シビアアクシデント時のインベントリ計算と核種組成

日本原子力研究開発機構 須山賢也

1. 序論

3月11日の東日本大震災の後に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故に対応するため、事 故を起こした原子炉に内蔵されている放射能量(インベントリ)計算を実施した。事故発生直後は通常使 用している計算機等が使用できず必要とされるデータも入手出来ない状態であったが、簡便な計算コー ドを使用し、いくつかの仮定を置いて計算を開始した。今回の事故発生時にどのようにインベントリ計算を 実施したのかは関係者にとって重要な情報になるであろうし、今後発生するかもしれない(もう二度と起こ してはならないが)緊急時にインベントリ計算をどのように実施するのかのヒントにもなると思われるので、 その経緯を含めて概要をまとめてみる。また、従来、使用済燃料の同位体組成取得はウラン、プルトニウ ム及び反応度効果の大きな同位体を中心に行われていたが、今回のようなシビアアクシデント評価時に は異なった視点から重要度の高い同位体が存在する。本稿ではシビアアクシデント評価のための同位体 組成測定について着目し、従来の測定とその評価結果等についてもまとめてみたい。

2. 地震発生から解析環境の整備まで

筆者は地震発生時、日本原子力研究所入所以来の居室としている原子力コード特別研究棟の3階に いた。すぐに停電になり、地震後の津波や福島第一原子力発電所で事故が発生したと言うニュースも停 電のためテレビも使えず、帰宅後に子供が持っていた手回し充電式ラジオ¹で聞くこととなった。

地震後は原子力機構原子力科学研究所も多くの場所で停電・断水となり、建物の安全性の確認も取れないために多くの職員が自宅待機となった。私には3月15日ぐらいになって職場に出てくるようにとの指示がグループリーダー経由で入り、情報交流棟の南ウイングの入り口付近の会議室に入る事となった。呼ばれた段階で、これまでの自分の仕事の内容から考えれば要求されるのは炉内インベントリ計算であろうし、そこではウランやプルトニウムの組成と言うよりも、ヨウ素やセシウムの放射能をかなりのスピードで評価する事を要求される事も明白だったため、まずは一点炉燃焼計算コード ORIGEN2 を使える環境を手に入れたいと考えた。しかし原子力科学研究所内は一部を除いて停電が続いており自分の研究室にある計算用マシンは停止中、原子力機構のスパコンも停止をしており、ネットワークすら利用できない状況にあった。ここで、昔使っていたけども最近は電源を入れる事の無かった古いパソコン(Pentium III 500MHz クラスのパソコンに昔の RedHat Linux を乗せたもの)に ORIGEN2.2 やその改良版である

¹ フランス出張時の下の子供へのお土産だった。今回の事故対応でフランス・アレバ社からの多大な援助があった事は記憶に新しいが、このラジオがフランス土産と言うのも何かの因縁を感じる。

した。そのため、余震の続く中事務室の人と私の居室に入り、散乱する資料の中からそれを含む2台のパ ソコン、HUB、ネットワークケーブルを拾い出して情報交流棟の会議室に持ち込むこととした。その会議室 では仮のIPアドレスが割り当てられていたためIPアドレスの付け替えなども同時に行うことになったが、他 課室の人が持ち込んだプリンタも接続されるなどして解析を実施する環境が構築された。

私が呼び出された時期とほぼ同じ頃に原子力基礎工学部門の西原健司さんも情報交流棟に来ておら れたため、インベントリ計算は私と西原さんが同時に独立に行い、お互いの結果を比較してオーダー通り の結果が得られている事と確認しつつの作業となった。その関係は情報交流棟からそれぞれの居室に戻 った後に私の作業が一段落する5月の連休前まで継続した。さらに、ORIGEN2では単位重量の核燃料 あたりの同位体量・放射能・崩壊熱が得られるが、着目する炉心や燃料プール全体のそれらの値を得る には ORIGEN2 による複数の計算結果を足し合わせるような作業が必要となる。このための小粋なプログ ラムを私は持っておらずまた作成する余裕はなかったので、普段からMS-Excelを使って ORIGEN2の計 算結果を処理しておられる私と同じセンターに所属の細山田龍二氏に後処理を行っていただいた。作業 を一人で抱え込まずに済んだことは、その後の作業を進める上で私にとってはとても心強かったし、計算 結果の信頼性を確保する観点からも極めて重要であったと思う。



写真1 地震ですっかり荷物の散乱した居室計算 機室の様子。机の上にあるのが、以前、炉物理 部会のホームページなどを提供していた typhoon。震災後も無事に稼働する事を確認。



写真23月16日夕方に情報交流棟の会議室でインベントリ計算を行う筆者(前列右)と西原さん(左端)。筆者の机の右側に古いPCを2台設置しネットワークで接続して使用。

3. インベントリ計算の方法

3.1 計算の概要

すでに述べたように、計算には一点炉燃焼計算コード ORIGEN2.2 に JENDL-3.2 及び JENDL-3.3 から作成した断面積ライブラリをリンクした ORIGEN2.2UPJ[1]を使用した。単純な ORIGEN2 を使った燃焼計算であるので、計算に特に工夫を行ったという点はない。しかしながら下に書いたように解析条件が明確でないという問題があるため、その計算条件の設定に多くの時間を割り当てることとなった。

また、インベントリ計算は一発で終わることなく、かなり長期間にわたり利用者のリクエストに応じて実施

された(私の場合は 1~1.5ヶ月、西原さんはさらに高度なリクエストに応えてもっと長期間)。そのため、その時点で入手できた情報を使用して計算を実行しつつ、さらに確実になった情報が入手された時にそれを使って再計算を行う事で、次第にその信頼性が増していった。すなわち手元のメモによると、3月16日の最初の評価依頼では 1F-1²~1F-3 には炉心と使用済燃料プール³(以下 SFP) にそれぞれ 1 炉心分の燃料があり、1F-4~1F-6の炉心には燃料は無く、SFP にそれぞれ 2 炉心分の燃料があると仮定している。 また、2F-1、2F-2 及び 2F-4 には炉心と SFP にそれぞれ 1 炉心分の燃料が、2F-3 の炉心には燃料は無く 2 炉心分の燃料が SFP にあると仮定している。SFP にある燃料の冷却条件も適宜指定された⁴。その上で、燃料の平均燃焼度は保守的な設定として 40GWd/t、燃料集合体の体数など炉心の基本的パラメータは参考文献[2]から引用して比出力を 27.3 MW/t として燃焼計算を実行した。

その後これらのデータは新聞報道や原子力安全・保安院のホームページに掲載された情報で置き換わり、最終的には東京電力から提供された各炉心及び SFP にある燃料集合体の燃焼度データが使用された。表1にインベントリ計算で使用した最終的な計算条件の概要を示す。

		炉出力(MWe)	燃料集合体体数
炉心	1F-1	460	400
	1F-2	784	548
	1F-3	784	548
SFP	1F-3	784	514
	1F-4 ^a	784	1331

表1 インベントリ評価の概要

a: 1F-4 は 2010 年 12 月より定検に入っており、炉心の全燃料が SFP に保管 されている。

3.2 燃料形式 - 燃料組成

いわゆる STEP-II あるいは STEP-III 燃料が多く利用されていることが予想されたが解析開始時は燃料種別も不明で、STEP-II 燃料で代表させていた。その後、東京電力からの情報によりそれぞれの炉で使用している燃料の種別が使用体数も含めて判明した。燃料の初期組成については、BWR の場合には複数の初期濃縮度のウランが使用されるが、核分裂収率と核分裂数によって核分裂生成物の量はほぼ決まると考えられることから平均濃縮度で代表させることとし、初期²³⁵U 濃縮度に 3.7wt% を設定した。1F-3 では MOX 燃料を装荷していたが、その組成も上記の東京電力ホームページの情報と、JENDL-3.3 に基づく ORIGEN2 用ライブラリ[3]を作成したときの標準的 Pu 組成を使用して設定することとした。なお放射化物の生成量も同時に評価するため放射化生成物核種の初期組成にジルカロイを与えている。

² 福島第一原子力発電所を 1F、福島第二原子力発電所を 2F と呼び、1F の一号機を 1F-1 と書くことが ある。ここでも簡略化のためにその例にならうこととする。

³ 1F-4の SFP の破損が懸念されたため、当初そのインベントリ計算が主要な課題であった。その後、 1F-2の SFP のインベントリ計算も依頼により実施した。

^{4 2}F については、その後事態が落ち着いたため詳細なインベントリ計算の対象とはならなかった。

3.3 ライブラリの選択

BWR の場合炉心の軸方向にボイド率分布が存在しているが、一般的に用いられる「40%ボイド率が炉 心平均値である」という考え方により、それで全炉心を代表させた。そして、JENDL-3.3 に基づく ORIGEN2 用ライブラリ[3]から燃料の種類別に使用する断面積ライブラリを選択した。崩壊定数と核分裂 収率は JENDL FP decay Data File 2000[4] に基づいたものである。

3.4 装荷ウラン量

ORIGEN2の入力では初期重元素(ウラン)が 1ton あるとして燃料の初期組成と比出力(MW/t)を指定 することが一般的である。そのため炉心全体のインベントリを算出するには炉心全体のウラン装荷重量が 必要になるが、意外とそのデータ入手に苦労した。筆者は以前から学部学生の頃のテキスト[2]に掲載さ れているプラントの諸元を参照しているが、主要諸元は問題ないものの古い形式の燃料を使用している 時のデータであるためウラン装荷量は新しい燃料とは異なることが判明した。最終的に炉心装荷ウラン量 は東京電力のホームページに掲載されているデータで置き換えることとした。1F-1では 69 t、1F-2 及び 1F-3、1F-4 では 94 t としてそれぞれ与えている。

3.5 計算対象核種

今回のインベントリ計算でまず必要とされたのは、核分裂収率が大きく半減期が数日以上となる同位体 である。特に報道等でよく聞く同位体¹³¹I、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs、⁸⁵Krの量を最初に求めたが、最終的には**表**2に 示す⁵⁸Coから²⁴⁴Cm までの54核種の放射能を計算している。これらは、事故影響評価を行うグループか らのリクエストに従ったものである。使用する事故評価コードによって必要とする同位体は異なると思われ るので、あらかじめ重要核種のリストを整備しておくのが良いと思われた。ORIGEN2とその派生バージョン のコードは今後もこのようなインベントリ計算で使われる事を考えると、事故影響評価コードとのつなぎを 行うユーティリティプログラムを作成することには大きな意義があるだろう(すでにあるのかもしれないが、 ORIGEN22UPJ にその機能は無い)。

3.6 運転履歴データの構築

多くの核分裂生成物は核分裂数と核分裂収率によってその生成量が求まる。特に長い半減期を有し それ自身と親核の断面積が小さい核種の場合、ORIGEN2を使用する時に指定するライブラリの選択によ って核分裂収率データが選択されれば、あとは燃焼度をいかに与えるかのみが主要な問題となる。最初 の評価では炉の出力変動も運転履歴も不明であったため、平均比出力を 27.3MW/t に設定し目標とな る燃焼度(最初は非常に保守的に 40GWd/t)となるように燃焼期間を求めた。

しかしながら、半減期が数年程度の同位体の計算値の確からしさを確保するには、燃料が炉内で照射 される間に複数回経験する数ヶ月間の定検期間中の崩壊を考慮する必要があり、原子炉の運転履歴を 計算に取入れなければならない。そのことを示すため、図1に運転サイクルの長さを1、サイクル間停止を 0.25として、時間あたりの生成率が1である半減期が2の核種の生成量をプロットした(ここで時間の単位 はすべて任意単位である)5。この図に示されるように同じ到達燃焼度であっても3サイクル後には、サイク

⁵時間の単位が年ならば、サイクル期間:1年、定検期間:3ヶ月、核種の半減期:2年、の場合に相当。

ル間の停止を考慮しない場合には、計算対象とした半減期2の核種の生成量評価に約7%の差を生じている。

そのため、評価開始後から原子力安全基盤機構(JNES)が公開している原子力施設運転管理年報に 掲載されているデータを参照し、原子炉の定期検査の記録、原子炉の運転履歴、そして定検時の取り出 し燃料体数が調べた。さらに、それらの情報と東京電力がホームページで提供しているデータをつきあわ せ、それぞれの炉心において何体の燃料が何サイクル照射されたのかという運転及び冷却期間の情報 を作成した。

さらに、東京電力から送付されてきたデータでは燃料の燃焼度が掲載されていたが、それを燃焼度の 大きさ順に並べると急に不連続に燃焼度が大きくなる点が存在し、燃料集合体を異なるバッチ数で照射 されたグループに分ける事が可能であることが判明した。また、西原さんはさらにグラフを作成してそれを さらに明確にする作業を行って下さった。これらの情報を総合的に判定し、それぞれの燃料グループの 照射サイクル数、照射サイクル毎に炉心から取り出された燃料体数や新しく装荷された燃料体数を想定 した。これによって、例えば半減期が2年程度の¹³⁴Csのなどの生成量に対して、仮定に基づく範囲内で はあるけども正確な評価の基礎が出来たことになる。



ところで、東京電力から提供されている データには個々の燃料集合体の到達燃焼 度のデータは記載されていたが、比出力を 含めた燃焼履歴データは与えられていな い。この時点で保守的な結果が得られてい ると考えていたし、東京電力の置かれた状 況を考えるとこれ以上のデータの要求は困 難だと判断したが、半減期が非常に短い 同位体の場合、定検期間に放射性崩壊で 無くなり運転が開始されればすぐに飽和量 に達するため、その生成量の評価には事 故発生時の運転サイクルにおける原子炉 の比出力が必要となることが課題であっ た。

その事を示すため、図2に運転サイクルの長さを1、サイクル間停止を 0.25 として、半減期が 0.02 の 核種の生成量を、その時間あたりの生成率が 1.0 で一定の場合と、1.2→1.1→1.0 と各サイクルで変化す る時の様子をプロットした(図1の場合と同様にここでも時間の単位はすべて任意単位)⁶。この図から、短 半減期核種の量はサイクル開始とともにすぐに平衡状態になること、サイクル間の冷却でほぼ無くなること と、各サイクルでの平衡量はそれぞれのサイクルにおける生成率(これは比出力に比例)で決まることがわ

⁶時間の単位が年ならば、サイクル期間:1年、定検期間:3ヶ月、核種の半減期:7.3日の場合に相当。

かる。ところが、上に書いた西原さんのグラフから、照射バッチ数が増加するとバッチ毎の燃焼度の増加 割合は次第に低下しており、照射バッチの異なる燃料グループ毎に比出力を設定する必要があることが 判明し、どうにかして炉停止直前のサイクルの比出力を評価する必要が生じた。

ここで、複数の照射サイクルを有する燃料グループについて手元にあるデータのみを使用し、全ての燃焼バッチにおいて 比出力を与えることは困難であるが、直近 の定検時に新燃料として装荷された第一 照射サイクル目の燃料の比出力は燃焼度 と照射日数から得ることが出来ることと、原 子炉の主要諸元で得られる平均比出力は 多少の上下はあるもののプラント性能を考 えれば保存されると考えられた。

そこで、①同じ照射バッチ数を持つ燃料のグループについてその平均燃焼度と 照射日数から平均比出力をもとめておき、 ②地震で停止した照射サイクルの開始時



図2 短半減期核種生成量に対する比出力の効果

に新燃料として装荷された1サイクル照射燃料については到達燃焼度から得られる比出力は正確である と仮定して固定し、③地震で停止した照射サイクルにおける全燃料の平均比出力がプラントの仕様から 得られる炉心平均比出力となるように定め、④地震で停止した照射サイクルより以前の照射サイクルにつ いて①で求まっている平均比出力に規格化因子を掛け合わせて同じ照射バッチ数を持つ燃料のグルー プの平均燃焼度が東京電力から提供されたデータに一致するようにする、こととした。これによって、炉停 止時の照射サイクルにおける炉心全体の比出力は原子炉の諸元にある炉心平均の値に規格化され、ま た新しい燃料ほど比出力が高くなる効果を、最も影響の大きな第一照射サイクル目の燃料に対して擬似 的に取り入れる事が可能になった。

これらの効果を取り入れて実施したインベントリ計算の例(1F-2、地震発生直後から一週間)を表 2 に示した。この例は一週間という短い期間であるが、要求に応じて地震発生直後から数十年の期間にわたるインベントリの変化も評価している。

なお、SFP に貯蔵されている燃料については、少数ではあるが 10-20 年以上前に照射された燃料も貯蔵されており古い燃料では履歴データを構築することが困難であった。そのため、上に書いたすべての評価を実施することが困難な場合には分かる範囲で照射履歴を作成して利用した。SFP にある燃料の場合は冷却時間が炉心に比べて長いため、到達した燃焼度が保存されていれば今回の目的に対応可能であると考えている。

表2 インベントリ計算の例

1F-2 炉心のインベントリ(Bq)(停止(地震発生)時から一週間)

14 X						冷却日	数					
仪悝	at-Quake	6h(0.25d)	12h(0.5d)	24h(1d)	36h(1.5d)	48h(2d)	60h(2.5d)	72h(3d)	96h(4d)	120h(5d)	144h(6d)	168h(7d)
CO 58	2.71E+14	2.71E+14	2.70E+14	2.69E+14	2.67E+14	2.66E+14	2.65E+14	2.63E+14	2.61E+14	2.58E+14	2.56E+14	2.53E+14
CO 60	3.46E+12	3.46E+12	3.46E+12	3.46E+12	3.46E+12	3.46E+12	3.46E+12	3.46E+12	3.46E+12	3.45E+12	3.45E+12	3.45E+12
KR 85	3.11E+16	3.11E+16	3.11E+16	3.11E+16	3.11E+16	3.11E+16	3.11E+16	3.11E+16	3.11E+16	3.11E+16	3.11E+16	3.11E+16
KR 85M	9.21E+17	3.68E+17	1.46E+17	2.27E+16	3.55E+15	5.55E+14	8.67E+13	1.36E+13	3.31E+11	8.07E+09	1.97E+08	4.81E+06
KR 87	1.34E+18	5.15E+16	1.96E+15	2.83E+12	4.11E+09	5.93E+06	8.58E+03	1.24E+01	2.60E-05	5.45E-11	1.14E-16	0.00E+00
KR 88	1.87E+18	4.32E+17	9.99E+16	5.34E+15	2.85E+14	1.52E+13	8.13E+11	4.34E+10	1.24E+08	3.53E+05	1.01E+03	2.87E+00
RB 86	4.44E+15	4.40E+15	4.36E+15	4.28E+15	4.20E+15	4.12E+15	4.04E+15	3.97E+15	3.82E+15	3.68E+15	3.55E+15	3.42E+15
SR 89	2.22E+18	2.22E+18	2.21E+18	2.19E+18	2.18E+18	2.16E+18	2.15E+18	2.13E+18	2.11E+18	2.08E+18	2.05E+18	2.02E+18
SR 90	1.91E+17	1.91E+17	1.91E+17	1.91E+17	1.91E+17	1.91E+17	1.91E+17	1.91E+17	1.91E+17	1.91E+17	1.91E+17	1.91E+17
SR 91	3.19E+18	2.08E+18	1.35E+18	5.68E+17	2.40E+17	1.01E+17	4.26E+16	1.80E+16	3.19E+15	5.67E+14	1.01E+14	1.79E+13
Y 90	1.97E+17	1.97E+17	1.96E+17	1.96E+17	1.95E+17	1.95E+17	1.94E+17	1.94E+17	1.93E+17	1.93E+17	1.92E+17	1.92E+17
Y 91	2.73E+18	2.73E+18	2.73E+18	2.72E+18	2.71E+18	2.69E+18	2.68E+18	2.66E+18	2.63E+18	2.60E+18	2.57E+18	2.54E+18
ZR 95	3.53E+18	3.52E+18	3.51E+18	3.49E+18	3.47E+18	3.45E+18	3.43E+18	3.41E+18	3.38E+18	3.34E+18	3.30E+18	3.27E+18
ZR 97	4.17E+18	3.26E+18	2.55E+18	1.56E+18	9.54E+17	5.84E+17	3.57E+17	2.18E+17	8.16E+16	3.05E+16	1.14E+16	4.27E+15
NB 95	3.07E+18	3.07E+18	3.08E+18	3.08E+18	3.08E+18	3.09E+18	3.09E+18	3.09E+18	3.10E+18	3.10E+18	3.11E+18	3.11E+18
MO 99	4.36E+18	4.09E+18	3.84E+18	3.39E+18	2.99E+18	2.63E+18	2.32E+18	2.05E+18	1.59E+18	1.24E+18	9.60E+17	7.46E+17
TC 99M	3.79E+18	3.73E+18	3.58E+18	3.22E+18	2.85E+18	2.52E+18	2.22E+18	1.96E+18	1.52E+18	1.18E+18	9.19E+17	7.14E+17
RU103	2.99E+18	2.98E+18	2.97E+18	2.94E+18	2.91E+18	2.89E+18	2.86E+18	2.84E+18	2.79E+18	2.74E+18	2.69E+18	2.64E+18
RU105	2.03E+18	8.21E+17	3.22E+17	4.94E+16	7.58E+15	1.16E+15	1.79E+14	2.74E+13	6.47E+11	1.52E+10	3.59E+08	8.47E+06
RU106	8.86E+17	8.86E+17	8.86E+17	8.85E+17	8.84E+17	8.83E+17	8.82E+17	8.81E+17	8.80E+17	8.78E+17	8.77E+17	8.75E+17
RH105	1.92E+18	1.86E+18	1.71E+18	1.38E+18	1.10E+18	8.67E+17	6.86E+17	5.42E+17	3.39E+17	2.11E+17	1.32E+17	8.25E+16
SB127	1.83E+17	1.76E+17	1.69E+17	1.54E+17	1.41E+17	1.29E+17	1.18E+17	1.08E+17	8.98E+16	7.51E+16	6.27E+16	5.24E+16
SB129	7.05E+17	2./8E+1/	1.08E+17	1.63E+16	2.46E+15	3./2E+14	5.61E+13	8.48E+12	1.93E+11	4.41E+09	1.01E+08	2.29E+06
TE127	1.69E+17	1.68E+17	1.65E+17	1.56E+17	1.45E+17	1.35E+17	1.24E+17	1.15E+17	9.80E+16	8.39E+16	7.20E+16	6.21E+16
TE127M	1.21E+16	1.21E+16	1.21E+16	1.22E+16	1.22E+16	1.22E+16	1.22E+16	1.23E+16	1.23E+16	1.23E+16	1.22E+16	1.22E+16
TE129	6.88E+17	3.80E+17	1.//E+1/	6.46E+16	4.70E+16	4.40E+16	4.32E+16	4.27E+16	4.18E+16	4.09E+16	4.01E+16	3.92E+16
TEI29M	7.04E+16	7.02E+16	7.00E+16	0.93E+10	0.80E+10	6./9E+16	6./2E+16	0.05E+10	6.51E+16	0.38E+10	0.25E+10	6.12E+16
TEISIM	0.21E+17	4.30E+17	3.97E+17	3.01E+17	2.28E+17	1./3E+1/	1.31E+17	9.93E+10	5.70E+10	3.2/E+10	1.88E+10	1.08E+10
1121	3.31E+18	3.14E+18	2.9/E+18	2.0/E+18	2.40E+18	2.15E+18	1.93E+18	1./3E+18	1.40E+18	1.12E+18	9.05E+17	1.29E+17
1131	2.315+10	2.20E+10	2.24E+10	2.10E+10	2.00E+10	2.00E+10	1.92E+10	1.04E+10	1.70E+10	1.30E+10	0.245+17	7.525+17
1132	3.37E+10	3.23E+10	3.07E+10	2.73E+10	1 50E+19	1.00E+19	6.72E+17	1.79E+10	2.02E+17	0.11E+16	9.34E+17	1.945+16
1134	5 39E+18	1.51E+17	1.57E+15	1 25E+11	9.33E+06	6.94E+02	5.17E-02	3.84E-06	2.00E-17	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
1135	4 56E+18	2 42E+18	1 29E+18	3.63E+17	1.02E+17	2 88E+16	8 13E+15	2 29E+15	1.82E+14	1 45E+13	1 15E+12	9 15E+10
XE133	4 84F+18	4.83E+18	4 79E+18	4 66E+18	4 49F+18	4 29E+18	4.07E+18	3.85E+18	3 42E+18	3.02E+18	2 66E+18	2 34F+18
XE135	1.59E+18	2 22E+18	2 05E+18	1 22E+18	6.05E+17	2 75E+17	1 20E+17	5.07E+16	8 70E+15	1 45E+15	2.37E+14	3.87E+13
CS134	2 79E+17	2 79E+17	2 78E+17	2 78E+17	2 78E+17	2 78E+17	2 78E+17	2 78E+17	2 78E+17	2 77E+17	277E+17	2 77F+17
CS136	8.49E+16	8.38E+16	8.27E+16	8.06E+16	7.85E+16	7.64E+16	7.44E+16	7.25E+16	6.88E+16	6.53E+16	6.19E+16	5.87E+16
CS137	2.55E+17	2.55E+17	2.55E+17	2.55E+17	2.55E+17	2.55E+17	2.55E+17	2.55E+17	2.55E+17	2.55E+17	2.55E+17	2.55E+17
BA140	4.30E+18	4.25E+18	4.19E+18	4.08E+18	3.97E+18	3.86E+18	3.76E+18	3.66E+18	3.46E+18	3.28E+18	3.11E+18	2.94E+18
LA140	4.38E+18	4.37E+18	4.35E+18	4.31E+18	4.26E+18	4.19E+18	4.12E+18	4.04E+18	3.88E+18	3.70E+18	3.53E+18	3.36E+18
CE141	3.70E+18	3.69E+18	3.68E+18	3.64E+18	3.61E+18	3.57E+18	3.53E+18	3.49E+18	3.42E+18	3.35E+18	3.28E+18	3.21E+18
CE143	3.78E+18	3.36E+18	2.96E+18	2.30E+18	1.79E+18	1.39E+18	1.08E+18	8.43E+17	5.10E+17	3.09E+17	1.87E+17	1.13E+17
CE144	2.36E+18	2.36E+18	2.36E+18	2.36E+18	2.35E+18	2.35E+18	2.35E+18	2.35E+18	2.34E+18	2.33E+18	2.33E+18	2.32E+18
PR143	3.72E+18	3.72E+18	3.71E+18	3.68E+18	3.64E+18	3.59E+18	3.53E+18	3.47E+18	3.33E+18	3.18E+18	3.03E+18	2.89E+18
ND147	1.55E+18	1.53E+18	1.51E+18	1.46E+18	1.42E+18	1.37E+18	1.33E+18	1.29E+18	1.21E+18	1.13E+18	1.07E+18	1.00E+18
NP239	4.23E+19	3.96E+19	3.68E+19	3.18E+19	2.74E+19	2.37E+19	2.04E+19	1.76E+19	1.31E+19	9.79E+18	7.29E+18	5.43E+18
PU238	4.58E+15	4.58E+15	4.58E+15	4.58E+15	4.59E+15	4.59E+15	4.60E+15	4.60E+15	4.60E+15	4.61E+15	4.61E+15	4.61E+15
PU239	8.74E+14	8.75E+14	8.76E+14	8.77E+14	8.78E+14	8.79E+14	8.80E+14	8.81E+14	8.82E+14	8.83E+14	8.84E+14	8.84E+14
PU240	1.09E+15	1.09E+15	1.09E+15	1.09E+15	1.09E+15	1.09E+15	1.09E+15	1.09E+15	1.09E+15	1.09E+15	1.09E+15	1.09E+15
PU241	2.68E+17	2.68E+17	2.68E+17	2.68E+17	2.68E+17	2.68E+17	2.68E+17	2.68E+17	2.68E+17	2.68E+17	2.68E+17	2.68E+17
AM241	3.99E+14	3.99E+14	4.00E+14	4.00E+14	4.01E+14	4.02E+14	4.02E+14	4.03E+14	4.04E+14	4.05E+14	4.06E+14	4.07E+14
CM242	8.63E+16	8.64E+16	8.64E+16	8.63E+16	8.62E+16	8.61E+16	8.59E+16	8.58E+16	8.54E+16	8.51E+16	8.47E+16	8.43E+16
CM244	3.07E+15	3.07E+15	3.07E+15	3.07E+15	3.07E+15	3.07E+15	3.07E+15	3.07E+15	3.07E+15	3.07E+15	3.07E+15	3.07E+15

3.7 詳細な計算との比較

ORIGEN2 をベースにしたコードを使用しているため、核分裂生成物の生成量評価において燃焼に伴う 中性子反応断面積の変化を取り入れる事はできない。そのため、一定の比出力で燃焼をする単純化した 燃焼問題に対して、統合化燃焼計算コードシステム SWAT[5]との比較も実施した。詳細な解析は西原さ んのグループが現在実施しておられるためここでは詳細に記載しないが、両者の計算結果は良く一致し ていることを確認している。

4. インベントリ計算の検証に使用可能な照射後試験データ収集の現状

ここからは、インベントリ計算の確かさらしさを検証するための同位体組成データ取得の観点から関係 する情報をまとめてみたい。

使用済燃料の臨界安全性評価において、燃料の燃焼に伴う反応度の低下を考慮すること、すなわち、 燃焼度クレジットの評価における同位体組成データの重要性に鑑み、OECD/NEA/NSC/WPNCS 燃焼 度クレジット専門家会合(EGBUC)は、公開レポートに記載されている PIE データの収集にも力を入れて いた。そこでの議論に基づき、当時の原研は使用済燃料同位体組成データベース「SFCOMPO」の開発 を行った。後年、今後公開される PIE データを国際的な協力の枠組みから入手及び配付することも視野 に入れ、2002 年に SFCOMPO は OECD/NEA に移管され、現在でもその運用が続いている (http://www.oecd-nea.org/sfcompo/)。**表 3** に、現在、SFCOMPO に内蔵されているデータの一覧を示 す。原研は SFCOMPO 自体の提供だけでなく、公開となった高浜 3 号炉の PIE データの無償提供や登 録など、SFCOMPO の拡充に協力をしてきた。

原子炉	王	炉型	集合体型式	燃料	全サンプル数
Obrigheim	Germany	PWR	14×14	UO ₂	23
Gundremmingen	Germany	BWR	6×6	UO ₂	12
Trino Vercellese	Italy	PWR	15×15	UO ₂	39
JPDR	Japan	BWR	6 ×6	UO ₂	30
敦賀−1	Japan	BWR	7×7	UO ₂	10
福島第一-3	Japan	BWR	8×8	UO_2 , UO_2 - Gd_2O_3	36(10)*
福島第二-2	Japan	BWR	8×8	UO_2, UO_2 - Gd_2O_3	18(10)*
美浜-3	Japan	PWR	15×15	UO_2	9
玄海-1	Japan	PWR	14×14	UO_2	2
高浜−3	Japan	PWR	17×17	UO_2, UO_2 - Gd_2O_3	16(5)*
Cooper	USA	BWR	7× 7	UO_2	6
Monticello	USA	BWR	8×8	UO_2, UO_2 - Gd_2O_3	30(5)*
Calvert Cliffs No.1	USA	PWR	14×14	UO ₂	9
H.B.Robinson Unit2	USA	PWR	15×15	UO ₂	6

表3 SFCOMPO に内蔵されている公開 PIE データー覧

この活動については2006年の炉物理夏期セミナーで詳しく述べているが、それ以降も新たなデータが 公開になっているわけではない。しかしながら、ベルギーのベルゴニュークリア社が幹事会社となって世 界各国の主要研究機関とメーカーの参加を得て行われた照射後試験 ARIANE[6]や、原子力安全基盤 機構が国内の原子炉で先行使用された新型燃料に対して行っている照射後試験の概要も最近開催され

8

た国際会議等を通じて知られている。そのため、それらのデータの SFCOMPO への取り入れの可能性や、 SFCOMPO の機能や内蔵データの拡充に対する要望を取り纏めることを目的とし、2006 年 9 月の WPNCS において照射後試験データについての専門家会合(Expert Group on Assay Data of Spent Nuclear Fuel; EGADSNF)が設立された。EGADSNF は当初の目的通り、PIE データや測定方法の現状な どをまとめたレポートを作成して昨年公刊している[7]。EGADSNF の今後の活動は、①SFCOMPO のシス テム自体のアップデート、②過去数年で明かになった SFCOMPO に未登録データの SFCOMPO への登 録、③SFCOMPO に登録するデータの ICSBEP で行っているようなレビュー、と聞いている。EGADSNF に は、我が国からは JAEA(筆者)、NUMO、JNES の専門家が参加しており、今後の SFCOMPO 拡充への貢 献が期待されている。

4.1 PIE 試験で得られるデータ

シビアアクシデント時のインベントリ計算で必要とされる同位体は生成量が多く半減期が数日から数十年に及ぶもので、報道でよく聞かれる^{134,137}Cs及び¹³¹Iや、希ガスである⁸⁵Krや¹³³Xeが主要な核種である。⁸⁵Krや¹³³Xeは希ガスであることの特徴からひばく評価と言うよりは、核実験が行われたかどうかを検知するための指標として使用される事の方がよく知られている核種かもしれない。

燃料の組成測定を目的とした PIE においては、アクチニド同位体には、ウラン(^{234,235,246,238}U)、ネプツニ ウム(²³⁷Np)プルトニウム(^{238-242,244}Pu)、アメリシウム(^{241,242m,243}Am)、キュリウム(²⁴²⁻²⁴⁶Cm)が含まれており、 核計算や廃棄物量評価において重要な同位体がほぼ網羅されている。一方、核分裂生成物に関しては アクチニドに比べると測定可能な同位体数は少ない。核分裂生成物の場合、ネオジム及びサマリウム同 位体は同位体希釈質量分析(ID-MS)で使用するための標準物質が入手可能であり、それらは ID-MS に よって正確な同位体量の定量が可能である。^{134,137}Cs は半減期も適当でγ線放出核種であり、¹⁴⁸Nd と同 様の燃焼度の指標にも使用されるために PIE による同位体組成測定における主要な測定対象核種と言 える。その他、¹⁰⁶Ru、¹⁴⁴Ce、¹²⁵Sb、¹⁵⁴Eu など、半減期が適度に長い同位体量は放射線スペクトロメトリに よって定量される。

4.2 クリプトン、キセノン及びヨウ素の PIE における測定例

シビアアクシデント時には、数時間から数日の半減期を有する同位体の組成評価精度が重要となるが、 短半減期の FP は PIE を実施する時点で放射性崩壊が進んでおり測定が困難である。また、ガス状の元 素を測定する場合には、それを捕獲するための機器が必要になり、従来の PIE よりも測定のバーは高い。 諸外国では、Obrighem(PWR)、Gundremmingen (BWR)、Trino_Vercellese (PWR)で照射された燃料を対 象とした PIE で Kr や Xe 同位体等の同位体比の測定がおこなわれていた。また、先に述べた ARIANE で 取得されたデータには¹²⁹Iの測定データも含まれている。これらの核種を対象とした測定は、炉物理の コミュニティではあまり注目されてこなかったと思われる。これは主に再処理工場での廃棄物発生量評価 等のために測定が実施されてきたからであろう。

我が国においては、美浜3号炉及び玄海1号炉で照射された燃料を対象にした照射後試験に於いて オフガス中に放出される⁸⁵Kr及び¹²⁹Iを測定した例が報告されている[8,9]。これは。再処理工程で放出さ れるガス状廃棄物量の定量を目的としたものであった。この測定では、銀添着ろ紙フィルタとトリエリレンジ

炉物理の研究 第64号(2012年3月)

アミン(TEDA)含浸活性炭フィルタを組み合わせた第一吸着器でヨウ素を吸着し、ドライアイスとメタノー ル混合冷媒で冷却された吸着管にゼオライトを充填した第二吸着器でキセノン及びクリプトンを吸着する。 また、トリチウムは酸化銅充填カラムで酸化し、純水中でバブリングすることでトラップしている。⁸⁵Kr及び ¹²⁹Iは、γ線測定によって定量している。ヨウ素については、化学的活性が大きく溶解液中に残留するた め、溶解液の加熱による追い出しも行っている。この PIE では、^{81,82,83,84,85,86}Kr の同位体比が質量分析で 測定されている。

主要な Kr 同位体の生成に関するデータを表4に示す。Kr 同位体の多くは核分裂収率曲線の二つある「山」のうち質量数の小さい領域の山あたりに多く生成されるが、質量数83以上の同位体は、0.1%の累積核分裂収率を持つ。しかしながら、^{80,81,82,83,84,86}Kr 以外の半減期は短く、照射後数年してから実施される通常の PIE では^{80,81,82,83,84,86}Kr の同位体比は質量分析によって測定可能であっても放射能測定によって定量する事が可能であるのは、10.8年の半減期を有する⁸⁵Kr と考えられる。

表 5 に、ヨウ素の生成に関するデータをまとめた。ヨウ素の場合、7%を超える大きな累積核分裂収率 をもつ同位体も多い。それらの半減期は短く、原子炉停止直後から環境中に放出されるようなシビアアク シデント時の被ばく評価においては重要な因子となる。一方、照射後数年に行われる照射後試験におい て検出可能な同位体は、実質的に¹²⁷ 及び¹²⁹ である。ただし¹²⁷ は安定同位体であり、質量分析が使 用できない場合には、非常に長い半減期を有する¹²⁹ だけが測定可能な同位体である事がわかる。

10

表4 クリプトン同位体生成に関するデータ

核分裂収率は JNDC FP ライブラリ第 2 版[10]、(n, γ)一群断面積は、JENDL-3.3 に基づく ORIGEN2 用ラ イブラリ[3] PWR 17×17 燃料集合体 4.1wt%のデータを抜粋

			核分裂収率 [%]					
同位体 半減其	半減期	²³⁵ U(Thermal)	²³⁵ U(Fast)	²³⁹ Pu(Thermal)	²³⁹ Pu(Fast)	一群断面積 [b]		
^{79m} Kr ^a	50s	1.49×10^{-14}	4.36×10 ⁻¹⁴	1.46×10^{-12}	9.24×10 ⁻¹³	-		
⁷⁹ Kr ^a	35h	1.72×10^{-14}	4.94×10 ⁻¹⁴	1.68×10^{-12}	1.05×10^{-12}	_		
⁸⁰ Kr	Stable	7.16×10 ⁻⁸	1.79×10 ⁻⁷	1.47×10^{-6}	1.21×10^{-6}	1.893×10^{0}		
⁸¹ Kr	2.29×10 ⁵ y	3.74×10^{-9}	1.35×10^{-9}	2.91×10 ⁻⁸	1.40×10^{-8}	0.0		
⁸² Kr	Stable	6.18×10^{-5}	1.95×10^{-4}	3.31×10 ⁻³	6.19×10^{-4}	5.238×10^{0}		
⁸³ Kr	Stable	6.38×10^{-1}	5.71×10^{-1}	2.95×10^{-1}	3.09×10^{-1}	1.474×10^{1}		
⁸⁴ Kr	Stable	1.04×10^{0}	1.10×10^{0}	4.81×10^{-1}	5.04×10^{-1}	6.411×10^{-2}		
^{85m} Kr	4.48h	1.26×10^{0}	1.25×10^{0}	5.59×10^{-1}	5.79×10^{-1}	0.0		
⁸⁵ Kr	10.8y	2.74×10^{-1}	2.69×10^{-1}	1.26×10^{-1}	1.29×10^{-1}	1.653×10^{-1}		
⁸⁶ Kr	Stable	1.97×10^{0}	1.94×10^{0}	7.60×10^{-1}	7.77×10^{-1}	1.682×10^{-3}		
⁸⁷ Kr	76.3m	2.51×10^{0}	2.46×10^{0}	9.84×10 ⁻¹	9.98×10^{-1}	5.518×10^{1}		
⁸⁸ Kr	2.84h	3.57×10^{0}	3.49×10^{0}	1.33×10^{0}	1.28×10^{0}	0.0		
⁸⁹ Kr	3.15m	4.61×10^{0}	4.32×10^{0}	1.45×10^{0}	1.47×10^{0}	0.0		
⁹⁰ Kr	32.3s	5.04×10^{0}	4.63×10^{0}	1.38×10^{0}	1.42×10^{0}	0.0		
⁹¹ Kr	8.57s	3.40×10^{0}	2.39×10^{0}	7.28×10^{-1}	1.00×10^{0}	0.0		
⁹² Kr	1.84s	1.72×10^{0}	1.05×10^{0}	3.12×10^{-1}	5.16×10^{-1}	0.0		
⁹³ Kr	1.29s	5.27×10^{-1}	2.86×10 ⁻¹	6.67×10^{-2}	1.45×10^{-1}	0.0		
⁹⁴ Kr	0.20s	2.22×10^{-1}	1.80×10^{-1}	2.18×10 ⁻²	2.86×10 ⁻²	0.0		

a - ORIGEN2 ライブラリに含まれない

表5 ヨウ素同位体生成に関するデータ

核分裂収率は JNDC FP ライブラリ第 2 版[10]、(n, γ)一群断面積は、JENDL-3.3 に基づく ORIGEN2 用ラ イブラリ[3] PWR 17×17 燃料集合体 4.1wt%のデータを抜粋

同告任) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1	核分裂収率 [%]				
1月11114	干顺别	²³⁵ U(Thermal)	²³⁵ U(Fast)	²³⁹ Pu(Thermal)	²³⁹ Pu(Fast)	一群断面積
122 I ^a	3.63m	3.50×10^{-19}	2.84×10 ⁻¹⁸	6.11×10^{-16}	1.14×10^{-15}	-
123 I ^a	13.3h	9.02×10^{-17}	7.28×10^{-16}	8.04×10^{-14}	1.91×10^{-13}	_
124 I ^a	4.18d	1.19×10^{-15}	9.00×10 ⁻¹⁵	1.11×10^{-12}	2.13×10 ⁻¹²	-
$^{125}I^{a}$	59.4d	6.09×10^{-14}	3.99×10 ⁻¹³	4.43×10 ⁻¹¹	7.82×10 ⁻¹²	-
126 I ^a	13.1d	2.81×10^{-10}	2.37×10 ⁻¹¹	2.10×10 ⁻⁹	3.28×10 ⁻⁹	_
¹²⁷ I	stable	1.25×10^{-1}	2.79×10^{-1}	4.90×10^{-1}	5.53×10^{-1}	4.43×10^{0}
¹²⁸ I	25.0d	$1.07{\times}10^{-6}$	9.64×10 ⁻⁸	9.44×10^{-5}	3.88×10 ⁻⁶	0.0
¹²⁹ I	1.57×10 ⁷ y	7.18×10^{-1}	8.23×10 ⁻¹	$1.39 \times 10^{\circ}$	1.53×10^{0}	1.56×10^{0}
$^{130\mathrm{m}}\mathrm{I}$	9m	6.49×10^{-5}	3.16×10^{-5}	1.66×10^{-3}	1.00×10^{-3}	0.0
¹³⁰ I	12.4h	2.06×10^{-4}	1.12×10^{-4}	5.26×10^{-3}	3.56×10^{-3}	6.67×10^{0}
¹³¹ I	8.02d	$2.88 \times 10^{\circ}$	3.18×10^{0}	$3.85 \times 10^{\circ}$	3.87×10^{0}	7.09×10^{0}
^{132m}I	1.39h	7.10×10^{-3}	1.75×10^{-2}	8.02×10^{-2}	1.02×10^{-1}	-
¹³² I	2.30h	$4.30 \times 10^{\circ}$	4.60×10^{0}	$5.38 \times 10^{\circ}$	$5.29 \times 10^{\circ}$	0.0
^{133m} I	9s	3.84×10^{-1}	4.68×10^{-1}	8.02×10^{-1}	8.14×10 ⁻¹	0.0
¹³³ I	20.8h	6.70×10^{0}	6.72×10^{0}	6.93×10^{0}	6.83×10^{0}	0.0
^{134m}I	3.69m	3.53×10^{-1}	5.88×10^{-1}	1.15×10^{0}	1.34×10^{0}	0.0
134 I	52.6m	7.74×10^{0}	7.53×10^{0}	7.27×10^{0}	7.05×10^{0}	0.0
¹³⁵ I	6.57h	6.29×10^{0}	6.23×10^{0}	6.45×10^{0}	$6.05 \times 10^{\circ}$	2.12×10^{-3}
^{136m} I	46.9s	$2.25 \times 10^{\circ}$	2.35×10^{0}	$2.05 \times 10^{\circ}$	2.40×10^{0}	0.0
¹³⁶ I	83.4s	$2.47 \times 10^{\circ}$	2.38×10^{0}	1.41×10^{0}	1.41×10^{0}	0.0
¹³⁷ I	24.5s	3.22×10^{0}	3.38×10^{0}	2.43×10^{0}	1.90×10^{0}	0.0
¹³⁸ I	6.49s	1.59×10^{0}	1.74×10^{0}	1.16×10^{0}	1.04×10^{0}	0.0
¹³⁹ I	2.29s	9.81×10^{-1}	6.51×10^{-1}	3.11×10 ⁻¹	1.87×10^{-1}	0.0
^{140}I	0.86s	2.18×10^{-1}	1.46×10^{-1}	5.93×10^{-2}	2.69×10 ⁻²	0.0
^{141}I	0.43s	1.46×10^{-2}	1.71×10^{-2}	6.92×10 ⁻³	2.81×10 ⁻³	0.0
^{142}I	0.2s	6.09×10^{-3}	2.52×10^{-3}	2.35×10^{-4}	1.54×10^{-4}	0.0
^{143}I	219ms	1.24×10^{-5}	2.90×10 ⁻⁵	5.17×10^{-7}	7.69×10 ⁻⁷	0.0
144 I	185ms	1.56×10^{-7}	6.94×10 ⁻⁷	4.95×10 ⁻⁹	7.82×10 ⁻⁹	0.0
145 I ^a	102ms	1.54×10^{-9}	6.48×10 ⁻⁹	3.20×10 ⁻¹¹	5.42×10 ⁻¹¹	_
146 I ^a	79.7ms	1.15×10^{-9}	2.82×10 ⁻¹¹	6.10×10^{-12}	9.62×10 ⁻¹²	-
147 I ^a	54.3ms	3.86×10^{-12}	2.83×10 ⁻¹²	1.17×10^{-14}	1.88×10^{-14}	-

a - ORIGEN2 ライブラリに含まれない

4.3 クリプトン同位体測定値の解析結果

これまでの PIE 解析の経験から、¹³⁷Cs は数%、¹³⁴Cs でも 10%以内でその燃料中での生成量を評価で きることがわかっている。また、JENDL-4 を使用することで、¹³⁴Cs 生成量評価の誤差は大きく改善されて いる[11]。そこで、シビアアクシデント時に重要な核種の生成量評価誤差はどの程度あるかを調べるため、 最初に美浜 3 号炉及び玄海 1 号炉で得られた Kr の同位体組成データと計算値[12]を比較した。

⁸⁵Kr の生成量の評価結果を**表**6 に示した。実験値はクリプトンを捕集管にトラップし Ge 検出器で測定 した値である。解析は、統合化燃焼計算コードシステム SWAT を使用し、中性子核反応断面積は JENDL-3.2 のデータ、その他の崩壊定数や分岐比また核分裂収率データなどは JNDCFP ライブラリ第 2 版のデータを使用した結果である。なお、サンプル 86B03 の値は他のサンプルの値とは明らかにはず れておりレポート作成時のデータ記載ミスなどの可能性も考えるため比較は行っていない。実際そのサン プルについては、同位体比の測定値などのデータが無く、実験値と計算値の比較を行うことは困難であ る。この表から、86G03 サンプル以外は概ね、SWATを使用したときの FP 評価誤差として考えていた 10% 以内で実験値と計算値は一致していることがわかる。

• • • • • •			
サンプル名	燃焼度[GWd/t]*	実験値[g/tIHM]	C/E
86B03	6.69	-	-
86G05	14.94	9.87E+00	0.90
86G03	20.67	8.07E+00	1.47
86G07	14.25	8.56E+00	0.99
87C03	28.84	1.56E+01	0.96
87C04	31.64	1.53E+01	1.05
87C07	33.02	1.56E+01	1.08
87C08	33.39	1.84E+01	0.92
87H01	37.99	1.83E+01	1.04
87H05	37.38	1.75E+01	1.05

表6美浜3号炉及び玄海1号炉照射燃料⁸⁵Krの生成量評価結果

*参考文献 12 で再評価された値

表 7 に Kr 同位体比の測定値を解析した結果を示した。 燃焼度が 15GWd/t 程度と低い場合には、 C/E は大きくずれるが、 概ね 30 GWd/t 以上の燃焼度では、15% 程度の差となっている。 この値は、 表 8 に示した Obrigheim 炉で照射された燃料から取得されたデータを解析した場合[13]よりも一致が悪くなっ ている。 この解析では核データに JENDL-3.3 を使用しているが、 表に示すように⁸³Kr 以外は中性子捕獲 断面積が小さく、また累積核分裂収率の値が大きな同位体である。 したがって、 解析方法や中性子断面 積評価の問題でこのような結果になっているとは結論できない。

サンプル名	燃焼度[GWd/t]*	Kr-83/Kr-86	Kr-84/Kr-86	Kr-85/Kr-86
86B03	6.69	-	-	-
86G05	14.94	1.77	1.23	_
86G03	20.67	1.74	1.24	_
86G07	14.25	0.79	0.87	-
87C03	28.84	0.90	0.94	0.85
87C04	31.64	0.91	0.95	0.85
87C07	33.02	0.90	0.90	0.84
87C08	33.39	0.94	0.94	0.92
87H01	37.99	0.97	0.98	1.13
87H05	37.38	0.75	0.83	0.72

表7 美浜3号炉及び玄海1号炉照射燃料 Kr 同位体比の評価結果(C/E)

*参考文献12で再評価された値

表8 Obrigheim 炉照射燃料 Kr 同位体比の評価結果(C/E)

サンプル名	燃焼度[GWd/t]*	Kr-83/Kr-86	Kr-84/Kr-86	Kr-85/Kr-86
D1-P1	21.52	1.87	1.92	1.96
E3-P2	35.64	0.97	1.02	1.08
E3-P4	31.45	1.02	1.00	1.03
G7-P1	23.08	0.98	1.03	1.04
G7-P3	31.66	1.03	1.00	1.04
G7-P5	26.25	1.00	0.99	1.01
M14-P1	15.86	1.01	1.01	1.02
M14-P4	25.31	1.02	1.00	1.03
G14-P3	37.59	1.06	1.01	1.05
K14-P4	33.47	0.97	1.05	1.04

*参考文献13で再評価された値

表9 には⁸⁵Kr の放射能測定結果とKr 同位体の同位体比測定結果から得た、全Kr 量の解析結果 を示す。参考文献[8,9]にはKr 量を測定した結果が掲載されているが、ここでは⁸⁵Kr 放射能量と同位体 比測定結果を組み合わせて全Kr 量を再評価して計算値と比較を行っている。表6 で示した⁸⁵Kr の放射 能測定の結果との比較より実験値と計算値の差は大きくなっているが、それでも87H05 を除いては、ほぼ 20% 以内の精度で生成量を評価できていることがわかる。

サンプル名	燃焼度[GWd/t]*	Kr 量[g/tIHM]	C/E
86B03	6.69	_	-
86G05	14.94	-	-
86G03	20.67	_	_
86G07	14.25	1.616E+02	1.07
87C03	28.84	2.918E+02	1.09
87C04	31.64	2.874E+02	1.20
87C07	33.02	2.961E+02	1.20
87C08	33.39	3.758E+02	0.96
87H01	37.99	4.453E+02	0.91
87H05	37.38	3.037E+02	1.31

表9 美浜3号炉及び玄海1号炉照射燃料 Kr 量評価結果(C/E)

*参考文献 12 で再評価された値

4.4 ヨウ素同位体測定値の解析結果

表10には、¹²⁹Iの生成量評価結果を示す。計算結果には最大で10%程度の差があるが、SWATを使用 したときの FP 評価誤差として考えていた10% の範囲にはほぼ入っている。参考文献[8,9]によれば、ヨウ 素については90%以上のヨウ素が燃料サンプル溶解時に放出されるものの、溶液中に残存するヨウ素が 存在し、それを追い出すための NO₂ と KIO₃ の添加が有効であったと記載されている。その上で不明の ヨウ素が1-2%あると報告されている。すなわちヨウ素については他の FP データよりは測定誤差が大きいこ とも考えれば、十分な精度で計算されていると判断できる。なお ARIANE で取得されたデータには¹²⁹I の測定データが含まれており、SWAT の最新バージョンである連続エネルギーモンテカルロ計算コードを 使用する SWAT3.1 を用いた解析結果は、実験値と 50%程度の差を示していた [14]。ヨウ素の測定が困 難で有り測定誤差も他の核種よりも大きい事を考えれば、この差は実験側にも大きな原因があるようにも 思われる。

¹³¹I は半減期が短く測定値が無いため SWAT との直接的な比較はできない。しかし、この核は核分裂 収率と比出力でほとんど生成量が決まる核種であるので、その核分裂収率の誤差が¹²⁹I のそれとほぼ同 じと考えれば、¹³¹I も¹²⁹I と同等の生成量予測精度があると考えてよいだろう。ヨウ素は溶液中に残留する 場合があり測定が難しい同位体の一つであるので、今後もデータの拡充を目指して測定技術を確立する とともに、そのデータを使用して評価用計算コードの信頼性をさらに高める事が重要であると考えられる。

15

サンプル名	燃焼度[GWd/t]*	¹²⁹ I 量[g/tIHM]	C/E
86B03	6.69	2.87E+01	1.06
86G05	14.94	7.61E+01	0.94
86G03	20.67	_	-
86G07	14.25	7.43E+01	0.92
87C03	28.84	1.63E+02	0.89
87C04	31.64	1.72E+02	0.94
87C07	33.02	1.72E+02	0.97
87C08	33.39	1.69E+02	1.00
87H01	37.99	2.08E+02	0.92
87H05	37.38	1.92E+02	1.00

表 10 美浜 3 号炉及び玄海 1 号炉照射燃料¹²⁹I 量評価結果(C/E)

*参考文献 12 で再評価された値

5. 結論 - インベントリ計算の将来

将来、再びこのような計算を実施することは考えたくもない。が、今回の経験から何か教訓と言えるよう なものを得るとすれば、まずは評価者自身が原子炉プラント全体に対する基礎知識を持つことと、事前の 準備が肝要、という事を申し上げたい。予想した通り、事故時のインベントリ計算では最初に保守的な結 果が求められるとしても、最終的には出来るだけ正確な値を要求されることとなった。その度に一生懸命 資料を開いてさらに信頼性のあるデータを得ることに努めたのであるが、そういう時には最新のデータを 掲載したデータブック類の重要性を認識し、もっと余裕の有るときにまとめてあれば、、、と感じる事が多か った。これは、緊急時対応の一つとして各プラントの基本的な炉心パラメータや運転履歴、SFP に貯蔵し てある燃料の体数やそれぞれの照射履歴などは、いつでも使えるように整理しておかれるべきである事を 示している(現場にいた我々の手元に無いだけだったのかもしれないが)。さらに一歩踏み込めば、 ORIGEN2 の計算は短時間で終了するので、準リアルタイムで、例えば毎日、国内の全原子炉に対してイ ンベントリ計算を実施することも困難ではない。集団線量予測が事故後の対応において重要となることに 疑いの余地は無い。インベントリ計算の結果は事故解析によるソースターム評価の基礎となるものである ため、出来るだけ正確な値を素早く提供する必要があるだろう。このアイディアは、その観点から今後緊 急時対策が見直される時に検討されるべき事項と考えている。

また、最初に書いた作業の複数人による実施についても再度述べておきたい。ORIGEN2の実行は単純な作業であるが、依頼側は出来るだけ早くそして正確な結果を期待しているのであり、事故の社会的影響を考えると数字を提示する方にもかなりのプレッシャーがかかる。そのため、一人の人間で作業を抱

炉物理の研究 第64号(2012年3月)

え込まず、複数の人間で入力や出力を確認しながら作業をすることは、得られた結果の妥当性を確保し、 作業者のモチベーションや健康を維持する上でも非常に重要であった。複数の人間が作業にかかわるこ とによる過度な負担の軽減は、作業の重要度が高く長期間に及ぶ場合には特に必要ではないかと思う。 その点、筆者は西原さんと細山田さんのお力を借りることが出来て本当に運がよかった。その意味で、私 がインベントリ計算をしたというのではなく、3人でインベントリ計算を担当したという事を強調したい。

最後にもう一つ、事故対応を行っている最中に感じたのだが、実験やっている人はこういう事態に対し てその影響や、提示された数字の重要度のイメージをつかむのが早いように感じた。普段机の前にすわ ってディスプレイを眺めるだけでは得る事の出来ない感覚が実験をしている人にはあるように思う。計算コ ードと核データの進歩は慶賀すべき事であるけども、実験を通じて技術や数字に対するセンスを磨いて おくことは大変重要だと痛感した。今回の事故を受けて減原発とか脱原発が話題となり、この環境下での 原子力の技術の継承がクローズアップされる時があるが、技術の維持には紙と鉛筆だけではなく実体験 として放射性物質をあつかうことが必須であって、実験施設の維持には教育的な効果も有ることが認識さ れるべきである。

本レポートでは、これまでSWATでは解析対象としなかった揮発性核種のPIEデータを調査し、実験デ ータが入手可能な美浜3号炉及び玄海1号炉で照射された燃料から得られたデータを中心に、原子力 機構が開発を進めているSWATの計算値を比較した。その結果、クリプトン及びヨウ素の実験値について も、ほぼ所定の性能を満たせることがわかった。欧州で1960-70年代に実施されたPIEでもデータが得ら れているので比較を行ったが、その場合の実験値と計算値の一致は良く、FP核種については概ね10%、 悪くても20%以内で予測可能であるという、既存のSWATの予測精度の見積もりの範囲内にあることが確 認出来た。

使用済燃料の特性として同位体組成データは基本的なものである。従来の炉物理分野からの PIE の 必要性は核特性に影響を及ぼす核種の生成量評価にあった。しかしながら、シビアアクシデント評価など 核特性以外にも同位体組成データには重要な利用分野があり、OECD/NEA に設立された EGADSNF で は放射性廃棄物の処理処分の専門家も参加している。今回の事故をうけ、今後も継続的に同位体組成 取得プログラムが実施されることと、シビアアクシデント対策を視野に入れた測定対象核種の充実が強く 望まれよう。その時には、測定手法についても以前の実験時の問題点を踏まえつつ検討していく必要が あるだろう。

(2012年1月1日 東海村にて)

参考文献

- 1. http://www.oecd-nea.org/tools/abstract/detail/nea-1642.
- 2. 豊田正敏他編 "原子力発電技術読本(改訂第二版)," オーム社(1976).
- 3. 片倉純一、片岡理治、須山賢也、神智之、大木繁夫, "JENDL-3.3 に基づく ORIGEN2 用断面積ラ イブラリセット: ORLIBJ33," *JAERI-Data/Code 2004-015*,日本原子力研究所 (2004).
- 4. J. Katakura, T. Yoshida, K. Oyamatsu and T. Tachibana: "JENDL FP Decay Data File 2000," JAERI

1343 (2001).

- 5. 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*,日本原子力研究所,(2000).
- R.T. Primm III, "ARIANE International Programme Final Report". ORNL/SUB/97-XSV750-1, Oak Ridge National Laboratory (as of AR2000/15 BN Ref. 0000253/221 Rev. B 2003 of Belgonucleaire)(2003).
- 7. OECD/NEA/WPNCS/EGADSNF, "Spent Nuclear Fuel Assay Data for Isotopic Validation State-of-the-art Report," NEA/NSC/WPNCS/DOC(2011)5, OECD/NEA (2011).
- 8. 化学部溶解試験グループ, "使用済燃料の溶解試験," JAERI-M 91-010, 日本原子力研究所 (1991).
- 9. 古牧睦英、石川二郎、高橋昭、横山淳、桜井勉、大貫守、小林義威、安達武雄, "使用済軽水炉燃 料溶解時の揮発性核種の分析方法と挙動," 日本原子力学会誌, **33** [5], pp.489-497 (1991).
- Kanji Tasaka, Jun-ichi Katakura, Hitoshi Ihara, Tadashi Yoshida, Shungo Iijima, Ryuzo Nakasima, Tsuneo Nakagawa, Hideki Takano, "JNDC Nuclear Data Library of Fission Products - Second Version -," *JAERI 1320*, Japan Atomic Energy Research Institute (1990).
- G. Chiba, K. Okumura, K. Sugino, Y. Nagaya, K. Yokoyama, T. Kugo, M. Ishikawa and S. Okajima, "JENDL-4.0 Benchmarking for Fission Reactor Applications," *Journal of Nuclear Science and Technology*, 48(2), pp.172–187 (2011).
- Kenya Suyama, Hiroki Mochizuki, "Corrections to the ¹⁴⁸Nd method of evaluation of burnup for the PIE samples from Mihama-3 and Genkai-1 reactors," *Annals of Nuclear Energy*, **33** [4], pp.335-342 (2006).
- 13. H. Sugino, K. Suyama, H. Okuno, "Analysis of Post Irradiation Examination Data of Samples from Obrigheim PWR with Re-evaluation of Burnup Values by Neodymium-148 Method Using Latest Nuclear Data Library," The 8th International Conference on Nuclear Criticality Safety (ICNC2007), (May 2007), Proceedings of the 8th International Conference on Nuclear Criticality Safety (ICNC2007), 27 May - 1 June 2007, St. Petersburg, Russia.
- 14. 須山賢也,望月弘樹,高田友幸,龍福進,奥野浩,村崎穣,大久保清志,"連続エネルギモンテカルロコード MVP 及び MCNP を使用する統合化燃焼計算コードシステム SWAT3.1," JAEA-Data/Code 2009-002,日本原子力研究開発機構(2009年).