

# プルトニウム燃料部分装荷炉心の単位格子実験

0.54%PuO<sub>2</sub> - UO<sub>2</sub> 燃料装荷炉心における格子定数の測定

1974年 6 月

動力炉・核燃料開発事業団  
大洗工学センター

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002

動力炉・核燃料開発事業団 大洗工学センター

システム開発推進部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technology Management Section, O-arai Engineering Center, Power Reactor  
and Nuclear Fuel Development Corporation 4002, Narita O-arai-machi Higashi-  
Ibaraki-gun, Ibaraki, 311-14, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development  
Corporation)

報告者 福 村 信 男  
仁 紫 明 人  
若 林 利 男

DCA実験グループ※

期 間 1972年8月 日～1973年10月 日

目 的  $UO_2$  炉心でおこなった格子定数の測定が  $PuO_2-UO_2$  混合炉心においても、同じ手法および精度で行なわれる事を実証し、単位細胞内における中性子の挙動を明らかにする。

要 旨 DCA炉心の中央部に0.54W/O富化プルトニウム燃料体を25体、その外円環に1.2W/O  $UO_2$  燃料体を装荷し、冷却材中のボイド率を0%、30%、70%、および100%の4種類かえた場合の格子定数の測定をおこなった。この時の格子ピッチは22.5cmの正方格子である。

測定結果を表に示す。表には、DCAでえられた1.2W/O、1.5W/O濃縮ウラン格子の値も示す。測定量は $\delta_{28}^{28} cell$  (高速核分裂比)、 $\delta_{28}^{28} cell$  (熱外核分裂比)、 $\rho_{28}^{28} cell$  (共鳴捕獲比)およびプルトニウム箔による熱外核分裂比 $\delta_{25}^{49}$ 、プルトニウムの核分裂率とウラン-235との核分裂との比( $\delta_{25}^{49} cell$ )である。この結果から次のことがわかった。

- 1)  $\delta_{28}^{28} cell$  はどのボイド率でもウラン格子の値より約2倍大きい。
- 2)  $\delta_{28}^{28} cell$  はどのボイド率でもウラン格子の値より少し大きい。
- 3)  $\rho_{28}^{28} cell$  はどのボイド率でもウラン格子の1.5W/O  $UO_2$  の値に近くそれより少し小さい。
- 4)  $\delta_{25}^{49} cell$  はボイド率と共にわずかに増加する。
- 5)  $(\delta_{25}^{49}) cell$  はボイド率と共に減少する。

※ DCA実験グループ

宮脇良夫, 樋口幸次郎, 八谷雄喜, 竹下徳人, 柴公倫, 飯島一敬, 村松精,  
浅野雄一郎, 相原永史, 戸村和二, 平山卓, 小綿泰樹, 米田平, 磯村和利,  
菅原昇,

表 測定結果

燃料濃縮度	格子定数	冷却材ボイド率			
		0%	30%	70%	100%
1.2W/0 UO <sub>2</sub>	$\delta_{cell}^{28} (\times 10^{-2})$	4.75±0.24	4.59±0.23	4.58±0.23	5.59±0.28
	$\delta_{cell}^{25} (\times 10^{-2})$	5.85±0.23	5.94±0.24	7.98±0.32	9.57±0.38
	$\rho_{cell}^{28}$	0.823±0.041	0.914±0.045	1.17±0.06	1.24±0.06
1.5W/0 UO <sub>2</sub>	$\delta_{cell}^{28} (\times 10^{-2})$	4.62±0.23	—	—	5.33±0.27
	$\delta_{cell}^{25} (\times 10^{-2})$	7.13±0.29	—	—	10.4±0.42
	$\rho_{cell}^{28}$	1.09±0.06	—	—	1.45±0.07
0.54SPuO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub>	$\delta_{cell}^{28} (\times 10^{-2})$	10.7±0.40	12.8±0.47	11.8±0.44	14.0±0.52
	$\delta_{cell}^{25} (\times 10^{-2})$	8.38±0.30	9.78±0.35	11.6±0.42	12.9±0.46
	$\rho_{cell}^{28}$	0.909±0.045	1.11±0.056	1.28±0.064	1.33±0.067
	$\delta_{cell}^{49} (\times 10^{-2})$	6.60±0.24	6.76±0.24	8.53±0.31	9.49±0.34
	$(\delta_{25}^{49})_{cell}$	1.23±0.043	1.29±0.045	1.08±0.038	0.963±0.034

Measurements of Lattice Parameters in 0.54W/O

PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> Fuel Lattice

Abstract

Measurements of lattice parameters in 0.54W/O PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> fuel cluster made in DCA core of 22.5cm lattice pitch with coolant void fractions of 0%, 30%, 70%, and 100%, loaded with twenty-five 0.54W/O PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> fuel assemblies in the inner region and ninety-six 1.2W/O UO<sub>2</sub> fuel assemblies in the outer region.

Experimental results compared between PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> core and UO<sub>2</sub> core are shown in the following table.

Lattice parameters of this experiment are such as  $\delta^{28}$  (<sup>238</sup>U fissions per <sup>235</sup>U fission),  $\delta^{25}$  (epicadmium/subcadmium <sup>235</sup>U fissions),  $\rho^{28}$  (epicadmium/subcadmium <sup>238</sup>U captures),  $\delta^{49}$  (epicadmium/subcadmium <sup>239</sup>Pu fissions) and  $\delta_{25}^{49}$  (<sup>239</sup>Pu fissions per <sup>235</sup>U fission).

Followings are concluded from the results.

- 1) Values of  $\delta_{cell}^{28}$  in PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> core are about two times as large as ones in UO<sub>2</sub> core.
- 2) Values of  $\delta_{cell}^{25}$  in PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> core are slightly larger than ones in UO<sub>2</sub> core.
- 3) Values of  $\rho_{cell}^{28}$  in PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> core are slightly lower than ones in 1.5W/O UO<sub>2</sub> core.
- 4) Values of  $\delta_{cell}^{49}$  in PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> core are slightly dependent on coolant void fractions.
- 5) Values of  $(\delta_{25}^{49})_{cell}$  increase with increased coolant void fractions.

Table Experimental Results

Fuel Enrichments	Lattice Parameters	Coolant Void Fractions			
		0 %	30 %	70 %	100 %
1.2W/OUO <sub>2</sub>	$\delta_{cell}^{28} (x10^{-2})$	4.75±0.24	4.59±0.23	4.58±0.23	5.59±0.28
	$\delta_{cell}^{25} (x10^{-2})$	5.85±0.23	5.94±0.24	7.98±0.32	9.57±0.38
	$\rho_{cell}^{28}$	0.823±0.044	0.914±0.045	1.17±0.060	1.24±0.060
1.5W/OUO <sub>2</sub>	$\delta_{cell}^{28} (x10^{-2})$	4.62±0.23	—	—	5.33±0.27
	$\delta_{cell}^{25} (x10^{-2})$	7.13±0.29	—	—	10.4±0.42
	$\rho_{cell}^{28}$	1.09±0.060	—	—	1.45±0.070
0.54SP uO <sub>2</sub> - UO <sub>2</sub>	$\delta_{cell}^{28} (x10^{-2})$	10.7±0.40	12.8±0.47	11.8±0.44	14.0±0.52
	$\delta_{cell}^{25} (x10^{-2})$	8.38±0.30	9.78±0.35	11.6±0.42	12.9±0.46
	$\rho_{cell}^{28}$	0.909±0.045	1.11±0.056	1.28±0.064	1.33±0.067
	$\delta_{cell}^{49} (x10^{-2})$	6.60±0.24	6.76±0.24	8.53±0.31	9.49±0.34
	$(\delta_{25}^{49})_{cell}$	1.23±0.043	1.29±0.045	1.08±0.038	0.963±0.034

## 目 次

1. 概 要	1
2. 測定量の定義および測定原理	1
2.1 高速核分裂比 ( $\delta^{28}$ ) の測定	1
2.2 共鳴捕獲比 ( $\rho^{28}$ ) の測定	2
2.3 熱外核分裂比 ( $\delta^{25}$ ) の測定	2
2.4 プルトニウム箔による熱外核分裂比 ( $\delta^{49}$ ) の測定	3
2.5 プルトニウムとウラン-235との核分裂比 ( $\delta_{25}^{49}$ ) の測定	3
2.6 P(t)関数の測定	6
3. 実験方法	8
3.1 実験体系	8
3.2 箔の照射条件	10
3.3 放射線の計測方法	14
4. 実験結果	19
5. 考 察	29
5.1 測定精度の評価	29
5.2 総合誤差の評価	33
6. 結 論	34
7. 謝 辞	35
8. 参 考 文 献	35
9. 付 録	37

# 1. 概 要

重水減速・軽水冷却クラスタ型燃料集合体内におけるU-238, U-235およびPu-fissileの核分裂率およびU-238の共鳴捕獲率の測定をプルトニウム富化した天然ウラン燃料炉心でおこなった。以下この炉心をプルトニウム炉心とよぶ。

測定は既報告の(8), (9), (10), (11)ウラン格子の場合と同様に核分裂性物質を含んだ箔を照射し、箔中に生じた核分裂生成物の $\gamma$ 線およびU-238の(n,  $\gamma$ )反応により生じた $^{239}\text{Np}$ の $\gamma$ 線を計測した。本報告書は、格子ピッチ2.25 cmの正方格子の炉心において、0.54 W/0.54 m<sup>2</sup>スタンダードグレードプルトニウム富化天然ウラン燃料体を中央に25体、その外円環に1.2%濃縮ウランを装荷し、冷却材中のボイド率を0%, 30%, 70%および100%の4種類にかえた場合の実験結果をまとめたものである。

## 2. 測定量の定義および測定原理

### 2.1 高速核分裂比( $\delta^{28}$ )の測定

$\delta^{28}$ は燃料中の $^{238}\text{U}$ と $^{235}\text{U}$ との全核分裂比で定義される。すなわち

$$\delta^{28} = \frac{N_{28} \int_{ET}^{\infty} \sigma_f^{28}(E) \phi(E) dE}{N_{25} \int_0^{\infty} \sigma_f^{25}(E) \phi(E) dE} \dots\dots\dots(1)$$

いま濃縮度の異なる2種類の箔のF.P.の計数値をそれぞれ $A_D, A_N$ とすると、その比 $r(t)$ は次式で表わせる。

$$r(t) = \frac{A_D}{A_N} = \frac{\mu_{28}(t) N_D^{28} \int_{ET}^{\infty} \phi(E) \sigma_f^{28}(E) dE + \mu_{25}(t) N_D^{25} \int_0^{\infty} \phi(E) \sigma_f^{25}(E) dE}{\mu_{28}(t) N_N^{28} \int_{ET}^{\infty} \phi(E) \sigma_f^{28}(E) dE + \mu_{25}(t) N_N^{25} \int_0^{\infty} \phi(E) \sigma_f^{25}(E) dE} \dots\dots\dots(2)$$

(1), (2)式より

$$\delta^{28} = P(t) \cdot \frac{\left[ \frac{N_N^{25}}{N_D^{25}} \cdot r(t) - \frac{N_D^{25}}{N_D^{28}} \right] \cdot \frac{N_N^{28}}{N_D^{28}}}{1 - \frac{N_N^{28}}{N_D^{28}} \cdot r(t)} \dots\dots\dots(3)$$



ここで、

$N_F$  : 燃料の単位体積あたりのウランの原子数

$N_D$  : 天然ウラン箔の単位重量あたりのウランの原子数。サフィックス 28, 25,

D はそれぞれ U-238, U-235, 劣化ウラン箔を示す。

$\mu(t)$  : ウランの核分裂あたりの  $r$  線強度

t は冷却時間を示す。

$\sigma_f$  : 中性子の核分裂断面積

$$P(t) = \frac{\mu_{25}(t)}{\mu_{28}(t)} \quad \dots\dots\dots(4)$$

従って  $N_{D25}$ ,  $N_{D28}$ ,  $N_{F25}$ ,  $N_{F28}$  が既知の 2 種類の箔を照射し、冷却時間約 1,100 分頃から各箔の 720 keV 以上の F.P. の  $r$  線を測定することにより、(3)式より  $\delta^{28}$  が求まる。

$P(t)$  は 2.6 節で述べるように F.P. の  $^{140}La$  の  $r$  線を冷却時間約 10 日目頃から測定することにより求めた。

### 2.2. 共鳴捕獲比 ( $\rho^{28}$ ) の測定

$\rho^{28}$  は燃料中の  $^{238}U$  の共鳴捕獲率と熱中性子による捕獲率との比で定義される。従って  $\rho^{28}$  の定義は下式で示される。

$$\rho^{28} = \frac{\int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma_c^{238}(E) \phi(E) dE}{\int_0^{\infty} \sigma_c^{238}(E) \phi(E) dE} \quad \dots\dots\dots(5)$$

測定は劣化ウラン ( $^{238}U$ ) 箔の箔放射化法で行なうので(5)式を変形すると

$$\rho^{28} = \frac{1}{\frac{\int_0^{\infty} \sigma_c^{238}(E) \phi(E) dE}{\int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma_c^{238}(E) \phi(E) dE} - 1} \quad \dots\dots\dots(6)$$

となり、ここで  $E_{cd}$  をカドミ切断エネルギーにとれば

$$\rho^{28} = \frac{1}{(^{238}U \text{ の捕獲のカドミ比}) - 1} \quad \dots\dots\dots(7)$$

となり、測定は  $^{238}U$  の捕獲のカドミ比を求めればよい、

すなわち U-238 の (n, r) 反応により生成される Np-239 の  $r$  線を測定することにより  $\rho^{28}$  がえられる。

### 2.3 熱外核分裂比 ( $\delta^{25}$ ) の測定

$\delta^{25}$  は燃料中の  $^{235}U$  の熱外核分裂率と熱中性子による核分裂率との比で定義される。

$$\delta^{25} = \frac{\int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma_f^{25}(E) \phi(E) dE}{\int_0^{\infty} \sigma_f^{25}(E) \phi(E) dE} \quad \dots\dots\dots(8)$$

いま濃縮度の異なる2種類の箔のF・Pの計数値をそれぞれ $A_D$ 、 $A_N$ とすると(8)式よりU-235の核分裂率は次式で与えられる。

$$(U-235の核分裂率) \propto \mu_{25} (t) \int_0^\infty \sigma_f^{25}(E) \phi(E) dE$$

$$= \frac{N_N^{25} (N_D^{28} A_N - N_N^{28} A_D)}{N_D^{28} N_N^{25} - N_N^{28} N_D^{25}} = AN \frac{N_D^{28} \cdot (1 - \frac{N_N^{28}}{N_D^{28}} \cdot \gamma(t)) \cdot N_N^{25}}{N_D^{28} N_N^{25} - N_N^{28} N_D^{25}} \dots\dots\dots(9)$$

従って、裸箔とカドミカバー箔とのF・Pの計数値の比より、カドミ比を求め(8)式から $\delta^{25}$ が算出される。

なお、(8)式で $E_c$ は検出箔の実効カドミ切断エネルギーを示す。

また(9)式で90w/o程度の高濃縮ウラン箔を用いると分子第2項は $10^{-3}$ 程度なので1に比べて無視できる。即ちこれ位の濃縮ウラン箔を用いた場合ウラン238の寄与分は無視できる。

2.4 プルトニウム箔による熱外核分裂比( $\delta^{49}$ )の測定

$\delta^{49}$ は燃料中のプルトニウムの熱外核分裂率と熱中性子による核分裂率との比で定義され、次式で与えられる。

$$\delta^{49} = \frac{\int_{E_c}^\infty \sigma_f^{49}(E) \phi(E) dE}{\int_0^\infty \sigma_f^{49}(E) \phi(E) dE} \dots\dots\dots(10)$$

但し、測定に使用したプルトニウム箔には、Pu-239、Pu-240、Pu-241、などが含まれているがPu-240、Pu-241の核種は少量ではあるがPu-239の核分裂と区別できないため、これらの核種による核分裂率をすべてPu-239の核分裂率として含めて取扱いたまた表記した。

なお、使用したプルトニウム箔は燃料に富化されたスタンダード・グレイドプルトニウム粉末と同じ同位体比をもったもので、ポリエチレンと混合して作成した箔を用いた。(付録III参照)

実験は定義式から明らかなようにPu-239の核分裂率のカドミ比を求めればよい。

2.5 プルトニウムとウラン-235との核分裂比( $\delta_{25}^{49}$ )の測定

PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub>混合燃料中におけるPu-239の核分裂率とU-235の核分裂率との比、

$\delta_{25}^{49}$ は、次式で定義される。

$$\delta_{25}^{49} = \frac{N_f^{49} \int_0^\infty \sigma_f^{49}(E) \phi(E) dE}{N_f^{25} \int_0^\infty \sigma_f^{25}(E) \phi(E) dE} \dots\dots\dots(11)$$

従って、燃料ビン内にプルトニウム箔（実際はPuO<sub>2</sub>とポリエチレンの混合物）とウラン箔（実際は90%濃縮ウラン-アルミ合金箔）とを重ねて、セットし、照射後各箔のF・P・のr線計数値の比を測定すれば(11)式より、 $\delta_{25}^{49}$ が求まる。

即ち、プルトニウム箔は、Pu-239より、ウラン箔はU-235より成り立っていると仮定し、両方のF・P・のr線計数値の比をA<sub>f</sub>(t)とすると、次式が成り立つ。

$$A_f(t) = \frac{\text{(Pu箔中のF・P・のr線計数値)}}{\text{(U箔中のF・P・のr線計数値)}} = \frac{N_{Pu}^{49} \mu(t) \int_0^\infty \sigma_f^{49} \cdot \phi(E) dE}{N_U^{25} \mu(t) \int_0^\infty \sigma_f^{25} \cdot \phi(E) dE} \dots\dots\dots(12)$$

但し、N<sub>Pu</sub><sup>49</sup> : Pu箔内のPu-239の単位重量あたりの原子数

N<sub>U</sub><sup>25</sup> : U箔内のU-235の単位重量あたりの原子数

f : 燃料中を表わす

μ(t)<sup>49</sup> : Pu-239の核分裂あたりのr線強度

μ(t)<sup>25</sup> : U-235の核分裂あたりのr線強度

また燃料ビン内で照射したものと同一プルトニウム箔とウラン箔をスペクトルの即知の熱中性子場（例えばマックスウエル分布をしている熱中性子場）で照射し、(12)式と同様にして両者の箔のF・P・のr線計数値との比A<sub>m</sub>(t)を求めると次式が成り立つ。

$$A_m(t) = \frac{N_{Pu}^{49} \mu_m^{49}(t) \left[ \int_0^\infty \sigma_f^{49} \cdot \phi(E) dE \right]_m}{N_U^{25} \mu_m^{25}(t) \left[ \int_0^\infty \sigma_f^{25} \cdot \phi(E) dE \right]_m} \dots\dots\dots(13)$$

(12)式と(13)式の比をとることにより、次式がえられる。

$$\frac{\int_0^\infty \sigma_f^{49} \cdot \phi(E) dE}{\int_0^\infty \sigma_f^{25} \cdot \phi(E) dE} = \frac{A_f(t)}{A_m(t)} \times \frac{\mu(t)^{25}}{\mu(t)^{49}} \times \frac{\mu_m^{49}(t)}{\mu_m^{25}(t)} \times \frac{\left[ \int_0^\infty \sigma_f^{49} \cdot \phi(E) dE \right]_m}{\left[ \int_0^\infty \sigma_f^{25} \cdot \phi(E) dE \right]_m} \dots\dots\dots(14)$$

ここで、f、mは燃料中および熱中性子場を表わす。

故に、(14)式を(11)式に代入することにより、 $\delta_{25}^{49}$ が求められる。但し、(14)式において、右辺の第4項は、熱中性子に対する核分裂断面積と、Westcottのβパラメータより計算できる。

すなわち、(14)式を簡単化すると次式のようになる。

$$\frac{\int_0^\infty \sigma_f^{49}(E) \phi(E) dE}{\int_0^\infty \sigma_f^{25}(E) \phi(E) dE} = \frac{A_f(t)}{A_m(t)} \times \frac{\hat{\sigma}_f^{49}}{\hat{\sigma}_f^{25}} \quad \dots\dots\dots(15)$$

というのは、熱中性子場においては、 $\mu(t)^{25} / \mu(t)^{49}$  で定義できる  $P_{49}(t)$  関数は熱中性子のスペクトルの変化による差は殆んどなく、熱中性子柱での  $P_{49}(t)$  関数と DCA 炉心での  $P_{49}(t)$  関数とは等しいとおける。また実験的にも文献(10)で報告され確認されている。(15)式の右辺第2項の核分裂実効断面積  $\hat{\sigma}_f$  は、Westcott 流に考えると、次式で与えられる。

$$\hat{\sigma}_f = \sigma_f (g + r_s) \quad \dots\dots\dots(16)$$

ここで  $g, r, s$  はいわゆるスペクトルパラメータと呼ばれ  $g$  は、非  $1/v$  因子、 $r$  は熱中性子束に対する熱外中性子束の割合を表わし、 $g$  の 1 からのずれおよび  $s$  の 0 からのずれは断面積の熱領域とそれ以上のエネルギー領域における  $1/v$  型吸収の断面積からのずれの尺度を表わす。

今、金箔のカドミ比が 100 以上のマックスウエル分布をしている熱中性子場で試料を照射すると(16)式で  $g$  因子だけが残る(14)式および(11)式より  $\delta_{25}^{49}$  が求まる。

なお、Pu-239 および U-235 の  $\hat{\sigma}_f$  は ORRP-960<sup>(1)</sup> により純粋なマックスウエル分布の時、温度 20°C での下記の値を用いた。

Pu-239 に対し、	( $\sigma_f$ ) <sub>2200</sub> = 7 4 2.1 5	}	.....(17)
	( $g$ ) <sub>fiss</sub> = 1.0 4 8 7		
	$\hat{\sigma}_f$ = 7 7 8.3		
			バーン

U-235 に対し	( $\sigma_f$ ) <sub>2200</sub> = 5 7 7.0 1	}	.....(18)
	( $g$ ) <sub>fiss</sub> = 0.9 7 5 9		
	$\hat{\sigma}_f$ = 5 6 3.1		
			バーン

従って(12)式と(14)式とから  $\delta_{25}^{49}$  は次の2通りの方法で求めることができる。

(12)式より  $P(t)$  関数を用いた場合

$$\delta_{25}^{49} = \frac{N_v^{25}}{N_{pv}^{49}} \cdot P_{49}(t) \cdot \frac{N_f^{49}}{N_f^{25}} \cdot A_f(t) \quad \dots\dots\dots(19)$$

(14)式より熱中性子場で照射すると

$$\delta_{25}^{49} = \frac{A_f(t)}{A_m(t)} \times \frac{\hat{\sigma}_f^{49}}{\hat{\sigma}_f^{25}} \times \frac{N_f^{49}}{N_f^{25}} \quad \dots\dots\dots(20)$$

実験は(19)式および(20)式の両方から求めた。

なお、プルトニウム箔およびウラン箔による検出効率の差異はないとした。

また熱中性子柱での照射時の室温は28℃でDGAでの照射時の室温は25℃で二つの温度の差異は無視した。

2.6... P(t)関数の測定

ウラン格子の場合 P(t)関数は、U-235とU-238の核分裂あたりのγ線強度の比で表わし、次式で定義した。

$$P(t) = \frac{\mu(t)^{25}}{\mu(t)^{28}} \dots\dots\dots(21)$$

ここで

$\mu(t)^{25}$  : U-235の核分裂あたりのγ線強度

$\mu(t)^{28}$  : U-238の核分裂あたりのγ線強度

を表わす。

一方プルトニウム格子の場合、上記と同様に、P(t)関数はU-235とPu-239の核分裂あたりのγ線強度の比で定義すると、次式で表わす。

$$P_{49}(t) = \frac{\mu(t)^{25}}{\mu(t)^{49}} \dots\dots\dots(22)$$

ここで

$\mu(t)^{49}$  : Pu-239の核分裂あたりのγ線強度。

を表わす。

ウラン格子で導出した手法と同様にして、プルトニウム格子の場合も<sup>140</sup>Laのγ線を測定することによりP<sub>49</sub>(t)が求められる。

いままでのべたように濃縮ウラン箔とPu<sub>2</sub>O<sub>7</sub>-ポリエチレン箔との<sup>140</sup>Laのγ線の計数値をそれぞれA<sub>La<sup>25</sup></sub>、A<sub>La<sup>49</sup></sub>とすると、各箔の同位体を考慮すると、次式で表わせる。

$$\frac{A_{La^{25}}}{A_{La^{49}}} = \frac{(\beta NI)^{25} + (\beta NI)^{28}}{(\beta NI)^{49} + (\beta NI)^{40} + (\beta NI)^{41}} \dots\dots\dots(23)$$

また、各箔のダロスなF、Pのγ線の計数値をそれぞれA<sub>x<sup>25</sup></sub>、A<sub>x<sup>49</sup></sub>とすると、次式で表わせる。

$$\frac{A_x^{25}}{A_x^{49}} = \frac{(\mu(t)NI)^{25} + (\mu(t)NI)^{28}}{(\mu(t)NI)^{49} + (\mu(t)NI)^{40} + (\mu(t)NI)^{41}} \dots\dots\dots(24)$$

(23)、(24)式において、各記号は次のような意味を表わす。

25, 28, 49, 40, 41, : それぞれ <sup>235</sup>U, <sup>238</sup>U, <sup>239</sup>Pu, <sup>240</sup>Pu, <sup>241</sup>Pu,

N : 箔の中に含まれる核種の個数密度

$\beta$  : 各核種の  $^{140}L_a$  の生成率

$\mu(t)$  : 核種の核分裂あたりの  $\gamma$  線強度

$$E : \int_0^\infty \sigma_f \phi dE$$

従って(20), (24)式の比をとることにより, 次式がなりたつ。

$$P_{49}(t) = \frac{\mu(t)^{25} A_x^{25} A_{La}^{49} \beta^{25}}{\mu(t)^{49} A_x^{49} A_{La}^{25} \beta^{49}} \times \frac{\left\{ 1 + \frac{\beta^{28}}{\beta^{25}} \cdot \frac{(NI)^{28}}{(NI)^{25}} \right\}}{\left\{ 1 + \frac{\beta^{41}}{\beta^{49}} \cdot \frac{(NI)^{41}}{(NI)^{49}} \right\}} \times \frac{\left\{ 1 + \frac{\mu(t)^{41}}{\mu(t)^{49}} \cdot \frac{(NI)^{41}}{(NI)^{49}} + \frac{\mu(t)^{40}}{\mu(t)^{49}} \cdot \frac{(NI)^{40}}{(NI)^{49}} \right\}}{\left\{ 1 + \frac{\mu(t)^{28}}{\mu(t)^{25}} \cdot \frac{(NI)^{28}}{(NI)^{25}} \right\}} \dots\dots\dots(25)$$

上式で本実験に用いた箔の場合および DCA 炉心の場合,

$$\frac{(NI)^{28}}{(NI)^{25}} \approx 0.001 \ll 1,$$

$$\frac{(NI)^{40}}{(NI)^{49}} \approx 0.001 \ll 1,$$

$$\frac{(NI)^{41}}{(NI)^{49}} \approx 0.01 \ll 1,$$

いっぽう後述するように本実験でえられた  $\frac{\mu(t)^{28}}{\mu(t)^{25}} \approx \frac{1}{1.3}$  で, また  $\frac{\beta^{28}}{\beta^{25}} \approx \frac{1}{1.13}$  である。  
同様に

$\frac{\mu(t)^{41}}{\mu(t)^{49}} \cdot \frac{\mu(t)^{40}}{\mu(t)^{49}} \cdot \frac{\beta^{41}}{\beta^{49}}$  も  $\frac{\mu(t)^{28}}{\mu(t)^{25}} \cdot \frac{\beta^{28}}{\beta^{25}}$  と同程度の値なので(25)式は次式のように簡単になる。

$$P_{49}(t) \approx \frac{\mu(t)^{25} A_x^{25} A_{La}^{49} \beta^{25}}{\mu(t)^{49} A_x^{49} A_{La}^{25} \beta^{49}} \dots\dots\dots(26)$$

(26)式からわかるように, グロスな F.P. と  $^{140}L_a$  の  $\gamma$  線を計数することにより  $P_{49}(t)$  が算出できる。但し,  $\beta$  の値は文献(2)によった。なお U-238 の  $\beta^{28}$  は文献(3)によった。

即ち

$$\left. \begin{aligned} (\beta^{25})_{25} U &\equiv 6.34 \\ (\beta^{28})_{28} U &\equiv 5.70 \\ (\beta^{49})_{49} P_v &\equiv 5.51 \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots(27)$$

### 3. 実験方法

#### 3.1 実験体系

炉心中央の1チャンネルのクラスタ型燃料体中の第1リング、第2リング、第3リングの各燃料棒内の燃料ペレット内に各々の検出箔を挿入し、1kW-75分間照射した。

実験をおこなった正方格子ピッチ2.25 cmにおける炉心の構成をTable 1に示す。またFig 1にDCAの炉心構成図を示す。

なお、冷却材中のボイド率はウラン格子と同様0%、30%、70%および100%の4種類を採用した。

Table 1 Core Configuration of PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> Mixture Fuel Lattice

Lattice Pitch (cm)	Coolant Void Fraction (%)	Number of Clusters		Critical Level of D <sub>2</sub> O Moderator (cm)	Coolant Level (cm)
		PuO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub> (ch)	UO <sub>2</sub> (**) (ch)		
2.25 Square Lattice	0 (Pure H <sub>2</sub> O)	25	96	85.2	85.0
	30 + (H <sub>2</sub> O-D <sub>2</sub> O Mixture)	25	96	86.7	87.0
	70 # (H <sub>2</sub> O-D <sub>2</sub> O Mixture)	25	96	93.0	93.0
	100 (Air)	25	96	103.5	0

(\*) 0.542 w/o PuO<sub>2</sub> - 99.458 w/o UO<sub>2</sub> mixture fuel

(PuO<sub>2</sub> : <sup>230</sup>Pu - 0.0213 w/o, <sup>239</sup>Pu - 99.360 w/o,

<sup>240</sup>Pu - 8.6398 w/o, <sup>241</sup>Pu - 0.9151 w/o,

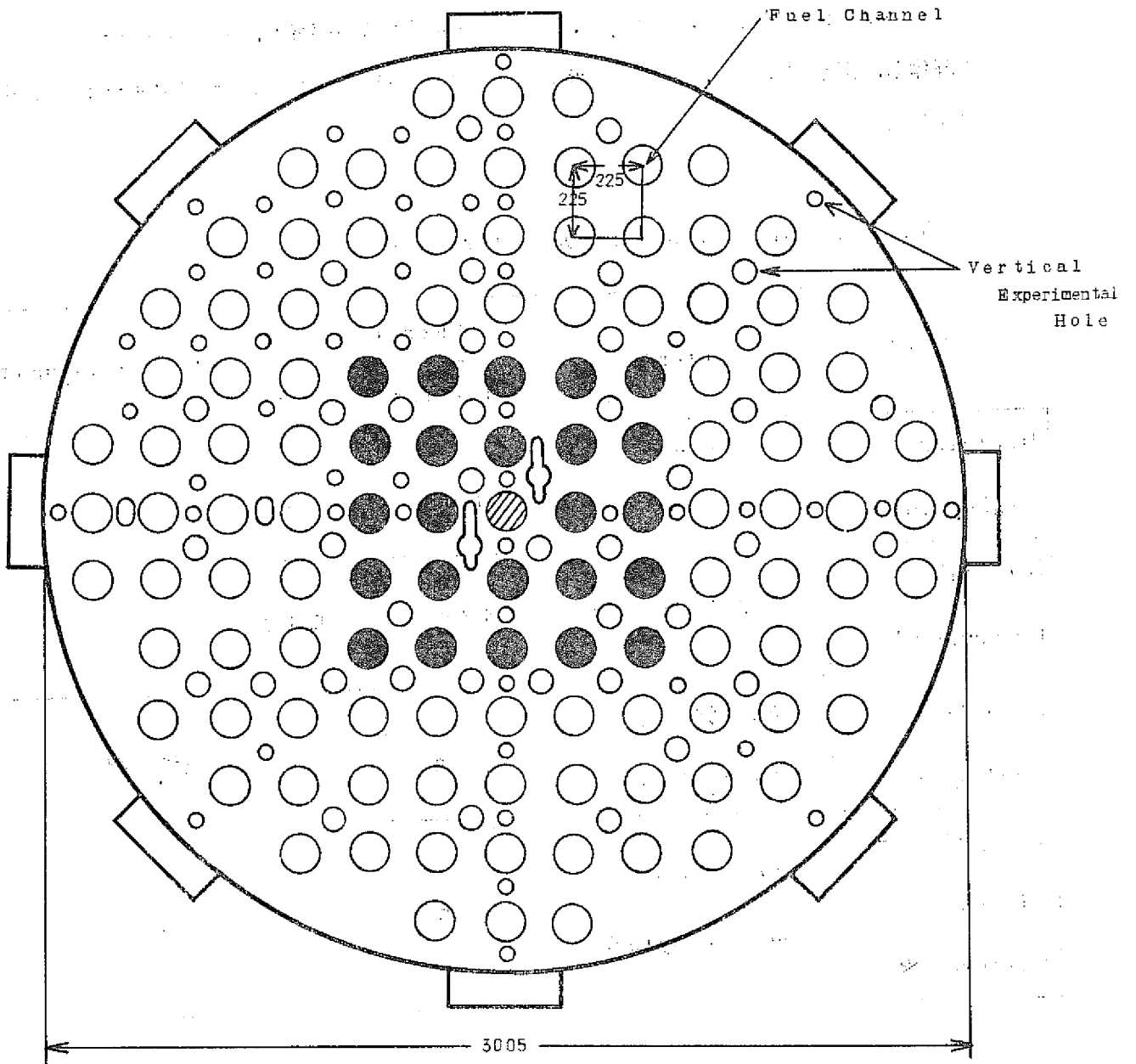
<sup>242</sup>Pu - 0.0636 w/o,

UO<sub>2</sub> : <sup>235</sup>U - 0.711 w/o, <sup>238</sup>U - 99.289 w/o)

(\*\*) 1.203 w/o enriched UO<sub>2</sub>

+ 63.17 w/o H<sub>2</sub>O - 36.82 w/o D<sub>2</sub>O - 0.0092 w/o H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>

# 18.07 w/o H<sub>2</sub>O - 81.91 w/o D<sub>2</sub>O - 0.0215 w/o H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>



Total Number of Fuel Channel:121

- Cluster Consisting of 0.543w/o  $\text{PuO}_2$ - $\text{UO}_2$  mixture rods.
- Cluster Consisting of 1.2w/o  $\text{UO}_2$  rods.
- Cluster Consisting of 0.548w/o  $\text{PuO}_2$ - $\text{UO}_2$  mixture rods (Containing detector foils).

Fig.1 DCA Core Configuration



## 3.2 箔の照射条件

実験に用いた箔の諸元を Table 2 に示す。

これらの箔は Fig.2, Fig.3, に示す燃料棒内に装填され, 照射後グローブボックス内で解体し, 箔を取り出し, 洗浄し, 汚染のないことを確認したあとオープンポート内で測定を開始した。

Table 2 Dimension of Detector Foils

Foils	Contents	Dimension (mm)		Measured Quantity
		Diameter	Thickness	
Depleted Uran-Metal	274 ppm $^{235}\text{U}$	14.8	0.10	$\delta^{28}$ , $\rho^{28}$
Natural Uran-Metal	0.71 W/o $^{235}\text{U}$	14.8	0.12	$\delta^{28}$ ,
Enriched U-Alalloy	89.9 W/o $^{235}\text{U}$ , 18 W/o U-Al	14.8	0.10	$\delta^{25}$ , $\delta_{25}^{49}$
PuO <sub>2</sub> -Poly- ethylene Mixture (*)	36.8 W/o PuO <sub>2</sub> -Polyethylene	14.5	0.11	$\delta^{49}$ , $\delta_{25}^{49}$

(\*) PuO<sub>2</sub> :  $^{238}\text{Pu}$ -0.023 W/o,  $^{239}\text{Pu}$ -90.21 W/o,  
 $^{240}\text{Pu}$ -8.758 W/o,  $^{241}\text{Pu}$ -0.937 W/o,  
 $^{242}\text{Pu}$ -0.073 W/o, Pu/PuO<sub>2</sub>-87.46 W/o,

Number	Parts Name	Material
1	Fuel Pellet	0.54% PuO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub> Mixture
2	Lower End Plug	Zry - 2
3	Shim Board	A 2 P 1
4	Spring	SUS 27WS-B
5	Upper End Plug	Zry-2
6	Clad (1)	Zry-2
7	Middle End Plug (1)	Zry-2
8	Middle End Plug (2)	Zry-2
9	Clad (2)	Zry-2

Fig.2 Separable Experimental Fuel Rod for Foil Irradiation

Number	Parts Name	Material
1	Lower End Plug	Z r y - 2
2	Clad (1)	Z r y - 2
3	PuO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub> Mixture Pellet	0.54 <sup>w/o</sup> PuO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub>
4	Middle End Plug	Z r y - 2
5	Shim Board	A 2 P 1
6	Spring	SUS27WS-B
7	Cadmium Disk	Cd , 0.5 t
8	Al Tape	Al, 0.03 t
9	Foil Cassette	Al, 0.02 t
10	PuO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub> Button	0.54 <sup>w/o</sup> PuO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub> , 2.5 t
11	Cd Ring	0.5 t, Cd
14	Detector Foil	Metal or Alloy
15	Al	Al

Fig 3 Lower Part of Separable Experimental Fuel Rod.  
(Containing Foil Cassettes)

なお、プルトニウム箔 (PuO<sub>2</sub> とポリエチレンの混合物) の場合、箔自身による汚染の防止およびポリエチレンのもろさによる箔の損傷の防止のため、新しいアルミ箔で箔をつつみ、汚染のないことを確認した後オープンポート内で測定を開始した。

また燃料棒内に箔を装填する場合、カセット方式を採用した。<sup>(4)</sup>

Fig 2 に、箔を挿入した分割型燃料棒の図を、Fig 3, に試料を挿入した燃料棒の図を示す。照射はウラン格子の場合と同様に、1KW-75分間照射し、照射後約1100分より照射箔のF.P.のγ線の測定を開始した。また<sup>239</sup>Npのγ線測定は照射後1日目から開始した。照射は2回にわけておこなった。1回は $\delta^{25}$ ,  $\rho^{28}$  や  $\delta^{28}$  を導出するためのもので、劣化ウラン箔と天然ウラン箔の1対をカセットにして充てんした燃料棒を4本中央クラスターに挿入して照射した。もう1回は $\delta^{25}$ ,  $\delta^{49}$  や  $\delta^{49}_{25}$  を導出するためのもので、プルトニウム箔と濃縮ウラン箔の1対をカセットにして充てんした燃料棒を4本用いて照射した。

また各箔のカドミ比を求めるため裸箔とカドミカバー箔とは同じ燃料棒内に高さを20cmはなして燃料ペレット下部先端より40cmのところ裸箔を60cmのところカドミカバー箔をセットした。



### 3.3 放射線の計測方法

計測方法は、核分裂率を測定する場合はウラン箔およびプルトニウム箔、共に同一条件で計測した。プルトニウム炉心の実験においてはプルトニウム燃料ペレット内に箔を挿入し、しかも箔にはプルトニウム箔の取扱いも含まれているため箔の汚染を考慮しなければならない。このためオープンポート内に計測のための装置を設置し計測した。

計測のブロックダイアグラムを核分裂生成物の $\gamma$ 線測定の場合 Fig 4-1に、 $^{239}\text{Np}$ の $\gamma$ 線測定の場合 Fig 4-2に示す。Fig 4-1からわかるように検出器は、オープンポート内に設置し、 $\beta$ - $\gamma$ 同時計数もできるように上部に $\text{CaF}_2$ の $\beta$ 線検出系を、下部に $\text{NaI}$ の $\gamma$ 線検出系を置いた。試料交換は自動試料交換方式で、試料はマガジンラックに最大30個まで格納できるようになっている。オープンポート内には、Fig 4-1の点線で囲んだように検出器、前置増巾器、鉛シールドおよび自動試料交換機までを収納し、それ以後の測定系はケーブルを約15mを使用して隣室に設置した。

自動試料交換機の制御は制御器およびインターフェイスを通じてデータ収集装置により行なった。データ収集装置は積算タイマー、プリセットタイマー、スケーラーおよび紙テープパンチからなり、データはすべて紙テープに出力され、Tosbac-3400の計算機で処理した。

また試料ホルダーは同時計数を行なうため、反コンプトン遮蔽体を用い、他の蛍光体から後方散乱されてくるのを防いでいる。試料ホルダーの図を Fig 5 に示す。なお、検出器と試料の距離はプルトニウム箔が出す強いガンマ線 ( $^{241}\text{Am}$ の低エネルギーガンマ線) によるパイルアップを防ぐため、約7cmほど離れた。付録〔I〕にこの $^{241}\text{Am}$ の生成過程を示す。参考のため、(5), (6), (7)  $^{241}\text{Am}$ の標準線源およびプルトニウム箔中の $^{241}\text{Am}$ のガンマ線スペクトラムならびにプルトニウム箔の照射後約1ヶ月間のガンマ線スペクトラムを付録〔II〕に示す。

Fig 4-2は $^{239}\text{Np}$ の $\gamma$ 線をGe検出器で測定する場合のブロックダイアグラムを示す。図の点線内はオープン・ポート内に設置された測定器を示す。

なお試料交換は自動試料交換機を用い、この制御は、前述したデータ収集装置でおこない、データの出力方法は前述のF.P.の場合と同様である。

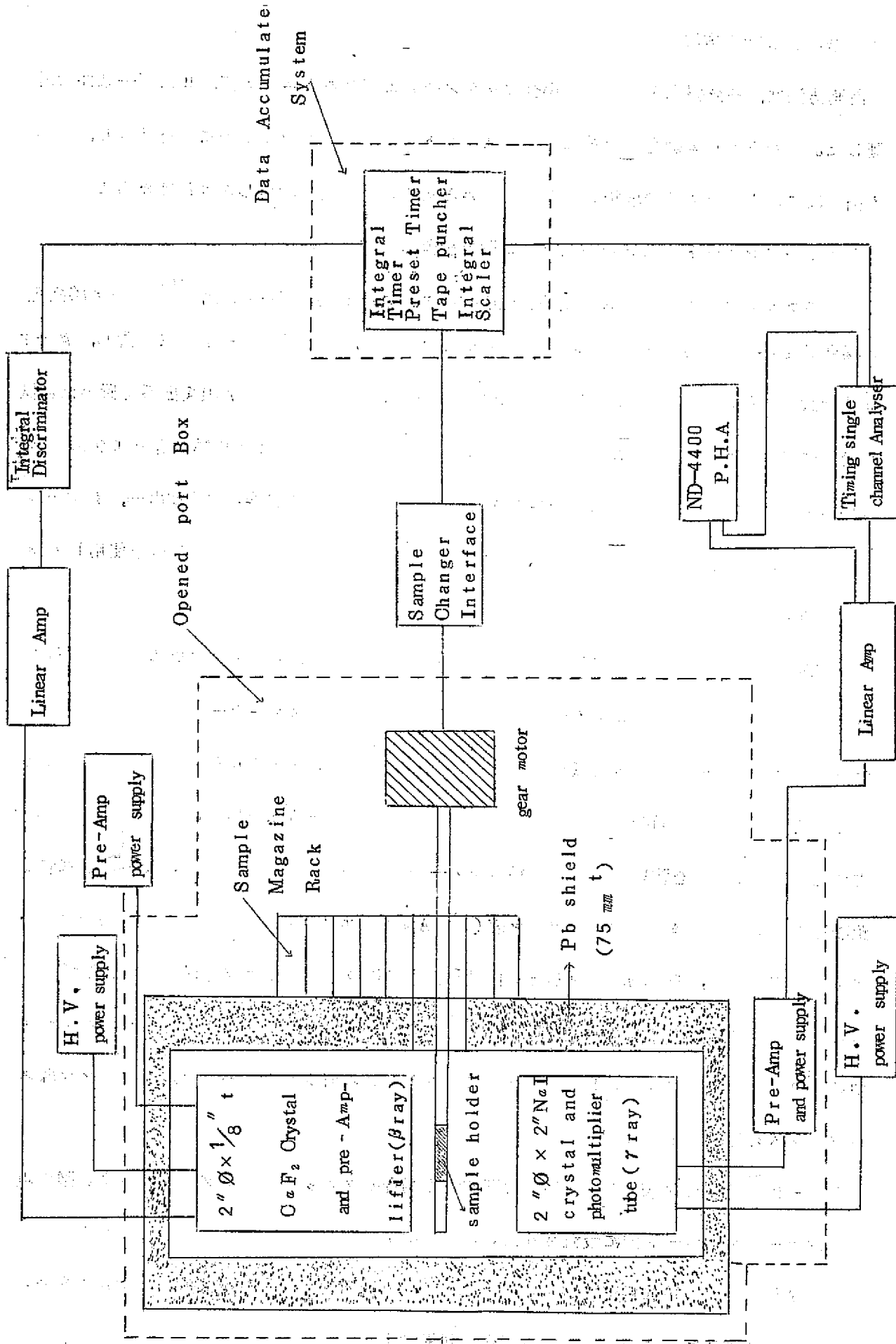


Fig 4-1 Block Diagram of  $\gamma$ -Ray Measurements for Fission Products

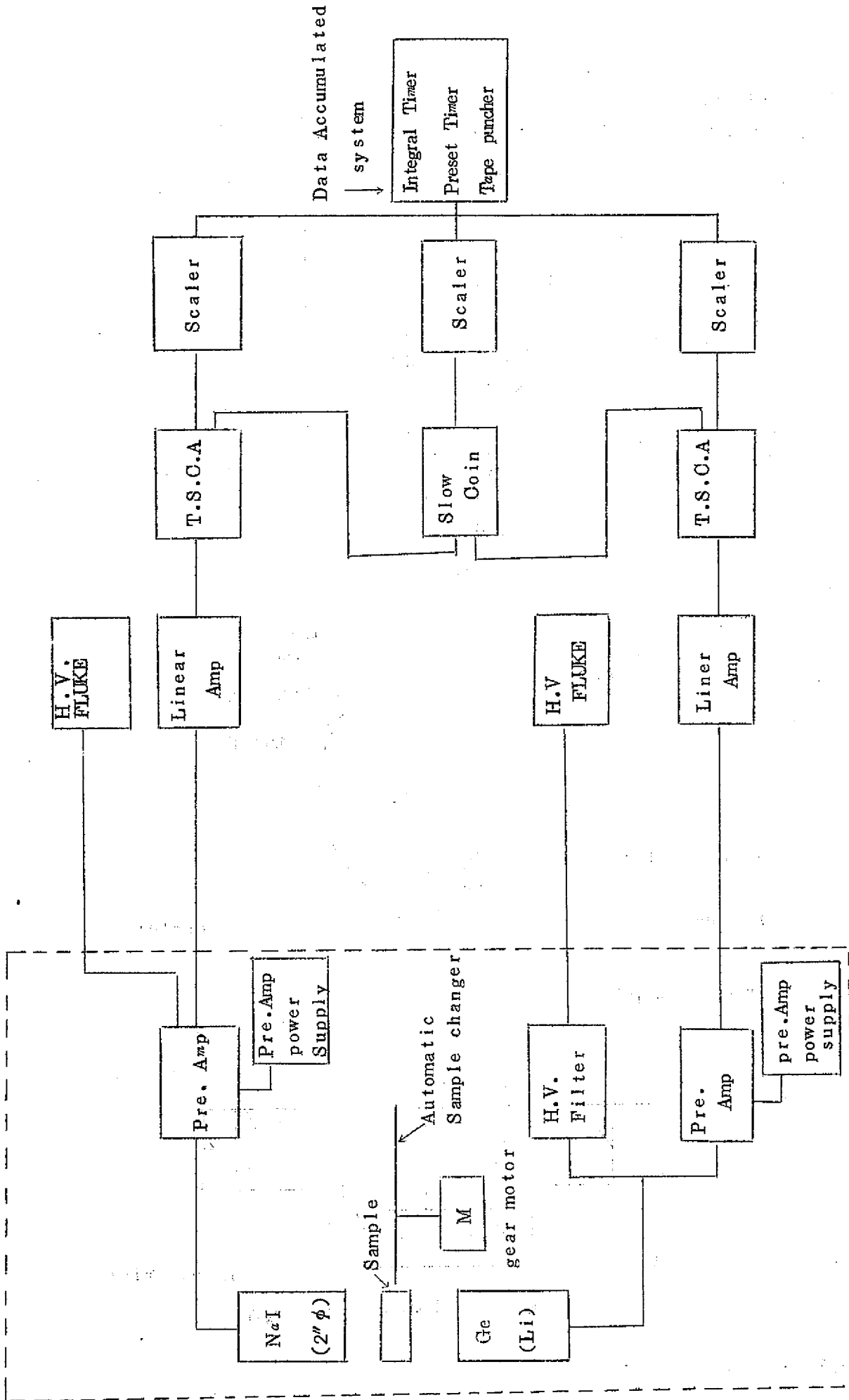


Fig 4--2 Block Diagram of Measurements for <sup>239</sup>NP  $\gamma$  - Rays

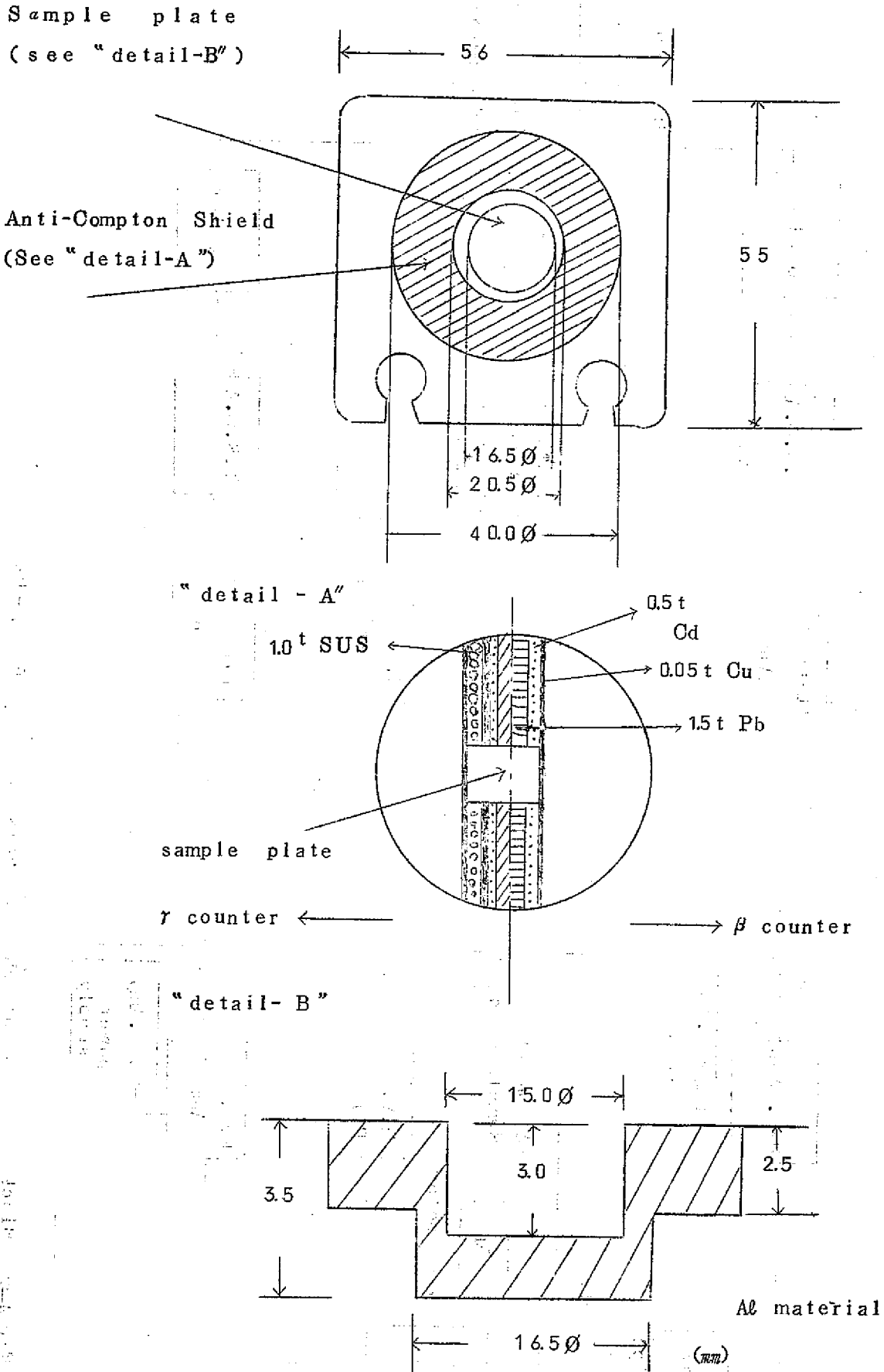


Fig 5 Sample Holder



### 4. 実験結果

Table 3 と Table 4 および Fig. 6~Fig. 9に実験結果を示す。前述したように、これらの結果は格子ピッチ225cmで0.548 PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub>燃料棒を使用した場合でボイド率が0%, 30%, 70%, と100%の4種類の場合である。但し ρ<sup>28</sup>, δ<sup>28</sup> の0%ボイドの値はプルトニウム燃料体が9体装荷の時のものである。

なお Table 3 の cell値は次式より算出した値である。

$$\text{Cell } \delta^{28} \equiv \frac{\sum_i V_i [\int_0^\infty (\Sigma_f \phi)^{28} dE]_i}{\sum_i V_i [\int_0^\infty (\Sigma_f \phi)^{25} dE]_i} \dots\dots\dots(28)$$

$$\text{Cell } \delta^{25} \equiv \frac{\sum_i V_i [\int_{scd}^\infty (\Sigma_f \phi)^{25} dE]_i}{\sum_i V_i [\int_0^{scd} (\Sigma_f \phi)^{25} dE]_i} \dots\dots\dots(29)$$

$$\text{Cell } \delta^{49} \equiv \frac{\sum_i V_i [\int_{scd}^\infty (\Sigma_f \phi)^{49} dE]_i}{\sum_i V_i [\int_0^{scd} (\Sigma_f \phi)^{49} dE]_i} \dots\dots\dots(30)$$

$$\text{Cell } \delta^{49}_{25} \equiv \frac{\sum_i V_i [\int_0^\infty (\Sigma_f \phi)^{49} dE]_i}{\sum_i V_i [\int_0^\infty (\Sigma_f \phi)^{25} dE]_i} \dots\dots\dots(31)$$

$$\text{Cell } \rho^{28} \equiv \frac{\sum_i V_i [\int_{scd}^\infty \sigma_c^{28}(E) \phi(E) dE]_i}{\sum_i V_i [\int_0^{scd} \sigma_c^{28}(E) \phi(E) dE]_i} \dots\dots\dots(32)$$

但し、Sum<sub>i</sub> は燃料第1:第2:第3リングの和を意味し

V<sub>1</sub> = 4    V<sub>2</sub> = 8    V<sub>3</sub> = 16 である。

これらの Cell 値を図示したのが、Fig 10 ~ Fig 14 である。

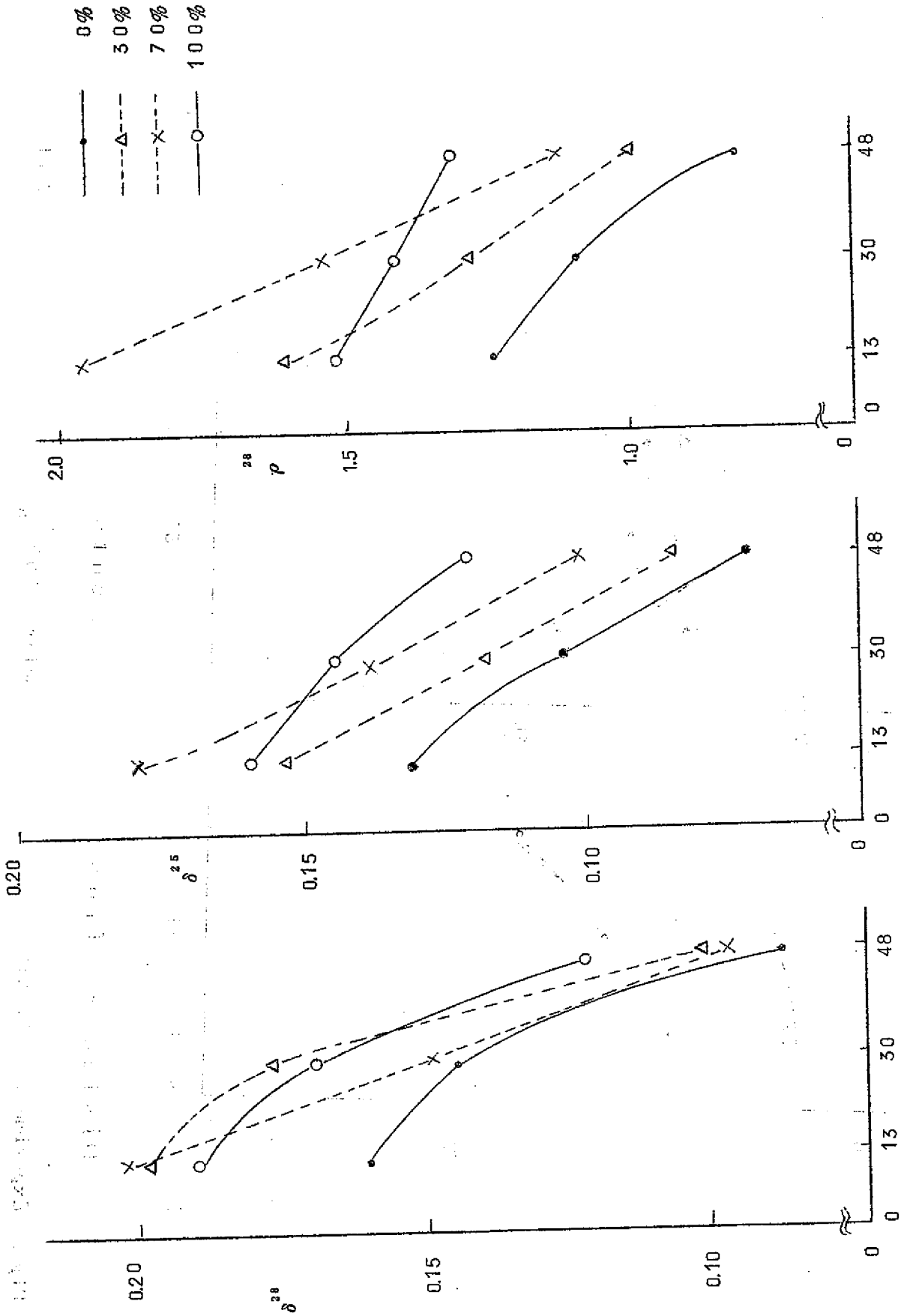
なお参考までに δ<sup>28</sup><sub>cell</sub>, ρ<sup>28</sup><sub>cell</sub>, δ<sup>25</sup><sub>cell</sub> についてはウラン格子で、1.2% , 1.5% 濃縮ウランの場合の結果も同時に図示した。

Table 3 Summary of Experimental Values for Lattice Parameter

Coolant Void Fraction (%)	Fuel Pin Position in Cluster	$\delta^{238}$ ( $\times 10^{-2}$ )	$\delta^{235}$ ( $\times 10^{-2}$ )	$\delta^{49}$ ( $\times 10^{-2}$ )	$\rho^{28}$	$\delta^{49}_{25}$
0	1st (ring)	1.60±0.59	13.2±0.48	88.1±0.32	1.24±0.062	1.31±0.046
	2nd	1.45±0.54	10.4±0.38	7.70±0.28	1.09±0.055	1.21±0.042
	3rd	8.66±0.32	7.05±0.26	5.91±0.21	0.802±0.040	1.23±0.043
	cell	10.7±0.40	8.38±0.30	6.60±0.24	0.909±0.045	1.23±0.043
30	1st	19.9±0.74	15.4±0.55	10.1±0.36	1.60±0.080	1.32±0.046
	2nd	17.6±0.65	11.7±0.42	8.11±0.29	1.28±0.064	1.27±0.044
	3rd	10.1±0.37	8.40±0.30	5.85±0.21	0.982±0.049	1.29±0.045
	cell	12.8±0.47	9.78±0.35	6.76±0.24	1.11±0.056	1.29±0.045
70	1st	20.2±0.75	17.9±0.64	10.9±0.39	1.95±0.098	1.07±0.037
	2nd	14.7±0.54	13.8±0.50	9.16±0.33	1.53±0.077	1.10±0.039
	3rd	9.55±0.35	9.98±0.36	7.97±0.29	1.11±0.056	1.08±0.038
	cell	11.8±0.44	11.6±0.42	8.53±0.31	1.28±0.064	1.08±0.038
100	1st	19.0±0.70	15.9±0.57	11.0±0.40	1.52±0.076	0.921±0.032
	2nd	16.9±0.63	14.5±0.52	10.7±0.39	1.41±0.071	0.970±0.034
	3rd	12.1±0.45	11.9±0.43	8.81±0.32	1.30±0.064	0.970±0.034
	cell	14.0±0.52	12.9±0.46	9.49±0.34	1.33±0.067	0.963±0.034

Table 4 Summary of Experimental Values for Reaction Rate Distribution.

Coolant Void Fraction (%)	Fuel Pin Position in the Cluster	U-238	U-235	Fission	U-238 Capture	Pu-Fissile Fission		
		Fast Fission	Epi-cd Fission	Sub-Cd Fission	Epi-Cd Fission	Sub-Cd Capture	Epi-Cd Fission	Sub-Cd Fission
0	1st (ring)	1.00	0.132	1.00	1.24	1.00	0.088	1.00
	2nd	1.12	0.136	1.31	1.33	1.22	0.091	1.18
	3rd	0.968	0.133	1.89	1.43	1.79	0.102	1.73
30	1st	1.00	0.154	1.00	1.60	1.00	0.101	1.00
	2nd	1.13	0.155	1.32	1.64	1.29	0.102	1.26
	3rd	0.919	0.162	1.93	1.80	1.84	0.108	1.85
70	1st	1.00	0.179	1.00	1.95	1.00	0.109	1.00
	2nd	1.02	0.186	1.34	1.97	1.29	0.125	1.37
	3rd	0.859	0.191	1.91	2.18	1.97	0.147	1.84
100	1st	1.00	0.159	1.00	1.52	1.00	0.111	1.00
	2nd	0.991	0.163	1.13	1.58	1.12	0.126	1.16
	3rd	0.958	0.188	1.55	1.94	1.50	0.143	1.60



Distance from Gluster Center (mm)

Fig 6 Experimental Results of Lattice Parameter (0.54S% PuO<sub>2</sub> - UO<sub>2</sub> mixture fuel)

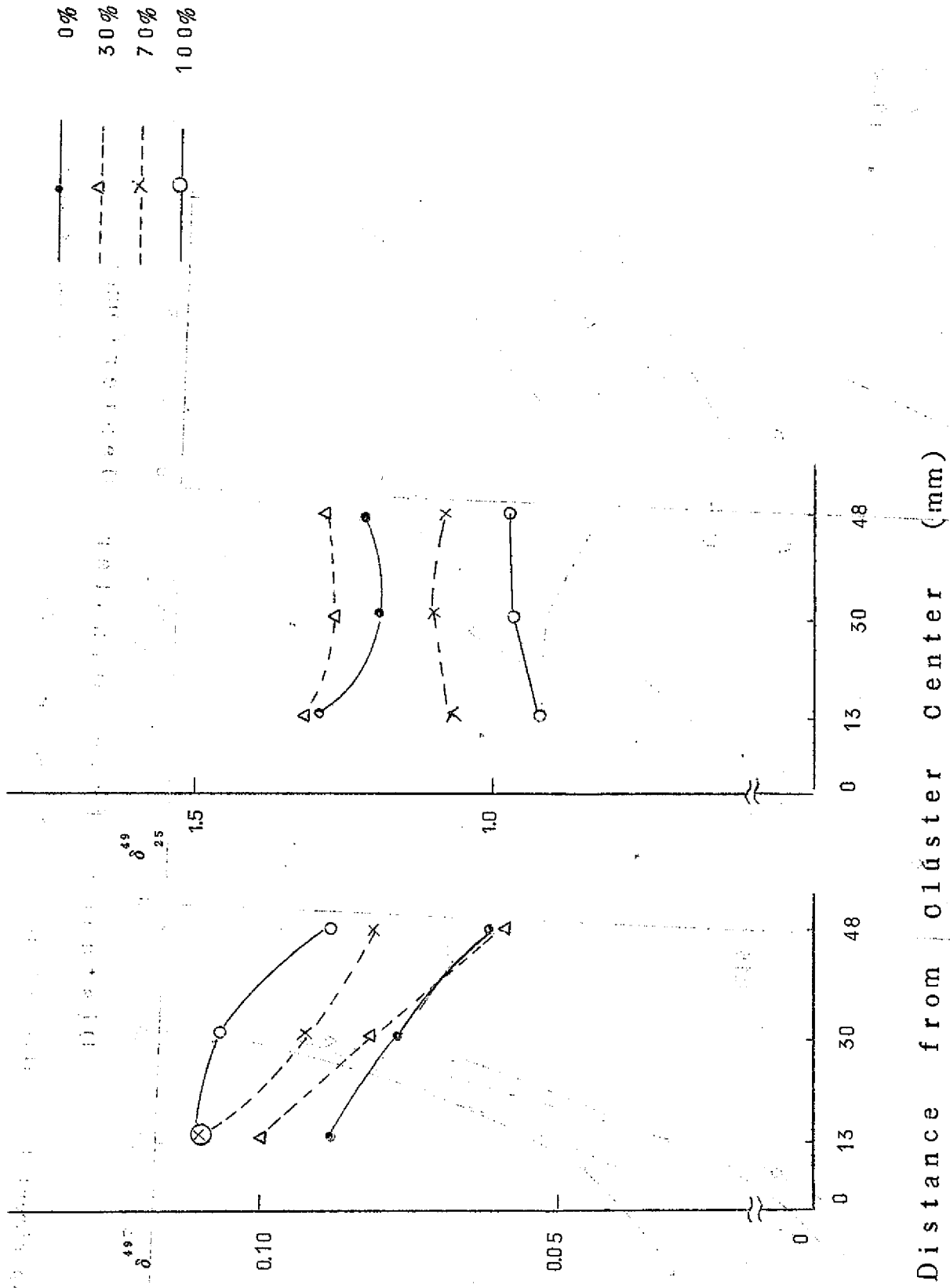


Fig 7 Experimental Results of Lattice Parameter (0.54 <sup>w</sup>/<sub>s</sub> PuO<sub>2</sub> - UO<sub>2</sub> mixture fuel)

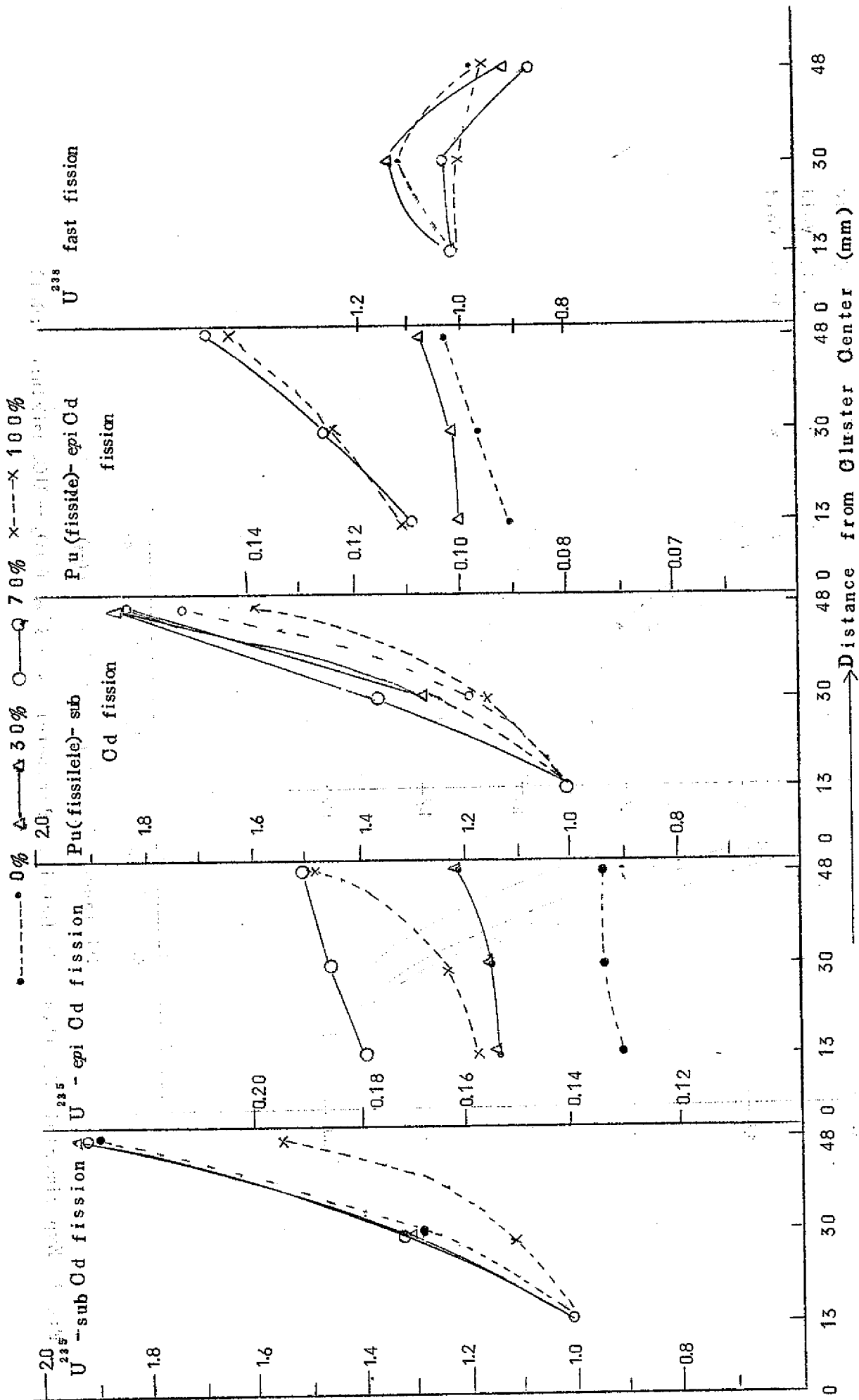


Fig 8 Experimental Results of Reaction Rate Distribution (0.548%  $PuO_2$  -  $UO_2$  mixture fuel)

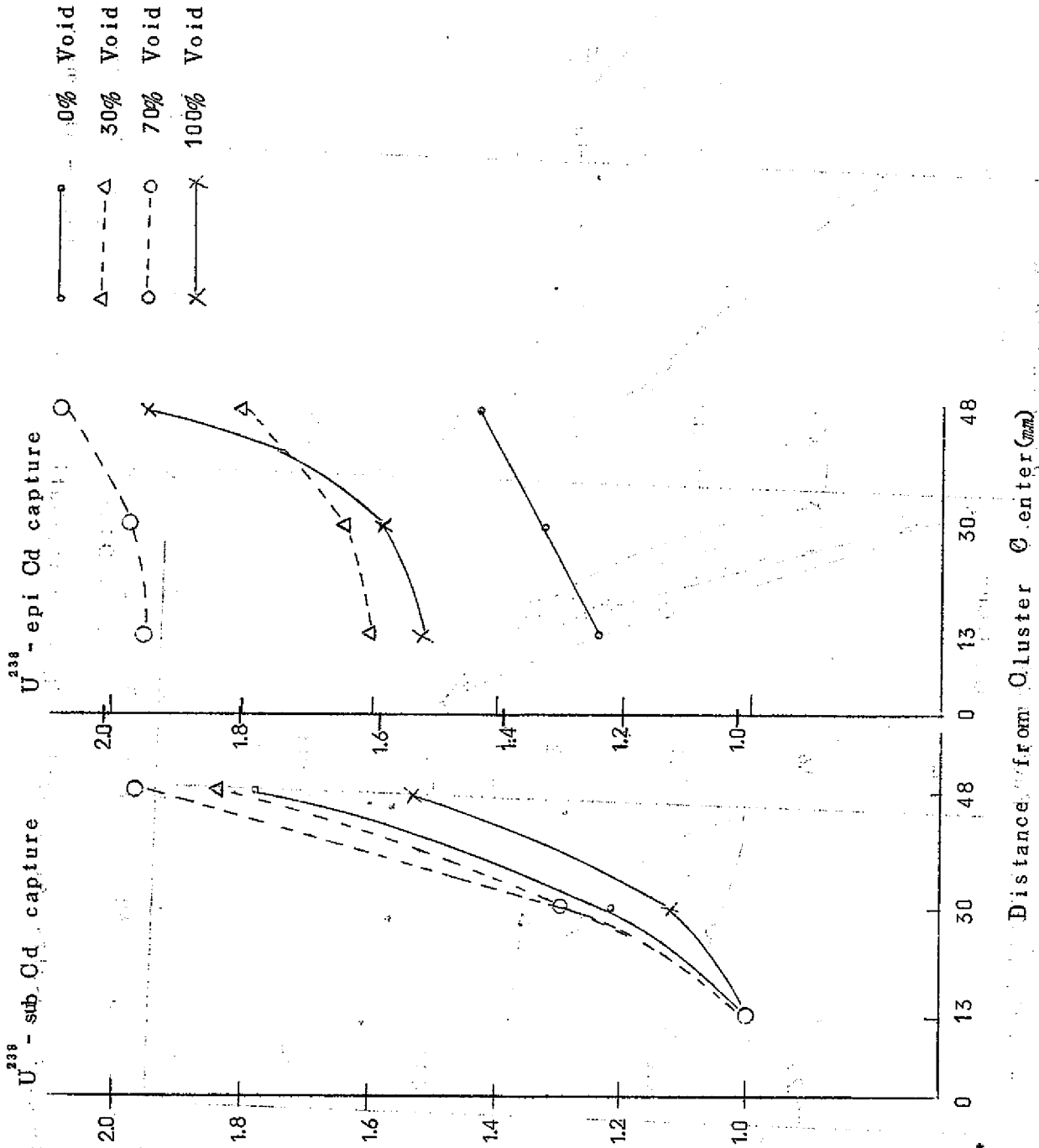


Fig 9 Experimental Results of Lattice Parameter (0.54S% PuO<sub>2</sub> - UO<sub>2</sub> mixture fuel)

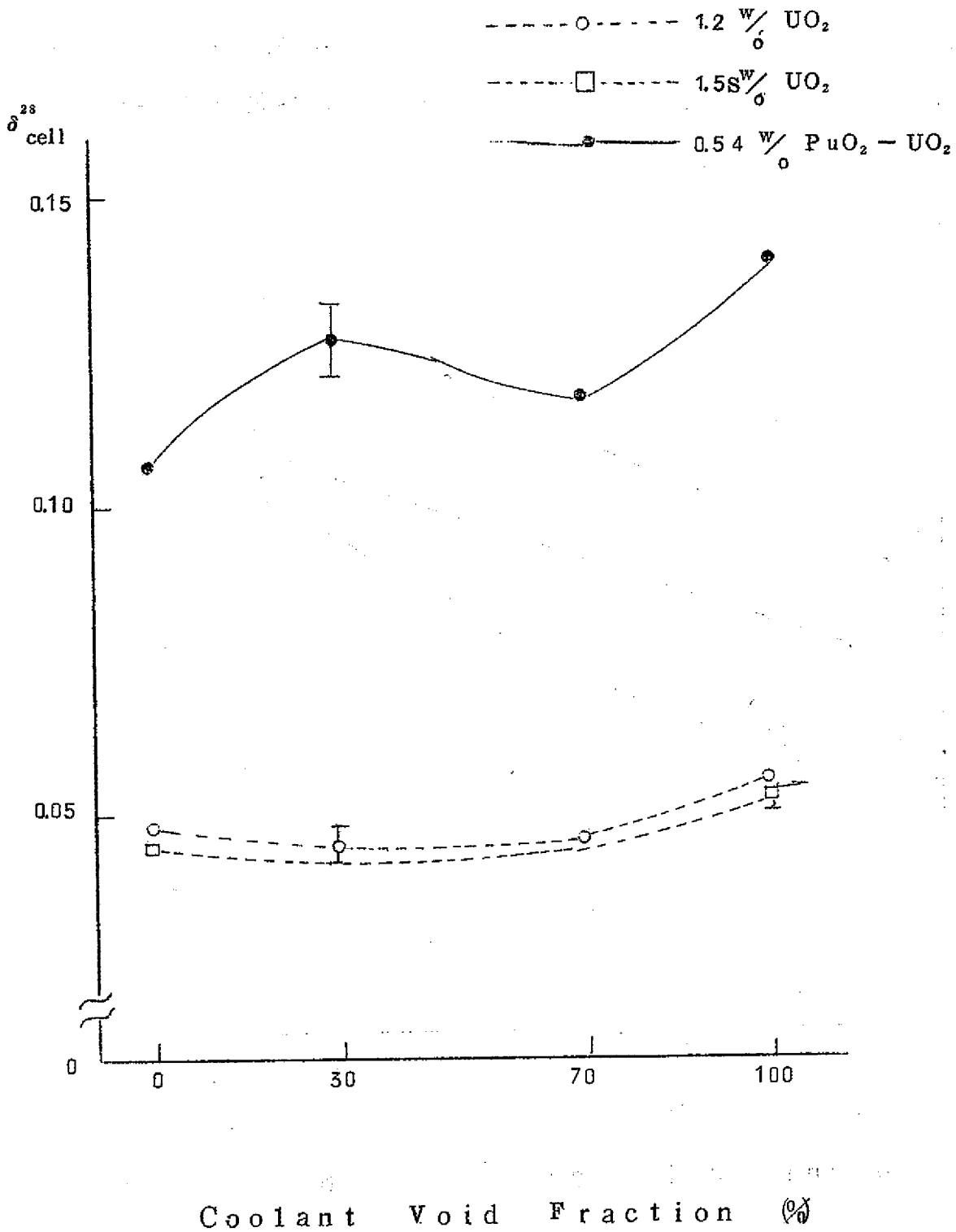
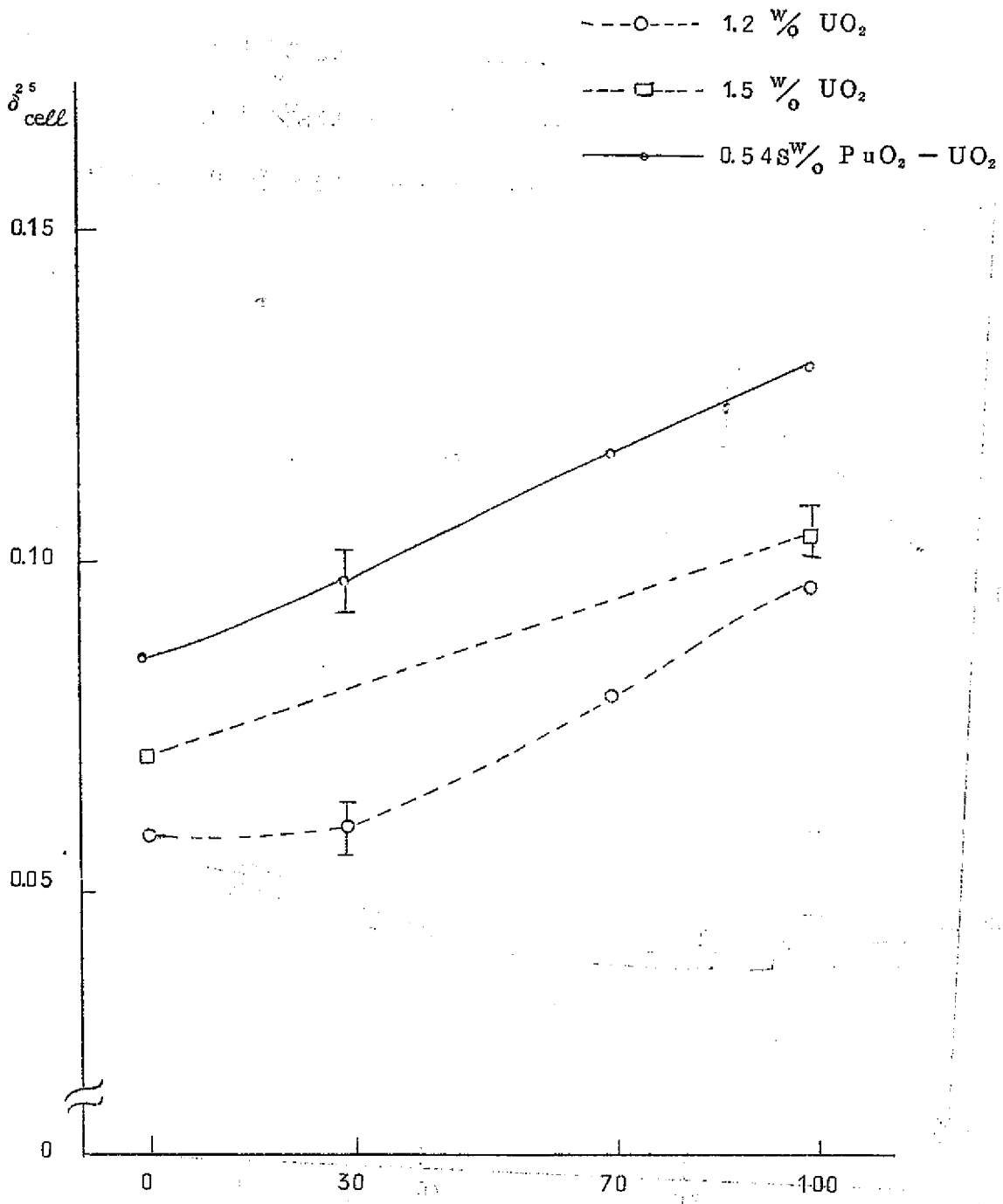


Fig 10 Comparison of Experimental Results of  $\delta_{cell}^{28}$  between  $PuO_2 - UO_2$  Core and  $UO_2$  Core



Coolant void fraction (%)

Fig 11 Comparison of Experimental Results of  $\beta_{cell}^{25}$  between PuO<sub>2</sub> - UO<sub>2</sub> Core and UO<sub>2</sub> Core



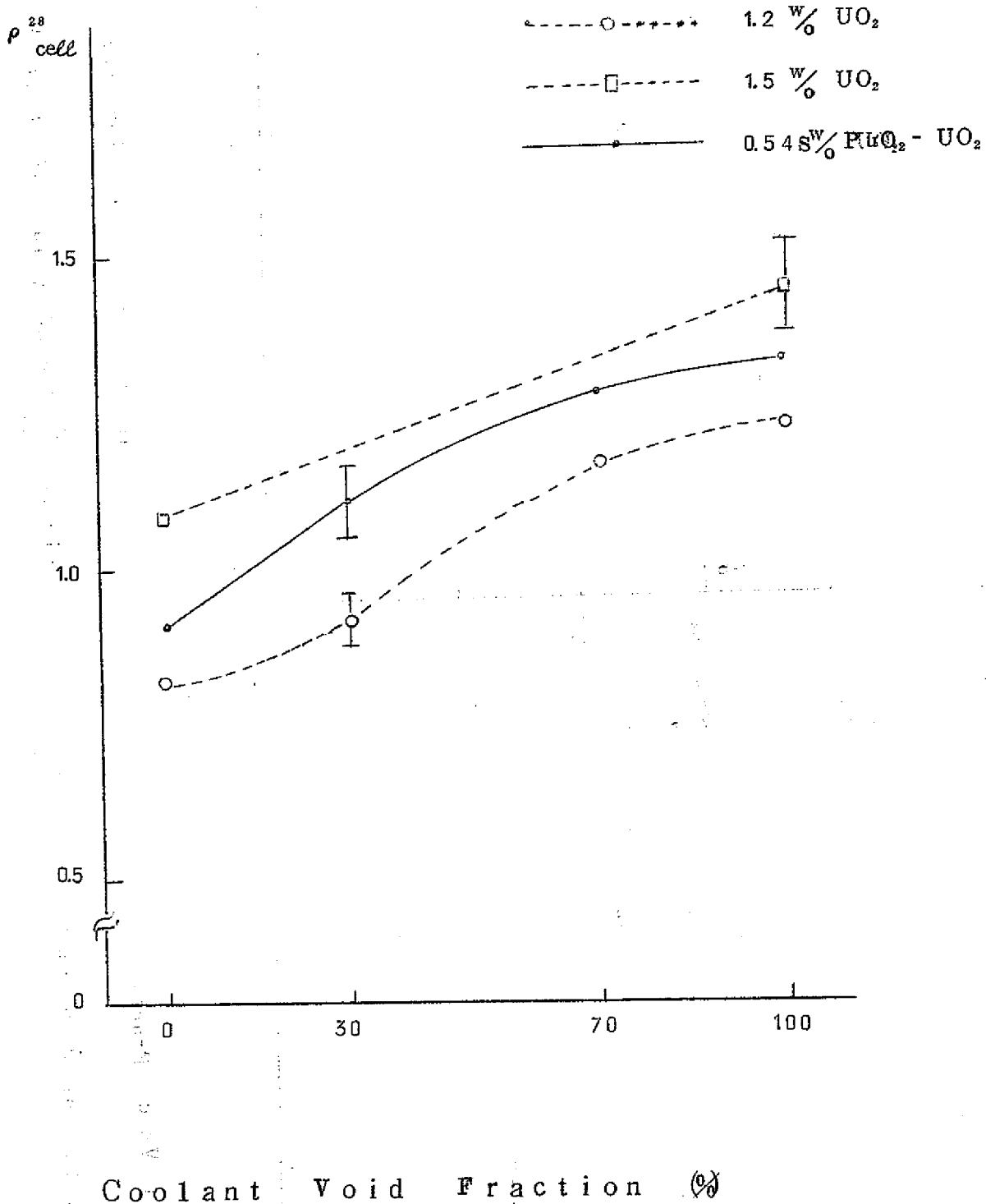


Fig 12 Comparison of Experimental Results of  $P_{cell}^{28}$  between  $PuO_2 - UO_2$  Core and  $UO_2$  Core

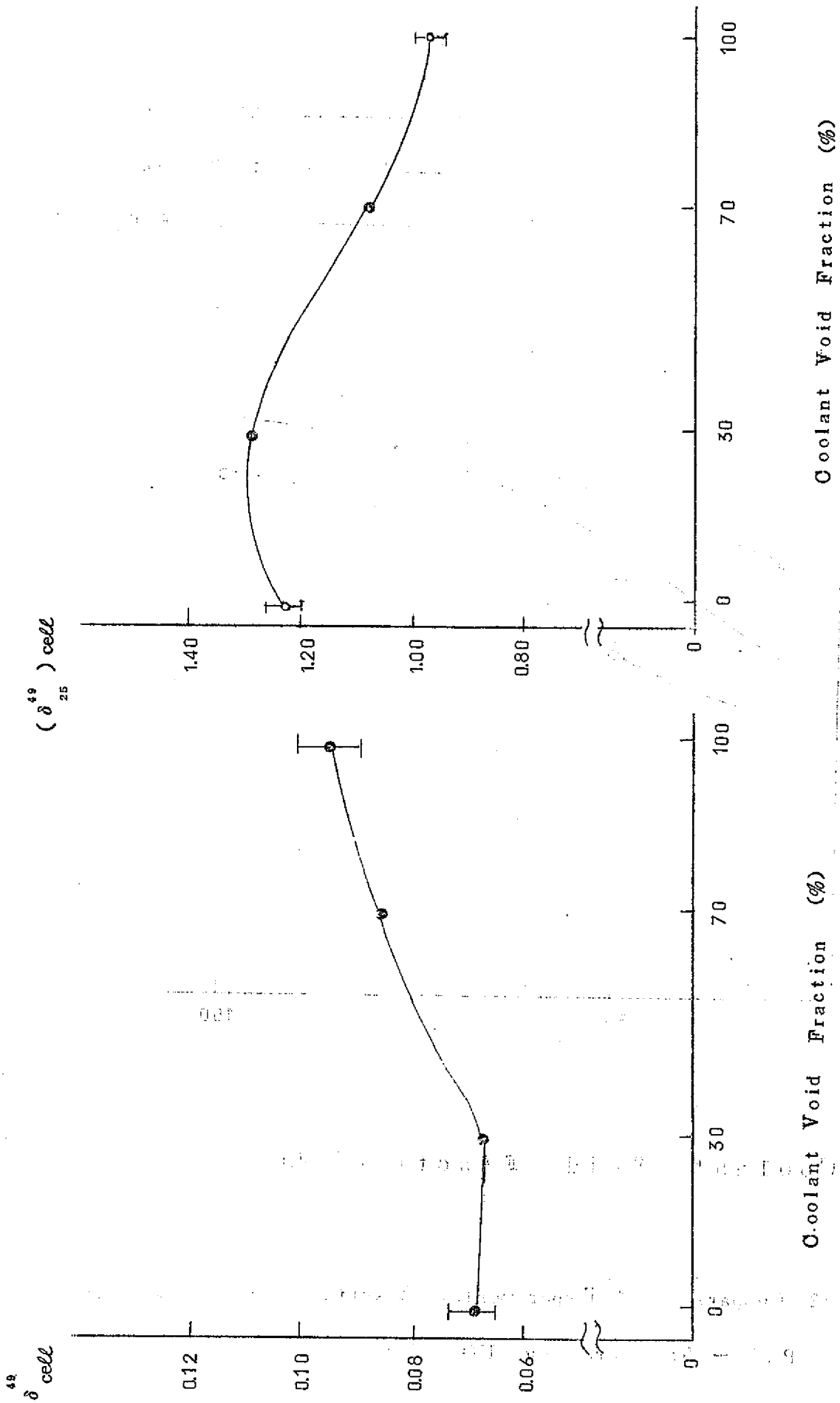


Fig 14 ( $\delta_{25}^{49}$ ) cell Value of 0.54.S PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> Core

Fig 13  $\delta_{cell}^{49}$  Value of 0.54S PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> Core

なお Table 3 の  $\delta_{25}^{49}$  は(19)式から算出した値である。(20)式を用いた今回の実験は30%ボイドおよび70%ボイドのDCAでの照射と同時に、それぞれ立教大学の熱中性子柱(黒鉛)で照射した。その結果を Table 5 に示す。

但し、0%ボイドおよび100%ボイドの場合、DCAでの照射と同時に熱中性子柱での照射をおこなわなかったため今回は30%ボイドおよび70%ボイドのデータだけにとどめた。Tab.3とTab.5より両者は非常によい一致を示している。

次に Tab.6 に P(t)関数の結果を示す。本実験では P(t)関数は実験毎に求めた。前述したように P(t)関数は熱中性子炉の場合スペクトル依存は殆んどなく、従って Tab.6 の P(t)関数の平均値を求めると、ウラン箔の場合  $1.31 \pm 0.030$ 、プルトニウム箔の場合  $1.24 \pm 0.025$  となる。

Table 5 Measured Value of  $\delta_{25}^{49}$  with Thermal Column Data

Position Void Fraction	$\delta_{25}^{49}$			
	1st Ring	2nd Ring	3rd Ring	Cell Value
30 (%)	$1.34 \pm 0.047$	$1.29 \pm 0.045$	$1.31 \pm 0.046$	$1.31 \pm 0.046$
70	$1.09 \pm 0.038$	$1.13 \pm 0.040$	$1.10 \pm 0.039$	$1.11 \pm 0.039$

Table 6 Measured Value of P(t) function

Coolant Void Fraction (%)	0	30	70	100
$P(t)$ Value $\mu(t)^{25} / \mu(t)^{28}$	$1.27 \pm 0.029$	$1.24 \pm 0.029$	$1.44 \pm 0.033$	$1.28 \pm 0.029$
$P_{49}(t) \equiv \mu(t)^{25} / \mu(t)^{29}$	$1.15 \pm 0.023$	$1.26 \pm 0.026$	$1.26 \pm 0.025$	$1.27 \pm 0.019$

## 5. 考察

### 5.1 測定精度の評価

#### (1) カドミカバーが各箔におよぼす影響

UO<sub>2</sub> 格子で  $\delta^{25}$  を測定した場合カドミカバーと UO<sub>2</sub> ボタンが U-235 の熱外核分裂率にどれだけ影響をおよぼすかを明らかにした。(8)

その結果を Fig 15 に示す。Fig 15 から  $\text{PuO}_2$  格子の場合、カドミの量が B 点で表わせるので、カドミがない場合 (A 点) との U-235 の熱外核分裂率の比は次の値となる。

$$\frac{A}{B} = 1.138 \pm 0.024 \quad \dots\dots\dots(28)$$

従って、カドミカバーの影響は燃料ペレットボタンの影響と相殺しあう。

$\text{PuO}_2 - \text{UO}_2$  格子で燃料ペレットボタンおよびカドミカバーが U-235 の熱外核分裂率にどれ位影響するかを示したのが Tab.7 である。

Tab.7 に 10.0% ボイドの場合の U-235 の核分裂率のカドミ比を示す。この場合、カドミカバー内にボタンを挿入した場合としない場合とを比較し、ボタンを挿入しない場合は、カドミによるひずみの補正因子を乗じると、ボタンを挿入した場合と一致する。

従って  $\text{UO}_2$  格子と同様ボタンとカドミの効果が  $\text{PuO}_2 - \text{UO}_2$  格子の場合も同じとみなすことができる。

しかし、今回の実験値はウラン格子と同様に  $\delta^{25}$  は濃縮ウラン箔のカドミ比より求めた。  
 $^{239}\text{Pu}$  のカドミ比も同様な補正因子を用いて算出した。

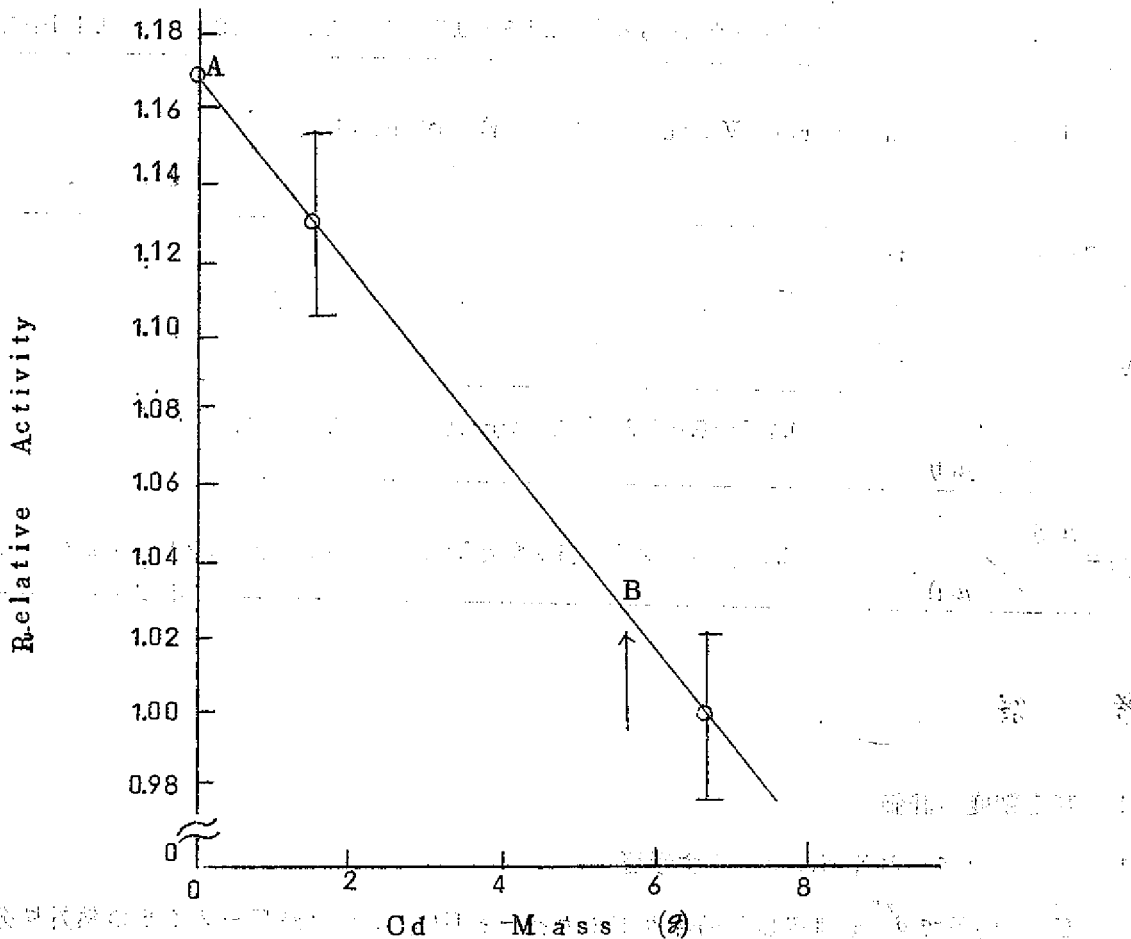


Fig 15 U-235 Epi-Cd Fission Activity as a Function of Cd Mass

Tab.7 Cd Cover Effects for <sup>235</sup>U Fission Rate

Lattice Pitch (cm)	Fuel Enrichment (w/o PuO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub> mixture)	Coolant Void Fraction (%)	Region in Cluster	U-235 Fission Cd Ratio	Supplement
22.5	Q54S	100	1st	7.12	detector foils : Natural Uran metal and Depleted Uran metal, foil arrangement : fuel pellet button contained
			2nd	7.98	
			3rd	9.31	
			1st	7.49 (8.45)	detector foils : enriched Uran - Aluminium alloy, foil arrangement : no fuel pellet button contained, blanket indicates Cd cover effect is not corrected
			2nd	7.82 (8.83)	
			3rd	9.52 (10.7)	

いっぽうU-238の共鳴捕獲率の測定の場合におけるカドミカバーおよびボタンの影響は、ウラン格子<sup>(10), (11)</sup>の場合と同様に考慮した。しかしカドミのまきかたがウラン格子の場合と異なるので、今後の問題点である。

またU-238箔による箔中のγ線源分布の差から生じる裸箔およびカドミカバー箔によるγ線検出効率の差は同じだとしてρ<sup>28</sup>を算出した。

(2) Pu箔のγ線スペクトルの影響

本実験ではウラン箔およびプルトニウム箔のF.P.のγ線測定のエネルギーは720 keV以上とした。このエネルギーはウラン箔の時と同じ値であるがPu箔の場合もU箔とほぼ同じγ線スペクトルを示しこのエネルギー設定は問題ないと思われる。付録〔II〕にPu箔による照射後のγ線スペクトルを示す。

しかし、エネルギーの低い100 keV近傍では、PuおよびAmのγ線、X線が多量に放出され、これらのパイルアップの効果がかなりあるので、実際の測定は試料と検出器は約7 cmほどはなしてパイルアップの効果をさけた。<sup>(12)</sup>

またδ<sup>49</sup><sub>26</sub>を求める時にU箔と同様Pu箔にも<sup>140</sup>Ba→<sup>140</sup>Laの放射平衡によるγ線を測定したが、Fig.16に示されるようにPu-239についても質量数140のF.P.は高い収率を示し、高速および熱中性子による変化が少ないので、今回のPu箔の<sup>140</sup>Ba→<sup>140</sup>Laの測定が妥当だといえる。

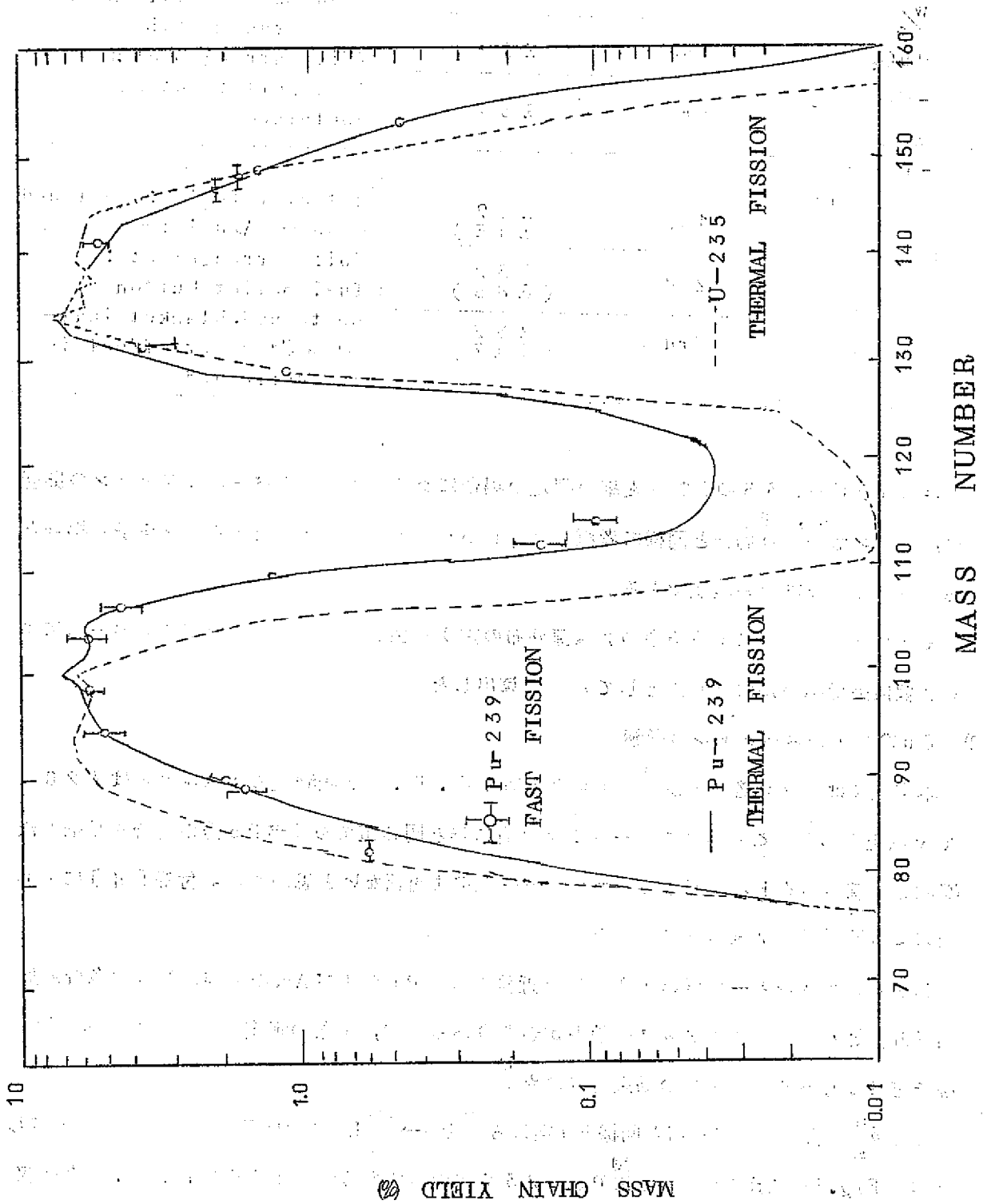


Fig 16 Fission Product Mass Chain Yields

(3)  $\text{PuO}_2$  - ポリエチレン混合箔のポリエチレンの影響

$\text{PuO}_2$  - ポリエチレン混合箔は燃料ベレットと同じ組成の  $\text{PuO}_2$  粉末 0.67 g, ポリエチレン 1 g, シリコングリース 0.15 g の割合で混合したもので、東海事業所で製作した。この製作過程を付録〔Ⅲ〕に示す。

製品は、直径 1.45 mm  $\phi$ , 厚み 0.11 mm になった。

また、ポリエチレンは、エチレン ( $\text{C}_2\text{H}_4$ ) の重合体で、中性子減速効果の大きい水素が含まれているので、この効果を評価する必要がある。一般に減速物質が含まれると箔の放射化量が増大する。この増大する量は裸箔およびカドミカバー箔ではその割合として差異がでる。従って裸箔およびカドミカバー箔の各々について、この補正係数を求める必要がある。

しかし Table 7 からわかるように U-235 のカドミ比は  $\text{PuO}_2$  - ポリエチレン混合箔を挿入した場合と、天然ウラン箔 - 劣化ウラン箔の 1 対から導出した場合と一致しているので、これらのデータからはポリエチレンの減速効果は U-235 の核分裂率のカドミ比にした場合表面にでてきていないようである。しかし、プルトニウム箔自身の裸箔およびカドミカバー箔について、この効果を検討する必要がある。今回はプルトニウム箔についてもウラン箔と同様にこの効果がカドミ比にした場合同一とした。今後の課題である。

## 5.2 総合誤差

(1)  $\delta^{28}$  の精度

$P(t)$  の誤差は  $L_{\alpha} - 140$  の生成量の誤差を含めて  $\pm 2.3\%$ , 燃料クラスタ内の最外層の燃料棒の 2 点での測定値のばらつきによる誤差  $\pm 2.9\%$ , 総合誤差として  $\pm 3.7\%$  で、これはウラン格子とほぼ同じ精度である。

(2)  $\delta^{25}$  の誤差

カドミによるひずみの補正  $\pm 2.1\%$ , 燃料棒の最外層の 2 点での測定値のばらつきによる誤差  $\pm 2.9\%$ , 総合誤差として、 $\pm 3.6\%$  でウラン格子とほぼ同じ精度である。

(3)  $\rho^{28}$  の誤差

燃料棒の最外層の 2 点での測定値のばらつきによる誤差  $\pm 1\%$ , カドミによるひずみの補正を含めた系統誤差として約  $\pm 5\%$ , 総合誤差として  $\pm 5\%$  で、これはウラン格子とほぼ同じ精度である。

(4)  $\delta^{49}$  の誤差

カドミのひずみの補正  $\pm 2.1\%$ , 測定値のばらつきによる誤差  $\pm 2.9\%$ , 総合誤差として  $\pm 3.6\%$  とした。

(5)  $\delta_{25}^{49}$  の誤差

$P_{49}(t)$  の誤差  $\pm 2\%$ , 測定値のばらつきによる誤差  $\pm 2.9\%$ , 総合誤差として  $\pm 3.5\%$  とした。

## 6. 結 論

これまでの実験結果から次のことがわかった。

- 1)  $\delta_{cell}^{28}$  はボイド率の増加と共に、あまり変化しないが100%ボイドでは少し大きな値となっている。これは、中間ボイド率はエピサーマル領域の $\Sigma_s$ が軽水の密度がほぼ $0.3 \text{ gm/cm}^3$  (70%ボイド),  $0.7 \text{ gm/cm}^3$  (30%ボイド)の場合に相当しているため、重水と軽水との高速領域での散乱断面積の差はあまりないので、中間ボイド率でも $\delta_{cell}^{28}$ は0%ボイドとの値とあまりかわらないことを意味している。いつほう100%ボイドでは減速材がないため大きな値となっている。

またウラン格子と比較した場合U-235の個数密度が約半分になっているため $\delta_{cell}^{28}$ の値は約2倍になっている。

- 2)  $\rho_{cell}^{28}$  はボイド率の増加と共にほぼ単調に増加している。これはボイド率の増加と共に共鳴中性子束が熱中性子束に比べ相対的に多くなっていくことを意味している。

また、ウラン格子と比べると、 $\rho_{cell}^{28}$ の値は1.2% $\text{UO}_2$ 格子と1.5% $\text{UO}_2$ 格子との値の間にあり、しかも1.5% $\text{UO}_2$ 格子での値に近い値を示している。 $\rho_{cell}^{28}$ は燃料濃縮度にほぼ比例することから、0.54S  $\text{PuO}_2$ - $\text{UO}_2$ 格子は $\rho_{cell}^{28}$ の値からみると1.5% $\text{UO}_2$ 格子相当に近い格子であることを意味している。

- 3)  $\delta_{cell}^{25}$  も  $\rho_{cell}^{28}$  と同様ボイド率の増加と共に単調増大している。これは冷却材のろう失と共に熱外中性子束が熱中性子束に比べ相対的に多くなっていくことを意味している。

また $\text{UO}_2$ 格子での値と比べると、 $\text{PuO}_2$ - $\text{UO}_2$ 格子での値は1.5% $\text{UO}_2$ 格子の値よりもより大きな値を示している。

これは、本実験の炉心の燃料ペレットは天然ウランにスタンダードグレード級のプルトニウムを0.54%富化したもので、2,200m/secの値で核分裂量からすればウラン換算で約1.0w/o濃縮相当になるが、熱中性子の吸収量からすれば約1.4w/o濃縮相当になる。従って、それだけ熱中性子束が熱外中性子束に比べ少なくなり、 $\delta_{cell}^{25}$ の値は1.5w/oUの値に近い値を示しているが実験はプルトニウムの0.3eVの大きな共鳴吸収のため吸収量は更にふえ、1.5w/oUより大きな値を示している。

- 4) いつほう $\delta_{cell}^{49}$ の値はボイド率の増加と共にゆるやかにふえている。これはプルトニウムの0.3eVの大きな共鳴のため冷却材の効果が相対的に小さいことを示している。なお、カドミ切断エネルギーは0.3eVより大きな値である。

- 5) ( $\delta_{25}^{49}$ ) $_{cell}$ の値は中間ボイドでピークをもつ複雑な変化を示している。

すなわち0%ボイドでは軽水の減速効果が大きく、従ってU-235の核分裂の割合がPu-239の核分裂の割合より多くなるが、ボイドがふえるにつれ減速効果が少なくなり、U-235の核分裂の割合に比べPu-239の核分裂の割合が多くなる。しかし100%ボイドになると中間ボイドよりU-235の核分裂の割合がPu-239の核分裂の割合より多くなっている。

これは次のことを意味している。



ボイド率が増大するにつれ、減速がおこなわれにくくなり、従ってスペクトルが硬くなりプルトニウムの0.3 eV近傍のスペクトルのひずみが相対的に大きくなり従って( $\delta_{25}^{49}$ ) cell が小さくなる。

## 7. 謝 辞

本実験に使用した照射箔入り下部燃料の製作にあたり、東海事業所プルトニウム燃料部の安久津部長、川島課長、鈴木係長、横沢班長、肥田野氏、その他大勢の方々に多大な御協力をいただきました。

PuO<sub>2</sub> - ポリエチレン混合箔の製作をして下さった同じくプルトニウム燃料部の品質管理課の三浦、宮原両氏をはじめ他の人々に心から感謝いたします。

また本実験の遂行にあたり多大な御尽力を下さった坂田肇前室長に深く感謝します。

さらに本実験の途中まで御助力下さった石井愛典(現在FBR)、遠藤千秋(現在ATR本部) 広田栄雄(現在ATR本部)、村津和雄(現在関西電力)、卜部昇(現在和知商事KK)、飯島一敬の各氏に厚く御礼申し上げます。

最後に本文全体の検討および実験に多大な貢献をして下さった主任研究員八谷雄喜氏に感謝します。

また有益なコメントを下さった宮脇良夫室長に感謝します。

## 8. 参考文献

- (1) WESTCOTT, C.H.: CRBP-960 (1960)
- (2) MEEK, M.E., RIDER, B.F.: APED-5398-A (1968)
- (3) R. Dirckx et al.: Journal of nuclear energy 25, (1971)85~89
- (4) NAKAMURA, Y., MIYAWAKI, Y., SASAO, N.  
HACHIYA, Y., and SHIMAMURA, A.: J. Nucl. science and Technology, 9, 5, 277~280 (1972)
- (5) C. MICHEL LEDERER, et al.: "Table of Isotopes" Sixth Edition (1968)
- (6) 村田, 他: JAERI-memo 2279 (1966)
- (7) PUTZIER, E.A.: REP-795, UC-41, HEALTH AND SAFETY, TID 4500 (Dec, 1966)
- (8) 福村, 他: SN941 73-05 (1973年 2月)
- (9) 坂田, 他: SN943 71-13 (1971年12月)
- (10) 仁紫, 他: SN941 72-28 (1972年12月)



付録〔 I 〕 プルトニウム同位体の崩壊形式

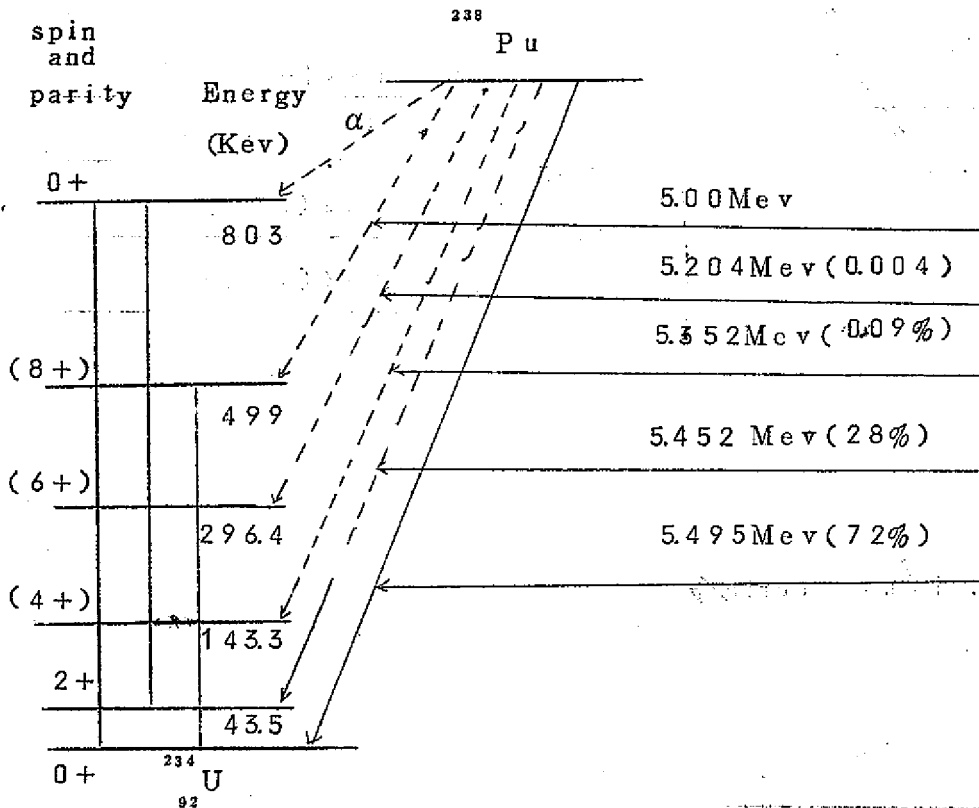
Plutonium-238

decay scheme

specific activity:

17.54 curies/g

half life: 86.4 y

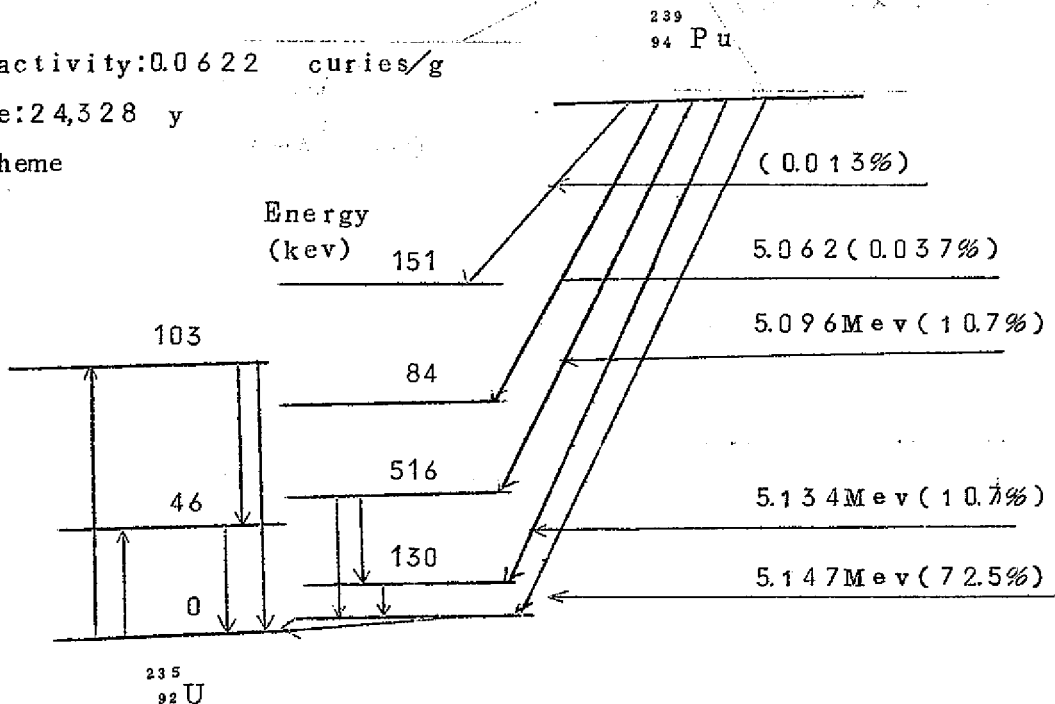


Plutonium-239

Specific-activity: 0.0622 curies/g

half life: 24,328 y

decay scheme

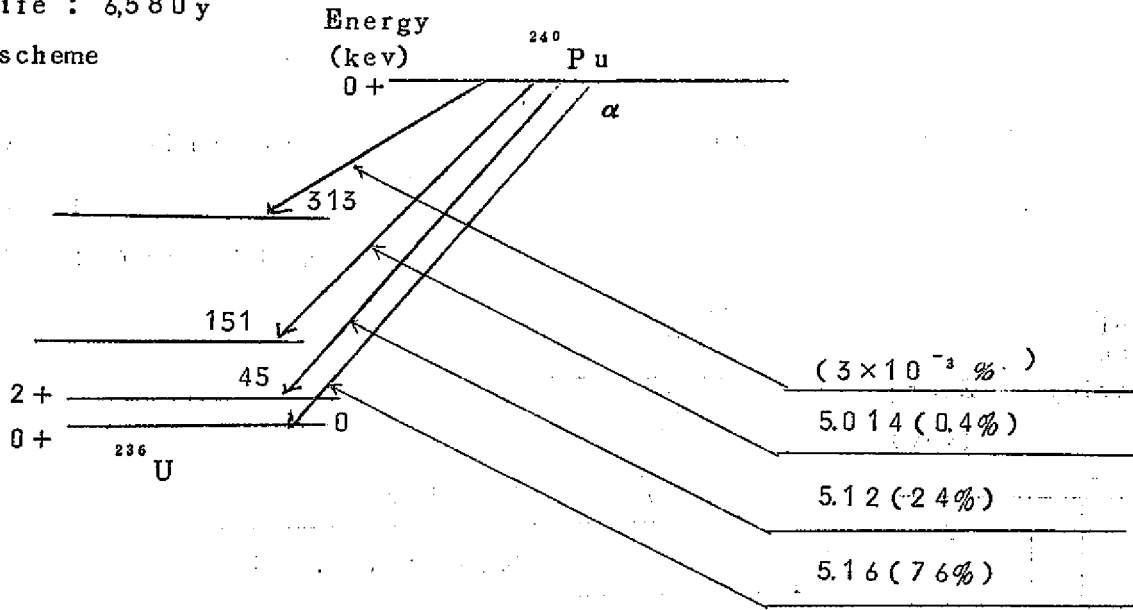


Plutonium - 240

specific activity : 0.23 curie/g

half life : 6,580y

decay scheme

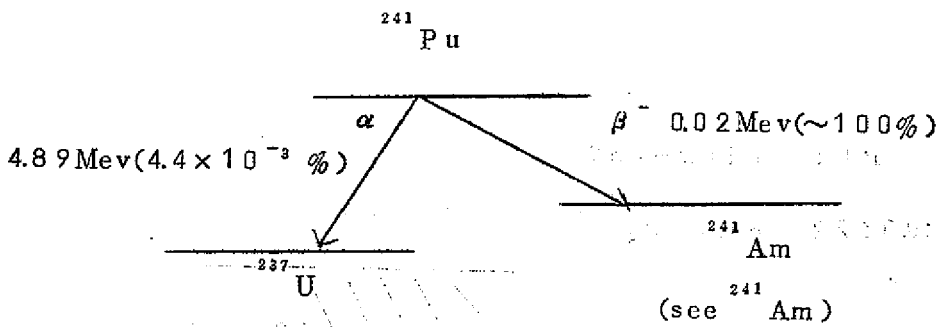


Plutonium - 241

Specific activity : 111.5 curie/g

half life : 13.25 y

decay scheme

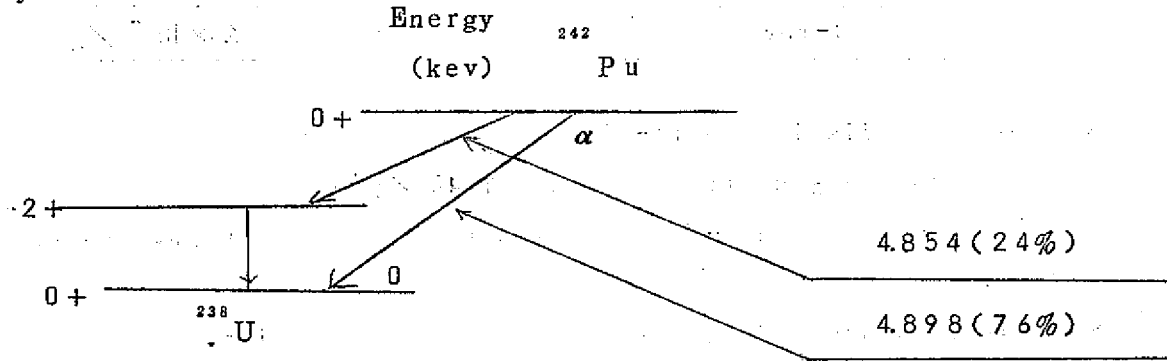


Plutonium - 242

specific activity : 0.004 curie/g

half life :  $3.7 \times 10^5$  y

decay scheme

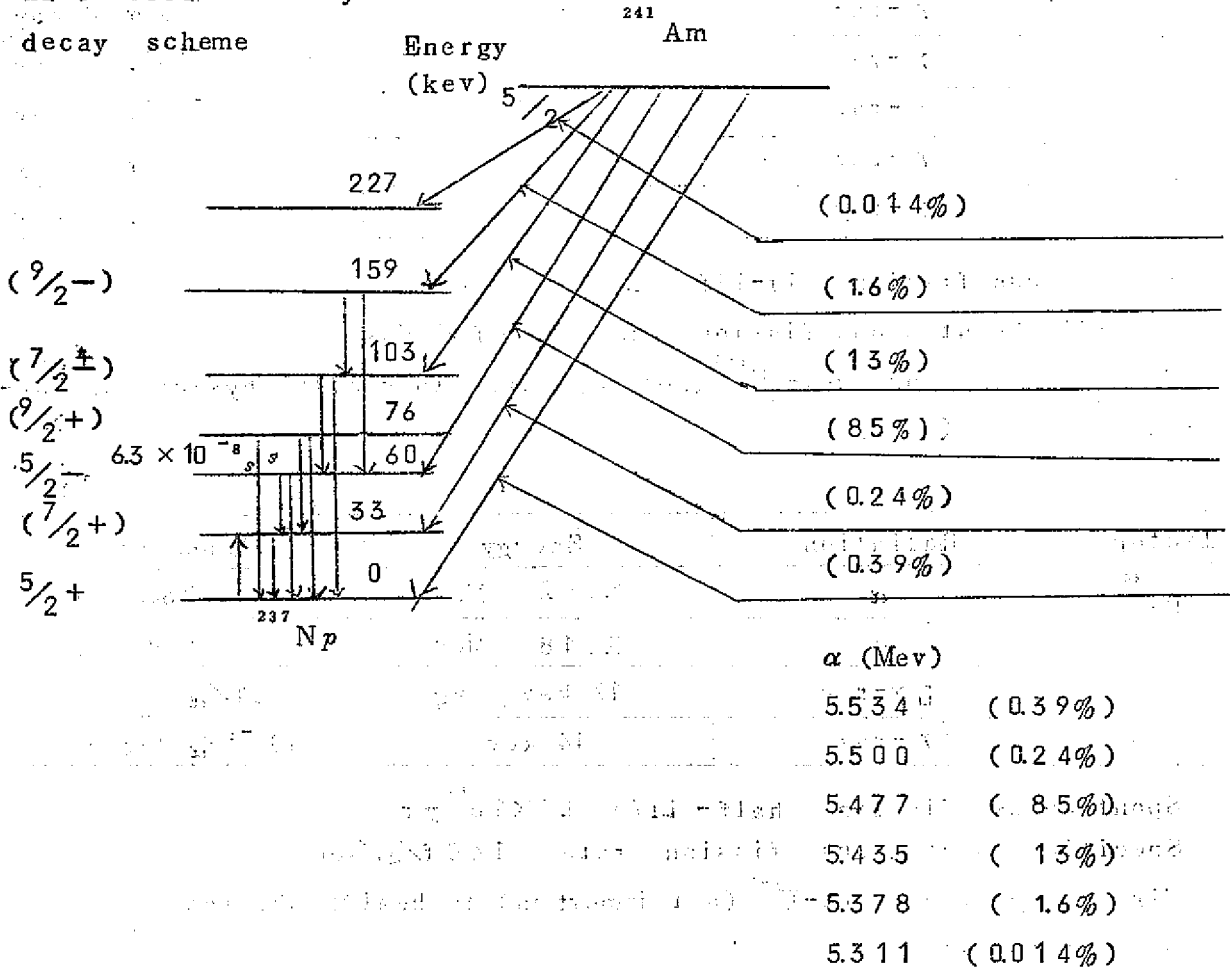


Am-241

Specific activity : 3.24 curie / g

half life : 458 y

decay scheme



Isotope	Radiation	Energy	Abundance
Pu <sup>238</sup>	$\alpha$	5.495 Mev	72%
	$\alpha$	5.452 Mev	28%
	$\alpha$	5.352 Mev	0.09%
	L x-ray	17 kev avg	0.13/ $\alpha$ decay
	$\gamma$ -ray	45 kev	$3.4 \times 10^{-4}$ / $\alpha$ decay

Spontaneous fission half-life  $3.8 \times 10^{10}$  yr

Specific spontaneous fission rate 1140 f/g/sec

First daughter product-U<sup>234</sup> (not important to health physics considerations)

Some small amount of hard  $\gamma$  associated with fission.

Isotope	Radiation	Energy	Abundance
Pu <sup>239</sup>	$\alpha$	5.147 Mev	72.5 %
	$\alpha$	5.184 Mev	16.8 %
	$\alpha$	5.096 Mev	10.7 %
	L x-ray	17 kev avg	$2.9 \times 10^{-3}$ / $\alpha$ decay
	$\gamma$ -ray	39 kev	$2 \times 10^{-5}$ / $\alpha$ decay
	$\gamma$ -ray	53 kev	$7 \times 10^{-5}$ / $\alpha$ decay
	$\gamma$ -ray	100 kev	$5.5 \times 10^{-5}$ / $\alpha$ decay
	$\gamma$ -ray	124 kev	$2.5 \times 10^{-5}$ / $\alpha$ decay
	$\gamma$ -ray	384 kev	$1.5 \times 10^{-5}$ / $\alpha$ decay

Spontaneous fission half-life  $5.5 \times 10^{15}$  yr

Specific spontaneous fission rate 0.02 f/g/sec

First daughter product-U<sup>235</sup> (not important to health physics considerations)

Isotope	Radiation	Energy	Abundance
Pu <sup>240</sup>	$\alpha$	5.162 Mev	76%
	$\alpha$	5.118 Mev	24%
	L x-ray	17 kev avg	0.1/ $\alpha$ decay
	$\gamma$ -ray	44 kev	$10^{-4}$ / $\alpha$ decay

Spontaneous fission half-life  $1.2 \times 10^{11}$  yr

Specific spontaneous fission rate 160 f/g/sec

First daughter product-U<sup>236</sup> (not important to health physics considerations)

Some small amount of hard  $\gamma$  associated with fission.

Isotope	Radiation	Energy	Abundance
Pu <sup>241</sup>	$\beta$	2.1 kev max	99 <sup>+</sup> %
	$\alpha$	4.9 Mev	$4 \times 10^{-3}$ %
	$\gamma$ -ray	145 kev	$2 \times 10^{-6}$ / $\alpha$ decay

First daughter products - Am<sup>241</sup> and U<sup>237</sup> (discussed separately)

Isotope	Radiation	Energy	Abundance
Pu <sup>242</sup>	$\alpha$	4.898 Mev	76%
	$\alpha$	4.858 Mev	24%

Spontaneous fission half-life  $7 \times 10^{10}$  yr

Specific spontaneous fission rate 2700 f/g/sec

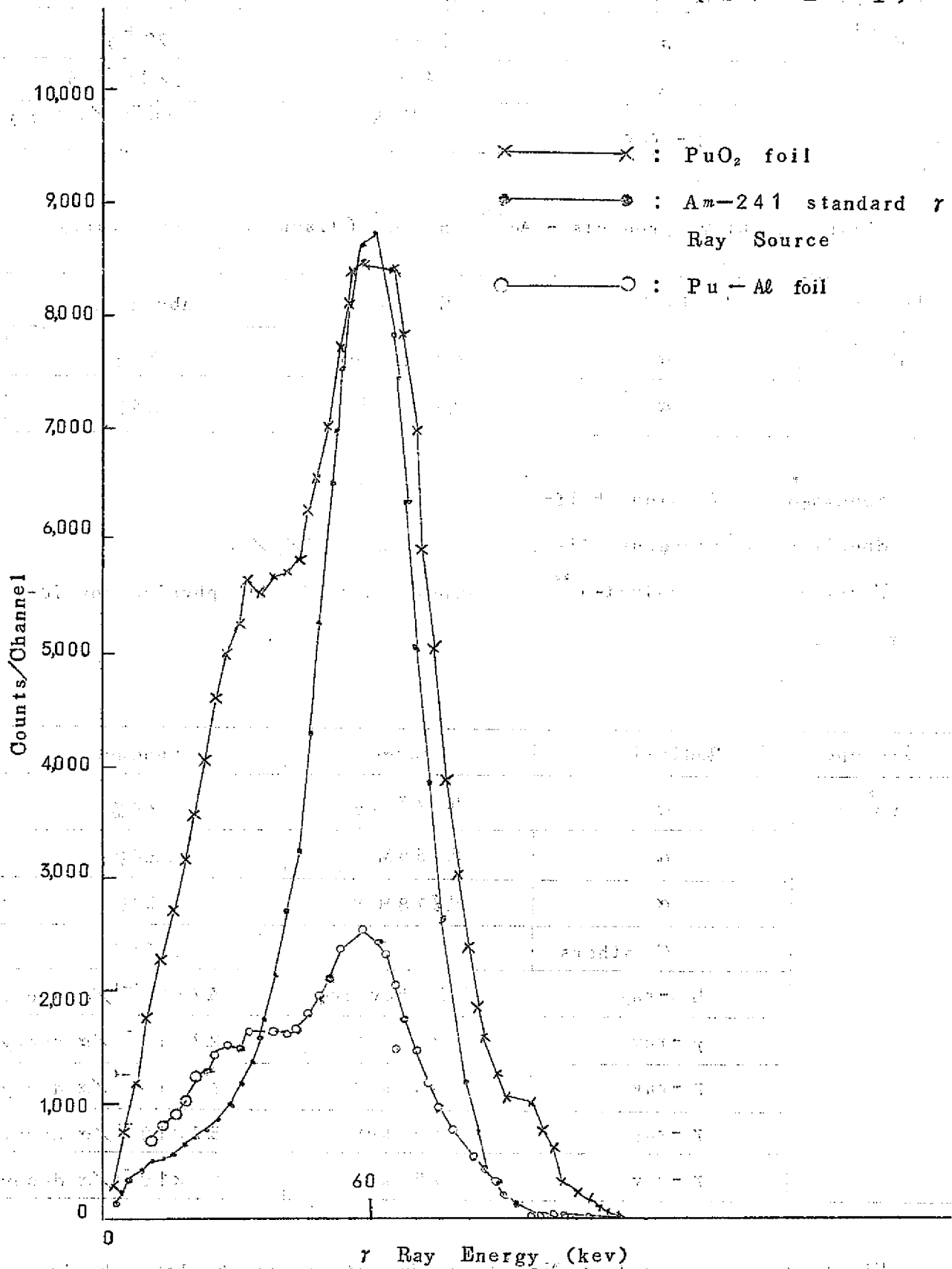
First daughter product-U<sup>238</sup> (not important to health physics considerations)

Isotope	Radiation	Energy	Abundance
Am <sup>241</sup>	$\alpha$	5.477 Mev	85%
	$\alpha$	5.435 Mev	12.6%
	$\alpha$	5.378 Mev	1.7%
	$\alpha$ others		<1%
	L x-ray	1.7 kev avg	$3.7 \times 10^{-4}$ / $\alpha$ decay
	$\gamma$ -ray	26 kev	$2.7 \times 10^{-2}$ / $\alpha$ decay
	$\gamma$ -ray	43 kev	$6 \times 10^{-4}$ / $\alpha$ decay
	$\gamma$ -ray	60 kev	$3.7 \times 10^{-1}$ / $\alpha$ decay
	$\gamma$ -ray	99 kev	$2 \times 10^{-4}$ / $\alpha$ decay

First daughter product-Np<sup>237</sup> (not important to health physics considerations of Am<sup>241</sup> chain)

付録〔Ⅱ〕 PuO<sub>2</sub>—ポリエチレン箔の照射後のγ線スペクトル

(2"φ×2"NaI)



FigA-1 γ Ray Spectrum of Am-241 (≈6.0Kev)



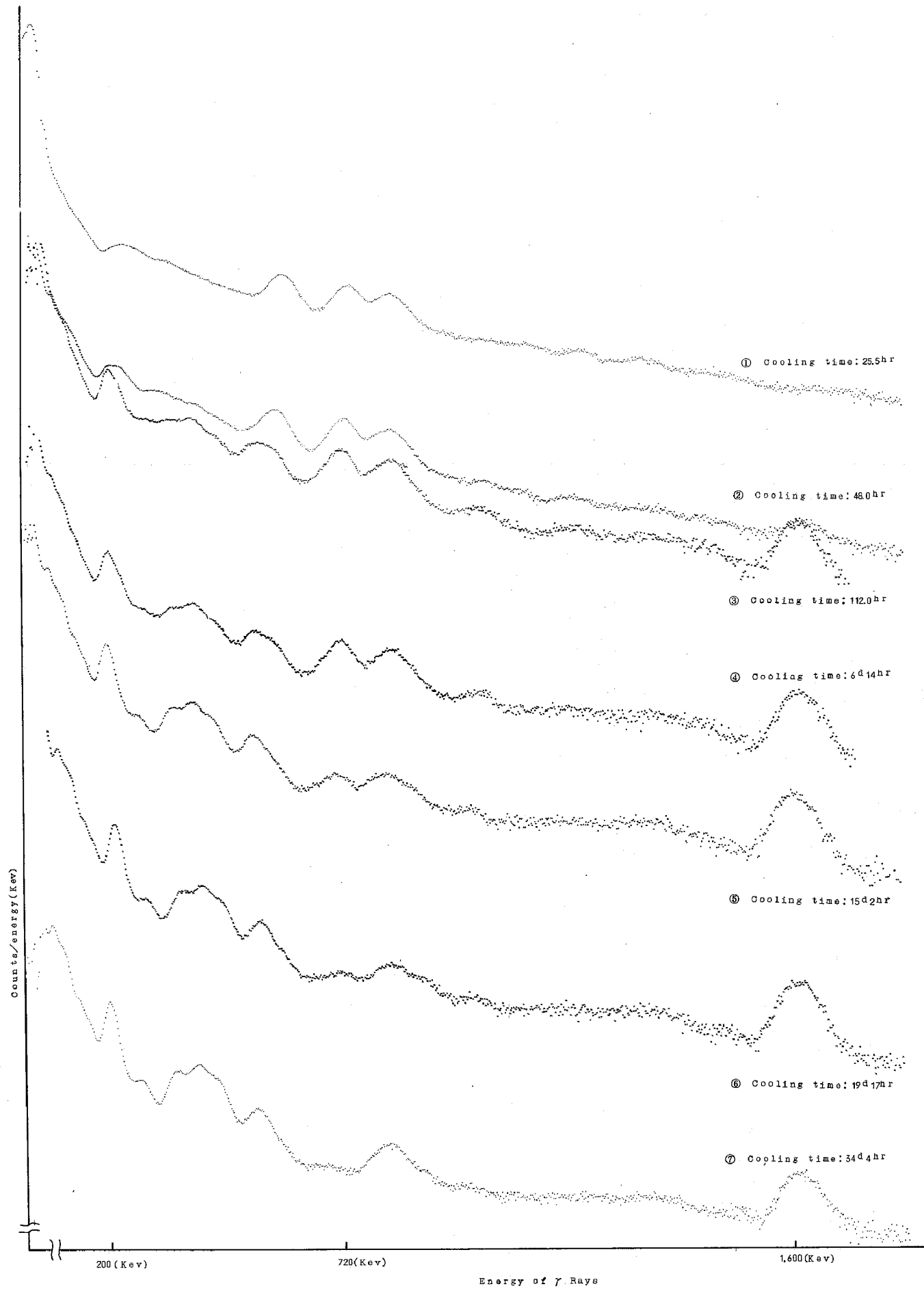


Fig. A-2 Gamma Ray Spectrum of Irradiated PuO<sub>2</sub> FOil

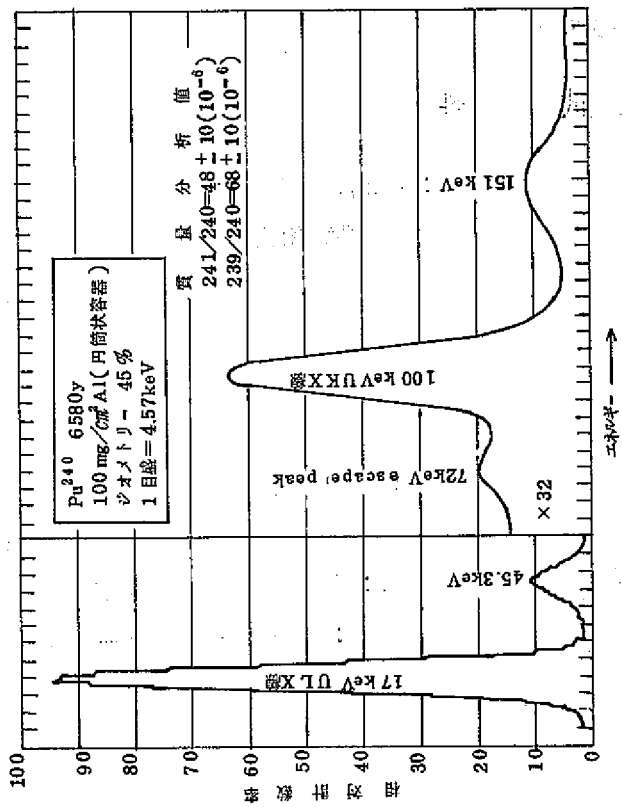
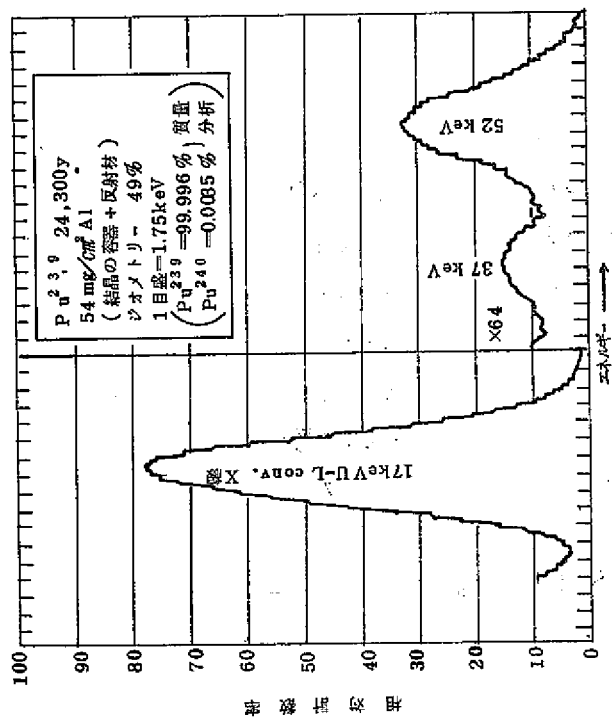
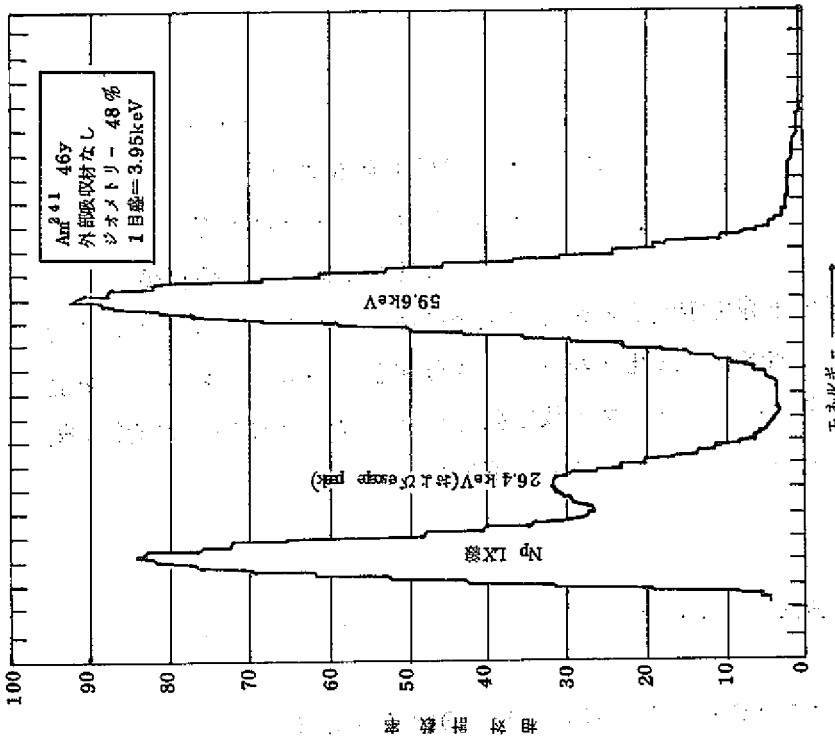


Fig A-3  $\gamma$ -Ray Spectrum from Ref. 14 ( $4'' \times 4'' \text{ NaI}, 5'' \text{ P.M.}$ )

## 付録〔Ⅲ〕 DCAプルトニウム箔製造方法

昭和47年9月18日

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所 Pu燃料部

品質管理課 分析係

DCAにおける燃料体中の中性子束分布等を定量する炉物理実験に使うプルトニウム箔の製造方法及びプルトニウムの定量方法について述べる。酸化プルトニウム粉末とポリエチレン粉末とを混ぜ、140℃で加熱後加圧することにより、プルトニウム板を製造した。所定の大きさに打抜き後 $\gamma$ 線強度を計ることによりプルトニウム箔中のプルトニウムを定量した。

## 1. 製造装置

- 箔製造器の本体および押え板：別紙 図1, 2
- 硬質ガラス：86mm $\phi$ ×10mm
- スペイサー：アルミニウムのドーナツ板，85mm $\phi$ ×75mm $\phi$ ×102 $\mu$ m
- 加熱炉：東芝製HGR-83，800W，スライダックスで微調整
- 箔打抜き器：箔の直径14.51mm
- 箔包装器：Al箔でプルトニウム箔を包む。
- 乳鉢
- マイクロメーター
- サランラップ

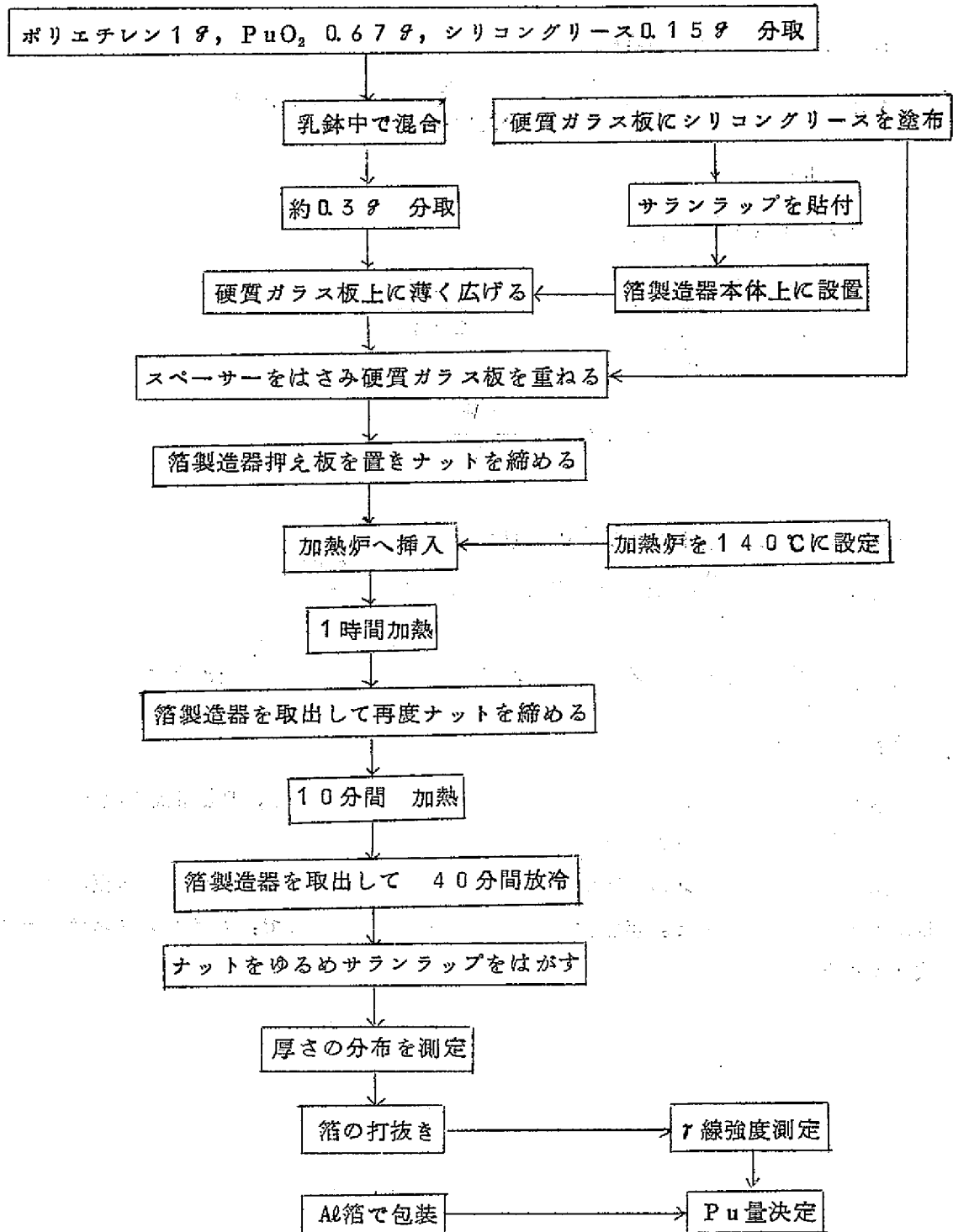
## 2. 試料

○PuO <sub>2</sub> 粉末：Pu含有量	87.46%	
Pu同位体比	Pu-238	0.023%
	Pu-239	90.21
	Pu-240	8.758
	Pu-241	0.937
	Pu-242	0.073
fissile 率	PNC	91.15%
	BNFL	91.37

○ポリエチレン粉末：120メッシュ以下

○シリコン グリース：トーレ・シリコーンKK製，SH111高真空用グリース

### 3. 製造の流れ図



### 4. プルトニウム量の定量

(ポリエチレン1.00g + PuO<sub>2</sub> 0.67g + シリコングリース0.15g) 混合物から約0.3gを分取し、精秤したWgの試料をプルトニウム円板に作り上げる。このプルトニウム円板のγ線強度AcpmをNaI検出器で測る。一方このプルトニウム円板から打抜いた箔のγ線強度αcpmを求める。

分取したWg中のPuO<sub>2</sub>量は

$$W \times \frac{0.67}{1.00 + 0.67 + 0.15} = \frac{0.67}{1.82} \cdot W \text{ g}$$

PuO<sub>2</sub> 1g当りのγ線強度は

$$A \times \frac{1}{\frac{0.67}{1.82} W} = \frac{1.82}{0.67} \frac{A}{W} \text{ cpm / g}$$

よってプルトニウム箔1枚当りのPuO<sub>2</sub>量は

$$\begin{aligned} a \times \frac{1}{\frac{1.82}{0.67} \frac{A}{W}} &= \frac{a W}{A} \times \frac{0.67}{1.82} \text{ g} \\ &= 0.368 \frac{a W}{A} \text{ g} \end{aligned}$$

なおプルトニウム箔1枚当りのPu量は

$$0.368 \times \frac{a W}{A} \times 0.8746 = 0.323 \frac{a W}{A} \text{ g}$$

以上の式によって求めたプルトニウム箔1枚当りのPu量を別表に示す。

## 5. 結 言

得られたプルトニウム箔の厚さは100~120μmであり、Pu量は1枚当り約10mgであった。出来上り枚数は約100枚であった。

製造の際ポリエチレンの溶融状況を観察するために、使用した硬質ガラス板がナットを締める時に破損しがちであった。溶融状況が殆んど一定しているので、ステンレススティール製の板に代えることができる。

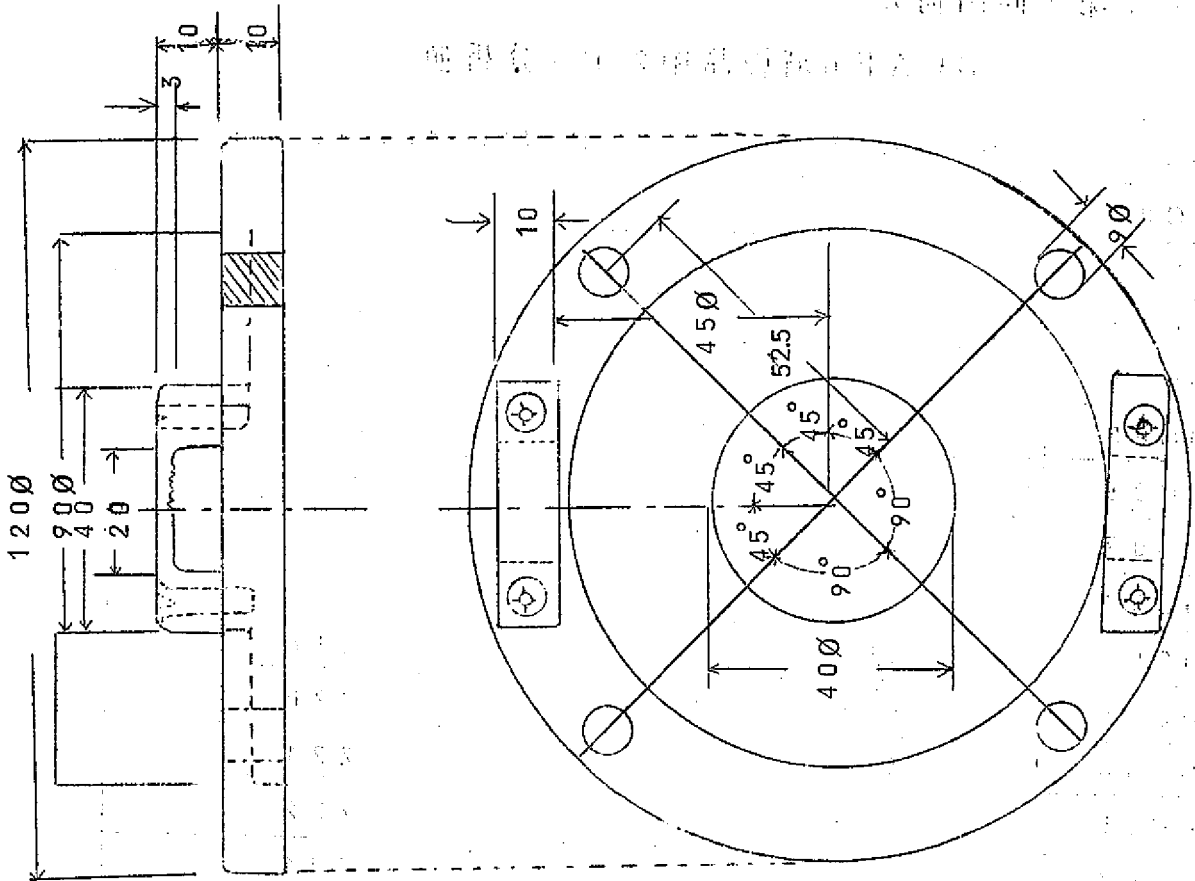


図 2 箔製造器図 (押込板)

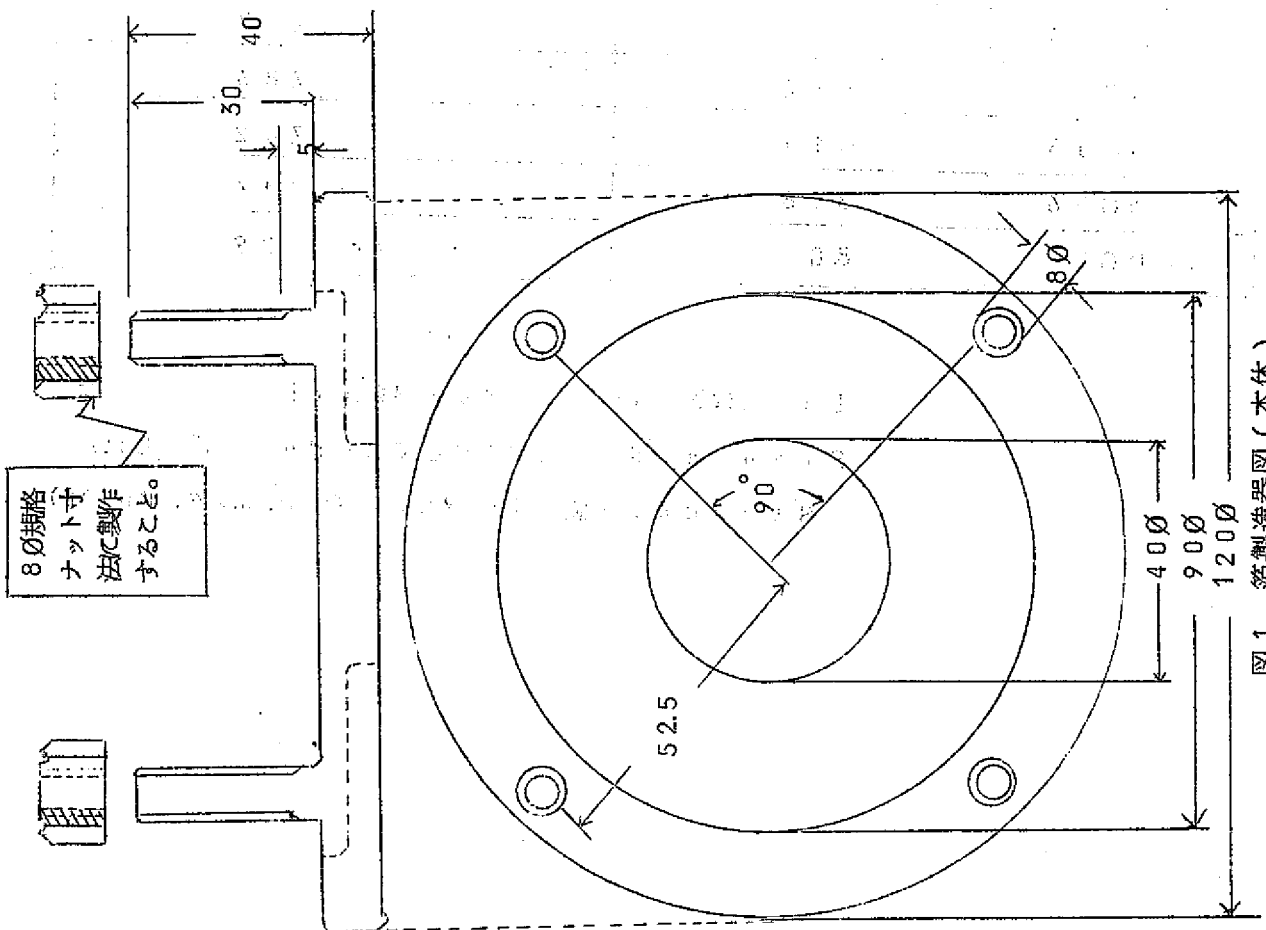


図 1. 箔製造器図 (本体)

## 別表・第7回出荷分

## DCAPu箔製品中のPu分析値

Pu箔 No.	重量 (Pu全量)	重量 (Pu fissile量)
002DC001	7.27 mg	6.63 mg
002DC002	7.00	6.38
002DC003	7.07	6.45
002DC004	7.65	6.98
002DC005	8.07	7.36
002DC006	7.49	6.83
002DC007	7.66	6.99
003DC001	8.06	7.35
003DC002	7.87	7.18
003DC003	7.90	7.20
003DC004	7.91	7.21
003DC005	7.92	7.22
003DC006	7.91	7.21
004DC001	8.50	7.75
004DC002	8.29	7.56
004DC003	8.63	7.87
004DC004	8.62	7.86
004DC005	8.14	7.42
004DC006	8.18	7.46
004DC007	8.87	8.09

◎ Pu定量はNaI検出器によりγ線を測定し、別に作成した  
Standardと比較することによりPu量を測定した。

Standard値 =  $1.129 \times 10^6$  C. P. m/g. Pu(M)