

JAERI-M
84-219

ウラン・プルトニウム溶液系の臨界計算 II
(硝酸溶液系の基本的臨界パラメータの検討)

1984年12月

三好 慶典・阿見 則男・館盛 勝一

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 Division, Department
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 山田軽印刷所

ウラニウム・プルトニウム溶液系の臨界計算Ⅱ
(硝酸溶液系の基本的臨界パラメータの検討)

日本原子力研究所東海研究所安全工学部
三好 慶典・阿見 則男・館盛 勝一

(1984年11月5日受理)

硝酸ウラニル，硝酸プルトニウム，及びU/Pu混合硝酸溶液についての臨界実験を行う臨界安全性実験施設(CSEF)の設計作業を進めている。

核設計及び臨界安全設計において，溶液燃料の臨界量及び体系の増倍係数等の臨界パラメータを評価する場合，燃料密度及び構成原子の個数密度を臨界計算コードの入力として求める必要がある。本報第Ⅰ部でCSEF設計用として原子個数密度算出式を提案したが，ここでは，第Ⅰ部に引き続き，上記3種の燃料の基本的な臨界パラメータを評価した。

計算体系としては，無限体系，水反射円筒体系を選択し，燃料濃度，同位体組成，溶液酸性度及び原子価等の臨界条件への効果について検討を行った。計算コードとしてはJACSコードシステムのKENO-IVを用いている。

Calculation of Critical Parameters for Uranium
and/or Plutonium Nitrate Solution, II
(Discussion of Basic Critical Parameters
for Nitrate Solution System)

Yoshinori MIYOSHI, Norio AMI and Shoichi TACHIMORI

Department of Nuclear Safety Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received November 5, 1984)

For the purpose of criticality experiments of the nitrate solution systems composed of uranium and/or plutonium, the designs of Criticality Safety Experimental Facility(CSEF) are under-going in JAERI.

In this report, by using the developed calculational code for the atomic number density of the nitrate solution of U/Pu mixture, the ratio H/Fissile has been calculated as a function of fuel concentration and acidity.

Critical parameters such as infinite multiplication factor, effective multiplication factor, and the critical diameter of infinite cylinder have been evaluated with Monte Carlo code KENO-IV of JACS system.

The dependence of multiplication factors on the formula for the atomic number density is described by comparing the calculated results with our formula and those with ARH-600 formula.

Based on our formula, the effects of acid molality and Plutonium valence state on the criticality of nitrate solution have been discussed.

Keywords: Criticality Safety, CSEF, Atomic Number Density, Acidity, Pu Valence State, Uranium, Plutonium, Nitrate Solution, KENO-IV, Monte Carlo Code, Critical Parameters, Critical Mass

目 次

1. 序 論	1
2. 計算体系	2
2.1 硝酸プルトニウム溶液	2
2.2 硝酸ウラニル溶液	3
2.3 ウラン・プルトニウム混合硝酸溶液	3
3. 計算手法	5
3.1 原子個数密度	5
3.2 臨界パラメータ	5
4. 結果と考察	10
4.1 原子個数密度	10
4.2 無限増倍係数	23
4.3 円筒体系の実効増倍係数	30
4.4 無限円筒体系の臨界直径	35
4.5 円筒直径と実効増倍係数の関係	37
4.6 プルトニウム濃度と中性子スペクトル	44
5. まとめ	57
参考文献	58

CONTENTS

1.	Introduction	1
2.	Calculational system	2
2.1	Plutonium nitrate solution	2
2.2	Uranyl nitrate solution	3
2.3	Mixture of uranyl and plutonium nitrate solution	3
3.	Calculational method	5
3.1	Atomic number density	5
3.2	Critical parameter	5
4.	Result and discussion	10
4.1	Atomic number density	10
4.2	Infinite multiplication factor	23
4.3	Effective multiplication factor of cylinder system	30
4.4	Critical diameter of the infinite cylinder	35
4.5	Dependence of K_{eff} on the cylinder diameter	37
4.6	Plutonium concentration and neutron spectrum	44
5.	Summary	57
	References	58

1. 序 論

現在原研では、原子炉以外の核燃料施設に対する臨界安全性研究の一環として、核燃料サイクルで取扱われる種々の物理的・化学的形態の燃料について臨界実験が可能な臨界安全性実験施設（Criticality Safety Experimental Facility：CSEF）の設計作業を進めている。CSEFにおいて硝酸プルトニウム、硝酸ウラニル及びプルトニウム・ウラン混合硝酸溶液等、棒状燃料以外の溶液状燃料についての臨界実験を安全にかつ効果的に遂行するためには、臨界実験装置、燃料供給系及び燃料貯蔵設備の設計において使用する燃料の基本的な臨界特性を広い範囲にわたって評価し、その計算結果の信頼性を把握しておく事が不可欠である。

溶液状燃料の臨界量、体系の実効増倍係数等の臨界パラメータを評価する場合、溶液状燃料の化学形態、燃料濃度、同位体組成及び硝酸濃度から、燃料の密度及び構成原子の個数密度を臨界計算コードの入力として求める必要がある。このために、硝酸プルトニウム溶液及びプルトニウム・ウラン混合溶液に対する原子個数密度の算出式を導出し、本報の第I部『溶液密度と原子個数密度の考察』⁽¹⁾で報告した。

本報では第I部に引き続き、臨界設計上重要である溶液状燃料に対して上記の算出式により原子個数密度を求め、JACSコードシステム⁽²⁾のモンテカルロコードKENO-IVを用いて、基本的な臨界パラメータを計算した。硝酸プルトニウム溶液に関しては、燃料濃度、同位体組成、酸性度をパラメータとして無限増倍係数 K_{∞} を求め、ARH-600⁽³⁾に記載されているH/X（H：水素、X：核分裂性核種）計算式より求めた原子個数密度を用いた計算結果と比較対照し、CSEF設計で採用している原子個数密度算出式の妥当性についての検討を行った。また、基本形状として円筒体系を選択し、体系の実効増倍係数 K_{eff} 及び無限長円筒の臨界直径 D_c に対する硝酸濃度、プルトニウム原子価の効果等について評価を行った。

硝酸ウラニル・プルトニウム混合溶液に対しては、核分裂性物質が低濃度の場合及び高濃度の場合について、完全水反射円筒体系の実効増倍係数及び臨界直径を求め、これらの臨界パラメータの酸性度、プルトニウム原子価に対する依存性を検討した。

またここでは、各溶液状燃料の円筒体系について燃料領域の中性子スペクトル、及び4因子解析による高速核分裂効果、共鳴吸収を逃れる割合等の計算結果についても報告する。

2. 計 算 体 系

設計を進めているCSEFの溶液タンク型臨界実験装置に使用する溶液燃料は大別して硝酸プルトニウム溶液、硝酸ウラニル・プルトニウム混合溶液及び硝酸ウラニル溶液の3種である。実験では、燃料溶液の燃料組成、濃縮度、燃料濃度、硝酸濃度等を基本的パラメータとして円筒、平板及び円環等各形状に対するベンチマークデータを取得することを目的としている。また、溶液燃料の臨界性に対する中性子毒物（固定毒物・可溶性毒物）の効果、反射体効果及び複数ユニットの相互干渉効果についても実験を予定している。

臨界実験装置本体の設計においては、臨界実験装置が上記の実験パラメータ範囲をカバーする性能を実現することを保証する事が必要であり、また同時に実験で使用する溶液燃料の調整を行なう核燃料供給系及び使用した燃料を貯蔵する燃料貯蔵設備の臨界安全性を、確実に担保することが要求される。

本報では、臨界安全上最も厳しい硝酸プルトニウム溶液を中心に、上記の3種の溶液燃料について、基本的な臨界特性を評価した。

2.1 硝酸プルトニウム溶液

硝酸プルトニウム溶液系の臨界条件に影響を及ぼす主要な因子は、Pu濃度、Pu同位体比、及び溶液の酸性度である。本報では、以下の燃料条件について、原子個数密度をCSEF設計用算出式と、ARH-600算出式を用いて計算し、無限増倍係数及び無限円筒臨界直径等の臨界パラメータを評価した。

- (1) Pu濃度；10, 20, 40, 60, 80, 100, 200, 400, 600, 800, 1000 gPu/ℓ
- (2) Pu同位体比及び酸性度
 - ① ^{239}Pu 100 w/o (0, 3, 6 M)
 - ② $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ 80/20 w/o (0 M)
- (3) 温度 300 °K

硝酸プルトニウム溶液は、通常酸性度が3～5Mの範囲で溶解性が高く、酸性度が大きく変動するとPuの沈殿あるいはポリマーを生成する。また複数の原子価状態が存在し、臨界上注意が必要である。本報では上記の燃料条件の変動による効果を調べるために、以下に示す燃料について、有限円筒体系（20 cmφ, 30 cmH, 水全反射）の実効増倍係数を評価した。

<条件1>

- (1) Pu濃度；350 gPu/ℓ
- (2) Pu同位体比； ^{239}Pu 100%
- (3) 酸性度；3 M
- (4) 温度；300 °K
- (5) Pu原子価；

- (i) Pu(IV) 100 %
- (ii) Pu(VI) 100 %
- (iii) Pu(IV)/Pu(VI) 68.25 %/31.75 %

<条件 2>

- (1) Pu 濃度；200 gPu/ℓ
- (2) Pu 同位体比；²³⁹Pu 100 %
- (3) 酸性度；0, 3, 6 M
- (4) 温度；300 °K

2.2 硝酸ウラニル溶液

CSEF で行う臨界・未臨界実験の硝酸ウラニル溶液は、²³⁵U濃縮度 10 %までの低濃縮ウラン燃料である(4, 6, 10 %の3種類)。

U濃度範囲は800 g/ℓ以下とし、昇温実験も実施する計画である。

ここでは、一次的なパラメータサーベイとして以下に示す燃料条件について、無限増倍係数の評価を行った。

- (1) U濃度；10, 20, 40, 60, 100, 200, 400, 600, 800 gU/ℓ
- (2) U濃縮度；²³⁵U 10 %
- (3) 酸性度；0, 3 M
- (4) 温度；300 °K

臨界計算においては、CSEF 設計用原子個数密度算出式を使用した。

2.3 ウラン・プルトニウム混合硝酸溶液

U/Pu混合硝酸溶液については、Pu富化度、Pu・U濃度、Pu同位体比、U濃縮度及び酸性度等、臨界条件を決定する因子が多く、また各国のハンドブック等にも十分実証された原子個数密度の算出法の記載が不足しているために、溶液の臨界特性に関する報告は限られている。

また工程の臨界安全設計においても、プルトニウム富化度等の燃料条件を確実に制御しない限り、混合硝酸溶液に対しては、ウランをPuとみなして評価し安全裕度を持たせているのが現状である。

本報第I部で著者らは、U/Pu混合硝酸溶液系の燃料密度及び原子個数密度算出式について有効な実験値との比較等を報告したが、溶液条件を特徴づける種々のパラメータについてさらに検証を重ねると共に、臨界計算による臨界条件算出値に対する検討が必要であると考えられる。

本報では、上記の特性評価の第1ステップとして、CSEF設計用として提出した原子個数密度式をベースに、以下に示す燃料の有限円筒体系の実効増倍係数を評価した。

<条件1>

- (1) 燃料濃度；197 gU/ℓ, 345 gPu/ℓ
- (2) Pu 同位体比；²³⁹Pu 100 %
- (3) U 同位体比；天然ウラン
- (4) 酸性度；2.0, 6.9 M
- (5) 温度；300 ℔

<条件2>

- (1) 燃料濃度；178 gU/ℓ 357 gPu/ℓ
- (2) Pu 同位体比；²³⁹Pu 100 %
- (3) U 同位体比；天然ウラン
- (4) 酸性度；7.5 M
- (5) Pu 原子価；Pu(IV), Pu(VI)

3. 計 算 手 法

3.1 原子個数密度

本報第1部にあるように、ウラン系溶液については、Moekenの式

$$\begin{aligned}\rho_{25} &= 1.0171 + 1.2944 \times 10^{-3} \times C_U + 0.0289 \times C_{HN} \\ \rho_t &= 1.0125 \times \rho_{25} + 0.000145 \times t - 0.0005 \times \rho_{25} \times t - 0.0036\end{aligned}\quad (3-1)$$

を用い、プルトニウム系溶液では、Maimoniの式

$$\begin{aligned}\rho &= 0.99708 + 1.65625 \times 10^{-3} \times C_{Pu} + 3.2959 \times 10^{-2} \times C_{HN} - 5.9915 \times 10^{-4} \times T \\ &\quad - 4.8706 \times 10^{-5} \times C_{Pu} \times C_{HN} - 1.4217 \times 10^{-6} \times C_{Pu} \times T - 3.418 \times 10^{-8} \times C_{Pu}^2\end{aligned}\quad (3-2)$$

を用いる。ここで t は溶液温度 ($^{\circ}\text{C}$)、 $T = t - 25$ ($^{\circ}\text{C}$)、また C_U 、 C_{Pu} 、 C_{HN} はそれぞれウラン、プルトニウムの濃度 (g/ℓ) と酸性度 (M) を表わしている。

ウラン-プルトニウム混合系では、前出二式より導出した混合溶液の密度式

$$\rho_{U+Pu} = R_U \times \rho_U(U+Pu) + R_{Pu} \times \rho_{Pu}(U+Pu) - R_U \times C_{Pu} \left(\frac{1.50 \times 10^{-3}}{C_N} - 3.05 \times 10^{-4} \right)\quad (3-3)$$

を用いる。ここで

$$R_U = \frac{C_U}{C_U + C_{Pu}}, \quad R_{Pu} = \frac{C_{Pu}}{C_U + C_{Pu}} \quad \text{また、}$$

$\rho_U(U+Pu)$ は溶液中の U と Pu を全部 U と見たときの密度で、(3-1) 式を用いて計算し、 $\rho_{Pu}(U+Pu)$ は同様に U と Pu を全部 Pu と見たときの密度で (3-2) 式により求める。 C_N は溶液中の硝酸根濃度で、 C_{UN} 、 C_{PN} 、 C_{HN} をそれぞれ U、Pu、 H^+ のモル濃度として、

$$C_N = 4C_{PN} + 2C_{UN} + C_{HN}$$

で得られる。

原子個数密度は、これらの式を用い、溶液密度と単位体積当りの溶質重量との関係から計算する。

密度 ρ と溶質重量との関係は、溶液 1ℓ として

$$\begin{aligned}1000 \rho &= C_U + C_{Pu} + C_{HN} \times M_H + \{ 2 \times C_U \times M_U^{-1} + 4 C_{Pu} M_{Pu}^{-1} + C_{HN} \} \times M_{NO_3} \\ &\quad + 2 C_U \times M_U^{-1} \times M_O + C_{H_2O} \times M_{H_2O}\end{aligned}\quad (3-4)$$

と表わされる。

ここで

C_U ウランの濃度 (g/ℓ)

C_{Pu} プルトニウムの濃度 (g / ℓ)

C_{HN} 酸性度 (M)

C_{H_2O} 水の濃度 (M)

M_H 水素の原子量

M_O 酸素の原子量

M_U ウランの原子量

M_{Pu} プルトニウムの原子量

M_{H_2O} 水の分子量

M_{NO_3} 硝酸根の分子量

である。

A_0 をアボガドロ数とすれば、各成分の原子個数密度は

$$U = C_{UN} \times A_0$$

$$Pu = C_{PN} \times A_0$$

$$H = (C_{HN} + 2C_{H_2O}) \times A_0$$

$$N = (C_{HN} + 2C_{UN} + 4C_{PN}) \times A_0$$

$$O = (C_{H_2O} + 3C_{HN} + 8C_{UN} + 12C_{PN}) \times A_0$$

で得られる。

3.2 臨界パラメータ

使用計算コードは原研の JACS システムにあるモンテカルロコード KENO-IV で、現在種々の燃料の臨界体系に対してベンチマーク計算を実施し、開発・整備を進めているものである。^(4,5) 今回の計算では、多群定数ライブラリーとして原研で整備した MGCL-137 群のマスターライブラリーを用いた。MGCL の多群定数は中性子遮蔽因子 $f(\sigma^0, T)$ と無限希釈断面積 σ_0^{∞} により表現され、また中性子スペクトルに関しては核分裂スペクトル、 $1/E$ スペクトル及びマクスウェル分布から作成した標準スペクトルが内蔵されている。

KENO-IV コードで用いる巨視的実効断面積 Σ_{eff}^0 は、処理コード MAIL により計算体系の各領域について入力された原子個数密度と幾何形状を基に計算される。JACS システムの計算フローの概略を Fig. 3.2.1 に示し、中性子エネルギーの群構造を Table 3.2.1 に示す。本報で報告されている計算における KENO-IV に関する計算条件は以下の通りであり、CSEF の核設計においては統一して用いている。

- | | |
|--------------|-----|
| ① エネルギー群数 | 137 |
| ② 一世代当りの中性子数 | 300 |
| ③ 計算世代数 | 103 |
| ④ スキップ世代数 | 3 |
| ⑤ 初期中性子発生分布 | 平坦 |
| ⑥ 中性子平均重み | 0.5 |

Table 3.2.1 Energy structure of MGCL

Group No		Upper Energy	Lethergy	Group No		Upper Energy	Lethergy
26Gr	137Gr	Boundary	width ΔU	26Gr	137Gr	Boundary	width ΔU
1	1	16.487 Mev	0.125	4	38	161.63 Kev	0.125
	2	14.550	0.125		39	142.64	0.125
	3	12.840	0.125		40	125.88	0.125
	4	11.331	0.125		41	111.09	0.125
	5	10.000	0.125		42	98.037	0.125
	6	8.825	0.125		43	86.517	0.125
	7	7.788	0.125		44	76.351	0.125
	8	6.8729	0.125		45	67.379	0.125
	9	6.0653	0.125		46	59.462	0.125
	10	5.3526	0.125		5	47	52.475
2	11	4.7239	0.125	48		46.309	0.125
	12	4.1686	0.125	49		40.868	0.125
	13	3.6788	0.125	50		36.066	0.125
	14	3.2465	0.125	51		31.828	0.125
	15	2.8650	0.125	52		28.088	0.125
	16	2.5284	0.125	53		24.788	0.125
	17	2.2313	0.125	54		21.875	0.125
	18	1.9691	0.125	55	19.305	0.125	
	19	1.7377	0.125	56	17.036	0.125	
	20	1.5335	0.125	6	57	15.034	0.25
	21	1.3533	0.125		58	11.709	0.25
	22	1.1943	0.125		59	9.1188	0.25
3	23	1.0540	0.125		60	7.1017	0.25
	24	930.14 Kev	0.125	7	61	5.5308	0.25
	25	820.85	0.125		62	4.3075	0.25
	26	724.40	0.125		63	3.3546	0.25
	27	639.28	0.125		64	2.6126	0.25
	28	564.16	0.125		65	2.0347	0.25
	29	497.87	0.125		66	1.5846	0.25
	30	439.37	0.125		67	1.2341	0.25
	31	387.74	0.125		68	961.12 ev	0.25
	32	342.18	0.125		69	748.52	0.25
	33	301.97	0.125	8	70	582.95	0.25
	34	266.49	0.125		71	454.00	0.25
	35	235.18	0.125		72	353.58	0.25
	36	207.54	0.125		73	275.36	0.25
4	37	183.16	0.125		74	214.45	0.25

Table 3.2.1 (Continued)

Group No		Upper Energy	Lethergy
26Gr	137Gr	Boundary	width ΔU
8	75	167.02 ev	0.25
9	76	130.07	0.25
	77	101.30	0.25
	78	78.893	0.25
	79	61.442	0.25
	80	47.851	0.25
10	81	37.267	0.25
	82	29.023	0.25
	83	22.603	0.25
	84	17.603	0.25
	85	13.710	0.25
11	86	10.677	0.25
	87	8.3153	0.25
	88	6.4760	0.25
	89	5.0435	0.25
12	90	3.9279	0.25
	91	3.0590	0.25
	92	2.3824	0.25
13	93	1.8554	0.125
	94	1.6374	0.125
14	95	1.4450	0.125
	96	1.2752	0.125
15	97	1.1254	0.125
	98	0.99312	0.125
16	99	0.87642	0.125
	100	0.77344	0.125
17	101	0.68256	0.125
	102	0.60236	0.125
	103	0.53158	0.125
	104	0.46912	0.125
18	105	0.41399	270m/sec
	106	0.38925	270
	107	0.36528	270
19	108	0.34206	270
	109	0.31961	270

Group No		Upper Energy	Lethergy
26Gr	137Gr	Boundary	width ΔU
17	110	0.29792 ev	270m/sec
18	111	0.27699	270
	112	0.25683	270
	113	0.23742	270
19	114	0.21871	270
	115	0.20090	270
	116	0.18378	270
20	117	0.16743	270
	118	0.15183	270
	119	0.13700	270
21	120	0.12293	270
	121	0.10962	270
	122	0.09708	270
22	123	0.085295	270
	124	0.074274	270
	125	0.064015	270
23	126	0.054518	270
	127	0.045783	270
	128	0.037811	270
24	129	0.030600	270
	130	0.024152	270
	131	0.018465	270
25	132	0.013541	270
	133	0.009379	270
	134	0.005979	270
26	135	0.003341	270
	136	0.001466	270
	137	0.000352	270
		0.000033	270

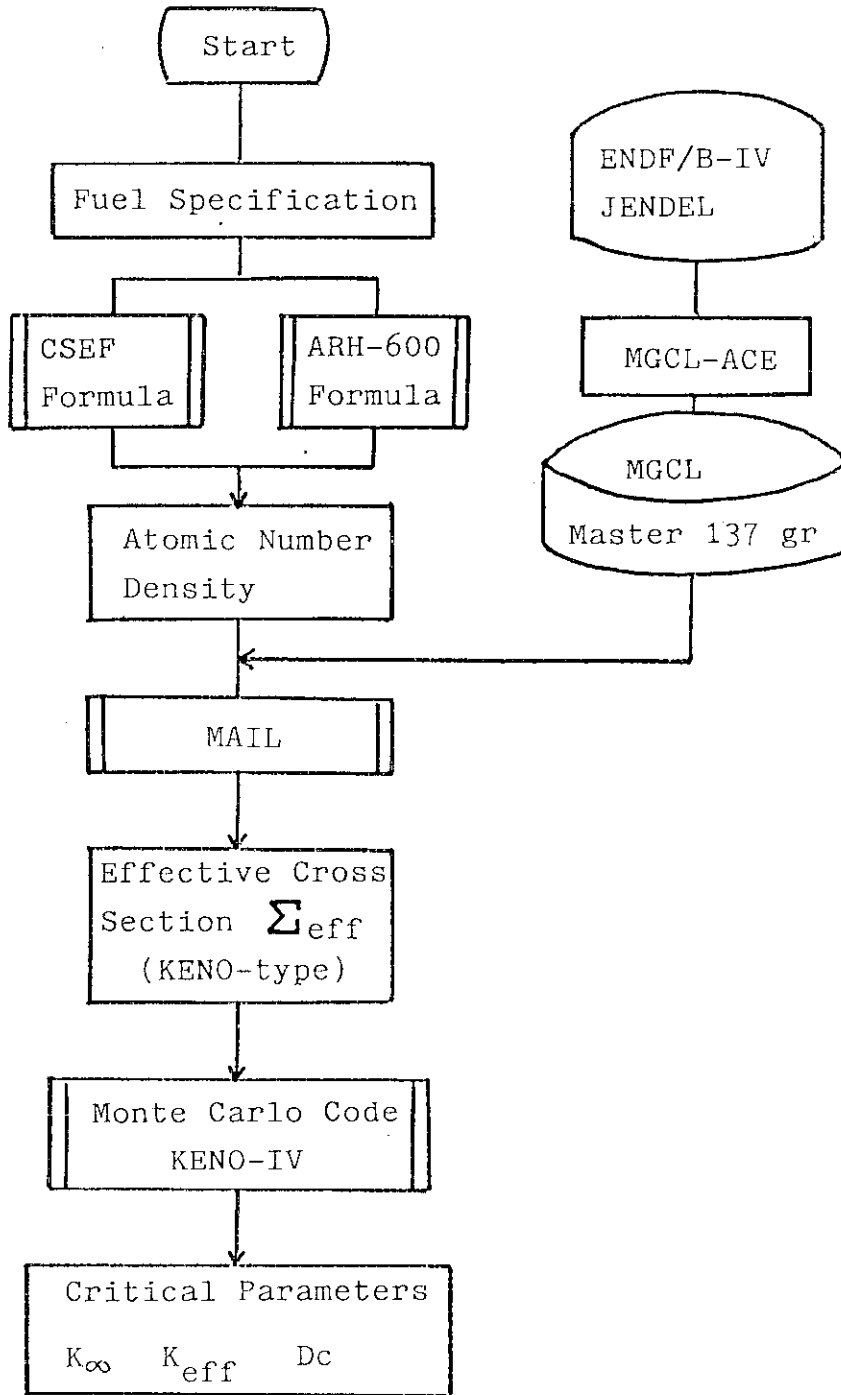


Fig. 3.2.1 General calculational flow

4. 結果と考察

4.1 原子個数密度

4.1.1 原子個数密度

Table 4.1.1 に硝酸ウラニル溶液の代表的なウラン濃度及び酸性度に対する原子個数密度の計算結果を示す。

Table 4.1.2 に硝酸プルトニウム溶液の代表的なプルトニウム濃度及び酸性度に対する原子個数密度の計算結果を示す。同Tableにはまた、ARH-600によるH/Pu値から計算した原子個数密度も示してある。これは、次の方法により計算した。

- (1) H/Pu 値を計算する。
- (2) Pu 及び酸性度の条件から Pu 原子数を計算し、これらに伴う硝酸根に含まれる N 及び O 原子数を計算する。
- (3) H/Pu 値に Pu 原子数を乗じて、全 H 原子数を計算し、酸性度から計算された H 原子数を差し引いた残りを H_2O によるものとする。
- (4) H_2O に含まれる O 原子数を計算する。

以上で全成分原子数が計算できる。

一例として Fig. 4.1.1 に本報採用式で計算したプルトニウム溶液における Pu 濃度と酸性度の変化にともなう全成分原子個数密度の変化の様子を示す。Fig. 4.1.2 ~ 4.1.4 に、それぞれ酸性度 0.3, 6 M における Pu 濃度の変化にともなう H 原子数の変化を ARH-600 による値もあわせて示す。燃料濃度の高い領域では本報採用値の方が H 原子数を少なく見積っており、この傾向は酸性度が高くなるにつれて大きくなる。

4.1.2 減速材対燃料原子個数比 (H/Fissile)

H/Fissile は、3.1にある原子個数密度の計算から容易に得られる。また、諸外国のハンドブック等から簡単な近似計算、あるいは図の読み取り値として得られる。

各国のハンドブックにある H/Fissile の値はウラン系では、高濃縮ウランの、金属-水系、酸化物-水系、硝酸ウラニル-水系が、また Pu 系では、 ^{239}Pu 100% で、金属-水系、酸化物-水系、硝酸プルトニウム-水系がそれぞれ主であり、他にはフッ化物系等がある。本報では、ウラン系は低濃縮ウランを対象としているためウラン系については諸外国との比較が行なえなかった。ウラン系について本報採用式による計算結果を Table 4.1.3 に、またプルトニウム系については、Table 4.1.4 に本報採用式による計算結果と ARH-600 による計算結果を示す。

(a) 燃料濃度と H/Fissile との関係

(1) 硝酸ウラニル系

Fig. 4.1.5 に H/Fissile と U 濃度の関係を示す。

U は天然 U とした。H/Fissile は U 濃度変化 $10\text{g}/\ell$ (U-235 で $0.072\text{g}/\ell$) から

1,000 g/l に対応して約 3.5×10^5 から約 2.5×10^3 まで変化する。U 濃度が低い溶液中では、 H_2O の割合が大きいため U が増加したことによる H_2O の減少率は比較的小さく $H/^{235}U$ 計算における水素原子数はほぼ一定と見てよい。一方 U 濃度が高い溶液中では、 H_2O の量が少ないため、U により排除された H_2O の割合は大きくなり、 $H/^{235}U$ の値の減少率は U 濃度が低い場合に比較してずっと大きくなっていく。

(2) 硝酸プルトニウム系

Fig. 4.1.6 に $H/Fissile$ と Pu 濃度の関係を示す。Pu は ^{239}Pu 100% とした。 $H/Fissile$ の値は、Pu 濃度変化 10 g/l から 1000 g/l に対応して約 2500 から約 15 まで変化する。変化のパターンは、ほぼ硝酸ウラニルの場合と同様で、Pu 濃度の高い領域では、 $Pu(NO_3)_4$ の増加による H_2O の減少の効果が現われている。この効果の現われ方は、ARH-600 にある計算式よりも本報採用式の方が大きく、Pu 濃度が 1000 g/l の場合には、ARH-600 による値は、本報採用式の値に対して水素原子数を 9.65% 大きく評価している。

(b) $H/Fissile$ と酸性度の関係

(1) 硝酸ウラニル系

Fig. 4.1.7 に $H/Fissile$ と酸性度との関係を示す。U 濃度が一定の場合には、酸性度の増加により $H/Fissile$ 値はゆるやかに小さくなる。異なった U 濃度においても $H/Fissile$ は酸性度の変化に対して同様な変化を示す。

(2) 硝酸プルトニウム系

Fig. 4.1.8 に $H/Fissile$ と酸性度との関係を示す。

濃度の低い領域においては、酸性度の変化に対する $H/Fissile$ の変化は比較的小さく硝酸ウラニル系と同様な変化を示している。しかし、Pu 濃度が高い領域 (> 400 g/l) では、酸性度の変化に対する $H/Fissile$ の変化は大きくなる。Pu 濃度が 1,000 g/l の場合、酸性度の 0 から 6 M までの変化に対して H/Pu は 15 から 4 まで変化しているが硝酸ウラニル系ではこれほど大きな $H/Fissile$ の変化は現われない。この相異は、燃料原子に配位した硝酸根の数の違いによっている。 $Pu(NO_3)_4$ は $UO_2(NO_3)_2$ の 2 倍の硝酸根を伴うので同一燃料濃度ではプルトニウム溶液の方が硝酸根は多い。金属原子と硝酸根以外は H^+ と H_2O が占めるというモデルで見れば、金属原子数が多い領域では、Pu 溶液の方が H^+ と H_2O が占有できる部分が少ない。加えて、酸性度が増加すれば、硝酸分子 1 個入ることにより H_2O 分子約 1.7 個が排除される。

したがって H^+ が 1 M の増加で H_2O にともなう H 原子が 3.4 M 分減少し、差し引き 2.4 M の H 原子の減少となる。以上の結果、Pu 濃度が大きな溶液中における H/Pu の値は U 系に比べて格段に小さいことになる。

また、同図には ARH-600 による $H/Fissile$ 計算値もプロットしてある(破線)が、上記のような現象がよく評価されていないようである。

本報採用式による値と ARH-600 の値とを比較すると、酸性度が高い場合の低濃度領域 (≤ 40 g/l) で本報採用式の方が ARH-600 の値よりもわずかに ($\leq 1.1\%$) 大きくなるが、酸性度が高い中・高濃度領域及び 0 M の全濃度領域にわたって本報採用式による H/Pu 値は ARH-600 式に比べて小さくなっている。

中濃度領域 (40~200 g/l) における ARH-600 式による H/Pu の本報採用式による値との相対比は酸性度が高くなる程大きく、燃料濃度が 200 g/l の場合酸性度が 0.3, 6 M に対して、ARH-600 の式は本報採用式に対して、H/Pu の値を各々 0.9, 1.0, 6.6% 高く評価している。溶液の酸性度が一定の場合、H/Pu 値の両者の相対比は、燃料濃度が高くなるにつれて大きくなる傾向を示し、溶液の酸性度が高い (~ 6 M) と燃料濃度が低い領域で有意な差が表われている。

従って、H/Pu 値の両算出方法による差異が臨界制限値へ及ぼす効果は、酸性度 0 M の高濃度領域及び 3.6 M の中高濃度領域において、各々低濃度領域に比べて大きくなると考えられる。

(c) 本報採用式と各国ハンドブックの比較

硝酸プルトニウム系について各国の H/Fissile 値と本報採用式による値とを比較する。各国ハンドブックにおける H/Fissile 値は

米国 ARH-600 による H/Pu 計算式と、図による

$$H/Pu = \frac{26530}{\rho (g/l)} - 1.35$$

仏国 ARH-600 より H/Pu 計算式を引用

英国 図による、酸性度 0 M のみ

西独 図による、酸性度 0 M, 3 M, 6 M

のように取扱っている。

Table 4.1.5 に各国の H/Pu の値の例を比較する。これらの値について、対応する本報採用の値で除した値を Fig. 4.1.9 ~ 4.1.11 にプロットした。これらの図では、本報採用値は 1.0 の直線となる。酸性度 0 M の場合では、本報採用式による H/Pu 値は Pu 濃度全域にわたって各国の H/Pu 値の分布の中間に位置している。酸性度 3 M, 6 M の場合では、Pu 濃度が低い領域では、各国の H/Pu の値は、本報採用値よりもわずかに小さい値を示している。

Pu 濃度が高い領域では、各国の H/Pu 値はいずれも本報採用値よりも大きく、この差は Pu 濃度の増加にともなってしだいに大きくなっている。この差は 4.1.2 (b) で述べた理由による。

Table 4.1.1 Atomic number density of Uranyl nitrate solution

U Concentration	U ₂₃₅ Atomic number density	Acidity (M)	Atomic number density of H, O, N (n/mℓ)															
			0			3			6									
			H	O	N	H	O	N	H	O	N							
g/ℓ	n/mℓ																	
10	1.8216	+17	6.7758 +22	3.4081 +22	5.0599 +19	6.2723 +22	3.6080 +22	1.8572 +21	5.7688 +22	3.8079 +22	3.6638 +21							
20	3.6431	+17	6.7517 +22	3.4163 +22	1.0120 +20	6.2481 +22	3.6162 +22	1.9078 +21	5.7446 +22	3.8161 +22	3.7144 +21							
40	7.2862	+17	6.7034 +22	3.4327 +22	2.0240 +20	6.1999 +22	3.6325 +22	2.0090 +21	5.6964 +22	3.8324 +22	3.8156 +21							
100	1.8216	+18	6.5586 +22	3.4817 +22	5.0599 +20	6.0551 +22	3.6816 +22	2.3126 +21	5.5515 +22	3.8815 +22	4.1192 +21							
200	3.6431	+18	6.3172 +22	3.5634 +22	1.0120 +21	5.8137 +22	3.7633 +22	2.8186 +21	5.3102 +22	3.9632 +22	4.6252 +21							
400	7.2862	+18	5.8345 +22	3.7268 +22	2.0240 +21	5.3309 +22	3.9267 +22	3.8306 +21	4.8274 +22	4.1266 +22	5.6372 +21							
800	1.4572	+19	4.8690 +22	4.0536 +22	4.0479 +21	4.3654 +22	4.2535 +22	5.8545 +21	3.8619 +22	4.4534 +22	7.6611 +21							
1000	1.8216	+19	4.3862 +22	4.2717 +22	5.0599 +21	3.8827 +22	4.4169 +22	6.8665 +21	3.3792 +22	4.6186 +22	8.6731 +21							

Table 4.1.2 Atomic number density of plutonium nitrate solution

Pu Concentration g/l	Pu Atomic number density n/ml	Atomic number density of H, O, N (n/ml)												Our formula	
		0				3				6				Upper	Lower
		H	O	N	H	O	N	H	O	N	H	O	N		
10	2.5191 +19	6.6404 +22	3.3504 +22	1.0076 +20	6.2085 +22	3.5861 +22	1.9072 +21	5.7767 +22	3.8219 +22	3.7140 +21	5.6960 +22	3.7815 +22			
		6.6613 +22	3.3609 +22		6.1787 +22	3.5712 +22		5.6718 +22	3.8295 +22		3.8147 +21				
20	5.0382 +19	6.6149 +22	3.3679 +22	2.0153 +20	6.1732 +22	3.5987 +22	2.0081 +21	5.7316 +22	3.8295 +22		5.6718 +22	3.7996 +22			
		6.6371 +22	3.3790 +22		6.1545 +22	3.5893 +22		5.6412 +22	3.8448 +22		4.0163 +21				
40	1.0076 +20	6.5636 +22	3.4027 +22	4.0306 +20	6.1024 +22	3.6238 +22	2.2097 +21	5.6234 +22	3.8359 +22		5.6234 +22	3.8359 +22			
		6.5887 +22	3.4153 +22		6.1061 +22	3.6256 +22		5.3692 +22	3.8902 +22		4.6209 +21				
100	2.5191 +20	6.4088 +22	3.5067 +22	1.0076 +21	5.8890 +22	3.6984 +22	2.8143 +21	5.4782 +22	3.9447 +22		4.9121 +22	3.9639 +22			
		6.4435 +22	3.5240 +22		5.9609 +22	3.7344 +22		5.2362 +22	4.1260 +22		5.6285 +21				
200	5.0382 +20	6.1470 +22	3.6781 +22	2.0153 +21	5.5295 +22	3.8210 +22	3.8219 +21	4.9121 +22	3.9639 +22		4.9121 +22	3.9639 +22			
		6.2015 +22	3.7053 +22		5.7189 +22	3.9157 +22		5.2362 +22	4.1260 +22		5.6285 +21				
400	1.0076 +21	5.6098 +22	4.0141 +22	4.0306 +21	4.7969 +22	4.0593 +22	5.8372 +21	3.9841 +22	4.1045 +22		3.9841 +22	4.1045 +22			
		5.7175 +22	4.0679 +22		5.2349 +22	4.2783 +22		4.7522 +22	4.4886 +22		7.6438 +21				
800	2.0153 +21	4.4806 +22	4.6586 +22	8.0612 +21	3.2770 +22	4.5085 +22	9.8678 +21	2.0734 +22	4.3583 +22		2.0734 +22	4.3583 +22			
		4.7496 +22	4.7931 +22		4.2669 +22	5.0035 +22		3.7842 +22	5.2138 +22		1.1674 +22				
1000	2.5191 +21	3.8885 +22	4.9672 +22	1.0076 +22	2.4895 +22	4.7194 +22	1.1883 +22	1.0906 +22	4.4715 +22		1.0906 +22	4.4715 +22			
		4.2656 +22	5.1558 +22		3.7830 +22	5.3661 +22		3.3003 +22	5.5764 +22		1.3690 +22				

Table 4.1.3 Relation between U concentration and H/U (0, 3, 6 M)

U Concentration	U ₂₃₅ Atomic number density Acidity (M)	H/U ₂₃₅		
		0	3	6
g/l	n/ml	—	—	—
10	1.8216 +17	3.7198 +5	3.4434 +5	3.1669 +5
20	3.6431 +17	1.8533 +5	1.7151 +5	1.5768 +5
40	7.2862 +17	9.2001 +4	8.5090 +4	7.8180 +4
100	1.8216 +18	3.6005 +4	3.3241 +4	3.0477 +4
200	3.6431 +18	1.7340 +4	1.5958 +4	1.4576 +4
400	7.2862 +18	8.0075 +3	7.3165 +3	6.6254 +3
800	1.4572 +19	3.3412 +3	2.9957 +3	2.6502 +3
1000	1.8216 +19	2.4080 +3	2.1315 +3	1.8551 +3

Table 4.1.4 Relation between Pu concentration and H/Pu (0, 3, 6 M)

Pu Concentration	Pu Atomic number density Acidity (M)	H/Pu		
		0	Upper Lower	ARH-600 Our formula
g/l	n/ml	—	—	—
10	2.5191 +19	2644.3	2452.7	2261.1
		2636.0	2464.6	2293.1
20	5.0382 +19	1317.3	1221.5	1125.7
		1312.9	1225.3	1137.6
40	1.0076 +20	653.87	605.97	558.06
		651.38	605.61	559.84
100	2.5191 +20	255.78	236.62	217.46
		254.40	233.77	213.14
200	5.0382 +20	123.09	113.51	103.93
		122.01	109.75	97.496
400	1.0076 +21	56.742	51.951	47.161
		55.672	47.605	39.539
800	2.0153 +21	23.568	21.173	18.778
		22.233	16.260	10.288
1000	2.5191 +21	16.933	15.017	13.101
		15.436	9.883	4.3293

Table 4.1.5 Comparison of H/Pu values calculated by our formula, ARH-600, and handbooks of West Germany and United Kingdom

		H / Pu			
Acidity (M)	Pu Concentration (g / ℓ)	CSEF (Our formula)	USA (ARH-600)	W. Germany	U. K
0	10	2636.0	2644.3	2600	2500
	50	519.2	521.2	505	520
	100	254.4	255.8	250	252
	500	42.35	43.47	42	41
	1000	15.44	16.93	17	14
3	10	2464.6	2452.7	2400	—
	50	481.7	482.9	460	—
	100	233.8	236.6	230	—
	500	35.12	39.64	38	—
	1000	9.88	15.02	15	—
6	10	2293.1	2261.9	2200	—
	50	444.3	444.5	420	—
	100	213.1	217.5	215	—
	500	27.89	35.81	34	—
	1000	4.33	13.10	13	—

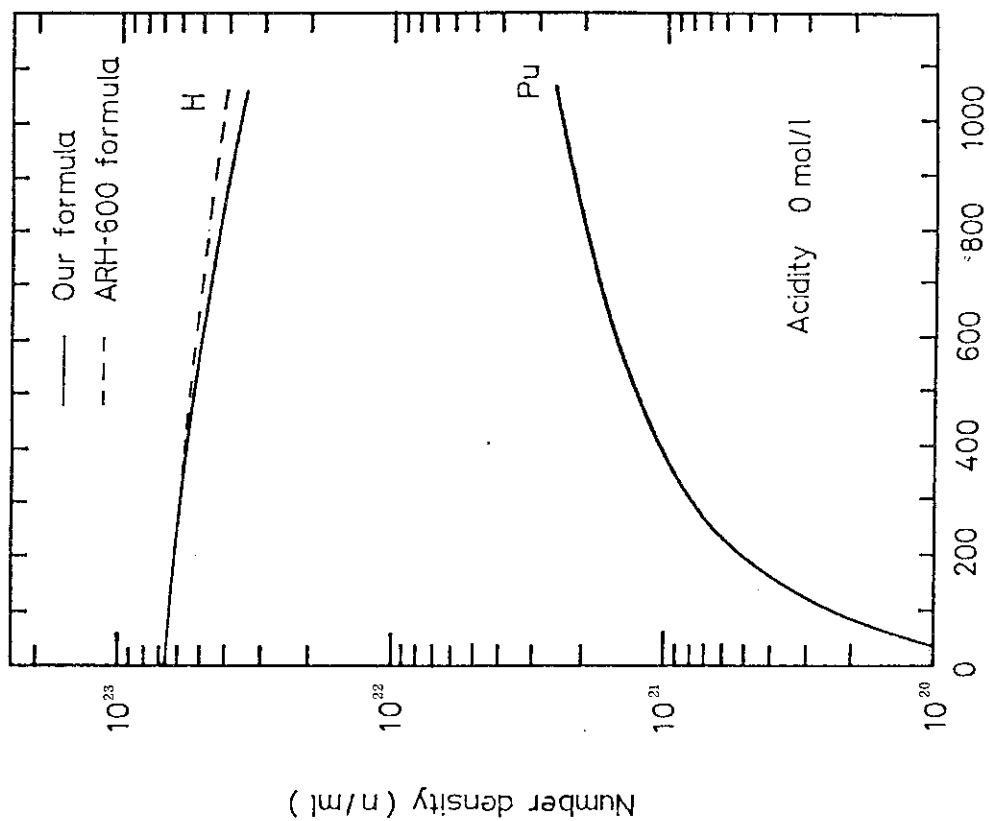


Fig. 4.1.2 Comparison of atomic number density of H and Pu between our formula and ARH-600 formula (acidity 0 M)

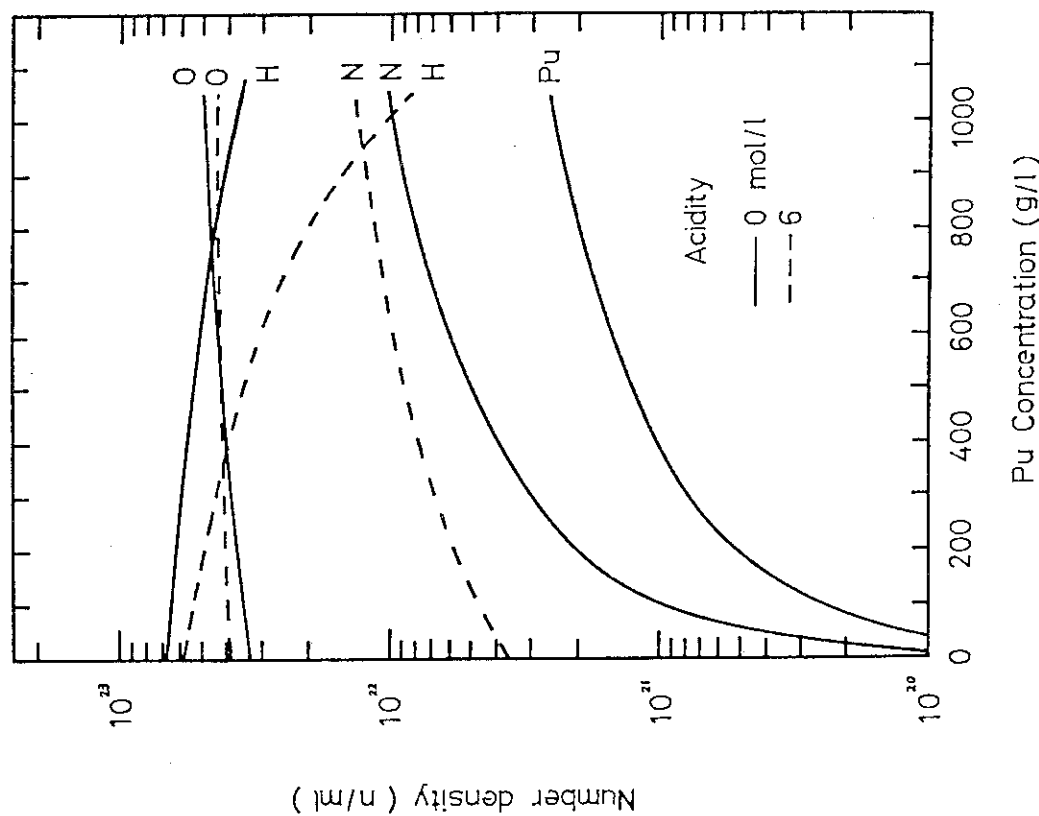


Fig. 4.1.1 Atomic number density vs. Plutonium concentration (acidity 0, 6. M; our formula)

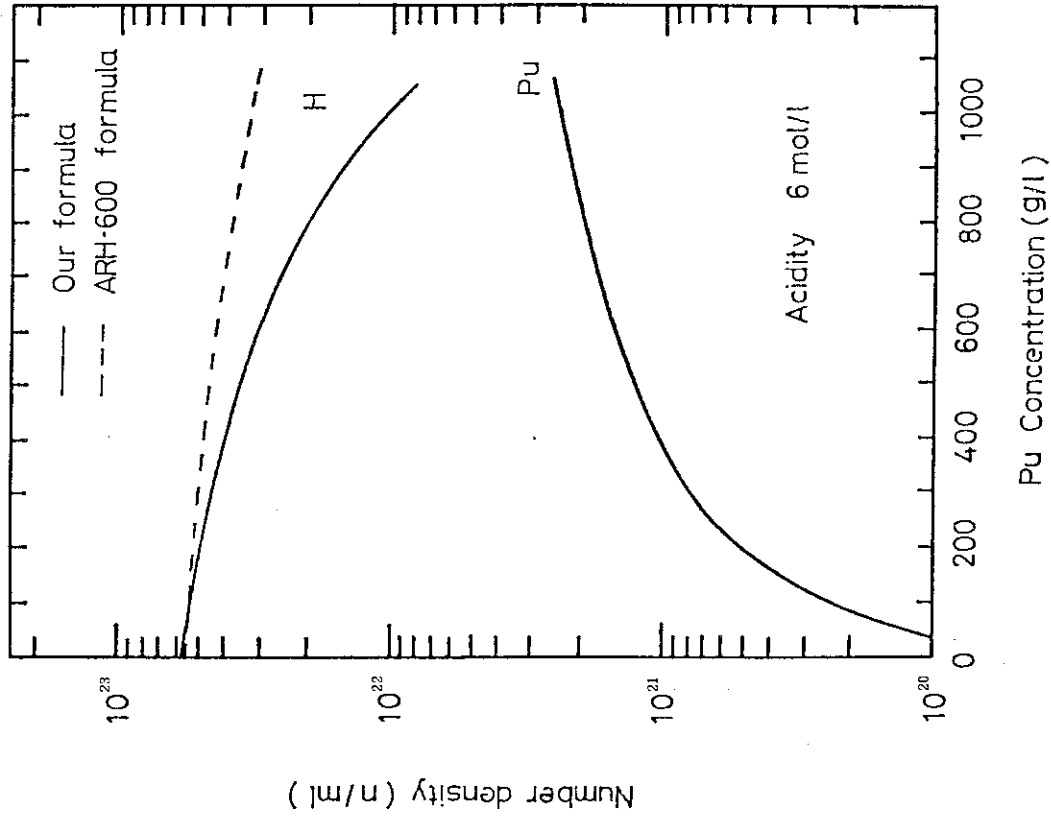


Fig. 4.1.4 Comparison of atomic number density of H and Pu between our formula and ARH-600 formula (acidity 6 M)

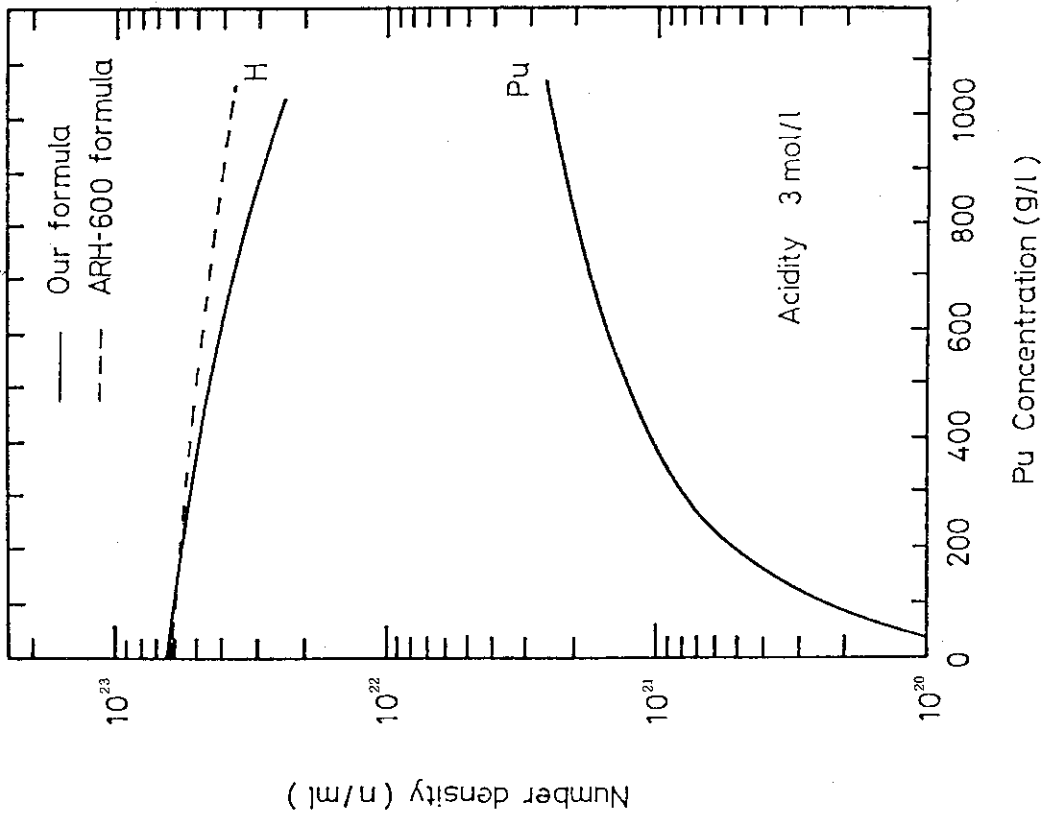


Fig. 4.1.3 Comparison of atomic number density of H and Pu between our formula and ARH-600 formula (acidity 3 M)

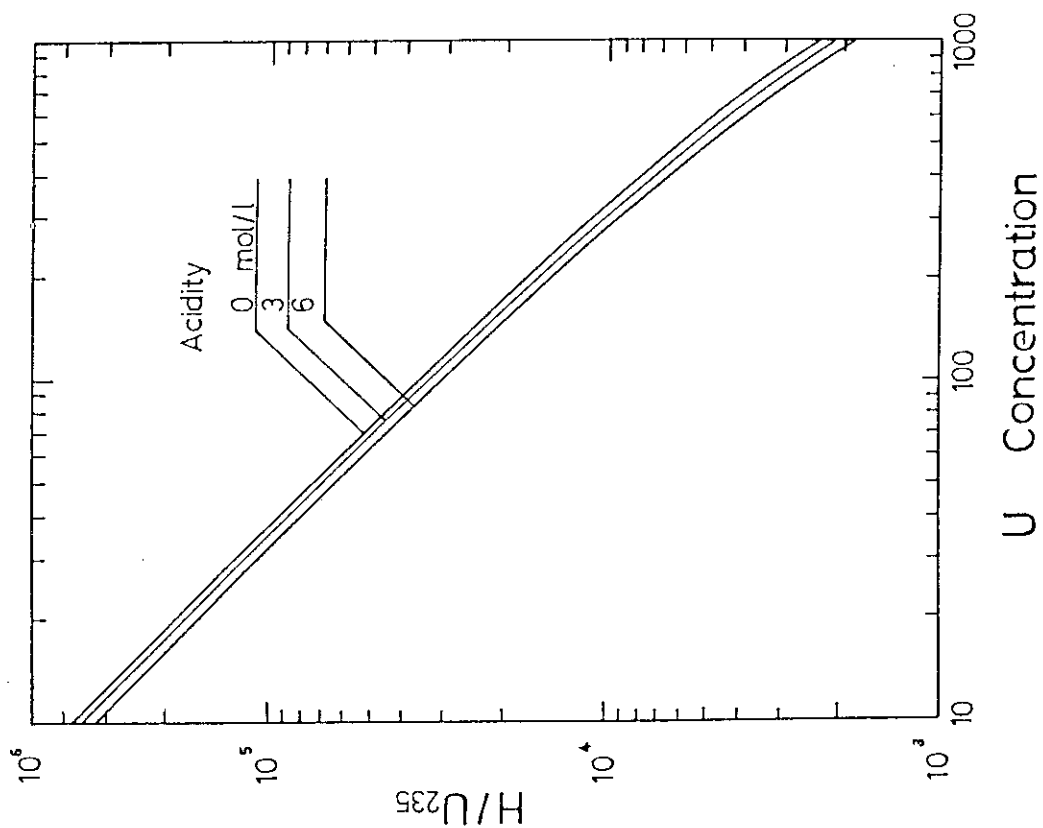


Fig. 4.1.5 Atomic number ratio $H/^{235}U$ vs. natural U concentration (acidity : 0, 3, 6 M)

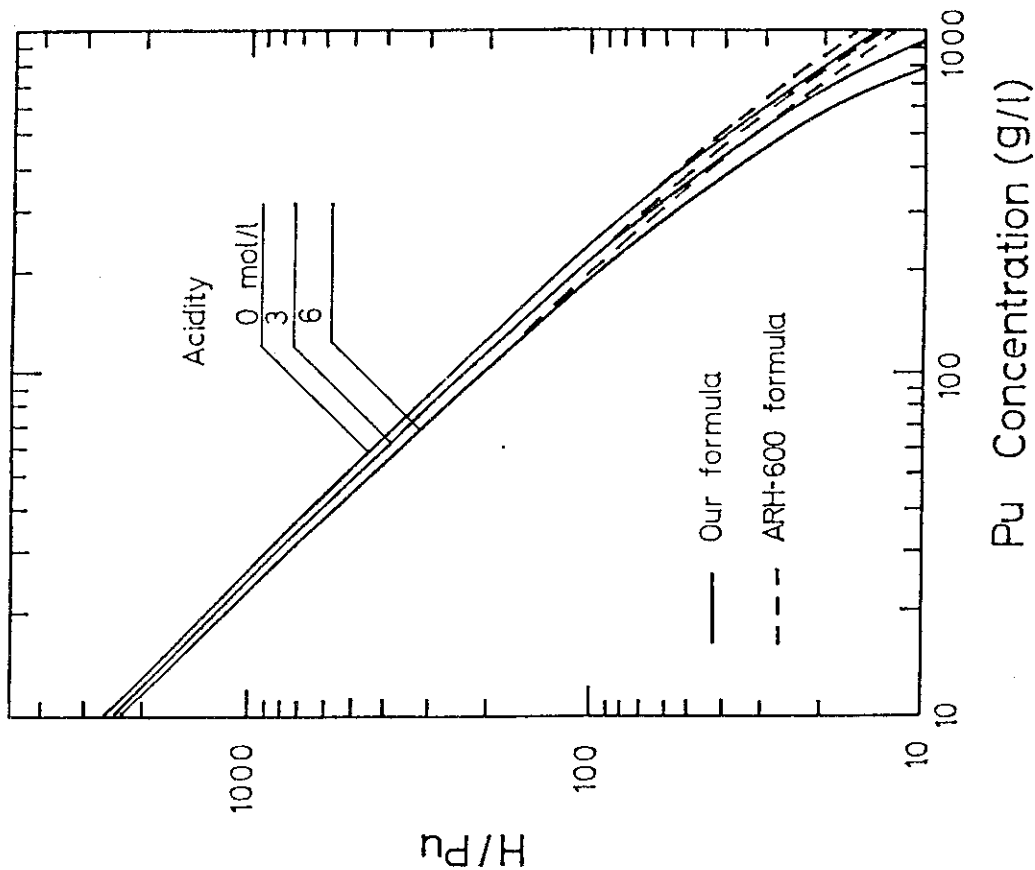


Fig. 4.1.6 Comparison of atomic number ratio $H/^{239}Pu$ of plutonium nitrate solution between our formula and ARH-600 formula (acidity : 0, 3, 6 M)

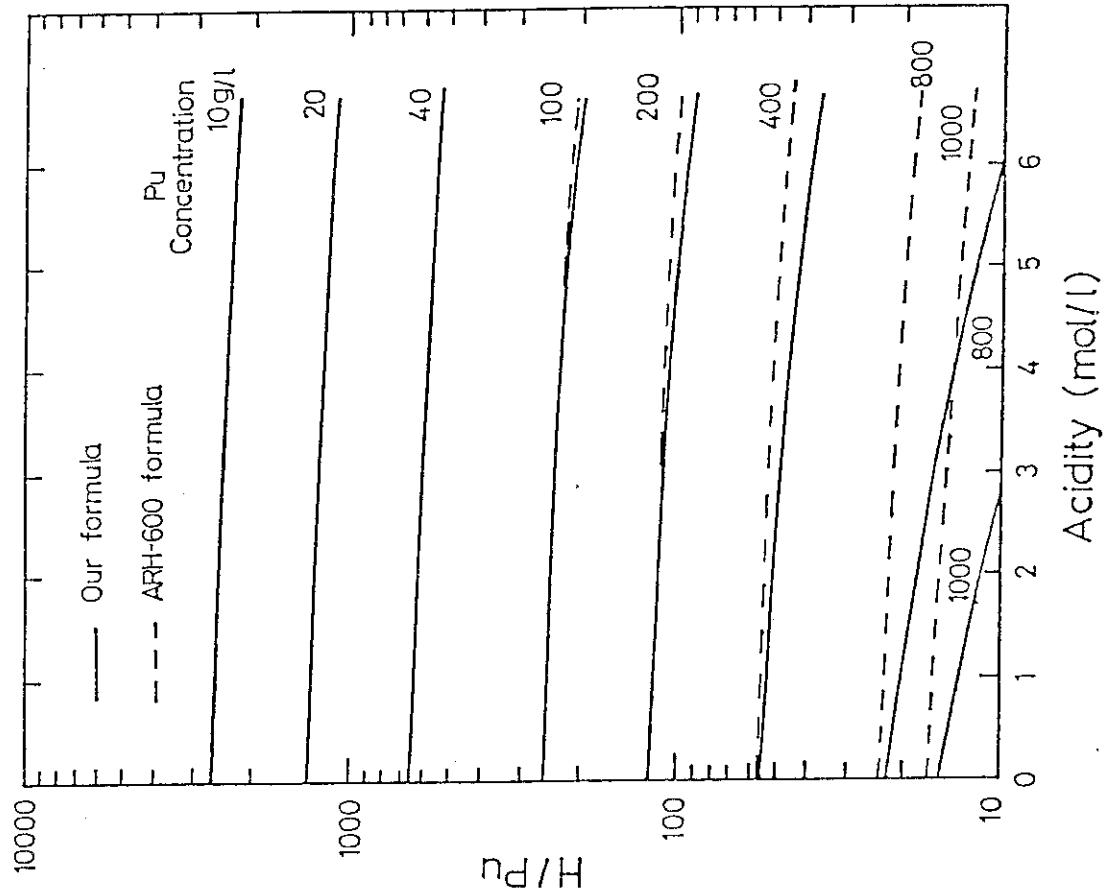


Fig. 4.1.8 Dependence of atomic number ratio $H/^{239}Pu$ on acidity of plutonium nitrate solution (our formula and ARH-600 formula)

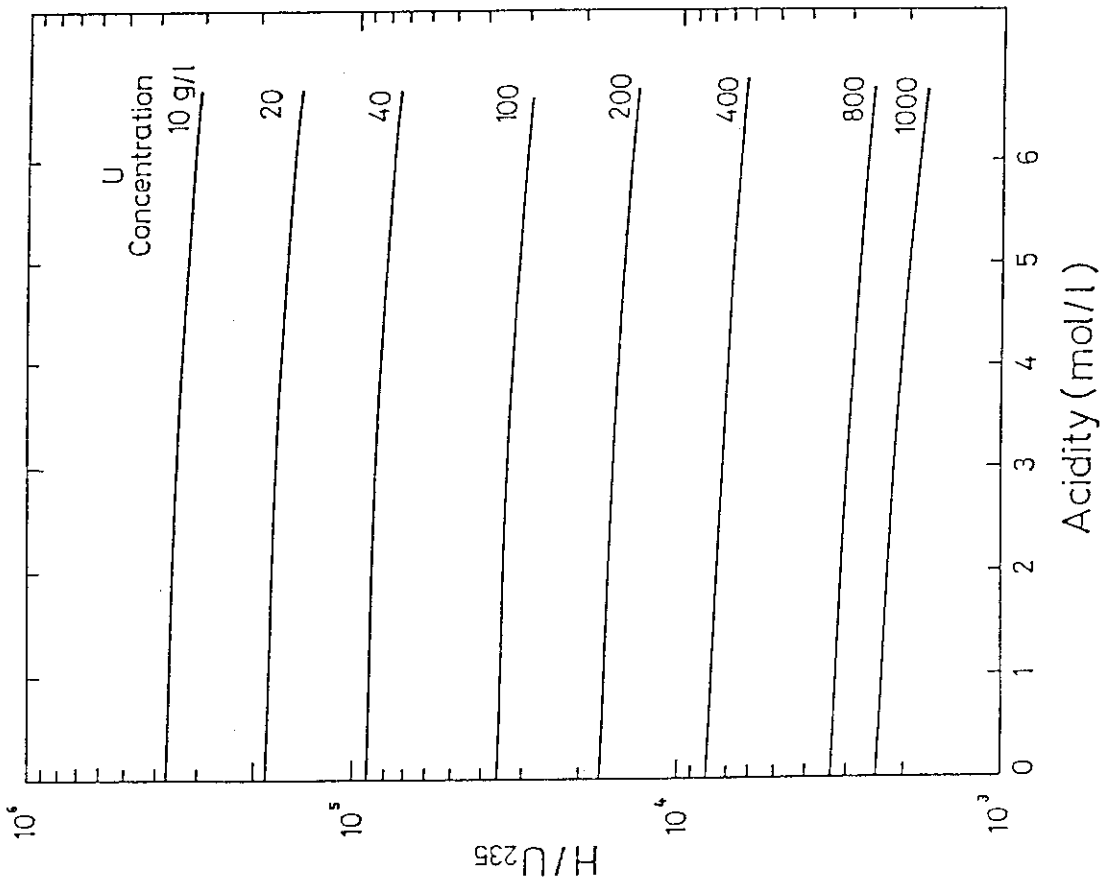


Fig. 4.1.7 Dependence of atomic number ratio $H/^{235}U$ on acidity of uranyl nitrate solution (our formula)

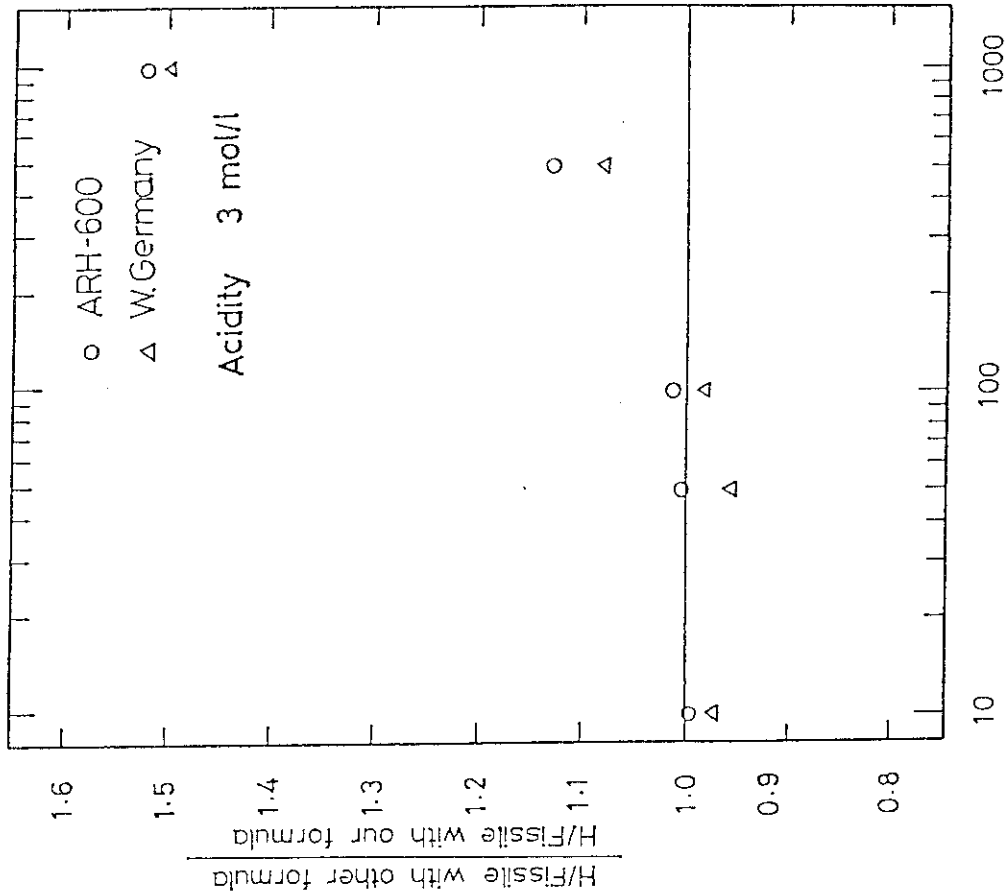


Fig. 4.1.10 Comparison of the value of H/Pu calculated by our formula and other formula (acidity : 3 M)

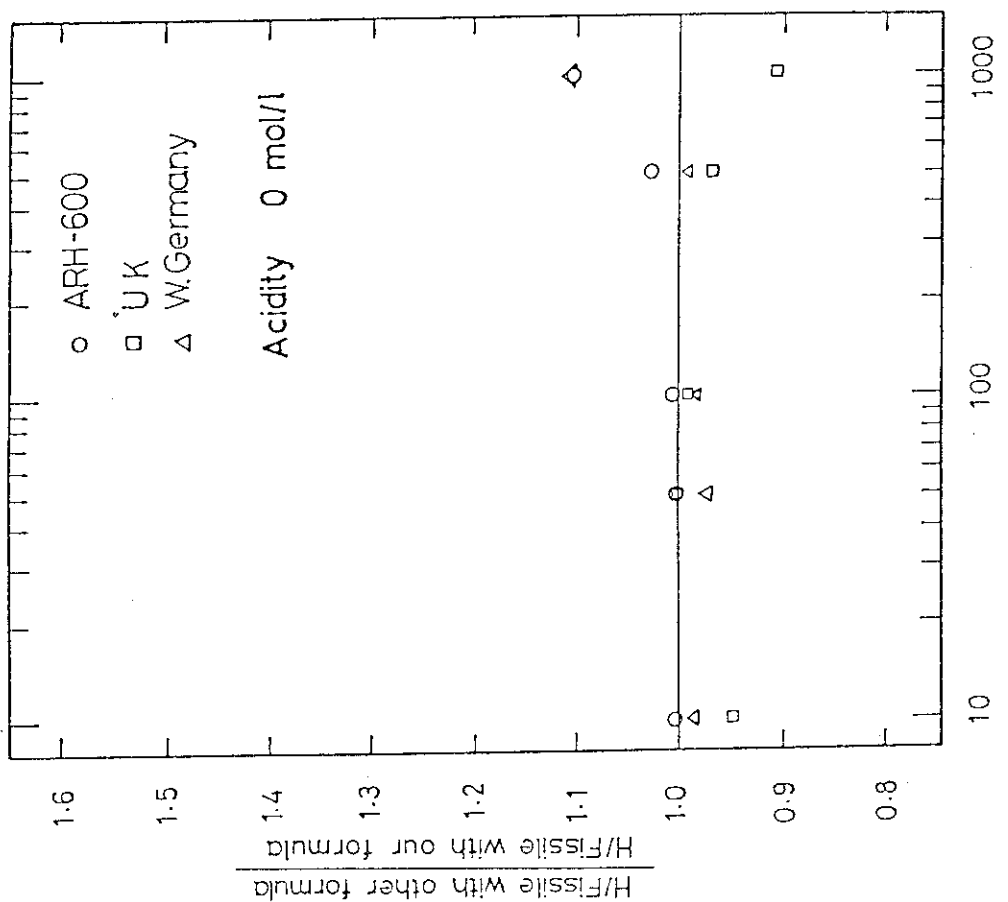


Fig. 4.1.9 Comparison of the value of H/Pu calculated by our formula and other formula (acidity : 0 M)

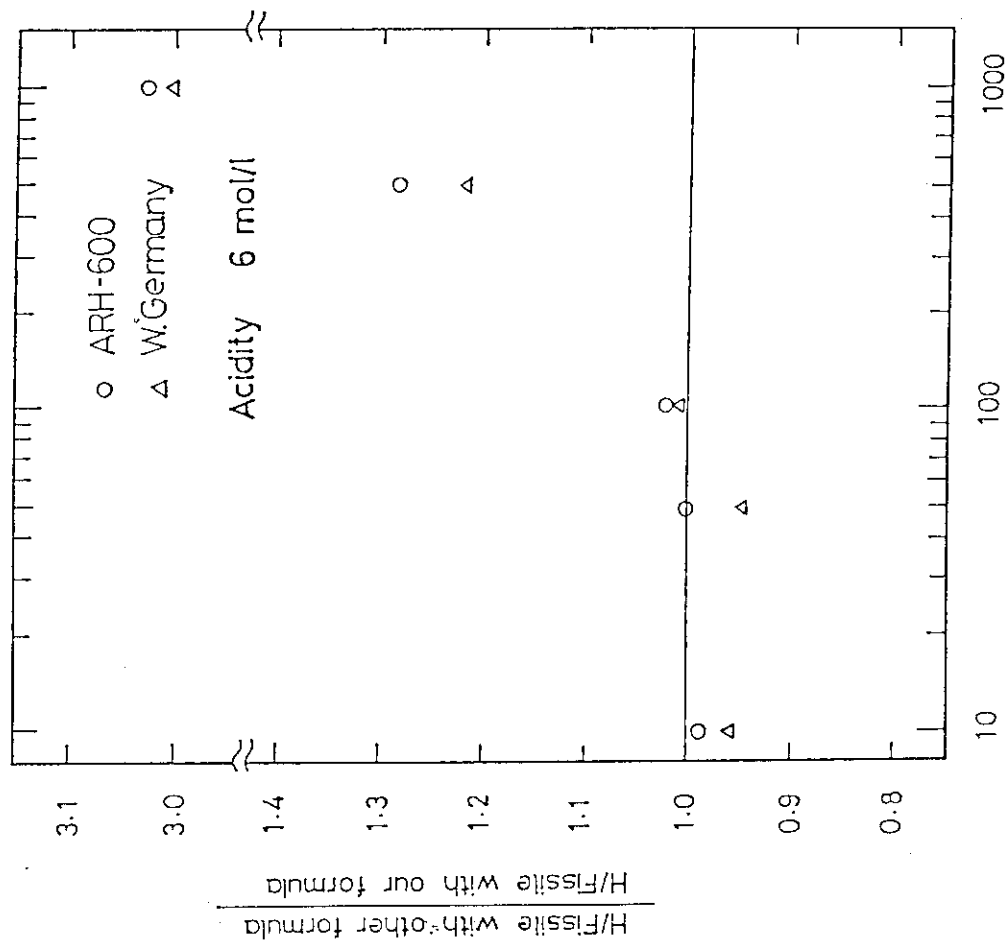


Fig. 4.1.11 Comparison of the value of H/Pu calculated by our formula and other formula (acidity: 6 M)

4.2 無限増倍係数

Table 4.2.1 及び Table 4.2.2 に、 ^{239}Pu 100% の同位体組成をもつ硝酸プルトニウム溶液の無限増倍係数を、硝酸濃度をパラメータ (0, 3, 6 M) として 10 ~ 1,000 g/ℓ の燃料濃度について示す。Table 4.2.1 は、本報採用式による溶液成分の原子個数密度を用いた結果で、Table 4.2.2 は、ARH-600 に記載された H/Pu 計算式に基づいた結果であり、各場合の成分原子の個数密度には、Table 4.1.2 の値を用いている。また Fig. 4.2.1 から Fig. 4.2.3 に各酸性度別に K_{∞} の濃度による変化を示し、Fig. 4.2.4 は、両者による K_{∞} の差を示している。

Table 4.2.3 及び Fig. 4.2.5 に、プルトニウムの同位体組成比が ^{239}Pu 80%、 ^{240}Pu 20% の硝酸プルトニウムの無限増倍係数について、本報採用式及び ARH-600 の式の両者を用いた場合の計算結果を示す。ここで硝酸濃度は 0 M である。

Fig 4.2.1 から Fig. 4.2.3 において、KENO-IV は ARH-600 に記載されている HFN 計算値よりも K_{∞} を高く評価し、その差は燃料濃度が高くなるにつれ増加している。

原子個数密度の算出方法の無限増倍係数に対する効果をみると、Fig. 4.2.4 に示したように、酸性度が 0 M の場合には全濃度領域において系統的な差はなく、本報採用式と ARH-600 計算式による K_{∞} の差異は 2 σ の範囲内にある。一方遊離硝酸を含む 3.6 M の溶液の場合には、低濃度領域で 1% 程度本報採用式による K_{∞} は ARH-600 計算式によるものよりも低い結果を与えているが、600 g/ℓ 以上の高濃度領域では、1 ~ 3% の範囲で K_{∞} は高くなる傾向を示している。これは 4.1.1 で述べたように、十分中性子が減速されている低濃度領域においては、本報採用式は ARH-600 計算式に比べて H/Pu の値を高く計算し、中性子吸収の効果を相対的に大きく評価するために、 K_{∞} の値は低くなると考えられる。また高濃度領域においては、燃料溶液中のスペクトルはかなり硬化しており、(4.6 参照) 全核分裂に対する高速中性子による核分裂割合は、燃料濃度の増加につれてほぼ直線的に増加している。従って、ARH-600 の計算式では、高濃度領域において H/Pu 値を本報採用式に比べて高く評価するので、中性子スペクトルの硬化が相対的に小さく、高速核分裂の寄与を低く評価し無限増倍係数 K_{∞} が 1 ~ 3% 低い値を示すものと考えられる。

本報採用式を用いた K_{∞} の計算値により、無限増倍係数の燃料濃度及び酸性度に対する依存傾向を Table 4.2.1 より調べると、800 g/ℓ 以上の燃料濃度のかかなり高い領域を除き、常温で燃料が溶解し得る濃度範囲においては、遊離硝酸のない 0 M 溶液の方が、遊離硝酸のある 3, 6 M 溶液に比べて K_{∞} は大きく、臨界上はより厳しい条件にあることが分かる。

ここで、プルトニウムの同位体組成が 100% 核分裂核種の ^{239}Pu である場合には、1000 g/ℓ 以下の濃度範囲で K_{∞} は燃料濃度に対して飽和傾向を示すが単調に増加し、極大となる濃度点は現われないので、濃度制限を行なわない臨界設計においては高濃度領域における K_{∞} 等の臨界制限値が厳しい条件になると考えられている。また高濃度領域においては、中性子のスペクトルソフトによる高速核分裂効果が燃料溶液の増倍特性に大きく寄与し、遊離硝酸の存在が臨界上非安全側になる傾向を示すことにも十分な配慮が必要である。

プルトニウム同位体として、核分裂性核種でない ^{240}Pu を 20% 含む場合、Fig. 4.2.5 に見られるようにモンテカルロコードによる K_{∞} の計算値は、 ^{239}Pu が 100% の同位体組成の燃料溶

液と同じように、燃料濃度が高くなるに従いARH-600のGAMTEC-IIによる値との差が増加する傾向を示し、燃料濃度が1000 g/ℓの場合には両者の差は約7% ΔK/Kである。

一方、燃料溶液の成分原子個数密度を本報採用式で求めた結果とARH-600の計算式を用いた結果は、1% ΔK/K以内で一致しており、²³⁹Pu 100%の場合のような高濃度領域における有意な差は認められない。

また吸収体核種である²⁴⁰Puが存在する硝酸プルトニウム溶液では、1,000 g/ℓ以下の濃度範囲において K_{∞} は単調増加傾向を示さず、80~100 g/ℓの中濃度領域で K_{∞} 1.51の極大となる。極大値近傍では、本報採用式による K_{∞} とARH-600の計算式による値の差は0.3%以下で、両算出式による K_{∞} への影響は十分小さいと考えられる。

10%濃縮の硝酸ウラニル溶液の無限増倍係数をTable 4.2.4, 及びFig. 4.2.6に示す。1000 g/ℓ以下の濃度範囲では、800 gU/ℓ近傍に最大値を有している。 K_{∞} に対する硝酸濃度の効果を見ると、0 Mの方が、3 Mの場合に比べて1~4%系統的に高くなっている。

Table 4.2.1 Infinite multiplication factor of plutonium nitrate solution
 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ (^{239}Pu 100%, Acidity 0, 3, 6 M : Our formula)

Concentration (gPu/l)	$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ Solution ^{239}Pu (100 %)		
	Acidity 0 M	3 M	6 M
10	1.15625 ± 0.00185	1.11701 ± 0.00177	1.07279 ± 0.00186
20	1.46958 ± 0.00224	1.43231 ± 0.00230	1.39743 ± 0.00228
40	1.68149 ± 0.00287	1.65498 ± 0.00264	1.63200 ± 0.00297
60	1.75682 ± 0.00333	1.73038 ± 0.00280	1.71006 ± 0.00277
80	1.78064 ± 0.00341	1.76704 ± 0.00304	1.74647 ± 0.00321
100	1.80121 ± 0.00306	1.78826 ± 0.00341	1.76591 ± 0.00302
200	1.81291 ± 0.00282	1.80210 ± 0.00301	1.78481 ± 0.00341
400	1.81025 ± 0.00290	1.79544 ± 0.00297	1.78720 ± 0.00292
600	1.81785 ± 0.00252	1.80816 ± 0.00245	1.80591 ± 0.00229
800	1.82703 ± 0.00253	1.83326 ± 0.00240	1.82690 ± 0.00223
1000	1.83478 ± 0.00237	1.85189 ± 0.00220	1.86057 ± 0.00292

a) Atomic number density is calculated by our formula

Table 4.2.2 Infinite multiplication factor of plutonium nitrate solution
 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ (^{239}Pu 100%, 0, 3, 6 M : ARH-600 formula)

Concentration (gPu/l)	$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ Solution ^{239}Pu (100 %)		
	Acidity 0 M	3 M	6 M
10	1.15731 ± 0.00173	1.11631 ± 0.00187	1.08192 ± 0.00182
20	1.46719 ± 0.00231	1.43589 ± 0.00244	1.40368 ± 0.00203
40	1.68138 ± 0.00327	1.65480 ± 0.00272	1.63486 ± 0.00266
60	1.75130 ± 0.00304	1.73283 ± 0.00304	1.71443 ± 0.00279
80	1.79033 ± 0.00288	1.76634 ± 0.00307	1.74950 ± 0.00289
100	1.79675 ± 0.00304	1.78303 ± 0.00290	1.76087 ± 0.00340
200	1.81571 ± 0.00338	1.80251 ± 0.00344	1.78669 ± 0.00270
400	1.80979 ± 0.00282	1.80462 ± 0.00281	1.79208 ± 0.00291
600	1.81585 ± 0.00271	1.79953 ± 0.00273	1.79974 ± 0.00259
800	1.82265 ± 0.00283	1.81631 ± 0.00256	1.81071 ± 0.00225
1000	1.83182 ± 0.00250	1.82996 ± 0.00269	1.82619 ± 0.00259

a) Atomic number density is calculated with the formula of ARH-600

Table 4.2.3 Infinite multiplication factor of plutonium nitrate solution $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ (^{239}Pu 80% + ^{240}Pu 20%, Acidity 0, 3, 6 M : Our formula and ARH-600 formula)

Concentration (g Pu/l)	$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ Solution $^{239}\text{Pu}(80\%)+^{240}\text{Pu}(20\%)$	
	Our Formula	ARH-600 Formula
10	0.98613 ± 0.00172	0.98484 ± 0.00158
20	1.25901 ± 0.00209	1.25949 ± 0.00217
40	1.44118 ± 0.00300	1.44117 ± 0.00293
60	1.49088 ± 0.00337	1.48810 ± 0.00336
80	1.50429 ± 0.00304	1.50818 ± 0.00364
100	1.50173 ± 0.00332	1.50623 ± 0.00372
200	1.46745 ± 0.00372	1.46036 ± 0.00326
400	1.41108 ± 0.00351	1.40482 ± 0.00336
600	1.39156 ± 0.00326	1.38408 ± 0.00315
800	1.39510 ± 0.00304	1.39607 ± 0.00317
1000	1.42457 ± 0.00263	1.41335 ± 0.00289

Table 4.2.4 Infinite multiplication factor of uranyl nitrate solution $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ ^{235}U 10%, 0, 3 M : Our formula)

Concentration (g U/l)	$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ Solution $^{235}\text{U}(10\%)$	
	Acidity 0 M	3 M
10	0.14235 ± 0.00031	0.13225 ± 0.00028
20	0.26434 ± 0.00063	0.24710 ± 0.00044
40	0.46170 ± 0.00101	0.43481 ± 0.00080
60	0.61788 ± 0.00118	0.58376 ± 0.00113
100	0.83818 ± 0.00154	0.79691 ± 0.00132
200	1.14054 ± 0.00207	1.10237 ± 0.00190
400	1.37434 ± 0.00254	1.34351 ± 0.00256
600	1.46334 ± 0.00278	1.42866 ± 0.00306
800	1.49395 ± 0.00300	1.45894 ± 0.00298
1000	1.45902 ± 0.00258	

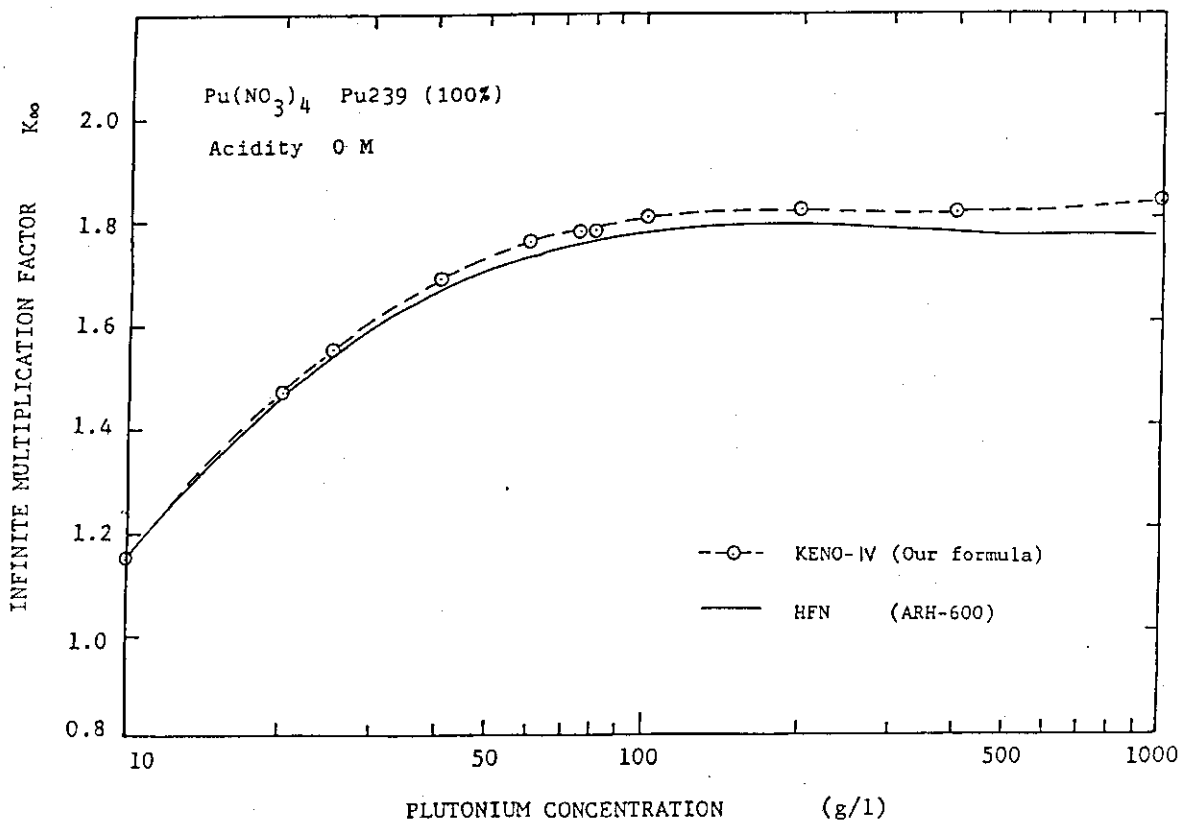


Fig. 4.2.1 Infinite multiplication factor of plutonium nitrate solution Pu(NO₃)₄ (²³⁹Pu 100%, Acidity 0 M)

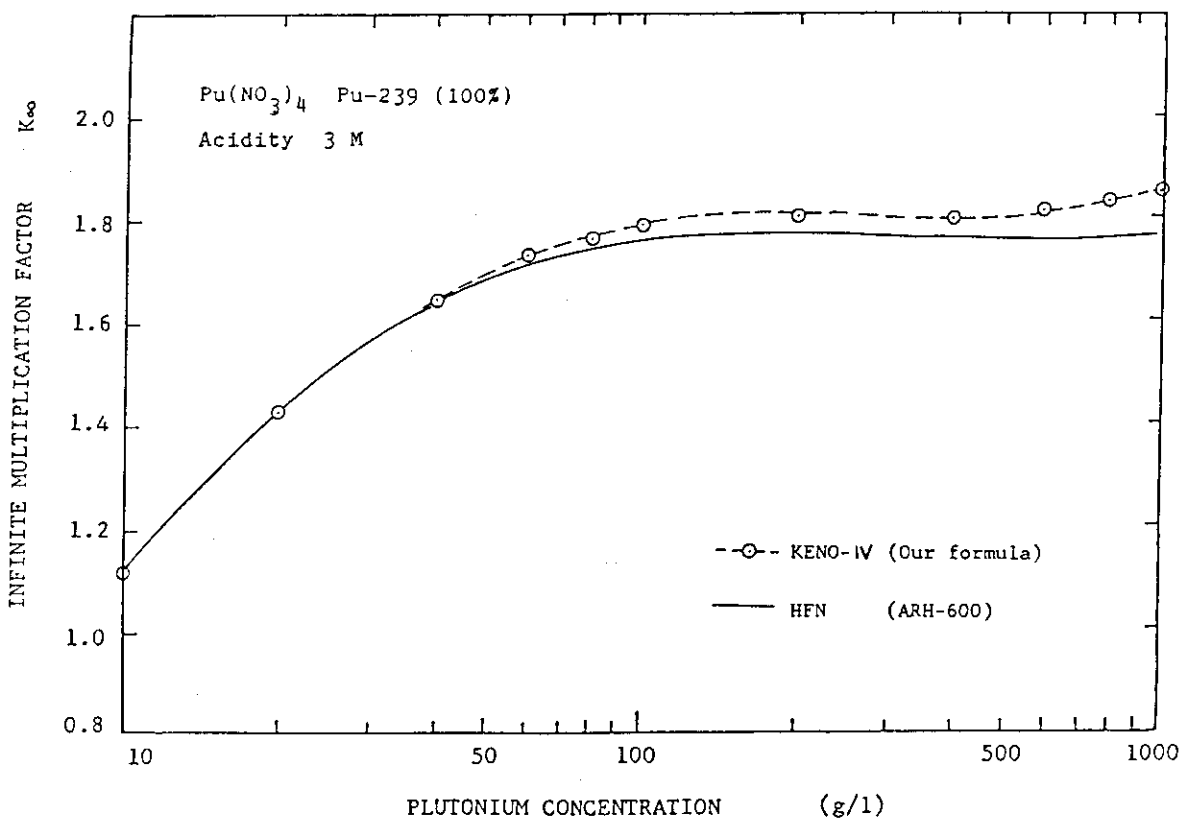


Fig. 4.2.2 Infinite multiplication factor of plutonium nitrate solution Pu(NO₃)₄ (²³⁹Pu 100%, Acidity 3 M)

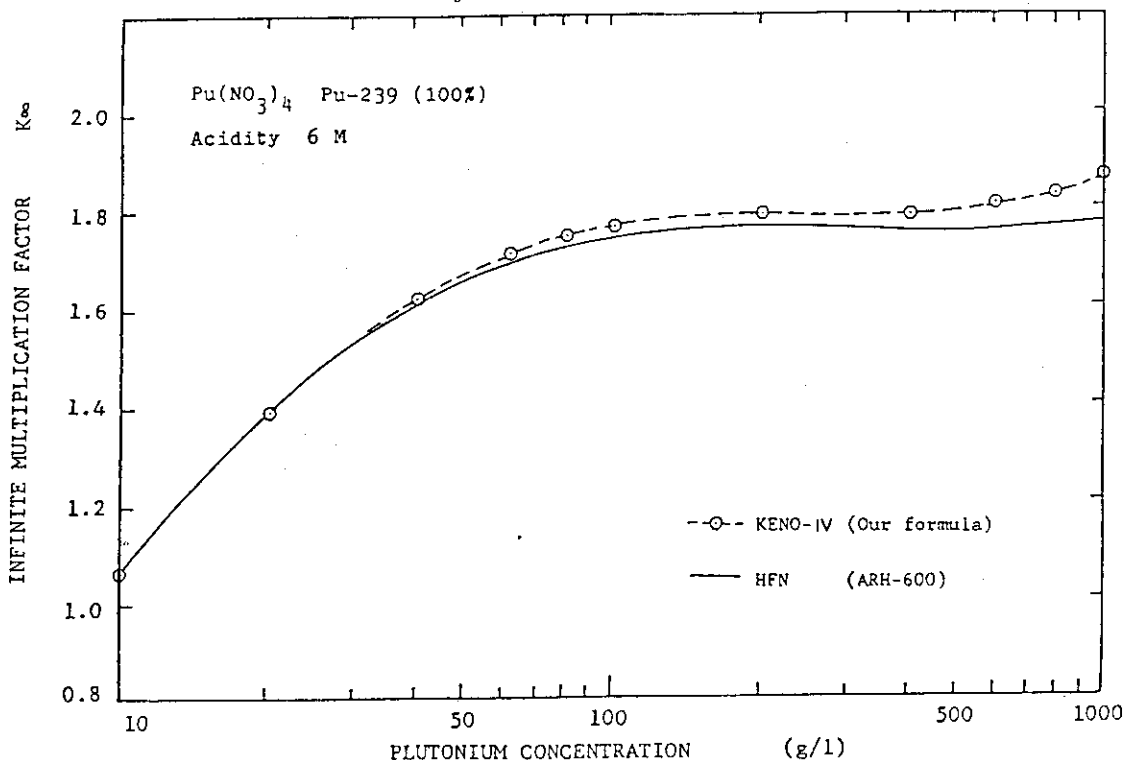


Fig. 4.2.3 Infinite multiplication factor of plutonium nitrate solution $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ (^{239}Pu 100 %, Acidity 6M)

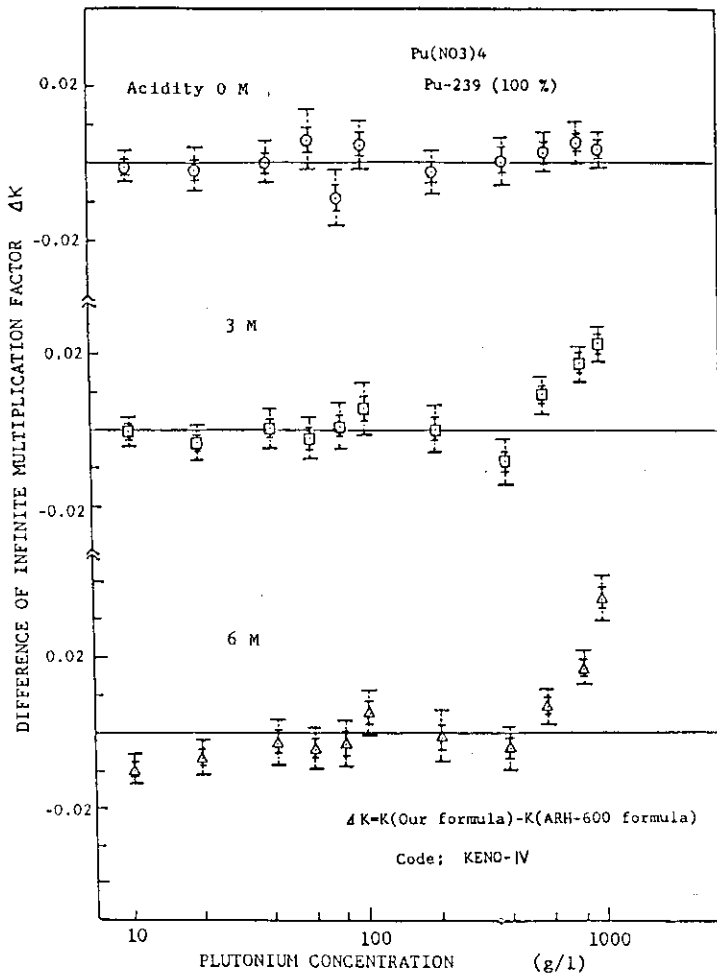


Fig. 4.2.4 Difference of infinite multiplication factor of plutonium nitrate solution $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ calculated using our-formula from that using ARH-600 formula (^{239}Pu 100 %, 0.3.6 M)

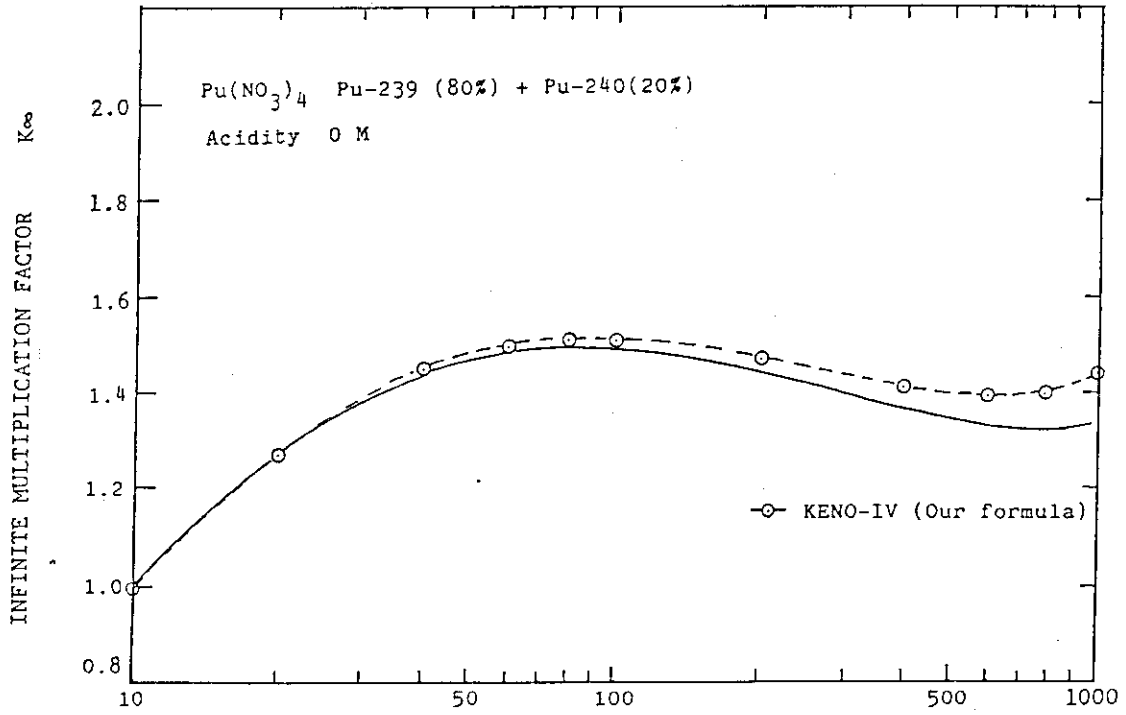


Fig. 4.2.5 Infinite multiplication factor of uranium nitrate solution Pu(NO₃)₄ (²³⁹Pu 80% + ²⁴⁰Pu 20%, Acidity 0 M)

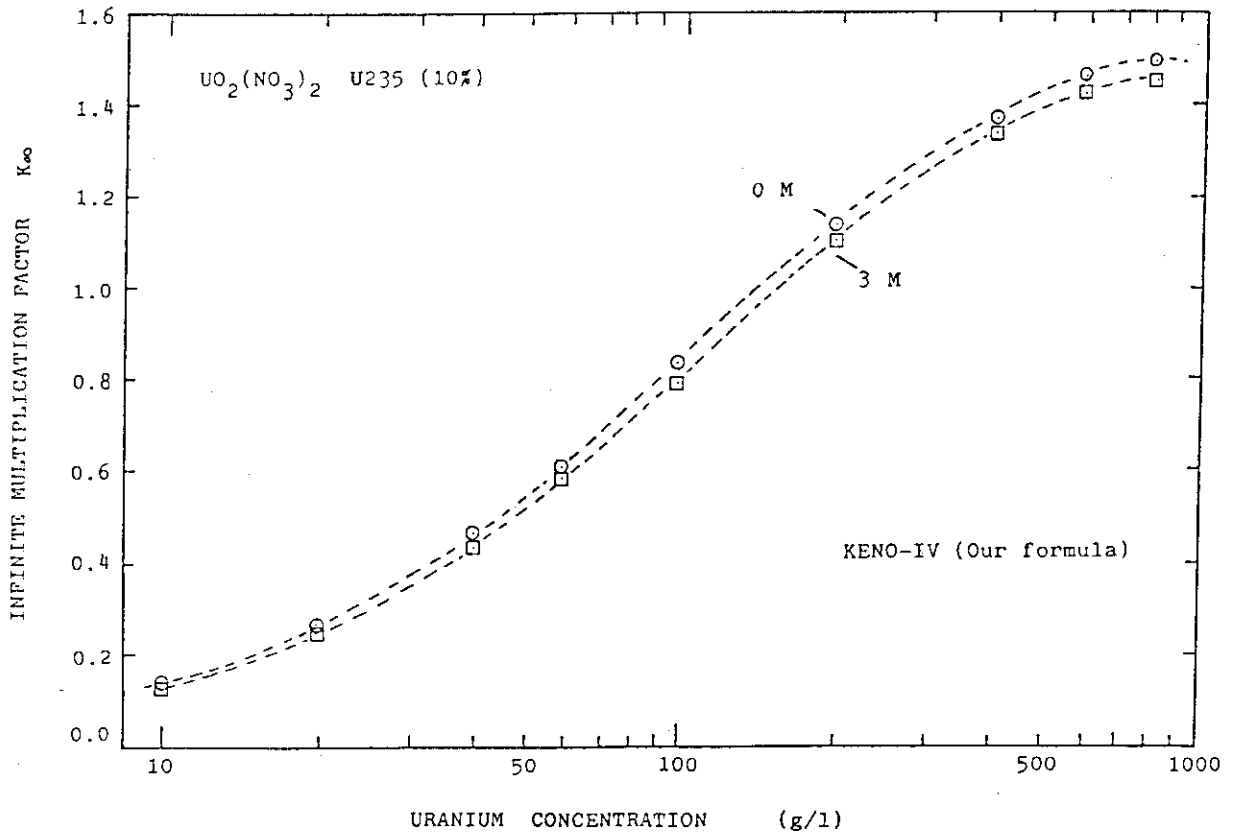


Fig. 4.2.6 Infinite multiplication factor of uranyl nitrate solution UO₂(NO₃)₂ (²³⁵U 10%)

4.3 円筒体系の実効増倍係数

有限体系として、直径20cm、高さ30cmの円筒形状の硝酸溶液燃料部分が水平、垂直方向に各々30cm厚の水層で取り囲まれた体系を選び、実効増倍係数を以下に示す燃料溶液に対して計算した。

① プルトニウム濃度 350 g/l, 酸性度 3 Mの硝酸プルトニウム溶液において、プルトニウム原子価が(i) Pu(IV) 100%, (ii) Pu(VI) 100% (iii) Pu(IV) 68.25% + Pu(VI) 31.75%のケース。Table 4.3.1に各ケースの溶液密度、構成原子のモル濃度及び個数密度を示しTable 4.3.2に K_{eff} 及び K_{∞} の計算結果を示す。

② プルトニウム濃度 200 g/l ^{239}Pu 100%の硝酸溶液の酸性度をパラメータとして 0.3, 3, 6 Mの3ケース。計算結果をTable 4.3.3に示す。

③ ウラン濃度 197 g/l, プルトニウム濃度 345 g/lの混合硝酸溶液の酸性度が6.9Mと2.0 Mの2ケース。

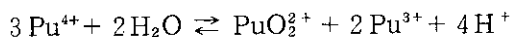
④ ウラン濃度 178 g/l, プルトニウム濃度 357 g/l, 酸性度 7.5 Mの混合硝酸溶液で、プルトニウム原子価が4価と6価のケース。

③, ④の混合硝酸溶液に対して、本報採用式で求めた溶液密度、構成原子の個数密度、及びH/FissileをTable 4.3.4に、実効増倍係数の計算値をTable 4.3.5に示す。

4.3.1 硝酸プルトニウム

(a) プルトニウム原子価の効果

プルトニウムには、3価から6価の原子価状態が存在するが、通常硝酸溶液中のプルトニウムは $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ の4価の化学形を取るとして構成核種の個数を計算し、臨界計算が行なわれている。しかし、実際には次に示すような不均化反応が知られており、



4価以外のプルトニウムも存在し得る。ここでは、プルトニウムの原子価が臨界性にどのような効果を持つかを調べるために、同じプルトニウム量に対して減速材である H_2O の量が最も大きい6価と、最も小さい4価について、各々単独に存在する状態と一定の割合で共存する溶液を想定し、本報で採用した個数密度計算式を用いて体系の増倍係数を評価した。ここでPu(VI)の密度式としてはU(VI)の形のものを用いた。

Table 4.3.1から分かるように、6価の $\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$ 硝酸溶液、4価の $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 硝酸溶液のH/Fissile (^{239}Pu)は、各々61.92, 56.48で6価の方が9.6%大きい。また臨界パラメータを比較すると、6価の溶液の K_{∞} 、及び有限円筒体系(20cm ϕ , 30cmH)の K_{eff} は1.814, 0.993で4価の溶液の値に比較して各々1.8%, 3.5%増加している。(Table 4.3.2)

密度は $\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$, $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ の場合各々1.56, 1.620で6価の溶液の方が通常の4価より小さい。これは、4価が6価になるとPu原子1個当りの硝酸根(NO_3^-)の数が減少するためである。 $\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$ と $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ が共存する溶液は、密度を各化学形のプルトニウムが単独で存在する溶液の中間値の1.6 g/cm 3 としてPu(VI)とPu(IV)の割合を計算した。この場合の K_{eff}

は、全て4価の溶液と比較すると約0.5%大きくなっている。

4.3.2 ウラン・プルトニウム混合硝酸溶液^(8,9)

混合硝酸溶液の濃度を高くするため蒸発濃縮を行なう場合、溶液の酸性度、加熱時間、初期プルトニウム濃度等により反応速度は変化するが4価のPuのかかなりの部分が6価に転換すると考えられる。また、一度生成されたPu(VI)はプルトニウムの α 崩壊による溶液の放射線分解によってPu(IV)に還元される。還元速度はPu(VI)の量や他の成分に依存し、水素イオンが還元過程で消費され、溶液の酸濃度は減少する。このように混合硝酸溶液の酸性度及びプルトニウム原子価の変動は溶液中の各構成核種の個数密度に変化を与え、体系の K_{eff} の変化の原因となるため、臨界安全上の重要な課題である。ここでは、高濃度のウラン・プルトニウム混合硝酸溶液に対して実現し得る条件を設定して、 K_{eff} の酸性度及び原子価に対する感度を評価した。

(a) 酸性度の効果

ウラン濃度及びプルトニウム濃度が各々197 g/l、345 g/lの混合硝酸溶液では、酸性度が6.9 Mから2.0 Mに変化すると、減速材対核分裂性核種の個数比 $H/^{235}\text{U}$ 及び $H/^{239}\text{Pu}$ は各々10.022から13.477、及び41.382から55.648に増加する(Table 4.3.4)。この減速度の増加に伴い、中性子スペクトルが軟化するため、円筒完全水反射条件の体系の K_{eff} は6.9 Mの場合0.810であるのに対し、2.0 Mの低酸性度溶液では0.917と増加している(Table 4.3.5)。両者の K_{eff} の差は約10%とかなり大きな値を示しており、臨界安全上溶液の酸性度のコントロール及び精度の高い化学分析が要求されると考えられる。

(b) プルトニウム原子価の効果

混合硝酸溶液中のプルトニウムの原子価が4価と6価の2つの場合について、溶液の K_{eff} と円筒体系の K_{eff} を評価した。混合硝酸溶液(Pu 357 g/l、U 187 g/l)の場合、 $H/^{239}\text{Pu}$ 値はPu(IV)からPu(VI)に変化するとTable 4.3.4に示すように約25%増加しており、ほぼ同じプルトニウム濃度を持つ硝酸プルトニウムの $H/^{239}\text{Pu}$ 値の増加が10%であるのに比較して変化が大きい。これは混合硝酸溶液では、 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ が共存しているためPu(IV)の $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 状態でのH量がプルトニウム単味の場合に比べて小さいので、プルトニウムの原子価の変化に対して $H/^{239}\text{Pu}$ の感度が高いためであると考えられる。30 cm厚の水反射体付円筒体系の K_{eff} もTable 4.3.5に示すように、0.79から0.87へ増加し、硝酸プルトニウムの場合の変化(+0.04)と比べてかなり高い。今回計算を行なった混合硝酸溶液は、高濃度でしかも酸性度が7.5 Mと高い場合であり、溶液の酸性度が低くなれば、プルトニウム原子価に対する K_{eff} の感度は低くなる傾向を示すと思われるが、実験の解析等においては、プルトニウム原子価を精度良く測定することが要求される。

Table 4.3.1 Density and concentration of plutonium nitrate solution
(^{239}Pu 100%, 350 g Pu/l, acidity 3 M)

Case No.		1	2	3
Chemical Compound		$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$	$\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$	$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ [68.25%] $\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$ [31.75%]
Solution Density (g/cm ³)		1.620	1.557	1.600
Concentration (M)	HNO_3	8.857	5.928	7.927
	H_2O	39.846	43.826	41.111
	^{239}Pu	1.464	1.464	1.464
	^{14}N	8.857	5.928	7.927
	^{16}O	66.415	64.539	65.821
	^1H	82.692	90.653	85.221
Number Density (n/b-cm ³)	^{239}Pu	8.8162×10^{-4}	8.8162×10^{-4}	8.8162×10^{-4}
	^{14}N	5.3337×10^{-3}	3.5698×10^{-3}	4.7736×10^{-3}
	^{16}O	3.9995×10^{-2}	3.8887×10^{-2}	3.9637×10^{-2}
	^1H	4.9797×10^{-2}	5.4591×10^{-2}	5.1320×10^{-2}
H/ Fissile (^{239}Pu)		56.484	61.921	58.211

Table 4.3.2 Effect of plutonium valence state on multiplication factor of plutonium nitrate solution system (^{239}Pu 100%, 350 g Pu/l, acidity 3 M)

Case No.	Plutonium Nitrate Solution (350 g/l $\text{H}^+=3\text{M}$)	Infinite Multiplication Factor K_∞	Effective Multiplication Factor K_{eff} (Cylinder 20 cm ϕ , 30 cm H)
1	$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$	1.79522 ± 0.00279	0.95724 ± 0.00598
2	$\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$	1.81389 ± 0.00291	0.99237 ± 0.00518
3	$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ [68.25%] $\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$ [31.75%]	1.79908 ± 0.00301	0.96228 ± 0.00552

Table 4.3.3 Effect of acidity on effective multiplication factor of plutonium nitrate solution $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ (^{239}Pu 100% 200 gPu/l)

Acidity (M)		
	Our formula	ARH-600 formula
0	1.01384 ± 0.00533	1.02124 ± 0.00545
3	0.96852 ± 0.00527	0.99152 ± 0.00556
6	0.91498 ± 0.00555	0.94180 ± 0.00519

a) Pu isotopic ratio : $^{239}\text{Pu} = 100\%$

b) Pu concentration 200 g/l

Table 4.3.4 Density and atomic number density of nitrate solution of plutonium and uranium mixture

Case No		1	2	3	4
Chemical Form of U		$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$		$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$	
Chemical Forms of Pu		$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$		$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$	$\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$
Concentration of U(g/l)		197		178	
Concentration of Pu(g/l)		345		357	
Acidity (M)		6.9	2.0	7.5	
Density (g/cm ³)		1.9396	1.8605	1.9392	1.9250
Number Density (n/b-cm)	^{235}U	3.5885×10^{-6}	3.5885×10^{-6}	3.2424×10^{-6}	3.2424×10^{-6}
	^{238}U	4.9481×10^{-4}	4.9481×10^{-4}	4.4709×10^{-4}	4.4709×10^{-4}
	^{239}Pu	8.6909×10^{-4}	8.6909×10^{-4}	8.9932×10^{-4}	8.9932×10^{-4}
	^1H	3.5964×10^{-2}	4.8364×10^{-2}	3.4237×10^{-2}	4.2474×10^{-2}
	^{14}N	8.6284×10^{-3}	5.6776×10^{-3}	9.0145×10^{-3}	7.2158×10^{-3}
	^{16}O	4.2786×10^{-2}	4.1609×10^{-2}	4.2804×10^{-2}	4.3326×10^{-2}
$\text{H} / ^{235}\text{U}$		10022	13477	10559	13100
$\text{H} / ^{239}\text{Pu}$		41.382	55.648	38.070	47.229

Table 4.3.5 Effect of plutonium valence and acidity on the multiplication factors of nitrate solution of plutonium and natural uranium

Case No.	Nitrate Solution	Concentration (g/l)	Acidity (M)	Infinite Multiplication Factor K_{∞}	Effective Multiplication Factor K_{eff}
1	$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ $+\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$	345 (Pu) 197 (U)	6.9	1.68565 ± 0.00272	0.80984 ± 0.00487
2			2.0	1.71697 ± 0.00275	0.91653 ± 0.00522
3	$\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$ $+\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$	357 (Pu) 178 (U)	7.5	1.68996 ± 0.00310	0.78990 ± 0.00566
4				1.70174 ± 0.00310	0.86572 ± 0.00506

4.4 無限円筒体系の臨界直径

硝酸プルトニウム溶液 ($\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$, ^{239}Pu 100%) の無限円筒体系の臨界直径は ARH-600, 西独ハンドブック等の諸外国のハンドブックに臨界パラメータの1つとして記載されている。プルトニウム濃度が 200 g/l, 600 g/l, 酸性度が 0, 3, 6 M の6種類の硝酸プルトニウム溶液を例にとり, 今回の CSEF 設計算出式及び ARH-600 の算出式を用いて無限円筒 30 cm 水反射体付体系の臨界直径を計算し比較した。臨界直径のサーチ計算における収束条件は, $1.0 - \sigma \leq K_{\text{eff}} \leq 1.0 + \sigma$ としている。結果を Table 4.4.1 に示す。臨界直径は溶液の酸性度と共に増加し, また我々の原子個数密度算出式を用いた臨界円筒直径の値は, Fig. 4.4.1 及び Fig. 4.4.2 に見られるように ARH-600 を用いた場合よりも大きな値を示し, 高濃度の溶液で顕著であるが酸性度が低くなるに従いその差異は減少している。一般に, 臨界安全設計においては溶液の酸性度は 0 M として安全余裕度を持たせている。また臨界上最も厳しい 0 M 溶液の場合の臨界直径は計算コードのバイアス等も考慮して算出するので, 設計上両者の差の影響は小さいと考えられる。

Table 4.4.1 Comparison of critical diameter of infinite cylinder of plutonium nitrate solution between our formula and ARH-600 formula

Acidity (M)	Pu concentration (g Pu / l)	Critical diameter (cm)	
		Our formula	ARH-600 formula
0	200	16.08	15.85
	600	16.34	16.05
3	200	17.25	17.06
	600	18.44	16.60
6	200	18.70	17.90
	600	21.39	17.47

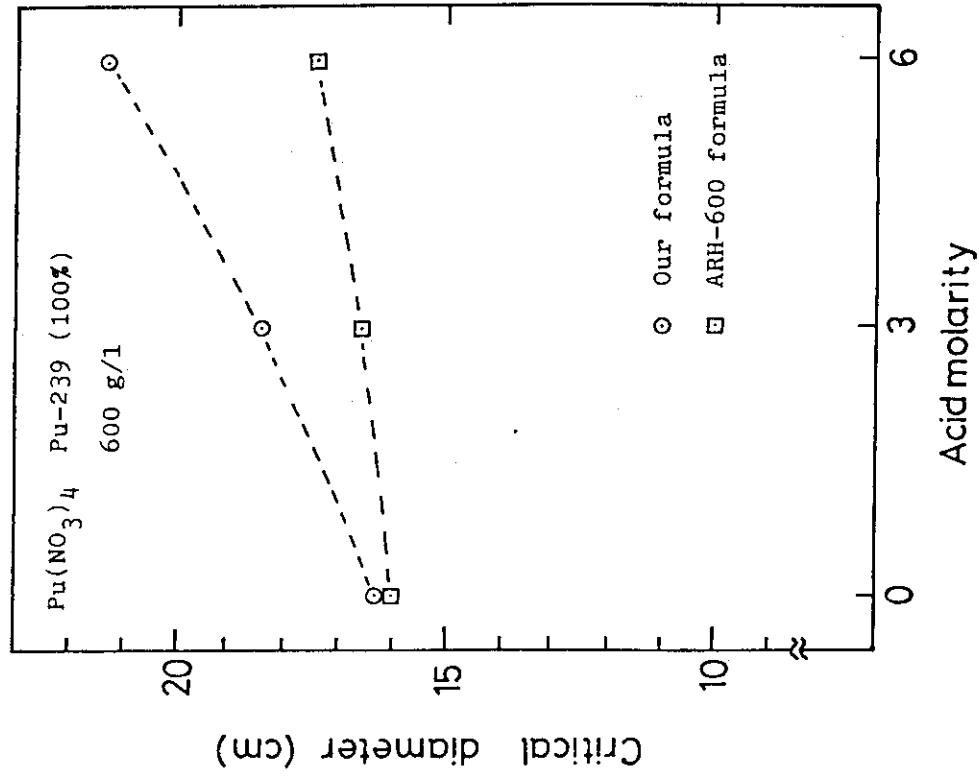


Fig. 4.4.2 Comparison of critical diameter of infinite cylinder of plutonium nitrate solution Pu(NO₃)₄ (600 g Pu/ℓ) (Our formula and ARH-600 formula)

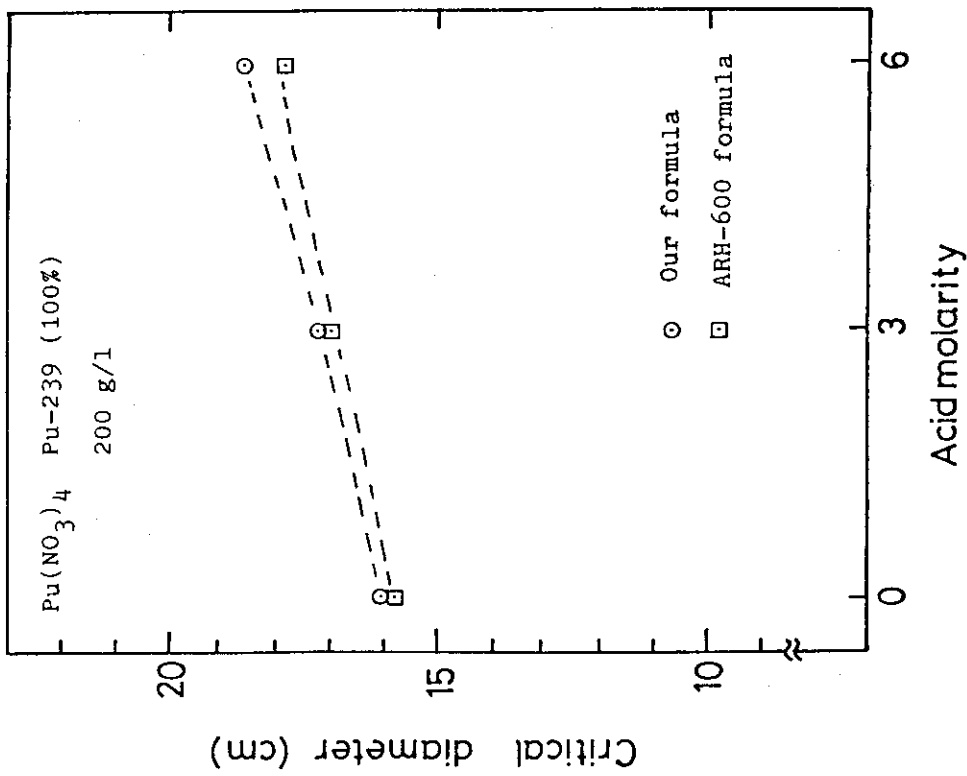


Fig. 4.4.1 Comparison of critical diameter of infinite cylinder of plutonium nitrate solution Pu(NO₃)₄ (200 g Pu/ℓ) (Our formula and ARH-600 formula)

4.5 円筒直径と実効増倍係数の関係

体系の実効増倍係数に影響を与える因子には、燃料濃縮度、燃料組成、化学形態、H/Fissile等の体系の材料バックリングに関するものと、容器形状、寸法、配置及び反射条件等、体系の幾何バックリングに関するものがある。実際のプラントにおいては、燃料条件はプロセスの変動と共に変化し、それに伴い体系の実効増倍係数も変化するが、設計段階においてはこれらの燃料のプロセス上の変化を考慮し、臨界安全上最も厳しくなる条件を想定して臨界計算を行っている。

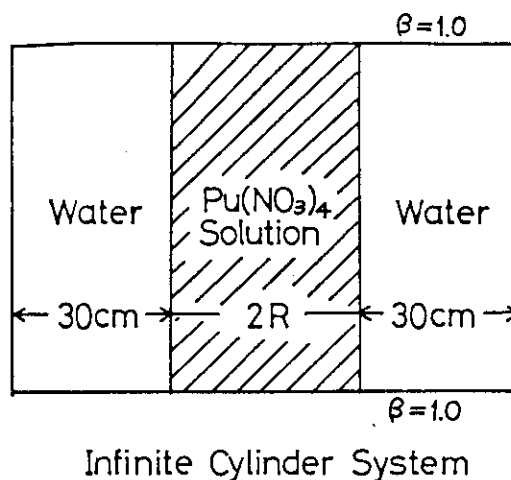
一方幾何学的条件についても、計算モデルとしては無限円筒体系あるいは無限平板体系を考え、かつ完全水反射条件を想定し、安全余裕度を持たせて設計が行われている。

実際のプラントの円筒タンクに関して、タンク直径の変動要因としては、製作時の加工公差や使用時の腐食等が考えられる。

Table 4.5.1及びTable 4.5.2に、各々CSEF設計算出式とARH-600算出式を用いた場合の硝酸プルトニウム溶液(Pu濃度200, 600g/l;酸性度0.3, 6M)の無限円筒体系の直径と実効増倍係数の関係を示す。またFig. 4.5.1からFig. 4.5.3にPu濃度が10, 200, 600g/lの場合について、CSEF設計算出式を使用した場合の計算結果を示す。

<簡易計算モデル>

一次元無限円筒体系(完全水反射)の寸法変化(半径方向)に対する実効増倍係数の変化を、以下に示す簡易計算モデルを用いて評価し、KENO-IVによる計算結果と比較した。



○ K_{eff} の変化率 $\partial K_{\text{eff}} / \partial R$ の算出

1群理論を用いれば、無限円筒体系の中性子実効増倍係数は、以下の式で表わされる。

$$K_{\text{eff}} = \frac{K_{\infty}}{1 + M^2 B_g^2} = \frac{K_{\infty}}{1 + M^2 \left(\frac{2.405}{R + \lambda} \right)^2} \quad (4-1)$$

ここで K_{∞} : 無限増倍係数

- M^2 : 中性子移動面積
- B_g^2 : 幾何バックリング
- λ : 反射体節約
- R : 円筒半径

体系が臨界の時の円筒半径を R_c とすれば式 (4-1) より

$$M^2 = \frac{K_\infty - 1}{2.405^2} (R_c + \lambda)^2 \quad (4-2)$$

式 (4-2) を式 (4-1) に代入して次式が得られる。

$$K_{eff} = \frac{K_\infty}{1 + (K_\infty - 1) \left(\frac{R_c + \lambda}{R + \lambda}\right)^2} \quad (4-3)$$

円筒寸法変化に対する K_{eff} の変化率は、式 (4-3) を R で微分することにより、

$$\frac{\partial K_{eff}}{\partial R} = \frac{2 K_\infty (K_\infty - 1) C^2}{\{1 + (K_\infty - 1) C^2\}^2 (R + \lambda)} \quad (4-4)$$

$$C = (R_c + \lambda) / (R + \lambda)$$

と表わされ、臨界点 ($K_{eff} = 1$) における K_{eff} の変化率は次式で与えられる。

$$\left. \frac{\partial K_{eff}}{\partial R} \right|_{R_c} = \frac{2 (K_\infty - 1)}{K_\infty (R_c + \lambda)} \quad (4-5)$$

式 (4-5) 中の反射体節約は、燃料組成、体系の中性子スペクトル等に依存するが、簡易評価モデルでは、溶液の燃料濃度にはよらず一定値 ($\lambda = 7.0$ cm) と仮定した。

また無限増倍係数 K_∞ は、臨界体系の中性子スペクトルを考慮するために、燃料溶液中の核分裂数と中性子吸収数の比 F/A より計算した。

以下に硝酸プルトニウム溶液の計算例を示す。

(Case 1)

$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ ^{239}Pu (100%) 200 g Pu/l 0 M

臨界半径 $R_c = 7.51$ cm

$K_\infty = 1.8483$

$$\text{式(4-5): } \left. \frac{\partial K_{eff}}{\partial R} \right|_{R_c} = \frac{2 (1.8483 - 1)}{1.8483 (7.51 + 7.0)} = 6.3268 \times 10^{-2} \Delta K / \Delta R$$

KENO-IV :

i	R_i (cm)	Multiplication factor K_i	$\Delta K_{i5} / \Delta R_{i5}$ (cm^{-1})
3	7.50821	0.95352 + 0.0564	7.8424×10^{-2}
5	8.04223	0.99540 + 0.00568	
4	8.15953	1.01021 + 0.00547	(1.2626×10^{-1})

(Case 2)

$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ $^{239}\text{Pu}(80\%) + ^{240}\text{Pu}(20\%)$ 200 g Pu/l 0 M

臨界半径 $R_c = 11.75$

$K_\infty = 1.5106$

$$\text{式(4-5)}: \left. \frac{\partial K_{\text{eff}}}{\partial R} \right|_{R_c} = \frac{2(1.5106 - 1)}{1.5106(11.75 + 7.0)} = 3.6057 \times 10^{-2} \quad \Delta K / \Delta R$$

KENO-IV:

i	R_i (cm)	Multiplication factor K_i	$\Delta K_{i4} / \Delta R_{i4}$ (cm^{-1})
3	11.48379	0.99013 ± 0.00513	4.2407×10^{-2}
4	11.74931	1.00139 ± 0.00469	
2	12.46556	1.02662 ± 0.00441	3.5225×10^{-2}
1	13.00	1.04111 ± 0.00427	3.1758×10^{-2}

(Case 3)

$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ $^{239}\text{Pu}(100\%)$ 10 g Pu/l 0 M

$R_c = 28.520$ cm

$K_\infty = 1.1593$

$$\text{式(4-5)}: \left. \frac{\partial K_{\text{eff}}}{\partial R} \right|_{R_c} = \frac{2(1.1593 - 1)}{1.1593(28.52 + 7.0)} = 7.739 \times 10^{-3} \quad \Delta K / \Delta R$$

KENO-IV:

i	R_i (cm)	Multiplication factor K_i	$\Delta K_{i6} / \Delta R_{i6}$ (cm^{-1})
4	25.7217	0.98065 ± 0.00291	7.730×10^{-3} (4.6)
5	27.2734	0.99138 ± 0.00291	8.746×10^{-3} (5.6)
6	28.5219	1.00228 ± 0.00237	

ここで i は KENO-IV のサーチ計算における繰返し回数、 R_i 、 K_i は各ステップでの円筒半径及び実効増倍係数を示している。

円筒半径の変化に対する K_{eff} の変化割合 $\partial K / \partial R$ は、体系内のスペクトルが著じるしく異ならない限り、一般に臨界寸法が小さい体系ほど大きくなる傾向を示す。また上記の計算ケースにおいて、簡易計算方法による計算値は、KENO-IV による値と比較して、ほぼ妥当な結果が得られていると考えられる。しかし、参考値として用いた KENO-IV による $\partial K / \partial R$ 計算値は $R - K_{\text{eff}}$ カーブの数点の計算点に対して直線近似により内挿して求めているので各ステップでの値が変動している。より詳細な比較を行うためには、 $R - K_{\text{eff}}$ カーブについてのフィッティング処理等が必要である。

また、簡易計算方法で用いる外挿距離は、燃料組成による体系内の中性子スペクトルや、反射条件の相異による影響を受け今後、種々の燃料についての系統的な検討が必要である。

Table 4.5.1 Effective multiplication factor vs. cylinder diameter of Pu(NO₃)₄ solution
(Our formula)

Pu Isotope ratio	Pu conc. (g/l)		200		600	
	Acidity (M)	Diameter (cm)	Effective multiplication factor	Keff	Diameter (cm)	Effective multiplication factor
²³⁹ Pu (100%)	0	15.02	0.95352 ± 0.00564	14.73	0.94414 ± 0.00505	
		16.08*	0.99544 ± 0.00580	16.34*	1.00389 ± 0.00535	
		16.32	1.01021 ± 0.00547	19.37	1.10501 ± 0.00478	
		19.08	1.09845 ± 0.00518	26.00	1.25517 ± 0.00526	
		26.00	1.26623 ± 0.00576			
		16.24	0.96739 ± 0.00551	18.44*	0.99540 ± 0.00522	
	3	17.25*	1.00437 ± 0.00488	21.27	1.06630 ± 0.00521	
		19.92	1.08653 ± 0.00507	26.00	1.18173 ± 0.00543	
		26.00	1.23386 ± 0.00540			
		18.70*	0.99830 ± 0.00580	20.19	0.98242 ± 0.00425	
		20.80	1.05597 ± 0.00553	21.39	1.00435 ± 0.00467	
		26.00	1.19989 ± 0.00611	21.93*	1.00588 ± 0.00472	
²³⁹ Pu (80%) + ²⁴⁰ Pu (20%)	0	22.97	0.99013 ± 0.00513	22.27	1.01303 ± 0.00474	
		23.50*	1.00139 ± 0.00469	23.65	1.03389 ± 0.00459	
		24.93	1.02662 ± 0.00441	26.00	0.98623 ± 0.00469	
		26.00	1.04111 ± 0.00427	26.36	0.98678 ± 0.00443	
				27.29	0.99804 ± 0.00431	
				27.75	1.00652 ± 0.00422	

* Critical diameter

Table 4.5.2 Effective multiplication factor vs. cylinder diameter of $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ solution (ARH-600 formula)

Pu conc. (g/l)	200		600		
	Acidity (M)	Diameter (cm)	Effective multiplication factor K_{eff}	Diameter (cm)	Effective multiplication factor K_{eff}
0		15.02	0.95785 ± 0.00550	15.05	0.96442 ± 0.00504
		15.85*	0.99676 ± 0.00564	16.05*	0.99978 ± 0.00585
		16.19	1.01713 ± 0.00449	18.63	1.09262 ± 0.00490
		18.88	1.09624 ± 0.00568	26.00	1.28350 ± 0.00550
		26.00	1.27230 ± 0.00551		
3		15.83	0.96985 ± 0.00526	16.12	0.98692 ± 0.00453
		16.81	0.99348 ± 0.00526	16.60*	0.99847 ± 0.00532
		17.06*	1.00208 ± 0.00506	19.86	1.09166 ± 0.00525
		19.60	1.09121 ± 0.00545	26.00	1.23597 ± 0.00513
		26.00	1.24494 ± 0.00501		
6		16.95	0.96918 ± 0.00549	17.47	0.99520 ± 0.00527
		17.90	1.00345 ± 0.00504	20.76	1.07773 ± 0.00465
		20.44	1.08306 ± 0.00542	26.00	1.20141 ± 0.00533
		26.00	1.21290 ± 0.00557		

* Critical diameter

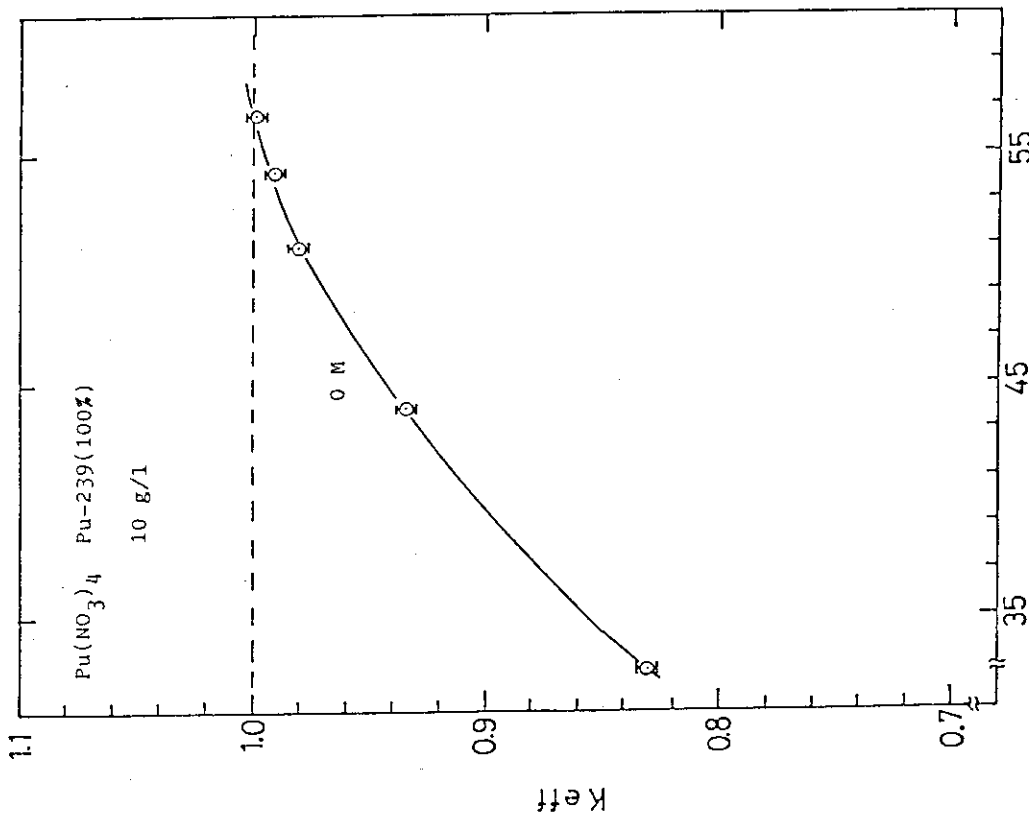


Fig. 4.5.1 Dependence of effective multiplication factor on cylinder diameter of plutonium nitrate solution with water reflection (²³⁹Pu 100%, 10 g Pu/ℓ, Acidity 0 M, Our formula)

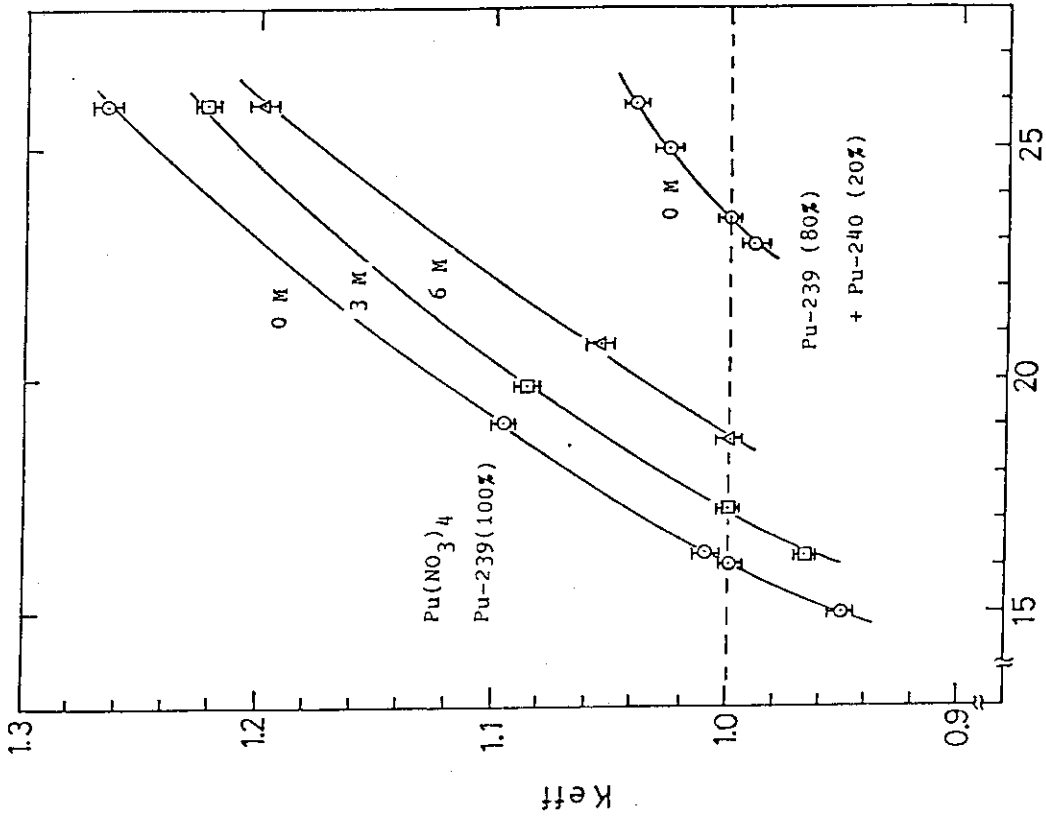


Fig. 4.5.2 Dependence of effective multiplication factor on cylinder diameter of plutonium nitrate solution with water reflection (²³⁹Pu 100%, 200 g Pu/ℓ, Our formula)

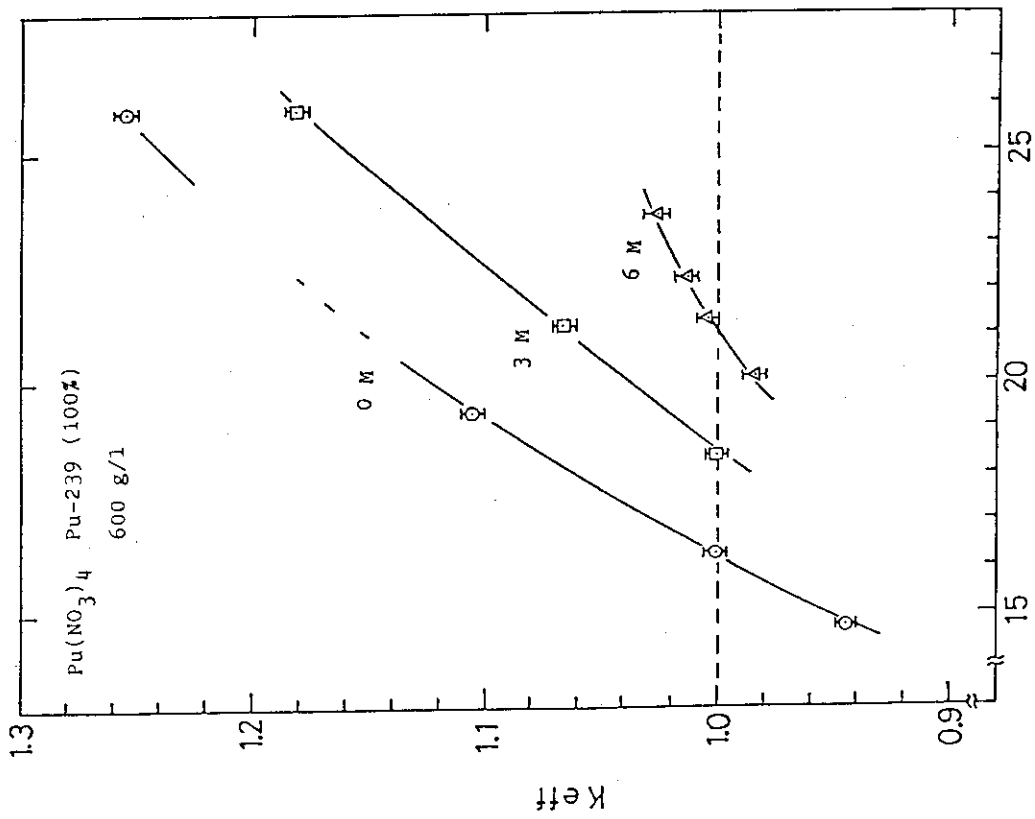


Fig. 4.5.3 Dependence of effective multiplication factor on cylinder diameter of plutonium nitrate solution with water reflection (^{239}Pu 100%, 600g Pu/l, Our formula)

4.6 プルトニウム濃度と中性子スペクトル

Fig. 4.6.1からFig. 4.6.4に硝酸プルトニウム溶液の無限体系における中性子スペクトルを示す。Fig. 4.6.1, Fig. 4.6.2及びFig. 4.6.3は、プルトニウムの同位体組成が ^{239}Pu (100%)の場合である。

溶液中のプルトニウム濃度が10～1,000 g/lと増加しH/Xが減少すると共に低エネルギーへの中性子減速が不足し、酸性度が0.3, 6 Mのいずれの場合においても、10 g/lの燃料濃度が低い溶液ではMaxwell分布が顕著であるが、600 g/l 1,000 g/lの高濃度の溶液では、熱外・高速中性子が支配的になる傾向を示している。

熱中性子領域のスペクトルは酸性度によっても影響を受け、10, 100, 600 g/lの各燃料濃度において酸性度が低い溶液の方が、酸性度が高い溶液に比べて減速度(H/X)が大きいためMaxwell分布はより発達しており、又各酸性度の間のMaxwell分布ピーク値の相対比は、プルトニウム濃度が大きくなると共に増加し、酸性度に対する中性子スペクトルの感度は、高濃度領域の溶液で大きくなる傾向を示している。

^{240}Pu を20%含む溶液についても同様で、プルトニウム濃度が600 g/lの場合にはMaxwell分布はほとんど発達していない。(Fig. 4.6.4参照)

また、 ^{239}Pu の同位体比が100%の溶液と比較して、 ^{240}Pu を20%含む硝酸溶液の場合、熱中性子領域のスペクトルの燃料濃度による変化には特に違いはない。1 eV付近にフラックスの大きな減少が見られるが、これは非核分裂性核種 ^{240}Pu の共鳴ピークによるものと考えられる。一方 $E_n \geq 100$ eVの減速領域の中性子フラックス及び、高速中性子フラックスは、これらの無限体系の燃料溶液の場合、プルトニウム濃度が増加すると共に相対的に高くなる傾向を示し、スペクトルの硬化が進んでいることが分かる。

硝酸溶液体系の中性子スペクトルは、溶液燃料の種類、燃料核種の同位体組成、燃料濃度、溶液の酸性度等の減速度H/Xに影響する各因子により決定されるが、KENO-IVを用い、137群の各中性子エネルギー群毎に、核分裂数(F_g)及び吸収数(A_g)を評価し、これを高速・熱外・及び熱中性子領域の3群に縮約して4因子解析を行なった。

縮約した中性子のエネルギー区分は以下の通りである。

Group 1 : 183.16 KeV < E_n ≤ 16.487 MeV

Group 2 : 0.68256 eV < E_n ≤ 183.16 KeV

Group 3 : E_n ≤ 0.68256 eV

硝酸溶液体系の無限増倍係数 K_∞ は、体系からのLeakageがない($L=0$)ので、4因子公式により

$$\begin{aligned} K_\infty &= \frac{F}{A} \\ &= \frac{F}{F_3} \cdot \frac{F_3}{A_3} \cdot \frac{A_3}{A} \\ &= \epsilon \cdot \eta f \cdot p \end{aligned}$$

と表わされる。

ここで、 F_3 : 熱領域 (Group 3) 中性子の核分裂数

$$= \sum_{g=101}^{137} F_g$$

F : 全中性子 (Group 1, 2, 3) 中性子の核分裂数

$$= \sum_{g=1}^{137} F_g$$

A_3 : 熱領域中性子の吸収数

$$= \sum_{g=101}^{137} A_g$$

A : 全中性子の吸収数

$$= \sum_{g=1}^{137} A_g$$

ϵ : 高速核分裂効果

$$= F / F_3$$

ηf : 再生率 \times 熱中性子利用率

$$= F_3 / A_3$$

p : 共鳴吸収を逃れる確率

$$= A_3 / A$$

である。

硝酸プルトニウム溶液 (4 ケース) 及び硝酸ウラニル溶液 (1 ケース) に対する各値の計算結果を Table 4.6.1 から Table 4.6.5 に示し、 ϵ 、 ηf 及び p の各因子について、溶液燃料濃度に対する変化を Fig. 4.6.5 から Fig. 4.6.9 に示す。また Table 中の \tilde{F}_1 、 \tilde{F}_2 、 \tilde{F}_3 は、各エネルギー群の中性子による核分裂数の全核分裂数に対する相対値を表わし、各溶液燃料における核分裂割合の変化を Fig. 4.6.10 から Fig. 4.6.14 に示す。

核分裂性核種 ^{239}Pu の同位体組成比が大きい硝酸プルトニウム溶液体系では、高速核分裂効果 ϵ の濃度依存性が大きく、200 g/l 以上の中濃度領域から急激に増加することが Fig. 4.6.5 ~ Fig. 4.6.7 に見られる。また溶液の硝酸濃度が大きい方が、減速不足となり 600 g/l において ϵ は、硝酸濃度が 0 M の溶液に対して 3.6 M 溶液は各々約 10、30% 増加している。

また Fig. 4.6.10 ~ Fig. 4.6.12 から分かるように、Group 1・Group 2 の中性子による核分裂割合は、10 ~ 800 g/l のプルトニウム濃度領域においていずれの酸性度の場合でも、ほぼ直線的に増加する傾向を示し、また 3.6 M の溶液の高濃度領域では、Group 2 の中性子による核分裂が支配的になっている。

因子 ηf は、硝酸プルトニウム溶液の場合、10 ~ 100 g/l の濃度範囲で燃料濃度と共に増加し、~ 200 g/l でほぼ飽和する傾向を示し硝酸濃度による影響は小さいが、溶液体系の無限増倍係数 K_∞ の濃度依存性に対して一次的な効果を与える因子と考えられる。

無限増倍係数 K_∞ は、高速核分裂効果 ϵ が小さい低濃度領域においては、 ηf 及び p 因子によって支配される。 K_∞ の硝酸濃度に対する依存性は、4.2 で記したように、高濃度領域の一部

($\geq 800\text{g/l}$)を除いて自由な硝酸根のない0 Mの場合が最も大きく、硝酸濃度が増加するにつれて減少するが、これは0 M溶液の ηf が燃料濃度の増加と共に3.6 M溶液に対して各々2.2~0.1%、4.3~0.1%大きくなり、又共鳴を逃れる確率 p が2.0~10.7%、1.8~28.8%大きくなるためである。低濃度では ηf に対する酸性度の効果が、又高濃度になるに従い p に与える酸性度の効果が溶液の核的特性を決める上で大きいと考えられる。

同位体組成が ^{239}Pu (80%) + ^{240}Pu (20%)の溶液における高速核分裂効果 ϵ の濃度依存性は、 ^{239}Pu (100%)、0 M溶液と比較して傾向に顕著な差異はないが、400 g/l以上の領域において燃料濃度の増加と共に1.5~12%の範囲で相対的に大きくなる。また ηf は ^{239}Pu (100%)溶液と異なり、Table 4.6.4に示すように $\approx 200\text{g/l}$ 付近で極大値を持ち、 K_{∞} の燃料濃度依存傾向に最も影響を与える因子であると考えられる。

一方10%濃縮の硝酸ウラニル溶液の場合、硝酸プルトニウムと比べて、燃料濃度変化に伴う高速核分裂効果 ϵ の増加は小さく、800 g/lにおいて約1.10である。また ηf が $< 1000\text{g/l}$ の濃度範囲においては、硝酸プルトニウムに見られたような飽和傾向を示さず、無限増倍係数 K_{∞} も800 g/l以下で燃料濃度の増加と共に単調に増加している事が分かる。

Table 4.6.1 Calculational results of critical parameters for
plutonium nitrate solution $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$
(^{239}Pu 100%, acidity 0 M)

Conc. (g/l)	Parameters for the four factor formula										
	F	F ₃	A	A ₃	F ₁	F ₂	F ₃	ε	p	γf	K _∞
10	1.1563	1.1411	0.9978	0.9776	0.0014	0.0117	0.9869	1.0133	0.9798	1.1672	1.1563
20	1.4696	1.4395	0.9986	0.9700	0.0022	0.0183	0.9796	1.0209	0.9784	1.4840	1.4696
40	1.6815	1.6220	0.9985	0.9535	0.0038	0.0315	0.9646	1.0367	0.9549	1.7011	1.6815
60	1.7568	1.6691	1.0005	0.9396	0.0055	0.0444	0.9501	1.0525	0.9391	1.7765	1.7568
80	1.7807	1.6649	0.9963	0.9196	0.0073	0.0577	0.9350	1.0695	0.9231	1.8104	1.7806
100	1.8012	1.6584	0.9991	0.9075	0.0090	0.0703	0.9207	1.0861	0.9083	1.8275	1.8012
200	1.8129	1.5410	0.9979	0.8349	0.0184	0.1316	0.8500	1.1776	0.8367	1.8458	1.8129
400	1.8103	1.3069	0.9990	0.7106	0.0387	0.2394	0.7220	1.3852	0.7114	1.8392	1.8103
600	1.8179	1.1020	1.0012	0.6003	0.0607	0.3331	0.6062	1.6496	0.5996	1.8356	1.8179
800	1.8270	0.9125	1.0014	0.4973	0.0857	0.4148	0.4995	2.0022	0.4967	1.8348	1.8270
1000	1.8348	0.7270	0.9987	0.3958	0.1150	0.4887	0.3963	2.5236	0.3964	1.8367	1.8348

Table 4.6.2 Calculational results of critical parameters for
plutonium nitrate solution $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$
(^{239}Pu 100%, acidity 3 M)

Conc. (g/l)	Parameters for the four factor formula										
	F	F ₃	A	A ₃	F ₁	F ₂	F ₃	ε	p	γf	K _∞
10	1.1170	1.1009	1.0016	0.9770	0.0015	0.0129	0.9856	1.0147	0.9754	1.1269	1.1170
20	1.4342	1.4004	0.9979	0.9644	0.0023	0.0199	0.9777	1.0228	0.9665	1.4521	1.4323
40	1.6550	1.5919	0.9986	0.9474	0.0041	0.0340	0.9619	1.0396	0.9488	1.6803	1.6550
60	1.7304	1.6366	0.9978	0.9293	0.0059	0.0483	0.9458	1.0573	0.9314	1.7611	1.7304
80	1.7670	1.6426	0.9992	0.9134	0.0079	0.0626	0.9296	1.0758	0.9142	1.7983	1.7670
100	1.7883	1.6356	1.0017	0.9005	0.0096	0.0757	0.9147	1.0933	0.8990	1.8164	1.7883
200	1.8013	1.5065	0.9995	0.8196	0.0202	0.1434	0.8364	1.1956	0.8200	1.8380	1.8021
400	1.7955	1.2358	0.9968	0.6739	0.0443	0.2675	0.6883	1.4529	0.6760	1.8338	1.7954
600	1.8082	0.99241	0.9998	0.5414	0.0769	0.3837	0.5488	1.8220	0.5416	1.8330	1.8082
800	1.8333	0.5735	0.9997	0.3122	0.1387	0.5484	0.3128	3.1969	0.3131	1.8370	1.8333
1000	1.8519	0.5158	1.0032	0.2802	0.1541	0.5674	0.2785	3.5906	0.2794	1.8404	1.8519

Table 4.6.3 Calculational results of critical parameters for
 plutonium nitrate solution $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$
 (^{239}Pu 100%, acidity 6 M)

Conc. (g/l)	Parameters for the four factor formula										
	F	F ₂	A	A ₃	F ₁	F ₂	F ₃	ϵ	p	ηf	K _∞
10	1.0728	1.0557	0.9976	0.9681	0.0017	0.0143	0.9840	1.0162	0.9704	1.0904	1.0728
20	1.3974	1.3633	0.9976	0.9584	0.0025	0.0219	0.9756	1.0253	0.9607	1.4225	1.3974
40	1.6320	1.5647	1.0002	0.9423	0.0044	0.0369	0.9587	1.0430	0.9421	1.6605	1.6320
60	1.7101	1.6099	0.9984	0.9219	0.0064	0.0522	0.9415	1.0622	0.9235	1.7463	1.7101
80	1.7465	1.6136	0.9985	0.9036	0.0084	0.0677	0.9239	1.0823	0.9051	1.7856	1.7465
100	1.7659	1.6006	0.9993	0.8862	0.0106	0.0830	0.9064	1.1033	0.8868	1.8060	1.7659
200	1.7848	1.4629	0.9984	0.7989	0.0219	0.1585	0.8196	1.2201	0.8002	1.8310	1.7848
400	1.7872	1.1564	0.9987	0.6320	0.0508	0.3022	0.6470	1.5455	0.6328	1.8298	1.7872
600	1.8059	0.8551	1.0020	0.4666	0.0901	0.4364	0.4735	2.1118	0.4657	1.8326	1.8059
800	1.8269	0.5277	1.0011	0.2874	0.1464	0.5648	0.2889	3.4620	0.2871	1.8362	1.8269
1000	1.8606	0.1992	0.9978	0.1078	0.2424	0.6505	0.1071	9.3405	0.1081	1.8471	1.8606

Table 4.6.4 Calculational results of critical parameters for
 plutonium nitrate solution $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$
 (^{239}Pu 80% + ^{240}Pu 20%, acidity 0 M)

Conc. (g/l)	Parameters for the four factor formula										
	F	F ₂	A	A ₃	F ₁	F ₂	F ₃	ϵ	p	ηf	K _∞
10	0.9861	0.9738	1.0011	0.9554	0.0015	0.0110	0.9875	1.0127	0.9544	1.0192	0.9861
20	1.2590	1.2347	0.9261	0.9261	0.0024	0.0169	0.9807	1.0197	0.9271	1.3332	1.2590
40	1.4412	1.3932	0.8903	0.8903	0.0043	0.0291	0.9667	1.0345	0.8904	1.5649	1.4412
60	1.4909	1.4201	0.8596	0.8596	0.0061	0.0413	0.9525	1.0499	0.8597	1.5910	1.4909
80	1.5043	1.4107	0.8326	0.8326	0.0082	0.0540	0.9378	1.0663	0.8330	1.6944	1.5043
100	1.5017	1.3859	0.8070	0.8070	0.0102	0.0667	0.9229	1.0836	0.8085	1.7173	1.5017
200	1.4675	1.2467	1.0003	0.7133	0.0215	0.1289	0.8496	1.1771	0.7131	1.7477	1.4675
400	1.4111	1.0029	1.0019	0.5767	0.0468	0.2424	0.7107	1.4070	0.5757	1.7390	1.4111
600	1.3916	0.8084	0.9990	0.4686	0.0754	0.3436	0.5809	1.7226	0.4690	1.7253	1.3916
800	1.3951	0.6418	0.9971	0.3747	0.1067	0.4333	0.4600	2.1739	0.3758	1.7129	1.3951
1000	1.4246	0.5053	1.0000	0.2908	0.1398	0.5055	0.3547	2.8194	0.2971	1.7009	1.4246

Table 4.6.5 Calculational results of critical parameters for
 Uranyl nitrate solution $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$
 (^{235}U 10 %, acidity 0 M)

Conc. (g/l)	Parameters for the four factor formula										
	F	F ₃	A	A ₃	F ₁	F ₂	F ₃	ϵ	p	η^f	K _∞
10	0.1424	0.1409	0.9996	0.9829	0.0022	0.0080	0.9898	1.0103	0.9834	0.1433	0.1424
20	0.2643	0.2615	0.9993	0.9783	0.0024	0.0086	0.9891	1.0111	0.9790	0.2672	0.2644
40	0.4617	0.4559	0.9978	0.9685	0.0028	0.0099	0.9873	1.0128	0.9706	0.4707	0.4617
60	0.6179	0.6091	1.0022	0.9659	0.0031	0.0111	0.9858	1.0144	0.9637	0.6306	0.6179
100	0.8382	0.8235	0.9996	0.9506	0.0039	0.0137	0.9825	1.0178	0.9510	0.8663	0.8382
200	1.1406	1.1107	0.9973	0.9232	0.0052	0.0204	0.9738	1.0269	0.9257	1.2031	1.1405
400	1.3743	1.3119	0.9967	0.8788	0.0100	0.0354	0.9546	1.0482	0.8817	1.4929	1.3744
600	1.4634	1.3654	1.0002	0.8416	0.0149	0.0520	0.9330	1.0718	0.8414	1.6224	1.4633
800	1.4940	1.3566	0.9999	0.8003	0.0203	0.0717	0.9080	1.1013	0.8004	1.6951	1.4940
1000	1.4590	1.2614	0.9985	0.7315	0.0294	0.1061	0.8645	1.1567	0.7326	1.7243	1.4590

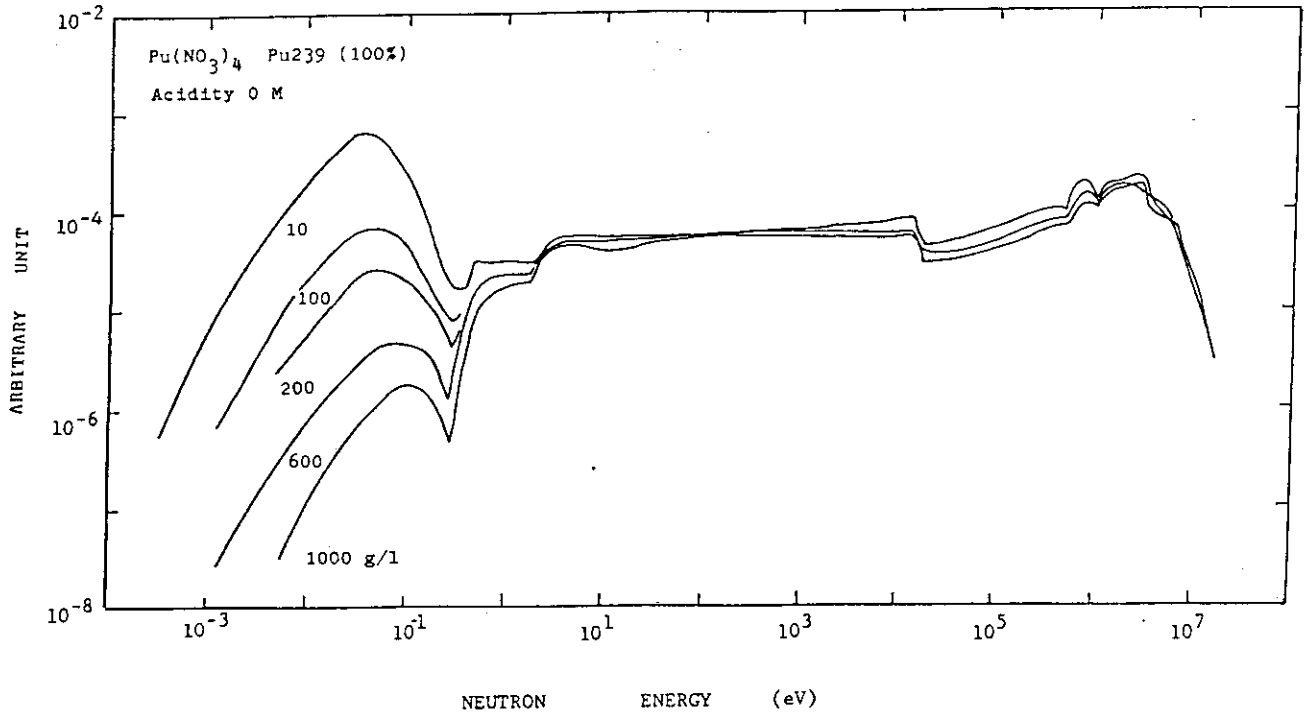


Fig. 4.6.1 Neutron spectrum of plutonium nitrate solution
 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ (^{239}Pu 100%, Acidity 0 M)

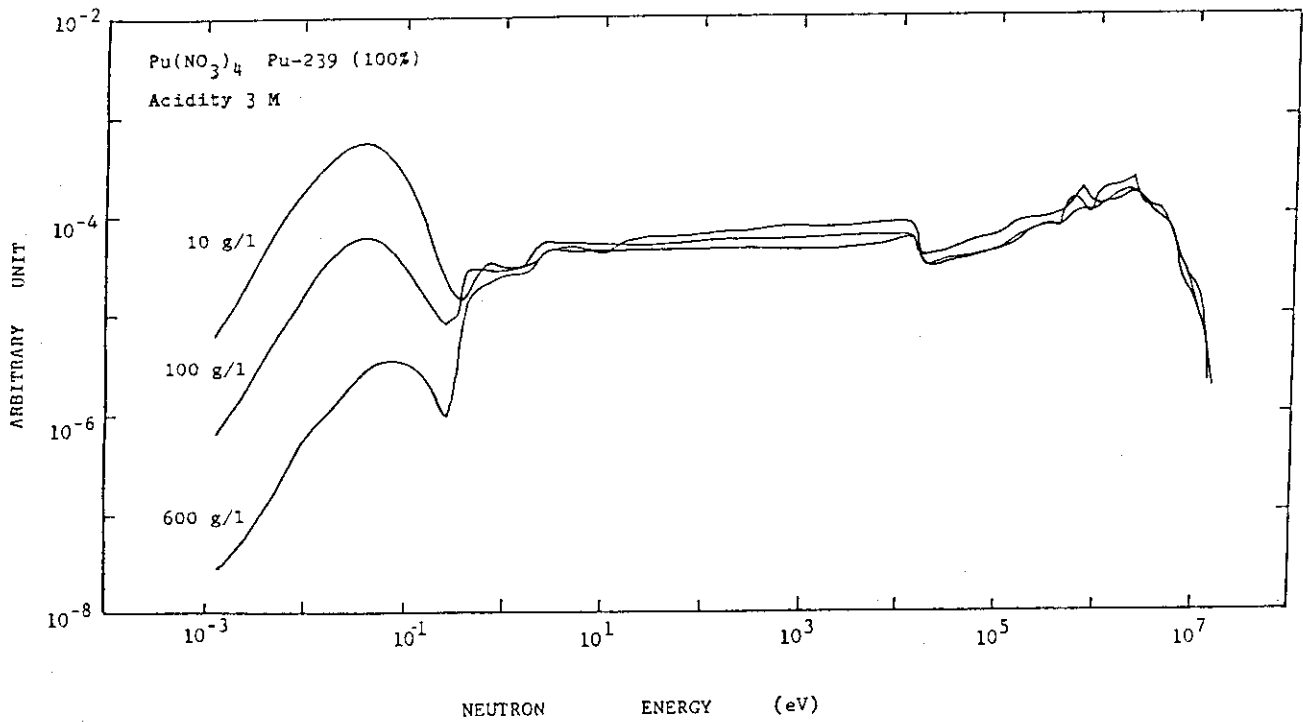


Fig. 4.6.2 Neutron spectrum of plutonium nitrate solution
 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ (^{239}Pu 100%, Acidity 3 M)

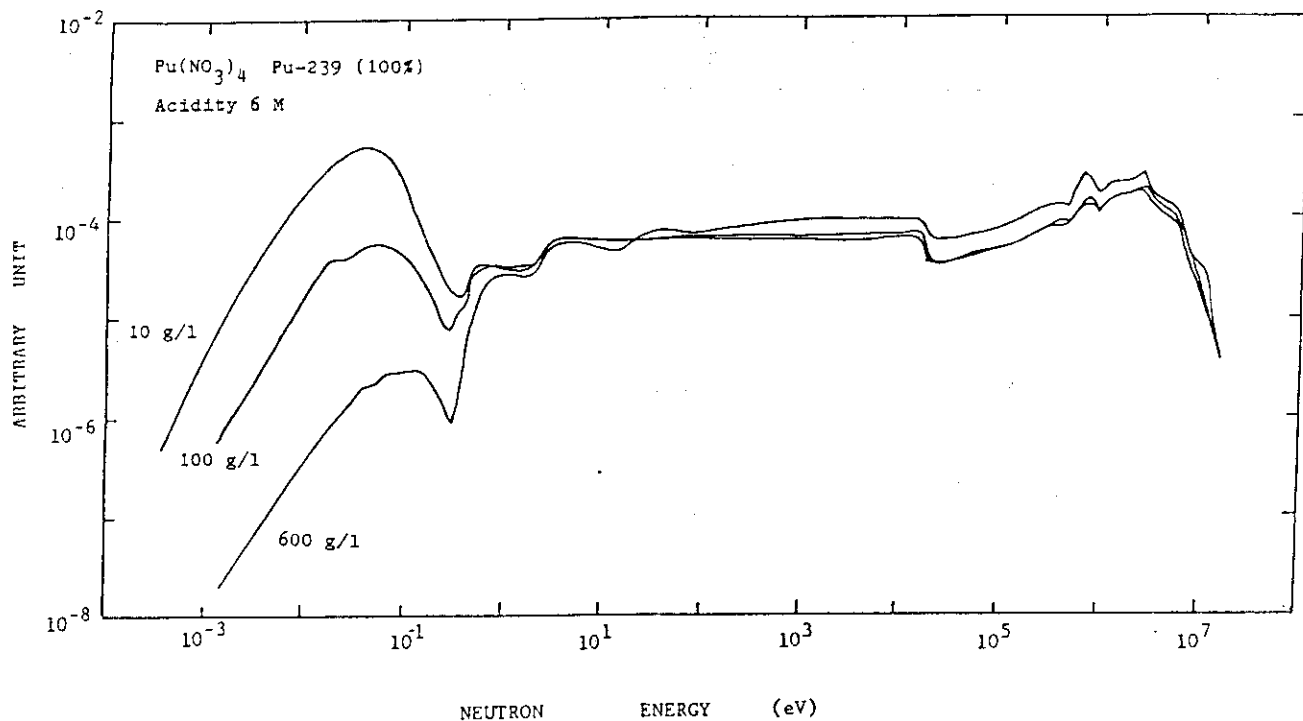


Fig. 4.6.3 Neutron spectrum of plutonium nitrate solution
 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ (^{239}Pu 100%, Acidity 6 M)

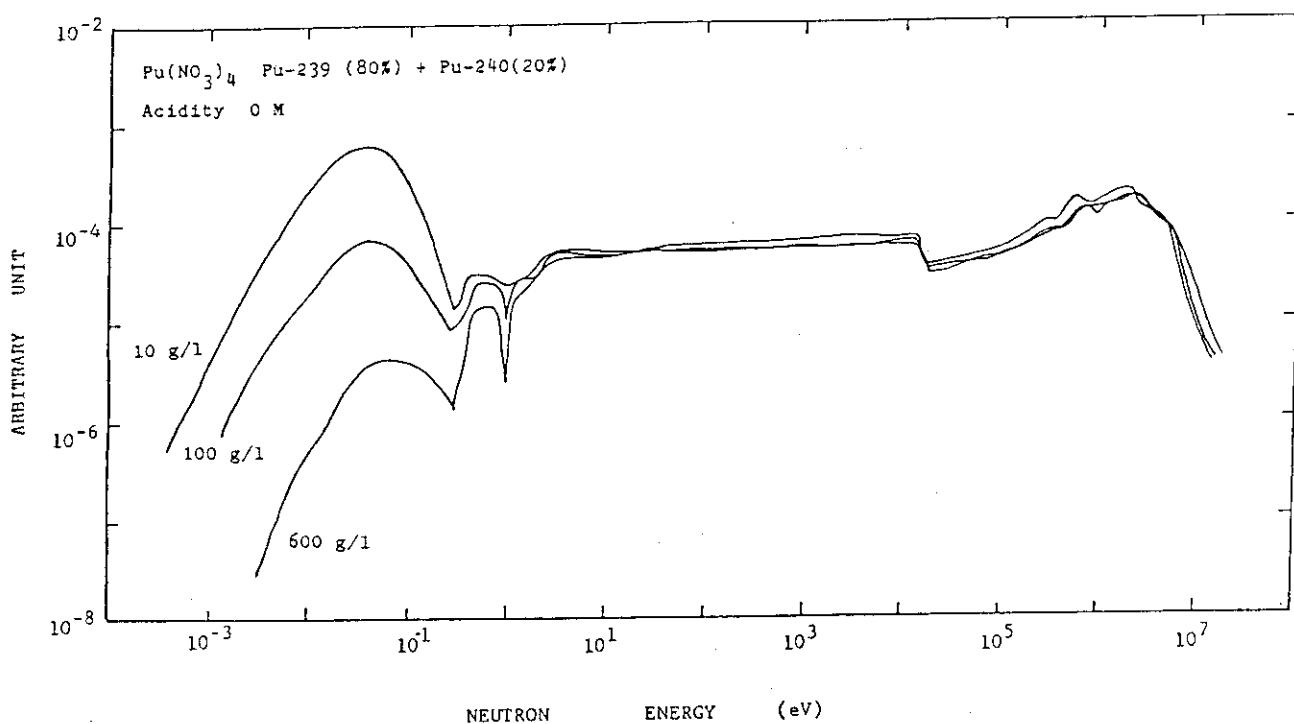


Fig. 4.6.4 Neutron spectrum of plutonium nitrate solution
 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ (^{239}Pu 80% + ^{240}Pu 20%, Acidity 0 M)

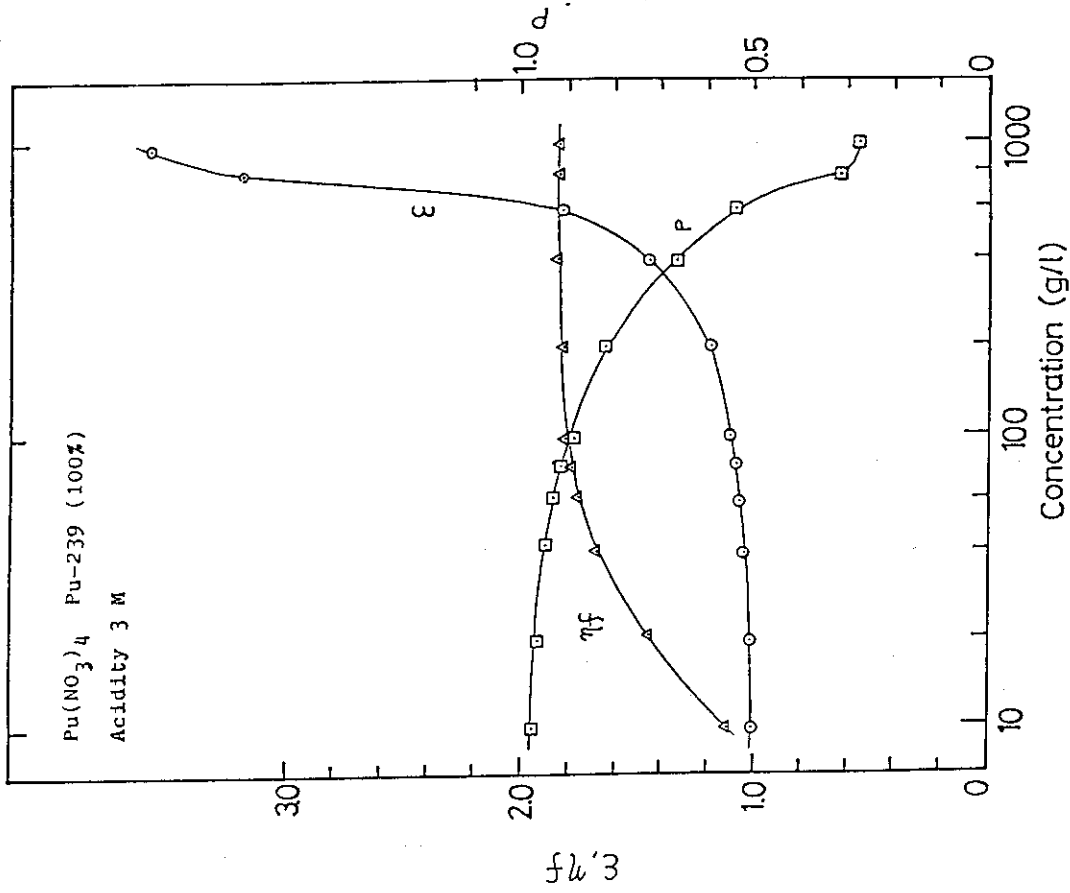


Fig. 4.6.6 Four factor of plutonium nitrate solution Pu(NO₃)₄; ϵ , η_f , P (²³⁹Pu 100%, Acidity 3 M)

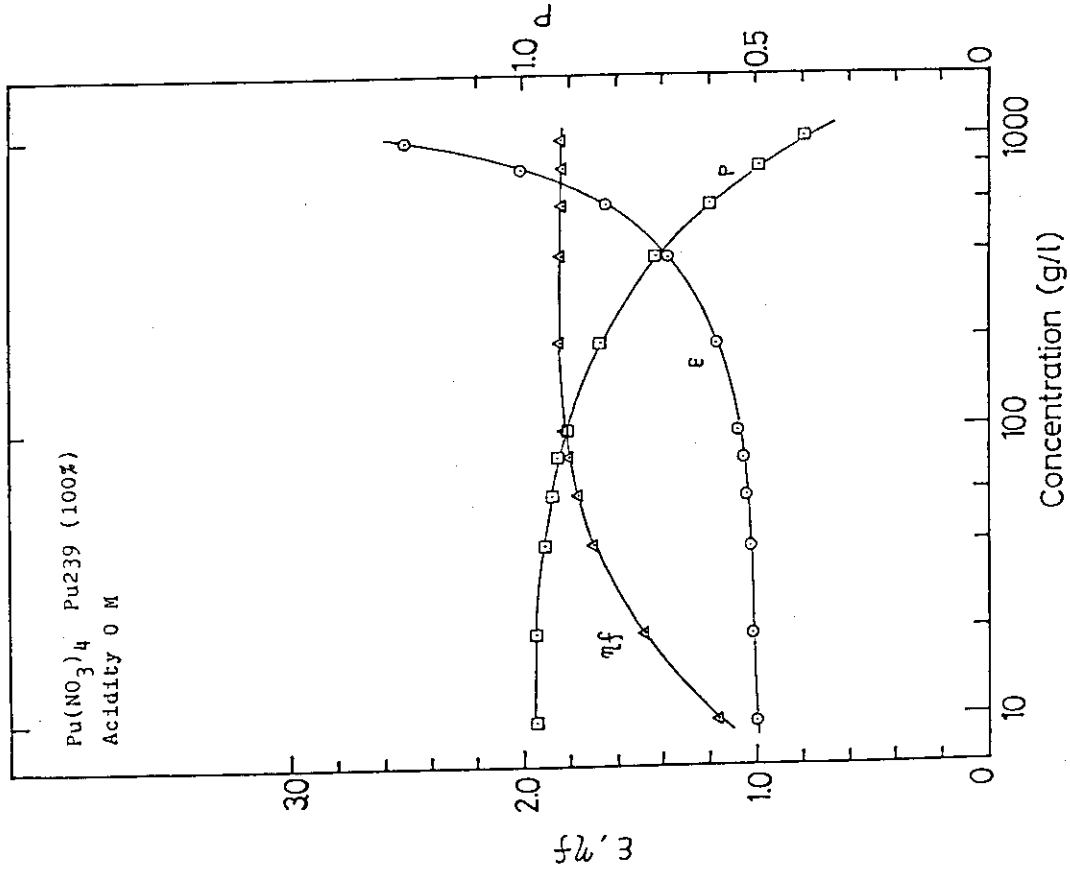


Fig. 4.6.5 Four factor of plutonium nitrate solution Pu(NO₃)₄; ϵ , η_f , P (²³⁹Pu 100%, Acidity 0 M)

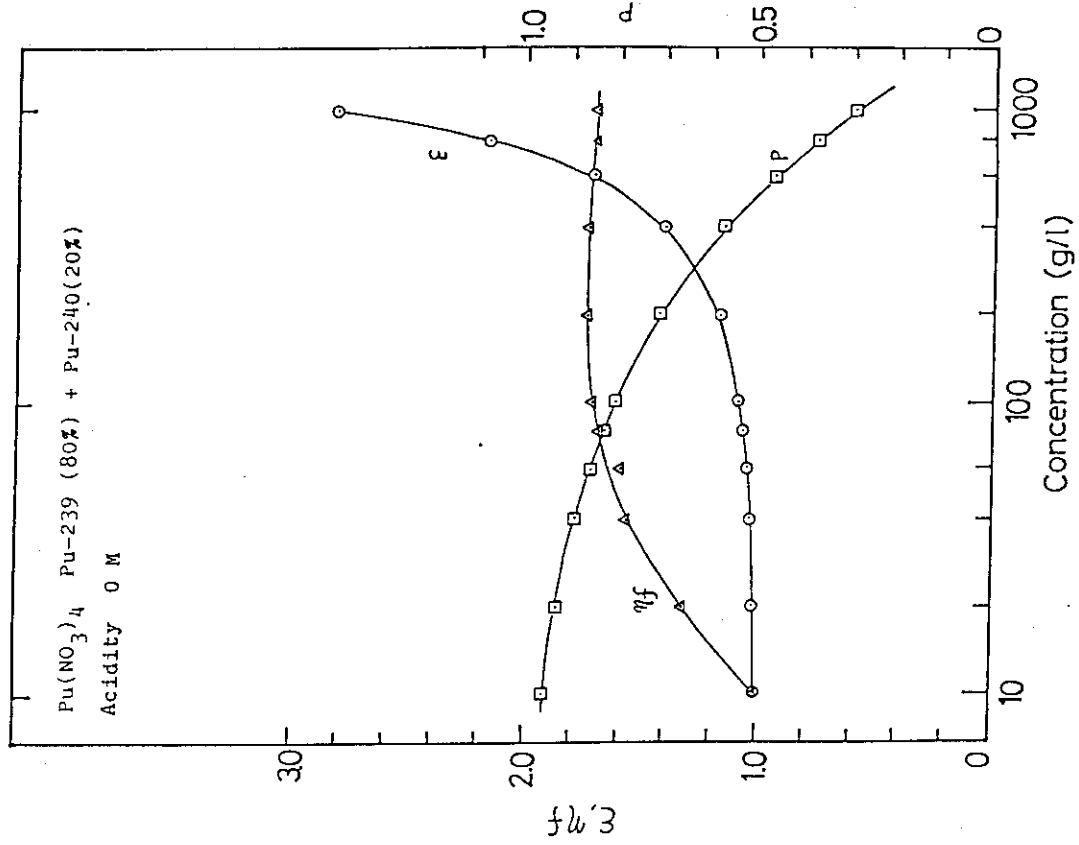


Fig. 4.6.8 Four factor of plutonium nitrate solution Pu (NO₃)₄; ε, ηf, P (239Pu 20%, Acidity 0 M)

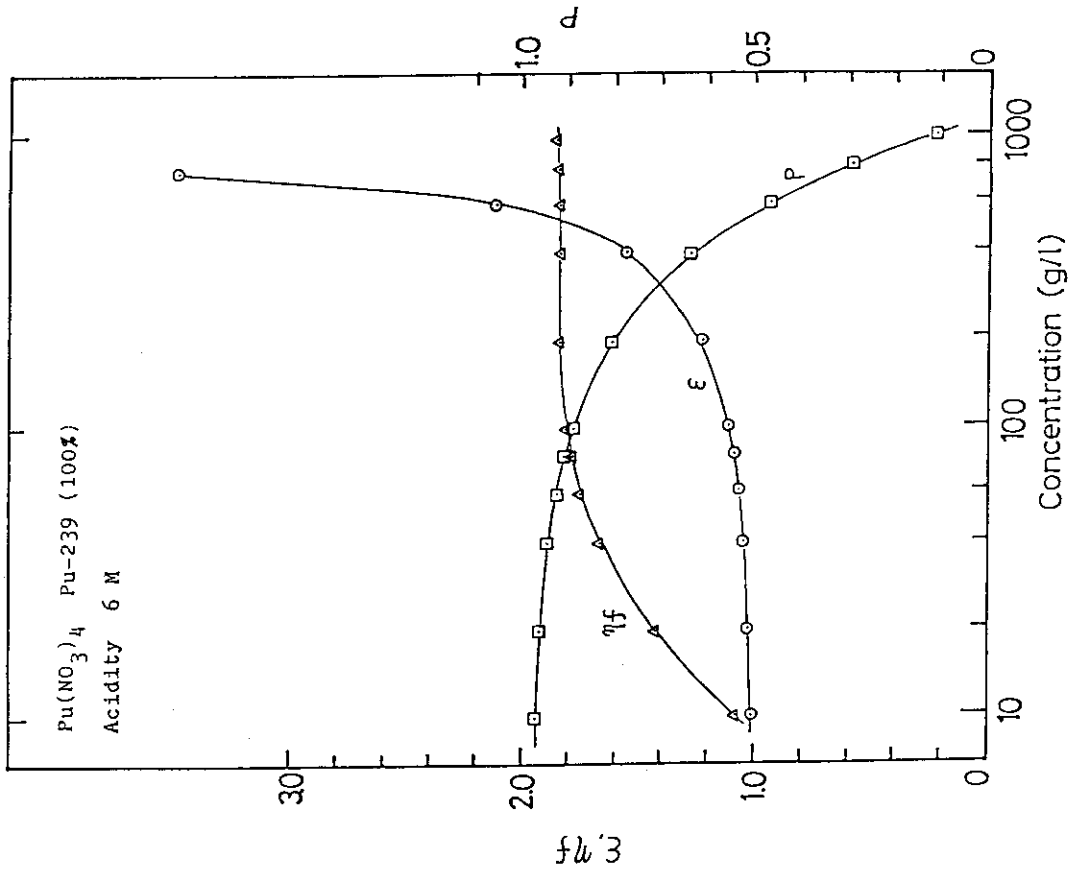


Fig. 4.6.7 Four factor of plutonium nitrate solution Pu (NO₃)₄; ε, ηf, P (239Pu 100%, Acidity 6 M)

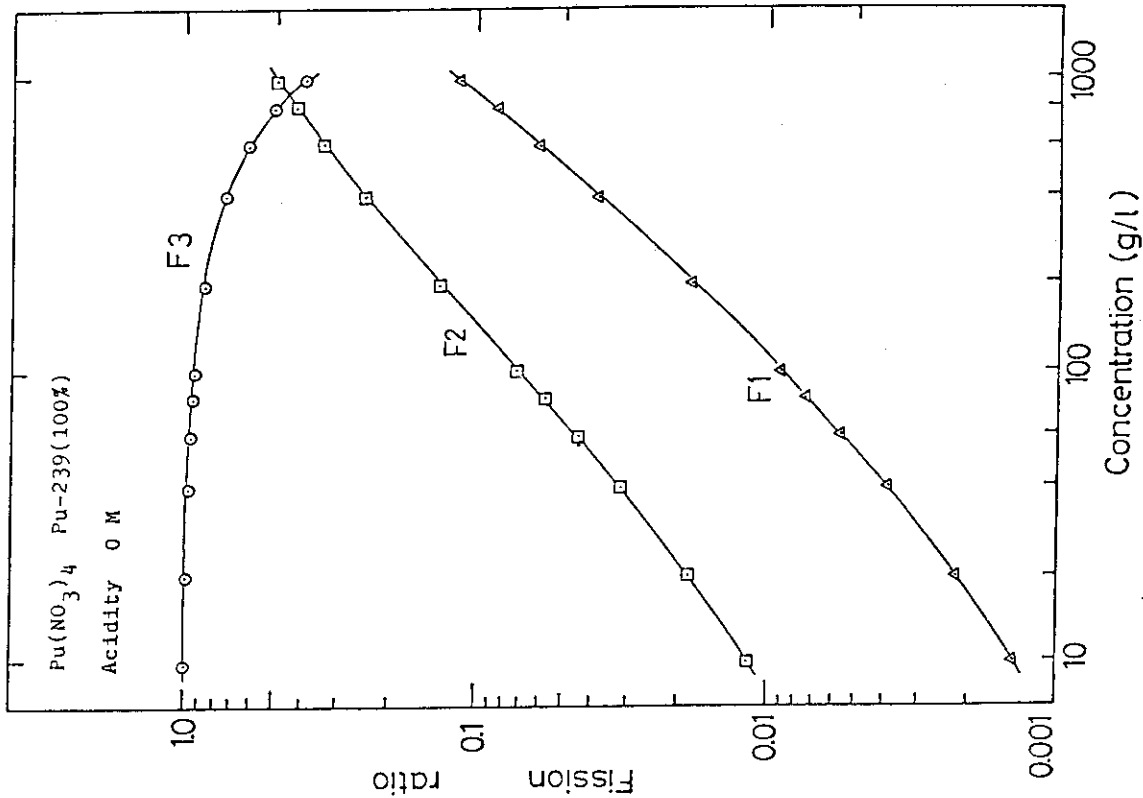


Fig. 4.6.10 Fission ratio of 3 neutron energy groups for plutonium nitrate solution; F1, F2, F3 (²³⁹Pu 100%, Acidity 0 M)

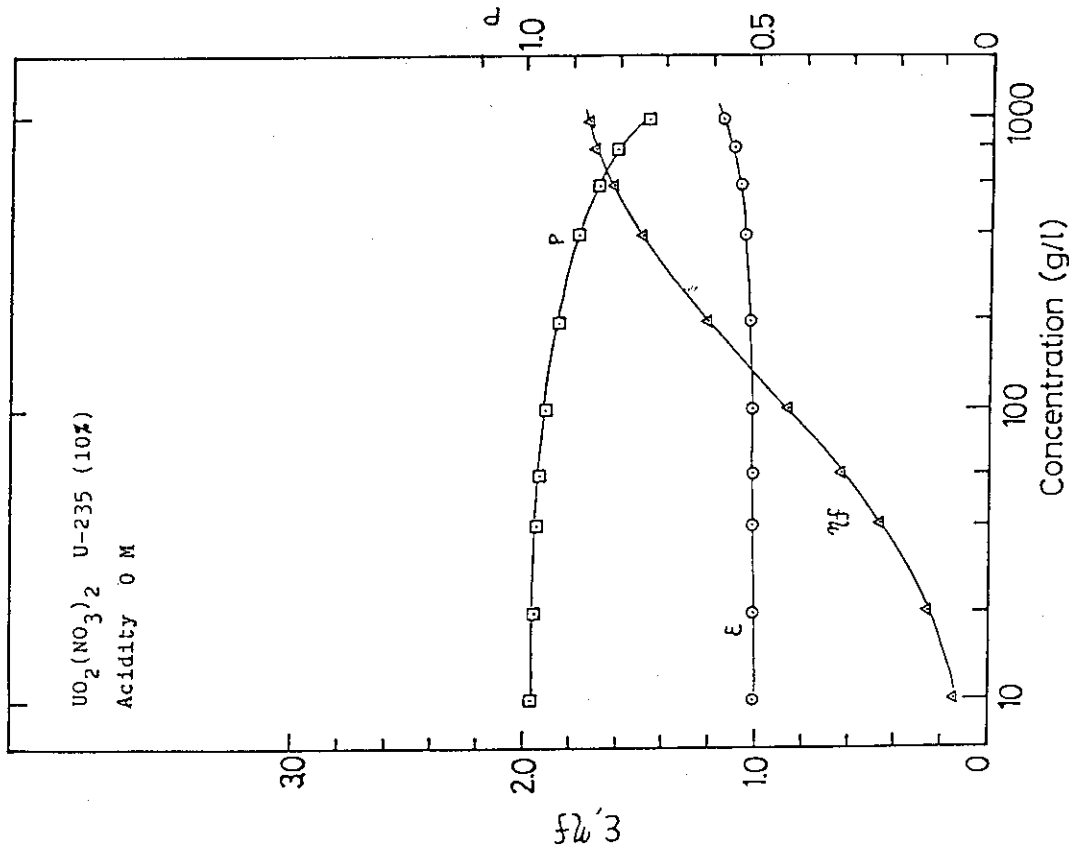


Fig. 4.6.9 Four factor of plutonium nitrate solution UO₂(NO₃)₂; ε, ηf, P (²³⁵U 10%, Acidity 0 M)

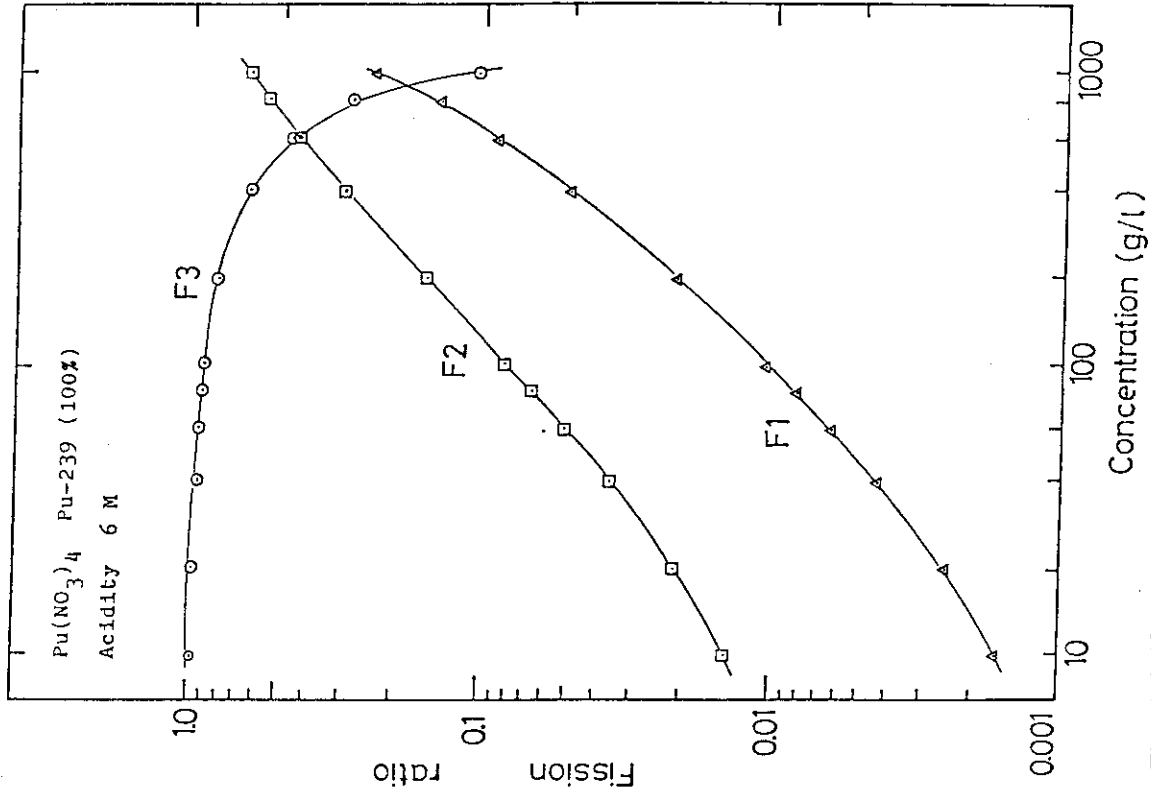


Fig. 4.6.12 Fission ratio of 3 neutron energy groups for plutonium nitrate solution ; F1, F2, F3 (^{239}Pu 100%, Acidity 6 M)

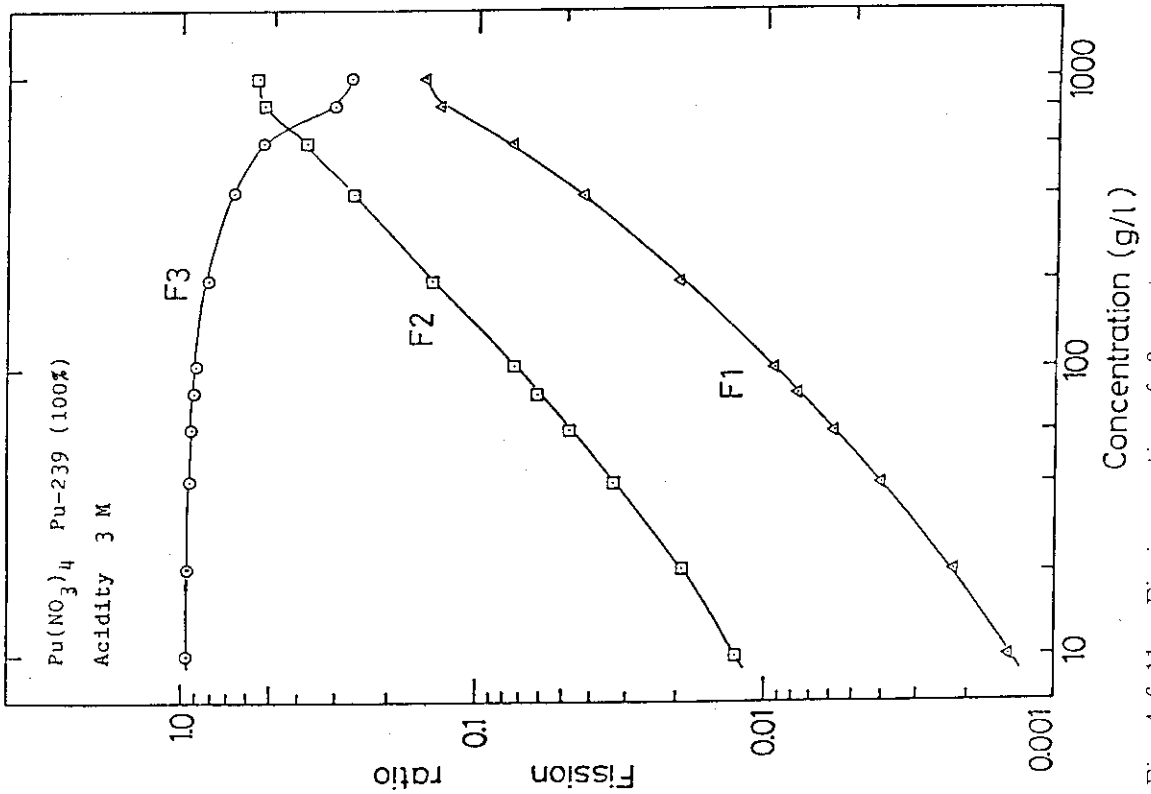


Fig. 4.6.11 Fission ratio of 3 neutron energy groups for plutonium nitrate solution ; F1, F2, F3 (^{239}Pu 100%, Acidity 3 M)

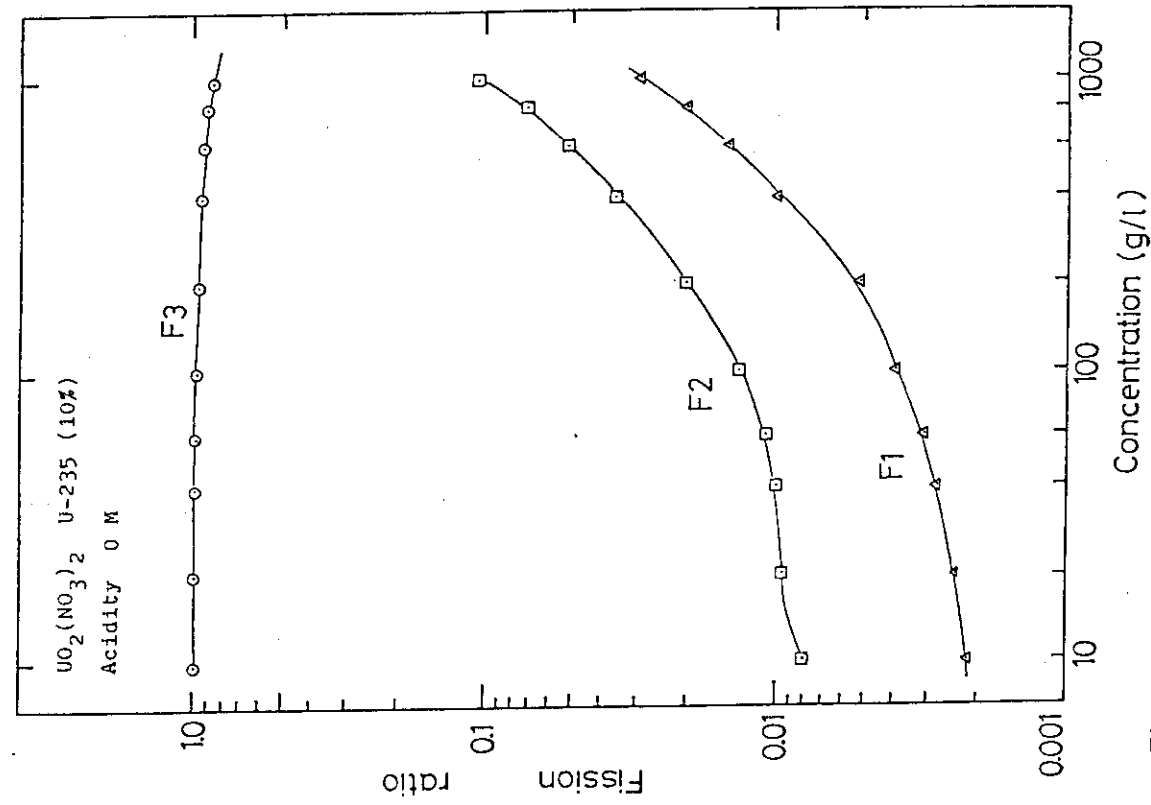


Fig. 4.6.14 Fission ratio of 3 neutron energy groups for Uranyl nitrate solution ; F1, F2, F3 (^{235}U 10%, Acidity 0 M)

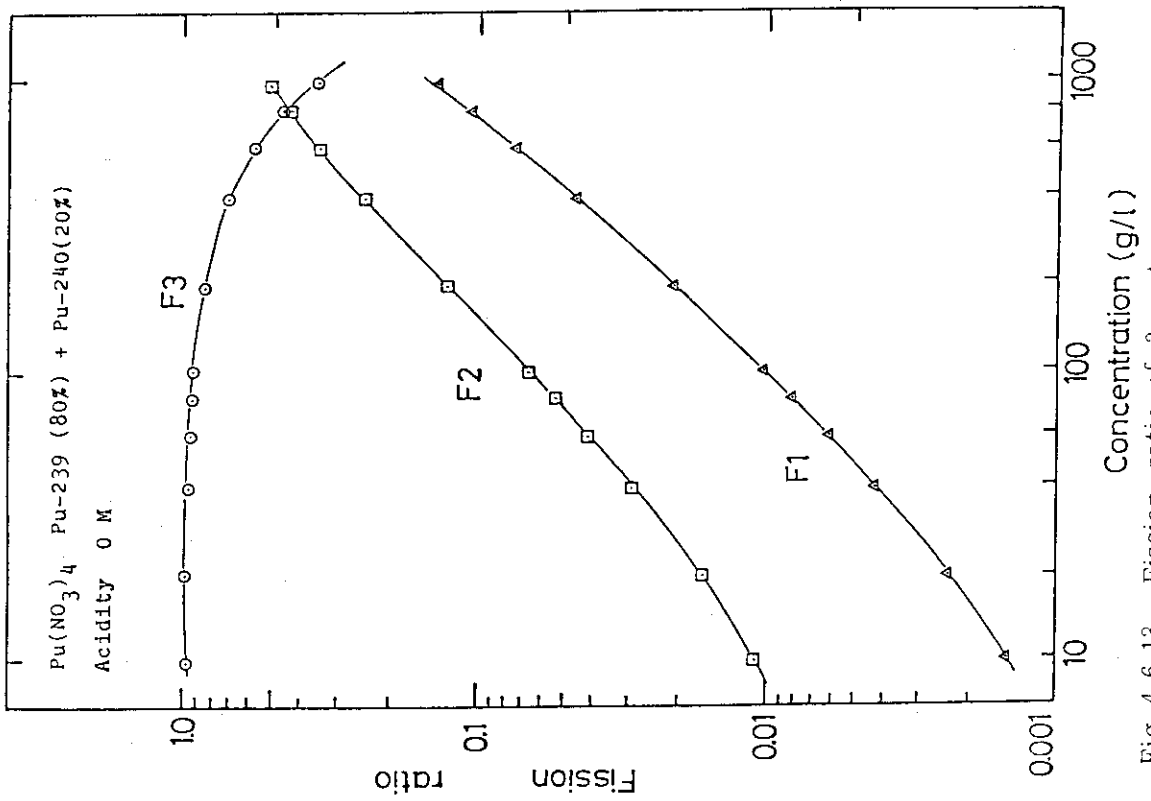


Fig. 4.6.13 Fission ratio of 3 neutron energy groups for plutonium nitrate solution ; F1, F2, F3 (^{239}Pu 80% + ^{240}Pu 20%, Acidity 0 M)

5. ま と め

本報では、CSEFの臨界実験装置の核設計及び燃料調整系・貯槽系の臨界安全設計に関連して、当研究室で作成したウラン・プルトニウム硝酸溶液の各成分の原子個数密度評価コードを用いて、基本的な溶液体系の臨界特性を評価した。

溶液燃料の臨界計算では、溶液成分中の各構成原子の評価に高い精度が要求され、その計算結果の妥当性が確認されている事が必要である。

また、臨界安全設計においては、燃料条件及び体系の幾何学的条件等を、実際の所要条件を考慮して十分な安全余裕度を持ったモデルを設定すると同時に、その余裕度を定量的に把握する事が重要であると考えられる。

以下に主要な結果をまとめる。

- (1) CSEF設計用として採用している原子個数密度算出式を用いた硝酸プルトニウム溶液の無限増倍係数は、臨界上最も厳しい酸性度0Mの条件において、ARH-600の計算結果と系統的な差は認められず、 2σ 以内で一致している。
- (2) 遊離硝酸を含む酸性度3.6Mの硝酸プルトニウム溶液では、高濃度領域においてCSEF設計用評価式はH/PuをARH-600に比べて低目に評価し、中性子スペクトルの硬化の影響で、無限実効増倍係数は相対的に高くなる。
- (3) 吸収体核種 ^{240}Pu を含む硝酸プルトニウム溶液(^{239}Pu 80% + ^{240}Pu 20%)では、1,000g Pu/l以下の範囲で最も臨界上厳しい80~100g/lの点において、両算出式による K_{∞} 評価の相異は $<0.3\%$ 以下で、 K_{∞} への影響は十分小さい。
- (4) ウラン・プルトニウム混合硝酸溶液中濃度領域では、酸性度の低下に伴うH/Fissile増加により、中性子熱化が進み、体系の実効増倍係数の増大が顕著である。
- (5) 混合硝酸溶液及び硝酸プルトニウム溶液においては、プルトニウムの原子価がPu(VI)の場合、通常のPu(IV)に比べて体系の実効増倍係数が増加し、実験等では高い精度の原子価測定が必要である。
- (6) 硝酸プルトニウムの無限体系における中性子スペクトルは、 $\sim 10\text{g/l}$ の燃料濃度が低い溶液では、Maxwell分布が顕著であるが、600, 1,000g/lの高濃度の溶液では熱外・高速中性子が支配的である。また因子 ηf が溶液の無限増倍係数 K_{∞} の濃度依存性に対して一次的な効果を与えている。

燃料溶液の組成、濃度、酸性度及び原子価効果等本報で臨界計算を実施した体系は、CSEFで計画している実験範囲の基本的なパラメータ範囲に属するものである。

今後はCSEFで臨界・未臨界実験を予定している各種の溶液燃料(濃縮ウラン・プルトニウム混合硝酸溶液、低濃縮ウラン燃料溶液等)についての臨界特性を評価すると同時に、溶液燃料の不均一性の効果や溶媒抽出系等でみられる有機系燃料についての代表的な実験体系に対する臨界計算を実施する予定である。

References

1. S.Tachimori, N.Ami, and Y.Miyoshi, "Calculation of Criticality Parameters for Uranium and/or Plutonium Nitrate Solution, I (Evaluation of Density and Atomic Number Density of the Solution)", JAERI-M 83-047(1983).
2. Y.Naito et al., "MGCL-PROCESSOR :A Computer Code System for Processing Multi-Group Constants Library MGCL", JAERI-M 9396 (1980).
3. W.A Blyckert, R.D Carter, and K.R.Ridgway, "Criticality Handbook, VOL.I,II,III, ARH-600", (1971)
4. Y.Komuro, Y.Nomura, Y.Naito, S.Tsuruta, and J.Katakura, "KENO-IV Code Benchmark Calculation(10) (A Light Water Reactor Critical Assembly)", JAERI-M 9147(1980).
5. J.Katakura, Y.Nomura, T.Shimooka, and N.Asano, "KENO-IV Code Benchmark Calculation(4) (Slab-cylinder Critical Configuration of Uranium Nitrate Solution)", JAERI-M 9026(1980).
6. I.Senuma, Y.Miyoshi, T.Suzaki, and I.Kobayashi, "Benchmark Calculation of Solution Criticality Experiments by SRAC Code System", JAERI-M 84-110(1984).
7. "Handbuch zur Kritikallitat"
8. E.D.Clayton, S.R.Bierman, and R.C.Lloyd, "Special Precation in Critical Mass Measurement", (1982)
9. E.D.Clayton, S.R. Bierman, and R.C.Lloyd, "Operating Practices of Critical Mass Laboratory", (1982)