

燃焼計算の研究現場応用

日本原子力研究開発機構

福島研究開発部門 廃炉国際共同研究センター(CLADS)

奥村啓介

1. はじめに

筆者は、1986年に日本原子力研究所(原研)に入所し、主に将来型炉(高転換軽水炉、宇宙炉、受動的な安全炉、熔融塩炉、蒸気冷却高速炉など)の開発や支援に従事した。将来型炉のような経験がない原子炉の開発では、手法・データ・コードの開発は必ずついて回ることになり、その必要性から核データの高度化とベンチマーク、各種炉定数ライブラリの作成、SRAC^{1,2)}、MVP³⁾、MOSRA^{4,5)}のような炉物理系の計算コードシステムの開発も手掛けることとなった。

当時の原研には、VHTRC、TCA、FCA、JMTRC、STACY/TRACYといった臨界集合体の他、燃料が燃焼する原子炉としては、JRR-2、JRR-3M、JRR-4、NSRR、HTTRがあった。これらの原子炉は、燃料、被覆材、減速材、制御材、幾何形状、中性子スペクトルなどに関し、多くの異なる特徴があることから、解析屋泣かせではあるが、筆者はこれらの解析を通して多くのことを学ぶことができた。

2005年10月のJ-J統合により日本原子力研究開発機構(JAEA)が設立された後は、六ヶ所再処理工場の高レベル廃液や通常炉の廃止措置研究に従事する機会を得て、混合系の放射能インベントリ評価や微量不純物に起因する放射化計算などといった筆者にとっては新しい境地の問題に取り組むことになった。また、この期間に多くの核種分析の専門家たちと議論をする機会を得た。分析者との交流は、実践的な燃焼や放射化計算を学ぶ上で、必須であろうと考えている。

最後に行きついた(?)のは、現在手掛けている福島第一原子力発電所(1F)の廃炉に係る研究であるが、新型炉開発、核データ、高レベル廃液のような一見無関係とも思われる分野で得てきた知識と経験が思いのほか役立っていることに我ながら驚かされている。

以下では、これらの研究過程や経験を通して筆者が得た知見から、教科書や論文ではあまり扱われていないが、燃焼計算の現場応用には有効と思われることを記載することで、この分野の技術継承の一助になればと願う次第である。

2. 様々な燃焼・放射化計算

核種崩壊生成計算の目的は、原子炉の設計や運転管理、核データベンチマーク、加速器や再処理施設などを含む原子力施設の遮蔽設計、核物質の計量管理、分析技術や検出器開発支援、原子力施設の廃止措置、放射性物質の輸送、貯蔵、処理、処分における安全性評価など、様々である。これらに共通することは、興味の対象とする物質中の目的に必要な核種の原子数(または重量)を求めることである。核種崩壊生成計算は、燃料物質を対象とするような場合には「燃焼計算」と呼ばれ、構造材物質などを対象とする場合には「放射化計算」と呼ばれる。以下では、特に区別しない限り「燃焼計算」と呼ぶこととする。

燃焼計算では、着目する核種(i)の原子数密度 N_i の時間変化を考え、一般に以下の式で表される。

$$\frac{dN_i}{dt} = -[\text{核種}i\text{の消滅率}] + [\text{核種}i\text{の生成率}] \quad (1)$$

原子炉燃料の場合、消滅率の項には、着目核種の全てのモードの崩壊($\lambda_i N_i$)と中性子による吸収反応率 ($N_i \int \sigma_{a,i}(E)\phi(E)dE$) を考慮すれば十分である。一方、生成率には、他核種からの崩壊による生成($\sum\{f_{j \rightarrow i}\lambda_j N_j\}$)、中性子捕獲反応等の核変換反応¹による生成 ($\sum\{g_{k \rightarrow i} N_k \int \sigma_{x,k}(E)\phi(E)dE\}$)、および核分裂反応による FP としての生成 ($\sum\{\gamma_{l \rightarrow i} F_l\}$, F は核分裂率) が含まれる。ここで、 λ は崩壊定数、 f は崩壊分岐比、 g は核変換による分岐比、 γ は核分裂収率、 σ_x は断面積であり、これらは核データにより与えられる。また、 ϕ は中性子輸送方程式を解いて得られる。(1)式を、後述する燃焼チェーンに現れる全ての核種について連立させ、Bateman 法⁶⁾、Taylor 展開法⁷⁾、Krylov 部分空間法⁸⁾、チェビシェフ有理関数近似法⁹⁾などの手法で解くことにより、全ての核種についての原子数密度の時間変化を求めることができる。このあたりの説明は、ここでの主題ではないため、参考文献⁶⁻¹⁰⁾を見ていただくことを期待して、ここでは省略する。

将来型炉や放射化の分野では、(1)式の応用として様々な興味深い計算がある。例えば、熔融塩炉のように運転中に人為的に特定の核種を供給・除染するような場合には、供給率や除染率を(1)式に組み込み、非同次系の方程式を解く必要がある。また、高温燃料から温度に依存する揮発性核種の放出を扱う場合、あるいは冷却水配管のような循環系の蓄積放射エネルギーを評価するような場合には、核種の移行モデルを燃焼方程式に組み込んだり、熱伝導計算や熱流動計算などとの連成計算を行ったりする必要がある。また、近年では、核融合炉や加速器施設に対する放射化の分野で、計算手法の大きな進展が見られている。これらの施設では、中性子のみならず、陽子、重陽子、 α 粒子、 ^{12}C のような荷電粒子により引き起こされる放射化や、核破砕反応による放射性核種の生成を考慮する必要がある。これらの扱いに興味がある方は、参考文献¹¹⁾の第8章を一読されると良い。

3. 燃焼チェーンの作成

燃焼チェーンの作成には、詳細な崩壊データを収納する JENDL Decay Data File 2015 (JENDL-FPD2015)¹²⁾や核分裂収率データを収納する JENDL FP Fission Yields Data File 2011 (JENDL-FPY2011)¹³⁾などを利用する。前者は 3,237 核種(中性子を含む)の崩壊データを、後者は ^{227}Th から ^{254}Fm までの 36 個の核分裂を起こす親核種に対して、1,284 個の FP 核種の収率データを含む。これらのデータを機械的に全て取り込むと膨大な数の短寿命核種を扱うことになり、物理現象が見えにくい、解法によっては数値計算上のトラブルを発生させる、無用な計算コストが掛かる、出力データが見にくいなどのデメリットがある。このため、核設計計算などの多数のルーチン作業を行うコードでは、必要最低限の核種に絞り込んだ燃焼チェーンを作成して使用

¹ 原子炉の核設計計算では、断面積ライブラリを有する(n,γ)のみを考慮し、数 MeV 程度の閾エネルギーを有する($n,2n$)、($n,3n$)、(n,p)、(n,α)反応などは無視することがある。ORIGEN2 では、核種に依存してこれら最大 5 つの生成反応パスを扱っており、最近の SCALE システムに組み込まれた ORIGEN-S では更に多くの核反応を扱っている。厳密に言えば、準安定な励起核を生成する非弾性散乱も消滅項や生成項に含めるべきであるが、これは燃焼チェーンの記述方法にも依存する。

することが多い。

図 1 は、SRAC や MVP-BURN で共通して使用している燃焼チェーンモデルの一例である。UO₂ や MOX 燃料の核特性解析の場合には、おおむねこの程度の重核種を扱えば実用に耐えうる。同図の ²³⁸U(n,γ)→²³⁹U(β⁻崩壊)→²³⁹Np の崩壊系列において、²³⁹U の部分を○印としているのは、半減期が短い ²³⁹U (24.5 m) の生成・崩壊過程を省略し、²³⁸U の中性子捕獲により ²³⁹Np が直接生成するモデルにしていることを表している。このような近似を導入しても、明示的に扱っている核種の生成量はほとんど変わることはない。しかし、²³⁹U はウラン燃料の原子炉において、ECCS 等による炉停止直後のアクチノイド崩壊熱の第一寄与核種であることに注意しておく必要がある。

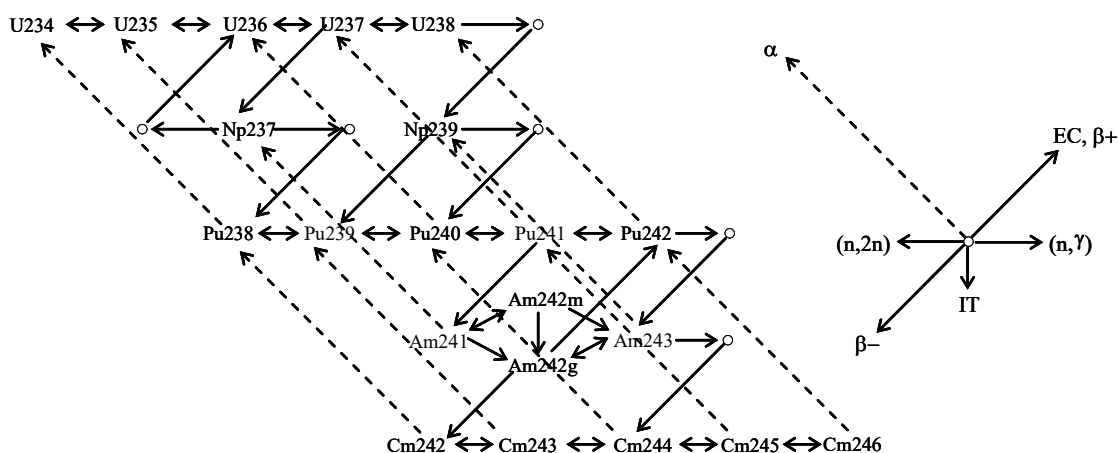


図 1 SRAC, MVP, MOSRA における重核種用燃焼チェーンの例²⁾

次に FP 核種のチェーンの簡素化方法を説明する。図 2 の左側は、核分裂でできた質量数 A の短寿命核種が次々と β⁻崩壊し、安定核 _zA に至るチェーンと _{z+1}A で示した核種が β⁺崩壊 (または EC) により安定核 _zA に至るチェーンを示している。γ はそれぞれの核種の核分裂収率であり、これを独立収率 (independent yield) と呼ぶ。ここで、仮に、β⁻崩壊核種の全ての崩壊定数が微視的吸収反応率 (σ Φ) に比べて十分に大きい (半減期が短い) 場合には、m=1~Z までの独立収率を足しこんだ実効収率 $\langle \Gamma_z \rangle$ により、安定核 _zA が直接生成されると近似することができる (チェーンモデル①)。更に、β⁺崩壊をする核種 _{z+1}A の半減期も十分に短ければ、図 2 の②のようにチェーンを簡素化ができる。ここで、 $\langle \Gamma_z \rangle + \gamma_{z+1}$ のことを、_zA に至る全ての核種の独立収率を足しこんだものとして、_zA の累積収率 (cumulative yield) と呼ぶ。JENDL-FPY2011 のような評価済み崩壊データファイルには、独立収率と累積収率のデータが収納されている。このように、独立収率と実効収率を組み合わせで作成したチェーンを、以下では便宜的に「簡素化チェーン」と呼ぶこととする。

実際の FP チェーンは、図 3 (左) に示すように、崩壊分岐や核異性体分岐 (核反応による分岐) を有し複雑である。このような場合にも、崩壊分岐比を考慮して実効収率を考えることにより、

²⁾ 独立収率を足しこんでいるという意味では、 $\langle \Gamma_z \rangle$ は一種の累積収率と言えるが、後述の累積収率と区別するため、一般的な用語ではないが、 $\langle \rangle$ で示すチェーンの簡素化のために加工した収率を「実効収率」と呼ぶことにした。

図3(右)のような簡素化チェーンを作ることができる。なお、核異性体分岐比は、実効収率に影響を与えない。

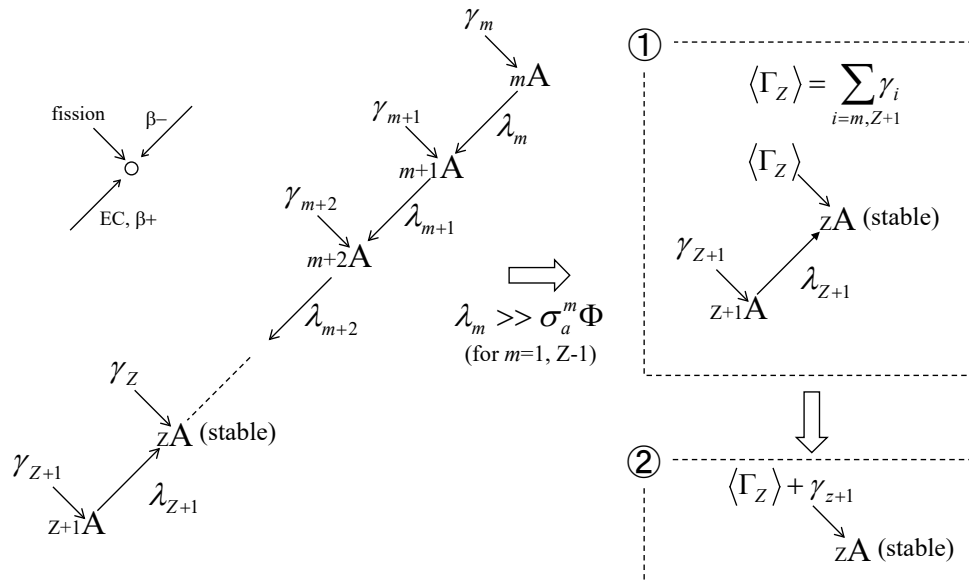
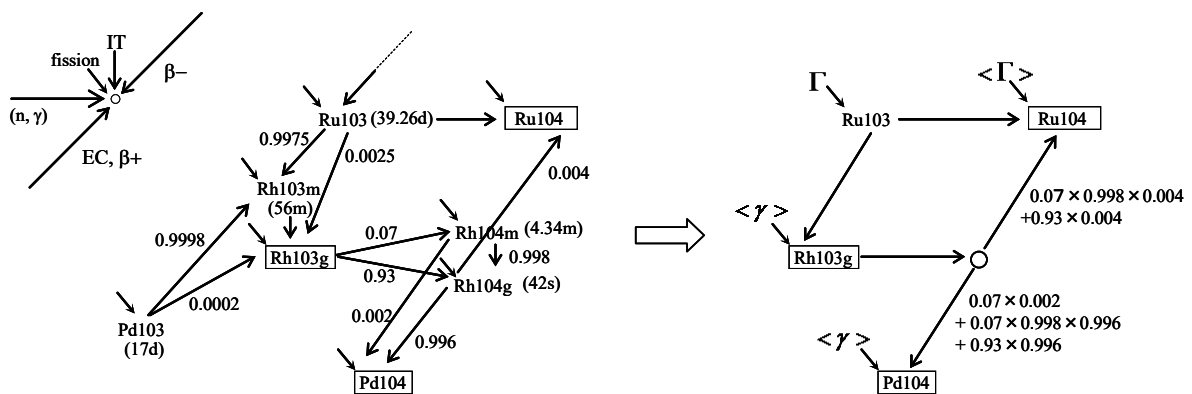


図2 独立収率と累積収率を使ったFPチェーンの簡素化



$$\begin{aligned}
 \langle \Gamma(\text{Ru-103}) \rangle &= \Gamma(\text{Ru-103}) \\
 \langle \gamma(\text{Rh-103g}) \rangle &= \gamma(\text{Rh-103g}) + \gamma(\text{Rh-103m}) + \gamma(\text{Pd-103}) \\
 \langle \gamma(\text{Pd104}) \rangle &= (0.002 + 0.998 \times 0.996) \cdot \gamma(\text{Rh104m}) + 0.996 \cdot \gamma(\text{Rh-104g}) + \gamma(\text{Pd-104}) \\
 \langle \Gamma(\text{Ru-104}) \rangle &= \Gamma(\text{Ru-104}) + 0.004 \cdot \gamma(\text{Rh-104g}) + 0.998 \times 0.004 \cdot \gamma(\text{Rh-104m}) \\
 &= \Gamma(\text{Ru-104}) + 0.998 \times 0.004 \cdot \gamma(\text{Rh-104m})
 \end{aligned}$$

図3 FP 燃焼チェーンの簡素化の例 (γ : 独立収率、 Γ : 累積収率)

$\langle \gamma \rangle$ と $\langle \Gamma \rangle$ は実効収率

解析対象とする炉型をある程度限定すれば、計算目的に対して原子数密度の評価が不要なFP核種を集めた疑似FP核種(ランプ化FPとも言う)を導入することにより、大幅なFPチェーン

の簡素化が可能となる。以下では、SRAC や MVP-BURN 用に使用した疑似 FP 核種の断面積作成方法を紹介する。ただし、疑似 FP 核種の断面積を作成するには、予めこれが不要な程度に詳細な燃焼チェーンモデルが必要である。例えば、MOSRA 版の SRAC では、「th2cm6fp198bp8T/F」⁴⁾がこれにあたる。現在では、疑似 FP 核種をほとんど導入していないが、最初の MVP-BURN¹⁴⁾では、30 個の FP と 4 つの疑似 FP (S56:²³⁵U 核分裂による疑似 FP、S86 : ²³⁸U 核分裂による疑似 FP、S96 : ²³⁹Pu 核分裂による疑似 FP、S16 : ²⁴¹Pu 核分裂による疑似 FP) からなる FP チェーンを採用していた。これは、当時の共有メモリ型並列計算機のノードごとのコアメモリが 20 MB 程度しかなく、多くの核種に対する連続エネルギー断面積ライブラリを利用できなかったためである。

SRAC 及び MVP-BURN の疑似 FP 断面積の作成は、以下の手順で行った。

- ① SRAC の詳細燃焼チェーンモデル (テキストファイル) を編集し、全ての親核種の FP 収率を ²³⁵U、²³⁸U、²³⁹Pu、²⁴¹Pu のそれぞれに置き換えた 4 種類のチェーンモデルを作成する。
- ② 代表炉型として PWR を選定し、①で作成した各詳細チェーンモデルを用いて、単一ピンの格子燃焼計算を行う。
- ③ 燃焼中期において、明示的に扱う 30 核種を除くすべての FP 核種 (疑似 FP) の巨視的吸収断面積を求め、疑似 FP 核種とする原子数密度の和で除して、多群微視的吸収断面積を作成する。
- ④ 4 ケースの燃焼計算から得た多群微視的断面積(S56、S86、S96、S16)を SRAC ライブラリに、通常の核種と同じフォーマットで追加する。
- ⑤ ①～④で作成した疑似 FP 核種を組みこんだ燃焼チェーンモデルを使って燃焼計算を行い、詳細燃焼チェーンモデルによる結果 (燃料組成、ボイド反応度、ドップラー反応度など) を再現することを確認する。
- ⑥ SRAC で作成した疑似 FP 核種の多群断面積(107 群)を、評価済み核データのフォーマットでファイルに書き出す。
- ⑦ ⑥で作成したファイルを MVP の断面積作成システム LICEM¹⁵⁾で処理し、疑似 FP 核種の連続エネルギー断面積ライブラリ (ステップ関数) を作成する。

最初に述べたような様々な研究に従事してきた結果、年々扱う核種数が多くなり、現在は、「th2cm6fp198bp8T/F」と「u4cm6fp119bp14T/F」の 2 種類としている。後者のチェーンモデルでは、FP 核種数を 100 以上に増やしたため、疑似 FP 核種の反応度寄与は当初よりかなり小さくなり、親核種を区別しない 1 つの疑似 FP を扱っている。崩壊チェーンは、熱中性子炉と高速炉で共通であるが、ファイルに収納している核分裂収率データと、群縮約の扱いをしている核異性体比が、熱中性子炉用 (T) であるか高速炉用 (F) であるかの違いをユーザーの選択に委ねている。ユーザーから「中速中性子炉の場合はどちらを選べばよいですか？」と問われて答えに窮したことがあるが、現在の核分裂収率の核データは、中性子の入射エネルギーが、0.0253 eV、500 keV、14 MeV の 2 点か 3 点で与えられており、エネルギー内挿できるレベルとは考えていない。また、エネルギー依存の核異性体比の導入については、実質的に意味があるのは ²⁴¹Am(n,γ)反応の分岐比くらいなので、費用対効果を考えると当面は導入することはないと思われる。必要な人

は、自身で核データを読み取り、テーブル内挿できるような仕組みを作っておくと良い。

4. 研究炉の炉心燃焼

原研への入所当時、板状燃料を採用する研究炉は、JRR-2、JRR-3M、JRR-4、JMTRであったが、震災後は再稼働計画中のJRR-3Mのみとなった。この種の研究炉の炉心燃焼計算は、軽水炉と同様な巨視的断面積を燃焼度などのパラメータで内挿する手法を用いており、格子燃焼計算にSRACを、炉心燃焼計算にはCOREBN¹⁶⁾を使ってきた。COREBNは3次元有限差分中性子拡散法のコードであるが、他の炉心計算コードには無い特殊な機能を有している。現在のJRR-3Mの炉心は、20%低濃縮U₃Si₂-Al分散型板状燃料(シリサイド燃料)を採用しており、26体の標準型燃料要素と6体の制御棒付きフォロワ型燃料要素で構成される。フォロワ型燃料要素の制御材部は約1cm厚のハフニウムを箱型に成形しAlで覆ったもので、その下部は燃料フォロワとなっている。これが上下に移動して反応度制御が行われる。燃焼する燃料が上下に移動するため、軽水炉のような制御棒挿入割合による断面積変更として制御棒をモデル化することはできず、有限差分メッシュ幅の単位でフォロワ型燃料要素を移動させながら炉心燃焼計算を行う。Hf制御材部は強中性子吸収体であるため、この領域は高速エネルギー群では通常の断面積として扱われるが、熱エネルギー群では対数微分境界条件として扱われる。対数微分境界条件とは、原子炉の外表面で良く使用されている外挿距離定数を与える境界条件の扱いで、これをエネルギー群依存で炉心内部に適用したものである。現在、このような機能を有する炉心燃焼計算コードは日本では唯一であり、世界的にも多くはないと思われる³⁾。

JRR-3Mの燃料は、1999年にそれまでのアルミナイド燃料からシリサイド燃料に切り替えられた。シリサイド燃料ではウラン密度が大きくなったことによる過剰反応度増加を抑制するために可燃性吸収体(Cdワイヤ)が採用されたが、これにより運転制御が複雑化することになった。この対策検討のため、JRR-3Mからの要請を受けて、MVP-BURNとSRACによるCdワイヤ付き板状燃料格子の燃焼特性解析を可能にして現場へ提供した⁴⁾。図4(左)は、燃料板1枚を模擬した格子燃焼計算モデルで、図4(右)は無限中性子増倍率のウラン燃焼率変化を示したものである。Cdワイヤの直径は0.4mmと細いが、熱中性子に対しては黒体として機能しており、軽水炉のガドリニア入り燃料と異なって、中性子増倍係数は運転開始後しばらくの間はすぐには立ち上がらないことが判明した。このような特性が明らかになったことにより、JRR-3Mの運転管理方法の改善提案につながった¹⁷⁾。

³⁾ 炉内での対数微分境界条件の扱いは、「内部黒体」の名前でMOSRA-Lightにも組み込んである。また、オプションとして、粗メッシュノード法に向かない研究炉などへの適用を期待して、有限差分法相当の2次の多項式展開法も組み込んだ。しかし、MOSRA-Lightへの燃料フォロワ駆動機能の導入には至らなかった。MVP-BURNには燃焼中に形状を変化させる機能を組み込んであるので、COREBNの代替になりうるかもしれない。

⁴⁾ Cdチェーンの追加よりも、核分裂をしない領域を燃焼できるように改良することに時間を要したが、これを機会に制御材などの劣化評価の計算が可能となった。

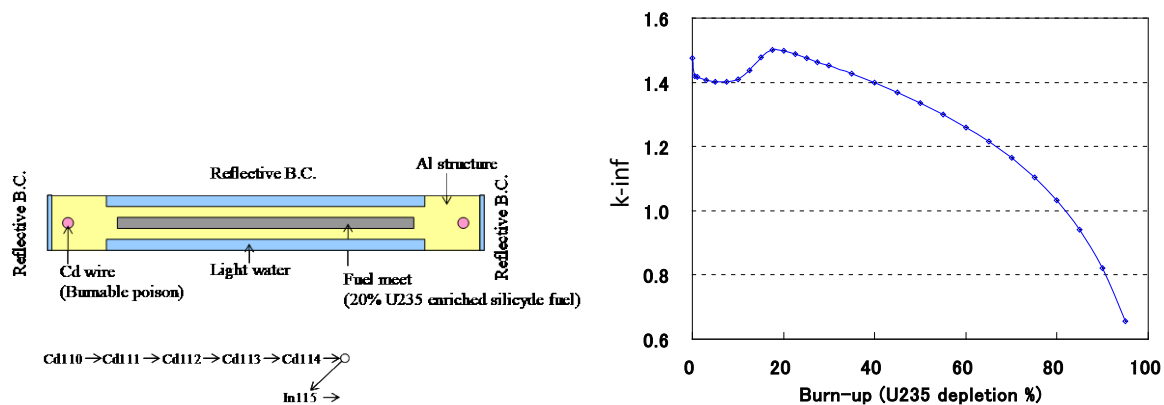


図4 Cdワイヤを含むJRR-3Mの格子燃焼計算モデル(左)と無限中性子増倍率の燃焼変化(右)

5. 照射後試験解析

SFCOMPO等の使用済み燃料に対する組成分析データベースが整備・公開されるようになり、核データや燃焼計算コードの検証に使われている。SFCOMPOは、もともと国内外で公開された照射後試験データを収集して原研で開発されたものであるが^{18,19)}、現在は、OECD/NEAの下の国際協力により、質・量ともに充実化されつつある²⁰⁾。これらの照射後試験データを使用するにあたっては、以下の点に留意する必要がある。

(1) 分析データの信頼性

分析値には測定に係る誤差が付けられるが、計算値との比較をする者は、分析値の信頼性や誤差の根拠まで踏み込んで良く理解しておく必要がある。使用済み燃料の試料が実際の分析者にわたるまでに、燃料の切り出し、溶解、希釈、分取といった作業が入る。分析者は、受け取った試料の分析を丁寧に行うが、必ずしもその前の作業に責任を持っていないことがある。特に、溶解プロセスにおいて、評価目的の核種の一部が不溶性残渣に残ることがある。計算値と実験値の比(C/E)が大きく1を超えるような場合には、1)着目核種の生成パスと関連する核データ誤差(例えば反応断面積や累積収率の測定データや誤差データ)の確認、2)残渣分析まで行った文献などから不溶性核種であるかどうかの判定、3)燃焼度が異なる複数の分析結果がある場合には、測定値が与える燃焼度相関が計算による相関と傾向が大きくずれていないか等のチェック、4)分析者や分析方法が異なる他の文献に、同じような傾向の差異が得られているかどうかの確認、などを行うことが望ましい。核種によっては、不溶性残渣に残るだけでなく、測定中のフラスコ吸着や環境からのコンタミなども考えられる。分析者はこれらの点に十分配慮しているが、独立した複数の分析結果がないと信頼性の確認は難しいだろうと推察される。

一例として、SFCOMPOにも収納されている高浜3号炉(17×17型PWR、の照射後試験²¹⁾の解析経験を挙げる。図5は、10個の試料に対する¹²⁵Sbの試料溶解後の化学分析による測定値(測定誤差10%)とSRAC/JENDL-3.3による燃焼計算の結果を、燃焼度を横軸に比較したものである。「SF95」と「SF97」は燃料棒の違いを示しており、前者は2サイクル照射、後者は3サイクル照射されたものである。

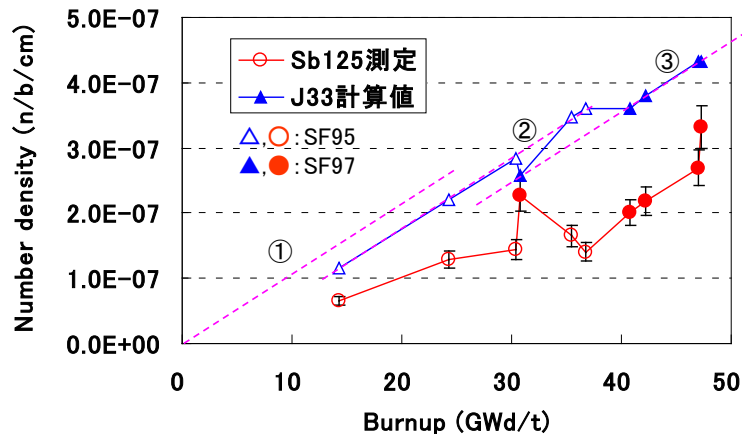


図5 高浜3号炉照射後試験における¹²⁵Sbの破壊測定値と計算値との比較²²⁾

まず、計算値の結果(△と▲)を見ると、¹²⁵Sb(半減期:2.76年)の生成特性が良く理解できる。一見、燃焼度に対する相関が悪いように見えるが、SF95の計算値(△)は同じ②の直線上にある。一方、SF97の計算値(▲)は、③の直線状にある。サイクル間の炉停止期間での崩壊により、①、②、③に段差が生ずるが、¹²⁵Sbは燃焼度に対して直線的に生成することが分かる。このような燃焼変化をするFP核種は、核分裂による生成量に比べて、中性子吸収による消滅量が十分に小さい核種の特徴(核分裂収率が大きく、吸収断面積が小さい)である。よって、中性子スペクトルに対する感度は小さく、冷却期間以外の運転条件や格子計算モデルは厳密に扱わなくても十分な計算精度が得られるはずのものである。一方、対応する測定値(SF95の○とSF97の●)は、計算値が示すような直線的な燃焼度相関がみられず、全ての測定値が計算値を下回り、系統性も見られない。これらのことから、溶解中に一部の¹²⁵Sbが不溶性残渣に残ったものと疑われる。同様な検討を全ての破壊測定データに対して行うと、信頼できる測定値とそうでないものを区別することができる。結果的に、¹²⁵Sb以外に、¹⁰⁶Ruの破壊分析の結果も信頼できないことが確認できた²²⁾。

しかし、このような判断ができるのは、複数の燃焼度点においてデータが得られているからであり、1点だけのデータから分析値の良し悪しを判断することは難しい。そのような場合は、他の同様な原子炉の照射後試験データも加えて検討すると良い。

高浜3号炉の照射後試験では、γスキャンによる非破壊測定データ(¹³⁴Cs/¹³⁷Cs、¹⁵⁴Eu/¹³⁷Cs、¹⁴⁴Ce/¹³⁷Cs、¹⁰⁶Ru/¹³⁷Cs、¹²⁵Sb/¹³⁷Cs放射能比)が得られている。これらの放射能比はGe検出器によりガンマ線の全吸収ピーク比として得られているため、不溶性の問題は排除される。破壊測定値の計算値との比較で問題が見られた¹⁰⁶Ru/¹³⁷Cs放射能比の測定値と計算値(破壊測定に供せられた試料の位置)との比較結果を図6に示す。同図から、¹⁰⁶Ru/¹³⁷Cs放射能比は核データにほとんど依存せず計算値と良く一致することが分かる。また、破壊測定の結果(△)は、放射能比の測定結果と整合していないことも明らかである。これらは、¹³⁷Csに対する比であるが、¹³⁷Csの破壊測定の結果は、すべての試料に対し計算値と良く一致していることを確認している。

不溶性である¹²⁵Sbや¹⁰⁶Ruの信頼できる測定値は貴重である。JENDL-4.0の軽水炉照射後試験ベンチマーク²³⁾ではこれらの核種を対象外としているが、このように非破壊測定の結果と

^{137}Cs 破壊測定の結果を組み合わせ、破壊測定で問題が見られた ^{106}Ru と ^{125}Sb の測定値を再評価して利用することができる。ただし、 ^{125}Sb はジルカロイ被覆管に添加されている Sn 中に約 5.8% 存在する ^{124}Sn の放射化($^{124}\text{Sn} \rightarrow ^{125}\text{Sn}(\beta\text{-崩壊}) \rightarrow ^{125}\text{Sb}$)によっても生成するため、その効果 (11~13%) を照射試料毎の放射化計算により補正する必要がある²²⁾。

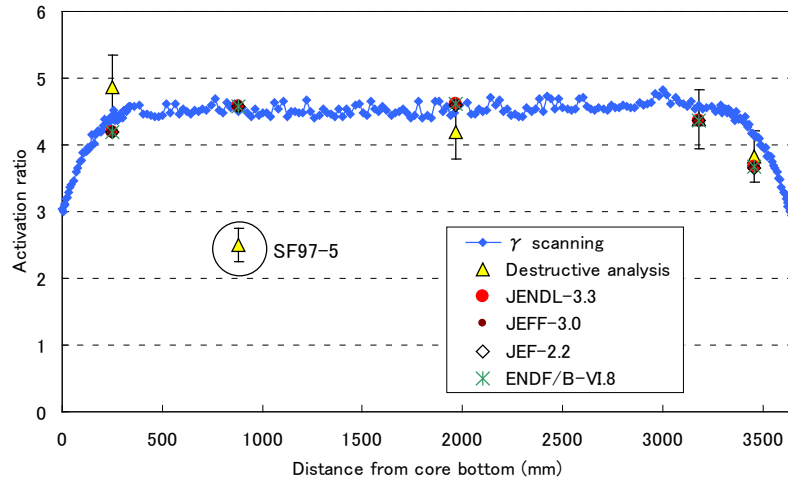


図6 $^{106}\text{Ru}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比に対する非破壊測定データと計算値及び破壊測定データとの比較²²⁾

(2) ^{241}Am の測定誤差伝播

高浜 3 号炉の照射後試験解析では、 ^{241}Am の測定値が測定誤差 (1σ : 約 0.2%) を大きく超えて計算値からはずれ ($C/E=0.83\sim 1.65$, 平均 1.16)、 C/E 値のばらつきも大きかったことから、 ^{241}Am の核データや測定方法に対する疑念が出されていた。筆者は、それ以前に MVP-BURN の検証として行った美浜 3 号炉の照射後試験解析で ^{241}Am 生成量の計算予測精度が十分に良い (平均 $C/E=1.016\pm 0.02$) ことを確信していたので、両者の違いを調査した。その結果、美浜 3 号炉の照射後試験では測定値が測定時期 (取り出し後 5 年) の値として整理されているのに対し、高浜 3 号炉の測定データは、ユーザーへの便宜を図るため約 4 年の崩壊補正を行って取り出し直後値として整理されていることが原因であると判明した。

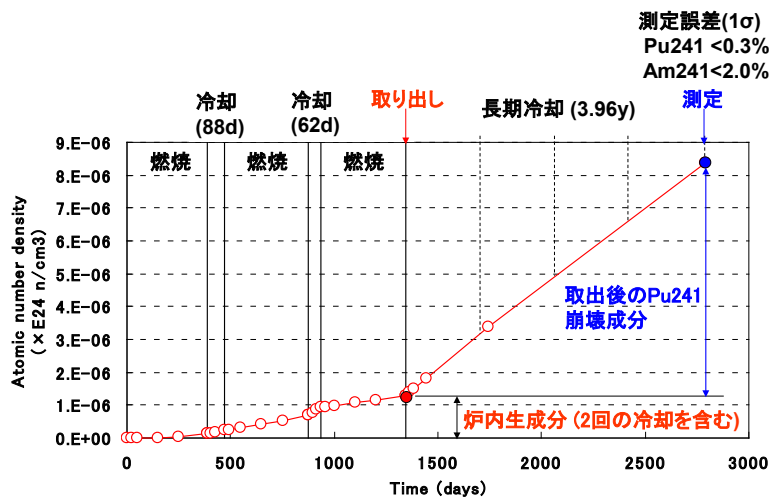


図7 高浜照射後試験サンプル (SF97-4) の ^{241}Am 生成量の時間変化 (SRAC+JENDL-3.3)

図 7 に示すように、 ^{241}Am の生成量は、原子炉から取り出した後 4 年程度経過すると、半減期 14.4 年の ^{241}Pu の β 崩壊成分が支配的となり、原子炉運転時での生成量の寄与は 14% 程度である。取り出し直後値の ^{241}Am の生成量 (N_0^{Am}) は、測定日の ^{241}Am 及び ^{241}Pu の生成量 (N^{Am} , N^{Pu}) と測定日までの冷却期間 T から以下の式により補正される。また、 ^{241}Am の崩壊補正値の誤差 (δN_0^{Am}) は、測定時の ^{241}Am と ^{241}Pu の測定誤差 (δN^{Am} , δN^{Pu}) に基づき、(3) 式の誤差伝播式により評価できる。

$$N_0^{\text{Am}} = N^{\text{Am}} - N^{\text{Pu}}(e^{\lambda_{\text{Pu}}T} - 1) \quad (2)$$

$$\delta N_0^{\text{Am}} = N^{\text{Am}} - N^{\text{Pu}}(e^{\lambda T} - 1) \sqrt{(\delta N^{\text{Am}})^2 + (\delta N^{\text{Pu}})^2 (e^{\lambda_{\text{Pu}}T} - 1)^2} \quad (3)$$

図 8 は、(3) 式を使って各照射後試料の取り出し直後値に相当する測定誤差を評価し、C/E 値をプロットしたものである。取り出し直後値の誤差は、測定時における ^{241}Pu や ^{241}Am の測定精度が十分に良いにも関わらず、大きく拡大することとなる。

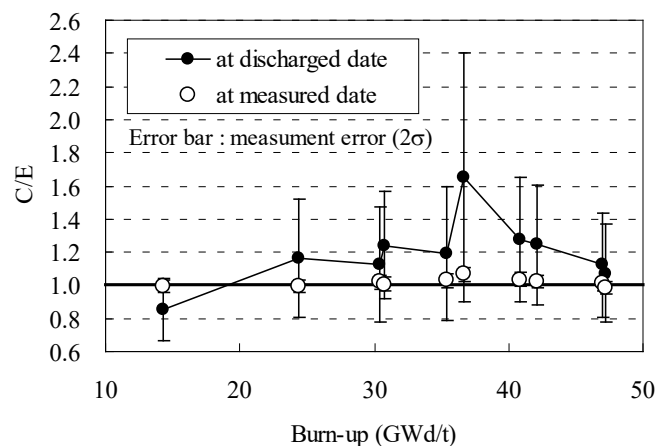


図 8 取り出し直後と測定日における ^{241}Am 生成量の C/E 値と測定値に基づく誤差

以上のことから、照射後試験解析では、以下のことに留意しておく必要がある。

- ・ 取り出し後数年が経過した使用済み燃料中の ^{241}Am の予測精度は、親核種である ^{241}Pu の予測精度で支配的に決まり、長期貯蔵、再処理、処理・処分などへの燃焼計算結果の適用には十分な予測精度がある。
- ・ 取り出し後の親核種による崩壊による生成成分が支配的である場合には、測定誤差の誤差伝播を考慮する必要がある。
- ・ 誤差伝播を考慮した測定誤差は、分析者の技量が疑われかねないため、測定時の誤差も併せて明記し、正しい情報発信をすることが望まれる。
- ・ 照射後試験データの多くは取り出し後の冷却期間が長く、測定日での ^{241}Am 生成量が精度良く測定されていても、 ^{241}Pu の崩壊成分が多いため、核データ評価に有用な ^{241}Am の炉内生成分の評価は困難である。

^{241}Am 以外に同様な配慮が必要な核種がある。例えば、FP として生成する ^{155}Eu から崩壊して生成される ^{155}Gd などがそうである。

6. 高レベル放射性廃液中の長寿命難分析核種のインベントリ評価

2008 年から 2011 年にかけて、受託研究「高レベル放射性廃液中の難分析長寿命核種のインベントリ評価に関する研究」²⁵⁾を JAEA の分析チームと協力し、以下の手順で実施した。

- ① 廃液の模擬試料を作成して長寿命難分析核種の分析手法を検討する（分析チーム）。
- ② 目的とする長寿命難分析核種を含む既存の照射後試験データを調査し、照射後試験解析により長寿命難分析核種に対する燃焼計算の予測精度を確認する（計算チーム）²⁶⁾。
- ③ 燃焼履歴や冷却履歴等が異なる複数の使用済み燃料に対するケーススタディ、及びそれらの溶解混合を模擬した組成計算を行い、長寿命難分析核種に対するスケーリングファクタ法⁵⁾に使用できる可能性があるキー核種の候補を複数選定し、分析チームと協議して分析難易度が低いキー核種を選定する（計算・分析チーム協力）^{27,28)}。
- ④ ①の検討結果を基に、燃焼履歴が既知の軽水炉使用済み燃料に対し、長寿命難分析核種と③で選定したキー核種の分析を実施する。また、得られた分析値を燃焼計算の結果と比較し、分析及び燃焼計算の妥当性を確認する。（分析チーム・計算チーム）²⁹⁻³²⁾。
- ⑤ 六ヶ所再処理工場から高レベル放射性廃液のサンプルを採取してもらい、その希釈液を東海に輸送して分析し、開発したスケーリングファクタ法の妥当性を実証する。

対象とした難分析核種は、ガラス固化体の地層処分の安全性評価において重要とされる ^{79}Se （半減期：約 30 万年）および ^{135}Cs （約 230 万年）、並びに硝酸による溶解時に不溶解性を有する ^{99}Tc （約 21 万年）と ^{126}Sn （約 23 万年）の 4 核種である。最終的に、キー核種として、 ^{145}Nd 、 ^{146}Nd 、 $^{145}\text{Nd}+^{146}\text{Nd}$ 、及び Nd 元素をキー核種として選定した³¹⁾。これは、1) 燃焼履歴が不明で燃焼度が異なる使用済み燃料の溶融混合溶液であっても、平均値としての燃焼度相関を保持する特性を持つこと、2) 安定核種であるため、 ^{137}Cs のように再処理工場へ持ち込む使用済み燃料の冷却期間や再処理工場の停止期間などの影響を受けないこと、3) ^{148}Nd のように、同重体妨害核種の分離のための複雑な化学分離処理が不要であることによる。

高レベル放射性廃液の難分析核種の分析自体を、このプロジェクトの期間に多数実施して帰納的にスケーリングファクタ法を作成することは困難であった⁶⁾。そこで、予め理論計算と照射後試験解析で得たデータに基づき、最確値の他に上限値と下限値も予測することができる理論的スケーリングファクタ法を新たに開発し、高レベル放射性廃液の分析結果が測定値の誤差範囲内で一致することをもって実証とした。この方法は、1F の燃料デブリ分析にも応用できる可能性がある。

一連の研究の中で得た教訓があるので紹介しておきたい。対象とした 4 つの難分析核種の分析データは、1985 年～1990 年に米国の Pacific Northwest Laboratory (PNL) により実施された、Cooper (BWR) と Calvert-Cliffs-1 (PWR) の照射後試験解析により既に得られていた³³⁾。この

⁵⁾ スケーリングファクタ法：主にバックエンド分野において放射能インベントリを評価するための手法の 1 つで、 ^{137}Cs や ^{60}Co などの分析が容易な核種（キー核種）の濃度と難分析核種の濃度との相関を多数のサンプリング分析値の統計処理を行って、分析が容易な核種の測定から難分析核種の濃度を推定する方法。

⁶⁾ 当初、再処理工程の 3 ヶ所からのサンプリング分析を計画していたが、スラッジの溶融試験のトラブルにより、1 ヶ所のサンプリング分析で終了することとなった。

データは SFCOMPO (2008 年当時) にも収納されていた。そこで、MVP-BURN (JENDL-4.0) により得られた ^{79}Se 及び ^{126}Sn に対する燃焼計算の結果を SFCOMPO に収納されていた測定値と比較したところ、平均の C/E 値は 5.5(^{79}Se)及び 3.1(^{126}Sn)と大きく合わない結果となった。一方、JAEA において質量分析により新たに得られた ^{79}Se と ^{126}Sn の分析値の C/E は、それぞれ 1.07 と 1.24 と良好な結果を得た。そこで PNL の原著報告書を詳しく調べたところ、 ^{79}Se と ^{126}Sn のいずれも放射能測定によることが明らかとなった。SFCOMPO の収納データは重量で示されており、データ収集が行われた 1990 年代の半減期データを使用して、PNL による放射能測定値を重量に換算されたものと推察された。実際、 ^{79}Se と ^{126}Sn のような試料の調達や分析が難しい超長半減期核種の半減期データは、近年の分析技術の進展により大きく更新されている。そこで、2009 年の測定に基づく半減期データを使用して、Cooper と Calvert-Cliffs-1 の照射後試験データを重量に換算したところ、C/E 値は大きく改善されことを確認した²⁶⁾。これ以降、照射後試験解析で疑問を感じた場合には、オリジナルの分析報告書を読むか、可能な場合には分析担当者と直接議論をする習慣がついた。これにより、SFCOMPO を使ったベンチマーク解析の疑問点が幾つか解決された。

7. 燃焼計算コードの V&V

燃焼計算コードの Verification においては、使用する核データと解析モデルが同じで、燃焼方程式の数値解法が異なる複数の計算コード間の比較を行い、Validation においては、信頼できる照射後試験データの解析をなるべく多く行うことが有効である。核データ(断面積、崩壊チェーン、半減期、分岐比など)や解析手法(数値解法)が異なる計算コードの結果を比較して差異が出てその原因解明には至らないことが多い。一方で、同じ核データ、解析モデル、解析手法、分析データを用いていると、共通要因エラーに気が付かないことにも留意が必要である。

表 1 は、解析手法のクロスチェックのために使用した燃焼計算コードの一覧である⁷⁾。同表の MOSRA-Bacon³⁴⁾は MOSRA-SRAC により事前に作成した 1 群断面積を使用する ORIGEN2 に類似のコードである。また、MOSRA-SuperBacon³⁴⁾は、MOSRA-SRAC による中性子輸送計算と MOSRA-Bacon による核種崩壊生成計算を交互に行う SWAT³⁵⁾に類似のコードである。図 9 は、これらの燃焼計算コードを使用して行った高浜 3 号炉の照射後試験解析の結果を比較したものである。計算値の解析手法間の差異は小さく、分析値とも ^{246}Cm を除いて概ね 10%以内で一致している。このことから ^{246}Cm の計算値が測定値を大きく過小評価しているのは、核データ起因によるものと判断している。

Validation においては、特に解析モデルの影響に配慮する必要がある。たとえ連続エネルギーモンテカルロ法のような手法を用いて幾何形状を厳密に表現していても、炉内での照射条件を必ずしも完全に反映していないことが多い。例えば、シャフリングによる隣接燃料集合体の影響、バッフル板の影響、瞬時ボイド率履歴、制御棒挿入履歴、燃料集合体内の減速材分布、ボロン濃度変化など、多くのことが考えられる。これらの影響を受けるかどうかは核種により異なるため、予め目的とする核種の生成量の特性をケーススタディ²⁷⁾などにより良く把握しておき、必要によ

⁷⁾ MOSRA-Bacon と MOSRA-SuperBacon は主に別コードの検証のために開発したもので、いずれも外部提供はしていない。

って解析モデルを変更した計算を行って核種毎に感度を確認しておくことが望ましい。

表1 クロスチェックのための燃焼計算コード

	MOSRA-Bacon	MOSRA-SuperBacon	MOSRA-SRAC	MVP-BURN
中性子スペクトル計算	無し (外部コード)	200群衝突確率法(+PEACO)	200群衝突確率法(+PEACO)	連続エネルギーモンテカルロ法
燃焼方程式の解法	指数行列法 (ORIGEN2)	指数行列法 (ORIGEN2)	改良Bateman法 (DCHAIN)	改良Bateman法 (DCHAIN)
燃焼チェーン	独立収率による詳細チェーン (1000核種以上)	独立収率による詳細チェーン (1000核種以上)	ChainJ40(累積収率を含む最大229核種)	ChainJ40(累積収率を含む最大229核種)
主要核種の断面積データ	JENDL-4.0	JENDL-4.0	JENDL-4.0	JENDL-4.0

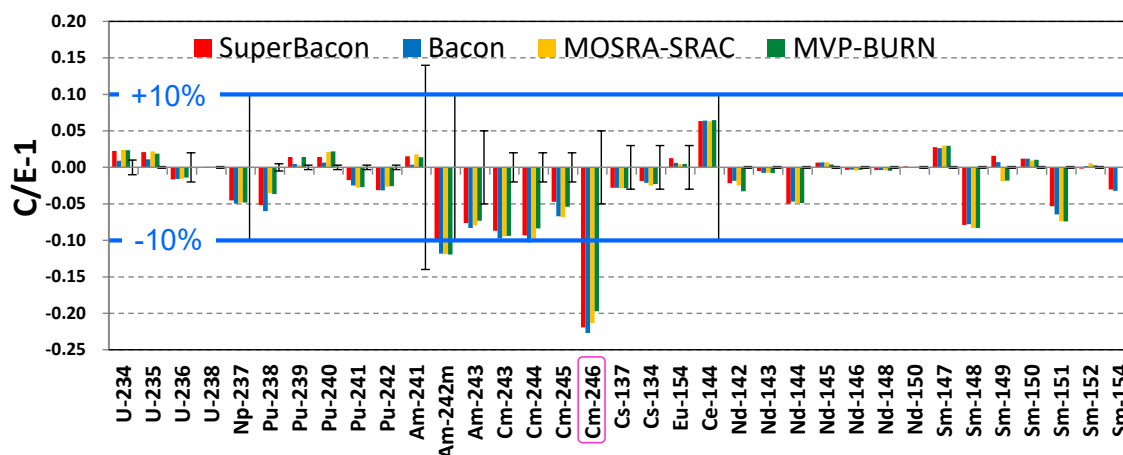


図9 異なる解析手法による高浜3号炉の照射後試験解析の結果比較
(SF97-4: 4.1wt%濃縮 UO₂ 燃料 47GWd/t、断面積はいずれも JENDL-4.0)

核データ検証を目的としたベンチマークでは、解析モデルに関する不確かさが比較的少ない PWR で、炉心の上下端近傍を避け、制御棒案内管や可燃性毒物棒からなるべく離れ、シャッフリング時にバッフル板の面に向かい合わない、などを考慮して解析対象を選定するようにしている。また、5章で述べたように、燃焼度相関などにより分析値の信頼性が確認できていることも重要である。

チャンネルボックス内にウォーターロードや濃縮度が異なる複数の燃料棒を含む BWR の照射後試験解析では、燃料集合体モデルによる解析は核データベンチマークには必須であると考えている。このような場合には、着目する試料位置の燃焼度を示す ¹⁴⁸Nd の分析値を計算値と一致させるような燃焼計算が好ましい。照射試料位置での燃焼度がずれていると、Cm 同位体核種のように燃焼度に対してべき乗で大きく変化する核種については、核データの妥当性とは無関係に計算値と分析値に大きなずれを発生させる。

計算値と測定値が合わない場合には、基礎方程式まで立ち返って見直すことも必要である。燃焼方程式は、(1)式で示した生成と消滅のバランス式であるが、大部分の燃焼計算コードは、核種

は物理的に移動しないことを前提としている。軽水炉の使用済み燃料では、 ^{137}Cs （または $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ）が燃焼度分布を示すことは良く知られているが、Na 冷却高速炉などには適用できない。熱伝達が良い Na 冷却高速炉では線出力が軽水炉よりも高く設計されており、燃料棒内の温度が軽水炉に比べて高く、Cs は核分裂した位置からガスペナムまでの範囲で大きく移動する。自身の計算手法や使用している核データに確信があっても、実測値との間に不整合が見られる場合には、現場の分析者や燃料の専門家などと、あらゆる可能性について議論することが望ましい。

8. ORIGIN コード

(1) JENDL 版 ORIGIN2

ORIGIN コードは、1960 年代の終わりから 1970 年代初めにかけて、米国のオークリッジ国立研究所 (ORNL) によって開発された核種崩壊生成計算コードであり、その後の改訂版は現在も使用済み燃料のインベントリ、放射能、崩壊熱、ガンマ線源や中性子源などの計算に広く利用されている。現在では、ORIGIN2(2.1 や 2.2 のようなマイナーチェンジを含む)や SCALE システムに燃焼方程式のソルバーとして組み込まれた ORIGIN-S が主に使われている。これらの改訂経緯や計算手法の違いに関しては、文献 11)や文献 38)を読むと良い。ORNL は既に ORIGIN2 の開発から撤退し、SCALE システムの開発に注力している。日本では、ORIGIN2 は依然として、遮蔽分野の許認可計算、放射性核種分析、廃止措置、処理・処分などの分野で利用されている。このため、JAEA が組織する JENDL 委員会(核種生成量・崩壊熱評価 WG)の活動の一環として、JENDL の新しい核データを組み込んだ ORIGIN2 (ORLIBJ32³⁶⁾、ORLIBJ33³⁷⁾、ORLIBJ40³⁸⁾ が開発されてきた。

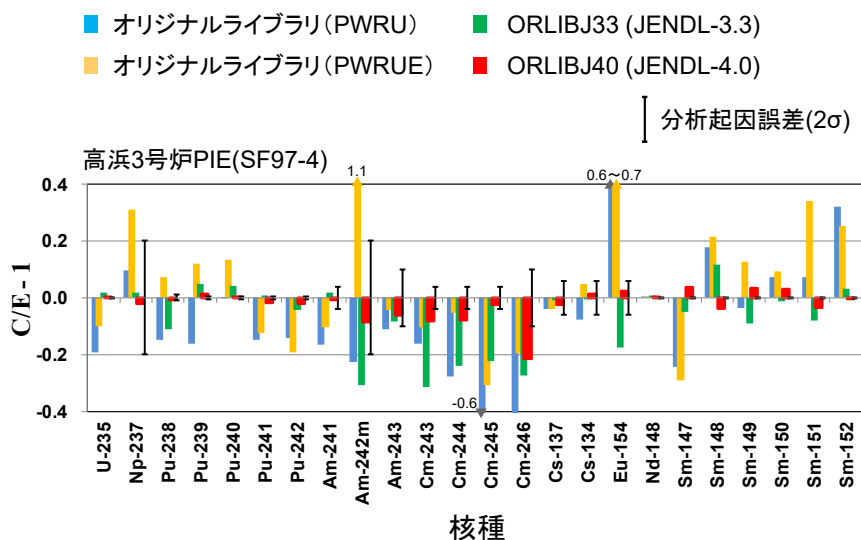


図 10 核データが異なる ORIGIN2 ライブラリによる軽水炉照射後試験解析結果

図 10 は、ORIGIN2 のオリジナルライブラリ(PWRU と PWRUE)の他、ORLIBJ33、ORLIBJ40 を使った高浜 3 号炉の照射後試験解析 (SF97-4) の結果を示したものである。差異の要因は主に断面積であり、評価済み核データライブラリの進化の様子を見ることができる。ORLIBJ33 と

ORLIBJ40 との比較では、JENDL-4.0 により Am や Cm 同位体の過小評価の傾向が改善されている。

ORIGEN2 はあくまで 1 点を対象とする燃焼計算コードであるため、上記のような照射後試験解析には良いが、体積が大きい燃料集合体や炉心全体を想定する場合に正確な計算結果を得ようとするのであれば、なにかしらの方法で燃焼度分布を考慮することが必要である。例えば、 ^{137}Cs ($^{137\text{m}}\text{Ba}$)や ^{90}Sr (^{90}Y)の生成量のように、燃焼度に対して近似的にでも直線性を有する核種に対しては、平均燃焼度の扱いで体積平均相当の特性が得られるが、Cm 同位体のように燃焼度に対して大きくべき乗で変化するような場合には、燃焼度が異なる領域毎に体積分割した特性評価が望まれる⁸。

(2) 多群放射化断面積ライブラリ (MAXS2015)

ORIGEN2 では代表的な原子炉燃料を想定して 1 群断面積が用意されている。しかし、特殊な原子炉燃料や原子力施設の廃止措置における放射化計算では、多様な中性子スペクトルを考慮しなければならない。このような問題に対応するため、多群放射化断面積ライブラリ (MAXS2015) を開発した³⁹⁾。

MAXS2015 は、JENDL-4.0 をベースとして、欧州の評価済み放射化断面積ライブラリ JEFF-3.0/A⁴⁰⁾で補てんし、199 群(高速 163 群+熱 36 群)の無限希釈多群断面積データライブラリ(表形式のテキストファイル)として整理したデータベースである。これは、以下の特徴を有する。

- JENDL-4.0 の評価(^4He と天然 C を除く 404 核種)をベースとし、これに含まれない断面積は、JEFF-3.0/A で補てんし、核データ処理コード NJOY2012⁴¹⁾を用いて多群化。
- 収納核種は 779 核種、中性子核反応断面積は 9504 セット。
- エネルギー範囲は $1.0\text{E}-5$ eV \sim 19.64 MeV、群構造は VITAMIN-B6 の 199 群 (熱エネルギー領域 $1\text{E}-5\sim 3.9279$ eV : 36 群、高速エネルギー領域 : 3.9279 eV \sim 19.64 MeV : 163 群)
- 核反応タイプ : MT=16(n,2n), 17(n,3n), 18(n,fiss), 22(n,n α), 24(n,2n α), 25(n,3n α), 28(n,np), 29(n,n2 α), 30(n,2n2 α), 32(n,nd), 33(n,nt), 34(n,n ^3He), 37(n,4n), 41(n,2np), 102(n, γ), 103(n,p), 104(n,d), 105(n,t), 106(n, ^3He), 107(n, α), 108(n,2 α), 111(n,2p), 112(n,p α)。ただし、JENDL-4.0 または JEFF-3.0/A に核データ評価がある場合。
- 多群核異性体比(核反応による分岐比)を含む (核データ評価がある場合)。
- データは、核種ごとの表形式テキストファイルで、多群中性子スペクトルを与えれば、EXCEL 等の表計算ソフトにより群縮約が可能。

簡単な編集プログラムを用意してやれば、MAXS2015 から ORIGEN2 や同種のコードの 1 群断面積ライブラリを生成することができる。また、ORIGEN2 では扱っていないような中性子核反応による影響を検討することができる。

(3) ORIGEN2 ライブラリの作成

MAXS2015 などを使って、燃焼計算や放射化計算に必要な 1 群断面積ライブラリを作成するこ

⁸ 例えば、ORIGEN を使用して軽水炉使用済み燃料集合体の崩壊熱を集合体平均燃焼度で評価すると、比較的正確な値が得られるが、中性子遮蔽用の自発核分裂中性子源を過小評価することに注意が必要である。

とができる。コバルトのような微量不純物に対する放射化計算では、MAXS2015 から作成する 1 群断面積をそのまま使用して良いが、燃料物質を扱う場合には、解析対象とする原子炉の特性に応じた実効微視的断面積を作成する必要がある。ORLIBJ40 の軽水炉用 1 群断面積ライブラリの場合、MOSRA-SRAC による燃焼計算を行い、無限希断面積から作成した 1 群断面積の一部を MOSRA-SRAC による実効断面積で上書きすることにより作成した³⁸⁾。また、軽水炉は燃焼に伴い中性子スペクトルが変化するため、重要な重核種の反応については、燃焼度依存断面積テーブルを事前に ORIGEN2 に組み込み⁹⁾、燃焼計算の際に燃焼度に対して断面積のテーブル内挿ができるようにしておく必要がある。

被覆粒子燃料を扱う高温ガス炉の場合は、粒子燃料の多重層とその周辺構造の二重非均質性を扱うことが重要になる。高温ガス炉用の ORIGEN2 ライブラリの作成検討では、MVP の確率論的幾何形状モデルにより二重非均質性を考慮し、MVP-BURN で燃焼計算を行って得た 1 群微視的断面積を使用して高温ガス炉用の ORIGEN2 ライブラリを作成した。このライブラリを使用した ORIGEN2 計算を行い、MVP-BURN の結果と良く一致することを確認した⁴²⁾。

9. 崩壊熱計算

(1) 総和計算

ECCS 性能評価などで必要となる炉停止直後の崩壊熱計算では、炉物理分野ではおなじみのない秒単位の半減期を有する数多くの短寿命核種が崩壊熱に寄与するため、ORIGEN のように 1000 以上の FP 核種を独立収率で扱うコードか後述する崩壊熱評価式が使われる¹⁰⁾。このようなコードでは、ある特定の位置(\vec{r})での崩壊熱¹¹⁾は(4)式で計算される。

$$q_d(\vec{r}) = \sum_i (E_i^\alpha + E_i^\beta + E_i^\gamma) \lambda_i N_i(\vec{r}) = \sum_i E_i \lambda_i N_i(\vec{r}) \quad (4)$$

ここで、 E_i^α 、 E_i^β 、 E_i^γ は、核種 i の放射能(Bq)あたりの α 崩壊、 β 崩壊、 γ 崩壊による平均の発熱量(J/Bq)で、崩壊データライブラリにより与えられる。 $N_i(\vec{r})$ を原子数ではなく原子数密度(個/cm³)として与えるなら、 q_d は発熱密度(W/cm³)である。(4)式のような計算を崩壊熱の「総和計算」と呼ぶ。短寿命 FP 核種は炉の起動後すぐに、核分裂率による生成と崩壊による消滅がバランスをとって平衡濃度に達するので、後述するアクチノイド崩壊熱の寄与を無視すれば、崩壊熱は(5)式で表される。

⁹⁾ ORIGEN2 のプログラム上の制約により燃焼度依存断面積は核異性体への分岐を含めて 20 までに限定されている。このデータは ORIGEN2 の外付けライブラリではなく、ソースプログラムのデータ文に記述されているため、燃焼度依存断面積(熱炉では推奨)を用意するにはソースプログラムの書き換えが必要である。

¹⁰⁾ SRAC/MVP-BURN において 100 核種以上の FP を扱うチェーンモデルでは、取り出し後 1 年以上で崩壊熱の 99%以上を占めるよう設計している。

¹¹⁾ 平均自由行程の長いガンマ線は体系内に全てのエネルギーを落とさずに体系から出ていくことがあるため、厳密に言えば崩壊熱の最大値を与えるものであり、体系の大きさに依存してカロリーメーターで実測される発熱量よりも大きい値を与える。

$$q_d(\vec{r}) \approx \left(\sum_{i \in \text{FP}} E_i \Gamma_i \right) \Sigma_f(\vec{r}) \Phi(\vec{r}) = \left(\sum_{i \in \text{FP}} E_i \Gamma_i \right) q(\vec{r}) / \kappa \quad (5)$$

ここで、 $q(\vec{r})$ は停止直前での出力密度分布、 Γ_i は累積核分裂収率、 κ は1核分裂あたりの平均発熱量(約 200 MeV)である。これを原子炉全体で体積積分すると、炉全体の停止直後の崩壊熱 P_d は、停止直前での原子炉の熱出力 P_0 を用いて以下のように表される。

$$P_d \approx \int q_d(\vec{r}) dv = \left(\frac{1}{\kappa} \sum_{i \in \text{FP}} E_i \Gamma_i \right) \int q(\vec{r}) dv = \left(\frac{1}{\kappa} \sum_{i \in \text{FP}} E_i \Gamma_i \right) P_0 \quad (6)$$

炉の熱出力と出力分布は、原子炉の運転者が知っていることであり、少なくとも炉停止直後に関しては、詳細な中性子の輸送計算などを必要としないで、原子炉の崩壊熱とその炉内分布を推定することができる。

ECCS 評価に関する崩壊熱の不確かさを考える場合には、核データの E_i 値や Γ_i 値の誤差が主な興味の対象となる。 E_i 値は近年の TAGS(Total Absorption Gamma Spectrometry) 測定などにより精度が向上しているが、現在の動力炉 ECCS 評価手法の規制を緩める方向で検討したいのであれば、核分裂収率の誤差評価の信頼性は十分に検討されなければならない。

(2) 崩壊熱評価式

軽水型動力炉の ECCS 評価や MELCOR などの事故進展解析コードでは、崩壊熱の総和計算は行わないで、標準化された崩壊熱の評価式が使用される。その一つとして、日本原子力学会「原子炉崩壊熱基準」が推奨する崩壊熱データ(AESJ 推奨値)⁴³⁾がある。これは、図 11 に示すような運転条件の原子炉に対し、崩壊熱を評価するデータと式を与えるものである¹²⁾。

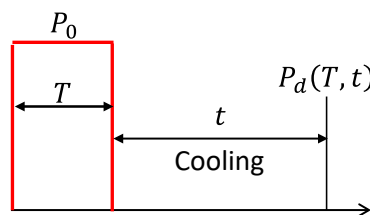


図 11 崩壊熱評価式で基準とする運転条件

AESJ 推奨値では、全崩壊熱を、以下のように、FP 崩壊熱の項とアクチノイド崩壊の項に分けて計算する。

$$P_d(T, t) = P_{FP}(T, t) + P_{ACT}(T, t) \quad (7)$$

¹²⁾ 米国の ANS J5.1(1979)も AESJ 推奨値とほぼ同様な式を採用している。実際の ECCS 評価では、これらの崩壊熱評価式に所定の裕度を与えて運用される。崩壊熱評価式は、図 11 の運転条件を重ね合わせることにより複雑な条件にも適用できる。

$$P_{FP}(T, t) = G(t) \sum_i^5 \left(\frac{P_i}{\kappa_i} \right) F_i(T, t) \quad (8)$$

$G(t)$ は ^{134}Cs のように、核分裂による生成後に中性子捕獲で生成する比較的寿命の長い核種の崩壊熱寄与を補正するための係数で、代表的な炉型(PWR, BWR, FBR)に依存した t に対するテーブル値が与えられる。 (P_i/κ_i) は ^{235}U 、 ^{238}U 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Pu の各核分裂数を意味し、 $F_i(T, t)$ で 1 核分裂あたりの崩壊熱を与える。これは、33 項からなる以下のフィッティング式で与えられる。

$$F_i(T, t) = \sum_{j=1}^{33} \frac{\alpha_j}{\lambda_j} e^{-\lambda_j t} (1 - e^{-\lambda_j T}) \quad (9)$$

一方、アクチノイド崩壊熱は、ウラン燃料の場合、 ^{239}U (半減期 23.5 m)と ^{239}Np (2.36 d)の $\beta \cdot \gamma$ 崩壊熱が支配的である。アクチノイド崩壊熱は以下の式で与えられる。

$$P_{ACT}(T, t) = \left(\frac{P_0}{\bar{\kappa}} \right) [F_{U239}(T, t) + F_{Np239}(T, t)] \quad (10)$$

ここで、 P_0 は炉停止直前の原子炉出力であり、 $\bar{\kappa}$ は 1 核分裂あたりの平均放出エネルギーで、 $P_0/\bar{\kappa}$ は炉内での核分裂数を意味する。 ^{239}U と ^{239}Np は、 $^{238}\text{U}(n, \gamma) \rightarrow ^{239}\text{U}(\beta \text{崩壊}) \rightarrow ^{239}\text{Np}$ のパスで生成されることから、

$$F_{U239}(T, t) = \left(\frac{C_8}{F} \right) \{ E_{U239} (1 - e^{-\lambda_{U239} T}) e^{-\lambda_{U239} t} \} \quad (11)$$

$$F_{Np239}(T, t) = \left(\frac{C_8}{F} \right) E_{Np239} \left[\frac{1}{(\lambda_{U239} - \lambda_{Np239})} \right] \times \left[\lambda_{U239} (1 - e^{-\lambda_{Np239} T}) e^{-\lambda_{Np239} t} - \lambda_{Np239} (1 - e^{-\lambda_{U239} T}) e^{-\lambda_{U239} t} \right] \quad (12)$$

$F_{U239}(T, t)$ と $F_{Np239}(T, t)$ は、核分裂性物質(F: ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu)が 1 核分裂した場合に ^{238}U の捕獲反応により生成する ^{239}U と ^{239}Np の崩壊熱である。すなわち、転換比(C_8/F)と Bateman の式を巧く利用して、アクチノイド崩壊熱を解析的に表現している。

代表的な PWR(UO₂燃料)を想定した炉停止直後における総和計算の結果では、アクチノイド崩壊熱は全体の 6%程度であり、そのうち、約 90%をこれらの 2 核種が占めている。一方、フル MOX 炉心の場合は、アクチノイド崩壊熱の割合は 7%程度で UO₂燃料の場合と大きくは変わらないが、その構成としては ^{242}Cm が最も大きく(36%)、 ^{239}U と ^{239}Np はそれぞれ 27%と 24%である。 ^{242}Cm の崩壊熱寄与は全体の崩壊熱からすれば 2.6%程度であるが、現状では崩壊熱評価式や事故進展解析コードに組み込まれていない。これは、Bateman の式で、 ^{242}Cm 生成量を容易に与えられないためである。

(3) 1F 事故時の崩壊熱

1F2 号機を対象として、MOSRA-SuperBacon により、軸方向のボイド率と燃焼度分布を考慮した 3次元インベントリ計算を行い、崩壊熱の総和計算を行った⁴⁴⁾。また、これを他の崩壊熱評価式の結果と比較した。

2号機は、5バッチ燃料装荷炉心であり、各バッチ領域の照射履歴は、図12に示すようなものとなる。よって、これらの山を図11のように分解してAESJ推奨値による崩壊熱をEXCELで計算したが、準備にかなりの時間を要し、1F事故のような非常時にはとても間に合わない。そのような場合には、(13)式のWay-Wignerの式($10 < t [\text{秒}] < 10^6$)や、(14)式のShureの式を使うと便利である。

$$\frac{P_d(t, \infty)}{P_0} = 0.0622t^{-0.2} \quad (13)$$

$$\frac{P_d(t, \infty)}{P_0} = At^{-\alpha} \quad (14)$$

これらの式は、炉心熱出力 P_0 と冷却時間 t を与えるだけなので、運転時間を調べる必要もなく、いち早く崩壊熱を計算できる。短期の崩壊熱に効くような短寿命核種はすぐに平衡濃度に達するため無限照射とみなせ、多くの場合に有効である。

図13(左)は3次元総和計算(全空間と全核種)の結果と比較したものであるが、2号機が溶融したと考えられている事故後80時間程度までであれば、10~20%の違いで詳細計算の結果を再現できる。その後は、燃焼履歴の影響を受ける核種の寄与が増えて差異は増大するが、過小評価することはない。

図13(右)は、AESJ推奨値との比較であるが、2.7年程度まで総和計算と良く一致している。ただし、アクチノイド崩壊熱に限ってみれば、 ^{239}Np がなくなると差異は大きく拡大する。

図14は、1F2事故後(炉停止後と考えても良い)の時間経過に伴ってどのような核種が崩壊熱に効くかを示したものである。10年程度経過すると、 ^{137}Cs 、 $^{137\text{m}}\text{Ba}$ 、 ^{90}Sr 、 ^{90}Y が崩壊熱全体の大部分を占めてくる。半減期が2.6分の $^{137\text{m}}\text{Ba}$ は半減期が約30年の ^{137}Cs の放射平衡娘核種であり、 $^{90}\text{Y}(2.7\text{d})$ も半減期が29年の ^{90}Sr の放射平衡核種である。親核種である ^{137}Cs と ^{90}Sr はいずれも燃焼度にほぼ比例して生成する特性をもつ核種であり、生成量の予測精度は良い。燃料デブリの場合は、揮発性Csの多くは揮発し、Srも冷却水に溶出していると考えられることから、燃料デブリは計算値に比べて小さい崩壊熱をもっていると予想される。50年程度経過すると、FP崩壊熱とアクチノイド崩壊熱が拮抗する程度となり、 ^{241}Pu の β 崩壊による増えてくる ^{241}Am の寄与が徐々に大きくなっていく。

Power history of 1F2

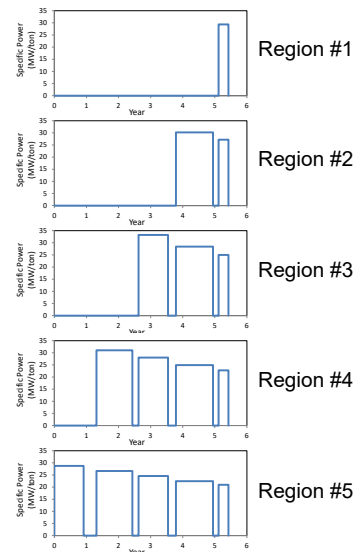


図12 1F2号機各バッチ領域照射履歴

t [s]	A	α
$10^{-1} \leq t \leq 10^1$	0.0603	0.0639
$10^1 \leq t \leq 1.5$	0.0766	0.181
$1.5 \times 10^2 \leq t \leq 4.0 \times 10^6$	0.130	0.283
$4.0 \times 10^2 \leq t \leq 2.0 \times 10^8$	0.266	0.335

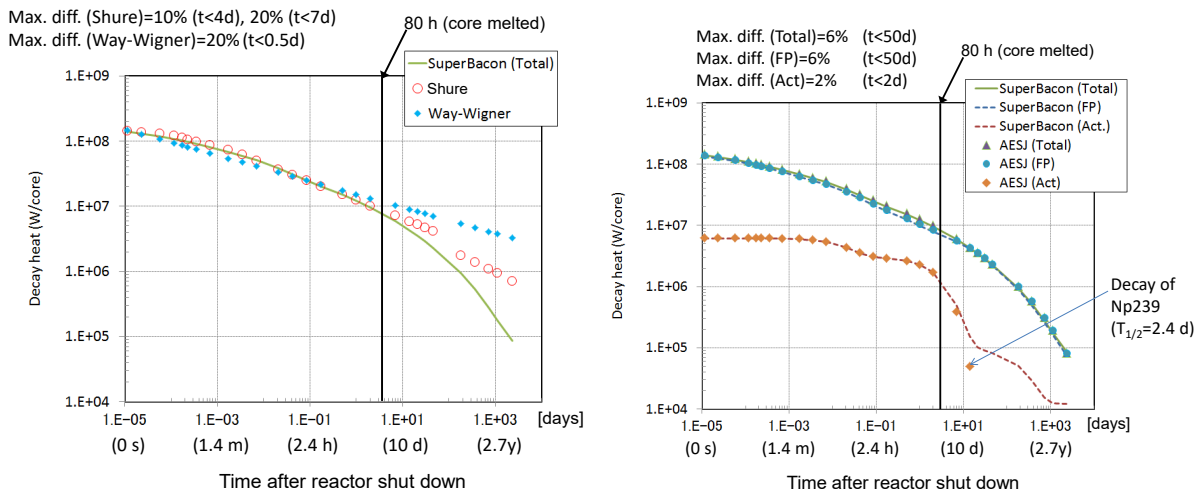


図 13 崩壊熱評価式と 3 次元総和計算との比較

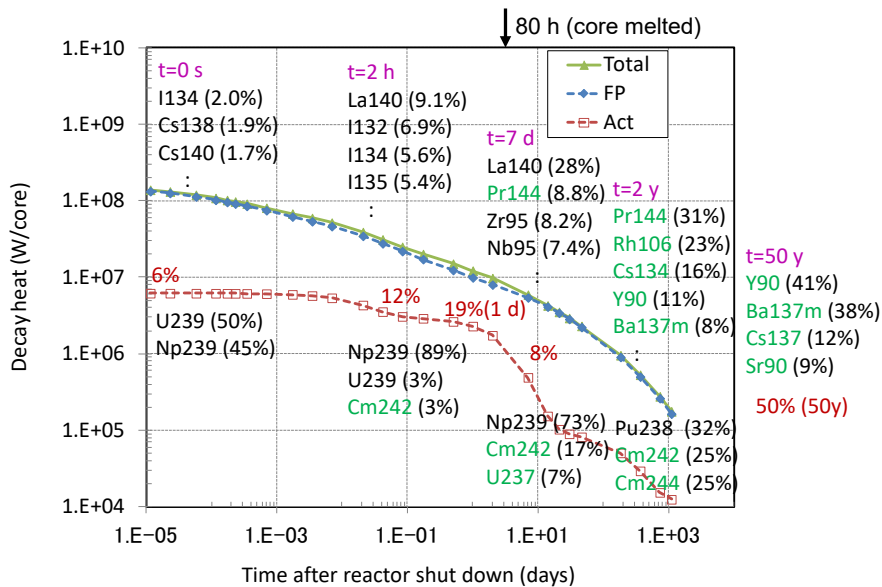


図 14 崩壊熱寄与核種の時間推移

10. おわりに

実践力は、教科書などにある知識だけで得られるものではなく、現場で知識を活用して大きな課題解決に挑み続けることにより体得できるものと思っている。数年前から福島県富岡町で従事している 1F 廃炉研究は、筆者にさらに多くの実践力を与えてくれる絶好の機会と感謝している。

【参考文献】

- 1) K. Tsuchihashi, Y. Ishiguro, K. Kaneko, M. Ido, "Revised SRAC code system," JAERI 1302 (1986).
- 2) K. Okumura, T. Kugo, K. Kaneko, K. Tsuchihashi, "SRAC2006: A Comprehensive Neutronics Calculation Code System," JAEA-Data/Code 2007-004 (2007).
- 3) Y. Nagaya, K. Okumura, T. Sakurai, T. Mori, "MVP/GMVP Version 3 : General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations Based on Continuous Energy and Multigroup Methods," JAEA-Data/Code 2016-018 (2017).
- 4) K. Okumura, "MOSRA-SRAC: Lattice Calculation Module of the Modular Code System for Nuclear Reactor Analyses MOSRA," JAEA-Data/Code 2015-015, (2015).
- 5) 奥村啓介, "MOSRA-Light;ベクトル計算機のための高速 3次元中性子拡散ノード法コード," JAERI-Data/Code 98-025 (1998).
- 6) 田坂寛二, "DCHAIN: 放射性ならびに安定核種の生成崩壊解析コード," JAERI 1250 (2006).
- 7) I. C. Gauld, O. W. Hermann, R. M. Westfall, "ORIGEN-S: SCALE SYSTEM MODULE TO CALCULATE FUEL DEPLETION, ACTINIDE TRANSMUTATION, FISSION PRODUCT BUILDUP AND DECAY, AND ASSOCIATED RADIATION SOURCE TERMS," ORNL/TM-2005/39, Version 6 Vol. II, Sect. F7 [SCALE manual].
- 8) A. Yamamoto, M. Tatsumi, N. Sugimura, "Numerical Solution of Stiff Burnup Equation with Short Half Lived Nuclides by the Krylov Subspace Method," J. Nucl. Sci. Technol., **44**, 147 (2007).
- 9) M. Pusa, "Rational Approximations to the Matrix Exponential in Burnup Calculations," Nucl. Sci. Eng., **169**, 155 (2011).
- 10) 山本章夫, "燃焼の基礎理論," 第38回炉物理夏期セミナーテキスト, pp.1-33, (2006).
- 11) 「遮蔽ハンドブック」研究専門委員会, "放射線遮蔽ハンドブック - 基礎編 -, " 一般社団法人 日本原子力学会 (2015).
- 12) J. Katakura, F. Minato, "JENDL Decay Data File 2015," JAEA-Data/Code 2015-030 (2016).
- 13) J. Katakura, "JENDL FP Decay Data File 2011 and Fission Yields Data File 2011," JAEA-Data/Code 2011-025 (2012).
- 14) K. Okumura, T. Mori, M. Nakagawa, 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**, 128 (2007).
- 15) 森 貴正, 中川 正幸, 金子 邦男, "連続エネルギーモンテカルロコード MVP 用中性子断面積ライブラリー作成コードシステム; LICEM,"
- 16) K. Okumura, "COREBN: A Core Burn-up Calculation Module for SRAC2006," JAEA-Data/Code 2007-003 (2007).
- 17) 加藤友章, 荒木 正明, 出雲 寛互, 他, "JRR-3 シリサイド燃料炉心に関する反応度管理及び燃焼度管理," JAEA-Technology 2007-050 (2007).
- 18) 内藤 俣孝, 黒沢 正義, 金子 俊幸, "軽水炉使用済燃料中の核種組成データ集," JAERI-M 93-061 (1993).

- 19) 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).
- 20) OECD/NEA, SFCOMP2.0, “Database of measured isotopic concentrations of spent nuclear fuel, with operational histories and design data,” <https://www.oecd-nea.org/sfcompo/>
- 21) (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).
- 22) 奥村 啓介, 大木 繁夫, 山本 宗也, 他, “JENDL による核種生成量予測精度の検討,” JAERI-Research-2004-025 (2005).
- 23) G. Chiba, K. Okumura, K. Sugino, et al., “JENDL-4.0 Benchmarking for Fission Reactor Applications,” J. Nucl. Sci. Technol., **48**, 172 (2011).
- 24) 奥村啓介, 森貴正, “照射後試験データの冷却補正における測定値の誤差伝播,” 日本原子力学会 2005 年春の大会要旨, G10 (2005).
- 25) 石川 真澄, 金子 悟, 北山 一美, 他, “地層処分安全評価の観点からのガラス固化体中の核種インベントリ評価の信頼性向上の取り組み,” 日本原子力学会和文論文誌, 8(4), No. 304 (2009).
- 26) K. Okumura, S. Asai, Y. Hanzawa, et al., “Analyses of Assay Data of LWR Spent Nuclear Fuels with a Continuous-Energy Monte Carlo Code MVP and JENDL-4.0 for Inventory Estimation of ^{79}Se , ^{99}Tc , ^{126}Sn , and ^{135}Cs ”, Progr. Nucl. Sci. and Technol., 2, 369 (2011).
- 27) 奥村 啓介, 岡本 力, “軽水炉使用済み燃料の核種インベントリ,” JAEA-Data/Code 2011-020 (2011).
- 28) K. Okumura, S. Asai, Y. Hanzawa, “Computational Study for Inventory Estimation of Se-79, Tc-99, Sn-126, and Cs-135 in High-level Radioactive Wastes from Spent Nuclear Fuels of Light Water Reactors”, Proc. of The ASME 2011 14th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management (ICEM2011), Sep. 25-29, 2011, Reims, France, ICEM2011-59087, (2011).
- 29) S. Asai, Y. Hanzawa, K. Okumura, et al., “Comparison of Post-Irradiation Experimental Data and Theoretical Calculations for Inventory Estimation of Long-Lived Fission Products in Spent Nuclear Fuel,” Proc. of The 13th Int. Conf. on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management (ICEM2010), Oct. 3-7, 2010, Tsukuba, Japan, ICEM2010-40101 (2010).
- 30) S. Asai, Y. Hanzawa, K. Okumura, et al., “Determination of ^{79}Se and ^{135}Cs in Spent Nuclear Fuel for Inventory Estimation of High-Level Radioactive Wastes,” J. Nucl. Sci. and Technol., 48, 851, (2011).
- 31) S. Asai, K. Okumura, Y. Hanzawa, “Validation of Correlations between Nd Isotopes and Difficult-Measure Nuclides Predicted with A Burn-up Calculation Code by Post Irradiation Examination”, Proc. of The ASME 2011 14th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management (ICEM2011), Sep. 25-29, 2011, Reims, France, ICEM2011-59086, (2011).
- 32) S. Asai, M. Toshimitsu, Yukiko Hanzawa, et al., “Isotope dilution inductively coupled plasma mass spectrometry for determination of ^{126}Sn content in spent nuclear fuel sample,” J. Nucl. Sci. and Technol., 50, 556, (2013).

- 33) R. J. Guenther, D. E. Blahnik, T. K. Campbell et al., Characterization of Spent Fuel Approved Testing Material –ATM-103/-104/-105/-106,” Pacific Northwest Laboratory, PNL-5109-103 (1988), -104 (1991), -105 (1991), -106 (1988).
- 34) A.G. Croff, “ORIGEN2: A Versatile Computer Code for Calculating the Nuclide Compositions and Characteristics of Nuclear Materials”, Nucl. Technol. **62**, 335 (1983).
- 35) 須山 賢也, 岩崎 智彦, 平川 直弘, “統合化燃焼計算コードシステム SWAT,” JAERI-Data/Code 97-047 (1997).
- 36) 須山 賢也, 片倉 純一, 大川 内靖, 他, “JENDL-3.2 に基づく ORIGEN2 用ライブラリ; ORLIBJ32,” JAERI-Data/Code 99-003, (1999).
- 37) 片倉 純一, 片岡 理治, 須山 賢也, 他, “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 (2004).
- 38) 奥村 啓介, 杉野 和輝, 小嶋 健介, 他, “JENDL-4.0 に基づく ORIGEN2 用断面積ライブラリセット:ORLIBJ40,” JAEA-Data/Code 2012-032 (2013).
- 39) K.Kojima, K. Okumura, S. Asai, “New ORIGEN2 Libraries Based on JENDL-4.0 and Their Validation for Long-Lived Fission Products by Post Irradiation Examination Analyses of LWR Spent Fuels,”
- 39))K. Okumura, K. Kojima, K. Tanaka, “Development of multi-group neutron activation cross-section library for decommissioning of nuclear facilities,” Proc. of 2014 Symposium on Nuclear Data, JAEA-Conf 2015-003, pp.43-47 (2015).
- 40) J-Ch Sublet, A J Koning, R A Forrest, J Kopecky, “The JEFF-3.0/A Neutron Activation File - EAF-2003 into ENDF-6 format -,” JEFDOC-982 (2003).
- 41) D.W. Muir, R.M. Boicourt, A.C. Kahler, "The NJOY Nuclear Data Processing System, Version 2012," LA-UR-12-27079 (Dec. 2012).
- 42) K. Kojima, K. Okumura, T. Okamoto, M. Goto, “Production of the ORIGEN2 Library Based on JENDL-4.0 for High Temperature Engineering Test Reactor,” Proc. of 6th International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology (HTR 2012), 2012, Oct. 28. – Nov. 1, 2011, Tokyo, Japan, Paper No. HTR2012-5-012, (2012).
- 43) 「原子炉崩壊熱基準」研究専門委員会, “原子炉崩壊熱とその推奨値,” 社団法人 日本原子力学会 (1989).
- 44) K. Okumura, K. Kojima, T. Okamoto, “Nuclear Data for Severe Accident Analysis and Decommissioning of Nuclear Power Plant,” Proc. of the 2012 Symposium on Nuclear Data, pp.15-20, JAEA-Conf 2013-002 (2013).
- 45) 奥村 啓介, Eka Sapta Riyana, 佐藤 若英, 他, “核分裂生成物の揮発を考慮した燃料デブリの崩壊熱予測,” 2018 年日本原子力学会春の大会, 3D06 (2018).