核燃料施設の事故影響評価手法に関する調査(V)

臨界事故影響の評価手法と試解析

山根 祐一^{1,*}, 中島 健², 阿部 仁¹,
林 芳昭³, 有澤 潤⁴, 早海 賢⁵

Research on Consequence Analysis Method for Probabilistic Safety
Assesment of Nuclear Fuel Facilities (V)

Evaluation Method and Trial Evaluation of Criticality Accident

Yuichi YAMANE^{1,*}, Ken NAKAJIMA², Hitoshi ABE¹,
Yoshiaki HAYASHI³, Jun ARISAWA⁴ and Satoru HAYAMI⁵

¹Safety Research Center, Japan Atomic Energy Agency, 2-4 Shirane, Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1112, Japan

²Research Reactor Institute, Kyoto University, 2-1010 Asashiro-Nishi, Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-0494, Japan

^{3~5}Japan Nuclear Fuel Limited, 4-108 Aza Okitsuke, Oaza Obuchi, Rokkasho-mura, Kamikita-gun, Aomori 039-3212, Japan

(Received April 10, 2009 and accepted in revised form October 23, 2009)

A special committee of “Research on the analysis methods for accident consequence of nuclear fuel facilities (NFFs)” was organized by the Atomic Energy Society of Japan (AESJ) under the entrustment of Japan Atomic Energy Agency (JAEA). The committee aims to research on the state-of-the-art consequence analysis method for the Probabilistic Safety Assessment (PSA) of NFFs, such as fuel reprocessing and fuel fabrication facilities. The objectives of this research are to obtain information useful for establishing quantitative performance objectives and to demonstrate risk-informed regulation through qualifying issues needed to be resolved for applying PSA to NFFs. The research activities of the committee were mainly focused on the consequence analysis method for postulated accidents with potentially large consequences in NFFs, *e.g.*, events of criticality, spill of molten glass, hydrogen explosion, boiling of radioactive solution and fire (including the rapid decomposition of TBP complexes), resulting in the release of radioactive materials to the environment. The results of the research were summarized in a series of six reports, which consist of a review report and five technical ones. In this report, the evaluation methods of criticality accident, such as simplified methods, one-point reactor kinetics codes and quasi-static method, were investigated and their features were summarized to provide information useful for the safety evaluation of NFFs. In addition, several trial evaluations were performed for a hypothetical scenario of criticality accident using the investigated methods, and their results were compared. The release fraction of volatile fission products in a criticality accident was also investigated.

KEYWORDS: *criticality accident, evaluation method, nuclear fuel facility, simplified method, one-point reactor kinetics code, quasi-static method, volatile fission product, release fraction*

I. はじめに

近年、我が国においても原子力施設の安全規制における

リスク情報活用に向けた活動が原子炉施設を中心に進む中で、核燃料施設を対象に確率論的安全評価(PSA: Probabilistic Safety Assessment)手法および基礎的データの整備も積極的に進められている。核燃料施設でのリスク情報の活用を促進するためには、手法、データの整備だけでなくこれらをもとに得られるPSA結果から導出されるリスク情報の品質の向上が不可欠である。

核燃料施設におけるPSA等のリスク情報を安全規制に

¹ ㈱日本原子力研究開発機構 安全研究センター

² 京都大学 原子炉実験所原子力基礎工学研究部門

³ 日本原燃㈱ 安全技術室

⁴ 日本原燃㈱ 業務管理室総務部

⁵ 日本原燃㈱ 再処理事業部技術部

* Corresponding author, E-mail: yamane.yuichi@jaea.go.jp

活用するには、核燃料施設の個々の安全上の特徴を反映した PSA 手法の整備および各施設におけるリスクの評価・分析を進めることが必要であることから、「核燃料施設事故影響評価手法調査専門委員会」では、平成16年度より(株)日本原子力研究開発機構からの委託を受けて、核燃料施設の PSA 手法のうち、特に事故時の影響評価のための解析手法に重点をおいて PSA に適用可能な解析手法について調査検討を実施してきた。その成果を、総論1編および再処理施設で想定される代表的な事象ごとにまとめた5編の技術資料としてまとめた。

本技術資料では、核燃料施設の安全評価に有益な情報を提供することを目的として、簡易評価手法や一点炉動特性解析コード、準定常法などの臨界事故評価手法について調査し、その特徴についてまとめた。さらに、仮想的な臨界事故シナリオに対してこれらの手法を適用した試算を行い、その結果を比較した。臨界事故における揮発性の核分裂生成物の移行率について調査した結果についても報告する。

II. 臨界事故の事例と評価手法

臨界事故の評価では、周辺公衆や従事者に対する放射線被ばくの影響を適切に評価することが求められる。

周辺公衆への線量評価では、放射性物質の環境への放出に伴う線量および臨界事故が発生した機器からの直達線による線量を評価する。この場合、臨界事故発生時の詳細な出力(核分裂率)の時間変化よりも発生エネルギー、すなわち総分裂数を適切に評価することが必要となる。

一方、従事者の線量評価については、臨界事故が発生した機器からの直達線の影響を適切に評価することが重要である。この場合、退避等の被ばく低減措置も考えられることから、総核分裂数よりも出力の時間変化、特に初期バーストと呼ばれる事故発生直後の大きな出力変動を適切に評価することが必要となる。

以下では、このような臨界事故評価を実施する立場の人々に有用な情報を与えることを目的としてこれまでに提案されている核燃料取扱施設における臨界事故評価手法を調査¹⁾し、各手法の特徴を取りまとめた。

1. 過去の事故と評価事例

(1) 過去の臨界事故の特徴

米国ロスアラモス国立研究所の報告書「臨界事故レビュー(LA-13638)²⁾」によると、これまでに臨界事故として報告されている事例は60件ある。そのうちの38件は臨界実験装置など、あらかじめ臨界になる可能性が想定されていた機器で発生したものであるが、残りの22件は、燃料加工施設などの臨界になることが想定されていなかった機器において発生している。

燃料加工施設などにおける工程操作中に発生した22件の臨界事故のうち、1999年に東海村の JCO で発生した臨

界事故^{3,4)}を含め、21件が溶液状またはスラリー状の核燃料物質で発生している。その他の1件は固体(金属)である。燃料の種類としては、高濃縮ウランが11件、プルトニウムが8件、低濃縮ウランが3件である。事故が発生した容器は、22件中21件までが円筒形であり、1件が平板である。円筒容器はすべて非臨界安全形状であり、質量あるいは濃度管理による制限を行っていた。総核分裂数については、米国アイダホの ICPP (Idaho Chemical Processing Plant) における事故(1959年)が最大で 4×10^{19} 、英国セラフィールドの Windscale Works における事故(1970年)が最小で 1×10^{15} と評価されているが、その他の多くは $1 \times 10^{15} \sim 3 \times 10^{18}$ の範囲となっている。なお、環境影響としては、敷地外において短半減期の核分裂生成物が検出された事例がいくつかあるが、公衆への被ばくが生じたのは、東海村の臨界事故が唯一の事例である³⁾。これは事故の発生した機器および建物がほとんど放射線遮へいのない状況であったことと敷地境界からの距離が非常に近かったことによる。

以上のことから、過去の臨界事故においては、高濃縮ウランまたはプルトニウムの溶液状燃料が臨界安全でない形状の円筒状の容器に流入して臨界に達する事例が多くを占めていることがわかる。

(2) 国内および海外の臨界事故評価事例

日本国内では、茨城県東海村で再処理工場が稼働中であり、青森県六ヶ所村に再処理工場が建設中、MOX 燃料加工施設が建設準備中である。これらの施設では、臨界事故時の総核分裂数の評価が行われている(その他の核燃料施設では臨界事故の評価は行われていない)。臨界事故時の総核分裂数はそれぞれ、東海再処理工場では災害評価用の事故として 10^{20} 、六ヶ所再処理工場では設計基準事象として 10^{19} および立地評価事故として 10^{20} 、ならびに MOX 燃料加工施設では仮想臨界事故として 5×10^{18} が想定^{5,6)}されている。東海再処理工場における 10^{20} は、過去の事故事例、事故解析例を参考に想定されたものである。六ヶ所再処理工場における 10^{19} は、選定した設備の事故シナリオでは臨界終息措置より速やかに未臨界状態となることから、解析により求めた総核分裂数は十分小さく抑えられるが、諸外国における過去の臨界事故例等を参考に保守側に想定された数値である。また、立地評価事故の 10^{20} は、施設の隔離距離の妥当性を確認する目的で、設計基準事象をもとに工学的に仮想したものである。一方、MOX 燃料加工施設における 5×10^{18} は、これまでに発生した国内外の臨界事故例、臨界事故評価事例等⁷⁾を参考に、原子力安全基準専門部会において設定された数値である。

海外では、米国 NRC 発行の「核燃料サイクル施設事故解析ハンドブック(NUREG/CR-6410)」⁸⁾に事故解析時の核分裂数の記載がある。核燃料施設を4種類に分類し、それぞれの分類における総核分裂数を、Table 1 のように過去の臨界事故の経験から推定している。

Table 1 Classification of facility and evaluation of total fission yield by NRC

Class	Total fission yield
Solution systems	$1 \times 10^{15} \sim 4 \times 10^{19}$
Fully moderated and reflected solids	5×10^{18}
Powder systems	2×10^{17}
Large storage arrays	5×10^{18}

2. 臨界事故の評価手法

これまでに提案されている臨界事故の評価手法は、基本的に溶液状の核燃料を対象としている。これは、溶液状の核燃料の臨界質量が非常に小さく、また移送も容易であり、本質的に臨界になりやすいことと、上に述べたように核燃料取扱施設における過去の臨界事故のほとんどが溶液燃料体系で発生しているためである。本資料においても、以下では溶液状の核燃料による臨界事故を対象とした調査、評価を実施した。

(1) 臨界事故時の物理現象

溶液状の核燃料の臨界事故については、核分裂数、温度、圧力などの挙動を把握するための臨界事故模擬実験が米国⁹⁾、フランス^{10,11)}、日本^{12~14)}で実施されている。米国およびフランスの実験では、主に高濃縮ウランの溶液について、日本原子力研究開発機構(以下、原子力機構)の過渡臨界実験装置 TRACY では低濃縮(濃縮度10%)ウランの溶液について、種々の実験条件(添加反応度、添加率、等)に対する出力(核分裂率)、温度、圧力などの実験データが蓄積されている。

溶液状の核燃料の臨界事故に関する物理現象の概略は以下のとおりである。非安全形状の容器に十分な量の溶液燃料が蓄積し臨界超過の状態になると、核分裂連鎖反応により出力が上昇し、燃料溶液の温度が上昇する。反応度温度係数が負の場合には、温度上昇に伴い負の反応度フィードバック効果が生じる。また、出力の上昇に伴い溶液の放射線分解反応が起こり、放射線分解ガスが発生する。このガスボイドによる大きな負の反応度効果が生じ、出力は急激に減少するが、ガスはやがて浮力により系外へ消失し、再び正の反応度が加わり、出力が上昇する。このガスボイドの生成・消滅の繰り返しにより、出力振動が生じるが、やがて十分に温度が上昇することにより、体系は未臨界となり事故は終息する。なお、最初に投入された反応度が大きく、溶液の温度上昇だけでは未臨界を維持できない場合には、溶液の沸騰が起こり、体積の減少と減速材の喪失により体系は未臨界となる。

なお、ウラン燃料溶液では、反応度温度係数は常に負であるが、プルトニウム燃料では、低濃度で体積が大きく中性子の漏れが小さい場合に、正の反応度温度係数を示すことが Suzaki 等により指摘されており、最近フランス IRSN が行った実験により、プルトニウムの希薄溶液にお

Table 2 Characteristics of criticality accident evaluation method

Method	Characteristics	Short time-scale	Reactivity feedback			
			Fuel temp.	External cooling	Radio-lytic gas void	Boiling
Simplified AGNES (Kinetics)	Overall	×	○	×	×	○
	One-point	○	○	○	△	×
Quasi-steady-state	Energy balance	×	○	○	△	○

Note : (○ : good, △ : conditionally good, × : not good).

いては、反応度温度係数がゼロに近い、もしくは正となる可能性が示された¹⁵⁾。

臨界事故における核分裂出力の時々刻々の変化は、投入された反応度の大きさとその投入速度(添加反応度および反応度添加率)、即発中性子寿命や実効遅発中性子割合などの動特性パラメータ、反応度温度係数、反応度ボイド係数、核燃料の比熱などによって支配されている。これらは、核物質の種類(ウラン、プルトニウム)、燃料濃度、減速材、燃料形状などによって決まる。臨界が長時間継続する場合には、核燃料容器や構造材の比熱および熱伝導率、冷却設備等の影響が無視できなくなる。また、臨界事故時には、液面から核分裂によって生じた放射性物質が空气中に飛散するが、その放出割合は被ばく評価上重要な量である。これについては、III 章で述べる。

(2) 評価手法

臨界事故の規模を評価することを目的として、これまでに様々な動特性コードが開発されている^{16~23)}。これらの多くは一点炉動特性方程式に基づくものであるが、FETCH²¹⁾や INCTAC²³⁾などのように詳細な空間動特性解析を行うものもある。一点炉動特性解析に比べ、空間動特性解析は一般に多大な計算コストを必要とするため、事故規模の上限値評価に必要となるサーベイ計算等に用いることは困難である。動特性解析以外にも、事故事例の調査と炉物理的考察に基づいて総核分裂数や最高出力を燃料物質の体積等の関数として表した簡易評価手法、添加反応度が温度およびボイドによるフィードバック反応度によって常に補償されるとする準定常法などがある。

ここでは、利便性や公開性の観点から臨界事故規模の上限値推定に有用と考えられる簡易評価手法、一点炉近似に基づく動特性解析手法および準定常法を取り上げることとする。それぞれの手法の特徴は **Table 2** のとおりである。以下では、各手法について説明する。

(a) 簡易評価手法

溶液燃料体系の臨界事故の規模を簡易的に評価する手法が1970年代以降、複数提案されている^{24~27)}。これらの手法は、米国およびフランスの過渡臨界実験や過去の臨界事

Table 3 Expressions of simplified evaluation methods

Proposer	Evaluation item	Expression	
Tuck	Max. FB	$F_B = 2.4 \times 10^{15} \cdot V$	—Uranium
		$F_B = 4.6 \times 10^{16} a^{1/4} \exp \left[0.0177D - \frac{0.8 \cdot (150 - H)a}{D} \right]$	—Pulonium
	FT	$F_T = V \times 10^{17}$	
Olsen	FB	$F_B = 2.95 \times 10^{15} \cdot V_B^{0.85}$	
	FP	$F_P = 3.2 \times 10^{18} \cdot (1 - t^{-0.15})$	
	FT	$F_T = F_B + F_P$	
Barbry	FT	$F_T = \frac{V \cdot t}{3.55 \times 10^{-15} + 6.38 \times 10^{-17} \cdot t}$	($t \leq 600$ s)
Nomura	FT	$F_T = 2.6 \times 10^{16} \cdot V$	No-boiling (short duration)
		$F_T = 6 \times 10^{16} \cdot V$	Boiling (long duration)

Note : F_B : Fissions released in initial burst, a : Solution feed rate [L/s], F_T : Total number of fission, F_P : Fissions released in plateau, V : Solution volume [L], D : Container diameter [cm], H : container height [cm], V_B : Solution volume at initial burst [L], t : Duration time of criticality [s].

故事例と物理的考察に基づいており、燃料の体積(容器形状)などの関数として、最大出力や総核分裂数が求められる。各手法を過去の臨界事故例に適用した結果は、すべての手法で、おおむね上限を再現している。それぞれの手法の特徴を以下に記すとともに、評価の方法を **Table 3** にまとめた。

① Tuck の方法²⁴⁾

初期バースト部の核分裂数を、燃料体積または容器形状(半径、高さ)で与えている。ウランとプルトニウムで異なった式を用いている。総核分裂数については、燃料体積の式として与えられているが、これは、溶液の蒸発により事象が終息するとして導かれたものである。

② Olsen の方法²⁵⁾

CRAC の実験データに基づき初期バースト部とプラト一部に分割して総核分裂数を評価している。プラト一部の評価では総核分裂数は燃料の体積によらず、時間のみの関数としている。この式は、容器直径が 300~800 mm、給液速度が 0.027~0.52 L/s(CRAC の実験範囲)に適用できる。

③ Barbry の方法²⁶⁾

CRAC および SILENE 実験結果から全積算出力の包絡値を定式化したもので、ウラン燃料を対象としており、総核分裂数を燃料体積と継続時間(最大600秒)の関数として与えている。

④ Nomura の方法²⁷⁾

総核分裂数を燃料体積の関数として与えている。臨界が短時間すなわち沸騰に至る前に終息する場合と長時間に亘り臨界が継続し溶液が沸騰した場合の2種類の式が与えられている。ウランあるいはプルトニウムなどの燃料の種類、濃度、組成、濃縮度、富化度、硝酸濃度などの変化範囲を考慮し、保守的な結果を与えるようにパラメータを設定している。

(b) 一点炉動特性解析手法

一点炉近似により導かれる動特性方程式を利用した解析手法の特徴は、簡易評価手法や次項に述べる準定常法に比べ、詳細な出力挙動を再現できることにある。一点炉動特性に基づく解析コードのうち、溶液燃料の臨界事故解析を目的としたものには、国内では原子力機構が開発した AGNES²²⁾ および TRACE²⁰⁾、三菱原子力工業(株)(現、三菱重工業(株))が開発した CREST¹⁸⁾、英国の CRITEX¹⁶⁾、米国の SKINATH¹⁷⁾、旧西ドイツの FELIX¹⁹⁾ などがある。いずれのコードも一点炉動特性方程式を解く計算方法、温度フィードバックおよびボイドフィードバックの計算モデル、反応度添加の計算モデルなどに特徴がある。

ここでは、原子力機構において TRACY, STACY の実験結果をフィードバックする形で改良が行われている AGNES コードの概要について説明する。

AGNES コードは溶液燃料体系の臨界事故シミュレーションを行うためのコードで、一点炉動特性方程式を解く。熱計算では、1次元熱伝達モデルを使用しており、溶液燃料系に特有な放射線分解ガスボイドによるボイドフィードバック効果を評価するためにボイド生成モデルを採用している。

核計算では、中性子源項付き一点炉動特性方程式を解くことにより出力密度 P を求める。

$$\frac{dP}{dt} = \frac{\rho - \beta}{\Lambda} P + \sum_{i=1}^6 \lambda^i C^i + S \quad \frac{dC^i}{dt} = \frac{\beta^i}{\Lambda} P - \lambda^i C^i \quad (1)$$

ここで、 ρ : 添加反応度(\$), β^i : 第 i 群実効遅発中性子割合, β : 実効遅発中性子割合, Λ : 中性子生成時間(s), λ^i : 第 i 群先行核崩壊定数(1/s), C^i : 第 i 群遅発中性子先行核密度, S : 中性子源強度, である。幾何学的条件としては、円筒形状の体系のみを取り扱うことができる。温度フィードバック反応度としては、ドップラー効果、散乱断面積効果、密度変化および体積変化の効果を考慮することができる。これは、反応度温度係数として必要な効果を含

めた値をあらかじめ計算し、入力値とすることで実現する。なお、反応度温度係数については、温度分布の影響を考慮するために、平均温度変化に対して求めた反応度温度係数に次の重み W を乗じた係数を使用している。

$$W = 1.0 + 0.5 \exp(-t/\tau) \quad (2)$$

ここで、 t : 臨界事故の経過時間、 τ : 重み消失の時定数、である。事故発生時は、出力分布に比例した温度分布が形成されるものと仮定して、温度反応度効果の重みを大きくし、その後は時間経過とともに温度分布が平坦化するものと考えている。

熱計算においては、計算領域を燃料、タンク壁、冷却材の3つの領域に分割し、それら3領域間の1次元熱伝達モデルに基づいて計算を行う。燃料領域(第1領域)とタンク壁領域(第2領域)における熱バランス式は

$$V_i(rC_p)_N \frac{\partial T_i}{\partial t} = \gamma_i P V_i + (hA)_{i-1}(T_{i-1} - T_i) - (hA)_i(T_i - T_{i+1}) \quad (3)$$

と表される。ここで、 N は領域を表す。領域 N を分割したメッシュの番号を i で表す。左辺項は i 番目のメッシュの温度上昇率、右辺第1項はエネルギー生成項、第2項および第3項は隣接メッシュとの熱の交換を表す。

放射線分解ガスボイドの影響を考慮するため、燃料領域($N=1$)を2次元 RZ 面内で小領域(i, j)に分割し、各小領域(i, j)におけるボイド率 F_{ij} を以下の式に従って計算する。

$$\begin{aligned} \frac{\partial F_{ij}}{\partial t} &= \nu \gamma_{ij} P (C_{ij} - C_0) \theta (C_{ij} - C_0) - \nu_{i\zeta} \frac{\partial F_{ij}}{\partial z} \\ \frac{\partial C_{ij}}{\partial t} &= G \gamma_{ij} P - \frac{C_{ij}}{F_{ij}} \nu_{ij} \frac{\partial F_{ij}}{\partial z} - \frac{C_{ij}}{\tau} \end{aligned} \quad (4)$$

ここで、 F_{ij} : ボイド率、 C_{ij} : 分解ガスのモル濃度、 P : 出力密度、 γ_{ij} : 出力割合、 ν_{ij} : ボイド上昇速度、 ν : エネルギーボイド変換係数、 C_0 : 分解ガスの飽和モル濃度、 θ () : ヘビサイド関数、 τ (s): 分解ガスの消滅時定数(s)、である。

AGNES コードは、主に TRACY を用いたウラン溶液燃料の臨界事故模擬実験データを用いて、検証が行われており、また東海村臨界事故の出力挙動解明のための解析に使用された。

(c) 準定常法

準定常法とは、溶液燃料体系の臨界事故解析を行うために開発された手法である^{28,29)}。一般に、溶液燃料体系では、フィードバック反応度として温度反応度のほかに放射線分解ガスおよび沸騰による2種類のボイド反応度がある。準定常法では、体系に加えられた反応度がこれらのフィードバック反応度により、常に補償されていると考えて、出力の時間変化を算出する手法である。具体的には、あらかじめ与えられたボイドの発生量(ボイド率)と出力の相関式を用いて、体系の反応度がゼロとなるようなボイド率から出力を求め、その出力を用いて熱計算により温度変化を評価する手法である。ただし、この手法は出力の平均

的な変化を計算する手法であり、短時間での出力変化を計算することはできない。

準定常法では、添加反応度を ρ_{IN} 、温度反応度を ρ_{Temp} 、ボイド反応度を ρ_{Void} とすると、常に次式が成立すると仮定している。

$$\rho_{IN} + \rho_{Temp} + \rho_{Void} = 0 \quad (5)$$

ここで、体系(溶液)の温度変化(上昇)を T 、また、ボイド率を f とすると、上式は次のように書き換えられる。

$$\rho_{IN} + \alpha_{Temp} \cdot T + \alpha_{Void} \cdot f = 0 \quad (6)$$

ただし、 α_{Temp} 、 α_{Void} は各々温度およびボイド反応度係数である。また、ここでは簡単のために反応度係数は1次係数のみとしているが、実際の計算では2次係数まで取り扱っている。

さて、ボイド率 f は体系の出力 P の関数により表現できる。具体的には、放射線分解ガスによるボイド率は次式となる。

$$f(1-f) = C_1 \cdot P \quad (7)$$

ここで、 C_1 は燃料条件等により決まる定数である。また、沸騰によるボイド率は、定数 C_2 を用いて次式で表される。

$$f = C_2 \cdot P \quad (8)$$

準定常法では、(5)~(8)式を用いて、出力変化を計算する。まず、ある時間幅 dt における添加反応度が与えられると、(5)式において温度変化 T をゼロとして、ボイド率 f を求める。このボイド率から(6)式(非沸騰時)あるいは(7)式を用いて出力を求めることができる。次の時間幅では、この出力を用いて温度変化を評価し、この温度変化を考慮して(5)~(7)式を用いて、ボイド率、出力を順次計算している。これにより、出力の時間変化を各時間幅(ステップ)について計算することができる。

準定常法は、フランスで行われた SINELE 実験データを用いて検証が行われている。上述のように、短時間での出力挙動は再現できないが、沸騰状態を含む平均的な出力挙動およびエネルギーの時間変化をよく再現していることが確認されている。

3. 臨界事故の評価事例

臨界事故規模を評価する上で参考となる評価事例を示すため、仮想的な臨界事故条件を設定し、それに対して II-2 節で紹介した3種類の評価手法を用いて事故規模(核分裂数)の評価を行った。

(1) 仮想的な臨界事故条件の設定

過去の事故事例では、Pu 溶液系と U 溶液系での臨界事故が多くを占めているが、ここでは、最小臨界量が小さい Pu 溶液系として、再処理工程等で取り扱われる硝酸プルトリウム水溶液を対象とすることとした。Pu の同位体組成は六ヶ所再処理工場の安全設計で標準的に用いられる Pu239 : Pu240 : Pu241 = 71 : 17 : 12 (重量比) とし、Pu 濃度は 20 g/L、遊離硝酸濃度は保守的にゼロ規定とし

た。また、初期温度は常温に近い30℃とした。これら条件のPu溶液燃料が半径25.15 cmの円筒容器^{a)}に臨界を超えて誤給液される事象を基本ケースとして評価することとした。

なお、容器寸法(半径)変化の影響を調べるために、半径が19.96 cm, 31.69 cmの円筒容器についても一部評価を実施することとした。

容器はステンレス(SUS304)製で、厚さを1 cmとした。

Fig. 1に示すように、容器の側面および下部には、周辺の構造材等による反射効果を考慮して、厚さ2.5 cmの水反射体があるものとした。

以上のような設定に対して核特性解析を行い、基本的な動特性パラメータを計算した。解析にはSRAC95³⁰⁾およびTWO-DANT³¹⁾コードとJENDL-3.2核データライブラリー³²⁾を使用した。反応度温度係数ならびにボイド係数の計算では、密度の変化に伴う体積膨張を考慮した。結果を**Tables 4~6**に示す。

(2) 簡易評価による総核分裂数の評価

II-3-1項で設定した仮想臨界事故条件に対して、簡易評価手法を用いて総核分裂数を評価した。用いた評価式は以下の4種類である。

$$\text{Tuck} : F_T = V \times 10^{17} \quad (9)$$

$$\text{Olsen} : F_T = 2.95 \times 10^{15} \cdot V_B^{0.85} + 3.2 \times 10^{18} \cdot (1 - t^{-0.15}) \quad (10)$$

$$\text{Barbry} : F_T = \frac{V \cdot t}{3.55 \times 10^{-15} + 6.38 \times 10^{-17} \cdot t} \quad (11)$$

$$\text{Nomura} : F_T = 6 \times 10^{16} \cdot V(\text{沸騰ありの式}) \quad (12)$$

ここで、 F_T , V , V_B , t はそれぞれ、総核分裂数(fission), 燃料体積(L), パースト時の溶液体積(L), 継続時間(s)を表す。

Fig. 1 Geometry of fuel, container and water-reflector

^{a)} この容器寸法は、当初は容積100 Lとしたときに直径と高さが等しくなるように決定したものである。他の半径(19.96 cm, 31.69 cm)も同様で、それぞれ容積を50および200 Lとしたものである。解析においては臨界となる高さを基準としていることから、当初の考え方とは異なっているが、最初に設定した半径をそのまま使用している。

Table 4 Kinetics parameters for case of 25.15 cm-Diameter (Volume 100 L.)

Container radius r (cm) 25.15 Critical height hc (cm) 39.77 Critical volume (L) 79.02			Reactivity temperature coefficient		
Value at critical			1st	2nd	
β eff	λ (1/s)		Reactivity void coefficient		
1	8.43E-05	1.29E-02	1st	-2.74E-02	\$/°C
2	8.57E-04	3.07E-02	2nd	-3.61E-04	\$/°C ²
3	6.26E-04	1.31E-01	Height-reactivity-transfer coefficient		
4	1.10E-03	3.39E-01	1st	-8.30E-01	\$/%
5	3.80E-04	1.43E+00	2nd	-2.01E-02	\$/% ²
6	1.08E-04	3.25E+00	Height-reactivity-transfer coefficient		
total	3.15E-03	—	1st	1.50E-01	\$/mm
Prompt neutron lifetime (s)	5.46E-05		2nd	-5.12E-04	\$/mm ²
			3rd	1.59E-06	\$/mm ³
			1E-2 means 1×10^{-2}		

Table 5 Kinetics parameters for case of 19.96 cm-Diameter (Volume 100 L.)

Container radius r (cm) 19.96 Critical height hc (cm) 75.83 Critical volume (L) 94.91			Reactivity temperature coefficient		
Value at critical			1st	2nd	
β eff	λ (1/s)		Reactivity void coefficient		
1	8.41E-05	1.29E-02	1st	-4.13E-02	\$/°C
2	8.55E-04	3.07E-02	2nd	-5.04E-04	\$/°C ²
3	6.24E-04	1.31E-01	Height-reactivity-transfer coefficient		
4	1.10E-03	3.39E-01	1st	-1.19E+00	\$/%
5	3.79E-04	1.43E+00	2nd	-2.12E-02	\$/% ²
6	1.08E-04	3.25E+00	Height-reactivity-transfer coefficient		
total	3.15E-03	—	1st	2.70E-02	\$/mm
Prompt neutron lifetime (s)	5.45E-05		2nd	-5.49E-05	\$/mm ²
			3rd	9.10E-08	\$/mm ³
			1E-2 means 1×10^{-2}		

Table 6 Kinetics parameters for case of 31.69 cm-Diameter (Volume 100 L.)

Container radius r (cm) 31.69 Critical height hc (cm) 31.37 Critical volume (L) 99.0			Reactivity temperature coefficient		
Value at critical			1st	2nd	
β eff	λ (1/s)		Reactivity void coefficient		
1	8.41E-05	1.29E-02	1st	-1.85E-02	\$/°C
2	8.55E-04	3.07E-02	2nd	-1.97E-04	\$/°C ²
3	6.24E-04	1.31E-01	Height-reactivity-transfer coefficient		
4	1.10E-03	3.39E-01	1st	-5.74E-01	\$/%
5	3.79E-04	1.43E+00	2nd	-1.79E-02	\$/% ²
6	1.07E-04	3.25E+00	Height-reactivity-transfer coefficient		
total	3.15E-03	—	1st	2.73E-01	\$/mm
Prompt neutron lifetime (s)	5.46E-05		2nd	-1.16E-03	\$/mm ²
			3rd	4.72E-06	\$/mm ³
			1E-2 means 1×10^{-2}		

簡易評価式のいずれも、燃料の体積 V のみか、体積 (V または V_B) と継続時間 t の関数として総核分裂数 F_T を表している。ここでは、あらかじめ臨界液位やバースト時液位が明確でない場合に簡易評価を行うことを想定して、体積 V および V_B を臨界体積である約 80~100 L を包絡する 50, 80, 100, 200 L とした。また、(10), (11) 式における継続時間 $t = \infty$ とした。このときの各簡易評価法による総核分裂数を **Table 7** に示す。Olsen 以外の式では総核分裂数は式のとおりの体積に比例しているが、Olsen の式では体積の増加に応じて若干増加している程度であった。基本ケースの臨界体積に近い 80 L の結果をみると、評価結果には $(1.3 \sim 8.0) \times 10^{18}$ の幅があることがわかる。

(3) 動特性解析による出力、温度の時間変化と総核分裂数の評価

II-3-1 項で設定した仮想臨界事故条件に対して AGNES コードを用いて動特性解析を行った。燃料溶液の給液流量率は 0.5 L/min とし、これに相当する反応度の添加率を Tables 4~6 に示した液位-反応度換算係数より求めた。また、反応度の添加量としては即発臨界となる 1\$ とした。これは、即発臨界となる時点までに異常状態が検知され、誤給液が停止されるとの想定である。このときの各容器における臨界液位からの給液時間および対応する反応度添加率^{b)}を **Table 8** に示す。解析において、燃料から容器への熱伝達は考慮したが、容器の外表面で断熱とした。一部のケースを除いて、反応度添加後 1,000 秒まで計算したが、ほとんどのケースで、1,000 秒まで単調に出力が減少

し、総核分裂数に影響しない程度に十分に小さな値となった。また、解析の初期状態で、体系は臨界であるとした。すなわち、時刻ゼロで臨界液位まで燃料が給液された状態を想定した。半径 25.15 cm の容器の場合だと、時刻ゼロで燃料が 0.5 L/min の流量率で流入し始め、162.9 秒後に 1\$ の反応度が添加された時点で流入が停止することとなる。なお、本評価では最大出力(核分裂率)および総核分裂数に着目しており、これらへの影響がほとんどない^{c)}、放射線分解ガスボイドによる反応度フィードバック効果は無視することとした。また、臨界時の動特性パラメータを用いて解析を行ったが、燃料溶液の熱容量の評価には、1\$ 添加後の体積を用いた。

最大出力と総核分裂数のまとめを **Table 9** に示す。半径の増大に対して最大出力も増大している。半径が大きいと臨界液位が小さく、液位反応度係数が大きいため、同じ流量率であれば反応度の添加率が大きくなり、最大出力に達するまでに添加される反応度が大きくなるためと考えられる。総核分裂数は、半径が約 25 cm の場合が最小となった。Table 9 に示すように総核分裂数は、最大出力とは異なり、体積が最小値より増加すると、増加する傾向がみられた。

(4) 準定常法による出力、温度、総核分裂数の評価

本項では、準定常法を用いて、半径 25.15 cm の容器への硝酸プルトニウム水溶液の誤給液により発生する臨界事

Table 7 Result of evaluation of total fission yield using simplified method

Volume (L)	Tuck	Olsen	Barbry	Nomura
50	5.00E+18	3.28E+18	7.85E+17	3.00E+18
80	8.00E+18	3.32E+18	1.26E+18	4.80E+18
100	1.00E+19	3.35E+18	1.57E+18	6.00E+18
200	2.00E+19	3.47E+18	3.14E+18	1.20E+19

Table 8 Criticality solution level, solution feed time and reactivity insertion ratio for 1\$ excess reactivity for each diameter

Radius (cm)	Critical height (cm)	Sol. feed rate 0.5 (L/min) / Excess reactivity 1 (\$)	
		Sol. feed time (s)	Reactivity insertion rate (cent/s)
20	75.83	600.8	0.166
25	41.75	162.9	0.614
32	31.37	141.2	0.708

Table 9 Effect of container diameter on maximum power and total fission yield

Container radius (cm)	Maximum power		Total fission yield		Critical volume	
	Value (fission/s)	difference (%) ^{a)}	Value (fission)	difference (%) ^{a)}	Value (fission)	difference (%) ^{a)}
20	3.66E+15	-64	4.68E+17	20	94.9	20
25	1.02E+16	—	3.90E+17	—	79.0	—
32	1.38E+16	35	4.45E+17	14	99.0	25

^{a)} Rate of change from case of 25 cm container diameter.

^{b)} 反応度添加率は、給液流量率が一定であれば、液位が高くなるほど小さくなるが³³⁾、ここで仮定している添加反応度(1\$)の範囲では、この効果は小さいため、本解析においては、単純に添加反応度を給液に掛かる時間で除した値を用いて、一定の反応度添加率として解析している。

^{c)} 放射線分解ガスボイドの影響が顕著となるのは出力が最大となった後であり、かつ発生している時間が短いため。

Table 10 Condition and result of kinetics calculation using quasi-steady-state method

Case	Calculation Condition				Result	
	Inserted reactivity (\$)	Sol. feed rate (L/min)	Sol. feed time (s)	Reactivity insertion rate (\$/s)	Total fission yield (fissions)	Final temperature (°C)
1-1	1.0	0.1	814.7	1.227E-03	2.83E+17	57.0
1-2	1.0	0.5	162.9	6.139E-03	2.83E+17	57.0
1-3	1.0	1.0	81.47	1.227E-02	2.83E+17	57.0
2-1	2.0	0.1	1668	1.199E-03	4.88E+17	75.6
2-2	2.0	0.5	333.7	5.993E-03	4.88E+17	75.6
2-3	2.0	1.0	166.8	1.199E-02	4.88E+17	75.6
3-1	3.0	0.1	2564	1.170E-03	6.63E+17	90.8
3-2	3.0	0.5	512.8	5.850E-03	6.63E+17	90.8
3-3	3.0	1.0	256.4	1.170E-02	6.63E+17	90.8

故の解析を行った。解析では燃料は外界(容器等)に対して断熱であるとし、エネルギー(核分裂数)が、ほぼ飽和したと判断できる時間まで計算を継続した。解析で使用した核特性パラメータは前項と同一である。給液率は、動特性計算の場合の0.5 L/minに加えて、0.1 および 1.0 L/min の3 ケースについて評価することとした。また、添加反応度も1\$に加えて、2 および 3\$の計3 ケースを評価することとし、全体としては、両者の組合せ(3×3)による計9 ケースの計算を行うこととした。各計算のケース番号と計算条件の対応を Table 10 に示す。本計算では事故時の最終エネルギー(総核分裂数)の評価を主として行った。

Table 10 に、各計算の終了時における総核分裂数と最終温度を示してある。表が示すように、総核分裂数については、添加反応度に依存しており給液率(反応度添加率)の影響はない。この総核分裂数は、添加した反応度を補償するために必要な温度まで溶液温度を上昇させるのに必要なエネルギー(核分裂数)に等しい値となっている。なお、動特性計算では、半径 25.15 cm の容器で添加反応度 1\$ の場合の総核分裂数が 3.9×10^{17} であったのに対し、準定常法では、添加反応度 1\$ の場合、 2.8×10^{17} の程度となっており、おおむねよい一致となっている。しかし、簡易評価の値($1.3 \sim 8.0 \times 10^{18}$)に比べると、かなり小さな値となっている。

まとめると、準定常法により溶液燃料体系の仮想臨界事故時の動特性挙動を評価したところ、総核分裂数は、反応度添加率には依存せず、添加反応度により決まることが示された。また、本項に示した条件下では、準定常法により求めた総核分裂数は、動特性解析の結果と比較的よい一致を示し、簡易法に比べて非常に小さな値となった。

簡易評価法では、燃料もしくは減速材が消失するまでを考慮しているが、燃料溶液もしくは減速材である水の熱容量が大きいために、放出される核分裂エネルギーが大きくなる。一方、動特性解析や準定常法で今回検討した時間の範囲では、水分の蒸発による消失が小さく、放出される核分裂エネルギーも小さい。このように準定常法の解析条件

と異なった条件となっていることが両者の差の要因と考えられる。

(5) まとめ

仮想的な臨界事故条件を設定し、それに対して3種類の評価手法を用いた事故評価を行った。この結果、総核分裂数に関して、動特性解析と準定常法はおおむね等しい解析結果を示すことがわかった。一方、ここでの計算例や類似した条件下では、これらの値に対して簡易評価手法は約1桁大きい値を与えることが示された。

III. 臨界事故時の揮発性核分裂生成物の気相への移行率に関する調査

日本原燃(株)の再処理事業指定申請書³³⁾の添付書類八では、「運転時の異常な過渡変化を超える事象」の1つとして、「溶解槽の臨界」を評価している。評価では、移行率を希ガス：100%，ヨウ素：25%として評価し、その結果、実効線量当量が0.57 mSv となり、判断基準の5 mSv を十分下回っているとしている。このうち、放射性雲からのガンマ線(希ガス)による外部被ばくが大部分を占めているとしている。このうち、ヨウ素の廃ガス中への移行割合はNUREG-1320³⁴⁾を参考として設定している。NUREG-1320 で示されている臨界の評価方法は、米国原子力規制委員会(NRC)から出されている規制指針 R.G.3.33³⁵⁾で推奨されている方法およびパラメータをそのまま用いているとしている。R.G.3.33 の Regulatory Position³⁶⁾に記載されているヨウ素等の放出割合を規定した部分を以下に示す。

『2. 放射性物質の放出に関連した仮定は以下のとおり。

a. 臨界で生じた核分裂生成物および臨界以前に使用済燃料中に存在した核分裂生成物のうち、希ガスの全量(臨界以前に離脱した希ガスは除く)、放射性ヨウ素の25%および放射性ルテニウムの0.1%が直接セル雰囲気へ放出されると仮定する。また、臨界時の溶液の蒸発により生じるエアロゾルは、直接セル雰囲気へ放出されると仮定する。エアロゾルには蒸発する溶液の塩(salt)含有率の0.05%を含むと仮定する。セル体積と換気率は個々の場合に基づい

て考慮すべきである。』

なお、R.G.3.33の脚注には、これらの値の設定に当たっては、R.G.1.3³⁶⁾を参考としたことが記載されている。R.G.1.3はBWRの冷却材喪失事故についての評価指針であるが、このもとになった原子炉の立地評価のための冷却材喪失事故の評価レポート³⁷⁾が、NRCの前身であるAECから発行されている。この中に、ハロゲン等の放出割合についての推奨値が記載されている。ヨウ素については50%が格納容器に放出され、そのうちの半分、すなわち炉心インベントリの25%が環境に放出されるとしている。

ウラン等の核分裂性物質を含む水溶液(以下、燃料溶液という)において臨界事故が発生した場合には、溶液中の放射性物質の気相中へ放出と移行が生じることが予想される。臨界に伴って溶液中で生成する希ガスおよびヨウ素は、揮発性を有しているため溶液から気相への移行率が大きいばかりでなくHEPAフィルタでの捕集効率が低いために、他の非揮発性放射性物質と比べると施設外への放出量が比較的大きくなる。したがって、事故時の公衆被ばくの影響を評価する場合には、これら揮発性放射性物質の放出特性の評価が重要となる。旧日本原子力研究所(現日本原子力研究開発機構)では、TRACYを用いて、これらの放出機構(ソースターム)および移行機構を核的出力と関連付けて収集してきた(以下、「TRACY閉じ込め試験」という)^{38~41)}。「TRACY閉じ込め試験」では、TRACY炉心タンクおよび炉心タンクに接続したベントガス配管系にサンブラを取り付け、溶液燃料臨界事故時の揮発性核分裂生成物の気相への放出挙動を観察している。燃料溶液の体積をできる限り変えない条件の下でのデータを得るため、TRACYの反応度添加モードのうち、調整トランジェント棒のランプ引抜きモード(可変反応度添加速度)およびパルス引抜き(PW)モードの2つの反応度添加モードのもとで、反応度添加量を0.7から2.9\$まで変化させて実施した試験結果を評価対象としている。核分裂に伴って燃料溶液中に生成したヨウ素や希ガス等の揮発性放射性物質Xは放出係数 ξ_X (1/s)をもって燃料溶液から炉心タンク気相部へ放出され、ベントガスの換気効果に基づく換気系数 ψ (1/s)に依存して炉心タンクからベントガスラインへ流出するものと考え、これら係数と各核種の放射崩壊定数 λ (1/s)を用いて、燃料溶液中および炉心タンク気相中の各核種の原子数の経時変化を表す微分方程式を連立するとともに、出力の時間履歴を入力項として与えることで、ヨウ素および希ガスの放出率を評価している。なお、ヨウ素については気相からのサンプリング結果から、また、希ガスについては試験後の溶液燃料中での娘核種の残存量から、それぞれ放出率を求めている。

「TRACY閉じ込め試験」で得られたヨウ素(^{133}I)の放出率評価結果をFig. 2⁴¹⁾に示す。過渡臨界から4.5時間後におけるヨウ素(^{133}I)の放出率として、約0.9%と報告している(試験条件: 1.5\$, PWモード, 総核分裂数: $8.5 \times$

Fig. 2 Example of evaluated release ratio of radioactive iodine from solution to air (reprint from Ref. 41)

10^{17} , 調整トランジェント棒を燃料溶液中に再挿入せず臨界状態を継続)。

また、竹安らは、1999年に発生したJCO臨界事故時のヨウ素の放出量の推定を行っている⁴²⁾。JCO排気口における排気中のヨウ素濃度の実測値とORIGENコードで計算された施設内残存ヨウ素量の比較からヨウ素放出量を推定しており、大気拡散解析結果およびモニタリング結果ならびに事故直後の葉菜中の検出結果を用いて検証を行っている。その結果、JCO臨界事故時のヨウ素の放出量は生成量の約0.02%に相当すると推定している。放出の割合が低かったのは、ヨウ素は施設に留まり長時間に亘って放出されたことにより、短半減期のヨウ素は減衰してしまったためであると考察している。

上述のように日本原燃協の再処理事業指定申請書³³⁾では、施設外へのヨウ素の放出率としてR.G.3.33で仮定されている25%を採用している。施設形状を含めた評価条件が異なるため一概に比較することはできないと考えるが、竹安らによる評価値を踏まえると、同申請書で仮定されているヨウ素の施設外への放出率には十分な裕度が含まれているものと推察される。「TRACY閉じ込め試験」では、燃料溶液の臨界事故に伴うヨウ素を含む放射性物質の放出挙動を実験的に観察しており、その意味で極めて有意義である。一方で、「TRACY閉じ込め試験」から得られた放射性物質の放出率は、TRACY炉心タンクおよび炉心タンクに接続したベントガス配管系にサンブラによる捕集結果から評価されているため、その評価結果には、炉心タンクや配管等の内壁へ沈降や沈着の効果が加味されているものと考えられる。サンブラによる捕集結果に対してこれらの沈降・沈着の効果を補正して燃料溶液表面から炉心タンク気相部へ放出された、いわば一次的な放出率を見積も

るとともに、この値をソースデータとした換気形状を含む施設条件を考慮した施設内での移行評価を実施することで、実験値を踏まえた施設外への放出率を評価することが可能となるものとする。また、この評価結果と比較することで、同申請書で採用されている施設外への放出率が有する裕度を定量的に評価することが可能となるものと考えられる。

過渡臨界時の燃料溶液内には、放射線分解ガスの生成・放出による気液接触面積の増大や燃料溶液中の攪拌等が生じ、これらの要因は、放射性物質の気相への放出挙動に対して大きく影響するものと予想される。多くの希ガスは、発散(divergence)が継続している時間中に生成・放出されるため、実験データをもとに評価・算出された ξ_X には、発散を表現するいくつかの炉特性パラメータの情報がしわ寄せされ、かつ含有されているものと推察される。出力(あるいは核分裂率)の増加割合を表す炉特性として、炉周期 $T(s)$ が用いられる。これは出力が e 倍になるのに要する時間として定義される。TRACYの過渡臨界試験から、逆炉周期(Inverse period) $(1/s) (=1/T)$ とピーク出力の間には比例関係があることが報告されている。このことは、逆炉周期は、出力(あるいは核分裂率)の増加割合の大きさばかりでなく、ピーク出力の大きさをも表現し得る炉特性パラメータであることを意味する。「TRACY 閉じ込め試験」では、いくつかの半減期の異なる同位体希ガス核種として ^{140}Xe と ^{141}Xe (半減期: 1.73 s)に着目し、それぞれについての ξ_X と R_X を求め、これらと逆炉周期の間の相関性を検討している^{40,41)}。 ^{140}Xe と ^{141}Xe の ξ_{Xe} をTRACY各試験における逆炉周期に対してプロットしたものをFig. 3^{40,41)}に示す。逆炉周期が1 1/s以下の場合には、 ξ_{Xe} は逆炉周期の増大に伴って急激に上昇したとしている。半

減期のより短い ^{141}Xe では、逆炉周期が100 1/s程度に対して、 ξ_{Xe} は約5 1/sと評価されている。同じ逆炉周期に対する ^{140}Xe の ξ_{Xe} は ^{141}Xe の ξ_{Xe} と比べて、約2桁小さく評価されている。これは、 ^{141}Xe の半減期は ^{140}Xe の半減期よりも相対的に短いために、 ^{141}Xe は過渡臨界直後の激しい溶液内の攪拌効果等の動的現象の影響をより大きく受け、その結果、 ^{140}Xe よりも放出が促進されたためであると推測している。なお、希ガス(^{140}Xe)の放出率については、約98%という結果を報告している(試験条件: 2.9\$, PWモード, 総核分裂数 5.7×10^{17} , 調整トランジェント棒を燃料溶液から引抜いた直後に再挿入し臨界を速やかに終息)。日本原燃(株)の再処理事業指定申請書³³⁾では、臨界で生じた核分裂生成物および臨界以前に使用済燃料中に存在した核分裂生成物のうち、希ガスの全量が施設外へ放出されるものと仮定している。希ガスはヨウ素に比べてそれ自身では炉心タンクや配管内壁等への沈降・沈着の効果は受け難いと考えられるため、「TRACY 閉じ込め試験」から評価された放出率は、同申請書での仮定とよく一致しているものと考えることができる。希ガスは施設内での滞留中に放射崩壊するため、施設外への実際の放出量は低下することが予想される。また、放射崩壊によって生成する娘核種は粒子状物質として振舞うことになるため、移行経路中での沈降・沈着やHEPAフィルタによる捕集の効果も期待できる。このため、同申請書での100%放出という仮定は十分な安全裕度を含んでいるものと考えられる。ヨウ素の移行・放出挙動の評価と同様に、「TRACY 閉じ込め試験」から得られた放出率をソースデータとした換気形状を含む施設条件を考慮した施設内での移行評価(放射崩壊の評価を含む)を実施することで、施設外への放出率を評価することが可能となるものとする。また、この評価結果と比較することで、同申請書で採用されている施設外への放出率が有する裕度を定量的に評価することが可能となるものと考えられる。

IV. 今後の課題

最後に、臨界事故評価における今後の課題を以下に示す。

まず、リスク評価の観点から、臨界事故の発生確率や、臨界安全管理手法および燃焼度クレジット導入に伴う安全裕度の変化が発生確率に与える影響を定量的に評価する手法を確立することが重要である。

臨界事故規模の評価に関しては、臨界が長時間継続した場合の簡易評価手法の開発、沸騰が生じた場合の動特性解析手法の整備、また、動特性解析および準定常法で使用しているモデルおよびパラメータの適用範囲の拡大・精度検証が必要である。また、これらの評価手法と放射性物質の気相への移動とを連携させる、すなわち出力の時間的変化と放射性物質の放出量の変化を結び付けると、より詳細な放出量評価を実施することが可能となり、有益であると考えられる。

Fig. 3 Relation between evaluated release coefficients of ξ_{Xe} and inverse period (reprint from Ref. 41, 42)

「TRACY 閉じ込め試験」で得られたヨウ素の放出率は、R.G.3.33 において示されている値よりも低かった。「TRACY 閉じ込め試験」で得られた基礎的なヨウ素の放出特性データをなんらかの具体的な施設情報に基づく施設の閉じ込め評価に適用するためには、溶液から放出される化学組成の変動や炉心タンク内気相部での水分の影響等についても考慮した上で、ヨウ素種の壁面への沈着速度に関する実験データを取得していくことが重要と考える。また、放射線分解ガス気泡への希ガスの物質移動を考慮した希ガスの放出機構のモデル化をさらに進めることにより、希ガスの放出特性と核的な動特性解析とを結び付けた臨界事故影響評価が可能となるものと考ええる。

— 参考文献 —

- 1) K. Yoshida, H. Abe, Y. Yamane *et al.*, *Research on the State-of-the-art of Probabilistic Safety Assessment for Non-reactor Nuclear Facilities (II)*, JAEA-Research2007-002 (1989), [in Japanese].
- 2) T. P. McLaughlin *et al.*, *A Review of Criticality Accidents 2000 Revision*, LA-13638 (2000).
- 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, 「ウラン加工工場臨界事故調査委員会報告」(1999).
- 4) N. Watanabe, H. Tamaki, *Review and Compilation of Criticality Accidents in Nuclear Fuel Processing Facilities Outside of Japan*, JAERI-Review 2000-006 (2000), [in Japanese].
- 5) *Nuclear Criticality Safety Handbook Version 2*, JAERI 1340, (1999), [in Japanese].
- 6) 原子力安全基準専門部会 MOX 加工施設指針検討分科会 議事録 M 分第13-3 号「臨界事故評価について(MOX 加工)」(2001).
- 7) Y. Miyoshi, T. Yamamoto, K. Nakajima, *Simplified Estimation of Criticality Accident of MOX Powder Fuel*, JAERI-Research 2002-002 (2002), [in Japanese].
- 8) *Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook*, NUREG/CR-6410 (1998).
- 9) M. Dunenfeld, R. Stitt, *Summary Review of the Kinetic Experiments on Water Boilers*, NAA-SR-7087 (1963).
- 10) P. Lcorch *et al.*, *A Review of the Experiments Performed to Determine the Radiological Consequences of a Criticality Accident*, Y-CDC-12 (1973).
- 11) F. Barbry, J. P. Rozain, *Objectives and Summary of Experiments on the Formation of Radiolysis Gas Carried Out Using the Silene Reactor*, SRSC 89.08 (1989).
- 12) K. Nakajima *et al.*, *TRACY Transient Experiment Databook 1) Pulse Withdrawal Experiment*, JAERI-Data/Code 2002-005 (2002).
- 13) K. Nakajima *et al.*, *TRACY Transient Experiment Databook 2) Ramp Withdrawal Experiment*, JAERI-Data/Code 2002-006 (2002).
- 14) K. Nakajima *et al.*, *TRACY Transient Experiment Databook 3) Ramp Feed Experiment*, JAERI-Data/Code 2002-007 (2002).
- 15) B. Normand *et al.*, "Experimental determination of the temperature effect of dilute plutonium solutions," *Proc. 8th Int. Conf. on Nuclear Criticality Safety*, ICNC2007 (2007).
- 16) D. J. Mather *et al.*, *CRITEX—A Computer Program to Calculate Criticality Excursions in Fissile Liquid Systems*, SRD R 380 (1984).
- 17) H. L. Dodds *et al.*, *SKINATH—A Computer Program for Solving the Reactor Point Kinetics Equations with Sample Thermal Hydraulic Feedback*, ORNL/CSD/TM-210 (1984).
- 18) R. Kato *et al.*, "The code CREST to simulate criticality accident power excursion in fuel solution," *Proc. Safety Margin in Critical Safety*, San Francisco, U.S.A., Nov. 26-30, 1989 (1989).
- 19) B. Gmal, J. Weber, *FELIX—A Computer Code for Simulation of Criticality Excursions in Liquid Fissile Solutions*, Safety of the Nuclear Fuel Cycle, eds. by K. Ebert, *et al.*, VCH Publishers (1989).
- 20) B. Basoglu *et al.*, *Development of a New Simulation Code for Evaluation of Criticality Transients Involving Fissile Solution Boiling*, JAERI-Data/Code 98-011 (1998).
- 21) C. C. Pain *et al.*, "Transient criticality in fissile solutions compressibility effects," *Nuc. Sci. Eng.*, **138**, 78-95 (2001).
- 22) K. Nakajima, Y. Yamane, Y. Miyoshi, *A Kinetics Code for Criticality Accident Analysis of Fissile Solution Systems: AGNES2*, JAERI-Data/Code 2002-004 (2002), [in Japanese].
- 23) S. Mitake *et al.*, "Development of INCTAC code for analyzing criticality accident phenomena," *Proc. 7th Int. Conf. on Nuclear Criticality Safety (ICNC2003)*, JAERI-Conf 2003-019 (2003).
- 24) G. Tuck, "Simplified methods of estimating the results of accidental solution excursions," *Nucl. Technol.*, **23**, 177 (1974).
- 25) A. R. Olsen *et al.*, "Empirical model to estimate energy release from accidental criticality," *Trans. Am. Nucl. Soc.*, **19**, 189 (1974).
- 26) F. Barbry *et al.*, "Criticality accident studies in france: Experimental programs and modelisation," *Proc. Int. Seminar on Nuclear Criticality Safety*, ISCS'87, Tokyo, Japan, Oct. 19-23, 1987, 423 (1987).
- 27) Y. Nomura, H. Okuno, "Simplified evaluation models for total fission number in a criticality accident," *Nucl. Technol.*, **109**, 142 (1995).
- 28) T. Shulenberg, J. Dohler, "Heating-up nucleation and boiling of a critical solution of fissile material," *Int. J. Multiph. Flow*, **12**[5], 759 (1986).
- 29) K. Nakajima, T. Yamamoto, Y. Miyoshi, "Modified quasi-steady-state method to evaluate the mean power profiles of nuclear excursions in fissile solution," *J. Nucl. Sci. Technol.*, **39**[11], 1162 (2002).
- 30) K. Okumura *et al.*, *SRAC95: General Purpose Neutronics Code System*, JAERI-Data/Code 96-015 (1996), [in Japanese].
- 31) R. E. Alcouffe *et al.*, *DANTSYS: A Diffusion Accelerated Neutral Particle Transport Code System*, LA-12969-M (1995).
- 32) T. Nakagawa *et al.*, "Japanese evaluated nuclear data library version 3 revision-2: JENDL-3.2," *J. Nucl. Sci. Technol.*, **32**, 1259 (1995).
- 33) 再処理事業所 再処理事業指定申請書, 日本原燃(株)(1997年7月).
- 34) J. E. Ayer *et al.*, *Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook*, NUREG-1320, May 1988.
- 35) *Assumptions Used for Evaluating the Potential Radiological Consequences of Accidental Nuclear Criticality in a Fuel Reprocessing Plant*, U.S. Nuclear Regulatory Commission, Regulatory Guide 3.33 (1977).

- 36) *Assumptions Used for Evaluating the Potential Radiological Consequences of a Loss of Coolant Accident for Boiling Water Reactors*, U.S. Nuclear Regulatory Commission, Regulatory Guide 1.3 (1974).
- 37) *Calculation of Distance Factors for Power and Test Reactor Sites*, U.S. A.E.C., TID-14844 (1962).
- 38) H. Abe, S. Tahiro, T. Koike *et al.*, *Studies on Release Behavior of Radioactive Noble Gases from Fuel Solution to Gas Phase under Simulated Nuclear Criticality Accident (Contract Research)*, JAERI-Research 2001-027 (2001), [in Japanese].
- 39) H. Abe *et al.*, "Studies on source term release behavior from fuel solution under simulated nuclear criticality accident," *ICNC'99 Proc.*, **3**, 1293-1302 (1999).
- 40) H. Abe *et al.*, "Source term on release behavior of radioactive materials from fuel solution under simulated nuclear criticality accident," *ANS NCSD Topical Meeting*, full paper (2001).
- 41) H. Abe *et al.*, *Study on Safety Evaluation for Nuclear Fuel Cycle Facility under Fire Accident Conditions*, JAERI-Conf 2005-007 (2005).
- 42) M. Takeyasu, T. Shimizu, T. Suto *et al.*, "Evaluation of time variation of radionuclides released in JCO criticality accident," *Abstract of 2000 Ann. Meeting of the Atomic Energy Society of Japan* (2000), [in Japanese].
-