

話 題 (I)

原子力学会 (核データ・炉物理) 合同特別会合

去る 1988 年 10 月 8 日～10 日, 原子力学会秋の大会が神戸商船大学で開かれた。その第 2 日目に, シグマ特別専門委員会と炉物理研究特別専門委員会による (核データ・炉物理) 合同特別会合が以下のプログラムに従って行われた。

座 長 (NAIG) 吉田 正

- (1) 使用済み燃料の分析と燃焼シュミレーション計算
(原研) 鈴木 敏夫
- (2) 原子炉崩壊熱基準研究専門委員会の活動
(名大) 加藤 敏郎
- (3) 炉物理国際会議出席報告 (阪大) 竹田 敏一
- (4) 事務局報告

使用済み燃料の分析と燃焼シミュレーション計算

(原 研) 鈴 木 敏 夫

[はじめに]

使用済み燃料中に含まれるウラン及び超ウラン元素 (TRU) 並びに核分裂生成物 (FP) の定量的把握は、再処理及び貯蔵における、臨界安全、核物質管理 (保障措置) 並びに廃棄物管理等において重要である。

われわれは、燃焼度 7 Gwd/t～39 Gwd/t の PWR 使用済み燃料について、溶解試験を行うとともに、ウラン、TRU (Np, Pu, Am, Cm 等) 及び FP (Ru, Nd 及び γ 線放出核種) の分析と燃焼度測定を行った。これらの試料について、燃焼シミュレーション計算 (ORIGEN2¹⁾、SRAC-FPGS²⁾) を行い分析値と計算値との比較を行った。ここでは、これらの結果について解説する。

1 使用済み燃料の分析及び測定誤差

分析に用いた 10 個の使用済み燃料試料の一覧を表 1 に示す。この内、最大燃焼度試料 (4.03 %FIMA) 1 個は異なる PWR の燃料 (濃縮度 3.45 at.%) である。

分析試料は燃料棒を長さ約 3mm に輪切りにしたもの (約 3g) を用い、硝酸による試料溶解前に、使用済み燃料 γ 線スペクトル自動測定解析システム (AUGASS-SF)³⁾ を用

いて ^{106}Ru , ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{154}Eu 等の核種の放射能比(ex. $^{106}\text{Ru}(\text{Bq}) / ^{137}\text{Cs}(\text{Bq})$)を測定した。溶解液の一定量を正確に分取し、 γ 線スペクトロメトリーにより ^{137}Cs を測定した。Cs は定量的に溶解すると仮定し、これを基準にして、他の上記核種の放射能値を算出した。被覆管中の Sn から $^{124}\text{Sn}(n, \gamma) \beta$ 崩壊で生成する ^{125}Sb (全量の約 10%) は差し引いて FP のみの値とした。

Nd, U, Pu の定量及び同位体組成の測定は、 ^{150}Nd , ^{233}U , ^{242}Pu を混合スパイクとして添加する同位体希釈質量分析法を用いて行った。また Ru の同位体組成は、化学分離-質量分析法⁴⁾により測定した。 ^{232}U , ^{237}Np , ^{238}Pu とその他の TRU (^{241}Am , $^{242\text{m}}\text{Am}$, ^{243}Am , ^{242}Cm , ^{243}Cm , ^{244}Cm) は、非分離及び化学分離- α 線スペクトロメトリー⁵⁾により定量した。何れの場合も、 ^{237}Np を除いて質量分析で得られた ($^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$)/U を放射能の基準とした。 ^{237}Np の定量には化学収率及び α 線標準線源を用いた。全ての測定値は照射終了後5年の値で規格化した(冷却時間=5年)。

測定誤差の推定値は、質量分析の場合、 ^{143}Nd , ^{144}Nd , ^{145}Nd , ^{146}Nd , ^{148}Nd , ^{150}Nd : <0.1%, ^{238}U : <0.1%, ^{235}U : <1%, ^{236}U : <2%, ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu : <1%, ^{242}Pu : <2%, Ru は同位体組成の誤差として、 ^{100}Ru , ^{101}Ru , ^{102}Ru , ^{104}Ru : <1% である。 α 線スペクトロメトリーの場合の誤差は、 ^{238}Pu : <0.5%, ^{241}Am , ^{244}Cm : <2%, ^{243}Am : <5%, ^{232}U , $^{242\text{m}}\text{Am}$, ^{242}Cm : 3~10%, ^{237}Np , ^{243}Am : <10% である。 γ 線スペクトロメトリーの場合の誤差は、 ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{154}Eu : <3%, ^{106}Ru : <5%, ^{125}Sb , ^{144}Ce : <10% である。

2 燃焼度及び燃焼挙動

質量分析法によって測定した、ネオジウム、ウラン、プルトニウムの同位体組成及び $^{148}\text{Nd}/\text{U}$, Pu/U , から燃焼率(%FIMA)を求める。単位は原子数である(以降、原子数を単位とする)。

燃焼率(FIMA, Fissions Per Initial Metal Atom)は(1)~(3)で表される。

$$\text{Burnup(FIMA)} = \text{核分裂数} / \text{初期重元素原子数} = F / (\text{U} + \text{Pu} + F) \quad (1)$$

$$\text{Burnup(\%FIMA)} = ((F/U) / (1 + \text{Pu}/\text{U} + F/U)) \times 100 \quad (2)$$

$$F = ^{148}\text{Nd} / Y_{148} \quad (3)$$

ここで、F は核分裂数を、 Y_{148} は ^{148}Nd の ^{235}U 熱中性子核分裂収率を表す。

燃焼度(GWd/t)と燃焼率(%FIMA)との関係は次の式で表される。

$$\text{Burnup(GWd/t)} = \text{Burnup(\%FIMA)} \times 9.6 \quad (4)$$

燃焼率計算は(2), (3)式で、発熱量への換算は(4)式で行われる。(4)式の発熱量は 205 MeV/Fission に相当する。(2)式の名分母 $1 + \text{Pu}/\text{U} + F/U$ は、中性子捕獲又は核分裂によって減少した初期ウランに換算するための補正係数であり、これを f_c とする。

$$f_c = 1 + \text{Pu}/\text{U} + F/U \quad (5)$$

F/U について f_c による補正を行なったのが FIMA である様に、ウランの同位体組成

(U_i/U)及び Pu/U についても f_0 による補正を行なうと、これらの値は初期ウランに対する比率になる。従って、初期ウランを基準にしたウラン等の燃焼による変化を見ることができる。

表2に燃焼率(3.34 %FIMA)の試料の計算例を示す。I, S, C, D はそれぞれ初期濃度、燃焼後濃度、燃焼後濃度の補正值、燃焼による減衰値を表す(D_6 は増加するのでマイナスとなる)。I 及び C の数字は初期ウランに対する比(at.%)で、S は燃焼後ウランに対する比(at.%)である。添字の 4,5,6,8 はそれぞれ ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U を表す。表2の計算式及びそれに関連する核反応断面積の種類を表3に示す。

ここで得られた燃焼挙動を表す幾つかの数値の意味を以下に示し、燃焼度の関数として図1に示す。

$$C_5/I_5 : ^{235}U/\text{初期}^{235}U$$

$$D_8/I_5 : (^{238}U \text{ 核分裂} + ^{238}U \text{ 中性子捕獲(TRU)})/\text{初期}^{235}U$$

$$C_{Pu}/I_5 : \text{全Pu}/\text{初期}^{235}U$$

$$F_5/F : ^{235}U \text{ 核分裂}/\text{全核分裂}$$

$(F-F_5)/F = F_{8T}/F = 1-F_5/F$ は全核分裂に対する ^{235}U 以外の核分裂の比である。図1の△印より上の部分がそれに相当し、3 %FIMA では約 40% が ^{235}U 以外の燃焼であることが分る。 D_8 には ^{235}U 起源の $^{237}Np(n, \gamma)$ β 崩壊による ^{238}Pu が 1% 近く含まれている。

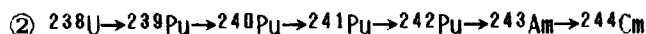
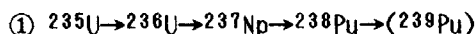
3 燃焼シミュレーション計算

燃焼シミュレーション計算コード及び核データは、ORIGEN2(ORNL)¹⁾, ENDF/B-IV 及び SRAC-FPGS(JAERI)²⁾, JENDL-2 を用いた。基本入力データは、U の同位体組成(濃縮度)と被覆管及び減速材組成(PWR)である。照射履歴は、照射時間(t_i)及び照射サイクル毎に集合体別に炉で計算された熱出力(P_i)を試料毎に、

燃焼度(測定値) = $\sum P_i t_i$ となるよう入力した。冷却時間(T_i)は5年とした。

4 測定結果と計算結果との比較

原子炉に装荷された燃料のウランはそれぞれの核種を起点とする生成・消滅チェーンを持つ(図2)。主なチェーンは(n, γ)及び β 崩壊による



これらは、主として核分裂をしない限り中性子を吸収して上位核種に変る。①では ^{238}Pu までに3個、②では ^{244}Cm までに6個の中性子を吸収する。

①, ②のチェーンに含まれている TRU 及び FP の測定結果並びに計算結果を燃焼率(%FIMA)の関数として図3~7の(a, b)に示す。図3~5の縦軸は初期ウラン(IMA)に対する at.% で、図6~7の縦軸は IMA 1g 当たりの放射能 (Bq) で示してある。

これらの図の(a)に測定値、(b)に測定値(点)と計算値(ORIGEN2 は実線、SRAC-FPGS は破線)を示す。測定値を基に計算された F_5 , D_8 , $F-F_5$ (F_{8T}) も測定値として扱う。 ^{238}Pu には ^{242}Cm からの寄与も含まれている。

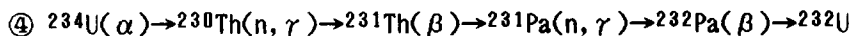
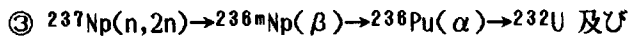
図4に示した Log-Log プロットの D_8 のデータでは勾配が1に近い。燃焼度は中性子フルエンスに比例する量であり、 ^{238}U は燃焼による原子数の変化が小さいので、 D_8 は反応中性子1個に対応して一次の勾配になる。従って、この勾配は反応中性子数に比例して大きくなる。

図3~7の(a)で半数以上のデータには1%FIMA以下とそれ以上との間に段差(破線)が認められる。これは照射サイクルにおける燃料の照射位置に関係があり、中性子スペクトルの相違によるものと考えられる。この場合、1%FIMA以下は1サイクル照射(炉心周辺部)であり、それ以上は、2及び3サイクル照射(炉心中心部)である。この段差を計算では評価しきれない部分があることが図3~7の(b)から認められる。

Nd 及び Ru の安定 FP 同位体組成の測定値と計算値(ORIGEN2)を図8~9に示す。これらの図に、測定値/計算値(C/M)比の平均値及びその標準偏差を併せて示す。 ^{100}Ru (C/M 平均値は●印の値による)を除いて非常に良い一致を示す。SRAC-FPGSによる Nd 同位体組成の C/M 比の平均値及び標準偏差を ORIGEN2 の値と併記して表4に示す。 ^{148}Nd 及び ^{150}Nd の値では SRAC-FPGS の値が ORIGEN2 のそれより少し低い。

図3~7に示した①及び②のチェーン核種並びに FP の C/M 比と燃焼率(%FIMA)との関係を図10~12に示す。前に述べた中性子スペクトルの相違によると思われる1%FIMA以下とそれ以上との間の段差を計算で評価しきれないという点が、このC/M比の図でより鮮明に分る。そして、丁寧に見ると、多くの核種にこの傾向が認められる。

再処理回収ウランに含まれ、 ^{228}Th ~ ^{208}Tl の親核種として注目される ^{232}U の C/M 比を図10の(g)に示す。この核種の主な生成・消滅チェーンには①のサブチェーンともいえる



があるが、他にもいくつかのパスがある。ORIGEN2 の計算では、 ^{232}U の C/M 比の平均が約0.6とかなり小さい。

図12の(a) ^{148}Nd (燃焼率測定の基準核種)では SRAC-FPGS の値が約2%小さく、(g),(h)の ^{125}Sb 及び ^{154}Eu では ORIGEN2 による C/M 比平均値が、それぞれ約2.1及び1.7と大変大きい。

まとめとして、①及び②のチェーンに関連した核種の C/M 比の平均値とその核種の生成に関与する中性子数との関係を図13に示す。中性子数の増加に伴って1からのずれが大きくなるのが見られる。

[おわりに]

使用済燃料中の同一場所の種々の核種は、ほぼ同じ中性子場で照射されて、生成・消

減の後に存在するものである。燃焼度は中性子フルエンスにほぼ比例する量であり、照射の進行や照射位置によって中性子スペクトルは変化する。この中性子場の時間変化が集合体を単位として再現でき、十分な核データと計算方法が確立されれば、核燃料及び原子炉からの情報を基に、正確な燃焼シミュレーション計算が可能になると思われる。

使用済燃料分析によって、燃焼シミュレーション計算を検証することは、計算によって仮定した中性子スペクトルと核データの双方を検証することに役立つと思われる。

本報告における測定、解析は、日本原子力研究所化学部の安達武雄、郡司勝文、河野信昭、園部保、大貫守、伊藤光雄、中原嘉則及び著者によって行われた。

(この報告は、科学技術庁から日本原子力研究所への委託研究として実施した「高燃焼度再処理試験研究」の成果の一部についてまとめたものである)

- 1) A.G. CROFF, ORNL-5621(1980)
- 2) 高野秀機 : 私信 (1988)
- 3) 鈴木、間柄、岡下 : 日本原子力学会 [昭62年会] 要旨集(F16) 及び第8回 核物質管理学会年次大会論文集 [研究発表20]、(1987)
- 4) K. Gunji, Z. Yoshida, T. Adachi and T. Komori, J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters, 118, 225(1987)
- 5) 河野、篠原、園部 : 日本原子力学会 [昭62秋の大会] 予稿集(K52), (1987)

表1 分析試料の一覧

試料 No.	濃縮度 (at.%)	燃焼率 %FIMA(Gwd/t)	照射 サイクル	集合体 No.	炉(PWR) No.
S-1	3.25	0.86(8.3)	1	A-1	PWR-1
S-2	3.25	0.72(6.9)	1	A-1	PWR-1
S-3	3.25	1.59(15.3)	2	A-2	PWR-1
S-4	3.25	2.20(21.2)	2	A-2	PWR-1
S-5	3.25	1.52(14.6)	2	A-2	PWR-1
S-6	3.25	3.07(29.4)	3	A-3	PWR-1
S-7	3.25	3.34(32.1)	3	A-3	PWR-1
S-8	3.25	3.50(33.6)	3	A-3	PWR-1
S-9	3.25	3.56(34.1)	3	A-3	PWR-1
S-10	3.45	4.03(38.7)	3	A-4	PWR-2

表2 燃焼挙動解析計算の一例 (燃焼率 : 3.34 %FIMA) (at.%)

	234U	235U	236U	238U	ΣU	Pu/U	F/U	ΣT
I_i Initial	I_4 0.03	I_5 3.25	I_6 0.03	I_8 96.69	I_U 100	I_{Pu} 0	I_F 0	I_T 100
S_i Spent	S_4 0.02	S_5 0.96	S_6 0.42	S_8 98.60	S_U 100	S_{Pu} 0.98	S_F 3.49	S_T 104.47
C_i (S_i/f_c)	C_4 0.02	C_5 0.92	C_6 0.40	C_8 94.38	C_U 95.72	C_{Pu} 0.94	C_F 3.34	C_T 100
D_i ($I_i - C_i$)	D_4 0.01	D_5 2.33	D_6 -0.37	D_8 2.31	D_U 4.28	D_{Pu} --		

$$f_c = 1 + Pu/U + F/U = S_T/100, \quad C_F = \%FIMA, \quad \Sigma T = \Sigma U + Pu/U + F/U$$

表3 表2の計算式及びそれに関連する核反応断面積の種類

$D_4 = I_4 - C_4$	$D_4 : \sigma_c^{234U}$
$D_5 = I_5 - C_5$	$D_5 : \sigma_c^{235U} + \sigma_f^{235U}$
$D_6 = I_6 - C_6$	$D_6 : \sigma_c^{235U}$
$D_8 = I_8 - C_8$	$D_8 : \sigma_c^{238U} + \sigma_f^{238U}$
$F_5 = D_4 + D_5 + D_6$	$F_5 : \sigma_f^{235U}$
$A_5 = (-D_6)/F_5$	$A_5 = \alpha_{235} : \sigma_c^{235U}/\sigma_f^{235U}$
$F_{8T} = F - F_5$	$F_{8T} : \sigma_f^{238U} + \sigma_f^{239Pu} + \sigma_f^{241Pu}$
$D_8 = C_{Pu} + F_{8T}$	

表4 Nd 同位体組成の C/M 比の平均値及び標準偏差
における ORIGEN2 と SRAC-FPGS の比較

核種	C/M 比の平均値(n=10) ± 標準偏差(%)	
	ORIGEN2	SRAC- FPGS
Nd 143	0.985 ± 1.4 %	1.011 ± 1.1 %
Nd 144	1.007 ± 1.0 %	0.997 ± 1.0 %
Nd 145	1.002 ± 0.4 %	1.007 ± 0.2 %
Nd 146	1.001 ± 0.3 %	0.995 ± 0.4 %
Nd 148	1.003 ± 0.5 %	0.980 ± 0.9 %
Nd 150	1.003 ± 1.3 %	0.963 ± 1.2 %

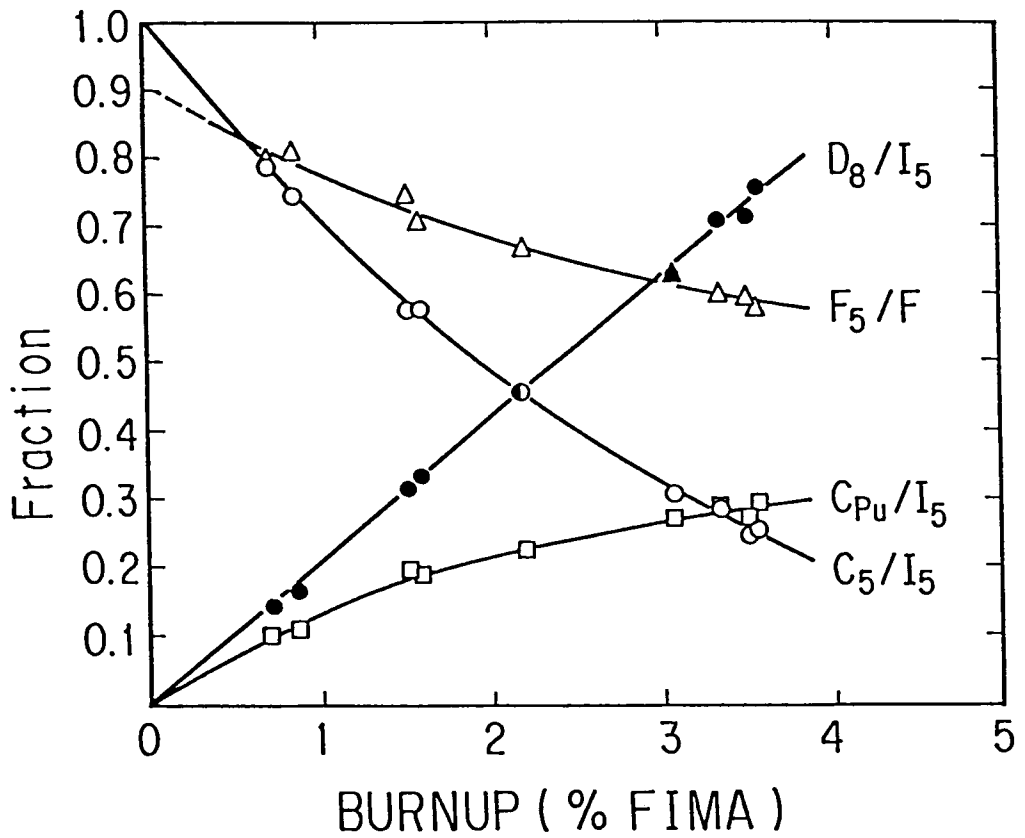


図1 PWR 燃料の燃焼（生成・消滅）挙動

C_5/I_5 : ^{235}U /初期 ^{235}U
 D_8/I_5 : (^{238}U 核分裂 + ^{238}U 中性子捕獲(TRU))/初期 ^{235}U
 C_{Pu}/I_5 : 全Pu/初期 ^{235}U
 F_5/F : ^{235}U 核分裂/全核分裂

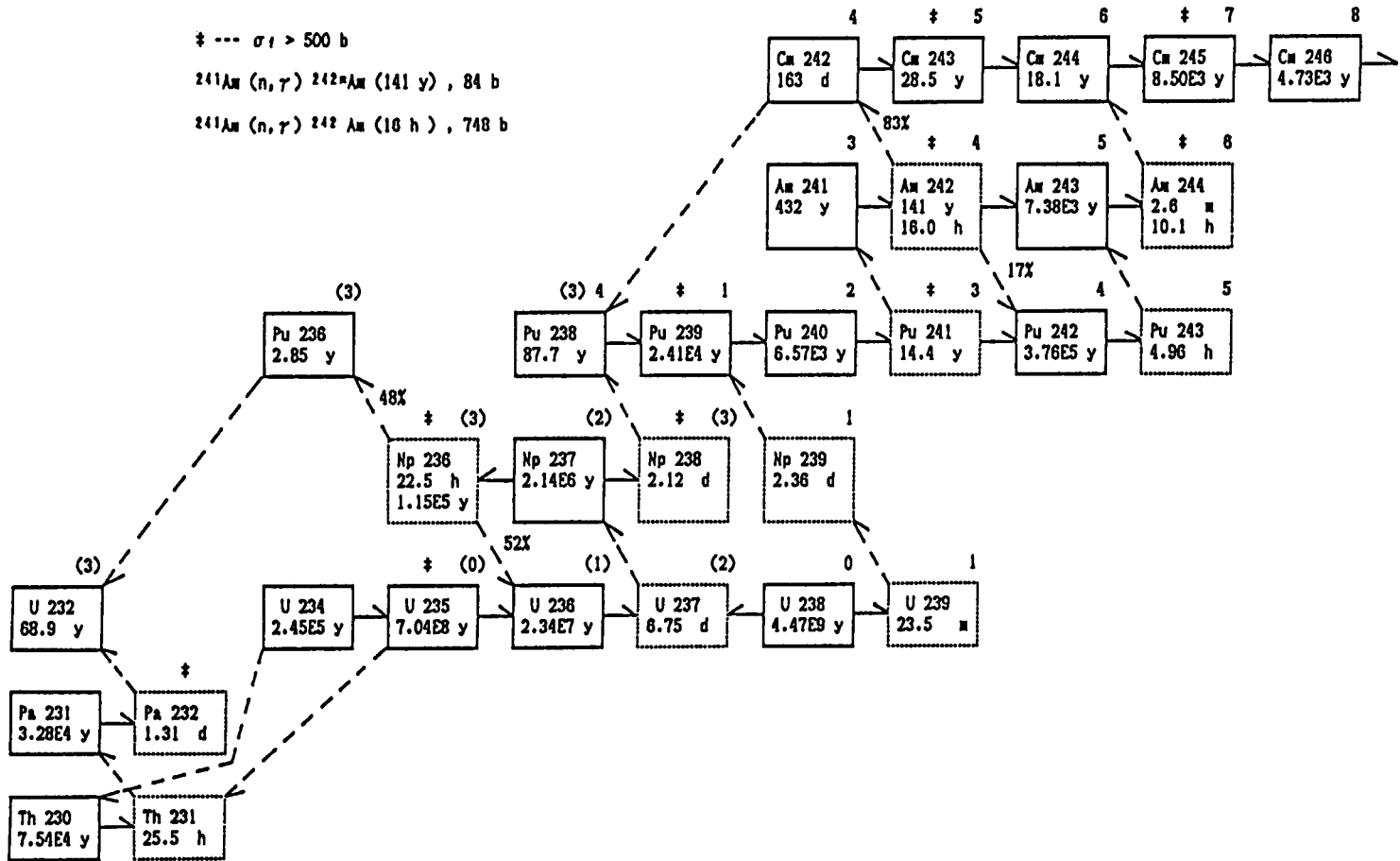


図2 核燃料中におけるアクチノイドの生成・消滅チェーン核種
 (右肩の数字は生成に関与する中性子数を示す)

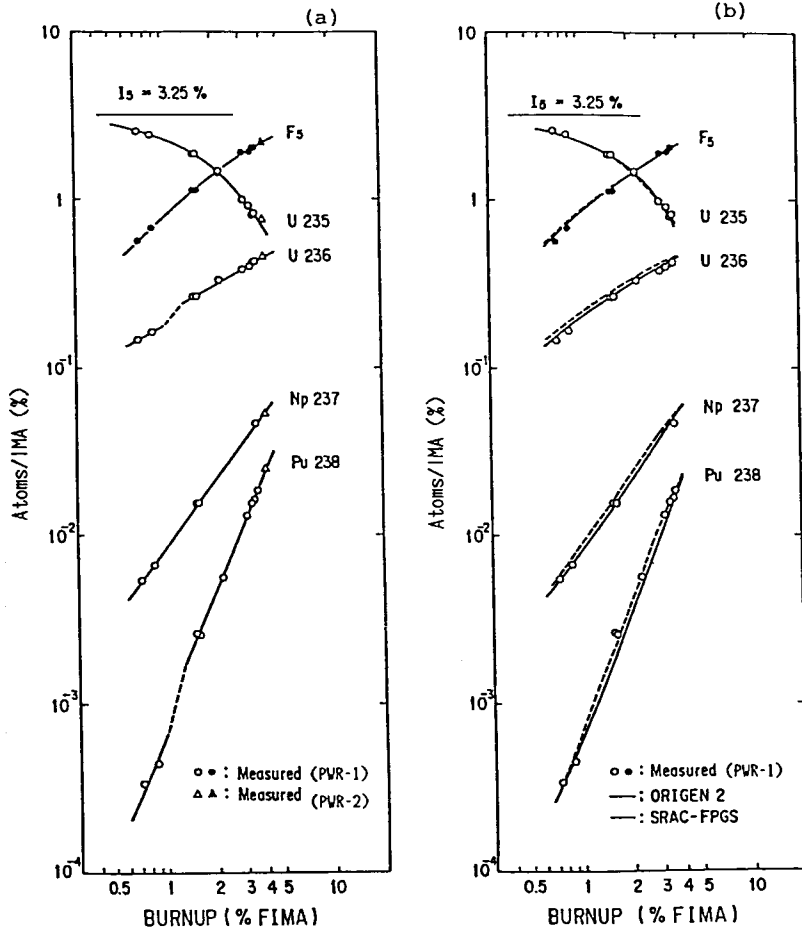


図3 ^{235}U を起点とする生成・消滅チェーン核種の変化

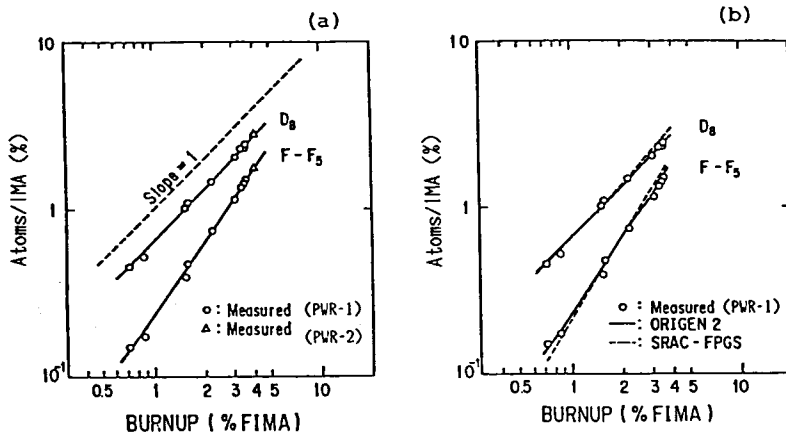


図4 ^{238}U を起点とする生成・消滅チェーン核種の変化 - I

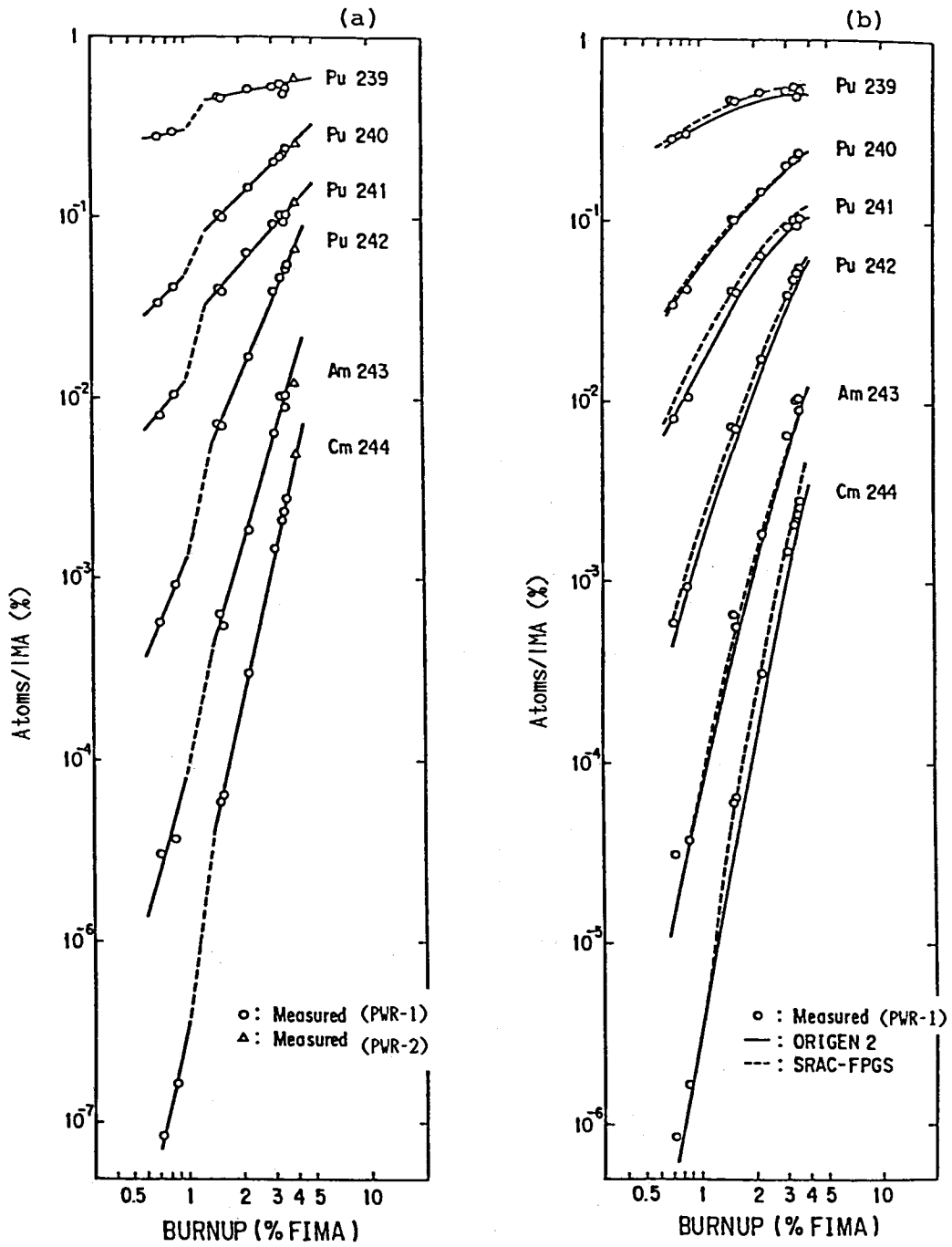


図5 ^{238}U を起点とする生成・消滅チェーン核種の変化-II

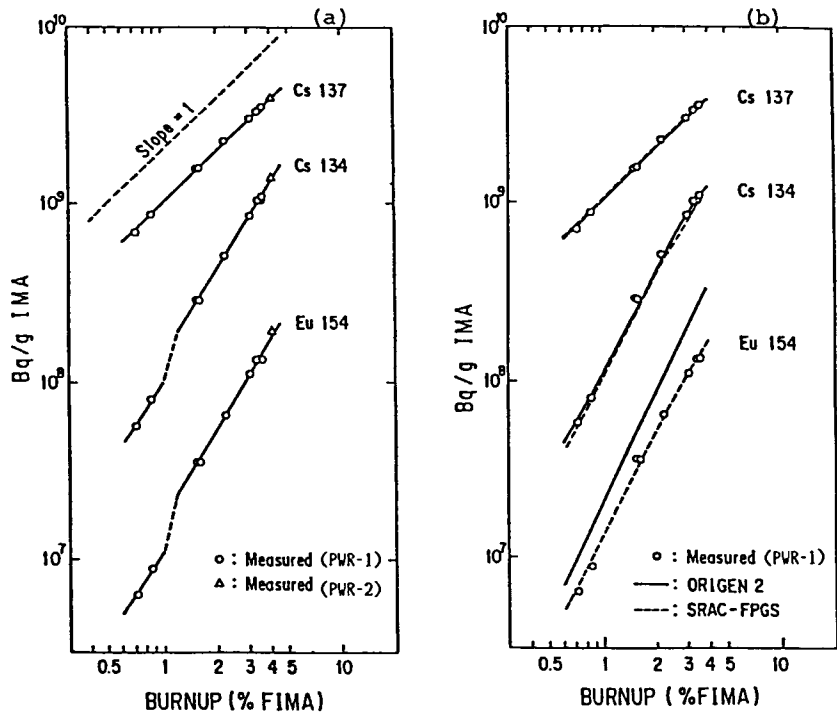


図6 γ 線放出FP核種の変化(冷却時間:5年) - I

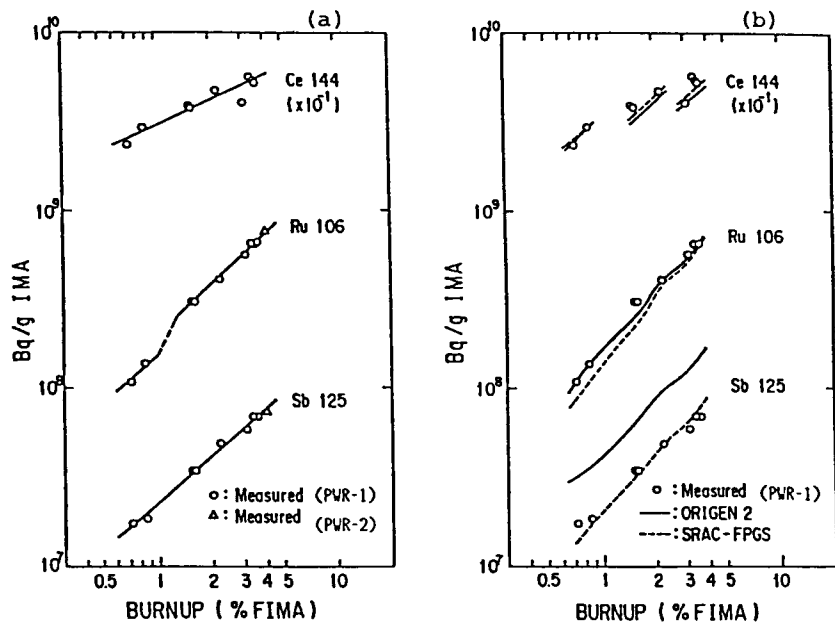


図7 γ 線放出FP核種の変化(冷却時間:5年) - II

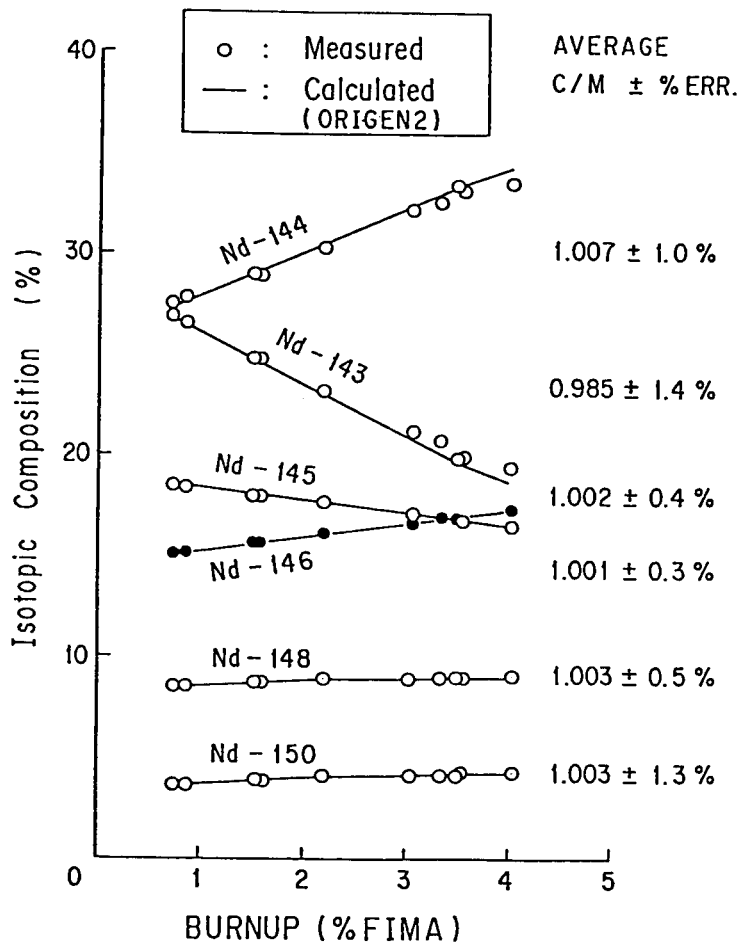


図8 Nd 安定FP核種の同位体組成の変化と C/M 比

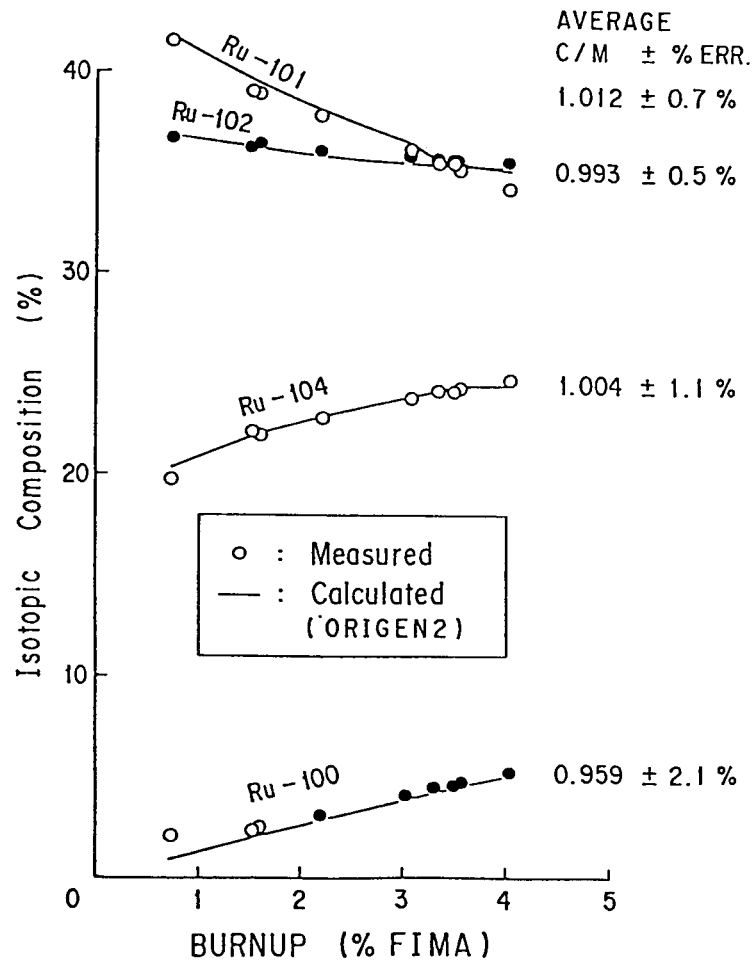


図9 Ru 安定FP核種の同位体組成の変化と C/M 比

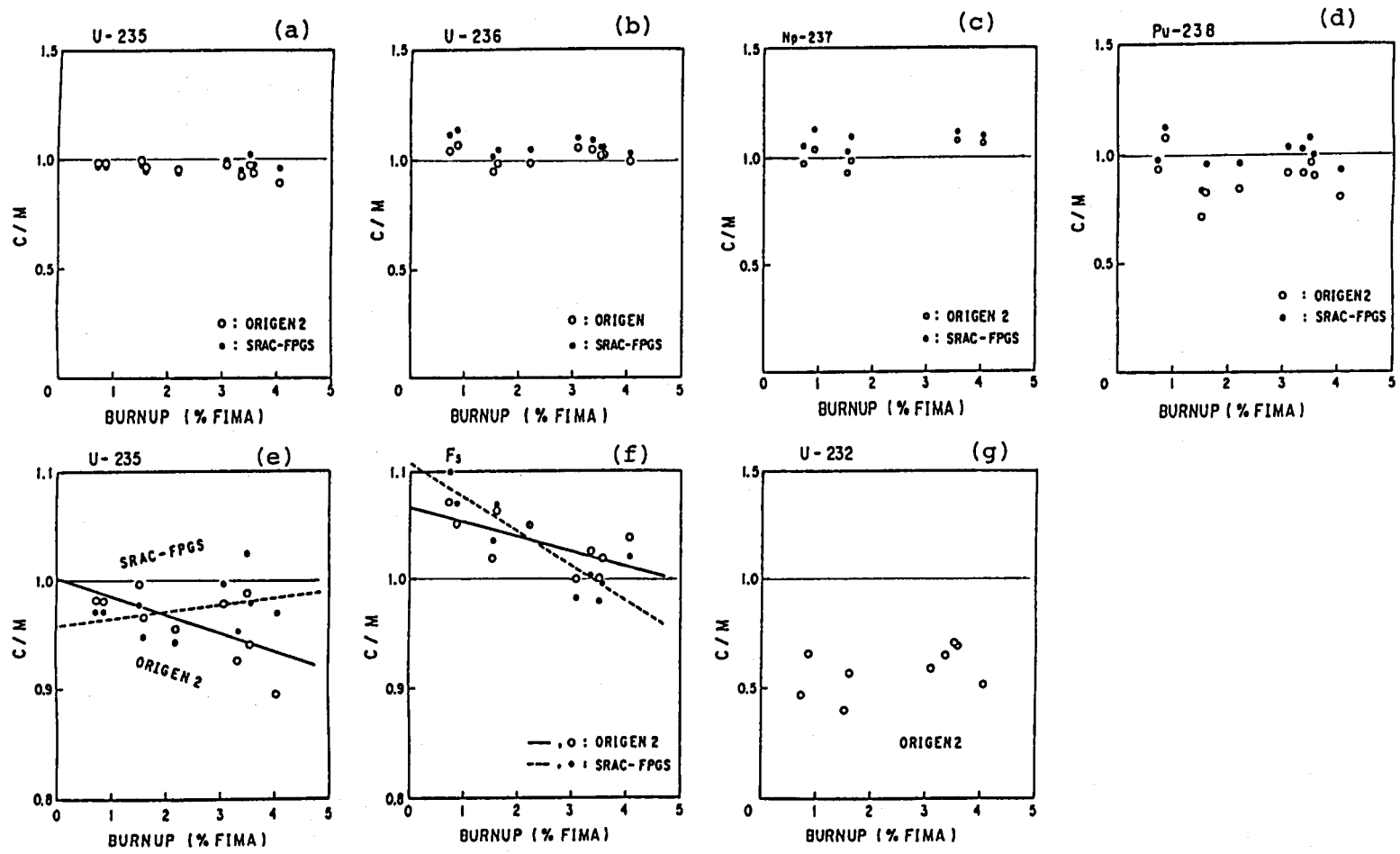


図10 ²³⁵U を起点とする生成・消滅チェーン核種の C/M 比

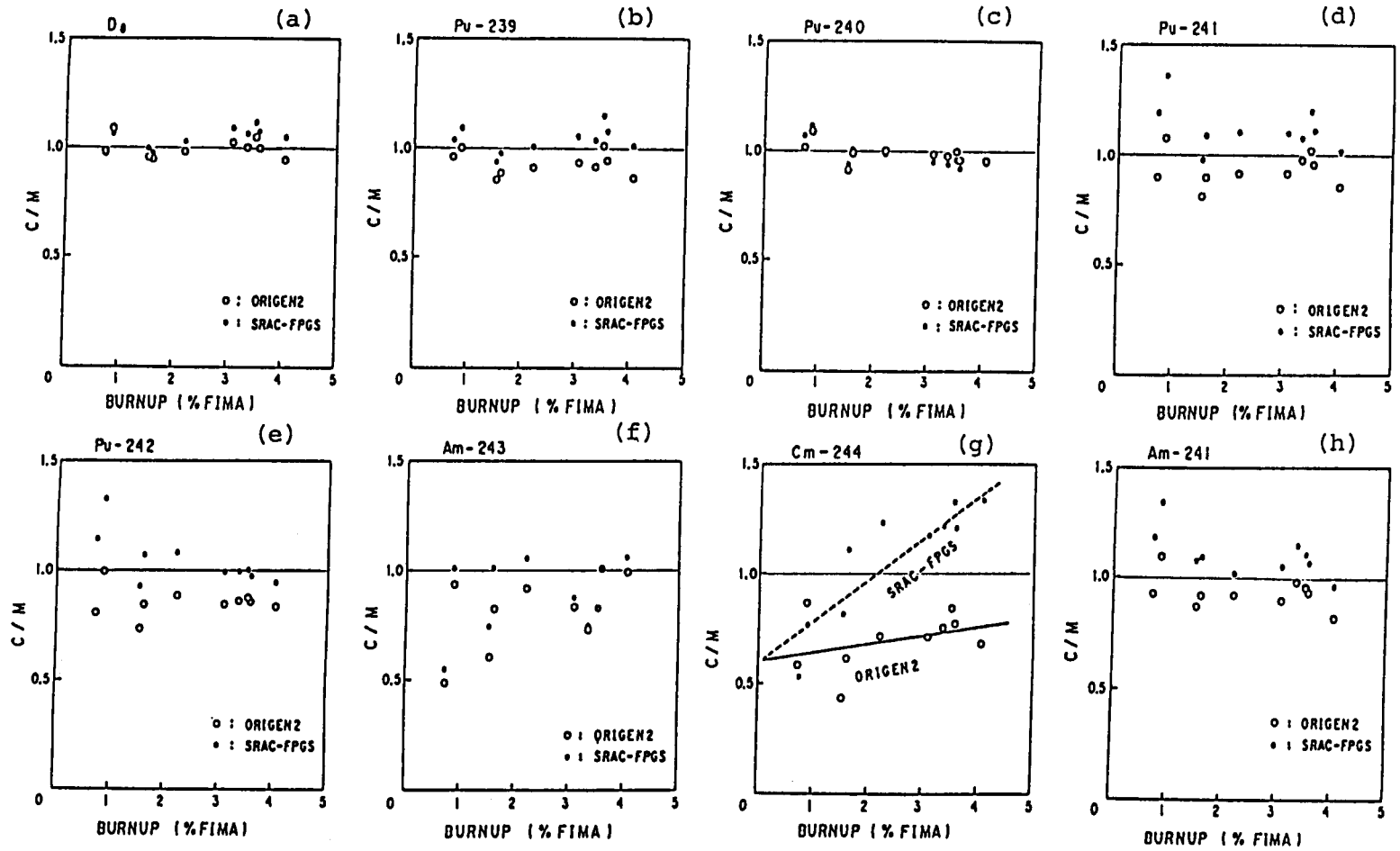


図11 ²³⁸U を起点とする生成・消滅チェーン核種の C/M 比

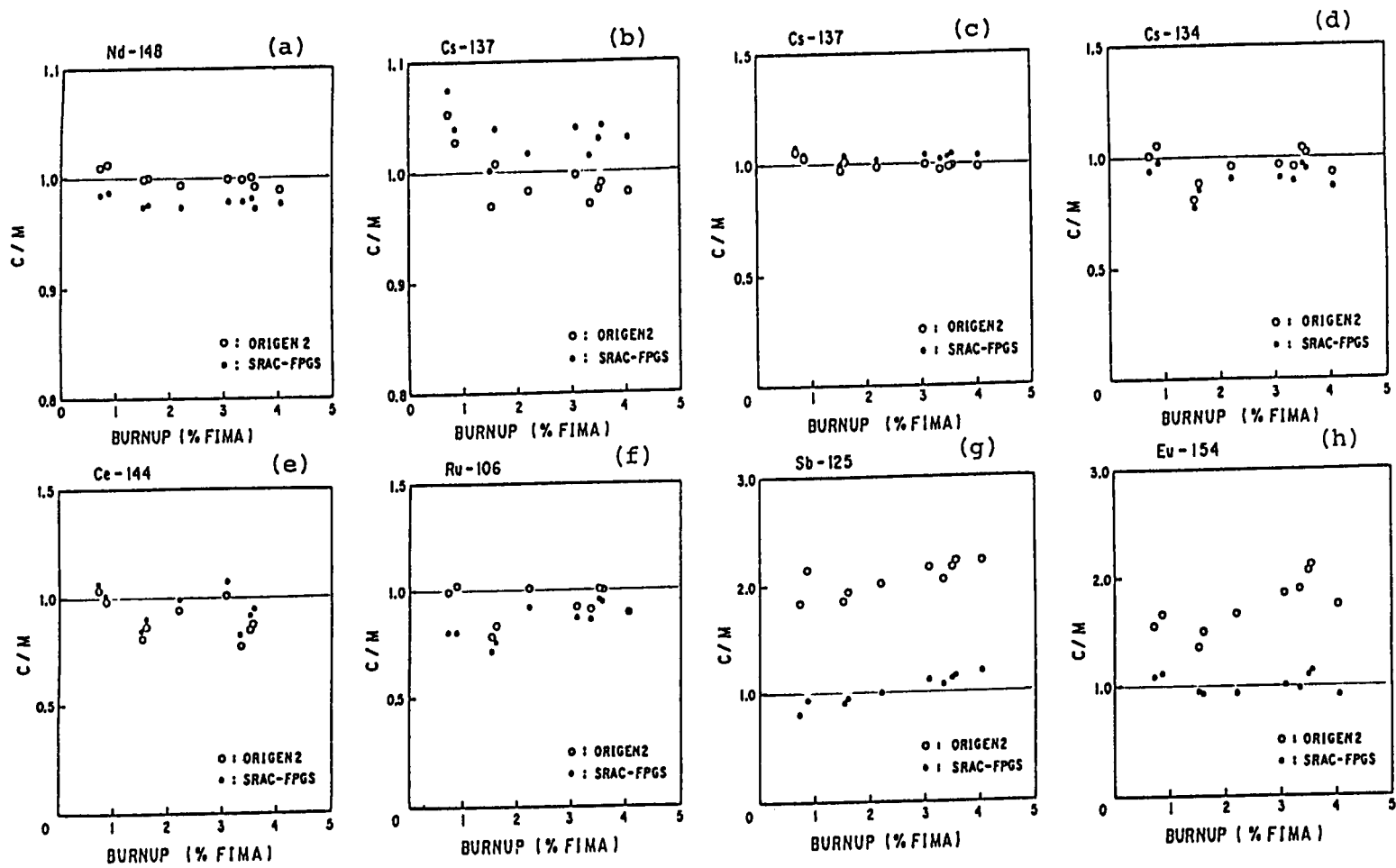


図12 FP核種のC/M比

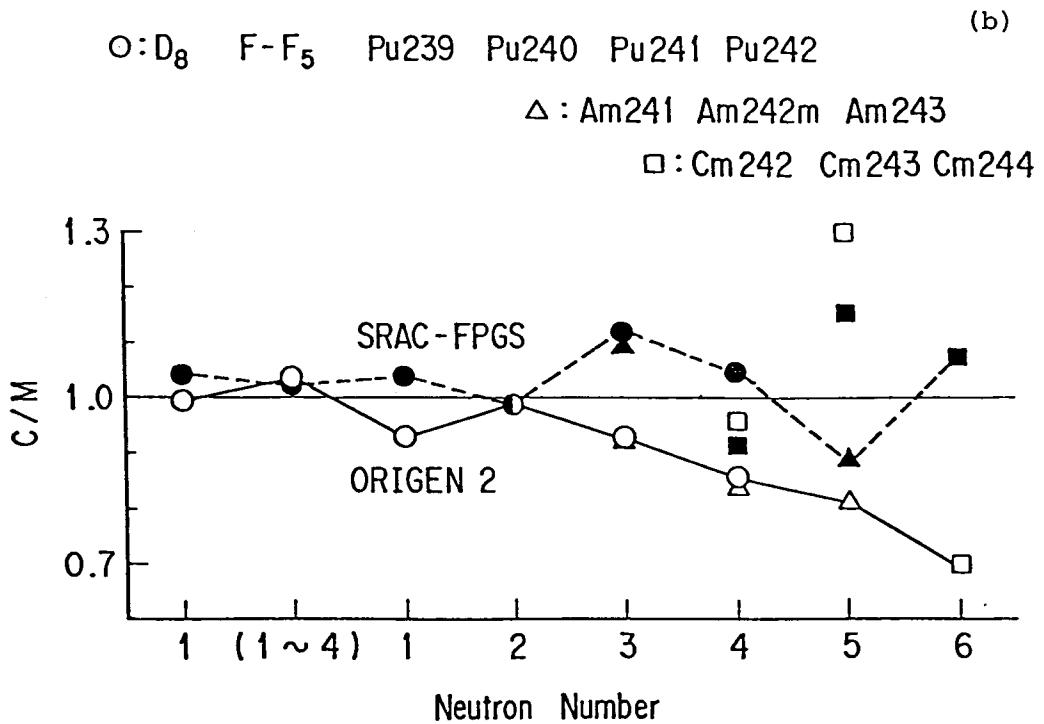
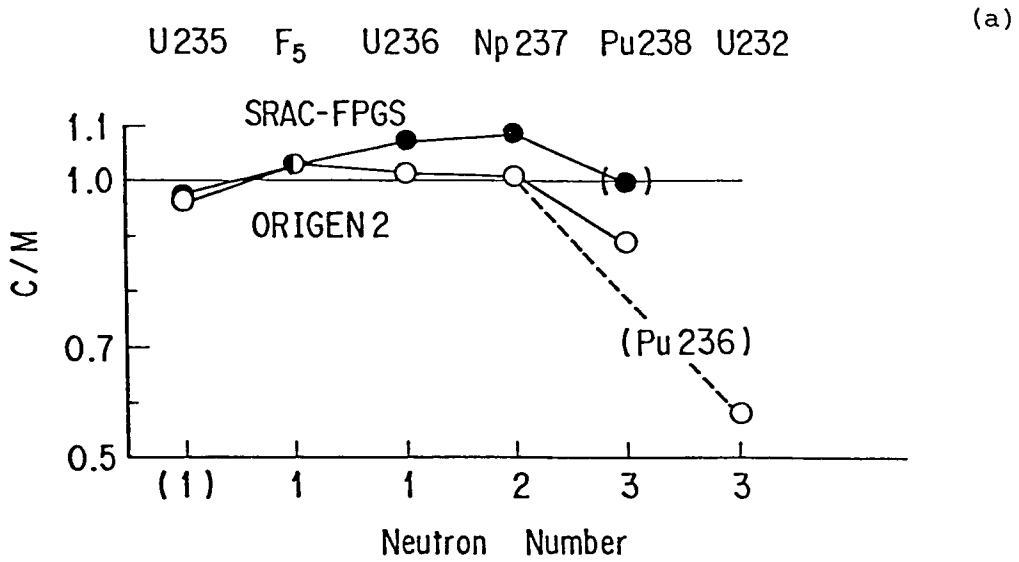


図13 ²³⁵U を起点とする生成・消滅チェーン核種の C/M 比の平均値(a) 及び²³⁸U を起点とする生成・消滅チェーン核種の C/M 比の平均値(b) と生成に関与する中性子数との関係