

分置

プルトニウムの 0.3eV 共鳴断面積が圧力管型
重水格子の冷却材ボイド反応度に及ぼす効果

1996年5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ください。

〒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

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section O-arai Engineering Center, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4002 Narita-cho, O-arai-machi, Higashi-Ibaraki, Ibaraki-ken, 311-13, Japan

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

プルトニウムの0.3eV共鳴断面積が圧力管型重水格子の 冷却材ボイド反応度に及ぼす効果

小綿 泰樹*¹ 福村 信男*²

要 旨

全炉心でMOX燃料を使用できる重水減速・沸騰軽水冷却圧力管型原子炉（HWR）の実用化検討で重要な冷却材ボイド反応度の評価に関しては、多くのパラメータについてその挙動を統一的に解明する必要がある。そのパラメータはプルトニウム富化度、プルトニウム同位体組成比、減速材と燃料の体積比等である。特に、ボイド反応度に及ぼすプルトニウムの寄与の解明は重要である。

格子計算コードWIMS-D4を用いてHWRの無限格子の冷却材ボイド率を0→100%に変化させた場合のボイド反応度の解析を行い、燃料核種又はプルトニウム同位体組成の相異がボイド反応度に及ぼす効果のメカニズムを解明した。格子計算においては格子内の空間及びエネルギー依存の中性子断面積と中性子束分布を用いて、ボイド反応度を燃料核種、反応断面積、中性子エネルギー群及び格子内領域の各種成分として分離することにより、ボイド反応度の挙動を解明できることが分かった。なお、本解析では使用する核データをオリジナルのUKAEAから日本版評価済みのJENDL-3.1に置き換えた。その結果、中性子スペクトル指標及び熱中性子束分布についてWIMS-D4コードの計算精度が向上することを確認した。

本研究により、燃料のマクロ熱中性子吸収断面積が同一であれば、HWR格子における冷却材ボイド反応度は狭いピッチの格子ほど負側に移行し、またウラン格子よりプルトニウム格子の方がより負側に移行することが明らかになった。プルトニウムによるボイド反応度の低減効果は、²³⁹Puの0.3eVの共鳴吸収断面積の存在に起因する。即ち、²³⁹Puの含有率が高いほど0.3eVの共鳴エネルギー幅内で冷却材ボイド率の増加に伴う軽水の熱中性子散乱効果が減少することによって、中性子密度の回復効果が低下するからである。この結果、²³⁹Puの共鳴核分裂率が減少してボイド反応度に対して負側の寄与となることが分かった。

*1 大洗工学センター 基盤技術開発部 先進技術開発室

*2 新型転換炉ふげん発電所

Effect of 0.3eV Resonance Cross Section for Plutonium on Coolant Void Reactivity in Heavy Water Lattice

Yasuki Kowata*¹ and Nobuo Fukumura*²

Abstract

Plutonium fuel could be utilized in the entire core of heavy water moderated, boiling light water cooled pressure-tube-type reactor (HWR). The void reactivity, however, depends on the various parameters of the lattice. It is especially significant to clarify the influence of plutonium nuclides on the void reactivity.

The void reactivities in the infinite HWR lattices have been parametrically analyzed to clarify the influences of changes in the lattice parameters on the void reactivity using the WIMS-D4 code with the JENDL-3.1 nuclear data. In this lattice calculation, it has been known that the behavior of the void reactivity can be made clear by separating the components for fuel nuclides, neutron cross sections, energy group and regions in lattice cell from the void reactivity using the important reaction rates.

If the macroscopic 2200m/s neutron absorption cross section of fuel is identical each other, it has been shown that the void reactivity of the HWR lattice shifts further to the negative side in the narrower pitch lattice, and in the plutonium lattice than in the uranium lattice. The effect reducing the void reactivity to the negative by plutonium is caused mainly by the presence of the resonance cross section at around 0.3eV of ²³⁹Pu. Because the higher the content of ²³⁹Pu is, the less the recovery effect of neutron density within the resonance energy due to decrease in the thermal neutron scattering of hydrogen is with increase in coolant void fraction, so that the decreased resonance fission rate for ²³⁹Pu contributes to the more negative side for the void reactivity.

* 1 Advanced Technology Division, Frontier Technology

* 2 Fugen Nuclear Power Station

目 次

1. 序 論	1
2. 解析手法	2
2.1 解析条件	2
2.2 冷却材ボイド反応度成分の導出方法	3
2.3 計算コードの検証	4
3. 結果と考察	7
3.1 HWR格子におけるボイド反応度の特性	7
3.2 冷却材領域におけるボイド反応度成分	8
3.3 燃料領域におけるボイド反応度成分	8
3.4 燃料の吸収断面積変化による寄与	12
3.5 燃料領域における成分のまとめ	13
4. 結 論	15
参考文献	16
謝 辞	17

図および表のリスト

TABLE I Nuclide Composition in Fuel for Void Reactivity Analyses

Fig.1. Cross-sectional view of 28-rod fuel assembly. Dimensions are given in millimetres.

Fig.2. Comparison between calculated and experimental values for q_{25}^{49} of 0.87wt%(R)PuO₂-UO₂ cluster.

Fig.3. Intra-cell thermal neutron flux distribution in 25.0cm pitch 0.87wt%(R)PuO₂-UO₂ lattice.

Fig.4. Components in fuel and coolant regions of void reactivity in 22.5cm pitch UOX and MOX lattices.

Fig.5. Components in fuel and coolant regions of void reactivity in 25.0cm pitch UOX and MOX lattices.

Fig.6. Absorption components of hydrogen in H₂O coolant to void reactivity in 25.0cm pitch lattice.

Fig.7. Intra-cell thermal neutron flux distribution in 25.0cm pitch MOX(S) fuel lattice.

Fig.8. Contribution of fission and fuel absorption components to void reactivity in 22.5cm pitch MOX(S) fuel lattice.

Fig.9. Contribution in 5th and 6th energy groups of fission component for each fissile nuclide to void reactivity.

Fig.10. Thermal neutron spectrum in inner layer fuel rod of MOX(S) ($\Sigma_{a0}=0.35\text{cm}^{-1}$) lattice.

Fig.11. Contribution in 5th and 6th energy groups of absorption component for each fissile nuclide to void reactivity.

1. 序論

燃料の高燃焼度化とプルトニウムの熱中性子炉への利用が今後比重を増してくる傾向にある。現在、最もプルトニウムを利用しやすいとされる熱中性子炉は重水減速沸騰軽水冷却の圧力管型炉(HWR)であり、これまで日本ではHWRにおけるプルトニウムの利用特性を重水臨界実験装置(DCA)や原型炉「ふげん」を用いて研究してきた。HWRは軽水炉(LWR)に比べて熱中性子スペクトルが軟らかく、中性子経済が良好なのでプルトニウムを燃焼させる炉として好都合である。また、プルトニウムの利用により冷却材ボイド反応度をウランに比べて抑制できるなど、安全性の向上についても多くの利点をもっている。

HWRでは原子炉の安全な運転・制御の観点でボイド反応度は極めて重要である。プルトニウムによるボイド反応度の低減化については、 ^{239}Pu や ^{241}Pu の0.3eV近傍の共鳴の存在が大きな寄与をしていることが重水臨界実験や原型炉「ふげん」の運転経験から明らかになっている。しかし、理論的には十分検証されてはいなかった。

プルトニウムには数種の同位体が存在し、燃焼により核分裂性核種と親物質核種がそれぞれ生成と消滅を繰り返すので、燃料中のプルトニウム同位体組成は複雑に変化する。またすべてのプルトニウムの同位体は低エネルギー領域に共鳴をもっているため、プルトニウムの組成の変化によって中性子断面積や格子内の熱中性子スペクトルも影響を受けボイド反応度も微妙に変化する。本研究では、HWRの格子計算コードWIMS-D4を用いて燃料核種(プルトニウム、ウラン)の濃度、プルトニウム同位体組成および格子ピッチ(減速材と燃料の体積比)のパラメータを広範囲に変化させて解析し、冷却材ボイド反応度に対するプルトニウムによる負の寄与のメカニズムを重点に解明する。

2. 解析手法

2. 1 解析条件

冷却材ポイド反応度に及ぼす燃料中の核種（ウランとプルトニウム）の効果の相違およびMOX燃料中のプルトニウム同位体（ ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Pu ）割合の相違による効果は、いずれも ^{239}Pu の0.3eVの共鳴の存在に起因することが実験で判明した^{(1),(2)}。しかし、実験で得られたこのような結論をHWR格子に関する一般的炉物理特性として裏付けるためには、燃料物質濃度の指標（例えば、2200m/s中性子に対する燃料のマクロ吸収断面積 Σ_{a0} ）を広範囲に変化させることによってポイド反応度の燃料濃縮度およびプルトニウム同位体組成等の依存性を詳細に解析する必要がある。

このためには、精度の高い計算コードを用いてポイド反応度に対する ^{239}Pu の0.3eVの共鳴の効果および実験値から得られた結論の妥当性の範囲をそれぞれ定量的に評価することが重要である。本稿では、重水臨界実験装置(DCA)を用いて測定した各種の炉物理量と計算値を比較・評価することによって計算精度を確認した格子計算コード(WIMS-D4)を使用し、種々の燃料格子でポイド反応度に占める各種の成分を求めることとした。

WIMS-D4コードを用いたポイド反応度の計算方法では、以下に示す項目を考慮した。

- ① 中性子断面積ライブラリーには、オリジナルのUKAEAよりも新しい日本版評価済核データ（JENDL-3.1）⁽⁵⁾を用い、プルトニウムの低エネルギー領域にある共鳴断面積の効果を正確に評価する。
- ② クラスタ型燃料格子を空間的非均質性を考慮して詳細にメッシュ分割を行い、ポイド反応度に占める圧力管内における燃料領域の成分および冷却材領域の成分とを分離して評価する。
- ③ エネルギー69群の基本断面積ライブラリを利用して群分割を行い、 ^{239}Pu および ^{241}Pu の0.3eVの共鳴エネルギー領域のポイド反応度成分を鮮明に判別できるようにする。

なお、解析では上記③を考慮して中性子エネルギー分割は、第1群=高速領域

(10MeV~0.82MeV)、第2群=減速領域(0.82MeV~5.53keV)、第3群=共鳴領域(5.53keV~0.625eV)、第4群=1/Eスペクトル領域(カドミカバ一切断エネルギー以上:0.625eV~0.4eV)、第5群= ^{239}Pu と ^{241}Pu の0.3eV近傍の熱中性子共鳴領域(0.4eV~0.2eV)および第6群=Maxwell領域(0.2eV~0.0eV)の計6群とした。

重水臨界実験装置(DCA)を用いたクラスタ型燃料体の断面図を図1に示す。実験に使用したMOX燃料については2種類のPu同位体組成比(S級 $\equiv 92\text{wt}\%\text{Pu}^{\text{is}}$ 、R級 $\equiv 74\text{wt}\%\text{Pu}^{\text{is}}$)をもつ燃料であるため、今回の解析対象のMOX燃料もこの2種類とした。しかし、燃料の核種が異なってもポイド反応度に対する燃料物質濃度の依存性を明確にすることが必要であるので、ここでは燃料物質濃度を示す共通の指標として、常温でMaxwell分布をした熱中性子スペクトルのエネルギー最確値($E_0=0.025\text{eV}$)に対応する燃料のマクロ吸収断面積 Σ_{a0} を採用する。なお、本稿では解析の対象とする Σ_{a0} の範囲としては、天然ウラン相当に近い 0.2 cm^{-1} から約 $30\text{GWd/t}\cdot\text{UO}_2$ の燃焼度を得る濃縮ウラン相当の 0.5 cm^{-1} とした。種々の Σ_{a0} に対応する各燃料中の核種の組成をまとめて表1に示す。

2. 2 冷却材ポイド反応度成分の導出方法

ポイド反応度を考察する体系は中性子漏洩のない無限格子とする。ここで、冷却材ポイド反応度 ρ_v は、圧力管内冷却材軽水中のポイド率が0%(軽水)から100%(空気)に変化した場合の反応度で表した摂動を意味するものとする⁶⁾。すなわち、 ρ_v は

$$\rho_v = \frac{k_{\infty}^v - 1}{k_{\infty}^v} = \frac{k_{\infty}^0 - 1}{k_{\infty}^0} = \frac{k_{\infty}^0 - k_{\infty}^v}{k_{\infty}^0 k_{\infty}^v} \quad (2.1)$$

で表される。ただし、

k_{∞}^0 、 k_{∞}^v =冷却材ポイド率がそれぞれ0%、100%の無限増倍率

次に、(2.1)式を基本式として、ポイド反応度を構成する各種の成分を導出してみる。ここで、冷却材ポイド率が0%から100%に変化した場合のある*i*タイプの断面積 Σ_i による

反応率の変化量を以下に示す。

$$\left\langle \delta \left(\Sigma_i(\mathbf{r}, E) \cdot \phi(\mathbf{r}, E) \right) \right\rangle = \left\langle \Sigma_i(\mathbf{r}, E) \cdot \phi(\mathbf{r}, E) \right\rangle_v - \left\langle \Sigma_i(\mathbf{r}, E) \cdot \phi(\mathbf{r}, E) \right\rangle_0 \quad (2.2)$$

ここで、 $\langle \rangle$ はエネルギーと空間に関する内積を示し、 $\phi(\mathbf{r}, E)$ は格子内の中性子束である。格子計算では単位格子内の全中性子吸収率を各ポイド率の格子毎に

$$\left\langle \Sigma_a^f \cdot \phi \right\rangle_0 + \left\langle \Sigma_a^s \cdot \phi \right\rangle_0 = \left\langle \Sigma_a^f \cdot \phi \right\rangle_v + \left\langle \Sigma_a^s \cdot \phi \right\rangle_v = 1.0$$

に規格化した。ここで、 Σ_a はマクロ吸収断面積であり、断面積の上付添字の f および s はそれぞれ燃料物質領域、燃料以外の物質（冷却材および減速材や配管等の構造材）を示す。したがって、各ポイド率の無限格子の増倍率は k_{∞}^0 、 k_{∞}^v はそれぞれ

$$k_{\infty}^0 = \langle v \Sigma_f \cdot \phi \rangle_0, \quad k_{\infty}^v = \langle v \Sigma_f \cdot \phi \rangle_v \quad (2.3)$$

になる。(2.2)式および(2.3)式を(2.1)式に代入すれば、 ρ_v は、

$$\rho_v = \frac{\left\langle \delta(v \Sigma_f \cdot \phi) \right\rangle - \left\langle \delta(\Sigma_a^f \cdot \phi) \right\rangle k_{\infty}^0 - \left\langle \delta(\Sigma_a^s \cdot \phi) \right\rangle k_{\infty}^0}{k_{\infty}^0 \cdot k_{\infty}^v} \quad (2.4)$$

に変形できる。

(2.4)式の右辺の各項は、以下のように燃料とそれ以外の構造材領域のポイド反応度の成分の合成になっている。

$$\rho_v = \rho_{fis}^f + \rho_{abs}^f + \rho_{abs}^s \quad (2.5)$$

すなわち、第1項 ρ_{fis}^f は、燃料中の核分裂生成反応率変化による成分、第2項 ρ_{abs}^f は同じく燃料の中性子吸収率変化による成分、そして第3項 ρ_{abs}^s は全構造材領域の中性子吸収率変化による成分をそれぞれ示す。(2.4)式を用いて、ポイド反応度を反応断面積、中性子エネルギー群、反応核種および格子内領域毎の成分として求めることができる。

2. 3 計算コードの検証

0.3eV近傍に共鳴をもつ ^{239}Pu と ^{241}Pu がポイド反応度に対していかなる寄与をしているかを核計算コードを用いて解明するには、まず核データライブラリを含む核計算コー

ドの精度評価をしておく必要がある。このため、JENDL-3.1ライブラリーを組み込んだWIMS-D4コードを用いてプルトニウムの0.3eV共鳴近傍の中性子スペクトル指標である q_{25}^{49} および圧力管内の熱中性子束分布について計算精度の評価を行った。これらの値はDCAを用いた臨界実験で、MOX燃料中のプルトニウム富化度、プルトニウム同位体組成および冷却材ポイド率をパラメータにして22.5cm、25.0cmピッチの各格子に対して得られている。実験で得られた q_{25}^{49} は以下で定義される。

$$q_{25}^{49} = \frac{\int_0^{\infty} \sigma_f^{49}(E) \phi(E) dE}{\int_0^{\infty} \sigma_f^{25}(E) \phi(E) dE} \quad (2.6)$$

ただし、

$\sigma_f^{49}(E)$ 、 $\sigma_f^{25}(E)$ =中性子エネルギーEでの ^{239}Pu 、 ^{235}U のそれぞれミクロ核分裂断面積
今回対象にしている燃料格子の範囲では、 ^{239}Pu のカドミ比が約10~20（カドミ切断エネルギー0.4eV~0.5eV）であることが実験や解析で確認されている⁽¹⁾。したがって、(2.6)式のエネルギー積分範囲はほとんどカドミ切断エネルギーまでとなることから、(2.6)式は0.3eV近傍の核分裂反応率の変化を顕著に示す指標となる。なお、圧力管内の熱中性子束分布は、照射箱のカドミ比から得た⁽⁶⁾。

図2に一例として冷却材ポイド率と格子ピッチをパラメータにした場合の0.87wt%MOX(R)燃料の q_{25}^{49} の実験値とWIMS-D4コードによる計算値との比較を示す。図2の結果から q_{25}^{49} の格子内平均値での計算精度は約±2.2%と評価され、実験誤差±4.0%の範囲内におさまっている。同図から、 q_{25}^{49} は0%ポイド格子では外層燃料棒よりも内層燃料棒ほど大きくなるが、100%ポイド格子では逆に小さくなる傾向を示している。このことは、0%ポイド格子では軽水冷却材の散乱効果により0.3eV近傍の中性子束の窪みが回復されるのに比べ、100%ポイド格子では内層燃料棒ほど0.3eV近傍の中性子束の窪みが助長されることを意味している。

次に、単位格子内の熱中性子束分布の実験値と計算値との比較の一例を図3に示す。実験では正方格子の方位角が直角方向と対角方向で得られているが、計算値は等価円筒

格子の形状としているため円周方向で同一の値となっている。分布の規格化は圧力管外表面で行った。図3から熱中性子束分布の計算精度は燃料棒内の平均で $\pm 2.5\%$ と評価され、実験誤差 $\pm 2.0\%$ をわずかに上回る程度である。HWR格子内の熱中性子束分布の特徴は、重水減速材領域から燃料クラスタ中心に向かって大きく低下し、この程度は燃料物質濃度が増加するほど大きくなることである。100%ポイド格子では軽水冷却材の散乱効果がないため、圧力管内の熱中性子束分布は0%ポイド格子のそれより平坦化する。また過大減速格子に相当する25.0cmピッチ格子では、22.5cmピッチ格子に比べ熱中性子スペクトルが軟化するため冷却材の熱中性子吸収効果が相対的に大きくなり、圧力管内の分布はより低下する傾向にある。

3. 解析結果とその考察

HWR格子では、構造材の材質はほとんど熱中性子吸収断面積の極めて小さい重水とジルコニウムである。本解析の結果、(2.4)式の第3項 ρ_{abs}^s は冷却材領域そのものの中性子吸収率の変化に起因する成分 ρ_{cs}^s とみなせることが分かった。

3.1 HWR格子におけるポイド反応度の特性

WIMS-D4コードで求めたHWRの無限格子におけるポイド反応度の Σ_{a0} に対する依存性の結果を、燃料種類(UOX、MOX(S)、MOX(R))をパラメータとして図4(22.5cmピッチ格子)および図5(25.0cmピッチ格子)に示す。これらの図には、ポイド反応度 ρ_v とともに(2.5)式から分離した ρ_v の燃料領域の成分 $\rho_v^f(=\rho_{fs}^f + \rho_{abs}^f)$ と冷却材領域の成分 ρ_{cs}^s も同時に示す。図4および図5からHWR格子におけるポイド反応度および燃料領域と冷却材領域の各成分について以下の特性をもつことが明らかになった。

(1) ポイド反応度 ρ_v について

- ① ρ_v は Σ_{a0} の増加とともに指数関数的に負側に移行する。
- ② Σ_{a0} が同一であれば、 ρ_v はUOX格子よりMOX格子の方が、MOXではR級よりS級の方が負側になる。
- ③ ρ_v は格子ピッチが小さいほどより負側である。

(2) ポイド反応度の冷却材領域の成分 ρ_{cs}^s について

- ① ρ_{cs}^s は常に正の寄与で、 ρ_v と同様 Σ_{a0} の増加とともに指数関数的に負側へ移行する。
- ② Σ_{a0} が同一であれば、 ρ_{cs}^s はUOXよりMOXの方が負側となり、MOX格子ではR級より核分裂性Puの割合が高いS級の方が負側となる。
- ③ ρ_{cs}^s の格子ピッチ依存性は無視できる。

(3) ボイド反応度の燃料領域の成分 ρ_{ν}^f について

- ① ρ_{ν}^f は常に負の寄与で、 Σ_{a0} の増加とともに緩やかに負側へ移行する ($\Sigma_{a0} = 0.4\text{cm}^{-1}$ 程度で飽和する傾向である)。
- ② 格子ピッチが小さければ、 ρ_{ν}^f はUOX格子よりMOX格子の方がより大きく負側になる。
- ③ 格子ピッチが大きくなれば、 ρ_{ν}^f は正側に移行するとともに、 ρ_{ν}^f の燃料核種に対する依存性は小さくなる。

3. 2 冷却材領域におけるボイド反応度成分

冷却材軽水中でのボイドの生成がボイド反応度を誘起するので、冷却材領域の成分がボイド反応度の直接的成分で、他の領域の成分は間接的成分といえる。UOX、MOX(R)、MOX(S)の各燃料格子における ρ_{ν}^f の中性子エネルギー群依存性を Σ_{a0} をパラメータ(0.35cm^{-1} と 0.50cm^{-1})として図6に示す。軽水中の酸素の熱中性子吸収は無視できるので、 ρ_{ν}^f はボイド率の増加に伴う水素の熱中性子吸収率の変化に起因する正の成分となる。水素の熱中性子吸収断面積は $1/v$ 型であるため、図に示すように ρ_{ν}^f はほとんど第6群での正の吸収効果を示す。

図7にMOX(S)燃料格子内の熱中性子束分布(0.5eV以下)の一例を、圧力管の外表面で規格化して示す。圧力管表面から中心に向かって低下する熱中性子束分布の勾配(熱中性子束低下率)は、燃料物質濃度 (Σ_{a0}) の増加とともに大きくなる。従って、 Σ_{a0} が増加すると、(2.4)式の分子の第3項が小さくなり正の ρ_{ν}^f を減少させる。また格子ピッチが大きいほど減速材中の熱中性子スペクトルは軟化し、冷却材領域の熱中性子遮蔽効果が大きくなる。このため、 Σ_{a0} の増加による効果と同様に熱中性子束が減少して ρ_{ν}^f を減少させる効果となる。しかし、格子ピッチの増大による熱中性子スペクトルの軟化は、実効吸収断面積の増加と等価であるので ρ_{ν}^f を増加させる効果となる。結局、前者の ρ_{ν}^f を減少させる寄与と後者の ρ_{ν}^f を増加させる寄与とが相殺し、 ρ_{ν}^f は両ピッチでほとんど差がなくなる。

3. 3 燃料領域におけるボイド反応度成分

図4に示すように、特に狭いピッチの格子ほどウラン燃料に比べプルトニウム燃料を使用することによるボイド反応度の低減効果がより顕著になっていることが分かる。図8に代表的な燃料核種 (^{235}U 、 ^{238}U 、 ^{239}Pu) のボイド反応度成分のエネルギー群依存性を Σ_{a0} (0.35cm^{-1} と 0.50cm^{-1}) および各燃料核種の Σ_a および $\nu\Sigma_f$ の反応断面積成分毎に、 22.5cm ピッチの MOX(S) 格子を例に示す。 Σ_{a0} が一定の燃料の格子では図の左右を比較すれば、核種とエネルギー群が同一の場合、 ρ_{abs}^f (左側) と ρ_{fis}^f (右側) の両成分は互いに競合し、符号が反転して絶対値が異なる関係になっている。絶対値が異なる理由は、核種や同位体によって α 値 (σ_c/σ_f) およびそのエネルギー特性が異なるからである。反応断面積が大きい $E < 0.2\text{eV}$ の第6群 (Maxwell領域) では、一般に核分裂性核種の α 値は $0.2 \sim 0.5$ の範囲となり、 σ_c に比べ σ_f が優勢である。この結果、図8に示すように $\rho_{\text{fis}}^f < 0$ 、 $\rho_{\text{abs}}^f > 0$ で $|\rho_{\text{fis}}^f| > |\rho_{\text{abs}}^f|$ であるため (とくに第6群での ρ_{abs}^f と ρ_{fis}^f を比較するとよく分かる)、 ρ_{abs}^f に比べ ρ_{fis}^f の値が優勢で ρ_{abs}^f は負となる。

以上のことから、HWR格子のボイド反応度成分の挙動を考察する場合、 $1/E \sim$ 熱エネルギー領域における核分裂性核種の ρ_{fis}^f の変化に着目することが重要であることが分かる。図9に、熱化中性子スペクトル領域 ($0 \sim 0.4\text{eV}$) の第5群および第6群における主要な核分裂性核種 (^{235}U 、 ^{239}Pu 、 ^{241}Pu) の ρ_{fis}^f 成分の Σ_{a0} 依存性を格子ピッチ (22.5cm と 25.0cm) および燃料種類 (UOX、MOX(R)、MOX(S)) をパラメータにして示す。図10に、WIMSコードで計算した $\Sigma_{a0} = 0.35\text{cm}^{-1}$ の MOX(S) 格子の内層燃料棒中における熱化中性子スペクトルを、ボイド率 (0% と 100%) と格子ピッチ (22.5cm と 25.0cm) をパラメータにして示す。

図10に示すように、ボイド率の増加に伴って次の2つの傾向があることが分かる。(1) 熱中性子スペクトルが硬化する、(2) 0.3eV の共鳴エネルギー幅以外で中性子束が相対的に増加する。また 0.2eV 以下の Maxwell 領域では、次のような中性子スペクトルの特徴が生じることが分かる。①ボイド率の増加に伴うスペクトルの硬化は狭いピッチ格子ほ

ど顕著である(ρ_v には負の寄与)、②中性子束の増加は広いピッチ格子ほど大きい(ρ_v には正の寄与)。したがって、図8および9に示すように22.5cmピッチ格子では、主に熱中性子スペクトルの硬化によってMaxwell領域での核分裂率を減少させるので、第6群における核分裂性核種 (^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu) の ρ_{fs}^f はいずれも負の寄与となる。しかし、広いピッチの格子ではスペクトルの硬化よりむしろMaxwell領域での中性子束の増加によって、図9に示すようにどの核分裂性核種の ρ_{fs}^f も狭いピッチの格子に比べ零ないし正側に移行し、このため ρ_v^f も正側に移行する(図5)。

広いピッチの格子でボイド率の増加に伴い熱中性子束が増加する効果は、重水減速材における減速密度が格子ピッチの増加によって大きくなることを意味する。0%ボイドでは軽水の減速比($\xi \Sigma_s / \Sigma_a$)が大きいため、熱中性子スペクトルに対しては格子ピッチの相異による変化が生じにくい。したがって、広いピッチ格子での ρ_{fs}^f は、ボイド率の増加に伴うスペクトル硬化による負の寄与よりも、熱中性子束の増加が核分裂率を増加させることによる正の寄与の方が優勢になる傾向である。このため、 ρ_v^f は格子ピッチが大きいほど正側へ移行する。

MOX格子の場合には、0.3eV近傍に共鳴積分が大きい ^{239}Pu の共鳴が存在するため、図9に示すように第5群では ^{239}Pu の含有率の高いほど ^{239}Pu の ρ_{fs}^f が負側に移行し、プルトニウムによる ρ_v の低減に寄与していることが分かる。この理由は、図10の熱化中性子スペクトルから明らかなように、0%ボイド率では水素の大きな熱中性子散乱効果によって、0.3eVの共鳴エネルギー幅内の中性子束の窪みは回復され易いが、ボイド率が増加すると巨大な共鳴吸収断面積のためその中性子束は一層大きく窪み、共鳴吸収断面積と共鳴中性子束の積である共鳴核分裂率が減少するためである。

一方、第5群における ^{239}Pu の ρ_{fs}^f は、第6群の場合とは異なり、格子ピッチが広いほどやや負側になるが、その効果は小さい。何故ならば、図10から明らかなように、100%ボイドでは格子ピッチが広いほど重水減速材中の減速密度が大きくなるので熱中性子スペクトルが軟らかくなり、相対的に0.3eVの共鳴中性子束の窪みもより大きくな

るからである。相対的には格子ピッチが小さいほど ^{239}Pu の0.3eVの共鳴における負の成分 $\rho_{fs}^f(49)$ が、第6群における ^{239}Pu の負の成分 $\rho_{fs}^f(49)$ とともにポイド反応度の負側への移行を助長している。

^{241}Pu は ^{239}Pu と同様に0.3eV近傍に共鳴をもつが、その共鳴断面積は ^{239}Pu のそれに比べて小さいので第5群における ^{241}Pu による負の寄与は ^{239}Pu のそれに比べ十分小さく無視できる。しかし、MOX(R)格子では ^{241}Pu の含有率は相対的に高いので、第6群における ^{241}Pu の成分 $\rho_{fs}^f(41)$ は、格子ピッチが狭いほどやはりポイド反応度を負側に移行させる効果をもつ。このため、第5群と6群の全体では ρ_{fs}^f に対するプルトニウム同位体比の相違の影響はほとんどなくなっている。また、 ^{238}U の成分 $\rho_{fs}^f(28)$ は、図8に示すように第1群での高速核分裂だけなので、ポイド率の増加に伴う中性子スペクトルの硬化により当然正の寄与となる。

結局、MOX格子では ^{239}Pu の0.3eVの共鳴幅における負の寄与がUOX格子の場合に比べポイド反応度を負側に移行させる点で決定的な役割を果たしていることが分かった。さらに、MOX格子では ^{239}Pu の含有率の高いS級燃料ほどR級燃料に比べてそのポイド反応度成分はより大きく負側の寄与となる。

3. 4 燃料の吸収断面積変化による寄与

本研究で着目している Σ_{a0} が $0.2\sim 0.5\text{cm}^{-1}$ の燃料物質濃度の範囲では、表1に示すように ^{238}U の含有率は85wt%以上で他の燃料核種の含有率に比べ圧倒的に高く、 0.4eV 以上のエネルギー領域では核種毎の成分の中で ^{238}U の吸収成分 $\rho_{\text{abs}}^f(28)$ が最も支配的な負の成分となっている。したがって、共鳴エネルギー領域の第3群($0.625\text{eV}\sim 5.5\text{keV}$)では、ボイド率の増加に伴う中性子スペクトルの硬化（低エネルギー領域に比べ高エネルギー領域ほど相対的に中性子束が増加する）により ^{238}U の共鳴捕獲率が増加して、 $\rho_{\text{abs}}^f(28)$ は大きな負の寄与となる。

図11に、第5～6群における主要な燃料核種（ ^{235}U 、 ^{239}Pu 、 ^{241}Pu ）の ρ_{abs}^f 成分の Σ_{a0} 依存性を格子ピッチ(22.5cm と 25.0cm)および燃料種類(UOX, MOX(R), MOX(S))をパラメータにして示す。第6群の熱中性子領域では、ウランおよびプルトニウムの全ての燃料核種の核分裂断面積と吸収断面積の中性子エネルギー特性は $1/v$ 型であるので、図から明らかのように ρ_{abs}^f の核種毎およびエネルギー群毎の挙動は、3.3節に述べた ρ_{fis}^f のそれと同様の傾向を示す。すなわち第6群では、過少減速の 22.5cm ピッチ格子ではボイド率の増加に伴う主に熱中性子スペクトルが硬化する効果により、各燃料核種の熱中性子吸収率が減少し、 ρ_{abs}^f は Σ_{a0} が大きい燃料格子ほど正側に移行する。一方、過大減速の 25.0cm ピッチ格子では、Maxwell領域での熱中性子スペクトルの硬化よりも熱中性子束の相対的な増加の効果が勝るので、図11に示すように ρ_{abs}^f は 22.5cm ピッチ格子の場合とは逆にやや負側へ移行する。しかし、どの燃料核種ともに α 値の特性によって ρ_{abs}^f の正の寄与より ρ_{fis}^f の負の寄与の方が優勢になるので、第6群全体では ρ_{abs}^f は負の寄与となる。また第6群の ^{241}Pu の成分 $\rho_{\text{abs}}^f(41)$ は、MOX(S)燃料の場合 ^{241}Pu の含有率は ^{239}Pu のそれと比べ約2桁少ないので $\rho_{\text{fis}}^f(41)$ と同様にほとんど無視できる。

一方、 $1/E$ 領域 ($0.2\sim 0.4\text{eV}$) の第5群における ^{239}Pu の成分 $\rho_{\text{abs}}^f(49)$ は、 Σ_{a0} および ^{239}Pu の含有率の上昇とともにボイド率の増加に伴って共鳴中性子束が一層大きく窪むことにより共鳴吸収率が減少するので、 $\rho_{\text{fis}}^f(49)$ とは逆に正側に移行する。しかし、第

5群においても $\alpha < 1.0$ であることによって、やはり $\rho_{abs}^f(49)$ より $\rho_{fs}^f(49)$ の方が優勢であることは、第6群の場合と同様である。

3. 5 燃料領域における成分のまとめ

3.3節および3.4節で考察した結果から、燃料領域のポイド反応度成分について以下のようにまとめられる。

- ① ポイド反応度成分の主要な負の成分は、共鳴エネルギー領域(第2群と第3群)における ^{238}U の無数の巨大な共鳴吸収の増加による負の寄与である。
- ② Σ_{a0} の増加とともにポイド反応度成分を負側に移行させる主要なエネルギー群と核種は、1/E領域からMaxwell領域にわたる熱化中性子スペクトル領域(第5群～第6群)での核分裂性核種(特に ^{239}Pu)である。
- ③ Maxwell領域においては、22.5cmピッチ格子では主に熱中性子スペクトルが硬化することによって核分裂率を減少させる負の成分と捕獲率を減少させる正の成分とが競合するが、 α 値($=\sigma_c/\sigma_f$) < 1.0 であることから前者の負の成分が優勢で ρ_{fs}^f は負側へ移行する。しかし、25.0cmピッチ格子では、Maxwell領域での熱中性子束が相対的に増加することによって、22.5cmピッチ格子の場合とは逆に両成分の符号が逆転し、正の成分が優勢で ρ_{fs}^f は正側へ移行する。
- ④ 燃料核種や組成の相異がポイド反応度をより負側に寄与することを助長する決定的理由は、ポイド率の増加に伴って ^{239}Pu の0.3eVの共鳴エネルギー幅で中性子束の窪みが一層大きくなり、 ^{239}Pu の0.3eVの共鳴核分裂率が減少することに起因する。
- ⑤ 狭いピッチ格子ほどMOX燃料中の ^{239}Pu の0.3eV付近での共鳴核分裂率の減少と ^{241}Pu のMaxwell領域での核分裂率の減少とによる2つの負の成分が相乗するため、ウランよりプルトニウムの方がポイド反応度を負側へ移行させる効果大きい。

以上の研究から、HWR格子における冷却材ポイド反応度の負側への低減効果は、狭いピッチの格子ほど大きく、またUOX格子よりMOX格子の方が寄与が大きい。その理

由は、ボイド率の増加に伴って狭いピッチの格子ほどMaxwell領域で熱中性子スペクトルが硬化すること、および ^{239}Pu の含有率が高いほど ^{239}Pu の0.3eVの共鳴エネルギー幅で中性子束の窪みが大きくなることに起因して核分裂率が減少する負の効果であることが分かった。

4. 結論

格子計算コードWIMS-D4を用いてHWRの無限格子における冷却材ポイド率を0→100%に変化させた場合のポイド反応度を格子ピッチ(22.5cmと25.0cm)をパラメータにして解析し、燃料核種またはプルトニウム同位体組成の相異がポイド反応度に及ぼす効果のメカニズムを解明した。計算では格子内の空間及びエネルギー依存の中性子断面積と中性子束分布を用いて、ポイド反応度を燃料核種(U,Pu)、反応断面積($\nu \Sigma_f$, Σ_a)、中性子エネルギー群(6群)および格子内領域(燃料と冷却材)の各成分として分離することにより、ポイド反応度の挙動を解明できることが分かった。

本研究により、以下の結論が得られた。

- (1) 燃料のマクロ熱中性子吸収断面積が同一であれば、冷却材ポイド反応度は、狭いピッチの格子ほど負側に移行し、またウラン格子よりプルトニウム格子の方がより負側に移行する。
- (2) 狭いピッチ格子ほどポイド反応度が負側へ移行する理由は、軽水の減速効果が大きいいため、ポイド率の増加に伴って熱中性子スペクトルが硬化する効果が大きくなるためである。
- (3) プルトニウムによるポイド反応度の低減効果は、 ^{239}Pu の0.3eVの共鳴吸収断面積の存在に起因し、 ^{239}Pu の含有率が高いほど0.3eVの共鳴エネルギー幅内で冷却材ポイド率の増加に伴う軽水の熱中性子散乱効果が減少することによって、中性子密度の回復効果が低下するからである。この結果、 ^{239}Pu の共鳴核分裂率が減少してポイド反応度に対して負側の寄与となる。

なお、本解析では使用する核データをオリジナルのUKAEAから日本版評価済みのJENDL-3.1に置き換えた。その結果、中性子スペクトル指標及び熱中性子束分布についてWIMS-D4コードの計算精度が向上することを確認した。

参考文献

1. N.FUKUMURA, "Measurement of Local Power Peaking Factors in Heavy-Water Moderated Plutonium Lattice," *J. Nucl. Sci. & Technol.*, 18[4] (1981).
2. Y.KOWATA and N.FUKUMURA, *Nucl. Sci. Eng.*, 99, 299 (1988).
3. H.KATO, "FUGEN plant dynamic test," Proc. 25th ANS Winter Meeting, San Francisco, *Trans. Am. Nucl. Soc.* 33, 761 (1979).
4. K.SHIBATA, et al, "Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Version-3 - JENDL-3 -," *JEARI 1319* (1990).
5. Y.KOWATA and N.FUKUMURA, *Nucl. Sci. Eng.*, 108, 308 (1991).
6. J.J. DUDERSTADT and L.J. HAMILTON, 成田正邦, 藤田文行 共訳, "原子炉の理論と解析(上)," 219, 現代工学社 (1982).
7. S.SAWAI, T.WAKABAYASHI and N.FUKUMURA, "Characteristics of Plutonium Utilization in the Heavy-Water-Moderated, Boiling-Light-Water-Cooled Reactor ATR," *Nucl. Engineering and Design* 125, 251-257 (1991).
8. T.WAKABAYASHI and Y.HACHIYA, *Nucl. Sci. Eng.*, 63, 292 (1977).

謝 辞

本報告書をまとめるにあたり幾多の貴重なコメントをいただいた猪原敏照氏（現在、電源開発株式会社 原子力部）に深く感謝いたします。

解析およびそのデータ処理において（株）CRC総合研究所の鷹見益夫氏および原子力システム（株）の岩崎誠司氏の献身的な御協力をいただきました。ここに深く感謝いたします。

TABLE I Nuclide Composition in Fuel for Void Reactivity Analyses

FUEL	Σ_{a0} (cm^{-1})	$^{235}\text{U}+\text{Pu}^{\text{fiss}}$ (wt%)	Ingredient (wt%)					
			^{235}U	^{238}U	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu
UO_2 (UOX)	0.20	0.88	0.7690	87.08	—	—	—	—
	0.25	1.19	1.047	86.80	—	—	—	—
	0.30	1.51	1.325	86.53	—	—	—	—
	0.35	1.82	1.603	86.25	—	—	—	—
	0.40	2.12	1.881	86.97	—	—	—	—
	0.45	2.46	2.159	85.69	—	—	—	—
	0.50	2.77	2.437	85.41	—	—	—	—
$\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ (MOX(R))	0.20	0.82	0.6239	87.13	8.205E-02	2.751E-02	1.196E-02	3.804E-03
	0.25	1.01	0.6223	86.90	2.300E-01	7.712E-02	3.351E-02	1.066E-02
	0.30	1.20	0.6207	86.67	3.779E-01	1.267E-01	5.507E-02	1.752E-02
	0.35	1.39	0.6190	86.45	5.258E-01	1.763E-01	7.662E-02	2.438E-02
	0.40	1.58	0.6174	86.22	6.737E-01	2.259E-01	9.818E-02	3.124E-02
	0.45	1.77	0.6158	85.99	8.217E-01	2.755E-01	1.197E-01	3.810E-02
	0.50	1.96	0.6141	85.76	9.696E-01	3.251E-01	1.413E-01	4.496E-02
$\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ (MOX(S))	0.20	0.83	0.6240	87.14	1.081E-01	1.034E-02	1.095E-03	7.700E-05
	0.25	1.05	0.6225	86.93	2.940E-01	2.811E-02	2.980E-03	2.080E-04
	0.30	1.26	0.6211	86.73	4.798E-01	4.588E-02	4.860E-03	3.400E-04
	0.35	1.47	0.6196	86.52	6.657E-01	6.365E-02	6.740E-03	4.700E-04
	0.40	1.68	0.6181	86.32	8.516E-01	8.142E-02	8.620E-03	6.000E-04
	0.45	1.89	0.6167	86.12	1.037E+00	9.920E-02	1.051E-02	7.000E-04
	0.50	2.11	0.6152	85.91	1.223E+00	1.170E-01	1.239E-02	8.700E-04

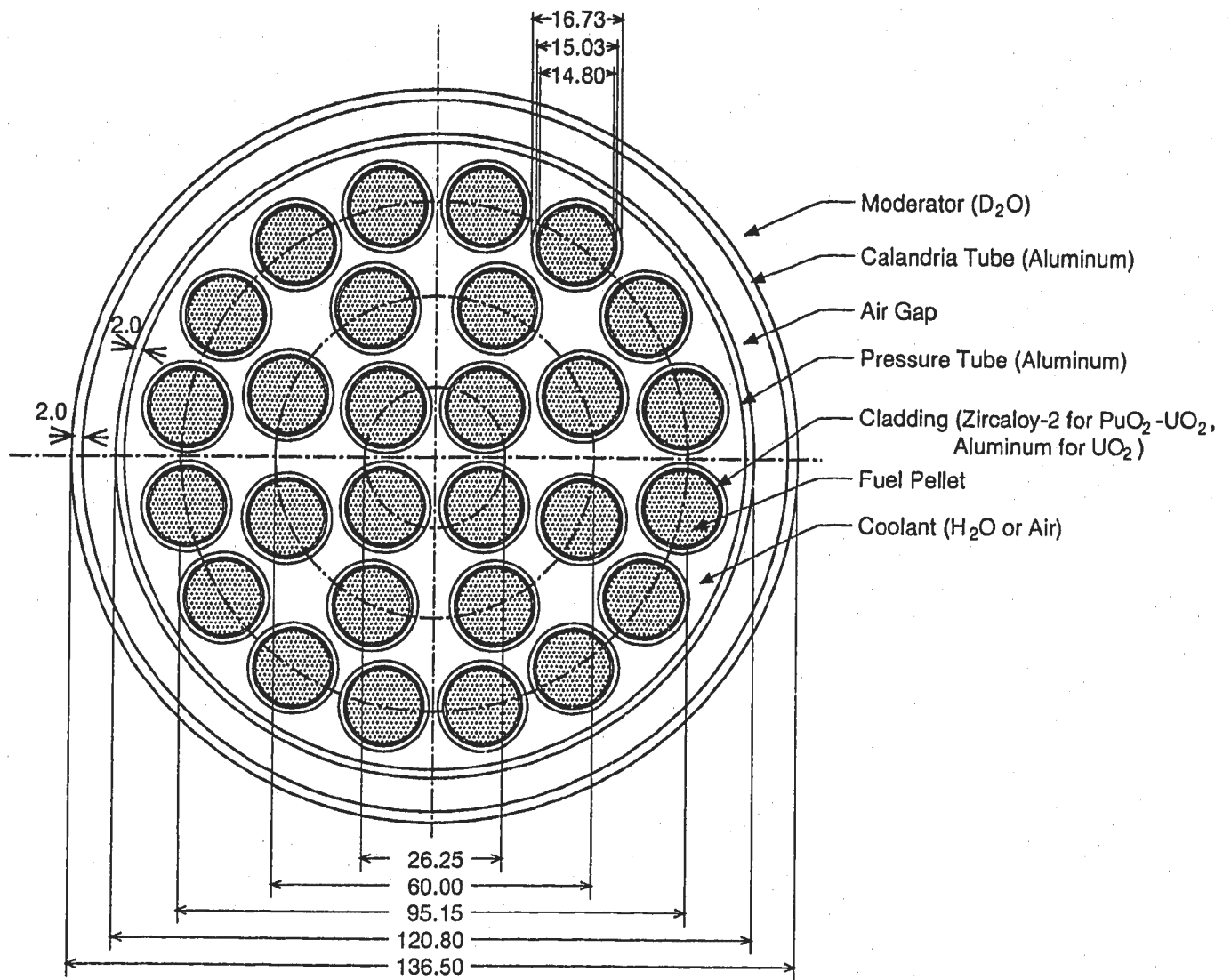
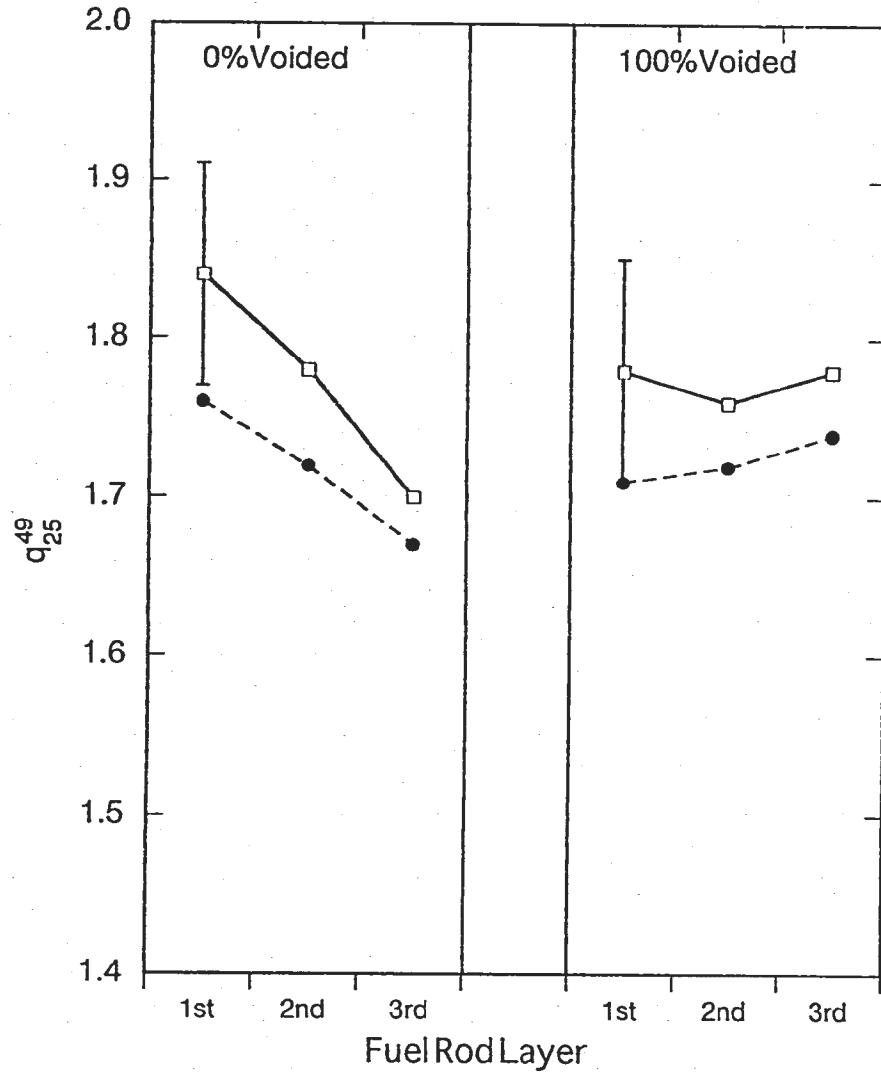
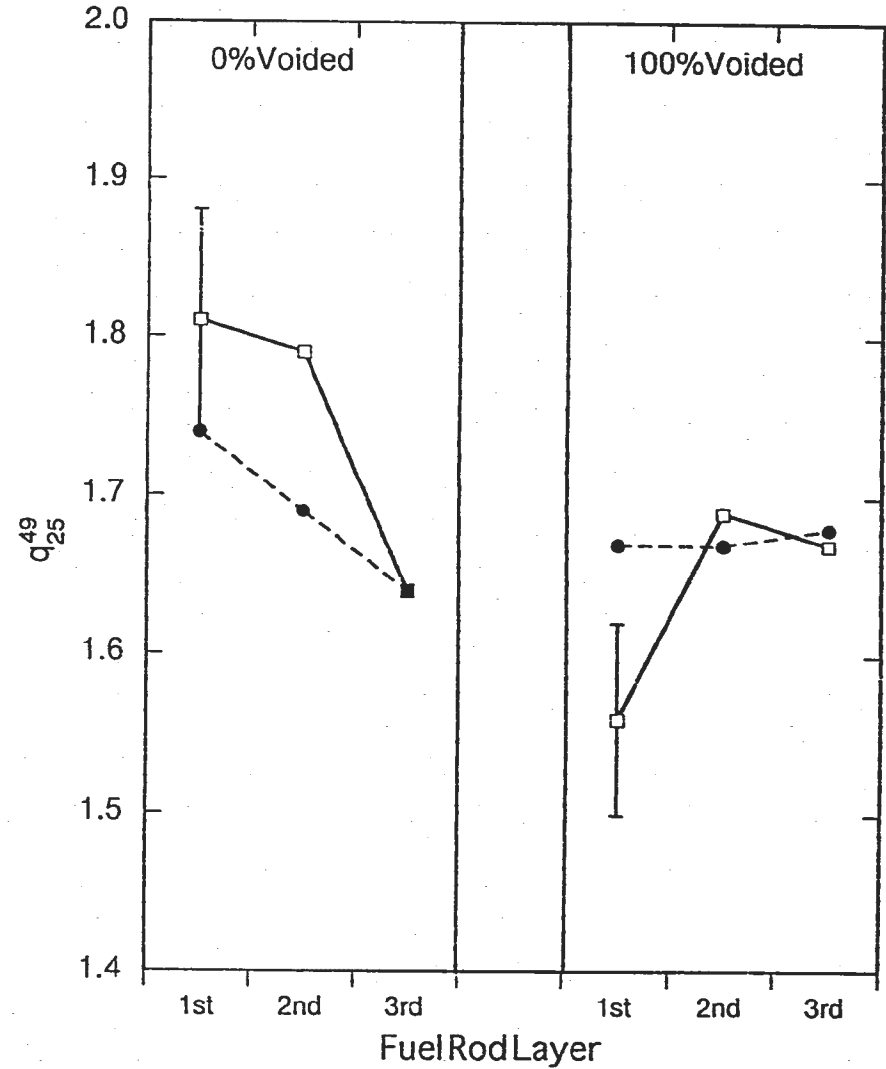


Fig. 1. Cross-sectional view of 28-rod fuel assembly. Dimensions are given in millimetres.



(1) Lattice Pitch = 22.5 cm



(2) Lattice Pitch = 25.0 cm

Fig.2 Comparison between calculated and experimental values for q_{25}^{49} of 0.87wt%(R) $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ cluster.

---●--- : Calculation
 ---□--- : Experiment

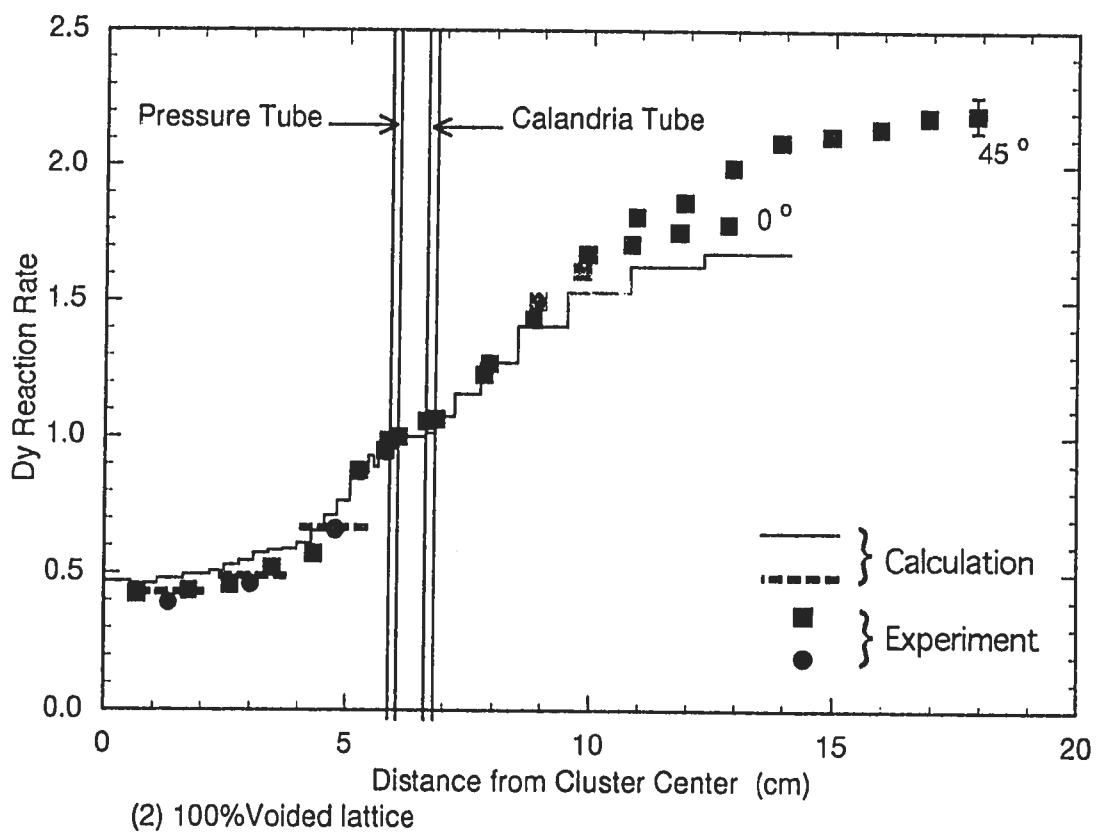
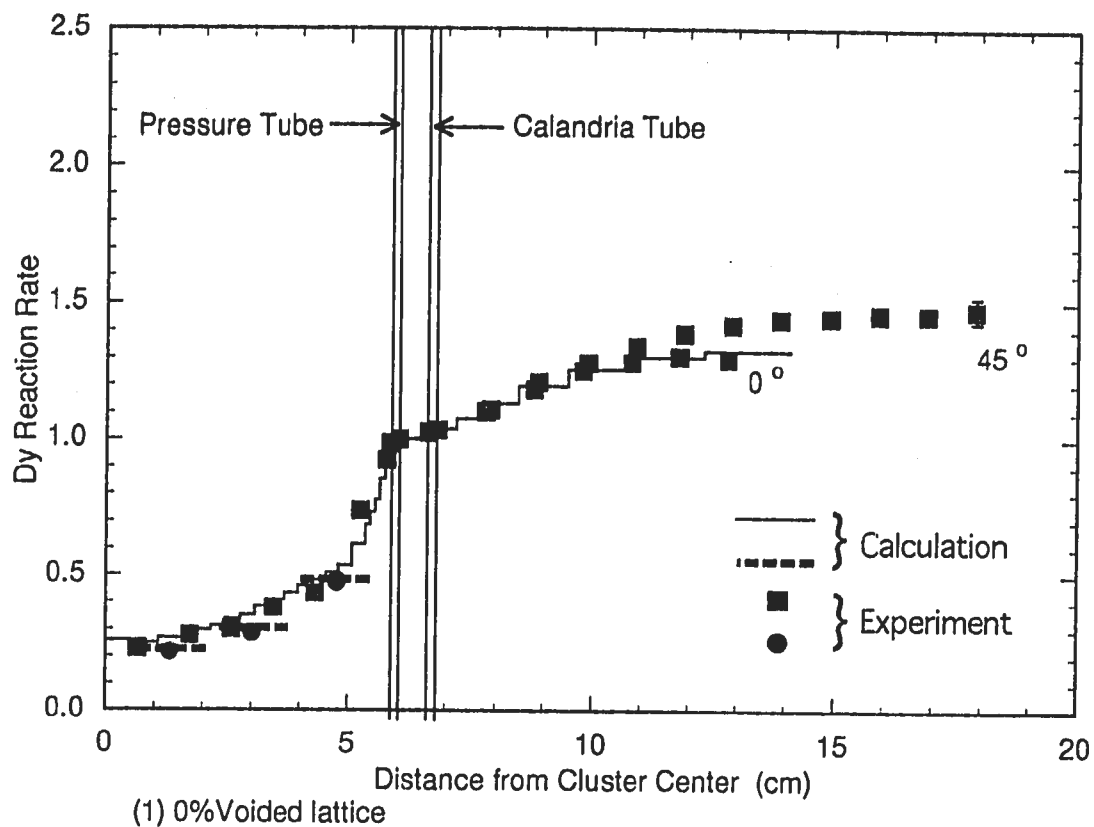


Fig. 3. Intra-cell thermal neutron flux distribution in 25.0cm pitch 0.87wt%(R)PuO₂-UO₂ lattice.

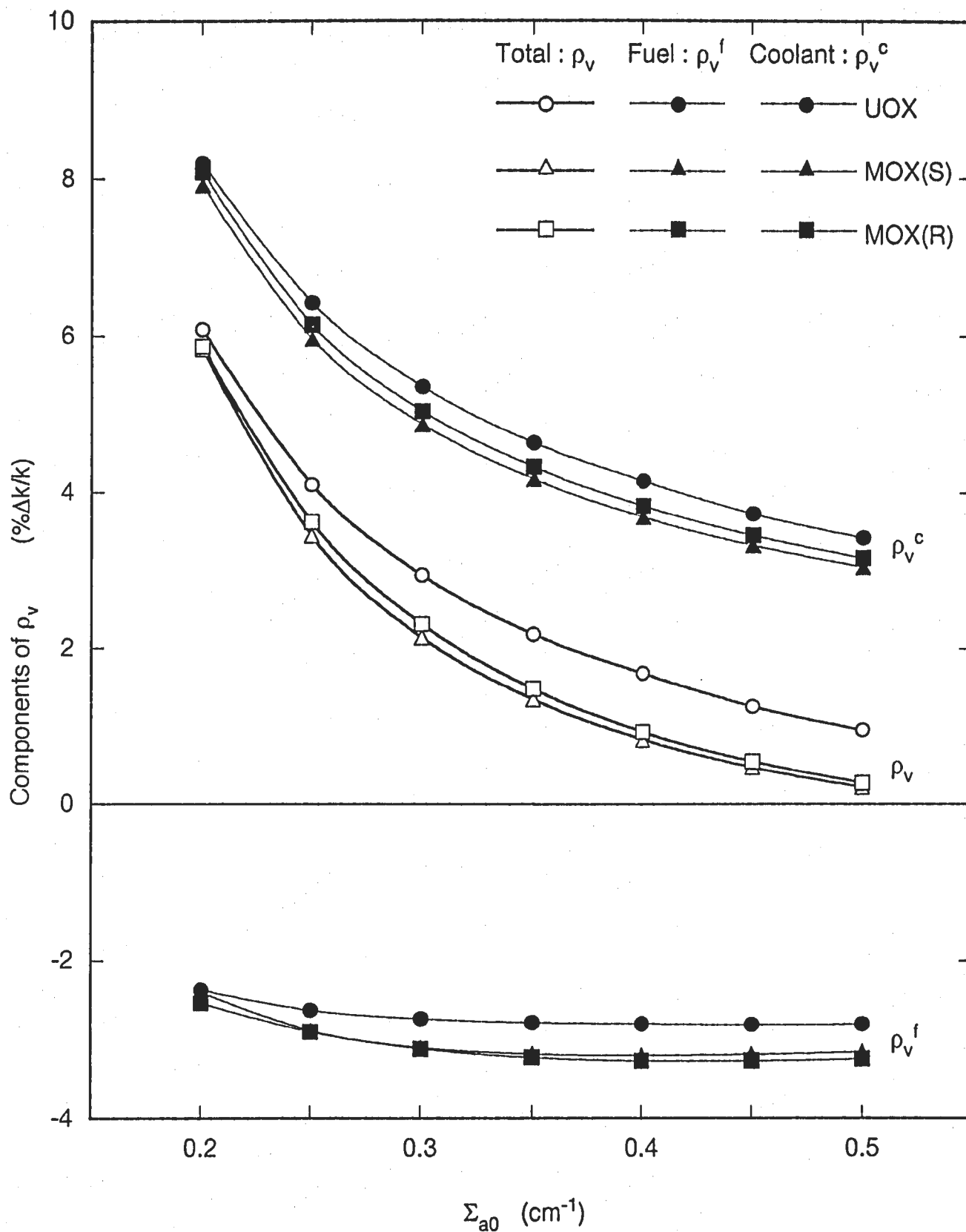


Fig.4 Components in fuel and coolant regions of void reactivity in 22.5cm pitch UOX and MOX fuel lattices.

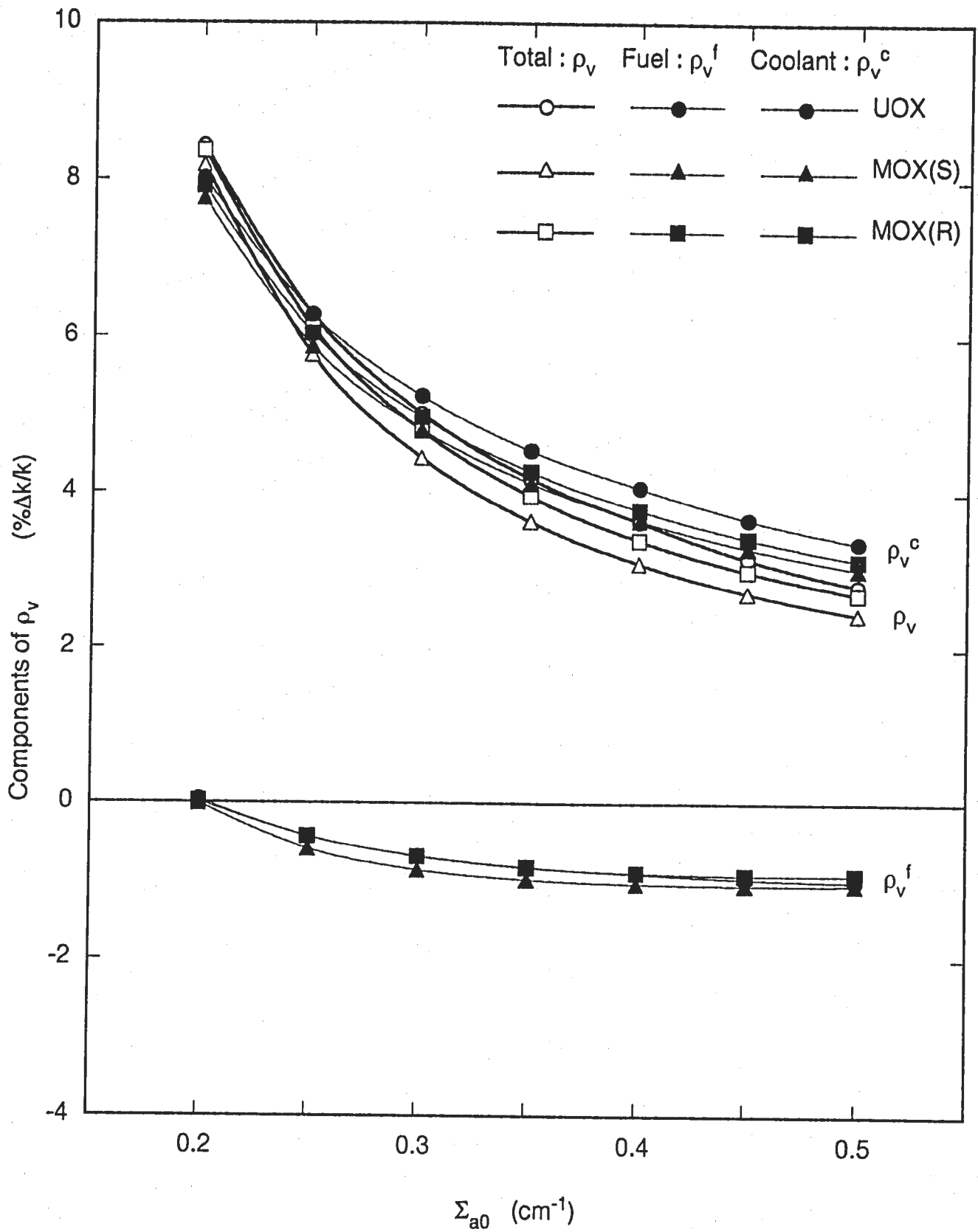


Fig. 5. Components in fuel and coolant regions of void reactivity in 25.0cm pitch UOX and MOX fuel lattices.

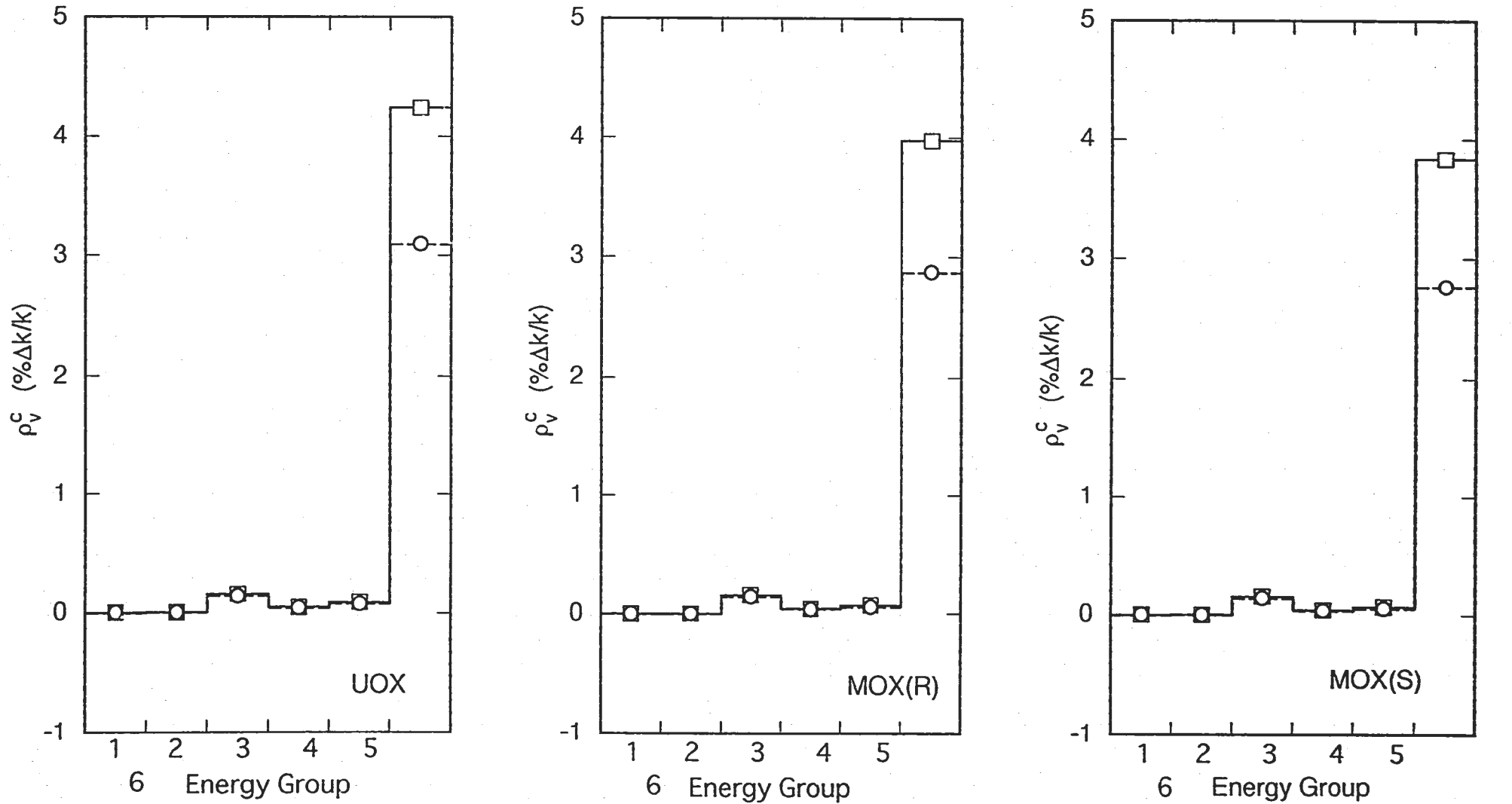


Fig.6 Absorption components of hydrogen in H₂O coolant to void reactivity in 25.0 cm pitch lattice.

—□— $\Sigma_{a0} = 0.35 \text{ cm}^{-1}$
 ---○--- $\Sigma_{a0} = 0.50 \text{ cm}^{-1}$

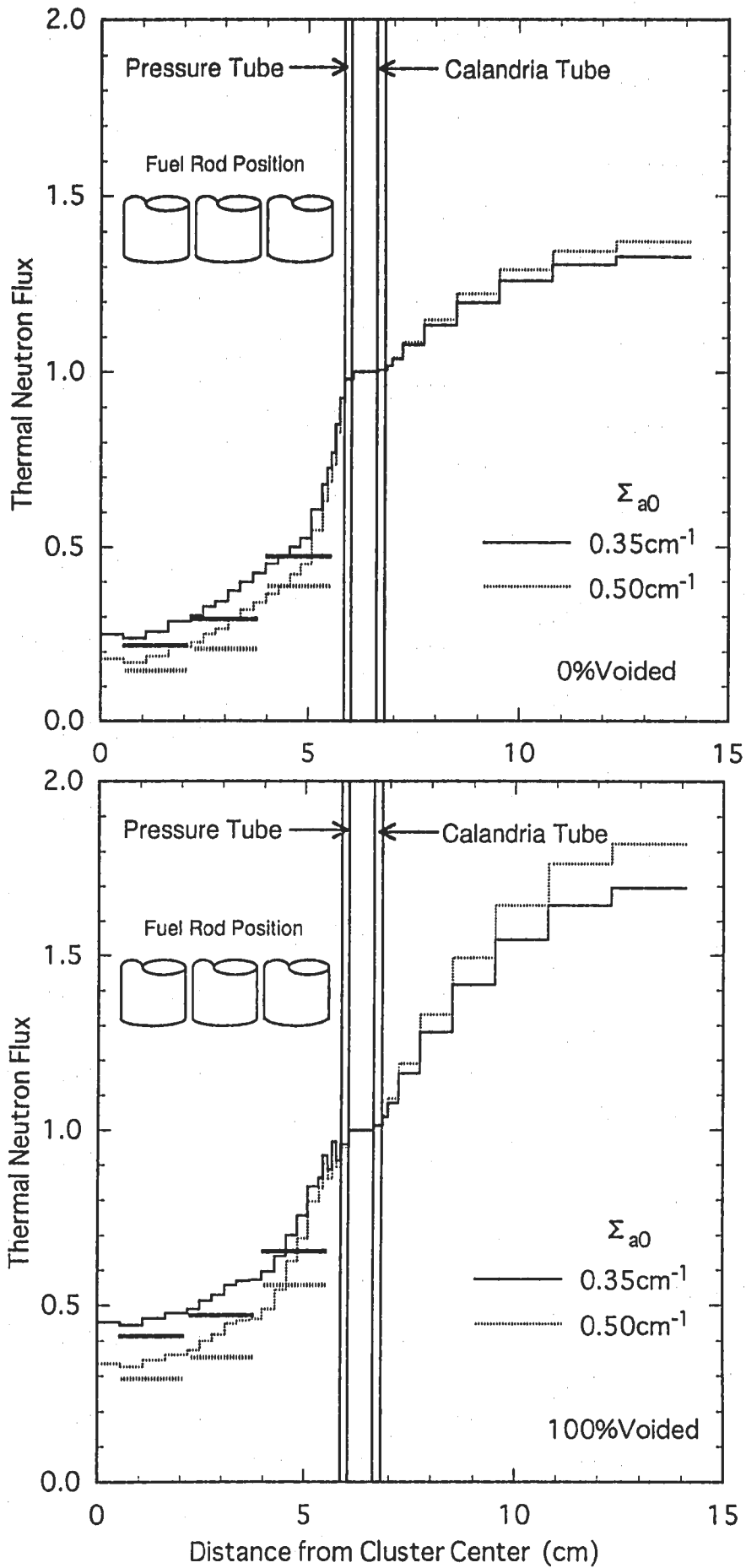


Fig. 7. Intra-cell thermal neutron flux distribution in 25.0cm pitch MOX(S) fuel lattice.

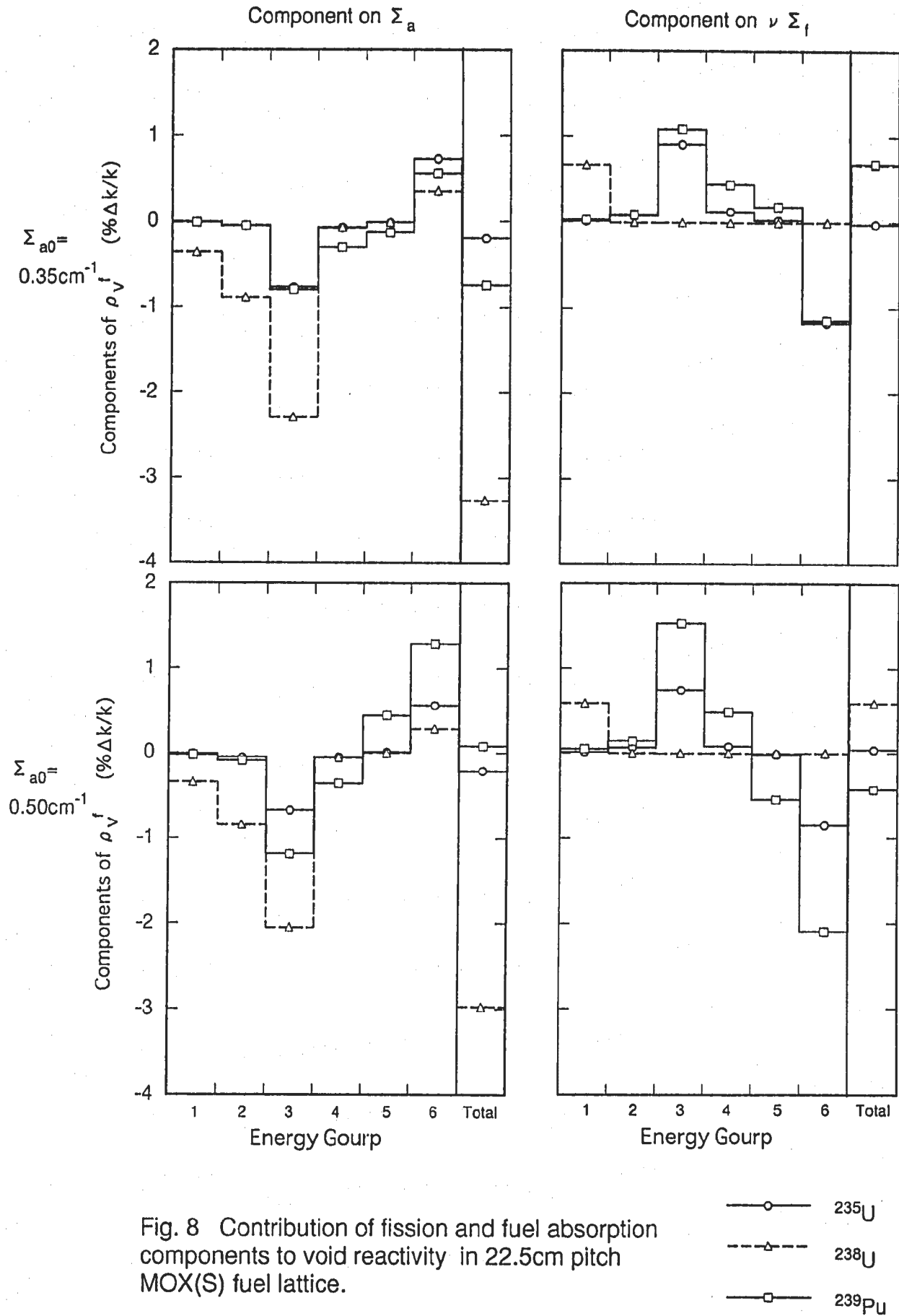


Fig. 8 Contribution of fission and fuel absorption components to void reactivity in 22.5cm pitch MOX(S) fuel lattice.

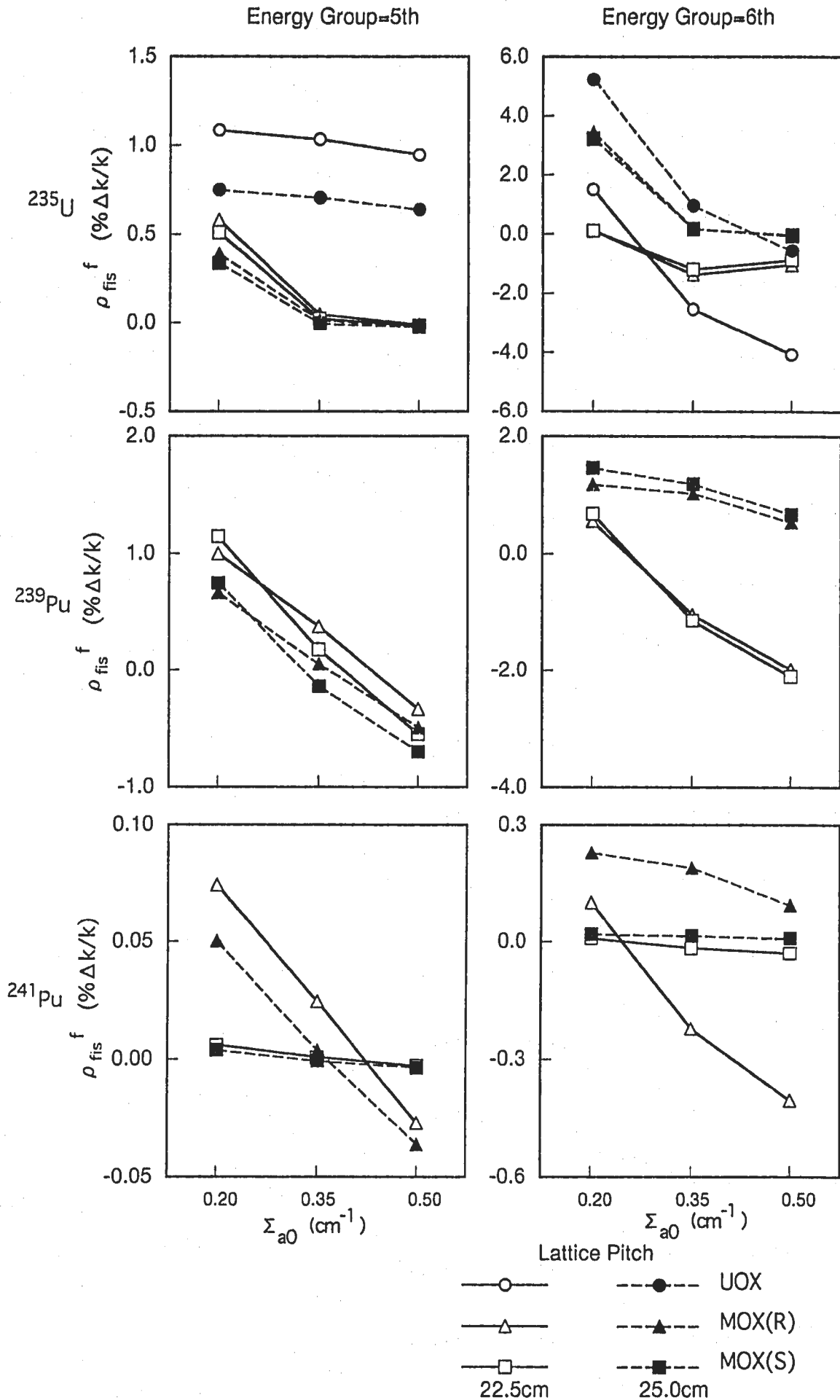


Fig. 9. Contribution in 5th and 6th energy groups of fission component for each fissile nuclide to void reactivity.

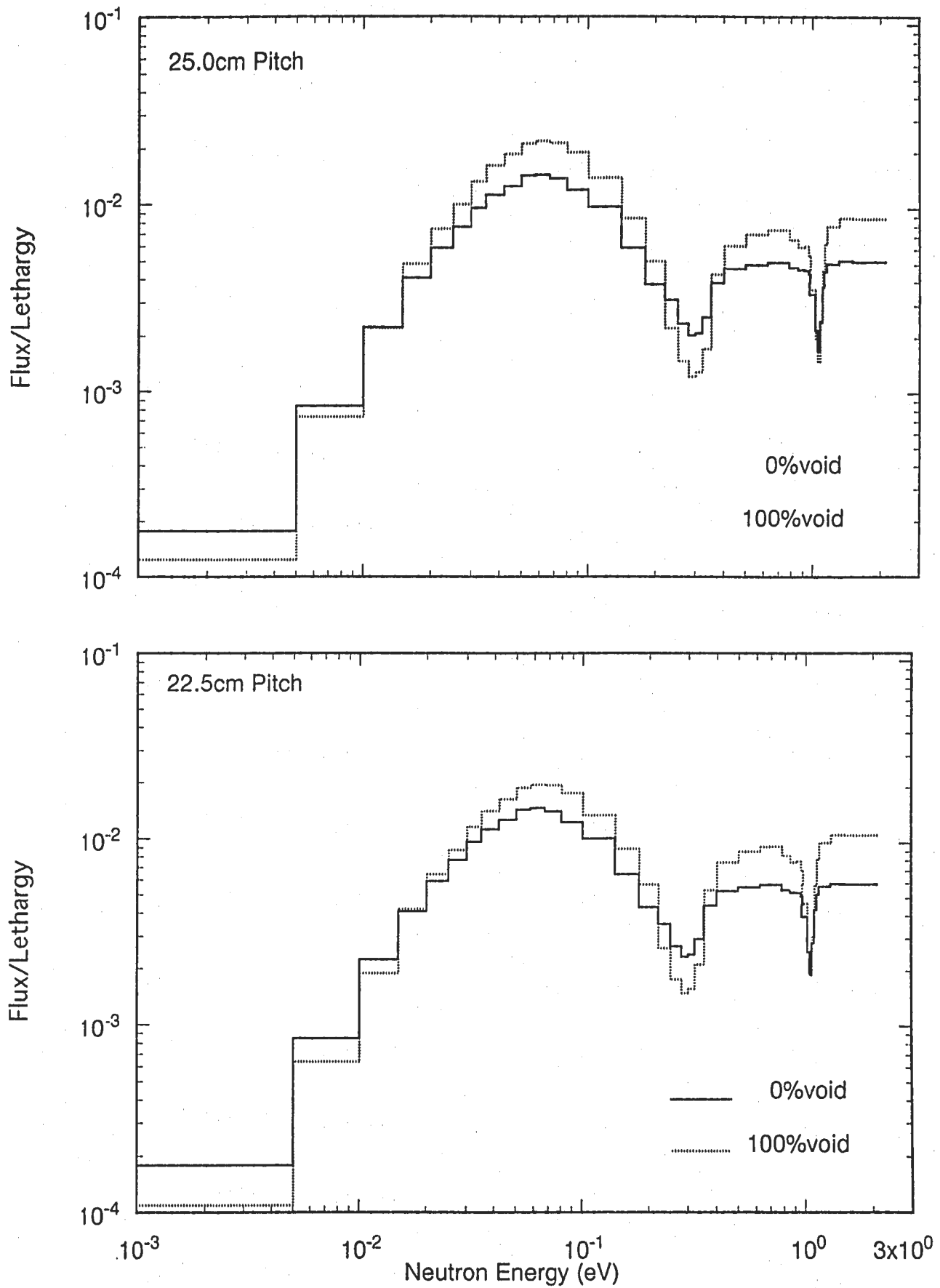


Fig.10 Thermal neutron spectrum in inner layer fuel rod of MOX(S) ($\Sigma_{a0}=0.35\text{cm}^{-1}$) lattice.

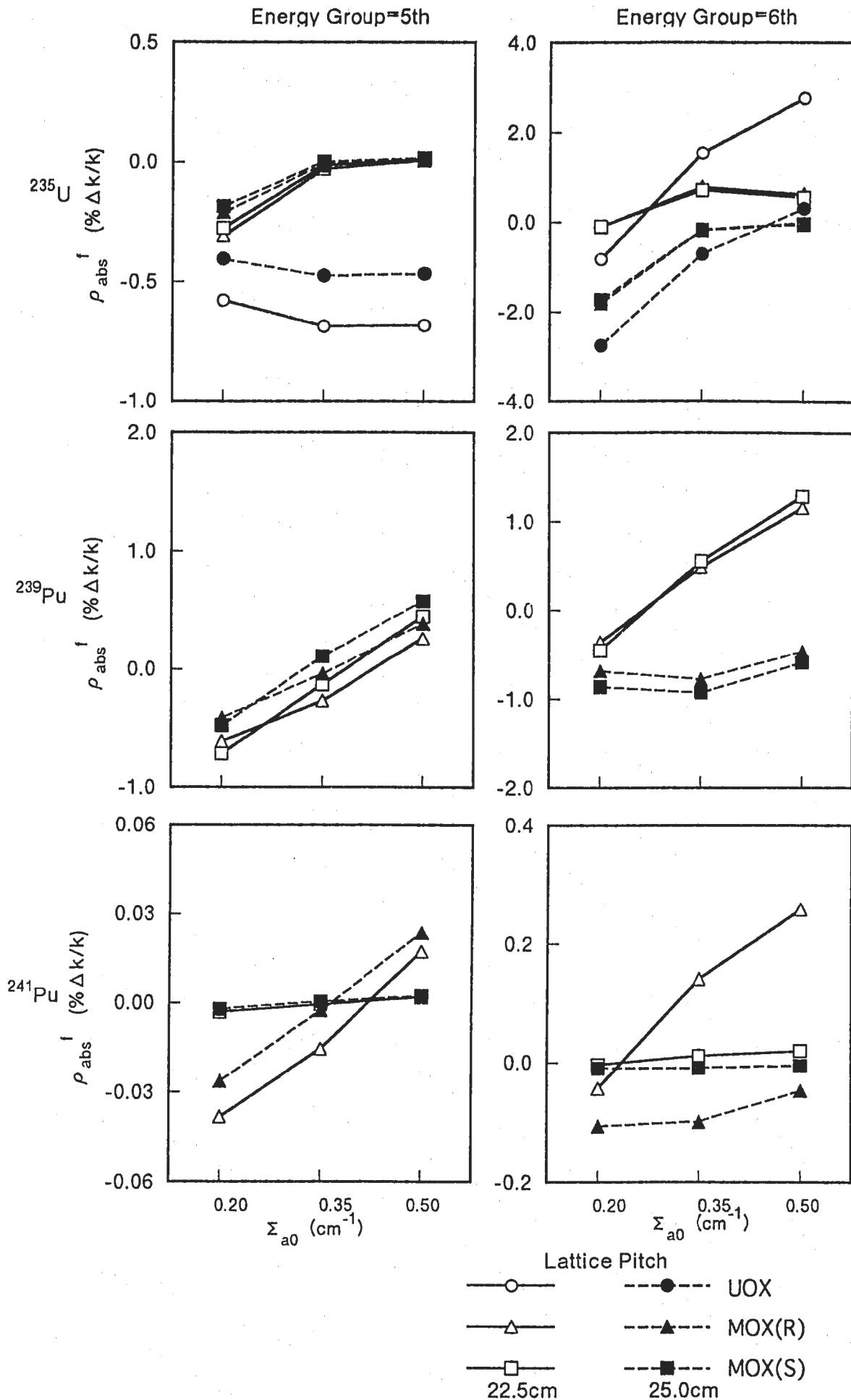


Fig. 11. Contribution in 5th and 6th energy groups of absorption component for each fissile nuclide to void reactivity.