102. プルトニウム溶液および粉末取扱施設の 臨界安全解析

大島博文*, 松本忠邦*

(1982年 7月 5日 受理)

(1982年 12月 7日 再受理)

Criticality Safety Analysis of Plutonium Solution and Oxide Powder Handling Facility

By Hirofumi OSHIMA and Tadakuni MATSUMOTO

Criticality safety analysis is one of the most important factors upon designing facilities in which a great deal of Pu solution and oxide powder are treated. The results of the criticality analysis for a Pu conversion facility adopting the oxalate precipitation method is reported for an example in this report.

At first, it was verified that the accuracy of criticality analysis, using the computer code ANISN or KENO with the Hansen-Roach 16 group cross sections, lay within $\pm 3\%$ on the basis of the criticality experiments achieved at CEA and PNL.

After describing basic analysis condition and a criticality flow sheet as the means of criticality safety design, the annular vessel for Pu solution and powder storage were analyzed from the view point of criticality, resulting in the maximum k_{eff} of 0.902 for the former and 0.755 for the later, both of which were ensured sufficiently subcritical.

KEYWORDS: criticality, nuclear safety, safety analysis, plutonium conversion, plutonium nitrate, plutonium oxide, fuel cycle facilities, accuracy, computer codes

I. はじめに

核燃料サイクルの進展に伴い多様な核物質取扱施設の設計・建設が行われている。これに伴い施設の安全設計あるいは安全解析の一部である「臨界安全解析」は施設の処理能力の確保・設置面積の制限および事故の防止という観点から極めて重要な位置を占めている。米国、英国、フランスなどでは臨界安全解析を容易にするために臨界実験を行うとともに、国あるいは国に準ずる機関によって臨界安全ハンドブック⁽¹⁾が制定されており、西ドイツにおいても外国との共同研究あるいは外国の文献を基礎として臨界安全ハンドブック⁽²⁾の整備が進められている。

我が国においても最近臨界安全研究⁽³⁾が進められつつあるが、今までに設計・建設されたPuなどの取扱い施設の多くは諸外国からの技術導入あるいは諸外国のハンドブック等より設計されており、国内で施設として設計・建設された報告はほとんどない。

本報ではPu溶液および粉末を取り扱う施設の臨界

安全解析および設計の例として、シュウ酸沈殿法によるPu転換施設の臨界安全設計を計算手法の検証を含めて実施したので報告する。

II. 臨界安全解析方法の検討および検証

1. 解析方法の検討

Pu取扱施設の臨界安全設計のパラメータとしてはPuの同位体組成、化学組成および濃度がある。この設計には同位体組成として²³⁹Pu 95%、²⁴⁰Pu 5%を考えた。本組成は軽水炉燃料が3,000 MWD/t以上照射された時に得られるものであり、現在の発電炉における燃料の燃焼度から考えると、特に同位体組成の確認をする必要がない程度の十分な余裕を持っている。化学組成としては各プロセスにおけるPuの状態に応じて、 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Pu} \cdot \text{H}_2\text{O}$ および $\text{PuO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ を用いることとし、溶液中の HNO_3 などは無視する。濃度としては溶液系については原則として通常、水溶液として

* 動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nucl. Fuel Development Corp.)

取扱可能な上限である $1,000 \text{ g Pu/l}$ 以下とし, 粉末系については実験により得られた密度を参考として $4 \text{ g PuO}_2/\text{cm}^3$ 以下とした。

解析には, 臨界安全解析に汎用されている 1 次元輸送コード ANISN⁽⁶⁾ および 3 次元モンテカルロコード KENO⁽⁷⁾ を用い, 核断面積として Hansen-Roach 16 群核断面積⁽⁸⁾ を用いた。臨界解析に用いられるコードとしてはこれらのほかにいくつかのコードが我が国に紹介され, 解析手法の検討⁽⁹⁾ がなされているが, その汎用性および施設の臨界解析結果の信頼性, 計算時間の

短縮等を考慮して選定した。

2. 溶液系の検証

ANISN, KENO-Hansen Roach による臨界解析の信頼性を確認するために, CEA (フランス)^{(10)~(13)} および PNL (米国)^{(14)~(17)} で実施された臨界実験データから本検証の目的に沿った 11 ケースを選んで検討した (第 1 表参照)。

解析モデルの例として第 1 表の No. 4, No. 8 を第 1 図(a), (b)に示す。また, 解析結果を第 2 図に示す。

第 1 表 溶液系の臨界実験データ

検証目的	SEQ. No.	CEA 解析 ケース No.	形 状	Pu 濃度 (g Pu/l)	反 射 体	備 考	実験者
硝酸系基本 ケース	1	E12	円 柱	44.7	水 (15cm)		CEA
	2	A12	"	44.7	水 (40cm)		"
内側ボイド 効果	3	K23	円環	40.6	内側: 空気, 外側: 水		"
相 互 干 渉 効果および Cd 効 果	4	M29	2 円環	74.2	内側: 水, 外側: 水	容器面間距離 $d=1.6 \text{ cm}$	"
	5	O29	"	74.2	内側: Cd+水, 外側: 水	$d=1.6 \text{ cm}$	"
	6	P29	"	74.2	内側: 空気, 外側: 半反射	$d=3.6 \text{ cm}$	"
1 次元 Sn コード, ANISN	7		球	38.6	水	完全水没	PNL
	8		"	47.5	水	"	"
	9		"	46.9	Cd+水	"	"
ボロン効果	10		円 柱	275	水		"
	11		"	391	水	Raschig ring 含む	"

(a) SEQ No. 4, 2円環体系

(b) SEQ No. 8, 球体系

第 1 図 モデル図

(1) 解析誤差

第 2 図に示したように各報告に示された体系の実効増倍率 k_{eff} を 1 とした場合に平均して 2%, 最大で 3% 低い値, 1% 高い値が得られた。これは核断面積, 計算コード, 計算モデル, 実験データなどに起因するものと考えられる。

(2) 核断面積の妥当性

Hansen-Roach 核断面積についてはすでに 20 年近くも臨界計算に使われてきたもので十分な実績もある。

今回の解析でもモデル化が簡単な No. 7~11 の解析と No. 1, 2 の解析で誤差の現われ方が前者は +1%, 後者は -2%~-3% となっている。また ARH-600⁽¹⁸⁾

第2図 実効増倍率のベンチマーク計算結果(溶液系)

第3図 Pu濃度と最小臨界直径

に示されたデータと ANISN-Hansen Roach で解析した結果を比較すると(第3図に示す), 今回の計算の最小臨界量の方が少なめの値を示している。これらの計算誤差は核断面積に起因するものと考えられるが, いずれも k_{eff} で3%以内の計算誤差で解析値が得られるものと考えられる。

(3) モデル化の検討

一般的に臨界実験体系を計算体系にモデル化する場合に, 臨界実験時の燃料・容器・反射体の寸法をどこまで正確にモデル化するかが重要である。本解析では CEA のデータ(9)~(13)を参考にしてモデル化を行なった。この際, ステンレス鋼(容器)の組成および Al(反射体)の厚み

をかえて計算したが, 結果はほとんどかわらなかった。

第Ⅲ章以降で報告する臨界安全解析では, これらの寸法などを必要に応じパラメータ計算をして解析の信頼度を良くするようにすることとした。

(4) BおよびCdの中性子吸収効果

BおよびCdは中性子吸収材として広く用いられており, 臨界解析時にその効果が正しく評価されているかどうかは非常に重要である。本検証では No. 5, 9, 11の解析に Cd および B を含んでいるが, いずれのケースも第Ⅱ-2(1)項で述べた計算誤差の範囲内に入っており, Hansen-Roach 16群断面積で十分実用可能であると考えられる。

以上の11ケースの臨界実験データと KENO, ANISN-

第2表 粉末系の臨界実験データ

解析ケース†	燃料の組成††	燃料部の寸法(cm)			燃料部の容積(l)	反射体
		長さ	幅	高さ		
A-1S -1L	Pu(18)O ₂ [H/Pu=0.04]	25.65 41.05	25.65 41.05	10.03 5.95	6.60 10.03	アクリル樹脂 (15cm ²)
A-2S -2L	Pu(8)O ₂ -ポリスチレン[H/Pu=15]	25.65 51.31	25.65 68.25	25.03 10.36	16.47 87.65	同上
A-3S -3L	Pu(18)O ₂ -ポリスチレン[H/Pu=50]	40.72 61.08	30.54 61.08	29.64 16.35	36.86 61.00	同上
A-4S -4L	30.6Pu(8)O ₂ -U(0.15)O ₂ -ポリスチレン	30.54 66.17	30.54 61.08	30.89 14.43	28.81 58.32	同上
A-5S -5L	14.6Pu(8)O ₂ -U(0.15)O ₂ -ポリスチレン	30.54 61.08	40.72 61.08	29.81 16.63	37.07 62.04	同上
A-6S -6L	7.9Pu(8)O ₂ -U(0.15)O ₂ -ポリスチレン	40.72 61.08	40.64 66.04	36.42 22.09	60.27 89.10	同上

† "S"は一連の実験のうちで最も小さい体積をとった場合(例えば球に最も近いケース), "L"は最も大きい体積をとった場合(例えば平板)

†† ()内は Pu 中の ²⁴⁰Pu % または U 中の ²³⁵U %

第4図 実効増倍率のベンチマーク計算結果(粉末系)

Hansen Roach による解析結果との検討により、硝酸プルトニウム溶液系の20~400 g Pu/l の範囲において実用上なら問題ないことが確認された。

3. 酸化物粉末系の検証

プルトニウム酸化物粉末の均質系の臨界実験データはまだ多くないので、ここでは低減速系に限らずPuO₂を含む均質な酸化物系の実験データ^{(19)~(22)}を用いた。第2表に本検証に用いた実験データを示す。

解析には実験体系が立方体であるのでKENO-Hansen Roach を使い、実験報告の燃料の体積を最大のケースと最小のケースについて解析を行なった。結果を第4図に示す。この結果、実効増倍率は1.00~1.04の間に入っていることがわかった。

4. 検証のまとめ

以上の検証により本解析手法により得られる実効増倍率は溶液系で0.97~1.01、粉末系では1.00~1.04の範囲であり、実際の機器の臨界安全解析で十分にモデル化について検討し、パラメータ計算によりその妥当性を確認することにより、実効増倍率が0.95(計算誤差3σを含む)以下であれば十分未臨界といえることが判明した。

核断面積は最近国内外でさらに多群の定数を用いて解析する方法の研究が実施されており、解析の信頼度も向上していき、より経済的な臨界安全設計が今後実用化されていくものと考えられる。

Ⅲ. 臨界安全設計の基本

シュウ酸沈殿法によるPu転換施設はPu溶液受入・調整、沈殿・濾過、沈殿物の焙焼・粉末の混合、PuO₂の貯蔵、濾液中のPu回収などの設備からなる。これらの

各設備の臨界安全設計条件としてはプロセス設計データを基礎として、技術的に発生しうる臨界安全の観点から最も厳しい側の化学的・物理的性状を用いた。すなわち、溶液系としてはPu(NO₃)₄・H₂O系またはPu-H₂O系を用い、酸化物粉末系としては各種実験データなど^{(23)~(25)}PuO₂-H₂O(最大含水率5%)を用いた。Pu同位体組成としては第Ⅱ章で述べたように²³⁹Pu95%—²⁴⁰Pu5%とし、中性子反射条件としては単一ユニットの解析には原則として水全反射条件を用いた。これらの設計条件を第3表に示す。

臨界安全管理の方法としては、形状・

寸法制限、濃度制限および質量制限のいずれかまたはこれらの方法の組合わせによるものとし、臨界安全上有意な量のPuを取り扱わない廃液処理工程などでは、誤操作などにより多量のPuがこないことを中間槽でその濃度を監視するように計画した。また、質量管理をする工程では管理の単位ごとに秤量器を設け、常時在庫量が把握できるように計画した。

第3表 Pu転換設備の臨界安全設計条件

1. Pu同位体組成 ²³⁹Pu 95%, ²⁴⁰Pu 5%
2. 化学的組成

工程	プロセス設計	臨界安全設計
受入, 調整	Pu(NO ₃) ₄ ・HNO ₃ (Max, 250 G/L)	Pu(NO ₃) ₄ ・H ₂ O (0~1,000G/L)
沈殿, 濾過	Pu(NO ₃) ₄ ・HNO ₃ →Pu(C ₂ O ₄) ₂ ・HNO ₃	Pu-H ₂ O
焙焼	Pu(C ₂ O ₄) ₂ ・HNO ₃ →PuO ₂	Pu-H ₂ O
粉碎~払い出し	PuO ₂	PuO ₂ ($d=4\text{ g/cm}^3$ 含水率5%)
蒸発濃縮	Pu(C ₂ O ₄) ₂ ・HNO ₃ →Pu(NO ₃) ₄ ・HNO ₃	Pu-H ₂ O
Pu回収	Pu(NO ₃) ₄ ・HNO ₃	Pu-H ₂ O

3. 臨界安全解析

計算コード ANISN, KENO
核断面積 Hansen-Roach 16 群
反射体 水全反射(20 cm 水)

臨界安全解析は第Ⅱ章で述べた計算コードおよび核断面積を用い、円筒形・平板形については原則として無限円筒・無限平板として、質量管理については球としてモデル化を行なった。また円環槽および相互干渉系の解析には3次元モデルを用いた。臨界解析の例に

については第Ⅳ, Ⅶ章で報告する。

施設全体の臨界安全設計の妥当性については第5図

に示すような臨界フローシートを作成して、各ユニット間の設計の妥当性について検討をした。

第5図 臨界フローシートの例

Ⅳ. 環状槽の臨界安全解析

1. 設備の設計

$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 溶液(Pu濃度 250 g Pu/l 以下、遊離硝酸 3M 以上)を受入れ・貯蔵するための2基の環状槽をコンクリートセル内に設置する。環状槽は外径160cm、高さ150cm、液厚6.4cmのステンレス鋼製とし、内側に円環内の中性子相互干渉を防ぐ目的で Cd 板を取り付けた。2槽間の相互距離は施設内レイアウト上から中心間距離で330cmとした。

2. 臨界安全解析

1つのコンクリートセル内に設置される2基の環状槽の臨界安全解析はまず予備解析を行なった。予備解析では ANISN-Hansen Roach を用いて液厚, Pu 濃度

第6図 円環槽の臨界解析モデル

と k_{eff} のパラメータ計算を行い、最大液厚の決定および溶液系全濃度(0~1,000 g Pu/l)範囲での解析濃度(最も k_{eff} の大きくなる濃度)を求めた。この予備解析に基づいて KENO-Hansen Roach を用いて単一ユニット(1槽)および相互干渉系(2槽)の臨界安全解析をした。解析モデルの例を第6, 7図に示す。

第7図 2円環槽の臨界安全解析モデル(相互干渉系)

(1) 単一ユニットの解析

円環槽単一ユニットの解析は円環内の中性子減速条件(中空部含水率)をパラメータとして行なった。第8

図に示すように中空部の水分が $0 \text{ g H}_2\text{O}/\text{cm}^3$ の場合の k_{eff} が最も高く、 0.907 ± 0.008 であった。これは中空部に水分がない場合には燃料から放出された中性子が十分に減速されないために、Cd の中性子捕獲が最も少なくなっていることによるものと考えられる。

第8図 円環槽中空部含水率と実効増倍率

さらに槽の外側を水ではなく、実際にコンクリートセル内に設置する条件に近づけて、空気およびコンクリートとして追加解析したが、 k_{eff} は上記最大値より十分に小さかった。本解析に先立って Pu 濃度による実効増倍率の変化をパラメータ計算して求め、解析には最も実効増倍率の高くなる濃度 ($180 \sim 250 \text{ g Pu/l}$) を採用した。

以上の解析より本円環槽単一ユニットは十分に未臨界であることが判明した。

(2) 相互干渉系の解析

相互干渉系の解析は、第6図に示したモデルで円環内側が空気の場合(ケース1)と、水が充填されている場合(ケース2)との2ケース行なった。 k_{eff} はケース1の場合に0.774、ケース2の場合に0.892となり、いずれも単一ユニットの最大値(0.902)を超えることはなかった。

(3) 解析のまとめ

円環槽の臨界安全解析では以上の計算により全濃度範囲 ($0 \sim 1,000 \text{ g Pu/l}$) において十分に未臨界の形状寸法であることが確かめられた。単一ユニットの解析ではパラメータ計算によって技術的に想定しうる槽の設置状態において k_{eff} の変化の傾向を確認するとともに、さらに本報ではその詳細については省略するが、槽構造材のモデル化の方法・槽外側の水の厚さなどについてもパラメータ計算を行なった。また、相互干渉系については中心間距離を330cmとしたが、これはセル内の配置計画上で定められた寸法であり、臨界安全設

計上はさらに近づけて配置することができる。

これらの解析結果より、本槽は液厚 $59 \pm 3 \text{ mm}$ 、高さ $1,200 \sim 1,450 \text{ mm}$ とし、Cd 板厚を 1.5 mm または 0.75 mm として設計した。

V. 粉末貯蔵庫の臨界安全解析

1. 設備の設計

粉末貯蔵庫では約 12 kg の PuO_2 粉末 (10 kg Pu) をステンレス鋼製の容器に入れたのち、ステンレス鋼・コンクリート製の貯蔵ホール中に保管する。貯蔵ホールは庫内で平面上に中心間距離 66 cm 以上で配置するように計画した。

2. 臨界安全解析

粉末貯蔵庫の単一ユニットは ANISN-Hansen Roach による解析により、最小臨界質量 (32.8 kg Pu) および最大無限円筒 ($15.7 \text{ cm}\phi$) のいずれにおいても十分未臨界である。貯蔵ホール間の相互干渉系の解析では貯蔵中に起こりうる粉末密度の変化 ($1.25 \sim 4 \text{ g PuO}_2/\text{cm}^3$)、施工上の径方向コンクリート厚さ ($0 \sim 24.7 \text{ cm}$) および径方向外側の空気中の含水率 ($0 \sim 0.05 \text{ g}/\text{cm}^3$) をパラメータにして第9図に示すモデルについて検討した。第10図に示すように粉末密度 $4 \text{ g PuO}_2/\text{cm}^3$ 、コンクリートおよび空気中の水分 0% で径方向コンクリート厚さ 10 cm の時に k_{eff} が最大となり、 0.755 であった。

第9図 粉末貯蔵庫の臨界計算モデル

3. 解析のまとめ

以上の解析により本貯蔵庫は十分に未臨界であることが確かめられた。本貯蔵庫は遮蔽設計上の観点より貯

第 10 図 粉末貯蔵室の臨界計算結果

蔵ホール間にコンクリートを充填する。このため万一のコンクリートの欠損(巣)を考慮して、コンクリート厚さをパラメータの一つとして解析を実施した。いずれの場合もほとんどの中性子が高速領域にあり、いわゆる乾燥系の臨界体系となっている。

貯蔵ホールの中心間距離は解析では 66 cm とし、施工上は 70 ± 2 cm (他にステンレス鋼容器のホール内の収容時の自由距離として ± 2 cm を考えている)として施工し、ホール間のコンクリートの巣の検査は実施しないものとして設備設計をした。

IV. まとめ

ANISN, KENO-Hansen Roach 16 群断面積を用いて臨界解析手法および計算コード検証を臨界実験データにより行い、実験に対し $\pm 3\%$ 程度の精度で実効増倍率が求められることを確認した。施設の臨界安全解析はこの検証に基づいて、第Ⅲ～Ⅴ章に示したような解析条件を設定した。さらに必要に応じてパラメータ計算をすることにより臨界安全解析の信頼性の向上を図った。

本解析に当り、動力炉・核燃料開発事業団の湯本 銀三氏、田村修男氏(現在三菱原子燃料(株))を初めとする諸氏のご指導・ご支援にここで感謝の意を表します。

— 参考文献 —

- (1) THOMAS, J.T.: NUREG/CR-0095, (1978).
- (2) BRETON, D. (ed.): CEA-R-3114, (1967).
- (3) ACKROYD, R.T., et al.: AHSB(S) Handbook I, (1960).
- (4) WEBER, H., et al.: "Handbuch zur Klriticalität", (1978), GRSnBH.
- (5) 桂木 学, 小林岩夫: 原子力誌, 24[6], 442 (1982).
- (6) SOLTESZ, R.G., DISNEY, R.K.: WANL-TMI-1697, (1967).
- (7) WHITESIDES, G.E., CROSS, N.F.: CTC-5, (1969).
- (8) HANSEN, G.E., ROACH, W.H.: LAMS-2543, (1961).
- (9) ITHURRALDE, M., et al.: CEA-R-2488, (1964).
- (10) BRETON, D., et al.: Proc. 3rd. Geneva Conf., Vol. 13, 244 (1964).
- (11) BRUNA, J.G., et al.: CEA-N-2274, (1963).
- (12) BRUNA, J.G., et al.: CEA-R-2453, (1964).
- (13) DEILGAT, E., et al.: CEA-N-2495, (1964).
- (14) LLOYD, R.C., et al.: Nucl. Sci. Eng., 25, 165 (1966).
- (15) KRAESI, F.E.: HW-24514, DEL, (1952).
- (16) READON, W.A., et al.: HW-66266, (1960).
- (17) RICHEY, C.R.: Nucl. Sci. Eng., 31, 32 (1968).
- (18) CARTER, R.P.: ARH-600, (1969).
- (19) BIERMAN, S.R., CLAYTON, E.D.: Nucl. Technol., 11, 185 (1971).
- (20) RICHEY, C.R., et al.: Nucl. Sci. Eng., 23, 150 (1965).
- (21) BIERMAN, S.R., CLAYTON, E.D.: Nucl. Technol., 15, 5 (1972).
- (22) BIERMAN, S.R., CLAYTON, E.D., HANSEN, L.E.: Nucl. Sci. Eng., 50, 115 (1973).
- (23) 梶 明, 他: 私 信.
- (24) MOSELEY, J.D., WING, R.O.: RFP-503, (1965).
- (25) GOLDWELL, G.S., et al.: NUMEC-P-90, (1961).