

JAERI-Tech
2001-091



JP0250132



高温工学試験研究炉用被覆燃料粒子製造工程の改良
(臨界安全対策)

2002年1月

高橋 昌史・植田 祥平・安田 淳*・吉牟田 秀治*・加藤 茂*・沢 和弘

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、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。

入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、
お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 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。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division,
Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-
gun, Ibarakiken 319-1195, Japan.

高温工学試験研究炉用被覆燃料粒子製造工程の改良（臨界安全対策）

日本原子力研究所大洗研究所高温工学試験研究炉開発部

高橋 昌史・植田 祥平・安田 淳*・吉牟田 秀治*・加藤 茂*・沢 和弘

(2001年11月29日受理)

高温工学試験研究炉（HTTR）では、被覆燃料粒子を燃料としている。被覆燃料粒子の製造は、燃料核工程及び被覆工程で行われる。燃料核の製造設備のバッチサイズは4.3kg-Uで、燃料核工程はいわゆる外部ゲル化法による硝酸ウラニルを用いた湿式工程である。HTTR燃料の²³⁵U濃縮度は、出力分布を最適化して燃料最高温度を低減化するため、3.4～9.9wt%の計12種類で構成されている。HTTR燃料の製造は、原子燃料工業（株）東海事業所のHTR燃料製造施設において行う。平成11年9月30日に発生したJCO事故の重大さを踏まえ、HTTR燃料製造工程を再度見直すことにした。検討の結果、濃縮度10%以下のウランを取扱うHTR燃料製造施設の湿式設備の臨界安全対策として、核的に安全な制限値を超えないよう、取扱うウラン自体の質量を制限するシステムの設置（インターロックの設置等）を行うこととした。これらの検討結果を踏まえて設備の改造を行い、安全性に十分配慮してHTTR第2次燃料の製造に着手する予定である。

大洗研究所：〒311-1394 茨城県東茨城郡大洗町成田町新堀3607

* 原子燃料工業株式会社

Improvement of Fuel Fabrication Process for High Temperature Engineering Test Reactor
(Countermeasures to Criticality Accident)

Masashi TAKAHASHI, Shouhei UETA, Atsushi YASUDA*,
Shigeharu YOSHIMUTA*, Shigeru KATO* and Kazuhiro SAWA

Department of HTTR Project
Oarai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received November 29, 2001)

The High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR) adopts coated fuel particles as fuel. The coated fuel particles are fabricated through fuel kernel process and coating process. The kernels are fabricated by so-called external gelation process with uranyl nitrate solution (wet-process). A batch size of the kernel process is 4.3kg-U. The HTTR used 12 kinds of ^{235}U enrichments, from 3.4 to 9.9 wt%, to flatten the power distribution and reduce the maximum fuel temperature during reactor operation. The fabrication of the HTTR fuel is carried out in the HTR fuel plant at Tokai works of Nuclear Fuel Industries, Ltd. (NFI). Considering the serious impact made by the criticality accident, which occurred at JCO Co. Ltd. on September 30, 1999, the Japan Atomic Energy Research Institute and NFI reviewed the safety of the HTTR fuel fabrication process. The countermeasures were discussed to prevent criticality accidents in the wet process of the HTR fuel plant where handling of less than 10 wt% enriched ^{235}U are permitted. As the results of the review, the HTR fuel plant will be modified to incorporate a strict mass-control system together with some interlock systems. After the modification, fabrication of the 2nd-loading fuel of the HTTR will be safely started.

Keywords: HTTR, Fuel Fabrication, Wet-process, Criticality Accident,
 Mass-control, Interlock Systems, Safety

* Nuclear Fuel Industries, Ltd.

目 次

| | | | |
|-----|---------------------------------|-------|----|
| 1. | はじめに | | 1 |
| 2. | 製造工程 | | 2 |
| 2.1 | 全体工程 | | 2 |
| 2.2 | ^{235}U 濃縮度調製工程及び燃料核工程 | | 3 |
| 3. | 問題点の摘出 | | 13 |
| 4. | 対応策の検討 | | 16 |
| 4.1 | 基本的な考え方 | | 16 |
| 4.2 | 具体的な方法 | | 17 |
| 4.3 | 燃料製造への影響評価 | | 18 |
| 5. | まとめ | | 28 |
| | 謝辞 | | 29 |
| | 参考文献 | | 29 |

Contents

| | | | |
|-----|---|-------|----|
| 1. | Introduction | | 1 |
| 2. | Fabrication Processes | | 2 |
| 2.1 | Whole Process | | 2 |
| 2.2 | ^{235}U enrichment Preparation Process and Fuel Kernel Process | | 3 |
| 3 | Extraction of Problems | | 13 |
| 4. | Investigation for Countermeasures of Criticality Accident | | 16 |
| 4.1 | Basic Concept | | 16 |
| 4.2 | Countermeasures | | 17 |
| 4.3 | Influences on Fuel Fabrication | | 18 |
| 5. | Summary | | 28 |
| | Acknowledgements | | 29 |
| | References | | 29 |

This is a blank page.

1. はじめに

高温工学試験研究炉（HTTR）のA型燃料体は、Fig. 1-1に示すようにピン・イン・ブロック型であり、燃料棒と六角柱型黒鉛ブロックからなる。燃料棒は、黒鉛スリーブに燃料コンパクトを14個封入したものである。燃料コンパクトは、被覆燃料粒子を黒鉛マトリックス材でオーバーコートした後、温間プレス、焼成したものである⁽¹⁾。

被覆燃料粒子の製造は、燃料核工程及び被覆工程で行われる。燃料核の製造設備のバッチサイズは4.3kg-Uである。燃料核はいわゆる外部ゲル化法で製造し、硝酸ウランを用いた湿式工程である。HTTR燃料の²³⁵U濃縮度は、出力分布を最適化して燃料最高温度を低減化するために、3.4～9.9wt%の計12種類で構成されている⁽²⁾。燃料核工程中の重ウラン酸アンモン（Ammonium-Di Uranate, 以下ADUとする）粒子製造工程以降では、取扱う燃料は全て固体状となる。

HTTR燃料の製造は、原子燃料工業（株）東海事業所のHTR燃料製造施設において行う。平成11年9月30日に発生したJCO事故の重大さを踏まえて改訂された安全審査指針「特定のウラン加工施設のための安全審査指針」の関連部分については、その主旨を参考にしてHTTR燃料製造工程においても、十分な安全性を確保した上で燃料製造を行うこととした。

本報は、濃縮度5%以上10%以下のウランを湿式で取扱う施設であるHTR燃料製造施設の臨界安全対策をまとめたものである。

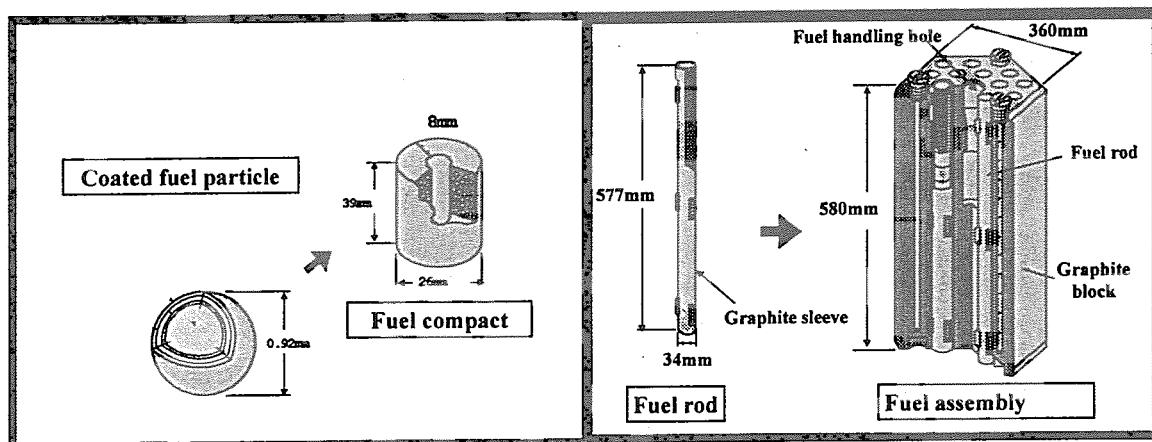


Fig. 1-1 Fuel assembly of the HTTR.

2. 製造工程

2.1 全体工程⁽¹⁾

HTTR 燃料製造の全体工程を以下に示す。

HTTR 燃料の濃縮度は出力分布を最適化して燃料最高温度を低減化するため 3.4wt% ~ 9.9wt% の 12 種類で構成されている。このため 12 種類の濃縮度の U₃O₈ 粉末を準備する必要があるが、経済性の観点より例えば第 2 次燃料製造の場合は 3.4、4.8、9.9wt% の 3 種類の U₃O₈ 粉末を購入し、それらを混合して 12 種類の濃縮度に調製する。このための工程を濃縮度調製工程と称する。本工程では所定量ずつの U₃O₈ 粉末（例えば 3.4wt% と 9.9wt%）を硝酸に溶解して硝酸ウラニル溶液とし、アンモニア水に通して ADU とし、焙焼して U₃O₈ 粉末とする。この工程中には中性子減速効果の大きい湿式工程が含まれることから本臨界安全対策の実施対象とした。工程の詳細については 2.2 節で説明する。

燃料核の製造工程フローを Fig. 2-1 に示す。初装荷燃料の燃料核は、合計で約 900kg-U 製造した。製造設備のバッチサイズは 4.3kg-U である。燃料核の製造方法はいわゆる外部ゲル化法であり、まず濃縮度調製工程で得られた U₃O₈ 粉末を硝酸に溶解した硝酸ウラニルに添加剤（PVA 等）を加えた調製液の液滴を生成し、アンモニア水中でゲル化して ADU 粒子とする。これを空気中で仮焼して UO₃ 粒子とし、水素雰囲気中で還元・焼結させて UO₂ 燃料核とする。図中で U₃O₈ 粉末を硝酸溶解して硝酸ウラニル溶液とする部分からアンモニア水中への滴下、熟成、洗浄、乾燥工程までが従来製造方法での湿式工程部分であり、本臨界安全対策の実施対象とした。工程の詳細については 2.2 節で説明する。

被覆工程は「流動床」と呼ばれる被覆装置を使用して、燃料核の周囲に 4 層の被覆層を連続的に蒸着して被覆燃料粒子を製造する工程である。流動床は黒鉛ヒータ、黒鉛反応管、ガス導入ノズル、粒子投入口、粒子取出口等で構成されている。燃料核を黒鉛製反応管中で流動させながら所定の被覆温度まで昇温した後、被覆ガスを流動ガスと混合して供給する。この操作により、第 1 層に低密度熱分解炭素、第 2,4 層に等方性高密度熱分解炭素、第 3 層に SiC をそれぞれ所定の厚さとなるように蒸着して被覆燃料粒子とする。

燃料コンパクトは、被覆燃料粒子を黒鉛マトリックス材でオーバーコートし、粒径

選別、乾燥した後、温間プレスにより成型、予備焼成、焼成を行い製造する。

燃料棒は燃料コンパクト 14 個を緩衝板とともに黒鉛スリーブに挿入し、端栓を締めた後に止めねじで回り止めを施して組立てる。組立てた燃料棒は、燃料体黒鉛ブロックに挿入して燃料体とする。

一連の HTTR 燃料製造の流れを上記に示したが、各工程の破壊検査に使用したロットはウランを再生利用するため、スクラップ再生工程に送られ、 U_3O_8 粉末として再び HTTR 燃料の原料となる。検査の結果、不合格となった燃料核、被覆粒子、燃料コンパクトの各検査ロットは粉碎、焙焼により U_3O_8 粉末として溶解槽にて硝酸で溶解される。その後、抽出、逆抽出工程を経て、アンモニア水を通して ADU 粉末として回収される。この ADU 粒子を焙焼して U_3O_8 粉末を得る。この一連のスクラップ再生工程は湿式工程であり、本臨界安全対策の対象であるが、臨界安全のための考え方・対処策は燃料核工程とほぼ同一であるため以後割愛する。

2.2 ^{235}U 濃縮度調製工程及び燃料核工程

以下に本臨界安全対策の対象工程である ^{235}U 濃縮度調製工程及び燃料核工程を臨界対策の観点を中心に示す。なお、これ以降の被覆工程からは燃料を固体状で取り扱う乾式工程である。

(1) ^{235}U 濃縮度調製工程

HTTR 初装荷燃料の ^{235}U 濃縮度は、出力分布を最適化して燃料最高温度を低減化するため、Fig. 2-2 に示すように 3.4~9.9wt% の計 12 種類で構成されている。第 2 次燃料の製造においては、3.4、4.8、9.9wt% の 3 濃縮度の U_3O_8 粉末を原料ウランとして、残りの 3.9、4.3、5.2、5.9、6.3、6.7、7.2、7.9、9.4wt% の 9 濃縮度について濃縮度調製を行う必要がある。

従来の U_3O_8 粉末濃縮度調製工程のフローを Fig. 2-3 に示す。所定の濃縮度の原料ウランを所定量秤量して硝酸溶解し、硝酸ウラニルとする。硝酸溶解時のバッチサイズは約 4kg-U である。代表的な反応式は以下のとおりである。



硝酸溶解は質量制限値以下のバッチ単位について溶解槽にて行い、溶解後に溶液は貯槽に送液される。貯槽での臨界管理方法は ^{235}U 濃度制限にて実施していた。この操作を調製すべき濃縮度の硝酸ウラニル全量について繰り返し実施する。貯槽中の硝酸ウラニル溶液は一括して均一混合され、濃縮度の偏差を無くして濃縮度検査を実施して

いた。

次に、この硝酸ウラニルを質量制限値以下のバッチ単位（約 4kg-U）で分取して沈殿槽に送り、アンモニアと反応させて ADU を沈殿、固液分離して ADU 粉末とする。この代表的な反応式は以下のとおりである。



最終的に ADU 粉末を空気中にて 650℃で焙焼して U_3O_8 粉末とする。

(2) 燃料核工程

上記の濃縮度調製工程で得られた U_3O_8 粉末を硝酸に溶解して硝酸ウラニル溶液とする。燃料核の製造方法はいわゆる外部ゲル化法であり、硝酸ウラニルと添加剤の調製液（以下、メタル溶液）の液滴を振動ノズルを介して、アンモニア水中に滴下し、ゲル化させて熟成・洗浄・乾燥工程の後、ADU 粒子とする。

U_3O_8 粉末は溶解槽で硝酸に溶解して硝酸ウラニルとする。溶解後、硝酸ウラニルはポンプで調整槽に送液され、そこで添加物を加えて滴下時の液組成とする。調整後のメタル溶液が原液貯槽にポンプで送液される。その後、アンモニア水を張った沈殿槽中に送液し、振動ノズルを介して滴下し、wet-ADU 粒子とする。wet-ADU 粒子を沈殿槽内で十分に攪拌流動して熟成させた後、乾燥槽に送り洗浄、乾燥を実施する。以上の湿式工程で使用する溶解槽、調整槽、原液貯槽、沈殿槽、乾燥槽の臨界管理方法は質量制限であった。

燃料核の直径分布および真球度の改良のために導入した振動ノズルの写真を Fig.2-4 に示す。また、ADU 粒子製造プロセスの概略図を Fig.2-5 に示す。

乾燥槽から得られた ADU 粒子中のアンモニア、硝酸アンモニウム、添加剤（PVA）等を熱分解除去するために、550℃の空気中で仮焼して UO_3 粒子とする。この UO_3 粒子を水素雰囲気中、500℃で還元して UO_2 粒子とし、1600℃で焼結して理論密度約 97% の UO_2 燃料核とする。その後、全数を篩により直径選別を行った後、振動テーブルにより真球度選別を行う。

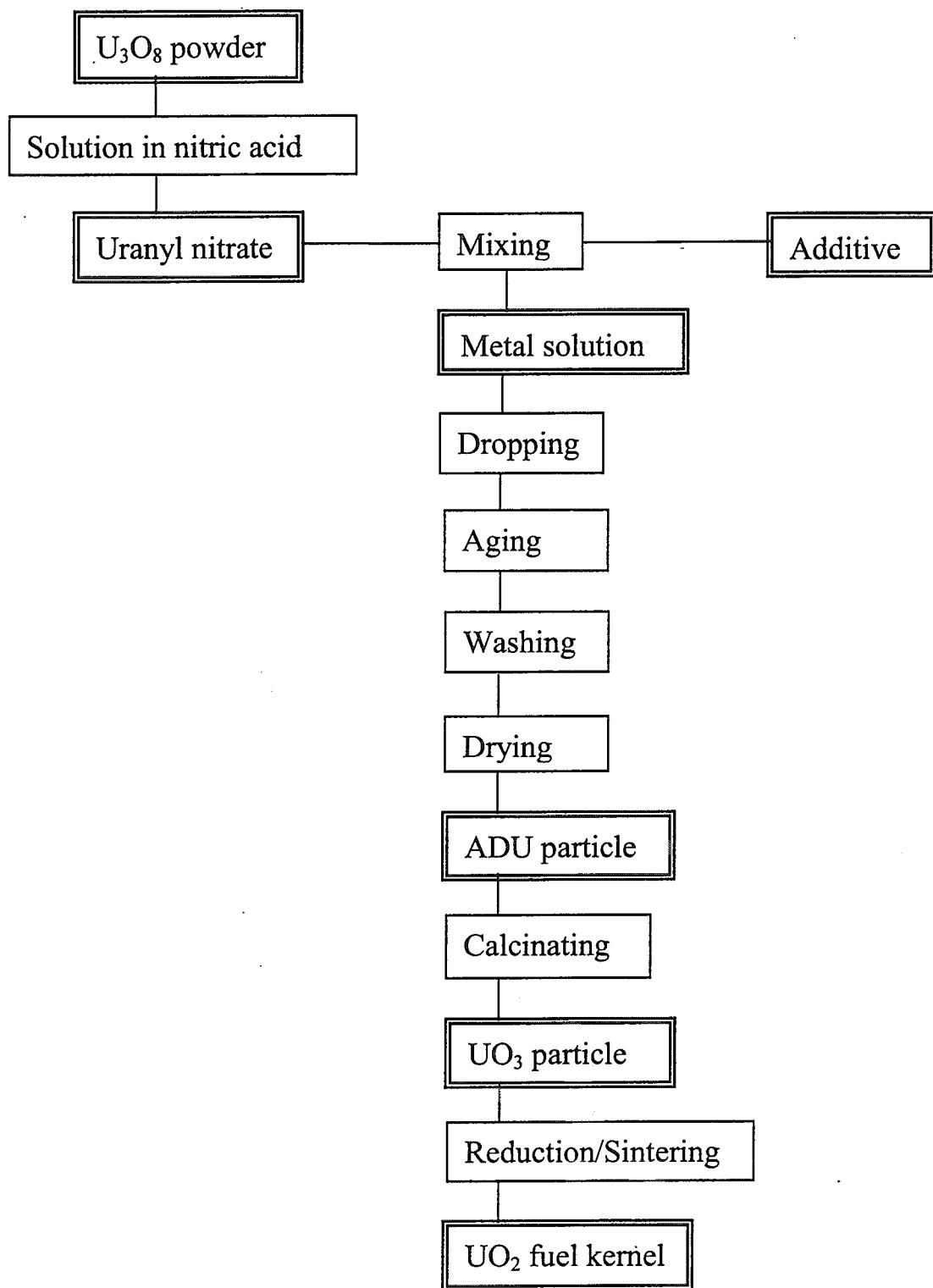


Fig.2-1 Flow diagram of UO_2 fuel kernel process.

| Region (* 1) Step from the top | ^{235}U enrichment (wt%) | | | | Burnable poison | |
|---|-----------------------------------|-----------------|-----------------|-----------------|-------------------|---|
| | 1 st | 2 nd | 3 rd | 4 th | Diameter (~mm) | Natural Boron concentration (~wt%) |
| 1 | 6.7 | 7.9 | 9.4 | 9.9 | 14 | 2.0 |
| 2 | 5.2 | 6.3 | 7.2 | 7.9 | 14 | 2.5 |
| 3 | 4.3 | 5.2 | 5.9 | 6.3 | 14 | 2.5 |
| 4 | 3.4 | 3.9 | 4.3 | 4.8 | 14 | 2.0 |
| 5 | 3.4 | 3.9 | 4.3 | 4.8 | 14 | 2.0 |

(* 1) Region number is as follows.

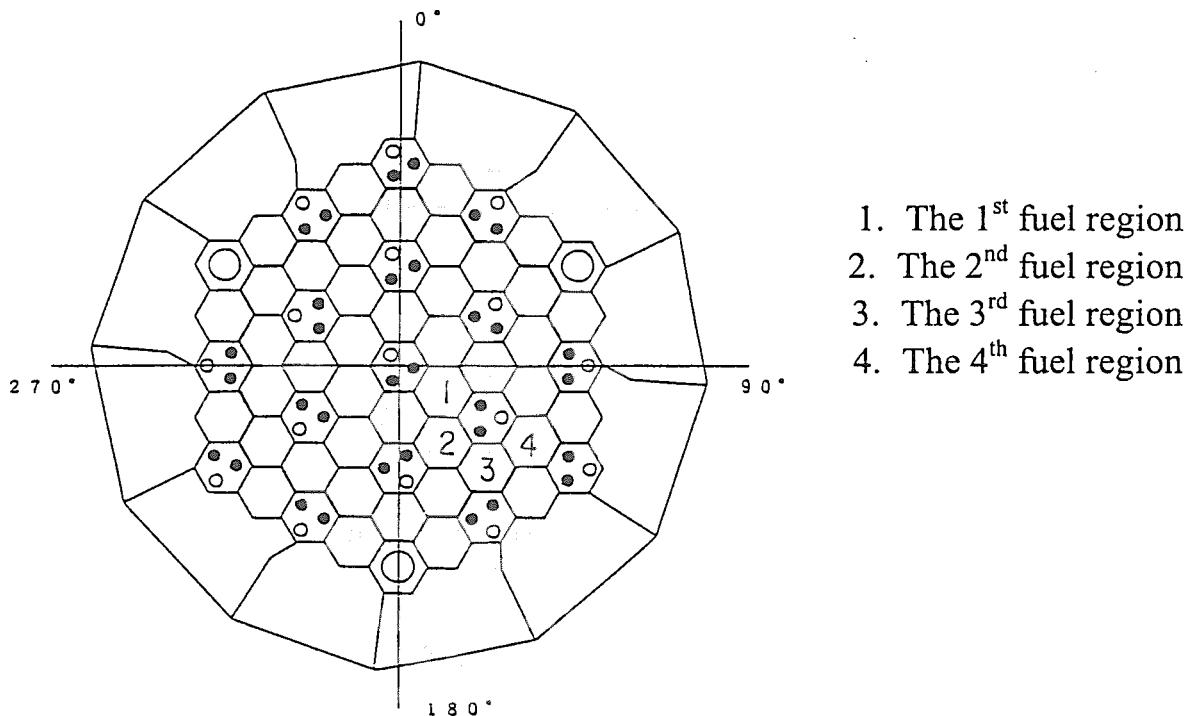
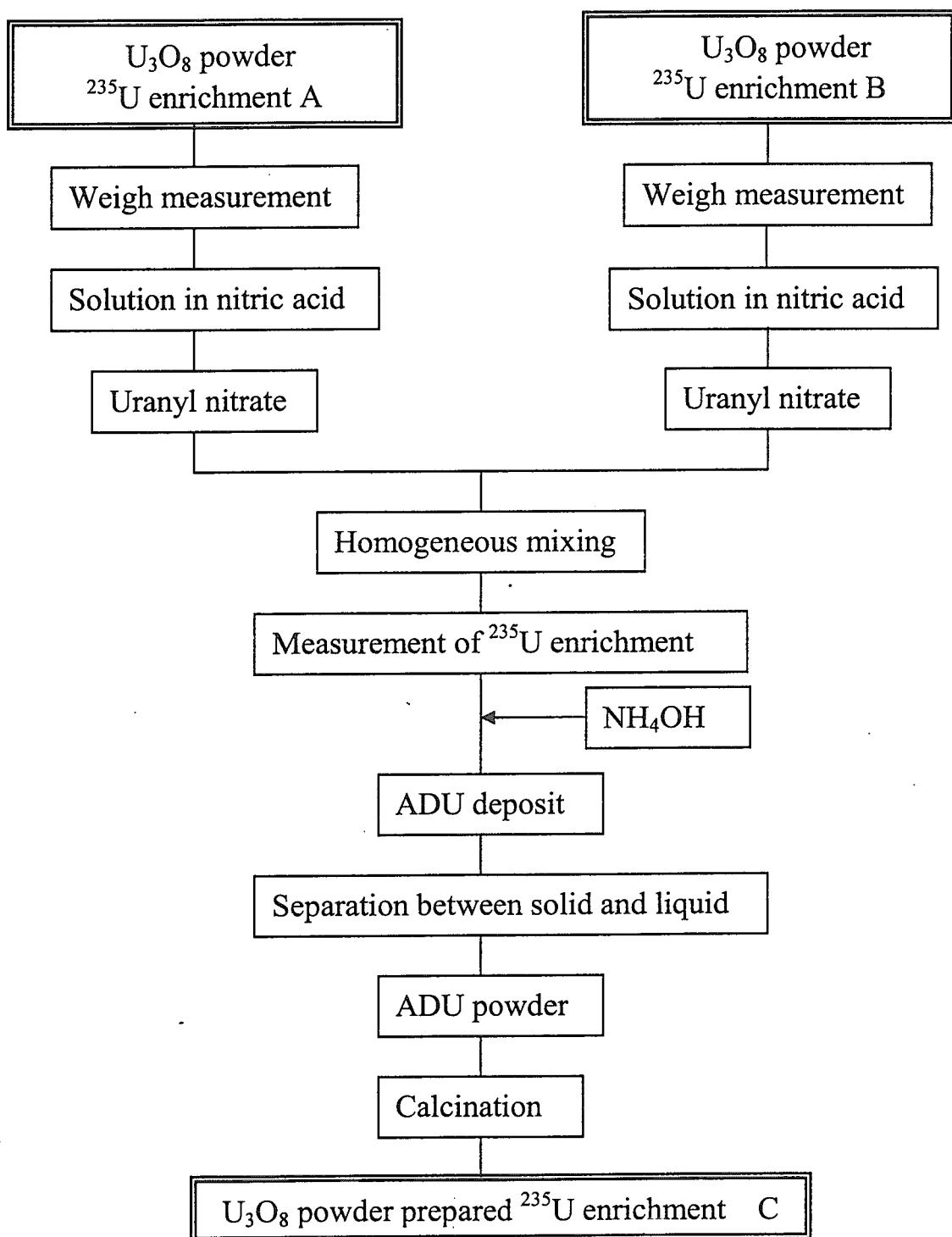


Fig.2-2 Fuel arrangement in the HTTR core.

Fig.2-3 ^{235}U enrichment preparation process.

This is a blank page.

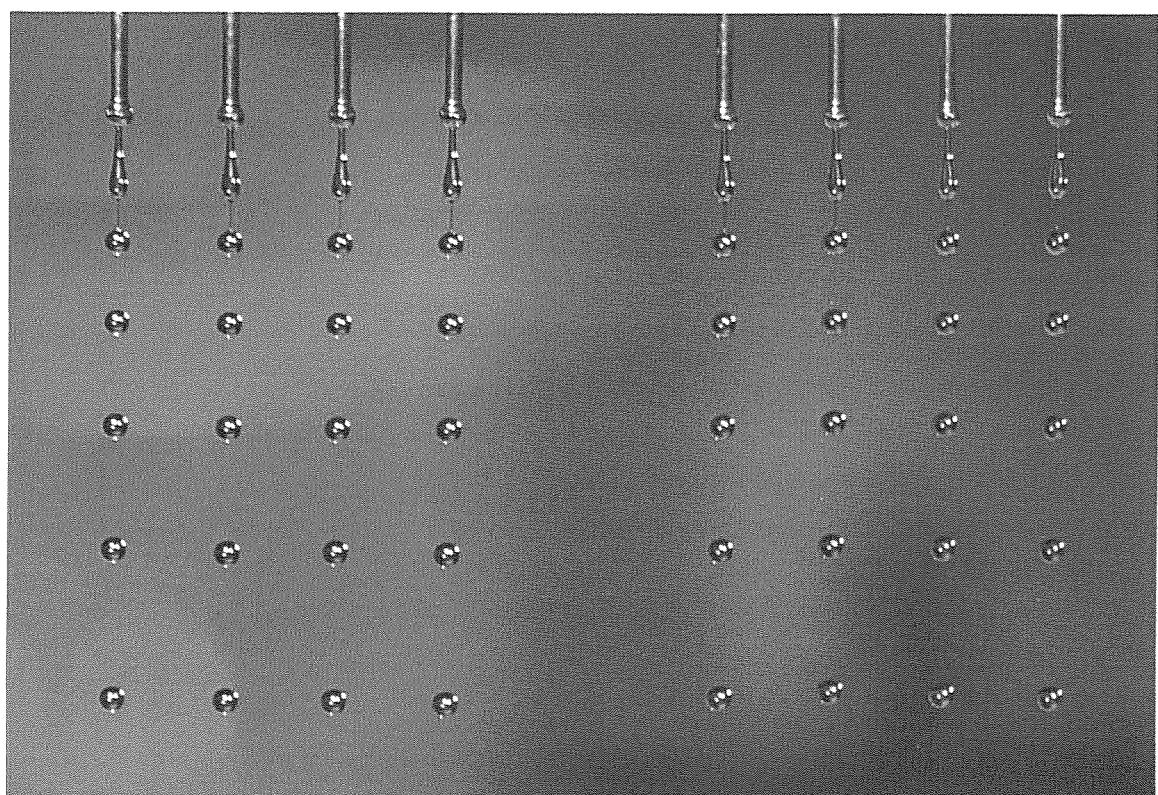


Fig.2-4 Vibrating nozzles and droplets.

This is a blank page.

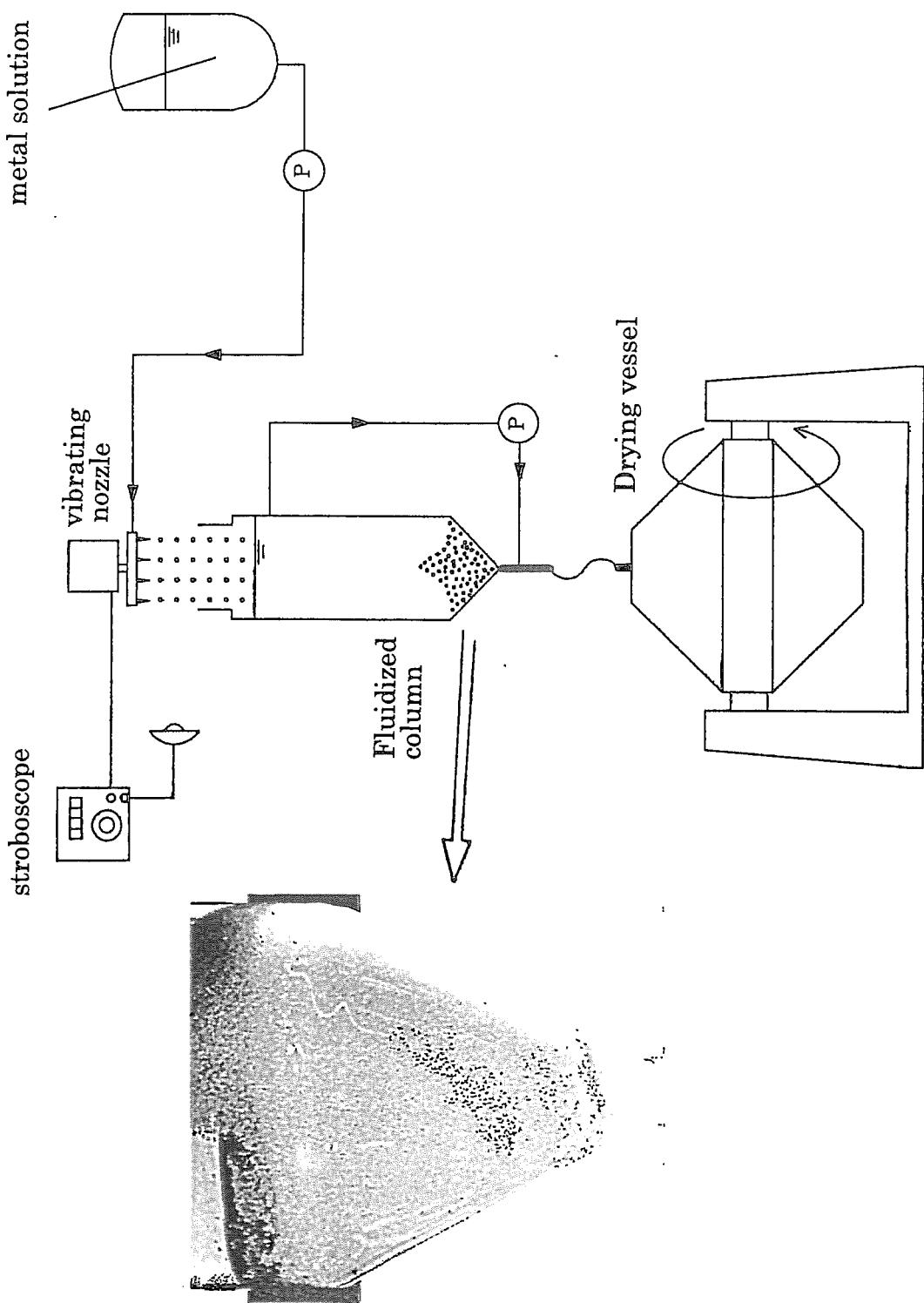


Fig.2-5 ADU particles production process.

This is a blank page.

3. 問題点の摘出

HTTR 燃料は 3~4 年毎に全炉心一括交換することとしており、燃料交換計画にあわせて燃料を製造する。HTR 燃料製造施設は、原子炉等規制法第 52 条 第 2 項 第 2 号に示す「使用の目的及び方法」が燃料体次數毎に異なるため、許可区分を「使用の許可」としている。これは、HTTR は高温ガス炉を開発するための試験研究を目的とした原子炉であるため、これに供される燃料体について、原子炉設置許可の範囲内で高性能化、高品質化を図ることによる。そのため、燃料の製造技術及び検査技術について、各炉心の燃料製造時毎に最新の知見を反映させて改良を継続する。すなわち、同一方法で繰り返して製造するわけではなく、製造仕様・方法について変更及び改良を行うという開発的要素を含んでいるためである。また、HTTR の原子炉設置許可申請書において、高温ガス炉技術の高度化の一環として、試験燃料体を用いた照射試験を実施することとなっており、被覆層厚さ、被覆層材質、燃料核組成を変えた 3 種類が申請されている⁽⁴⁾。これらの試験燃料体については、研究開発のため、原子燃料工業(株)東海事業所の HTR 燃料製造施設において製造する予定であり、これらの燃料の製造目的及び方法はその都度異なる。

このように、HTR 燃料製造施設は加工施設ではないが、JCO 事故の重大さを踏まえ、安全審査指針で改訂された、「特定のウラン加工施設のための安全審査指針」の関連する部分については、その趣旨を参考に対応をとる必要があると判断した。具体的には、以下に示す指針の主要な項目に対する現行設備の問題点を抽出し、その対応策を検討することとした。

- ① 指針の適用対象は、「濃縮度 5%を超える、20%未満のウランを転換、加工する施設」である。HTR 燃料製造施設で取扱う HTTR 燃料濃縮度は 3.4~9.9wt% であり、5%を超えるウランを取扱う。
- ② 「指針 10. 単一ユニットの臨界安全」においては、「溶液状のウランを取扱う設備・機器については、全濃度安全形状を基本とする。」とされている。HTTR 燃料の製作工程上、²³⁵U 濃縮度調製工程と燃料核工程のうち、2.2 節で示した溶解槽～乾燥槽の間、スクラップウラン再生工程が湿式工程である。全濃度安全形状とすることが困難な場合には、「取扱うウラン自体の質量や溶液中の濃度等について核的に安全な制限値が設定されていること。」とされており、

この制限値を超えないよう、十分な対策を講じることが要求されている。具体的な対策として、インターロック等の設置、容積上の制限等が考えられる。

さらに、指針では、「核的制限値の維持・管理については、起こるとは考えられない独立した二つ以上の異常が同時に起こらない限り臨界に達しないものであること。」と、二重偶発性の原理（人の誤操作も含む）を適用している。

- ③ 「指針 12. 臨界事故に対する考慮」においては、「臨界警報装置の設置その他の臨界事故の発生を想定した適切な措置（臨界及びその継続性の検知）が講じられる設計であること。」、さらに、「臨界事故の発生が想定される施設において臨界事故が発生したとしても、これを未臨界にするための措置が講じられる設計であること。」とされている。

まず、HTTR 燃料製作工程を全て乾式とすることは技術的に不可能であるため、以下の 2 つの可能性を検討した。

(1) 燃料濃縮度を 5wt%以下に低減する可能性

HTTR では、平均濃縮度 6wt%（最高 9.9wt%）の二酸化ウランを燃料としている。これまでに海外において建設又は設計された高温ガス炉では、高濃縮（93wt%）ウラン、20wt%濃縮ウラン、8wt%濃縮ウラン（燃料の連続追加が可能なペブルベット型原子炉用燃料）が用いられている。HTTR 燃料の燃料濃縮度を 5wt%以下にした場合、以下のような問題がある。

- ① 燃料温度の上昇を抑制しつつ高い原子炉出口冷却材温度を得るために、炉心内で濃縮度を分配すると、平均濃縮度が 2~3wt%となり、原子炉を臨界にできない可能性もある。
- ② 原子炉内に全て 5wt%濃縮度の燃料を装荷すると、現在の HTTR の燃焼末期の U-235 量と同程度になり燃焼がほとんどできない。また、出力分布の調整ができなくなるために燃料温度が高くなり、原子炉出口冷却材温度を高くすることができない。

これらの理由により、燃料濃縮度を 5wt%以下にすることはできない。

(2) 燃料製造を海外で行う可能性

現在、高温ガス炉の被覆燃料粒子の製造技術を有しているのは、原子燃料工業（株）以外に中国の清华大学があるが、現在の規模、品質の観点から、HTTR 燃料の製造を

直ちに行うことはできない。また、南アフリカの AEC 社 (Atomic Energy Corporation in South Africa) が高温ガス炉燃料の製造を行う計画であるが、現時点では製造装置も設置されていない。そのため、燃料製造を海外で行うことは実際上不可能である。

そこで、改訂された、「特定のウラン加工施設のための安全審査指針」の以下の点について、現行設備の変更による対応策を検討することとした。

- ① 湿式工程である ^{235}U 濃縮度調製工程、燃料核工程（溶解槽～乾燥槽）、スクラッピングウラン再生工程の設備・機器を全濃度安全形状とできるか？
- ② 全濃度安全形状とすることが困難な場合、取扱うウラン自体の質量や溶液中の濃度等について核的に安全な制限値を超えないよう、インターロック等の設置、容積上の制限ができるか？
- ③ 臨界警報装置の設置その他の臨界事故の発生を想定した適切な措置（臨界及びその継続性の検知）が講じられるか？

4. 対応策の検討

4.1 基本的な考え方

対応策の検討の始めに、HTR 燃料製造設備で臨界事故を想定した場合に必要となる対策を検討した。臨界事故の規模として $10^{17} \sim 10^{18}$ fission を想定すると、現状設備では放射線及び放射性物質による周辺住民の被ばく線量を低減するために、建家全体を覆うコンクリート等の遮蔽体の敷設及び施設から放出される核分裂生成物量を低減するための排気筒、排気系統の増設が必要となる。この場合、Table 4-1 に示すような対応案が想定された。このための期間、必要とする費用を考慮すると、現状の施設でそのまま臨界事故を想定し、対応をとることは現実的ではないことが分かる。

そこで、前節で述べた3つの問題点に対する対策を講じた場合の影響評価を Table 4-2 に示すように行った。

- ① 湿式工程である、硝酸ウラニルの混合、ADU 粒子生成、スクラップウラン工程の設備・機器を全濃度安全形状とできるかどうか。
→ Table 4-2 のケース①に対応する対策。
- ② 全濃度安全形状とすることが困難な場合、取扱うウラン自体の質量や溶液中の濃度等について核的に安全な制限値を超えないよう、インターロック等の設置、容積上の制限ができるかどうか。
→ Table 4-2 のケース②及び③に対応する対策。
- ③ 臨界警報装置の設置、その他の臨界事故の発生を想定した適切な措置（臨界及びその継続性の検知）が講じられるかどうか。
→ 臨界モニターを設置することで対応するよう検討する。

ケース①は、例えば燃料核工程の湿式設備である溶解槽、調整槽、原液貯槽、沈殿槽、乾燥槽を全て形状制限化することに対応し、最も安全な対策である。しかし、現行の設備を全て撤去して新しい設備を設置することとなるため経済的な負担が極めて大きくなるとともに、安全形状の装置が細長い形となり取扱うことができるウラン溶液体量が制限されるため製造性効率が悪化する。そのため、経済性、製造性の観点から現実的には困難と判断した。

一方、ケース②は経済性、製造性の観点からは合理的であるが、ケース①に較べる

と、ウラン粉末の投入量を間違えると、臨界事故が起こりうる対策である。この時、インターロックの多重化のみにより、臨界事故の発生頻度を十分低減できるかどうかが問題となった。そこで、インターロックの多重化に加え、ウラン粉末の投入量を機械的に制限するケース③を、臨界事故の発生頻度の低減化、経済性、製造性等の観点から実現性のある対策と考え、詳細な検討を行うこととした。ケース③の対策を図示したものを Fig. 4-1 に示す。

4.2 具体的な方法

前節で述べた Table 4-2 のケース③について詳細な検討を行った。ケース③では、従来工程と比較して湿式設備内へのウラン投入量を制限するとともに、湿式設備内の溶解槽、調整槽、原液貯槽、沈殿槽、乾燥槽の各槽に対してウランのダブルバッチ誤混合が生じないような対策を実施する。このため、原料粉末ボックス、カセット型投入器、ガンマ線センサー、液面センサーを新規に設置する。

また、万一の臨界事故を想定して、臨界警報装置・監視モニター等を設置する。

(1) ウラン投入量制限

^{235}U 濃縮度調製工程では、従来の方法では 2.2 節に示したように所定量の U_3O_8 粉末を溶解槽にて硝酸で溶解して硝酸ウラニルとし、大型の貯槽に移して液状混合して均一な濃縮度の硝酸ウラニル溶液を得ていた。この大型貯槽の臨界管理は ^{235}U 濃度管理であり、臨界対策上、最も問題となる設備であった。そこで、この大型貯槽を撤去して、原料粉末ボックスを新設し、原料粉末をバッチ毎に秤量、混合するよう変更する。

溶解槽のカセット型投入器に原料ウラン粉末を入れる際に、Fig. 4-2 に示すような専用の原料粉末ボックスで秤量する。原料ウラン粉末の分取重量の和（原料ボックス No.1+No.2）および混合重量（原料ボックス No.3）がそれぞれ所定の設定量を超えないことを重量で自動的に確認する。このような方式により、万一、天秤の故障により原料ボックス No.1+No.2 での分取重量の和が所定量を超えたことが検知できなかった場合でも、混合重量（原料ボックス No.3）測定で異常が検知できる。すなわち、複数の天秤によって秤量の確認を多重化している。

本投入器の重量が設定値を超えた場合には、警報が鳴動するとともに、カセット型投入器を溶解槽上部に取り付けることが不可となるインターロックを施す。

(2) ダブルバッチ誤混合防止

燃料核工程の湿式設備（溶解槽～乾燥槽）では万が一ウラン溶液をダブルバッチ装荷しても臨界とはならない設計がなされているが、本臨界安全対策ではこのダブルバッチ誤混合の防止を目標とする。ダブルバッチ誤混合防止のための具体的方法を下記に示す。

- a. 湿式設備（溶解槽～乾燥槽）内にウランが存在しないことをガンマ線センサー等でチェックし、確認できるとカセット型投入器が溶解槽上部の所定位置に取り付けることがはじめて可能となる。
- b. カセット型投入器はいったん取り付けると湿式設備からウランが払い出されるまで取り外すことが出来ない。
- c. 複数の槽でウランを検知した場合は、インターロックが作動し、送液を中止する。ただし、通常の液移送時における当該二槽間は例外とする。

なお、ガンマ線センサーは故障する場合を想定し、液面センサーを併設し、それが不可能な場合には複数のガンマ線センサーを設けることとした。

(3) 臨界警報装置・監視モニターの設置

(1)および(2)により、インターロックの多様化、多重化を図っている。

しかし、万一の臨界事故を想定し、臨界警報装置・監視モニター等を湿式設備近傍に3個設置することとした。従来から設置している原料貯蔵庫内モニターと製品保管庫内モニターを併せて5個のモニターにより監視を行い、2 out of 5で臨界警報を発報することとした。

上記の(1)～(3)に示すような改造後、劣化ウランを用いたテス特朗を半年程度実施し、手順等を確認して安全等を十分確認した後、濃縮ウランを用いた実際の HTTR 第2次燃料製造を行う計画としている。

4.3 燃料製造への影響評価

(1) 製造工程の変更による影響

前述のように、従来は²³⁵U濃縮度調製工程では硝酸ウラニルを大型の貯槽に移して液状混合し、均一な濃縮度の硝酸ウラニル溶液を得ていた（クロスブレンド）が、臨界安全対策によりこの大型貯槽を撤去して、原料粉末ボックスでバッチ毎に秤量、混合することになる。そのため、約300バッチの各燃料核工程において原料粉末のクロスブレンドによる濃縮度調製を行うことになる。

この変更に伴う工程数の増減は小さく、やや減少する方向である。しかし、次に述べるように、この変更により濃縮度検査方法を従来から変更する必要が生じる。

(2) 濃縮度検査方法の変更

燃料核の濃縮度の検査は、従来のように湿式のクロスブレンドでは、均質混合が可能であったため、1濃縮度当たり1試料を抜き取り、検査を行っていた。しかしながら、各燃料核バッチ毎の乾式ブレンドの採用に伴い、濃縮度検査の抜取り率を見直す必要が生じる。

HTTR燃料の検査における抜取り率の分類は、Fig. 4-3に示すように、以下の3種類を考えている⁽⁵⁾。

- ① 製造プロセス、これまでの実績から均質性の高い検査項目については、検査ロット当たり1試料の抜取りを行う。
- ② 製造プロセス、これまでの実績から均質性が低く、ばらつきの大きい検査項目については、統計的な判定を行うものとし、検査ロット当たり判定に必要な数の試料を抜取る。
- ③ 上記①及び②の中間の均質性である検査項目については、検査ロット当たり3試料又は10%の抜取りを行う。

乾式ブレンドにおいては、従来の湿式のクロスブレンドよりも、同一濃縮度の母集団（原料ロット）内の均一性は悪くなると予想される。また、現在のところ、乾式ブレンドによる濃縮度の均一性に関する実績データも無く、従来の抜取り率の分類①を直ちに適用することはできない。一方、原料ウランそのものの濃縮度の均一性は一般に良く、秤量誤差を考慮しても大きくばらつくことは考えがたい。さらに、前述のように、臨界管理の観点から原料ウラン粉末をボックスで秤量し、自動的に確認する。すなわち、秤量記録は全燃料核バッチについて保存されるため、混合した濃縮度は全て計算できる。

そこで、全燃料核バッチの濃縮度を秤量記録で確認するとともに、一部の燃料核ロ

ットを抜取り、濃縮度検査を行うこととする。抜取り率を仮に原料ロット毎3試料とすると、従来の12試料の検査が36試料程度となり、3倍程度の検査工数となる。本方法でばらつきの実績を確認し、順次合理化していく必要がある。

Table 4-1 Countermeasures for criticality accident.

| ケース番号 | 想定される対応案 | 追加期間(年) | 追加工事費用** (億円) | 備考 |
|-------|---|---------|---------------|------------------|
| ① | 周辺監視区域からの離隔距離が確保できないため、現状設備に建家の遮蔽体敷設、排気系等増設等の対策実施 | 2.5* | ◎ | |
| ② | 国内の他の施設に工場を移転 | 3* | ◎ | |
| ③ | 海外の燃料製造メーカーで燃料を製作 | — | — | 現状では製造可能なメーカーはない |

* 工事期間を示す。この他、+0.5 年程度の変更申請期間を必要とする。

** ◎：数十億円の規模を示す。

Table 4-2 Countermeasures to exclude criticality accident.

| ケース番号 | 溶液系の形状管理 | 対策概要 | 追加期間(年) | | 追加費用** (億円) | | 備考 |
|-------|----------|-----------------------------|---------|------|-------------|------|-----------------------|
| | | | 追加工事* | 燃料製造 | 追加工事 | 燃料製造 | |
| ① | 実施する | 湿式工程設備を全て臨界安全形状とする。 | 1.5 | 1.5 | ○ | △*** | 形状管理により臨界事故を防止 |
| ② | 実施しない | 溶液系のインターロックを多重化 | 0.5 | 1 | △ | △*** | 多重化により臨界事故発生確率を低下 |
| ③ | | 溶液系のインターロックを多重化するとともに投入量を制限 | | 1 | | △*** | ケース②よりも臨界事故発生確率をさらに低下 |

* 工事期間を示す。この他、+0.5 年程度の変更申請期間を必要とする。

** ○：数億円の規模を示す。△：1~2 億円の規模を示す。

*** 燃料を 1 回で取扱う量が小さくなり、製造に必要な工程数が増加するため、製造費が増加する。

This is a blank page.

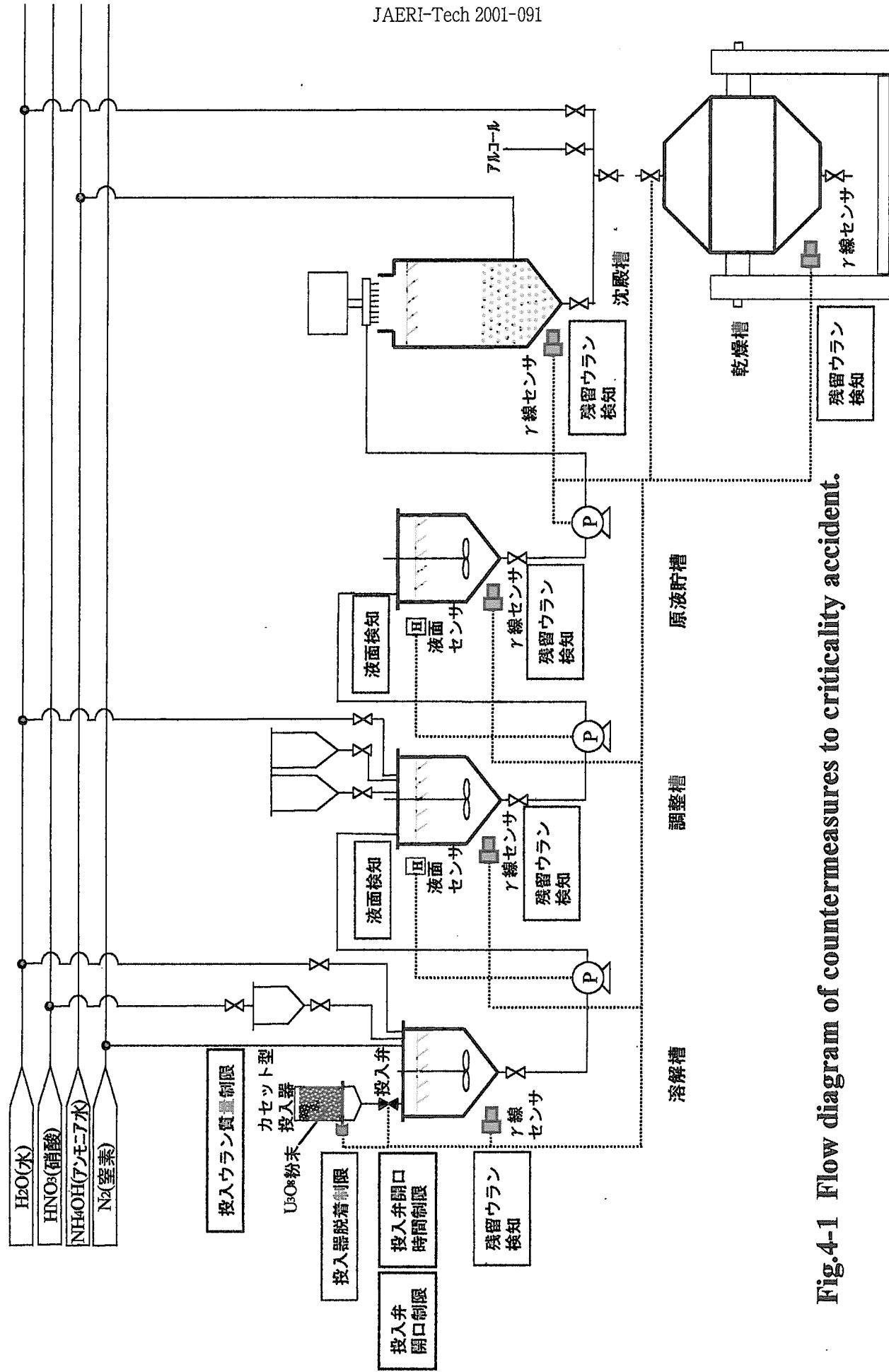


Fig.4-1 Flow diagram of countermeasures to criticality accident.

This is a blank page.

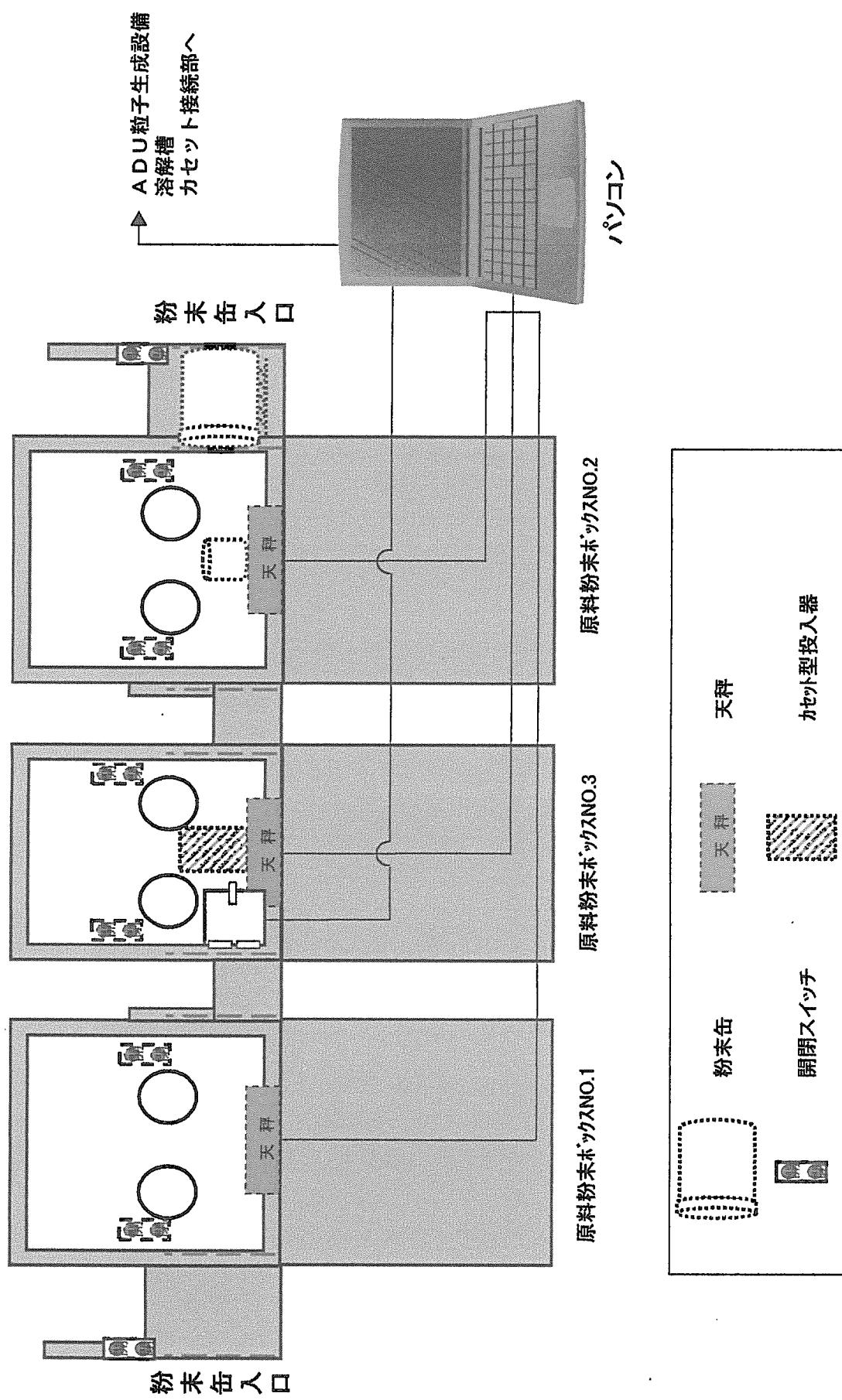


Fig.4-2 Concept of uranium weight restriction method.

This is a blank page.

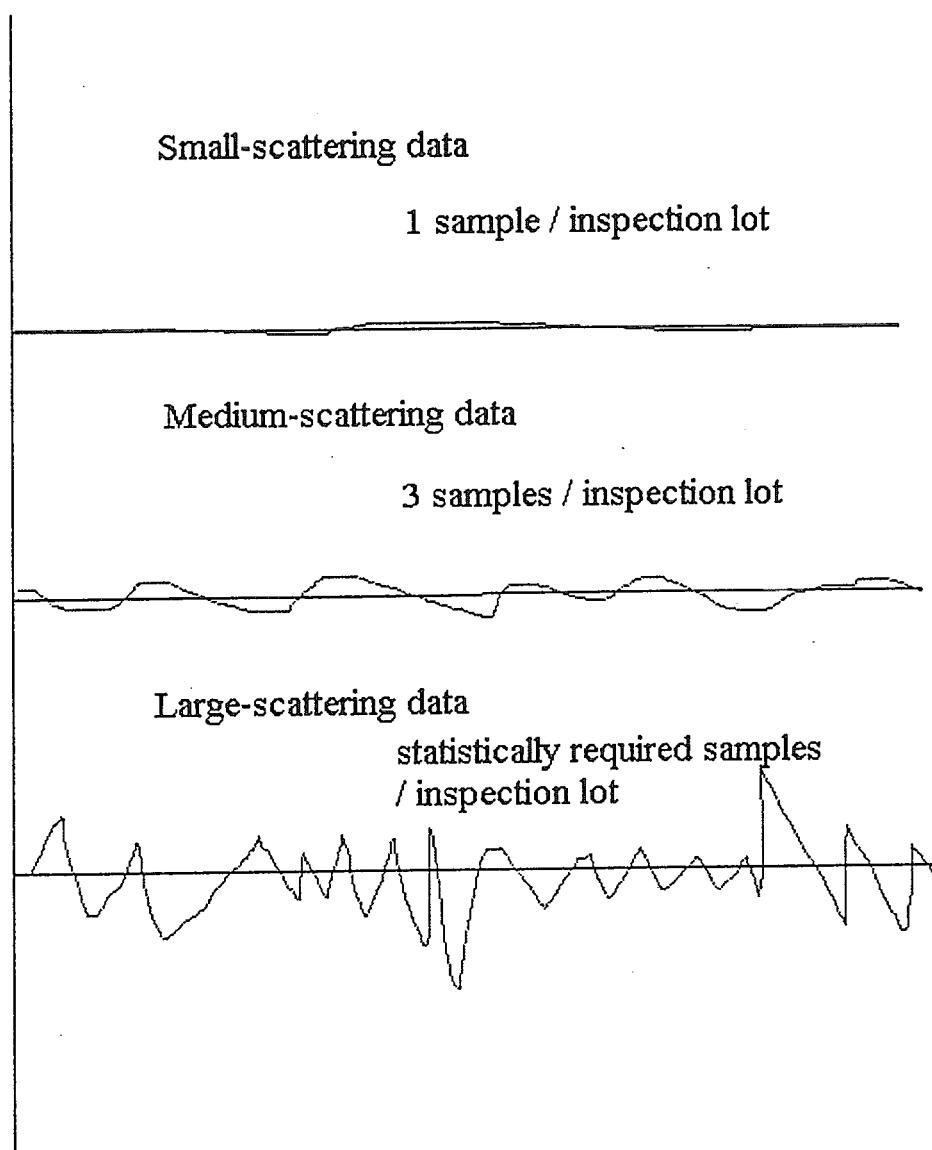


Fig.4-3 Basic concept of sampling rate in quality control of HTTR fuel.

5. まとめ

平成 11 年 9 月 30 日に発生した JCO 事故の重大さを踏まえ、HTR 燃料製造施設の臨界安全対策を以下のように検討した。

- ① 安全審査指針で改訂された、「特定のウラン加工施設のための安全審査指針」の関連する部分については、その趣旨を参考に対応をとることとし、現行設備の問題点を摘出し、対応策を検討した。
- ② 臨界事故を想定除外できるための対策を検討した結果、重要な湿式設備についてはインターロックを設置することとした。また、臨界及びその継続性の検知が可能なように、臨界モニターを設置することとした。
- ③ 湿式工程へのウラン投入量を制限するために、カセット型粉末投入器を追設するとともに、ガンマ線センサー及び液面センサーを設け、インターロックの多重化、多様化を図ることとした。
- ④ 製造設備の改造後、劣化ウランを用いたテストランを半年程度実施し、手順等を確認して安全性を十分確認した後、濃縮ウランを用いた実際の燃料製造を行う計画とした。
- ⑤ 濃縮度調製において、従来の大型貯槽による液状混合工程を削除した。このことによる濃縮度検査等の工程の増加は、原料ウラン粉末混合時の秤量記録により補完することにより、できるだけ小さくすることとした。

以上の検討を踏まえて設備の改造を行い、安全性に十分配慮して HTTR 第 2 次燃料を製造することとしている。

謝　　辞

本検討を行うに当たり、御指導、御助言いただいた馬場治 HTTR 開発部長をはじめとする同部の皆様方に感謝いたします。また、本検討にあたり、貴重な技術的アドバイスを頂いた安全性試験研究センター村松健原子炉安全評価研究室長をはじめとする同室の方々、計画調査室の渡部憲夫氏、燃料サイクル安全工学部臨界安全研究室の中島健氏に深く感謝いたします。また、本報の作成に当たり、貴重な御意見を頂いた物質科学研究部アクチノイド科学研究グループの湊和生グループリーダーに深く感謝いたします。

参　考　文　献

- (1) K. SAWA, T. TOBITA, H. MOGI, S. SHIOZAWA, S. YOSHIMUTA, S. SUZUKI, K. DEUSHI, "Fabrication of the First-Loading Fuel of the High Temperature Engineering Test Reactor", *J. Nucl. Sci. Technol.*, 36, 683 (1999).
- (2) S. SAITO, T.TANAKA, Y.SUDO, O.BABA, et al., "Design of High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR)", *JAERI-1332* (1994).
- (3) 小林紀昭、塩沢周策、林君夫、沢和弘、他：高温工学試験研究炉の燃料検査基準、*JAERI-M 92-079* (1992).
- (4) S. SHIOZAWA, K. SAWA, K. FUKUDA, N. KITAMURA, "The Status of HTGR Fuel Development in Japan", Proc. of IAEA TCM on Development Status of HTR and their Future Role, ECN Petten, Netherlands, 28-29 Nov., *ECN-R-95-026*, 206 (1995).
- (5) K. SAWA, S. SUZUKI, S. SHIOZAWA, "Safety Criteria and Quality Control of the High Temperature Engineering Test Reactor Fuel", *Nucl. Eng. Des.*, (2001) to be published.

This is a blank page.

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

| 量 | 名称 | 記号 |
|-------|--------|-----|
| 長さ | メートル | m |
| 質量 | キログラム | kg |
| 時間 | 秒 | s |
| 電流 | アンペア | A |
| 熱力学温度 | ケルビン | K |
| 物質量 | モル | mol |
| 光度 | カンデラ | cd |
| 平面角 | ラジアン | rad |
| 立体角 | ステラジアン | sr |

表3 固有の名称をもつSI組立単位

| 量 | 名称 | 記号 | 他のSI単位による表現 |
|-------------|--------|-------------|------------------|
| 周波数 | ヘルツ | Hz | s^{-1} |
| 圧力、応力 | ニュートン | N | $m \cdot kg/s^2$ |
| エネルギー、仕事、熱量 | パスカル | Pa | N/m^2 |
| 工率、放射束 | ジュール | J | $N \cdot m$ |
| 電気量、電荷 | ワット | W | J/s |
| 電位、電圧、起電力 | クロン | C | $A \cdot s$ |
| 電流、電圧 | ボルト | V | W/A |
| 電容量 | ファラード | F | C/V |
| 電気抵抗 | オーム | Ω | V/A |
| コンダクタンス | ジーメンス | S | A/V |
| 磁束密度 | ウェーバ | Wb | $V \cdot s$ |
| 磁束密度 | テスラ | T | Wb/m^2 |
| インダクタンス | ヘンリー | H | Wb/A |
| セルシウス温度 | セルシウス度 | $^{\circ}C$ | |
| 光束度 | ルーメン | lm | $cd \cdot sr$ |
| 照度 | ルクス | lx | lm/m^2 |
| 放射能 | ベクレル | Bq | s^{-1} |
| 吸収線量 | グレイ | Gy | J/kg |
| 線量当量 | シーベルト | Sv | J/kg |

表2 SIと併用される単位

| 名称 | 記号 |
|--------|-----------|
| 分、時、日 | min, h, d |
| 度、分、秒 | °, ', " |
| リットル | L, L |
| トントン | t |
| 電子ボルト | eV |
| 原子質量単位 | u |

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

| 倍数 | 接頭語 | 記号 |
|------------|------|-------|
| 10^{18} | エクサ | E |
| 10^{15} | ペタ | P |
| 10^{12} | テラ | T |
| 10^9 | ギガ | G |
| 10^6 | メガ | M |
| 10^3 | キロ | k |
| 10^2 | ヘクト | h |
| 10^1 | デカ | da |
| 10^{-1} | デシ | d |
| 10^{-2} | センチ | c |
| 10^{-3} | ミリ | m |
| 10^{-6} | マイクロ | μ |
| 10^{-9} | ナノ | n |
| 10^{-12} | ピコ | p |
| 10^{-15} | フェムト | f |
| 10^{-18} | アト | a |

(注)

1. 表1-5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。

2. 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。

3. barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。

4. EC閣僚理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

| 名称 | 記号 |
|----------|--------------|
| オングストローム | \AA |
| バーン | b |
| バール | bar |
| ガル | Gal |
| キュリ | Ci |
| レントゲン | R |
| ラド | rad |
| レム | rem |

$$1 \text{ \AA} = 0.1 \text{ nm} = 10^{-10} \text{ m}$$

$$1 \text{ b} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$$

$$1 \text{ bar} = 0.1 \text{ MPa} = 10^5 \text{ Pa}$$

$$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{ m/s}^2$$

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$$

$$1 \text{ rad} = 1 \text{ cGy} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ rem} = 1 \text{ cSv} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

換算表

| 圧 | MPa(=10 bar) | kgf/cm ² | atm | mmHg(Torr) | lbf/in ² (psi) |
|---|--------------------------|--------------------------|--------------------------|-----------------------|---------------------------|
| 力 | 1 | 10.1972 | 9.86923 | 7.50062×10^3 | 145.038 |
| 力 | 0.0980665 | 1 | 0.967841 | 735.559 | 14.2233 |
| | 0.101325 | 1.03323 | 1 | 760 | 14.6959 |
| | 1.33322×10^{-4} | 1.35951×10^{-3} | 1.31579×10^{-3} | 1 | 1.93368×10^{-2} |
| | 6.89476×10^{-3} | 7.03070×10^{-2} | 6.80460×10^{-2} | 51.7149 | 1 |

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s} (\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P(ボアズ)} (\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストークス)} (\text{cm}^2/\text{s})$$

| エネルギー・仕事・熱量 | J($=10^7 \text{ erg}$) | kgf·m | kW·h | cal(計量法) | Btu | ft · lbf | eV | 1 cal = 4.18605 J(計量法) | | |
|-------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|--------------------------|--|-----------------------------------|--|
| | 1 | 0.101972 | 2.77778×10^{-7} | 0.238889 | 9.47813×10^{-4} | 0.737562 | 6.24150×10^{18} | $= 4.184 \text{ J (熱化学)}$ | | |
| | 9.80665 | 1 | 2.72407×10^{-6} | 2.34270 | 9.29487×10^{-3} | 7.23301 | 6.12082×10^{19} | $= 4.1855 \text{ J (15 }^{\circ}\text{C)}$ | | |
| | 3.6×10^6 | 3.67098×10^5 | 1 | 8.59999×10^5 | 3412.13 | 2.65522×10^6 | 2.24694×10^{25} | $= 4.1868 \text{ J (国際蒸気表)}$ | | |
| | 4.18605 | 0.426858 | 1.16279×10^{-6} | 1 | 3.96759×10^{-3} | 3.08747 | 2.61272×10^{19} | 仕事率 | 1 PS(仏馬力) | |
| | 1055.06 | 107.586 | 2.93072×10^{-4} | 252.042 | 1 | 778.172 | 6.58515×10^{21} | | $= 75 \text{ kgf}\cdot\text{m/s}$ | |
| | 1.35582 | 0.138255 | 3.76616×10^{-7} | 0.323890 | 1.28506×10^{-3} | 1 | 8.46233×10^{18} | | $= 735.499 \text{ W}$ | |
| | 1.60218×10^{-19} | 1.63377×10^{-20} | 4.45050×10^{-26} | 3.82743×10^{-20} | 1.51857×10^{-22} | 1.18171×10^{-19} | 1 | | | |

| 放射能 | Bq | Ci | 吸収線量 | Gy | rad |
|-----|----------------------|---------------------------|------|----|-----|
| | 1 | 2.70270×10^{-11} | | 1 | 100 |
| | 3.7×10^{10} | 1 | 0.01 | 1 | |

| 照 射 線 量 | C/kg | R |
|------------------|-----------------------|------|
| | 1 | 3876 |
| | 2.58×10^{-4} | 1 |

| 線量当量 | Sv | rem |
|------|------|-----|
| | 1 | 100 |
| | 0.01 | 1 |

