火災の試験データに基づく解析(開放空間における中規模GB火災解析)

※実規模GB火災の試験データは、主にIRSNと原子力規制庁との間で締結された協定「RESEARCH AGREEMENT ON THE IRSN GLOVE BOX FIRES PROGRAM」に基づくGB火災試験(FIGAROプロジェクト)で得られた試験データを活用した。本協定におけるGB火災試験は、IRSNが実施している。(実施期間:2019年から2023年まで)



- (2) GB火災に関する研究
- ①GB火災の挙動に関する知見等の取得、分析及び課題の抽出
- A) 実規模GB火災の試験データ・知見

FIGAROプロジェクトにおいて実規模GB火災の挙動に関する以下の試験データを取得した。

- 開放空間における中規模GB※火災の挙動
- 換気条件下における中規模GB※火災の挙動 (※中規模GB:容量が実規模GBの半分の大きさのGB)

主な試験データ: <u>発熱速度、</u> 可燃物の重量減少等の時間変化

【GB火災の挙動に関する知見及び抽出した課題の一例】

#### 知見:

GBの構成(GBパネルの材料等)の違いは、「GBパネルの溶融に伴う開口部の発生までの余裕時間」及び「開口部からのGB内への空気流入による発熱量の増大」に寄与する。

#### > 課題:

「GBパネルの溶融に伴う開口部の発生」及び「開口部からのGB内への空気流入」を評価するためには、開口部が発生するまでの時間の評価に加えて、開口部の発生及び開口部からの空気流入の評価が必要。



#### (2) GB火災に関する研究

#### B) 火災防護対策の閉じ込め機能に対する影響に関する知見

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



### 【解析条件】

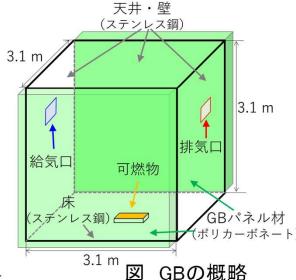
図 解析対象としたシナリオ

- 解析コード: SYLVIA(仏国IRSNが開発した火災解析用のゾーンモデルコード)
- GBの条件: GB内初期圧力:-400 Pa(ゲージ圧)

GB内初期雰囲気:空気

初期換気流量:179 m³/h

- 可燃物:エタノール
  - ⇒液体燃料の燃焼モデルを適用し、酸素濃度低下による影響を考慮
- 解析対象の設備・機器:GB、GB給気系統及びGB排気系統
  - ⇒給排気系統の応答を評価するため、SYLVIAの換気系ネットワークモデルを構築







SY-1: 対策なし

### (2) GB火災に関する研究

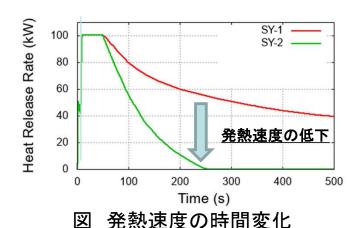
### B) 火災防護対策の閉じ込め機能に対する影響に関する知見

【解析結果及び取得した知見の一例】

SY-1 SY-2

400

500



5000

4000

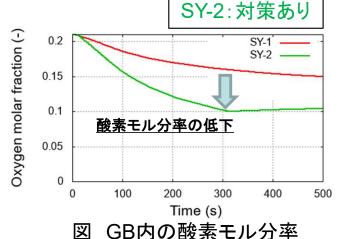
図 GB内圧力の時間変化

Time (s)

200

300

100



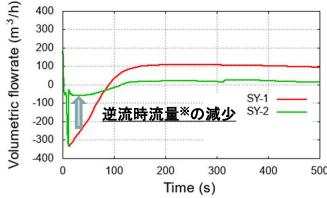


図 GB内への給気流量の時間変化

※負の値はGB内からGB給気側への逆流を示す。

#### <対策のタイミング>

• 対策i: 12 秒

· 対策ii:13~313 秒

• 対策iii: 314 秒

### 火災防護対策による影響

- 燃焼反応を抑制させる。
- GB内圧力を上昇させる。
- 給気側の弁の閉止により、 逆流時の流量を減少させる。



火災防護対策は、燃焼反応の抑制等の効果を示すが、 GB内圧力を上昇させる可能性があると評価された。



#### (2) GB火災に関する研究

#### ②実規模GB火災の試験データに基づく火災解析(開放空間における中規模GB火災解析)

GB火災の事象進展に関する知見の取得に加えて、GB火災におけるパネル材の燃焼挙動に対する解析コードの適用性の確認を目的として、試験データに基づくベンチマーク解析を実施した。

#### 【解析対象とした試験の概要】

- 開放空間における中規模GBの燃焼試験(可燃物:ポリカ―ボネート(PC)パネル)
- GB火災時の燃焼挙動に関するデータ(発熱速度、PCの重量減少等)を取得

#### 【解析条件】

- 解析コードには、IRSNが開発した火災解析用の数値流体解析コード(ISIS)を適用
- 中規模GBの形状を模擬し、ISISに実装されている固体燃料の熱分解・燃焼モデルを適用

#### 【解析結果及び取得した知見の一例】

- 発熱速度等の解析結果は、概ね試験結果と同じになることを確認
- GBパネル材の燃焼時には、グローブ穴等からの高温ガスの流入によりGB内の温度が 上昇するとともに、GB内の流動状態が大きく変化する可能性があると評価された。



# 4. まとめ

### (1) 蒸発乾固事象に関する研究

- 本研究は、(国研)日本原子力研究開発機構への委託事業として実施した。
- 「重大事故等対処の緩和対策やその際に想定される機器設備の環境を踏まえた条件での放射性物質移行挙動」、「準揮発性物質の移行挙動」及び「凝縮液へのRuの化学吸収効果」を把握するためのデータを取得した。
- さらに、長期的な目標として事象進展解析コードの整備に資するため、既往の研究成果等を踏まえ解析コードを整備する上での課題、課題解決に必要な試験データ等について分析・整理するとともに整備方針を検討した。

### (2) GB火災に関する研究

• FIGAROプロジェクトで得られた実際のGBを模擬した実規模の試験データを踏まえ、「開放空間における中規模GB火災の挙動及び換気系統の影響下における中規模GB火災の挙動に関する知見の分析・課題の抽出」を行うとともに、「開放空間における中規模GB火災の試験データ等に基づく解析」を実施した。



### 5. 成果の活用について

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

- > 蒸発乾固事象に関する放射性物質移行挙動
- ➤ GB火災に関する燃焼挙動

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



# 6. 成果の公表等

- ▶ 原子力規制庁の職員が著者に含まれる公表:現時点でなし
- ▶ 委託先による公表
  - (1) 論文(査読付): 現時点でなし
  - (2) 国際会議のプロシーディング(査読付): 現時点でなし
  - (3) その他: 現時点でなし



# 7. 成果目標に対する達成状況

#### (1) 蒸発乾固事象に関する研究

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

#### (2) GB火災に関する研究

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



# 8. 今後の展開

### (1)蒸発乾固事象に関する研究

再処理施設で想定される環境条件下でのCs等の移行挙動等に係る必要なデータ等を着実に取得するとともに、これまでの試験で明らかになった課題(放射線分解による廃液中の亜硝酸生成挙動に及ぼす金属イオン濃度の影響等)を解決するための試験を実施し、蒸発乾固事象に関する知見を拡充する。

### (2)GB火災に関する研究

実規模のGB火災試験データに基づく解析及び試験データの分析については、「換気条件下における中規模GBの火災試験」、「開放空間における実規模GBの火災試験」及び「換気条件下における実規模GB火災試験」を対象とした解析を行い、GB火災の事象進展に関する知見を拡充する。また、これらの解析等で取得したGB火災の事象進展に関する知見を踏まえ、GB火災の事象進展シナリオを評価するための解析手法の整備を行う。