

第 8 章 核燃料の燃焼

内容

第 8 章 核燃料の燃焼.....	157
8.1 燃焼の概要	160
8.1.1 概念	160
8.1.2 燃焼度	164
8.1.3 増倍率の変化.....	165
8.1.4 中性子スペクトルとの関係.....	168
8.2 燃焼における物理現象.....	172
8.2.1 重核種	172
8.2.2 核分裂生成物.....	175
8.2.3 可燃性毒物	182

【この章のポイント】

- ・ 核燃料が核分裂反応によりエネルギーを発生し、核分裂性核種（核分裂を起こしやすい核種）を消費していくことを「燃焼」という。
- ・ 核燃料の燃焼においては、核分裂性核種を消費するだけでなく、核分裂性核種が生成される物理現象（転換）も発生する。
- ・ 核分裂反応が生じると中性子の発生とともに通常 2 個の核分裂生成物が生成される。これらは中性子の吸収反応に寄与する。
- ・ 燃焼に伴い、核分裂性核種の消費/生成、中性子を吸収する核種の生成が生じ、核分裂反応や吸収反応の発生数が変化するため、原子炉の増倍率や出力分布等の核特性が変化する。

原子力発電では核分裂反応に伴って発生するエネルギーを利用し発電を行っている。核燃料が核分裂反応によりエネルギーを発生し、核分裂性核種（核分裂を起こしやすい核種）を消費していくことを、原子炉物理の分野では**燃焼 (burnup または depletion)** という。日常生活で使用される「燃焼」という用語からは、ロウソクや木炭などが炎を上げて燃える現象、すなわち、化学反応によるエネルギーの発生を連想すると思われるが、原子炉物理分野での燃焼についても、核分裂反応によりエネルギーを発生し、同時に燃料を消費していくという意味では、化学反応による燃焼と同様の概念と考えるのであればよい。

ただし、核燃料の燃焼においては、化学反応による燃焼にはない特徴がある。それは、エネルギーを生み出す元となっている核分裂性核種が消費されるだけでなく、生成されるメカニズムも備わっているということである。さらに言えば、核燃料が燃焼する中で、生成が消費を上回れば、いわゆる燃料の増殖が実現できる。この点は原子力工学の興味深い物理現象の一つであろう。

運転中の原子炉では、燃焼が絶えず生じており、核分裂反応によりエネルギーを発生しながら、時々刻々と燃料の組成を変化させ続けている。燃料の組成が変化すると、核種によって核反応の断面積は様々であることから、核分裂反応や吸収反応の発生数が変化し、原子炉の核特性が変化する。そのため、原子炉を運転する上で燃焼の取扱いは非常に重要である。

また、原子炉でのエネルギーの発生を終えた使用済燃料は、放射能、放射線量、発熱量等の観点から特別な管理や取扱いが必要である。放射能評価、放射線量評価、発熱量評価等のインプットには、使用済燃料中の核種組成、すなわち、燃焼を経験した後の核種組成が使用されるため、燃焼はこのような評価とも深く関係している。

本章では核燃料の燃焼について解説する。燃焼の概要から始め、燃焼における物理現象を述べる。

8.1 燃焼の概要

【この節のポイント】

- ・ 燃焼により、核分裂性核種の消費および生成、核分裂生成物の生成、重核種の組成変化が生じ、核燃料の核種組成が変化する。
- ・ 核燃料がどの程度燃焼したかを示す量として、燃焼度が使用される。燃焼度は、未燃焼時の重核種重量あたりの発生エネルギーで定義される物理量である。
- ・ 燃焼により核燃料の増倍率が変化する。これは、核分裂性核種の減少、中性子を吸収する重核種や核分裂生成物の増加、親核種から核分裂性核種への転換による。
- ・ 核反応の断面積は中性子のエネルギーに依存するため、燃焼に伴う核種組成の変化の挙動は中性子スペクトルに依存する。

8.1.1 概念

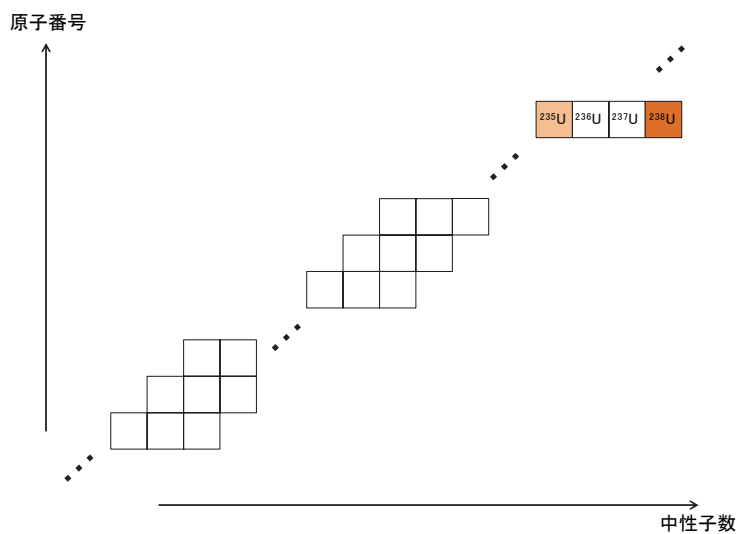
核燃料の燃焼についてイメージを描いてもらうため、軽水炉のウラン燃料を対象として、燃焼中の核種組成の挙動を説明する。ここでは、横軸に中性子数、縦軸に原子番号をとり、それぞれの中性子数および原子番号を持つ核種を 1 マスずつ埋めた形式の表を用いて解説する。概念図を図 8-1 に示す。この表は核図表と呼ばれるものである。本紙面では核図表全体を示すことは到底不可能であるので、核図表が手元にある方や Web ページ等で参照可能な方は、ぜひ核図表を開きながら以降の説明を読み、イメージを膨らませて欲しい。

原子炉物理の分野では、核種はその役割に応じて大まかに以下の通り分類される。

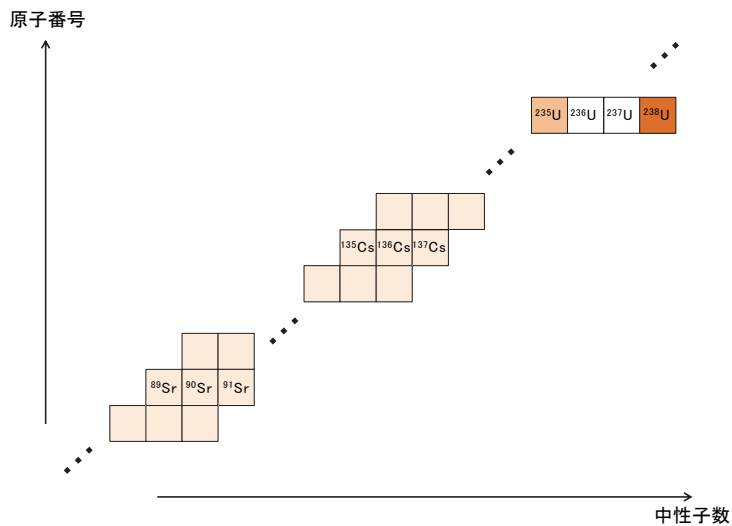
- ・ (メジャーな) アクチノイド¹ : 核分裂エネルギーの発生源として核燃料の初期組成に含まれる核種。ウラン (U)、プルトニウム (Pu) を指す。
- ・ マイナーアクチノイド : ウランよりも原子番号の大きい核種 (超ウラン核種) のうち、プルトニウム以外の核種の総称。ネプツニウム (Np)、アメリシウム (Am)、キュリウム (Cm)、カリフォルニウム (Cf) など。
- ・ 軽核 : 中性子の速度を落とす減速材の役割を果たす、質量数が小さい核種。水素 (H)、炭素 (C) など。
- ・ 中重核 : 構造材として使用される、質量数が中程度の核種。アルミニウム (Al)、鉄 (Fe)、ジルコニウム (Zr) など。
- ・ 核分裂生成物 (核種) : 核分裂によって生成される核種。質量数 80~160 の核種が主要である。

¹ アクチノイドを、アクチナイドまたはアクチニドという場合もある。

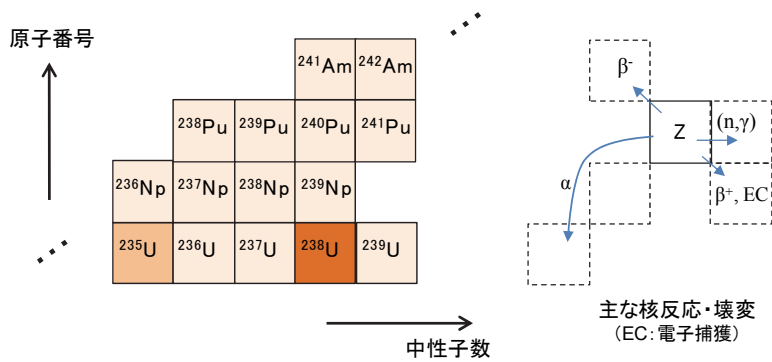
ここで、アクチノイドとは、原子番号 89 のアクチニウム (Ac) から原子番号 103 のローレンシウム (Lr) の元素の総称である。また、原子炉物理の分野では、アクチノイドを重核種ともいう。核燃料の燃焼、すなわち、核燃料内に含まれる核種組成の変化を考える場合には、(メジャーな) アクチノイドの核分裂反応により核分裂生成物が生成される物理現象や、(メジャーな) アクチノイドが捕獲反応を起こしマイナーアクチノイドが生成される物理現象が主なものであり、以降では、これらの核種、すなわち、アクチノイド、および核分裂生成物に特に着目して、核燃料内の核種組成の挙動を説明する。なお、軽核より構成される減速材や中重核より構成される構造材について、中性子照射により材料組成が変化する過程を**放射化 (activation)** という。放射化については、以降の説明では取り上げないものの、中性子との反応により組成が時間変化するという点は、核燃料の燃焼と同様であることを付記しておく。



(a) 燃焼前の状態



(b) 燃焼後（核分裂反応後）の状態



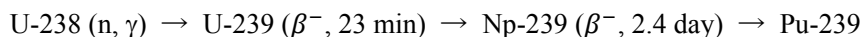
(c) アクチノイド核種の生成

図 8-1 燃焼の概念図

軽水炉のウラン燃料は主として U-235 と U-238 から構成されている。U-235 は熱中性子に対して核分裂反応を起こしやすい性質をもった核種であり、このような核種を**核分裂性核種 (fissile nuclide)**と呼ぶ。天然のウランにおいては、全ウラン質量に対する U-235 の質量割合は約 0.7 wt% (例として、ウランが 100 g 存在している場合、U-235 が 0.7 g 存在していることを意味する) であり、U-235 を濃縮し、その質量割合を約 3~5 wt% に高めて核燃料として使用している。ウラン燃料が原子炉で使用される前、すなわち燃焼が生じる前の状態は図 8-1(a) に示す通りとなっており、U-235 が約 5 wt%、U-238 が約 95 wt% 存在している。図 8-1(a) においては概念的に質量割合を色の濃さで示している。

ここで、核分裂性核種の U-235 が中性子との反応により核分裂反応を起こしたとする。核分裂反応が起こると、2~3 個程度の中性子の発生とともに、通常 2 個の核分裂生成物が生成される。核分裂生成物が生成した状態を図 8-1(b) に示す。後述するが、U-235 の核分裂では、質量数 80~110 前後と 130~150 前後の核分裂生成物が生成される確率が高い。核分裂生成物は、生成後、中性子との反応や原子核の壊変により、中性子数や原子番号を変化させていく。

また、原子炉内では U-238 も中性子との反応を起こす。U-238 の主要な反応は捕獲反応であり、U-238 から U-239 に変化する。さらに、U-239 は半減期 23 分で β^- 崩壊しネプツニウム 239 (Np-239) に、Np-239 は半減期 2.4 日で β^- 崩壊しプルトニウム 239 (Pu-239) となる。一連の反応をまとめると以下のとおりである。



上記の一連の反応で生じた Pu-239 もまた中性子との反応を起こす。Pu-239 は捕獲反応により Pu-240 に、Pu-240 は捕獲反応により Pu-241 に、Pu-241 は β^- 崩壊により Am-241 にと、段階的に中性子数または原子番号を増やしていき、様々なアクチノイドが生成されていく場合がある。ここで、「場合がある」と記載したのは、中性子と反応した際、捕獲反応ではなく核分裂反応が生じることもあるためである。様々なアクチノイドが生成されていく状態を概念的に示したものが図 8-1(c) である。ここでは、U-238 の捕獲反応から開始して様々な核種が生成されることを述べたが、U-235 についても一定の割合で捕獲反応を起こし、別のアクチノイドに変化していく反応も原子炉内では生じている。図 8-1(c) では、一度にたくさんの核種が出てきて少々驚くかもしれないが、初期に存在していた U-235 や U-238 を起点として、核反応および原子核の壊変により様々なアクチノイドが生成されていることをイメージして欲しい。

さらに、特筆すべき点は、U-238 の捕獲反応が起因となり生成した Pu-239 や Pu-241 が核分裂性核種であることである。核燃料内において、ある場所で核分裂によりエネルギーを発生し核分裂性核種を消費している一方で、別の場所で核分裂性核種を生み出す物理現象が生じているのである。これら後発で生成した核分裂性核種も、核分裂反応を起こし、エネルギーの発生に寄与していく。

上記の U-238 から Pu-239 へ変化する一連の反応のように、その核種自身は核分裂性核種ではないが、中性子との反応により核分裂性核種に変換する核種のことを**親核種 (fertile nuclide)**という。また、親核種が核分裂性核種に変換することを**転換 (conversion)**という。非核分裂性核種の U-238 が中性子を吸収して、核分裂性核種の Pu-239 を生み出すことから、「親」という言葉が使用されている。また、親核種 (または親物質) の英訳である「fertile nuclide (material)」について、fertile は「肥沃な、肥えた」という意味を有しており、この用語から、U-238 という肥えた土壌に中性子を与えることで、燃料としての価値を有する Pu-239 という生産物が産み出される、といったイメージを連想するとよい。また、参考として、U-238 と Pu-239 の関係も含め、親核種と核分裂性核種の例を表 8-1 に示す。ウラン燃料やウラン・プルトニウム混合酸化物燃料 (MOX 燃料) においては U-238 や Pu-240 の転換が、トリウムを主成分とするトリウム燃料においては Th-232 の転換が、主として生じる。

表 8-1 親核種と核分裂性核種の例

親核種	核分裂性核種	変換経路
U-238	Pu-239	U-238 (n, γ) \rightarrow U-239 (β^- , 23 min) \rightarrow Np-239 (β^- , 2.4 day) \rightarrow Pu-239
Pu-240	Pu-241	Pu-240 (n, γ) \rightarrow Pu-241
Th-232	U-233	Th-232 (n, γ) \rightarrow Th-233 (β^- , 22 min) \rightarrow Pa-233 (β^- , 27 day) \rightarrow U-233

*) Th : トリウム、Pa : プロトアクチニウム

ここまで説明したとおり、中性子との反応、主として核分裂反応および捕獲反応、ならびに原子核の壊変が繰り返されることにより、核分裂反応によるエネルギーの発生とともに核燃料は核種組成を大きく変化させていく。生成した核種は、それぞれの核反応の断面積が異なるため、核種組成の変化に伴い核燃料の特性が変化し、増倍率や原子炉の出力分布に影響を与える。したがって、原子炉の核特性を精度良く予測するためには、燃焼の適切な取り扱いが必要不可欠である。

また、燃焼した燃料に含まれるマイナーアクチノイドや核分裂生成物には、核分裂反応や吸収反応への影響が大きい核種や、遅発中性子を放出する核種など、原子炉物理の分野において重要となる核種のほか、自発核分裂を起こす核種や、長半減期核種、発熱量評価で重要となる核種など、原子力工学の各方面の評価で重要とされる核種が含まれる。そのため、原子炉物理以外の分野においても、燃焼の扱いが重要となることも多い。

8.1.2 燃焼度

核燃料がどれだけ燃焼したか、すなわち、どれだけエネルギーを発生したかを表す量として、**燃焼度 (burnup)** が使用される。燃焼度は、未燃焼時の重核種の単位重量あたりの発生エネルギーで定義される物理量である。単位として、MWd/t や GWd/t が使用されることが

多く、この単位における分子の MWd や GWd は、単位時間あたりの発生エネルギー（MW または GW）とエネルギー発生日数（day）の積で定義される量であり、エネルギーに相当する物理量である。

例として、重核種重量 1 トンの核燃料が、20 MW の熱出力でエネルギーを発生しながら、1 日間燃焼したとすると、その核燃料の燃焼度は 20 MWd/t ということになる。典型的な軽水炉の核燃料は、30,000～55,000 MWd/t 程度の燃焼度まで使用されている。

【コラム】燃焼度におけるエネルギーの単位

ここでは、MWd という単位について解説する。例えば、1 kW のドライヤーを 1 時間使用すると、使用したエネルギーは 1 kWh という単位で表現される。ここで、W（ワット）の定義は 1 秒あたりの使用（発生）エネルギーであり、単位は J/s である。したがって、1 kWh という単位で表現されるエネルギーは、 3.6×10^6 J（1 kW=1,000 W、1 h=3,600 s より）に対応する。核燃料の燃焼度で使用される MWd という単位についても、このドライヤーの例と同様に考えればよく、1 MW の熱エネルギーを発生する核燃料を 1 日間使用した場合、発生エネルギーは 1 MWd となる。1 MWd は 8.64×10^{10} J（1 MW=10⁶ W、1 d=86,400 s より）に対応する。

【コラム】核燃料のエネルギー密度

燃焼度は、その燃料からどれだけのエネルギーを取り出したか、あるいは取り出せるのかを示す指標としても捉えることができる。核燃料における主なエネルギー源となる核分裂性核種の U-235 の濃縮度を高めるほど、核燃料を燃焼できる期間は長くなるため、燃焼度、すなわち核燃料の単位重量あたりの取り出しエネルギーを高くすることができる。大まかに言えば、U-235 濃縮度 1 wt% は最大燃焼度 10,000 MWd/t 程度に相当し、仮に U-235 濃縮度 100 wt% の核燃料を考えた場合、最大燃焼度は 1,000,000 MWd/t 程度に相当する。U-235 濃縮度を高めた核燃料は、単位重量あたりに取り出せるエネルギーが大きく、エネルギー密度の高い核燃料であると言える。

なお、液化天然ガスや石油など、火力発電に使用される燃料の燃焼度（燃料 1 トンあたりから取り出せるエネルギー）は約 1 MWd/t である。原子力エネルギーの利点としてエネルギー密度が高いことが挙げられるが、燃焼度の比較からもこの点が確認できる。

8.1.3 増倍率の変化

核燃料からエネルギーを取り出して発電を行うにあたり、核燃料があとどれだけの期間使用できるのか、という点はぜひとも知りたい情報であろう。そこで、核燃料の使用可能期間を何らかのパラメータで表現することを考える。例えば、ライターの使用可能期間は、ライターケースに入っている液化ガスの量によって決まる。当然、液化ガスが底をつけば火をつけることはできなくなる。つまり、燃料としてエネルギーを発生する物質がどれだけ残っているかが使用可能期間を決める直接的な指標であると言える。では、核燃料の場合はどう

であろうか。核燃料についてもライターの例と同様、エネルギー源である核分裂性核種の量に依存するが、一概にそれだけでは決まらない。第 6 章でも解説されているように、原子力発電においては、核燃料が臨界状態となり、連鎖反応が持続することを利用して発電を行うが、核分裂性核種がどれだけ残っているかということだけではなく、核分裂連鎖反応を持続できるかという点も重要になる。この指標として、第 6 章で導入された増倍率が利用できる。増倍率が 1.0 以上の場合は核分裂連鎖反応を十分に持続できる潜在能力を有する状態、1.0 の場合は核分裂連鎖反応をちょうど維持できている状態、1.0 未満の場合は核分裂連鎖反応を持続できない状態として捉えることができる。なお、核燃料が有する潜在的なエネルギーを考えるうえでは、核燃料が無限に並び、体系からの漏れが存在しないような状態を想定した増倍率が使用されることが多い。体系からの漏れがない状態での増倍率を無限増倍率という。

それでは、燃焼中に無限増倍率、すなわち核分裂連鎖反応を持続する能力がどのように変化するのか、また、その変化の要因となる事象は何か、を見ていこう。燃焼に伴う無限増倍率の変化は以下のメカニズムに分類することができる。

- ・ 初期に含まれる核分裂性核種の減少

燃焼に伴い、初期に含まれる U-235 などの核分裂性核種が核分裂反応や捕獲反応により減少する。核分裂性核種が減少するため、核分裂連鎖反応を抑制する方向の変化であり、無限増倍率を負側に变化させる。

- ・ 転換による核分裂性核種の増加

親核種が中性子を吸収することにより核分裂性核種の Pu-239 や Pu-241 が生成する。核分裂性核種が増加するため、核分裂連鎖反応を促進する方向の変化であり、無限増倍率を正側に变化させる。

- ・ 中性子吸収核種の増加

燃焼に伴い、核分裂生成物が蓄積される。また、初期に含まれるウランの核反応により様々なアクチノイド核種が蓄積される。これらのほとんどは中性子吸収核種であるため、核分裂連鎖反応を抑制する方向の変化であり、無限増倍率を負側に变化させる。

核燃料の無限増倍率の燃焼推移は上記事象の重ね合わせで決まり、一般的には無限増倍率は燃焼に伴い減少する。一例として、PWR 出力運転時の代表的なウラン燃料集合体の無限増倍率の燃焼推移を図 8-2 に示す。この燃料集合体の無限増倍率は燃焼初期には 1.4 程度であるが、燃焼が進むに従って減少し、燃焼度約 40,000 MWd/t では 1.0 を下回り、燃焼度約 60,000 MWd/t では 0.9 程度となることがわかる。無限増倍率が 1.0 を下回ると、この燃料単独では臨界を維持できなくなることを意味する。なお、図 8-2 の横軸で使用している燃焼度について、原子炉が定格出力状態で運転し、かつ、この燃料が相対出力 1.0 で燃焼した場

合、1,000 MWd/t が約 1 ヶ月の運転期間に相当する。

また、主要な核種の燃料に占める重量割合の燃焼推移を図 8-3 に、核種ごとの核分裂反応の分担割合（全核分裂反応を 1.0 とした場合）の燃焼推移を図 8-4 に示す。図 8-3 より、核分裂性核種について、前述のとおり、初期に含まれる U-235 は単調減少していること、ならびに Pu-239 や Pu-241 は燃焼初期には存在していないが燃焼により生成が進んでいることがわかる。その結果として、図 8-4 より、燃焼後半では Pu-239 や Pu-241 が核分裂反応に一定の寄与を示していることがわかる。なお、U-238 は核分裂反応の断面積はそれほど大きくないが、存在量が多いことから核分裂反応の総数に対し一定の寄与を示していることがわかる。

また、図 8-2 中の燃焼初期において、燃焼が開始するとともに無限増倍率が大きく減少した後、この減少傾向がすぐに止まる挙動が確認される。これは、いったん燃焼が開始すると、核分裂生成物として吸収断面積が非常に大きいキセノン 135 (Xe-135) が生成するためである。Xe-135 の生成により、吸収される中性子数が大きく増加するため、結果として無限増倍率が大きく減少する。また、燃焼開始後に Xe-135 は生成と消滅がつり合った平衡状態となるため燃焼に伴って増加し続けることはなく、無限増倍率が大きく減少した後はその減少傾向はすぐに止まる。

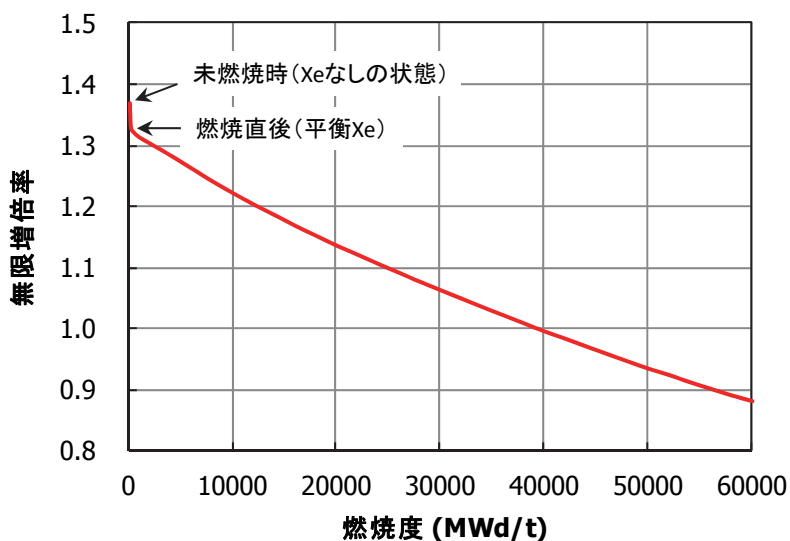


図 8-2 無限増倍率の燃焼推移

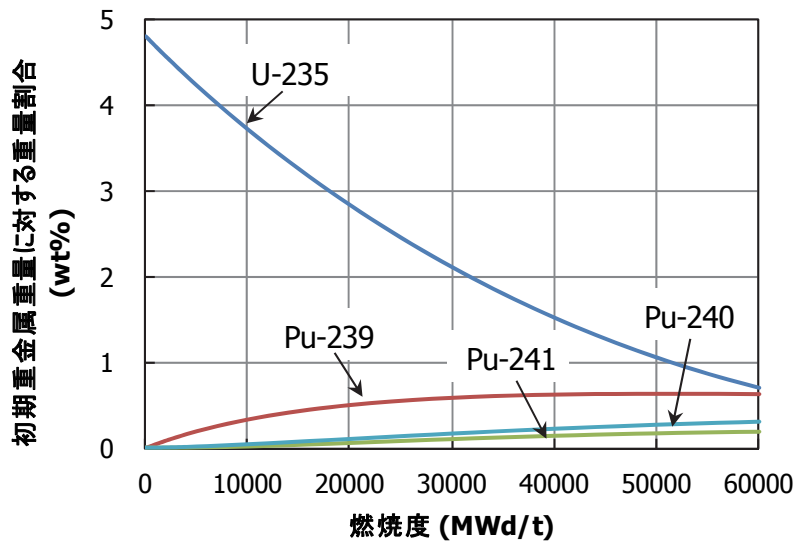


図 8-3 主要な核種の燃焼推移

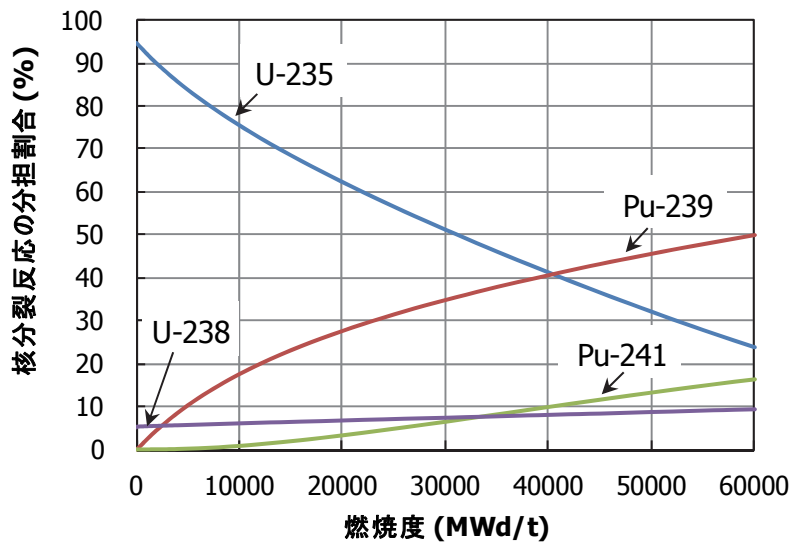


図 8-4 核分裂反応における核種ごとの分担割合の燃焼推移

8.1.4 中性子スペクトルとの関係

ここまで見てきたとおり、核燃料の燃焼においては、核反応および原子核の壊変が連続して生じている。ここで、第 4 章で説明されている通り、核反応の断面積は中性子のエネルギーに依存することを思い出してみよう。燃焼における主要な反応として、U-235 の核分裂反応および U-238 の捕獲反応の断面積を図 8-5 に示す。いずれの反応も、中性子のエネルギーが低いほど断面積が大きくなることや、U-238 の捕獲反応については約 1~10,000 eV の領域においていくつもの共鳴ピークを有していることなどがわかる。反応確率が中性子のエ

エネルギーに依存することから、どのようなエネルギーにどの程度の数の中性子が存在しているか、すなわち、中性子のエネルギー的な分布状態によって核反応の発生確率が変化し、その結果、核燃料の核種組成もそれに伴って変化することになる。

上記の物理現象について図を用いて解説する。例として、軽水炉の**中性子束 (neutron flux)**のエネルギー分布を図 8-6 に示す。ここで、中性子束とは、単位時間あたりに単位面積を通過する中性子の数であり、中性子が集団としてどのようなエネルギー分布であるかを示す図として捉えればよい。原子炉物理の分野では、中性子束のエネルギー分布を**中性子スペクトル (neutron spectrum)**という。図 8-6 より、中性子スペクトルはふたこぶの分布を有していることがわかる。高エネルギー側の分布は、核分裂により生じた中性子によって形成されるものと理解すればよい。核分裂で発生した中性子は、減速材中の水素などの軽い原子核との衝突により、徐々にエネルギーを失い、低エネルギーとなる。低エネルギー側では、中性子は周囲の原子核との熱平衡状態に達する（詳細をコラムに示す）ことから、中性子のエネルギー分布は、主として熱平衡状態の分布を表すマクスウェル分布となる（より詳細には、マクスウェル分布に対して、中性子の吸収、漏れなどの効果が加わり、マクスウェル分布から若干ずれた分布となる）。以上のメカニズムにより、中性子スペクトルは高エネルギー側と低エネルギー側のふたこぶの分布を有することになる。

ここで、図 8-6 には、核燃料の周囲の水の密度を変えた 2 ケースの中性子スペクトルを示している。なお、いずれのケースについても全体の中性子束が 1.0 となるように規格化を行っている。水の密度が小さくなると、中性子と水分子中の水素原子との衝突回数が少なくなり、中性子の減速効果が弱まることになる。その結果、低エネルギー側の分布は小さくなり、相対的に中～高エネルギー領域の中性子の割合は大きくなる。

なお、原子炉物理の分野では、低エネルギー側の中性子束の割合が大きい状態を中性子スペクトルが「軟らかい」、その逆の状態を中性子スペクトルが「硬い」と表現することがよくある。水の密度が小さく中性子の減速効果が弱まっている状態は、中性子スペクトルが硬い状態であることを意味する。

ある核種のある核反応の発生数は、その核種が 1 個存在する場合の反応確率（微視的断面積）、その核種の個数および中性子束の積によって求められる。すなわち、核反応の発生数は、図 8-5 の微視的断面積、当該核種の個数、図 8-6 の中性子束を各エネルギーにおいて掛け合わせ、全エネルギーについて総和をとる（積分する）ことで求められる。したがって、中性子スペクトルの状態によって、核反応の発生数が決まることになる。

例として挙げた U-235 の核分裂反応と U-238 の捕獲反応の反応割合について、中性子スペクトルが硬い場合、定性的に、U-235 の核分裂反応の発生数は少なく、U-238 の捕獲反応の発生数は多くなる。8.1.1 節で述べたとおり、U-238 は捕獲反応を起源として β^- 崩壊を経て Pu-239 に変化するが、中性子スペクトルが硬い場合には、U-238 の捕獲反応の発生数が多くなることから、Pu-239 の生成量は大きくなる。Pu-239 は核分裂性核種であり、炉心の核的特性への影響は大きいことから、燃焼中の中性子スペクトルの状態によって燃焼後の核燃料の核特性は大きく変化することになる。

なお、ここでは主要な反応である U-235 の核分裂反応および U-238 の捕獲反応を例として取り上げたが、マイナーアクチノイドや核分裂生成物を含め、全ての核反応は中性子のエネルギー依存性を有することから、核種組成は燃焼中の中性子スペクトルによって多種多様に変化する。

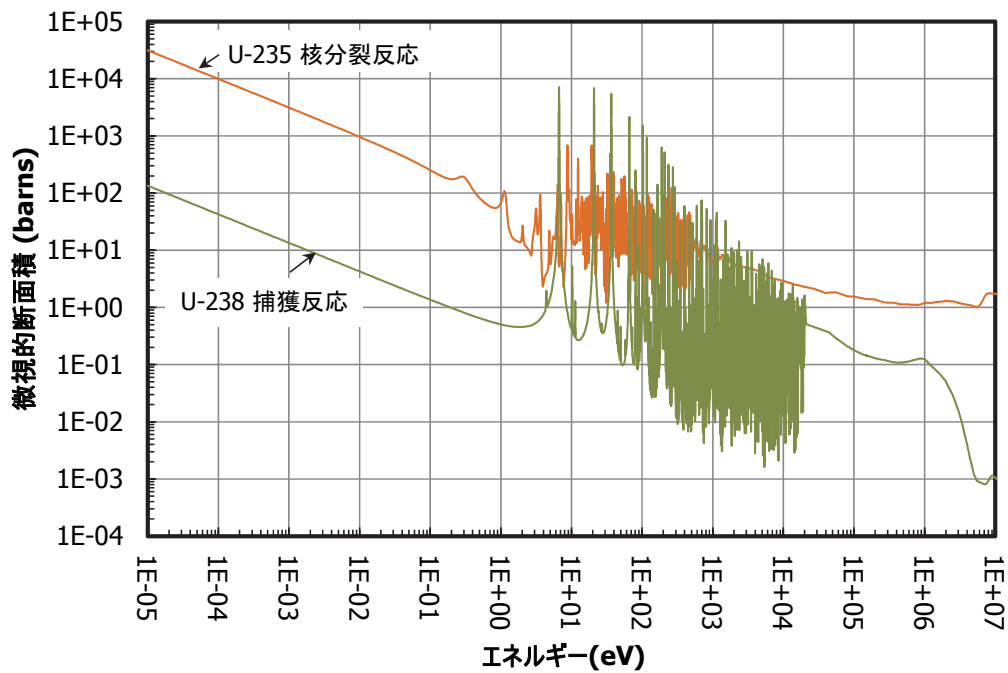


図 8-5 燃焼における主要な核反応の微視的断面積
(JANIS[1]より JENDL-4.0 のデータを引用)

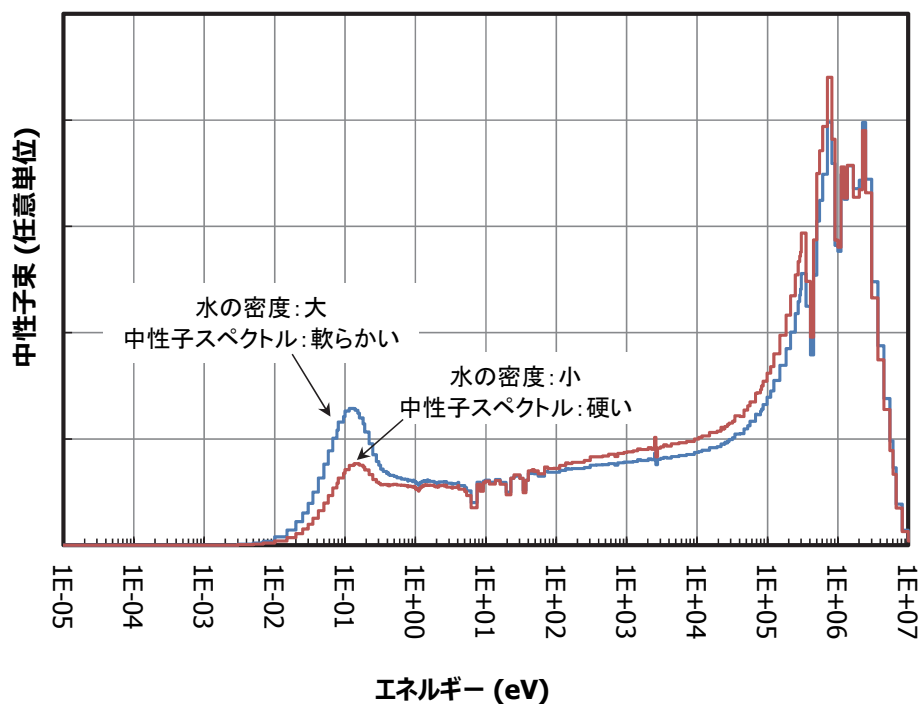


図 8-6 軽水炉の水の密度を変えた場合の中性子スペクトル (未燃焼時)
(エネルギー200 群の計算例を図示)

【コラム】熱平衡状態

核分裂で発生した中性子は、減速材中の水素などの軽い原子核との衝突により徐々にエネルギーを失っていく。この際、衝突の繰り返しによって、最終的にエネルギーがゼロ、すなわち速度がゼロとなるわけではない。それは、中性子の周囲に存在する減速材などの物質が熱を持っている状態、すなわち熱運動をしている状態であり、中性子も周囲の物質と同様に熱運動をするためである。このように、中性子が周囲の物質と同程度の運動エネルギーを持つことを、周囲の物質と熱平衡状態にあるという。熱平衡状態に達した中性子は希薄気体のようにふるまい、そのエネルギー分布は、気体分子のエネルギー分布として知られるマクスウェル分布にほぼ従い、図 8-6 の低エネルギー側に示されるような、ピークを持つ分布となる。なお、低エネルギー側の中性子を「熱中性子」と呼ぶのは、中性子が周囲の物質と熱平衡状態にあることが所以である。

8.2 燃焼における物理現象

【この節のポイント】

- ・ 重核種の核種組成は、主に核分裂反応、捕獲反応および原子核の壊変によって変化する。
- ・ 核分裂生成物の核種組成は、主に核分裂反応による生成、捕獲反応および原子核の壊変によって変化する。
- ・ 可燃性毒物とは、サイクル初期には中性子を吸収する効果を有し、燃焼に伴い非吸収性核種に変化する核種をいい、可燃性毒物の核種組成は、主に吸収反応によって変化する。

8.1 節では燃焼の概念や増倍率の燃焼推移の概要を説明した。燃焼という物理現象をモデル化する目的は、燃焼時の核種組成を予測し、原子炉の核特性や核燃料の放射線の線源強度特性等の評価を精度良く行うことである。モデル化のためには、燃焼に伴い存在量に変化する核種について、その増減の機構、すなわち生成・消滅機構を把握することが重要となる。そこで、本節では、基本的な核特性や生成・消滅機構の違いから、重核種、核分裂生成物、可燃性毒物に分類して燃焼中の物理現象を解説する。また、燃焼により生じる核種に関し、原子力工学の各種評価で重要とされる核種についても解説する。

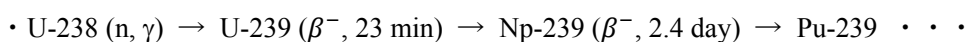
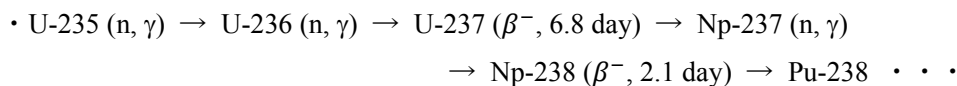
8.2.1 重核種

重核種は核分裂反応によるエネルギーの発生源となる核種である。以下では、燃焼時の挙動、各種評価で重要とされる核種を説明する。

(1) 燃焼時の挙動

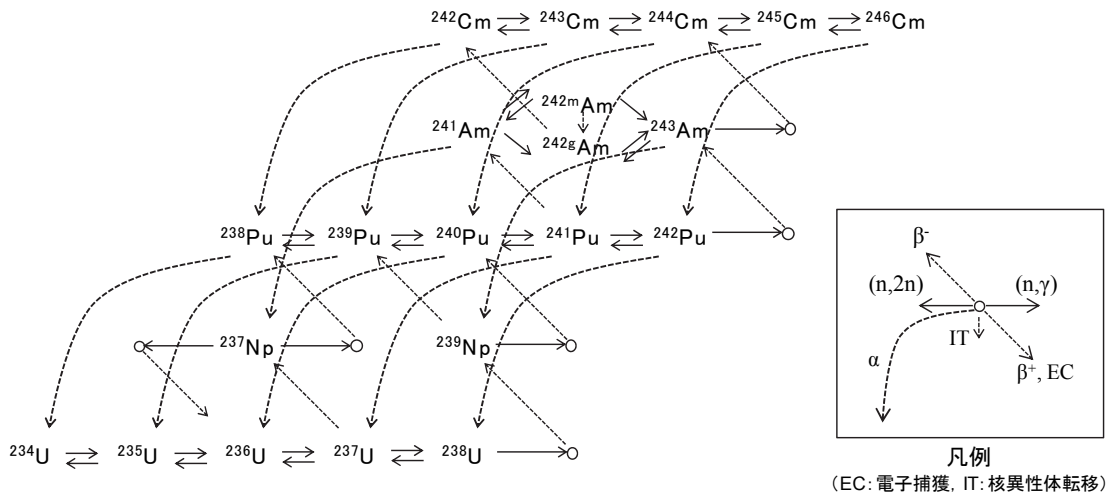
燃焼における生成・消滅機構を把握するにあたっては、**燃焼チェーン (burnup chain)** を使用すると便利である。燃焼チェーンとは、核反応や原子核の壊変による核種の一連の変化をまとめたものであり、燃焼チェーンを図示したものとしては、核図表形式で配置された核種に対して、ある核種から別の核種への変換経路（核反応および原子核の壊変）が矢印で示された図がよく使用される。もちろん、核図表からも燃焼に伴う組成変化をイメージすることはできるが、主要な変換経路が示された方が幾分かイメージを掴みやすいと考えられる。

重核種の代表的な燃焼チェーンを図 8-7(a) に示す。軽水炉のウラン燃料の初期組成としては U-235 および U-238 が主要であることから、重核種の組成変化に着目した場合の主な反応は以下のものになる。図 8-7(b) では、下記の反応をそれぞれ青色・赤色で示している。

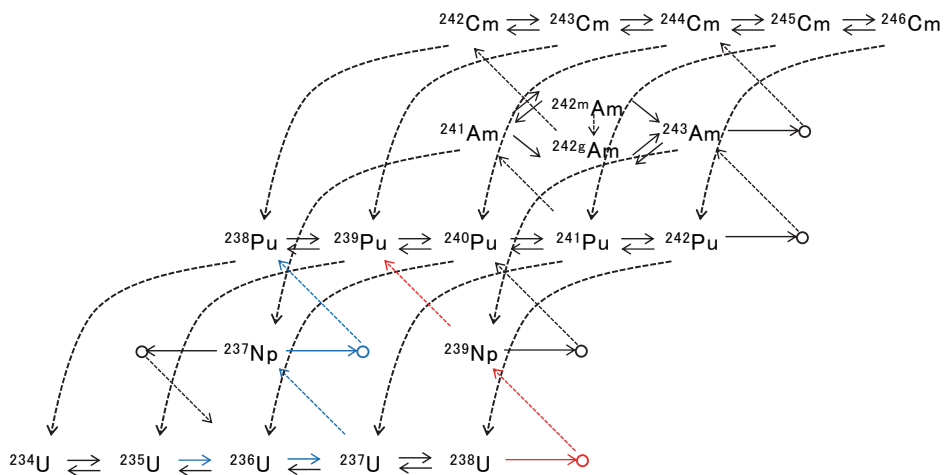


核分裂性核種など一部の核種を除いて、捕獲反応 ((n, γ) 反応) の断面積は他の反応に比べ

て大きく、重核種の組成変化に着目した場合には、主として捕獲反応によって核種組成が変化していく。また、主要な反応ではないものの、(n, 2n)反応による核種組成の変化も生じる。また、 β^- 崩壊により原子番号を1つ増加させ、Uを起点としてNp、Pu、Am、Cmというように、より原子番号の大きい核種が生成されていく。また、 α 崩壊によって、質量数を4つ、原子番号を2つ下げた核種が生成される。その他、核異性体転移 (Isomeric Transition: IT)、 β^+ 崩壊、電子捕獲 (Electron Capture: EC) を起こす核種も存在する。



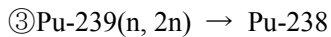
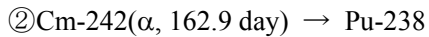
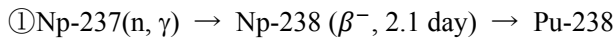
(a) 燃焼チェーン



(b) ウラン燃料における主要な反応経路

図 8-7 重核種の燃焼チェーン
(UO₂・MOX 燃料を対象とした標準燃焼チェーン[2]を図示)

燃焼チェーンを利用することで、ある核種に対して生成・消滅経路を把握することが可能である。一例として、Pu-238の生成・消滅経路を考える。Pu-238の生成経路として、燃焼チェーンより次の反応が存在することがわかる。



①の生成経路のNp-237は、U-236の捕獲反応またはU-238の(n, 2n)反応により生じるU-237より生成され、さらにU-236については主としてU-235の捕獲反応より生成される。また、②の生成経路のCm-242は、U-238を起点としてPu、Am、Cmが生成される一連の反応により生成される。また、③の生成経路のPu-239は、主としてU-238を起点として生成される。このように、燃焼チェーンから着目核種より変換経路をさかのぼっていくと、どのような核反応・壊変を経て着目核種が生成されているかを把握することができる。また、Pu-238の消滅経路としては、Pu-238の中性子との反応や、Pu-238の α 崩壊があることがわかる。

以上より、Pu-238の生成を考えた場合、初期に存在するU-235またはU-238から複数の核反応や壊変を経ていることがわかる。このことは、仮に、Pu-238の生成量を計算により予測する場合、Pu-238自身の核反応の発生数だけでなく、生成経路上の核反応の発生数も影響を与えるパラメータとなることを意味する。そのため、仮にPu-238の生成量の予測精度の向上を図る場合には、これら一連の全ての反応を適切に予測する必要がある。

(2) 各種評価で重要とされる核種

U-235、U-238、Pu-239、Pu-240およびPu-241などは核燃料中の存在量が大きく、また核特性への影響が大きい核分裂断面積や捕獲断面積も大きいことから、原子炉物理の分野では必須として取り上げられる。ここでは、その他の分野の各種評価で重要とされる核種について取り上げて記載する。

a. 中性子源強度評価

使用済燃料の放射線の線源強度評価のうち、中性子源の強度評価において、**自発核分裂 (spontaneous fission)** を起こす核種の存在量が重要となる場合がある。自発核分裂とは、外部からの中性子照射やエネルギー付与のない状態で、原子核が自然に核分裂を起こす現象のことをいう。使用済燃料中において自発核分裂による中性子放出率が高い代表的な核種として、Cm-242およびCm-244がある[3]。

b. 燃焼度評価

使用済燃料の燃焼度の評価方法の一つに、使用済燃料より放出される中性子数を測定し、あらかじめ計算により求めた燃焼度と中性子放出率の相関を基に燃焼度を評価する、放出

中性子測定法がある。使用済燃料からの中性子放出源は、**Cm-242** および **Cm-244** の自発核分裂によるものが大部分を占める。燃焼終了後からの経過期間が数年以上となる場合の燃焼度評価においては、半減期の短い **Cm-242** (半減期 163 日) による寄与は減少し、半減期の長い **Cm-244** (半減期 18 年) による寄与が主となるため、使用済燃料中の **Cm-244** の存在量が重要となる[4]。

c. 回収ウランの放射線量評価

回収ウラン (reprocessed uranium) とは、使用済ウラン燃料を再処理してウランを抽出し、再度燃料として加工し利用する際のウランのことを指す。ここで、(回収ウランではない) 通常の濃縮ウランは、天然ウランを濃縮して得られるものであり、初期組成は **U-234**、**U-235** および **U-238** から構成される。一方、回収ウランは、使用済燃料を再処理して得られることから、通常の濃縮ウランでは存在しない **U-232** および **U-236** が含まれる、通常の濃縮ウランよりも **U-234** の存在比が大きい、という特徴がある。**U-232** の娘核種であるタリウム 208 (**Tl-208**) やビスマス 212 (**Bi-212**) が高エネルギーのガンマ線放出核種であるため、回収ウランの放射線量評価においては、**U-232** の存在量が重要になる[5]。

8.2.2 核分裂生成物

8.1.1 節で解説したとおり、核分裂生成物は、核分裂により生成し、核反応や原子核の壊変によりその組成を様々に変化させていく。以下では、核分裂生成物の生成量を決める重要な因子の一つである核分裂収率、燃焼時の挙動、各種評価で重要とされる核種を説明する。

(1) 核分裂収率

一回の核分裂反応あたりの核分裂生成物の平均発生個数、すなわち、核分裂によりどのような核種がどれだけ生成されるかを表したものが**核分裂収率 (fission yield)**である。代表的な核分裂性核種である **U-235** および **Pu-239** の核分裂収率を図 8-8 に示す。核分裂収率はふたこぶの分布を示し、質量数が 80~110 前後および 130~150 前後にピークを有することがわかる。また、**U-235** と **Pu-239** の核分裂収率を比較すると、**Pu-239** の核分裂収率では、**U-235** のそれよりも質量数 80~110 前後のピークが右側に位置することが確認される。8.1.3 節で説明したとおり、燃焼が進むことにより、**Pu-239** の核分裂の割合が増加していくため、核分裂によって生じる核分裂生成物の構成も徐々に変化していくこととなる。

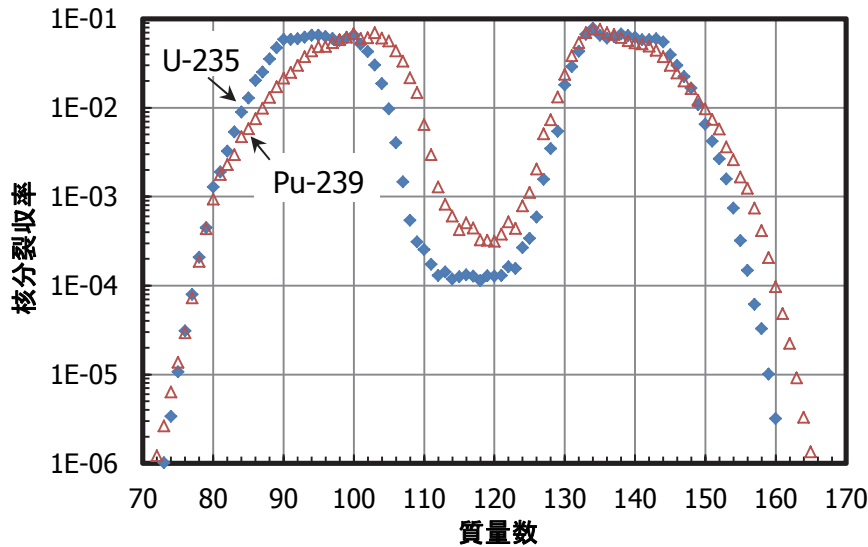


図 8-8 核分裂収率

(JANIS-4.0[1]より JENDL-4.0 の熱中性子に対する独立収率を引用)

(2) 燃焼時の挙動

核図表からもわかるとおり、核分裂生成物は非常に多種類の核種より構成される。燃焼時の基本的な生成・消滅機構のメカニズムは核種によらず同様であることから、ここでは、代表的な核種の燃焼時の挙動を見ていくことにする。なお、重核種と同様に、燃焼における生成・消滅経路を把握するにあたっては、燃焼チェーンを利用する。

まず、セシウム 137 (Cs-137) について、燃焼時の生成量の変化、ならびに燃焼チェーンを図 8-9 に示す。図 8-9 より、Cs-137 は燃焼度にほぼ比例して生成量が増加していることがわかる。ここで、燃焼チェーンを確認すると、Cs-137 の生成経路には、核分裂による生成と、Xe-136 の捕獲反応による生成 (Xe-137 の β^- 崩壊を経て Cs-137 が生成) の 2 つの系統があるが、前者の方がより生成確率が高い。Cs-137 の例のように、主として核分裂によって生成する核種は、その生成量は核分裂反応の発生量、すなわち、燃焼度にほぼ比例して増加する。

次に、Cs-134 について、燃焼時の生成量の変化、ならびに燃焼チェーンを図 8-10 に示す。図 8-10 より、Cs-134 は燃焼度の 2 乗にほぼ比例して生成量が増加していることがわかる。燃焼チェーンを確認すると、Cs-134 の生成経路には、核分裂による生成と、Cs-133 の捕獲反応による生成の 2 つの系統があるが、後者の方がより生成確率が高い。Cs-133 は核分裂または Xe-133 の β^- 崩壊 (半減期 5.2 日) により生成され、Cs-137 と同様に燃焼度にほぼ比例して増加する核種であるため、Cs-134 は燃焼度の 2 乗にほぼ比例して増加することになる (メカニズムの詳細をコラムに示す)。仮に Cs-134 の生成量の予測精度の向上を図る場合には、Cs-134 自身の核反応の発生数だけでなく、Cs-133 の捕獲反応の発生数についても適切に予測する必要があるといえる。

上記の例では、核分裂による生成後の核反応の回数が少ない、比較的簡素な例を取り上げ

たが、実際の原子炉では、核分裂により多種類の核分裂生成物が発生し、それらが核反応や原子核の壊変により様々に組成を変化させ、非常に多種類の核分裂生成物が生じていることをイメージして欲しい。

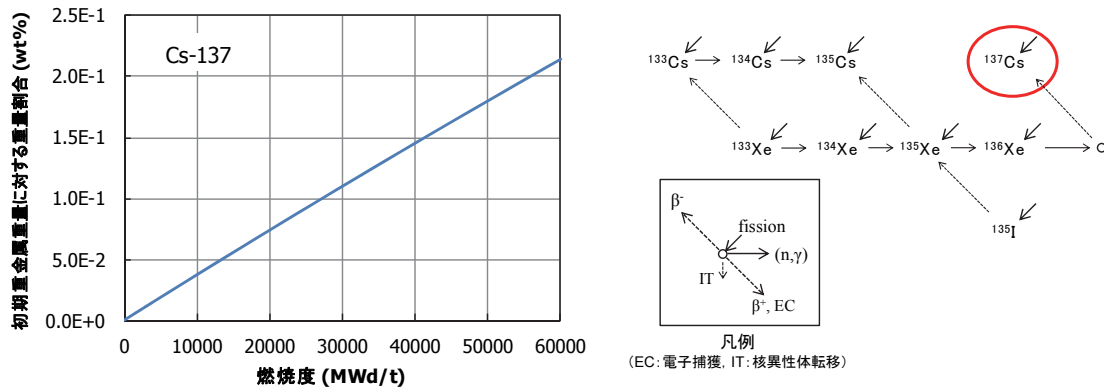


図 8-9 Cs-137 の燃焼推移および燃焼チェーン

(燃焼チェーン：UO₂・MOX 燃料を対象とした標準燃焼チェーン[2]の一部を図示)

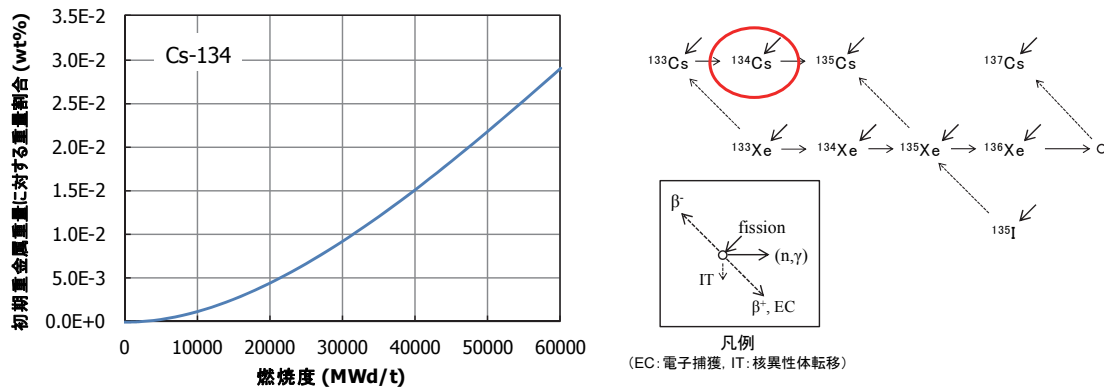


図 8-10 Cs-134 の燃焼推移および燃焼チェーン

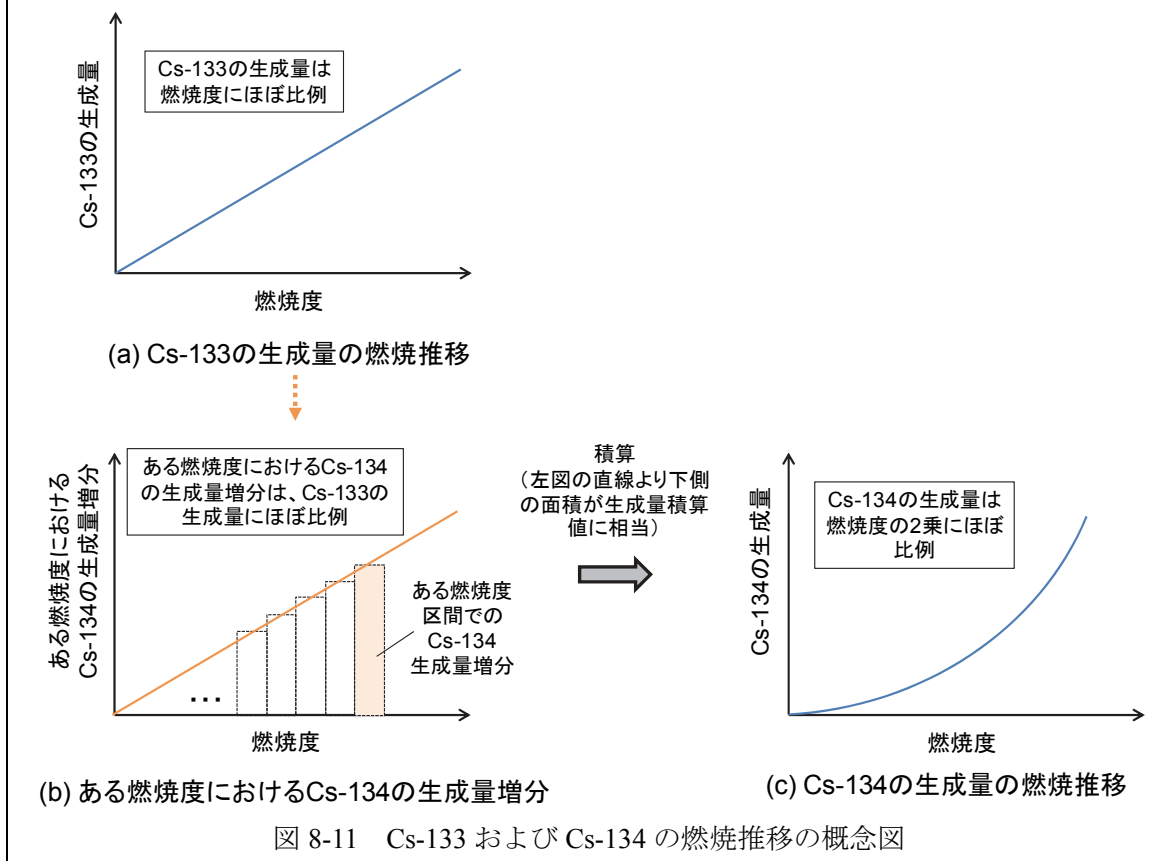
(燃焼チェーン：UO₂・MOX 燃料を対象とした標準燃焼チェーン[2]の一部を図示)

【コラム】Cs-134 の燃焼推移

本文において Cs-134 の生成量が燃焼度の 2 乗にほぼ比例して増加することを述べた。ここでは、その理由について解説する。

Cs-133 および Cs-134 の燃焼推移の概念図を図 8-11 に示す。図 8-11(a)は Cs-134 の主な生成源となる Cs-133 の生成量の燃焼推移を示しており、燃焼度にほぼ比例し増加する。次に、ある燃焼度における Cs-134 の生成量増分を考える。概念図を図 8-11(b)に示す。Cs-134 は主として Cs-133 の捕獲反応によって生成するため、ある燃焼度点における Cs-134 の生成量増分は、Cs-133 の生成量にほぼ比例することになる。最後に、Cs-134 の生成量については、図 8-11(b)に示した各燃焼度区間での生成量増分を、燃焼度 0 MWd/t から着目する燃焼度まで積算した値となる。ある燃焼度点における Cs-134 の生成量の増分が燃焼度にほぼ比例す

ることから、結果として Cs-134 の生成量は燃焼度の 2 乗にほぼ比例することになる。なお、Cs-134 の生成量増分の積算値を求めることは、図 8-11(b)の生成量増分を示した直線より下側に相当する面積を求めることと同義であり、この点からも Cs-134 の生成量が燃焼度の 2 乗に比例することが確認される。



(3) 各種評価で重要とされる核種

ひとくちに核分裂生成物といっても、非常に多種類の核種から構成されており、それぞれに特徴を有している。原子力工学の各種評価で重要とされる核種について解説する。

a. 核分裂連鎖反応（増倍率）への影響が大きい核種

キセノン 135 (Xe-135) およびサマリウム 149 (Sm-149) は吸収断面積が非常に大きく、原子炉での核分裂連鎖反応への影響が大きい核種としてよく知られている。

まず、Xe-135 の生成および消滅に関する主要な反応経路を図 8-12 に示す。キセノンは主としてヨウ素 135 (I-135) の β^- 崩壊（半減期 6.6 時間）により生成し、中性子を吸収して Xe-136 となるか、半減期 9.1 時間で β^- 崩壊して Cs-135 となる。原子炉運転中には、I-135 および Xe-135 は生成と消滅が釣り合った平衡状態となっている。

8.1.3 節で示した通り、核燃料の無限増倍率は、燃焼が開始すると大きく低下する。これは、Xe-135 の中性子吸収効果によるものである。

また、原子炉を停止した後の挙動を考えると、I-135 の β^- 崩壊による Xe-135 の生成は継続し、一方、Xe-135 の消滅については捕獲反応による消滅がなくなり、 β^- 崩壊による消滅のみとなるため、親核種である I-135 より半減期が長い Xe-135 は初め蓄積し、約 10 時間後に最大となり、その後減少する挙動を示す。原子炉停止後の Xe-135 の生成量の変化の一例を図 8-13 に示す。図 8-13 では運転中の中性子束を変えた 2 ケースの例を示している。中性子束が高いほど運転中の I-135 の平衡値が大きくなるため、原子炉停止後の Xe-135 の増加量も大きくなる。Xe-135 の中性子吸収効果は非常に大きいことから、原子炉の増倍率によっては、原子炉停止後にすぐさま起動しようとしても臨界に到達させることができず、起動のためには一定の時間を空けなければならない場合がある。

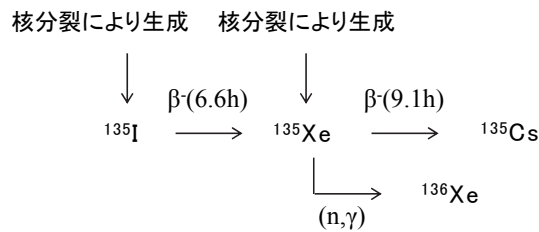


図 8-12 Xe-135 の反応経路

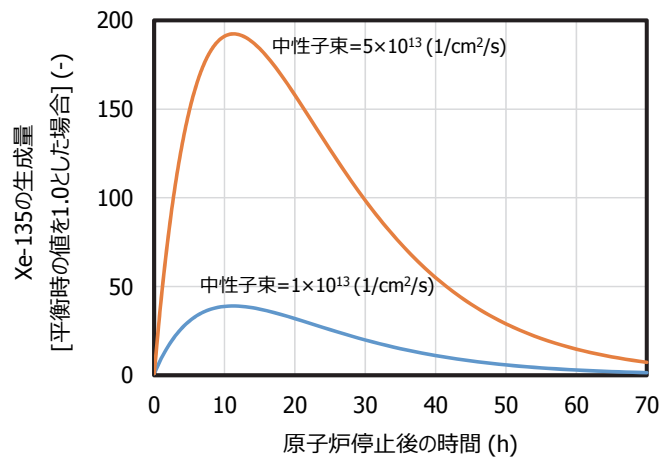


図 8-13 原子炉停止後の Xe-135 の生成量の変化

次に、Sm-149 に関連する主要な反応経路を図 8-14 に示す。Xe-135 に比べ親核種の半減期が長いことから Xe-135 に比べてゆっくりとした挙動を示す。Pm-149 および Sm-149 が平衡状態に達するのは運転から数日程度である。

また、原子炉を停止した後は、Pm-149 からの β^- 崩壊による Sm-149 の生成のみとなるため、Sm-149 は増加し、Pm-149 の半減期の 2.2 日に対して十分な時間が経過した後はほぼ一定となる。原子炉停止後の Sm-149 の生成量の変化の一例を図 8-15 に示す。図 8-13 と同様

に、運転中の中性子束を変えた 2 ケースの例を示している。I-135 と Xe-135 の関係と同様、中性子束が高くなるほど運転中の Pm-149 の平衡値が大きくなることから、原子炉停止後の Sm-149 の増加量も大きくなる

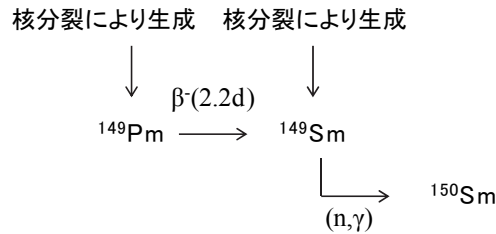


図 8-14 Sm-149 の反応経路

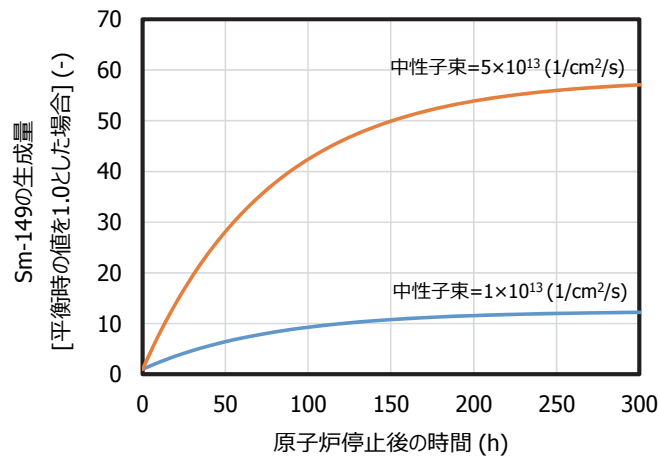


図 8-15 原子炉停止後の Sm-149 の生成量の変化

Xe-135 および Sm-149 は運転中の原子炉における核分裂連鎖反応への影響が大きいため、原子炉の挙動を適切に予測するためには、これらの生成量のふるまいを正確に把握することが重要になる。

【コラム】 Reactor dead time

本文でも述べたとおり、原子炉停止後しばらく時間が経過すると、Xe-135 の中性子吸収効果のため、原子炉の増倍率によっては、制御棒を全引き抜きしたとしても臨界に到達できない場合がある。このような場合、Xe-135 が崩壊して減少するまで、原子炉を再起動できないことになる。この再起動できない期間のことを「Reactor dead time」という。

潜水艦などに使用されている動力用の原子炉では、主動力たる原子炉の停止は深刻な状況を招く可能性がある。したがって、Reactor dead time が生じる事態を防ぐため、このような動力用の原子炉では、U-235 濃縮度を高めた燃料を使用するなど、十分に大きな増倍率を

持つような設計がなされている[6]。

【発展的内容】 増倍率への影響が大きい核種

本文中では、増倍率への影響が大きい核種として、Xe-135 および Sm-149 を紹介したが、その他にも、運転中の原子炉において増倍率への影響が大きい核種として、テクネチウム 99 (Tc-99)、ロジウム 103 (Rh-103)、Xe-131、Cs-133、ネオジム 143 (Nd-143)、プロメチウム 147 (Pm-147)、Sm-150、ユーロピウム 153 (Eu-153) といった核種が挙げられる[7]。

また、使用済燃料の貯蔵、輸送、再処理の臨界安全評価において、燃料の燃焼に伴う核分裂性核種の減少および中性子を吸収する核種の増加による増倍率の低下を考慮することがある。この増倍率の低下を臨界安全評価にて考慮することを、「燃焼度クレジットを採る」という。また、燃焼度クレジットそのものが、燃料の燃焼による増倍率の低下を臨界安全評価にて考慮することを指す場合もある。燃焼度クレジットを採り入れることで、燃料集合体間距離の削減による貯蔵容量の増加や、中性子吸収材使用量の低減につながるため、より合理的な方法で使用済燃料の取扱いが可能となる。燃焼度クレジットでは、核分裂性核種の減少や、中性子吸収に寄与するアクチノイドや核分裂生成物の増加を考慮するが、このうち、核分裂生成物としては、モリブデン 95 (Mo-95)、Tc-99、Rh-103、Cs-133、Nd-143、Nd-145、Sm-147、Sm-149、Sm-150、Sm-152、Eu-153、ガドリニウム 155 (Gd-155) の 12 核種が重要な核種として挙げられる。これらは、中性子吸収断面積の大きい核種から、寿命の短い核種、気体状または揮発性の核種、比較的揮発しやすい核種を除外して選定された核種である。なお、Rh、Tc、Mo などの核分裂生成物は、再処理における燃料の溶解時に不溶性残渣となる可能性があることから、再処理の溶解工程以降では、上記 12 核種より Rh-103、Tc-99、Mo-95 を除いた 9 核種の核分裂生成物の中性子吸収効果が期待できるとされている[8]。

b. 使用済燃料中の核種組成評価が重要となる核種

使用済燃料の燃焼度、発熱量、長期処分時の存在量といった観点から、使用済燃料中に含まれる核種の存在量を把握することが重要になる。なお、このような核種の存在量の評価は**インベントリ (inventory)** 評価と呼ばれることがある。インベントリとは、棚卸・在庫一覧という意味の用語であり、「使用済燃料のインベントリ評価」は、使用済燃料中に、どの核種がどれだけ存在するかを評価することを意味する。以下では、燃焼度評価、発熱量評価、長期処分時の存在量の評価の観点から重要とされる核種をまとめる。

・燃焼度評価

ルテニウム 106 (Ru-106)、Cs-134、Cs-137、セリウム 144 (Ce-144)、Nd-148、Eu-154 などは、その生成量が燃焼度に対して線形もしくは二次関数的に変化し、かつ原子核の壊変に伴うガンマ線による検出が容易であることから、燃焼度を推定する指標として利用されている[9]。

- ・発熱量評価

ストロンチウム 90 (Sr-90)、Ru-106、Cs-134、Cs-137、Ce-144 などは、使用済燃料中の発熱量が問題となる核種として知られている[10]。

- ・長期処分時の存在量の評価

放射性廃棄物の長期処分において重要となる長寿命核種として、セレン 79 (Se-79) (半減期 30 万年)、ジルコニウム 93 (Zr-93) (同 160 万年)、Tc-99 (同 21 万年)、パラジウム 107 (Pd-107) (同 650 万年)、スズ 126 (Sn-126) (同 23 万年)、I-129 (同 1600 万年)、Cs-135 (同 230 万年) などが挙げられる[11]。

c. 安全評価において重要となる核種

原子炉施設の安全評価においては、放射性物質の放出による敷地境界外における被ばく線量が評価される。核分裂により発生し、大気中に放出されうる気体状の核分裂生成物である、ヨウ素 (I-) 131、132、133、134、135、クリプトン (Kr-) 83m、85m、85、87、88、ならびにキセノン (Xe-) 131m、133m、133、135m、135、138 の存在量が重要となる。

d. 動特性の観点から重要となる核種

臭素 (Br-) 87、88、89、ヨウ素 137 (I-137) は遅発中性子を放出する核種であり、原子炉の動特性の評価において重要となる[12]。

8.2.3 可燃性毒物

軽水炉では、炉心の安全性を確保するため、しばしば**可燃性毒物 (burnable poison)** が使用される。可燃性毒物とは、大まかに言えば、サイクル初期には中性子を吸収する効果を有し、サイクル中期～末期にはその効果が消失する物質のことをいう。本節では可燃性毒物の概要および燃焼挙動について解説する。

軽水炉では、PWR では約 100～200 体、BWR では約 300～900 体の燃料集合体が炉心に装荷される。約 1 年ごとに燃料交換が行われ、炉心全体の約 4 分の 1 から 3 分の 1 の燃焼燃料が新燃料と交換され、運転期間中は燃料交換を行うことなく連続的に運転を行っている。燃料交換なしで 1 年程度の長期間の運転を実現するため、新燃料の装荷体数を多くする、または、燃料の濃縮度を高めるなどにより、炉心の増倍率が 1.0 を大きく上回ることができる状態にする。このとき、増倍率が 1.0 より上回った余剰分の反応度(これを**余剰反応度 (excess reactivity)** という)に対し、PWR では減速材 (一次冷却材) 中のほう素により、BWR では制御棒により、余剰反応度の制御 (補償) を行っている (炉心の増倍率を 1.0 としている)。余剰反応度を高めることで長期間の運転が実現されるが、運転初期に非常に大きな余剰反応度を有することになり、原子炉制御のしやすさや安全性の観点からは好ましくないと言える。具体的には、PWR では、減速材中のほう素濃度を高めることで余剰反応度を補償で

きるが、ほう素濃度が高くなりすぎると、減速材温度の上昇に対して水の密度減少による負の反応度効果（水の密度減少により、中性子が減速しにくくなり、低エネルギー側に大きな断面積を有する核分裂反応の発生数が減少する）よりも、水の密度減少により単位体積あたりのほう素が減少することによる正の反応度効果（単位体積あたりのほう素が減少し、吸収反応の反応数が減少する）が大きくなるおそれがある。これは、減速材温度が上昇すると増倍率が大きくなる状態となることを意味し、結果として、第12章で紹介する原子炉の固有の安全性を損なうことにつながる。また、BWRでは制御棒や流量調整では十分な未臨界性を保てないおそれがある。したがって、炉心の制御性や安全性を確保するため、余剰反応度を一定の値に抑える必要がある。

所定の運転期間を確保したままで、サイクル初期の余剰反応度を抑えるため、軽水炉においては、サイクル初期には中性子を吸収する毒物として作用し、サイクル中期～末期にはその毒作用が消失するような物質を使用している。初期に存在する毒物が燃焼により消失することから、このような作用を持つ物質を可燃性毒物と呼ぶ。軽水炉では、燃料ペレットに可燃性毒物が添加されて使用されるほか、PWRでは、可燃性毒物を金属製の管に封入し、その管を複数本束ねた構造物（バーナブルポイズン棒と呼ばれる）が制御棒案内管位置に挿入されて使用される。可燃性毒物には、ほう素（B）、ガドリニウム（Gd）、エルビウム（Er）が使用されている。

可燃性毒物を使用した場合の増倍率の燃焼推移の一例として、PWRのガドリニア（ガドリニウムの酸化物である Gd_2O_3 ）入り燃料集合体の無限増倍率の変化を図8-16に示す。燃焼初期には可燃性毒物による中性子吸収効果により無限増倍率がウラン燃料に比べて低下していることがわかる。また、燃焼とともに中性子吸収核種は非吸収性核種に変化し、中性子吸収効果は低下していくため、ウラン燃料との無限増倍率の差が縮小し、燃料集合体の燃焼度が15,000 MWd/t程度でウラン燃料と同程度となり、その後は通常燃料と同様に推移することがわかる。

可燃性毒物の組成変化のメカニズムは核分裂生成物とほぼ同様であるが、初期組成として当該核種が存在するか否かの違いがある。可燃性毒物に対する主要な反応は、 (n, α) 反応、 (n, γ) 反応、原子核の壊変（ β^- 崩壊、 β^+ 崩壊、電子捕獲、核異性体転移）であり、中性子吸収断面積が大きい核種であることから吸収反応による消滅量が大きくなる。

可燃性毒物は中性子吸収断面積が大きい核種であるため、可燃性毒物の核種組成が無限増倍率や出力分布などの核特性に与える影響は大きい。したがって、燃焼に伴う可燃性毒物の存在量の変化を適切に評価することは、炉心の核特性を予測するうえで必要不可欠である。

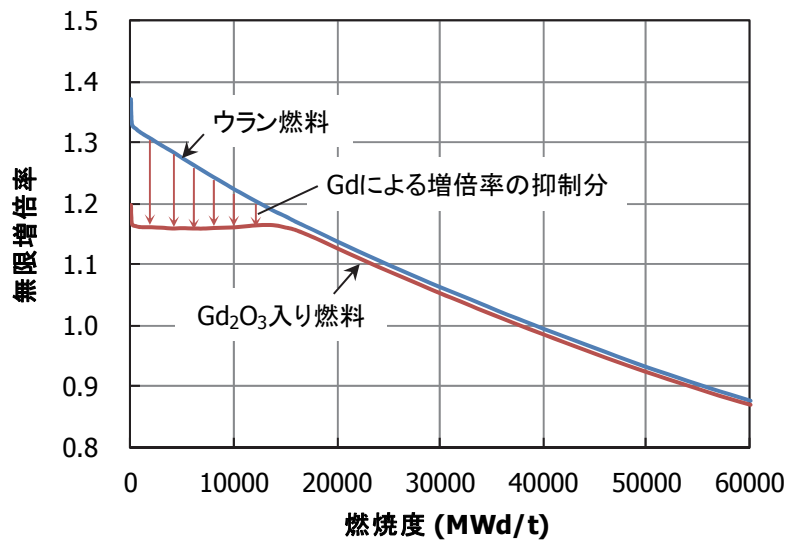


図 8-16 可燃性毒物を使用した場合の無限増倍率の燃焼推移

【コラム】 毒物とは？可燃性とは？

本文で紹介した「毒物」、「可燃性」という用語は、日常生活において連想されるものと原子炉物理のものとは大きく意味合いが異なり、誤解を生じやすい用語でもあることから、ここで解説する。

まず、「毒物」という用語について、日常生活では、生物の健康状態に対して有害な、場合によっては死に至らしめるような物質のことを意味し、毒物・劇物といった言葉でよく耳にするであろう。一方、原子炉物理の分野においては、中性子を吸収する物質のことを毒物と称する。これは、中性子を吸収する物質は、中性子を死に至らしめることから、中性子にとっての「毒」であるためである。8.2.2 節で述べたキセノンやサマリウムなども中性子を吸収する物質であり、キセノン毒、サマリウム毒といったような表現が用いられることがある。

次に、「可燃性」という用語について、日常生活では、可燃性/不燃性という類で使用され、「燃える、よく燃える」という意味で使用される。一方、原子炉物理の分野においては、「毒物」を修飾し「可燃性毒物」という用語で使用される。ここでの「可燃性」は、核燃料の燃焼に伴い、毒物が中性子を吸収して消費され、次第に毒物の効果がなくなることを意味している。したがって、「可燃性毒物」は中性子を吸収する毒物ではあるものの、余剰反応度を抑えたいサイクル初期のみ毒物としての効果を発揮し、サイクル中期以降はその効果が消失するように設計されたものを意味する。

【発展的内容】 可燃性毒物による核特性の違い

可燃性毒物には吸収断面積の大きい核種が選定される。軽水炉の可燃性毒物として使用されている Gd、B および Er について、代表的な核種の吸収断面積を図 8-17 に示す。図 8-

17には比較のため U-238 の吸収（捕獲）断面積も示している。いずれの核種についても、U-238 に比べて熱中性子に対する吸収断面積が 2~4 桁程度大きく、これらを燃料に添加することで通常の燃料に比べて中性子吸収効果が大きくなることがわかる。また、Gd、B および Er について、それぞれガドリニア (Gd_2O_3)、炭化ほう素 (B_4C) およびエルビア (Er_2O_3) の化学形態にて燃料ペレットに混合した場合の燃料集合体の無限増倍率の燃焼推移を図 8-18 に示す。なお、図 8-18 においては、図 8-18(a) に示す燃料棒位置に可燃性毒物入り燃料を使用し、燃料中の可燃性毒物の体積割合を同一とした場合の計算例を示している。

炭化ほう素入り燃料の場合、ガドリニア入り燃料と同程度の増倍率の抑制効果が得られる。しかし、ほう素を燃料ペレットに添加した場合、B-10 の(n, α)反応によりヘリウムガスが生成され、燃料棒内の圧力が高くなるため、ほう素の装荷量には制限が生じることが知られている。なお、ほう素は、本文で述べたバーナブルポイズン棒（可燃性毒物を封入した金属管を制御棒案内管に挿入して使用）の可燃性毒物として広く利用されている。

エルビア入り燃料の場合、Er は Gd よりも中性子吸収断面積が小さいため、ガドリニア入り燃料に比べて、毒核種による中性子の吸収量が小さく、燃焼に伴う毒核種の減少が緩やかになる。そのため、1 サイクルの運転期間が十分に長くなければ、サイクル末期に毒核種が残存してしまう。また、Er-167 は 0.5 eV 付近の熱外領域において吸収断面積のピークを有しており、中性子スペクトルが高エネルギー側にシフトした場合に対して中性子吸収効果が大きくなるため、減速材温度係数をより負側にする（減速材の温度上昇に対して増倍率をより負側に変化させる）効果がある。このような核特性は、サイクル期間の長期化に適したものである。

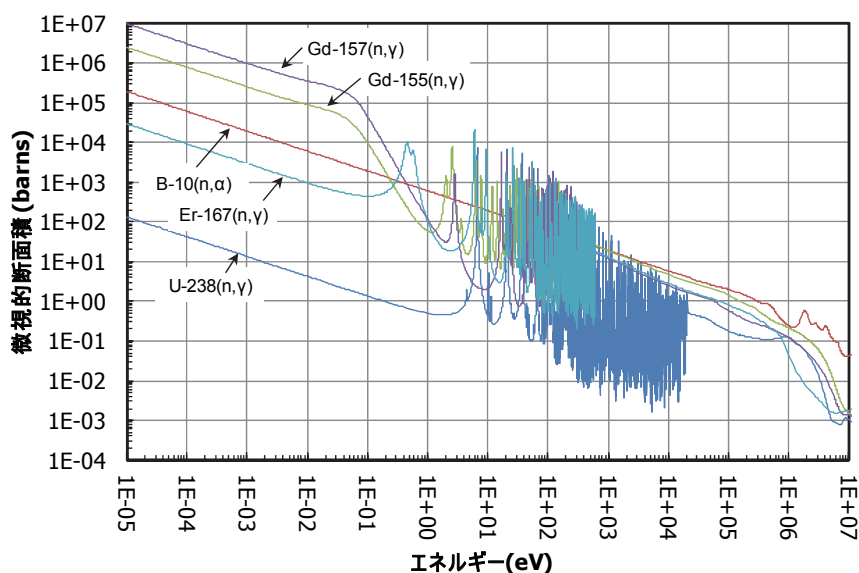
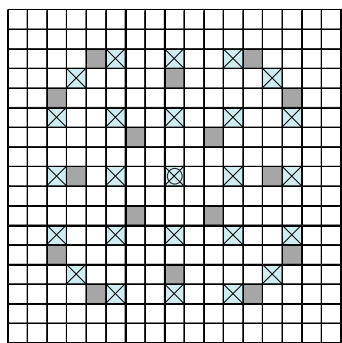
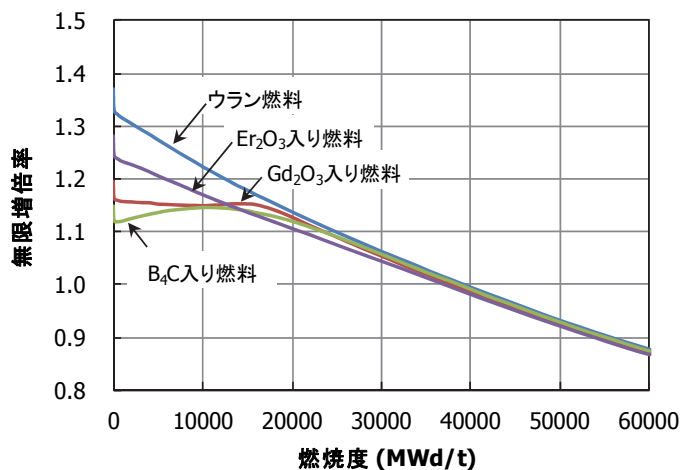


図 8-17 可燃性毒物の吸収断面積
(JANIS[1]より JENDL-4.0 のデータを引用)



ウラン燃料棒 可燃性毒物入り燃料棒
X 制御棒案内管 X 炉内計装用案内管

(a) 燃料棒配置



(b) 無限増倍率の燃焼推移

図 8-18 様々な可燃性毒物を使用した場合の無限増倍率の燃焼推移

参考文献

- [1] OECD/NEA, “JANIS-4.0, Java-based Nuclear Data Information System,”
<https://www.oecd-nea.org/janis/> (accessed 2019/06/02)
- [2] K. Okumura, “MOSRA-SRAC: Lattice Calculation Module of the Modular Code System for Nuclear Reactor Analyses MOSRA,” JAEA-Data/Code 2015-015、日本原子力研究開発機構 (2015).
- [3] 西原健司、岩元大樹、須山賢也、「福島第一原子力発電所の燃料組成評価」、JAEA-Data/Code 2012-018、日本原子力研究開発機構 (2012).
- [4] 株式会社東芝、「再処理施設における燃焼度計測装置」、TLR-R001 (1991).
- [5] International Atomic Energy Agency, “Management of reprocessed uranium: current status and future prospects,” IAEA-TECDOC-1529, International Atomic Energy Agency (2007).
- [6] M Ragheb, “Nuclear Marine Propulsion,”
<http://neoblackpanther.com/nuclear/Nuclear-Marine-Propulsion.pdf> (accessed 2019/07/21)
- [7] G. Chiba and S. Okumura, “Uncertainty quantification of neutron multiplication factors of light water reactor fuels during depletion,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **55**, 1043-1053 (2018).
- [8] 燃料サイクル安全研究委員会編、「燃焼度クレジット導入ガイド原案」、JAERI-Tech 2001-055、日本原子力研究所 (2001).
- [9] 佐藤駿介、名内泰志、「使用済燃料の燃焼度評価技術の開発」、電力中央研究所研究報告 L16002 (2017).
- [10] Y. Inagaki, T. Iwasaki, S. Sato, T. Ohe, K. Kato, S. Torikai, Y. Niibori, S. Nagasaki and K. Kitayama, “LWR high burn-up operation and MOX introduction; fuel cycle performance from the viewpoint of waste management,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **46**, 677-689 (2009).
- [11] 放射性廃棄物の分離変換研究専門委員会編、「分離変換技術総論」、日本原子力学会 (2016).
- [12] 平川直弘、岩崎智彦、「連載講座 原子炉物理 第6回 原子炉の動特性と制御」、日本原子力学会誌、**42**、45-60 (2009).

