

^{238}U 捕獲と ^{239}Pu 核分裂反応率比の実験値の検証

(1995年6月5日受理)

日本原子力研究所

飯島 進

1. はじめに

高速炉体系において、 ^{238}U 捕獲反応と ^{239}Pu 核分裂反応の比(C8/F9)は、増殖比や燃焼損失反応度を支配する重要な核特性である。核設計におけるC8/F9の計算精度評価は、日米高速炉共同研究として実施されたJUPITER計画において、アルゴンヌ国立研究所のZPPR炉で測定されたデータを用いて行われてきた。そしてJENDL-2をベースにした炉定数による解析では、C/E値が ~ 1.05 となり、計算値の過大評価は、核設計上の重要な検討課題となった。

高速炉臨界集合体(FCA)では、ZEBRA、PROTEUS、ZPPR等の測定技術を参考に、箔測定法を開発し、京大炉のサーマルカラムを用いた検出器の校正実験等を繰り返して実施し、 $\pm 2\%$ の精度でC8/F9を測定できる技術を確認した(ZPPRの誤差も同程度である)。最近の、金属燃料炉心と酸化物燃料炉心という異なる中性子スペクトルを持つ実験体系のC8/F9について、核データおよび計算手法をJUPITER実験と統一し解析した結果、そのC/E値は ~ 1.0 となり、ZPPR炉の結果と異なる傾向を示した。

FCAおよびZPPRは、炉心規模こそ異なるが、共に板状燃料を用いた水平2分割型の炉心構造であり、放射化箔を用いたC8/F9の測定も、同じ測定原理と測定手法を用いている。最新のJENDL-3.2を用いた計算でも、FCAおよびZPPR炉のC/E値に変化がなかったことから、測定手法および実験誤差評価について、実験値の詳細な比較検討を行うこととした。

2. 反応率測定の概要

反応率比実験では、 ^{238}U 捕獲反応率および ^{239}Pu 核分裂率それぞれについて、単位原子数当たりの値(絶対値)を測定する。箔から放出される γ 線をゲルマニウム検出器により計測するが、絶対値を測定するため、検出器の計数効率を絶対校正する必要がある。校正は、測定における系統誤差を生む最大要因であることから、実験者は複数の方法を用いるなど多方面から検討を加え、慎重に事を進めることになる。FCAでは、1) 標準熱中性子場を用いた熱中性子定数法、2) 絶対校正された核分裂計数管を用いる

方法および ^{243}Am – ^{239}Np 標準線源法を用いた。

FCAの実験では、 γ 線として半減期が15hr～35hrの範囲にあるものを選択し、C8では ^{239}Np (277.6keV)の γ 線、そしてF9ではF.P.核種の中から、 ^{143}Ce 、 ^{133}I 、 ^{97}Nb および ^{97}Zr の γ 線の光電ピークを捉えて計測する(図1参照)。

FCAおよびZPPRの燃料セルを図2に示す。両炉心共、板状の燃料を組み合わせて燃料組成を模擬する。燃料セルの大きさは、1辺が～5cmの立方体である。

反応率の絶対値は、セル内の1点に箔を挿入し測定される。そして計算手法との対応を考慮して、反応率比の実験値は、セル平均の値に処理される。平均化には、別の実験により測定した、セル平均化係数(セルファクター)を用いる。

セル平均反応率を(1)式で定義し、絶対値を測定した位置での反応率とセル平均反応率の比をセル平均化係数とする。

$$C8 = \sum Ri Ni Vi / \sum Ni Vi \quad (1)$$

ここで、

Ri : plate-averaged reaction rate of the plate i

Ni : atom density in the plate i

Vi : volume of the plate i

記号iは、 ^{238}U を含む燃料板を表し、FCAセルではDUO₂板3枚、ZPPRセルではU₃O₈板2枚およびDU板とZPPR-Fuel各1枚が、対象となる。燃料板ごとの反応率(Ri)の測定では、 ^{238}U が大きな共鳴断面積を持ち、燃料板の中での反応率の微妙な空間変動が考えられることから、実験者は様々な工夫をこらした測定を行うことになる。

FCAでは、図3に示すように、DUO₂板(横幅～6.5mm)を上下に2分割し、間に長方形の劣化ウラン箔(幅～1.5mm)4枚を並べる。この方法により、Riを直接測定することが出来る。

ZPPRでは、U₃O₈およびDUについて同様の測定を行ったと考えられる。しかし、ZPPR-Fuelはプルトニウムとウランの混合燃料であり、簡単に分割することなどできない。そこで、極めて薄い燃料板を重ねて、ZPPR-Fuelを模擬し、燃料板内の詳細分布を測定している(Stanford and Robinson実験;図4)。この測定は、大変な労力と材料を必要とすると考えられ、炉心ごとに行うことはしていない。しかし、中性子スペクトルは炉心ごとに異なるため、燃料板中の谷の深さは炉心ごとに違ったものになる。そこ

で、炉心ごとの谷の深さを考慮するため、次のような測定を行う。セル内の ZPPR-Fuel（6.4mm 厚さ）を、半分の厚さの燃料板 2 枚に置き換え、この燃料板の間に箔を挟み、さらに燃料板外側表面に箔を張り付ける。これらの反応率の比から谷の深さを求め、Stanford and Robinson 実験の値を補正する。ZPPR-9 では C8 反応の Stanford and Robinson 実験への補正值として、 $0.977 \pm 1\%$ を得て全てのセル内測定値に適用している。

セル平均化係数は、次のようになる。

	セルファクター	
	C8	F9
FCA(T2 Cell)	$1.023 \pm 0.37\%$	$0.990 \pm 0.26\%$ （注 1）
ZPPR-9(SINGLE FUEL Cell)（注 2）	$0.9256 \pm 0.42\%$	$0.990 \pm 0.51\%$

（注 1）モンテカルロ計算の結果（FCA では実測は出来ない）

（注 2）Single Column Fuel に囲まれた Inner Core Drawer の値

セル平均化係数の測定方法は、FCA、ZPPR 炉心共、同じような手法を用いており、測定値を比較しても、両炉心で系統的な差を生ずる要因は存在しないと考えられる。

3. 実験の誤差評価

FCA 実験の誤差評価

反応率の測定値は、(2) 式で与えら、各項について誤差評価がなされる。

$$\langle \sigma \phi \rangle = Ck / N \cdot K \cdot Fk \quad (2)$$

Ck : エネルギー k の γ 線の計数

N : 原子数（箔の重量測定により求める）

K : 測定時間 t_m の測定値を照射時間 t_r に引き直す補正係数

Fk : 校正係数（ゲルマニウム検出器の計数率）

各項ごとの誤差評価を表 1 に示す。

ZPPR 実験の誤差評価

(1) アルゴンヌが分析した ZPPR 反応率測定の誤差因子及びその具体的値を表 2 に示す。

誤差の因子としては、大きく分けて

- ① Mapping foil ガンマ線計測時の統計誤差、
- ② セルファクターの評価誤差、
- ③ 検出器の校正誤差

の3項目がある。

- (2) 表3に、ZPPR-13 径方向非均質炉心実験での SCF の反応率についての誤差評価結果を示す。アルゴンヌが評価した誤差は F49 絶対値測定に対して 2.0%、C8/F9 反応率比測定に対して 2.4% である。
- (3) 実験から得られたセルファクターの妥当性を検証するために、VIM コードによるモンテカルロ計算値との比較を表4に示す。ZPPR-7 炉心の DCF における両者のノミナル値の差は、C8 反応が 1.2 ~ 2.4%、F9 反応が 1.1 ~ 1.8% であり、いずれも両者の誤差内で良い一致を示したとしている。

4. まとめ

C8/F9 反応率比測定値について、FCA および ZPPR の値を比較し、測定手法および誤差評価の検討を行った。C8/F9 の実験値は、厳密で精度の高い測定景の校正を必要とする絶対測定と様々な工夫をして得られるセル平均化係数の組み合わせにより、得られることを述べてきた。仮定の話として、測定系の系統誤差が存在するとした場合、その大きさは、FCA および ZPPR の実験誤差 $\pm 2\%$ を考慮すると $\sim 2\%$ 程度と考えられる。

系統的な誤差を生じる要因としては、

- 1) ゲルマニウム検出器の絶対校正
- 2) セルファクターの評価

が、考えられる。

ゲルマニウム検出器の絶対校正に関して、2% 程度の相違を評価するためには、同一中性子スペクトル場での測定結果の直接の比較が必要である。しかし、ZPPR が運転を停止してしまった現時点では、残念ながら不可能である。

セル平均化係数については、モンテカルロ計算での検討が可能であるが、ZPPR-7 での検討結果から判断すると、その誤差は 1% を超えることはないと考えられる。

ZPPR 実験について、これ以上の検討が出来ないことから、C/E 値の相違 5% について、実験の立場からさらに追求することは出来ない。FCA としては、フランスの MASURCA 炉やロシアの BFS 炉との共同研究を今後検討することになる。

なお、本報告は、飯島進、桜井健（原研）および石川眞（動燃）が、シグマ委員会積分テストワーキンググループで行った報告を基に、飯島がその抄録として、まとめたものである。

参考文献

- 1) 桜井健、他、「標準熱中性子場を用いた FCA 反応率測定手法の精度の検証」、1994 年秋の原子力学会、G18（1994 年 9 月）
- 2) T.Sakurai, et al., "Measurements and Analyses of ^{238}U Capture to ^{239}Pu Fission Rate Ratio at Fast Critical Assembly," 1994 Symposium on Nuclear Data, 3.2 (Nov. 1994)
- 3) S.B.Brumbach and J.M.Gasidlo, "In-Cell Reaction Rate Distributions and Cell-Average Reaction rates in Fast Critical Assemblies," ANL-85-44 (Aug. 1985)
- 4) "The JUPITER Program: ANL Analysis of ZPPR-9," PNC SA385 85-01, Argonne National Laboratory (Sep. 1980)
- 5) "The JUPITER Program: ANL Analysis of ZPPR-10," PNC SA385 81-04, Argonne National Laboratory (Sep. 1981)
- 6) "ZPPR-9 Monthly Report for September 1978," ZPR-TM-328, Argonne National Laboratory (Sep. 1978)
- 7) "ZPPR-10 Monthly Report for May 1979," ZPR-TM-341, Argonne National Laboratory (May 1979)
- 8) "ZPPR-10 Monthly Report for September 1979," ZPR-TM-352, Argonne National Laboratory (Sep. 1979)
- 9) "ZPPR-11 Monthly Report for April 1980," ZPR-TM-366, Argonne National Laboratory (Apr. 1980)
- 10) "ZPPR-11 Monthly Report for June 1980," ZPR-TM-372, Argonne National Laboratory (Jun. 1980)
- 11) 桜井健、他、「核分裂箔を使用した反応率測定のための異なる検出器校正手法の比較実験」、JAERI-M 93-153,（1993 年 8 月）

表 1 FCAXVII-1 炉心反応率測定誤差評価

(a) 誤差の内訳

項目	Pu239 fission			U238 capture		
	本文中式の記号	誤差因子	誤差 (%)	本文中式の記号	誤差因子	誤差 (%)
Mapping foil	C	Counting statistics of mapping foil	0.57	C	Counting statistics of mapping foil	0.86
				N	Foil weight	0.2
				f	Decay correction factor	0.43
					Correction for gamma-ray self-attenuation	0.66
	小計 *		0.57	小計 *		1.2
Detector calibration	F	Counting statistics of calibration foil	0.57	F	Source activity of Am243-Np239	0.3
		Counting statistics of absolute fission chamber	0.33		Counting statistics of Am243-Np239 source	0.1
		Deposit mass of absolute fission chamber	0.5			
		Correction for counts of absolute fission chamber	0.56			
	小計 *		1.0	小計 *		0.35
Cell factor		Statistics of monte carlo calculation	0.26		Counting statistics of foils for reaction rate distribution within a cell	0.37
Flux level monitor		Counting statistics of monitor foil	0.62		Counting statistics of monitor foil	0.77

* Sum of root of squared individual components

(b) 誤差の合計

項目	Pu239 fission	U238 capture	U238 cap. / Pu239 fis.
Mapping foil 小計	0.57 (%)	1.2 (%)	1.4 (%)
Detector calibration 小計	1.0	0.35	1.1
Cell factor	0.26	0.37	0.46
Flux level monitor	0.62	0.77	0.99
誤差合計 *	1.4	1.6	2.1

* Sum of root of squared individual components

表2 JUPITERにおける反応率測定誤差の分析 (Ref.ANL-85-44)

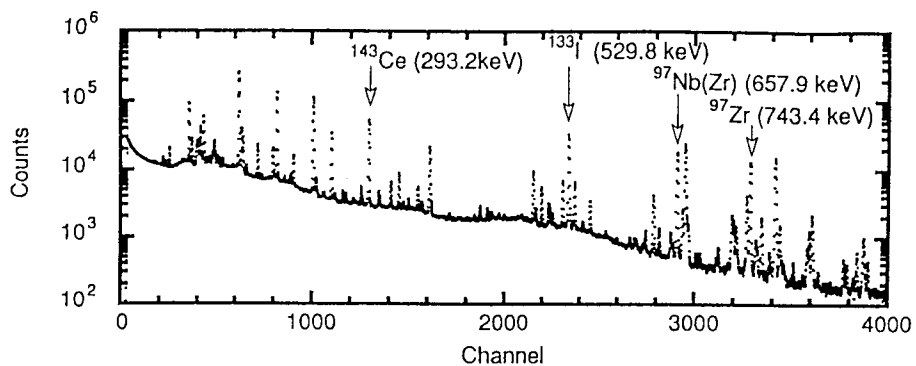
項 目	誤差因子	系統性・内訳等の説明	Typical Uncertainty			
			Pu239 fission	U235 fission	U238 fission	U238 capture
Mapping foil	Counting statistics in mapping foil values	特定の反応について、同じタイプのセルどうして反応率 の比をとる場合には、この誤差だけが残る。	1%	0.7%	1.5%	0.5%
	Positioning a sample above a gamma-ray counter		0.3%	0.3%	0.3%	0.3%
Cell factor	Counting statistics in measuring the reaction rate distribution within the cell	セルフアクターを決定する際に生じる測定統計誤差。	0.7% (ZPPR-13B/4 のDC-SC-DC 配列の例)		1.5% (同左)	0.6% (同左)
	Plate-averaging procedure	系統的に入る誤差であり、その主要原因を以下に示す。 (ZPPR-Pu燃料板) : ①Stanford-Robinson実験結果の採用、 ②half-thickness fuel platesで測定 (U ₃ O ₈ 板) : ①U238 foilからのFPのloss、②metal foilと 酸化物板の反応率の違い (DU Metal板) : ①同位体組成の不確かさ、②FPのloss	(ZPPR-Pu) 0.5% (U ₃ O ₈) - (DU Metal) -	(ZPPR-Pu) 0.5% (U ₃ O ₈) 0.5% (DU Metal) 0.5%	(ZPPR-Pu) 1.5% (U ₃ O ₈) 0.5% (DU Metal) 0.2%	(ZPPR-Pu) 1.0% (U ₃ O ₈) 0.5% (DU Metal) 0.0%
Detector	Detector calibration procedure	絶対値測定、または違った種類の反応率の比をとる場合に 現れる誤差。反応率比については、F25/F49:1.0%、 F28/F49:1.2%、C28/F49:1.8%	(絶対値測定) 1.5%	(同左) 1.3%	(同左) 1.9%	(同左) 1.0%

表3 誤差合計の例 (ZPPR-13径方向非均質炉心実験でのSCFの反応率)

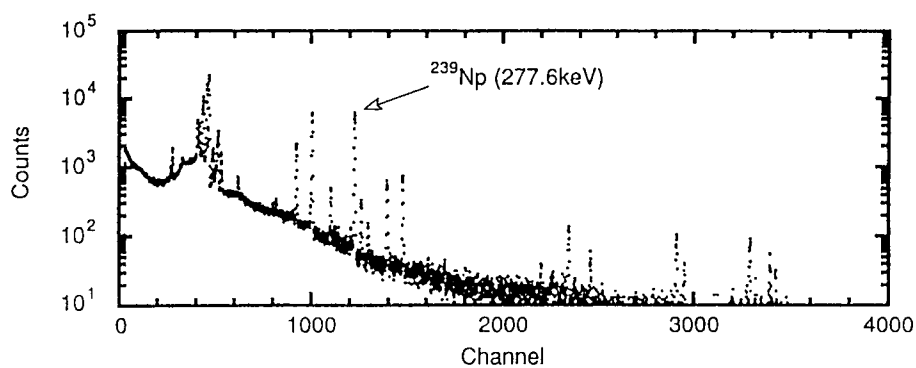
項目	誤差因子	(例1) ZPPR-13のSCFの Pu239 fission 絶対値測定	(例2) ZPPR-13のSCFの U238 capture/Pu239 fission 反応率比測定
Mapping foil	Counting Statistics in mapping foil	1.0%	(Pu):1%、(U238):0.5%
	Foil positioning of foil in γ -counter	0.3%	(Pu):0.3%、(U238):0.3%
Cell factor	Counting Statistics and Foil positioning in cell factor measurement	0.7%	(Pu):0.7%、(U238):0.6%
	Systematic uncertainty in the cell factor	0.5%	(Pu):0.5%、(U238):0.5%
Detector	Detector Calibration	1.5%	1.8% (= (Pu):1.5% + (U238):1.0%)

表4 モンテカルロ計算との比較によるセルファクターの検証

	Comparison of VIM Monte Carlo and Measured Cell Factors in the Core and Blanket Cells of ZPPR-7					
	$^{238}\text{U}(n, \gamma)$		$^{238}\text{U}(n, f)$		$^{239}\text{Pu}(n, f)$	
	VIM	Experiment	VIM	Experiment	VIM	Experiment
Double fuel column 138-40	0.889 ± 0.008	0.9008 ± 0.008	1.080 ± 0.022	1.057 ± 0.012	0.990 ± 0.005	1.0014 ± 0.008
Double fuel column 138-41	0.884 ± 0.011	0.9075 ± 0.004	1.056 ± 0.024	1.048 ± 0.008	0.983 ± 0.007	1.0014 ± 0.008
Blanket	0.990 ± 0.010	0.9754 ± 0.005	1.045 ± 0.022	0.982 ± 0.009	--	--

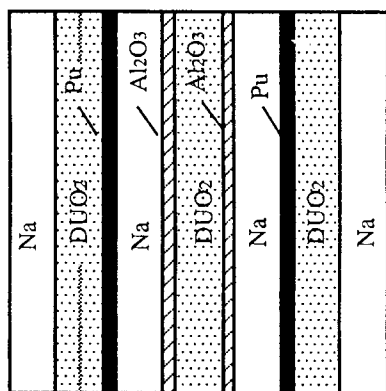


(a) 0~4000 Channel



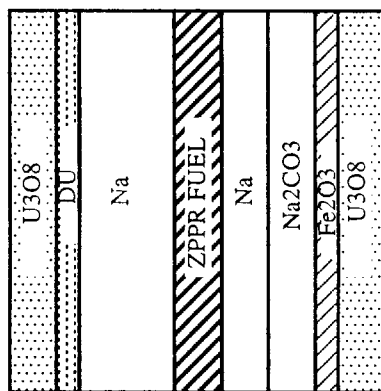
(a) 0~4000 Channel

図1 γ線スペクトラム



Pu-239箔装填位置
U-238箔装填位置

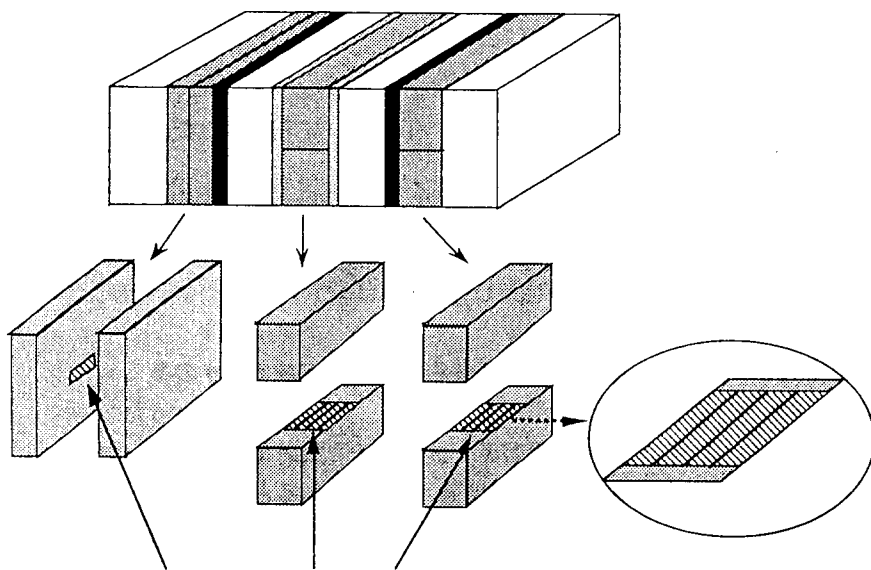
FCA XVII-1
(T2)



箔フォルダー装填位置

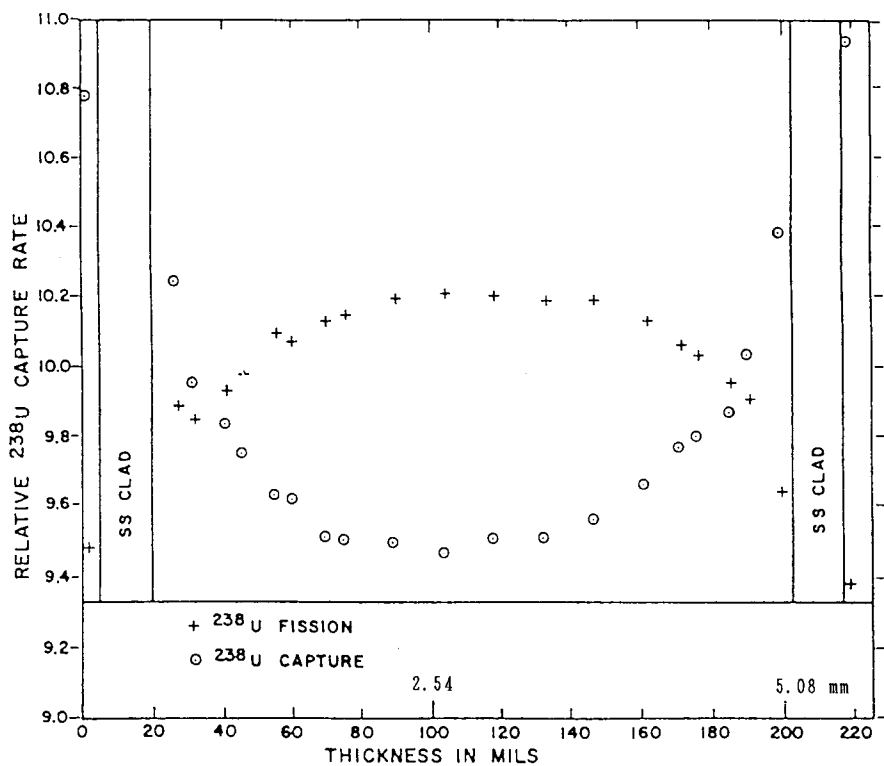
ZPPR-9
(SINGLE FUEL COLUMN)

図2 FCA (酸化物燃料模擬炉心) と ZPPR-9 の燃料セル



Depleted U foils

図3 短冊型箔によるDUO₂板の反応率測定



Mil: 1/1000 インチ

図4 Distribution of ²³⁸U Capture and Fission in a Simulated Fuel Plate.