

3.3 FCAにおけるアクチノイド積分実験

向山 武彦⁺, 岡崎 成晃⁺

主要アクチノイド核種の核断面積データについての評価・修正を行うために、中性子エネルギースペクトルを系統的に変化させた FCA の 8 ケの炉心において、アクチノイド核種核分裂率およびサンプル反応度価値測定を行った。測定結果を JENDL-2 及び ENDF/B-V (又は IV) を用いた計算結果と比較検討する。

Actinides Integral Measurements on FCA Assemblies

Takehiko MUKAIYAMA⁺, Shigeaki OKAJIMA⁺

Actinide integral measurements were performed on eight assemblies of FCA where neutron energy spectra were shifted systematically from soft to hard in order to evaluate and modify the nuclear cross section data of major actinides. Experimental values on actinide fission rates and sample reactivity worths are compared with the calculated values using JENDL-2 and ENDF/B-V (or IV) data sets.

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の処理処分法として地層処分法が各国各研究機関で精力的に進められている。高レベル廃棄物中には半減期の非常に長いアクチノイド(核分裂生成物 ^{99}Tc 及び ^{129}I も半減期には長い)が含まれているため、これらを放射性毒害が充分低くなるまで生物圏から隔離しなければならない期間は数 10 万年以上となり、これだけの超長期間の隔離を保障する事は甚しく困難であろう。一方今年 4 月の米国最高裁におけるいわゆる "カリフォルニア・モトトリヤム" を認める判決に端的に示されるように、一般人は核燃料サイクル・バックエンドにより厳しい目を向けるようになってきた。このような情勢のもとでは地層処分ばかりでなく、それに代わり得るものでより現実的な処分法についても研究開発しておく必要がある。

代替案の一つとして高レベル廃棄物から群分離によりアクチノイドを分離し、核分裂により核分裂生成物に変換する消滅処理法がある。消滅処理システムとして我々はアクチノイド専焼高速炉 (Actinide Burning Fast Reactor; ABFR) を提案してきた¹⁾。これはアクチノイド混合物のみを燃料とする高速炉であり、中性子エネルギースペクトルが硬いほど効率よくアクチノイドを消滅処理できる ($\sigma_f/\sigma_c \gg 1$)。Fig. 1 に群分離・消滅処理サイクルを組込んだ階層核燃料サイクルの概念図を示した。

ABFR 炉心の核設計を行うためには信頼性の高い核データが必要となるが現状では核データの

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

誤差は大きい。そこで主要なアクチノイドの核データの評価・修正を行い信頼性の高いデータを得るために FCA を用いた一連のアクチノイド積分実験を行った。

2. アクチノイド核データの現状

Table 1(a)(b)に各国で用いているアクチノイド核種の核データセットを LMFBR の NEACRP ベンチマーク・モデルの炉心スペクトルを重みとして一群に縮約したものを示した²⁾。アクチノイドについての実験値は少なく、数少ない実験データを共通に用いて得られたデータ・セットの誤差は Table 1 に示されているものより実際はさらに大きいと思われる。

3. FCA における積分実験

積分測定により得られたデータの精度は、微分測定データの精度より良いが、エネルギー的に積分されたデータであるため、エネルギーに関する情報は少ない。広いエネルギー範囲にわたり核データを評価・修正するためには、中性子エネルギースペクトルを系統的に変化させたいくつもの中性子場での積分測定が必要になる。そこで FCA で標準中性子スペクトルの場の選定とその妥当性について一連の特性試験を行った。

3.1 標準中性子スペクトル体系 FCA K 炉心シリーズ特性実験

特性実験については本研究会ポスターセッションにおいて「FCA 標準中性子スペクトル場」(中野, 岡嶋)³⁾として報告されているので、ここでは概略のみ述べる。

特性実験の目的は上に述べたように一連の炉心シリーズにおける中性子スペクトルのシフトの妥当性を検証する事と、積分実験を行う中性子場を記述するための data and method の確立にある。低エネルギー側のスペクトル調整にはグラファイトを希釈材として用い、高エネルギー側の調整には不銹鋼を用いている。核燃料としてプルトニウムを用いた場合にはその α 崩壊に伴う発熱による体系の温度ドリフトがあり、微少反応度測定の精度が悪くなるため、K 炉心では、濃縮ウランを用いた。

中性子スペクトルを正確に記述出来るように信頼性の高い核データを有する物質のみを用いて体系をつくった。又計算する際にモデル化しやすい幾何学的に単純な体系が望ましい。このような観点から FCA K-1 ~ K-6 の 6 つの炉心が設定され、又 20% 濃縮金属ウランのみを用いた K-7 炉心も追加された。FCA K-1 ~ K-7 炉心のセル・パターンを Fig. 2 に示した。なおアクチノイド積分測定はプルトニウム燃料を用いた「常陽 Mark II」模擬炉心 (FCA X-1) においても行った。

FCA K-1 ~ K-7 炉心の諸特性、標準スペクトル場としての妥当性、中性子スペクトル記述の data & method 等については文献 4) を参照されたい。

3.2 アクチノイド核種核分裂率測定

新たに開発した平行板型核分裂計数管⁴⁾を用いて、²³⁵U、²³⁷Np、²³⁸Pu、²³⁹Pu、²⁴¹Am、²⁴³Am および ²⁴⁴Cm について核分裂率測定を行った⁵⁾。

測定対象核種は白金製の陰極に電着されている。電着量はアクチノイド核種が放出する α 線のスペクトロメトリーより電着ソースの毎秒当りの崩壊数を測定し、半減期データを用いて定量（電着原子数）を行う。電着量測定誤差は約1%以下である。電着量は α 崩壊半減期と計数率を勘案して決められ、数 μg (^{238}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm) から約200 μg (^{235}U) の間の量である。この計数管の α 線バックグラウンドと核分裂パルスとの分離は非常によく、 α 線バックグラウンドでマスクされる核分裂カウント数は全核分裂カウントの約1%以下である。

測定は各炉心の中心において行った。核分裂パルスの全カウント数は $1.5 \times 10^4 \sim 1 \times 10^6$ である。

不純物からの核分裂率への寄与は、 ^{238}Pu 計数管の場合、 ^{239}Pu の寄与が19～27%、その他の核種の寄与が約2%、 ^{244}Cm 計数管の場合 ^{240}Pu から3～5%、 ^{246}Cm から6%の寄与があり、その他の計数管では不純物からの寄与は1%以下である。

計数管を炉心に挿入することにより、体系中にステンレス鋼壁のキャビティーを持たむことになり、中性子束分布に摂動を生ずる事になる。このステンレス及びキャビティーの影響に対する補正実験を行った結果、この影響に対する補正は0.1～+2%程度であった。これ等の補正を行って各核種の核分裂率の実験値が求まる。実験時の炉出力に無関係な物理量になるように、 ^{235}U の核分裂率に対する各核種の核分裂比を求める。核分裂比の実験誤差は ^{244}Cm については $\pm 4 \sim 5\%$ 、それ以外の核種については $\pm 2 \sim 3\%$ である。

3.3 アクチノイド核種試料反応度値測定

^{237}Np , ^{238}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am の5核種について炉心中心における試料反応度値測定を行った。測定に用いた試料はアクチノイド酸化物をステンレス製二重円筒キャプセルに密封したものである。

アクチノイド核種重量は ^{238}Pu および ^{240}Pu が約15g、その他の核種は20gである。不純物は ^{238}Pu 試料の場合に ^{239}Pu と ^{240}Pu 合計で約9%存在しているが、他の試料の場合は純度は約98%以上の高純度のものである。

測定は試料を炉心中心に挿入し、体系を臨界に保つための制御棒の位置の変化から反応度値を測定する。臨界点の決定の誤差は制御棒の位置の誤差であり、これは $\pm 0.02 \text{ mm}$ であり、反応度としては $3 \sim 9 \times 10^{-7} \text{ } \Delta k/k$ の誤差である。試料の長さは約8cmであり、炉心中心に対して試料位置を前後に4cm移動させて試料軸方向の反応度値分布を測定したが、炉心寸法の最も小さいK-7炉心において試料全長にわたる反応度値の変化は約6%であり、X-1炉心のようなやや大きな炉心では約3%以下であった。試料を密封したキャプセルの反応度値への寄与分はダミーキャプセルについての測定値を用いて補正している。酸素の反応度値は濃縮ウラン酸化物試料及び劣化ウラン酸化物試料の反応度値測定値より求めた。又 Al_2O_3 試料及びAl試料の反応度値測定値からも求めたが、この2つの酸素反応度値測定値は実験誤差内で一致している。酸素の反応度値の試料反応度値への寄与は ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am 試料のK-3、-4及びX-1炉心における測定の場合特に大きい。

種々の補正を施した後の試料反応度値実験値の誤差は核種1g当り $\pm (5 \sim 20) \times 10^{-8} \text{ } \Delta k/k$ であった。試料反応度値実験値を ^{238}Pu の値に対する比としてFig. 3に示した。

3.4 実験値と計算値の比較

体系の計算には JENDL-2 を、アクチノイド核種試料の核データとしては JENDL-2 及び ENDF/B-V (但し V が使用できない場合には N) ライブラリーを用いた。計算のフローを Fig. 4 に示す。炉心セルについては衝突確立法コード SP-2000⁶⁾ により JENDL-2 ライブラリー (1950 群) を用いて無限平板セル計算を行い、20 群実効断面積を求め、次にこの断面積を用いて、炉心およびブランケットの 2 領域体系について 20 群 2 次元 R-Z モデルによる $S_4 P_1$ 近似輸送計算を行い中性子束及び随伴中性子束を求める。一方アクチノイド核種の核データとして JENDL-2 及び ENDF/B-V (又は N) ライブラリーを用い、1950 群データを作成し SP-2000 を用いて求めた体系の中性子スペクトル (1950 群) を重みとして無限希釈の 20 群断面積に縮約し、一次摂動論によりアクチノイド核種の核分裂率及び試料中心反応度値を計算する。実験値と計算値の比較は、 ^{235}U に対する各アクチノイド核種の核分裂率及び ^{239}Pu に対する反応度値の比について行った。

核分裂比の計算値の実験値に対する比を C/E として Fig. 5(a)(b) に示した。又試料反応度値比の C/E 値を Table 2 に示した。

Fig. 5(a)(b) には計算精度をチェックするために ^{239}Pu の核分裂比を示したが、この値は全測定体系にわたって実験値と計算値は実験誤差内で一致していて計算の精度は充分よいことがわかる。 ^{239}Pu については K-2 炉心における実験値に問題があるがその他の体系については実験誤差内で実験値と計算値は一致している。その他の核種については計算値は実験値より 5~15% 大きな値を与えている。JENDL-2 と ENDF/B ライブラリーの間には ^{237}Np および ^{243}Am で 5~8%、 ^{244}Cm で ~2% の差を生ずるが、その他の核種についてはほとんど同じ値を与えている。

試料反応度値比については、計算精度の目安を示すために ^{235}U の ^{239}Pu に対する反応度値比の比を Table 3 に併記した。全ての体系について 3% 以内で計算値は実験値と一致していて、計算手法の妥当性を示している。

試料反応度値比は主として核分裂による正の反応度値の寄与と吸収による負の反応度値の寄与の和であり、測定した核種の中には中性子スペクトルによってはこれら正負の寄与がほぼ等しくなり、反応度値としては 0 に非常に近いものもある。この様な場合には C/E として実験値と計算値を比較するのは適当でないので、試料反応度値の実験値及び計算値の一方又は両方が ^{239}Pu の値の 10% 以下になる場合には $1-C/1-E$ として比較し、Table 2 ではこれ等の値をカッコ内に示した。 ^{240}Pu の場合には K-7 炉心以外では計算値は実験値よりかなり小さい値となっていて、JENDL-2 及び ENDF/B-V でその傾向はほぼ同じである。 ^{238}Pu の場合には K-1 炉心以外では計算値が実験値より大きい値 (最大で 20%) を示していて、JENDL-2 の方が ENDF/B-V より 5% 程実験値に近い値を与えている。 ^{237}Np および ^{243}Am については JENDL-2 を用いた計算値は比較的良く実験値を再現しているのに対し、ENDF/B-V を用いた計算値は実験値との一致はひどく悪い。 ^{241}Am については K-5 炉心以外では比較的实验値と計算値の一致は良い。

4. まとめ

核分裂断面積データについては、JENDL-2では ^{238}Pu 、 ^{237}Np のデータ、ENDF/B-Vでの ^{238}Pu のデータの信頼性は高く、その他の核種については両ライブラリーとも5~15%大きい値となっている。試料反応度値に関しては、JENDL-2データを用いた方が、 ^{237}Np および ^{243}Am について実験値をより良く予測し、その他の核種についてはJENDL-2およびENDF/Bのデータに大きな差はない。

今後これ等の積分測定値を最少自乗法を用いてフィッティングし、核分裂断面積及び捕獲断面積の修正をする予定である。

謝 辞

本研究のうちFCA X炉心特性実験は中野正文が、核分裂率測定は大部誠が、試料反応度値測定は向山がそれぞれ責任者となり行った。小坪龍男、岡嶋は実験全般に寄与している。実験全体のとりまとめは黒井英雄（前高速炉物理研究室長）が行った。計算については永井正克氏（金沢計算センター）の協力を得た。本報告をまとめるに当り御協力いただいた上記の方々、及び議論していただいた吉田弘幸高速炉物理研究室長に感謝いたします。

References

- 1) T. Mukaiyama, H. Mitani, K. Koyama, M. Obu, H. Kuroi, "Evaluation of actinide cross sections by integral experiments", Nuclear Cross Sections for Technology (Proc. Int. Conf. Knoxville, 1979), NBS SP 594 (Washington, 1980)
 H. Murata, H. Kuroi, "A proposed concept on actinide waste transmutation", Nuclear Technologies in a Sustainable Energy System (Selected papers from an IIASA Workshop edited by G. Bauer and A. McDonald) pp 237 (Springer-Verlag, 1983)
 H. Murata, T. Mukaiyama, "Fission Reactor Studies in View of Reactor Waste Programmes", accepted for publication by Atomkernenergie-Kerntechnik 45 (1984) (Proc. Int. Conf. Emerging Nuclear Energy Systems, Helsinki, 1983)
- 2) "NEACRP LMFBR Benchmark Calculation, Intercomparison for Full Burn-up", to be published
- 3) 中野正文, 岡嶋成晃, "FCAにおける標準中性子スペクトル場" (本研究会ポスター発表), P.6 JAERI-M 84-010 (1984)
- 4) 大部誠, "アクチノイド核種を用いた核分裂計数管の製作と特性" JAERI-M 9757 (1981)
- 5) M. Obu, et al., to be published
- 6) H. Kuroi, T. Tone, "SP-2000: Program for Calculating Fine Group Neutron Spectrum in Multi-region Cell and Effective Broad Group Constants", JAERI-1240 (1975)

Table 1(a) Comparison of one-group fission cross section of actinides at core center of LMFBR

Set Isotope	(Unit : barns)				
	CARNAVAL ^a IV	ENDF/B-V ^b	FGL5 ^c	JENDL2 ^d	KEDAK4 ^e
U 235	1.94	1.98	1.98	2.01	2.06
U 238	0.040	0.042	0.043	0.044	0.043
Np 237	0.33	0.33	0.31	0.32 ^f	0.34
Pu 238	0.84	1.15	1.13	1.13	1.05
Pu 239	1.81	1.85	1.83	1.86	1.87
Pu 240	0.33	0.37	0.35	0.37	0.37
Pu 241	2.53	2.60	2.70	2.64	2.59
Pu 242	0.22	0.26	0.27	0.27	0.25
Am 241	0.29	0.29	0.27	0.28 ^g	0.28
Am 242	3.70	0.61	3.33	3.49	3.86
Am 243	0.20	0.22	0.19	0.22	0.20
Cm 242	2.05	—	1.23	0.47	—
Cm 243	3.39	2.77	2.89	2.91	2.46
Cm 244	0.45	0.40	0.38	0.41	0.43

Table 1(b) Comparison of one-group capture cross section of actinides at core center of LMFBR

Set Isotope	(Unit : barns)				
	CARNAVAL ^a IV	ENDF/B-V ^b	FGL5 ^c	JENDL2 ^d	KEDAK4 ^e
U 235	0.59	0.61	0.54	0.64	0.62
U 238	0.29	0.30	0.29	0.30	0.31
Np 237	1.41	1.82	1.95	1.70 ^f	1.66
Pu 238	0.55	0.79	0.46	0.95	0.71
Pu 239	0.57	0.56	0.55	0.60	0.57
Pu 240	0.55	0.60	0.63	0.62	0.64
Pu 241	0.50	0.50	0.62	0.53	0.52
Pu 242	0.63	0.47	0.39	0.39	0.48
Am 241	2.02	1.86	1.88	1.69 ^g	1.93
Am 242	0.70	0.097	0.11	0.45	0.46
Am 243	1.60	1.20	1.73	1.69	1.53
Cm 242	0.59	—	0.51	0.64	—
Cm 243	0.50	0.27	0.10	0.29	0.18
Cm 244	0.85	0.91	0.49	0.66	0.65

a: CEA, FRANCE, b: ANL, USA, c: UKAEA, UK, d: JAERI, Japan, e: KFK, West Germany, f: ENDF/B-IV, g: JENDL1.

Table 2 C/E values of actinide sample reactivity worth ratio to Pu-239 in FCA standard neutron spectra assemblies

Assembly No.	Data Library	Np237/Pu239	Pu238/Pu239	Pu240/Pu239	Am241/Pu239	Am243/Pu239	U235/Pu239
IX-1	JENDL ^{a)}	1.06	0.70	-0.73	0.98	0.91	1.012
	ENDF/B ^{b)}	0.99	0.84	-0.61	1.00	0.77	1.022
IX-2	JENDL	1.01	1.00	0.53	0.96	0.71	0.985
	ENDF/B	0.60	1.08	0.59	0.86	(0.78)	0.979
IX-3	JENDL	(0.98) ^{c)}	1.07	0.69	(0.98)	(0.92)	1.002
	ENDF/B	(0.88)	1.12	0.74	(0.96)	(0.86)	0.995
IX-4	JENDL	(0.97)	1.08	0.58	(0.95)	(1.00)	0.976
	ENDF/B	(0.89)	1.12	0.62	(1.04)	(0.85)	0.978
IX-5	JENDL	1.11	1.11	0.67	0.77	1.11	0.967
	ENDF/B	1.57	1.15	0.70	0.80	1.78	0.970
IX-6	JENDL	1.06	1.12	0.80	1.01	1.14	0.980
	ENDF/B	1.36	1.17	0.84	1.01	1.49	0.991
IX-7	JENDL	1.16	1.18	1.03	1.12	(0.94)	1.007
	ENDF/B	1.63	1.25	1.08	1.16	(0.83)	1.028
X-1	JENDL	(0.99)	1.03	0.81	(0.98)	(0.96)	0.979
	ENDF/E	(0.92)	1.10	0.88	(0.97)	(0.83)	0.994

a) : JENDL-2

b) : ENDF/B-V for Np-237, Pu-238, Am-241, Am-243 and U-235, ENDF/B-IV for Pu-239 and Pu-240

c) : Values in parentheses are values of $1-C/1-E$ for $|C|$ or/and $|E| < 0.1$

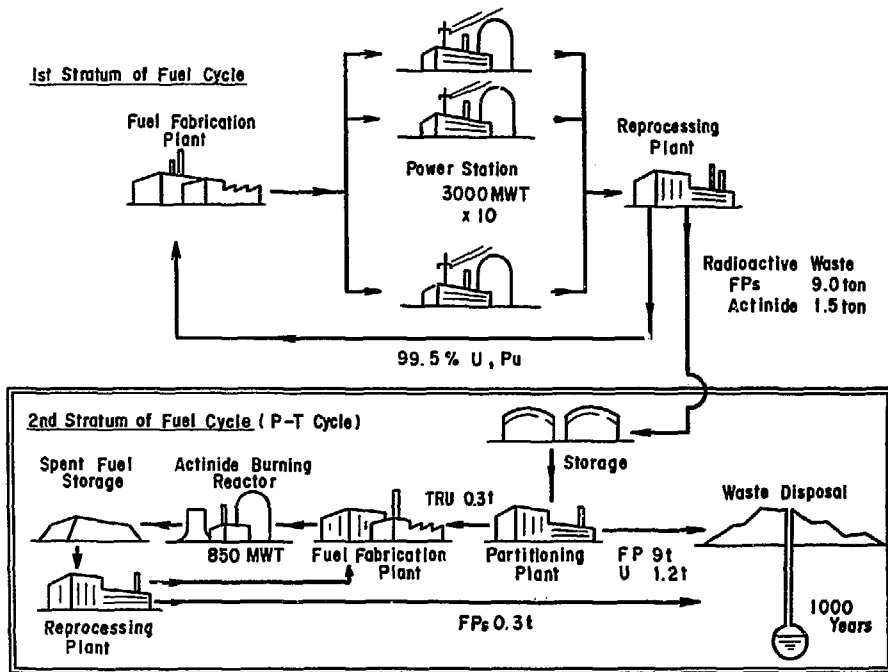


Fig. 1 Flow of Radioactive Waste per Year through Double Strata Fuel Cycle combined with Partitioning and Transmutation (Actinide Burning Fast Reactor) Cycle

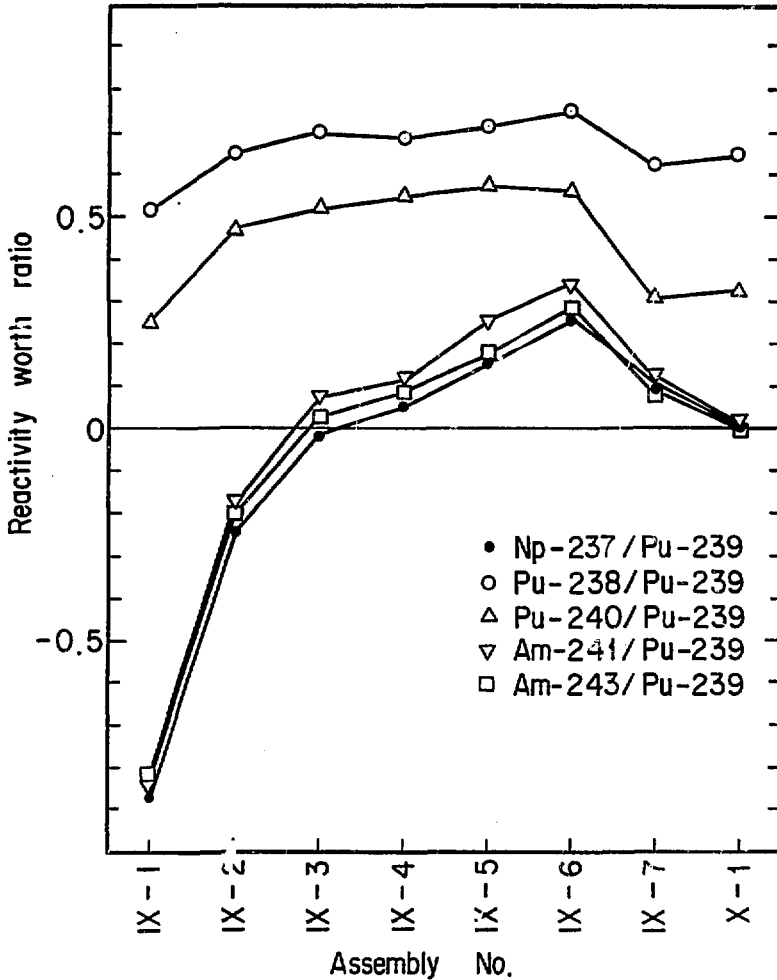


Fig. 3 Actinide sample worth ratio measured in FCA assemblies

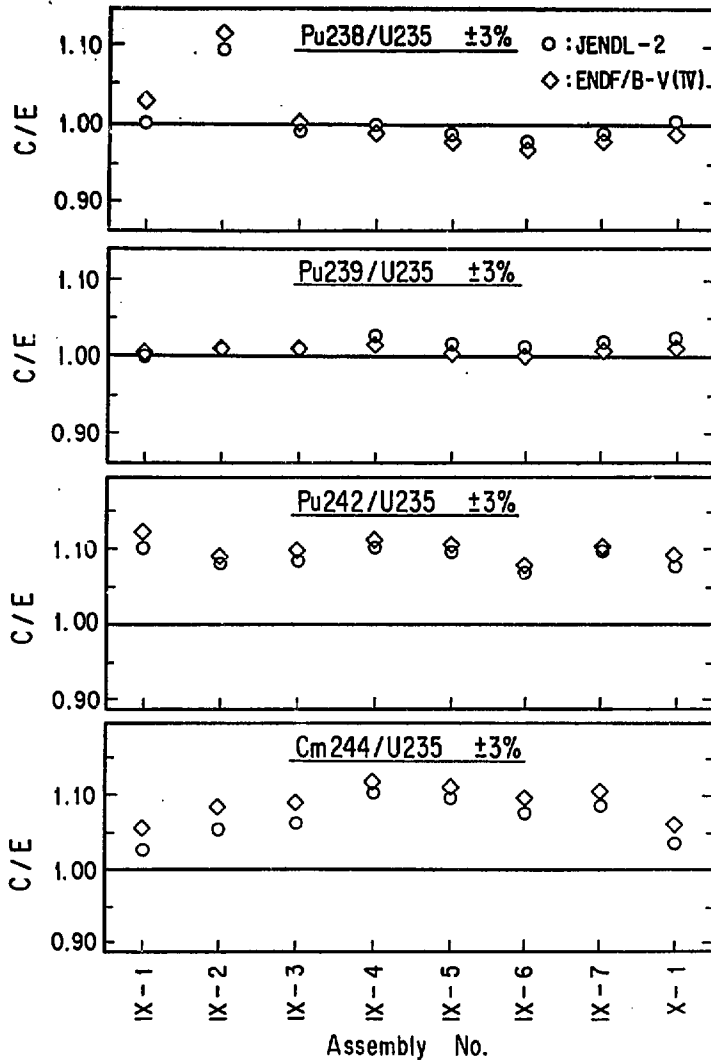


Fig.5(a) Comparison between values calculated (C) and measured (E) for actinide fission rate ratio in FCA assemblies

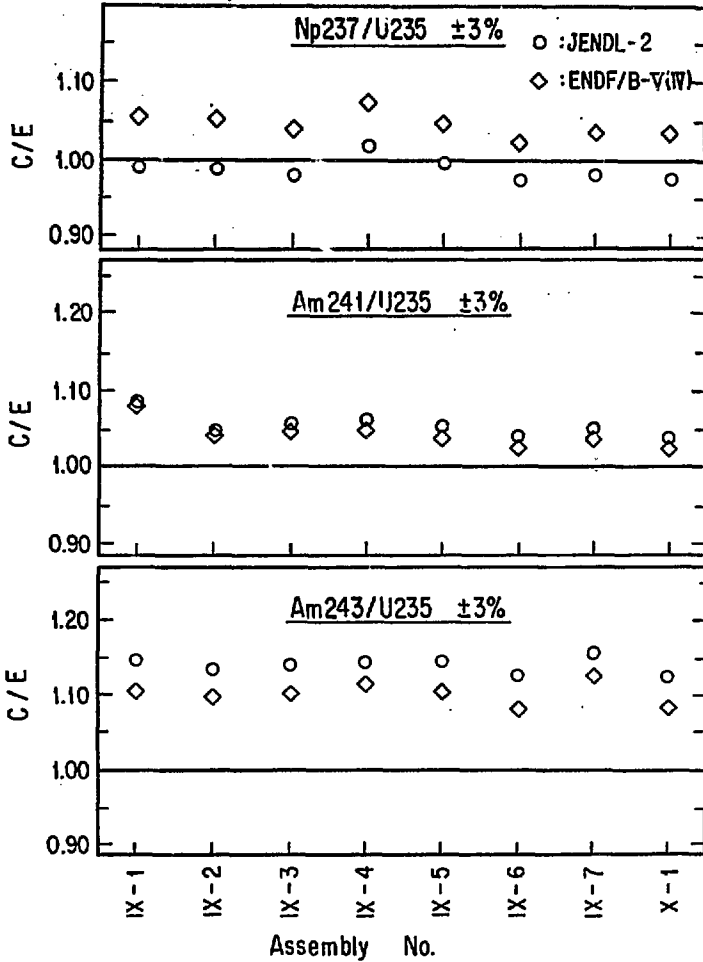


Fig. 5(b) Comparison between values calculated (C) and measured (E) for actinide fission rate ratio in FCA assemblies

討 論

Q: 瑞慶覧 篤 (日立・エネ研)

Actinide nuclei の sample worth について計算値と実験値の間に systematic な discrepancy があるのか?

A: 向山 武彦 (原研)

Table 2 に示したように、 ^{235}U の ^{239}Pu に対する worth ratio で見る限り、この一連の実験では、計算値と実験値の間の systematic discrepancy はない。他の Actinide nuclide については systematic discrepancy を議論できる程には断面積データの精度は高くない。

Q: 菊池 康之 (原研)

fission ratio が良くあうのに worth の C/E がバラツキすぎる。worth の解析に問題があるのではないかと。この worth で核データを云々できないのではないかと?

A: 向山 武彦 (原研)

Table 3 に示すように、 $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ の worth ratio の C/E は 1.0 ± 0.03 であり解析に問題はない。worth に関する核データの精度の現状が C/E のバラツキに現われている。但し fission ratio では σ_f のみを考えれば良いが、sample worth は $\nu\Sigma_f - \Sigma_a$ という差分を考えなければならず、 $\nu\Sigma_f$ 、 Σ_a の各々がわずかわずか変わっても、 $\nu\Sigma_f \sim \Sigma_a$ の場合にはその差分の変化の仕方は大きい。今回の一連の実験の様に中性子スペクトル・シフトの大きい場合にも sample reactivity worth (特に exotic な sample に対して) の C/E のバラツキが小さければ、その核データ・ライブラリーは広いエネルギー領域に対してバランスのとれた良いライブラリーと言える。

Q: 五十嵐 信一郎 (原研)

専焼炉の立場から見て、どんな核種のどんなデータが必要か。最初に見せた表からは何が必要と言えるか?

A: 向山 武彦 (原研)

議論は 2 つに分かれる。第 1 は発電炉 (LWR, FBR) におけるアクチノイド生成量に関係する核データであり、専焼炉の初期燃料組成に関係してくる。第 2 は専焼炉中の燃焼にともなう燃料組成の変化に関係する核データである。第 1 の点については、感度解析のセッションで三谷氏 (原研) から話があると思うが、FBR におけるアクチノイド生成に関しては、 ^{241}Pu 、 ^{242}Cm の崩壊定数、 σ_c に関しては、 ^{237}Np 、 ^{241}Am 、 ^{242}Pu 、 σ_f に関しては、 ^{237}Np 、 ^{241}Am 、 ^{242}Am 、 $^{242\text{m}}\text{Am}$ 、 ^{242}Pu の精度よいデータが要求される。(H. Mitani, et al, JAERI-M 8133 (1979))。第 2 の点については、 ^{237}Np 、 ^{238}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am の σ_f 、 σ_c 、 ^{239}Pu の σ_c 、 ^{241}Am 、 ^{242}Bm 、 ^{244}Cm の decay constant などの精度よいデータが必要である。

Q: 飯島 俊吾 (NAIG)

標準場として、 $\phi(E)$ 、 $\phi^*(E)$ の詳細表を是非公表しておいて欲しい。

A: 向山 武彦 (原研)

FCA 標準中性子スペクトル炉心 (FCA-K-1~7) については、今後も標準場として各種測定に用いる予定である。各体系の $\phi(E)$ 、 $\phi^*(E)$ の詳細データについては、皆さんに御利用いただけるような形で特性実験グループ (責任者: 中野正文) より発表する予定である。