



JAEA-Research

2006-085



JP0750013

JAEA-Research

核燃料施設の確率論的安全評価に関する調査（I）

Research on the State-of-the-art of Probabilistic Safety Assessment for
Non-reactor Nuclear Facilities (I)

(編)吉田 一雄 阿部 仁 山根 祐一 田代 信介 村松 健

(Eds.) Kazuo YOSHIDA, Hitoshi ABE, Yuichi YAMANE
Sinsuke TASHIRO and Ken MURAMATSU

安全研究センター

Nuclear Safety Research Center

February 2007

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp/index.shtml>)
より発信されています。このほか財団法人原子力弘済会資料センター*では実費による複写頒布を行つております。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4
日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920

* 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4 日本原子力研究開発機構内

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920

核燃料施設の確率論的安全評価に関する調査(Ⅰ)

日本原子力研究開発機構 安全研究センター

(編) 吉田 一雄、阿部 仁、山根 祐一、田代 信介、村松 健

(2006年11月21日受理)

日本原子力研究開発機構安全研究センターでは、核燃料施設の確率論的安全評価手法整備の一環として、社団法人 日本原子力学会に委託し「核燃料施設の確率論的安全評価に関する調査」を実施した。本調査は、核燃料施設での PSA 適用に向けた課題を検討し、これにより、定量的性能目標の策定、リスク情報を活用した安全管理／規制（RIR）の参考となる情報を得るとともに、関係者間での共通認識の醸成に資することを目的としている。調査に当たっては、日本原子力学会が「核燃料施設事故影響評価手法」調査専門委員会を組織し、核燃料施設において想定される主要な放射性物質の環境への放出を伴う異常事象（臨界、火災、爆発等）の環境への上限的な影響を評価するための手法を中心に調査を実施した。

本報告書は、日本原子力学会「核燃料施設事故影響評価手法」調査専門委員会が、平成 16 年度に実施した調査の結果をまとめたものである。

Research on the State-of-the-art of Probabilistic Safety Assessment for
Non-reactor Nuclear Facilities (I)

(Eds.) Kazuo YOSHIDA, Hitoshi ABE, Yuichi YAMANE,
Sinsuke TASHIRO and Ken MURAMATSU

Nuclear Safety Research Center
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received November 21, 2006)

Japan Atomic Energy Agency (JAEA) entrusted with research on the state-of-the-art of probabilistic safety assessment (PSA) for non-reactor nuclear facilities (NRNF) to the Atomic Energy Society of Japan (AESJ). The objectives of this research is to obtain the basic useful information related for establishing the quantitative performance requirement and for risk-informed regulation through qualifying issues needed to be resolved for applying PSA to NNRF. A special committee of "research on the analysis methods for accident consequence in NNRF" was organized in the AESJ. The research activities of the committee were mainly focused on the analysis method for upper bounding consequences of accidents such as events of criticality, explosion, fire and solvent boiling postulated in NNRF resulting in release of radio active material to the environment.

This report summarizes the result of research conducted by the committee in FY 2004.

Keywords: Non-reactor Nuclear Facilities, PSA, Accident Consequence Analysis, Criticality, Fire, Explosion, Solvent Boiling

目次

1.はじめに	1
1.1 核燃料施設における確率論的安全評価手法整備の必要性と 本研究の目的	1
1.2 核燃料施設の確率論的安全評価の現状	1
1.3 事故時影響評価手法に関する調査検討の目標と 16 年度の検討内容	4
2.核燃料施設の事故シナリオ	8
2.1 はじめに	8
2.2 放射性物質の閉じ込めの概念	8
2.3 代表的な事故シナリオ	9
2.3.1 水素爆発	9
2.3.2 溶液沸騰	10
2.3.3 溶媒火災	11
2.3.4 TBP 等の錯体の急激な分解反応	12
2.4 上限影響を示す事故シナリオの一般的な考察	16
2.4.1 水素爆発及び溶液沸騰	16
2.4.2 溶媒火災	16
2.4.3 TBP 等の錯体の急激な分解反応	16
2.4.4 その他の事象	17
2.5 その他の検討事項	17
2.6 第 2 章のまとめ	18
3.臨界事故評価手法の調査	19
3.1 はじめに	19
3.2 臨界事故の概要	19
3.2.1 国内及び海外の臨界事故評価事例	19
3.2.2 臨界事故の特徴	20
3.3 臨界事故評価手法	24
3.3.1 簡易評価手法	24
3.3.2 一点炉動特性解析手法	26
3.3.3 準定常法	29
3.4 第 3 章のまとめ	32
4.放射性物質のエアロゾル化挙動に関するデータの調査	35
4.1 はじめに	35
4.2 溶液沸騰事象に関するデータの調査・分析	36
4.2.1 実験データに関する調査	37
4.2.2 実験に関する調査のまとめ	38

4.3 沸騰液面からの飛沫同伴実験式による ARF の評価	42
4.4 爆発事象に関するデータの調査・分析	47
4.5 第 4 章のまとめ	48
5. 燃焼・爆発モデル、火災データの調査	50
5.1 はじめに	50
5.2 調査内容	50
5.2.1 調査範囲の検討	50
5.2.2 調査結果	54
5.3 第 5 章のまとめ	79
6. まとめ	80

Contents

1.	Introduction	1
1.1	Purpose	1
1.2	Present status of PSA for non-reactor nuclear facilities	1
1.3	Target and scope	4
2.	Accident scenarios	8
2.1	Introduction	8
2.2	Confinement of radioactive materials	8
2.3	Typical accident scenario	9
2.3.1	Hydrogen explosion	9
2.3.2	Solvent boiling	10
2.3.3	Solvent fire	11
2.3.4	Explosive decomposition of TBP complex	12
2.4	Discussion on accident scenario resulting in upper bounding consequence	16
2.4.1	Hydrogen explosion and Solvent boiling	16
2.4.2	Solvent fire	16
2.4.3	Explosive decomposition of TBP complex	16
2.4.4	Other scenarios	17
2.5	Other Issues	17
2.6	Summary	18
3.	Analysis methods for criticality accidents	19
3.1	Introduction	19
3.2	Overview of criticality accidents	19
3.2.1	Peculiarity of criticality accidents	19
3.2.2	Upper bounding of consequences	20
3.3	Evaluation methods	24
3.3.1	Simple methods	24
3.3.2	Analysis with one point kinetics	26
3.3.3	Quasi steady method	29
3.4	Summary	32
4.	Review of experimental data for aerosolization of radioactive materials	35
4.1	Introduction	35
4.2	Review of experimental data for solvent boiling events	36
4.2.1	Data review	37

4.2.2 Summary of experimental data	38
4.3 Evaluation of ARF with experimental correlation of entrainment from boiling surface	42
4.4 Review of experimental data for explosive events	47
4.5 Summary	48
 5. Review of combustion model and fire data	50
5.1 Introduction	50
5.2 Contents of review	50
5.2.1 Scope of review	50
5.2.2 Results of review	54
5.3 Summary	79
 6. Summary	80

まえがき

本報告書は、日本原子力研究所が、核燃料施設を対象とする確率論的安全評価（PSA）の手法やデータベース、判断基準等の開発・整備の状況を調査するとともに、今後の PSA 適用に向けた課題を検討し、これにより、定量的性能目標の策定、リスク情報を活用した安全管理／規制（RIR）の参考となる情報を得るとともに、関係者間での共通認識の醸成に資することを目的に社団法人 日本原子力学会に委託した「核燃料施設の確率論的安全評価に関する調査（I）」に関する調査結果をまとめたものである。

調査を実施するに当たっては、次ページに示す委員および幹事で構成される「核燃料施設事故影響評価手法」調査専門委員会を組織し、個々の核燃料施設における安全上の特徴を反映した評価手法の検討、リスクの評価・分析に資するため、核燃料施設において想定される主要な放射性物質の環境への放出を伴う異常事象（臨界、火災、爆発等）の環境への上限的な影響を評価するための手法について以下の調査を実施した。

① 核燃料施設の PSA に関する現状調査

核燃料施設の PSA 手法の開発状況、PSA 実施事例、信頼性データベース、換気系挙動解析コードの現状を調査し整理した。

② 事故シナリオの検討

以下の④、⑤で検討する物理現象の位置付けを明確にするための導入部として、再処理施設の主要工程で想定される事故シナリオを示した。また、上限影響を与えるような事故シナリオについて一般的な考察を加えた。

③ 臨界事故等の上限に関する調査・検討

再処理施設等の主要な工程において発生し得る臨界事故等の影響の規模について、評価モデル及びその実験や事故等との比較に基づく検証事例を調査した。

④ 核物質のエアロゾル化挙動に関するデータの調査

環境への放射性物質の放出を簡易的に評価する手法の一つである核燃料サイクル施設事故解析ハンドブックにある五因子法による放射性物質放出量評価において用いる実験に基づく数値について、根拠となった実験等を調査し、分析した。

⑤ 燃焼・爆発モデル、火災データの調査

環境への放射性物質の放出量を評価する上でフィルタの健全性が重要である。これを評価するには、火災時の発熱、煤煙の発生量等が必要となるため、核燃料施設で想定される火災の原因となる可燃物の燃焼をモデル化する簡易的なモデル、そこで利用する燃焼速度、煤煙発生量等の基礎的データを調査した。

「核燃料施設事故影響評価手法」調査専門委員会で検討した調査の結果をまとめるに際して下記の分担で報告書の原案を執筆し、委員会での審議を経て報告書に取りまとめた。

第1章 村松 健、吉田 一雄

第2章 上田 吉徳

第3章 山根 祐一、中島 健

第4章 吉田 一雄

第5章 阿部 仁、田代 信介

第6章 吉田 一雄

「核燃料施設事故影響評価手法調査」特別専門委員会 委員名簿

平成17年3月8日

	氏 名	所 属
主査	松本 史朗	埼玉大学 工学部応用化学科
委員	石田 優彦	核燃料サイクル開発機構 東海事業所 再処理・技術部技術開発課
	榎田 洋一	名古屋大学 環境量子リサイクル研究センター
	小西 秀雄	独立行政法人原子力安全基盤機構 解析評価部
	竹下 健二	東京工業大学 資源化学研究所 化学システム構築部門
	中田 耕太郎	東芝電力・社会システム社
	中島 健	京都大学 原子炉実験所 原子力基礎工学研究部門
	林 和也	三菱重工業 原子力技術センター 原子炉安全技術部 放射線安全技術課
	藤田 茂	原子燃料工業 安全管理室
	古田 一雄	東京大学 大学院工学系研究科 システム量子工学専攻
	有沢 潤	日本原燃 再処理事業部技術部
幹事	三好 慶典	日本原子力研究所 東海研究所 燃料サイクル安全工学部
	村松 健	日本原子力研究所 東海研究所 原子炉安全工学部 安全評価研究室
	阿部 仁	日本原子力研究所 東海研究所 燃料サイクル安全工学部 プロセス安全研究室
	上田 吉徳	独立行政法人原子力安全基盤機構 解析評価部 サイクル施設解析グループ
	金盛 正至	核燃料サイクル開発機構 東海事業所 安全管理部 安全対策課
	田代 信介	日本原子力研究所 東海研究所 燃料サイクル安全工学部 プロセス安全研究室
	関根 啓二	日本原燃 安全技術室
	山根 祐一	日本原子力研究所 東海研究所 燃料サイクル安全工学部 臨界安全安全研究室
	吉田 一雄	日本原子力研究所 東海研究所 原子炉安全工学部 安全評価研究室

This is a blank page.

1. はじめに

1.1 核燃料施設における確率論的安全評価手法整備の必要性と本研究の目的

確率論的安全評価（PSA: Probabilistic Safety Assessment）は、原子力施設等における異常や故障等の発生頻度、異常や故障の防止や影響緩和のための安全機能の失敗確率、事故の進展および環境への影響等を定量的に分析することにより、有意な発生頻度と環境への影響を持ちうる事故シナリオを同定するとともに、その発生頻度と影響の積和（あるいは何らかの関数）としてリスクを評価し、これを基に対象施設の安全性を総合的に評価する手法である。PSAは、原子力施設の立地、設計、運転、防災、規制等各分野での安全確保の対策について、その効果や影響を体系的かつ定量的に評価することにより、様々な意思決定を安全上の重要度を考慮して合理的に行うための有力な参考情報を与えるものであり、我が国を含め各国で手法の整備と活用が進められてきた。我が国では、1980年代より主として原子力発電所を対象としてPSAの手法の整備が進められ、1990年代には事業者の自主的努力として、全ての軽水型原子力発電施設において内的起因事象に関するPSAが実施され、それを参考にアクシデントマネジメントの整備がなされた。近年ではPSAの技術の成熟を踏まえ、PSAの結果を安全規制における意思決定の参考として積極的に活用しようとする、「リスク情報を活用した規制」(Risk Informed Regulation)の導入が各国において進みつつある。

我が国では、原子力安全委員会は、安全規制活動の目指すリスクのレベルを示すものとして、2003年12月、公衆の健康リスクを指標とする安全目標の案を公表し、今後、軽水炉および核燃料施設について、個々の施設タイプで発生しうる事故の特徴を踏まえて施設の特性を表すパラメータを指標として、この安全目標への適合性を確認できるような性能目標を設定する方針を示している。また、規制行政庁である原子力安全・保安院では同じく2003年12月に開催された原子力安全・保安部会において、所管するあらゆる原子力施設を対象にリスク情報を活用した規制の取り入れについて検討を進めていく方針を示している。わが国の核燃料施設におけるPSA等のリスク評価手法およびリスク情報活用に関する検討は、そのリスクが比較的小さいことが一つの理由と考えられるが、原子力発電施設に比べ大きく遅れている。しかしながら、リスク情報を安全規制に活用するには、核燃料施設の個々の安全上の特徴を反映したPSA手法の整備および各施設におけるリスクの評価・分析を進めることが必要である。

(社)日本原子力学会では、こうした状況を踏まえて、日本原子力研究所より「核燃料施設の確率論的安全評価に関する調査(I)」を受託し、核燃料施設のPSA手法のうち、特に、事故時の影響評価のための解析手法に重点をおいてPSAに適用可能な解析手法について調査検討を行うこととした。本調査は、2年計画で進めており、本報告書はその1年目の成果を中間報告としてまとめたものである。以下では、核燃料施設のPSAの現状を概説すると共に、事故時影響評価手法に関する調査検討の方針を述べる。

1.2 核燃料施設の確率論的安全評価の現状

(1) 確率論的安全評価実施例および手法整備

海外では、公開の核燃料施設の確率論的安全評価事例としては、1970年代後半に米国電力研究所(EPRI: Electric Power Research Institute)の実施例⁽¹⁾がある。EPRIは、原子力発電所の

リスクに対する核燃料サイクル施設のリスクを把握するための評価を実施している。評価対象施設は、核燃料サイクル施設のうち、ウラン転換、濃縮、加工施設を除く再処理施設、MOX 燃料加工施設、廃棄物保管施設および各施設を結ぶ核物質の輸送時のリスクを評価対象としている。再処理施設および MOX 燃料加工施設は当時建設が予定されていた施設を対象としている。評価対象外のウラン関連の 3 施設は、予備的評価でリスクが他の施設に比べ十分に小さいことより除外された。評価結果として癌発生の晩発効果および 50 年間の全身被曝集団線量と発生確率との関係が示されている。

上記は米国の例であるが、他の国々については、1992 年に IAEA が開催した核燃料施設の確率論的安全評価に関する専門家会議の報告書⁽²⁾に、英国、仏国、独国、日本の報告が紹介されている。同報告書によれば、英国および仏国では、再処理施設 THORP (英国) および UP-3 (仏国) について確率論的安全評価の経験を有している。独国では、バックエンド関連施設の安全解析手法開発の一環として確率論的安全評価手法が開発された経緯があるが、1980 年代末に中断している。

国内では、核燃料施設に関する PSA 手法開発あるいは PSA 実施事例としてその成果が公開されているものに次の 3 件がある。1) 旧原子力発電技術機構が、旧科学技術庁からの委託事業（平成 13 年 1 月以降は経済産業省からの委託事業）として再処理施設の確率論的安全評価手法の開発を行った。2) 核燃料サイクル開発機構が、同機関が保有する再処理施設の確率論的安全評価手法の適用性検討を実施している。3) 日本原子力研究所が、経済産業省からの委託事業として MOX 燃料加工施設加工施設の確率論的安全評価手法整備を進めている。

旧原子力発電技術機構の再処理施設の確率論的安全評価手法の開発では、主に研究的なテーマや手法の基盤整備という観点から、再処理モデルプラントを対象に代表的事象の発生頻度解析、信頼性データの収集、起因事象発生から事故に至るまでの時間的余裕の取り扱いの検討、影響評価に関連する調査やコード整備などが実施されてきた⁽³⁾。これらの成果は、原子力安全基盤機構（平成 15 年 10 月 1 日設立）に引き継がれ、以降は同機構にて、リスク情報に基づく検査制度の検討に資するという観点から、再処理モデルプラントを対象にした代表的事象の発生頻度と影響の解析を実施している⁽⁴⁾。また、ウラン加工施設を対象とした ISA 実施手順の検討を進めている⁽⁴⁾。

核燃料サイクル開発機構の東海再処理施設では、PSA 手法の再処理施設への適用性検討の一環として、各事故シナリオに複数存在する事故発生防止策の相対的な重要度を把握するため PSA を実施した。評価においては、放射性物質量の相対的に大きい施設等を対象に HAZOP (圧力、流量等のプロセス制御パラメータの変動から異常事象を分析する手法) 及び FMEA 手法 (機器等の故障の波及効果から異常事象を分析する手法) を用いた網羅的な異常事象の洗い出しを実施し、火災・爆発・臨界等の事故に至ると予想されるものについて事故進展シナリオの検討を行った⁽⁵⁾。検討した事故進展シナリオのうち、代表的ないくつかのシナリオについて、イベントツリー及びフォールトツリーを用いたモデル化を行い、THERP 手法による人間信頼性解析や東海再処理施設固有の機器故障率等により事故発生頻度の算出を行った。また Fusel-Vesely 指標及びリスク増加価値 (Risk Achievement Worth) を用い、事故発生防止策の相対的な重要度把握を実施した。

原研の MOX 燃料加工施設の確率論的安全評価手法整備⁽⁶⁾では、ハザード分析、事故シナリ分

析、事故影響評価、発生頻度評価の 4 つのステップで構成される手順の検討が進められている。ハザード分析では、ハザードの見落としを避けるため、1) まず対象とする施設全体から環境に影響を及ぼす事故の原因になり得る異常事象の候補ができるだけ多く見つけ出し、2) 次にその中から、リスク上重要と考えられる事故に進展する可能性のある異常事象を選別するという 2 つのステップで行う。2)の選別では、事象の重要さを頻度と影響の大きさの 2 次元の指標の組み合わせで表す選別用マトリックスを用いて相対的に比較することで、以降の詳細な分析の対象とする事象の選別を行うのが特徴である。この PSA 実施手順に従い、モデルプラント全体を対象に一連の分析を実施している。

(2) 規制でのリスク情報の活用

米国原子力規制委員会 (NRC : Nuclear Regulatory Commission) は、米国エネルギー省が建設を計画している核兵器級プルトニウムを軽水炉用 MOX 燃料に加工する施設を含めた核燃料サイクル施設を対象とした連邦規制法典 10 CFR Part70⁽⁷⁾ を改訂するとともに規制のガイドラインとして標準審査プラン (SRP : Standard Review Plan)⁽⁸⁾ を策定した。10 CFR Part 70 では、事業者に対して総合安全解析 (ISA : Integrated Safety Analysis)⁽⁹⁾ を実施し、すべての潜在的な事故を同定し、その影響と発生頻度を評価し、すべての事故が 10 CFR Part 70 で示す性能要求を満たすことを示すよう求めている。具体的には 10 CFR 70.61において、想定される事故の影響と発生頻度が十分に低いことを示し、性能要求に従っていることを評価するよう求めている。

(3) 最近の動き

2004 年 10 月に、OECD/NEA 主催の「核燃料施設の PSA に関するワーキングショップ」が開催され、各国の専門家が参加し核燃料サイクル施設等の非原子炉施設 (NRNF : Non-Reactor Nuclear Facilities) を対象とした PSA について、手法の開発および適用、リスク情報の規制での活用 (RIR : Risk-Informed Regulation) について各国の現状が紹介された。手法検討または・具体的な評価に利用されている PSA 手法では、発生頻度および影響評価までを行う詳細な PSA から HAZOP や FMEA を用いた事故事象の同定を主とした手法まで多様な手法が用いられており、施設の特性に応じて分析の詳細度のレベルを選択するアプローチ (Graded Approach) がとられている。PSA 実施例については、核燃料サイクルの燃料加工、再処理、廃棄物処分の各施設、核融合関連施設、Generation IV 原子炉の概念設計など幅広い施設等への適用が紹介された。リスク情報の規制への活用については、米国からは核燃料施設の統合安全解析 (ISA : Integrated Safety Analysis) について、日本からはウラン加工施設での ISA の試行等の核燃料施設の RIR の現状および安全目標について発表があった。私は、従来からの決定論的な規制を継続しており、核燃料施設の運転管理での PSA の取り入れにも消極的な発言をしていた。サマリーセッションでは、NRNF の PSA 手順の標準化が必要との意見もあったが、NRNF の多様性等から困難な点もあること、信頼性データ整備の必要性、化学物質のリスクの重要性の指摘、人的因子や組織因子には慎重な配慮が必要である等の意見があった。全体として PSA は多様な NRNF に有効に活用されている。

(5) 事故影響評価手法開発の現状

核燃料施設の安全評価では、決定論的評価および確率論的評価のいずれの場合も、事故時の放射性物質放出量の環境中への移行量を評価する必要がある。米国 NRC は、このための評価手法を体系的にまとめ、1988 年に核燃料サイクル施設事故解析ハンドブック (NUREG-1320)⁽¹⁰⁾ を刊行している。そこでは、計算コードを用いた火災、爆発事故における放射性物質の放出量の評価法等が中心に示されている。その後、1998 年に改訂版とも言うべき同じタイトルのハンドブック (NUREG/CR-6410)⁽¹¹⁾ が刊行された。内容は大きく変更され、放射性物質の放出量の評価は、計算コードを用いないで核燃料物質のエアロゾル化割合に関する数多くの実験データを基に概略的に評価する手法として五因子法 (Five Factor Formula) が提案されている。

一方、核燃料施設において想定される主要な事故事象である火災、爆発事象での施設内での熱流動挙動を解析することを目的とした多くの計算コードが開発されている。米国のパシフィックノースウエスト研究所で開発された FIRIN コード⁽¹²⁾ は、核燃料サイクル施設で想定される火災により生ずるエアロゾル、熱エネルギーを解析する。この解析結果を入力条件として FIRAC コード⁽¹³⁾ が火災に起因する換気系内の流動、熱およびエアロゾル等の物質の移行ならびに放射性および非放射性物質の環境への放出量を算出する。FIRAC と同種のコードとしては、ロスアラモス国立研究所の EVENT コード⁽¹⁴⁾、原研で開発した CELVA-1D⁽¹⁵⁾ 等がある。旧三菱原子力工業が、セル内の溶媒火災の解析コード : FEVER⁽¹⁶⁾、再処理施設における塔槽内の爆発事象の塔槽類廃ガス処理系へ影響を解析する SWORD⁽¹⁷⁾ を開発している。

(6) 信頼性データベースの現状

代表的な核燃料施設としては、ウラン燃料加工施設、再処理施設、MOX 燃料加工施設等を挙げることができるが、発電用軽水炉施設に比べれば、既存の設備数は少ない。したがって、公開のデータベースも少なく、再処理施設を対象とした信頼性データベースとして、米国のサバンナリバーサイト (SRS : Savannah River Site) のデータベース^{(18) - (19)} が公開されているのみである。これらのデータベースについては、SRS の再処理施設の運転経験に基づくデータも含まれているが、収録されているデータの多くは、発電用軽水炉施設を対象とした既存の信頼性データベースに基づいており、核燃料施設固有の信頼性データの整備は、発電用軽水炉施設に比べて極めて立ち後れている。

1.3 事故時影響評価手法に関する調査検討の目標と 16 年度の検討内容

1.2 では、核燃料施設の確率論的安全評価の現状を概観した。原子力発電所の PSA 手法のような ET、FT、事故解析コード等を用いた定量的な評価手法だけでなく、米国の ISA のような半定量的な手法による Graded Approach を含め、個々の核燃料施設における安全上の特徴を反映した手法開発、リスクの評価・分析が実施されている。発生頻度評価については、信頼性データの整備は十分ではないが、評価手法については、原子力発電所の PSA で広く用いられている ET、FT を用いる手法、ISA のような半定量的手法などを用いて、個々の施設のリスクレベルに応じた詳細度での評価が可能である。一方、影響評価については、実験で得られた基礎データを用いる五因子法、あるいは核燃料施設で想定される事故の特性を考慮した計算コードの開発が試みられているが、十分ではない。そこで本調査では、核燃料施設において想定される主要な放射性物質の環境への放出を伴う異常事象（臨界、火災、爆発等）の環境への上限的な影響を評価するた

めの手法を中心に、以下の3項目の調査を2年間で行うこととする目標としている。

a) 臨界事故等の上限に関する調査・検討

再処理施設等の各工程において、発生が十分抑止され決定論的には評価対象外とされるような事故等も含め、その影響の規模について、評価モデルおよびその実験や事故等との比較に基づく検証事例を調査し、上限推定の手法を整備する。

b) 放射性物質のエアロゾル化挙動に関するデータの調査

環境への放射性物質の放出を簡易的に評価する手法の一つである核燃料サイクル施設事故解析ハンドブックにある五因子法において用いる実験に基づく数値について、根拠となつた実験等を調査し、その適用可能範囲を現時点の日本での技術的知見を踏まえて分析する。

c) 燃焼・爆発モデル、火災データの調査

環境への放射性物質の放出量を評価する上でフィルタの健全性が重要である。これを評価するには、火災時の発熱、煤煙の発生量等が必要となるため、核燃料施設で想定される火災の原因となる可燃物の燃焼をモデル化する簡易的なモデル、そこで利用する燃焼速度、煤煙発生量等の基礎的データを調査する。さらに、火災・爆発での外力および構造物の健全性を簡易的に評価する手法を調査する。

このような目標の下に16年度は、以下の調査検討を行うこととした。

① 核燃料施設の事故シナリオの検討

再処理施設でPSAの対象となる代表的な事象のうち臨界事象以外の事故事象が発生した場合の上限の影響を評価する上で考慮すべき物理現象を明確にするため、再処理施設の主要工程でPSAの対象となる代表的な事故シナリオを示し、解説する。また、上限影響を与えるような事故シナリオについて、一般的な考察を紹介する。なお、ここで検討対象とする事故シナリオは、原子力発電施設の早期大量放出等の過酷事故に相当する、発生の可能性からは考え難い領域（残留リスクの領域）にまで踏み込んだものとしている。

② 臨界事故の簡易評価法の調査

NUCEF施設などでの研究成果を踏まえて溶液系での臨界事故の特徴をまとめたうえで、総核分裂数を簡易的に評価する手法について、実験や詳細解析コードとの比較に基づいて解析精度等について検討する。

③ 放射性物質のエアロゾル化挙動に関するデータの調査

①の検討結果を受けて、主要な事故シナリオの影響評価に必要なエアロゾル生成に関するデータを調査し分析する。ここでは、NRCの「核燃料サイクル施設事故解析ハンドブック」(NUREG/CR-6410)に記載のエアロゾル化率等のデータの根拠となっている実験に関する文献を中心に調査し、その適用範囲を検討する。

④ 燃焼・爆発モデル、火災データの調査

核燃料施設で想定される火災の原因となる可燃物の燃焼をモデル化する簡易的なモデル、そこで利用する燃焼速度、煤煙発生量等の基礎的データを調査する。

本報告書では、以上の①から④の調査結果を以下の 2 章から 5 章に記述し、6 章に全体をまとめている。

参考文献

- (1) "Status report on The EPRI Fuel Cycle Accident Risk Assessment" EPRI NP-1128, July, 1979.
- (2) IAEA, "Use of probabilistic safety assessment for nuclear installations with large inventory of radioactive material" IAEA-TECDOC-711, 1993
- (3) 原子力発電技術機構、"平成 12 年度 核燃料施設安全解析コード整備のとりまとめに関する報告書 =再処理施設事故解析コード="、平成 13 年 3 月、INS/M00-55
- (4) 原子力安全基盤機構、"15 年度の事業活動"、平成 16 年 10 月
- (5) 中村博文、他、「東海再処理施設の事故発生防止策の検討」、JNC TN8410 99-004、1999 年 2 月
- (6) 吉田一雄 他、"MOX 燃料加工施設の確率論的安全評価実施手順の開発 (I) —PSA 実施手順の概要—"、日本原子力学会 2004 年秋の大会、L33
- (7) Code of Federal Regulations, Title 10, Energy, Part 70, "Domestic Licensing of Special Nuclear Material.
- (8) Nuclear regulatory Commission (U.S.)(NRC), NUREG-1718, "Standard Review Plan for the Review of an Application for a Mixed Oxide (MOX) Fuel Fabrication" NRC: Washington, D.C., 1999.
- (9) Nuclear regulatory Commission (U.S.)(NRC), NUREG-1513, "Integrated Safety Analysis Guidance Document" NRC: Washington, D.C. 1995.
- (10) Ayer, J. E., et. al., "Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook", NUREG-1320, May 1988
- (11) SAIC, "Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook", NUREG/CR-6410, March 1998
- (12) Chan, M.K., et al, "User's Manual for FIRIN", NUREG/CR-3037, 1989
- (13) Andrae, R.W., et al., "FIRAC User's Manual-A Computer Code for Analysis of Fire-Induced Flow and Material Transport in Nuclear Facilities", LA-7397-M, 1978
- (14) Tang, P.K., at al, "EVENT User's Manual, A Computer Code for Analyzing Explosion Induced Gas-Dynamic Transients in Flow Network", LA-96242-M, 1988
- (15) 西尾軍治、他、「再処理施設の火災・爆発時におけるセル換気系の安全性解析コード (CELVA-1D)」, JAERI-Data/Code 98-017, 1998
- (16) 三菱原子力工業㈱、「FEVER コードの概要」, MAPI-3001, 平成元年 3 月
- (17) 三菱原子力工業㈱、「SWORD コードの概要」, MAPI-3002, 平成元年 3 月
- (18) Dexter, A. H., et. al., "Component Failure-Rate Data with Potential Applicability to a Nuclear-Fuel-Reprocessing Plant", DP-1633, 1982

- (19) C.H.Blanton and S.A.Eide, "Savannah River Site Generic Data Base Development (U)", WSRC-TR-93-262, Jun. 30, 1993
- (20) H.C.Benhardt, et al., "Savannah River Site Human Error Data Base Development for Nonreactor Nuclear Facilities (U)", WSRC-TR-93-581, Feb. 28, 1994

2. 核燃料施設の事故シナリオ

2.1 はじめに

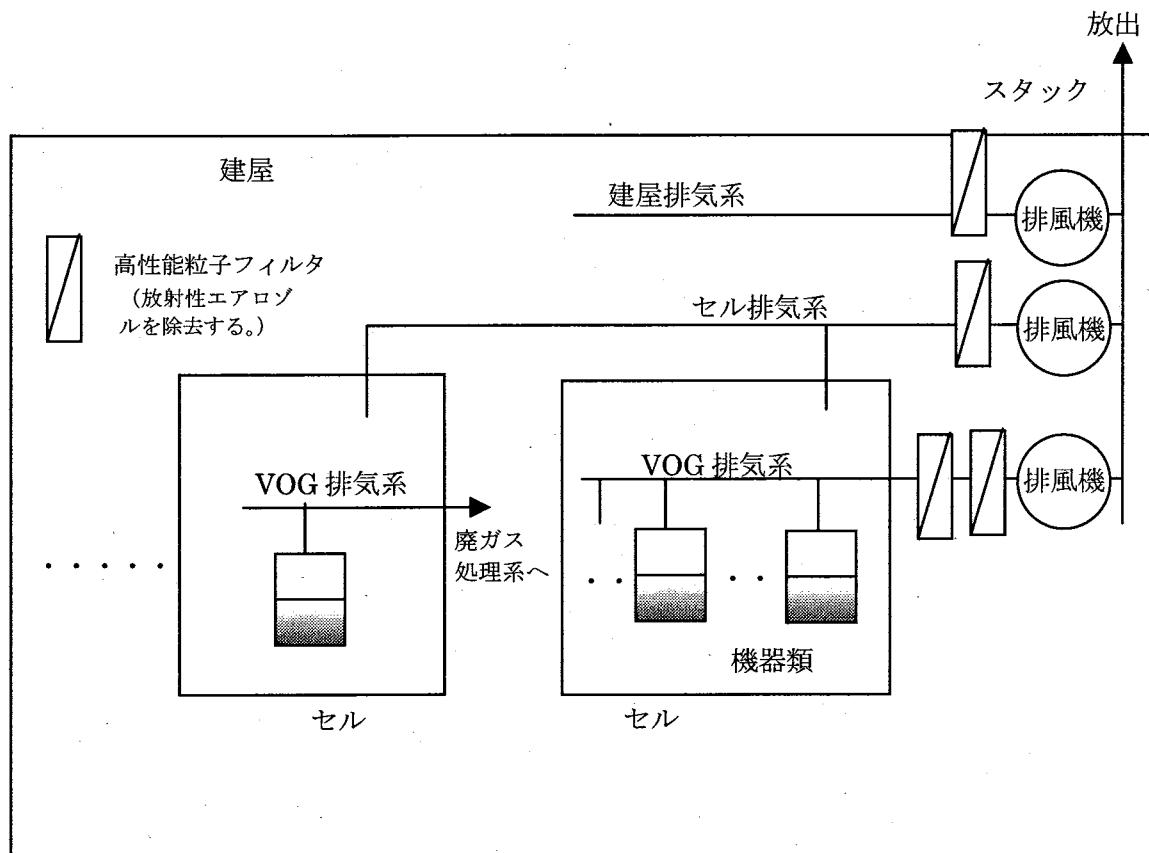
核燃料施設においては、核燃料物質は、工程ごとに性状、形態を変化させつつ、工程間を移動していくことが一般的であり、各工程を通じて核燃料物質が臨界に達しないための対策、放射性物質を閉じ込めるための対策等が必要とされる。本章では、再処理施設を例として、発生が十分抑制され決定論的には評価対象外とされる事故を含め、放射性物質を閉じ込める機能が損なわれる事故シナリオについて述べる。また、上限影響を与えるような事故シナリオについて、一般的な考察を行う。本章の構成を以下に示す。

- ・放射性物質の閉じ込めの概念（2.2節）
- ・代表的な事故シナリオ（2.3節）
- ・上限影響を示す事故シナリオの一般的な考察（2.4節）
- ・放射性物質放出量の評価に影響を与える要因の考察（2.5節）

なお、本報告書の4、5章では、主に本章で取り上げた種類の事故に関連して、放射性物質のエアロゾル化挙動に関するデータ並びに燃焼・爆発モデル、火災データの調査結果について述べる。

2.2 放射性物質の閉じ込めの概念

再処理施設における放射性物質の閉じ込めの一般的な概念を図2.2-1に示す。放射性物質を内蔵する機器類は、腐食し難く、漏えいし難い構造とするとともに、漏えい液受皿等を設けたセル、グローブボックス又は室（以下、2.2節では、セルという。）内に収納され、放射性物質を限定された区域に閉じ込める設計となっている。また、放射性物質を内蔵する機器類は専用の排気系（以下、この排気系をVOG排気系という。）に接続されており、このVOG排気系には高性能粒子フィルタ（以下、フィルタという。）、排風機等が設置され、機器内の気相中に移行した放射性エアロゾルを十分に除去した上でスタックから放出する。また、機器内はセル内に対して負圧に、セル内は建屋内に対して負圧に維持し、機器内気相中の放射性物質がセル内へ、セル内気相中の放射性物質がセル外へ漏えいすることを防止している（外気→建屋内→セル内→機器内の順に圧力を低くしている）。セル排気系及び建屋排気系にもフィルタ、排風機等が設置され、排気をろ過した後スタックから放出する。



- 放射性物質を内蔵する機器類に接続されているVOG排気系及びセル排気系には高性能粒子フィルタ等を設置し、放射性物質を十分に低減化した後、スタックから放出。
- 外気→建屋内→セル内→機器内の順に圧力を低くし、汚染の拡大を防止。
- 建屋排気系にも高性能粒子フィルタ等を設置し、万一の事故時にも放射性物質を低減化した後、スタックから放出。

図 2.2-1 再処理施設での放射性物質の閉じ込めの一般的な概念

2.3 代表的な事故シナリオ

本節では、国内外で広く採用されているPUREX法を用いた再処理施設において、PSAの対象となる代表的な事故シナリオの概要及び、その起因事象、安全対策、放出経路について一般的な例として示す。実際の再処理施設では、各種事故に対して多重防護の考え方に基づく安全設計を行うことにより、その発生、拡大の防止及び影響の緩和対策が施されているが、ここでは、代表的な4つの事故に対して、諸々の安全設計が機能しないとして、シナリオを示した。事故シナリオの概要及び、その起因事象、安全対策、放出経路の一般的な例を示すに当っては、国内で公開されている資料(1)~(5)を参考とした。

2.3.1 水素爆発

(1) 事故シナリオの概要

再処理施設の機器には、内包する溶液の放射線分解により水素が発生するものがあり、このよ

うな機器では、発生する水素の蓄積を避けるために圧縮空気（以下、圧空という。）で機器内の水素を掃気している。したがって、万一、この掃気機能が喪失して水素が爆発限界濃度以上に蓄積し、さらに着火源の存在を想定すると、水素爆発が発生して機器内気相部への放射性物質移行量が増加し、排気系を介して外気へ放出される放射性物質量が平常時より増加する可能性がある。

(2) 起因事象

水素掃気用の圧空の供給が断たれる事象が水素爆発の起因事象となる。圧空供給系統の概念を図 2.3-1 に示す。図 2.3-1 では、圧空の供給が断たれる事象としては、圧空の製造機能自体の喪失（圧縮機故障、電源断等による）と圧空の移送機能の喪失（圧空の供給ラインからのリーク等による）がある。図 2.3-1 を参照して、圧空が供給されている機器から遠い側から起因事象を挙げると、全電源喪失、圧縮機故障、圧空の供給ラインの移送機能喪失（配管、バルブからのリーク等による）がある。供給ラインの移送機能喪失については、各機器に共通の供給ラインで発生する場合と、各機器個別の供給ライン（共通の供給ラインヘッダーから個々の機器に至るまでのライン）で発生する場合がある。各機器個別の供給ラインで移送機能喪失が発生する場合は、該当するラインに接続している機器で水素が蓄積する。圧空の製造機能自体の喪失及び各機器に共通の供給ラインでの移送機能喪失の場合は、圧空供給系に接続されている全機器で水素が蓄積する。

(3) 安全対策

起因事象が発生しても水素爆発に至らないように、種々の対策がある。図 2.3-1 を参照して安全対策の例を示す。常用の圧縮機（図 2.3-1 の例では 2 台）が故障した際には、予備の圧縮機への切り替えで対応する。予備の圧縮機が対応不可の場合は、供給ライン上の空気貯槽によって短時間の圧空供給が可能である他、一般圧空系（他の用途の圧空系）を水素掃気用圧空供給ラインへ接続する（他の用途の圧空を供給する）等で対応する。圧空供給ラインの移送機能喪失に対しては、同じ圧空の製造系統から各機器に接続されている他の用途のライン（図 2.3-1 の例では、パルセーション用ライン、攪拌用ライン）を用いて圧空を供給して対応する。また、静電気の発生のおそれのある機器は接地を行う等により着火源を排除する対策が施されている。全電源喪失に対しては、2 系統受電や非常用ディーゼル発電機等の対策がある。

(4) 放出経路

放射性物質は VOG 排気系を介して放出されるが、万一、高い水素濃度に至り爆発が発生した場合には機器が破損する等の可能性もあり、この場合は、一部の放射性物質がセル内に流出しセル排気系を介して外気に放出される。万一、セル内圧力が建屋内圧力よりも増加する場合は、一部の放射性物質はセル外に流出するが建屋排気系を介して放出される。（図 2.2-1 参照）

2.3.2 溶液沸騰

(1) 事故シナリオの概要

再処理施設の機器には、放射性物質の崩壊熱により内包する溶液の温度が上昇するものがあり、このような機器では、溶液が沸騰に至ることを防止するために冷却水により崩壊熱を除去する対策を施している。万一、この冷却機能が喪失した場合は、溶液の沸騰までに時間余裕があり種々

の対策を施すことができると考えられるが、全てに失敗して溶液が沸騰に至ると機器内気相部への放射性物質移行量が増加し、外気へ放出される放射性物質量が平常時より増加する。

(2) 起因事象

冷却水の供給が断たれる事象が溶液沸騰の起因事象となる。冷却水の供給が断たれる事象としては、冷却機能自体の喪失（冷却機故障、全電源喪失等）と冷却水の移送機能の喪失（循環ポンプ故障、冷却水の供給ラインからのリーク等）がある。移送機能の喪失については、各機器に共通の供給ラインで発生する場合と、各機器個別又は複数の機器固有の供給ラインで発生する場合がある。各機器個別又は複数の機器固有の供給ラインで移送機能喪失が発生する場合は、該当するラインに接続している機器が影響を受ける。水の冷却機能自体の喪失や各機器に共通の供給ラインでの移送機能喪失の場合は、冷却水の供給を受けている全機器が影響を受ける。（起因事象の種類によって影響を受ける機器の範囲が異なることは、水素爆発事象の場合と同様である。）

(3) 安全対策

起因事象が発生しても溶液沸騰に至らないように、種々の対策がある。例を示すと、1系統でも冷却能力を確保可能な独立した冷却系を常時2系統運転し、1系統の冷却機故障や冷却水の移送機能の喪失が発生しても冷却が可能とする。2系統の冷却機能が喪失した際には、他の用途の冷却水系統を当該供給ラインに接続する等により対応する。冷却水供給ラインの移送機能の喪失（循環ポンプ故障）に対しては、予備機への切り替えで対応する。また、全電源喪失の場合は、2系統受電や非常用ディーゼル発電機等の対策がある。このように、圧空供給と冷却水供給との違いはあるが、安全対策の考え方は基本的には水素爆発（2.3.1 (3) 参照）と同様である。

(4) 放出経路

溶液が沸騰した場合、同伴される放射性物質を含む蒸発蒸気は排気系を経て排気筒から放出される。

2.3.3 溶媒火災（セル内への溶媒の漏えいによる）

(1) 事故シナリオの概要

溶媒を内包する機器はセル内に設置されており、溶媒を取扱う機器は腐食し難い材料を使用して漏えいし難い設計としているが、万一、機器あるいは機器周りの配管から溶媒が漏えいした場合、漏えい溶媒はその受け皿（以下、ドリップトレイという。）にある集液部分に滞留する。その際、漏えい溶媒の温度が、溶媒中の放射性物質の崩壊熱により引火点以上に温度が上昇した場合、着火源の存在を想定すると、溶媒が着火する可能性がある。火災が継続した場合、セル内気相部への放射性物質移行量が増加し、排気系を介して外気へ放出される放射性物質量が平常時より増加する可能性がある。

(2) 起因事象

上記のような溶媒火災は、溶媒がセル内に漏えいし、漏えいした溶媒の温度が引火点に達し着火し発生する事象である。したがって、溶媒のセル内への漏えいが起因事象となる。

(3) 安全対策

起因事象が発生しても溶媒火災に至らないように、種々の対策がある。図 2.3-2 を参照して安全対策の例を示す。ドリップトレイには漏えい検知器が設けられており、漏えいが生じると警報を発し運転員に知らせる。運転員は漏えいを認知すると、該当機器への給液の停止及び該当機器内の液の移送（他機器へ移送する）を行って漏えいを停止させ、漏えいの拡大を防止する。また、ドリップトレイ中の漏えい溶媒を回収する。また、セル内の機器は接地を行う等により着火源を排除する対策が施されている。万一、火災が発生した場合は、消火設備により消火を行う。この時、給気系の防火ダンパが作動しセル内への給気を遮断する。

(4) 放出経路

放射性物質はセル排気系を介して放出される。通常時、セル内は建屋（セル周囲の区画）に対して負圧に維持されているが、火災によりセル内圧力が建屋内圧力よりも増加する場合は、一部の放射性物質はセル外に流出し建屋排気系を介して放出される。（図 2.2-1 参照）

2.3.4 TBP 等の錯体の急激な分解反応

(1) 事故シナリオの概要

TBP（再処理工程で溶媒抽出に用いる溶媒）及びその劣化物と硝酸等が反応して生成する錯体は、高温条件（約 135°C 以上）下で、窒素酸化物、炭酸ガス等の発生を伴う自発的な分解反応を起こす性質を有している。（この事象を、TBP 等の錯体の急激な分解反応事象と呼ぶ。）本事象は、TBP 等の錯体が存在し且つ高温条件（約 135°C 以上）に加熱される可能性のある環境下で発生するが、当然ながら、通常運転時にこのような条件に相当する機器はない。本事象に対しては、従来から、濃縮缶（水系の溶液を蒸発濃縮する）における次のような事故シナリオが想定されている。即ち、通常、濃縮缶は、TBP 等の錯体が存在しない条件で且つ 135°C 以下で運転されているが、万一、濃縮缶の上流工程で有機相の水系からの分離（相分離）が不十分となって濃縮缶に TBP 等が混入し、さらに濃縮缶の温度制御に失敗して上記の高温条件が成立すると、TBP 等の錯体の急激な分解反応により、機器内気相部への放射性物質移行量が増加して排気系を介して外気へ放出される放射性物質量が平常時より増加する可能性がある。

(2) 起因事象

TBP 等の錯体の急激な分解反応事象は、濃縮缶内にある程度以上の TBP 等の錯体が存在しなければ起こらない。通常は、濃縮缶よりも上流側の抽出装置及び油水分離機能を有する貯槽において TBP 等は水相から分離・除去されるので、急激な分解反応事象を生じるような濃縮缶への TBP 等の混入は発生しない。したがって、本事象の起因事象としては、上流側の抽出装置の TBP 等の分離機能喪失、それに引き続く貯槽における油水分離分離機能の喪失が考えられる。

(3) 安全対策

起因事象が発生しても TBP 等の錯体の急激な分解反応に至らないように、種々の対策がある。対策例としては、上流側の抽出装置で TBP 等の分離が不十分になる事象を検出すること、油水分離機能を有する貯槽で TBP 等の混入を検出すること、また、濃縮缶を温度制御すること（135°C を超えないようにする）、異常な温度上昇を検出した際は加熱を停止すること等がある。

(4) 放出経路

放射性物質は VOG 排気系を介して放出される。本事象による圧力上昇により事象が発生した機器が破損することは考え難いが、一部の放射性物質がセル内に流出した場合は、セル排気系を介して外気に放出される。

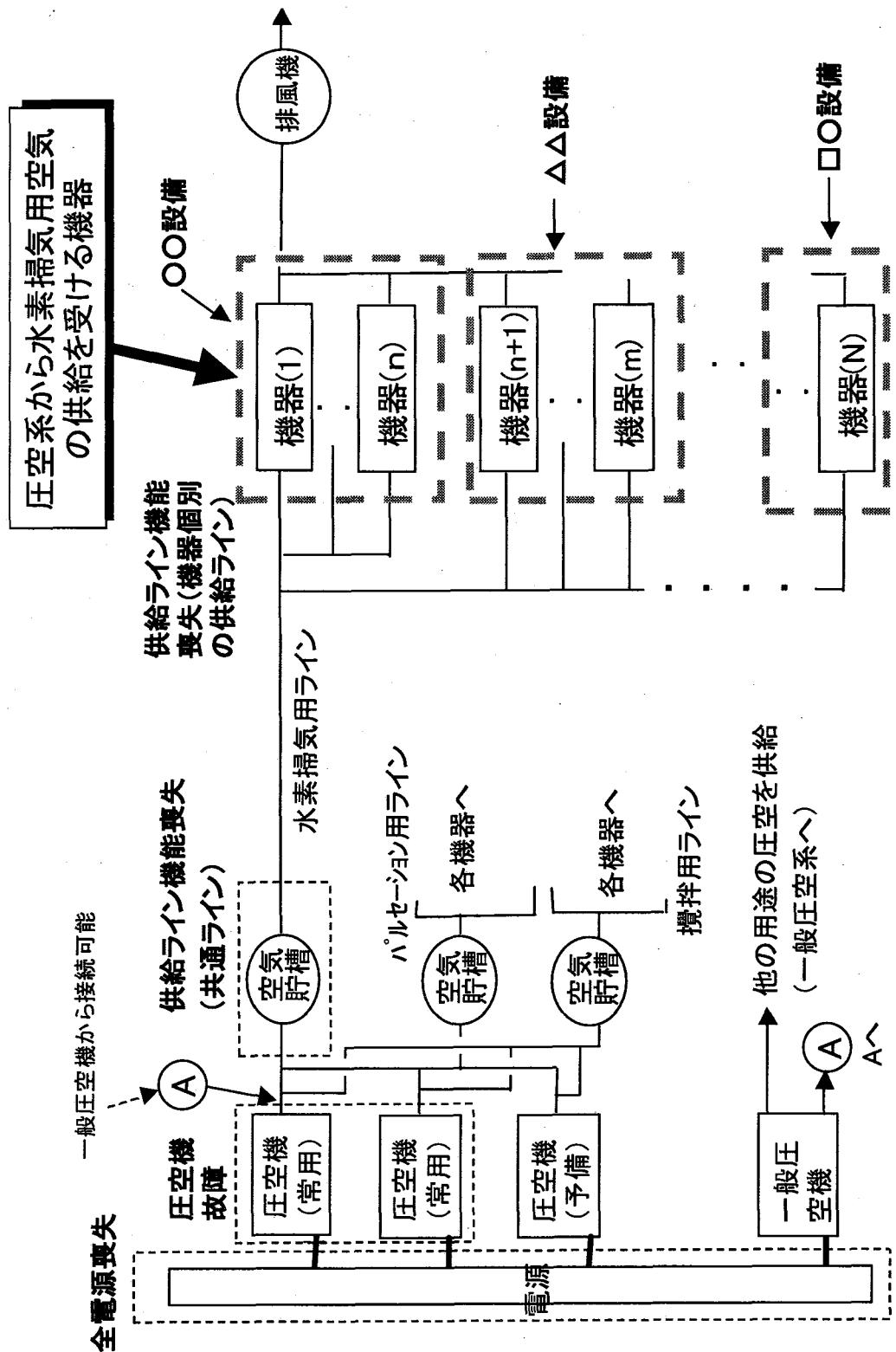


図 2.3-1 圧空供給系統の概念図

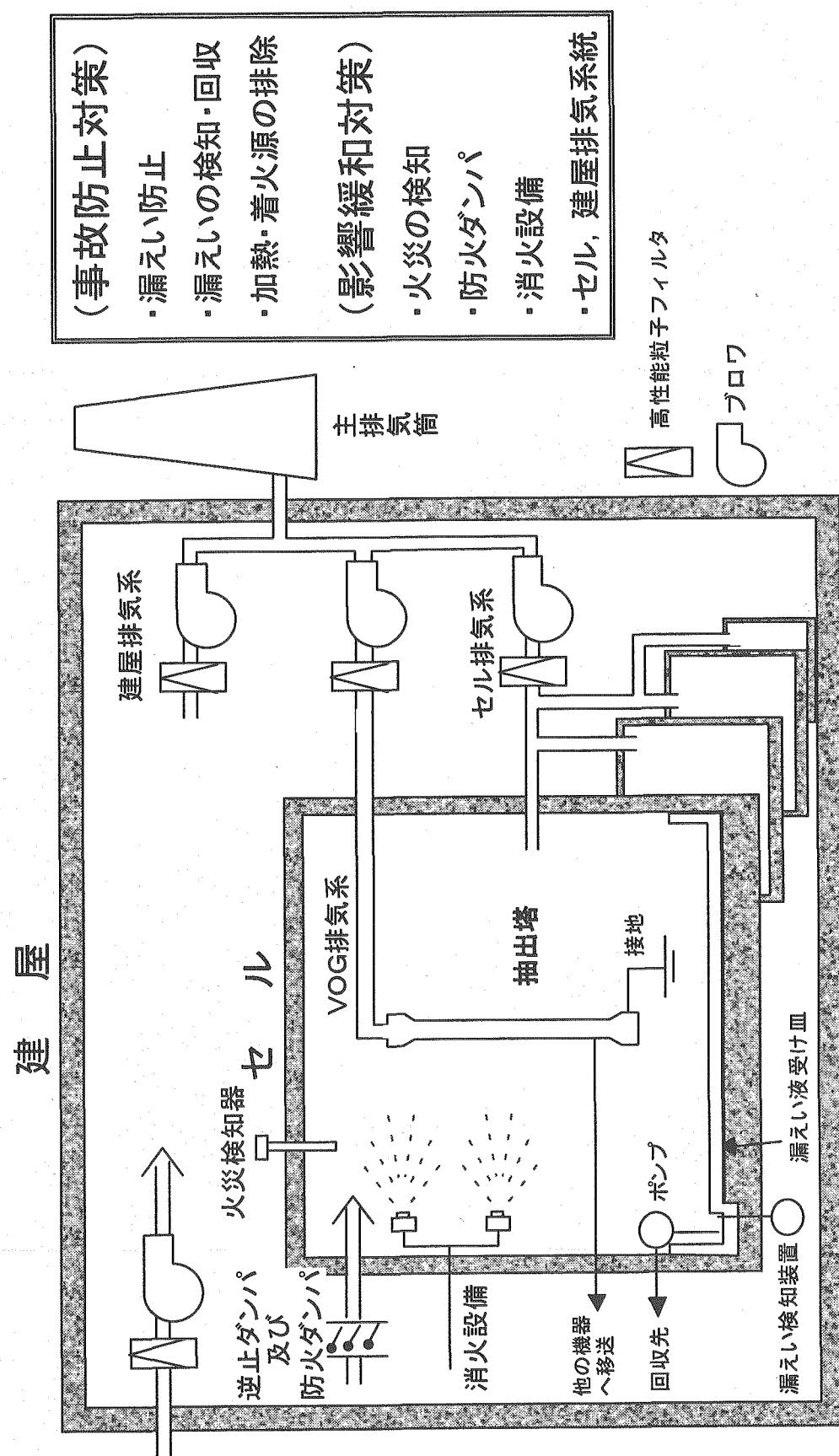


図 2.3-2 セル内火災に対する事故防止及び影響緩和対策の概要

2.4 上限影響を示す事故シナリオの一般的な考察

本節では、2.3 節の代表的な事故シナリオを基に、各事象に対し影響（コンシクエンス）が最大となるケースについて一般的に考察する。

2.4.1 水素爆発及び溶液沸騰

水素爆発及び溶液沸騰事象は、起因事象による機能喪失が全機器に影響を及ぼす場合は、圧空供給系又は冷却水供給系に接続されている全機器で発生する可能性がある。したがって、単純には、影響（コンシクエンス）は、圧空供給系又は冷却水供給系に接続されている全機器での発生を想定する場合が最大となるが、その発生頻度は極めて小さい。上限影響のケースを現実的に検討するには、様々な発生パターン（水素爆発又は溶液沸騰事象について、発生する機器と発生しない機器の多様な組合せのパターン）の頻度をどう考慮するかが課題となる。まず、圧空供給系又は冷却水供給系に接続されている全機器での発生の影響（コンシクエンス）を大略的に評価し、その大きさのオーダーを把握した上で、その結果を基に頻度との兼ね合いを検討することが考えられる。

2.4.2 溶媒火災（セル内への溶媒の漏えいによる）

本事象の起因事象は、溶媒を内包する機器や機器周りの配管からセル内へ溶媒が漏えいすることである。ここで、溶媒を内包する全ての機器や機器周りの配管から同時にセル内への漏えいを発生させるような原因是考え難い。（地震等により溶媒を内包する全ての機器や機器周りの配管が同時に損傷する場合が考えられるが、このような頻度は極めて低いと考えられる。）さらに、セル内には着火源もないことから、同時にセル内で火災が発生する可能性は極めて小さい。したがって、上限影響の検討においては、単独の機器及び機器周りで漏えいが発生して火災に至るケースを対象にできると考えられる。（但し、外的事象の場合については、ここでは考慮していない。）この場合、内包する放射性物質の被爆への影響が大きい機器から多量の溶媒が漏えいして燃焼するようなケースが、影響（コンシクエンス）も大きくなると考えられる。このようなケースは、定性的には、放射性物質濃度が高い溶媒を有し且つ連続的に該当機器に溶媒が供給されている機器及び同機器周りからの漏えいに基づく場合である。（機器に連続的に溶媒が供給されると漏えい量が多くなる。）

上限影響の検討における他の要因として供給酸素量がある。溶媒火災発生時にセルへの給気系が防火ダンパーで閉じられると、供給酸素量と当量の溶媒しか燃焼せず、燃焼溶媒量の上限（即ち、影響（コンシクエンス）の上限）が制限されるので、この観点からの検討も必要である。また、崩壊熱のみでは引火点に達しない場合もあるので（溶媒中の放射性物質濃度等の兼ね合いで）、それらのケースを事前に同定しておくと、考慮対象から除くことができる。

2.4.3 TBP 等の錯体の急激な分解反応

本事象の起因事象は、濃縮缶上流側の抽出装置又は油水分離機能を有する貯槽での不具合である。複数ある濃縮缶について、上流側の抽出装置又は油水分離機能を有する貯槽は個別に存在するので、全濃縮缶の上流側の抽出装置又は油水分離機能を有する貯槽での不具合が同時に起こり、且つ全濃縮缶で温度制御に失敗する（TBP 等の錯体の急激な分解反応が全濃縮缶で同時に発生する）ことは考え難い。したがって、上限影響の検討においては、単独の濃縮缶で発生するケース

を対象にできると考えられる。(溶媒火災の場合と同様な考え方である。この場合、内包する放射性物質の被ばくへの影響が大きい濃縮缶で発生するケースが、影響(コンシクエンス)も大きくなると考えられる。このような濃縮缶は、定性的には、内包する溶液の放射性物質濃度が高く溶液体量が大きい。このような観点から、TBP等の錯体の急激な分解反発時の影響(コンシクエンス)が潜在的に大きい濃縮缶は、各濃縮缶の設計仕様等から判別できると考えられる。

上限影響の検討における他の要因として、分解されるTBP等の錯体の最大値をどう想定するかがある。これは、分解されるTBP等の錯体の量により分解反応の規模が変わるからである。分解されるTBP等の錯体の量は濃縮缶に混入するTBP等の量とみなせるが、濃縮缶に混入するTBP等の量は無制限に想定できるものではない。(例えば、上流側の抽出装置の仕様等(有機相流量、抽出装置内の水相と有機相の比、ミキサセトラの堰高さ等)により、工学的な観点からある程度の上限が考えられる。したがって、このような上限を合理的に検討することが必要である。なお、上記のような混入を繰り返すことの想定についても、頻度との兼ね合いで合理的に設定すべき性質の事項である。

2.4.4 その他の事象

2.4.1～2.4.3項までの考察により、影響(コンシクエンス)が最大となるケースを検討するに当って、複数の機器での同時発生については考慮する必要がないと考えられる事象があることがわかる(2.4.1～2.4.3項の例では、溶媒火災及びTBP等の錯体の急激な分解反応)。2.4.1～2.4.3項で取り挙げた以外のその他の事象に対して影響(コンシクエンス)が最大となるケースを検討するに当っても、このような観点から整理することが一つの方法であると考えられる。例えば、容器等の落下や取扱い不良による破損については、装置が同時に扱う対象容器の範囲で検討を行えばよい。この場合、定性的には、同時に扱う容器の組合せパターンのうち内包する放射性物質の被ばくへの影響が最大の場合が、影響(コンシクエンス)が大きくなると考えられる。

なお、幾つかの種類の事象が複合的に発生する場合も事故シナリオとしては考えられるが(例えば、火災が拡大、延焼し、その熱により発生した可燃性ガスが爆発を誘発する等)、このような場合の発生頻度は、単一の種類の事象が発生する場合に比べて一般的には低下すると考えられる。したがって、上限影響の検討において、幾つかの種類の事象が複合的に発生する事故シナリオをどこまで考慮するかについては、それらの頻度との兼ね合いで検討すべきと考える。また、複合的な事象の影響を検討する場合においても、単一の種類の事象に対する検討方法を組み合わせることにより対応可能と考える。以上のことから、ここでは、複合的な事象の可能性を指摘することに留める。

2.5 その他の検討事項

本節では、放射性物質放出量の評価に際して過度に保守的でなく適切に行うという観点から、今後望まれる検討事項について一般的に考察する。

考察は五因子法で扱う係数を対象に行う。五因子法とはNRC(米国原子力規制委員会)のNUREG/CR-6410に示されている手法であり、次の式により簡易的に放射性物質の放出量を評価するものである。

$$\text{放射性物質の放出量 } Q[\text{Bq}] = \text{MAR} \times \text{DR} \times \text{ARF} \times \text{RF} \times \text{LPF} \quad \cdots \quad (2.5-1)$$

MAR : Material at Risk (発生機器内の放射性物質量) [Bq]

DR : Damage Ratio (MAR のうち事象の影響を受ける割合) (-)

ARF : Airborne Release Fraction (気相への移行割合) (-)

RF : Respirable Fraction (吸入摂取に寄与する割合) (-)

LPF : Leak Path Factor (放出経路での低減割合) (-)

式 (2.5-1) が示すように、用いる MAR～LPF の値が、算出される放射性物質の放出量の値に影響を与える。これら各値の増減に関連すると考えられる要因及び今後望まれる検討事項について下記に示す。

- ・ MRF : 本値については、対象機器が決まればその仕様や運転条件から与えられるので、過度に保守的な設定は避けることができると考えられる。
- ・ DR : 本値については、定性的には発生事象の形態や発生規模に依存すると考えられる。1.0 が最も保守的な設定であるが、保守的過ぎない適切な値を設定するための検討が望まれる。
- ・ ARF : 本値については、多くの研究が行われており、結果はハンドブック等（例えば、NUREG/CR-6410 等）にまとめられている。しかしながら、条件によって異なる値を選択する必要があるので、さらに詳細な分析・整理が望まれる。
- ・ RF : 本値については、1.0 が最も保守的な設定であるが、保守的過ぎない適切な値を設定するための検討が望まれる。本値は吸入される粒子径の割合に依存するので、粒径分布及び吸入粒子径以下の割合を把握することが重要である。
- ・ LPF : 本値に影響する要因として、放出経路の状況、フィルタ損傷の有無、排気系統内での放射性エアロゾルの沈着（沈着がないと仮定すると保守的な評価になる。）がある。したがって、発生事象の種類や規模とこれらの関係を把握するための検討が望まれる。

2.6 第 2 章のまとめ

2.4 節で述べた検討に当っては、最初は、保守性を排除しようとしないで大略的に検討し、その結果を把握した上で、以降の検討を進める方が効率的であると考えられる。

また、2.4、2.5 節で述べた検討に当っては、国内の 2 基の再処理施設の対応する条件の範囲を予め整理し、その範囲に対応する調査や検討を集中して実施することが効率的である。

参考文献

- (1) 日本原燃株式会社、「六ヶ所再処理・廃棄物事業所 再処理事業指定申請書」（平成元年）、「再処理事業所 再処理事業変更許可申請書」（平成 8 年、平成 13 年）、その他
- (2) 大森、須藤他、「東海再処理施設の事象の拡大防止策及び影響緩和策の検討」、JNC TN8410 99-005 (1999)
- (3) 財団法人 原子力発電技術機構 原子力安全解析所、「平成 14 年度 再処理施設の確率論的安全評価手法の整備に関する報告書」、INS/M02-56、平成 15 年 3 月
- (4) 財団法人 原子力発電技術機構 原子力安全解析所、「平成 15 年度 核燃料施設安全解析コード改良整備 再処理施設の確率論的安全評価手法の整備に関する報告書」、INS/M03-49、平成 15 年 9 月
- (5) 独立行政法人 原子力安全基盤機構、「平成 15 年度 再処理施設の確率論的安全評価手法の整備に関する報告書」、JNES/SAE03-077 03 解部報-0077、平成 16 年 11 月

3. 臨界事故評価手法の調査

3.1 はじめに

再処理施設等の主要な工程において安全評価上想定すべき臨界事故の影響の規模について、評価モデル及びその実験や事故等との比較に基づくモデル検証事例を調査し、上限推定の手法を整備する。本年度は、基礎的な情報の収集・整理として、過去の臨界事故事例及び臨界事故模擬実験データの調査・検討を行うとともに、各種の臨界事故評価手法の調査を行った。

3.2 臨界事故の概要

米国ロスアラ莫斯国立研究所の報告書「臨界事故レビュー (LA-13638)¹⁾」によると、これまでに臨界事故として報告されている事例は 60 件ある。そのうち燃料加工施設などの、臨界になることが想定されていなかった機器において発生した例が 22 件あるが、その他の 38 件は臨界実験設備など、あらかじめ臨界になる可能性が想定されていた機器で発生している。

燃料加工施設などの工程操作中に発生した 22 件の臨界事故のうち、1999 年に日本国内で発生した臨界事故^{2,3)}を含め、21 件が溶液状またはスラリー状の核燃料物質で発生している。その他の 1 件は固体（金属）である。燃料の種類としては、高濃縮ウランが 11 件、プルトニウムが 8 件、低濃縮ウランが 3 件である。1999 年の我が国の臨界事故では、公衆への被ばく及び事業所の外部における核分裂生成物による汚染が確認された²⁾。総核分裂数については、米国アイダホICPP における事故が最大で 4×10^{19} 、英国ウインドスケール U.K.AEA における事故が最小で 1×10^{15} と評価されているが、その他の多くは $1 \times 10^{15} \sim 3 \times 10^{18}$ の範囲となっている。

3.2.1 国内及び海外の臨界事故評価事例

日本国内では、茨城県東海村で再処理工場が稼動中であり、青森県六ヶ所村に再処理工場が建設中、MOX 燃料加工施設が建設準備中である。これらの施設における臨界事故時の総核分裂数はそれぞれ、東海再処理工場では災害評価用の事故として 10^{20} 、六ヶ所再処理工場では設計基準事象として 10^{19} 及び立地評価事故として 10^{20} 、並びに MOX 燃料加工施設では仮想臨界事故として 5×10^{18} が想定^{4,5)}されている。東海再処理工場における 10^{20} は、過去の事故事例、事故解析例を参考に想定されたものである。六ヶ所再処理工場における 10^{19} は、選定した設備の事故シナリオでは臨界終息措置により速やかに未臨界状態へ回復されるが、諸外国における過去の臨界事故例等を参考に保守側に想定された数値である。また、立地評価事故の 10^{20} は、施設の隔離距離の妥当性を確認する目的で、設計基準事象をもとに工学的に仮想したものである。一方、MOX 燃料加工施設における 5×10^{18} は、これまでに発生した国内外の臨界事故例、臨界事故評価事例等⁶⁾を参考に、原子力安全基準専門部会において設定された数値である。

海外では、米国 NRC 発行の「核燃料サイクル施設事故解析ハンドブック (NUREG/CR-6410)⁷⁾」に事故解析時の核分裂数の記載がある。核燃料施設を四種類に分類し、それぞれの分類における総核分裂数を、表 3.2-1 のように過去の臨界事故の経験から推定している。

表 3.2-1 NRC による施設の分類と総核分裂数の評価

分類	総核分裂数
Solution systems	$1 \times 10^{15} \sim 4 \times 10^{19}$
Fully moderated and Reflected Solids	5×10^{18}
Powder systems	2×10^{17}
Large Storage Arrays	5×10^{18}

注)5 因子法の適用に際しては、これらの数値を考慮した上で定めた推奨数値を別途提示している。

3.2.2 臨界事故の特徴

核燃料溶液については、臨界事故時の核分裂数、温度、圧力などの挙動を把握するための臨界事故模擬実験が米国⁸⁾、仏国^{9,10)}、日本¹¹⁻¹³⁾で実施されている。米国及び仏国の実験では、主に高濃縮ウランの溶液について、日本原子力研究所の過渡臨界実験装置 TRACY では低濃縮（濃縮度 10%）ウランの溶液について、異なる実験条件（添加反応度量、添加率、等）に対する単位時間あたり核分裂数（出力）の挙動などの実験データが蓄積されている。

ここでは、溶液系での臨界事故の特徴を把握するために、TRACY で実施された実験結果から反応度の添加の方法、添加量、添加率が出力（核分裂率）やエネルギー（核分裂数）の時間変化に与える影響について分析した結果¹⁴⁾を紹介する。

TRACY では、硝酸ウラニル水溶液（ウラン濃度 350-450gU/Lit.、酸濃度 0.5-1.0mol/Lit.）を燃料として、直径 50cm の SUS 製の炉心タンクを用いて、臨界事故を模擬した実験を行っている。炉心タンク中央に配置されたガイド管の中を上下することができる、中性子吸収用のトランジエント棒を急速に引き抜くことによって、瞬時に反応度が添加された場合（パルス引抜）やゆっくり引き抜くことで、ゆっくり反応度が添加された場合（ランプ引抜）、燃料溶液を炉心タンクの底部から徐々に流し込むことによって反応度が徐々に添加された場合（ランプ給液）などの条件での実験がなされている。

図 3.2-1 には、TRACY においてパルス引抜により瞬時に反応度が添加された場合の出力変化を示す。この場合、出力は短時間で上昇し、最大値に達したあと減少していく。この出力の最大値は、図 3.2-1 及び 2 にみられるように添加反応度に応じて大きくなっている。このように短時間で反応度が添加される場合には、温度上昇やボイドによる反応度フィードバックが生じる以前に全ての反応度が添加されるため、最大出力は添加反応度に応じた値となる。出力の第 1 ピークの間に、添加された反応度を補償するのに必要なエネルギーが放出されるため、総核分裂数も図 3.2-3 にみられるように、添加反応度とともに増加している。

反応度の添加がゆっくりと行われるランプ給液では、図 3.2-4 にみられるように、出力が最大に達した後、出力振動が発生している。また、最大出力は図 3.2-2 にみられるように、添加反応度が変わってあまり変化していない。ゆっくりと反応度が添加される場合には、反応度が即発臨界（1\$）を超過した時点で急激な出力上昇が起き、これに伴い温度上昇及び放射線分解ガスによるフィードバック反応度が発生し出力上昇が抑制される。この結果、反応度の添加が続いているにもかかわらず、出力は最大値に達した後、減少する。このため、最大出力は反応度添加量には

とんど依存しないこととなる。また、その後、放射線分解ガスが液面から体系外へ離脱することにより正の反応度が添加され再び出力上昇が生じる。しかし、この出力上昇によって放射線分解ガスが生成されるため、再び出力は低下する。この現象の繰り返しにより、出力に振動が生じる。ランプ給液と同様に反応度の添加がゆっくりと行われる、ランプ引抜実験で測定された総核分裂数を図3.2-5に示すが、図に示されるように総核分裂数は反応度添加率には依存していない。

以上の結果は、TRACY実験により得られたものであるが、仏国のSILENE実験でも同様の結果が得られており、溶液燃料体系（少なくともウラン溶液）の一般的な特徴を現しているものといえる。なお、臨界継続が長時間におよぶ場合には、総核分裂数は、体系の冷却条件、設備構造に依存して変化することが、これまでの事故事例等によりわかっている。

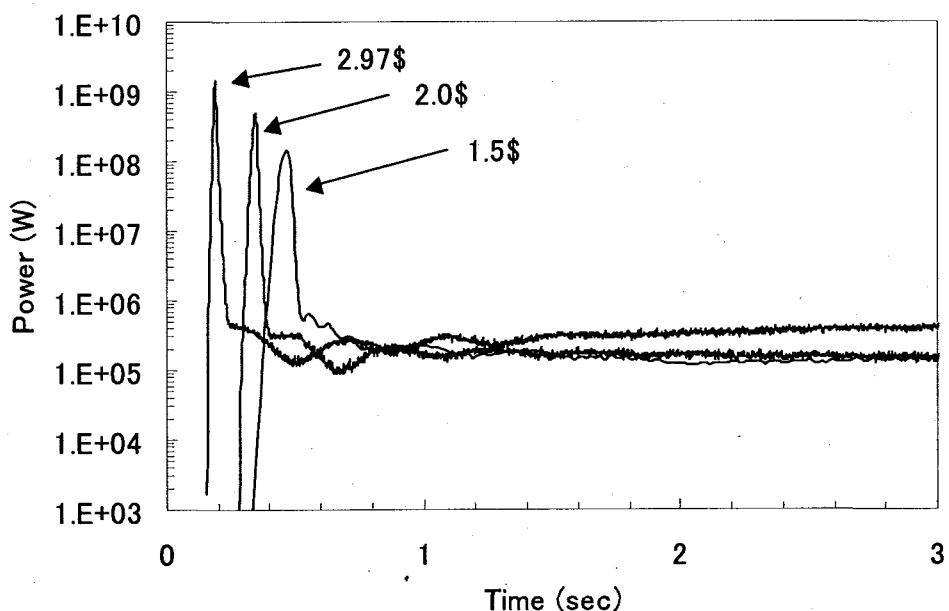


図3.2-1 出力挙動と添加反応度の関係（パルス引抜）

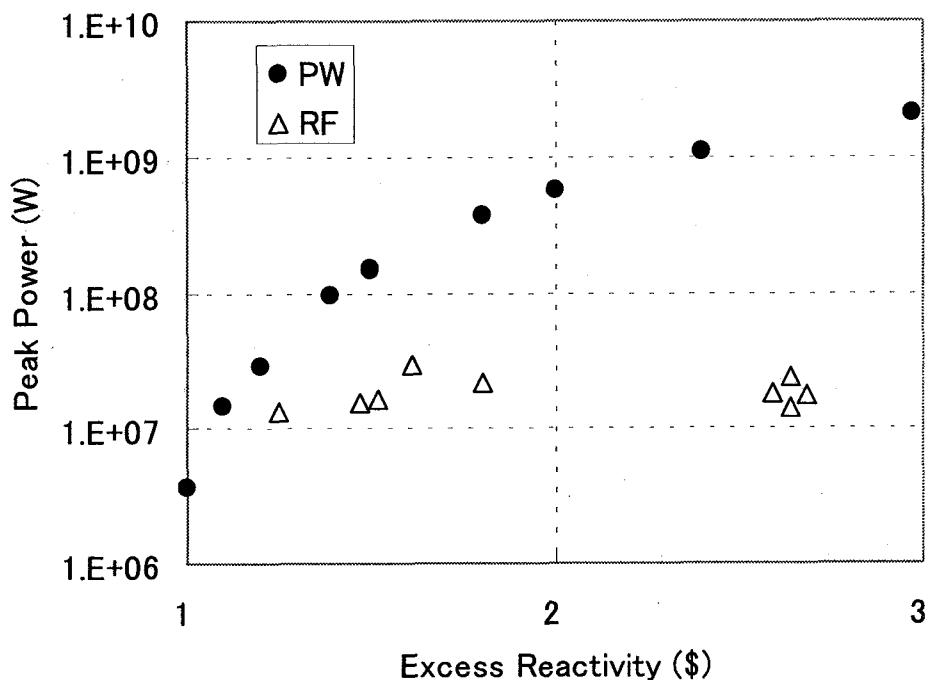


図 3.2-2 最大出力と添加反応度の関係

(PW : パルス引き抜き実験、RF : ランプ給液実験)

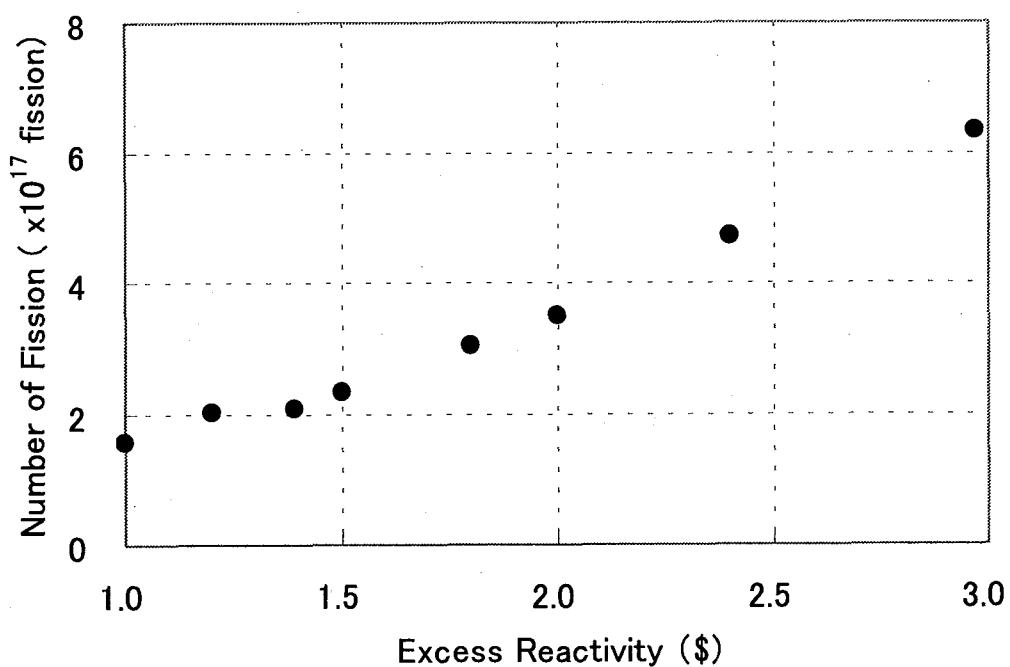


図 3.2-3 総核分裂数と添加反応度の関係 (パルス引抜)

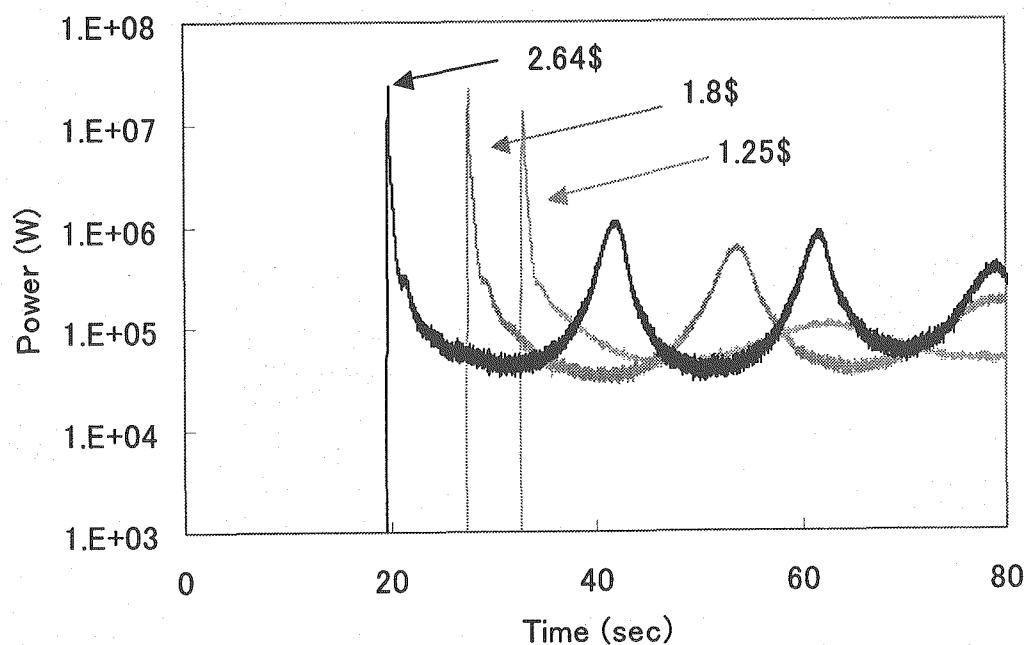


図 3.2-4 出力挙動と添加反応度の関係（ランプ給液）

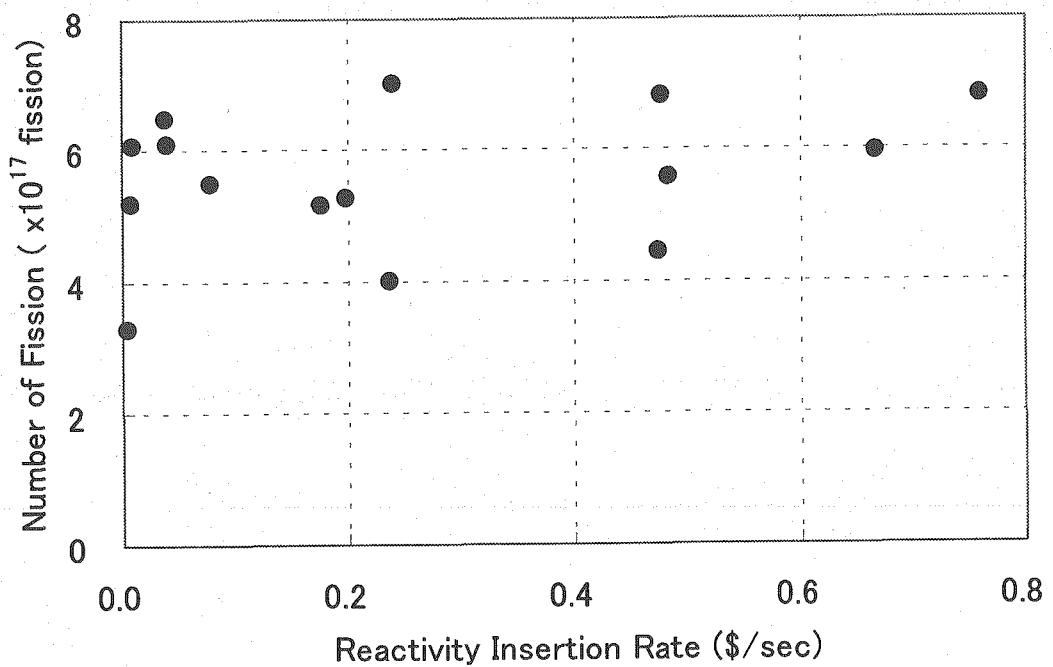


図 3.2-5 総核分裂数と反応度添加率の関係（ランプ引抜）

3.3 臨界事故評価手法

臨界事故規模を評価することを目的として、これまでにさまざまな動特性コードが開発されている¹⁵⁻²²⁾。これらの多くは一点炉動特性方程式に基づくものであるが、FETCH²⁰⁾やINCTAC²²⁾などのように詳細な空間動特性解析を行うものもある。一点炉動特性解析に比べ、空間動特性解析は一般に多大な計算コストを必要とするため、上限評価に必要となるサーベイ計算等に用いることは困難である。動特性解析以外にも、事故事例の調査と炉物理的考察に基づいて総核分裂数や最高出力を燃料物質の体積等の関数として表した簡易評価手法、添加反応度が温度及びボイドによるフィードバック反応度によって常に補償されるとする準定常法などがある。ここでは、利便性や公開性の観点から上限推定に有用と考えられる、簡易評価手法、一点炉近似に基づく動特性解析手法及び準定常法について検討する。それぞれの手法の特徴は表 3.3-1 のとおりである。以下では、各手法について説明する。

表 3.3-1 臨界事故規模評価手法の特徴

評価方法	特徴	短時間 挙動への対応	反応度フィードバック			
			燃料温度	外部冷却 条件	放射線 分解ガス	沸騰
簡易法	包絡的 評価	×	○	×	×	○
AGNES (動特性) 解析	一点炉 動特性 解析	○	○	○	△	×
準定常法	エネル ギーバ ランス	×	○	○	△	○

(○ : 考慮可, △ : 条件付で考慮可, × : 考慮不可)

3.3.1 簡易評価手法

(1) はじめに

溶液燃料体系の臨界事故の規模を簡易的に評価する手法が 1970 年代以降、複数²³⁻²⁶⁾提案されている。これらの手法は、米国及び仏国の過渡臨界実験および過去の臨界事故事例と物理的考察に基づいており、燃料の体積（容器の形状）などの関数として、最大出力や総核分裂数が求められるようになっている。それぞれの手法の特徴を以下に記すとともに、評価の方法を表 3.3-2 にまとめた。

(2) Tuck の方法

初期バースト部の核分裂数を、燃料体積または容器形状（半径、高さ）で与えている。ウランとプルトニウムで異なる式を用いている。総核分裂数については、燃料体積の式として与えられている。これは、溶液の蒸発により事象が終息するとして導かれたものである。

(3) Olsen の方法

CRAC の実験データに基づき初期バースト部とプラト一部に分割して総核分裂数を評価している。プラト一部の評価では総核分裂数は燃料の体積によらず、時間のみの関数としている。この式は、容器直径が 300~800mm、給液速度が 0.027~0.52Lit. /sec (CRAC の実験範囲) に適用できる。

(4) Barbry の方法

CRAC 及び SILENE 実験結果から全積算出力の包絡値を定式化したもので、燃料はウランのみで、総核分裂数を燃料体積と継続時間（最大 600 秒）の関数として与えている。

(5) 野村の方法

総核分裂数を燃料体積の関数として与えている。臨界が短時間すなわち沸騰に至る前に終息する場合と長時間に亘り臨界が継続し溶液が沸騰した場合の 2 種類の式が与えられている。本式は、基本的にウランあるいはプルトニウムなどの燃料の種類、濃度、組成、濃縮度、富化度、硝酸濃度、また形状・寸法に制限なく、負の反応度温度係数を有する溶液燃料体系一般に適用されるものと考えられる。

各手法を過去の臨界事故例に適用した結果を図 3.3-1 に示す²⁶⁾。全ての手法で、概ね上限を再現しており、Tuck の方法、野村の方法（沸騰あり）については、全ての臨界事故時の核分裂数を包絡している。

表 3.3-2 簡易評価手法における評価の方法

提案者	評価項目	評価方法
Tuck	最大 FB	$F_B = 2.4 \times 10^{15} \cdot V$ ウラン系 $F_B = 4.6 \times 10^{16} a^{1/4} \exp \left[0.0177D - \frac{0.8 \cdot (150-H)a}{D} \right]$ プルトニウム系
	FT	$F_T = V \times 10^{17}$
Olsen	FB	$F_B = 2.95 \times 10^{15} \cdot V_B^{0.85}$
	FP	$F_P = 3.2 \times 10^{18} \cdot (1 - t^{-0.15})$
	FT	$F_T = F_B + F_P$
Barbry	FT	$F_T = \frac{V \cdot t}{3.55 \times 10^{-15} + 6.38 \times 10^{-17} \cdot t}$ ($t \leq 600\text{sec}$)
野村	FT	$F_T = 2.6 \times 10^{16} \cdot V$ 沸騰なし（短時間で終息）
		$F_T = 6 \times 10^{16} \cdot V$ 沸騰あり（長期間継続）

注 FB：初期バースト部の核分裂数、FT：総核分裂数、FP：プラト一部核分裂数、V：燃料体積[Lit.]、D：容器直径[cm]、H：容器高さ[cm]、t：臨界継続時間[sec]

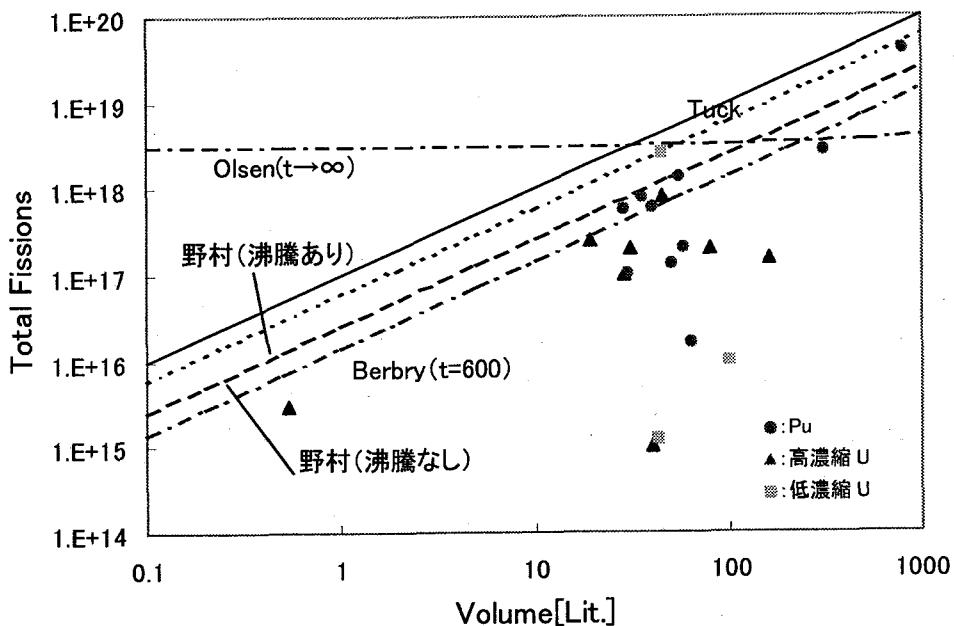


図 3.3.1 簡易評価手法と過去の事故データとの比較

3.3.2 一点炉動特性解析手法

(1) はじめに

一点炉近似により導かれる動特性方程式を利用した解析手法の特徴は、簡易評価手法や次項に述べる準定常法に比べ、詳細な出力挙動を再現できることにある。一点炉動特性に基づく解析コードのうち、溶液燃料の臨界事故解析を目的としたものには、国内では原研が開発している AGNES²¹⁾及び TRACE¹⁹⁾、三菱原子燃料工業株式会社（現、三菱重工業株式会社）が開発した CREST¹⁷⁾、英国の CRITEX¹⁵⁾、米国の SKINATH¹⁶⁾、旧西独の FELIX¹⁸⁾などがある。いずれのコードも一点炉動特性方程式を解く計算方法、温度フィードバック及びボイドフィードバックの計算モデル、反応度添加の計算モデルなどに特徴がある。

以下では、国内の原子力研究所において TRACY, STACY の実験結果をフィードバックする形で改良が行われている AGNES コードの概要について説明する。

(2) AGNES コードの概要

AGNES コードは溶液燃料体系の臨界事故シミュレーションを行うために原研が開発してきたコードで、一点炉動特性方程式を解く。熱計算では、1 次元熱伝達モデルを使用しており、溶液燃料系に特有な放射線分解ガスボイドによるボイドフィードバック効果を評価するためにボイド生成モデルを採用している。

[核計算モデル]

核計算では、中性子源項付き一点炉動特性方程式を解くことにより出力密度 P を求める。

$$\frac{dP}{dt} = \frac{\rho - \beta}{\Lambda} P + \sum_{i=1}^6 \lambda^i C^i + S, \quad \frac{dC^i}{dt} = \frac{\beta^i}{\Lambda} P - \lambda^i C^i. \quad (3.3-1)$$

実際には、これらの式から導かれる以下の式を用いて、新しい時刻の出力密度と遅発中性子先行核密度を算出する。

$$P_{k+1} = e^{\omega_k \Delta t} \left[P_k \left\{ 1 + \frac{\Delta t}{2\Lambda} (\rho_{k+1} - \rho_k) \right\} + \sum_{m=1}^G \lambda^{(m)} C_k^{(m)} \left(\frac{e^{\Delta t (\gamma_k^{(m)} - \omega_k)} - 1}{\gamma_k^{(m)} - \omega_k} - \Delta t \right) + S \left(\frac{e^{-\Delta t \omega_k} - 1}{-\omega_k} - \Delta t \right) \right] \quad (3.3-2)$$

$$C_{k+1}^{(m)} = e^{\gamma_k^{(m)} \Delta t} \left[C_k^{(m)} + \frac{P_k \beta^{(m)}}{\Lambda} \left(\frac{e^{\Delta t (\omega_k - \gamma_k^{(m)})} - 1}{\omega_k - \gamma_k^{(m)}} - \Delta t \right) \right] \quad (3.3-3)$$

ここで ω_k 及び γ_k は

$$\omega_k = \frac{\rho_k - \beta}{\Lambda} + \frac{1}{P_k} \sum_{m=1}^G \lambda^{(m)} C_k^{(m)} + \frac{S}{P_k}, \quad (3.3-4)$$

$$\gamma_k^{(m)} = \frac{\beta^{(m)} P_k}{\Lambda C_k^{(m)}} - \lambda^{(m)} \quad (3.3-5)$$

である。幾何学的条件としては、円筒形状の体系のみ取り扱うことができる。中性子束分布は相対値を入力で与える。反応度 ρ は初期反応度 ρ_0 、添加反応度 $\Delta \rho_a$ 、温度フィードバック $\Delta \rho_t$ の和であらわされる。

$$\rho = \rho_0 + \Delta \rho_a + \Delta \rho_t. \quad (3.3-6)$$

温度フィードバック反応度としては、ドップラー効果、散乱断面積効果、密度変化及び体積変化の効果を考慮することができる。これは、反応度温度係数として必要な効果を含めた値をあらかじめ計算し、入力値とすることで実現する。

[熱計算モデル]

熱計算においては、計算領域を燃料、タンク壁、冷却材の 3 つの領域に分割し、それら 3 領域間の 1 次元熱伝達モデルに基づいて計算を行う。燃料領域（第 1 領域）とタンク壁領域（第 2 領域）における熱バランス式は

$$V_i(\rho C_p)_j \frac{\partial T_i}{\partial t} = \gamma_j PV_i + (hA)_{i-1}(T_{i-1} - T_i) - (hA)_i(T_i - T_{i+1}). \quad (3.3-7)$$

とあらわされる。ここで、左辺項は i 番目の領域の温度上昇率、右辺第 1 項はエネルギー生成項、第 2 項及び第 3 項は隣接領域との熱の交換を表す。冷却材領域（第 3 領域）については、

$$V_i(\rho C_p)_3 \frac{\partial T_i}{\partial t} = \gamma_3 PV_i + (hA)_{i-1}(T_{i-1} - T_i) - \omega C_{p3}(T_{out} - T_{in}). \quad (3.3-8)$$

となる。ここで ω は給液流量率、 C_p は水の比熱を表す。 T_{in} と T_{out} は冷却材の入り口及び出口の温度を示す。第 3 領域の平均温度として

$$T_i = \frac{1}{2}(T_{out} + T_{in}). \quad (3.3-9)$$

と仮定することにより、上記 3 つの方程式を解くことができる。

[放射線分解ガスボイドモデル]

放射線分解ガスボイドの影響を考慮するため、燃料領域を 2 次元 RZ 面内で小領域に分割し、

各小領域におけるボイド率 F_{ij} を以下の式に従って計算する。

$$\begin{aligned}\frac{\partial F_{ij}}{\partial t} &= \nu \gamma_{ij} P (C_{ij} - C_0) \theta(C_{ij} - C_0) - \nu_{ij} \frac{\partial F_{ij}}{\partial z}, \\ \frac{\partial C_{ij}}{\partial t} &= G \gamma_{ij} P - \frac{C_{ij}}{F_{ij}} \nu_{ij} \frac{\partial F_{ij}}{\partial z} - \frac{C_{ij}}{\tau}\end{aligned}\quad (3.3-10)$$

ここで、 F_{ij} ：ボイド率、 C_{ij} ：分解ガスのモル濃度、 P ：出力密度、 γ_{ij} ：ボイド上昇速度、 ν ：エネルギーボイド変換係数、 C_0 ：分解ガスの飽和モル濃度、 $\theta(\cdot)$ ：ヘビサイド関数、である。

(3) 計算例

図 3.3-2 に AGNES コードを用いて TRACY 実験 R100 の解析を行った例を示す。燃料濃度は 392.9gU/Lit.、酸濃度は 0.66mol/Lit. で、液位は約 50.8cm である。初期条件は臨界で 1W の出力である。トランジエント棒のパルス引抜により瞬時に 0.3\$ の添加反応度を与える。実験条件の詳細は表 3.3-3 に示す。図 3.3-2 に示されるように、解析結果は実験結果をよく再現している。

表 3.3-3 実験条件

Run No.	Inserted Reactivity (\$)	Initial state				U Conc. (gU/L)	Acidity (N)	Duration Time (sec)
		Criticality (Power)	Sol. Level (mm)	Fuel Temp. (°C)	Tr-rod position (mm)			
100	0.30	Cri. (1W)	508.52	26.2	471.7	392.9	0.66	554.8

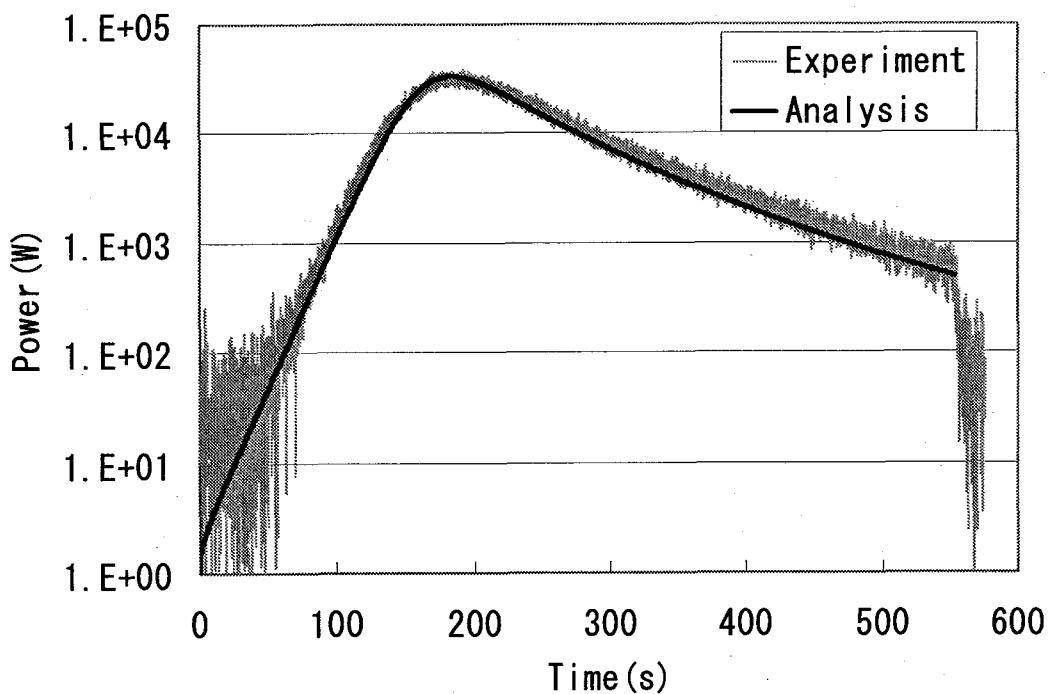


図 3.3-2 AGNES による TRACY 実験 R100 (0.3\$) の解析結果

3.3.3 準定常法

(1) 概要

準定常法とは、溶液燃料体系の臨界事故解析を行うために開発された手法である^{28,29)}。一般に、溶液燃料体系では、フィードバック反応度として温度反応度のほかに放射線分解ガス及び沸騰による2種類のボイド反応度がある。準定常法では、体系に加えられた反応度がこれらのフィードバック反応度により、常に補償されていると考えて、出力の時間変化を算出する手法である。具体的には、あらかじめ与えられたボイドの発生量（ボイド率）と出力の相関式を用いて、体系の反応度がゼロとなるようなボイド率から出力を求め、その出力を用いて熱計算により温度変化を評価する手法である。ただし、この手法は出力の平均的な変化を計算する手法であり、短時間での出力変化を計算することはできない。

(2) 計算方法

準定常法では、添加反応度を ρ_{IN} 、温度反応度を ρ_{Temp} 、ボイド反応度を ρ_{Void} とすると、常に次式が成立すると仮定している。

$$\rho_{IN} + \rho_{Temp} + \rho_{Void} = 0 \quad \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \quad (3.3-11)$$

ここで、体系（溶液）の温度変化（上昇）を T 、また、ボイド率を f とすると、上式は次のように書き換えられる。

$$\rho_{IN} + \alpha_{Temp} \cdot T + \alpha_{Void} \cdot f = 0 \quad \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \quad (3.3-12)$$

ただし、 α_{Temp} 、 α_{Void} は各々温度及びボイド反応度係数である。また、ここでは簡単のために反応度係数は1次係数のみとしているが、実際の計算では2次係数まで取り扱っている。

さて、ボイド率 f は体系の出力 P の関数により表現できる。具体的には、放射線分解ガスによるボイド率は次式となる。

$$f(1-f) = C_1 \cdot P \quad \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \quad (3.3-13)$$

ここで、 C_1 は燃料条件等により決まる定数である。また、沸騰によるボイド率は、定数 C_2 を用いて次式で表される。

$$f = C_2 \cdot P \quad \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \quad (3.3-14)$$

準定常法では、(3.3-12～14)式を用いて、出力変化を計算する。まず、ある時間幅 dt における添加反応度が与えられると、(3.3-12)式において温度変化 T をゼロとして、ボイド率 f を求める。このボイド率から(3.3-13)式（非沸騰時）あるいは(3.3-14)式を用いて出力を求めることができる。次の時間幅では、この出力を用いて温度変化を評価し、この温度変化を考慮して(3.3-12～14)式を用いて、ボイド率、出力を順次計算している。これにより、出力の時間変化を各時間幅（ステップ）について計算することができる。なお、沸騰が発生した場合には、沸騰による反応度変化の項を(3.3-12)式に追加し、計算することもできる。以上述べた計算のフローを図 3.3-3 に示す。

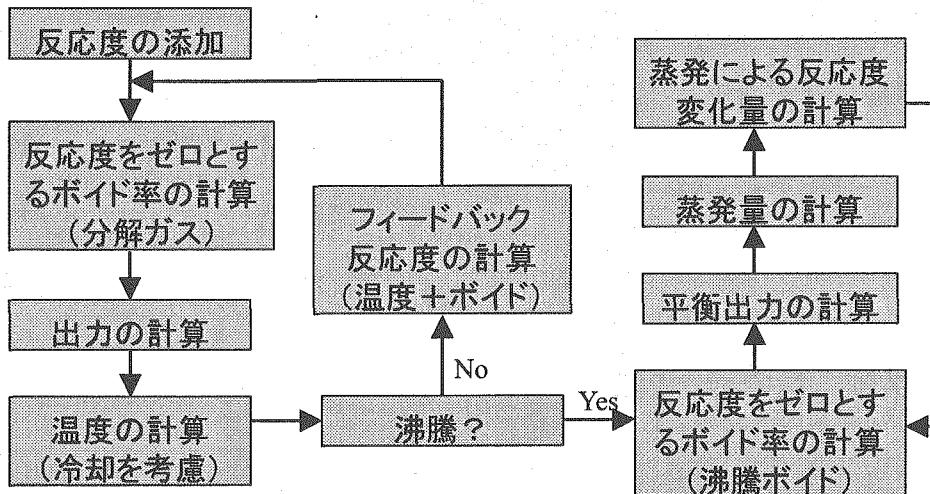


図 3.3-3 準定常法の計算フロー

(3) 計算例

準定常法を用いた計算事例として、フランスの CRAC 実験及び原研の TRACY 実験の解析結果を紹介する²⁹⁾。フランスの CRAC 実験は直径約 30cm の円筒容器に 93% 濃縮ウランの硝酸ウラニル水溶液を連続給液することにより 8.6\$ の反応度を投入し、最終的に溶液は沸騰に至っている。一方、TRACY 実験は 10% 濃縮の硝酸ウラニル水溶液を直径約 50cm の円筒炉心に連続給液した実験で、最大反応度 3 ドル未満の範囲で反応度の添加量、添加率をパラメータとした 4 種類の実験を取り上げた。これら解析を行った実験の条件を表 3.3-4 に示す。

解析により求めた出力及びエネルギーの時間変化を図 3.3-4 及び 5 に実験結果とともに示す。これらの図に示されたように、準定常法では、出力振動のような急激な時間変化は計算できないが、平均的な出力挙動は実験結果をほぼ再現しており、また、エネルギーについても、初期の部分を除いて実験をよく再現していることがわかる。

表 3.3-4 解析対象とした実験の条件

	Run	U (gU/l)	Acidity (N)	H_c (mm)	Feed rate (l/min)	Feed time (s)	Reactivity (\$)	Rate (t/s)
CRAC	16	82.3	2.20	420	7.77	205	8.60	4.2
TRACY	61	422.1	0.77	461.38	59	14.4	2.64	18.3
	71	392.7	0.75	503.37	41	28.0	2.75	9.8
	76	396.2	0.74	496.25	20	52.7	2.66	5.0
	98	391.7	0.73	500.52	60	11.3	1.80	15.9

U : Uranium concentration, Acidity: Free nitric acid molarity, H_c : Critical height,

Reactivity: Inserted reactivity by solution feed, Rate: Reactivity insertion rate

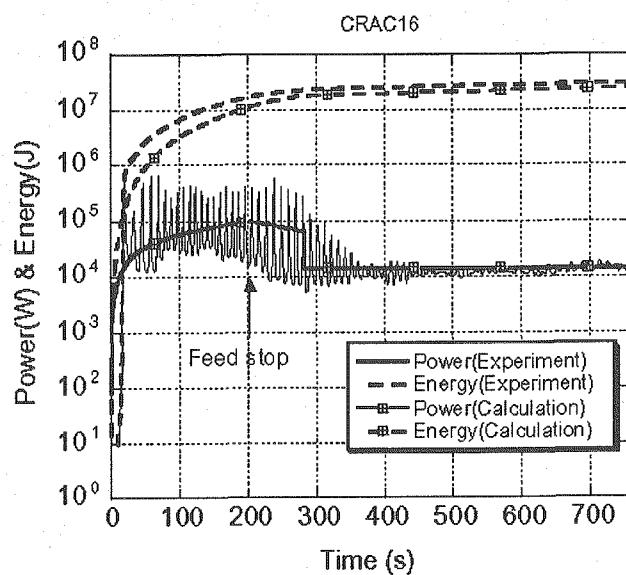


図 3.3-4 CRAC 実験（沸騰実験）の解析結果

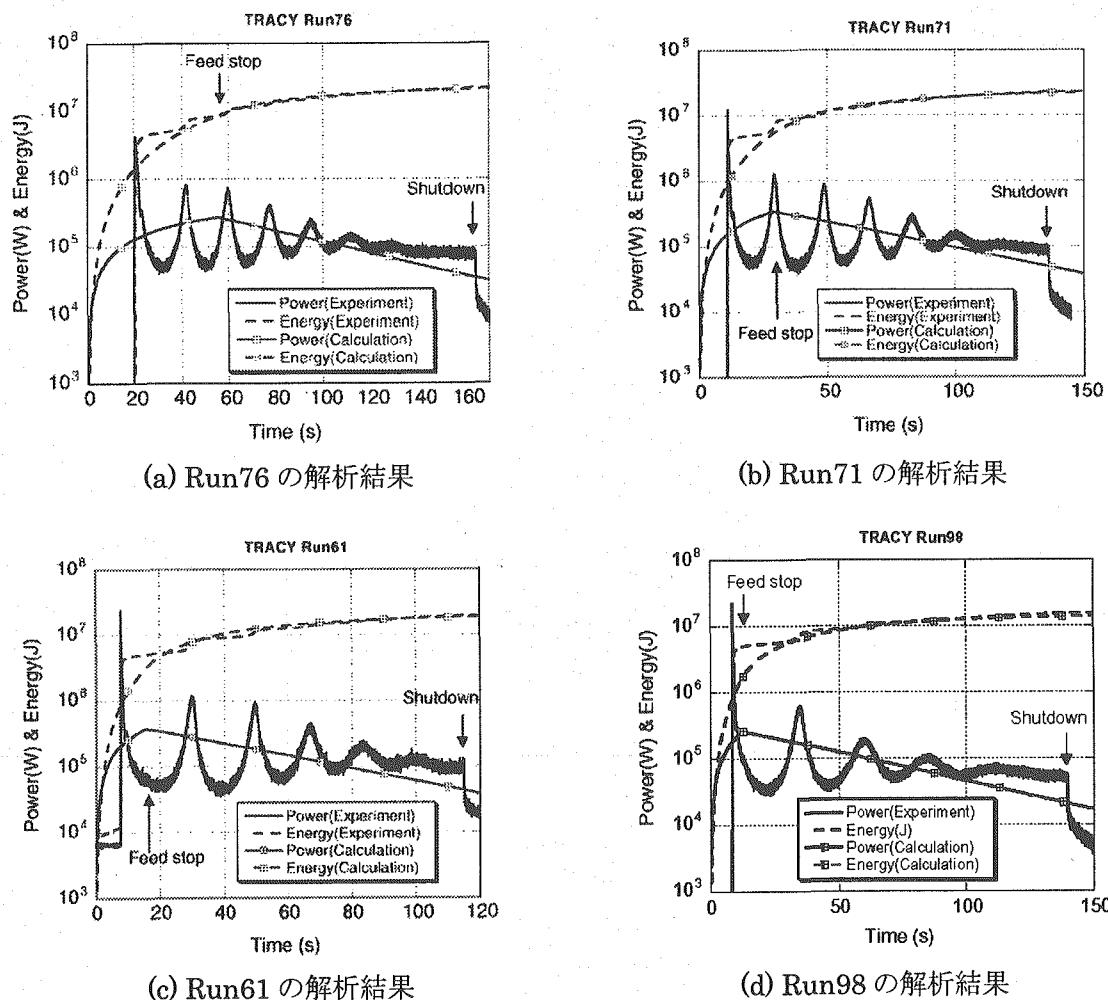


図 3.3-5 TRACY 実験の解析結果

3.4 第3章のまとめ

本章では、臨界事故時の影響の規模を評価するために、過去の事故事例、臨界事故評価事例の調査・整理を実施するとともに、臨界事故模擬実験の結果から添加反応度と核分裂数の関係等を分析した。また、臨界事故規模、つまり核分裂数を評価するための手法について、調査を行い、過去の事故事例及び実験結果との比較によりそれぞれの特徴を把握するとともに適用性の検討に必要な基礎的な情報の収集・整理を行った。

今後は、核燃料施設における工程条件及び想定事故事象等の調査を行うとともに、これらのデータをもとにした核燃料施設における臨界事故規模の上限として適切な値についての評価・検討を実施する。

参考文献

- (1) T. P. McLaughlin et al., A Review of Criticality Accidents 2000 Revision, LA-13638 (2000).
- (2) 原子力安全委員会 ウラン加工工場臨界事故調査委員会、「ウラン加工工場臨界事故調査委員会報告」,(1999).
- (3) 渡辺憲夫, 玉置等史, 「海外の核燃料施設における臨界事故に関する事例集」, JAERI-Review 2000-006 (2000).
- (4) 臨界安全ハンドブック第2版, JAERI 1340, (1999).
- (5) 原子力安全基準専門部会 MOX 加工施設指針検討分科会 議事録 M 分第 13-3 号「臨界事故評価について(MOX 加工).」(2001).
- (6) 三好慶典, 山本俊弘, 中島健, 「MOX 粉体燃料の臨界事故の簡易評価」, JAERI-Research 2002-002 (2002).
- (7) Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook, NUREG/CR-6410 (1998).
- (8) M. Dunenfeld and R. Stitt, "Summary Review of the Kinetic Experiments on Water Boilers," NAA-SR-7087 (1963).
- (9) P. Lécorché, et al., "A Review of the Experiments Performed to Determine the Radiological Consequences of a Criticality Accident," Y-CDC-12 (1973).
- (10) F. Barbry and J.P. Rozain, "Objectives and Summary of Experiments on The Formation of Radiolysis Gas Carried Out using The Silene Reactor," SRSC 89.08 (1989).
- (11) K. Nakajima, et al., "TRACY Transient Experiment Databook 1)Pulse Withdrawal Experiment," JAERI-Data/Code 2002-005 (2002).
- (12) K. Nakajima, et al., "TRACY Transient Experiment Databook 2)Ramp Withdrawal Experiment," JAERI-Data/Code 2002-006 (2002).
- (13) K. Nakajima, et al., "TRACY Transient Experiment Databook 3)Ramp Feed Experiment," JAERI-Data/Code 2002-007 (2002).
- (14) Y. Yamane, et al., "Transient Characteristics Observed in TRACY Supercritical Experiments," Proc. 7th International Conference on Nuclear Criticality Safety (ICNC2003), JAERI-Conf 2003-019 (2003).
- (15) D.J. Mather, et al., "CRITEX – A Computer Program to Calculate Criticality Excursions in Fissile Liquid Systems," SRD R 380 (1984).
- (16) H.L. Dodds, et al., "SKINATH – A Computer Program for Solving the Reactor Point Kinetics Equations with Sample Thermal Hydraulic Feedback," ORNL/CSD/TM-210 (1984).
- (17) R. Kato, et al., "The Code CREST to simulate Criticality Accident Power Excursion in Fuel Solution," Proc. Safety Margin in Critical Safety, San Francisco, U.S.A., Nov. 26-30, 1989 (1989).
- (18) B. Gmal and J. Weber, "FELIX- A Computer Code for Simulation of Criticality Excursions in Liquid Fissile Solutions," Safety of the Nuclear Fuel Cycle, ed. by K. Ebert, et al., VCH Publishers (1989).
- (19) B. Basoglu, et al., "Development of a New Simulation Code for Evaluation of Criticality Transients Involving Fissile Solution Boiling," JAERI-Data/Code 98-011 (1998).

- (20) C.C. Pain, et al., "Transient Criticality in Fissile Solutions Compressibility Effects", Nuc. Sci. and Eng., 138 78-95 (2001).
- (21) 中島健, 山根祐一, 三好慶典, 「溶液燃料体系の臨界事故解析コード: AGNES」, JAERI-Data/Code 2002-004 (2002).
- (22) S. Mitake, et al., "Development of INCTAC code for Analyzing Criticality Accident Phenomena," Proc. 7th International Conference on Nuclear Criticality Safety (ICNC2003), JAERI-Conf 2003-019 (2003).
- (23) G. Tuck, "Simplified Methods of Estimating the Results of Accidental Solution Excursions," Nucl. Technol., 23, 177 (1974).
- (24) A. R. Olsen et al., "Empirical Model to Estimate Energy Release from Accidental Criticality," Trans. Am. Nucl. Soc., 19, 189 (1974).
- (25) F. Barbry et al., "Criticality Accident Studies in France: Experimental Programs and Modelisation," Proc. Int. Seminar on Nuclear Criticality Safety, ISCS'87, Tokyo, Japan, October 19-23, 1987, p. 423 (1987).
- (26) Y. Nomura and H. Okuno, "Simplified Evaluation Models for Total Fission Number in a Criticality Accident," Nucl. Technol., 109, 142 (1995).
- (27) K. Nakajima, "Applicability of Simplified Methods to Evaluate Consequences of Criticality Accident Using Past Accident Data," Proc. 7th International Conference on Nuclear Criticality Safety (ICNC2003), JAERI-Conf 2003-019 (2003).
- (28) T. Shulenberg and J. Dohler, "Heating-up Nucleation and Boiling of a Critical Solution of Fissile Material," Int. J. Multiphase Flow, 12[5], 759 (1986).
- (29) K. Nakajima, T. Yamamoto and Y. Miyoshi, "Modified Quasi-Steady-State Method to Evaluate the Mean Power Profiles of Nuclear Excursions in Fissile Solution," J. Nucle. Sci. Technol., 39[11], 1162 (2002).

4. 放射性物質のエアロゾル化挙動に関するデータの調査

4.1 はじめに

米国原子力規制委員会は、1998年に核燃料サイクル施設の事故解析ハンドブック(NUREG/CR-6410)⁽¹⁾（以下、事故解析ハンドブックと呼ぶ）を刊行した。そこでは、核燃料物質のエアロゾル化割合に関する数多くの実験データを基にして簡易的に放射性物質の放出量を評価する手法として五因子法(Five Factor Formula)が提案されている。五因子法では、図4.1-1に示すように放射性物質の環境への移行過程を段階的に区分し、放射性物質の放出量を図中に示す5つの因子の積として定義している。各段階の通過割合は、試験データ等を基にある程度保守性を持つ係数として定めている。本章では、以下に示すARF(霧囲気中に放出され浮遊する割合)およびRF(肺に吸入され得る微粒子の割合)について、再処理施設でPSAの対象となる事故のうち、放射性廃液貯槽での沸騰および溶液貯槽での爆発事象を例に、事故解析ハンドブックに示されたエアロゾル発生量の評価に用いる数値の根拠となった実験等を調査し、その適用可能性について検討した。以下に五因子法で評価する各因子の定義を示す。

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

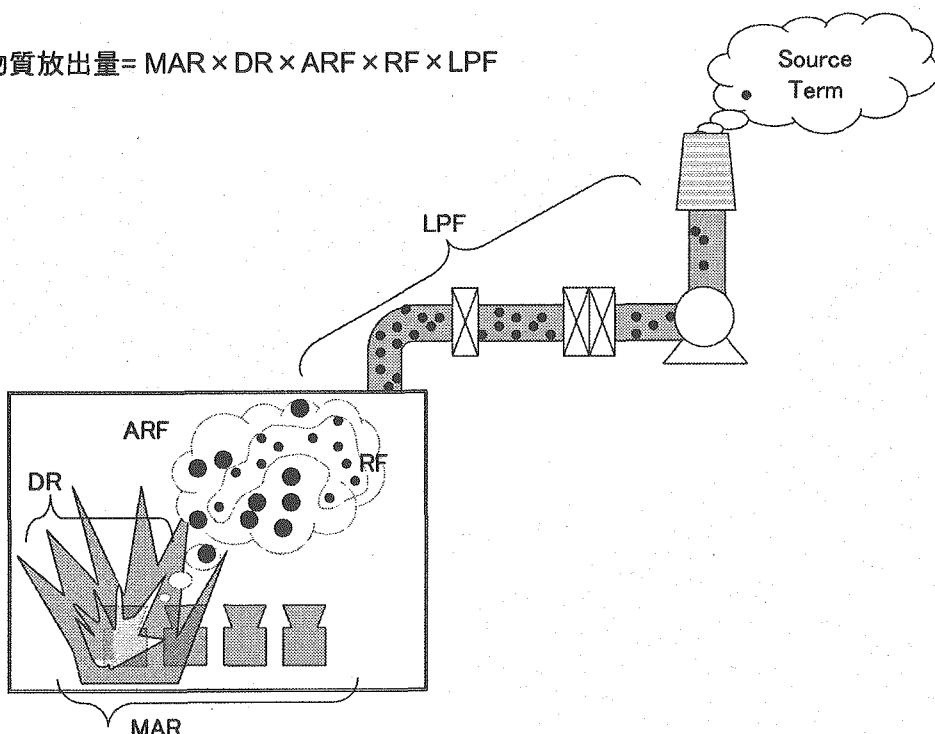


図4.1-1 五因子法で想定する放射性物質の環境中への移行過程

(a) MAR (Material at Risk : リスクをもたらす物質の総量)

MARは異常事象時に生じる物理的な外力によって環境に影響を及ぼす可能性のある物質の質量を表す。MARの値は外力の規模に依存しており、施設内に存在する全インベントリー量から個々の工程内の局所的インベントリーまでの幅がある。

(b) DR (Damage Ratio : 事故の影響を受ける割合)

DR は特定の事象から与えられる外力によって現実に影響を受ける割合を表し、MAR の分率である。DR の数値は、異常事象で生じる外力の上限、外力による構造物の応答解析、MAR で表される物質の物理・化学的な形態を考慮して決められる。DR は、MAR の定義に依存して変わる。外力の直接影響を受ける放射性物質の量を、 $MAR \times DR$ で表せばよい。

(c) ARF (Airborne Release Fraction : 雰囲気中に放出され浮遊する割合)

ARF は、異常事象で発生した外力の影響により気相に放出される物質の分率を表す。ARF は影響を及ぼす外力の種類や影響を受ける物質本来の物理・化学的性状に依存する因子である。たとえばガスは除去されることなく放出し、液体や固体は粒子化や再飛散を起こして分散する。

(d) RF (Respirable Fraction : 肺に吸入され得る微粒子の割合)

RF は気相に浮遊した物質のうち、呼吸により肺に吸入される粒子の分率を表す。一般には、空力学的等価直径 (AED : Aerodynamic Equivalent Diameter) : DAED が $10 \mu m$ 以下の微粒子が対象になる。AED とは、密度が $\rho = 1.0 g/cm^3$ の球形粒子における終末沈降速度を想定し、その球形粒子と同じ沈降速度をもつ粒子の直径として定義される。

(e) LPF (Leak Pass Factor : 環境中へ漏れ出る割合)

LPF は浮遊性粒子の沈着や沈降のような除去作用および閉じ込め系のバリアを通過する浮遊性物質の分率を表す。除去作用とは、粒子の重力による沈降、粒子間の凝集効果、フィルタによる捕集効果などである。

4.2 溶液沸騰事象に関するデータの調査・分析

ここでは再処理施設の放射性廃液貯槽での沸騰事象を例に、エアロゾル発生量を評価するときに利用可能なデータについて調査・分析した。再処理施設の放射性廃液貯槽での沸騰事象のシナリオとしては、同設備の冷却系統が機能焼失し、廃液に含まれる放射性物質の崩壊熱が除去できなくなり、徐々に廃液の温度が上昇して、沸騰を開始し、冷却が回復しない場合は、水分は蒸発し乾固するシナリオを想定する。事故解析ハンドブックでは、このような事象に利用可能と考えられるデータとして以下が示されている。

a. 沸騰前の状態、バブルの発生なし

$$ARF = 3 \times 10^{-5} \quad (1 \times 10^{-8} \sim 3 \times 10^{-5}), RF = NA$$

b. 沸騰の状態

$$ARF = 2 \times 10^{-3} \quad (4.5 \times 10^{-7} \sim 1.1 \times 10^{-3}), RF = NA$$

このデータの基となった実験として以下⁽²⁾を参照しているが、直接的には、核燃料施設での事故時のエアロゾル化挙動に関して DOE がまとめたハンドブック⁽³⁾での上記の推奨値を引用している。

Mishima, J., et al, "Plutonium Release Studies IV. Fractional Release From Heating Plutonium Nitrate Solutions in A Flowing Stream", BNWL-931, 1968

そこで、参考文献(2)より実験の概要を調査するとともに、文献(3)から事故解析ハンドブックの推奨値の導出過程を分析した。

4.2.1 実験データに関する調査

Mishima らが実施した実験は以下の 3 ケースである⁽²⁾。

実験 A : 浅い硝酸 Pu 水溶液プールで蒸散させる実験

実験 B : 硝酸 Pu 水溶液を沸騰させた実験

実験 C : 硝酸 Pu 水溶液の蒸発残渣を加熱した実験

(1) 実験 A : 浅い硝酸 Pu 水溶液プールで蒸散させる実験

実験装置の概要を図 4.2-1 に示す。図中のステンレスの蒸発皿に硝酸 Pu 溶液 (0.72g あるいは 0.86g のプルトニウムを含む) を滴下し、蒸発皿の下部からアルコールランプで加熱する。緩やかな空気流のもとで溶液を蒸発させ、下流側に設置した凝縮器で、エアロゾル化した Pu を回収してエアロゾル化率を求める実験である。

表 4.2-1 に実験結果を示す。DOE ハンドブックでは、表中の左端に丸印を付けた実験値を基に、「沸騰前で気泡の発生のない状態での ARF 値 (3×10^{-5})」を求めている。しかし、文献(2)によれば四角で囲ったケースでは、溶液の温度制御がうまくできず沸騰したと記述がありエアロゾル化率は DOE が採用した他のケースに比べ大きな値になっている。

(2) 実験 B : 硝酸 Pu 水溶液を沸騰させた実験

実験装置の概要を図 4.2-2 に示す。図中の 180ml のビーカーに 100ml の硝酸 Pu 溶液 (700 μg のプルトニウムを含む) を入れ、ビーカーを電気ヒータで加熱し、全量の 90%まで蒸発させる。2.9cm/sec の上向きの空気流を閉じ込め容器 (容積 : 4 リッター) 内に流す。容器の上部出口にはフィルタが設置され、エアロゾル化した Pu が回収される。

表 4.2-2 に実験での測定結果を示す。回収した Pu のうち、上昇空気流に同伴して容器上部出口のフィルタに付着した Pu 量の比率が、DOE ハンドブックおよび事故解析ハンドブックでの ARF 値として参照されている。実験装置の写真 (参考文献には掲載されている) を基に閉じ込め容器の体積からビーカーの液面とフィルタの距離は 20cm~30cm と推定され、近接していること、閉じ込め容器内面を伝って落下した液滴として回収された Pu 量とフィルタ付着 Pu 量が同程度であること、ケース A では蒸気の付着でフィルタが破損していることから、フィルタ面には、液滴が付着した可能性が高く、ARF 値としては過大評価になると考えられる。さらに、フィルタへの到達量は、上昇空気流量の影響を受ける。

(3) 実験 C : 硝酸 Pu 水溶液の蒸発残渣を加熱した実験

実験装置の概要を図 4.2-3 に示す。この実験のサンプルは、実験 A で蒸発させたステンレス皿

のサンプルに残った蒸発残渣をヒータで加熱してエアロゾル化する現象を測定する実験である。実験では、円筒部の上昇空気流量と、サンプルの加熱温度をパラメータとしている。

表 4.2-3 に実験結果を示す。実験 N5a は測定値が他のケースに比べ明らかに異なる。文献(2)での本実験の考察でもこの点を指摘しており、実験後にステンレス皿に残ったサンプルの性状が他のサンプルと異なると記述している。実験パラメータは、加熱温度および上昇空気流量のエアロゾル化挙動に及ぼす影響を検討するように選定されているが、ケース数が少ないため、これらのパラメータに関する定性的な特徴を分析できない。この実験結果は、いずれのハンドブックにも ARF に関する実験値としては参照されていない。

4.2.2 実験に関する調査のまとめ

沸騰前の蒸散の実験データには、部分的に沸騰しているデータが含まれており、ARF 値としては、 3×10^{-5} は過大であると考えられる。沸騰を伴う実験では、フィルタに吸着した Pu 量を ARF 値としているが、この実験体系では上昇空気流量により吸着量が影響を受けるだけでなく、沸騰液面とエアロゾルを回収するフィルタが近接しているため、重力沈降で落下するような比較的大きな液滴も含まれる可能性があり、ハンドブックの ARF の推奨値： 2×10^{-3} は過大であると考えられる。

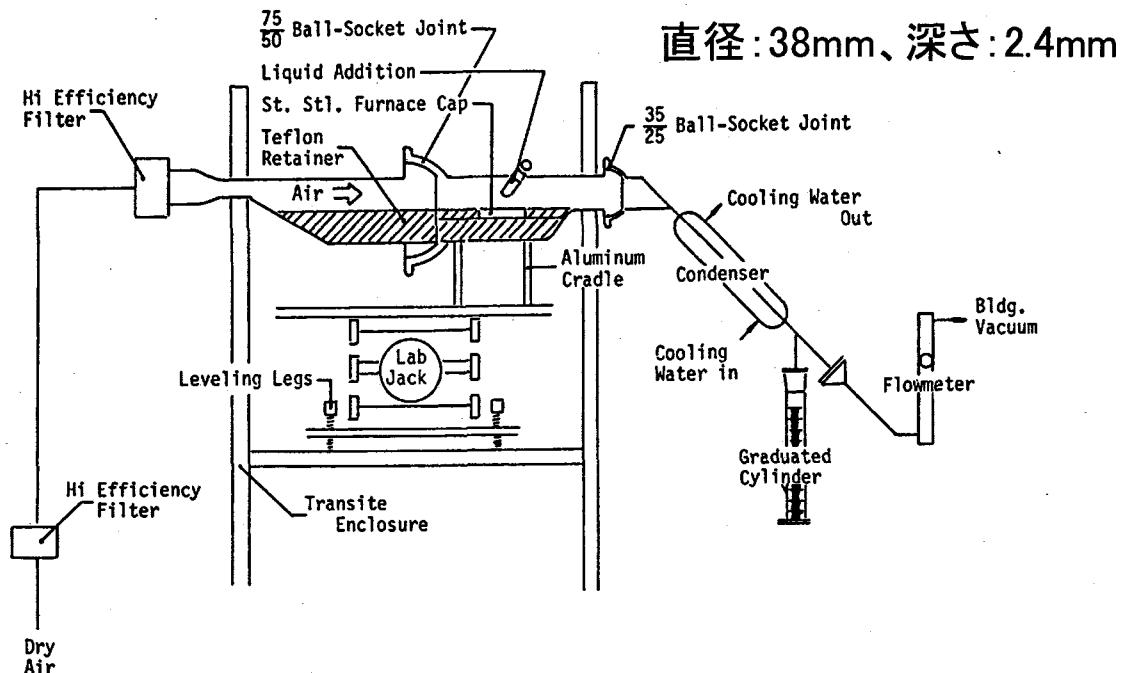


図 4.2-1 実験 A：浅い硝酸 Pu 水溶液プールで蒸散させる実験⁽²⁾
- 実験装置 -

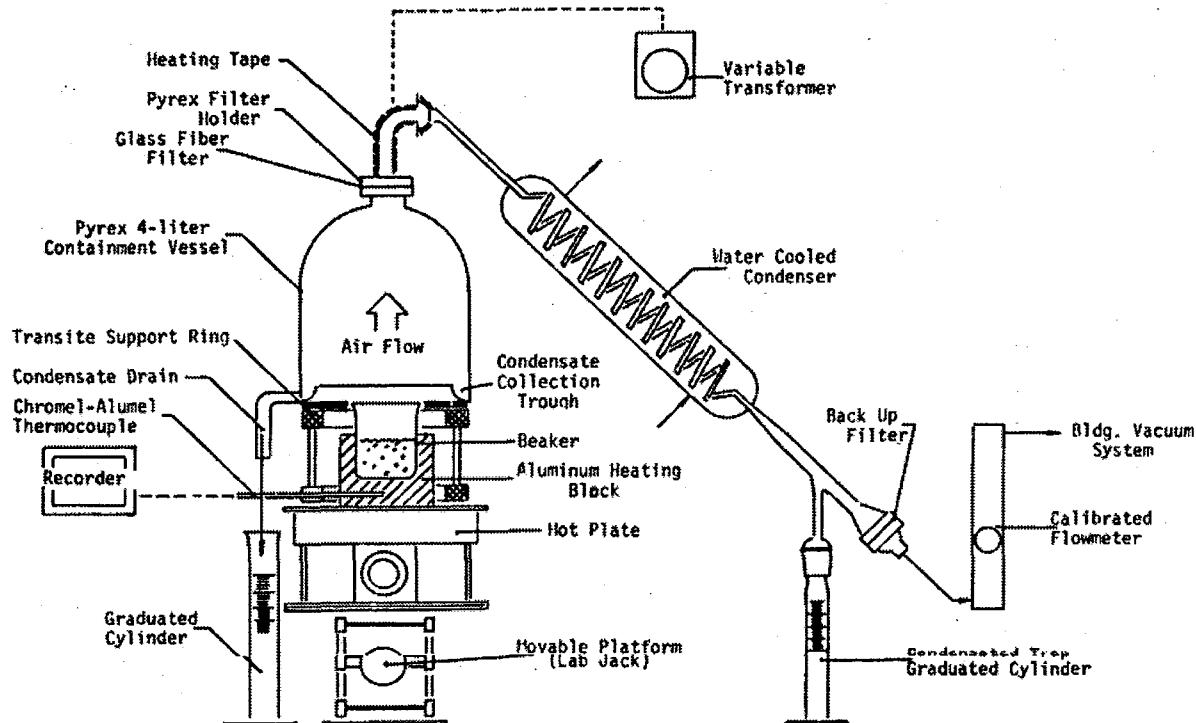
表 4.2-1 実験 A：浅い硝酸 Pu 水溶液プールで蒸散させる実験⁽²⁾
- 測定結果 -

TABLE I
FRACTIONAL RELEASE DURING AIR DRYING OF CONCENTRATED PLUTONIUM NITRATE SOLUTIONS
(Using 0.72g Plutonium as a source)

Run No.	Temp. (°C)	Air Velocity (cm/sec)	Sampling Time		Containment Vessel Wash		Sweep Air During Evaporation	Sweep Air Following Evaporation
			Evap. (hr)	Residue (hr)	Condensate + Wash			
N1*	Ambient	10	24		0.0033	8.7×10^{-3}	<10 ⁻⁷	--
○ N2*	75	10	5	20	0.00027	9.5×10^{-8}	<10 ⁻⁶	<10 ⁻⁶
○ N3	100	10	2	4	0.0046	1.7×10^{-6}	0.001	3×10^{-7}
N4	Ambient	50	24	24	0.00035	4.5×10^{-7}	2.5×10^{-7}	1×10^{-7}
○ N5	100	50	1-1/2	3	0.027	1.4×10^{-4}	0.003	6×10^{-7}
○ N6	90	50	2	4-1/2	0.00051	5.4×10^{-6}	5.3×10^{-5}	1×10^{-6}
N7	Ambient	100	24	24	0.020	7.5×10^{-8}	<2 × 10 ⁻⁸	<2 × 10 ⁻⁸
○ N8	50	100	2	4	0.00045	9.4×10^{-6}	1.3×10^{-5}	<2 × 10 ⁻⁸
○ N9	90	100	1-1/2	4	0.00013	9.4×10^{-5}	5.7×10^{-5}	3×10^{-6}

* 0.86 g plutonium used during these runs.

○:DOEハンドブックで参照

図 4.2-2 実験 B : 硝酸 Pu 水溶液を沸騰させた実験⁽²⁾

- 実験装置 -

表 4.2-2 実験 B : 硝酸 Pu 水溶液を沸騰させた実験⁽²⁾

- 測定結果 -

TABLE II

FRACTIONAL RELEASE DURING THE HEATING OF POOLS OF PLUTONIUM NITRATE SOLUTIONS

(90% solution boiled off, 700 μg plutonium as source,
2.9 cm/sec air up sweep during evaporation.)

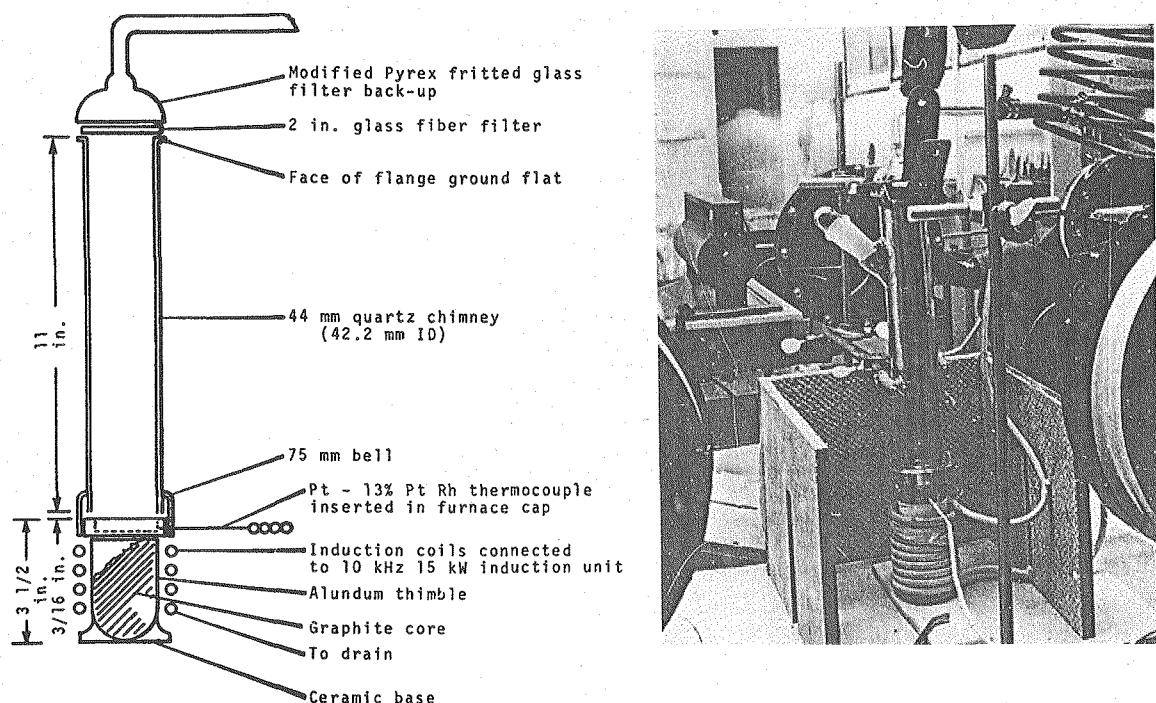
Run No.	Average Hot Plate Temp. ($^{\circ}\text{C}$)	Average Boil-Off Rate (ml/min)	Period Heated (min)	Plutonium Recovered			Visual Appearance of Solution During
				Exhausted by Sweep Air (dpm)	(wt.%)	Fall-Out (dpm)	
A	218	1.4	63	2×10^5	.18**	2.3×10^4	.02
B	190	0.9	80	9.4×10^4	.084	3×10^5	.27
C	175	0.73	124	2.7×10^4	.024	1.3×10^4	.012
D	150	0.6	151	500	4.5×10^{-4}	500	4.5×10^{-4}
E*	220	2.1	42	$\sim 5^*$	$\sim 4.5 \times 10^{-5}^{\dagger}$	~ 23	$\sim 2 \times 10^{-4}$
F	150	0.5	150	150	1.3×10^{-4}	~ 3	$\sim 3 \times 10^{-6}$
G	164	0.66	121	6.5×10^3	.0058	1.9×10^4	.016
H	188	1.2	64	1×10^4	.008	8×10^5	.71
I	218	1.4	59	3×10^4	.03	2.3×10^4	.02
J*	200	1.4	66	$1.2 \times 10^4*$.11†	1.9×10^5	.17

* No air flow through containment vessel, 70 μg plutonium as source. ("Airborne" is that found on containment vessel wall following this run.)

** Filter ruptured. All plutonium found in acid washes of equipment downstream of filter position.

† Plutonium in condensate.

エアロゾル平均粒径: $4 \mu\text{m}$

図 4.2-3 実験 C : 硝酸 Pu 水溶液の蒸発残渣を加熱した実験⁽²⁾

- 実験装置 -

表 4.2-3 実験 C : 硝酸 Pu 水溶液の蒸発残渣を加熱した実験⁽²⁾

- 測定結果 -

FRACTIONAL RELEASE FROM SOLIDS REMAINING AFTER EVAPORATION
OF PLUTONIUM NITRATE SOLUTIONS

(0.72g plutonium used, 2 hours sampling time.)

Run No.	Temp. (°C)	Air Velocity (cm/sec)	Plutonium				Total Evolved (wt.%)
			Deposited In Chimney (dpm)	Carried Through Chimney (dpm)			
N1a*	1000	100	9.2×10^6	.0067	1.7×10^7	.012	.0187
N2a*	700	100	5.3×10^6	.004	1.2×10^7	.0092	.0132
N4a	400	100	1.1×10^7	.0097	7.6×10^6	.0068	.0165
N5a	1000	50	3.6×10^7	.032	1.4×10^8	.12	.152
N6a	1000	10	1.8×10^6	.0016	5.1×10^6	.0046	.0062
N7a	700	50	1.7×10^7	.015	8.4×10^6	.0075	.0225
N8a	400	50	6.2×10^6	.0055	7.2×10^6	.0064	.0019
N9a	1000	100	1.4×10^6	.0012	7.9×10^6	.0071	.0013

* 0.864 g plutonium used.

4.3 沸騰液面からの飛沫同伴実験式による ARF の評価

ここでは、沸騰液面からの上昇蒸気流に同伴して上昇する液滴の量から ARF の解析的な導出を試みる。

沸騰液面からの飛沫同伴実験式として Kataoka-Ishii の式⁽⁴⁾を用いる。同式は、機構論的なモデルと実験データから導出された相関式であり、沸騰液面上部の気液 2 相領域を液面からの規格化高さ : h^* に応じて、次の 3 領域に分けて $E_{fg}(h, j_g)$ (液滴同伴率 : 上向きの蒸気流束に対する上向きの液滴流束の比) を表す相関式が示されている。図 4.3-1 に実験データと相関式の比較を示す。図から分かるように相関式と実験データの一致はよい。

(1) 液面近傍

$$0 \leq h^* \leq 1.038 \times 10^3 \quad j_g^* N_{\mu g}^{0.5} D_H^{*0.42} \left(\frac{\rho_g}{\Delta_\rho} \right)^{0.23} \quad (1)$$

のとき

$$E_{fg}(h, j_g) = 4.84 \times 10^{-3} \left(\frac{\rho_g}{\Delta_\rho} \right)^{-1.0} \quad (2)$$

(2) 運動量支配領域

$$1.038 \times 10^3 \quad j_g^* N_{\mu g}^{0.5} D_H^{*0.42} \left(\frac{\rho_g}{\Delta_\rho} \right)^{0.23} \leq h^* \leq 1.97 \times 10^3 \quad N_{\mu g}^{0.33} D_H^{*0.42} \left(\frac{\rho_g}{\Delta_\rho} \right)^{0.23} \quad (3)$$

のときで、

a) 低蒸気流の場合、

$$j_g^* / h^* < 6.39 \times 10^{-4} \quad (4)$$

$$E_{fg}(h, j_g) = 2.213 N_{\mu g}^{1.5} D_H^{*1.25} \left(\frac{\rho_g}{\Delta_\rho} \right)^{-0.31} j_g^* h^{*-1} \quad (5)$$

b) 中蒸気流の場合

$$6.39 \times 10^{-4} < j_g^* / h^* \leq 5.7 \times 10^{-4} \quad N_{\mu g}^{-0.5} D_H^{*-0.42} \left(\frac{\rho_g}{\Delta_\rho} \right)^{0.10} \quad (6)$$

$$E_{fg}(h, j_g) = 5.417 \times 10^6 j_g^{*3} h^{*-3} N_{\mu g}^{1.5} D_H^{*1.25} \left(\frac{\rho_g}{\Delta_\rho} \right)^{-0.31} \quad (7)$$

c) 高蒸気流の場合

$$j_g^*/h^* \geq 5.7 \times 10^{-4} N_{\mu g}^{-0.5} D_H^{*-0.42} \left(\frac{\rho_g}{\Delta_\rho} \right)^{0.10} \quad (8)$$

$$E_{fg} \propto (j_g^*/h^*)^{7.20} \quad (9)$$

(3) 沈降支配領域

$$h^* \geq 1.97 \times 10^3 N_{\mu g}^{0.33} D_H^{*0.42} \left(\frac{\rho_g}{\Delta_\rho} \right)^{0.23} \quad (10)$$

$$E_{fg}(h, j_g) = 7.13 \times 10^{-4} j_g^{*3} N_{\mu g}^{0.5} \left(\frac{\rho_g}{\Delta_\rho} \right)^{-1.0} \exp(-0.205(h/D_H)) \quad (11)$$

また、高さ : h での液滴の最大径については Kataoka・Ishii の文献には示されていないが、重力沈降を考慮して導出した次式が文献(5)に示されている。

$$D_{\max}^*(h) = 5.71 \times 10^4 h^{*-2} j_g^* N_{\mu g} D^{*0.8372} \left(\rho_g / \Delta_\rho \right)^{-0.208} \quad (12)$$

ここで(1)～(12)式での各変数は以下の通りである。

$$D^* = D \sqrt{\frac{\sigma}{g \Delta \rho}} : \text{無次元化液滴直径} \quad (13)$$

$$D_H^* \equiv D_H \sqrt{\frac{\sigma}{g \Delta \rho}} : \text{無次元化流路直径} \quad (14)$$

$$D_{\max}^* : \text{最大無次元化液滴直径} \quad (15)$$

$$g : \text{重力加速度} \quad (16)$$

$$h^* \equiv h \sqrt{\frac{\sigma}{g \Delta \rho}} : \text{無次元化高さ} \quad (17)$$

$$j_g^* \equiv j_g \sqrt{\left(\frac{\sigma g \Delta \rho}{\rho_g^2} \right)^{1/4}} : \text{無次元化蒸気流速度} \quad (18)$$

$$N_{\mu g} \equiv \frac{\mu_g}{(\rho_g \sigma \sqrt{\sigma/g \Delta \rho})^{1/2}} : \text{蒸気粘性数} \quad (19)$$

$$\Delta_\rho : \text{気液密度差}$$

ρ_f : 液相密度

ρ_g : 気相密度

次に液滴同伴率と ARF の関係を求める。液滴同伴率は、以下のように定義される。

$$E_{fg} = \frac{\rho_f j_{fe}}{\rho_g j_g} \quad (20)$$

一方、ARF を単位時間当たりに、沸騰によって減少する廃液に含まれる放射性物質に対する液滴に含まれて上昇する放射性物質の比と考えると(21)式が成り立ち、ARF は、 E_{fg} が 1 に対して十分小さいければ液滴同伴率に等しいと言える。

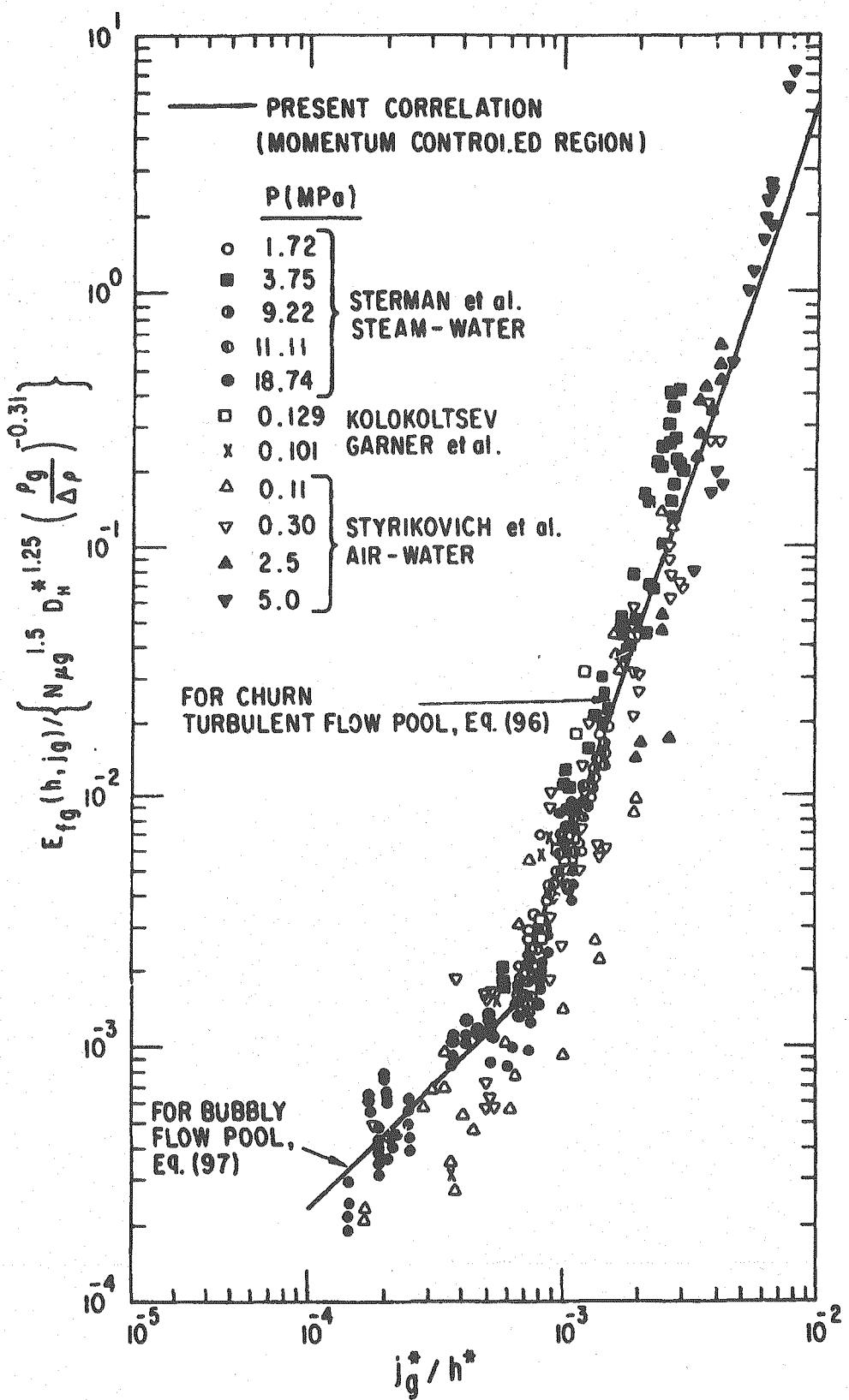
$$ARF \equiv \frac{x \rho_f j_{fe}}{x(\rho_f j_{fe} + \rho_g j_g)} = \frac{E_{fg}}{1+E_{fg}} \doteq E_{fg} \quad (21)$$

ここで図 4.3-2 に示すような放射性廃液貯槽を想定し、図中に示した解析条件で ARF の算出を試みた。計算では、液面から廃液貯槽上部の排気口までの距離をパラメータに液滴同伴率と換気口まで到達する液滴の最大径を求め、液滴同伴率を ARF として示した。

図より分かるように、ARF は事故解析ハンドブックの値 (2×10^{-3}) に比べ約 1/10~1/20 倍となっている。蒸発により液面が低下し、排気口との距離が大きくなるにつれて ARF は小さくなる。

粒径が $10 \mu\text{m}$ 以上のエアロゾルは、重力沈降等で換気系内等で沈着し、環境中に移行して吸入されることによる被ばくへの寄与がないと想定される。本章の 4.1 節で概要を示したよう五因子法でも、 $10 \mu\text{m}$ 以下の粒径のエアロゾルを評価対象としている。この点を考慮すると最大粒径が $10 \mu\text{m}$ 以上で ARF が相対的に大きい場合でも、環境への移行量は少ないと考えられる。

Kataoka-Ishii の式は、実験装置の流路内径が 0.2m 程度であるのに対して廃液貯槽は約 7m と大きいこと、液相の表面張力等の放射性廃液と水との物性の差異が同伴率に及ぼう効果など検討が必要である。

図 4.3-1 相関式と実験値との比較（運動量支配領域）⁽⁴⁾

廃液量 : 120 m^3
 貯槽内径 : 7.0 m
 液面からの排気口高さ :
 $0.5 \sim 3.0 \text{ m}$
 発熱量 : $8.0 \times 10^3 \text{ kcal/h} \cdot \text{m}^3$
 槽内構造物を無視
 廃液の表面張力 : 水と同じ

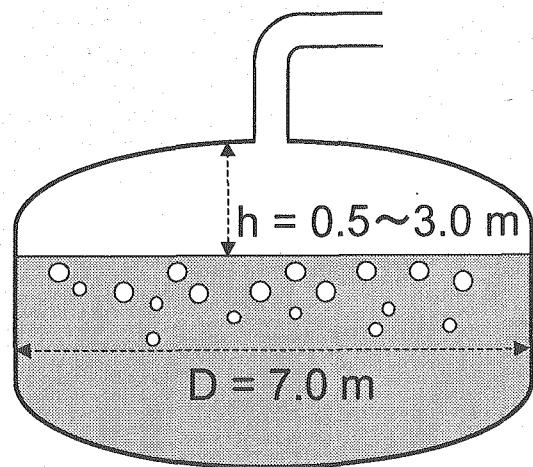


図 4.3-2 放射性廃液貯槽の形状と解析条件（仮定）

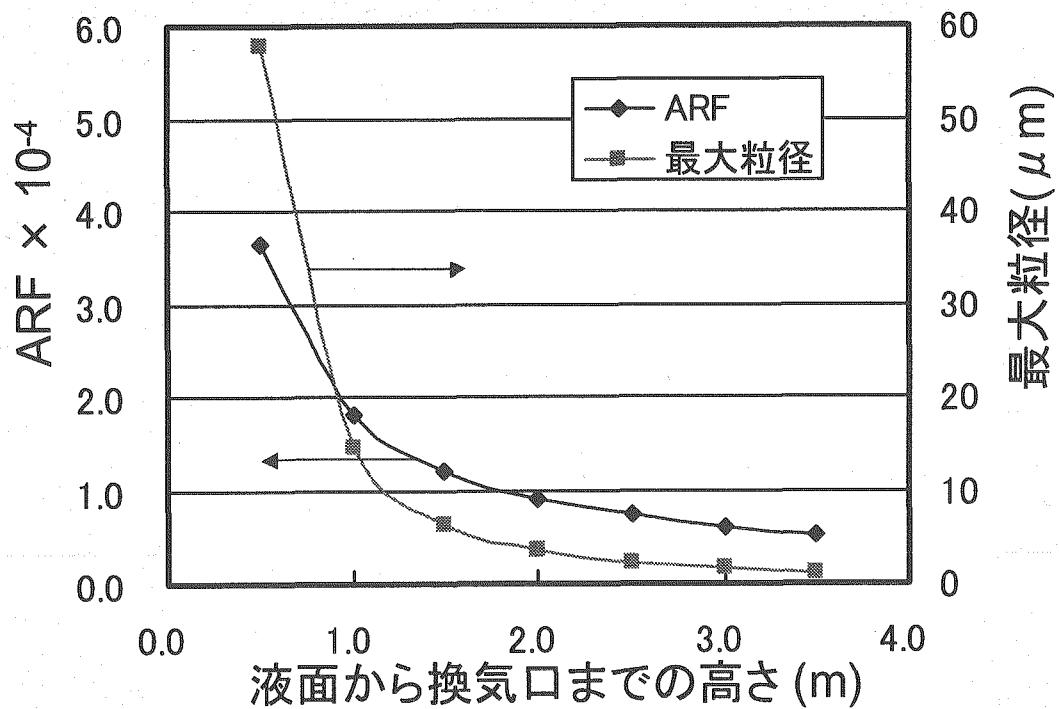


図 4.3-3 飛沫同伴実験式による ARF および液滴径の試算

4.4 爆発事象に関するデータの調査・分析

ここでは、溶液貯槽での爆発事象として、TBP 等の錯体の急激な分解反応および貯槽の気相部に蓄積した水素の爆発事象を対象にエアロゾル化割合の評価に利用可能なデータについて調査・分析した。

事故解析ハンドブックには、関連しそうな数値として「爆轟時の金属あるいは液体の飛散」がある。このデータは、高性能火薬を金属あるいは液体が取り巻く体系で実施した爆轟実験の結果に基づいている。実験で得られた結果を火薬と物質の質量比で整理し、得られた相関式を計算プログラム (DETIN コード) 化し、得られた ARF、RF の値を表形式で示している。これは、開放空間での爆轟事象に基づくデータであり、貯槽の破損を伴わない上記の閉空間での爆発には適用できないと考えられる。

一方、核燃料施設の事故影響評価の参考データ集として参考文献(6) (以下 Walker 報告書と略す)がある。Walker 報告書は、米国での再処理施設の安全評価の基礎データである N46.5、“Criteria for Safety-Related Features on Nuclear Fuel Cycle Facilities” の基となったデータ集である。収録データは、以下の各項目について、実測値、現行の使用例、推奨値がまとめられている。

- ・破損燃料
- ・溶融燃料
- ・加熱燃料
- ・溶液の沸騰
- ・溶液の蒸散
- ・火災
- ・爆発
- ・臨界

爆発に関する収録データを表 4.4-1 に示す。このうち(e)Airborne Material (time > 100 sec) のデータが溶液貯槽での爆発事象に関するデータと考えられる。このデータの基となった実験は次の 2 つである。

実験 1 : UO₂ 粉末入りの容器を数回回転させて容器の空気スペースの UO₂ 粉末濃度を静止後時間を追ってフィルタに採って測定。測定結果は以下の通り⁽⁷⁾。

7-1,000 mg/m ³	ts = 100 sec
1.0-70 mg/m ³	100 < ts < 3600sec
2.5-6 mg/m ³	3600sec < ts

実験 2 : PuO₂、UO₂ をヒータで加熱して、飛散粒子を測定。測定結果は以下の通り⁽⁸⁾。

71 mg/m ³	PuO ₂
51 mg/m ³	UO ₂

TBP 等の錯体の急激な分解反応および溶液貯槽の気相部に蓄積した水素の爆発では、エアロゾルの発生メカニズムは異なると考えられる。TBP 等の錯体の急激な分解反応は、突沸現象に近いと考えられるのに対して、気相部に蓄積した水素の爆発では、気相部の急激な体積膨張で、液面が乱されてエアロゾルが生成されると考えられる。今後、エアロゾルの発生メカニズムを含め、更なる検討を要する。

表 4.4-1 Walker 報告書記載の爆発事象のデータ⁽⁶⁾

核種	測定範囲	現行の使用例	推奨値
(a) Noble Gas	—	1.00	1.00
(b) Halogens	—	1.00	1.00
(c) Volatile Solids	—	0.001	0.01
(d) Non-Volatile Solids	9×10^{-5} - 0.14	0.01	0.01
(e) Airborne Material (time > 100 sec)	$1,000 \text{ mg/m}^3$ - 71 mg/m^3	$10 - 100 \text{ mg/m}^3$	100 mg/m^3 (d)
(f) Airborne Particle Size (μ)	—	<10 - <30	<10

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

4.5 第4章のまとめ

本章では、五因子法で用いる ARF（霧団気中に放出され浮遊する割合）および RF（肺に吸入され得る微粒子の割合）について、再処理施設で PSA の対象となる事故のうち、放射性廃液貯槽での沸騰および溶液貯槽での爆発事象を例に、事故解析ハンドブックに示されたエアロゾル化割合の評価に用いる数値の根拠となった実験等を調査し、その適用可能性について検討した。

沸騰事象については、沸騰前の蒸散と沸騰中の飛散について検討した。沸騰前の蒸散の実験データには、部分的に沸騰しているデータが含まれており、事故解析ハンドブックの ARF 値は過大であると考えられる。沸騰を伴う実験では、フィルタに吸着した Pu 量を ARF 値としているが、この実験体系では上昇空気流量により吸着量が影響を受けるだけでなく、沸騰液面とエアロゾルを回収するフィルタが近接しているため、重力沈降で落下するような比較的大きな液滴も含まれる可能性があり、ハンドブックの ARF の推奨値は過大であると考えられる。さらに飛沫同伴実験式を用いて沸騰事象の ARF の評価を試みた。その結果、事故解析ハンドブックの推奨値より 1/10～1/20 程度小さい値が得られた。

TBP 等の錯体の急激な分解反応および溶液貯槽の気相部に蓄積した水素の爆発については、事故解析ハンドブックには適用可能性の検討対象とすべきデータは含まれていない。Walker 報告書には、爆発に関するデータが含まれているが、参照した実験と、両爆発事象でのエアロゾルの発生メカニズムを含め、更なる検討が望まれる。

参考文献

- (1) SAIC, "Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook", NUREG/CR-6410, March 1998.
- (2) Mishima, J., et al, "Plutonium Release Studies IV. Fractional Release From Heating Plutonium Nitrate Solutions in A Flowing Stream", BNWL-931, 1968.
- (3) "DOE Handbook Airborne Release Fractions/Rates and Respirable Fractions for Nonreactor Nuclear Facilities", DOE-HDBK-3010-94, Dec., 1994.

- (4) Kataoka, I. and Ishi, M., "Mechanistic Modeling and Correlations for Pool-Entrainment Phenomenon", NUREG/CR-3304, April, 1983
- (5) Muramatsu, K. and et. al., "Sensitivity Stude on BWR Source Terms Using the THALES/ART and REMOVAL Codes", NUCLSAFE 88, Avignon, 1988
- (6) Walker, E., "A Summary of Parameters Affecting the Release and Transport of Radioactive Material form an Unplanned Incident", BNFO-81-2, Sept., 1978 (Reissued Aug., 1981)
- (7) Schwendiman, L.C., "Supporting Information for the Estimation of Plutonium Oxide Leak Rates Through Very Small Apertures", BNWL-2198, Jan. 1977
- (8) Castleman, A.W. Jr., et al., "On the Behavior of Aerosols Under Fast Reactor Accident Conditions", BNL-14070, Nov., 1969

5. 燃焼・爆発モデル、火災データの調査

5.1 はじめに

核燃料施設に対する定量的な安全目標の策定とリスク情報を活用した規制の導入が検討されている。これらの検討に際しては、同施設における事故時の公衆に対する被ばく影響の大きさを網羅的かつ定量的に評価することが求められる。このためには施設の設計・運転情報や機器故障率データ等に基づいた事故事象毎の発生頻度の算出に加え、事故事象毎のエネルギーや放射性物質放出速度等のソースターム情報の定量的な把握が必要である。

本調査では、同施設で PSA の対象となる火災（燃焼）・爆発事故を対象として、これら事故時の公衆に対する被ばく影響の大きさを定量的に評価する上で必要不可欠なソースタームデータとエネルギーや質量の放出速度等の評価手法について、国内外で公表されている文献等をもとに調査・検討することを目的とする。事故時の放射性物質の放出・移行挙動の評価については、4 章で述べた 5 因子法等の評価手法が報告されている。ソースタームデータあるいはエネルギーや質量の放出速度等の評価手法を調査し整理しておくことは、5 因子法等を用いた評価結果の定量性をさらに高める上でも極めて重要である。

今年度は、まず、2 章で述べた事故事象（ハザードの種類）の抽出作業を踏まえて、調査対象とする施設種類及び調査・整理作業範囲の明確化を行った。その結果に基づき、可燃性物質の燃焼事象と硝酸と有機溶媒の急激な熱分解反応を取り上げ、これら事象を対象とした安全性評価データの調査収集に着手した。

5.2 調査内容

5.2.1 調査範囲の検討

(1) 基本的な考え方

本調査における作業の流れを図 5.2-1 に示す。調査の開始に先立ち、まず調査・評価対象とする施設の選定を行い（図 5.2-1 の①）、次に選定された施設が内包するハザードを公開文献に基づき抽出し整理を行う（図 5.2-1 の②）。現在、六ヶ所村に建設が進められている民間再処理施設（以下、「六ヶ所再処理施設」という。）では、本格稼動に向けた準備が行われている。MOX 燃料加工施設については、核燃料サイクル開発機構（以下、「JNC」という。）から事業許可申請がなされ行政庁による審査が行われている。また、これに加えて他の民間 MOX 燃料加工施設についても近々に事業許可の申請がなされる状況にある。このような社会的状況に鑑み、本調査では調査対象とする核燃料施設として再処理施設と MOX 燃料加工施設を取り上げることとした。

5.1 で述べたように、実際の施設において着目する事故が発生するか否か（事故発生の可能性の高低）は、施設の設計・運転情報や機器故障率データ等に依存する。また、事故によって公衆が被る被ばく線量の絶対的大きさについても、施設に内包されるハザード源の量的な大きさに一義的に依存するものと考えられる。これらの因子は施設毎の固有な情報であるため、施設が限定され、かつ、事故シナリオが確立しなければ、厳密には確定しない。この点を考慮して、本調査では、事故事象の発生頻度及び発生の可能性の高低に基づく重み付けは行わず、客観的に施設で起こり得るか否かという観点から調査対象とする事故事象のリストアップを行うこととした。また、事故事象毎のエネルギーや放射性物質放出速度等のソースターム情報の調査・検討に際し

ては、ハザード源の量で規格化するなどして、可能な限りハザード源の量的な情報に左右されない形で整理することを念頭においた。このような形でソースターム情報を整理しておくことで、ハザード源の量的な大きさを含んだ施設固有な情報や事故シナリオが追加的な知見として与えられれば、事故によって公衆が被る被ばく線量の絶対的な大きさを評価できることとなる。

(2) 核燃料施設におけるハザード源の整理

六ヶ所再処理施設の事業指定申請に際して考慮された設計基準事象の選定の過程では、これら事象以外のいくつか事象がリストアップされ評価されている⁽¹⁾。また JNC では、JNC の再処理施設（以下、「東海再処理施設」という。）の安全性確認として実施した事故の発生防止策、拡大防止策及び影響緩和策の検討結果や実績調査と最新の技術的知見の反映状況をまとめており、その中で各工程で取り扱う可燃性物質または熱的不安定物質をリストアップし、それぞれに関して施している安全対策を説明している⁽²⁾。再処理施設に関しては、2 章においても、放射性物質を閉じ込める機能が損なわれることを想定した事故シナリオが例示されている。その中では、水素爆発とセル内への溶媒の漏えいによる溶媒火災及び TBP 等の錯体の急激な分解反応等を代表的なシナリオとして取り上げている。一方 MOX 燃料加工施設に関しては、再処理施設に対するような系統だった事象の整理は十分になされていないのが現状であるが、MOX 燃料加工施設の設備や操作から考えると、焼結炉で使用される水素、グローブボックス内に持ち込まれるアルコール等の有機溶剤等が事故発生の可能性を議論する場合には取り上げられるべき物質であることは予想され得る。また、グローブボックスのパネル材として可燃性の高分子材料が用いられている場合には、これら材料の燃焼性に関する基礎データも火災事故シナリオを検討するうえで重要なところ。

これらの情報を踏まえ、本調査における調査及び評価対象事象の選定を行った。選定結果を表 5.2-1 に示す。ここでは、(1)で述べたように事故事象の発生頻度及び発生の可能性の高低に基づく重み付けは行わず、単にハザード源となりうる物質が存在するか否かという観点から選定を行った。そのため、取扱量が非常に小さいあるいは十分な安全対策が施されているなど、施設の通常の条件では想定されない事故事象に係るハザード源についてもリストアップされている。表 5.2-1 では、事象を「火災」と「爆発」に大別し、「火災」に分類される事象としては「有機溶媒火災」等の 3 つの事象を、「爆発」に分類される事象としては「気相（蒸気雲）爆発」等の 2 つの事象をリストアップするとともに、それぞれの事象に対して起因となりうる評価対象物質を定義した。また、それぞれの事象に起因する影響評価を実施する上で必要となると考えられる質量・エネルギー放出速度等のソースタームデータをリストアップした。以降、表 5.2-1 に整理した各事象について調査を行うこととするが、具体的な調査内容については、今後、適宜内容を精査し見直していくこととする。

本年度は、表 5.2-1 に示した事象のうち、主に可燃性物質の燃焼事象（「有機溶媒火災」及び「固体の燃焼」に対応）と硝酸/TBP/ドデカン系の急激な熱分解反応（「固体の爆発、急激な熱分解反応」に対応）に着目し、これら事象に係るソースタームデータ及び評価手法について調査を実施した。

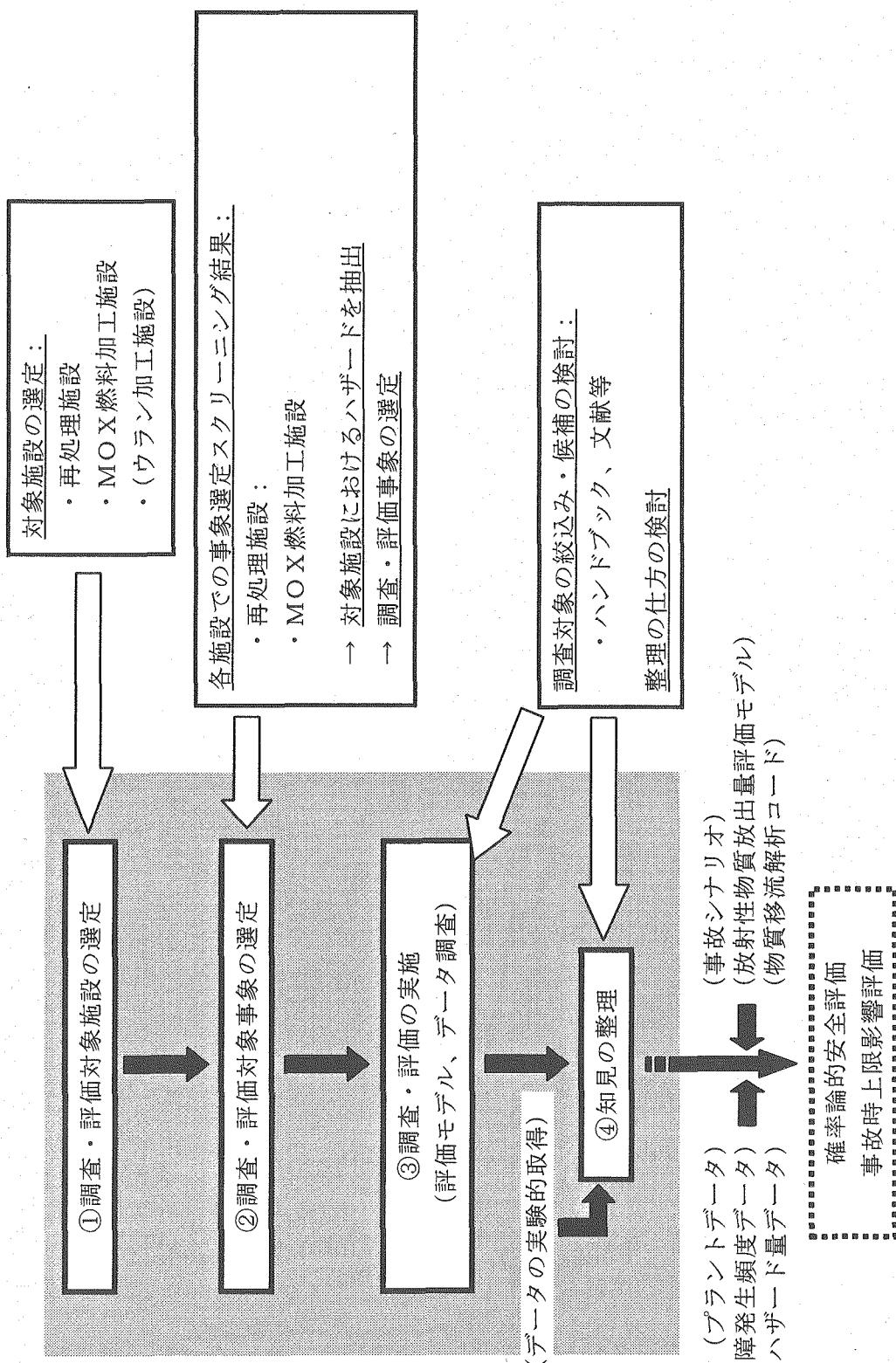


図 5.2-1 本調査における作業の流れ

表 5.2-1 調査の実施を検討する事象範囲†

事象	評価対象物質	検討項目
火災	金属粉末火災 ジルコニウム粉末	・比表面積と反応速度の関係 ・湿潤条件等、雰囲気の関数 ・発熱量、発熱速度 ・引火点、着火点
	ドデカシ/TBP 他の有機溶剤 アルコール、キシレン、潤滑油、グリス、 等	・質量・エネルギー放出速度評価式 ・発熱量 ・引火点、着火点 ・量論的関係
	プラスチック ケーブル被覆材、GB 構造材(アクリル、ポリカーボネート)、エポキシ樹脂、硬化剤、ゴム、等	・質量・エネルギー放出速度評価式 ・発熱量 ・爆発条件(爆発限界条件) ・爆轟転移条件、爆轟評価モデル
爆発	水素 気化有機溶剤(アルコール、キシレン、等)	・化学反応、反応速度、量論的関係 ・発熱量 ・質量・エネルギー放出速度評価式 ・反応開始温度、反応開始条件
	硝酸/TBP 錫体 アジ化水素 ヒドラジン ホルマリン	

†：あくまでも現段階での調査範囲の案であって、実際に調査を実施する検討項目については、調査を進める過程で精査するものとする。

5.2.2 調査結果

(1) 火災（燃焼）事象

1) 拡張 Spalding の B ファクタモデル

原研では、再処理施設の設計基準事象として考慮されている有機溶媒火災事故時のセル換気系における放射性物質の閉じ込め効果を実証することを目的として、昭和 56 年度から昭和 60 年度まで、旧科学技術庁からの受託研究として、「再処理施設排気フィルタ事故時安全性実証試験」を実施してきた。この試験では、火災事故に伴う放射性物質の放出挙動と煤煙による排気系フィルタの目詰まり現象の実験的な把握に加えて、火災時の液面燃焼モデルの作成を検討している⁽²⁾⁽³⁾。液面燃焼モデルとしては、油滴の燃焼モデルである Spalding の B ファクタモデルを拡張し、溶媒抽出器における液面燃焼に適用したものを考えている（以下、「拡張 B ファクタモデル」という）。このモデルの概要を図 5.2-2 に示す。評価対象を、溶媒相領域、溶媒蒸発領域（A 領域）、燃焼ガス移動領域（B 領域）に分けてモデル化している。抽出器内の有機溶媒は火炎面からの熱流（= 対流 + 輻射）と燃焼皿からの伝熱によって熱をもらい蒸発し、A 領域を通り、A 領域 B 領域境界面で形成される火炎面で燃焼した後、燃焼ガスとして B 領域へ移行する。モデル化にあたっては、①定常燃焼、②火炎面での燃焼の反応速度は無限大、③ガスの比熱 C_p 、熱伝導率 λ 、拡散係数 D は全領域で一様、④レイス数 Le （= $\lambda/\rho C_p D$ ）は 1.0、⑤A 領域では溶媒蒸気のみの移動を考慮（酸素は火炎面で消費されるため A 領域には存在しないと仮定）、B 領域では酸素、燃焼ガス、煤煙、未燃焼溶媒蒸気の移動を考慮、等を仮定する。その上で、以下のような A・B 各領域及び溶媒相 A・B 領域間の物質移動、エネルギー移動を考慮した酸素の質量保存式、エネルギー保存式を連立させる。

[質量保存式(連続の式)]

$$(m_{fu})_A + (m_{H2O})_A + (m_{ox})_A = (m_{fu})_B + (m_{H2O})_B + (m_{pr})_B + (m_{ox})_B \quad (5.2-1)$$

[領域 A におけるエネルギー保存式]

$$(m_{fu}h_{fu})_A + (m_{H2O}h_{H2O})_A - q = (m_{fu}h_{fu})_{x=0} + (m_{H2O}h_{H2O})_{x=0} - (q)_{x=0} \quad (5.2-2)$$

[領域 B におけるエネルギー保存式]

$$\begin{aligned} (m_{fu}h_{fu})_B + (m_{H2O}h_{H2O})_B + (m_{pr}h_{pr})_B + (m_{ox}h_{ox})_B - q_{es} \\ = (m_{fu}h_{fu})_{x=0} + (m_{H2O}h_{H2O})_{x=0} - (q)_{x=0} + m_b \Delta H \end{aligned} \quad (5.2-2)$$

ここで、

m_{fu} : 溶媒の蒸発速度（=溶媒の質量消費速度）（kg/s）

m_{H2O} : 水の蒸発速度（kg/s）

m_{pr} : 燃焼ガスの発生速度（kg/s）

m_{ox} : 酸素の発生速度（kg/s）

h_{fu} : 溶媒のエンタルピ（J/kg）

- h_{H2O} : 水のエンタルピ (J/kg)
 h_{pr} : 燃焼ガスのエンタルピ (J/kg)
 h_{ox} : 水のエンタルピ (J/kg)
 q : 火炎から溶媒方向への熱流量 (J/s)
 q_{es} : B 領域から外部へ逃げた熱流量 (J/s)

である。また、添え字 A、B 及び X=0 はそれぞれ A 領域、B 領域及び溶媒表面における値であることを意味する ((q)X=0 は溶媒表面に入る熱流量 (J/s)を意味する。)。表 5.2-2 に示す燃焼パラメータ (ξ 、 ϵ 、 ψ 、 γ 、 f 、 d 、 Y_{OX}) を導入し、これらの式を連立することで溶媒の燃焼速度 m_b の評価式として以下の式を得る。

$$\dot{m}_b = \xi(\dot{m}_{fu})_A = \frac{\pi D_b^2 h}{4(1+\delta)C_{p,fu}} \ln\{(1+\delta)\epsilon B + 1\} \quad (5.2-3)$$

$$B = \frac{C_{p,fu}(T_\infty - T_s) + f\Delta H(1-\gamma)Y_{OX}}{L_{fu}(1-\psi)} \quad (5.2-4)$$

$$h = \frac{\lambda}{D_b} [3.106 + 0.14(Gr \cdot Pr)^{1/3} \{1 - \exp(-1.72D_b)\}] \quad (5.2-5)$$

ここで、

- D_b : 溶媒液面の円相当直径 (m)
 h : 火炎から溶媒面へ熱伝達係数 (J/m²sK)
 $C_{p,fu}$: 溶媒の熱容量 (J/kgK)
 T_∞ : ∞ 位置の気相温度 (K)
 T_s : 溶媒液面温度 (K)
 ΔH : 溶媒の燃焼熱 (J/kg)
 L_{fu} : 溶媒の蒸発潜熱 (J/kg)
 λ : ガス相の熱伝導率 (J/msK)
 Gr : グラスホフ数 (-) ($= (gD_b^3\beta\Delta T\rho^2)/\mu^2$)
 Pr : プラントル数 (-) ($= \mu C_{p,g}/\lambda$)
 $C_{p,g}$: 気体の熱容量 (J/kgK)
 β : 体膨張率 (1/K)
 ρ : 気体の密度 (kg/m³)
 μ : 粘性係数 (Pa·s)

さらに溶媒燃焼に伴う質量放出速度 M_s (kg/s)とエネルギー放出速度 E_s (J/s)は以下の式から算出される。

$$M_s = (1+\delta)m_{fu} \quad (5.2-6)$$

$$E_s = \Delta H \xi m_{fu} (1-\gamma) \quad (5.2-7)$$

2) NUREG-1320 における Hand Calculation モデル

米国の Pacific Northwest Laboratory と Los Alamos National Laboratory 及び米国原子力規制委員会 (NRC) によって作成された核燃料施設事故解析ハンドブック(以下、NUREG-1320 という。)は、核燃料施設を対象とした事故時の安全解析のためのハンドブックである⁽⁴⁾。 NUREG-1320 では、核燃料施設で想定される火災、爆発、漏洩、竜巻、臨界、故障（設備の破損、制御システムの喪失等）時の放射性物質の放出移行評価を含めた施設の総合的な安全性解析を行う際に必要不可欠な評価手法と推奨データが具体的なサンプル問題とともに示されている。 評価手法としては、詳細評価手法とともに簡易評価手法が記載されており、記載されている推奨データと簡易評価手法を適宜組み合わせることで、極めて簡便に事故時の安全性を評価することが可能である。核燃料施設において想定される火災事故に関しては、様々な可燃性物質の燃焼時の発熱速度や煤煙発生率等のデータ、質量・エネルギー放出速度の評価式、さらに、燃焼時の放射性物質の放出速度の評価式等が記載されている。これらは、火災事故時の安全性を評価する上で極めて重要な知見であるため、本調査においても取り上げ、知見を整理することとした。

NUREG-1320 では、火災事故時の簡易評価手法として、Tewarson のモデル⁽⁵⁾に基づく評価手法（以下、「Hand Calculation モデル」という。）の使用を推奨している。これは、以下のようない定常燃焼時の熱収支に基づいた評価式より、溶媒の質量消費速度（=溶媒の蒸発速度） m_{fu} (kg/s) を求め、さらにエネルギー放出速度 E_s (J/s) を評価するモデルである。

$$m_{fu} = (q_e'' + q_{fc}'' + q_{fr}'' - q_{rr}'')A/L \quad (5.2-8)$$

$$E_s = X_a \cdot H_t \cdot m_{fu} \quad (5.2-9)$$

ここで、

q_e'' : 単位燃料表面積当たりの外部からの熱流 (kW/m²)

q_{fc}'' : 火炎対流熱流束 (kW/m²)

q_{fr}'' : 火炎輻射熱流束 (kW/m²)

q_{rr}'' : 表面輻射熱損失 (kW/m²)

A : 燃料燃焼表面積 (m²)

L : 単位質量当たりの燃料蒸気の生成に要する熱量 (kJ/g)

H_t : 燃焼熱 (kJ/g)

X_a : 理論的な燃焼熱の内、実際に放出される熱の割合 (-)

である。表 5.2-3 に示すように、NUREG-1320 ではいくつかの可燃性物質毎にこれらパラメータを記載している。なお、NUREG-1320 では「Hand Calculation モデル」においては q_e'' は省略可能であるとしている。また、表 5.2-3 に示した以外の可燃物については、化学的・物理的特性、加熱されたときの融け方や焦げ方を表中の物質と比較し、最も類似している物質についての値を適用することを推奨している。

1)で述べた「拡張 B ファクタモデル」とこの「Hand Calculation モデル」ともに可燃性物質燃焼時のソーススタークを評価する手法である。そこで、「再処理施設排気フィルタ事故時安全性

実証試験」で得られた具体的な試験条件をもとに、両手法を用いて可燃性物質燃焼時のソースターム評価を行い、評価結果を比較した。評価対象とする試験は、可燃性物質としてドデカンを用いた試験とした。その他の計算条件（物性値等）は以下の通りである。なお、「Hand Calculation モデル」においては、表 5.2-3 に示したケロシンの燃焼特性データを用いた。

$C_{p,fu}$: 2.21×10^3 (J/kgK)
$C_{p,g}$: 1.09×10^3 (J/kgK)
T_∞	: 673 (K)
T_s	: 489 (K)
ΔH	: 4.61×10^7 (J/kg)
L_{fu}	: 2.56×10^5 (J/kg)
λ	: 5.70×10^{-2} (J/msK)
β	: 3.67×10^{-3} (K ⁻¹)
ρ	: 1.29 (kg/m ³)
μ	: 3.55×10^{-5} (Pa·s)
ε	: 0.2 (-)

大気火災条件に対する評価結果の比較を図 5.2-3 に、また、セル内火災条件に対する評価結果の比較を図 5.2-4 にそれぞれ示す。これら図にはそれぞれの評価手法から算出された溶媒の質量消費速度（溶媒の蒸発速度） m_{fu} (kg/s) の比較を示した。「拡張 B ファクタモデル」による評価結果は、大気火災の条件下では、実証試験結果を非常によく再現している。一方、セル内火災条件に対しては実証試験結果より若干ではあるが過大に評価している。表 5.2-3 に示した燃焼パラメータの値からも推察されるように、大気火災条件はセル内火災条件と比べて、いわばより単純な系であるため、大気火災条件下の試験結果をよりよく再現できているものと考えられる。「Hand Calculation モデル」による評価結果は、大気火災条件下及びセル内火災条件下ともに実証試験結果より過小評価となった。今回の試計算結果からは、「Hand Calculation モデル」を用いる場合には、評価条件によっては非安全側の結果を与える可能性があることが示唆される。ただし今回の試計算は、計算に用いた物性値の温度依存性を無視している等、簡略化した計算条件のもとで実施したものである。評価モデル間の比較をより定量的に行うためには、計算条件の詳細化に加えて他の燃焼試験結果との比較検討を行うなど、より広範囲な検証計算を行っていく必要があるものと考える。

上述のように NUREG-1320 において核燃料施設における火災事故時の安全解析を行う際に用いることが推奨されている「Hand Calculation モデル」の評価式及びデータは、Tewarson のモデル⁽⁵⁾を引用したものである。従って、「Hand Calculation モデル」自身が有する確からしさや定量性等を評価するためには、これら評価式やデータを導いた Tewarson のオリジナルの報告書にまで遡って調査する必要があると考えられる。今回の調査では、「Hand Calculation モデル」の直接の引用文献入手することはできなかつたため、同様にプラスチックの燃焼性について Tewarson らが実施した燃焼試験に関する他の文献を取り上げ、燃焼特性データの取得方法等について調査を行った⁽⁶⁾。本文献⁽⁶⁾においても「Hand Calculation モデル」に引用されている評価式と同様の基礎式が述べられていることから、NUREG-1320 に引

用されている各燃焼物質の熱特性データ（表 5.2-3 参照）についても、本文献⁽⁶⁾と同様な方法にて取得・評価導出されたものと推察できる。なお NUREG-1320 では、火災事故時のソーススターク評価に際して、簡易評価手法としての「Hand Calculation モデル」に加え、詳細評価手法としての計算コード FIRIN の使用を推奨している。本文献は、この FIRIN に採用されている燃焼理論の参考先として NUREG-1320 中でリファーされているものである。

図 5.2-5 に Tewarson らが実施した燃焼試験における試験装置の概要を示す⁽⁶⁾。試験では、16 種類の市販されているプラスチックサンプル（含、木及び合板）と 6 種の有機溶媒を対象としている。市販の可燃性サンプルは、容積 60～100 cm³、厚さ 3～5 cm の方形あるいは円形であり、水平のプール様構造中で燃焼する。ステンレスサンプルフォルダをいくつかのケースで使用し、その他はサンプルのエッジをセラミックペーパーやアルミホイルでラップした。液体に対しては、深さ 1.5 cm、直径 10 cm のパイレックス皿を用いている。その上で、(1)マッチフレーム、(2)マッチフレームによる 10cc ヘプタンの点火、(3)プロパンエアートーチ、(4)マッチフレームによるプラスチック片、ペンタン、パラフィンオイルの点火、等の方法によって点火した。これらサンプルを直径 17 cm、長さ 61 cm の石英チューブで囲んだ状態で燃焼させている。空気あるいは空気と O₂ or N₂ を用いた混合気を用いた全流量は、50～70 L/min の条件が用いられている。この条件は、定常状態の質量燃焼速度に影響を及ぼすものではないが、石英チューブ内部への煤の沈着防ぐ働きがある。燃焼表面への外部熱流束の装置としては、長さ 24 cm、幅 8 cm の 2 つの高密度放射ヒーター（Model 5208, Research inc., Minneapolis, Minn.）を用いている。それぞれのヒーターは、6 つのタングステンフィラメント管状石英ランプを有しており、Variac (Type W5OH, general Radio Co., Concord, Mass.) によって出力制御がなされている。質量燃焼速度は、荷重変換器によって連続的に計測されている。表 5.2-4 に燃焼試験評価結果の抜粋を示す。表中に示した各データの定義から、表 5.2-4 での \dot{Q}_T^* 、L_G 及び \dot{Q}_L^* は、表 5.2-3 に示した NUREG-1320 中に記載されている q_{fc} と q_{fr} の和、L 及び q_{rr} に、それぞれ対応するものと考えられる。その観点から表 5.2-4 のデータを見ると、ポリメチルメタクリレートとポリスチレンの L_G については、L とほぼ一致しているが、木材については L_G は L に対して約 1/2 と過小な評価となっている。また、 \dot{Q}_T^* 及び \dot{Q}_L^* については、q_{fc} と q_{fr} の和及び q_{rr} とは一致しておらず、 \dot{Q}_L^* についてはより過大な、そして \dot{Q}_T^* についてはより過小な評価結果となっている傾向が見られる。この傾向からは、本文献⁽⁶⁾において評価導出されている燃焼データを用いて燃焼現象を評価する場合、NUREG-1320 で推奨されている燃焼データを用いる場合よりも、燃焼現象を過小に評価するものと推察される。ただし、本文献⁽⁶⁾で取り上げられている物質の種類が NUREG-1320 中で記載されている物質と一致せず直接比較しうる物質が少ないため、このような傾向を厳密に定量的に述べることはできないことに注意が必要である。他の論文の調査を含めて、これら燃焼データの更なる調査・収集と、比較検討を実施していくことが重要であろう。

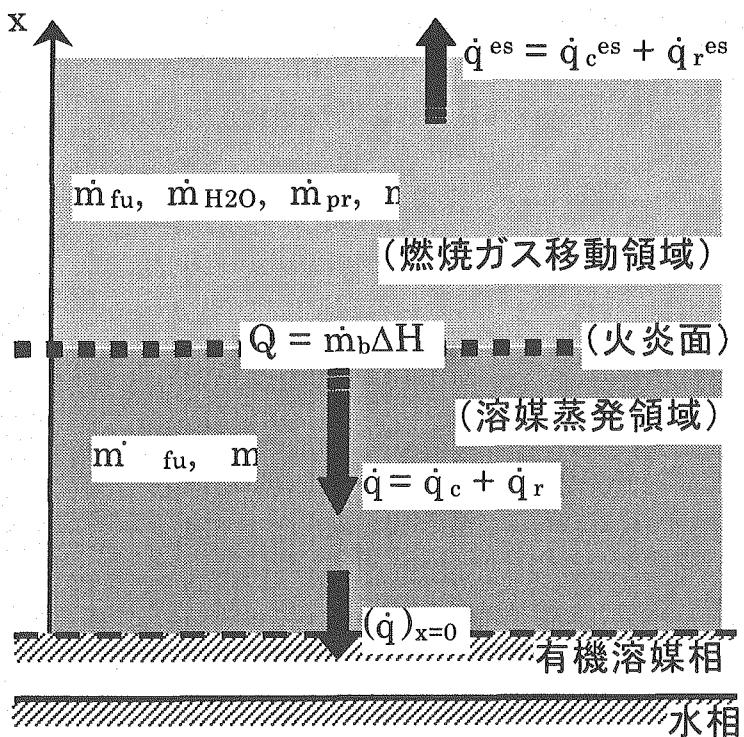
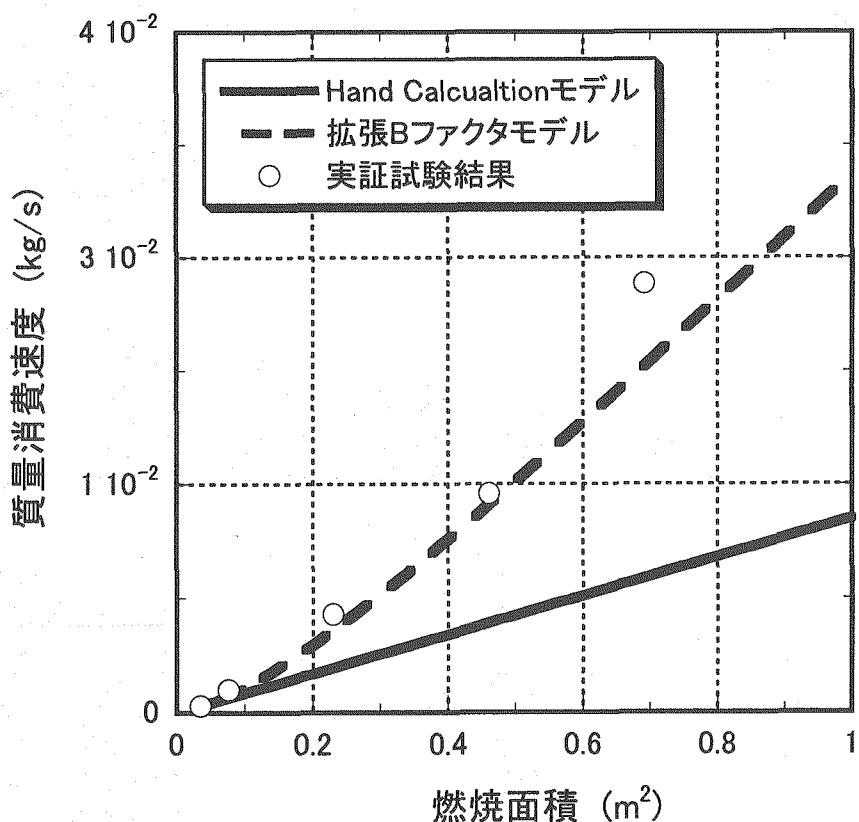


図 5.2-2 拡張 Spalding の B ファクタモデルの概念図

図 5.2-3 拡張 B ファクタモデルと Hand Calculation モデルの評価結果比較
(大気火災条件)

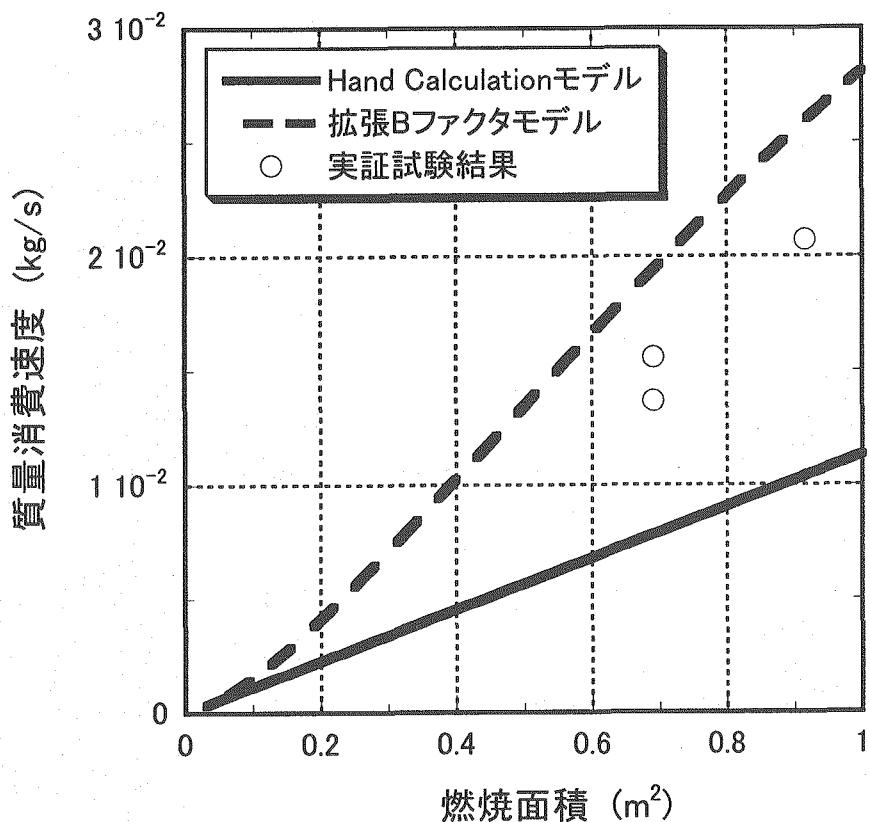


図 5.2-4 拡張 B ファクタモデルと Hand Calculation モデルの評価結果比較
(セル内火災条件)

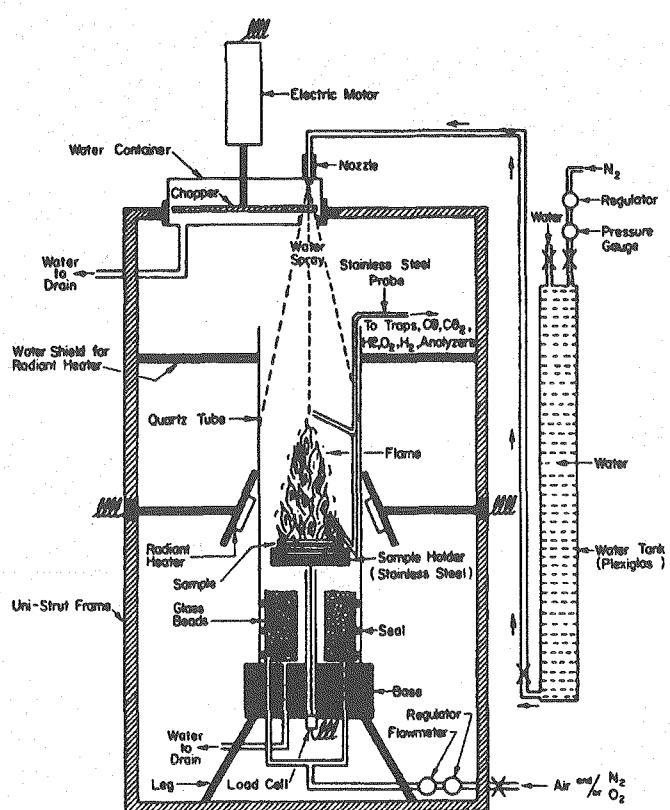


図 5.2-5 Tewarson らが実施した燃焼試験における試験装置の概要(6)

表 5.2.2 各燃焼パラメータ（実証試験より決定）

燃焼パラメータ	定義	実験式
ξ	$(\dot{m}_b)/(\dot{m}_{fu})_A$	1.0 (大気火災) $\exp\{0.889\ln(F/S)+1.175\}, (F/S \leq 0.15)$ $\exp\{0.128\ln(F/S)-0.268\}, (F/S > 0.15)$
ε	$(\dot{m}_{fu})_A L_{fu} / (\dot{q})_{X=0}$	$0.2 \sim 0.4$
ψ	$(\dot{q}_r)_A / (\dot{q})_{X=0}$	$0.85 - 0.46 \exp(-4.2 D_b)$
γ	$\{(\dot{q}_r)_A (\dot{q}_r)_B\} / \{m_b \Delta H\}$	0.15
f	$m_b / (-m_{ox})_B$	0.288 (ドデカノン) 0.333 (30% TBP/70% ドデカノン)
δ	$(\dot{m}_{H2O})_A / (\dot{m}_{fu})_A$	0.1 (大気火災) 0 (セル内火災)
Y_{Ox}	[無限遠方の酸素重量分率]	0.232 (大気火災) $0.232 \exp\{-28.8(V_f/V_c)\} (セル内火災)$

F : セルへの給気の質量流量 (kg/s)、S : 溶媒液面積 (m^2)、 V_f : 火炎体積 (m^3)、 V_c : セル体積 (m^3)、 L_{fu} : 溶媒の蒸発潜熱 (J/kg)

表 5.2-3 NUREG-1320において推奨されている可燃性物質の燃焼特性データ

物 質	L(kJ/g)	\dot{q}_{fr} (kJ/m ²)	\dot{q}_{fc} (kJ/m ²)	\dot{q}_r (kJ/m ²)	H _t (kJ/g)	X _a
ポリメチルタクリート	1.6	11	12	40	25	0.94
ポリ塩化ビニル	2.5	21	26	37	16	0.35
ポリスチレン	1.7	14	13	66	39	0.68
セルロース	3.2	12	18	40	14	1.00
ポリクロロブレン	2.4	8	38	34	25～27	0.41
ケロシン	1.5	8	11	14	46～47.9	0.91
木材	3.6	16	18	40	18	0.70

表 5.2-4 Tewarson らが実施した燃焼試験結果（抜粋）(7)

物 質	L _{G*} ¹ (kJ/g)	$\dot{Q}_{L^{**2}}$ (kJ/m ²)	$\dot{Q}_{T^{***3}}$ (kJW/m ²)
ポリメチルタクリート	1.62	21.4	38.5
ポリスチレン	1.82	50.3	61.6
ポリカーボネート	4.07	74.2	52.0
木材	1.82	23.9	23.9

*1：ガス化/熱分解/解重合熱

*2：実験条件下のもとの表面からの熱損失

*3：実験条件下における火炎から燃焼表面へ移動する熱流束

(2) 高分子材料の熱分解特性（燃焼特性）の整理

核燃料施設にはグローブボックスのパネル素材をはじめとした各種の高分子材料が用いられている。これらの高分子材料の燃焼特性に関するデータを蓄積・整理することは、決定論的な火災事故時の安全性解析の実施に加えて、火災事故の発生確率の評価等、確率論的評価を行う上でも重要である。そこで、化学便覧等⁽⁷⁾⁽⁸⁾⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾を調査し、各種高分子材料の燃焼特性に関するデータの収集・整理に着手した。表 5.2-5 から 5.2-7 に収集・整理したデータを示す。表 5.2-5 には、各種高分子材料の分解温度や燃焼速度等の熱特性データを、表 5.2-6 には、燃焼に伴って放出される燃焼生成ガス組成データ、そして表 5.3-7 には、燃焼に伴って放出される煤煙発生データをそれぞれまとめた。欠落しているデータについては引き続いて調査を実施していく予定である。

表 5.2-5 高分子材料の熱特性データ

	アクリル PMMA ^{*5}	ポリカーボネート PC	ポリエチレン PE	ポリ塩化ビニル PVC	エボキシ EP
分解温度(℃)	170～300 ⁽⁸⁾	400 ⁽¹¹⁾	335～450 ⁽⁸⁾	200～300 ⁽⁸⁾	235～320 ⁽¹¹⁾
重量減少速度 ^{*1} (wt%/h)	5.2～200 ⁽⁸⁾		0.004～0.008 ⁽⁸⁾	170 ⁽⁸⁾	0.575 ⁽⁸⁾
燃焼速度(g/min) ^{*2}	1.56(17.3) ⁽¹²⁾	0.72(24) ⁽¹²⁾	1.08(17.5) ⁽¹²⁾	1.80(47) ⁽¹²⁾	
燃焼速度(cm/min) ^{*3}	1.5～4.0 ⁽⁹⁾	(自己消炎性) ⁽⁹⁾	0.7～3.0 ⁽⁹⁾	(自己消炎性) ⁽⁹⁾	(自己消炎性) ⁽⁹⁾
活性化エネルギー ^{*4} (kcal/mol)	30～56 ⁽⁸⁾		63～72(14.7) ⁽⁸⁾	54(34.2) ⁽⁸⁾	51 ⁽⁸⁾
頻度因子(1/s)	10 ¹⁸ ～10 ²² ⁽⁸⁾		10 ¹⁸ ⁽⁸⁾	10 ¹⁷ , 10 ¹⁵ ⁽⁸⁾	10 ¹⁵ ⁽⁸⁾
引火温度(℃)	280～300 ⁽¹⁰⁾	480 ^{*5(11)}	341 ⁽⁹⁾	391 ⁽⁹⁾	
発火温度(℃)	450～462 ⁽¹⁰⁾		349 ⁽⁹⁾	454 ⁽⁹⁾	
酸素指數(%)	17.3 ⁽¹⁰⁾	26～28 ⁽⁹⁾	17.4 ⁽⁹⁾	45～49 ⁽⁹⁾	38.3, 47.6 ⁽¹¹⁾
燃焼熱(kcal/g)	6.3 ⁽¹⁰⁾	7.3 ⁽¹⁰⁾	10～11.5 ⁽¹⁰⁾	4.3 ⁽¹⁰⁾	

*1: 350°Cにおける値、*2: 密閉型燃焼試験方式 (() 内は酸素指数)、*3: 水平に保持されたプラスチック表面に沿った火炎伝ば速度、*4: () 内は空気中分解の場合、*5: ポリメタクリル酸メチル

表 5.2-6 高分子材料の燃焼生成ガスデータ

高分子材料	空気供給量 (L/h)	燃焼生成ガス						ガス化率*3 (%)	
		HCl	CO ₂	CO	HCN	CH ₄	C ₂ H ₄		
ポリエチレン*1 PE	100 50		738 ⁽⁸⁾ 502 ⁽⁸⁾	210 ⁽⁸⁾ 195 ⁽⁸⁾		72 ⁽⁸⁾ 65 ⁽⁸⁾	185 ⁽⁸⁾ 187 ⁽⁸⁾	34 ⁽⁸⁾ 9.5 ⁽⁸⁾	
エポキシ*1 EP	100 50		1138 ⁽⁸⁾ 961 ⁽⁸⁾	153 ⁽⁸⁾ 228 ⁽⁸⁾	2.2 ⁽⁸⁾ 3.3 ⁽⁸⁾	16 ⁽⁸⁾ 33 ⁽⁸⁾	2.3 ⁽⁸⁾ 4.6 ⁽⁸⁾	7.4 ⁽⁸⁾ 6.4 ⁽⁸⁾	
ポリ塩化ビニル*1 PVC	100 50	286 ⁽⁸⁾ 279 ⁽⁸⁾	657 ⁽⁸⁾ 594 ⁽⁸⁾	177 ⁽⁸⁾ 207 ⁽⁸⁾		6.5 ⁽⁸⁾	2.3 ⁽⁸⁾	11 ⁽⁸⁾ 6.4 ⁽⁸⁾	
ポリ塩化ビニル*2 PVC				0.038 ⁽¹²⁾	0.013 ⁽¹²⁾				
ポリカーボネート*2 PC				0.196 ⁽¹²⁾	0.016 ⁽¹²⁾				

*1：加熱温度：700°C、燃焼生成ガス：mg/試料 1g、*2：燃焼生成ガス；vol% (HCl のみ(mg/g))、*3：(燃焼ガス成分中の炭素重量/試料中の炭素重量)×100

表 5.2-7 高分子材料燃焼時の煤煙発生データ

	物質の煤煙への変換率	最大減光係数	発煙開始温度(°C)
ポリエチレン PE		0.27 ⁽¹¹⁾	220 ⁽¹¹⁾
ポリ塩化ビニル PVC	発炎： くん燃： 0.026 ⁽⁸⁾ 0.93 ⁽⁸⁾	0.11 ⁽¹¹⁾	440 ⁽¹¹⁾
アクリル PMMA	発炎： くん燃： <0.01 ⁽⁸⁾ <0.01 ⁽⁸⁾	0.01 ⁽¹¹⁾	>500 ⁽¹¹⁾
ポリカーボネート PC		0.97 ⁽¹¹⁾	470 ⁽¹¹⁾
エポキシ EP		1.07 ⁽¹¹⁾	364 ⁽¹¹⁾

(3) 硝酸と有機溶媒の急激な熱分解反応

1) 調査項目の選定

再処理施設では、硝酸水溶液を加熱している機器には、通常、TBP とドデカンの混合溶媒などの有機溶媒は混入しない設計になっている。しかしながら、万一、このような機器に溶媒が混入した上に、硝酸と溶媒の混合溶液が通常よりも異常に高い温度条件で加熱された場合、硝化溶媒が生成し、そのまま放置すると硝化溶媒の急激な熱分解反応に進展して爆発が生じる恐れがある。「再処理施設安全審査指針」⁽¹²⁾では、熱的に不安定な物質を使用するか又は生成する機器は、火災・爆発の発生を防止するため、適切な熱的制限値等を設けることを要求している。また、六ヶ所再処理施設では、対応する機器の加熱蒸気の温度を監視するとともに、加熱蒸気の温度が135°Cを超えない設計になっている⁽¹³⁾。

実際の機器において、このような急激な熱分解反応が生じるか否かを検討する場合には、機器内への溶媒の混入量、機器内での硝酸と有機溶媒の熱分解反応や放射性物質の崩壊熱に伴う発熱速度、機器の壁面を通した放熱速度に関する条件を事故シナリオから決定することが重要である。硝酸と有機溶媒の急激な熱分解反応は、機器内の温度が自己加速反応温度を超えた場合に発生することが報告されている⁽¹⁴⁾。自己加速反応温度とは、急激な熱分解の開始温度であり、機器内の温度がこの温度しきい値を超えると暴走的な熱分解が進行する温度であると定義されている。機器内における自己加速反応温度は、機器内の発熱速度と機器外への放熱速度が釣り合った次式から決定される⁽¹⁴⁾。

$$\Delta H \times m \times k \times [HNO_3] + Q = UA(T - T_0) \quad (5.2-10)$$

かつ、

$$k = S \times \exp(-E/RT_a) \quad (5.2-11)$$

ここで、

ΔH : 硝酸／溶媒の熱分解反応における反応熱 (kJ/kg・溶媒)

m : 溶媒の流入量(kg)

k : 硝酸／溶媒の熱分解反応の反応速度定数 (s⁻¹)

[HNO₃] : 硝酸の相対飽和濃度率(%)。溶媒中に配位した硝酸の分率であり、溶媒に配位した硝酸量が完全に飽和した場合は[HNO₃]=1。

Q : 機器内の放射性物質の総崩壊熱(kJ/s)

U : 機器の総括伝熱係数(kJ/(m² · s · K))

A : 機器外へ放熱する壁の伝熱面積(m²)

T : 機器内の温度(K)

T_0 : 機器外の温度(K)

S : 反応の頻度因子(s⁻¹)

E : 活性化エネルギー(J/mol)

R : ガス定数(=8.314 J/mol · K)

T_a : 機器内温度(K)

なお、(5.2-10)式の第1項中の $k \times [HNO_3]$ は、硝酸と有機溶媒の熱分解反応の反応速度が溶媒に配位した硝酸濃度について1次であると仮定の下で成り立つ式である。(5.2-10)、(5.2-11)式の ΔH 、 k および $[HNO_3]$ は、硝酸が配位した溶媒の組成に依存した値である。よって、硝酸が配位した溶媒の組成ごとに ΔH 、 k および $[HNO_3]$ のデータを整理しておくと、事故シナリオの下で機器内の温度が自己加速反応温度を超えるか否かを判定する際に有用である。また、同時にエネルギー放出速度等のソースターム評価にも有効であると考えられる。

そこで本項目では、硝酸と有機溶媒の熱分解反応における ΔH 、 k および $[HNO_3]$ に関するデータの整理と自己加速反応温度の評価手法について調査を行うこととした。本年度は、以前に原研において実施された旧科学技術庁からの受託研究「再処理施設セル換気系安全性実証試験」(試験実施期間：昭和61年度から平成12年度まで)の中の「小型溶媒硝酸反応試験」で得られた知見⁽¹⁴⁾を調査した。

2) 「小型溶媒硝酸反応試験」の概要⁽¹⁴⁾

「小型溶媒硝酸反応試験」では、再処理施設の塔槽類や蒸発缶などの熱的機器内で硝酸／溶媒の異常な熱分解反応を想定した場合、①どのような異常反応が生じ、②どの程度の反応速度で有機溶媒が熱分解し、③どの程度発熱するかを小型溶媒硝酸反応試験装置ならびに熱分析計を用いて調べている。

最初に本試験で使用している溶媒について記す。対象としている溶媒は、混合比率の異なるTBPとドデカンの混合溶液からなる溶媒である。試験に用いる溶媒には、予め硝酸あるいは硝酸ウランを配位させている(以下、硝酸／溶媒と表記)。硝酸／溶媒は、硝酸水溶液あるいは硝酸ウランを含む硝酸水溶液と溶媒を攪拌して混合させた後に放置して平衡状態になった水相と溶媒相を分離して得られる。硝酸／溶媒中のTBP濃度は、平衡後の溶媒体積を基準としている。また、硝酸／溶媒中の硝酸濃度、ウラン濃度はそれぞれ、分析により得られた平衡状態の前後の水相中の存在量の差から決定している。

図5.2-6に小型溶媒硝酸反応試験装置の概略図を示す。気相部を化学的に不活性なHeまたはArガスで置換した図中の反応槽(容積1.5L)に硝酸または硝酸ウランが配位した溶媒を貯え、攪拌しながら加熱して熱分解反応を誘発させる。そして、定量ガスマータを用いて熱分解ガスの積算発生量を測定するとともに、ガスクロマトグラフィ、比色分析計、全有機炭素炭素計を用いて熱分解ガスの化学組成を同定している。

図5.2-7に様々な組成の下での硝酸／溶媒の熱分解ガス積算量と溶媒に配位した硝酸濃度の関係を示す。図に示した硝酸／溶媒の組成の下では、組成によらず、硝酸／溶媒の熱分解ガス積算量と溶媒に配位した硝酸濃度が比例関係で表されることを示している。なお、用いた硝酸／溶媒を別途分析して、硝酸が溶媒に飽和状態になるまで配位した場合の硝酸濃度はTBP濃度と等しいことを確認している。硝酸／溶媒のうち、TBP濃度が最大である100vol.%TBPのTBP濃度は、密度0.97g/cm³、分子量266.32を用いて計算すると、3.64mol-TBP/L-TBPであり、この場合に溶媒に配位する硝酸濃度の最大値は3.64mol-HNO₃/L-TBPとなる。図5.2-7の横軸の値を3.64で除すると、(5.2-10)式中の[HNO₃]となり、図5.2-7の比例関係は、硝酸／溶媒の熱分解ガス積算量と[HNO₃]でも成り立つ。このことは、(5.2-10)式において硝酸と有機溶媒の熱分解反応の反応速度が溶媒に配位した硝酸濃度について1次であるとした仮定が正しいことを示唆

している。この仮定が成り立つことは、ガラスキャピラリ中に封入した硝酸／100vol.%TBP を加熱して熱分解ガス発生量を調べた Nichols の実験⁽¹⁵⁾でも確認されている。

さらに、硝酸／溶媒の熱分解反応に寄与する溶媒中の硝酸濃度を単位溶媒あたりの熱分解ガス積算量に変数変換することで、硝酸／溶媒の熱分解反応の反応速度定数を算出している。試験では、反応槽内の硝酸／溶媒の温度が一定の場合、および一定速度で上昇させた場合で生成した熱分解ガス積算量を測定している。前者、後者の試験はそれぞれ、定温反応速度法（以下、定温法）、昇温反応速度法（以下、昇温法）と呼ばれる手法である。また、この試験では、硝酸／溶媒にルテニウム（Ru）を添加して、k に対する Ru の触媒効果の有無も調べている。

熱量分析計を用いた試験では、DTA（示差熱分析計）または DSC（示差走査熱量計）を用いて、様々な組成における硝酸／溶媒の試料（mg 程度）の熱分解反応で生じた熱量を測定して反応熱を調べている。表 5.2-10 に試験条件を示す。

3) 反応速度定数に関する知見⁽¹⁴⁾

2)の結果から、定温法および昇温法における反応速度解析において、硝酸／溶媒の熱分解反応は溶媒に配位した硝酸濃度に対して 1 次であると仮定している。

まず、用いた定温法および昇温法における反応速度モデルを示す。次に実験結果および反応速度モデルに用いて算出した各硝酸／溶媒の化学組成毎の反応度速度定数の一覧を表 5.2-11～5.2-14 に示す。

定温法における反応速度モデル

硝酸／溶媒の熱分解反応速度式は次式で表される。

$$dC/dt = k(C_0 - C) \quad (5.2-13)$$

ここで、

C : 時刻 t までに熱分解した溶媒中の硝酸濃度(mol/L・溶媒)

C₀ : 热分解が生じる前の溶媒中の硝酸濃度(mol/L・溶媒)

k : 反応速度定数(s⁻¹)

2)の結果より熱分解ガス発生量は溶媒中の硝酸濃度に比例するので、(5.2-13)式は次式の形で表すことができる。

$$dV/dt = k(V_0 - V) \quad (5.2-14)$$

ここで、

V : 時刻 t までに発生した熱分解ガス積算量(L)

V₀ : 反応の全過程で発生した熱分解ガス積算量(L)

また、未熱分解率 X は次式で表される。

$$X \equiv (V_0 - V)/V_0 = \exp(-kt) \quad (5.2-15)$$

ここで、(5.2-12)式で表される k と半減期 t_{1/2} の関係は次式で表される。

$$t_{1/2} = (0.693/S) \exp(E/RT) = 0.693/k \quad (5.2-16)$$

(5.2-15)式に溶媒温度 T における V_0 、V の測定値を代入することで、T における反応速度 k が決定される。また、複数の $t_{1/2}$ を $1/T$ に対してプロットして最小自乗法を用いると、E、S が決定される。

昇温法における反応速度モデル

(5.2-15)式を t で微分し、変形すると、

$$-(dX/dt)/X = S \exp(-E/RT) \quad (5.2-17)$$

昇温法の下で測定された V_0 、V を(5.2-10)式およびその微分式に代入して X、 dX/dt を求めると、(5.2-17)式の左辺の値が得られる。(5.2-17)式の左辺の値を $1/T$ に対してプロットして最小自乗法を用いると、E、S が決定される。

表 5.2-11～5.2-14 に示した試験結果および反応速度モデルに用いて算出した硝酸／溶媒の組成毎の反応度速度定数の一覧を示す。これらの条件の下での硝酸／溶媒の熱分解反応の反応速度は、以下の特徴を有している。表 5.2-11 の硝酸／溶媒の熱分解反応について、定温法と昇温法で得られた反応速度定数に関する値はよく一致し、手法の相違による反応速度定数の違いはないことを示唆している。表 5.2-13 の下では、硝酸／溶媒に Ru を添加させた場合でもの反応速度定数への影響はないことを示している。表 5.2-14 の硝酸ウランを含んだ硝酸／溶媒の条件において、熱分解ガスの発生量には 2 つの温度ピークが存在した。そのため、低温側、高温側の場合とそれぞれ異なる反応速度定数が得られている。

4) 反応熱に関する知見⁽¹⁴⁾

TBP に硝酸水溶液やドデカンを加えて溶媒に配位する硝酸濃度を変化させた場合の反応熱の関係として、図 5.2-8 に硝酸を配位させていない 100vol.%-TBP に所定量の硝酸水溶液を加えた場合（表 5.2-10 の対象項目④）、図 5.2-9 に硝酸を配位した TBP に所定量の 100vol. ドデカンを加えた場合（表 5.2-10 の対象項目②）を示す。また、図 5.2-10 に硝酸ウランを含み、硝酸が配位した TBP に所定量の硝酸水溶液を加えた場合（表 5.2-10 の対象項目⑤）ならびに、硝酸ウランを含み、硝酸が配位していない TBP の反応熱とウラン濃度の関係（表 5.2-10 の対象項目⑥）を示す。図 5.2-8～5.2-10 の結果から、溶媒に配位した硝酸が不飽和、すなわち、 $[HNO_3] < 1$ の下では、硝酸／溶媒の熱分解の反応熱は、溶媒に配位する硝酸量が増えるに従い、直線的に増加している。これは、水相中の硝酸あるいは硝酸ウランが溶媒相に移行して TBP に配位することにより、硝酸／溶媒の熱分解反応が進行することを示唆している。また図 5.2-10 の結果から、TBP 中に硝酸がなくても、硝酸ウランが存在すれば溶媒の熱分解反応は進行するが、熱分解反応開始温度は高く、214°C であった。

図 5.2-11 に硝酸が配位した 100vol.%-TBP に硝酸水溶液を加えた混合溶液（表 5.2-10 の対象項目③）、硝酸ウランを含み、硝酸が配位した 100vol.%-TBP に硝酸水溶液を加えた混合溶液（表 5.2-10 の対象項目⑤）の熱分解反応時の反応熱を示す。また、図 5.2-12 にドデカンに硝酸水溶液を加えた混合溶液の熱分解反応時の反応熱（表 5.2-10 の対象項目④）を示す。いずれも横軸の硝酸/溶媒のモル比の増加とともに反応熱は直線的に増加し、一定のモル比で反応熱はほぼ一定の結果が得られた。これは 1 モルの溶媒が硝酸と反応して熱分解が完全に進行するのに要する硝酸の化学量論値は決まっており、反応熱が一定の硝酸／溶媒のモル比は量論比よりも大

きく、硝酸が過剰になったためとしている。そして、得られた硝酸／溶媒のモル比と反応熱の妥当性について、化学量論と熱力学計算から検討を行っている。まず、1 モルの溶媒と硝酸が化学量論に従い、完全に CO₂、H₂O、N₂ にまで分解される場合の硝酸／溶媒のモル比と図 5.2-11、5.2-12 中で反応熱がほぼ一定になる最小の硝酸/溶媒のモル比を比較している。さらに、表 5.2-15 に示す反応物、生成物の標準生成モルエンタルピーの値を用いて、溶媒と硝酸が完全に熱分解する場合の化学量論比の条件での反応熱を熱力学的計算で算出し、図 5.2-11、5.2-12 中で一定値を示した反応熱の値と比較している。表 5.2-16 に反応熱計算に用いた熱分解反応の化学量論係数および反応熱算出結果、表 5.2-17 に化学量論値と反応熱の比較をまとめたものを示す。表 5.2-17 に示した反応系における反応熱がほぼ一定になる最小の硝酸/溶媒のモル比は化学量論に従った場合の値とほぼ一致している。しかしながら、反応熱は熱力学計算による算出値の方が試験での値よりも約 1.4 倍程度大きい結果となっている。今後は、さらに文献調査を進めると共に、自己加速反応温度の評価手法の調査にも着手してゆく予定である。

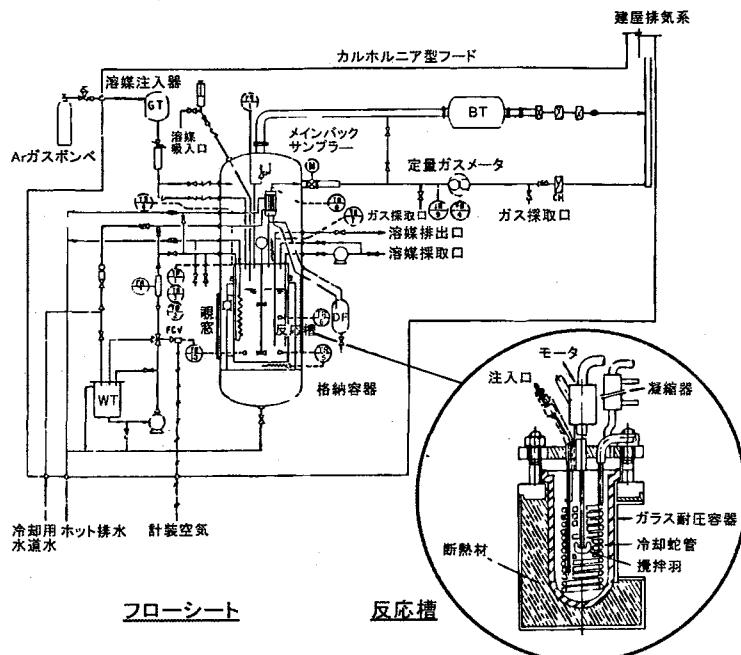


図 5.2-6 小型溶媒硝酸反応試験装置の概略図

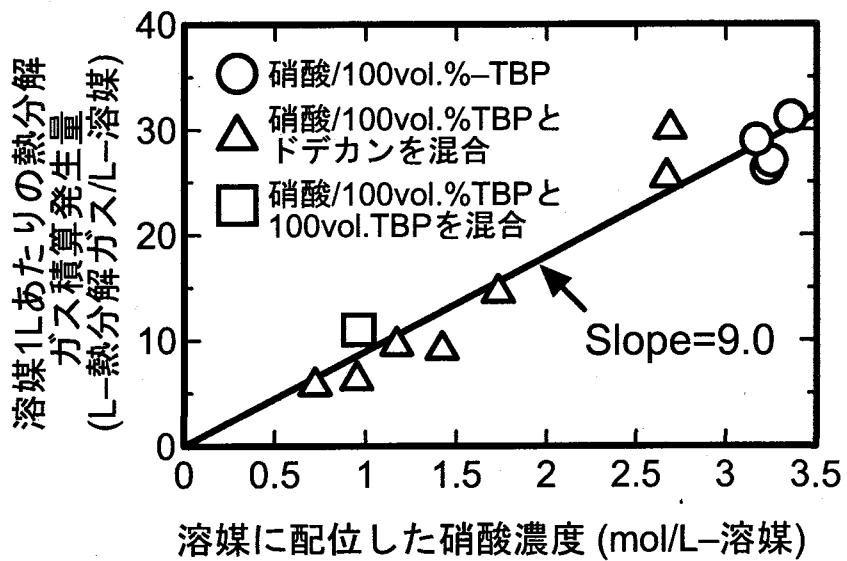


図 5.2-7 溶媒中の硝酸濃度と熱分解ガスの積算発生量の関係

○印…硝酸が配位した 100vol.%TBP ; 溶媒に配位した硝酸濃度 :

3.17-3.36mol/L-溶媒

△印…硝酸が配位した 100vol.%TBP とドデカンの混合溶液 ; 溶媒に配位した硝酸濃度 : 0.72-

2.69mol/L-溶媒、TBPvol.% : 17.8-84vol.% 、TBP 濃度 : 0.99-3.46mol/L-溶媒

□印…硝酸が配位した 100vol.%TBP と硝酸が配位していない 100vol.%TBP 混合溶液 ; 溶媒

に配位した硝酸濃度 : 0.96mol/L-溶媒、TBP 濃度 : 2.58mol/L-溶媒

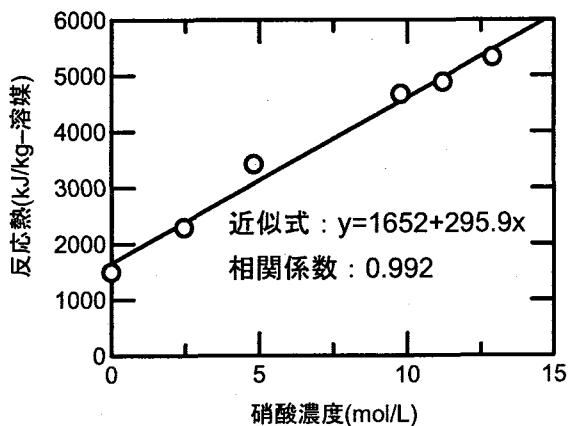


図 5.2-8 硝酸を配位させていない 100vol.%-TBP に所定量の硝酸水溶液を加えた混合溶液の熱分解反応時の反応熱（表 5.2-10 の④）：硝酸水溶液濃度（2.45-12.9mol/L）、TBP に配位した硝酸濃度（3.16mol/L-TBP）

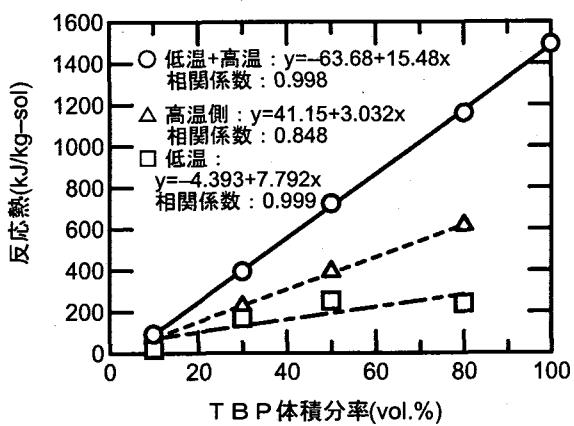


図 5.2-9 硝酸を配位した TBP に所定量のドデカンを加えて TBP 体積分率を変化させた混合溶液の熱分解反応時の反応熱（表 5.2-10 の対象項目②）

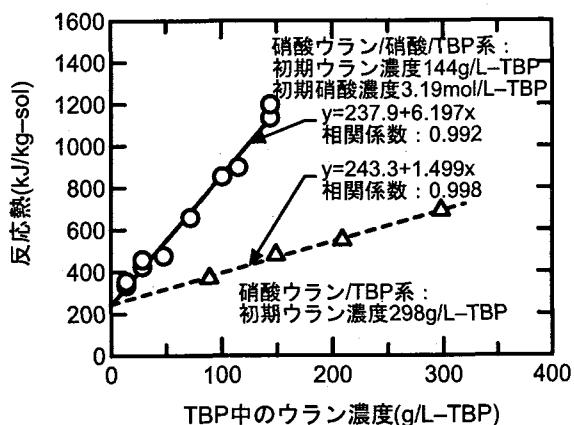


図 5.2-10 硝酸ウランを含み、硝酸が配位した TBP に硝酸水溶液を加えた混合溶液および硝酸ウランを含み、硝酸が配位していない TBP 溶液の反応熱とウラン濃度の関係（表 5.2-10 の対象項目⑤ならびに⑥）

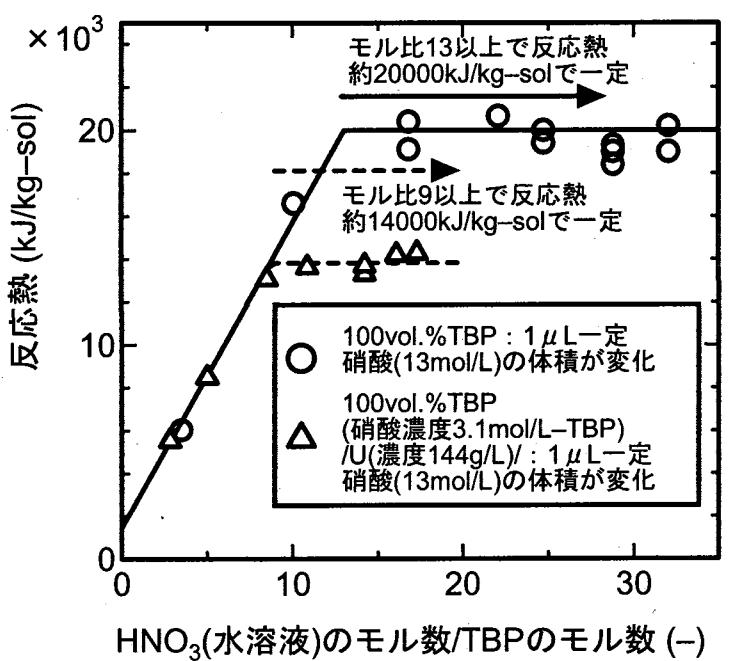


図 5.2-11 硝酸が配位した 100vol.%-TBP に硝酸水溶液を加えた混合溶液（表 5.2-10 の対象項目③）、硝酸ウランを含み、硝酸が配位した 100vol.%-TBP に硝酸水溶液を加えた混合溶液（表 5.2-10 の対象項目⑤）の熱分解反応時の反応熱

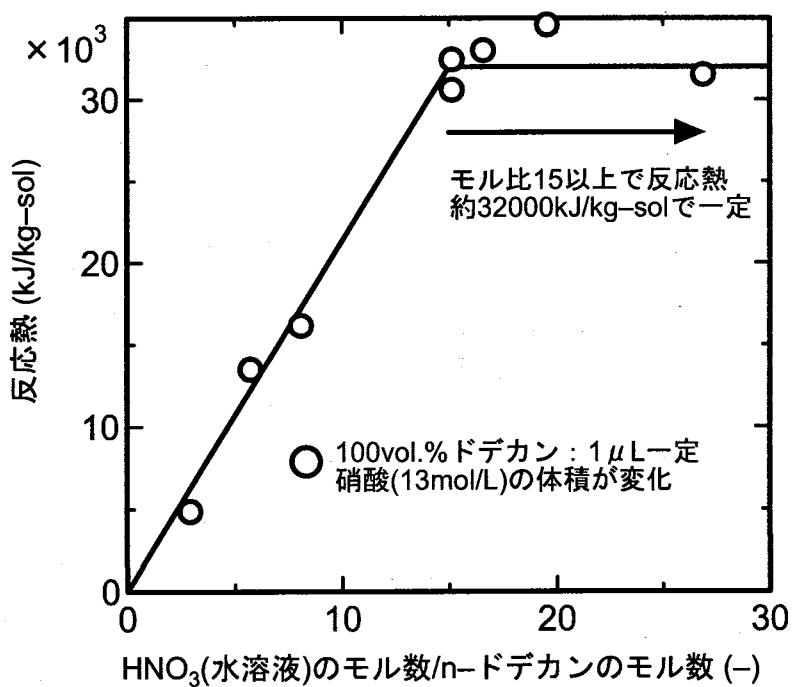


図 5.2-12 ドデカンに硝酸水溶液を加えた混合溶液の熱分解反応時の反応熱（表 5.2-10 の対象項目④）

表 5.2-10 DTA、DSC を用いた反応熱測定の実験条件

対象項目	初期溶媒条件	操 作	TBP および硝酸濃度	ドデカン	硝酸水溶液	反応熱測定法
① TBP : 100vol.% 硝酸濃度 : 3.16mol/L-TBP	そのまま使用		TBP : 100 vol.% 硝酸濃度 : 3.16 mol/L-sol	なし	なし	DSC
① TBP : 100vol.% 硝酸濃度 : 3.19mol/L-TBP	初期溶媒(1 μ L)を 100vol.%TBP で希釀	希釀倍率 : 1-10		なし	なし	DTA
② TBP : 100vol.% 硝酸濃度 : 3.16mol/L-TBP	100vol.%ドデカン で希釀	TBP : 10-100 vol.% 硝酸濃度 : 0.315-3.16 mol/L-sol	あり	なし	なし	DSC
② TBP : 100vol.% 硝酸濃度 : 3.19mol/L-TBP	初期 溶 媒 (1 μ L) を 100vol.%ドデカンで希釀	初期溶媒条件と同じ		希釀倍率 : 1-10	なし	DTA
③ TBP : 100vol.% 硝酸濃度 : 3.16mol/L	硝酸水溶液で希釀	TBP : 100 vol.% 硝酸濃度 : 3.16 mol/L-sol	なし	2.45-12.9 mol/L	なし	DSC
③ TBP : 100vol.% 硝酸濃度 : 3.6mol/L-TBP	初期溶媒(1 μ L)を硝酸水 溶液で希釀	初期溶媒条件と同じ		希釀に用いた硝酸水 溶液濃度 : 13mol/L 希釀体積 : 1-8 μ L	希釀に用いた硝酸水 溶液濃度 : 13mol/L 希釀体積 : 1-7 μ L	DTA
④ ドデカン : 100vol.% 硝酸なし	初期溶媒(1 μ L)を硝酸水 溶液で希釀	なし		初期溶媒条件と同じ	なし	DTA
⑤ TBP : 100vol.% 硝酸濃度 : 3.1mol/L-TBP ウラン濃度 : 144g/L-TBP	初期溶媒(1 μ L)を硝酸水 溶液で希釀	初期溶媒条件と同じ		希釀に用いた硝酸水 溶液濃度 : 13mol/L 希釀体積 : 1-7 μ L	希釀に用いた硝酸水 溶液濃度 : 13mol/L 希釀体積 : 1-7 μ L	DTA
⑥ TBP : 100vol.% 硝酸濃度 : 3.1mol/L-TBP ウラン濃度 : 144g/L-TBP	初期溶媒(1 μ L)を 100vol.%TBP で希釀	希釀倍率 : 1-10	なし	なし	なし	DTA
⑦ TBP : 100vol.% 硝酸なし ウラン濃度 : 298g/L-TBP	初期 溶 媒 (1 μ L) を 100vol.%TBP で希釀	希釀倍率 : 1-3	なし	なし	なし	DTA

表 5.2-11 反応速度定数 k、半減期 $t_{1/2}$ 、頻度因子 S、および活性化エネルギー E
 (硝酸 (1.0mol/L・溶媒) / 30vol.%TBP / ドデカノ)

温度(°C)	定温法				昇温法			
	k (min ⁻¹)	$t_{1/2}$ (min)	S (min ⁻¹)	E (kJ/mol)	$t_{1/2}$ (min)	S (min ⁻¹)	E (kJ/mol)	
140	6.513×10^{-2}	10.64			9.93			
146	1.039×10^{-1}	6.67			5.88			
149	1.370×10^{-1}	5.06		2.193×10^{14}	122.6	5.380×10^{14}	125.4	
159	3.113×10^{-1}	2.23			4.55			
					1.99			

表 5.2-12 反応速度定数 k、半減期 $t_{1/2}$ 、頻度因子 S、および活性化エネルギー E
 (硝酸 (1.0mol/L・溶媒) / 100vol.%TBP)

温度(°C)	定温法				昇温法			
	k (min ⁻¹)	$t_{1/2}$ (min)	S (min ⁻¹)	E (kJ/mol)	$t_{1/2}$ (min)	S (min ⁻¹)	E (kJ/mol)	
153	2.640×10^{-2}	26.25			22.07			
166	1.392×10^{-1}	4.98		1.993×10^{22}	194.4	4.375×10^{22}	193.3	
168	1.714×10^{-1}	4.04			3.439			
171	2.387×10^{-1}	2.90			2.407			

表 5.2-13 反応速度定数 k、半減期 $t_{1/2}$ 、頻度因子 S、および活性化エネルギー E
(Ru を含む系と含まない系の比較 (昇温法))

系	温度範囲(°C)	S (min ⁻¹)	E (kJ/mol)	Ru の有無
硝酸 (0.95 mol/L・溶媒) / 30vol.%TBP / ドデカン	140-170	1.923×10^{13}	126.2	×
硝酸 (1.3 mol/L・溶媒) / 35vol.%TBP / ドデカン / Ru	135-160	3.512×10^{13}	126.6	○
硝酸 (3.36mol/L・溶媒) / 100vol.%TBP	140-170	2.839×10^{16}	158.5	×
硝酸 (3.75 mol/L・溶媒) / 100vol.%TBP / Ru	135-170	2.087×10^{20}	190.9	○

表 5.2-14 反応速度定数 k、半減期 $t_{1/2}$ 、頻度因子 S、および活性化エネルギー E
(ウランを含む場合と含まない場合の比較 (昇温法))

系	反応領域	温度範囲(°C)	S (min ⁻¹)	E (kJ/mol)	ウランの有無
硝酸 (0.95mol/L・溶媒) / 30vol.%TBP / ドデカン		140-170	1.923×10^{13}	126.2	×
硝酸 (0.93 mol/L・溶媒) / 30vol.%TBP / ドデカン / 硝酸 U	低温	131-141	1.736×10^{24}	216.3	○
	高温	149-155	6.807×10^{19}	186.0	
硝酸 (3.36mol/L・溶媒) / 100vol.%TBP		140-170	2.839×10^{16}	158.5	×
硝酸 (3.78 mol/L・溶媒) / 100vol.%TBP / 硝酸 U	低温	138-147	2.087×10^{20}	167.5	○
	高温	180-199	1.386×10^{16}	164.6	
100vol.%TBP/硝酸 U	—	170-230	1.098×10^{16}	168.2	○

表 5.2-15 反応熱計算に用いた反応物、生成物の標準生成モルエンタルピーの値

物質	CO ₂	H ₂ O	HNO ₃	C ₁₂ H ₂₆	C ₄ H ₉ OH
物質の状態	ガス	液体	液体	液体	液体
標準生成モルエンタルピー(ΔH kJ/mol)	-394	-286	-174	-352	-326

表 5.2-16 反応熱計算に用いた熱分解反応の化学量論係数および反応熱算出結果

(1) 硝酸水溶液／100vol.%-TBP (表 5.2-10 の対象項目③)					
物質	CO ₂	H ₂ O	HNO ₃	C ₄ H ₉ OH	反応熱 (kJ/mol-TBP)
化学量論係数(mol)	12	22.2	14.4	3	-7593
(2) 硝酸水溶液／100vol.%-ドデカン (表 5.2-10 の対象項目④)					
物質	CO ₂	H ₂ O	HNO ₃	C ₁₂ H ₂₆	反応熱 (kJ/mol-ドデカン)
化学量論係数(mol)	12	20.4	14.8	1	-7634
(3) 硝酸水溶液／硝酸ウランを含む 100vol.%-TBP (表 5.2-10 の対象項目⑤)					
物質	CO ₂	H ₂ O	HNO ₃	C ₄ H ₉ OH	反応熱 (kJ/mol-TBP)
化学量論係数(mol)	8	14.8	9.6	2	-5062
					-19900

表 5.2-17 化学量論値と反応熱の比較のまとめ

反応系	硝酸水溶液／ 硝酸配位したTBP	硝酸水溶液／ドデカン	硝酸水溶液／ 硝酸配位したTBP／ 硝酸ワラン
化学量論値の実験値 (反応熱が一定になる硝酸／溶媒の モル数の比)	13	15	9
化学量論値の計算値 (硝酸／溶媒のモル数の比)	14	15	10
反応熱の実験値 (kJ/kg・溶媒)	20000	32000	14000
反応熱の計算値 (kJ/kg・溶媒)	28000	45000	18700

5.3 第5章のまとめ

今年度は、調査対象とする施設種類及び事故事象（ハザードの種類）の抽出と調査・整理作業範囲の明確化を行い（表 5.2-4 参照）、その結果を踏まえて、可燃性物質の燃焼事象と硝酸と有機溶媒の急激な熱分解反応を対象とした安全性評価データの調査収集に着手した。調査・整理作業範囲の明確化においては、事故事象の発生頻度及び発生の可能性の高低に基づく重み付けは行わず、単にハザード源となりうる物質が存在するか否かという観点から選定を行った。そのため、取扱量が非常に小さいあるいは十分な安全対策が施されているなど、施設の通常の条件では想定されない事故事象に係るハザード源についてもリストアップしている。また、核燃料施設で使用が想定される各種高分子材料の燃焼特性に関するデータの収集・整理に着手した。今後は表 5.2-4 に取り上げた評価対象事象についての安全評価データの調査を継続していく予定である。また並行して、調査した評価手法間の比較検討や評価手法自身の定量性・確からしさの評価についても引き続き検討していく。

参考文献

- (1) 日本原燃サービス株式会社、他、"再処理施設の設計基準事象選定"（平成3年7月）.
- (2) G.Nishio, et al., "Pool Fire under Atmosphere and Ventilation in Steady-State Burning (part-I)", *Fire Technol.*, 23, 146 (1987).
- (3) G.Nishio, et al., "Pool Fire under Atmosphere and Ventilation in Steady-State Burning (part-II)", *Fire Technol.*, 23, 186 (1987).
- (4) J.E.Ayer, et al., "Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook", NUREG-1320 (1988).
- (5) A.Tewarson, "Physio-Chemical and Combustion/Pyrolysis Properties of Polymeric Materials – Technical Report", PMRC J.I. OEON 6.RC., National Bureau of Standards, Washington, D.C. (1980).
- (6) A.Tewarson, et al., "Flammability of Plastics-I. Burning Intensity", *Combustion and Flame*, 26, 85 (1976).
- (7) 日本火災学会編、"火災便覧 新版"、共立出版株式会社（昭和59年3月）.
- (8) 高分子学会編、"高分子材料便覧"、コロナ社（昭和49年2月）.
- (9) "高分子材料の燃焼性"、工業材料、51、4 (2003).
- (10) 伊藤公正、"プラスチックデータハンドブック"、工業調査会 (1980.7).
- (11) "非金属材料データブック"、日本規格協会 (1983.10).
- (12) 原子力安全委員会、"再処理施設安全審査指針"（昭和61年2月20日決定、平成元年3月27日一部改訂）.
- (13) 日本原燃サービス（株）、「六ヶ所事業所 再処理事業指定申請書」（平成元年3月）
- (14) 小池、西尾、高田ら、"再処理施設における溶媒と硝酸の熱分解反応に関する安全性実証試験"、JAERI-Tech 95-005 (1995. 2).
- (15) G. S. Nichols, "Decomposition of the Tributyl Phosphate-Nitrate complexes", DP-526 (1960).

6. まとめ

核燃料施設における安全上の特徴を反映した評価手法の検討、リスクの評価・分析に資するため、核燃料施設において PSA の対象となる主要な放射性物質の環境への放出を伴う異常事象（臨界、火災、爆発等）の環境への上限的な影響を評価するための手法について以下の調査を実施した。

① 核燃料施設の PSA に関する現状調査

核燃料施設の PSA 手法の開発状況、PSA 実施事例、信頼性データベース、換気系挙動解析コードの現状を調査し整理し、第 1 章、1.2 節にまとめた。

② 核燃料施設の事故シナリオの検討

以下の④～⑤で検討する物理現象の位置づけを明確にするための導入部として、公開文献等を基に再処理施設で PSA の対象となる代表的なシナリオとして、a)水素爆発、b)溶液沸騰、c)溶媒火災、d)TBP 等錯体などの急激な分解反応について、シナリオの概要を一般的に示すとともに、起因事象、安全対策、放出経路について例を示した。さらに、これらの各事象において影響（コンシクエンス）が最大となるケースについて一般的に考察した。

③ 臨界事故評価手法の調査

臨界事故時の環境への影響の規模を評価する手法を検討するために、過去の事故事例、臨界事故評価事例の調査・整理をするとともに、臨界事故模擬実験の結果から添加反応度と核分裂数の関係等を分析した。また、臨界事故の規模を表す指標の一つである核分裂数を評価するための手法として、簡易評価手法（Tuck、Olsen、Barbry および野村の各方法）、AGNES コードを用いた一点炉動特性解析手法、準定常法について調査し、過去の事故事例および実験結果との比較により、それぞれの特徴を把握するとともに適用性の検討に必要な基礎的な情報を収集・整理した。

④ 放射性物質のエアロゾル化挙動に関するデータの調査

環境への放射性物質の放出を簡易的に評価する手法の一つである核燃料サイクル施設事故解析ハンドブックにある五因子法で用いる ARF（霧囲気中に放出され浮遊する割合）および RF（肺に吸入され得る微粒子の割合）について、再処理施設で PSA の対象となる事故のうち、放射性廃液貯槽での沸騰および溶液貯槽での爆発事象を例に、事故解析ハンドブックに示されたエアロゾル化割合の評価に用いる数値の根拠となった実験等を調査し、その適用可能性について検討した。また、放射性廃液の沸騰事象については、沸騰液面からの飛沫同伴実験式を用いて ARF の評価を試みた。

⑤ 燃焼・爆発モデル、火災データの調査

環境への放射性物質の放出量を評価する上でフィルタの健全性が重要である。これを評価するには、火災時の発熱、煤煙の発生量等が必要となるため、核燃料施設で想定される火災の原因となる可燃物の燃焼をモデル化する簡易的なモデルとして拡張 Spalding の B ファクタモデル、核

燃料サイクル施設事故解析ハンドブック（旧版）に示されている Hand Calculation モデル、そこで利用する燃焼速度、煤煙発生量等の基礎的データを調査した。さらに、硝酸/TBP/ドデカン系の急激な熱分解反応について、反応速度、反応熱等の基礎的なモデルについて調査した。

This is a blank page.

