



Gd-157 熱中性子捕獲断面積に関する最近の検討状況

JENDL 委員会

リアクター積分テストワーキンググループ

千葉 豪

go_chiba@eng.hokudai.ac.jp

1. はじめに

軽水炉ではサイクル初期の余剰反応度を抑制するために可燃性毒物が用いられるが、その代表的なものとしてガドリニア（酸化ガドリニウム(III)、 Gd_2O_3 ）が挙げられる。ガドリニウム同位体のうち Gd-155、-157 の中性子捕獲断面積を図 1 に示す。これらの断面積は熱中性子エネルギー領域で極めて大きい値を示しており、この特性が、ガドリニアが可燃性毒物として用いられる所以となっている。

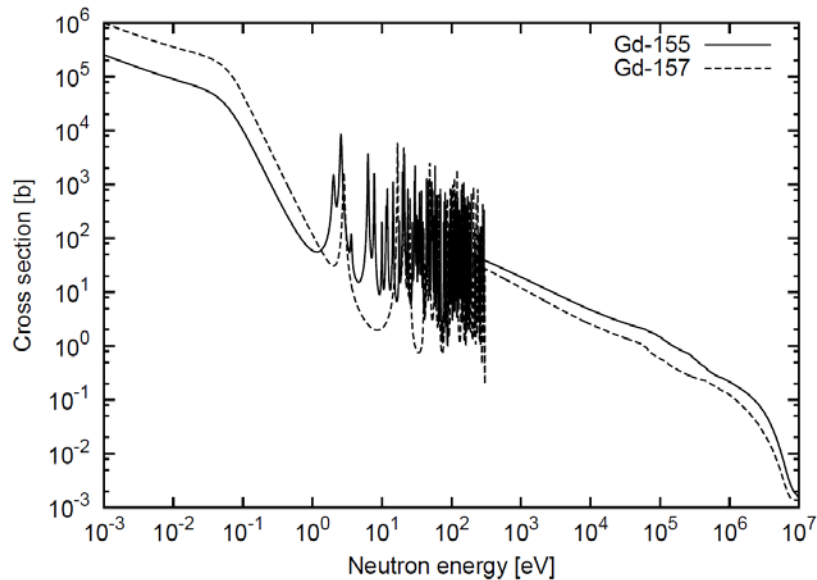


図 1 Gd-155、-157 の中性子捕獲断面積 (JENDL-4.0)

2006 年、RPI の Leinweber らが Gd-157 の中性子捕獲断面積について新たな実験データを取得した[1]。彼らがそのデータに基づいて熱中性子断面積を評価したところ、従来の評価値と比べて小さい値となり、JENDL-3.3 と比較するとその差は 10% 強に達した。当

時、ガドリニアに関連する核分裂率分布に関する軽水炉の積分特性で、予測値と測定値の一致が比較的良くないものがあり、Leinweberらの新たな評価値を導入することでその問題が解決される可能性が示唆されたことから、俄かに Gd-157 の中性子捕獲断面積がクローズアップされ始めた。

本稿では、Gd-157 中性子捕獲断面積について、JENDL-4.0 における評価とその後のリアクター積分テスト WG での検討内容を紹介する。

2. Gd を含む軽水炉体系の核特性

本節では、ガドリニアに馴染みの無い読者のために Gd を含む軽水炉体系の核特性について簡単な解説を行う。

図 2 に示すような軽水炉のマルチセル体系を考える。中央に位置する燃料棒にはガドリニアが添加されているものとする。ガドリニアが添加されている燃料棒（以下、Gd 棒）で空間メッシュ分割が詳細なのは、中性子吸収反応率に強い空間依存性が現れるためである。この体系について、ガドリニアの添加割合をパラメータとして変化させ、いくつかの核特性を観察する（おおまかな傾向を見るのが目的であるため、減速材領域はメッシュ分割していない）。

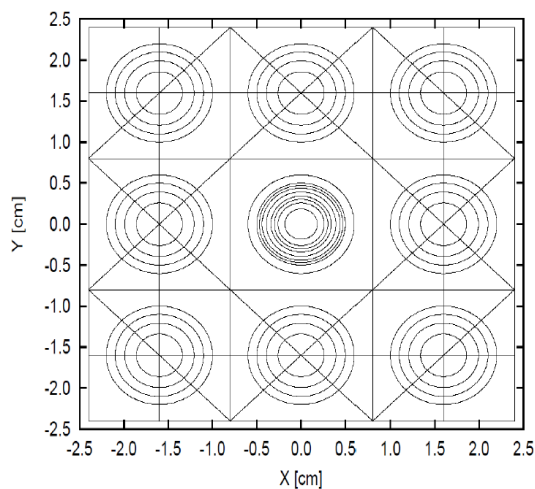


図 2 軽水炉のマルチセル体系（中央の燃料棒にガドリニアが添加）

まずは、中性子吸収反応率について Gd 棒とその他の燃料棒との比を計算した。結果を図 3 に示す（赤線）。ガドリニアの添加率が大きくなるにつれて、Gd 棒の中性子吸収反応率が相対的に大きくなっていき、徐々に飽和していく様子が分かる。また、同図には Gd 棒における中性子生成率と吸収率の比も併せて示している（緑線）が、この比はガドリニア添加率の増加に伴い減少していることが分かる。ただし、吸収反応率の比（赤線）と異なり、ガドリニア添加率が大きい範囲でもある程度の変動が見られている。図 4 には Gd 棒における核分裂率のエネルギースペクトルを示す。図 1 に見られるように、Gd-157

の捕獲断面積は0.1eV以下で 10^5 barn以上の非常に大きな値を持つが0.1eV以上ではその値が急激に小さくなる。このようなGdの捕獲断面積の特性の影響で、ガドリニア添加率を増加させると、熱中性子束のピークが急速に低下するとともに、熱外中性子束も徐々に低下し、結果的に熱中性子束のピークが高エネルギー側にシフトする。中性子吸収反応率は熱エネルギー領域が支配的であるため図3の赤線に示されるようにガドリニア添加率の増加に伴い変動が小さくなるが、生成率については0.1eVより高い領域での変動が影響する。つまり、Gd棒は熱中性子に対しては、あるガドリニア添加率以上で黒体として見做せるが、熱外中性子に対しては一概にそうは言えない、ということである。なお、参考情報として、図5にGd棒の中性子平均自由行程を示す（今回対象としているGd棒の直径は1.0cmである）。

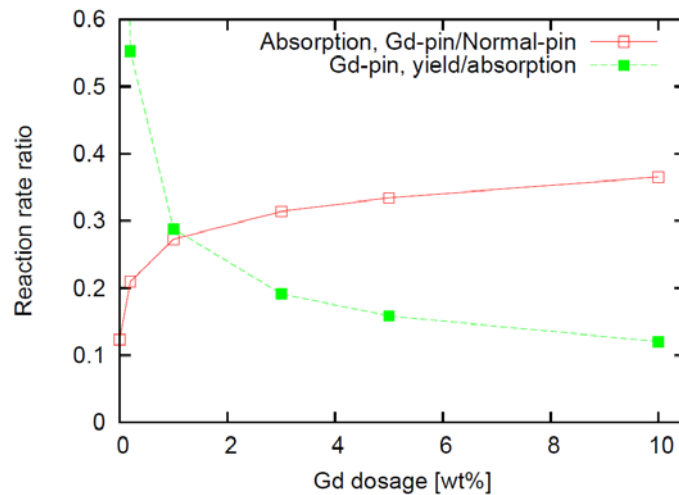


図3 反応率比のガドリニア添加率依存性
(Gd燃料棒における生成と吸収の比はGd添加率が0wt%のときは1.4程度)

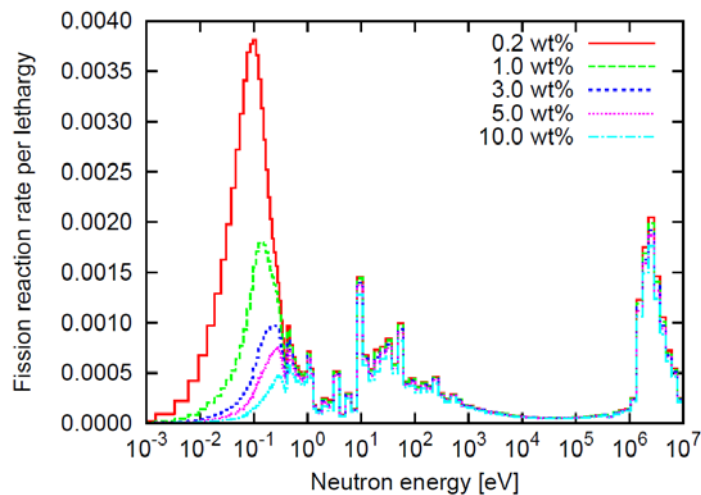


図4 ガドリニア添加燃料棒における核分裂率のエネルギースペクトル

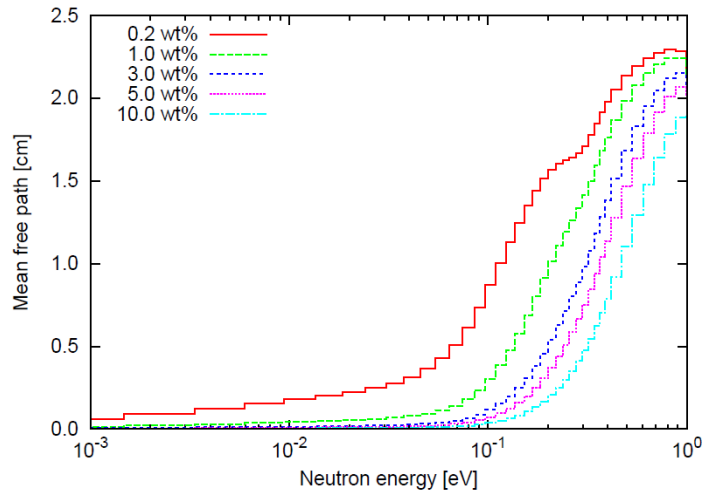


図5 Gd 棒の中性子平均自由行程

図6には無限増倍率のGd-157捕獲断面積に対する感度を示す。ガドリニア添加率の増加に伴い、感度のピークが高いエネルギー側にシフトしている様子が分かる。

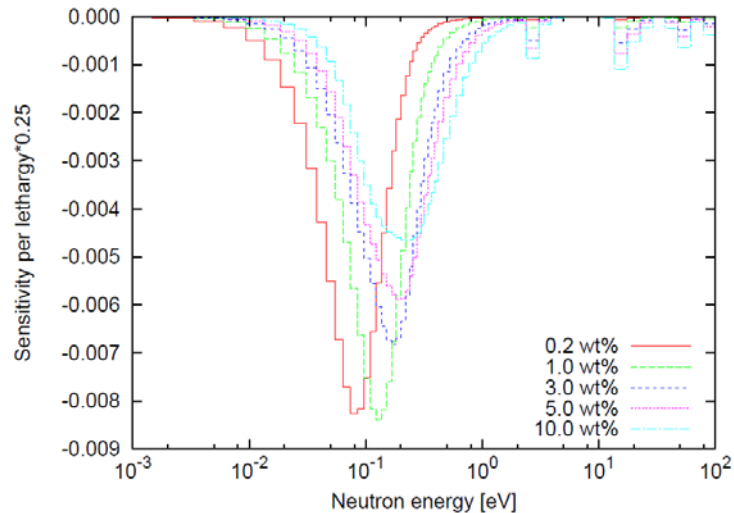


図6 無限増倍率のGd-157中性子捕獲断面積に対する感度

また、Gd 棒を含む軽水炉体系では「玉ねぎの皮効果」が有名なので、それについても簡単に触れておく。図2に示した3wt%のガドリニアを添加したGd 棒を含むマルチセル体系を燃焼させたときのGd-155、-157の数密度の燃焼度依存性を、燃料棒内の空間メッシュ毎に図7に示す。なお、図中の「Ring 8」が燃料棒の最外周メッシュに対応する。これらより、燃料棒の表面からGd-155、-157が中性子捕獲によって減損していく様子が分かる。Gd-155は-157と比較して捕獲断面積が小さいため、減損の速度が緩慢となっている。

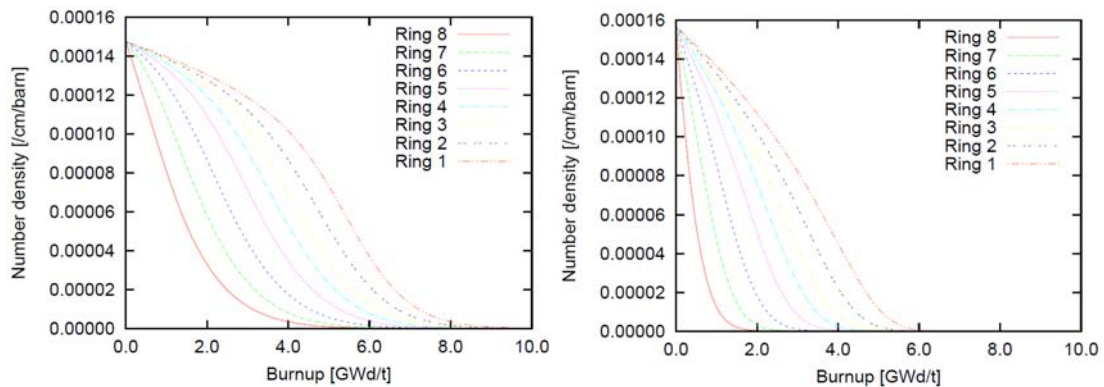


図7 ガドリニア添加燃料棒における数密度の燃焼度依存性 (左 : Gd-155、右 : Gd-157)

3. Gd-157 中性子捕獲断面積の JENDL-4.0 での評価

Gd-157 の中性子捕獲断面積に対する問題提起としては、ガドリニア添加燃料棒における核分裂率分布の過少評価が挙げられる。図8の左に、スイスの臨界実験装置 PROTEUS で取得された核分裂率分布に対する ENDF/B-VI による解析結果を示すが、Gd 燃料棒 (図中 UO₂-Gd₂O₃) で有意な過少評価が見られることが分かる。

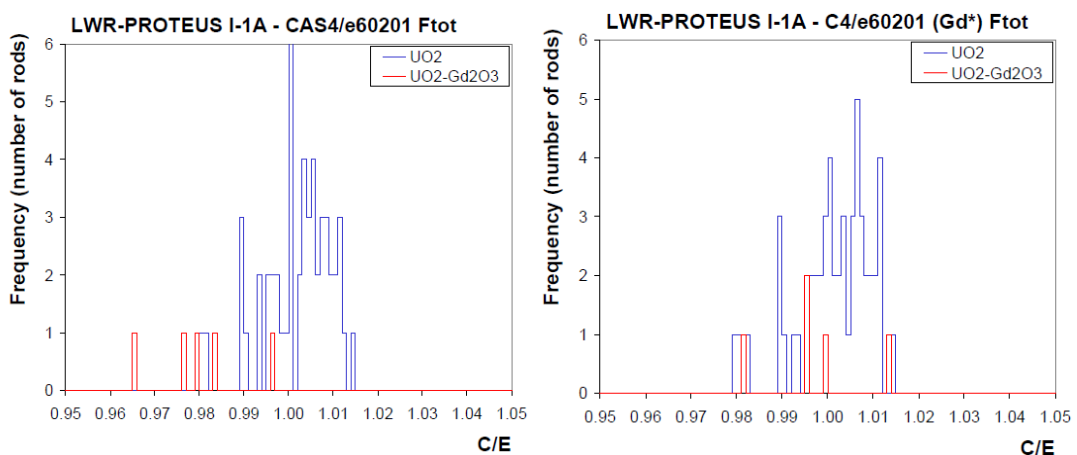


図8 PROTEUS における核分裂率分布解析結果[2]

(左 : ENDF/B-VI を使用、右 : Leinweber らの Gd-157 評価データを使用)

また、MOX 燃料を用いた臨界実験である FUBILA 実験で取得されたデータにおいても、UO₂、MOX 燃料棒では核分裂率の誤差の平均値がそれぞれ-1.9%、+0.6%である一方、Gd 燃料棒については-4.1%となっており、上記 PROTEUS 実験の結果と整合のとれる結果が得られている[3]。

一方、Leinweber らが新たに評価した Gd-157 の捕獲断面積を適用すると、PROTEUS のデータで見られた反応率過少評価が改善することが報告されている (図8の右)。また、

同様に FUBILA でも Leinweber らのデータの採用により、上述の問題が改善し、UO₂ 燃料棒と同等の結果となることがテスト計算により明らかになった。

従来の評価値と比べて 10% も値が変わる Leinweber らの評価値であったが、積分実験データの再現性が格段に向上したことから、JENDL-4.0 への採用が検討された。しかし、その過程で別な問題が浮上した。

図 9 に、減速材として Gd 水溶液を用いた臨界実験における臨界固有値に対する解析結果を示す。Leinweber らのデータを採用した場合に臨界固有値が大幅な過大評価となることが分かる。Gd 燃料棒を含む体系と、Gd 水溶液が減速材として用いられている体系とで、Leinweber らのデータを採用したときの影響が大きく異なることから、これらの体系の臨界性の Gd-157 捕獲断面積に対する感度を計算した。結果を図 10 に示すが、感度のエネルギー領域が異なることが分かる。これらの結果を受けて、JENDL-4.0 では、Leinweber らのデータを採用すると同時に、0.1eV 以下でバックグランド断面積を加えて、熱中性子断面積は JENDL-3.3 の値と同一になるような改訂を行った（図 11 参照）。JENDL-4.0 を用いた Gd 水溶液系臨界データの解析結果を図 9 に示す（赤点）が、実験値を良好に再現できていることが分かる。ただし、JENDL-4.0 の評価は Leinweber らのデータと比べて低いエネルギー領域では断面積が大きくなることから、FUBILA 実験データにおける Gd 燃料棒の核分裂率過少評価の改善幅は若干小さくなった。

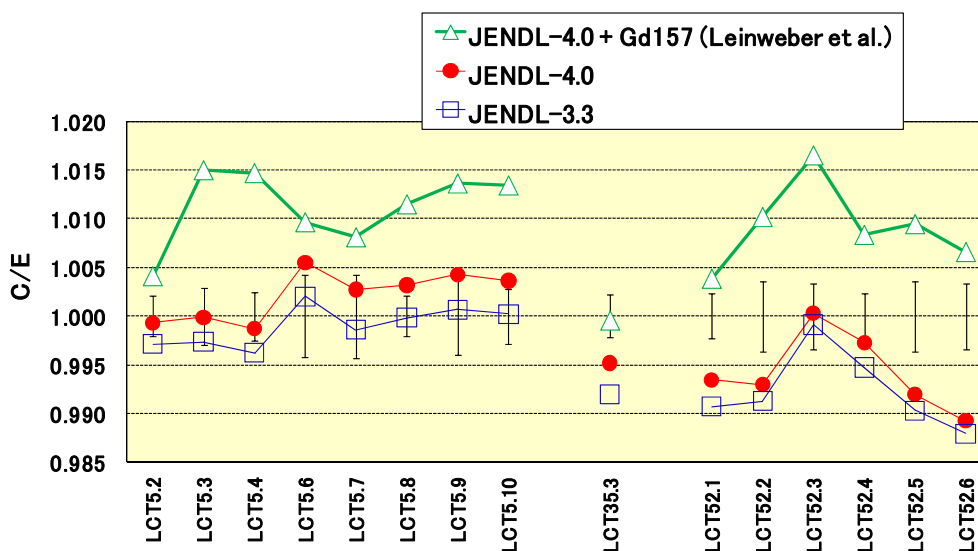


図 9 Gd 水溶液を用いた臨界実験データの臨界固有値解析結果
 (「LCT」は ICSBEP ハンドブックの区分「LEU-COMP-THERM」の略称)

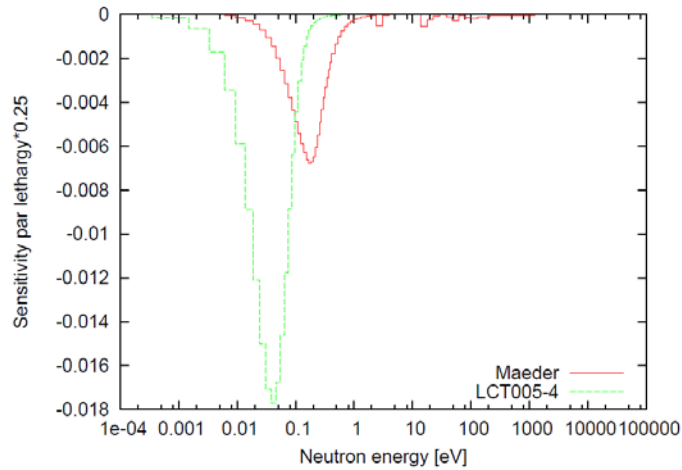


図 10 Gd 添加燃料ピン体系と Gd 水溶液体系における Gd-157 捕獲断面積の感度

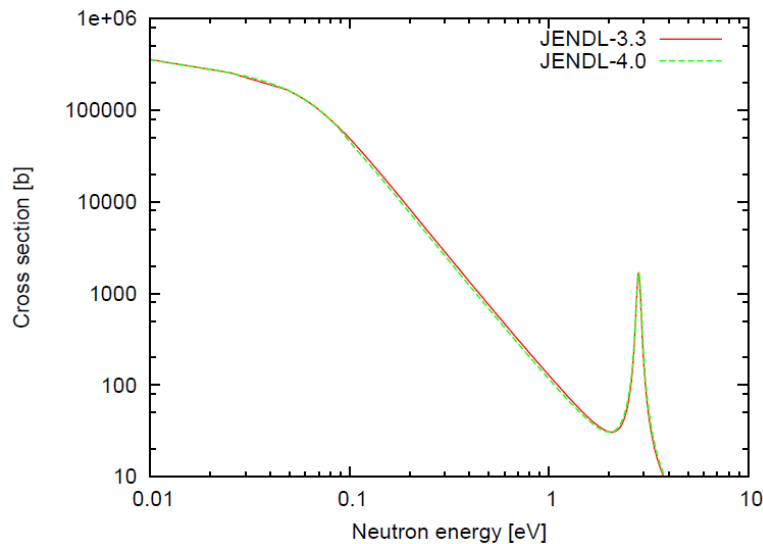


図 11 Gd-157 中性子捕獲断面積 (0.1eV から 2eV の領域では JENDL-4.0 の評価値が小さいが、0.02eV あたりで両者が一致している様子が分かる。

Leinweber らのデータをそのまま採用すると具合が悪くなる他の例として、テプコスシステムズが保有する臨界実験データがある[4]。Gd 燃料棒が複数本挿入された軽水減速の臨界データであり、いくつかの Gd 添加率でデータが取得されている。計算により得られた臨界固有値を図 12 に示すが、JENDL-3.3 を用いた場合は低 Gd 添加率で臨界固有値が小さ目に評価される一方、Leinweber らのデータを用いた場合 (Gd157 変更案①) は低 Gd 添加率では固有値が逆に大き目に評価される。それに対して、JENDL-4.0 を用いた場合 (変更案②、「JENDL-4.0(pre)」となっているが、JENDL-4.0 そのもの) は臨界固有値の Gd 添加率依存性は非常に小さくなり、良好な結果となっている。

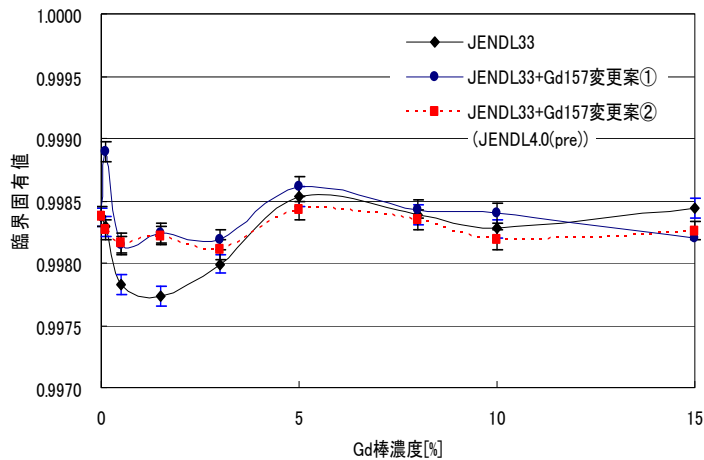


図 12 Gd 燃料棒を含む軽水減速臨界実験データに対する計算値
(誤差棒はモンテカルロ計算の統計誤差を示す)

また、図 9 では低濃縮ウラン燃料の格子系でのデータを示したが、高濃縮ウラン燃料の溶液系 (HEU-SOL-THERM) の臨界データについても、Leinweber らのデータをそのまま採用すると実験値の再現性が悪化することも分かっている[5]。

なお、Gd 燃料棒における核分裂率の過少評価については、Gd-157 の中性子捕獲断面積以外にもいくつかの誤差要因が挙げられることに留意する必要がある。核分裂率分布は一般的に、生成した核分裂生成物核種からのガンマ線を計数するグロスガンマスキュン法で測定するが、Gd 燃料棒と通常の燃料棒とでは核種毎の核分裂反応に対する分担割合が異なるため、核分裂収率の違いからガンマ線源も異なる。これを厳密に考慮することにより、Gd 燃料棒における出力分布の過少評価が若干緩和されるという報告もある[6]。

ちなみに、ENDF/B-VII.1 では Leinweber らのデータは最終的には採用されなかった。上記で示したように積分データの再現性が悪くなる点と、他の微分データで Leinweber らのデータを支持するようなものが無かった点を踏まえてのことのようである。なお、文献[7]の p.2930 には、「...the thermal capture cross section give a consistent picture with other measurements in EXFOR and show that it is unnecessary to invoke a large thermal capture background, as was done in JENDL-4.0 to justify the embracing of the Leinweber et al. parameters of the 0.0314 eV resonance.」という記述があり、「自信を持って」Leinweber らのデータを棄却したことが窺える。

4. Gd-157 中性子捕獲断面積の軽水炉炉心設計等への影響

それでは Gd-157 の中性子捕獲断面積の評価は、実際の軽水炉炉心設計においてどの程度影響を及ぼすであろうか？

Gd 燃料棒は通常の燃料棒と比べて出力が低いことから、相対誤差がある程度大きくと

も絶対的な影響はそれほど大きくないと言える。PROTEUS や FUBILA の核分裂率分布では 3~4%の過少評価が見られてはいるが、炉心設計に与えるインパクトはそれほど大きくないと言える。ただし、目標として、Gd 燃料棒の出力分布を通常の燃料棒と同程度の精度で予測できれば良いことは確かである。

一方、高燃焼度燃料の設計では、燃料製造施設等における臨界安全性を担保する目的から、5wt%超の濃縮度の燃料にガドリニアを薄く添加するコンセプトが考えられている[8]。そのようなケースで要求される精度については、別途整理する必要がある。

これまでの評価値と比べて 10%以上も値が変わる Leinweber らのデータを導入した場合の BWR 炉心設計へのインパクトについては、文献[5]で詳細に評価されている。それによると、燃料集合体の無限増倍率については全燃焼期間で最大 0.4% Δk 程度の影響を及ぼし、炉心を全て新燃料により構成する初装荷炉心の実効増倍率に対してはその影響は有意であるが、平衡炉心についてはその影響が薄められ、実効増倍率における変動は 0.1% Δk 以内、熱的制限値（最大線出力密度、最小限界出力比）における影響は 0.3%程度と小さくなる。なお、Leinweber らのデータを導入した際の BWR 燃料集合体核特性に対する影響については文献[9]においても検討が行われている。

5. おわりに：J-PARC 測定データへの期待

本稿では、Gd-157 中性子捕獲断面積について、微分測定データ、評価データ、積分データの観点から、その検討状況についての解説を行った。

JENDL-4.0 では、Leinweber らの測定データを取り込みつつ、ある程度の広い範囲の積分データの再現性を担保するような評価が行われた。この評価の妥当性を議論するためには、独立な微分測定データの取得が必須である。

このような積分側からの要請を受けて、J-PARC において当該断面積の測定が実施されており、データが整理されつつある[10]。読者の皆さんには、またいつか、本稿の続編が核データニュースに掲載されることを期待してもらいたいと思う。

参考文献

- [1] G. Leinweber, et al., “Neutron capture and total cross-section measurements and resonance parameters of gadolinium,” Nucl. Sci. Eng., 154, 261 (2006).
- [2] F. Jatuff, et al., “Impact of newly-measured gadolinium cross sections on BWR fuel rod reaction rate distributions,” Proc. of Physor2008, Interlaken Switzerland, Sep. 14-19 (2008).
- [3] T. Yamamoto, et al., “Analysis of core physics experiments on MOX assemblies loaded with Gd₂O₃-UO₂ and UO₂ rods,” Proc. of ICAPP’09, Tokyo, Japan, May 10-14 (2009).
- [4] G.. Chiba, “Validation of JENDL-4.0 and future: reactor integral test working group,” JAEA-Conf 2013-002, 65, Japan Atomic Energy Agency (2013).

- [5] 池原、東條、「ENDF/B-VII.0 Gd-157 の熱中性子捕獲断面積の調整が軽水炉核特性に与える影響—Leinweber らのパラメータの採用—」、JENDL 委員会リアクタ積分テ
スト WG 会合資料 RIT4-1-1 (2014).
- [6] 松宮、他、「ガドリニアを含む軽水炉体系の JENDL-4 による臨界解析」、日本原子
力学会 2011 年秋の大会 N33 (2011).
- [7] M.B.Chadwick, et al., “ENDF/B-VII.1 nuclear data for science and technology: cross
sections, covariances, fission product yields and decay data,” Nucl. Data Sheets, 112,
2887 (2011).
- [8] S. Gunji, et al., “Critical experiments of low-content neutron absorbers for above 5wt%
enrichment fuel on PWRs,” Proc. of ICNC2011, Edinburgh, Scotland, Sep. 19-22 (2011).
- [9] Y. Ando et al., “Effect of newly-measured cross sections of ^{157}Gd on burnup characteristics
of high burnup BWR UO_2 and MOX assemblies,” JAEA-Conf 2011-002, 181 (2011).
- [10] 木村、他、「J-PARC/MLF/ANNRI NaI(Tl)スペクトロメータ及び Ge スペクトロメー
タを用いた Gd-157 の中性子捕獲断面積の測定」、日本原子力学会 2013 年秋の大会
(2013).

