

JAERI-M
93-212

反射体のない $^{235}\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ 系の臨界量
— MCNP-4コードとJENDL-3
ライブラリーを用いた計算

1993年10月

松浦 重和*・奥野 浩

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

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

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1993

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日立高速印刷株式会社

反射体のない²³⁵U - H₂O系の臨界量
— MCNP - 4コードとJENDL - 3ライブラリーを用いた計算

日本原子力研究所東海研究所燃料サイクル安全工学部

松浦 重和*・奥野 浩

(1993年10月1日受理)

GODIVAでの濃縮度93.7wt%の裸球体系金属ウランのベンチマーク実験を、連続エネルギーモンテカルロ計算コードMCNP-4とJENDL-3ライブラリーを用いて解析し、実効増倍率 1.003 ± 0.001 という結果を得た。この最新の方法を反射体のない²³⁵U100%金属の基本形状に適用し、同じ実効増倍率を与える寸法を求めた。球体系での臨界質量が 47.3 ± 0.4 kgU (半径 8.44 ± 0.02 cm)、無限円柱体系での臨界直径が 11.92 ± 0.04 cm、無限平板体系での臨界厚さが 6.40 ± 0.02 cmという結果を得た。欧米のハンドブック記載データとの相違は、濃縮度と反射条件の微妙な違いに起因すると推定された。また、ロッキーフラッツで実施された円筒容器入り高濃縮硝酸ウラニル水溶液の実験についても解析し、²³⁵U - H₂O系の臨界質量を計算してハンドブックのデータと比較した。最小臨界質量 1.48 ± 0.02 kgUの値を得た。

Critical Mass and Dimensions of Bare $^{235}\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ System
—Calculations with MCNP-4 Code and JENDL-3 Library

Shigekazu MATSUURA* and Hiroshi OKUNO

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

(Received October 1, 1993)

The benchmark experiment of bare 93.7 wt% enriched uranium metal sphere at GODIVA was analysed with a combination of continuous energy Monte Carlo code MCNP-4 and JENDL-3 library. The calculated effective multiplication factor k_{eff} was 1.003 ± 0.001 . The most progressed combination of code and library was applied to ^{235}U metal in basic geometries without reflector to find the sizes that give the same value of k_{eff} . The critical mass of bare ^{235}U metal sphere was found to be 47.3 ± 0.4 kgU (radius 8.44 ± 0.02 cm), the critical cylinder diameter 11.92 ± 0.04 cm and the critical slab thickness 6.40 ± 0.02 cm. Disagreements from the corresponding data in the European and American handbooks were estimated to be originated in slightly different enrichments and reflector conditions. A series of experiments on high enriched uranium nitrate solution in cylindrical tanks conducted at the Rocky Flats Plant were also analysed, and the critical mass of water mixture of ^{235}U was calculated and compared with the corresponding data found in the handbooks. The minimum critical mass was found to be 1.48 ± 0.02 kgU.

Keywords : Metal, Mixture, Uranium-235, Bare, Mass, Volume, Cylinder,
Slab, Continuous Energy, Monte Carlo, MCNP-4, JENDL-3,
Nuclear Criticality

* Kyoto University

目 次

1. はじめに	1
2. 予備的検討	2
3. 金属 ²³⁵ Uの臨界計算	4
3.1 GODIVAのベンチマーク実験の解析	4
3.2 金属 ²³⁵ Uの臨界寸法の計算	4
4. ²³⁵ U-H ₂ O系の臨界計算	6
4.1 ロッキーフラッツでのベンチマーク実験の解析	6
4.2 臨界量の計算	8
5. 考察	10
6. 結論と今後の課題	12
謝辞	12
参考文献	13
付録A JACSコードを用いた金属 ²³⁵ Uの臨界計算	31
付録B SIMCRIを用いたベンチマーク体系のスペクトル計算	33

Contents

1. Introduction	1
2. Preliminary Studies	2
3. Criticality Calculations of ²³⁵ U Metal	4
3.1 Analysis of Benchmark Experiment at GODIVA	4
3.2 Calculations of Critical Dimensions of ²³⁵ U Metal	4
4. Criticality Calculations of ²³⁵ U-H ₂ O Systems	6
4.1 Analysis of Benchmark Experiments at Rocky Flats	6
4.2 Calculations of Critical Mass in Spherical Shape	8
5. Discussions	10
6. Conclusion and Future Problems	12
Acknowledgements	12
References	13
Appendix A Criticality Calculations of ²³⁵ U Metal with JACS Code System	31
Appendix B Spectrum Calculations of Benchmark Systems with SIMCRI Code	33

1. はじめに

中性子によるウランの核分裂は1938年にハーンらにより発見された。その後の原子力の歴史の中で中心となっているのは、 ^{235}U の連鎖反応である。 ^{235}U がどれだけ集まると連鎖反応が開始するか、すなわち ^{235}U の臨界量は、原子力分野における最も基本的な量の一つである。

各種の燃料の臨界量は諸外国及び日本の臨界ハンドブックにまとめられている。しかし、後述するように、欧米のハンドブックは実用的な情報が中心となっているため、ウラン濃縮度は約93%までで、 ^{235}U 濃縮度100%金属のデータは記載されていない。また、日本の臨界安全ハンドブック⁽¹⁾には、ウラン燃料に関して濃縮度5%以下の低濃縮燃料に限定されている。

^{235}U の臨界量は、臨界安全評価上でも意味のある量である。即ち、たとえば多種類の核分裂性核種が混在している体系で、 ^{235}U 以外の核分裂性核種を ^{235}U に対する核種反応度値に置き換えて評価するときが必要になってくる。

臨界量を求めるには実験データを直接用いる方法と、計算に基づく方法とがある。実験データを直接用いる方が信頼度が高いが、理想的な体系は得にくい。これに対して計算の方は、自在に対象を操ることが可能である。また、近年の核データ評価・計算手法・計算機の進歩により、臨界計算においても数値実験が可能なレベルに精度・信頼度が向上してきた。本報告書では、 ^{235}U 金属あるいはその水との混合系という計算対象系に近い臨界実験体系を選び、これを最新の計算手法で解析して計算誤差の程度を把握し、次にこの計算誤差分を補正することにより臨界量を求めた。なお、安全評価上では反射体付きの臨界量の方がよく用いられるが、より基本的なデータとして本報告書ではまず反射体のない体系に限定した。

以下、第2章では欧米ハンドブック記載データの現状を調査するとともに、簡易式に基づき手計算で ^{235}U 金属の臨界量を予備的に求めてみた。第3章では、金属 ^{235}U の臨界計算について、第4章では ^{235}U -水系の臨界計算について記す。第5章には結果の考察を、最後の第6章にはまとめを記す。また、本計算にはMCNPコードを用いたが、 ^{235}U 金属系についてはJACSコードシステムを用いた計算も行った。ので、その結果を付録Aに示す。さらに、ベンチマーク実験体系のエネルギースペクトルを求めたので、その結果を付録Bに示しておく。

2. 予備的検討

本報告書の $^{235}\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ 系について諸外国のハンドブックでは、LA-10860-MS⁽²⁾、TID-7028⁽³⁾ (米)、AHSB(S)⁽⁴⁾ (英)、CEA-R3114⁽⁵⁾ (仏)などにその記載がある。これらを図2.1から図2.12に示す。

LA-10860-MSに記載されているには濃縮度93wt%のデータである。球体系は横軸が体積割合であるが、18.8をかければウラン濃度になる。無限円柱体系(図2.2)及び無限平板体系(図2.3)については金属のデータはなかった。TID-7028記載データ(図2.4-図2.6)は濃縮度93.2wt%で、1/16インチ(約1.6mm)のステンレス反射体が付いている。これら2つのハンドブックのグラフ点は実験値で、体系の形状にあわせてバックリング変換をしている。AHSB(S)は濃縮度93wt%で拡散理論により計算されており、無限円柱体系(図2.8)と無限平板体系(図2.9)はバックリング変換して求めている。記述されてはいなかったが薄い反射体がついている可能性がある。CEA-R3114は濃縮度93.5wt%のデータである。詳細は分らないが、系統的なデータが与えられているため、計算によるものと考えられる。

次に、修正一群理論を用いた手計算で予め金属 ^{235}U の臨界寸法を求めてみる。即ち、

$$k_{eff} = \frac{k_{inf}}{1+M^2 \cdot B^2} \quad (2-1)$$

と表された表式を用いる。ここで、

- k_{eff} : 実効増倍率
- k_{inf} : 無限増倍率
- M^2 : 中性子移動面積
- B^2 : バックリング

である。球、無限円柱、無限平板でのバックリングの表式は以下の式で与えられる。

$$\text{球:} \quad B^2 = \left(\frac{\pi}{R+d} \right)^2 \quad (2-2-1)$$

$$\text{無限円柱: } B^2 = \left(\frac{2.405}{R + d} \right)^2 \quad (2-2-2)$$

$$\text{無限平板: } B^2 = \left(\frac{\pi}{T + 2d} \right)^2 \quad (2-2-3)$$

R : 半径 (球及び無限円柱)

T : 厚さ (無限平板)

d : 外挿距離

反射体の無い体系ではアルベドは0なので、外挿距離dは拡散係数Dを用いて、

$$d = 2D \quad (2-3)$$

と表される⁽¹⁾。

無限増倍率 2.309、中性子移動面積 16.58 cm²、拡散係数 1.186 cm (参考文献(6)の均質²³⁵U-H₂O無限体系でH/U=0.01の値)を用いて計算すると、

球	(半径)	8.81 cm
〃	(体積)	2.86 ℓ
〃	(質量)	53.9 kg
無限円柱	(直径)	12.4 cm
無限平板	(厚さ)	6.44 cm

となる。

3. 金属²³⁵Uの臨界計算

3.1 GODIVAでのベンチマーク実験の解析

ベンチマーク計算にはGODIVAでの高濃縮ウラン金属球の実験データ⁽⁷⁾を用いた。その値を表3.1.1に示す。この実験体系は径と厚さの異なる高濃縮金属ウランの半球核を組み合わせて球を模擬しているが、本計算では体系中の支持板等の構造材は無視して、一様な組成とした。計算には、連続エネルギーモンテカルロ計算コードMCNP-4⁽⁸⁾と核データライブラリーJENDL-3⁽⁹⁾を用いた。計算条件は以下に示すとおりである。

一世代あたりの中性子数	5000
計算世代数	210
無視する初期世代数	10

これにより求めた実効増倍率の値は 1.0032 ± 0.0007 となり、ほぼ1に近い値を得た。

3.2 金属²³⁵Uの臨界寸法の計算

金属²³⁵Uの臨界寸法を、球、無限円柱、無限平板についてそれぞれ求めた。方法は以下に示す通りである。

- (1) 予想される臨界寸法付近の値3点について、実効増倍率を計算する。
- (2) 燃料寸法の小さな変化に対しては実効増倍率は直線的に変化するとみなしてもよいので、(1)より得た値から最小2乗法により得られた直線と3.1で得られた実効増倍率から、臨界寸法を求める。

この方法を用いると、これまで「臨界安全ハンドブック」で採用されてきたサーチ計算を行う方法よりも誤差が小さくなる利点がある。

計算手法及び条件は3.1と同様とした。密度は 18.8 g/cm^3 、原子個数密度 $4.8167 \times 10^{-2} \text{ atom/b/cm}$ の値を用いた。

実効増倍率と直線の式は表3.2.1に示し、球体系での例を図3.1に示す。これにより求めた臨界寸法を以下に示す。

球	(半径)	$8.44 \pm 0.02 \text{ cm}$
〃	(体積)	$2.52 \pm 0.02 \text{ l}$
〃	(質量)	$47.3 \pm 0.4 \text{ kg}$
無限円柱	(直径)	$11.92 \pm 0.04 \text{ cm}$
無限平板	(厚さ)	$6.40 \pm 0.02 \text{ cm}$

なお、臨界安全評価コードシステムJACS⁽¹⁰⁾も用いて計算し、ほぼ同様の結果を得た。その計算の概要を付録Aに示す。

4. $^{235}\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ 系の臨界計算

$^{235}\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ 系でウランと水の割合を変化させたときの臨界寸法は、高濃縮ウラン燃料では金属のとき（水がない状態）に最小になることが知られている。しかし、臨界質量は水がある状態で最小となり、重要性が高い。このため、ここではH/Uをパラメータとして球体系の臨界量の曲線を求める。

4.1 ロッキーフラッツでのベンチマーク実験の解析

ベンチマーク計算には、ロッキーフラッツで実施されたアルミニウム製（内径28 cm）またはステンレス製（内径28、33、51cmの3種類）の円筒容器入り硝酸ウラニル水溶液の最小反射体つき臨界実験データ⁽¹¹⁾を用いた。これらの実験データは10件あり、ウラン濃縮度が93.2wt%、H/Uが64から473までの範囲内にある。アルミ容器では、腐食防止のため薄い樹脂のコーティングが施されているが、計算では無視した。実験体系の詳細を表4.1.1から表4.1.4に示す。計算には、連続エネルギーモンテカルロ計算コードMCNP-4⁽⁸⁾と核データライブラリーJENDL-3⁽⁹⁾を用いた。水素との4eV以下の散乱の取扱いについては、MCNP-4に内蔵されている軽水のS(α, β)を導入した。1世代あたりの中性子数は2000、世代数は210とした。スキップ世代数（計算で無視する初期世代数）は10とした。原子個数密度は以下の方法で求めた⁽¹²⁾。

ウランの個数密度 N_u は、

$$N_u = \frac{C_u \cdot N_A}{A_u} \quad (4-1)$$

C_u : ウラン濃度 (gU/cm³)

N_A : アボガドロ数 (6.022×10²³/mol)

A_u : ウランの原子量

と表される。

溶液の密度 ρ_{solution} (g/cm³)と各成分の濃度の関係の理論式は、以下の式で表される。

$$\rho_{\text{solution}} = C_{\text{U}} + \frac{\bar{C}_{\text{HNO}_3} \cdot A_{\text{H}}}{1000} + \left(2 \cdot \frac{C_{\text{U}}}{A_{\text{U}}} + \bar{C}_{\text{HNO}_3} \right) \cdot A_{\text{NO}_3} + \frac{2 \cdot C_{\text{U}} \cdot A_{\text{O}}}{A_{\text{U}}} + \frac{\bar{C}_{\text{H}_2\text{O}} \cdot A_{\text{H}_2\text{O}}}{1000} \quad (4-2)$$

ここで、

\bar{C}_{HNO_3} : 硝酸の体積モル濃度 (mol/l)

$\bar{C}_{\text{H}_2\text{O}}$: 水の体積モル濃度 (mol/l)

A_{H} : 水素の原子量

A_{NO_3} : 硝酸根の原子量

A_{O} : 酸素の原子量

$A_{\text{H}_2\text{O}}$: 水の分子量

である。

溶液の密度を求める実験式は、

(Moeken の式)

$$\rho_{\text{solution}} = 1.0171 + 0.3081 \cdot \bar{C}_{\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2} + 0.0289 \cdot \bar{C}_{\text{HNO}_3} \quad (4-3-1)$$

(Burger の式)

$$\rho_{\text{solution}} = 1.0125 \cdot \rho_{\text{solution}} + 0.000145 \cdot t - 0.0005 \cdot \rho_{\text{solution}} \cdot t - 0.0036 \quad (4-3-2)$$

溶液密度がわかれば、(4-2)式から $\bar{C}_{\text{H}_2\text{O}}$ が求まる。したがって、ウラン以外の原子個数密度 (atom/cm³)は、

$$N_{\text{H}} = \frac{(\bar{C}_{\text{HNO}_3} + 2 \cdot \bar{C}_{\text{H}_2\text{O}}) \cdot N_{\text{A}}}{1000} \quad (4-4)$$

$$N_{\text{N}} = \left(2 \cdot \frac{C_{\text{U}}}{A_{\text{U}}} + \frac{\bar{C}_{\text{HNO}_3}}{1000} \right) \cdot N_{\text{A}} \quad (4-5)$$

$$N_{\text{O}} = \left(8 \cdot \frac{C_{\text{U}}}{A_{\text{U}}} + 3 \cdot \frac{\bar{C}_{\text{HNO}_3}}{1000} + \frac{\bar{C}_{\text{H}_2\text{O}}}{1000} \right) \cdot N_{\text{A}} \quad (4-6)$$

のように求まる。これにより求めた原子個数密度を表4.1.5に示す。

ベンチマーク計算結果を表4.1.6に示す。全10ケースの実効増倍率の平均は1.0025、標準偏差は0.0044となった。表4.1.1を参考にすると、ウラン濃度が低い方が実効増倍率はやや高くなることがわかる。

4.2 臨界量の計算

4.1により得られた実効増倍率を図4.1のように直線でフィッティングした。この直線を使い、3.2と同様の方法を用いて $^{235}\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ 系での臨界量の計算を行った。計算条件は、1世代あたりの中性子数2000、世代数210、スキップ世代数10とした。原子個数密度は以下のように求めた⁽¹²⁾。

体系のウランと水の濃度の理論密度に対する比の和は1である。

$$\frac{C_{\text{U}}}{\rho_{\text{U}}} + \frac{C_{\text{H}_2\text{O}}}{\rho_{\text{H}_2\text{O}}} = 1 \quad (4-7)$$

C_{U} : ウラン濃度 (g/cm^3)

$C_{\text{H}_2\text{O}}$: 水の濃度 (g/cm^3)

ρ_{U} : ウランの理論密度 (g/cm^3)

$\rho_{\text{H}_2\text{O}}$: 水の理論密度 (g/cm^3)

一方、水素とウランの原子個数密度比 H/U は、

$$\frac{\text{H}}{\text{U}} = \frac{2 \cdot N_{\text{A}} \cdot C_{\text{H}_2\text{O}} / A_{\text{H}_2\text{O}}}{N_{\text{A}} \cdot C_{\text{U}} / A_{\text{U}}} \quad (4-8)$$

N_{A} : アボガドロ数

A_{U} : ウランの原子量

$A_{\text{H}_2\text{O}}$: 水の分子量

(4-7)式を(4-8)式に代入すれば、

$$\frac{\text{H}}{\text{U}} = \frac{2 \cdot A_{\text{U}} \cdot \rho_{\text{H}_2\text{O}}}{A_{\text{H}_2\text{O}}} \left(\frac{1}{C_{\text{U}}} - \frac{1}{\rho_{\text{U}}} \right) \quad (4-9)$$

C_u : ウラン濃度 (g/cm^3)

ρ : 密度 (g/cm^3)

A : 原子量 (または分子量)

となる。(4-9)式によりH/Uを与えればウラン濃度が求まる。

ウラン濃度から原子個数密度 (atom/cm^3)は、

$$N_u = \frac{N_A \cdot C_u}{A_u} \quad (4-10)$$

$$N_H = N_u \frac{U}{H} \quad (4-11)$$

$$N_0 = 2 \cdot N_H \quad (4-12)$$

N_A : アボガドロ数

となる。

各H/U値に対して臨界近傍の燃料半径の値を3点決め、対応する実効増倍率の値をベンチマーク計算と同様の手法により計算した。計算結果を表4.2に示す。この表には計算結果を1次式で近似することにより得られた、推定臨界実効増倍率に対応する燃料半径の値も記している。これを変換し得られた臨界質量を図4.2、臨界体積を図4.3に示す。

5. 考 察

まず、 ^{235}U 金属の計算結果について考察する。図5.1は参考文献(2)の球体系の金属ウランの濃縮度と臨界質量の関係である。この図の実験データをつなぐ曲線を濃縮度100%に外挿して得られる値は47.1kg、臨界半径に直すと約8.42cmである。本計算では、 $8.44 \pm 0.02\text{cm}$ となりほぼ一致した。参考文献(4)と(5)は共に濃縮度93wt%で52kg、半径に直すと約8.48cmとなり、濃縮度100%では本計算とほぼ一致するものと思われる。

無限円柱の臨界直径は、参考文献(3)では濃縮度93wt%のステンレス最小反射体つきで11.6cm、参考文献(4)では同じく12.2cm、参考文献(5)では同じく12.0cmである。本計算では $11.92 \pm 0.04\text{cm}$ であるが、最小反射体と濃縮度の効果が相殺したと考えると矛盾のない結果といえる。

無限平板の臨界寸法は、参考文献(3)、(4)、(5)では濃縮度93wt%のステンレス最小反射体つきで5.6cmである。本計算では $6.40 \pm 0.02\text{cm}$ であり、最小反射体と濃縮度の効果が相殺すると考えると一致しているとはいえない。そこで、 ^{235}U 金属平板にステンレス最小反射体をつけて粗い計算を実行してみたところ、臨界寸法は5.6cm程度と求められた。したがって、無限円柱では問題にならなかったステンレスの厚みが無限平板では影響するといえる。

なお、第3章に記した詳細計算の結果を第2章に記した手計算と比較すると、手計算では球及び無限円柱の寸法が約4%過大評価しているのに対して、無限平板では相対誤差が1%以内に収まっている。これは参考文献(6)のデータを求めるときに用いた B_1 近似の式が、空間分布として正弦分布を仮定していたためであると考えられる。

次に、 $^{235}\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ 系について考察する。硝酸ウラニル水溶液体系でのベンチマーク計算は、金属体系での実効増倍率から最大で $\pm 0.7\%$ 程度の範囲内にある。しかし、系統的な変化は見いだすことはできないので、平坦($k_{\text{eff}}=1.0032$ に近い直線で近似して $^{235}\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ 系の計算を行った。その結果、図4.2に示す曲線が得られた。このときの最小臨界質量は $1.48 \pm 0.02\text{kgU}$ である。本計算結果と文献(2)、(3)、(4)、(5)に掲載されている $^{235}\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ 系のデータを一つにしたグラフを図5.2に示す。

文献(2)、(3)と(5)では約1.4kgU、文献(4)では約1.6kgUとなっている。

臨界質量の最大値は 56.2 ± 0.8 kgUである。文献(2)では約56kgU、文献(3)では約51kgU、文献(4)では約60kgUとなっているが、文献(5)では金属状態のとき最大となっている。濃縮度の違いなどを考慮すると文献(4) (英) が一番本計算結果に近いといえ、文献(2)と(3) (米) は値にやや違いがあるものの同様の傾向を示している。しかし、文献(5) (仏) は特に減速材が少ない状態でのデータが明らかに異なっている。

6. 結論と今後の課題

以上のように、 ^{235}U の臨界質量として 47.3 ± 0.4 kgU、無限円柱体系での臨界直径 11.92 ± 0.04 cm、無限平板体系での臨界厚さ 6.40 ± 0.02 cm という結果を得た。また、反射体の無い $^{235}\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ 系での臨界質量を図4.2のように求めることができた。

今後の課題として挙げられるのは以下の点である。

- (1) $^{235}\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ 系のベンチマーク計算には硝酸ウラニル水溶液での実験データを用いたが結果にややばらつきがみられた。この原因を探ると共に、別の（例えば UO_2F_2 水溶液）の実験データを用いて同様の計算をするとよいと考えられる。
- (2) 本報告書は濃縮度100%での計算であるが、計算のベンチマークに用いた実験データや比較のデータが全て濃縮度93wt%程度であった。この濃縮度の違いがどの程度の違いを生むのかを確かめておく必要がある。

謝 辞

本研究は、松浦が平成5年度の夏期休暇実習生として日本原子力研究所に滞在中に行った計算に基づくものです。全般にわたり適切な助言を賜った燃料サイクル安全工学部燃料サイクル安全評価研究室の野村靖室長に深く感謝いたします。また、MCNPについて御指導下さった高野誠氏、JACSコードについて御指導下さった小室雄一氏を始め、お世話になった同研究室の皆様感謝いたします。さらに、原稿を閲読して有益な御指摘をいただいた京都大学原子炉実験所の神田啓治先生に感謝いたします。

6. 結論と今後の課題

以上のように、 ^{235}U の臨界質量として 47.3 ± 0.4 kgU、無限円柱体系での臨界直径 11.92 ± 0.04 cm、無限平板体系での臨界厚さ 6.40 ± 0.02 cm という結果を得た。また、反射体の無い $^{235}\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ 系での臨界質量を図4.2のように求めることができた。

今後の課題として挙げられるのは以下の点である。

- (1) $^{235}\text{U}-\text{H}_2\text{O}$ 系のベンチマーク計算には硝酸ウラニル水溶液での実験データを用いたが結果にややばらつきがみられた。この原因を探ると共に、別の（例えば UO_2F_2 水溶液）の実験データを用いて同様の計算をするとよいと考えられる。
- (2) 本報告書は濃縮度100%での計算であるが、計算のベンチマークに用いた実験データや比較のデータが全て濃縮度93wt%程度であった。この濃縮度の違いがどの程度の違いを生むのかを確かめておく必要がある。

謝 辞

本研究は、松浦が平成5年度の夏期休暇実習生として日本原子力研究所に滞在中に行った計算に基づくものです。全般にわたり適切な助言を賜った燃料サイクル安全工学部燃料サイクル安全評価研究室の野村靖室長に深く感謝いたします。また、MCNPについて御指導下さった高野誠氏、JACSコードについて御指導下さった小室雄一氏を始め、お世話になった同研究室の皆様感謝いたします。さらに、原稿を閲読して有益な御指摘をいただいた京都大学原子炉実験所の神田啓治先生に感謝いたします。

参考文献

- (1) 科学技術庁原子力局核燃料規制課編、「臨界安全ハンドブック」、にっかん書房(1988).
- (2) H. C. Paxton and N. L. Pruvost, "Critical Dimensions of Systems Containing ^{235}U , ^{239}Pu , and ^{233}U , 1986 Revision," LA-10860-MS(1987).
- (3) H. C. Paxton, J. T. Thomas, Dixon Callihan and E. B. Johnson, "Critical Dimensions of Systems Containing ^{235}U , ^{239}Pu , and ^{233}U ," TID-7028 (1964).
- (4) J. H. Chalmers, G. Walker and J. Pugh, Criticality Inspectorate Authority Health and Safety Branch, "Handbook of Criticality Data", AHSB(S) (1965).
- (5) "Guide de Criticité," CEA-R3114(1967).
- (6) 奥野浩、梅田健太郎、小室雄一、内藤倅孝、「種々の核燃料における無限体系の核特性パラメタ及び臨界データ、MGCL-J3とSIMCRIの組み合わせによる計算」、JAERI-M 93-135(1993).
- (7) H. C. Paxton, "Los Alamos Critical-Mass Data," LA-3067-MS, Rev. (1975).
- (8) "RSIC COMPUTER CODE SELECTION, MCNP 4, Monte Carlo Neutron and Photon Transport Code Systems," CCC-200A/B(1991).
- (9) K. Shibata et al., "JENDL-3 : Japanese Evaluated Nuclear Cross Section Library, Version-3," JAERI-1319(1990).
- (10) J. Katakura, Y. Naito and Y. Komuro, "Development of the Computer Code System JACS for Criticality Safety", Trans. Am. Nucl. Soc., 41, 329 (1982).
- (11) R. E. Rothe and I. Oh, "Benchmark Critical Experiments on High-Enriched Uranyl Nitrate Solution Systems," Nucl. Technol., 41, 207(1978).
- (12) 小室雄一、酒井友宏、中丸昇一、「各種核燃料物質の原子個数密度計算方法」(1987).

表3.1.1 裸の金属ウラン球実験データ

	濃縮度 (wt%)	個数密度 (1/b/cm)
^{234}U	1.02	4.918×10^{-4}
^{235}U	93.71	4.499×10^{-2}
^{238}U	5.27	2.498×10^{-3}
密度	18.74	(gU/cm ³)
臨界質量	49.12 ± 0.15	(kg ²³⁵ U)

表3.2.1 実効増倍率と直線の式

	寸法 x (cm)	実効増倍率 y	直線の式
球	半径 8.32	0.9913 ± 0.0007	y=0.1011x+0.1496
	8.42	1.0010 ± 0.0007	
	8.52	1.0115 ± 0.0008	
無限円柱	半径 5.87	0.9922 ± 0.0007	y=0.1250x+0.2585
	5.97	1.0048 ± 0.0008	
	6.07	1.0172 ± 0.0007	
無限平板	厚さ 6.25	0.9867 ± 0.0007	y=0.1040x+0.3371
	6.45	1.0087 ± 0.0008	
	6.65	1.0282 ± 0.0008	

表 4.1.1 硝酸ウラニウム水溶液*の実験データ

番号	U濃度 (gU/l)	硝酸濃度 (mol/l)	臨界の高さ (cm)	H/U**	旧H/U***	タンク番号
1	145.68±1.04	0.294±0.002	31.20±0.04	171.9	169.5	1
2	346.73±0.95	0.542±0.005	28.93±0.09	66.43	65.8	1
3	142.92±0.52	0.283±0.003	33.55±0.03	175.5	173.1	2
4	357.71±1.99	0.549±0.015	30.91±0.04	64.10	63.5	2
5	54.89±0.25	0.105±0.001	39.48±0.13	473.7	465.6	3
6	59.65±0.42	0.114±0.004	36.67±0.17	435.1	427.7	3
7	137.40±0.63	0.287±0.002	23.96±0.13	182.9	180.2	3
8	145.68±1.04	0.294±0.002	23.67±0.03	171.9	169.5	3
9	357.71±1.99	0.549±0.015	22.53±0.05	64.10	63.5	3
10	63.95±0.34	0.111±0.003	20.48±0.05	405.3	398.5	4

* 23°C

** 本報告書で計算した値

*** 文献値

表 4.1.2 Uの同位体比 (wt%)

^{234}U	1.022
^{235}U	93.172
^{236}U	0.434
^{238}U	5.372

表4.1.3 タンクの形状

番号	材質		内径 (cm)	高さ (cm)	重量 (kg)	コーティング (mm)
	側面	底面				
1	SUS304	SUS316	27.92	41.6	12.326	なし
2	Al	Al	28.01	41.9	4.473	0.17
3	Al	Al	33.01	49.5	6.049	0.18
4	Al	Al	50.69	30.9	7.834	0.30

表4.1.4 タンクの材質 (wt%)

物質	Al (6061-T6)	SUS304	SUS316
C	—	0.066	0.042
Mg	1.00	—	—
Al	97.35	—	—
Si	0.60	0.81	0.45
P	—	0.025	0.031
S	—	0.019	0.014
Ti	0.03	—	—
Cr	0.17	18.5	16.6
Mn	0.07	1.29	1.25
Fe	0.47	70.02	70.313
Ni	—	9.27	11.3
Cu	0.25	—	—
Zn	0.06	—	—
Mo	—	0.018	2.1
密度 (g/cm ³)	2.732	7.927	7.92

表4.1.5 原子個数密度 (atom/b/cm)

	1	2	3	4	5
^{234}U	3.8498E-06	9.1629E-06	3.7769E-06	9.4531E-06	1.4506E-06
^{235}U	3.4799E-04	8.2823E-04	3.4139E-04	8.5446E-04	1.3112E-04
^{236}U	1.6072E-06	3.8253E-06	1.5768E-06	3.9464E-06	6.0557E-07
^{238}U	1.9560E-05	4.6555E-05	1.9189E-05	4.8029E-05	7.3699E-06
H	6.4126E-02	5.8979E-02	6.4210E-02	5.8709E-02	6.6580E-02
N	9.2305E-04	2.1019E-03	9.0229E-04	2.1624E-03	3.4431E-04
O	3.5490E-02	3.7407E-02	3.5458E-02	3.7508E-02	3.4572E-02
	6	7	8	9	10
^{234}U	1.5763E-06	3.6310E-06	3.8498E-06	9.4531E-06	1.6900E-06
^{235}U	1.4249E-04	3.2821E-04	3.4799E-04	8.5446E-04	1.5276E-04
^{236}U	6.5808E-07	1.5159E-06	1.6072E-06	3.9464E-06	7.0552E-07
^{238}U	8.0090E-06	1.8448E-05	1.9560E-05	4.8029E-05	8.5864E-06
H	6.6453E-02	6.4333E-02	6.4126E-02	5.8709E-02	6.6357E-02
N	3.7411E-04	8.7643E-04	9.2305E-04	2.1624E-03	3.9432E-04
O	3.4620E-02	3.5413E-02	3.5490E-02	3.7508E-02	3.4655E-02

注) $3.8498\text{E-6} = 3.8498 \times 10^{-6}$

表4.1.6 硝酸ウラニル水溶液ベンチマーク計算結果

番号	実効増倍率
1	1.0042 ± 0.0018
2	0.9972 ± 0.0019
3	1.0063 ± 0.0019
4	0.9988 ± 0.0019
5	1.0031 ± 0.0015
6	1.0103 ± 0.0016
7	1.0048 ± 0.0017
8	1.0057 ± 0.0018
9	0.9957 ± 0.0019
10	0.9987 ± 0.0017
平均	1.0025 ± 0.0044

表 4.2 反射体のない球形²³⁵U-H₂O系の臨界計算結果

H/U	ウラン濃度 [gU/ℓ]	燃料半径 [cm]	実効増倍率	推定臨界値	
				実効増倍率	燃料半径[cm]
0.4	14586	9.5	0.9969±0.0011	1.0032	9.57
		9.7	1.0156±0.0012		
		9.9	1.0329±0.0012		
0.77	12081	10.05	0.9812±0.0013	1.0032	10.31
		10.25	1.0016±0.0013		
		10.45	1.0126±0.0012		
1.5	9024	11.25	0.9935±0.0013	1.0032	11.42
		11.40	1.0007±0.0013		
		11.65	1.0186±0.0012		
3	5937	12.6	0.9904±0.0014	1.0032	12.79
		12.9	1.0094±0.0014		
		13.1	1.0244±0.0014		
4	4834	13.05	0.9856±0.0014	1.0032	13.38
		13.30	0.9980±0.0013		
		13.45	1.0074±0.0014		
5	4077	13.3	0.9791±0.0014	1.0032	13.76
		13.5	0.9885±0.0016		
		13.7	1.0004±0.0014		
		13.9	1.0103±0.0016		
		14.1	1.0227±0.0016		
10	2286	14.45	0.9976±0.0016	1.0032	14.56
		14.65	1.0067±0.0015		
		14.85	1.0212±0.0016		
16	1497	14.7	0.9988±0.0018	1.0032	14.77
		14.9	1.0117±0.0017		
		15.1	1.0200±0.0016		
25	987	14.6	0.9894±0.0018	1.0033	14.85
		14.8	1.0006±0.0018		
		15.0	1.0116±0.0019		

表 4.2 反射体のない球形状²³⁵U-H₂O系の臨界計算結果 (続き)

H/U	ウラン濃度 [gU/ℓ]	燃料半径 [cm]	実効増倍率	推定臨界値	
				実効増倍率	燃料半径[cm]
31	804	14.7	0.9953±0.0020	1.0033	14.81
		14.9	1.0117±0.0017		
		15.1	1.0188±0.0018		
		15.5	1.0429±0.0017		
		15.7	1.0532±0.0020		
		15.9	1.0645±0.0017		
38	661	14.7	0.9991±0.0019	1.0033	14.81
		14.9	1.0049±0.0017		
		15.1	1.0209±0.0019		
		15.3	1.0293±0.0017		
		15.5	1.0431±0.0017		
50	507	14.7	0.9920±0.0019	1.0033	14.87
		14.9	1.0063±0.0018		
		15.1	1.0170±0.0017		
		15.3	1.0281±0.0018		
		15.5	1.0409±0.0017		
64	398	14.6	0.9822±0.0019	1.0033	14.96
		14.8	0.9916±0.0019		
		15.0	1.0064±0.0021		
100	257	14.8	0.9796±0.0019	1.0034	15.15
		15.0	0.9965±0.0020		
		15.2	1.0056±0.0020		
140	184	15.3	0.9931±0.0018	1.0035	15.48
		15.5	1.0052±0.0018		
		15.7	1.0161±0.0020		
200	129	15.6	0.9849±0.0017	1.0036	15.97
		16.0	1.0055±0.0019		
		16.2	1.0154±0.0018		

表 4.2 反射体のない球形状²³⁵U-H₂O系の臨界計算結果(続き)

H/U	ウラン濃度 [gU/g]	燃料半径 [cm]	実効増倍率	推定臨界値	
				実効増倍率	燃料半径[cm]
240	108	16.1	0.9883±0.0019	1.0037	16.37
		16.3	0.9978±0.0017		
		16.5	1.0124±0.0017		
300	86.4	16.75	0.9932±0.0018	1.0038	16.92
		16.95	1.0070±0.0018		
		17.15	1.0160±0.0016		
400	64.8	17.65	0.9905±0.0017	1.0040	17.95
		17.85	0.9986±0.0017		
		18.05	1.0093±0.0016		
470	55.2	18.5	0.9937±0.0015	1.0042	18.73
		18.7	1.0004±0.0015		
		18.9	1.0136±0.0016		
520	49.9	19.0	0.9958±0.0015	1.0043	19.22
		19.2	1.0023±0.0015		
		19.4	1.0124±0.0015		
580	44.8	19.3	0.9816±0.0017	1.0044	19.98
		19.6	0.9929±0.0014		
		20.4	1.0181±0.0013		
740	35.1	21.8	0.9926±0.0014	1.0047	22.03
		22.0	1.0069±0.0014		
		22.2	1.0111±0.0014		
860	30.2	23.4	0.9974±0.0012	1.0050	23.71
		23.6	1.0025±0.0013		
		23.8	1.0073±0.0013		
1000	26.0	25.4	0.9950±0.0012	1.0053	25.93
		25.7	1.0008±0.0011		
		26.0	1.0067±0.0013		

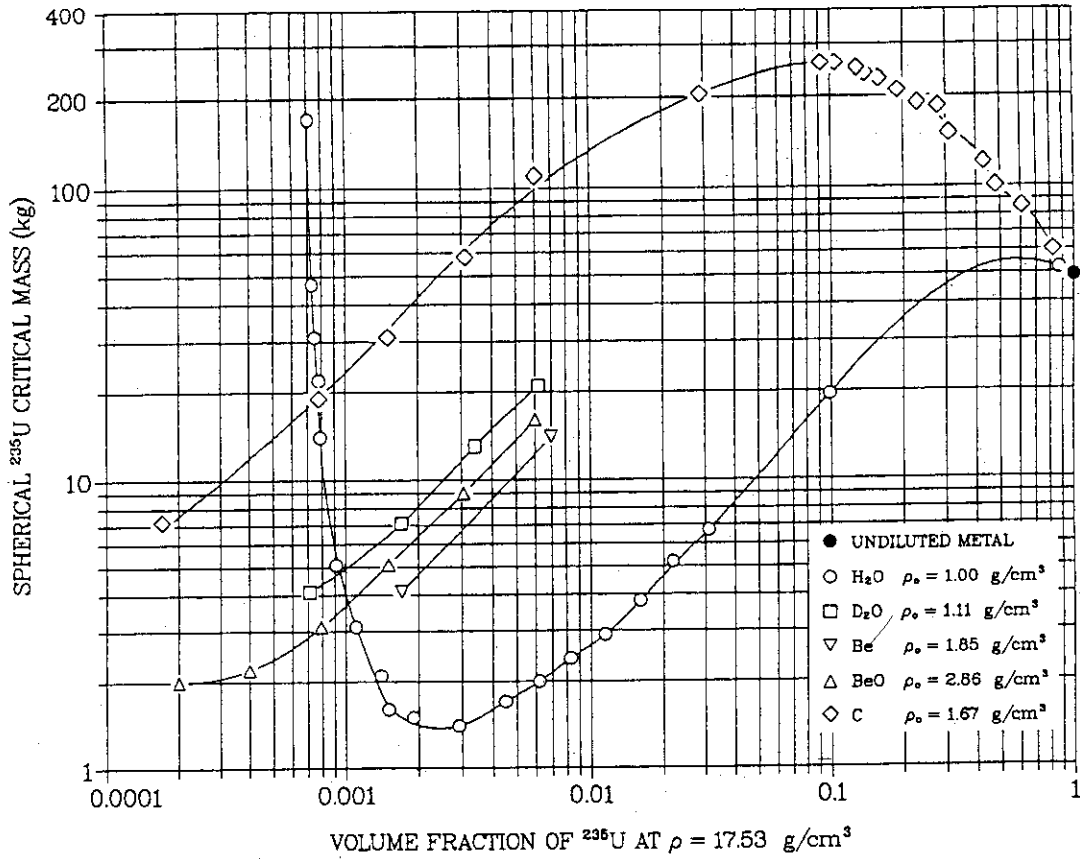


図 2.1 球体系 U(93) - H₂O 臨界質量 (LA - 10860 - MS)

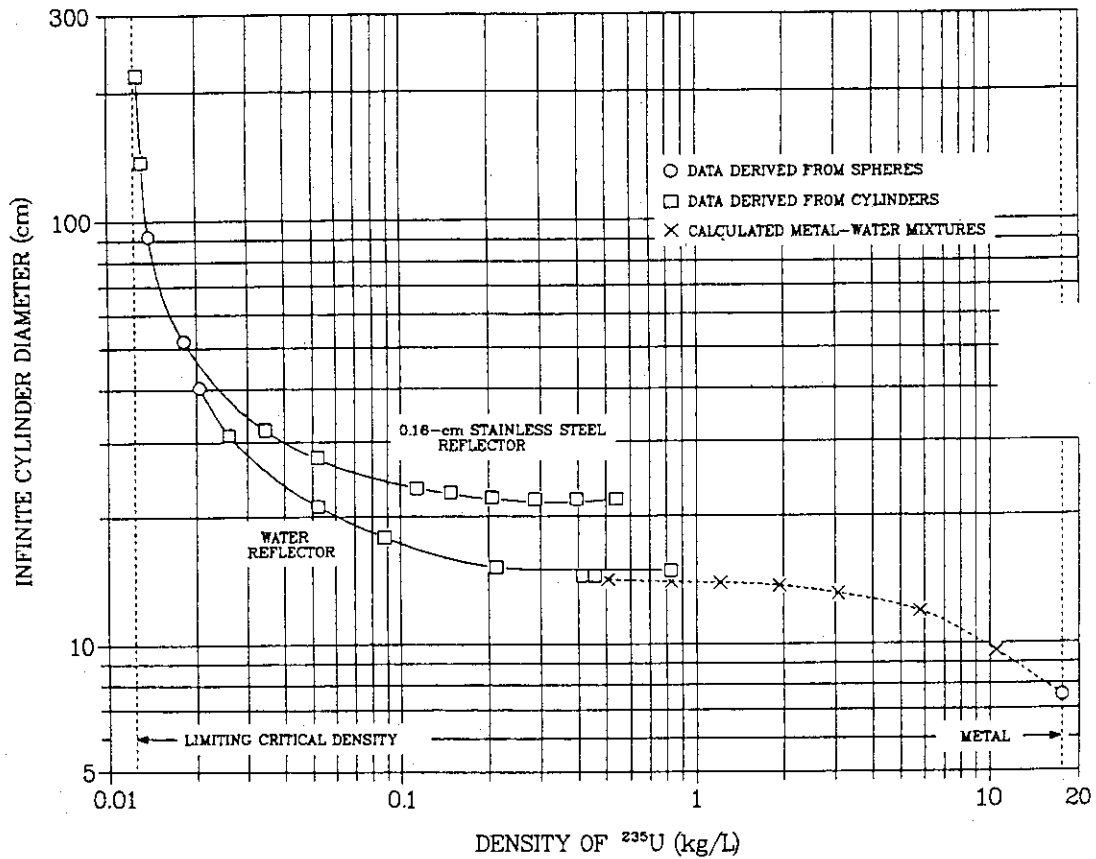


図 2.2 無限円柱体系 U(93) - H₂O 臨界直径 (LA - 10860 - MS)

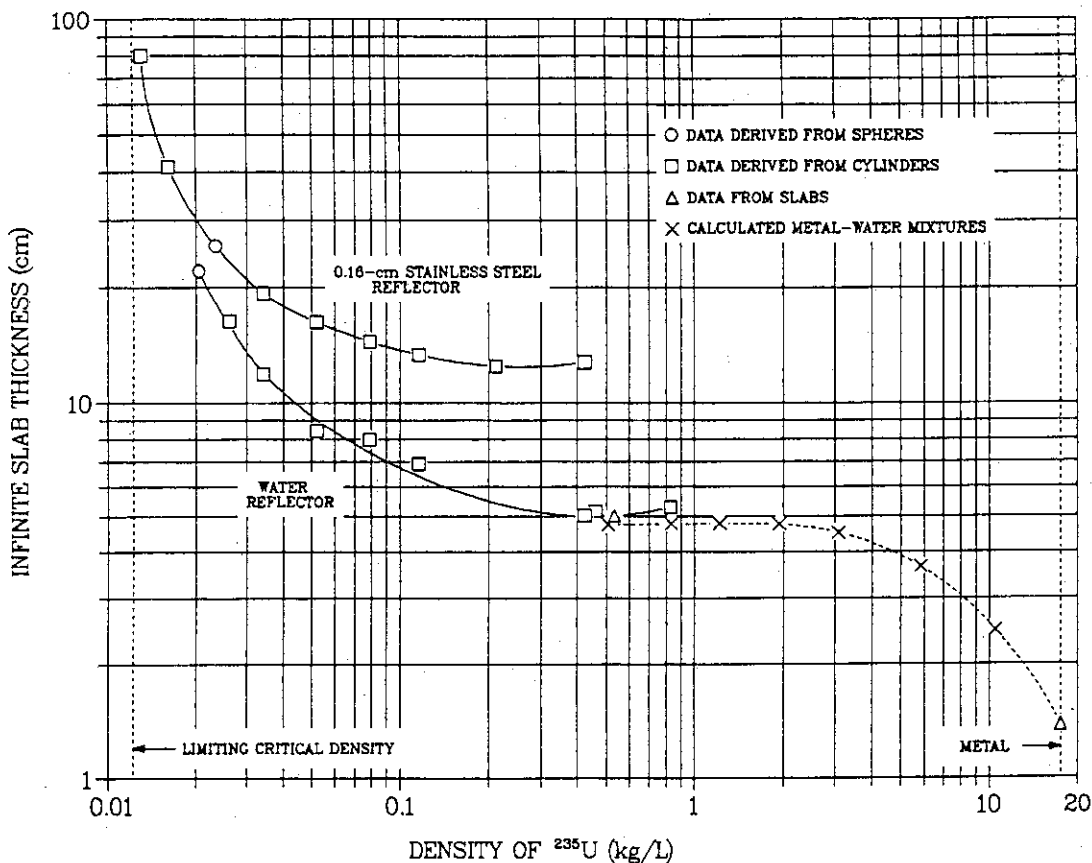


図 2.3 無限平板体系 U(93) - H₂O 臨界厚さ (LA - 10860 - MS)

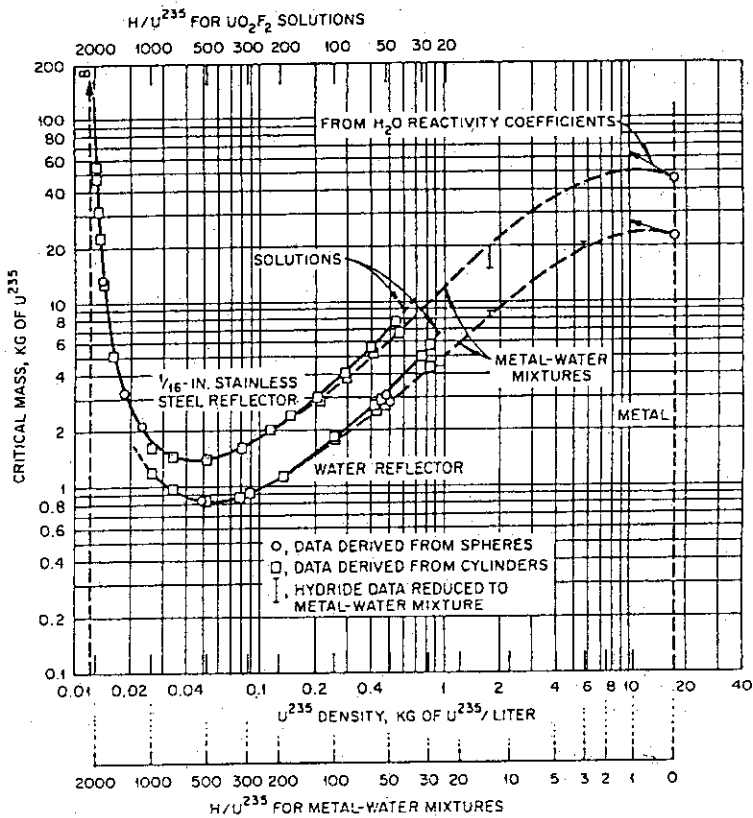


図 2.4 球体系 U(93.2) - H₂O 臨界質量 (TID - 7028)

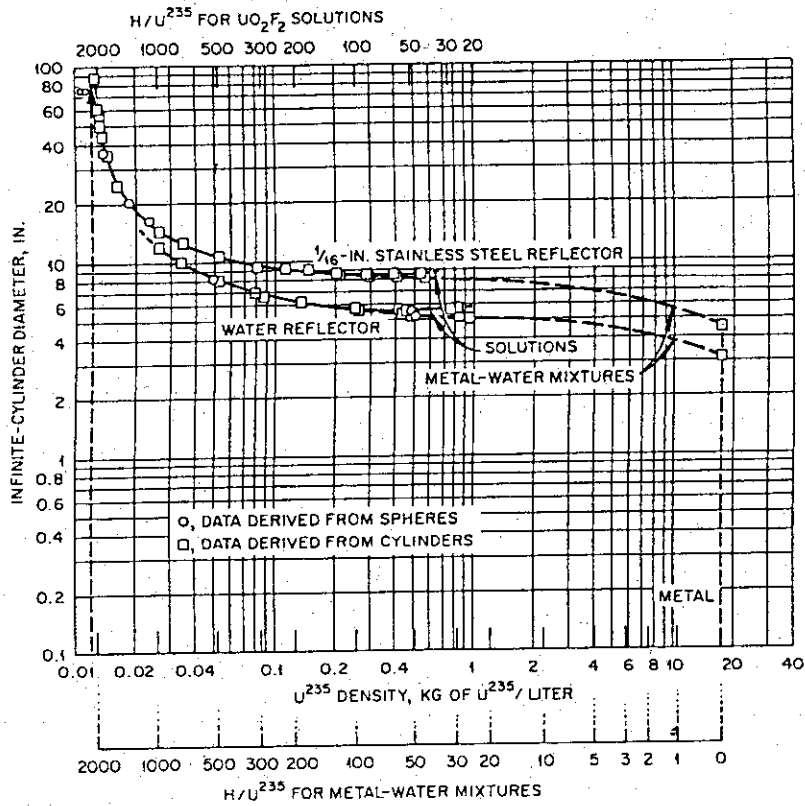


図 2.5 無限円柱体系 $U(93.2) - H_2O$ 臨界直径 (TID - 7028)

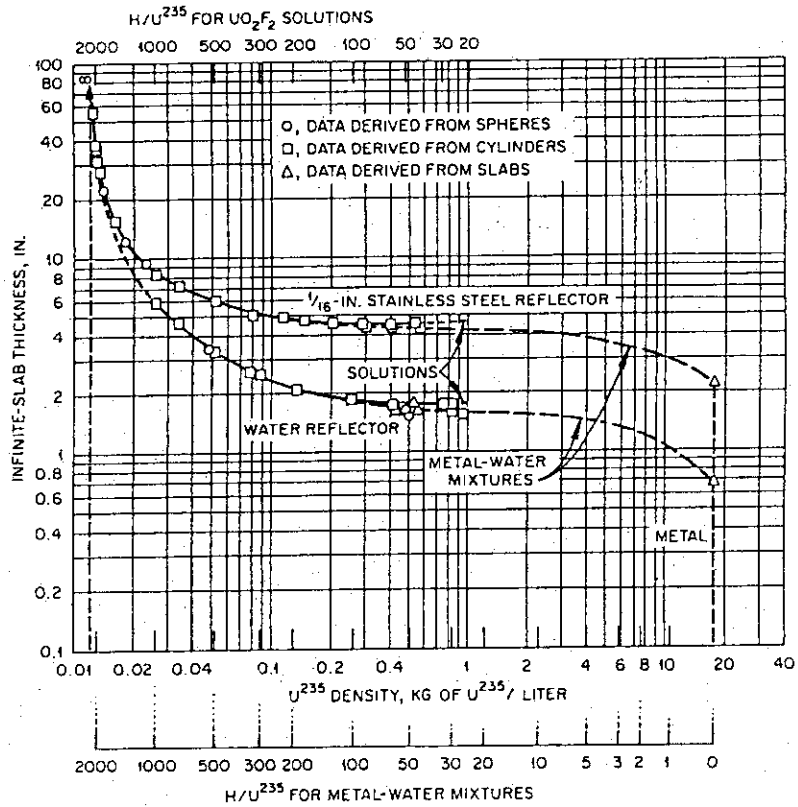


図 2.6 無限平板体系 $U(93.2) - H_2O$ 臨界厚さ (TID - 7028)

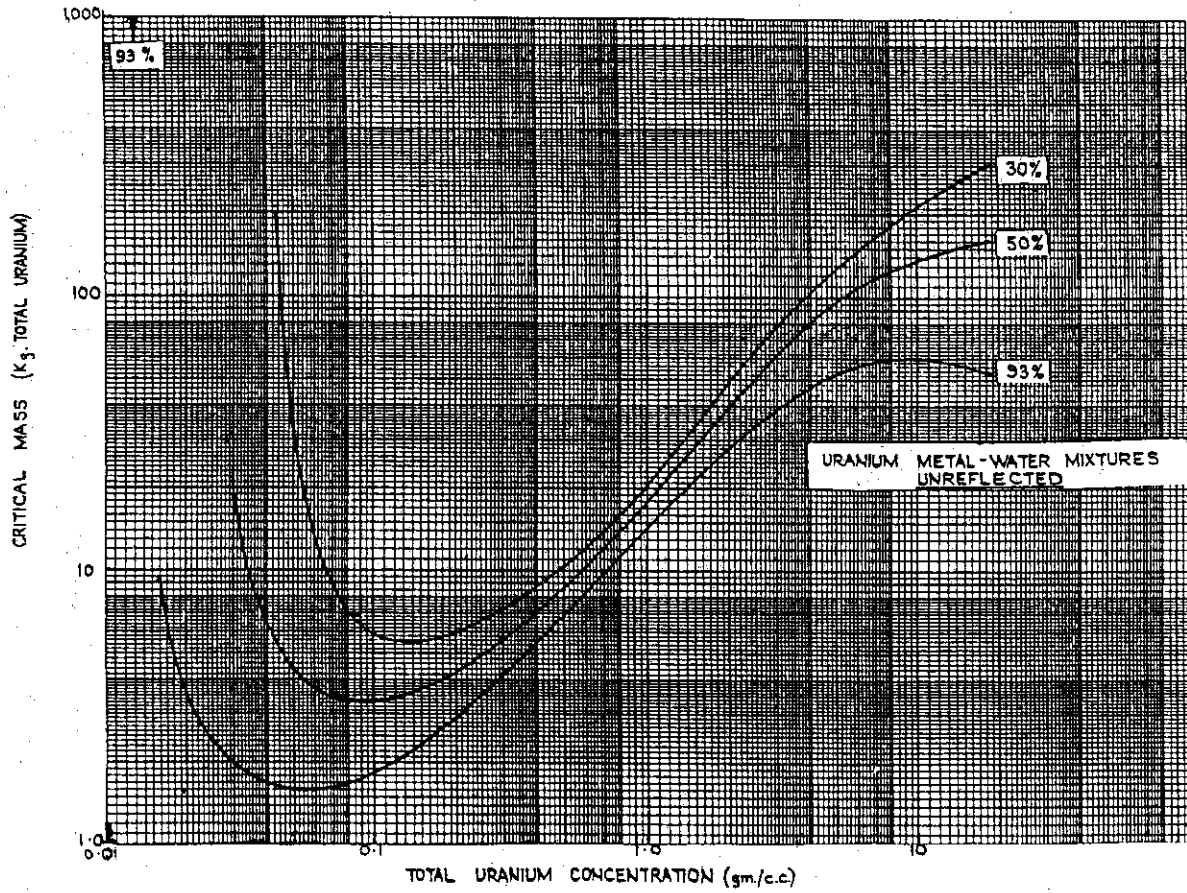


图 2.7 球体系 U - H₂O 臨界質量 (AHSB (S))

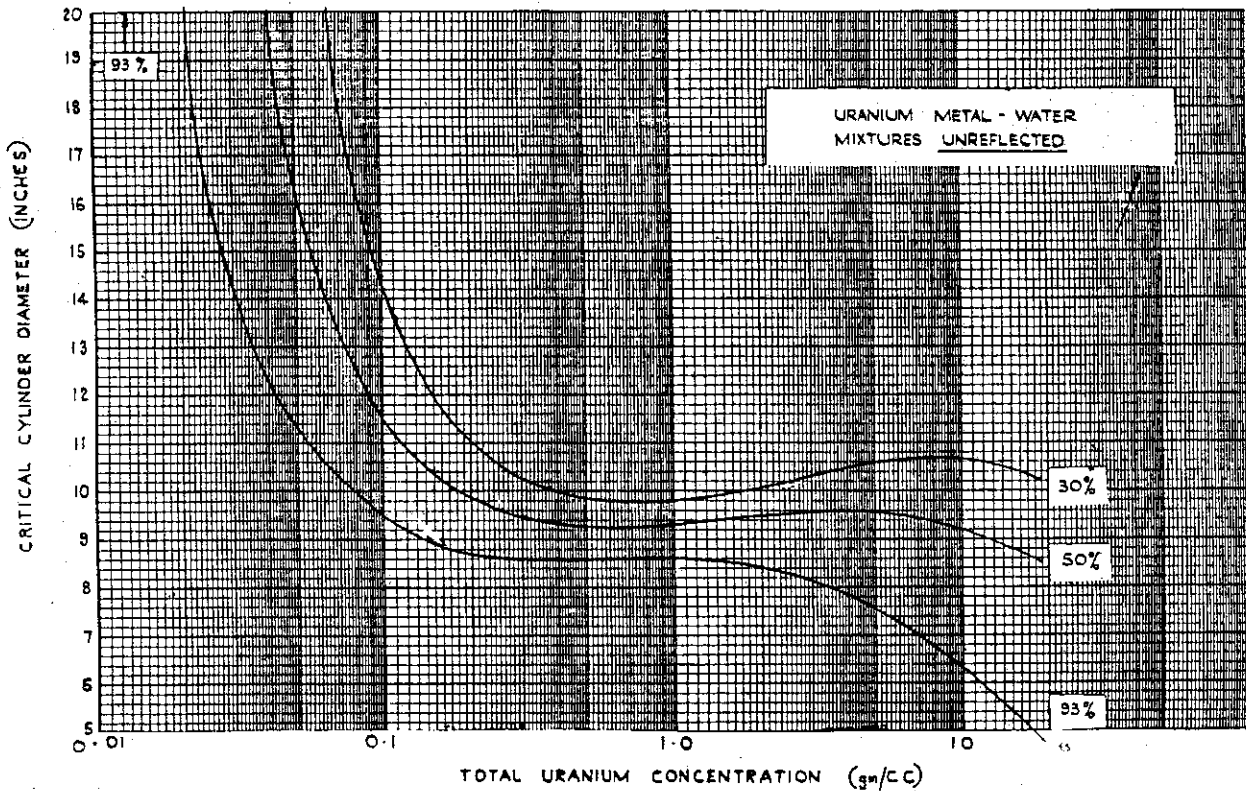


图 2.8 無限円柱体系 U - H₂O 臨界直径 (AHSB (S))

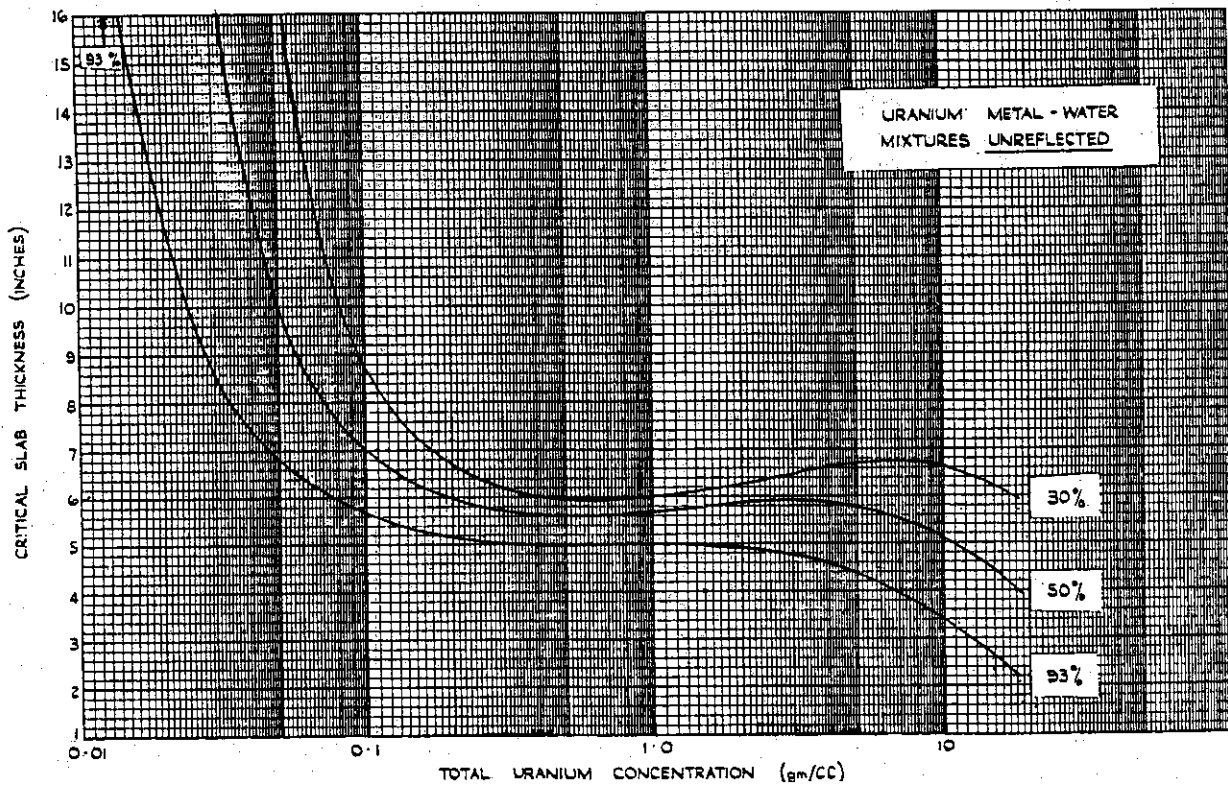


図 2.9 無限平板体系 U - H₂O 臨界厚さ (AHSB (S))

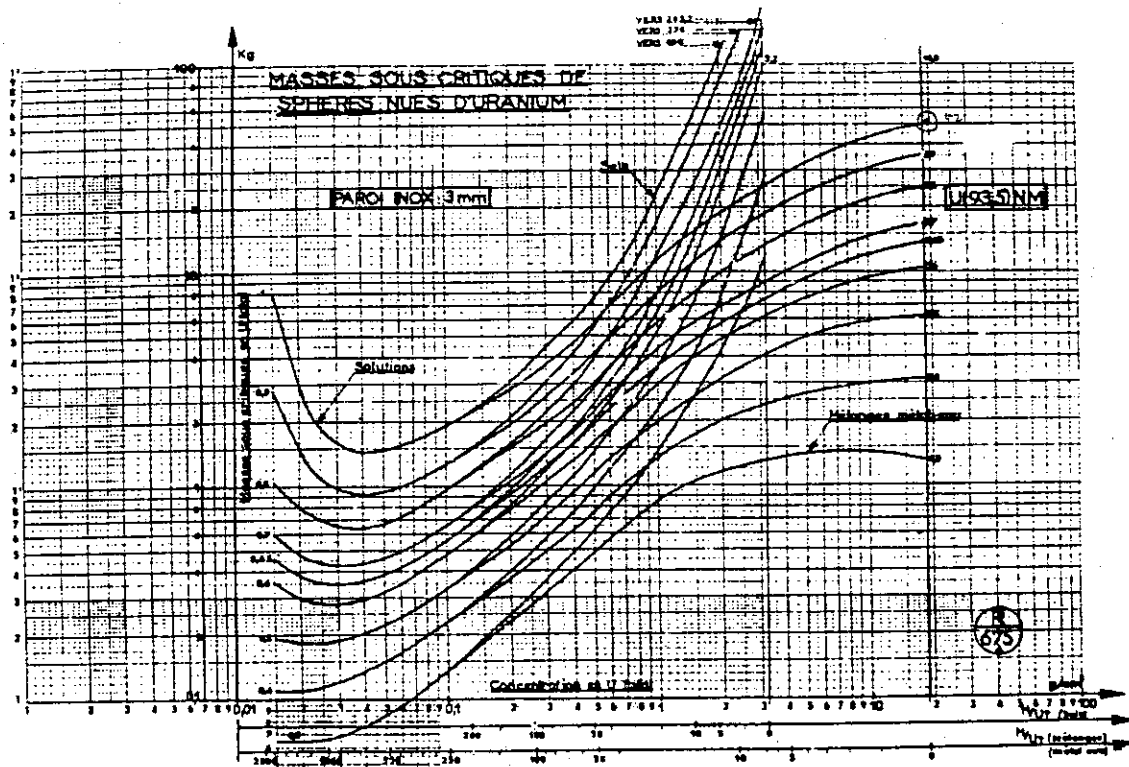


図 2.10 球体系 U - H₂O 臨界質量 (CEA - R3114)

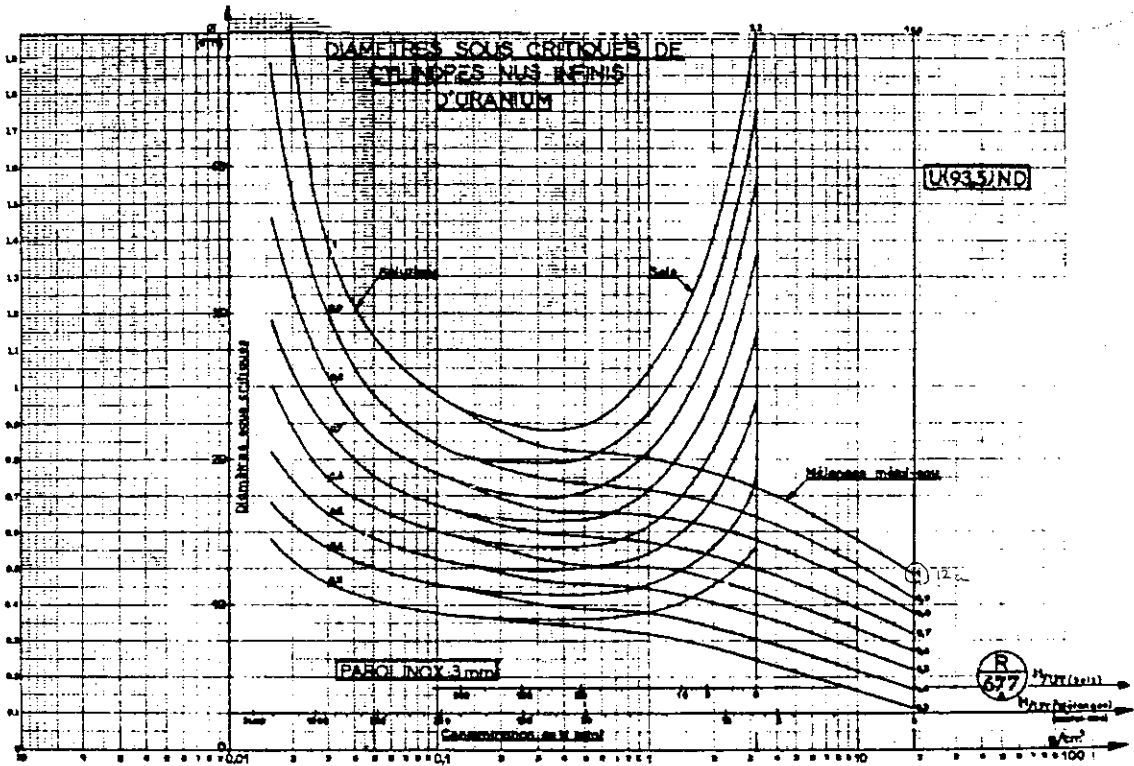


図2.11 無限円柱体系 U - H₂O 臨界直径 (CEA - R3114)

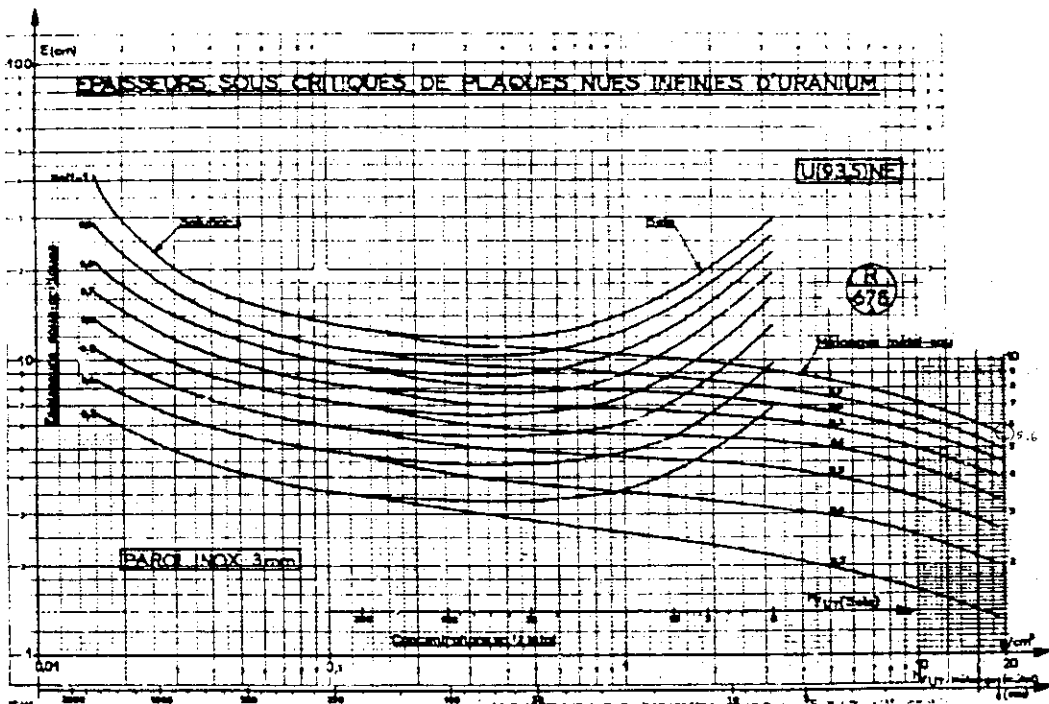


図2.12 無限平板体系 U - H₂O 臨界厚さ (CEA - R3114)

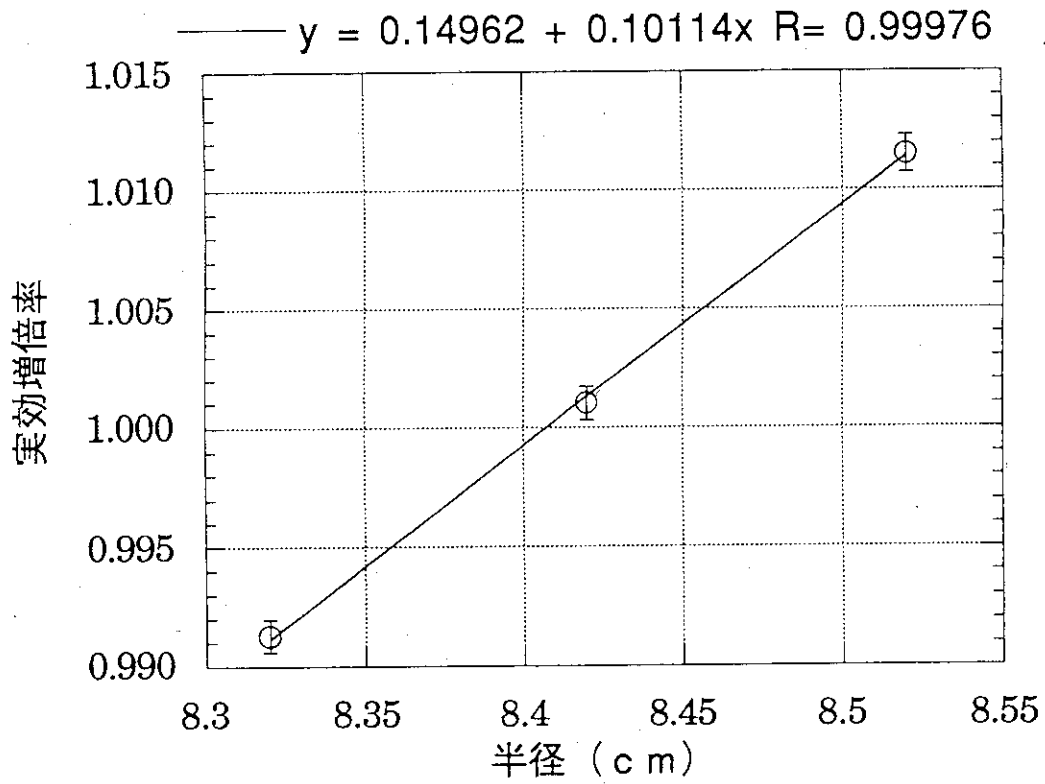


図 3.1 球体系金属 ^{235}U の実効増倍率の変化

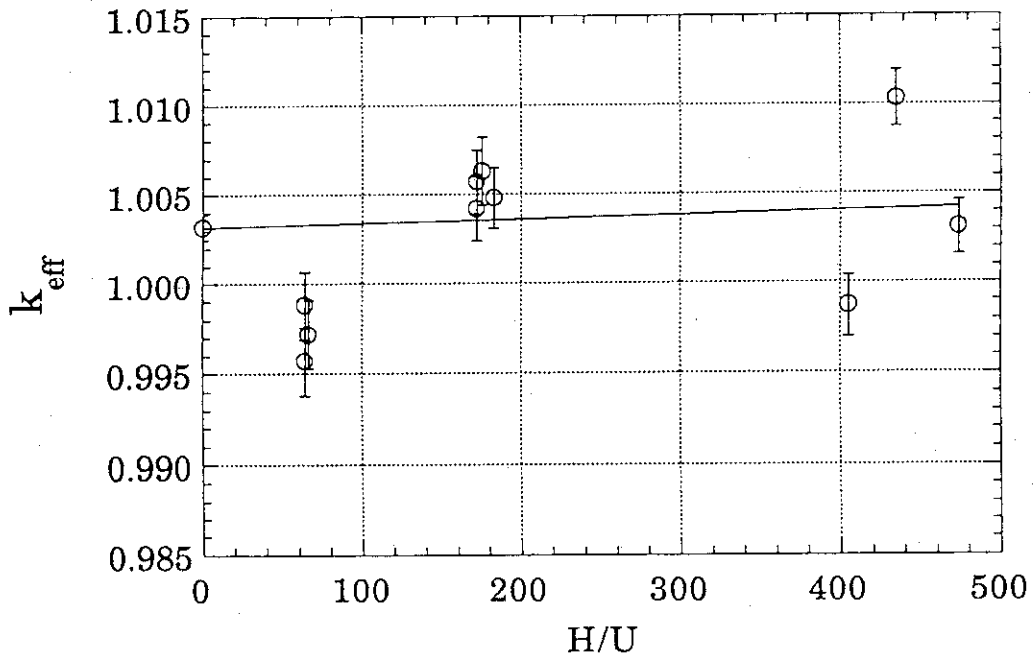


図 4.1 硝酸ウラニル水溶液体系ベンチマーク計算結果
(直線は各計算値を最小自乗法でフィッティングしたもの)

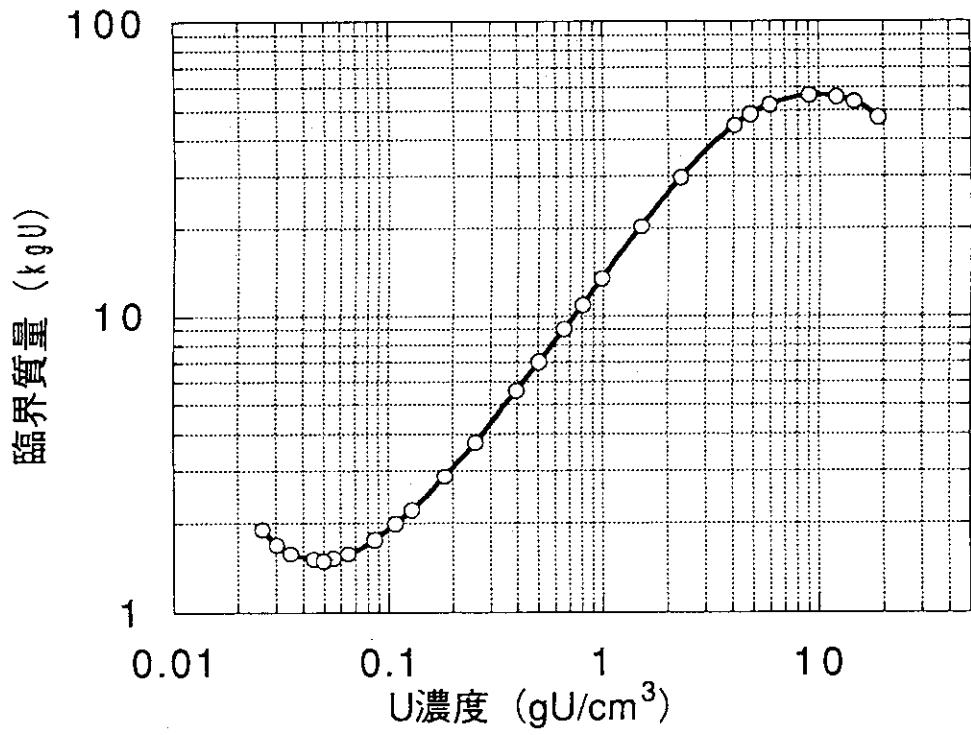


図4.2 反射体なし均質²³⁵U - H₂O体系臨界質量 (計算値)

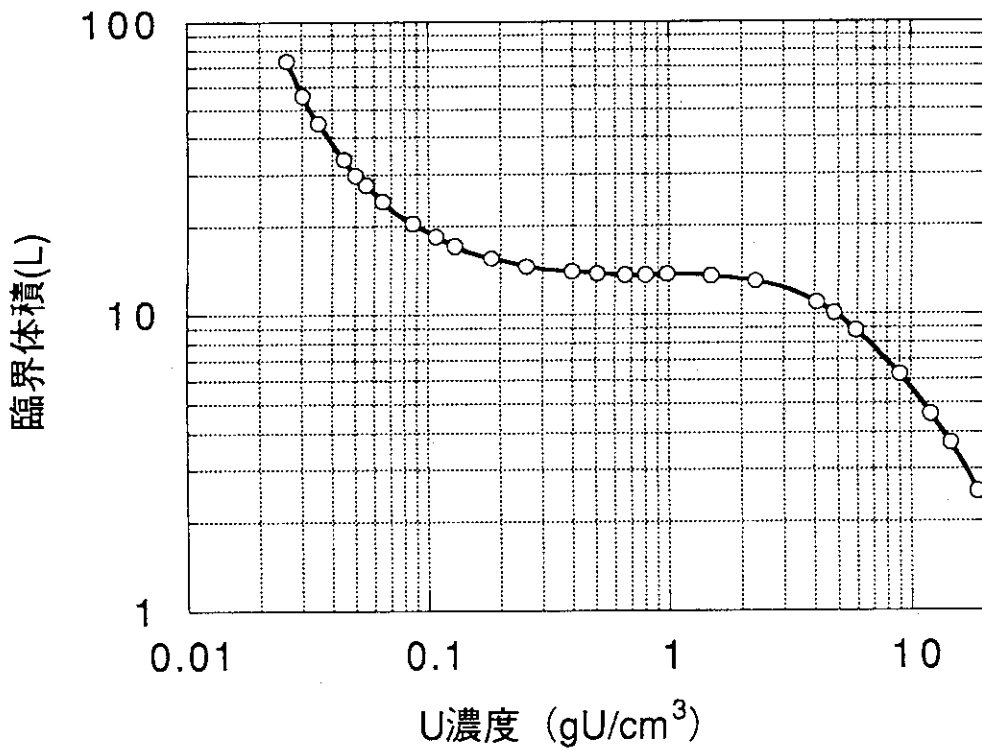


図4.3 反射体なし均質²³⁵U - H₂O臨界体積 (計算値)

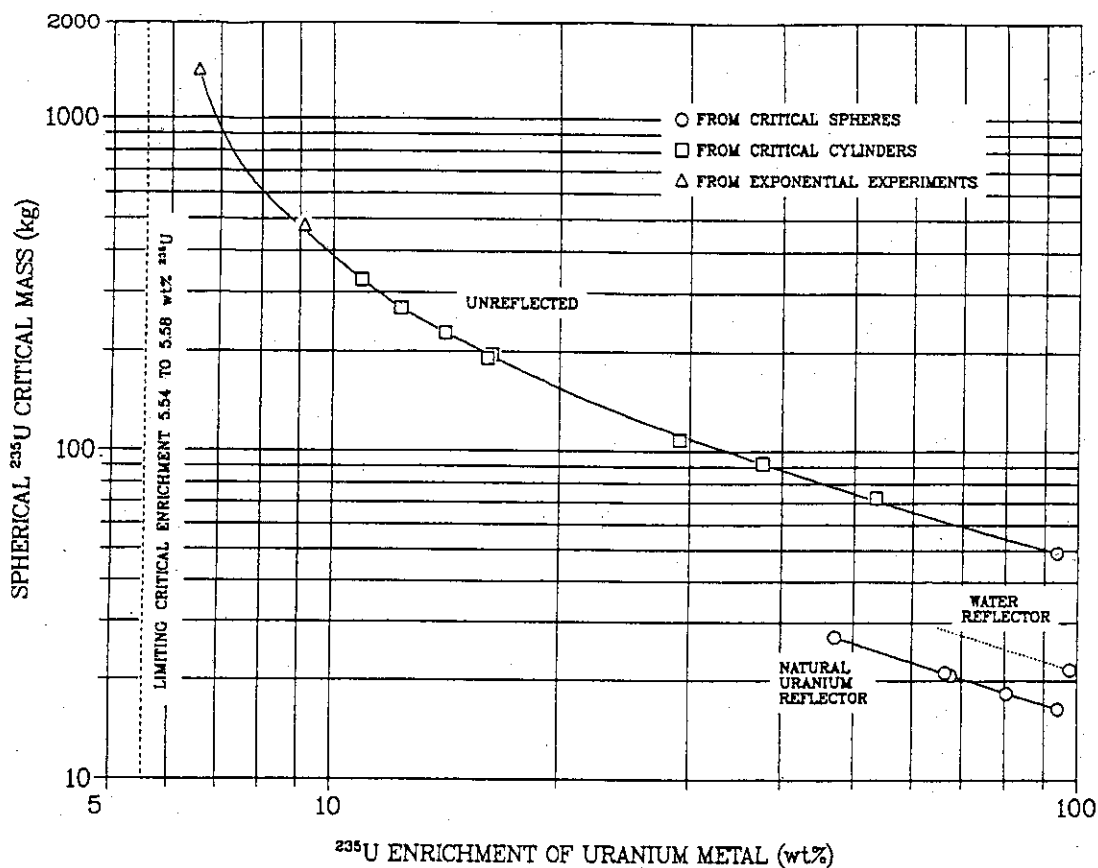


図5.1 濃縮度による球体系金属ウランの臨界質量 (LA - 10860 - MS)

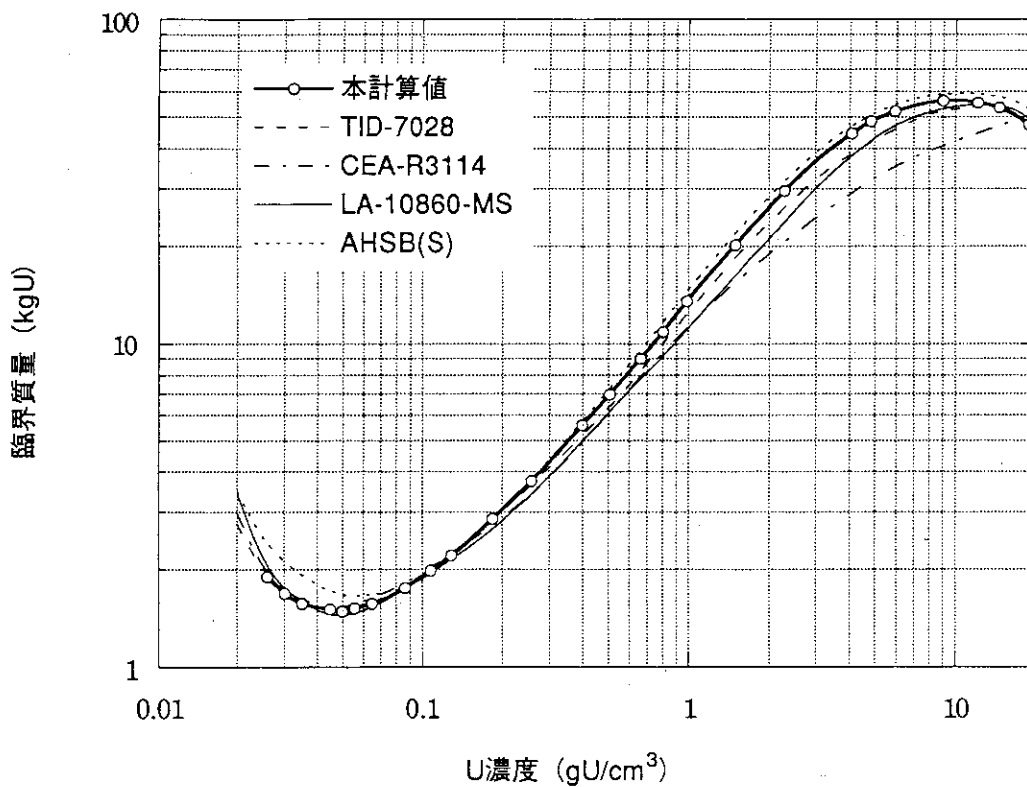


図5.2 反射体なし均質 $^{235}\text{U} - \text{H}_2\text{O}$ の臨界質量に関する文献値との比較

付録A JACSコードを用いた金属 ^{235}U の臨界計算

臨界安全性評価コードシステムJACSを用いた金属 ^{235}U の臨界計算は、核データライブラリーとして、JENDL-3から作成された多群定数ライブラリーMGCL-J3^(A1)とENDF/B-IV^(A2)から作成されたMGCL-B-IV^(A3)を用いた。JACS中のモンテカルロ計算コードKENO-IVの計算条件は以下に示すとおりである。

一世代あたりの中性子数	5000
計算世代数	210
スキップ世代数	10
初期中性子発生分布	余弦分布
中性子平均重み	0.5

結果を表A.1に示す（球は半径、無限円柱は直径、無限平板は厚さ）。

JACSでは実効増倍率はMCNPよりも1%程度高めになるが、臨界寸法はほぼ一致している。

参考文献

- (A1) 小室雄一・奥野浩・内藤淑孝・酒井友宏・塩田雅之・奥田泰久、「断面積セット作成プログラムMAIL3.0使用手引書」、JAERI-M90-126(1990).
- (A2) ENDF/B Summary Documentation, BNL-NCS-17541(ENDF-201), 2nd Edition (ENDF/B-IV) (1975).
- (A3) Y. Naito, S. Tsuruta, T. Matsumura and T. Ohuchi, "MGCL-PROCESSOR : A Computer Code System for Processing Multi-group Constants Library MGCL," JAERI-M 9336(1981).

表 A.1 ^{235}U の臨界寸法 (cm)

コード	核データ	実効増倍率*	球**	無限円柱	無限平板
JACS	JENDL-3	1.0176 ± 0.0007	8.44	11.94	6.45
	ENDF/B-IV	1.0147 ± 0.0007	8.42	11.90	6.39
MCNP	JENDL-3	1.0032 ± 0.0007	8.44	11.92	6.40

* ベンチマーク計算に用いたGODIVA (93.7wt%濃縮ウラン球体系) の計算値

** 100% ^{235}U 金属球の臨界寸法

付録 B SIMCRIを用いたベンチマーク体系のスペクトル計算

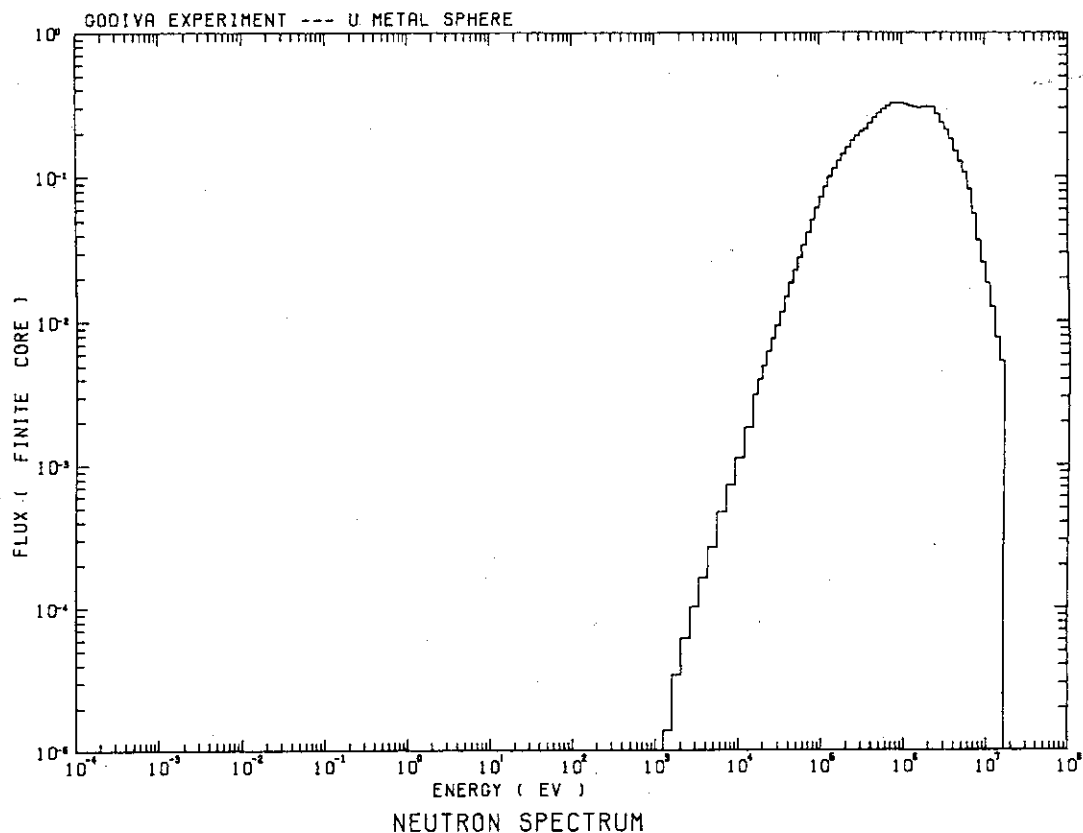
参考までに、ベンチマーク計算に用いた実験体系の中性子スペクトルを図B.1からB.11に示す。図の一覧を表B.1に示す。計算は、B₁近似のSIMCRIコード^(B1)とMGCL-J3ライブラリー^(B2)を用いて計算した。

参考文献

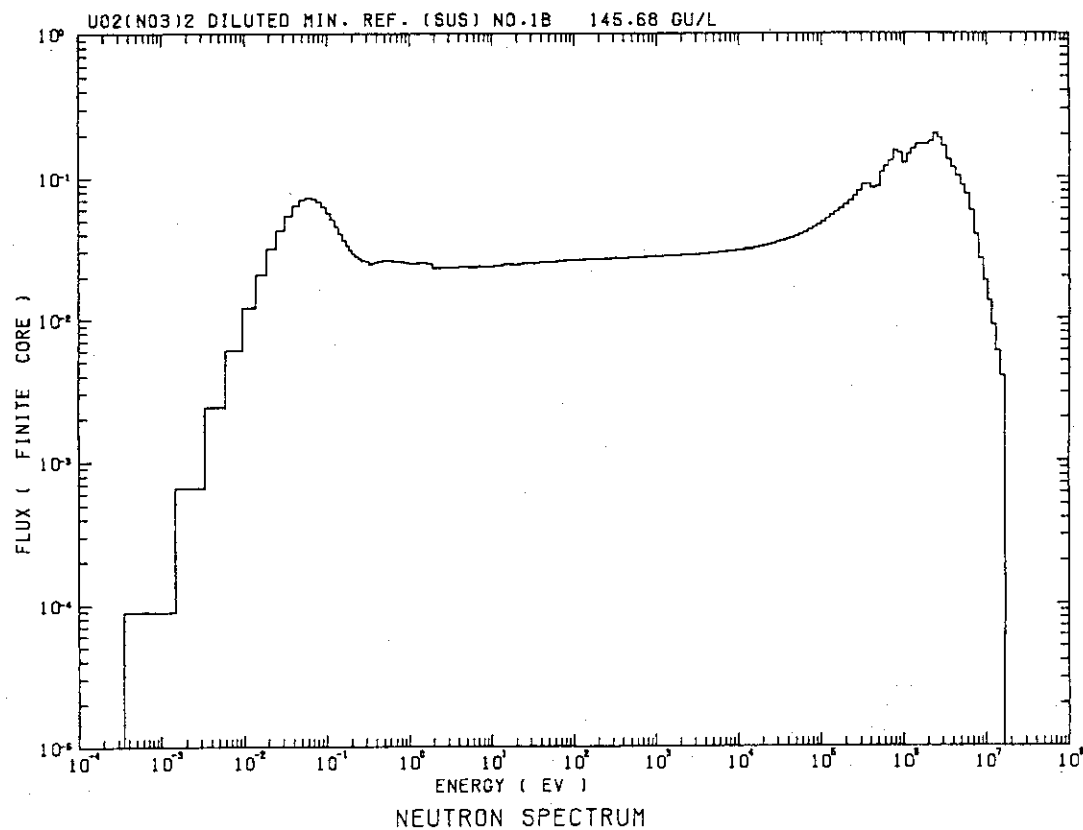
- (B1) S. Nakamaru, N. Sugawara, Y. naito, J. Katakura and H. Okuno.,
 "SIMCRI:A Simple Computer Code for Calculating Nuclear Criticality
 Parameters," JAERI-M 86-027(1986).
- (B2) 小室雄一・奥野浩・内藤淑孝・酒井友宏・塩田雅之・奥田泰久、「断面積
 セット作成プログラムMAIL3.0使用手引書」、JAERI-M90-126(1990).

表B.1 図の一覧

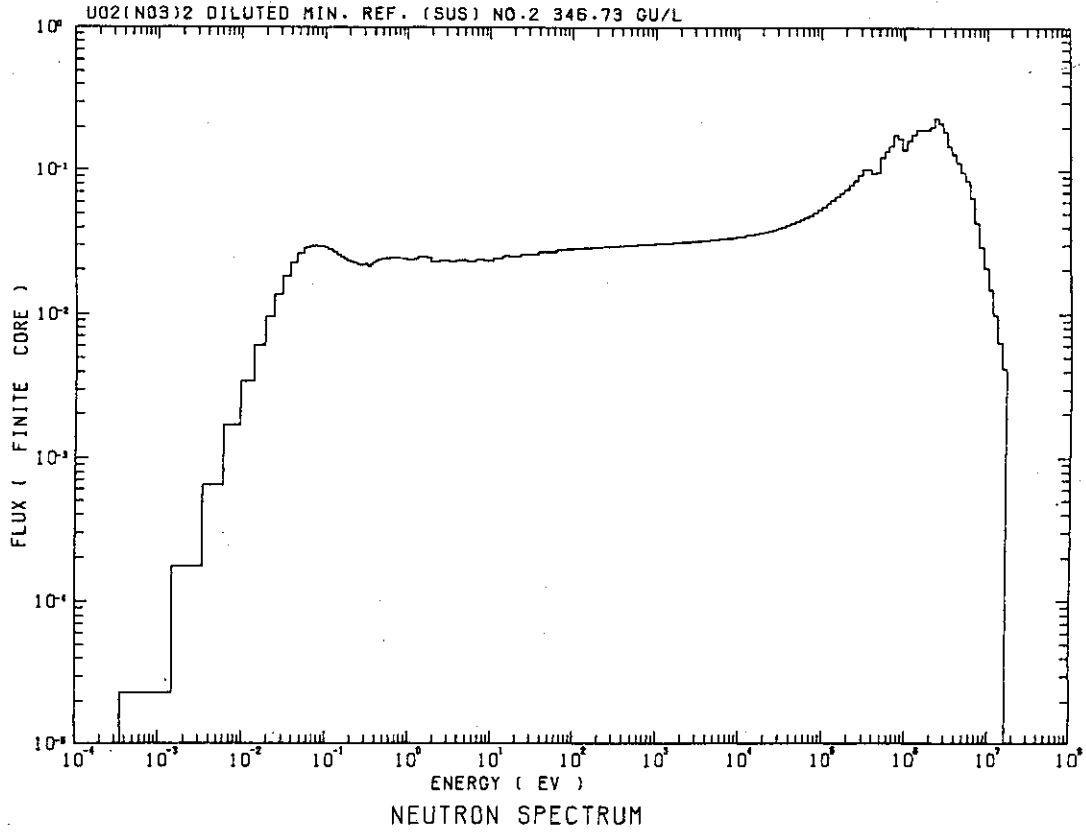
番号	図のタイトル
図B.1	高濃縮金属ウラン球の実験体系の中性子スペクトル
図B.2	硝酸ウラニル水溶液実験体系No.1の中性子スペクトル
図B.3	硝酸ウラニル水溶液実験体系No.2の中性子スペクトル
図B.4	硝酸ウラニル水溶液実験体系No.3の中性子スペクトル
図B.5	硝酸ウラニル水溶液実験体系No.4の中性子スペクトル
図B.6	硝酸ウラニル水溶液実験体系No.5の中性子スペクトル
図B.7	硝酸ウラニル水溶液実験体系No.6の中性子スペクトル
図B.8	硝酸ウラニル水溶液実験体系No.7の中性子スペクトル
図B.9	硝酸ウラニル水溶液実験体系No.8の中性子スペクトル
図B.10	硝酸ウラニル水溶液実験体系No.9の中性子スペクトル
図B.11	硝酸ウラニル水溶液実験体系No.10の中性子スペクトル



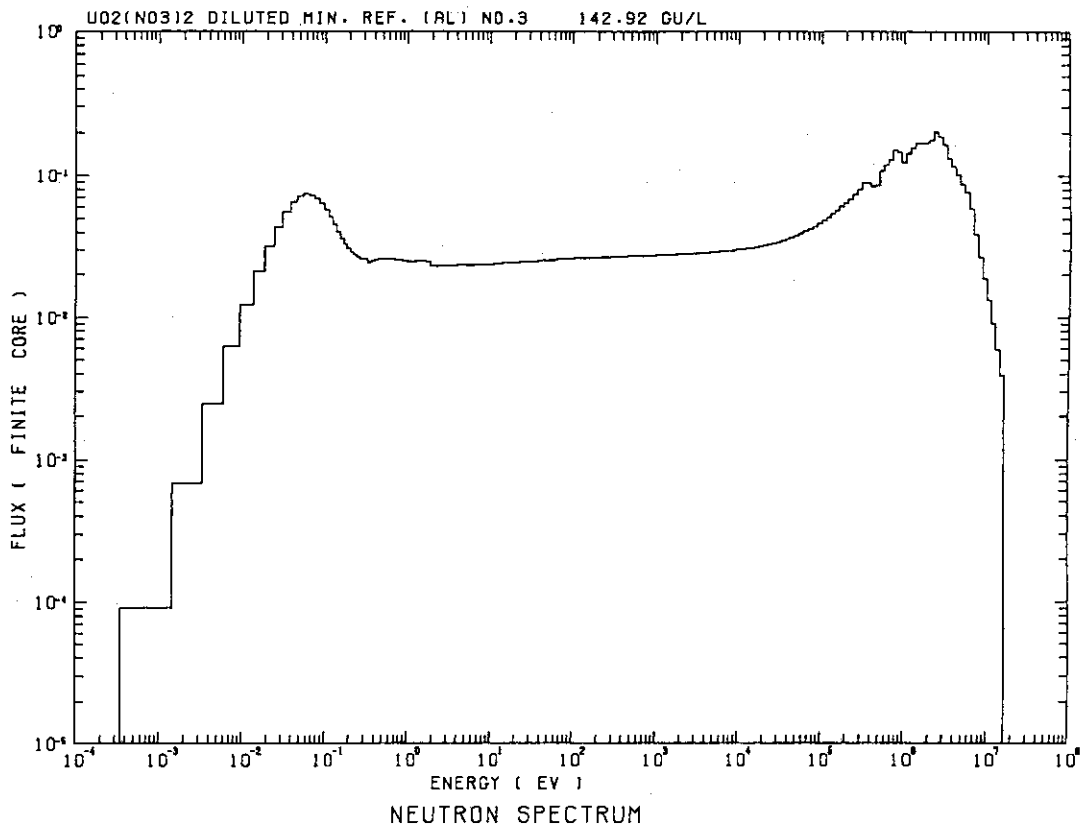
図B.1 高濃縮金属ウラン球の実験体系の中性子スペクトル



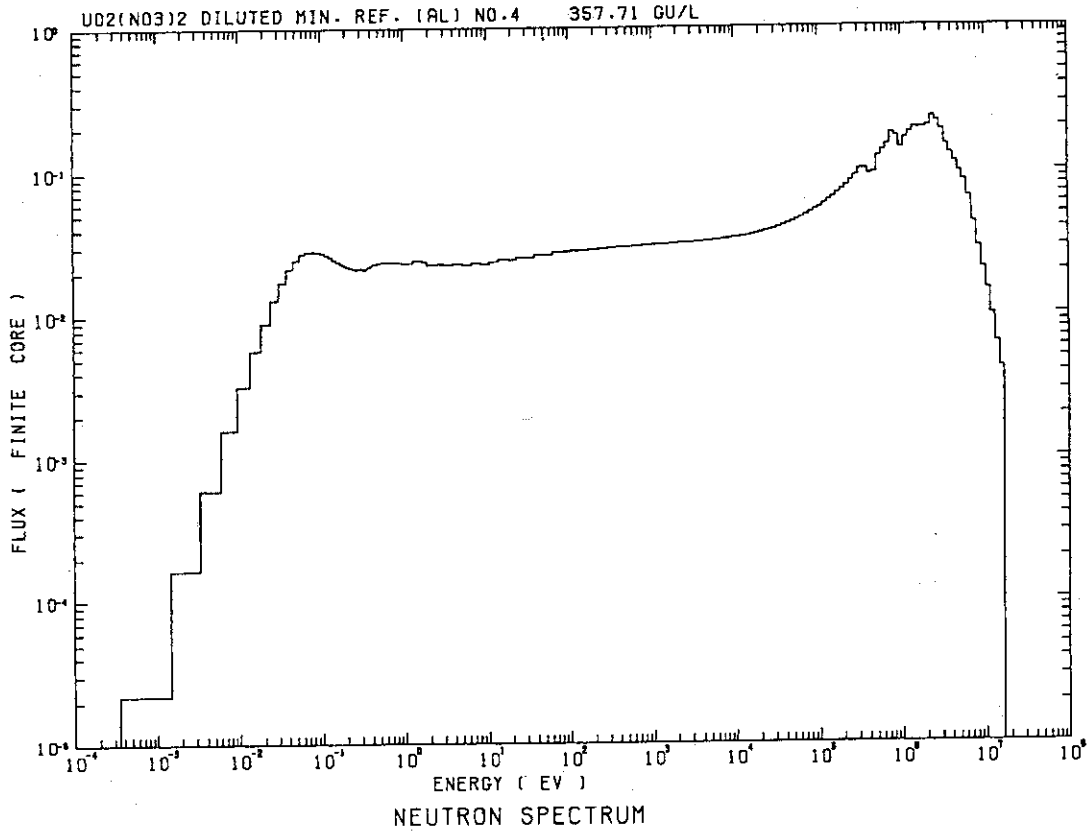
図B.2 硝酸ウラニル水溶液実験体系No.1の中性子スペクトル



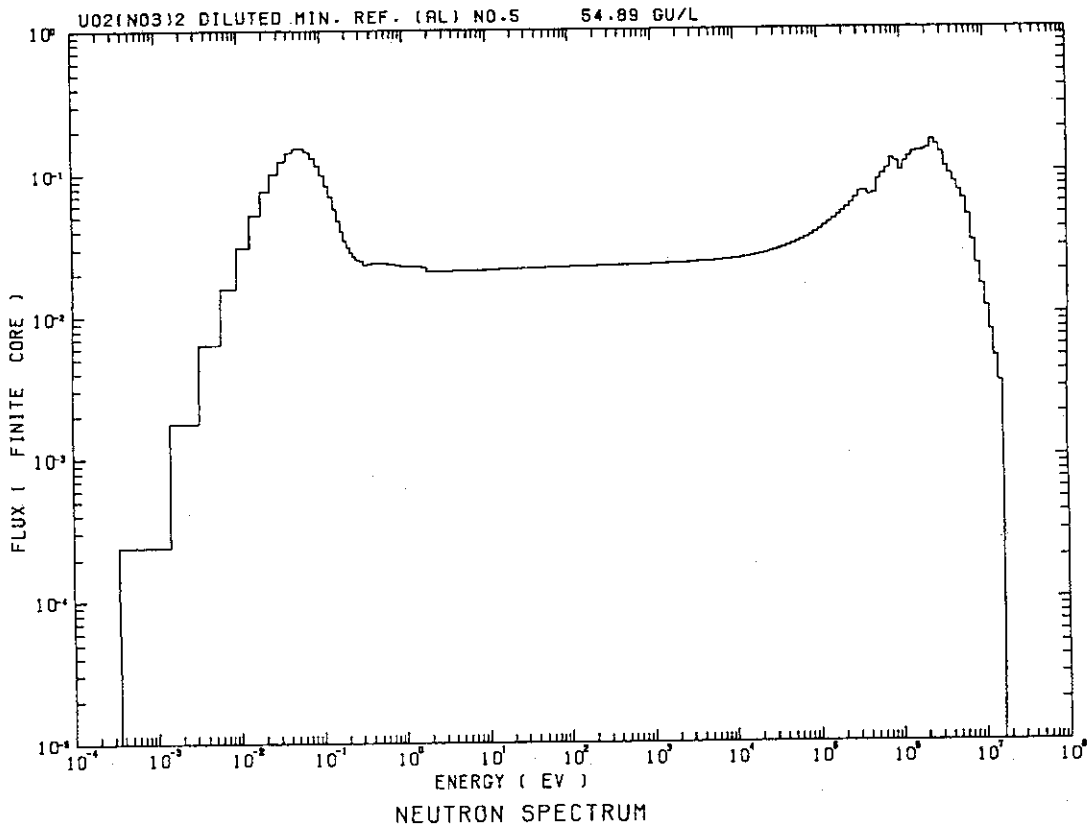
図B.3 硝酸ウラニル水溶液実験体系No.2の中性子スペクトル



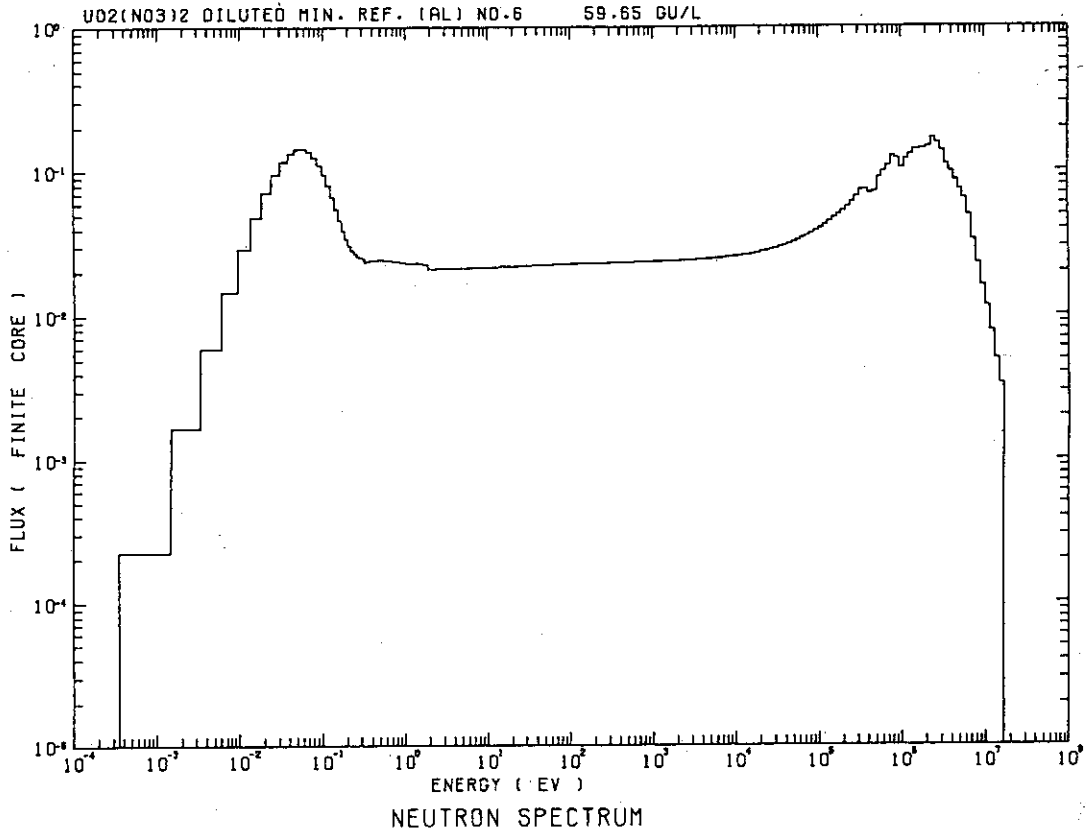
図B.4 硝酸ウラニル水溶液実験体系No.3の中性子スペクトル



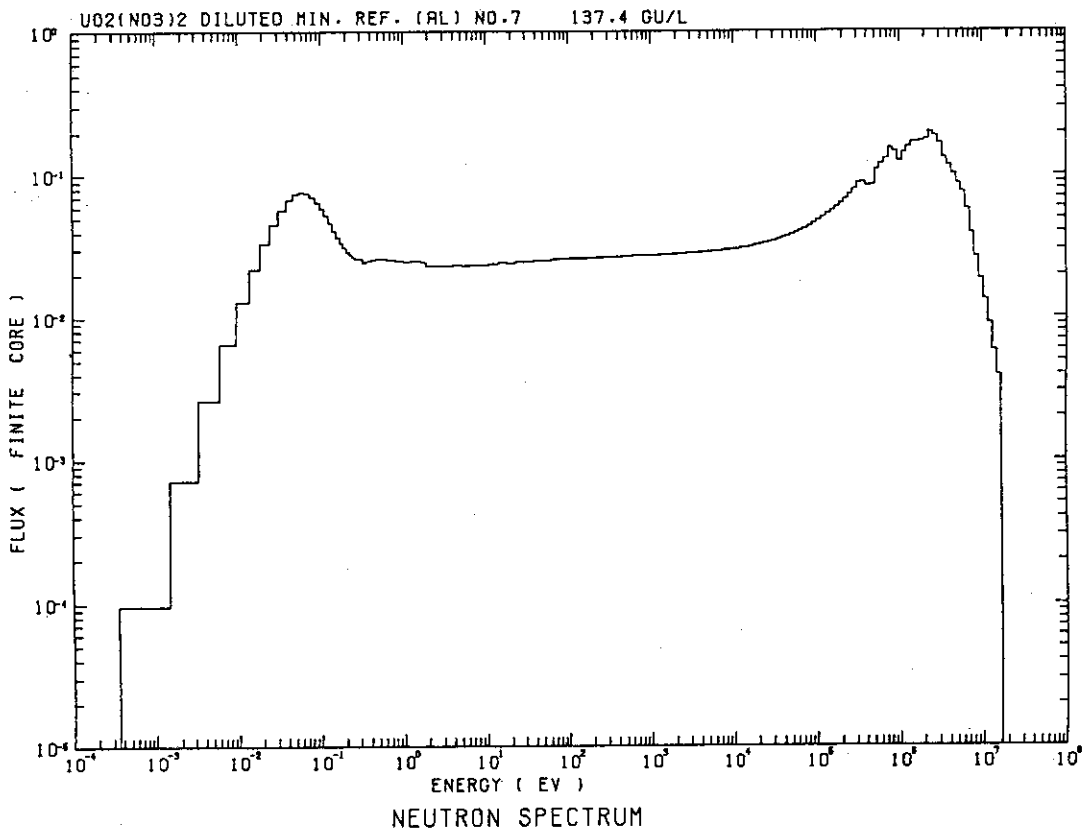
図B.5 硝酸ウラニル水溶液実験体系 No.4 の中性子スペクトル



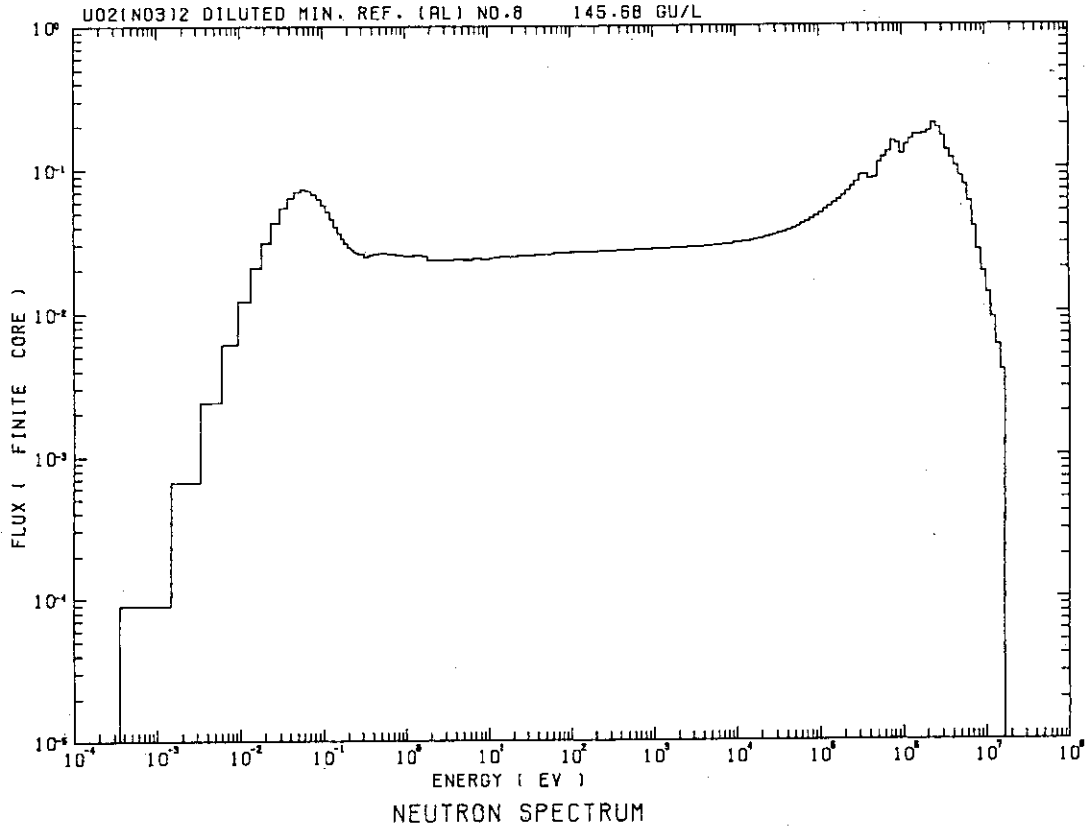
図B.6 硝酸ウラニル水溶液実験体系 No.5 の中性子スペクトル



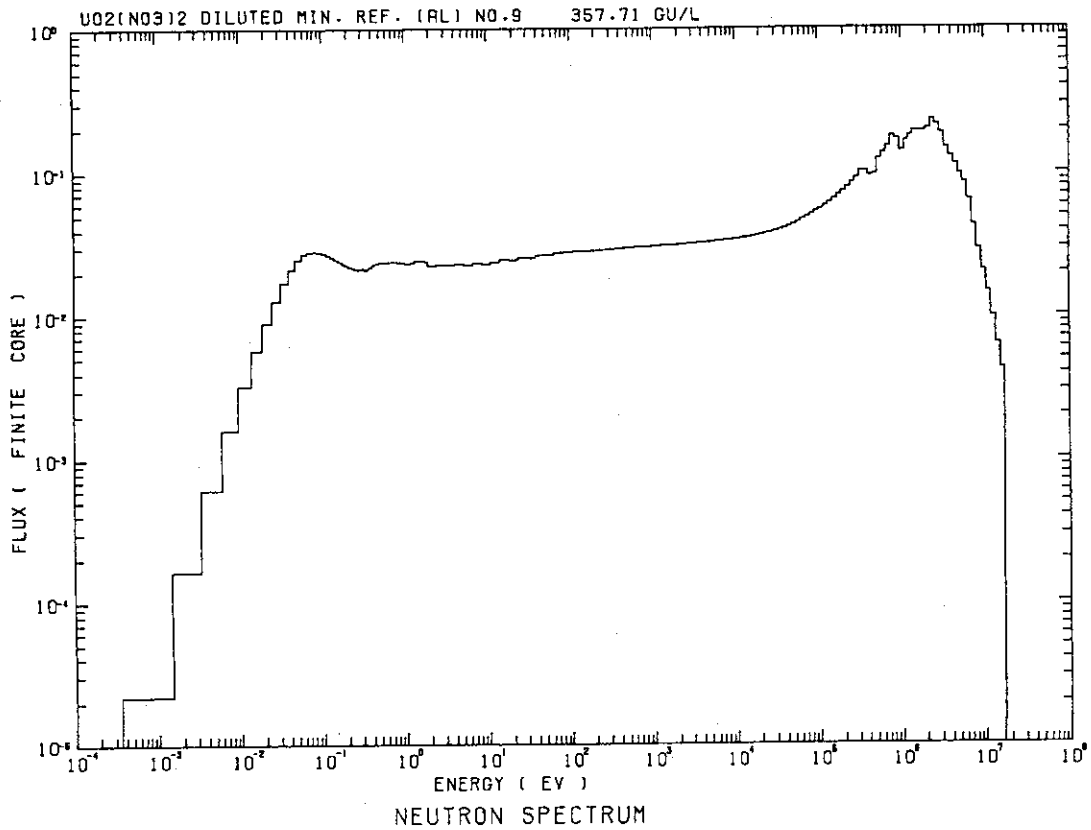
図B.7 硝酸ウラニル水溶液実験体系 No.6 の中性子スペクトル



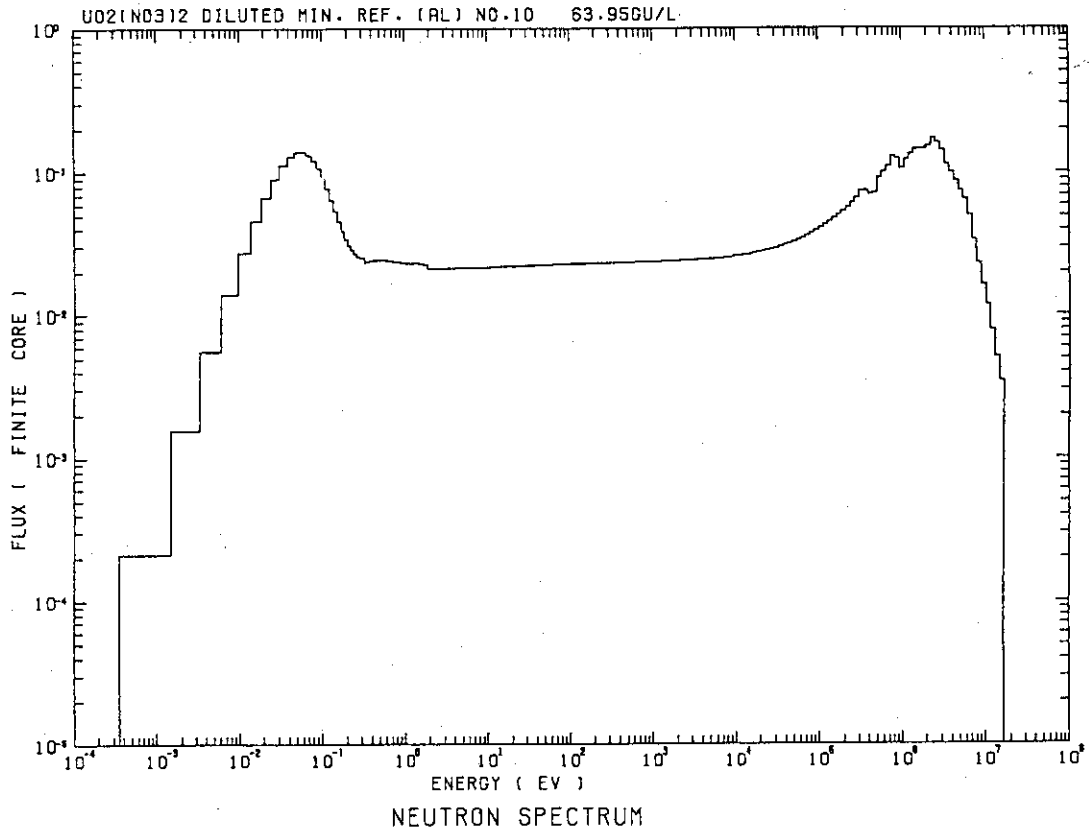
図B.8 硝酸ウラニル水溶液実験体系 No.7 の中性子スペクトル



図B.9 硝酸ウラニル水溶液実験体系No.8の中性子スペクトル



図B.10 硝酸ウラニル水溶液実験体系No.9の中性子スペクトル



図B.11 硝酸ウラニル水溶液実験体系No.10の中性子スペクトル