

加速器駆動消滅処理システムの核特性への 核データファイルの影響

日本原子力研究所中性子科学研究センター

消滅処理システム工学研究室

佐々 敏信

e-mail : sasa@omega.tokai.jaeri.go.jp

1. はじめに

日本原子力研究所では、群分離・消滅処理技術開発長期計画（オメガ計画）の下で、高レベル放射性廃棄物中に含まれる、長寿命の放射性核種の群分離・消滅処理技術の研究開発¹⁾を進めている。消滅処理の対象としているのは、ネプツニウム、アメリシウム、キュリウム等のマイナーアクチノイド（MA）及びテクネチウム-99、ヨウ素-129等の長寿命核分裂生成物である。原研では、これらの核種を消滅処理に最適化したシステムにより効率良く処理を行う消滅処理専用システムを提案している。消滅処理専用システムでは、対象とする MA 自体を燃料として使用するため、発電炉の燃料であるウラン、プルトニウムを無駄に消費することなく、効率よく消滅処理を行うことができる。

MA を燃料の主成分とする場合、炉心の安全性に大きく寄与する遅発中性子放出割合やドップラー効果が従来のウラン燃料に対して小さくなる。このため、MA 燃料を使用する原子炉では、炉心の動的安全性の確立が大きな課題となる。また、高レベル廃棄物中の MA の組成は、使用済み燃料が装荷されていた原子炉の炉型や燃焼度、冷却期間等によって異なる²⁾ため、燃料交換ごとに正確な過剰反応度を予測し、調整しながら装荷する必要がある。原研で概念設計を進めている加速器駆動消滅処理システムでは、MA が装荷される燃料領域は常に未臨界に保たれる。このため、加速器からの陽子ビームの遮断と同時に中性子の連鎖反応が終結し、安全にシステムを停止することができる。また、新燃料中の MA 組成による反応度の変動にも、あらかじめ余裕をもった設計とすることで柔軟に対応できる。

ただし、未臨界炉心の持つこれらの特長は、全て燃料領域の未臨界度が維持されることが前提であり、設計時にはこれを保証する十分な精度の炉心燃焼解析が要求される。

また、前述のように燃料の主成分は MA であるため、従来の原子炉解析では重要ではなかった核種が未臨界炉心の核特性に大きく寄与する。本稿では、加速器駆動消滅処理システムの計算精度検証の一環として、現行の主要な核データライブラリーである、JENDL-3.2³⁾、ENDF/B-VI⁴⁾及び JEF-2.2⁵⁾について、評価済み断面積データライブラリーの相違が加速器駆動消滅処理システムの核特性に与える影響を検討した結果を報告する。

2. 解析モデル

解析の対象は、OECD/NEA NSC で行なった加速器駆動炉による消滅処理のベンチマークに使用された問題⁶⁾である。システムの主要なパラメータを表1にまとめた。燃料領域に装荷される MA 燃料の同位体組成は、燃焼度 33GWd/tHM の使用済 PWR 燃料を 3 年冷却後に再処理、さらに 5 年冷却後に群分離したときの組成を基準にした。各 MA の組成比率を表2に示す。燃料は窒化物 (Mono-Nitride) とした。窒素-15 の濃縮度は 100%である。

解析のための 2 次元 R-Z 体系の均質モデルを図1に示す。未臨界炉心中央には、中性子放出特性を最適化したタングステン製の核破碎ターゲットが設置される。MA を主成分とする燃料はターゲットの周囲に円環状に配置され、ターゲット・燃料全体が、高エネルギー粒子の遮蔽を兼ねたステンレス製の反射体で取り囲まれる構造となっている。

3. 解析手法

解析には著者らが開発中の ATRAS コードシステム⁷⁾を使用した。ATRAS コードシステムの構成を図2に示す。ATRAS は、NMTC/JAERI⁸⁾により解析した核破碎中性子を線源とし、2次元 Sn 計算コード TWODANT⁹⁾及び燃焼解析コード BURNER¹⁰⁾により固定中性子源解析・燃焼特性解析を行うコードシステムである。また、解析精度確認及び、燃焼前の炉心に対する核種毎の影響を調べるため、モンテカルロ輸送計算コード MVP¹¹⁾を使用した。

解析用の群定数セットには、JENDL-3.2 より作成した ATRAS コードシステム標準の 73 群 P3 のセットと、U-234 から Cm-247 までのアクチノイドを ENDF/B-VI 及び JEF-2.2 より作成したものとそれぞれ置き換えたセットを使用した。ENDF/B-VI については、最新の評価を反映するため、U-235 は Rev.4、Pu-241 及び Am-241 については Rev.3 のデータを使用した。MVP に関しては、それぞれ専用のライブラリーを使用した。また、今回は MA のみの影響を検討するため、核破碎ターゲット、冷却材、構造材等の非アクチノイド核種の断面積は、全て JENDL-3.2 のデータを使用した。

4. 解析結果及び検討

表3に、TWODANT及びMVPで計算した、各ライブラリーごとの初期未臨界炉心実効増倍係数を示す。両コードの計算値には、系統的な差が僅かに見られるが、概ね良く一致している。各ライブラリー間の相違を見ると、JENDL-3.2とJEF-2.2の実効増倍係数は1%以内で一致しているのに対し、ENDF/B-VIを使用したときの実効増倍係数は、JENDL-3.2に対して約3%近く過大評価となっている。この差の原因となった核種を調べるため、ENDF/B-VI及びJEF-2.2の解析値について、燃料中に含まれる核種の断面積をJENDL-3.2の断面積と置換し、個々の核種の未臨界炉心実効増倍係数への寄与を調べた。

表4にENDF/B-VIによる主要燃料核種の実効増倍率への寄与を示す。消滅処理対象核種でも特にインベントリの多いNp-237及びAm-241が過大評価の原因となっている。一方、Pu-239のように、高速炉のベンチマーク等で比較的良く検証が行われている核種については大きな差は見られない。

表5に、JEF-2.2による結果を示す。JEF-2.2とJENDL-3.2では、一見良く一致をしているように見られるが、JEF-2.2のNp-237については1%近く過小評価となり、その他の核種についても僅かな差が見られる。全体的な一致は、Np-237の差がその他の核種の差によって相殺されたためと考えられる。

表6に、Np-237、Am-241を含む主要燃料核種について、BOL及びEOLでの反応率を示す。JENDL-3.2とENDF/B-VIでは、捕獲及び核分裂反応率については元素ごとの差異は小さい。これに対し、ENDF/B-VIによる生成反応率は全MAともに他のライブラリーより高くなっている。このことが、ENDF/B-VIが他のライブラリーより高い初期実効増倍係数を与えた原因と考えられる。この傾向は燃焼末期でも変わらない。ただし、EOLでのCmについては、ENDF/B-VIによる核分裂、生成反応率とも他のライブラリーよりかなり小さい値となっている。これは、後述するようにCm-242の共鳴領域での核分裂断面積の欠落に起因している。JEF-2.2は、特にNp及びAmの捕獲反応率が他の2つのライブラリーとは大きく異なっている。捕獲反応については、図3に示したAm-241のように、しきい値反応の取扱いが、ライブラリー間の差に大きく寄与していると考えられる。

その他の主な核特性（燃焼による実効増倍係数の変化、燃焼反応度スイング、MA燃焼率、炉心平均中性子エネルギー、出力ピーキング係数、冷却材ボイド反応度）を表7に示す。

燃焼時の反応度変化を図4に図示した。図中には、JENDL-3.2ライブラリーでCm-242のみENDF/B-VIを使用したケース、JEF-2.2ライブラリーでNp-237のみJENDL-3.2を使用したケース及びJEF-2.2ライブラリーでAm-241のみJENDL-3.2を使用したケ

ースを併記した。

各ライブラリー中では、ENDF/B-VI は最も少ない燃焼反応度変化を与え、また、反応度変化の傾向も他の 2 ライブラリーとは異なっている。併記したケースのうち、JENDL-3.2 と ENDF/B-VI の Cm-242 を用いたケースでは、燃焼の傾向が類似しており、ENDF/B-VI の燃焼反応度変化の傾向が他のライブラリーと異なるのは、燃焼と共に蓄積する Cm-242 が原因と考えられる。図 5 に JENDL-3.2、ENDF/B-VI、JEF-2.2 の Cm-242 の核分裂断面積を示す。図から明らかなように、ENDF/B-VI では、共鳴領域の断面積が欠落している。このために Cm-242 の核分裂反応を過小評価したことにより、燃焼反応度変化が過小評価になっている。

また、図 4 に示したように、JEF-2.2 の Am-241 は JENDL-3.2 に対して、燃焼期間全体にわたって、炉心の実効増倍係数を約 0.5% 程度高く与えることがわかる。図 6 に Am-241 の核分裂中性子放出数 (ν 値) の比較を示す。JEF-2.2 では、全エネルギー領域にわたって、 ν 値を他のライブラリーより大きく評価しており、これが Am-241 による実効増倍係数の過大評価につながっていると考えられる。逆に JEF-2.2 の Np-237 は JENDL-3.2 に対して実効増倍係数を過小評価する傾向がある。この原因は図 7 に示すように、2MeV 以上のエネルギー領域での核分裂中性子エネルギースペクトルが小さいためと考えられる。

この他の計算結果はそれぞれのライブラリー間の相違は比較的小さくなっている。これらの差については、厳密に原因を特定することは難しいが、初期実効増倍係数の相違と同様に、様々な核種により差が相殺されている、と考えるべきであろう。

5. まとめ

加速器駆動消滅処理システムの核特性予測精度の検証のために、現行の主要な核データライブラリー間での未臨界炉心核特性の差について解析を行った。

JENDL-3.2 と ENDF/B-VI の間では初期実効増倍係数及び燃焼反応度変化ともに大きな差が見られた。JENDL-3.2 と JEF-2.2 の間では、類似した初期実効増倍係数と燃焼反応度変化が得られたが、これは複数のアクチノイド核種の差が相殺されたものであり、個々の核種間では、例えば Am-241 の核分裂中性子放出数や Np-237 の核分裂中性子エネルギースペクトルのように、大きな差を持つ核種があった。また、MeV 領域の捕獲断面積については、今回比較したほとんどの核種について系統的な相違が見られる。Np-237 や Am-241 のように燃料内に多く含まれる核種では、これらの相違が炉心実効増倍係数等に有意な影響を与えているため、評価値の見直しを期待したい。

加速器駆動消滅処理システムの設計では、MA 核データの精度がシステムの消滅性能や経済性に大きな影響を与える。今回の解析結果では、JENDL-3.2 を基準として議論した

が、詳細な設計を進めるためには、実験値により評価値の予測精度を把握することが重要である。

参考文献

1. M. Nakamura et al.: "Present Status of the OMEGA Program in Japan," Proc. Info. Excg. Mtg. on Actinide and Fission Product Separation and Transmutation, 24 (1993).
2. Y. Ando, H. Takano: "Estimation of LWR Spent Fuel Composition," JAERI-Research 99-004 (1999).
3. T. Nakagawa, et al.: "Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision-2: JENDL-3.2," J. Nucl. Sci. Technol., 32, 1259 (1995).
4. (Comp. and Ed.) P. F. Rose: "ENDF-201, ENDF/B-VI Summary Documentation," BNL-NCS-17541, 4th Edition (1991).
5. C. Nordborg, M. Salvatores: "Status of the JEF Evaluated Data Library," Proceedings of International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Vol. 2, p.680 (1994).
6. "OECD/NEA NSC Task Force on Physics Aspects of Different Transmutation Concepts - Benchmark Specifications," NSC/DOC(96)10 (1996).
7. T.Sasa, et al.: "Accelerator-driven Transmutation Reactor Analysis Code System -ATRAS-," JAERI-Data/Code 99-007 (1999).
8. Y. Nakahara, T. Tsutsui: "NMTC/JAERI-A Simulation Code System for High Energy Nuclear Reactions and Nucleon-Meson Transport Processes," JAERI-M 82-198 (1982).
9. R E. Alcouffe, et al.: "Users Guide for TWODANT: A Code Package for Two-Dimensional, Diffusion-Accelerated, Neutral-Particle Transport," LA-10049-M (1990).
10. "BOLD VENTURE IV, A Reactor Analysis Code System, Version IV," CCC-459 (1980).
11. T. Mori, M. Nakagawa: "MVP/GMVP: General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations based on Continuous Energy and Multigroup Methods," JAERI-Data/Code 94-007 (1994).

表1 解析モデルの主要パラメータ

陽子ビーム	
エネルギー	1.0 GeV
ビーム半径	15 cm
プロファイル	一様
ターゲット	
構造	多重ディスク構造
材質	タングステン
上部領域高さ	26 cm
上部ターゲットディスク	1.5 cm
下部領域高さ	54 cm
下部ターゲットディスク	13 cm
半径	15 cm
未臨界炉心	
内／外半径	15/40 cm
高さ	80 cm
冷却材	ナトリウム
燃料	
燃料ピン外半径	3.65 mm
ピンピッチ	9.9 mm
有効長	80 cm
燃料ペレット半径	3 mm
Naボンド厚	0.35 mm
クラッド厚	0.3 mm
クラッド材質	HT-9
反射体	
側部厚さ	50 cm
上部厚さ	30 cm
底部厚さ	40 cm

表2 MA燃料の同位体組成比

アクチノイド		プルトニウム	
Np-237	56.18 (wt%)	Pu-238	1.57 (wt%)
Am-241	26.40	Pu-239	49.51
Am-243	12.00	Pu-240	35.78
Cm-243	0.03	Pu-241	8.49
Cm-244	5.11	Pu-242	4.65
Cm-245	0.28		

表3 初期未臨界炉心実効増倍係数

ライブラリー	ATRAS	MVP	JENDLとの差
JENDL-3.2	0.9089	0.9021	0.0000
ENDF/B-VI	0.9374	0.9300	0.0285
JEF-2.2	0.9005	0.8931	-0.0084

表4 実効増倍係数への核種効果(ENDF/B-VI)

置換核種	実効増倍係数	核種効果
ALL ENDF/B-VI	0.9300	-
ALL JENDL	0.9021	0.0279
Np-237	0.9213	0.0087
Pu-239	0.9299	0.0001
Am-241	0.9144	0.0156
Am-243	0.9286	0.0014
Cm-244	0.9297	0.0003

表5 実効増倍係数への核種効果(JEF-2.2)

置換核種	実効増倍係数	核種効果
ALL JEF-2-2	0.8931	-
ALL JENDL	0.9021	-0.0090
Np-237	0.9024	-0.0093
Pu-239	0.8938	-0.0007
Am-241	0.8945	-0.0014
Am-243	0.8916	0.0015
Cm-244	0.8929	0.0002

表6 BOL, EOLでの反応率

BOL (0 GWd/tHM)

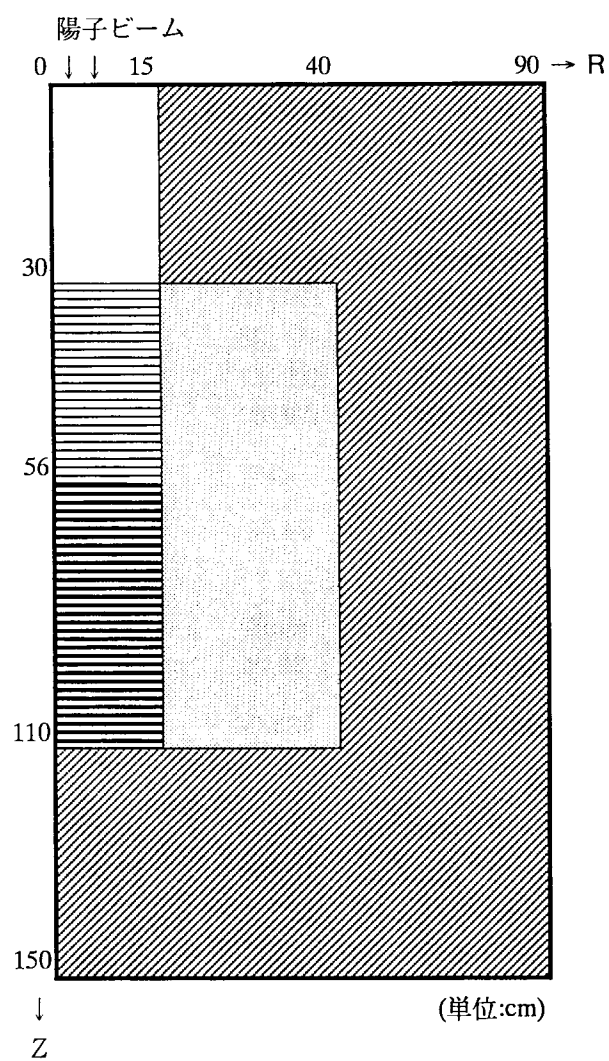
Reaction Library	Capture (%)			Fission (%)			Production (%)		
	JENDL	ENDF	JEF	JENDL	ENDF	JEF	JENDL	ENDF	JEF
Np	41.35	42.07	36.47	37.28	36.70	37.08	37.89	39.65	36.20
Pu	3.124	2.976	2.924	22.04	21.76	22.00	23.58	24.07	22.51
Am	53.57	52.72	58.93	38.58	39.38	38.70	46.90	49.42	45.88
Cm	0.876	1.127	0.682	2.103	2.157	2.220	2.569	2.854	2.594
N	0.015	0.012	0.014	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Na	0.255	0.253	0.230	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
構造材	0.817	0.843	0.745	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000

EOL (200 GWd/tHM)

Reaction Library	Capture (%)			Fission (%)			Production (%)		
	JENDL	ENDF	JEF	JENDL	ENDF	JEF	JENDL	ENDF	JEF
Np	32.80	32.85	31.29	22.44	22.36	22.34	25.71	26.12	25.06
Pu	9.539	10.67	8.440	39.24	40.47	39.79	47.86	48.85	47.26
Am	43.35	42.04	46.68	28.68	30.49	27.85	39.02	41.03	37.22
Cm	3.216	3.070	2.934	9.644	6.669	10.02	13.19	9.549	13.32
FP	9.719	9.964	9.351	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
N	0.013	0.013	0.013	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Na	0.301	0.308	0.280	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
構造材	1.060	1.084	1.011	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000

表7 主な炉心核特性

ライブラリー	JENDL-3.2	ENDF/B-VI	JEF-2.2
炉心実効増倍係数			
0.0 GWD/tHM	0.9089	0.9374	0.9005
10.0 GWD/tHM	0.9148	0.9376	0.9064
50.0 GWD/tHM	0.9312	0.9424	0.9200
100.0 GWD/tHM	0.9428	0.9460	0.9309
150.0 GWD/tHM	0.9457	0.9448	0.9349
200.0 GWD/tHM	0.9407	0.9378	0.9317
反応度変化 (% $\Delta k/k'$)	4.28	0.97	4.09
MA燃焼率 (%)	34.78	34.84	35.30
平均中性子エネルギー			
BOL (keV)	809.7	825.8	823.7
EOL (keV)	758.5	767.2	754.3
炉心熱出力 (MWth)	532.04	541.35	539.62
平均中性子束			
BOL ($\times 10^{15}$ n/cm ² /s)	10.000	10.000	10.000
EOL ($\times 10^{15}$ n/cm ² /s)	10.782	11.263	10.887
出力ピーキング			
BOL	1.659	1.557	1.689
EOL	1.520	1.516	1.528
冷却材ボイド反応度			
BOL (% $\Delta k/k'$)	7.04	6.78	7.49
EOL (% $\Delta k/k'$)	5.68	5.53	5.73



-  上部ターゲット領域
-  下部ターゲット領域
-  MA燃料領域
-  反射体領域
-  ビームダクト領域

図1 解析モデル図

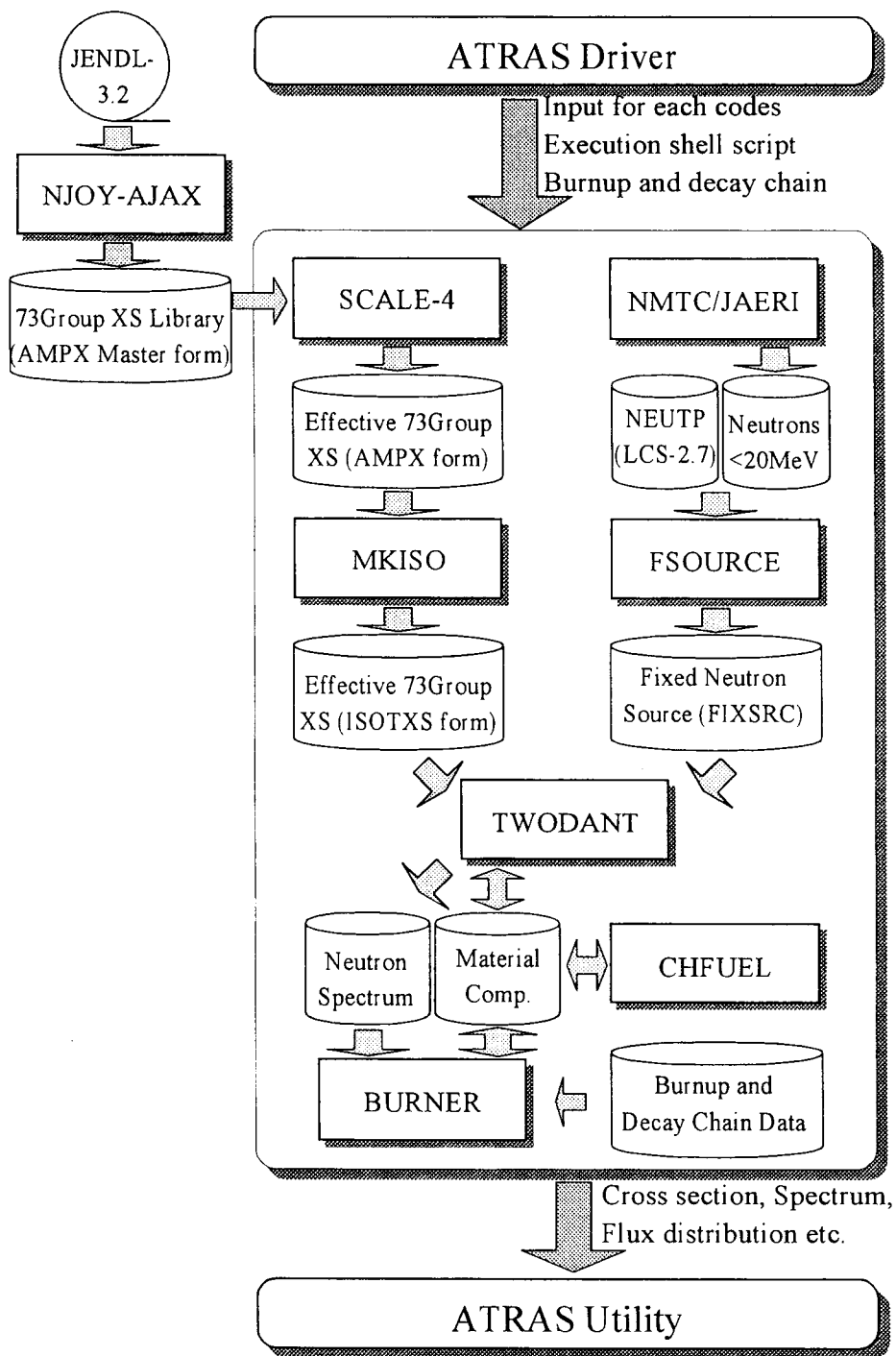


図2 ATRASコードシステムの構成

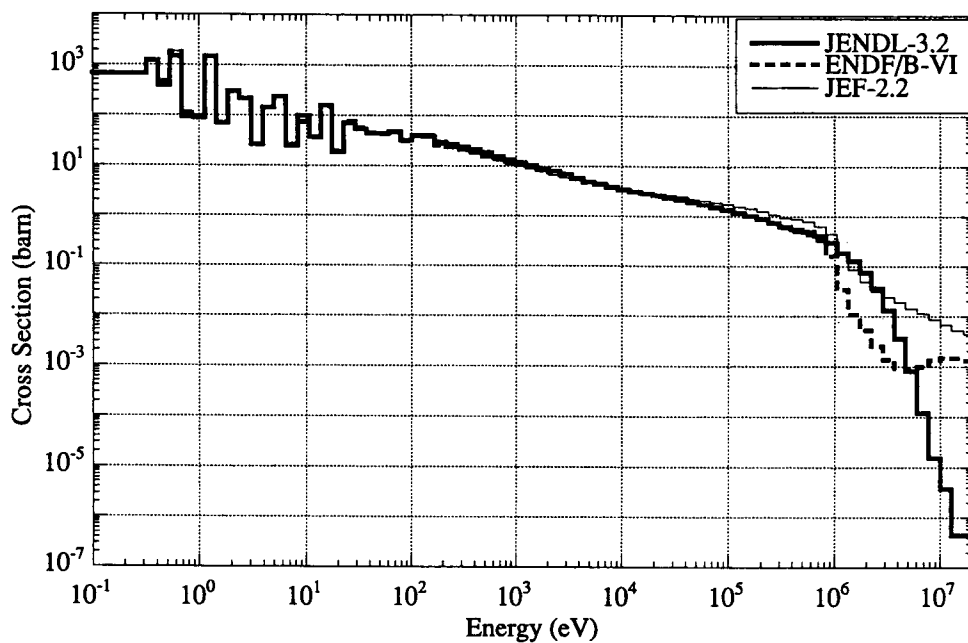


図3 Am-241 捕獲断面積の比較

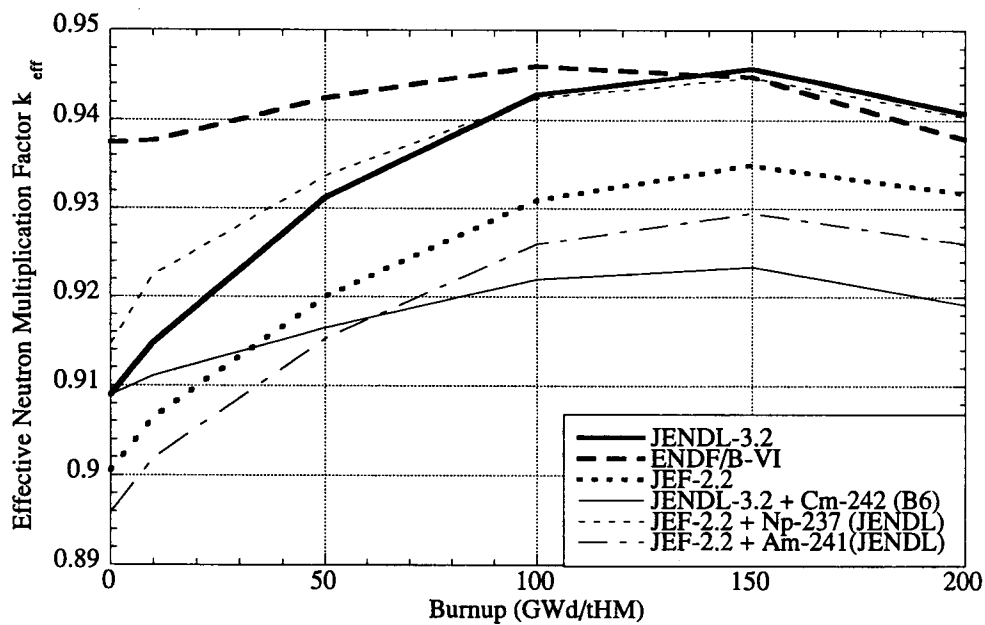


図4 燃焼反応度変化の比較

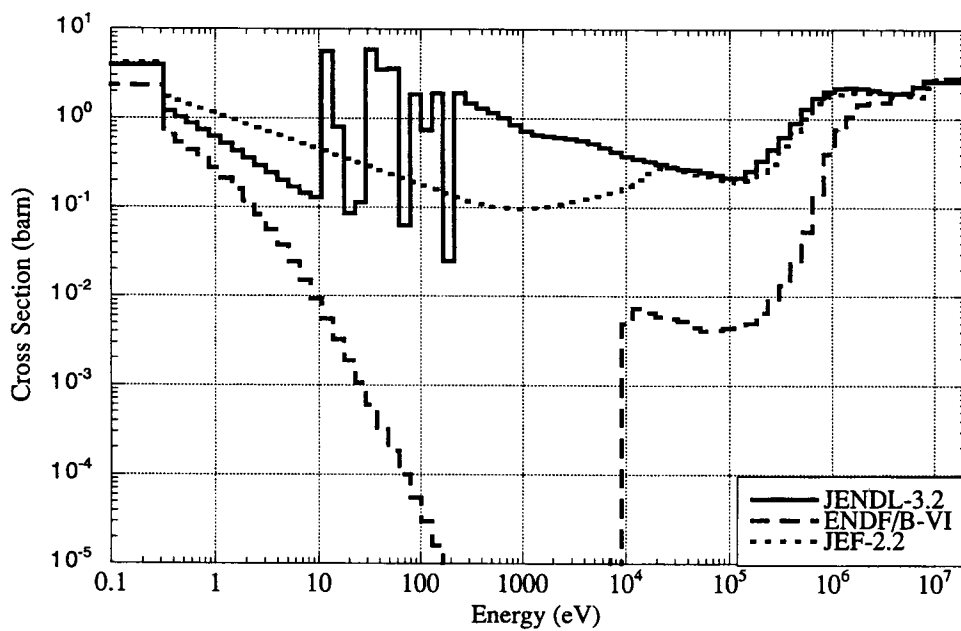


図 5 Cm-242 核分裂断面積の比較

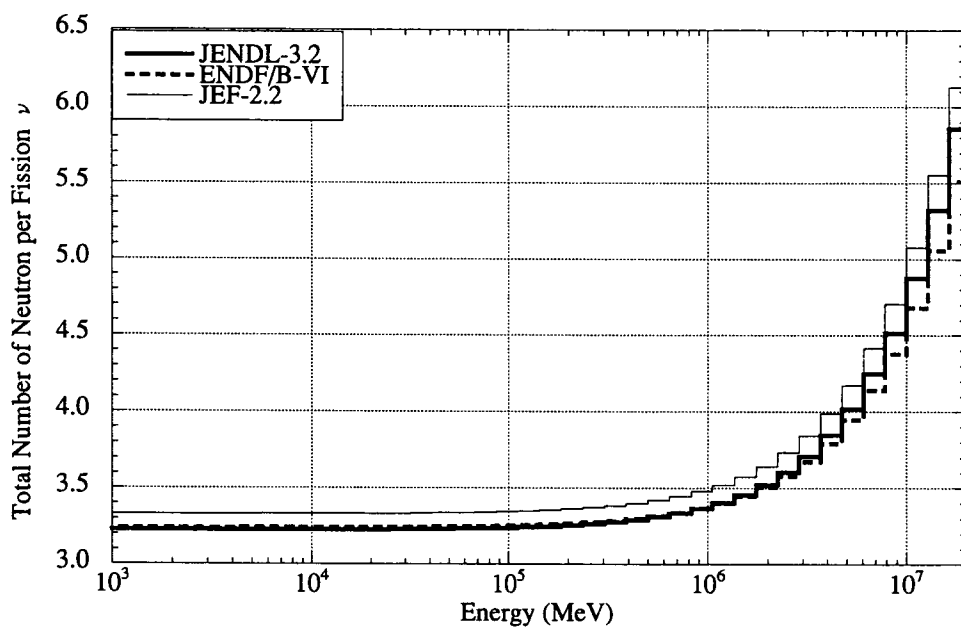


図 6 Am-241 核分裂放出中性子数の比較

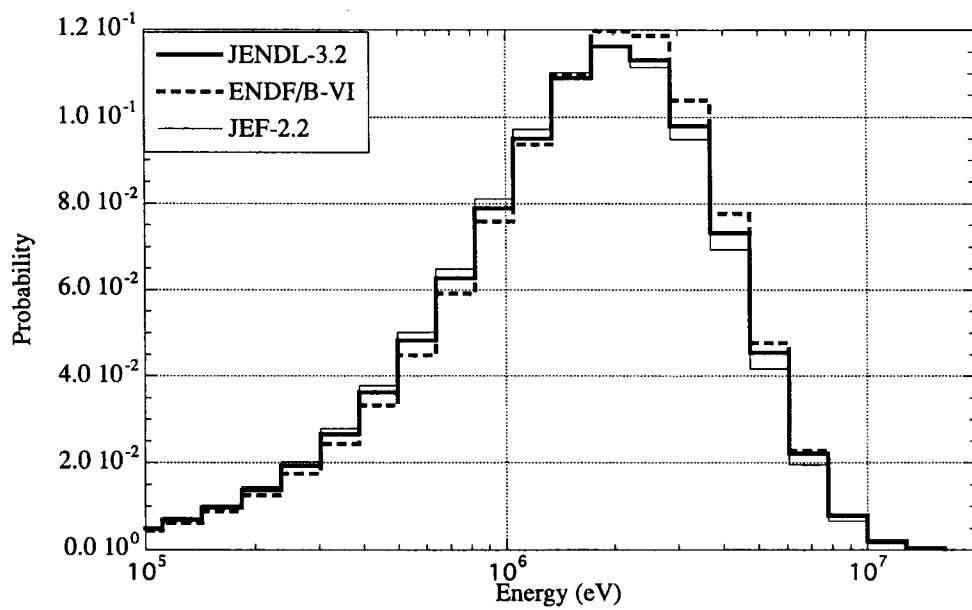


図7 Np-237 核分裂中性子エネルギースペクトルの比較