第9章

燃焼

- 1.はじめに
- 2.燃料の燃焼
- 3.核分裂生成物の毒作用
- 4.まとめ

[この章のポイント]

「燃料の燃焼」は、原子炉運転中に起こる原子核の変化・変遷を考 えるもので、燃料の減少などを通して原子炉の性能に大きな影響 を持つ。一方、「核分裂生成物の毒作用」は、原子炉運転に伴い、核分 裂反応により生み出される極めて大きな吸収断面積を持つ¹³⁵Xeと ¹⁴⁹Smの影響について考えるものである。これらの原子核の蓄積は 原子炉の増倍率などに大きな負の影響をもち、このことから毒作 用と呼ばれている。

第9章 燃焼

9.1 はじめに

本章では、長期間運転される原子炉の運転において重要となる、比較的長い時間 的挙動について説明する。具体的には、以下の2項目である。

(1) 燃料の燃焼

原子炉内で燃焼中の燃料に含まれる原子核は、中性子吸収や崩壊を繰り返し、 様々な原子核に変化していく。原子炉内で起るこのような原子核の変化を、原子炉 物理学では、燃焼(burnup)と呼んでいる。この燃焼は燃料の減少などを通して、 運転に伴う原子炉の性能に大きく影響を及ぼすことから、非常に重要である。な お、この「燃料の燃焼」は、月、年単位の挙動である。

(2) 核分裂生成物の毒作用

原子炉を運転すると、燃料内に核分裂生成物が生成される。生成される核 分裂生成物の種類は数百を越えるが、そのような数多くの核分裂生成物の中 に、¹³⁵Xeと¹⁴⁹Smという二つの核種がある。この二つの核種は他の主要な核分裂 生成核種に比べて、特に大きな吸収断面積を持つ。その大きさは熱中性子に対し、 ¹³⁵Xeは約3.0×10⁶ (barn)、¹⁴⁹Smは約5.9×10⁴ (barn)である。

これらの核種はまた、核分裂で生成される割合が大きく、原子炉の増倍率に 大きな影響をもつ。このような現象を原子炉物理学では、核分裂生成物の毒作用 (poisoning)^(注9.1)と呼んでいる。なお、この現象は時間あるいは日単位の挙動で ある。

9.2 燃料の燃焼

9.2.1 燃焼の基礎

(1) 単一の核反応

原子炉内で原子核は、中性子を吸収する核反応を起こし、異なった原子核に変化 する。たとえば、

$^{235}\text{U+n} \rightarrow ^{236}\text{U}$).1)
---	-----	---

である。

この核反応による²³⁵U原子核の変化を定量的に表現するため、²³⁵Uの単位体積当たりの数をN₂₃₅(個·m⁻³)とし、中性子束を ϕ (n·m⁻²·s⁻¹)、²³⁵Uの吸収断面積を σ_a^{235} (m²)とする。

第2章で述べた通り、原子核の反応率は、中性子束(ϕ)と巨視的断面積(Σ)で与 えられ、 Σ は微視的断面積(σ)と原子数密度(N)の積であることを思い出すと、²³⁵U の吸収反応率は、 $\phi\sigma_a^{235}N_{235}$ と書くことができる。²³⁵Uが吸収反応1回を起こすと、元 の原子核(²³⁵U)が1個減るから、²³⁵Uの吸収反応率 $\phi\sigma_a^{235}N_{235}$ は、²³⁵Uの減少率に等 しい。したがって、²³⁵Uの原子核数 N_{235} (個·m⁻³)は以下の微分方程式に従う。

$$\frac{dN_{235}(t)}{dt} = -\phi \ \sigma_a^{235} N_{235}(t) \$$
(9.3)

この微分方程式は容易に解くことができ、時間ゼロにおける²³⁵Uの原子核数をN_{0 235}と書くと

 $N_{235}(t) = N_{0\ 235} \exp\left(-\phi \ \sigma_a^{235}t\right) \ \cdots \qquad (9.4)$

となる。すなわち、²³⁵Uの原子核数は指数関数に従って減少する。その様子を図示すると、図9.1となる。この図の縦軸は初期の値に対する相対値である。

一方、²³⁵Uの吸収反応で生成する²³⁶Uに着目してみる。²³⁵Uが捕獲反応を起こして 減少した数は、²³⁶Uの原子核数の増加数になることに着目して、²³⁵Uの捕獲反応率 $\phi \sigma_c^{235} N_{235} \epsilon^{236}$ Uの増加率とできる。ここで、吸収反応でなく、捕獲反応を考えている ことに注意する必要がある。²³⁵Uは吸収(=捕獲+核分裂)により減少するが、²³⁶U

注9.1:「中性子を吸収する」物質のことを英語 でpoisonと呼ぶ。このことから、原子炉物理 では、中性子を吸収する物質、作用のことをそ れぞれ「**毒物」**、「毒作用」と称することがあ る。これらは、人体に対する化学的な「毒」と は全く異なる意味であることに注意する必要 がある。



図9.1 燃焼中の原子核の変化の様子(σa²³⁵=600barn、σc²³⁵=100barnとした場合)

は²³⁵Uが中性子を捕獲することにより生成する。すなわち、N₂₃₆(個·m⁻³)は、次の微 分方程式に従う^(注9.2)。

 $\frac{dN_{236}(t)}{dt} = \phi \,\sigma_c^{\,235} N_{235}(t) \quad \dots \tag{9.5}$

この微分方程式の解は、t=0における²³⁶Uの原子核数を0であるとすると、N₂₃₅(t)が (9.4) 式で与えられることを考慮して、

$$N_{236}(t) = N_{0\,235} \frac{\sigma_c^{235}}{\sigma_a^{235}} \left(1 - \exp\left(-\phi \,\sigma_a^{235} t\right) \right) \tag{9.6}$$

とできる。すなわち、²³⁶Uは指数関数的に飽和値に近づく。時間が十分経過したときの 値の²³⁶Uは、時間ゼロの元の原子核²³⁵Uの数に $\sigma_c^{235}/\sigma_a^{235}$ を乗じたものに等しくなる。

(例題9.1)

原子数密度2.0×10²⁶(個·m⁻³)の²³⁵Uを、中性子束1×10¹⁸(個·m⁻²·s⁻¹)で1年 間燃焼させたときの²³⁵Uと²³⁶Uの原子数密度を求めよ。²³⁵Uの吸収断面積は600 (barn)、捕獲断面積は100 (barn)とする。なお、²³⁶Uの吸収などによる減少は無 視する。

〈解答9.1〉

²³⁵Uの原子数密度は (9.4) 式、²³⁶Uの原子数密度は (9.5) 式に従う。 $\phi \sigma_a^{235} = 1 \times 10^{18} \times 600 \times 10^{-28} = 6.0 \times 10^{-8}$ (1/s) $t = 3600 \times 24 \times 365 = 3.15 \times 10^{7}$ (s) $\phi \sigma_a^{235} t = 6.0 \times 10^{-8} \times 3.15 \times 10^{7} = 1.89$ exp ($-\phi \sigma_a^{235} t$) = exp (-1.89) = 0.151 これより、 N₂₃₅ (1年) = 2.0 × 10²⁶ × 0.15 = 0.3 × 10²⁶ (個·m⁻³) N₂₃₆ (1年) = 2.0 × 10²⁶ × 100/600 (1-0.15) = 0.28 × 10²⁶ (個·m⁻³)

(2) 核反応の連鎖

ついで、核反応が連鎖的に起こる場合を考える。たとえば、	
²³⁵ U+n→ ²³⁶ U および ²³⁶ U+n→ ²³⁷ U	(9.7)
である。なお、このような連鎖的な反応を	
$^{235}\text{U} \xrightarrow{n} ^{236}\text{U} \xrightarrow{n} ^{237}\text{U}$	(9.8)
) キノニ)) よ ?	

と書くこともある。

この3つの核に関わる連鎖的な核反応において、初めの核である²³⁵Uは、前節の

注9.2:右辺が²³⁶Uでなく、²³⁵Uの反応率であ ることに注意。 (9.2) 式と同じ微分方程式に従う。すなわち、

$$\frac{dN_{235}(t)}{dt} = -\phi \,\sigma_a^{235} N_{235}(t) \,\dots \tag{9.9}$$

しかし、次の原子核である²³⁶Uについては、前節と同じではない。それは、²³⁶U自身の中性子吸収を考慮しなければならない点である。²³⁶Uの吸収核反応率は前節 の²³⁵Uの吸収反応率と同様に考えることができて- $\phi \sigma_a^{236} N_{236}(t)$ と書くことができる (235でなく236に代わっている点に注意)。従って²³⁶Uが従う微分方程式は、先の ²³⁶Uの微分方程式(9.4式)に、この- $\phi \sigma_a^{236} N_{236}(t)$ を加えたものとなり、

$$\frac{dN_{236}(t)}{dt} = \phi \,\sigma_c^{235} N_{235}(t) - \phi \,\sigma_a^{236} N_{236}(t) \quad \dots \qquad (9.10)$$

と書くことができる。一方、²³⁶Uから生成される²³⁷Uに対する微分方程式は、前節の ²³⁶Uと同様の方程式、すなわち、

$$\frac{dN_{237}(t)}{dt} = \phi \ \sigma_c^{236} N_{236}(t) \quad \dots \qquad (9.11)$$

である。(9.11)式において、吸収でなく捕獲断面積を用いていることに注意。

それぞれの核の吸収断面積や捕獲断面積などが与えられれば、これら3つの微分 方程式 (9.9) 式、(9.10) 式、(9.11) 式を連立して解くことにより、連鎖的な核反応に 関わる原子核の数の変化を定量的に得ることができる。

(3)崩壊を伴う場合

原子炉内の燃焼中には、安定でない原子核が生成されることがある。このような不 安定な原子核は、原子炉での燃焼中における崩壊現象による核の変化を考慮しなけ ればならない。

たとえば、以下のような²³⁸Uの中性子吸収反応で生まれる²³⁹Uは、約23分の半減 期でβ崩壊して²³⁹Npに変わる。

 238 U $\xrightarrow{n} ^{239}$ U $\xrightarrow{\beta 崩壞} ^{239}$ Np ······ (9.12)

この²³⁹Uの原子核の数を考えると、²³⁸Uの中性子吸収による生成と、²³⁹Uの崩壊に よる消滅の二つの過程を考えることが必要となる。この考えを用いて、²³⁹Uの原子核 数N_{U239}(個・m⁻³)に関する微分方程式は、

と書くことができる^(注9.3)。この方程式を解けば、崩壊を伴う原子核の数の変化を解 析することができる。

(4) 中性子吸収と崩壊の両方を伴う場合

実際に原子炉の燃焼中には、これまでに学んだ中性子吸収による原子核の変化と 崩壊による原子核の変化が同時に起こることも多い。そこで、それら両方を考慮する 方法について考えてみる。

そこで、ある原子核の核反応・崩壊がともに起こる例を、図9.2に示すように一般的 な形で表す。

この例では、原子核Aが原子核Bの崩壊により、また原子核Cの中性子吸収により 生成される。一方、原子核A自身が中性子吸収を起こすとともに崩壊を起こし、別の 原子核に変化している。

このような原子核Aにおいて、その生成消滅を考える場合、二つの生成項

①Bの崩壊によるAの生成と、

②Cの中性子吸収(+n)によるAの生成

および、二つの消滅項

③Aの中性子吸収(+n)によるAの消滅と、

注9.3: この²³⁹Uの例では、²³⁹Uの半減期が 非常に短いので²³⁹Uの中性子吸収反応は無 視でき、²³⁹Uの減少はすべて崩壊によると考 えている。



図9.2 中性子吸収と崩壊を伴う原子核の燃焼

④Aの崩壊によるAの消滅

の4つの項を考える必要がある。前節までの知識を基にすると、これら4つの項は、

 Bの崩壊によるAの生成 	$+\lambda_B N_B(t)$
②Cの中性子捕獲 (+n) によるAの生成	$+\phi \sigma_c^{\ C} N_C(t)$
③Aの中性子吸収 (+n) によるAの消滅	$-\phi \sigma_a^A N_A(t)$
④Aの崩壊によるAの消滅	$-\lambda_A N_A(t)$

と書くことができる。これらを用いると、中性子吸収と崩壊をともに伴う原子核Aの数 を支配する微分方程式を書くことができる。

$\frac{dN_A(t)}{dt}$	$= \underbrace{+\lambda_B N_B(t)}$	$+\phi\sigma_c^C N_C(t)$	$-\phi\sigma_a^A N_A(t)$	$-\lambda_A N_A(t)$		1820-11-182
	 ①原子核B の崩壊によ 	②原子核C の中性子捕獲	③原子核A の中性子吸収	 ④原子核A の崩壊によ 	******	(9.14)
	る生成	による生成	による消滅	る消滅		

この方程式を解けば、Aの原子核の数の変化を定量的に知ることができる。 実際の原子炉内の燃焼では、さまざまな原子核の核反応や崩壊が相互に関係し合うこととなり、数十を超える多くの原子核についての微分方程式を立てる必要があるため、実際はかなり複雑な問題になる。

9.2.2 燃焼解析の実際

(1) 燃焼計算コード

TAT IN

上述した通り、実際に燃料の燃焼を解析するには、多くの原子核に対する微分方 程式を立式して、それらを連立させて解く必要がある。2~3個程度の連立微分方程 式の場合、原子核の微視的実効断面積が変化しないとすれば、線形であることもあ り、解析的な解法が可能である。また、数値的な解法も容易である。

しかし、数十を超える核について同時に解こうとすると、半減期の長短、吸収断面 積の大小、またループ状の原子核生成過程などの点から、解析的な手法は適用が不 可能となる。このため実際には、燃焼の解析は数値的に行われることになるが、その 解法も先と同じ理由から容易なものではない。

燃焼解析を数値的に行う方法としては、Bateman法、有限差分法、マトリックス指





図9.4 広範囲の原子核(重核)に対する詳細燃焼チェーン(一例)

注9.4: ORIGENコードにはいくつかの事例 があり、断面積の入力や計算の仕方の点でこ となるので、使用に当たっては十分注意する ことが必要である。

注9.5: ORIGENコードについては、たとえば、 以下を参照のこと。A.G.Croff "ORIGEN2-A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code", ORNL-5621 (1980)

注9.6: なお、原子炉の運転に伴って中性子 吸収が非常に大きな¹³⁵Xeと¹⁴⁹Smの核分裂 生成物が生成蓄積される。この二つの原子核 は通常の燃焼計算からは切り離して、次節で 述べる独自の方法によりその効果を考慮する のが一般的な方法である。 数関数法、ルンゲクッタギル法など幾つかの手法があげられ、また、それらに用いた 燃焼解析コードが数多く開発されている。

燃焼計算コードの一例として、最も広く用いられているORIGENコード^(注9.4)を 挙げることができる。ORIGENコードには、ほとんどの原子核に対して中性子断面 積および崩壊データが付属ライブラリとして与えられており、そのために非常に広範 な原子核についての燃焼計算が容易に可能となっている^(注9.5)。これらの特徴から、 ORIGENコードが燃焼計算でよく使われる。

(2) 燃焼チェーン

通常のウラン燃料を用いる原子炉においては、²³⁵Uおよび²³⁹Puを核燃料として燃 焼が進むこととなるが、この場合の燃焼の進み方の様子を図示すると簡易的には図 9.3、さらに広い原子核の範囲について精密にまとめると図9.4になる。なお、このよ うな燃焼における原子核の変化の過程を、わかりやすく表したものを燃焼チェーン (burnup chain)と呼ぶ。

原子炉あるいはそこで使用する燃料の性能、特性を知るために、原子炉中でどのような原子核が生成されるか(あるいは消滅するか)、またそれらがどのような生成消 減過程をたどるかを把握しておくことが重要である。それらの理解は、原子炉の運転 や燃料の燃焼だけでなく、核燃料の加工、転換、再処理などの核燃料サイクルの各 過程を理解する上で、極めて重要となる。

(3) 核分裂生成物および可燃性毒物

これまで燃焼に関する説明では、燃料の核分裂により生み出される核分裂生成物 について言及してこなかった。しかし実際の原子炉の燃焼を考える場合、核分裂生 成物も考える必要がある。原子炉の中で生まれる核分裂生成物は数百種類以上にな るため、多くの原子炉計算では核分裂生成物すべてをあらわに扱うこことはなく、実 際には主だった核分裂生成物10~30種類程度に限定している場合が多い^(注9,6)。

その他、燃焼解析においては、原子炉の運転中の反応度変化を小さくするために 用いられる可燃性毒物(¹⁵⁵Gd、¹⁵⁷Gdなど)も、その解析対象として重要なものであ る。現在の原子炉計算では、可燃性毒物専用の燃焼計算法が種々開発されており、 実際の原子炉設計に取りいれられている。

9.2.3 核燃料の燃焼、増殖

ここでは、燃料の燃焼に関わるいくつかの項目について整理しておく。

(1) 燃焼度

第3章で述べたように、原子炉の燃料において、燃料の燃焼の様子を表す単位と して、燃焼度(burnup)という独特の単位が用いられている。これは、原子炉に装荷 された燃料が核分裂によって発生させたエネルギーを、装荷初期の重金属(ウラン、 プルトニウム)の単位重量当たりに発生したエネルギーで表したものとして定義される (注9.7)。

燃焼度は、燃料が原子炉内でどの程度燃えたかを示す指標である。具体的に は、核燃料1トン(ここで1トンは初期の重金属の重量)が燃焼をして、1メガワッ ト(1MW)の熱を1日間(1d)、出し続けた場合のエネルギーを表す単位である 「MWd/t」(メガワットデイパートンと読む)が良く用いられる。

</

1グラムの²³⁵Uをすべて核分裂させたときの発生エネルギーをMWd単位で求めよ。 ²³⁵Uの原子量を235とする。

〈解答9.2〉

1グラムの²³⁵Uの原子数は、(1/235)×6×10²³で約2.5×10²¹である。核分裂1個あた りの発生エネルギーは約200MeVであるから、それは1 (eV) =1.60×10⁻¹⁹(J)を用い ると200×10⁶×1.60×10⁻¹⁹=3.2×10⁻¹¹(J)である。従って1グラムの²³⁵Uをすべて核 分裂させたときのエネルギーは、2.5×10²¹×3.2×10⁻¹¹=8.0×10¹⁰(J)=8.0×10⁴(MJ) である。

一方、1W=1(J/s)と1(d)=86400 (s) を考慮すると、1MWd=1M(J/s)d=1(MJ)×
 86,400=8.6×10⁴(MJ)である。以上から、1グラムの²³⁵Uをすべて核分裂させたときの発生エネルギーはMWd単位で8.0×10⁴(MJ)/8.6×10⁴(MJ/MWd)=0.93 (MWd)
 ⇒1.0 (MWd) である。

上の例題9.2 (すなわち1gのウランがすべて核分裂した時の発生エネルギーは 約1.0MWd)を用いると、1トンのウランがすべて核分裂した時の発生エネルギー が10⁶MWdであること、言い換えると、ウランがすべて核分裂するときの燃焼度は 10⁶(MWd/t)であることが分かる。

現在運転されている軽水炉では主として約3~5%程度の濃縮度の燃料が用いられているが、これらの燃料が達成できる燃焼度の目安は、その燃料が初期に持つ²³⁵U量がすべて核分裂した時と考えることができる。その燃焼度はウランがすべて核分裂したときの燃焼度である10⁶(MWd/t)に濃縮度(3~5%程度)を乗じることで算出でき、すなわち10⁶(MWd/t)×(0.03~0.05)=30,000~50,000MWd/tである^(注9,8)。

なお、実際の燃料の燃焼では、燃焼中のプルトニムの生成とその核分裂あるいは ウランの中性子吸収によるマイナーアクチニド(後述)の生成などの効果を考慮する 必要があり、そのため、原子炉の燃料の燃焼解析に詳細な燃焼計算が必要となる。 (2) 転換と増殖

天然に存在する核種でエネルギーが低い入射中性子に対して、核分裂を起す原子 核(核分裂性核種(fissile nuclide)、第3章参照)は²³⁵Uのみである。しかし²³⁸Uや ²³²Thに中性子を吸収させると、次のプロセスによって低い運動エネルギーでも核分

裂する原子核である、²³⁹Pu、²³³Uが生成される。このため、これらの原子核を親物質 (fertile)という。²³⁹Puの例では、²³⁸Uの捕獲から、²³⁹U(半減期23分)、²³⁹Np(同 2.4日)を経て²³⁹Puが生成される。

238 U+ $^{1}_{0}$ n \rightarrow 239 U- $^{\beta}_{,23.5min}$ \rightarrow 239 Np- $^{\beta}_{,23.5min}$	$\xrightarrow{1^{-,2.4 \text{day}}} 2^{239} \text{Pu} \cdots$	(9.15)
²³² Th $+_0^1$ n \rightarrow ²³³ Th $\xrightarrow{\beta^-, 23.3 \text{min}}$ \rightarrow ²³³ Pa-	$\beta^{-27.4 \text{day}} \rightarrow^{233} \text{U}$	(9.16)

注9.7:原子炉の出力などの燃焼条件が異な る場合、同じ期間燃焼した燃料でも、その燃 料が起こした核分裂反応の量、そして発生エ ネルギーが異なる。したがって燃焼度は異な る。

注9.8:30,000~50,000MWd/t程度の燃焼 度が、現行の軽水炉における燃料燃焼の目 安となる。そして、燃料の取出し燃焼度を上 げるためには、燃料の濃縮度を上げることが 最も有効な手段であることが分かる。

第9章 燃焼

注9.9: 転換比と増殖比は呼び名が違うだけ で、中身は同じ、同じ定義式であることに注 意せよ。 このような核反応は、核燃料の資源の利用効率を大幅に向上させる。とくに、 ²³⁹Puの場合、ウラン資源の99.3%を占める²³⁸Uを核燃料として利用できることにつな がり、原子力利用にとって非常に重要である。

このような親物質から核分裂性核種が生成される過程を、転換(conversion)と よぶ。そして、ある原子炉において、運転により消費される核分裂性核種と、その原 子炉運転中に転換されて生成される核分裂性核種の量の比を、転換比(conversion ratio)と呼ぶ。²³⁸Uを燃料として運転される原子炉において生成される²³⁹Pu量を例 に取ると、転換比は以下となる^(注9.9)。

転換比=<u>生成された²³⁹Puの原子数</u> 消費された²³⁵Uの原子数 (9.17)

さらに、転換比が1以上になった場合に、転換比を増殖比(breeding ratio)と呼ぶ。

増殖比 = <u>生成された²³⁹Puの原子数</u>(おおよそ1以上の場合のとき用いる) 消費された²³⁵Uの原子数

(3) マイナーアクチニドの生成

原子炉の中では以上のような過程で²³⁸Uが中性子を吸収することにより²³⁹Puが生成され、核燃料として利用される。しかし、同じく原子炉では、この過程で生み出された²³⁹Puが中性子吸収を行い、²⁴⁰Puが生成される。そして、その²⁴⁰Puから更に高次のプルトニウムが生み出される。すなわち

 $^{239}\mathrm{Pu} \xrightarrow{n}^{240}\mathrm{Pu} \xrightarrow{n}^{241}\mathrm{Pu} \xrightarrow{n}^{242}\mathrm{Pu} \cdots (9.19)$

さらに、このような高次のPuからは、Am (²⁴¹Am、^{242m}Am、²⁴³Amなど) やCm (²⁴²Cm、²⁴³Cm、²⁴⁴Cmなど) が生成される。このような核種を、超ウラン元素 (TRU: Trans-Uranium) と呼ぶことが多い。また、TRUからPuを除いた核種をマイ ナーアクチニド (MA: Minor-Actinide) と呼ぶ。

通常の原子炉運転で生成されるマイナーアクチニドに含まれる核種は、Np、Am、 Cmである。これらのマイナーアクチニドは、^{242m}Am、²⁴⁵Cmなど一部の核種を除き、 熱中性子に対する核分裂断面積が小さく、熱中性子炉では核燃料として使用するこ とは難しい。このため、マイナーアクチニドは再処理において取り除かれ、廃棄物とし て処分される。処理・処分におけるマイナーアクチニドの特徴を整理すると、以下のよ うになる。

寿命が極めて長い核種が存在する (たとえば²³⁷Npでは約200万年) 多くは α 崩壊をするため潜在的な放射能毒性が強い、 α 崩壊連鎖をする (たとえば²⁴³Am \rightarrow ²³⁷Np \rightarrow ²³⁴U \rightarrow ²³⁰Th \rightarrow など)、 崩壊時の発熱量が大きい核種が存在する (たとえば²⁴¹Am)、 中性子放出率が大きい核種が存在する (たとえば²⁴⁴Cm)。

このため、核燃料の処理・処分においては、マイナーアクチニドの取り扱いが極めて重要となる。

また、長寿命で潜在的な毒性が強いマイナーアクチニドは処分時の大きな負担に なるため、マイナーアクチニドを分離する方策、さらにはマイナーアクチニドを原子炉内 で核変換させて安定あるいは短寿命な核種、低毒性の核種に変える、または核分裂 断面積が大きい核種に変換し、核分裂させる方策(核変換と呼ぶこともある)が研究 されている。

9.3 核分裂生成物の毒作用

9.3.1 135Xe2149Sm

原子炉の運転中に生成される¹³⁵Xeは約3.0×10⁶barn、¹⁴⁹Smは約5.9×10⁴barnという、格段に大きな吸収断面積を持つ。このため、これらの原子核の蓄積量は原子炉の 増倍率に大きな影響をもつ。以下、この作用について定量的に解説する。 まず¹³⁵Xeと¹⁴⁹Sm共通の原理的な面から学んだ後、順に、¹³⁵Xe、ついで¹⁴⁹Smについて学ぶ。なお、この毒作用は、熱中性子炉において重要であり、高速炉においては、高速中性子に対する吸収断面積が小さいことからあまり問題とならない。

9.3.2 毒物の反応度への効果

今、燃料と減速材から構成されている一様の原子炉(均質炉)を考える。そして、そ こに熱中性子に対して大きな断面積を有する毒物が加えられることを考え、この毒物 の増倍率に対する影響を考える。

毒物が入る前の原子炉の実効増倍率をkとすると、kは6因子公式(5.82式)から、

 $k = \varepsilon p f \eta P_E P_T \qquad (9.20)$

と表せる。ここで、 ϵ は高速核分裂因子、pは共鳴を逃れる確率、fは熱中性子利用率、 η は中性子再生率であり、 P_{F} および P_{T} は高速中性子および熱中性子が体系から漏れ ない確率である。そして、この毒物の毒作用が主に熱中性子に対するものであること から、増倍率への毒物の影響は、6因子公式上、熱中性子利用率を通じて及ぼされ ることとなる^(注9.10)。

この原子炉の燃料 (F) と減速材 (M) の巨視的吸収断面積を Σ_a^F, Σ_a^M とすると、熱中 性子利用率は、

$$f = \frac{\Sigma_a^F}{\Sigma_a^F + \Sigma_a^M} \dots$$
(9.21)

と書ける。この状態の原子炉に、巨視的吸収断面積がΣ^ρである毒物が加えられたとする。毒物投入後の実効増倍率と熱中性子利用率をそれぞれk'とf'とすると、これらは、

 $k' = \varepsilon p f' \eta P_F P_T \cdots (9.22)$

$$f' = \frac{\Sigma_a^F}{\Sigma_a^F + \Sigma_a^M + \Sigma_a^P} \dots$$
(9.23)

となる。毒物投入前後の反応度をpおよびp'とすると、毒物投入による反応度変化Δp は

である。さらに、毒物投入前の原子炉のkがほぼ1に近いとする(k~1)と

$$\Delta \rho = 1 - \frac{f}{f'}.....(9.25)$$

とできる。この式に (9.21) 式ならびに (9.23) 式を代入すると、

$$\Delta \rho = 1 - \frac{\Sigma_a^F}{\Sigma_a^F + \Sigma_a^M} \left/ \frac{\Sigma_a^F}{\Sigma_a^F + \Sigma_a^M + \Sigma_a^P} = 1 - \frac{\Sigma_a^F + \Sigma_a^M + \Sigma_a^P}{\Sigma_a^F + \Sigma_a^M} = -\frac{\Sigma_a^P}{\Sigma_a^F + \Sigma_a^M} \cdots \right. \tag{9.26}$$

と書ける。さらに、燃料と減速材の吸収断面積の和を $\Sigma_a (= \Sigma_a^F + \Sigma_a^M)$ で表すと、

$$\Delta \rho = -\frac{\Sigma_a^P}{\Sigma_a} \tag{9.27}$$

となる。この式から、毒物の毒作用を求めることができる。すなわち、毒物の反応度 効果は、毒物の巨視的吸収断面積と、燃料および減速材の巨視的吸収断面積の合計 との比によって与えられる。

上式に基づいて、毒物の毒作用の大きさを求めるためには、その毒物の巨視的吸 収断面積が必要となる。巨視的吸収断面積は微視的吸収断面積と原子数密度の積 注9.10:熱中性子断面積が大きい毒物の場 合、 ϵ , p, η は変化しない。 P_F およ UP_T は厳密 には、毒物の有無によって変化する。しかし、 大型の原子炉を考えると、 P_F も P_T ともに~1な ので、 P_F およ UP_T の変化はないと近似できる。 以下では核分裂生成物の収率と典型的な軽 水炉における反応度効果等に触れながら説 明する。 で与えられるから、特定の核による毒物の毒作用を得るためにはその核の原子数密度 (の時間変化)を知らなければならない。

9.3.3¹³⁵Xeの毒作用

(1) 生成消滅の式

¹³⁵Xeは熱中性子に対し、ほぼ3.0×10⁶(barn)という大きな吸収断面積を持ち、 核分裂から直接生成される(1回の核分裂あたり約0.2%)とともに、核分裂で生成さ れる¹³⁵Te、¹³⁵Iから下記の燃焼チェーンに沿って生成される(1回の核分裂あたり計 約6.4%)。生成された¹³⁵Xeはこのチェーンに沿って崩壊するとともに、中性子吸収に よって、¹³⁶Xeに核変換される。

¹³⁵Te^{$$\beta, T_{1/2} < 1min$$})¹³⁵I ^{$\beta, T_{1/2} = 6.7h$})¹³⁵Xe ^{$\beta, T_{1/2} = 9.2h$}
¹³⁵Cs ^{$\beta, T_{1/2} = 2\times 10^6 \text{ yr}$})¹³⁵Ba(\cancel{F}_{777})¹³⁵Ba(

以下、このような生成消滅過程における¹³⁵Xeの濃度を追いかけ、その毒作用を、前 項で示した方法で定量的に検討する。

¹³⁵Xeの濃度(の時間変化)を定量的に知るためには、¹³⁵Xe自身の生成消滅のほか、 その親核の¹³⁵Iに対する生成消滅の式を作る必要がある^(注9.11)。¹³⁵Xeおよび¹³⁵Iの生 成消滅の式を定式化するために必要な原子核のチェーンを整理した図を図9.5に示す。

図中の記号のうち、X(t)、 λ_X 、 γ_X 、 σ_X は¹³⁵Xeに対する濃度、崩壊定数、核分裂収率 (fission yield)、微視的吸収断面積であり、I(t)、 λ_I , γ_I , σ_I は¹³⁵Iに対するそれらを意 味する。なお、この節に限って、原子数密度を単に濃度と表現する。表9.1には、それら ¹³⁵Xe、¹³⁵Iに対する生成消滅に関する数値データを、主な核分裂性の原子核である ²³³U、²³⁵U、²³⁹Pu、²⁴¹Puに対して示している。

これらを使って、 135 Xe、 135 Iの生成消滅の式を書く。 ϕ を中性子束、 Σ_f を巨視的核分裂断面積とする。まず 135 Iに対しては、

dI (i dt	$\frac{t}{t} = -\lambda_I I(t)$	$- \sigma_I I(t) \phi +$	$\underline{\gamma_I \Sigma_f \phi}$	 (0.20)
	¹³⁵ Iの崩壊 による消滅	中性子吸収による変換消滅	核分裂による生成	(9.29)

と書ける。この式において、¹³⁵Iの中性子吸収断面積σ_Iが小さいため、第2項が第1項 に比べて十分小さいとして、第2項を無視できる。この結果、¹³⁵Iの生成消滅の式は、



図9.5¹³⁵Xe毒作用解析のために用いる壊変図 表9.1 核分裂生成物収率と壊変定数

核分裂生成物	勿 収率 ^(注 9.12)	²³³ U	²³⁵ U	²³⁹ Pu	²⁴¹ Pu	崩壞定数 (h ⁻¹)
¹³⁵ I	γ _I (%)	4.884	6.386	6.100	7.694	$\lambda_I = 0.1035$
¹³⁵ Xe	γ_X (%)	1.363	0.228	1.087	0.255	λ_{χ} =0.0753
¹⁴⁹ Pm	γ_P (%)	0.66	1.13	1.9	0.0	$\lambda_p=0.0128$

注9.12:表9.1において、核分裂収率は、1核 分裂あたりにその核が生成される数で定義 される。なお、核分裂反応では1回の核分裂 あたり2個の核分裂生成物ができることから、 核分裂収率は全体で200%になるように規格 化されている。

注9.11:¹³⁵Iの半減期が¹³⁵Xeと同程度であるこ とから必要となる。厳密には、核分裂によって直接 生成される¹³⁵Teの生成消滅についても定式化す べきではあるが、¹³⁵Teは半減期が極めて短いこ とから¹³⁵Iが核分裂によって直接生成するとして 良い。核分裂からの¹³⁵Teの収率は、¹³⁵Iの収率に 含めて考える。

$\frac{dI(t)}{dt}$	$= -\lambda_{I}I(t) + 135I の崩壊による消滅$	+ $\gamma_1 \Sigma_f \phi$ 核分裂に よる生成	 (9.30
	による消滅	よる生成	

とできる。一方、¹³⁵Xeに対しては

$$\frac{dX(t)}{dt} = -\lambda_{x}X(t) - \underbrace{\sigma_{x}X(t)\phi}_{1^{35}Xe \ O \ Bla \ W} + \underbrace{\gamma_{x}\Sigma_{f}\phi}_{1^{25}I \ O \ Bla \ W} + \underbrace{\lambda_{i}I(t)}_{1^{35}I \ O \ Bla \ W} \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots (9.31)$$

となる。

1-1-5

(2) 平衡状態

原子炉をある程度長期間運転すると、¹³⁵Iと¹³⁵Xeの濃度は平衡に達する。そのとき の濃度と、毒作用について学ぶ。平衡状態においては、*dI/dt=dX/dt=*0である。これを、 (9.30) 式と (9.31) 式に代入することにより、平衡状態での濃度が求められる。¹³⁵I の平衡状態での濃度を*I*₀と書くと、(9.30) 式から、

 $I_0 = \frac{\gamma_I \Sigma_f \phi}{\lambda_I}.$ (9.32)

となる。また、135Xeに対しての平衡状態の濃度をXoと書くと、この値は (9.31) 式から

 $0 = -\lambda_X X_0 - \sigma_X X_0 \phi + \gamma_X \Sigma_f \phi + \lambda_I I_0 \qquad (9.33)$

であり、(9.32)式を用いれば平衡状態のXe濃度は、

$$X_{0} = \frac{\gamma_{X} \Sigma_{f} \phi + \lambda_{I} I_{0}}{\lambda_{X} + \sigma_{X} \phi} = \frac{\gamma_{X} \Sigma_{f} \phi + \gamma_{I} \Sigma_{f} \phi}{\lambda_{X} + \sigma_{X} \phi} = \frac{(\gamma_{X} + \gamma_{I}) \Sigma_{f} \phi}{\lambda_{X} + \sigma_{X} \phi}$$
(9.34)

と求められる。この135Xeの濃度Xoを、(9.27)式に代入すると

$$\Delta \rho = -\frac{\Sigma_a^P}{\Sigma_a} = -\frac{X_0 \sigma_X}{\Sigma_a} = -\frac{\sigma_X}{\Sigma_a} \frac{(\gamma_X + \gamma_I) \Sigma_f \phi}{\lambda_X + \sigma_X \phi} = -\frac{\sigma_X (\gamma_X + \gamma_I) \Sigma_f \phi}{(\lambda_X + \sigma_X \phi) \Sigma_a} \quad \dots \dots \quad (9.35)$$

として¹³⁵Xeの毒作用が求められる。炉心の巨視的吸収断面積と巨視的核分裂断面 積が与えられると、この式から具体的な毒作用の値を求めることができる。

以下、具体的な値に言及する代りに、²³⁵Uのみを燃料とする原子炉では無限増倍率 がνΣ_ℓ/Σ_αで与えられることに着目して考察する。すなわち、無限増倍率をk_∞と書くと、

$$k_{\infty} = \frac{\nu \Sigma_f}{\Sigma_a} \quad \tag{9.36}$$

である。さらに、実効増倍率kは、k。に体系から漏れない確率を乗じた値、すなわち

$$k = k_{\infty} P_F P_T = \frac{\nu \Sigma_f}{\Sigma_a} P_F P_T \cdots$$
(9.37)

と書ける。この式から、¹³⁵Xeの毒作用を求める (9.35) 式に必要なΣ_t/Σ_aが

$$\frac{\Sigma_f}{\Sigma_a} = \frac{k}{P_F P_T} \frac{1}{\nu}$$
(9.38)

と得られる。臨界にある大型炉の場合、実効増倍率は1、中性子が体系から漏れない確率もほとんど1であることから、上式は、

$$\frac{\Sigma_f}{\Sigma_a} \cong \frac{1}{\nu} \tag{9.39}$$

となる。この式を、(9.35)式に代入して、¹³⁵Xeの毒作用を求めると、

$$\Delta \rho = -\frac{\sigma_X(\gamma_X + \gamma_I)\Sigma_f \phi}{(\lambda_X + \sigma_X \phi)\Sigma_a} = -\frac{\sigma_X(\gamma_X + \gamma_I)\phi}{\nu(\lambda_X + \sigma_X \phi)} = -\frac{(\gamma_X + \gamma_I)\phi}{\nu\left(\frac{\lambda_X}{\sigma_X} + \phi\right)} \quad \dots \tag{9.40}$$

となる。

注9.13: (9.40) 式に基づいて考察すると、中 性子束が低いとき、すなわち¢≪λ_X/σ_Xのとき は

$$\Delta \rho = -\frac{(\gamma_X + \gamma_I)\phi}{v\frac{\lambda_X}{\sigma_z}} = -\frac{\sigma_X(\gamma_X + \gamma_I)}{v\lambda_X}\phi \propto \phi$$

となり、 135 Xeの毒作用の反応度損失が中性 子束に比例することとなる。逆に、中性子束 が高く ϕ > λ_X/σ_X とできる場合①には、

$$\Delta \rho = -\frac{(\gamma_X + \gamma_I)\phi}{\nu\phi} = -\frac{(\gamma_X + \gamma_I)}{\nu}$$

となる。これより、¹³⁵Xeの毒作用には(y₁+y_X)/v という最大値が存在することがわかる。すなわ ちゅがいくら大きくなってもこの値を超えること はない。²³⁵Uを燃料とする熱中性子炉では、こ の値は0.026 (Δk)となる。この値は、原子炉 の運転の観点から見て、大きな値である。した がって、原子炉の余剰反応度と原子炉の制御 系の設計では、この反応度損失に打ち勝つ余 裕を持つようにしなくてはならない。

 λ_{x}/σ_{x} =0.756×10¹⁷(m⁻²s⁻¹)であり、たとえば 典型的な軽水炉の中性子束は10¹⁷(m⁻²·s⁻¹)で あることから、この条件をほぼ満たしていると 考えてよい。 この式の中の変数のうち、¢以外は定数であり、平衡状態の¹³⁵Xeの毒作用すなわち 反応度損失量は、中性子束の大きさにのみ依存する量となっていることがわかる^(注9,13)。

(注9.13)より、典型的な軽水炉においては、¹³⁵Xeの反応度損失は2.6%Δk程度である。たとえば、PWRにおける燃焼中の反応度変化は1か月に1%Δk程度であるため、Xeによる反応度損失は大きいと言える。

(3) 原子炉停止後の¹³⁵Xe濃度

原子炉を停止すると、¹³⁵Xeの濃度は平衡状態から変化する。¹³⁵Xe自身が不安定 核なので、停止後十分時間が経つと、最終的に¹³⁵Xeの濃度はゼロとなる。しかし、 ¹³⁵Xeの場合、親核の¹³⁵Iの半減期が¹³⁵Xeの半減期より短い(すなわち $\lambda_I > I_X$)ことか ら、単調にゼロにならずに¹³⁵Xe濃度がいったん上昇する特徴がある。ここでは、原子 炉停止後特有の振舞いをする¹³⁵Xe濃度の時間変化に着目する。

はじめに原子炉が一定の出力で平衡状態にあったとする。このときの¹³⁵Iと¹³⁵Xe 濃度は、それぞれ (9.32) と (9.34) 式で与えられる I_0 、 X_0 である。まず¹³⁵Iから考える。 原子炉停止後の¹³⁵I濃度は、(9.30) 式において、中性子束をゼロとした式、すなわち

$$\frac{dI(t)}{dt} = -\lambda_I I(t) \quad$$
(9.41)

で与えられる。この式を、初期状態の135I濃度をIoとして解くと

 $I(t) = I_0 \exp(-\lambda_1 t)$ (9.42)

となる。次いで、¹³⁵Xeに対しても同様にして(すなわち式(9.31)においてφ=0として)、 さらに(9.42)式を代入すると、

$$\frac{dX(t)}{dt} = -\lambda_X X(t) + \lambda_I I(t) = -\lambda_X X(t) + \lambda_I I_0 \exp(-\lambda_I t) \quad \dots \qquad (9.43)$$

となる。この微分方程式を解くと(Appendix V参照)、

$$X(t) = \exp(-\lambda_{X}t) \left(\int_{0}^{t} \exp(\lambda_{X}t') (\lambda_{I}I_{0} \exp(-\lambda_{I}t')) dt' + X_{0} \right)$$

$$= \exp(-\lambda_{X}t) \left(\frac{\lambda_{I}}{\lambda_{X} - \lambda_{I}} I_{0} \left[\exp(-(\lambda_{I} - \lambda_{X})t') \right]_{0}^{t} + X_{0} \right) \qquad (9.44)$$

$$= \frac{\lambda_{I}}{\lambda_{X} - \lambda_{I}} I_{0} \left[\exp(-\lambda_{I}t) - \exp(-\lambda_{X}t) \right] + X_{0} \exp(-\lambda_{X}t)$$

となる。この式の右辺第1項は、停止後の¹³⁵Iの崩壊で生成した¹³⁵Xeの濃度の変化であり、第2項は原子炉停止時に存在した¹³⁵Xeが崩壊することによる¹³⁵Xe濃度の変化を表す。この (9.44) 式を、¹³⁵Xe毒作用を表す式 (9.27)、すなわち

$$\Delta \rho(t) = -\frac{\Sigma_a^p}{\Sigma_a} = -\frac{X(t)\sigma_X}{\Sigma_a} \quad (9.45)$$

に代入し、(9.34) 式による X_0 、(9.32) 式による I_0 および (9.39) 式による Σ_f / Σ_a を利用 すると、

$$\Delta\rho(t) = -\frac{1}{\nu} \left(\frac{\gamma_I \sigma_X \phi}{\lambda_X - \lambda_I} \left(\exp(-\lambda_I t) - \exp(-\lambda_X t) \right) + \frac{(\gamma_X + \gamma_I) \phi}{\frac{\lambda_X}{\sigma_X} + \phi} \exp(-\lambda_X t) \right)$$
(9.46)

となる。図9.6に中性子束を変えたときのΔρ(t)の値を示す^(注9.14)。

この図からわかるように、¹³⁵Xe濃度は一度上昇し、10時間程度経過したところでピークに至り、その後、数10時間かけてゼロに向かって減少して行く。毒作用の最大値、すなわちピーク時の反応度損失は、中性子束が10¹⁷(m⁻²·s⁻¹)以下のときには非常に小さいが、中性子束が大きくなると毒作用も大きくなり、中性子束が2×10¹⁸(m⁻²·s⁻¹)になるとピーク時の反応度損失が-0.33 (²³⁵Uを燃料として用いる炉心の場合)にも達する。この場合、原子炉の制御系が0.1 (10%)の反応度余剰を持っていたとしても、原子炉停止後1時間以内に原子炉を再起動しない限り、30時間以上にわたり原子炉を再起動できないことになる^(注9.15)。

最後に原子炉停止後¹³⁵Xe濃度が最大となる時間について見ておく。原子炉停止後

注9.14: なお、平衡時の濃度 I₀とX₀が運転中の 中性子束に依存することから、図9.6に見られるように、原子炉停止後の¹³⁵Xeの濃度変化も中性子 束に依存することとなる。

注9.15:この期間はreactor dead timeと呼ばれ、 原子炉を艦船などの動力源として用いる場合に 深刻な問題となり得る。すなわち、何らかのトラブル により原子炉が停止し、すぐに再起動できなかっ た場合、長時間にわたって動力源が失われること になるためである。従って、例えば艦船で用いられ る動力用の原子炉においては、燃料の²³⁵U濃縮 度を高めることで、炉心の余剰反応度を大きくす る設計がなされている。

- 166 -

¹³⁵Xe濃度が最大となる時間は、(9.44)式を微分し、dX/dt=0と置くことにより得られる。すなわち、

$$\frac{dX(t)}{dt} = \frac{\lambda_I}{\lambda_X - \lambda_I} I_0 \left(-\lambda_I \exp(-\lambda_I t) + \lambda_X \exp(-\lambda_X t) \right) - \lambda_X X_0 \exp(-\lambda_X t) = 0 \quad (9.47)$$

より求めることが可能である。

 $\langle \textbf{例題9.3} \rangle$ $(9.47) 式から濃度が最大となる時間t_{max}を求めよ。$ $\langle \textbf{解答9.3} \rangle$ (9.47) 式から、 $<math display="block"> \frac{\lambda_I}{\lambda_X - \lambda_I} \lambda_I I_0 \exp(-\lambda_I t_{max}) = \left(\frac{\lambda_I}{\lambda_X - \lambda_I} \lambda_X I_0 - \lambda_X X_0\right) \cdot \exp(-\lambda_X t_{max})$ $\Rightarrow x b 5, \quad \frac{\exp(-\lambda_I t_{max})}{\exp(-\lambda_X t_{max})} = \left(\frac{\lambda_I}{\lambda_X - \lambda_I} \lambda_X I_0 - \lambda_X X_0\right) \frac{1}{\frac{\lambda_I}{\lambda_X - \lambda_I}} \lambda_I I_0$ $\geq x b \uparrow, \quad \exp((\lambda_X - \lambda_I) t_{max}) = \frac{\lambda_X}{\lambda_I} - \frac{\lambda_X X_0 (\lambda_X - \lambda_I)}{\lambda_I^2 I_0}$ $\exp((\lambda_X - \lambda_I) t_{max}) = \frac{\lambda_X}{\lambda_I} \left(1 - \frac{\lambda_X - \lambda_I}{\lambda_I} \frac{X_0}{I_0}\right) \cdots$ (9.48) $\geq \tau \diamond \delta + t_{max} = \frac{1}{\lambda_X - \lambda_I} \ln\left(\frac{\lambda_X}{\lambda_I} \left(1 - \frac{\lambda_X - \lambda_I}{\lambda_I} \frac{X_0}{I_0}\right)\right) \cdots$ (9.49)

のように求められる。





図9.6 原子炉停止時のXe毒作用の時間変化

この式に、 λ_I =0.1035(h⁻¹)、 λ_X =0.0753(h⁻¹)を代入し、 I_0 、 X_0 として平衡状態の値を 使うと、中性子束濃度が高いとき、約11時間となる(図9.6参照)。

(4) Xeの空間振動

以上のように、¹³⁵Xe濃度は時間変化をするが、大きな原子炉の中では、Xeの時間 変化が場所ごとに異なることがある。原子炉の内部の異なる場所で別のXe変動が起 こることがあり、それを通常Xeの空間振動(Xe oscillation)と呼んでいる。以下、そ の現象の概要を説明する。

大きな原子炉を考え、その原子炉の一部分の空間領域で、一時的にある領域(領域Iと呼ぶ)の中性子束が高くなり、一方別の領域(領域IIと呼ぶ)の中性子束は小さくなったとする。中性子束が高くなった領域Iでは、高くなった中性子束の効果により(より多くの中性子が¹³⁵Xeにより吸収されることとなるので)、¹³⁵Xeの濃度が低下しはじめる。濃度が低下すると正の反応度が投入されるので、その領域Iの中性子束がさらに増大する結果となる。これは更に¹³⁵Xeの濃度を下げ、反応度と中性子束を増す。しかし、一定時間後には、その間に増加した¹³⁵Iの崩壊により¹³⁵Xeが増えはじめるため、やがて中性子束の増加傾向は止まり、減少に転ずることとなる。

一方で、はじめに出力が低下した領域Ⅱではまったく逆の位相(出力の時間変化) でこの振動現象が起る(中性子束低→Xe濃度高→反応度低→中性子束低・・・)。こ の結果、領域IとⅡの間において、原子炉内出力分布が振動する現象が起こる。この ような現象がXeの空間振動である。詳細な¹³⁵Xe振動解析から、¹³⁵Xe振動の周期は 約1日であることがわかっていて、通常の制御棒操作で容易に制御できる。しかしな がら、¹³⁵Xe振動により加えられる局所的な中性子束(出力)の増加は比較的大きい ことがあるため、燃料に損傷を与える可能性があるので、このXeの空間振動に対す る十分な注意が必要である。なお、発電用の原子炉では、炉外・炉内に配置された 中性子検出器によりこのような振動の監視を行っている。

9.3.4 Smの毒作用

¹⁴⁹Smは、熱中性子に対して約5.9×10⁴ (barn) という吸収断面積を持つ。この断面 積は、¹³⁵Xeの3.0×10⁶ (barn) に比べると1/50程度であるものの、他の主要な核分裂 生成物に比べると格段に大きな値であり、この毒作用も原子炉物理上重要な項目と なっている。

しかし、¹⁴⁹Smの特徴は、Xeと違って安定な原子核である点である。このため、 ¹⁴⁹Smの濃度や毒作用の時間的な挙動は¹³⁵Xeの場合とは異なる。¹⁴⁹Smに関する チェーンを次に示す。

¹⁴⁹Ndの崩壊定数は¹⁴⁹Pmの崩壊定数に比べて大きいので、核分裂により直ちに ¹⁴⁹Pmができると考えることができる。以下、P、Sをそれぞれ¹⁴⁹Pm、¹⁴⁹Smの濃度、 $\lambda_p e^{149}$ Pmの崩壊定数、 $\sigma_s e^{149}$ Smの微視的吸収断面積、 $\gamma_p e^{149}$ Pmの核分裂収率とする。

先の表9.1には、それら生成消滅に関する数値データを、主な核分裂原子核である ²³³U、²³⁵U、²³⁹Puに対して示している。¹⁴⁹Pm、¹⁴⁹Smに対する生成消滅の式を、前節 にならって作成すると以下のようになる。

$dt = -A_p P(t)$ ¹⁴⁹ Pmの崩壊 による消滅	+ γ _P Σ _f φ 核分裂に よる崩壊	 (9.51)
$\frac{dS(t)}{dt} = -\sigma_s S(t) \phi$ 中性子吸収に よる変換消滅	+ 入 _p P(t) ¹⁴⁹ Pmの崩壊 による消滅	 (9.52)

$$P_0 = \frac{\gamma_P \Sigma_f \phi}{\lambda_P} \quad \dots \tag{9.53}$$

$$S_0 = \frac{\lambda_P P_0}{\sigma_S \phi} = \frac{\lambda_P}{\sigma_S \phi} \frac{\gamma_P \Sigma_f \phi}{\lambda_P} = \frac{\gamma_P \Sigma_f}{\sigma_S}$$
(9.54)

となり、そのときの毒作用 (反応度損失量) は、 (9.35) 式を¹⁴⁹Smに書き換えた式、すなわち、

$$\Delta \rho = -\frac{\Sigma_a^P}{\Sigma_a} = -\frac{S_0 \sigma_s}{\Sigma_a} \quad \dots \tag{9.55}$$

に、(9.54)式によるSoおよび(9.39)式によるΣfΣaを代入した次式で得られる。

$$\Delta \rho = -\frac{\gamma_P \Sigma_f}{\sigma_S} \frac{\sigma_S}{\Sigma_a} = -\frac{\gamma_P}{\nu} \quad$$
(9.56)

平衡に達するまでの時間は¹³⁵Xeの場合に比べると長く、運転開始後数日を要する。¹⁴⁹Smの平衡時の濃度は中性子束に依存しない点が、¹³⁵Xeの場合と異なる。平衡時の¹⁴⁹Smの毒作用は、 y_p として²³⁵Uの熱中性子核分裂に対する1.13%を用いると、0.00463(Δk)となる。

また原子炉停止後のSmの毒作用は (9.51) 式、(9.52) 式で φ=0と することにより得られる。

$$\frac{dP(t)}{dt} = -\lambda_P P(t) \qquad (9.57)$$

$$\frac{dS(t)}{dt} = \lambda_P P(t) \qquad (9.58)$$

を、初期条件P(0)=P0、S(0)=S0の下で解くことにより得られ、

 $P(t) = P_0 \exp(-\lambda_P t) \quad (9.59)$



図9.7 原子炉停止時のSm毒作用の時間変化

$$S(t) = \int_{0}^{t} \lambda_{p} P_{0} \exp(-\lambda_{p} t') dt' + S_{0} = P_{0} \Big[-\exp(-\lambda_{p} t') \Big]_{0}^{t} + S_{0} \qquad (9.60)$$
$$= P_{0} \Big[1 - \exp(-\lambda_{p} t) \Big] + S_{0} = \frac{\gamma_{p} \Sigma_{f} \phi}{\lambda_{p}} \Big[1 - \exp(-\lambda_{p} t) \Big] + \frac{\gamma_{p} \Sigma_{f}}{\sigma_{s}}$$

となる。これから、¹⁴⁹Smの原子炉停止後の毒作用による反応度の時間変化を求める。 (9.55)式に、(9.60)式のS(t)を代入し、さらに(9.39)式によるΣ_d/Σ_aを利用すると、

$$\Delta \rho = -\frac{S(t)\sigma_s}{\Sigma_s} = -\frac{\sigma_s}{\Sigma_s} \left(\frac{\gamma_p \Sigma_f \phi}{\lambda_p} \left[1 - \exp(-\lambda_p t) \right] + \frac{\gamma_p \Sigma_f}{\sigma_s} \right)$$
$$= -\frac{1}{\nu} \sigma_s \left(\frac{\gamma_p \phi}{\lambda_p} \left[1 - \exp(-\lambda_p t) \right] + \frac{\gamma_p}{\sigma_s} \right) \qquad (9.61)$$
$$= -\frac{\gamma_p}{\nu} \left(1 + \frac{\sigma_s \phi}{\lambda_p} \left[1 - \exp(-\lambda_p t) \right] \right)$$

となる。つまり原子炉停止後の毒作用は、中性子束に依存する。図9.7に種々の中性子 束に対する原子炉停止後の¹⁴⁹Smによる反応度変化を示す。 $2 \times 10^{18} (m^{-2} \cdot s^{-1})$ の中性 子束に対しては、¹⁴⁹Smの毒作用による反応度は最大 $-0.027 (\Delta k)$ となる。これは¹³⁵Xe による反応度よりはるかに小さい。しかし、¹³⁵Xeの場合と違い、¹³⁵Smは安定核であ るので、時間がたっても減ることがないことに注意する必要がある。

9.4 まとめ

本章では原子炉の長い時間範囲で起る時間的挙動として、燃料の燃焼と核分裂 生成物XeとSmの毒作用について説明した。

燃焼については、初めに、その基本的な考え方、定量的な微分方程式の立式、その 解法などについて学んだ。また、実際の原子炉における燃焼では、運転に伴う核燃料 の燃焼、親物質からの生成、また核分裂生成物の生成などを考慮する必要があり、そ のためには数十を超える生成消滅の微分方程式を解く必要があることを学んだ。現在、 それらの解法には数値的な解析が行われており、その代表的な手法を紹介した。

ついで、核分裂生成物の中でも核分裂で生じる割合が高く、ともに大きな中性子 吸収断面積を持つXeとSmについて学んだ。そこでは、これらが及ぼす毒作用、その 影響(反応度の変化)、その具体例が説明された。これらにより、XeあるいはSm、特 にXeは原子炉の特性、臨界性に大きな影響を有していることがわかる。このことを意 識し、8.7節のチェルノブイリ原発事故と反応度効果を今一度読み返してみると、その 重要性がわかる。

《演習問題》

- [1] 厚さ0.001cm、面積1cm²の金箔(¹⁹⁷Auが100%存在)を熱中性子束10⁵cm⁻²sec⁻¹ で1日照射する。照射後1日たったときの¹⁹⁸Auの放射能は何ベクレルか計算せよ。 ただし、金の密度は19.3g/cm³、熱中性子に対する放射化断面積は98.8 (barn) お よび¹⁹⁸Auの半減期は2.698日とする。またexp(-0.2577)=0.773である。なお、金箔 中での中性子束の落ち込みは考慮しない。
- [2] 以下の文章を読んで問いに答えよ。

²³⁸Uは中性子捕獲反応(微視的断面積σ_c)により、²³⁹Uになる。²³⁹Uはベータ崩壊(半減期T₁)して、²³⁹Npになる。²³⁹Npはベータ崩壊して(半減期T₂)して²³⁹Puになる。

- ①中性子照射中の各原子核の原子数密度を求めるための方程式を示せ。ただし、 ²³⁸Uの時刻tにおける原子数密度を $N_{28}(t)$ とし、同様に²³⁹Uは $N_{29}(t)$ 、²³⁹Npは $N_{39}(t)$ 、²³⁹Puは $N_{49}(t)$ と表すものとする。また、中性子束を ϕ とする。
- ②中性子束= 10^{18} (n·m⁻²·s⁻¹)の場で²³⁸Uを照射しているとする。 T_1 =23.5分、 T_2 =2.35日であるので、²³⁹Uと²³⁹Npの原子数密度は照射開始後10日以上たつと 平衡状態となる。このとき、時刻t(t>10日)における²³⁹Puの原子数密度を表す式 を求めよ。ただし²³⁸Uの原子数密度の初期値を N_0 、また²³⁸Uの微視的吸収断面 積を σ_a =2 (barn)とする。
- [3] 天然ウランを燃料とする無限に大きな熱中性子炉が、その寿命期間を通じて一定の中性子束 ϕ を保って運転されるとする。²³⁵U、²³⁸U、²³⁹Puの熱中性子吸収断面積をそれぞれ σ_a^{25} 、 σ_a^{28} 、 σ_a^{49} 、²³⁵U、²³⁹Pu、²⁴¹Puの熱中性子核分裂断面積をそれぞれ σ_f^{25} 、 σ_f^{49} 、 σ_f^{41} 、核分裂当りの中性子発生数をそれぞれ v^{25} 、 v^{49} 、 v^{41} 、高速核分裂因子を ε 、²³⁸Uの共鳴を逃れる確率をpとする。
- ①燃焼に伴う²³⁵Uの原子数密度の時間変化を求めよ。なお、高速中性子に対する ²³⁵Uの吸収反応は無視する。
- ②熱中性子によって引き起こされる核分裂から生じる核分裂中性子の発生数(単位体積・単位時間当たり)を求めよ。なお、²³⁸U、²⁴⁰Puの核分裂は無視する。
- ③高速および熱中性子によって引き起こされる核分裂から生じる核分裂中性子の 発生数(単位体積・単位時間当たり)を求めよ。なお、²³⁸U、²⁴⁰Puの核分裂は無 視する。

(ヒント:②で求めた結果に基づき、高速核分裂因子をを考慮する)

④③で求めた核分裂中性子が減速している途中で引き起こす共鳴吸収の発生数 (単位体積・単位時間当たり)を求めよ。

(ヒント:共鳴を逃れる確率をpとすると、共鳴を逃れない確率、すなわち共鳴吸 収される確率はどうなるか)

- ⑤燃焼に伴う²³⁹Puの原子数密度の時間変化を求めよ。なお、以下の仮定をせよ。
 - ・高速中性子に対する²³⁹Puの吸収反応は無視する。
 - ・④で求めた共鳴吸収は²³⁸Uによるものであり、結果として²³⁹Puが生成される。
 - ・燃焼に伴う²³⁸Uの原子数密度の変化は無視する。

[4] 原子炉で生成される¹³⁵Xeと¹⁴⁹Smについて、下図に示す生成経路を仮定して、 以下の問に答えよ。解答に当たっては、核分裂による生成率にはy、核種濃度 にはN、崩壊定数には λ 、吸収断面積には σ を用い、下添え字_{IV-X}、P、sにより¹³⁵I、 ¹³⁵Xe、¹⁴⁹Pm、¹⁴⁹Smを区別するものとする。なお、ここで考える原子炉の巨視的 核分裂断面積を Σ_{f} 、巨視的吸収断面積を Σ_{a} 、定格出力運転時の中性子束を ϕ と する。また、原子炉中の中性子吸収物質の反応度価値 $\Delta \rho$ は、次式で表すことが できるものとする。

$$\Delta \rho = 1 - \frac{J}{d}$$

ここで、fは中性子吸収物質が存在しないときの熱中性子利用率、f'は中性子吸収物質が存在するときの熱中性子利用率である。



- ①¹⁴⁹Pm、¹⁴⁹Smに対する生成消滅の式を記すとともに、原子炉定格出力運転時の ¹⁴⁹Pm、¹⁴⁹Smの核種濃度の平衡値N_P⁰、N_S⁰を求めよ。
- ②①で求めた原子炉定格出力運転時の¹⁴⁹Smがもつ中性子吸収効果の反応度価値 値 Δρ_sを求めよ。また、その反応度価値の中性子束(の大きさ)依存性について 説明せよ。
- ③定格出力運転している原子炉を停止したときの¹⁴⁹Smの核種濃度の時間変化を 表す式 $N_s(t)$ を求めよ。また、停止後十分な時間が経過した後の¹⁴⁹Smの核種濃 度 N_s^{∞} を求めよ。
- ④¹³⁵I、¹³⁵Xeに対する生成消滅の式を記すとともに、原子炉定格出力運転時の¹³⁵I、 ¹³⁵Xeの核種濃度の平衡値N₁⁰、N_x⁰を求めよ。
- (5)④で求めた原子炉定格出力運転時の¹³⁵Xeがもつ中性子吸収効果の反応度価 値Δρ_Xを求めよ。また、その反応度価値の中性子束(の大きさ)依存性について 説明せよ。