JCOの沈殿槽の制限質量 2.4 kgU の根拠

日本原子力研究所 小 室 雄 一

1. はじめに

平成11年9月30日に臨界事故を起こした(株)ジェー・シー・オー(以下 JCO)の沈殿槽の臨界安全性は、投入する溶液に含まれるウランの質量を制限することで保証することになっていた。このような管理方法は、一般に質量管理と呼ばれている。沈殿槽のウラン質量の制限値は2.4 kgとされている。沈殿槽の上流側にある溶解槽からは、その値を超えない量の溶液が移送される設計になっていた。ところが裏マニュアルにさえ従わず、作業者がバケツで、制限値を上回る量の硝酸ウラン水溶液を沈殿槽へ入れたために、我が国初の臨界事故に至った。

第2回事故調査委員会⁽¹⁾において、この制限値の導出法について少し議論があったが、米国の核的安全ガイド TID-7016 Rev.1⁽²⁾を参照して求めたという答弁だけで終わっていた。第3回事故調査委員会においても、文献を教えてほしいとの意見⁽³⁾があった。この要望に応えるため、以下では TID-7016 Rev.1 の概要、制限値2.4 kg の導出法、制限値2.4 kg の安全裕度について述べる。TID-7016 Rev.1 を利用した簡便な制限質量導出の一例を示すという意味でも有意義である。

2. 米国の核的(臨界)安全ガイドの歴史

TID-7016 Rev.1 の概要を述べる前に、米国の核的臨界安全ガイドの歴史を振り返ることにする。第1表に示すように、米国には古くから核的臨界安全ガイドが用意されていて、適宜改訂されてきた。最新版は1996年に公開された。

(1) LA-2063

4人のパイオニア Callihan(ORNL), Ozeroff(Hanford Works), Paxton(LASL), Schuske(Rocky Flats)によって編集された。臨界安全の分野における“Granddaddy” standard と呼ばれている。この文書は非公開扱いであった。記載されている臨界データ(実際には制限値)はすべて実験に基づいたものである。本文で述べているよう

に、当時は、臨界量を正確に計算するコードや断面積データが十分に整っていなかったのである。臨界データの一例を第2表に示す。この表は、 ^{235}U , ^{239}Pu , ^{233}U の臨界制限質量を、3種類の中性子反射条件別に示している。thick water reflector は厚さ6 in 以上の水, nominal reflector は燃料受入れ容器の周囲に設けられた冷却ジャケットを想定した厚さ1 in の水, minimal reflector は容器やその周辺にあるステンレス鋼のパイプ類を想定した厚さ1/8 in のステンレス鋼である。この表の後に、球体積、無限円柱直径、無限平板厚さに関する制限値がそれぞれ同じ形式の表で続く。残念なことに、各臨界制限値に含まれる安全裕度の記述はないようだ(しかし、後述する Rev.1 との対比から、安全裕度が含まれることがわかるのだが…)。均質系の臨界データは基本的にこれだけである。 ^{235}U 濃縮度が低い物質の制限質量は、第2表から読み取った値に、別の図に与えられている allowance factor (≥ 1.0) を乗じて求めることができる。このようにして基本データを実際の核燃料取扱施設に適用する方法が、核燃料サイクル上の施設ごとに具体的に書いてある。

(2) TID-7016

非公開扱いの LA-2063 が作られた翌年、その公開版として TID-7016 というレポート番号が付けられて刊行された。内容は LA-2063 と全く同じであるが、活字を小さくしたため、ページ数は少ない。TID とは、米国原子力委員会(U. S. Atomic Energy Commission)の技術情報部(Technical Information Division)に由来するらしい。しかし1979年3月のスリーマイルアイランド事故を機に組織の変更が行われたため、第1表にあるように、TID という名称の継続は Rev.2 までで終了した。

(3) TID-7016 Rev.1

LA-2063(TID-7016)の改訂版である。臨界データの表は、第3表のように形式が変更された。中性子反射条件は thick water reflector の1つだけになった。recommended(前版では limit)のほかに minimum critical が併記されていて、recommended にどのくらいの安全裕度があるのか明らかである。新旧(LA-2063 と Rev.1)の比較を行うと、個別には多少の違いが認められるが、全体的には大きな差異はない。前版では表の形式でのみ与えられていた断片的な臨界データが、例えば第1図に示す連続的なデータになって追加された。小さくて見落としやすいが、この図には安全係数の値(>1.0)が表示されている。この値は、前述の recommended と minimum critical の比である。質量に対する安全係数2.3は、二重装荷(double batching)を想定したものである。体積に対する安全係数1.33は、質量に対する安全係数2.3の立方根に相当する。allowance factor を使うことは前版と同様である(第2図参照)。新たに、過去の臨界事故の事例が盛り込まれた。

ここで、臨界質量を安全係数2.3で除した値が、およそどの程度の実効中性子増倍係数(k_{eff})に相当するのか、検

The Subcritical Mass Limit, 2.4 kgU, for the JCO's Precipitation Tank : Yuichi KOMURO.

(1999年11月18日 受理)

第 1 表 米国の核的(臨界)安全ガイドの変遷

標 題	文献番号	編集担当 組 織	発行年	ページ数
Nuclear Safety Guide	LA-2063 ⁽⁴⁾	LASL	1956	64
Nuclear Safety Guide	TID-7016 ⁽⁵⁾	LASL	1957	24
Nuclear Safety Guide	TID-7016 Rev.1 ⁽²⁾	GAC†	1961	42
Nuclear Safety Guide, TID-7016 Rev.2	NUREG/CR-0095 ORNL/NULEG/CSD6 ⁽⁸⁾	ORNL	1978	127
Nuclear Criticality Safety Guide	LA-12808 ⁽⁷⁾	LANL	1996	126

† Goodyear Atomic Corporation

第 2 表 各体系の制限質量(文献(4)の Table I を転載)

	metal; low H mixtures, compounds	principally hydrogenous compounds, mixtures	principally solutions	
	$0 \leq H/X \leq 2$	$H/X \leq 20$	$H/X \leq 100$	H/X unlimited ^(a)
<u>U²³⁵ (Refs. 1, 3, 4, 5, 14, 25)</u>				
thick water reflector	11.0	2.5	0.80	0.35
nominal reflector ($\leq 1''$ water)	15.0	3.5	1.04	0.43
minimal reflector ($\leq 1/8''$ ss)	22.0	5.0	1.40	0.55
<u>Pu²³⁹ (Refs. 5, 22, 25, 27)</u>				
thick water reflector	2.6 ^(b)	2.2	0.50	0.25
nominal reflector ($\leq 1''$ water)	3.3 ^(b)	3.2	0.70	0.32
minimal reflector ($\leq 1/8''$ ss)	4.4 ^(b)	4.8	1.00	0.43
<u>U²³³ (Refs. 5, 16, 25, 27)</u>				
thick water reflector	3.0	1.3	0.48	0.25
nominal reflector ($\leq 1''$ water)	4.1	1.7	0.69	0.33
minimal reflector ($\leq 1/8''$ ss)	6.0	2.3	0.90	0.45

(a) See p. 29 for values of H/X beyond which no limit is required.
(b) These limits apply to Pu metal at $\rho = 19.6 \text{ gm/cm}^3$; for alloy at $\rho = 15.8 \text{ gm/cm}^3$ the corresponding limits are 3.5 kg with thick water reflector, 4.8 kg with nominal reflector, and 7.0 kg with minimal reflector.

討する。文献(8)の(2)式によれば、

$$k_{\text{eff}} \approx \text{FRAC}^{0.25}$$

FRACは、臨界時の核分裂性物質の質量に対する実効中性子増倍係数が k_{eff} における核分裂性物質の質量の比である。この簡易式は20~200gU(またはPu)/lの濃度の核分裂性物質を含む体系に適用できる。式に $\text{FRAC}=1/2.3$ を代入すると

$$k_{\text{eff}} \approx 0.81$$

を得る。

安全係数2.3の根拠の記述はRev.1にない。これについて米国のある臨界安全性の専門家は、個人的な見解として、以下のことを教えてくれた。すなわち、制限質量を臨界質量の85%前後と定め、さらにその半分を二重装荷を考慮する場合の1バッチ当たりの取扱い制限質量と定めたのではないかと。2.3は $1/0.435$ とも表現できる。0.435の2

倍値は87%で、先の85%に近い。では85%とは一体何なのか。Rev.1ができた1961年当時の知識、実験データおよび計算手法の水準、並びに容認するリスクと享受できる利益との釣合いから決められた値ではないかとのことである。

3. 制限質量の導出

本題に入る。第4表は、科学技術庁のホームページに載っていた文献(9)からの抜粋である。表中の濃縮度20%-均質系の制限質量(表では安全質量と表現しているが、本稿では制限質量と記す)2.4kgが、沈殿槽のためのものである。この文献には、表の値はすべて文献(2)のFig. 1, 13および21(本稿の第1~3図に対応)に基づくதாகだけ記されている。以下では、濃縮度および均質/非均質別に、具体的に導出を試みる。

第 3 表 基礎的な核的特性値 (文献(2)の Table I を転載)

	U^{235}		U^{233}		Pu^{239}	
	Recommended	Minimum Critical	Recommended	Minimum Critical	Recommended	Minimum Critical
Mass, kg:						
Solution	0.35	0.82	0.25	0.59	0.22	0.51
Metal	10.0	22.8	3.2	7.5	2.6	5.6 α phase
					3.5	7.6 β phase
Diameter of Infinite Cylinder, in.:						
Solution	5.0	5.4	3.7	4.4	4.2	4.9
Metal	2.7	3.1	1.7	1.9	1.4	1.7 α phase
					1.8	2.1 β phase
Thickness of Infinite Slab, in.:						
Solution	1.5	1.7	0.8	1.2	0.9	1.3
Metal	0.5	0.6	0.2	0.3	0.18	0.24 α phase
					0.22	0.28 β phase
Solution Volume, liters	4.8	6.3	2.3	3.3	3.4	4.5
Chemical Concentration of Aqueous Solution, g (of isotope)/liter	10.8	12.1	10.0	11.2	6.9	7.8
U^{235} Enrichment of Homogeneous Hydrogen-Moderated Uranium, wt %	0.95	1.0	—	—	—	—

第 1 図 球状の均質 U(93.5%)-H₂O の制限質量(横軸は ^{235}U 濃度 $\text{kg } ^{235}\text{U}/\text{l}$ および $\text{H}/^{235}\text{U}$ 原子個数比, 縦軸は制限質量 $\text{kg } ^{235}\text{U}$, 文献(1)の Fig.1 を転載)

第2図 水反射体付き非均質ウラン棒-H₂Oの制限質量
(横軸はウラン濃縮度%, 縦軸は制限質量 kg ²³⁵U,
文献(1)のFig. 13を転載)

(1) 均質系/全濃縮度

第1図および第3図から導出した。第1図は濃縮度93.5 wt%の均質 U-H₂O の制限質量で、すでに安全係数2.3を含む。つまり曲線の読みの2.3倍値が臨界質量である。図にはおのおの反射条件の異なる3つの制限質量が描いてあるが、full-reflectorに相当する曲線が用いられたのであろう。その最小値、すなわち、全濃度範囲の制限質量は約0.35kg ²³⁵Uと読める。第1図と同じ化学組成で濃縮度93.5 wt%以下のものの制限質量は、第3図のallowance factorを乗じて求めることができる。この図によれば、濃縮度20 wt%かつ質量(mass)の場合、allowance factorは約1.35である。よって濃縮度20 wt%の均質 U-H₂Oの全濃度範囲の制限質量は、

$$0.35 \text{ kg } ^{235}\text{U} \times 1.35 = 0.473 \text{ kg } ^{235}\text{U}$$

を得る。これをkg Uに変換するには、濃縮度で除すればよい。すなわち、

$$0.473 \text{ kg } ^{235}\text{U} \div 0.2 = 2.36 \text{ kg U}$$

この値は2.4kg Uとは若干異なるが、対数目盛を読む時に生じる個人差が原因であろう。

(2) 非均質系/濃縮度5wt%以下

第2図から直接読み取った値である。

第4表 水反射体付き U-H₂O 燃料の
安全質量

濃縮度 (²³⁵ U%)	安全質量† (kg U)	
	均質系	非均質系
50	0.78	0.78
30	1.4	1.4
20	2.4	2.4
16	3.2	3.2
12	4.7	4.7
10	6.0	6.0
5	16	16
4	23.5	21
3	40	33
≤ 2.5	56	44

† 安全質量は安全係数2.3を含む。

(3) 非均質系/濃縮度6wt%以上

第2図には、濃縮度が5 wt%を超える領域の制限質量は与えられていない。そのため、均質系の制限値で代用したと考えられる。炉物理の教科書にあるように、²³⁸Uの共鳴吸収を逃れる確率の影響で、濃縮度が約6 wt%を超えると、非均質系の臨界質量は均質系のそれを上回る。よってこの代用は安全側である。もっとも、このような理由から、第2図の濃縮度の上限は5 wt%に決められたとも考えられる。この代用によって、この領域の安全係数は、実際には2.3よりも大きい。

4. 検 討

沈殿槽の制限質量の導出法がわかったので、制限質量2.4kgの安全裕度を、初めに、いくつかの因子に分けて定性的に検討する(安全係数を除く)。項目別に、以下のような裕度が考えられる。

- ・安全係数： 2.3(二重装荷対策, $k_{\text{eff}} \approx 0.81$ に相当)
- ・ウラン濃縮度：
 - 20.0 wt% (TID) > 18.8 wt% (沈殿槽)
- ・中性子の漏れ率： 球 (TID) < 有限長円筒 (沈殿槽)
- ・中性子反射効果： 全周水完全反射 (20 cm 以上) (TID) > ステンレス鋼製容器および水 (2.5 cm) 部分反射 (沈殿槽)
- ・硝酸中の窒素による中性子の吸収：
 - U-H₂O (TID) < UO₂(NO₃)₂水溶液 (沈殿槽)
- ・中性子の減速： 最適 (TID) $\approx$ ほぼ最適 (沈殿槽)

以上6項目の比較から、制限質量2.4kgは相当な安全裕度を有していることがわかる。

別な視点から安全裕度を検討するために、第4表の均質系の制限質量を、既存の臨界データと比較して、第4図に示す。曲線(1)が第4表の水反射体付き均質系 U-H₂O の制限質量のプロットである。曲線(3)はその2.3倍値で、臨界質量に相当する。曲線(3)でさえ、硝酸ウラニル水溶液の制限値⁽⁷⁾⁽¹⁰⁾を下回っており、第4表の数値がいかに大き

第 3 図 均質 $^{235}\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ の allowance factor (横軸はウラン濃縮度%, 縦軸は allowance factor, 文献(1)の Fig. 21 を転載)

第 4 図 均質 $\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ および均質硝酸ウラニル水溶液の臨界質量および制限質量の比較

第 5 表 燃料加工業者の臨界制限質量または形状の根拠[†]

燃料加工業者名	根 拠
三菱原子燃料(株)	1 次元コード ANISN と 16 群 Hansen-Roach 断面積の組合せによる計算値(米国)
原子燃料工業(株)	TID-7016 Rev. 2 を参照(米国)
日本ニュークリア・フュエル(株)	"Handbook of Criticality Data", AHSB(S) Handbook 1 (1st Revision), UKAEA (1965) を参照(英国)
(株)ジェー・シー・オー	1 次元 Sn コード ANISN と 16 群 Hansen-Roach 断面積の組合せによる計算値または TID-7016 Rev. 1 を参照(米国)

[†] 文献(11)の「沈殿槽に係る加工業者の臨界管理状況」と題する表をもとに作成した。

な裕度を含んでいるかがうかがえる。

5. ま と め

- (1) TID-7016 Rev. 1 およびそれ以前の米国の核的臨界安全ガイドの概要を述べた。
- (2) 臨界事故を起こした JCO の沈殿槽のウラン質量の制限値 2.4 kg の根拠を検討した。その結果、TID-7016 Rev. 1 を上手に利用して導出された値であることを、JCO や国とは独立に確認した。
- (3) 第 4 表の制限質量 2.4 kg は、定性的にみて、かつ既存の臨界データと比して十分な安全裕度を含むことを確認した。
- (4) JCO の作業者は、 U_3O_8 粉末と硝酸と純水とをバケツの中で混合して、ウラン濃度 370 gU/l の硝酸ウラン水溶液を 6.5 l 作った。したがって、バケツには制限値に等しい 2.4 kg のウランがあった。しかし、恐れを知らずに、「バケツで 6 ないし 7 杯も」硝酸ウラン水溶液を沈殿槽に注入したため、十分にあった安全裕度をすべて食いつくし、我が国初の臨界事故の原因を作った。

〔付 記〕

- (1) 第 4 表の制限質量は、申請のために JCO が独自に作成したものか、あるいは我が国の燃料加工事業者共通の基本データなのか筆者にはわからない。参考のために、各事業者が設定した臨界制限質量または形状の根拠を第 5 表に示す⁽¹¹⁾。
- (2) 第 1 表に示した米国の核的臨界安全ガイドシリーズ⁽²⁾⁽⁴⁾⁻⁽⁷⁾ および臨界安全性に関わる我が国の技術基盤である『臨界安全ハンドブック』⁽¹⁰⁾ を、多方面でぜひ活用していただきたい。最近の身近な例を紹介すると、筆者の属する研究炉部が有する濃縮度約 20 wt% の八角形板状ウラン金属の臨界安全性を示すのに、文献(7)が役に立った。前者は最新版が旧版の内容をすべて含んでいないため、全シリーズ揃えて価値がある。ロスアラモス国立研究所によれば、必要なら直ち

に送るとのこと。さらに、臨界事故のレビュー、いわゆる Stratton レポート⁽¹²⁾ は、改訂準備中でドラフトはできたが、JCO の事故を加筆するため、完成は来年の 1 月または 2 月になるとのこと。これについても 1,000 部を超える要求があるなら、知らせてほしいとのことなので、ご好意を受けて、どこかが窓口になって一括要求してはどうか。後者の文献(10)は原研の研究情報部研究情報課(Tel 029-282-6325)に複写依頼をすれば入手できる。

本稿執筆にご協力いただいた米国のロスアラモス国立研究所の Thomas P. McLaughlin, オークリッジ国立研究所の Calvin M. Hopper, アイダホ国立工学環境研究所の Valerie L. Putman の 3 氏に感謝いたします。

(1999 年 11 月 18 日 記)

— 参 考 文 献 —

- (1) 原子力安全委員会：ウラン加工工場臨界事故調査委員会第 2 回会合速記録(1999)。
- (2) USAEC Rep., TID-7016 Rev. 1, (1961)。
- (3) 原子力安全委員会：ウラン加工工場臨界事故調査委員会第 3 回会合：資料第 3-16 号「委員から寄せられた意見」, (1999)。
- (4) Callihan, A. D., et al. : LA-2063, (1956)。
- (5) Callihan, A. D., et al. : TID-7016, (1957)。
- (6) Thomas, J. T., Ed. : NUREG/CR-0095, ORNL/NUREG/CSD-6, (1978)。
- (7) Pruvost, N. L., Paxton H. C., Ed. : LA-12808, (1996)。
- (8) O'Dell, R. D., Parsons, D. K. : LA-UR-97-141, (1997)。
- (9) 日本核燃料コンバージョン：核燃料物質加工事業変更許可申請書, (1983)。
- (10) 日本原子力研究所核燃料施設安全性研究委員会臨界安全性専門部会臨界安全性実験データ検討ワーキンググループ：JAERI-1340, (1999)。
- (11) 原子力安全委員会ウラン加工工場臨界事故調査委員会第 5 回会合：資料第 5-5 号「安全規則に関する追加説明資料(その 2)」, (1999)。
- (12) Stratton, W. R., revised by Smith, D. R. : DOE/NCT-04, (1984)。