

資料紹介

"Nuclear Criticality Safety Guide" LA-12808 の完成

日本原子力研究所

小室 雄一

e-mail:komuro@jrr3fep2.tokai.jaeri.go.jp

"Nuclear Safety Guide TID-7016 Rev.2" は、米国で編集された臨界安全指針である。日本でも "TID" と略称で呼ばれ、馴染みの深い文献である。これの改訂作業が行なわれていることを数年前に知ったが、とうとう出来上がって、私のもとにも届いた。"...Rev.2" の次の版のタイトルは当然 "...Rev.3" になるものと予想していた。しかし、それは見事にはずれ、"Nuclear Criticality Safety Guide" LA-12808 になり、Revision 番号はなくなった。

1. はじめに

1996年11月5日、大きな(30cm×30cm×60cm)段ボール箱が国際宅急便で突然届いた。発送者はロスアラモス国立研究所の Nuclear Criticality Safety グループのリーダーの Thomas P. McLaughlin 氏。「LA-12808 を届ける前に、このたび再生したこれまでの "Nuclear Safety Guide"(4冊で一式、名称は "Nuclear Safety Guide Collection") を10部送る。すぐ後に届く最新版と併せて技術的な参考文献として活用して欲しい。」との内容の手紙が添えられていた。以下では、過去の4つの "Nuclear Safety Guide" 及び LA-12808 について紹介する。これらの簡単な比較を表1にまとめた。

2. 各 "Nuclear (Criticality) Safety Guide" の概要

LA-2063 4人のパイオニア Callihan(ORNL)、Ozeroff(Hanford Works)、Paxton(LASL)、Schuske(Rocky Flats) によって編集された。臨界安全の分野における "Granddaddy" standard と呼ばれている。この文書は非公開扱いであった。原研の図書館にも所蔵されていない。記載されている臨界データ(実際には制限値)はすべて実験に基づいたものである。本文で述べているように、当時は、臨界量を正確に計算するコードや断面積データが十分に整っていなかったのである。臨界データの一例を TABLE I. (以下図表の番号は、引用先のをそのまま使用する。) に示す。この表は、²³⁵U、²³⁹Pu 及び ²³³U の臨界制限質量を、3種類の中性子反射条件別に示している。thick water

reflector は厚さ 6 インチ以上の水、nominal reflector は燃料受入れ容器の周囲に設けられた冷却ジャケットを想定した厚さ 1 インチの水、minimal reflector は容器やその周辺にあるステンレス鋼のパイプ類を想定した厚さ 1/8 インチのステンレス鋼である。この表の後に球体積、無限円柱直径、無限平板厚さに関する制限値がそれぞれ同じ形式の表で続く。残念なことに、各臨界制限値が持つ安全裕度の記述はないようだ。(実は、この後に述べる Rev.1 との対比から、安全裕度を含んでいることが分かるのだが...) 均質系の臨界データは基本的にこれだけである。²³⁵U 濃縮度が低い物質の制限質量は、TABLE I. から読取った値に、別の図に与えられている allowance factor (≥ 1.0) を乗じて求めることができる。このような、基本データを実際の核燃料取扱施設に適用する方法が、核燃料サイクル上の施設ごとに具体的に書いてある。

TID-7016 非公開扱いの LA-2063 が作られた翌年、その公開版として TID-7016 というレポート番号が付けられて刊行された。内容は LA-2063 と全く同じであるが、活字を小さくしたため、ページ数は少ない。

TID-7016 Rev.1 LA-2063(TID-7016) の改訂版である。臨界データの表は Table I のように形式が変更された。中性子反射条件は thick water reflector の 1 つだけになった。recommended(旧版では limit) の他に minimum critical が併記されていて、recommended にどの位の安全裕度があるのか明らかである(Table I 内の []内の値は LA-2063 から引用した。()内の値は Rev.2 からの引用で、後で触れる。)。Table I において新旧(LA-2063 と Rev.1)の比較を行なうと、個別には多少の違いが認められるも、全体的には大きな差異はない。旧版では表の形式でのみ与えられていた断片的な臨界データ(前出の TABLE I.)が、FIG.1. や FIG.2. に示す連続的なデータになって追加された。小さくて見落しやすいが、FIG.1 及び FIG.2 には安全率の値(> 1.0)が表示されている。この安全率は、先程の recommended と minimum critical の比率である。質量に対する安全率 2.3 は、二重装荷(double batching)を想定したものである。体積、円柱直径及び平板厚さに対する安全率 1.33 の根拠は、説明されてない。allowance factor を使うことは旧版と同様である。新たに、過去の臨界事故の事例が盛り込まれた。

TID-7016 Rev.2 TID-7016 Rev.1 の改訂版である。subcritical limit の表を Table 2.1 及び Table 2.2 に示す。この 2 つの表と Rev.1 の TABLE 1 との形式上の違いは、溶液(solution) と 金属(metal) の 2 つに分離されたこと、及び recommended と minimum critical の 2 本立てから subcritical limit だけになったことである。2 つの表のデータの脚注にある Ref.9 とは、"American National Standard N16.1"(1975) を

指している。この文献は、"ANSI/ANS-8.1-1983" の前身である。長さの単位は inch から cm に改められた。ここに記載されたデータには、それを導出するのに用いた計算及び実験の不確かさだけが内包されている。すなわち、Rev.1 とは考え方が変り、安全率は考慮されていない。Rev.1 と Rev.2 の比較を行なうために、Table 2.1 及び Table 2.2 の subcritical limit の値を Rev.1 の TABLE I の空白に書込んだ(²³⁹Pu を除く)。TABLE I における比較から、Rev.2 の subcritical limit の値は Rev.1 の recommended の値よりほとんど大きいことが分かる。安全率が考慮されなくなった分だけ、Rev.1 より大きな値になったのである。

他に、均質 MOX 燃料の臨界データが初採用された。アクチニド核種の臨界量が Appendix に記載された。

LA-12808 TID-7016 Rev.2 の改訂版である。16年ぶりの改訂とあってデータの量は激増するかと思っていたが、意外にあっさりしていて、ページ数は旧版と変わらない。版下の作成は、図表も含めてすべてパソコンで行なわれたようである。活字は大きくなって読みやすい。

subcritical limit の表を Table 1(溶液) 及び Table 3(金属) に示す。どちらも "ANSI/ANS-8.1-1983" からの引用である。Table 1 は Rev.2 の Table 2.1 を発展させた内容になっていて、化合物別に ²³³U、²³⁵U 及び ²³⁹Pu の subcritical limit が記載されている。両表の対等な比較はできないが、大きな違いはないようである。一方 Table 3 から、²³³U 金属の subcritical limit は見直しが行なわれたことが分かる。Table 3 のカッコ内の手書きの数値は Rev.2 の Table 2.2 からの引用である。

旧版までは実験に基づいた臨界データが主であったが、新版では Fig.6 から分かるように、実験データと計算で求めたデータが混在している。実験データは "LA-10860-MS"(1987) からの引用である。図の体裁も "LA-10860-MS" を踏襲している。計算は連続モンテカルロコード MCNP 4A 及び米国の評価済み核データファイル ENDF/B-V の組合せで、このレポート作成のために行なわれた。但し、コードや核データがもつ不確かさを考慮した(誤差評価済みの)計算結果ではない。この点については、「科学的な結果を報告する場合の伝統的な基準に従って、第三者がいつでも結果の検証や再計算ができるように、計算に用いた核種 ID や個数密度等の詳細なデータ及び計算結果はすべて Appendix に記載した。」と言訳している。個数密度について、我が国の臨界安全ハンドブックと照合したところ、使用した定数(特に理論密度)の違いを考えれば、両者は良く一致している。subcritical limit に対応する曲線に代って、3つの k_{eff} (1.0, 0.9, 0.8) にそれぞれ対応する曲線が採用された。水反射体の厚さは、旧版の 2.5cm 及び 30cm の

2種類に代って、実効的に十分な厚さ、15.2cm、の1種類になった(実験データを除く)。

旧版で初めて採用された均質 MOX 燃料の臨界データに、非均質 MOX 燃料のデータが追加され、Fig.15 が描かれた。引用先は、均質のデータも含めて、ANSI/ANS-8.12-1987 と書いてある。旧版では安全裕度について記述がなかったが、新版では Fig.15 には $\Delta k_{\text{eff}}=0.05$ の裕度が含まれると明記されている。ところで Fig.15 の破線で示す非均質のデータのうち " $^{240}\text{Pu}=25\text{wt}\%$ and $^{241}\text{Pu}=15\text{wt}\%$ " の曲線だけは、Pu 富化度が 15wt%を超えたところでとぎれていて奇異である。実は Pu 富化度が 30wt%の点も計算は済んでいるのだが、得られた値が不可解なため、プロットを控えているのである。これについて E. D. Clayton ら[1]は次のように述べている。「この点の値を求めるためには、他の点とは異なり極めて細い燃料棒格子配列が計算の対象となった。ところが、計算に使用した共鳴吸収の取扱い手法は、このような幾何形状には不適切であったため、変則的な結果を得るに至った。」 本件に関する私信レベルの資料を持っているので、興味ある方は連絡してください。

その他、旧版との違いをいくつか挙げておく。表面密度法、密度アナログ法、立体角法など、古典的な中性子相互干渉効果評価手法の詳細な解説は大幅に簡素化された。アクチニド核種の臨界量が削除された。低濃縮ウラン燃料の subcritical limit の表が追加された代りに、allowance factor の表が削除された。臨界事故等の事例として旧ソ連のものが1件追加された。

"Nuclear Safety Guide" 第 32-2 巻、Apr・Jun 1991 の巻頭で公にされた、TID-7016 Rev.2 の Table 2.8 の誤り(subcritical limit なのに、タイプミスのため1桁大きい値を記載してしまい、実際には最大で $k_{\text{eff}}=1.09$ に相当するケースも含まれる。)は、訂正されて Table 11 に掲載された。

3. まとめ

均質燃料の subcritical limit に焦点をあてて、その値の変遷を見てきた。初めは 100% 実験に基づいていたが、版を重ねるにつれ、計算によって得られたデータの占める割合が少しずつ増える傾向にある。しかし自国の貴重な臨界実験データをしっかりと継承しようとする姿勢もうかがえる。また他国の類似の文献と比較すると、臨界データの変数は増やさずに、必要最低限に抑えているようだ。

我が国の臨界安全ハンドブックの英訳版が 1995 年に完成し、その報告が米国において行なわれた。翌 1996 年、ここに述べたように、米国の "Nuclear Safety Guide TID-

7016 Rev.2" が18年ぶりに改訂された。1995年3月に届いたGRSのB.Gmal氏のファクスによれば、西独(出版当時)の臨界ハンドブックも改訂される予定とのこと。個人的には、西独の臨界ハンドブックが分かりやすく一番好きだ。脈絡のない話題ではあるが、1996年秋にライカR7はR8へと衝撃的な変貌を遂げた。かつてBMW(2輪)のRシリーズがKシリーズに変わったように。西独のハンドブックはどのように変わるのだろうか。

参考文献

- [1] E. D. Clayton and Thomas P. McLaughlin, "ANSI/ANS-8.12-1987(R93) : Criticality Control of Plutonium-Uranium Mixtures," Trans. Am. Nucl. Soc., 75,198 (1996)

表 1 米国の "Nuclear (Criticality) Safety Guide" の比較

タイトル	文献番号	編集担当組織	発行年	ページ数
Nuclear Safety Guide	LA-2063	LASL	1956	64
Nuclear Safety Guide	TID-7016	LASL	1957	24
Nuclear Safety Guide	TID-7016 Rev.1	GAC*	1961	42
Nuclear Safety Guide TID-7016 Revision 2	NUREG/CR-0095 ORNL/NUREG/CSD-6	ORNL	1978	127
Nuclear Criticality Safety Guide	LA-12808	LANL	1996	126

* Goodyear Atomic Corporation

TABLE I.
 MASS LIMITS FOR INDIVIDUAL SYSTEMS

Maximum mass in kg of X \equiv U²³⁵, Pu²³⁹, or U²³³

	metal; low H mixtures, compounds	principally hydrogenous compounds, mixtures	principally solutions	
	$0 \leq H/X \leq 2$	$H/X \leq 20$	$H/X \leq 100$	H/X unlimited ^(a)
<u>U²³⁵</u> (Refs. 1, 3, 4, 5, 14, 25)				
thick water reflector	11.0	2.5	0.80	0.35
nominal reflector (\leq 1" water)	15.0	3.5	1.04	0.43
minimal reflector (\leq 1/8" ss)	22.0	5.0	1.40	0.55
<u>Pu²³⁹</u> (Refs. 5, 22, 25, 27)				
thick water reflector	2.6 ^(b)	2.2	0.50	0.25
nominal reflector (\leq 1" water)	3.3 ^(b)	3.2	0.70	0.32
minimal reflector (\leq 1/8" ss)	4.4 ^(b)	4.8	1.00	0.43
<u>U²³³</u> (Refs. 5, 16, 25, 27)				
thick water reflector	3.0	1.3	0.48	0.25
nominal reflector (\leq 1" water)	4.1	1.7	0.69	0.33
minimal reflector (\leq 1/8" ss)	6.0	2.3	0.90	0.45

(a) See p. 29 for values of H/X beyond which no limit is required.

(b) These limits apply to Pu metal at $\rho = 19.6 \text{ gm/cm}^3$; for alloy at $\rho = 15.8 \text{ gm/cm}^3$ the corresponding limits are 3.5 kg with thick water reflector, 4.8 kg with nominal reflector, and 7.0 kg with minimal reflector.

TID-7016 Rev.1

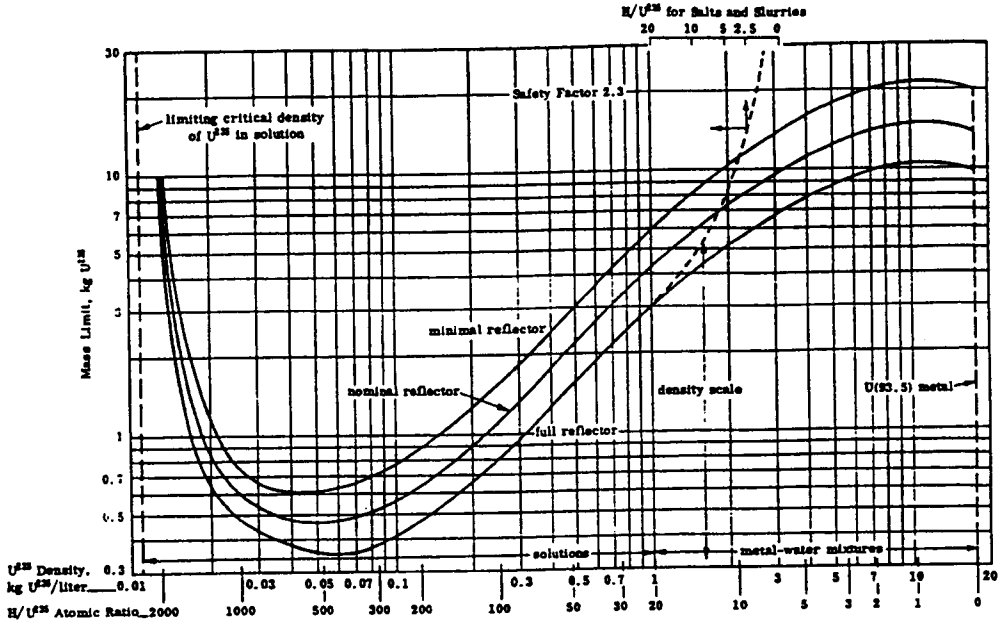


FIG. 1. MASS LIMITS FOR ISOLATED UNITS OF HOMOGENEOUS WATER-MODERATED U SPHERES (93.5% U^{235}) (References 9-14)

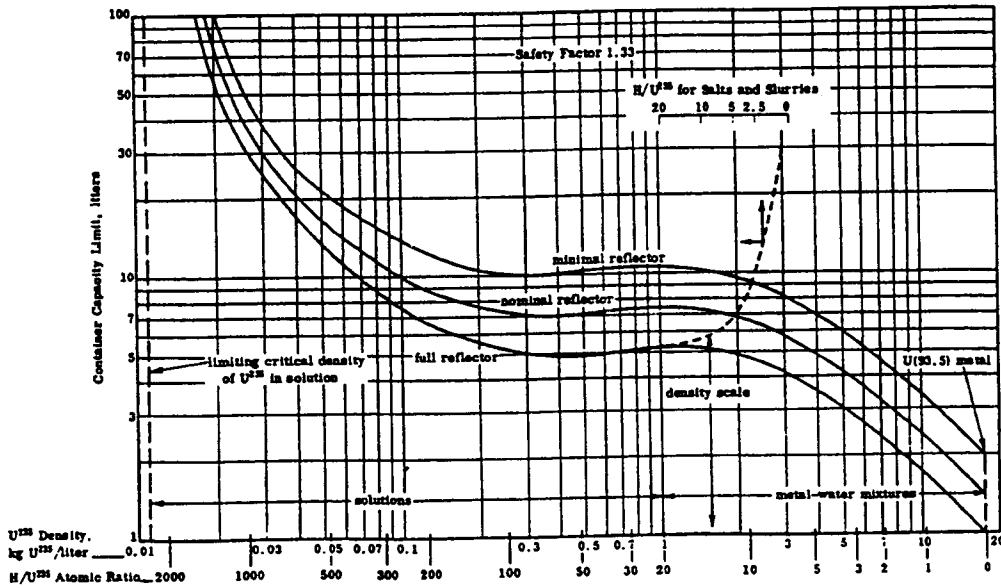


FIG. 2. CONTAINER CAPACITY LIMITS FOR ISOLATED UNITS OF HOMOGENEOUS WATER-MODERATED U SPHERES (93.5% U^{235}) (References 10-13)

Table I
VALUES OF BASIC NUCLEAR PARAMETERS

	U^{235}			U^{233}			Pu^{239}		
	Recommended	Minimum Critical		Recommended	Minimum Critical		Recommended	Minimum Critical	
Mass, kg:									
Solution	[0.35] 0.35 (0.76)	0.82		[0.25] 0.25 (0.55)	0.59		[0.25] 0.22	0.51	
Metal	[11.0] 10.0 (20.1)	22.8		[3.0] 3.2 (6.7)	7.5		[2.6] 2.6 3.5	5.6 7.6	α phase β phase
Diameter of Infinite Cylinder, in.:									
Solution	[5.0] 5.0 (5.5)	5.4		[3.7] 3.7 (4.5)	4.4		[4.5] 4.2	4.9	
Metal	[2.5] 2.7 (2.9)	3.1		[1.5] 1.7 (1.8)	1.9		[1.4] 1.4 1.8	1.7 2.1	α phase β phase
Thickness of Infinite Slab, in.:									
Solution	[1.4] 1.5 (1.8)	1.7		[0.5] 0.8 (1.2)	1.2		[1.5] 0.9	1.3	
Metal	[0.7] 0.5 (0.5)	0.6		[0.2] 0.2 (0.2)	0.3		[0.2] 0.18 0.22	0.24 0.28	α phase β phase
Solution Volume, liters	[4.8] 4.8 (5.8)	6.3		[2.0] 2.3 (3.5)	3.3		[3.3] 3.4	4.5	
Chemical Concentration of Aqueous Solution, g (of isotope)/liter	10.8 (11.5)	12.1		10.0 (10.8)	11.2		6.9	7.8	
U^{235} Enrichment of Homogeneous Hydrogen-Moderated Uranium, wt %	0.95	1.0		--	--		--	--	

Table 2.1. Single-Parameter Limits for Uniform Aqueous Solutions Reflected by an Effectively Infinite Thickness of Water *

Parameter	Subcritical limit for		
	²³⁵ U	²³³ U	²³⁹ Pu N:Pu > 4
Mass of fissile nuclide, kg	0.76	0.55	0.51
Solution cylinder diameter, cm	13.9	11.5	15.7
Solution slab thickness, cm	4.6	3.0	5.8
Solution volume, liters	5.8	3.5	7.7
Concentration of fissile nuclide, g/liter	11.5	10.8	7.0
Areal density of fissile nuclide, g/cm ²	0.40	0.35	0.25

*These values are from Ref. 9.

TID-7016 Rev.2

Table 2.2. Single-Parameter Limits for Metal Units Reflected by an Effectively Infinite Thickness of Water*

Parameter	Subcritical limit for		
	²³⁵ U	²³³ U	²³⁹ Pu
Mass of fissile nuclide, kg	20.1	6.7	4.9
Cylinder diameter, cm	7.3	4.6	4.4
Slab thickness, cm	1.3	0.54	0.65
Uranium enrichment, wt % ²³⁵ U	5.0	—	—

*These values are from Ref. 9.

Table 1
Single-Parameter Subcritical Limits for Uranium and Plutonium Solutions,
Reflected by an Effectively Infinite Thickness of Water

Fissile Solute	Subcritical Limit						
	Mass of Fissile Nuclide (kg)	Diameter of Cylinder of Solution (cm)	Thickness of Slab of Solution (cm)	Volume of Solution (L)	Density of Fissile Nuclide (g/L)	Atomic Ratio ^a of Hydrogen to Fissile Nuclide	Areal Density of Fissile Nuclide (g/cm ²)
²³³ UO ₂ F ₂	0.54	10.5	2.5	2.8	10.8	2390	0.35
²³³ UO ₂ (NO ₃) ₂	0.55	11.7	3.1	3.6	10.8	2390	0.35
²³⁵ UO ₂ F ₂	0.76	13.7	4.4	5.5	11.6	2250	0.40
²³⁵ UO ₂ (NO ₃) ₂	0.78	14.4	4.9	6.2	11.6	2250	0.40
²³⁹ Pu(NO ₃) ₄	0.48	15.4	5.5	7.3	7.3	3630	0.25

LA-12808

Table 3
Single-Parameter Subcritical Limits for Metal Units,
Reflected by an Effectively Infinite Thickness of Water

Nuclide	Subcritical Limit			
	Mass of Fissile Nuclide (kg)	Cylinder Diameter (cm)	Slab Thickness (cm)	Uranium Enrichment (wt% ²³⁵ U)
²³³ U	6.0 (6.7)	4.5 (4.6)	0.38 (0.54)	—
²³⁵ U	20.1 (20.1)	7.3 (7.3)	1.30 (1.3)	5.0 (5.0)
²³⁹ Pu	5.0 (4.9)	4.4 (4.4)	0.65 (0.65)	—

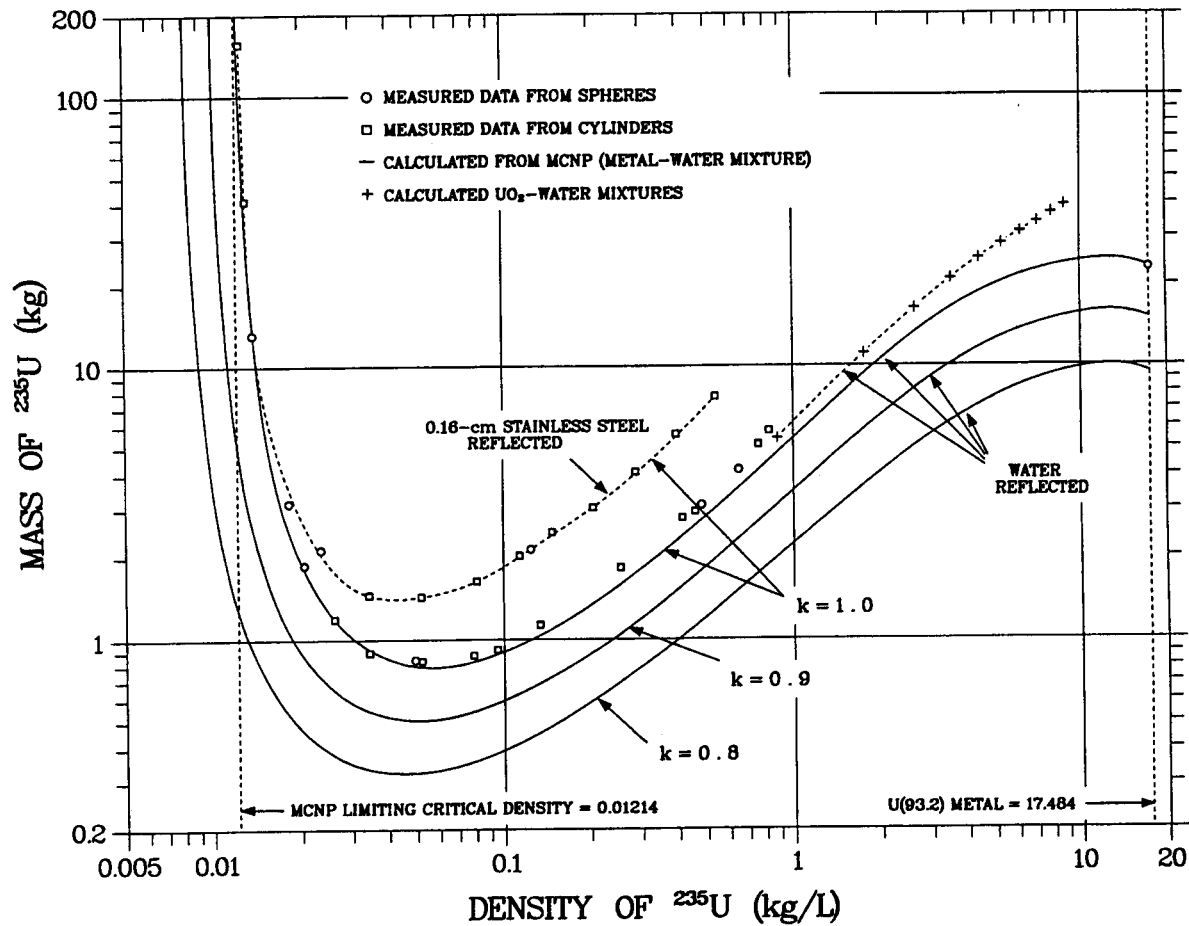


Fig. 6. Masses of spheres of homogeneous water-moderated U(93.2) as functions of ^{235}U density.

Figure 6

LA-12808

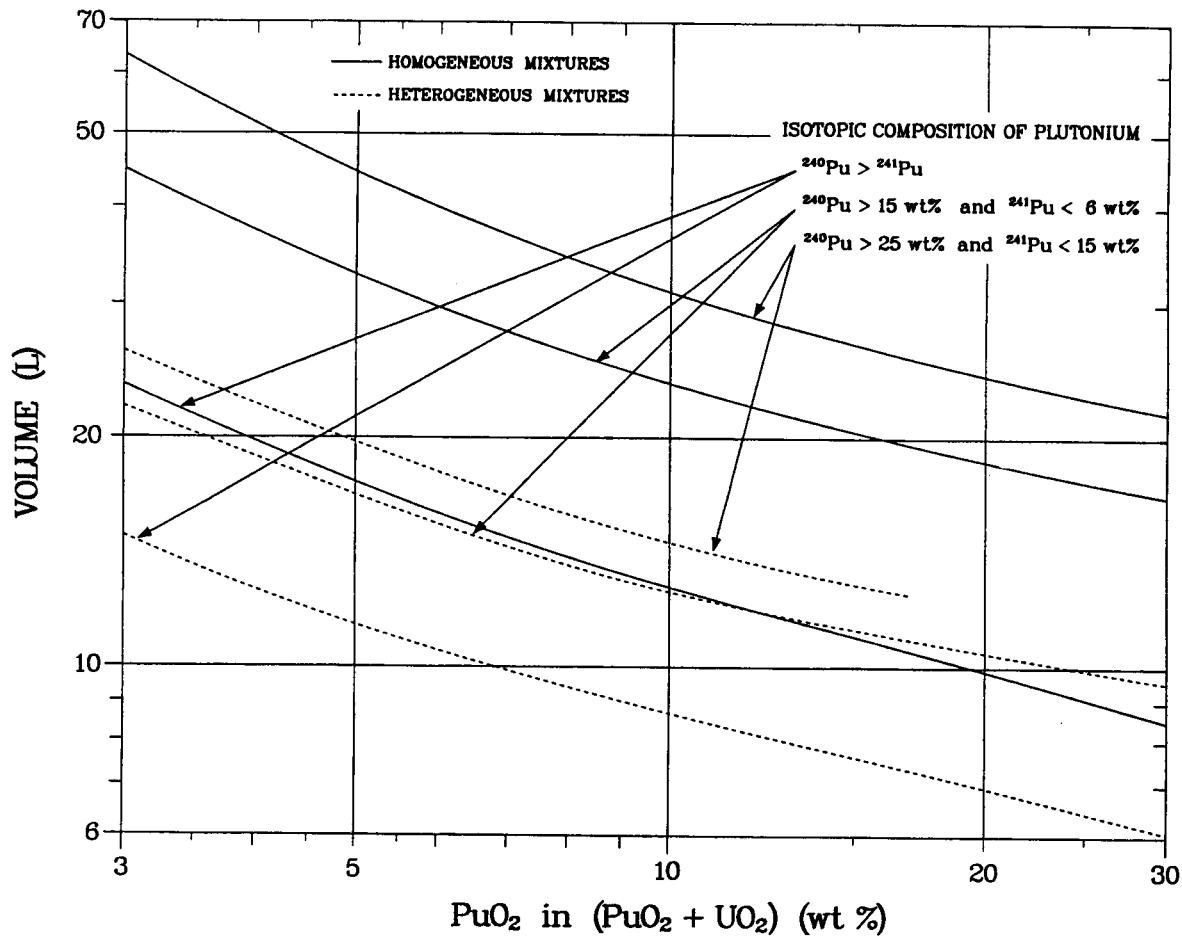


Fig. 15. Subcritical volume limits for water-reflected spheres of aqueous mixtures of PuO₂ and U(0.7)O₂.

Figure 15

LA-12808