

JAERI-M
91-091

再処理施設の溶液加熱・沸騰事故時の
STARコードによる
ソースタームモデル比較評価

1991年6月

野村 靖

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1991

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日立高速印刷株式会社

再処理施設の溶液加熱・沸騰事故時の
STARコードによるソースタームモデル比較評価

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部

野村 靖

(1991年5月9日受理)

再処理施設において事故により放射性物質を含む溶液の加熱・沸騰が考えられる場合、発生するエアロゾルの粒子数流量、及び粒度分布を精度よく予測することは、施設の安全評価上重要である。

本報告では、このような場合の安全解析で用いられるソースタームモデルを、関連する文献により調査し、実際の解析に便利に使えるように必要な考え方、データ等を整理して示した。又、具体的な適用の仕方を高レベル廃液貯槽の冷却能喪失事故をとり上げ、STARコードにより公衆被曝リスクの解析を行う過程で示した。

このSTARコードによる解析では、エアロゾル発生にかかわる溶液蒸発モデルを採用したケースと、気泡流モデルを採用したケースを取り上げ、結果を比較評価した。この結果、公衆被曝リスクの解析という観点からは、再処理施設における溶液加熱・沸騰事故時のソースタームモデルとしては、サブミクロン領域のエアロゾル粒子の発生を予測する溶液蒸発モデルが重要となることが示された。

Comparative Evaluation by STAR Code with Source Term Models
Used in Solution Heating and Boiling for Reprocessing Facility

Yasushi NOMURA

Department of Fuel Safety Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 9, 1991)

It is vital for safety assessment of reprocessing facilities to precisely predict generation of aerosol particles, their density and size distribution in the case of accidental solution heating and boiling.

In this report, several source term models for use in the safety assessment are reviewed and summarized, resorting to relevant published documents, with necessary methods and data sorted and described. Furthermore, an example case of loss of cooling accident in HALW (High Activity Liquid Waste) tanks of a typical reprocessing facility is analysed with the STAR code, to illustrate how to use these models and data in the safety assessment.

This example analysis includes two cases, one for the solution vaporization model and the other for the bubble burst model, with respect to different mechanism of aerosol generation from liquid surface. As a result of the analysis, it is shown for the solution vaporization model, generating sub-micron range liquid drop aerosol, to be more important to predict accurate dose rate committed by the public.

Keywords : Reprocessing Facility, Source Term Model, Solution Vaporization Model, Bubble Burst Model, Aerosol Generation, Aerosol Particle Density, Aerosol Size Distribution, STAR Code

目 次

1. はじめに	1
2. エアロゾル発生に関わる計算モデル	2
2.1 溶液蒸発によるエアロゾル発生モデル	2
2.2 溶液沸騰によるエアロゾル発生モデル	3
2.2.1 気泡流エアロゾル生成割合	4
2.2.2 チャーン流エアロゾル生成割合	8
2.2.3 エアロゾル粒子数流量及び粒度分布	9
2.3 具体例による計算モデル適用性の検討	12
3. ソースタームモデル比較計算	20
3.1 解析対象及び解析手法	20
3.2 ソースタームモデル	20
3.3 バリアモデル	24
3.4 比較計算結果及び検討	26
4. 評価と結論	38
5. おわりに	40
参考文献	41

Contents

1. Introduction	1
2. Calculational Model for Aerosol Generation	2
2.1 Aerosol Generation Model by Solution Vaporization	2
2.2 Aerosol Generation Model by Solution Boiling	3
2.2.1 Aerosol Production Ratio for Bubbly Flow	4
2.2.2 Aerosol Production Ratio for Churn-turbulent Flow	8
2.2.3 Particle Number Flow and Its Size Distribution of Aerosol ...	9
2.3 Application Study for Calculational Models with Exemplified Cases	12
3. Comparative Calculations with different Source Term Models	20
3.1 Calculation Method and Object	20
3.2 Source Term Model	20
3.3 Barrier Model	24
3.4 Results and Discussions for Comparative Calculations	26
4. Evaluation and Conclusion	38
5. Ending	40
References	41

1. はじめに

再処理施設のプルトニウム溶液貯槽あるいは高レベル廃液貯槽のような崩壊熱による自己発熱性の溶液を貯蔵する装置では、通常、冷却系統を装備して溶液温度を一定の温度以下に保って運転している。これらの装置の冷却能喪失事故時には、溶液温度が上昇し、そのまま放置するとやがて沸騰に到ることも考えられる。又、再処理施設ではウランやプルトニウムなど核分裂性物質を溶液の形態で処理する工程が多く、これらの工程で臨界事故が起き核分裂発熱により溶液が加熱・沸騰することも考えられる。このように再処理施設では放射性物質の大部分が溶液の形態で存在し、事故時には加熱・沸騰も考えられることから、影響評価においては、その溶液表面から引き出されるエアロゾルの挙動（ソースターム）の評価が重要となる。

溶液表面におけるエアロゾル発生メカニズムとしては、従来、軽水炉の炉心溶融事故解析に多用される気泡破裂によるものが考えられる。一方ANSI (American National Standards Institute) N46.5, "Criteria for Safety-Related Features on Nuclear Fuel Cycle Facilities) の中に、安全評価上参考とすべきデータのひとつとして溶液沸騰時のプール表面からの放射性物質放出率ばかりでなく、溶液蒸発時のプール表面からの放射性物質放出率の記載がある。後者は、気泡破裂以外の蒸発により溶液表面から直接引き出されるエアロゾル発生に関するものと考えられ、値としては気泡破裂によるものの $\frac{1}{10}$ 程度のデータが記載されている。これらの溶液表面から発生したエアロゾルは、空気流に同伴してオフガス系に入り、各種フィルター装置を通過する間に大部分が捕集されてしまい、残余が空気に稀釈されてスタックから環境に放出される。従って、エアロゾル発生量の大小よりも、エアロゾルがスタック手前に配置されたHEPAフィルターを透過しやすい粒径の範囲にあるかどうか、環境安全評価上考慮すべき重要なファクターになることが考えられる。

本報告では、溶液加熱・沸騰時のエアロゾル発生にかかわり解析に用いられる種々のソースタームモデルについて紹介し、発生メカニズムの違い、すなわち気泡破裂モデル及び溶液蒸発モデルの選び方によって発生するエアロゾルの粒度分布が異なり、環境へ放出される放射性物質による公衆被ばく量の評価値が大いに異なることを典型的な条件によるモデル計算により示した。

上述のモデル計算には、再処理施設の高レベル廃液貯槽冷却能喪失事故を対象として5,6年前ドイツのPSEプロジェクトで開発されたモデル体系と共に、核燃料施設リスク解析コードSTAR¹⁾を用いた。STARコードによる計算のためには、ソースタームモデルばかりでなく、バリアモデル、事故発生確率や故障確率のデータが必要となるが、これらについては上記PSEプロジェクトで開発・整備されたものを用いた。ただし、気泡破裂と溶液蒸発のソースタームモデルをそれぞれ用いた2ケースについて計算し、バリアモデル、事故・故障確率については共通して同一のモデル、データを使用した。

2. エアロゾル発生に関わる計算モデル

2.1 溶液蒸発によるエアロゾル発生モデル

溶液が蒸発して発生した蒸気は、断熱膨張あるいは冷却などのプロセスを経て凝縮することがある。この場合、核となる粒子の存在が不可欠であり、その生成のメカニズムも複雑となる²⁾。この蒸気凝縮によるエアロゾル生成機構とは別に、1985年頃ドイツで再処理施設等の核燃料サイクルバックエンド関連施設の安全解析手法の開発を目的としたPSEプロジェクトが実施された中で、NUKEM GmbHにより提唱されたモデルがある。これは、溶液が蒸発する際に直接その一部がエアロゾルとして引き出されるという仮説を立てて、エアロゾル発生をモデル化している。

理論的前提は、次のとおりである³⁾。

- 溶液エアロゾルは、溶液蒸発の際に溶液中に“Macromoleküle”として形成され、蒸発後、溶液表面で理想気体としてふるまう。
- これらの“Macromoleküle”は、放射性物質を溶かし込んだ溶媒である。
- “Macromoleküle”の溶液中濃度は希薄なので、その蒸気圧はRaoulの法則によって求められる。

溶液表面からの蒸発による水蒸気移行は次式による。

$$W_{D,v} = \sigma_s \cdot A \cdot (x_s(T_F) - \bar{x}(T_F)) \quad (2.1.1)$$

ここで、

$W_{D,v}$: 水蒸気移行流

σ_s : 物質移行係数

A : 溶液表面積

$x_s(T_F)$: 溶液温度 T_F における表面気相中の飽和水蒸気含有率

$\bar{x}(T_F)$: 溶液温度 T_F における表面気相中の水蒸気含有率

エアロゾルとなるのは $W_{D,v}$ のうちある割合 F_v であり、この発生割合 F_v が上に述べた前提により $a \cdot \exp(b/T_F)$ の形式で表わされる。この実験式の係数 a 及び b は、実験データから与えられ、 F_v は次のようになる。

$$F_v = 6.9 \times 10^5 \exp(-8.9 \times 10^3 / T_F) \quad (2.1.2)$$

従って、エアロゾル質量流量 $W_{A,v}$ は、次式で表わされる。

$$W_{A,v} = F_v \cdot W_{D,v} \quad (2.1.3)$$

2.2 溶液沸騰によるエアロゾル発生モデル

溶液の加熱が進み沸騰状態となる場合、あるいは常温でも溶液中に空気等のガスを吹き込む場合には、気泡が発生し気相流となって溶液中を上昇する。この場合、溶液表面から離脱する液滴エアロゾルの生成機構は、水溶液プール中の気泡上昇の様式によって大いに異なる。気泡の上昇が低速（気泡流）である場合は、プール表面での気泡の破裂により液滴が発生する。一方、気泡の上昇が高速（チャーン流）で連続気相柱をつくる場合はプール表面から気相の流れに引きずられて液膜が成長し、これが破断して液滴のエアロゾルとなる生成機構が支配的となる。再処理施設のプルトニウム溶液貯槽あるいは高レベル廃液貯槽の冷却能喪失事故においては、発生する熱量は小さく、沸騰に到ることを想定しても気相の流れは充分気泡流の範囲内にある。燃料溶液体系の臨界事故の場合には、添加反応度が大きいケースでは、チャーン流となるような激しい沸騰に到ることも考えられる。

気相みかけ流速 j_g は蒸気流量 W_g から次式により求められる。

$$j_g = \frac{W_g}{A \cdot \rho_g} \quad (2.2.1)$$

ここで A : 溶液プール表面積
 ρ_g : 蒸気密度

また、蒸気流量 W_g は、内部発熱 Q による沸騰の水蒸気流として次式により求められる。

$$W_g = \frac{Q}{\Delta h} \quad (2.2.2)$$

ここで Δh : 蒸発潜熱

気泡流からチャーン流へ遷移する時の気相みかけ流速は次の Ishii の式により与えられる⁴⁾。

$$j_{g,t}^* = 0.325 \left(\frac{\rho_g}{\rho_f} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (2.2.3)$$

ここで * 印は無次元数であることを示す。(2.2.3) 式の値と比較するため、(2.2.1) 式の j_g の値を次式により無次元化する。

$$j_g^* = \frac{j_g \cdot \sqrt{\rho_g}}{[g \cdot \sigma \cdot (\rho_f - \rho_g)]^{\frac{1}{4}}} \quad (2.2.4)$$

ここで ρ_g : 蒸気密度
 ρ_f : 液体密度
 σ : 表面張力
 g : 重力加速度

これらの関係は、プール中の純水を用いた実験により検証されている⁵⁾。

2.2.1 気泡流エアロゾル生成割合

気泡破裂によるエアロゾル生成速度（単位時間あたり生成するエアロゾルの全体積） \dot{V}_d は、次式により表される。

$$\dot{V}_d = \int_0^\infty \int_0^{r^*} v_d(R, r) dr \cdot n(R) dR \quad (2.2.5)$$

ここで $n(R) dR$: プール中で単位時間あたり上昇する、半径 R の増分 dR における気泡の個数

$v_d(R, r) dr$: 1 個の気泡（半径 R ）が破裂するごとに生成する、半径 r の増分 dr における液滴体積

r^* : 気相流に伴伴される滴液エアロゾルの半径の上限値

気相みかけ流速を j_g 、プール表面積を A とすれば、 $j_g \cdot A$ は単位時間に上昇する気泡の全体積を表す。このうち半径 R の増分 dR における気泡の占る割合を $\phi(R) dR$ で表すことにすれば、

$$n(R) dR = \frac{j_g \cdot A \cdot \phi(R) dR}{\frac{4}{3} \pi R^3} \quad (2.2.6)$$

従って、エアロゾルみかけ流速 j_f が次式のように導かれる。

$$j_f \equiv \frac{\dot{V}_d}{A} = \int_0^\infty \int_0^{r^*} v_d(R, r) \cdot \frac{j_g \cdot \phi(R)}{\frac{4}{3} \pi R^3} \cdot dR \cdot dr \quad (2.2.7)$$

従って、質量流量比で表した無次元エアロゾル生成割合 E は次式により求められる。

$$E \equiv \frac{W_{A,B}}{W_g} = \frac{\rho_f \cdot j_f}{\rho_g \cdot j_g} = \frac{\rho_f}{\rho_g} \cdot \int_0^\infty \int_0^{r^*} v_d(R, r) \cdot \frac{\phi(R)}{\frac{4}{3} \pi R^3} \cdot dR \cdot dr \quad (2.2.8)$$

右辺の内、気泡体積分布関数は一般に得られないので、通常は単一径の気泡により全てが占られていると仮定することにより、次式が導かれる。

$$E \equiv \left(\frac{\rho_f}{\rho_g} \right) \left(\frac{V_{fd}}{V_{gb}} \right), \quad V_{fd} = \int_0^{r^*} v_d(R, r) dr$$

$$V_{gb} = \frac{4}{3} \pi R_0^3 \quad (2.2.9)$$

但し、 R_0 は単一径を仮定した気泡の半径である。

エアロゾル体積比 V_{fd}/V_{gb} については、いくつかの計算モデル及び実験データが報告されている。ここでは、Ginsberg の報告書⁶⁾に記載された図に P S E モデルを書き加えたものを Fig. 2.1 に示す。以下、これらについて各々の計算モデル及び実験データに関して、項目に分けて述べる。

(1) P S E の気泡流モデル

水溶液中に沸騰又はエアパーズにより気泡流が存在するとき、蒸気質量流量に対する生成エアロゾル質量流量の比すなわち (2.2.8) 式で表わされるエアロゾル生成割合 E については、ドイツの P S E プロジェクトにおいて実験データをフィッティングして得られた次式が提唱されている³⁾。

$$F_B (= E) = 2.014 \times 10^4 \cdot \exp(-4.322 \times 10^{-2} \cdot T) \quad (2.2.10)$$

上式において、T は熱力学温度 (K) で表した溶液温度である。T = 373 K (100°C) とすれば、上式は $F_B = 2.01 \times 10^{-3}$ を与える。他のモデルと同一の取り扱いとするため $\rho_f / \rho_g = 1000$ とすれば生成するエアロゾル体積比は、次式により示される。

$$\frac{V_{fd}}{V_{gb}} = 2.01 \times 10^{-6}$$

この値は、Fig. 2.1 に示すように、他の気泡流モデルと比べて、エアロゾル発生を大き目 (保守側) に与える。

(2) Azbel のモデル

Azbel は、プール表面に達した気泡が、膜内の気体の音響の共振現象により破裂するという考え方から次式を導いた⁷⁾。

$$\frac{V_{fd}}{V_{gb}} = \frac{3 K_1}{2 \pi \rho_f d_b} \times \left\{ \frac{\left(1 - \frac{d_b^2}{2K_2} + \frac{9}{16} \frac{d_b^4}{K_2^2}\right)^{1/2} + \left(\frac{d_b^2}{4K_2} - 1\right)}{1 + \frac{3}{4} \frac{d_b^2}{K_2} - \left(1 - \frac{d_b^2}{2K_2} + \frac{9}{16} \frac{d_b^4}{K_2^2}\right)^{1/2}} \right\}^{1/2} \quad (2.2.11)$$

- ここで
- K1 : $1.15 \pi \sigma / c^2$
 - K2 : $6 \sigma / g (\rho_f - \rho_g)$
 - d_b : 気泡の直径
 - c : 気体中での音速
= $1.08 \times 10^4 \sqrt{T} / M$
 - M : 気体の平均分子量
 - T : 温度
 - σ : 表面張力

従って、沸騰により生成する気泡の直径が求まれば、(2.2.11) 式及び (2.2.9) 式によりエアロゾル生成割合 E が算出できることとなる。この気泡直径 d_b は、臨界ウェーバ数 W_{eb} を用いて次式から求められる。

$$d_b = \frac{We_b \sigma}{\rho_l v_r^2} \quad (2.2.12)$$

We_b は原子炉熱流動解析コードTRAC-PF1⁸⁾で使われている $We_b = 7.5$ を用いる。気液相対速度 v_r は、液相が静止状態にあると仮定し、 $v_r =$ (気泡上昇速度)とする。さらに、気泡上昇速度として気泡終端速度を仮定する。

気泡終端速度を与えるモデルとしてPeeblesとGarberのモデルがある⁹⁾。気泡が溶液プール中をある程度上昇していくと、気泡径にはほぼ無関係に終端速度 v_∞ が決まってくる。

$$v_\infty = 1.18 \left(\frac{\sigma g}{\rho_l} \right)^{1/4} \quad (2.2.13)$$

(2.2.12)式の v_r に上式を代入すれば、気泡径を表す次式が得られる。

$$d_b = \frac{We_b}{1.39} \left(\frac{\sigma}{g \rho_l} \right)^{1/2} \quad (2.2.14)$$

同様な気泡終端速度を与えるモデルとしてHarmathyのモデルがある⁹⁾。

$$v_\infty = 1.53 \left(\frac{\Delta \rho \sigma g}{\rho_l^2} \right)^{1/4} \quad (2.2.15)$$

上式を(2.2.12)式の v_r に代入すれば、気泡径を表す次式が得られる。

$$d_b = \frac{We_b}{2.34} \left(\frac{\sigma}{g \Delta \rho} \right)^{1/2} \quad (2.2.16)$$

ここで $\Delta \rho$ は気液密度差 $\Delta \rho = \rho_l - \rho_g$ を表す。

100°Cの飽和水の条件で、上述した2つのモデルによる計算結果を次に示す。

	Peebles と Garber のモデル	Harmathy のモデル
気泡上昇速度 (cm/s)	18.5	23.5
気泡径 (cm)	1.35	0.84

Azbelモデルでは、以上述べたように、溶液の種類、体系の温度、圧力及び密度、表面張力等の物性によって、気泡径が決定され、従ってエアロゾル体積比が求められる。従って体系の条件、種類の違いを考慮した解析が可能となるが、Fig. 2.1に示すように他の計算モデルと比較した場合に下限に近い値を与えるので、安全評価用に用いる場合には注意が必要である。このことは、Azbelモデルが気泡破裂の原因として、音の共振現象のみ考慮していることが考えられる。

(3) Cipriano & Blanchard モデル

Cipriano 及び Blanchard は海洋の "Breaking wave" の実験研究で、気泡及びエアロゾルの粒度分布を測定し、生成するエアロゾル粒子が気泡径の増大と共により微細化することを示した¹⁰⁾。また気泡 1 個あたり生成するエアロゾル体積比は、気泡径の増大と共に減少し、10mm の気泡径に対して、

$$\frac{V_{fd}}{V_{gb}} = 4 \times 10^{-6} \quad (2.2.17)$$

となることを示した。

(4) Garner et al. モデル

Garner 等は、水/空気、エチルアルコール/空気、ベンゼン/空気等を用いて、単一気泡径による液滴エアロゾルのエントレーンメント実験を行い、気泡径を 6 mm から 12 mm まで変化させて、液滴エアロゾル粒度分布やエアロゾル生成割合を測定した¹¹⁾。液滴粒度分布については、例えば 7 mm 直径の気泡による単一気泡実験では、液滴エアロゾル直径は 8~52 μm まで分布し分布のピーク値における径は 12 μm であった。エアロゾル生成割合の体積比測定結果については、純水体系に対しては、

$$\frac{V_{fd}}{V_{gb}} = (2 \sim 5) \times 10^{-5} \quad (2.2.18)$$

又、水中の不純物の影響を調べるために水中に炭酸カルシウムを懸濁させた体系では、プール表面に浮んだ気泡の破裂を不純物が遅らせる効果により、次式に示すような値の範囲が得られた。

$$\frac{V_{fd}}{V_{gb}} = (1.3 \sim 2.3) \times 10^{-7} \quad (2.2.19)$$

(5) Tomaidis and Whitby モデル

Tomaidis 及び Whitby は、5.5 mm 径の単一径の空気泡を 0.1% NaCl 水溶液中で破裂させたときに生ずる水滴エアロゾルの粒度分布を測定し、これが 2~15 μm の範囲にあることを報告した。代表径を 10 μm として、生成するエアロゾル体積比の測定結果は、次に示すとおりである¹²⁾。

$$\frac{V_{fd}}{V_{gb}} = 1.2 \times 10^{-6} \quad (2.2.20)$$

(6) フィルムキャップ形状モデル

気泡破裂あたり生成するエアロゾル体積の上限は、フィルムキャップに内包される液体積が全てエアロゾルに変換されるという考え方から与えられる。

$$\frac{V_{fd}}{V_{gb}} = \frac{A_f \cdot \delta_c}{V_b}$$

ここで A_f : フィルムキャップ面積
 δ_c : フィルムキャップ厚
 V_b : 気泡体積

Toba は上式の右辺を気泡径の関数として算定し、次の範囲にあることを示した¹³⁾。

$$10^{-5} < \frac{V_{fd}}{V_{gb}} < 10^{-3} \quad (2.2.21)$$

2.2.2 チャーン流エアロゾル生成割合

気泡が高速の流れとなり、(2.2.3)式の遷移条件を超える場合には、気泡上昇の様式はチャーン流となる。この場合溶液中を上昇する気相流によりプール表面から引っ張り出された液膜が破断して液滴エアロゾルを生成する機構が支配的となる。

水溶液プールからのエアロゾル生成時のプール表面附近の気相領域の液滴エアロゾルの生成を模式的に示したものが Fig. 2.2 である⁶⁾。生成した液滴のエアロゾルは、プール表面の上に広がる気相領域中を上昇してゆくが、気相流に同伴される液滴エアロゾルの量はプール表面からの距離に依存して変化する。Kataoka-Ishii の定義に従えば⁴⁾、プール上の液滴を含む気相領域は、Near surface, Momentum controlled, Far field (deposition controlled) の3領域に分けられる。Near surface 領域においては、プール表面から離脱した液滴は全て気相流に同伴される(この領域はプール表面に近接した非常に狭い範囲にある)。次に Momentum controlled 領域においては、最初に液滴エアロゾルが有していた運動量(慣性)によって到達し得る高さが決まる。この領域では同伴される液滴エアロゾルの量は気相流速が大きい程増えるが液面より高くなるに従って減少する。最後に Far field に達した液滴エアロゾル粒子は、全て、終端速度が気相流速より小さく従って気相流に同伴されてゆく。この領域では同伴される液滴エアロゾルの量は高さに関係であるが、実際には容器壁への拡散沈着により徐々に少なくなっていく。

Rozenらは、空気-水系でチャーン流によりプール表面から引き出されるエアロゾル生成割合 E を測定し、

$$E = 4$$

という気相流束に依存しない値を得た¹⁴⁾。この値は、Near surface 領域で得られたものであり、プール表面へ落ちる液滴の存在を考慮すると、気相に同伴される液滴エアロゾルの上限値を与える。チャーン流における Far field (Deposition Controlled) 領域の E 値は、次の Rozen の式により与えられる。

$$E = 7.6 \times 10^{-5} [j_g^* N_{\mu g}^{1/6} + 4870 j_g^{*4.2} N_{\mu g}^{0.7}] \times \left(\frac{\rho_f - \rho_g}{\rho_g} \right)^{1/2} \exp(-0.23 h / D_H) \quad (2.2.22)$$

ここで、 j_g^* : 無次元みかけ気相流速 (2.2.4) 式
 h : プール表面からの高さ
 D_H : プール表面の水力等価直径
 $N_{\mu g}$: 無次元気体粘性係数

$$\mu_g / \left(\frac{\rho_g \sigma^{1.5}}{g^{1/2} (\rho_f - \rho_g)^{1/2}} \right)^{1/2}$$

まだ Far field 領域では、次の Kataoka - Ishii の式も用いられる。

(壁面への沈着を考慮する場合)

$$E = 7.13 \times 10^{-4} j_g^{*3} N_{\mu g}^{1/2} \left(\frac{\rho_f - \rho_g}{\rho_g} \right) \exp(-0.205 h / D_H)$$

(壁面への沈着を考慮しない場合)

$$E = 0.002 j_g^{*3} N_{\mu g}^{1/2} \left(\frac{\rho_f - \rho_g}{\rho_g} \right) \quad (2.2.23)$$

Fig. 2.3 は、チャーン流における Far field 領域での Rosen のモデル及び Kataoka - Ishii のモデルによるエアロゾル発生割合 E の値を j_g^* の関数として、Ginsberg の報告書⁶⁾ から引用して示したものである。同図には又、気泡流領域の各モデルによる E の値も比較して示す。

2.2.3 エアロゾル粒子数流量及び粒度分布

以上述べたように、エアロゾル発生割合 E が求まれば気相流量をかけることにより気相に同伴されるエアロゾルの体積又は質量の流量が求められることとなる。

一方、溶液表面から引き出されたエアロゾルが、換排気系に配置されたフィルター等の捕集装置を通過していく間に減少していく過程を詳細に解析するためには、エアロゾル粒子数濃度と流量及びその粒度分布を求める必要がある。本節においては、これまでに報告された実験データ及び実験式等を整理して示し、参考となる考え方を述べると共に、一般に用いられる定式化の方法を示すこととする。

気泡が発達して上昇し溶液表面に達した後、破裂して液滴を生ずるメカニズムは、Fig. 2.4 に示すように 2 つに分けて考えることができる。ひとつは、小さな気泡が破裂するとき液面の中央部が衝撃により盛り上がり、ジェット流となって飛散する、径の比較的大きい (数 10 μm) 液滴エアロゾルが発生する。Tomaidis & Whitby によれば、1 個の気泡の破裂あたり発生する液滴エアロゾル粒子数 n_{pj} 及び液滴平均径 d_p (cm) が気泡径 d_b (cm) の関数として次式により与えられる。

$$n_{pj} = 0.095 / d_b^{1.9} \quad (2.2.24)$$

$$d_p = 0.1546 \cdot d_b^{1.3} \quad (2.2.25)$$

上記の相関式から、気泡径が0.4 cmより大きくなるとジェット流による液滴エアロゾル生成が行われないことが示される。小さな気泡が破裂する際にはFig. 2. 4に示すような液膜の破碎により液滴エアロゾル微粒子も生成される。これに対して、Toba, Whitby, Tomaidis等は、次式により液滴エアロゾル微粒子数 n_{pf} が気泡膜面積 A (cm^2) の関数として表わされることを示した¹⁵⁾。

$$n_{pf} = A^{\frac{1}{2}} \quad (2.2.26)$$

この場合、微細粒子の径は $5 \mu\text{m}$ より大きくなることが示されている。このように従来のエアロゾル測定実験では、発生する液滴エアロゾルの粒度分布に数 μm と数 $10 \mu\text{m}$ の2箇所ピークが観測されており、この2つのうちどちらが支配的となるかは、溶液の種類、濃度、密度、粒度、表面張力などの違い、及び発達する気泡の大きさに依存するものと考えられる。

大きな径（おそらく0.6 cmより大）の気泡の破裂によって、液膜の破碎により生成する液滴エアロゾルの粒度分布を与える相関式は報告されていない。Garner等は、0.7 cmの気泡を破裂させた時に生成されるエアロゾルの液滴粒子の粒度分布の平均径が $12 \mu\text{m}$ であることを示した。又、Tomaidis & Whitbyは、この平均径が 5μ 程度であることを示した。これらのデータを比較したものがFig. 2. 5であり¹⁵⁾、両者は実験条件の違いを考慮するとよく一致していることがわかる。

以上述べたような実験データ、あるいは実際の測定データから平均粒径が求まると、一般には対数正規分布を仮定してエアロゾル粒子の粒径分布モデルを求めることが多い。すなわちエアロゾル粒子直径 D に対する確率分布密度関数 $f(D)$ は、一般に次式に示すような対数正規分布測に従うとしてよい。

$$f(D) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \cdot \sigma} \cdot \frac{1}{D} \cdot \exp \left[-\frac{1}{2\sigma^2} (\ln D - \mu)^2 \right] \quad (2.2.27)$$

すなわち、 D の自然対数値 $\ln D$ が平均値 μ の周りの標準偏差 σ の正規分布に従う。 μ は、粒径の自然対数値の算術平均、従って粒径の幾何平均の自然対数値として求められる。又、 σ は、PSAの分野で用いられることの多いエラーファクター S と次式による関係がある。

$$\sigma = \frac{\log S}{1.645}$$

$$S = \frac{D_{95}}{D_{50}} = \frac{D_{50}}{D_{05}}$$

ここで、 D_p は、上記粒度分布の $P\%$ を占める点に対応して求まる粒子直径の値であり、次式により求まる。

$$\int_0^{D_p} f(D) dD = \frac{P}{100}$$

粒度分布 $f(D)$ の形が定まると、エアロゾル粒子数流量を N_0 とすれば、粒径 $\leq D$ の累積粒子数流量 $N(D)$ 及びその微分粒子数流量 $dN(D)/dD$ は、次式により表わすことができる。

$$N(D) = N_0 \int_0^D f(D') dD' \quad (2.2.28)$$

$$\frac{dN(D)}{dD} = N_0 \cdot f(D) \quad (2.2.29)$$

1 個の粒子の質量 m は、密度を ρ_f として次式により求まる。

$$m = \frac{\pi}{6} \cdot (D)^3 \cdot \rho_f = 0.5236 \cdot \rho_f \cdot D^3$$

従って、上記 $N(D)$ を単位時間あたりに流れる全粒子数と考えると、(2.1.3) 式の $W_{A,v}$ あるいは (2.2.8) 式の分子に与えられている $W_{A,B}$ のようなエアロゾル質量流量を W_A と表すことにすれば、 W_A と $N(D)$ の間には次式の関係が成立する。

$$W_A = 0.5236 \cdot \rho_f \cdot N_0 \cdot \int_0^{D_{MAX}} f(D') \cdot D'^3 \cdot dD' \quad (2.2.30)$$

ここで、 D_{MAX} は気相に同伴されるエアロゾル粒子の最大径を表す。従って ρ_f が与えられ、

$\int_0^{D_{MAX}} f(D') \cdot D'^3 dD'$ の値が数値積分により求まり、 W_A が (2.1.3) 式あるいは (2.2.8) 式から定められれば、(2.2.30) 式を用いて粒子数流量 N_0 が決定される。従って、(2.2.28) 式あるいは (2.2.29) 式によりエアロゾル粒子の粒度分布が決まることになる。

次に、気相の流動が激しくチャーン流の領域にある場合には、Kataoka & Ishii が Garner 等の実験データに基づき導いた次式が用いられる。すなわち、Kataoka & Ishii は、Near surface 領域で同伴される液滴エアロゾル粒子の、粒径が \bar{D} より小さいものの重量割合を次式で与えた。

$$F(D < \bar{D}) = \left(\frac{\bar{D}}{D_{MAX}} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (2.2.31)$$

ここで、 D_{MAX} は同伴される液滴粒子の最大径であり、次式により与えられる。

$$D_{MAX} = \frac{7.24}{j_g^*} \left(\frac{\sigma}{g(\rho_f - \rho_g)} \right)^{1/2} \quad (2.2.32)$$

(2.2.31) 式を \bar{D} で微分することにより、粒径 \bar{D} における液滴エアロゾル粒子の密度分布関数が次式のように求められる。

$$\frac{dF(D < \bar{D})}{d\bar{D}} = f(\bar{D}, j_g^*) = \begin{cases} 1.5 \bar{D}^{1/2} / D_{MAX}^{3/2} & \text{for } \bar{D} \leq D_{MAX} \\ 0 & \text{for } \bar{D} > D_{MAX} \end{cases} \quad (2.2.33)$$

Near surface領域の液滴エアロゾルはMomentum controlled 領域を上昇するにつれて大きな粒子は減速されプールへ落下していく。Far field領域まで到達する粒子は終末速度が気相の流速よりも遅いもののみである。このような粒子の最大径 d_0 は、以下の関係により求めることができる。

$$Re^2 f(Re) - \frac{4\rho_g(\rho_f - \rho_g)gd_0^2}{3\mu_g^3} = 0 \quad (2.2.34)$$

Re : レイノルズ数 = $\rho_g v_g d_0 / \mu_g$

f(Re) : 抵抗係数

$$3/16 + 24/Re \quad Re < 0.01$$

$$24/Re [1 + 0.1315 Re^2] \quad 0.01 \leq Re \leq 2$$

$$z = 0.82 - 0.05 (\log_{10} Re)^2$$

従って、Far field領域において気相流に同伴される液滴エアロゾル粒子の全重量割合は、次式で与えられることになる。

$$F_f(D < d_0) = \left(\frac{d_0}{D_{MAX}} \right)^{3/2} \quad (2.2.35)$$

粒子の密度分布関数は、(2.2.33)式において \bar{D} の上限を D_{MAX} の代りに d_0 と置きなおしたものととなる。粒径が \bar{D} より小さいものの重量割合は、近似的には(2.2.31)式と相似な次式により表される。

$$F_{ff}(D < \bar{D}) = \begin{cases} \left(\frac{\bar{D}}{d_0} \right)^{3/2} & \bar{D} < d_0 \\ 1 & \bar{D} > d_0 \end{cases} \quad (2.2.36)$$

2.3 具体例による計算モデル適用性の検討

前の節において、溶液加熱事故時に発生するエアロゾルに関して、考えられるいくつかのエアロゾル発生モデルを紹介した。そこで述べたことを要約すると次のようになる。

- (1) 溶液蒸発によるエアロゾル発生メカニズムでは、(2.1.1)式で与えられる水蒸気移行流($W_{D,v}$)と、それに掛かるエアロゾル発生割合((2.1.2)式の F_v)により、ソースタームの大きさが決まる。これらの式を見るとわかるように、ソースタームの大きさは基本的に容器内のプール表面積及び溶液温度 T_F によって決まる。

(2) 溶液沸騰によるエアロゾル発生メカニズムでは、気相みかけ流速が(2.2.3)式で与えられる遷移流速より小さい場合には気泡流モデルが用いられ、又、気相みかけ流速がこの遷移流速より大きい場合にはチャーン流モデルが用いられる。すなわち発生する蒸気流量従って発生熱の大きさによって適用されるエアロゾル発生割合のモデルが異なり、従ってエアロゾルの発生量の評価結果も違ってくる。

ここで、沸騰により気相流が発生する場合の気相みかけ流速の大きさを、具体的な数値例により検討してみよう。

気相みかけ流速 j_g (cm/s) 及びその無次元量 j_g^* は、2.2節で述べたように次式で表わされる。

$$j_g = \frac{W_g}{A \rho_g} = \frac{Q}{\Delta h} \cdot \frac{1}{A \rho_g} \quad (2.3.1)$$

$$j_g^* = \frac{j_g \cdot \sqrt{\rho_g}}{(g \sigma \Delta \rho)^{\frac{1}{4}}} \quad (2.3.2)$$

ここで、 Q : 発熱量 (J/s)

Δh : 気化熱 128.75 (cal/g)
= 539 (J/g)

ρ_g : 気体密度 0.000598 (g/cm³)

g : 重力加速度 980 cm/s²

σ : 表面張力 58.92 dyne/cm²

$\Delta \rho$: 液体と気体の密度差 ($\rho_f - \rho_g$)
0.9575 (g/cm³)

A : 溶液表面積 (cm²)

ただし、上に与えた物性値は100°C飽和水に対するデータである。上式にデータを代入して整理すれば次式が得られる。

$$j_g^* = \frac{Q}{A} \cdot 4.95 \times 10^{-3} \quad (2.3.3)$$

一方、気泡流-チャーン流の遷移流速 $j_{g,t}$ は(2.2.3)式から、次に示すように求められる。

$$j_{g,t}^* = 0.325 \left(\frac{\rho_g}{\rho_f} \right)^{\frac{1}{2}} = 8.12 \times 10^{-3} \quad (2.3.4)$$

ドイツのPSEプロジェクトでモデル化された高レベル廃液貯槽の冷却能喪失事故における溶液沸騰時には、

$$Q = 187.5 \text{ kW} = 187.5 \times 10^3 \text{ J/S}$$

$$A = 50 \text{ m}^2 = 5.0 \times 10^5 \text{ cm}^2$$

であり、(2.3.3)式から無次元気相みかけ流速を求めると、

$$j_g^* = 1.85 \times 10^{-3}$$

となる。この値は(2.3.4)式で示される遷移流速の約 $\frac{1}{5}$ であり、十分に小さい。実際の再処理施設の設計に係わる高レベル廃液貯槽では、廃液体積及び発熱量がPSEプロジェクトのモデルにおける値と多少異なるものと考えられるが、大巾には違わないであろう。従って、一般に高レベル廃液貯槽の冷却能喪失事故において、溶液沸騰時の気泡上昇の様式は気泡流の領域にあると考えてよく、そのソースターム評価のためには気泡流エアロゾル発生モデルが用いられる。

又、高レベル廃液貯槽の場合には、発生する水素を水溶液中から除去するため空気又は窒素ガスをパージしており、この場合の気泡による気相流速がどの程度か検討してみる。原研のWASTE F (Waste Safety Testing Facility - 廃棄物安全試験施設)における高レベル廃液貯槽の場合を例にとると、直径約40cmの円筒形タンクの底部に設置したリング状の配管表面に穿けられた10個の1mmφの穴から、溶液中に窒素ガスが最大約1Nm³/hrの流量で吹き込まれている。この場合、気相流速は、次のようになる。

$$j_g = \frac{1 \times 10^6}{\frac{1}{4} \cdot \pi \cdot (40)^2} \cdot \frac{1}{3600} = 2.21 \times 10^{-1} \text{ cm/s}$$

この値と(2.3.2)式から無次元みかけ流速を求めると $j_g^* = 3.52 \times 10^{-4}$ となり、遷移領域の値(2.3.4)式と比較してはるかに小さく、この場合の気泡上昇の様式は気泡流であることがわかる。

以上述べたことから、高レベル廃液貯槽の平常時、あるいは冷却能喪失事故による溶液沸騰を想定しても、気相流は、十分に気泡流領域にあると考えてよい。

次に、臨界事故時における蒸気流量がどの程度になるか検討するため、フランスのCRAC実験のデータを取り上げて考えてみよう¹⁶⁾。CRAC実験は、フランスのValduc実験所において実施された溶液状燃料(²³⁵U93%濃縮の硝酸ウラニル水溶液)を用いた出力暴走実験である。1968年11月に第一回の実験が行われて以来、1973年に実験が終了するまでの間に約60回の実験が実施された。各回の実験には、CRAC 01、CRAC 02のように連続した実験番号が付与されている。炉心タンクは、直径約30cmと直径約80cmの2種類の太さの円筒形状であり、燃料溶液のウラン濃度、給液速度をパラメータとして臨界状態からの反応度添加量を約0.3\$から約10\$まで変化させた。発生蒸気量及び気泡上昇の様式は、反応度添加量の違いにより実験毎に多様であった。

- 比較的反応度添加量の小さいCRAC 01 ($\rho_{ex} = 0.695 \$$)、CRAC 04 ($\rho_{ex} = 0.605 \$$)では、溶液温度が常温から約12°C程度上昇しただけで沸騰に到らず未臨界となった。
- 反応度添加量の大きい($\rho_{ex} > 5 \$$) CRAC 10、CRAC 12では、溶液が沸点に達した後、定常的な沸騰現象が10分以上続き、最終的に溶液中の中性子減速材となる水分が蒸発により失われて反応が停止した。
- 8.6 \$もの反応度が添加されたCRAC 16では、激しい沸騰が継続し、最終的には溶液

が容器から吹きこぼれてしまった。この場合の核分裂発生率は、 6.9×10^{14} fission/s と報告されており、タンク直径 29.4 cm であったことから、(2.3.2) 式により無次元蒸気流速を求めると、次式のようになる。

$$Q = 6.9 \times 10^{14} \text{ fission/s} = 2.09 \times 10^4 \text{ J/S}$$

$$A = \frac{1}{4} \pi (29.4)^2 = 679 \text{ cm}^2$$

$$\therefore j_g^* = \frac{2.09 \times 10^4}{679} \times 4.95 \times 10^{-3} = 1.52 \times 10^{-1}$$

この j_g^* の値は、(2.3.4) 式で与えられる遷移流速と較べてはるかに大きく、溶液中の気相の上昇の様式は十分にチャーン流領域にあるものと考えられる。

以上述べたことから、臨界事故の場合は添加される反応度の大きさにより、気泡の発生の有無、気泡が発生したとしても気泡流となるかチャーン流となるか、種々の状況が考えられ、ケースバイケースで検討する必要がある。

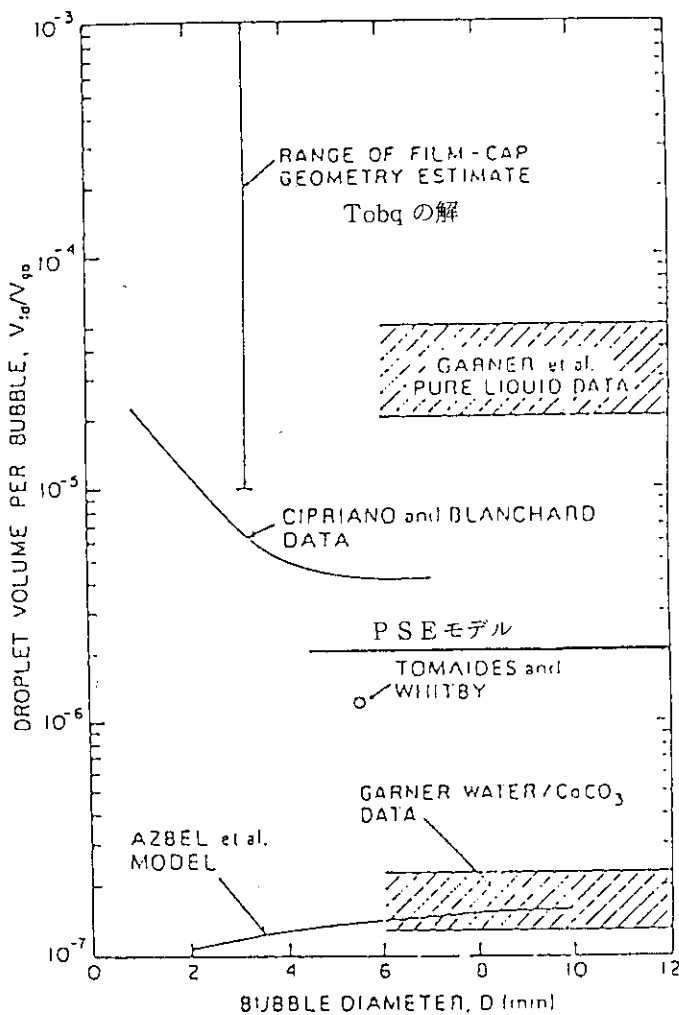


Fig. 2.1 Comparison of droplet volume per bubble with bubble dia. (quoted from Ref. 6 except for PSE model line).

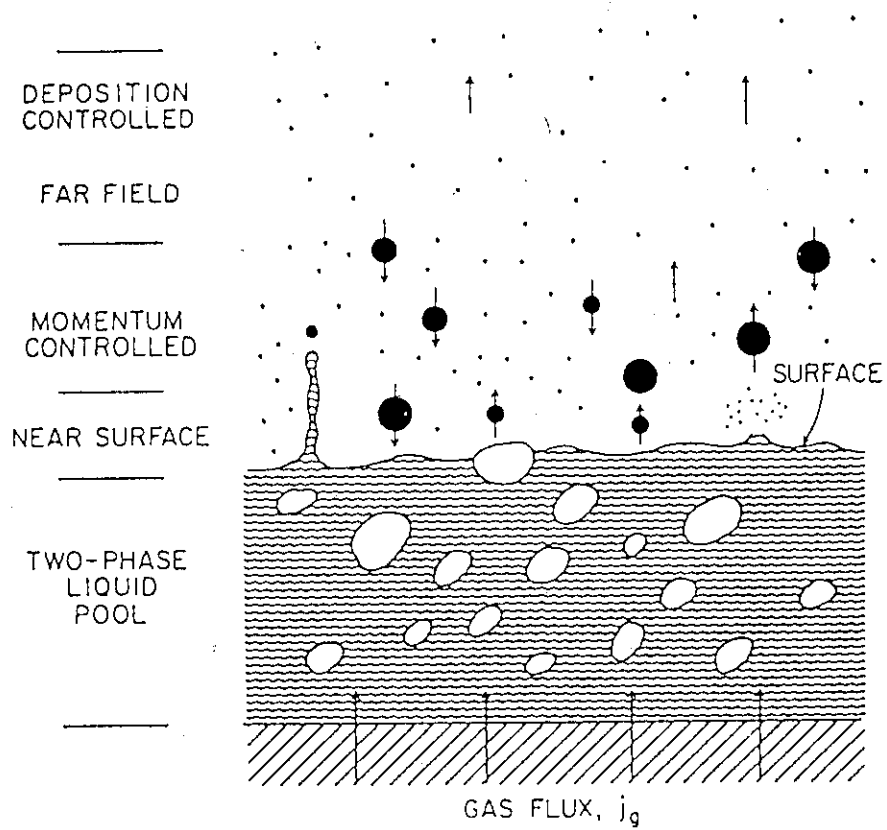


Fig. 2.2 Schematic of a liquid pool with gas injection at its base.
(quoted from Ref. 6)

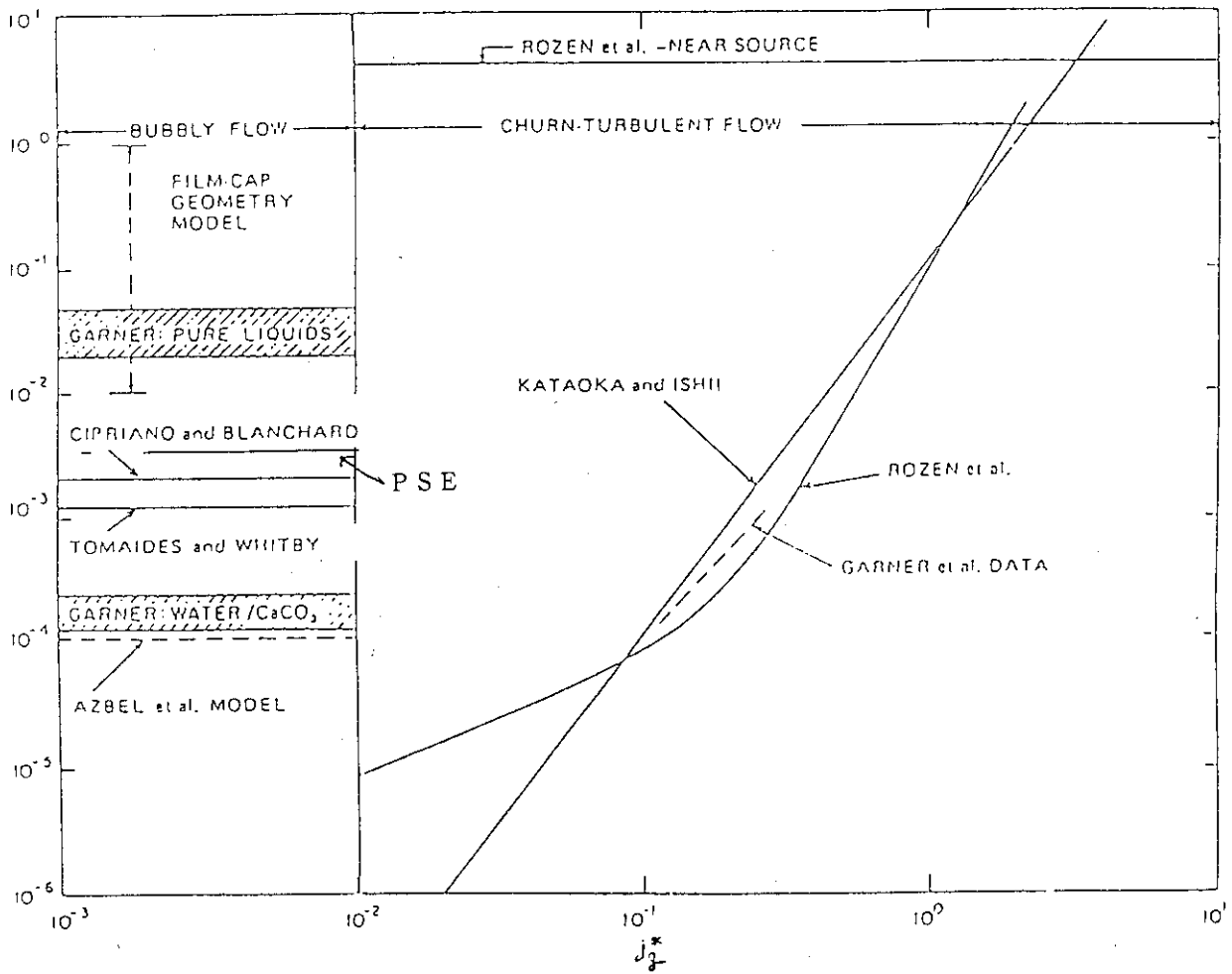


Fig. 2.3 Comparison of aerosol production ratio (E) with dimensionless superficial vapour velocity (quoted from Ref. 6 except for PSE model line).

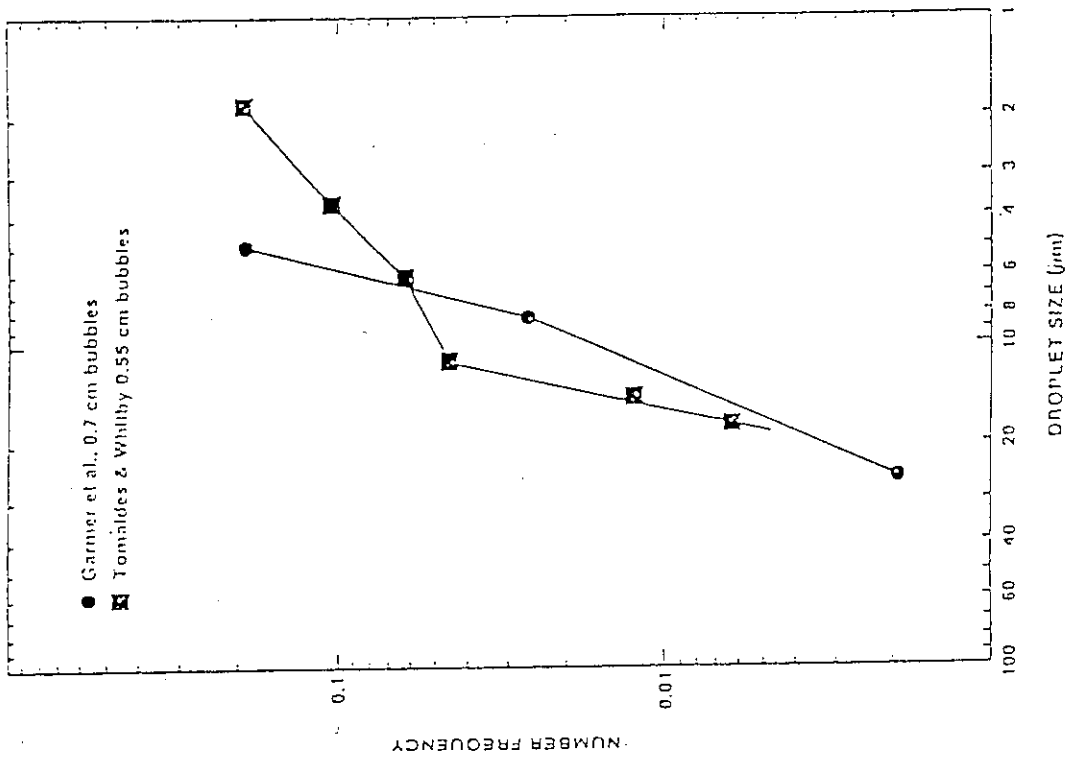


Fig. 2.5 Droplet size distribution for bubble burst acrossol production (quoted from Ref. 15)

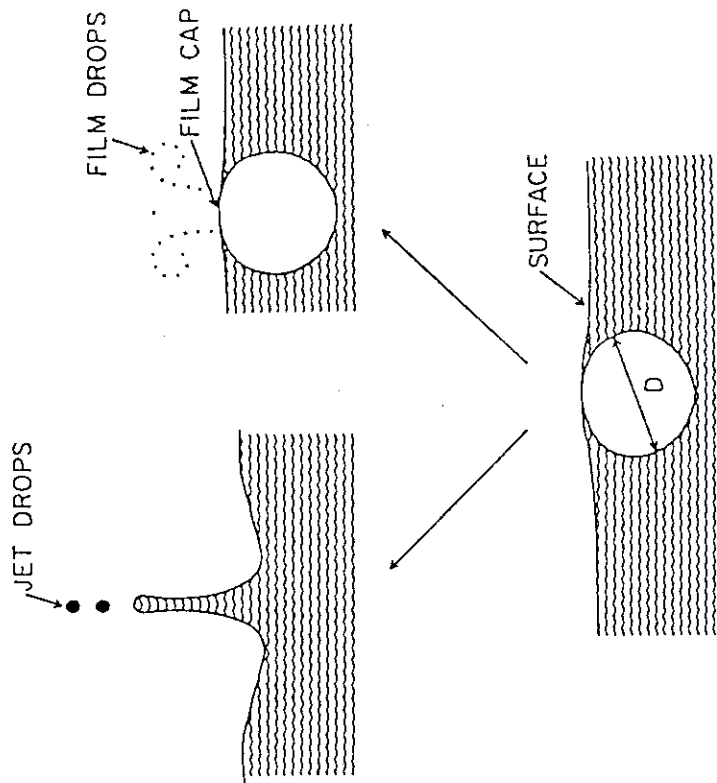


Fig. 2. 4 Schematic of a bubble burst at pool surface (quoted from Ref. 6)

3. ソースタームモデル比較計算

3.1 解析対象及び解析手法

ソースタームモデル比較計算の対象として、再処理施設の高レベル廃液貯槽の冷却能喪失事故をとり上げる事故発生により除熱能力が失われた貯槽内の高レベル廃溶液が除々に加熱され、やがて（約30時間経過後）沸点に達した後沸騰状態となる過程におけるエアロゾル発生量の計算モデルを違えた2つのケースについて計算する。

STARコードは、核燃料施設の正常時及び事故時の放射性物質の環境放出に関わるPSA（確率論的安全評価）用の計算コードであり、元々ドイツの核燃料サイクル・バックエンド関連施設の安全解析手法の開発を目的としたPSEプロジェクトが実施された間（1977年～1985年）に、NUKEM GmbHにより開発された。原研では、これを1986年に導入し、公衆被ばくをも解析できるように改良したり。STARコードでは、核燃料施設において容器内部あるいはセル内部に放出された放射性物質（ソースターム）が、オフガス系あるいは換・排気系に配置された捕集装置類（バリア）を通過してゆく間に大部分が除去され、透過した放射性物質が空気に稀釈されてスタックから環境へ放出され公衆被ばくに寄与する過程を、解析者が自由にモデル化して解析できる。Fig.3.1にSTARコードにおける計算及びデータの流れを図示する。図中、破線で示したブロックは、STARコードの取扱い範囲外にあり、他の計算コードあるいは実験等によりデータ、計算モデル等を準備してSTARに組み込む必要がある。

再処理施設の高レベル廃液貯槽モデル体系として前述したPSEプロジェクトで開発されたものを用いる。Fig.3.2は、廃液貯槽及び関連する排気系、オフガス系の概念図である。貯槽は、各75m³の体積容量を持つ水冷式貯蔵タンク2基から成る。タンク及びそれを格納するホットセルの主要諸元をTable 3.1に示す。タンク内には水素ガス掃気用の空気が溶液相下部に導入されている。タンク底及び外側には、崩壊熱除去用の冷却用マントルが巻かれており、通常運転時に溶液温度を一定に保っている。溶液から発生した水蒸気及びエアロゾルは、空気に同伴してタンク上方に設けられた開口部よりオフガス系に引かれ、オフガス洗浄用の各装置を通過して低減された後、空気に稀釈されてスタックより環境へ放出される。

3.2 ソースタームモデル

前述したようなPSEプロジェクトで開発された再処理施設の高レベル廃液貯槽モデル体系を対象に、冷却能喪失事故時の公衆被ばくリスクをSTARコードにより解析する。ソースタームモデルとしては、2.1節で述べたPSE溶液蒸発モデル及び2.2.1節で述べたPSE気泡流モデルを用い、正常運転時から冷却能喪失事故が起きて溶液が除々に加熱され沸騰に到る過程をモデル化する。

PSE溶液蒸発モデルでは、(2.1.1)、(2.1.2)、(2.1.3)の各式、及び(2.2.30)式から次式が導かれる。

$$\begin{aligned}
 & 0.5236 \cdot \rho_f \cdot N_0 \cdot \int_0^{D_{MAX}} f(D') \cdot D'^3 \cdot dD' \\
 & = F_v \cdot \sigma_s \cdot A \cdot (x_s(T_F) - \bar{x}(T_F)) \\
 \therefore N_0 & = \frac{F_v \cdot \sigma_s \cdot A \cdot (x_s(T_F) - \bar{x}(T_F))}{0.5236 \cdot \rho_f \cdot \int_0^{D_{MAX}} f(D') \cdot D'^3 \cdot dD'} \quad (3.2.1)
 \end{aligned}$$

PSEプロジェクトのモデルでは、 F_v が(2.1.2)式で与えられ、 $\rho_f = 1.2 \text{ g/cm}^3$ としている。Aの値は直接には報告書に記載はないが、セル床面積、タンク容積等から推算すると約20 m^2 としてよい。又、蒸発モデルの $f(D')$ として中央粒径0.5 μm 、エラーファクター2の対数正規分布に従うとしている。この $f(D')$ を用いて $\int_0^{\infty} f(D') D'^3 dD'$ を数値積分で求めると $2.78 \times 10^{-10} (\text{cm})^3$ となる。 $\sigma_s \cdot (x_s(T_F) - \bar{x}(T_F))$ の値は、直接には与えられていないが、PSEプロジェクト報告書記載のデータから間接的に推定することができる。溶液温度(40°C, 90°C, 100°C)の各温度における F_v 、 $\sigma_s \cdot (x_s(T_F) - \bar{x}(T_F))$ 及び N_0 の算出値を示すと以下ようになる。

T_F (°C)	F_v (-)	N_0 (hr^{-1})	$\sigma_s \cdot (x_s(T_F) - \bar{x}(T_F))$ ($\text{kg/m}^2 \cdot \text{hr}$)
40	3.09×10^{-7}	2.8×10^9	7.91×10^{-2}
90	1.55×10^{-5}	2.0×10^{12}	1.126
100	2.99×10^{-5}	5.2×10^{13}	15.17

次に、PSE気泡流モデルでは、(2.2.1)、(2.2.2)、(2.2.8)、(2.2.10)の各式、及び(2.2.30)式から次式が導かれる。

$$\begin{aligned}
 & 0.5236 \cdot \rho_f \cdot N_0 \cdot \int_0^{D_{MAX}} f(D') \cdot D'^3 \cdot dD' \\
 & = F_B \cdot Q / \Delta h \\
 \therefore N_0 & = \frac{F_B \cdot Q}{0.5236 \cdot \rho_f \cdot \Delta h \cdot \int_0^{D_{MAX}} f(D') \cdot D'^3 \cdot dD'} \quad (3.2.2)
 \end{aligned}$$

PSEプロジェクトのモデルでは、 $f(D')$ を中央粒径 $28\mu\text{m}$ 、ないし $30\mu\text{m}$ 、エラーファクター2.3の対数正規分布関数としている。このとき $\int_0^\infty f(D') D'^3 dD'$ を数値積分により求めると $6.9 \times 10^{-8} \text{ cm}^3$ となる。また、 F_B の値が(2.2.10)式から溶液温度 100°C として算出すると 2.01×10^{-3} となる。沸騰蒸発による潜熱 Δh 、溶液内部発熱量 Q 、及び溶液密度 ρ_f の値は、次のように与えられる。

$$\begin{aligned} Q &= 187.5 \text{ kW} = 187.5 \times 10^3 \text{ (J/s)} \\ \Delta h &= 128,75 \text{ cal/g} = 538.9 \text{ (J/g)} \\ \rho_f &= 1.2 \text{ (g/cm}^3\text{)} \end{aligned}$$

これらの数値を(3.2.2)式に代入すると、次のように N_0 の値が求められる。

$$N_0 = 1.61 \times 10^7 \text{ (s}^{-1}\text{)} = 5.81 \times 10^{10} \text{ (hr}^{-1}\text{)} \quad (3.2.3)$$

この値は、(2.2.2)式、すなわち沸騰によって発生する気泡流のみ考慮して求められたものである。

高レベル廃液貯槽のように放射線分解(H_2)ガスを除去するために、溶液下部より空気又は不活性ガスをパージする場合には、溶液温度が沸点に達する以前にも気泡流が溶液中に流動しており、これによるエアロゾル発生を考慮する必要がある。この場合も気泡流による気相流量に(2.2.10)式で与えられるエアロゾル発生割合をかけてエアロゾル発生量が求まる。

STARコード内に組込むソースタームモデルとしては上述した方法に基づき作成し、次のようにまとめることができる。

- (1) 正常運転時のソースターム(モデル名QK)として、溶液温度 40°C を仮定し、エアロゾル粒子数密度分布関数を、溶液蒸発モデルに由来する項とエアパージの気泡流モデルに由来する項の和として表す。

$$\begin{aligned} \frac{dN}{dD} &= 2.8 \times 10^9 \cdot f_{0.5, 2.0}(D) + 1.9 \times 10^8 \cdot f_{30.0, 2.3}(D) \\ 0.1 \leq D \leq 3.75 & \quad (3.2.4) \end{aligned}$$

ここで、 $f_{a,b}(D)$ はエアロゾル粒径 $D(\mu\text{m})$ における平均値 a 、エラーファクター b の対数正規分布密度関数を表す。

- (2) 冷却能喪失事故時には、溶液の加熱過程と沸騰過程の2つに分けて、各々の過程ではエアロゾル発生流量が一定であるとして解析する。溶液の加熱過程のソースターム(モデル名QKV)として、溶液温度 90°C を仮定し、エアロゾル粒子数の密度分布関数を、溶液蒸発モデルに由来する項とエアパージの気泡流モデルに由来する項の和として表す。

$$\begin{aligned} \frac{dN}{dD} &= 2.0 \times 10^{12} \cdot f_{0.5, 2.0}(D) + 7.5 \times 10^8 \cdot f_{28.0, 2.3}(D) \\ 0.1 \leq D \leq 8.0 & \quad (3.2.5) \end{aligned}$$

- (3) 溶液の沸騰過程のソースターム（モデル名 Q K S）として、溶液温度 100°C を仮定し、エアロゾル粒子数密度分布関数を、溶液蒸発モデルに由来する項と、エアページ及び沸騰による気泡流モデルに由来する項の和として表す。

$$\frac{dN}{dD} = 5.2 \times 10^{13} \cdot f_{0.5, 2.0}(D) + 1.5 \times 10^{10} \cdot f_{28.0, 2.3}(D)$$

$$0.1 \leq D \leq 30 \quad (3.2.6)$$

- (4) 事故時の溶液加熱・沸騰過程の時間

H A L W タンクの冷却能喪失事故時には、崩壊熱により溶液が加熱されて温度上昇し、やがて沸点に達する。タンク内容液の加熱時間 T_1 は、75 m³ の溶液が 187.5 kW の発熱により通常時の 40°C から 100°C の沸騰点まで温度上昇するために要する時間として、

$$T_1 = \frac{75 \times 10^3 \times 1.2 \times 1.0 \times (100 - 40)}{187.5 \times 10^3 \times 0.23885}$$

$$= 120578 \text{ secs} = 33.5 \text{ hrs}$$

と求められる。

事故時には、緊急冷却系が働いて、蒸発により発生した水蒸気及びエアロゾルは再び水及び溶液となってタンク内へ戻されるので、タンク内容液は事実上枯渇することはないと考えられる。

従って、溶液の加熱過程及び沸騰過程の開始及び終了時間として、次のように仮定する。

溶液の加熱過程に対して、0 ~ 33 hrs。

溶液の沸騰過程に対して、33 ~ 10000 hrs。

- (5) 溶液（エアロゾル）の密度

タンク内容液の密度と発生するエアロゾルの密度は等しいと仮定し、その値を 1.2 g/cm³ (Table 3.1 参照) とする。

- (6) 溶液（エアロゾル）の比放射能

密度と同様に比放射能の値も、タンク内容液中とエアロゾル中とで等しいと仮定し、次のように求める。

- 初期濃縮度 4.5 % の P W R 用燃料 1 トンを 45 GWd/tU 燃焼させた後、4 年間冷却させたものの中に含まれる核種別放射能強度を、ORIGEN-2 コードの計算により求める。
- 使用済燃料 1 トンを再処理することにより、派生する高レベル廃液中の核種別放射能強度は、工程到達率をかけて得られる。ここで工程到達率は、使用済燃料の剪断、溶解に始まり、ウラン・プルトニウムの分離、精製の一連のプロセスを経て、高レベル廃液として貯蔵されるまでに放射性物質が分離、減少する割合であり、Exxon 再処理工場の P S A R (予備的安全解析書)¹⁷⁾ 記載のデータを用いた。
- 上記 P S A R には、使用済燃料の再処理により高レベル廃液が 517 ℓ 派生するとしており、廃液密度を 1.2 kg/ℓ とすれば、核種別の比放射能は Table 3.2 に示すように求められる。

3.3 バリアモデル

高レベル廃液貯槽溶液から発生したエアロゾルはオフガス系に配置されたデミスター、ミストエリミネータ等のバリアを通過した後、最終的にHEPAフィルターにより大部分が除去され、残余が空気に稀釈されてスタックから環境に放出され一般公衆の被ばくに寄与する。

Fig. 3.3にPSEプロジェクトで用いられた上述の各バリアの配置のモデル図を示す。Fig. 3.4に、オフガス系各バリアのエアロゾル透過率の計算モデルに基づいて算出した粒径依存の透過率を図示する。凝縮器モデルKON及び緊急冷却系モデルSKの透過率は一定値を与える。NO_xスクラバーのモデルKOL、除湿器モデルDEN、バッフ板式水分除去器モデルLAMは、エアロゾル粒径の10 μ m前後の値の範囲を遷移領域として除去効率を急減し、1 μ m以下の粒径のエアロゾルの大部分を透過する。一方、この範囲の粒径のエアロゾルに対し、良好な除去効率を維持できるものとして、ファイバー充填式水分除去器モデルVOR及びHEPAフィルターのモデルSがある。これらの詳細については、文献1)に記載がある。ここではHEPAフィルターについてのみ引用して示すこととする。

PSEプロジェクトでは、PuO₂エアロゾル実験¹⁸⁾により得られた次表に示すデータを用いる。

空気力学直径 Ya (μ m amad)	透 過 率 ※1E-6	標準偏差 ※1E-6
< 0.12	36	36
0.12 - 0.22	54	50
0.22 - 0.44	71	59
0.44 - 0.96	64	57
0.96 - 1.50	39	33
1.50 - 2.30	30	30
2.30 - 3.40	14	13
3.40 - 5.40	13	12
> 5.40	13	13

上記の透過率のデータのうちエアロゾル粒径が4 μ mより小さい範囲では、任意の粒径に対してスプライン法 (Spline-Verfahren) により内挿して透過率を求める。また、エアロゾル粒径が4 μ mを越す範囲では、別の同様な実験から得られたフィッティング式 ($3.5 \times 10^{-4} Ya^{-3.5}$) を用いることとし、結局、実験データからは次に示すような方法により透過率を求める。

$$P_{\text{HEPA}}^{\text{exp}}(Ya) = \begin{cases} \text{上表のデータのスプライン内挿法, } Ya \leq 4 \mu\text{m} \\ 3.5 \times 10^{-4} \cdot Ya^{-3.5}, Ya > 4 \mu\text{m} \end{cases}$$

上記のデータを実際の安全解析に用いるためには、個々のHEPAフィルタの仕様が異なることによる性能のバラツキを考慮に入れなければならない。DIN 24184にはHEPAフィルタに対する許容透過率が次のように定められている。

- $0.05 \mu\text{m} < Y < 0.08 \mu\text{m}$ の範囲で $< 0.03 \%$
- $0.3 \mu\text{m} < Y < 0.5 \mu\text{m}$ の範囲で $< 0.03 \%$

従って、この許容透過率をバラツキの上限と考えることにすれば、 $P_{\text{HEPA}}^{\text{設計}}(Ya)$ に4倍を掛けなければならない。さらに、フィルタ使用中の性能劣化等を考慮して10倍の安全係数を掛けることとする。

HEPAフィルタの漏洩により、エアロゾルの透過が増える分については、DIN 25414に規準があり差圧20mbarのとき、漏洩流は公称流量の 3×10^{-5} 以下でなければならないとされている。従って、本来の透過率に上記漏洩率の10倍の安全係数を乗じた数値を加算したものを、安全解析に使用することとする。

以上述べたことをまとめると、PSEプロジェクトのHEPAフィルタのエアロゾル透過率モデルは、次式に示すように与えられる。

$$P_{\text{HEPA}}(Ya) = 40 \cdot P_{\text{HEPA}}^{\text{設計}}(Ya) + 3 \times 10^{-4} \quad (3.3.1)$$

フィルターのDF値は、(3.3.1)式の透過率の逆数として求められる。

HEPAフィルタの除染係数(DF)を求める理論式としてはKirschの単一繊維さえぎり効率モデルが有名である¹⁹⁾。ここでは、Kirschの式を説明し、 $0.04 \sim 1 \mu\text{m}$ のエアロゾル粒径領域についてDFを求めてみる。

或る粒径のエアロゾル個数濃度をC(ヶ/cc)とすれば、フィルタの捕集効率は $E = (C_{\text{in}} - C_{\text{out}}) / C_{\text{in}}$ だから、 $DF = 1 / (1 - E)$ となる。また、捕集効率(E)と単一繊維さえぎり効率(η_{DI})の関係は、

$$E = 1 - \exp\left(-\frac{4}{\pi} \frac{\alpha}{1 + \sigma} \frac{L \eta_{\text{DI}}}{d_f \delta}\right) \quad (3.3.2)$$

ここで、 η_{DI} はKirschの単一繊維さえぎり効率を表し、 η_{D} と η_{I} をそれぞれ拡散さえぎり効率と慣性さえぎり効率、 $f(\text{Pe}, R)$ を両者の複合さえぎり効率とすれば、

$$\eta_{\text{DI}} = \eta_{\text{D}} + \eta_{\text{I}} + f(\text{Pe}, R) \quad (3.3.3)$$

ここで、Peはペクレ数(= $u_0 d_f / D_B$)、Rはさえぎりパラメータ(= d_p / d_f)である。以下の計算で用いるパラメータと物性値は以下のとおりである。

α : フィルタ繊維の充填率(=0.063)	d_f : 繊維円柱の直径(= $0.54 \times 10^{-4} \text{ cm}$)
D_B : エアロゾルの拡散係数(= $(C_m \kappa T) / (3\pi \mu d_p) \text{ cm}^2/\text{s}$)	L : フィルタの厚み(= 0.041 cm)
u_0 : 繊維円柱周りの流体の近接速度(定格 3.63 cm/s)	Kn : ヌッツエン数(= $2\lambda / d_f$)
C_m : カニンガムの定数(= $1.257 + 0.4 \exp(-1.1 / \text{Kn})$)	σ : 繊維径の分散(= 0.44)
δ : フィルタ充填の不均一性のパラメータ(= 1.48)	d_p : 粒子直径(入力)(cm)

また、空気流体の温度 ($T=293\text{ K}$)、空気の粘性 ($\mu=183.0 \times 10^{-6} \text{ dyn s/cm}^2$)、空気の自由走行距離 ($\lambda=6.54 \times 10^{-4} \text{ cm}$)、ボルツマン定数 ($k=1.38 \times 10^{-16} \text{ erg/K}$)とする。

(3.3.3) 式中の拡散さえぎり効率 (η_D) は、

$$\eta_D = 2.7 \text{ Pe}^{-2/3} (1 + 0.39 k^{-1/3} \text{ Pe}^{1/3} \text{ Kn}) + 0.624 \text{ Pe}^{-1}$$

慣性さえぎり効率 (η_I) は、

$$\eta_I = (2k)^{-1} [(1+R)^{-1} - (1+R) + 2(1+R)\ln(1+R) + 2.86(2+R)R(1+R)^{-1} \text{ Kn}]$$

両者の複合さえぎり効率 ($f(\text{Pe}, R)$) は、

$$f(\text{Pe}, R) = 1.24 k^{-1/2} \text{ Pe}^{-1/2} R^{2/3}$$

これらの式における k は水力学因子と呼ばれ、繊維充填率 (α) と繊維径の分散 (σ) を用いて、

$$k = -0.5 \ln[\alpha/(1+\sigma)] - 0.52 + 0.64[\alpha/(1+\sigma)] + 1.43[1 - (\alpha/(1+\sigma))] \text{ Kn}$$

これらの式から η_{DI} を求め、(3.3.2) 式に代入すれば、フィルタの捕集効率 (E) を決定することができる。

Table 3.3 に P S E プロジェクトの H E P A フィルター・モデルによる D F 値と、上述した Kirsch のモデルによる D F 値をエアロゾル粒径の $0.04 \mu\text{m}$ から $1.0 \mu\text{m}$ までの分割値に対して示す。

3.4 比較計算結果及び検討

前述したようにソースタームモデルを表現した (3.2.4) 式、(3.2.5) 式、及び (3.2.6) 式は、高レベル廃液貯槽冷却能喪失事故におけるエアロゾル発生に関する溶液蒸発モデルと気泡流モデルによる2つの項の和から構成される。これを、実際の状況に近いモデルケースとして並び、Case 1 とする。一方、溶液蒸発によるエアロゾル発生を無視して、溶液中のエアパーズあるいは沸騰により生ずる気泡流によるエアロゾル発生のみを考慮したモデルケースとして、Case 2 を考える。すなわち、エアロゾル粒子数流量の粒径依存分布を示した Fig. 3.5 において、Vaporization と Bursting の両方の項を考慮したものが Case 1 であり、Vaporization の項を無視したものが Case 2 である。各々の Case について粒径依存のエアロゾル粒子数流量をグラフにプロットして示したものが Fig. 3.6 である。これを見ると、Bursting によるエアロゾルの粒径分布では平均粒径が大きく、ピークの高さが Vaporization による分布のそれより低い。しかもより大きい径の粒子は沈降により溶液表面に引き戻されてオフガス流に伴わず、分布の形は、右半分の喪失したゆがみのあるものとなっている。

Case 1 と Case 2 に関して STAR コードによる計算出力の一部を Table 3.4 及び Table 3.5 に示す。これを公衆被ばくのリスクに関するファーマー線図として比較して図示したもの（これも又 STAR コードの出力として得られる）が、Fig. 3.7 である。図中に。印で示した点の

右上に附した数字は、Table 3.4 及び Table 3.5 の左の欄に記載した Path No. に対応しており、事故・故障のひとつの組合せにおけるリスクを表わしている。例えば、Path No. 2 と 3 に対応して Fig. 3.7 では“2-3”を右肩に附した点が、QKV 及び QKS のモデル名で示した冷却能喪失事故時の溶液加熱・沸騰事故時のリスク計算結果を表わし、横軸の値を読み取ると Case 1 に対して公衆被ばく量が 3.38×10^{-6} Rem, Case 2 に対して公衆被ばく量が 3.44×10^{-15} Rem と算出されている。これから両ケースの算出値は桁違いであることがわかる。この原因は、元々気泡流モデルから算出されるエアロゾル粒子数が比較的少ないのに加えて、Fig. 3.4 に示すように HEPA フィルター（図中 S-Filter）のエアロゾル透過率が $5 \mu\text{m}$ 以上の粒径に対してかなり低くなっていることが考えられる。逆に、溶液蒸発モデルから算出されるエアロゾルの粒子数が、冷却能喪失事故の場合には比較的多く、さらに Fig. 3.4 に示すように HEPA フィルターのエアロゾル透過率が、エアロゾル粒子数の粒径分布のピーク値に対する粒径の約 $0.5 \mu\text{m}$ 付近で最大を示していることも上の原因に寄与しているであろう。このことは、実際の HEPA フィルターの挙動を比較的精度よく予測すると考えられる Kirsch のモデル（Table 3.3 参照）を適用しても、同様な結論が導かれる。

Table 3.1 Data for Main Items of Sample HALW Tank

項 目	デ ー タ
タンク内容積	75 m ³
発 熱 量	187.5 kW
冷 却 方 式	マントル冷却方式
正常運転温度	<45 °C
ホットセル床面積	60 m ²
ホットセル体積	500 m ³
溶 液 密 度	1.2 kg/l
溶 液 比 放 射 能	1.75 x 10 Bq/kg *

*表示の値はPSEプロジェクト最終報告書記載のものであり、本報告書のサンプル問題解析用には別に算出した。

Table 3.2 Specific Radioactivity per Nuclide in HALW Liquid

核 種	比放射能 Ci/kg	核 種	比放射能 Ci/kg
⁹⁰ Sr	1.47 x 10 ²	²³⁸ U	2.50 x 10 ⁻⁶
⁹⁵ Zr	3.84 x 10 ⁻⁴	²³⁷ Np	7.61 x 10 ⁻⁴
⁹⁵ Nb	8.49 x 10 ⁻⁴	²³⁹ Np	4.16 x 10 ⁻²
⁹⁹ Tc	2.52 x 10 ⁻²	²³⁸ Pu	4.98 x 10 ⁻²
¹⁰⁶ Ru	5.22 x 10 ¹	²³⁹ Pu	4.32 x 10 ⁻³
¹²⁹ I	4.22 x 10 ⁻⁸	²⁴⁰ Pu	6.85 x 10 ⁻³
¹³⁴ Cs	1.01 x 10 ²	²⁴¹ Pu	1.61
¹³⁷ Cs	2.06 x 10 ²	²⁴² Pu	2.88 x 10 ⁻⁵
¹⁴⁴ Ce	6.03 x 10 ¹	²⁴¹ Am	1.79
²³⁵ U	1.76 x 10 ⁻⁷	²⁴² Cm	0.23
²³⁶ U	3.03 x 10 ⁻⁶	²⁴⁴ Cm	4.93

Total 575.1 Ci/kg

Table 3.3 Decontamination Factor (DF) by PSE project and Kirsch

$d_p (\mu m)$	DF by PSE project	DF by Kirsch
0.04	634	4750
0.05	609	2530
0.06	587	1670
0.07	566	1250
0.08	547	1030
0.09	529	899
0.1	512	826
0.2	395	1290
0.3	337	5500
0.4	312	37700
0.5	308	3.57×10^5
0.6	317	4.36×10^6
0.7	334	6.57×10^7
0.8	358	1.19×10^9
0.9	385	2.55×10^{10}
1.0	416	6.32×10^{11}

Table 3.4 STAR Calculation Output for Case 1 (Vapor. & Burst.)

PATH NO.	FAILED BARRIERS	ANNUAL FREQ.		EFF. DURATION		RELEASED FLOW		RELEASE		ENVIRONMENTAL	
		MEAN	VARIANCE	MEAN	VARIANCE	MEAN	VARIANCE	MEAN	VARIANCE	DOSE EQ.	RISK
1	N O N E	1.00E+00	.00E+00	8.76E+03	.00E+00	7.30E+01	1.10E+04	6.30E+05	8.43E+11	2.22E-05	2.22E-06
2	OKV	6.13E-02	6.24E-03	2.01E+01	1.07E+03	1.55E+04	4.95E+08	3.11E+05	4.56E+11	1.08E-06	6.60E-08
3	OKS	6.13E-02	6.24E-03	1.71E+01	5.89E+03	3.89E+04	3.11E+09	6.64E+05	9.81E+12	2.30E-06	1.41E-07
4	KOL	1.56E+00	3.76E+00	2.30E+01	2.82E+03	9.51E+01	1.64E+04	2.19E+03	3.41E+07	7.58E-09	1.18E-08
5	KON	8.89E-02	2.15E-02	6.16E+00	3.11E+02	7.45E+01	1.00E+04	4.59E+02	2.10E+06	1.59E-09	1.42E-10
6	S	2.37E-01	7.94E-02	5.00E-01	1.12E+00	3.10E+04	1.98E+09	1.55E+04	1.58E+09	5.38E-08	1.27E-08
ALL FAILURE PATHS		1.94E+00	3.87E+00					3.44E+04	1.20E+10	3.44E-06	2.32E-07

Table 3.5 STAR Calculation output for Case 2 (Burst. only)

PATH NO.	FAILED BARRIERS	ANNUAL FREQ.		EFF. DURATION		RELEASED FLOW		RELEASE		ENVIRONMENTAL	
		MEAN	VARIANCE	MEAN	VARIANCE	MEAN	VARIANCE	MEAN	VARIANCE	DOSE EQ.	RISK
1	N O N E	1.00E+00	.00E+00	8.76E+03	.00E+00	5.89E-08	7.16E-15	5.16E-04	5.49E-07	1.79E-15	1.79E-15
2	OKV	6.13E-02	6.24E-03	2.01E+01	1.07E+03	1.16E-05	2.88E-10	2.37E-04	2.65E-07	8.22E-16	5.04E-17
3	OKS	6.13E-02	6.24E-03	1.71E+01	5.89E+03	4.41E-05	4.02E-09	7.54E-04	1.27E-05	2.62E-15	1.60E-16
4	KOL	1.56E+00	3.76E+00	2.30E+01	2.82E+03	1.29E-07	3.01E-14	2.96E-06	6.28E-11	1.03E-17	1.60E-17
5	KON	8.89E-02	2.15E-02	6.16E+00	3.11E+02	6.01E-08	6.54E-15	3.71E-07	1.37E-12	1.29E-18	1.14E-19
6	S	2.37E-01	7.94E-02	5.00E-01	1.12E+00	1.94E-05	7.70E-10	9.71E-05	6.18E-10	3.37E-17	7.97E-10
ALL FAILURE PATHS		1.94E+00	3.87E+00					3.49E-05	1.48E-08	3.48E-15	2.35E-16

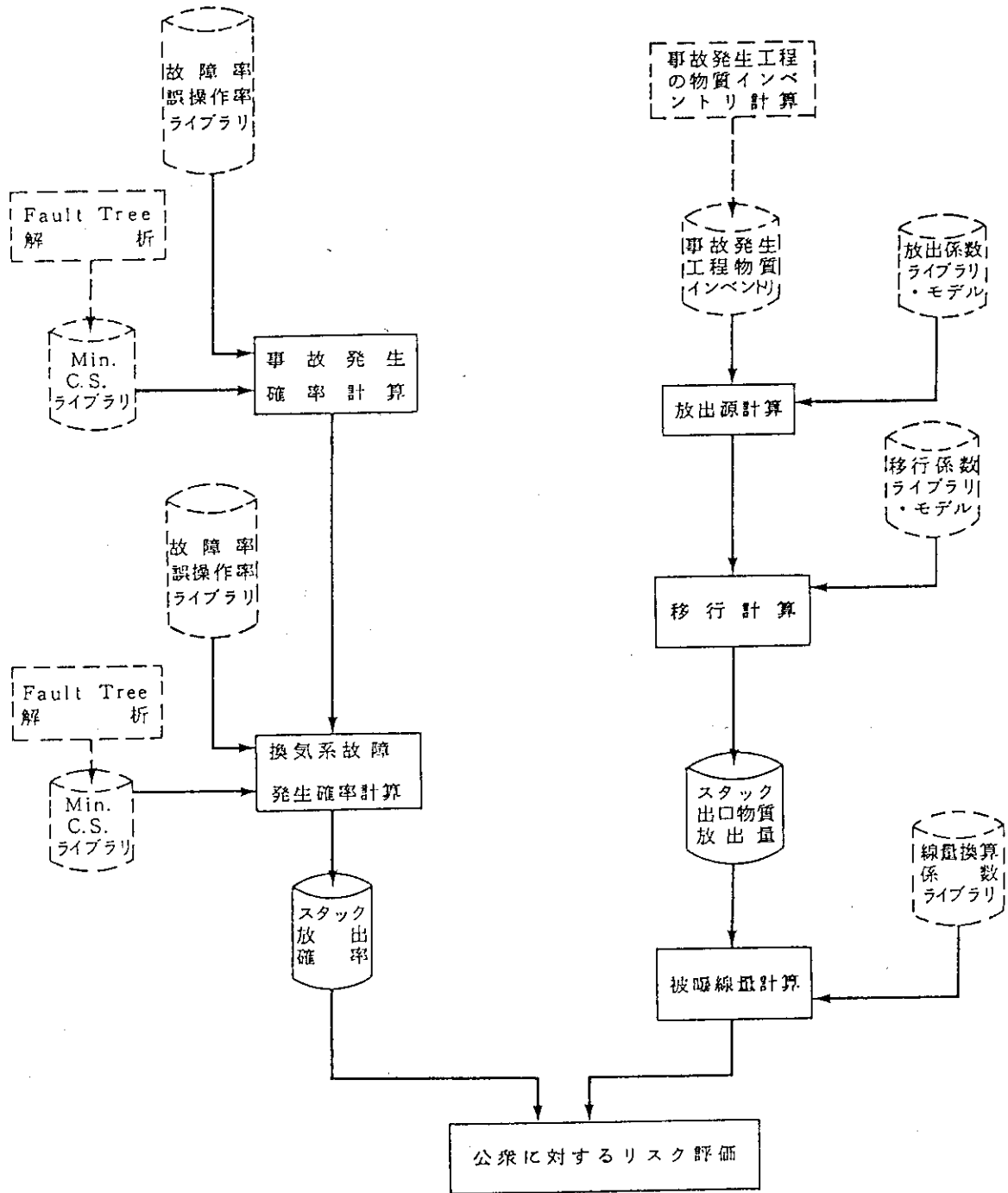


Fig. 3.1 Calculational data flow in STAR analyses.

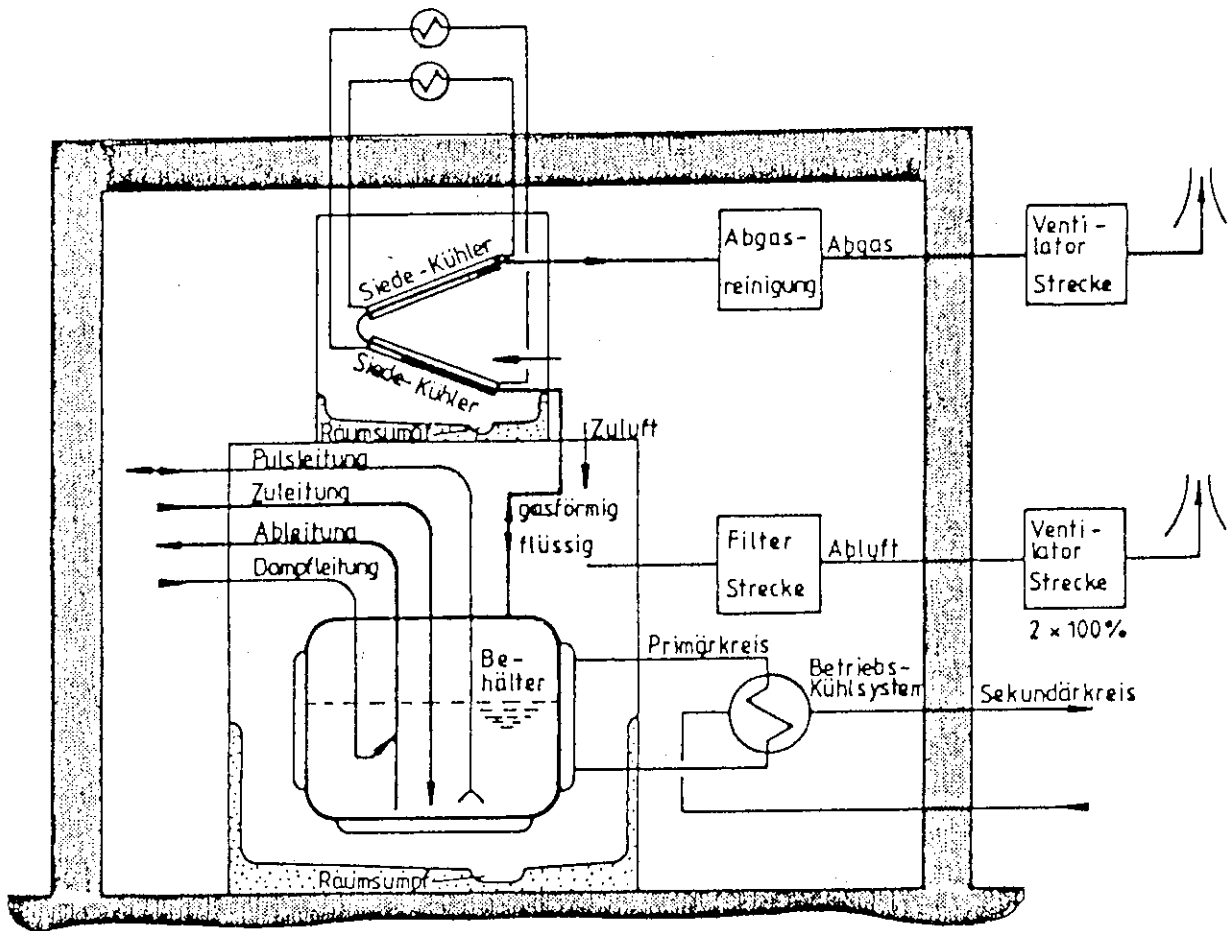


Fig. 3.2 Off-gas and exhaust gas flow diagram for a HALW tank.

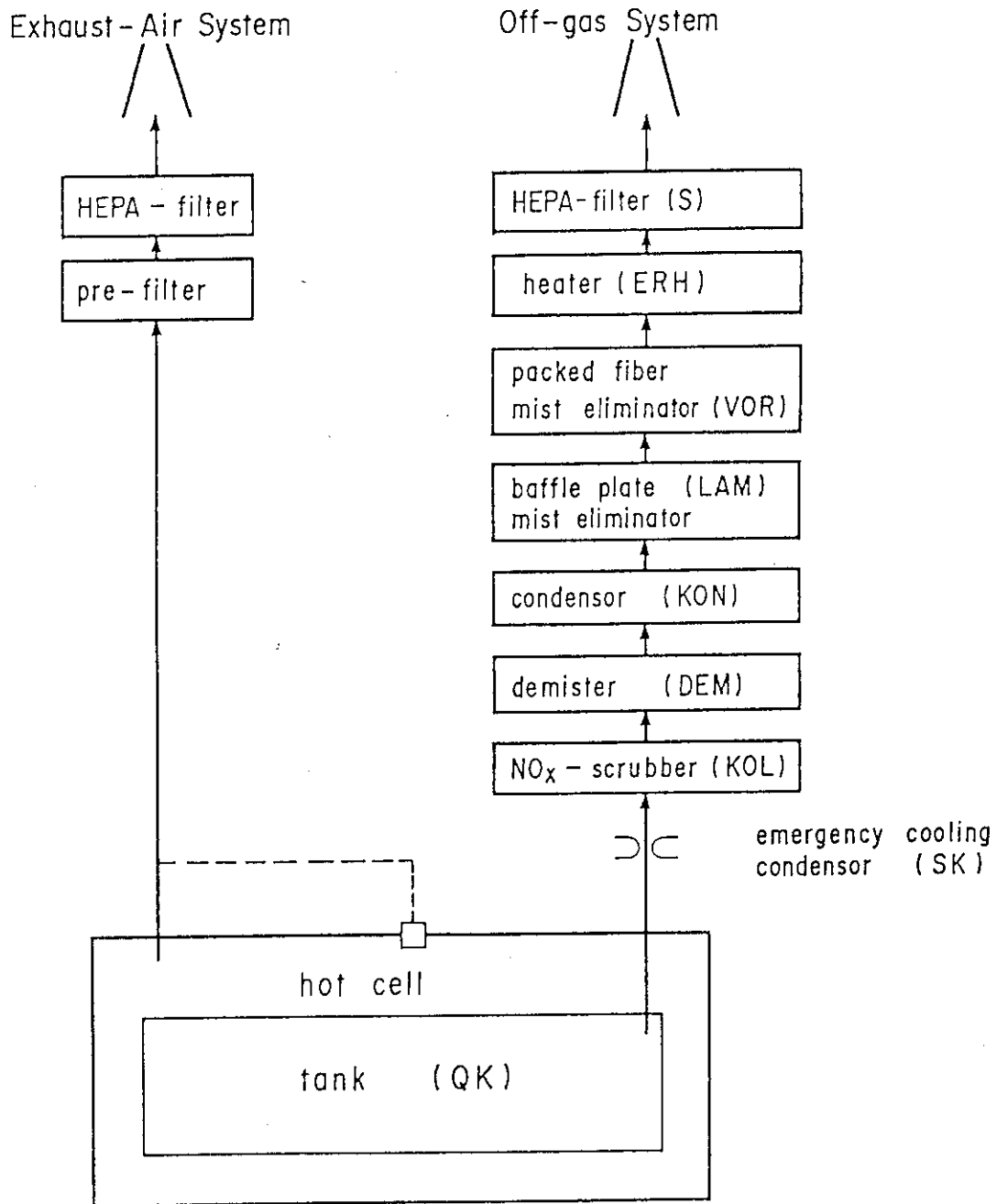
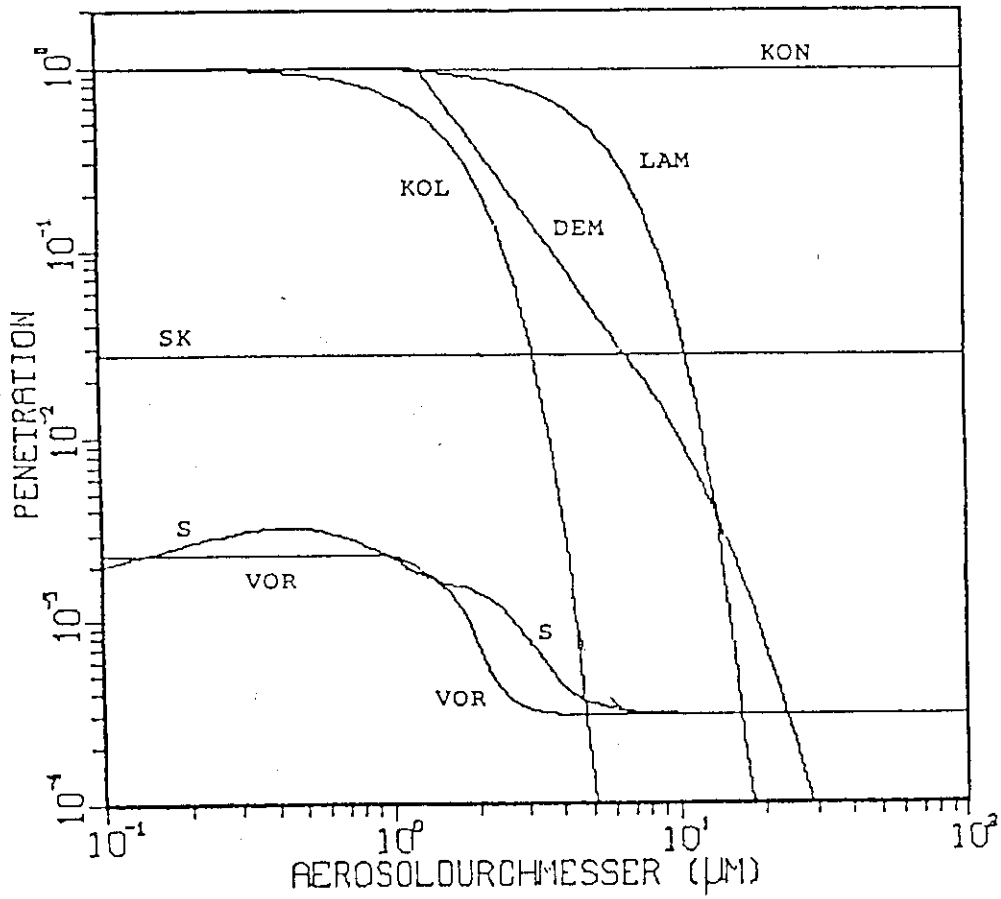
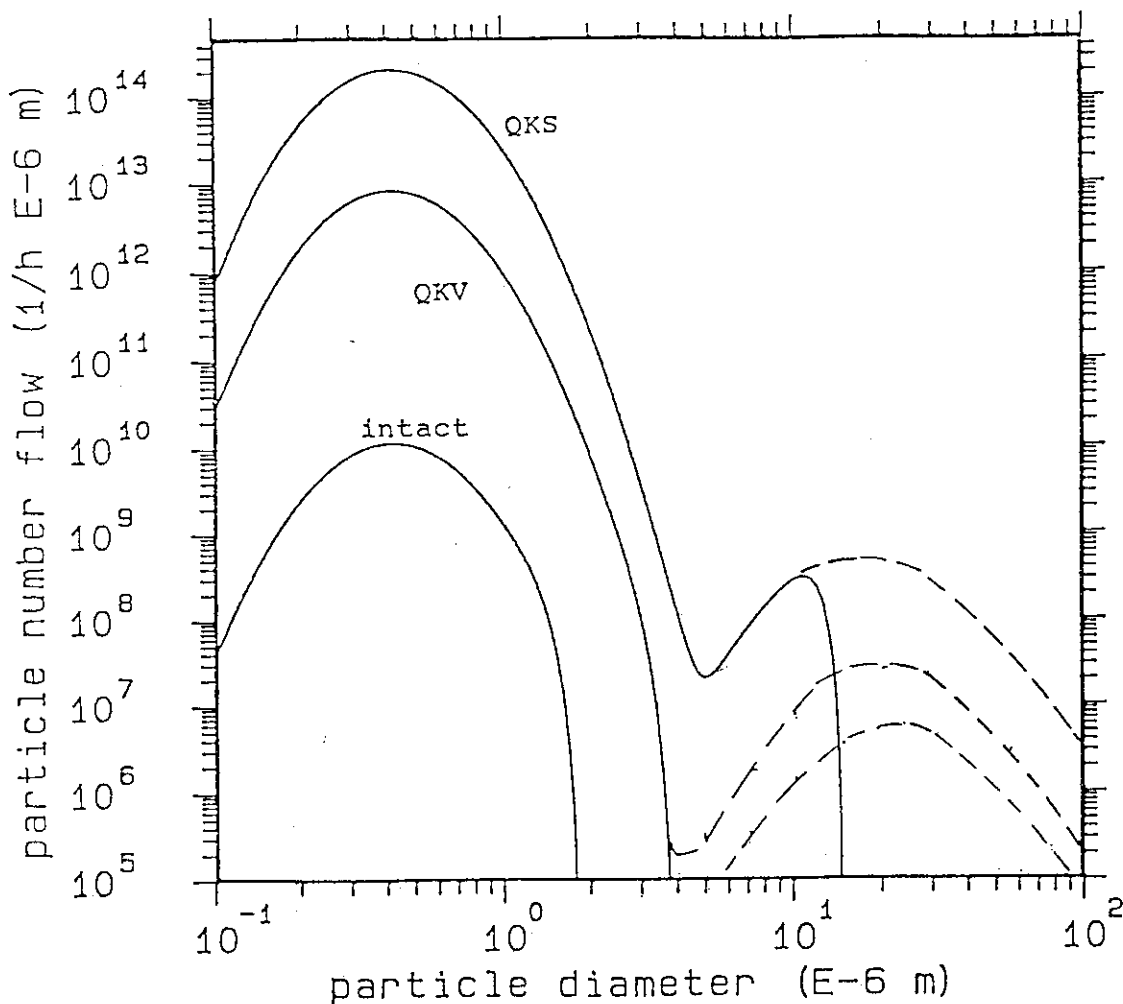


Fig. 3.3 Arrangement of source and barriers for airborne radioactive materials in a simplified HALW model.



SK	Siedekühler (Siedephase)
KOL	Glockenbodenkolonne
DEM	Demister
KON	Kondensator
LAM	Lamellenabscheider
VOR	Glasfasertiefbettfilter
S	S-Filter

Fig. 3. 4 Penetration of barriers at HALW off -gas line for aerosole, showing dependency on particle diameters.



$f_{a,b}(D)$; Log-normal-distribution density function
with mean value "a" and variance factor "b".

intact; $dQk/dD (D) = 2.8E+9 \times f_{0.5,2.0}(D)$ ----- Vaporization
 $+1.9E+8 \times f_{30.0,2.3}(D)$ ----- Bursting

heating phase; $dQkv/dD (D) = 2.0E+12 \times f_{0.5,2.0}(D)$ ----- Vaporization
 $+7.5E+8 \times f_{28.0,2.3}(D)$ ----- Bursting

boiling phase; $dQks/dD (D) = 5.2E+13 \times f_{0.5,2.0}(D)$ ----- Vaporization
 $+1.5E+10 \times f_{28.0,2.3}(D)$ ----- Bursting

Fig. 3.5 Size dependent particle number flow.

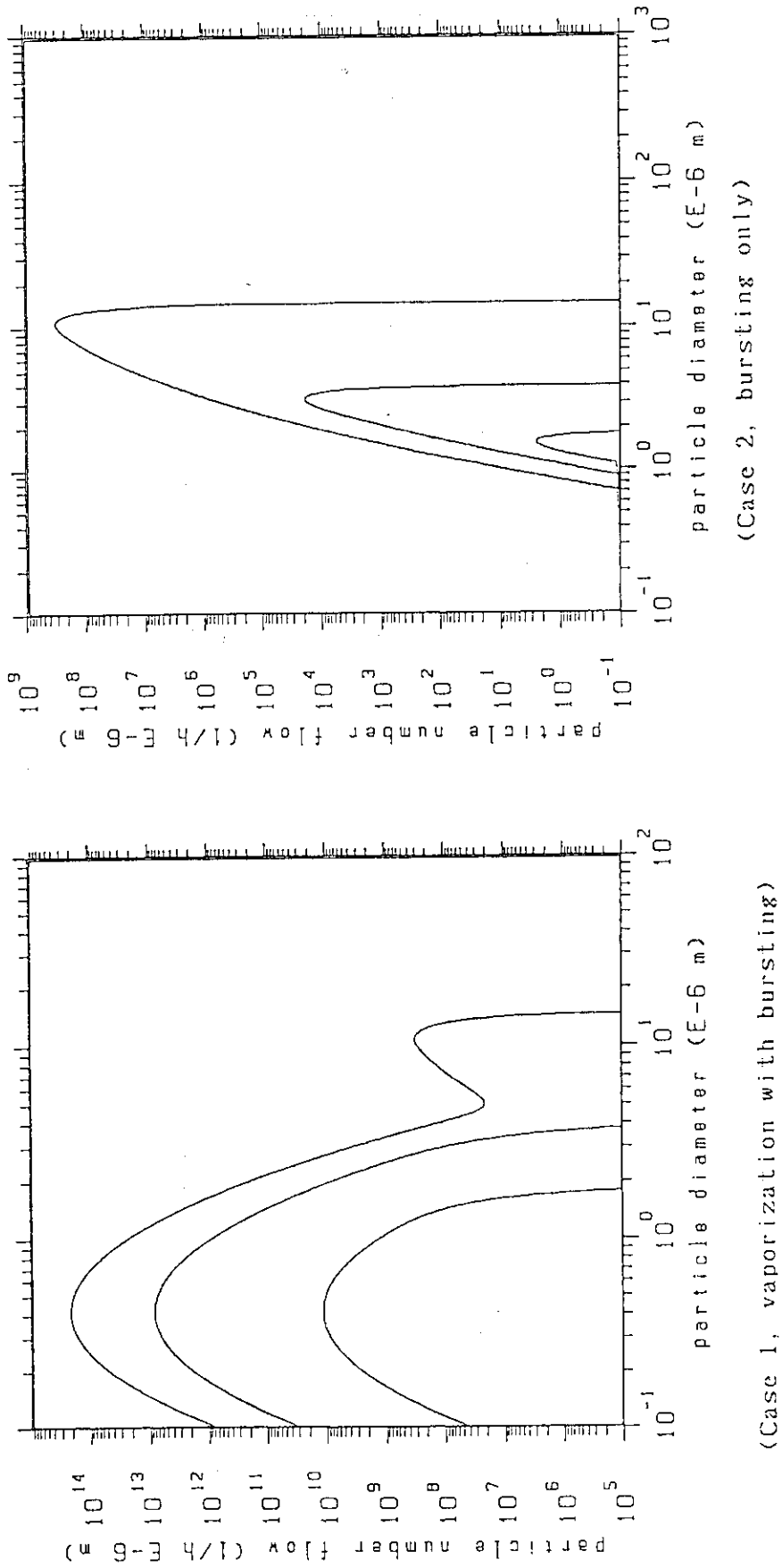
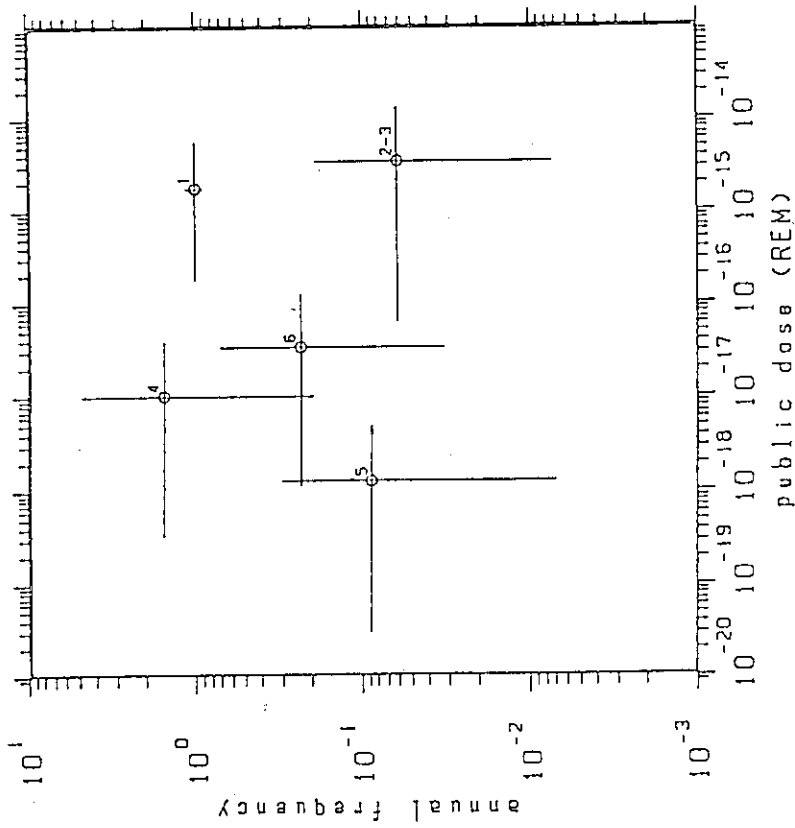
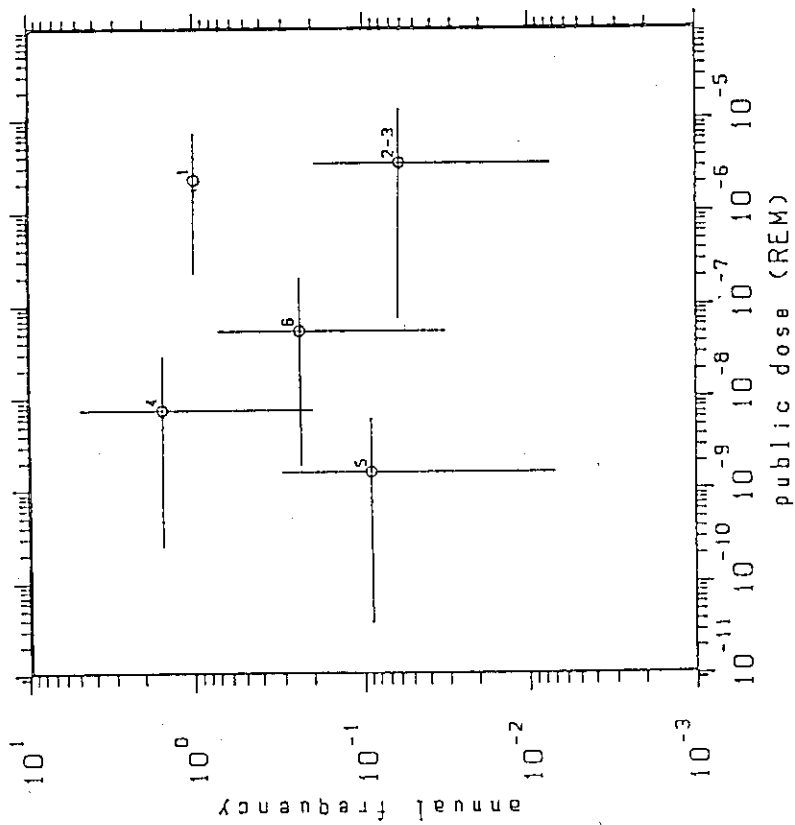


Fig.3.6 STAR calculation outputs for particle number flow.



(Case 2, bursting only)



(Case 1, vaporization with bursting)

Fig. 3.7 STAR Calculation outputs for Farmer diagram.

4. 評価と結論

従来、軽水炉の苛酷事故解析では炉心が溶融してコンクリート床と反応し、大量に発生するガスの気泡の破裂によるエアロゾル発生が問題となった。そこでは、発生するエネルギーも多く、大量のエアロゾルが空気に同伴して格納容器内に放出され、比較的粒径の大きい（数10 μm ）エアロゾル粒子が格納容器破損孔からフィルター等にトラップされることなく環境へ放出されることも考慮された。一方、核燃料施設では放射性物質が種々の工程にある配管や容器内部に溶液として巾広く分布・分散して存在し、万一、臨界事故や冷却能喪失事故が起きたとしても、発生するエネルギーは比較的小さく容器や格納セルの構造は十分に耐える強度を有している。従って、一時的にエアロゾル発生量が増加するとしても、オフガス系や排気系は健全性を維持し、大部分のエアロゾルはフィルター装置等により捕集されてしまい、スタックから環境へ放出されるのはフィルターに捕集されにくいサブミクロン粒径領域に残存する微量であると考えられる。

核燃料施設においてサブミクロン領域のエアロゾルが実際に発生することは、いくつかのフィールド・サンプリング測定によって示されており、Table 4.1 は米国におけるいくつかの核燃料施設のオフガス系のHEPAフィルターに入る直前の PuO_2 のエアロゾル粒径分布定数及び放射能濃度を示したものである¹⁸⁾。Table 4.1 を見ると核燃料再処理・回収（Recoverg）のD施設において、測定された平均放射能濃度が最も高く（ $1.5 \times 10^{15} \text{ dis/s/m}^3$ ）、かつエアロゾルのamad（空気力学的放射能中央径）が最も小さい（ $0.5 \mu\text{m}$ ）ことがわかる。このサブミクロン領域の粒径のエアロゾルは、気泡破裂のメカニズムでは発生しにくく、溶液蒸発のメカニズムにより発生すると考えられる。このことは、プルトニウム硝酸溶液を沸騰させずに加熱させて静止した表面からのエアロゾル発生量を測定した実験データからも確認される²⁰⁾。

本報告では、再処理施設の高レベル廃液貯槽の冷却能喪失事故を例にとり、スタックから放出された放射性物質による公衆被ばくのリスクを解析するためには、溶液表面から発生するエアロゾル粒子流量、粒径分布等を定めるソースタームモデルとして、サブミクロン領域のエアロゾル粒子の発生を予測する溶液蒸発モデルを無視しえないことを、STARコードによるケーススタディーにより示した。これにより、再処理施設の溶液加熱・沸騰事故の環境安全評価のためには、従来の軽水炉の炉心溶融事故解析に用いられている手法で充分というわけにはいかず、異なる観点から解析モデルを考慮する必要があることがわかった。

Table 4.1 MEAN PLUTONIUM AEROSOL SIZE CHARACTERISTICS^a AND ACTIVITY CONCENTRATIONS

Location	Type	Isotope	amad (μm)	σ_g	Actvity Conc (dis/S/m ³)	
					Mean	Maximum
A	R & D	Both	1.9	2.1	2.0×10^2	8.4×10^2
B	R & D	238	2.9	3.0	2.0×10^3	2.0×10^4
C	Fabri - cation	238	4.1	1.7	1.0×10^3	1.1×10^4
D	Re - covery	239	0.5	3.9	1.5×10^5	4.0×10^5
E	Fabri - cation	239	2.6	2.9	2.7×10^4	4.3×10^5

^a Assuming that particle diameters are log - normally distributed.

(from M. Gonzales, " Performance of Multiple HEPA Filters Against Plutonium Aerosols ".
UC-41 (1976).)

5. おわりに

本報告では第2章において、再処理施設等における溶液加熱・沸騰事故時の安全評価に用いられる、各種のエアロゾル発生に関わる計算モデルを列挙して概要を説明し、実際に解析する場合に便利のように必要な考え方、データを整理して示してある。又、具体的な適用例として高レベル廃液貯槽の冷却能喪失事故をとり上げ、溶液表面から発生するエアロゾル粒子流量に係わるソースタームモデルとして溶液蒸発モデル及び気泡流モデルをとり上げ、公衆被曝リスクの解析という観点から比較評価を行った。従って、本報告書は、この種の解析・評価を実際に行うために役立つものと期待される。

最後に、本報告をまとめるにあたり、多くの方々の御指導、御助言をいただいたことをここに記し、深甚なる感謝の意を表す次第であります。特に、原研燃料安全工学部核燃料施設安全評価研究室、主任研究員西尾軍治氏には、多くの貴重な御助言、御協力を載いたので深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) 野村 靖, "核燃料サイクル施設リスク解析コードSTARの導入と整備,"
JAERI-M 90-158 (1990).
- 2) 高橋幹二, "基礎エアロゾル工学," 養賢堂発行 (1982).
- 3) R.Leicht, H.J.Oorst et. al., "Anwendung der Sicherheitsanalyse auf
Oberirdische Anlagen des Integrierten Entsorgungskonzepts,"
Profedts Sicherheitsstudien Fachband 5, Berlin (1985).
- 4) I.Kataoka and M. Ishii, "Mechanistic Modeling and Correlations for
Pool Entrainment Phenomenon," ANL-83-37 (1983).
- 5) T.Ginsberg, Trans. Am. Nucl. Soc., 39, 654 (1981).
- 6) T.Ginsberg, "Aerosol Generation by Liquid Breakup Resulting from Sparging
of Molten Pools of Corium by Gases Released During Core/Concrete
Interactions," Nuclear Science and Engineering, 89, 36 (1985).
- 7) D.S.Azbel et. al., "Acoustic Resonance Theory for the Rupture of Film
Cap of a Gas Bubble at a Horizontal Gas-Liquid Interface," Two-Phase
Momentum, Heat and Mass Transfer in Chemical Process and Energy
Engineering Systems, Vol.1, Hemisphere Publishing Company (1978).
- 8) Safety Code Analysis Group, "TRAC-PF1/MOD1:An Advanced Best-Estimate
Computer Program for Pressurized Water Reactor Thermal-Hydraulic
Analysis," NUREG/CR-3858 (1986).
- 9) 日本機械学会編「気液二相流技術ハンドブック」(1989).
- 10) R.J.Cipriano and D.C.Blanchard, J. Geophys.Res., 86, C9, 8085 (1981).
- 11) F.H.Garner et al., Trans. Inst. Chem. Eng., 32, 222 (1954).
- 12) M.Tomaides and K.T.Whitby, "Generation of Aerosols by Bursting of
Single Bubbles," Fine Particles, Academic Press Inc., New York (1976).
- 13) Y.Toba, J.Oceanogr. Soc. Japan, 15, 3 (1959).
- 14) A.M.Rozen, et al., Teploenergetica, 23, 11, 59 (1976).
- 15) D.A.Powers, J.A.Brockmann, and A.W.Shiver, "VANESA : A Mechanistic
Model of Radionuclide Release and Aerosol Generation During Core-
Debris Interactions with Concrete," NUREG/CR-4308 (1985).
- 16) TRACYワーキング・グループ, "CRAC実験データのまとめ,"
JAERI-M 89-031 (1989).
- 17) Exxon Nuclear Co., Inc., "Preliminary Safety Analysis Report-Nuclear
Fuel Recovery and Recycling Center," "XN-FR-32, Rev.1 (1977).

- 18) M.Gonzalez, J.C.Edler et.al., "Performance of Multiple HEPA-Filters Against Plutonium Aerosols," LA-6546 (1976).
- 19) A.A.Kirsh, I.B.Steehkina and N.A.Fuchs, "Efficiency of Aerosol Filters Made of Ultrafine Polydisperse Fibers," Aerosol Science, 6, 119 (1975).
- 20) J.Mishima et. al., "Plutonium Release Studies IV, Fractional Release from Heating Plutonium Nitrate solutions in a Flowing Air Stream," BNWL-931 (1968).