

## (13) 任意の状態変化に対応可能な未臨界度測定手法に関する研究

名古屋大学大学院  
工学研究科  
近畿大学原子力研究所

遠藤 知弘、野中 朝日、今井 頌  
左近 敦士、橋本 憲吾

### 1. はじめに

我々の研究グループでは、未臨界度測定手法(核燃料を含んだ体系がどれだけ臨界未満か定量的に測定する方法)に関する研究開発に取り組んでいる。特に、測定対象として、東京電力 福島第一原子力発電所における燃料デブリ取出し作業時や、停止中原子炉の燃料シャッフリング時などの状況を想定し、それらの状況下でも適用可能な未臨界度測定手法について研究を進めている。以上で述べた状況における未臨界度測定の課題として、以下の点を挙げることができる。

- ✓ 体系の詳細情報が不明、あるいは不確かさが大きい。従って、連続エネルギーモンテカルロ計算コード等による事前の数値解析により、未臨界度測定に必要な核特性パラメータ(中性子生成時間 $\Lambda$ 、実効遅発中性子割合 $\beta_{\text{eff}}$ )を評価することが難しい。
- ✓ 燃料装荷・引抜のような、大きな体系変化を伴う過渡変化の状況を考えた場合、炉心の実効増倍率 $k_{\text{eff}}$ のみが変化だけでなく、外部中性子源強度 $S$ (燃料内に内在する自発核分裂源や $(\alpha, n)$ 源のような固有中性子源)や一点炉動特性パラメータ $\Lambda, \beta_{\text{eff}}$ も同時に変化し得る。また、それらの時間変化もステップ状とはみなせず、例えばランプ状のような、ある程度の時間を要する過渡変化となる。

上述した課題を解決するために、我々研究グループでは時間領域分割積分法(Time-Domain Decomposition-based Integral method, TDDI法)<sup>1)</sup>によるドル単位未臨界度測定手法を考案し、仮想的な数値実験を通じて提案手法の有効性について検討してきた。

さらに、詳細情報が不明な体系において、中性子検出数の時系列データのみから未臨界度絶対値を概算する手法として、炉雑音解析に基づく三次中性子相関法<sup>2)</sup>に注目し、核燃料を含まない非増倍体系における測定実験などの実証試験<sup>3)</sup>も進めてきた。

2019年度共同利用実験では、近畿大学原子炉(UTR-KINKI)の未臨界炉心において、Pu-Be中性子線源と制御棒を同時に操作することにより、実効増倍率 $k_{\text{eff}}$ と外部中性子源強度 $S$ が同時に変化するような未臨界過渡変化実験を実施し、TDDI法による未臨界度測定法の有効性について実証試験を行った。加えて、Pu-Be中性子線源の無い原子炉停止中の状態において、中性子検出数の時系列データを測定し続けることにより、停止時UTR-KINKIにおける三次中性子相関法実験を初めて実施した。

### 2. 時間領域積分法(TDDI法)

まず、TDDI法によるドル単位の未臨界度測定法について概要を述べる。初期状態として、未臨界度 $-\rho_0 = (1 - k_{\text{eff},0})/k_{\text{eff},0}$ 、外部中性子源強度 $S_0$ 、一点炉動特性パラメータ $\Lambda_0, \beta_{\text{eff},0}$ が一定の条件下で定常状態に達した未臨界炉心を考える。この未臨界炉心の状態が、時間 $t_0 \leq t \leq t_1$ の間に、初期状態 $(-\rho_0, S_0, \Lambda_0, \beta_{\text{eff},0})$ から別の状態 $(-\rho_1, S_1, \Lambda_1, \beta_{\text{eff},1})$ に変化したとする。以上のような過渡変化

において測定された中性子計数率 $n(t)$ の時間変化を分析することで、TDDI法では以下のように状態変化後のドル単位未臨界面度 $-\rho_1/\beta_{\text{eff},1}$ を推定することができる。

$$\frac{-\rho_1}{\beta_{\text{eff},1}} \approx \frac{\sum_{i=1}^6 \frac{a_i}{\lambda_i} \left( n_0 e^{-\lambda_i(t_1-t_0)} - n_\infty + \lambda_i \int_{t_0}^{t_1} n(t) e^{-\lambda_i(t_1-t)} dt \right)}{\int_{t_1}^{\infty} (n(t) - n_\infty) dt} \quad (1)$$

$n_0$  : 過渡変化前の定常状態における中性子計数率

$n_\infty$  : 過渡変化後の定常状態における中性子計数率

$a_i$  : 第 $i$ 群の遅発中性子先行核の相対収率

$\lambda_i$  : 第 $i$ 群の遅発中性子先行核の崩壊定数

測定対象における主な核分裂性核種(例: $^{235}\text{U}$ )が既知であれば、 $a_i, \lambda_i$ については文献値を用いることができるため、(1)式に基づくことで $n(t)$ の測定結果のみから状態変化後の $-\rho_1/\beta_{\text{eff},1}$ を推定することができる。なお(1)式において、過渡変化がステップ状であると近似し $t_1 \approx t_0$ とみなすと

$$\frac{-\rho_1}{\beta_{\text{eff},1}} \approx \frac{\sum_{i=1}^6 \frac{a_i}{\lambda_i} (n_0 - n_\infty)}{\int_{t_0}^{\infty} (n(t) - n_\infty) dt} \quad (2)$$

となり、TDDI法は従来の積分法に帰着することとなる。

TDDI法の有効性を確認するための実証試験として、UTR-KINKIの未臨界炉心において、Pu-Be中性子線源と制御棒を同時に操作することにより、未臨界面度 $-\rho$ と外部中性子源強度 $S$ が同時に変化する未臨界過渡変化実験を実施した。制御棒と中性子源の操作パターンとして以下の4ケースについて検討した。

1. 調整棒引抜による正の反応度添加+ソースドロップによる中性子源強度増加→計数率増加
2. 調整棒挿入による負の反応度添加+ソースジャークによる中性子源強度減少→計数率減少
3. 調整棒引抜による正の反応度添加+ソースジャークによる中性子源強度減少→計数率減少
4. 調整棒挿入による負の反応度添加+ソースドロップによる中性子源強度増加→計数率増加

以上の4ケースについて、中性子源位置および制御棒位置から十分離れた黒鉛反射体位置に配置したBF<sub>3</sub>検出器により測定された中性子計数率の時間変化 $n(t)$ に対して、①中性子源増倍法、②積分法、③TDDI法により状態変化後のドル単位未臨界面度の推定を行った。各ケースにおける未臨界面度の参照値は、正ペリオド法および落下法によって事前に測定された余剰反応度および制御棒値から求めた。なお、①中性子源増倍法については、余剰反応度および制御棒値に基づいて、状態変化前のドル単位未臨界面度の参照値 $-\rho_0/\beta_{\text{eff},0}$ を求め、 $-\rho_0/\beta_{\text{eff},0}$ が既知であると仮定して状態変化前後の計数率比 $n_0/n_\infty$ から状態変化後の未臨界面度 $-\rho_1/\beta_{\text{eff},1}$ を推定した。①～③の各手法で推定した未臨界面度の統計誤差については、時間幅 $\Delta t = 0.1\text{s}$ 毎に測定した中性子計数率 $n(t)$ の統計誤差がポアソン分布に従うと近似し、ランダムサンプリング法に基づくことで評価した。

①～③の各手法で推定された状態変化後の $-\rho_1/\beta_{\text{eff},1}$ 推定結果を表1に整理する。表1において、 $-\rho_1/\beta_{\text{eff},1}$ の統計誤差はランダムサンプリング法により推定された標準偏差( $1\sigma$ )を示している。表1から分かるように、①中性子源増倍法の場合には、状態変化前後における $n_0/n_\infty$ の増減のみで未臨界面度の相対変化を推定することになるため、 $-\rho$ と $S$ が同時に変化するような過渡変化の場合には、参照値からの差異が非常に大きい。特に、ケース3, 4のように、状態前後における計数率の増減が未臨界面度の変化と対応していない場合には、状態変化後の $-\rho_1/\beta_{\text{eff},1}$ の定性的な増減傾向でさえ大きく見誤る

こととなる。一方、②積分法および③TDDI法を用いた場合には、 $n(t)$ の測定結果のみから参照値に比較的近い推定結果を得ることが可能であり、ケース3, 4についても状態変化の $-\rho_1/\beta_{\text{eff},1}$ の増減を正しく推定できる。さらに、②積分法と③TDDI法を比較した場合、③TDDI法のほうがより参照値に近い $-\rho_1/\beta_{\text{eff},1}$ を推定可能であることが分かる。この理由は、調整棒の挿入および引抜に約30 [s]の時間を要しており、②積分法における仮定「ステップ状の状態変化」が適切ではないためである。③TDDI法の場合には、 $t_0 \leq t \leq t_1$ の時間範囲にわたって状態変化が起こったとしても、(1)式で示したように $t_0, t_1$ の効果を考慮することができ、ステップ状以外の任意の状態変化に対してもより適切に $-\rho_1/\beta_{\text{eff},1}$ を推定できたと考えられる。ただし、③TDDI法の場合には、過渡変化に要する時間間隔( $t_1 - t_0$ )が長くなるにつれて、(1)式における右辺分母の積分値 $\int_{t_1}^{\infty} (n(t) - n_{\infty}) dt$ が小さくなりゼロに近づくため、中性子計数の統計誤差の影響が大きくなり、 $-\rho_1/\beta_{\text{eff},1}$ の統計誤差も大きくなる点に注意が必要である。すなわち、③TDDI法において状態変化後の時刻 $t_1$ は任意に設定することが可能であるが、 $-\rho_1/\beta_{\text{eff},1}$ の統計誤差を小さくするためには、実際の状態変化終了時刻にできる限り近くなるように設定することが重要となる。

以上より、UTR-KINKIにおける制御棒および中性子源の同時操作による未臨界過渡変化実験を通じて、TDDI法の有効性を実証することができた。

表1 各測定手法による状態変化後の $-\rho_1/\beta_{\text{eff},1}$ 推定結果

Case	参照値 [\$]	①中性子源増倍法 [\$]	②積分法 [\$]	③TDDI法 [\$]
1	0.463	0.00948 ± 0.00004	0.395 ± 0.002	0.447 ± 0.004
2	0.638	83.9 ± 1.3	0.566 ± 0.002	0.660 ± 0.004
3	0.463	37.3 ± 0.4	0.512 ± 0.002	0.494 ± 0.003
4	0.638	0.0443 ± 0.0002	0.83 ± 0.02	0.74 ± 0.04

### 3. 三次中性子相関法

まず、三次中性子相関法について概要を述べる。定常状態における外部中性子源有りの未臨界体系において、ある時間幅 $T$ ごとに中性子を連続的に測定し続け、中性子検出数 $C(T)$ の時系列データ(炉雑音)を計測したとする。得られた $C(T)$ について平均、二次モーメント、三次モーメントを求め、以下の定義式に基づいて、二次中性子相関量 $Y$ 値および三次中性子相関量 $y_3$ 値を評価する。

$$Y \equiv \frac{\langle (C - \langle C \rangle)^2 \rangle}{\langle C \rangle} - 1 = \frac{\langle C(C - 1) \rangle - \langle C \rangle^2}{\langle C \rangle}, \quad (3)$$

$$y_3 \equiv \left( \frac{\langle (C - \langle C \rangle)^3 \rangle}{\langle C \rangle} - 1 \right) - 3 \left( \frac{\langle (C - \langle C \rangle)^2 \rangle}{\langle C \rangle} - 1 \right) = \frac{\langle C(C - 1)(C - 2) \rangle - 3\langle C(C - 1) \rangle \langle C \rangle + 2\langle C \rangle^3}{\langle C \rangle}, \quad (4)$$

(3), (4)式においてブラケット $\langle \rangle$ は期待値を意味する。比較的浅い未臨界体系を考えた場合には、基本モード成分が支配的であると近似することができ、検出時間幅 $T \rightarrow \infty$ の極限において中性子相関量の比 $y_{3,\infty}/Y_{\infty}^2$ の値は、臨界状態における固有の組み合わせ数「3」に比較的近い値となる。

$$\frac{y_{3,\infty}}{Y_{\infty}^2} = \lim_{\substack{T \rightarrow \infty \\ -\rho \ll 1}} \frac{y_{3,\infty}(T)}{(Y(T))^2} \approx 3 + (-\rho)K. \quad (5)$$

ここで $K$ は、核分裂率および外部中性子源強度の空間分布や検出器の不感時間 $\tau$ などに依存した測定対象体系固有の定数であり、オーダーとしては $K \approx 1$ である。従って、中性子相関量の比 $y_{3,\infty}/Y_{\infty}^2$ の「3」からの差異 $|y_{3,\infty}/Y_{\infty}^2 - 3|$ を調べることで、未臨界度 $(-\rho)$ のオーダーを概算することができる。言い換えると、臨界状態に近くなるほど、 $y_{3,\infty}/Y_{\infty}^2$ の値が臨界状態における固有の組み合わせ数「3」により近づくことになる。

UTR-KINKIにおいて三次中性子相関法の実験を行うため、停止時の未臨界炉心( $k_{\text{eff}} \approx 0.98$ )において炉雑音測定を実施した。停止時の状態では、炉内にPu-Be中性子線源などの外部中性子源は一切装荷されていない。しかし、UTR-KINKIの燃料板はU-Al合金であり、ウラン同位体(特に $^{234}\text{U}$ )の $\alpha$ 崩壊により発生した $\alpha$ 線と $^{27}\text{Al}$ が $(\alpha, n)$ 反応を起こすことによって、燃料内に固有中性子源が存在する状況となっている。従って、停止時の未臨界炉心においても、固有中性子源に起因した未臨界増倍が生じており、炉内に中性子検出器を配置することで低計数率ではあるものの中性子検出数の時系列データを測定することができる。本実験では、できる限り計数率を大きくできるよう炉心中央に $\text{BF}_3$ の検出器を配置し(計数率は約39cps)、運転停止中の期間を有効活用することにより、15.8時間にわたる長時間の炉雑音測定を実施した。得られた中性子検出数の時系列データに対して、bootstrap法および再帰バンチング法を利用することで、中性子相関量の比 $y_3(T)/Y^2(T)$ およびその統計誤差を分析した。

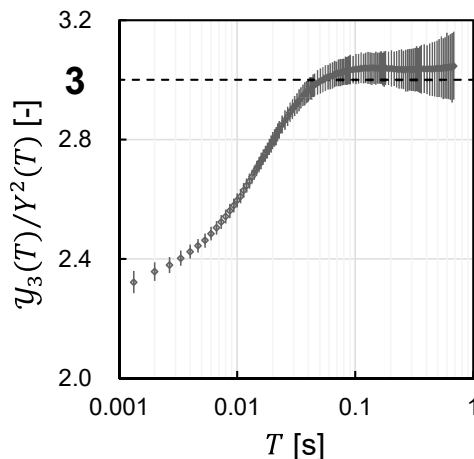


図1 検出時間幅 $T$ に対する $y_{3,\infty}/Y_{\infty}^2$ の変化

停止時のUTR-KINKIにおいて測定された炉雑音測定結果に対して、検出時間幅 $T$ に対する中性子相関量の比 $y_3(T)/Y^2(T)$ の変化を図1に示す。図1において、エラーバーはbootstrap法により推定した $y_3(T)/Y^2(T)$ の95%信頼区間を表している。図1から分かるように、検出時間幅 $T$ が大きくなるにつれて、飽和値 $y_{3,\infty}/Y_{\infty}^2$ が臨界状態における固有の組み合わせ数「3」近傍に収束することが確認できた。過去に我々の研究グループで実施した、核燃料を一切含まない非増倍体系における三次中性子相関法の実験結果<sup>3</sup>では、 $y_{3,\infty}/Y_{\infty}^2$ が「3」とは有意に異なる値であったため、停止時のUTR-KINKIにおける三次中性子相関法の結果は、炉内において未臨界増倍による核分裂連鎖反応が生じていることを意味している。ここで、停止時のUTR-KINKIの未臨界度は約2% $\Delta k/k$ のオーダーと比較的浅いため、 $y_{3,\infty}/Y_{\infty}^2$ の「3」からの差異 $|y_{3,\infty}/Y_{\infty}^2 - 3|$ のオーダーとしては0.02程度となることが期待された。しかし、本実験で実施した15.8時間の炉雑音測定で得られた $y_{3,\infty}/Y_{\infty}^2$ の統計誤差は $(-\rho)$

のオーダーと比べて大きく、約 $2\% \Delta k/k$ の浅い未臨界体系においては $y_{3,\infty}/Y_{\infty}^2$ の「3」からの統計的有意に検知することはできなかった。 $y_{3,\infty}/Y_{\infty}^2$ の「3」からの有意な差を測定できるような実験方法の改善策としては、さらに長時間(例えば1ヶ月オーダーの炉停止時状態)の炉雑音測定を実施するか、あるいは少ない燃料板枚数の深い未臨界体系(例えば $(-\rho) < 10\% \Delta k/k$ )において三次中性子相関法実験を実施することが挙げられる。

## 業績一覧

### [学術論文]

1. T. Endo, A. Nonaka, S. Imai, A. Yamamoto, A. Sakon, K. Hashimoto, “Subcriticality measurement using time-domain decomposition-based integral method for simultaneous reactivity and source changes,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, 57(5), pp. 607–616 (2020), DOI: 10.1080/00223131.2019.1706658

### [国際会議プロシーディング]

2. T. Endo, S. Imai, K. Watanabe, A. Yamamoto, A. Sakon, K. Hashimoto, M. Yamanaka, C.H. Pyeon, “Experiment of unique combination number due to the third-order neutron-correlation,” Proc. PHYSOR2020, Cambridge, United Kingdom, Mar. 29–Apr. 2, 2020.

### [国内会議]

3. 遠藤 知弘, 今井 頌, 渡辺 賢一, 山本 章夫, “非増倍体系での三次中性子相関法実験,” 日本原子力学会 2019 年秋の大会, 2J10, 2019 年 9 月 11 日～13 日, 富山大学五福キャンパス.

## 実験・測定補助者

野中 朝日 名古屋大学大学院工学研究科 博士前期課程 2 年

今井 頌 名古屋大学大学院工学研究科 博士前期課程 2 年

(計 2 名)