

遅発中性子に関する最近の話題

日本原子力研究所

岡嶋 成晃

e-mail : okajima@fca001.tokai.jaeri.go.jp

1. はじめに

OECD/NEA/NSC核データ評価国際協力 (WPEC) では項目毎にサブワーキンググループ (SG) を組織して、様々な核データ評価を国際協力によって成果をあげている。そのSGの中で、これまで作業の進展が見られず、すこぶる評判の悪かったSG6: 遅発中性子ベンチマークが、人事を刷新し、遅発中性子専門家会合 (Colloquy on Delayed Neutron Data, 1997年4月オブニンスク (ロシア)) を開催する等、最近、活動を活発にしている。ここでは、SG6の現状を紹介するとともに、遅発中性子専門家会合の概要とその時の主要な話題について報告する。

2. SG6の経緯と現状

SG6は、WPECが開始された1990年に、その前年にNEA/CRPにおいてMASURCAを用いた β_{eff} 国際ベンチマーク実験を提案したフランスが中心となって創設された。当初の活動目的は、原子炉の反応度測定において、計算値と実験値を比較する際の換算係数として重要な実効遅発中性子割合 (β_{eff}) の予測精度向上であった。この目的は、ベンチマーク実験の目的に合致する。但し、対象核種は、U-238やPu-239のみならず、アクチノイド核種全般とした。創設当時は、活動も活発であり、1990年には12月、ベンチマーク実験に関する第1回専門家会合 (フランス・Cadarache) 及び第1回遅発中性子 (以下、DN) 専門家会合 (フランス・Paris)⁽¹⁾が開催された。この専門家会合において、具体的な活動内容が討議された。その結果、活動内容は以下の3つのレベルから成る。

Level 1: 核分裂生成核種 (以下、FP) の総和計算

Level 2: 中性子照射による遅発中性子積分測定

Level 3: 原子炉による実効DN割合測定

活動内容が多岐にわたっていることから、コーディネーターには、核データおよび炉物理の分野に精通する資質が求められ、創設当初は、コーディネーターとして、ミクロデータのG.Rudstam (Uppsala大) と積分評価担当のA.Filip (Cadarache) が任に当

たった。その後、MASURCAでの β_{eff} 国際ベンチマーク実験を除くと、久しく泣かず飛ばずの状態であり、WPECでの各SGの活動報告でも次第に評判が悪くなっていった。また、その間に、コーディネーターやメンバーの一部が定年・引退等により去っていったこともあり、1995年の頃にはSG6の存続の有無が話題の中心になっていった。1996年、WPEC議長自身が、A.D'Angelo (Cassacia) を新たなコーディネーターに就任させ、1~2年の間にケリを付けるように要請した。これを受けて、A.D'Angeloは、新しいメンバーを加え、体制の建て直しを図るとともに、現状の把握と終了の仕方および今後の展開を求めるために、専門家会合を開催した。

3. 遅発中性子専門家会合の概要

会合は、1997年4月9~10日に、ロシア・オブニンスク物理エネルギー研究所 (IPPE) のゲストハウスにて開催された。参加者は、29名 (英1名、仏3名、伊1名、米4名、露18名、OECD1名、日1名) であった。会合では、SG6の3つのレベルにおける活動報告と、SG6の今後の活動について討論された。

会合冒頭に、WPEC議長のP.Finkが、敢えて会合の目的を明確にするように、「2日間の会合で、①SG6が今後何をすべきか、②SG6をどのように終えるか、結論を出せるようにしてほしい」と述べた。

3つのレベルにおける活動報告の前に、J.Rowlands がDNデータの現状についてのレビューを行い、

①DNデータ要求精度

原子炉で使用する核種：2~3%

マイナーアクチノイド核種：10~20%

②DNデータの入射中性子エネルギー (eV~MeV) 依存性に関する情報が必要

③時間パラメータは6群がいいのか？

④ミクロ総和計算時の先行核の吟味

等の条件及び課題をリストアップした。続いて、A.Filip がDNデータ測定の歴史的経緯と測定手法について発表した。

各レベルの活動報告概要は、以下の通りである (トピック毎のまとめは後述)。

Level 1 : ロシアから、FPの質量分布について及び総和計算に基づくU-235とNp-237のDN収率の中性子エネルギー依存性についての報告があった。また、米国からENDF/B-6の総和計算に基づくDNスペクトルについて報告があった。

Level 2 : 大部分がロシアからの測定に関する報告であった。米国から、U-235のENDF/B-6のDNデータとこれまでの評価DNデータを比較し、炉周期から求める反応度に関してENDF/B-6のDNデータは他のDNデータよりも小さな反応

度を与えることが報告された。また、LANLではGODIVA-4を用いたU-235及びNp-237のDNデータ測定結果が報告され、U-235の測定値はKeepinの値を良く再現することが報告された。

Level 3 : G.Spriggs (LANL) が原子炉を用いたDNグループデータ測定のレビューを行った。その中で、DNグループデータの群数を従来の6群から増加することにより炉周期（特に、負のペリオドに対して）から求める反応度の予測精度が向上すると報告した。続いて、FCAでの β_{eff} 国際ベンチマーク実験の現状報告と日本における研究活動状況が報告された。ロシアからは、FCAベンチマーク実験に関する彼らの測定結果とその解析が報告された。A.D'Angelo (ENEA) とE.Fort (CEA) は、1970年代に実施されたベンチマーク実験及びMASURCAベンチマーク実験等について、解析を行い、DNの修正結果を報告した。

会合の最後に、このSG6の今後の活動について議論された。ここで、日本からのコメントとして、「①短期的課題として、現在の原子炉解析に必要な核種（U-235、U-238、Pu-239）に関するDNデータの推奨値を出すこと、②長期的課題として、マイナーアクチノイド核種のDNデータについて測定・総和計算等を実施すること。さらに、①の完了をもってSG6は終了し、②について将来的に新たなSGとすること」が提案された。この提案は、WPEC議長を初め、会合参加者全員から賛同を得た。その後の討論では、②に関してロシアからTh-232、U-233を加える要望が提出された。

遅発中性子収率 (ν_d 、DNY) 測定

会合で報告された ν_d 測定実施機関と測定核種を表1にまとめる。

ロシアでは、DubnaがIBR-2（パルス炉）を用いて、U-235、U-233、Pu-239、Np-237核種のDNY測定を行っている。今後、測定精度の向上をめざして（具体的には、バックグラウンドに起因する測定誤差の低減を図るために）、測定手法の改善等を行う。また、IPPEとの協力で良質の標準試料（Pu-239）を作成し、それを用いた測定が計画中である。一方、IPPEでは、電子静電加速器を用いてU-235、Np-237 DNY測定を行っている。IPPEでの測定の特徴は、DNYの入射中性子エネルギー依存性に関する測定を行っている点にある。また、FP収率の質量分布を4つの関数でフィッティングする方法で中性子入射エネルギーのFP収率への影響を検討している。

アメリカでは、Texas A&M大がTRIGA炉を用いてU-235、Np-237、Am-241、Am-243の測定を行った。測定結果は、核分裂中性子スペクトル場での平均放出率として見なせるものであった。また、LANLでは、高濃縮U炉心のGODIVA4を用いたU-235のDNY測定とNp-237のDNY測定が実施されている。LANLの測定結果では、U-235の

DNY (0.0163 ± 0.0009) はKeepinの値と良好な一致を示したことが、報告された。マイナーアクチノイド核種の遅発中性子データについては、IPPE (Np-237)、Texas A&M大 (Np-237、Am-241、Am-243)、LANL (Np-237) から測定結果が報告された。これらの機関では、標準データとしてU-235の測定も行っている。さらに、ロシアのサロフ研究所の短寿命先行核量の測定についての紹介があった。

英国では、Birmingham大学でのU-238のDNY測定を実施している。内容については、参考文献(2)に述べられている。

実効遅発中性子割合 (β_{eff}) 測定と解析

β_{eff} 測定はSG 6の活動の主要課題であり、MASURCAとFCAでのベンチマーク実験がある。これらの内容については、参考文献(3、4)に詳しい。なお、FCAの β_{eff} ベンチマーク実験は、1998年2月に終了予定であり、その後、測定者達による専門家会合において、実験値の相互比較や誤差評価等の検討が行われる予定である。

β_{eff} 実験解析では、ヨーロッパにおいて、MASURCAでの結果と1970年代に測定されたSNEAKやZPRの結果の解析を通して、DNデータの評価修正が行われている。A.D'Angeloは古典的な修正方法を用いて高速炉系でのDNYの修正を行い^(5、6)、その結果は、

U-235 : $0.0163 \pm 1.5\%$

U-238 : $0.0456 \pm 2.9\%$

Pu-239 : $0.00661 \pm 2.6\%$

であった。彼は、これらの値は修正に使用した初期データ (Tuttle 1975 or Bennet et al.) に依存しない、と報告した。また、E Fort は、Lendel semi-empirical model (詳細は不明) で、DNY エネルギー依存性を考慮して、JEF2 のU-235とPu-239を評価した。最終的な不確かさは、J.Rowlandsが示した要求精度に近いものになるであろうと結んだ。

遅発中性子6群パラメータ (α_i, λ_i)

マイクロデータからの総和計算によって得る6群パラメータに関する問題点は、これまでも指摘されている^(7、8、9)。その具体的な例として、T. Parishが、U-235を例に、安定炉周期と反応度の関係 (逆時間方程式) を様々なDNデータを用いた場合について比較した。その結果、ENDF/B-VI以外のDNデータから得られる反応度は良く一致するが、ENDF/B-VIのDNデータ (マイクロ総和計算による) の場合、他のDNデータより小さな反応度を与える。この原因として、6群パラメータが問題であることを示すとともに、時間依存グループデータ (Keepin, Waldo et al., Texas A&M, etc.)の相違は、安定炉周期が長くなると大きくなると指摘した。ENDF/B-VIを用いた場合の安定炉

周期からの反応度の相違は、S. Okajima からも指摘があった（図 1 参照）。

また、G. Spriggs は、ロッドドロップ法と炉周期法で校正した制御棒の反応度を比較した。その結果、負の反応度の場合、両者の相違が著しいことを示した。この相違の主たる原因として、彼は Keepin の 6 群パラメータの第 1 群の λ に関連があると考えた。すなわち、Keepin の λ_1 、 λ_2 、 λ_3 はどれも、これら各群の崩壊定数を支配する主たる FP 核種（Br-87、I-137、Br-88）の崩壊定数の漸近値と大きく異なることを指摘し、さらに、以下の 2 つの理由で、6 群データのグループ分けを見直す必要があると、報告した。

- 1) 核分裂核種毎に固有の 6 群パラメータ (λ) となっている。これは、複数核種が存在する体系でのモデル化は、困難である。
- 2) λ は、入射中性子エネルギーの関数である。したがって、ある特定の体系に熱中性子体系、高速炉体系のいずれかを特定してそのセットを使用するのは、困難である。

この考え方は、また中性子スペクトルが局所的に大きく変化した場合（様々な核分裂核種の寄与が変化する）等を考慮した過渡解析のモデル化においても困難が生じる。その結果、もう一度 λ のグループ分けを考え直し、3 つの支配的な λ と、残りの数群の λ を提唱した（彼は 8 群モデルを一つの候補として提案し、IPPE の測定者もこの群分けには賛同している）。

遅発中性子スペクトル (χ_d)

Massachusetts 大（米国）で、FP の半減期、収率、スペクトル、崩壊熱、遅発中性子の測定を行ってきた J. Campbell が、DN スペクトルに関して、LANL で実施中の総和計算による結果と Lowell での U-235、U-238、Pu-239 の測定結果の比較について報告した。彼女は、測定した遅発中性子放出と時間の関係を、計算コード CINDER 10 を用いて、従来の 6 群モデルにフィッティングした。得られた 6 群のスペクトルはフィッティングに用いた初期値に依存せず、普遍性があることを確認した。この 6 群のスペクトルと Brady and England の総和計算から得る中性子スペクトルを比較した結果、両者は概ね良く一致した。この結果から、主要核種（U-235、U-238、Pu-239）の遅発中性子スペクトルは満足すべきであると結論づけた。

SG6 の今後

DN 専門家会合の翌日（4月11日）に、SG6 メンバーによる Advisory Committee Meeting が開催され、SG6 の今後の活動について議論された。その結果、以下のことが確定された。

・ Major Isotopes に対して、以下の点に留意してDNデータをまとめて、SG6は終了する。

- ①重要な遅発中性子先行核の同定と、それに基づいた物理的観点から、並びにより汎用性の高い遅発中性子時間依存データの提唱
- ②U-235、U-238、Pu-239、Pu-241の遅発中性子データの推奨値の作成
- ③推奨データの積分テスト

・ Minor Actinides に関する活動は今後も継続し、SG6が終了後、新たなSGを創設して活動する

対象核種：消滅処理及びThサイクル研究において、重要な核種
(Np-237、Am、Cm、Th-232、U-233)

参考文献

- (1) J. Blachot, et al.; "Status of Delayed Neutron Data - 1990," *NEACRP-L-323 / NEANDC-293"U"*, (1990).
- (2) M.A. Kellett, D.R. Weaver, A. Filip; "Measurement of Delayed Neutron Yields from U-235 and U-238," *Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology*, Guttingburg, USA, p.133-1135, (1994)
- (3) P. Bertrand et al.; *Proc. of Int. Conf. on the Physics of Reactors PHYSOR 96*, Mito, Japan, E-190 - E-199, (1996).
- (4) S. Okajima, T. Sakurai, T. Mukaiyama; "Status of International Benchmark Experiment for Effective Delayed Neutron Fraction (β_{eff})," *Proc. of the 1996 Symposium on Nuclear Data*, JAERI-Conf 97-005, 71-76, (1997).
- (5) A. D'Angelo; "A Total Delayed Neutron Yields Adjustment using ZPR and SNEAK," *Proc. of Int. Conf. on the Physics of Reactors PHYSOR 90*, Marseille, France, III 84 - III 94, (1990).
- (6) A. D'Angelo and A. Filip; *Nucl. Sci. and Eng.*, **114**, 332-341 (1993).
- (7) G. Spriggs et al.; *Nucl. Sc. and Eng.*, **114**, 324-351, (1993)
- (8) P. Mohanakrishnan et al.; *Nucl. Sc. and Eng.*, **122**, 359-365, (1995)
- (9) T. Williams; *Ann. Nucl. Energy*, **23**, 1261-1265, (1996)

表1 DNデータ測定機関と測定核種一覧

	U-235	U-238	Pu-239	U-233	Np-237	Am-241	Am-243
Dubna IBR-2 (pulsed reactor)	○		○	○	○		
IPPE Electrostatic accelerators	○		☆		○		
Texas A&M Univ. TRIGA reactor	○				○	○	○
LANL GODIVA 4 reactor	○				○		
Birmingham Univ.		○					

- Dubna : 測定手法 : Cross-Correlation method
 今後の改善 : (バックグラウンドによる誤差の低減)
 Neutron guide, Use of a chopper for Cross-Correlation technique
 IPPE との協力 (より良好な試料の利用)
 近い将来 : Pu-239 DNY (fast to thermal ratio measurement)
- IPPE : 入射中性子エネルギー依存性 (U-235, Np-237 (preliminary results))
- LANL : U-235 : $\rho d = 0.0163 \pm 0.0009$ (Keepin の値と良い一致)
 Np-237 : preliminary result (これまでの値と若干異なる)

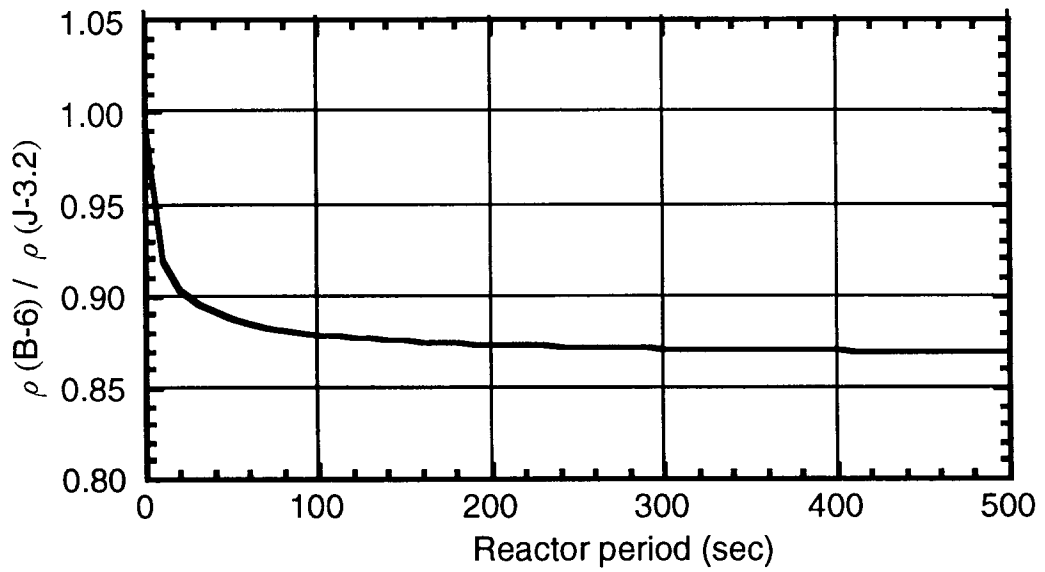


図1 炉周期から得られる反応度のDNデータ間の比較