

JAERI-Research

99-026



JP9950171



硝酸プルトニウム溶液の  
温度反応度係数の解析  
(受託研究)

1999年3月

山本俊弘・三好慶典

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

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の問い合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

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

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1999

編集兼発行 日本原子力研究所

硝酸プルトニウム溶液の温度反応度係数の解析

(受託研究)

日本原子力研究所東海研究所安全性試験研究センター燃料サイクル安全工学部

山本 俊弘・三好 慶典

(1999年2月25日受理)

硝酸プルトニウム溶液の温度が上昇した場合の反応度効果の解析を行った。プルトニウム濃度が希薄になると、0.3eV 付近の  $^{239}\text{Pu}$  の共鳴吸収での中性子インポートランスが高くなり、それがスペクトルシフトの効果を正にする原因となる。また、 $^{240}\text{Pu}$  を含む場合の温度反応度係数への影響も調べた。ガドリニウムを含む場合は高濃度のプルトニウム溶液でも 0.3eV 付近に中性子インポートランスのピークを持つことになり、正のスペクトルシフトの効果を持つことを示した。定常臨界実験装置 STACY で予定されているプルトニウム溶液実験での、温度反応度係数測定のための予備的な解析を行った。STACY での実験における温度反応度係数の解析を、中性子毒物を含む場合と含まない場合とで行った。

---

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として行った成果の一部である。

東海研究所: 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

Analyses of Temperature Reactivity Coefficient in Plutonium Nitrate Solutions  
(Contract Research)

Toshihiro YAMAMOTO and Yoshinori MIYOSHI

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

(Received February 25, 1999)

Analyses of reactivity effects due to the temperature rise in plutonium nitrate solutions were performed. In dilute plutonium solutions, a positive spectrum shift effect is caused by higher neutron importance around 0.3 eV, the resonance absorption energy of  $^{239}\text{Pu}$ . In addition, the effects of containing  $^{240}\text{Pu}$  on temperature reactivity coefficients were investigated. Denser plutonium solutions containing gadolinium also have a peak of neutron importance around 0.3 eV, thereby, making the effect of the spectrum shift positive. Preliminary analyses of temperature reactivity coefficients were performed for future measurements of the Static Criticality Experiment Facility, STACY. The temperature reactivity coefficients in the experiments of the STACY were calculated with/without neutron poisons.

Keywords: Plutonium, Temperature Coefficient, Gadolinium, Boron, Reactivity, STACY

---

This work was carried out by the Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) under entrustment by the Science and Technology Agency (STA) of Japan.

## 目 次

1. 序.....	1
2. 硝酸プルトニウム溶液燃料の温度反応度係数の詳細解析.....	1
2. 1 計算条件.....	1
2. 2 $^{239}\text{Pu}$ が 100% のときの結果.....	2
2. 3 $^{240}\text{Pu}$ が 25wt.% のときの結果.....	3
2. 4 ガドリニウムを含む場合の温度反応度係数.....	3
3. STACY での臨界実験での温度反応度係数の解析.....	4
3. 1 計算対象.....	4
3. 2 計算方法.....	4
3. 3 臨界状態に対する温度反応度係数.....	5
3. 4 毒物入りプルトニウム溶液での温度反応度係数.....	5
4. 結論.....	5
参考文献.....	6

## Contents

1. Introduction.....	1
2. Detailed Analyses of Temperature Reactivity Coefficients of Plutonium Nitrate Fuel Solution.....	1
2. 1 Calculation Conditions.....	1
2. 2 Results for 100% $^{239}\text{Pu}$ .....	2
2. 3 Results for 25wt.% $^{240}\text{Pu}$ .....	3
2. 4 Temperature Reactivity Coefficients for Fuel Solutions Containing Gadolinium.....	3
3. Analyses of Temperature Reactivity Coefficients for STACY Criticality Experiments.....	4
3. 1 Contents for Calculation.....	4
3. 2 Calculation Method.....	4
3. 3 Temperature Reactivity Coefficients for Critical States.....	5
3. 4 Temperature Reactivity Coefficients for Plutonium Solutions Containing a Neutron Poison...5	5
4. Conclusions.....	5
References.....	6

This is a blank page.

## 1. 序

溶液状態で存在するウラン燃料は、一般的にはその温度が上昇すれば実効増倍率は減少する。即ち負の温度反応度係数を持っている。溶液の温度が上昇すれば、密度は減少するが、それは主要な減速材である水素の密度を減少させる。そのため中性子スペクトルは僅かながら硬くなる。核燃料物質はエネルギーが低くなるほどより大きな断面積を持つため、スペクトルの硬化は反応度の減少をもたらす。一方プルトニウムでも、同様の減少が見られるが、20gPu/l を下回る希薄な硝酸プルトニウム溶液では、状況は大きく異なる。プルトニウムの主要な核分裂核種  $^{239}\text{Pu}$  は 0.3eV で核分裂の共鳴のピークを持っている。希薄なプルトニウム溶液で温度上昇が起ると、この共鳴エネルギー付近での反応が増え、温度反応度は正になることが知られている<sup>(1)</sup>。また、中性子吸収材として、ガドリニウムのような吸収反応のエネルギー依存性が  $1/v$  特性でないものを使用した場合には、燃料がプルトニウムでなくても正の温度反応度係数を持つことが知られている<sup>(1)(2)</sup>。このような温度上昇による実効増倍率の上昇は、核燃料物質の臨界管理において安全裕度を小さくすることになる。そのため、どのような燃料条件に対し、どの程度の反応度が加えられるのかを定量的に把握しておくことは、臨界管理技術の高度化の観点から重要である。

本報告書では、硝酸プルトニウム溶液燃料の温度上昇時の反応度変化について、単純なモデルケースに対して詳細な検討を行う。また、より現実的な問題として、定常臨界実験装置 STACY で将来予定されている硝酸プルトニウム溶液燃料を用いた臨界実験を想定して、中性子吸収材としてガドリニウム、ボロンが溶解した場合も含めて、温度反応度係数を評価する。

## 2. 硝酸プルトニウム溶液燃料の温度反応度係数の詳細解析

### 2.1 計算条件

溶液燃料の温度反応度係数を計算するにあたっては、溶液燃料の組成、形状が大きく影響する。即ち、温度上昇に伴う密度の減少は、中性子の漏れを増加させるが、これは形状に大きく依存する。また、密度の減少により溶液は膨張するが、この反応度効果は溶液が膨張する方向のバックリングに大きく依存する。これに更に燃料組成(プルトニウム濃度、プルトニウム同位体組成、硝酸濃度など)の影響も考慮しなければならない。本章では、燃料組成を温度反応度係数の主要なパラメータとして、燃料組成による影響を中心に調べることにする。そこで、形状としては直径 100cm の無限長の円柱に固定して議論を行う。従って、温度上昇による密度変化は考慮するが、体積膨張による影響は考慮しないこととする。中性子の漏れは径方向のみであり、また、径が大きいことため漏れによる影響の効果は非常に小さい体系となっている。基準温度は 25°C とし、温度上昇時の温度は 55°C とした。

計算には SRAC コードシステム<sup>(3)</sup>、核データとしては JENDL-3.2 を用いた。燃料は均質で無限体系として NR 近似に基づく table look up 法を用いて実効マイクロ断面積を計算し、次に無限長の一次元円筒体系に対して ANISN を用いて 107 群のスペクトルを計算した。これを用いて 24 群の少数群定数を作成した。サーマルカットオフエネルギーは 1.8554eV とした。さらにこの群定数を用いて中性子輸送計算コード TWOTRAN により、25°C での随伴中性子束と 55°C での中性子束とを計算し、厳密摂動計算により、温度上昇に伴う反応度を計算した。ANISN、TWOTRAN とも輸送計算は  $S_0$ ,  $P_1$  で計算

を行った。原子個数密度の算出には Sakurai<sup>(4)</sup>らによる密度式を用いた。厳密摂動計算により、反応度は、ストリーミングの変化、核分裂反応の変化、吸収反応の変化、スペクトル変化の4つの成分に分解される。このうちスペクトル変化について式で表現すると

$$\sum_g \int_V d\mathbf{r} \phi^g(\mathbf{r}) \sum_{g'} \delta \Sigma_s^{g \rightarrow g'} (\psi^{g'}(\mathbf{r}) - \psi^g(\mathbf{r}))$$

となる。ここで  $\phi^g, \psi^g$  はそれぞれエネルギー-g群の中性子束と随伴中性子束とを表している。この式の意味するところは、随伴中性子束が低いエネルギー群から随伴中性子束の高いエネルギー群に散乱する散乱断面積が摂動により大きくなる時は正の効果を持つことを示している。より分かりやすい物理的イメージとしては、随伴中性子束が低いエネルギー群から高いエネルギー群に中性子のスペクトルがシフトするときには正の反応度が加えられることを意味している。

燃料条件としては、プルトニウム濃度が 10~120g/l の範囲とし、硝酸濃度は 3 規定とした。プルトニウムの同位体組成の影響を調べるため、<sup>239</sup>Pu が 100%のときと、重量比で <sup>239</sup>Pu が 75%、<sup>240</sup>Pu が 25%の場合を考えた。

## 2. 2 <sup>239</sup>Pu が 100%のときの結果

<sup>239</sup>Pu の組成が 100%のときに温度を 25°C から 55°C に上昇させたときの反応度の計算結果を、ストリーミング、核分裂、吸収、スペクトルシフトの各成分別に Table 1 に示す。プルトニウム濃度は 10, 15, 20, 40, 80, 120g/l とした。表に示す反応度の単位は  $\Delta k/k'$  であり、これは温度上昇前の実効増倍率の逆数から温度上昇後の実効増倍率の逆数の差をとったものである。この表より次のことが言える。ストリーミングの効果は常に負である。核分裂と吸収の効果は正負が逆で大きさはほとんど同じであり、ほとんど打ち消しあっている。スペクトルシフトの効果は 20g/l 以下では正の効果を持っている。トータルの反応度としては約 15g/l 以下で正になる。また、プルトニウム濃度を横軸にしたときの成分別の変化を Fig.1 に示す。ここでは核分裂と吸収の効果は表示していない。なおここでは正の効果を持つ体積膨張は考慮していないために、実際の反応度はこれよりも正のほう移行することになる。

ここで希薄なプルトニウム溶液でスペクトルシフトの効果が正になる現象について詳しく調べる。Fig.2 はプルトニウム濃度が 20g/l のときの 25°C と 55°C での熱エネルギー範囲での中性子スペクトルの分布を示している。比較のために 1eV 付近で規格化している。このスペクトルは ANISN を用いた 107 群の計算結果を示している。この図より温度上昇により中性子のスペクトルが僅かながら硬くなっているのが分かる。Fig.3 はプルトニウム濃度が 10~80g/l での随伴中性子束の熱エネルギー範囲でのエネルギー分布を示したものである。比較のために低エネルギー側で規格化している。10g/l のような希薄な溶液では <sup>239</sup>Pu の 0.3eV での共鳴エネルギーのところに随伴中性子側のピークを持っていることが分かる。これは、燃料が希薄な場合には、燃料による吸収、核分裂は 0.3eV 付近で主に起きるため、相対的にこの付近の中性子インポートランスが増加するからである。濃度が濃くなるに従いこの 0.3eV 付近の随伴中性子束のピークは小さくなり、80g/l では逆に共鳴吸収が強くなるために窪んでいることが分かる。また参考のために Fig. 4 には各濃度での熱エネルギーでの中性子スペクトルを示



す。比較のために高エネルギー側で規格化している。Fig.2 と Fig.3 を見比べれば次のことが言える。温度が上昇し、スペクトルが 0.3eV に近い側にシフトする。プルトニウム濃度が希薄な場合にはよりインポートランスが高い側にスペクトルがシフトすることになるので、スペクトルシフトの効果は正となる。しかし、濃度が濃くなると逆にインポートランスが低い側にシフトすることになり、スペクトルシフトの効果は負となる。

### 2. 3 $^{240}\text{Pu}$ が 25 wt.% のときの結果

ここまでの議論は、 $^{239}\text{Pu}$  の存在比が 100% の場合であった。STACY で予定されている実験では  $^{240}\text{Pu}$  が重量比で約 25% 存在している。現実には  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  など含まれるが、 $^{240}\text{Pu}$  は存在比が  $^{239}\text{Pu}$  の次に大きく、また 1eV に非常に大きな共鳴吸収のピークを持っているので、ここでは  $^{239}\text{Pu}$  と  $^{240}\text{Pu}$  だけを考慮する。Table 2 にはプルトニウム濃度が 10, 20, 25g/l のときの Table 1 と同様の結果を示す。 $^{239}\text{Pu}$  が 100% のときには 20 gPu/l で温度上昇による反応度が負であったのが、 $^{240}\text{Pu}$  が 25 wt.% のときには逆に正の反応度になっている。プルトニウム濃度が同じでも、 $^{240}\text{Pu}$  の存在量が多いと非安全側になることになる。これはプルトニウム濃度が同じでも、 $^{240}\text{Pu}$  が存在することにより  $^{239}\text{Pu}$  そのものが、 $^{240}\text{Pu}$  が存在しない場合に比べて希薄になっていることが一つの原因である。因みに  $^{239}\text{Pu}$  が 100% で 15 gPu/l の場合、 $^{240}\text{Pu}$  が 25 wt.% で 20 gPu/l の場合、 $^{240}\text{Pu}$  が 40 wt.% で 25 gPu/l の場合 (Table 2 参照) とでは、 $^{239}\text{Pu}$  の濃度は同じである。Table 1 と Table 2 で三者を比較すると、 $^{239}\text{Pu}$  が同じ濃度でも  $^{240}\text{Pu}$  が存在することにより、温度上昇による反応度は負から正に転じていることがわかる。この原因を検討すれば、スペクトルシフトの効果はあまり変化はない。一方、 $^{239}\text{Pu}$  が 100% のときには、核分裂減少分と吸収減少分の効果がほとんど打ち消し合っていたのが、 $^{240}\text{Pu}$  が存在することにより核分裂の減少分よりも、吸収の減少分の効果がのほがら大きくなっていることが分かる。この影響により  $^{239}\text{Pu}$  の濃度が同じでも、 $^{240}\text{Pu}$  が存在することにより温度反応度係数が正のほうに移行することになる。

### 2. 4 ガドリニウムを含む場合の温度反応度係数

ガドリニウムを含む場合として、ガドリニウム濃度 0.1g/l と 0.5g/l とを考えた。 $^{239}\text{Pu}$  が 100% の場合のガドリニウム濃度が 0.1g/l と 0.5g/l に対する温度反応度係数の計算結果をそれぞれ Table 3, 4 に示す。また、 $^{240}\text{Pu}$  が 25 wt.% のときのガドリニウム濃度が 0.1g/l と 0.5g/l に対する温度反応度係数の計算結果をそれぞれ Table 5, 6 に示す。これらの表よりガドリニウムを溶かしたことにより、温度反応度係数がガドリニウムを含まないときに正だったものが、正の値がより大きくなり、また負だったものがより高い濃度範囲で正に転じていることが分かる。成分別の値を評価すると、これはスペクトルシフトの効果が作用しているためであることが分かる。特にガドリニウム濃度が 0.5g/l のときには、プルトニウム濃度が 120g/l のときでもスペクトルシフトの効果が正になっている。これについて詳細に検討する。ガドリニウムを溶かしたことによる影響はプルトニウム組成にはあまり依存していないので、 $^{239}\text{Pu}$  100% のときについて議論する。まず、プルトニウム濃度 10g/l のときの中性子スペクトルを Fig.5 にガドリニウムなしとガドリニウム 0.5g/l のときについて示す。また、Fig.6 にはプルトニウム濃度 80g/l のときの同様の

グラフを示す。これらより、ガドリニウムを溶かすことにより熱中性子の大きなピークが抑制されていることが分かる。Figure 7にはプルトニウム濃度 80g/l, ガドリニウム濃度 0.5g/l のときの 25°Cと 55°Cでの熱エネルギー領域での中性子スペクトルについて示す。温度上昇により僅かながらスペクトルが硬くなっているのが分かる。Figure 8には、プルトニウム濃度が 10g/l で、ガドリニウムなしとガドリニウム濃度が 0.5g/l のときの熱エネルギー領域での随伴中性子束分布を示す。ガドリニウムが溶けたことにより 0.3eV 付近のインポートランスが大きく上昇しているのが分かる。Figure 9にはプルトニウム濃度が 80g/l のときの同様のグラフを示す。ガドリニウムがないときには 0.3eV 付近のインポートランスは大きく低下しているが、ガドリニウムを溶かしたことにより逆に 0.3eV 付近のインポートランスが大きく増加している。この傾向はプルトニウム濃度 120g/l のときにも見られる。これはガドリニウムが 0.1eV 以下のエネルギーで大きな吸収断面積を持っているので、相対的に  $^{239}\text{Pu}$  の 0.3eV の共鳴吸収の効果が高くなるためである。このようにガドリニウム入り溶液燃料での温度上昇によるスペクトルシフトの正の効果は、ガドリニウムを溶かすことにより、インポートランスの高い 0.3eV 付近にスペクトルがシフトするためであると言える。

### 3. STACY での臨界実験での温度反応度係数の解析

#### 3.1 計算対象

将来 STACY で予定されている硝酸プルトニウム溶液を用いた温度反応度係数測定実験の予備的な解析を行う。計算形状は内径 390mm, 590mm, 990mm の三種類の円筒炉心タンクについて行った。プルトニウム組成としては将来搬入が予定されている組成であって、平成 15 年の時点での組成である  $^{238}\text{Pu}:$  $^{239}\text{Pu}:$  $^{240}\text{Pu}:$  $^{241}\text{Pu}:$  $^{242}\text{Pu}=1.217:64.317:24.896:5.132:4.438$  (重量比)を採用した。またプルトニウム全重量に対する  $^{241}\text{Am}$  の重量比は 4.676%である。硝酸濃度は 3 規定とした。

#### 3.2 計算方法

計算方法は SRAC コードシステムを用いて行った。ANISN を用いてスペクトルを計算するところまでは前章と同じである。ここでは、ANISN で求めた 107 群のスペクトルから 16 群に縮約し、次に TWOTRAN の R-Z 体系の計算で実効増倍率を計算した。この計算方法で求めた実効増倍率が現実の臨界実験に対してどの程度のバイアスを持っているかを確かめるため、OECD/NEA の国際臨界安全ベンチマーク評価計画 (ICSBEP) のハンドブックにある文献番号 PU-SOL-THERM-022 に掲載されているフランスの Valduc で実施されたプルトニウム溶液燃料の臨界実験の実効増倍率を解析した。この実験は、水反射体付で円環形状の炉心タンクを用いており、9 個の臨界データが掲載されている。Figure 10 に実験装置の概要を示す。プルトニウム濃度は 30~152g/l で、硝酸濃度は 1.9~3.9 規定、 $^{240}\text{Pu}$  の重量比が 19wt.%であり、本解析が対象としている体系に近い。計 9 ケースに対して上で述べた方法で実効増倍率を計算した。結果を Table 7 に示す。これらの平均をとって、1.0132 が本解析で臨界になる実効増倍率とした。

温度反応度係数の計算方法は次の通りである。25, 35, 50°Cの三つの温度点に対して実効増倍率を計算する。この際、温度上昇による液位の上昇も考慮に入れる。三つの温度点での反応度から

$$\rho \left( = 1/k_{\text{eff}}^0 - 1/k'_{\text{eff}} \right) = aT^2 + bT + c$$

での係数 a, b, c を求め、25°Cでの温度反応度係数 dp/dT を

$$dp/dT = 2aT + b = 2a \times 25 + b \quad (\Delta k/k/k'/^\circ\text{C})$$

として計算した。

### 3. 3 臨界状態に対する温度反応度係数

3. 2での結果をもとにして、内径 390mm, 590mm, 990mm の三種類の裸の炉心タンクに対して、臨界になる燃料液位と燃料濃度との関係求めた。結果を Fig.11 に示す。実験の制約上、燃料濃度は 300gPu/l 以下、燃料液位は 40~140cm となっているので、内径 990mm のタンクでは約 24gPu/l 以下で、内径 590mm のタンクでは約 40gPu/l 以下 250gPu/l 以上で、また、内径 390mm のタンクでは 60~140gPu/l の範囲で実験が可能になる。三つの炉心タンクに対して、実験が可能範囲で、温度反応度係数を計算した。結果を Table 8 に示す。内径 390mm と 590mm のタンクでは実験可能な範囲では温度反応度係数は常に負となる。内径 990mm のタンクでは、燃料濃度が 20gPu/l を下回る時に正の温度反応度係数が得られる。これは、燃料濃度が希薄になっていることに加えて、タンクの径が大きいため漏れの負の効果が小さくなっているためである。これにより内径 990mm のタンクを使用すればプルトニウム溶液の正の温度反応度係数が測定できることが分かった。

### 3. 4 毒物入りプルトニウム溶液での温度反応度係数

内径 390mm で水反射体付の円筒炉心タンクにおいて、ガドリニウム、ボロンなどの毒物を含むプルトニウム溶液の温度反応度係数を解析した。両毒物の吸収効果を調べるために、異なるプルトニウム濃度に対して液位 100cm で臨界になる毒物の濃度を求めた。結果を Table 9 に示す。この結果をもとに液位を 100cm に固定し、ガドリニウム濃度 0.04g/l と 0.25g/l について、またボロン濃度 0.1g/l と 0.5g/l の場合について、プルトニウム濃度 50~200g/l の範囲で温度反応度係数を計算した。結果を Table 10, 11, Fig. 12, 13 に示す。ガドリニウム、ボロンともに毒物が高濃度では 120gPu/l でも温度反応度係数は正になり、毒物の濃度が低くなるにつれて、温度反応度係数が正になるプルトニウム濃度は低くなる。

## 4. 結論

20gPu/l を下回る希薄なプルトニウム溶液燃料では、 $^{239}\text{Pu}$  の共鳴により 0.3eV 付近の中性子のインポートランスが高くなる。溶液の温度が上昇し、密度が減少すると、熱エネルギー領域での中性子スペクトルが僅かながら硬くなり、0.3eV 付近での反応が増えることになる。このことが希薄なプルトニウム溶液燃料が正の温度反応度係数を持つことの原因である。温度反応度係数は、漏れの効果や体積膨張効果など形状に依存するため、一概には言えないが、直径 100cm の無限長の円筒体系では、 $^{239}\text{Pu}$ 100%、15gPu/l 未満で正の温度反応度係数を持つことが分かった。濃度が濃くなると、逆に 0.3eV 付近のインポートランスは周りのエネルギーよりも低下するため、スペクトルシフトの効果は負に

なる。 $^{240}\text{Pu}$  を含む場合には、同濃度の  $^{239}\text{Pu}$  を含む場合と比べてスペクトルシフト効果はあまり変わらないが、吸収反応減少分が、核分裂反応減少分よりも大きくなる。従って、同濃度の  $^{239}\text{Pu}$  を含む場合よりも温度反応度係数が正になるプルトニウム濃度は高くなる。

プルトニウム溶液にガドリニウムを溶かすと、120gPu/l の高い濃度でも 0.3eV 付近にインポートタンクがピークを持つようになり、温度上昇によりスペクトルシフトの効果が正となる。このためより高いプルトニウム濃度でも正の温度反応度係数を持つようになる。

STACY で実験が予定されているプルトニウム溶液の組成を用いて、温度反応度係数を求める予備解析を行った。内径 390mm と 590mm のタンクでは、実験可能な範囲では温度反応度係数は常に負であることが分かった。また、内径 990mm のタンクでは 20gPu/l を下回る濃度で正の温度反応度係数が得られることが分かった。

STACY の内径 390mm の水反射体付炉心タンクで、ガドリニウムやボロンを溶かした場合には、高濃度で毒物を溶かせば、120gPu/l を超える溶液燃料でも正の温度反応度係数が得られることを示した。

#### 参考文献

- (1) Suzuki, T. *et al.*: "Evaluation of temperature and void coefficient of reactivity in homogeneous solution fuel systems," *Proc. of International Seminar on Nuclear Criticality Safety*, Tokyo, Japan. p.383 (1987).
- (2) Miyoshi, Y. *et al.*: "Temperature effect on reactivity in light water moderated  $\text{UO}_2$  cores with soluble poisons," *J. Nucl. Sci. Technol.*, **29**(12), p.1201 (1992).
- (3) 奥村啓介他: "SRAC95; 汎用核計算コードシステム" JAERI-Data/Code 96-015 (1996)
- (4) Sakurai, S. *et al.*: "Density equation of aqueous solution containing plutonium (IV), uranium (VI) and nitric acid," *J. Nucl. Sci. Technol.*, **33**, 187 (1996).
- (5) Poullot, G. *et al.*, "Criticality of plutonium nitrate solution in a water-reflected annular cylinder, 50/20-cm diameters ( $19\%^{240}\text{Pu}$ )," *Int. Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments*, NEA/NSC/DOC(95)03, PU-SOL-THERM-022 (1998).

Table 1.  $^{239}\text{Pu}$ 100%の硝酸プルトニウム溶液を25°Cから55°Cに昇温したときの  
反応度の各成分

成分	Pu 濃度 (g/l)					
	10	15	20	40	80	120
ストリーミング	-1.823E-03 <sup>a</sup>	-1.531E-03	-1.388E-03	-1.191E-03	-1.125E-03	-1.126E-03
核分裂	-2.012E-02	-1.713E-02	-1.565E-02	-1.348E-02	-1.248E-02	-1.221E-02
吸収	1.955E-02	1.671E-02	1.538E-02	1.348E-02	1.269E-02	1.245E-02
スペクトルシフト	4.411E-03	1.791E-03	5.175E-04	-1.216E-03	-1.691E-03	-1.597E-03
計	2.022E-03	-1.680E-04	-1.140E-03	-2.406E-03	-2.607E-03	-2.482E-03

<sup>a</sup> -0.001823と読む。単位  $\Delta k/k/k'$

Table 2. 硝酸プルトニウム溶液を25°Cから55°Cに昇温  
したときの反応度の各成分の $^{240}\text{Pu}$ の影響

成分	$^{240}\text{Pu}$ 25wt.%			$^{240}\text{Pu}$ 40wt.%
	Pu濃度 (g/l)			Pu濃度 (g/l)
	10	20	25	25
ストリーミング	-2.267E-03 <sup>a</sup>	-1.702E-03	-1.593E-03	-1.838E-03
核分裂	-2.486E-02	-1.908E-02	-1.799E-02	-2.070E-02
吸収	2.446E-02	1.929E-02	1.829E-02	2.111E-02
スペクトルシフト	7.160E-03	1.613E-03	4.724E-04	1.736E-03
計	4.497E-03	1.191E-04	-8.223E-04	3.016E-04

<sup>a</sup> -0.002267と読む。単位  $\Delta k/k/k'$

Table 3.  $^{239}\text{Pu}$ 100%, Gd濃度0.1g/lの硝酸プルトニウム溶液を25°Cから  
55°Cに昇温したときの反応度の各成分

成分	Pu 濃度 (g/l)				
	10	20	40	80	120
ストリーミング	-2.225E-03 <sup>a</sup>	-1.580E-03	-1.281E-03	-1.164E-03	-1.149E-03
核分裂	-2.497E-02	-1.792E-02	-1.449E-02	-1.289E-02	-1.244E-02
吸収	2.399E-02	1.736E-02	1.424E-02	1.294E-02	1.257E-02
スペクトルシフト	1.449E-02	5.370E-03	1.028E-03	-7.399E-04	-1.058E-03
計	1.129E-02	3.222E-03	-4.983E-04	-1.854E-03	-2.074E-03

<sup>a</sup> -0.002225と読む。単位  $\Delta k/k/k'$

Table 4.  $^{239}\text{Pu}$ 100%, Gd濃度0.5g/lの硝酸プルトニウム溶液を25°Cから55°Cに昇温したときの反応度の各成分

成分	Pu 濃度 (g/l)				
	10	20	40	80	120
ストリーミング	-3.586E-03 <sup>a</sup>	-2.415E-03	-1.591E-03	-1.303E-03	-1.232E-03
核分裂	-4.090E-02	-2.548E-02	-1.792E-02	-1.434E-02	-1.328E-02
吸収	3.595E-02	2.293E-02	1.663E-02	1.381E-02	1.300E-02
スペクトルシフト	4.603E-02	2.071E-02	8.254E-03	2.426E-03	7.807E-04
計	3.749E-02	1.592E-02	5.381E-03	5.927E-04	-7.388E-04

<sup>a</sup> -0.003586と読む。単位  $\Delta k/k/k'$

Table 5.  $^{240}\text{Pu}$ 25%, Gd濃度0.1g/lの硝酸プルトニウム溶液を25°Cから55°Cに昇温したときの反応度の各成分

成分	Pu 濃度 (g/l)				
	10	20	40	80	120
ストリーミング	-2.820E-03 <sup>a</sup>	-1.972E-03	-1.584E-03	-1.451E-03	-1.451E-03
核分裂	-3.158E-02	-2.234E-02	-1.799E-02	-1.621E-02	-1.591E-02
吸収	3.086E-02	2.228E-02	1.836E-02	1.713E-02	1.709E-02
スペクトルシフト	2.092E-02	8.346E-03	1.946E-03	-1.235E-03	-2.183E-03
計	1.737E-02	6.315E-03	7.326E-04	-1.773E-03	-2.453E-03

<sup>a</sup> -0.002820と読む。単位  $\Delta k/k/k'$

Table 6.  $^{240}\text{Pu}$ 25%, Gd濃度0.5g/lの硝酸プルトニウム溶液を25°Cから55°Cに昇温したときの反応度の各成分

成分	Pu 濃度 (g/l)				
	10	20	40	80	120
ストリーミング	-4.695E-03 <sup>a</sup>	-2.902E-03	-2.039E-03	-1.663E-03	-1.583E-03
核分裂	-5.365E-02	-3.311E-02	-2.308E-02	-1.849E-02	-1.727E-02
吸収	4.799E-02	3.049E-02	2.215E-02	1.865E-02	1.789E-02
スペクトルシフト	6.371E-02	2.949E-02	1.217E-02	3.449E-03	6.435E-04
計	5.335E-02	2.397E-02	9.203E-03	1.945E-03	-3.177E-04

<sup>a</sup> -0.004695と読む。単位  $\Delta k/k/k'$

Table 7. PU-SOL-THERM-022 実効増倍率計算結果

Case No.	Pu濃度 (g/l)	硝酸濃度 (N)	臨界液位 (cm)	$k_{\text{eff}}$
1	152.0	3.85	36.88	1.01138
2	104.0	2.65	34.31	1.01234
3	62.0	1.88	37.13	1.01028
4	51.0	1.85	41.08	1.01126
5	40.9	1.87	49.16	1.01292
6	36.0	1.90	57.65	1.01389
7	33.1	1.90	66.64	1.01561
8	30.8	1.88	77.31	1.01625
9	28.7	1.94	93.34	1.01464

Table 8. STACY裸炉心タンクでの温度反応度係数

タンク内径 (mm)	液位 (cm)	Pu濃度 (g/l)	温度反応度係数 ( $\Delta k/k/k/^{\circ}\text{C}$ )
390	140	62	-2.794E-04 <sup>a</sup>
	96.56	80	-2.887E-04
	95.75	100	-2.951E-04
590	140	23.46	-7.847E-05
	100	24.46	-8.284E-05
	70	27.25	-9.681E-05
990	140	17.72	5.215E-05
	70	19.46	3.250E-05
	40	25.20	-1.112E-05

<sup>a</sup> -0.0002794と読む。

Table 9. 液位100cmでの臨界になる毒物濃度  
390mm $\Phi$  水反射体付

毒物	Pu濃度 (g/l)	臨界毒物濃度 (g/l)
Gd	50	0.0391
	60	0.0742
	80	0.136
	120	0.228
	200	0.267
B	50	0.127
	60	0.234
	80	0.411
	120	0.627
	200	0.629

Table 10. ガドリニウムを含む硝酸プルトニウム溶液の温度反応度係数  
(液位100cm, 390mm $\Phi$ , 水反射体付)

Gd濃度 (g/l)	Pu濃度 (g/l)	温度反応度係数 ( $\Delta k/k/k/^{\circ}C$ )
0.04	50	4.377E-05 <sup>a</sup>
	60	2.407E-05
	80	-4.081E-07
	120	-1.756E-05
	200	-2.423E-05
0.25	50	2.956E-04
	60	2.295E-04
	80	1.451E-04
	120	6.920E-05
	200	1.777E-05

<sup>a</sup> 0.00004377と読む。



Table 11. ボロンを含む硝酸プルトニウム溶液の温度反応度係数  
(液位100cm, 390mmΦ, 水反射体付)

B濃度 (g/l)	Pu濃度 (g/l)	温度反応度係数 ( $\Delta k/k/k/^{\circ}C$ )
0.1	50	1.357E-05 <sup>a</sup>
	60	-3.810E-07
	80	-1.646E-05
	120	-2.633E-05
	200	-2.748E-05
0.5	50	1.065E-04
	60	7.746E-05
	80	4.109E-05
	120	1.035E-05
	200	-7.204E-06

<sup>a</sup> 0.00001357と読む。

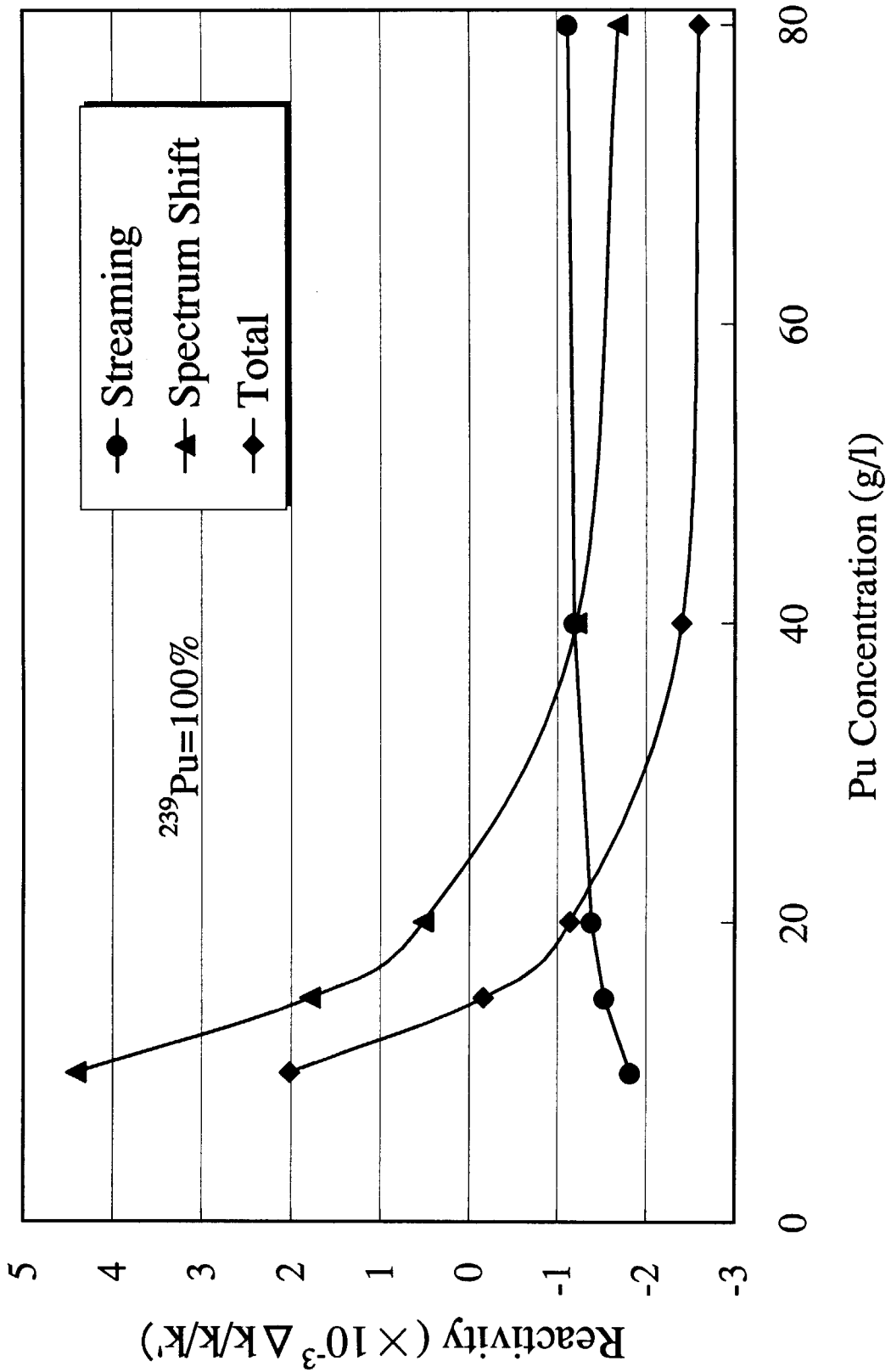


Fig. 1 温度係数のストリーミングとスペクトルシフト成分の濃度依存性

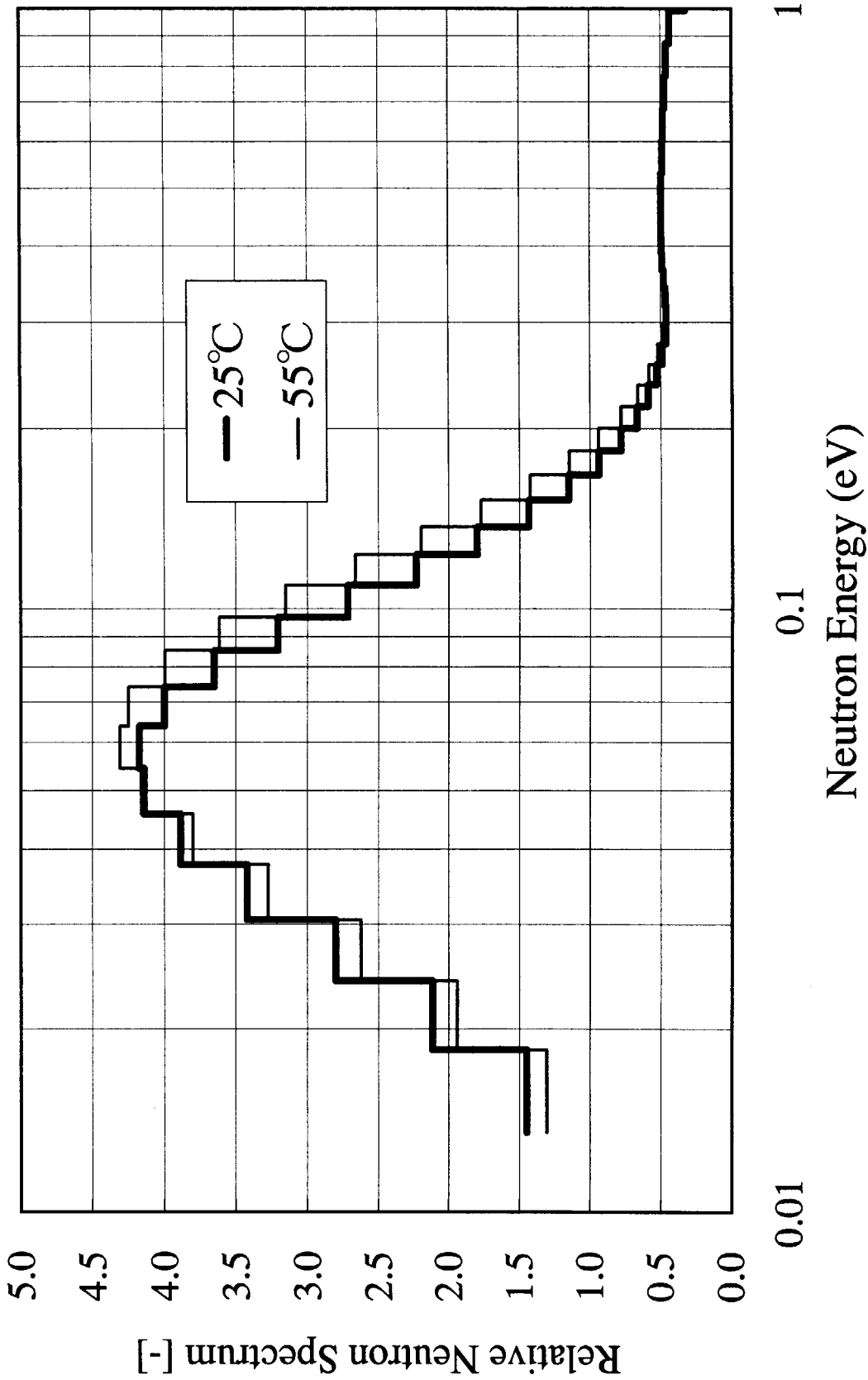


Fig.2 プルトリウム濃度20g/lにおけるスペクトルの溶液温度の影響

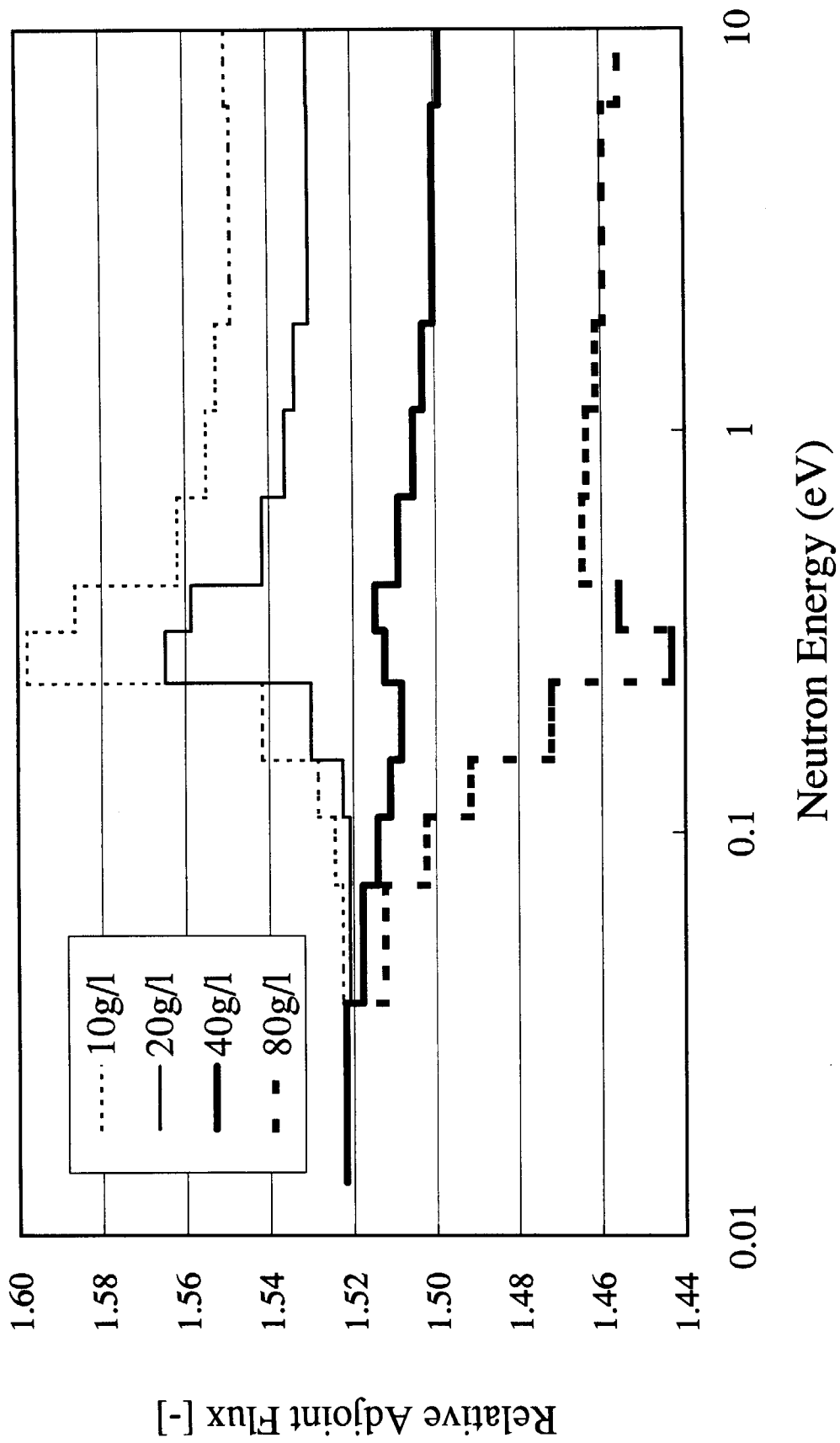


Fig.3 プルトニウム濃度ごとの随伴中性子束のエネルギー依存性

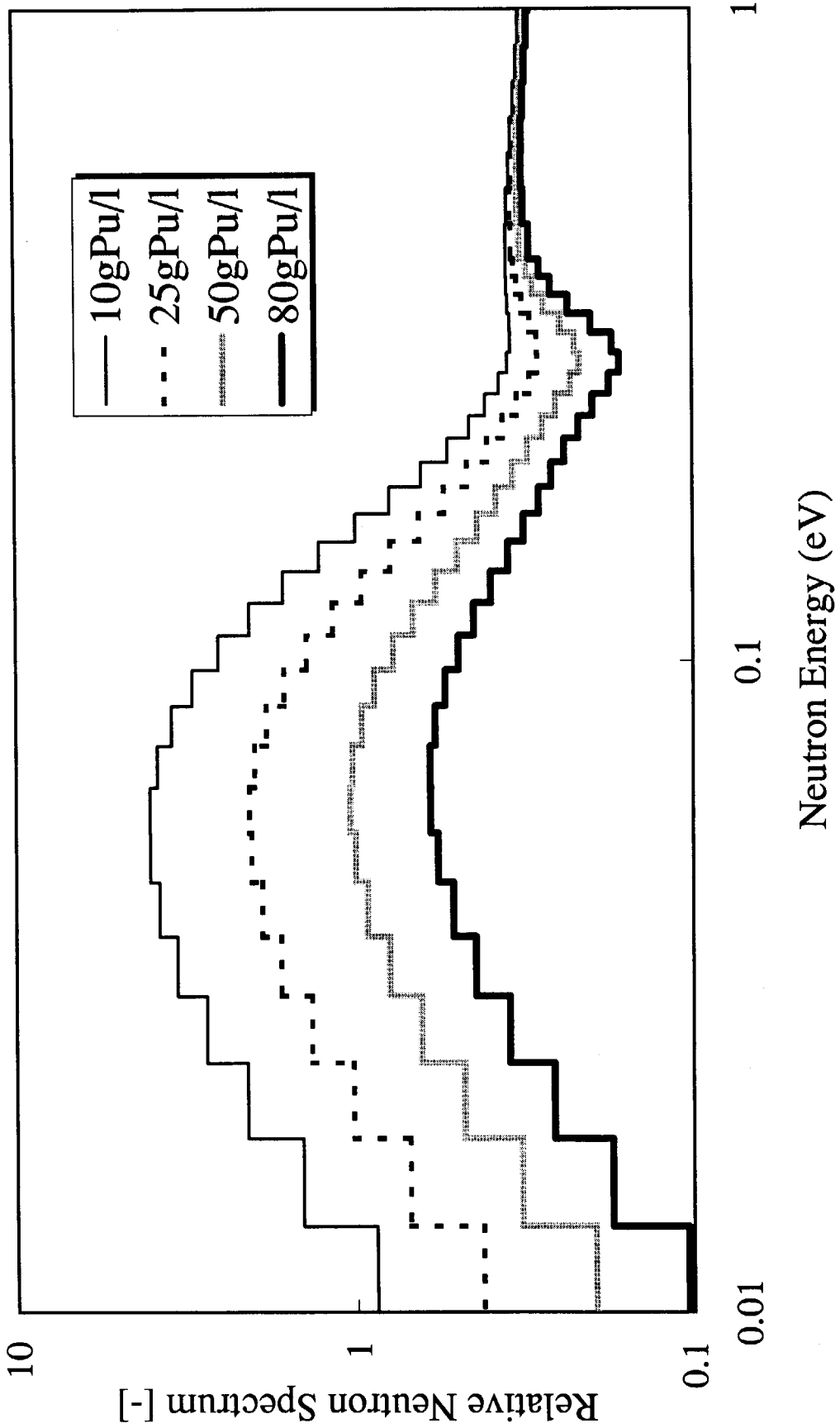


Fig. 4  $^{239}\text{Pu}$  100wt%のときの中性子スペクトル

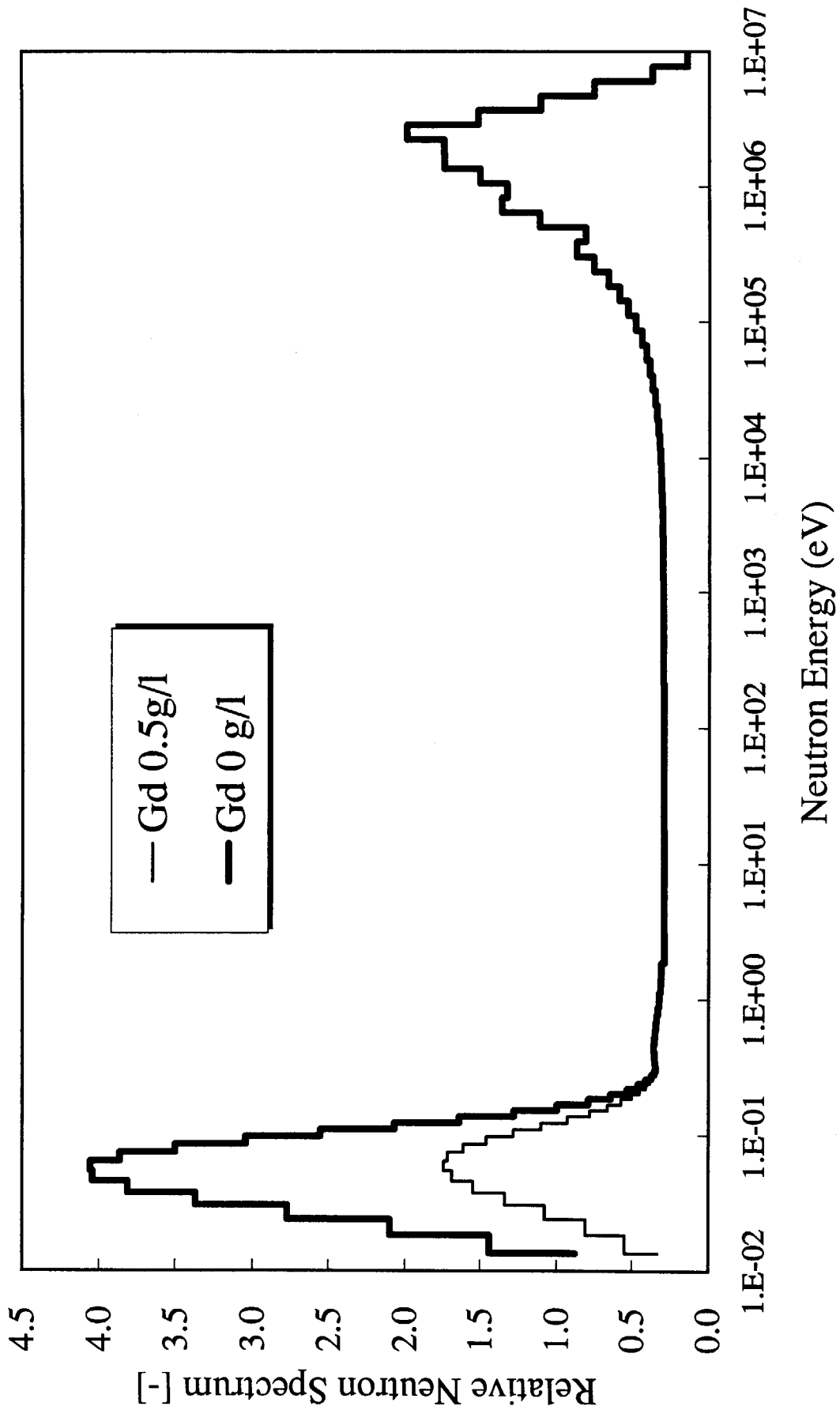
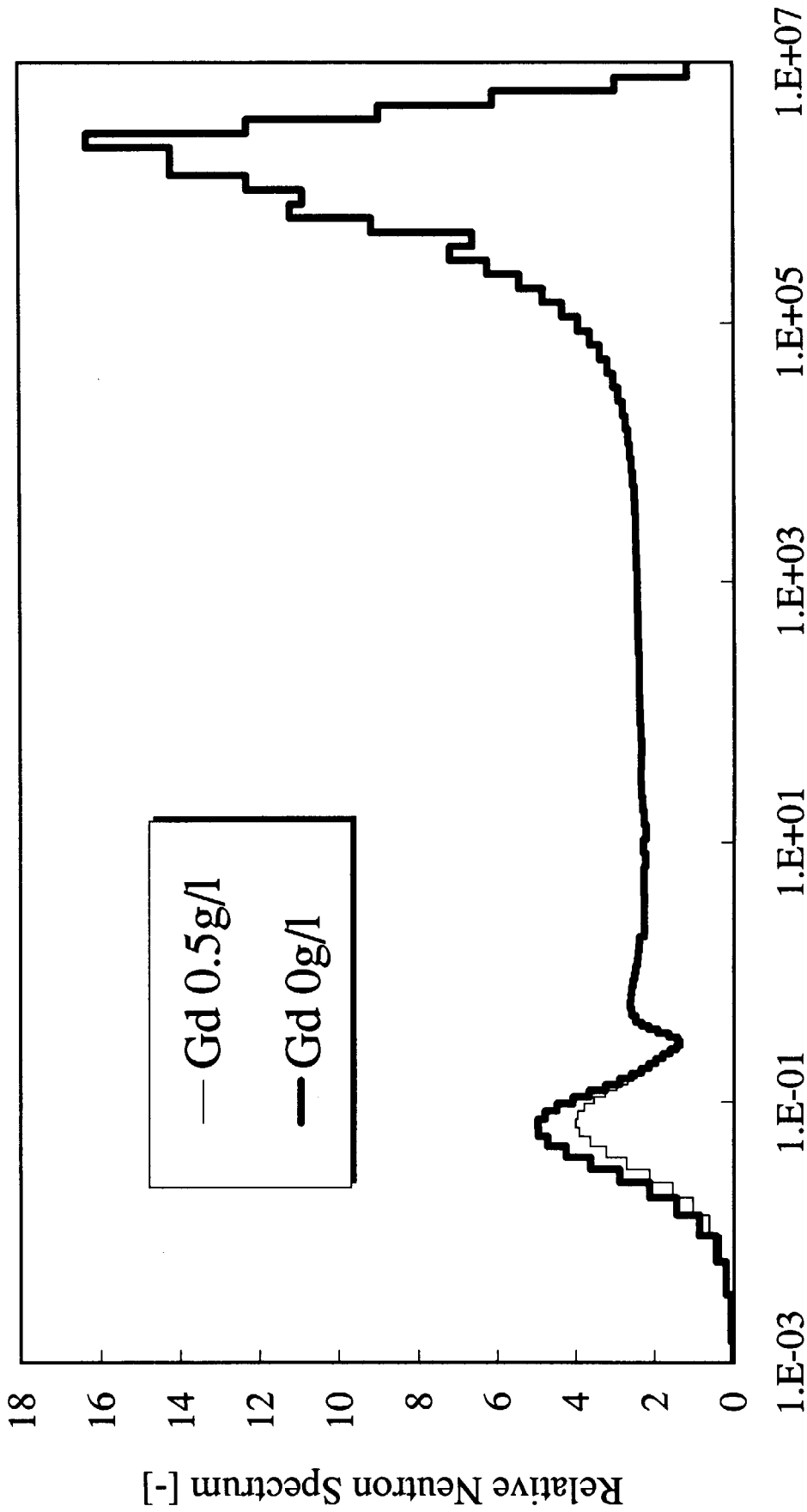


Fig. 5 10Pu g/l  $^{239}\text{Pu}$  100%での中性子スペクトル



Neutron Energy (eV)

Fig. 6 80Pu g/l  $^{239}\text{Pu}$  100%での中性子スペクトル

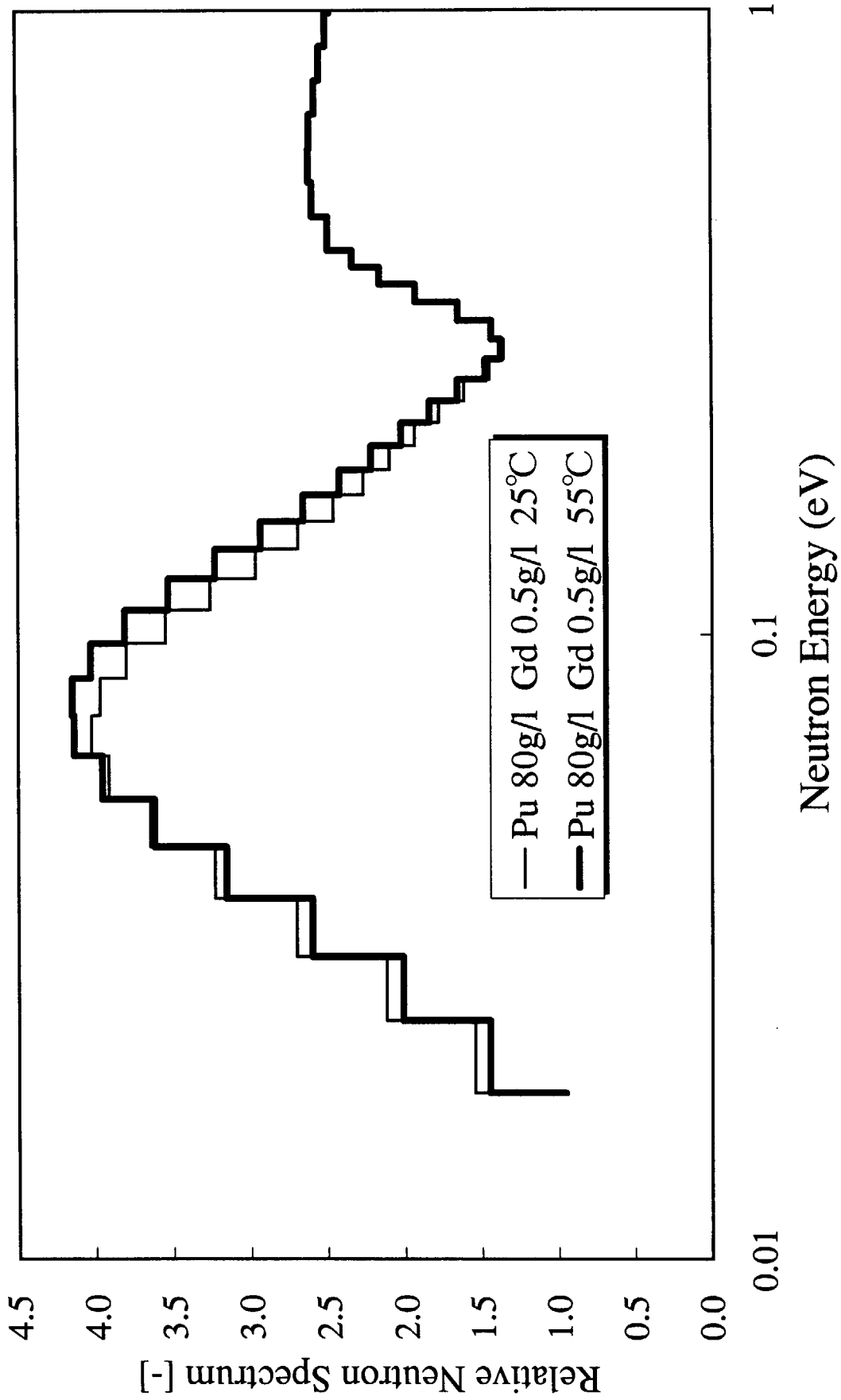


Fig. 7 80Pu/g/l, <sup>239</sup>Pu 100%, Gd 0.5g/lでの中性子スペクトル



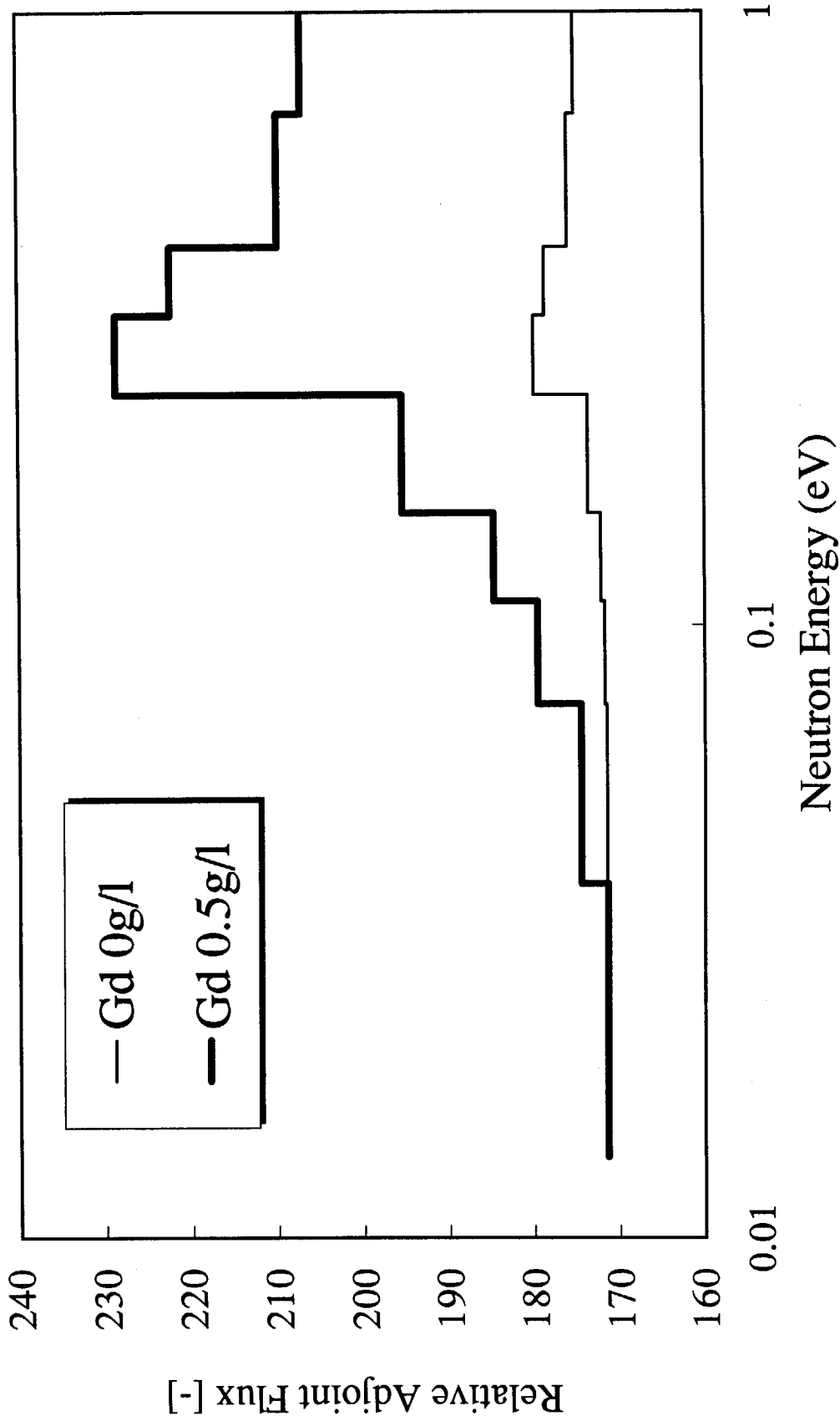


Fig.8 10gPu/lでの随伴中性子束の相対分布

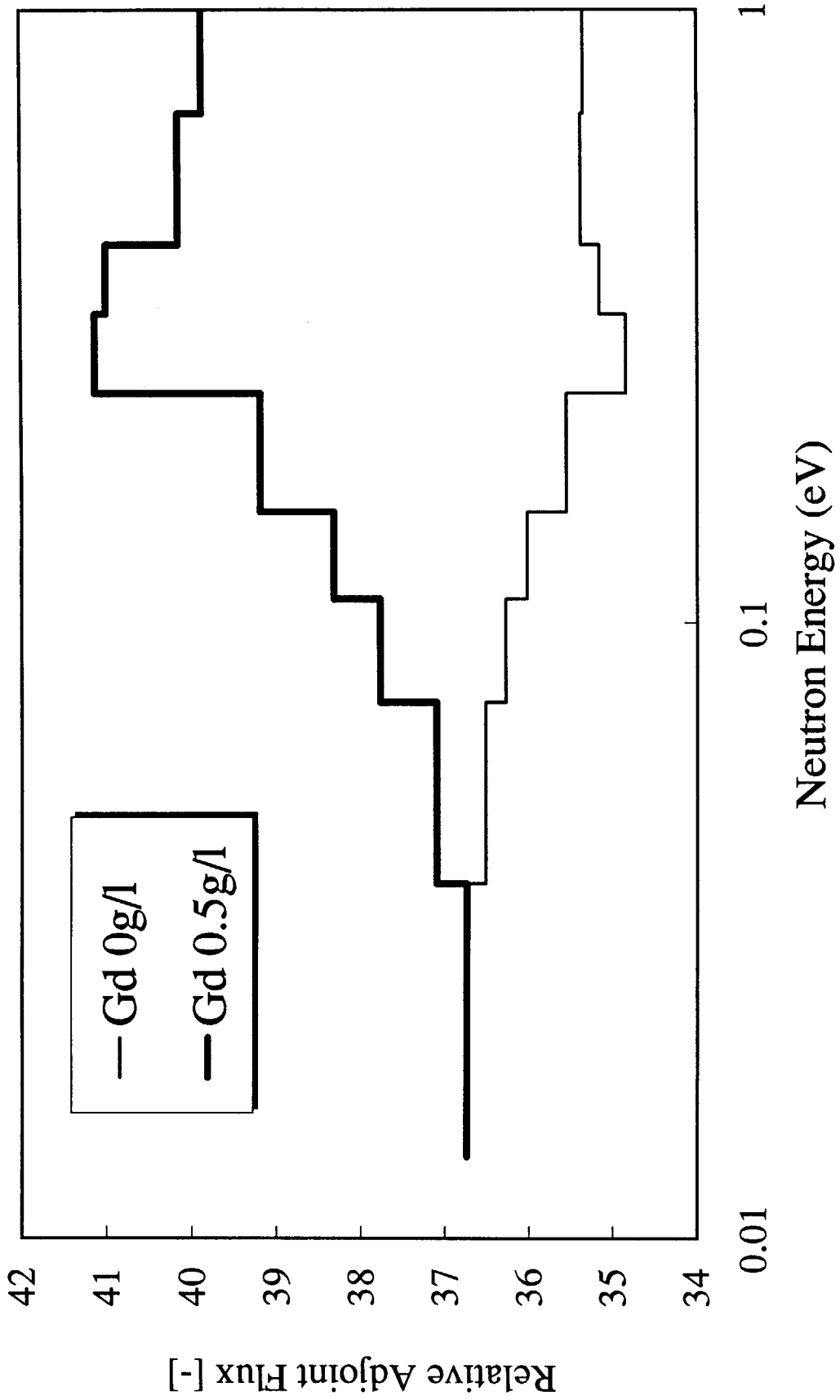
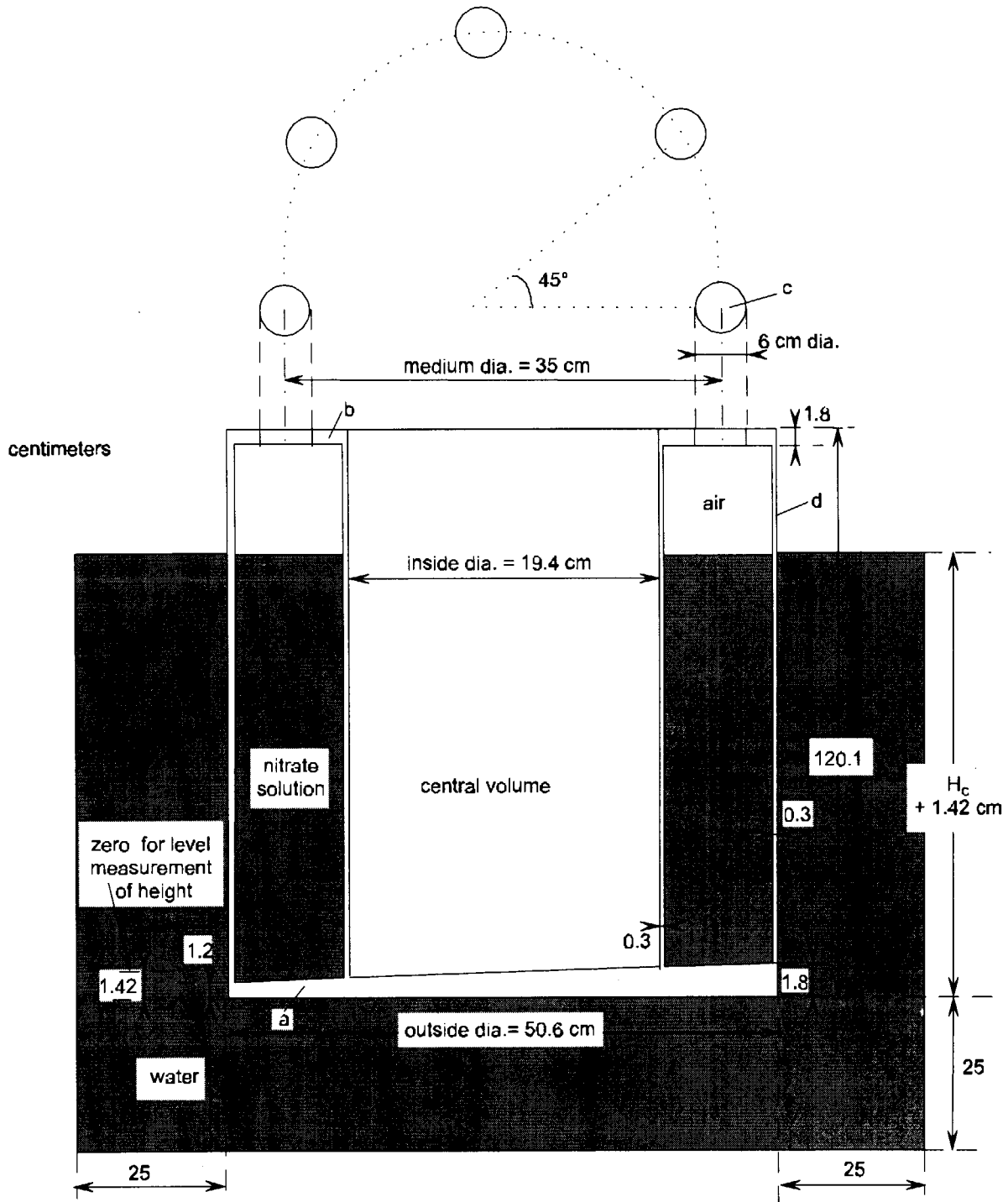


Fig. 9 80gPu/lでの随伴中性子束の相対分布



- a: bottom plate (stainless steel), thickness from 1.2 to 1.8 cm  
 b: top plate (stainless steel), thickness 1.8 cm  
 c: hole 6 cm dia. - 8 holes, each at 45°, centered on the circle 35 cm in diameter  
 d: wall (stainless steel)  
 central volume: 1) air 2) cadmium sheet: 19.24/19.4 cm dia. + paraffin: 19.24 cm dia.

Fig.10 ベンチマークモデル体系図

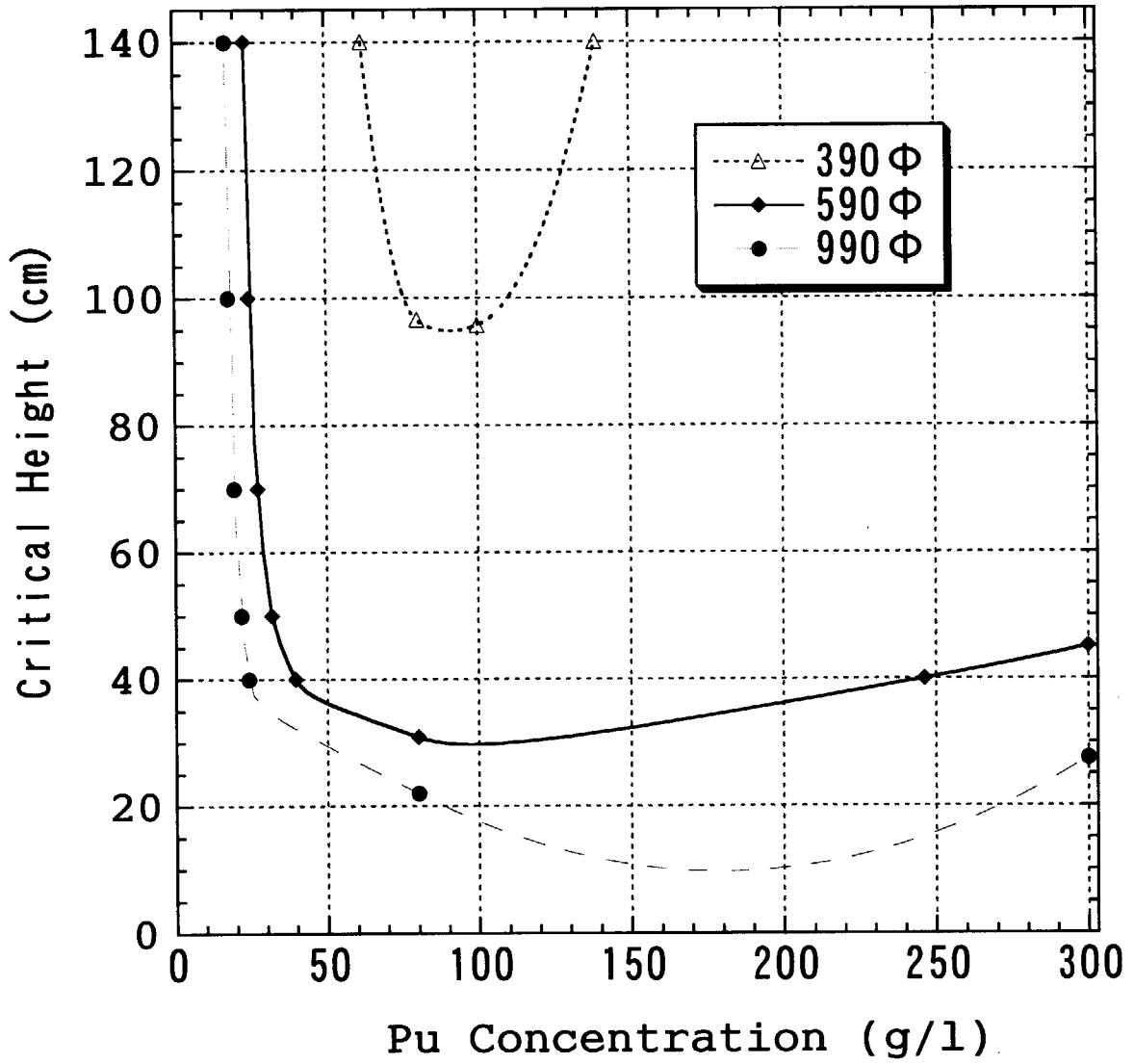


Fig. 11 プルトニウム濃度と臨界液位の関係

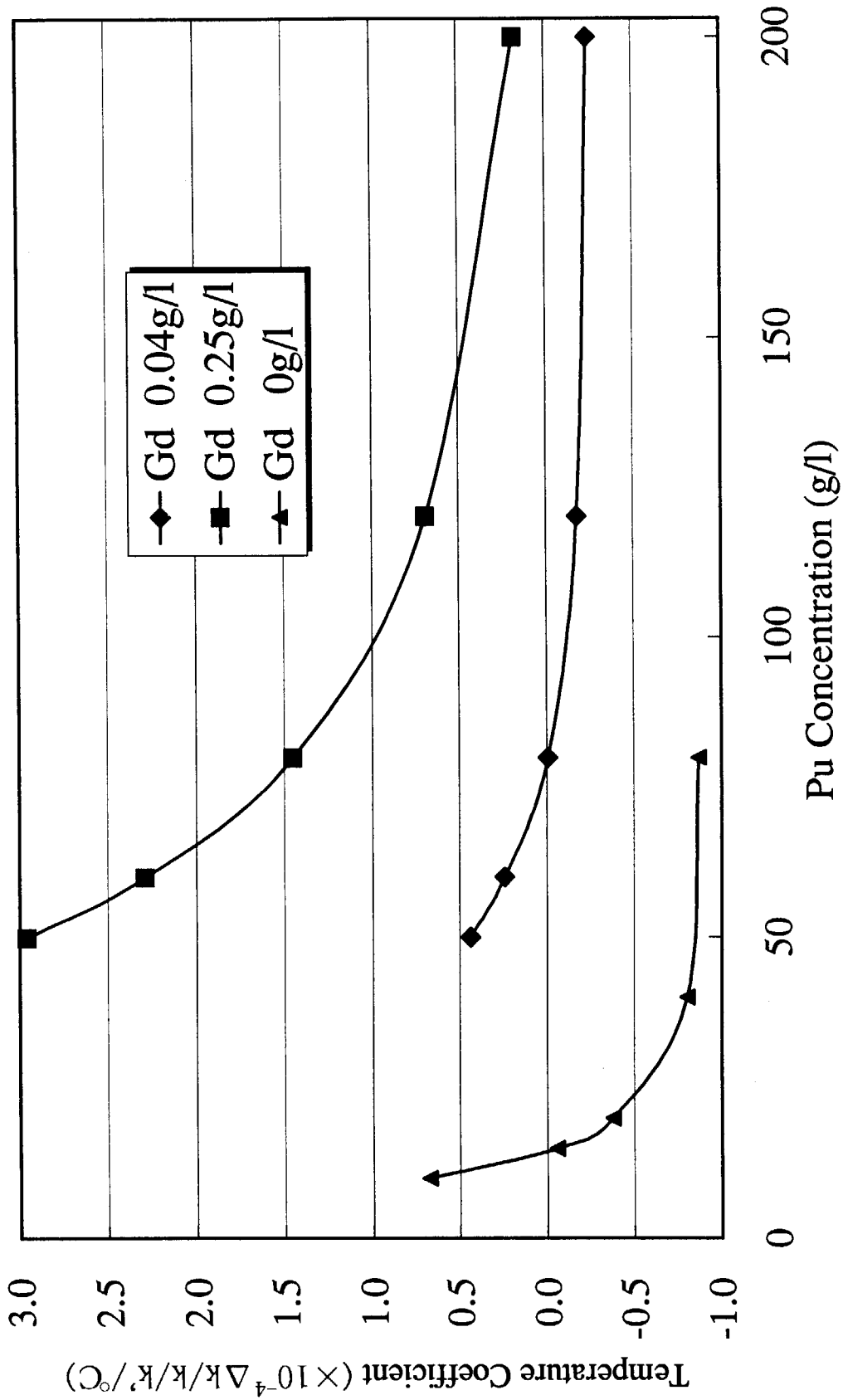


Fig. 12 ガドリニウム入り硝酸プルトニウム溶液の温度反応度係数

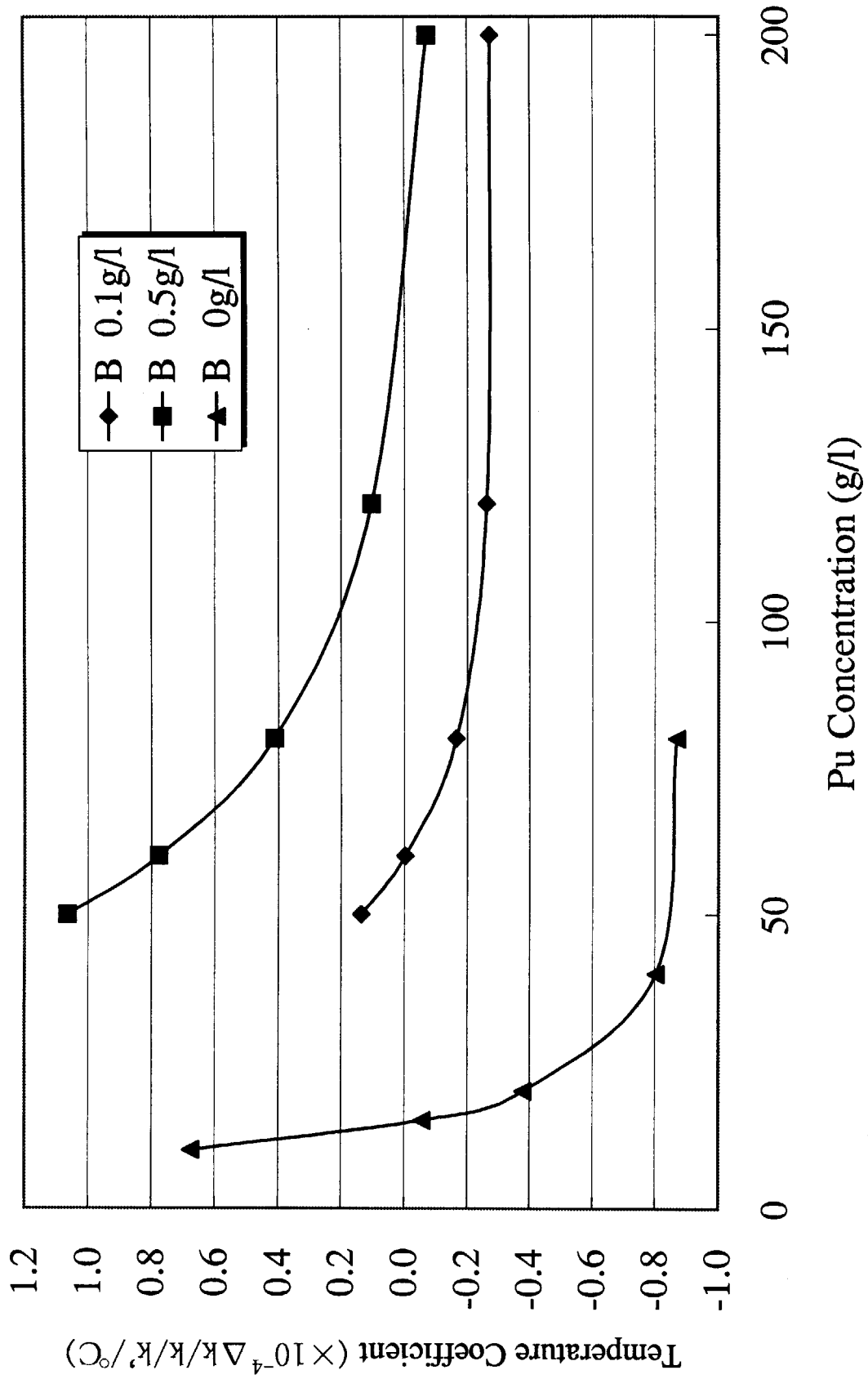


Fig. 13 ボロン入り硝酸プルトニウム溶液の温度反応度係数

# 国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

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

表3 固有の名称をもつSI組立単位

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

表2 SIと併用される単位

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

1 eV=1.60218×10<sup>-19</sup>J  
1 u=1.66054×10<sup>-27</sup>kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バー	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å=0.1nm=10<sup>-10</sup>m  
1 bar=100kPa=10<sup>5</sup>Pa  
1 Gal=1cm/s<sup>2</sup>=10<sup>-2</sup>m/s<sup>2</sup>  
1 Ci=3.7×10<sup>10</sup>Bq  
1 R=2.58×10<sup>-4</sup>C/kg  
1 rad=0.01Gy=10<sup>-2</sup>Gy  
1 rem=0.01Sv=10<sup>-2</sup>Sv

表5 SI接頭語

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

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1 eVおよび1 uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- F・C関係理事会指令ではbar, barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

## 換 算 表

力	N (=10 <sup>5</sup> dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘 度 1 Pa·s(N·s/m<sup>2</sup>)=10 P(ポアズ)(g/(cm·s))

動粘度 1 m<sup>2</sup>/s=10<sup>4</sup>St(ストークス)(cm<sup>2</sup>/s)

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

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 <sup>7</sup> erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778×10 <sup>-7</sup>	0.238889	9.47813×10 <sup>-4</sup>	0.737562	6.24150×10 <sup>18</sup>
	9.80665	1	2.72407×10 <sup>-6</sup>	2.34270	9.29487×10 <sup>-3</sup>	7.23301	6.12082×10 <sup>19</sup>
	3.6×10 <sup>6</sup>	3.67098×10 <sup>5</sup>	1	8.59999×10 <sup>7</sup>	3412.13	2.65522×10 <sup>6</sup>	2.24694×10 <sup>25</sup>
	4.18605	0.426858	1.16279×10 <sup>-6</sup>	1	3.96759×10 <sup>-3</sup>	3.08747	2.61272×10 <sup>19</sup>
	1055.06	107.586	2.93072×10 <sup>-4</sup>	252.042	1	778.172	6.58515×10 <sup>21</sup>
	1.35582	0.138255	3.76616×10 <sup>-7</sup>	0.323890	1.28506×10 <sup>-3</sup>	1	8.46233×10 <sup>18</sup>
	1.60218×10 <sup>19</sup>	1.63377×10 <sup>20</sup>	4.45050×10 <sup>20</sup>	3.82743×10 <sup>20</sup>	1.51857×10 <sup>22</sup>	1.18171×10 <sup>19</sup>	1

1 cal= 4.18605J (計量法)  
= 4.184J (熱化学)  
= 4.1855J (15°C)  
= 4.1868J (国際蒸気表)  
仕事率 1 PS(仏馬力)  
= 75 kgf·m/s  
= 735.499W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10 <sup>-11</sup>
	3.7×10 <sup>10</sup>	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10 <sup>-4</sup>	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

硝酸フルトニウム溶液の温度反応係数の解析 (委託研究)