

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。 2001. 6. 20

[技術情報室]

液体供給セラミックメルターによる 高レベル廃液ガラス固化プロセスの安全性評価

(PNL-3493, Aug.1980, の翻訳)

1981年11月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001

配布限定
SN851-81-01
1981年11月



液体供給セラミックメルターによる
高レベル廃液ガラス固化プロセスの安全性評価

(PNL - 3493, Aug. 1980, の翻訳)

技術部廃棄物処理開発室

岡本 弘信

倉重 哲雄

財津 知久

福留 豊

黄田 知仁

要 旨

使用済燃料再処理によって得られる高レベル廃液のガラス固化パイロットプラントの基本設計を今年度進めており、来年度以降の詳細設計の方針確立を目標として信頼性及び安全性の高いプロセスのシステム化を図っている。現在、動燃事業団が開発を進めているガラス固化プロセスと同じもの (Liquid-Fed Ceramic Melter Process) について、その安全性を評価した文献 "Safety Assessment of the Liquid-Fed Ceramic Melter Process, PNL-3493, Aug. 1980, by J. L. Buelt & W. L. Partain" が公表されたので、プラント設計担当者のみならずプロセス技術開発担当者並びにそれらの関係者に有用であると考えここに訳出した。

要 約 と 結 論

高レベル廃棄物の固化のための開発計画の一部として、パシフィック・ノースウエスト・ラボラトリーアは、液体そのものを供給するセラミックメルター（Liquid-Fed Ceramic Melter, LFCM）プロセスに対する安全性の問題を評価した。このLFCMプロセスは商業用のガラス製造技術の応用であり、核燃料サイクルから出る高レベルの液体廃棄物を、ガラスに交換するために開発されているものである。この安全性評価は、LFCMプロセスに関する未解決のまたは重要な安全性上の問題は何も明らかにしていない。この評価においてはLFCMプロセスは、その他の固化プロセスと直接には比較されていないが、LFCMの安全上の危険性は、その他の固化プロセスの場合と似たようなものである。LFCMにおけるガラスの高い処理温度は余分な安全上の配慮を必要とするものではなく、また、乾燥した廃棄物（仮焼体）の散逸する量は小さなものである。

高レベル廃液は、政府の軍用プラント、または、原子力発電所のための使用済燃料再処理施設から来る。この安全性評価は、原子炉廃棄物のフローシートに基いたものである。それは原子炉廃棄物が軍用廃棄物よりも固化処理時放射性が高く、また原子炉廃棄物に対するすべての事故状況が、軍用廃棄物に対する場合に比べてより大きな放射線上の影響を持っているためである。今回の評価のベースとした原子炉廃棄物のフローシートは、 $5 - \text{MTU}/\text{d}$ の再処理施設から発生する廃棄物を固化するように設計されている。高レベル廃棄物は、 7 M の最大濃度を持っており、また高レベルと中レベルの混合廃液に対する処理速度は $138 \text{ l}/\text{h}$ ($662 \text{ l}/\text{MTU}$ と仮定して) である。

可能な非定常状況と機器の故障についての徹底したリスト(exhaustive list)を作成した。次に、これらの事故を結果の重大さと、事故のタイプに従って分類した。事故の重大さ(小さな、中程度のまたは重大な)は、放射能放出に対する潜在性と機器損傷の程度によって決定した。事故のタイプは、液体廃棄物のこぼれ、溶融ガラスの飛散、プロセスの加圧、オフガス系構成部分の故障及びプロセスセルの損傷によって評価した。

放射性核種のスタックへの放出は、プロセス及び施設の保有能力と除染効率の面について慎重な仮定を行ない、各グループの事故に対して計算した。最大事故は設計ベースの竜巻であることが判明したが、これは、施設内のすべての高性能微粒子エアフィルターを破裂させるものと仮定したものである。竜巻によって引き起される減圧は約 44 g の微粒子(105 Ci)をプラントのスタックから放出させることになる。仮定したサイト条件に単純な吸入線量計算をすると、この設計ベースの竜巻は、サイト境界において一個人だけの被曝に起因して、50年間の全身被曝線量が 0.58 レム になる。このサイト境界線量の重大性を判定する確実な指針はないが、原子炉サイト

の規則（原子力規制委員会原子炉サイト基準 1979）と比較することができる。この規則によれば、設計ベースの事故によって25レム以上の全身被曝線量にならないように原子炉を設置すべきだとしている。

プロセス設計者の考慮すべき2つの勧告がこの安全性評価で与えられている。第一にこの評価は、放射性核種放出に対する障壁としてセルの高性能微粒子エアフィルターの重要性を指摘している。従って、プロセスセル設計者は固化プラントを設計する場合容易な保守は勿論、フィルター保護を考慮すべきである。第2にフィルターとダクト系を通る時の揮発ルテニウムの挙動が不確定なため、この評価ではセル空気中に揮発した後のルテニウムの除染効率を期待しないものとした。将来、この仮定の正しさが示された場合には、煙突でのルテニウムの捕集が考慮されるべきである。

謝 辞

それぞれの経験分野について、この安全性評価を検討してくれた次の人々に感謝する。

- W. J. Bjorklund 軍用廃棄物固化の開発と放射性ガラス固化の経験
- W. F. Bonner 放射性廃棄物処理技術
- R. A. Brouns 液体供給セラミックメルター技術
- C. L. Brown 臨界解析
- L. K. Holton 固化プロセス安全性検討と放射性ガラス固化経験
- D. E. Larson プログラム管理検討と原子炉廃棄物固化技術
- M. S. Hanson オフガス処理と放射性ガラス固化経験
- J. K. Soldat 生態科学／環境解析
- D. L. Strenge 生態科学／環境解析

目 次

(頁)

要 旨	1
要約と結論	III
謝 辞	V
1 序 論	1
2 プロセスと施設の説明	2
2.1 供給系	2
2.2 液体供給セラミックメルター	4
2.2.1 耐火材質	6
2.2.2 電極と電力系	6
2.2.3 封じ込めボックス	7
2.2.4 流出制御	7
2.2.5 計 装	7
2.3 オフガス系	8
2.4 プロセスセル	8
3 フローシート	11
3.1 原子炉廃棄物フローシート	11
3.2 軍用廃棄物フローシート	16
4 安全性評価方法論	18
5 事故の定義と分類	19
6 事故グループ毎の放射性核種放出	41
6.1 放射性核種放出解析のため的一般仮定	41
6.2 放出事象解析	44
6.2.1 液体を伴なう小さな事故	44
6.2.2 液体を伴なう中程度の事故	44
6.2.3 液体を伴なう重大な事故	45
6.2.4 ガラスを伴なう小さな事故	46
6.2.5 ガラスを伴なう中程度の事故	46
6.2.6 ガラスを伴なう重大な事故	47
6.2.7 プロセス加圧に帰因する小さな事故	47
6.2.8 プロセス加圧に帰因する中程度の事故	48
6.2.9 プロセス加圧に帰因する重大な事故	48

6.2.10 オフガス系における小さな事故	49
6.2.11 オフガス系における中程度の事故	50
6.2.12 オフガス系における重大な事故	50
6.2.13 プロセスセルに影響を与える小さな事故	50
6.2.14 プロセスセルに影響を与える中程度の事故	51
6.2.15 プロセスセルに影響を与える重大な事故	51
事故分類別：放射性物質放出状能一覧	53
結論	55
文献	57
付録A … 蒸気爆発	59
付録B … 安全性評価で使った液体供給セラミックメルタープロセス	65
付録C … 高レベル廃液中の放射性核種の放射能	81
付録D … ジュール加熱メルターの臨界解析	91

図

(頁)

1 液体供給セラミックメルター固化プロセス	3
2 液体供給セラミックメルターの作動	5
3 液体供給セラミックメルター	6
4 換気系におけるHEPAフィルターの位置	10

表

1 プロセスセルの概念仕様	9
2 原子炉廃棄物フィード液の特性	13
3 原子炉廃棄物ガラスの組成	15
4 軍用高レベル廃液の組成とフィード割合	17
5 小さな事故と非定常状況	21
6 中程度の事故	33
7 重大な事故	37
8 小さな事故における放射能放出	
9 中程度の事故における放射能放出	
10 重大な事故における放射能放出	

1. 序論

パシフィック、ノースウエスト、ラボラトリ（PNL）は、アメリカ合衆国エネルギー省（DOE）のために廃棄物固化プラントで使用するための液体供給セラミックメルター（LFCM）プロセスを開発している。このLFCM 固化プロセスは、高レベル廃液(High-Level Lipuid Waste, HLLW)を一回の連続ステップでガラスに変えることを意図している。

このLFCM プロセスの最終製品は、化学的に、また放射線的に安定したガラスである（Ross et al, 1979）。研究は、1973年に PNL でジュール加熱セラミックメルターについて開始され、1976年には、ジュール加熱メルターへ直接液体廃棄物を供給するプロセスが、パイロット規模で開始された（Buelt and Chapman 1979）。それ以来政府の軍用施設から出る軍用廃棄物と原子力発電所から出る原子炉廃棄物の双方について模擬し、この種のメルターによるパイロット及び実規模の試験を行ってきた。

PNLはLFCMプロセス開発を助けるためにこの安全性評価を実施した。一般的なLFCMプロセスのために非定常状況と機器の故障を仮定し、その結果としての機器の損傷と放射能の放出を算定した。更に結果の解釈を助けるための単純化された吸入被曝モデルを使用し、各事故グループ毎のサイト境界線量を計算した。実際の廃棄物固化施設の設計者は、この評価を使用して機器、運転及び放射性核種障壁に対する信頼性基準の設定に役立たせることができ、また予想される非定常状況の発生を許容できるぎりぎりまで減少し出費効果を最大にすることができる。

この安全性評価には、LFCMプロセスの開発にたずさわってきた研究者の知識と経験が反映されている。これはLFCMプロセス を他の固化プロセスと比較するものではなく、LFCM 独自の面に集中している。メルターと密接な相互関係を持っている給液系、オフガス系及びプロセス、セルのような複合システムを伴なっている。最後に軍用廃棄物は原子炉廃棄物よりも希薄で、その放射能は長い貯蔵期間中に減衰しているので原子炉廃棄物に伴なう事故の放射線上の結果は、軍用廃棄物に伴なう事故の場合よりも重大です。従って最悪の事故を評価するためこの安全性評価においてはより放射性の高い商用原子炉廃棄物に基いて放射線上の計算を行っている。

2. プロセスと施設の説明

LFCMガラス固化施設は、軍用廃棄物または原子炉廃棄物のいずれに対してもまだ存在していないので、一般的なLFCMプロセスと施設を記述する必要がある。双方の廃棄物のフローシートは、プロセスと機器に対して類似した要件を持っている。これらのフローシートの主要な相違点は、供給廃液の組成、濃度、放射能と酸性度ガラスの組成、オフガスの特性及び必要処理速度である。これらの相違点はプロセス設計には、それ程の影響を与えないで一つの基本プロセスと、一つの施設だけを双方のフローシート用として記述している。実際の固化プラントでは、そのプラント特有の要求を満たすためにこの一般的なプロセス及び施設とは違ったものになる。

図1に示されている一般的なLFCMプロセスは、液体ゼロ放出の考え方に基く。このプロセスは、以下より成立っている。

- ・ 供給系；これによって高レベル廃棄物を受入れ、調整及び計量後ガラス固化装置へ送る。
- ・ ガラス固化装置；これには、セラミックメルター、受入れキャニスター、キャニスター交換及びハンドリング機器を伴なう。
- ・ オフガス系；これは放射性核種または化学的に有毒な廃液を処理して、これらの放出を規制している規則に適合させるためのものである。

以下のLFCMプロセスの記述は、PNLにおいて多くの人手と年月をかけた経験に基くもので、これには、14000Lを越える、非放射性の模擬HLLW（高レベル廃液）の固化を含んでいる。開発作業は依然として続いている、処理能力の向上、メルター能力の増大、エアロゾル移行の制御、ルテニウム揮発の制御、及び安全と運転の計画のような分野において設計の改良が行われている。しかし、ここでの安全性評価は実験的にまだ証明されていない設計面については、保証を得ていない。

2.1 供 給 系

高レベルと中レベルの廃液は、この供給系（図1を参照）を通じて、固化プラントへ導入される。供給系の第1段階はフィード準備タンクで、これには廃棄物を遠隔モニターし、その特性を明らかにするための機器が装備されている。同時に廃棄物を攪拌するための装置と、廃棄物の温度を制御するための水冷及びスチーム加熱コイルを有する。適量のガラス素材成形剤を供給液がフィールド準備タンクの中にある間に添加する。スチームコイルは、フィードを90°Cまで予熱するために使用される。これは、メルター内でのスチーム爆発の可能性を完全に除去するための予防措置である。（スチーム爆発については、付録Aで詳細に述べる。）品質保証及びプロセス制御措置として、この準備タンクからのフィードは、フィードタンクへ移される

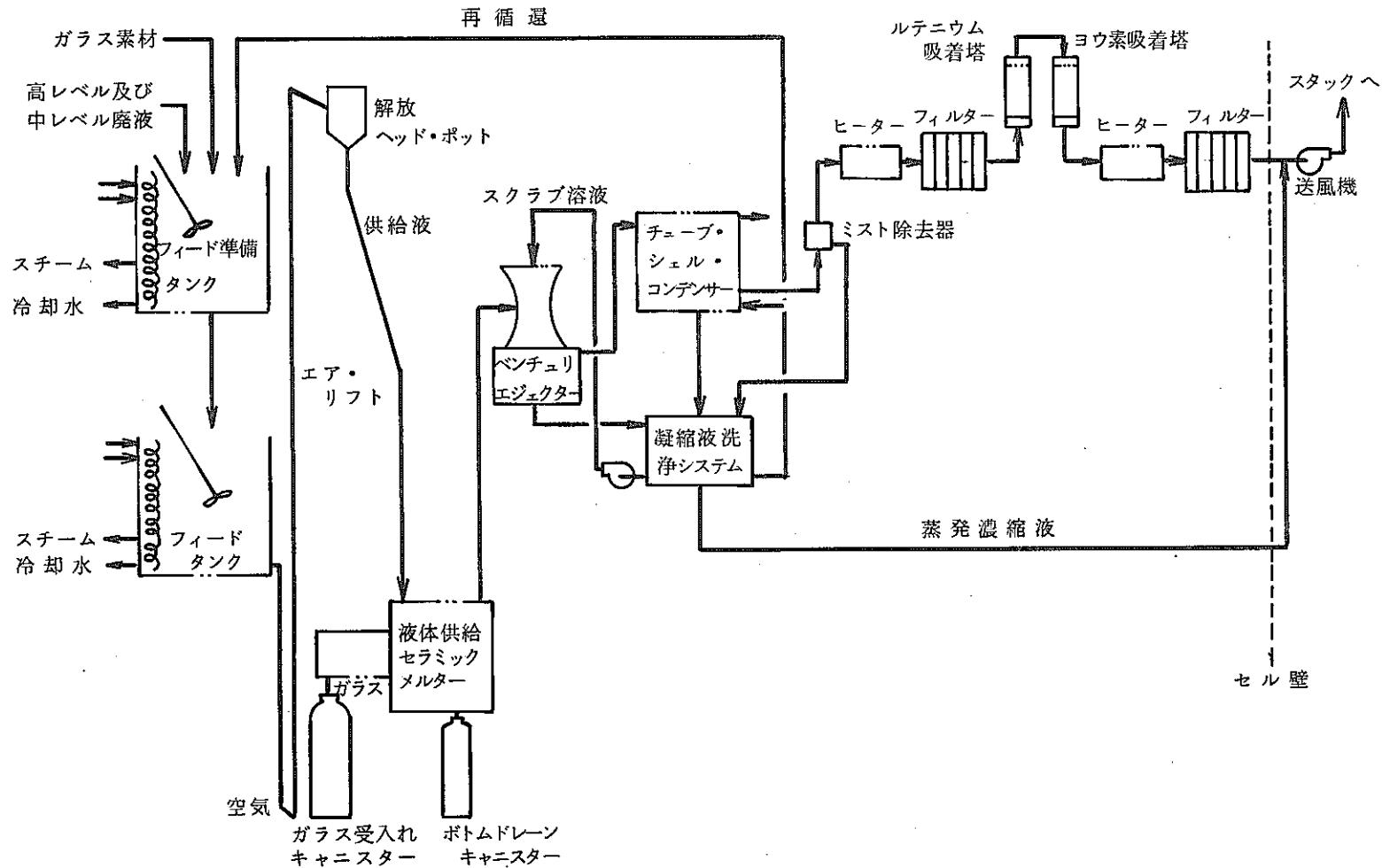


図1 液体供給セラミックメルター固化プロセス

前にサンプリングする。

フィード準備タンクからのフィードは調整され、シフト毎に1度フィードタンクへと移される。このフィールドタンクには、温度制御用の水冷及びスチーム加熱コイルが装備されている。これは、また固体を懸濁状態にしておくために攪拌され、タンクのレベルと溶液の温度をモニターする器具を有している。HL LWは計量され、フィードタンクから、エアリフトによってLFCMへ供給される。U字管の長い方の側にエアを注入し、U字管の両側に密度の差を作り出すことによってエア・リフトは作動する。これによって必要量の液体を、ヘッド、ポットへと移す。ここで、空気と廃液を分離し、廃液は水冷したノズルを通ってメルターへ流れ、空気はオフガス系へ抜け出す。

2.2 液体供給セラミックメルター

この安全性評価の対象としたLFCMは、過去3年間PNLで非放射性の模擬廃棄物を使って開発してきたものと類似している(Buelt and Chapman 1978)。このメルターは、ガラス産業における商業用電気炉と同じ基本原理に基いて作動する。溶融したガラスは、ガラス接触耐火材及びそのバックアップ材そして断熱耐火材で囲まれたキャビティ内に入れられる。キャビティの両端にある電極の間に交流を通してこのガラスをジュール加熱する。予めガラス素材と混合した廃液を図2に示すように、メルターへ給送するに従って熱は流動する仮焼体の表層を通じて、溶融したガラスから、液体プールへと移る。この流動する表層は物理的に安定しているので、LFCMは一層の安全特性を持つことになり、飛散する仮焼体の量が少くなる。運転を続行するにつれて流動する表層の仮焼によって作り出される分解ガスと水和水は、表層と液体プールを通って抜け出る。これらのガスが表層を押し通る時には溶融ガラスが液体プールと接触することがある。その結果熱移行が増大しオフガス流量が2.3秒間で通常の3倍にも急増する。しかし、オフガス系はこのような急増に適応するようなサイズに作られている。乾いた表層が加熱されるに従って、それは、ガラス素材と溶融し始め、ガラスと共に溶融液の中に入り込む。この時点を過ぎると、ガラスはあふれドレーン系統を通じて流れ受けキャニスターに入る。メルターが作動している時には、メルター内のガラスの代表的な温度は、1200°C(電極で1050°C)である。このような高温運転についての安全性上の関心事はガラスがこぼれている間の揮発性放射性核種の放出である。

しかし、これは放射性核種の放出に寄与する主要な要因ではないことをこのリポートの後の章で示している。液体プール上霧囲気の安定状態温度は、溶融したガラス表面にあふれている程度と上部ヒーターによって供給される熱量による。温度は200°Cから400°Cの間である。

(訳者注；上部ヒータを作動させなくても実際にはこの程度の温度になる)

図3は、LFCMを構成している基本部分を示している。

- 耐火材……これは一次及び二次れんが層によって溶融ガラスを封じ込め、ガラスとその周

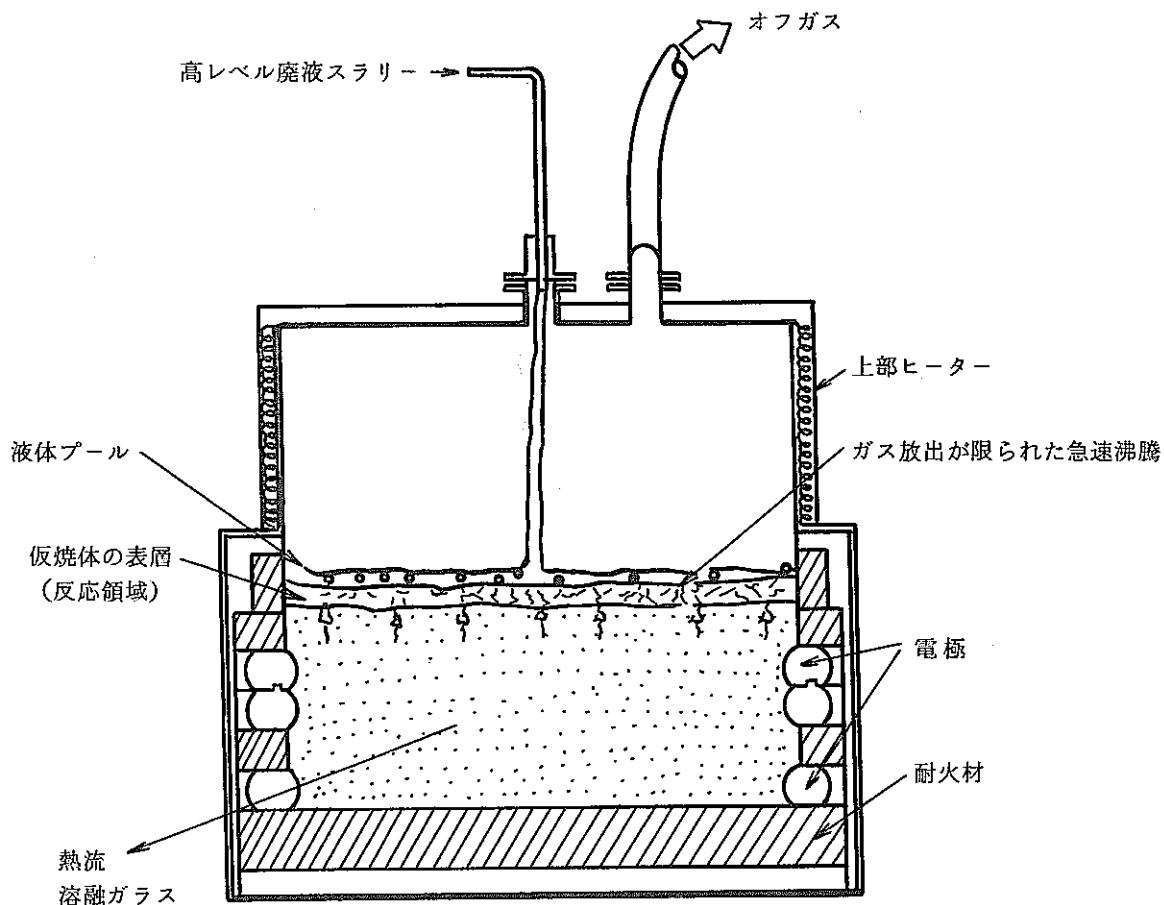


図2 液体供給メルターの作動

辺との間の熱的電気的絶縁を果す。

- 電極と動力系……溶融を維持するために必要な動力を制御し、提供する。
- 封じ込めボックス……耐火材と電極を支持し、廃ガス等を封じ込め、耐火材のバックアップとして溶融ガラス封じ込めの役目を果す。
- 一次ドレーン系……（普通、オーバーフロー方式として知られている）メルターの底部から、ガラス流出作業用のオーバーフロー系へ溶融ガラスを流す。
- 底部ドレーン……予定された、また緊急時の運転閉鎖のため LFCMの完全な抜出し備えたものである。
- 計装系……温度、電気的特性、冷却水の流れを監視し制御する。また工学的保護系に対する信号を出す。

上記の各構成機器は、運転の信頼度と安全性を向上させるために開発期間中に改善されてきた。次に、各々について詳細に述べる。

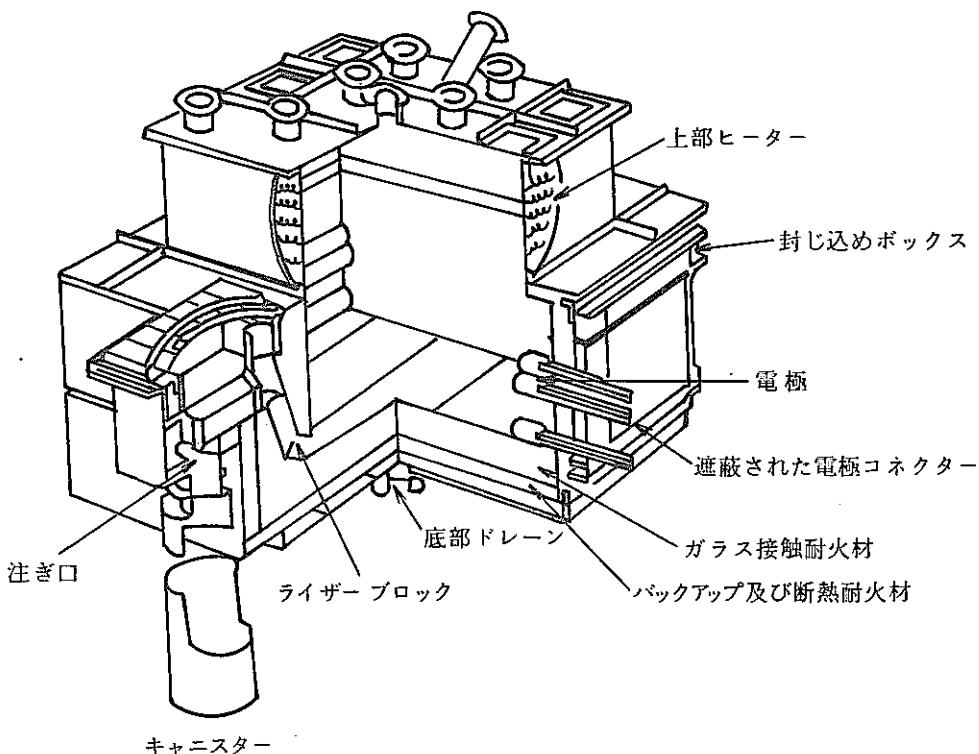


図3 液体供給セラミック メルター

2.2.1 耐火材

耐火材は、3層の複合材料で構成されている。第1層はガラス接触耐火材で、これは非常に密度が高く、溶融成形された物質(電鋸れんが)である。ガラス接触耐火材の直ぐ後に、高アルミナの成形耐火材があり、これは追加の断熱と、2次的ガラス封じ込めのために使用される。この層の後には非常に多孔質で、断熱性の高い耐火材がある。ガラス接触耐火材によって囲まれるメルターの内部寸法は、86.4cm(34")幅、122.0cm(48")長さ、66.0cm(26")高さである；通常のガラスの深さは48.3cm(19")である。

2.2.2 電極と動力系

電極はニッケル、クローム合金である。2組の独立して制御される電極が溶融域の向い合った壁に直接埋め込まれている。この2点配置は溶融域で、ガラスの温度を垂直方向に制御するために設計されている。これらの電極は、絶縁変圧器で動力制御系に接続されており、メルターの電気回路は、地面から絶縁されている。動力制御系は、ガラスがオーバーヒートした場合に追加の電力が負荷されないように定電流で作動しており、定電圧制御の場合も同じである。絶縁した電線と電極コネクターを除き、この動力制御系はプロセスセル外に設

置されている。プロセス外の動力制御系の保守によって生ずる事故については、この安全性評価では触れていない。

2.2.3 封じ込めボックス

ステンレススチール製の封じ込めボックスが耐火材と電極を適切な位置に保持し、僅かにマイナスのゲージ圧 (-2.5 kPa; -10" 水) で廃ガス等を封じ込んでいる。このボックスは本体と上部の、2つの部分に別れている。ガラスレベル以下の耐火材を包む本体は、電極の温度とオーバフロー ドレーンの特定の個所を制御するための水冷及び空冷のコイルを有している。これらのコイルは、故障が起きても冷却媒体が溶融ガラスに接触しないように設計されている。上部は、ガラスレベル上の空間を取り囲んでおり、エアゾール分離のためのヘッドスペースを提供している。この上部は同時に絶縁体に埋め込まれた電気抵抗ヒーターを取り囲んでいる。これらのヒーターは、LFCMの能力を増大させるためにガラスの表面に対して余分の熱を提供している。この封じ込めボックスは長さ 1.9 m, 幅 1.6 m, 高さ 1.5 m である。オフガス系の能力を越えるスチームを突発させるような工程上の混乱が生じた場合には、プロセスセルへの圧力解放孔によって封じ込めボックスの健全性を保護する。

2.2.4 流出制御

1 次ドレーン制御系は、溶融域の底部から、ライザーブロックと称する耐火構造のトンネルを上りオーバフロー系を通じて、キャニスターへ溶融ガラスを注入する。ガラスの流量はエアリフト原理によって制御される。即ち、ライザーブロック内のプラチナ管が空気を吹き込み、これによってガラスは、オーバーフロー系へと上昇する。オーバーフロー系は十分に断熱されており、防護壁の後に据付けた電気ヒーターによって加熱される。

フリーズバルブを使用している底部ドレーンは予定された、または緊急時の停止の場合に、溶融ガラスを抜き出すためのもので 1 つの安全対策である。フリーズバルブへの空気流量を減少させ、電気抵抗ヒーターで加熱することによって、固っていたガラスのプラグは軟化し、メルター内のガラスを底部ドレーン用キャニスター内へ制御しながら抜き出す。

2.2.5 計装系

このメルターは、熱電対、動力系モニター、液体流量計及びメルター上部空間の負圧監視のための気圧変換器で、完全に装備されている。計装系は、保護警報装置と自動停止装置に結び付いている。保護装置には次のものを含む。

- メルターの加圧または電源故障時の自動給液停止
- 電極間の電気抵抗が例えば、かなりな泡立ちあるいは再沸騰 (Pye 1979) 中に、規定範囲を越えて急激に上昇した場合の自動電源停止スイッチと警報装置

- ガラス、電極封じ込めボックス及びオーバーフロ系における温度警報装置
- ロードセル及びキャニスターの注入口温度によって指示されるような受入れキャニスターの高充填警報装置

2.3 オフガス系

ガラス溶融工程からのオフガスは、オフガス系で凝縮され除染される (Hanson and Kaser 1976)。この系統の容積と、除染能力は通常の運転及び大抵の非定常状況に対する規制限度以上である。オフガスは主としてスチーム、空気、分解ガス、エアゾール及び揮発性の放射性核種によって構成されている。

これらの成分の量は、プロセスフローシートによって左右されるが、内部洩れに基因する空気流量は、代表的には、 $0.57 \text{ m}^3/\text{min}$ (20 scfm) で、エアゾールの移行量は、代表的には原料廃棄物の 0.5 wt % である (Buelt and Chapman, 1979)。

メルターのオフガスは最初、ベンチュリ排出管へ進む。メルターの近くにあるベンチュリ管は、この微粒子の大半を除去し、ほとんどすべてのスチームを凝縮させる。ガス成分が凝縮物と分離された後、tube-and-shell コンデンサーは、最後の凝縮可能物を除去し、小さな粒子に対して高い除染係数 (DF) を与える。これは同時にベンチュリ管の故障時または他の非定常状況が発生した場合に、バックアップ能力を発揮する。

ベンチュリ排出管と、tube-and-shell コンデンサーによって洗浄及び凝縮された液は、凝縮液洗浄ループとしての役目を果す一連の蒸発缶とコンデンサーの中で除染される。このループからの蒸発残査は、HLLW 供給系へ再循還し、一方除染された凝縮液は、プラントのスタックを通じて蒸発させる。

tube-and-shell コンデンサーで凝縮できないガスは、ミスト除去器を通って一連の高性能微粒子空気 (HEPA) フィルター、湿度制御ヒーター及びルテニウムとヨウド吸着塔へ流れる。ここからは、送風機によって除染された非凝縮成分は、プラント換気系へと移行し、プロセスセル換気空気と混合後、プラントのスタックを通して大気中に放出される。

2.4 プロセスセル

LFCM プロセスのセルは、原子力規制委員会 (NRC) のガイドラインによって定義されている第一級安全境界としての役目を果し、従事者に対して第一次の遮蔽を与えていた。このリポートでは特定のセル設計を勧告してはいないが、換気系を持つセルについての簡単な記述が、この安全性評価にとって必要である。

この安全性評価は、2つの主要なセル (フィードセルと固化処理セル)、それに関連配管区域と作業区域を扱っている。全てのセル区域は制御された換気系を有する運転区域内にある。各一次セル内の機器とセルの大体の寸法を表1に示す。この安全性評価のためには、実際の

セル内機器レイアウトを決定する必要はない。

この事故解析のために想定されるセルの安全面は下記の通りである。セル内の勾配をつけたステンレススチールライニングのフロアが液体とガラスのこぼれを閉じ込める。セル及び一次電線絶縁物内には、僅か2,3の可燃性品目があるだけであるが消防系が装備されている。水、空気及び蒸気設備は熱交換器を内蔵しており、または、さもなければ事故中にサービスラインに入り込む汚染物を閉じ込める。このセルはまた鉛ガラス覗き窓、高架クレーン及び機器搬入ハッチを持っている。

表1 プロセス概念設計仕様書

セルの名称	概算寸法	主要機
フィードセル	4.9m×7.3m ×6.1m高さ	フィード、タンク(～1200L) 2ヶ 移送ポンプ、2ヶ 高架クレーン、1ヶ
固化処理セル	4.9m×7.3m ×15.7m高さ	フィード、エアリフト(～150L/h), 1ヶ ジュール加熱ガラス、メルター(～500L) 1ヶ 充填用キャニスター(～100L), 1ヶ 待機キャニスター、5ヶ ベンチュリ排出管タンク(～3000L), 1ヶ コンデンサー、1ヶ 凝縮液洗浄系(蒸発缶とコンデンサー), 1ヶ、ルテニウム吸着塔 1ヶ ヨウド吸着塔、1ヶ 高架クレーン、1ヶ

大きなセル構造また廃液ゼロリリース原理のため、セル換気とプロセスオフガスを合せもつ換気系統は、放射性核種を環境へ放出する主要通路である。プレフィルターとHEPAフィルターは放射性核種のこの通路を通って放射性核種を放出するのに対する重要な防護装置である。但し、この評価では、プレフィルターによる除染効果は期待していない。想定される換気系レイアウトを図4に示す。HEPAフィルターに対する除染係数(DF)も図4に示した。

HEPAフィルターに対する余分な保護を、プレフィルターと共に提供する迅速作動換気ダンパーとか衝撃波防止装置のような工学的防護装置は示していない。

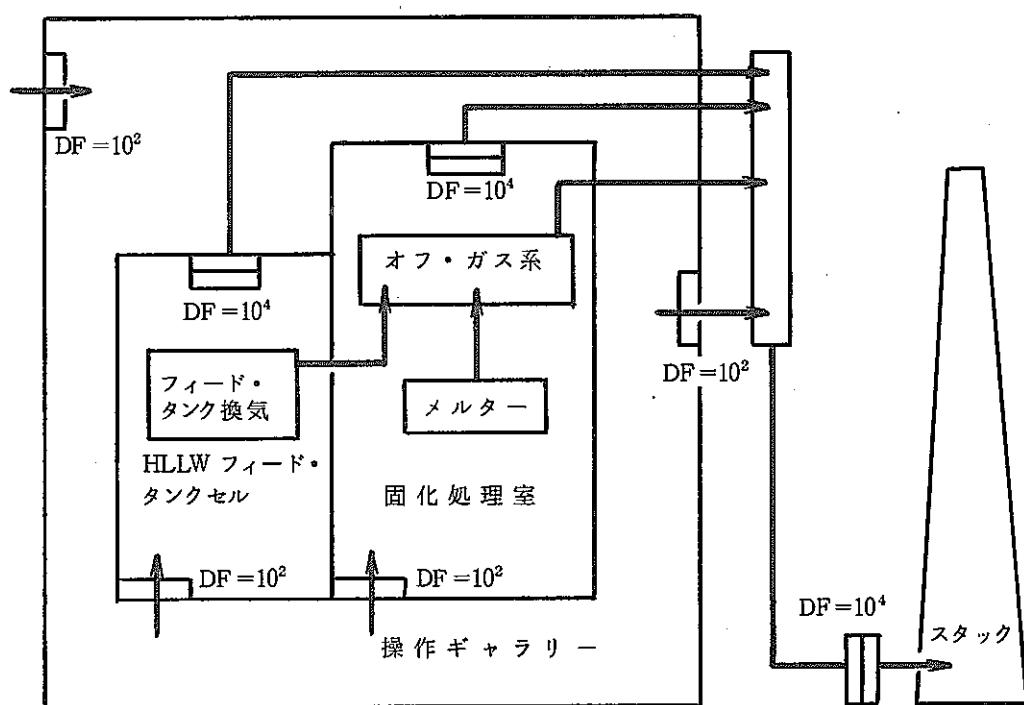


図4 換気系内のHEPAフィルターの位置

3. フ ロ ー シ ー ト

この安全性評価を実施するためには、プロセスフローシートを仮定しなければならなかった。軍用及び原子炉廃棄物のフローシートを比較することによって、軍用廃棄物が原子炉廃棄物よりも、危険性が少いことを示した。軍用廃棄物は、原子炉廃棄物よりも、7倍も放射能が少く、ルテニウム濃度（非定常状況での主要な放出源）は、かなり低くなる。更に、液体及びオフガスの流速と、殆どの機器の能力は、軍用廃棄物では低くなっている。軍用廃棄物の場合、危険性が少なく、原子炉廃棄物に伴なう事故よりも重大な結果を持たらすものは見つからなかった。従って、単純化するために、この安全性評価では、原子炉廃棄物フローシートだけを取り扱った。

軍用廃棄物と原子炉廃棄物のフローシートは極めて類似しているので、この評価方法は正当化される。軍用廃棄物のフローシートにとって独特であると認められた唯一の事故は、長寿命のI-129を含むヨウ化第2水銀の濃縮物の放出であった。しかし、このような放出の事故の影響は、この安全性評価において計算されたその他の放出事故に比較すれば、小さなものである。それは、I-129が低い比重を持っている、と言う事実に起因するものである。水銀蒸気放出の危険性は、その化学的毒性が、他の事故の放射線学的危険に近いものかどうかを決定するための予備分析でも考慮された。幾つかの産業に対する環境保護局(EPA)の大気放出基準(National Emission Standards for Mercury, 1979)は、通常の運転に対しては、24時間に亘って、2,3 kgまでの水銀が放出されることを許容している。従って、事故中に、水銀が重大となるにはそれがEPA基準よりも大きな等級の量でなければならない。

この章では、原子炉廃棄物と軍用廃棄物のフローシートの双方を簡単に要約している。軍用廃棄物のフローシートは、主として、比較のために含まれている。この安全性評価の基礎になっている特定の原子炉廃棄物についての、より詳細な情報に関しては付録Bを参照して下さい。

3.1 原子炉廃棄物フローシート

参考原子炉廃棄物フローシートは、3年経ったHLLWの固化処理をベースとしている。このHLLWの予想アイソトープ濃度は、下記の発電と照射の履歴を持つ燃料に対するORIGEN(Bell 1973)コードに基くものです：

原子炉タイプ	加圧水原子炉
燃 燃 度	29,000 MWd/MTU
比 出 力	32 MW/MTU
初期濃縮度	2.8 % ^{235}U
原子炉稼動率	80 %

再処理までの冷却期間 3 年

これらの燃料特性は、アライド・ガルフ・ニュークリア・サービス社のための考えられるガラス化施設についての記述において、Hall (1977) が選定したものである。3年経った燃料と言うHall の仮定は：1) 予見できる将来に亘っての十分な古い燃料の供給、2) 古い燃料を処理することの経済的利点、及び、3) 燃料冷却期間の制限の結果としての人口照射設定量の減少によって是認された。

原子炉廃棄物は、使用済燃料の再処理によって作られる。再処理中に、ウラニウム、プルトニウム、ヨードの 99.5 % と、すべてのクリプトン及びトリチュームが抽出されるものと仮定する。この結果得られる HLLW の組成を表 2 に示す。この場合、化学試薬の添加を伴なっている。7 M の硝酸の最高濃度は、プロセス試薬添加とオフガス能力を高く推定していることを反映している。

ガラス固化施設の能力は、 $5 \text{ MTUWE} / \text{d}$ で、年間 300 日、運転する再処理施設に等しいものと仮定する。従って、 $378 \text{ L}/\text{MTUWE}$ の HLLW 濃縮液に対しては、ガラス化施設は $788 \text{ L}/\text{h}$ をガラス固化しなければならない。更に、 $284 \text{ L}/\text{MTUWE}$ の濃度を持つ中レベル廃液 (ILLW) も、 $59.2 \text{ L}/\text{h}$ でガラス固化しなければならない。最後に、凝縮液洗浄ループからの凝縮液の部分が、 $14 \text{ L}/\text{h}$ で、フィード・タンクへ再循還されます。従って、HLLW, ILLW 及び再循還される凝縮液を合せたものは、 $152 \text{ L}/\text{h}$ の割合で処理されなければならない。表 2 は、HLLW, ILLW 及び再循還される凝縮液の成分と、特性を記載している処理ラインと機器それぞれに対する物質及び放射能収支については、付録 B の表 B.1 と B.2 を参照して下さい。表 B.3 には主要な機器を記載しており、また、各機器の目的、サイズ及び作動特性についての簡単な説明を含んでいる。

原子炉廃棄物固化フローシートは、図 1 の一般的フローシートには示されていない、特別な設計上の考慮を幾つか必要とする。これらは供給系におけるフィード脱硝段階と、オフガス系内の NO_x 分解段階である。模擬高レベル廃棄物を使ってのガラス固化実験では、 2 M 以上の酸濃度ではルテニウムの揮発性が高いことを示した (Christian and Pence. 1977; Buelt and Chapman. 1979)。化学量論的な割合の蟻酸を使って、予備タンク内で、フィードを脱硝することにより、ルテニウムの揮発性が 5 % まで減少することを Buelt and Chapman は示した。このフィード前処理段階は、バッチ法で実施し、廃棄物の分析そして蟻酸及びガラス素材の添加を行なう。各バッチは 1 回の 8 時間運転シフト (1200 L) のために必要なフィード量と等量である。分析では、HLLW, ILLW 及び再循還される凝縮液を合せた

- (a) MTUWE …… メトリックトンのウラニウム廃棄物等量で、 1 MTU の燃料から発生する廃棄物と同じ割合である。

表 2 原子力廃棄物フィード溶液の特性

<u>フィード特性</u>	<u>HLLW</u>	<u>ILLW</u>	<u>再循還凝縮液</u>	<u>計</u>
成 分, g/L				
不活性分				
H ⁺	4-7	2.5	4.0	4.97
Na	17.64	6.87
K	0.36	0.14
Cr	0.123	0.0323	0.076
Ni	0.065	0.017	0.07	0.047
Fe	0.458	0.121	0.285
Gd	6.415	33.24
Mn	0.5	0.189
HO ₃ Max	644.0	217.0	248.0	441.0
PO ₄	0.045	23.0	8.98
SO ₄	0.11	0.043
Cl	0.053	0.32	0.164
剪断ファイン	0.66	0.34
H ₂ O min	<u>424.0</u>	<u>844.0</u>	<u>832.0</u>	<u>625.0</u>
計	1141.0	1105.0	1084.0	1121.0

核分裂生成物

Ba	3.5	Negligible	Negligible	1.81
Ce	5.78	Negligible	Negligible	3.0
Cs	6.09	Negligible	Negligible	3.16
La	2.96	Negligible	Negligible	1.53
Nd	9.57	Negligible	Negligible	4.96
Pd	3.2	Negligible	Negligible	1.66
Pr	2.79	Negligible	Negligible	1.45
Rb	0.78	Negligible	Negligible	0.408
Rh	0.90	Negligible	Negligible	0.466
Ru	5.1	Negligible	Negligible	2.64
Sm	2.18	Negligible	Negligible	1.13
Sr	2.04	Negligible	Negligible	1.05
Tc	1.95	Negligible	Negligible	1.02

表 2 (続き)

フィード特性	HLLW	ILLW	再循還凝縮液	計
核分裂生成物 (続き)				
Te	1.32	Negligible	Negligible	0.684
r	1.09	Negligible	Negligible	0.564
Zr	8.58	Negligible	Negligible	4.45
その他	1.35	Negligible	Negligible	0.63
I (0.5 %)	0.003	0.0043	0.0773	0.011
計	59.2	306.2
アクチニド				
U (0.5 %)	12.68	16.91	Negligible	13.22
Np	1.06	Negligible	0.556
Pu (0.5 %)	0.119	0.152	Negligible	0.119
Am	0.645	Negligible	0.338
Cm	0.053	Negligible	0.028
計	14.55	17.07	Negligible	14.2
不溶解性残査	14.55	2.0	8.32
(上記に含まれている成分)				
物理的特性				
最大比重	1.122	1.084	1.166	
ワット／L	7.02	0.012	Negligible	3.64
L／MTHM	3780	2840	67.0	729.0
冷却期間	3.0	3.0	3.0

ものの比重と酸モル度を決定する。次に、硝酸を 0.5 M と同等濃度まで脱硝するために、蟻酸を添加し、オフガス系へ、CO₂, NO_x 及びスチームを放出する。反応速度を制御するため脱硝は 95 °C で行なう (Bradley and Goodlet, 1972)。反応完了後ガラス素材：酸化廃棄物比が 2 : 1 となるようにガラス素材を攪拌されているフィード・タンクに添加する。

原子炉廃棄物フローシートにおいては、硝酸と硝酸塩の分解によるオフガス中に、高濃度の NO_x も含んでいる。NO_x の化学的毒性のため、アンモニアによって窒素と水に分解する NO_x 分解装置によって法定限度以内に、その量を減少しなければならない。アンモニアの必要量は、すべての NO_x が NO₂ であるという仮定に基いている。

原子炉廃棄物フローシートにおけるオフガス除染は、NRC 規制 (Nuclear Regulatory Commission Standards for Protection Against Radiation, 1979) と、EPA 規則 (Environmental Radiation Protection Standards for Nuclear Power Operation 1979) によって定義されている運転限度に基いている。これらについては、付録 C でより詳細に論じている。

この原子炉廃棄物フローシートからの典型的な廃棄物ガラスの成分を表 3 に示す。この場合のメルターは、254 kg のガラス / MTUWE または 847 L のガラス / MTUWE を作る。この廃棄物ガラスは、3.0 の比重と、31.3 W/L の熱発生密度を持つ。

表 3 原子炉廃棄物ガラス成分

成 分	g/L ガラス	kg/MTHM
廃 棄 物		
不活性物	480	40.6
核分裂生成物	377	32.0
アクチニド	143	12.1
小 計	1000	84.7
ガラス素材		
Na ₂ O	240	20.3
K ₂ O	60	5.1
SiO ₂	1060	89.8
B ₂ O ₃	280	23.7
TiO ₂	180	15.2
CaO	60	5.1
CuO	90	7.6
Al ₂ O ₃	30	2.5
小 計	2000	169.3
合 計	3000	254.0

3.2 軍用廃棄物フローシート

この安全性評価のための一般的な軍用廃棄物フローシートは、アメリカ合衆国の国防計画から発生し、5年間冷却した廃棄物に対する代表的なものである。フィードの組成、放射能レベル及び処理速度は、サバンナリヴァー実験所にある軍用廃棄物処理施設のための資料から引用した(Landon 1980)。設計上の処理速度は毎時ガラス 116 kg で、これは、要求される年間平均処理割合より33%多くなっている。17.8-wt %の固体成分(ガラス素材を除く)のためには、高レベル廃棄物は 225 L/h で処理されなければならない。このリポートで記述しているサイズの液体供給メルターによって、この処理速度を達成するために適当な昇熱技術(例えば、上部ヒーター)について考えているが、これはまだ実証されていない。従って、この安全性評価においては、1日当たりの処理速度に適応するために2つのメルターが必要であると仮定した。

1日当たりの処理速度に対応するのに2つのメルターが必要であるため、設計上の処理速度の半分のみを、この安全性評価では考慮している。従って、HLLWは 112 L/h の速度で処理される。原子炉廃棄物フローシートにおけるのと同じように再循環液とフィードの比を仮定すると、再循環液の流速は 10 L/h となる。最後に、 750 kg のガラスフリットを、製造ガラス 1000 kg 每に添加すると仮定し、また、ガラス素材の比重を25と仮定するとガラス素材に伴なう量的増加は 162 L/h となる。従って、全処理速度は 138 L/h となり、原子炉廃棄物フローシートにおいて推定された処理速度(152 L/h)より小さい。軍用廃棄物を固化処理施設で処理する場合の、その成分と供給速度を表4に示す。

2つのメルターを使うと言う控え目の仮定に加え、この安全性評価では、軍用高レベル廃棄物の冷却期間を僅か5年と仮定しているが、これは、我国で貯蔵されている軍用廃棄物の実際の期間よりかなり短い。5年間経過した廃棄物の放射性核種の放射能は 113 Ci/L であるが、これは、原子炉廃棄物の 780 Ci/L のレベルよりも、かなり低い。付録BはLFCMプロセスのための、より詳細な軍用廃棄物フローシートを示している。

表 4 高レベル軍用廃棄物フィード成分と供給速度

成 分	HLLW 供給速度 kg/h ^(a)
H ₂ O	104
NaNO ₃	0.0918
NaNO ₂	0.0345
NaAlO ₂	0.0368
NaOH	0.208
Na ₂ CO ₃	0.0150
Na ₂ SO ₄	0.0195 9.59×10^{-4}
Na-EDTA	1.11
FeOH ₃	9.18
Al(OH) ₃	2.12
MnO ₂	1.97
UO ₂ (OH) ₂	0.686
Ni(OH) ₂	1.04
CaCO ₃	0.900
Hg(OH) ₂	0.325
HgI ₂	0.914
その他の固体	1.75
ゼオライト	1.51
SiO ₂	0.455
全部の塩と固体	224

(a) 平均流量

4. 安全性評価方法論

この安全性評価で使われる方法論は、一般的 LFCM ガラス固化プロセスに特有の、一切の非定常及び事故の条件を定義し、これらの事故の結果を決定することであった。これらの結果は、すべての事故に対して定性的に記述しているが、代表的な事故については放射能の放出と言う観点で定量的に分析している。

この評価の範囲を簡単にするため幾つかの仮定をした。第一に、この安全性評価は、関連する他のプロセス及び施設からは独立した HLLW 固化プロセス及びプロセスセルについてのものである。しかし、軍用廃棄物の場合には、または商業用再処理が再開される場合には、固化プロセスは使用済燃料貯蔵、使用済燃料再処理、HLLW 貯蔵、HLLW 固化及び廃棄物キャニスター貯蔵から成る大規模な運転の一部になる。固化処理以外のプロセスの多くは、より大量の廃棄物在庫を持つので、施設全体の安全性解析によると最も重大な設計ベースでの事故は、固化処理以外のプロセスから生じる。

単純化するための第二の仮定としては、事故を予測及び解析する場合に、軍用廃棄物のフローシートを無視する。前章で論じたように、軍用廃棄物は比較的放射能が低いため、軍用廃棄物に対する非定常状況の結果は、すべての場合原子炉廃棄物の場合に比べて重大性が低いと判断された。更に、軍用廃棄物に対して水銀の放出以外で、異った非定常状況は認められず、また軍用廃棄物固化処理中に発生する水銀を短期間に放出することは些細な結果を持たらす。

原子炉廃棄物フローシートにおける事故は、放射性核種の放出と機器損傷の程度の見地から結果の重要度（小さな、中程度の、または重大な）に従って分類している。事故の確率を求めることはせず、事故が比較的頻繁であるか、そうでないか、または滅多にありそうもない出来事であるかどうかを調べた。

事故は更に、そのタイプによってグループ分類した。次に、各サブグループの代表的な事故に対する放出状況について推算した。各グループにおける最大の放射性核種放出に起因する事故に対する放射性核種起因事象は、決定起因事象（bounding source term）として知られており、そのグループにおけるすべての事故を反映するように慎重に仮定する。原子炉の安全性解析の原理を順守する上で、一つの工学的保護装置では、重大な事故には対処できないと仮定する。しかし一つの利用できない工学的保護装置によるすべての組合せは考慮しなかった。決定起因事象はスタックからの放射性核種放出の結果をサイト境界線量にて解析するのに使った。この方法は非常に慎重であるから、殆どの事故に対する結果と放射性核種放出は、解析のために選定されたものよりは小さい。

5. 事故の定義と分類

事故は、次の3つのカテゴリーに分類した：

1. 小さな事故または非定常状況……比較的頻繁で、かつ迅速に回復できるプロセス故障で、少ない放射性核種放出の潜在性を伴うもの；
2. 中程度の事故……施設の外部に幾らかの放射線を放出すること、または相当の修復時間を要する機器の損傷に潜在的に帰因する頻繁ではない出来事；
3. 重大な、または設計ベースでの事故……滅多に起りそうもない出来事で、重大な放射線の放出または主要機器の損傷の潜在性を伴うもの；

これらの事故は、放射性放出物を封じ込める役目を有する工学的安全面の限界に近付くものである。この結果放出物は、Nuclear Regulatory Commission Reactor site Criteria 1979 のガイドライン被曝限界に近いものとなる。

先に述べたように、小さな、中程度の及び重大なカテゴリーの事故は、そのタイプによって更に小類し、サブグループ毎における最悪のケースの事故について放射性核種の放出量を解析することができる。サブグループは次のものである。

- プロセス機器からセルへの廃液を放出すること、または、こぼれることを特徴とする事故
- 溶融ガラスのセルへの放出を特徴とする事故
- プロセスの加圧と、プロセスガスのセル内への放出を特徴とする事故
- 通常よりは高いスタックからの放出をもたらすオフガス系構成機器の故障を特徴とする事故
- 換気HEPA フィルターの故障のようなプロセスセルの損傷を特徴とする事故

この章の中の諸表は、原子炉廃棄物フローシート事故、その原因と結果、及びその結果を軽減する助けとなる保護装置を含んでいる。これらの表の中で、情報を提示する場合には幾つか的一般的なガイドラインに従っている。第1に、普通の形態の故障については、概して触れていない。それは、これらの故障が電気、圧縮空気、冷却水及びスチームのようなセルサービスのための最終的設計に大いに依存しているためである。（一次及びバックアップ系統の複合故障に対する普通の形態の故障解析は、特定の施設に対しても確かに適用できる。）

第2に、これらの表は、事故が発生する確率を減少させる安全面を強調するものではなく、その影響を少くする助けとなる保護装置だけを強調するものである。論じていない安全面の例では2重のプロセス封じ込め、電気的一機械的インターロック、リミットスイッチ、更に品質保証、運転員訓練、詳細な運転手順のような運営上の管理がある。これらの安全面は、より重大な結果を伴う事故の確率を減らすために、最終設計において、コスト効果を考慮した方法で適用される。

最後に、これらの結果を記述する場合に、最悪のケースにおける潜在的な放射性核種の放出量を算定し、また同時に事故の現実的な結果を反映した。

小さな、また中程度の事故の結果は、プラントの設計と運転において重要であるが、他方、重大な事故は、プラントの安全性の見地で重要な配慮を必要とする。重大事故は、固化プラントにおける設計ベースでの事故を指す。原子炉認可の歴史を通じて、設計ベース事故として受け入れられている安全性評価の標準項目ができた。例としては、一次冷却系におけるパイプ両端の破損と、極めて強力なたつまき及び地震がある。燃料再処理及び廃棄物固化プラントの認可において原子炉のような広範な手続きはないとしても、幾つかの事故は、類似の安全性研究には頻繁に含まれるために、今では標準的なものになっている。例えば、設計ベースでのたつまきと、設計ベースでの地震（安全シャットダウン地震とも呼ばれています）は通常解析されている。

再処理プラントに関連する設計ベースの事故には、タンク内での赤オイル（退化した溶媒の硝酸塩）爆発、及びタンクとイオン交換カラム内での臨界を含む。赤オイル爆発はここで解析した。HLLWの臨界は、大半のプルトニウムが HLLW から取除かれており、また中性子毒が添加されているので考慮しなかった。更に臨界の潜在性は再処理プラントにおいてより高く、LFCM プロセス独特のものではない。（臨界の起因事象は発生し得ないと言う非常に強い論議にもかかわらず、メルターのガラスタンク内での臨界の可能性について付録Dで考慮した。）硝酸アンモニウムの爆発は、この評価では考慮しなかった。というのは、NO_x分解器において多量の結晶性硝酸アンモニウム生成と衝撃波による反応開始を考えられないためである。

固化プロセスにとって独特の、もう一つの強力な事故も考慮した。それはスチーム爆発で、溶融ガラスと水との間の熱反応によって起る。スチーム爆発では、生成エネルギーが非常に大きなものになりうるけれども、このような相互作用をもたらす起因事象は発生し得ないと言う重要な論拠と経験が存在する。（Postma, Chapman and Buelt 1980; 付録Aを参照）。

重大な事故は発生しないと言う本質的な証拠にもかかわらず、重大な事故を取扱った主要な理由は、プロセス施設をテストできる設計ベース事故としての役目を果すためである。特定施設のための安全性についての追跡解析には、特定の衝撃波と、圧力一時間の履歴と、これらの事故仮定に対する構造上の応答が多分含まれるであろう。

小さな事故は表 5 に、中程度の事故は表 6 に、重大な事故は表 7 に記述している。

表 5 小さな事故と非定常状況

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
廃液			
フィード、タンクへの移送配管 内での洩れ	パイプの腐蝕； 溶接の失敗。	サンプ水の放射能検出器； セルの排水と警報システム； セルHEPAフィルター。	運転員が修正する前の最大洩れを 200Lと想定； すべて蒸発するものと仮定。
エバポレーターのオーバーフロー	エバポレーター用ヒーターの故障； タンクレベラーと警報器の故障；	サンプ水の放射能検出器； セルの排水系統； セルHEPAフィルター。	正常になるまでに最大20Lの液が エバポレーターの底部からこぼれる ものと想定； しかし、エバポレーターからオーバーフローした液は、ほとんど第2のエバポレーターか、または、放射線検知器のある濃縮タンクへ流れ込む。
フィードタンクまたは、フィード予備タンクのオーバーフロー	タンクレベラーと警報器の故障； フィードタンクへの意図しなかった水の添加； 冷却コイルのHLLWへの洩れ；	サンプ水の放射能検知器が、応答時間 shortest する； セルドレーン系統； セルHEPAフィルター。	修正される前に、最大200Lの HLLWが、フィードセルのフロア にこぼれるものと想定； すべて蒸発するものと仮定； これらのタイプのこぼれを封じ込

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
ガラス	スチームコイルの破裂。		め、影響をゼロにすることを、詳細設計で要求。
移送中のキャニスター落下	キャニスターのリフト装置、または高架クレーンの故障	セルHEPAフィルター。	1000°Cのガラス 50 L (キャニスターの1/2まで)が、セルのフロアにこぼれるものと想定。
ガラス・エアリフトの制御機能の喪失	運転員の不注意と、キャニスターへのガラス注入過剰警報器の故障；制御バルブ故障。	オーバーフローに対するキャニスターのシール；溶融ガラスレベルが下るに従って、ガラスの割合は減少する。	1000°Cのガラス、50 L (メルターの1/10まで)が、セルのフロアにこぼれるものと想定。
急激なHCOOHの添加	運転員が操作手順を無視；制御バルブの故障。	メルターから発生する蒸気量の変動や、通常見積ったよりも多量の空気がリークした場合にも対応できるようにオフガス系の設計に余裕をもたせる；セルのドレーン系統；サンプ水の放射能検知器；セルHEPAフィルター。	急速過ぎるHCOOHの添加は、無制御の発熱反応をひきおこし、これは過度のガス放出を起させ、フィードタンクを加圧し、HLLWのこぼれを起こす。 20 Lのこぼれを仮定。

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
フィードタンクへの過度のHCOOH添加	運転員の過失とタンクサンプル分析の誤り； HCOOHの流量制御の誤り。	オフガス系統の能力に余裕をもたせる； オフガス系統を真空系にする。	メルター内で急速に反応または硝酸塩と一緒に蒸発； エバポレーターからの200 Lのこぼれと、メルターから10分間の蒸気生成(25 kg)を仮定。
フィードタンクのスチーム加熱コイルの洩れ	コイルが侵蝕で破裂； コイルが腐蝕で破裂； コイルがポンプまたは攪拌器の機械的故障で破裂。	オフガス系統の計器でスチーム変動量を検知； オフガス系統はスチーム変動を吸収できる； セルドレーン系統； セル集水口の放射能検知器； セルHEPA フィルター。	タンクを加圧すればタンクの排気口、または、破損したガスケットを通じてHLLWを排出する恐れがある； 200 Lのこぼれを仮定。
オフガス系統の配管内でのルテニウムの沈着	オフガス系統の配管内で RuO ₂ プレートアウト。	これは徐々に起きるから、オフガス系統の計器で検知され、迅速に補正される； 自動的なフィードシャットダウン； セルHEPA フィルター。	10分間メルターで生成した蒸気量(25 kg)は、セルへ排出されるものと仮定。

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
蒸気凝縮器のロスに基因するメルターの加圧	ベンチュリエジェクタータンクの冷却ロス； ベンチュリエジェクター再循還ポンプのロス； コンデンサーへの冷却のロス。	漸進的な発生で、オフガス系統の計器により検知される。 ベンチュリコンデンサーに、余分の流れ能力； 自動的なフィード・シャットダウンメルター圧力逃がし。	10分間にメルター内で生成した蒸気は、セル内へ排出されるものと仮定(25kg)
オフガス系統送風機のロス	機械的故障； 並列送風機におけるチェックバルブの故障； 1つの送風機による隣接バルブに対する損傷； 緊急動力を含むすべての電力のロス。	セルHEPAフィルター； ベンチュリエジェクターが真空を形成； 自動的なフィード・シャットダウン。	10分間にメルター内で生成した蒸気は、セル内へ排出されるものと仮定(25kg)。
小さな水ガラススチーム爆発	HLLWフィード予熱が故障したため、その他すべてのスチーム爆発基準は満足させながらも、フィード温度が90°C以下に大きく低下。より詳細な論議についてはPost-ma Chapman及びBuelt(1980)	大きなベンチュリエジェクターとコンデンサー； セルHEPAフィルター； メルターがセルへの圧力逃がしを持つ； 自動的な動力シャットダウン。	1分間にメルター内で生成した蒸気はセル内へ排出されるものと仮定(25kg)。

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
コールドキャップ蒸発における量の増大	メルターが過度のオーバーフィードから、過度のコールドキャップを蓄積し、それが偶然くずれて、スチーム発生に変動を生ずる。 を参照。	大きなベンチュリエジェクターとコンデンサー； セルHEPAフィルター； メルターがセルへの圧力逃がしを持つ； 自動的なフィード、シャットダウン。	メルター内で生成した蒸気はセル内へ10分間排出されるものと仮定(25kg)。
オフガス系統での圧力降下増大に伴なうメルター内の加圧	コンデンサーのあふれ； HEPAフィルターのぬれ； 配管の閉塞	メルターがセルへの圧力開放機構を持つ； セルHEPAフィルター； 自動的なフィード、シャットダウン。	メルター内で生成した蒸気はセル内へ10分間排出されるものと仮定(25kg)
ガラスレベルよりも高い位置でのコンテインメント・ボックスの破損	熱応力に基因する溶接欠陥または腐蝕； 蒸気にさらされたり、オフガス系の真空中度が悪いことに起因するガスケットの破損；	オフガス系統の送風機能力に余裕をもたせる； セルHEPAフィルター； 真空のロスと同時に、自動的にフィードを遮断；	メルター内で生成した蒸気はセル内へ10分間排出されるものと仮定(25kg)

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
電力故障	高架クレーン運転からの損傷。 電力供給の中絶。	メルター内の液のホールド量を制限する。(<20L) 自動的なフィード・シャットダウン； オフガス機器へのバックアップ動力供給。	メルター内で生成した蒸気は、 バックアップ動力供給が送風機と 洗浄器を再作動させるまでの間に、 1分間セルへ排出されるものと仮定； メルター内のガラスは12時間で硬 化するが、安全であることを示 すものは何もない。
オフガス系統			
フィード・タンクへNCOOHの添加なし	運転員の過失とタンクサンプル分析の誤り。	オフガス系統がDF能力の余裕を持つ。	メルター内のルテニウムDFが20から5へ低下。
過度のエア内部洩れ	ガスケットの破損； 処理系統配管または機器の亀裂。	オフガス系統の計器； オフガス系統と送風器に余裕をもたせる； セルHEPAフィルター。	吸着器ベッドのDFがわずかに低下； 系統は、メルターのスチーム変動からの加圧の影響を受けやすい。
フィード・タンク沸騰	フィード・タンクに過度の真空を生成させるタンク排出口の故障に	フィード・タンクをオフガス系統に接続する；	即座の影響なし。

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
エバボレーターが沸騰して乾く	起因する沸騰点の低下； 冷却不足； 温度制御機能の喪失； 運転員の過失。	オフガス系統に余裕をもたせる。	
コンデンサーへの冷却水のロス	タンクレベラーの誤作動； 運転員の過失； 過度のページ。	廃液を浄化するために多段蒸発とする； この廃液をフィードタンクへ再循還させる。	粉塵ルテニウム 10^{-4} と揮発性ルテニウム 10^{-2} のオフガス系への移行によるオフガス系の放射能増加は無視しうる。
オフガス系のヒーター制御の機能の喪失	配管の閉塞； 配管の破裂； 冷却水内で検知される放射性核種は、直ちに冷却水をシャットダウンすることを要求する。	ベンチュリエジェクターが主に凝縮作用をもつ； オフガス系統がDF余裕を持つ。	コンデンサーへ与えられるDFのロス； メルター内で発生するスチームの変動が大きい場合は系内が加圧になる。 温度に敏感な吸着器ベッド内で、DFのロス； 高いガス温度に起因するHEPAフィルターの破裂。

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
HEPA フィルターの破裂	ヒーターの温度超過； 水のコンデンサー通り過ぎ； オフガス系統送風機の速度超過； オフガス系統の圧力変動	HEPA フィルターがバック・アップを持つ； オフガス系統が DF の余裕を持つ。	修正されるまでは普通以上の放射能放出。
ルテニウムの吸着器ベッドのオーバーヒート	オフガス・ヒーターでの温度制御のロス。設計段階ではオーバーヒートしないように消費電力に制限を設けるから、この様な事態は処理ガス量が少ない場合におこる。	NO _x 分解塔でルテニウムの DF をかせぐ。	温度が上昇するに伴ってシリカゲル・ベッドの DF が減少。
ルテニウム吸着器ベッド内に水分	オフガス・ヒーターでの温度制御のロス； 水がコンデンサーを通り過ぎる。	NO _x 分解塔でルテニウムの DF をかせぐ。	シリカゲル・ベットから、水がルテニウムをエリュート； NO _x 分解塔から逃げたルテニウムは煙突へ放出されるかも知れない。
化学的汚染物がルテニウム吸着ベッドを退化させる	ルテニウム吸着についての表面化学反応は、まだ、完全には説明されていない； 性能の退化はシリカゲルで観察された。	NO _x 分解塔でルテニウム DF をかせぐ。	煙突監視が規準外の状況を検知するまでは、普通以上のルテニウム放出が発生。

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
銀ゼオライトベッドがオーバーヒート	低ガス処理量でオフガス系統のターミナル温度制御機能の喪失。	なし。	考えられるDFの減少。
銀ゼオライトベッド内の水分	水のコンデンサーからの持越し；オフガス系統ヒーターの機能不全。	なし。	DFをふやす。
水銀ゼオライトベッド内に汚染物	汚染が実験室で観察された。	なし。	考えられるDFの減少。
NO _x 分解塔のベッドが熱過ぎる	ヒーター制御の機能不全。	セルHEPAフィルター。	硝酸アンモニウム結晶がベッド内に生成；しかし、爆発のチャンスは考えられない。
MH ₃ が許容値以上に流出	制御系統の機能不全；運転員の過失。	オフガス系統がルテニウムDFの余裕を持つ。	ルテニウムDFの減少；追加のNO _x が煙突へ放出。
ルテニウム吸着器ベッドが入替え中に落下	運転員の過失。	セルHEPAフィルター。	シリカゲルがセルフロアへこぼれる；脱着はおこらない。

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
ヨウ素吸着器ベッドが入替え中に落下	運転員の過失。	セルHEPAフィルター。	銀、ゼオライトがセル、フロアにこぼれる； 脱着はおこらない。
メルターへのフィード配管の閉塞	断続的な送液はスラッジの形成と配管内にドライアウトを生ずる；始動中の水冷チップの故障。	流量が次第に減少している間のプロセス徵候が閉塞を感じ、影響を最低限にする……これらは、メルターリッド温度の上昇、オフガス流量と圧力低下の変化及びガス流れの減少、または停止である。HLLWは、エバポレータへ流れ、多くの浄化サイクルを受ける；エバポレータ内の放射能モニターが、発生の検知を助ける；	HLLWは排気口を通じて、オフガス系統コンデンサーへ引き込まれる； 検知前、10分間発生すると仮定。
<u>プロセスセル</u>			
汚染が冷却水に入る	フィードタンク、コンデンサーまたはエバポレータ系統の冷却コイルに押し入る。	冷却系統内の放射能検知器； 汚染を隔離または封じ込むように設計で考慮する。	修理が必要。
汚染がスチーム、ラインに入る	フィードタンクまたはエバポレ	スチーム系統内の放射能検知器；	修理が必要。

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
汚染が空気供給系統に入る	ーター内のスチームコイルに押し入る。 系統設計が不完全で同定不能、但し、加圧空気供給であるため、起りそうもない。	設計で考慮。 配管と機器区域の放射能検知器。	主として運転職員に対する職業的暴露； 生物圏への小さな放出は、浄化のため限定されます。
主要機器の交換	メルターのような汚染された機器の除染、閉じ込め、または除去は、小さな汚染放出を起すかも知れない。	ホットの保守セルとホットの貯蔵セルはマイナスの圧力で、換気はHEPAを通じて煙突へ放出。	汚染浄化中は、作業員に対して職業的被曝； 約4 kgの粉末ガラスが、セル空気中に放出。
保管中にキャニスターの故障	プールに貯蔵されているキャニスターの溶接の失敗。	プール水浄化系統；プール建造物の換気は煙突へ行く。	汚染制御中に職業的被曝。
操縦装置との接触からの電気ショック	運転員が電気シールドをはみ出す；重大な事故からの主要機器の損傷は電気シールドの故障を起す。	1つの電極との接触には、ショックの危険はない； 電位の異なる2点の接触の場合のみ（即ち、反対の電極、電極とガラス、サーモウエル、または、封じ込めボックスが、他の電位に対して、	すべての条件が満足されなければ影響なし； 放射性核種の放出に影響なし。

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
		現行の短絡を持つ場合には、アースと電極)。	

表 6 中 程 度 の 事 故

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
<u>液体</u>			
フィードタンク破裂	タンクの溶接の失敗； ポンプ羽根車または攪拌器羽根車 が故障し、タンクを破裂させる； 侵蝕； 腐蝕；	サンプ水の放射能検知器； セルドレーン系統； セル HEPA フィルター。	全部のタンク分(1200L)がサン プ水になると仮定。
ベンチュリ再循還配管内の破 損または重大な洩れ	溶接の失敗； 高架クレーンの運転により破損。	サンプ水の検知器； セルドレーン系統； セル HEPA フィルター； オフガス系統機器； 肉眼観察。	修正前の10分間洩れ(1140L)が、 ガラス化セル内に最大限の水分と エアゾールを越すものと仮定。
長い時間に及ぶ過度で、検知さ れないオーバーフィード	運転員の過失； フィード・エアリフト制御機能 の喪失と運転員の警報無視。	電極間の電気抵抗の大幅な変化； プレナム温度低下； フィードタンク内のレベルの過度 の減少量； 過度のガラス生成量； シールしたボックス構造が液体の	メルターのシールを通じての小 な液体こぼれ(10L)； プロセスの加圧を発生させるかも 知れない； メルターの再始動必要。

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
あふれを通じてのガラスの流れの長時間の妨害	フロアとプラグライザに Spinels またはその他の結晶が集積； 不十分なあふれ熱供給が、あふれ注ぎチップに硬化したガラスの集積を起す。	こぼれ防止に役立つ。 2つの電極間の電気抵抗の変更、及びガラスの製造は状況検知の役には立たない； シールしたボックス構造は、こぼれの防止を助ける。	ガラス製造流れは止り、溶解レベルは上昇； メルターのシールを通じて、小さな液体のこぼれ(10L)を仮定；問題を修正するために、シャットダウンと高いあふれ及び溶解温度を要求。
ガラス キャニスターの入れ過ぎ	運転員の過失； キャニスター重量と、温度モニター系統の故障； メルター加圧と、均等化ラインの閉塞； 臨時に閉塞したライザーまたはあふれのプラグ外し。	セルフロアはステンレススチールで内張り； セルHEPAフィルター。	キャニスターを分離した時に、1100°Cのガラス、10Lのこぼれを想定。
注入作業中にキャニスター破裂	検知されない、不適切なキャニスター・キャムの溶接。	セルフロアをステンレススチールで内張り；	1100°Cのガラス、50L(キャニスターの1/2まで)のこぼれを

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
<u>プロセス加圧</u>		セルHEPAフィルター。	想定。
中程度の水ガラススチームの爆発	他のすべての基準は満足させながら、HLLW予熱の失敗；より詳細な論議については、Postma Chapman および Buelt (1980) を参照。	大きなベンチュリエジェクターとコンデンサー；セルHEPAフィルター；自動的なフィード・シャットダウン。	1100 °C のガラス 40 L のこぼれと、HLLW 25 L のセルへの気化を仮定；メルターに対するガスケットの故障またはその他の小さな損傷。
過度のガラス発泡はメルター・ヘッド、キャビティーを充満し、圧力逃がしを通じてセルへ逃げる。	実験室のスクリーニングと分析によつては、異常なガラス溶解反応は検知されず。	セルHFPAフィルター；真空のロスと同時に自動的フィード・シャットオフ；ステンレススチールで内張りしたセル。	コールド キャップ内の 25 L の HLLW がセルへ気化し、36 kg のガラス泡が、圧力逃がし口、キャニスター接続部の破水口、及びメルター リッドのガスケットを通じて、セルへ放出されると仮定。
<u>オフガス系</u>	オフガス系ラインに割れ目	オフガス系計器；セルHEPAフィルター	10分間のメルター蒸気生成 (25 kg) がセルへ排出されると仮定。

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
オフガス系構成部分への一切の冷却が消失	配管の閉塞； 配管の破裂； 冷却水に放射性核種を検知； 運転員の過失； メルターからのスチームは濃縮されずに、オフガス系統を通過。	オフガス系計器； メルターはセルへの圧力逃がしを持っている。	オフガス系内での増大する放射能 プラス、メルター蒸気のセルへの 排出； 修正前、10分間、発生と仮定。
HEPA フィルターが入れ替え中に落下	運転員の過失と、落下時に、保護バックが働かない。	セルHEPA フィルター。	HEPA フィルター上に積んだ固体 の 1/2 が、セルへ消散。
プロセスセル 機器またはキャニスターの移動でHEPA フィルター破損	高架クレーンのフックまたはケブルが破損； クレーン制御が不安全な方法で失敗。	肉眼検査、換気ダクト内の高放射能レベル警報、及び差動圧力メーターによる故障の検知； バックアップフィルター。	浄化に基づく幾らかの追加的な職業上の被曝； 幾らかのセル汚染（1 kg の仮焼物と仮定）が換気ダクトへ掃き入れられるかも知れない。
セル内の発火	電線絶縁物または脱汚染補給品が燃えて、セル HEPA フィルターを破損。	セル内のスプリングラー系統； 換気は、煙突への途中で、建家換気系の HEPA フィルターを通る	浄化中に、幾らかの追加の職業的被曝； セル汚染は掃かれて、破損したHEPA フィルターを通過するかも知れない（仮焼物 1kg と仮定）。

表 7 重 大 な 事 故

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
<u>液 体</u> フィードタンクの爆発	赤オイルの爆発 (劣化した溶媒が多量に存在する状態で、攪拌不足が生じ、長時間フィードタンク内で沸騰がおこっているような場合に、この様な爆発の発生する可能性がある) ; 発泡または再沸騰はガラスのオーバーヒートを起させて、自動的な電力シャットダウンが機能しない。	爆発エネルギーを封じ込め、または、消散させることのできるフィードタンク; セルのドレーン系統; セルの HEPA フィルター;	フィードセル内で最大のエゾール飽和を作り出すものと仮定(220L = 31% MTUWE) 単一故障基準としてセル HEPA フィルターの故障を仮定
<u>ガ ラ ス</u> 溶融ガラスのレベルよりも下の部分で生じたメルターの破損	高架クレーン運転による破損; フィード及びプロセス分析で検知されなかった高腐蝕性ガラスとの長時間の接触; 運転員の不注意とガラス及び/または電極の異常昇温警報器の故障	長時間、ボックスを $< 800^{\circ}\text{C}$ に加熱するためには、ガラスは 3 層の耐火物質を十分な量で浸透しなければならない。 メルター温度計器; 運転員は、メルターを底部ドレーン	メルター内の溶融ガラスの全部または一部 (1370 kg = 500 L) は、セルのフロアへこぼれる。 ガラスの中の幾らかの揮発性・放射性核種のセル内への放出は、 1150°C で、30 分間と仮定;

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
メルタータンク内の臨界	長時間に亘るメルタータンク内のPuO ₂ からの優先的沈殿 (この事故が不可能であることを示す分析については、付録Dを参照)	を通じて、ガラス溜めタンクヘドレーンすることができる。 ステンレススチールをライニングしたセル； セル HEPA フィルター セル内の中性子検出器； セル HEPA フィルター	单一故障基準として、破損したセルHEPAを仮定 セル内のガラスの発泡； メルター内に臨界が起きる証拠がないので、この事故の推定は行わない。
プロセス加圧	水—ガラススチームの爆発によるメルターの破裂	他のすべての基準は満足させながら、HLLW フィード予熱の失敗。 より詳細な論議については、Postma Chapman 及び Buelt (1980) を参照	セル壁を強固にする； スタック HEPA フィルター メルター封じ込めボックスの完全な破裂は、すべてのガラス (~500 L) を放出し、煅焼コール、キャップ (~10 L) を消散させ、更に、ガラス—水の反応に基づく約 124 kg の小さなガラス微粒子を発生させる。

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
<u>オフガス系統</u> (重大事故はこれまでなかった)			セルとセルの窓はがっちりしていて、どんなミサイルにも耐え抜くものと予想される。セルHEPAフィルターも、最終設計では保護されているが、破裂は単一故障基準と合致するものと仮定。
<u>プロセス、セル</u> 設計ベースの竜巻	原子力委員会（1974）規制ガイド1.76に定義されている特色を持つ竜巻は、プラント換気系統内の1組のHEPAフィルターを破裂させるものと仮定。	プラントは、この事故でも小さな損傷を受けるだけで耐え得るように設計される。	設計ベースの竜巻が来ても、メルターは10分間運転をつづけ、その間メルター内の蒸気はセル内に放出されるものと仮定する。第2セットの換気HEPAフィルターは、単一故障基準に合わせて破裂するものと仮定。
設計ベースの地震	プラントはサイトの過去の地震記	すべての換気出入ダクトにはHEPA	10分間、フィード（25L）が、フ

事故の種類	事故の原因	事故防止のための設計上の考慮	事故内容の想定
	録に基づいて、機器の損傷を軽微にとどめ、セル壁が破損しないように設計される。	フィルターを入れる。	ロアにこぼれ、10分間メルタ内の蒸気(25kg)がセルへ逃げ、また、一杯になったキャニスターが、ひっくり返って50Lのガラスをこぼすものと仮定。 单一故障基準に合わせたため、セルHEPAフィルターは破裂するものと仮定。

6. 事故サブグループ毎の放射性核種放出

重大性とタイプによる事故の分類については前章に述べた。この章では事故のサブグループ毎に算定した放出量が与えられる。放出量はプロセスの運転パラメーターに基いているが、放出量を計算するためには多くの仮定も必要とする。これらの仮定は、事故の影響を最大限にするように安全側にとっている。しかし、ここでも、本来の意図は事故を現実的に記述することであった。主要な仮定についての論議を最初に提示し事故サブグループ毎の計算について短い要約を追加した。

6.1 放射性核種放出解析のための一般的仮定

高レベル廃液は多数の元素を含んでいる。2,3のものを除き、放射性核種は、液状または固体状を問わず、相対比を維持しているものと仮定する。従ってこの放出量解析においては、放射性核種の大半をまとめて粒子と呼ぶことにする。

上の仮定には2つの例外がある。第1に、溶融ガラスがこぼれている間、幾らかの放射性核種が、セル雰囲気中へ揮発する。第2に、ルテニウムは、特に高い硝酸濃度の廃棄物溶液が加熱される時、揮発性のガス化学種を生成する。事故サブグループ毎の放出量を算定する場合に、これらの揮発性元素を考慮に入れた。

Gray(1976)は、溶融したガラスからセシウム、モリブデン、テルル、ルビジウム及びルテニウムが揮発する度合を温度の関数として測定した。これらの元素の揮発度合がガラスの温度と共に指数的に上昇することを、Grayは発見した。しかし、ルテニウムは場合によって別にしても、これらの元素は凝縮してミクロンサイズの粒子を形成し、これらの粒子は、HEPAフィルターによってトラップできる。予備計算によって、セシウムだけが別個の放出量を正当化するに十分多い量で揮発することがわかった。しかし、この解析では、安全側としてルテニウムが揮発性のガス化学種を生成し、これらのガス化学種はHEPAフィルターを通過する時間内には凝縮しないものと仮定した。従って、溶融ガラスがこぼれている間のセシウム放出量とルテニウム放出量を計算した。

揮発性のルテニウムガス化学種(RuO_4 及びニトロシルルテニウム錯体; Christian 1976)の生成は幾つかの特別な状況下で起るので、その他の事故計算のすべてにおいて、ルテニウムの揮発を考慮する必要がある。通常の運転中、オフガス系内のルテニウム吸着塔ベッドは揮発性のルテニウムを除去する。しかし、事故状況下では、揮発性ガスはセル雰囲気へ放出され、セル換気の流れに乗って移送されるものと仮定できる。この事故解析では、移送される揮発性ルテニウムが、換気系のHEPAフィルターで、トラップされずに通過すると仮定している。

高い硝酸濃度条件下で形成されるガス状のニトロシルルテニウム錯体に対して、この仮定は現実的なものかも知れないが、廃液が乾燥している時にしばしば生成される RuO₄ に対しては、多分過度に安全側である。実験において、RuO₄ が、金属プロセス・ラインと換気ダクト内で、沈着することが観察された。揮発性ルテニウムは、また、室温で RuO₄ 粒子に容易に分解する。

放射性核種の放出量を計算する場合に、もう一つ考慮すべきことは、どれくらいの揮発性元素がセル雰囲気へ放出されるかを決定することである。溶融ガラスの事故に対しては、Gray (1976) によって測定された揮発性放出速度を使用した。総放出量を正確に予測するためには、その放出量に、時間、温度及び表面積を積分することが必要である。これらの放出量計算のために、簡単で、しかし控え目なモデルを適用した。こぼれた場合薄いガラスのプールを作り、このプールは当初のガラス温度で30分間、存続しこの間追加の揮発性放出は発生しないものと仮定した。(この揮発性データは、この解析のベースとして使ったものとは僅かに異ったガラスの組成に基いたものであるが、その偏差は、他の仮定に伴なう正確度の範囲内にあるものと判断される。) 溶融ガラスの揮発性データは、単位面積、単位時間当たりの重量ロスによって与えられる。これを特定のアイソトープのMTUWEに換算するためには、各元素に対する放射性同位元素の割合を求める必要があった。セシウムについては、Cs-134は2%で、Cs-137は46%であった。ルテニウムについては、Ru-106は0.7%であった。これらの元素のその他の同位元素は、安定なものかほとんど放射能がないかのいずれかである。

廃液がこぼれた時の放出量と、セル雰囲気に対するメルター オフガス放出量の計算は微粒子（ルテニウムを含む、すべての放射性核種）の移行と、ルテニウムの揮発に関する仮定を必要とする。廃液放出は、フィード系、ベンチュリスクラバーまたは蒸発缶のいづれかからである。この放出は、セル床へこぼれるかまたはセレ雰囲気へのスプレーの形を取りうる。こぼれた場合放射性核種は、蒸発中の移行によって可動的になる。微粒子の移行割合は、 10^{-4} 以下と報告されている (Christian and Pence 1977)。ルテニウムは、一般的に、HLWの中和溶液に対する微粒子と同じ割合で、移行する。しかし、高い硝酸濃度では揮発が卓越して起ることが観察された。8 M HNO₃以上では Ru-106 の揮発速度は 10^{-1} に近くなる。模擬廃棄物溶液についての測定では、6 M - HNO₃の場合、ルテニウムの全ロス係数が 1.5×10^{-3} であった。(Hanson 1980)。従って、HLWのこぼれ (7 M HNO₃最大)に伴なう液体放出の場合、揮発性のルテニウム(多分、ニトロシルルテニウムガス錯体)の放出速度を慎重に高めの値 10^{-2} と仮定している。(Christian 1976)。これらの仮定のうちの例外は、メルター自体に対する移行値である。運転上の経験に基き、セシウムを含みルテニウムを除く一切の放射性核種のメルター オフガスへの移行は、通常の運転状況で、 5×10^{-3} を越えない。揮発性化学種のルテニウムの移行は、慎重に 5×10^{-2} と仮定する。

この安全性評価で考慮したもう一つの揮発性元素がある。使用済み燃料には、相当量のヨウ素があり、それは非常に揮発性である。しかし、使用済み燃料が再処理される時までには、大

部分のヨウ素は減衰して安定同位元素になる。残存する放射性核種は I-129 である。拡張する核燃料サイクルから長期間大気中における I-129 の蓄積は一つの問題である。そのため、大半のヨウ素をトラップし、固化することを EPA は要求している (Environmental Radiation Protection Standards for Nuclear Power Operations)。ヨウ素管理の大半は、再処理プラントで起きるが、それは再処理のフローシートでは、一般に 99.5% の放出を示しているからである。1 MTUWE の HLLW 中に、僅か 1.7×10^{-4} Ci の I-129 が存在するだけである。数 MTUWE 相当のヨウ素の放出では、サイト周辺における重大な被曝を招かない。従って、ヨウ素を別にした放出量の計算はしなかった。数 MTUWE 相当のヨウ素を放出する事故状況のあるタイプに、負荷したヨウ素吸着塔ベッドが出会うかも知れないと言う可能性をこの事故解析で考慮した。しかし、銀ゼオライト吸着塔ベッド上に化学的に吸着されたヨウ素を放出する事故状況は全然なかった。このタイプのベッドの再生は、約 400 °C から 500 °C で、水素を通じヨウ素を除くことによって行なう。しかし、ベッドを容量以上に使用すると、物理的に吸着されたヨウ素が、ガス温度の上昇またはベッドの洗浄によって、比較的簡単に放出される。将来、通常の運転がヨウ素吸着器ベッドの更新を要求する場合には、特に安全性解析が進むにつれて、この潜在的な事故は、より綿密に検討されるべきである。

放出量を計算するために必要なもう一つの仮定は、液体放出の蒸発と移行のためのモデルである。どれ位の液体がプロセスセル内に残り、また、完全に気化できるかを控え目に算定することによって、プール放出をモデル化した。気化した液体のすべては微粒子となり、先に述べた移行係数に当量のルテニウム放出量を出すと仮定した。加圧下で液体を放出するのを特徴とする事故においては、細かいエアゾールを生成する潜在性がある。典型的なラインの破損は液体の噴出または流れを招き、液だまり (Pool) を作るようである。他方、もし多大の噴霧化を起す洩れが可能ならば、これらの細かい水滴の蒸発は大いに助長され、また乾いたエアゾールとミストが換気流へ相当移行することが考えられる。しかし、PNLでのスプレー仮焼装置開発計画において示されたように (Larson and Bonner 1976)，大量の液体を噴霧化することは困難であり、また事故状況が大量のエアゾールを作り出すことも、なさそうである。液滴の沈澱速度は、直径 $70 \sim 200 \mu\text{m}$ の粒子に対して $10 \sim 75 \text{ cm/s}$ の範囲である (Perry and Chilton 1973)。この解析で使ったモデルは液体のスプレーが続いている間、最大可能速度で蒸発し、蒸発した液体の 100% が移行することを仮定している。この最大蒸発は、換気空気が湿度 0% のセルに入り、温度 50 °C、湿度 100% で出て行き、 131 kg/m^3 の水分を作り出すことを仮定している (Perry and Chilton 1973)。フィードセル内の換気流量は $1300 \text{ m}^3/\text{h}$ と仮定する。この形態で換気空気と共に移送される全てのルテニウムのうち、99% は微粒子として扱い 1% は揮発性であると仮定する。先に述べた通常の HEPA フィルターの DF はこれらの液体スプレー事故から発生する微粒子に適用できるものと仮定する。

幾つかの事故については、仮焼体 (乾燥した HLLW) を起因事象と考えた。仮焼体による

起因は、メルター内のコールドキャップまたは蒸発したHLLWの汚染物（多分、熱い表面での長時間に亘る小さな洩れ）のいずれかです。

付録Cは放射性核種すべてとMTUWE当りの放射能のリストである。1 MTUWE当りの放出量を示している。これは普通使わない放射能単位であるが、フローシート情報には適合しました、総キューリーに簡単に換算することができる（3年冷却の原子炉廃棄物で、 6×10^{-5} Ci/MTUWE）。放出量の一覧表はMTUWEとキューリーの両方で示している。

6.2 放出量解析

放出量計算の要約を以下に示す。各サブグループから唯一つの事故（主要な起因事象）を選んだ。しかし、サブグループ中でどの事故が、そのグループにとって最大の放出を引き起すかを決定するために、すべての事故を検討した。放出量はMTUWE単位で報告している。

6.2.1 液体を伴なう小さな事故

状態：フィードタンク移送ラインにおける洩れが200 LのHLLWをセルのフロアにこぼし、そこで乾いて、スラッジとなる。

仮定：微粒子の 10^{-4} が蒸気で移行し、ルテニウムの 10^{-2} が揮発する。これは70分間に亘って起る。セル及びスタックのHEPAフィルターが、ルテニウムには1のDFを、微粒子には 10^{-8} のDFを与える。

考察：200 Lのこぼれは、10分間のタンクからタンクへの移送、または、フィードセルフロア上での深さ0.56 cmのこぼれに相当する。この多くは、溜め（Sump）に移ると予想されるが、この可能性は考慮していない。蒸発は、換気量の許す限り迅速に起きるものと仮定する。タンクからタンクへの移行は脱硝後に起るが、ルテニウムに対しては、高い蒸発放出率を使っている。脱硝後のルテニウムは、移行による放出だけであり約 10^{-4} に低下する。

スタックへの放出：煙突へ放出されるルテニウムは 2.8×10^{-3} MTUWEと等量である。煙突へ放出される微粒子は 2.8×10^{-13} MTUWEと等量である。

6.2.2 液体を伴なう中程度の事故

状態：ベンチュリ再循還ラインにおける主要な洩れは、プロセスセルを10分間で飽和するエアゾールを作り出す。

仮定：再循還液体の放射能はルテニウムに起因する3.2 Ci/L及び微粒子に起因する3.8 Ci/Lとして計算した（付録B）。事故状況と低い硝酸濃度は高いルテニウム揮

発性を招かない。従って、揮発性のルテニウムは全体の 10^{-13} と仮定している。空気の最大飽和（ 131 g/m^3 , 50°C で）を仮定する。セルの容積は 566 m^3 で、これは10分間の事故の間、1度空気が入れかわる。これらの仮定によって、 150 L の再循還液体が蒸発し、微粒子のエアゾールを作り出す。セル霧囲気放出のためのDF値は揮発性のルテニウムに対して1で、微粒子に対しては 10^{-8} である。

考察：このような事故が予想される過程には、エアゾールを生成しない小さな洩れを伴ない、また検知し停止させる前、及び残ったこぼれをセルの溜めに集める前にはほとんど蒸発をしない小さな洩れを伴なう。この事故で仮定しているような蒸発する液体エアゾールを発生すること、及び微粒子のエアゾールを作り出すことは非常に困難である。ルテニウムの揮発は仮定している 10^{-3} よりもはるかに少いものと考えられる。

スタックへの放出：煙突へ放出されるルテニウムは $1.1 \times 10^{-5} \text{ MTUWE}$ と等量であり、煙突へ放出される微粒子は $1.0 \times 10^{-11} \text{ MTUWE}$ と等量になる。

6.2.3 液体を伴なう重大な事故

状態：「赤オイル」と名付けられる劣化溶媒の不安定な硝酸塩が再処理プラント内で生成され、フィードタンクへ運ばれてそこで爆発する。

仮定：「赤オイル」爆発の危険性は再処理プラントでより大きく、プロセス設計と運転によりプラントで受入れる程度にまで爆発の可能性を下げる。従って、第1の仮定は、「赤オイル」がフィードタンクに集まり、爆発することである。この爆発は、フィードセル内（ 218 m^3 ）に最大飽和空気を発生するものと仮定する。これらの仮定によって、 28.6 L のHLLW ($4 \times 10^{-2} \text{ MTUWE}$) がセル霧囲気内に広がる。更に、 200 L が、フィードタンクの破損の項で計算したように、セルのフロアで乾燥するものと仮定する。セルのHEPAフィルターの故障は、重大な事故に対しては、工学的な保護装置において单一の故障を推定すると言う全般的な安全性解析原理に一致するものと仮定する。ルテニウムの揮発性は、フィードが 7 M 硝酸ほどになり得るので 10^{-2} と仮定する。スタックのHEPAフィルターに対するDF値は、揮発性のルテニウムには1、微粒子には 10^4 と仮定する。

考察：「赤オイル」の爆発は、安全性解析に含めたが、実際のプラント設計についてのより完全な解析によれば、この事故の確率を無視できることを示すであろう。最大蒸発及び関連する微粒エアゾールの生成についての仮定は安全側のもので、この事故に対する起因事象を最大にしている。

スタックへの放出：煙突へ放出されるルテニウムは $2.8 \times 10^{-3} \text{ MTUWE}$ と等量で、煙突へ

放出される微粒子は 4.0×10^{-6} MTUWE と等量である。

6.2.4 ガラスを伴なう小さな事故

状態：ガラスを充填したキャニスターが移送中に倒れ、ガラスが一部セルフロアに流れ出る。

仮定：キャニスターは、 100ℓ (300 kg) のガラスを含む。半分 (50ℓ) が、依然として溶融状態にあるものと仮定する。この漏れたガラスの平均温度は 1000°C である。また、その厚さは 1 cm で、表面積は 5 m^2 である。揮発する主要元素は、セシウムとルテニウムである。揮発については、ガラスの漏れを30分間 1000°C のままにしておき、その後直ちに冷却すると仮定しモデル化する。（主な揮発性元素の選定および時間一温度モデルについては、本節の始めに論じた。）セル雰囲気に放出される放射性核種のDF係数は、セシウムに対して 10^8 で、ルテニウムに対して 1 である。また、 1000°C における揮発率は、セシウムが $0.55\text{ mg/cm}^2\text{-h}$ で、ルテニウムが $0.01\text{ mg/cm}^2\text{-h}$ である。さらに、主たる放射能に寄与する放射性核種は、Cs-134 が 2%，Cs-137 が 46%，そして Ru-106 が 0.7% である。

考察：キャニスターから流れ出ることの可能性は認められるものの、キャニスター移送装置およびその手順の点から考えて、そのような事故の起る可能性は低い。

スタックへの放出：スタックへ放出されるルテニウムは 1.3×10^{-4} MTUWE に等量で、セシウムは 6.2×10^{-11} MTUWE に等量である。

6.2.5 ガラスを伴なう中程度の事故

状態：キャニスターの操作ミスで、充填したばかりの溶融ガラスがセル・フロアへこぼれる。

仮定：キャニスター全容量の半分 (50ℓ) がこぼれる。ガラスの温度は 1100°C である。このガラス漏れは、厚さが 1 cm 、そして面積が 5 m^2 である。主な揮発元素は、セシウムおよびルテニウムである。揮発については、ガラスの漏れを30分間 1100°C のままにしておき、その後直ちに冷却すると仮定してモデル化する（主な揮発性元素の選定および時間一温度モデルについては、本節の始めに論じた。）。セル雰囲気に放出される放射性核種のDF係数は、セシウムに対して 10^8 で、ルテニウムに対して 1 である。また、 1100°C における揮発率は、セシウムが $2.5\text{ mg/cm}^2\text{-h}$ で、ルテニウムが $0.018\text{ mg/cm}^2\text{-h}$ である。さらに、主たる放射能に寄与する放射性核種は、Cs-134 が 2%，Cs-137 が 46%，そして Ru-106 が 0.7% である。

考察：キャニスターは、使用前に十分に検査されており、ジュール加熱メルターによってガラス充填をする時の負荷は、さして過大でない。従って、つぎ目のところで亀裂が生じるということは、あり得ない事象である。さらに、ガラスの漏れと揮発モデルはいずれも安全側である。

スタックへの放出：スタックから放出するルテニウムは 2.2×10^{-4} MTUWE と等量で、セシウムは 2.8×10^{-10} MTUWE と等量である。

6.2.6 ガラスを伴なう重大な事故

状態：ガラスレベル以下でメルタ一封じ込めボックスが破壊し、ガラスが漏れる。

仮定：メルター全容量 500 ℥ が、プロセスフロアーへ漏れる。ガラス温度は 1150 °C である。この漏れ出たガラスの広がりは、36 m² のセル・フロアーに及び、1.4 cm の深さになる。揮発に関しては、ガラスの漏れを 30 分間 1150 °C のままにしておき、その後直ちに冷却すると仮定してモデル化する（主な揮発元素の選定および時間一温度モデルについては、本節の始めに論じた。）。揮発した主要元素は、セシウムとルテニウムである。また、1150 °C における揮発率は、セシウムが 5.5 mg/cm²・h で、ルテニウムが 0.05 mg/cm²・h である。セルHEPA フィルターの破損は、重大な事故に対する単一故障基準に一致するものと仮定する。スタックHEPA フィルターは、セシウムに対して 10^4 の DF を、そしてルテニウムに対しては 1 の DF を与える。

考察：セルHEPA フィルター故障発生原因は、発火または加熱による破損であると考えられ、これは単一故障基準の仮定に一致する。

スタックへの放出：スタックから放出するルテニウムは 4.6×10^{-3} MTUWE と等量で、セシウムは 4.4×10^{-5} MTUWE と等量である。

6.2.7 プロセス加圧に帰因する小さな事故

状態：ベンチュリエジェクターおよび主コンデンサーに対する冷却がなくなり、メルターに圧力がかかる。

仮定：この加圧の推定発生時期は、メルター中の水相プールがセルへ蒸発して行く前の 10 分間である。通常、発生したチルター蒸気は、10 分間にわたりセル雰囲気に放出されると想定されるが、これは水相プールの最大容量 (25 ℥) に等しいものと仮定される。10 分間の操作は、 3.5×10^{-2} MTUWE に等しい。メルター中の蒸気移行係数は、微粒子については 5×10^{-3} 、ルテニウムについては 5×10^{-2} である。ルテニウムはすべて、揮発性の形

態をとっているものと想定する。セルおよびスタックHEPAフィルターに対するDF値は、ルテニウムには1、そして微粒子については 10^8 である。

考察：このサブグループに属する事故は11件ある。それらのうちの数件は、メルター空間に加圧を招くものと仮定する。これらは、メルター蒸気のセル雰囲気への放出の原因となる。これらの事故による放出量は、その他のプロセス加圧事象から得られるものより大きい。液体供給メルターでは、蒸気噴出を起す可能性があるため、ベンチュリエクターおよびコンデンサーの双方とも容量を大きめに設計されている。従って、ベンチュリエクターで冷却水がロスしても、それが直ちに加圧状態になることはない。現時点での設計思想においては、メルター加圧の徵候が発生した場合、フィード投入を直ちに止めるよう、自動的にインターロックが働く。

スタックへの放出：スタックへ放出されるルテニウム及び微粒子はそれぞれ 1.75×10^{-3} MTUWE、 1.75×10^{-12} MTUWE相当である。

6.2.8 プロセス加圧に帰因する中程度の事故

状態：メルター内でかなりの発泡が発生し、圧力逃し口からセルへ泡が逃げる。

仮定：ガラス温度は1150°Cと仮定する。ガラス発泡に伴ない揮発性物質が飛散する現象モデルの代りに、メルター保有量の $\frac{1}{5}$ のガラス(36 kg)が発泡として逃げ、この表面積の大きい泡から揮発するセシウム及びルテニウムは泡中の20%と仮定する。更に、25ℓのHLLWがメルター蒸気として放出されるとして、起因事象に足す。DF値は、ルテニウムに対して1、セシウム及び微粒子に対して 10^{-8} である。

考察：廃棄物ガラス固化プロセスにおいて、ガラスの再沸騰や発泡が起り得るが、ここでは例外的に重大な現象が発生すると仮定した。発泡については通常フィードを自動的に停止し、メルターへの供給電力を下げることによって制御可能である。メータからかなりの量のガラス泡が飛散し、続いてセシウムとルテニウムが揮発するという仮定は、実験データに代って有効である。メルター内HLLW 25ℓという仮定は、開発用メルターで観察してきた最大溢出量である。

スタックへの放出：スタックへ放出されるルテニウムは 1.26×10^{-2} MTUWEと等量で、セシウムは 0.216×10^{-8} MTUWEと等量である。そして微粒子は 1.75×10^{-12} MTUWEに等量である。

6.2.9 プロセス加圧に帰因する重大な事故

状態：大規模な水一ガラスの熱反応は、メルターを破壊する蒸気爆発を引き起す。

仮定：安全性評価のために、絶対に起るはずはないというのにもかかわらず、上記の熱反応が起ると仮定する。放出量は破碎ガラス、コールドキャップ仮焼体、溶融ガラスから発生する揮発性セシウムとルテニウム、および蒸発したHLWから成る。破碎ガラス量(124 kg)、25ℓのHLWを蒸発させ800℃まで加温し、約22,060 KPa(3200 psia)まで加压するに必要とする熱収支によって求めた。ガラスの比熱は、0.25 cal/g.°Cと仮定した。10ℓのコールド・キャップ仮焼体量は、溶融ガラスの全面に当たり1cmの厚さのコールド・キャップが発生した量に相当する。ガラス揮発量についても、ガラス放出大規模事故の場合の仮定と同じものを用いる。この事故により、セルHEPAフィルターが破壊されると仮定する。スタッツHEPAフィルターのDF値は、ルテニウムに対して1、セシウムおよび微粒子に対しては 10^4 である。

考察：溶融ガラス-水系における強力な熱反応現象については、すでにPostman, Chapman and Buelt(1980)によって論じられている。この種の事故は、設計ベースのものであるが、このプロセスにおいて、何ら事故が発生しないことが証明されるよう将来の解析・実験が望まれる。また、微粒子に係る大きな起因事象は、熱反応に関係するガラスが、すべてセル霧囲気に飛散し、換気流中に移行するという仮定の結果である；ただし、この仮定は、かなり安全側の仮定である。ルテニウム放出については、揮発形態を取るものとして取扱っており、除染係数をこの解析では期待していない。工学的保護装置（この場合は、セルHEPAフィルター）の单一故障を仮定する。

スタッツへの放出：スタッツへ放出するルテニウムは 6.4×10^{-3} MTUWEに等量で、セシウムは 4.4×10^{-5} MTUWE、そして微粒子は 5.6×10^{-5} MTUWEに等量である。

6.2.10 オフガス系における小さな事故

状態：水またはかなりの凝縮液が、ルテニウム吸着塔ベッドに浸入し、少量のルテニウムをシリカゲルから洗出す。

仮定：上記吸着塔ベッドの容量は、約30ℓである。1年間の運転後には、約73gのルテニウムを吸着する。これは、 3.75×10^{-2} MTUWEに相当する。このルテニウムは、洗出された後、下流にて再揮発する。また、NOx分解塔のDFは300と仮定する。

考察：オフガス系における小さな事故、及び非定常状況は、18件である。これらの多くは、通常運転時の放出レベルを超えることはない。過去における最大の関心事は、吸着塔ベッドに蓄積した放射性核種の放出であった。シリカゲル吸着塔ベッドからルテニウムが洗出されることについては、殆んどありえないものと考えられているが、解析結果によるとこの事象は、最大起因事象である。

スタックへの放出：スタックへ放出するルテニウムは、 1.25×10^{-4} MTUWE に相当する。

6.2.11 オフガス系における中程度の事故

状態：オフガス系から取はずした二重HEPA フィルターを別のものと取り換えようとして、誤ってプロセスセル内に落してしまった。

仮定：このHEPA フィルターは、メルタ一下流中の第1番目の二重フィルターである。それには、1年間運転後の微粒子が固まって付着している状態にある。そのようなフィルターを落すということは、この微粒子の固まりの半分をセル雰囲気に放出することにつながるはずである。セルおよびスタックHEPA フィルター・バンクの双方が一つになって示すDF係数は、 10^8 である。

考察：本事故分類グループ該当のこの事故についても、結局のところ問題視されるのは、ガスぬきシステム利用の総活動回数から割り出した放出可能量が、いったいどれだけになるだろうかという事実決定である。操作寿命は1年間と仮定されたが、この時点におけるフィルターの微粒子吸着量は、 1.9 kg である。これは、 7.5×10^{-3} MTUWE に相当する。

スタックへの放出：スタック放出の微粒子量は、 3.75×10^{-11} MTUWE に等量である。

6.2.12 オフガス系における重大な事故

状態：現在発生件数なし

仮定：想定不可能。

考察：重大な事故として分類するために必要な条件を挙げれば、広範囲に渡る装置破損あるいは放射性核種の大量環境放出のいずれか一方である。今までのところ、オフガス系を利用した場合で、上記の判定基準に当てはまる事故は1件も報告例がない。

スタックへの放出：なし。

6.2.13 プロセスセルに影響を与える小さな事故

状態：メルター取換え中に一部破損が起った場合には、仮焼体に似たガラスの粉が相当量セル雰囲気に放出される。

仮定：メルターはプロセスセル内で解体することがあり、取換作業中に約4 kg（約2ポンド）の粉末状ガラスが、セル雰囲気に放出されている。この粉末を除去くための除染補助システムは、いっさい用いられてはいない。MTUWE 毎に 254 kg のガラスがあるも

のとする。このセルとスタックHEPAの双方が一つになって、微粒子に対し 10^8 のDFを与える。

考察：ジュール加熱メルターについては、初めから廃棄物固化装置の寿命を最後までまっとうするとは期待されてはいない。メルター取換えのためには、プロセス内においてメルターを解体する必要があるかも知れない。ここで採用しているのは、制御下におけるプロセスであるため、どのような放射性核種放出でもある一定の安全操作レベルまで制限可能である。以上のさまざまの仮定が下された理由は、上述の操作結果発生し得る最大放出量の定量化のためである。

スタックへの放出：スタックへ放出する微粒子量は、 1.6×10^{-10} MTUWEに等量である。

6.2.14 プロセスセルに影響を与える中程度の事故

状態：セル内が発火したため、その結果、セルHEPAフィルターが故障した。

仮定：この火災により、セル換気出口に備っている二重HEPAフィルターが破壊される。また、約1kgの放射性粉塵（これは、恐らく粉末ガラスであると仮定される）が、この火のために撒き散らされる。毎MTUWEごとに、254kgのガラスが認められる。スタックHEPAフィルター全部によって発生するDF係数は、 10^4 である。

考察：セル中の可燃物の種類は、限定されている。主要可燃物は、動力ケーブル用絶縁装置であるが、その他にも、防災警報システムおよび少くとも一つの消火システムがいずれも、このセルの中にはある。設計段階において、熱・火・煙がHEPAフィルターに与える危険性については、よく考慮されるべきであろう。1kgの各種微粒子の発生源は、はっきりと断定することはできない。そこで、セル汚染の結果、それらが発生したのだと仮定する。しかしながら、これだけの量の汚染物が未回収状態のまま残ったということは、ちょっと普通では考えられない。

スタックへの放出：スタックへ放出する微粒子量は、 3.9×10^{-7} MTUWEに等しい。

6.2.15 プロセスセルに影響を与える重大な事故

状態：NRCの規定による「設計段階に問題がある竜巻」が原子力発電所上空を通過している。

仮定：上記NRCが特定する諸条件中最悪のものが仮定された。21kpa圧力が毎秒14kpaの率をもって落下。この圧力が加わったため、セル内中HEPAフィルターのうちの一つが破壊される。同じ原因にて、建物全体の換気装置も破壊されている。発生したメルター

内蒸気は、10分間にわたりセル霧囲気へ送られるものと仮定する。また、設計ミス事故発生中に单一工学的保護装置がうまく作動しなかったのだという、事故評価基準には背馳しないとすれば、残りのHEPAフィルターが破壊されたと仮定する以外はない。各種微粒子およびルテニウムに対するDF係数は1である。

考察：上で触れた規正基準に合致するためには、処理装置および重要機械機能は、建物構造上風圧力やその他関連飛来物から保護されなくてはならない。これに加えて、減圧現象2件についても解析されなくてはならない——加圧および衝撃波にさらされたHEPAフィルに関する実験データ（Anderson & Anderson 1966）に基づくと、上記減圧現象は、HEPAフィルターの破壊近似点をはっきり示してくれるのである。ただし、HEPAフィルターが仮定減圧に耐え得るかどうかを証明するためには、HEPAフィルター自体に用いられた換気系の細部および建物構造の規模・型式がいったいかなるものであるのかがきっと決め手になるだろう。さらに興味を引く点は、根本条件をよく検討してみると、全体処理機能もそうだが、メルター内の最大液体停滞物の蒸発力もかなり阻害されていることが分る。これは、ガスぬきシステムにおいては通常見かけられない機能進行状況である。

スタックへの放出：スタックへ放出するルテニウムは 1.75×10^{-3} MTUWEに、そして微粒子は 1.75×10^{-4} MTUWEに相当する。

事故分類別：放射性物質放出状態一覧

揮発性ルテニウム・揮発セシウム（微粒子形状に濃縮済）および各種微粒子の放出状態について、小さな事故・中程度の事故・重大な事故別に、それぞれ第8表・第9表・第10表にまとめた。放出状態については、MTUWE単位およびキュリー単位の両方で示してある。ルテニウムとセシウムとは別々の項目として表に載せた。というのは、両放射性物質とも廃棄物中の他の放射性核種と比べて、比較的優先的に放出される揮発性化合物を形成することが出来るからである。

ルテニウム放出量は、小さな事故及び中程度事故に限って言えば、他の放射性核種放出量に比べて多い。その原因是、以下のような比較的控え目な2つの仮定に基づいているからである。すなわち、ルテニウムは、揮発性形態に変わりやすい高転換要因を持つという仮定がその一つ。また、もう一つの仮定は、セルおよび発電所換気装置内において、揮発性ルテニウム形能物質を効果的に除染を起させることが出来ないのだ、というものである。

重大な事故の放出量は最大であるが、その原因は二つある。その一つは、処理機能上の混乱がより大であること。もう一つは、この場合、セルHEPAフィルターは工学的保護装置としてはふつう入手不可能であることである。この仮定は、原子炉の各種設計ミス分析に関する別の仮定に基づくものである。すなわち、工学的保護装置はふつう入手不可能だという仮定であるが、これがライセンス契約の存在理由の一部でもある。

重大な事故のすべてに亘って共通することであるが、放出量が最大になる発生原因是、プロセスへの加圧およびセル間境界への破損の2つである。この2つの発生原因から見て、次の直感的判断が正しいことが分かる。すなわち、固化処理装置の設計は、どのような爆発可能性が予想されても、放射性物質処理中は、未然に完全防止され得るものでなければならぬことは言うまでもなく、さらには、処理機能遂行重要機械部分は、たとえどのような重大事故が起ろうとも絶対に破損を未然に防止し、放射性核種が上記部分から外へ漏れないよう設計されていなければならない。

最大微粒子放出が原因で発生する特別の事故は、設計ミス竜巻である。竜巻が原因で引き起された減圧は、原子力発電所の換気系のHEPAフィルターを破壊し、セルHEPAフィルターも使用不能だと仮定する。すると、仮に竜巻自体はほとんど処理機能上の混乱を与える原因とはなり得ないとしても、上記換気系の脱除染機能が作動しないため、メルター・オフガスから逃げるすべての放射性核種が、スタックへ放出される。しかも、同様の事故仮定が、万一LFCMプロセス以外の固化プロセンに適用された場合には、同様かもしくはそれ以上の放出量が必ずや期待されることであろう。次に、2番目に大きい微粒子放射性物質が、メルター中の蒸気爆発を原因として放出される（この蒸気爆発は、溶融ガラスと液体フィードとの間の熱反応が原因で発生

したものである。)。プロセスセル中には、かなりの量にのぼる廃棄物の飛散があるとはいものの、原子力発電所換気系があるため、この種の事故による放射性物質放出量を制覇することが出来る。

各種放射性物質を放射能単位（キュリー）のみで表示すると、放射性核種によっては、その他のものと比べて、生物学的にもっと害が大きいものもあるのだという事実が、不鮮明になってしまふ。従って、簡略化した線量計算法を採用し、その計算結果を第8・9・10表に含めた。この線量計算結果に基づくと、次のことが予測出来るのである。即ち、放射性物質放出雲が敷地境界を通過する時、その最悪地点に立っている人（1人）が、それより50年後に累積全身吸収する量はいったいいかなるものであるか、である。計算中用いた線量要因については、D A C R I N 規定集（Henston, Srenge & Watson, 1976）より選んだが、実際の線量計算は筆算によつた。この線量は、上記の放出雲通過中吸入された線量のみをその計算考慮対象とし、放射能汚染された陸・水・作物のいずれにしろ人体が長時間露出されるという点は、この場合、考慮対象外であることに注意されたい。また、露出期間中の放出雲の照りの示す線量の予備計算によると、吸入露出時の線量の約 $\frac{1}{10}$ と判明したため、上記計算中、この放出雲の照りに関しては、含めてはいられない。

なお、上記の線量計算にあたって用いた、用地および気象状態に関して下した仮定内容は、米国原子力委員会発行 The Regulatory Guide (1974年) ハンドブックの第1章第3節目に記すものに基づいている。すなわち、50メートルスタックを有する原子力発電所の半径2キロの用地において、0～8時間にわたって大気中核分裂反応が発生中という想定である。そして、上記仮定内容に関する x/Q 比は、 $3.5 \times 10^{-5} \text{ s/m}^3$ である。

最大全身線量の 0.57 rem は、設計ミス竜巻事故発生中微粒子放出時に得られた値である。固化処理プラント内外ではあまり起りそうにもない各種設計ミス事故については、公衆被曝の観点から計算内容に組み込んだらよいかどうかの判断は、各当事者自身が決定を下すべきものであり、別にはっきりこうだと言った公的指導基準があるわけではない。とはいえ、固化処理プラント設計ミス事故による線量を、NRC のまとめた「原子炉工場建設用地指定許可基準（1979年）」中で指定する許容線量と比較してみると、かなり参考になるかも知れない。この規制基準によれば、設計ミス事故がたとえ起ったとしても、その結果成じる放射線の線量は、人体全身について最大25レムが許容範囲であり、除外区域にいた個人が2時間の放射線被曝を受けた時の甲状腺ヨウ素線量は、最大300レムが許容範囲である。また、周辺の低人口地域（すなわちサイト境界外にある地域のこと）の個人にしても、仮に全放出雲被曝を受けたとしても、上記線量は絶対に被災しないようにすること、とある。

結論

前出の放射能放出計算結果によると、最大放出量の発生原因是、プロセス加圧に伴なう各種事故、およびそれと同時に1台でもセル内 HEPA フィルターが破損した場合の各種事故の2種類ある。この結果からはっきり言えることは、固化処理装置の設計は、予想されるどのような爆発可能性といえども、放射性物質処理中は、未然に完全防止され得るものでなくてはならないし、さらに言えば、処理機能遂行重要機械部分は、たとえどのような重大事故が起らうとも絶対に破損を未然に防止し、放射性核種が上記部分から外へ漏れないよう設計されていなければならない。」という直観判断は正しい、ということである。セル HEPA フィルターは、放射性核種放出の主要防御壁の役を果たす。従って、保守点検作業が楽だからという安易な理由から、セル HEPA フィルターを圧力変動・衝撃波・ほこりや煙のつきすぎ・湿気や火気の危険に瞬時でもさらしてよいとは夢々考えるべきではない。設計担当者としても（もしそういった希望が発注者より与えられればの話だが）、それ以外に重複した工学的保護装置をつけておくべきである。すなわち、補助防災タンク（プロセス加圧気孔用）、スタック内のルテニウム吸着塔、およびHLLW プロセス配管・タンク二重封じ込め装置などである。

中程度の事故におけるルテニウム放出量を線量で測定してみると、各種微粒子放出量に比べて多いことがわかった。これは以下のような2つの保守的仮定の結果からわかる。

(1) ルテニウムは、揮発形態に変わりやすい高転換要因を持つということ、および(2)セルあるいはプラント内換気装置は、このように揮発性に富むルテニウムを効果的に除染することが出来ないということ、の2つである。ある特定の固化処理プラントを分析してみて、ルテニウム放出推定量がだんだん低くなっているのならば、それは正常なことである。だが、そうではないとするのなら、同プラントの換気系にいくつかルテニウム吸着塔をつけることが必要である。これにより、ルテニウムが偶発事故で放出される前に汚染防止が出来る。プロセスセルおよびプラント換気装置が、放射性核種の外部放出を効果的にかつ完全に防止するため、LFCM プロセスは、他のどのような固化プロセスよりも、はるかに無公害安全性が高い。実際のところ、放射性物質大量放出事故原因として挙げられるのは、設計ミスによる竜巻被災であって、内部プロセス上の機能崩壊ではない。

要約すれば、本放射線安全管理実態調査にて算出された各種放射性物質放出量の具体的な数値は、以後、さまざまに異なる型の放射線事故の事故結果を具体的に比較するためには、たいへん役に立つものである。固化処理プラントの設計がより具体化すればするにつれ、放射性物質放出量を改善し、解析用に使ったさまざまの仮定のもつ控え目な面を弱める可能性も高まって来るであろう。同様に、本実態調査が社会に寄与する大切な点は、事故シナリオをつつみかくさず書き

記したことである。示した事故描写的数々は、当社の LFCM 開発を通じて得られたさまざまの知識を色濃く反映するものであり、必ずやプラント設計者がそれらを駆使し、最終的には、プロセス及び設備ともに、信頼性と安全性とを向上することに役立てることであろう。

参 考 文 献

Anderson, W.L. and T. Anderson. 1966. "Effect of Shock Overpressure on High Efficiency Filter Units," In Proceedings of 9th AEC Air Cleaning Conference, Report CONF-66094, United States Atomic Energy Commission, Washington, DC.

Atomic Energy Commission. 1974. Assumptions Used for Evaluation the Potential Radiological Consequences of a Loss of Coolant Accident for Boiling Water Reactors, Regulatory Guide 1.3, Revision 2, Washington, DC.

Bell, M.J. 1973. ORIGEN - The ORNL Isotope Generation and Depletion Code. ORNL-4628, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.

Bradley, R.F. and C.B. Goodlet. 1972. Denitration of Nitric Acid Solutions by Formic Acid. DP-1299, Savannah River Laboratory, Aiken, South Carolina.

Buelt, J.L. and C.C. Chapman. 1978. Liquid Fed Ceramic Melters: A General Description Report. PNL-2735, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.

Buelt, J.L. and C.C. Chapman. 1979. Slurry Feeding of Nuclear Waste to an Electric Glass Melter. PNL-SA-7571. Presented at the ANS Meeting in Atlanta, Georgia.

Christian, J.D. 1976. "Process Behavior and Control of Ruthenium and Cesium," Presented at the ANS-AICHE Meeting on Controlling Airborne Effluents from Fuel Cycle Plants, ANS-AICHE Meeting, August 5-6, 1976.

Christian, J.D. and D.T. Pence. 1977. Critical Assessment of Methods for Treating Airborne Effluents from High-Level Waste Solidification Processes, PNL-2486, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.

Environmental Radiation Protection Standards for Nuclear Power Operations, 40 C.F.R. Section 190 (1979).

Gray, W.J. 1976. Volatility of a Zinc Borosilicate Glass Containing Simulated High-Level Radioactive Waste. BNWL-2111, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.

Hall, J.C. 1977. Conceptual Liquid Waste Storage and Solidification Baseline Description. NMS-7, Allied-General Nuclear Services, Barnwell, South Carolina.

Hanson, M.S. 1980. Spray Calcination/In-Can Melting: Effluent Characterization and Treatment. PNL-3109, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.

Hanson, M.S. and J.O. Kaser. 1976. Design of Off-Gas Cleaning Systems for High-Level Waste Vitrification. BNWL-SA-5686, Paper presented at the 14th ERDA Air Cleaning Conference, Sun Valley, Idaho.

Houston, J.R., D.L. Strenge, D.C. Watson. 1976. DACRIN, A Computer Program for Calculating Organ Dose from Acute or Chronic Radionuclide Inhalation. BNWL-B-389, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.

Larson, D.E. and W.F. Bonner (eds.). 1976. High-Level Waste Vitrification by Spray Calcination/In-Can Melting. BNWL-1092, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.

Landon, L.F. 1980. Preliminary Technical Data Summary No.3 for the Defense Waste Processing Facility. DPSTD-77-13-2, Savannah River Laboratory, Aiken, South Carolina.

National Emission Standards for Mercury, 40 C.F.R., Section 61 (1979).

Nuclear Regulatory Commission. 1974. Design-Basis Tornado, Regulatory Guide 1.76, Washington, DC.

Nuclear Regulatory Commission Standards for Protection Against Radiation, 10 C.F.R., Section 20 (1979).

Nuclear Regulatory Commission Reactor Site Criteria, 10 C.F.R., Section 100 (1979).

Perry, R.H. and C.H. Chilton. 1973. Chemical Engineer's Handbook. Fifth Edition, McGraw Hill Book Co, New York, New York.

Postma, A.K., C.C. Chapman and J.L. Buelt. 1980. An Assessment of Water/Glass Interactions in Waste Glass Melter Operation. PNL-2622, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.

Pye, L.D. 1979. An Investigation of Controlling Mechanisms in Simulated Nuclear Waste Glass Melting and Gas Generation. New York State College of Ceramics, Alfred University, Alfred, New York.

Ross, W.A., et al. 1979. "A Comparison of Glass and Crystalline Waste Materials," Ceramics in Nuclear Waste Management. Technical Information Center, U.S. Department of Energy, Springfield, Virginia.

付 錄 A

蒸 気 爆 発

水とガラスの激しい相互作用が起こることは全く予想されないが、この安全性評価においては種々のレベルでの水とガラスの相互作用を考慮した。しかしながら、それらの発生がありそうにもないこと、およびそれらを防止するのにとる方法を強調するために、水とガラスの相互作用を調査した報告から、要約と結論の部分をここに引用しておく。

(Postma , Chapman and Buelt 1980, P5~P8)

LFCMにおける蒸気爆発の可能性を評価するために、利用可能な情報の研究がなされた。蒸気爆発（ガラスと水の激しい相互作用）は、液体供給メルターを運転する場合に考慮する必要がある。というのは、他の産業での作業工程における経験によると、もし高温の液体がそれより低温気化性の液体と混合されると激しい爆発が起りうるからである。激しい爆発が起るためには多くの必要条件が満たされねばならないが、この研究では、それら必要条件のすべてが液体供給メルターの運転において満たされるかどうかを決定することを目的とした。

水溶液を供給するガラス溶融炉の運転においてこれまでかなりの量の経験が世界的に積重ねられてきた。これまでのところでは、激しい相互作用はひとつとして生じていない。この経験および理論的解析から、水とガラスの激しい相互作用は、たとえ起りうるとしても、その確率は低いということが言える。しかしながら、現在利用可能な情報からだけでは、液体供給ガラス溶融炉における蒸気爆発の可能性を全くゼロだと考えるわけにはいかない。メルターの中で生じうる範囲内での条件のもとで蒸気爆発が可能でないことを示すためには、溶融状態のガラスと廃棄物溶融液を故意に混合する実験をさらにおこなうことが必要である。

このような追認的実験を完遂するのに必要とする間、蒸気爆発の可能性を最小にするようないくつかの予防措置が明らかにされている。以下にかけられている四つの予防措置は実用的のように思えるし、現存のメルターの運転に悪影響を及ぼすことはない。

1. 液体フィードはメルターに送りこまれる前に予熱されるべきである。もし冷たい方の液体がその沸点に近いと蒸気爆発は生じないということを示す文献データに基づき、液体フィードはその沸点より10℃以上冷たくしないということを、控え目ではあるがすすめる。
2. メルターのさまざまな部分を冷やす冷却水回路は、冷却水管の亀裂からもれた冷たい水が溶融状態のガラスと接触することのないようにチェックをする必要がある。
3. 熱せられていないプロセス水を熱いメルターに送りこむことはさけなければならぬ

い。

4. ガラス製品の製造は著しく粘性の低い状態で行なわないように設計する必要がある。

この報告のあとで示すように、粘性による拡散 (viscous dissipation) は蒸気爆発を阻止する。1050 °Cで50ポアズ以上の粘度をもつ典型的な廃棄物ガラスに対しては、粘性による抑制効果が激しい反応を防ぐことが期待される。しかしながら、もしガラス粘度が典型的な値よりも低い場合には、粘性による阻止効果はそれだけでは相互作用を防止するのに十分でないかもしれません。

これまでの研究で支持されたそれ以外の結論は以下の通りである。

- かなりの量の液体が過熱 (Superheat) されると蒸気爆発が生じる。もし温度が自発核形成温度を超えると、液体が突然気化しそれが衝撃波や潜在的に破壊的な圧力パルスを発生させることがありうる。液体を用いるガラス溶融炉の平常の運転状態のもとではこのような相互作用はおこりそうもないという結論に我々は到達した。
- 大量の液体を過熱するのに十分な熱量を与えるためには、熱せられた液体を分解し、相当量の冷たい液体中に分散しなければならない。実験研究によると蒸気膜の破壊が分解過程を生じることがわかった。数回の蒸気の消滅と成長のプロセスが、液体を分散するのに十分な圧力パルスを誘起するフィードバック過程で生じるかもしれません。液体供給のガラス溶融炉では、そのような分解は安定な膜沸とうと溶融ガラスの高い粘性によって防止される。
- 熱い物質が固体である時には蒸気爆発は決しておこらない。それは次の二つの理由による。(1)固体は蒸気膜の消失によってはきれいに霧散することができない。(2)固体は核形成本として働き、蒸気形成核が存在するときには、液体をかなりの程度過熱することはできない。液体を用いるガラス溶融炉においては、典型的な廃棄物ガラスはその温度が膜沸とうの崩壊を許すほど下る前に固まってしまうということが予期されている。このことひとつだけでも、通常の条件のもとでは蒸気爆発を防ぐ。
- 溶融ガラスを使った小規模な実験によると、熱した液体が溶融金属であった時には爆発を生じたような実験条件のもとでも、ガラスを使った時には蒸気爆発は生じなかつた。このことはガラスのより低い熱拡散性とより高い粘性が蒸気爆発を抑えるように作用するという説を支持することになる。
- 蒸気爆発を理解しようとして現在非常に大きな努力が世界中でおこなわれている。しかしながら、蒸気爆発をおこすための十分条件をすべて記述する単一モデルで誰でもが同意するようなものはこれまでのところまだない。したがって、すべての具体的な熱条件のもとで、ガラスと水の蒸気爆発が発生するかどうかを理論だけで予言することは不可能である。

- 廃棄物ガラス溶融炉において蒸気爆発を防ぐ条件には次のようなものがある。
 - (1)核形成を助長し、ガラスの過熱を防ぐような浮遊物質が原料の中に含まれていること。(2)原料が予熱されていること(水が60°C以上に熱せられているとき蒸気爆発は起こらないことが実験で示されている。)(3)ガラスの粘性が高く、蒸気爆発に必要な短時間での分解を防げること。
- 粉末フリットを含む液体フィードには固体粒子が分散しており、起りうる過熱の程度を下げる。もしそれらの粒子が核形成の場として機能したならば、過熱性の蒸気爆発は起こりえないだろう。しかしながら、十分なデータがないために、浮遊粒子が存在するゆえに爆発が生じるような相互作用を割引するという結論を下すことはできない。
- 経験によると、CO₂のような溶込んでいるガスもまた激しい相互作用を防止することができる。仮説的にいって、凝縮しないガスは二種類の液体の間のクッションとしてはたらき、したがって蒸気膜の消失を許さない。これが熱い液体の分解を防止し、従って激しい相互作用がおこらない。
- 液体供給メルターの運転中に伴なう条件下では、水とガラスとの激しい相互作用はおこりそうもないということを示すために、数十キログラムの溶融ガラスと廃棄物溶液を故意に混ぜあわせる実験が必要である。

この報告で述べた結果を生かすため、非常に小さな蒸気爆発の可能性をも除外するよう、PNLにおける研究開発の方法を更新した。以前には、供給ノズルを冷却しノズルがこびりつきつまるのを防ぐために、スラリーの前に浮遊粒子を含まない水数リットルを溶融炉に送りこんでいた。今では、熱せられていないプロセス水を入れるのを排除するために、水冷式のノズルがとりつけられている。また、爆発をおこさない保証温度である90°Cにフィードを予熱するように手順を変更した。それに加えて、エアーリフト段階で十分な量のCO₂が原料の中に溶解されるかどうかを決めるために設計計算もおこなっている。この報告では、もし水中におけるCO₂の濃度が飽和条件の10%にあたる80m³Kg⁻¹にまで達すれば、それは蒸気爆発に対するもう一つのバリアを与えることになることを示している。

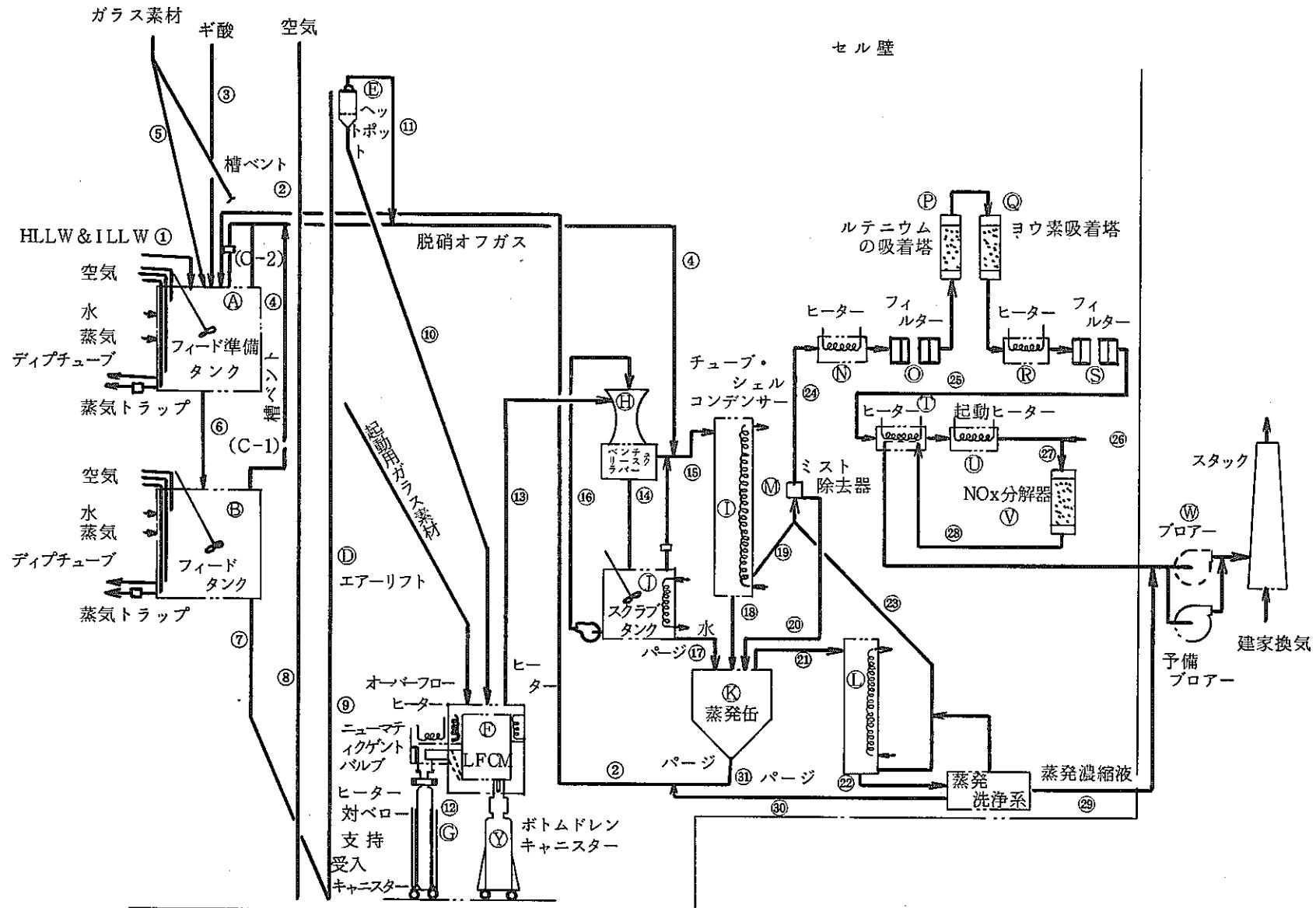
参 考 文 献

Postma, A.K., C.C. Chapman, and J.L. Buelt. 1980. An Assessment of Water/Glass Interactions in Waste Glass Melter Operation, PNL-2622, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.

付 錄 B

安全性評価に使われた液体供給 セラミックメルタープロセス

原子炉廃棄物は軍用廃棄物よりも放射能レベルが高いので、原子炉廃棄物のフローシートについてのみ非定常状態およびその結果が仮定された。この安全性評価に使われたフローシートについてのより詳しい記述はこの付録の中の図および表に与えられている。B.1図は原子炉廃棄物の固化フローを示し、B.1表とB.2表はフローラインと装置における廃棄物の特性を示し、B.3表はそれぞれの装置について、割り当てられた除染係数とともに詳しい記述を与える。比較のために、軍用廃棄物の詳しいプロセスフローがB.2図に与えられている。



図B.1 原子炉廃棄物固化プロセスフローシート

表 B. 1. 原子炉廃棄物固化プロセスラインの物質収支と放射能収支

プロセスパラメータ	HLLW & ILLW	リサイクル 凝縮液	ギ酸	脱硝オフガス	ガラス素材	フィード	エアーリフト へのフィード	空気	エアーリフト からのフィード	メルター へのフィード	空気	ガラス
	1 ^(a)	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
液 体												
流 量 , L/h	138	14	95			148	148		148	148		22
酸モル濃度 (g moles/L)	5	4	15			0.5						
比 重	1.243	1.084	1.165									
気 体												
凝縮性, g-moles/h			1930									
H ₂ O												
HNO ₃												
非凝縮性, g-moles/h			2590				27	27		27		
N ₂												
O ₂												
CO ₂												
NO												
NO ₂												
NH ₃												
温 度 , °C						90		90		90		
压 力, kPa												
固 体												
質量流量, kg/h			35							53		
放 射 能												
Ru-106, Ci/min									160			
Ru-106, Ci/L									67			
Particulates, Ci/min									1.9+3			
Particulates, Ci/L									780			

(a) プロセスラインはB. 1図での番号で識別する。

(b) 無視できる。

表 B. 1. (続き)

プロセスパラメータ	オフガス 13 ^(a)	凝縮液 14	洗浄済 オフガス 15	スクラップ液 16	スクラップ ページ 17	凝縮液 18	非凝縮性ガス 19	ミスト 凝縮液 20	蒸発缶 オフガス 21	凝縮液 22
液体										
流量, L/h		31920		31800	134.8	34.8		(b)	156	156
酸モル濃度 (g moles/L)										
比重										
气体										
凝縮性, g-moles/h	7367		1930							
H ₂ O		7300		1930						
HNO ₃		67								
非凝縮性, g-moles/h	1799		4389				4389			
N ₂		1185		1324			1324			
O ₂		391		430			430			
CO ₂				1447			1447			
NO				965			965			
NO ₂		223		223			223			
NH ₃										
温度, °C	110		50	30						
圧力, kPa				621						
固体										
質量流量, kg/h										
放射能										
Ru-106, Ci/min	8	1.7E+3	0.8		7.2		4.0E-3			
Ru-106, Ci/L	2.3E-3	3.2	3.3E-4		3.2		2.4E-6			
Particulates, Ci/min	9.5	2.0E+3	0.95		8.6		9.5E-3			
articulates, Ci/L	2.8E-3	3.8	4.0E-4		3.8		5.8E-6			

(a) プロセスラインは B. 1 図での番号で識別する。

(b) 無視できる。

表 B. 1. (続 き)

	非凝縮性ガス プロセスパラメータ	23 ^(a)	非凝縮性ガス 24	除染済オフガス 25	アンモニア 26	NO _x 分解器 へのフィード 27	スタック オフガス 28	スタックへの 蒸発缶凝縮液 29	ページ 30	ページ 31
液体										
流量, L/h									(b)	14
酸モル濃度 (g moles/L)										4.8
比重										1.1
气体										
凝縮性, g-moles/h								1781		
H ₂ O							1781			
HNO ₃										
非凝縮性, g-moles/h	(b)	4389	4389			5577	4204			
N ₂		1324	1324			1324	2512			
O ₂		430	430			430	245			
CO ₂		1447	1447			1447	1447			
NO		965	965			965				
NO ₂		223	223			223				
NH ₃					1188	1188				
温度, °C										
圧力, kPa										
固体										
質量流量, kg/h										
放射能										
Ru-106, Ci/min		4.0E-3	2.0E-5			6.7E-8				
Ru-106, Ci/L		2.4E-6				3.0E-11				
Particulates, Ci/min		9.5E-3	9.5E-11			9.5E-11				
Particulates, Ci/L		5.1E-6				4.3E-14				

(a) プロセスラインはB. 1図での番号で識別する。

(b) 無視できる。

表 B. 2. 原子炉廃棄物固化プロセス機器の物質収支と放射能収支

プロセスパラメータ	A ^(a)	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M
液体													
流量, L/h				148	148	148 (廃棄物)		31800	35			156	
比重													
容量, L	2000	2100								8000	1500		
定常インベントリー, L	1184	1184								5300	500		
気体													
凝縮性, g-moles/h								7367					
H ₂ O								7300					
HNO ₃								67					
非凝縮性, g-moles/h			27(空気)					1799				4389	
N ₂								1185				1324	
O ₂								391				430	
CO ₂												1447	
NO												965	
NO ₂								223				223	
温度, °C	95	90			1200					30	100		
圧力, in. H ₂ O					-10								
固体													
質量流量, kg/h					53	53							
定常インベントリー, kg					(ガラス)								
					1350	100							
					(ガラス)								
放射能													
Ru-106, Ci/min													
Ru-106, Ci/L	67	67				489	448			3.2			
Particulates, Ci/min													
Particulates, Ci/L	780	780				6.0E+3	5.5E+3			3.8			

(a) 各機器は図. B. 1 の文字で識別される。

(b) 捕集量,

(c) Ci/yr

表 B. 2. (続き)

プロセスパラメータ	N	O	P	Q	R	S	T	U	V	W	X	Y
液 体												
流 量, L/h												2.75
比 重												712.0
容 量, L												0
定常インベントリー, L												
気 体												
凝縮性, g-moles/h										1781	1781	
H ₂ O									1781	1781		
HNO ₃												
非凝縮性, g-moles/h	4389	4389	4389	4389	4389	4389	4389	4389	4204	4204		
N ₂	1324	1324	1324	1324	1324	1324	1324	1324	2512	2512		
O ₂	430	430	430	430	430	430	430	430	245	245		
CO ₂	1447	1447	1447	1447	1447	1447	1447	1447	1447	1447		
NO	965	965	965	965	965	965	965	965				
NO ₂	223	223	223	223	223	223	223	223				
温 度, °C												
压 力, in. H ₂ O												
固 体												
質量流量, kg/h												
定常インベントリー, kg												
放 射 能												
Ru-106, Ci/min				4.0E-3 ^(b)						2.0E-5 ^(b)		
Ru-106, Ci/L				1.7E+3 ^(c)						8.6 ^(c)		
Particulates, Ci/min		9.5E-3 ^(b)					9.5E-7 ^(b)					
Particulates, Ci/L		4.2E+3 ^(c)					0.42 ^(c)					

(a) 各機器は 図. B. 1 の文字で識別される。

(b) 捕集量

(c) Ci/yr

表B.3 プロセス機器の記述

機 器	記 述
フィード準備タンク (A)	容量 2,000 l。通常のインベントリーは 1,200 l である。 脱硝とガラス素材の混合に使用される。温度コントロール (90°C ~ 95°C) の為に水および蒸気コイルを装備している。 回分操作で 8 時間毎にタンクに再充填される。タンクの設計および攪拌系によりスラッジの蓄積を防止している。 ディップ・チューブと最大レベルの警報を装備している。
フィードタンク (B)	容量 2,100 l。通常のインベントリーは 1,200 l である。 冷却水コイルと蒸気加熱コイルにより、フィードの温度を 90 °C に自動制御している。メルターにつながっているエアリフトラインへこのタンクからフィードされる。タンクの設計および攪拌系によりスラッジの蓄積を防止している。ディップチューブと最大レベルの警報を装備している。
ベント・オリフィス (C)	タンク A, B および K のベントにつけられている。オリフィスは、タンクベント流量が最小になるようにオフガス系に流量減少を与える。
フィードエアーリフト(D)	フィードタンクからメルターへの液体廃棄物量を測定する。長さは、タンクとメルターとの高さ関係に依存している。空気はタンクレベルより高いところより供給され、バックアップ保護として、チェックバルブを持っている。配管径は約 1 インチである。空気供給量は約 10 l / 分である。
気液分離／ヘッドポット(E)	メルターの高さより高いところに設置されている。気液分離を行う。オーバーフロー配管により入れすぎを防止する。
液体供給 セラミック メルター(F)	模擬廃液を用いた実験により決定された D F は、微粉に対して 200 であり、ルテンウムに対して 20 である。 (Buelt and Chapman 1979) (報告書に記述されている)
キャニスター (G)	貯蔵庫の熱負荷限界により、キャニスターのインベントリーは約 100 l (300 Kg) に制限されるだろう。したがって、キャニスターの寸法は、直径 30.5 cm, 長さ 180 cm に定

表B.3 (続き)

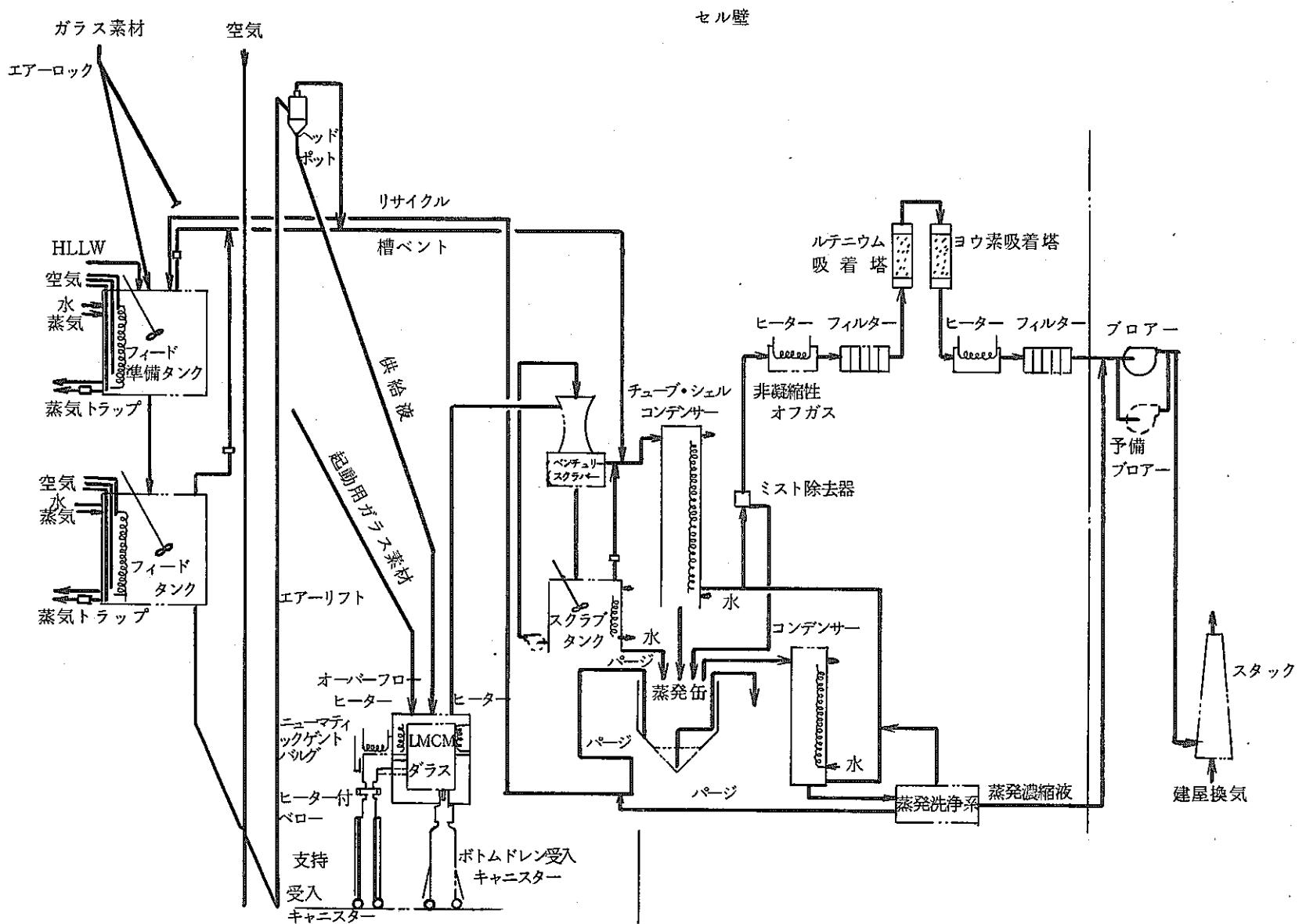
機器	記述
	められている。キャニスター材質の第一候補はステンレススチール304である。メルターとキャニスターの結合部はキャニスター交換の為にナイフ・ゲート・バルブ(空気作動)を装備している。フレキシブル・ベローにより結合の調節が可能であり、熱膨張に適応する。この領域におけるガラスのつまりを防止あるいは、直すためにヒーターが設けられている。
ベンチュリースクラバー エジェクター (H)	このオフガス処理段階の主目的は、メルターオフガスの凝縮であるが、同時にメルターオフガスから多量の微粉を除去する。凝縮液は収集タンク内で冷却され洗浄液としてリサイクルされる。通常のメルターオフガスは 136 Kg/hr の凝縮性ガスと 56 Kg/hr の非凝縮性ガスを含んでいる。しかし、ベンチュリーは 408 Kg/hr までの蒸気流量の急増に対処できる大きさに作られている。これは 620 KPa , 30°C において直径 9 cm のノズルを通して、 530 l/min のスクラビングを必要とする。ベンチュリーのDFは微粉に対して少なくとも10であり、揮発性ルテニウムに対して10である。 (Christian and Pence 1977)
メイン コンデンサ (I)	メインコンデンサはベンチュリーからのいかなる蒸気持ちこしにも対応し、脱硝プロセスからくる蒸気を凝縮し、微粉に対して 10^2 、揮発性ルテニウムに対して 2×10^2 のDFを与える。(Christian and Pence 1977)
	コンデンサへの通常の流量は、 35 Kg/hr の蒸気と $9.8 \times 10^4\text{ std l/hr}$ の非凝縮性ガスである。コンデンサは 400 Kg/hr までの付加的な蒸気急増に対処できる大きさに作られている。
ベンチュリースクラブ タンク (J)	この容量 $3,000\text{ l}$ のタンクは、メルターからの凝縮液を、保持、攪拌、冷却する。凝縮液が蓄積するにつれ、蒸気缶へ連続的にオーバーフローする。最大レベルの検知器が設けられている。
蒸気缶 (K)	これはオフガス系における主蒸気缶である。ベンチュリー

表B.3 (続き)

機器	記	述
		スクラブタンク (J), コンデンサ (I) およびミスト除去器 (M) から凝縮液を受け入れる。蒸発缶のボトム液はフィードタンクへリサイクルされる。蒸発缶は 1,400 ℥までの凝縮液 (1シフト分) を保持する。
蒸発缶コンデンサ (L)		約 155 Kg/hr の蒸気を凝縮する。凝縮液は凝縮液浄化系として知られる多段の蒸気缶 / コンデンサに送られる。除染された凝縮液は、液体排出ゼロの考え方へ従って、プロトスタックへと蒸発される。
ミスト除去器 (M)		D F に対して貢献しない。オフガス流からミストを除去するのにバッフルとワイヤ・メッシュを用いる。
ヒーター (N)		HEPA フィルターおよび吸着塔での凝縮を防止するためにオフガスの温度を自動的にコントロールする。ガス流量は約 1,650 std ℥ / min である。下流の HEPA フィルターにダメージを与える可能性を避けるために過温度安全器がとりつけられている。
HEPA フィルター (O)		2段 HEPA フィルターが微粉に対して 10^4 の D F を与える。通常のガス流量は 1,650 ℥ / min (60 sfm) である。 30.5 cm 平方で深さ 30 cm の HEPA フィルターは流量 7,100 ℥ / min で圧力損失が 0.25 KPa (1インチ H ₂ O) である。したがって、このサイズのフィルターは、流量が 10 倍にならなければ、大きな圧力損失とはならない。(Long 1978) このフィルターは破壊するまでに約 21 KPa (3 psi) のショック圧力に耐えることができる。(Anderson and Andersm 1966) 材質は耐熱性である。
ルテニウム吸着塔 (P)		ルテニウムを捕集する媒質としてシリカゲルガが用いられている。ベットは水洗することにより部分的に機能を回復させることができある。D F は室温における方が高温でよりも大きい値をとる。 2×10^2 の D F は妥当な実用値である。しかしながら、測定値はこれより高かつたり低かたりしている。(Newby and Barnes 1975) 空塔速度は 12 cm/s より小さくなければならない。そこ

表B.3 (続き)

機器	記	述
		で塔断面積は、 0.23m^2 以上でなければならない。負荷に対する安全率2で1年間の運転で $0.049\text{gRu}/\text{MTUWE}$ 吸着するためには、圧力損失 0.25KPa (1インチ H_2O)の高さ 13cm のカラムが必要である。
ヨウ素吸着塔 (Q)		銀ゼオライトは 10^3 のDFを持つ有効なヨウ素吸着材である。(Burger and Burns 1979)各MTUWE中の 245g のヨウ素のうちのわずか 0.5% (1.2g)だけがHL LW中に存在すると仮定されている。 100g のソルベントに対して約 7g のヨウ素吸着能力を仮定すると、約 100kg のソルベントは負荷に対する安全率2で1年間の運転(1,500 MTUWE)に対応できる。それぞれの吸着塔は、流路断面積 0.23m^2 で高さ約 30cm である。圧力損失は約 1KPa (4インチ H_2O)である。
ヒーター (R)	Nと同じ	
HEPA フィルター(S)	Oと同じ	
ヒーター (T)		このヒーターは、流入してくるオフガスを反応に最適な温度($\sim 500^\circ\text{C}$)に予熱するために NO_x の触媒還元から得られる熱をも利用するということを除いてはNと同じ。
起動ヒーター (U)		オフガス温度を NO_x 分解器が機能できる温度にあげるのに十分なヒーター。
NO_x 分解器 (V)		NO_x を N_2 , O_2 , H_2O に分解する NH_3 還元に対して触媒マトリクスとして機能するゼオライトベッドである。これらの反応は 350°C から 500°C で生じる。 NO_x の約 99% が除かれる。このベッドはまた揮発性 RuO_4 も減少させる。 Ru に対するDF300は現実的である。 (Christian and Pence 1977)
オフガスプロア (W)		2器の並列のプロアー(1器は予備)で、それぞれ予想される最大オフガス流量の125%の定格を持ち、メルターおよびオフガス系に対して圧力差を与える。
プラントスタック (X)		スタック高さおよび建屋空気の希釈はサイトにより設定される。



図B.2 軍用廃棄物固化プロセス フローシート

参 考 文 献

Anderson, W.L. and T. Anderson. 1966. "Effect of Shock Overpressure on High Efficiency Filter Units," In Proceedings of 9th AEC Air Cleaning Conference, Report CONF-660904, United States Atomic Energy Commission, Washington, DC.

Buelt, J.L. and C.C. Chapman. 1979. Slurry Feeding of Nuclear Waste to an Electric Glass Melter. PNL-SA-7571. Presented at the ANS Meeting in Atlanta, Georgia.

Burger L.L. and R.E. Burns. 1979. Technical Requirements for the Control, of ^{129}I in a Nuclear Fuels Reprocessing Plant. Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.

Christian, J.D. and D.T. Pence. 1977. Critical Assessment of Methods for Testing Airborne Effluents from High-Level Waste Solidification Processes, PNL-2486, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.

Long, J.T. 1978. Engineering for Nuclear Fuel Reprocessing. American Nuclear Society, LaGrange Park, Illinois.

Newby, B.J. and V.H. Barnes. 1975. Volatile Ruthenium Removal from Calciner Off-Gas Using Solid Sorbents. Allied Chemical Corporation, ICP-1078, Idaho Falls, Idaho.

付 錄 C

高レベル廃液中の放射性核種のアクティビティー

プロセスフローシート作成の一環として、通常運転で必要とされるDFがおよそどの程度かを決定することが望まれた。ここに、満たさるべき二つの主要な法規がある。ひとつは「放射線防護に関する原子力規則委員会規準」(1979, 第20・106項)であり、それは基本的には、敷地境界の大気中の放射性核種の許容濃度を制限するものである。もう一つは「原子炉の運転に関する環境放射線防護規準」(1979)である。EPA規制は核燃料サイクルにおける⁸⁵K, ¹²⁹Iおよびアルファ粒子を放出する超ウラン元素の総放出量を制限し、また燃料サイクルにおいて、放射性物質を計画的に放出した結果として公衆が受ける年間線量当量を制限している。EPA規準はNRC濃度制限よりも厳しいが、EPA規準は実施されたばかりで、承諾を受けるような計算モデルはまだ十分に確立されていない。この研究では、⁸⁵K, ¹²⁹Iおよびアルファ粒子を放出する超ウラン元素の総放出量に関する制限値のみがEPA規制に基づいて計算された。

NRC規制についての計算をする上では、敷地の平均的気象条件や立地条件を知ることが必要だったが、それは敷地境界での濃度を測定するためである。大気拡散係数、 X/Q は $10^{-7} \text{ s}/\text{m}^3$ とした。この値は、サウス・カロライナ州バーンウェルにあるAllied General Nuclear Service再処理プラントにおいて、測定された平均値として報告されている。(Christian and Pence 1977)。

C.1表はORIGENコードによって計算されたもので、原子炉から取り出し後3年経過し、その間再処理された放射性核種のアクティビティーのリストである(Bell 1973)。NRC基準による各放射性核種についての最大許容濃度(MPC)は2列目に与えられている。各核種の重要度は、実際のところMPCに対するアクティビティーの比で表わされるので、これは3列目に与えておいた。

表C.1 原子炉取り出し後3年経過しその間再処理された放射性核種のアクティビティーとNRCの最大許容濃度

アイソトープ	アクティビティー Ci/MTU	MPC, Ci/m ³	アクティビティー/MPC
軽元素			
H-3	5.28E-02	2E-07	2.6E+09
Se-79	3.5E-01	1E-10	3.5E+09
Sr-89	3.72E-02	3E-10	1.2E+08
Sr-90	6.14E-04	3E-11	2.0E+15

表 C.1 (つづき)

<u>アイソトープ</u>	<u>アクティビティー Ci/MTU</u>	<u>MPC, Ci/m³</u>	<u>アクティビティー/MPC</u>
軽元素			
Y-90	6.15E-04	3E-09	2.1E+13
Y-91	3.36E-01	1E-10	3.4E+09
Zr-93	1.65E-00	4E-09	4.1E+08
Nb-93m	3.76E-01	4E-09	9.4E+07
Zr-95	2.02E+00	1E-09	2.0E+09
Nb-95m	4.28E-02	1E-10	4.3E+08
Nb-95	4.49E-00	3E-09	1.5E+09
Tc-99	1.28E+01	2E-09	6.4E+09
Ru-106	4.72E+04	2E-10	2.4E+14
Rh-106	4.72E+04	3E-06	1.6E+10
Pd-107	1.05E-01	1E-10	1.1E+09
Ag-110m	1.09E+02	3E-10	3.6E+11
Ag-110	1.42E+01	3E-06	4.7E+06
Cd-113m	8.04E+00	1E-10	8.0E+10
Sn-119m	4.60E-01	1E-10	4.6E+10
Sn-123	7.88E+00	1E-10	7.9E+10
Sb-125	3.38E+03	9E-10	3.8E+12
Te-125m	1.40E+03	4E-09	3.5E+11
Sn-126	5.08E+01	3E-06	1.7E+05
Sn-126m	5.08E-01	3E-06	1.7E+05
Sb-126	5.03E-01	1E-10	5.1E+09
Te-127m	5.15E-00	1E-09	5.2E+09
Te-127	5.09E+00	3E-09	1.7E+09
I-129	3.39E+02	2E-11	1.7E+09
Cs-134	6.52E+04	4E-10	1.6E+14
Cs-135	2.24E-01	3E-09	7.5E+07
Cs-137	8.85E+04	5E-10	1.8E+14
Ba-137	8.28E+04	3E-06	2.8E+10
Ce-144	4.47E+04	2E-10	2.2E+14
Pr-144	4.47E+0	3E-06	1.5E+10
Pm-147	4.04E+0	2E-09	2.0E+13
Sm-151	1.13E+0	2E-09	5.7E+11

表 C.1 (つづき)

<u>アイソトープ</u>	<u>アクティビティー Ci/MTU</u>	<u>MPC, Ci/m³</u>	<u>アクティビティー/MPC</u>
軽元素			
Eu - 152	1.02E + 0	4E - 10	2.6E + 10
Ge - 153	9.06E - 0	3E - 09	3.0E + 08
Eu - 154	5.31E + 0	1E - 10	5.3E + 13
Eu - 155	1.81E + 0	3E - 09	6.0E + 11
重元素			
Tl - 208	1.11E - 0	4E - 08	2.8E + 03
Pb - 212	3.07E - 0	6E - 10	5.1E + 05
Bi - 212	3.07E - 0	3E - 09	1.0E + 05
Po - 212	1.97E - 0	2E - 14	9.9E + 09
Po - 216	3.07E - 0	2E - 14	1.5E + 10
Rn - 226	3.07E - 0	2E - 12	1.5E + 08
Ra - 224	3.07E - 0	2E - 11	1.5E + 07
Th - 228	3.06E - 0	2E - 13	1.5E + 09
Th - 234	1.58E - 0	1E - 09	1.6E + 06
Pa - 233	2.84E - 0	1E - 10	2.8E + 09
Pa - 234m	1.58E - 0	3E - 06	5.3E + 02
U - 234	7.41E - 0	4E - 12	1.9E + 08
U - 234	1.21E - 0	4E - 12	3.0E + 08
U - 237	1.04E - 0	1E - 10	1.0E + 08
U - 238	1.58E - 0	3E - 12	5.3E + 08
Np - 237	2.84E - 0	1E - 03	2.8E + 12
Np - 239	1.66E + 0	2E - 18	8.3E + 08
Pu - 236	6.11E - 0	2E - 14	3.1E + 10
Pu - 238	9.77E + 0	7E - 14	1.4E + 15
Pu - 239	1.62E + 0	6E - 14	2.7E + 13
Pu - 240	2.97E + 0	6E - 14	5.0E + 13
Pu - 241	4.35E + 0	3E - 12	1.5E + 14
Pu - 242	6.50E - 0	6E - 14	1.1E + 11
Am - 241	1.59E + 0	2E - 13	8.0E + 14
Am - 242m	9.45E + 0	2E - 13	4.7E + 13
Am - 242	9.45E + 0	1E - 09	9.5E + 09
Am - 243	1.66E + 0	2E - 13	8.3E + 13

表C.1 (つづき)

<u>アイソトープ</u>	<u>アクティビティー Ci/MTU</u>	<u>MPC, Ci/m³</u>	<u>アクティビティー/MPC</u>
重元素			
Cm-242	1.75E+0	4E-12	4.4E+13
Cm-243	3.38E+0	2E-13	1.7E+13
Cm-244	1.88E+03	3E-13	6.3E+15
Cm-245	2.94E-01	2E-13	1.5E+12
Cm-246	5.66E-02	2E-13	2.8E+11
Bk-249	1.71E-04	3E-11	5.7E+16

揮発性(a), 潜在的揮発性(b) および固体状(c) 放射性核種の混合物に対するNRCの規制は次の式

$$a/MPC_a + b/MPC_b + c/MPC_c = 1$$

で示される濃度が1を超えないということである。したがって、これら3つのグループに属する主要な放射性核種については便宜をはかけてC.2表にまとめておいた。

MPCを満たすのに必要なDFは、各放射性核種がそれだけで放出されたと仮定すれば3列目のようになる。これらのDF値は、アクティビティーのMPCに対する比率に放出率, 5.79×10^{-5} MTUWE/s と大気拡散係数, 10^{-7} s/m³をかけて得たものである。それぞれのグループ毎の合計は、本質的には実際そうであるように、すべての放射性核種が同時に放出された場合に、その濃度が許容値を何倍超えるかを示すものである。揮発性、潜在的揮発性および固体状核種の3つのグループをまとめてみると、各グループに必要なDFは各グループ毎の合計の10倍であるといつても言いすぎではない。

表C.2 主要な放射性核種の要約表

<u>アイソトープ</u>	<u>アクティビティー/MPC</u>	<u>個々の放射性核種が MPCを満たすのに 必要なDF</u>
揮発性		
H-3	2.6E+09	1.5E-02
Kr-85	2.6E+10	1.5E-01
I-129	1.7E+09	9.8E-03
TOTAL		1.7E-01
潜在的揮発性		
Se-79	3.5E+09	2.0E-02

表C. 2 (つづき)

<u>アイソトープ</u>	<u>アクティビティー</u>	個々の放射性核種が MPC を満たすのに 必要な DF
潜在的揮発性		
Tc-99	6.4E+09	3.7E-02
Ru-106	2.4E+14	1.4E+03
Rh-106	1.6E+10	9.3E-02
Te-125	3.5E+11	2.0E+00
Te-127m	5.2E+09	3.0E-02
Te-127m	1.7E+09	9.8E-03
Sb-125	3.8E+12	2.2E+01
Sb-126	5.1E+09	3.0E-02
Cs-134	1.5E+14	9.3E+02
Cs-135	7.5E+07	4.3E-04
Cs-137	1.8E+14	1.0E+03
TOTAL		3.4E+03
主に固体状		
Sr-90	2.0E+15	1.2E+04
Y-90	2.1E+13	1.2E+02
Ce-144	2.2E+14	1.3E+03
Pm-147	2.0E+13	1.2E+02
Eu-154	5.3E+13	3.1E+02
Pu-238	1.4E+15	8.1E+03
Pu-239	2.7E+13	1.6E+02
Pu-240	5.0E+13	2.9E+02
Pu-241	1.5E+14	8.7E+02
Am-241	8.0E+14	4.5E+03
主に固体状		
Am-242m	4.7E+13	2.7E+02
Am-243	8.3E+13	4.8E+02
Cm-242	4.4E+13	2.5E+02
Cm-243	1.7E+13	9.9E+01
Cm-244	6.3E+15	3.6E+04
TOTAL		6.5E+04

それゆえ、揮発性のものについては DF は 2 が、潜在的揮発性のものについては DF は

4×10^4 が、そして固体状のものについては DF は 7×10^5 が必要とされる。

EPAが要求している一部分（原子炉の運転に関する環境放射線規準、1979）は、電気出力年間 1 ギガワットを支える全燃料サイクルについての放出量が、⁸⁵Kr については 5×10^4 Ci 以下、¹²⁹I については 5×10^{-3} Ci 以下、半減期が 1 年以上のアルファ粒子放出超ウラン元素については 0.5×10^{-3} Ci 以下におさえられていることである。比較のために申しそえると、約 40 MTUWE は年間出力 1 ギガワットと同等であることが決められている（エネルギー省、1979）。EPA の年間線量当量による放出限界は敷地に大きく依存しており、精巧な計算モデルを必要とする。したがって、線量限界はこの研究では計算しなかった。EPA 規制の第一部で要求される DF は C.3 表に与えられている。

EPA 規制の結果、¹²⁹I と固体（微粉）について必要な DF は、NRC の規制と比較するとそれぞれ 270 と 286 (2E+8 のまちがい) に増えている (NRC 規制もまた敷地依存の値である)。

表C.3 EPAの要求する除染係数

放射性核種	必要除染係数
Kr-85	No Kr-85 in HLLW
I-129	270
Transuranics	2E+08

表C.4 はプロセス装置について仮定された DF 値および NRC 規制と EPA 規制の要求する DF 値の要約である。

表C.4 プロセス除染係数および規制から要求される除染係数

プロセス / 規制	除 染 係 数			
	微 粉	揮発性ルテニウム	ヨウ素	NO _x
プロセス				
液体供給溶融炉	2E+02	20	1	1
ベンチュリーエジェクター	10	10	1	1
Tube-and-shell コンデンサー	10 ⁴	2E+02	1	1
ミスト除去器	1	1	1	1
2段 HEPA フィルター	10	1	1	1
ルテニウム吸着塔	1	2E+02	1	1
ヨウ素吸着塔	1	1	10^3	1

表C. 4 (つづき)

プロセス／規制	微粉	除染係数		
		揮発性ルテニウム	ヨウ素	NO _x
プロセス				
2段HEPAフィルター	10 ⁴	1	1	1
二酸化窒素分解器	10	3E+02	1	10 ²
総合DF	2E+14	2.4E+09	10 ³	10 ²
規制				
10 C.F.R. 20(a)	7E+05	4E+04	2	NA
40 C.F.R. 190(b)	2E+08	NA	3E+02	NA
40 C.F.R. 50(c)	NA	NA	NA	10 ²

(a) 放射線防護に関する原子力規制委員会規準(1979)

(b) 原子炉の運転に関する環境放射線防護規準(1979)

(c) 全国第一次及び第二次循環空気の質的規準(1979)

参 考 文 献

Bell, M.J. 1973. ORIGEN - The ORNL Isotope Generation and Depletion Code. ORNL-4628, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.

Department of Energy. 1979. Draft Environmental Impact Statement: Management of Commercially Generated Radioactive Waste, Volume II. DOE/EIS-0046, U.S. Department of Energy, Washington, DC.

Environmental Radiation Protection Standards for Nuclear Power Operations, 40 C.F.R. Section 190 (1979).

National Primary and Secondary Ambient Air Quality Standards. 40 C.F.R. Section 50 (1979).

Nuclear Regulatory Commission Standards for Protection Against Radiation, 10 C.F.R. Section 20 (1979).

付 錄 D

ジュール加熱溶融炉の臨界解析

臨界のおそれのある核分裂性物質の蓄積は、燃料の再処理あるいはHLLW固化のプラントにおいて絶えず関心事となっている。運転管理、プロセスの幾何的形状、プロセスサンプリング、そして中性子毒物の組みあわせが臨界防止の手段として用いられる。ジュール加熱のセラミック溶融炉では回分操作ではなく、連続的な処理がおこなわれる。溶融炉中で、臨界量に達するような沈殿物の蓄積が生じるかどうかという安全性の問題を解決しなければならない。

最近の報告 (Walker and Riege, 1979) によると、HLLW中のアクチニドは溶融炉の中では沈殿しない。20 wt%の模擬HLLWと10 wt%の Gd_2O_3 を含むガラス中のアクチニド (UO_2 , NpO_2 , PuO_2 , AmO_2 , CmO_2) の溶解度は、標準濃度のおおよそ5倍以上である。したがって、溶融炉中で臨界事故の初期条件が成立する可能性はない。

たとえ、沈殿が形成されると仮定しても、多くのアクチニドが持つ中性子吸収断面積が大きいため、臨界量が達成されるかどうかについては疑問である。予備検討を目的とした計算を行なってジュール加熱のセラミック溶融炉における臨界の可能性を調べたが、その際非常に安全側な（物理的には不可能であるような）一連の仮定を使った。(Partain and Kinby, 1978)。

溶 融 炉

臨界計算は、NULIFコードを使ったもの (Wittekoop et al., 1976) と、ANISNコードを使ったもの (Engle, 1976) がそれぞれ独立になされた。

NULIFを使ったものは、ENDF/B-IV断面積を利用して、溶融炉中の無限均質混合体を検討した。一次元輸送コードであるANISNでは、溶融炉中の単純な反射平板モデルについての臨界を検討した。これらの計算には、ハンセンニローチ断面積が用いられた。

NULIF, ANISN(ハンセンニローチ)いずれのライブラリも廃棄物中のすべての同位体を含んでいるわけではない。核分裂性同位体と親同位体の重要なもののほとんどについては含まれているが、代替物質を使った場合もあった。NULIF計算では、U-232, U-237, Pu-236, Pu-244, Am-242m, Am-242, それにキュリウム同位体のすべてを、U-233としてモデル化した。U-233濃度を決定するのにMughabgnab and Gorber (1973) のデータに基く熱中性子による核分裂断面積の単純等価量を用いた。代表する同位体の数が多いこと、それにU-233の捕獲-核分裂特性を考えあわせると不完全な

ものではあるが、このモデル化は妥当であると思われる。ANISN計算においても、U-232, U-237, Pu-244, それにアメリシウムとキュリウムの同位体をモデル化する際に同じような技法を用いた。HEDLからNp-237の断面積を得て、それらを近似的にハンセン=ローチライブラリ構造に適用した。この方法は、予備検討の計算としては十分に正確であるが、しかしNp-237は廃棄物中ではU-238について最も支配的なアクチニド同位体であるので、正確な研究のためには一層の努力が必要であろう。（しかしながら、NULLIFライブラリはENDF/B-I V断面積を使っており、Np-237を含んでいる。）

モ デ ル

典型的な廃液およびガラスの組成をモデルとして用いた。廃液はBonner, Blair and Romero (1976)によって与えられた組成をもつPW-7である。

H LWは、33,000 Mwd/t の燃焼度と 30 MWt の比出力の軽水炉燃料を再処理した場合に発生するものとした。水素、ヘリウム、クリプトンおよびキセノンは100%回収され、ウランとプルトニウムは、99%回収されるものとした。モデルからガドリニウムと核分裂生成物を除くことによって、溶融炉臨界の評価はかなり安全側になる。また、硝酸とリン酸も除外した。廃液中の各元素の同位体の相対濃度は、1,100 日照射、150 日冷却し、さらに再処理した後、1年半後におけるORIGENのデータ (Bell, 1973)に基いている。Mendelら (1977)が検証した76-68ガラスを用いた。核分裂生成物とガドリニウムを除外したので総廃液濃度が混合物中の標準重量比33%よりも小さいが、廃液中のアクチニドは適正な濃度を持っている。

結 果

廃液の無限均質混合体に対する一連の臨界計算の結果は表D.1に要約されている。最初の計算は、表D.2に示されている構成物質の標準濃度を使った。標準濃度は、アクチニド酸化物とガラスを均一に混合することを仮定している。表D.1でわかる通り、この組成に対する増倍率の計算結果は0.168であった。廃液の濃縮もしくは固化が臨界に及ぼす潜在的影響は、全体としてアクチニド酸化物が密度 12 g/cm^3 にまで濃縮されたと仮定して検討した。これは本質的にはPuO₂の理論的密度であるから、これは濃縮度の上限として妥当なように思われる。濃縮廃液中の同位体の構成比は標準濃度についてのものと同じであるが、ガラスの構成要素はひとつも含まれていない。表D.2に示されているように、濃縮廃液の濃度は、標準濃度の約46倍となっている。ガラス構成要素を除外した濃縮廃棄物の均質な混合物については、増倍率の計算結果は0.524となった。溶融炉が水と濃縮廃

液 (12 g/cm³) で満たされた場合の影響を検討するため補足的計算をおこなった。溶融炉がアクチニドの濃縮廃液でデザインレベル (48 cm) まで満たされ、残りは水で満たされる (79 cm) と仮定し、一様なスラリー混合物に比例配分した。(NULIFではこれを均質なスラリーとしてモデル化している。) 濃縮スラリーについての計算結果は均質混合物の増倍率は 0.539 であった。支配的なスペクトルはハードであった。

以上のケースにおける増倍率の計算結果からわかる通り、十分未臨界である。濃縮を仮定するのは、物理的に現実的ではないが、それでもこの極端な場合にさえ臨界までかなりの余裕があることがわかる。

NULIF 計算は、そのモデルが漏洩効果を除外しているために、反応度を高く評価していると思われる。他の差異も明らかに存在する。たとえば、NULIF コードは軽水炉の燃料棒の格子の分析のために開発されたもので、スペクトルが軽水炉のスペクトルと相当違うようなケースには不適当であるかもしれない。しかしながら、アプローチと計算方法が控え目なことは確かであると思われる。補足的に独立な評価をして、ある種の幾何学モデリングと漏洩効果を考慮するために、ANISN コードで一次元モデルを解析した。このコードは、速いスペクトルをもつ臨界アセンブリを正確に計算することができる。

表 D.2 に示す通り、濃縮廃液を両側が水の 79 cm 平板で反射された 48 cm 平板としてモデル化した。16 群のハンセン = ローチ断面積を使って、増倍率の計算結果は 0.576 であった。この値は、異ったコードと断面積が使われたということを考えたとしても、濃縮スラリーに対する NULIF の値とよい一致を示しており、十分な未臨界性を示す。

結論

アクチニドの沈殿物は溶融炉の中では生じない。たとえそのような沈殿がおこったとしても、HL-LW に存在するアクチニド混合物の顕著な中性子吸収特性のためにかなり臨界以下になるだろう。中性子吸収体である核分裂生成物と Gd₂O₃ を臨界計算に含めると、増倍率はさらに減少することになる。

表 D.1 液体供給溶融炉の臨界計算の要約

廃棄物溶融物の構成	計算のタイプ	増倍率
標準	無限均質	0.168
濃縮	無限均質	0.524
濃縮廃液と水スラリー	無限均質	0.539
濃縮廃液と水反射体	一次元平板	0.576

表 D.2 均質廃棄物溶融物の組成

構成元素	標準 (Atoms/barn·cm)	濃縮 (Atoms/barn·cm)
U-233	1.64E-06	7.46E-05(a)
U-234	1.19E-07	5.50E-06
U-235	5.47E-06	2.53E-04
U-236	2.57E-06	1.19E-04
U-238	5.85E-04	2.70E-02
Np-237	4.59E-05	2.12E-03
Np-239	6.03E-12	2.78E-00
Pu-238	7.16E-07	3.13E-05
Pu-239	2.58E-06	1.19E-04
Pu-240	1.36E-06	6.28E-05
Pu-241	5.21E-07	2.41E-05
Pu-242	2.32E-07	1.07E-05
Am-241	3.91E-06	1.81E-04
Am-243	5.74E-06	2.65E-04
Na	2.93E-03
Fe	5.40E-04
Cr	6.48E-05
Ni	2.70E-05
Si	1.20E-02
O	4.89E-02	7.85E-02

(a) 表にはないU, Pu, Am, Cmの同位体を模擬するための量を含む。

参 考 文 献

- Bell, M.J. 1973. ORIGEN - The ORNL Isotope Generation and Depletion Code. ORNL-4628, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.
- Bonner, W.F., H.T. Blair and L.S. Romero. 1976. Spray Solidification of Nuclear Waste. BNWL-2059, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.
- Engle, W.W., Jr. 1967. A User's Manual for ANISN, A One-Dimensional Discrete Ordinates Transport Code with Anisotropic Scattering. K-1693, Union Carbide Corp., Nuclear Division, Oak Ridge, Tennessee.
- Mendel, J.A., et al. 1977. Annual Report on the Characteristics of High-Level Waste Glasses. BNWL-2252, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington.
- Mughabghab, S.S., and D.I. Gorber. 1973. Neutron Cross Section. BNL-325, Brookhaven National Laboratory, Long Island, New York.
- Partain, W.L. and K.D. Kirby. 1978. Safety Analysis of High Level Waste Solidification Processes. SSA-112, Southern Science Applications, Inc., Dunedin, Florida.
- Walker, C.T. and U. Riegel. 1979. "Compatibility of Actinides with HLW Borosilicate Glass: Solubility and Phase Formation," Ceramics in Nuclear Waste Management. Technical Information Center, U.S. Department of Energy, Springfield, Virginia.
- Wittkopf, W.A., et al. 1976. Fuel Utilization and Performance Analysis Code (FUPAC) System, NULIF - Neutron Spectrum Generator, Few-Group Constant Calculator, and Fuel Depletion Code. BAW-426, Power Generation Group, Babcock & Wilcox, Lynchburg, Virginia.