

日本原子力学会「2019年春の年会」核データ部会セッション  
「核分裂生成物核種の核データ研究のフロンティア」

## (4) 原子力エネルギーシステム応用の観点から

北海道大学工学研究院  
エネルギー環境システム部門 原子炉工学研究室  
千葉 豪  
[go\\_chiba@eng.hokudai.ac.jp](mailto:go_chiba@eng.hokudai.ac.jp)

### 1. はじめに

本稿では、核分裂生成物（FP）核種の核データ研究に関連して、原子力エネルギーシステム応用の立場から重要な FP 核種を整理するとともに、FP 核データを検証するために利用可能な積分データを紹介する。読み物というよりは、技術資料的なものを作成することを意図している。

### 2. 原子力エネルギーシステム応用分野において重要な FP 核種

エネルギー応用分野において重要な FP 核種として、(1)核分裂連鎖反応体系の反応度に与える影響が大きい FP、(2)原子炉の動特性に与える影響が大きい FP、(3)使用済み及び使用中核燃料に含まれるインベントリの評価が重要となる FP、(4)福島第一原子力発電所の廃炉作業において重要な FP、の4つのカテゴリーに分類して説明する。

始めに、核分裂連鎖反応体系の反応度に与える影響が大きい FP ということで、運転中の原子炉と使用済み燃料の貯蔵施設について考えることとする。

前者に関しては、さらに高速中性子炉と熱中性子炉とに分類することが出来る。高速中性子炉では FP の吸収反応の影響が熱中性子炉と比べて小さく、かつ FP 核種の個性がそれほど大きく現れないため、特定の FP が重要ということにはならない。具体的な例として、エネルギー一群に平均化した中性子捕獲断面積をいくつかの FP について図 1 に示す。この図では、対応する原子炉の主要核分裂性核種の一群核分裂断面積を実線で示しているが、高速中性子炉（図中「FR」、黒色が対応）では個々の FP の個性が小さく、かつ核分裂性核種（Pu-239）の核分裂断面積と比べて値が小さいことが分かるであろう。

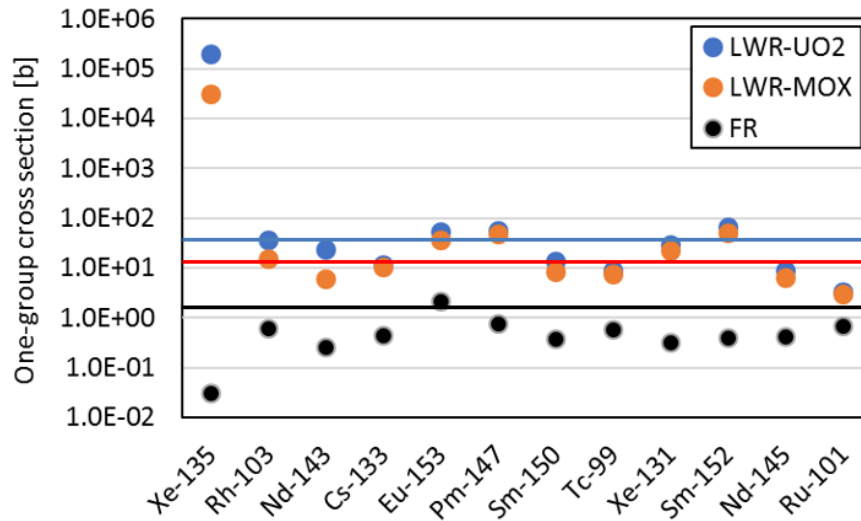


図 1 FP の一群中性子捕獲断面積の計算例

一方、熱中性子炉では FP の個性が大きく現れるため、累積核分裂収率の大きさが有意であり、かつ中性子吸収が大きいものが重要となる。重要な FP の特定は、例えば燃料の燃焼度に応じてそれぞれの FP 核種の中性子捕獲反応率の大きさを比較すればよいが、捕獲断面積は燃焼中の核種の消滅・生成にも寄与するため、そういった効果を含めて考えるには燃焼問題のための摂動理論 [1,2] を用いて反応度の断面積に対する感度を計算するのが手取り早い。その計算例として軽水炉 UO<sub>2</sub> 燃料における反応度の中性子捕獲断面積に対する感度を図 2 に示すが、この例からは、Xe-135、Rh-103、Nd-143、Cs-133、Eu-153、Pm-147、Sm-150、Tc-99、Xe-131、Sm-152、Nd-145、Ru-101 が重要なものとして挙げられることになる。

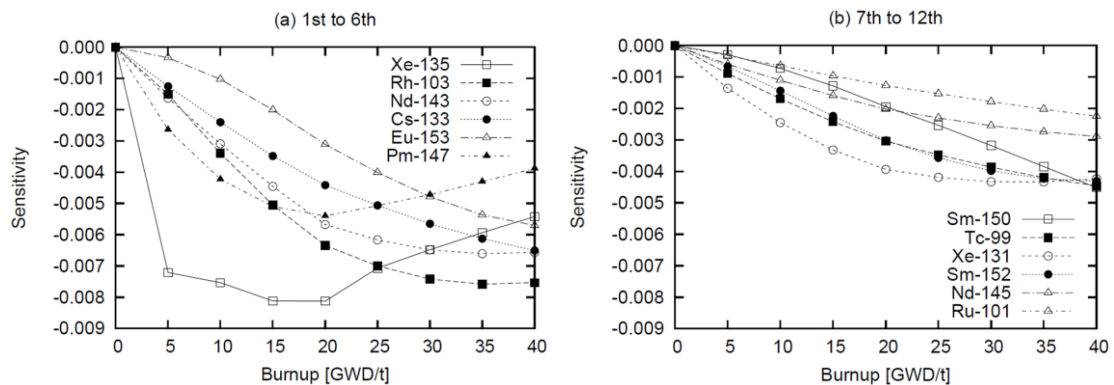


図 2 軽水炉 UO<sub>2</sub> 燃料における燃焼中の反応度の中性子捕獲断面積に対する感度  
(縦軸の単位は  $(dk/k)/(d\sigma/\sigma)$ )

使用済燃料に関しては、貯蔵容量の合理化のための考え方である燃焼度クレジット適用の観点から Mo-95、Tc-99、Rh-103、Cs-133、Nd-143、-145、Sm-147、-149、-150、-152、Eu-153、Gd-155 が重要な核種として挙げられる [3]。ここでは、運転中の原子炉の反応度に与える影響が大きいとされた核種のうち、Xe-135 などの短半減期のものが除外される一方、使用済燃料の冷却期間中に崩壊によって発生する Gd-155 などが追加されている。これらに加えて、可燃性毒物として用いられている、もしくは用いられることが考えられている Gd、Eu といったものも挙げられるであろう。

遅発中性子の放出は原子炉の動特性に大きな影響を与える。原子炉の動特性においては、遅発中性子放出に関わる FP 核種を仮想的な 6 つ（もしくは 8 つ）の核種として扱うモデルが用いられてきたが、近年は個々の FP 核種の核データが原子炉動特性に与える影響を定量評価する試みが行われている [4,5]。その結果、Br-87、-88、-89、I-137 といった比較的重要性が認識されている核種に加えて、Ge-86 や Rb-94 といった FP 核種の重要性も明らかとされている（ただし、Ge-86 については評価済みファイル編集時の誤りに起因するものであったようにも記憶している）。遅発中性子平均総放出数（ $\nu$ -d）とその不確かさについて、個々の FP の核データに基づいて計算したもの（総和計算）と、評価済み核データファイルの評価値とを比較したものを図 3 に示すが、意外と整合がとれた結果が得られていることが分かる [6]（総和計算は JENDL/FPY-2011、JENDL/FPD-2011 を利用）。また、手前味噌になるが、個々の FP 核種を陽に扱った空間依存の原子炉動特性計算も、既に実現している [7]。

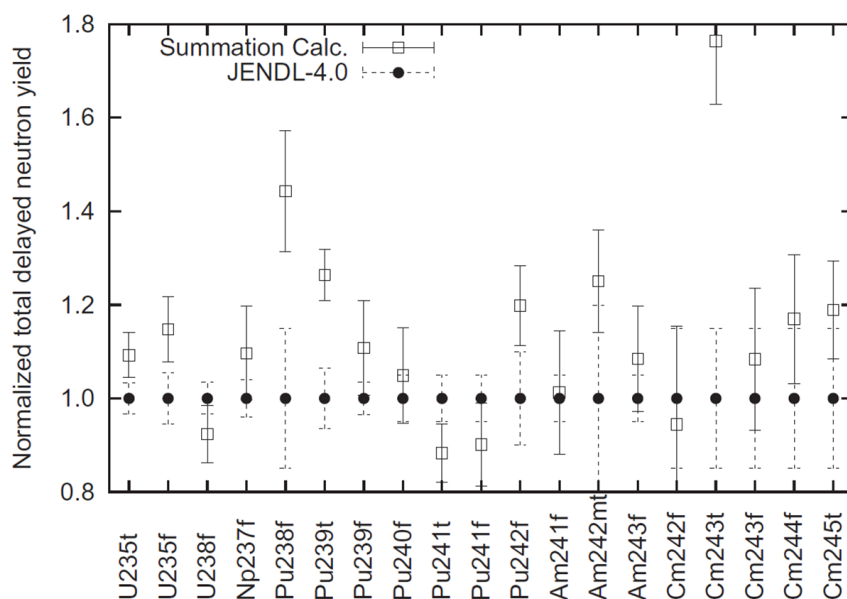


図 3 遅発中性子平均総放出数とその不確かさの比較（核データ評価値で規格化。図中の「t」「f」はそれぞれ熱中性子核分裂、高速中性子核分裂を示す。） [6]

使用済核燃料中のインベントリ評価が重要となる FP として、まずはそのインベントリが燃料の燃焼度指標となりうるものが挙げられる。これらは、燃焼度に対する生成量が線形もしくは二次関数的に変化し、かつ崩壊ガンマ線による検出が容易な核種が該当し、Cs-134、-137、Eu-154、Ru-106、Ce-144、Nd-148 などが挙げられる [8]。例として Nd-148 生成量の核分裂収率に対する感度を図 4 に示すが、燃焼度の増加に関わらず、Nd-148 自身の核分裂収率に対する感度がほぼ 1.0 となっていることが分かる。詳細な説明は省略するが、このことは Nd-148 の生成には他の FP 核種の核反応が介在せず、基本的には自身の累積収率のみで決まることを示している。さらに、Nd-148 は U-235 と Pu-239 の核分裂収率がほぼ同じ値となることから、その生成量は燃焼度指標として有効になると言える。

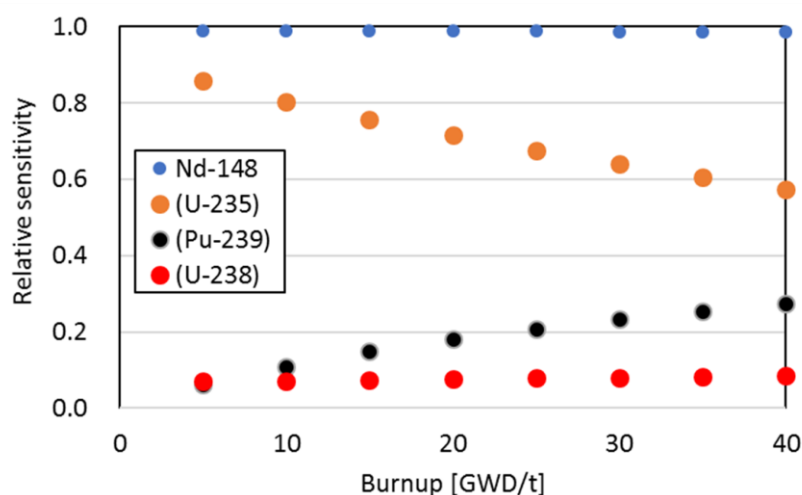


図 4 Nd-148 生成量の核分裂収率に対する感度  
(括弧は核分裂性核種毎の値)

また、使用済燃料の再処理においては、その発熱量が問題となる核種として Sr-90、Ru-106、Cs-134、-137、Ce-144 などが、ガラス固化体の特性の観点から含有量が制限される元素として Mo が、ガラス熔融炉において電気短絡を発生させる可能性があるため含有量が制限されている白金族元素 (Ru、Rh、Pd) が重要な FP 核種として挙げられる [9]。さらに、放射性廃棄物の長期処分において重要となる超寿命 FP 核種として、Se-79 (半減期 30 万年)、Zr-93 (同 15 万年)、Tc-99 (同 21 万年)、Pd-107 (同 650 万年)、I-129 (同 1570 万年)、Cs-135 (同 230 万年)、Sn-126 (同 10 万年) などが挙げられる [10]。

使用中の核燃料における FP 核種に関しては、燃料設計における FP 放出モデルで重要となるガス状 FP 核種 (Kr、Xe、Cs 等) が挙げられる。また、燃料漏洩時の監視のため、希ガス 7 核種 (Xe-133、-135、-135m、-138、Kr-85m、-87、-88m) の放出が監視されるとともに、漏洩が生じた燃料の種類 (ウラン燃料/MOX 燃料) や燃焼度を推定するために I

や Cs の同位体の測定も行われており、そういった FP 核種が重要と言える。

福島第一原子力発電所から取り出す燃料デブリについては、そこに含まれる核分裂性物質の定量化が重要であり、非破壊で実施可能な核種インベントリ推定方法がいくつか提案されている [11]。その中で、核分裂性核種と随伴し、かつそのインベントリが燃焼度に強く依存するような FP 核種が重要であり、その例として Eu-154 や Ce-144、Cs-134、-137 が挙げられる。また、再臨界監視技術として、Cm-242 や-244 の自発核分裂由来の FP ガスと U-235 や Pu-239 の中性子誘起核分裂由来の FP ガスの生成量の差異を利用する方法がある。この方法では、FP ガス（希ガス）の核分裂収率の違いを利用していることから、そういった核データが重要となる。例として簡易的なモデルで計算した Xe-135 と Xe-133 の放射能比の中性子増倍率依存性を図 5 に示す（引用するのに適切なものが他にあることと思うが著者の勉強不足で把握できていないことをお詫びする）。

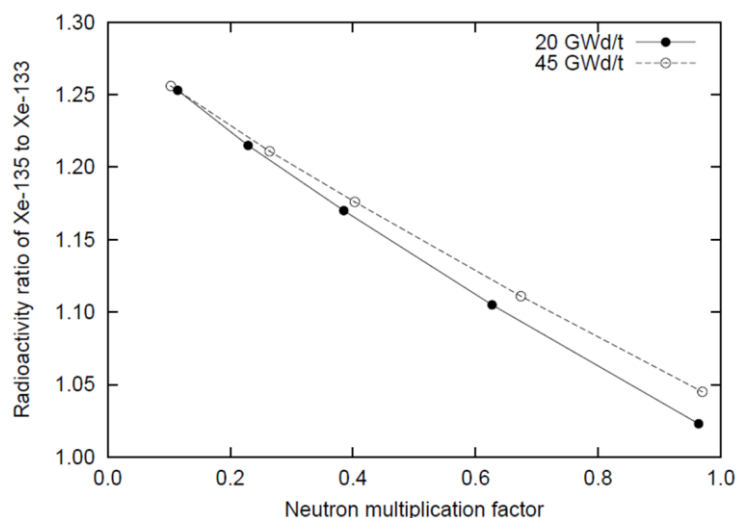


図 5 Xe-135 と Xe-133 の放射能比の中性子増倍率依存性

### 3. FP 核種の核データ検証のための積分データ

本節では、FP 核データの検証に利用できる積分データを、(1)照射後試験データ、(2)臨界実験で取得された実効増倍率データ、(3)サンプル反応度データ、の 3つのカテゴリーに分類して説明する。

使用済燃料中に含まれる種々の核種のインベントリを定量化した照射後試験データ（Post Irradiation Examination data、PIE データ）は、FP 核種の生成に関わる核データの精度検証をする上で極めて有益である。これまでに、ALIANE、MALIBU、REBUS といった国際的な枠組みのプロジェクトで PIE データが蓄積されてきたが、ALIANE、REBUS などのプロジェクトの一部は OECD/NEA が開発している照射後試験データベースの SFCOMPO-2.0 [12] に収納され、活用可能となっている。また、福島第二原子力発電所で

取得されたデータ [13,14] についても SFCOMPO-2.0 に収納されている（文献 [13,14] は 1 号機のデータを対象としているが、SFCOMPO-2.0 では 2 号機のデータも含まれている）。なお、REBUS プロジェクトで取得された、照射燃料で構成される体系における炉物理パラメータの測定データも FP 核種の核データの検証に有益であるが、関係者の尽力によりその詳細が公開されており活用可能となっている [15]。

ICSBEP や IRPhEP で収集・公開されたデータには、いくつか FP 核データに感度を有するものがあり、それらも有効に活用できる。これらに収録されている臨界実験データのうち、軽水炉核特性に深く関係しかつ高品質な実験データを、JENDL 委員会・リアクター積分 WG が軽水炉ベンチマークデータ集としてまとめており [16]、Gd や Rh を含む臨界実験体系のデータが収録されている。加えて、日本原子力研究所の TCA で取得された FP 核種を含む臨界体系の実験データについても利用可能である [17-19]。

FP 核種を含んだサンプルを原子炉に導入することで生じる反応度（サンプル反応度）の測定データは、FP 核種の核データの直接的な検証に有効である。代表的なものとしては、仏 CEA と英 UKAEA による CERES プログラムが挙げられるであろう。CERES では、試験研究炉 MINERVE、DIMPLE を用いた測定が実施され、データの一部は IRPhEP に登録されている模様である [20]。また、オランダで実施された STEK 実験、ドイツで実施された SEG 実験でも FP 核種のサンプル反応度データが取得されており、一部のデータが利用可能な状態となっている [21]。SEG 実験については、最近、米 INL でも再解析が実施されている [22]。

#### 4. おわりに

FP 核種の核データ研究に関連して、原子力エネルギーシステム応用の立場から重要な FP 核種を整理するとともに、核データを検証するために利用可能な積分データを紹介した。

なお、この学会での発表に関して、その予稿や発表資料を作成するにあたって数々の有益なご助言をいただいた原子燃料工業(株)の大岡靖典氏を始めとした JENDL 委員会・リアクター積分 WG の皆様に深く感謝致します。また、本稿の内容の一部についてご確認いただいたことに対し、NEA データバンクの須山賢也氏、電力中央研究所の鈴木求氏に深く感謝致します。

#### 参考文献

- [1] M.L. Williams, “Development of depletion perturbation theory for coupled neutron/nuclide fields,” Nucl. Sci. Eng., 70, p.20-36 (1979).
- [2] G. Chiba, S. Okumura, “Uncertainty quantification of neutron multiplication factors of light water reactor fuels during depletion,” J. Nucl. Sci. Technol., 55, p.1043-1053 (2018).

- [3] 燃料サイクル安全研究委員会編、「燃焼度クレジット導入ガイド原案」、JAERI-Tech 2001-055、日本原子力研究所 (2001).
- [4] G Chiba, et al., “Sensitivity and uncertainty analysis for reactor stable period induced by positive reactivity using one-point adjoint kinetics equation,” J. Nucl. Sci. Technol., 50, p.1150-1160 (2013).
- [5] F. Minato, “Sensitivity of delayed neutron to fission yields and beta-decay half-lives,” JAEA-Conf 2015-003, p.153-158, Japan Atomic Energy Agency (2016).
- [6] G Chiba, et al., “Uncertainty quantification of total delayed neutron yields and time-dependent delayed neutron emission rates,” Ann. Nucl. Energy, 85, p.846-855 (2015).
- [7] K. Katagiri, G Chiba, “Spatially-dependent nuclear reactor kinetic calculations with the explicit fission product model,” Ann. Nucl. Energy, (accepted).
- [8] 佐藤駿介、名内泰志、「使用済燃料の燃焼度評価技術の開発」、電力中央研究所研究報告 L16002 (2017).
- [9] Y Inagaki, et al., “LWR high burn-up operation and MOX introduction; fuel cycle performance from the viewpoint of waste management,” J. Nucl. Sci. Technol., 46, p.677-689 (2009).
- [10] 放射性廃棄物の分離変換研究専門委員会編、「分離変換技術総論」、日本原子力学会、(2016).
- [11] T. Nagatani, et al., “Characterization study of four candidate technologies for nuclear material quantification in fuel debris at Fukushima Daiichi nuclear power station,” Energy Procedia, 131, p.258-263 (2017).
- [12] F. Michel-Sendis, et al., “SFCOMPO-2.0: an OECD NEA database of spent nuclear fuel isotopic assays, reactor design specifications, and operating data,” Ann. Nucl. Energy, 110, p.779-788 (2017).
- [13] T. Yamamoto, Y. Kanayama, “Lattice physics analysis of burnups and isotope inventories of U, Pu, and Nd of irradiated BWR 9x9-9 UO<sub>2</sub> fuel assemblies,” J. Nucl. Sci. Technol., 45, p.547-566 (2008).
- [14] M. Suzuki, et al., “Lattice physics analysis of measured isotopic compositions of irradiated BWR 9x9 UO<sub>2</sub> fuel,” J. Nucl. Sci. Technol., 50, p.1161-1176 (2013).
- [15] 原子力安全基盤機構、「REBUS 計画の試験結果及び解析」、JNES-SS-0904, (2009).
- [16] JENDL 委員会リアクター積分 WG、「JENDL 開発のための軽水炉ベンチマークデータに関するデータ集の整備ー公開データベース ICSBEP 及び IRPhEP における実効増倍率データの活用ー」、JAEA-Data/Code 2017-006 (2017).
- [17] K. Sakurai, T. Yamamoto, “Benchmark model of critical experiment at TCA for integral evaluation of fission product nuclide cross sections,” J. Nucl. Sci. Technol., 34, p.202 (1997).

- [18] T. Yamamoto, K. Sakurai, et al., “Measurements and analyses of reactivity effect of fission product nuclides in epithermal energy range,” J. Nucl. Sci. Technol., 34, p.1178 (1997).
- [19] 須崎武則、奥村啓介、他、「FP 元素等核データ検証実験及び解析」、2003 年春の年会 H37、アルカス SASEBO (2003).
- [20] A. Santamarina, et al., “Reactivity worth measurement of major fission products in MINERVE LWR lattice experiment,” Nucl. Sci. Eng., 178, p.562-581 (2014).
- [21] K. Dietze, “Integral test of JENDL-3.2 data by re-analysis of sample reactivity measurements at fast critical facilities,” JNC TN 94000 2001-043, Japan nuclear cycle development institute (2001).
- [22] A. Hummel, G Palmiotti, Small sample reactivity measurements in the RRR/SEG facility: reanalysis using TRIPOLI-4, INL/EXT-16-39582 (2016).