

高速実験炉「常陽」を用いたサンプル照射 試験によるMA核データの検証（2）

— ^{243}Am サンプル（試料番号77, 78）及び
 ^{244}Cm サンプル（試料番号86）の予備解析—

（研究報告）

2005年1月

核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地 4 9
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課
電話：029-282-1122（代表）
ファックス：029-282-7980
電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,
Japan

© 核燃料サイクル開発機構
(Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2005

高速実験炉「常陽」を用いたサンプル照射試験による MA 核データの検証 (2)
- ^{243}Am サンプル (試料番号 77, 78) 及び ^{244}Cm サンプル (試料番号 86) の予備解析 -

(研究報告)

大木 繁夫

要 旨

高速炉サイクルシステムのための燃焼計算方法の開発とマイナーアクチニド (MA) 核データの検証を目的として、高速実験炉「常陽」において照射された MA サンプル (^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{244}Cm) の核種組成解析に着手している。本報告では、 ^{243}Am サンプル (試料番号 77, 78) 及び ^{244}Cm サンプル (試料番号 86) の予備解析結果を示す。主な結論は次のとおりである：

- 核種組成比 $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ の解析結果より、 ^{241}Am 捕獲反応の核異性体比が高速中性子スペクトルにおいて約 0.85 (g/(g+m)) であることが示された。これにより、ENDF/B-VI 及び JENDL-3.3 に納められたデータについて見直しが必要であるといえる。
- 核種組成比 $^{245}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ 及び $^{246}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}$ の解析結果より、ENDF/B-VI の ^{244}Cm 捕獲反応断面積及び JENDL-3.3 の ^{245}Cm 捕獲反応断面積が過大評価となっている可能性が示された。

これまでに得られた結果は、データの量の観点から決して十分とはいえない。今後、残りのサンプルの解析を行い、結果の数を増やしていく。そして、解析結果を活用するために、詳細解析ならびに実験及び解析双方についての誤差評価を行うものとする。

Validation of MA Nuclear Data by Sample Irradiation Experiments
with the Fast Reactor “JOYO” (2)
- Preliminary analyses of the ^{243}Am samples (No. 77, 78)
and the ^{244}Cm sample (No. 86) -

OHKI Shigeo

Abstract

To develop a burnup calculation method and to validate minor actinide (MA) nuclear data for a fast-reactor cycle system, we have launched the isotopic composition analysis of MA samples (^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{244}Cm) irradiated at the experimental fast reactor “JOYO.” Preliminary analysis results of the ^{243}Am samples (No. 77, 78) and the ^{244}Cm sample (No. 86) were presented in this report. The main conclusions are the followings:

- The analysis results on the isotopic abundance ratio $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ showed that the isomeric ratio for ^{241}Am capture reaction lies at around 0.85 (g/(g+m)) in the fast-neutron spectrum, which suggested the necessity of re-evaluation of the data both in ENDF/B-VI and in JENDL-3.3.
- From the analysis results on the isotopic abundance ratios of $^{245}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ and $^{246}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}$, overestimations could be pointed out for the capture cross section of ^{244}Cm in ENDF/B-VI and that of ^{245}Cm in JENDL-3.3.

The results we have obtained are never enough in terms of the quantity of the data. We carry on the analyses for the remaining samples, and increase the number of results. Detailed calculation as well as the error estimation for both experiment and calculation, will be performed for practical utilization of the analysis results.

目 次

1 . はじめに	1
2 . 実験	2
3 . 予備解析方法	9
4 . 結果と考察	22
5 . おわりに	34
謝辞	35
参考文献	35
付録 A 核変換・崩壊チェーン	37

Tables

Table 1	PIE result of the ^{243}Am sample (No. 77)	4
Table 2	PIE result of the ^{243}Am sample (No. 78)	5
Table 3	PIE result of the ^{244}Cm sample (No. 86)	6
Table 4	Burnup sensitivity coefficients for the nuclide abundance ratios	14
Table 5	Deduced neutron flux at the MA sample irradiation positions	16
Table 6	One-group infinitely diluted cross sections of MA nuclides	17
Table 7	Sensitivity of calculation modeling	18
Table 8	Preliminary C/E values on isotopic abundance ratio $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$	25
Table 9	Preliminary C/E values on isotopic abundance ratio $^{244}\text{Cm}/^{243}\text{Am}$	25
Table 10	Preliminary C/E values on isotopic abundance ratio $^{245}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$	25
Table 11	Preliminary C/E values on isotopic abundance ratio $^{246}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}$	26
Table 12	Comparable other PIE results	26

Figures

Fig. 1	Layout of JOYO MK-II core (33 rd cycle) and MA sample irradiation positions	7
Fig. 2	Axial loading positions of MA samples in the B9 irradiation test assembly	8
Fig. 3	Preliminary calculation method for the MA sample PIE analysis	19
Fig. 4	Calculation models to investigate the heterogeneity of the B9 irradiation test assembly	20
Fig. 5	Calculation models to investigate the self-shielding effect of MA samples	21
Fig. 6	Control rod modeling for the RRRP calculation	21
Fig. 7	Isomeric ratio for ^{241}Am capture reaction and the related energy regions	27
Fig. 8	Comparison of ^{241}Am capture cross sections in major nuclear data libraries	28
Fig. 9	Comparison of $^{242\text{m}}\text{Am}$ fission cross sections in major nuclear data libraries	29
Fig. 10	Comparison of ^{243}Am capture cross sections in major nuclear data libraries	30
Fig. 11	Comparison of ^{244}Cm capture cross sections in major nuclear data libraries	31
Fig. 12	Comparison of ^{245}Cm fission cross sections in major nuclear data libraries	32
Fig. 13	Comparison of ^{245}Cm capture cross sections in major nuclear data libraries	33
Fig. A-1	Simplified nuclide transmutation-decay chain for fast reactors	38

1. はじめに

実用化高速炉サイクルシステムでは、燃料の高燃焼度化やマイナーアクチニド (Minor Actinide: MA) のリサイクルを考えており、MA の核データに対する要求精度が従来に比べ高いものとなる。MA の核データとして重要なのは、核分裂断面積と捕獲反応断面積である。核分裂断面積については、微分断面積測定やフィッション・チェンバを用いた積分測定が数多く行われ、それらを取り入れることにより評価済み核データの精度向上が図られてきている。一方、核変換による核種生成において重要な捕獲反応断面積については、微分断面積測定は容易でなく、現状では多くの MA 核種について測定データ数が不十分である。微分断面積測定では断面積のエネルギー依存性が良く測定できたとしても、全体に系統誤差が入る可能性があり、積分実験はその系統誤差を取り除く役割を果たす。積分実験で捕獲反応断面積を検証する現実的な方法として、原子炉実機で照射した核種サンプルの照射後試験 (PIE) での核種組成分析がある。そこで、捕獲反応を中心とした高速炉エネルギー領域の MA 核データ検証と MA の燃焼計算手法の確立を目的として、高速実験炉「常陽」を用いた MA サンプル (^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{244}Cm) の照射試験及び解析を進めている。本報告では、「常陽」MK-II 炉心第 3 列・軸方向中心位置で照射した ^{243}Am サンプル (試料番号 78) 及び ^{244}Cm サンプル (試料番号 86) の予備解析結果を示す。また、前報^[1]で予備解析結果を報告した第 3 列・軸方向上部 350 mm 位置で照射した ^{243}Am サンプル (試料番号 77) について、解析条件の変更箇所が見つかったため、再解析を行った結果も合わせて示す。

2. 実験

高速実験炉「常陽」を用いた MA サンプルの照射は、1994 年から 1999 年にかけて行われた。特殊燃料集合体 (B9) 材料照射用反射体 (SMIR-26) に、100 μ g オーダーの ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{244}Cm 高純度サンプルがそれぞれ 4 つずつ、計 16 個が装填された。Fig. 1 に示すように、B9 集合体は「常陽」MK-II 炉心の燃料領域である第 3 列に、SMIR-26 反射体は燃料領域に外接する内側反射体領域である第 5 列にそれぞれ配置された。MA サンプルの軸方向照射位置としては、炉中心と炉中心より上部 350 mm 位置の 2 点が選定された。照射期間は、B9 集合体が MK-II 炉心第 29 サイクルから第 33 サイクルまで (276 EFPD)、SMIR-26 反射体が第 30 サイクルから第 33 サイクルまで (251 EFPD) である。

MA サンプルは個々に長さ 10 mm、径 2 mm のバナジウム製キャプセルに封入されており、そのバナジウムキャプセルは長さ 72 mm、径 8 mm のステンレス製のキャプセル (TRU キャプセル) に封入された。TRU キャプセル内は 2 部屋に分かれており、炉心上側の部屋にはドシメータセットが、炉心下側の部屋には MA サンプルが収められた。

本報告では、B9 集合体・軸方向中心位置で照射した ^{243}Am サンプル (試料番号 78) 及び ^{244}Cm サンプル (試料番号 86) の予備解析結果を示す。また、B9 集合体・軸方向上部 350 mm 位置で照射した ^{243}Am サンプル (試料番号 77) についての再解析結果を示す。Fig. 2 は解析対象サンプルの軸方向装荷位置を示す図であるが、上部反射体内で且つ制御棒吸収体が隣接する ^{243}Am サンプル (試料番号 77) に比べ、軸方向中心位置の ^{243}Am サンプル (試料番号 78) 及び ^{244}Cm サンプル (試料番号 86) については、解析モデル誤差の小さい好条件での解析が期待できる。

Tables 1 ~ 3 に ^{243}Am サンプル (試料番号 77)、 ^{243}Am サンプル (試料番号 78)、 ^{244}Cm サンプル (試料番号 86) それぞれについて、核種組成分析結果*より解析に必要なデータを抜粋した。表中の核種組成で測定方法の断り書きがない場合、質量分析による測定であることを表す。

Table 1 の ^{243}Am サンプル (試料番号 77) のデータには、以下に示すように前報記載値からの変更点がいくつかある。

< ^{243}Am サンプル (試料番号 77) の分析データに関する変更点 >

照射期間

前報では B9 集合体の照射期間を第 29 サイクルから第 32 サイクルまでと誤って記載していた。正しくは、第 29 サイクルから第 33 サイクルまでである。これにより

* 核燃料サイクル開発機構 大洗工学センター 燃料材料試験部 照射燃料試験室における分析結果

照射量が 3 割増となり、照射後の核種組成比に着目した計算結果に直接影響する。

初期組成

前報では ^{243}Am サンプルの初期組成は結果に影響しないとみなし、サンプル購入元の公称値を記載していた。しかしながら、初期組成に 1.3%とわずかに含まれる $^{242\text{m}}\text{Am}$ は、照射によって生成する $^{242\text{m}}\text{Am}$ の約 9%にあたる量であり、これを無視できないことがわかった。そこで、新たに測定された非照射サンプルの質量分析結果を初期組成データとして用いることに変更した。

ただし、前報の計算においては、すでに変更後の初期組成と同じ値を用いていた。それは、本サンプルと原料が同一と予想された照射燃料試験室が所有する Am 標準試料の質量分析結果に基づいている。原料が同一という確証は無かったが、照射後の組成から考えても、サンプルに付けられた公称値よりは Am 標準試料の質量分析結果の方が信頼できたため、計算では後者を採用していた。原料が同一であることは、その後の非照射サンプルの質量分析により確認された。

このような事情で、幸いにも初期組成の変更による計算結果への影響はなかった。ただし、初期組成が結果に影響しないという解釈は誤りであり、ここで訂正したい。

$^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 比

α 線スペクトル分析による $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 比の追加測定が行われ、測定値と測定誤差がアップデートされた。

Table 3 の ^{244}Cm サンプル（試料番号 86）の初期組成については、照射前の γ 線スペクトル測定による定量*とサンプル購入元の公称値を採用している。前者により 241 , ^{243}Am , $^{243-245}\text{Cm}$ の組成比が得られ、後者により ^{244}Cm に対する比として 246 , ^{247}Cm の組成比を補った。なお、 ^{244}Cm の非照射サンプルの質量分析が進められており、今後、初期組成をアップデートする予定である。

* 核燃料サイクル開発機構 大洗工学センター 実験炉部 技術課における分析結果

Table 1 PIE result of the ^{243}Am sample (No. 77)

Item	Value		
Irradiation Position	3B2		
Axial Position from Core Midplane [mm]	+350		
Irradiation History	BOC	EOC	EFPD
29 th -cycle	1994/8/27	1994/9/20	24.34
30 th -cycle	1997/3/21	1997/5/19	59.73
31 st -cycle	1997/7/19	1997/9/12	54.92
32 nd -cycle	1997/12/17	1998/2/24	68.96
33 rd -cycle	1999/6/24	1999/8/31	67.81

Isotopic Composition of Unirradiated Sample

Americium (2004) [at%]	Standard deviation	
^{241}Am	12.188	0.02%
$^{242\text{m}}\text{Am}$	0.013	0.8%
^{243}Am	87.799	0.003%

Isotopic Composition After Irradiation

Americium (2003/7) [at%]		
^{241}Am	12.280	0.1%
$^{242\text{m}}\text{Am}$	0.143	2.0%
^{243}Am	87.577	0.02%
Curium (2003/8) [at%]		
^{243}Cm	0.160	N/A
^{244}Cm	99.836	N/A
^{245}Cm	0.004	N/A
^{246}Cm	0.0003	N/A
^{247}Cm	0	N/A
^{244}Cm / ^{241}Am via alpha spectroscopy (2003/10)		
	0.530	3%

Table 2 PIE result of the ^{243}Am sample (No. 78)

Item	Value		
Irradiation Position	3B2		
Axial Position from Core Midplane [mm]	0		
Irradiation History	BOC	EOC	EFPD
29 th -cycle	1994/8/27	1994/9/20	24.34
30 th -cycle	1997/3/21	1997/5/19	59.73
31 st -cycle	1997/7/19	1997/9/12	54.92
32 nd -cycle	1997/12/17	1998/2/24	68.96
33 rd -cycle	1999/6/24	1999/8/31	67.81
Isotopic Composition of Unirradiated Sample			
Americium (2004) [at%]		Standard deviation	
241Am	12.188	0.02%	
242mAm	0.013	0.8%	
243Am	87.799	0.003%	
Isotopic Composition After Irradiation			
Americium (2003/12) [at%]			
241Am	11.965	0.02%	
242mAm	0.192	0.1%	
243Am	87.843	0.003%	
Curium (2003/12) [at%]			
243Cm	0.109	7%	
244Cm	97.814	0.01%	
245Cm	2.058	0.02%	
246Cm	0.018	2.7%	
247Cm	0.0003	96%	
244Cm / 241Am via alpha spectroscopy (2003/12)			
	0.703	8%	

Table 3 PIE result of the ^{244}Cm sample (No. 86)

Item	Value		
Irradiation Position	3B2		
Axial Position from Core Midplane [mm]	0		
Irradiation History	BOC	EOC	EFPD
29 th -cycle	1994/8/27	1994/9/20	24.34
30 th -cycle	1997/3/21	1997/5/19	59.73
31 st -cycle	1997/7/19	1997/9/12	54.92
32 nd -cycle	1997/12/17	1998/2/24	68.96
33 rd -cycle	1999/6/24	1999/8/31	67.81
Isotopic Composition Before Irradiation*			
Americium and Curium (1994) [at%]	Standard deviation		
241Am	1.00	1.2%	
243Am	0.925	1.7%	
243Cm	0.131	0.6%	
244Cm	92.0	1.1%	
245Cm	2.41	1.0%	
246Cm	3.46	N/A	
247Cm	0.044	N/A	
Isotopic Composition After Irradiation			
Americium (2003/12) [at%]			
241Am	57.872	0.02%	
242mAm	0.766	0.2%	
243Am	41.362	0.02%	
Curium (2003/12) [at%]			
243Cm	0.137	0.6%	
244Cm	87.765	0.1%	
245Cm	6.760	0.1%	
246Cm	5.169	2.3%	
247Cm	0.149	5.6%	
244Cm / 241Am via alpha spectroscopy (2003/12)			
	39.730	N/A	

* Based on the gamma spectroscopy (for $^{241}, ^{243}\text{Am}$, $^{243-245}\text{Cm}$) and the nominal data by the sample supplier (for $^{246}, ^{247}\text{Cm}$).

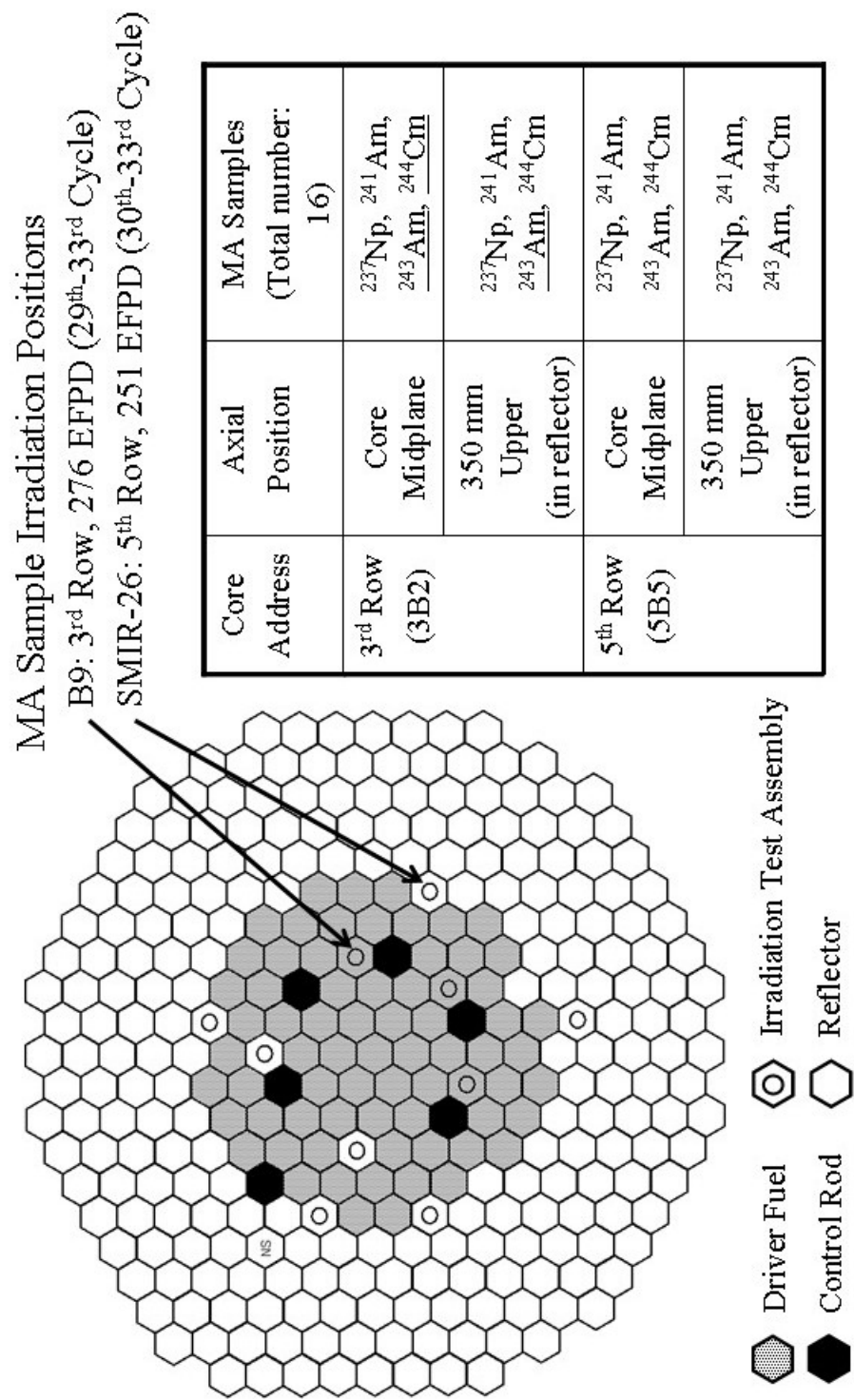


Fig. 1 Layout of JOYO MK-II core (33rd cycle) and MA sample irradiation positions

Preliminary analysis results of the underlined three samples are described in this report.

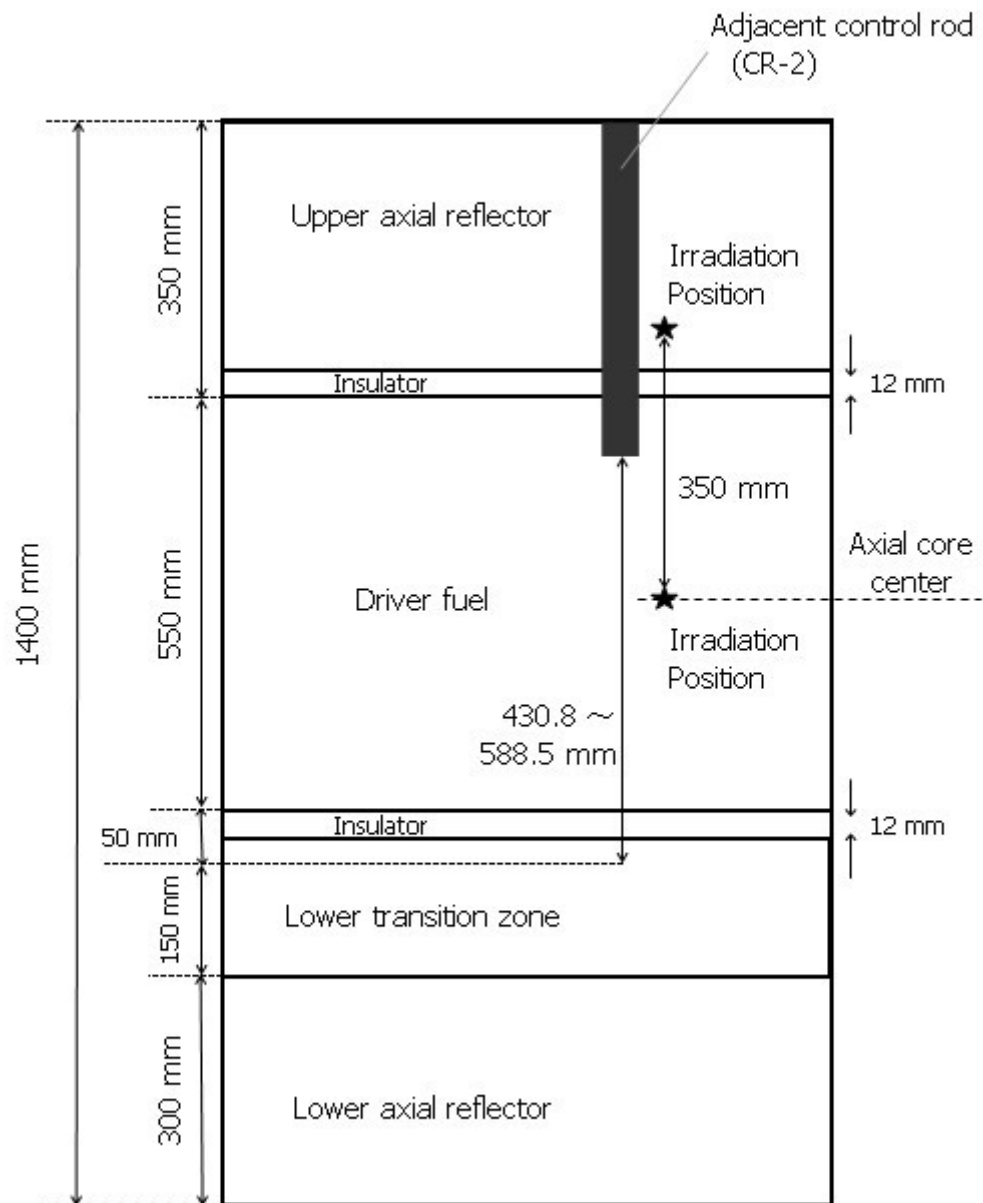


Fig. 2 Axial loading positions of MA samples in the B9 irradiation test assembly

3. 予備解析方法

MA サンプルの PIE 解析は、最初に行う「予備解析」と引き続く「詳細解析」の二段階で行う。本報告書で示す予備解析では、簡易解析方法により、実験の妥当性の解析側からの確認、炉物理的な意味の考察、詳細解析における留意事項の把握等を行う。

(1) 評価量

本解析では、照射による生成核種と生成元核種の照射後組成の比を取ることににより、生成元核種の捕獲反応断面積の検証を試みる。考え方を説明するため、簡単な燃焼方程式をみることにする。一定の中性子束 ϕ で時間 t だけ照射したとき、生成元核種(添字 0)と生成核種(添字 1)の核種数密度は、次の燃焼方程式に従う：

$$\begin{cases} \frac{dN_0}{dt} = -\sigma_{0,a}\phi N_0 \\ \frac{dN_1}{dt} = \sigma_{0,c}\phi N_0 - \sigma_{1,a}\phi N_1 \end{cases} \quad (1)$$

ここで、 σ_a , σ_c はそれぞれ吸収反応断面積、捕獲反応断面積を表す。なお、簡単のため核種の崩壊は考えていない。生成核種の初期組成が無視できるとすると (i.e. $N_1(0)=0$)、式(1)の解は

$$\begin{cases} N_0(t) = N_0(0) \exp[-\sigma_{0,a}\phi t] \\ N_1(t) = N_0(0) \frac{\sigma_{0,c}}{\sigma_{0,a} - \sigma_{1,a}} \left\{ \exp[-\sigma_{1,a}\phi t] - \exp[-\sigma_{0,a}\phi t] \right\} \end{cases} \quad (2)$$

と求められる。生成核種と生成元核種の照射後核種組成比をとると、

$$\frac{N_1(t)}{N_0(t)} = \frac{\sigma_{0,c}}{\sigma_{1,a} - \sigma_{0,a}} \left\{ 1 - \exp[-(\sigma_{1,a} - \sigma_{0,a})\phi t] \right\} \quad (3)$$

となる。指数関数を級数展開し、高次項が無視できるとすると、

$$\frac{N_1(t)}{N_0(t)} = \sigma_{0,c}\phi t + \dots \quad (4)$$

と表すことができ、主要項で生成元核種の捕獲反応断面積 $\sigma_{0,c}$ と中性子フルエンス ϕt に比例する。式(4)によると、中性子フルエンスが精度良く決定できれば、照射後の核種組成比より生成元核種の捕獲反応断面積の検証を行うことができる。これが本 PIE 解析の基本的な考え方である。

しかしながら、実際の照射条件は式(1)～式(4)で表されるような単純なものではない。中性子束の時間変化は運転履歴を模擬しなければならないし、生成核種の初期組成や式

(3)の指数関数を級数展開したときの高次項の影響は必ずしも無視できない。そして、核種の崩壊も考慮しなければならない。そこで、生成核種と生成元核種の照射後組成比に対する感度解析を、実際の照射条件を模擬した数値計算により行った。結果を Table 4 に示す。これらより、次のように着目する核種組成比を選定した。

^{243}Am サンプル (試料番号 77)

^{243}Am サンプルについては、核種組成比 $^{244}\text{Cm}/^{243}\text{Am}$ がまず評価対象となる。また、初期組成には約 12% の ^{241}Am が含まれており、 ^{241}Am と ^{243}Am の核変換チェーンは独立とみなせるため、 $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ も評価対象とすることができる。本サンプルについては Cm 同位体の質量分析も行われているが、複数回の測定が行われておらず精度に課題があると考えられるため、評価対象としないことにした。

核種組成比 $^{244}\text{Cm}/^{243}\text{Am}$ に対する感度係数を Table 4 (b)に示す。中性子フルエンスと ^{243}Am 捕獲反応断面積の感度係数がほぼ 1 であり、式(4)の近似が成立しているとみなせ、この核種組成比が ^{243}Am 捕獲反応断面積の検証に適していることがわかる。

Table 4 (a)に示した核種組成比 $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ に対する感度係数では、中性子フルエンスと ^{241}Am 捕獲反応断面積の感度係数がほぼ 1 であるが、さらに ^{241}Am 捕獲反応の核異性体比*が大きな感度を有している。核種組成比 $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ に対して、式(4)は

$$\frac{N_{\text{Am}-242\text{m}}(t)}{N_{\text{Am}-241}(t)} \simeq (1 - I_{\gamma}) \sigma_{\text{Am}-241, c} \phi t + \dots \quad (5)$$

と書き直すべきである。ここで、 I_{γ} は ^{241}Am 捕獲反応の核異性体比 (= ground / (ground + meta)) を表す。

なお、 ^{243}Am (n, 2n)反応断面積の核種組成比 $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ に対する感度係数、 $^{242\text{m}}\text{Am}$ 捕獲反応断面積の核種組成比 $^{244}\text{Cm}/^{243}\text{Am}$ に対する感度係数はいずれも小さく、 ^{241}Am と ^{243}Am の核変換チェーンを独立とみなしてよいことが確認できる。

^{243}Am サンプル (試料番号 78)

と同様に、核種組成比 $^{244}\text{Cm}/^{243}\text{Am}$ 及び $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ が評価対象となる。さらに、Cm 同位体の質量分析結果 (Table 2 参照) より測定精度の良いものを選び、核種組成比 $^{245}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ 及び $^{246}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}$ を評価対象に加えた。

これら核種組成比に対する感度係数を Table 4 に示す。全てについて、式(4)あるいは式(5)による近似的考え方が当てはまり、評価対象にふさわしいことがわかる。

* 核異性体比(isomeric ratio)とは、捕獲反応によって生成した原子核が、基底状態と準安定な励起状態 (meta-isomer) に分かれる比をいう。 ^{241}Am の捕獲反応の場合、約 80%が基底状態の ^{242}Am に、約 20%が準安定な励起状態である $^{242\text{m}}\text{Am}$ に変換する。

^{244}Cm サンプル (試料番号 86)

本サンプルは初期組成が約 92%の ^{244}Cm を主要核種としており、核種組成比 $^{245}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ が評価対象となる。Table 4 (c)にそれに対する感度係数を示すが、中性子フルエンスと ^{244}Cm 捕獲反応断面積の感度係数は 0.5~0.6 であり、1 に比べ半分程度しかない。これは、初期組成に約 2.4%存在する ^{245}Cm が、照射後の ^{245}Cm の約 4 割にあたるためである。

次に、核種組成比 $^{246}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}$ に対する感度係数を Table 4 (d)に示す。けれども、期待される ^{245}Cm 捕獲反応断面積の感度はほとんどなく、 ^{244}Cm 捕獲反応断面積の感度が現われている。これは、 ^{246}Cm の初期量に対し、照射によって生成する量が少なく、核種組成比の分子の ^{246}Cm の増加にほとんど寄与しないためである。本核種組成比は、結局のところ、分母の ^{245}Cm の変化をみているのであり、 ^{245}Cm 捕獲反応断面積の検証データとして使用することはできない。

このように本サンプルの核種組成比は、初期組成に敏感である。よって、非照射サンプルの質量分析により、確からしい初期組成が判明してから、解析対象を再検討した方がよい。本解析では核種組成比 $^{245}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ のみを暫定的に解析対象に取り上げるものとする。

なお、本サンプルの有用性は ^{244}Cm の捕獲反応断面積の検証のみに限定されるわけではない。初期組成が高い精度で測定されれば、 ^{244}Cm の(n, 2n)反応断面積、 ^{246}Cm の捕獲反応断面積、 ^{241}Am 捕獲反応の核異性体比についても有意なデータのとれる可能性が残されている。

(2) 予備解析フロー

生成核種と生成元核種の照射後組成の比に着目した本予備解析の計算フローを Fig. 3 に示す。以下、中性子束履歴、中性子束の規格化、MA 核種の 1 群無限希釈断面積の作成、ORIGEN2 コードによる燃焼計算の順に説明する。

中性子束履歴

照射の行われた当該サイクルの中性子束履歴には、簡単のため、既に計算値がデータベースとしてまとめられている「常陽」の運転管理コード MAGI の中性子束履歴^[2]を用いることにした。MAGI では、7 群 3 次元拡散計算にて各サイクルの燃料交換を忠実に追いかけている。

中性子束の規格化

MA 照射位置における中性子束の大きさは、別途 CITATION-FBR コード^[3]を用いた 70 群 3 次元 Tri-Z 拡散全炉心定常計算により算出した。使用した炉定数セッ

トは JENDL-3.2 に基づく高速炉用炉定数 JFS-3-J3.2R^[4]である。ここで、輸送効果、メッシュ効果、燃料格子非均質性、拡散係数の非等方性 (Benoist の拡散係数) を考慮した。MA サンプルを装填した B9 集合体の非均質効果は、モンテカルロ計算により評価した。さらに、B9 集合体に隣接する制御棒吸収体による影響を適切に評価するために、制御棒の均質化実効断面積を反応率比保存法 (Reaction Rate Ratio Preservation method: RRRP 法)^[5]により作成した。これらを適用した第 29 サイクルから第 33 サイクルまでの中性子束履歴を Table 5 に示す。

MA 核種の 1 群無限希釈断面積の作成

次に、主要核データライブラリ (JENDL-3.2^[6], JENDL-3.3^[7], ENDF/B-VI.5^[8], JEF-2.2^[9]) より、NJOY コード^[10]を用いて MA 核種の無限希釈断面積を算出し、CITATION-FBR で求めた MA サンプル照射位置の中性子スペクトル (と同様に輸送効果、B9 集合体の非均質効果等を考慮) を重みに 1 群に縮約した。Table 6 に関連する MA 核反応について各ライブラリの 1 群断面積を示す。

ORIGEN2 コードによる燃焼計算

以上の中性子束履歴と 1 群無限希釈断面積を用いて、ORIGEN2 コード^[11]により MA サンプルの燃焼計算を行い、照射後の生成核種と生成元核種の組成比を算出し、測定値と比較を行うものとした。

(3) 解析モデル誤差の程度

輸送効果や B9 集合体の非均質効果等の各種効果の大きさを調べることで、解析モデル誤差の程度を推察することができる。主な効果について、中性子束の大きさに与える影響と中性子スペクトルに与える影響をそれぞれ調べた結果を Table 7 にまとめる。ここで、中性子スペクトルに与える影響としては、典型例として、²⁴¹Am と ²⁴³Am の 1 群捕獲反応断面積、²⁴¹Am の 1 群核分裂反応断面積に着目した。

輸送効果

輸送効果は CITATION-FBR と 3 次元輸送計算コード TRITAC との比較より算出した。中性子束の大きさに対しては、B9 集合体・軸方向中心位置で 1% 程度の減少であるが、軸方向上部 350 mm 位置では 5% もの減少となる。²⁴¹Am と ²⁴³Am の 1 群捕獲反応断面積の変化は小さかったが、²⁴¹Am の 1 群核分裂反応断面積については、軸方向中心位置で 3% の減少、軸方向上部 350 mm 位置で 7% の減少が生じる。

B9 集合体の非均質効果

B9 集合体の非均質効果は、連続エネルギーモンテカルロコード MVP を用いて評価した。計算モデルを Fig. 4 に示す。軸方向中心位置については、中性子束の大きさに対する影響は小さいが、 ^{241}Am と ^{243}Am の 1 群捕獲反応断面積に 2~3% の増加が、 ^{241}Am の 1 群核分裂反応断面積については 3% の減少が生じた。軸方向上部 350 mm 位置については、モンテカルロ計算の統計誤差を超える有意な非均質効果はみられなかった。

MA の自己遮蔽効果

MA の自己遮蔽効果については、Fig. 5 に示す円筒スーパーセルモデルにて、格子計算コード CASUP を用いて Tone の方法による衝突確率法により実効断面積を求め、無限希釈断面積との相違を調べた。結果として、MA サンプルの自己遮蔽効果は小さく、無限希釈断面積を用いて十分評価できることが確認できた。

RRRP 法による制御棒断面積作成

RRRP 法の適用により、軸方向上部 350 mm 位置の中性子束の絶対値に大きな変化がもたらされる。制御棒均質モデルと比較すると、中性子束の大きさは 25% も増加する。そして、 ^{241}Am と ^{243}Am の 1 群捕獲反応断面積が 6% 増加、 ^{241}Am の 1 群核分裂反応断面積については 3% 減少する。

RRRP 法による制御棒断面積作成における体系モデル依存性として、Fig. 6 に示す二つの体系モデルの違いを調べた。Model 1 は制御棒を燃料で囲んだモデルであり、Model 2 は制御棒を反射体で囲み、さらにその周辺を燃料で囲んだモデルである。軸方向上部 350 mm 位置の MA サンプルの解析には、Model 2 が適当であるが、Model 2 のモデル化には任意性があり、どのくらい反射体の厚みをとればよいか決める根拠が見出しにくい。今回は、暫定的に反射体の厚みを MA サンプルと同一高さの隣接制御棒中心から炉心燃料までの隔たり程度となるようにしている。Model 1 から Model 2 にかけての変化を調べた結果、中性子束の大きさや ^{241}Am の 1 群核分裂反応断面積には影響は現れないが、 ^{241}Am と ^{243}Am の 1 群捕獲反応断面積については 3~4% の減少が生じた。予備解析では問題とはならない程度であるが、詳細解析においては裏付けのある体系モデル化を行う必要がある。

以上、B9 集合体・軸方向中心位置の MA サンプルについては、輸送効果や B9 集合体の非均質効果等の各種効果が比較的小さいことがわかった。一方、軸方向上部 350 mm 位置の MA サンプルについては、輸送効果や隣接する制御棒の影響が大きく、このため、詳細解析を行ったとしても相当の解析モデル誤差が残る見込みである。よって、軸方向上部 350 mm 位置の MA サンプルは予備解析までにとどめておき、詳細解析では軸方向中心位置の MA サンプルに注力した方が良いと思われる。

Table 4 Burnup sensitivity coefficients* for the nuclide abundance ratios

(a) $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$

	^{243}Am sample (No. 77)	^{243}Am sample (No. 78)
Neutron Fluence	0.9	0.8
^{241}Am Capture Cross Section	1.0	1.0
^{241}Am Isomeric Ratio (g/(g+m))	-5.3	-5.3
^{241}Am Fission Cross Section	0.005	0.01
$^{242\text{m}}\text{Am}$ Capture Cross Section	-0.01	-0.02
$^{242\text{m}}\text{Am}$ Fission Cross Section	-0.07	-0.11
^{243}Am (n, 2n) Cross Section	0.001	0.004
^{241}Am Initial Composition	-0.06	-0.06
$^{242\text{m}}\text{Am}$ Initial Composition	0.07	0.05

(b) $^{244}\text{Cm}/^{243}\text{Am}$

	^{243}Am sample (No. 77)	^{243}Am sample (No. 78)
Neutron Fluence	1.0	1.0
$^{242\text{m}}\text{Am}$ Capture Cross Section	0.000	0.000
^{243}Am Capture Cross Section	1.1	1.1
^{243}Am Fission Cross Section	0.003	0.01
^{244}Cm Capture Cross Section	-0.03	-0.02
^{244}Cm Fission Cross Section	-0.006	-0.02

* Sensitivity coefficients for the nuclide abundance ratio R are defined as

$$S_x = \frac{x}{R} \frac{dR}{dx},$$

where a variable x represents the core physics parameters such as neutron fluence, capture and fission cross sections, isomeric ratio, and initial nuclide composition. The tabulated sensitivity coefficients were calculated by the ORIGEN2 code with one-by-one substitution of x. Cross sections used here were based on JENDL-3.2. The reference ^{241}Am isomeric ratio (g/(g+m)) was set to 0.85.

Table 4 (continued)

(c) $^{245}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$

	^{243}Am sample (No. 78)	^{244}Cm sample (No. 86)
Neutron Fluence	1.0	0.5
^{243}Am Capture Cross Section	0.02	-
^{243}Am Fission Cross Section	0.005	-
^{244}Cm Capture Cross Section	1.0	0.6
^{244}Cm Fission Cross Section	0.007	0.03
^{245}Cm Capture Cross Section	-0.007	-0.02
^{245}Cm Fission Cross Section	-0.06	-0.13
^{244}Cm Initial Composition	-	-0.4
^{245}Cm Initial Composition	-	0.4

(d) $^{246}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}$

	^{243}Am sample (No. 78)	^{244}Cm sample (No. 86)
Neutron Fluence	1.0	-0.4
^{243}Am Capture Cross Section	0.008	-
^{243}Am Fission Cross Section	0.002	-
^{244}Cm Capture Cross Section	0.005	-0.4
^{244}Cm Fission Cross Section	0.005	0.01
^{245}Cm Capture Cross Section	1.0	0.04
^{245}Cm Fission Cross Section	0.02	0.13
^{246}Cm Capture Cross Section	-0.005	-0.02
^{246}Cm Fission Cross Section	-0.007	-0.03
^{244}Cm Initial Composition	-	-0.6
^{245}Cm Initial Composition	-	-0.4
^{246}Cm Initial Composition	-	1.0

Table 5 Deduced neutron flux at the MA sample irradiation positions
(Unit: 10^{15} n/cm² s)

Time Point	B9 Assembly	B9 Assembly
	Core Midplane	350 mm Upper
29 th -cycle BOC	3.45	1.38
29 th -cycle EOC	3.47	1.45
30 th -cycle BOC	3.37	1.31
30 th -cycle EOC	3.41	1.48
31 st -cycle BOC	3.32	1.28
31 st -cycle EOC	3.38	1.41
32 nd -cycle BOC	3.34	1.22
32 nd -cycle EOC	3.44	1.31
33 rd -cycle BOC	3.39	1.25
33 rd -cycle EOC	3.46	1.35

Table 6 One-group infinitely diluted cross sections of MA nuclides

(a) B9 assembly: Core midplane (Unit: barn)

Nuclide and Reaction	Evaluated Nuclear Data Library			
	JENDL-3.2	JENDL-3.3	ENDF/B-VI.5	JEF-2.2
²⁴¹ Am Capture	1.336	1.440	1.289	1.548
²⁴¹ Am Fission	0.3675	0.3686	0.3673	0.3586
^{242m} Am Capture	0.4394	0.3871	0.2731	0.4077
^{242m} Am Fission	2.741	2.739	3.418	2.775
²⁴³ Am Capture	1.175	1.237	1.147	1.308
²⁴³ Am Fission	0.2711	0.2729	0.2719	0.2830
²⁴⁴ Cm Capture	0.5323	0.5522	0.6532	0.4446
²⁴⁴ Cm Fission	0.5422	0.5426	0.5470	0.5537
²⁴⁵ Cm Capture	0.2820	0.4191	0.2402	0.2487
²⁴⁵ Cm Fission	2.346	2.406	2.079	2.387
²⁴⁶ Cm Capture	0.2522	0.3992	0.1769	0.1769
²⁴⁶ Cm Fission	0.3583	0.3923	0.3662	0.3662

(b) B9 assembly: 350 mm upper position (Unit: barn)

Nuclide and Reaction	Evaluated Nuclear Data Library			
	JENDL-3.2	JENDL-3.3	ENDF/B-VI.5	JEF-2.2
²⁴¹ Am Capture	3.071	3.131	2.955	3.175
²⁴¹ Am Fission	0.2257	0.2278	0.2272	0.2227
^{242m} Am Capture	0.8362	0.7496	0.8573	0.7070
^{242m} Am Fission	4.544	4.546	6.656	4.700
²⁴³ Am Capture	3.161	3.158	3.136	3.319
²⁴³ Am Fission	0.1598	0.1622	0.1627	0.1634
²⁴⁴ Cm Capture	1.980	1.992	2.027	1.821
²⁴⁴ Cm Fission	0.3857	0.3860	0.3902	0.4008

Table 7 Sensitivity of calculation modeling

(a) B9 assembly: Core midplane

Item	Effect on Flux Level	Effect on Spectrum (1-group cross section)		
		²⁴¹ Am	²⁴¹ Am	²⁴³ Am
		Capture	Fission	Capture
Transport effect	~ -1%	0.1%	-3%	0.2%
Heterogeneity of B9 assembly	0.2%	3%	-3%	2%
Self-shielding effect of MA	-	0%	-	0%

(b) B9 assembly: 350 mm upper position

Item	Effect on Flux Level	Effect on Spectrum (1-group cross section)		
		²⁴¹ Am	²⁴¹ Am	²⁴³ Am
		Capture	Fission	Capture
Transport effect	-5%	-0.5%	-7%	-1%
Heterogeneity of B9 assembly	< 0.2%	< 1%	N/A	< 2%
Self-shielding effect of MA	-	~ 0%	-	~ -0.1%
Reaction Rate Ratio Preservation (RRRP) method for control rod homogenization	25%	6%	-3%	6%
Ambiguity in control rod modeling (Model 1 to Model 2)*	0%	-3%	0%	-4%

* Model 1: Control rod surrounded by fuel (cf. Fig.6 (a)).

Model 2: Control rod surrounded by reflector and fuel (cf. Fig.6 (b)).

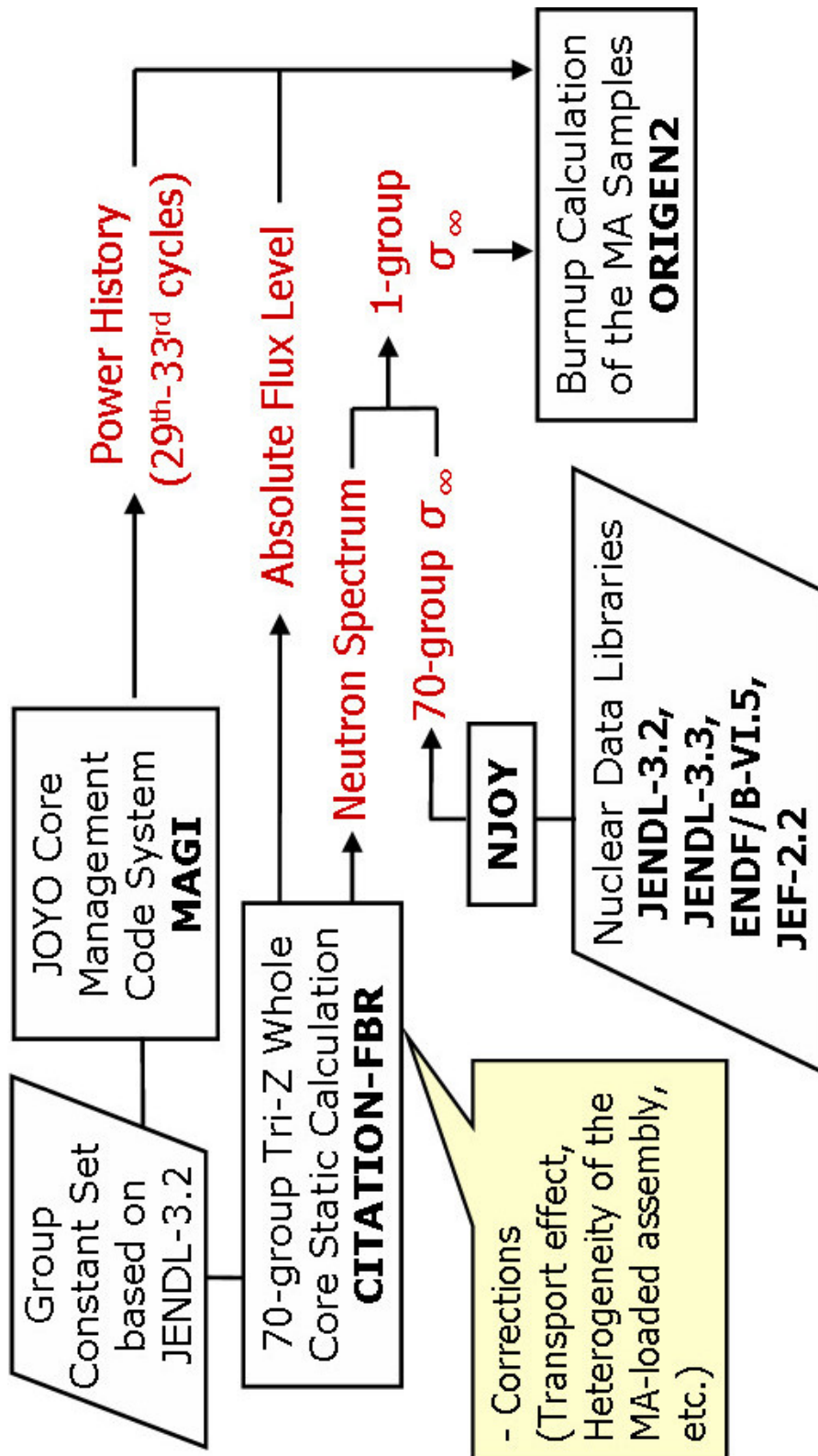
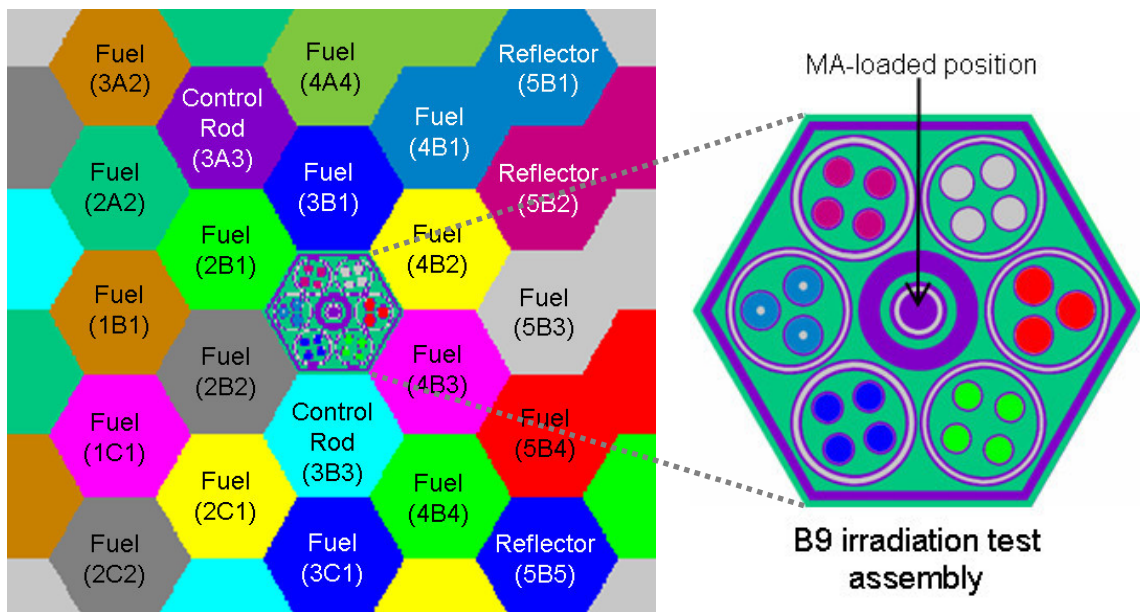
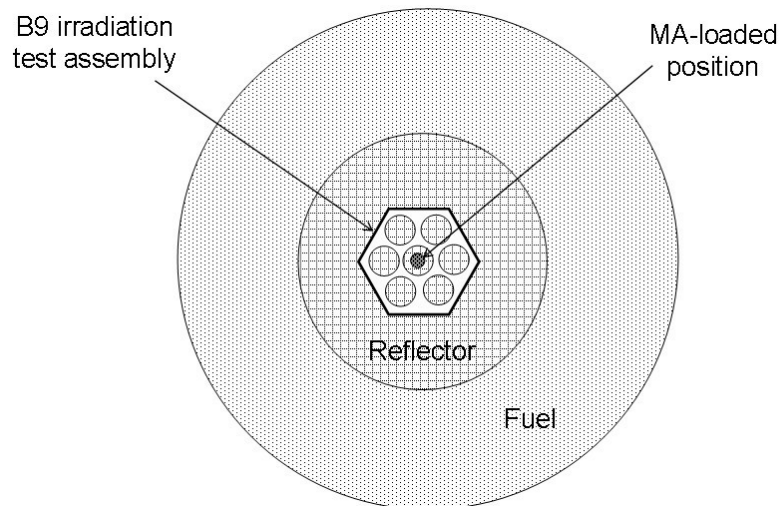


Fig. 3 Preliminary calculation method for the MA sample PIE analysis



(a) Core Midplane



(b) 350 mm Upper Position

Used code: MVP

Fig. 4 Calculation models to investigate the heterogeneity of the B9 irradiation test assembly

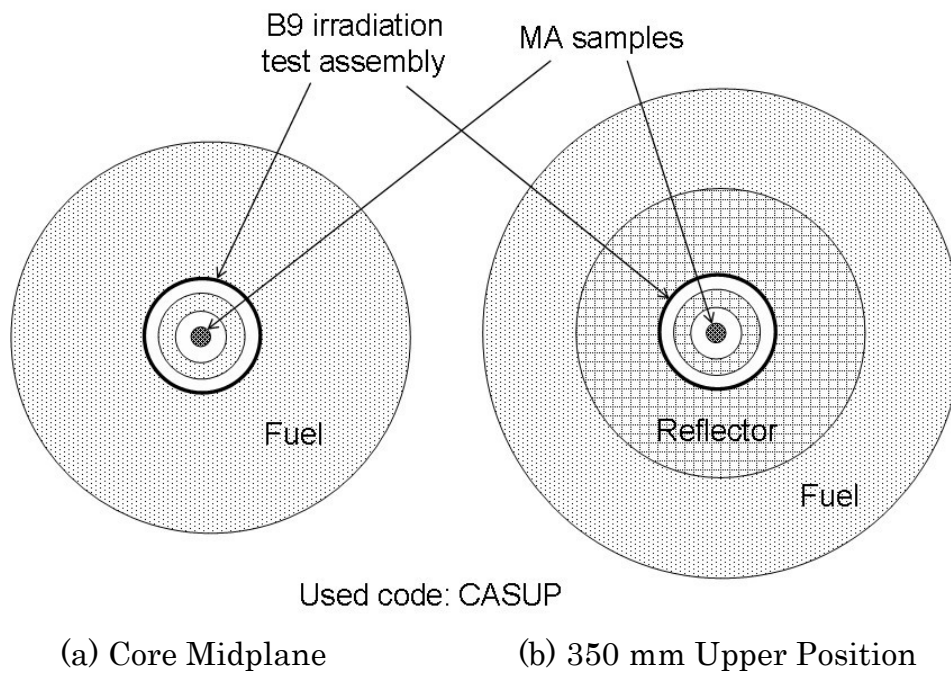


Fig. 5 Calculation models to investigate the self-shielding effect of MA samples

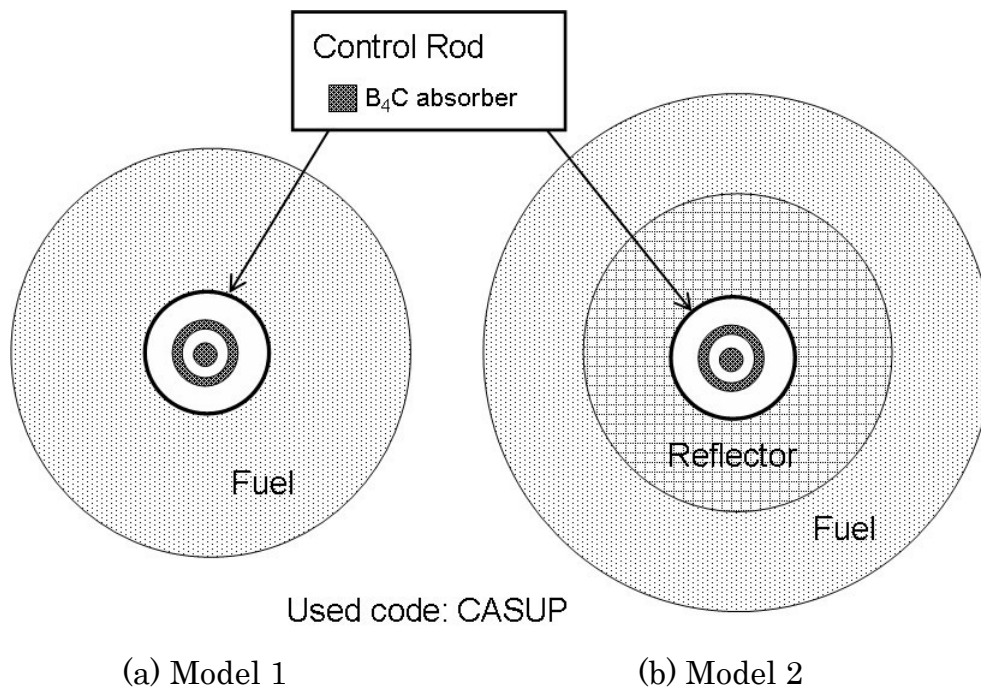


Fig. 6 Control rod modeling for the RRRP calculation

4. 結果と考察

照射後の核種組成比 $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}/^{243}\text{Am}$ 、 $^{245}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ 、 $^{246}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}$ について、核データライブラリ (JENDL-3.2, JENDL-3.3, ENDF/B-VI.5, JEF-2.2) をパラメータとした予備解析を行った。それぞれの C/E 値について考察する。

(1) $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$

$^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ に対しては、核データライブラリに加え ^{241}Am 捕獲反応の核異性体比 ($I_\gamma (=g/(g+m))$) をパラメータとして解析を行った。ここで、核異性体比については、従来から標準的に用いられてきた 0.80、仏国の高速原型炉「PHENIX」を用いた PROFIL 実験に基づく D'Angelo *et al.* の推奨値 0.85^[12]、さらにそれらを上まわる 0.88 を用いた場合を比較した。

結果を Table 8 に示す。まず軸方向炉中心の照射位置についてみると、1 群無限希釈断面積に JENDL-3.2 を用いて $I_\gamma=0.80$ とした場合、C/E 値は 1.30 と大きく過大評価となった。 $I_\gamma=0.85$ とすると、C/E 値は 0.99 に減少した。 $I_\gamma=0.88$ のときは、C/E 値は 0.81 まで減少してしまう。 $I_\gamma=0.85$ のまま 1 群無限希釈断面積に他の核データライブラリを用いた場合の C/E 値の変化は $\pm 15\%$ 以内であり、核異性体比を変えることによる変化に比べると小さい。 $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ の測定は質量分析法で行われており、その測定誤差は十分に小さい。これらより、軸方向炉中心位置における核異性体比は従来値 0.80 より約 0.85 の方が確からしいといえる。本解析結果だけでは核異性体比と断面積の両方を決定するには情報不足であり今後も追加検討を要するが、核異性体比の感度が大きいことから、本結果であっても核異性体比の傍証の一つになると考えられる。以上は、D'Angelo *et al.* の推奨値を支持するとともに、Table 12 (a) に示す英国の高速原型炉「PFR」を用いたアクチニドサンプル PIE 解析結果^[13]とも良い一致を示している。

一方、反射体内である軸方向上部 350 mm の照射位置においては、0.85 よりさらに核異性体比を大きくしないと C/E 値が 1 に近づかない結果となった。同照射位置の解析誤差は大きく、さらなる検討を必要とするが、中性子スペクトルの軟化に伴い核異性体比が増加した可能性もある。

^{241}Am 捕獲反応の核異性体比で評価済み核データライブラリに納められたものは ENDF/B-VI と JENDL-3.3 の二つしかない (Fig. 7 参照)。なお、これらの高速炉エネルギー領域におけるエネルギー依存性は小さい。MA サンプル照射位置における ^{241}Am 捕獲反応のエネルギー分布で平均化した核異性体比は次のとおりである：

	B9: 350 mm Upper	B9: Core Midplane
ENDF/B-VI	0.80	0.79
JENDL-3.3	0.70	0.69

本 MA サンプル PIE 解析結果からは、少なくとも ENDF/B-VI と JENDL-3.3 に納められた核異性体比(それぞれ約 0.8、約 0.7)は明らかに小さすぎるということができ、これらの見直しが望まれる。最近、米国ロスアラモス国立研究所の Kawano *et al.*は、次期 ENDF ライブラリのための ^{241}Am 捕獲反応の核異性体比の新たな評価を行い、高速炉エネルギー領域において約 0.85 という評価データを出している^[14]。これは、本 PIE 解析結果からみて、望ましい評価データである。

次に断面積についていくらかの考察を加える。軸方向炉中心の照射位置について、仮に $I_\gamma=0.85$ が正しいとすると、JEF-2.2 を用いた場合に C/E 値が 15% 過大となるのは、100 keV ~ 1 MeV 領域の ^{241}Am 捕獲反応断面積に原因があると考えられる(Fig. 8 参照)。ENDF/B-VI.5 を用いた場合の 6% の過小評価は、 ^{242m}Am 核分裂反応断面積が keV エネルギー領域において他と比較して数十%大きいためである(Fig. 9 参照)。

JEF-2.2 を用いた場合、軸方向炉中心の結果と Table 12 (b) に示す「PHENIX」を用いた PROFIL 実験結果^[15]とは C/E 値の傾向が異なっている。JEF-2.2 の ^{241}Am 捕獲反応断面積が 100 keV ~ 1 MeV 領域で中性子エネルギーに従い序々に過大評価となっているとすれば、「PHENIX」に比べ「常陽」の中性子スペクトルが硬いことにより、C/E 値の 1 からのズレが顕著になったのかもしれない。逆に中性子スペクトルの軟らかい軸方向上部 350 mm 位置における C/E 値では、JEF-2.2 は JENDL-3.2 や JENDL-3.3 の結果とほぼ一致している。

いずれにせよ、断面積の良し悪しを議論するのは、測定数を増やし再現性を確認するとともに、詳細解析を行い、さらには核異性体比の決定を行ってからである。今後、解析・検討を継続し、以上の問題についての考察を深めていきたい。

(2) $^{244}\text{Cm}/^{243}\text{Am}$

$^{244}\text{Cm}/^{243}\text{Am}$ についての結果を Table 9 に示す。軸方向炉中心の照射位置では 10 ~ 20% の過小評価、軸方向上部 350 mm では 10 ~ 20% の過大評価となっている。Cm/Am 組成比は α 線スペクトル測定により求めたが、軸方向炉中心のサンプルについては 8% (1σ) の誤差が伴っていること、軸方向上部 350 mm 位置については解析誤差が大きいことを考えると、まずまずの結果ではある。しかし、 ^{243}Am 捕獲反応断面積(Fig. 10 参照)の検証のためには、実験及び解析誤差を数%程度に抑えるさらなる改善を必要とする。

(3) $^{245}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$

軸方向炉中心で照射した ^{243}Am サンプル(試料番号 78)及び ^{244}Cm サンプル(試料番号 86)の二つを対象とした解析結果を Table 10 に示す。第 3 節で核種組成比 $^{245}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ についての感度解析を行ったが、 ^{244}Cm サンプル(試料番号 86)では初

期組成に含まれる ^{245}Cm の影響により、 ^{244}Cm 捕獲反応断面積の感度係数が 0.5～0.6 と ^{243}Am サンプル（試料番号 78）の半分程度しかなかった。 ^{244}Cm サンプル（試料番号 86）の C/E 値の方が 1 に近いようにみえるが、これは感度係数が小さく、断面積の違いが C/E 値に出にくいためである。この感度係数の違いを考慮すれば、 ^{243}Am サンプル（試料番号 78）と ^{244}Cm サンプル（試料番号 86）の C/E 値は整合していることがわかる。

核データライブラリ間の C/E 値の変化は、主に ^{244}Cm 捕獲反応断面積（Fig. 11 参照）に従っている。 ^{245}Cm 核分裂反応断面積の違い（Fig. 12 参照）による影響は二次的である。

本解析は予備的なものであるが、著しく C/E の悪いものについては核データの異常を指摘することができよう。ここでは、 ^{243}Am サンプル（試料番号 78）で ENDF/B-VI.5 を用いた場合に C/E 値が約 50% 過大となることが挙げられる。同ライブラリの ^{244}Cm 捕獲反応断面積は 1 keV～数百 keV のエネルギー領域において過大評価となっていると考えられる。

^{244}Cm 捕獲反応断面積に関する他の PIE 解析結果として、Table 12 (a) に示す「PFR」を用いたアクチニドサンプル PIE 解析のものがある。 ^{244}Cm サンプルは完全に純粋なサンプルの入手は難しく、初期組成に他の Cm 同位体が含まれていると考えられ、それによって感度係数が変わるため、単純に C/E 値を比較することはできない。両者の整合性確認は今後の課題としたい。

(4) $^{246}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}$

結果を Table 11 に示す。第 3 節の感度解析より、 ^{243}Am サンプル（試料番号 78）の核種組成比 $^{246}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}$ の核データライブラリ間の C/E 値の変化は、 ^{245}Cm 捕獲反応断面積（Fig. 13 参照）にほぼ依存している。特に JENDL-3.3 を用いた場合に C/E 値が約 30% 過大となっており、同ライブラリの ^{245}Cm 捕獲反応断面積が 1 keV～数百 keV のエネルギー領域において過大評価となっている可能性を示唆している。

Table 8 Preliminary C/E values on isotopic abundance ratio $^{242m}\text{Am} / ^{241}\text{Am}$

MA Sample	Irradiation Position	Nuclear Data Library						Experimental Error** (1 σ)
		JENDL-3.2			JENDL-3.3	ENDF/B-VI.5	JEF-2.2	
		$I_{\gamma}^*=$ 0.80	0.85	0.88	0.85	0.85	0.85	
^{243}Am (No. 77)	B9: 350 mm Upper	1.67	1.28	1.04	1.30	1.19	1.32	2%
^{243}Am (No. 78)	B9: Core Midplane	1.30	0.99	0.81	1.07	0.94	1.15	<1%

* Isomeric Ratio (ground/(ground + meta)) for ^{241}Am capture reaction, taken as a parameter.

** Combined errors from those in the mass spectroscopy and the initial composition.

Table 9 Preliminary C/E values on isotopic abundance ratio $^{244}\text{Cm} / ^{243}\text{Am}$

MA Sample	Irradiation Position	Nuclear Data Library				Experimental Error* (1 σ)
		JENDL-3.2	JENDL-3.3	ENDF/B-VI.5	JEF-2.2	
^{243}Am (No. 77)	B9: 350 mm Upper	1.10	1.10	1.09	1.16	~5%
^{243}Am (No. 78)	B9: Core Midplane	0.80	0.84	0.78	0.90	~10%

* Combined errors from those in the mass spectroscopy and the alpha spectroscopy.

Table 10 Preliminary C/E values on isotopic abundance ratio $^{245}\text{Cm} / ^{244}\text{Cm}$

MA Sample	Irradiation Position	Nuclear Data Library				Experimental Error* (1 σ)
		JENDL-3.2	JENDL-3.3	ENDF/B-VI.5	JEF-2.2	
^{243}Am (No. 78)	B9: Core Midplane	1.18	1.22	1.46	0.99	<1%
^{244}Cm (No. 86)	B9: Core Midplane	1.10	1.11	1.28	0.98	1%

* Combined errors from those in the mass spectroscopy and the initial composition.

Table 11 Preliminary C/E values on isotopic abundance ratio $^{246}\text{Cm} / ^{245}\text{Cm}$

MA Sample	Irradiation Position	Nuclear Data Library				Experi- mental Error* (1 σ)
		JENDL- 3.2	JENDL- 3.3	ENDF/B- VI.5	JEF- 2.2	
^{243}Am (No. 78)	B9: Core Midplane	0.89	1.33	0.77	0.79	3%

* Error from the mass spectroscopy.

Table 12 Comparable other PIE results

(a) Sample irradiation at Dounreay Prototype Fast Reactor^[13]

Nuclear data library	JENDL-3.2
^{241}Am Isomeric ratio	0.80
C/E values on percent changes	
^{242m}Am in ^{241}Am Sample	1.29 $\pm$ 2 %
^{244}Cm in ^{243}Am Sample	0.95 $\pm$ 2 %
^{245}Cm in ^{244}Cm Sample	1.02 $\pm$ 2 %

(b) PROFIL experiment at PHENIX reactor^[15]

Nuclear data library	JEF-2.2
^{241}Am Isomeric ratio ^[12]	0.85
C/E values on capture cross section	
^{241}Am	1.03 $\pm$ 1.2 %
^{243}Am	0.96 $\pm$ 5.0 %

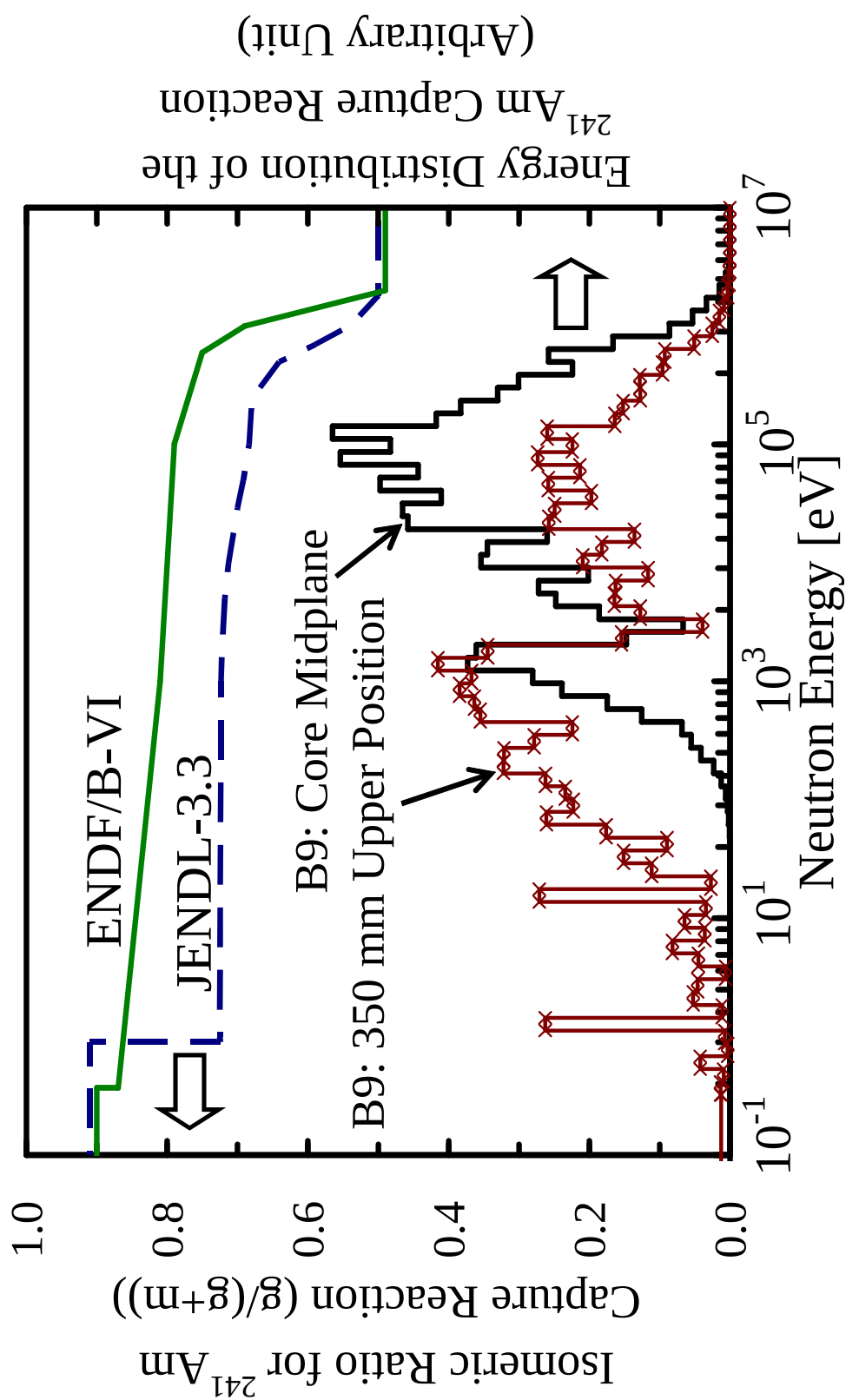


Fig. 7 Isomeric ratio for ^{241}Am capture reaction and the related energy regions

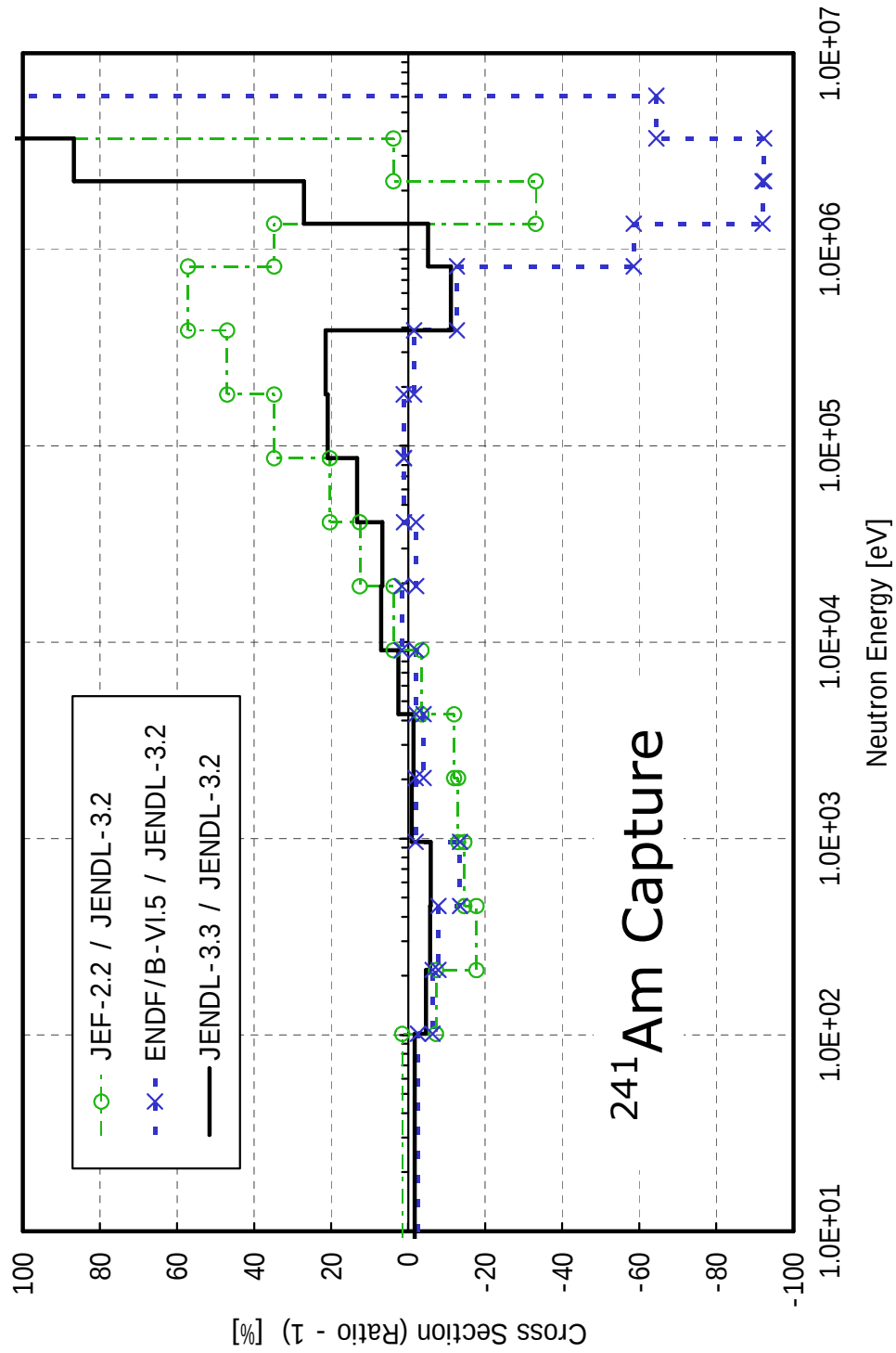


Fig. 8 Comparison of ^{241}Am capture cross sections in major nuclear data libraries

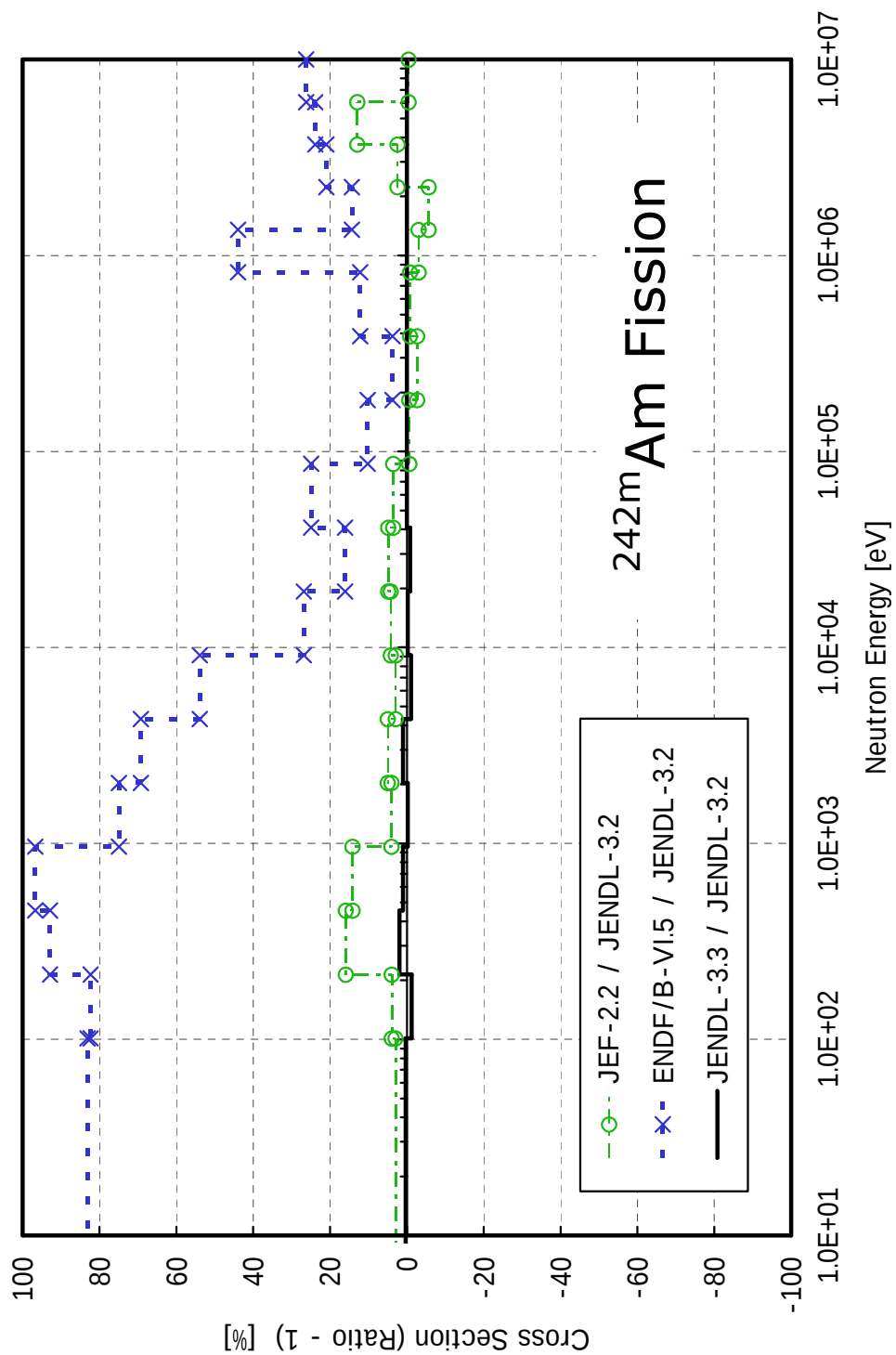


Fig. 9 Comparison of ^{242m}Am fission cross sections in major nuclear data libraries

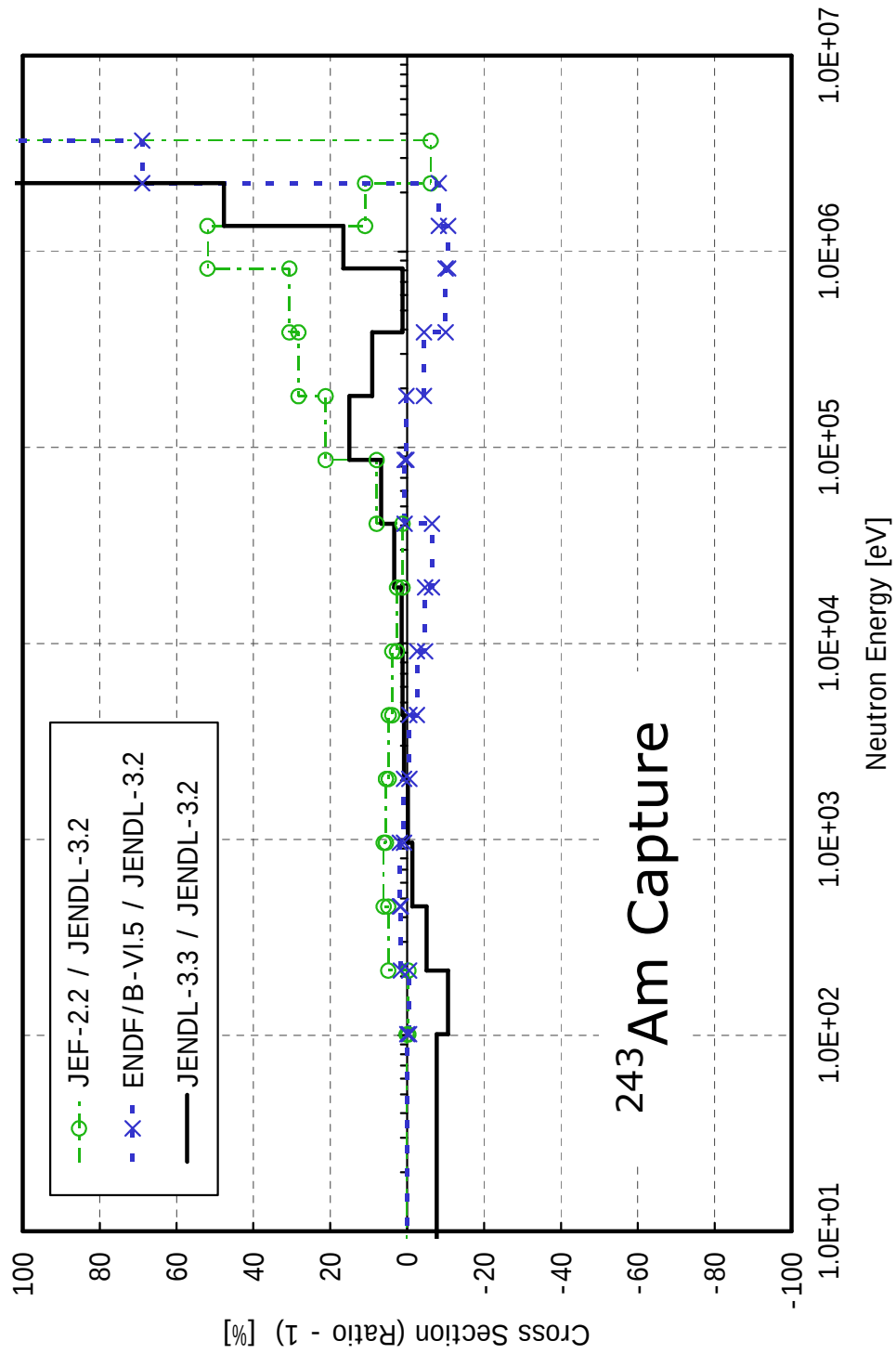


Fig. 10 Comparison of ^{243}Am capture cross sections in major nuclear data libraries

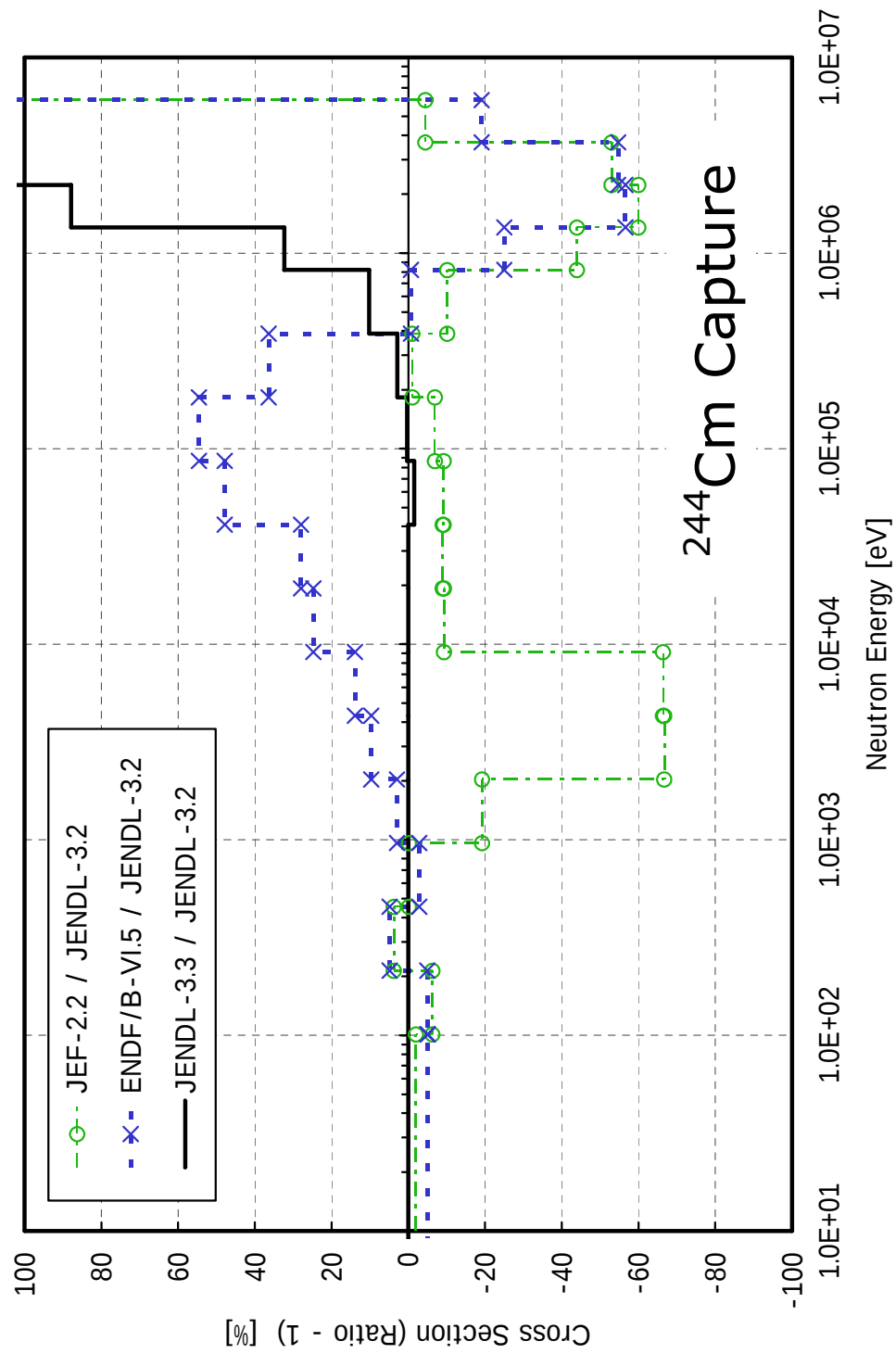


Fig. 11 Comparison of ^{244}Cm capture cross sections in major nuclear data libraries

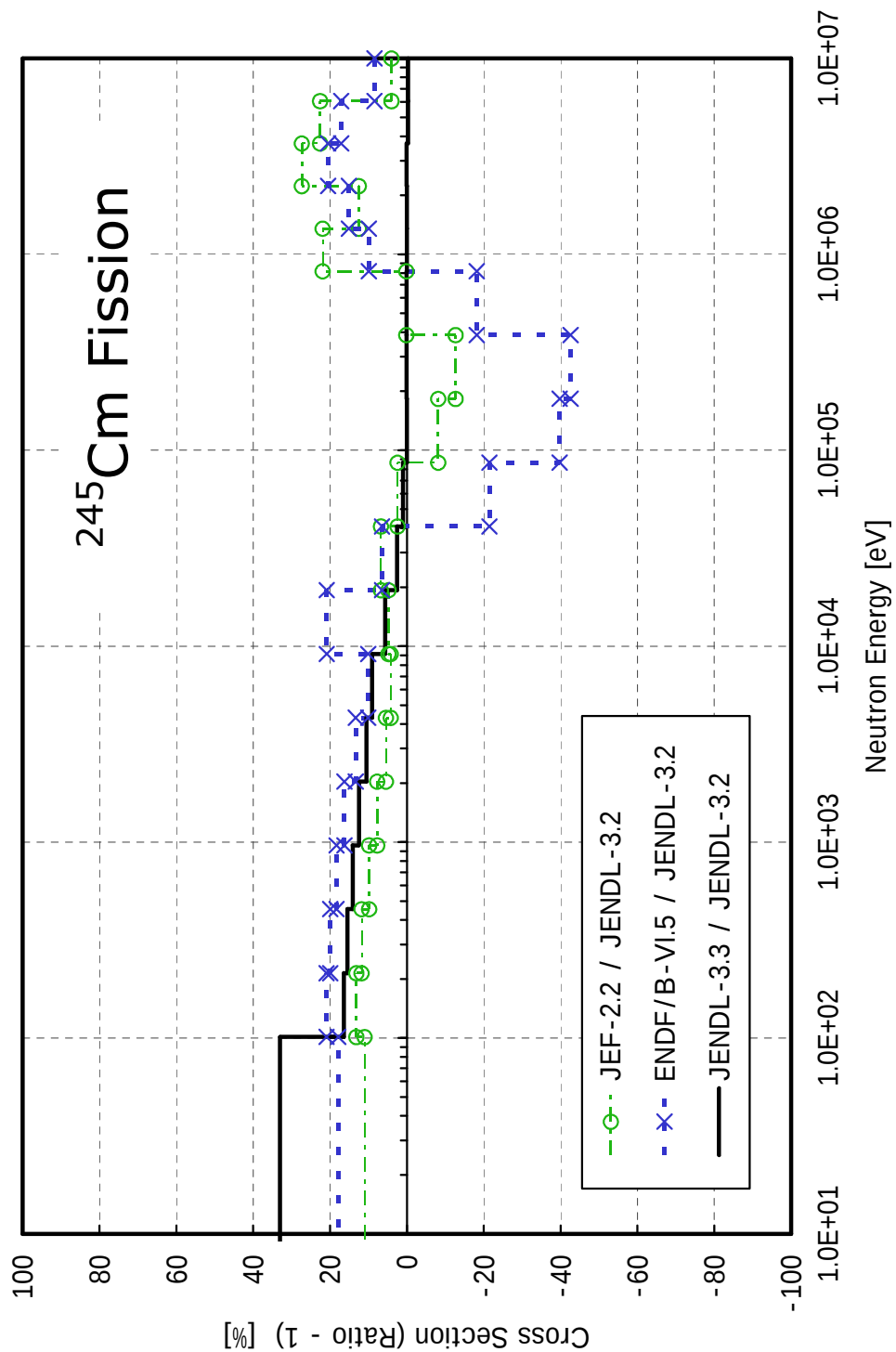


Fig. 12 Comparison of ^{245}Cm fission cross sections in major nuclear data libraries

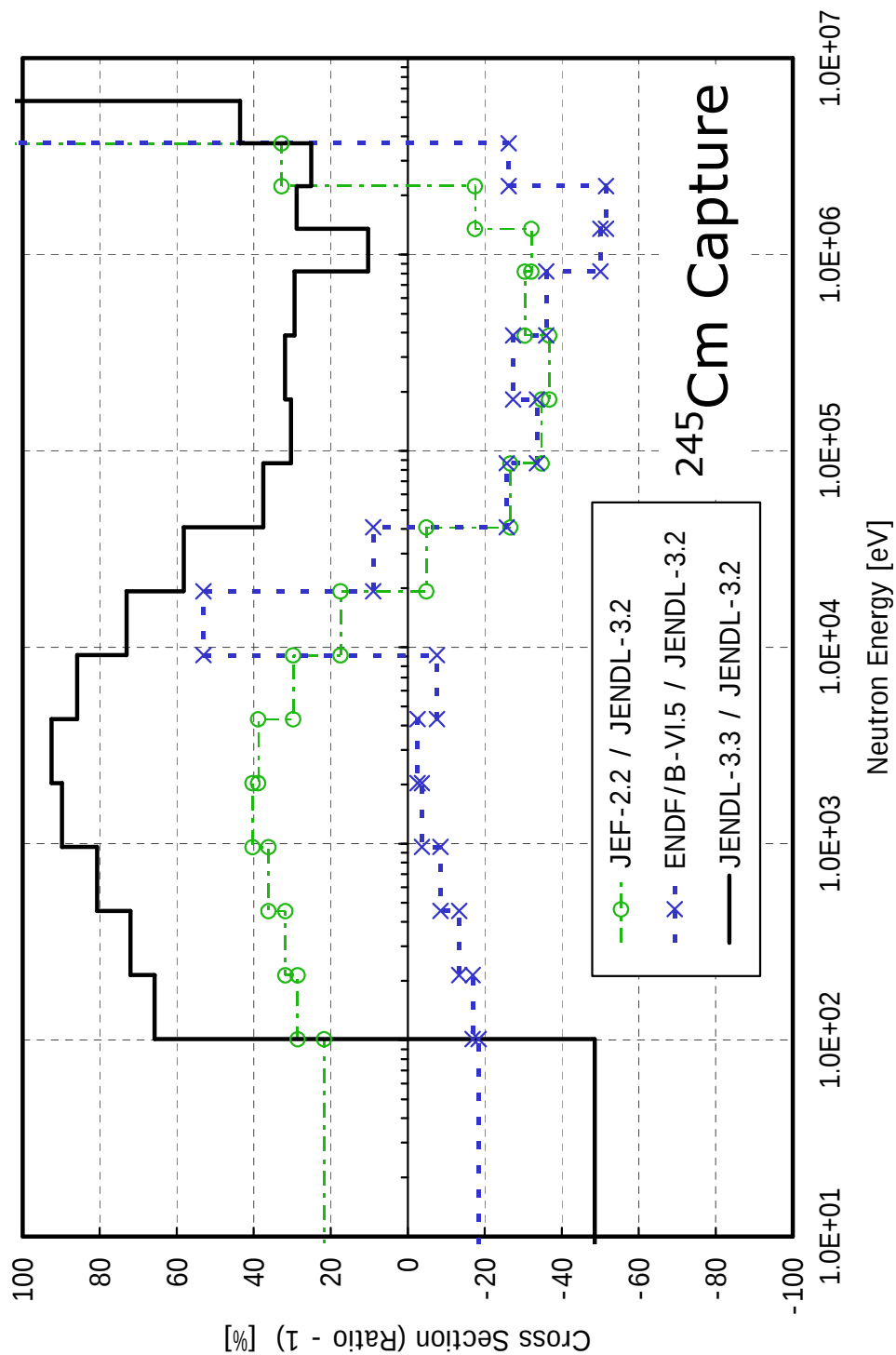


Fig. 13 Comparison of ^{245}Cm capture cross sections in major nuclear data libraries

5. おわりに

高速実験炉「常陽」MK-II 炉心の第 3 列・軸方向中心位置で照射した ^{243}Am サンプル (試料番号 78) 及び ^{244}Cm サンプル (試料番号 86) 第 3 列・軸方向上部 350 mm 位置で照射した ^{243}Am サンプル (試料番号 77) の予備解析を行った。照射後の生成核種と生成元核種の組成比である $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}/^{243}\text{Am}$ 、 $^{245}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ 、 $^{246}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}$ について、核データライブラリ (JENDL-3.2, JENDL-3.3, ENDF/B-VI.5, JEF-2.2) をパラメータとして解析し、生成元核種の捕獲反応断面積及び核異性体比の検証を試みた。主な結果は次のとおりである。

- $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ の解析結果より、 ^{241}Am 捕獲反応の核異性体比が、軸方向中心の照射位置では約 0.85 (g/(g+m)) である可能性が示された。ENDF/B-VI、JENDL-3.3 に納められた従来の核異性体比の評価データは、それぞれ約 0.8、約 0.7 となっており、これらの見直しが望まれる。
- $^{245}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ 及び $^{246}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}$ の解析結果より、ENDF/B-VI.5 の ^{244}Cm 捕獲反応断面積及び JENDL-3.3 の ^{245}Cm 捕獲反応断面積が、1 keV ~ 数百 keV のエネルギー領域において過大評価となっている可能性が示された。

実験値と解析値の一致性は概ね良く、解析側からの実験の妥当性が確認できた。ただし、Cm/Am 組成比を α 線スペクトル測定により求めた $^{244}\text{Cm}/^{243}\text{Am}$ については、課題がみられる。

輸送効果や MA サンプル装荷集合体の非均質効果等より解析モデル誤差の程度を調べた結果、軸方向中心位置に装荷した MA サンプルは解析モデル誤差が小さく、詳細解析対象として適当であることがわかった。一方、軸方向上部位置の MA サンプルは、輸送効果や隣接する制御棒の影響が大きく、詳細解析を行ったとしても相当の解析モデル誤差が残る見込みである。

今後、詳細解析や残された MA サンプルの予備解析に引き続き取り組み、解析数を増やすとともに、相互比較を行っていく予定である。本解析では、中性子束の評価精度が断面積の検証に直接影響するため、中性子束を計算だけで決定するのではなく、標準サンプルやドシメータ等の実測データを用いるものとした。また、解析結果を活用するための現実的な誤差評価も行うものとする。

謝辞

本研究は多くの方々の努力の賜物である。本研究計画を開始した若林利男氏（現日本原子力研究所）、「常陽」での照射に携わったサイクル機構 照射施設運転管理センターの方々、照射後サンプルの分析に尽力いただいたサイクル機構 照射燃料試験室の小山真一氏、「常陽」炉心計算でサポートいただいた(株)NESI の沼田一幸、神智之の両氏に感謝する。

参考文献

- [1] S. Ohki, *Validation of MA Nuclear Data by Sample Irradiation Experiments with the Fast Reactor “JOYO” (1) - Preliminary analysis of the ^{243}Am sample (No. 77) -*, JNC TN9400 2004-002 (2004), [in Japanese].
- [2] Y. Ohkawachi, *et al.*, *JOYO MK-II Core Characteristics Database – Update to JFS-3-J3.2R –*, JNC TN9400 2003-029 (2003), [in Japanese].
- [3] T. B. Fowler, *et al.*, *Nuclear Reactor Core Analysis Code: CITATION*, ORNL-TM-2496, Rev.2 (1971).
- [4] G. Chiba and K. Numata, *Development of the fast reactor group constant set JFS-3-J3.2R based on the JENDL-3.2*, JNC TN9400 2001-124 (2002), [in Japanese].
- [5] K. Sugino and T. Iwai, *Advances in Methods of Commercial FBR Core Characteristics Analyses – Investigations of a Treatment of the Double-heterogeneity and a Method to Calculate Homogenized Control Rod Cross Sections –*, PNC TN9410 98-067 (1998), [in Japanese].
- [6] T. Nakagawa, *et al.*, “Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision-2: JENDL-3.2,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **32**, 1259 (1995).
- [7] K. Shibata, *et al.*, “Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision-3: JENDL-3.3,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **39**, 1125 (2002).

- [8] Cross Section Evaluation Working Group, *ENDF/B-VI Summary Documentation*, BNL-NCS-17541 (ENDF-201) (1991).
- [9] OECD/NEA (Ed.), *The JEF-2.2 Nuclear Data Library*, JEFF Report 17 (2000).
- [10] R. E. MacFarlane and D. W. Muir, *The NJOY Nuclear Data Processing System, Version 91*, LA-12740-M, (1994).
- [11] A. G. Croff, *A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code*, ORNL-TM-7175 (1980).
- [12] A. D'Angelo, *et al.*, "Analysis of Sample and Fuel Pin Irradiation Experiments in Phénix for Basic Nuclear Data Validation," *Nucl. Sci. Eng.*, **105**, 244 (1990).
- [13] K. Tsujimoto, *et al.*, "Validation of Minor Actinide Cross Sections by Studying Samples Irradiated for 492 Days at the Dounreay Prototype Fast Reactor – II: Burnup Calculations," *Nucl. Sci. Eng.*, **144**, 129 (2003).
- [14] T. Kawano, *et al.*, "Nuclear Data Evaluations for Americium Isotopes," *Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, ND2004*, Santa Fe, New Mexico, USA, Sept. 26 - Oct. 1, 2004, [to be published].
- [15] R. Soule and E. Fort, "Contribution to the Validation of JEF2 Actinide Nuclear Data: Analysis of Fuel and Sample Irradiation Experiments in PHENIX," *Proc. Int. Conf. on Future Nuclear Systems, Global '97*, Yokohama, Japan, Oct. 5-10, 1997, p.1332 (1997).

付録 A 核変換・崩壊チェーン

アクチニド核種の核変換・崩壊チェーンを Fig. A-1 に示す。本文では MA の核変換について既知のものとして考察を進めたため、補足の意味で付すものである。この核変換・崩壊チェーンは、核変換の概念を説明する目的から、以下のように不必要な複雑さを省き、単純化をほどこしている。

- 対象としたアクチニド核種は、典型的な高速炉燃料に含まれ、全重金属量に対し 0.01% 以上の質量を持つ次の 19 核種である：

$^{234}, ^{235}, ^{236}, ^{238}\text{U}$, $^{237}, ^{239}\text{Np}$, $^{238}, ^{239}, ^{240}, ^{241}, ^{242}\text{Pu}$, $^{241}, ^{242\text{m}}, ^{243}\text{Am}$, $^{242}, ^{243}, ^{244}, ^{245}, ^{246}\text{Cm}$.

- 半減期が数日以下の短半減期核種は、中性子核反応による核変換に比べ、十分速く崩壊するため、本チェーンにおいては瞬時崩壊とした。ただし、重要核種である ^{239}Pu に変換する ^{239}Np (半減期 2.3565 d) については、瞬時崩壊とせずに陽に取り扱った。
- 半減期が数千年を超える核種は安定とみなした。ただし、 ^{240}Pu (半減期 6564 y) は娘核種 ^{236}U の生成に有意な寄与を与えるため、崩壊過程を例外的に取り入れている。
- (n, 2n) 反応断面積は大きいものでも吸収反応の 0.3% 程度であり、反応核種自身の消滅量に対する影響は無視できる。しかし、 ^{238}U の (n, 2n) 反応による ^{237}Np の生成や、 ^{244}Cm の (n, 2n) 反応による ^{243}Cm の生成など、生成核種に対し生成元核種が多い場合に考慮した。

半減期、分岐比等の出典は次のとおりである。

- 半減期： T. Horiguchi, *et al.*, *Chart of the Nuclides 2000*, Japanese Nuclear Data Committee (2000).
- ^{242}Am 崩壊の分岐比： R.B. Firestone and V.S. Shirley (editors), *Table of Isotopes, 8th edition*, John Wiley & Sons, Inc. (1996).
- ^{241}Am 捕獲反応の核異性体比： A. D'Angelo, *et al.*, *Nucl. Sci. Eng.*, **105**, 244 (1990). (本文での議論を参照)

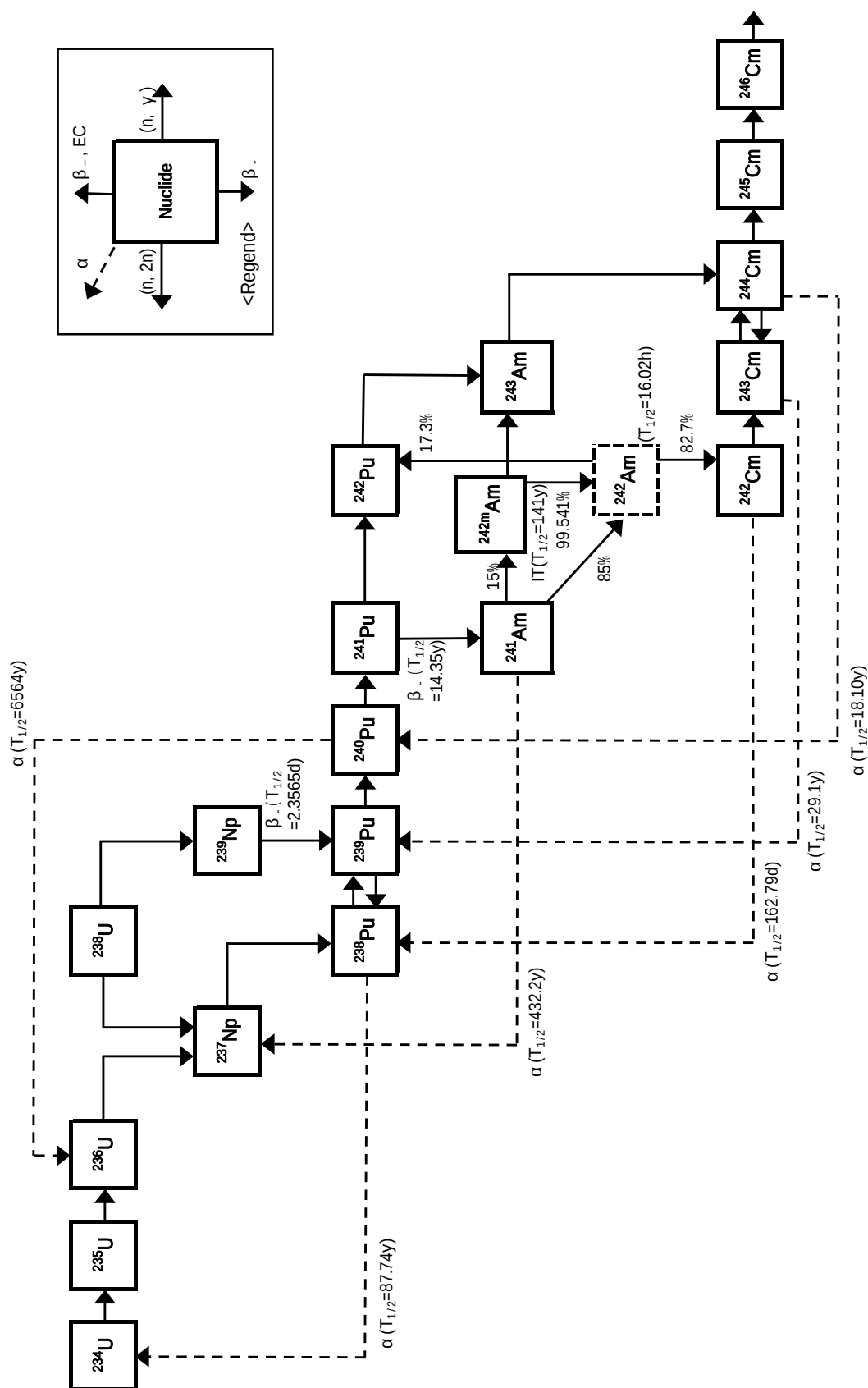


Fig. A-1 Simplified Nuclide Transmutation-decay Chain