

## NUCEF と核データ (STACY による臨界安全性実験)

日本原子力研究所

三好 慶典

e-mail: miyoshi@crss10.tokai.jaeri.go.jp

### 1. はじめに

日本原子力研究所は、再処理施設で取り扱われる溶液状燃料等の臨界安全性に関する研究を行うため、燃料サイクル安全工学研究施設(NUCEF)に2つの臨界実験装置 STACY と TRACY を設置した。STACY は、溶液燃料の静的臨界特性に関する実験を行うための定常臨界実験装置であり、臨界ベンチマークデータを広範に取得するとともに、再処理施設の機器を想定した体系について臨界安全裕度が十分大きいことを実証する。STACY は、濃縮度 10% の硝酸ウラニル水溶液を用いて平成 7 年 2 月に初回臨界を達成し単一炉心に関する臨界実験を開始した。一方、TRACY は、再処理施設での臨界事故を模擬した実験を行うための過渡臨界実験装置であり、臨界事故時の核・熱動特性及び放射性物質の挙動を研究するとともに、万が一臨界事故が起きたとしても、放射性物質が施設内に閉じ込められることを実証する。TRACY も昨年 12 月 20 日に初臨界を達成して現在定常運転モードによる特性試験を進めている。平成 8 年 6 月からは過渡実験に向けてパルス運転による使用前検査を開始する予定である。

ここでは、臨界安全解析コード及び核データの検証用データの取得を主目的とした STACY に関して、実験計画の概要とこれまで実施した特性試験及びベンチマーク実験の結果について述べる。

### 2. 装置構成

STACY は、再処理施設で取り扱われる低濃縮のウラン硝酸水溶液及びウラン/プルトニウム混合硝酸水溶液を燃料とする臨界実験装置である。STACY のフローシートと運転条件を第 1 図、第 1 表に各々示す。STACY では溶液燃料をダンプ槽から炉心タンクに給液し、炉心の反応度を燃料液位により制御する。燃料液位は、触針式液位計と呼ばれる接触式の液位計を用い、その測定精度は $\pm 0.2$  mm である。炉心タンク上方には、緊急停止用の安全棒または安全板が設置され、スクラム時には自由落下により炉心に挿

入される。炉心タンクは反射体水槽内に設置されており、基本的なベンチマークデータとして水反射体の有る体系と反射体のない裸体系に対する臨界実験が可能であり、また、炉心タンク及び周囲の反射体は実験目的に応じて交換する。

### 3. 実験計画の概要

STACY では、第 2 表に示す範囲で溶液燃料の燃料条件及び体系条件を変化させ、以下の項目に関する実験を行う。

#### (1) 単一炉心の基本的臨界量

均質溶液燃料の臨界データを測定するため、円筒及び平板タンクを用いて燃料濃度が一般的な炉心を構成し、臨界・未臨界実験を行う。また、棒状燃料と溶液燃料の混在した非均質体系に関する臨界特性を測定する。炉心断面を第 2 図に示す。ウラン系燃料及びプルトニウム系燃料の最大濃度は、各々 500 g/l、300g/l である。均質系の核特性として、ウラン及びプルトニウム燃料における 4 因子の燃料濃度依存性に関する解析例を第 3 図、第 4 図に示す。

#### (2) 反射体効果

コンクリート、ボロン入コンクリート、ポリエチレン等、構造材及び減速材として用いられる材料を炉心タンク周囲に設置し、その反応度効果を測定する。

#### (3) 動特性パラメータの測定

臨界過渡事象の挙動を支配する動特性パラメータである実効遅発中性子割合  $\beta_{eff}$  及び即発中性子寿命  $\lambda_1$  について、パルス法及びノイズ法により測定し、燃料組成及び体系の変化に対する系統的データを蓄積する。

#### (4) 反応度温度係数

溶液燃料を昇温した条件で臨界量を測定し、温度変化に伴い添加される反応度を液位反応度（溶液燃料液位から反応度への換算係数）を用いて測定する。燃料温度は室温から 40℃の範囲である。均質系炉心の温度係数の変化を第 5 図に示す。プルトニウム燃料の極低濃度及び可溶性毒物を含む体系で反応度係数が正になる領域があることが注目される。

#### (5) 中性子相互干渉効果に関する実験

複数ユニットの臨界安全評価手法に関する基礎データとして、2 基の平板または円筒タンクからなる炉心を構成し、タンク間の相互干渉効果及び炉心タンク間に配置した中性子しゃへい体効果に関する実験を行う。

#### (6) 可溶性毒物効果

工程機器における燃料取り扱い量を増大する場合に有効であると考えられる可溶性毒物効果に関する実験を行う。ここでは、硝酸ガドリニウム等を含む溶液燃料の臨界

液位を測定し反応度効果を明らかにする。均質炉心におけるガドリニウムの臨界濃度の変化を第6図に示す。

#### (7) 非均質体系の臨界特性

溶液燃料中に棒状燃料を配列させた非均質体系にを構成し、溶解行程におけ溶液燃料対棒状燃料体積比及び燃料濃度変化に対する臨界特性を測定する。また、硝酸ガドリニウム等の中性子吸収体効果に関する実験を行う。臨界液位及び温度反応度係数の変化を第7図及び第8図に示す。

#### (8) 未臨界度測定手法の開発

中性子源増倍法、ノイズ法等を溶液燃料を含む単一炉心及び配列炉心に適用して体系の未臨界度測定を行う。ここでは、未臨界度を炉心液位により調整し、液位法による未臨界度を較正データとして、各手法の得失と適用範囲を明らかにする。

### 4. これまでの成果

STACY は、濃縮度 10%のウラン硝酸水溶液を燃料として、第9図に示す直径 60cmの筒炉心タンクを用いた特性試験を実施し、その後種々の炉物理量に関するベンチマーク実験を行った。実験範囲を第3表に示す。ここでは主に核特性試験及び臨界ベンチマーク実験の結果を示す。

#### (1) 特性試験

##### ①初回臨界

1995年2月23日に水反射体付炉心により初回臨界を達成した。臨界近接では、本体設備の起動系A、Bと実験系のHe-3計数管とB-10計数管を用いて逆増倍曲線(1/M曲線)を測定し、ウラン濃度及び硝酸濃度が、各々310.1g/l及び2.17mol/lにおける臨界液位は41.5cmであった。

##### ②原子炉停止余裕

炉心タンク上部に設置されている4本の安全棒の全挿入時及びワンロッドスタック時における安全棒反応度値をロッドドロップ法により測定した。測定データは、従来の積分法と1点動特性方程式から得られる計数率減衰カーブを安全棒落下後の計数率変化にフィットする2つの方法により処理し、十分な停止余裕があることを確認した。

##### ③核計装較正

初回臨界から最高出力(200W)まで炉心出力を段階的に上昇させ、線型出力系及び安全出力系の中性子核計装の較正を行った。各段階における炉出力評価には、溶液燃料中のCe-143, Ru-103等の溶液中の核分裂生成物及びNp-239のガンマ線スペクトル分析及び金箔放射化法を適用し、良い一致が得られた。

## (2)ベンチマーク実験

### ①臨界液位と中性子実効増倍率

溶液燃料をウラン濃度が 313g/l から 225g/l の範囲で順次希釈し、周囲に十分な厚さの水反射体がある体系と水反射体のない裸の体系について臨界液位の系統的データを取得した。結果を第 4 表に示す。臨界体系に対しては、SRAC システムの 2 次元 SN コード TWOTRAN(16 群) 及び連続エネルギーモンテカルロコード MCNP-4A と核データファイル JENDL-3.2 を組み合わせて中性子実効増倍率を求め、解析精度を評価した。水反射体体系及び裸体系に対する解析例を第 10 図及び第 11 図に各々示す。計算結果は、いずれも実効増倍率を過大評価している。

### ②動特性パラメータ

動特性パラメータは、パルス中性子法及びノイズ法を用いて  $\beta_{\text{eff}}/l$  ( $\beta_{\text{eff}}$ : 実効遅発中性子割合、 $l$ : 即発中性子寿命) を測定した。ノイズ法では、2 個の  $\gamma$  線補償型電離箱の信号に対してコヒーレンスを測定し、折点周波数から  $\beta_{\text{eff}}/l$  を求めた。測定例を第 5 表に示す。

### ③温度反応度係数

室温(約 25°C) から最大 40°C までの範囲で昇温実験を行い、液位反応度及び臨界液位の変化から温度反応度係数を測定した。実験では、電気ヒータにより炉心タンク及び燃料給液系配管を加熱した後、炉心タンクへ溶液燃料を給液した。温度変化に伴う反応度効果の測定結果を第 12 図に示す。

## 5. まとめ

これまで実施した各実験は、600 Φ円筒炉心による 10%濃縮の硝酸ウラニル水溶液に関する基本的な臨界データを取得することが第一の目的であった。得られたデータに対しては、標準的な臨界解析コードと核データファイル JENDL-3.2 とを組み合わせた解析がなされ、計算バイアス等の検討に供されている。STACY 実験としては、当面は 10%濃縮の硝酸ウラニル溶液を用いて、コンクリート、ポリエチレン等の反射体効果に関する実験を行い、その後 2 基の平板炉心タンクによる配列体系における相互干渉効果に関する実験を行う予定である。また、6%濃縮のウラン溶液を用いた非均質実験及びプルトニウム溶液の実験に順次移行する計画である。STACY での臨界・未臨界データが核データ及び計算手法の改良並びに臨界解析手法の妥当性等を検討する上でより多く活用されることを期待している。

- 参考文献 -

- 1) Y. Miyoshi et al., "Critical Experiment Programs for Fuel Solution with STACY and TRACY", OECD Criticality Safety Expert Meeting, Albuquerque (1995)
- 2) Y. Miyoshi et al., "Neutronic Design of Criticality Facilities (STACY and TRACY) at JAERI for Criticality Safety Research" Proc. of 1988 International Reactor Physics Conference, Jackson Hole, Vol. II 493- 504 (1988)
- 3) K. Tonoike et al., "New critical facilities toward their first criticality, STACY and TRACY in NUCEF", Proc. of the Fifth International Conference on Nuclear Criticality Safety, Albuquerque, Vol. II 10.25- 10.32 (1995)
- 4) Y. Miyoshi, "Critical Experiments on Low Enriched Uranyl Nitrate Solution with STACY", Proc. of the First NUCEF International Symposium NUCEF 95, JAERI Conf. 96-003, 102-114 (1996)

Table 1. Operation limitation and control system

|                                     |                                  |                      |
|-------------------------------------|----------------------------------|----------------------|
| Limitation                          | Maximum reactivity               | 0.8 dollars          |
|                                     | Maximum reactivity addition rate | 3 cent/sec           |
|                                     | Reactivity shutdown margin       |                      |
|                                     | All safety rod insertion         | $k_{eff} \leq 0.985$ |
|                                     | One rod stuck                    | $k_{eff} \leq 0.995$ |
|                                     | Maximum core temperature         | 40 °C                |
| Maximum power                       | 200 watt                         |                      |
| Control system                      | Needl-type level gauge           |                      |
|                                     | Full length                      | 150 cm               |
|                                     | Accuracy                         | $\pm 0.2$ mm         |
|                                     | Control range of feed pump       |                      |
|                                     | Fast feed                        | 2.0 - 30 l/min.      |
|                                     | Slow feed (A)                    | 0.7 - 10.0 l/min.    |
|                                     | Slow feed (B)                    | 0.07 - 1.0 l/min     |
| Safety rod (B4C pellet in SUS tube) |                                  |                      |
| Basic core                          | 2 - 6                            |                      |
| Interaction core                    | 8                                |                      |
| Safety plate (Cd in SUS plate)      |                                  |                      |
| Heterogeneous core                  | 2                                |                      |

Table 2. Test parameters of STACY core

| Experimental Core | Homogeneous  |  | Heterogeneous   |
|-------------------|--|--|---|
|                   | Basic Core   | Interaction Core   |   |
| Geometry          | Cylindrical Tank<br>Diameter $\leq 100$ cm<br>Slab Tank<br>Thickness $\leq 50$ cm<br>Width = 70 cm | Cylindrical Tank<br>Diameter $\leq 60$ cm<br>Slab Tank<br>Thickness $\leq 35$ cm<br>Width = 70 cm                    | Cylindrical Tank<br>Diameter = 60 cm  |
| Fuel Solution     | Uranyl Nitrate<br>Concentration<br>$\leq 500$ g/l<br><sup>235</sup> U Enrichment<br>10%, 6%        | U/ Pu Mixture<br>Concentration<br>$\leq 300$ g/l<br>Pu Enrichment<br>0 - 100 %<br><sup>240</sup> Pu Content<br>5-25% | Uranyl Nitrate<br>Concentration<br>$\leq 500$ g/l<br><sup>235</sup> U Enrichment<br>6%                      |
| Fuel Rod          | -  | -  | PWR Type Fuel Rod<br><sup>235</sup> U Enrichment 5%<br>Number of Rods<br>50-500<br>Volume Ratio<br>1.9-15.0 |
| Reflector         | Water<br>Concrete<br>Borated Concrete  | Water<br>Concrete<br>Borated Concrete  | Water   |
| Neutron Poison    | Gadolinium   | -  | Gadolinium  |

Table 3. Experimental condition for a cylindrical tank of 60 cm in diameter at STACY

|   |               |
|---|---------------|
| Fuel solution : Uranyl nitrate solution |               |
| U235 enrichment (%)                     | 9.97          |
| Uranium concentration (g/l)             | 225.3 - 317.4 |
| Acid molarity (mol/l)                   | 2.17 - 2.28   |
| Temperature (°C)                        | 23.1 - 25.9   |
| Core tank : SUS304                      |               |
| Type                                    | Cylinder      |
| Inner diameter (mm)                     | 590           |
| Thickness of side wall (mm)             | 3             |
| Thickness of bottom plate (mm)          | 20            |
| Thickness of upper plate (mm)           | 25            |
| Reflector : Light water* / None (bare)  |               |
| Thickness of lower reflector* (mm)      | 330           |
| Thickness of upper reflector* (mm)      | 200           |
| Thickness of side reflector* (mm)       | > 700         |

Table 4. Experimental results of critical solution heights

| Run No. | Reflector | Uranium Conc.(g/l) | Acidity (mol/l) | Core Temp. (°C) | Critical Height (cm) | Density (g/cm <sup>3</sup> ) | Date      |
|---------|-----------|--------------------|-----------------|-----------------|----------------------|------------------------------|-----------|
| 1       | Water     | 310.1              | 2.17            | 23.1            | 41.53                | 1.4827                       | 1995/2/23 |
| 29      |           | 290.4              | 2.23            | 24.8            | 46.70                | 1.4572                       | 1995/5/30 |
| 33      |           | 270.0              | 2.20            | 24.7            | 52.93                | 1.4348                       | 1995/6/9  |
| 34      |           | 253.6              | 2.24            | 24.8            | 64.85                | 1.4090                       | 1995/6/12 |
| 46      |           | 241.9              | 2.27            | 24.6            | 78.56                | 1.3936                       | 1995/7/16 |
| 51      |           | 233.2              | 2.28            | 22.4            | 95.50                | 1.3848                       | 1995/9/20 |
| 54      |           | 225.3              | 2.28            | 23.3            | 130.33               | 1.3722                       | 1995/9/26 |
| 14      | None      | 313.0              | 2.25            | 23.8            | 46.83                | 1.4881                       | 1995/4/11 |
| 30      |           | 290.7              | 2.23            | 25.4            | 54.20                | 1.4571                       | 1995/6/1  |
| 32      |           | 270.0              | 2.20            | 25.8            | 63.55                | 1.4339                       | 1995/6/7  |
| 36      |           | 253.9              | 2.23            | 25.8            | 83.55                | 1.4102                       | 1995/6/21 |
| 49      |           | 241.9              | 2.27            | 23.4            | 112.27               | 1.3941                       | 1995/7/13 |

Table 5. Measurement of kinetic parameters  $\beta_{eff}/l$

| Core condition  | Date                                 | 1995/5/25 | 1995/4/20   |
|-----------------|--------------------------------------|-----------|-------------|
|                 | Run No.                              | 28        | 18          |
|                 | Reflector                            | Water     | None (bare) |
|                 | U concentration (g/l)                | 316       | 313.8       |
|                 | Acid molarity (mol/l)                | 2.20      | 2.23        |
|                 | Critical height (cm)                 | 40.94     | 46.83       |
|                 | Temperature (°C)                     | 25.2      | 23.8        |
| $\beta_{eff}/l$ | Pulse experiment                     |           |             |
|                 | Ch. A                                | 136.2±4.5 | 133.6±4.9   |
|                 | Ch. B                                | 137.9±5.7 | 135.1±3.2   |
|                 | Noise experiment<br>CPSD * (Ch. 4,5) | 139.4±3.6 | 134.1±3.2   |

\* Cross Power Spectral Density between CH-4 and Ch-5 (CIC)

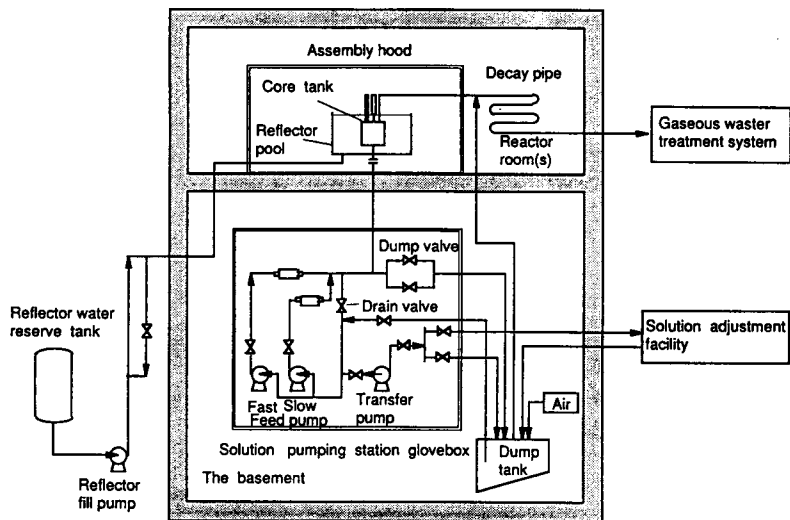


Figure 1. Outline of STACY facilities and flow diagram

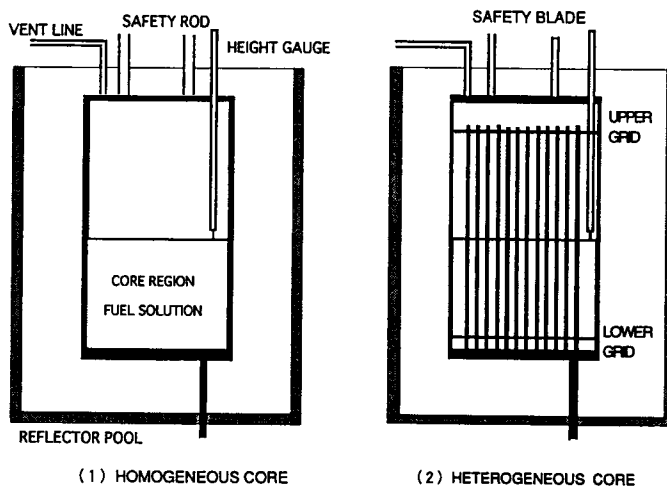


Figure 2. Schematic view of homogeneous and heterogeneous core



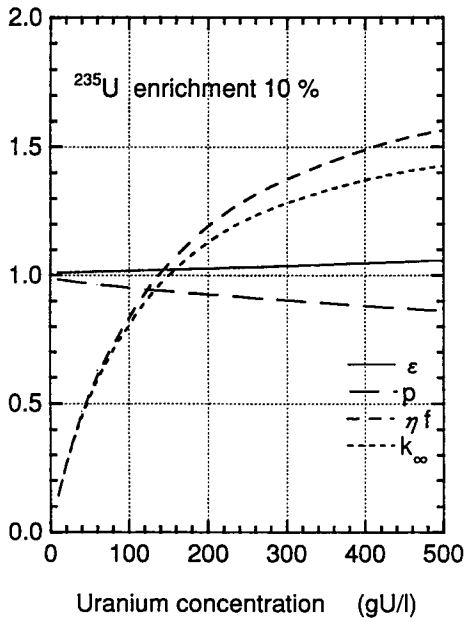


Figure 3. Four factors of uranyl nitrate solution

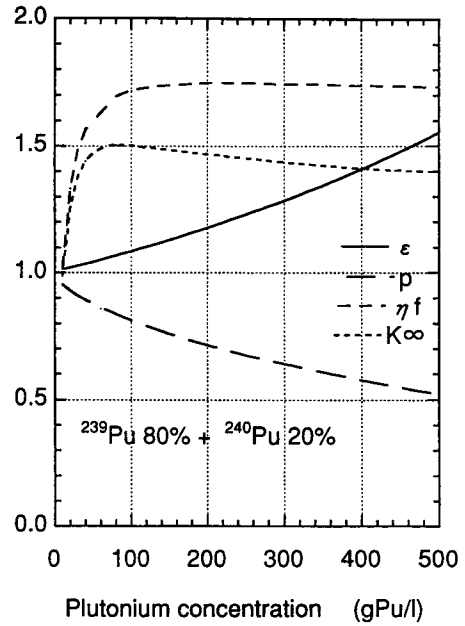


Figure 4. Four factors of plutonium nitrate solution

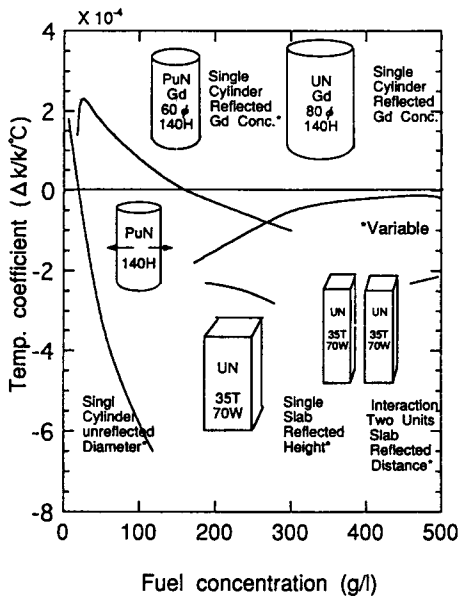


Figure 5. Temperature coefficient of homogeneous cores

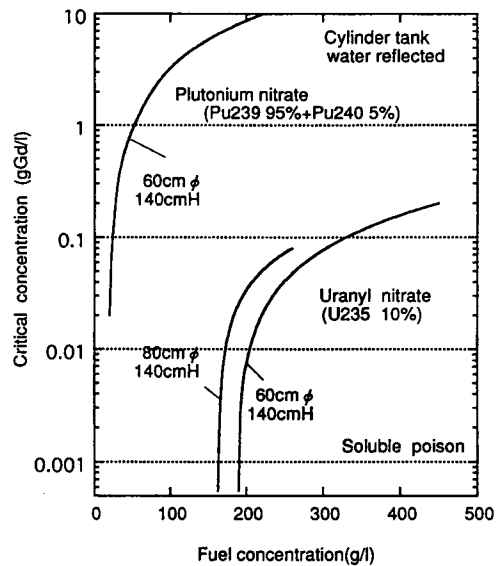


Figure 6. Critical concentration of gadolinium vs. fuel concentration in homogeneous core

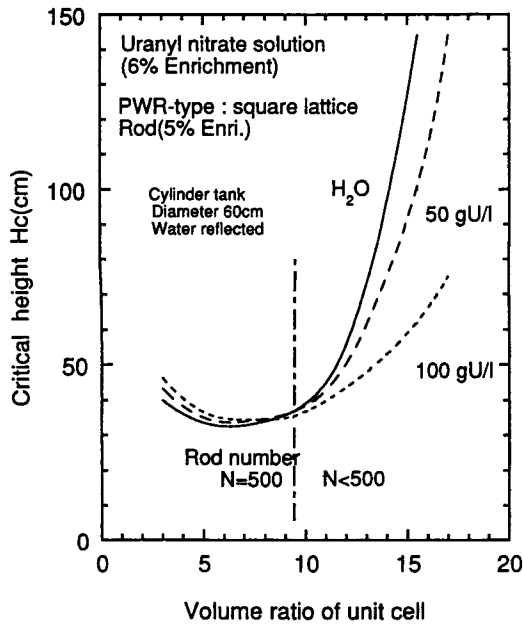


Figure 7. Critical height of the heterogeneous core

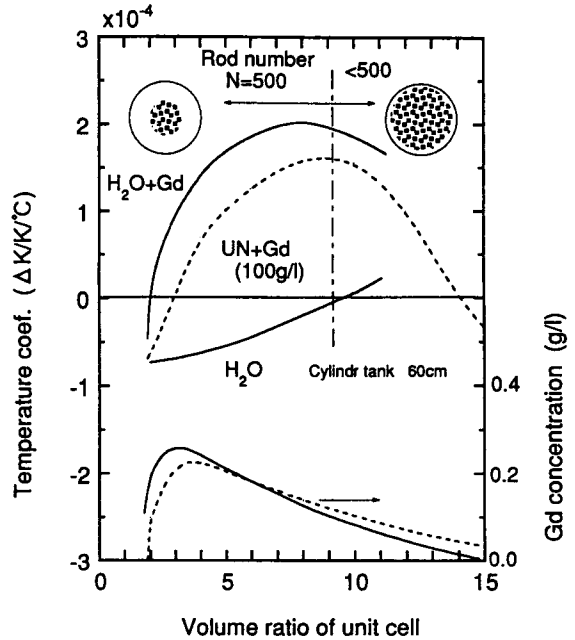


Figure 8. Temperature coefficient of solution of heterogeneous core

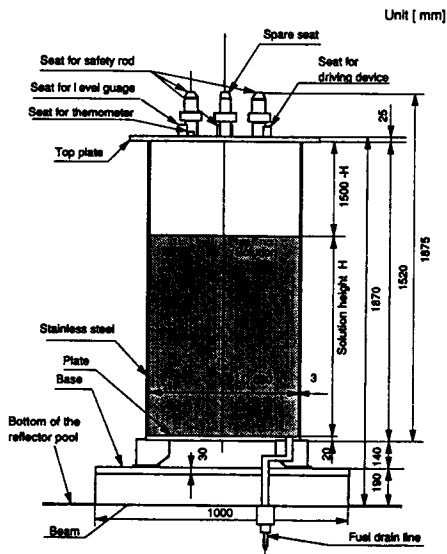


Figure 9. Vertical cross section of the core tank

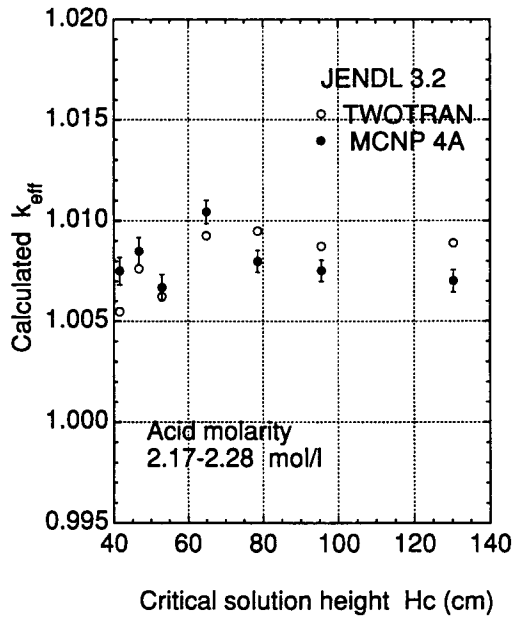


Figure 10. Calculated Keff for water reflected cores

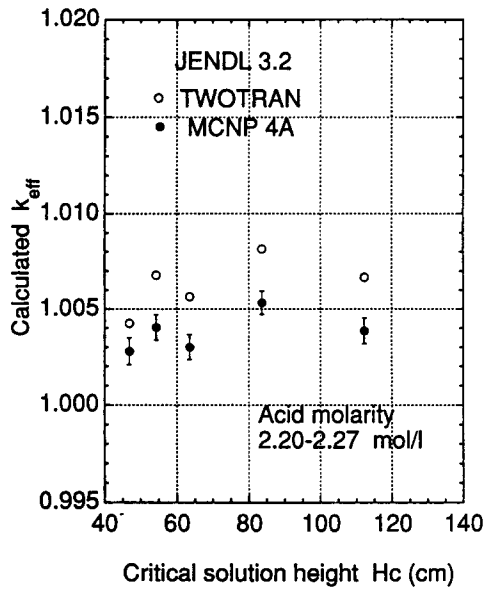


Figure 11. Calculated  $K_{eff}$  for unreflected cores

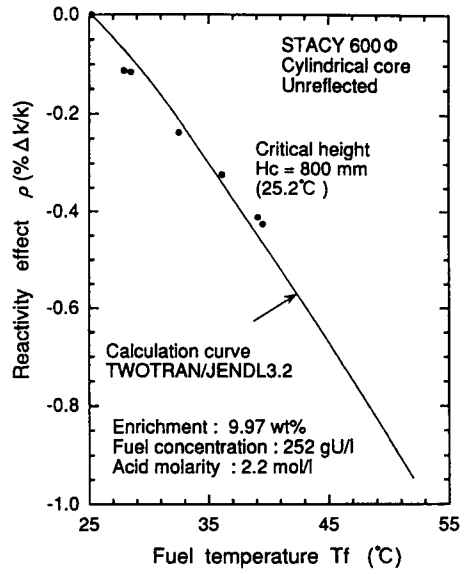


Figure 12. Reactivity effect of solution temperature

