JAEA-Research 2023-001 DOI:10.11484/jaea-research-2023-001



再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故の ソースターム解析手法の整備

Development of Analytical Approach of Source Term 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

May 2023

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(<u>https://www.jaea.go.jp</u>)

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.

より発信されています。

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

© Japan Atomic Energy Agency, 2023

JAEA-Research 2023-001

再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故の ソースターム解析手法の整備

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*

(2023年2月14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。このためリスク評価の観点からは、Ruの定量的な放出量の評価が重要な 課題である。再処理施設のリスク評価の精度向上に資するため、計算プログラムを用いて当該事 故時でのソースタームを解析的に評価する手法の整備を進めている。提案する解析手法では、ま ず廃液貯槽の沸騰をSHAWEDで模擬する。模擬結果の蒸気発生量等を境界条件としてMELCORに より施設内の蒸気等の流れに沿って各区画内の熱流動状態を模擬する。さらに各区画内の熱流動 状態を境界条件としてSCHERNを用いてRuを含む硝酸、NO_x等の化学挙動を模擬し、施設外への 放射性物質の移行量(ソースターム)を求める。本報では、仮想の実規模施設での当該事故を想 定して、これら3つの計算プログラム間でのデータの授受を含めて解析事例を示す。

原子力科学研究所:〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2-4 *株式会社フロンティアシステム

JAEA-Research 2023-001

Development of Analytical Approach of Source Term 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 February 14, 2023)

An accident of evaporation to dryness by boiling of high-level radioactive 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 the atmosphere. Accurate quantitative estimation of released Ru is one of the important issues for risk assessment of those facilities. To resolve this issue, an analytical approach has been developed using computer simulation programs to assess the radioactive source term from those facilities. The proposed approach consists analyses with three computer programs. At first, the simulation of boiling behavior in the HLLW tank is conducted with SHAWED code. Next step, the thermal-hydraulic behavior in the facility building is simulated with MELCOR code based on the results at the first step simulation such as flowed out mixed steam flow rate, temperature and volatized Ru from the tank. The final analysis step is carried out for estimating amount of released radioactive materials with SCHERN computer code which simulates chemical behaviors of nitric acid, nitrogen oxide and Ru based on the condition also simulated MELCOR. Series of sample simulations of the accident at a hypothetical typical facility are presented with the data transfer between those codes in this report.

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

^{*} Frontier System Co., Ltd.

目次

1.	はじめに	1
2.	解析の手順	3
3.	SHAWED を用いた廃液貯槽の沸騰現象の解析	4
	3.1 廃液沸騰の解析モデルの概要	4
	3.2 貯槽からの流出蒸気量、蒸気温度及び Ru 量	5
	3.3 Ru の発生速度に係る課題	6
	3.4 NO ₂ 及び O ₂ の発生速度	6
	3.5 エアロゾルの発生速度	7
4.	MELCOR を用いた施設内の熱流動解析	8
	4.1 解析モデル	8
	4.2 解析条件	9
	4.3 解析結果	10
5.	MELCOR を用いた蒸発乾固事故解析での課題	15
	5.1 解析上の課題	15
	5.2 硝酸の同モルの水での代用による誤差の補正	16
	5.3 気液各層の温度の適正化	17
6.	SCHERN を用いた施設内の化学挙動解析	19
	6.1 SCHERN の概要	19
	6.2 解析結果	20
	6.3 化学挙動が熱流動解析に及ぼす効果	23

7.	まとめ	•••••	 •••••	 •••••	 •••••	 ••••••	 	25
参	考文献·	•••••	 ••••	 •••••	 	 	 	26

Contents

1.	Introduction	1						
2.	Procedure of analysis	3						
3.	Analysis of boiling behavior in HLLW tank with SHAWED code	4						
	3.1 Overview of analytical model for liquid waste boiling	4						
	3.2 Outflow rate of mixed steam flow rate, temperature and, amount of Ru	5						
	3.3 Issue of concern with Ru generation rate							
	3.4 Generation rate of NO ₂ and O ₂							
	3.5 Generation rate of aerosol	7						
4.	Analysis of thermal-hydraulic behavior in facility building with MELCOR	8						
	4.1 Analytical models ·····	8						
	4.2 Boundary conditions	9						
	4.3 Analytical results ·····	10						
5.	Issues of concern with accident analysis with MELCOR	15						
	5.1 Analytical issues ·····	15						
	5.2 Infused error with substitution of mole equivalent water steam for nitric acid	16						
	5.3 Appropriate modeling of temperatures in vapor and liquid phase	17						
6.	Analysis of chemical behavior in facility building with SCHERN	19						
	6.1 Overview of SCHERN ·····	19						
	6.2 Analytical results ·····	20						
	6.3 Effect of chemical behavior to thermal-hydraulic behavior	23						
7.	Summary	25						
Re	ferences	26						

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、それらの崩壊熱による発熱の ため常時冷却する必要がある。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。この過程において廃液中の放射性物質は、沸騰で発生する飛沫の形態、あるいは廃液 の温度上昇に伴い発生する揮発性化学種として貯槽外に流出する¹⁾。乾固時には、含有硝酸塩の 脱硝反応が進行しNO_xガスが発生し始めると考えられる。溶液の沸騰及び脱硝反応に伴い発生す る気体(蒸気あるいはガス)とともに貯槽から放出される放射性物質は、事故シナリオの一つと して貯槽の圧力上昇を防止する目的で設置される廃ガスシールポットから廃ガス処理セル内に流 出することが想定される¹⁾。このシナリオではセルに流出した放射性物質を含む気体は、セル排 気系から排気筒放出されるかまたはセルから建屋内へ逆流し建屋排気系から排気筒放出される。 この事故シナリオでの蒸気等の流れを図1.1に示す。



図 1.1 事故時に想定される再処理施設内での放射性物質の移行経路

当該事故のリスク評価では、廃液の沸騰により貯槽から施設内のセル等の区画に流出した放射 性物質が施設内を移行し、最終的に施設外の環境中に放出される放射性物質量(いわゆるソース ターム)を定量的に最適予測することが求められる。日本原子力研究開発機構(以下、機構とい う)では、再処理施設のリスク評価の精度向上に資するため、計算プログラムを用いてソースタ ームを解析的に評価する手法の整備を進めている。

ソースターム解析では、

- a) まず廃液貯槽から再処理施設の区画内に流出する放射性物質の経時的な変化を求める。貯槽 から流出した放射性物質はエアロゾルまたは気体状 Ru として硝酸-水混合蒸気とともに 施設内を移行する。
- b)移行挙動を解析するには、施設内の熱流動解析により硝酸-水混合蒸気及び NOx 流量、施設

区画内での蒸気の凝縮を模擬する必要がある。

さらに

c) 気体状 Ru の移行挙動に影響する施設内の気液各相で生じる化学挙動を解析する必要がある。

項目 a)の貯槽からの放射性物質の流出を解析するため、再処理廃液の沸騰を模擬する計算プ ログラム:SHAWED (<u>Simulation of High-level radioActive Waste Evaporation and Dryness</u>)を開発し た²⁾。廃液の沸騰・濃縮の進展に伴う温度などの熱水力パラメータや硝酸濃度の過渡的な定量的 変化は、廃液の発熱量、硝酸濃度、FP 硝酸塩の組成及び濃度等の条件に大きく依存し変動する。 リスク評価に資するためのソースタームを精度よく評価するには、これらの境界条件の多様な変 動に対応可能な汎用性のある計算プログラムにより解析的に求めることが重要である。SHAWED では、任意の多成分硝酸塩水溶液の気液平衡モデルに基づき廃液の沸騰を模擬している。

項目 b)の再処理施設内の熱流動挙動解析には、原子炉施設のシビアアクシデント時の熱流動 を解析する計算コード:MELCOR³⁾を用いている。MELCOR は、解析対象施設を複数の領域(コ ントロールボリューム)に分割してそれらを流路(フローパス)で連結し、コントロールボリュ ーム内の質量及びエネルギーに対して、一点集中定数型近似モデルで表現し、コントロールボリ ューム間の圧力差、重力、流動抵抗、流体の慣性を考慮した運動方程式によって流体のコントロ ールボリューム間の移行量を計算する。原子炉施設を対象に開発されているため、硝酸の熱流動 は模擬できないが、当該事故での熱流動の特徴を踏まえて解析モデルを工夫することで近似的に 妥当な解析が可能である。

項目 c) については、MELCOR で解析した施設内の熱流動状態(温度、蒸気流量など)を境界 条件としてそこでの化学挙動を解析する計算プログラム:SCHERN(<u>S</u>imulation of <u>Che</u>mical <u>R</u>eaction of <u>N</u>itroxide)⁴⁾を開発した。SCHERN は、再処理施設内での硝酸-水混合蒸気、その凝 縮水及び NO_x が存在する気相及び液相で構成される系において想定される化学反応を伴う多様 な化学種の濃度の経時変化を、化学反応速度を考慮した連立一次微分方程式の数値解として求め る。

本報では、上記の3つの計算コードを用いた高レベル廃液の蒸発乾固事故のソースタームを解 析する手順を具体的な事例を基に詳述する。さらに MELCOR を用いた熱流動解析での硝酸蒸気 を考慮するために提案する解析モデルが解析結果に及ぼす効果についても定量的に分析する。

2. 解析の手順

図 2.1 に実規模施設の蒸発乾固事故時でのソースターム解析の流れを示す。解析は、貯槽内の 廃液の沸騰解析、その結果を境界条件とした施設内のエアロゾルの移行を含めた熱流動解析、貯 槽からの流出に係る情報、施設内の熱流動条件を基に施設内の各区画での化学挙動解析の3つの ステップで行う。この一連の解析を通してソースタームとして施設外に流出する Ru 量及びエア ロゾル量を求める。

ステップ1:SHAWEDを用いた廃液貯槽の沸騰現象の解析

主要な解析項目は、沸騰時の廃液の温度上昇、沸騰に伴う硝酸及び水の蒸気発生量、沸騰段階の飛沫発生量、沸騰晩期から乾固にかけて発生する NOx 量、Ru 量である。

ステップ2: MELCOR を用いた施設内の熱流動解析

ステップ1 で求めた廃液貯槽から流出する硝酸及び水の蒸気発生量、温度を境界条件として、 硝酸-水混合蒸気が設内の移行経路の沿って流れるときのセル等の区画内の温度、蒸気、ミスト 量及び凝縮液量を解析する。飛沫はエアロゾルとして区画内での沈着量を計算する。

ステップ3:SCHERNを用いた施設内の化学挙動解析

ステップ1で求めた廃液貯槽から流出する硝酸及び水の蒸気発生量、温度、沸騰晩期から乾固 にかけて発生する NO_x、O₂量、Ru量、ステップ2で求めた各区画内の凝縮液量、温度、蒸気流 速を境界条件として、蒸気の移動経路に沿って施設内の各区画の気液各相の NO_x、硝酸、亜硝酸、 水、Ruの濃度を解析する。蒸気の流れの上流から下流に向け区画ごとに逐次的に解析する。



図 2.1 再処理施設での蒸発乾固事故時のソースターム解析の流れ

3. SHAWED を用いた廃液貯槽の沸騰現象の解析

本章以降の解析の実施例として、発熱が 5 W/L の廃液 120 m³を内包する 1 基の貯槽(内径:7 m、高さ:4.0 m)の冷却機能喪失事故を取り上げる。この貯槽を対象とした SHAWED の解析例 は文献 2)の 10 章に詳述している。本報では、3.1 節に、文献 2)より転載して SHAWED の廃液 沸騰の解析モデルの概要を示す。また、ステップ 2 及びステップ 3 の境界条件となる貯槽での事 故時の諸量に係る情報についても文献 2)から転載して 3.2~3.5 節に示す。

3.1 廃液沸騰の解析モデルの概要

溶液の沸騰は、気液各相が平衡に達するまで継続し平衡になると停止する。高レベル廃液貯槽 のような緩慢な発熱が継続し、定常的に貯槽出口から蒸気が流出し大気圧が保持される系では、 液相の蒸発により廃液の沸点が徐々に上昇し続けるので、気液平衡に極めて近い状態で沸騰が継 続すると仮定できる。SHAWED では近似的に気液平衡状態で継続的に液相が蒸発するとして廃 液の沸騰をモデル化している。上述の廃液の温度、硝酸量及び硝酸活量は、廃液の発熱量及び多 成分硝酸塩水溶液である廃液の硝酸の気液平衡データを基に求める。その計算のスキームを図 3.1 に示す。気液平衡モデルに基づき廃液の硝酸及び水の蒸発量、廃液温度、気液各相の硝酸モル分 率を求める廃液沸騰に係る主要な流れ(濃いグレーの矢印)とそれらのパラメータから気相に移 行する放射性物質に係る諸量を計算する流れ(薄いグレーの矢印)で構成される。この計算スキ ームの有効性は実廃液の沸騰実験等の模擬で検証されている⁵。



図 3.1 SHAWED での主要パラメータの計算スキーム (文献 2) より転載)

図 3.2 には、貯槽内で発生すると考えられる事象の模式図を示す。図 3.1 に示す計算スキーム での矢印と、図 3.2 中の発生事象間の繋がりを示す矢印との対応は、同一の番号で示す。



図 3.2 廃液貯槽内の主要なパラメータの計算の流れ(文献 2) より転載)

3.2 貯槽からの流出蒸気量、蒸気温度及び Ru 量

図 3.3 に SHAWED で模擬された貯槽からの流出蒸気量、蒸気温度及び Ru 発生速度を示す。 SHAWED の模擬は、廃液(乾固物)温度が 190 ℃となる沸騰開始後 4.84 日で終了している。本 報ではこれまでの実験等の結果を踏まえて¹⁾当該事故での乾固と判断する 160 ℃¹⁾を目安にし、 約 119 時間後(4.75 日後)を廃液の乾固とした。ステップ2以降の解析で例えば 10 日間の模擬を 行う場合には、その後の乾固物温度及び Ru 発生速度を求める必要がある。乾固物の温度は、4 章 の MELCOR の解析では文献 6)の解析結果を援用している。



図 3.3 廃液貯槽からの流出硝酸-水混合蒸気流量、温度及び RuO4 発生速度

3.3 Ru の発生速度に係る課題

廃液からの RuO₄の発生は廃液温度が約 120 ℃を超えると顕著になるが、それ以前では廃液中の HNO₂により RuO₄の発生が抑制されることが実験から確認されている 7。しかし、HNO₂による揮発抑制効果の定量的な解明は十分でない。さらに廃液中の HNO₂は HNO₃の放射線分解により発生するが、高レベル廃液中の FP の組成、濃度等に依存した放射線量及び G 値の不確実さ、情報不足により廃液中の HNO₂のモデル化は現状では困難である。現状の SHAWED の解析では図 3.4 に示すように廃液温度が 120 ℃になるまでの発生速度は、飛沫に含まれて気相中に移行する Ru(NO)(NO₃)₃である。

一方、SHAWED では乾固後の Ru 発生速度を模擬できない。現状では乾固以降の解析には Ru の発生に係る実験での実測値から推定することになる。文献 2) では、文献 1) に記載の模擬廃液 を用いた長時間実験での乾固後の Ru 発生の測定結果を基に図 3.4 に示すように Ru の発生速度 を推定している。後述の SCHERN の解析ではこの値を用いることになる。



図 3.4 RuO4 発生速度の沸騰模擬ツールの計算結果及び 実験結果から推定した発生速度との比較(文献 2)より転載)

3.4 NO₂ 及び O₂ の発生速度

文献 2) では、模擬廃液を加熱し NO₂の発生速度を測定した結果を基にした昇温速度 [K/s]と単 位液量当たりの NO₂発生速度 [mol/L s] との相関を分析している。複数の測定実験の結果を比較 すると、昇温速度が遅くなるにつれて、NO₂の発生速度のピーク値は小さくなり、ピーク時の温 度は低くなる傾向が見て取れる。また、廃液温度が 150 ℃以上では NO₂ 発生速度の変化は概ね相 似している。このような廃液の昇温速度と NO₂の発生速度との相関性に着目して NO₂発生速度の 相関式が示されている。SHAWED ではこの相関式により乾固までの NO₂及び O₂の発生速度を模 擬している。SHAWED は乾固以降の発生量を計算しないため、次段の MELCOR 解析では、乾固 以降の発生量も必要とするため、同様の相関式を制御関数で表現し、熱流動解析で考慮している。

3.5 エアロゾルの発生速度

SHAWED では、図 3.5 に示す飛沫同伴 FP 量[g/s]が計算される。飛沫に含まれる FP 量は、飛沫 として気相に移行する廃液量に FP 重量分率(廃液中の結晶水を含まない FP 硝酸塩の総量の重量 割合)を乗じた値をタイムステップ[s]で除して求めている。飛沫には水及び硝酸が含まれるが貯 槽から流出する時点で乾燥したエアロゾルになると仮定する。MELCOR 解析では、時間依存のエ アロゾル発生速度[kg/s]として入力する。



4. MELCOR を用いた施設内の熱流動解析

本章では、SHAWEDの解析結果を境界条件として、MELCORを用いた施設内の熱流動解析に ついて説明する。当該事故時に貯槽から発生した蒸気が放射性物質とともに施設内を移動する経 路をもとに施設内の各区画及びそれらの間をつなぐ流路で構成されるボリューム・フローパスの 解析モデルを設定する。そのための入力データの作成手順を示す。さらに MELCOR を用いて当 該事故を解析するにあたり仮定した解析条件が、結果に及ぼす影響について分析した結果も併せ て示す。

4.1 解析モデル

本報での MELCOR を用いた施設内の熱流動解析で想定する事故シナリオでは、廃ガスシール ポットから廃ガス処理セル内に流出する場合を想定する¹⁾。一般的には、セルに流出した放射性 物質を含む気体は、セル排気系から排気筒放出されるか、またはセルから建屋内へ逆流し建屋排 気系を経由し排気筒から放出される。ここでは後者の移行経路を仮定する。図 4.1 に仮想的な実 規模施設を対象とした MELCOR の分割モデルを示す。高レベル廃液貯槽は解析の境界条件であ る。廃ガス処理セル及び廃ガス処理セルに近接する建屋区画(放射性配管分岐セル)の容積、壁 表面積は文献 8)に掲載された施設の平面図及び立面図から推定している。それ以外の区画は、 概略値を設定している。放射性配管分岐セルは、図 4.2 に示すように容積、コンクリート壁面が 広いので、発生蒸気の移行可能な経路を考慮して4 区画でモデル化している。

当該事故の解析では、熱吸収源であるコンクリート壁での凝縮水の発生が重要である。廃ガス 処理セル、放射性配管分岐セルでは図面から測った壁厚をできるだけ忠実に再現したが、それ以 外の壁面の厚さは2mを仮定している。温度解析に必要な物性値はMELCOR内蔵の値を用いて いる。全電源喪失による冷却機能喪失を想定するので、換気系の停止を仮定する。これにより事 故時の建屋内への新たな空気の流入はないとする。



図 4.1 仮想的な実規模施設のボリューム分割図(参考文献 9)から転載)



図 4.2 放射性配管分岐セルのコントロールボリューム分割(参考文献 9)から転載)

4.2 解析条件

(1) 貯槽からの流出ガス流量及び温度

廃液貯槽から廃ガス処理セルに至る流路の流量として図 3.1 に示す硝酸及び水蒸気の各流量、 及び蒸気温度を MELCOR 解析の境界条件として設定する必要がある。解析では、硝酸と水の単 位モル当たりの潜熱がほぼ等しいことから硝酸蒸気はモル数の等しい水蒸気として扱うモデルと している。5 章ではこの仮定が Ru の移行に影響する凝縮水量に及ぼす効果を分析する。

MELCOR では、蒸気流量を解析の境界条件とする場合、蒸気を供給する時間依存ボリューム (Time-Specified Volumes、蒸気供給ボリュームと呼ぶ)と時間依存流路(Time Dependent Flow Path、 蒸気供給流路)を用いる。蒸気供給ボリュームでは、圧力[Pa]、温度[K]、蒸気分圧[Pa]、非凝縮ガ スのモル比[-]及びボリューム体積[m³](任意)の入力が必要である。圧力及び蒸気分圧は大気圧、 非凝縮ガスのモル分率はすべてゼロである。

温度は、蒸気がほぼ消失するまでは SHAWED の解析結果を時間依存のテーブル形式で入力する。それ以後の乾固段階では硝酸塩の熱分解に伴う脱硝反応で発生する NO_x 及び O₂ が放射性物質のキャリアガスとなるため、この段階の温度は、乾固物の温度を別途計算する必要がある。本報では文献 6) の解析結果を援用する。

蒸気供給流路は、蒸気流速[m/s]を時間依存のテーブル形式で入力する必要がある。SHAWED 解 析で得られる流出蒸気流量[kg/s]を MELCOR の制御関数(Control Function)機能を用いて蒸気流 速に変換する。SHAWED 解析の硝酸蒸気流量は、モル数の等しい水蒸気流量に換算し、水蒸気流 量に加算する。

(2) NO₂ 及び O₂の発生量及び温度

MELCOR では、非凝縮性の気体として N₂、O₂ 及び NO が既定の気体として設定され、水の蒸発及び凝縮への影響を考慮するための取り扱いである。当該事故の SHAWED 解析では貯槽で発

生するNO_xはすべてNO₂であると仮定し、O₂とともに発生するモデルとなっている²⁾。 MELCOR ではNO₂の物性値を入力すれば考慮可能であるが、解析上は化学反応を考慮するわけではないの で同モルのNOで代用する。

O₂及びNOの発生も時間依存ボリューム(非凝縮ガス供給ボリューム)で模擬する。状態量と して圧力[Pa]、温度[K]、蒸気分圧[Pa]、非凝縮ガスのモル比[-]及びボリューム体積[m³](任意)を 入力する。圧力は大気圧、温度は蒸気供給ボリュームと同じ、蒸気分圧はゼロ、O₂及びNOのモ ル比は、廃液中の硝酸塩がすべてⅢ価であると仮定し1:4とする。

NO₂の発生速度[mol/s/L]は、文献 2) に示した相関式を制御関数で表現し求める。相関式では、 昇温速度[K/s]の値も必要であるため、流出気体温度の時間依存テーブルから求める昇温速度を時 間依存テーブルで入力する。さらに別の制御関数を用いて NO₂の発生速度をもとに、貯槽 1 基分 の廃液:120 m³からの発生速度に換算し、非凝縮ガス供給ボリューム中の NO の濃度[mol/m³]を 用いて非凝縮ガス供給流路の流速[m/s]に換算する。

(3) 発生するエアロゾルの粒径分布及び密度

文献 1)では、大型の実験装置を用いて沸騰時に発生する飛沫に由来するエアロゾルの粒径分布 を測定した結果が示されている。それによれば、模擬廃液を沸騰させ、管体を約 150 ℃に加熱し た高さ約 2m、内径 0.2m の管内を蒸気とともに上昇する飛沫が水分を失って、乾燥したエアロゾ ルになる。それをカスケードインパクタで回収し分析している。回収したエアロゾル中の Cs お よび Nd の量をもとに粒径の分布を推定している。2 種類の元素の実測値の平均値に対して粒径 区分ごとのエアロゾルの体積に対して対数正規分布を仮定し、粒径分布の中央径は、1.6 μm、幾 何標準偏差は、2.4 であるとしている。測定したのは乾燥したエアロゾルの粒径である。参考文献 2) によれば、廃液が乾固すると体積は約 7.3 %に減少したとしている。また、文献 1)で示されて いる実験では乾固直前では体積は 10 分の 1 程度まで減少することが観測されている。これらの 知見より乾燥エアロゾルの密度は模擬廃液の初期密度の 10 倍を仮定して 1.26×10⁴ kg/m³ と仮定 した。

4.3 解析結果

(1) 気相部の温度

図 4.3 に建屋内の各区画での気相部温度の変化を示す。最上流の廃ガス処理セルの温度が最も 高く乾固直前まで徐々に上昇する。貯槽から流出する蒸気が乾固直前で減少するため一端は低下 に転ずるが、NO2の発生量の増大に伴い再び上昇する。NO2の発生が減少するにつれ再び低下に 転ずる。配管分岐セルのA、B及びCの各区画の温度は、ほぼ100℃で推移し乾固後は低下する。 その他の区画の温度は、100℃未満で推移する。



図 4.3 各区画内の気相部温度

(2) 凝縮水量

図 4.4 に建屋内の各区画での凝縮水の変化を示す。壁面の面積が狭い廃ガス処理セル及び配管 分岐セルの各区画の凝縮水に比して大空間を想定した地下1階には約15~20倍の凝縮水が停留 する。乾固後はNO2の熱量で上流側の区画では凝縮水は僅かではあるが蒸発し減少する。地下1 階では、蒸気の供給が無くなるので凝縮水の増加は止まる。地上1階での乾固後の凝縮液の発生 は、地下1階のミストがNO2により押し出されて流入しプール水として停留し始めることに因 る。



(3) ミスト量

図4.5に示すようにミストは、配管分岐セルの区画D、地下1階及び地上1階にのみ存在する。

それ以外の区画では、乾固するまでは気相部の温度が100℃より高いためミストは存在できない。 乾固後には蒸気の供給がないため引き続きミストは存在しない。区画 D は、"行き止まり"のた め気相部温度がほとんど上昇せず、わずかなミストが停留している。地下1 階及び地上1 階は MELCOR で設定されているミストの上限濃度(0.1 kg/m³)が最大となる。地下1 階では、0.3 日 ~乾固時まで上流よりミストの供給があり上限値で推移し、乾固後は供給がなくなり地上1 階に NO₂の発生で押し出された分だけ減少する。地上1 階では逆に乾固後に地下1 階から押し出され 増加するが上限値に達して以降一定値を維持する。



(4) NO₂及びO₂の発生速度

図 4.6 に NO₂ 及び O₂ の発生速度を示す。乾固後には乾固物の温度の急上昇に伴い NO₂ 及び O₂ の発生速度が急増するが、乾固物温度が 400 ℃以上では熱分解による脱硝反応はほぼ終了するため短時間で減少に転ずる。MELCOR の熱流動解析の境界条件として同モルの NO に換算して反映 される。



(5) 気相部エアロゾル濃度

MELCOR では、気相部エアロゾルに気相中のミスト量を含めている。図 4.7 に示す値は、ミスト量を差し引いた値である。貯槽でのエアロゾルの発生が無くなると気相部のエアロゾルはなくなる。地上1階のエアロゾルが 1.5 日以降無くなるのはミスト量の有効数字に埋もれて計算上ゼロになったことに因ると考えられる。



図 4.7 各区画における気相部のエアロゾル濃度

(6) プール水中のエアロゾル濃度

図 4.8 に各区画内のプール水中のエアロゾル濃度を示す。一旦プール水に移行したエアロゾル は減少しないため、乾固後はエアロゾルの発生停止と水蒸気の供給が無くなりプール水は僅かに 減少するためエアロゾル濃度は僅かに増加するが、5日目以降はエアロゾル濃度は一定となる。



図 4.8 各区画内のプール水中のエアロゾル濃度

(7) 壁面及び天井に沈着したエアロゾル量

図4.9 に各区画内の壁面及び天井に沈着した単位面積当たりのエアロゾル量を示す。壁面では 液膜が形成され気相部のエアロゾルの一部が液膜に吸着する。



図 4.9 各区画内の壁面及び天井に沈着したエアロゾル量

5. MELCOR を用いた蒸発乾固事故解析での課題

5.1 解析上の課題

蒸発乾固事故解析において貯槽から放出された放射性物質の施設内での移行挙動を解析するためには、各区画内の凝縮水量、凝縮速度、蒸気流速、気相及び液相温度等を求める必要がある。 これらのデータの精度は、構造物表面での除熱を模擬する解析モデルに依存している。この観点から現状の MELCOR の解析モデルでは、解決すべき課題として次の2点を挙げることができる。

a) 硝酸の蒸発/凝縮が扱えない。

b) 解析対象とする空間では、気液各層の温度は異なるが、ほぼ同温の扱いとなる。

課題 a) の硝酸の沸騰/凝縮を扱えない点を補うため、これまでの解析では硝酸を同モルの水 として取り扱っている。この概略的な仮定は、図 5.1 に示す硝酸及び水の単位モル当たりの蒸発 潜熱を比較すると解析対象の温度領域(~120℃)硝酸及び水の単位 mol 当たりの蒸発潜熱は概ね 同じであること、またそれ期間の沸騰の初期段階では水の蒸発が圧倒的に多いことを根拠として いる。



図 5.1 硝酸及び水の単位モル当たりの蒸発潜熱の比較

課題 b) については、文献 7) に記載の Ru の気相部移行試験の結果から、硝酸-水混合蒸気の 凝縮過程では、気相部と液相部の硝酸濃度はほぼ同じであると推察される。このことから気液各 層の温度は、図 5.2 に示すように気相が液相より高い。図 5.3 に再処理施設内で事故時に生じる と考えられる空間内の温度分布と MELCOR での実規模解析の熱的状態を示す。MELCOR の解析 での各区画内の空間は、プール水と蒸気相で記述される。床面ではプール水で覆われる。蒸気相 に接する壁面では蒸気凝縮により液膜が形成される。事故時の実施設で想定されるバルクの気相 部では硝酸-水混合蒸気の露点(液相温度)より高温であるためミストは形成されないと想定さ れる。これに対して、これまでに実施した MELCOR を用いた熱流動解析 ^のではプール水と蒸気 相の温度は、解析対象区画の圧力に対応する飽和温度にほぼ等しくなる(MELCOR の非平衡オプ ションを選択した場合)。構造物壁面での熱伝達は自然対流を仮定し、熱流動状態に関係なく一定 値を用いている。本報で示す MELCOR のサンプル解析では、熱伝達モデルで計算している。



図 5.2 大気圧での硝酸-水混合水溶液の沸騰時の気液平衡状態(文献 10)より転載)



図 5.3 再処理施設内の温度分布と MELCOR での実規模解析の熱的状態

本章では、これら2つの解析モデルにおける仮定が、凝縮液量をはじめとする熱流動状態に及 ぼす影響の定量的な分析を試行する。そのために必要な解析モデルの改良あるいは精緻化のため のモデルを提案し、従来の解析結果と比較することで MELCOR を用いた当該事故解析の合理的 な解析モデルの提案に資する。

5.2 硝酸の同モルの水での代用による誤差の補正

先に述べたように廃液温度が 120 ℃を超えるまでは、貯槽から流出する蒸気は水蒸気が圧倒的 に多い。MELCOR の解析では SHAWED で解析した硝酸及び水の蒸気を入力条件としている。 MELCOR の解析では、流出蒸気は廃ガス処理セル内、それ以降に繋がるセル内の壁面等で除熱さ れ凝縮する。MELCOR が計算する凝縮液量は水のみとして求められるので、水及び硝酸の蒸発潜熱の差異が凝縮液量の誤差の原因となる。

図 5.1 に示すように蒸気が約 50 ℃以上の領域で高温であるほど硝酸及び水の蒸発潜熱の差異 は大きくなる。そこで最も高温の状態で蒸気が流入する廃ガス処理セルを対象に、潜熱の誤差が 凝縮水量の及ぼす効果の定量化な把握を試行した。

先に述べたように、実験結果から硝酸-水混合蒸気の凝縮過程¹⁾では、気相部と液相部の硝酸 濃度はほぼ同じであると推察される。このことから凝縮する蒸気のモル分率から混合蒸気の蒸発 潜熱を求める必要がある。MELCOR 解析では、関数機能を利用して次の2つのパラメータを基に 計算した。

- ・これまでに SCHERN で解析した廃ガス処理セル内での気相部の硝酸モル分率変化の時間依 存テーブル入力
- ・温度依存の硝酸及び水の蒸発潜熱のテーブル入力

さらに MELCOR で計算される凝縮液発生速度を基に硝酸-水混合蒸気の潜熱及び水蒸気のみの潜熱の差分(単位質量当たりの潜熱は水蒸気のみの方が大きいので混合蒸気の場合より凝縮水 は少なく計算される)から求めた凝縮水量の増分をプール水に追加、それに対応する蒸気の減少 分を気相部より差し引き、これらの差分に対応する潜熱の差分を気相部のエネルギーとして補正 した。これにより廃ガス処理セルの凝縮水が、従来モデルの解析(10日後)では5.65m³であった 値が5.48m³となり、3.0%減少する結果となった。これにより従来モデルでも大きな誤差にはなら ないと判断される。

5.3 気液各層の温度の適正化

図 5.2 に示すように気液が同温の平衡状態では、気液各層のモル分率は大きく異なる。例えば 温度は 110 ℃での平衡状態では、液相のモル分率が 0.15、気相のモル分率は 0.026 である。一方、 比較的大きな空間(バルク)にモル分率が 0.03 の硝酸-水混合蒸気が存在し、壁面での除熱によ り混合蒸気が凝縮する場合、液相である凝縮水のモル分率は、小規模な実験結果 ⁷⁾ からの推定で は気相と同じ 0.03 となり、その時の液相温度は 101.3 ℃になると推定される。

ここでの改良モデルの検討では、共沸状態(沸騰状態の硝酸水溶液で気液両相のモル分率が等 しい状態)より低い温度(120.5 ℃以下)の沸騰状態の貯槽から流出した混合蒸気が施設内のセル に流入する場合を想定する。緩やかに混合蒸気が流入する状態では、壁面から離れた空間では流 入した気相の温度が維持される。一方、壁面での除熱により液膜が形成される壁面近傍の空間で は気相温度が低下し、気相と同じモル分率のミストが生成されると想定される。図 5.3 の左側に 再処理セルで事故時に想定される温度分布等の熱的状態を示す。ミストは液膜に取り込まれるた め液膜のモル分率も気相のそれと同じになると想定される。先にも述べたように混合蒸気がガラ ス管内で凝縮する小規模実験では同モル分率の気液各相が共存することが確認されている。この ことから図 5.3 の左側に示した再処理セル内の気液各相の温度: Tvap及びTua で一意に定まると仮定する。事故時の実施設で想定されるバルクの気相部では硝酸-水混合蒸気 の露点(液相温度)より高温であるためミストは形成されないと想定される。

これに対して MELCOR を用いた既往の実規模解析での熱的状態を図 5.3 の右側に示す。 MELCOR では、ボリューム内の圧力、質量及び内部エネルギーは気液平衡を仮定して予め求め、 その後に液相中の気相(気泡)及び気相中の液相(ミスト)、非凝縮気体の存在及び気液間の断熱 状態を仮定して、圧力及び気液各層の体積を求め気液温度の疑似的な非平衡をモデル化している。 蒸気凝縮を伴う空間では、気相温度は飽和温度より高く、液相温度は飽和温度にほぼ等しく計算 される。各区画内の空間は、プール水と蒸気相で記述される。床面はプール水で覆われる。蒸気 相に接する壁面では蒸気凝縮により液膜が形成される。

再処理施設内での熱流動解析での重要な解析項目の一つにプール水量がある。熱流動解析結果 を受けて実施する SCHERN を用いた化学挙動解析では、プール水量は Ru の液相への移行量を解 析する上で重要である。熱流動解析では、床及び壁面での除熱がプール水量を左右する。図 5.3 に 示す事故時に想定される施設内の熱的状況と MELCOR の解析モデルを比較すると、壁面での液 膜の温度が異なる。壁面での除熱は、内面と外面の温度差及び熱伝達係数で決まる。液膜の温度 差は、気相部の硝酸濃度に依存し変化する。液膜の温度差による伝熱量の増分: ΔQ を壁内面で の伝熱量: qn をもとに(5.1)式より用いて求め、廃ガス処理セルのボリュームの蒸気相から差し引 き補正した。

$$\Delta Q = (T_{liq} - T_{sat}) / (T_{sat} - T_0) \times q_n \tag{5.1}$$

解析結果では、廃ガス処理セルの凝縮水が従来モデルの解析(10日後)では 5.65m³ であった値 が 5.69m³ となり、0.7%増加する結果となった。これにより従来モデルでも大きな誤差にはならな いことが明らかになった。さらに 5.1節で示した硝酸—水混合蒸気の潜熱補正を併用すると当該 箇所の凝縮水量は 5.56m³ となり、1.6%の減少となった。

本節で試行した解析モデルは、区画内の気相部バルクの温度に関係なく気相部の硝酸モル分率 によって決まる凝縮水の温度(プール水温度とは異なる)が凝縮水量を決定することから、下流 区画にはバルクの蒸気が流入するが解析的にはその温度には無関係に凝縮水温度が決まるため、 上流から下流に向けて逐次的に進める SCHERN 解析に影響しない。

6. SCHERN を用いた施設内の化学挙動解析

本章で示す SCHERN を用いた施設内の化学挙動解析では、SHAWED 及び MELCOR 解析で求め た次に示すデータを境界条件として、蒸気の移動経路に沿って施設内の各区画の気液各相の NO_x、 硝酸、亜硝酸、水、Ru の濃度を解析する。蒸気の流れの上流から下流に向け区画ごとに逐次的に 解析する。

- ・ 第3章で示した SHAWED 解析で求めた廃液貯槽から流出する硝酸及び水の蒸気発生 量、温度、沸騰晩期から乾固にかけて発生する NO_x、O₂量、Ru量。
- ・ 第4章で示した MELCOR 解析で求めた各区画内の温度、圧力及び入口及び出口の蒸 気流量及びミスト流量、凝縮水体積。
- ・ 各区画の化学種の初期濃度、床面積、天井を含む壁面積

SCHERN の解析は、最上流の廃ガス処理セルでは、貯槽から流入する各化学種の濃度が流入濃度となり、それ以降の下流側区画では上流区画の出口濃度の解析結果が入力濃度となる。入力データファイルの形式等は、文献 4) に詳述されている。

SCHERN の解析では、硝酸等が気相から液相に移行する挙動を模擬している。この解析の境界 条件となる MELCOR の解析では、化学的な気液間の移行は考慮していないため、SCHERN 及び MELCOR との間での繰り返し解析の必要性が考えられる。これについては、6.3 節において 6.2 節 に示す解析結果を基に考察する。

6.1 SCHERN の概要

SCHERN では文献 11) 及び 12) に記載の NO_x に係る気液各相での化学反応をモデル化している。反応に関わる化学種は NO、NO₂、N₂O₃、N₂O₄、HNO₂、HNO₃、H₂O、O₂である。両文献に記載の各化学反応の平衡定数及び反応速度定数は、プログラム内に組み込まれている。

(1) 気相部での化学反応

気相部でモデル化している化学反応式を(6.1)~(6.5)式に示す。文献 11) 及び 12)とも同様の反応式及び反応速度定数が示されている。

2NO($g) + O_2($	$(g) \rightarrow 2NO_{2}$	(g)	(6.]	1)
			\sim	~	

- $2NO_2(g) \leftrightarrow N_2O_4(g) \tag{6.2}$
- $NO(g) + NO_2(g) \leftrightarrow N_2O_3(g)$ (6.3)
- $N_2O_3(g) + H_2O(g) \leftrightarrow 2HNO_2(g)$ (6.4)
- $N_2O_4(g) + H_2O(g) \leftrightarrow HNO_3(g) + HNO_2(g)$ (6.5)

(2) 液相部での化学反応

液相部の化学反応式を(6.6)~(6.11)式に示す。文献 11)では(6.9)及び(6.10)式の反応は平衡反応と

しているのに対して文献 12)では、不可逆反応としている。SCHERN では平衡反応を仮定してい る。また、(6.6)及び(6.7)式は文献 11)のみに、(6.8)及び(6.11)式は文献 12)のみに示されている。

> $2NO_2(aq) \leftrightarrow N_2O_4(aq)$ $NO_4(aq) \leftrightarrow N_2O_3(aq)$ (6.6)

$$NO(aq) + NO_2(aq) \leftrightarrow N_2O_3(aq)$$
(6.7)

$$2NO_2(aq) + H_2O(aq) \rightarrow HNO_2(aq) + HNO_3(aq)$$
(6.8)

 $N_2O_3(aq) + H_2O(aq) \leftrightarrow 2HNO_2(aq)$ (6.9)

$$N_2O_4(aq) + H_2O(aq) \leftrightarrow HNO_3(aq) + HNO_2(aq)$$
(6.10)

$$3\text{HNO}_2(aq) \rightarrow \text{HNO}_3(aq) + \text{H}_2\text{O}(aq) + 2\text{NO}(g) \tag{6.11}$$

なお本プログラムは、原子力規制庁からの受託事業「平成 29 年度原子力施設等防災対策等委 託費(再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等)事業|及び「平成 31 年度原子力 施設等防災対策等委託費(再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等)事業」の成 果^{13),14)}の一部を含む。

6.2 解析結果

(1) 各化学種の濃度の経時変化

図 6.1 に一例として廃ガス処理セルの気相部での各化学種の濃度変化を示す。乾固前の気相部 では、HNO3の流入量の増加に伴い各化学種が発生する。熱分解による脱硝反応で NO2 及び O2 が 発生し始める約4日以降ではN2O4、HNO2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 NO2 及び O2 は増加し HNO3 及び H2O は減少す るが、それ以外の化学種ほとんど変化しない。乾固後は高温のNO2などが流入し液相からはH2O が気化し凝縮水が僅かに減少する。このため廃ガス処理セル内では乾固後も水蒸気はゼロにはな らない。HNO₃もNO₂から生成されゼロにはならない。



図 6.1 廃ガス処理セル内の気相中の各化学種の濃度

図 6.2 に示すように廃ガス処理セルの液相では、HNO3の溶解が顕著であり HNO2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、各化学種の濃度は凝縮液の減少に伴い僅かに増加する。



図 6.2 廃ガス処理セル内の液相中の各化学種の濃度

(2) 各区画の液相中の HNO3 及び HNO2の濃度変化

図 6.3 に各区画の液相中の HNO₃ 及び HNO₂ の濃度変化を示す。同一時刻での空間的な変化で は、 HNO₃ 濃度は乾固前ではほぼ同じ値で推移するが、乾固後では配管分岐セルでは下流側の区 画ほど低下する。これに対して、HNO₂ 濃度は下流側の区画ほど上昇する傾向がある。HNO₃ に次 いで HNO₂ の濃度が高く、地下1階では沸騰初期から高い。これは、僅かに生成した HNO₂ と大 量に存在する HNO₃の反応で N₂O₄ 及び NO₂ が生成され HNO₂ への変化が連鎖的に増大した可能 性が考えられる。



(3) Ru の移行挙動

(a) Ru の濃度変化

図 6.4 に各区画の気液各相での 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。凝縮液中での HNO2濃度は 0.01 mol/L 以下のため⁹、気液界面での液相への Ru のこのメカニズムによる移動は 考慮していない。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のピークを過ぎると再び減少に転ずる。区画 B、C 及び地下 1 階で気相中の Ru 濃度は液相に移行した分だけ下流側ほど少なくなる傾向がある。約 5~5.2 日にかけてこれら の区画で気相中の Ru 濃度が一時的に増加に転じているのは、熱分解による脱硝反応で発生した NO2及び O2により上流側から押し出された Ru による増加である。液相では、徐々に Ru が増加 し、沸騰晩期の急増の後は、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 4) 3.4 節参照)ため凝縮水の減少に伴う濃度の微増のみとなる。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 HNO2 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。



(b) Ru の施設内での停留

図 6.5 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。排ガス処理セル及び区画 A~C はほぼ同じ大きさの空間であるが、区画 A には最も多くの Ru (貯槽からの流出量とほぼ同量)が液相中に停留するが、下流の区画 B 及び C では気相の Ru 濃 度が減少するため液相への移行も減少する。地下1階は、上流の各区画に比べ空間が大きく蒸気 の停留時間も長いので液相への移行量が多くなると想定されるが他の区画に比べ最も少ない。こ れは気相の Ru 濃度の減少に加え、Ru 物質移動係数を求める文献 9)に記載の(3.2)式が、同じく 文献 9)の図 5.9 に示すように適用範囲外であることによると考えられる。



6.3 化学挙動が熱流動解析に及ぼす効果

SCHERN の解析では、HNO₃等が気相から液相へ移行する挙動を模擬している。この解析の境 界条件となる MELCOR の解析では、化学的な気液間の移行は考慮していないため、SCHERN 及 び MELCOR との間での繰り返し解析の必要性が考えられる。MELCOR の解析では、気相部の組 成として H₂O、N₂、O₂および NO を考慮している。HNO₃は同モルの H₂O で代用している。図 6.6 に SCHERN の解析結果である廃ガス処理セルでの気相から液相への各化学種の移行量 [kmol/s] を示す。図に示すように HNO₃ が他の化学種に比して液相への移行が顕著である。



図 6.6 廃ガス処理セルでの気相から液相への各化学種の移行量

図 6.7 には、MELCOR で求めた各区画の気相中水蒸気量に対する SCHERN 解析で求めた単位 時間当たりの HNO₃の液相への移行量の割合を示す。HNO₃の比率は、概ね 3.0×10⁻⁶~1.0×10⁻³倍 程度であり、MELCOR の解析において HNO₃の液相への移行による気体の減少を考慮しなくても 熱流動解析結果に与える影響は十分に小さいため繰り返し解析の必要性はないと判断される。



7. まとめ

再処理施設の重大事故である高レベル廃液の蒸発乾固事故の影響評価において重要な核種である Ru は揮発性化学種の RuO₄に変化して貯槽から流出し、施設内を移行する過程で凝縮水へ移行することが想定される。このため当該事故で施設外へ移行する Ru を含む放射性物質量を精度良く評価するための解析手法の整備を進めている。提案する手法では SHAWED、MELCOR 及び SCHERN の3コードを連携して用いる。本報では仮想的な実規模施設を対象に Ru を含めた放射性物質の施設内での移行挙動の具体的な解析例を示した。また、提案する解析手法の課題として考えられる事項について考察し次の結論を得た。

SHAWED 及び SCHERN は、高レベル廃液乾固事故を対象として新たに開発、整備した計算コ ードであるのに対して、MELCOR は原子炉施設の炉心損傷事故を対象としたコードであり、水及 び非凝縮気体の熱流動を1点近似の均質体系でモデル化している。このコードを硝酸ー水混合蒸 気の熱流動解析に使用するにあたり、硝酸蒸気を等モルの水蒸気で置き換える仮定を用いている。 この仮定及び MELCOR の均質モデルが、施設内での放射性物質の移行を左右する凝縮水量の発 生に及ぼす影響を定量的に分析し、影響が小さいことを示した。

SCHERN の解析では、硝酸等が気相から液相に移行する挙動を模擬している。この解析の境界 条件となる MELCOR の解析では、化学的な気液間の移行は考慮していないため、SCHERN 及び MELCOR との間での繰り返し解析の必要性が考えられるが、気相部の水蒸気に対する液相への移 行量の割合が十分に小さいことから、繰り返し解析は必要ないことを確認した。

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.
- 吉田 一雄,玉置 等史,桧山 美奈,"再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故解析のための廃 液沸騰模擬計算プログラム:SHAWEDの整備,"JAEA-Research 2022-011, 2022, 37p.
- R. O. Gauntt, R.K. et al., "MELCOR Computer Code Manuals, Vol. 2: Reference Manuals, Version 1.8.5 May 2000," NUREG/CR-6119, Vol. 2, Rev. 2, SAND2000-2417/2, 2000.
- 4) 吉田 一雄, 玉置 等史, 桧山 美奈, "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.
- 5) 吉田 一雄, 石川 淳, 阿部 仁, "再処理施設の蒸発乾固事故での放射性物質の移行挙動解析," 日本原子力学会和文論文誌, Vol.14, No.4, pp.213-226, 2015.
- 6) 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故事象解析," JAEA-Research 2012-026, 2012, 25p.
- 7) 日本原子力研究開発機構,"平成 28 年度原子力施設等防災対策等委託費(再処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等)事業事業報告書,"平成 29 年 3 月, 2017, https://www.nsr.go.jp/data/000210760.pdf,(閲覧 2022/12/14).
- 8) 日本原燃株式会社,"再処理事業指定申請書及び同添付書類,"平成元年3月申請(平成8年4月,同13年7月,同16年10月変更許可申請).
- 9) 吉田 一雄, 玉置 等史, 桧山 美奈, "再処理施設の高レベル廃液蒸発乾固事故での NO_x の化学 挙動を考慮した Ru の移行挙動解析," JAEA-Research 2021-005, 2021, 25p.
- 10) 吉田 一雄, 阿部 仁, "多成分硝酸塩水溶液の気液平衡状態推定法の提案," JAEA-Research 2014-001, 2014, 22p.
- J.A. Patwardhan, J. B. Joshi, "Unified Model for NOx Absorption in Aqueous Alkaline and Dilute Acidic Solutions," AIChE J., Vol. 49, No. 11, pp. 2728-2748, 2003.
- K.G. Loutet et al., "Experimental Measurements and Mass Transfer/Reaction Modeling for an Industrial NOx Absorption Process," Ind. Eng. Chem. Res., Vol.50, No.4, pp. 2192-2203, 2011.
- 13) 日本原子力研究開発機構, "平成 29 年度原子力施設等防災対策等委託費(再処理施設内での 放射性物質の移行挙動に係る試験等)事業 事業報告書 平成 30 年 3 月," 2018, https://www.nsr.go.jp/data/000256373.pdf, (閲覧:2022/12/14).
- 14) 日本原子力研究開発機構, "平成 31 年度原子力施設等防災対策等委託費(再処理施設内での 放射性物質の移行挙動に係る試験等)事業 事業報告書 令和 2 年 3 月," 2020, https://www.nsr.go.jp/data/000319224.pdf, (閲覧:2022/12/14).