

解 説 (Ⅱ)

高速実験炉「常陽」における中性子照射量評価技術の開発

(動力炉・核燃料開発事業団) 茶谷恵治、鈴木惣十

1. 緒 言

原子炉の燃料や材料の開発のための照射試験においては、中性子照射効果を精度良く評価することが重要であり、このためには中性子スペクトルやそれに基づく照射量（高速中性子照射量、DPA：原子はじき出し損傷量等）を十分な精度で予測解析したり、測定したりする必要がある。

高速実験炉「常陽」では、種々の照射試験や供用期間中検査（サーベイランス試験）に対する中性子照射量を予測評価するための計算手法を確立するとともに、実測による評価手法として、多重放射化箔法(RM法)を用いた原子炉ドシメトリー手法^{1)、2)、3)}を国内外の研究機関との相互比較等を通じて開発・整備してきた。また、最近の照射技術や照射後試験の技術進展に伴って高まりつつある中性子照射量や中性子スペクトル等の予測・評価精度向上の要求に対応するため、測定手法および核計算手法の高度化等の研究開発に着手した。

本報では、動燃事業団大洗工学センターの高速実験炉「常陽」における中性子照射量評価手法と精度向上に向けての今後の研究開発について記述した。

2. 中性子照射量計算評価法

高速実験炉「常陽」における現在の中性子照射量の予測評価は、「常陽」運転監視コードシステム「MAGI」の計算結果を基に「常陽」炉心要素照射評価システム「ESPRIT-J」を用いて行われている。「MAGI」は、各運転サイクル毎に全炉心を対象に炉心・燃料管理のために各種炉心特性を計算するものである。ここで中性子束は次の計算条件により、各集合体の内部構造を均質化して求められている。

- ・断面積セット : JFS-II
- ・計算体系 : 3次元 HEX-Z
- ・エネルギー群数* : 中性子7群、 γ 線3群
- ・計算手法 : 均質拡散計算

「ESPRIT-J」では、「MAGI」の計算結果を入力データとしてポテンシャル理論に基づき、集合体内の詳細な微細中性子束分布（エネルギー群数は中性子および γ 線ともに1群）

を計算する。この結果を基にして、個々の照射試験片位置における中性子照射量を予測評価している。

3. 放射化箔法による中性子照射量評価法

3.1 標準ドシメータセット

RM 法では、可能な限り広いエネルギー範囲をカバーするように種々の放射化ドシメータを組み合わせたドシメータセットで中性子反応率を測定する。「常陽」の標準ドシメータセット⁴⁾は、放射化箔と核分裂箔からなり、典型的な高速炉の中性子照射場において 100eV ~ 20 MeV のエネルギー範囲に感度を有するように構成されている。表 1 に各ドシメータの仕様を示す。これらのドシメータは、酸化防止のためにヘリウム雰囲気の小容量キャプセルに封入された後、照射試験用の特殊燃料集合体や材料照射用集合体に装荷される。一例として、図 1 に炉心材料照射用集合体へのドシメータの装荷状況（集合体中央のフラックスモニター管内の 7 ヶ所に組み込まれている）を示す。

3.2 反応率測定法

RM 法による反応率測定では、まず、放射化したドシメータが放出する γ 線のスペクトルを測定し、着目する反応で生成した核種の放射能強度と照射時の原子炉運転パターンから中性子反応率を求める。 γ 線スペクトルは、標準線源により校正した高純度 Ge 半導体検出器システムで測定しており、数 KeV の低エネルギー X 線から数 MeV の γ 線までを測定する高純度 Ge 検出器システム (γ -X Ge SSD System) を 2 系統（有感部体積 63 cc、86 cc）、Nb-93m、Am-241 等の低エネルギー X 線測定専用の低エネルギー光子測定システム (LEPS System: Low Energy Photon Spectrometer System) を 1 系統有している。図 2 に高純度 Ge 検出器システムとその回路構成を示す。

この測定システムで得られる γ 線スペクトルを γ 線スペクトル解析コード "BOB 75"¹⁾ を用いて解析し、着目する光電ピークの総カウント数を算出して放射化量を求めた後、照射の期間とパターン、冷却期間等を考慮して反応率を算出する。

反応率の測定精度については、東大弥生炉の標準中性子場で実施した我が国の主要ドシメトリ研究グループ（東大弥生炉、京大炉、原研 JMTR）とのブラインドテストや米国 ANL-W の EBR-II と「常陽」を用いて実施した PNC-HEDL Dosimetry Exchange Program¹⁾ により、 $\pm 2 \sim 4\%$ (1σ) であるとの結果を得ている。

3.3 中性子スペクトル解析法

測定で得られた反応率と輸送計算コード等で計算した初期推定スペクトルおよびドシメトリ用反応断面積を用いて、図 3 に示す計算フローに従い中性子スペクトル解析コ

ード "NEUPAC"¹⁾ により中性子スペクトルを求めている。本コードでは、 J_1 型線形汎関数を用いて線形計画法により中性子スペクトルを推定するだけでなく、原子はじき出し損傷率 (dpaレート) の算出、これらの感度解析と誤差の評価を行うこともできる。このコードのスペクトル解析法を以下に示す。

n 種の反応率測定値 $R_i (i=1 \sim n)$ を用いて中性子スペクトル $\phi(u)$ 等を求めることは、一般的にアンフォールディングと呼ばれ、次の連立線形方程式を解くことにより求められる。

$$R_i = \int \phi(u) \sigma_i(u) du \quad (i=1 \sim n) \quad 1)$$

このとき、 R_i 、 $\sigma_i(u)$ が既知として、 $\phi(u)$ の初期値 $\phi_0(u)$ が与えられているとし、

$$I = \int W(u) \phi(u) du \quad 2)$$

を評価するものである。ここで、 R_i 、 $\sigma_i(u)$ および $\phi_0(u)$ には不確定性があり、それぞれの共分散行列 $\overline{\Delta R_i \cdot \Delta R_j}$ 、 $\overline{\Delta \sigma_i(u) \cdot \Delta \sigma_j(u)}$ および $\overline{\Delta \phi_0(u) \cdot \Delta \phi_0(u)}$ を与える必要がある。

"NEUPAC" では、1)式を解くため、下式に示す J_1 関数を導入している。

$$J_1 = \int W(u) \phi(u) du + \sum C_i (R_i - \int \phi(u) \sigma_i(u) du) \quad 3)$$

($i=1 \sim n$)

3)式において ϕ_0 を代入したとき、 J_1 は、

$$\Delta J_1 = \int \{W(u) - \sum C_i \sigma_i(u)\} \Delta \phi_0 du \\ + \sum C_i \{\Delta R_i - \int \Delta \sigma_i(u) \Delta \phi_0 du\}$$

であり、 $(\Delta J_1)^2$ が最小となるように係数 C_i を求める。

ここで、現状のスペクトル解析では、次のように誤差を与えている。

- ・スペクトル解析用断面積セット : ENDF/B-V の Dosimetry File 等から作成した103 群の共分散誤差マトリックス
- ・初期推定スペクトル : エネルギー群毎に一律30%の自己分散 (経験的に)
- ・反応率測定値 : 反応率と原子炉出力の両方の測定誤差 (自己分散) と原子炉出力の誤差 (共分散)

動燃と東大が共同で開発した“NEUPAC”の妥当性検証に関しては、前述の PNC-HEDL Dosimetry Exchange Program において、“SAND-II”および米国 HEDL の開発したスペクトル解析コード“FERRET”による解析結果と“NEUPAC”による解析結果が誤差範囲内で一致することを確認した。表2は“NEUPAC”による反応率測定値に対する計算値の比(C/E値)を示したものである。C/Eの平均値は、アンフォールディング前のスペクトルでは1.47であったものが、アンフォールディング後のスペクトルを用いることにより1.10に改善されている。

4. 中性子照射量評価結果

“NEUPAC”により解析した中性子スペクトルの例として、「常陽」MK-II炉心(照射用炉心)の第1列で照射した9種のドシメータから得た11種の反応率測定値により解析した中性子スペクトルを、各反応の90%感度範囲とともに図4に示す。この中性子スペクトルを基に算出した中性子束と“MAGI”による計算値との比較を図5に示す。“MAGI”の均質計算は、中性子照射効果を評価する上で重要な0.1 MeV以上の高速中性子束に対して、炉心中心レベルでは約5%、また、炉心の上下端(±27.5cm)近傍では約6%過小評価していることが明らかとなった。

また、ドシメトリ技術は、限界線出力試験における燃料ペレットの発熱密度評価や超ウラン(TRU)元素の消滅量測定にも適用されている。図6は、「常陽」の軸方向炉心中心位置においてNpドシメータにより実測した消滅率を、“MAGI”による燃焼計算値、および“NEUPAC”により解析した中性子スペクトルを用いて評価した計算値と比較したものである。“MAGI”による計算は約10%の過大評価、“NEUPAC”により解析した中性子スペクトルを用いて評価した計算は約5%の過小評価となっている。これらの原因を究明するため、今後、質量分析装置による詳細な測定を行うとともに計算手法の見直しを行う予定である。

5. 精度向上に向けての研究開発

最近の照射試験では、高照射量を要するため、従来に比べ照射期間が長期化する上に中性子照射量や中性子スペクトル等の予測・評価精度向上の要求が高まってきている。しかし、制御棒材照射用集合体のように強い吸収体を含むものや、燃料ピンの装荷本数や配置が燃料集合体と大きく異なる集合体に対する中性子照射量の予測評価では、現状のポテンシャル理論に基づく“ESPRIT-J”の解析に精度上の限界があることが明らかになっている。一方、従来のRM法によるドシメトリ試験では、長期にわたる照射試験に対しては、ドシメータの放射化の飽和による測定精度の低下という原理的問題が存在

する。これらの課題を踏まえて、測定手法および核計算手法の両面からの高精度化を進めている。

5.1 測定手法の高度化

RM 法によるドシメトリー試験の課題解決のため、新型ドシメータとして、放射化箔法とは原理が全く異なり、より直接的に目的量を測定できるヘリウム蓄積型フルーエンスモニター（HAFM）法の開発を進めている。また、スペクトル解析精度の向上作業の一環として、JENDL-3 ライブラリーをベースにしたスペクトル解析用断面積セットを作成整備して、「常陽」でのドシメトリー試験への適用性評価を行っている。

1) 新型ドシメトリーの開発

HAFM 法は、ホウ素、ベリリウムおよびアルミニウム等の中性子モニター材中に (n, α) 反応により生成し蓄積されるヘリウム原子数を質量分析装置により測定し、生成断面積を用いて中性子照射量を評価するものである。このため、HAFM 法は、照射時間、冷却時間および測定時間に対する飽和や減衰の補正が原理的に不要であるという特長を有している。HAFM 法による中性子照射量測定概念を図 7 に示す。

「常陽」における HAFM 法の開発について、これまでに測定装置の試作を終え、「常陽」への適用性を確認するための予備試験や感度校正試験等により基礎的な測定原理の確認を行い技術的な見通しを得ている。予備的な適用性確認試験として、RM 法のドシメータとともに 3 種の HAFM を構造材料照射用反射体に装荷し、MK-II 炉心定格第 19 サイクルにおいて定格出力（100MW）で約 70 日間照射した。表 3 は、HAFM 法による中性子束および中性子照射量の評価結果を RM 法と二次元輸送計算コード“DOT3.5”による計算値と比較したものである⁵⁾。RM 法と“DOT3.5”の結果は、1 MeV 以上の高速中性子束に対して、HAFM 法の結果より約 20% 低い評価となっている。この結果は、高速中性子照射量の評価における HAFM の有効性を示唆するものと考えられ、今後、RM 法や“DOT 3.5”の計算結果との詳細な比較検討を通じて、HAFM 法を用いた中性子照射量評価手法の確立を図る計画である。

2) 測定解析法の改良

ドシメータ測定で直接得られるのは、中性子反応率であり、目的とする照射量を評価するためには、実測で得られた反応率をアンフォールディング（スペクトル解析または調整）して中性子スペクトルを求め、それから目的量（高速中性子照射量、原子はじき出し損傷量等）を算出しなければならない。この時、評価精度に大きく影響するのはアンフォールディング手法とそれに用いる誤差付の断面積セットである。

断面積セットに関しては、ENDF/B-V の Dosimetry Fileから作成したものを過去約10年間用いてきた。最近、国内においても誤差が評価された断面積ライブラリー JENDL-3^{6), 7)}が公開されたので、これをベースにしたスペクトル解析用の誤差マトリックス付の103群断面積セットの整備を行っている。

5.2 計算手法の高度化

1) 全炉心中性子束分布計算法の改良

“MAGI”は、炉心・燃料管理のための各種炉心特性計算に用いられるばかりでなく、その結果は照射条件評価や“ESPRIT-J”の入力データとして使用されている。このため、“MAGI”が照射条件の評価精度を支配しており、その高度化は照射精度向上の観点から重要な研究項目となっている。このため、これまで“MAGI”で用いてきた断面積セット JFS-2 や γ 線断面積、特に γ 線生成断面積の更新、計算ルーチンの高度化（例：TRU核種の取扱い、燃焼チェーンの見直し、輸送計算法の導入等）および照射後試験（PIE）結果や炉心特性測定試験結果の“MAGI”への反映を図る。そして、PIEで得られている燃焼度やドシメトリー試験の結果との比較評価を行い、照射精度向上の観点からの“MAGI”の高度化の有効性と妥当性を確認することとしている。

2) 集合体内微細中性子束分布計算法の高度化

“ESPRIT-J”で用いられているポテンシャル理論に基づく集合体内の局所的な中性子束分布の計算に替え、より詳細に集合体の非均質性や隣接集合体の影響を精度良く評価できるモンテカルロ法を“ESPRIT-J”に適用する。そして、照射量評価コードとしての照射試験への適用性と有効性を確認することとしている。

6. 結 言

高速実験炉「常陽」におけるこれまでの研究開発により、実測に基づく中性子照射量評価手法を確立するとともに、これまでの核計算による照射量の予測精度を明らかにし、今後の精度向上のための課題の抽出とその解決策の検討を行った。

評価精度については、初臨界以来実施してきた炉内サーベイランス試験やMK-II炉心での各種照射試験で得られたドシメータによる測定値と計算値との比較検討を通じて、炉心領域については特殊な照射試験を除き、ほぼ5%以内の精度で中性子照射量を評価できることを確認した。一方、中性子の流れが大きく変化する炉心周辺部や炉心から隔たった反射体領域、非均質性の強い試験用集合体内等については、これまでの核計算法では、照射試験の観点からは不確定度が大きく十分な照射精度が得られないため、計算法と測定法の両面からのさらなる研究開発が必要であることが明らかとなった。

「常陽」では、これまでに得られた成果を基にこれまでに明らかにされた課題を解決して、PIE 手法の発達と照射試験の多様化に伴って高まりつつある照射精度向上の要求に応えていくこととしている。このためには、動燃内外の関連諸機関の協力を得て、新型ドシメータの開発および最近の核計算法の高度化や核データの高精度化の成果を反映した高速炉ドシメトリーの研究開発を進める必要がある。

[参考文献]

- 1) 鈴木惣十、他：「常陽」ドシメトリー試験の計画と現状、動燃技報、
No. 38(1981)
- 2) 「常陽」による高速炉技術開発の成果と将来展望、
PNC TN9410 92-081, P21(1992)
- 3) 高速増殖炉研究開発の現状、PNC TN1410 93-004, P106(1993)
- 4) T.Odo, S.Suzuki: "Introduction of Nuclear Instruments and Radiation
Measurements in Experimental Fast Reactor "JOYO" ", PNC TN9420 92-005,
P22(1992)
- 5) 高橋和男、他：ヘリウム蓄積型中性子照射量測定法の開発、日本原子力学会
1990年秋の大会
- 6) K.Shibata, et al.: "Japanese Evaluated Nuclear Data Library, version-3",
JAERI 1319(1990)
- 7) M.Nakazawa, et al.: "JENDL Dosimetry File ", JAERI 1325(1991)

表 1 「常陽」の標準ドシメータセット

ドシメータ 核 種	形 態	寸 法 (mm)	反 応 型 式	
			非しきい値反応	しきい値反応
C o	ワイヤ (Co-V or Co-Al)	$\phi 1.0$	$^{59}\text{Co}(n, \gamma)$	
S c	パナムパネル封入 (Sc_2O_3)	$\phi 1.5 \times L 8.0$	$^{45}\text{Sc}(n, \gamma)$	
T i	ワイヤ	$\phi 0.5$		$^{48}\text{Ti}(n, p)$
F e	ワイヤ	$\phi 0.75$	$^{58}\text{Fe}(n, \gamma)$	$^{54}\text{Fe}(n, p)$
N i	ワイヤ	$\phi 0.75$		$^{58}\text{Ni}(n, p)$
C u	ワイヤ	$\phi 0.75$		$^{63}\text{Cu}(n, \alpha)$
T a	ワイヤ (Ta-V or Ta-Al)	$\phi 0.5$	$^{181}\text{Ta}(n, \gamma)$	
N b	箔	$0.51 \mu\text{m}$ (厚さ)		$^{93}\text{Nb}(n, n')$
^{237}Np	パナムパネル封入 (NpO_2)	$\phi 1.5 \times L 8.0$		$^{237}\text{Np}(n, f)$
^{235}U	パナムパネル封入 (UO_2)	$\phi 1.5 \times L 8.0$	$^{235}\text{U}(n, f)$	
^{238}U	パナムパネル封入 (UO_2)	$\phi 1.5 \times L 8.0$		$^{238}\text{U}(n, f)$
^{232}Th	パナムパネル封入	$\phi 1.5 \times L 8.0$	$^{232}\text{Th}(n, \gamma)$	$^{232}\text{Th}(n, f)$

表 2 反応率の測定結果と計算結果の比較
(Mk-II 炉心第 0 列における評価例)

軸方向位置*1	反 応	反応率測定値*2	計算値/測定値	
			ソフティン前	ソフティン後
+ 4 cm	$^{59}\text{Co}(n, \gamma)$	$9.851 \times 10^{+13}$	1.227	1.028
	$^{237}\text{Np}(n, f)$	$1.949 \times 10^{+15}$	1.297	1.055
	$^{232}\text{Th}(n, f)$	$6.842 \times 10^{+13}$	1.235	0.908
	$^{232}\text{Th}(n, \gamma)$	$7.619 \times 10^{+14}$	1.690	1.384
	$^{235}\text{U}(n, f)$	$6.139 \times 10^{+15}$	1.287	1.054
	$^{238}\text{U}(n, f)$	$2.203 \times 10^{+14}$	1.613	1.195
	$^{48}\text{Ti}(n, p)$	$5.464 \times 10^{+12}$	1.609	1.067
	$^{54}\text{Fe}(n, p)$	$4.439 \times 10^{+13}$	1.648	1.119
	$^{58}\text{Fe}(n, \gamma)$	$2.493 \times 10^{+13}$	1.403	1.121
	$^{58}\text{Ni}(n, p)$	$6.261 \times 10^{+13}$	1.553	1.066
	$^{63}\text{Cu}(n, \alpha)$	$2.607 \times 10^{+11}$	1.627	1.128
	平 均		1.472	1.102

* 1 : 軸方向炉心中心位置からの距離。

* 2 : 単位は、 $\times 10^{+4}$ reaction/sec/atom/100MWt。

表3 HAFM法の適用性確認予備試験結果
(Mk-II炉心第5列の中性子照射量測定結果)

測定・評価法 評 価 量	計 算 値 (DOT3.5)	放射化箔法 (RM)	He 蓄 積 法 (HAFM)	HAFM DOT3.5	HAFM RM
ϕ_{total} (n/cm ² /s)	2.28×10^{15}	2.13×10^{15}	2.08×10^{15}	0.91	0.98
$\phi > 1.0 \text{ MeV}$ (n/cm ² /s)	3.35×10^{14}	3.37×10^{14}	4.16×10^{14}	1.24	1.23
$\phi > 0.1 \text{ MeV}$ (n/cm ² /s)	1.45×10^{15}	1.38×10^{15}	1.40×10^{15}	0.97	1.01
照 射 条 件	定格1サイクル照射 (100MWt 約70日運転)				
$\Phi > 0.1 \text{ MeV}$ (n/cm ²)	8.58×10^{21}	8.17×10^{21}	8.29×10^{21}	0.97	1.01

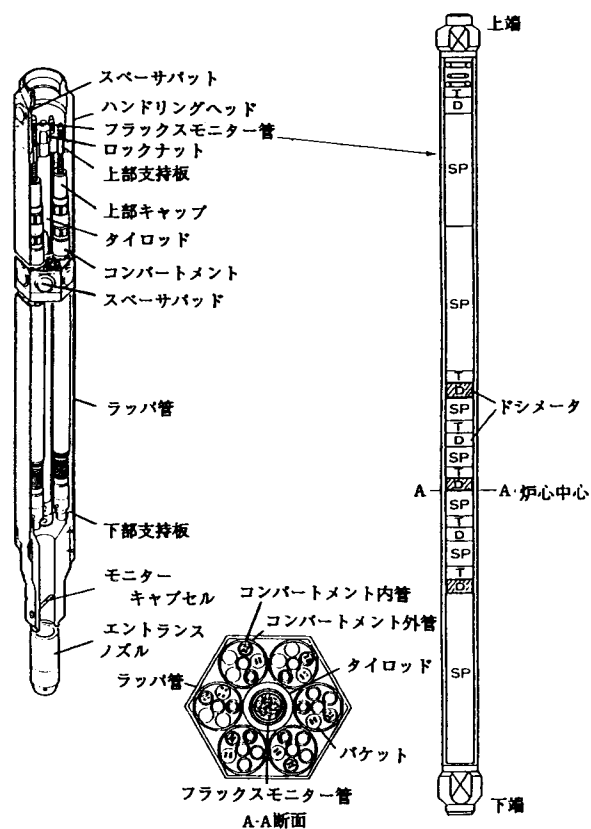
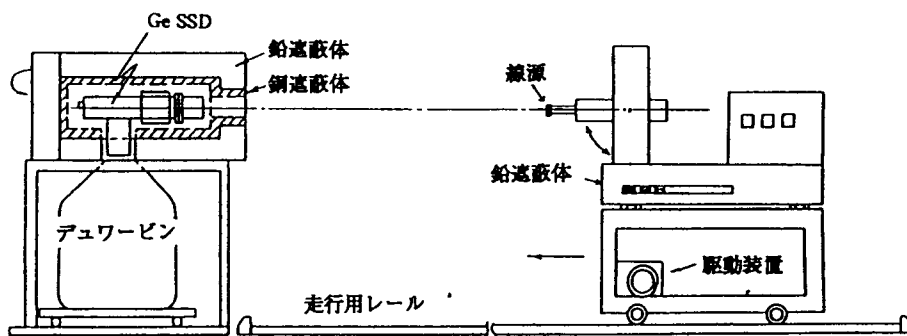
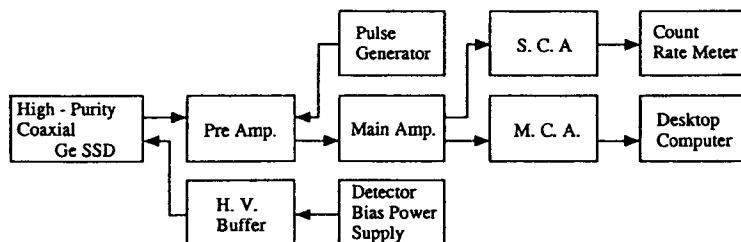


図1 ドシメータの装荷例 (炉心材料照射用集合体)



高純度Ge検出システムの概念図



高純度Ge半導体検出器 (System-1)	: ORTEC High - Purity Germanium (HP Ge) Coaxial Solid State Detector Detector Size 45 ϕ x40L Total Active Volume 63 cc Absorbing Layers Al 0.5mm Window to Detector Distance 5mm
高純度Ge半導体検出器 (System-2)	: ORTEC High - Purity Germanium (HP Ge) Coaxial Solid State Detector Detector Size 48.8 ϕ x45.8L Total Active Volume 85.6 cc Absorbing Layers Al 0.5mm Window to Detector Distance 4mm
プリアンプ	: ORTEC Model 120-4 Preamplifier
高圧バッファ	: NAIG High Voltage Buffer D-133S
パルスジェネレータ	: CANBERRA Model 807 Pulser
リニアアンプ	: ORTEC Model 572 Spectroscopy Amplifier
高圧電源	: ORTEC Model 459 5kV Detector Bias Supply
マルチチャンネルアナライザ	: NAIG E series Multichannel Analyzer
デスクトップコンピュータ	: NEC PC-9801EC
シングルチャンネルアナライザ	: ORTEC Timing Single Channel Analyzer Model 455
レートメータ	: ORTEC Ratemeter Model 441

回路構成

図2 高純度Ge検出システムと回路構成

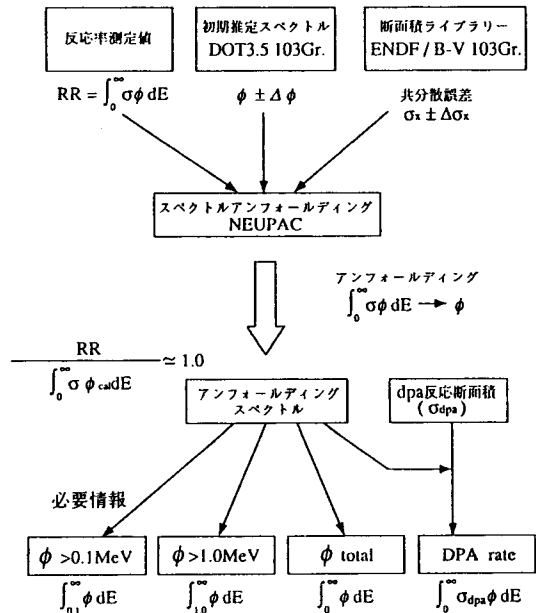


図3 中性子スペクトル解析フロー

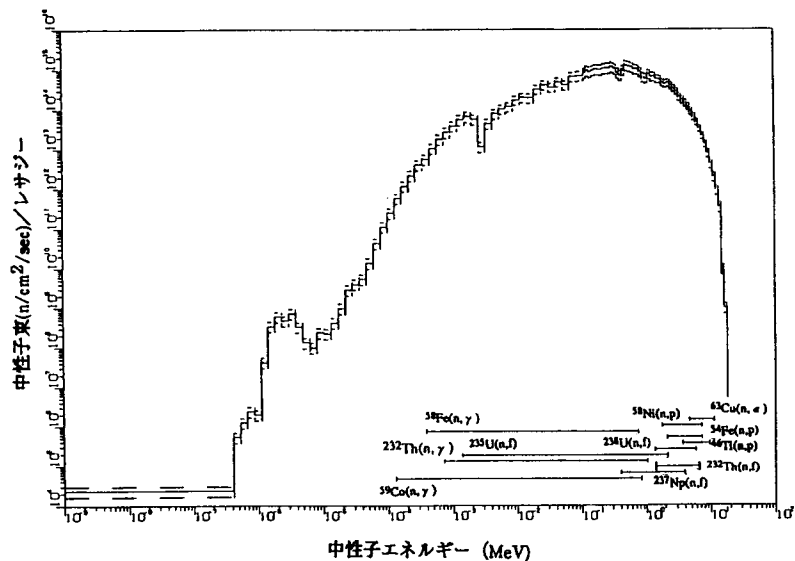


図4 Mk-II炉心中心レベルでの中性子スペクトル解析例
(炉心材料照射用集合体)

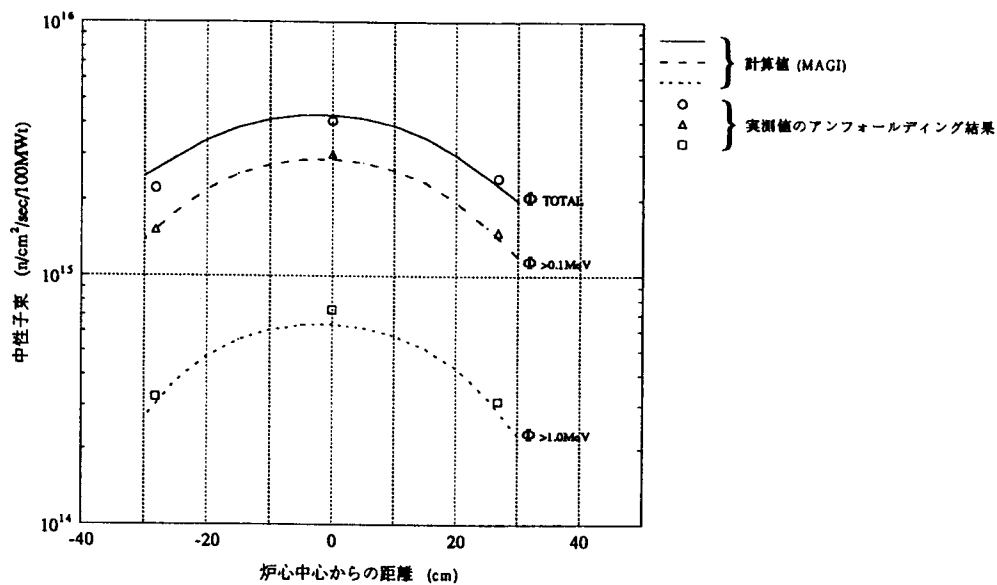


図5 計算結果と実測値のスペクトルアンフォールディング結果の比較

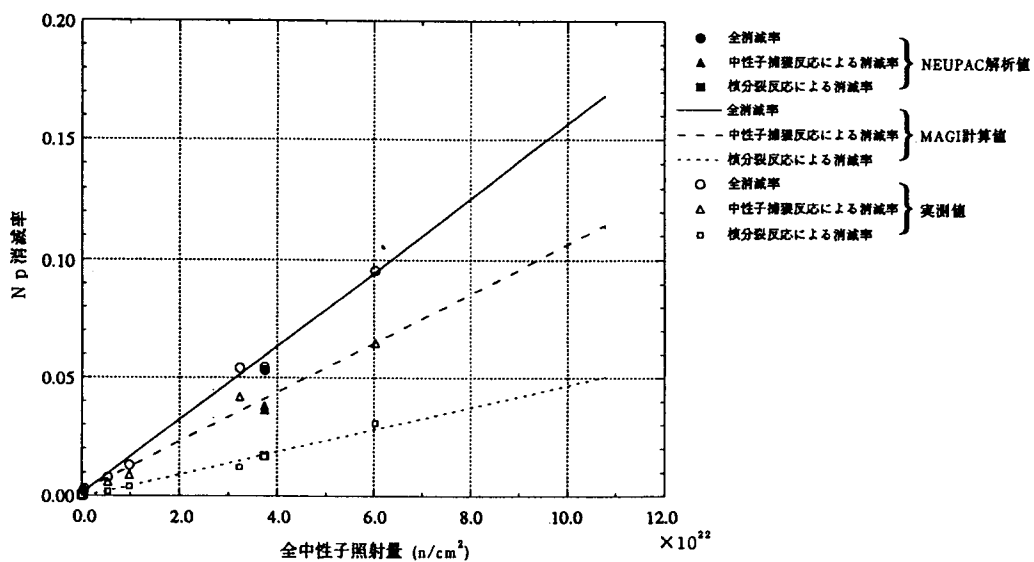


図6 ^{237}Np 消滅率の測定評価結果と計算評価結果の比較

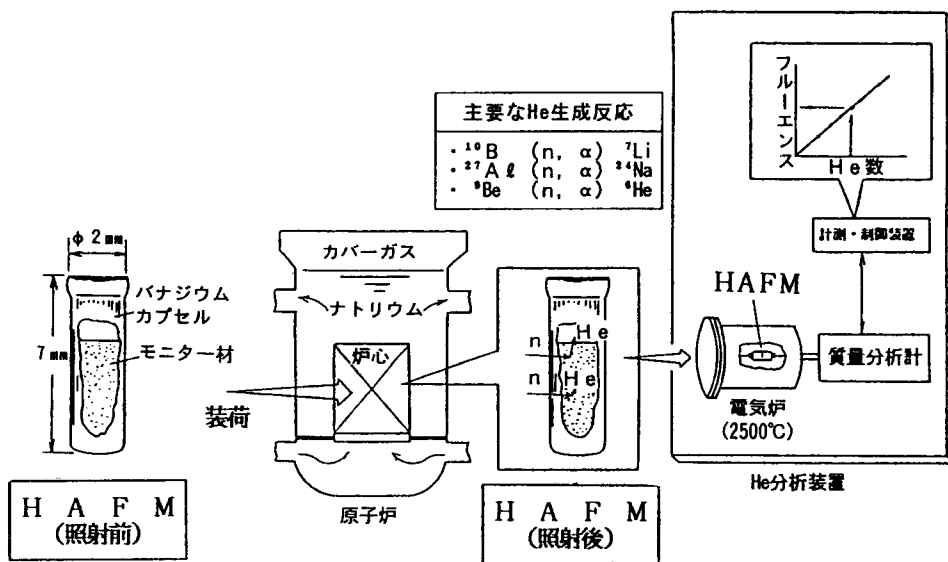


図7 HAFM法による中性子照射量測定概念