資料

臨界安全性に関わる米国の最近の動き

小室 雄一*

Recent Topics of Nuclear Criticality Safety in the United States

by Yuichi KOMURO

Recent topics of nuclear criticality safety in the United States are presented. A guidance and two standards issued by U.S.DOE, Nuclear Criticality Safety Guide LA-12808, a work group for ANSI/ANS-8.15, a continuous energy version of KENO V.a, and the Zeus benchmark experiment are described below. Source data of these topics are from journals, reports, transactions of American Nuclear Society and so on issued from 1995 until 1999, and internet sites.

KEYWORDS : nuclear criticality safety, guidance, computer codes, criticality experiments, USA

I. 序

1995年から1999年までに出版された文献やインターネットのホームページ等を参考に、米国における臨界安全性に関わる動きの一部をまとめた。臨界安全性に関わる文献からは、米国エネルギー省(DOE)発行の3つの文献および核的臨界安全ガイド LA-12808 を紹介する。続いて、ANSI/ANS-8.15 作業部会の活動、連続エネルギー版 KENO V.a コード、および臨界実験 Zeus について紹介する。

II. 米国エネルギー省の文献の紹介

1. 臨界安全性研究 5 ヶ年計画

標記計画が、1999年8月に作成された全77頁の文献(文献番号なし)にまとめられ、United States Department of Energy Nuclear Criticality Safety Program(<http://ncsc.llnl.gov:8080/plan/FinalFiveYearPlan.html>)に掲載された。2000年から始まる5年間に実施する臨界安全性研究計画のすべてを知ることができる。これによれば、臨界安全性研究は、critical experiments, benchmarking, nuclear data, analytical methods, applicable ranges of bounding curves and data**, information preservation and dissemination, training and qualificationの7つの項目で構成される。おのおのについて、DOEの要求、目

的、期待される成果、予算、工程表、担当者名等がきわめて詳細に書いてある。予算配分では、費用を要する critical experiments が1位で、その中でも第VI章で述べる Zeus 実験の優先度が最も高い。Applicable ranges of bounding curves and data は、日本ではまだ未着手の領域と思われる。国内の臨界安全性の研究者にぜひ読んでほしい。

2. DOE GOOD PRACTICE GUIDE : Criticality Safety Good Practices Program Guide for DOE Nonreactor Nuclear Facilities

米国には臨界安全に関する多くの規則が、DOEの文書(DOE xx.xx)、国の文書(Title x, Part x of the Code of Federal Regulation, NRC Regulatory Guide x.x, NUREG/CR-xxxx)、および非政府文書(ANSI/ANS-x.x)として見事に整備されている。しかしその数があまりにも多くて、おのおのの位置付けが理解しづらい。50を超えるこれらの文書を俯瞰し、系統立てて1つにまとめた手引きが標記の文献である⁽¹⁾。核的臨界安全に関わるDOEの命令または規則を実行するための臨界安全計画の推進を支援するための包括的手引きともいえる。章立てを以下に示す。全200頁の約半分を占める第5章については各項の標題も示す。

1. SCOPE
2. APPLICABLE DOCUMENTS
3. TERMS AND DEFINITIONS
4. GENERAL GUIDANCE
5. DETAILED GUIDANCE
 - 5.1 Administration
 - 5.2 Personnel Selection, Qualification, Training, and Staffing Program
 - 5.3 Operating, Storing, and Transferring—Plans, Procedures, Requirements, and Controls

* 日本原子力研究所 (Japan At. Energy Res. Inst.)
(2000年6月12日 受理)

** ここでは、既存のベンチマーク臨界実験を内外挿する手法を確立する。この手法は、ベンチマーク臨界実験が存在しないあるいは非常に限られている領域の計算結果の検証に役立つ。核的未臨界制限値の裕度およびその導出に使用したベンチマーク臨界実験の適性について、妥当か否か、客観的かつ技術的に判断する。

- 5.4 Criticality Accident Alarm and Detection Systems
- 5.5 Emergency Preparedness
- 5.6 Nuclear Criticality Safety Control Principles and Methods
- 5.7 Nuclear Criticality Safety Design and Analysis Guidelines
- 5.8 Software Quality Assurance and Validation
- 5.9 Nuclear Criticality Safety Evaluation (NCSE) Guidelines
- APPENDIX A. PERSONNEL SELECTION, QUALIFICATION, TRAINING, AND STAFFING PROGRAM
- APPENDIX B. GRADED APPROACH
- APPENDIX C. ESTIMATING THE WAITING TIME UNTIL THE SIMULATIONS COLLAPSE OF TWO CONTINGENCIES
- APPENDIX D. EXAMPLES OF DESIGN OF NUCLEAR CRITICALITY SAFETY CONTROLS
- APPENDIX E. SOFTWARE CONFIGURATION CONTROL PROCEDURE
- APPENDIX F. EXAMPLE COMPUTATIONAL TECHNIQUE VALIDATIONS
- APPENDIX G. BIBLIOGRAPHY OF JOURNAL ARTICLES AND MEETING AND CONFERENCE PROCEEDINGS

第5.1.5項の“Fissionable Material Operations Personnel”では、核分裂性物質を扱う者が遵守すべき7項目(responsibility, operational procedures, terminate operations, inquiries, training requirements, notification, emergency response)を挙げている。そのうちの初めの2項目を原文のまま以下に示す。あまりにも当然のことではあるが、1999年9月30日に起きたJCO臨界事故の発生原因とされる行為を思い起こすと、軽視できない。

“All personnel working with fissionable material shall :

- 5.1.5.1 **Responsibility.** Be responsible for nuclear criticality safety of their own actions and the operating systems under their control.
- 5.1.5.2 **Operational procedures.** Conduct fissionable material operations in strict accordance with approved written procedures and instructions”.

3. DOE STANDARD : Review Guide for Criticality Safety Evaluations

この文献⁽²⁾は、DOEの契約者が作成した臨界安全評価報告書を、DOEの臨界安全担当者が審査する時に利用する手引きである。チェックリストではない。臨界安全評価報告書が、認可できるものであることを保証するための一

貫した枠組みを提供する。審査側が行うべきことが書いてあるため、被審査側にも役立つ。もちろん我が国の同じ立場の者にも有益である。以下に文献の第II章の項目を示す。このような構成で臨界安全評価報告書を作成することが望まれることを、被審査側に示唆していると解釈できる。第5.0項の検討が最も重要と強調している。

II. GUIDANCE KEYED TO SECTIONS IN DOE-STD-3007-93

- 1.0 Introduction
- 2.0 Description
- 3.0 Requirements
- 4.0 Methodology
- 5.0 Discussion of Contingencies
- 6.0 Evaluation and Results
- 7.0 Design Features
- 8.0 Summary and Conclusions
- 9.0 References
- 10.0 Appendices

III. 核的臨界安全ガイド LA-12808

外国の核的臨界安全ガイド(またはハンドブック)は、米国(1956年)⁽³⁾が先行し、その後を英国(1967年)⁽⁴⁾、フランス(1967年)⁽⁵⁾および西ドイツ(1972年)⁽⁶⁾が追った。後発の3つのうち、西ドイツのみ一度改訂が行われたが、他は見直しされてないようである。米国のガイドは、継続した改訂が行われ、その最新版LA-12808⁽⁷⁾は、米国の臨界安全指針Nuclear Safety Guide TID-7016 Rev.2⁽⁸⁾(以下Rev.2)の改訂版である。

LA-12808の標題は、より適切な内容を表すものとするため、これまでの“Nuclear Safety Guide”から“Nuclear Criticality Safety Guide”に改められた。16年ぶりの改訂にもかかわらず、ページ数はRev.2と変わらない。

Subcritical limitの表の例を第1表(溶液)および第2表(金属)に示す。この2つの表はLA-12808オリジナルではなく、ANSI/ANS-8.1-1983⁽⁹⁾からの引用である。第1表は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および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、第2表から、²³³U金属のsubcritical limitは見直しが行われたことがわかる。第2表の()内の数値はRev.2のTable 2.2からの引用である。

Rev.2までは実験に基づいた臨界データが主であったが、LA-12808では、第1図からわかるように、実験データと計算で求めたデータが混在している。ここでいう実験データとは、LA-10860-MS⁽¹⁰⁾からの引用で、図の体裁もそれを踏襲している。計算値は、Rev.2の欠点*を改める

* Rev.2の欠点は、そのFig.2.12からFig.2.12に描かれているsubcritical limitを表す曲線がどのくらいの k_{eff} に相当するのか、全くわからないことであった。

第1表 実効的に無限に厚い水で反射されたUおよびPu水溶液の未臨界制限値(文献(7)のTable 1を転載)

Subcritical limit							
Fissile solution	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 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	2,390	0.35
²³⁵ UO ₂ (NO ₃) ₂	0.55	11.7	3.1	3.6	10.8	2,390	0.35
²³³ UO ₂ F ₂	0.76	13.7	4.4	5.5	11.6	2,250	0.40
²³⁵ UO ₂ (NO ₃) ₂	0.78	14.4	4.9	6.2	11.6	2,250	0.40
²³⁹ Pu(NO ₃) ₄	0.48	15.4	5.5	7.3	7.3	3,630	0.25

第2表 実効的に無限に厚い水で反射された金属の未臨界制限値(文献(7)のTable 3から引用。()内の数値は文献(8)を転載)

Subcritical limit				
Nuclide	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)	— —

ために、連続モンテカルロコードMCNP 4A⁽¹¹⁾および米国の評価済み核データファイルENDF/B-V⁽¹²⁾の組合せで、このレポート作成のために行われた。ただし、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および計算結果はすべてAppendixに記載した。」と言訳している。Rev.2の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、Rev.2の2.5cmおよび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(ただし、実験データを除く)。

MCNPには臨界寸法サーチ機能が備わっていない。そのため、ある k_{eff} に対応するあるUまたはPu濃度の燃料寸法を得るのに、MCNPによる k_{eff} 計算を、燃料寸法を適当に変えて5ないし6回(うち1回は k_{inf} 計算)実行する必要があった。第1図の曲線はいずれも20個前後の点を内挿して描かれた。仮に20個として、それらの値を得るのに100~120回のMCNP計算が行われた勘定になる。計算で得られた燃料寸法と k_{eff} の関係を処理して $k_{\text{eff}}=0.8, 0.9, 1.0$ に対応する質量および寸法が求められた。「20個の点」の仮定の下では、全データの計算に約1,000回もの膨大な量のMCNP計算が行われたことになる。得られた臨界

データの一部を既存のデータと比較して第2, 3図に示す⁽¹¹⁾。第2図の凡例のTID-7028, CEA R3114およびAHSB(s)は文献(14), (5)および(6)にそれぞれ対応する。第3図のARH-600およびWEST GERMANYは文献(15)および(4)にそれぞれ対応する。第1図の $k=1.0$ (WATER REFLECTED)は、第2図のLA-12808に相当する。

Rev.2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、第4図が描かれた。引用先は、均質のデータも含めて、ANSI/ANS-8.12-1987⁽¹⁶⁾である。Rev.2では安全裕度について記述がなかったが、LA-12808では第4図には $\Delta k_{\text{eff}}=0.05$ の裕度が含まれると明記されている。ところで第4図の破線で示す非均質のデータのうち、²⁴⁰Pu=25wt% and ²⁴¹Pu=15wt%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(Fig.16, Fig.17も同様)。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、プロットは控えられた⁽¹⁷⁾。この理由についてE.D.Claytonらは次のように述べている⁽¹⁷⁾。「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。」(財)原子力発電技術機構原子力安全解析所の報告書⁽¹⁸⁾には、この問題に対する精力的な取組みの結果が載っている。

その他、Rev.2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。アクチノイ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爆発事故が1件追加された。

TID-7016シリーズにあった誤りも訂正された。例えば文献(19)で公表された、Rev.2の“Table 2.8 Subcritical Limits for Spheres, Cylinders, and Slabs of U(93.5) Metal Water Graphite Mixtures”の誤り*は、訂正されて

* subcritical limitにもかかわらず、タイプミスにより1桁大きい値を記載したため、実際には、最大で $k_{\text{eff}}=1.09$ に相当するケースが含まれる。

第 1 図 球状の均質 U(93.2)-H₂O の質量 (文献(7)の Fig. 6 を転載) 第 2 図 水反射体付き均質 U(93)-H₂O 混合物の臨界データの比較 第 3 図 水反射体付き均質 ²³⁹Pu-H₂O 混合物の臨界データの比較

Table 11 に掲載された。

6. ま と め

米国の核的臨界安全ガイドに含まれるデータは、初めは実験に基づいていたが、改訂を重ねるにつれ、計算によ

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べると、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。筆者は Rev.2 のオリジナルを見たこと

第 4 図 水反射体付き均質 $\text{PuO}_2\text{-U(0.7)O}_2\text{O}$ 混合水溶液の未臨界制限体積(文献(7)の Fig. 15 を転載)

がない。一方、LA-12808 は LANL の好意で、数 10 部のオリジナルが我が国の関係者に配られた。

IV. ANSI/ANS-8.15-1981(R87) : Nuclear Criticality Control of Special Actinide Elements の改訂作業

「米国の基準 ANSI/ANS-8.15-1981(R87) : Nuclear Criticality Control of Special Actinide Elements⁽²⁰⁾」には 15 種類のアクチニドの臨界制限値が記載されている。この基準は 1981 年 11 月に承認された。その後、5 年をかけて見直しが行われたが、実際には内容の改訂なしで 1987 年 10 月に再承認された。続く 2 度目の見直しの後も改訂はなく、1995 年 12 月に再々承認された。これから行われる 3 度目の見直しは 2000 年の 12 月までに終了の予定である。

3 度目の見直しにあたって、ワーキンググループのリーダーは E. D. Clayton から N. L. Pruvost に交替したが、Clayton はメンバーとして留任する。幾人かの米国人が新規メンバーとして加わった。米国以外に、国際メンバーとして英国およびロシアから参加することになった。まもなく始まる見直しの作業では、ロシアと米国ロスアラモス臨

界実験施設で得られた実験データ、および OECD/NEA の国際臨界安全ベンチマーク評価プロジェクトの下で行われた解析の成果が、検討の材料として取り上げられる。この作業を支援するため、N. L. Pruvost, E. D. Clayton, C. T. Rombough の 3 メンバーによって作成中の文書が 1997 年に公開される予定である。」

以上は文献(21)の抜粋で、1996 年 11 月における情報である。この後、国際メンバーとしてさらに 2 つの国の参加が決まった。国別に核種が割り当てられ、計算作業が進められている。

1. ANSI/ANS-8.15-1981 の概要

この基準はわずか 4 頁の本文と 14 頁の付録から構成されている。本文の内容は Table 1 から Table 4 の表に凝縮されている。うち Table 1 および Table 2 を、それぞれ第 3, 4 表として示す。4 つの表のデータは主に文献(22), (23)から引用された。しかし実際の時間的流れはこれとは逆で、ANSI/ANS-8.15-1981 の 4 つの表のデータを得るために行った一連の計算の詳細を、後になって雑誌に投稿したと推定するのが妥当である。付録には本文のバックデータと

第3表 非核分裂性アクチニド核種の未臨界制限質量(文献②の Table 1 を転載)

Nuclide	Chemical form	Limit of nuclide with reflector of	
		Water (kg)	Steel (kg)
²³⁷ Np	Np	30	20
	NpO ₂	140	90
²³⁸ Pu	Pu	4	3
	PuO ₂	11	7
²⁴⁰ Pu	Pu	20	15
	PuO ₂	70	45
²⁴² Pu	Pu	60	40
²⁴¹ Am	Am	24	16
	AmO ₂	40	32
²⁴³ Am	Am	35	25
	Am ₂ O ₃	50	37
	AmO ₂	60	45
²⁴⁴ Cm	Cm	5	3
	Cm ₂ O ₃	7	5
	CmO ₂	7	5

第4表 水反射体付き核分裂性アクチニド核種の未臨界制限質量(文献②の Table 2 を転載)

Nuclide	Mass limit (g)
²³⁹ Pu	450
²⁴¹ Pu	200
^{242m} Am	13
²⁴³ Cm	90
²⁴⁵ Cm	30
²⁴⁷ Cm	900
²⁴⁹ Cf	10
²⁵¹ Cf	5

して、当時収集されたアクチニドの臨界量に関するデータ(実験値, 計算値)が前出の文献⁽²²⁾⁽²³⁾も含めて記載されている。

第3表の値は主に文献③に基づいている。ENDF/B-IV⁽²⁴⁾に基づく218群ライブラリ⁽²⁵⁾を縮約して作成した27群ライブラリと1次元SnコードXSDBNPM⁽²⁶⁾の組合せで、(*P*₃, *S*₁₆)の条件で臨界寸法サーチ計算を行った。ただし、文献③は臨界質量のみの記載なので、これらにどのような裕度を与えて第3表の未臨界質量制限値を導出したのかわからない。一方、第4表の値は主に文献③に基づいている。この文献によれば、ENDF/B-IVに基づく16群ライブラリ(群構造はHansen-Roach 16群ライブラリに近い)と1次元SnコードANISN⁽²⁷⁾の組合せで、(*P*₃, *S*₄)の条件で臨界寸法サーチ計算が行われた。この文献は、未臨界質量制限値の導出に関する説明が文献③に比べて詳細である。例えば、

²⁴¹Puの制限値は $k_{\text{eff}} = 0.95$

²⁴²Am, ²⁴³Cmおよび²⁴⁵Cmの制限値は $k_{\text{eff}} = 0.90$

にそれぞれ対応しているとの明確な記述がある。

第5表 ²³⁷Npの臨界質量の比較 (単位: kg)

導出手法	引用文献	裸	水完全反射
XSDRNPM & 27群ライブラリ (ENDF/B-IV)	(4)	55.7	51.1
KENO V.a & 27群ライブラリ (ENDF/B-IV)	(9)	55.6	50.6
MCNP 4A & ENDF/B-V	(9)	69.3	63.1
MULTI-KENO-3.0 & 137群MGCL-J3ライブラリ (JENDL-3)	(10)	69.4	61.8
MVP & JENDL-3.2	(11)	—	70.7
LANLの臨界集合体Flatopにおける実験	(12)	56±10	—

2. 計算に基づくアクチニドの臨界質量の核データ依存性

²³⁷Npの臨界質量に注目して、文献③、日本原子力学会での2件の口頭発表⁽²⁸⁾⁽²⁹⁾、文献③、および最新の実験値⁽³¹⁾を比較して第5表にまとめた。計算に使用する評価済み核データに強く依存して、得られる臨界質量が大きく変わることがわかる。反対の見方をすれば、ある核データを用いて求めた臨界質量は、別の核データによれば超臨界であったり、またはその逆であったりするのである。なお第5表では、使用した核データのうち最も古いENDF/B-IVが、皮肉にも実験値に最も近い結果を出した。

3. ま と め

1981年にこの基準ができてから文献②の発表までに16年が経過した。その間に米国の評価済み核データは、ENDF/B-IVからB-VそしてB-VIへと改訂された。第IV-2節で述べたように、単純な球形状体系の臨界計算結果は、計算コードの違いよりも、使用する核データに最も大きく依存する。特に裸の金属燃料体系では、高速エネルギー領域の断面積と核分裂スペクトルだけでほぼすべてが決まるのだろう。²³⁷Npに限れば、第5表に例示したように、KENO V.aおよびXSDBNPMのいずれも、同じENDF/B-IVに基づく27群ライブラリを使う限り、計算結果に大きな違いはない。最も古いENDF/B-IVを使って求めた臨界質量は、より新しいENDF/B-VやJENDL-3を使って求めた値と大きく異なり、実験値に最も近い。予定では、この基準の3度目の見直しは2000年12月までに終了とのこと。²³⁷Npを始めとして、おのおのの臨界量がどのように改訂されるのか期待が高まる。例えば、消滅処理研究やPuのマルチリサイクルの実施にあたっては、アクチニドの臨界量は重要である。

V. 連続エネルギー版KENO V.a

多群モンテカルロ臨界計算コードKENO V.aを基に、その連続エネルギー版(以下PKENO V.a)の開発が、ORNL

で進められている。文献②には、PKENO V.aの主な算法の平易な解説、多群法と連続エネルギー法の違い、検証計算結果等が記載されている。KENOコードファミリーの利用者、連続エネルギーモンテカルロ法に興味ある方などに有益である。文献⁽²³⁾の概要の抄訳を以下に示す。

「KENO V.aはボルツマン輸送方程式を解く多群モンテカルロコードで、核分裂性物質を含む体系の実効中性子増倍率を計算することを目的に、核的臨界安全の分野で広く利用されている。これまでは、輸送方程式を解くための方法として、連続(点)エネルギーよりも多群が好まれていた。計算の実行に必要なCPU時間と記憶容量の点で、後者が有利であったためである。しかし高性能コンピュータの出現で、CPU時間と記憶容量の制限は緩やかになり、連続エネルギーの輸送計算が実行できるようになった。多群法が多くの仮定や近似を取り入れている一方、連続エネルギー法はそれらを必要としないので、たいへん魅力的である。KENO V.aの連続エネルギー版はまだ存在しないので、連続エネルギー断面積を使う新しいKENO V.aの開発に着手した。今のところKENO V.aが使える点エネルギー断面積ライブラリ、例えば、ENDF/B-Vのような生の連続エネルギー断面積ライブラリに基づくものは存在しない。しかし、広く使われている別のモンテカルロ輸送コードMCNPのための連続エネルギー断面積ライブラリがすでに存在する。このMCNP用のライブラリはENDFを処理して作られ、かつ今すぐにでも利用できるもので、これの使用を前提に新版KENO V.a(PKENO V.a)の開発を始めた。点断面積を使うために、KENO V.aに大幅な変更を施した。PKENO V.aの試計算を現在進めている。9個の臨界実験データと1個の未臨界実験データを対象に、PKENO V.a、KENO V.a、MCNPの3コードを使って比較計算を行った。PKENO V.aの計算結果は、MCNPおよびKENO V.aの計算結果および実験値とよく一致した。」

KENOコードの原点は、次期コンピュータ選定のためにORNLのWhitesides博士が作った小さなモンテカルロコードであった。それが成長してSCALEコードシステムに組み込まれ、モンテカルロ法に基づく多群の臨界計算コードとして一時代を築いた。現在は連続エネルギーモンテカルロコードMCNPが、臨界計算の分野でも、利用者の数を増やしつつある。このような中でのPKENO V.aの船出である。それもMCNP用の点断面積ライブラリを使うので、両者の計算結果の違いは、中性子の追跡の方法論にのみ帰することになる。個人的な希望を述べると、コード単体で臨界寸法サーチができる機能を追加して、MCNPの先を行ってほしい。

Petrie博士によれば、①PKENO V.aの公開時期は未定、②PKENO V.aの入力データはKENO V.aのそれとほとんど同じ、③PKENO V.aはワークステーション上で稼働するが、PCへの移植は容易であるとのこと。なお、文献②

の邦訳⁽³³⁾がある。文献②にはKENO 25題問題セットのうち9題に対する計算結果のみ載っているが、文献③にはPetrie博士より送られてきた全25題の結果がある。

VI. ベンチマーク実験Zeus

米国では、研究炉等で使用された210t以上の高濃縮ウラン(HEU)、および冷戦終結によって不要となった核兵器から取り出された50t以上のPuの処分に関わる研究が盛んに行われている。後者についてDOEは1997年1月に、混合酸化物(MOX)燃料に加工して商業炉で燃やす、MOX燃料の加工に適さない少なくとも8tのPuはガラスカセラミックで固化して地中処分することを決定した。

地中処分の安全性について、多くの研究成果が国際会議で発表されたり、レポートとして公開されている。なかでも、ガラスで固めて地中に処分したPuやUの臨界性に関する議論が最も白熱しているようだ。処分された燃料が、乾燥状態でも水浸けの状態でも、超臨界に達する可能性のあることを指摘する研究成果が発表されたり、それに対する反論があったりする。自己触媒的臨界*の生じる道筋を体系的に評価した論文も発表されている^{(34)~(37)}。

1. 実験の目的

ANSI/ANS-8.1-1983には次のことが書いてある。

「臨界実験の結果と、臨界安全性を評価しようとする手法でその臨界実験を解析した結果との相関から、その手法が持つ偏りを明らかにしなければならない。」

地中処分した場合、体系の中性子エネルギースペクトルは「高速」と「熱」の中間的なもの**になるという。したがって、地中処分の臨界安全性を評価するためには、中間エネルギースペクトル体系のベンチマーク臨界実験データを解析し、解析手法の持つ偏りをあらかじめ把握する必要がある。ところが、適当なベンチマーク臨界実験データが、現実にはない。なければ実験しようということでLANLで立てられた計画がZeus実験である。この実験の解析結果を基に、地中処分における臨界安全余裕を導出しようとするものである。Zeusとはローマ神話に出てくる山の神の名前である。

* HEUや²³⁹Puの濃度を、天然ウラン鉱石中のウラン濃度と同じ程度にまで下げて地中に埋めても、条件によっては理論上臨界になりうる。いくつかの仮想的な臨界体系では、地中の水分がほんのわずかで減ると、それが正のフィードバックとなって作用し、臨界超過に至ることがある。さらに、岩石の温度上昇や均質化もまた反応度を上昇させる。このように人為的ではなく自然の変化によって体系の反応度が上昇することを、自己触媒的臨界性と呼ぶ。

** 前書きの後半で、「乾燥状態でも水浸けの状態でも」と述べたことと矛盾している。異常時ではなく、正常時にはこのようなエネルギースペクトル体系になるのだろう。

2. 仮想的中間エネルギースペクトル体系

中間エネルギースペクトル体系の臨界実験の必要性を訴えるために、一連の計算がLANLで行われた⁽³⁸⁾。計算の対象は、球状の均質²³⁹Pu-SiO₂燃料の外側に厚さ100cm、密度2.2g/cm³のSiO₂反射体を設けた仮想体系である。燃料中の²³⁹Pu量は、燃料の直径にかかわらず100kg一定とする。したがって²³⁹Pu密度は、燃料領域の直径が大きくなれば低くなり、直径が小さくなれば高くなる。燃料領域に含まれるSiO₂の密度は2.2g/cm³で一定とする。このような条件の下では、燃料領域の直径を変えれば、²³⁹PuとSiO₂の比率、つまり体系のスペクトルを自由に調節できる。例えばSi/Pu=90では、全核分裂の77%が1eV～1MeVの間で生じる。Si/Pu=90はガラス固化貯蔵に相当するという。

この仮想体系の臨界計算が幾種類もの断面積セットを使って行われた。使用した原子個数密度を第6表に、計算結果を第7表に、第7表のプロットを第5図に示す。個数密度はLANLより入手した。第7表の右端以外の計算は、LANLで行われた。ENDF/B-Vを使った計算には標準MCNPライブラリを、ENDF/B-IV⁽³⁹⁾を使った計算にはRev.2 MCNPライブラリを使った。27群ライブラリはSCALE 4.2⁽⁴⁰⁾のものである。16群Hansen-Roachライブラリ⁽⁴¹⁾のSiの散乱データは、Los Alamos版がP₀成分、Oak Ridge版がP₁成分までである。第5図から、断面積

第5図 SiO₂反射体付き均質²³⁹Pu-SiO₂燃料の臨界計算結果の比較

セットによって k_{eff} が大きく異なることがわかる。ある断面積セットによる結果は超臨界である一方で、別の断面積セットは十分な未臨界を示した。

この計算では、連続エネルギーと多群の断面積セットの両方が使われた。後者は核データをエネルギー縮約するのに用いた重み関数によって高速系用、熱系用という具合にそれぞれ適用範囲がある。 k_{eff} の大きな差異の要因は、適用範囲からはずれたエネルギー体系の計算に多群断面積セットを使ったことにあると考える。もちろんそれを定量的に示すために、あえて使ったと考えられる。

第6表 均質²³⁹Pu-SiO₂燃料の寸法および原子個数密度

燃料半径 (cm)	燃料体積 (cm ³)	²³⁹ Pu (a/barn·cm)	Si (a/barn·cm)	O (a/barn·cm)	Si/ ²³⁹ Pu
40	2.681×10 ⁵	9.397×10 ⁻⁴	2.205×10 ⁻²	4.410×10 ⁻²	23.47
45	3.817×10 ⁵	6.600×10 ⁻⁴	2.205×10 ⁻²	4.410×10 ⁻²	33.41
50	5.236×10 ⁵	4.811×10 ⁻⁴	2.205×10 ⁻²	4.410×10 ⁻²	45.83
55	6.969×10 ⁵	3.615×10 ⁻⁴	2.205×10 ⁻²	4.410×10 ⁻²	61.00
60	9.048×10 ⁵	2.784×10 ⁻⁴	2.205×10 ⁻²	4.410×10 ⁻²	79.19
70	1.437×10 ⁶	1.753×10 ⁻⁴	2.205×10 ⁻²	4.410×10 ⁻²	125.76
90	3.054×10 ⁶	8.250×10 ⁻⁵	2.205×10 ⁻²	4.410×10 ⁻²	267.28
100	(4.189×10 ⁶)	(6.014×10 ⁻⁵)	2.205×10 ⁻²	4.410×10 ⁻²	(366.64)

注(1) ()内の数値は筆者が計算して求めた値。それ以外はLANLのSanchez氏による。

注(2) SiO₂反射体のSiおよびOの原子個数密度は、上表のSiおよびOの個数密度と同じである。

第7表 均質²³⁹Pu-SiO₂燃料の臨界計算結果の比較

燃料半径 (cm)	Si/ ²³⁹ Pu	ONEDANT 16群HR-LA	ONEDANT 16群HR-OR	MCNP ENDF/B-VI	MCNP ENDF/B-V	KENO 27群	MCNP JENDL-3.2
40	23.47	1.0422	1.0240	0.98266±0.00129	0.97626±0.00114	1.0103±0.0013	0.97277±0.00108
45	33.41	1.0225	1.0065	0.97002±0.00120	0.96065±0.00118	Not done	0.96154±0.00105
50	45.83	1.0132	0.99919	0.96998±0.00128	0.95876±0.00108	0.9895±0.0015	0.96124±0.00127
55	61.00	1.0116	0.99936	0.97667±0.00124	0.9646 ±0.00134	Not done	0.96652±0.00113
60	79.19	1.0152	1.0005	0.98834±0.00111	Not done	0.9978±0.0013	0.97895±0.00112
70	125.76	1.0309	1.0232	1.0171 ±0.00119	0.9993 ±0.0013	1.0213±0.0016	1.00657±0.00122
90	267.28	1.0765	1.0738	1.0799 ±0.0013	1.0598 ±0.00113	Not done	1.06833±0.00121
100	366.64	1.1002	1.0995	Not done	1.0935 ±0.0008	1.0985±0.0014	1.0990 ±0.00127

注(1) 最右端以外の計算結果は、LANLのJaegers氏による。

注(2) このほか、燃料半径80(cm)のKENO-27群計算結果は、1.0482±0.0015であった。

この体系とは別に、さらにもう一つ類似の計算が、鉄反射体付き均質U(93)-鉄燃料体系についても行われたが、均質²³⁹Pu-SiO₂燃料の場合と同じように、使用した断面積セットによって k_{eff} が大きく異なったという。

さて、第5図のLANLの結果の中で最も信頼できるのは、最新の評価済み核データENDF/B-VIに基づく連続エネルギー断面積セットとMCNP 4Aの組合せによる結果であろう。しかしこの結果すら、ベンチマーク臨界実験データの解析による検証が済んでいなければ、どの程度の偏りを持つのか全くわからない。参考のために、MCNP 4AとJENDL-3.2⁽⁴²⁾の組合せで行った筆者の計算の結果を、第7表の右端および第5図に書き込んだ。粒子のヒストリーはLANLのMCNP計算と合わせ、1世代の粒子数を5,000、計算世代数を120、スキップ世代数を20とした。JENDL-3.2による結果は、ENDF/B-VIよりもENDF/B-Vに近い。

3. 実験の仕様

LANLで計画しているZeus実験の概要⁽⁴³⁾は次の通りである。燃料として用意される物質の一つは濃縮度93%のウラン金属で、形状は半径26.67cm、厚さ0.3cmの円板である(燃料プレート)。これと同じ形状寸法で、非核分裂物質でできた円板も用意される(中間プレート)。燃料プレートと中間プレートとを交互に積み重ねて円筒状の炉心を作る。燃料の装荷量を抑えるために、炉心全体を反射体で囲む。実験体系の中性子エネルギースペクトルの変更は、中間プレートの材質と厚さ(枚数)を変えて行う。例えば、グラファイトのような軽い物質を中間プレートとして使えば、プレートの厚さを変えるだけで、高速から中間スペクトルまで自由に調節できる。反射体の材質変更によってもスペクトルを変えられる。燃料として²³⁵Uのほかに²³³UおよびPuを使用する。中間プレートとしてグラファイトのほかに、FeおよびSiO₂を使用する。反射体としてCu、Fe、グラファイトおよびBeを使用する。実験では臨界量のほかに、中性子寿命や中性子エネルギースペクトルも測定する。

4. まとめ

HEUやPuの地中処分は、現在のところ、我が国が直面する課題ではない。しかしこれに関連する実験の一つとして、Zeus実験が行われようとしていることは、中間エネルギー領域の核データの検証という観点から非常に興味深い。

Zeus実験のための臨界装置は、1999年4月26日に初臨界に達した。最初の実験結果^{(44)~(46)}は、驚くべき早さでまとめられようとしている。Cuで全体を覆われた円筒状のU(93wt%) - グラファイト燃料(C : ²³⁵U = 52 : 1)の臨界実験データは、ICSBEPハンドブック⁽⁴⁷⁾の2000年9月版に、HEU-MET-INTER-006と番号付けされて掲載されることが決まった。我が国の核データJENDL-3.2の改訂

作業への貢献、特に²³⁵Uの評価が期待できる。(ICSBEPハンドブックの2000年9月版のCD-ROMは、2000年9月末頃から配布が始まる。それから4週間以内にインターネットでの閲覧も可能となる。詳細は<http://icsbep.inel.gov/icsbep/>まで)

Ⅶ. 終わりに

米国における臨界安全性に関わる最近の動きの一部を紹介した。インターネットを利用して入手したDOEの最新の文献を3つ紹介した。核的臨界安全ガイドLA-12808については、概要を述べるとともに、新たに記載された均質U(93)-H₂Oおよび均質²³⁹Pu-H₂Oの臨界量(計算値)を、既存のデータと比較した。ガイドでは触れられていないFig. 15からFig. 17が抱える問題を指摘した。ANSI/ANS-8.15の活動状況を紹介するとともに、計算に基づくアクチニド核種の臨界量の核データ依存性の強さを例示した。臨界実験Zeusの予備解析結果は、日米両国の最新の評価済み核データJENDL-3.2とENDF/B-VIの間に有意な差異のあることを示した。多群モンテカルロコードKENO V.aの連続エネルギー版PKENO V.aの開発について述べた。

最後に、第IV章に関連するごく最近の我が国における情報を2つ紹介する。Cm同位体の3核種(²⁴⁵Cm, ²⁴⁶Cm, ²⁴⁷Cm)の臨界($k=1.0$)および未臨界($k=0.9, 0.8$)質量の計算に関わるレポートが公開された⁽⁴⁸⁾。裸の²³⁸Pu金属の臨界質量の核データ依存性およびその主たる原因の検討がなされた⁽⁴⁹⁾。

— 参考文献 —

- (1) US Department Energy : DOE G 421.1-1, (1999).
- (2) US Department Energy : DOE STD-1134-99, (1999).
- (3) Callihan, A. D., *et al.* : LA-2063, (1956).
- (4) Abbey, F. : Manual of Criticality Data ; Parts 1, 2, 3, AHSB(s) Handbook 5, Health and Safety Branch, U. K. AEA, (1967).
- (5) Guide de Criticité : Parts I, II, III, CEA-R3114, (1967), [in French].
- (6) Thomas, W., *et al.* : Handbook of Criticality, Technical Univ. of Munich, (1972), [in German].
- (7) Pruvost, N. L., Paxton, H. C., Ed. : LA-12808, (1996).
- (8) Thomas, J. T., Ed. : NUREG/CR-0095, ORNL/NUREG/CSD-6, (1978).
- (9) American National Standard for Nuclear Criticality Safety in Operations with Fissionable Materials Outside Reactors, ANSI/ANS-8.1-1983, Am. Nucl. Soc., La Grange Park, IL, (1983).
- (10) Paxton, H. C., *et al.* : LA-10860-MS, (1987).
- (11) Briesmister, J. F., Ed. : LA-12625-M, (1993).
- (12) Kinsey, D. (ed) : BNL-NCS-17541, 3rd ed., (1979).
- (13) Komuro, Y., *et al.* : Proc. 2nd NUCEF Int. Symp. NUCEF '98, Ibaraki, Japan, 1998, p.443, JAERI-Conf 99-004, (1999).
- (14) Paxton, H. C., *et al.* : TID-7028, (1964).

- ⑮ Carter, R. D., *et al.* : "Criticality Handbook—Vols. I and II", ARH-600, (1968/1969) ; see also Blyckert, W. A., *et al.* : "Criticality Handbook—Vol. III", ARH-600, (1971), (volumes updated 1980 by Rockwell Hanford Operations).
- ⑯ American National Standard for Nuclear Criticality control and Safety of Plutonium-Uranium Fuel Mixtures Outside Reactors, ANSI/ANS-8.12-1987, Am. Nucl. Soc., La Grange Park, IL, (1987).
- ⑰ Clayton E. D., *et al.* : *Trans. Am. Nucl. Soc.*, **75**, 198 (1996).
- ⑱ 原子力発電技術機構原子力安全解析所 : *INS/S 99-6*, (2000).
- ⑲ Whitesides, G. E. : *Nucl. Safety*, **32** (2), 167 (1991).
- ⑳ American Nuclear Standard for Nuclear Criticality Control of Special Actinide Elements, ANSI/ANS-8.15-1981 (R87), Am. Nucl. Soc., La Grange Park, IL (1981).
- ㉑ Brewer, R. W., *et al.* : *Trans. Am. Nucl. Soc.*, **75**, 200 (1996).
- ㉒ Clark, H. K. : *Nucl. Technol.*, **48**, 164 (1980).
- ㉓ Westfall, R. M. : *Nucl. Sci. Eng.*, **79**, 237 (1981).
- ㉔ ENDF/B Summary Documentation, *BNL-NCS-17541 (ENDF-201)*, 2nd Ed. (ENDF/B-IV), (1975).
- ㉕ Ford, W. E., *et al.* : *ORNL/CSD/TM-4*, (1976).
- ㉖ Petrie, L. M., *et al.* : *ORNL/TM-3706*, (1976).
- ㉗ Engle, W. W. Jr. : *K-1963*, (1967).
- ㉘ 野尻 一郎, 他 : 原子力学会「1995秋の大会」予稿集, G 33, (1995).
- ㉙ 小室 雄一, 他 : 原子力学会「1995秋の大会」予稿集, B 55, (1995).
- ㉚ 日本原子力学会「次世代燃料」研究専門委員会 : "プルトニウム燃料工学", 388 (1998).
- ㉛ Sanchez, R. G. : *Proc. 5th Int. Conf. on Nuclear Criticality Safety*, New Mexico, U. S. A., 1995, p.6-182 (1995).
- ㉜ Dunn, M. E., *et al.* : *Nucl. Technol.*, **119**, 306 (1997).
- ㉝ 小室 雄一 : 私 信.
- ㉞ Bowman, C. D. : *LA-UR-96-1800*, (1996).
- ㉟ Kastenber, W. E., *et al.* : *Nucl. Technol.*, **115**, 298 (1996).
- ㊱ 古川和男, 他 : 原子力誌, **38**, 900 (1996).
- ㊲ 原子力産業新聞, 平成9年1月30日号, (1997).
- ㊳ Jaegers, P. J., *et al.* : *LA-UR-95-4060*, (1995).
- ㊴ Rose, P. F. (Ed.) : *BNL-NCS-17541*, 4th ed., (1991).
- ㊵ *NUREG/CR-0200, Rev. 4*, (ORNL/NUREG/CSD-2/R 4), Vols. I, II, and III, (1995).
- ㊶ Hansen, G. E., *et al.* : *LAMS-2543*, (1961).
- ㊷ Shibata, K., *et al.* : *JAERI-1319*, (1990).
- ㊸ Jaegers, P. J., *et al.* : *LA-UR-96-1232*, (1996).
- ㊹ Jaegers, P. J., *et al.* : First critical for Zeus, an intermediate neutron energy spectrum experiment, *Proc. Int. Topical Meeting on Advances in Reactor Physics and Mathematics Computations into the Next Millennium (PHYSOR 2000)*, Pennsylvania, U. S. A., (2000).
- ㊺ Mosteller, R. D., *et al.* : Detailed analysis of the initial Zeus critical configuration with MCNP and ENDF/B-VI, *Proc. Int. Topical Meeting on Advances in Reactor and Mathematics and Computations into the Next Millennium (PHYSOR 2000)*, Pennsylvania, U. S. A., (2000).
- ㊻ Jaegers, P. J., *et al.* : *Trans. Am. Nucl. Soc.*, **81**, 167 (1999).
- ㊼ International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments, *NEA/NSC/DOC (95)03/ I-VII*, OECD-NEA, (1999).
- ㊽ Okuno, H., *et al.* : *JAERI-Research 2000-040*, (2000).
- ㊾ 小野田直光, 他 : 原子力学会「2000秋の大会」予稿集, D 15, (2000).