

## 核分裂生成物の崩壊熱とその推奨値

(名 大) 田 坂 完 二

核分裂生成物 (FP = Fission Product) の崩壊熱が日本原子力学会の「原子炉崩壊熱基準研究専門委員会」において評価され、推奨値として完成したのでその概要を報告する。FPの崩壊熱は原子炉の定常運転時には出力の約7%を占め、原子炉停止後も減衰しながら出力を発生し続ける。そのため停止時冷却系、事故時の冷却系、使用済燃料プールの冷却系、使用済燃料輸送容器等の設計のため重要である。とくに崩壊熱は軽水炉の冷却材喪失事故 (LOCA = Loss-of-Coolant Accident) に対する非常用炉心冷却系の設計に支配的影響を及ぼし、1970年以後その精度の向上が原子炉の性能向上と関連しだいな課題となった。米国においては精度のよい実験が行われ、その成果はFPの崩壊熱に対する新しい基準ANS5.1として1978年にとりまとめられた。これは特に軽水炉のLOCAへの適用を目的として作られた基準であり、1973年にとりまとめられた漸定基準と比較して大幅に精度が向上している。また取扱われている核分裂核種も<sup>235</sup>Uのみでなく<sup>238</sup>Uと<sup>239</sup>Puも含まれるようになるなどより厳密な取扱が可能となっている。原子炉運転中のFPの中性子捕獲による壊変の効果も近似的に取扱われている。

FPの崩壊熱の計算法は普通、総和計算と呼ばれている。これはまず各FP核種の生成量を照射条件および照射後の冷却時間に対して生成崩壊の連立1次微分方程式を解くことにより求め、それに崩壊定数と単位崩壊あたりの崩壊エネルギーを乗じて各核種の崩壊熱を求め、しかる後に核種に関して総和をとり崩壊熱を計算するためつけられた名称である。計算は広い適用性を持ち、本来崩壊熱は計算により求めることが望ましい。しかし総和計算に必要な核データには未知のものが数多く残っているのが現状である。短かい冷却時間においても精度よく崩壊熱を計算するためには数多くの短寿命FP核種を取扱わねばならないが、短寿命核種には皆目核データの不明な核種が多数存在する。従って千秒より短かい冷却時間に対して崩壊熱を精度よく計算することは近年まで困難であった。一方、崩壊熱の積分測定値は測定の範囲内では測定精度の範囲で正しいデータである。しかし米国を中心として測定されたのは核分裂核種は<sup>235</sup>Uを中心とする数核種、冷却時間範囲も0.2~10<sup>5</sup>秒と限界が大きい。そこで短かい冷却時間範囲では主に測定結果を利用し、長い冷却時間範囲では主に計算結果を利用し、崩壊熱に対するANS5.1等の基準を作成して各種の目的に使ったわけである。

日本における崩壊熱の研究は1970年代初めに開始され、その歴史は比較的新しい。しかし1973年に著者らは短寿命核種の未知の核データを系統性をもとに推定し、取扱核種数を大幅にふやして総和計算を行い、短かい冷却時間における崩壊熱の計算精度を大幅に向上させた。ま

た秋山らは1980年以後高速中性子源炉「弥生」を使い $^{232}\text{Th}$ から $^{239}\text{Pu}$ にわたる多くの核分裂核種の崩壊熱の精度のよい測定を行い貴重なデータベースを作成した。また吉田と中嶋は未知の核データをベータ崩壊の大局理論により推定するのみならず、測定誤差の大きい $Q_\beta$ 値が5MeV以上の核種の崩壊データも理論推定値で置きかえることにより、崩壊熱の計算精度を飛躍的に向上させた。日本原子力研究所のシグマ研究委員会の崩壊熱評価ワーキンググループにおいてさらに個々のFP核種のデータを詳細に最評価し、千秒以上の冷却時間における計算精度がさらに向上され、測定データとの一致度が向上した。図1に示す如く $^{235}\text{U}$ のベータ、ガンマ崩壊熱の秋山らによる測定結果との一致度は満足すべきものである。 $^{235}\text{U}$ 以外の核種に対する測定結果との一致もよい。このFPの核データはJNDC FP核データライブラリー第2版としてとりまとめられている。

この日本における崩壊熱の計算と測定の両面の新しいすぐれた研究成果をもとに崩壊熱の基準を作ろうということとなり、専門家を集め日本原子力学会に「原子炉崩壊熱基準研究専門委員会」が設立された。委員会では推奨値の評価方法の討議とともに各分野での崩壊熱データ利用の現状の幅広い調査が行われた。

検討の結果、JNDC FP核データライブラリー第2版による計算結果が精度の良い最新の測定結果と非常によく一致することから、計算結果そのものを推奨値とすることになった。誤差評価も計算値の誤差評価をもとに行われた。この点がANS5.1などの既存の基準と大きく異なる点である。既存の基準では計算と測定の両方の結果を利用、場合によっては両者を最小2乗法フィッティングを行い基準値を求めている。これはJNDC以外のライブラリーによる崩壊熱の計算結果と測定結果との一致度が特に短かい冷却時間に於て不充分なことによっている。短かい冷却時間に於ても測定データと満足な一致を示すのはJNDCのライブラリーを使った計算結果のみであることが1987年、スウェーデンのスタズビックで開かれた「FP崩壊熱計算のための核データ専門家会議」において認められた。

また今回の推奨値はANS5.1と比較してより幅広いデータを与えていることが第2の特徴である。核分裂核種はANS5.1では $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ の3核種であるが、今回の基準では上記3核種に加えて $^{240}\text{Pu}$ と $^{241}\text{Pu}$ の2核種が追加されている。また $^{232}\text{Th}$ と $^{233}\text{U}$ のデータも参考値として与えられている。冷却時間範囲の上限も $10^9$ 秒から $10^{13}$ 秒に拡張された。これは廃棄物処理処分等で問題となる超長期冷却への適用も考慮したことである。さらにANS5.1では全崩壊熱のみが与えられているのに対し、今回の推奨値ではベータとガンマ線崩壊熱が個別に与えられている。ガンマ線スペクトルのデータも与えられている。これは原子炉停止後の出力分布を精度よく計算するのみならず、遮蔽、特に使用済燃料輸送のための遮蔽への適用も可能とするためである。このガンマ線スペクトルの推奨値も計算によっている。ガンマ線スペクトルデータの無い核種に対してはベータ崩壊大局理論とガンマ崩壊カスケード理論を組みあわせて求めた推奨スペクトルを与えることにより、短かい冷却時間でもFPのガンマ線スペクトルを精度よく総和計算で

求められる。図2に示す如く測定値とも満足な一致を示している。

また今回の推奨値においては原子炉運転中のFPの中性子捕獲による崩壊熱への影響を、厳密な総和計算による結果を内挿することにより、精度よく炉型別に求め得るようになっている。崩壊熱は33項の指數関数で与えられており、容易に推奨値を計算することが出来る。

今回の推奨値は $^{235}\text{U}$ の場合ANS5.1と比較して0.5%程度小さくなる傾向がある。精度は同程度である。適用性が広く、幅広い崩壊熱データを与える今回の推奨値が国内外で幅広く利用されることを希望する。また日本原子力学会で基準を作ったのは今回が初めてであると考えられるが、崩壊熱以外の分野でも基準が作られ国際的に利用されるようになることを合せて希望するものである。

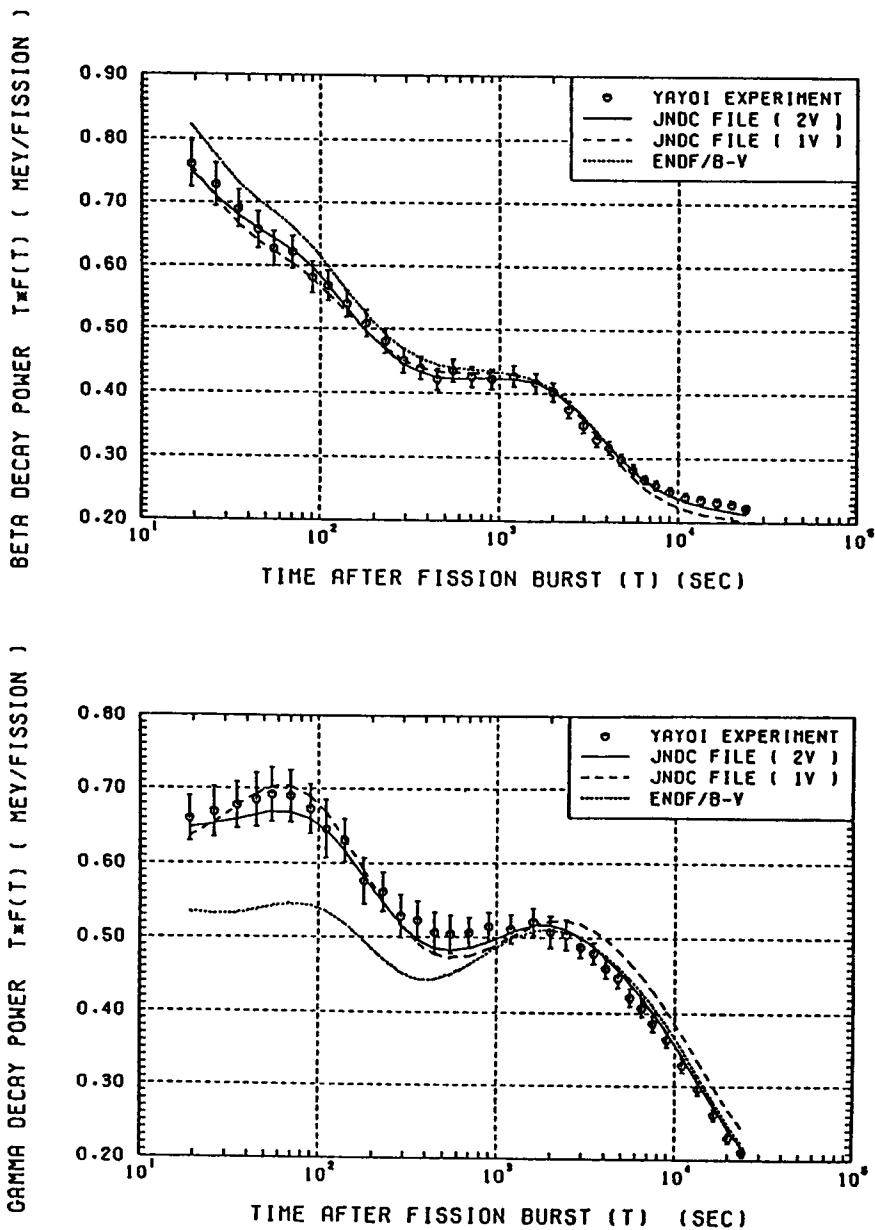


図1 東大におけるU-235のベータ線，ガンマ線崩壊熱の測定値と計算結果との比較

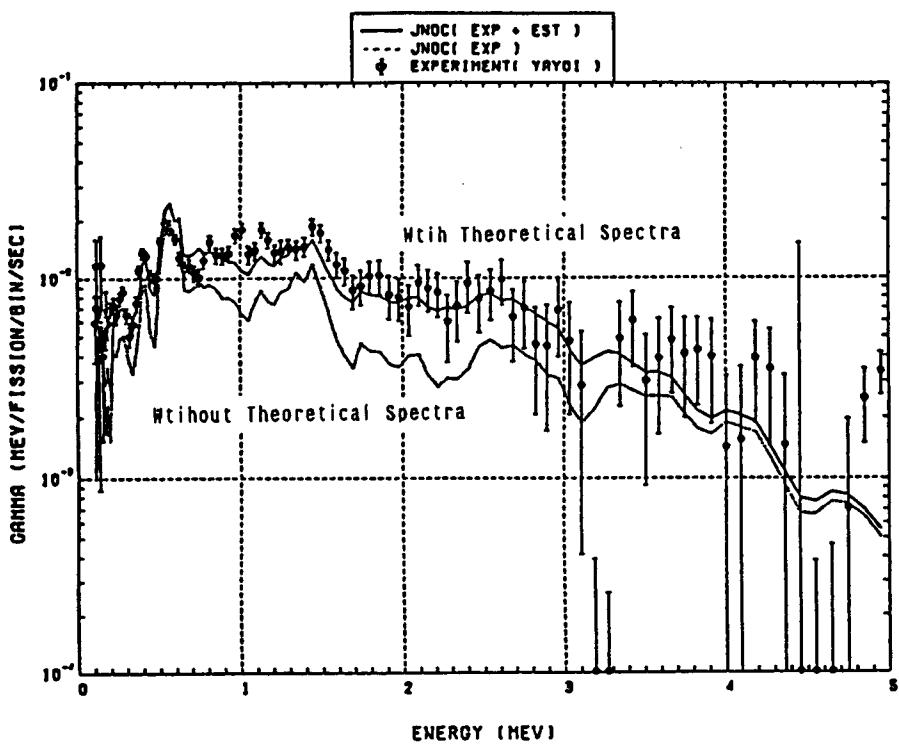


図2 瞬時照射19秒後のU-235 遅発ガンマ線スペクトル計算値  
黒丸は東京大学の測定