



JAEA-Research

2007-047

JAEA-Research

核燃料施設の事故影響評価手法に関する調査 (I)

Research on the State-of-the-art of Accident Consequence Analysis Method 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, Shinsuke TASHIRO
and Ken MURAMATSU

安全研究センター
リスク評価・防災研究グループ

Risk Analysis and Applications Research Group
Nuclear Safety Research Center

June 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

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
029-282-6387, Fax 029-282-5920

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

© Japan Atomic Energy Agency, 2007

核燃料施設の事故影響評価手法に関する調査(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

(2007年4月2日受理)

日本原子力研究開発機構では、核燃料施設の確率論的安全評価（PSA）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「核燃料施設の事故影響評価手法に関する調査」を実施した。本調査は、核燃料施設（主として再処理施設および燃料加工施設）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異常事象（臨界、火災、爆発等）において放出される放射性物質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 18 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 Accident Consequence Analysis Method for
Non-reactor Nuclear Facilities (I)

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

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

(Received April 2, 2007)

Japan Atomic Energy Agency (JAEA) entrusted with a research on the state-of-the-art of consequence analysis method for Probabilistic Safety Assessment (PSA) of non-reactor nuclear facilities (NRNF) such as fuel reprocessing and fuel fabrication facilities 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 NRFN. A special committee of "Research on the analysis methods for accident consequence in NFRF" was organized by 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 boiling of radioactive solution postulated in NFRF resulting in release of radioactive material to the environment.

This report summarizes the results of research conducted by the committee in FY 2006.

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

目次

1.はじめに	1
2.調査項目の選定	3
3.水素爆発事象に関する調査	9
3.1 高レベル廃液からの放射線分解水素に係る調査	9
3.2 硝酸プルトニウム溶液からの放射線分解水素、酸素の発生に係る調査	23
3.3 水素の爆発下限界濃度に至るまでの時間余裕に対する酸素生成の効果	29
3.4 水素爆発時の爆発圧力測定実験に係る調査	35
3.5 3章のまとめ	42
4.臨界事故での揮発性核分裂生成物の気相への移行率に関する調査	44
4.1 設計基準事象（溶解槽の臨界）評価における揮発性核分裂生成物の移行率	44
4.2 挥発性核分裂生成物の移行率に関する TRACY の実験結果	44
4.3 4章のまとめ	49
5.溶融ガラスの誤流下における核分裂生成物の移行割合に関する調査	55
5.1 「高レベル廃液ガラス固化設備での溶融ガラスの漏えい」の評価の概要	55
5.2 溶融ガラスからの核分裂生成物の移行割合の参考となる文献データの調査	56
5.3 溶融ガラスからの移行割合の試算	59
5.4 5章のまとめ	60
6.まとめ	68

Contents

1. Introduction	1
2. Screening of research issues	3
3. Research on hydrogen explosion accidents	9
3.1 Review of experimental data on radiation induced hydrogen generation in high active liquid waste	9
3.2 Review of experimental data on radiation induced hydrogen and oxygen in plutonium nitrate solvent	23
3.3 Effect of considering oxygen generation in estimating time limit to explosive lower limit of hydrogen concentration	29
3.4 Review of experiment of measuring overpressure	35
3.5 Summary	42
4. Research on release of volatile fission products in criticality event	44
4.1 Release fraction of volatile fission products used in consequence analysis of design basis criticality event at fissile solution tank	44
4.2 Experimental results of release of volatile fission products obtained from TRACY	44
4.3 Summary	49
5. Research on release fraction of fission products in free fall of melting glass	55
5.1 Overview of consequence analysis of melting glass leakage from high active liquid waste vitrification facility	55
5.2 Review of experimental data applicable to estimation of fission products release	56
5.3 Preliminary estimation of fission products release	59
5.4 Summary	60
6. Summary	68

まえがき

本報告書は、社団法人 日本原子力学会が日本原子力研究開発機構より受託した「核燃料施設の事故影響評価に関する調査」に関する調査結果をまとめたものである。本調査では、核燃料施設を対象とする確率論的安全評価（PSA）での事故影響を評価するための手法や基礎的データ等を調査するとともに、現状での評価手法の適用可能性と今後の PSA 適用に向けた課題を検討した。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実施した。

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、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）の環境への影響を評価するための手法、基礎的データについて調査その適用可能性について検討した。

「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成果を下記の分担でとりまとめ、委員会での審議を経て当委員会の調査報告書とした。

第1章 吉田 一雄

第2章 吉田 一雄、林 芳昭

第3章 林 芳昭 (3.1 節)、石田 明倫 (3.2 節)、上田 吉徳 (3.3 節)、吉田 一雄 (3.4 節)

第4章 林 芳昭 (4.1 節)、阿部 仁 (4.2 節)

第5章 林 和也、林 芳昭

第6章 吉田 一雄

平成18年度「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19年2月16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 倫彦	日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター 核燃料サイクル工学研究所 再処理技術開発センター 技術開発部 技術開発課
	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	株東芝 電力システム社 電力・社会システム技術開発センター
	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(株) 原子力技術センター 原子炉安全技術部 安全審査統括グループ
	林 芳昭	日本原燃(株) 安全技術室 安全技術グループ(平成18年7月から)
	藤田 茂	原子燃料工業(株) 品質・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
	有澤 潤	日本原燃(株) 再処理事業部技術部(平成18年6月まで)
幹事	三好 慶典	日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター 原子力科学研究所 安全試験施設管理部
	村松 健	日本原子力研究開発機構 安全研究センター
	阿部 仁	日本原子力研究開発機構 安全研究センター 核燃料サイクル施設安全評価研究グループ
	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	日本原子力研究開発機構 安全統括部
	関根 啓二	日本原燃(株) 安全技術室
	田代 信介	日本原子力研究開発機構 安全研究センター 核燃料サイクル施設安全評価研究グループ
	山根 祐一	日本原子力研究開発機構 安全研究センター 核燃料サイクル施設安全評価研究グループ
	吉田 一雄	日本原子力研究開発機構 安全研究センター リスク評価・防災研究グループ

1. はじめに

確率論的安全評価（PSA: Probabilistic Safety Assessment）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、平成 16 年度より 2 年計画で旧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」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った^{(1), (2)}。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）の環境への影響を評価するための手法について以下の 3 項目の調査を実施した。

① 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、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した。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た。

② 臨界事故の評価手法の調査

NUCEF 施設など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した。

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した。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した。

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した。

平成 18 年度には、継続的な研究として日本原子力研究開発機構より「核燃料施設の事故影響評価手法に関する調査」を受託し前年度までの調査結果を踏まえ、以下の調査・検討を実施した。

① 事故時影響評価手法検討のための事故事象の選定

平成 17 年度に実施した事故影響評価手法の現状等の調査・検討の結果、核燃料施設において想定される代表的な事故事象の影響評価に係わり解決すべき今後の課題と考えられる事項を参考に、重要度、優先度、難易度等の観点より調査項目の順位付けを行い、これに基づき評価手法の精度向上のための調査対象を選定する。

② 選定事象に関する関連情報の調査と適用可能性の検討

①で選定した事故事象の影響評価に必要な関連情報について調査し、事故影響評価への適用可能性を検討するとともに、今後解決すべき課題についても検討する。

本報告書では、①および②の調査を再処理施設で想定される主要な事象を対象に検討した。その結果を以下の 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) 吉田 一雄 他 (編)、「核燃料施設の確率論的安全評価に関する調査 (I)」、JAEA Research 2006-085, 2007 年 2 月
- (2) 吉田 一雄 他 (編)、「核燃料施設の確率論的安全評価に関する調査 (II)」、JAEA Research 2007-002, 近刊

2. 調査項目の選定

平成 17 年度までの調査では、再処理施設で想定される主要な事象のうち比較的大きな影響を及ぼすと考えられる事象を中心に調査した。18 年度は、これまでに調査した事象でさらに調査が必要な事項、再処理施設で想定される事象のうち、新たに調査を必要と考えられる事象について検討した。検討に際しては、再処理施設の安全審査での設計基準事象の“「運転時の異常な過渡変化」を超える事象”に選定された事象の事故影響評価で参照されたパラメータについて調査し、平成 17 年度までの本特別専門委員会の調査結果を踏まえ平成 18 年度の調査事項を選定した。

表 2.0-1 に六ヶ所再処理工場の安全審査での設計基準事象の“「運転時の異常な過渡変化」を超える事象 (BAT : Beyond Anticipated Transient と略す)”に選定された事象および「水素爆発」、「沸騰」事象の事故影響評価で参照されたパラメータ、評価線量値、それぞれの事象での設計で想定している範囲を超えて事象が拡大する可能性、拡大した場合の評価上の課題、平成 17 年度までの調査結果の概要を示す。この資料をもとに課題選定に当たって委員会において検討した結果をまとめた。

- ・有機溶媒火災

有機溶媒/固体燃焼評価モデル (質量放出(消費)、エネルギー放出速度評価モデル) について、国内外の既存のモデルの概要、仮定及び適用条件等を整理するとともにドデカンの燃焼事象を対象に各モデルを用いた評価を実施し、比較検討した。また、高分子材料の燃焼・熱分解特性等の基礎データを調査・整理した。また米国 DOE のハンドブック記載の火災時の浮遊性物質の放出評価データ (エアロゾル化割合 (ARF : Aerosol Release Fraction) 及び吸入に寄与し得る割合 (RF : Respirable Fraction)) について、特に表面汚染固体燃焼時の表面からの放射性物質放出に係る ARF 及び RF の推奨値とその裏づけとなる実験について調査した。今後は、各評価モデルの導出のもとになった実験等の調査を行うことで、各評価モデルの適用範囲の明確化を図っていく必要があるが、影響評価に必要な基礎的なデータはほぼ調査できた。

- ・リン酸三ブチル (TBP : Tri-Butyl Phosphate) 等の錯体の急激な分解反応

爆発事象の一例として TBP 等の錯体の急激な分解事象について調査し、換気系モデルの設定、高性能エア (HEPA : High Efficiency Particulate Air) フィルタの健全性の評価、放出経路の検討、環境への移行率 (LPF : Leak Path Factor) の設定等における基本的な考え方は、他の事象に適用可能と考えられる。今後の課題としては、算出に用いる種々の設定値、解析モデル、様々な物理・化学的データ等の精緻さを向上させる必要があるが、当該事象の影響評価が可能な手法は調査できたと考えられる。

- ・臨界

核燃料を含む溶液を蓄えた貯槽等での臨界事故の影響評価では、事故規模の指標となる総核分裂数および溶液から発生する放射性物質の量を評価する必要がある。前者については過去の臨界事故事例を調査し、事故に至った条件や臨界事故の結果を特徴を抽出した。また、仮想的

な臨界事故条件を設定し、3種類の評価手法（動特性解析、準定常法解析、簡易評価式）を用いた事故評価を行い、総核分裂数に関して、動特性解析と準定常法は概ね等しい解析結果を示すことを示した。事故影響評価には、さらに臨界発生時の放射性物質の溶液からの発生量に関する情報が必要であり、当委員会では未調査である。

・漏えい

当該事象については、当委員会では未調査であるが、他の事象に比べ影響は小さいものの発生頻度が高いと想定される。漏えい時のエアロゾル化割合については、NRCの事故解析ハンドブック等に利用可能なデータがある。本事象では、事故の影響の程度を、漏えい量に大きく依存するため適切な事故シナリオの想定が重要であり、当面事故影響評価手法に関わり調査すべき事項はない。

・溶融ガラス誤流下

当該事象については、当委員会では未調査であるが、他の事象に比べ影響は小さいものの発生頻度が高いと想定され、リスクのバランスの観点より影響評価では過度に保守的な仮定に基づくのではなく適切な精度の評価が必要である。このため関連するデータの利用可能性について調査する必要があるが、当委員会では未調査である。

・全電源喪失

BATとして想定する全電源喪失の事故シナリオでは、30分間に復電すると仮定するためガラス溶融炉内の排ガス中に含まれる放射性物質の固化セル内への漏えいが最も厳しいとして影響評価が行なわれている。電源喪失が長期化すれば、塔槽類の冷却機能喪失による沸騰、圧空供給機能喪失による水素爆発がリスク上重要な事故シナリオとなる。このため、当該事象の設計基準事象を超えるような事故の影響評価は、下記の事象に包含される。

・水素爆発

爆発時の換気系内のエアロゾルの移行量の評価については、前述のTBP等の錯体の急激な分解反応で調査した評価手法が適用可能と考えられる。爆発による圧力上昇等を評価するためには、放射性溶液からの水素の発生量の評価、水素濃度と爆発規模の関係に関するデータが必要であるが、当委員会では未調査である。

・沸騰

これまでの調査で、沸騰事象でのエアロゾル発生量評価について、溶液沸騰の飛沫同伴等の実験式、飛まつ粒径の実測値等をもとにしたARF、RFを算出し、従来から使われているデータの保守性を示すとともに、沸騰が長期間継続した場合に想定されるRuの揮発挙動についての情報を調査し、有意な揮発までは、2日程度を要し、それまでの累積揮発率が0.01程度であることを試算した。地震時等の長期間にわたって冷却機能の回復が見込めない状況での事故影響評価ではRuの揮発挙動のデータを必要とするが、調査可能な公開情報がないのが現状である。

以上の状況を踏まえ、想定される事象のリスク上の重要性、関連する公開情報情報の入手可能性より、18年度では以下の項目について調査することとした。

水素爆発事象に関する調査

- ・高レベル廃液からの放射線分解発生水素量
- ・硝酸プルトニウム溶液における放射線分解水素および酸素の発生
- ・爆発下限濃度に至るまでの時間余裕に対する酸素生成の考慮の効果
- ・水素混合ガスの爆発時の圧力上昇

臨界事象での揮発性核分裂生成物の発生量に関する調査

- ・FP 移行率に関する米国 Regulatory Guide の根拠
- ・FP 移行率に関する TRACY の実験結果

溶融ガラスの誤流下に関する調査

参考文献

- (1) 日本原燃㈱、「再処理事業所 再処理事業指定申請書 本文及び添付書類」平成13年7月17日変更申請、平成14年2月15日一部補正
- (2) E.Walker, "A Summary of Parameters Affecting the Release and Transport of Radioactive Material from an Unplanned Incident", BNFO-81-2 Bechtel National Inc., September 1978 (Reissued August 1981).
- (3) 尾崎 誠、他、「高性能エアフィルタの苛酷時健全性試験、(I)DOP エアロゾルの捕集性能」、日本原子力学会誌 Vol.27, No.7, 1985
- (4) J.E.Ayer, et al., "Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook", NUREG-1320, May 1988.
- (5) S.L.Sutter, et al. , "Aerosols Generated by Free Fall Spills of Powder and Solution in Static Air", NUREG/CR-2139, December 1981.
- (6) B.J.Newby and V.H.Barnes, "Volatile Ruthenium Removal from Calciner Off-gas Using Solid Sorbents", ICP-1078, July 1975.
- (7) 「水洗浄塔による揮発性ルテニウム除去試験」(EN-89-006, 石川播磨重工業株式会社, 平成元年3月)
- (8) 高橋 武士、他、「シリカゲル吸着剤の揮発性ルテニウム除去特性」、PNC TN1410 91-034(1991)
- (9) 野村 靖、他、「再処理施設安全評価用基礎データ」JAERI-M 90-127(1990)
- (10) K.D.Kuhn, et al., "New Findings in Designing an Offgas System for the WACKERSDORF Reprocessing Plant", RECOD 87, August 1987.
- (11) G, "Höhlein, et al., "Vitrification of High Level Radioactive Waste Operating Experience with the PAMELA Plant", Waste Management '86

- (12) 高橋 武士、他、「ガラス固化モックアップ試験によるスクラバー及びデミスタの性能試験」、
PNC TN1410 91-033(1991)

表 2.0-1 再処理施設の「運転時の異常な過渡変化」を超える事象での解析パラメータ、課題、
委員会での平成 17 年度までの検討結果（その 1）

潜在事故	MAR	DR	ARF	RF	LPF	線量 (mSv)*	拡大可能性・課題	委員会での平成17年度までの調査結果
火災 集液部有機溶媒 0.07m ³ ⁽¹⁾ (10gPu/L)					1×10^{-3} ⁽³⁾ (HEPAフィルタ1段)	9.3×10^{-3}	70%はセル内酸素による燃焼上限量に近いので、換気停止か防火ダンバー前ににより自然鎮火。加熱源、着火源に乏しく炭酸ガス消火装置も設置しているので、立地評価の影響 ² mSvはリスクとして上限を超える。	国内外で開発整備されてきた有機溶媒／固体燃焼評価モデル(質量放出(消費)、エネルギー放出速度評価等)の調査を行い、各モデルの概要、仮定及び適用条件等を整理した。また、ドネン燃焼事象として各モデル間の比較検討を行った。合わせて、貴重な材料の燃焼・熱分解特性データの調査、整理も実施した。さらに、火災時の呼吸性物質の放出評価データ(ARF 及びRF値)について詳細に記載されているアメリカDOEのハンドブックを取り上げ、特に表面活性固体燃焼時の表面から放射性物質放出に係るARF 及びRFの推奨値とその裏づけとなる実験内容について調査をおこなった。
TBP分解 PU濃縮缶容積 1.0L ⁽¹⁾ (250gPu/L) ⁽¹⁾								JNESでの評価手法を調査。想定される移行経路ごとに理想気体を仮定した排気系での流量の増加を評価。ARFはIAH試験の ARF=1.28 × MFO-827(MF:過飽和蒸気／液体のモル分率)を利用。硝酸等と有機溶媒の危険な熱収支の基盤データ上の必要となる反応速度定数、反応熱の実験値を調査、整理した。まず、文献の実験条件、反応速度定数等で必要となる機器内外の熱収支の基盤データにより下流での微量有機相蓄積はn-ドデカノンであり、密度計により検知される。また、爆発しない。通常運転時の爆発は考え難い。
許認可における評価事故	1 エアロソル 50mg ^(注1)	1	1×10^{-3} ⁽³⁾ ^(注2)	1 (HEPAフィルタ2段)		1.3×10^{-5}		バルスカラムでは、重力のおかげで大量の有機相が下流に行くことはない。TBP洗浄塔により下流での微量有機相蓄積はn-ドデカノンであり、密度計により検知される。また、爆発しない。過去の実験値の関係について、硝酸等と有機溶媒が化学量論比で得られる反応熱の計算値と比較検討した。
臨界 溶解槽容積 3m ³ ⁽¹⁾ (250g(U+Pu)/L) ⁽¹⁾	希ガス 1 ⁽⁴⁾ ^(注3) よう素 0.23 ⁽⁴⁾ ^(注3) ルテニウム 0.001 ⁽⁴⁾ ^(注3) その他 0.0005 ⁽⁴⁾ ^(注3)				希ガス 1 よう素 1 その他 1×10 ⁻³ ⁽³⁾ (セル:HEPAフィルタ1段) (DOG:HEPAフィルタ2段) ^(注4)	5.7×10^{-1}	遮へい壁、飛来物防護壁により、γ線の敷地外放出はない。遠隔操作によるガドリ注入、蒸発等により終止。臨界発生頻度が10-6/s以下であり、リスクとしては10 ²⁰ を上限と考えて良い。	過去の臨界事故事例と国内外での上限評価の調査、六ヶ所再処理施設の臨界安全管理方法の調査、事故評価手法(簡易評価、動特性解析、準正常法)を用いた仮想事故の解析を行った。
漏えい 漏えい 高レベル濃縮廃液 5m ³ ⁽¹⁾					1×10^{-3} ⁽³⁾ (HEPAフィルタ1段)	1.20×10^{-5} ⁽⁵⁾		貯槽全量漏えいは考慮しない。高レベル廃液でも蒸発乾固しなければ、影響は限られる。セルへの水注入により貯槽までの時間は延長可能(注入しない場合2日程度)であり、回収により安全確保。 未検討

表 2.0-1 再処理施設の「運転時の異常な過渡変化」を超える事象での解析パラメータ、課題、
委員会での平成 17 年度までの検討結果（その 2）

潜在事故	MAR	DR	ARF	RF	LPF	線量 (mSv)*	拡大可能性・課題	委員会での平成 17 年度までの調査結果
溶融ガラス 誤流下	固化ガラス 2 本 ⁽¹⁾ (約 400kg/本 × 2) 0.1 ^(注6)	ルテニウム及びセシウム 1 1 上記以外のエアロゾル 1	ルテニウム 2×10^{-4} ⁽⁶⁾⁽⁷⁾⁽⁸⁾ (洗浄塔及びリニウム吸着塔) 上記以外のエアロゾル 1×10^{-5} ⁽³⁾ (HEAP フィルタ 2 段)	1	2.8×10^{-2}	1 体の流下に約 3 時間。誤流下は電源停電による終止できるので 2 体は上限。実体に合う ARF の設定が課題。	未検討	
燃料落 下 破損	PWR 燃料集合体 1 体 のキャップ中の希ガス、よう素の存在量 (30%) ⁽²⁾⁽⁹⁾ (約 0.05t/ 体)	1	1	希ガス 1 1 よう素 1×10^{-2} ⁽²⁾ (プール水)	1.6×10^{-3}	拡大要因なし	未検討	
許認可における評価事故	全電源 喪失	ガラス溶融炉 (平常運転時におけるガラス溶融炉から高レベル廃ガラス処理設備へ移行する放射性物質量の 1 時間分) ^(注6)	1	圧力放出系(全体の 6%) ルテニウム 1 1×10^{-3} ⁽³⁾ (高性能粒子フィルタ 1 段)	2.7×10^{-1}	拡大した場合は下記水素発生、沸とうにつながる。ガラス溶融炉からの放射性物質放出速度は電源喪失時間とともに減少し、拡大要因が。	未検討	
				固化セルからの排気系(全体の 100%) ルテニウム 1×10^{-2} ⁽⁶⁾⁽⁸⁾ (ルテニウム吸着塔) 上記以外のエアロゾル 1×10^{-5} ⁽³⁾ (高性能粒子フィルタ 2 段)				
	上記以外 該計の その他の 事故	水素発 泡とう				実液での発生ガスの組成分析及び水素発生 G 値測定が必要。爆燃、爆轟の遷移、爆発圧力の評価等必要。	未検討	エアロゾル化割合に関する文献 ⁽²⁾ を調査、適用可能な評価等必要。
	主要な 事故							沸騰による飛沫同伴等の実験式により ARF、RF を算出。試験では、AAH の堆積値を用いて、場合により 1/100 ～ 1/150 度量放出量が估算。RF の揮発率についての情報を調査し、有意味な揮発率までは、2 日程度を要し、それまでの累積揮発率が 0.01 度であることを試算。

(注1) 煙巻による発ガス處理設備に漏出した気体量(0.5m^3) × エアロゾル濃度(100mg/m^3)⁽²⁾ = エアロゾル 50mg

(注2) 煙巻による大量がフィルタの除去効率を低下させる傾向をもつことを考慮した値

(注3) 希ガス、よう素、ルテニウムについては溶液中の保有量及び生成量(全核分裂数 10^{19}fission)に対する移行割合を示し、その他については

全核分裂数 10^{19} のエネルギーによる蒸発量に相当する溶液液体積(0.4m^3)中の保有量に対する移行率を示す

(注4) 線形昇温曲線が除去効率を低下させる傾向をもつことを考慮した値

(注5) ガラス溶融炉から面状セルへ漏れるする気体の移行率を以下の通り設定する。 $(0.01)(X)(2)$

アネウド 0.5 セシウム 0.05 セリウム 0.005 ドラゴム 1 アチナイト 0.005

ルテニウム 0.2 スロヂウム 0.005 シルコニウム 0.005 よう素 1

(注6) PNC ガラス固化技術開発施設(TVF)のモックアップ試験結果及びベルギー モルユーロケミックサイトの PAMERA ガラス固化プラント測定結果に基づき保守側に設定

3. 水素爆発事象に関する調査

水素爆発事象発生時の換気系内でのエアロゾルの移行量の評価については、爆発による圧力上昇等を評価するためには、放射性溶液からの水素の発生量の評価、水素濃度と爆発規模の関係に関するデータが必要である。そこで本章では、高レベル廃液からの放射線分解発生水素量、硝酸プルトニウム溶液における放射線分解水素および酸素の発生、爆発下限濃度に至るまでの時間余裕に対する酸素生成の考慮の効果、水素混合ガスの爆発時の圧力上昇に関連する文献を調査するとともに試解析を試みた。

3.1 高レベル廃液からの放射線分解水素に係る調査

高レベル濃縮廃液からの放射線分解水素について、文献「高レベル廃液からの放射線分解発生水素の評価」⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾⁽⁴⁾（日本原子力学会）の調査を実施した。同文献の調査結果を以下 3.1.1 から 3.1.6 に示し、3.1.7 に今後の検討課題等のまとめを示す。

なお、本文献では、液攪拌下照射での気相へ放出された水素量を水素発生量、この条件下での水素 G 値（水素 G 値とは試料に吸収された放射線エネルギー 100eV 当たりに気相へ放出された水素の分子数をいう。）を水素発生 G 値とし、液静置下照射で気相に自然放出される水素量を水素放出量、この条件下での水素 G 値を水素放出 G 値と区別している。

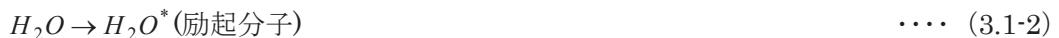
3.1.1 水素発生機構と実験方法

(1) 硝酸水溶液の放射線分解における水素生成の機構

a. 水の放射線による分解機構

液体の水の放射線による分解機構は、エネルギー吸収からの時間経過に従い、概要すると以下 3.1-1 式～3.1-20 式のように示されるとしている。このうち、水の放射線分解により発生する水素は、大部分が放射線の進路に沿って生じた励起種とイオン種が小さく集まったスパー(spur)内で起こる 3.1-7 式～3.1-9 式に示す反応により生じるとしている。液が静置された状態で照射された場合には、溶液中の水素は拡散により移動するので、水酸ラジカル OH が溶存している水素と以下 3.1-12 式の反応による影響が無視できないとしている。

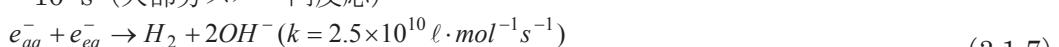
① 10^{-15}s 以下

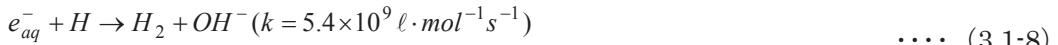


② 10^{-11}s 以下

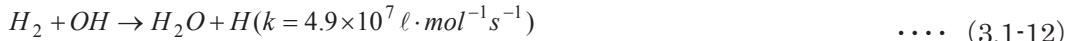


③ $10^{-10} \sim 10^{-8}\text{s}$ (大部分スパー内反応)



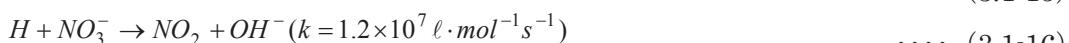


④ $10^{-8}s$ 以上 (一般的な水溶液系におけるスパー外の放射線化学反応の領域)



b. 硝酸水溶液の放射線による分解機構

硝酸水溶液が放射線場で照射された場合の反応は、硝酸濃度があまり高くない場合は、基本的に 3.1-1～3.1-14 式の水の放射線分解を考えればよいとしている。しかし、硝酸イオン NO_3^- は、以下に示すように、水素の前駆体である e_{aq}^- 及び H と反応するとしている。



硝酸濃度の高い水溶液の場合には、以下に示す硝酸イオンの放射線による直接分解を考慮しなければならないとしている。



c. 金属イオンを含む水溶液の放射線による分解機構

金属成分が溶液中で解離して生じる金属イオンは、 e_{aq}^- 及び H と反応 (3.1-18 及び 3.1-19 式) し、その反応速度定数も 3.1-15 及び 3.1-16 式のそれにはほぼ近いものが多いとしている。また、金属イオンは水素の分解(3.1-12 式)に関与する OH ラジカルに対しても高い反応性(3.1-20 式)を有するとしている。



3.1.2 実験方法

実験装置は、照射装置、ガス循環系、ガス分析系等で構成されている (図 3.1-1 参照)。照射装置は、 $60Co\gamma$ 線照射室 (原研高崎研コバルト第 2 照射室 : 線源数量 6.95PBq、固定線源形状 高さ 45cm × 幅 200cm) 内に設置している。線量率は 0.24～6.3kGy/h としている。ガス循環系は、Ar ガス(純度 99.9999%)が充填されており、循環ポンプにより 5L/min で循環されている。ガス分析系は、循環ガス中の水素、酸素及び窒素をガスクロマトグラフを用いて分析している。水素最小検出感度は、1ppm としている。

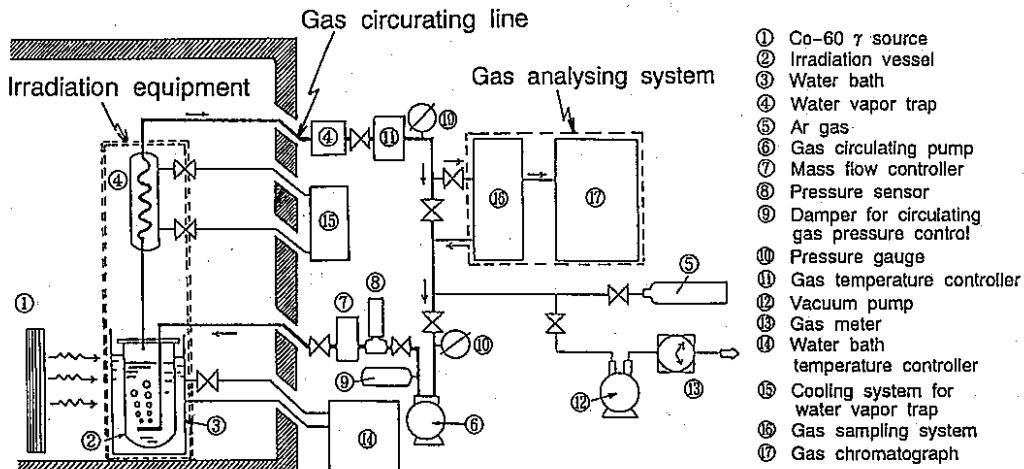


図 3.1-1 実験装置概要図（参考文献(1)より転載）

3.1.3 各種濃度の硝酸水溶液の γ 線分解(攪拌状態)⁽¹⁾

(1)純水のG値による実験装置特性把握（攪拌時）

純水試料を攪拌下で γ 線を照射(0.25kGy/h)した場合の水素濃度と照射時間の関係から、純水のG(H₂)は0.44と求めている。これは文献値⁽⁵⁾とほぼ一致することから、データの信頼性に問題ないとしている。

(2)硝酸水溶液の水素生成量とG値（攪拌時）

硝酸イオンがどの程度の水素生成抑制効果を有するか明らかにするために、硝酸濃度を変えて水素生成量の照射時間による変化を調べている。水素発生量と照射時間(線量)との間に良好な直線関係が得られたとしている(図3.1-2参照)。

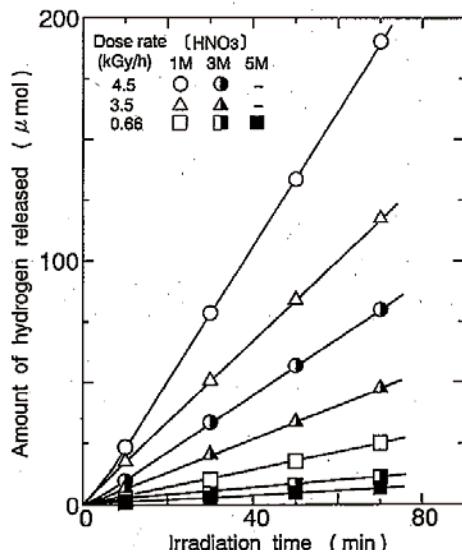


図 3.1-2 種々の硝酸濃度下における水素発生量の時間変化（攪拌条件下）
(参考文献(1)より転載)

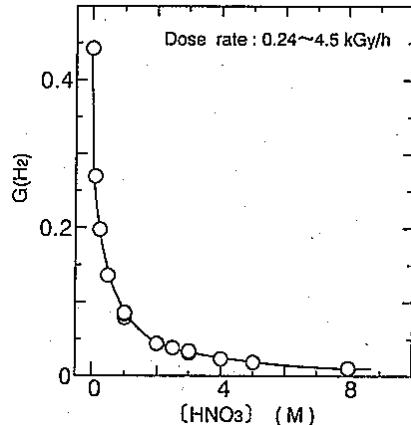


図 3.1-3 水素G値と硝酸濃度の関係(攪拌条件下)(参考文献(1)より転載)

この傾きから $G(H_2)$ を求めた結果、0.079（硝酸濃度 1 M、線量率 0.66 kGy/h）が得られ、 $G(H_2)$ は硝酸濃度の増加とともに指数関数的に減少するとしている（図 3.1-3 参照）。

高レベル濃縮廃液の硝酸濃度に相当する 2~5 M における $G(H_2)$ は 0.044~0.019 であり、硝酸水溶液をガラスアンプルにより減圧下で照射して得られた既報値より約 20% 低いとしている。0.24~4.6 kGy/h の範囲では、 $G(H_2)$ は線量率に依存しないとしている（図 3.1-4 参照）。

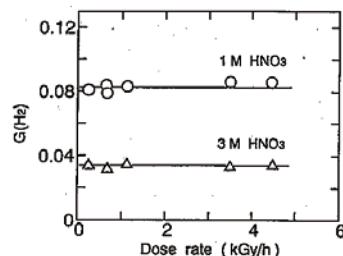


図 3.1-4 水素 G 値と線量率の関係
(参考文献(1)より転載)

(3) 酸素及び窒素の生成挙動（攪拌時）

硝酸濃度が高くなると、硝酸あるいは硝酸イオンへの直接効果が無視できなくなることから、酸素の生成量の測定を実施したとしている。また、窒素の生成量の測定も実施している。硝酸濃度 1 M の場合には酸素よりも水素の生成量が僅かに多い（図 3.1-5 参照）のに対して、3 M の場合には逆に水素よりも酸素の生成量が多くなったとしている（図 3.1-6 参照）。これは、硝酸濃度が高くなると、水素については硝酸イオンによる阻害効果が増大すること、酸素については、硝酸イオンへのエネルギー配分が増すことによる増大することが定性的に説明されるとしている。酸素生成の G 値は、それぞれ 0.073 (1 M)、0.19 (3 M) と求められたとしている。酸素濃度は、硝酸濃度と線量はほぼ 1 次に比例するとしている。窒素生成量は硝酸濃度には依存せず、かつ、線量が増加しても一定以上にはならないとしている。

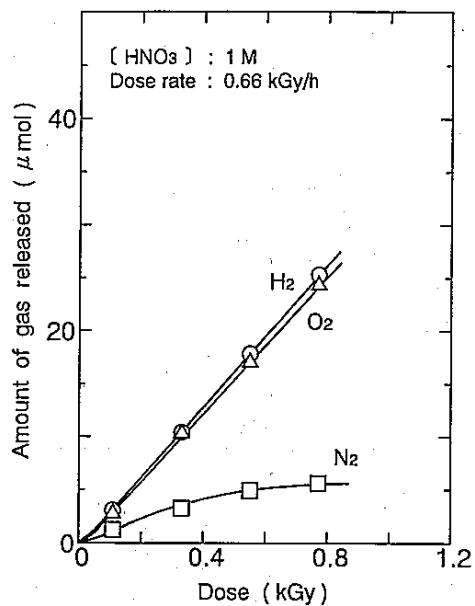


図 3.1-5 硝酸水溶液での酸素、窒素の生成量と線量の関係 (1 M) (参考文献(1)より転載)

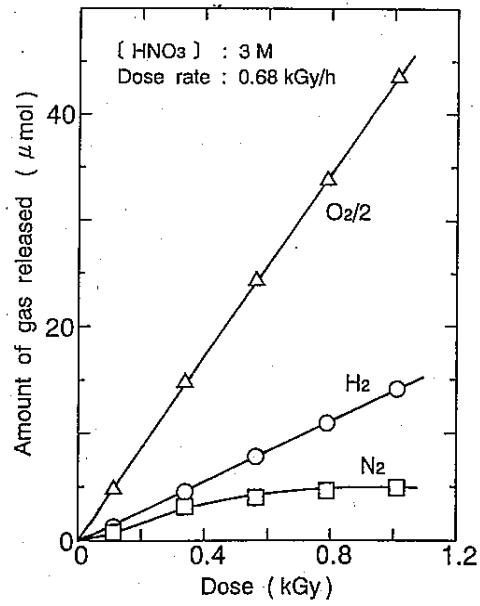


図 3.1-6 硝酸水溶液での酸素、窒素の生成量と線量の関係 (3 M) (参考文献(1)より転載)

3.1.4 静置状態の硝酸水溶液から放出される水素量の液深依存性⁽²⁾

(1)水素放出G値と液深の関係（静置時）

液静置下照射で、液深、硝酸濃度などを変えた種々の条件下で、硝酸水溶液から気相へ放出される水素量の照射時間による変化を調べた結果、水素放出量は初期には著しく小さいが、約90分(液深5cm)～約170分(液深105cm)で水素放出量が一定となったとしている(図3.1-7参照)。この直線部分から水素放出G値を算出し、液深に対してプロットした結果を図3.1-8に示している。

水素放出G値は例えば、2.5M硝酸水溶液、線量率1.8kGy/hの場合、5、16、25、45及び65cmの液深では、それぞれ0.036、0.018、0.0012、0.0075及び0.0059となり、液深16cm以上では急激に減少したとしている。

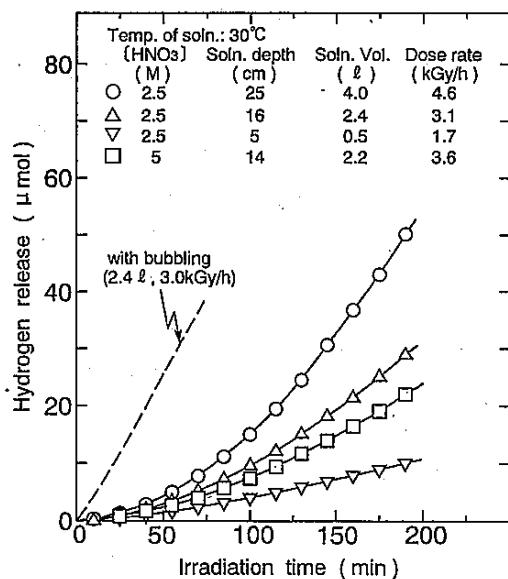


図3.1-7 水素放出量と照射時間(静置)
(参考文献(2)より転載)

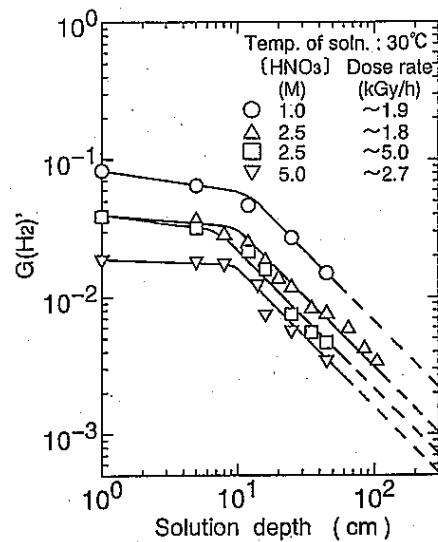


図3.1-8 水素放出G値と液深の関係(静置時)
(参考文献(2)より転載)

(2)溶存水素濃度（静置時）

液の沸騰に伴い放出される溶存水素の状態を知るために、液静置下で190分照射した後、非照射下で60分間自然放出させ、さらに、強制攪拌させた時の水素放出挙動を調べている(図3.1-9参照)。照射後の自然放出とその後の強制攪拌により増加した水素放出量から、さまざまな液深で、照射直後の溶存水素濃度(単位溶液当たりの溶存水素量)を求めた(図3.1-10参照)結果、液深が約20cmで溶存水素濃度が最大となり、それより液深が深い試料は減少している。

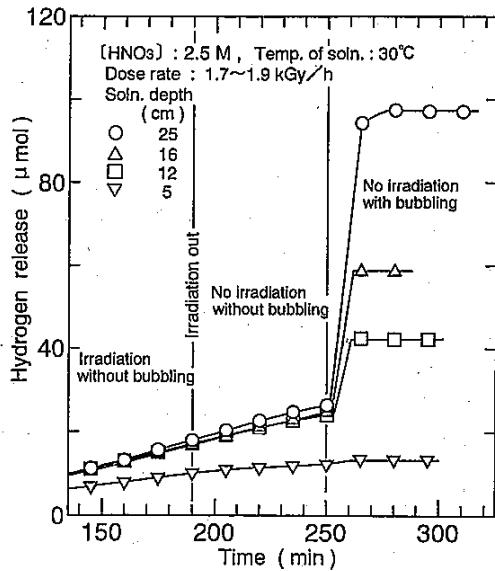


図 3.1-9 水素放出量と時間の関係
(参考文献(2)より転載)

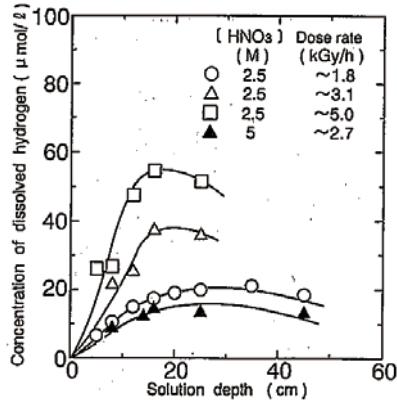


図 3.1-10 溶存水素濃度と液深の関係
(参考文献(2)より転載)

(3)液深効果に及ぼす硝酸濃度の影響（静置時）
硝酸濃度 1～5 M の水溶液について、液深 25cm、温度 30°C、線量率 1.6～2.7kGy/h の条件下で、水素放出 G 値を調べた結果(表 3.1-1 参照)、液攪拌下照射値との差は硝酸濃度 1、2.5 及び 5 M の場合それぞれ、0.052、0.027 及び 0.013 であり、硝酸濃度が低くなるにつれ水素放出 G 値が明らかに大きくなっているとしている。図 3.1-10 図によると、20cm 近傍の液深における溶存水素濃度は硝酸濃度が 2.5M(3.1kGy/h)から 5M(2.7kGy/h)に増加すると 37 から 13 μ mol/l へと、約 1/3 に低下しているとしている。この低下率は、先に示した $G(H_2)'$ の低下率($0.013/0.027=0.48$)に近いとしている。このことから、液深効果に及ぼす硝酸濃度の影響は溶存水素濃度の変化に起因すると考えられるとしている。

(4)液深効果に及ぼす線量率の影響（静置時）

硝酸濃度 2.5M の水溶液について、液深 12～25cm、温度 30°C の条件下で、水素放出 G 値を調べた結果(図 3.1-11 参照)、いずれの液深も線量率が高くなるにつれて水素 G 値は低下している。

(5)液深効果に及ぼす温度の影響（静置時）

硝酸濃度 2.5M の水溶液について、液深 25cm、線量率 1.9、3.1 及び 4.9kGy/h の線量率について、温度の影響を調べた結果、温度が 10°C から 60°C に上昇すると、G 値は線量率 4.9kGy/h で 0.012 から 0.032 に約 3 倍増加するとしている(図 3.1-12 参照)。

表 3.1-1 硝酸濃度と水素放出 G 値の関係
(参考文献(2)より転載)

[HNO ₃] (M)	Dose rate (kGy/h)	$G(H_2)'$	$G(H_2)^\dagger$
1	1.6	0.027	(0.079)
2.5	1.9	0.012	(0.039)
5	2.7	0.0057	(0.019)

[†]: Data of stirred solution⁽¹⁾

注 : ()内は液攪拌時の値である。

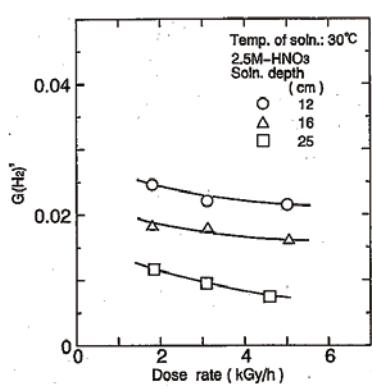


図 3.1-11 水素G値と線量率の関係
(参考文献(2)より転載)

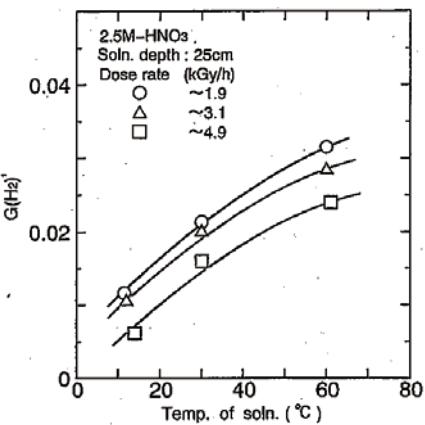


図 3.1-12 水素G値と温度の関係
(参考文献(2)より転載)

(6)酸素及び窒素の放出挙動（静置時）

Wilke-Chang式によって算出した酸素と窒素の拡散係数はそれぞれ 3.94×10^{-5} と $2.48 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ であり、これは水素の拡散係数の約 $2/3$ と $1/2$ であるとしている。液静置下照射での酸素と窒素の放出挙動を調査した結果(図 3.1-13 参照)、窒素については、生成量が少ない上に、生成機構が解明されておらず、かつ測定上の問題から正確な挙動が明らかにされていないとしているが、酸素の測定値には問題がないとしており、酸素が一定速度で増加し始める時間は水素の場合に比べ長くなったとしている。明らかに拡散係数の影響の違いが現れているとしている。

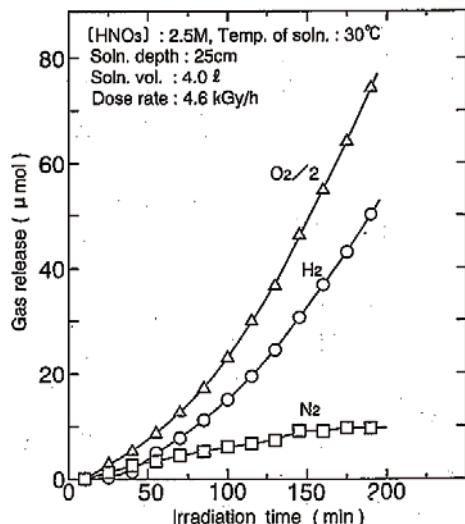


図 3.1-13 酸素等の放出量と照射時間
(参考文献(2)より転載)

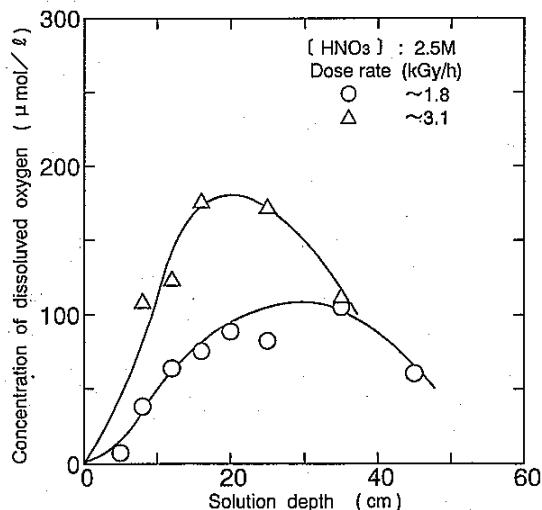
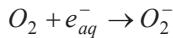


図 3.1-14 溶存酸素濃度と液深の関係
(参考文献(2)より転載)

照射開始 190 分後の酸素放出G値を求めたところ 0.039 を得たとしている。これは、硝酸濃度 3 M の液攪拌照射での値の約 $1/5$ となったとしている。水素の場合の同条件下での比は約 $1/4$ となったとしている。酸素の場合は水和電子 e_{aq}^- との反応によると推定されるとしている。



硝酸濃度 2.5M、温度 30°C、線量率 4.6kGy/h の酸素放出 G 値は、液深 8、12、16 及び 25cm でそれぞれ 0.10、0.089、0.067 及び 0.038 が得られたとしている。

照射後の強制攪拌により増加した気相中酸素の濃度から求めた照射終了直後の溶存酸素濃度の試料液深の変化(図 3.1-14 参照)によると、溶存水素の場合と類似した変化を示しているが、溶存濃度は酸素のほうが 6~10 倍ほど高いとしている。

3.1.5 硝酸水溶液の γ 線分解発生水素量に及ぼす共存金属成分の影響⁽³⁾

高レベル濃縮廃液中から 23 種類の金属成分(FP19 種、腐食生成物 3 種類(Fe、Ni、Cr)及びプロセス添加物 1 種類(P、H₃PO₄として))を選択し、 γ 線分解によって気相へ放出される水素量に及ぼす影響を調査している。

(1)攪拌条件下での水素発生量に及ぼす共存金属成分の影響

攪拌しながら γ 線を照射した場合の水素放出量と照射時間にはほぼ直線関係が成立するとしている(図 3.1-15)。この直線の傾きから各種金属成分が共存する場合の G(H₂)s を算出している(表 3.1-2 参照)。純硝酸水溶液での結果との比較から、Fe³⁺、Cr³⁺以外の金属以外は G(H₂)s を増大させる効果があるとしている。

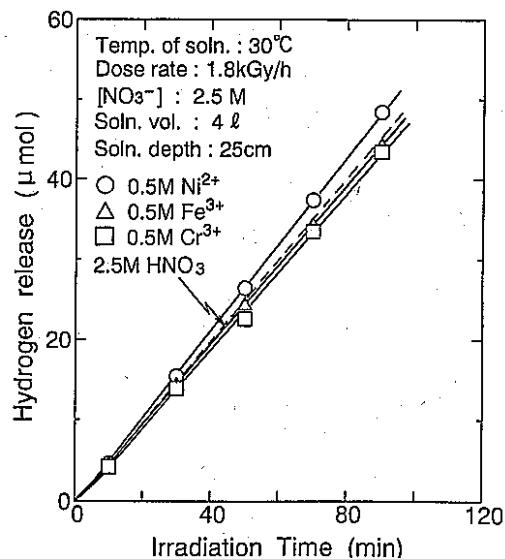


図 3.1-15 金属共存下における水素放出量と照射時間の関係(攪拌時)
(参考文献(3)より転載)

表 3.1-2 各種金属共存下における G 値(攪拌時)
(参考文献(3)より転載)

Metal component	Added amount of HNO ₃ (M)	Conc. of [†] free NO ₃ ⁻ (M)	G(H ₂)s	G(O ₂)s	G(N ₂)s
Metal ion					
Rh ³⁺	1.6	1.58	0.0594	1.40	0.116
Ba ²⁺	1.9	2.05	0.0473	0.166	0.0184
Sm ³⁺	1.6	2.35	0.0450	0.207	0.00360
Pr ³⁺	1.6	2.31	0.0448	0.211	0.0248
Ce ³⁺	1.6	—	0.0443	0.157	0.00573
Cd ²⁺	1.9	2.49	0.0440	0.207	0.00909
Ce ⁴⁺	1.3	—	0.0437	1.43	0.00831
Eu ³⁺	1.6	2.05	0.0430	1.25	0.0151
Nd ³⁺	1.6	2.35	0.0424	0.244	0.0195
Y ³⁺	1.6	2.44	0.0416	0.201	0.0154
Zr ⁴⁺	1.9	2.43	0.0414	0.157	0.0125
Ag ⁺	2.2	2.49	0.0409	0.152	0.0259
Ni ²⁺	1.9	2.43	0.0387	0.215	0.0140
No addition	2.5	2.49	0.0386	0.181	0.0103
Fe ³⁺	1.6	—	0.0379	0.213	0.0134
Cr ³⁺	1.6	2.47	0.0374	0.283	0.0123
Metal oxide					
Sm ₂ O ₃	2.5	2.26	0.0492	0.316	0.0437
Rh ₂ O ₃	2.5	2.42	0.0414	0.110	0.0362
RuO ₂	2.5	2.50	0.0366	0.733	0.0549
TeO ₂	2.5	2.53	0.0364	0.169	0.0114
Na ₂ MoO ₄	2.5	—	0.0353	0.224	0.0102
PdO	2.5	2.52	0.0349	0.200	0.0203
H ₆ TeO ₆	2.5	2.47	0.0330	0.0295	0.0262
H ₃ PO ₄ (P ⁵⁺)	2.5	2.51	0.0370	—	—

[†] Determined by spectrophotometry (at 300 nm⁽⁹⁾, 15°C)

Concentration of metal component: 0.3M

[NO₃⁻: 2.5M, Solution temperature: 30°C]

Dose rate: 1.7~1.9 kGy/h

しかし、硝酸イオン濃度が設定濃度(2.5M)より小さくなっているため、硝酸濃度の低下に伴い $G(H_2)s$ が増加する効果を考慮すると有意な範囲で $G(H_2)s$ を増大させるものは、 Cd^{2+} と Ag^+ であるとしている。

(2) 静置条件下での水素発生量に及ぼす共存金属成分の影響

静置下において γ 線を照射した場合の水素放出量は、初期には速度を上げながら増加するが、照射後約 150 分には直線的に増加するようになるとしている(図 3.1-16)。この直線の傾きから各種金属成分が共存する場合の $G(H_2)ns$ を算出している(表 3.1-3 参照)。純硝酸水溶液での結果との比較から、 Ag^+ 、 Rh^{3+} 以外の金属以外は $G(H_2)s$ を増大させるとしている。液静置下で 190 分照射した後、非照射下で 60 分間自然放出させ、さらに強制攪拌させた時の水素放出挙動を調べている(図 3.1-17)。

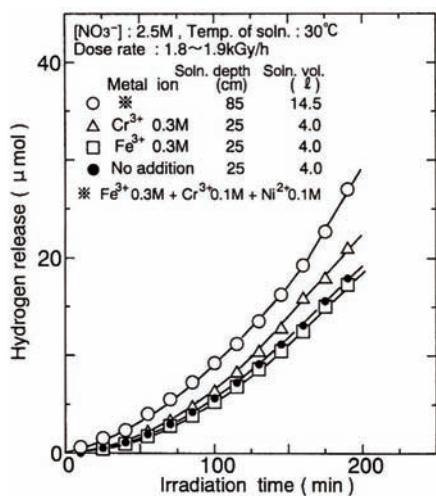


図 3.1-16 金属共存下における水素放出量と照射時間の関係(静置時)
(参考文献(3)より転載)

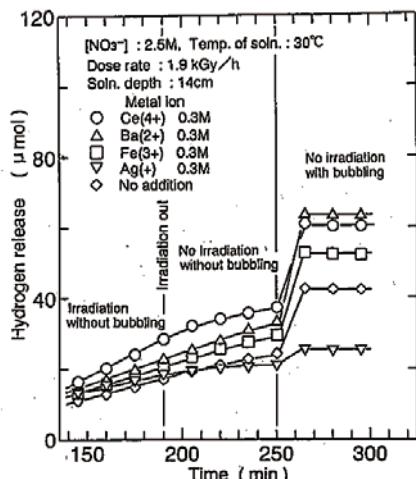


図 3.1-17 水素放出量と時間の関係
(参考文献(3)より転載)

表 3.1-3 各種金属共存下における G 値(静置時)
(参考文献(3)より転載)

Metal component	Added amount of HNO_3 (M)	$G(H_2)ns$	Concentration of dissolved hydrogen (μM)	$\frac{G(H_2)s}{G(H_2)ns}$	$G(O_2)ns$	$G(N_2)ns$
Metal ion						
Ce^{4+}	1.3	0.0358	15.6	1.22	1.02	0.00272
Eu^{3+}	1.6	0.0339	15.0	1.27	0.784	0.00306
Nd^{3+}	1.6	0.0288	17.5	1.47	0.0882	0.00428
Zr^{4+}	1.9	0.0280	16.5	1.48	0.0236	0.00449
Y^{3+}	1.6	0.0277	16.6	1.50	0.0800	0.00207
Cr^{3+}	1.6	0.0271	15.5	1.38	0.0329	0.00277
Cd^{2+}	1.9	0.0266	18.6	1.65	0.0869	0.00866
Sm^{3+}	1.6	0.0263	19.4	1.71	0.0875	0.00540
Ni^{2+}	1.9	0.0256	16.8	1.51	0.0823	0.00540
Ba^{2+}	1.9	0.0247	20.4	1.91	0.0514	0.00468
Fe^{3+}	1.6	0.0240	15.9	1.58	0.0930	0.00694
Ce^{3+}	1.6	0.0231	21.0	1.92	0.0583	~0.0
Pr^{3+}	1.6	0.0226	20.7	1.98	0.0694	0.00284
No addition	2.5	0.0215	15.5	1.80	0.0542	0.00979
Rh^{3+}	1.6	0.0168	0.60	3.54	—	—
Ag^+	2.2	0.0160	3.35	2.56	0.0511	0.00854
Metal oxide						
Sm_2O_3	2.5	0.0286	22.0	1.72	0.0973	0.0130
Na_2MoO_4	2.5	0.0252	14.7	1.40	0.0854	0.00308
Rh_2O_3	2.5	0.0251	12.8	1.65	0.0598	0.00870
TeO_2	2.5	0.0228	14.9	1.60	0.0210	0.00774
$H_6TeO_6(Te^{6+})$	2.5	0.0204	14.7	1.62	0.108	0.00743
RuO_2	2.5	0.0191	14.7	1.92	0.106	0.0114
PdO	2.5	0.0178	9.56	1.96	0.0722	0.00381
Concentration of metal component: 0.3 M [NO_3^-]: 2.5 M, Solution temperature: 30°C Solution depth: 14cm, Dose rate: 1.8~1.9 kGy/h † $G(H_2)s$ were from Table 4						

溶存水素濃度は、 Fe^{3+} 、 Cr^{3+} 及び Ni^{2+} を除き、低い水素放出G値を与える金属ほど高いとしている。しかし、 Ru^{3+} 、 Ag^+ 及び PbO の硝酸水溶液は水素ガスを吸収する能力を有し、溶存水素濃度と水素放出G値は著しく小さいとしている。

(3)酸素及び窒素の放出量に及ぼす共存金属成分の影響

金属成分を添加した場合にも、照射を開始してから一定時間後に酸素と窒素の放出量と照射時間との間に直線関係が成立したとしている。この直線の傾きから各種金属成分が共存する場合の $G(\text{H}_2)\text{s}$ (表 3.1-2 参照)及び $G(\text{H}_2)\text{ns}$ (表 3.1-3)を算出している。酸素の放出量については、液攪拌時及び液静置下いずれの場合にも、金属イオンの添加は一部のイオンを除いて増加させるとしている。金属無添加の場合($G(\text{O}_2)\text{s}=0.181$ (攪拌)、 $G(\text{O}_2)\text{ns}=0.0452$ (静置))に比べてそれぞれ、最大約8倍と約19倍に達するとしている。窒素の放出量は、窒素の生成量が著しく小さいこと、実験誤差が大きいため、値に大きなバラツキが見られ、明確な金属イオンの影響は見出せなかつたとしている。

3.1.6 模擬高レベル廃液の γ 線分解発生水素量⁽⁴⁾

高レベル濃縮廃液を模擬した廃液(SHLLW)の液攪拌時及び液静置下での γ 線分解によって気相へ放出される水素量について調査している。

(1)攪拌条件下での水素発生量

攪拌しながら γ 線を照射した場合の水素放出量と照射時間にはほぼ直線関係が成立するとしている(図 3.1-18 参照)。この直線の傾きから液攪拌時の水素放出G値($G(\text{H}_2)\text{s}$)は0.0164となり、純5M硝酸水溶液の値よりも約10%小さいとしている。 $G(\text{H}_2)\text{s}$ の線量率依存は認められなかったとしている(図 3.1-19 参照)。

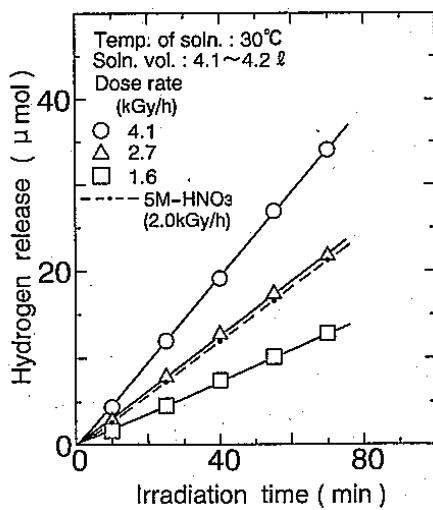


図 3.1-18 SHLLW における水素放出量と照射時間の関係(攪拌時)
(参考文献(4)より転載)

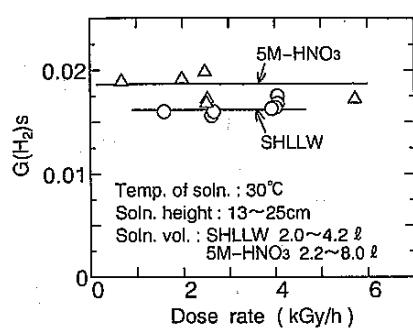


図 3.1-19 SHLLW における水素G値(攪拌時) (参考文献(4)より転載)

(2) 静置条件下での水素発生量及び液深効果

静置下において γ 線を照射した場合の水素放出量は、初期には速度を僅かに上昇させながら増加するが、照射後約100分には直線的に増加するとしている(図3.1-20)。水素放出量に対する液深効果を確認するために、線量率2.7~2.9kGy/h、温度30°Cの条件で、8~25cmの液深で水素放出量の経時変化を調べている。この水素放出カーブの直線部分の傾きから求めた液静置下での水素放出率($G(H_2)_{ns}$)は、液深8、12、16及び25cmにおいて、それぞれ0.0033、0.0018、0.0012および0.00053であり、純5M硝酸水溶液の場合の1/5~1/11であったとしている。この結果を $G(H_2)_{ns}$ と液深の関係を示すと、一定深さ以上の液深で直線関係が得られたとしている(図3.1-21)。

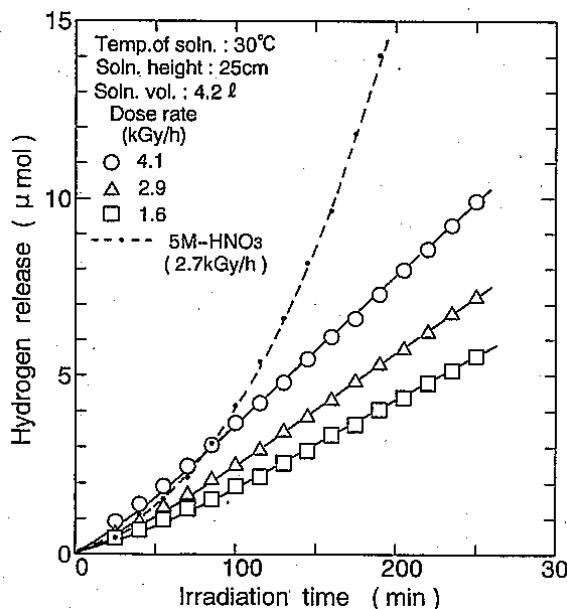


図3.1-20 SHLLWにおける水素放出量と照射時間の関係(静置時)
(参考文献(4)より転載)

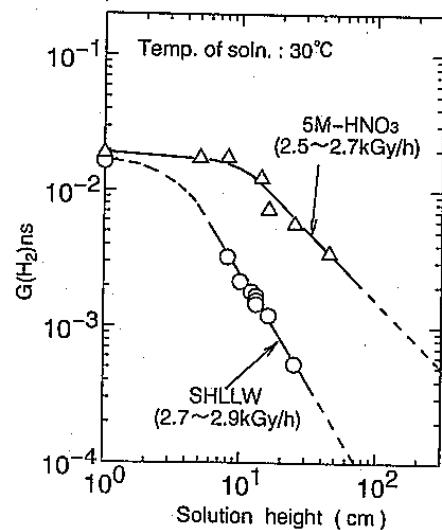


図3.1-21 SHLLWにおける水素G値と液深の関係(静置時)
(参考文献(4)より転載)

(3) 水素G値と線量率の関係

SHLLW(模擬高レベル廃液)の溶液で、液深25cm、温度30°C、線量範囲1.64から4.08kGy/hの条件下で、水素放出G値を調べた結果(表3.1-4参照)、線量率が1.64から4.08kGy/hへ約2.5倍増すと、水素G値は0.00165から0.0010へ約33%減少することがわかつたとしている。

表3.1-4 水素G値と線量率の関係
(参考文献(4)より転載)

Solution	Dose rate (kGy/h)	$G(H_2)_{ns}$	Concentration of dissolved hydrogen ($\mu\text{mol/l}$)
SHLLW ¹⁾	1.64	0.00165	0.0307
	2.83	0.00132	0.0580
	2.85	0.00123	0.0524
	4.08	0.00110	0.0714
5M-HNO ₃ ¹⁾	1.55	0.00696	8.41
	2.65	0.00572	13.3
5M-HNO ₃ ²⁾	1.86	0.0156	10.6
	2.64	0.0125	12.1
	6.03	0.0113	20.2

Solution temperature : 30°C
Solution height: 1) 25cm, 2) 14cm

(4)水素G値と温度の影響

SHLLW(模擬高レベル廃液)の溶液で、液深25cm、線量率2.8kGy/hの条件下で、水素放出G値の温度依存性を調べた結果(図3.1-22参照)、液温度が10°Cから60°Cに上がると、水素G値は0.00063から0.0019へ約3倍上昇したとしている。

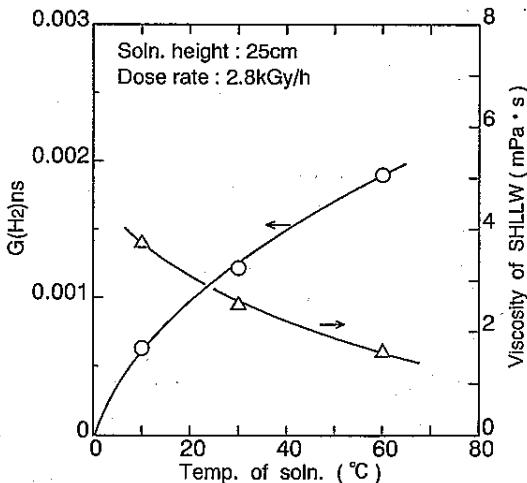


図3.1-22 水素G値と温度の関係

(参考文献(4)より転載)

(5)溶存水素濃度と液深依存性

液静置下で照射した後、非照射下で60分間自然放出させ、さらに、循環ガスを溶液に吹き込み、溶液中の溶存水素を気相に放出させて気相中の水素濃度を調べている(図3.1-23参照)。線量率の低い1.6kGy/hを除き、気相中の水素濃度は減少傾向にあることから、水素はほとんど溶存していないことがわかるとしている。照射終了直後の溶存水素濃度と液深の関係(図3.1-24参照)結果、溶存水素濃度は液深が増すにつれ増加し、約10cmで最大となった後急減し、25cm以上の液深では約0.07μmol/L(純5M硝酸水溶液の1/185以下)になるとしている。

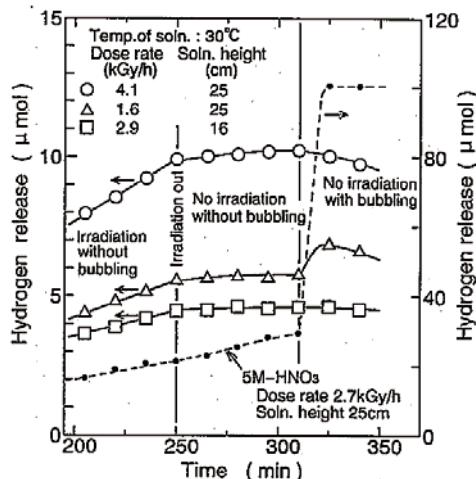


図3.1-23 SHLLWにおける水素放出量と時間の関係(参考文献(3)より転載)

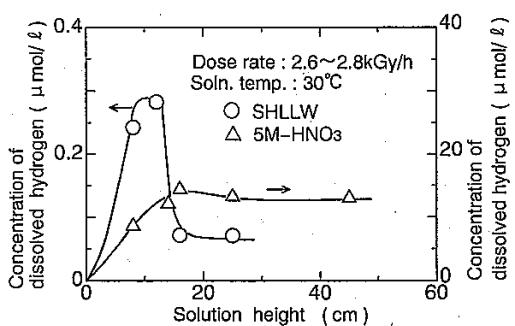


図3.1-24 SHLLWにおける溶存酸素濃度と液深の関係(参考文献(3)より転載)

(6)ガス中水素のSHLLWによる分解

SHLLWが水素を分解する能力を有するかどうかを確認するため、水素を272μmol含むArガスを、非照射下で強制的に吹き込み、気相中の濃度の変化を調べた結果(図3.1-25参照)、ガス吹き込みと同時に水素濃度は低減し始め、吹き込みを続けている間では水素濃度は減少し続け、吹き込みを停止すると一定値を保持するとしている。

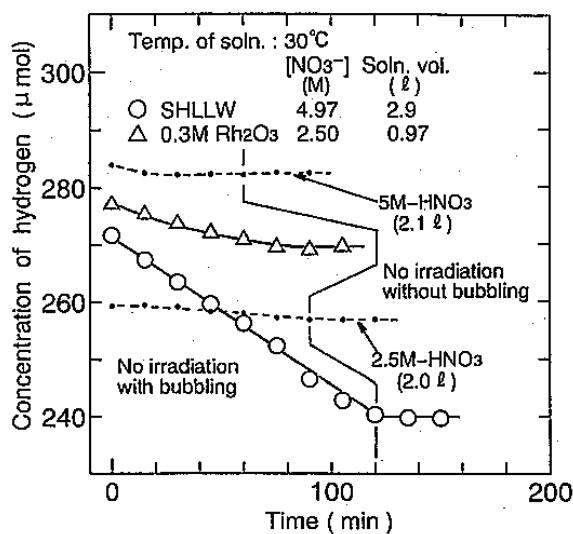


図 3.1-25 水素を SHLLW 吹き込み時の水素濃度の時間変化
(参考文献(4)より転載)

(7)酸素及び窒素の放出量

酸素及び窒素の液静置下照射時のG値($G(O_2)_{ns}$ 及び $G(N_2)_{ns}$)(表 3.1-5 参照)、液攪拌下照射時のG値($G(O_2)_s$ 及び $G(N_2)_s$)(表 3.1-6 参照)の測定結果、酸素の放出G値は、水素放出G値に対し、液静置下照射で約15~90倍大きく、液攪拌下照射では約9倍大きいとしている。窒素については、生成量が著しく小さい上に、測定時に微量空気の混入が避けられず、信頼性に問題があるとしている。

表 3.1-5 SHLLW におけるG値(静置時) (参考文献(4)より転載)

Solution	$G(H_2)_{ns}$	$G(O_2)_{ns}$	$G(N_2)_{ns}$	Dose rate (kGy/h)	Solution height (cm)	Solution volume (l)
SHLLW	0.00182	0.0753	0.000176	2.84	12	1.76
	0.00121	0.0501	0.000514	2.85	16	2.50
	0.00165	0.0268	0.00103	1.64	25	4.20
	0.000529	0.0470	0.000499	2.77	25	4.14
	0.00110	0.0268	0.00103	4.08	25	4.20
5M-HNO ₃	0.0123	0.109	0.00646	2.68	8	1.07
	0.00848	0.0511	0.00466	2.73	16	2.55
	0.00572	0.0671	0.00222	2.72	25	4.14

Solution temperature : 30°C

表 3.1-6 SHLLW における G 値(攪拌時) (参考文献(4)より転載)

Solution	$G(H_2)$ s	$G(O_2)$ s	$G(N_2)$ s	Dose rate (kGy/h)
SHLLW	0.0163	0.168	0.000794	2.67
	0.0167	0.157	0.000320	4.02
	0.0175	0.147	—	4.06
5M-HNO ₃	0.0191	0.352	0.0117	1.98
	0.0180	0.386	0.0116	2.48

Solution temperature : 30°C

3.1.7まとめ

槽等への通常時の圧縮空気の供給が停止した場合に、水素の濃度が爆発下限界濃度(4vol%)に達するまでの時間的余裕が小さい槽等は、多重化された空気圧縮器等で構成される安全系の圧縮空気系から常時空気を供給することにより、水素の濃度を爆発下限界濃度未満に抑制する設計とされている。高レベル濃縮廃液から発生する α 線及び $\beta \cdot \gamma$ 線により発生する放射性分解水素の放出量の計算においては、放射線分解により放出する気体は保守側に酸素等の放出を考慮せず水素のみが放出されると想定し、さらに、 α 線による水素放出の G 値では液深効果がないという厳しい条件で評価を行っている。

上記文献によれば、模擬高レベル廃液では、溶液中の水素濃度を減少させる効果が確認されており、 α 線により発生する水素も γ 線により発生する水素と同様に液浸効果が期待でき、爆発下限界濃度に至る時間余裕の増大が期待できる。さらに、模擬高レベル廃液での γ 線照射による酸素放出 G 値は、水素放出 G 値に比べ約 9 倍以上大きいことが報告されていることから、気相へ放出される水素濃度は最大でも 10%程度と見込まれ、爆発下限界濃度に至る時間余裕の増大及び槽内水素濃度の上限濃度の算出に利用可能と考えられる。

確率論的安全評価の発生頻度評価、影響評価において、より最適な評価を行うためには、 α 線により発生する水素放出 G 値及び酸素放出 G 値の考慮が必要であるが、 α 線を用いた模擬高レベル廃液への照射実験は難しいことから、 α 線核種を含む実高レベル廃液を用いた水素放出 G 値及び酸素放出 G 値の測定が望まれる。

3.2 硝酸プルトニウム溶液からの放射線分解水素、酸素の発生に係る調査

3.2.1 はじめに

プルトニウム溶液貯槽における水素掃気機能喪失事故等の影響評価への利用を念頭に、東海再処理施設で過去に実施した硝酸プルトニウム溶液からの放射線分解による水素、酸素の発生にかかる実験結果に関する文献⁽⁶⁾の調査を実施した。以下に同文献の調査結果をまとめる。

3.2.2 文献の概要

G 値の測定に関しては、国内では模擬高放射性廃液への γ 線照射による G 値の測定はあったが、 α 線の実液を用いた G 値の測定は実施されていなかった。また国外では α 線による研究報告もあったが α 線による放射線分解酸素の発生機構については解明されていなかった。

一方、溶液の高さの違いにより G 値が異なること（液深効果）は認識されており、主要因は水素と OH ラジカル間の反応と考えられていたが、その機構は解明されていなかった。また α 線の放射線分解に関する液深効果の試験は国内外で実施されていなかった。

これらの背景を踏まえ、以下を目的に実験を行っている。

- α 線による放射線分解水素、酸素発生 G 値の測定を実施するとともに、発生機構の検討を行う
- α 線の放射線分解に関する液深効果の確認を行う

実験では、東海再処理工場で分離・精製された硝酸プルトニウム溶液を用い、水素及び酸素発生 G 値を測定し、文献データとの比較検討を行っている。また硝酸プルトニウム溶液を用いて液深効果を調査し、 γ 線照射下における液深効果との比較を行うとともに、液深効果の機構の検討を行っている。さらに酸素発生 G 値の測定を実施し、過去に報告された発生機構との比較・検討を行っている。

3.2.3 実験方法

(1) 実験装置の構成

実験装置はループ構造となっており、反応容器、ガスクロマトグラフ、循環ポンプ等から成る。キャリアガスとして、アルゴンガス（99.999%）を用いている。

(2) 実験方法

東海再処理工場で回収された硝酸プルトニウム溶液を陰イオン交換樹脂により精製した後、表 3.2-1 に示す同位体組成の異なる 2 つの試料を用い水素、酸素発生 G 値及び液深効果の測定を実施している。

実験では、まず初めに直径 3.6cm のシリンダー状ステンレス反応容器に硝酸プルトニウム溶液試料 40ml を入れ、アルゴンガスで 30 分間バーリングを行っている。その後、静置した容器の空間部を 30 分毎にアルゴンガスで置換し、置換したガス中の水素及び酸素ガス濃度をガスクロマトグラフで測定している。なお貯槽内壁についた気泡を除去するため、アルゴンガス置換を行う前に振動装置で容器を振動させている。

ガスの体積はガス濃度、循環系の容積及びガスの圧力から算出しており、温度の影響は溶液が加熱された場合のみ補正している。

この実験で得られる水素ガス及び酸素ガスの G 値は、気相中を通過するガスから算出したみかけの G 値となる。個々の測定誤差は G(H₂)で 5%以下、G(O₂)で 10%以下となっている。

表 3.2-1 実験で使用した硝酸プルトニウム溶液の同位体組成
(参考文献(6)より転載)

Sample No.	Isotopes (wt%)					Absorption rate of energy (W/l) [†]
	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu	
1	1.17	62.83	23.51	8.46	4.01	0.105
2	0.0037	74.37	19.50	4.22	1.88	0.0523

[†] Energy when total Pu is 10 g/l.

3.2.4 結果と考察

上記実験を通して得られた結果と考察を以下にまとめる。

(1) Pu 濃度変化の水素発生 G 値への影響

図 3.2-1 にこの実験で得られたプルトニウム濃度 (9.3g/L~160g/L) 、水素発生 G 値及び溶液の硝酸濃度との関係を示す。

同結果から、プルトニウム濃度の増加に伴い、水素発生 G 値は減少すること、プルトニウム濃度が減少するにつれ、²⁴⁴Cm の G 値に近づくことが読み取れるとしている。

なお ²⁴⁴Cm の G 値は、Bibler 等の実験結果(7)を参照している。

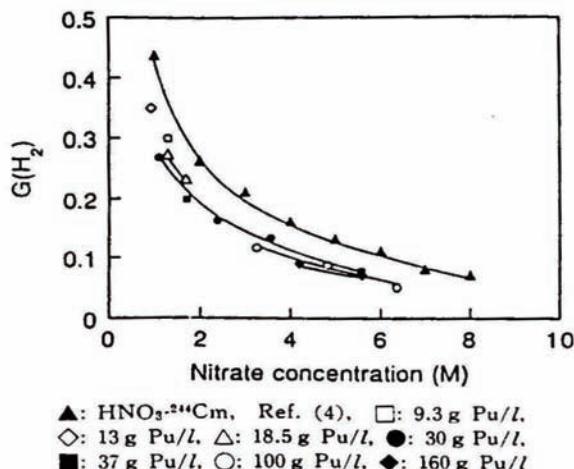


図 3.2-1 硝酸濃度と水素発生 G 値の関係
(参考文献(6)より転載)

次に Pu(IV)のモル数[Pu(M)]^{1/3} と G(H₂)の関係を図 3.2-2 に示す。

同結果から、(3.2-1) の反応に基づき Pu(IV)が遊離 H スカベンジャーとして働くことを示唆する結果が得られたとしている。



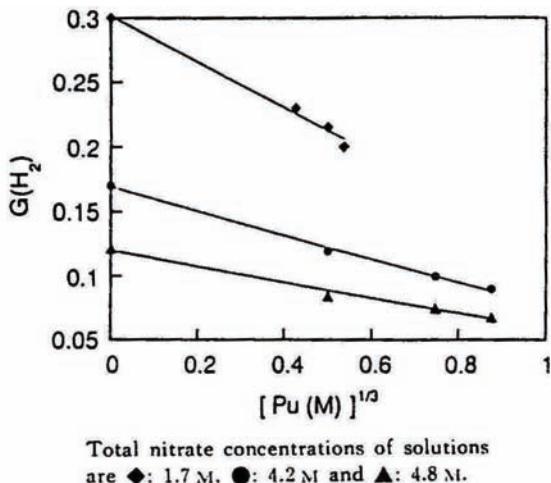


図 3.2-2 Pu (IV) 濃度と水素発生 G 値の関係 (参考文献(6)より転載)

図 3.2-1 では、各溶液で NO_3^- としての濃度が一定でなく正確な $G(\text{H}_2)$ の比較はできないことから、Pu 濃度の影響を正確に検証するため、表 3.2-2 に示すとおり α 、 β 放射能は同一で Pu 濃度のみ異なる 2 種類の溶液を調整し $G(\text{H}_2)$ を測定した。Pu 濃度以外は、ほぼ同条件で調整されているため、表 3.2-2 の $G(\text{H}_2)$ の差異は Pu 濃度の相違によるものと推測している。

表 3.2-2 水素発生 G 値への Pu(IV)濃度の影響 (参考文献(6)より転載)

Sample†	No. 1	No. 2
Concentration of Pu(IV)(g/l)	18.5	37.1
Absorption rate of α/β energy (W/l)	0.172/0.022	0.172/0.022
$G(\text{H}_2)^{\ddagger}$	0.23 ± 0.01	0.20 ± 0.01

† Isotopic compositions of sample Nos. 1 and 2 were identical to those shown in Table 1. The concentration of HNO_3 and total nitrate were 1.10 and 1.72 M, respectively, for both the samples. The difference in $[\text{NO}_3^-]$ was adjusted by the addition of NaNO_3 .

†† Mean value \pm av. dev. for 6 repeated determinations.

(2) 硝酸プルトニウム溶液を加温した場合の水素発生 G 値への影響

硝酸プルトニウム溶液を加温した場合、Pu(VI)が放射線分解で生成される H_2O_2 と反応し、Pu(IV)に還元され、その結果水素原子と反応する H_2O_2 が減少し、水素発生量が増加することが予想されることから実験での検証を行っている。

硝酸プルトニウム溶液を加温した場合の水素発生 G 値を表 3.2-3 に示す。同結果では、いずれのケースも水素発生 G 値に有意差は見られず、加温による水素発生 G 値への影響は無視できる程度との結論である。

表 3.2-3 水素発生における溶液加温の影響
(参考文献(6)より転載)

$G(H_2)$ at 25°	$G(H_2)$ at 70°*2	$G(H_2)$ at 70°*3
0.36 ± 0.01	0.36 ± 0.01	0.35 ± 0.01

*1 Concentrations of Pu and HNO₃ were 10.0 g/l and 0.6 M, respectively. Pu (VI) was confirmed to be 45% of total Pu at 70°. The value shown is mean \pm av. dev. for 4 repeated determinations.

*2 Temperature of solution was kept at 70°.

*3 Solution was cooled from 70° to 25°.

(3) 液深効果

液深効果は発生する水素分子が液面に到達する前に OH ラジカル等と反応し、水素発生 G 値を低下させる現象である。



高放射性廃液 ($\beta(\gamma)$ 系) における液深効果については報告があるが、プルトニウム溶液における液深効果は報告されていなかった。

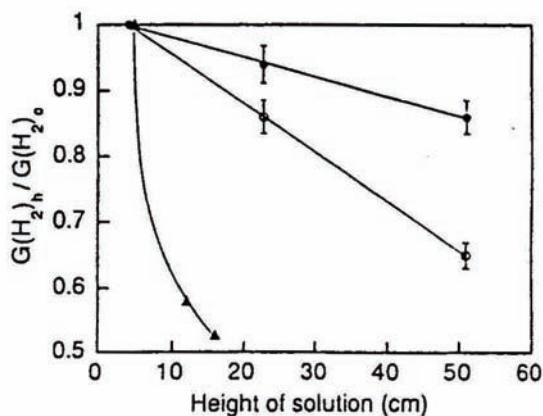
実験では、まず初めに硝酸濃度の液深効果への影響を調査するため、Pu 濃度は同様で硝酸濃度だけが異なる溶液を作成し、溶液の体積 (40ml) は変えずに、溶液の高さを変化させたときの $G(H_2)$ を測定している。液深と $G(H_2)_h/G(H_2)_o$ の関係を図 3.2-3 に示す。同図には ^{60}Co 照射下における文献値⁽³⁾も記載されている。図 3.2-3 より、溶液が深くなるにつれ $G(H_2)_h/G(H_2)_o$ の値も小さくなること、及び硝酸濃度の相違により液深効果が異なることが読み取れる。硝酸濃度の相違による液深効果の違いについては、硝酸濃度が高い溶液では、OH スカベンジャーとなる非解離硝酸

濃度が高く上記 (3.2-2) の反応を抑制することによるものと推定している。

また、図 3.2-3において、 ^{60}Co 照射下における G 値 (\blacktriangle) は液深の増加に伴い急激に G 値が減少するのに対し、Pu 溶液の G 値 (\circ , \bullet) は緩やかな減少となっており、同傾向から α 放射線下における液深効果は γ 放射線下における液深効果よりも小さいとしている。

次に Pu 濃度の液深効果への影響を調べるため、Pu 濃度だけが異なる溶液を調整し測定を行っている。図 3.2-4 に液深と $G(H_2)_h/G(H_2)_o$ の関係を示す。

同図から、わずかではあるが Pu 濃度が高い溶液で液深効果が小さくなつ



●: 4.2 M HNO₃, ○: 0.7 M HNO₃, ▲: ^{60}Co irradiation without stirring, Ref. (6). Subscripts *h* and *o* represent solution height of *h* cm and 4 cm for Pu/5 cm for ^{60}Co , respectively.

図 3.2-3 液深効果における Pu 濃度の影響
(参考文献(6)より転載)

ていることが読み取れ、これは OH ラジカルとプルトニウムの反応が進み、結果的に水素分子と OH ラジカルの反応が抑制されたためと推測している。

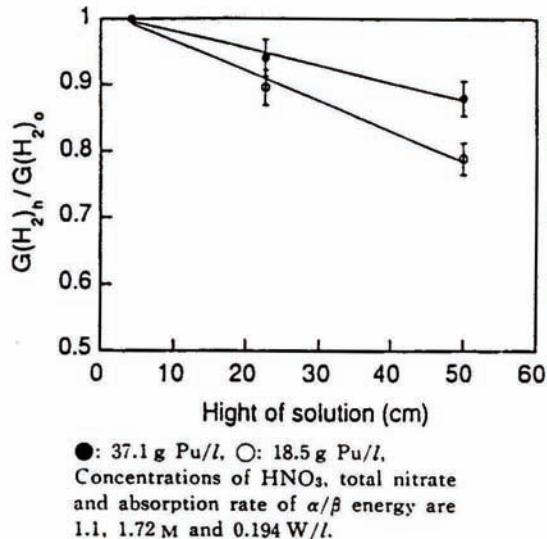


図 3.2-4 溶液の高さによる G 値の変化
(参考文献(6)より転載)

(4) 硝酸プルトニウム溶液の G(O₂)の測定

酸素発生 G 値については、硝酸濃度の上昇に伴い酸素発生 G 値が増加するという報告⁽⁶⁾と、逆に酸素発生 G 値が減少するとの報告^{(9),(10)}があり、結論が相互に矛盾する状況であった。

図 3.2-5 に実験で得られた硝酸濃度と G(O₂)の関係を示す。同図には Pu 濃度 100g/L、160g/L、210g/L について測定した酸素発生 G 値と、²¹⁰Po の文献値⁽¹¹⁾及び²⁴⁴Cm の文献値⁽⁸⁾を記載している。同結果から、硝酸濃度が増加するにつれ、酸素発生 G 値も増加することが読み取れる。これは、酸素発生機構において、硝酸イオンが α 線により亜硝酸と酸素原子に分解する (3.2-3) の反応によるものと、硝酸濃度の增加に伴い増加する非解離硝酸と OH ラジカルとの反応から HNO₃ が生成し、その結果、酸素が生成する (3.2-4) の反応の両者の寄与によるものと推測している。

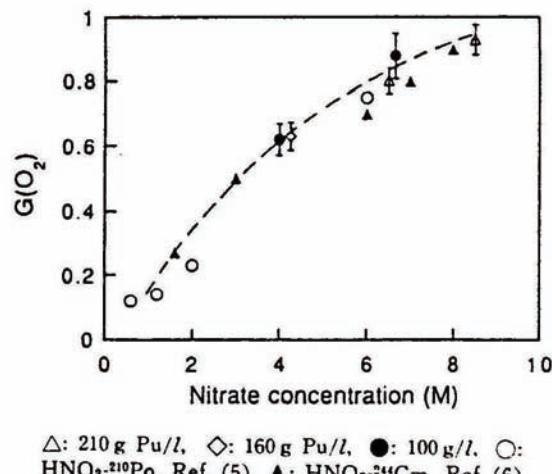
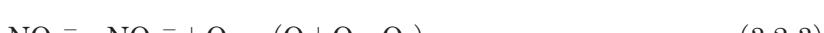


図 3.2-5 硝酸濃度と酸素発生 G 値の関係
(参考文献(6)より転載)



また同実験結果から Bibler 等⁽⁷⁾が示している硝酸濃度の増加とともに $G(O_2)$ も増加するという説明が妥当としている。

3.2.5 実験結果のまとめ

東海再処理工場の硝酸プルトニウム溶液を用いた放射線分解水素、酸素の発生に関する実験結果として以下の知見が得られたとしている。

- (1) Pu(IV)は、水素発生 G 値に関与していることが明らかとなった。これにより ^{244}Cm - HNO_3 溶液と Pu(IV)- HNO_3 溶液における G 値の相違を説明することが可能である。
- (2) 加温した溶液から発生する水素について、Pu(IV)と Pu(VI)の酸化状態の相違による影響は見られなかった。
- (3) 硝酸プルトニウム溶液における水素発生 G 値は液の深さに依存する。ただし、その液深効果は、 γ 線照射下において観測されるものより明らかに低い。
- (4) 水素発生における液深効果は、OH と H_2 間の反応として説明できる。
- (5) NO_3^- の増加に伴い $G(O_2)$ も増加することが再確認された。そしてそれは、 ^{244}Cm と ^{210}Po を含む硝酸溶液で観察される $G(O_2)$ と概ね一致する。

3.2.6 調査結果のまとめ

プルトニウム溶液貯槽における水素掃気機能喪失事故等の影響評価への利用を念頭に、東海再処理施設で過去に実施した硝酸プルトニウム溶液からの放射線分解水素、酸素の発生にかかる実験結果に関する論文の調査を実施した。

同文献には再処理プロセスから得られた硝酸プルトニウム溶液を用いて測定した硝酸濃度、Pu 濃度及び液深と G 値の関係が他の文献値との比較も踏まえて記載されていることから、再処理プラントで想定される事故シナリオの条件に応じて G 値を設定し、水素掃気機能喪失後の爆発下限濃度に至るまでの時間余裕を適切に評価することや、 α 線放出核種を含む溶液と γ 線放出核種を含む溶液との液深効果の相違を示す際に有用な知見を与えるものと考えられる。

しかしながら同文献の測定値はラボスケールの試験装置で得られたものであり、これらの値が再処理プラントの安全評価にそのまま適用可能か否かについては今後さらなる検討が必要と考えられる。

3.3 水素の爆発下限濃度に至るまでの時間余裕に対する酸素生成の考慮の効果

3.3.1 はじめに

再処理施設では、溶液（水及び溶媒）の放射線分解により水素が発生している機器があり、このような機器では、水素の蓄積を避けるために圧縮空気（以下、圧空と言う。）系から空気を供給し機器内の水素を常に掃気している。したがって、この掃気機能が喪失して機器内水素濃度が爆発限界濃度以上に蓄積し且つ着火源が存在する（着火源を排除する設計となっており、着火源が存在する可能性は低い）と、水素爆発に至る可能性がある。但し、水素掃気機能が喪失後に機器内水素が爆発限界濃度に達するまでには、該当機器の仕様に対応した時間余裕があるので、この時間余裕内に安全対策を施して掃気機能喪失を修復すれば、水素爆発に至る可能性を排除することができる。このような時間余裕の長短は、安全対策が実施できるかどうか、また、安全対策の失敗確率に影響を与えるので、水素爆発事象の確率論的安全評価では、シナリオ検討や頻度算出に際して、機器内水素が爆発下限濃度に至るまでの時間余裕が評価されている⁽¹²⁾。

一方、溶液の放射線分解の際には酸素の発生も報告されており、この酸素発生を考慮すれば、水素濃度上昇速度が抑制されて時間余裕が増加し、安全対策の失敗確率は低下する方向になる。しかし、従来の時間余裕の評価では、保守的に酸素発生の効果は考慮されていない。そこで、水素が爆発下限濃度に至るまでの時間余裕に対する酸素生成の効果を考察した。

3.3.2 考察の方法

まず、既報告書から酸素発生 G 値のデータを収集・整理した。次いで、整理した酸素発生 G 値を用いて水素が爆発下限濃度に至るまでの時間余裕を試算し、時間余裕に対する酸素生成の効果を考察した。

3.3.3 酸素発生 G 値データの収集・整理

(1) 対象報告書

「参考文献」の(1)、(3)、(4)、(6)に示す 4 件の報告書からデータを収集した。

(2) 収集データの整理結果

これらの報告書の中から、攪拌又は加振条件でのデータであり且つ NO_3^- 濃度が判別できる実験条件でのデータを対象として整理した。（攪拌又は加振条件でのデータを対象としたのは、実プロセスでの塔槽類内の溶液挙動に近いと考えられることからである。また、 NO_3^- 濃度が判別できる実験条件でのデータを対象としたのは、結果を NO_3^- 濃度で整理するためである。）実験結果がグラフのみで示されている場合については、値をグラフ上で読み取ってデータを得た。

収集データを NO_3^- 濃度で整理して図 3.3-1 に示す。図 3.3-1 には、前述の 4 件の文献から得られた水素 G 値のデータも参考のために合わせて示している。また、図 3.3-1 には、宮田ら及び KUNO らのデータについて、酸素及び水素のデータを最小二乗法によりフィッティングしたみかけの近似曲線を合わせて示す。酸素の G 値は、大略的には NO_3^- 濃度と共に増加する傾向が見られる。（水素 G 値とは逆の傾向である。）

図 3.3-1 で宮田らと KUNO らの酸素 G 値のデータを比較すると、KUNO らのデータの方が大きい。一方で、水素 G 値のデータも KUNO らのデータの方が宮田らのデータより大きい傾向

にあることから、酸素 G 値は、みかけ上、対応する水素 G 値に依存していることが推察される。そこで、宮田ら及び KUNO らの各々のデータ間について、水素 G 値に対する酸素 G 値の比を NO_3^- 濃度で整理することを試みた。（なお、以降の本文及び図中では、水素 G 値に対する酸素 G 値の比を $G(\text{O}_2)/G(\text{H}_2)$ で示す。）整理の方法としては、同じ NO_3^- 濃度条件下における酸素 G 値と水素 G 値の組合せの実験データは少ないため、次のように行った。

即ち、最初に、図 3.3-1 に示す水素 G 値及び酸素 G 値のみかけの近似曲線（4 つ）について式の形を求めた。これらを以下に示す。

$$\text{KUNO らの酸素 G 値} = -0.0082x^2 + 0.1801x - 0.0137 \quad (R^2=0.9753) \quad \dots \quad (3.3-1)$$

$$\text{KUNO らの水素 G 値} = 0.3808\exp(-0.3162x) \quad (R^2=0.9501) \quad \dots \quad (3.3-2)$$

$$\text{宮田らの酸素 G 値} = 0.0374x + 0.0598 \quad (R^2=0.2996) \quad \dots \quad (3.3-3)$$

$$\text{宮田らの水素 G 値} = 0.2138\exp(-0.5161x) \quad (R^2=0.8882) \quad \dots \quad (3.3-4)$$

上記式で、 x は NO_3^- 濃度 [M] を示す。 R^2 は相関係数である。また、式の形については、各データができるだけ滑らかにフィッティングされるように選んだものであり、特に物理的な意味は持たない。続いて、KUNO らのデータについては式 (3.3-1) と式 (3.3-2) を用いて、宮田らのデータについては式 (3.3-3) と式 (3.3-4) を用いて、 NO_3^- 濃度 0.5～8M の間での NO_3^- 濃度 25 点における $G(\text{O}_2)/G(\text{H}_2)$ の値を算出した。最後に、各々の場合で得られた $G(\text{O}_2)/G(\text{H}_2)$ の値をさらに最小二乗法によりフィッティングして、みかけの近似曲線を得た。このようにして得られた近似曲線を図 3.3-2 に示す。また、式の形を以下に示す。

$$G(\text{O}_2)/G(\text{H}_2) = 0.6826x^2 - 2.1347x + 2.4918 \quad (R^2=0.9932) \quad \dots \quad (3.3-5)$$

(KUNO らのデータを基にした場合)

$$G(\text{O}_2)/G(\text{H}_2) = 0.4104\exp(0.712x) \quad (R^2=0.9973) \quad \dots \quad (3.3-6)$$

(宮田らのデータを基にした場合)

上記式で、 x は NO_3^- 濃度 [M] を示す。 R^2 は相関係数である。また、この場合も式の形についても、各データができるだけ滑らかにフィッティングされるように選んだものであり、特に物理的な意味は持たない。

図 3.3-2 より、上記のようにして得た $G(\text{O}_2)/G(\text{H}_2)$ はみかけ上 NO_3^- 濃度に依存する。また、 $G(\text{O}_2)/G(\text{H}_2)$ は NO_3^- 濃度 1M 近傍から NO_3^- 濃度と共に増加し、 $G(\text{O}_2)/G(\text{H}_2)$ の値が小さく示される傾向にある場合（KUNO らのデータを基にした場合）においても、 $G(\text{O}_2)/G(\text{H}_2)$ は NO_3^- 濃度 8M で 30 度となる。

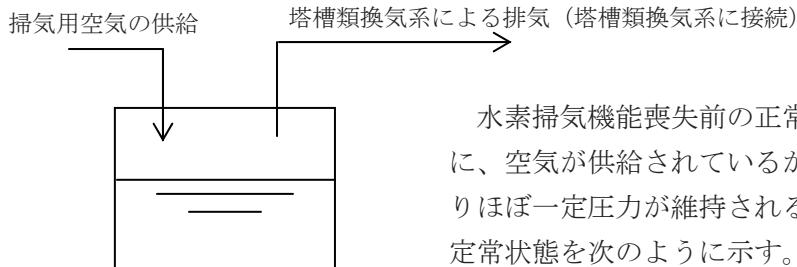
なお、図 3.3-2 に示される KUNO らと宮田らのデータに基づく近似曲線の違いは、図 3.3-1 に示す実験データの違いに基づいている。即ち、酸素 G 値について宮田らの値は同 NO_3^- 濃度での KUNO らの値に比べ概ね半分程度小さいが、対応する水素 G 値については宮田らの値は KUNO らのデータの半分程度よりさらに小さいという、みかけ上の傾向に基づいている。（このため、宮田らの $G(\text{O}_2)/G(\text{H}_2)$ は、同じ NO_3^- 濃度での KUNO らの $G(\text{O}_2)/G(\text{H}_2)$ よりも相対的に大きくなる。）但し、このような図 3.3-1 での傾向の違い自体の原因については、実験系の違い

である Pu の存在の有無が主に影響していると考えられるが（KUNO らの実験は Pu 共存下で行われている）、詳細に考察するには両データの実験条件等のさらに細かい検討・分析を要する。

3.3.4 時間余裕の低減効果の試算

(1) 酸素発生を考慮しない場合の水素濃度評価式

はじめに、酸素発生を考慮しない場合について、起因事象発生からの経過時間に対する水素濃度を示す。ここでは、簡略的に次のようなモデルで考える。

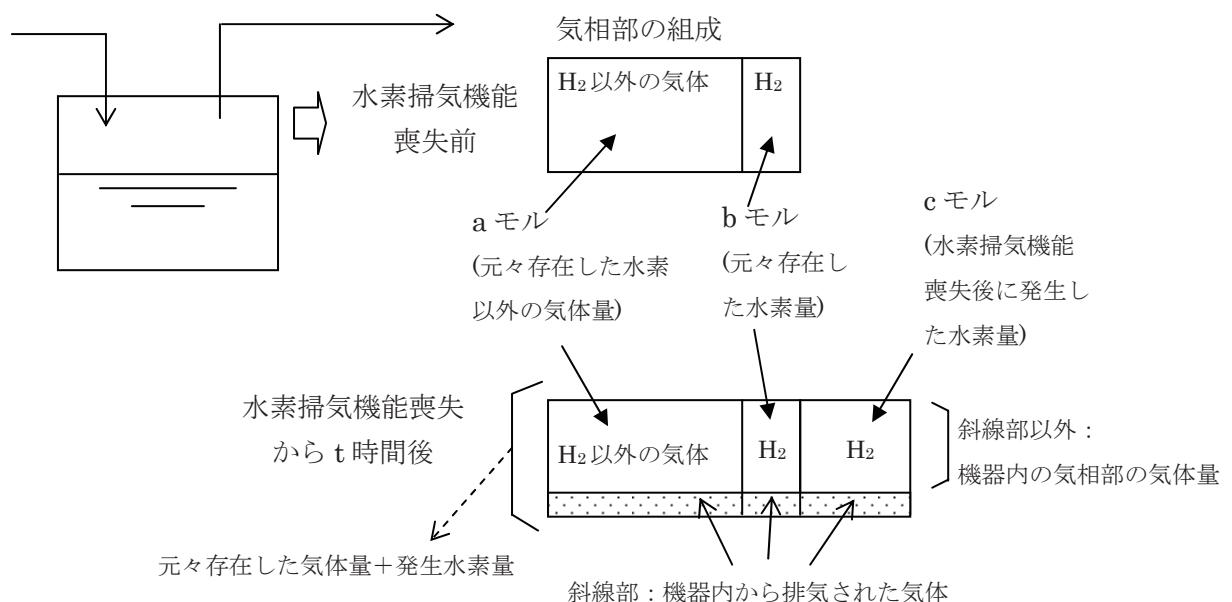


水素掃気機能喪失前の正常な状態では、左図で示すように、空気が供給されているが、気相部は塔槽類換気系によりほぼ一定圧力が維持されるように排気されている。この定常状態を次のように示す。

温度 T, 圧力 P, 気相部体積 V[m³],
水素濃度 C(H₂)[vol%],

前述の状態から水素掃気機能が停止する。この場合、空気の供給は停止するが、塔槽類換気系による排気機能は継続される。したがって、空気の供給停止に対応して排気量も調整されて、気相部圧力は水素掃気機能停止前とほぼ同じに保たれるとする。そして、その間に発生した水素は、常に気相部の気体と完全混合するとする。また、気相部の体積、温度及び単位時間当たりの水素発生量については、有意に変化せず水素掃気機能喪失前後で同じとする。

以上の条件で、水素掃気機能喪失から t 時間経過後の気相部の組成を考えると次のようになる。



即ち、水素掃気機能喪失前の組成を、水素以外の気体 a モル、水素 b モルとすると、水素掃気機能喪失から t 時間後の「元々存在した気体量 + 発生水素量」の合計は [a+b+c] モルとなる。ここで、気相部の圧力、体積及び温度は一定なので、気相部の気体の総モル数は [a+b+c] に維持される。また、[a+b+c] モルの一部（上図の斜線で示した部分）は機器内から排気されるが、気相部の気体は常に完全混合するので、気相部に存在する各成分のモル数の組成は、a : b : c に維持される。したがって、水素掃気機能喪失から t 時間後の水素濃度をモル濃度 (mol%) で示すと、次のような。

$$\{(b+c)/(a+b+c)\} \times 100 \quad \dots \quad (3.3-7)$$

以上、組成をモル数で考えたが、圧力、温度が一定なので、モル数の換わりに各成分の占める体積で考えても同じことが言える。この時、上記の各値に相当する体積は次による。

a+b : 元々の気体の占める体積である V に相当

b : 元々存在した水素の占める体積に相当。定常時の水素濃度 C(H₂) より V × C(H₂) × 0.01 となる。

c : 水素掃気機能喪失から t 時間に発生した水素の占める体積に相当する。定常的に発生する水素量を F(H₂) [Nm³/h] とすると F(H₂) × t となる。

以上より、水素掃気機能喪失から t 時間後の水素の濃度を体積濃度 C(t) [vol%] で示すと、次のような。

$$C(t) = \{(V \times C(H_2) \times 0.01 + F(H_2) \times t) / (V + F(H_2) \times t)\} \times 100 \quad \dots \quad (3.3-8)$$

t : 水素掃気機能喪失からの経過時間 [h]

V : 機器の気相部体積 [m³]

C(t) : t での水素濃度 [vol%]

C(H₂) : 定常時の水素濃度 [vol%]

F(H₂) : 水素発生量 [Nm³/h]

(2) 酸素発生を考慮する場合の水素濃度評価式

酸素発生を考慮する場合は、3.3.4 項 (1) で議論した c モルの部分を、水素掃気機能喪失後に発生した水素及び酸素の量に相当すると考えればよい。したがって、起因事象発生からの経過時間に対する水素濃度は式 (3.3-9) となる。

ここで、水素発生量 F(H₂) を算出する際には、従来から水素 G 値の値を用いている。したがって、その水素 G 値と式 (3.3-5) 又は式 (3.3-6) から酸素 G 値を得、さらに酸素発生量 F(O₂) を得ることで、下記式により C(t) を得る。

$$C(t) = \{(V \times C(H_2) \times 0.01 + F(H_2) \times t + F(O_2) \times t) / (V + F(H_2) \times t + F(O_2) \times t)\} \times 100 \quad \dots \quad (3.3-9)$$

F(O₂) : 酸素発生量 [Nm³/h]

(3) 時間余裕の低減効果

式(3.3-9)を用いて時間余裕の増加効果を求めた。機器の条件等は、起因事象発生（水素掃気機能喪失）からの経過時間に対する水素濃度を評価している既報告書である文献(11)中から選び、同条件における酸素発生を考慮した場合の時間余裕を試算した。また、その結果を、酸素発生を考慮しない場合の時間余裕と比較した。（酸素発生を考慮しない場合の時間余裕は、文献(12)に示されている。）水素の爆発限界濃度は4vol%とした。（その他の詳細な条件は文献(12)を参照。）

機器の条件等は、文献(12)における時間余裕の計算事例から4ケースを対象とした。酸素G値を求める際の $G(O_2)/G(H_2)$ と NO_3^- 濃度の関係の近似式は、図3.3-2のうちのKUNOらのデータを基にした場合の式(3.3-5)を用いた。（保守的に、酸素G値が小さくなるほうの式を用いた。）算出結果を次表に示す。 $G(O_2)/G(H_2)$ が高硝酸濃度域で増加する傾向にあるため、高硝酸濃度の条件の機器において時間余裕の増加効果が大きくなっている。

時間余裕の増加効果

ケース	対象機器内溶液 の硝酸濃度 (M)	既報告書 ⁽¹²⁾ の 時間余裕(h)	酸素発生を考慮 した時間余裕 (h)	時間余裕の増加比 (-)
1	1.6	2.10	2.2	1.05
2	1.8	9.50	10.0	1.05
3	7	0.77	4.0	5.20
4	7	7.80	64.0	8.20

3.3.5 おわりに

水素の爆発下限濃度に至るまでの時間余裕に対する酸素生成の効果は、対象機器内溶液の硝酸濃度が高いほど効果が大きい。例えば硝酸濃度7Mの場合、今回試算した条件下では、時間余裕が5~8倍程度となり、安全対策の失敗確率は伴って減少すると考えられる。また、例えばケース4のように時間余裕のオーダーが3日程度まで増加すると、これまで想定しなかった新たな安全対策のアイデアも生じるであろう。

今回は時間余裕の増加効果のみの試算であるが、この時間余裕の増加が水素爆発事象のリスク（影響×頻度）の減少に及ぼす効果、さらには、施設全体のリスクの減少に及ぼす効果の評価が重要である。このようなリスクに対する効果の程度を把握することが、酸素G値の把握に取り組む重要性の程度を判断する材料となろう。

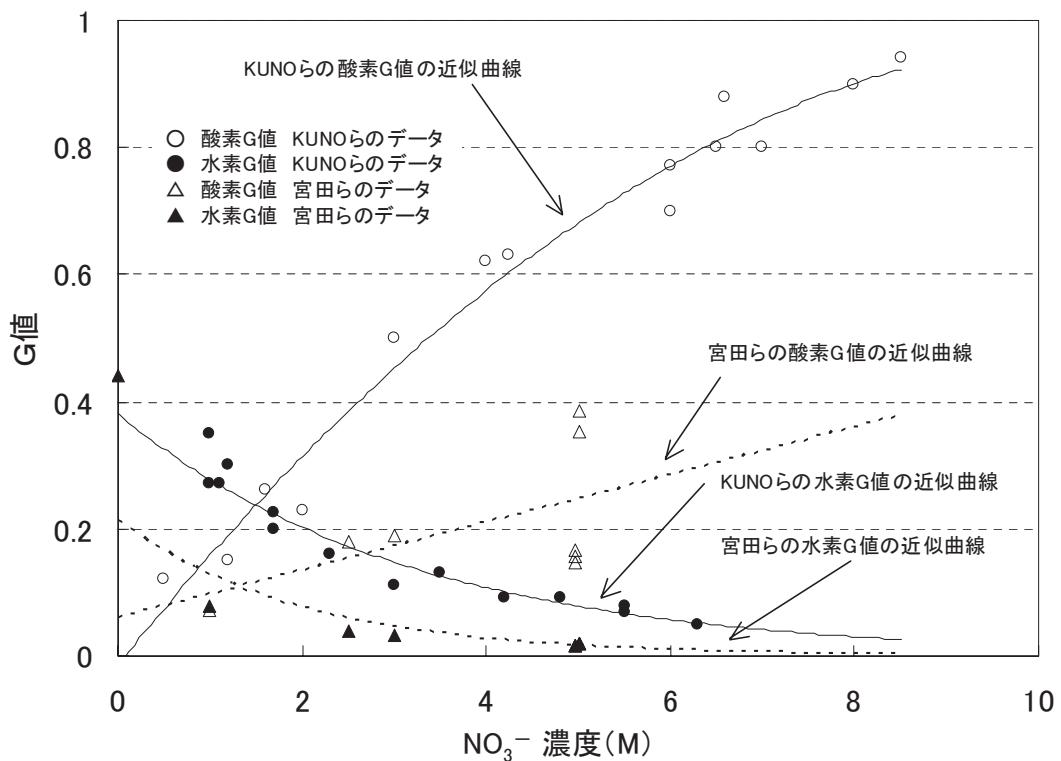
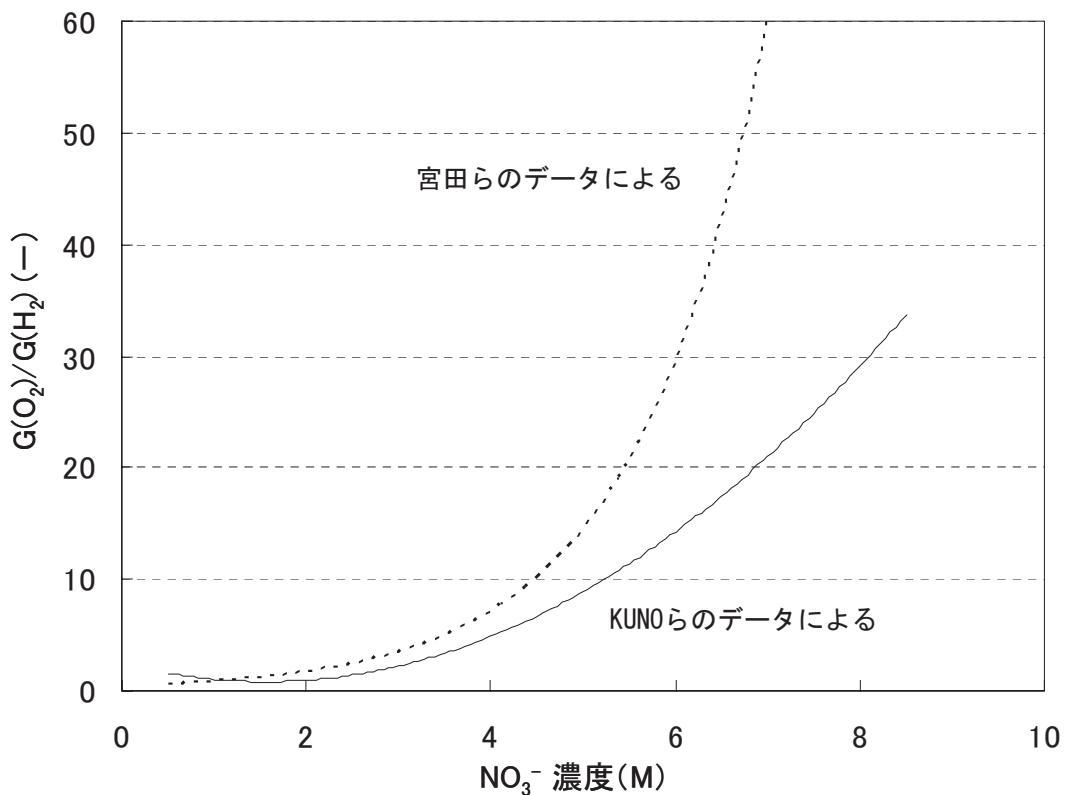


図 3.3-1 酸素 G 値データの整理結果 (KUNO、宮田らのデータ)

図 3.3-2 NO_3^- 濃度に対する $G(\text{O}_2)/G(\text{H}_2)$ の依存性の推察

3.4 水素爆発時の爆発圧力測定実験に係る調査

貯槽内で発生した水素が蓄積し爆発に至る事故事象では、水素爆発により貯槽内の内圧が上昇し、貯槽およびそれに接続する排ガス処理系の閉じ込め性能が損なわれる可能性がある。そのため、水素爆発を伴う事故事象の影響評価においては、水素爆発による圧力上昇の程度を把握することが事故シナリオを検討する上で重要となる。平成17年度に調査⁽¹³⁾した「TBP等錯体などの急激な熱分解反応」事象の解析事例⁽¹⁴⁾では、分解反応による発熱が、理想気体とした気相部に瞬時に移行するとして、圧力上昇を評価する手法が用いられている。MOX燃料加工施設のPSA実施手順の開発⁽¹⁵⁾では、3次元爆発解析コードを用いた解析事例が示されている。ここでは、実験により水素爆発時の圧力上昇を検討した事例⁽¹⁶⁾を調査した。

3.4.1 実験の概要

調査事例では、水素を含む混合ガスの爆発圧力、ガス流動時の爆発下限界への影響、爆轟限界などについて検討している。

水素-空気-窒素および水素-空気-アルゴンの各3成分の爆発圧力を測定し、爆発範囲内における爆発圧力等圧線図を作成するとともに、水素混合ガスの場合、一般に爆発下限界付近の爆発圧力および爆発圧力上昇速度は極めて小さいが、この傾向は水素ガスの部分燃焼に起因しており、他のガスに見られない水素に特有の現象であることを解明している。

水素の爆発下限界に及ぼすガス流動の影響については、下方伝播および水平伝播による下限界はガス流動により低下するが上方伝播による下限界(4.0%)の低下は観測されず、ガス流動下でも水素燃焼が4%以下では起こりえないことを示したとしている。

爆轟については、水素濃度が10%以下ではどのような条件でも発生しないとし、水素-空気-窒素および水素-空気-アルゴン各3成分系の爆轟範囲をガス組成の点から解明したとしている。

3.4.2 水素混合ガスの爆発限界

水素-空気2成分系及び水素-空気-不活性ガス3成分系の爆発限界について、従来の文献の調査、実施した実験から以下の点を明らかにしている。

- (1) 水素の空気中における爆発範囲は4.0~75%である、ただしその下限界には他の可燃性ガス及び蒸気に見られない特異性があり、この特異な性状は水素10%以下で認められる。
- (2) 上記の特異性は、十分な酸素が存在する下限界においても、水素の全量が燃焼せずに一部分が残留する、いわゆる部分燃焼が起こることに原因する。その結果、この組成域では爆発による発生圧力が異常に低い。
- (3) この部分燃焼は特に火炎の上方伝播で起こり、下方伝播ではほとんど起こらない。
- (4) 部分燃焼域のうちでも、水素濃度が4~8%の範囲では、発生圧力が比較的低い($1\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ 以下)ために、通常の爆発範囲に較べて危険性が大幅に低減されている。
- (5) 空気-不活性ガス2成分系における支燃性消失の限界組成を示すP限界濃度は、この組成以上の不活性ガスを含む混合ガス中に、任意量の水素を添加しても、爆発性の混合ガスを形成することはなく、この値は、窒素添加の場合は71.7%、アルゴン添加の場合83.1%である。

- (6) 水素ー不活性ガス 2 成分系における支燃性消失の限界組成を示す Q 限界濃度は、この組成以上の不活性ガスを含む混合ガス中に、任意量の空気を添加しても爆発性の混合ガスを形成することではなく、この値は、窒素添加の場合は 93.9%（水素 6.1%）アルゴン添加の場合は 96.2%（水素 3.8%）である。
- (7) 爆発限界酸素濃度とは、水素ー空気ー不活性ガス 3 成分系における爆発性消失の限界酸素濃度を示している。すなわち、3 成分中の酸素濃度がこの値以下であれば爆発性の混合ガスを形成することはない。この値が窒素添加の場合は 5.0%.アルゴン添加の場合は 3.4% である。
- (8) 不活性ガスとしての窒素とアルゴンを比較した場合、一般に比熱の大きい方が 3 成分系の爆発範囲を縮小させるため、所領の添加で爆破特性を抑制することが可能である。

3.4.3 水素ー空気ー窒素 3 成分系の爆発範囲内における爆発圧力分布の測定

実験装置は、爆発筒（内径 10.0cm、長さ 20.0cm）、爆発筒内から排気するための真空ポンプ、混合ガス供給装置、デジタル圧力ゲージ、圧力変換器を通して得た電気信号を增幅し波形記憶装置に記録する計測装置で構成される。

実験では、筒内を真空ポンプで排気したのち、デジタル圧力ゲージで計量しながら一定量の水素を入れ、次に乾燥空気を大気圧まで急速に導入する。このとき、細管から急激に流入するガス流により、筒内ガスは攪拌され、直ちに均一組成の混合ガスとなる。ガス組成の決定は全圧と分圧の比で行う。すなわち、フォルタン型水銀気圧計による大気圧の読み A (mm Hg) を全圧とし、整数表示のデジタル圧カゲージによる水素導入量の読み B (mm Hg) を水素分圧とすれば、水素濃度 C (vol%) は次式で与えられるとしている。

$$C = (B/A) \times 100 \quad \dots \quad (3.4-1)$$

これらの方針により、水素濃度の表示誤差は 0.1 vol% 程度である。次に、着火装置のニクロム線にタイマーにより 1 秒間の通電を行って、ガスを着火する。圧力の測定は、動歪ゲージ式圧力変換器の出力を增幅しデジタルオシロで圧力上昇曲線を記録することで行うとしている。

実験より求めた水素ー空気ー窒素系の爆発圧力等圧線を図 3.4-1 に示す。図に見られるように、爆発下限界側では、水素約 9% のラインが爆発圧力 $2.0\text{kg/cm}^2\text{g}$ で、これ以下の水素濃度では爆発圧力が極端に低くなる。これは水素の部分燃焼に起因するもので特に、6% 以下では、 $0.5\text{kg/cm}^2\text{g}$ 以下で他の可燃性ガスには見られない特性としている。

爆発圧力上昇速度と水素濃度の関係については、着火してから爆発圧力が最大値に到達するまでの時間は、爆発空間が大きいほど長くなる傾向が見られ、圧力の上昇速度の最大値と爆発空間の容積との間には次の関係があることが知られ、水素・空気系での K_G 値の測定を行っている。

$$\left(\frac{dp}{dt} \right)_{\max} V^{1/3} = \text{const} = K_G \quad \dots \quad (3.4-2)$$

上記の K_G 値は、着火点が空間の中心ある場合に最大となり、中心からのずれが大きくなるにつれて、小さくなる傾向がある。文献値では、水素の K_G 値は 500 となっているとして、実験の測定値の最大値が 500 になるよう 2.6 倍した補正 K_G 値（図 3.4-2）が示されている。

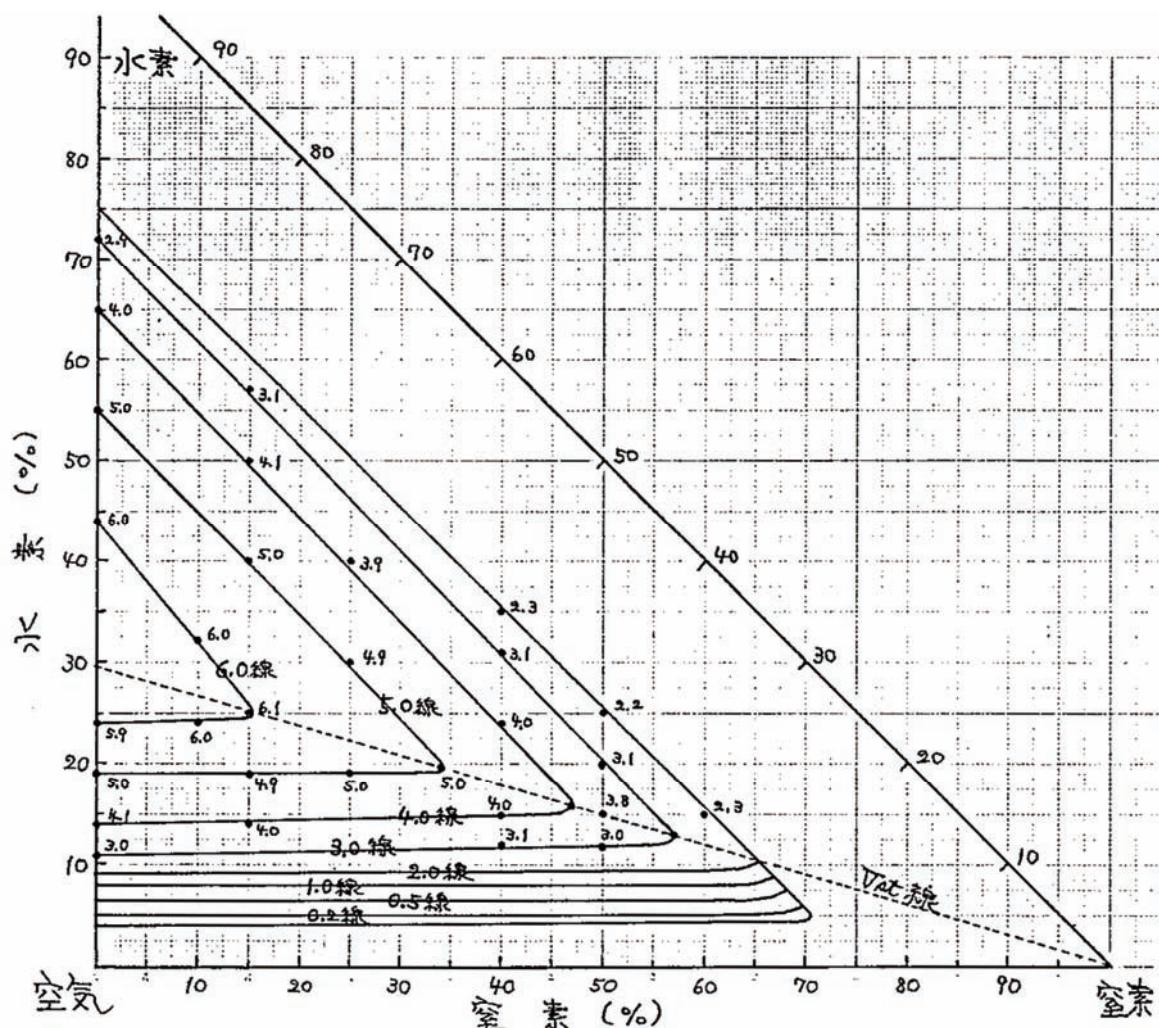


図 3.4-1 水素-空気-窒素系の爆発圧力等圧線（参考文献(16)より転載）

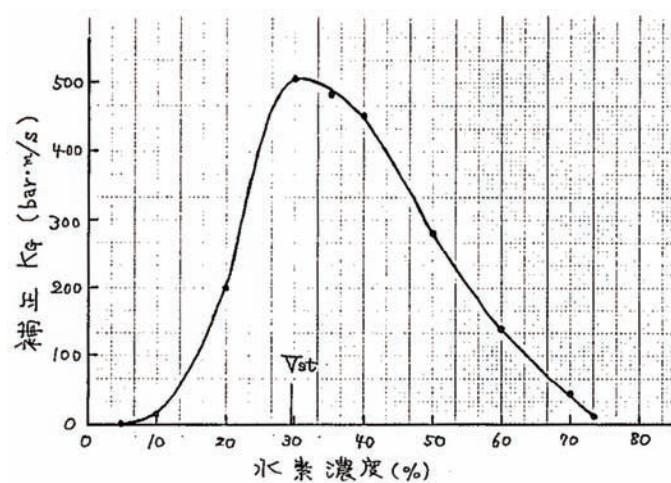


図 3.4-2 水素濃度と補正 KG 値の関係（参考文献(16)より転載）

3.4.4 水素-空気-アルゴン 3成分系の爆発範囲内における爆発圧力分布の測定

水素-空気 2成分系の水素濃度と爆発圧力の関係と水素-空気-アルゴン系の化学量論線上のアルゴン濃度-爆発圧力の関係(図 3.4-3)をもとに爆発圧力等圧線図(図 3.4-4)を作成している。

図 3.4-4 と水素-空気-窒素 3成分系の爆発圧力等圧線図(図 3.4-1)を比較すると、下限界側の直線は、いずれも右下がりの傾向が見られ、爆発領域も広い。これは、アルゴンが窒素より比熱が小さいことに起因しており、爆発による発熱がより大きな圧力上昇をもたらすためとしている。また、爆発下限界側では、水素濃度が約 7%以下で、爆発圧力は $2.0\text{kg/cm}^2\text{G}$ 以下になる。窒素添加の場合と同様に、水素濃度の低下とともに爆発圧力は極端に低くなるが、アルゴンの比熱が窒素より小さいことにより同一の水素濃度でもアルゴン添加量の増大につれて爆発圧力が徐々に大きくなる点を指摘している。その一例を図 3.4-5 に示す。

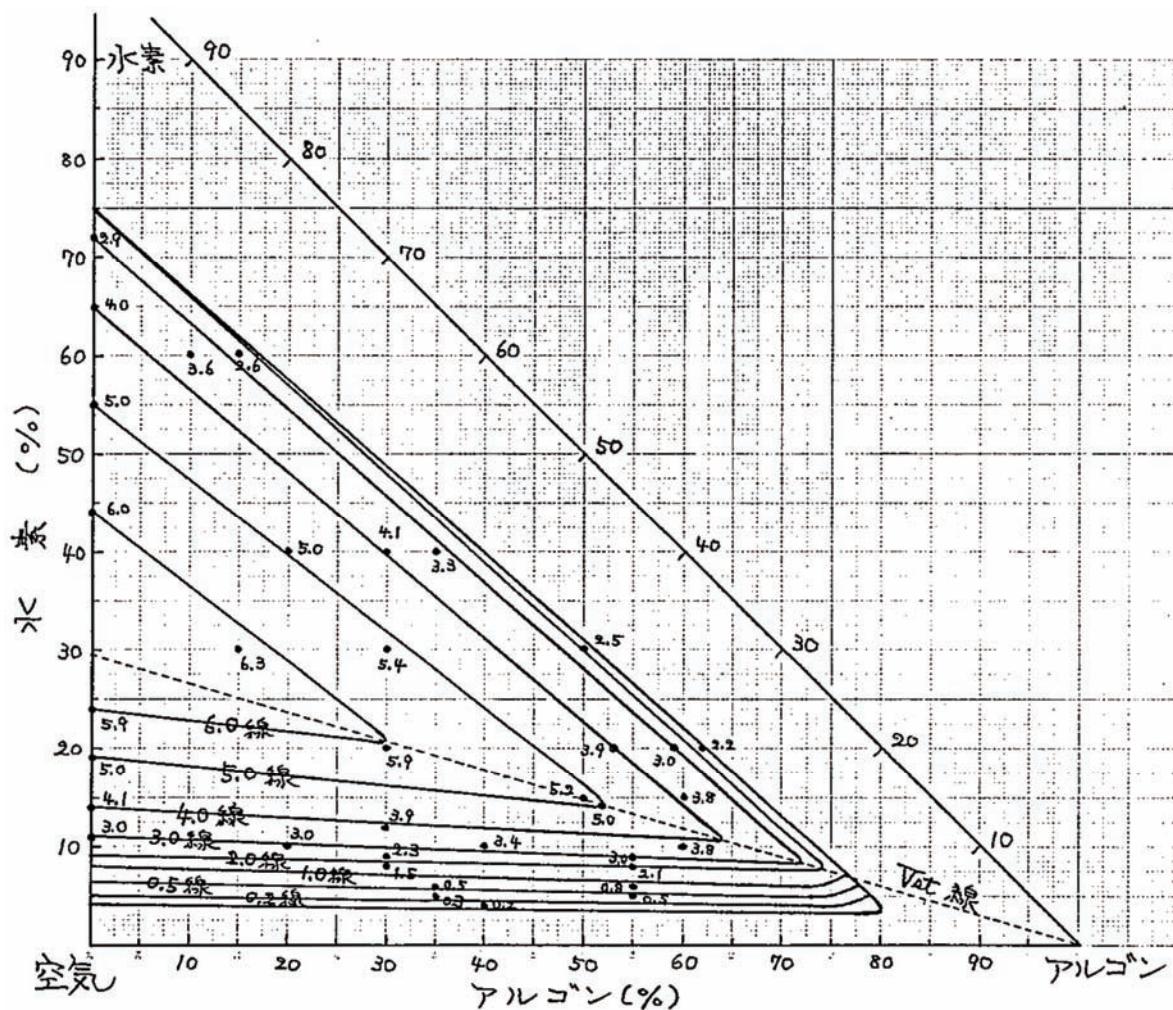


図 3.4-4 水素-空気-アルゴン系の爆発圧力等圧線 (参考文献(16)より転載)

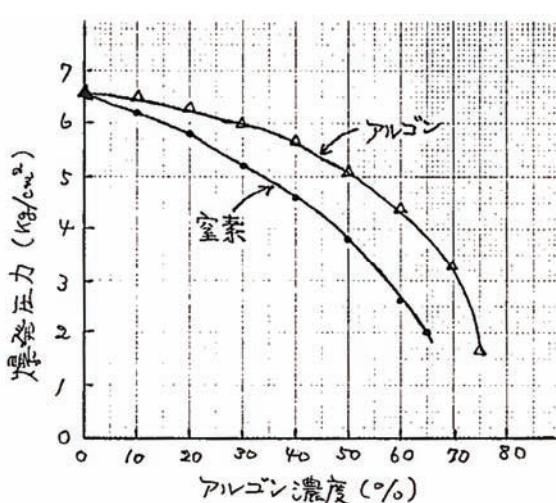


図 3.4-3 水素-空気-アルゴン系の化学量
論線上のアルゴン濃度-爆発
圧力の関係 (参考文献(16)より転載)

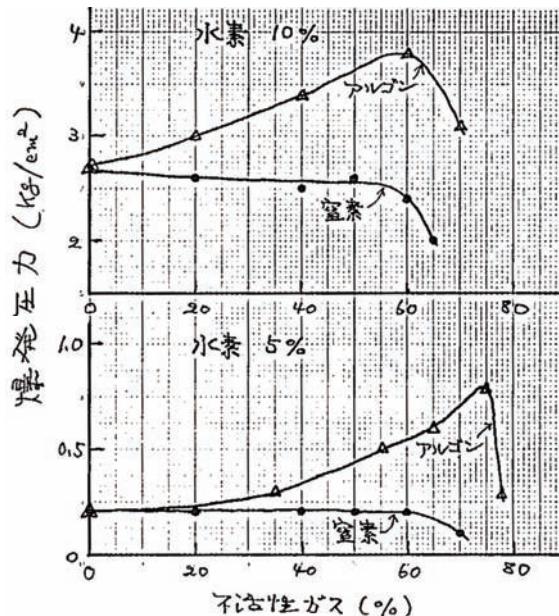


図 3.4-5 同一水素濃度における不活性ガス
添加量と爆発圧力の関係
(参考文献(6)より転載)

3.4.5 水素-空気 2 成分系の爆発下限界のガス流動の影響

文献(4)によれば、これまでに実施された関連する実験としては、メタン、エタン、プロパン等の実験が成されており、一般的な傾向として、ガス流速がそれほど大きくない範囲（数 m/s 程度）では、下限界はわずかに低下し、上限界は上昇して、結局爆発範囲を両側に拡大し、流速がある限度以上に大きくなると、逆の傾向が見られ爆発範囲を縮小するとしている。さらに流速が増大して、ガスがかく乱状態になると火炎伝播が不可能になり爆発は生じないとしている。

文献(4)の実験では、上方、下方および水平伝播の 3 ケースの実験を実施しているが、同じ装置を方向を変えて設置している。爆発管は内径 4.7cm、長さ 120cm の硬質ガラス管で、その一端に着火用の放電電極を付けた長さ 30cm のガス混合管が接続されている。爆発管の他端は全断面開放である。混合ガスは、水素と空気をそれぞれのボンベから流量計を通してガス混合管へ送り込み、爆発管を通過して管の他端から放出される。次に、着火した場合に、火炎の到達を検知するための CA 熱電対（線径 0.1mm）が、管の末端近くの内面 2ヶ所に張り付けてあり、その出力を高速度 mV レコーダに記録している。

実験手順は、水素と空気の流量を微調節弁により流量計の読みで調整して、爆発下限界付近の混合ガスを爆発管に送入する。ガス放出口で水素ガス濃度を干渉計型ガス分析計で連続的に測定し、水素濃度が一定となったのち、電極間にネオントランスによる 15kV の交流アーク火花を飛ばせて、ガスを着火する。爆発の有無は、水素濃度が 5%程度以上では、火炎の通過による管内面のわずかな水滴の付着および管の開放端で軽い爆発音で確認する。水素濃度がこれより低い場合は、水滴の付着や爆発音が確認できない場合があるので熱電対出力の記録曲線における出力の大きさと形状から判定する。また、2ヶ所の熱電対間の距離と記録曲線から読み取った2点間の時間差との両者から、管末端近くでの火炎速度を求める。

ガスの流速は、水素と空気の各流量計の読みを加算して混合ガスの流量とし、この値を爆発管の断面積で除して得られる数値を、未燃性ガスの平均流速とするとしている。

図3.4-6～3.4-8に実験結果を示す。

図3.4-6に示す各火炎伝播方向の下限界に及ぼすガス流動の影響については、下方伝播および水平伝播では、他の可燃性ガスの場合と同様に、ガスの流速の増大にあわせて、一旦下限界が低下し、再び上昇するという定性的な傾向を示すが、上方伝播については、ガス流速の増加にあわせて、爆発下限界が上昇する傾向がみられ、他の可燃性ガスにはない、水素ガス特有の傾向であるとしている。

図3.4-7に示す爆発下限界におけるガス流速と火炎速度の関係では、火炎速度はガス流速より大きくなっている、その差は、静止ガスに対する本来の火炎速度とみなしえるとしている。また、火炎速度は、上方伝播、水平伝播、下方伝播の順で大きくなっているのは、既燃焼ガスが滞留により上方向へ浮き上がりやすく上方向へのガス流動を助長するためとしている。

図3.4-8には、ガス流速が一定（平均流速1.61～1.65m/s）の場合の水平伝播の水素濃度と火炎速度の関係を示す。この関係は、静止ガスの場合と同様に、水素濃度が増加するについて火炎速度も増加する傾向があるとしている。

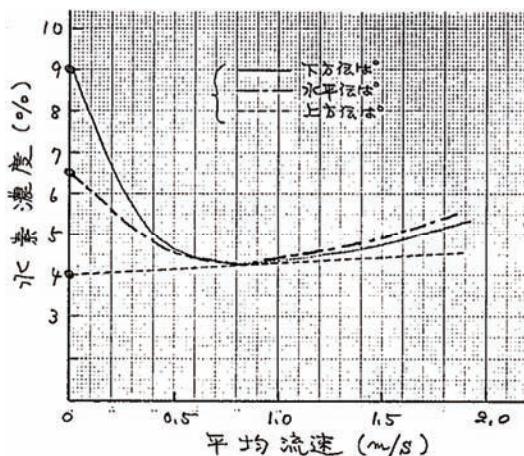


図3.4-6 各火炎伝播方向の下限界に及ぼすガス流動の影響（参考文献(16)より転載）

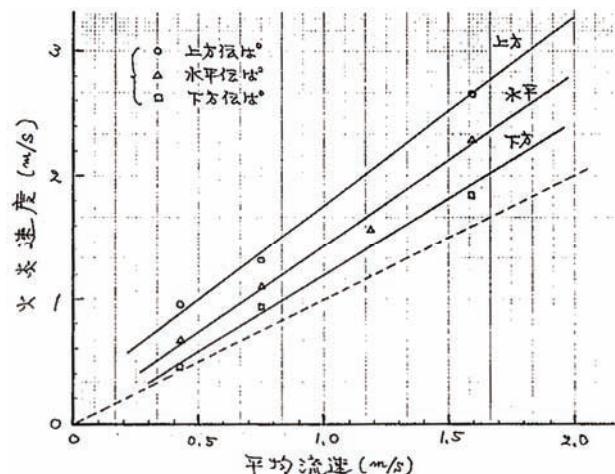


図3.4-7 爆発下限界におけるガス流速と火炎速度の関係（参考文献(16)より転載）

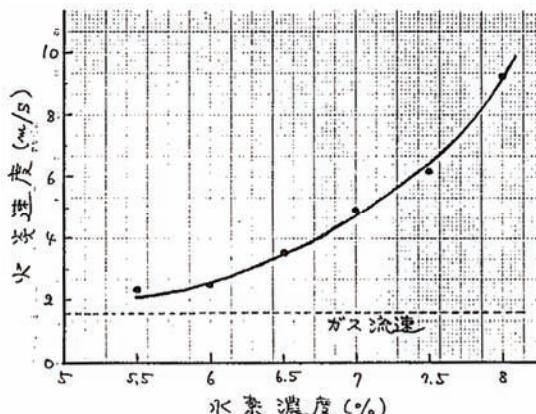


図3.4-8 水素濃度と火炎速度の関係（水平伝播）（参考文献(16)より転載）

3.4.6 水素-空気 2 成分系および水素-空気-窒素 3 成分系の爆轟

実験装置は、長さ 6.4m、内径 2.8cm のステンレス鋼管を使用しボール弁により駆動部(1.2m)と試験部(5.2m)に区切られている。駆動部には着火後の燃焼波を加速して急速に爆轟波へ転移させるために長さ 70cm の金属スパイラル線が入れてある。管壁には、火炎の通過を検知するために 20~40cm の間隔でイオンプローブが取り付けている。また、爆轟波の波面圧力測定のためピエゾ圧力計も設置されている。実験では、駆動部および試験部に同様の混合ガスを充填して自己起爆法により爆轟を発生させたとしている。

実験より、水素-空気系での爆轟範囲として水素濃度で 17~56%の結果を得たとしている。管路内の障害物により爆轟範囲が拡大されること等の知見を考慮して爆轟範囲を 15~60%程度と考えるのが妥当として、これより図 3.4-9 および図 3.4-10 に示すような爆轟範囲を推定している。水素-空気-窒素系の爆轟下限界は、経験則より a 点(15%)を通り空気-窒素軸に平行で化学量論線の交点 c を結ぶ線分となり、c 点と b 点(60%)を結ぶ線分が、爆轟上限界になるとしている。水素-空気-アルゴン系については、爆轟限界線が爆発圧力 4kg/cm²G の等圧線にほぼ等しいという事実をもとに作成したとしている。

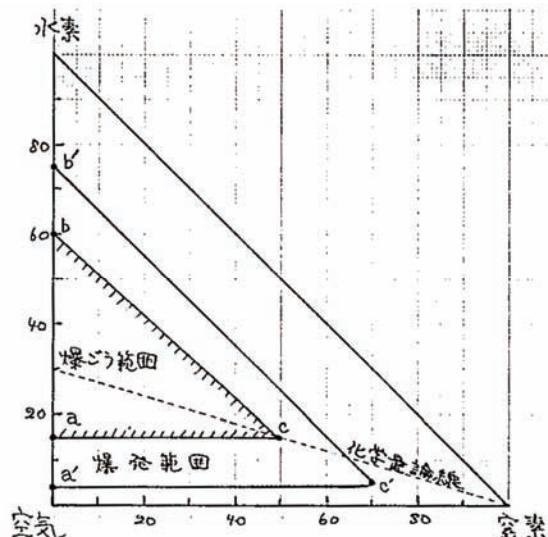


図 3.4-9 水素-空気-窒素系の爆轟範囲
の推定図 (参考文献(16)より転載)

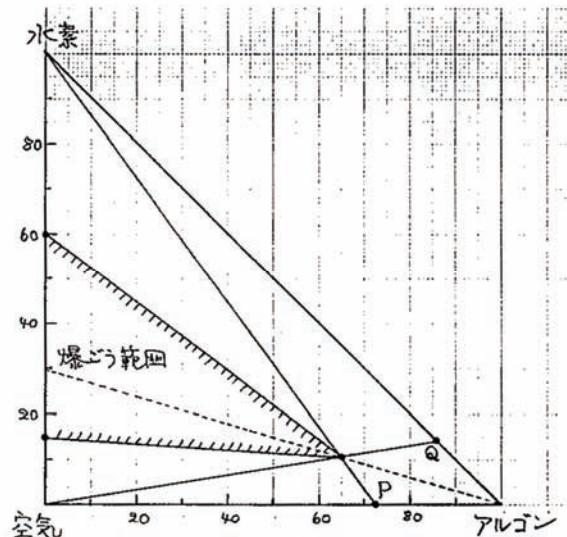


図 3.4-10 水素-空気-アルゴン系の爆轟範囲
の推定図 (参考文献(16)より転載)

3.4.7まとめ

ここで調査した水素爆発に関する実験は、燃料加工施設で用いられる焼結炉の還元ガス雰囲気に空気の混入を想定したときの水素爆発を対象として、爆発下限範囲、爆発圧力、圧力上昇速度等を解明するために実施された。

実験体系と異なる体系での爆発への実験結果の適用可能性については、文献(15)では、爆発圧力は、発生エネルギーの爆発空間の壁面からの熱損失によって変化し、体系が大きくな

れば単位容積当りの壁面面積が減少し、爆発圧力は高くなる傾向になるが、容積が1000倍になってもその差は10%程度と小さいとしている。

再処理施設の貯槽、たとえば高レベル廃液貯槽では、放射線分解で生じる水素が貯槽内に蓄積するのを防止するため空気により掃気している。貯槽内の気相部は、水蒸気を無視すれば水素-空気2成分系の混合気であり、今回調査した実験結果をもとに水素濃度に依存した爆発圧力は求めることができる。しかし、今回調査した実験は乾燥した混合気による実験であるため、水蒸気の存在が爆発に及ぼす影響については不明であり、この点について更なる調査を必要とする。

3.4 3章のまとめ

高レベル濃縮廃液からの放射線分解水素について関連する実験に関する文献を調査した。模擬高レベル廃液では、溶液中の水素濃度を減少させる効果が確認されており、 α 線により生成する水素も γ 線により発生する水素と同様に液浸効果が期待でき、爆発限界濃度に至る時間余裕の増大が期待できることがわかった。さらに、模擬高レベル廃液での γ 線照射による酸素放出G値は、水素放出G値に比べ約9倍以上大きいことが報告されていることから、気相へ放出される水素濃度は最大でも10%程度と見込まれ、爆発限界濃度に至る時間余裕の増大及び槽内水素濃度の上限濃度が算出に利用可能と考えられる。しかし、より最適な水素発生量の評価には、 α 線により発生する水素放出G値及び酸素放出G値の考慮が必要であり、 α 線を用いた模擬高レベル廃液への照射実験は難しいことから、 α 線核種を含む実高レベル廃液を用いた水素放出G値及び酸素放出G値の測定が望まれる。

プルトニウム溶液貯槽における水素掃気機能喪失事故等の影響評価への利用を念頭に、東海再処理施設で過去に実施した硝酸プルトニウム溶液からの放射線分解水素、酸素の発生にかかる実験結果に関する論文の調査を実施した。同文献には再処理プロセスから得られた硝酸プルトニウム溶液を用いて測定した硝酸濃度、Pu濃度及び液深とG値の関係が他の文献値との比較も踏まえて記載されていることから、再処理プラントで想定される事故シナリオの条件に応じてG値を設定し、水素掃気機能喪失後の爆発下限濃度に至るまでの時間余裕を適切に評価することや、 α 線放出核種を含む溶液と γ 線放出核種を含む溶液との液深効果の相違を示す際などに有用な知見を与えるものと考えられる。しかしながら同文献の測定値はラボスケールの試験装置で得られたものであり、これらの値が再処理プラントの安全評価にそのまま適用可能か否かについては今後さらなる検討が必要と考えられる。

水素の爆発下限濃度に至るまでの時間余裕に対する酸素生成の考慮することの効果について、関連する実験データをもとに試算し、その効果は対象機器内溶液の硝酸濃度が高いほど効果が大きいことが分かった。今回は時間余裕の増加効果のみの試算であるが、この時間余裕の増加が水素爆発事象のリスク（影響×頻度）の減少に及ぼす効果、さらには、施設全体のリスクの減少に及ぼす効果の程度を把握することにより、酸素G値を把握するための関連する実験の実施の重要性の程度を判断する一つの材料となる。

燃料加工施設で用いられる焼結炉の還元ガス雰囲気に空気の混入を想定したときの水素爆発を対象として、爆発下限範囲、爆発圧力、圧力上昇速度等を解明するために実施された実験について調査した。調査したデータは、実験体系と異なる体系での爆発事象へも適用可能であることが分かった。たとえば高レベル廃液貯槽では、放射線分解で生じる水素が貯槽内に蓄積する

のを防止するため空気により掃気している。貯槽内の気相部は、水蒸気を無視すれば水素一空気2成分系の混合気であり、今回調査した実験結果をもとに水素濃度に依存した爆発圧力は求めることができる。しかし、今回調査した実験は乾燥した混合気による実験であるため、水蒸気の存在が爆発に及ぼす影響については不明であり、この点について更なる調査を必要とする。

参考文献

- (1) 中吉、宮田、「高レベル廃液からの放射線分解発生水素量の評価、(I) 各種濃度の硝酸水溶液の γ 線分解」、日本原子力学会誌、Vol.36,No.8(1994)
- (2) 中吉、宮田、「高レベル廃液からの放射線分解発生水素量の評価、(II) 静置状態の硝酸水溶液から放出される水素量の液深依存性」、日本原子力学会誌、Vol.37,No.12(1995)
- (3) 中吉、宮田、「高レベル廃液からの放射線分解発生水素量の評価、(III) 硝酸水溶液の γ 線分解発生水素量の及ぼす共存金属成分の影響」、日本原子力学会誌、Vol.38,No.12(1996)
- (4) 中吉、宮田、「高レベル廃液からの放射線分解発生水素量の評価、(IV) 模擬高レベル廃液の γ 線分解発生水素量」、日本原子力学会誌、Vol.39,No.12(1997)
- (5) Draganic, I.G., et al, "The Radiation Chemistry of Water", p130, Academic Press. (1971)
- (6) Y.Kuno, T.Hina and J.Masui : "Radiolytically Generated Hydrogen and Oxygen from Plutonium Nitrate Solutions", J.Nucl.Sci.Technol., 30, 919 (1993)
- (7) Bibler,N.E. : "Curium-244 α Radiolysis of Nitric Acid. Oxygen Production from Direct Radiolysis of Nitrate Ions", J.Phys.Chem., 78(3), 211 (1974)
- (8) Becker,R., Burkhardt,H.G. : "Radiolytically Generated Hydrogen from PUREX Solutions" IAEA-SM-245/13, 81 (1979)
- (9) Kazanjian, A.R., Horrell,D.R.: "Radiolytically Generated Gases in Plutonium- Nitric Acid Solutions" Radiation Effects, 13, 277 (1972)
- (10) Sheppard, J.C.: "Alpha Radiolysis of Plutonium(IV)-Nitric Acid Solutions" U.S. Atomic Energy Commission Rep. BNWL-751 (1968)
- (11) Savel'ev, Y.I., Ershova, Z.V., Vladimirova, M.V. : "Alpha-Radiolysis of aqueous solutions of nitric acid" Sov. Radiochem., 9, 221 (1967)
- (12) (財)原子力発電技術機構、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
- (13) 吉田一雄他(編)、「核燃料施設の確率論的安全評価に関する調査(II)」、JAEA Research 2007-002, 近刊
- (14) 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/SAE04-016 04解部報-0016、平成16年8月
- (15) 日本原子力研究開発機構、「平成17年度 MOX燃料加工施設安全技術調査等(確率論的安全評価等調査)調査報告書」、平成18年3月
- (16) (社)産業安全技術協会、「水素混合ガスの安全性に関する研究(II)」PNC-PJ8655 97-001、1997年3月

4. 臨界事故での揮発性核分裂生成物の気相への移行率に関する調査

事故時影響評価手法に関する調査検討の一環として、臨界事故時の揮発性核分裂生成物の気相への移行率について、安全評価における使用例、TRACY での実験結果について調査を行った。

4.1 設計基準事象（溶解槽の臨界）評価における揮発性核分裂生成物の移行率

日本原燃株式会社の再処理事業指定申請書⁽¹⁾の添付書類八では、「運転時の異常な過渡変化を越える事象」の1つとして、「溶解槽の臨界」を評価している。評価では、移行率を希ガス：100%、ヨウ素：25%として評価し、その結果、実効線量当量が 0.57mSv となり、判断基準の 5 mSv を十分下回っているとしている。このうち、放射性雲からのガンマ線（希ガス）による外部被ばくが大部分を占めているとしている。

このうち、ヨウ素の廃ガス中への移行割合は “Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook”, NUREG-1320 (1988)⁽²⁾を参考として設定している。

NUREG-1320 で示されている臨界の評価方法は、NRC から出されている規制指針 R.G.3.33 “Assumptions used for evaluating the potential radiological consequences of accidental nuclear criticality in a fuel reprocessing plant” (1977)⁽³⁾で推奨されている方法及びパラメータをそのまま用いているとしている。R.G.3.33 の Regulatory Position⁽³⁾に記載されているヨウ素等の放出割合を規定した部分を以下に示す。

『2. 放射性物質の放出に関連した仮定は以下のとおり。

- a. 臨界で生じた核分裂生成物及び臨界以前に使用済燃料中に存在した核分裂生成物のうち、希ガスの全量（臨界以前に離脱した希ガスは除く）、放射性ヨウ素の 25 % 及び放射性ルテニウムの 0.1% が直接セル雰囲気に放出されると仮定する。また、臨界時の溶液の蒸発により生じるエアロゾルは、直接セル雰囲気に放出されると仮定する。エアロゾルには蒸発する溶液の塩（salt）含有率の 0.05% を含むと仮定する。セル体積と換気率は個々の場合に基づいて考慮すべきである。』

なお、R.G.3.33⁽³⁾の脚注には、これらの値の設定に当たっては、R.G.1.3 “Assumptions Used for Evaluating the Potential Radiological Consequences of a Loss of Coolant Accident for Boiling Water Reactors”(1974)⁽⁴⁾を参考としたことが記載されている。

R.G.1.3 は BWR の冷却材喪失事故についての評価指針であるが、この基になった原子炉の立地評価のための冷却材喪失事故の評価レポート⁽⁵⁾が、NRC の前身である AEC から発行されている。この中に、ハロゲン等の放出割合についての推奨値が記載されている。ヨウ素については 50% が格納容器に放出され、そのうちの半分、すなわち炉心インベントリの 25% が環境に放出されるとしている。

4.2 挥発性核分裂生成物の移行率に関する TRACY の実験結果

4.2.1 はじめに

ウラン等の核分裂性物質を含む水溶液（以下、燃料溶液という。）において臨界事故が発生し

た場合には、溶液中の放射性物質の気相中へ放出と移行が生じることが予想される。臨界に伴って溶液中で生成する希ガス及びヨウ素種は、揮発性を有しているため溶液から気相への移行率が大きいばかりでなく HEPA フィルタでの捕集効率が低いために、他の非揮発性放射性物質と比べると施設外への放出量が比較的大きくなる。従って、事故時の公衆被爆の影響を評価する場合には、これら揮発性放射性物質の放出特性の評価が重要となる。日本原子力研究所（現、日本原子力研究開発機構）では、TRACY (Transient Experimental Critical Facility) を用いて、これらの放出機構（ソースターム）及び移行機構を核的出力と関連づけて収集してきた（以下、「TRACY 閉じ込め試験」という。）。

図 4.2-1 に「TRACY 閉じ込め試験」の全体的な流れを示す⁽⁵⁾。「TRACY 閉じ込め試験」では、希ガスやヨウ素等の揮発性放射性核種及び H₂ 等の放射線分解ガスの放出挙動を観察し、放射性物質に関しては溶液から気相への移行率や放出係数のようなソースタームデータの導出を検討しているとしている。さらにこれら実験的に得られた知見を集約し、放射性物質の放出・移行挙動を換気系内の熱流動とリンクして解析することで換気系内での滞留効果を考慮した放射性物質の施設外への放出挙動を評価できる放射性物質移行解析コードの開発・整備を進めてきたとしている⁽⁵⁾⁽⁶⁾⁽⁷⁾⁽⁸⁾。ここでは、日本原子力研究所が実施してきた「TRACY 閉じ込め試験」の概要と研究結果について調査・検討することとした。

4.2.2 「TRACY 閉じ込め試験」の概要

図 4.2-2 に TRACY 試験装置の概要を示す⁽⁵⁾。TRACY 炉心タンクにはベントガスラインが設置しており、ベントガスが循環している。臨界に伴って燃料溶液から気相中に放出された放射性物質と放射線分解ガスは同ラインに流出する。同ラインには、放射性エアロゾル及びヨウ素種の捕集のためのカスケードインパクタ(Mst 及び C)及びメイパックサンプラ(M)と放射線分解ガスの計測のためのガス濃度測定装置が設置してある。Mst サンプラは、1 枚のメンブレンフィルタとミストの捕集を目的とした液溜付きの 4 段のインパクタから、また C サンプラは、1 枚のメンブレンフィルタと液溜が付いていない 7 段のインパクタから構成される。M サンプラは、1 枚のメンブレンフィルタと 5 枚の銀蒸着ろ紙(無機状ヨウ素)と 2 段の硝酸銀添着アルミナベット(有機ヨウ素)から成るヨウ素捕集フィルタエレメントとから構成される。なお Mst 及び C サンプラにもヨウ素捕集フィルタエレメントが装着されている。サンプリングの後、それぞれのサンプラを解体し、 γ 線測定によってそれらに捕集された放射性物質を定量している。放射性物質の量については核データライブラリ⁽⁹⁾を用いて各サンプリング時刻に崩壊補正している。さらに試験前後の溶液中に存在する放射性物質量を同様に γ 線測定により定量しており、溶液から気相への希ガスの放出挙動については、この燃料溶液中の存在量に関する測定結果を用いて評価している。

燃料溶液中の初期ウラン及び硝酸濃度はそれぞれ約 400 g/dm³ 及び 0.7 mol/dm³、また、ベントガスの体積流量は約 0.27 m³/min であった。TRACY では、調整トランジエント棒のランプ引抜きモード(RW、可変反応度添加速度)、パルス引抜きモード(PW)、そしてランプ給液モードの 3 つの異なる反応度添加モードによって燃料溶液に反応度を添加できる。このうち「TRACY 閉じ込め試験」では、燃料溶液の体積をできる限り変えないことを念頭において、RW 及び PW モードの 2 つの反応度添加モードのもとで実施した試験結果を評価対象としている。反応度添加

量については、0.7から2.9\$まで変化させている。

4.2.3 試験結果

(1) 希ガスの放出挙動

「TRACY 閉じ込め試験」では、希ガス核種の燃料溶液相から気相への放出挙動を定量的に把握するため、図4.2-3に示すような計算モデルを用いて希ガス核種の放出挙動を評価している⁽⁵⁾⁽⁷⁾⁽⁸⁾。このモデルでは、核分裂に伴って燃料溶液中に生成した希ガス核種Xは放出係数 ξ_X (1/s)をもって燃料溶液から炉心タンク気相部へ放出され、ベントガスの換気効果に基づく換気系数 ψ (1/s)に依存して炉心タンクからベントガスラインへ流出するものと考えている。これら係数と各核種の放射崩壊定数 λ (1/s)を用いて、燃料溶液中及び炉心タンク気相中の各核種の原子数の経時変化を以下の微分方程式を連立して解くことによって計算している。

(燃料溶液中)

$$dP_{sol}/dt = F_s \times \eta_P + \kappa_P \times \lambda_{P'} \times P'_{sol} - \lambda_P \times P_{sol} \quad \dots \dots (4.2-1)$$

$$dX_{sol}/dt = F_s \times \eta_X + \kappa_P \times \lambda_P \times P_{sol} - (\lambda_X + \xi_X) \times X_{sol} \quad \dots \dots (4.2-2)$$

$$dD_{sol}/dt = F_s \times \eta_D + \kappa_X \times \lambda_X \times X_{sol} - \lambda_D \times D_{sol} \quad \dots \dots (4.2-3)$$

(炉心タンク気相中)

$$dX_{gas}/dt = \xi_X \times X_{sol} - (\lambda_X + \psi) \times X_{gas} \quad \dots \dots (4.2-4)$$

$$dD_{gas}/dt = \kappa_X \times \lambda_X \times X_{gas} - (\lambda_D + \psi) \times D_{gas} \quad \dots \dots (4.2-5)$$

ここで、 F_s (fissions/s)は核分裂率、 κ (-)は分岐比である。下付き添え字P、X及びDはそれぞれ親核種(PはPの親核種)、着目している揮発性核種及び娘核種を意味しているとしている。添字のsol及びgasはその値が燃料溶液中及び炉心タンク気相中の値であることを意味している。さらに以下の、X原子数の減衰とベントガスによる換気効果を消去した微分方程式を連立することで、燃料溶液中及び炉心タンク気相中のX原子の時間積算量を計算している。なお、報告⁽⁵⁾⁽⁶⁾⁽⁷⁾⁽⁸⁾においては直接言及されてはいないが、計算の初期条件としては、これら核分裂生成物は溶液中に存在しないものと仮定しているものと推定される。

(燃料溶液中)

$$dX^*_{sol}/dt = F_s \times \eta_X + \kappa_P \times \lambda_P \times P_{sol} \quad \dots \dots (4.2-6)$$

(炉心タンク気相中)

$$dX^*_{gas}/dt = \xi_X \times X_{sol} \quad \dots \dots (4.2-7)$$

(X原子の溶液から気相への移行率)

$$R_X = (X^*_{gas}/X^*_{sol}) \times 100 \quad \dots \dots (4.2-8)$$

ここで、アスタリスクは時間積算原子数であることを意味する。Rx(%)は、X原子の全生成量に

に対する全放出量として定義される X 核種の溶液から気相への移行率である。その上で、以下の仮定を置くとともに、着目している希ガス核種 X の放出係数 ξ_X をパラメータとして上述の微分方程式を連立して解き、TRACY 試験後の燃料溶液中に存在する希ガス核種の娘核種 D_{sol} について上記の連立計算より計算された値と実測された測定値が一致するまで収束計算し ξ_X と R_X を算出している。

- ① 着目した希ガス核種は、過渡臨界直後に気相中に放出されるものと考え ξ_X を平均値として一定値として取り扱う。
- ② 燃料溶液から気相へ放出される核種は着目している希ガス核種 X のみであり、その他の核種 (P, P' 及び D) は溶液中に残留している。X 核種の親核種に揮発性核種が存在した場合でも、これらの半減期が極めて短いため気相中へは放出されず全量が溶液中に存在する。
- ③ ψ については、TRACY 炉心タンクと同じディメンジョンを有する模擬装置を用いて、装置内のエアロゾルの減衰の経時変化から実験的に求めた 0.016 (1/s) を用いる。

一例として、着目する希ガス核種として ^{140}Xe (半減期 : 13.6 s) を取り上げた場合の評価結果が報告されている⁽¹⁾。 ^{140}Xe の娘核種 D_{sol} としては、信頼性の高い同定を行うのに適当な半減期と比放射能を有する ^{140}Ba (半減期 : 12.8 d) を考慮している。溶液中の ^{140}Ba の原子数の計算値 (過渡臨界後 5 時間後の時点での値) が測定値 (計算値と同様に過渡臨界後 5 時間後の時刻まで崩壊補正を実施した値) と一致するまで収束計算し、 ξ_{Xe} と R_{Xe} を算出した (以下、着目する揮発性放射性核種として Xe を考慮している場合には、X を Xe と表記する。)。2.9\$、PW モード、総核分裂数 5.7×10^{17} の試験条件で得られたデータに関して行った ξ_{Xe} と R_{Xe} の評価結果を図 4.2-4 に示す。 ξ_{Xe} を 2.5 (1/s) とすると計算結果は測定結果と一致し R_{Xe} は 98 (%) と算出されている。

過渡臨界時の燃料溶液内には、放射線分解ガスの生成・放出による気液接触面積の増大や燃料溶液中の攪拌等が生じ、これらの要因は、放射性物質の気相への放出挙動に対して大きく影響するものと予想されるとしている。多くの希ガス核種は、発散 (divergence) が継続している時間中に生成・放出されるため、実験データをもとに評価・算出された ξ_X には、発散を表現する幾つかの炉特性パラメータの情報がしづ寄せされ、かつ含有されているものと推察されるとしている。出力(あるいは核分裂率)の増加割合を表す炉特性として、炉周期 T (s) が用いられる。TRACY の過渡臨界試験から、逆炉周期 (Inverse period) (1/s) (=1/T) とピーク出力の間には比例関係があることが報告されており、このことは、逆炉周期は、出力(あるいは核分裂率)の増加割合の大きさばかりでなく、ピーク出力の大きさをも表現しうる炉特性パラメータであることを意味するものと考えている。「TRACY 閉じ込め試験」では、いくつかの半減期の異なる同位体希ガス核種に着目し、それぞれの同位体についての ξ_X と R_X を求め、これらと逆炉周期の間の相関性を検討している⁽³⁾⁽⁴⁾。評価対象とする希ガス核種としては、 ^{140}Xe と ^{141}Xe (半減期 : 1.73 s) を取り上げている。 ^{141}Xe の ξ_{Xe} と R_{Xe} の評価においては、 D_{sol} として ^{141}Ce (半減期 : 32.5 d) を考慮し、 ^{140}Ba と同様に上述の連立微分方程式を計算値と試験終了後の測定値が一致するまで収束計算することで、 ^{141}Xe の ξ_{Xe} と R_{Xe} を求めている。このように評価・算出した ^{140}Xe と ^{141}Xe の ξ_{Xe} を TRACY 各試験における逆炉周期に対してプロットしたものを図 4.2-5 に

示す。逆炉周期が 1 1/s 以下の場合には、 ξ_{Xe} は逆炉周期の増大に伴って急激に上昇したとしている。半減期のより短い ^{141}Xe では、逆炉周期が 100 1/s 程度に対して、 ξ_{Xe} は約 5 1/s、また、 R_{Xe} は約 90% と評価されている。一方で、この同じ逆炉周期に対する ^{140}Xe の ξ_{Xe} は ^{141}Xe の ξ_{Xe} と比べて、約 2 衍小さく評価されている。この点に関しては、 ^{141}Xe の半減期は ^{140}Xe の半減期よりも相対的に短いために、 ^{141}Xe は過渡臨界直後の激しい溶液内の攪拌効果等の動的現象の影響をより大きく受け、その結果、 ^{140}Xe よりも放出が促進されたためであると推測している。

(2) ヨウ素の放出特性

「TRACY 閉じ込め試験」では、燃料溶液臨界時のヨウ素の放出挙動についても、(1)で述べた希ガスと同様のモデル（図 4.2-3 参照）を適用することで、評価を行っている⁽²⁾⁽³⁾⁽⁴⁾。希ガス核種については、試験後の燃料溶液に残存する希ガス核種の娘核種の存在量にかかる測定結果を用いることで、 ξ_{Xe} や R_{Xe} を評価している。それに対してヨウ素に関しては、図 4.2-2 に示したように、ベントガス気相をサンプリングすることで気相中のヨウ素量の経時変化を観察することができるため、このサンプリングデータを用いることでヨウ素の ξ_I と R_I を直接計算している。すなわち、各サンプリング時刻における炉心タンク気相中のヨウ素存在量実測値をもとに、各実測値間の時間変化が以下の式で表現されるものと仮定している。

(炉心タンク気相中)

$$I_{\text{gas}} (= X_{\text{gas}}) = \alpha \times \exp(\beta \times t) \quad \dots \quad (4.2-9)$$

$$dI_{\text{gas}}/dt = \alpha \times \beta \times \exp(\beta \times t) \quad \dots \quad (4.2-10)$$

まず、 α 及び β をヨウ素の各サンプラ時刻における炉心タンク気相中のヨウ素の原子数の実測値を用いて求め、この式と、(1)で述べた微分方程式を連立して解くことで、 ξ_I と R_I の経時変化を求めている。このように求められた ^{133}I (半減期 : 20.8 h) の R_I の経時変化の一例を図 4.2-6 に示す。図 4.2-6 には、反応度添加量としては 1.5% とし、調整トランジエント棒を燃料溶液から引き抜いた直後に再挿入し臨界を速やかに収束させた場合と調整トランジエント棒を燃料溶液中に再挿入せず臨界状態を継続させた場合の比較を行っている。総核分裂数は前者の場合で 3×10^{17} 、後者の場合で 8.5×10^{17} であったとしている。また、過渡臨界から 4.5 時間後における R_I は、前者の条件で約 0.2 %、また、後者の条件で約 0.9 % となったとしている⁽⁴⁾。ヨウ素の気相への放出は燃料溶液温度の上昇や放射線分解ガス気泡の形成による気液表面積の増大に伴って促進されると考えられるとしている。調整トランジエント棒を再挿入せず臨界状態を継続させた場合の過渡臨界から 4.5 時間後における燃料溶液の温度は約 60 °C であり、調整トランジエント棒を再挿入し臨界状態を速やかに収束させた場合の温度よりも約 1.7 倍高かった。また、同時刻でのベントガス中の水素（放射性分解ガス）濃度は同様に約 4.1 倍高く、これにより前者では後者と比べて、燃料溶液中に放射線分解ガス気泡の存在量が多かったことが推測されるとしている。図 4.2-6 に示された R_I の相違はこれらの要因によるものと考えている。なお、「TRACY 閉じ込め試験」では、他の同位体である ^{131}I (半減期 : 8.02 d) についても同様の評価を実施しており、 ^{133}I と同様の評価結果が得られているとしている。

図 4.2-6 には、より基礎的なヨウ素の放出挙動を観察するために TRACY 試験の他に実施して

いる「小規模基礎試験」から得られた結果についても言及されている。図 4.2-7 に「小規模基礎試験」に用いている装置の概要を示す⁽¹⁰⁾。「小規模基礎試験」では、溶液中のヨウ素濃度、酸濃度や溶液温度等のいくつかの基礎的条件をパラメータとして溶液からのヨウ素の放出特性を評価することを目的としているとしている。TRACY 試験では、溶液中のヨウ素は核分裂によってのみ生成するため溶液中の存在量は約 10^{-9} mol/dm³ 程度と見積もられるとしている。図 4.2-7 には TRACY 試験条件よりも極めて高いヨウ素濃度を用いた場合の測定結果が示されている。その結果溶液から気相への移行率は、溶液へのヨウ素の添加時刻から約 4.5 時間後で約 4%となり TRACY 試験結果より高い値となったとしている。ヨウ素の放出に対しては、放射線照射や溶液温度、あるいは放射線分解ガス気泡による溶液攪拌効果等が重要な因子として働くために、より高い放射線照射条件や溶液温度条件あるいは溶液攪拌効果によってヨウ素の放出は促進されるものと考えられるとしている。今回の試験条件の範囲では、溶液中のヨウ素の質量効果がヨウ素の放出に対してより支配的であったものと考えられるとしている。

4.2.4 試験結果に対する検討

上述のように「TRACY 閉じ込め試験」では、臨界時の希ガスの放出係数と逆炉周期との関係を観察している。放射線分解ガス気泡への希ガスの物質移動を考慮した希ガスの放出機構のモデル化⁽⁵⁾をさらに進めることにより、希ガスの放出特性と核的な動特性解析とを結びつけた評価が可能となるものと考える。

「TRACY 閉じ込め試験」で得られたヨウ素の放出率は、4.1 に述べた R.G.3.33 において示されている値（臨界で生じた核分裂生成物及び使用済燃料中に存在した核分裂生成物のうちヨウ素の 25%が直接セル雰囲気に放出と仮定）よりも低かった。「TRACY 閉じ込め試験」で得られた基礎的なヨウ素の放出特性データを何らかの具体的な施設情報に基づく施設の閉じ込め評価に適用するためには、溶液から放出される化学組成の変動や炉心タンク内気相部での水分の影響等についても考慮した上で、ヨウ素種の壁面への沈着速度に関する実験データを取得していくことが重要と考える。

4.3 4 章のまとめ

臨界事故時の揮発性核分裂生成物の気相への移行率について、安全評価における設定値とその根拠について概観するとともに、TRACY での実験結果について調査・検討を行った。

旧日本原子力研究所が実施してきた「TRACY 閉じ込め試験」では、燃料溶液における臨界事故時の公衆被爆の影響を評価する場合に重要となる、希ガス及びヨウ素の放出特性データの取得及び評価が行われてきた。TRACY 炉心タンク内における燃料溶液から気相へのこれら放射性物質の放出係数 α 及びベントガスによる炉心タンク気相部の換気系数 ψ を考慮することで、燃料溶液及び気相中におけるこれら放射性物質の各存在量の経時変化を表す微分方程式を立て、これらを連立して解くことで各存在量の経時変化を評価するとともに、実測値とフィッティングすることで、各放射性物質の移行率を導出している。放射線分解ガス気泡への希ガスの物質移動を考慮した希ガスの放出機構のモデル化⁽⁵⁾をさらに進めることにより、希ガスの放出特性と核的な動特性解析とを結びつけた評価が可能となるものと考える。またヨウ素に関しては、溶液から放出さ

れる化学組成の変動や炉心タンク内気相部での水分の影響等についても考慮した上で、ヨウ素種の壁面への沈着速度に関する実験データを取得していくことが重要と考える。

参考文献

- (1) J.E.Ayer, et al., "Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook", NUREG-1320, May 1988.
- (2) "Assumptions used for evaluating the potential radiological consequences of accidental nuclear criticality in a fuel reprocessing plant" U.S. Nuclear Regulatory Commission, Regulatory Guide 3.33 (1977)
- (3) "Assumptions Used for Evaluating the Potential Radiological Consequences of a Loss of Coolant Accident for Boiling Water Reactors" U.S. Nuclear Regulatory Commission, Regulatory Guide 1.3 (1974)
- (4) "CALCULATION OF DISTANCE FACTORS FOR POWER AND TEST REACTOR SITES", U.S. A.E.C., TID-14844 (1962)
- (5) 阿部、他、"燃料溶液過渡臨界事故時における放射性希ガスの放出挙動の検討(受託研究)"、JAERI-Research 2001-027 (2001年3月) .
- (6) H.Abe, et al., "Studies on Source Term Release Behavior from Fuel Solution under Simulated Nuclear Criticality Accident", ICNC'99 Proceeding Vol.3 p1293-1302 (1999.9).
- (7) H.Abe, et al., "Source term on release behavior of radioactive materials from fuel solution under simulated nuclear criticality accident", ANS NCSD Topical Meeting full paper (2001.11).
- (8) H.Abe, et al., "Study on Safety Evaluation for Nuclear Fuel Cycle Facility under Fire Accident Conditions", JAERI-Conf 2005-007 (2005.8).
- (9) K.TASAKA, et al., "JNDL Nuclear Data library of Fission products -Second Version-", JAERI 1320 (1990).
- (10) 平成15年度 日本原子力研究所年報 (2004年11月) .

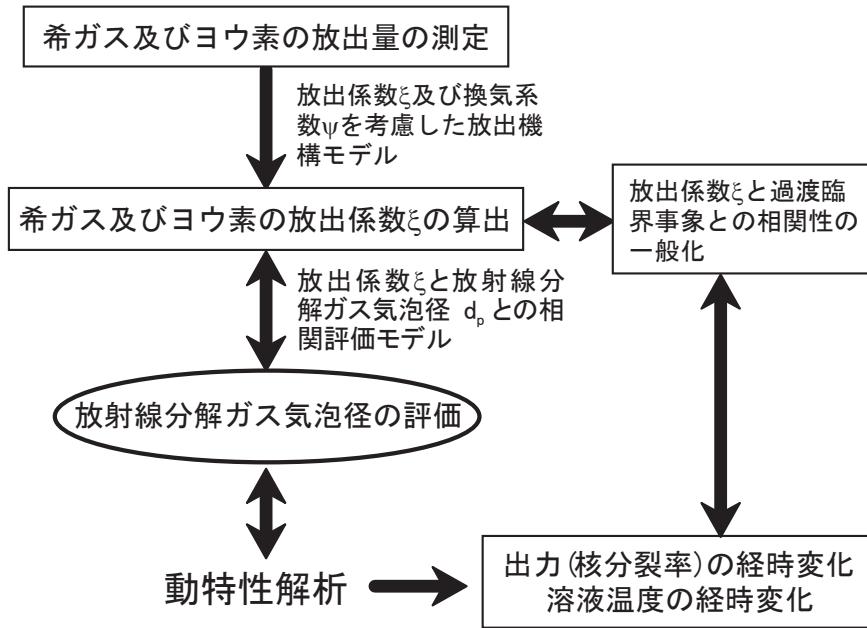


図 4.2-1 「TRACY 閉じ込め試験」における全体的な流れ（参考文献(1)より転載）

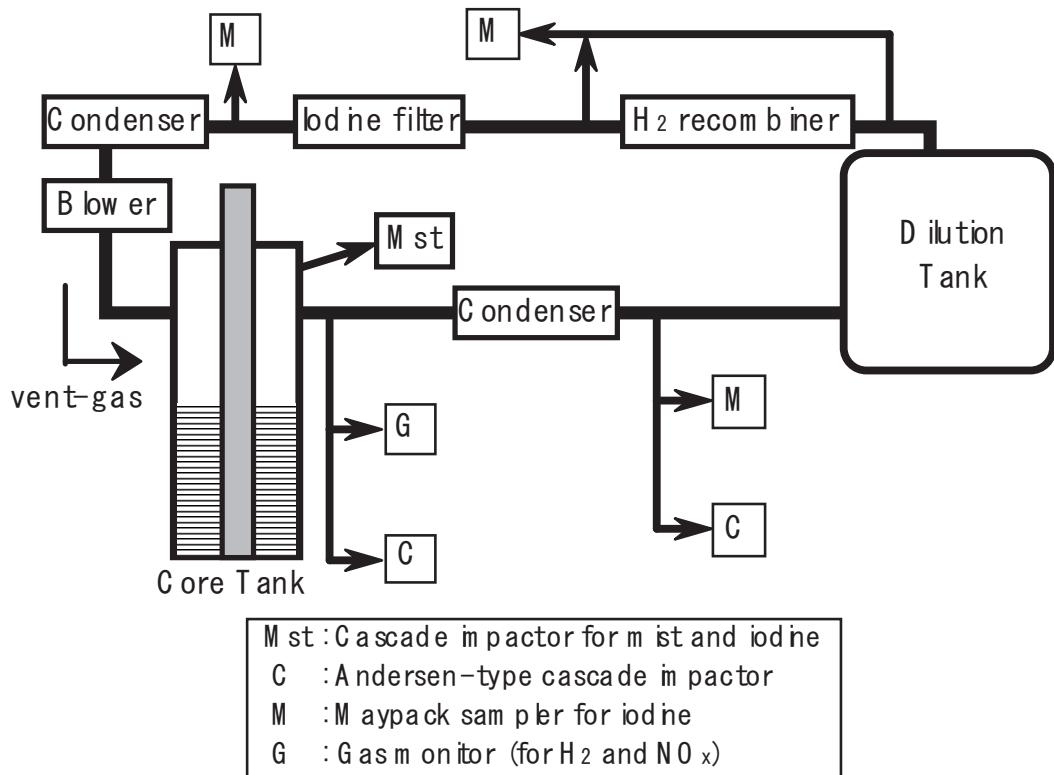


図 4.2-2 「TRACY 閉じ込め試験」に用いた試験装置の概要（参考文献(1)より転載）

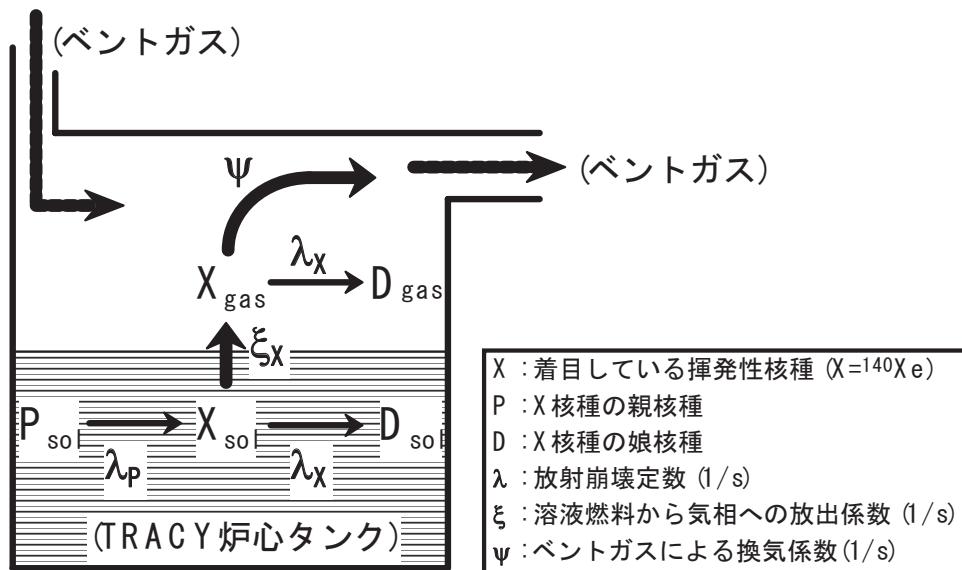


図 4.2-3 「TRACY 閉じ込め試験」における揮発性放射性物質の放出挙動評価モデルの概要 (参考文献(1)より転載)

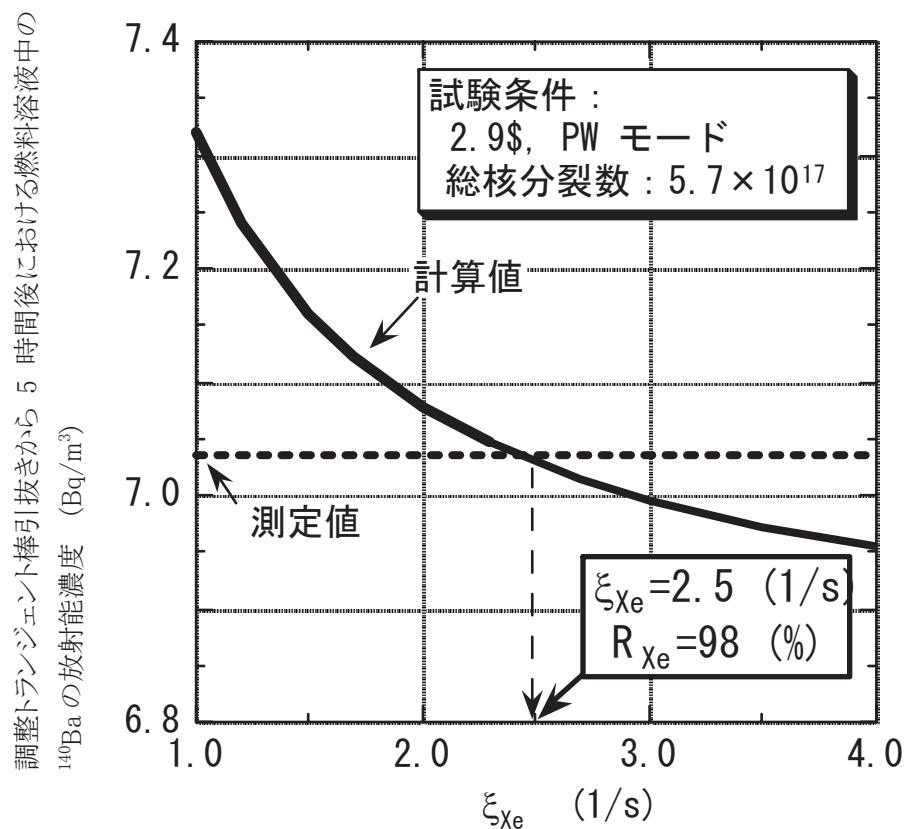


図 4.2-4 ξ_{Xe} と R_{Xe} の評価結果例 (参考文献(1)より転載)

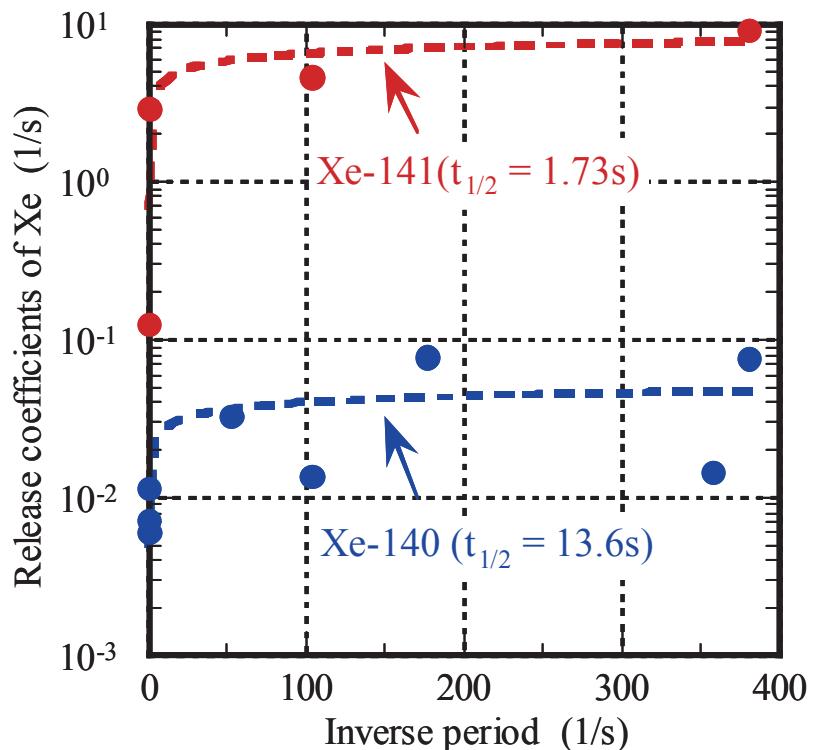
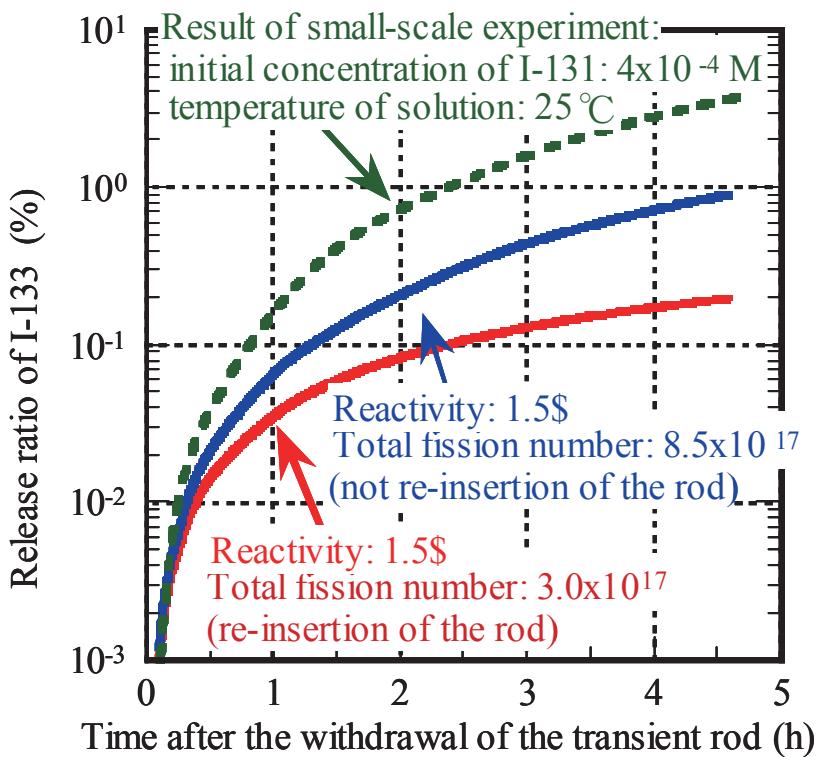
図 4.2-5 ξ_{Xe} 評価結果と逆炉周期の関係 (参考文献(3)(4)より転載)

図 4.2-6 ヨウ素の溶液から気相への移行率評価結果例 (参考文献(4)より転載)

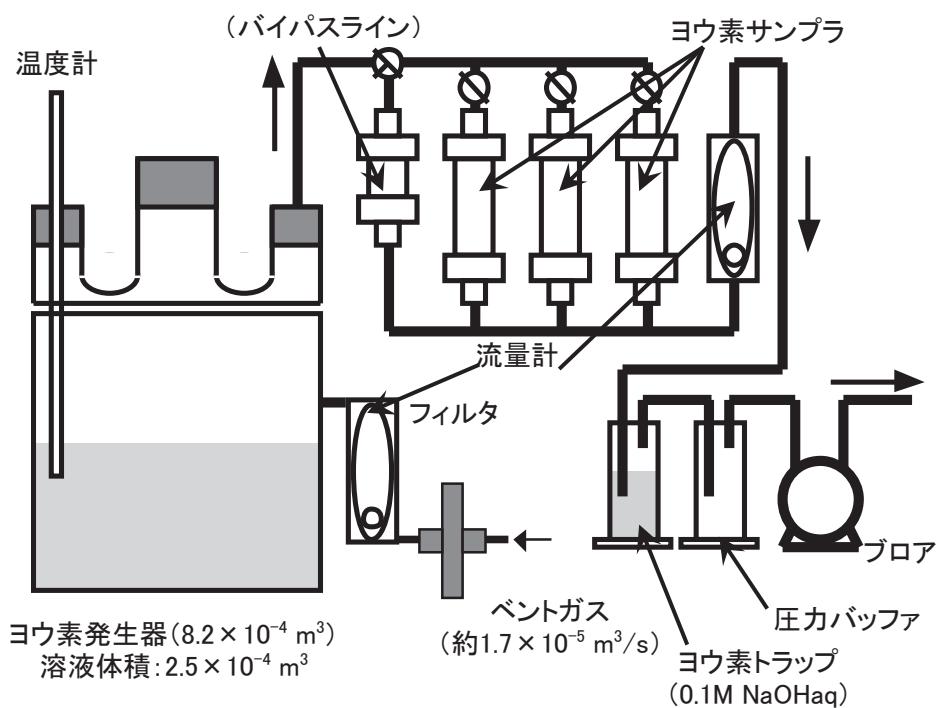


図 4.2-7 「小規模基礎試験」で用いられる試験装置の概要 (参考文献(6)より転載)

5. 溶融ガラスの誤流下における核分裂生成物の移行割合に関する調査

六ヶ所再処理施設の事業指定申請書の添付書類八では、「運転時の異常な過渡変化を超える事象」の1つとして「高レベル廃液ガラス固化設備での溶融ガラスの漏えい」を評価している。評価では、保守側な核分裂生成物（FP : Fission Products）移行割合（Ru、Cs : 100%、その他 : 10%）を用いているが、評価結果は実効線量当量が $4.1 \times 10^{-2} \text{ mSv}$ となり、判断基準の 5 mSv を十分下回っている。

この評価は、溶融ガラスからの FP 移行割合に関する文献データが乏しいこと、線量評価結果が小さいことから保守側の評価を行ったものである。しかしながら、今後のリスク評価においては、溶融ガラスの漏えいに係る事象のリスクが全体のリスクに対して無視できない可能性も考えられる。

本章では、添付書類八の、「運転時の異常な過渡変化を超える事象」の評価における移行割合の設定根拠、設定に係る関連文献等を整理するとともに、より現実的な移行割合データとして

- ① ガラス溶融炉から廃ガスへの FP 移行割合に関するデータ
- ② 溶融ガラスからの FP の揮発性に関するデータ

について文献調査を行い、評価への適用性について検討した。

5.1 「高レベル廃液ガラス固化設備での溶融ガラスの漏えい」の評価の概要

(1)概要

ガラス溶融炉（ガラス原料と高レベル廃液を約 $1100\sim1200^{\circ}\text{C}$ で溶融混合）の下の固化セル移送台車上にガラス固化体容器がない状態で溶融ガラスが誤流下（ガラス固化体2本分）することを想定している（図 5.1-1 参照）。溶融ガラスに含まれる放射性物質のうちルテニウム及びセシウムについては 100%が、その他の核種については 10%が固化セル雰囲気中に移行することを仮定している。固化セル排気系の DF として、ルテニウムに対しては、洗浄塔及びルテニウム吸着塔の DF5000 を、その他の核種については、高性能粒子フィルタ 2段の DF10⁵ を考慮している。

(2)漏えいした放射性物質の移行割合設定の根拠

溶融ガラス漏えい時の気相への FP 移行割合に係る文献が存在しないことから、安全評価においては、以下のとおり保守側に設定されている。

- ・ 溶融ガラスに含まれる放射性物質のうち、Ru、Cs、Tc など溶融ガラス温度付近（約 1100°C ）で蒸気圧の高い元素については、移行割合を保守側に 100% としている。
- ・ その他の揮発し難い核種については、揮発性核種の移行割合 100%に対し、1/10 である 10% としている。1/10 の根拠は、平常時のガラス溶融炉から高レベル廃液ガラス固化廃ガス処理設備への揮発性核種の移行割合とその他揮発し難い核種の移行割合の比により算出されている。すなわち、揮発性核種の中で最も移行割合の低い Cs : 5 %に対し、その他揮発し難い核種の移行割合 0.5%に基づき設定されている。

5.2 溶融ガラスからの核分裂生成物の移行割合の参考となる文献データの調査

高レベル廃液等の溶液の漏えい事象においては、放射性物質の移行のメカニズムとして流下時の飛沫発生（エアロゾル発生）を考慮している。一方、溶融ガラスの漏えい事象においては、溶融ガラスからの放射性物質の揮発が重要となる。リスク評価における溶融ガラスからの FP 移行割合の参考とできる文献としては、以下の 2 種類がある。

- ① ガラス溶融炉から廃ガスへの FP 移行割合に関するデータ
(移行割合が最も大きい主要核種は Ru)
- ② 溶融ガラスからの FP の揮発性に関するデータ
(移行割合が最も大きい主要核種は Cs)

以下、①②について、文献調査結果等を記す。

5.2.1 ガラス溶融炉から廃ガスへの FP 移行割合に関するデータ

平常時のガラス溶融炉から廃ガス中への移行割合に関する文献データとして、旧動力炉・核燃料開発事業団のガラス固化技術開発施設（TVF）のモックアップ試験結果⁽¹⁾、及びベルギーモルユーロケミックサイトの PAMERA ガラス固化プラントにおける測定結果⁽²⁾⁽³⁾が報告されている。これらの 3 つの文献について、ガラス固化廃ガスに関する部分を紹介する。

- (1) 高橋、間野、大鷹、「ガラス固化モックアップ試験によるスクラバ及びデミスタの性能試験」、PNC TN1410 91-033(1991)⁽¹⁾

a. 概要

高レベル放射性廃液のガラス固化処理に伴い発生するオフガス中の放射性物質に対するオフガス処理機器の除去性能を確認するため、モックアップ試験設備において、高レベル廃液を模擬した廃液を用いた試験を実施している。この試験により、ガラス溶融炉からの元素の移行割合、スクラバ、デミスタの除去性能を確認している。

b. 試験装置及び試験方法

モックアップ試験設備の概略を図 5.2-1 に示す。模擬廃液は濃縮器で濃縮し、フィルターカートリッジ状ガラス原料に含浸した後、ガラス溶融炉へ供給している。ガラス溶融炉への模擬廃液の供給速度は、供給槽の液位変化から計算した模擬廃液の減少速度として測定し、その値と模擬廃液中に着目する元素の濃度からガラス溶融炉への元素の供給量を求めている。ガラス溶融炉からの元素の移行量は、各オフガス処理機器での元素の捕集総量から求め、ガラス溶融炉からの元素の移行割合は捕集総量とガラス溶融炉への供給量との比から求めている。

c. 試験条件及び試験結果

ガラス溶融炉の試験条件及びガラス溶融炉からオフガス中への元素の移行割合を表 5.2-1 に示す。

- (2) K.D.Kuhn et al., “New Findings in Designing an Offgas System for the WACKERSDORF Reprocessing Plant”, RECOD’87, August (1987)⁽³⁾

a. 概要

西独のバッカスドルフ再処理工場の建設に当たり、WAK、PAMELA プラント等で得られた廃ガス処理系（溶解槽オフガス、塔槽類オフガス、ガラス固化オフガス）の除染係数等の測定結果をまとめたものである。

b. 測定結果

高レベル廃液は、約 1100°C～1150°C のガラス溶融炉に直接供給され、蒸発、脱硝、仮焼及びガラス固化が 1 つの工程で行われる。PAMELA プラントで行われガラス溶融炉（セラミックメルタ）での除染係数の測定結果を表 5.2-2 に示す。参考のため、除染係数を移行割合に換算した結果を表 5.2-3 に示す。

(3) G.Hohlein, et al., "Vitrification of High Level Radioactive Waste Operating Experience with the PAMELA Plant", Waste Management '86, Vol.2, 413 (1986)⁽³⁾

a. 概要

西独のカールスルーエ原子力研究センターで行われた PAMELA ガラス固化プラントの実廃液試験の結果をまとめたものであり、PAMELA ガラス固化プラントの概要、試験結果等を報告している。

b. 測定結果

PAMELA ガラス固化プラントは、液体供給式直接通電加熱セラミックメルタによるガラス固化プロセスで、1985 年 10 月 1 日にホット試験を開始している。高レベル廃液及びほうけい酸ガラスのフリット（ビーズ）は、直接ガラス溶融炉へ供給される。溶融したガラスの上で、水分、硝酸が蒸発し、残った塩は仮焼されて酸化物となり、約 1150°C で溶融されたガラス中に取り込まれている。1985 年 10 月 1 日～12 月 4 日の第 1 キャンペーンでは、22.7m³ の高レベル廃液を処理し、30.6 トンのガラスを製造している。このキャンペーンで、 α 、 β 及び Cs-137 の放射能に対する廃ガス処理系の除染係数が測定され、表 5.2-4 の結果が得られている。参考のため、除染係数を移行割合に換算した結果を表 5.2-5 に示す。

これらの文献データのうち、ガラス固化技術開発施設 (TVF) のモックアップ試験結果⁽¹⁾を参考に、溶融ガラスからの移行割合を設定した例を表 5.2-6 に示す。ガラス溶融炉から廃ガス中の移行割合は、高レベル濃縮廃液の蒸発に伴う移行も含まれており、溶融ガラスの漏えい時の移行割合に比べ大きく、リスク評価で使用する際には、結果が過大評価（保守側）となることに留意する必要がある。なお、表 5.6 に示す値は、漏えいした溶融ガラスからの移行割合としては、過大な値であるが、六ヶ所再処理施設の事業指定申請書の添付書類八の「高レベル廃液ガラス固化設備での溶融ガラスの漏えい」の評価で用いられている移行割合に比べると、Tc を除き、数分の 1 から 1/10 程度以下の値である。

5.2.2 溶融ガラスからの FP の揮発性に関するデータ

固化ガラスを 1200°C 程度まで加熱し、ガラスからの FP の揮発性について測定した文献を 2 件紹介する。

- (1) W.J.GRAY, "Volatility of Some Potential High-Level Radioactive Waste Forms," Radioactive Waste Management Vol.1(2), pp.147-169, (1980)⁽⁴⁾

4種類のガラス固化体及び3種類の煅焼体の合計7つ(表5.2-7参照)について、1073～1573Kの範囲で揮発による移行割合を測定している。試験装置を図5.2-2に示す。2gガラス固化体を「るつぼ(断面積200mm²)」に入れて加熱する。空気を上から下に流し、揮発した成分をCold-Fingerで捕獲し成分分析するとともに、重量の減少を連続測定している。空気の流量は0.028m³/hである(0.025～0.084 m³/hの範囲で影響を確認した結果、移行割合への空気流量の影響はなかった)。試験結果の例として72-68ガラスに対する結果を図5.2-3及び図5.2-4に示す。揮発量は時間に関して \sqrt{t} あるいはtの形である。温度については、どの核種もほぼ同じ傾きである(気化熱は同様である)。結論として以下が記載されている。

- ・ 挥発による移行割合はガラスの粘性と強い相関がある。
- ・ 気化熱はすべての揮発性核種とも同様であり、揮発性が同じメカニズムに支配されていることが推測される。
- ・ 空気中の湿分が増えると移行割合が増加する。
- ・ ガラスからの移行割合が最も大きい核種はCsである。

- (2) H.KAMIZONO, et al., "Volatilization of ¹³⁷Cs and ¹⁰⁶Ru from Borosilicate Glass Containing Actual High-Level Waste," J. American Ceramic Society, Vol. 72, No. 8, 1438-40, (1989)⁽⁵⁾

高レベルガラス固化体からの放射性物質の揮発性の把握を目的とした試験であり、実廃液を少量混ぜた模擬ガラス固化体(表5.2-8参照)を作成し、400℃～1000℃の範囲でCs及びRuの揮発性を測定している。試験装置を図5.2-5に示す。ガラス固化体のキャニスターを模擬したステンレス製1リットル容器(内径8.1cm、高さ24.4cm)に250cm³のガラス固化体(Cs-137:1.0×10¹²Bq, Ru-106:1.7×10¹¹Bq)を作成し、温度を階段上に上昇させ(図5.2-6参照)、気相部のCs及びRu濃度をサンプリングにより測定している。温度を変えると、気相部の放射能濃度が短時間で飽和状態(平衡状態)に達することから(図5.2-7参照)、放射性物質の移行のメカニズムを以下のように推定している(図5.2-8参照)。

- ① 気相への移行は2段階の過程からなり、1つは、ガラス中の拡散によるガラス表面への移動過程であり、もう1つは、ガラス表面での酸化反応等の化学反応により揮発性物質になる過程である。揮発性物質としては、CsBO₂、RuO₄を例示している。
- ② 気相からの消滅の過程としては、3つの過程が平行して進む。1つは、蒸気(揮発性物質)がガラス表面への沈着するもの、もう1つは、気体中で微粒子を生成しガラス表面に沈降するもの、3つめは、蒸気(揮発性物質)がキャニスター内壁に沈着するものである。

測定結果は、気相部の放射能濃度をガラス中の放射能濃度で除した相対値で整理している。測定結果を図5.2-9に示す。結論として以下が記載されている。

- ・ Cs-137の揮発性は、温度とともに上昇し、活性化エネルギー140kJ/mol(6)とよく一致。
- ・ Ru-106の揮発性は、600℃、800℃においてCs-137の揮発性の約1/5である。1000℃において

ては、Ru-106 の気相中の濃度は検出限界未満であった。Ru と酸化ステンレスとの反応、あるいは RuO₄ の分解の可能性がある。

以上の 2 件の文献データは、限定された規模、体系（小規模のルツボ、キャニスタを模擬した容器）で測定されたデータであり、リスク評価の際の移行割合に適用する際には、実験と事故想定の状態との相違に留意する必要がある。

5.3 溶融ガラスからの移行割合の試算

5.2.2 で調査した文献データを用いて、漏えいした溶融ガラスからのセシウムの移行割合を試算し、文献データの適用性及び評価上の課題を抽出する。試算に当たっては、紹介した 2 つの文献から得られる以下の知見を利用する。

- ①溶融ガラスからの移行割合は、温度に対して大きな感度を持つ。
- ②ガラス表面気相部濃度／ガラス中濃度には温度で一意的に決まる平衡関係が存在するものと推定される。（図 5.2-9 中の Previous work は、文献(5)と同じ寸法のキャニスタで、異なる量のガラス（430c ガラス表面気相部濃度／ガラス中濃度 m³）(6) を用いた試験であるが結果はよく一致している。）

試算に際しては以下を仮定した。

- ①セシウムについてのガラス表面気相部濃度／ガラス中濃度の平衡関係は、図 5-10 の直線から下式を用いる。

$$\ln K = -18870 / (T + 273.15) + 6.07$$

ここで、

K : ガラス表面気相部濃度／ガラス中濃度

T : ガラス温度 (°C)

- ②揮発したガス状のセシウムの移動を、物質伝達率を用いて下式で表す。

$$\dot{A} = h_D \cdot C_V$$

ここで、

\dot{A} : 移動速度 (Bq/m²·s)

h_D : 物質伝達率 (m/s) = 0.02 m/s

(物質伝達と熱伝達の間にアナロジが成立するものと仮定して自然対流熱伝達の Nu 相関式より算出しました。拡散係数は 100 mm²/s を仮定)

C_V : ガラス表面気相部の放射能濃度 (Bq/m³)

- ③漏えいした溶融ガラスの温度は、堆積高さ（深さ）を仮定して 1 次元熱伝導で計算。表面から輻射及び自然対流により放熱するものと仮定。

試算結果を図 5.3-1 に示す。漏えいした溶融ガラスの堆積高さ（深さ）を 5cm と仮定した場合のセシウムの移行割合の試算の結果、評価上の課題として以下のようなものが抽出される。

- ①溶融ガラスからのセシウムの移行割合は、ガラス温度が高い漏えい直後の移行によって支配

される。このため、漏えいした溶融ガラスの温度低下への感度が極めて大きく、また、漏えいした溶融ガラスがどのように広がるか（堆積するか）にも大きく依存する。

- ② 文献から設定した気相濃度／ガラス濃度の平衡関係をガラス表面温度で計算した場合と、表面から 1cm の温度で計算した場合で結果が大きく異なる。ガラス中に温度勾配がある場合の揮発性に関するデータが不足しており、計算の不確かさが大きい。

5.4 5 章のまとめ

溶融ガラスからの FP 移行割合に関連する文献を調査するとともに、溶融ガラス漏えい時の移行割合評価への適用性を検討した。検討結果は以下のとおりである。

- ① 平常時のガラス溶融炉から廃ガス中への FP 移行割合を参考に、溶融ガラスからの移行割合を設定することができる。ただし、この移行割合には、高レベル濃縮廃液の蒸発に伴う移行も含まれており、溶融ガラスの漏えい時の移行割合に比べ大きく、リスク評価で使用する際には、結果が過大評価（保守側）となることに留意する必要がある。
- ② 溶融ガラスからの FP の揮発性に関する文献データを基に、漏えいした溶融ガラスからの FP 移行割合を計算することができる。ただし、文献データが、限定された規模、体系（小規模のルツボ、キャニスターを模擬した容器）で測定されたデータであり、リスク評価の際の移行割合に適用する際には、実験と、事故想定の状態との相違に留意する必要がある。また、漏えいした溶融ガラスの温度低下への感度が極めて大きく、漏えい後の温度低下の評価結果の不確かさ等にも留意する必要がある。
- ③ 平常時のガラス溶融炉から廃ガス中への FP 移行割合、溶融ガラスからの FP 揥発性について文献を調査したが、漏えいした溶融ガラスからの FP 移行割合にそのまま適用できるデータは見当たらなかった。今後のリスク評価において、より現実的な評価（不確かさに伴う保守側の想定を低減した評価）が必要となった場合には、実験により、適用可能な移行割合のデータを取得することも有効である。

参考文献

- (1) 高橋、間野、大鷹、「ガラス固化モックアップ試験によるスクラバ及びデミスタの性能試験」、PNC TN1410 91-033(1991)
- (2) K.D.Kuhn et al., "New Findings in Designing an Offgas System for the WACKERSDORF Reprocessing Plant", RECOD'87, August (1987)
- (3) G.Hohlein, et al., "Vitrification of High Level Radioactive Waste Operating Experience with the PAMELA Plant", Waste Management '86, Vol.2, 413 (1986)
- (4) W.J.GRAY, "Volatility of Some Potential High-Level Radioactive Waste Forms," Radioactive Waste Management Vol.1(2), pp.147-169, (1980)
- (5) H.KAMIZONO, et al., " Volatilization of ^{137}Cs and ^{106}Ru from Borosilicate Glass Containing Actual High-Level Waste," J. American Ceramic Society, Vol. 72, No. 8, 1438-40, (1989)
- (6) H.KAMIZONO, et al., " Volatilization of Cesium from Nuclear Waste Glass in a Canister," Nuclear Technology, Vol. 72, 84-88, (1986)

表 5.2-1 ガラス溶融炉から廃ガスへの FP 移行割合測定結果 (参考文献(1)より転載)

	試験 A	試験 B	試験 C	試験 D	試験 E	試験 F	試験 G	試験 H	
模擬廃液の硝酸濃度 (moL/L)	5	5	7	6	6	6	6	6	
模擬廃液供給速度 (L/h)	20.8	20.8	20.8	20.8	10	14.6	14.6	14.6	
カートリッジ供給速度 (kg/h)	9.4	9.4	9.4	9.4	4.5	6.6	6.6	6.6	
供給時間(h)	21	19	22	11	10	23	25	12	
廃液供給開始以降の ガラス溶融炉上部空間 温度の変化(℃)	460～280	530～340	650～290	880～530	620～640	600～470	510～430	590～430	
移行率	Ru	0.15	0.11	0.11	0.17	0.21	0.19	0.19	
	Cs	1.5×10^{-2}	1.6×10^{-2}	4.8×10^{-3}	1.6×10^{-2}	2.7×10^{-2}	1.2×10^{-2}	1.2×10^{-2}	4.4×10^{-3}
	Sr	1.6×10^{-3}	1.8×10^{-3}	3.5×10^{-4}	3.1×10^{-4}	3.2×10^{-4}			2.9×10^{-4}
	Ce	1.7×10^{-3}		9.0×10^{-5}					3.0×10^{-4}
	Zr	2.9×10^{-3}		2.1×10^{-4}					
移行量(g/h)	Ru	10.7	7.6	7.9	12.5	7.4	9.5	9.5	
	Cs	1.4	1.4	0.42	1.4	1.2	0.76	0.75	0.27
	Sr	5.3×10^{-2}	5.9×10^{-2}	1.1×10^{-2}	9.7×10^{-3}	5.0×10^{-3}			6.5×10^{-3}

表 5.2-2 ガラス溶融炉から廃ガスへの FP 移行に関する DF 測定結果 (参考文献(2)より転載)

WAK		Ru	
components			
dissolver		$> 10^5$	
1W evaporator		$> 10^4$	
HEPA filter (DOG)		$> 10^4$	
overall (feed solution to stack)		$> 10^{10}$	
PAMELA		Ru	Tc
components			β
ceramic melter		8.5	2.2
wet offgas cleaning system offgas system (melter-jet scrubber)		300	400
		2600	870
overall		-	$> 10^{13}$

表 5.2-3 参考文献(2)の除汚係数 (表 5-2 参照) をもとに算出した移行割合

核種	除染係数	移行割合
Ru	8.5	0.12
Tc	2.2	0.45
β	65	0.015

表 5.2-4 ガラス溶融炉から廃ガスへの FP 移行に関する D F 測定結果（参考文献(3)より転載）

System	α -total	β -total	Cs 137
Melter	576	63.9	26.5
Wet off-gas treatment I (Dust scrubber, Condenser, Jet scrubber)	78.5	63.7	61.3
Wet off-gas treatment II (NO _x -absorber)	-1)	25	-1)
Glass fiber filter (HEME)	-	2000	-
HEPA-filters (2)	-	> 2.5 E5	-
Total DF from single DFs	-	> 5.8 E13	-
Total DF feed to stack (direct measurement based on measuring filter before the stack)	1.6 E13	6 E14	6 E14

1) Values not available

表 5.2-5 参考文献(3)の除汚係数（表 5.2-4 参照）をもとに算出した移行割合

核種	除染係数	移行割合
α	576	0.0017
β	63.9	0.016
Cs-137	26.5	0.038

表 5.2-6 ガラス溶融炉から廃ガスへの移行割合を参考とした
溶融ガラスからの移行割合の設定例

核種	ガラス溶融炉から廃ガスへの移行割合（文献値 ⁽¹⁾ ）	リスク評価で用いる溶融ガラスからの移行割合（例）
Tc	0.45	0.45
Ru	0.11～0.15	0.15
Cs	0.0048～0.038	0.038
Sr, Ce, アクチノイド	0.00009～0.0018	0.0018
その他 FP	0.015～0.016	0.016

表 5.2-7 FP 移行割合の測定に用いた廃棄物組成（参考文献(4)より転載）

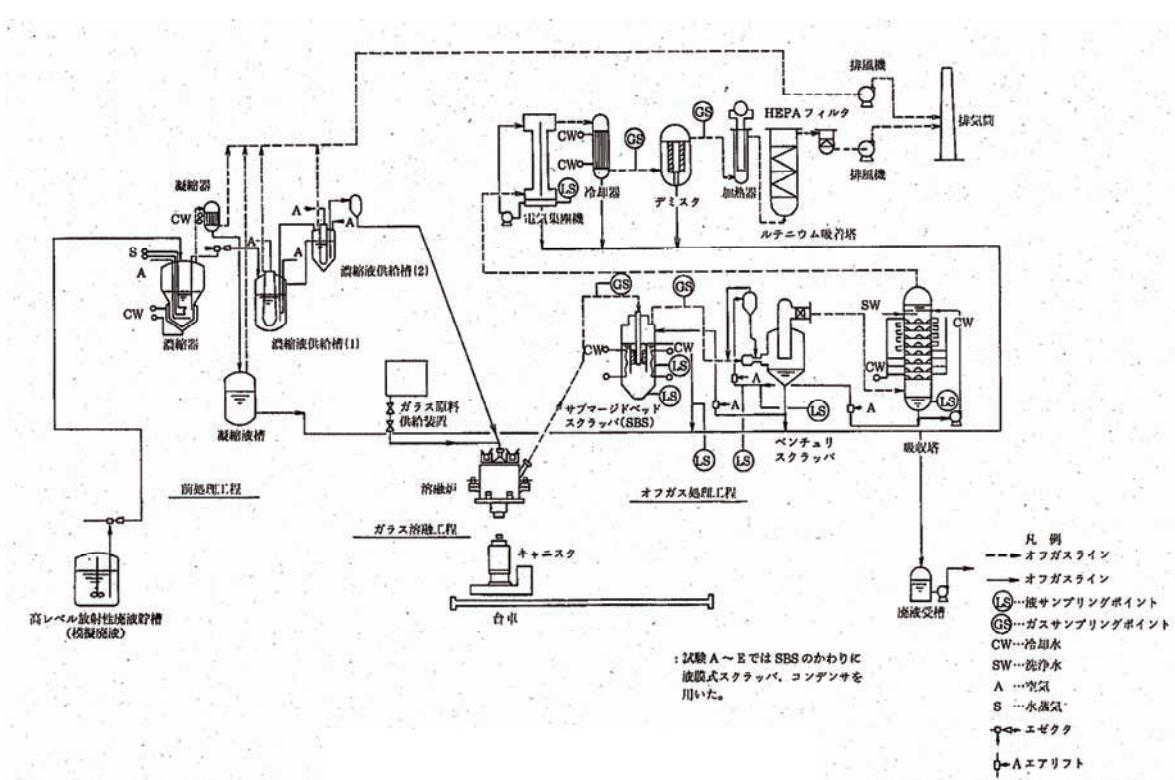
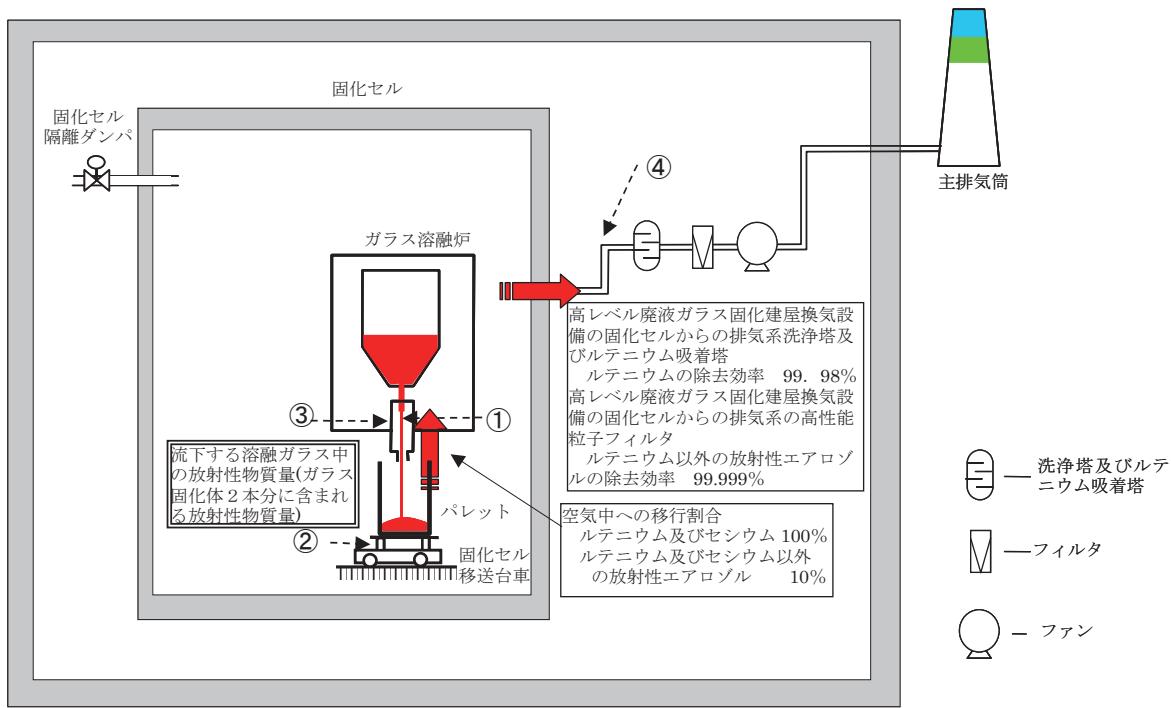
Constituent	Waste Compositions						
	Nominal Concentration (Wt.%)						
	77-260 ^a	76-68 ^a	72-68	76-183	PW-4b	SPC-2	SPC-4
B ₂ O ₃	8.93	9.47	11.30	9.50	—	—	—
Na ₂ O	11.36	12.80	4.12	11.64	—	0.18	0.19
MgO	—	—	1.50	—	—	—	—
Al ₂ O ₃	2.00	—	—	1.00	—	4.43	4.53
SiO ₂	35.80	39.80	27.71	35.50	—	19.00	17.64
P ₂ O ₅	2.54	0.51	0.44	3.36	1.75	4.16	4.26
K ₂ O	2.00	—	4.12	2.00	—	—	—
CaO	1.00	2.00	1.50	2.00	—	4.93	2.09
TiO ₂	6.00	2.97	—	6.00	—	—	—
Cr ₂ O ₃	0.02	0.44	0.23	0.19	0.92	0.54	0.55
MnO ₂	0.11	—	—	—	—	—	—
Fe ₂ O ₃	1.31	10.34	1.00	1.60	3.98	4.68	4.79
Co ₂ O ₃	—	—	—	0.16	—	—	—
NiO	0.01	0.21	0.09	0.56	0.36	0.22	0.22
CuO	3.00	—	—	3.00	—	—	—
ZnO	—	4.97	21.64	—	—	—	—
Rb ₂ O	0.12	0.13	0.23	0.19	0.92	0.55	0.56
SrO	0.31	0.40	2.20	0.56	2.79	2.86	4.23
ZrO ₂	1.62	1.88	3.28	2.62	13.06	7.66	7.84
MoO ₃	2.14	2.42	4.29	3.38	17.08	8.02	8.21
RuO ₂	0.93	1.13	1.97	1.57	7.85	0.47	0.48
Rh ₂ O ₃	0.17	0.18	0.32	—	1.27	—	—
PdO	0.53	0.56	0.98	—	3.90	—	—
Ag ₂ O	0.02	0.03	0.06	0.05	0.24	—	0.14
CdO	0.03	0.04	0.06	0.05	0.24	0.15	0.15
TeO ₂	0.24	0.28	0.48	0.39	1.91	—	—
Cs ₂ O	0.85	1.09	1.91	1.53	7.61	4.46	4.57
BaO	0.59	0.59	2.54	0.83	4.14	2.43	2.48
RE ₂ O ₃	18.12	7.76	8.03	12.34	31.98	35.26 ^b	37.07 ^b
Total	99.75	100.00	100.00	100.02	100.00	100.00	100.00

^aNo chemical analyses of vapor composition was made for these wastes.^bSee Table II for rare earth make-up.

表 5.2-8 試験に用いたガラス固化体の組成（参考文献(5)より転載）

Component	(Added reagent)	Content (wt%)	Component	(Added reagent)	Content (wt%)	
Glass additives						
SiO ₂	(SiO ₂)	41.22	Na ₂ O	(Na ₂ CO ₃)	9.19	
B ₂ O ₃	(H ₃ BO ₄)	14.02	K ₂ O	(KNO ₃)	1.23	
Al ₂ O ₃	(Al(OH) ₃)	3.81	MnO ₂	(Mn(NO ₃) ₂ · 6H ₂ O)	0.07	
CaO	(CaCO ₃)	7.10	TiO ₂	(TiO ₂)	0.07	
MgO	(MgO)	1.60	Fe ₂ O ₃	(Fe(NO ₃) ₃ · 9H ₂ O)	2.02	
P ₂ O ₅	(H ₃ PO ₄)	1.17	Simulated (nonradioactive) high-level waste fission products			
Rb ₂ O	(RbNO ₃)	0.10	La ₂ O ₃	(La(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O)	0.44	
SrO	(Sr(NO ₃) ₂)	0.29	Ce ₂ O ₃	(Ce(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O)	0.87	
Y ₂ O ₃	(Y(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O)	0.17	Pr ₆ O ₁₁	(Pr(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O)	0.42	
ZrO ₂	(ZrO(NO ₃) ₂ · 2H ₂ O)	1.41	Nd ₂ O ₃	(Nd(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O)	1.42	
MoO ₃	(H ₃ MoO ₄ · H ₂ O)	1.49	Sm ₂ O ₃	(Sm(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O)	0.28	
MnO ₂	(Mn(NO ₃) ₂ · 6H ₂ O)	0.22	Eu ₂ O ₃	(Eu(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O)	0.05	
Ag ₂ O	(AgNO ₃)	0.03	Gd ₂ O ₃	(Gd(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O)	0.03	
CdO	(Cd(NO ₃) ₂ · 4H ₂ O)	0.03	SeO ₂	(SeO ₂)	0.02	
SnO ₂	(SnCl ₄ · 5H ₂ O)	0.02	RuO ₂	(RuCl ₃ · 3H ₂ O)	0.69	
Sb ₂ O ₃	(SbCl ₃)	0.004	Ru	(Ru)	0.10	
TeO ₂	(TeO ₂)	0.20	Rh	(Rh)	0.13	
Cs ₂ O	(CsNO ₃)	0.84	Pd	(Pd)	0.37	
BaO	(Ba(NO ₃) ₂)	0.53	As actinide elements			
CeO ₂	(Ce(NO ₃) ₃ · 6H ₂ O)	2.01	As corrosion products			
Fe ₂ O ₃	(Fe(NO ₃) ₃ · 9H ₂ O)	2.04	Cr ₂ O ₃	(Cr(NO ₃) ₃ · 9H ₂ O)	0.35	
NiO	(Ni(NO ₃) ₂ · 6H ₂ O)	0.28				

*The total wt% of the above recipe is 96.3%, and 3.7% of oxides are expected to come from the solution of actual HLW. The composition of the present glass is called J-10, which has been developed by the Japan Atomic Energy Research Institute.



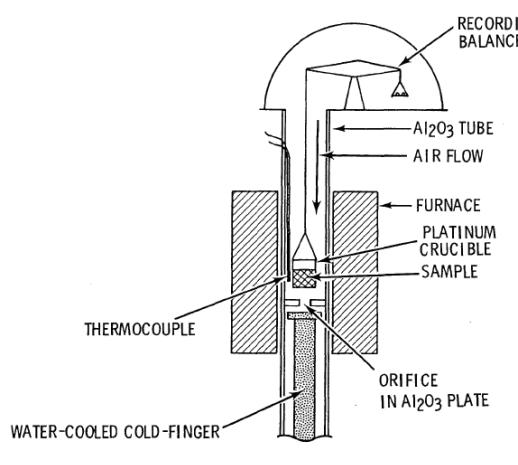


図 5.2-2 ガラスからの FP 移行割合の測定に用いた試験装置（参考文献(4)より転載）

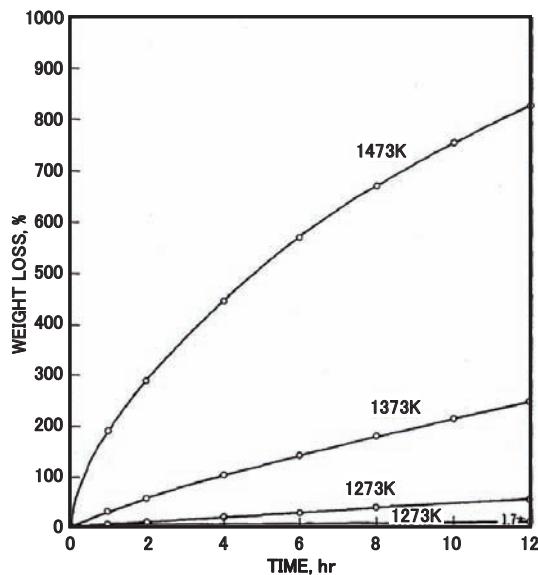


図 5.2-3 ガラス (72-68 ガラス) の重量減少と温度の関係（参考文献(4)より転載）

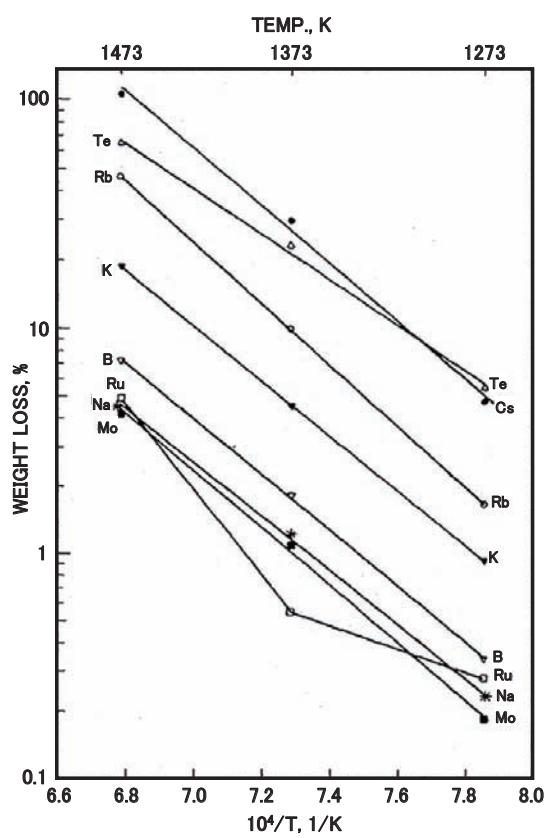


図 5.2-4 ガラス(72-68 ガラス)からの FP 元素の移行割合(参考文献(4)からの転載)

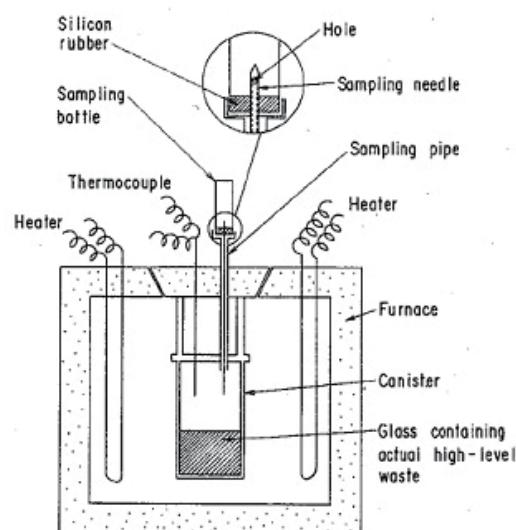


図 5.2-5 ガラス固化体からの FP 挥発性の測定に用いた試験装置（参考文献(5)より転載）

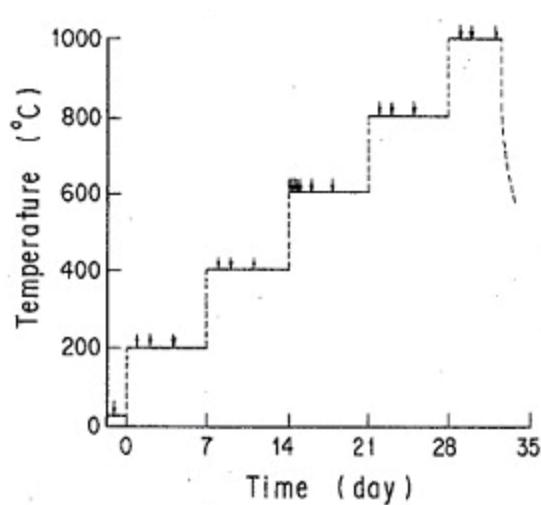


図 5.2-6 ガラス固化体からの
FP 挥発性の測定の加熱条件
(参考文献(5)より転載)

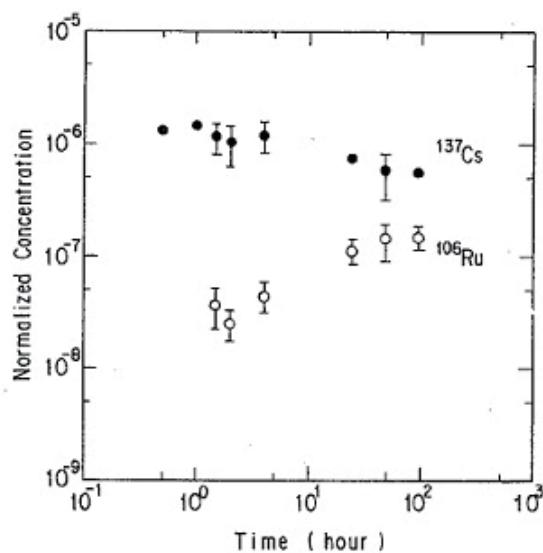


図 5.2-7 ガラスからの Cs-137 及び
Ru-106 の揮発性の時間依存性
(参考文献(5)より転載)

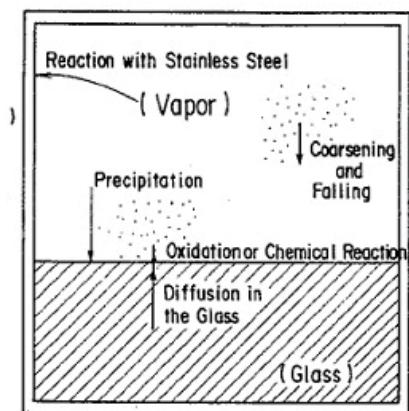


図 5.2-8 ガラスからの FP 移行の
メカニズム(参考文献(5)より転載)

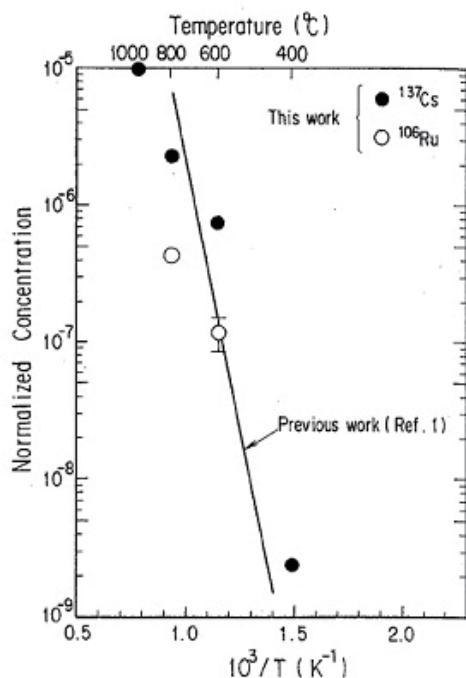
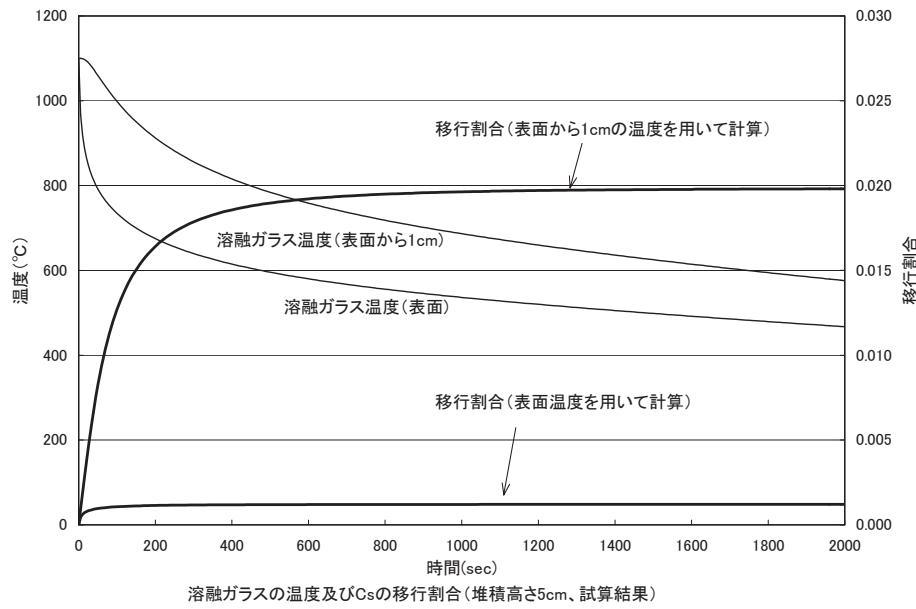


図 5.2-9 ガラスからの Cs-137 及び Ru-106 の
揮発性の温度依存性 (参考文献(5)より転載)



(注1)溶融ガラスの物性値として下記を使用(試算のための暫定値)

密度 : 2500kg/m³ (伝熱工学資料のホウケイ酸ガラス 600K の値を
高レベル廃液成分の混合を考慮して大きめにまるめた値)

熱伝導度: 1.49 (W/mK) (伝熱工学資料のホウケイ酸ガラス 600K の値)

比熱 : 1120 (J/kgK) (伝熱工学資料のホウケイ酸ガラス 600K の値)

発熱密度: 1.5×10^6 (W/m³) (事業指定申請書 添付書類六に記載のガラス固化体の発熱量 2.3kW／本から推定)

(注2)熱伝導(1次元)の計算においては、溶融ガラス初期温度 1100°C、上面からの輻射(表面輻射率: 0.9)、自然対流熱伝達を考慮。下面是断熱を仮定。

図 5.3-1 溶融ガラスの温度変化及びセシウムの移行割合
(溶融ガラスの堆積高さ 5cm 一様を仮定した試算結果)

6. まとめ

(社)日本原子力学会では、日本原子力研究開発機構より「核燃料施設の事故影響評価手法に関する調査」を受託し、平成17年度までに実施した「核燃料施設の確率論的安全評価に関する調査」(旧日本原子力研究所からの受託調査)調査結果を踏まえ、以下の調査・検討を実施した。

平成17年度までの調査では、再処理施設で想定される主要な事象のうち比較的大きな影響を及ぼすと考えられる事象を中心に調査した。18年度は、これまでに調査した事象でさらに調査が必要な事項、再処理施設で想定される事象のうち、新たに調査を必要と考えられる事象について検討した。検討に際しては、再処理施設の安全審査での設計基準事象の“「運転時の異常な過渡変化」を超える事象”に選定された事象の事故影響評価で参照されたパラメータについて調査し、平成17年度までの本特別専門委員会の調査結果を踏まえ平成18年度の調査事項を選定し、関連する実験等の文献を調査し、以下の結果を得た。

① 水素爆発事象に関する調査

高レベル濃縮廃液での放射線分解水素に関する実験の文献を調査した。模擬高レベル廃液では、溶液中の水素濃度を減少させる効果が確認されており、 α 線により発生する水素も γ 線による発生水素と同様に液浸効果が期待でき、爆発下限界濃度に至る時間余裕の増大が期待できることがわかった。さらに、模擬高レベル廃液での γ 線照射による酸素放出G値は、水素放出G値に比べ約9倍以上大きいことが報告されていることから、気相へ放出される水素濃度は最大でも10%程度と見込まれ、爆発下限界濃度に至る時間余裕の増大及び槽内水素濃度の上限濃度の算出に利用可能と考えられる。しかし、より最適な水素発生量の評価には、 α 線により発生する水素放出G値及び酸素放出G値の考慮が必要であるが、 α 線を用いた模擬高レベル廃液の照射実験は難しいことから、 α 線核種を含む実高レベル廃液を用いた水素放出G値及び酸素放出G値の測定が望まれる。

プルトニウム溶液貯槽における水素掃気機能喪失事故等の影響評価への利用を念頭に、東海再処理施設で過去に実施した硝酸プルトニウム溶液からの放射線分解水素、酸素の発生にかかる実験に関する論文の調査を実施した。同文献には再処理プロセスから得られた硝酸プルトニウム溶液を用いて測定した硝酸濃度、Pu濃度及び液深とG値の関係が他の文献値との比較も踏まえて記載されていることから、再処理プラントで想定される事故シナリオの条件に応じてG値を設定し、水素掃気機能喪失後の爆発下限濃度に至るまでの時間余裕を適切に評価することや、 α 線放出核種を含む溶液と γ 線放出核種を含む溶液との液深効果の相違を示す際に有用な知見を与えるものと考えられる。しかしながら同文献の測定値はラボスケールの試験装置で得られたものであり、これらの値が再処理プラントの安全評価にそのまま適用可能か否かについては今後さらなる検討が必要と考えられる。

水素の爆発下限界濃度に至るまでの時間余裕の算出において酸素生成を考慮することの効果について検討した。関連する実験データをもとに試算した結果、その効果は対象機器内溶液の硝酸濃度が高いほど効果が大きいことが分かった。今回は時間余裕の増加効果のみの試算であるが、この時間余裕の増加が水素爆発事象のリスク(影響×頻度)の減少に及ぼす効果、さらには、施

設全体のリスクの減少に及ぼす効果の程度を把握することは、酸素 G 値を把握するための関連する実験の必要性の程度を判断する一つの材料となる。

燃料加工施設の焼結炉で想定される水素爆発を対象として、爆発下限範囲、爆発圧力、圧力上昇速度等を解明するために実施された実験について調査した。調査したデータは、実験体系と異なる体系での爆発事象へも適用可能であることが分かった。たとえば高レベル廃液貯槽では、放射線分解で生じる水素が貯槽内に蓄積するのを防止するため空気により掃気している。貯槽内の気相部は、水蒸気を無視すれば水素-空気 2 成分系の混合気であり、今回調査した実験結果をもとに水素濃度に依存した爆発圧力は求めることができる。しかし、実験は乾燥した混合気による実験であるため、水蒸気の存在が爆発に及ぼす影響については不明であり、この点について更なる調査を必要とする。

② 臨界事故での揮発性核分裂生成物の気相への移行率に関する調査

臨界事故時の揮発性核分裂生成物の気相への移行率について、安全評価における設定値とその根拠について概観するとともに、TRACY での実験結果について調査・検討を行った。旧日本原子力研究所が実施してきた「TRACY 閉じ込め試験」では、希ガス及びヨウ素の放出特性データの取得及び評価が行われてきた。これらのデータは、燃料溶液における臨界事故時の公衆被爆の影響を評価する場合に重要となる。実験データに基づく評価では、TRACY 炉心タンク内における燃料溶液から気相へのこれら放射性物質の放出係数 α 及びベントガスによる炉心タンク気相部の換気系数 ψ を考慮することで、燃料溶液及び気相中におけるこれら放射性物質の各存在量の経時変化を表す微分方程式を立て、これらを連立して解くことで各存在量の経時変化を評価するとともに、実測値とフィッティングすることで、各放射性物質の移行率を導出している。今後は、放射線分解ガス気泡への希ガスの物質移動を考慮した希ガスの放出機構のモデル化をさらに進めることにより、希ガスの放出特性と核的な動特性解析とを結びつけた評価が可能となるものと考える。またヨウ素に関しては、溶液から放出される化学組成の変動や炉心タンク内気相部での水分の影響等についても考慮した上で、ヨウ素種の壁面への沈着速度に関する実験データを取得していくことが重要と考える。

③ 溶融ガラスの誤流下における FP 移行率に関する調査

関連するデータとして平常時のガラス溶融炉から廃ガス中への FP 移行率に関するデータはあるが、漏えいした溶融ガラスからの FP 移行率にそのまま適用できるデータは見当たらなかった。そこで平常時の廃ガス中への FP 移行率を溶融ガラス漏えい時の移行率評価に適用することの可能性を検討した。平常時の移行率を参考に溶融ガラスからの移行率を設定することはできるが、この移行率には高レベル濃縮廃液の蒸発に伴う移行も含まれており、溶融ガラスの漏えい時の移行率に比べ大きく、結果が過大評価（保守側）となり、リスク評価での使用に際には、この点に留意する必要があることが分かった。さらに、溶融ガラスからの FP の揮発性に関する文献データを基に、漏えいした溶融ガラスからの FP 移行を計算できることを示したが、参照した文献データが、限定された規模、体系（小規模のルツボ、キャニスターを模擬した容器）で測定されたデータであり、リスク評価の際の移行率に適用する際には、実験と事故想定の状態との相違に留意

する必要がある。また、移行率は漏えいした溶融ガラスの温度低下への感度が極めて大きく、温度低下挙動の解析結果の不確かさ等にも留意する必要がある。今後のリスク評価において、より現実的な評価（不確かさに伴う保守側の想定を低減した評価）が必要となった場合には、実験により適用可能な移行率データを取得することも必要であると考えられる。

平成 19 年度は、当特別専門委員会での調査の最終年度になる予定であるので、これまでの調査での成果を集大成し、可能な限り現実的な事故シナリオを想定して具体的な事故影響評価を実施し、評価の手順を解説的に示すとともに、評価上の課題を明確にし、実施が望まれる実験的研究を具体的に提案することを目指す。さらに、これまででは、主として再処理施設で想定される事故を対象として調査したが、燃料加工施設についても、相対的にリスクが大きい焼結炉の爆発、粉末容器の落下による漏えいに関する調査が望まれる。

国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m^2
体積	立方メートル	m^3
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s^2
密度(質量密度)	キログラム毎立方メートル	kg/m^3
質量体積(比体積)	立法メートル毎キログラム	m^3/kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m^2
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
(物質量の)濃度	モル毎立方メートル	mol/m^3
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m^2
屈折率	(数の)1	1

表5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10^{24}	ヨーダ	Y	10^{-1}	デシ	d
10^{21}	ゼタ	Z	10^{-2}	センチ	c
10^{18}	エクサ	E	10^{-3}	ミリ	m
10^{15}	ペクタ	P	10^{-6}	マイクロ	μ
10^{12}	テラ	T	10^{-9}	ナノ	n
10^9	ギガ	G	10^{-12}	ピコ	p
10^6	メガ	M	10^{-15}	フェムト	f
10^3	キロ	k	10^{-18}	アト	a
10^2	ヘクト	h	10^{-21}	ゼット	z
10^1	デカ	da	10^{-24}	ヨクト	y

表3. 固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	他のSI単位による表し方
平面角	ラジアン ^(a)	rad	$m \cdot m^{-1}=1^{(b)}$
立体角	ステラジアン ^(a)	sr ^(c)	$m^2 \cdot m^{-2}=1^{(b)}$
周波数	ヘルツ	Hz	s^{-1}
力	ニュートン	N	$m \cdot kg \cdot s^{-2}$
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m^2
エネルギー, 仕事, 熱量	ジユール	J	$N \cdot m$
功率, 放射束	ワット	W	J/s
電荷, 電気量	クーロン	C	$s \cdot A$
電位差(電圧), 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	フアラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジメンス	S	A/V
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度 ^(d)	°C	K
光束度	ルーメン	lm	$cd \cdot sr^{(c)}$
(放射性核種の)放射能吸収線量, 質量エネルギー分与, カーマ線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量, 組織線量当量	ベクレル	Bq	lm/m^2
	グレイ	Gy	J/kg
	シーベルト	Sv	J/kg

(a) ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なる性質をもつた量を区別するときの組立単位の表し方として利点がある。組立単位を形作るときのいくつかの用例は表4に示されている。

(b) 実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号“1”は明示されない。

(c) 測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。

(d) この単位は、例としてミリセルシウス度m°CのようにSI接頭語を伴って用いても良い。

表4. 単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa·s	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-1}$
力のモーメント	ニュートンメートル	N·m	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2}$
表面張力	ニュートン每メートル	N/m	$kg \cdot s^{-2}$
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	$m \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}=s^{-1}$
角加速度	ラジアン毎平方秒	rad/s ²	$m \cdot m^{-1} \cdot s^{-2}=s^{-2}$
熱流密度, 放射照度	ワット每平方メートル	W/m ²	$kg \cdot s^{-3}$
熱容量, エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
質量熱容量(比熱容量), 質量エントロピー	ジュール毎キログラム	J/(kg·K)	$m^2 \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
質量エネルギー(比エネルギー)	ジュール毎キログラム	J/kg	$m^2 \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
熱伝導率	ワット每メートル毎ケルビン	W/(m·K)	$m \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot K^{-1}$
体積エネルギー	ジュール每立方メートル	J/m ³	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-2}$
電界の強さ	ボルト每メートル	V/m	$m \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^{-1}$
体積電荷	クーロン每立方メートル	C/m ³	$m^{-3} \cdot s \cdot A$
電気変位	クーロン每平方メートル	C/m ²	$m^{-2} \cdot s \cdot A$
誘電率	ファラード每メートル	F/m	$m^{-3} \cdot kg^{-1} \cdot s^4 \cdot A^2$
透磁率	ヘンリー每メートル	H/m	$m \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-2}$
モルエネルギー	ジュール每モル	J/mol	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot mol^{-1}$
モルエントロピー	ジュール每モル每ケルモル	J/(mol·K)	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$
モル熱容量ビン	クーロン每キログラム	C/kg	$kg^{-1} \cdot s \cdot A$
照射線量(X線及びγ線)	クーロン每キログラム	Gy	$m^2 \cdot s^{-3}$
吸収線量率	グレイ每秒	Gy/s	$m^2 \cdot s^{-3}$
放射強度	ワット每平方メートル	W/sr	$m^4 \cdot m^{-2} \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot m^2 \cdot kg \cdot s^{-3}$
放射輝度	ワット每平方メートル每ステラジアン	W/(m ² ·sr)	$m^2 \cdot m^{-2} \cdot kg \cdot s^{-3} = kg \cdot s^{-3}$

表9. 固有の名称を含むCGS組立単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
エルグ	erg	$1 erg=10^{-7} J$
ダイニン	dyn	$1 dyn=10^{-5} N$
ボアズ	P	$1 P=1 dyn \cdot s/cm^2=0.1 Pa \cdot s$
ストークス	St	$1 St=1cm^2/s=10^{-4} m^2/s$
ガウス	G	$1 G=10^{-4} T$
エルステッド	Oe	$1 Oe=(1000/4\pi) A/m$
マクスウェル	Mx	$1 Mx=10^{-8} Wb$
スチール	sb	$1 sb=1cd/cm^2=10^4 cd/m^2$
ホタル	ph	$1 ph=10^4 lx$
ガル	Gal	$1 Gal=1cm/s^2=10^{-2} m/s^2$

表10. 国際単位に属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
キュリ	Ci	$1 Ci=3.7 \times 10^{10} Bq$
レントゲン	R	$1 R=2.58 \times 10^{-4} C/kg$
ラド	rad	$1 rad=1cGy=10^{-2} Gy$
レム	rem	$1 rem=1 cSv=10^{-2} Sv$
X線単位	X unit	$1 X unit=1.002 \times 10^{-4} nm$
ガンマ	γ	$1 \gamma=1 nT=10^{-9} T$
ジャンスキ	Jy	$1 Jy=10^{-26} W \cdot m^{-2} \cdot Hz^{-1}$
フェルミ	fermi	$1 fermi=1 fm=10^{-15} m$
メートル系カラット		$1 metric carat=200 mg=2 \times 10^{-4} kg$
トル	Torr	$1 Torr=(101325/760) Pa$
標準大気圧	atm	$1 atm=101325 Pa$
カリ	cal	$1 cal=4.184 J$
ミクロ	μ	$1 \mu m=10^{-6} m$



古紙配合率100%
白色度70%再生紙を使用しています