

## II. 高速炉における核分裂生成核種

富岡秀剛 (日本原子力研究所)

原子炉において核分裂生成核種が注目された最初の問題は、熱中性子炉における  $^{135}\text{Xe}$  の毒作

用と **delayed neutron** の先行核とであった。それ以来、熱中性子炉の研究開発の進展と共に、核分裂生成物およびそれに含まれる核種の研究も多数発表されて来た。

一方、高速炉における核分裂生成物および核種に関する研究は、高速炉の開発が熱中性子炉よりもおこなわれていることもあって、熱中性子炉に比較してずっと少ない現状である。しかし近年の高速動力炉の世界的な開発熱の中で、核分裂生成物および核種に関する研究も漸く盛んになろうとする気運が感じられる。

炉内の燃焼に伴って核分裂による一次生成物が生成される。この一次生成物に含まれる核種は、それらの生成率から判断して、質量数が  $A = 70 \sim 165$  の同重核系列に属する核種を考慮すれば十分である。これらの核種は、炉内において、 $\beta$ -崩壊、 $(n, \gamma)$ 、 $(n, 2n)$ 、 $(n, p)$  などの核反応、**delayed neutron** の放出などの過程を経て他の核種に変換していく。これらの核種は、上記の核変換過程を通して、全体として一つの核変換網を形成している。(Fig. 1) 変換網の構成核種の数は約四、五百核種になる。燃焼過程を考えるとときには、上記の核変換過程のうち **delayed neutron** の放出は他の過程にくらべて少ないので通常は無視する。

これまでに発表された研究においては、 $\beta$ -崩壊と  $(n, \gamma)$  反応のみを考慮しその他の核反応は無視された。このような取扱いが行われて来た理由は、1つには計算機の能力が不足していたこと、1つには対象となった炉が主に熱中性子炉で、 $(n, 2n)$ 、 $(n, p)$  などのような高いエネルギー領域において現われる核反応は重要視しなくても良かったことである。

高速炉に対しては、 $(n, 2n)$ 、 $(n, p)$  などの核反応も考慮することが必要であると思われるが、そのことを吟味検討するデータはない。また、必要としても、これらの核反応を実際にとり入れることは、下記の理由により現在利用できる計算機の能力では困難である。

$\beta$ 崩壊と  $(n, \gamma)$  反応だけを考える場合と、それらに加えて  $(n, 2n)$ 、 $(n, p)$  なども考える場合との差異は、生成核種の密度変化を記述する方程式系に現われる。

前者の場合は、核種は  $Z$ 、 $A$  の小さいものから大きいものに順次変換していくことになり、それに対応して方程式系も  $Z$ 、 $A$  の小さいものから大きいものに順次解いていくことができる。後者の場合は、 $Z$ 、 $A$  の大きいものから小さいものへの変換もあるから方程式系は連立系となる。すなわち数百元一次の連立方程式を解かなければならなくなる。このような大きい連立系を解くことは、現在利用できる計算機の能力では困難である。

高速炉の燃焼過程および長期特性の解析においては、核分裂生成核種の **capture cross-section**  $\sigma(n, \gamma)$  は、多群定数の形に変換して使用される。

$\sigma(n, \gamma)$  は、中性子エネルギー： $E_n = \text{thermal} \sim 10\text{MeV}$  (あるいは  $20\text{MeV}$ ) の範囲の値が必要である。それらの値は、測定値および理論による計算値が用いられる。 $\sigma(n, \gamma)$  の計算において、共鳴準位のパラメータが測定されているエネルギー領域では、それらのパラメータ

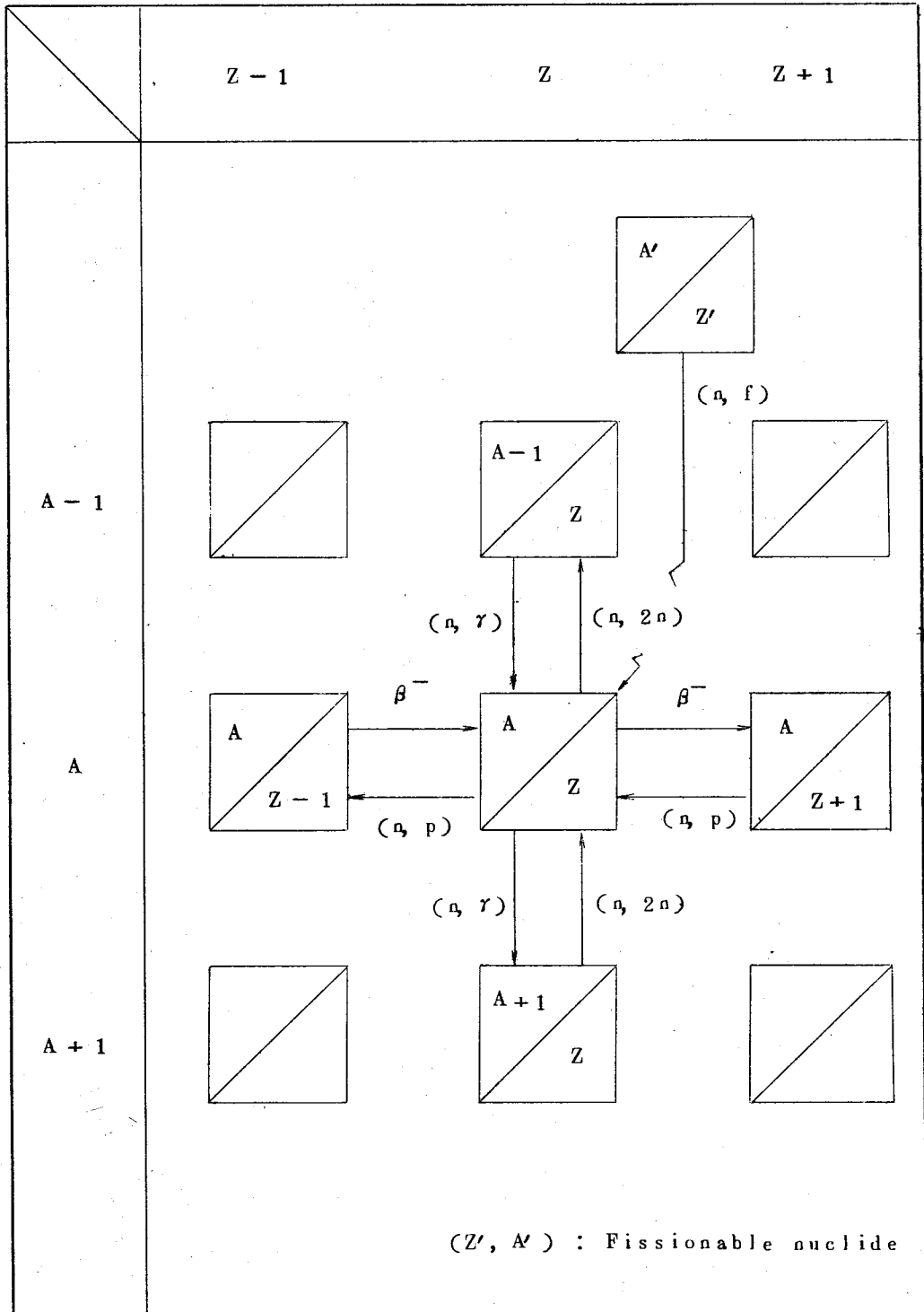


Fig. 1

を用いて Breit-Wigner の公式により  $\sigma(n, r)$  の値を求める。

単位パラメータが測定されていない領域および連続領域では、統計モデルに基づく理論を用いて  $\sigma(n, r)$  の値を求める。核分裂生成物に含まれる核種について、これまで発表されている測定値をみると、軽い方の核種では 10 keV 以上のエネルギー領域が、重い方の核種では 1 keV 以上のエネルギー領域が連続領域と見なせる。連続領域における  $\sigma(n, r)$  の値は、高速炉の解析および設計にとって重要である。連続領域における  $\sigma(n, r)$  の測定値はまだ不十分であるので、かなりの部分を理論計算に頼らなければならない。これについて、これまで P. Grebler, et al.,<sup>1)</sup> U. L. Businaro, et al.<sup>2)</sup>, I. V. Gordeev と V. Y. Pupko<sup>3)</sup>, V. Benzi と A. M. Saruis<sup>4)</sup>, J. D. Garrison と B. W. Ross<sup>5)</sup>, および V. Benzi と M. V. Bortolani<sup>6)</sup> の仕事がそれぞれ発表されている。最後の V. Benzi と M. V. Bortolani の仕事では、4 MeV 以上では直接過程も考慮している。そこでの取扱いは、Lane と Lynn の式<sup>7)</sup> を用い粗い評価をしている。

核分裂生成核種に対する核データとしては、cross-section の他に生成率が重要である。熱中性子分裂からの生成率については、S. Katcoff の compilation の仕事<sup>8)</sup> は、良く知られている。しかし高速炉で問題になるようなエネルギー領域の中性子による分裂からの生成率については、実験データが少なく、また生成率のエネルギー依存性を予測する満足な理論もない状況である。

生成率に対しては、cross-section ほど未だ関心を持たれていないようであるが、実際の燃焼過程の解析においては、cross-section と同程度に重要である。

核分裂生成核種の多群定数を作成する場合に、解析の対象によってそのまとめ方が異なってくる。たとえば、燃料再処理から要請される“取り出した使用済み燃料体の元素組成がどうなっているか”という問題の場合には、核変換網を正確に追跡し、個々の核種の密度変化を求めることが必要になる。そのような場合には、個々の核種について照射時間に依存する多群定数を作成する必要がある。一方、“燃焼に伴い炉の反応度がどう変るか”という問題の場合には燃料核種の密度変化は正確に求める必要があるが、核分裂生成核種をひとまとめにして一つの仮想的吸収物質、いわゆる pseudo fission product (PFP) として取り扱うことができる。PFP は 1 つのグループとは限らず、時には数箇のグループにまとめることもある。高速炉の解析によく用いられている Abagyan, et al. の 26 群定数系——しばしば ABN set と呼ばれている——に、<sup>235</sup>U, <sup>238</sup>U および <sup>239</sup>Pu の核分裂から生成される核種を 1 つのグループにまとめた PFP の 26 群定数が与えられている。

核分裂生成核種が、高速炉の増殖比、臨界量および反応度に及ぼす影響を解析した結果の 1 例を TABLE 1 に示す。対象とした炉は炉心体積 1500ℓ、炉心組成は燃料が 25 v/o、構造材が

TABLE 1  
INFLUENCE OF FISSION PRODUCTS\* ON BREEDING RATIO, CRITICAL MASS  
AND REACTIVITY

Reactor type**	Critical mass (kg)		Breeding ratio		Loss in reactivity
	New reactor	With fission products*	New reactor	With fission products**	$\delta k/k$
Metal	686	700	1.79	1.74	0.0115
Oxide	562	592	1.47	1.39	0.0312
Carbide	613	630	1.56	1.47	0.0165

\*  $0.0008 \times 10^{24}$  atoms per cubic centimeter of fission product.  
\*\* 1500-l, fuelled with Pu A.

TABLE 2  
CAPTURE CROSS-SECTIONS FOR FISSION PRODUCT

Group	$\sigma_{n,\gamma}$
1	0.020
2	0.040
3	0.063
4	0.090
5	0.092
6	0.095
7	0.110
8	0.125
9	0.140
10	0.165
11	0.200
12	0.250
13	0.330
14	0.450
15	0.690
16	1.54

TABLE 3  
CENTRAL REACTIVITY EFFECTS FOR PHYSICUM, Mo, Nb AND Ta IN VARIOUS  
ZPR-III ASSEMBLIES  
Measured and calculated

Assembly No.	Inhours per % $\delta k/k$	Loss in $\delta k/k$ per gram atom					
			Ph I	Ph II	Mo	Nb	Ta
8	430	Meas.	0.000053	0.000063	0.000030	0.000047	0.000123
		Calc.	0.000081	0.000081	0.000042	0.000053	0.000153
20	444	Meas.	0.000063	—	0.000023	—	0.000101
		Calc.	0.000060	—	0.000043	—	0.000113
24	475	Meas.	0.000048	0.000063	0.000032	0.000040	0.000124
		Calc.	0.000048	0.000048	0.000035	0.000037	0.000095
25	478	Meas.	0.000052	0.000050	0.000025	0.000031	0.000098
		Calc.	0.000036	0.000036	0.000025	0.000025	0.000073
29	437	Meas.	0.000076	0.000058	0.000026	0.000041	0.000134
		Calc.	0.000049	0.000049	0.000030	0.000045	0.000123
30	433	Meas.	0.000049	0.000052	—	—	—
		Calc.	0.000044	0.000044	—	—	—
31	434	Meas.	0.000031	0.000028	—	—	—
		Calc.	0.000034	0.000034	—	—	—
32	422	Meas.	0.000100	0.000069	0.000014	—	—
		Calc.	0.000066	0.000066	0.000029	—	—
33	422	Meas.	0.000092	0.000073	0.000014	0.000026	0.000131
		Calc.	0.000055	0.000055	0.000024	0.000038	0.000121

25 v/o, 冷却材が25 v/o, 燃料組成は<sup>239</sup>Pu が100%で, 核分裂生成物が炉心の単位体積中に $8 \times 10^{20}$  atoms が一様に存在しているものである。

そのとき用いた核分裂生成核種の多群定数は, 1つのグループにまとめられたPPPに対する16群定数で, それをTABLE 2に示す。その他の多群定数は, Yiftah, et. al. の16群定数系——通常YOM set と呼ばれている——を用いている。

高速炉臨界実験装置における核分裂生成物に関する実験は, ANLの臨界実験装置ZPR-IIIにおいて行なわれている。そこでは, 核分裂生成物のnuclear mock ups として天然元素の非放射性混合物を作り, それを炉心の中心部に入れたときの反応度変化, いわゆるcentral reactivity measurement を行ない, YOM set を用いた理論解析と比較している。その結果をTABLE 3に示す。

Physicum I, II というのが上記の混合物である。その他に元素Mo, NbおよびTaについてもcentral reactivity measurementを行なっている。

Karlsruhe の臨界実験装置SNEAKにおいても, 核分裂生成物を安定な元素の混合物により模擬し, それによる反応度効果を測定する計画を発表している。<sup>9)</sup>

原研のFCAにおいても, 核分裂生成物のモック・アップ実験の準備が進められて居り, 近いうちに実験に入る予定である。

高速炉の核分裂生成核種, それらの核データと炉特性との関連については, 今後, なお多くの研究を必要とする状況にある。

## 参 考 文 献

1. Greebler, P., et. al., N S. E., 2 ('57) 334
2. Businaro, U. L., et. al., J. Nucl. Energy, Pt. A, 4 ('57) 319
3. Gordeev, I. V., and Pupko, V. Y., Proc. 2nd Int. Conf. on PUAE ('58) P/2223
4. Benzi, V. and Saruis, A. M., Physics of Fast and Intermediate Reactors, Vol. I ('62)
5. Garrison, J. D. and Roos, B. W., N S. E., 12 ('62) 115
6. Benzi, V. and Bortolani, M. V., Nuclear Data for Reactors, Vol. I. ('67)
7. Lane, A. M. and Lynn, J. E., Nucl. Phys., 11 ('59) 646
8. Katcoff, S., Nucleonics, 16 ('58) No. 4 78
9. Engelmann, P., et. al., KFK-472