

バーナブルポイズン核特性の実験と解析

Experiments and Analyses of Nuclear Characteristics of Burnable Poison

山下 淳一* 芳賀 暢** 小熊 正臣***
 Junichi Yamashita Tôru Haga Masaomi Oguma

要 旨

BWRの反応度制御および出力分布平坦(へいたん)化のために使用するバーナブルポイズン入り燃料(以下B.P燃料と呼ぶ)において、ポイズン物質として採用するガドリニア(Gd_2O_3)の核的特性を解明するため王禅寺臨界実験装置(以下OCFと呼ぶ)によるB.P燃料棒をそう入した炉心の臨界実験を行ない、その解析を行なった。実験は燃料棒を格子状に均質に並べた均質炉心と、BWRを模擬した8×8の燃料集合体より成るアセンブリー炉心について常温でポイド0%状態でのB.P燃料棒の反応抑制効果、B.P燃料棒の温度係数および制御棒反応度への影響等を調べた。なお、ポイズン物質の粒径による熱中性子密度分布の変化は日立教育訓練用原子炉(以下HTRと呼ぶ)で実験した。

1. 緒 言

「最近の沸騰水型原子力発電設備」にも述べたように、最新のBWR初装荷炉心では、従来使用していたポイズン・カーテンの代わりにB.P入り燃料棒を使用して反応度制御と出力分布平坦化を行ない燃料の経済性と炉心性能の向上をはかっている。また取替燃料においても、B.P入り燃料の使用がはじめられている。このように今後BWRに装荷される大部分の燃料にB.Pが使用される計画であり、したがってB.P入り燃料の特性解析は重要な意味を持つものである。

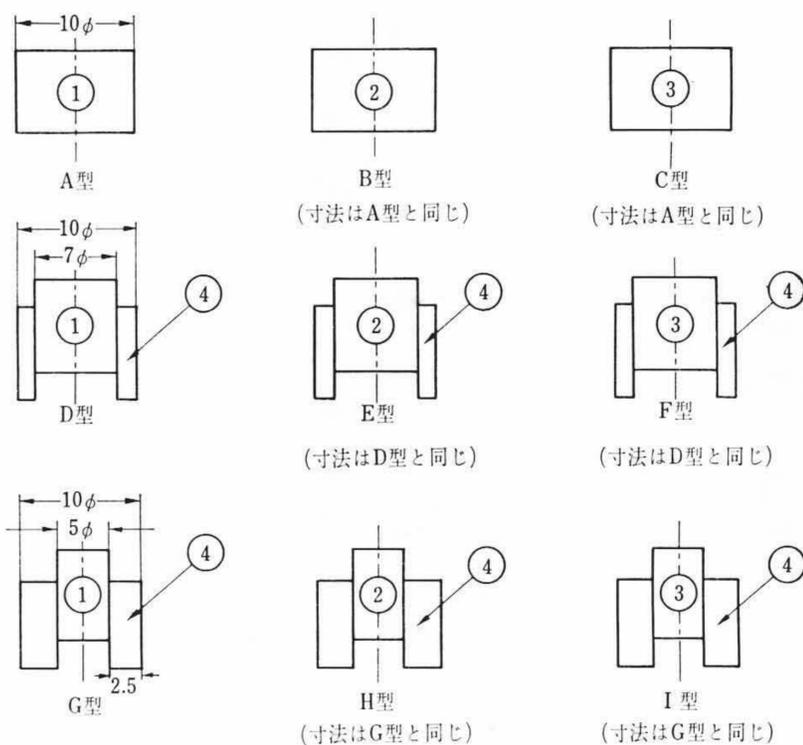
燃料に入れるB.P物質としては核的特性がすぐれ、化学的にも安定であるガドリニア(Gd_2O_3)が使用され、これを低濃縮 UO_2 の中に数パーセント程度混入させた燃料棒を燃料集合体中に数本の割合で配置する方法を採っている。このような方法をとるのは、ガドリニウム同位元素による強い熱中性子吸収作用による自己しゃへい効果を利用し、 UO_2 中に混入するガドリニアの濃度と、燃料集合体あたりのB.P燃料の本数をパラメーターとして、ガドリニアによる反応度制御期間と、反応度抑制効果を自由に選定しうるためである。また、B.P燃料棒はその強い中性子吸収作用により、出力分布の制御作用も大きく、特に燃料棒の軸方向にガドリニアを分布させることにより、軸方向出力分布の平坦化を容易にすることができる。

このようにガドリニアの核的特性はすぐれたものであるが、ガドリニア燃料を採用するにあたっては、その特性に関する綿密で総合的検討を行なう必要がある。本論文は、このガドリニア燃料の特性に関する研究の一環として行なった基本的研究の一部である反応度および出力分布など核的特性の実験と解析に関するものである。

2. 実験の概要

2.1 臨界実験の仕様

OCFにおけるB.P燃料棒入り臨界実験の概要は次のとおりである。まずポイズン物質としてはガドリニア(Gd_2O_3)を使用し、ポイズン濃度は天然 UO_2 に対し0.5%、1.0%、2.0%のものを用意した。また、 UO_2 に添加されたポイズンがペレット外周部より中心部へ燃焼してゆく過程を模擬するためペレットを2領域に別け、内部領域にのみポイズンを入れた焼ばめ型ペレットも用意した。この焼ばめ型ペレット内のポイズン領域の直径は10φ、7φ、5φである。これらB.P燃料ペレットの仕様は図1のとおりである。一般燃料棒としては中心領域には2.5% UO_2 を、周辺領域には1.5% UO_2 を



| 項番 | 材 質 |
|----|------------------------------|
| ① | 0.5 w/o. Gd_2O_3 in Nat. U |
| ② | 1.0 w/o. Gd_2O_3 in Nat. U |
| ③ | 2.0 w/o. Gd_2O_3 in Nat. U |
| ④ | Nat. U (中空) |

(D~Iの①, ②, ③は④の中空部にそう入して同一面になるが図では理解しやすいように凸出して示してある)

図1 実験用B.P燃料ペレット

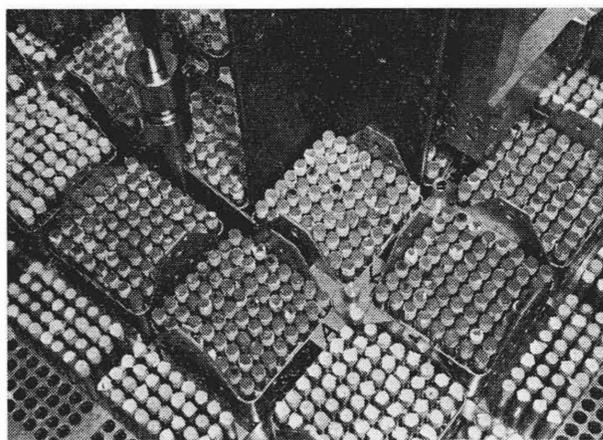


図2 OCF炉心概観

使用した。使用炉心はBWR実用炉を模擬した8×8の燃料アセンブリー炉心と、正方格子状の均質炉心である。また実験測定法としては反応度は水位法、温度係数はペリオド法、出力分布はDy箱(はく)放射化法で行なった。本実験に使用した炉心の概観は図2のとおりである。

* 日立製作所日立工場
 ** 日立製作所原子力研究所
 *** 日立製作所日立研究所

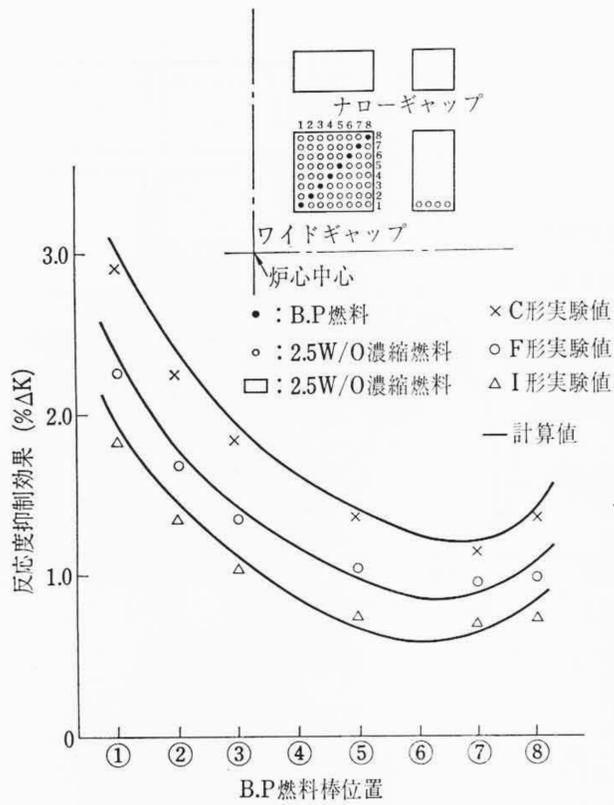


図3 アセンブリ炉心反応度変化(1)

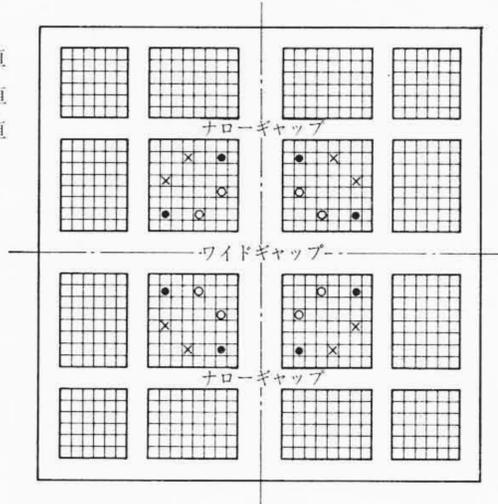


図4 アセンブリ炉心配置図

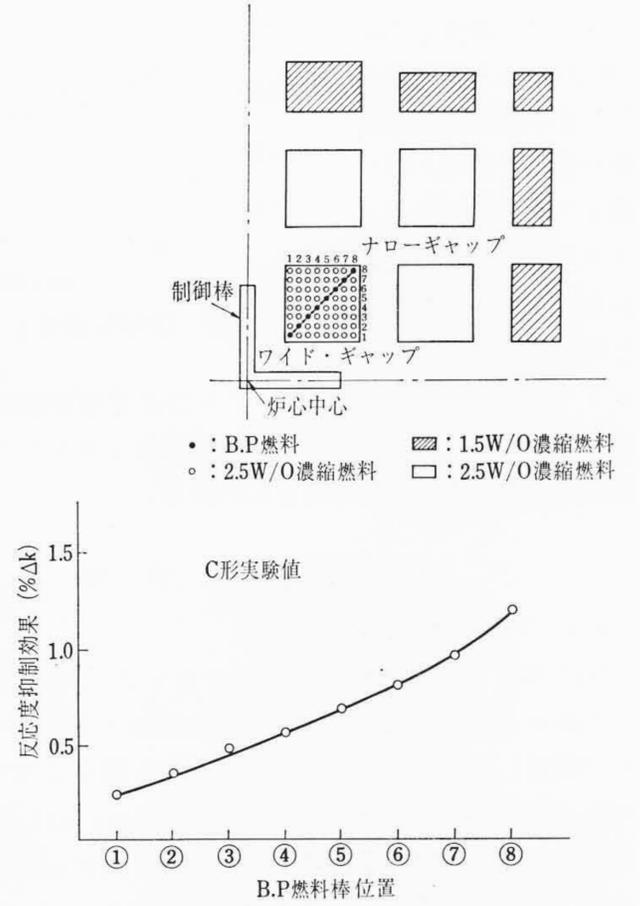


図5 制御棒入り炉心反応度変化

表1 アセンブリ炉心反応度変化(2)

| 燃料数 | BP濃度 本数 | BP位置 | Δk(計算) | Δk(実験) | 差 |
|------|---------------|-----------------------|--------|--------|-------|
| 776本 | 1.0 w/o 8本 | (2, 7) (7, 2) ● | 0.035 | 0.031 | 0.004 |
| 776本 | 1.0 w/o 8本 | (5, 7) (7, 5) × | 0.028 | 0.023 | 0.005 |
| 776本 | 1.0 w/o 8本 | (2, 4) (4, 2) ○ | 0.038 | 0.033 | 0.005 |

2.2 B. P 燃料

実験用B.P燃料ペレットはGd₂O₃粉末をUO₂粉末と乾式粉碎しながら均一に混合し、冷間圧縮成形-焼結法によって製作されている。A, B, Cの各形ペレットは常法によったが、D~I形ペレットについては、圧粉体の段階でUO₂円柱体とUO₂-Gd₂O₃中空体とを組み合わせてから焼結し「焼ばめ」効果を利用して両者を固定し、実験中の脱落を防止することにした。このような、複合ペレットの焼結に際して、Gd₂O₃を分散添加したUO₂は焼結中の収縮率がGd₂O₃の添加量に対応して低下するため、UO₂円柱体とUO₂-Gd₂O₃中空体の圧粉圧力を別々に調整して、焼結後に試料ペレットの寸法、密度が仕様値に納まるようにしてある。

焼結体については、寸法、重量、密度、不純物などの検査のほか、Gd₂O₃の含量およびその分布の均一性の試験を行ない、また、X線マイクロ分析によりGd₂O₃の粒径は直径10μ以下であることを確かめた。

3. B.P燃料棒の反応度抑制効果

3.1 B.P燃料位置による反応度変化

燃料アセンブリ内のB.P燃料棒の位置による反応度抑制効果の変化を調べるため、アセンブリ当り1本のB.P燃料棒を炉心中央を通る対角線上で移動させて実験したのが図3である。同時にここでは2.0% Gd₂O₃濃度の燃焼過程を模擬した焼ばめ形ペレットC形, F形, I形, の実験により燃焼過程によるB.P燃料棒の反応度抑制効果の変化を調べた。実験値の傾向をみると、まずB.P燃料棒の位置の変化に対して反応度抑制効果は炉心中央の広い水ギャップ近くで最大を示し、またアセンブリ内位置⑥近くで最小を持つことがわかった。この反応度効果のアセンブリ内変化は次節で調べるとおりB.P燃料棒のない場合における熱中性子密度分布と同様の形を

しており、したがってB.P燃料棒の反応度効果の変化の様子は熱中性子密度分布により予測しうることがわかった。また焼ばめペレットによる実験により、燃焼過程を模擬したB.P燃料棒の反応度抑制効果劣化の様子が定量的に確かめられた。反応度の計算はB.P燃料棒内も拡散近似で取り扱うが輸送理論を用いた場合と等価な結果が得られるように補正した定数を使って拡散方程式を解いた。なおB.P燃料棒の熱群核定数計算ではB.P燃料棒が一般の2.5% UO₂燃料棒の中に局在していることを考慮してスペクトル計算を行なった。計算結果は実験に現われたB.P燃料棒のアセンブリ内位置の変化や燃焼過程による反応度効果の劣化の様子をよく再現しているといえる。

次にアセンブリあたり2本のB形B.P燃料棒を配置して対角線と直角方向に保ちながら移動させ、反応度効果の変化を調べたのが表1である。このときの炉心配置は図4のとおりである。この場合にはB.P燃料棒が炉心中央に固まって配置した場合ほどその反応度抑制効果は大きくなっている。また計算結果をみると、B.P燃料棒の反応度抑制効果に関し、計算値は実験値の0.5% Δkの範囲内で再現性のあることが確かめられた。

3.2 制御棒入り炉心のB.P燃料棒反応度抑制効果変化

次に炉心中央の広い水ギャップに十字形制御棒をそう入した場合にB.P燃料棒の反応度抑制効果を調べたのが図5である。この実験で使用した制御棒はBWRで使用されているものと同様の断面構造を持つもので、OCF実験用として特に長さを短くして制作したものである。なおB.P燃料棒としては2.0% Gd₂O₃入りのC形を使用しアセンブリあたり1本配置した場合である。制御棒入り炉心の測定結果を要約すると、十字形制御棒入りのアセンブリ炉心では制御棒近傍の中性子束分布がこの制御棒により強く押えられるため、制御棒の影響を受ける領域ではB.P燃料棒の反応度効果は小さくなっていることである。これは図5からもわかるように炉心中央を通る対角線上にB.P燃料棒を移動させると制御棒のはいった近くで反応度抑制効果が最小となりそこから離れるにつれて単調に増加している。このような結果は前にも述べたとおりB.P燃料棒のない場合での熱中性子密度分布と同様のふるまいをしているものである。

3.3 ガドリニア濃度による反応度抑制効果の変化

均質炉心の場合、炉心に16本のB.P燃料棒をそう入してそのガ

ドリニアの濃度を0.5, 1.0, 2.0 w/oと変化させたときの反応度抑制効果の変化を調べたのが図6である。実験点は3点であるがこの結果からガドリニアの濃度と反応度との間には、

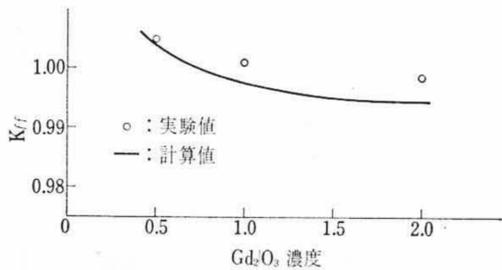


図6 Gd₂O₃ 濃度と K_{eff} の関係

ガドリニア濃度が2 w/o. くらいでその反応度抑制効果がほぼ飽和に達していることがわかった。また計算値をみるとこのような実験の傾向をよく再現していることがわかる。

4. 出力分布

4.1 アセンブリ内出力分布

次に B.P 燃料棒の配置によるアセンブリ内出力分布の変化を調べたのが図7である。この実験では Dy の箔をペレット間にはさんで照射し、Dy の放射化量 $\sum_{dy} \phi \cdot dt$ を測定している。ここで Dy の断面積は熱領域でほとんど $1/v$ 的ふるまいをしているので、この測定量は結局熱中性子密度 $n = \phi/V$ に比例する量であるといえる。なおこの実験で使用した B.P 燃料棒は 2.0 w/o. Gd₂O₃ の C 形である。図7には比較のため同時に B.P 燃料棒のない場合の熱中性子密度分布をのせてある。この両者の比較からわかることは B.P 燃料棒のはいった位置における中性子密度は B.P 燃料棒がない場合の 30~40% に下がることである。一方、B.P 燃料棒のまわりの熱中性子密度分布をみるとこれは B.P 燃料棒のはいった位置に比べそれほど大きな変化のないことがわかる。つまりその作用は非常に局所的である。したがって B.P 燃料棒の出力分布に対する作用は大きい、局所的であることがわかった。計算結果は全体に実験結果のふるまいをよく再現しているといえる。なお B.P 燃料棒近傍の様子をみるため輸送理論による計算値も示してある。

4.2 B.P 燃料棒周辺の出力分布

次に図8に B.P 燃料棒付近の微細な熱中性子密度分布の測定値を計算結果と比較して示してある。この密度分布の測定には炉心内で空間的マクロ分布が平坦になっている場所に B.P 燃料棒 C 形をそう入して、B.P 燃料棒およびその周辺燃料棒のペレット間にはさんだ Dy-Al 合金の円形箔を照射後に細分割してその誘導放射能を計数した。図8はそう入した B.P 燃料棒の中心から Y 軸に平行な方向に測定した結果を示しているが、熱中性子密度が B.P 燃料棒に向かって波うちながら低下していく様子がよくわかる。計算は B.P 燃料棒のまわりの UO₂ と H₂O を均質化した輸送計算と B.P 燃料棒がない場合の非均質な輸送計算を合成したものであるが、その結果は実験に現われた現象を忠実に再現しているといえる。

4.3 ガドリニア粒径と出力分布の関係

核計算では、UO₂ に混合している Gd₂O₃ は UO₂ と分子大の大きさで均一に混合しているとみなしている。しかし実際の燃料ペレットは、ある粒径を持つ Gd₂O₃ 粉末を UO₂ 粉末と混合して製作するため Gd₂O₃ の粒子が UO₂ マトリックス内に分散して存在することになり微視的には完全に均一な混合とはいえない。そこでこのような理論的仮定に基づく計算値が、実際の場合に対してどの程度対応しているかを検討するため実験を行なった。試料は 200 μ , 100 μ , 10 μ , 1 μ 以下の Gd₂O₃ 粒径を用いて製作した直径 10 mm, 長さ 10 mm の UO₂ ペレットである。これを HTR で約 5 時間照射し冷却後ペレットから直径に沿ってマイクロサンプルを切り出し、U²³⁵ の核分裂生成物である La¹⁴⁰ を測定した。測定値に実験上の補正を加えて整理し、計算値とともに図9に示した。図からわかるように、Gd₂O₃ 粒径が 200 μ の場合に比べて 1 μ 以下、10 μ , 100 μ では計算値

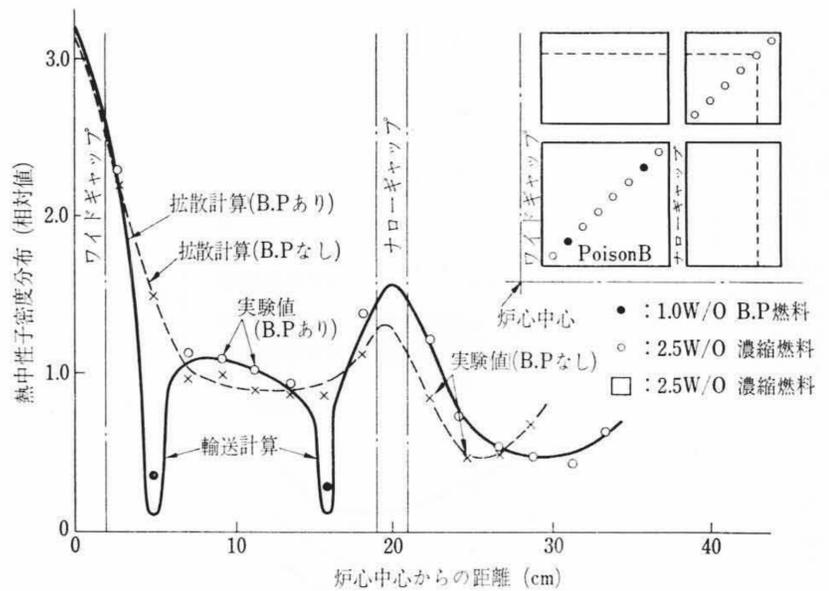


図7 アセンブリ炉心内の熱中性子密度分布

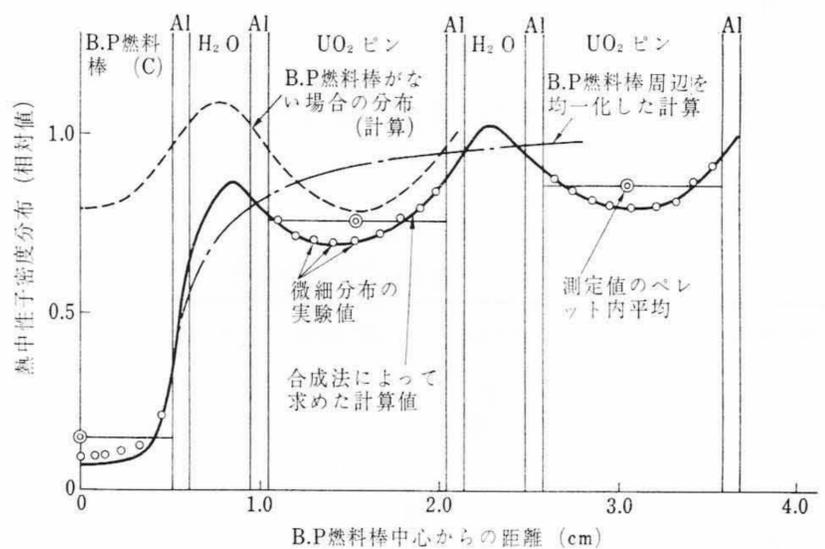


図8 B.P 燃料棒(C)周辺の熱中性子密度分布

とよく一致している。このような Gd₂O₃ 粒径の違いによる燃料ペレットの熱中性子吸収効果すなわち自己遮蔽(しゃへい)効果の相違は、B.P 燃料の核的挙動を解析して妥当な設計を行なう際問題となるが、BWR の B.P 燃料にもちいられる Gd₂O₃ の粒径は充分小さいもので、現在用いられている解析法に粒径の影響を考慮する必要のないことが今回の実験から確認された。

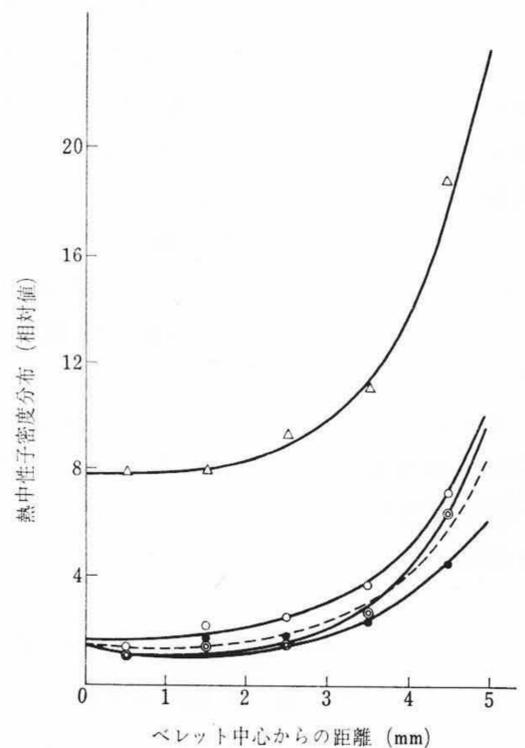


図9 Gd₂O₃ 粒径と熱出力分布

5. 減速材温度係数に与える B.P 燃料の影響

減速材温度係数に与える B.P 燃料の影響についてその効果を実験的に追求した。

この実験では、減速材の温度を 20°C~70°C の範囲で平均 5°C 間隔で上昇させ、それぞれの温度において炉心の余剰反応度をペリオド法で測定した。減速材温度係数は、この余剰反応度の温度に關す

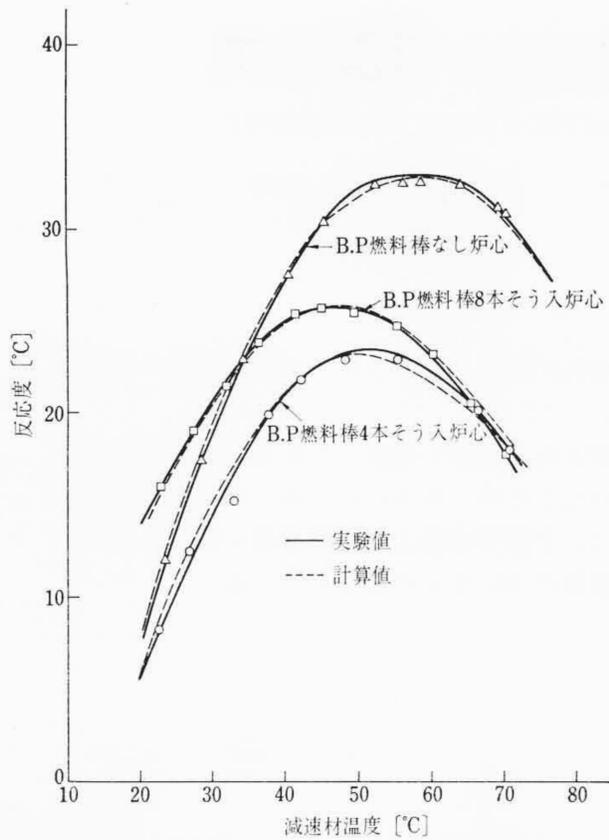


図10 減速材温度上昇による余剰反応度の変化

る微係数として与えられる。実験は B. P 燃料棒入りの前後における減速材温度係数の変化を知ることを目的とした。B. P 燃料棒としては C 形ポイズンを使用し、4 本使用の場合には炉中央の水ギャップのコーナーに、8 本使用の場合にはそれぞれ燃料アセンブリ内の場所 (4, 6) および (6, 4) にそう入した。

このようにしてそれぞれの温度において測定した余剰反応度の変化は図 10 に示すとおりであるが、実線は、実験値の最少 2 乗フィッティングを点線は後に述べる解析の結果を示している。これらの曲線の温度微分が減速材温度係数を与えるが、図 11 はその結果を示したものである。この炉心では減速材温度係数が常温ではいずれも正であるが、温度上昇とともに次第に減少しやがて負に転ずることがわかる。その減少の様子は B. P 燃料棒の有無にかかわらずほとんど直線的で、減速材温度係数が正から負に転ずる温度は B. P 燃料棒のない炉心から 8 本そう入までの各炉心について 58°C、52°C、47°C と B. P 燃料棒そう入の増加につれて低くなっていく。つまり B. P 燃料棒は炉心の減速材温度係数を負側に移動させる原因となっている。以上の結果から OCF アセンブリ炉心に類する原子炉においては、B. P 燃料が減速材温度係数に対してより安全な方向に作用すると言う結論に達した。この現象の定性的な説明としては、温度上昇によって炉心媒質の中性子移動面積が増加し、その結果 B. P 燃料棒表面に向かう中性子の炉心内のもれが増加することによる。

一般に温度係数の解析では温度変化に伴う微少な反応度変化を固有値計算によって求めるが、温度上昇が反応度を与える影響は複数の正と負の効果が複雑に相殺しあって、その総合的な結果が微少な反応度変化になる。このため精度良い解析結果を得ることは大変困難な問題となるが、ここでは B. P 燃料棒のない炉心の反応度曲線を基準として実験値と計算値が合うような各群の核分裂断面積を修正した。このような実験による修正核定数を使用した結果、B. P 燃料

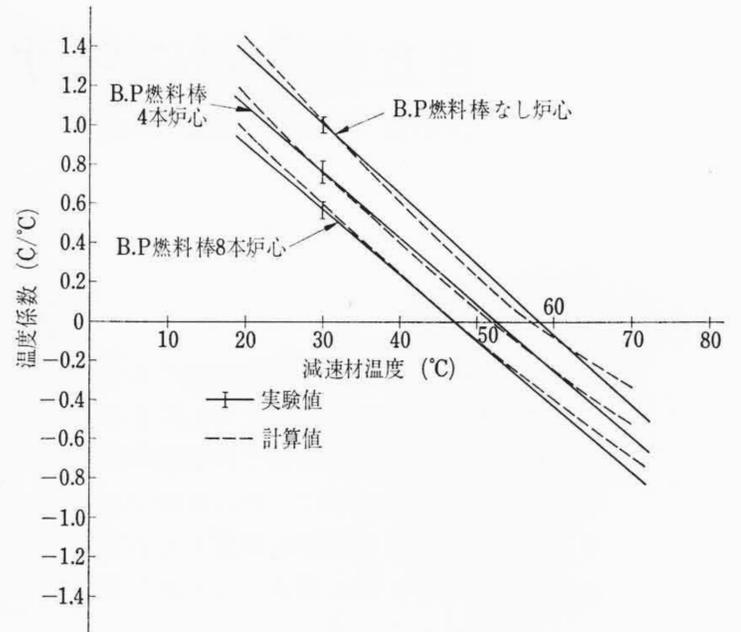


図11 減速材温度係数

棒そう入炉心に関しても非常に再現性の良い反応度曲線の解析結果を得ることができた。これらの結果は図 10、図 11 の点線に示されているが、いずれも B. P 燃料棒の使用によって減速材温度係数が負の方向に移動する現象を裏付けている。

そう入した B. P 燃料棒の解析上の取扱いには、その表面において対数微分境界条件を適用したが温度係数解析においても有効な手法であることを確認した。

以上の実験と解析の結果から Gd₂O₃ を含有する B. P 燃料棒が炉心の余剰反応度を抑制するのみならず、減速材温度係数にも安全側に作用することを実証できた。

6. 結 言

以上、OCF および HTR による B. P 燃料棒に関する実験およびその解析を通して得られた結論は次のとおりである。

- (1) B. P 燃料棒の反応度効果はガドリニア濃度が天然 UO₂ に対し数パーセント程度で飽和に達する。
- (2) またこの反応度効果のアセンブリ内位置による変化は B. P 燃料棒のない場合の熱中性子密度分布にほぼ比例する。
- (3) B. P 燃料棒の出力分布への影響は、B. P 燃料棒のはいった位置のごく近傍に強く作用し離れた位置の分布にはあまり影響を及ぼさない。
- (4) 十字形制御棒がはいるとそのまわりの B. P 燃料棒の反応度効果は極端に弱められる。
- (5) 減速材温度係数は B. P 燃料棒のそう入によって負側に移動する。
- (6) ガドリニアの粒径が適当な大きさ以下なら B. P 燃料棒内出力分布に関する計算値の再現性がよい。
- (7) 解析結果は一般に反応度、熱中性子密度ともに実験値をよく再現する。

以上がドリニアを用いた B. P 燃料のすぐれた核特性を実証することができたが、また、同時実験解析の結果、B. P 燃料の反応度や出力分布に関し、現在用いられている解析法はじゅうぶんな計算精度で実験値を再現しうることが証明された