

京都大学原子炉実験所臨界集合体 (KUCA) を用いた Np-237 及び Am-241 の核分裂と捕獲反応率の測定と解析

京都大学原子炉実験所核エネルギー基礎研究部門

宇根崎 博信

unesaki@kuca.rri.kyoto-u.ac.jp

東北大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻

岩崎 智彦

tomohiko.iwasaki@qse.tohoku.ac.jp

大阪大学大学院工学研究科原子力工学専攻

北田 孝典

kitada@nucl.eng.osaka-u.ac.jp

1. はじめに

高レベル核廃棄物中に含まれる超長寿命の超ウラン元素であるマイナーアクチニド (MA) の消滅処理に関する研究は、'80 年代後半より本格化しており、特に、近年においては、加速器駆動未臨界炉の利用法の一つとしても取り上げられていることを反映して、各国において様々な方面から R&D が進められている。現在までに、極めて幅広いコンセプトの MA 消滅処理システムが提案されているが、一般には、MA 消滅処理には高速中性子炉が適していると考えられている。これに対して、高速炉の導入の遅れ等の要因をふまえ、現実的なオプションとして、既存の熱中性子炉を積極的に MA 消滅処理に活用することも検討されている¹⁻⁴⁾。

いずれの炉型を採用するにせよ、MA 消滅処理特性の R&D を進める上では精度のよい MA 核種の核データが必要であるが、現実として、評価済み断面積ライブラリ間で MA 核種の断面積データに顕著な差異が見られることが多い。一例として、JENDL-3.2⁵⁾、ENDF/B-VI⁶⁾、JEF-2.2⁷⁾ に収録されている Np-237 核分裂断面積及び Am-241 核分裂断面積を図 1、2 に示す。このような差異の原因の一つとして、微分実験値間の不一致⁸⁾ があげられるが、同時に、これらの核データの妥当性を検証するための積分実験データも不足しているのが現状である。このため、中性子スペクトルを系統的に変化させた場において積分実験を行い、積分データを蓄積することは、評価済み MA 断面積データの積分的検証のために極めて重要であるといえる。

これらの背景のもと、我々のグループ (東北大学、大阪大学、京都大学) では、京都大学原子炉実験所の京都大学臨界集合体実験装置 (KUCA) を用い、熱中性子体系における MA 消滅処理のための基礎研究として、様々な熱中性子体系における MA 核種の核

分裂及び捕獲反応率の積分測定を行っており、軽水炉で発生する MA の最重要核種である Np-237 の核分裂・捕獲反応率と、Am-241 の核分裂反応率測定を終了した。本報告では、これらの実験の内容及び各種評価済み断面積ライブラリーを用いた解析結果について紹介する。

2. KUCA の概略⁹⁻¹¹⁾

KUCA は、最大熱出力 100W、短時間（1 時間以内）最大熱出力 1kW の臨界集合体であり、1 つの軽水減速架台、2 つの固体減速架台を有する、世界でも稀少な複数架台型の臨界集合体である。また、絶縁変圧器型の付設加速器を 1 基有しており、臨界集合体と組み合わせることによる炉物理実験が可能となっている。KUCA は、我が国で大学が保有する唯一の臨界集合体であり、共同利用施設として全国の大学研究者に開放されており、様々な炉物理実験に供されている。本研究も、東北大・阪大・京大の共同研究として、KUCA の 3 架台のうち、固体減速架台である B 架台と、軽水減速架台である C 架台を用いて行われたものである。

3. KUCA における MA 消滅処理関連実験と解析

3.1 Np-237 /Au-197 捕獲反応率比の測定と解析^{12,13)}

Np-237 捕獲反応率は、Au-197 捕獲反応率との反応率比として、固体減速架台（B 架台）で構築された 5 炉心、及び軽水減速架台（C 架台）に隣接して設けられた重水反射体タンク内における 5 種類の中性子場において測定された。

B 架台では、図 3 に示すように、5.08cm 角の 93%濃縮ウラン燃料板及びポリエチレン減速材板を適宜組み合わせ、高さ約 40cm の燃料部とし、その上下に約 50cm の軸方向ポリエチレン反射体を付けたものを、約 5.4cm 角、長さ約 150cm のアルミニウム製鞘管に装荷して燃料体を作る。その際に、燃料部を形成する単位セル中の燃料板とポリエチレン減速材板との比率を変えることにより、炉心のスペクトルを変化させている。出来上がった燃料体は格子板上に垂直に立てて並べ、その周りを反射体要素で囲み、また、制御・安全棒を燃料体・反射体境界近傍に設置して臨界炉心を構築する。炉心燃料部のサイズは単位セル構成により異なるが、およそ 30cm 角×高さ 40cm 程度である。

Np サンプル（詳細は後述）は図 4 に示したアルミニウム製のサンプルホルダー内に密閉して用いた。サンプルホルダーは、炉心中心部に設けられたサンプル用要素に、上下をアルミニウムパイプで支え、軸方向高さが炉心燃料部中心と一致するようにして装荷した。B 架台で構築された各炉心の単位セル構成及び H/U-235 比を表 1 に、また炉心構成図を図 5 に示す。

C 架台では、図 6 に示すように、幅約 7cm、長さ約 60cm の燃料板を燃料フレーム中に装荷して燃料体を形成し、それをアルミニウム製炉心タンク内の格子板上に垂直に立

てて炉心を構築する。今回の実験では、幅 42cm、奥行き 80cm、高さ 112cm の重水タンクを炉心に隣接して設置し、この重水タンク内で、サンプルと炉心の距離を変える (5, 7, 9, 20, 30cm) ことにより、照射場のスペクトルを変化させた照射を行った。なお、この実験に際しては、図 4 のサンプルホルダーをさらにアルミニウム製の水密容器内に封入して照射を行っている。

これらの照射場の中性子スペクトル情報を定量的に整理するため、スペクトルインデックスとして、全中性子束積分値に対する、1eV 以下の中性子束の積分値の比率を用いた。表 2 に、本実験で用いた照射場のスペクトルインデックスを示す。スペクトルインデックスは 0.06~0.94 であり、ヴァラエティに富んだ中性子スペクトル場での実験が行われたことがわかる。

捕獲反応率比実験で用いた Np サンプルは、Pt バッキングプレートに約 1.0mg の Np-237 を電着したもので、電着膜直径は 25mm である。また、Au サンプルは、直径 9 mm、厚さ 0.02mm の金属箔で、重量は約 27mg である。両試料共に、照射後、HPGe 検出器を用いた γ スペクトル測定を行い、捕獲反応率を求めた。原子 1 個当たりの捕獲反応率比に対する実験精度 (1σ) は 3.4~3.9% である。

実験解析は、MVP¹⁴⁾ (3次元・連続エネルギーモンテカルロ)、SRAC/TWOTRAN¹⁵⁾ (2次元 RZ・S₁₆P₁・107群：固体減速架台実験のみ) 及び SRAC/CITATION (2次元 RZ 及び 3次元 XYZ・107群：固体減速架台実験のみ) を用いた JENDL-3.2 ベースの照射スペクトル計算、及び、各種補正因子の計算からなる。考慮した補正因子のうち、サンプルフォルダ及びバッキングプレートによる中性子束歪み因子と、各試料の自己遮蔽因子¹⁶⁾ 以外は解析結果に大きな影響を及ぼさないことが確認されている。捕獲反応率比は、得られた中性子スペクトルに各核種の実効断面積を掛け合わせるにより求めている。

JENDL-3.2 及び ENDF/B-VI の Np-237 捕獲断面積を用いて得られた C/E 値を図 7 に示す。JENDL-3.2 ベースの Np-237/Au-197 捕獲反応率の C/E 値は 0.97~1.02、平均値で 1.01 となり、極めて良好な結果が得られている。一方、Np-237 捕獲断面積として ENDF/B-VI を用いた場合は、C/E 値は 1.02~1.09 と過大評価傾向を示し、かつ、スペクトルインデックスが大きいほど過大評価するというスペクトル依存性が見られる。この C/E 値の傾向は、両ライブラリにおける Np-237 捕獲断面積の差、特に熱領域断面積の差 (例えば 2200m/s で JENDL-3.2=165b, ENDF/B-VI=JEF2.2=181b) を反映しているものであると考えられる。

3.2 Np-237/U-235 核分裂率比の測定と解析^{17,18)}

Np-237 核分裂反応率は、U-235 核分裂反応率との反応率比として、固体減速架台 (B 架台) で構築された 5 炉心において測定された。炉心の構成は表 1 及び図 5 に示したも

のと同一である。

核分裂率比の測定には、背中合わせ型二重核分裂計数管(Back-to-back type double fission chamber, BTB)¹⁹⁾が用いられた。BTB 検出器の外観及び構造を図 8 に示す。この検出器中に、SUS バッキングプレート上に電着された Np-237 及び U-235 電着膜試料²⁰⁾を装填し、約 1 気圧の Ar ガスを充填して用いた。BTB 検出器は、炉心中心部に設けられたサンプル用要素に、上下をアルミニウムパイプで支え、サンプル位置軸方向高さが炉心燃料部中心と一致するようにして装荷した。BTB 検出器からの信号は、MCS 及び SCA を用いて計数し、得られた計数率から、各試料の原子個数を用いて、原子 1 個あたりの核分裂率比を求めた。

各試料の原子個数、BTB 検出器の 2 つのチェンバーの検出効率の差異、波高弁別、計数値の統計精度を考慮して得られた原子 1 個あたりの核分裂率比に対する実験精度 (1σ) は 2.0~2.3% である。なお、各試料中に含まれる不純物 (U-235 試料中の U-234、U-236、U-238、及び、Np-237 試料中の Pu-238、Pu-239) による核分裂率比への影響は極めて小さく、無視できることが確認されている。

実験解析は、MVP (3 次元・連続エネルギーモンテカルロ) および SRAC/TWOTRAN (2 次元 RZ・S₁₆P₁・107 群) を用いた JENDL-3.2 ベースの照射スペクトル計算、及び、各種補正因子の計算からなる。補正因子としては、BTB 検出器及び SUS バッキングプレートによる中性子束歪み因子及び各試料の自己遮蔽因子を考慮したが、BTB 検出器による中性子束歪み因子及び各試料の自己遮蔽因子は無視できる程度であった。

JENDL-3.2 ベースの C/E 値を図 9 に示す。SRAC/TWOTRAN による C/E 値は 0.91~0.95、平均値で 0.93 ± 0.01 となり、明確なスペクトル依存性は見られないことがわかる。MVP を用いた C/E 値の平均値は 0.95 ± 0.03 であり、若干良好な結果を与える。但し、MVP 計算結果の統計精度が、特にスペクトル炉心で大きいため、MVP と TWOTRAN の C/E 値の差異に関する詳細な議論は現段階では行っていない。

次に、Np237 核分裂断面積のみを JENDL-3.2、ENDF/B-VI 及び JEF2.2 のものとし、他の断面積は JENDL-3.2 のものを用いた場合の C/E 値を図 10 に示す。3 種のライブラリを比較すると、JENDL-3.2 がもっとも 1 に近い C/E 値を与えること、また、ENDF/B-VI および JEF2.2 はほぼ同一の傾向を示し、JENDL-3.2 に比べて全てのケースについて約 4% 小さい C/E 値を与えることがわかる。この C/E 値のライブラリ間の差の原因を調べるため、JENDL-3.2 及び ENDF/B-VI を用いて得られた Np-237 核分裂率の差をエネルギー群別に検討した結果、核分裂率の差異は、1 MeV 近傍、及び、39.9eV の主共鳴近傍で顕著であり、全エネルギー積分値に対する寄与は、それぞれ約 20%、約 70% であることが明らかになった。

3.3 Am-241/U-235 核分裂率比の測定と解析

Am-241 核分裂反応率は、Np-237 核分裂反応率と同様に、BTB を用いて U-235 核分裂反応率との比として測定が行われた。実験炉心は Np-237 核分裂反応率測定と同じく、表 1 及び図 5 に示した B 架台の 5 炉心である。

実験手法及び解析手法は Np-237/U-235 核分裂率比測定と同一であり、実験誤差 (1σ) は 2.1~2.3% である。なお、スペクトル計算には SRAC/TWOTRAN のみを使用している。

C/E 値を図 11 に示す。JENDL-3.2 を用いた C/E 値は 0.79~0.85 であり、20% 程度の過小評価傾向となる。但し、明らかなスペクトル依存性は見られない。Am-241 核分裂断面積として ENDF/B-VI 及び JEF2.2 を用いた場合の C/E 値はそれぞれ 0.81~0.87、0.85~0.94 となる。ENDF/B-VI と JENDL-3.2 の C/E の違いは主として熱領域の断面積差に起因するものである。ちなみに JENDL-3.2 の Am-241 核分裂断面積は共鳴領域及び熱領域で過小評価傾向であることが指摘されており²¹⁾、このことが本実験で観測された核分裂率比の過小評価の原因の一端となっているものと考えられる。なお、JEF2.2 はもっとも良好な C/E 値を与えているが、これは、0.6eV 近傍の共鳴の評価値が他のライブラリに比べて格段に大きいことが影響しているものである。この影響で、JEF2.2 の C/E 値にはスペクトル依存性が見られ、全体としてスペクトルインデックスが大きいほど C/E 値が大きくなる。ただし、この JEF2.2 における 0.6eV 近傍の共鳴ピークの評価には若干疑問が残されており²²⁾、今後の検討が待たれる。

4. 感度解析

以上述べた積分実験の解析結果をより詳細に断面積ライブラリ評価と結びつけるため、感度解析による断面積データの解析結果に対する影響の検討を行っている。その例として、Am-241/U-235 核分裂率比実験を対象として、大阪大学で開発された感度解析コード SAINT²³⁾を用いて行われた解析結果を図 12 に示す。これらの感度係数と、断面積ライブラリ間の断面積差から得られた核分裂率比の差は、直接計算によるものとよく一致しており、感度係数の妥当性を示すものといえる。本実験を対象とした感度解析はまだ緒についたばかりであるが、今後、断面積データへの直接のフィードバックのための手段、及び、将来における実験計画立案に積極的に活用していきたいと考えている。

5. まとめ

MA 核種の断面積の積分的評価を目的として、KUCA を用いた熱中性子体系で積分実験を行った。その結果、Np-237 に関しては、JENDL-3.2 は他のライブラリに比べて捕獲、核分裂反応率ともに良好な結果を与えることがわかった。一方で、Am-241 核分裂反応率については、JENDL-3.2 は約 15~20% の過小評価となる。ライブラリ間の C/E 値の差は Np-237 核分裂反応率に関して約 4%、Am-241 核分裂反応率に関して 6~10% と

依然として大きく、MA 消滅特性予測精度の向上には、断面積データの再検討が望ましいと考えられる。

KUCA での MA 関連積分実験は、本報告で述べたものをもって、予定されていたものを一応終了した段階である。今後は、より幅広いスペクトル領域での積分データの取得を目指して、KUCA の特色を生かした実験、例えば付設加速器と未臨界体系とを組み合わせた場での照射実験の検討を始めている。KUCA での積分実験が、MA 核種の核データの精度向上の一助となるように、今後とも努力を続ける所存である。

謝 辞

本研究を行うにあたり、京都大学原子炉実験所・神田啓治、代谷誠治、小林圭二、林正俊（現：九州保健福祉大学）、市原千博、三澤毅、中村博、池川龍照、嵯峨根俊光、山本弘志の諸氏には、KUCA での実験に際して多大な御協力、御指導を賜った。京都大学原子炉実験所・小林捷平、山本修二、山名元の諸氏には、BTB 検出器の準備に際して御指導、御協力を頂いた。日本原子力研究所・篠原伸夫氏には、捕獲反応率実験で用いた Np-237 試料の作成にご尽力頂いた。ここに深く感謝する次第である。また、実験・解析に参加し、本研究の一部を各々の修士論文としてまとめられた東北大学院・堀内敏光、藤原大資、阪大大学院・黒田充男、京大大学院・小橋昭夫、加藤丈始、池内祥隆の諸氏に、改めて感謝の意を表したい。

参考文献

- (1) Mochida, T. and Yamashita, J-i. : *Prog. Nucl. Energy*, **29**, 327 (1995).
- (2) Aziz, F. and Kitamoto, A. : *Ann. Nucl. Energy*, **23**[15], 1239 (1996).
- (3) Yokoyama, K. *et al.* : *Proc. Int'l. Conf. on Future Nuclear Systems GLOBAL'97*, Yokohama, Kanagawa, Japan, Oct. 5-10, 1997, Vol.1, 230 (1997).
- (4) Wiese, H. W. : *J. Alloys and Compounds*, **271-273**, 522 (1998).
- (5) Nakagawa, T. *et al.* : *J. Nucl. Sci. Technol.*, **32**, 1259 (1995).
- (6) Rose, P. F. (comp. and ed.) : BNL-NCS-17541 (4th Ed.) (1991).
- (7) Nordborg, C. and Salvatores, M. : *Proc. International Conf. on Nuclear Data for Science and Technology*, Gatlinburg, Tennessee, USA, May 9-13, 1994, Vol. 2, 680 (1994).
- (8) Iwasaki, T. *et al.* : *J. Nucl. Sci. Technol.*, **36**, 127 (1999).
- (9) 代谷誠治、神田啓治、他、原子力誌、31[5]、512(1989).
- (10) 代谷誠治、核データニュース、No.57、2 (1997).
- (11) Unesaki, H. and Shiroya, S.: *Proc. International Conf. on the Physics of Nuclear Science and Technology*, Oct. 5-8, 1998, Long Island, New York, Vol. 2,

- 1587 (1998).
- (12) Iwasaki, T. *et al.*: *Proc. International Conf. on the Physics of Nuclear Science and Technology*, Oct. 5-8, 1998, Long Island, New York, Vol.2, 1711 (1998).
 - (13) Iwasaki, T. *et al.*: accepted for publication in *Nucl. Sci. Eng.*.
 - (14) Mori, T. and Nakagawa, M.: *JAERI-Data/Code 94-007*, Japan Atomic Energy Research Institute (1995) (in Japanese).
 - (15) Okumura, K., Kaneko, K. and Tsuchihashi, K.: *JAERI-Data/Code 96-015*, Japan Atomic Energy Research Institute (1996) (in Japanese).
 - (16) Hirakawa, N. *et al.*: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **30**, 628 (1993).
 - (17) Shiroya, S. *et al.*: *Proc. International Conf. on Future Nuclear Systems GLOBAL'97*, Oct.5-10, 1997, Yokohama, Japan, Vol.2, 1307 (1997).
 - (18) Unesaki, H. *et al.*: submitted to *J. Nucl. Sci. Technol.*
 - (19) Obu, M.: *JAERI-M 9757*, Japan Atomic Energy Research Institute (1981) (In Japanese).
 - (20) Yamanaka, A. *et al.* : *J. Nucl. Sci. Technol.*, **30**, 863 (1993).
 - (21) Yamamoto, S. *et al.*: *Nucl. Sci. Eng.*, **126**, 201 (1997).
 - (22) 中川庸雄、私信 (2000).
 - (23) Takeda, T. *et al.*: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **23**, 681 (1986).

表1 固体減速炉心一覧

Core	Unit Cell Structure	H/U-235
EEE1	EU+EU+EU+1/8P	34
EE1	EU+EU+1/8P	52
E1	EU+1/8P	103
E2	1/8P+EU+1/8P	207
E3	1/4P+EU+1/8P	316

表2 実験炉心のスペクトルインデックス

Type	Core	Spectrum Index	Type	Core	Spectrum Index
B-core (Solid Moderated)	EEE1	0.06	C-core (Light Water Moderated)	C5*	0.46
	EE1	0.09		C7	0.52
	E1	0.14		C9	0.60
	E2	0.22		C20	0.84
	E3	0.29		C30	0.94

* Numeral after the "C" denotes the distance between core and sample in D₂O

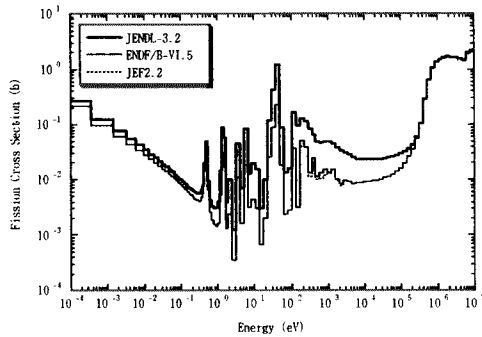


図1 JENDL-3.2, ENDF/B-VI, JEF2.2 の Np-237 核分裂断面積

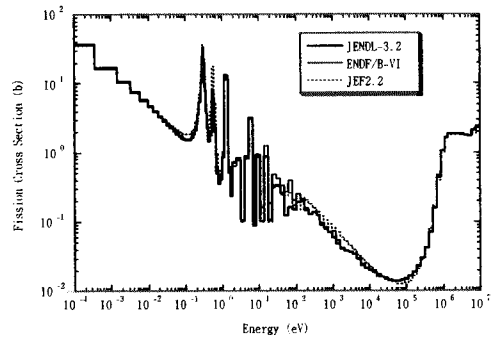


図2 JENDL-3.2, ENDF/B-VI, JEF2.2 の Am-241 核分裂断面積

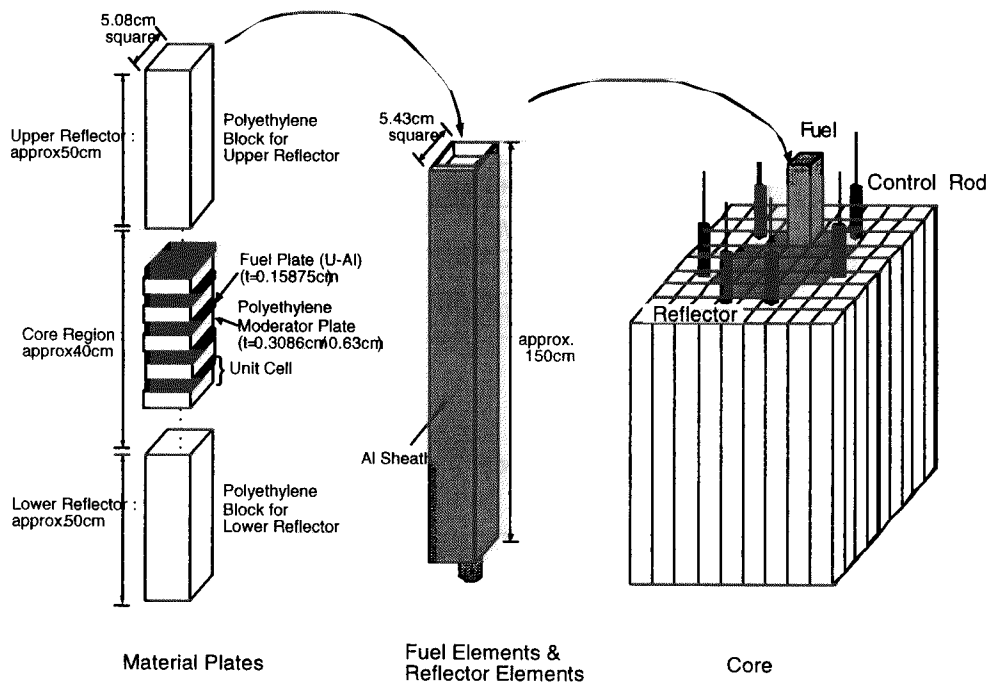


図 3 KUCA 固体減速炉心概念図

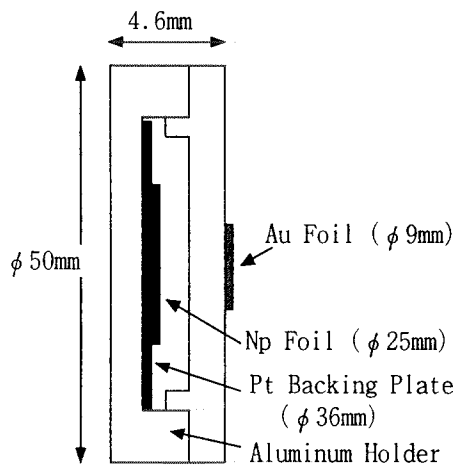


図 4 Np-237/Au-197 捕獲反応率比測定用サンプルホルダー

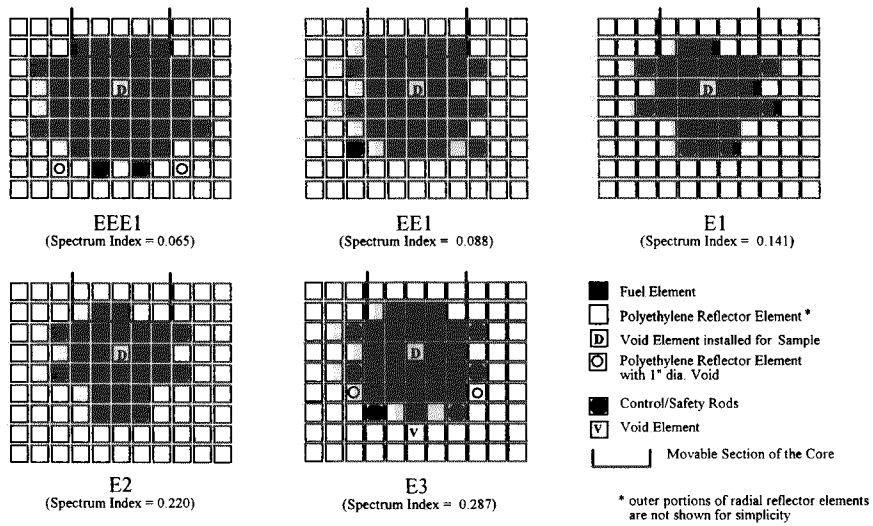


図5 固体減速炉心 炉心配置図

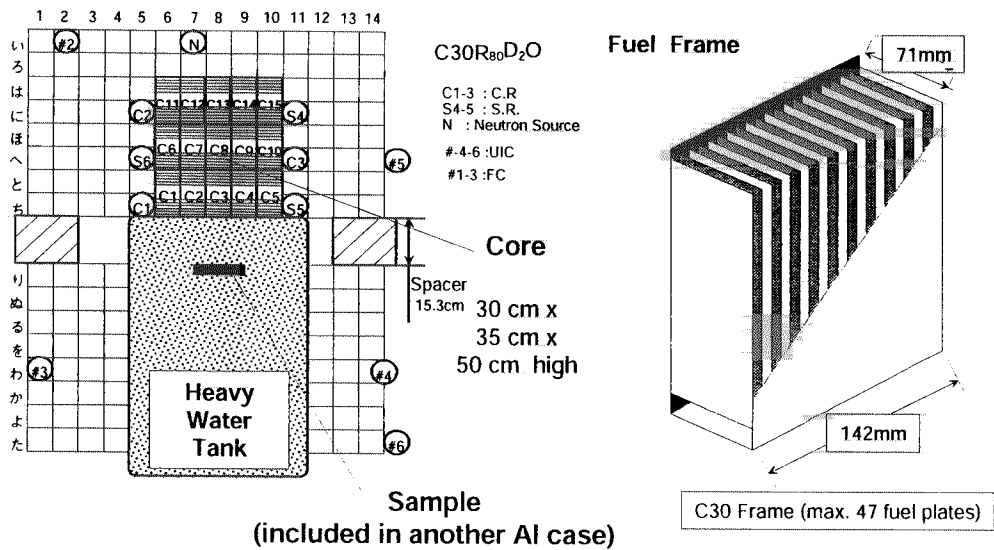


図6 重水タンク付き軽水減速炉心配置図

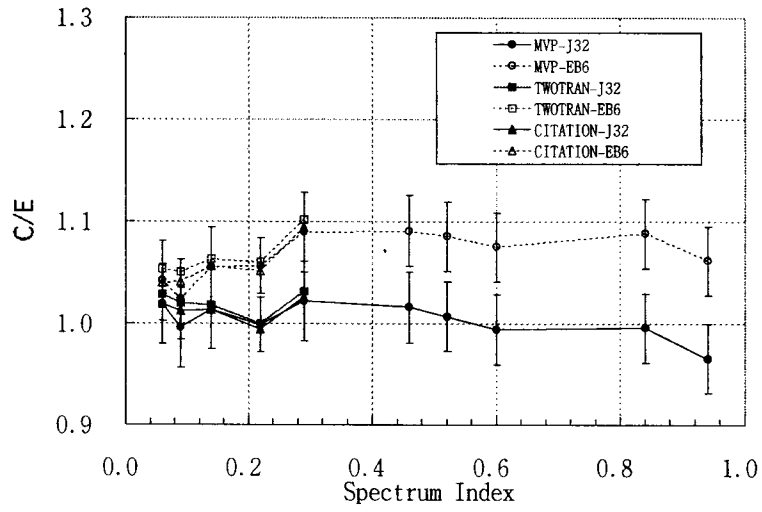


図7 Np-237/Au-197 捕獲反応率比の C/E 値

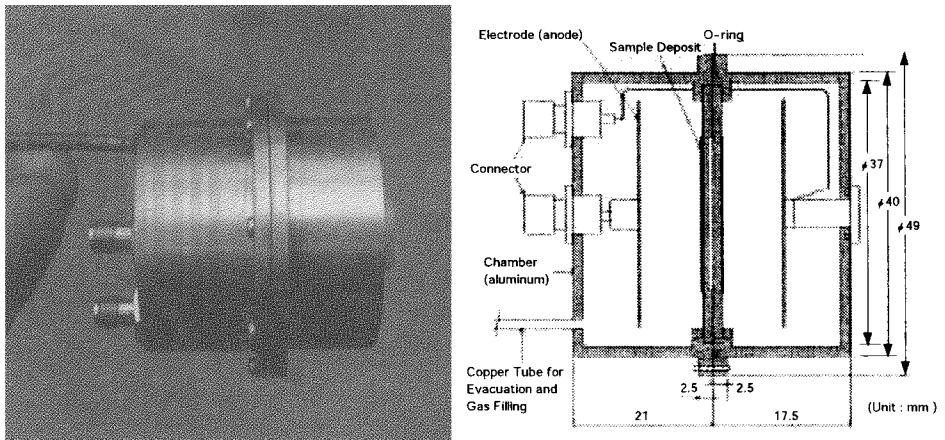


図8 核分裂率比測定実験で用いたB T B 検出器

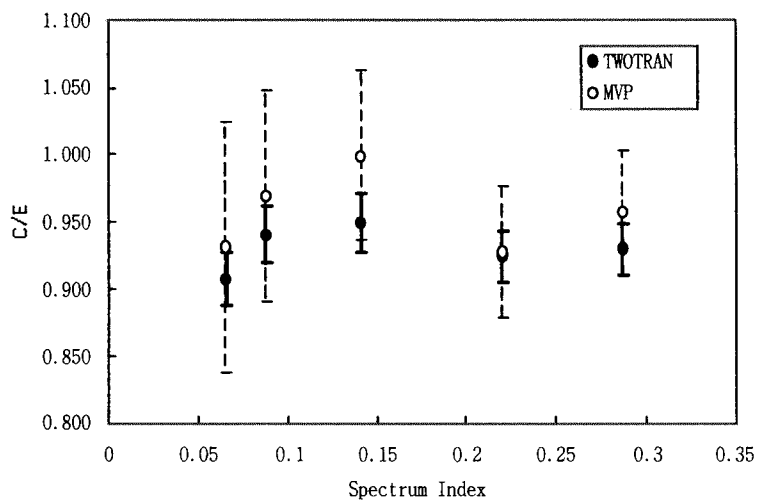


図9 JENDL-3.2に基づく Np-237/U-235 核分裂率比 C/E 値

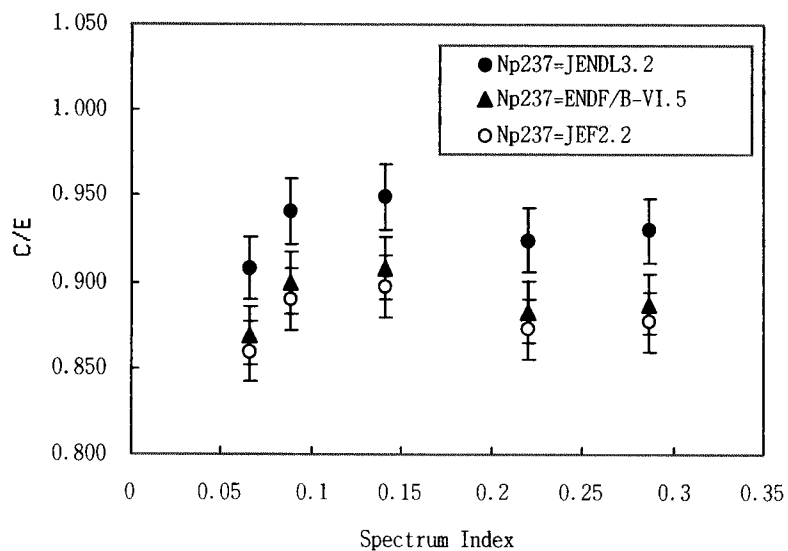


図10 各種ライブラリを用いた Np-237/U-235 核分裂率比 C/E 値の比較

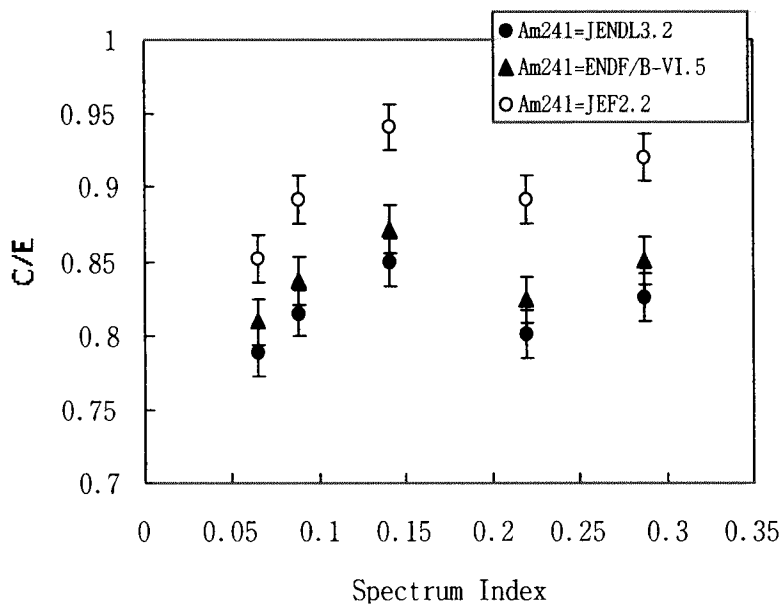


図 11 各種ライブラリを用いた Am-241/U-235 核分裂率比 C/E 値の比較

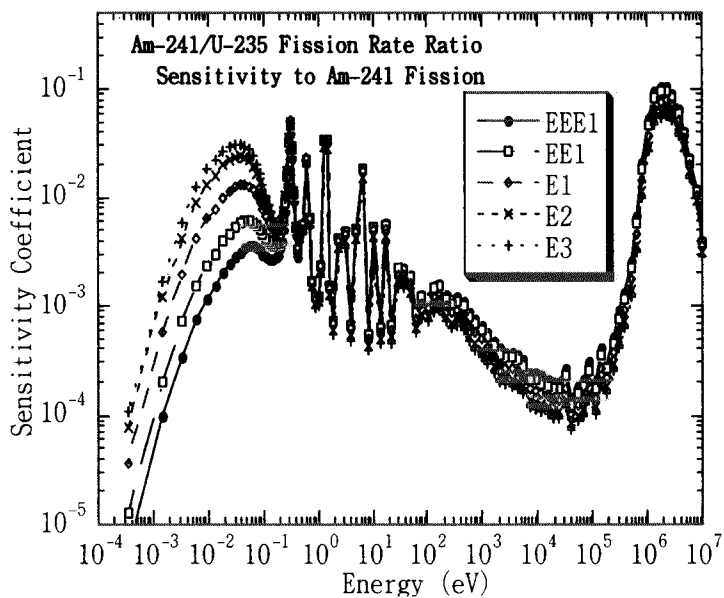


図 12 感度解析結果の例 (Am-241/U-235 核分裂率比)