

再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での凝縮器を想定した  
事故対処策のリスク低減効果に係る実機解析

Analysis of Risk Reduction Effect of Supposed Steam Condenser Implementation as  
Accident Measure for Accident of Evaporation to Dryness by  
Boiling of Reprocessed High Level Liquid Waste

吉田 一雄 玉置 等史 桧山 美奈

Kazuo YOSHIDA, Hitoshi TAMAKI and Mina HIYAMA

安全研究・防災支援部門

安全研究センター

原子炉安全研究ディビジョン

Reactor Safety Research Division

Nuclear Safety Research Center

Sector of Nuclear Safety Research and Emergency Preparedness

January 2022

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人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。  
本レポートの転載等の著作権利用は許可が必要です。本レポートの入手並びに成果の利用(データを含む)は、  
下記まで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ウェブサイト (<https://www.jaea.go.jp>)  
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課  
〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.  
Reuse and reproduction of this report (including data) is required permission.  
Availability and use of the results of this report, please contact  
Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub,  
Japan Atomic Energy Agency.  
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan  
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での  
凝縮器を想定した事故対処策のリスク低減効果に係る実機解析

日本原子力研究開発機構 安全研究・防災支援部門 安全研究センター  
原子炉安全研究ディビジョン

吉田 一雄、玉置 等史、桧山 美奈\*

(2021年11月26日受理)

再処理施設の過酷事故の一つである高レベル放射性廃液貯槽の冷却機能喪失による蒸発乾固事故では、沸騰により廃液貯槽から発生する硝酸-水混合蒸気とともにルテニウム (Ru) の揮発性の化学種が放出される。そのための事故対処策の一つとして貯槽から発生する混合蒸気を積極的に凝縮する凝縮器の設置案が示されている。この事故対策では、硝酸蒸気の拡散防止、Ruの除去率の向上などが期待できる。本報では、実規模の仮想的な再処理施設を対象に凝縮器を設けて施設内での蒸気及びRuの移行挙動の模擬を試行した。模擬解析では、MELCORを用いて施設内の熱流動解析を行い、得られた熱流動状態を境界条件として硝酸、窒素酸化物等の化学挙動を解析するSCHERNコードを用いてRuの定量的な移行挙動を模擬した。解析から、凝縮器による蒸気拡散防止及びRuの除去効率の向上効果を定量的に分析するとともに、凝縮器の解析モデル上の課題を明らかにすることができた。

Analysis of Risk Reduction Effect of Supposed Steam Condenser Implementation as Accident Measure for  
Accident of Evaporation to Dryness by Boiling of Reprocessed High Level Liquid Waste

Kazuo YOSHIDA, Hitoshi TAMAKI and Mina HIYAMA\*

Reactor Safety Research Division  
Nuclear Safety Research Center  
Sector of Nuclear Safety Research and Emergency Preparedness  
Japan Atomic Energy Agency  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received November 26, 2021)

An accident of evaporation to dryness by boiling of high level liquid waste (HLLW) is postulated as one of the severe accidents caused by the loss of cooling function at a fuel reprocessing plant. In this case, volatile radioactive materials, such as ruthenium (Ru) are released from the tanks with water and nitric-acid mixed vapor into atmosphere. An idea has been proposed to implement a steam condenser as an accident counter-measure. This measure is expected to prevent nitric acid steam diffusing in facility building and to increase gaseous Ru trapping ratio into condensed water. A simulation study has been carried out with a hypothetical typical facility building to analyze the efficiency of steam condenser. In this study, SCHERN computer code simulates chemical behaviors of Ru in nitrogen oxide, nitric acid and water mixed vapor based on the conditions obtained from simulation with thermal-hydraulic computer code MELCOR. The effectiveness of steam condenser has been analyzed quantitatively in preventing mixed vapor diffusion and gaseous Ru trapping effect. Some issues to be solved in analytical model has been also clarified in this study.

Keywords: Reprocessing Plant, High Level Liquid Waste, Accident of Evaporation to Dryness by Boiling, Ruthenium, Nitrogen Oxide, Steam Condenser, Chemical Reaction, Thermo-Hydraulic Behavior, SCHERN Code

---

\* Frontier System Inc.

## 目次

1. はじめに	1
2. 凝縮器のモデル化	3
2.1 凝縮器の基本仕様	3
2.2 熱流動解析モデル	3
3. 解析の実施	6
3.1 解析条件	6
3.2 凝縮器での化学挙動解析	8
4. 解析結果	9
4.1 熱流動解析	9
4.2 SCHERN による化学挙動解析	10
4.3 解析モデルの課題に係る考察	17
5. まとめ	19
参考文献	20

## Contents

1. Introduction	1
2. Modeling of condenser	3
2.1 Basic specification of condenser	3
2.2 Thermal-hydraulic model	3
3. Conducting of analysis	6
3.1 Boundary condition	6
3.2 Chemical behavior analysis in condenser	8
4. Results of analysis	9
4.1 Thermal-hydraulic analysis	9
4.2 Chemical behavior analysis with SCHERN	10
4.3 Discussion of issues in analysis model	17
5. Summary	19
References	20

## 1. はじめに

再処理施設で想定される重大事故の一つに高レベル廃液貯槽の蒸発乾固事故がある。高レベル廃液には、再処理で取り除かれた核分裂生成物の硝酸塩が含まれ、それらの崩壊熱で発熱するため常時冷却する必要がある。このため冷却機能が全喪失した状態が継続した場合、廃液が沸騰しいずれ乾固する。沸騰に伴い大量の硝酸-水混合蒸気（混合蒸気という）が発生する。六ヶ所再処理施設の従来の設備では、貯槽から流出した混合蒸気は廃ガス処理セルに設置された水封安全器から当該セルに流出しセル換気系を経由して排気塔から放出されるシナリオが想定されていた<sup>1)</sup>。

放射性物質を含む混合蒸気の施設外への流出を抑制するために再処理事業者が当初に想定した重大事故対処策では、混合蒸気を施設内の大空間に誘導し凝縮させる案（A案という）であった。その後対処策を変更し、**図 1.1** に示すように水封安全器の手前で分岐した配管を通して新たに設置する凝縮器で蒸気の大半を凝縮する案<sup>2)</sup>（B案という）が示されている。暫定的な値と思われるが凝縮器では混合蒸気の90%を凝縮する性能が示されている。未凝縮の蒸気は、配管分岐セルに導出される。

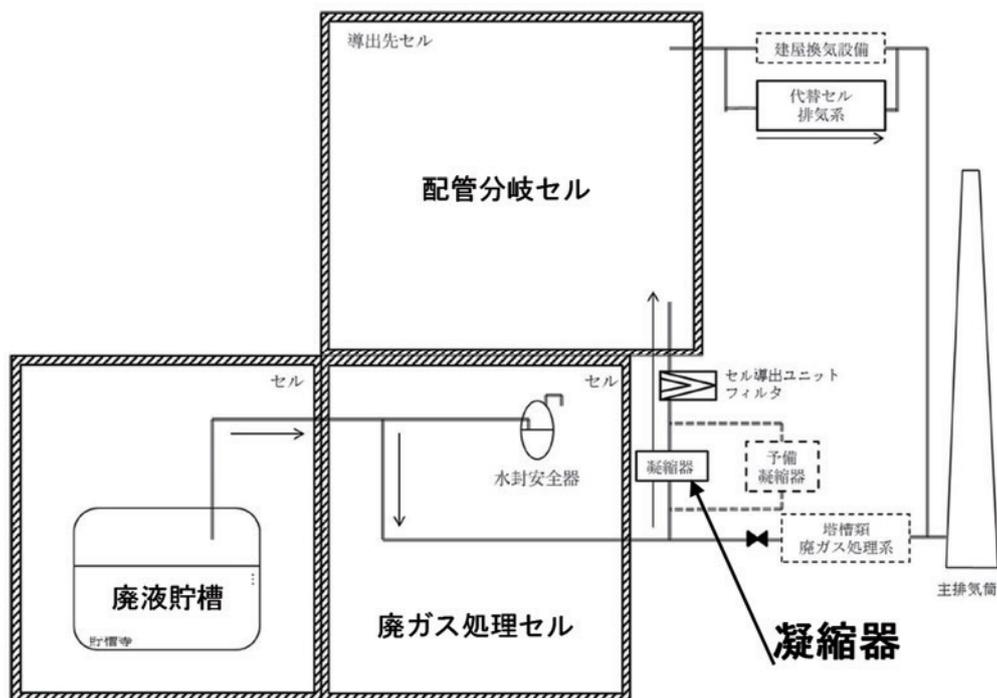


図 1.1 凝縮器を用いた重大事故対処策の概要

(参考文献 1) から転載し一部追記)

高レベル廃液貯槽の蒸発乾固事故の重大事故対処策の目的としては、気体状放射性物質 ( $\text{RuO}_4$ ) 及び硝酸蒸気の施設内外への拡散の防止の2点が考えられる。エアロゾル状の放射性物質の除去は、セルあるいは建屋換気系の設置されるフィルタでの除去が期待できるが、 $\text{RuO}_4$ は、蒸気の凝縮に伴い凝縮水に移行することが実験的に確認されている<sup>1)</sup>ことから、A案に比べB案のほうが積極的に混合蒸気を凝縮させる点で  $\text{RuO}_4$  除去効果が大きいと推察される。硝酸蒸気の拡散防止

の観点からも B 案が有利と考えられる。

本報では、仮想的な実規模施設を対象に凝縮器を設置した体系を想定して施設内の熱流動解析を実施し、その結果を境界条件として  $Ru$  を含む化学的挙動を解析し、重大事故対処策の観点で凝縮器を用いた対策のメリットとデメリットを分析する。併せて、1 点近似の均質平衡モデルを基本とする熱流動解析コードを用いて凝縮器のモデル化を試行し、そこでの課題等を分析する。

## 2. 凝縮器のモデル化

### 2.1 凝縮器の基本仕様

図 2.1 に凝縮器の概念図を示す。凝縮性能は、廃ガス中の混合蒸気の 90% を 50℃ の凝縮水に冷却する性能が示されている。内部圧力は、発電用原子炉施設の復水器を参考<sup>3)</sup> に 98 kPa を仮定する。排ガスには水素が含まれるため、蒸気凝縮に伴い水素濃度が上昇し、爆発する危険が想定される。これを避けるため空気を混入するとしている。大きさ、冷却配管等の諸元の詳細に係る情報は公開されていない。

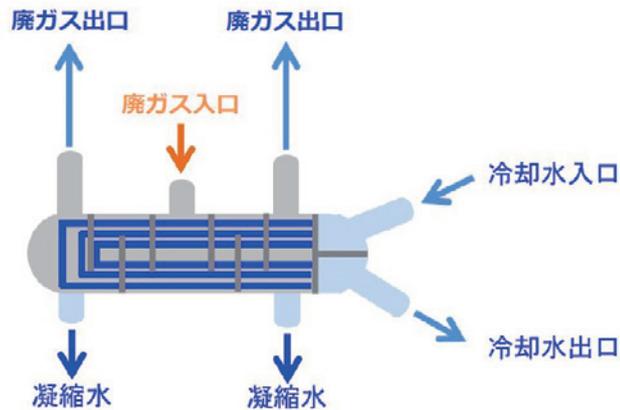


図 2.1 凝縮器の概念  
(参考文献 1) から転載

### 2.2 熱流動解析モデル

#### (1) 施設全体のモデル

図 2.2 に熱流動解析での仮想的な実規模施設全体のノード/ジャンクション図を示す。

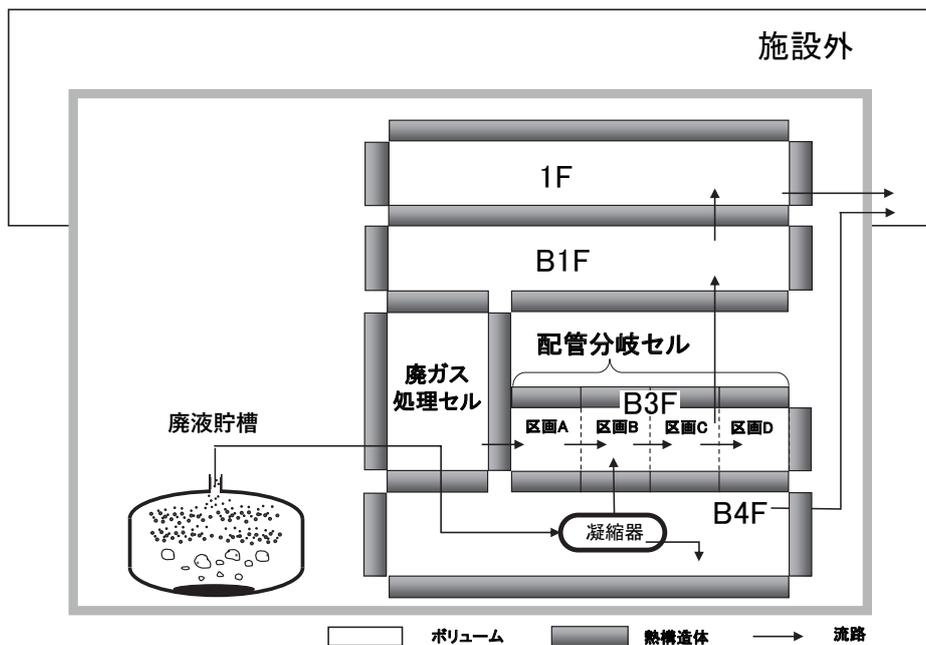


図 2.2 仮想的な実規模施設全体のボリューム/ジャンクション図

凝縮器は地下 4 階に設置されると仮定する。貯槽から放出される混合蒸気は、配管を通して凝縮器に導かれる。凝縮水は地下 4 階のセルに放出され、混合蒸気の一部を含む廃ガスは、地下 3 階の放射性配管分岐セルの区画 B に導出されると仮定する。

## (2) 凝縮器周辺のモデル

図 2.3 に廃液貯槽から流出する混合蒸気の流れに沿ったノード/ジャンクション図を示す。図中、CVnnn、FLnnn 及び HSnnnnn は、それぞれボリューム、ジャンクションおよび熱構造体を表す。ボリュームを表す四角形の左側上下の数字は、ボリュームの上端及び下端の基準点からの高さ、四角内の数字はジャンクション高さ位置を表す。

廃液貯槽から凝縮器に至る配管 (CV030) は、長さ：50 m、内径：0.2 mΦ、肉厚：0.01 m を仮定した。配管内面の熱伝達は、MELCOR 内蔵の熱伝達モデルを適用し、外面は自然対流熱伝達とし、 $4.47 \text{ W/m}^2\text{K}$  を仮定した。

貯槽からの混合蒸気 (CV001 から供給) 及び硝酸塩の脱硝反応に伴う  $\text{NO}_2$  及び  $\text{O}_2$  (CV300 から供給) は沸騰模擬ツールによる解析で求めた値<sup>4)</sup>を参照し、時間依存ボリューム及びジャンクション流量を境界条件として設定する。

凝縮器は、内径 1m、長さ 3m の横置き円筒とし、伝熱管 (内側：CV035、管体：HS00310)、気相部 (CV032) と冷却部 (CV033) に 2 分した。伝熱管での徐熱は、MELCOR の制御関数機能を用いて、冷却部の圧力及び温度が目標値 (それぞれ、 $50 \text{ }^\circ\text{C}$  及び  $98 \text{ kPa}$ ) のなるように凝縮器への給水流量 (FL036、水温： $2^\circ\text{C}$ ) を制御した。

気液平衡を基本とする MELCOR の模擬では、単一のボリュームでモデル化するとほぼ全量の蒸気が凝縮する結果となった。これを回避するために気相部と冷却部に 2 分割したが、ほぼすべての蒸気が冷却部に流入し凝縮するため気相部と冷却部をつなぐジャンクション (FL016) の流量を気相部に流入量の一定割合 (例えば 90%) となるように制御関数機能を用いて制御した。これらの制御は、廃液貯槽からの発生蒸気がほぼゼロとなる時点 (4.63 日) で制御を停止する。制御停止後には、高温の気体が冷却部を通過して配管分岐セルに流出するようにするため、蒸気の流れを抑制していた FL016 を閉止し、気体全量が冷却されるようにするため冷却部に接続する FL161 を全開にする。凝縮器気相部から配管分岐セルに接続する FL034 を閉止し、冷却部から配管分岐セルに接続する FL341 に切替える。このタイミングで凝縮器では気体の冷却のみとなるので伝熱管への給水は、30%に減少される。

CV034 は水素爆発防止のための空気供給ボリュームであり、注入する空気は、温度： $26.85 \text{ }^\circ\text{C}$ 、相対湿度：90%、体積流量： $5.0 \times 10^{-4} \text{ m}^3$  を仮定した。また、CV036 は凝縮器用冷却水供給ボリュームであり、注入水は、温度： $2.85 \text{ }^\circ\text{C}$  を仮定した。

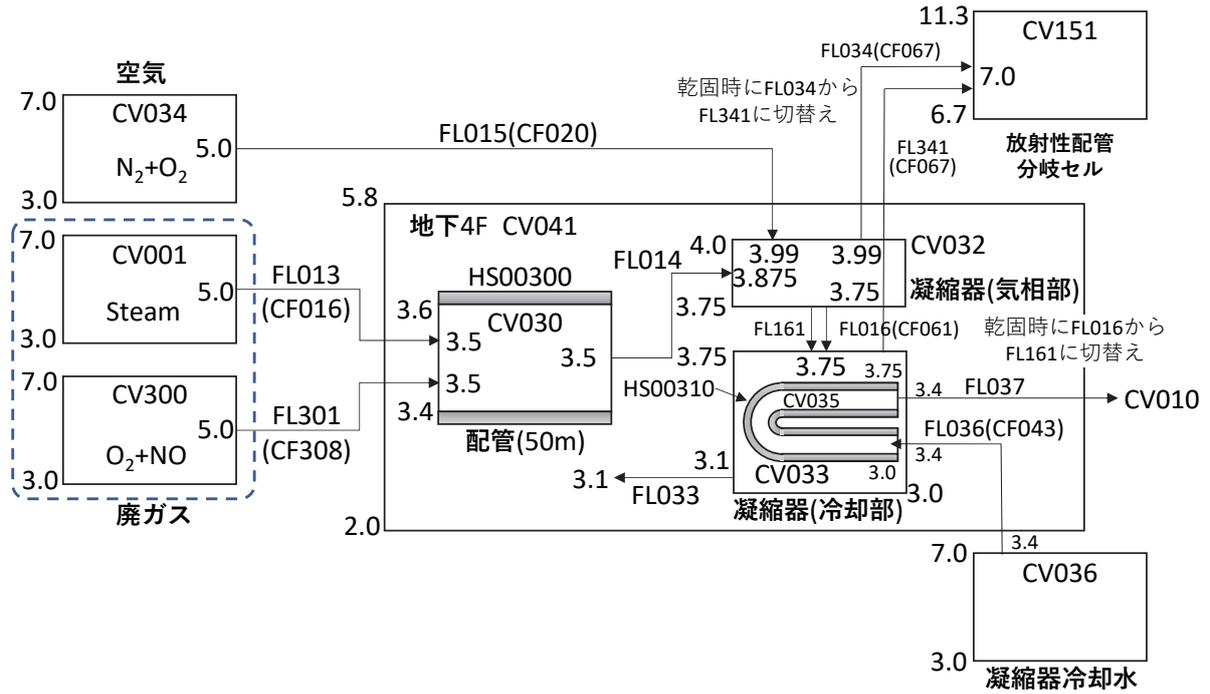


図 2.3 廃ガスの流れに沿ったボリューム/ジャンクション図

### 3. 解析の実施

#### 3.1 解析条件

##### (1) 沸騰模擬ツールを用いた廃液貯槽の沸騰

##### (a) 貯槽からの流出蒸気量、蒸気温度及び Ru 量

貯槽からの流出蒸気量、蒸気温度及び Ru 発生速度は、沸騰模擬ツールによる解析結果<sup>4)</sup>を参照した。廃液の乾固後の温度上昇は文献<sup>5)</sup>の解析結果を参照している。沸騰模擬ツールの解析では、発熱が 5 W/L の廃液 120 m<sup>3</sup> を内包する 1 基の貯槽の冷却機能喪失を仮定している。図 3.1 に硝酸及び水蒸気の各流量、蒸気温度及び Ru 発生速度を示す。沸騰模擬ツールでは蒸気温度は廃液温度に等しいと仮定している。そこで本報では当該事故での乾固と判断する 160°C<sup>1)</sup>を目安にし、約 110 時間後 (4.58 日後) を廃液の乾固とした。

Ru 発生速度は、沸騰模擬ツールの結果及び模擬廃液を用いた長時間実験の結果を基に推定した値を用いている。推定の過程を次に示す。

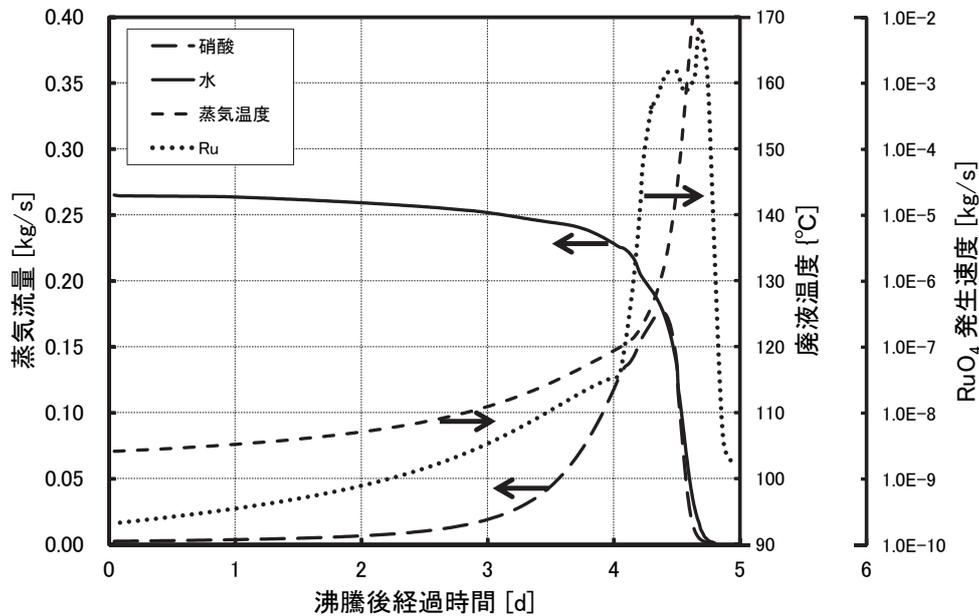


図 3.1 廃液貯槽から流出する硝酸－水混合蒸気、RuO<sub>4</sub> 及び廃液温度の変化

##### (b) Ru 発生速度の推定

参考文献<sup>1)</sup>では、高レベル廃液の模擬廃液を用いた長時間実験を実施しその結果が示されている。実験では、5 W/L の廃液の発熱を仮定した温度上昇を模擬している。その結果を図 3.2 中の実験値として示す。当該図には沸騰模擬ツールの廃液温度の解析結果を廃液温度が 120°C となるタイミングの 24 時間後を起点として併せて表示している。実験及び解析の 200°C までの温度上昇を比較すると実験値が緩慢である。Ru の発生速度は、発生源の温度によって決まると仮定し、解析の温度上昇に併せた Ru の発生速度の推定値を図 3.2 に示す。

図 3.3 に沸騰模擬ツールで計算した RuO<sub>4</sub> 発生速度、および図 3.1 に示す廃液温度の計算値を基に実験結果から推定した発生速度との比較を示す。両者のピーク近傍での値は、概ね良好な一致

を示している。

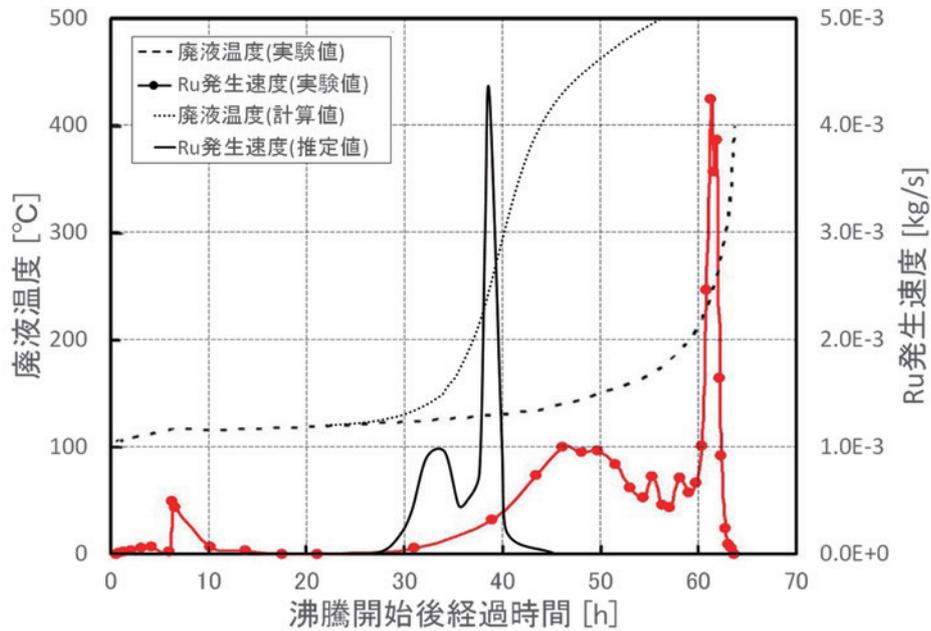


図 3.2 Ru 発生速度の実験値から推定

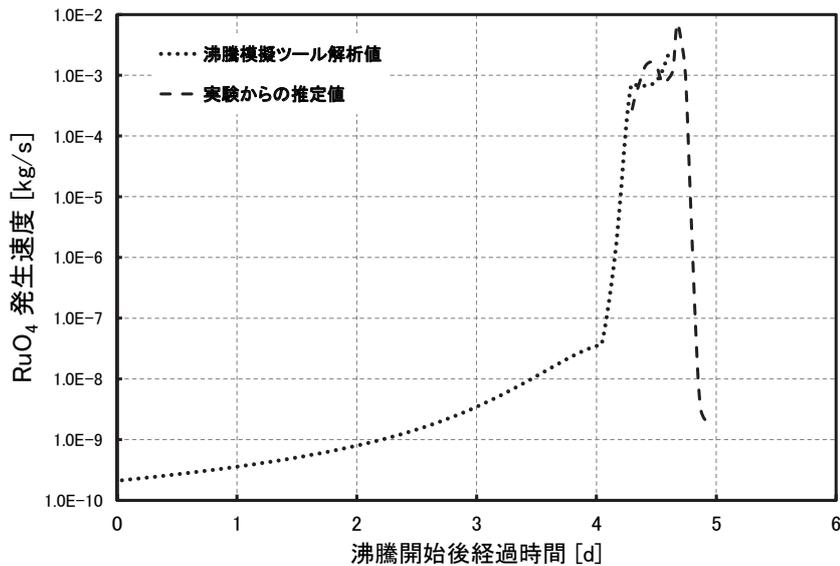


図 3.3 RuO<sub>4</sub> 発生速度の沸騰模擬ツールの計算結果および計算した廃液温度を基に実験値から推定した発生速度との比較

SCHERN の解析では、4.22 日以前は、沸騰模擬ツールの解析値、4.35 日以降では、実験からの推定値を用い、4.22～4.35 日間は、両者の相乗平均値を用いた。

## (2) NO<sub>x</sub> 及び O<sub>2</sub> の発生速度

文献 6) では、高レベル廃液の模擬溶液（模擬廃液という）を加熱し NO<sub>x</sub> の発生速度を測定した結果<sup>1)</sup>を基にした昇温速度 [K/s]と単位液量当たりの NO<sub>x</sub> 発生速度 [mol/L s] との相関を分析している。複数の測定実験において NO<sub>x</sub> の発生が比較的穏やかな 100～200°Cの温度域のデータ

点の相乗平均値にはほぼ線型な相関があるとして NO<sub>x</sub> 発生速度の相関式が示されている。本報でもこの相関式を用いた。

### 3.2 凝縮器での化学挙動解析

凝縮器内で発生した凝縮水は、地下 4 階に流出するようにモデル化している。このため SCHERN での凝縮器内の解析での液相水量としては、凝縮器内のプール水に加え凝縮器から地下 4 階に流出するミスト及びプール水を加算した値とする。

## 4. 解析結果

### 4.1 熱流動解析

#### (1) 凝縮液の蓄積量

##### (a) 凝縮器接続配管

凝縮器接続配管内の凝縮水量を図 4.1 中に“接続配管内凝縮水量”（実線）で示す。凝縮器接続配管では管壁を通して徐熱されるので、配管内には凝縮水が停留する。貯槽からの流出蒸気の減少及び高温の NO<sub>x</sub> の流入により、配管内凝縮水量は徐々に再蒸発して 4.59 日以降に減少に転じ、5.39 日後にはゼロになる。接続配管内の凝縮水量の最大値は、全体の 0.22%に過ぎないが後述の Ru の閉じ込めの観点からは、接続配管内の凝縮水を再蒸発させないことが重要である。

##### (b) 凝縮器

図 4.1 中に示す“総凝縮水量”（一点鎖線）は、凝縮器内及び地下 4 階に流出する凝縮液量（ミスト量を含む）を合算した値である。これに加え当該図には、貯槽からの流出蒸気量（長い破線）を示す。2 章で示したように解析モデルでは、流出蒸気量の 90%が冷却部に流れるように設定しているが 80%が凝縮する結果となっている。これは冷却部において気相部から流入する蒸気のうち約 10%の蒸気が凝縮せずに地下 4 階に流出することに因る。

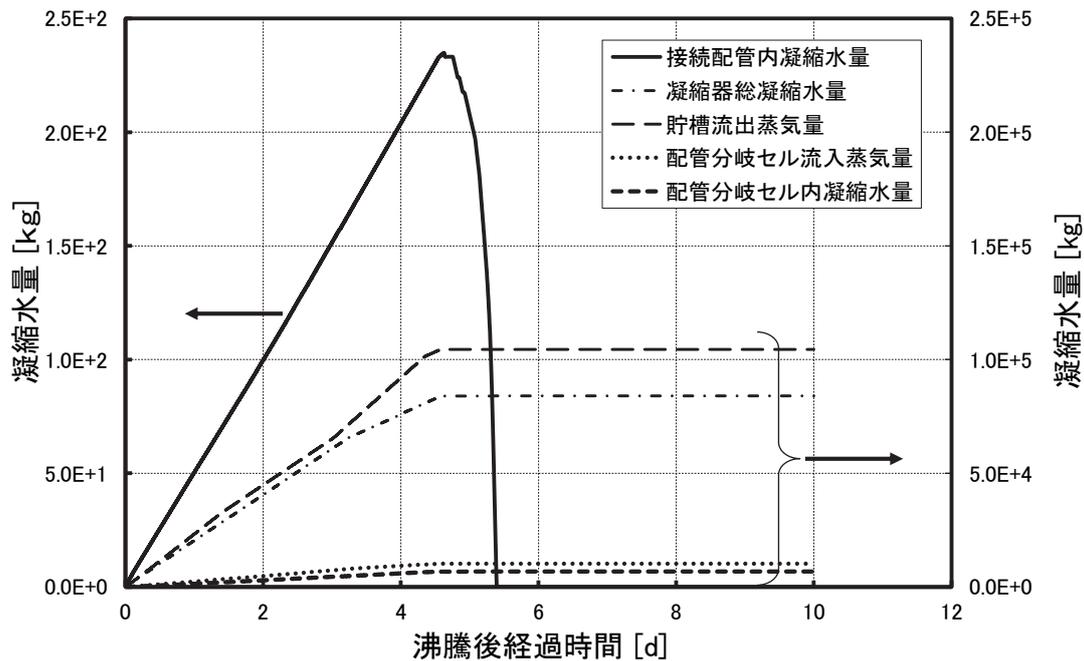


図 4.1 凝縮器接続配管内の凝縮水量、総凝縮液量及び貯槽からの積算の流出蒸気量

##### (c) 配管分岐セル

配管分岐セルへ流入する蒸気及びセル内の凝縮水を、それぞれ図 4.1 中の点線及び短い破線で示す。流入蒸気の 60%が凝縮し、残りの蒸気は下流側へ流れる。貯槽から流出する蒸気の約 93.5%が限られた空間に停留する結果となった。

(2) 蒸気放出抑制の観点での凝縮器の効果

凝縮器を用いて蒸気を凝縮する対処策は、貯槽から発生する蒸気を特定の個所に停留させることで、施設内の放射性物質を含む蒸気による汚染を限定する効果は大きい。

(3) 乾固後の気体の流れ

図 4.2 に蒸気の流出経路での各箇所での温度変化を示す。図 3.1 に示すように貯槽温度は、Ru が気化し始める 120°C以降に急激に上昇し、おおよそ 4.6 日頃に蒸気発生がなくなり、高温の NO<sub>x</sub> 等が発生する。このタイミングで凝縮器接続配管内に停留している凝縮水が再蒸発する。仮に凝縮器接続配管を 2 系統設けて再蒸発が起こるタイミングで接続配管を切り替えることで Ru を配管内に閉じ込めることができる。

凝縮器では、蒸気の凝縮だけでなく NO<sub>x</sub> ガスも冷却されるため、配管分岐セル内の温度は上昇しない。このため当該セル内に停留する凝縮水の温度は上昇せず凝縮水に移行した Ru の再揮発の抑制が期待できる。

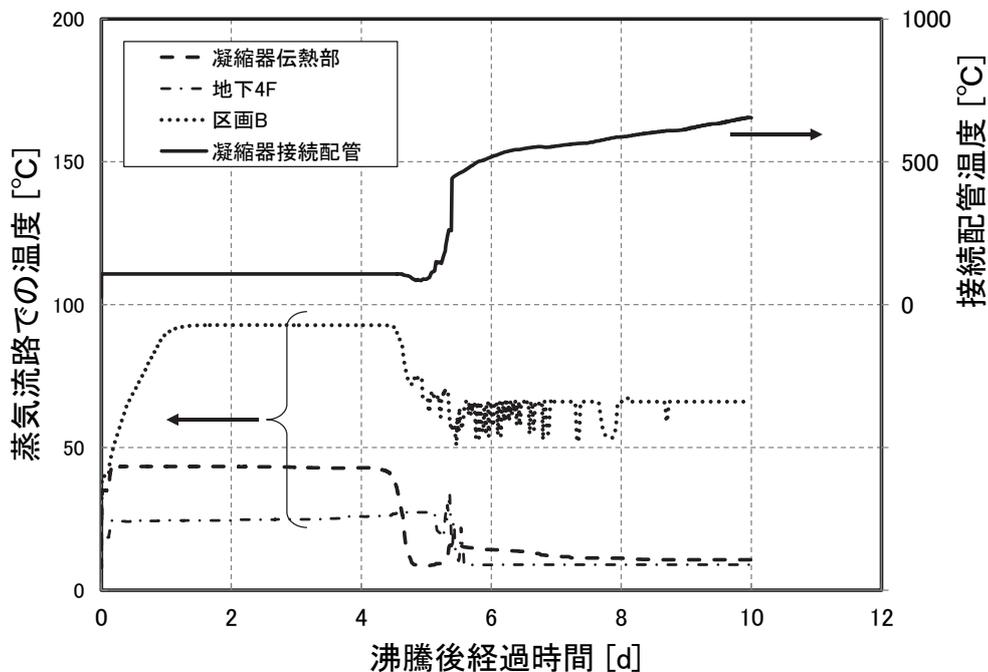


図 4.2 蒸気の流出経路での温度変化

4.2 SCHERN による化学挙動解析

解析は、蒸気発生が無くなるまで、すなわち沸騰開始後の約 5 日間の解析を行った。以下に蒸気の流出経路に沿って各箇所での化学挙動を示す。

(1) 凝縮器接続配管

図 4.3 及び図 4.4 に、それぞれ凝縮器接続配管内の気相部及び液相部の各化学種の濃度変化を示す。図 4.3 に示す気相部の濃度変化では、HNO<sub>3</sub> の流入量の増加に伴い各化学種が発生しその濃度は徐々に増加する。熱分解による脱硝反応で NO<sub>2</sub> 及び O<sub>2</sub> が発生し始める約 4 日以降では N<sub>2</sub>O<sub>4</sub>、HNO<sub>2</sub> などの濃度が増加する。廃液が乾固すると気相部では、硝酸－水混合蒸気が流入せず脱硝

反応で発生する  $\text{NO}_2$  及び  $\text{O}_2$  は増加し  $\text{HNO}_3$  及び  $\text{H}_2\text{O}$  は減少するが、それ以外の化学種はほとんど変化しない。混合蒸気が急激に減少し乾固とする 4.58 日以降では、高温の  $\text{NO}_2$  などが流入し液相からは  $\text{H}_2\text{O}$  が気化し凝縮水が急激に減少する。このため接続配管内では、 $\text{H}_2\text{O}$  以外のほとんどの化学種の濃度は漸増する。

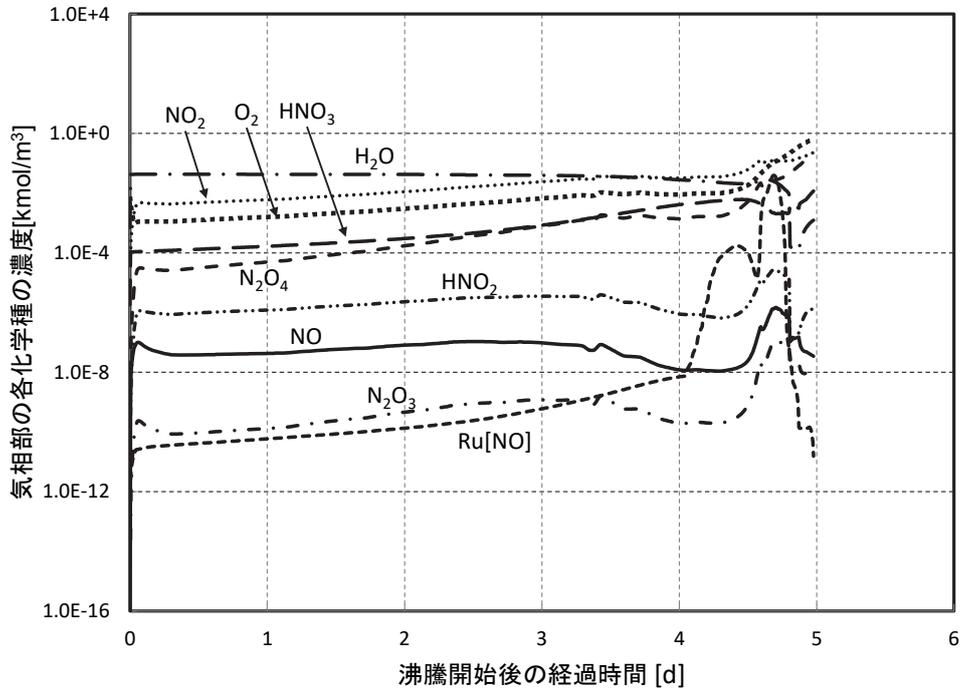


図 4.3 凝縮器接続配管内の気相部の各化学種の濃度

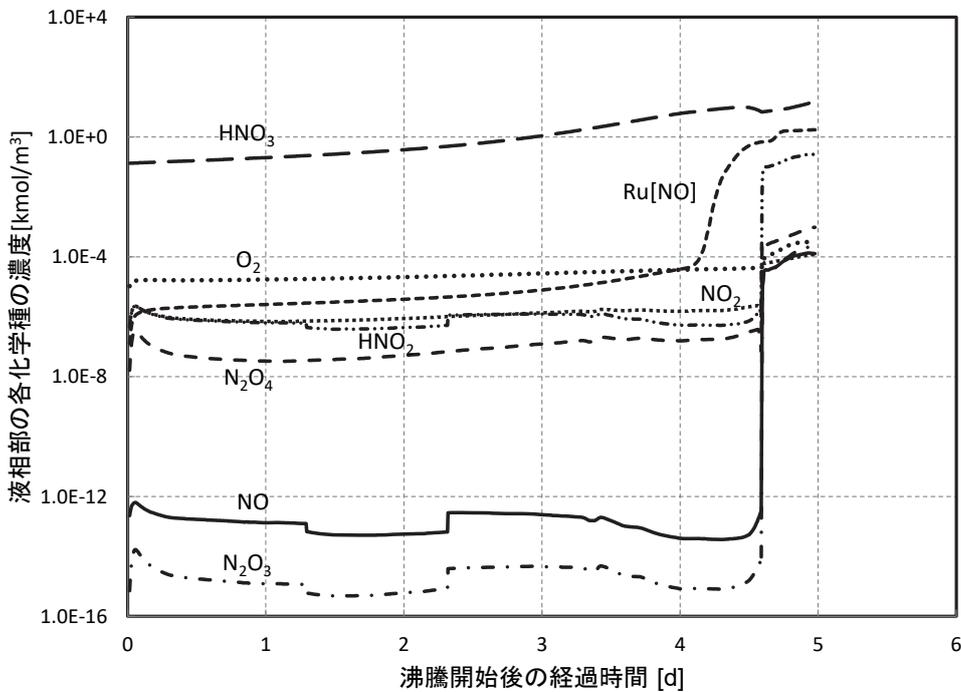


図 4.4 凝縮器接続配管内の液相部の各化学種の濃度

図 4.4 に示す液相中の濃度では、 $\text{HNO}_3$  の溶解が顕著であり  $\text{HNO}_2$  も発生する。沸騰晩期の 4.0 日～4.6 日にかけて Ru が増加し、凝縮液が減少に転じたのちには、気液間の移行はモデル化していないため変化しない。配管内の凝縮水が減少に転じる 4.59 日に急激に変化する。これは、高温の  $\text{NO}_2$  を含む高温の混合蒸気の流入によりミストの生成がなくなり、ミストに含まれて下流側に流出する量が無くなるためである。その後は凝縮水量の減少に伴い液相濃度は漸増する。 $\text{HNO}_3$  以外の化学種は、凝縮液が減少に転じて以降では、気液界面を介した分子拡散により増加に転ずる。なお、1.3 日から 2.3 日の期間での液相中の  $\text{NO}$ 、 $\text{N}_2\text{O}_3$  及び  $\text{HNO}_2$  の濃度でのステップ的な変動は、解析のタイムステップの変化による。

## (2) 凝縮器伝熱部の気相及び液相部での濃度変化

凝縮器内で発生した凝縮水は、地下 4 階に流出するようにモデル化している。このため SCHERN 解析での凝縮器内の液相水量としては、凝縮器内のプール水に加え凝縮器から地下 4 階に流出するミスト及びプール水を加算した値とした。また凝縮器での凝縮速度は、SCHERN の気液間の化学種の移行において仮定する“瞬時の気液平衡による Henry 法則に基づく移行”としての取り扱いには無理があると考えられるため、移行速度を 1/100 倍として解析している。

図 4.5 及び図 4.6 に、それぞれ凝縮器伝熱部での気相部及び液相部の各化学種の濃度変化を示す。各化学種の濃度変化の傾向は、図 4.3 に示す凝縮器接続配管の気相部での傾向と類似しているが、各化学種の濃度は接続配管内に比べて薄い。これは、気相成分が凝縮器上部を經由して配管分岐セルの区画 B に流出するため凝縮器伝熱部の濃度が低下したためと考えられる。3.9 日付近での気相中の  $\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{HNO}_3$  及び  $\text{HNO}_2$  の濃度でステップ的な変動は、解析のタイムステップの変化による。

図 4.6 に示す液相中の濃度は、凝縮器伝熱部の気相の濃度が接続配管の気相濃度に比べて薄いにも拘わらず、 $\text{NO}$  および  $\text{N}_2\text{O}_3$  を除いて接続配管内液相部の濃度と同程度である。これは、凝縮器伝熱部の凝縮速度が、解析条件として 1/100 倍にしたにも拘わらず、接続配管内に比べて 4 桁ほど大きいいため、気相から液相への移行量が多くなるためと考えられる。このことから凝縮器での凝縮量の制御は、凝縮器での凝縮水中の化学種の濃度に影響すると推察される。

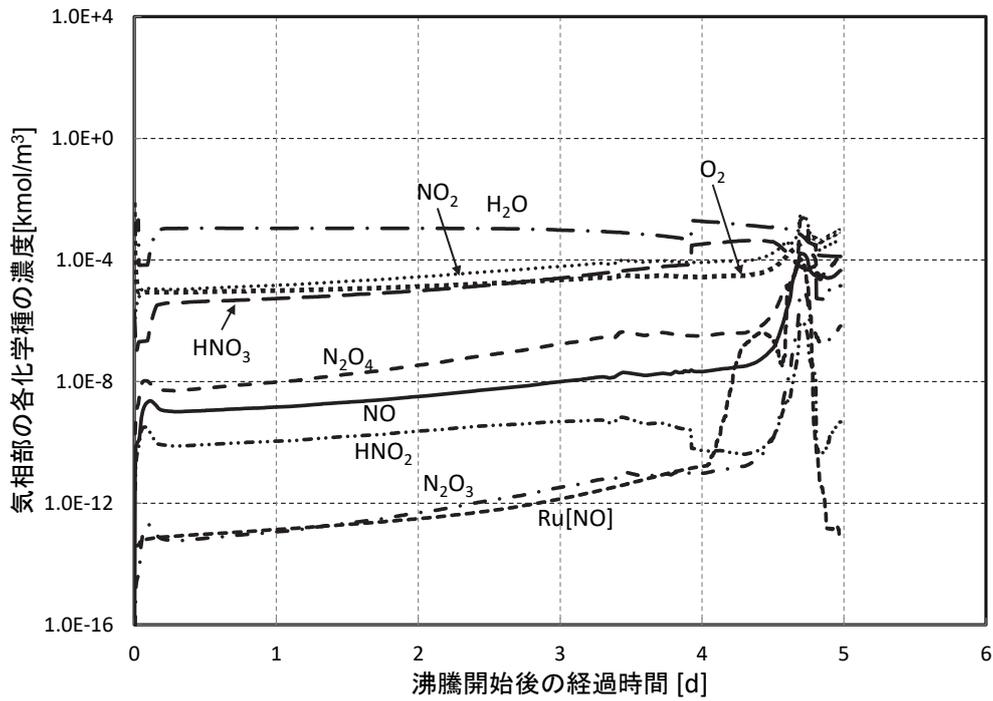


図 4.5 凝縮器伝熱部の気相部の各化学種の濃度

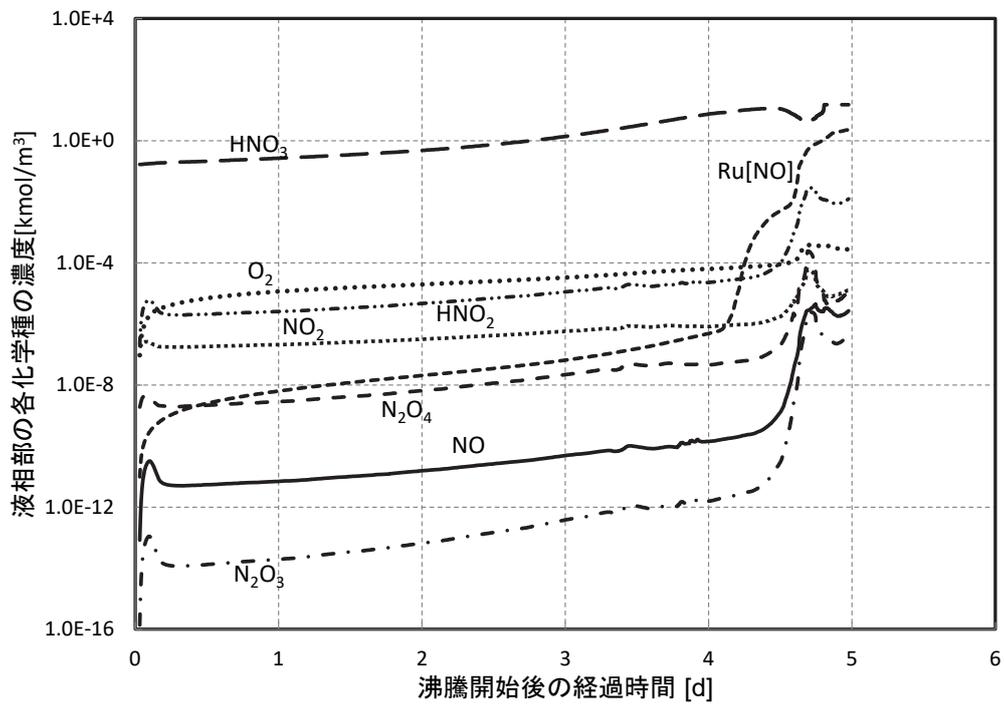


図 4.6 凝縮器伝熱部の液相部の各化学種の濃度

(3) HNO<sub>3</sub> 及び HNO<sub>2</sub> の各部の気相及び液相部での濃度

図 4.7 及び図 4.8 にそれぞれ各区画の気相及び液相中の HNO<sub>3</sub> 及び HNO<sub>2</sub> の濃度変化を示す。両相とも同一時刻での空間的な変化では、HNO<sub>3</sub> 濃度はほぼ同じ値で推移する。これに対して、HNO<sub>2</sub> 濃度は下流側の区画ほど上昇する傾向がある。HNO<sub>3</sub> に次いで HNO<sub>2</sub> の濃度が高く、区画 B

では沸騰初期から高い。これは、僅かに生成した  $\text{HNO}_2$  と大量に存在する  $\text{HNO}_3$  の反応で  $\text{N}_2\text{O}_4$  及び  $\text{NO}_2$  が生成され  $\text{HNO}_2$  への変化へと連鎖的に増大した可能性が考えられる。

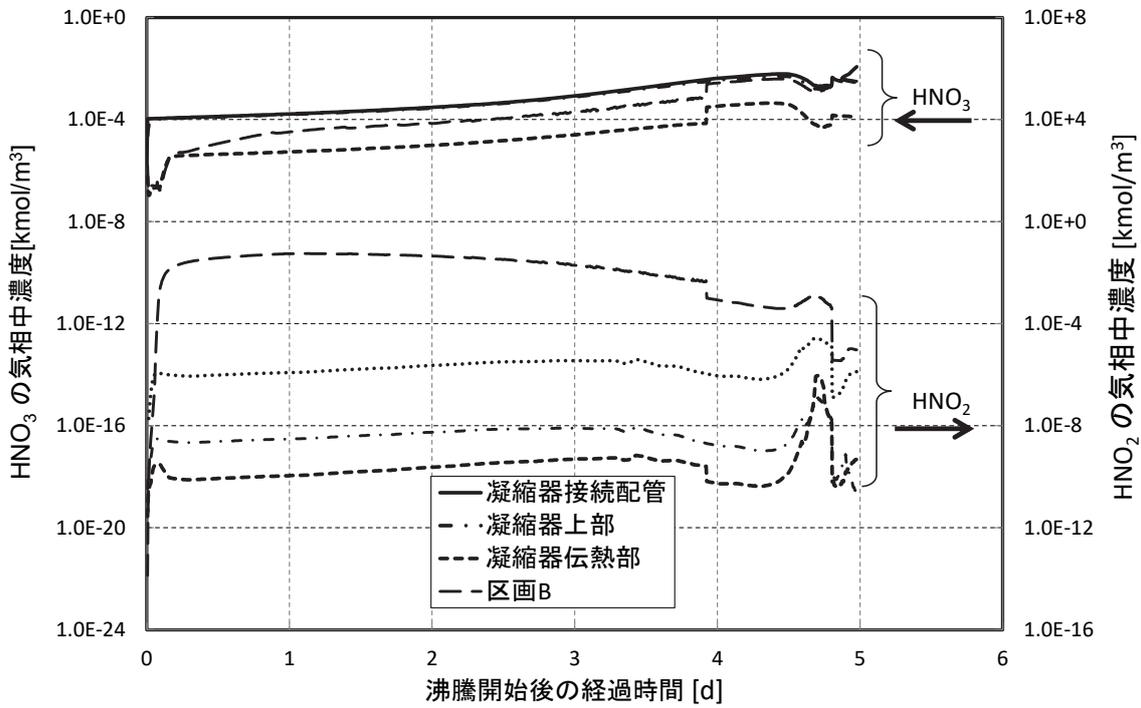


図 4.7 各部の気相中の  $\text{HNO}_3$  及び  $\text{HNO}_2$  の濃度

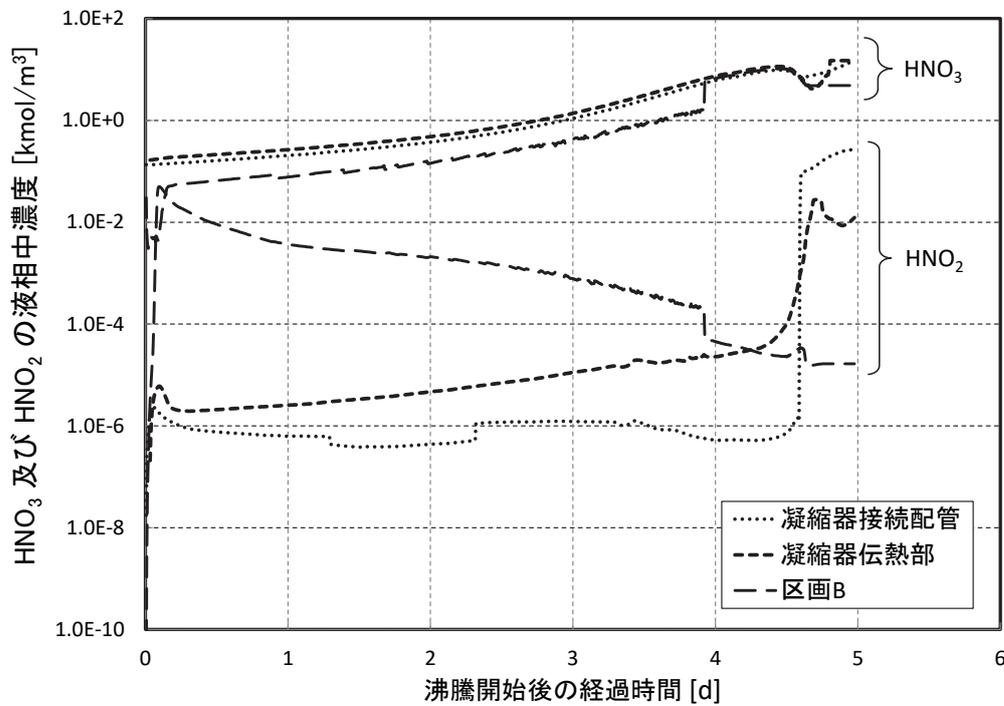


図 4.8 各部の液相中の  $\text{HNO}_3$  及び  $\text{HNO}_2$  の濃度

**(4) Ru の各部の気相及び液相部での濃度及び総量**

図 4.9 に各部の気液各相での Ru 濃度の経時変化を示す。Ru の凝縮水への移行量は気相の Ru 濃度、濡れ壁を含む凝縮水液面の面積及び Ru 物質移動係数の積で計算される<sup>7)</sup>。凝縮液中での HNO<sub>2</sub> 濃度は 0.01 mol/L 以下のため、文献 4) の 2 章で示した気液接触実験の分析結果を反映して液相の HNO<sub>2</sub> の濃度に依存した化学吸収はゼロとした。4 日以前では Ru の発生量が少ない。沸騰晩期で Ru の発生が増大すると気相濃度が急増するが発生ピークを過ぎると再び減少に転ずる。液相では、徐々に Ru が増加し、沸騰晩期の急増の後には、解析条件として乾固後の Ru 発生はなく、拡散による移行もゼロを仮定している(文献 7)、3.4 節参照)ため、凝縮水の減少に伴う濃度の微増あるいは区画 B での増減なしとなる。凝縮がない状態では、分子拡散による移動、液相中での Ru と HNO<sub>2</sub> との化学変化による増減が想定されるが、今後の実験等による化学的な挙動の解明が待たれる。

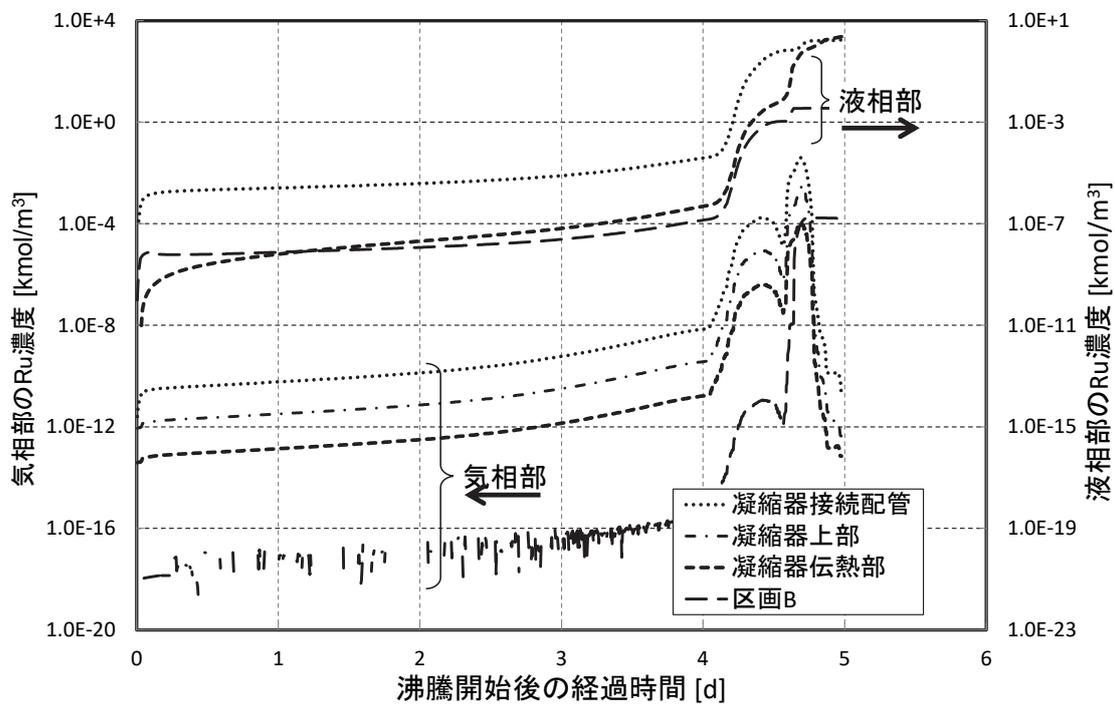


図 4.9 各区画内の気液各相中の Ru 濃度

図 4.10 には、各セル内の液相中の Ru 残存量の変化及び貯槽から気化し流出した Ru の総量を示す。図 4.11 には、Ru の総量と下流側に向けて順次加算した Ru の積算値を示す。凝縮器接続配管では、放出総量の 35% が凝縮水に移行する。解析では接続配管は水平配管を想定しているが、配管の取り回しで U 字のベント部が形成されればスクラビング効果が期待でき Ru の除去率は上昇すると考えられる。沸騰晩期以降での熱分解による脱硝反応で発生した NO<sub>2</sub> 及び O<sub>2</sub> の流入により配管内の凝縮水は再蒸発し始める。凝縮水が減少すれば Ru も再蒸発すると考えられるが、解析では Ru の再蒸発をモデル化していない。Ru が再蒸発しても蒸気とともに移行すれば後段の凝縮器で再度凝縮水に移行させることができると考えられるが、接続配管を 2 系統設置し、片方の系統で蒸気を流し貯槽からの蒸気発生が減少した時点での隔離し、他方の系統に切り替えるような操作を行えば、35%程度(スクラビング効果が期待できればこれ以上)の Ru 量が配管内に閉じ込めることが可能と考えられ、汚染範囲の限定化の観点では有効と考えられる。

地下 4 階に流出した凝縮水を含めて凝縮器で発生した凝縮水に移行した Ru 量は、発生総量の 21%である。これは、上流の接続配管の凝縮水に Ru が移行して凝縮器伝熱部の Ru 濃度が減少したことにより接続配管に比べて凝縮水に移行した Ru 量が減少したと考えられる。

一方区画 B では、凝縮水中の Ru 濃度は、凝縮器での凝縮水中の濃度とほぼ同等であるにも関わらず凝縮水量が少ないため凝縮水中の Ru 量は流出量の約 1.1%であった。残りの約 43%は他の区画に移行することになる。

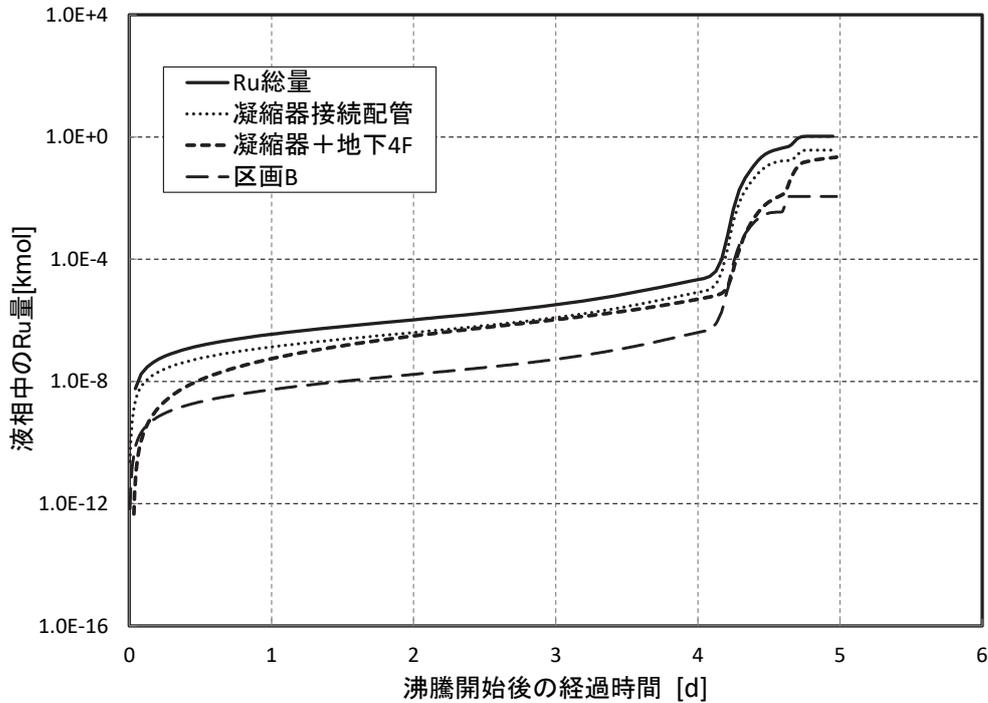


図 4.10 各区画の液相中の Ru 量

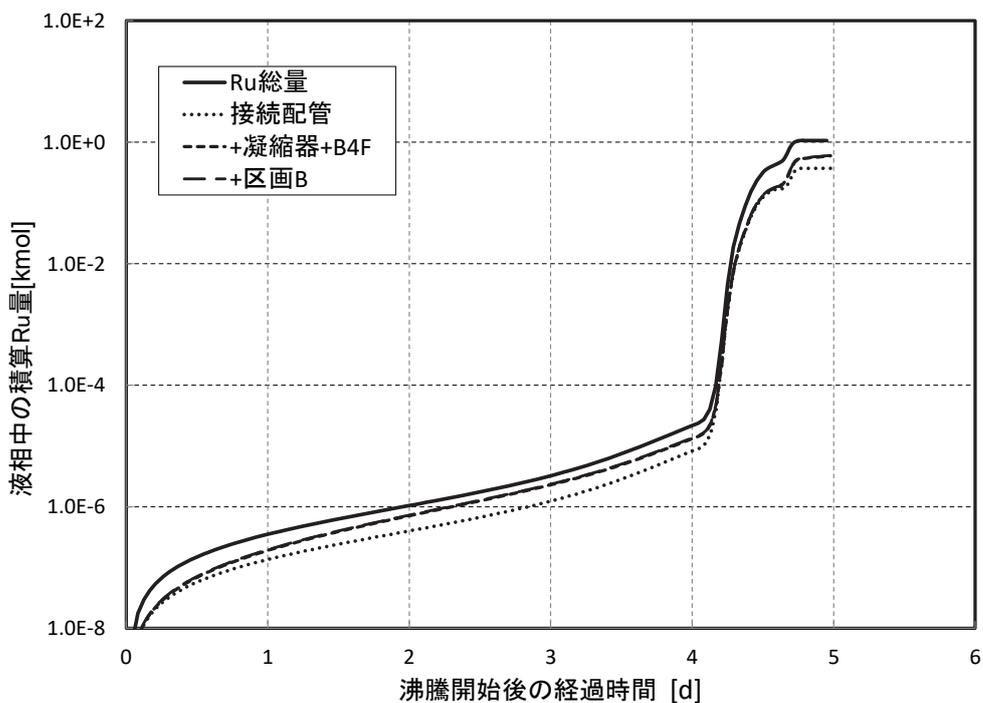


図 4.11 各区画の液相中の Ru 量の積算

ここでの解析では、凝縮器での凝縮率を 90% と仮定した。このため凝縮せずに凝縮器を通過した混合蒸気に含まれる Ru は区画 B に流出する。100%凝縮を仮定すれば、凝縮水がなくなるまではより多くの Ru を地下 4 階に止めることが可能と考えられるが、混合蒸気がゼロになって以降も Ru は放出され、脱硝反応に伴う NO<sub>x</sub> 及び O<sub>2</sub> を流出の駆動源として配管分岐セルに流出するが、100%凝縮では配管分岐セルには硝酸を含む凝縮水は存在しないので Ru あるいは NO<sub>x</sub> は吸収されることなくそのまま気体として移行することになる。これを避けるために配管分岐セル内に硝酸を含むプール水を注水する対策も想定できるが、凝縮器の完全凝縮としないことで事故対策としての実効性を増すメリットになると考えられる。

#### 4.3 解析モデルの課題に係る考察

これまでの実規模施設での高レベル廃液の蒸発乾固事故解析<sup>4), 5), 6)</sup>では、施設内の壁面での蒸気凝縮を想定した解析を実施した。解析モデルもこれに合わせた仮定等を基に提案<sup>7)</sup>している。これに対して本報で解析対象とする凝縮器では急速に蒸気の凝縮が進む。このため、従来の大空間での蒸気凝縮の事故シナリオから凝縮器を用いることによる事故シナリオの変化を基に SCHERN の解析モデルの適用の可否について考察する。

##### (1) 乾固後の液相中の化学種の取り扱い

沸騰晩期での混合蒸気の減少と硝酸塩の熱分解による脱硝反応による高温の NO<sub>x</sub> 等の発生により配管内の凝縮水は再蒸発し凝縮器接続配管内の凝縮水に一旦は移行した Ru は再揮発すると考えられる。図 4.6 に示すように凝縮液には硝酸、亜硝酸が溶解している。文献 8) には高レベル廃液中の Ru の揮発量に係る相関式が示されている。相関式は、廃液中の硝酸濃度及び硝酸活量の関数として定義されており、廃液中の鉄、ニッケル等の硝酸塩が Ru の気化に影響することが示されている。また、液相中の亜硝酸には Ru の揮発を抑制する効果がある。凝縮水には硝酸塩は含まれないと考えられるため、文献 8) に示されている相関式は、本解析での Ru の再揮発現象には、変更なしに適用することはできないが、代用として利用することは可能と考える。

##### (2) 急激な凝縮での Henry の法則に基づく移行モデル

4.2 (2) で示したように、凝縮器における凝縮速度では、SCHERN の気液間の化学種の移行において仮定する“瞬時の気液平衡による Henry 法則に基づく移行”としての取り扱いには限界があると考えられるため、移行速度を 1/100 倍として仮定して解析している。

##### (3) Ru の凝縮器内での凝縮水への移行モデル

Ru の凝縮水への移行速度に係る物質移動係数相関式を導出した条件<sup>4)</sup>からは凝縮器内の熱流動状態は大きく逸脱しており、同相関式を凝縮器に適用することはできない。同相関式より求まる物質移動係数は気相部の Ru 濃度に依存するため、上流の接続配管で Ru の 35% が凝縮水に移行するため、凝縮器伝熱部の Ru 濃度は低くなり、結果として Ru の凝縮器での除去量は少ない結果となっている。これは物質移動係数に基づくモデルの凝縮器への適用の限界を示しており、凝縮器での液相への移行メカニズムを解明し、それに即した移行モデルを提案する必要がある。

#### (4) 熱流動解析での凝縮器のモデル化

気液同温を基本とする MELCOR の模擬では、単一のボリュームでモデル化するとボリューム内の全域の蒸気が均等に凝縮する結果となる。これを回避するために気相部と冷却部を 2 分割したが、ほぼすべての蒸気が冷却部に流入し凝縮するため気相部と冷却部をつなぐ仮想的なジャンクションを設けて、その流量が気相部への流入量の一定割合となるように制御関数機能を用いて制御し、凝縮器での凝縮をモデル化した。

蒸発乾固事故では、再処理施設内での壁面での凝縮が放射性物質の施設内での移行挙動に影響することはこれまでの事故解析で示してきた。施設内での凝縮挙動を MELCOR のような 1 点近似の均質モデルによるモデル化には限界があり、RELAP5 のような気液 2 層流を扱えるコードによる詳細解析も一つの解決策と考えられるが、計算機資源の適切は活用の観点からは、MELCOR での解析は第ゼロ近似として有効と考えられ、同コードの特性を考慮した改善策を取り入れた解析モデルを提案することは有益と考える。

## 5. まとめ

再処理施設の過酷事故の一つである高レベル放射性廃液貯槽の冷却機能喪失による蒸発乾固事故では、沸騰により廃液貯槽から発生する硝酸-水混合蒸気とともに Ru の揮発性の化学種が放出される。そのための事故対処策の一つとして貯槽から発生する混合蒸気を積極的に凝縮する凝縮器の設置案が示されている。この事故対策では、硝酸蒸気の拡散防止、Ru の除去率の向上などが期待できる。

本報では、実規模の仮想的な再処理施設を対象に凝縮器を設けて施設内での蒸気及び Ru の移行挙動の模擬を試行した。解析の結果次の点を確認した。

- ・凝縮器を用いて蒸気を凝縮する対処策は、貯槽からの発生する蒸気を特定の個所に停留させることで、施設内の放射性物質を含む蒸気による汚染を限定する効果は大きい。
- ・凝縮器では、蒸気の凝縮だけでなく NO<sub>x</sub> ガスも冷却されるため、配管分岐セル内の温度は上昇しない。このため当該セル内に停留する凝縮水の温度は上昇せず凝縮水に移行した Ru の再揮発の抑制が期待できる。

また解析に係る解決すべき課題として、次の点を挙げることができる。

- ・乾固後の液相中の Ru を含めた化学種の気相への移行のモデル化が必要である。
- ・急激に蒸気が凝縮する凝縮器の解析では、Henry の法則に基づく移行モデル及び物質移動係数に基づく Ru 移行モデルには限界がある。凝縮器内での凝縮水への移行メカニズムを解明し、それに即した移行モデルを提案する必要がある。
- ・施設内での凝縮挙動を MELCOR のような 1 点近似の均質モデルでモデル化するには限界があるが、計算機資源の適切は活用の観点からは、MELCOR での解析は第ゼロ近似として有効と考えられ、同コードの特性を考慮した改善策を取り入れた解析モデルを提案することは有益と考える。

## 参考文献

- 1) 「再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究」運営管理グループ, “再処理施設における放射性物質移行挙動に係る研究報告書”, 2014.
- 2) 日本原燃株式会社, “資料 10-1 六ヶ所再処理施設における新規制基準に対する適合性 第 28 条：重大事故等の拡大防止等・重大事故等の対処に係る有効性評価の基本的な考え方・冷却機能の喪失による蒸発乾固への対処”, 第 320 回核燃料施設等の新規制基準適合性に係る審査会合, [https://www2.nsr.go.jp/disclosure/committee/yuushikisya/tekigousei/nuclear\\_facilities/190000136.html](https://www2.nsr.go.jp/disclosure/committee/yuushikisya/tekigousei/nuclear_facilities/190000136.html) (参照 2021 年 10 月 30 日) .
- 3) 火力原子力発電技術協会, “火力・原子力発電所設備要覧, 平成 10 年改訂版”, 1999.
- 4) 吉田 一雄 他, “再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での NO<sub>x</sub> の化学挙動を考慮した Ru の移行挙動解析”, JAEA-Research 2021-005, 2021, 25p.
- 5) 吉田 一雄, 石川 淳, “MELCOR コードを用いた再処理施設の廃液沸騰事象解析”, JAEA-Research 2012-026, 2012, 25p.
- 6) 吉田 一雄 他, “再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での FP 硝酸塩の脱硝に伴い発生する NO<sub>x</sub> の化学的挙動解析”, 日本原子力学会和文論文誌, Vol.18, No.2, 2019, pp.69-80.
- 7) 吉田 一雄 他, “SCHERN-V2：再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での化学的挙動解析プログラム解説書”, JAEA-Data/Code 2021-008, 2021, 35p.
- 8) 吉田 一雄 他, “再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故における気相への Ru 移行速度の導出”, 日本原子力学会和文論文誌, Vol.13, No.4, 2014, pp.155-166.



