#### 2019年春の年会

## 核データ部会セッション

# 核分裂生成物核種の核データ研究のフロンティア

Frontier of Nuclear Data Researches on Fission Product Nuclides

# (4) 原子力エネルギーシステム応用の観点から

(4) Comments from users' side
\*千葉 豪<sup>1</sup>
<sup>1</sup>北海道大学

#### 1. はじめに

本稿では、核分裂生成物核種の核データ研究に関連して、原子力エネルギーシステム応用の立場から、応 用分野における重要な FP 核種を整理するとともに、核データを検証するために利用可能な積分データを紹 介する。

#### 2. 原子カエネルギーシステム応用分野において重要な FP 核種

#### 2-1. 核分裂連鎖反応体系の反応度に与える影響が大きい FP 核種

核分裂連鎖反応体系としては、運転中の原子炉に加えて使用済み燃料の貯蔵施設が挙げられるであろう。 前者に関しては、核分裂反応の結果発生する FP 核種のうち、累積核分裂収率の大きさが有意であり、かつ中 性子吸収が大きいものが挙げられる。核燃料の燃焼問題のための摂動理論[1]を用いた解析により、反応度に 対する感度が大きい核種の定量化が可能であり[2]、その結果として、例えば UO2 燃料であれば、Xe-135、Rh-103、Nd-143、Cs-133、Eu-153、Pm-147、Sm-150、Tc-99、Xe-131、Sm-152、Nd-145、Ru-101 といったものが 挙げられる。また、使用済み燃料に関しては、貯蔵容量の合理化のための考え方である燃焼度クレジット適 用の観点から重要とされた Mo-95、Tc-99、Rh-103、Cs-133、Nd-143、-145、Sm-147、-149、-150、-152、Eu-153、Gd-155 といった核種が重要となる[3]。ここでは、運転中の原子炉の反応度に与える影響が大きいとさ れた核種のうち、Xe-135 などの短半減期のものが除外され、崩壊によって発生する Gd-155 などが追加され ている。これらに加えて、可燃性毒物(及びその候補材料)として用いられる Gd、Eu といった FP 核種も重 要なものとして挙げられるであろう。

#### 2-2. 原子炉の動特性に与える影響が大きい FP 核種

遅発中性子の放出は原子炉の動特性に大きな影響を与える。原子炉の動特性においては、遅発中性子放出 に関わる FP 核種を仮想的な 6 つ(もしくは 8 つ)の核種として扱うモデルが用いられてきたが、近年は個々 の FP 核種の原子炉動特性に与える影響を定量評価する試みが行われている[4,5]。その結果、Br-87、-88、89、 I-137 といった比較的重要性が認識されている核種に加えて、Ge-86 や Rb-94 といった FP 核種の重要性も明 らかとされている。また、実際に原子炉を用いた実験で取得された動特性パラメータに対する核データの議 論も行われつつある[6]。

#### 2-3. 使用済み及び使用中核燃料中のインベントリの評価が重要となる FP 核種

使用済み核燃料中のインベントリ評価が重要となるものとして、まずはそのインベントリが燃料の燃焼度 指標となりうる FP 核種が挙げられる。これらは、燃焼度に対する生成量が線形、もしくは二次関数的に変化 し、かつ崩壊ガンマ線による検出が容易な核種が該当し、Cs-134、-137、Eu-154、Ru-106、Ce-144、Nd-148 な どが挙げられる[7]。また、使用済み燃料の再処理においては、その発熱量が問題となる核種として Sr-90、Ru-106、Cs-134、-137、Ce-144 など、ガラス固化体の特性の観点から含有量が制限させる元素として Mo、ガラ ス溶融炉において電気短絡を発生される可能性があるため含有量が制限されている白金族元素 (Ru、Rh、Pd) が重要な FP 核種として挙げられる[8]。さらに、放射性廃棄物の長期処分において重要となる超寿命 FP 核種 として、Se-79(半減期 30 万年)、Zr-93(同 15 万年)、Tc-99(同 21 万年)、Pd-107(同 650 万年)、I-129(同 1570 万年)、Cs-135(同 230 万年)(、Sn-126(同 10 万年))などが挙げられる[9]。

使用中の核燃料における FP 核種に関しては、燃料設計における FP 放出モデルで重要となるガス状 FP 核

#### 2019年春の年会

種(Kr、Xe、Cs等)が挙げられる。また、燃料漏洩時の監視のため、希ガス7核種(Xe-133、-135、-135m、-138、Kr-85m、-87、-88m)の放出が監視されるとともに、漏洩が生じた燃料の種類(ウラン燃料/MOX燃料)や燃焼度を推定するためにIやCsの同位体の測定も行われており、そういった FP 核種が重要と言える。

#### 2-4. 福島第一原子力発電所の廃炉作業において重要となる FP 核種

福島第一原子力発電所から取り出す燃料デブリについて、そこに含まれる核分裂性物質の定量化が重要であり、非破壊で実施可能な核種インベントリ推定方法がいくつか提案されている[10]。その中で、核分裂性核種と随伴し、かつそのインベントリが燃焼度に強く依存するような FP 核種が重要であり、その例として Eu-154 や Ce-144、Cs-134、-137 が挙げられる。また、再臨界監視技術として、Cm-242 や-244 の自発核分裂由来の FP ガスと U-235 や Pu-239 の中性子誘起核分裂由来の FP ガスの生成量の差異を利用する方法がある。この方法では、FP ガス(希ガス)の核分裂収率の違いを利用していることから、そういった核データが重要となる。

#### 3. FP 核種の核データ検証のための積分データ

#### 3-1. 照射後試験データ

使用済み燃料中に含まれる FP 核種のインベントリを定量化した照射後試験データ(Post Irradiation Examination data、PIE データ)は、FP 核種の生成に関わる核データの精度検証をする上で極めて有益である。 これまでに、ALIANE、MALIBU、REBUS といった国際的な枠組みのプロジェクトで PIE データが蓄積され てきたが、ALIANE、REBUS などその一部は OECD/NEA が開発している照射後試験データベースの SFCOMPO-2.0[11]に収納され、活用可能となっている。また、福島第二原子力発電所で取得されたデータ [12,13]についても SFCOMPO-2.0 に収納されている(文献[12,13]は 1 号機のデータを対象としているが、 SFCOMPO-2.0 では2号機のデータも含まれている)。なお、REBUS プロジェクトで取得された、照射燃料で 構成される体系における炉物理パラメータの測定データも FP 核種の核データの検証に有益であるが、関係 者の尽力によりその詳細が公開されており活用することが可能となっている[14]。

#### 3-2. 臨界実験で取得された実効増倍率データ

ICSBEP や IRPhEP で収集・公開されたデータには、いくつか FP 核データに感度を有するものがあり、それらを有効に活用できる。また、これらに収録されている臨界実験データのうち、軽水炉核特性に深く関係し、かつ高品質な実験データを、JENDL 委員会・リアクター積分 WG が抽出し、軽水炉ベンチマークデータ集としてまとめており[15]、Gd や Rh を含む臨界実験体系のデータが収録されている。加えて、日本原子力研究所の TCA で取得された FP 核種を含む臨界体系の実験データについても利用可能と言える[16-18]。

#### 3-3. サンプル反応度データ

FP 核種を含んだサンプルを原子炉に導入することで生じる反応度(サンプル反応度)の測定データは、FP 核種の核データの直接的な検証に有効である。代表的なものとしては、仏 CEA と英 UKAEA による CERES プログラムが挙げられるであろう。CERES では、原子炉 MINERVE、DIMPLE を用いた測定が実施され、データの一部は IRPhEP に登録されている模様である[19]。また、オランダで実施された STEK 実験、ドイツで 実施された SEG 実験でも FP 核種のサンプル反応度データが取得されており、一部のデータが利用可能な状態となっている[20]。SEG 実験については、最近、米 INL でも再解析が実施されている[21]。

## 4. おわりに

核分裂生成物核種の核データ研究に関連して、原子力エネルギーシステム応用の立場から、応用分野にお ける重要な FP 核種を整理するとともに、核データを検証するために利用可能な積分データを紹介した。

#### 参考文献

[1] M.L. Williams, "Development of depletion perturbation theory for coupled neutron/nuclide fields," Nucl. Sci. Eng., 70, p.20-36 (1979).

[2] G. Chiba, S. Okumura, "Uncertainty quantification of neutron multiplication factors of light water reactor fuels during depletion," J. Nucl. Sci. Technol., 55, p.1043-1053 (2018).

[3] 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).

# 2019年春の年会

[4] G. Chiba, et al., "Sensitivity and uncertainty analysis for reactor stable period induced by positive reactivity using one-point adjoint kinetics equation," J. Nucl. Sci. Technol., 50, p.1150-1160 (2013).

[5] F. Minato, "Sensitivity of delayed neutron to fission yields and beta-decay half-lives," JAEA-Conf 2015-003, p.153-158, Japan Atomic Energy Agency (2016).

[6] A. Zoia, Y. Nauchi, et al., "Monte Carlo analysis of the CROCUS benchmark on kinetics parameters calculation," Ann. Nucl. Energy, 96, p.377-388 (2016).

[7] 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).

[8] Y Inagaki, et al., "LWR high burn-up operation and MOX introduction; fuel cycle performance from the viewpoint of waste management," J. Nucl. Sci. Technol., 46, p.677-689 (2009).

[9] 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).

[10] T. Nagatani, et al., "Characterization study of four candidate technologies for nuclear material quantification in fuel debris at Fukushima Daiichi nuclear power station," Energy Procedia, 131, p.258-263 (2017).

[11] F. Michel-Sendis, et al., "SFCOMPO-2.0: an OECD NEA database of spent nuclear fuel isotopic assays, reactor design specifications, and operating data," Ann. Nucl. Energy, 110, p.779-788 (2017).

[12] T. Yamamoto, Y. Kanayama, "Lattice physics analysis of burnups and isotope inventories of U, Pu, and Nd of irradiated BWR 9x9-9 UO2 fuel assemblies," J. Nucl. Sci. Technol., 45, p.547-566 (2008).

[13] M. Suzuki, et al., "Lattice physics analysis of measured isotopic compositions of irradiated BWR 9x9 UO2 fuel," J. Nucl. Sci. Technol., 50, p.1161-1176 (2013).

[14] 原子力安全基盤機構、「REBUS 計画の試験結果及び解析」、JNES-SS-0904, (2009).

[15] JENDL 委員会リアクター積分 WG、「JENDL 開発のための軽水炉ベンチマークデータに関するデータ集の整備-公開データベース ICSBEP 及び IRPhEP における実効増倍率データの活用-」、JAEA-Data/Code 2017-006 (2017).

[16] K. Sakurai, T. Yamamoto, "Benchmark model of critical experiment at TCA for integral evaluation of fission product nuclide cross sections," J. Nucl. Sci. Technol., 34, p.202 (1997).

[17] T. Yamamoto, K. Sakurai, et al., "Measurements and analyses of reactivity effect of fission product nuclides in epithermal energy range," J. Nucl. Sci. Technol., 34, p.1178 (1997).

[18] 須崎武則、奥村啓介、他、「FP元素等核データ検証実験及び解析」、2003 年春の年会 H37、アルカス SASEBO (2003).

[19] A. Santamarina, et al., "Reactivity worth measurement of major fission products in MINERVE LWR lattice experiment," Nucl. Sci. Eng., 178, p.562-581 (2014).

[20] K. Dietze, "Integral test of JENDL-3.2 data by re-analysis of sample reactivity measurements at fast critical facilities," JNC TN 94000 2001-043, Japan nuclear cycle development institute (2001).

[21] A. Hummel, G. Palmiotti, Small sample reactivity measurements in the RRR/SEG facility: reanalysis using TRIPOLI-4, INL/EXT-16-39582 (2016).

# 謝辞

本予稿・発表資料を作成するにあたって数々の有益なご助言をいただいた原子燃料工業(株)の大岡靖典 氏を始めとした JENDL 委員会・リアクター積分 WG の皆様に深く感謝致します。また、本予稿の内容の一部 についてご確認いただいたことに対し、NEA データバンクの須山賢也氏、電力中央研究所の鈴木求氏に深く 感謝致します。

<sup>\*</sup>Go Chiba, <sup>1</sup>Hokkaido Univ.