研究論文

385. 指数実験の1方法

中野正文*

A New Method for Exponential Experiments

By Masafumi NAKANO

A new method of exponential experiment was developed for a cylindrical subcritical assembly of hexagonal lattices. In this method, higher harmonics are excited by an eccentric point neutron source and are divided into 4 groups. Then, from the attenuation coefficients of the dominant modes in each group, the material buckling and the effective core radius (or the reflector saving) of the assembly are determined experimentally.

Experimental results show that this method is useful for cylindrical assemblies, and the bare homogeneous approximation is rather good even for a subcritical assembly with reflector.

序

縦方向に長い裸の均質な直方体、または円柱状の臨界未満集合体に、中性子源を持ち込むと、体系の境界および中性子源から離れた領域での熱中性子束分布は、拡散方程式の解として、Z方向に指数関数的に減少することが示される。普通はその中で最も減衰の遅い、いわゆる基本モードのみに着目し、その減衰定数と横方向のバックリングとを測定することにより、体系の材料バックリングを求めることができる。

軽水などを減速材とする体系は、一般に炉心と反射体との2領域から構成されるが、臨界炉の場合の考え方にならって、炉心の実効的な大きさを仮想し、裸で均質な体系として取り扱う。その場合、横方向のバックリング(あるいは反射体による節約)をいかにして実験的に求めるかが問題であり、反射体の付いた臨界未満集合体による材料バックリングの測定における困難さがこの点に集約される。従来行なわれている方法は、

- (1) 炉心の中心付近で横方向の熱中性子束分布を測定し、基本モードの分布に適合させて、炉心の実効的な大きさを決める。
- (2) 反射体による節約が炉心の大きさによらず一定であると仮定し、炉心の横方向の大きさを変えて、それぞれの場合のZ方向の減衰定数から反射体に

よる節約を求める。

の2つである。これらはいずれも基本モードが支配的になる領域での測定をもとにしており、そのため一方では、高次モードを消すための努力もなされている。しかし、逆に高次モードを励起させ、それらをうまく分離して抽出することができれば、各モードのZ方向の減衰定数から、実効的な炉心の大きさおよび材料バックリングを求めることができる。

当教室**の臨界未満集合体(軽水-天然 UO_2 系)は、正六角形格子からなる円柱状炉心と反射体とから成り、Am-Be 中性子源が正三角形に3個配置されている。そこで、偏心した1個の中性子源を用い、中性子源と測定点との相対的な位置関係を利用すると、角度方向に関する高次モードを容易に分離することができ、各モードの減衰定数から、炉心の実効半径および材料バックリングを求めることができる。以下、角度方向のモードの分離方法とその実験例を示す。

I. 基礎理論

外挿距離を含めて半径 R でZ方向に無限に長い裸の均質な円柱状の臨界未満集合体を考える。中性子源が存在する場合、定常状態における熱中性子束分布

* 京都大学 工学部原子核工学教室 (Dept. Nucl. Eng., Kyoto Univ.)

** 京都大学 工学部原子核工学教室

$\phi(\mathbf{r})$ は次式に従う。

$$\begin{aligned} -D\nabla^2\phi(\mathbf{r}) + \sum_a \phi(\mathbf{r}) \\ = k \sum_a \int K(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \phi(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' \\ + \int H(\mathbf{r}, \mathbf{r}') S(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' \end{aligned} \quad (1)$$

ここに、 k は無限増倍係数、 $S(\mathbf{r})$ は中性子源の分布を表わす。 $K(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ 、 $H(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ はそれぞれ核分裂および中性子源による中性子に対する減速核である。

境界条件としては

$$\phi(\mathbf{R}) = 0 \quad (2)$$

をとる。すなわち、外挿境界 $\mathbf{R}$ で中性子束が消える。さらに、減速核が isotropic displacement kernel であるとする。

$$\begin{aligned} K(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = L(r), \quad H(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = H(r) \\ |\mathbf{r} - \mathbf{r}'| = r \end{aligned} \quad (3)$$

いま点 $\mathbf{r}_0 (= (r_0, \theta_0, 0))$ に単位の強さの点状源がある場合を考える。すなわち、

$$S(\mathbf{r}) = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \quad (4)$$

このとき、熱中性子束 $\phi(\mathbf{r})$ はつぎのように書ける⁽¹⁾。

$$\begin{aligned} \phi(\mathbf{r}) = \sum_{l=1}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} a_{lm} J_m(\alpha_{ml} r/R) \\ \times \cos m(\theta - \theta_0) \varphi_{lm}(z) \end{aligned} \quad (5)$$

$$a_{lm} = \frac{\varepsilon_m}{\pi R^2} \frac{J_m(\alpha_{ml} r_0/R)}{J_{m+1}^2(\alpha_{ml})}, \quad \varepsilon_m = \begin{cases} 1 & m=0 \\ 2 & m=1, 2, \dots \end{cases} \quad (6)$$

$$\varphi_{lm}(z) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\tilde{H}(\omega_{lm}) e^{iuz} du}{\sum_a + D\omega_{lm}^2 - k \sum_a \tilde{K}(\omega_{lm})} \quad (7)$$

$$\omega_{lm}^2 = \left(\frac{\alpha_{ml}}{R} \right)^2 + u^2 \quad (8)$$

ただし、 α_{ml} は m 次の Bessel 関数 $J_m(x)$ の第 l 番目の零点である。また、 $\tilde{K}(\omega)$ 、 $\tilde{H}(\omega)$ はそれぞれ減速核 $K(r)$ 、 $H(r)$ の Fourier 変換である。減速核 $K(r)$ 、 $H(r)$ がともに拡散核とすると、その Fourier 変換はそれぞれつぎのように書ける。

$$\tilde{K}(\omega) = \frac{1}{1 + L_1^2 \omega^2}, \quad \tilde{H}(\omega) = \frac{1}{1 + L_2^2 \omega^2} \quad (9)$$

ここに、 L_1^2 、 L_2^2 はそれぞれ核分裂および中性子源による中性子の減速面積である。(9)式を(7)式に代入すれば、Fourier 積分(7)は容易に求めることができる。すなわち、 $z > 0$ に対しては、ガウス平面上半の半円周の積分路を付け加えて考えれば、留数計算からつぎの結果を得る。

$$\varphi_{lm}(z) = \sum_{n=1}^3 c_n e^{-\lambda_{lmn} z / \lambda_{lmn}} \quad (10)$$

$$c_n = \begin{cases} \frac{1 + L_1^2 \omega_n^2}{2 \sum_a (L^2 + L_1^2 + 2 \omega_n^2 L_1^2 L_2^2) (1 + L_2^2 \omega_n^2)} & n=1, 2 \\ \frac{1 + L_1^2 \omega_n^2}{2 \sum_a L_2^2 (1 + L^2 \omega_n^2) (1 + L_1^2 \omega_n^2 - k)} & n=3 \end{cases} \quad (11)$$

$$L^2 = D / \sum_a \quad (12)$$

ここに、 ω_n^2 は

$$[(1 + L^2 \omega^2) (1 + L_1^2 \omega^2) - k] (1 + L_2^2 \omega^2) = 0 \quad (13)$$

の根であり、モード l, m には無関係で、特に $n=1, 2$ に対しては体系の核的性質のみで定まる。(13)式から

$$\begin{aligned} \omega_1^2 = -\frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{L^2} + \frac{1}{L_1^2} - \left[\left(\frac{1}{L^2} + \frac{1}{L_1^2} \right)^2 - 4 \frac{k-1}{L^2 L_1^2} \right]^{1/2} \right\} \\ \omega_2^2 = -\frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{L^2} - \frac{1}{L_1^2} + \left[\left(\frac{1}{L^2} + \frac{1}{L_1^2} \right)^2 - 4 \frac{k-1}{L^2 L_1^2} \right]^{1/2} \right\} \\ \omega_3^2 = -\frac{1}{L^2} \end{aligned} \quad (14)$$

さらに、

$$\left(\frac{1}{L^2} + \frac{1}{L_1^2} \right)^2 \gg \frac{4|k-1|}{L^2 L_1^2}, \quad \Delta k = k-1$$

のとき、 ω_1^2 は近似的に

$$\omega_1^2 \approx \frac{k-1}{L^2 + L_1^2} = \frac{\Delta k}{M^2} \quad (15)$$

となり、いわゆる材料バックリング $B_{\frac{1}{2}}$ に等しい。ただし、 M^2 は核分裂中性子の移動面積である。一方、 Z 方向の減衰定数 $\lambda_{lmn} (> 0)$ は次式で与えられる。

$$\lambda_{lmn}^2 = \left(\frac{\alpha_{ml}}{R} \right)^2 - \omega_n^2 \quad (16)$$

結局、熱中性子束分布 $\phi(\mathbf{r})$ は

$$\begin{aligned} \phi(\mathbf{r}) = \sum_{l=1}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=1}^3 A_{lmn} J_m(\alpha_{ml} r/R) \\ \times \cos m(\theta - \theta_0) e^{-\lambda_{lmn} z} \\ A_{lmn} = a_{lm} c_n / \lambda_{lmn} \end{aligned} \quad (17)$$

と書ける。つまり、熱中性子束の角度方向の分布は $\cos m(\theta - \theta_0)$ の形で表わせる。したがって、中性子源からの偏角 $(\theta - \theta_0)$ を適当に選べば、モード m の励起のされかたが簡単な形で表わせ、それらの組合せから、角度方向のモードをいくつかの組に分けることができる。

簡単のため、熱中性子束を改めて

$$\phi(\mathbf{r}) = \sum_{m=0}^{\infty} \phi_m(r, z; r_0) \cos m(\theta - \theta_0) \quad (18)$$

$$\phi_m(r, z; r_0) = \sum_{l,n} A_{lmn} J_m(\alpha_{ml} r/R) e^{-\lambda_{lmn} z}$$

と書く。正六角形格子では、角度方向に関して幾何学的に全く対称な6点が存在するが、 θ_0 を基準に角度

をはかると、それぞれの方向の熱中性子束はつぎのようになる。

$$\phi(0) = \sum_m \phi_m, \quad \phi(\pi) = \sum_m (-1)^m \phi_m$$

$$\phi(\pm\pi/3) = \sum_m \cos \frac{m\pi}{3} \phi_m$$

$$\phi(\pm 2\pi/3) = \sum_m (-1)^m \cos \frac{m\pi}{3} \phi_m$$

そこで、一定の (r, z) に対して、互いに独立な 4 方向の熱中性子束 $\phi(0), \phi(\pi/3), \phi(2\pi/3)$ および $\phi(\pi)$ から、つぎの操作をほどこすことにより、角度方向のモードを 4 つの組に分離することができる。

$$\frac{1}{6} \{ \phi(0) + \phi(\pi) + 2\phi(\pi/3) + 2\phi(2\pi/3) \}$$

$$= \sum_p \phi_{6p} \sim \Phi_0$$

$$\frac{1}{3} \{ \phi(0) - \phi(\pi) + \phi(\pi/3) - \phi(2\pi/3) \}$$

$$= \sum_p (\phi_{6p+1} + \phi_{6p+5}) \sim \Phi_1$$

$$\frac{1}{3} \{ \phi(0) + \phi(\pi) - \phi(\pi/3) - \phi(2\pi/3) \}$$

$$= \sum_p (\phi_{6p+2} + \phi_{6p+4}) \sim \Phi_2$$

$$\frac{1}{6} \{ \phi(0) - \phi(\pi) - 2\phi(\pi/3) + 2\phi(2\pi/3) \}$$

$$= \sum_p \phi_{6p+3} \sim \Phi_3 \quad (19)$$

一般に $\lambda_{lm2}, \lambda_{lm3}$ は λ_{lm1} に比べて充分大きく、また l, m が大きくなるとともに λ_{lmn} は一様に大きくなる。したがって、 $l=2, 3, \dots, n=2, 3$ の各モードは $l=1, n=1$ モードに比べて充分減衰が早く、 (r, z) を適当に選べば、(19)式はそれぞれ $l=1, n=1, m=0, 1, 2, 3$ の各モードに対応すると考えられる。ただし、(19)式の Φ_p は $l=1, n=1, m=p$ モードの意味である。

Φ_m の Z 方向の減衰定数 λ_m は(16)式から

$$\lambda_m^2 = \left(\frac{\alpha_{m1}}{R} \right)^2 - B_m^2 \quad (20)$$

と書ける。したがって、各モードの減衰定数の測定から、実効半径 R および材料バックリング B_m^2 を容易に求めることができる。また、測定点 r を変化させて同様の測定をすることにより、反射体付きの体系を、実効半径 R を導入して、裸の体系で近似することの適否を調べることができる。

なお、天然ウランを燃料とする場合、実際の測定では ^{238}U の自発的核分裂などによるバックグラウンドを無視できない。ただし(19)式からわかるように、実際に補正を必要とするのは第 1 式のみで、第 2 式以下では相殺されている。

II. 実 験

1. 実験装置の概要

当教室の臨界未満集合体は、軽水-天然 UO_2 系で、炉心は正六角形格子から成り、295本の燃料棒が第 1 図に示すようにほぼ円形に配列されている。燃料管は厚さ 1.5 mm、外径 34 mm のアルミニウム製パイプで、燃料部分が 1 m、さらにその上に 25 cm のポリエチレン部分がある。炉心タンクは高さ 1 m の黒鉛ベDESTAL の上に置かれている。Am-Be 中性子源 ($\sim 1 \text{ C} \times 3$) は黒鉛ベDESTAL 中に正三角形形状に 3 個配置されており、中心からの距離 r_0 はともに 25.5 cm である。中性子源は黒鉛ベDESTAL 中を上下方向に移動させることができ、その最高位置はベDESTAL 上面から 10 cm 下がったところである。測定は、1 つの中性子源孔へ縦に 3 個の中性子源を入れ、最高位置までもち上げた状態で行なった。

●マイクロカウンタ用実験孔

第 1 図 燃料棒の配置

熱中性子束分布の測定には Nuclear Chicago 社製のマイクロ BF_3 カウンタ (NC-202) を使い、Z 方向の分布は、自動の測定点駆動装置により 20 mm 間隔に測定した。カウンタは垂直性を保つため上下管板で固定されたガイドパイプ(アルミニウム製)中を上下させた。第 1 図に示すように、測定孔は 3 本の燃料棒の中心にある。

軽水はイオン交換樹脂を通した純水を用い、水温 $\sim 8^\circ\text{C}$ 、水質 $\sim 2.0 \mu\text{v}$ で測定した。

2. 実験例

実験例として格子間隔 54 mm (体積比 2.29) の炉心で

の測定結果を示す。炉心の中心軸から測定点までの距離は16.4 cm および 30.4 cm で、第1図の名称に従ってそれぞれ2-3 GI および 3-4 GO と呼ぶ。第2図に、3-4 GO の Z 方向の熱中性子束分布の測定からモードの分離操作をほどこした結果を示す。Z 方向の位置表示はBF₃ カウンタが炉心の底面に接する点を基準にとった。第2図に見られるように、各モードとも $z=10\sim 50$ cm の間ではほぼ1本の直線が引ける。したがって、これらの直線部分はそれぞれ $m=0, 1, 2$ および 3 モードに対応していると考えられる。2-3 GI についても同様の結果を得た。図からはほぼ直線にのると考えられる範囲を選び、最小2乗法を用いて指数関数に適合させると、両グループの減衰定数として第1表に示す値を得た。ただし、測定誤差としては計数値の統計誤差の

第2図 各モードのZ方向の熱中性子束分布

第1表 $\lambda_m (\times 10^{-1})$

	$m=0$	$m=1$	$m=2$	$m=3$
2-3 GI	0.7188 ± 0.0011	0.9043 ± 0.0035	1.087 ± 0.027	1.326 ± 0.108
3-4 GO	0.7193 ± 0.0017	0.8981 ± 0.0030	1.090 ± 0.004	1.256 ± 0.030

みを考え、カウンタの位置には誤差はないものとして取り扱った。第1表の λ_m は信頼度75% で表わしたが、両グループの λ_m は誤差の範囲でよく一致している。

第1表の λ_m と Bessel 関数の零点 α_{m1} との関係を第3図に示す。図から、 λ_m^2 と α_{m1}^2 とはよく直線にのり、特に3-4 GO は測定誤差が小さいが直線の適合性がよいといえる。両グループについて最小2乗法を用いて求めた B_R^2 および R の値を第2表に示す。反射体による節約 δR は、

$$\delta R = R - R_0$$

で与えられ、いまの場合は等価半径 $R_0=48.70$ cm である。第2表に見られるように両グループの B_R^2 および R (あるいは δR) はともによく一致している。したがって、材料バックリング B_R^2 を $5 \times 10^{-5} \text{ cm}^{-2}$ 程度の精度で求めるかぎり、反射体付きの体系に対しても、

● : 2-3 GI, × : 3-4 GO
第3図 λ_m^2 と α_{m1}^2 との関係

第2表 B_R^2 および R

	$-B_R^2$ ($\times 10^5 \text{ cm}^{-2}$)	$R(\text{cm})$	$\delta R(\text{cm})$
2-3 GI	3.224 ± 0.062	54.83 ± 0.73	6.13 ± 0.73
3-4 GO	3.297 ± 0.043	55.51 ± 0.36	6.81 ± 0.36
平均	3.273 ± 0.035	55.37 ± 0.32	6.67 ± 0.32

実効半径を導入した裸の近似は充分よい近似であると考えられる。

無限増倍係数 k は(15)式から

$$k = 1 + M^2 B_{eff}^2$$

と書ける。移動面積 M^2 として Deutsch⁽²⁾ の方法による3組の計算値 $M^2 = 41.2 \text{ cm}^2$ を用いると、

$$k = 0.865 \pm 0.002$$

を得た。

Ⅲ. 結 論

反射体の付いた円柱状臨界未満集合体を裸の均質な体系で近似し、偏心した1個の点状中性子源を用いることによって角度方向の高次モードを分離し、体系の材料バックリングと反射体による節約とを求めた。体系の幾何学的特徴を利用したこの方法は充分実用性があり、特に当教室の実験装置のように、自動の測定点駆動装置がある場合には有効な方法であると考えられる。

この方法では、基本モードに比べて減衰の早い高次モードの減衰定数をいかに精度よく求めうるかが問題であり、そのためには、中性子源の位置および測定点についてさらに検討する必要がある。例えば、 $l=1$, $m=3$ モードを相対的にもっとも強く励起させるためには中性子源の位置 r_0 を

$$J_3(\alpha_{31}r_0/R) = 0$$

すなわち $r_0 \sim 0.66 R$ にとり、その点でZ方向の熱中性子束分布を測定すればよい。ここで取り上げた体系ではこの値は $\sim 36 \text{ cm}$ であり、中性子源の位置 $r_0 = 25.5 \text{ cm}$ を上の値に近づけることにより、 $l=1, m=3$ モードをより励起させることができる。

なお、この方法を用いれば材料バックリングの測定以外に、体積比の等しい体系で炉心の半径を変化させて同様の測定をすることにより、炉心の半径と反射体による節約との関係を調べることができるであろう。

本報は修士論文の一部をまとめたものである。論文の作成に当ってご指導戴いた西原 宏教授を初め、討論に参加して下さった西原研究室の皆様に深く感謝いたします。なお測定データの解析には KDC-1 を利用した。

(1964年 4月27日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) A. M. WEINBERG, E. P. WIGNER: "The Physical Theory of Neutron Chain Reactors", (1958), Univ. of Chicago Press.
- (2) R. W. DEUTSCH: J. Nucl. Energy, **14**, 168 (1961).

研究論文

386. 核燃料体における核分裂生成ガスの放出に関する研究, (I)

ウラン炭化物焼結体における ^{133}Xe の拡散

大 沢 安 隆*, 竹 沢 一 晃*

Fission-Gas Release from Nuclear Fuels, (I)
Diffusion of ^{133}Xe in Sintered Uranium Carbides

By Yasutaka OSAWA and Kazuaki TAKEZAWA

The diffusion parameters of ^{133}Xe in irradiated sintered pellets of several different uranium carbides were measured in post-irradiation annealing experiment in the

* 三菱原子力工業(株)研究所(Eng. Res. Lab., Mitsubishi Atomic Power Ind. Inc.)