

JAERI-M
87-037

各種核燃料物質の原子個数密度計算方法

1987年3月

小室 雄一・酒井 友宏・中丸 昇一*

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

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。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、
お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡
東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領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, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki
ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1987

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日青工業株式会社

各種各燃料物質の原子個数密度計算方法

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部

小室 雄一・酒井 友宏・中丸 昇一*

(1987年3月16日受理)

臨界計算に必要な媒質の実効巨視的断面積は媒質を構成する各核種の実効微視的断面積と個数密度の積の総和である。原子個数密度は簡単に計算できるが、使用する原子量、アボガドロ数、理論密度等の物理定数は文献により値や有効数字が異なることがあり計算結果に微妙な差異を生む原因になる。

そこで実験データにもとづく原子個数密度計算式及び信頼のおける物理定数を収集するとともに、理論的な原子個数密度計算式の導出を試みた。さらに、この結果を踏まえて各種核燃料物質の原子個数密度を計算するプログラム AND を作成した。このことにより、信頼度の高い原子個数密度を容易にかつ迅速に計算できるようになった。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

この報告書は、電源開発促進対策特別会計法に基づく科学技術庁からの受託研究「臨界安全解析データ・プログラム整備事業」として行った研究成果の一部である。

*コンピュータサービス課

Calculation Methods of Atomic Number Density for Various Nuclear Materials

Yuichi KOMURO, Tomohiro SAKAI and Shou-ichi NAKAMARU

Department of Fuel Safety Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received March 16, 1987)

Microscopic cross sections for criticality calculations are calculated by summarizing products of microscopic cross sections and atomic number densities of each nuclides contained in the region. This calculation, indeed, is not so difficult, but the results are slightly different due to some differences of data used such as atomic weight, Avogadro number, theoretical fuel density.

Then, atomic number density calculation equations based on experimental data and reliable physical constants were collected, and theoretical equations for calculating atomic number density were derived in this report. AND — a program for calculation of atomic number density were made based on these equations and data. Users of the program can easily get atomic number densities of various nuclear materials with high reliability.

Keywords: Atomic Number Density, Nuclear Material, Criticality Calculation,
AND Code

* Computer Services, LTD.

目 次

1. 序	1
2. 対象とした核燃料物質	1
3. 物理定数	2
3.1 核燃料物質の理論密度	2
3.2 水の密度	2
3.3 アボガドロ数	3
3.4 各核種の原子量	3
4. 原子個数密度計算式の導出	5
4.1 理論的な導出	5
4.1.1 U, Pu	5
4.1.2 溶媒中の水素	5
4.1.3 水	6
4.2 実験データに基づく導出	6
4.2.1 UO_2F_2 水溶液	6
4.2.2 硝酸水溶液	8
5. 検 討	10
謝 辞	22
参考文献	22
付録 A	24
A. 1 重量パーセントと個数パーセントの関係	24
A. 2 同位体組成を考慮した原子量の計算	24
A. 3 UO_2F_2 水溶液のH/U原子個数比計算式の導出	25
A. 4 UO_2F_2 水溶液の最大U濃度	26
A. 5 UO_2 , PuO_2 , PuO_2-UO_2 の理論密度	27
A. 6 ADUの理論密度	28
A. 7 各種核燃料物質の原子個数密度	29
参考文献	36
付録 B 記号表	37
付録 C 原子個数密度計算プログラムANDの入力マニュアル	38
付録 D 原子個数密度計算プログラムANDのジョブ制御文, 入力例, 出力例	42
参考文献	42

Contents

1. Introduction	1
2. Nuclear Materials	1
3. Physical Constants	2
3.1 Theoretical Density of Nuclear Material	2
3.2 Density of Water	2
3.3 Avogadro Number	3
3.4 Atomic Weights	3
4. Derivation of Equations for Calculating Atomic Number Density	5
4.1 Theoretical Derivation	5
4.1.1 U, Pu	5
4.1.2 Hydrogen in Solvents	5
4.1.3 Water	6
4.2 Derivation from Experimental Data	6
4.2.1 Uranyl Fluoride Solutions	6
4.2.2 Nitrate Solutions	8
5. Discussions	10
Acknowledgements	22
References	22
Appendix A	24
A.1 Relation between atomic percent and weight percent	24
A.2 Atomic weight calculation considering isotropic composition	24
A.3 Derivation of the equation which calculates H/U atomic ratio of UO ₂ F ₂ solution	25
A.4 Maximum Uranium Concentration of Uranyl Fluoride Solution	26
A.5 Theoretical Densities of UO ₂ , PuO ₂ and PuO ₂ -UO ₂	27
A.6 Theoretical Densities of ADU	28
A.7 Atomic Number Densities of Various Nuclear Materials	29

References	36
Appendix B Table of Notations	37
Appendix C AND Data Guide	38
Appendix D AND Job Control Cards, Sample Problem input, Sample Problem Output	42
References	42

1. 序

臨界計算をはじめとする中性子の移動を議論する場合には、媒質の実効巨視的断面積が必要である。これは媒質を構成する各原子（核種）の実効微視的断面積と個数密度の積の総和である。核データを処理して作成した多群定数から各核種の実効微視的断面積を計算するプログラムは多数用意されているが、個数密度の計算プログラムは少ない。そのために核燃料物質等の個数密度を必要とする者は、手計算あるいは私的レベルの簡単な計算プログラムに頼っているのが現状である。したがって、計算者が異なると原子量、アボガドロ数あるいは燃料密度等の物理定数を引用する文献の違いや有効数字の取扱い方の違いが原因となって、計算結果間に微妙な差異を生じる。

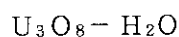
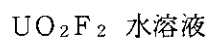
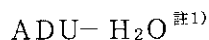
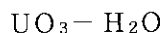
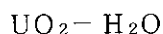
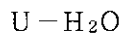
そこで、本報告書では最新の物理定数と実験データを用いた原子個数密度の計算式を収集し、その内から妥当な式を提案するとともに、これらの式に基づいて作成した原子個数密度計算プログラムを紹介する。なお、このプログラムは、日本原子力研究所が科学技術庁から昭和57年度から4ヶ年にわたって受託した「臨界安全解析データ・プログラム整備事業」の一項目である各種核燃料物質の臨界条件算出の際に使われた。

本報告書の第2章では対象とした核燃料物質の種類を記す。第3章では原子個数密度の計算に必要な物理定数を記す。第4章は本報告書の基幹であり、各種核燃料物質の原子個数密度計算式を理論的あるいは実験データに基づき導出する。第5章では、第4章で導出した各式を組込んで作成した原子個数密度計算プログラムANDから得られた結果を用いて、既存のデータとの比較その他の検討結果を述べる。なお、巻末には第4章では省略した仔細な諸事項の追加説明、ANDの入力ガイド及び入力例・出力例等を記した。

本報告書の図7及び図8は科学技術庁から受託した昭和59年度臨界安全解析データ・プログラム整備事業の成果報告書から引用した。

2. 対象とした核燃料物質

原子炉を除く核燃料サイクル上の各施設（燃料加工施設、使用済燃料再処理施設等）でよく取扱う核燃料物質を主な対象として、次のものを取上げた。また、反射材や減速材に用いられる水も対象とした。



1. 序

臨界計算をはじめとする中性子の移動を議論する場合には、媒質の実効巨視的断面積が必要である。これは媒質を構成する各原子（核種）の実効微視的断面積と個数密度の積の総和である。核データを処理して作成した多群定数から各核種の実効微視的断面積を計算するプログラムは多数用意されているが、個数密度の計算プログラムは少ない。そのために核燃料物質等の個数密度を必要とする者は、手計算あるいは私的レベルの簡単な計算プログラムに頼っているのが現状である。したがって、計算者が異なると原子量、アボガドロ数あるいは燃料密度等の物理定数を引用する文献の違いや有効数字の取扱い方の違いが原因となって、計算結果間に微妙な差異を生じる。

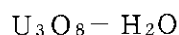
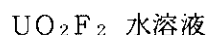
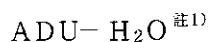
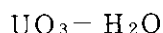
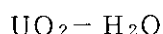
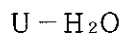
そこで、本報告書では最新の物理定数と実験データを用いた原子個数密度の計算式を収集し、その内から妥当な式を提案するとともに、これらの式に基づいて作成した原子個数密度計算プログラムを紹介する。なお、このプログラムは、日本原子力研究所が科学技術庁から昭和57年度から4ケ年にわたって受託した「臨界安全解析データ・プログラム整備事業」の一項目である各種核燃料物質の臨界条件算出の際に使われた。

本報告書の第2章では対象とした核燃料物質の種類を記す。第3章では原子個数密度の計算に必要な物理定数を記す。第4章は本報告書の基幹であり、各種核燃料物質の原子個数密度計算式を理論的あるいは実験データに基づき導出する。第5章では、第4章で導出した各式を組み込んで作成した原子個数密度計算プログラムANDから得られた結果を用いて、既存のデータとの比較その他の検討結果を述べる。なお、巻末には第4章では省略した仔細な諸事項の追加説明、ANDの入力ガイド及び入力例・出力例等を記した。

本報告書の図7及び図8は科学技術庁から受託した昭和59年度臨界安全解析データ・プログラム整備事業の成果報告書から引用した。

2. 対象とした核燃料物質

原子炉を除く核燃料サイクル上の各施設（燃料加工施設、使用済燃料再処理施設等）でよく取扱う核燃料物質を主な対象として、次のものを取上げた。また、反射材や減速材に用いられる水も対象とした。



$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 水溶液

$\text{Pu}-\text{H}_2\text{O}$

$\text{PuO}_2-\text{H}_2\text{O}$

$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 水溶液

$\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2-\text{H}_2\text{O}$

$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4-\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 水溶液

3. 物 理 定 数

核燃料物質の燃料濃度（U濃度，Pu濃度，または（Pu+U）濃度）あるいは燃料に対する水素の原子個数比（H/U，H/Pu，またはH/（Pu+U））は，初めに与えられるものとする。^{註2)}このようにしたのは，ここで導出する式の多くは様々な核燃料物質の臨界条件（臨界質量，臨界無限円柱直径等）を計算するための前準備として用意することを第1の目的としていること，及び臨界ハンドブック等^{1),2),3),4),5)}では燃料濃度を代表的なパラメータとして臨界条件が示されているからである。

原子個数密度を計算するには，原子量，アボガドロ数，燃料密度等の物理定数が必要である。これらのデータを本節に記す。

3.1 核燃料物質の理論密度

U， U_3O_8 ，ADU及びPuの理論密度を表1に示す。 UO_2 ， PuO_2 及び PuO_2 及び PuO_2-UO_2 の理論密度は同位体組成を考慮してそのつど計算する。計算方法は付録に記す。 UO_2F_2 水溶液， $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 水溶液， $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 水溶液及び $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2-\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 水溶液の溶液密度は実験式から求める。これらについては4.2節で述べる。

3.2 水の密度

水の密度（ $\rho_{\text{H}_2\text{O}}$ ）は表2⁹⁾の20℃における値0.99820 g/cm³を用いる。

註 1) ADU（Ammonium Diuranate；重ウラン酸アンモニウム）

2) 燃料濃度と燃料に対する水素の個数比の間には一定の関係があり，どちらか一方が決まればもう一方は一意的に決まる（但し，粉末燃料を除く）。

$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 水溶液

$\text{Pu} - \text{H}_2\text{O}$

$\text{PuO}_2 - \text{H}_2\text{O}$

$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 水溶液

$\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2 - \text{H}_2\text{O}$

$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 - \text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 水溶液

3. 物 理 定 数

核燃料物質の燃料濃度（U濃度，Pu濃度，または（Pu + U）濃度）あるいは燃料に対する水素の原子個数比（H/U，H/Pu，またはH/（Pu + U））は，初めに与えられるものとする。^{註2)}このようにしたのは，ここで導出する式の多くは様々な核燃料物質の臨界条件（臨界質量，臨界無限円柱直径等）を計算するための前準備として用意することを第1の目的としていること，及び臨界ハンドブック等^{1),2),3),4),5)}では燃料濃度を代表的なパラメータとして臨界条件が示されているからである。

原子個数密度を計算するには，原子量，アボガドロ数，燃料密度等の物理定数が必要である。これらのデータを本節に記す。

3.1 核燃料物質の理論密度

U， U_3O_8 ，ADU及びPuの理論密度を表1に示す。 UO_2 ， PuO_2 及び PuO_2 及び $\text{PuO}_2 - \text{UO}_2$ の理論密度は同位体組成を考慮してそのつど計算する。計算方法は付録に記す。 UO_2F_2 水溶液， $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 水溶液， $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 水溶液及び $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - \text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 水溶液の溶液密度は実験式から求める。これらについては4.2節で述べる。

3.2 水の密度

水の密度（ $\rho_{\text{H}_2\text{O}}$ ）は表2⁹⁾の20℃における値0.99820 g/cm³を用いる。

註 1) ADU（Ammonium Diuranate；重ウラン酸アンモニウム）

2) 燃料濃度と燃料に対する水素の個数比の間には一定の関係があり，どちらか一方が決まればもう一方は一意的に決まる（但し，粉末燃料を除く）。

3.3 アボガドロ数

アボガドロ数として、 6.002045×10^{23} atoms/mol¹⁰⁾を用いる。

3.4 各核種の原子量

各元素（核種）の原子量を表3に示す。

表1 U, Pu及びウラン化合物の理論密度

元素（化合物）	理論密度 [g/cm ³]
U	19.5 ⁶⁾
U ₃ O ₈	8.43 ⁷⁾
ADU (II) ^(a)	4.83 ^{8), (d)}
ADU (III) ^(b)	5.14 ^{8), (d)}
ADU (IV) ^(c)	5.21 ^{8), (d)}
Pu	19.816 ⁶⁾

(a) $3\text{UO}_3 \cdot \text{NH}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$

(b) $2\text{UO}_3 \cdot \text{NH}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$

(c) $3\text{UO}_3 \cdot 2\text{NH}_3 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$

(d) ²³⁸U 100%

表2 水の密度⁹⁾

1気圧のもとにおける水の密度は3.98°Cにおいて最大である。単位はg/cm³

温度 (°C)	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9
	0.	0.	0.	0.	0.	0.	0.	0.	0.	0.
0	99984	99990	99994	99996	99997	99996	99994	99990	99985	99978
10	99970	99961	99949	99938	99924	99910	99894	99877	99860	99841
20	99820	99799	99777	99754	99730	99704	99678	99651	99623	99594
30	99565	99534	99503	99470	99437	99403	99368	99333	99297	99259
40	99222	99183	99144	99104	99063	99021	98979	98936	98893	98849
50	98804	98758	98712	98665	98618	98570	98521	98471	98422	98371
60	98320	98268	98216	98163	98110	98055	98001	97946	97890	97834
70	97777	97720	97662	97603	97544	97485	97425	97364	97303	97242
80	97180	97117	97054	96991	96927	96862	96797	96731	96665	96600
90	96532	96465	96397	96328	96259	96190	96120	96050	95979	95906

G, S. Kell, J. Chem. Eng. Data 20(1975)による。

表3 元素（核種）の原子量⁹⁾

元素（核種）名	原子量
H	1.0079
N	14.0062
O	15.9997
F	18.9984
²³⁴ U	234.0409
²³⁵ U	235.0439
²³⁸ U	238.0508
²³⁸ Pu	238.0496
²³⁹ Pu	239.0522
²⁴⁰ Pu	240.0538
²⁴¹ Pu	241.0568
²⁴² Pu	242.0587

4. 原子個数密度計算式の導出

燃料濃度（U濃度，Pu濃度）が与えられるとUやPuの個数密度が求まる。同時に，UやPuと化合している原子の個数密度も求まる。溶媒中の水素原子の個数密度の計算には可能な限り実験データを採用し，U-H₂O，UO₂-H₂O等の仮想的な混合物には理論式で対処した。

4.1 理論的な導出

4.1.1 U，Pu

U系燃料を例にとって述べる。U濃度 C_U g U/l を与えれば，Uの原子個数密度は次式から簡単に求まる。

$$N_U = \frac{C_U \cdot N_A}{A_U} \quad [\text{atoms/cm}^3] \quad (1)$$

N_A はアボガドロ数である。 A_U は同位体組成を考慮したUの原子量であり，その計算方法は付録A.2に記す。 N_U が得られると，Uと化合している原子の個数密度が容易に求まる。たとえばUO₂であれば，Oの個数密度は分子式より $2 \cdot N_U$ [atoms/cm³]となる。

なお，本節以降で用いる記号の意味については付録Cに一括して記す。

4.1.2 溶媒中の水素^{註3)}

UO₂-H₂O^{註3)}を例にとって述べる。溶液^{註3)}中のUO₂の濃度及び水の濃度の，各々の理論密度に対する比率の和は1であるから，式(2)が成立する。

$$\frac{C_{UO_2}}{\rho_{UO_2}} + \frac{C_{H_2O}}{\rho_{H_2O}} = 1 \quad (2)$$

次にH/U原子個数比について考えると，式(3)が成立する。

$$\frac{N_H}{N_U} = \frac{2 \cdot N_A \cdot C_{H_2O} / A_{H_2O}}{N_A \cdot C_{UO_2} / A_{UO_2}} \quad (3)$$

式(2)を C_{H_2O} について解き式(3)に代入すると，式(4)を得る。

$$\frac{N_U}{N_H} = 2 \cdot \frac{\rho_{H_2O}}{A_{H_2O}} \cdot \left(\frac{A_{UO_2}}{C_{UO_2}} - \frac{A_{UO_2}}{\rho_{UO_2}} \right) \quad (4)$$

註 3) UO₂-H₂OはUO₂と水の仮想的な混合物である。したがってUO₂-H₂Oを溶液，その中のH₂Oを溶媒と呼ぶのは正しくないが，便宜上このように呼ぶこととする。

また、単位体積の溶液中の UO_2 分子とU原子の個数は等しいから、式(5)が成立する。

$$\frac{C_{\text{UO}_2}}{A_{\text{UO}_2}} \cdot N_A = \frac{C_U}{A_U} \cdot N_A \quad (5)$$

式(5)を式(4)に代入すると、式(6)を得る。

$$\frac{N_U}{N_H} = 2 \cdot \frac{\rho_{\text{H}_2\text{O}}}{A_{\text{H}_2\text{O}}} \cdot \left(\frac{A_U}{C_U} - \frac{A_{\text{UO}_2}}{\rho_{\text{UO}_2}} \right) \quad (6)$$

U濃度が与えられると、式(6)の右辺が決まる。左辺の N_U は式(1)から得られるので、溶媒(この場合は水である)中の水素原子の個数密度 N_H が求まる。水素と化合している酸素の個数密度は $N_H/2$ である。

以上、 $\text{UO}_2 - \text{H}_2\text{O}$ を例にH/U原子個数比を表す式を導出した。 $\text{UO}_2 - \text{H}_2\text{O}$ 及びその他の核燃料物質に関する同様の式をまとめて表4に示す。

4.1.3 水

水分子の個数密度は次式から求まる。

$$N_{\text{H}_2\text{O}} = \frac{\rho_{\text{H}_2\text{O}} \cdot N_A}{A_{\text{H}_2\text{O}}} = \frac{\rho_{\text{H}_2\text{O}} \cdot N_A}{2 \cdot A_H + A_O} \quad (7)$$

式(7)を用いて 20°C の水に含まれる水素及び酸素の原子個数密度を求めてみる。 20°C における $\rho_{\text{H}_2\text{O}}$ は表2によれば 0.99820 g/cm^3 である。表3より A_H は 1.0079 、 A_O は 15.9997 である。 N_A は 6.022045×10^{23} atoms/molである。これらの値を式(7)に代入すると次の値を得る。

$$N_{\text{H}_2\text{O}} = 3.3367 \times 10^{22} \quad [\text{atoms/cm}^3]$$

したがって、

$$N_H = 6.6734 \times 10^{22} \quad [\text{atoms/cm}^3]$$

$$N_O = 3.3367 \times 10^{22} \quad [\text{atoms/cm}^3]$$

となる。

4.2 実験データに基づく導出

4.2.1 UO_2F_2 水溶液

Uの原子個数密度は式(1)より求まる。溶液中のH/U原子個数比はCEA-N-2051¹¹⁾に記載されている次の3つの式から計算する。

$$\frac{N_H}{N_U} = 26.444 \cdot \frac{\rho_{\text{solution}}}{C_U} - 34.222 \quad (8)$$

表4 核燃料物質の原子個数比 (H/U, H/Pu, H/(Pu+U))

核燃料物質	原子個数比 (H/U, H/Pu, H/(Pu+U))
U-H ₂ O	$2 \cdot \rho_{H_2O} \cdot \frac{A_U}{A_{H_2O}} \cdot \left(\frac{1}{C_U} - \frac{1}{\rho_U} \right)$
UO ₂ -H ₂ O	$2 \cdot \rho_{H_2O} \cdot \frac{1}{A_{H_2O}} \cdot \left(\frac{A_U}{C_U} - \frac{A_{UO_2}}{\rho_{UO_2}} \right)$
UO ₃ -H ₂ O	$2 \cdot \rho_{H_2O} \cdot \frac{1}{A_{H_2O}} \cdot \left(\frac{A_U}{C_U} - \frac{A_{UO_3}}{\rho_{UO_3}} \right)$
U ₃ O ₈ -H ₂ O	$2 \cdot \rho_{H_2O} \cdot \frac{1}{A_{H_2O}} \cdot \left(\frac{A_U}{C_U} - \frac{A_{U_3O_8}}{\rho_{U_3O_8}} \right)$
ADU(II) ^(a) -H ₂ O	$2 \cdot \rho_{H_2O} \cdot \frac{1}{A_{H_2O}} \cdot \left(\frac{A_U}{C_U} - \frac{A_{ADU(II)}}{3 \cdot \rho_{ADU(II)}} \right) + \frac{13}{3}$
ADU(III) ^(b) -H ₂ O	$2 \cdot \rho_{H_2O} \cdot \frac{1}{A_{H_2O}} \cdot \left(\frac{A_U}{C_U} - \frac{A_{ADU(III)}}{2 \cdot \rho_{ADU(III)}} \right) + \frac{9}{2}$
ADU(IV) ^(c) -H ₂ O	$2 \cdot \rho_{H_2O} \cdot \frac{1}{A_{H_2O}} \cdot \left(\frac{A_U}{C_U} - \frac{A_{ADU(IV)}}{3 \cdot \rho_{ADU(IV)}} \right) + \frac{14}{3}$
Pu-H ₂ O	$2 \cdot \rho_{H_2O} \cdot \frac{1}{A_{H_2O}} \cdot \left(\frac{1}{C_{Pu}} - \frac{1}{\rho_{Pu}} \right)$
PuO ₂ -H ₂ O	$2 \cdot \rho_{H_2O} \cdot \frac{1}{A_{H_2O}} \cdot \left(\frac{A_{Pu}}{C_{Pu}} - \frac{A_{PuO_2}}{\rho_{PuO_2}} \right)$
PuO ₂ -UO ₂ -H ₂ O	$2 \cdot \rho_{H_2O} \cdot \frac{1}{A_{H_2O}} \cdot \left(\frac{1}{C_{PuO_2-UO_2}} - \frac{1}{\rho_{PuO_2-UO_2}} \right) \cdot$ $\left(\frac{A_{PuO_2} \cdot A_U + \alpha^{(d)} \cdot A_{UO_2} \cdot A_{Pu}}{A_U + \alpha \cdot A_{Pu}} \right)$

(a) 3UO₃·NH₃·5H₂O

(b) 2UO₃·NH₃·3H₂O

(c) 3UO₃·2NH₃·4H₂O

(d) $\alpha = \left(\frac{100}{\epsilon} - 1 \right) / \left(\frac{A_{UO_2} \cdot A_{Pu}}{A_{PuO_2} \cdot A_U} \right)$, ϵ : プルトニウム富化度 (酸化物重量比)

$$\rho_{\text{solution}} = \frac{1}{1.00294 - 0.912 \cdot F_2 + 0.0567 \cdot F_2^2} \quad (9)$$

$$F_2 = \frac{1}{1 + 0.02922 \cdot (N_H/N_U)} \quad (10)$$

式(8)及び式(9)の中の ρ_{solution} は UO_2F_2 水溶液の密度である。式(9)及び式(10)中の F_2 は溶液中に占める UO_2F_2 の重量比、すなわち $C_{\text{UO}_2\text{F}_2} / \rho_{\text{solution}}$ である。上記3式による H/U 原子個数比の計算は繰返し法によって実行する。式(9)は文献(12)に記載されている溶液温度 25°C における実験式である。これら3式の導出は付録A.3に記す。

4.2.2 硝酸水溶液 ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 水溶液, $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 水溶液, $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - \text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 水溶液)

溶質濃度 (C_U, C_{Pu}) を与えれば U と Pu の原子個数密度は式(1)より求まる。U と Pu 以外の溶液中の原子の個数密度は文献(13)に記載されている実験式等を引用して計算することとした。その計算手法を以下に概説する。

溶液内に含まれるすべての種類の原子の個数密度を求めるためには、溶液の密度 ρ_{solution} 及び溶液を構成する全成分の各々の濃度が必要である。ここで取扱う3種類の溶液に適用できる溶液密度と各成分 (U, Pu, H, NO_3 , O, H_2O) の濃度との関係を次に示す。

$$\rho_{\text{solution}} = C_U + C_{\text{Pu}} + \frac{\tilde{C}_{\text{HNO}_3} \cdot A_{\text{H}}}{1000} + \left(2 \cdot \frac{C_U}{A_U} + 4 \cdot \frac{C_{\text{Pu}}}{A_{\text{Pu}}} + \tilde{C}_{\text{HNO}_3} \right) \cdot A_{\text{NO}_3} + \frac{2 \cdot C_U \cdot A_{\text{O}}}{A_U} + \frac{\tilde{C}_{\text{H}_2\text{O}} \cdot A_{\text{H}_2\text{O}}}{1000} \quad (11)$$

但し、 \tilde{C}_{HNO_3} 及び $\tilde{C}_{\text{H}_2\text{O}}$ は溶液中の HNO_3 及び H_2O の体積モル濃度で、 mol/l の単位を持つ。 ρ 及び C の単位は g/cm^3 である。式(11)において C_U, C_{Pu} 及び \tilde{C}_{HNO_3} は初めに与えられるものとするれば、未知数は ρ_{solution} 及び $C_{\text{H}_2\text{O}}$ だけになる。文献(13)には ρ_{solution} を求める実験式が紹介されており、この値が求まれば $C_{\text{H}_2\text{O}}$ も明らかとなりこれですべての未知数が明らかになる。 ρ_{solution} を求める実験式を以下に示す。

(1) $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 水溶液

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{(Moeken }^{14} \text{ の式)} \\ \rho_{\text{solution}}^{25} = 1.0171 + 0.3081 \cdot \tilde{C}_{\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2} + 0.0289 \cdot \tilde{C}_{\text{HNO}_3} \\ \hspace{15em} (12-1) \\ \text{(Burger }^{15} \text{ の式)} \\ \rho_{\text{solution}}^t = 1.0125 \cdot \rho_{\text{solution}} + 1.45 \times 10^{-4} \cdot t \\ \hspace{15em} - 5 \times 10^{-4} \cdot \rho_{\text{solution}} \cdot t - 0.0036 \\ \hspace{15em} (12-2) \end{array} \right.$$

上記2式中の t は溶液温度で $^\circ\text{C}$ の単位を持ち、 ρ_{solution}^t は温度 $t^\circ\text{C}$ における溶液密度である。

(2) $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 水溶液 (Maimoni¹⁶⁾ の式)

$$t_0 = t - 25 \quad (13-1)$$

$$\begin{aligned} \rho_{\text{solution}}^t = & C + P_1 \cdot C_{\text{Pu}} + P_2 \cdot \tilde{C}_{\text{HNO}_3} + P_3 \cdot t_0 + P_4 \cdot C_{\text{Pu}} \cdot \tilde{C}_{\text{HNO}_3} \\ & + P_5 \cdot C_{\text{Pu}} \cdot t_0 + P_6 \cdot (C_{\text{Pu}})^2 \end{aligned} \quad (13-2)$$

ここで,

$$C = 0.99708$$

$$t_0 = t - 25$$

$$P_1 = 1.65625 \times 10^{-3}$$

$$P_2 = 3.2959 \times 10^{-2}$$

$$P_3 = -5.9915 \times 10^{-4}$$

$$P_4 = -4.8706 \times 10^{-5}$$

$$P_5 = -1.4217 \times 10^{-6}$$

$$P_6 = -3.418 \times 10^{-8}$$

(3) $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - \text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 水溶液

式(12-1), 式(12-2), 式(13-1)及び式(13-2)を組合せて作成した式の定数項を実験データ^{17,18)}でフィッティング処理した式を次に示す。

$$\begin{aligned} \rho_{\text{Pu}(\text{NO}_3)_4}^{\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2} = & \epsilon_U \cdot C_{\text{Pu}} \cdot \rho_{\text{U-Pu}} + \epsilon_{\text{Pu}} \cdot \rho_{\text{Pu-U}} \\ & - \epsilon_U \cdot C_{\text{Pu}} \left(\frac{1.50 \times 10^{-3}}{\tilde{C}_N} - 3.05 \times 10^{-4} \right) \end{aligned} \quad (14)$$

ここで,

$$\epsilon_U = \frac{C_U}{C_U + C_{\text{Pu}}}$$

$$\epsilon_{\text{Pu}} = \frac{C_{\text{Pu}}}{C_U + C_{\text{Pu}}}$$

$$\tilde{C}_N = 4 \cdot \tilde{C}_{\text{Pu}(\text{NO}_3)_4} + 2 \cdot \tilde{C}_{\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2} + \tilde{C}_{\text{HNO}_3}$$

$\rho_{\text{U-Pu}}$: 溶液中のUとPuをすべてUとみなした時の溶液密度で, 式(12-1)及び式(12-2)から求まる。

$\rho_{\text{Pu-U}}$: 溶液中のUとPuをすべてPuとみなした時の溶液密度で、式(13-1)及び式(13-2)から求まる。

以上のようにして ρ_{solution} が求まった段階で、式(11)における未知数は $\tilde{C}_{\text{H}_2\text{O}}$ のみとなる。式(11)を $\tilde{C}_{\text{H}_2\text{O}}$ について解くと次式が得られる。

$$\begin{aligned} \tilde{C}_{\text{H}_2\text{O}} = & \left[\rho_{\text{solution}} - \left\{ C_{\text{U}} + C_{\text{Pu}} + \frac{\tilde{C}_{\text{HNO}_3} \cdot A_{\text{H}}}{1000} + \left(2 \cdot \frac{C_{\text{U}}}{A_{\text{U}}} \right. \right. \right. \\ & \left. \left. \left. + 4 \cdot \frac{C_{\text{Pu}}}{A_{\text{Pu}}} + \tilde{C}_{\text{HNO}_3} \right) \cdot A_{\text{NO}_3} + \frac{2 \cdot C_{\text{U}} \cdot A_{\text{O}}}{A_{\text{U}}} \right\} \right] \cdot \frac{1000}{A_{\text{H}_2\text{O}}} \end{aligned} \quad (14)$$

したがって、溶液中のUとPu以外の原子の個数密度は次のようになる。

$$N_{\text{H}} = \frac{(\tilde{C}_{\text{HNO}_3} + 2 \cdot \tilde{C}_{\text{H}_2\text{O}}) N_{\text{A}}}{1000} \quad (15)$$

$$N_{\text{N}} = \left(2 \cdot \frac{C_{\text{U}}}{A_{\text{U}}} + 4 \cdot \frac{C_{\text{Pu}}}{A_{\text{Pu}}} + \frac{\tilde{C}_{\text{HNO}_3}}{1000} \right) \cdot N_{\text{A}} \quad (16)$$

$$N_{\text{O}} = \left(8 \cdot \frac{C_{\text{U}}}{A_{\text{U}}} + 12 \cdot \frac{C_{\text{Pu}}}{A_{\text{Pu}}} + 3 \cdot \frac{\tilde{C}_{\text{HNO}_3}}{1000} + \frac{\tilde{C}_{\text{H}_2\text{O}}}{1000} \right) \cdot N_{\text{A}} \quad (17)$$

5. 検 討

3章及び4章で述べた各定数及び各式をもとに原子個数密度計算プログラムANDを作成した。このプログラムを用いて種々の核燃料物質の原子個数密度を計算し、その結果について検討した。また、ADUの種類と生成過程を調べた。

(1) 燃料濃度とH/X原子個数比の関係

U(Pu)濃度とH/U(H/Pu)原子個数比の関係を図1から図5に示す。これはウラン濃縮度を0.711 wt% (天然ウラン相当)、Pu同位体組成を ^{239}Pu 100%、体系温度を20°Cと設定した結果であるが、同位体組成依存性は小さい。

各図とも低U(Pu)濃度領域では、U(Pu)濃度とH/U(H/Pu)はほぼ直線関係にある(全対数方眼紙の場合)。この関係は次のように説明できる。U-H₂Oを例にとれば、表4よりU濃度とH/U原子個数比の関係は

$\rho_{\text{Pu-U}}$: 溶液中のUとPuをすべてPuとみなした時の溶液密度で、式(13-1)及び式(13-2)から求まる。

以上のようにして ρ_{solution} が求まった段階で、式(11)における未知数は $\tilde{C}_{\text{H}_2\text{O}}$ のみとなる。式(11)を $\tilde{C}_{\text{H}_2\text{O}}$ について解くと次式が得られる。

$$\begin{aligned} \tilde{C}_{\text{H}_2\text{O}} = & \left[\rho_{\text{solution}} - \left\{ C_{\text{U}} + C_{\text{Pu}} + \frac{\tilde{C}_{\text{HNO}_3} \cdot A_{\text{H}}}{1000} + \left(2 \cdot \frac{C_{\text{U}}}{A_{\text{U}}} \right. \right. \right. \\ & \left. \left. \left. + 4 \cdot \frac{C_{\text{Pu}}}{A_{\text{Pu}}} + \tilde{C}_{\text{HNO}_3} \right) \cdot A_{\text{NO}_3} + \frac{2 \cdot C_{\text{U}} \cdot A_{\text{O}}}{A_{\text{U}}} \right\} \right] \cdot \frac{1000}{A_{\text{H}_2\text{O}}} \end{aligned} \quad (14)$$

したがって、溶液中のUとPu以外の原子の個数密度は次のようになる。

$$N_{\text{H}} = \frac{(\tilde{C}_{\text{HNO}_3} + 2 \cdot \tilde{C}_{\text{H}_2\text{O}}) N_{\text{A}}}{1000} \quad (15)$$

$$N_{\text{N}} = \left(2 \cdot \frac{C_{\text{U}}}{A_{\text{U}}} + 4 \cdot \frac{C_{\text{Pu}}}{A_{\text{Pu}}} + \frac{\tilde{C}_{\text{HNO}_3}}{1000} \right) \cdot N_{\text{A}} \quad (16)$$

$$N_{\text{O}} = \left(8 \cdot \frac{C_{\text{U}}}{A_{\text{U}}} + 12 \cdot \frac{C_{\text{Pu}}}{A_{\text{Pu}}} + 3 \cdot \frac{\tilde{C}_{\text{HNO}_3}}{1000} + \frac{\tilde{C}_{\text{H}_2\text{O}}}{1000} \right) \cdot N_{\text{A}} \quad (17)$$

5. 検 討

3章及び4章で述べた各定数及び各式をもとに原子個数密度計算プログラムANDを作成した。このプログラムを用いて種々の核燃料物質の原子個数密度を計算し、その結果について検討した。また、ADUの種類と生成過程を調べた。

(1) 燃料濃度とH/X原子個数比の関係

U(Pu)濃度とH/U(H/Pu)原子個数比の関係を図1から図5に示す。これはウラン濃縮度を0.711 wt% (天然ウラン相当)、Pu同位体組成を ^{239}Pu 100%、体系温度を20°Cと設定した結果であるが、同位体組成依存性は小さい。

各図とも低U(Pu)濃度領域では、U(Pu)濃度とH/U(H/Pu)はほぼ直線関係にある(全対数方眼紙の場合)。この関係は次のように説明できる。U-H₂Oを例にとれば、表4よりU濃度とH/U原子個数比の関係は

$$\frac{N_H}{N_U} = 2 \cdot \rho_{H_2O} \cdot \frac{A_U}{A_{H_2O}} \cdot \left(\frac{1}{C_U} - \frac{1}{\rho_U} \right) \quad (18)$$

であった。U濃度が低くなると $C_U \ll \rho_U$ になり、式(18)は、

$$\begin{aligned} \left(\frac{N_U}{N_U} \right)_{C_U} &\approx 2 \cdot \rho_{H_2O} \cdot \frac{A_U}{A_{H_2O}} \cdot \frac{1}{C_U} \\ &\approx 2 \times 1 \times \frac{238}{18} \times \frac{1}{C_U} \approx 26.4 (C_U)^{-1} \end{aligned} \quad (19)$$

と近似して表現することができる。式(19)を全対数方眼紙に描くと、傾きが-1で点(26.4, 1.0)を通る直線になる。図1のUの曲線の直線部分は約45℃の傾きをもち、U濃度が1.0 g U/cm³における切片は約25である。これは式(19)におおよそ一致している。

(2) 理論密度の同位体組成依存性

一般に、UO₂の理論密度は10.96 g/cm³、PuO₂の理論密度は11.46 g/cm³とされているが、これらは²³⁵Uの比率が天然ウラン相当または²³⁹Puの比率が非常に高い場合の値である。ANDコードではUO₂、PuO₂及びPuO₂-UO₂の理論密度を同位体組成を考察して計算する。これらの物質の理論密度は表4に示すように、減速比の計算すなわち水素の原子個数密度の計算の際に用いる。

UO₂を例に、同位体組成(²³⁵U濃縮度)と理論密度の関係をANDから求めて表5及び図6に示す。²³⁵U濃縮度とUO₂の理論密度は直線関係にあり、²³⁵U濃縮度が高くなると理論密度は10.96 g/cm³よりも小さくなるのがこの図から確認できる。したがって、原子個数密度を計算する際に同位体組成を考慮した理論密度を用いることは重要である。

(3) UO₂F₂水溶液のH/U原子個数比

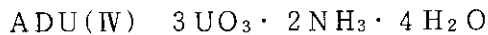
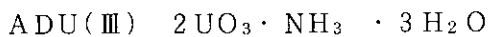
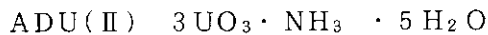
UO₂F₂水溶液中の水素の原子個数密度を求めるためには溶液中のH/U原子個数比が必要である。この溶液のU濃度に対するH/U原子個数比はCEA-N-2051, ARH-600, 西独臨界ハンドブック等に図示されているが、計算式及び式の中で使用している測定値の引用先が明らかでない文献はCEA-N-2051だけである。このような理由から、UO₂F₂水溶液のH/U原子個数比はCEA-N-2051に記載されている計算式を用いて求めることとした(3.3.1項参照)。

しかし、U濃度に対するH/U原子個数は文献によって差があり、特に高U濃度領域で顕著になる。ANDによる計算結果(CEA-N-2051)をARH-600及び西独臨界ハンドブックの記載値とあわせて図7に示す。この差異は水素の原子個数密度ばかりでなく臨界計算結果にまで波及し、図8のような臨界条件の違いとなって現れる。この図は厚さ30 cmの水反射体付きの均質UO₂F₂水溶液無限円柱の臨界直径を示している。曲線は西独臨界ハンドブックの記載値である。点で表示した値はANDで求めた原子個数密度、多群定数ライブラリMGCL(群数は、137)及びモンテカルロ臨界計算コードKENO-IVの組合せによる計算結果である。高U濃度

領域で有意な違いが認められ、西独臨界ハンドブックの臨界円柱直径の方が大きい。図8の2種類の臨界データは原子個数密度ばかりでなく計算コード及び核データも異なるが、臨界円柱直径の異なる主な原因は図7に示した差異にあると考える。

(4) ADUの種類と生成過程

文献19)によると、ADU (Ammonium Diuranate ; 重ウラン酸アンモニウム)と称する化合物として次の4種類が報告されている。



ADUは硝酸ウラニルと NH_3 (または NH_4OH)から生成されるが、その組成は生成条件により異なる。ADU(I)は通常生成しない。ADU(II)、(III)及び(IV)の生成は表6に示すように、ADUが生成される溶液のpHによって決定付けられる。溶液のpHが大きくなるとADU(III)やADU(IV)が生成されるが、これらの化合物は湿気を含む空气中に放置しておくと水分を吸収するとともに NH_3/UO_3 の個数比が減少してゆく。そして、最終的にはADU(II)になって安定する。

2章の冒頭で述べたように本報告書では燃料加工施設や使用済燃料再処理施設を念頭において、対象とする核燃料物質を選定した。ADUは燃料加工施設でよく取扱う物質である。この施設ではアンモニアが過剰な雰囲気の下でADUが生成されるためにADU(III)及びADU(IV)が多く存在し、これらはやがてADU(II)に変化してゆくと考えられる。このような理由から、ANDには4種類のADUのうちADU(II)、ADU(III)及びADU(IV)の原子個数密度を計算する機能を備えることとした。

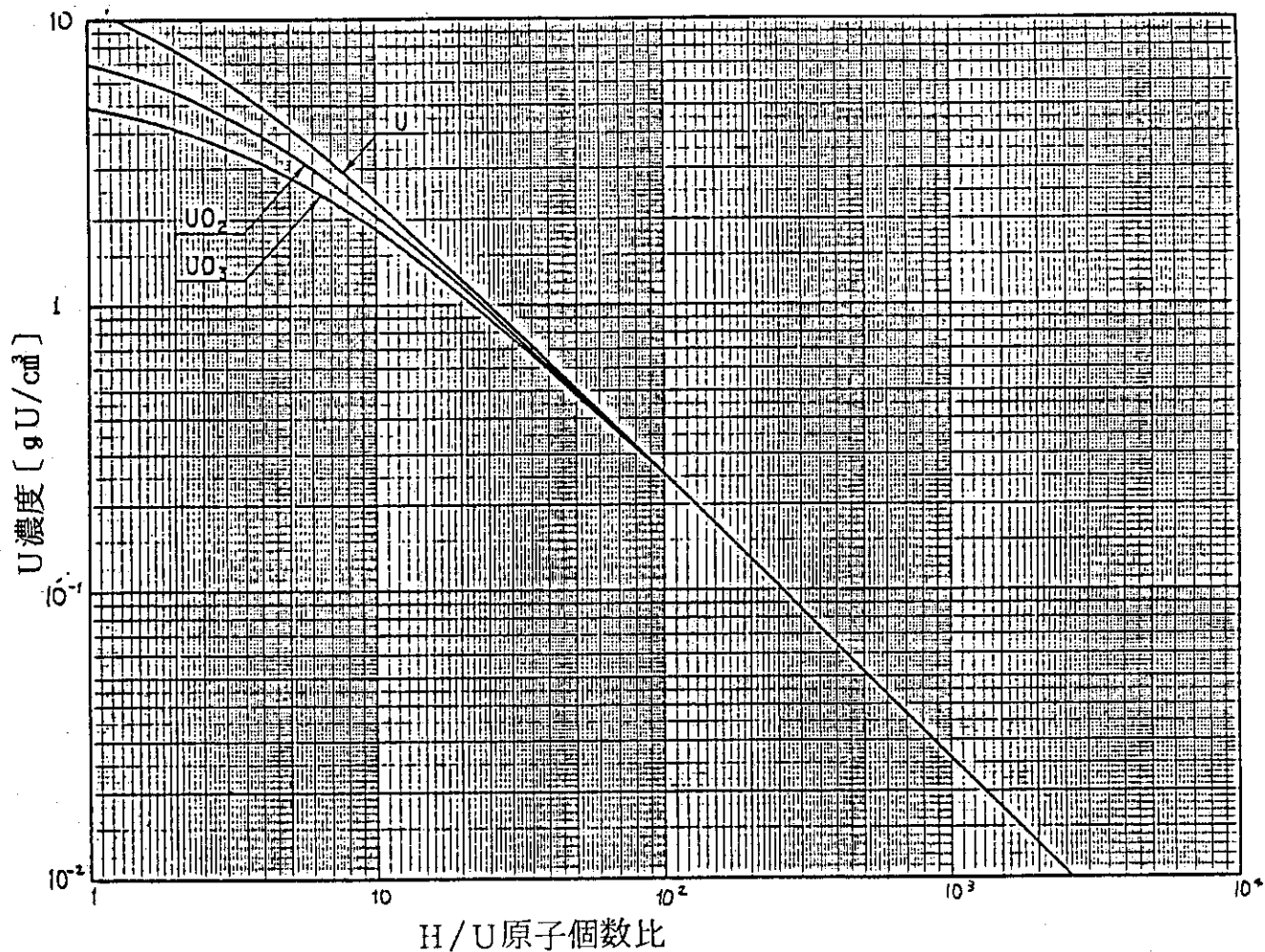


図1 ウラン濃度に対する H/U 原子個数比
 (U-H₂O, UO₂-H₂O, UO₃-H₂O ; ウラン濃縮度は天然ウラン相当)

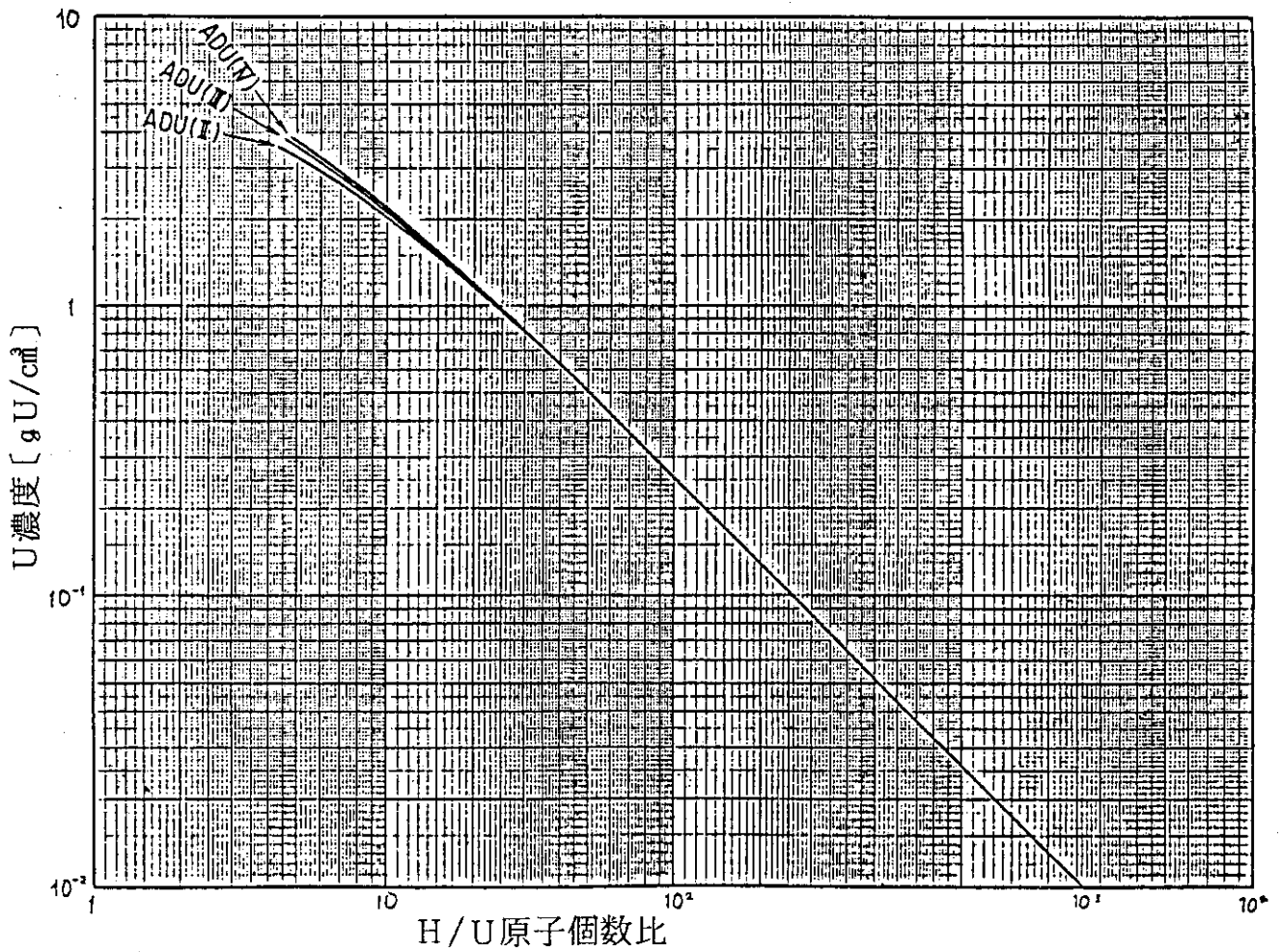


図2 ウラン濃度に対する H/U 原子個数比
 (ADU (II), ADU (III), ADU (IV) ; ウラン濃縮度は天然ウラン相当)

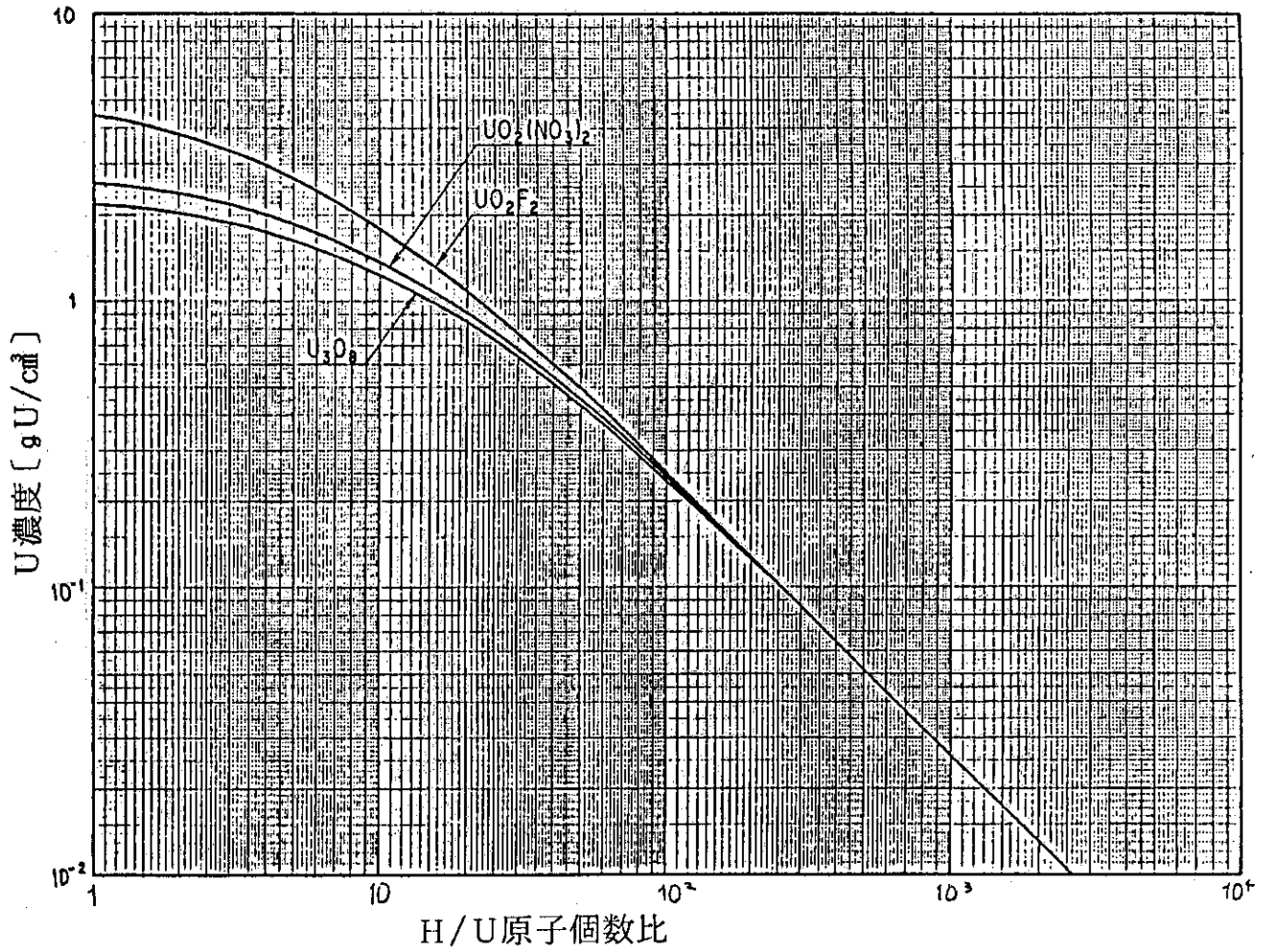


図3 ウラン濃度に対する H/U 原子個数比

($U_3O_8-H_2O$, UO_2F_2 水溶液, $UO_2(NO_3)_2$ 水溶液; ウラン濃縮度は天然ウラン相当)

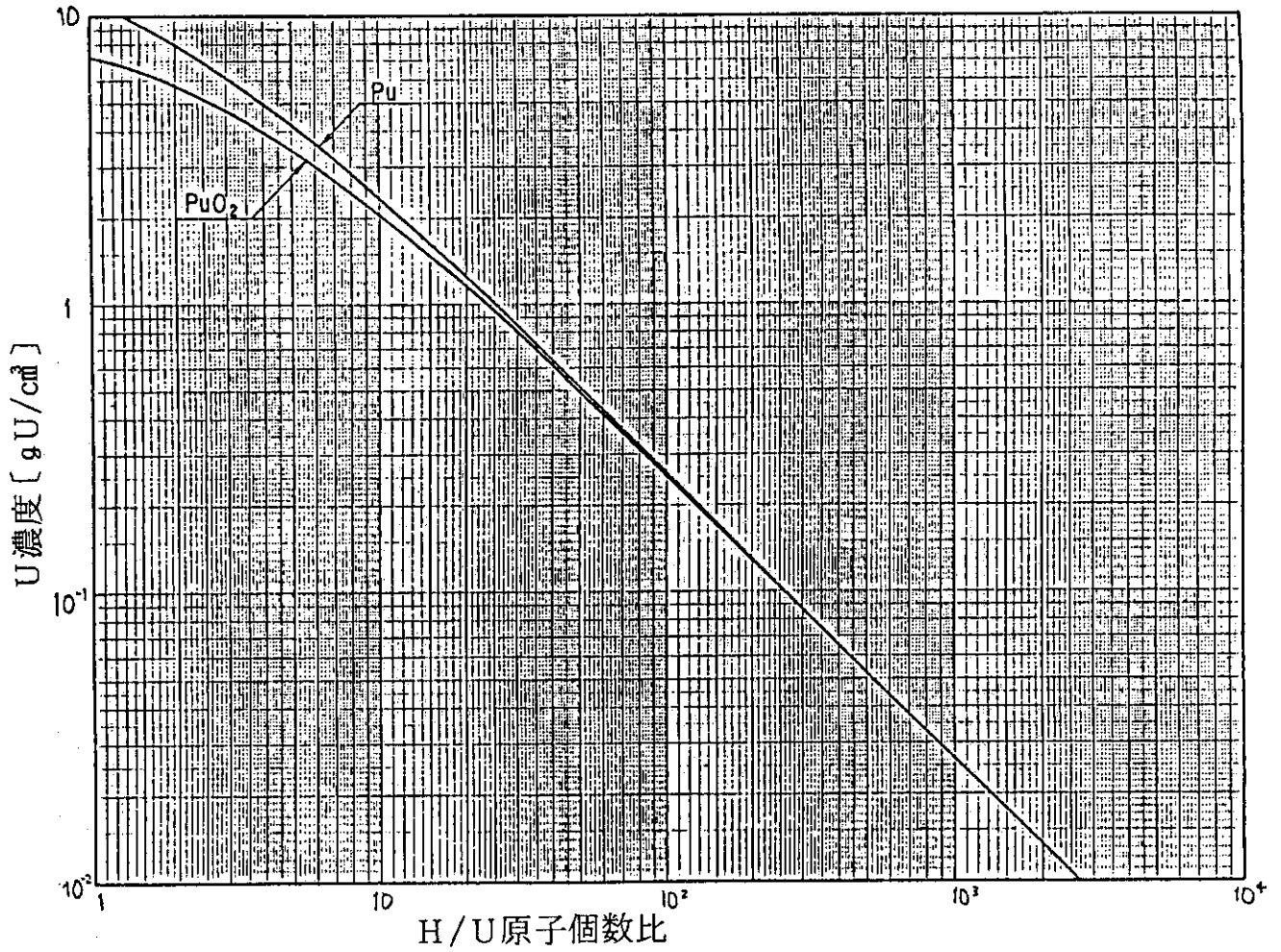


図4 プルトニウム濃度に対するH/Pu原子個数比
 (Pu-H₂O, PuO₂-H₂O ; ²³⁹Pu 100%)

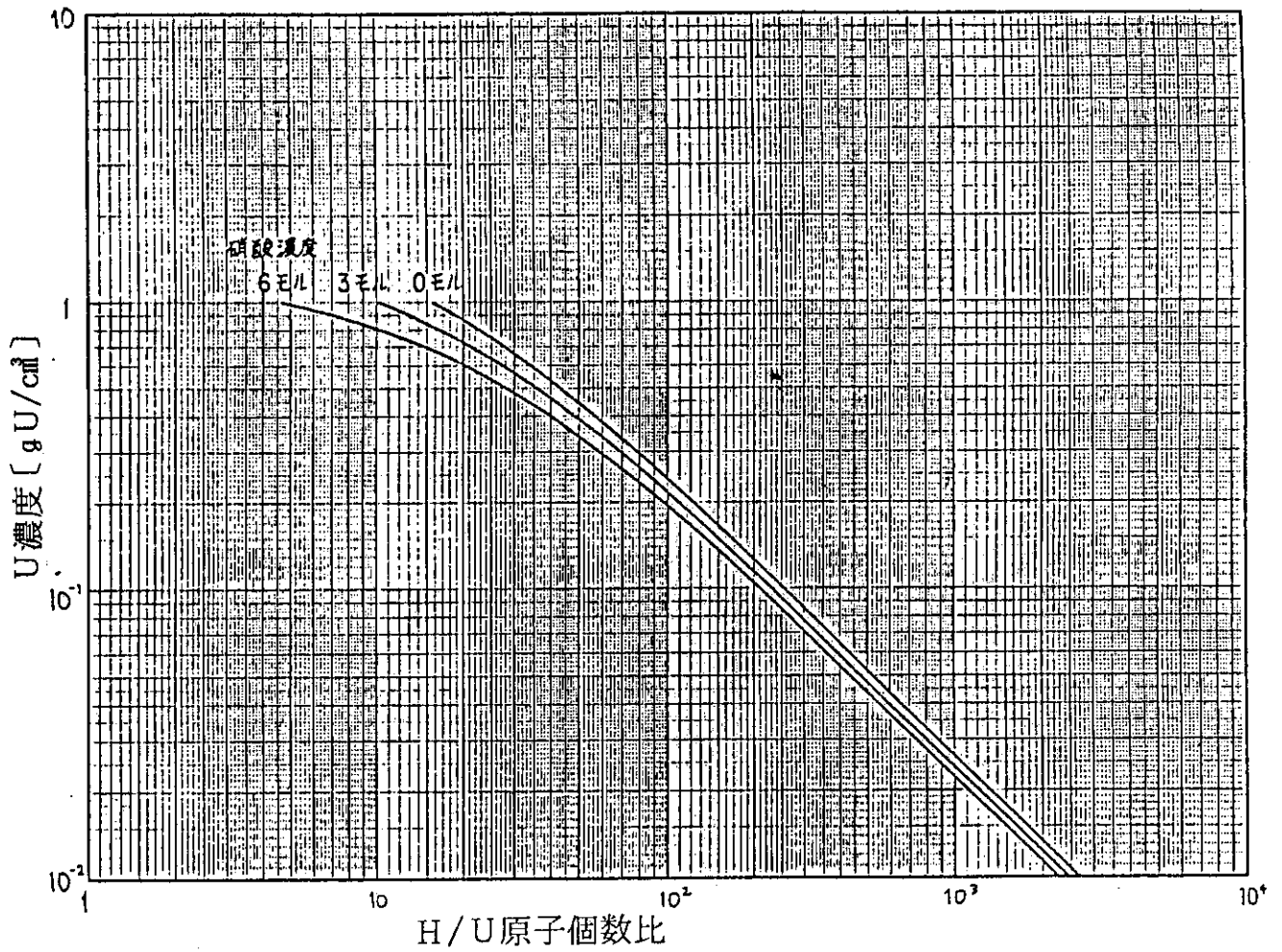


図5 プルトニウム濃度に対する H/Pu 原子個数比
 (Pu(NO₃)₄ 水溶液 ; ²³⁹Pu 100%)

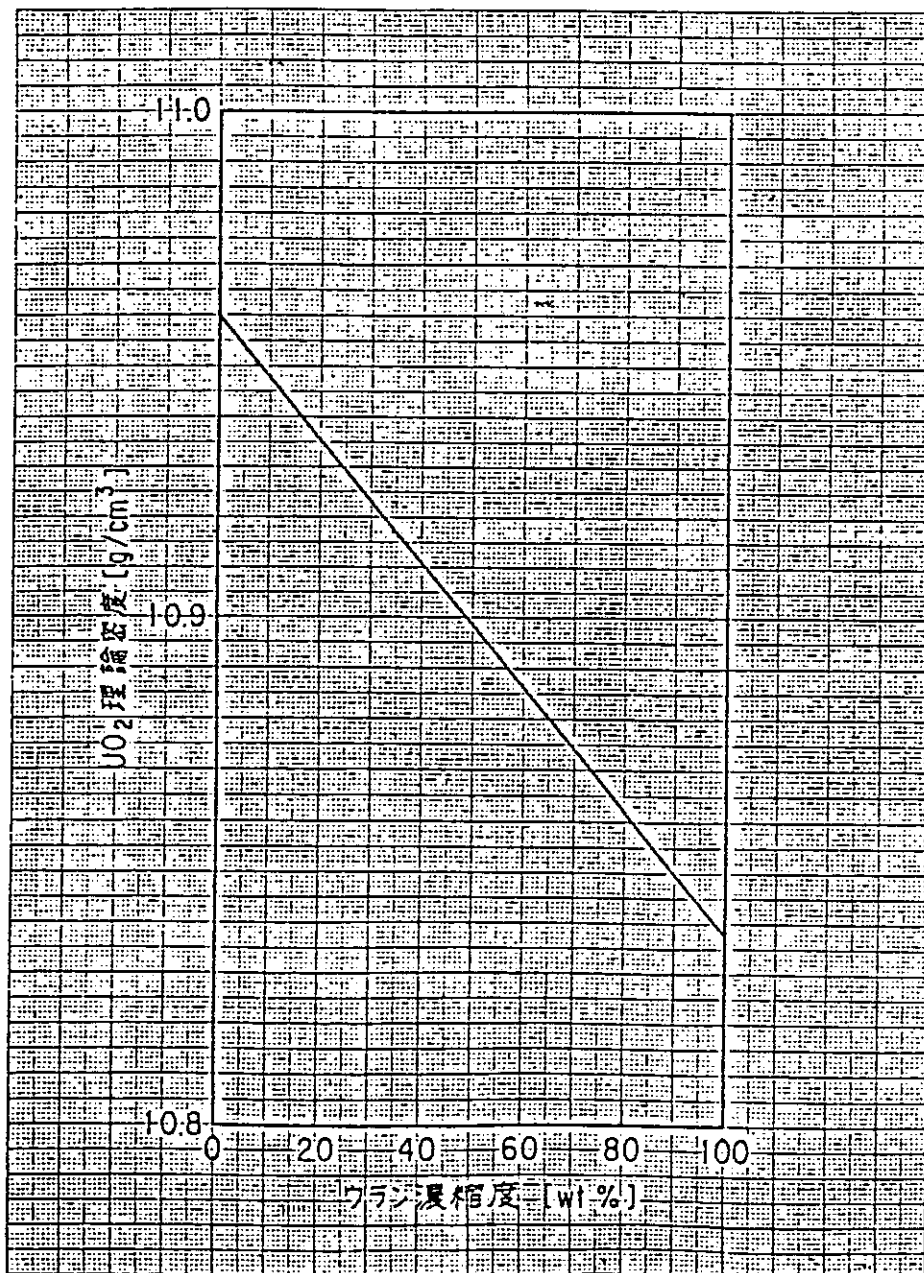


図6 ウラン濃度に対するUO₂理論密度の変化

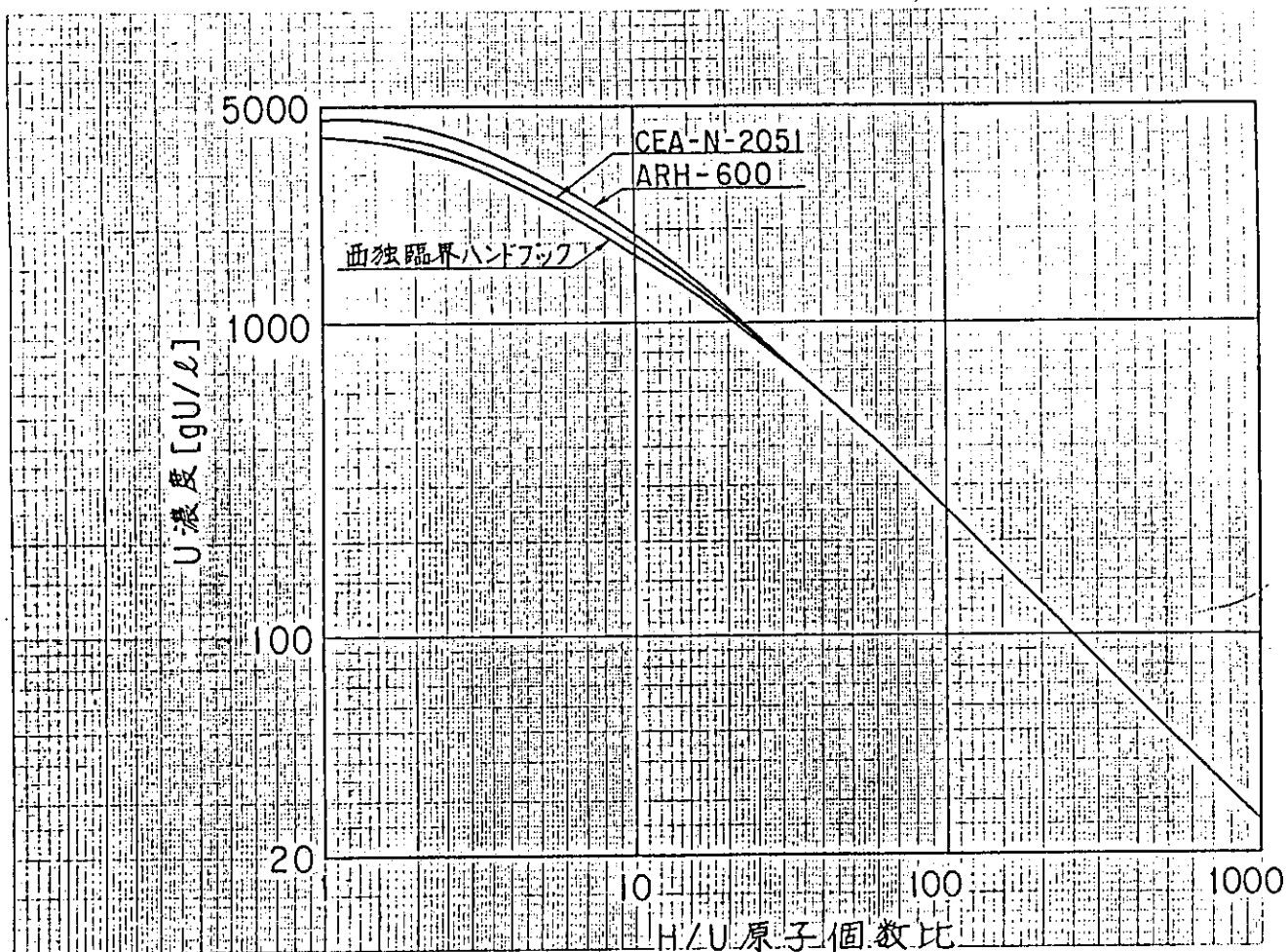


図7 ウラン濃度に対する H/U 原子個数比の比較

(UO_2F_2 水溶液 ; CEA-N-2051, 西独臨界ハンドブック, ARH-600)

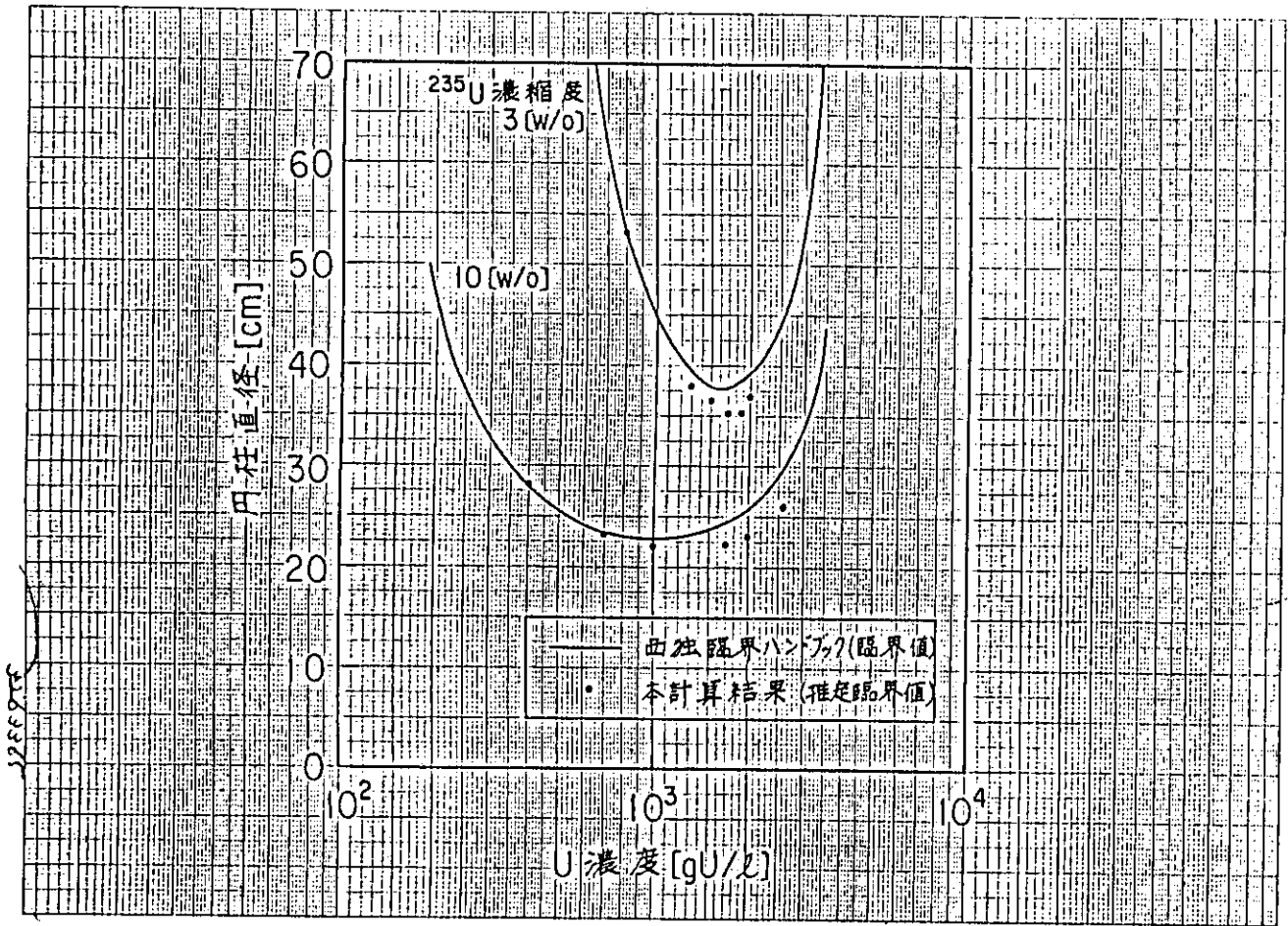


図8 UO_2F_2 水溶液の臨界条件
(無限円柱直径, 水反射体付き, ウラン濃縮度 3 及び 10 wt %)

表5 UO₂理論密度のウラン濃縮度依存性

ウラン濃縮度 [wt %]	UO ₂ 密度 [g/cm ³]
0	10.960
0.711 (天然)	10.959
10	10.947
20	10.935
40	10.911
60	10.886
80	10.862
100	10.838

表6 ADU生成におけるpHの効果²⁰⁾

pH	AU Type*			
	I	II	III	IV
4.2		M	VMi	
4.6		M	VMi	
5.0		M	VMi	
5.9		M	VMi	
6.4		M	M	
6.9		M	M	M
7.1		Mi	M	M
8.0		Mi	M	M
8.6		Mi	M	M
9.1			M	M
9.4			M	M
10.0			M	M

* Cordfunke's [1962] AU compound

nomenclature is used

M=major, Mi=minor

VMi=very minor

謝 辞

UO₂F₂水溶液に関する実験データを三菱金属(株)原子力事業部設計部の田仲昇一課長から、ADUの種類及び組成を日本核燃料コンバージョン(株)東海事業所安全管理の吉岡正年室長から、MOX燃料の原子個数密度計算方法を動力炉・核燃料開発事業団の小山智造氏からそれぞれ紹介していただいた。図7及び図8は科学技術庁から提供していただいた。ここに謝意を表す。

参 考 文 献

- 1) J. T. Thomas, "The Nuclear Safety Guide——TID—7016 Rev. 2", NUREG/CR—0095, (1978)
- 2) "Guide de Criticité", CEA—R 3114, French Atomic Energy Commission, (1967)
- 3) W. Thomas, W. Weber, "Handbuch zur Kritikalität", Technical University of Munich, (1972)
- 4) F. Abbey, "Manual of Criticality Data ; Parts 1, 2, 3", AHSB(S) Handbook 5, Health and Safety Branch, U. K. Atomic Energy Authority, (1967)
- 5) W. A. Blyckert, R. D. Carter, K. R. Ridgway, "Criticality Handbook vol. I, II, III", ARH—600, Atrantic Richfield Hanford Co., (1971)
- 6) "化学便覧基礎編 改訂2版", 社団法人 日本化学会 (1975年)
- 7) 長谷川正義, 三島良績, "原子炉材料ハンドブック", 日刊工業新聞社, (1977)
- 8) P. C. Debets and B. O. Loopstra, "On the Uranates of Ammonium—II, X—ray Investigation of the Compounds in the System NH₃—UO₃—H₂O", J. Inorg. Nucl. Chemi, Vol. 25, pp. 945—953, (1962)
- 9) "理科年表 昭和60年度版", 東京天文台編纂 (1984年)
- 10) C. Michael Lederer and Virginia S. Shirley, "Table of Isotopes Seventh Edition", (1978)
- 11) L. Maubert, "Standard de Criticite—Valeurs Minimales Critiques", CEA—N—2051, (1978)
- 12) James S. Johnson, Kurt A. Kraus, "Density and Refractive Index of Uranyl Fluoride Solutions", Journal of American Chemical Society, Vol. 75, (1953)
- 13) 館盛勝一 他, "ウラン, プルトニウム溶液系の臨界計算・I (溶液密度と原子個数密度の考察)", JAERI—M 83—047, (1983)
- 14) H. H. Ph. Moeken, "The Density of Nitric Acid Solutions of Uranium and Uranium Alloys", Analytica Chimica Acta, Vol. 44, pp. 225—228, (1969)
- 15) L. L. Burger, et al., "Properties—Nitric Acid (or Sodium Hydroxide) —Sodium

謝 辞

UO₂F₂水溶液に関する実験データを三菱金属(株)原子力事業部設計部の田仲昇一課長から、ADUの種類及び組成を日本核燃料コンバージョン(株)東海事業所安全管理の吉岡正年室長から、MOX燃料の原子個数密度計算方法を動力炉・核燃料開発事業団の小山智造氏からそれぞれ紹介していただいた。図7及び図8は科学技術庁から提供していただいた。ここに謝意を表す。

参 考 文 献

- 1) J. T. Thomas, "The Nuclear Safety Guide——TID—7016 Rev. 2", NUREG/CR—0095, (1978)
- 2) "Guide de Criticité", CEA—R 3114, French Atomic Energy Commission, (1967)
- 3) W. Thomas, W. Weber, "Handbuch zur Kritikalität", Technical University of Munich, (1972)
- 4) F. Abbey, "Manual of Criticality Data ; Parts 1, 2, 3", AHSB(S) Handbook 5, Health and Safety Branch, U. K. Atomic Energy Authority, (1967)
- 5) W. A. Blyckert, R. D. Carter, K. R. Ridgway, "Criticality Handbook vol. I, II, III", ARH—600, Atrantic Richfield Hanford Co., (1971)
- 6) "化学便覧基礎編 改訂2版", 社団法人 日本化学会 (1975年)
- 7) 長谷川正義, 三島良績, "原子炉材料ハンドブック", 日刊工業新聞社, (1977)
- 8) P. C. Debets and B. O. Loopstra, "On the Uranates of Ammonium—II, X—ray Investigation of the Compounds in the System NH₃—UO₃—H₂O", J. Inorg. Nucl. Chemi, Vol. 25, pp. 945—953, (1962)
- 9) "理科年表 昭和60年度版", 東京天文台編纂 (1984年)
- 10) C. Michael Lederer and Virginia S. Shirley, "Table of Isotopes Seventh Edition", (1978)
- 11) L. Maubert, "Standard de Criticite—Valeurs Minimales Critiques", CEA—N—2051, (1978)
- 12) James S. Johnson, Kurt A. Kraus, "Density and Refractive Index of Uranyl Fluoride Solutions", Journal of American Chemical Society, Vol. 75, (1953)
- 13) 館盛勝一 他, "ウラン, プルトニウム溶液系の臨界計算・I (溶液密度と原子個数密度の考察)", JAERI—M 83—047, (1983)
- 14) H. H. Ph. Moeken, "The Density of Nitric Acid Solutions of Uranium and Uranium Alloys", Analytica Chimica Acta, Vol. 44, pp. 225—228, (1969)
- 15) L. L. Burger, et al., "Properties—Nitric Acid (or Sodium Hydroxide) —Sodium

- Nitrate—Water—Hexone”, HW—11276, (1949)
- 16) A. Mainomi, “Density and Radiolytic Decomposition of Plutonium Nitrate Solutions”, UCRL—52727, (1979)
 - 17) R. C. Lloyd and E. D. Clayton, “Criticality of Plutonium—Uranium Nitrate Solutions”, Nuclear Science and Engineering, Vol. 60, pp.143 — 146, (1976)
 - 18) R. C. Lane and C. Parker, “Measurement of the Critical Size of Solutions of Plutonium and Natural Uranium with Pu/U = 0.3”, AWRE—O—58 / 73, (1973)
 - 19) E. H. Cordfunke, “On the Uranates of Ammonium— I The Ternary System NH_3 — UO_3 — H_2O ”, J. Inorg. Nucl. Chem. Vol. 24, pp. 303 — 307, (1962)
 - 20) Woolfrey, J. L., “The Effect of pH on the Properties of Ammonium Uranate Precipitated with Gaseous Ammonia”, AAEC/E 397, (1976)

付 録 A

A. 1 重量パーセントと個数パーセントの関係

重量パーセントを個数パーセントに変換することを考える。元素Xがn種類の同位体 (X_1, X_2, \dots, X_n) から構成され、各同位体の重量パーセント及び原子量をそれぞれ (w_1, w_2, \dots, w_n) wt %, (A_1, A_2, \dots, A_n) とする。元素Xが単体でWg存在すれば、ある同位体 X_j の個数 N_j は、

$$N_j = \frac{W \cdot w_j \cdot N_A}{100 \cdot A_j} \quad [\text{atoms}] \quad (\text{A. 1})$$

になる。また、同位体の全個数Nは、

$$N = \sum_{i=1}^n N_i = \sum_{i=1}^n \frac{W \cdot w_i \cdot N_A}{100 \cdot A_i} = \frac{W \cdot N_A}{100} \cdot \sum_{i=1}^n \frac{w_i}{A_i} \quad [\text{atoms}] \quad (\text{A. 2})$$

である。したがって、同位体 X_j の個数パーセント a_j は次のようになる。

$$\begin{aligned} a_j &= \frac{N_j}{N} \times 100 = \frac{\frac{W \cdot w_j \cdot N_A}{100 \cdot A_j}}{\frac{W \cdot N_A}{100} \cdot \sum_{i=1}^n \frac{w_i}{A_i}} \times 100 \\ &= \frac{w_j / A_j}{\sum_{i=1}^n (w_i / A_i)} \times 100 \quad [\%] \quad (\text{A. 3}) \end{aligned}$$

以上で重量パーセントを個数パーセントに変換できた。なお、この逆の変換は次式を用いればよい。

$$w_i = \frac{a_i \cdot A_i}{\sum_{i=1}^n a_i \cdot A_i} \times 100 \quad [\text{wt \%}] \quad (\text{A. 4})$$

A. 2 同位体組成を考慮した原子量の計算

前節と同じ元素Xを例に説明する。各同位体の個数パーセントを (a_1, a_2, \dots, a_n) %とすると、元素Xの原子量Aは次のようになる。

$$A = \frac{\sum_{i=1}^n a_i \cdot A_i}{100} \quad (\text{A. 5})$$

また、各同位体の重量パーセントの総和は、

$$\sum_{i=1}^n w_i = 100 \quad (\text{A. 6})$$

である。式(A. 4)に式(A. 3)を代入し、式(A. 5)の関係を適用すると次式が得られる。

$$A = \sum_{i=1}^n \left(\frac{w_i}{A_i} \right)^{-1} \quad (\text{A. 7})$$

A. 3 UO₂F₂水溶液のH/U原子個数比計算式の導出

本文4.2.1項で示した3式は次の通りである。 ρ_{solution} はUO₂F₂水溶液の密度、 F_2 はUO₂F₂水溶液中に占めるUO₂F₂の重量比である。

$$\frac{N_H}{N_U} = 26.444 \cdot \frac{\rho_{\text{solution}}}{C_U} - 34.222 \quad (8)$$

$$\rho_{\text{solution}} = \frac{1}{1.00294 - 0.912 \cdot F_2 + 0.0567 \cdot F_2^2} \quad (9)$$

$$F_2 = \frac{1}{1 + 0.02922 \cdot (N_H/N_U)} \quad (10)$$

初めに式(8)を導出する。次の3つの式が成立するのは明らかである。

$$\rho_{\text{solution}} = C_{\text{UO}_2\text{F}_2} + C_{\text{H}_2\text{O}} \quad (\text{A. 8})$$

$$\frac{N_H}{N_U} = \frac{(C_{\text{H}_2\text{O}}/A_{\text{H}_2\text{O}}) \times 2}{C_{\text{UO}_2\text{F}_2}/A_{\text{UO}_2\text{F}_2}} \quad (\text{A. 9})$$

$$\frac{C_U}{A_U} = \frac{C_{\text{UO}_2\text{F}_2}}{A_{\text{UO}_2\text{F}_2}} \quad (\text{A. 10})$$

式(A. 8)及び式(A. 10)を式(A. 9)に代入して $C_{\text{H}_2\text{O}}$ 及び $C_{\text{UO}_2\text{F}_2}$ を消去すると、次式が得られる。

$$\frac{N_H}{N_U} = 2 \cdot \frac{A_U}{A_{\text{H}_2\text{O}}} \cdot \frac{\rho_{\text{solution}}}{C_U} - 2 \cdot \frac{A_{\text{UO}_2\text{F}_2}}{A_{\text{H}_2\text{O}}} \quad (\text{A. 11})$$

式(A. 11)に次の値を代入すると式(8)を得る。

$$A_U = 238$$

$$A_{H_2O} = 1 \times 2 + 16 = 18$$

$$A_{UO_2F_2} = 238 + 16 \times 2 = 19 \times 2 = 308$$

式(10)は次のように導出できる。

$$\begin{aligned} F_2 &= \frac{C_{UO_2F_2}}{\rho_{\text{solution}}} = \frac{C_{UO_2F_2}}{C_{UO_2F_2} + C_{H_2O}} = \frac{1}{1 + \frac{C_{H_2O}}{C_{UO_2F_2}}} \\ &= \frac{1}{1 + \frac{N_{H_2O} \cdot A_{H_2O}}{N_{UO_2F_2} \cdot A_{UO_2F_2}}} = \frac{1}{1 + \frac{1}{2} \cdot \left(\frac{N_H}{N_U} \right) \cdot \frac{A_{H_2O}}{A_{UO_2F_2}}} \end{aligned} \quad (\text{A. 12})$$

先に示した A_U 及び $A_{UO_2F_2}$ の値を式 (A. 12) 代入して、式(10)を得る。

式(9)は本文中の参考文献 11) からの引用である。この文献によると次式が成立するという。

$$\frac{1}{\rho_{\text{solution}}} = \frac{1}{\rho_{H_2O}} + a \cdot F_2 + b \cdot F_2^2 \quad (\text{A. 13})$$

但し、 a 及び b は定数であり、実験から得られる値である。本文中の参考文献 11) によると溶液温度 25 °C の場合、

$$a = -0.9120$$

$$b = 0.0567$$

である。また「理科年表」昭和 60 年版によると 25 °C の場合には、

$$\rho_{H_2O} = 0.99704$$

である。これら 3 つの値を式 (A. 13) に代入すると式(9)を得る。

以上で式(8)、式(9)、式(10)の導出が完了したが、この過程で使った A_U 、 A_{H_2O} 、 A_U 、 A_{H_2O} 、 $A_{UO_2F_2}$ は粗い値である。すなわち式(8)、式(9)、式(10)内の各定数は精度が悪いので、実際の適用にあたっては注意を要する。なお、AND ではウラン濃縮度を考慮した A_U 及び $A_{UO_2F_2}$ を使っている。

A. 4 UO_2F_2 水溶液の最大 U 濃度

均質 UO_2F_2 水溶液の溶解度を表 A. 1¹⁾ に示す。このデータと本文中の式(8)、(9)、(10)より、25 °C における最大 U 濃度を推定する。式(8)内の N_H/N_U 及び ρ_{solution} を式(9)と式(10)を用いて消去した後に C_U について解くと次式を得る。

$$C_U = \frac{26.444}{\left\{ \left(\frac{1/F_2 - 1}{0.02922} \right) + 34.222 \right\} (1.00294 - 0.912 \cdot F_2 + 0.0567 \cdot F_2^2)}$$

表A.1より、25℃における F_2 は0.673である。この値を上式に代入すると、最大U濃度として約1.25g U/cm³を得る。

表A.1 UO₂F₂水溶液の物性データ

Temp., °C	UO ₂ F ₂ , wt. %	Molality	ρ , g/cc
25.0	67.3	5.18	2.405
75.0	69.6	5.59	2.472
99.9	72.4	6.08	2.588

A. 5 UO₂, PuO₂, PuO₂-UO₂の理論密度

一般に、UO₂及びPuO₂の理論密度はそれぞれ10.96g/cm³及び11.46g/cm³とされている。しかしこれらの値は²³⁸Uの存在比が高い(²³⁵U濃縮度が約3%以下)、あるいは²³⁹Puの存在比が高い(約90%以上)場合に限られる。したがってこのような範囲を越えた同位体組成のUO₂及びPuO₂の理論密度は別途計算しなければならない。式(A.14)に計算式を示す。この式では分子の配列格子1個に注目して、格子内に含まれる分子の重量(W_g)を格子の体積(V_x)で除して理論密度を求めている。

$$\rho_x = \frac{W_x}{V_x} = \frac{4 \cdot A_x / N_A}{(a_{ox} \times 10^{-8})^3} \quad [\text{g/cm}^3] \quad (\text{A. 14})$$

ここで、XはUO₂、PuO₂またはPuO₂-UO₂である。a_{ox}は物質Xの格子定数で、単位はÅである。UO₂、PuO₂及びPuO₂-UO₂の格子定数を表A.2に示す。また、これらの物質の分子量A_xは表A.3に示す式から求まる。

表A.2 UO₂、PuO₂及びPuO₂-UO₂の格子定数

物質名	格子定数 [Å]
UO ₂	5.4700
PuO ₂	5.3960
PuO ₂ -UO ₂	5.4700 - 7.40 × 10 ⁻⁴ · a _{PuO₂} ^(a)

$$(a) \quad a_{\text{PuO}_2} = \frac{N_{\text{PuO}_2}}{N_{\text{PuO}_2} + N_{\text{UO}_2}} \times 100$$

表A.3 UO_2 , PuO_2 及び PuO_2-UO_2 の分子量

物質名	分子量
UO_2	$\frac{1}{100} \cdot \sum_i (A_i \cdot a_i) + 2 \cdot A_o$ ^(a)
PuO_2	$\frac{1}{100} \cdot \sum_j (A_j \cdot a_j) + 2 \cdot A_o$ ^(b)
$PuO_2 - UO_2$	$\frac{1}{100} \cdot (A_{UO_2} \cdot a_{UO_2} + A_{PuO_2} \cdot a_{PuO_2})$ ^(c)

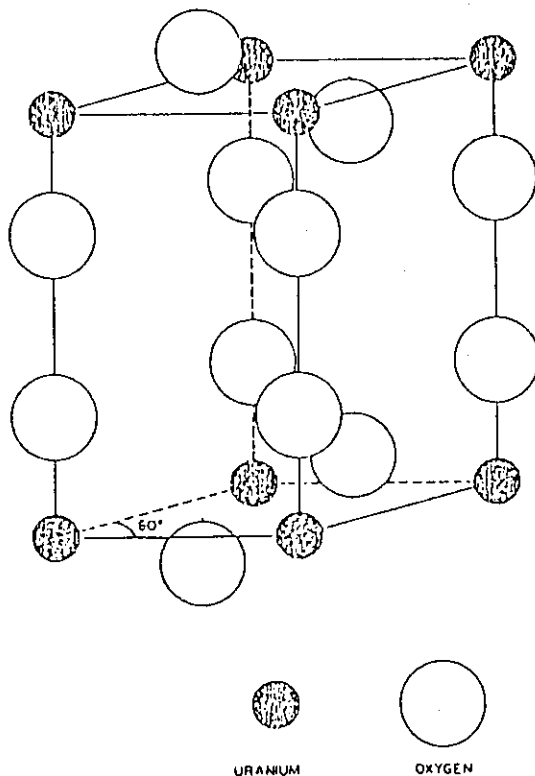
(a) $i = {}^{234}U, {}^{235}U, {}^{236}U, {}^{238}U$

(b) $j = {}^{238}Pu, {}^{239}Pu, {}^{240}Pu, {}^{241}Pu, {}^{242}Pu, {}^{237}Np, {}^{241}Am$

(c) $a_{UO_2} = \frac{N_{UO_2}}{N_{PuO_2} + N_{UO_2}} \times 100$, $a_{PuO_2} = \frac{N_{PuO_2}}{N_{PuO_2} + N_{UO_2}} \times 100$

A. 6 ADUの理論密度

文献2) に記録されているSubcell のデータを用いて、3種類のADUの理論密度を概算した。図A.1²⁾ に示すSubcell の体積及びSubcell 内に含まれる各原子の重量から理論密度を求めることができる。



$$\rho_{ADU} = \frac{W_{ADU}}{V_{ADU}} = \frac{\sum_i (A_i \cdot n_i / N_A)}{V_{cell, ADU}} \quad [\text{g/cm}^3] \quad (\text{A. 15})$$

ここで n_i は Subcell 中の原子 i の個数で、 $i = \text{U, O, N, H}$ である。 n_i の値を表 A. 4 に示す。このデータと Subcell の体積及び各原子の原子量を式 (A. 15) に代入すると、ADU の理論密度を得る。計算結果を以下に示す。

表 A. 4 Subcell 内に含まれる各原子の数

Compound	n_U	n_O	n_N	n_H
ADU(II)	1	14/3	1/3	13/3
ADU(III)	1	9/2	1/2	9/2
ADU(IV)	1	13/3	2/3	14/13

$$\rho_{ADU(II)} = \frac{(238.0508 \times 1 + 15.9997 \times \frac{14}{3} + 14.0062 \times \frac{1}{3} + 1.0079 \times \frac{13}{3})}{(110.6 \times 10^{-24}) \times (6.022045 \times 10^{23})} = 4.83 \quad [\text{g/cm}^3]$$

$$\rho_{ADU(III)} = \frac{238.0508 \times 1 + 15.9997 \times \frac{9}{2} + 14.0062 \times \frac{1}{2} + 1.0079 \times \frac{9}{2}}{(103.8 \times 10^{-24}) \times (6.022045 \times 10^{23})} = 5.14 \quad [\text{g/cm}^3]$$

$$\rho_{ADU(IV)} = \frac{238.0508 \times 1 + 15.9997 \times \frac{13}{3} + 14.0062 \times \frac{2}{3} + 1.0079 \times \frac{14}{3}}{(102.5 \times 10^{-24}) \times (6.022045 \times 10^{23})} = 5.21 \quad [\text{g/cm}^3]$$

この計算では U の原子量に ^{238}U の値を用いたが、AND ではウラン濃縮度を考慮した正確な原子量を用いて計算を行う。

A. 7 各種核燃料物質の原子個数密度

本文で述べた算法を用いて原子個数密度計算プログラム AND を作成した。このプログラムを使って表 A. 5 に示す各種核燃料物質の原子個数密度を計算した。結果を表 A. 6. 1 から表 A. 6. 14 に示す。

表 A.5 ANDによる原子個数密度計算結果一覧

核燃料物質	$^{235}\text{U}/\text{U}^{(a)}$	$^{239}\text{Pu} : ^{240}\text{Pu} : ^{241}\text{Pu}^{(a)}$	硝酸濃度 [mol/l]	体系温度 [°C]	計算結果表番号		
U-H ₂ O	2.0	—	—	20	表 A.6.1		
UO ₂ -H ₂ O					表 A.6.2		
UO ₃ -H ₂ O					表 A.6.3		
ADU(II)-H ₂ O					表 A.6.4		
ADU(III)-H ₂ O					表 A.6.5		
ADU(IV)-H ₂ O					表 A.6.6		
UO ₂ F ₂ 水溶液				25	—	—	表 A.6.7
U ₃ O ₈ -H ₂ O							表 A.6.8
UO ₂ (NO ₃) ₂ 水溶液				20	0	0	表 A.6.9
Pu-H ₂ O							表 A.6.10
PuO ₂ -H ₂ O							80 : 10 : 10
Pu(NO ₃) ₄ 水溶液							100 : 0 : 0
PuO ₂ -UO ₂ -H ₂ O ^(c)							100 : 0 : 0
UO ₂ (NO ₃) ₂ - Pu(NO ₃) ₄ 水溶液 ^(d)							0.711 ^(b)

(a) 重量比 [wt %]

(b) 天然ウラン相当

(c) PuO₂/(UO₂ + PuO₂) = 20 wt %

(d) Pu/(U + Pu) = 80 wt %

表A.6.1 均質U-H₂Oの原子個数密度 (ウラン濃縮度 2.0 wt%, 溶液温度 20℃)

U 濃度 (gU/l)	H		O		²³⁵ U		²³⁸ U	
	100	6.63832E-02	3.31916E-02	5.12419E-06	2.47913E-04	5.12419E-06	2.47913E-04	1.23957E-03
500	6.49821E-02	3.24910E-02	5.12418E-05	2.47914E-03	5.12418E-05	2.47914E-03	1.23957E-03	2.47914E-03
1000	6.32306E-02	3.16153E-02	7.68628E-05	3.71871E-03	7.68628E-05	3.71871E-03	1.02484E-04	4.95827E-03
1500	6.14790E-02	3.07395E-02	1.02484E-04	4.95827E-03	1.02484E-04	4.95827E-03		
2000	5.97275E-02	2.98637E-02						

表A.6.2 均質UO₂-H₂O及び均質UO₂粉末*の原子個数密度 (ウラン濃縮度 2.0 wt%, 溶液温度 20℃)

U 濃度 (gU/l)	H		O		²³⁵ U		²³⁸ U		H/U*
	100	6.60427E-02	3.35274E-02	5.12419E-06	2.47913E-04	5.12419E-06	2.47913E-04	1.23957E-03	
500	6.32790E-02	3.41699E-02	5.12418E-05	2.47914E-03	5.12418E-05	2.47914E-03	1.23957E-03	—	
1000	5.98244E-02	3.49730E-02	7.68628E-05	3.71871E-03	7.68628E-05	3.71871E-03	1.02484E-04	1.0	
100*	2.53038E-04	6.32594E-04	2.56209E-05	1.23957E-03	2.56209E-05	1.23957E-03	2.47914E-03	1.0	
500*	1.26519E-03	3.16297E-03	5.12418E-05	2.47914E-03	5.12418E-05	2.47914E-03	1.23957E-03	1.0	
1000*	2.53038E-03	6.32594E-03						1.0	

表A.6.3 均質UO₃-H₂O (ウラン濃縮度 2.0 wt%, 溶液温度 20℃)

U 濃度 (gU/l)	H		O		²³⁵ U		²³⁸ U	
	100	6.56335E-02	3.35759E-02	5.12419E-06	2.47913E-04	5.12419E-06	2.47913E-04	1.23957E-03
500	6.12334E-02	3.44123E-02	5.12418E-05	2.47914E-03	5.12418E-05	2.47914E-03	1.23957E-03	2.47914E-03
1000	5.57333E-02	3.54578E-02	7.68628E-05	3.71871E-03	7.68628E-05	3.71871E-03	1.02484E-04	4.95827E-03
1500	5.02331E-02	3.65033E-02	1.02484E-04	4.95827E-03	1.02484E-04	4.95827E-03		
2000	4.47329E-02	3.75487E-02						

表A.6.4 均質ADU(II)-H₂Oの原子個数密度(ウラン濃縮度 2.0 wt %, 溶液温度 20℃)

U 濃度 (gU/l)	235U			238U		
	H	N	O	H	N	O
100	6.59624E-02	8.43459E-05	3.36138E-02	5.12419E-06	2.47913E-04	2.47913E-04
500	6.28781E-02	4.21730E-04	3.46020E-02	2.56209E-05	1.23957E-03	1.23957E-03
1000	5.90226E-02	8.43460E-04	3.58372E-02	5.12418E-05	2.47914E-03	2.47914E-03
1500	5.51670E-02	1.26519E-03	3.70724E-02	7.68628E-05	3.71871E-03	3.71871E-03
2000	5.13114E-02	1.68692E-03	3.83076E-02	1.02484E-04	4.95827E-03	4.95827E-03

表A.6.5 均質ADU(III)-H₂Oの原子個数密度(ウラン濃縮度 2.0 wt %, 溶液温度 20℃)

U 濃度 (gU/l)	235U			238U		
	H	N	O	H	N	O
100	6.61195E-02	1.26519E-04	3.36291E-02	5.12419E-06	2.47913E-04	2.47913E-04
500	6.36631E-02	6.32595E-04	3.46782E-02	2.56209E-05	1.23957E-03	1.23957E-03
1000	6.05926E-02	1.26519E-03	3.59896E-02	5.12418E-05	2.47914E-03	2.47914E-03
1500	5.75220E-02	1.89778E-03	3.73010E-02	7.68628E-05	3.71871E-03	3.71871E-03
2000	5.44514E-02	2.53038E-03	3.86124E-02	1.02484E-04	4.95827E-03	4.95827E-03

表A.6.6 均質ADU(IV)-H₂Oの原子個数密度(ウラン濃縮度 2.0 wt %, 溶液温度 20℃)

U 濃度 (gU/l)	235U			238U		
	H	N	O	H	N	O
100	6.61818E-02	1.68692E-04	3.35970E-02	5.12419E-06	2.47913E-04	2.47913E-04
500	6.39746E-02	8.43460E-04	3.45177E-02	2.56209E-05	1.23957E-03	1.23957E-03
1000	6.12157E-02	1.68692E-03	3.56686E-02	5.12418E-05	2.47914E-03	2.47914E-03
1500	5.84567E-02	2.53038E-03	3.68195E-02	7.68628E-05	3.71871E-03	3.71871E-03
2000	5.56977E-02	3.37384E-03	3.79703E-02	1.02484E-04	4.95827E-03	4.95827E-03

表A.6.7 均質 UO_2F_2 水溶液の原子個数密度 (ウラン濃縮度 2.0 wt%, 溶液温度 25°C)

U 濃度 (gU/l)	H	O	F	^{235}U	^{238}U
100	6.58175E-02	3.34148E-02	5.06076E-04	5.12419E-06	2.47913E-04
500	6.17286E-02	3.33947E-02	2.53038E-03	2.56209E-05	1.23957E-03
1000	5.58415E-02	3.29815E-02	5.06075E-03	5.12418E-05	2.47914E-03
1500	4.95835E-02	3.23829E-02	7.59114E-03	7.68628E-05	3.71871E-03
2000	4.31399E-02	3.16915E-02	1.01215E-02	1.02484E-04	4.95827E-03

表A.6.8 均質 $U_3O_8-H_2O$ の原子個数密度 (ウラン濃縮度 2.0 wt%, 溶液温度 20°C)

U 濃度 (gU/l)	H	O	^{235}U	^{238}U
100	6.39330E-02	3.26413E-02	5.12419E-06	2.47913E-04
500	5.27305E-02	2.97391E-02	2.56209E-05	1.23957E-03
1000	3.87275E-02	2.61114E-02	5.12418E-05	2.47914E-03
1500	2.47244E-02	2.24837E-02	7.68628E-05	3.71871E-03
2000	1.07213E-02	1.88560E-02	1.02484E-04	4.95827E-03

表A.6.9 均質 $UO_2(NO_3)_2$ 水溶液の原子個数密度 (ウラン濃縮度 2.0 wt%, 硝酸濃度 0 モル, 溶液温度 20°C)

U 濃度 (gU/l)	H	N	O	^{235}U	^{238}U
100	6.57288E-02	5.06074E-04	3.48887E-02	5.12419E-06	2.47913E-04
300	6.09461E-02	1.51822E-03	3.65459E-02	1.53725E-05	7.43740E-04
500	5.61633E-02	2.53037E-03	3.82031E-02	2.56209E-05	1.23957E-03
700	5.13805E-02	3.54252E-03	3.98603E-02	3.58693E-05	1.73540E-03
1000	4.42063E-02	5.06074E-03	4.23461E-02	5.12418E-05	2.47914E-03

表 A.6.10 均質 Pu-H₂O の原子個数密度 (²³⁹Pu : ²⁴⁰Pu : ²⁴¹Pu = 80 : 10 : 10 wt% , 溶液温度 20℃)

Pu 濃度 (gU/ℓ)	O			
	H	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu
100	6.63968E-02	3.31984E-02	2.01531E-04	2.50862E-05
500	6.50498E-02	3.25249E-02	1.00765E-03	1.25431E-04
1000	6.33659E-02	3.16830E-02	2.01531E-03	2.50862E-04
1500	6.16822E-02	3.08411E-02	3.02296E-03	3.76293E-04
2000	5.99983E-02	2.99992E-02	4.03061E-03	5.01724E-04

表 A.6.11 均質 PuO₂-H₂O 及び均質 PuO₂ 粉末* の原子個数密度 (²³⁹Pu : ²⁴⁰Pu : ²⁴¹Pu = 80 : 10 : 10 wt% , 溶液温度 20℃)

Pu 濃度 (gU/ℓ)	O				H/U*
	H	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	
100	6.60741E-02	3.35402E-02	2.01531E-04	2.50862E-05	—
500	6.34362E-02	3.42341E-02	1.00765E-03	1.25431E-04	—
1000	6.01388E-02	3.51014E-02	2.01531E-03	2.50862E-04	—
100*	2.51599E-04	6.28997E-04	2.01531E-04	2.50862E-05	1.0
500*	1.25799E-03	3.14498E-03	1.00765E-03	1.25431E-04	1.0
1000*	2.51599E-03	6.28997E-03	2.01531E-03	2.50862E-04	1.0

表 A.6.12 均質 Pu(NO₃)₄ 水溶液の原子個数密度 (²³⁹Pu 100wt% , 硝酸濃度 0 モル , 溶液温度 20℃)

Pu 濃度 (gU/ℓ)	O			
	H	N	O	²³⁹ Pu
100	6.43347E-02	1.00765E-03	3.51903E-02	2.51913E-04
300	5.91492E-02	3.02296E-03	3.86434E-02	7.55740E-04
500	5.37806E-02	5.03827E-03	4.20051E-02	1.25957E-03
700	4.82294E-02	7.05357E-03	4.52754E-02	1.76339E-03
1000	3.95598E-02	1.00765E-02	5.00095E-02	2.51913E-03

表 A.6.13 均質 MOX-H₂O 及び均質 MOX 粉末* の原子個数密度

(ウラン濃縮度 0.711 wt%, ²³⁹Pu 100 wt%, プルトニウム富化度 (酸化物比) 20 wt%, 溶液温度 20°C)

(UO ₂ + PuO ₂) 密度 [g (UO ₂ + PuO ₂) / cm ³]	H	O	²³⁵ U	²³⁸ U	²³⁹ Pu	H/U*
100	6.60801E-02	3.34857E-02	1.28462E-06	1.77128E-04	4.44347E-05	—
500	6.36676E-02	3.40623E-02	6.42310E-06	8.85637E-04	2.22173E-04	—
1000	6.06521E-02	3.47830E-02	1.28462E-05	1.77127E-03	4.44347E-04	—
100*	2.22847E-04	5.57117E-04	1.28462E-06	1.77128E-04	4.44347E-05	1.0
500*	1.11423E-03	2.78558E-03	6.42310E-06	8.85637E-04	2.22173E-04	1.0
1000*	2.22847E-03	5.57116E-03	1.28462E-05	1.77127E-03	4.44347E-04	1.0

表 A.6.14 均質 UO₂(NO₃)₂-Pu(NO₃)₄ 水溶液の原子個数密度

(ウラン濃縮度 0.711 wt%, ²³⁹Pu 100 wt%, プルトニウム富化度 (重金属比) 80 wt%, 硝酸濃度 0 モル, 溶液温度 20°C)

(U+Pu) 濃度 [g (U+Pu) / ℓ]	H	N	O	²³⁵ U	²³⁸ U	²³⁹ Pu
100	6.38764E-02	9.07320E-04	3.47613E-02	3.64330E-07	5.02349E-05	2.01531E-04
500	5.48304E-02	4.53660E-03	4.15310E-02	1.82165E-06	2.51174E-04	1.00765E-03
1000	4.26991E-02	9.07321E-03	4.95811E-02	3.64330E-06	5.02349E-04	2.01531E-03
1500	2.96521E-02	1.36098E-02	5.71734E-02	5.46494E-06	7.53523E-04	3.02296E-03
2000	1.56894E-02	1.81464E-02	6.43079E-02	7.28659E-06	1.00470E-03	4.03061E-03

参 考 文 献

- 1) Joseph J. Katz and Eugene Rabinowitch, " The Chemistry of Uranium, The Element, Its Binary and Related Compounds ", Dover Publications, Inc., (1951)
- 2) P.C. Debets and B.O. Loopstra, " On the Uranates of Ammonium—II X-ray Investigation of the Compounds in the System $\text{NH}_3 - \text{UO}_3 - \text{H}_2\text{O}$ " J. Inorg. Nucl. Chem., Vol. 25, p.p. 945 - 953, (1963)

付 録 B

記号集

N_A [atoms/mol]	アボガドロ数
A	原子(分子)量
N [atoms/cm ³]	原子(分子)の個数密度
ρ [g/cm ³]	密度
C_x [gX/cm ³]	物質 X の濃度
\tilde{C}_x [mol/l]	物質 X の体積モル濃度
a_0 [Å]	格子定数
V [cm ³]	体積
W [g]	重量
ϵ [%]	Pu 富化度
a [%]	個数百分率
W [wt %]	重量百分率

付録C 原子個数密度計算プログラムAND入力マニュアル

Card 1 : タイトルカード, FORMAT (A72)。このカードの先頭の文字で核燃料物質等の種類を指定する。指定方法及び Card 1 に続く各カードは次の通りである。Card 2 以降はすべてフリーフォーマットである。

核燃料物質名	識別子	Card 1 の後に続くカード
U - H ₂ O	*U*	Card 2
UO ₂ - H ₂ O	*UO2*	Card 2
UO ₃ - H ₂ O	*UO3*	Card 2
U ₃ O ₈ - H ₂ O	*U3O8*	Card 2
UO ₂ F ₂ 水溶液	*UO2F2*	Card 6
ADU(II) - H ₂ O	*ADU2*	Card 2
ADU(III) - H ₂ O	*ADU3*	Card 2
ADU(IV) - H ₂ O	*ADU4*	Card 2
UO ₂ (NO ₃) ₂ 水溶液	*(U+PU)NO3*	Card 3, Card 4
Pu(NO ₃) ₄ 水溶液	*(U+PU)NO3*	Card 3, Card 4
UO ₂ (NO ₃) ₂ - Pu(NO ₃) ₄ 水溶液	*(U+PU)NO3*	Card 3, Card 4
Pu - H ₂ O	*PU*	Card 5
PuO ₂ - H ₂ O	*PUO2*	Card 5
PuO ₂ - UO ₂ - H ₂ O	*MOX*	Card 7
H ₂ O	*H2O*	Card 8

Card 2 : U系燃料のパラメータ・カード。Card 1 の初めの文字が*U*, *UO2*, *UO3*, *U3O8*, *ADUのいずれかの場合に必要。

1. ENR ²³⁵U 濃縮度, wt %
2. CONC U 濃度 (単位は IOXIDE で指定する)
3. HBU H/U 原子個数比 (Uは全ウランである)
4. IOXIDE CONC の単位の判別子
IOXIDE=0 : gU/cm³
IOXIDE=100 : gUO₂/cm³
5. IT 溶液の温度, °C

[注意] 体系の中に空隙が存在しなければ, U濃度とH/U原子個数比の間には一定の関係が成立する(本文表4参照)。したがって, ユーザーは CONC 及び HBU のどちらか一方を指定すればよい。CONC < 0.0 かつ HBU ≥ 0.0 の場合には, 入力された HBU より CONC が計算される。また, CONC ≥ 0.0 かつ HBU < 0.0 の場合には, 入力さ

れた CONC より HBU が計算される。

空隙のある体系に対しては CONC 及び HBU ($\text{CONC}, \text{HBU} \geq 0.0$) の両方を指定しなければならない。但し、実際にありえない CONC 及び HBU の組合せ (H/U 原子個数比対 U 濃度曲線の外側の領域) は避けること。

IOXIDE=100 を指定できるのは *UO₂* の場合に限られる。これ以外の燃料では常に IOXIDE=0 とすること。

IT は 1°C から 100°C の間で 1°C ごとに指定できる。IT=0 とすると 20°C とみなされる。他のカードでも同様である。

Card 3 : 硝酸系燃料パラメータ・カード(1)。Card 1 の初めの文字が *(U+PU)NO₃* の場合に必要。

1. CU U 濃度, gU/l
2. CPU Pu 濃度, gPu/l
3. H HNO₃ の体積モル濃度 (酸性度), mol/l
4. T 溶液の温度, °C

[注意] CU 及び CPU の単位は Card 1 の CONC の単位と異なる。

Card 4 : 硝酸系燃料のパラメータ・カード(2)。Card 1 の初めの文字が *(U+PU)NO₃* の場合に必要。U 及び Pu の同位体組成。

1. ABD (1) ²³⁵U/U 重量比, wt %
2. ABD (2) ²³⁸U/U 重量比, wt %
3. ABD (3) ²³⁸Pu/Pu 重量比, wt %
4. ABD (4) ²³⁹Pu/Pu 重量比, wt %
5. ABD (5) ²⁴⁰Pu/Pu 重量比, wt %
6. ABD (6) ²⁴¹Pu/Pu 重量比, wt %
7. ABD (7) ²⁴²Pu/Pu 重量比, wt %

[注意] CPU=0.0 の場合には、ABD(1)及びABD(2)のみ入力すればよい。CU=0.0 の場合には、ABD(1)及びABD(2)は不要。

$$\text{ABD}(1) + \text{ABD}(2) = 100.0$$

$$\text{ABD}(3) + \text{ABD}(4) + \text{ABD}(5) + \text{ABD}(6) + \text{ABD}(7) = 100.0$$

でなければならない。

Card 5 : Pu 系燃料のパラメータ・カード。Card 1 の初めの文字が *PUO₂* または *PU* の場合に必要。

1. CONC Pu 濃度 (単位は IOXIDE で指定する)
2. HBPU H/Pu 原子個数比 (Pu は全プルトニウムである)
3. WP 238 ²³⁸Pu/Pu 重量比, wt %
4. WP 239 ²³⁹Pu/Pu 重量比, wt %

5. WP 240 $^{240}\text{Pu}/\text{Pu}$ 重量比, *wt* %
6. WP 241 $^{241}\text{Pu}/\text{Pu}$ 重量比, *wt* %
7. WP 242 $^{242}\text{Pu}/\text{Pu}$ 重量比, *wt* %
8. IOXIDE CONC の単位の判別子
 IOXIDE= 0 : gPu/cm^3
 IOXIDE= 100 : $\text{gPuO}_2/\text{cm}^3$
9. IT 溶液の温度, $^{\circ}\text{C}$

〔注意〕 CONC 及び HBPU の符号の取扱いは, Card 2 の CONC 及び HBU と同じである。IOXIDE= 100 を指定できるのは *PUO2* の場合に限られる。*PU* では常に IOXIDE=0 とすること。

Card 6 : UO_2F_2 水溶液のパラメータ・カード。Card 1 の初めの文字が *UO2F2* の場合に必要。

1. ENR ^{235}U 濃縮度, *wt* %
2. CONC U 濃度, gU/cm^3
3. HBU H/U 原子個数比

〔注意〕 溶液温度の指定はできない。常に 25°C である。

Card 7 : $\text{PuO}_2 - \text{UO}_2 - \text{H}_2\text{O}$ のパラメータ・カード。Card 1 の初めの文字が *MOX* の場合に必要。

1. CONC (U+Pu) 濃度
2. HBUPU H/(U+Pu) 原子個数比
3. ENRPU Pu 富化度, *wt* % (酸化物重量比; $W_{\text{PuO}_2}/(W_{\text{UO}_2} + W_{\text{PuO}_2})$)
4. ENR ^{235}U 濃縮度, *wt* %
5. WP 238 $^{238}\text{Pu}/\text{Pu}$ 重量比, *wt* %
6. WP 239 $^{239}\text{Pu}/\text{Pu}$ 重量比, *wt* %
7. WP 240 $^{240}\text{Pu}/\text{Pu}$ 重量比, *wt* %
8. WP 241 $^{241}\text{Pu}/\text{Pu}$ 重量比, *wt* %
9. WP 242 $^{242}\text{Pu}/\text{Pu}$ 重量比, *wt* %
10. IOXIDE CONC の単位の判別子
 IOXIDE= 0 : $\text{g}(\text{Pu}+\text{U})/\text{cm}^3$
 IOXIDE= 100 : $\text{g}(\text{PuO}_2 + \text{UO}_2)/\text{cm}^3$
11. IT 溶液の温度, $^{\circ}\text{C}$

〔注意〕 CONC 及び HBUPU の符号の取扱いは, Card 2 の CONC 及び HBU と同じである。

Card 8 : Card 1 の初めの文字が *H2O* の場合に必要。

1. IT 水の温度, $^{\circ}\text{C}$

Card 9 : 入力終了カード, FORMAT A(72)。先頭の5カラムに*END*と印字して入力の終了を宣言する。

付録D 原子個数密度計算プログラムANDのジョブ制御文,入力例, 出力例

FACOM - M 380 用のジョブ制御文を表D.1に示す。このジョブ制御文で割当てている各論理ユニットの機能を表D.2に示す。2つの入力例を表D.3.1及び表D.3.2に、対応する出力を表D.4.1及び表D.4.2にそれぞれ示す。

AND の出力形式は KENO - IV¹⁾ 及び ANISN²⁾ 用実効巨視的断面積作成コード MAIL³⁾ への入力形式に合致するようにコーディングしてある。したがって AND の出力では核種名を表D.5に示す核種識別番号で表示するとともに、原子個数密度の単位を atoms/barn-cmとしている。なお、36番の論理ユニットには表D.4.1や表D.4.2と同じ形式の出力が行なわれ、次の計算ステップ (MAIL, REMAIL³⁾) で読込まれる。

参 考 文 献

- 1) L.M. Petrie, N. F. Cross, " KENO IV— An Improved Monte Carlo Criticality Program ", ORNL - 4938, (1975)
- 2) Kinji Koyama, et al., " RADHEAT - V 3, A Code System for Generating Coupled Neutron and Gamma - ray Group Constants and Analyzing Radiation Transport ", JAERI - M 7175, (1977)
- 3) Y. Naito, et al, " MGCL PROCESSOR : A Computer Code System for Processing Multigroup Constants Library MGCL ", JAERI - M 9396, (1981)

表D.1 ANDのジョブ制御文

```

//JCLG JOB
// EXEC JCLG
//SYSIN DD DATA,DLM='++'
// JUSER 11993069,YU.KOMURO,0943
    C.1 I.1 OPN
    OPTP NOTIFY=J3069,PASSWORD=
// EXEC FORT77,SO=J3069.AND,Q='.FORT77',A='ELM(*)'
// EXEC LKED77
// EXEC GO
//FT05F001 DD DSN=J****.****.****(****),DISP=SHR
//FT16F001 DD DSN=&&TEMP,DISP=(NEW,PASS),SPACE=(TRK,(1,1)),
//          DCB=(LRECL=80,BLKSIZE=3200,RECFM=FB,DSORG=PS),UNIT=WK10
//FT36F001 DD DSN=J3069.A.DATA,DISP=(NEW,CATLG,DELETE),
//          DCB=(LRECL=80,BLKSIZE=3200,RECFM=FB,DSORG=PS),UNIT=TSSWK,
//          SPACE=(TRK,(1,1))
++
//

```

表D.2 ANDで用いる各論理ユニットの機能

ユニット番号	機 能
5	入力ファイル
6	出力ファイル (ラインプリンタへ出力)
16	作業ファイル
36	出力ファイル (MAIL 入力形式)

表D.3.1 AND の入力例(1)

U		235U:5(WT%)	/	U:0.5(GU/CM**3)		
	5.0	0.5		-1.0	0	0
U02		235U:5(WT%)	/	U:0.5(GU/CM**3)		
	5.0	0.5		-1.0	0	0
U03		235U:5(WT%)	/	U:0.5(GU/CM**3)		
	5.0	0.5		-1.0	0	0
U308		235U:5(WT%)	/	U:0.5(GU/CM**3)		
	5.0	0.5		-1.0	0	0
U02F2		235U:5(WT%)	/	U:0.5(GU/CM**3)		
	5.0	0.5		-1.0	0	0
ADU2		235U:5(WT%)	/	U:0.5(GU/CM**3)		
	5.0	0.5		-1.0	0	0
ADU3		235U:5(WT%)	/	U:0.5(GU/CM**3)		
	5.0	0.5		-1.0	0	0
ADU4		235U:5(WT%)	/	U:0.5(GU/CM**3)		
	5.0	0.5		-1.0	0	0
END						

表D.3.2 AND の入力例(2)

PU		239PU:90(WT%)	/	240PU:10(WT%)	/	PU:0.5(GPU/CM**3)
	0.5	-1.0				
	0.0	90.0		10.0	0.0	0.0
	0	0				
PU02		239PU:90(WT%)	/	240PU:10(WT%)	/	PU:0.5(GPU /CM**3)
	0.5	-1.0				
	0.0	90.0		10.0	0.0	0.0
	0	0				
MOX		235U:100(WT%)	/	239PU:100(WT%)	/	PU02 ENRICH.:20(WT%)
	0.5	-1.0		20.0	100.0	
	0.0	100.0		0.0	0.0	0.0
	0	0				
(U+PU)N03		235U:5(WT%)	/	U:500(GU/L)	/	PU:0(GU/L)
	500.0	0.0		0.0	20.0	
	5.0	95.0				
(U+PU)N03		239PU:90(WT%)	/	240PU:10(WT%)	/	PU:500(GPU/L)
	0.0	500.0		0.0	20.0	
	0.0	90.0		10.0	0.0	0.0
(U+PU)N03						
	500.0	50.0		0.0	20.0	
	5.0	95.0				
	0.0	90.0		10.0	0.0	0.0
H2O	20(DEG)					
	0					
H2O	50(DEG)					
	50					
END						

表D.4.1 ANDの出力例(1)

8	26	2				
U			235U:5(WT%) , U:0.5(GU/CM**3)			
4	0	3				
	4010010		4080160	4922350	4922380	
	6.49821E-02		3.24911E-02	6.40523E-05	1.20162E-03	
U02			235U:5(WT%) , U:0.5(GU/CM**3)			
4	0	3				
	4010010		4080160	4922350	4922380	
	6.32777E-02		3.41702E-02	6.40523E-05	1.20162E-03	
U03			235U:5(WT%) , U:0.5(GU/CM**3)			
4	0	3				
	4010010		4080160	4922350	4922380	
	6.12331E-02		3.44136E-02	6.40523E-05	1.20162E-03	
U308			235U:5(WT%) , U:0.5(GU/CM**3)			
4	0	3				
	4010010		4080160	4922350	4922380	
	5.27298E-02		2.97400E-02	6.40523E-05	1.20162E-03	
U02F2			235U:5(WT%) , U:0.5(GU/CM**3)			
5	0	3				
	4010010		4080160	4090000	4922350	4922380
	6.17285E-02		3.33956E-02	2.53135E-03	6.40523E-05	1.20162E-03
ADU2			235U:5(WT%) , U:0.5(GU/CM**3)			
5	0	3				
	4010010		4070140	4080160	4922350	4922380
	6.28766E-02		4.21891E-04	3.46025E-02	6.40523E-05	1.20162E-03
ADU3			235U:5(WT%) , U:0.5(GU/CM**3)			
5	0	3				
	4010010		4070140	4080160	4922350	4922380
	6.36619E-02		6.32837E-04	3.46787E-02	6.40523E-05	1.20162E-03
ADU4			235U:5(WT%) , U:0.5(GU/CM**3)			
5	0	3				
	4010010		4070140	4080160	4922350	4922380
	6.39735E-02		8.43783E-04	3.45181E-02	6.40523E-05	1.20162E-03

表D.4.2 AND の出力例(2)

```

      8      26      2
*PU*      239PU:90(WT%) , 240PU:10(WT%) , PU:0.5(GPU/CM**3)
      4      0      3
      4010010      4080160      4942390      4942400
6.50498E-02 3.25249E-02 1.13361E-03 1.25431E-04
*PU02*      239PU:90(WT%) , 240PU:10(WT%) , PU:0.5(GPU02/CM**3)
      4      0      3
      4010010      4080160      4942390      4942400
6.34335E-02 3.42348E-02 1.13361E-03 1.25431E-04
*MOX*      235U:100(WT%) , 239PU:100(WT%) , PU02 ENRICH.:20(WT%)
      4      0      3
      4010010      4080160      4922350      4942390
6.30867E-02 3.40979E-02 1.02484E-03 2.52420E-04
*(U+PU)N03* 235U:5(WT%) , U:500(GU/L) , PU:0(GU/L)
      5      0      3
      4010010      4070140      4080160      4922350      4922380
5.61715E-02 2.53133E-03 3.82110E-02 6.40523E-05 1.20162E-03
*(U+PU)N03* 239PU:90(WT%) , 240PU:10(WT%) , PU:500(GPU/L)
      5      0      3
      4010010      4070140      4080160      4942390      4942400
5.37952E-02 5.03616E-03 4.20061E-02 1.13361E-03 1.25431E-04
*(U+PU)N03*
      7      0      3
      4010010      4070140      4080160      4922350      4922380      4942390
      4942400
5.47723E-02 3.03494E-03 3.90223E-02 6.40523E-05 1.20162E-03 1.13361E-04
1.25431E-05
*H20*      20(DEG)
      2      0      3
      4010010      4080160
6.67337E-02 3.33669E-02
*H20*      50(DEG)
      2      0      3
      4010010      4080160
6.60545E-02 3.30273E-02

```

表D.5 核種識別番号

/1150310	P-31/	<2721740	HF-174>	<2721760	HF-176>	<2721770	HF-177>
<2721780	HF-178>	<2721790	HF-179>	<2721800	HF-180>	4003020	ZR-NAT
4010010	H-1	4010020	D-2	4020030	HE-3	4020040	HE-4
4040090	BE-9	4050100	B-10	4050110	B-11	4060120	C-12
4070140	N-14	4080160	O-16	4090000	F-NAT	4110230	NA-23
4120000	MG-NAT	4130270	AL-27	4140000	SI-NAT	/4160000/	S-NAT
4170000	CL-NAT	4190000	K-NAT	4200000	CA-NAT	4220000	TI-NAT
4240000	CR-NAT	4250550	MN-55	4260000	FE-NAT	4270590	CO-59
4280000	NI-NAT	4290000	CU-NAT	4360800	KR-80	4370870	RB-87
4380880	SR-88	4380900	SR-90	4390890	Y-89	4400900	ZR-90
4420000	MO-NAT	4430990	TC-99	4441020	RU-102	4451030	RH-103
4451050	RH-105	4461040	PD-104	4461050	PD-105	4461060	PD-106
4461070	PD-107	4461080	PD-108	4471070	AG-107	4471090	AG-109
4480000	CD-NAT	4481130	CD-113	4491130	IN-113	4491150	IN-155
4521300	TE-130	4531350	I-135	4541310	XE-131	4541350	XE-135
4551330	CS-133	4551340	CS-134	4561380	BA-138	4571390	LA-139
4581440	CE-144	4591410	PR-141	4601430	ND-143	4601440	ND-144
4601450	ND-145	4601460	ND-146	4611470	PM-147	4611480	PM-148
4611481	PM-148M	4611490	PM-149	4621480	SM-148	4621490	SM-149
4621500	SM-150	4621510	SM-151	4621520	SM-152	4621530	SM-153
4631530	EU-153	4631540	EU-154	4631550	EU-155	4640000	GD-NAT
4641550	GD-155	4641560	GD-156	4641570	GD-157	4641580	GD-158
4661610	DY-161	4661620	DY-162	4661630	DY-163	4661640	DY-164
4791970	AU-197	4820000	PB-NAT	4902320	TH-232	4912330	PA-233
4922330	U-233	4922340	U-234	4922350	U-235	4922360	U-236
4922380	U-238	4932370	NP-237	4942380	PU-238	4942390	PU-239
4942400	PU-240	4942410	PU-241	4942420	PU-242	4952410	AM-241
4952430	AM-243	4962440	CM-244	(5922350	U-235)		

/ : FROM ENDL , P-31:ENDL84 , S-NAT:ENDL76

< : FROM JENDL-2

() : FROM ENDF/B-5