

話 題 (Ⅲ)

N U C E F に つ い て

(原研) 竹 下 功・三 好 慶 典
中 島 健

1. はじめに

NUCEFとは「燃料サイクル安全工学研究施設」(Nuclear Fuel Cycle Engineering Research Facility)の略で、再処理施設等の臨界安全性研究、再処理プロセスに関する研究及び再処理施設等から発生するTRUを含む廃棄物に関する研究の3つの研究を行うための実験施設である。⁽¹⁾

これらの3つの研究は、いずれも主として核燃料サイクルの要である再処理に係る安全性の向上、技術の高度化を目指している。研究テーマ相互間の関連性は薄いにもかかわらず、NUCEF計画としてこれらがまとめられたのは、いずれもプルトニウム等のTRUを取り扱う実験であり、施設設備の共用化を図ることができるとともに、原研の人的資源を有効に活用する観点から、昭和60年度にそれまで別個に計画されていた実験施設を合体させた経緯によっている。

NUCEFは、原子炉規制法上では2種の施設により成る。すなわち、2基の臨界実験装置を中心とした原子炉施設と、使用済燃料や高レベル廃液の化学処理をするためのアルファ・ガンマセルや各種のグローブボックスからなる核燃料物質の使用施設である。それぞれの安全審査は昭和62年度半ばより始められ、63年10月に設置変更に関する許可を得て、東海研究所の再処理特研の南側に位置する約3万m²の用地の造成工事を開始した。

現在は、地表面より約10m下部の岩盤(砂質泥岩層)まで掘削が進み、建家の基礎工事に入る段階である。施設の完成は、平成4年度の予定である。

NUCEFの建家は、実験棟A、実験棟B及び管理棟の3棟からなるが、それぞれ地下1階、地上3階で建築面積は合計約6,000m²である。建家の構成は図-1に示すとおりであり、臨界安全性に関する実験は2基の臨界実験装置を収納するA棟で、また群分離実験を含む再処理プロセスに関する実験、TRU廃棄物に関する実験はアルファ・ガンマセルを収納するB棟で行われる。

編集委員会から炉物理・核データとの関連でNUCEF計画の説明をするようにとの指示なので、以下これらに関連の深い臨界安全性に関する研究課題と臨界実験装置の特徴を紹介することとした。

2. 臨界安全性研究におけるNUCEFでの課題

(1) 核燃料施設に関する臨界データ

軽水炉の核燃料サイクルに関する臨界安全性研究では、ウラン、プルトニウム及びその混合硝酸溶液を燃料形態とする臨界データを取得することが特に必要である。ウラン硝酸溶液は、再処理施設の溶解工程においては非均質状にペレットと共存する状態で、また、ウラン精製・濃縮工程では均質の状態を取扱われる。プルトニウム硝酸溶液はプルトニウム精製・濃縮工程で、また、混合硝酸溶液は我が国の再処理の特徴である混合転換工程で取扱われる。しかしながら、溶液系燃料の臨界データで、諸外国において現在までに報告されているものの大部分は、過去の軍事研究から派生的に得られたものであるため、高濃度ウランやプルトニウム単体に関するものが中心であり、特に使用済燃料の再処理に係る低濃縮ウラン、高次プルトニウムの溶液に関するデータはわずかである。従って、これらの核物質形態に対する系統的な臨界データを蓄積することにより、① 臨界安全評価に用いる計算コードの検証 ② 実験データに基づく臨界パラメータの整理③ 機器の臨界安全裕度の実証を行うことが、再処理施設等のより一層の安全性の向上、効率的な運転を図る上で重要である。⁽²⁾

NUCEFの定常臨界実験装置STACY(Static Experimental Critical Facility)では、低濃縮ウラン、高次プルトニウムを含む均質溶液燃料に関する基礎的な臨界データを取得するため、燃料条件、炉心形状、反射体等を変化させて臨界・未臨界実験を行うと共に、異常時の挙動解析に重要な溶液燃料の反応度係数及び動特性パラメータを測定する。ここでは、今後核物質取扱量を増大させる上で有効な固定または可溶性中性子吸収体を使用し、その反応度効果に関するデータも取得する(基本炉心)。また、再処理施設の溶解槽を模擬する体系を構成し、燃料棒の配列形状、格子間隔及び溶解部の核物質濃度を変化させ、臨界設計における安全裕度を評価するためのデータを得る(非均質炉心)。核燃料施設には複数の槽類や機器が配置されるが、このような複数ユニット体系の臨界安全設計手法の合理化にも資するため、中性子相互干渉効果に関するデータ及び中性子遮蔽体の実証データを蓄積する(相互干渉炉心)。なお、11期計画ではプルトニウム燃料貯槽に多用される円環体系、ウラン・プルトニウム混合酸化燃料、有機燃料体系、及び複雑な多ユニット相互干渉体系について臨界特性を測定するため実験範囲を拡充する予定である。表-1に当面計画している臨界実験の主要なパラメータ範囲を示す。

(2) 臨界事故時の過渡事象データ

原子炉以外の核燃料取扱い施設における臨界事故はこれまでに主に軍事用施設で生じ、9件報告されている⁽³⁾が、これらはいずれも溶液燃料の取扱い時に発生している。これは、再処理工程の大部分で取扱う核物質が溶液であること、溶液状の核物質が配管により容易に移送されること等が原因と考えられる。これらの臨界事故による災害は、放射線災害と機械的災害とに分類することが出来る。このうち、放射線災害は事故時に放出される即発及び遅発の γ 線及び中性子による被曝と建屋の内外に放出される核分裂生成物による汚染及び被曝である。一方、機械的災害

は核分裂数の大きさに依存して発生する衝撃圧力による機器の破損と、その結果誘起される2次災害である。この臨界事故の規模は反応度の添加条件によって大きく支配される。例えば、即発臨界以下の反応度添加の場合は、ゆっくりとした出力上昇が起こり、温度等の負の反応度フィードバックにより、徐々に出力が減少していく。これに対して、即発臨界を超える反応度添加の場合は、急激な出力の上昇とともに多量の放射線分解ガスボイドが衝撃圧力を伴い発生する。このボイドは大きな負の反応度フィードバック効果を有しており出力は減少するが、時間の経過とともにボイドは消滅してしまうため、再び出力が上昇する。この結果、いくつかの出力ピークを持つ出力振動現象が生じる。最終的には溶液燃料の蒸発、飛散により未臨界状態となり、事故は収束する。このような事故時の出力変化の様子は、反応度添加条件の他に、溶液燃料の種類、組成体系の大きさ、温度等の条件によっても変化する。このため、核燃料施設における安全設計、安全評価を適切に行うためには、各種条件を考慮した臨界事故時の過渡的出力挙動を明らかにしておく必要がある。

臨界事故時の溶液燃料体系の過渡的出力挙動に関する実験でその成果が公開されているものは仏国のCRAC実験がほぼ唯一のものである。⁽⁴⁾ CRAC実験は広範囲の反応度添加条件、燃料条件について実験を行っており、臨界事故事象に関する多くの知見を提供している。しかし、燃料として高濃縮ウランを使用していること、出力挙動に大きな影響を与える放射線分解ガスボイドに関する測定が充分に行われていないこと、放射性物質の移行に関する測定は行われていないこと等、核燃料施設の安全設計・評価を行う上ではデータが充分ではなく、低濃縮ウラン溶液に関する放射性物質の移行現象まで含めた広範囲な臨界事故事象に関する実験データが求められている。

NUCEFの過渡臨界実験装置TRACY (Transient Experimental Critical Facility) は上記の実験データの取得を目的とし、主に燃料条件、反応度添加条件をパラメータとした各種の過渡事象データ（出力、エネルギー、温度、圧力及び液位等）の測定及び放射性物質（FP及び重元素）の移行量に関する測定を行う。実験の主要なパラメータ及びその範囲を表-2に示す。実験体系としては、当面は硝酸ウラニル溶液を用いた均質体系を対象とするが、将来は溶解槽を模擬した非均質炉心、FBR燃料の取扱いを想定したプルトニウム溶液の使用も必要と考えている。

3. NUCEFの臨界実験装置

NUCEFには、溶液燃料の臨界量測定のためのSTACYと臨界事故実験のためのTRACYの2基の臨界実験装置を設置するが、両装置の性能、特徴とともにこれらで使用する核燃料を調製するための設備について説明する。

(1) 核燃料調製設備

本設備の機能は、図-2に示すとおり、U、Pu酸化物の溶解、溶液燃料の濃度調整、U、Pu、中性子毒物等の分離・精製等であり、2.で述べた幅広い燃料条件にわたる臨界実験を可能にするために設置するものである。実験を効率的に行えるよう、この設備と2基の臨界実験装置とは配管で連結している。これが、従来の固体燃料による臨界実験と大きく異なるところであり、NU

CEFでは施設内に核燃料の加工工場と再処理工場をもっているようなものである。勿論、設備の規模や能力はあくまで実験室規模で、取扱い時の放射能レベルも低く、濃縮缶やミキサセトラ等の主要な機器はセルでなくグローブボックス内に納めているが、原子力施設の規制の観点からは、本設備が核燃料の使用施設なのか、加工施設なのか、再処理施設なのか、あるいは原子炉施設の一部なのか多くの議論があった。結局、規制当局の指導により、本設備は原子炉で使用中の核燃料を取り扱う設備であるという解釈をして原子炉施設の一部とすることになった。これまでにない実験をしようとする現実の規制の仕組みに組み込むまでも大変な苦労があることを実感した次第である。

(2) STACY

ウランの溶液燃料を用いる研究炉としては、JRR-1、水性均質臨界実験装置が原研発足直後の我が国の原子力開発の草創期に外国より導入されているが、プルトニウムの溶液燃料の臨界実験ができる装置としては勿論STACYが我が国で初めてのものである。STACYの設計にあたっては、米国のハンフォード国立研究所のCML(Critical Mass Laboratory)、フランスのヴァルドック研究所のApparatus-B等を参考にはしているが、これらの施設では軍事研究も行われていることから、技術導入が困難なこともあって、基本的には独自の設計によるものである。そのため、臨界装置の停止に係る方法、反応度制御に係る方法等については、独自のアイデアに基づくものであり、それらの信頼性をモックアップ試験により確認した。例えば、安全棒は自然落下をさせるが、その引き上げは真空を利用するもので、駆動機構の単純化により故障の確率を下げるとともに溶液燃料を用いることによる核分裂生成物等の閉じ込めを容易にすることをねらった設計である。⁽⁶⁾ 図-3にその構造概略を示す。

STACYのフローシートは図-4に示すとおりで、溶液燃料はダンプ槽からポンプで小刻みに炉心タンクに送液され、臨界近接を行う。炉心タンク内の溶液燃料は触針式の液位計により液高さを測定するが、この液位計は、反応度制御の制限値(0.8ドル)を担保する手段でもあるので、液が触針に触れると給液ポンプを停止するインターロックを組んでいる。実験終了後は、炉心タンク下部の弁を開いて溶液燃料をダンプ槽に自然落下させる。実験により生じる気体の核分裂生成物はベント設備、気体廃棄物処理設備等により浄化するが、特に短半減期核種の放射能を下げるために約10分の遅延機能を持つ減衰管をベント設備に設けている。また、発生する放射性ヨウ素は銀系の吸着材を用いて除去する。

炉心は、形状、寸法の異なる各種のタンクの使用が可能であり、この交換が安全に行えるよう、継手部等の設計に工夫をしている。交換時の万一の汚染トラブルに備え炉本体部分は炉室フードの中に納めるようにした。

STACYの臨界実験装置としての性能をまとめて表-3に示すが、現在の許可範囲では2.で述べた実験を全て含むわけではないので、更に基礎データの収集を図り許可の範囲を広げて行く予定である。

(3) TRACY

溶液燃料を用いた臨界事故実験を行うための装置は世界的にも事例は少なく、フランスのヴァールドック研究所のSILENE (CRACの改造炉)、アメリカロスアラモス研究所のSHEBA の2基が現存するものである他は、1960年代のアメリカのKEWB (ウォーターボイラ型炉の動特性試験炉) ぐらいである。

STACYの場合と同様にこれらの装置設計に関する公開された資料は少なく、TRACYについても独自の設計を行うとともに、反応度制御や停止の為の機器について重要なものはモックアップ試験を行って信頼性の確認を行った。

TRACYのフローシートは図-5に示すとおりで、溶液燃料の給排液はSTACYと同様であるが、過渡臨界時に発生する水素ガス、FPガス等の閉じ込め、安全対策には工夫を凝らしている。すなわち、過渡実験中を含めて実験後24時間以上はベント系は閉ループとし、約10m³の容量を持つ希釈槽で水素ガス、酸素ガスの希釈を図ると共に、短半減期放射性ガスを減衰させる。水素、酸素ガスは念のため再結合器により水にして水素ガス爆発の発生を防止する。

過渡臨界時に炉心に発生する圧力は、最大でも数kg/cm²程度と予測しているが、添加する反応度の大きさや溶液燃料の性状との関係等で究明すべき課題の一つであるので、炉心タンクの設計圧力は十分大きく設定している。さらに、実験も穏やかな条件から、より厳しい条件へ段階的に進めることにより実験時の安全性を確保する。

過渡臨界を起こさせる反応度の添加方法としては、臨界量を越えて溶液燃料を炉心タンクに給液する方法と、炉心中央の中性子吸収体(調整トランジェント棒)を引き抜く方法の2通りを用意している。この調整トランジェント棒は、炉心液面の乱れを避けることや、駆動機構が硝酸雰囲気中に浸されないこと等の為に、燃料溶液に直接接触しない方式とした。従って、炉心タンクは完全な円筒型でなく、中心部に案内管を有する円環型となった。

STACYと同様に炉心は反射体付きの体系と裸の体系いずれも組める方式であり、その為、炉本体を収納する炉室は約2mの厚さの遮へい壁を必要としている。水の中に炉心を設置している他の研究炉等と大きく異なる点である。

TRACYの性能をまとめて表-4に示す。溶液系の過渡臨界事象は、ウラン燃料で十分把握できるものと考えているが、実証という観点からはプルトニウム燃料による実験も有意義なものであるので、将来計画として検討する予定である。

4. NUCEFと核データ

溶液燃料の臨界実験は炉心タンク内の臨界液位、臨界体積等を求める積分実験が主であり、ベンチマーク解析は臨界体系の中性子実効増倍率 k_{eff} を評価することが中心となっている。我が国で使用されている主な臨界安全解析コード及び核データファイルには、以下のようなものがある。解析には、複雑な体系の幾何形状を三次元的にモデル化できるモンテカルロ法に基づく輸送計算コードが用いられる。

・計算コード : KENO-IV、-V、MULTI-KENO、WIMS-D

・群定数 : MGCL137群、WIMS69群
HANSEN-ROACH16群

・核データファイル : ENDF-B/IV、-B/V、
JENDL-2、-3T、

中性子実効増倍率 K_{eff} の解析値の精度は、多群中性子ライブラリとして作成された核種の中性子断面積や散乱マトリックスの精度等核データに直接関係する要因、非均質系の格子計算方法等に関する要因、及びモンテカルロ法の計算条件（中性子の発生数・世代数）等に依存する。原研では臨界安全評価システム JACS を開発整備し、KENO-IV による種々のベンチマーク計算を行っている。これまでの計算で主に使用されている MGCL ライブラリは、米国の評価済核データファイル ENDF/B-IV を処理して作成した Bondarenko 型の多群定数であり、エネルギー群数は 137 群である。中性子散乱の角度依存性は、散乱断面積をルジャンドル展開したときの P1 成分まで考慮している。現状の主要な問題点及び今後の課題としては、

- (1) 均質溶液燃料の単一ユニット体系は、水など十分な反射体のあるものに限定され、さらに低濃縮硝酸ウラニルに関する実験データはわずかである。
- (2) 酸化ウラン棒状燃料の非均質体系は、軽水減速材を用いた炉心特性実験が中心である。
- (3) 複数ユニット体系は、単一ユニット体系に比べて中性子実効増倍率を低めに評価する傾向がある。
- (4) 合理的な臨界設計に有用な中性子毒物を用いた実験データが必要である。
- (5) 単一及び複数ユニット体系のいずれも、裸の（周囲に反射体の無い）体系に関する信頼性の評価はなく、実験条件の明確なデータを取得する必要がある。

等があげられる。STACY で得られる実験データは上記の問題の解決、核データファイル・臨界安全解析コードの総合的な評価に反映されると考えられる。実験体系毎に主要な項目を以下に示す。

(1) 基本体系

- ① 臨界条件の評価上重要な λ 値及び核分裂断面積 σ_f 等の効果に関する核データファイル間の比較。
- ② 非等方性の散乱の大きい体系での散乱マトリックスの評価。
- ③ 燃料、中性子毒物、構造物構成核種に関する温度依存の群定数ライブラリの評価。

(2) 非均質体系

- ① 温度依存の群定数ライブラリのデータの評価。
- ② 可溶性毒物核種のデータに関する評価。

③ 溶液部に中性子吸収率の大きい燃料または可溶性毒物がある非均質セルを均質化するとき問題となるダンコフ係数等の計算モデルの整備。

(3) 相互干渉体系

① 遮へい体物質に関するアルベドデータの検証。

② 散乱マトリックスの整備及び精度の検証。

尚、現在は多群定数ライブラリを用いた計算コードの検証が中心であるが、今後連続モンテカルロコード等が整備されれば、多群定数化に起因する誤差、格子計算におけるダンコフ係数等の問題が無いという特徴を有しているので、計算手法の影響が少ない条件下でより詳細な核データファイルの検討も可能になると考えられる。

NUCEFの研究計画と核データとの関連では、上述のようにSTACYによる臨界実験が最も直接係わり得るものであるが、例えば化学プロセスの異常と臨界安全性との係わり等、化学分野と炉物理・核データとの関連が議論される場合には、NUCEFは格好の研究の場になり得るものと考えられる。諸兄の積極的な関心を期待したい。なお、NUCEFの設計、安全審査では、核設計、臨界安全設計、遮へい設計等で莫大な計算を行い、核データライブラリや計算コード等の研究成果をふんだんに使用させていただいた。誌面を借りて関係者に謝意を表したい。

5. 参考文献

(1) 松元 章 「燃料サイクル安全工学研究施設 (NUCEF) 計画の概要」

1989年原子力学会年会予稿集

(2) 桂木 学、小林 岩夫 「核燃料サイクル施設の臨界安全性研究」

原子力学会誌、26(6)、442(1982)

(3) 館盛 勝一、桜井 聡 「核燃料取扱施設における臨界事故例の解析」 JAERI-M84-155(1984)

(4) TRACYワーキンググループ 「CRAC実験データのまとめ」 JAERI-M89-031(1989)

(5) 村上 清信 「安全棒の駆動方法」特許出願公開 昭62-96893

表-1 臨界実験のパラメータ範囲

実験体系	炉心タンク		溶 液 燃 料					反射体	吸収体	備 考
			硝酸ウラニル溶液		ウラン・プルトニウム硝酸溶液		濃 度 (g/l)			
	形状	寸 法	濃縮度 (%)	濃 度 (g/l)	²⁴⁰ Pu (%)	Pu富化度 (%)				
基本炉心	円筒	直径≤100cm	10	≤500	5-25	0-100	≤300	コンクリート	Gd、B	
	平板	厚さ≤50cm	6				(U+Pu)	水、鉄等	Cd等	
非均質炉心	円筒	直径≤60cm	4	≤500	—	—	—	水	Gd、B Cd等	LWR燃料棒 濃縮度5%
相互干渉 炉心	円筒	直径≤60cm	10	≤500	5-25	0-100	≤300	コンクリート	—	
	平板	厚さ≤35cm	6					水、鉄等		

表-2 過渡臨界実験のパラメータ範囲

項 目	実 験 範 囲
(1) 炉 心 形 状	円筒炉心タンク (50cm及び80cm径、高さ約2m) 最低臨界液位：40cm 最高燃料液位：100cm 反射体取り付け可能
(2) 燃 料 条 件	硝酸ウラニル溶液、 ²³⁵ U濃縮度10% ウラン濃度：最大500gU/l 初期温度：最高40℃ 初期出力：最大10kW
(3) 反応度添加条件	添加方法 溶液燃料連続給液及び調整トランジェント棒引抜き 50cm径炉心：最大約3\$ 80cm径炉心：最大約2\$

表-3 STACYの主要機能

熱出力	最大 200W
年間積算出力	最大 3kw・h
炉心	円筒、平板、2つのタンクによる相互干渉炉心タンク 非均質炉心等可変
燃料(硝酸溶液)	ウラン濃縮度 10, 6, 4% 最大装荷量 350kgU ウラン濃度 500gU/l以下 プルトニウム富化度 0~100% 最大装荷量 60kgPu プルトニウム濃度 300gPu/l以下
燃料(棒状)	ウラン濃縮度 5%
燃料温度	40℃以下
最大過剰反応度	0.8ドル
実験用装荷物	水、コンクリート等の反射材、中性子吸収材、ボイド模擬体等
安全棒	最大8本

表-4 TRACYの主要性能

熱出力	定常時最大 10kW, 過渡時最大 5,000MW 過渡時積分出力 32MW・s
年間積算出力	最大 230kw・h
安全棒	3本(50cm炉心)、5本(80cm炉心)

炉心、燃料条件、最大過剰反応度等は表-2のとおり。

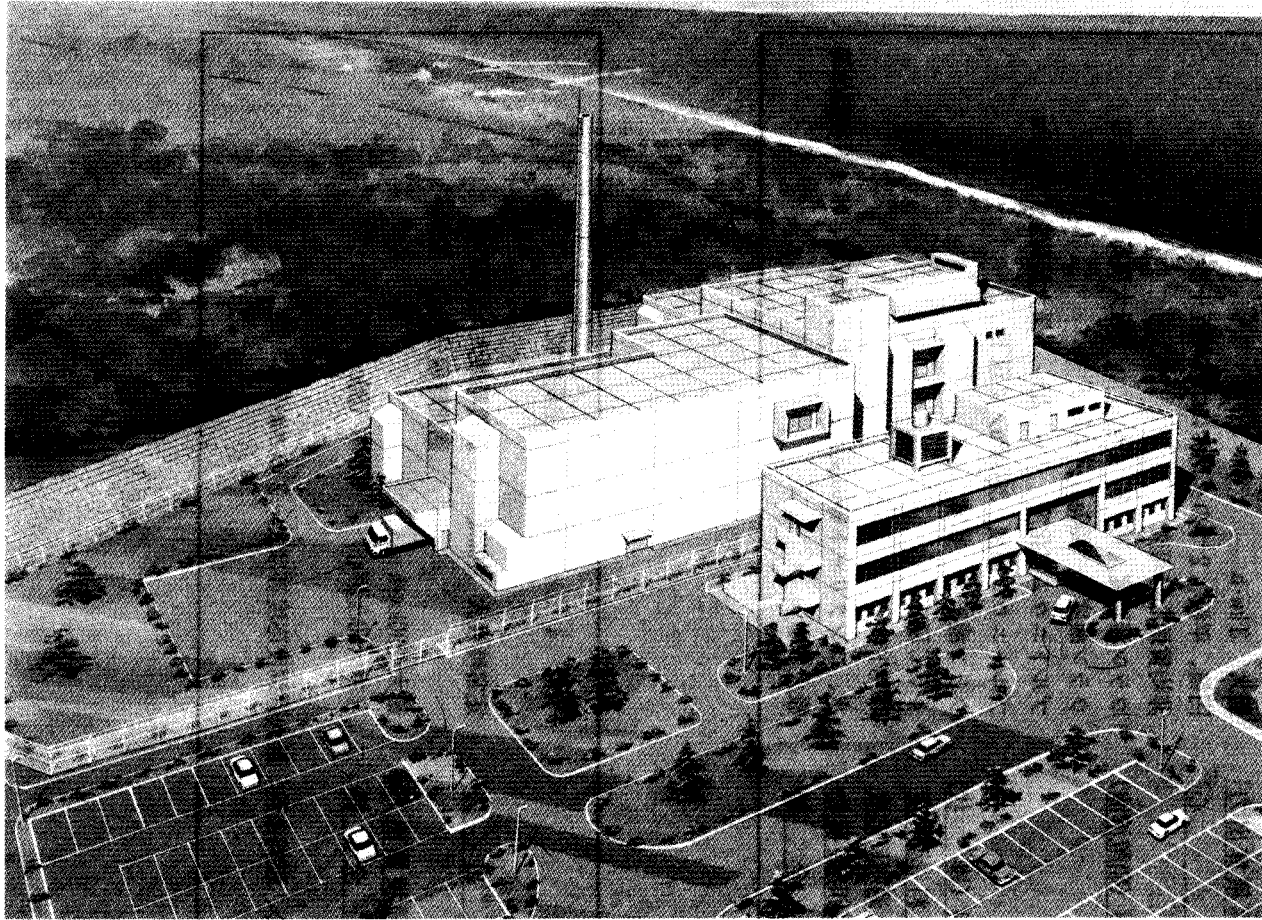


図-1 N U C E F 完成予想図
(右上が実験棟A, 左が実験棟B, 手前は管理棟である。)

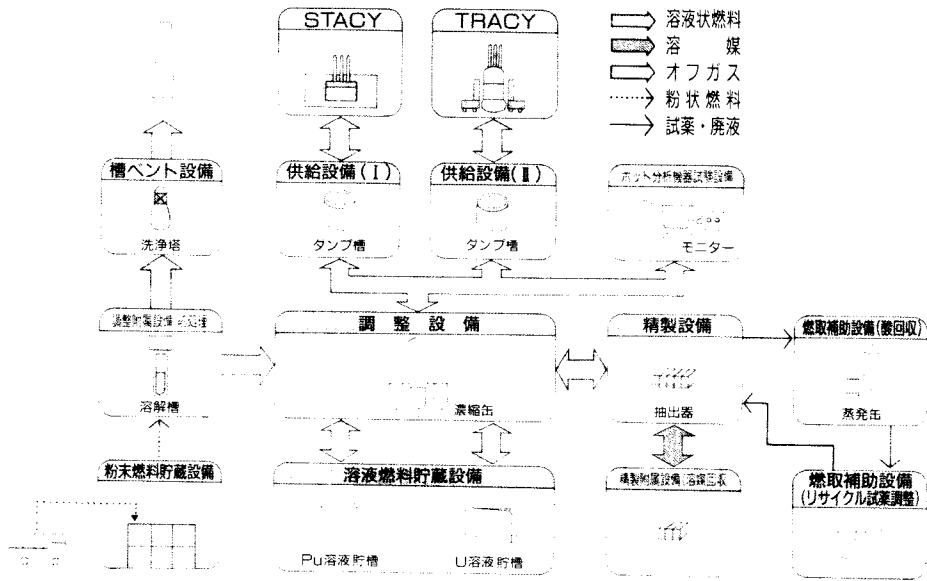


図-2 STACY, TRACYのための核燃料物質のフロー図

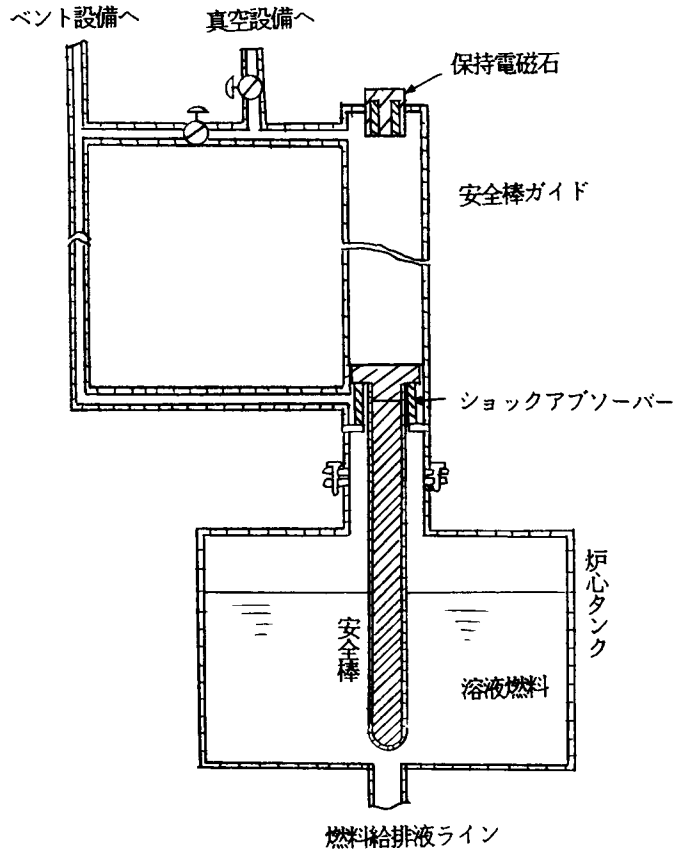


図-3 安全棒駆動装置の構造概略

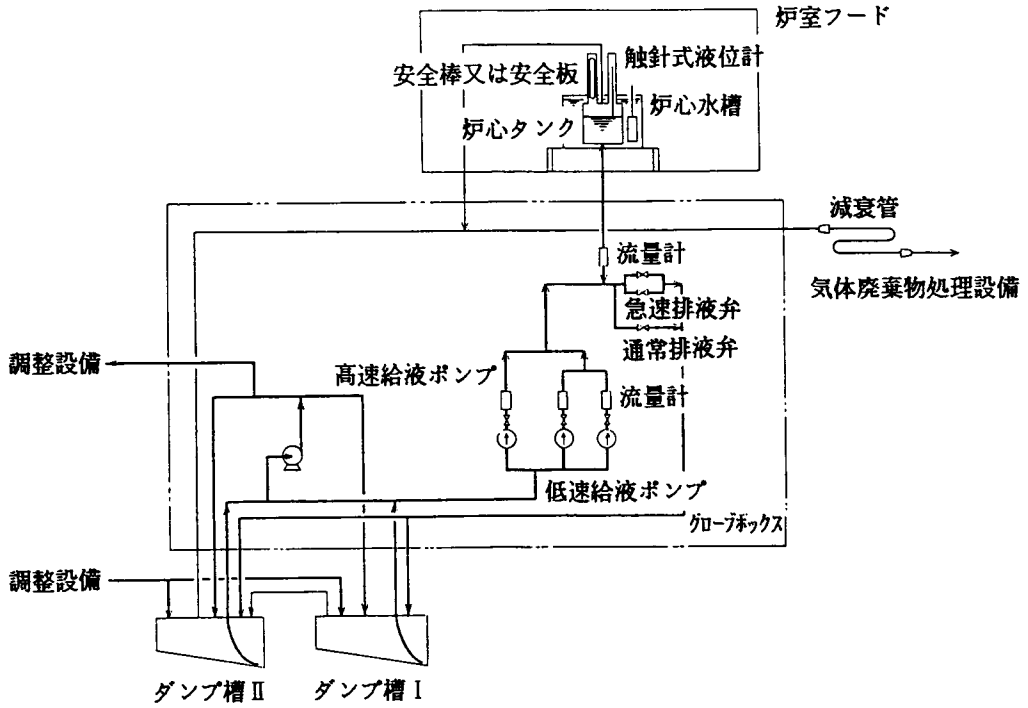


図-4 STACYのフローシート

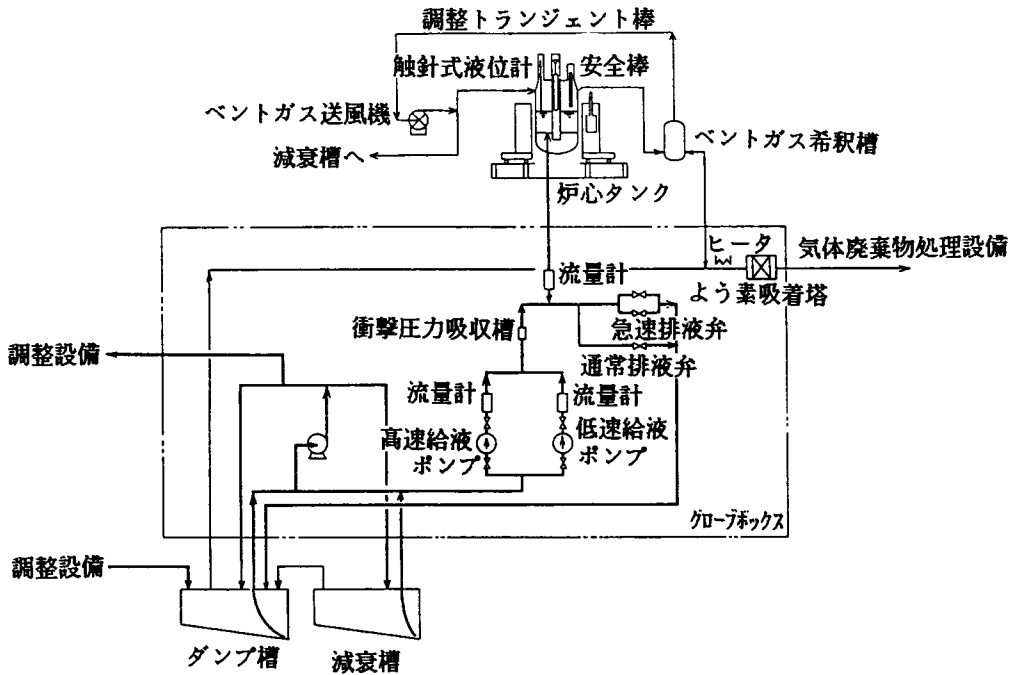


図-5 TRACYのフローシート