

ホウ酸注入ホース内回収液の分析結果について

今中哲二

imanaka@rri.kyoto-u.ac.jp

一部の方にはすでにコピーを送ってありますが、沈澱槽から逆流したとされるホウ酸注入ホース内回収液の分析結果報告を3月に科学技術庁から入手しました。「残存ウラン溶液分析結果報告」という全5ページの平成12年1月17日付け原研報告です。科技庁のホームページには出ていないようなので、内容を簡単に紹介するとともに、いくつか問題を整理しておきます。なお、このメモ全体は古川路明さん（四日市大学）との議論に基づいてまとめたものです。

◇ ホース内残存液問題の経緯

科学技術庁事故調査対策本部は昨年11月4日、JCO事故に関する報告書と一連の資料を発表している。その報告の中で、臨界事故にともなう総核分裂数は 2.5×10^{18} であったとされている。この評価でもっとも大きな根拠となっているのは沈澱槽残存溶液の測定データ（11月4日原研報告）であった。簡単にいうと、溶液中のウラン濃度とFP放射能濃度の測定データから、ウラン1g当りの核分裂数が 1.5×10^{14} となるので、それに沈澱槽に投入したとされるウラン総重量16.6kgを掛けて総核分裂数としたものであった。

ところが、その資料では、10月20日に沈澱槽溶液をサンプリングした際の溶液量は37Lとされており、この溶液量とウラン濃度（279g/L）に基づく沈澱槽内ウラン量は10.3kgにすぎなかった。その後の話として、10月1日早朝に沈澱槽に消防ホースを使ってホウ酸水を注入した際にサイホン効果で沈澱槽内溶液が逆流し、その分沈澱槽内の溶液量が減ったということであった。

ホース内の残存液は昨年12月13日に回収され、回収溶液量は24.1Lであった（http://www.sta.go.jp/genan/jco/jco91214_1.html）。今回の報告は、その回収液を12月20日に50mLサンプリングして測定した結果である。

◇ 分析結果：沈澱槽内溶液との比較

沈澱槽内溶液の測定の場合と同様に、分析はAとBのふたつのグループが実施している。

表1 主な分析結果の比較

測定項目	ホース回収液		沈澱槽内溶液	
	A	B	A	B
ウラン濃度 (g/L)	173.9	174.0	278.9	279.3
ホウ素濃度 (g/L)	5.3	-	5.6	5.57
Na 濃度 (g/L)	8.0	-	4.2	3.95
Zr95 (Bq/mL)	2.17×10^5	2.31×10^5	2.68×10^5	3.28×10^5
Ru103 (Bq/mL)	1.78×10^5	1.96×10^5	2.53×10^5	2.81×10^5
Ba140 (Bq/mL)	1.14×10^6	1.17×10^6	1.59×10^6	1.80×10^6

注：放射エネルギーは、昨年9月30日10:35に補正した値。

◇ 考察いくつか

➤ 採取サンプルの代表性：その1

昨年10月20日に沈澱槽溶液をサンプリングした際、攪拌機が作動しなかったため、溶液を均一化させる作業が出来なかった。11月4日原研報告では、サンプルの代表性と均一性に問題がない理由として以下の4つをあげている。

- A．測定ウラン濃度（279g/L）と溶液量（56～61L）に基づくウラン量は15.6～17.1kgとなり、投入量16.6kgとの質量バランスが合う。
- B．沈澱槽のほぼ真ん中の位置から採取した。
- C．4種類のFPから求めた核分裂数が $(2.39 \sim 2.57) \times 10^{18}$ であり差が小さい。
- D．5.5g/Lというホウ素濃度が、十分攪拌して行った原研での予備実験と一致している。

Aのウラン質量バランスの話は、サンプリングしたときに沈澱槽内の残存溶液量が37Lしかなかったこととの関係に言及しておらず、話にならない。Bはサンプルの均一性を示す証拠ではない。Dのホウ素については、ホース内回収液との比較（表1）で示されているように、ウラン濃度や放射能濃度が異なってもホウ素濃度はほぼ等しくなっており、ホウ素濃度から均一性を主張することは出来ない。

Cについては後述する。

➤ 採取サンプルの代表性：その2

溶液サンプルの代表性、均一性を考えるにあたって、まず次の3つの問題がうかんでくる。

- a．サイホン効果による溶液逆流プロセスのとき、沈澱槽内溶液は均一であったか？
- b．10月20日の沈澱槽溶液サンプルは沈澱槽残存溶液を代表しているか？
- c．12月20日のホース内回収液サンプルは逆流溶液を代表しているか？

aについては、注入したホウ酸水と硝酸ウラニル溶液の比重差が大きく均一に混ざらないうちに逆流したとも考えられるし、消防ホースからの注入は結構高圧なのでただちに混ざったかもしれない（結局わからない）。bについては上記で述べたように、かなり頼りない。cについては、ホース内回収液としての代表性に問題はなさそうであるが、（回収液＝逆流液）とみなせるかという問題がある。

以上のように、沈澱槽溶液サンプルの代表性には疑問が残るが、当面の議論の土台として、『上記aとbは成立し、cについては、ホース内回収液は逆流液とホウ酸水が混合したもの』としておく。

➤ ウランの質量バランス

これまでの情報から、ウランの質量バランスをまとめると次のようになる。

表2 ウランの質量バランス

	ウラン濃度	容量	ウラン重量
沈澱槽内	279 g/L	37 L	10.3 kg
ホース内	174 g/L	24.1 L	4.2 kg
(合計)			14.5 kg

沈澱槽に投入したウラン量は16.6kgとされているので、2.1kg（13%）が行方不明である。このすべてが、ホース内濃度でこぼれたと仮定すると漏洩量は12Lとなり、沈澱槽サンプル濃度でこぼ

れたとすると 7.5L となる。

ウラン量のつじつまを合わせるには、

- i. かなりの量がホースからこぼれた。
- ii. 沈澱槽サンプルが残留液を代表していない。
- iii. ウラン投入量 16.6kg という数字がおかしい。

といったことが考えられる。(i)については、科技庁ホームページ (http://www.sta.go.jp/genan/jco/jco91015_12.html) に示されているように、ホースのジョイントで漏洩があったようだ。(iii)については、槌田敦さんら「JCO事故調査市民の会」の主張である、「沈澱槽に投入されたウランの量は 16.6kg ではなく、納入量である 40L の溶液を作るためには約 14.5kg だったはずだ」という見解と、表 2 のウラン量合計が一致している。

いずれにせよ、2.1kg ものウランの行方をはっきりさせるべきである。

➤ 溶液量のバランス

- ・事故発生の時点で沈澱槽内にあった溶液量は、45L ($16.6\text{kg} \div 370\text{g/L}$) と計算される。
(臨界事故中の蒸発量は、冷却水が回っていて案外少なそうなので、ここでは無視。)
(事故終息後 10 月 20 日までの自然蒸発分も無視して議論する。)
- ・沈澱槽溶液サンプルのウラン濃度は 279g/L であるから、(均一性が成立すると仮定しているので)
ホウ酸水注入後の溶液量は 60L ($=45 \times 370 / 279$) となり、ホウ酸水注入量は 15L となる。
- ・新聞報道 (99/10/22 朝日) によるホウ酸水注入量は約 17L であり、上の見積りとほぼ一致する。
- ・一方、10 月 20 日のサンプリング時点で沈澱槽の溶液量は 37L であった。
- ・従って、ホウ酸水の注入量を 15L とすると、サイホンで逆流した溶液量は 23L ということになる。

➤ U 濃度と Na 濃度

沈澱槽内溶液にはもともと Na は含まれておらず、すべての Na はホウ酸水とともに注入されたと仮定すると、ホウ酸水中の Na 濃度は $16 (=4.1 \times 60 / 15)$ g/L となる。

逆流液とホウ酸水が混ざり合ってホース内回収液ができあがったと考えているので、両者の Na 濃度から、逆流液のホース回収液中への混入率を求めると 0.67 になる。一方、ホース内のホウ酸水にはウランはなかったから、ウラン濃度から求めた混入率は 0.62 となる。2 つの混入率はまずまず一致しており、「均一性の仮定」をほどほどに支持するデータである。

表 3 ウラン濃度と Na 濃度から求めた逆流液の混入率

	沈澱槽	ホウ酸水	ホース回収液	混入率
ウラン濃度	279	0	174	0.62
Na 濃度	4.1	16	8.0	0.67

➤ ホウ素濃度

表 1 に示したように、ホース内回収液と沈澱槽溶液サンプルのホウ素濃度はほぼ等しい。11 月 4 日原研報告では、ホウ酸注入予備試験結果と沈澱槽サンプルのホウ酸濃度がほぼ同じであることが沈澱槽残存溶液の均一性を示している、と述べている。表 1 のデータはこの推論が成り立たないことを示している。注入されたホウ素濃度は明らかでないが、暖めたりしてかなり濃い溶液が用意されたであろう。「均一性の仮定」に基づいて注入ホウ酸水のホウ素濃度を求めると $22 (=5.6 \times 60 / 15)$ g/L となる。22g/L のホウ酸水であったとして、0.67 の逆流液混入率からホース内回収液の濃度を

見積もってみると約 11g/L となる。冷水のホウ素溶解度は約 9 g/L であり、さらに硝酸ウラニルなどがいろいろ溶けていればもっと下がるものと思われる。ホース内回収液中のホウ酸は飽和している（沈殿槽サンプルも？）とすれば、表 1 の数字が説明可能となる。

➤ FP 濃度

表 1 の FP 濃度から、表 3 と同じように混入率を求めると以下のようなになる。ウラン濃度や Na 濃度からの混入率に比べ、FP に基づく方が若干大きめの値である。また、核種間での違いは認められない、といてよい。

表 4 FP 濃度から求めた逆流液の混入率

核種	混入率	
	A	B
Zr95	0.81	0.70
Ru103	0.70	0.70
Ba140	0.72	0.65

➤ FP 濃度とウラン濃度の比

以上の考察から、ウランと FP とは結構同じように挙動していると考えてよいであろう。（少なくとも、極端な分離現象が生じているとは思われない。）このことは、「均一性の仮定」に疑問が残っても、FP 放射エネルギー / ウラン濃度比の値は“タフ”である可能性を示唆している。そこで、これまでのデータ（11 月 4 日報告と回収液分析報告）を使って、溶液中に含まれるウラン重量当り核分裂数をまとめてみたものが表 5 である（古川メモより）。

表 5 ウラン重量当りの核分裂数（/g・U）

核種	収率 (%)	沈殿槽溶液サンプル		ホース回収液サンプル	
		A	B	A	B
Zr95	6.52	1.18×10^{14}	1.44×10^{14}	1.52×10^{14}	1.62×10^{14}
Mo99	6.07	1.44×10^{14}	1.57×10^{14}	-	-
Ru103	3.03	1.47×10^{14}	1.57×10^{14}	1.65×10^{14}	1.82×10^{14}
I131	2.89	1.30×10^{14}	1.56×10^{14}	-	-
Cs137	6.18	1.17×10^{14}	-	-	-
Ba140	6.21	1.46×10^{14}	1.65×10^{14}	1.68×10^{14}	1.72×10^{14}
Ce144	5.49	1.68×10^{14}	-	-	-
(平均)		1.39×10^{14}	1.56×10^{14}	1.62×10^{14}	1.72×10^{14}

表 5 をながめると、沈殿槽より回収液の方が若干大きい傾向、A グループの分析値より B グループの方が若干大きい傾向が認められる。おおざっぱに言って、ウラン 1 g 当りの核分裂数は（1.4 ~ 1.7） $\times 10^{14}$ 個であったとしてよいだろう。

となると総核分裂数は、沈殿槽投入ウラン量を 16.6kg とすると、（2.3 ~ 2.8） $\times 10^{18}$ 個となり、11 月 4 日の科技庁報告と矛盾しない。また、「確認ウラン量」の 14.5kg に基づくと（2.0 ~ 2.5） $\times 10^{18}$ 個となる。

◇ まとめ

以上の検討結果をまとめると；

- ・ 沈澱槽に投入されたとする 16.6kg のウランのうち、2.1kg の行方が未確認である。
- ・ ホウ酸水注入量を 15L、サイホンによる逆流量を 23L とし、ホース回収液はホウ酸水と逆流液が混ざったものとする、ウラン濃度と Na 濃度は一応説明がつく。
- ・ 沈澱槽サンプルと回収液のホウ酸濃度がほぼ等しい。ホウ素濃度が飽和して析出したのかも知れないが、断定するには evidence が必要であろう。
- ・ 測定データが示されている FP 核種とウランは、ほぼ同じような挙動を示しており、大きな fractionation は認められない。
- ・ ウラン 1 g 当りの核分裂数は $(1.4 \sim 1.7) \times 10^{14}$ 個となり、総核分裂数は $(2.0 \sim 2.8) \times 10^{18}$ 個の間であろう。

結局、本メモの検討結果は、“頼りない” 11 月 4 日科技庁報告の評価と矛盾しなかった。よりキチンとした評価を行うため、沈澱槽回収液の再サンプリング・再測定、ならびにホースからの漏洩量の評価が必要なことを強調しておきたい。

以上

・「残存ウラン溶液分析結果報告」日本原子力研究所、平成 12 年 1 月 17 日、全 5 ページについては、コピー（PDF）をこちらのサーバーから download できるようにしてあります。必要な方は imanaka@rri.kyoto-u.ac.jp まで連絡願います。

◇ 余計なひとこと

「株式会社ジェー・シー・オー東海事業所において起った臨界事故は、定められた作業基準を逸脱した条件で作業者が作業を行った結果、生じたものである。従って直接の原因は全て作業者の行為にあり、責められるべきは作業者の逸脱行為である」

何げなく読むと“悪かったのは作業者だ”と断定しているようなこの文章は、原子力安全委員会・JCO 臨界事故調査委員会最終報告書の最終章「委員長所感（結言にかえて）」（http://sta-atm.jst.go.jp/jco/jco11/siryo11-4-1_20.htm）の冒頭である。臨界事故の責任を現場作業者に問うことができないことは、事実関係を少しでも follow すれば分かることで、事故調の委員長が「責められるべきは作業者である」と考えたとは私には思えない。上記の文章からいったい何を読みとるべきなのだろうか？