

核データ部会・「シグマ」特別専門委員会合同セッション

(3) 軽水炉燃料サイクルにおける

核種生成量評価のための核データ

日本原子力研究開発機構

原子力標準ソフトウェア開発グループ

奥村 啓介

okumura.keisuke@jaea.go.jp

1. はじめに

本報告では、先ず核種生成量計算に必要な核データについて簡単に説明する。続いて、核種生成量の精度評価において留意すべき点を Am-241 の生成量を例に紹介する。次に、バックエンド分野における核種生成量と核データニーズの一例として、ガラス固化体の長期安全性評価に関する事例を紹介する。最後に、福島第一原子力発電所の破損燃料に対する核種組成推定法について述べる。

2. 核種生成量の計算

着目する核種 i の燃焼及び放射性壊変による原子数密度 (N^i) の時間変化は、次の微分方程式により表される。

$$\frac{dN^i}{dt} = \sum_{j \neq i} f^{j \rightarrow i} \lambda^j N^j + \sum_{k \neq i} \sum_x g_x^{k \rightarrow i} \int R_x^k(E) dE + \sum_l \gamma^{l \rightarrow i} F^l - \left\{ \lambda^i N^i + \int R_a^i(E) dE \right\} \quad (1)$$

ここで、 j 及び k は親核種、 l は核分裂をする重核種、 $f^{j \rightarrow i}$ は崩壊により i 核種が生成される確率、 λ は崩壊定数、 $g_x^{k \rightarrow i}$ は k 核種の核反応 x によって i 核種に変換される確率 (例えば核異性体比)、 F^l は重核種 l の核分裂率、 $\gamma^{l \rightarrow i}$ は F^l により i 核種が生成される確率 (核分裂収率)、 R_x は核反応 x の反応率である。

核種生成量の計算コード (以下、燃焼計算コードと呼ぶ) は、このような微分方程式を、燃焼チェーンモデルに現れる全核種について連立させ、時間 (t) について離散化することで行列式とし、これを計算機により解いて $N^i(t)$ を求める。式(1)に現れる反応率のエ

エネルギー積分の扱いは、式(2)に示すように計算コードによって異なり、連続エネルギー法で厳密に扱うもの（例：MVP-BURN[1]）、多群計算で近似するもの（例：SRAC[2]）、代表的な体系で予め反応率を保存するように作られた 1 群断面積を使用するもの（例：ORIGEN2[3]）などがある。

$$\begin{aligned} & \int R_x^k(E)dE \quad (\text{e.g. MVP - BURN}) \\ & \approx N^k \sum_g \sigma_{x,g}^k \phi_g \quad (\text{e.g. SRAC}) \\ & \approx N^k \langle \sigma_x^k \rangle \langle \phi \rangle \quad (\text{e.g. ORIGEN2}) \end{aligned} \quad (2)$$

以上に述べたように、核種生成量の計算に必要な核データは、崩壊による分岐比（崩壊確率）、核反応による分岐比（例えば核異性体比）、半減期、核分裂収率、核反応断面積である。これらの核データと燃焼計算コードにより、式(1)を解いて原子数密度が計算できると、これに核種に依存する様々な定数（崩壊定数や発熱定数など）を乗ずることにより、放射能、崩壊熱、毒性などの諸量が評価できる他、次の遮蔽計算等のための線源データなどを作ることができる。

3. 軽水炉使用済み燃料の照射後試験解析による精度検証

核種生成量の精度検証は、原則として分析に基づく実測値との比較によって行われる。実測値（M 値）と計算値（C 値）を比較する際には、「何処で何を評価するための検証か？」という点を明確にしておかなければ、大きな誤解を与えることがある。以下に、軽水炉使用済み燃料中の Am-241 生成量の予測精度に関する事例を紹介する。

軽水炉の使用済み燃料は、通常 4 年以上の冷却期間の後に分析が行われるが、分析値を冷却補正して、炉心からの取り出し直後の値として整理されている実測データが少なくない。このようなデータでは、Am-241 の実測値と計算値が大きく異なっていることがあり、ともすれば、核データに起因する差異と考えられることがある。しかしながら、多くの場合は、C/M 値の誤差が正しく評価されていないことに起因する。

Pu-241（半減期 14.4 年）の β 崩壊からの生成寄与を持つ Am-241 の場合、取り出し直後の核種生成量(N_0^{Am})は、測定日の核種生成量(N^{Am})と測定日までの冷却期間 T_c から式(3)により冷却補正される。一方、冷却補正値の誤差は、測定時の Pu-241 と Am-241 の測定誤差(δN)に基づき、式(4)の誤差伝播式により与えられる。

$$N_0^{Am} = N^{Am} - N^{Pu}(e^{\lambda T_c} - 1) \quad (3)$$

$$\delta N_0^{Am} = \sqrt{(\delta N^{Am})^2 + (\delta N^{Pu})^2 (e^{\lambda T_c} - 1)^2} \quad (4)$$

測定時における Pu-241 及び Am-241 の分析値の誤差（相対標準偏差）は、それぞれ約 0.3%と約 2%（高浜 3 号炉 PIE の例）と十分に小さいが、冷却補正された Am-241 の実測値（取り出し直後値）の誤差は、式(4)により拡大する（図 1 参照）。実測値は式(3)の値で与えられても、分析者は精度良く測定した結果をわざわざ誤差を拡大して報告することはしないため、実測値の誤差がデータベースの利用者に正しく理解されないことが多い。

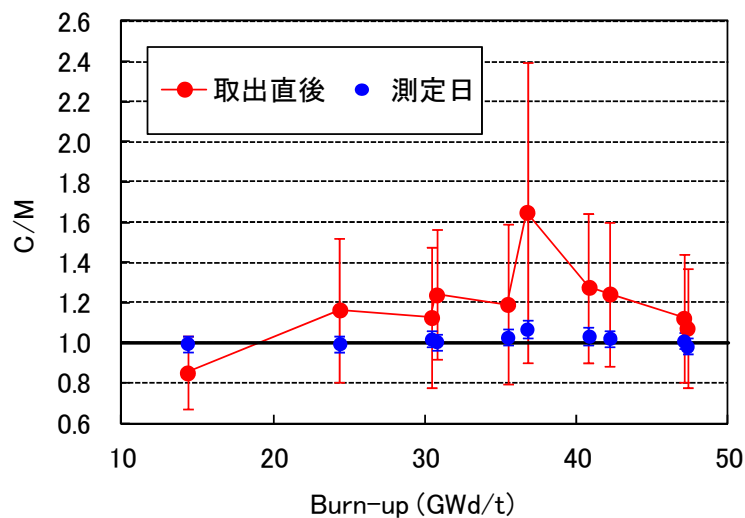


図 1 高浜 3 号炉照射後試験解析の例（取出直後と測定日で見えた C/M 値の違い）
誤差棒は測定に起因する誤差（ 2σ ）を示す

一般に、冷却期間が 4 年以上の軽水炉使用済み燃料は、Am-241 の炉内生成量は僅かであり、約 90%以上は Pu-241 の崩壊成分である。これまでの照射後試験解析の実績から、燃焼計算による Pu-241 生成量の予測精度は条件が良ければ 3%以下であり、十分に冷却された使用済み燃料の輸送や中間貯蔵などを議論する際の Am-241 生成量の予測精度はその断面積とは無関係に良いものと言える。また、再処理工場においても、保障措置の観点からプルトニウムのインベントリ管理はサンプリング分析等により厳しく行われるため、Am-241 のインベントリも良く把握されているものと言える。一方、ウラン・プルトニウムの溶媒抽出工程の後では、アメリシウム同位体の大部分は高レベル放射性廃液に移されるが、この段階では廃液中の核種重量は、燃焼計算で得られるウラン重量当たりで規格化された重量ではなく、廃液体積または廃液重量あたりの核種重量（g/L または g/g-sol）として評価される。再処理工程を化学平衡式などに基づき模擬する解析コードも存在するが、現状では溶解・抽出・濃縮等の工程を経た廃液中の核種重量を計算で精度

よく再現することは困難であるため、再処理工程の要所で、日常的にサンプリング分析が行われており、その分析結果から目的核種のインベントリ評価が行われる。

4. ガラス固化体の長期安全性評価のための核種インベントリ評価

再処理で使用済み燃料からウラン・プルトニウムを分離した高レベル放射性廃棄物は、ガラス固化後、30～50年間冷却され、その後、地下300m以深に地層処分される。地層処分においては、オーバーパックの健全性が長期間持続するように設計されること、また人工バリアや天然バリアを核種が移行する間に崩壊による減衰が期待できることから、地層処分システムの長期的な安全性の評価対象核種として、主に半減期が数千年以上の長半減期核種が選定されている[4]。具体的には、処分後十万年以降の総線量を支配する、Se-79、Cs-135、Th-229 (Np-237と放射平衡)が重要核種として考えられている。これらの核種はいずれも化学分離や分析が難しい核種であり、現状では、再処理工場のサンプリング分析の対象核種となっていない。特に純β放出核種であるSe-79については、核分裂収率が小さく、分析に必要なサンプル量を用意するためには、核分裂収率が高いCs-137等からのガンマ線被曝を余儀なくされる。このため、重要核種とされながらも、Se-79の分離サンプルを用意することは容易ではなく、その断面積測定や半減期測定は十分に行われていない。また、その生成量に関する照射後試験データも、世界的にごく僅かである。

「わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性・地層処分開発研究第2次取りまとめ」より

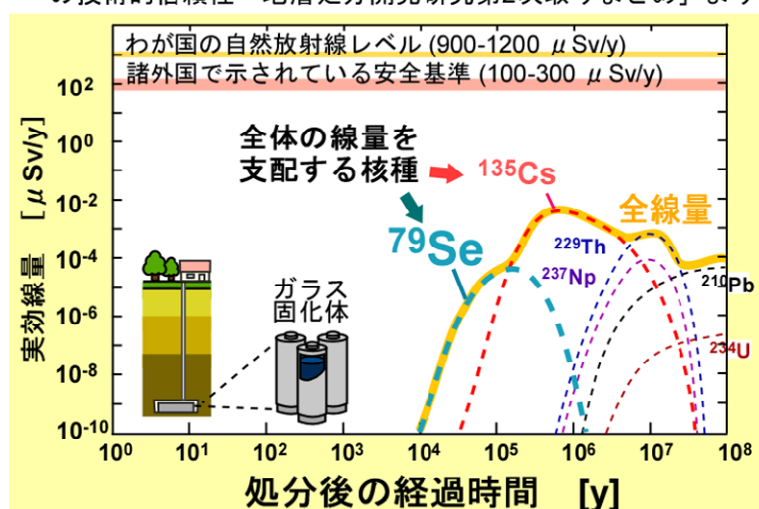


図2 地層処分されたガラス固化体の安全性評価の一例[4]

Se-79 や Cs-135 など地層処分の安全性評価で用いられる核種のインベントリ評価手法を開発するため、2008年度より、電力共通研究の枠組みにおいて原子力機構により研究

が開始された[5]。その第 I 期研究（2008～2009）では、Se-79 及び Cs-135 の迅速簡便な分析手法を開発し、これを軽水炉使用済み燃料の溶解液に適用して、日本では初めてこれら難分析核種の分析に成功した[6]。この分析は質量分析（ICP-QMS）によるものであるが、その結果は、米国のパシフィック・ノースウェスト研究所（PNL）で得られた放射能測定による分析結果とよく整合していることが示された[7]。ただし、Se-79 の半減期データは過去 20 年で大きく変動しており、放射能と質量の換算には、最新のデータを使用する必要がある。

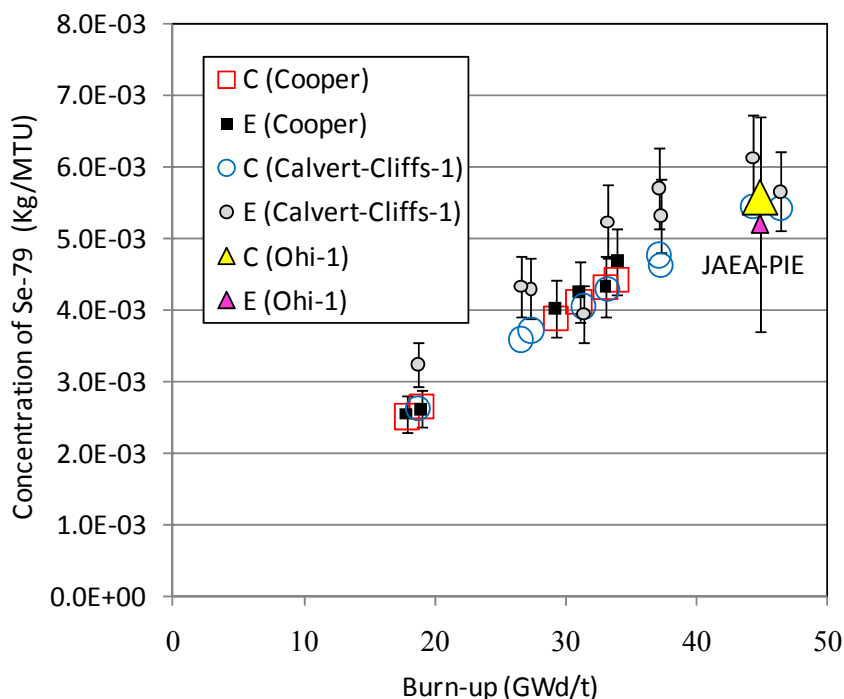


図3 難分析長寿命FP核種 Se-79 に対する照射後試験解析結果の例 (C:MVP-BURN と JENDL-4.0 による計算値、E:実験値) [7]

5. 福島第一原子力発電所の破損燃料に対する核種組成推定法

福島第一原子力発電所の事故に関しては、3月22日以降、海水、空気中、土壌など多くの放射能分析値が公表されているが、何よりも破損した燃料の組成や形状を推測することが今後の対策案策定において重要であろう。事故直前の正確な燃料組成については、電力が所有する炉心燃焼管理データを活用することが最も有効であるが、これは今のところ公表されていない。燃焼燃料組成を推測する上で先ず確認すべき点は燃焼度である。燃焼度指標となる核種は幾つかあるが、分析されている核種は燃料棒の外部に放出されたものであるため、照射後試験解析のように燃焼計算により得られる組成をそのまま比較することはできない。元素毎の放出率や水への溶出率などの特性は簡単には予測できないため、同じ化学的特性を持つ同位体の組成比に着目することが望ましい。例

例えば、Cs-134/Cs-137 放射能比は、燃焼度指標として良く知られており、非破壊による燃焼度分布測定などに利用されている（図 4 参照）。

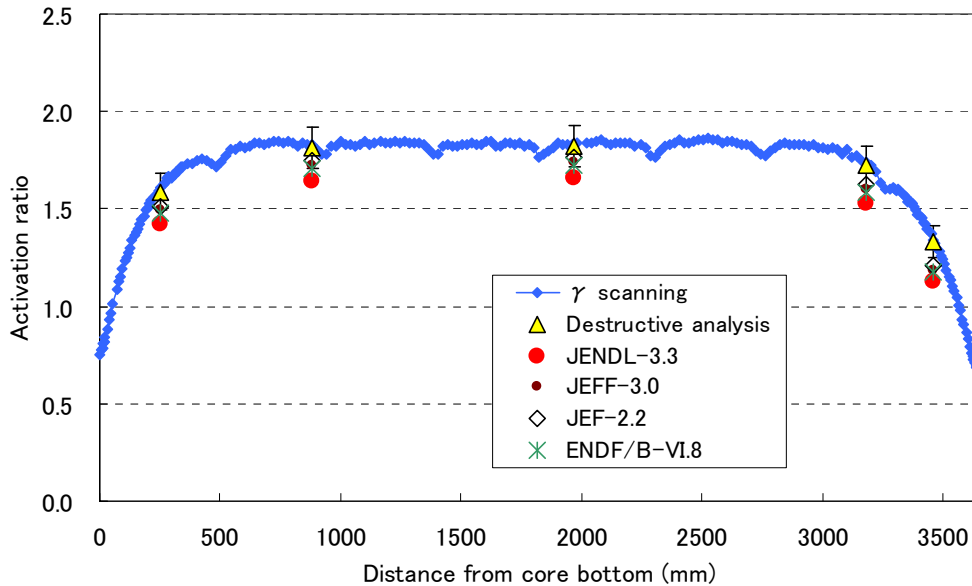


図 4 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比の軸方向分布の実測値（ γ スキャン）と計算値の比較[8]

タービン地下溜まり水の放射能分析値は、各原子炉の燃焼度を反映しているものと考えられるが、東京電力から報告されている、分析に基づく Cs-134 と Cs-137 の放射能は、どの原子炉の溜まり水でもほぼ同程度である（表 1）。

表 1 タービン地下溜まり水の核種分析結果（3月26日採取）

	Cs-134 (Bq/cm ³)	Cs-137 (Bq/cm ³)	Cs-134/Cs-137 (Bq/Bq)
1号機	1.20E+05	1.30E+05	0.92
2号機	2.30E+06	2.30E+06	1.00
3号機	5.50E+04	5.60E+04	0.98

そこで、JENDL-4.0 に基づくライブラリ（ORLIBJ40）[9]を使用した ORIGEN2 計算により、燃焼度と Cs-134/Cs-137 放射能比の相関を作成し、放射能比が約 1.0 になる燃焼度を概算した。なお、図 3 では、JENDL-3.3 による Cs-134/Cs-137 放射能比はやや過小評価の傾向があるが、これは JENDL-4.0 では解消されている[10]。図 4 に示す燃焼度と Cs-134/Cs-137 放射能比の相関から、破損燃料の平均燃焼度は 20～25GWd/t であると推定される。実際には、Cs-134 の生成量は燃料集合体の軸方向燃焼度分布やボイド分布に敏感であり、この効果の補正（MOSRA-SRAC により軸方向 25 ノード分割体系の組成計算

から補正值を評価)を加味すると、破損燃料の平均燃焼度は ORIGEN2 による評価値よりもやや小さくなり 20GWd/t 前後となる。

他の核種のインベントリは、この燃焼度点で燃焼燃料組成を事故後の経過時間だけ冷却して概算できる。更に、環境へのソースターム（放出インベントリ）については、SPEEDI[11]による計算値や分析値から逆推定され、これを燃焼計算値によるインベントリから差し引いて破損燃料の組成を推定する。将来的には、破損燃料から空気中への放出率や冷却水中への溶出率を、機構論的な計算や経験的なデータベースから予測できるようにし、SPEEDI のソースターム入力として利用できるようにすることが望まれる。

破損燃料の取り出し方法の検討が具体化するのには、早くても数年先と考えられるが、その輸送、貯蔵、処理処分法を検討するには、発熱量、放射能、臨界性等の正確な評価が必要であり、当面はこれらの評価に必要な情報を取得するための手段が必要である。

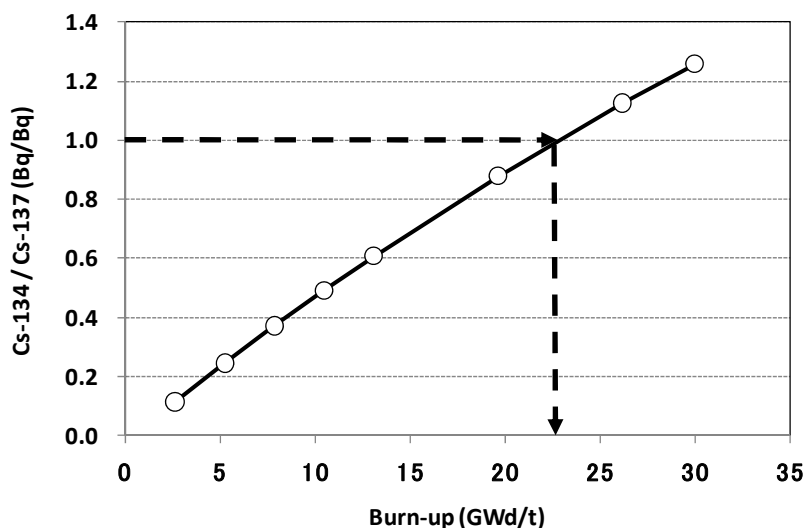


図5 福島第一原子力発電所の破損燃料に対する燃焼度と Cs-134/Cs-137 放射能比の相関 (JENDL-4.0 ライブラリによる ORIGEN2 計算)

6. おわりに

福島第一原子力発電所の事故により、日本の核燃料サイクルの将来像が流動的となっている。今後の日本の核データニーズを的確に把握するためには、原子力政策大綱の見直し内容、軽水炉廃止措置や次世代軽水炉による既存炉のリプレース、六ヶ所再処理工場やむつ市中間貯蔵施設の操業開始などの動向を注視しておく必要がある。

【参考文献】

- [1] K. Okumura, T. Mori, N. Nakagawa, K. Kaneko, “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** [2], 128 (2000).
- [2] K. Okumura, T. Kugo, K. Kaneko, K. Tsuchihashi, “SRAC2006: A Comprehensive Neutronics Calculation Code System”, JAEA-Data/Code 2007-004 (2007).
- [3] A. G. Croff, “ORIGEN2 – A revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code”, ORNL-5621 (1980).
- [4] 核燃料サイクル開発機構, “わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性－地層処分研究開発第2次取りまとめ－”, JNC-1400 99-020 (1999).
- [5] 石川真澄, 金子悟, 北山一美他, “地層処分の安全評価の観点からのガラス固化体中の核種インベントリ評価の信頼性向上の取り組み”, 日本原子力学会和文論文誌, **8** (4), 304 (2009).
- [6] S. Asai, Y. Hanzawa, K. Okumura, *et al.*, “Determination of ^{79}Se and ^{135}Cs in Spent Nuclear Fuel for Inventory Estimation of High-Level Radioactive Wastes”, J. Nucl. Sci. and Technol., **48** [5], 851 (2011).
- [7] K. Okumura, S. Asai, Y. Hanzawa, *et al.*, “Analyses of Assay Data of LWR Spent Nuclear Fuels with a Continuous-Energy Monte Carlo Code MVP and JENDL-4.0 for Inventory Estimation of ^{79}Se , ^{99}Tc , ^{126}Sn , and ^{135}Cs ”, Progress in Nucl. Sci. and Technol., Vol. 2 (SNA+MC2010) (2011).
- [8] 奥村啓介, 大木繁夫, 山本宗也他, “JENDL による核種生成量予測精度の検討”, JAERI-Research 2004-025 (2004).
- [9] 奥村啓介, 小嶋健介, 岡本力, “最新核データ JENDL-4.0 に基づく軽水炉用 ORIGEN2 ライブラリの開発”, 日本原子力学会 2011 年秋の大会予稿 D33 (2011).
- [10] K. Okumura, K. Sugino, G. Chiba, *et al.* “JENDL-4.0 Integral Testing for Fission Systems,” J. of the Korean Physical Society, **59**[2], 1135-1140 (2011).
- [11] 茅野政道, 石川裕彦, 甲斐倫明 他, “SPEEDI: 緊急時環境線量情報予測システム”, JAERI-M 84-050 (1984).