

JAERI-M
84-155

核燃料取扱い施設における
臨界事故例の解析

1984年9月

館盛 勝一・桜井 聡

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村 日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1984

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日立高速印刷株式会社

核燃料取扱い施設における臨界事故例の解析

日本原子力研究所東海研究所安全工学部
館盛 勝一・桜井 聡

(1984年8月1日受理)

今迄に核燃料取扱い施設で発生した臨界事故の中から詳細がわかっている8件について、事故に至る経過を中心に概要をまとめた。それぞれの Event Tree を作成して、事故を構成する欠陥要因を抽出し、それらを他の事故例における原因と比較し考察した。また、過渡臨界における起因事象並びに収束に結びつく現象も検討した。

JAERI-M 84-155

Review of the Criticality Accidents
in Nuclear Fuel Facilities

Shoichi TACHIMORI and Satoshi SAKURAI

Department of Nuclear Safety Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received August 1, 1984)

Eight criticality accidents which occurred in the nuclear fuel facilities during past 25 years and appeared in the published literatures were summarized from a view point of identifying the causes for the nuclear excursions. Elemental causes of each accident were extracted and analyzed by developing Event Tree. Phenomena inducing and terminating the nuclear excursions were also examined.

Keywords ; Criticality Accident, Uranium, Plutonium, Event Tree,
Nuclear Excursion, Nuclear Fuel Facility, Fission

目 次

1. 序	1
2. 核燃料取扱い施設における臨界事故	5
2.1 ORNL Y-12 プラント事故	5
2.2 LASL 溶媒処理槽事故	8
2.3 ICPP 廃液貯槽事故	15
2.4 ICPP 蒸発缶事故	19
2.5 Hanford Recuplex 事故	25
2.6 Wood River Junction 工場事故	29
2.7 Windscale, Plutonium Recovery Plant 事故	32
2.8 ICPP, 抽出カラム事故	36
3. 臨界事故原因の考察	42
4. 過渡臨界の起因事象と収束原因	45
5. 結 び	46
引用文献	47

C o n t e n t s

1. Introduction	1
2. Criticality accidents in nuclear fuel facilities	5
2.1 ORNL (Y - 1 2 plant)	5
2.2 LASL (Plutonium process tank)	8
2.3 ICPP (Waste tank)	15
2.4 ICPP (Evaporator)	19
2.5 Hanford (Recuplex system)	25
2.6 Wood River Junction (Scrap recovery plant)	29
2.7 Windscale (Plutonium recovery plant)	32
2.8 ICPP (Extraction column)	36
3. Considerations of causes for nuclear accidents	42
4. Phenomena inducing and terminating the nuclear excursions	45
5. Conclusion	46
References	47

1. 序

1983年9月23日にアルゼンチンの研究所 Constituyendesの臨界集合体(RA-2)で臨界事故が発生し、作業員が1名死亡した。臨界事故としては1978年10月のIdaho Chemical Processing Plant 事故以来5年振りである。核燃料の化学処理施設に限ってみると、1970年以降の臨界事故は2件である。この数字は小さいように見えるが、臨界安全性が1960年代以降、飛躍的に重視改善されてきた経緯を振り返ると、2件の持つ意味は大きく臨界事故防止のための不断の努力が必要といえる。特に我が国では現在、Pu燃料加工施設が増設され、第二再処理施設の設計が開始されるなど、大型の核燃料処理施設が増加しつつあり、臨界安全性の課題を正しく評価すべき時期にあるといえよう。核燃料施設の設計段階においては、工程機器はいかなる条件下においても未臨界であるように設計される、あるいは、施設の大型化が進むと、未臨界である条件内に工程条件を制限管理する措置がとられる。このような臨界安全設計の実施においては、各種工程の性能、特徴を十分把握し、正常時、異常時の核燃料物質の挙動(物理的、化学的変化)を正確にトレース出来ることと、信頼性の高い制御方法が要求される。このように、核燃料施設の臨界安全性の課題は、従来の原子炉施設の臨界問題と全く異なって、化学(工学)的要素を多分に含んでいる。臨界安全研究室では、各種工程の化学現象を臨界安全性との係わりで解析し、臨界安全設計および臨界安全管理システムの確立に寄与するために行う研究をプロセス臨界安全性研究と称している。

本報執筆の動機は、核燃料取扱い施設において発生した臨界事故を解析する事によって、これからのプロセス臨界安全性研究の参考としたいこと、および少なからぬ人々から臨界事故例の簡潔な説明を求められる事が多く、今後とも要請があると判断したことの2点である。

核燃料処理施設における臨界事故は、今迄に9件報告されている(表1参照)。そのうちの8件は多くの解説記事によって内容が良く知られている。1968年1月のオークリッジ国立研究所(ORNL)、Y-12プラント事故(1958年6月に同所で起きた事故とは異なる)は、唯一の ^{233}U による臨界事故であるが、事故の詳細は不明である。

臨界事故の内容を記述した著書では、“原子力施設の事故〔調査報告〕”JAERI-4052(1970)、大西 武他4名共著、がよく知られている。これは題名のとおり1969年迄の各種の事故285件を集録した労作であり、上記8件のうちの6件が含まれている。この報告は放射線管理的立場から記述されているため、臨界安全性の検討資料としては必ずしも十分ではない。以上の状況をふまえ、ここでは、8件の臨界事故それぞれについて、事故原因に重点を置いて解説し、入手できる報告等から読み取れる限りの情報に基づいてEvent Treeを作成した。Treeの中に用いた(設)等のマークは、問題点を摘出するために使用し、それぞれのマークの意味は表2に示した。

これらの臨界事故例から得られる教訓は、上述のプロセス臨界安全性研究課題といった、事故に係わる化学的過渡現象の未知の部分を見付け出し、解明する事の必要性の他に、全体のシステムの調和と整合性、すなわち工程制御におけるman machine interfaceの検討、運転、保

守、手順書等の完全性、あるいは担当者の適性に関する問題等があげられる。TMI事故並びに本報で解説した多くの事例では、後者、すなわちシステムの欠陥あるいは人的ミス等が発端となり事態の進行と共に予期せぬ工程現象等が関与している点に注目したい。

第3章では、第2章で行った Event Tree による事故原因の抽出をもとに、著者の立場からの考察を加えてみた。

表 1 核燃料化学処理加工施設における臨界事故

施設名 発生年月日	事故の概要と全核分裂数	臨界時の状況	警報発生の有無と回避状況	事故現場の線量率状況	臨界モニタの型式とアラーム設定値	被曝状況
ORNL Y-12 (Oak Ridge, Tenn.) 1958. 6. 16	濃縮U液がリークテスト用の水と一緒に208ℓドラム缶に入り臨界。 1.3×10^{19}	U水溶液56.2ℓ中 ²³⁵ U 2.1kgで臨界、出力スパイク 10^{16} 、アラーム出力 1.29×10^{16} (約3min)継続時間18min、遮断なし。	現場で8人作業中、事故と同時に警報が吹鳴、迅速な回避が行われた。	事故直後、現場より107mの所で、100mR/hr、3hr後ドラム缶より30.5mの所で60mR/hr。	GM使用、工場の中心より24.4m点に8個設置。アラーム設定点は1mR/hr、事故後は3mR/hrに変更。	8名被曝 28~461rem
LASL (Los Alamos N, Mexico) 1958. 12. 30	廃液からPuを回収する工程で計量作業のためPu含有液を処理タンクに入れ攪拌した時に臨界。 1.5×10^{17}	96.5cmφの8550ℓ処理槽、Pu溶液160ℓ中Pu 3.27kg、Puは溶媒割に分配、攪拌時に臨界。出力スパイク 1.5×10^{17} 、継続時間2sec、遮断なし。	事故発生と同時に警報吹鳴全員退避、付近にいた2名は救助活動を行う。	事故直後、現場より53.3m離れた場所の臨界警報が吹鳴。処理槽より7.6m離れた場所で20R/hr。	電離箱使用、2個以上の信号で警報発生、内蔵線源により故障検出アラーム設定は1と10mR/hr。	12,000rem 被曝1名死亡。 他は53~134rem
ICPP (Idaho Falls, Idaho) 1959. 10. 16	硝酸ウラニルをサンプリングのため空気攪拌、サイホン作用発生、非安全形状タンクへ移送、臨界。 $\sim 4 \times 10^{19}$	18,900ℓのタンクに170g ²³⁵ U/ℓ溶液が200ℓ流入、全水溶液量800ℓ、 ²³⁵ U34.0kgで臨界。出力スパイク 10^{17} 、遮断あり。	貯留タンク区域のベントラインを通してプロセス建屋空気汚染、モニタ吹鳴、口頭および電話により退避。	退避時点で建屋の外側および入口西方119mの所で5R/hr以上(放射線ガスによる)。	電離箱型検出器20個の臨界警報装置を設置。アラーム設定値は20mR/hr。	11名被曝 2~50rem
ICPP (同上) 1961. 1. 25	蒸発ポンプの詰り物除去作業中、非安全形状部に液が吹き上げられ臨界。 6×10^{17}	蒸発缶上部の径は61cm非安全形状、U液40ℓ中 ²³⁵ U8kgが吹き上げ臨界。出力スパイク 6×10^{17} 、遮断あり。	臨界と同時に放射線警報吹鳴、手動で緊急退避警報を鳴らす。	事故直後の施設内は通常のバックグラウンド、施設の風下地点で放射性雲により30mR/hr。	同上	被曝はr線のみ 0~55mrem
Recuplex (Richland, Wash.) 1962. 4. 7	施設洗浄作業中、床のサンアにたまったPu液が非安全形状容器に吸い上げられ臨界。 8×10^{17}	46cmφ 69ℓ円筒容器、Pu液46ℓ、Pu 1.5kgで臨界。出力スパイク 10^{16} 、継続時間37hr、遮断なし。	臨界警報吹鳴、退避は迅速、事故時、容器の最も近くの人までの距離は1.5~8m。	事故現場の線量率は不明、スタックより約1,200 Ci希ガス放出。	234~5建屋にはNaI検出器10個よりなる臨界モニタあり、アラーム設定値500mR/hr。	3名被曝 19~110rem
UNC Wood River Junction 1964. 7. 24	ラベル不備、濃縮Uを非安全形状のメークアップタンクに入れ臨界。 1.2×10^{17}	45.7cmφ 66cm深さの円筒容器、0.54M NaCO ₃ 41ℓ中に10ℓ中 ²³⁵ U 2.6kgを含む液を入れ臨界、出力スパイク 10^{17} 、遮断なし。	警報吹鳴については不明、事故当事者は青白い光と液の噴出を見て退避。	事故直後スタック付近は最高100mR/hrのサーベイでフルスケール、線量の詳細は不明。	—	骨盤46,000rem 頭部14,000rem 死亡。
ORNL Y-12 (Oak Ridge, Tenn.) 1968. 1. 30	1.1×10^{16}	硝酸ウラニル水溶液20ℓ、33kg ²³⁵ U、球形、水反射	—	—	—	—
U. K. AEA Windscale 1970. 8. 24	Pu回収工程中非安全形状の容器に溶液を移送し終わった時に臨界。 1×10^{16}	61cmφ、68.6cm深さの容器、55g Pu/ℓ液40ℓと6~7g Pu/ℓ液50ℓで臨界、出力スパイク 10^{15} 、継続時間5~10sec、遮断あり。	臨界警報吹鳴、全員迅速に退避。被ばく検査を受ける。	事故10min後4階のコントロール区域で200mR/hr、スタックより約5m Ci放出。	—	2名被曝 2rad以下
ICPP (Idaho Falls, Idaho) 1978. 10. 17	洗浄用の硝酸アルミニウム濃度低下、ウラン濃度上昇で臨界 2.74×10^{18}	溶媒抽出工程第1サイクル洗浄塔の硝酸アルミニウム濃度が低下、ウラン濃度22.2g U/ℓで臨界。遮断あり。	—	—	—	なし

表2 臨界事故の原因の1つと考えられる事項と
Event Tree に用いた記号

事故の原因を構成する事項	記号
設計上(システム解析, 安全解析)の欠陥	設
保守, 点検の不備	保
作業員等の不注意	不
手順書等の違反	違
判断を誤った	誤
連絡上の欠陥	連
管理体制, 規則の欠陥, 不備	体
装置や機器の故障, 欠陥	装
手順書等の欠陥, 不備	マ

2. 核燃料取扱い施設における臨界事故

2.1 ORNL Y-12プラント事故 (1), 2), 3), 4), 5), 6), 21)

ORNLのY-12プラントは、種々の物質からウランを化学的方法で回収する工場である。臨界事故当時、この回収工程は改造中で、これと並行してウラン在庫量調査を行っていた。事故の直接の原因は、回収工程とは異なる区域にある2次抽出工程で生産された硝酸ウラニル溶液 (^{235}U ~ 90%濃縮) が配管を通して漏洩し、リーク試験に用いた幾何学的安全形状でないドラム缶に集まったことである。この事故による核分裂数は、 1.3×10^{18} 個で、事故現場にいた8人が被曝し、その最大被曝線量は461remであった。この事故発生時の各種機器の配列状態の概略を図1に、Event Treeを図2に示した。

事故当時の前の運転班の直長は事故以前に、ガラス製 pH 調整槽 (安全形状) の上部のV-2バルブを通してウラン溶液が調整槽に漏洩しているのを発見した。B-1区域の2次抽出工程が運転中であることを直長は知っていたが、C-1区域の貯槽のリーク試験は終わっていると誤解していた。このため、直長が行なったのは、V-2バルブの漏洩を止めたことだけだった。この結果、V-1バルブと、偶然開いていたV-3バルブを通して、B-1区域で生産された硝酸ウラニル溶液が、C-1区域の直径12.7cmの幾何学的安全形状の貯槽1-2に流入した。なお、直長は、この漏洩について運転日誌に記載していない。また、B-1区域とC-1区域を結ぶ配管には、C-1区域のV-1バルブだけしか設けられていない。

臨界事故は、直交代後に行われた貯槽1-2、6-1、6-2のリーク試験時に発生した。当時この貯槽群はインベントリ作業のため、分解、洗浄、再組立てをされたので、これらの貯槽に試験水を注入してリーク試験を行う必要があった。まず、バルブV-4、V-5が閉じられて、貯槽6-1、6-2に試験水が注入された。続いて、試験水を排出するために幾何学的安全形状でない208ℓの空のドラム缶が、プラスチック管によって排出用バルブV-11に接続され、念のためにV-1バルブが完全に閉じられた。午後1時45分、バルブV-4、V-5、V-11が開けられ、試験水がドラム缶に排出され始めた。このとき、貯槽1-2の液位についての確認はされていない。この結果、貯槽1-2に流入していた硝酸ウラニル溶液が、リーク試験水とともにドラム缶に流れ込み、午後2時5分頃、臨界に達した。この時、系は、液量56.2ℓ、高さ23.45cm、直径55.2cmの円柱状で2.10kgの ^{235}U が存在したと推定される。臨界状態は、約18分間持続し、その間に0.4kgの ^{235}U が流入した後、試験水が多量に流入したことによって終結した。その時の液量は180ℓであった。ドラム缶内の溶液の試料の分析から、核分裂数は 1.3×10^{18} 個であった。初期の2.8分間に大きなパルス ($6 \sim 7 \times 10^{17}$) が発生し、その後何回かのパルスが生じたと考えられた。

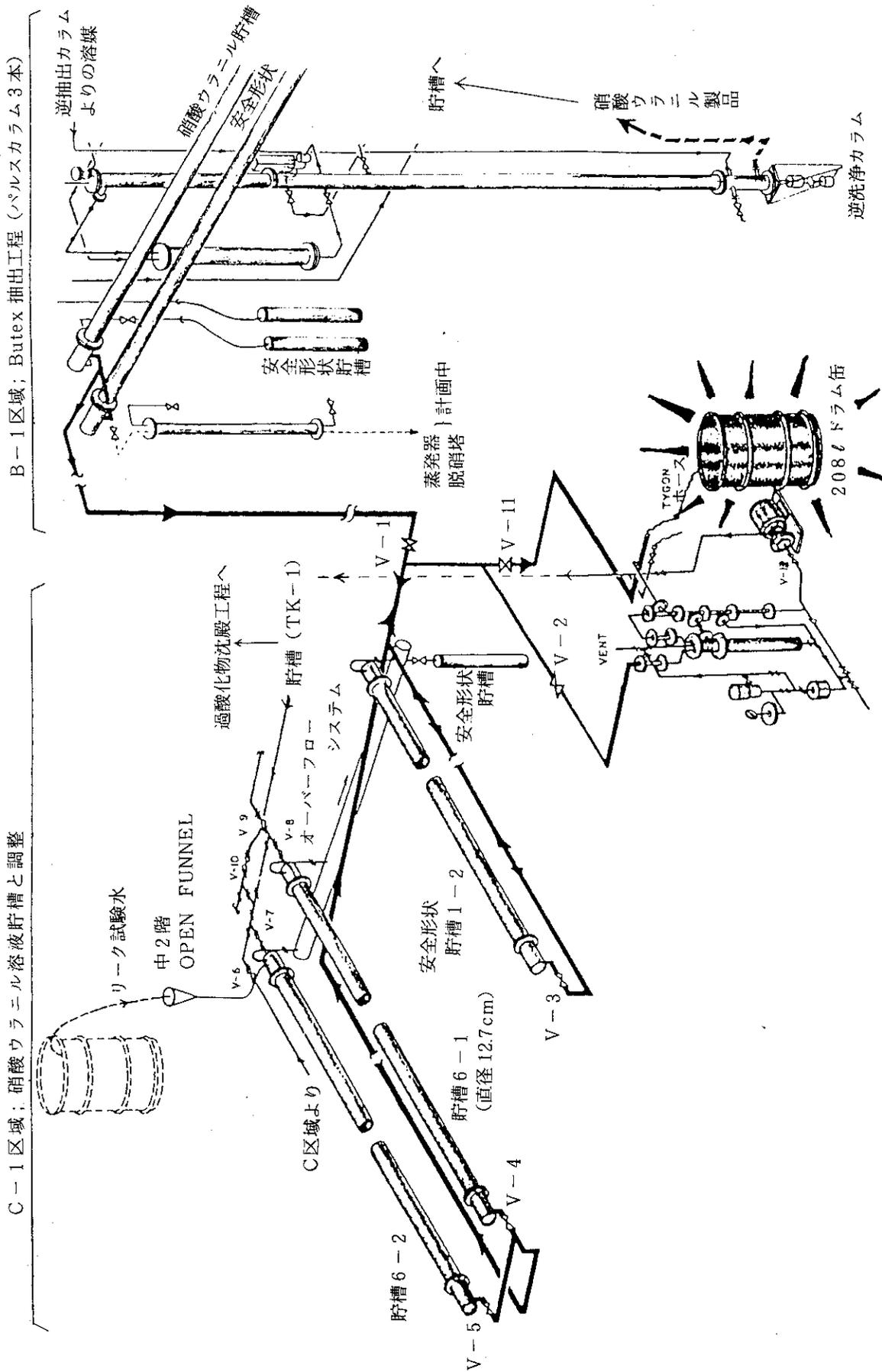


図1 ORNL Y-12プラントの臨界事象関連装置の配置

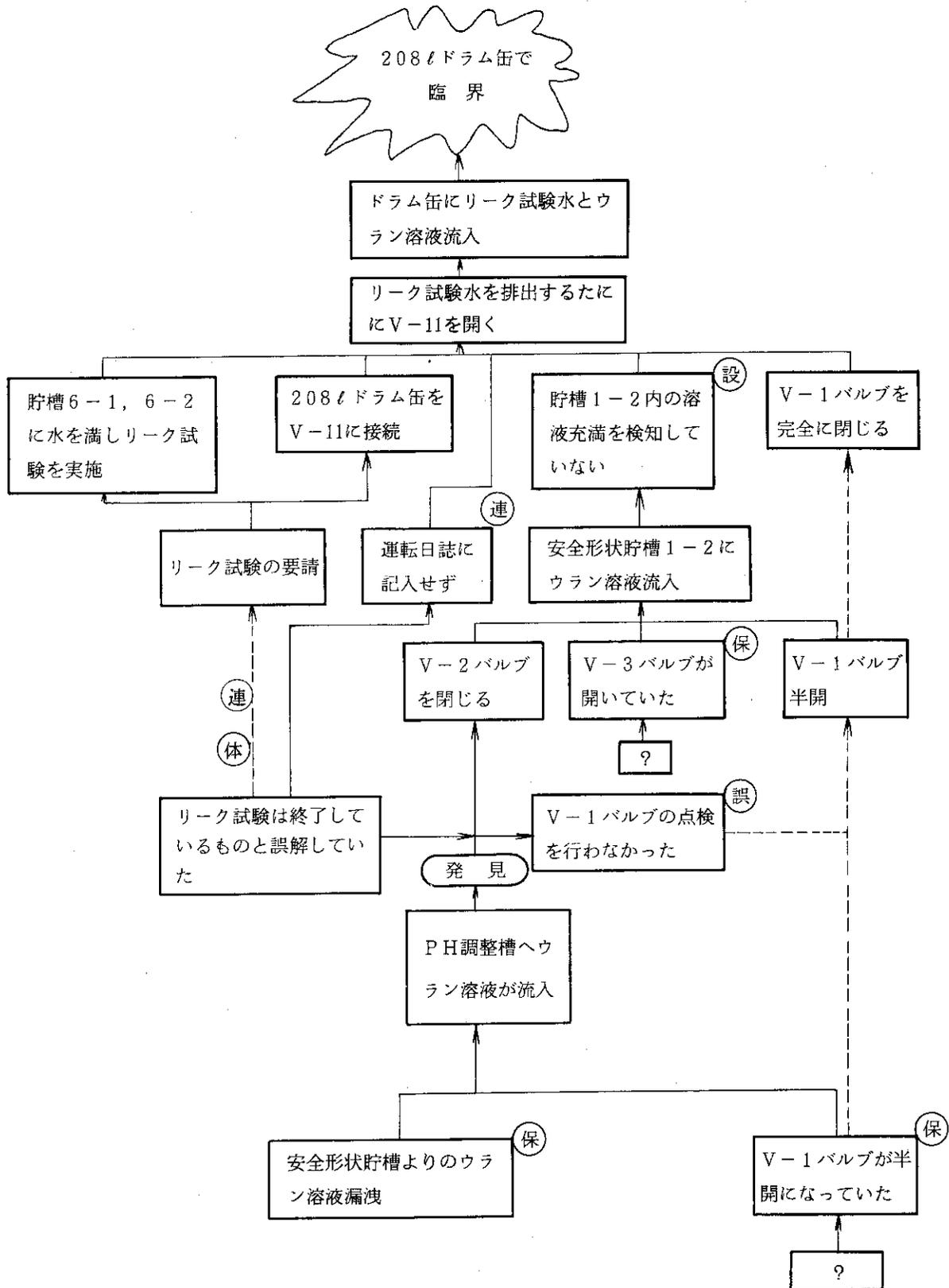


図2 ORNL, Y-12プラントにおける臨界事故のEvent Tree

2.2 LASL 溶媒処理槽事故 (1), 2), 3), 4), 7), 8), 9)

ロスアラモス科学研究所 (Los Alamos Scientific Laboratory; LASL, 現在はロスアラモス国立研究所に名称変更) は, プルトニウム金属を製造する際に生じるスラッグなどから, プルトニウムを回収していた。

臨界事故は, プルトニウム回収工程で発生したプルトニウム含有量の少ない残液 (raffinate) から, プルトニウムとアメリカシウムをバッチ抽出法で濃縮, 精製する工程で発生した (図3参照)。事故の原因は, この工程で生じた, プルトニウムを多量に含んだTBPの放射線分解生成物等の沈澱を, プルトニウム在庫量調査中に誤まって安全形状でない容器に入れ, 溶解, 攪拌したことである。この事故による核分裂数は 1.5×10^{17} 個で, 作業員3人が被曝し, その線量は, それぞれ, 12,000rem \pm 50%, 134rem, 53remであった。このうち, 12,000remを被曝した作業員が死亡したが, 他の2人に身体的影響はなかった。事故のEvent Treeを図4に示す。

プルトニウム回収工程で発生する残液には, 0.1g/ℓ以下のプルトニウムとトレーサ量のアメリカシウムが含まれると想定されていた。これらはバッチ法によって, TBPで抽出, シュウ酸水溶液で逆抽出し, 蒸発缶で濃縮して, 回収段階に戻される。この際TBPは, 熱, 硝酸および α 線の作用で加水分解され, リン酸モノブチル (MBP) およびリン酸ジブチル (DBP) となる。これらは, プルトニウムと強く結合する傾向があるので, 周期的にTBP溶媒混合物から沈澱させて除去するという処理をしなければならなかった。

インベントリ作業の際, 作業員の行なったプルトニウムを含有する物質の移送は以下の通りである。(図5, 図6参照)

- (1) 工程中のさまざまなタンクから, 洗浄液 1,212 ℓ, NaNO₃ 廃液 378 ℓ, 溶媒 57 ℓおよび回収液 7.5 ℓが, CDS槽に集められた。
- (2) DS槽内のプルトニウムを多量に含んだ約9kgの固形物が, CDS槽に189.3ℓの洗浄水で流し出された (通常は, この固形物を別の貯槽に移送して処理していた)。
- (3) さらに56.7ℓの洗浄水でDS槽が洗われ, CDS槽に流し出された。
- (4) 蒸発缶1にあった洗浄液378.5ℓがフィルター給液槽2に移送された。
- (5) 蒸発缶1に残ったスラリーをCDS槽に移送した (通常は, このスラリーも別の貯槽に移送して処理していた)。この時, CDS槽の内容は, 水相1790ℓ, 有機相150ℓであった。
- (6) 218溶媒処理槽にあった溶媒549ℓを廃液槽1に移し, 218溶媒処理槽を“から”にした。
- (7) 溶媒処理工程で発生し, アルカリで安定化された水-有機物エマルジョンを貯槽2から直径96.5cm, 容量850ℓの218溶媒処理槽に移送した。
- (8) CDS槽の水相1166ℓを沈澱槽2に移送した。
- (9) CDS槽に残った水相624ℓを蒸発缶3に移送した。
- (10) CDS槽の有機相約150ℓを218溶媒処理槽に移送した。
- (11) CDS槽に残ったプルトニウムを多量に含む固形物を, 50ℓの濃硝酸で218溶媒処理槽に洗い出した。

218溶媒処理槽に集められたこれらの液を空気攪拌したため, エマルジョンは酸性となって消

滅し、2相に分離し、固形物に含まれていたプルトニウムは、有機相に抽出された。この時の218溶媒処理槽内の状態は、プルトニウム40gを含む水相331ℓの上に、プルトニウム3.27kgを含む有機相160ℓ（厚さ20.3cm）が存在し、両相および界面に、プルトニウム60gを含む固形物が浮いていたと推定される。有機相の厚さ20.3cmは、推定された臨界厚さ21cmよりわずかに小さく、系は未臨界であった。（図7参照）

系が臨界に達したのは、溶液を混合するために、作業員が、218溶媒処理槽内の電動攪拌機を起動したからである。これにより、水相が壁面に沿って上昇し、有機相の外側の部分と入れかわり、その結果、有機相の中央部の厚さが臨界厚さを超えた。臨界状態は、電動攪拌機起動後、1秒で始まり、約1秒間継続し、攪拌によって両層が完全に混合した結果終結した。水相に含まれていた⁹⁹Moの放射化学的分析から、核分裂数は 1.5×10^{17} 個であった。事故時に、溶媒処理槽が上方に跳び上り、blue flushと大きな音を発生した事が作業員によって報告されている。超臨界に達した時の機構から、攪拌機作動中あるいは停止時における再臨界の可能性は興味深いが、バーストのパルスが2度以上発生したか否かは不明である。

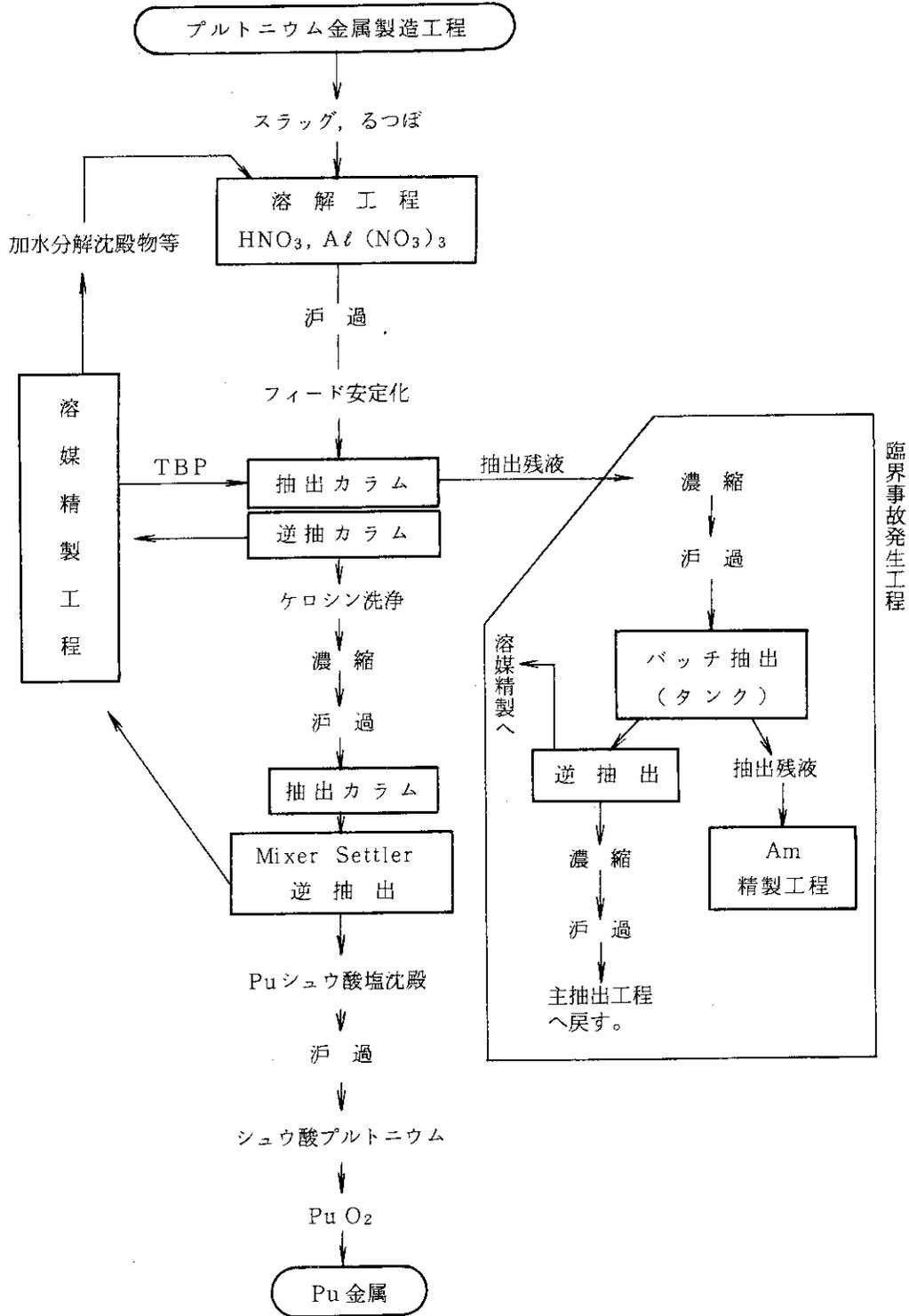


図3 LASLにおけるプルトニウム回収フロー図

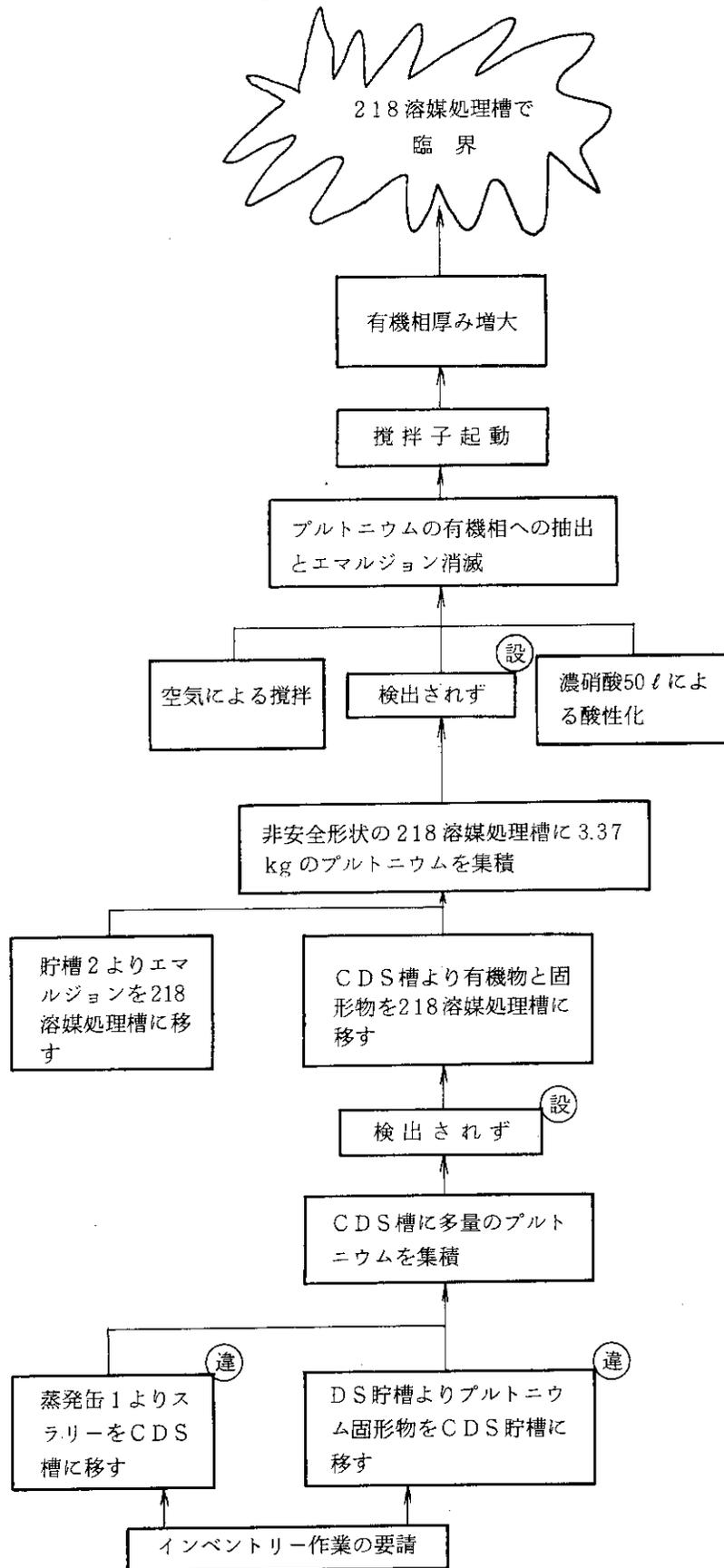


図4 LASLにおける臨界事故のEvent Tree

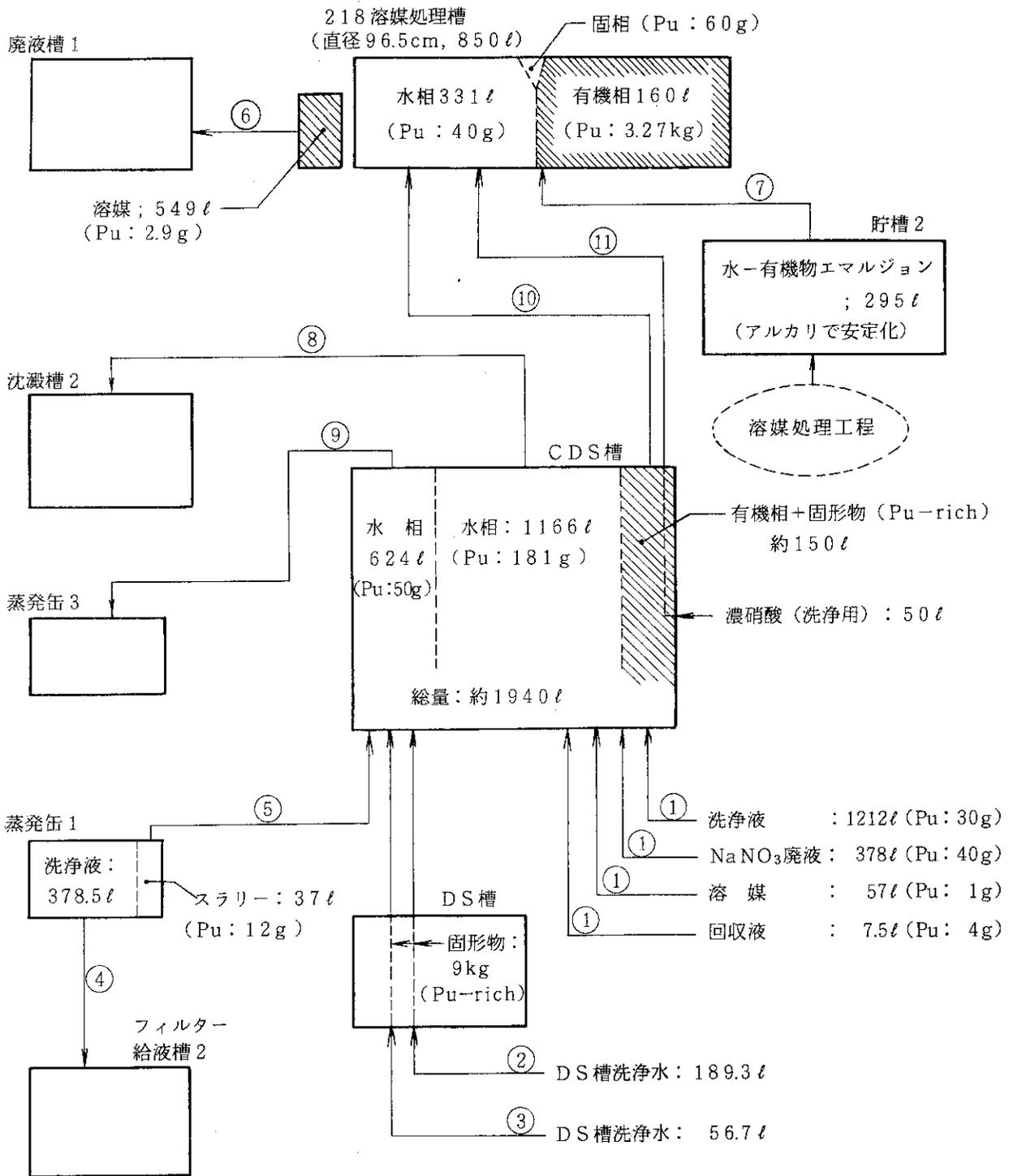


図 5 LASLインベントリ作業の物質移動 (①~⑩は作業順を示す)

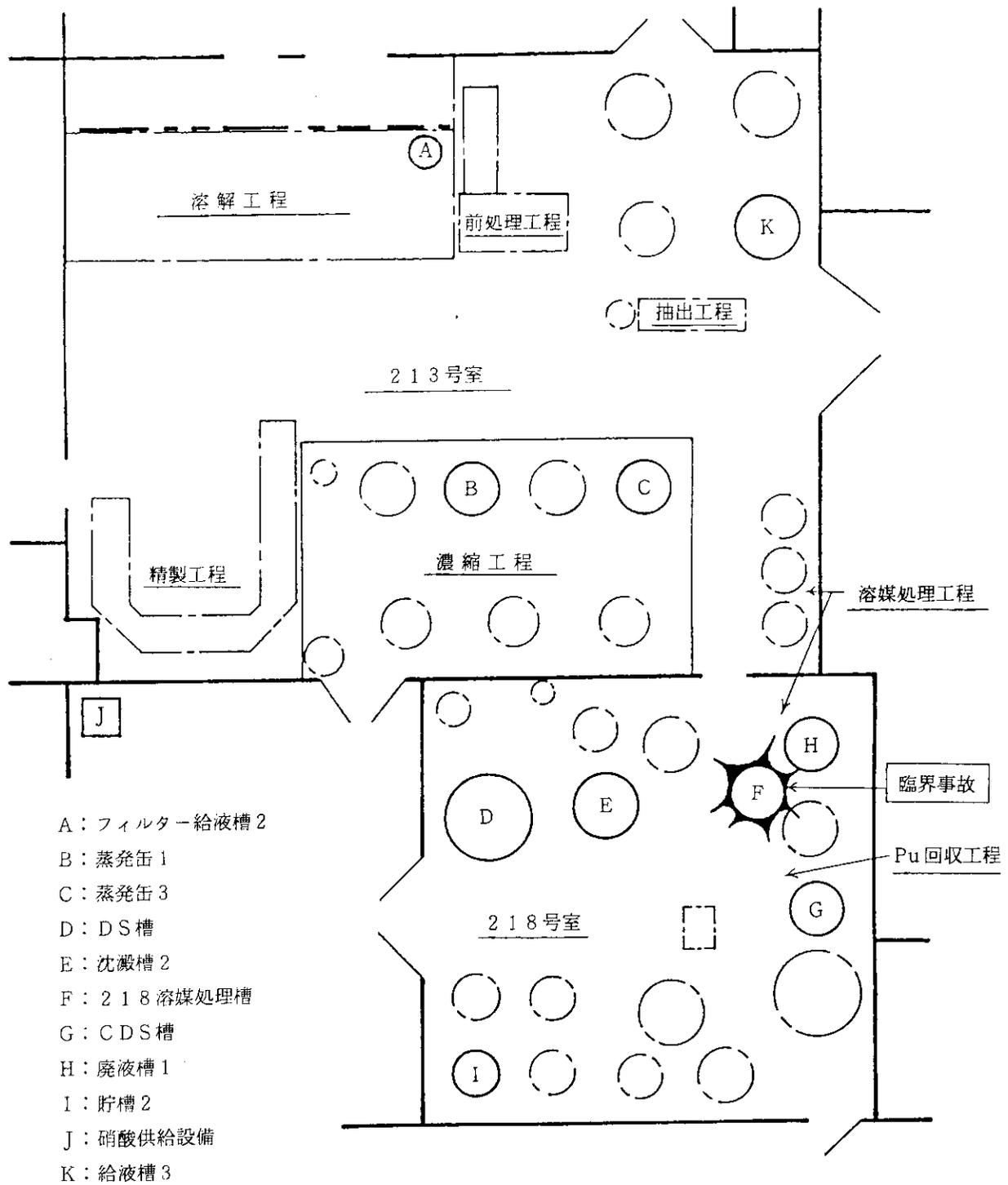
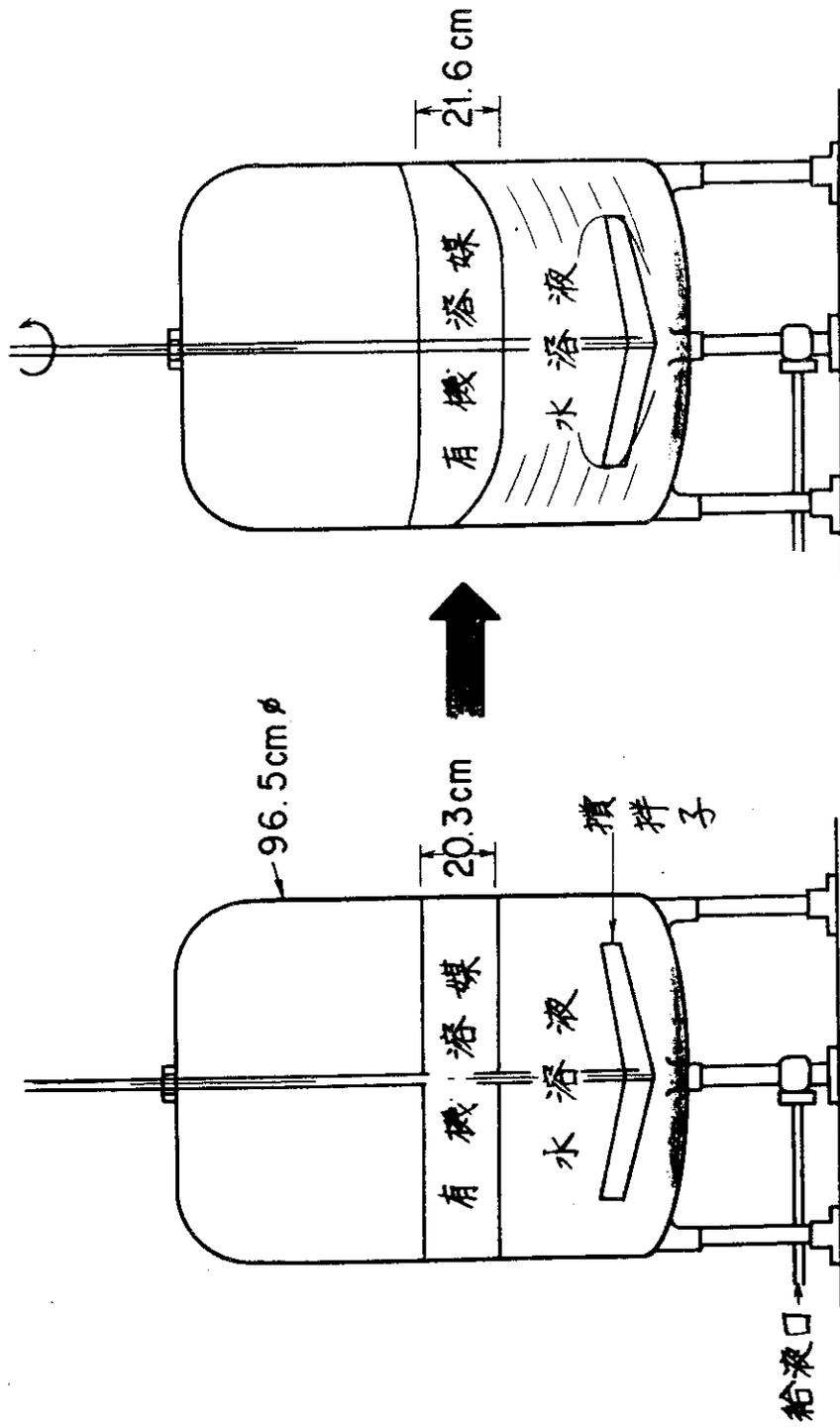


図 6 事故現場の装置，貯槽配置図



超 臨 界

未 臨 界 (-5ドル)

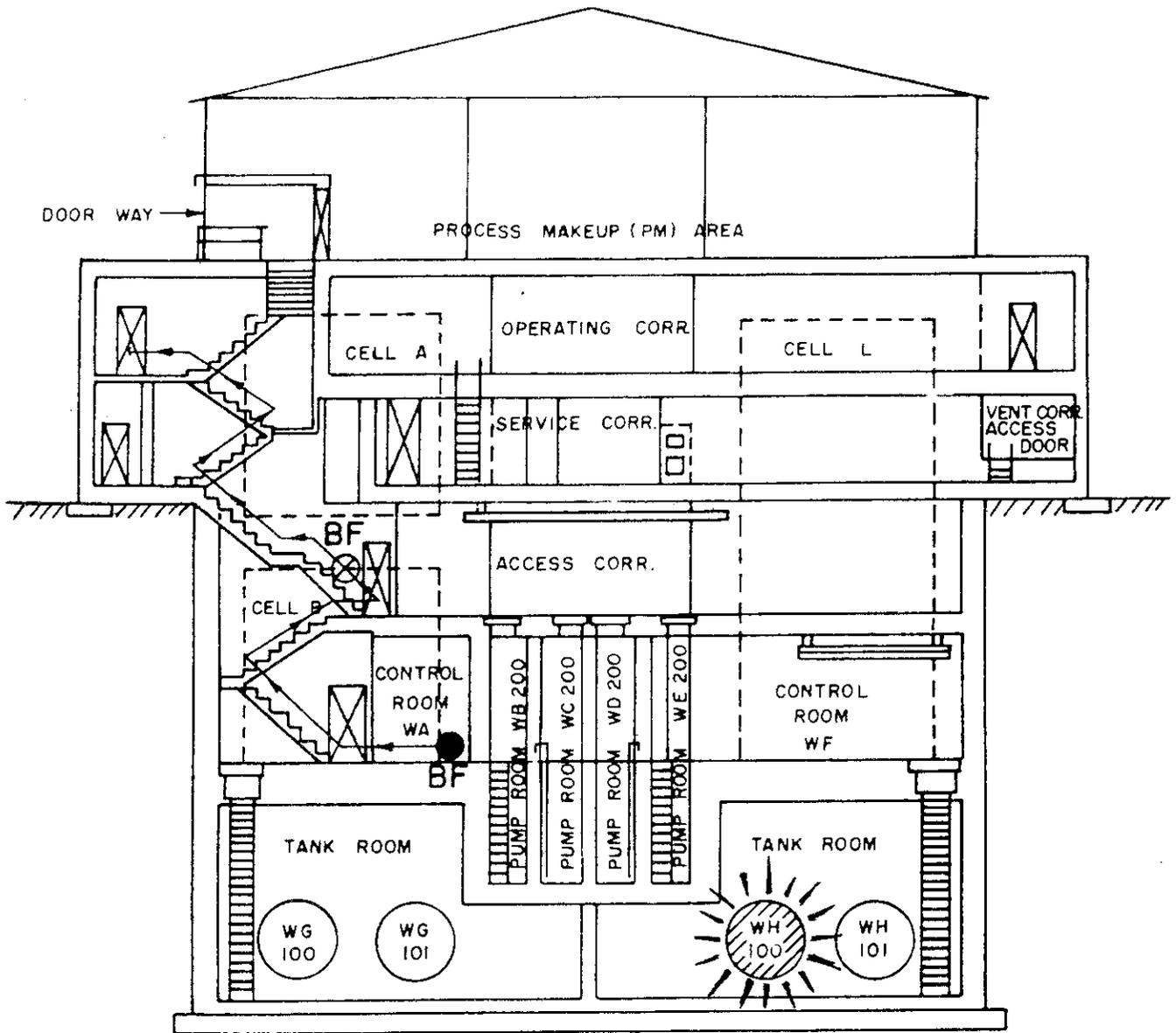
図7 Los Alamos S. L.における218 溶媒処理槽での臨界事故にいたる過渡概念図

2.3 ICPP 廃液貯槽事故 (1), 2), 3), 4), 10), 11)

アイダホ再処理工場 (Idaho Chemical Processing Plant: ICPP) の臨界事故は、使用済高濃縮ウラン燃料からウランを回収する工程の遮蔽された貯槽の中で起こった (図8参照)。事故の原因は、製品貯槽に入っていた高濃度の硝酸ウラニル溶液をサンプリングする際、攪拌用空気を入れ過ぎたため、この溶液が、幾何学的安全形状でない廃液貯留槽にサイホン作用によって流入したことであった。事故の際の全核分裂数は、 4×10^{19} 個であった。現場にいた作業員21人のうち、中性子線による被曝を受けた者はいなかったが、 β 、 γ 線に12人が被曝し、その最大量は50remであった。これらの被曝は、退避中に受けたものである。事故に関連した機器類を図9に、またEvent Treeを図10に示す。

事故が起こった時、工場ではステンレス被覆燃料 (91%濃縮ウラン) の処理を行っていた。抽出工程の第1サイクルの処理能力は、第2サイクルにくらべて小さいため、第1サイクルのプロダクトである濃度 $170 \text{ g }^{235}\text{U}/\ell$ の硝酸ウラニル溶液は、幾何学的安全形状の製品貯槽に貯留されていた。この貯槽は、直径12.7cm、高さ305cmの円柱状の容器8本からなり、総容量は309ℓである。ドレイン用配管は8本の容器に共通で、最高液面より114.4cm高い位置まで立ち上っていたので、分離バルブは設けられていなかった。製品貯槽の容量の80%にあたる約250ℓの硝酸ウラニル溶液がたまったもので、これを抽出工程の第2サイクルに移送する必要が生じ、それに先立って溶液のサンプリングを行うこととなった。手順書によると、サンプリングの際には、容器の底部にあるスパージャー (直径1.27cmのパイプに直径0.32cmの穴が2個あいている) によって空気攪拌し、溶液を均一にすることになっていた。操作員は手順書にしたがって作業を始めた。まず、導入バルブを全開にし (圧力 3.5 kgf/cm^2)、続いてスパージャーへ 0.14 kgf/cm^2 の圧力で空気を供給するようパネル上の圧力計のモニターを見ながら供給バルブを開いた。この時作業員は、圧力計が故障しており、代りの圧力計が取り付けられて、そのモニターも別の場所に設置されていることを知らなかった。そのため、密度計を見ながら供給バルブを開いていき、密度計の振れから空気攪拌が行われていることを確認した。

結果として、過剰な圧力の空気が製品貯槽に導入されたため、硝酸ウラニル溶液はドレイン用配管中を押し上げられ、サイホン作用で、廃液貯留槽に $13 \ell/\text{min}$ の平均流量で、約200ℓ ($34 \text{ kg }^{235}\text{U}$) が流入した。廃液貯留槽は直径274cm、容量18,900ℓで、当時、ウラン濃度の無視できる約600ℓの廃液が入っていた。臨界状態は初期スパイク ($\sim 10^{17}$ fission) の後に約20分間継続し、400ℓの水が他のタンクに蒸留したことにより終結した。この間の核分裂数は、溶液中の ^{99}Mo の放射化学的分析から、 4×10^{19} 個、中性子束密度は、事故現場から得たステンレス鋼のボルト、ナットの ^{59}Fe 、 ^{58}Cr の誘導放射能の測定から $1.5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2$ と推定された。核分裂数が大きいのは、臨界状態が長く継続したことと、溶液の体積が大きかったため、核的暴走の程度の大きさによるものではない。



事故発個所

- ⊗ LOCATION AT FIRST LOCAL RADIATION ALARM - L CELL CAM
- PRIOR LOCATION
- EVACUATION ROUTE

図 8 ICPPの建家内構造図 (廃液タンクWH100で
臨界事故が発生した)

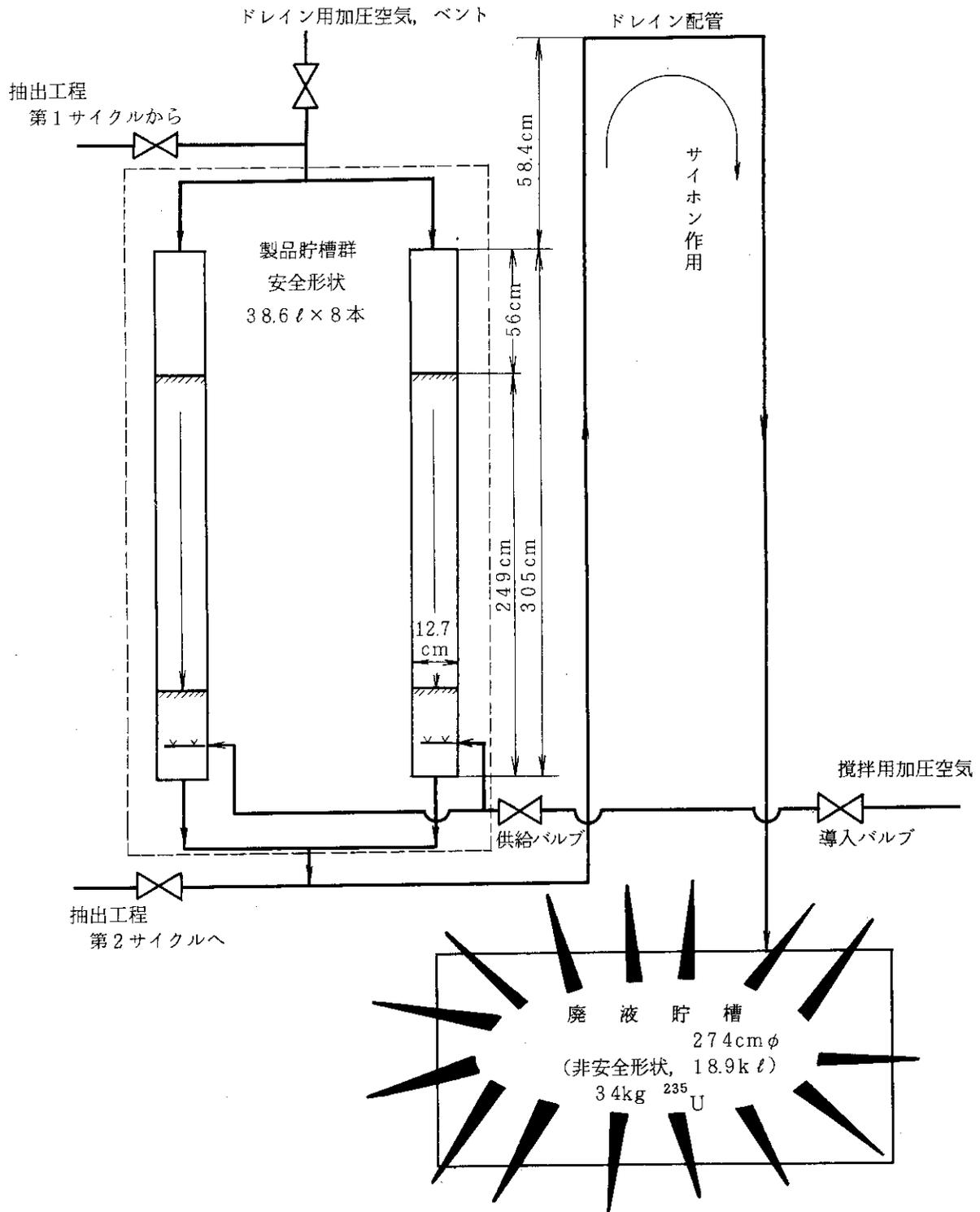


図9 ICPPの廃液貯槽における臨界事故

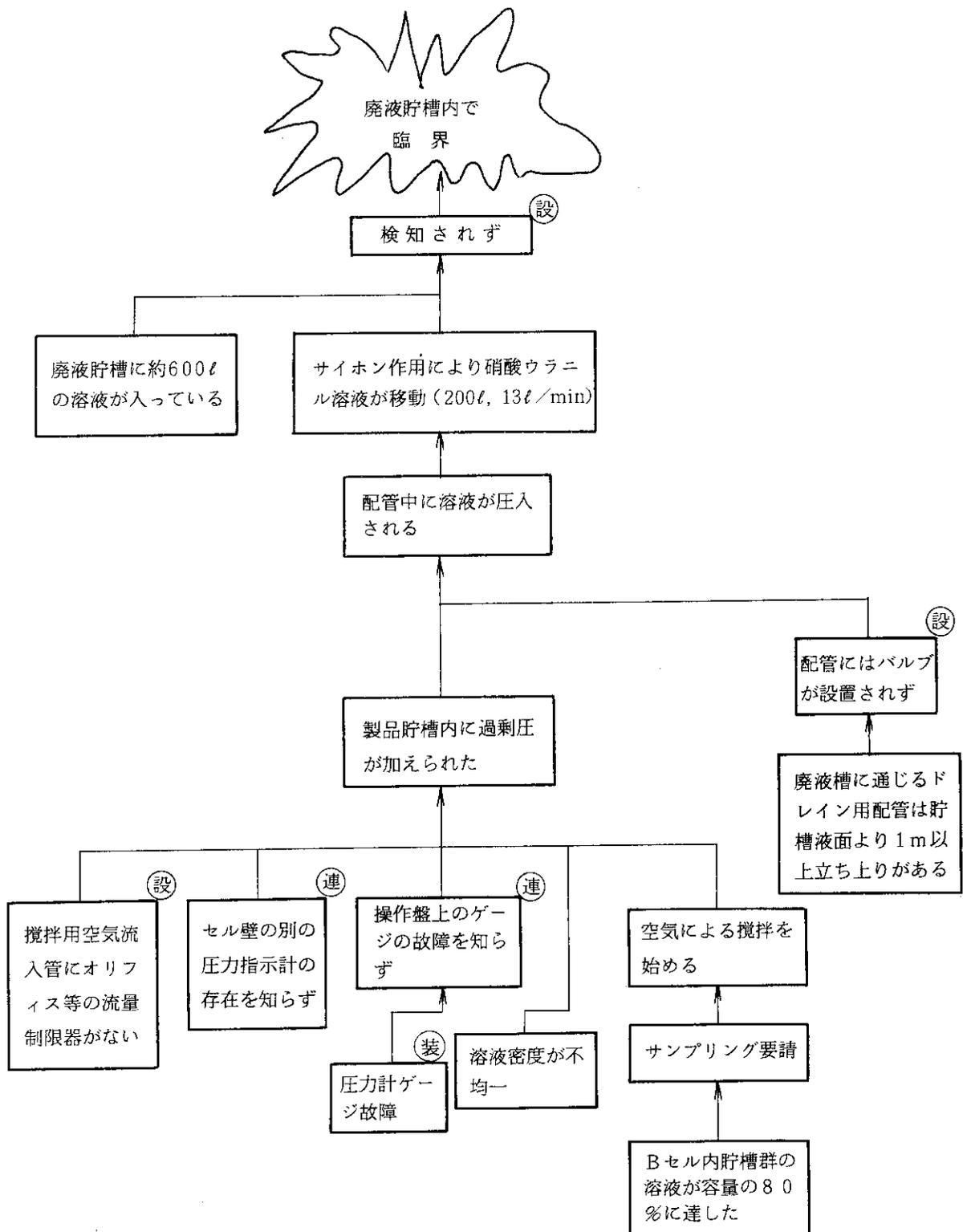


図10 I C P P 廃液貯槽における臨界事故の Event Tree

2.4 ICPP, 蒸発缶事故 (2), 3), 4), 12), 13)

前述の事故(1959年10月)後, ICPPは長期間, 運転を停止していたが, 1961年1月20日から運転を再開した。今回の臨界事故は, 抽出工程のコールドランとして, 未照射濃縮ウランのスクラップを処理中に, 第一抽出サイクルの最後の工程にある蒸発缶で発生した。直接の原因は, ポンプ配管の詰まりを取り除くため利用した加圧空気が蒸発缶に導入されたため, 硝酸ウラニル溶液を, 蒸発缶上部の幾何学的安全形状でない蒸気離脱部に持ち上げたことである。核分裂数は 6×10^{17} 個, 事故時にICPP区域にいた251人の被曝は最大55m rem (r 線)で, β 線および中性子線による被曝はなかった。ICPPの再処理プロセスの流れを図11に示した。

再開されたプラントでは, 高濃縮ウラン—アルミニウムのETR燃料の処理が予定されていたが, これに先立ち, 装置の改良点を見つけるために, 未照射の濃縮ウラン(90% ^{235}U)のスクラップによるコールドランを行なった。第1サイクルのパルスカラムで精製された硝酸ウラニル溶液は, Hセルにある蒸発缶H-110で濃縮されていた。この蒸発缶は, 熱サイホン型連続式で下部は直径12.7cmの幾何学的安全形状であったが, 上部の蒸気離脱部は, 直径61cm高さ122cmで, 幾何学的安全形状ではなかった(図12参照)。

蒸発缶内の硝酸ウラニル溶液は濃縮され, $200\text{g U}/\ell$ の濃度を示す比重1.28に近づいた。液量は約40ℓであった。この濃縮液を, 蒸発缶の下部からバルブ28を通してポンプ239によって, “N”セルの一時貯槽に輸送しようとしたができなかった。配管の洗浄が水と空気で行なわれ, また, 蒸発缶の排出側配管もエア—ページされたが, やはり蒸発缶から“N”セルへの濃縮液の輸送はできなかった。洗浄水の流入による, “N”セルの一時貯槽の濃度減少を避けるため, “J”セルの貯槽を用いて配管の洗浄が試みられた。この結果ポンプ239による輸送はできなかったが, ポンプ238による輸送は可能だった。これは, 蒸発缶の排出側配管には詰まりがなく, ポンプ239の故障, あるいはその排出側配管に詰まりがあることを示していた。“N”セルへの輸送には, ポンプ239を通る配管を使うしかなかったので, 最後に, plant make up area (PM area)の38ℓのタンクから4ℓの水が, $2.81\text{kgf}/\text{cm}^2$ の空気圧によって, 除染用配管の手動バルブとポンプ239を通して“J”セルに強制的に流され, 詰まりは取り除かれた。

除去作業が終わったので, PM areaの作業員は, 通話管から手動バルブを閉じるよう指示された。工程側の作業員は, PM areaの作業員の声を通話管から聞いたが, 内容は聞きとれなかった。しかし彼は, ポンプ239を再起動し, バルブ28を開いた。除染用配管および排出用配管の加圧空気が, 4ℓの水の移送後, Nセルの一時貯槽を通してベントされていると工程側の作業員は誤認しており, また, PM areaの作業員が完全に手動バルブを閉じる以前に, バルブ28を開けてしまった可能性もある。

この結果, 加圧空気が, 排出用配管を通して蒸発缶に逆流し, 高濃度の硝酸ウラニル溶液を幾何学的安全形状でない蒸気離脱部に吹き上げ臨界に達した。この時, 液量は約40ℓ, 約8kgの ^{235}U が含まれていた。蒸気離脱部へ溶液が上昇した場合の核的暴走の可能性は予見されていたので, 溶液をオーバーフロー貯槽(安全形状)へ導く配管が設置されていた(図13参照)。そのため, 臨界状態は2~3分以内で終結した。溶液のサンプルに含まれる ^{99}Mo と ^{143}Ce

に対する放射化学的分析から、核分裂数は 6×10^{17} 個あるいは発生エネルギー 20 MWS (± 25%) と推定された。以上の Event Tree を図14に示した。

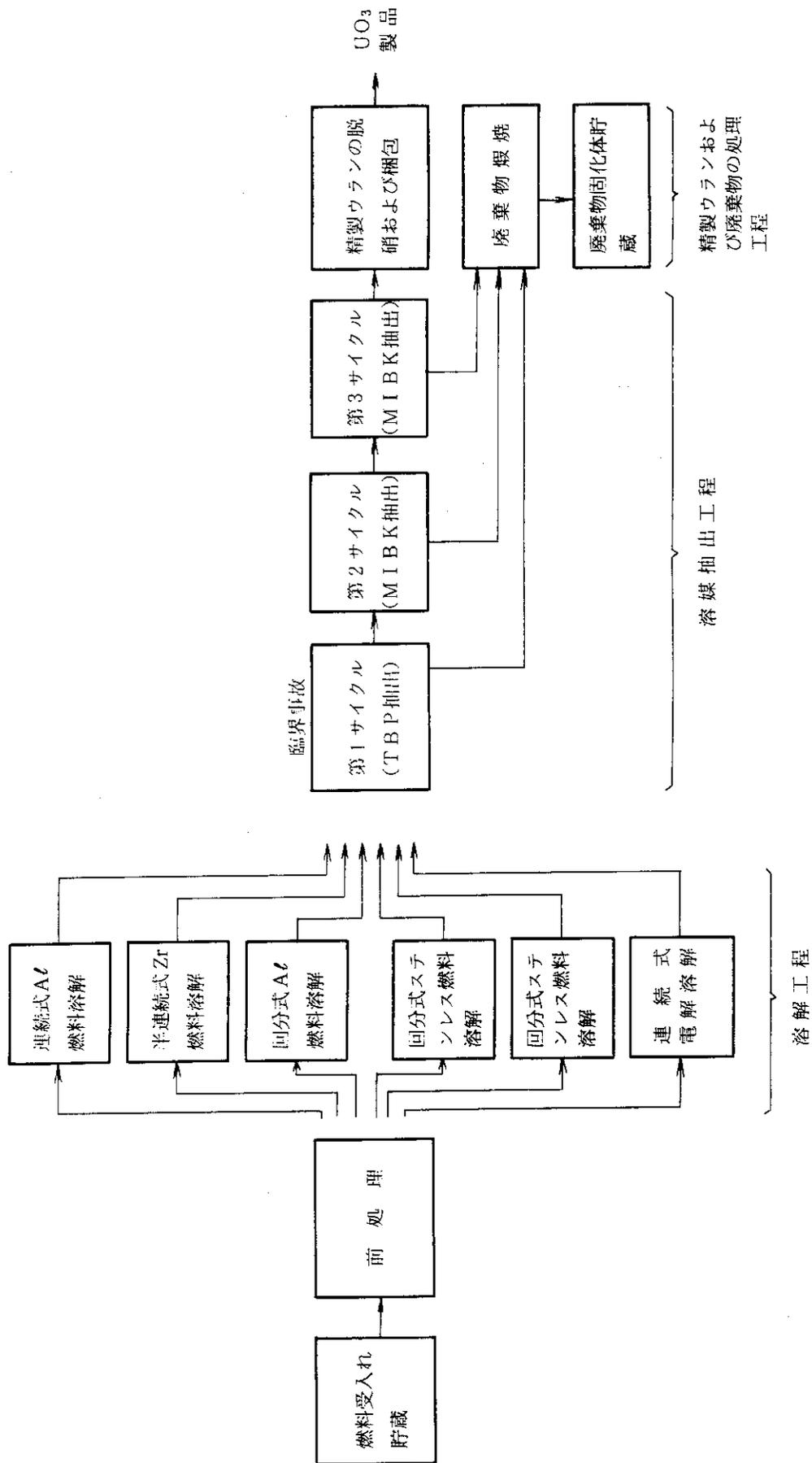


図11 ICPPの再処理 - 廃棄物処理プロセス

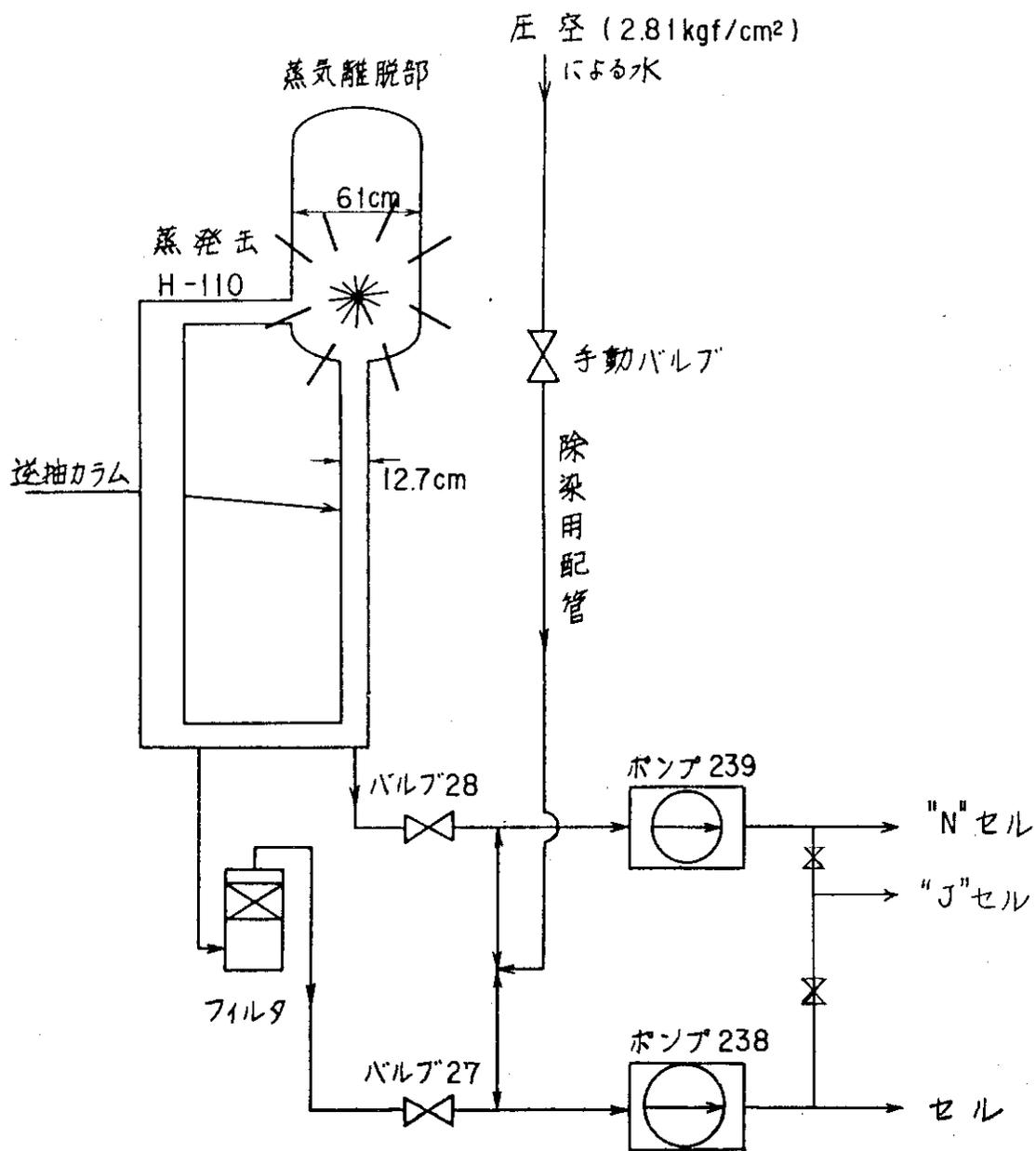


図12 ICPPの蒸発缶における臨界事故

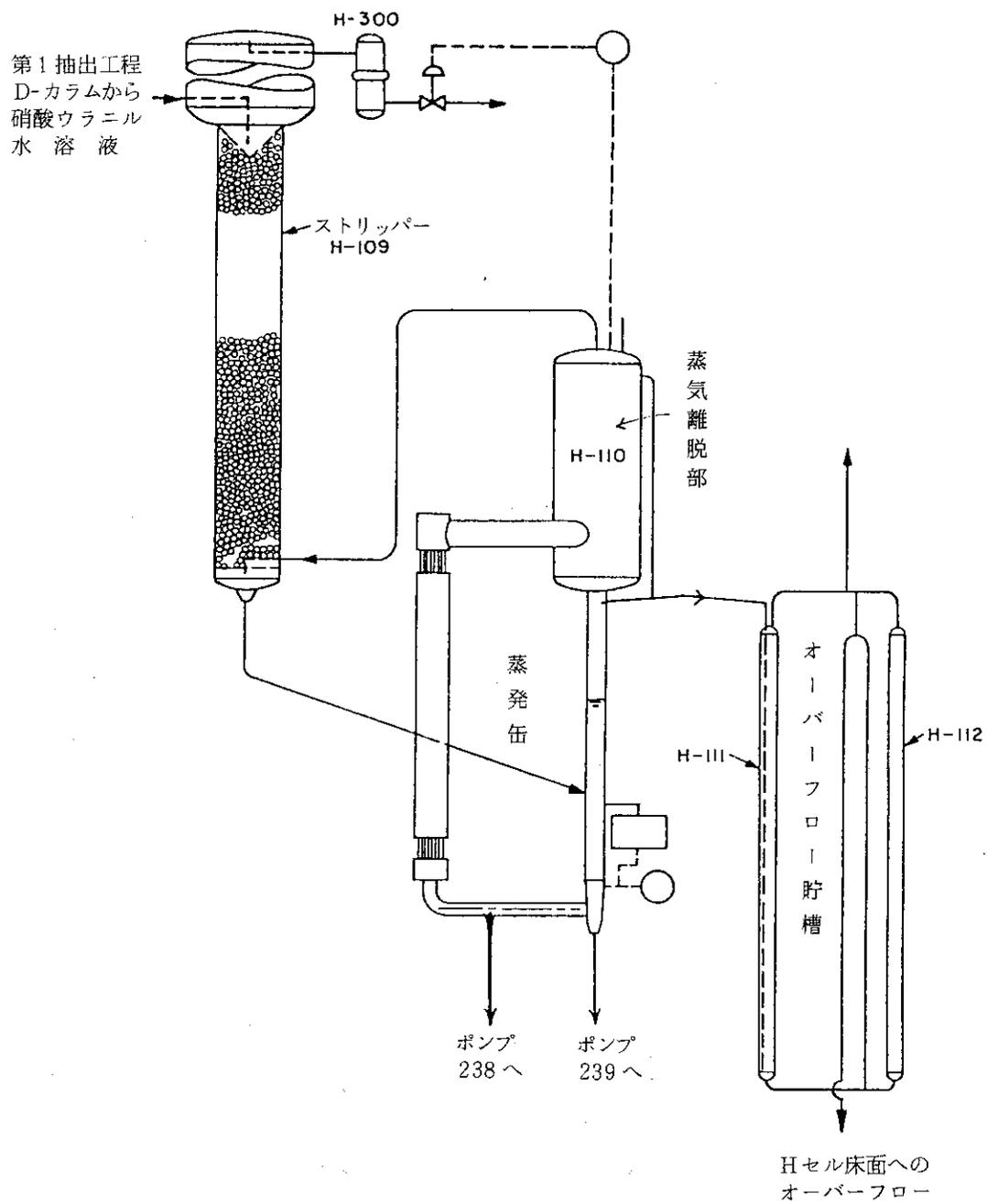


図13 蒸発缶に設置された濃縮液上昇防止のための配管とオーバーフロー貯槽

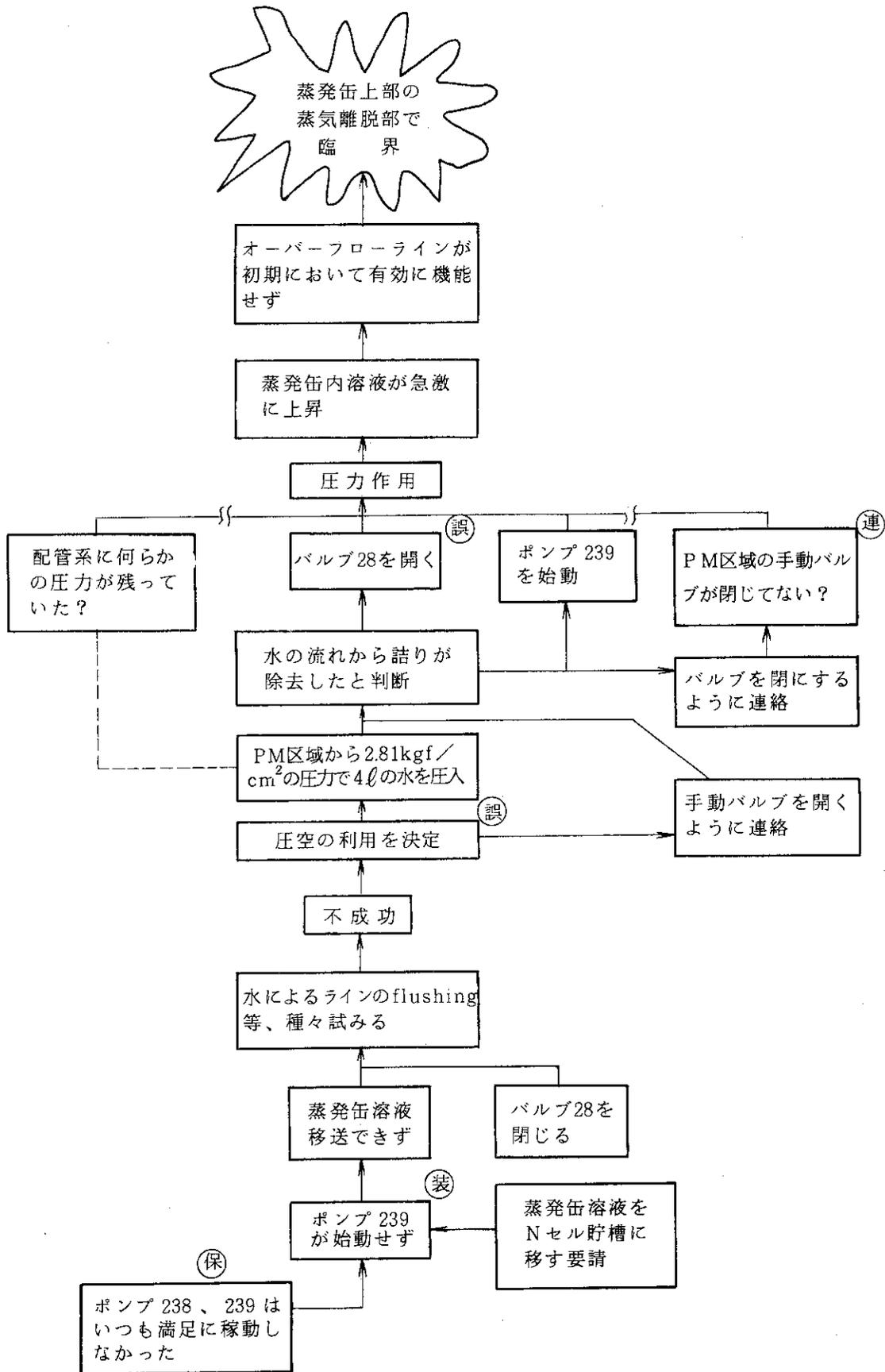


図14 ICPP蒸発缶における臨界事故のEvent Tree

2.5 Hanford Recuplex 事故 (2), 3), 4), 14)

GEのハンフォード工場(Hanford Atomic Products Operation)にあるRecuplex 施設はプルトニウム処理プラントなどから出る廃液から、プルトニウムを溶媒抽出によって回収する複雑な施設である。臨界事故は、通常運転ではない時に溶媒抽出工程で発生した。事故の原因は、抽出工程で得られた高濃度硝酸プルトニウム溶液が、床面のサンプルにオーバー・フローし、このサンプルから撤去を忘れられた配管を通して、制限付安全形状の移送タンクに流入したことである。この事故は37時間も継続し、全核分裂数は 8.2×10^{17} 個で、約1,200 Ciの希ガスと娘核種が、スタックから大気中に放出された。なお、作業員3人が、中性子線による被曝を受け、その線量はそれぞれ、110, 43, および19remであったが、身体的影響は現われなかった。事故に係わる機器の配列状況を図15に、またEvent Treeを図16に、それぞれ示す。

この事故には、3つの背景がある。

事故前の数週間に、Recuplexの抽出部が入っているフードの洗浄が行なわれた。この作業により、床にたまったプルトニウムを含む廃液の処理の必要が生じた。このため、多量の硝酸アルミニウム溶液と硝酸が床に流された。これらの溶液は、床面に設けられた幾何学的安全形状のサンプルにたまったので、分析したのち、移送タンクK-9に移した。この移送タンクK-9は、直径46cm、高さ41.5cm、容量69ℓの円筒容器で、側壁はパイレックス・ガラス、上部と底部は鋼板であった。臨界安全管理は、プルトニウム濃度を3g/ℓ未満に保つという分析管理を採用していた。溶液の移送は、サンプルからタンクK-9まで直径2.54cmの臨時に設けたプラスチック管を通して真空で吸入する方法が採られた。作業終了後もこの配管を撤去しなかったことが、臨界事故の誘因のひとつとなった。

次に、重要な点は、幾何学的安全形状の生成物受け槽J-1の構造の変更である。以前は、このJ-1からオーバーフローした溶液は、受け槽にとるようになっていたが、数年前にオーバーフローパイプが設けられ、オーバーフローした溶液は、直接フードの床に流すように変更された。この変更の理由は不明である。しかし、この変更は、運転グループには知らされておらず、操作手順書にも反映されていなかった。

最後に指摘しなければならない点は、廃溶媒の処理のための移送経路である。プルトニウムは、TBPの放射線分解で生成するDBPと強く結合するため、有機溶媒に蓄積する。この廃溶媒からのプルトニウムの回収は、バッチ処理によって行なう。このための溶媒処理槽K-2への廃溶媒の移送は、廃液受け槽L-2から前述の移送タンクK-9を經由して行なうが、このL-2とK-9の間には2系統の配管があった。バルブV-506を経て、K-9の上部に通じる配管と、バルブV-543、V-431を経て、K-9の下部に通じる配管で、前述のサンプルからの臨時のプラスチック管は、バルブV-944を経てこれに接続されている。操作手順書によれば、この移送は前者の配管で行うと規定されていたが、後者の配管による移送も禁止されてははず、移送を速く行うために、この配管を利用することもあった。

臨界事故が発生したとき、抽出工程では、装置の洗浄で発生した廃液からプルトニウムを抽出していた。一方、貯蔵タンクG-36から廃液受け槽L-2に移送された550ℓの廃溶媒(TBP-四塩化炭素)を分析したところ、プルトニウムの濃度が2.11g/ℓ(後で2.19g/ℓに訂正)

であったので、この廃溶媒の一部を洗浄しようとしていた。

最初の作業班は、廃液受け槽L-2から貯蔵タンクG-36へ、約130ℓの廃溶媒を送り返し、200ℓの廃溶媒を4回にわけて、移送タンクK-9（容量は69ℓ）に真空ポンプを使って移し、溶媒処理槽K-2に重力によって落した。この移送には、通常の経路ではないバルブV-543、V-431を通る配管が利用された。K-2で、廃溶媒は、スルファミン酸と硫酸第2鉄を含む水相で洗浄され、その後、水相は移送タンクK-9を通して、貯蔵タンクG-58にポンプで送られた。最初の50ℓの廃溶媒が、K-9に移された時、そこには水相はなかったという証言もあるが、明確ではない。

次の作業班は、残りの廃溶媒の洗浄をするための移送を、バルブV-506を通る通常の経路で行っているつもりだった。しかしこの時、前の作業班が移送に使用したバルブV-543、V-431が閉じられていなかったため、廃液受け槽L-2から移送タンクK-9への経路は、同時に2つ存在していた。この移送作業は、50～55ℓづつ3～4回行われたが、これが、3回か4回かは、はっきりしない。最後の25ℓをL-2からK-9に移し、続いて、溶媒処理槽K-2に落として、移送作業は完了した。報告によると、K-2には、有機相210ℓがあり、その上に水相10～30ℓ（0.118g Pu/ℓ）があったので、この水相を真空ポンプを使って、K-9に戻し始めた。このとき、バルブV-431は開いており、さらに、この数時間前に抽出工程の生成物受け槽から床にオーバーフローした硝酸プルトニウム溶液約48ℓ（濃度45g/ℓ）が、サンプにたまっていた。そして、撤去し忘れたプラスチック管の、上部のバルブV-944が、何らかの原因で開いたため、サンプの高濃度の硝酸プルトニウム溶液が、制限付安全形状の移送タンクK-9に臨界量を超えて吸い上げられ、系は臨界に達した。K-9には約1ℓの有機溶媒と約46ℓの水溶液があり、プルトニウムの総量は1,400～1,500gであった。臨界状態は37時間継続し、複合的現象によって停止した。タンクK-9から回収した試料などの放射化分析によると全核分裂数は 8.2×10^{17} で約20%は初期の30分間のバーストによる。

この事故にはいくつかの特徴がある。それらは、①臨界事象が約37時間も継続した、②汚染の拡大はなかった、③物損はなかった、④作業員の被曝線量は小さい、⑤修復作業には遠隔ロボットが使用された、⑥反応停止機構は、溶液の蒸発飛散、移行のみではない、⑦確実な事故原因は判明していない、等である。

停止機構で最も重要なものは、K-9槽下部の配管内に、事故後に発見されたプルトニウム（140～150g）を含んだ有機物の存在である。すなわち、事故の初期には約1ℓの有機溶媒（TBPとDBPを含む）が水相表面に浮いていたと想定される。溶液の沸騰によりプルトニウムは抽出され、また四塩化炭素も蒸発するので、有機物は比重が重くなって水相の底に沈んだ。この効果は、水分の蒸発よりも大きな反応度減少をもたらす事が確認されている。

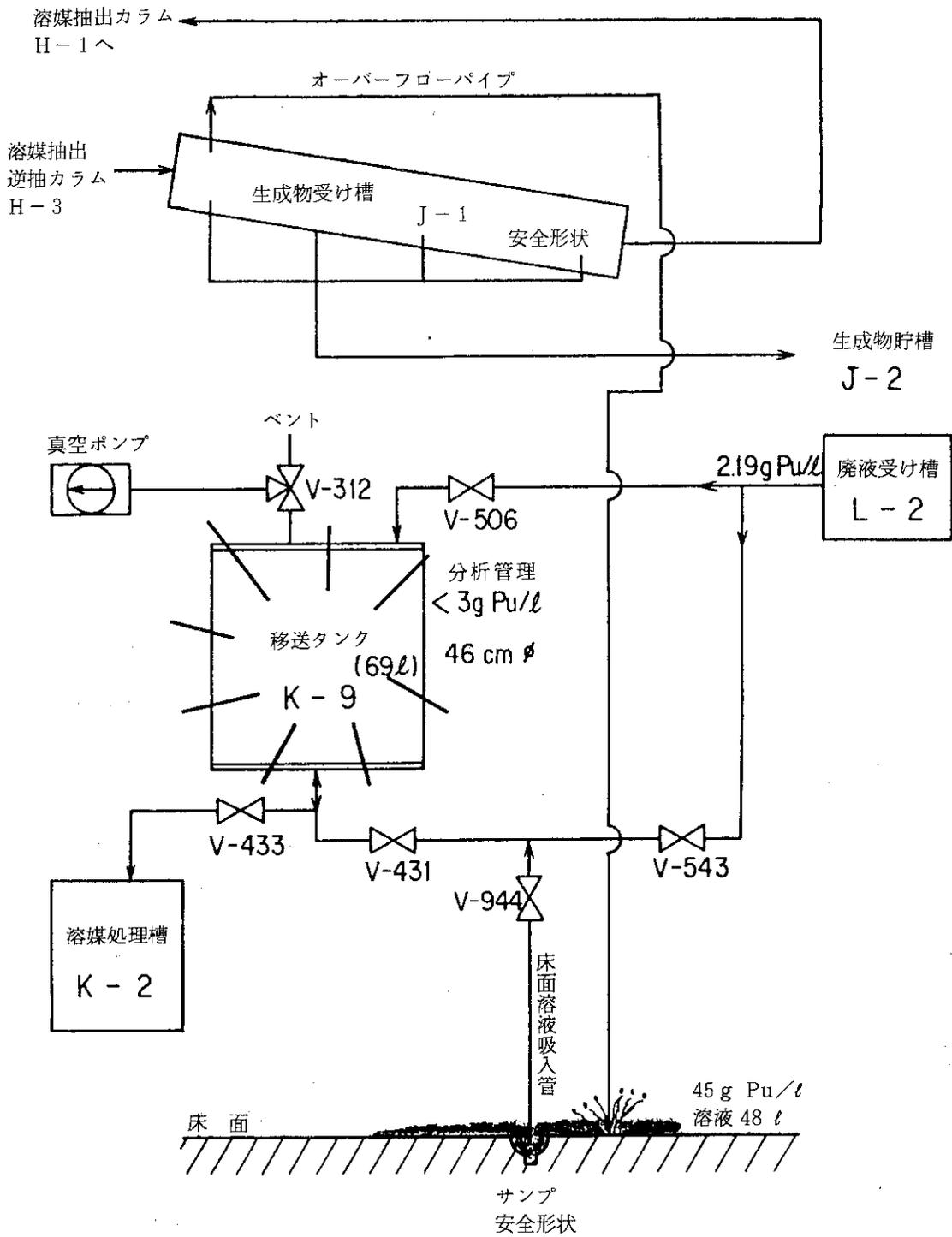


図15 Hanford, Recuplex プロセスにおける臨界事故

2.6 Wood River Junction 工場事故 2), 3), 4), 15)

米国ロード・アイランド州にある、Wood River Junction 核燃料回収工場は、廃液および未照射の燃料スクラップからの高濃縮ウランの回収と、回収ウランから固形の二酸化ウランの製造を目的とするプラントで、1964年3月に運転を開始したばかりであった。臨界事故が発生したのは、炭酸ナトリウム溶液調製タンクで、このタンクは、抽出工程の生成液を洗浄して微量のウランを含んだTCE (trichloroethane) を精製するためにも利用されることがあった。この調製タンクに高濃度硝酸ウラニル溶液を、TCEと誤認して注入したため、臨界に達した。この事故で、作業員1名が放射線障害で死亡した。被曝量は、骨盤部に46,000 rad、頭部に14,000 radと評価されている。さらに、事故時の回復処置を誤ったため、再び臨界状態となり、工場長と直長が有意の被曝を受けた。全核分裂数は、 1.2×10^{17} 個と推定されている。事故時の状況を図17に、Event Treeを図18に示す。

この工場の抽出工程は、次の通りである。

- 1) ケロシンで希釈したTBP溶媒に、硝酸ウラニルを抽出する。
- 2) 次にウランを希硝酸水溶液中に逆抽出する。
- 3) 硝酸ウラニル水溶液中に混入した少量の抽出溶媒を取り除くため溶液をTCEで洗浄する。
- 4) TCEは、炭酸ナトリウムで洗浄して再使用する。

抽出溶媒を含んだTCEは、直径12.7 cm、高さ122 cm、容量11 ℓのプラスチックビンに貯蔵することになっていた。逆抽出はカラムで行なわれていたが、当時、抽出効率が悪く、TCEに通常以上のウランが入ってくるので、TCEの洗浄を計画よりも頻繁に行なう必要があった。この洗浄操作の自動化は準備中であったため、作業員の人力によっていた。

事故の1週間前、操作員の1人の提案で、攪拌機のついている炭酸ナトリウム調製タンクを、TCE中のウラン濃度が800ppm以下という条件で、TCEの洗浄に使用することを直長は許可した。しかし、これは正式な承認を受けていなかった。

事故の前日、ウラン溶液濃縮用蒸発缶の溶液注入口が硝酸ウラニルの結晶でつまったため、これを蒸気で洗う作業をした。この時回収した、硝酸ウラニル溶液とスラリを、数本の11 ℓプラスチックビンに保管した。このビンには、“Bottle Y, Concentrated Liquor from the Evaporator”という標識が貼られたが、このビンは、TCEを貯蔵するものと同じだった。

事故当日、作業員は、直長の同意を得て、炭酸ナトリウム調製タンクで、TCEの洗浄をしようとした。このタンクに、11 ℓプラスチックビンの1つを注いだとき、系は臨界に達した。ビンには上記の標識が貼ってあったが、作業員はこれをTCEだと誤認した。

炭酸ナトリウム調製タンクは、厚さ3.18 mmのステンレス鋼で作られ、直径45.7 cm、深さ66 cmで、底部は皿状で安全形状にはなっていない。タンクの中には、約41 ℓの0.54 モル炭酸ナトリウム溶液が入っており、攪拌機を駆動後、2.6 kgの ^{235}U を含む硝酸ウラニル溶液約10 ℓを注入した時、臨界に達した。そのため、溶液量の約1/5が噴き出し、また、攪拌機によって、ウランの分散、空気泡や渦の発生が起こり、臨界未満状態になったと推定される。このときの核分裂数は 1×10^{17} 個であった。

事故後、工場長と直長は、事故の起きたタンク内の溶液を、ホースを使って、幾何学的安全形状の容器に移しかえようとして攪拌機を停止した。この結果、溶液内の空気泡や渦が消滅して、系は再び臨界に達した。これは、工場長と直長が、 γ 線による約50 radの被曝のほか、速中性子線による被曝1～5 radを受けていることから推定された。この2回目の臨界は、沈澱物の生成により停止し、 2×10^{16} 個の核分裂が生じたと思われる。したがって、全核分裂数は 1.2×10^{17} 個である。

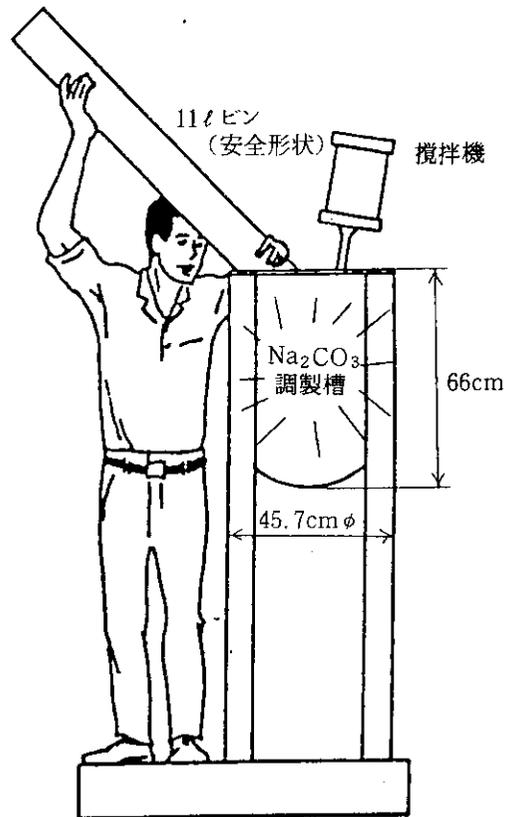


図17 Wood River Junction における臨界事故

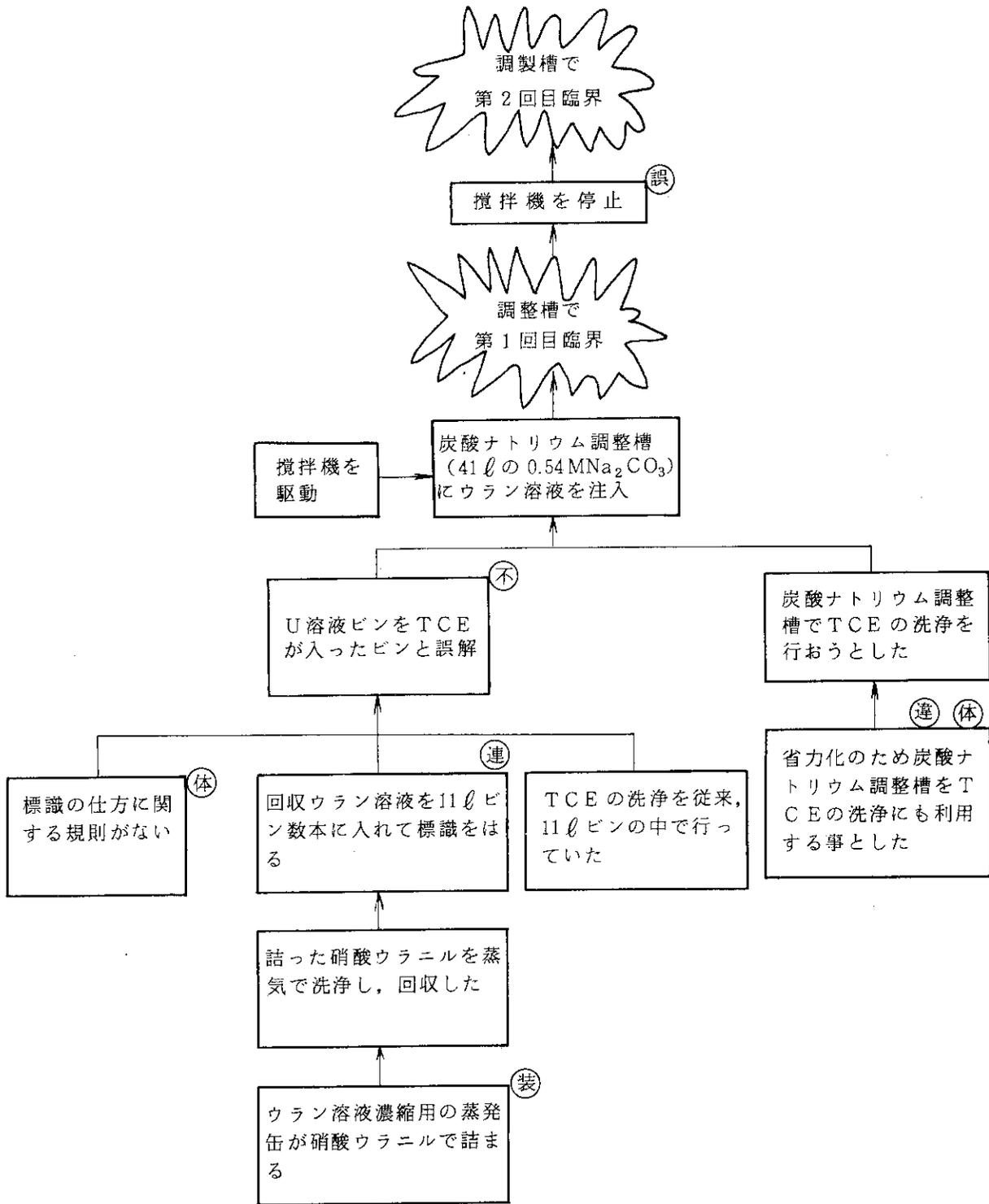


図18 Wood River Junctionにおける臨界事故のEvent Tree

2.7 Windscale, Plutonium Recovery Plant 事故^{3), 4), 16)}

この事故は、英国における唯一の臨界事故であるが、負傷者、損害等はなかった。英国ウィンズケールのプルトニウム回収工場 (PRP) は、種々のプルトニウム含有物からプルトニウムを回収するための施設で、1954年に完成した。臨界事故は、抽出工程の溶液調整槽とパルスカラムへの計量貯槽の間にある安全形状でない移送トラップで発生した。この移送トラップにTBP-ケロシン溶液が蓄積し、これが、給液中のプルトニウムを臨界量以上に抽出したのが原因である。核分裂数は 1×10^{15} 個と推定され、作業員2人が2 rad以下の被曝を受けた。PRPの建家を図19に、処理フローを図20に示す。

PRPの抽出工程は、次の通りである。

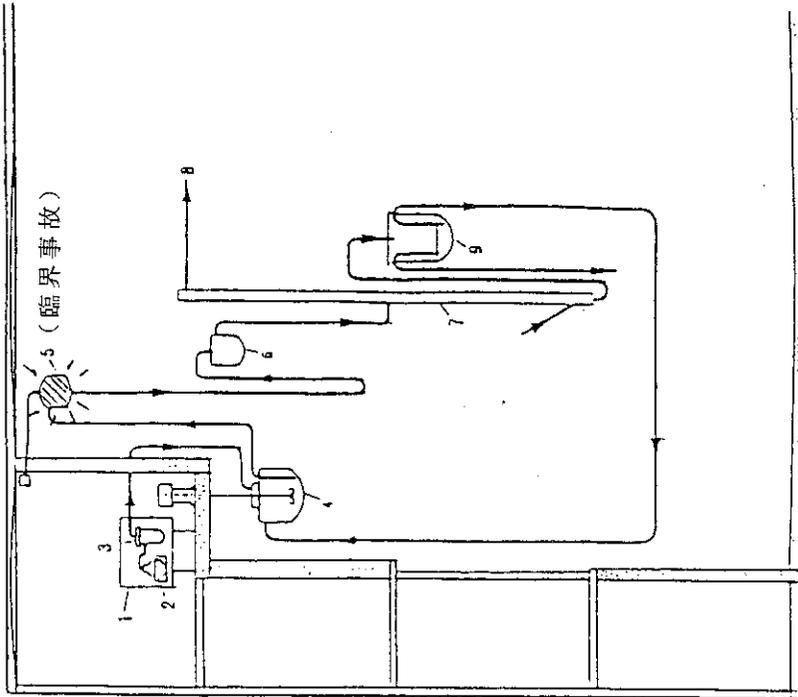
- (1) プルトニウム含有物を、プルトニウム溶解槽で溶解後、溶解液を汙過器を通して溶液調整槽に送る。
- (2) 溶液調整槽で、溶解液に適当な試薬を加えて調整し、負圧によって移送トラップに一時送る。ここから計量貯槽に送られ、パルスカラムでプルトニウムを抽出する。
- (3) 抽出液は次の工程に送られる。抽出残液は廃液槽に入るが、プルトニウムの回収率が悪い時には、溶液調整槽にリサイクルされる。

臨界安全管理は、パルスカラムについては幾何学的安全形状を、その他については質量管理あるいは濃度管理によって行われている。

臨界事故は、この移送トラップで起こった。トラップは、溶液中の比重の小さい相が中に閉じ込められてしまう構造となっていた。このため、抽出残液のリサイクル運転時に、残液に少量含まれるTBP-ケロシン溶液 (比重0.96) が、トラップに蓄積していったと考えられる。この有機相はプルトニウムを抽出するので、トラップ内のプルトニウム濃度は徐々に高くなっていき、臨界に達した。

事故時、トラップ (直径61cm, 高さ68.6cm) には55g/ℓのプルトニウムを含む有機相40ℓと、5~6g/ℓのプルトニウムを含む硝酸プルトニウム溶液 (比重~1.3) 50ℓが入っていた。トラップに水溶液が注入される時、有機相中央部には注入水溶液の“hole”があるので、系は未臨界であるが、注入停止で水相と有機相が混合分散し一時的に臨界となった。しかし、分散相が消滅すると、系は再び未臨界となった (図21参照)。この間、臨界状態は、数秒間継続し、核分裂数は 1×10^{15} であったと推定された。

以上のEvent Treeを図22に示した。



- 1: フルトニウム溶解G. B.
 2: ガラス製溶解槽 6: 計量貯槽
 3: 溶解濾過器 7: パルスカラム
 4: 調整槽 8: 次工程カラムへの溶媒出口
 5: 移送トラップ 9: 廃液槽

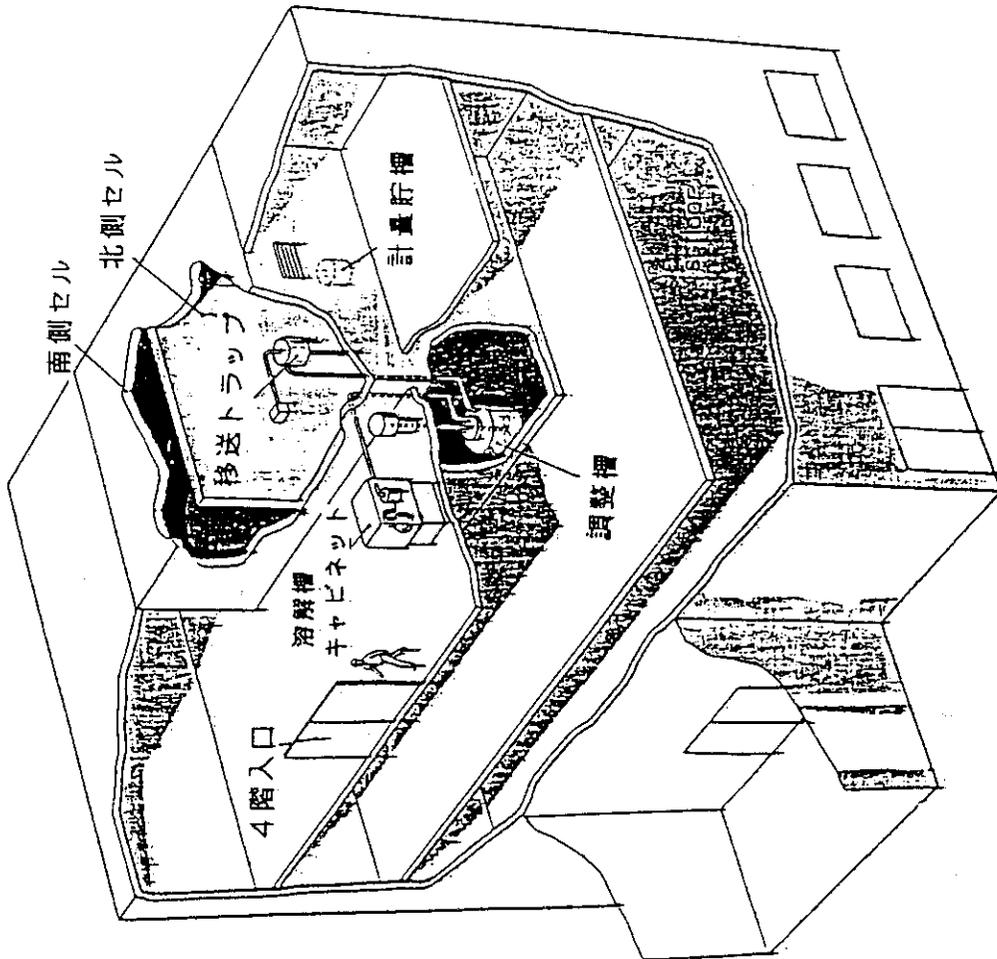


図19 PRRPの建家概略図

図20 PRRPの処理フロー

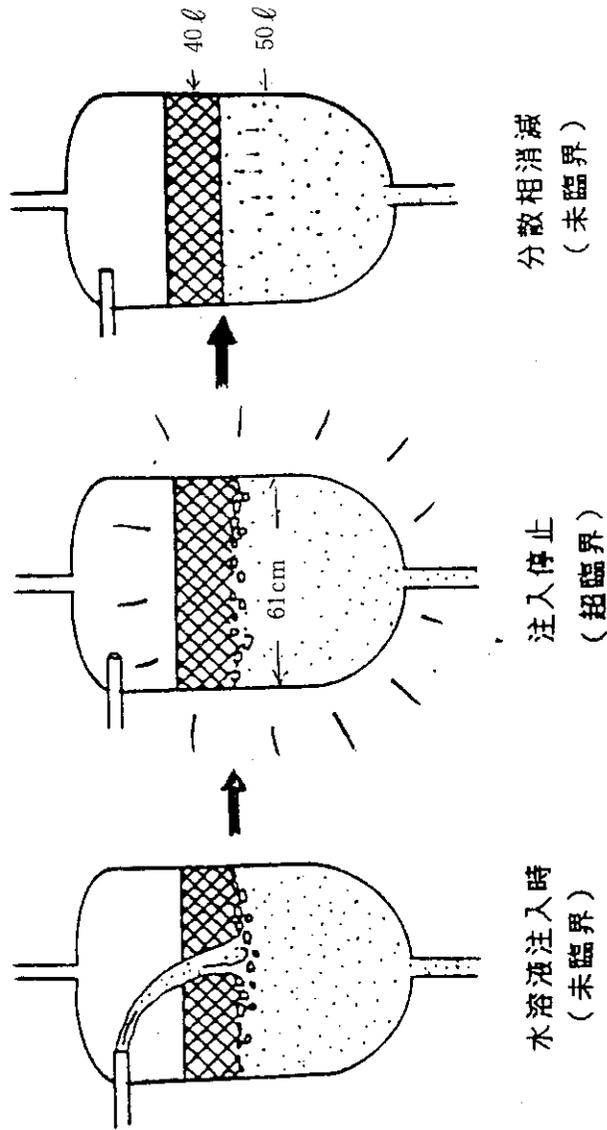


図21 移送トラップ内で水相、有機相、分散相により臨界が生じた概念

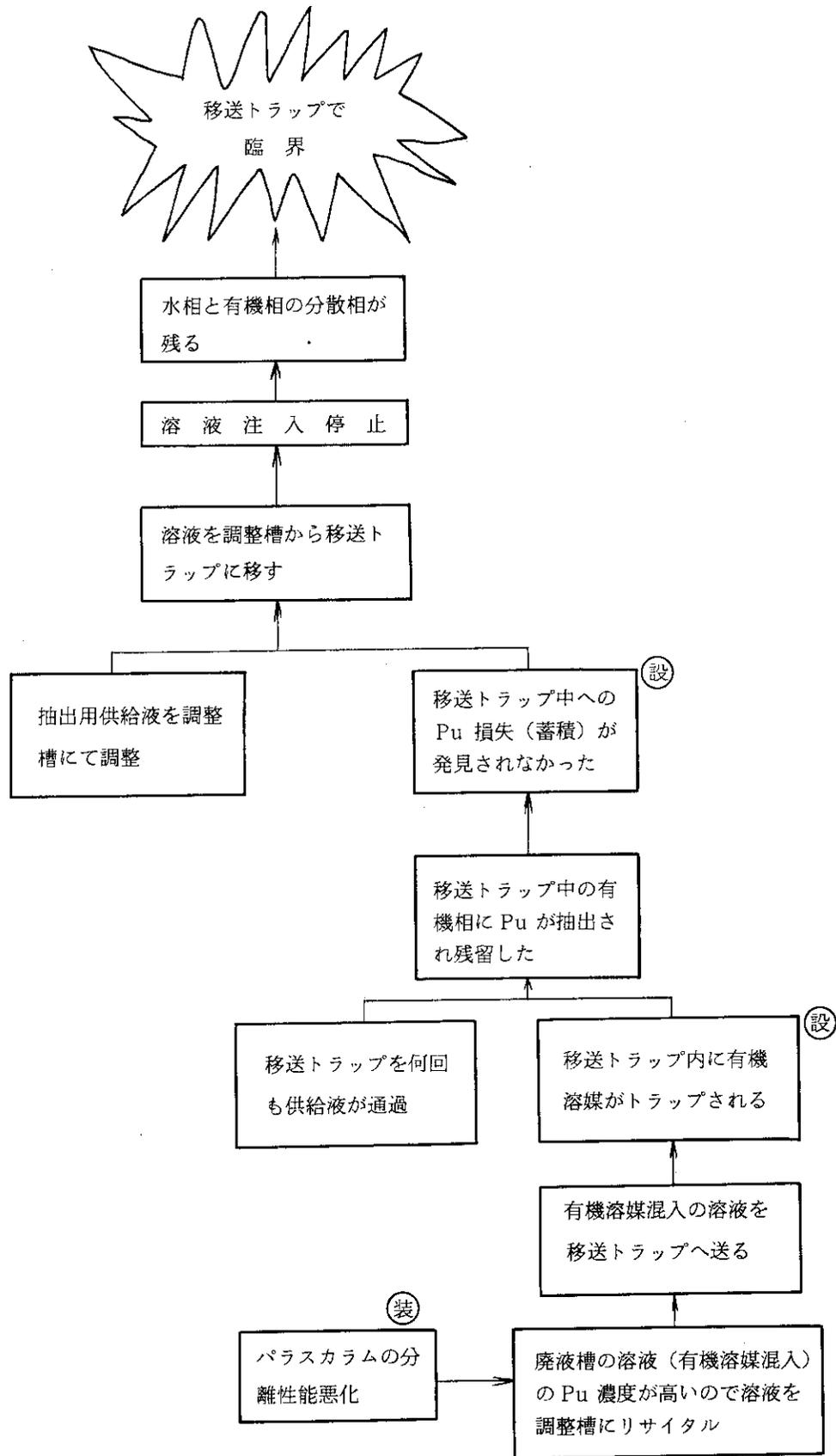


図22 WindscaleのP/RPにおける臨界事故のEvent Tree

2.8 I C P P抽出カラム事故^{4), 17)}

1959年、1961年と2回の臨界事故を起こしたI C P Pは、1978年10月17日に、抽出工程第1サイクルの洗浄カラムで3回目の臨界事故を起した。事故の直接の原因は、洗浄カラム中の硝酸アルミニウムの濃度が減少したため、有機相のウランが水相に逆抽出され、さらにこの水相が、抽出カラムの給液として還流された結果、洗浄カラムの水相のウラン濃度が臨界量を超えたことである。核分裂数は、 2.74×10^{18} 個であったが、重遮蔽かつ適切な換気を有するセル内での事故であったため、被曝、汚染等の被害はなかった。工程の概略を図23に、Event Treeを図24に示す。

第1サイクルでは、処理する燃料の濃縮度によって、T B Pの濃度を変えている。事故時の運転は、廃棄物および規格外ウラン製品からのウラン回収（濃縮度82%）が目的で、抽出剤には5% T B P-ケロシンを用いていた。この工程は、1 A、1 B、1 Cの3本のパルスカラムと1 Dのpackedカラムからなり（表3参照）、それぞれ、抽出、洗浄、逆抽出、ケロシンによる洗浄を行う。1 Bカラムの洗浄廃液（1 B R）は、ウランを少量含む（ $0.32 \text{g}/\ell$ ）ため、1 Aカラムの給液（1 A F）にリサイクルされる。1 Aカラムは、給液（1 A F）のウラン濃度を $5 \text{g}/\ell$ 以下に保つこととカラム上部の有機相厚さを20cm以下にすることで、臨界安全管理されている。5% T B Pの飽和ウラン濃度は $21.7 \text{g}/\ell$ で、カラム上部の有機相厚さ20cmの臨界濃度 $26 \text{gU}/\ell$ より小さく、安全とされた。1 Bカラムの臨界安全管理は、塔底部の界面制御と、洗浄液（1 B S）に含まれる硝酸アルミニウムの濃度を0.75 Mに保ちウランの逆抽出を妨げることによっていた。1 B Sが正常ならば、1 Aカラムの異常で有機相のウラン濃度が大きくなっても、1 Bカラムで水相に逆抽出されるウランの量はそれほど大きくならない（1 A P； $20 \text{gU}/\ell$ のとき、1 B R； $\sim 6 \text{gU}/\ell$ ）。

臨界事故は、バルブの漏洩から洗浄液調整槽に水が流入し洗浄液（1 B S）中の硝酸アルミニウムの濃度が低下したため、ウランが水相へ臨界濃度以上に逆抽出された結果、洗浄カラム塔底部で発生した。事故後の解析によると、硝酸アルミニウムの濃度低下は、事故の1ヶ月以前から始まっていた（表4）。しかし、1 B S給液槽の比重計が故障していたため、この異常は検出されなかった。また、給液槽で洗浄液（1 B S）の分析は行われていたが、これはサンプリングしてから20日後になって結果が得られるという体制で、やはり異常の検出には役立たなかった。操作手順書によれば、1 B S給液槽の比重計が故障していても、パルスカラムを運転してもよいことになっていた。

事故の起こった10月17日の1 B S液の分析は事故後に行われたが、その中の硝酸アルミニウム濃度は0.084 Mで、規定の濃度の約1/10に減少していた。図25から、この時の水素イオン濃度を0 Mとすれば、硝酸アルミニウムの濃度の減少によって、ウランの分配化（有機相のウラン濃度/水相のウラン濃度）が約5から0.01以下に激減することがわかる。1 Bカラムにおいて、ウランは水相に逆抽出され、1 B R流によって1 Aカラムにリサイクルされた。この結果、1 Aカラムと1 Bカラムにウランが蓄積されていった。平常時および事故時の1 Bカラムのウラン濃度分布を図26、図27に示す。

10月17日午後8時45分、1 Bカラム底部のウラン濃度が遅発臨界（ 20°C で $22.2 \text{gU}/\ell$ ）に

達したことが、2基の定常空気モニタの記録から明らかとなった。臨界到達位置は、FP(^{141}Ce , ^{143}Ce)の測定とカラム壁放射能測定から求められた。この時、系は、温度上昇による負の反応度効果と、熱拡散によるカラム中央部の高濃度ウランの底部への流入および水相へ逆抽出されるウラン量の増加の正の効果の間に、均衡が成立していたと推定される。

8時40分、カラム機器の異常に気がついた運転員は、カラム圧を下げるためカラム底部の補助回路(jackleg)を開いて、水相を排出した。このため、カラム中央部のウラン濃度の高い水相が底部に流入し、即発臨界に達した。この即発臨界は、温度上昇、局部沸騰、放射線分解ガス(気泡)発生等により一時的に停止した。その後、引き続いた水相のカラムからの流出とパルサーの運転によって水相のウラン濃度が減少したことと、補助回路の流れを止めて制御器を全圧状態にセットしたことによって液温が上昇したことにより、系は未臨界となった。表5にFP生成量から計算した各カラム内における核分裂数を示した。全核分裂数は、 2.74×10^{18} 個である。

表3 ICPP 第1抽出サイクル カラムの大きさ

カラム	実効長さ(cm)	内径(cm)
1 A	701	25.4
1 B	305	20.0
1 C	427	22.9
1 D	320	12.7

表4 1978年9月15日より同10月18日までの期間における
1Bカラムの1BS中硝酸アルミニウム濃度の変化
(この期間中、工程は断続的に運転された)

月 日	硝酸アルミニウムの濃度(M)	
	計 算 値	分 析 値
9月15日		0.7
16日	0.70	
18日	0.66	
19日	0.62	
23日	0.56	
26日	0.50	
27日	0.43	0.47*
10月 1日	0.31	
4日	0.25	
14日	0.10	
16日	0.09	
17日	0.08	
18日		0.084*

* 事故後に分析された。

表5 抽出カラム内における核分裂数の分析結果

容 器	核分裂数(測定値)*	割 合 (%)
1Bカラム 有機相	3×10^{16}	1
1Bカラム 水相	2.66×10^{18}	97
1Cカラム 有機相	1×10^{15}	0.04
1Cカラム 水相	5.7×10^{16}	2.08
1Aカラム	2.4×10^{16}	0.87
1Dカラム	1×10^{15}	0.04
	2.74×10^{18}	100

* ^{143}Ce , ^{141}Ce の測定から求めた核分裂数の平均値

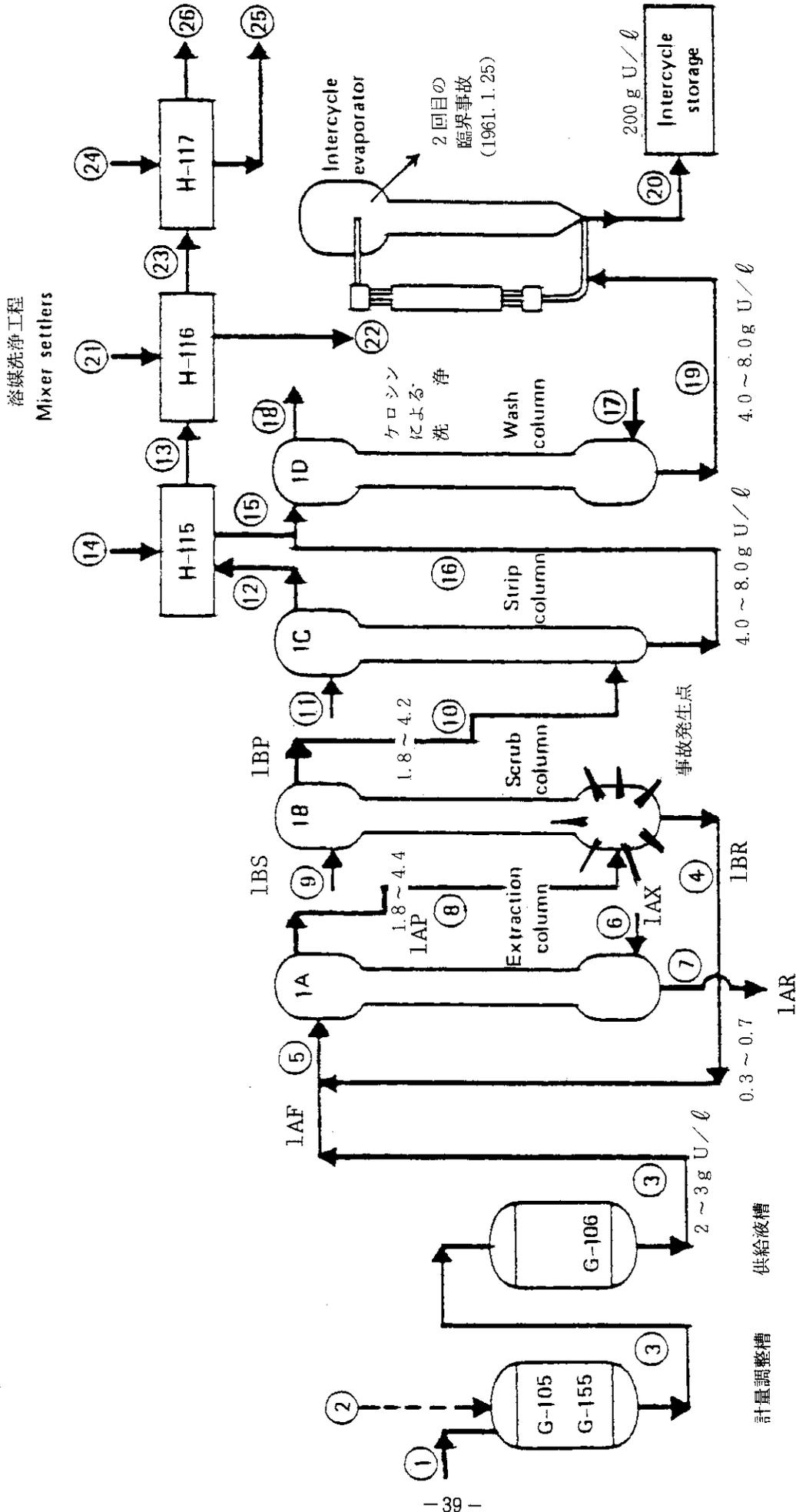


図23 ICPP抽出第1サイクルの工程フロー

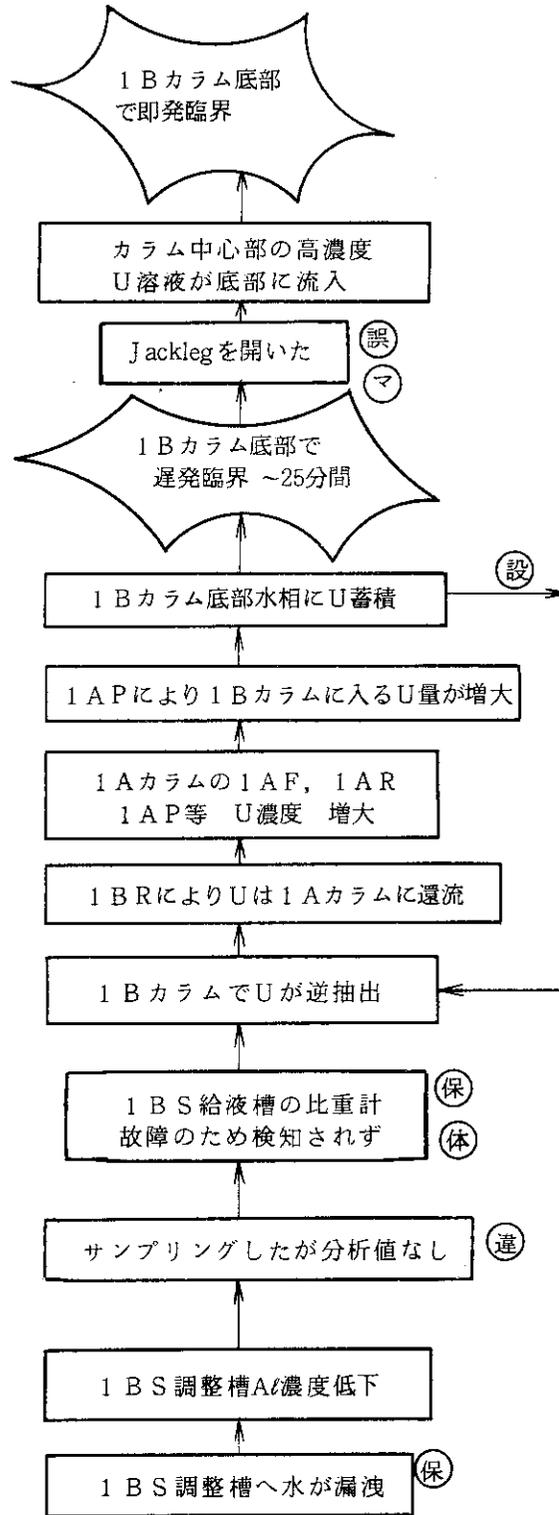


図24 ICPP第1抽出工程における臨界事故の Event Tree

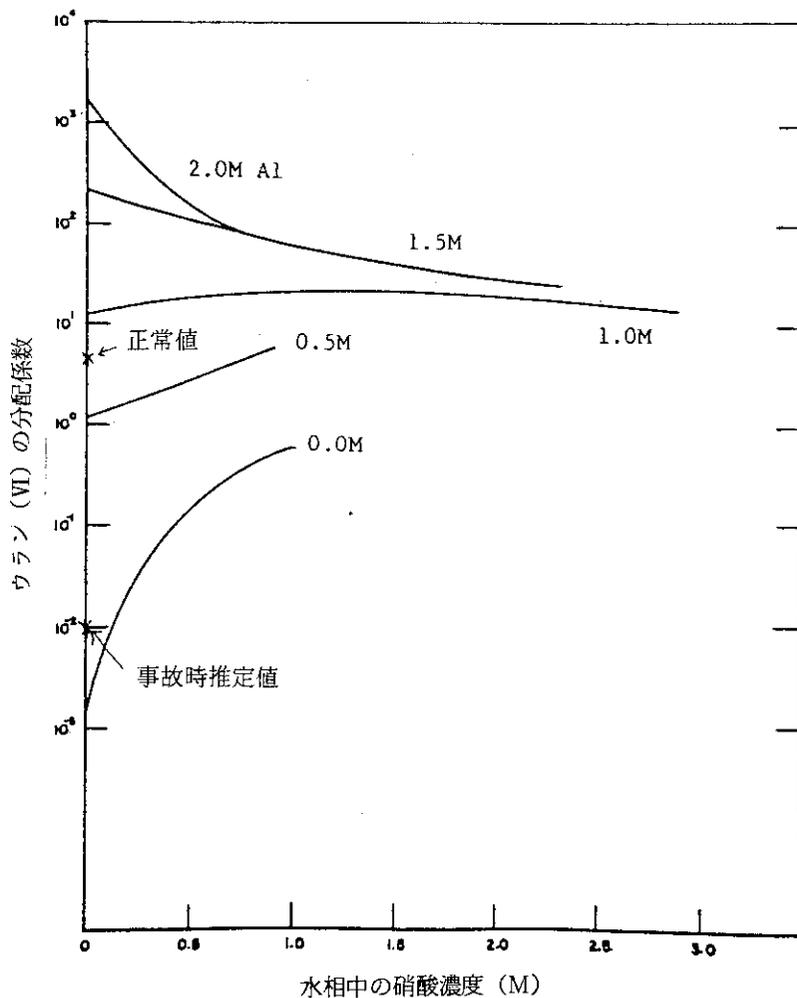


図25 ウラン(VI)分配比 $UO_2^{2+}-HNO_3-Al(NO_3)_3-5\%TBP-Amsco123$

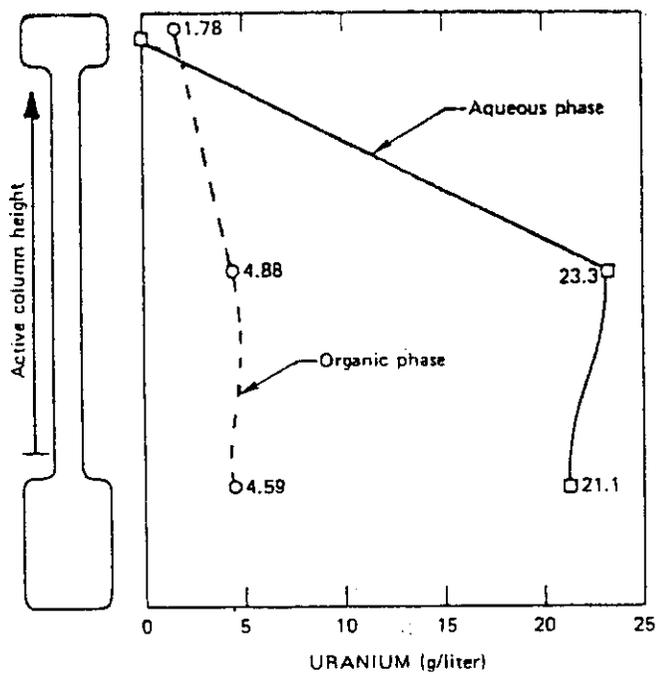
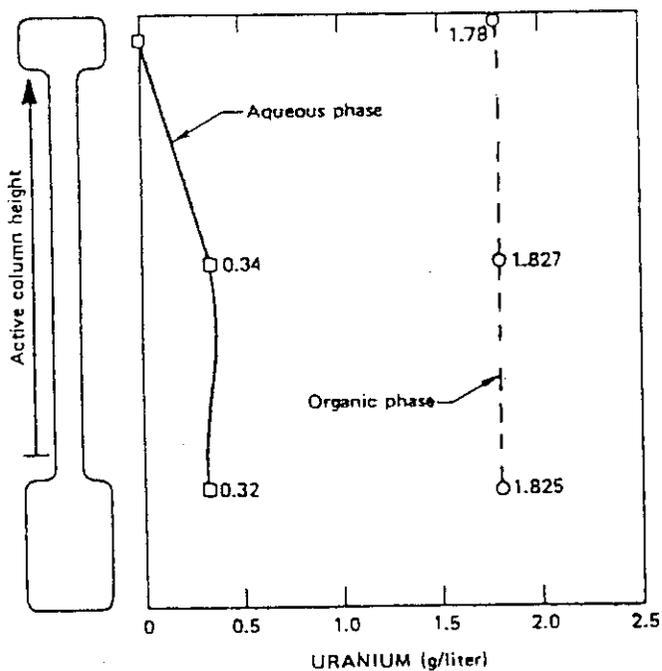


図26 平常運転時の1Bカラム内ウラン濃度分布

図27 1BS中 $Al(NO_3)_3$ 濃度減少時(10月17日)の1Bカラム内ウラン濃度分布

3. 臨界事故原因の考察

前章で作成した Event Tree の中には、著者らが事故の公開レポートから読み取れる範囲内で、事故の素因と考えられる事項マーク（表2を参照）が記入してある。この中には当時の事情が正確に理解されていなければ正しい判定が下せないものがいくつもある。例えば、違反と誤判断と不注意の間の区別や、その三者とマニュアルの欠陥（㊟）の区別である。これらは手順書の内容を十分検討する事、あるいは当時の作業員が受けていた訓練内容を知った上で判定すべきと考えられる。その様な意味で、ある程度の制約の中でこれらの判断をした事を記しておく。表6は以上の結果をまとめたもので、8件全体の総欠陥数は50となった。1件当りの平均欠陥数は約6であり、“多くの欠陥が組み合わさって大事故となる。”という指摘はここでも生きている。現場作業員の過失、欠陥に基づくと考えられる4項目の合計は44%、設計および装置の欠陥によるものは30%、管理体制や手順書の欠陥によるものは10%となっている。比較のため、米国DOE関連核燃料施設における臨界安全規則抵触事故データ（421個の事故原因）の原因分類を表7に¹⁸⁾、また米国民間再処理施設における放射線事故（460件）の事故原因区分を表8に示した¹⁹⁾。いずれも作業員の過失等が事故原因の約半数を占める。また、表6、7、8における装置故障の値を比較すると、装置故障によって引起される事故の中では、臨界事故は他の事故より少ないという事が云える。これは、臨界安全関連機器のレベルが低くないとも解されるが、他方、全ての臨界事故に共通して作業員の過失のみで生じた事故がない事も事実である（表6参照）。人的過失をゼロにする事が不可能であるとするなら、装置の設計・製作等におけるレベル向上は絶えず要求される事といえよう。

表6 8件の臨界事故における主な原因(欠陥)の統計

事故名 \ 原因	連絡	違反	誤判断	不注意	保守	設計	装置	体制	マニュアル	合計
Y-12プラント事故	2		1		3	1		1		8
LASL溶媒処理槽"		2				2				4
ICPP廃液槽"	2					3	1			6
ICPP蒸発缶"	1		2		1		1			5
Hanford, Recuplex"	2	1		3	2	2				0
W. R. Junction"	1	1	1	1			1	2		7
Windscale"						2	1			3
ICPP抽出カラム"		1	1		2	1		1	1	7
計	8(16%)	5(10)	5(10)	4(8)	8(16)	11(22)	4(8)	4(8)	1(2)	50

表7 事故原因の区分(DOE施設における臨界安全規則違反データより)

作業員の不注意と性急な行動	56%
訓練不足または規準の誤解	14
安全規準の不備	15
設備の誤作動または設計/製作過失	15

表8 事故原因の区分（米国民間再処理施設における incident）

作 業 員	作業員の過失，人間的過失， 保守のミス，故意の行為， 不適切な操作，不注意， 装置の誤使用 装置の指定目的以外への使用	50%
装置，プラント	装置の破損，爆発， 火災，欠陥装置， 動力欠陥	31%
設 計 ， 工 学	設計ミス，設置ミス， 適切な操作の無理解， 工程設計の欠陥	9%
管 理	製作ミス， 管理上の過失， 適切なプロセスを無視， 装置の不適切な保守， 不十分な装置を使用	5%
そ の 他		5%

4. 過渡臨界の起因事象と収束原因

8件の事故に関して、過渡臨界（核的暴走）に至る起因事象とそれを収束させた原因を表9に示した。前者では、溶液の移動が半数を占め、その他に抽出溶媒に係わる物質移動（抽出）によるものと攪拌による微妙な効果がある。他方後者では、それぞれが異なった現象により収束している。

これらの事象から、プロセス臨界安全性研究課題として以下の項目があげられる。

- ◎ 抽出工程における核燃料の挙動を制御する方法 — 特にreflux現象、工程異常時における核物質の蓄積現象の検討。
- ◎ 工程異常時の回復操作の検討。
- ◎ 溶媒劣化、酸の分解等によるプルトニウムの沈殿生成現象の研究。
- ◎ 第三相形成、エマルジョン、放射線分解等の現象の研究。
- ◎ モニター等を利用した適切な工程管理システムによる臨界安全管理法の開発。

以上の課題の他に、中性子毒物採用等の新方式に伴なう現象も今後のプロセス臨界安全性研究課題となろう。

表9 臨界事故の核的暴走の起因事象と収束原因

事故名	起因事象	収束原因
Y-12プラント	溶液の移動	水による希釈
L A S L	攪拌による液相厚み増大	有機相の分散によるPu濃度減少
ICPP廃液槽	溶液の移動	溶液の蒸発飛散
ICPP蒸発缶	溶液の移動	溶液の移動
Recuplex	溶液の移動	有機相に抽出濃縮沈降
W. R. Junctn.	溶液の注入	溶液沸騰飛散、攪拌によるボイド生成
	攪拌停止によるボイド消滅	沈殿物生成
Windscale	有機相-水相分散	分散相の消滅
ICPP抽出塔	抽出工程リサイクル蓄積	ウラン溶液排出、温度上昇
	高濃度溶液移動	ボイド形成、攪拌

5. 結 び

第2章で述べた過去の臨界事故の中には、物的および人的被害がほとんど無いケースがあり、これらは十分な遮蔽と閉じ込め機能を有するセルの中で発生した事故である。このような場合にも、しかしながら、施設の運転停止と安全性に対する信頼性の低下といった、大きなマイナスは避けられず、臨界事故に対する不断の注意と対策は、今後とも強調されなければならない。

最近臨界安全設計の信頼性は高くなっている。特に平常時、核物質が流れる工程の機器に関しては、臨界安全設計は最も精力的に実施される。次に注意すべき部分は、通常は臨界質量以上の核物質が集積する可能性が極めて小さい工程の臨界安全管理法である。最近発表されたロスアラモス国立研究所(LANL)の廃液貯槽(8000ℓ)におけるPuの沈澱蓄積²⁰⁾のように、安全形状寸法を採用できない大型廃液槽などは、この例である。上記事件では、 γ 線と中性子線のサーベイにより蓄積が発見されたが、モニター設置あるいは、定期サーベイは重要な管理手段である。

臨界事故の安全対策は、事故防止と事故時対策によって行われる。前者は、臨界安全設計の改良(信頼性の高い臨界実験データに基づく核計算コードの改良、モニタ等を駆使した工程管理システムの確立)、理解度の高い作業員の養成ならびに労働衛生環境の改善等が必要であり、後者は、放射線遮蔽と放射性物質の閉じ込め能力の向上、臨界警報器の改良ならびに避難法の確立等が重要である。

臨界安全性研究に携わる立場からは、実際に詳細な設計内容がわかる施設を対称に、Fault Tree Analysisを含む臨界安全設計の評価を行う必要性を感じている。

第3章の考察は極めて初歩的なものである。多くの方々の御批判、御意見をいただきたい。

引用文献

- 1) Stratton W. R. : A Review of Criticality Accidents, Progr. Nucl. Energy, Series IV, Technology, Engineering and Safety V. 3, Pergamon Press, London, p. 163~205 (1960).
- 2) Stratton W. R. : A Review of Criticality Accidents, LA-3611, Los Alamos Scientific Laboratory (1967).
- 3) Seale R. L. : Consequence of Criticality Accidents, Proc. UNM Short Course on Nuclear Criticality Safety, May 7~11, 1973, p. 16~19, TID-26286, U. S. Atomic Energy Commission (1974).
- 4) Knief R. : Criticality Safety, Nuclear - Fuel - Cycle Education, Module 6, p. 21~31, DOE/SR/00952-T6 (1981).
- 5) Callihan D., Thomas J. T. : Accidental Radiation Excursion at the Oak Ridge Y-12 Plant - I, Description and Physics of the Accident, Health Physics 1 No. 4 p. 363~372 (1959).
- 6) Patton S. F. : Criticality Accident at the Oak Ridge Y-12 Plant, Nucl. Safety 1 No. 2 p. 59~63 (1959).
- 7) Paxton H. C. et al. : Los Alamos Criticality Accident, December 30, 1958, Nucleonics 17 No. 4 April, p. 107 (1959).
- 8) Paxton H. C. et al. : Nuclear - Critical Accident at the Los Alamos Scientific Laboratory on December 30, 1958, LAMS-2293, Los Alamos Scientific Laboratory (1959).
- 9) Guthrie C. E. : Los Alamos Criticality Accident, Nucl. Safety 2 No. 1 p. 71~75 (1960).
- 10) Ullmann J. W., Nichols J. P. : Idaho Chemical Processing Plant Criticality Incident, Nucl. Safety 1 No. 3 p. 75~77 (1960).
- 11) Ginkel W. L. et al. : Nuclear Incident at the Idaho Chemical Processing Plant on October 16, 1959, Phillips Petroleum Co. report IDO-10035 (1960).
- 12) Nichols J. P. : Idaho Chemical Processing Plant Criticality Incident of January 25, 1961, Nucl. Safety 3 No. 2 p. 71~73 (1961).
- 13) Pauls R. C. et al. : Nuclear Incident at the Idaho Chemical Processing Plant January 25, 1961, IDO-10036 (1961).
- 14) Callihan D. : Accidental Nuclear Excursion in Recuplex Operation at Hanford in April 1962. Nucl. Safety 4 No. 4 p. 136~144 (1963).
- 15) Auxier J. A. : Nuclear Accident at Wood River Junction, Nucl. Safety 6 No. 3 p. 298~301 (1965).
- 16) Hughes T. G. : Criticality Incident at Windscale, Nucl. Eng. Int. 17 No. 189 p. 95~97 (1972).

- 17) Cast D. R. : ICPP Criticality Event of October 17, 1978, Nucl. Safety 21 No.5 p. 648 (1980).
- 18) Lloyd R. C. et al. , : Assessment of Criticality Safety in DOE Facilities, PNL - 3790 (1981).
- 19) Bodeau D. J. et al. , : Data Base for Radiation Events in the Commercial Nuclear Fuel Cycle 1950 - 1978, NUREG / CR - 2429 (1982).
- 20) McLaughlin T. P. , Smith D. R. : Plutonium Buildup In and Recovery from a Caustic Waste Tank, Trans. Am. Nucl. Soc. 46, 465 (1984).
- 21) Union Carbide Nuclear Company : Accidental Radiation Excursion at the Y-12 Plant June 16, 1958, Y-1234 (1958).