

<第49回炉物理夏期セミナー報告>

若手研究会報告

FP領域核種における評価済み熱中性子捕獲断面積データの実験的検証

Experimental validation of evaluated data of thermal neutron capture cross section in the region of FP

寺島 敦仁

東京工業大学大学院理工学研究科原子核工学専攻

1. 緒言

原子炉核特性解析や中性子遮蔽設計などといった原子力分野で用いられる様々な計算コード内において、中性子捕獲断面積は最も基本的な物理量の一つとして取り扱われており、その値は入射中性子のエネルギーに依存して大きく変化する。原子炉で発生する中性子は幅広いエネルギー領域(10^{-2} ~ 10^7 eV)に及ぶため、JENDLやENDF/Bといった評価済み核データライブラリという形で全エネルギー領域における中性子捕獲断面積の評価値が整備されており、各種計算に広く用いられている。その中でも特に、熱中性子捕獲断面積 σ_0 の値は、核物理の理論で求めることができないことから、過去の実験測定値に基づいて評価がなされている。しかしながら、白金族元素や希土類元素といった核分裂生成物(FP)領域の核種においては、実験測定値の数が多くなく、評価値の精度が十分に担保されていないのが現状である。

断面積データの不確かさは共分散データとして与えられるが、JENDL-4.0においては、FP核種の断面積データについての共分散データはまだ整備されていない^[1-3]。したがって、研究用原子炉を用いた中性子照射実験と、それを模擬する計算機シミュレーションを比較することにより、評価済み断面積データの信頼性を検証することは、計算結果の信頼性の担保につながるだけでなく、断面積データの不確かさに関する知見をもたらし、将来的な共分散データの整備に役立てることができると考えられる。

そこで本研究では、中性子照射実験と計算機シミュレーションを組み合わせることにより、特にFPにおける希土類元素領域のいくつかの核種の σ_0 について、評価済み核データライブラリ JENDL-4.0における評価値の妥当性確認をおこない、さらに、照射実験に基づく σ_0 の推定値を算出する。

2. 手法

2.1 中性子放射化分析実験

各元素のICP標準溶液から、1,000 ppmのLa, Ce, Nd, Sm, Gd, Tb, Er, およびTmイオンを含む希硝酸溶液をそれぞれ調製した。各溶液を1 mL採取してポリバイアルに封入した上で、米国カリフォルニア大学アーバイン校のUCI-TRIGA炉における照射用のポリエチレン容器にそれぞれ入れた。

UCI-TRIGA炉におけるサンプルの装荷場所としては、炉心の外側を囲む黒鉛反射体の内側領域に位置し、熱中性子束が支配的となる“Lazy Suzan”を選択した。“Lazy Suzan”には最大40本の照射用ポリエチレン容器を装荷することが可能であるため、本実験では各溶液のサンプルを異なる装荷位置に同時に装荷した上で、定常最大熱出力である250kWで、1時間にわたって中性子を照射した。

照射終了後、高純度Ge半導体検出器GC4018(CANBERRA)を用いて、生成した放射性核種の崩壊に伴うガンマ線を測定し、分析ソフトGenie 2000(CANBERRA)を用いてガンマ線スペクトルを分析した。代表的なガンマ線のカウント数CPSから、その崩壊履歴と検出器効率の較正に基づいて照射終了時刻における各放射性核種の原子個数密度 E を計算した。

照射終了時刻 t_i [s]における各放射性核種の原子個数密度 $N(t_i)$ [cm^{-3}]は、

$$N(t_i) = \frac{1}{\lambda} \times \frac{CPS(t_b)}{I \times \varepsilon} \times \exp[\lambda\{t_b - t_i\}] \times \frac{\lambda\{t_e - t_b\}}{1 - \exp[-\lambda\{t_e - t_b\}]} \quad (1)$$

により算出した。ここで、 $t_{b(e)}$ [s]はガンマ線計測の開始(終了)時刻、 I [%]はガンマ線の放出強度、 λ [s]は放射性核種の崩壊定数である。また、 ε [%]はサンプルの形状、検出器内での測定位置、およびガンマ線のエネルギーに依存した検出器効率である。

本実験測定値の誤差については、実験由来としてカウント数 CPS と検出器効率 ε の誤差、および核データ由来としてガンマ線の放出強度 I と崩壊定数 λ の不確かさを考慮した。

2.2 燃焼計算

第2.1項で示した UCI-TRIGA 炉(Mark-I 型)を用いた中性子放射化分析実験の条件に従って、連続エネルギー法に基づく3次元モンテカルロコード MVP^[4]と燃焼計算モジュール MVP-BURN^[5]を用いて、生成放射性核種の原子個数密度のシミュレーションを実施した。

MVP の入力データにおける炉心の3次元幾何形状は、UCI-TRIGA 炉に関する資料^[6-8]に基づいてモデリングした(Fig.1)。なお、照射台の回転による中性子束の均一化を模擬するため、および、照射領域における統計量を増やすために、本計算では、40箇所の照射領域全てに同じ元素のサンプルを装荷した体系とした。

炉心内の各構造材における核種組成は、MVP を用いた TRIGA 炉(Mark-II 型)のベンチマーク計算に関する報告書^[9]および UCI-TRIGA 炉の炉心解析に関するレポート^[8]を参考にして定めた。ただし、装荷されている燃料棒の照射履歴を完全に追うことは困難であったため、全燃料棒を新燃料組成と仮定した。

燃焼チェーンデータファイルは、ChainJ40(u4cm6fp119bp14T_J40)を一部書き換えることによって短寿命な放射性核種の原子個数密度を陽に扱えるように改造したものを使用した。MVP 計算用の断面積ライブラリは、JENDL-4.0 に基づく MVPlib_nJ40^[10]を使用した。

MVP 計算において、1バッチあたりの中性子ヒストリは 160,000 とし、スキップバッチ数および有効バッチ数はそれぞれ 100 および 1,000 とした。BURN 計算において、燃焼ステップは 1 時間の照射時間に対して 1 ステップとした。燃焼計算のサブステップ数は、燃焼ステップごとに 120 回とした。

以上の条件で燃焼計算をおこない、照射終了時刻における生成放射性核種の原子個数密度 C を算出した。

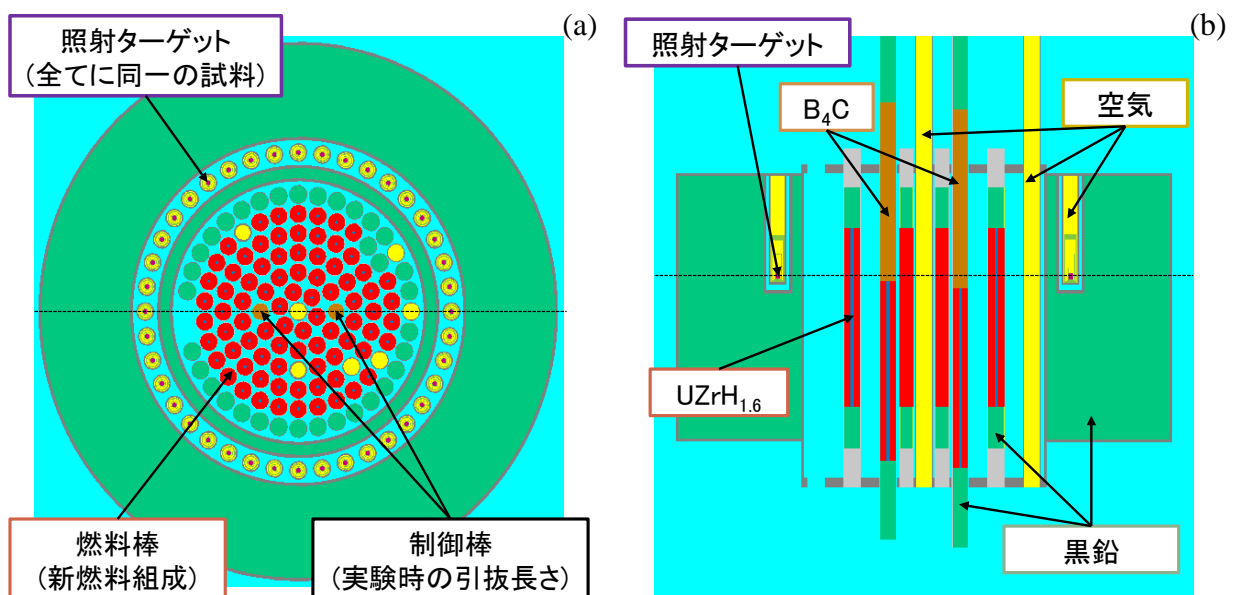


Fig.1 本計算で作成した UCI-TRIGA 炉の 3 次元モデル (a)水平断面図, (b)鉛直断面図 (破線: 断面)

2.3 (C/E-1)値の規格化

ターゲット核種の中性子捕獲断面積データの評価値に言及することを考える上では、第2.2項で求めた各計算値から、計算における仮定やモデリング、実際の炉心出力との差異等に起因して生じる共通の誤差因子を規格化によって取り除く必要があると考えられる。一般的な中性子放射化実験では、金(^{197}Au)の放射化量が規格化因子として用いられるが、本解析では $^{152}\text{Sm}(n, \gamma)^{153}\text{Sm}$ の放射化量についての(C/E-1)値を規格化因子として用いた。なお、 ^{152}Sm は熱中性子捕獲断面積の値が大きいため、放射化分析実験において測定しやすい核種である。ここで、 ^{152}Sm の熱中性子捕獲断面積の実験測定値と主要な核データライブラリにおける評価値の変遷を、Fig.2に示す。Fig.2における実験測定値は実験核反応データベース EXFOR^[11]より、各ライブラリにおける評価値は評価済み核データファイルデータベース ENDF^[12]より、それぞれ取得した。Fig.2より、 ^{152}Sm の熱中子捕獲断面積は、過去に得られた測定値のばらつきが小さく、かつ、主要な評価済み断面積ライブラリにおける値もほぼ同じ値が採用されていることから、今後大幅な改訂がなされにくいと考えられる。

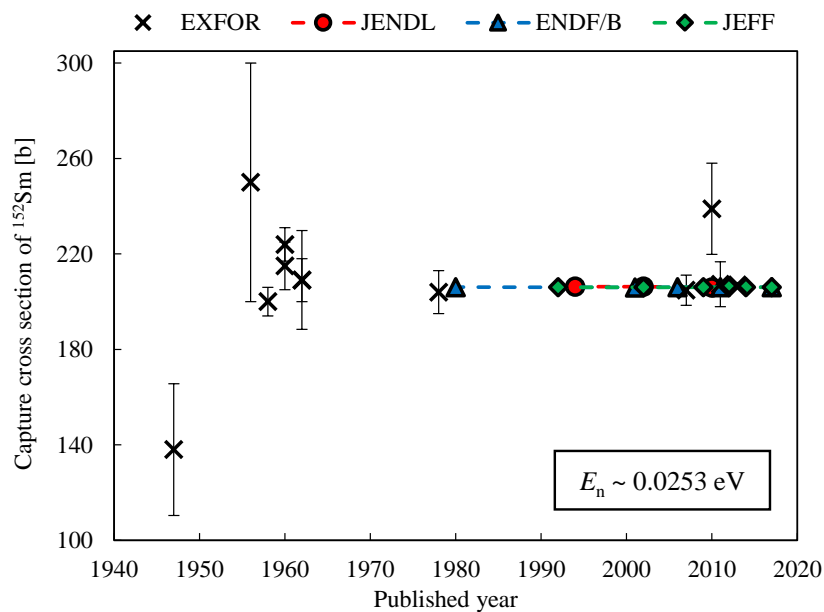


Fig.2 ^{152}Sm の熱中性子捕獲断面積の実験測定値(EXFOR)および評価値の変遷

3. 結果

3.1 JENDL-4.0における中性子捕獲断面積データの妥当性確認

^{152}Sm の中性子捕獲反応によって生成された ^{153}Sm の生成量についての(C/E-1)値を規格因子として用いた場合における、各核種の相対的な(C/E-1)値をFig.3に示す。相対的(C/E-1)値が小さい核種から見ると、 $^{159}\text{Tb}(n, \gamma)^{160}\text{Tb}$ については、実験誤差の幅を考慮しても5%以下の差しかないことから、JENDL-4.0における中性子捕獲断面積データの不確かさは5%以下程度である可能性が示唆された。次に、 $^{139}\text{La}(n, \gamma)^{140}\text{La}$ 、 $^{140}\text{Ce}(n, \gamma)^{141}\text{Ce}$ 、 $^{142}\text{Ce}(n, \gamma)^{143}\text{Ce}$ 、 $^{146}\text{Nd}(n, \gamma)^{147}\text{Nd}$ 、並びに $^{148}\text{Nd}(n, \gamma)^{149}\text{Nd}$ については、+10%程度の差となったことから、計算値が過大評価、すなわち、捕獲断面積データが10%程度の過大評価となっている可能性が示唆された。一方、 $^{158}\text{Gd}(n, \gamma)^{159}\text{Gd}$ および $^{169}\text{Tm}(n, \gamma)^{170}\text{Tm}$ については、-5~-10%程度の差となったことから、計算値が過少評価、すなわち、捕獲断面積データが5~10%程度の過少評価となっている可能性が示唆された。最後に、 $^{170}\text{Er}(n, \gamma)^{171}\text{Er}$ については、+15%程度の差となったことから、捕獲断面積データが15%程度の過大評価となっている可能性が示唆された。

以上より、核種ごとでばらつきがあるものの、FP領域核種、とりわけ希土類元素の核種においては、

JENDL-4.0における中性子捕獲断面積データについて、±10%程度の不確かさを持っていることが示唆された。したがって、あらかじめ±10%程度の不確かさによる影響を考慮しておくことで、計算結果の信頼性を担保することができるのではないかと考えられる。

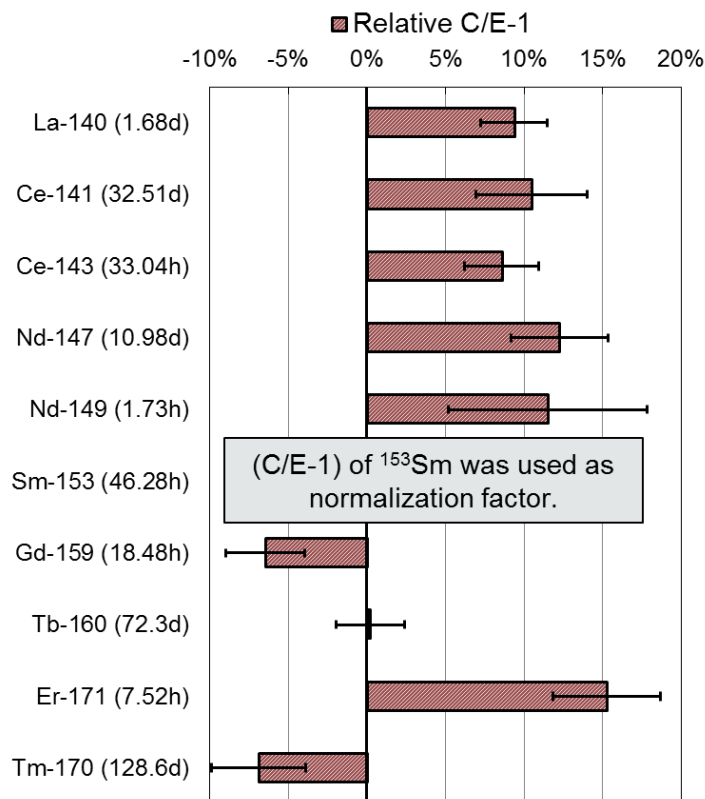


Fig.3 照射終了時刻における放射性核種の原子個数密度についての実験値と計算値の差異

3.2 本実験に基づく σ_0 の推定値の算出

Fig.3 に示した各放射性核種の生成量についての相対的(C/E-1)値を用いることで、計算で使用した JENDL-4.0 における σ_0 の評価値を補正することにより、本実験結果から推測される推定値の算出を試みる。Fig.3 に示した生成核種に対応するターゲット核種は全て、中性子捕獲断面積に関する g-factor がほぼ 1.0 であるため、熱領域の断面積は $1/\nu$ 則に従う。したがって、相対的(C/E-1)値の要因の全てを $1/\nu$ 領域の断面積の不確かさに起因するものと仮定すると、 $1/\nu$ の傾きを持つ直線を C/E 値に応じて上下させるだけで補正することができるため、

$$\sigma_0^{\text{est}} = \frac{\sigma_0^{\text{J40}}}{(C/E)} \quad (2)$$

によって JENDL-4.0 における評価値 σ_0^{J40} を補正することで、推定値 σ_0^{est} を得ることができると考えられる。

そこで、(2)式によって算出した各核種の σ_0 の推定値を、Table 1 にまとめた。また、一例として、 ^{142}Ce について、 σ_0 の実験測定値および核データライブラリにおける評価値と本推定値との比較を、Fig.4 に示す。本推定では共鳴領域の不確かさの存在を考慮せず、全ての差異を熱中性子捕獲断面積に乗せているため、 $1/\nu$ 領域の寄与率が低い核種については、過剰な補正になっている可能性が考えられる。しかしながら、 ^{142}Ce のように、最新の評価済みライブラリ間の差異よりも大きい 10%程度という相対的(C/E-1)値を有していた核種においても、その σ_0 の推定値は過去の実験測定値をサポートする範囲の値であることが確認できた。したがって、本推定で用いた(2)式は簡易的な補正式ではあるものの、 σ_0 の推定値として妥当な結果を導出することができたのではないかと考えられる。

Table 1 希土類元素における熱中性子捕獲断面積の推定値のまとめ

Target nuclide	σ_0 in JENDL-4.0 [b]	Relative (C/E-1) [%]	σ_0^{est} [b]
^{139}La	8.94	9.37±2.11	8.17±0.14
^{140}Ce	0.570	10.48±3.54	0.516±0.015
^{142}Ce	0.961	8.58±2.36	0.885±0.018
^{146}Nd	1.49	12.27±3.06	1.33±0.03
^{148}Nd	2.58	11.52±6.32	2.32±0.12
^{158}Gd	2.20	-6.48±2.50	2.35±0.07
^{159}Tb	23.1	0.21±2.18	23.1±0.5
^{170}Er	8.86	15.26±3.41	7.68±0.20
^{169}Tm	105	-6.90±2.98	113±4

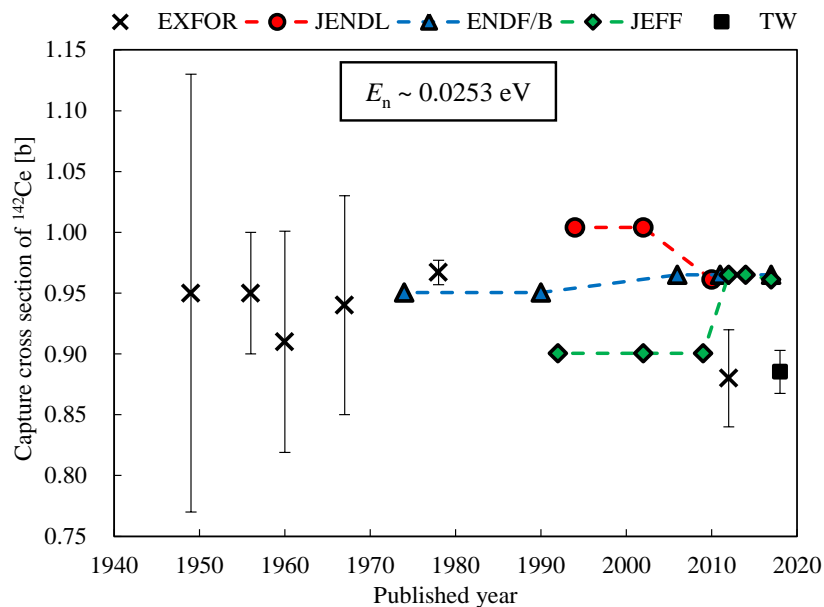


Fig.4 ^{142}Ce の熱中性子捕獲断面積の実験測定値(EXFOR)および評価値と算出した推定値(TW)の比較

4. 結言

本研究では、FP 領域における評価済み断面積データの検証を目的として、米国カリフォルニア大学アーバイン校の UCI-TRIGA 炉における中性子放射化分析実験、および MVP-BURN を用いた燃焼計算をおこない、 ^{153}Sm の生成量についての計算値 C と実験値 E の差($C/E-1$)を規格化因子として用いた場合における各放射性核種の生成量についての相対的な($C/E-1$)値を算出することで、JENDL-4.0 におけるターゲット核種の中性子捕獲断面積データを検証した。その結果、希土類元素の中性子捕獲断面積データは、±10%程度の不確かさを有している可能性が明らかになった。したがって、あらかじめ±10%程度の不確かさの影響を考慮しておくことで、計算結果の信頼性を担保することができるのではないかと考えられる。

また、各放射性核種の生成量についての相対的な($C/E-1$)値を用いることで、JENDL-4.0 における σ_0 の評価値を補正することにより、本実験に基づく推定値を算出した。複数の評価済みライブラリ間の差異よりも大きな差異である 10%程度の相対的な($C/E-1$)値を有していた核種においても、その σ_0 の推定値は過去の実験測定値をサポートしていたことから、妥当な値を導出することができたと考えられる。

謝辞 本研究は、東京工業大学環境エネルギー協創教育院およびJSPS 科研費 15J12066 の助成を受けたものである。

参考文献

- [1] K. Shibata, et al.: “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering,” *J. Nucl. Sci. Technol.* **48**, 1-30 (2011).
- [2] O. Iwamoto, et al.: “Covariance Evaluation for Actinide Nuclear Data in JENDL-4,” *J. Korean Phy. Soc.* **59**, 1224-1229 (2011).
- [3] O. Iwamoto: “Evaluation of Covariance Data of JENDL,” JAEA-Conf 2013-002, 41-46 (2013).
- [4] Y. Nagaya, et al.: “MVP/GMVP II : General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations based on Continuous Energy and Multigroup Methods,” JAERI 1348, Japan Atomic Energy Research Institute (2005).
- [5] K. Okumura, et al.: “Validation of a Continuous-Energy Monte Carlo Burn-up Code MVP-BURN and Its Application to Analysis of Post Irradiation Experiment,” *J. Nucl. Sci. Technol.* **37**, 128-138 (2000).
- [6] J. R. Humphries: “TRIGA MARK I 250-kW Pulsing Reactor Mechanical Maintenance and Operating Manual for the University of California, Irvine,” GA 9389, General Atomics (1969).
- [7] G. E. Miller: “Safety Analysis Report Revision 1,” University of California, Irvine (1999).
- [8] J. Crozier: “Nuclear Analysis of the University of California – Irvine TRIGA® Reactor,” GA 911196, General Atomics (2010).
- [9] M. S. Mahmood, et al.: “Analysis of the TRIGA Mark-II Benchmark IEU-COMP-THERM-003 with Monte Carlo Code MVP,” JAERI-Tech 2004-027, Japan Atomic Energy Research Institute (2004).
- [10] 奥村啓介, 長家康展: 「JENDL-4.0 に基づく連続エネルギーモンテカルロコード MVP 用の中性子断面積ライブラリーの作成と ICSBEP ハンドブックの臨界性ベンチマーク解析への適用」, JAEA-Data/Code 2011-010, 日本原子力研究開発機構 (2011).
- [11] Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR) Database, International Atomic Energy Agency, <https://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm> (Last access: July 31, 2017).
- [12] Evaluated Nuclear Data File (ENDF) Database, International Atomic Energy Agency, <https://www-nds.iaea.org/exfor/endl.htm> (Last access: July 31, 2017).