

JENDL, JEF, ENDF/B による 軽水炉高燃焼 UO_2 燃料の照射後試験解析

日本原子力研究所・炉物理研究グループ

奥村 啓介

okumura@mike.tokai.jaeri.go.jp

1. はじめに

炉物理研究委員会の軽水炉次世代燃料の炉物理ワーキングパーティでは、取出し平均燃焼度 70GWd/t を想定した燃焼計算ベンチマーク（現行濃縮度制限を超える仮想燃料の数値計算比較）を行っており、一部核種の生成量に燃焼度の増大に伴う大きなばらつきが見られ、その差異要因の検討が進められている[1]。また、シグマ研究委員会の核種生成量評価ワーキンググループでは、最近公開された JENDL-3.3[2]に基づく核種生成量の精度評価を行っている。これらの活動の一環として、軽水炉における核種生成量評価精度の核データ依存性や燃焼度依存性を明らかにするため、高燃焼軽水炉の照射後試験（PIE：Post Irradiation Examination）の解析を SRAC コード[3]及び5種類の核データライブラリー（JENDL-3.2, JENDL-3.3, JEF-2.2, ENDF/B-VI(R5), ENDF/B-VI(R8)）を使用して行った。解析は高浜原子力発電所3号炉（PWR）で照射された4.1wt.%濃縮 UO_2 燃料の照射後試験[4]で得られている燃焼度が14~47GWd/tの10個のサンプルに対して行い、重核種及び核分裂生成核種（FP）の計37核種について核種生成量の計算値を測定値と比較した。また、非破壊測定で得られた放射能比との比較も行った。

2. 照射後試験サンプルの概要

図1に、今回の解析で対象としたサンプル燃料棒（SF95及びSF97）の燃料集合体内位置を示す。ただし、SF95とSF97は、それぞれ2サイクル期間、及び3サイクル期間燃焼後の別の集合体から取出された燃料棒である。SF97からは異なる軸方向位置から5mm高さの6つのサンプル（SF97-1~SF97-6）が切り出され、SF95からは5つのサンプル（SF95-1

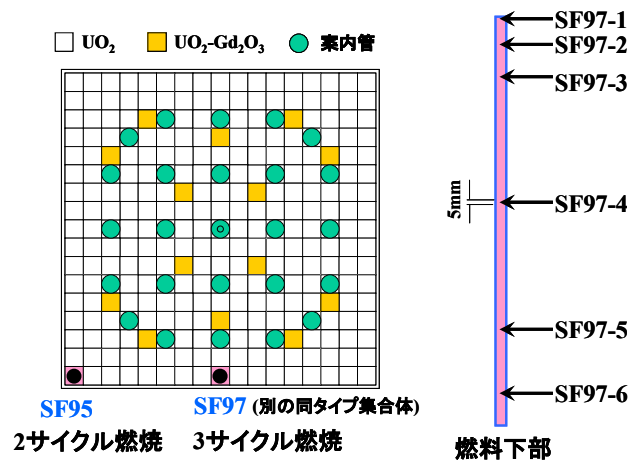


図1 破壊試験サンプルの切り出し位置

～SF95-5) が切り出されている。これらの内、後述する無限格子モデルでは解析が困難であるとの理由から、燃料上端部より 4mm 位置から切り出された SF97-1 を除き、燃焼度が異なる計 10 個のサンプルを PIE 解析の対象とした。サンプルは全て 4.1wt.%濃縮の UO₂ 燃料であるが、2 サイクル燃焼された SF95 サンプルの燃焼度は 14.30～36.69GWd/t の範囲であり、SF97 サンプルの燃焼度は 17.69～47.25GWd/t の範囲にある。これらの PIE 解析結果から核種生成量に対する C/E 値の燃焼度依存性を知ることができる。

表 1 に、SF95 と SF97 サンプルに対する核種生成量の測定核種を示す。主要な重核種はほぼ網羅されており、FP 核種についても、軽水炉体系で反応度寄与が大きい核種やその生成に関わる核種、及び燃焼度指標として重要となる核種 (Cs, Nd など) が高い精度で測定されている。なお、Ru-106 と Sb-125 に関しては、不溶解残渣や容器吸着などの測定上の問題が考えられるため、試験的な結果として報告されている。これらの測定結果は、燃料取出し時から測定日までの崩壊の効果が補正され、取出し直後値として整理されている[4]。ただし、崩壊補正が困難な Sm 同位体核種については、SF97 サンプルのみの測定であり、測定日での値が与えられている。また、表 1 の下段に示すように、サンプル燃料棒の非破壊測定 (γスキャン) により、5 種類の放射能比の燃料棒軸方向分布が測定されている。

表 1 高浜 3 号炉照射後試験 (SF95、SF97 サンプル) における核種生成量の測定核種

破壊試験測定核種 ()内数値は測定誤差(%)
U-234(1), U-235(0.1), U-236(2), U-238(0.1), Np-237(10), Pu-238(0.5), Pu-239(0.3), Pu-240(0.3), Pu-241(0.3), Pu-242(0.3), Am-241(2), Am-242m(10), Am-243(5), Cm-242(10), Cm-243(2), Cm-244(2), Cm-245(2), Cm-246(5)
<u>Cs-134</u> (3), Cs-137(3), Ce-144(10), Nd-142(0.1), <u>Nd-143</u> (0.1), Nd-144(0.1), <u>Nd-145</u> (0.1), Nd-146(0.1), Nd-148(0.1), Nd-150(0.1), Sm-147(0.1), Sm-148(0.1), <u>Sm-149</u> (0.1), <u>Sm-150</u> (0.1), <u>Sm-151</u> (0.1), <u>Sm-152</u> (0.1), <u>Eu-154</u> (3)
Ru-106(5), Sb-125(10) : (試験的測定)
γスキャン (非破壊測定) による放射能比
Cs-134/Cs-137(2%以下), Eu-154/Cs-137(2%以下), Ce-144/Cs-137(3%以下), Ru-106/Cs-137(2%以下), Sb-125/Cs-137(5%以下)

註：Nd-142 測定は SF95 のみ、Sm 核種測定は SF97 のみ。下線核種は軽水炉 FP 反応度ランク 20 位以内。

3. 解析コード

核種生成量の計算は ORIGEN コード[5]を使用して行われることが多いが、核データへのフィードバックなどを目的として精度の高い計算を行うためには、燃焼履歴 (燃焼期間中の出力、温度、減速材密度などの変化) に沿って中性子スペクトル計算を行い、これによって得られる 1 群実効微視的断面積を使用した核種生成消滅計算を行うことが望ましい。この目的に合った公開コードとしては、SRAC、SWAT[6]、MVP-BURN[7]などが

ある。SRAC は共鳴エネルギー領域の超詳細群スペクトル計算機能 (PEACO オプション) により、PIE 解析において連続エネルギーモンテカルロ法燃焼計算コード MVP-BURN とほぼ同程度の精度を有する[7]。SWAT は、SRAC と ORIGEN2.1 を交互に実行するものであり、SRAC で得られる実効断面積を利用し、独自の無限希釈断面積ライブラリー (SWAT ライブラリー) と ORIGEN の 1 群ライブラリーで断面積補充をして、1000 核種以上の FP 核種を対象として ORIGEN2.1 コードによる核種生成消滅計算を行う。ただし、SRAC が断面積を提供しても、SWAT ライブラリーに同じ核種の断面積が用意されていないと ORIGEN ライブラリーが使用されることに留意する必要がある。JENDL-3.3 ベースの SWAT ライブラリーは、核種生成量評価ワーキンググループにおいて、現在作成が進められている。

今回の一連の解析には、計算時間が最も少なく (1 ケース約 5 分)、使用できるライブラリーも充実している SRAC を使用し、SWAT と MVP-BURN はその精度検証のために補足的に利用した。SRAC は主として炉心特性解析を目的として設計してあるため、従来の燃焼チェーンデータ (崩壊系列、FP 収率、核異性対比、半減期などを記述するデータ) では、比較的反応度寄与が小さい Ce-144 や Cs-137 などの PIE 測定核種は擬似 FP に含めた扱いをしており、その生成量を計算することができなかった。そこで、U-234 から Cm-246 までの 21 個の重核種と 100 個の FP 核種を扱えるように拡張した新しい燃焼チェーンデータを作成し、今回の PIE 解析に使用した。作成した燃焼チェーンモデルの妥当性については、半減期と核異性体比などの基礎データを同一とした SWAT による計算結果と比較し、核種生成量に有意な差異がないことを確認して検証した。なお、新しい燃焼チェーンデータでは、以下の基礎データを採用している。

- ・ 半減期 : 核図表 2000 (原研核データセンター)
- ・ FP 核種の核分裂収率、核分裂あたりの放出エネルギー : JNDC-V2[8,9]
- ・ Am-241 捕獲反応の核異性体比 : ENDF/B-VI に基づく 1 群定数

4. 解析モデル

SRAC による燃焼計算は、燃料棒、被覆管、減速材領域の 3 領域からなる無限正方格子モデルで行った。ただし、PWR の燃料集合体には、制御棒案内管や集合体間ギャップ (1mm) が存在するため、実寸の燃料棒ピッチを使用するよりも、中性子スペクトルが若干柔らかくなる。これを考慮するため、先ず MVP コードによる集合体計算 (燃焼度ゼロ) を行い、各サンプル位置におけるスペクトルインデックス ($\phi_{\text{fast}}/\phi_{\text{thermal}}$) を求め、これを保存する実効ピッチ[7]を採用した。SF95 及び SF97 の実効ピッチは、実寸ピッチに比べて約 3 ~4%大きくなる。また、各サンプルの軸方向位置 (Z) における減速材温度 $T_m(Z)$ は、出力分布が炉心下部からサイン分布であると仮定し、以下の式で求めた。

$$T_m(Z) = T_{inlet} + \frac{\pi\Delta T}{2H} \int_0^Z \sin\left(\frac{\pi}{H}z\right) dz$$

$$= T_{inlet} + \frac{\Delta T}{2} \left\{ 1 - \cos\left(\frac{\pi Z}{H}\right) \right\}$$

T_{inlet} : 入り口冷却材温度
 ΔT : 炉心出口での温度上昇
 H : 燃料有効長

減速材密度は、システム圧と $T_m(Z)$ から蒸気表で求められる。燃料温度 $T_f(Z)$ は高浜 3 号炉の許認可資料に示される線出力と燃料温度との相関図を用いて、サンプル燃焼度から逆算される燃焼期間の平均線出力に対する内挿値で概算した。なお、燃料温度に対する測定核種の生成量の感度は、 100°C の変化でも最大で 3% であり、燃料温度に対する感度は大きくない。減速材中のボロン濃度は、各サイクル期間中に約 1160ppm から 70ppm の範囲で変化しているが[10]、SRAC の格子燃焼計算には、燃焼期間中のボロン濃度を追従する機能がないため、照射期間中の平均値 (約 700ppm) で一定とした。この近似の精度は、別途 MVP-BURN により評価した。MVP-BURN によりボロン濃度を平均値で一定値とする場合とボロン濃度を追従する場合の燃焼計算結果の比較から、核種生成量に及ぼす影響は、最大でも 2% 程度であることを確認した。ただし、非測定核種の中には 5% 程度の影響を受ける核種も存在する。出力履歴は文献[4]に示されているものを使用した。例として 3 サイクル照射の SF97 サンプルの出力履歴を図 2 に示す。サイクル間の炉停止期間は約 90 日である。SRAC の燃焼計算はこの出力変化を模擬しながら、約 50 回のスペクトル計算を行っている。

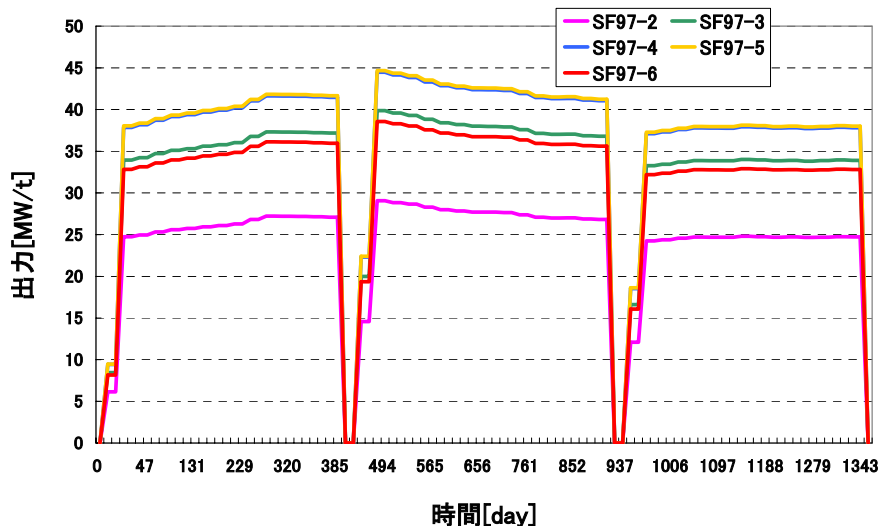


図 2 SF97 サンプルの出力履歴[4]

5. 破壊測定値と解析値の比較

先ず、PIE 解析において留意すべき点を説明するため、いくつかの例を示す。図 3 は燃

焼度が異なる 10 個のサンプルから得られた Cs-137 生成量の測定値と解析値を比較したものである。以降にも同様な図を示すが、線で結ばれた核種生成量は、照射条件が異なる別のサンプルのものであることに留意していただきたい。測定値と解析値は良く一致し、Cs-137 の生成量は、サンプルの切り出し位置や取出しサイクルには依存せず、燃焼度に対してほぼ比例した結果となっている。これは Cs-137 の β 崩壊（半減期 30.1 年）や捕獲反応による消滅に比べて、核分裂による生成の方が十分に多く、しかも Cs-137 の核分裂収率が U-235 と Pu-239 でほぼ同じであるためである。したがって、測定値と解析値の一致は、核分裂収率の妥当性を意味するものであり、Cs-137 の断面積の良さを意味するものではない。

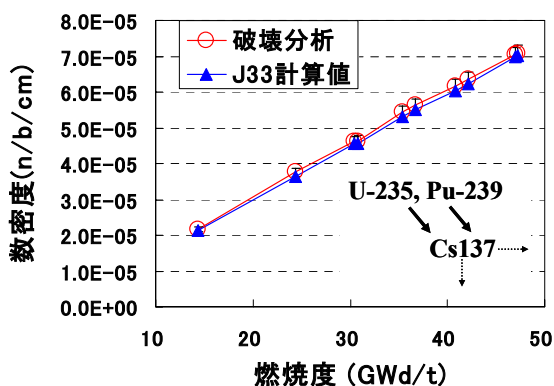


図3 Cs-137 の測定値と解析値

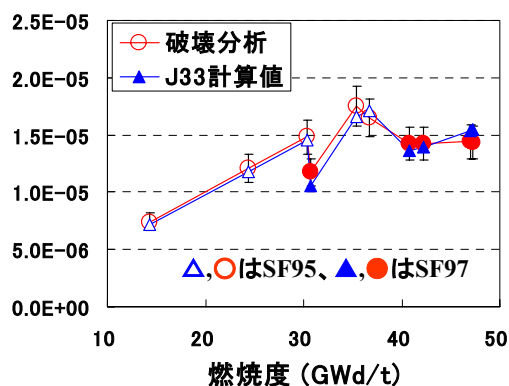


図4 Ce-144 の測定値と解析値

一方、図 4 は比較的短い半減期（2.06 年）を持つ Ce-144 の結果である。結線は凸凹しているが、SF95 試料と SF97 試料を分けて見れば、燃焼度に対してほぼ直線にのっている。凸凹は、2 サイクル目と 3 サイクル目の間の炉停止期間中の崩壊によるものである。また、図 5 は安定な Pu-239 の結果であり、こちらの凸凹はサンプル位置の減速材密度や燃料温度などの差異によるものである。このように、測定値の凸凹の傾向を解析で再現できるのは、冷却期間による崩壊や中性子スペクトルの変化を採用した解析手法やモデルで良く追従できている傍証と言える。ところが、図 6 に示した U-234 のように、測定精度を大きく超えて無秩序に差異が出る結果もある。同図では燃焼が進んだ SF95 サンプルの結果(○印)がまったく解析値と合っていない。こうした結果は必ずしも測定プロセスにおける不具合によるものとは言えない。照射中に無限格子モデルでは考慮できないような制御棒の出し入れやスペクトルが極端に異なる集合体に隣接したなどの影響も考えられる。もっとも、U-234 の例では、他の測定核種に同様の不一致が見られないことから、測定上の問題である可能性が高い。いずれにせよ、このような測定結果を含めて C/E 値の平均値を出すと正しい情報は得られない。今回の PIE 解析では、U-234 と同様なケースが総データ数の 3%程度あり、極端なものについては検討の対象から除外した。高浜 3 号

炉の破壊試験の結果は、上記のようなデータ吟味の結果、後述する幾つかの核種を除いて、良いデータが得られていると判断される。

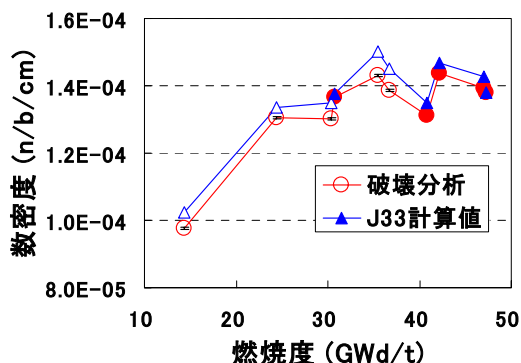


図5 Pu-239 の測定値と解析値

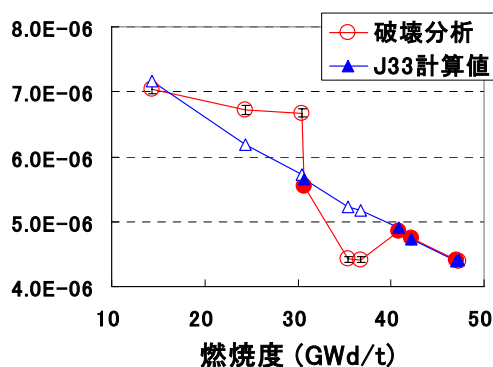


図6 U-234 の測定値と解析値

図7及び図8は、それぞれ、燃焼度が異なる10個のサンプルから得られた重核種生成量の平均 C/E 値と標準偏差を示したものである。また、それらの核データライブラリー依存性も示しており、左から JENDL-3.3 (J33 と表記)、JENDL-3.2 (J32)、JEF-2.2 (F22)、ENDF/B-VI.5 (B65)、ENDF/B-VI.8 (B68) の順に整理してある。図7より、Am-241 の過大評価と、Cm 同位体核種の過小評価が顕著である。Cm 同位体核種の 20~30% の過小評価は過去の美浜 PIE 解析[7]などでも顕著にその傾向が見られており、改善を期待するところである。また、JENDL-3.3 の Am-241 捕獲反応断面積は JENDL-3.2 より大きくされたが、C/E 値の改善効果は僅かである。Am-243 や Cm-244 の C/E 値は JENDL や JEF-2.2 よりも ENDF/B-VI の結果が良く、これらの生成量に関連する断面積を比較する価値がある。

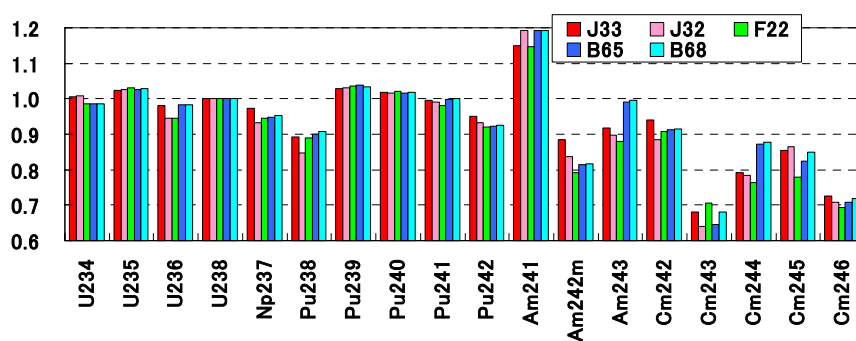


図7 重核種生成量の C/E 値 (サンプル平均値)

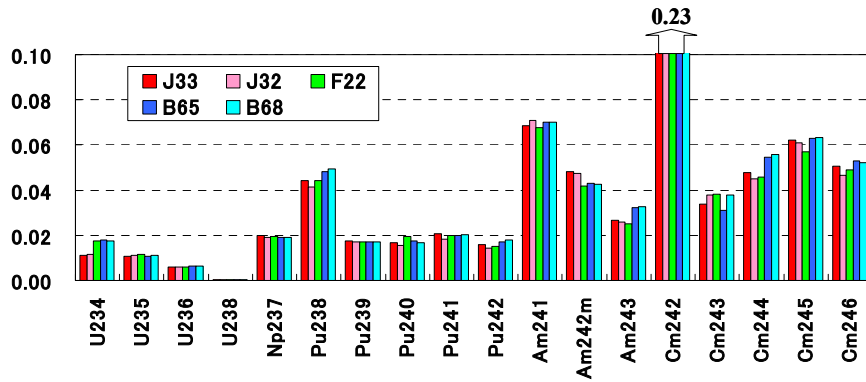


図 8 重核種生成量の C/E 値の標準偏差

図 8 の標準偏差は、燃焼度が異なる 10 個のサンプルから得られた C/E 値のばらつきを表しており、いわば図 7 の平均 C/E 値の信頼性を表す指標と言える。ばらつきが大きくなる場合として、一般に以下の 2 つの場合が考えられる。1 つは、C/E 値が燃焼度と相関が無く平均値の周りにランダムに分布する場合であり、これは測定精度や解析のモデル化等に起因するものである。もう一つの場合は、C/E 値が燃焼度に関して、単調増加や単調減少するなどの一定の傾向を持つ場合である。この場合には着目核種の生成消滅に関連する断面積の不具合が考えられる。図 8 では、Cm-242 のばらつきが他の核種に比べて極端に大きくなっているが、これは上記の何れの場合とも判断できない特殊なケースである。図 9 に Cm-242 のサンプル毎の C/E 値 (左図) と数密度 (右図) の測定値と解析値を示す。

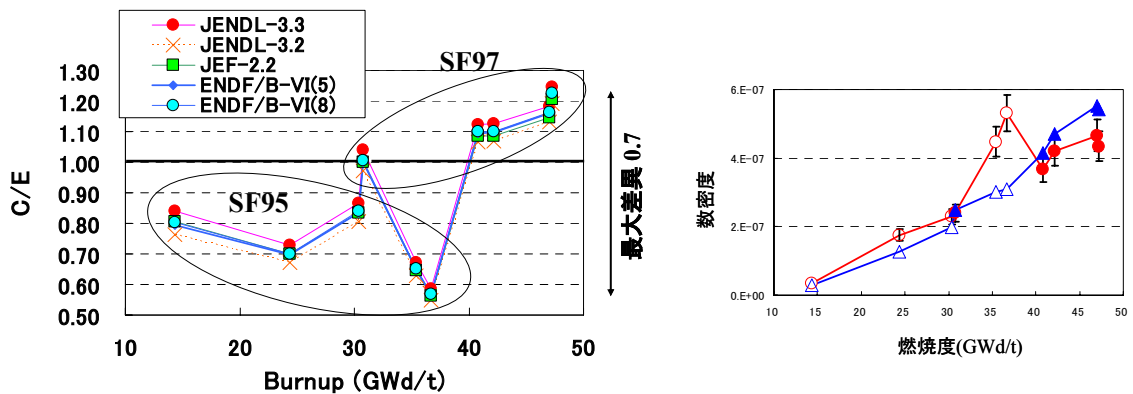


図 9 サンプル毎の Cm-242 生成量の C/E 値

右図は数密度の測定値と J33 解析値

(○: SF95 測定、●: SF97 測定、△: SF95 計算、▲: SF97 計算)

同図右に示すように、測定値と解析値の核種生成量の傾向 (凸凹傾向) が全く異なっており、SF95 のみの C/E 値からは過小評価の結果が得られ、SF97 のみの結果からは過大評

価の結果が得られることになる。更に、右図で突出している SF95 の測定値 2 点 (35GWd/t 近傍の SF95-3 と SF95-4) を不適切な実験データであるとして排除した場合には、C/E 値が燃焼度依存であるとの結果を得る。このような結果は、他の Cm 同位体核種には見られず、解析コード、解析モデル、ライブラリーにも無関係であり、今のところ原因が明確になっていない。Cm-242 は冷却期間中に Am-242m (半減期 16 時間) から生成され、同時に 168 日の半減期で Pu-238 に α 崩壊する。測定値は、取出し直後値に補正されて報告されているが、Cm-242 の崩壊補正が正しく行われていない可能性がある。現在、測定担当者から補正前のデータを手し、崩壊補正を行わない測定時点での C/E 値を比較する検討を進めている。この結果については、別途報告したい。

図 10 及び図 11 は、FP 核種生成量の平均 C/E 値と標準偏差を示したものである。FP 核種については、Sb-125 (参考測定) の過大評価 (C/E \sim 1.8)、Nd-142 の過小評価 (C/E \sim 0.75)、JEF-2.2 の Eu-154 (C/E \sim 1.5) の過大評価が突出している。また、Sm-148 と Sm-149 に 10%程度の過小評価が見られるが、これは Pm-147 捕獲反応の核異性体比にも依存して変動することに留意する必要がある。Cs-137 と共に燃焼度指標として重要な Cs-134 の C/E 値については、JENDL-3.3 による結果が 10%程度の過小評価をしており、JEF-2.2 の結果が幾分良い。

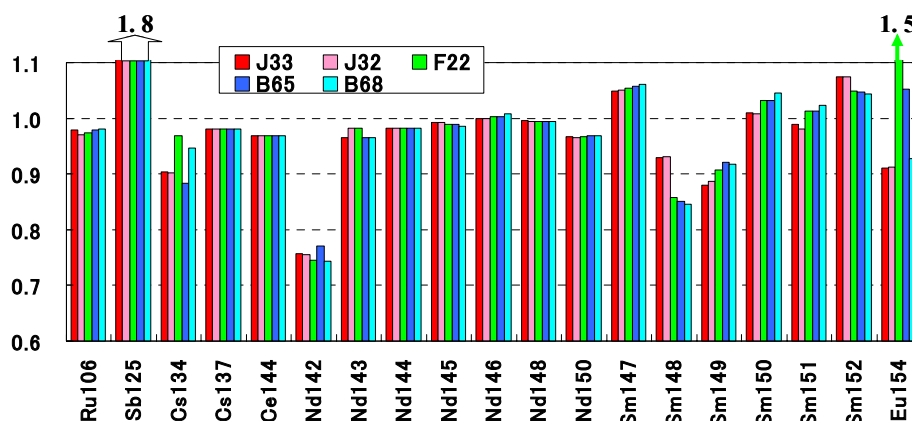


図 10 FP 核種生成量の C/E 値 (サンプル平均値)

図 11 において、Ru-106、Sb-125、Ce-144、Nd-142、Sm-149、Eu154 (JEF-2.2) のばらつきが大きい。Ru-106 と Sb-125 (何れも参考測定) は破壊測定の問題であり、Sm-149 と Eu-154 (JEF-2.2) のばらつきが大きいのは、図 12 及び図 13 に示すように C/E 値に燃焼度依存があるためである。特に Eu-154 の JEF-2.2 の結果のみが、他のライブラリーによる結果と比べて突出しているのは、関連する断面積に特異な差異があるためと考えられる。

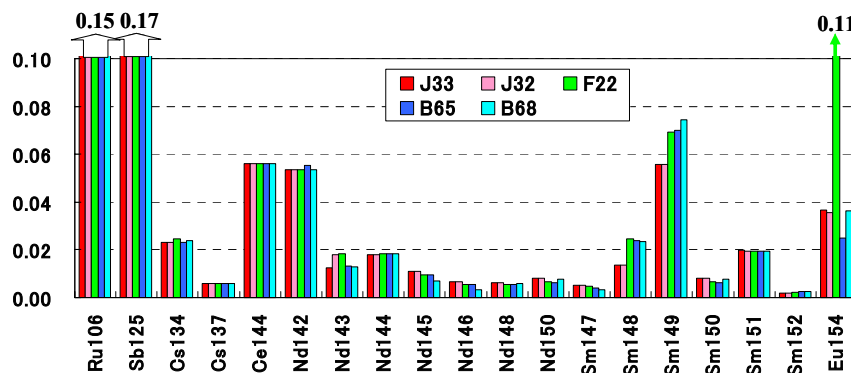


図 11 FP 核種生成量の C/E 値の標準偏差

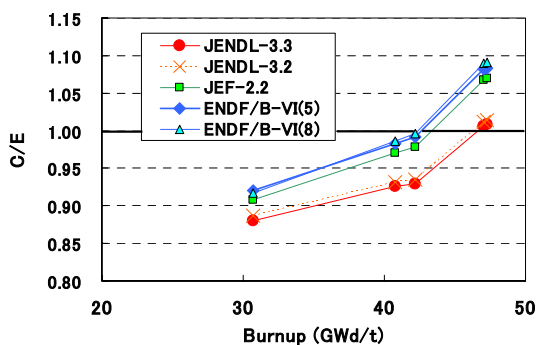


図 12 Sm-149 生成量の C/E 値

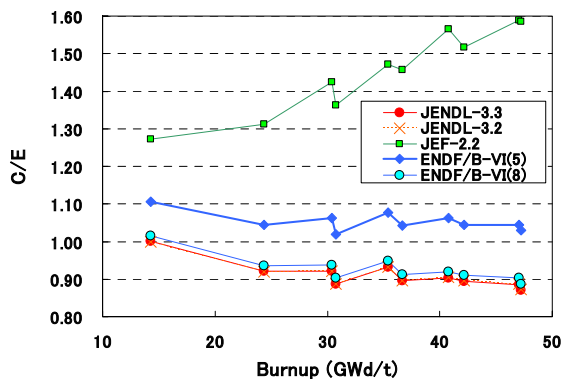


図 13 Eu-154 生成量の C/E 値

実際、図 14 に示すように、JEF-2.2 の Eu-154 の捕獲断面積は最近の核データ評価とは異なり、0.5eV 以下で共鳴が無い小さな断面積評価となっている。JEF-2.2 のコメントによれば、この評価は「ENDF/B-V から採用したもので、実験データが無いため理論式に基づく評価」とある。同図からも明らかなように、この評価は ENDF/B-IV から変わっていない。JEF-2.2 による Eu-154

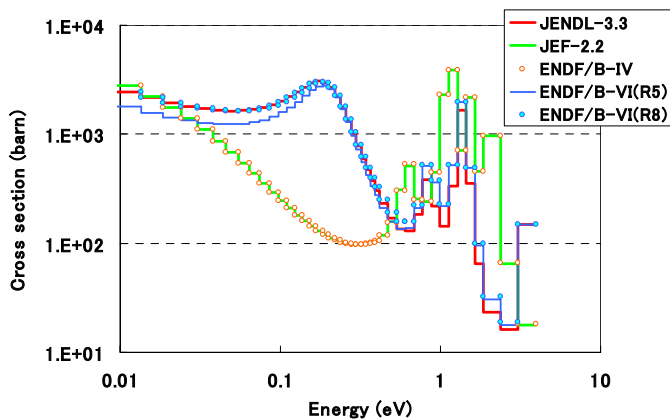


図 14 Eu-154 の捕獲断面積比較

に対する C/E 値が燃焼度の増大と共に過度に大きくなるのは、Eu-154 の捕獲断面積評価に問題があるためであり、今回の PIE 解析には使用していない ENDF/B-IV や ENDF/B-V

も同様の結果になることが予想される。

最初に述べた炉物理研究委員会の軽水炉次世代燃料の炉物理ベンチマークの結果では、Eu-154 から Eu-155 及び Gd-154 を介して燃焼チェーンで繋がる Gd-155 の生成量にも大きな差異 (106%) が見られている[1]。これは、図 15 及び図 16 に示すように Gd-154 と Eu-155 にも核データ評価に大きな差異があるためである。

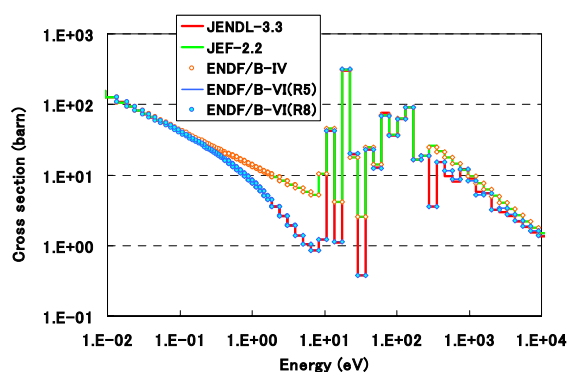


図 15 Gd-154 の捕獲断面積比較

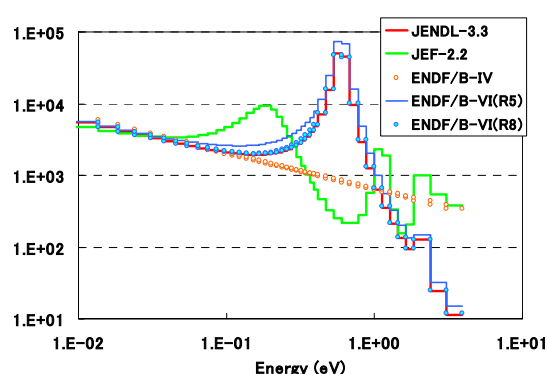


図 16 Eu-155 の捕獲断面積比較

Gd-154 の捕獲断面積については、JEF-2.2 と ENDF/B-IV の評価は同じであり、JENDL-3.3 や ENDF/B-VI に比べて大きい断面積を与える。Eu-155 については、JEF-2.2 は ENDF/B-IV と異なる独自の評価をしており、結果的に軽水炉スペクトルでは JENDL-3.3 や ENDF/B-VI に比べて Eu-155 (4.8 年で Gd-155 へβ崩壊) の捕獲断面積を小さく与える。結局、以上に述べた Eu-154、Eu-155、Gd-154 の熱群捕獲断面積の差異が主要な要因となって、JEF-2.2、ENDF/B-IV、ENDF/B-V に基づくライブラリーを使用すると、Eu-154 や Gd-155 の生成量が燃焼度の増大と共に加速度的に過大評価されることになる。ただし、Gd 同位体の中でも吸収断面積が特に大きい Gd-155 や Gd-157 の断面積については、JEF-2.2 の断面積は他の核データ評価と大きな差異はなく、ガドリニアのような可燃性毒物に関わる炉心特性 (k_{∞} の燃焼変化や出力分布) には大きな影響は無い。問題となるのは、冷却後に Eu-154 (半減期 8.6 年) や Eu-155 (半減期 4.8 年) のβ崩壊によって生成・残存する Gd-154 や Gd-155 への影響であり、特に 5 年以上冷却後の Gd-155 の反応度寄与は相対的に大きくなるため、燃焼度クレジットの計算などでは留意する必要がある。

JENDL-3.2 の FP 核種の断面積評価は比較的新しいが、JEF-2.2 や ENDF/B-V には、重要な FP 核種にもかなり古い評価が含まれている。ENDF/B が FP 核種の評価にテコ入れを始めたのは ENDF/B-VI 以降であり、最近も ENDF/B-VI(R8)において、20 核種程度の FP 核種の断面積が再評価されている。JEFF-3.0 の SRAC ライブラリーは現在作成中であるが、核データのコメントを見る限り、Eu-154 と Eu-155 の評価は ENDF/B-VI(R7)の評価を採用しており、Gd-154 については JEF-2.2 のままである。JENDL-3.3 は、ほとんどの FP 核種について JENDL-3.2 と同じ評価であり、今回の PIE 測定値には含まれていないが、

捕獲断面積の評価が変更された Tc-99 と Ce-140 の生成量には、JENDL-3.2 と JENDL-3.3 の結果に有意な差異は見られていない。

6. 非破壊測定値と解析値の比較

非破壊測定は何本もの燃料棒サンプルに対して行われているが、ここでは、破壊測定に供せられた SF97 燃料棒の γ スキャン測定により得られた放射能比を、前章の破壊測定の結果及び解析値と比較する。

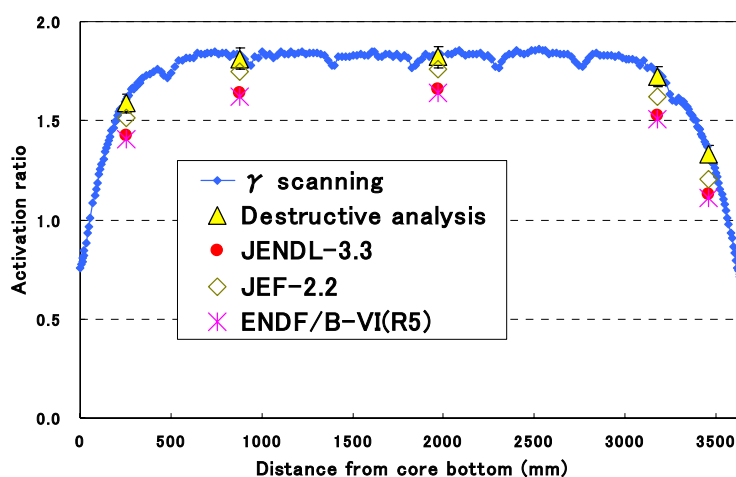


図 17 Cs134/Cs137 放射能比の軸方向分布
(SF97 燃料棒、凹みはグリッド位置)

先ず、典型的な例として、図 17 に Cs134/Cs137 放射能比の燃料棒軸方向分布を示す。Cs-134 は主として Cs-133 の中性子捕獲により生成されるが、Cs-137 の場合と同様に Cs-133 の U-235 及び Pu-239 の核分裂による収率はほぼ等しい。このため、Cs-134 生成量は燃焼度の 2 乗にほぼ比例する。また、Cs-137 の生成量は既に述べたように、燃焼度に比例する。このため、Cs134/Cs137 放射能比は、良く知られるように燃焼度に比例する特性があり、しばしば非破壊による燃焼度分布の測定に利用される。非破壊測定の結果は、破壊測定の結果と良く一致しており、両測定信頼度の高さを立証している。非破壊測定で得られるのは、2 つの核種の放射能の相対比 ($\lambda_i N_i / \lambda_j N_j$) でしかないが、図 3 に示したように、Cs-137 の解析値は広範囲な燃焼度で破壊測定の結果と良く一致することから、Cs-137 放射能を分母とする放射能比の解析値は、分子となる核種の生成量評価の精度指標となる。図 17 からは、破壊測定結果との比較で既に述べたように、JENDL-3.3 による Cs-134 生成量の 10% 程度の過小評価が再確認できる。実際の燃焼度測定では、放射能比と燃焼度相関式は実測燃焼度により校正されるため、このような差異が問題となることはない。しかし、燃焼度指標核種の生成量を精度良く計算できれば、計算のみで校正を行ったり、

シミュレーションによる新しい相関式を作成したりできるなどメリットは大きい。

紙面の都合上、非破壊測定による結果をここではすべて掲載しないが、解析結果との比較で得られる結論は概ね破壊測定との比較結果と同じである。特に、Eu154/Cs137 放射能比からは、JEF-2.2 の Eu-154 生成量の過大評価が歴然と判る結果が得られている。非破壊測定の結果で興味深いのは、破壊測定では参考測定とされた Ru-106 と Sb-125 の結果である。非破壊測定では、これらの核種の破壊測定で問題となる不溶解残渣やフラスコ吸着の影響は無視することができる。図 18 は SF97 サンプルから得られた Ru106/Cs137 放射能比を比較したものである。破壊測定の結果には SF97-5 サンプルのように明らかに不適切と考えられる結果も含まれるが、これを除いた結果は、非破壊測定の結果とほぼ一致している。前章で示した Ru-106 の C/E 平均値 (約 0.98) も SF97-5 サンプルの結果を排除したものである。結局、ばらつきは大きいですが、破壊測定から得られた Ru-106 に対する C/E 値の結果は、ほぼ妥当

なものであると判断される。同様な比較を、破壊測定で大幅な過大評価 (C/E~1.8) となった Sb-125 についても行った。その結果を図 19 に示す。一看すると、非破壊測定の結果は、解析値と 10% 以内で一致しており、破壊測定の結果に問題があるように見える。しかし、非破壊試験で測定される Sb-125 放射能

には、ジルコニウム被覆管に含まれる Sn-124 の放射化により生成される Sb-125 からの寄与分が含まれる。この寄与分は、破壊試験の測定値や燃料の燃焼計算には含まれていない。被覆管からの寄与分は、Sn 同位体を含む燃焼チェーンを使用して別途計算で詳細に評価する必要があるが、概算でも十数%は含まれていると推定されている[1]。この放射能分を差し引くと、燃料部の Sb125/Cs137 放射能比は図中の破線程度まで下がり、破壊試験の結果に近づく。破壊測定結果のばらつき具合から見て、測定値に 1.8 倍もの差異が恒常的に発生するとは考え難く、むしろ Sb-125 の核分裂収率が少なくとも 20%以上過大評価されていると推定される。現在、被覆管中の Sn 同位体を燃焼できる新しい燃焼チェーンデータを準備しており、被覆管からの Sb-125 放射能寄与を評価する作業を進めている。従来の核データには Sn 同位体核種の評価はなかったが、JENDL-3.3 で評価に加えられたため、このような分析が可能となった。この結果については、別の機会に報告したい。

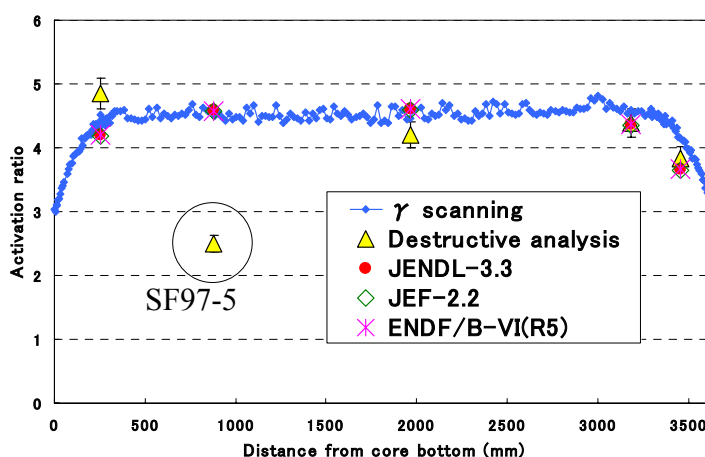


図 18 Ru106/Cs137 放射能比の軸方向分布

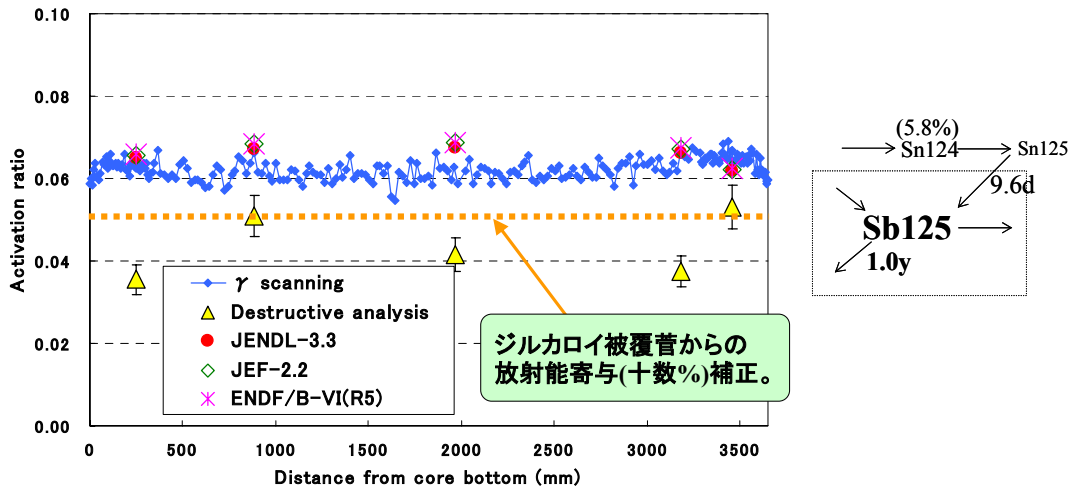


図 19 Sb125/Cs137 放射能比の軸方向分布

7. 核異性体比の影響

軽水炉の燃焼解析で重要となる核異性体比（分岐比）は、Am-241 と Pm-147 の捕獲反応によるものである。前者については、これまで ENDF/B-VI（ENDF/B-V から変更無し）の評価があったが、JENDL-3.3 にも新たに評価が加えられた。図 20 にこれらの比較を示す。

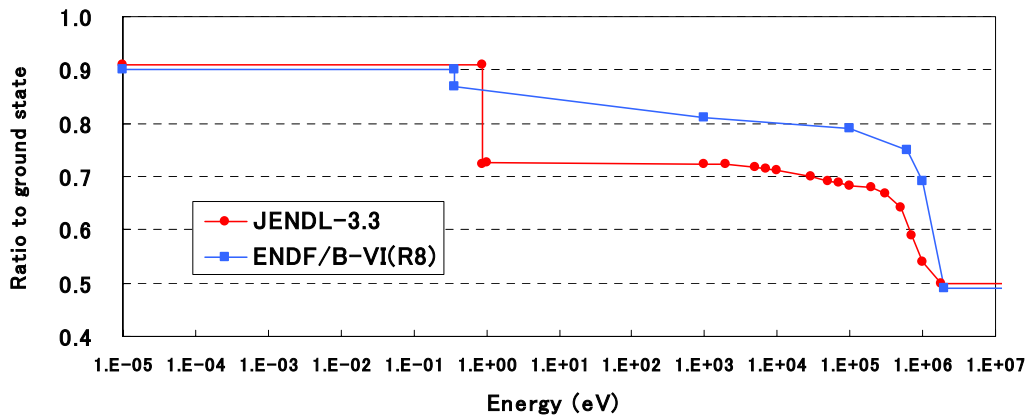


図 20 Am-241 捕獲反応の核異性対比（核データ比較）

実際の燃焼計算では、核異性対比をエネルギー依存で与えるコードはほとんど無く、解析対象炉型を特定した 1 群の核異性体比を与えるのが通例である。SRAC では、今回の PIE 解析を含め、ENDF/B-VI のエネルギー依存データを使用し、これを典型的な軽水炉スペクトルにより計算される Am-241 捕獲反応率（107 群）を重みとして得られた 1 群の核異性対比（0.884）を使用している。JENDL-3.3 の核異性体比は 0.9eV 以下で ENDF/B-VI の値（0.90）よりも僅かに高い値（0.91）をとるが、Am-241 の捕獲反応率を重みにして

計算すると逆に 0.877 と小さくなる。コードによっては、低エネルギー側の一定値をとることもある。また、SRAC では、エネルギー依存データが無い Pm-147 をはじめとする FP 核種については、JNDC-V2[8,9]で与えられている 1 群データをそのまま採用している。1 群核異性体比の値は、燃焼計算コード間で少なからず差異があり、これにより関連する核種生成量の計算値にも差異が発生する。現在の公開コードで使用されている Am-241 と Pm-147 の 1 群核異性体比を表 2 に示す。SWAT コードでは、FP 核種の核分裂収率は SRAC と同じ JNDC-V2 の値を使用しているが、核異性体比については ORIGEN の軽水炉用の標準的なライブラリーである PWRU の値(BWRU も同じ値)を採用している。Am-241 の核異性対比については SRAC と SWAT で大きな差異は無いが、Pm-147 の核異性対比は、SWAT の方が約 13% 大きい値を採用している。また、ORIGEN ライブラリー PWRU と BWRU の改訂版と位置づけられている PWRUS や BWRUS ライブラリー[11]では、Am-241 の核異性対比は 0.800 まで下げられている。

表 2 軽水炉解析に使用されている核異性体比の例

コードまたはライブラリー	Am241→Am242g	Pm147→Pm148g
SRAC (ENDFB-VI, JNDC-V2)	0.884	0.530
SWAT (ORIGEN ライブラリー:PWRU, BWRU)	0.890	0.658
ORIGEN ライブラリー PWRUS	0.800	0.679
ORIGEN ライブラリー-BWRUS	0.800	0.670

このような核異性体比の差異による PIE 解析結果への影響を見るため、核異性対比を表 2 の範囲で変化させた計算を SRAC で実施し、測定値と比較した。Am-241 核異性体比の影響を受ける核種の C/E サンプル平均値を図 21 に示す。同図より、Am-241 核異性体比の値は、測定核種の内、Am-242m、Cm-242、Cm-243 の生成量に敏感であり、核異性体比の値を 0.80 程度まで小さくすると、Am-242m の C/E 値が 50% 近く過大評価となる上に、Cm-242 や Cm-243 の過小評価が益々進む結果となる。Am-242m の測定精度は 10% 程度であることを考慮しても、Am-241 の核異性体比の適正な範囲は、0.85~0.90 程度と考えられ、SRAC や SWAT の値、及び JENDL-3.3 ベースの値もこの範囲にある。ORIGEN の PWRUS や BWRUS ライブラリーの値は、小さすぎることになるが、これは、ORIGEN の 1 群断面積ライブラリーとの共用を前提に最適化されたものであると理解すべきであろう。

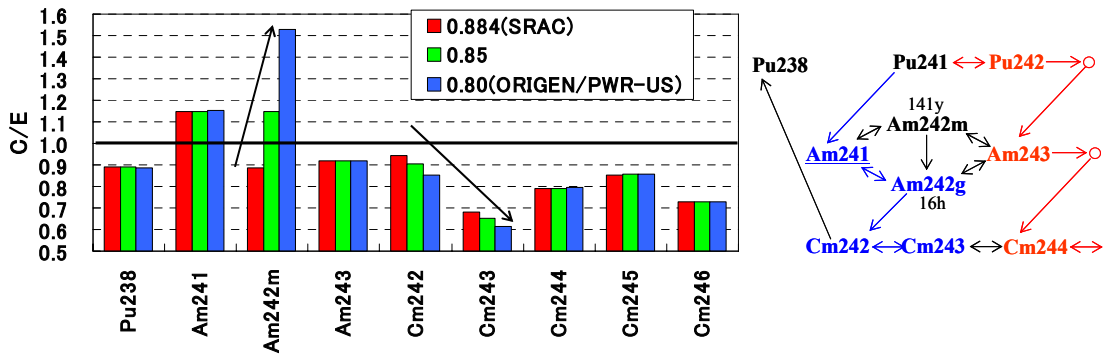


図 21 Am-241 核異性体比による核種生成量 C/E 値への影響

ところで、図 21 において、Am-241 の核異性体比は、Am-243、Cm-244、Cm-245、Cm-246 にはほとんど感度が無い。このことから、Cm 同位体核種の主要な生成パスは、以下の 2 つに分解できることがわかる。

- Pu241→Pu242→(Pu243β崩壊)→Am243→Am244β崩壊→Cm244→Cm245→Cm246
- Pu241β崩壊→Am241→Am-242g→Cm242→Cm243

Cm 同位体核種の生成量は何れも過小評価されているが、Cm-244、Cm-245、Cm-246 の過小評価の原因と、Cm-242 と Cm-243 の過小評価の原因は別のものである。前者は Pu-241 以降の高次化が進んでいないためであり (図 7 参照)、後者は、Cm-242 の捕獲断面積が過小または Cm-243 の吸収断面積が過大であるためと考えられる。今回の PIE 解析では Cm-242 の C/E 値の傾向が正確に詰められなかった点が残念である。

図 22 は、Pm-147 核異性体比による関連核種生成量の C/E 値への影響を示している。

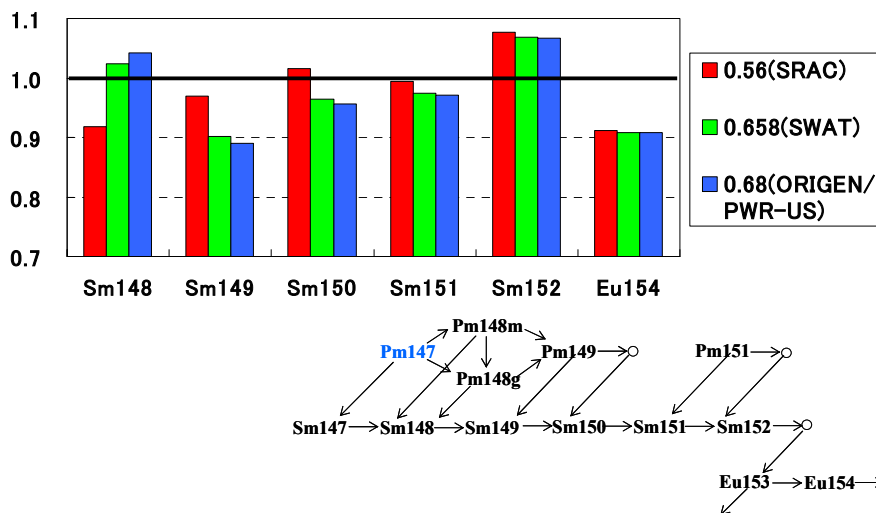


図 22 Pm-147 核異性体比による核種生成量 C/E 値への影響

JNDC-V2 と ORIGEN ライブラリーでは、核異性体比の差異の幅が大きいこともあり、そ

の影響は、測定核種の中でも Sm-149 から Sm-152 の生成量にまで及んでいる。Sm 同位体核種の測定精度は何れも 0.1%程度と高いが、Sm-149 のように C/E 値が燃焼度に依存しているものもあり、また FP 核種の生成量は核分裂収率にも依存するため、PIE 解析の結果から適切な核異性体比を推定することは困難である。しかしながら、Sm 同位体核種は、FP 核種の中でも反応度寄与が大きいいため、Pm-147 の核異性体比を精度良く評価することは重要である。

8. 結論

高浜 3 号炉の PIE 解析の結果、JENDL-3.3 による核種生成量の評価精度は、JENDL-3.2 の結果に比べて改善は見られるが、それはドラスティックなものとは言えない。核種生成量評価の観点から、次期 JENDL への期待を以下にまとめる。

- ・ Am-241 生成量の過大評価（～15%）の改善
 - ・ Cm 同位体核種の過小評価（10%～30%）の改善
 - ・ Cs-134 生成量の過小評価（10%）の改善
 - ・ Nd-142 生成量の過小評価（25%）の改善
 - ・ Sb-125 核分裂収率の見直し（20%程度の過大?）
 - ・ Pm-147 捕獲反応の核異性体比の評価
 - ・ Sm 同位体核種生成量の精度向上（例：Sm-149 の C/E 値の燃焼度依存性の解消）
- なお、これらの改善に必要なデータを今後の検討で詰めていく予定である。

参考文献

- [1] K. Okumura, H. Unesaki, T. Kitada and E. Saji: “Benchmark Results of Burn-up Calculation for LWR Next Generation Fuels”, Proc. of Int. Conf. PHYSOR 2002, 9A-03, Seoul, Korea, 7-10 October (2002).
- [2] K. Shibata, et al.: “Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision-3: JENDL-3.3”, J. Nucl. Sci. Technol. 39, 1125 (2002).
- [3] 奥村啓介, 金子邦男, 土橋敬一郎: “SRAC95 : 汎用核計算コードシステム”, JAERI-Data/Code 96-015 (1996).
- [4] (編)中原嘉則, 須山賢也, 須崎武則: “軽水炉使用済燃料の燃焼度クレジットに関する技術開発”, JAERI-Tech 2000-071 (2000).
- [5] A.G. Groff: “ORIGEN2 – A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code”, ORNL-5621 (1980).
- [6] 須山賢也, 清住武秀, 望月弘樹: “統合化燃焼計算コードシステム SWAT 改訂版”, JAERI-Data/Code 2000-027 (2000).
- [7] K. Okumura, T. Mori, N. Nakagawa and 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), 128-138 (2000).
- [8] K. Tasaka, et al.: “JNDC Nuclear Data Library of Fission Products –Second Version–”, JAERI 1320 (1990).
- [9] (Ed.) H. Ihara: “Tables and Figures from JNDC Nuclear Data Library of Fission Products, Version 2”, JAERI-M 89-204 (1989).
- [10] 望月弘樹, 須山賢也, 野村靖, 奥野浩: “WWW を利用した核種組成データベースシステム SFCOMPO on WWW Ver.2”, JAERI-Data/Code 2001-020 (2001).
- [11] J.W. Roddy and J.C. Mailen: “Radiological characteristics of light-water reactor spent fuel: A literature survey of experimental data. 82 references”, ORNL/TM-10105 (1987).