37. 破壊法による核燃料の燃焼率測定技術の開発*

夏目晴夫*, 岡下 宏*, 梅沢弘一*

(1972年 12月20日 受理)

Development of Burnup Determination Technique by Destructive Measurement

By Haruo NATSUME, Hiroshi OKASHITA and Hirokazu UMEZAWA

The system for burnup measurements of spent nuclear fuel adopted in the Japan Atomic Energy Research Institute is outlined, and the procedure of destructive measurement, which is the most important part of this system, is described in detail. In this procedure, various determinations by γ -ray and α -ray spectrometry, coulometry and mass-spectrometry are systematically employed after sequential ion-exchange separation.

Treatment of the data and the method of analysis for burnup evaluation are also discussed. A description is also given of the present status of installations of the Burnup Measurement Cell, and some results obtained from test runs are presented.

KEYWORDS: burnup measurement, spent fuel elements, destructive measurement, gamma spectrometry, alpha spectrometry, coulometry, mass-spectrometry, ion exchange, separation process, burnup evaluation, hot cells

I. 緒 論

1969年4月、日本原子力研究所において、使用済核燃料の燃焼率測定技術開発を組織的に推進することが決定された。当時、原研化学部門では、JRR-2 使用済燃料の燃焼率測定を暫定的な共同作業で実施中であったが、同年11月この決定に沿って専任研究グループを発足させた。

この経緯により、技術開発計画は、まずMTR 型燃料の燃焼率測定をとりあげ、さらに発展させて軽水動力炉燃料の燃焼率測定技術の確立を当面の目標とした。すなわち、JPDRを対象として、燃焼計算結果と対比しうる燃料組成を実測し、計算コードの改善に資するとともに、燃焼率測定法の検討を行うことを第1目標とした。一方、燃料開発研究のための各種試験照射燃料の測定、核拡散防止条約にもとづく保障措置に関連した技術開発も要望されているが、これらは上記目標の達成に沿って包括されるものと考えられる。

爾来、分離測定技術の確立と施設の整備に努め、このほど第一段階を画するに致ったので、ここにその概要を報告する。

II. 燃焼率測定システム

原研燃焼率測定グループでは、およそ次のような手順で、使用済燃料の燃焼率を測定している：

- (1) 燃料貯蔵プールにおけるアスキャンニング
- (2) 精密アスキャンニングなど非破壊ホットラボワーク
- (3) 上の結果にもとづく破壊測定用試料の採取
- (4) 燃焼率測定セルにおける一連の作業
- (5) 測定結果にもとづく燃焼率評価

このうち、(1)～(4)項の測定技術の確立には、それぞれ方法の開発とならんで施設・機器の整備が重要である。一方、(5)項においては、測定結果の処理ならびに解析方法に関するソフトウェアに重点がある。システムの概要をFig. 1に示す。ここで、各段階の測定と得られる情報との関連が明らかにされている。

燃焼率測定の目的は、単に核燃料物質の消費量を知るにとどまらず、原子炉内におけるエネルギーならびに全物質収支の正しい把握にある。この観点に立って破壊法で得られなければならない情報を検討し、次の

* 日本原子力研究所(Japan At. Energy Res. Inst.)

Fig. 1 General flow chart of burnup analysis

各項を実施可能とすれば、必要かつ十分であると結論した。

- 放射性核分裂生成物の定量
- ウランの定量と同位体比測定
- プルトニウムの定量と同位体比測定
- ネプツニウムと超プルトニウム元素の定量
- ネオジムの各安定同位体の定量
- モリブデンの各安定同位体の定量
- 全ランタノイド元素の定量

これらのうち、(a)はホットラボならびに原子炉サイトにおける非破壊測定結果の標準化に役立つ。また、この方法の特色から多くの情報を集中的に得る利点がある。(b)~(d)の各項は、残存する核燃料物質とその中性子捕獲によって生成した重元素の量および同位体組成に関連し、(e)~(g)は核分裂生成物(F.P.)に関するものである。核分裂総数の実測法は、燃料系に則して適当に選ばれた F.P. の生成量から算出するのが最も正しい。また、各種核分裂反応の分率は、適当な F.P. 核種の生成比から求める。このためには、安定 F.P. を用いるのが良く、ネオジム(e)およびモリブデン(f)の各同位体、全ランタノイド(g)の定量などを行う。

Ⅲ. 化学分離・定量法

前章(a)~(g)各項の分析は、目的元素の逐次分離を基軸にして系統的に行われる。JPDR-I 燃料の測定に際して実施した分離・定量体系を Fig. 2 に示す。この図には明記されていないが、(d)ならびに(f),(g)項の定量もこれに容易に付加され得る。このように、燃焼率評価のために相補的に用いられる諸情報を系統的にとり得ることが、本測定システムの特色である。また、概略結果で足りる場合には、無視できる因子の測定を随意省略して測定体系の簡素化を図ることもやさしい。

Fig. 2 Schematic diagram of the destructive test

このシステムを組むにあたりとくに意を用いたのは、各測定結果の正確度が良く均衡するような定量法の選択、ならびに高放射能レベル試料を扱う段階での操作をできるかぎり簡便化しながら、定量性の優れた化学分離法を開発することであった。

1. 試料の採取

さきに Fig. 2 に示した手順で評価される燃焼率は、燃料試料片全体についての平均値である。当然、試料片は平均燃焼率を定むべき燃料の単位区分に則して採取されなければならない。燃焼率測定セル施設面の制約から、扱い得る最大試料片は 10^4 MWD/t・1 年冷却の燃料を例にすれば、ウラン約 50 g 相当量である。したがって、この限度以上の単位区分について平均燃焼率を実測するには、他施設、例えば再処理用溶解槽などから試料採取を行うこととなる。

一方、分析に供する試料量は、ウラン数 mg 相当で足りる。それゆえ、これが微量試料採取の限度となる。より僅かな量 (≤ 1 mgU) であっても測定不可能ではないが、燃焼率測定結果の正確度は当然低下する。

これまで試験測定した燃料は、MTR 型 U-Al 合金燃料*、ならびに BWR 用ジルカロイ-2 被覆 UO_2 燃料**であった。前者は、対象部分を径 5 mm の円盤状に打ち抜いて測定試料とした (~ 5 mgU)。後者では、被覆管ごと厚さ 5 mm の輪切りにして単位区分とした

* JRR-2, JRR-4 燃料

** JPDR-I 燃料

($\sim 8 \text{ g UO}_2$)。また、その切断面において、燃料棒の半径方向に沿い2 $\sim$ 3 mg ずつのマイクロサンプリングも試みた。これらの作業は、いずれもホットラボにおいて行われる。

2. 化学分離法⁽¹⁾⁽²⁾

(1) 試料溶液

試料は、溶解・分離・定量と一貫して処理されなければならないので、各過程における諸条件は互いに深く関連する。後続過程の初期条件に合致するよう先行過程を終ることが、全操作の円滑な進捗のために重要である。すなわち、試料片を溶解した1次試料溶液が、そのまま次の分離に供し得れば最も便利である。

金属燃料：塩酸で容易に溶解できる。溶解後、少量の硝酸を加えれば、そのままイオン交換分離用試料とすることができる。

酸化物燃料： UO_2 部分は硝酸で溶解する。この際残りの被覆管に付着するF.P.の量は、 UO_2 部分のそれに比べて無視できる。ちなみに、この被覆管を計量すれば、測定した試料片の見掛け燃料密度を知ることができる。

硝酸酸性の1次試料溶液では、分離過程に供するに適さない。しかし、多くの場合、分析供試量は当初試料の一部で足りるので、この1次試料溶液を適当な濃度の塩酸で希釈したのちイオン交換分離用試料として分取すれば、希釈操作すなわち分離のための液性調節操作となる。

高燃焼度 UO_2 燃料あるいは UO_2 - PuO_2 混合燃料試料の溶解には、フッ化水素酸またはフッ化水素酸-硝酸混合溶液を用いる必要がある。この場合には、溶解後ホウ酸を加え、1次試料溶液中の過剰のフッ化水素酸をテトラフルオロホウ酸に変えたのち希釈・分離を行う⁽³⁾。

(2) 銅モニタ法による試料分取比の決定⁽⁴⁾

1次試料溶液の全量に対する分析供試量の比を正確に知ることは、分析結果を原試料片あたりに換算するために非常に大切である。しかるに、遮蔽セル内で遠隔操作により溶液の正確な分取を行うのはきわめて難しい。

この点を解決するため銅モニタ法を考案した。銅は、高純度物質が容易に入手でき、かつ簡単な方法で正確に定量できる。しかも、使用済核燃料には含有されず、測定する諸元素とともに定量的に系統分離することが可能である。それゆえ、1次試料溶液に既知量の銅を添加して均一に混合させ、のちに希釈・分取した分析用試料から諸元素とならんで分離回収した銅を

定電位電量分析法で定量し、初期添加量と比較して分取比を決定する。

本法によれば、試料溶液を化学天秤によって秤取するのに比肩しうる精度で、容易に試料分取比を求めることができる。とくに、分取比率が大きいときにはきわめて有利である。Fig. 2に示した測定システムに銅が入っているのはこのためである。

(3) イオン交換系統分離法

試料の分割にもとづく誤差の介入を除去し、かつ分析供試量を最少にとどめるため、目的元素をすべて同一試料から定量的に系統分離することを基本方針として、化学分離法を検討した。諸法の得失を詳細に調べた結果、イオン交換法を採用することとした。

ここに提案する系統分離法⁽¹⁾⁽²⁾は、塩酸系陰イオン交換による第1段階と、各種の陰・陽イオン交換による第2段階の各個分離から構成される。本法によれば、II章に挙げた諸元素ならびに試料分取モニタとして用いる銅は、すべて系統的かつ定量的に分離される。

ここで、目的元素のすべてを損失なく分離回収することにとりわけ注意をはらった。これは、のちの定量段階において、多大の労力・費用を要する質量分析計による同位体希釈分析法の代わりに電量分析法などを採用可能とするためである。とくに、プルトニウムの塩酸溶液における陰イオン交換挙動を詳細に研究して最適分離条件を定めた⁽⁵⁾。

フッ化水素酸含有試料溶液に、ホウ酸を加えフッ化水素酸をマスクしてイオン交換分離するため、テトラフルオロホウ酸を含む塩酸および硝酸溶液中の諸元素の陰イオン交換平衡を調べて新分離法を開発した⁽³⁾。また、II章(g)項に関して、超プルトニウム元素ならびにイットリウムからランタノイドを定量的に分族するきわめて有望な方法を現在開発中である。これには、新しいタイプのイオン交換樹脂を用いる。

3. 定量法

(1) 電量分析法

同位体組成と無関係に総原子数を測定できることが、定量法の選択規準となる。この観点にたてば、同位体比既知であることを前提とする重量分析法よりは、電量分析法あるいは容量分析法などが有用になる。

原理的に絶対測定であり、かつ自動化の容易さにもとづく遠隔操作上の利点を考慮して、定電位電量分析法を採用した。ウラン、プルトニウム、銅などがこの方法で定量できる。硫酸を支持電解質とし、水銀を作動電極とするウランおよび銅の定量技術は、すでに確立した⁽⁴⁾⁽⁶⁾。低燃焼度燃料の場合、ウランは化学分離を

行わず直接定量することができるが、F.P. 含量が増すとモリブデンが妨害する。現在、予測クロマトリーを採用して装置の自動化を研究するとともに、プルトニウム定量の検討を始めている。

(2) 質量分析法

質量分析による同位体希釈分析法は、原理的には高精度であるが、測定に長時間を費すほか機器の操作に高度の熟練を要し、分析コストも高い。それゆえ、より簡単な方法によって、たとえ有意の系統偏差があっても高精度の定量が可能な場合には、代表的な試料についてのみ同位体希釈分析を行い、簡便法による分析値を確認する方法をとっている。

現在、ウランとプルトニウムに関しては、同位体比は全試料にわたって質量分析計により測定するが、同位体希釈分析による定量は、一部の試料についてのみ行なっている。ネオジウムあるいはモリブデンの各安定同位体の定量は、すべて質量分析計を用いる同位体希釈分析法に頼らざるを得ない。これに代わる簡便法として、全ランタノイドを定量する方法が有望であり、別にその検討も開始している。

(3) 放射性核種の測定

一般に、良く検定された標準線源を準備し、これとの相対測定を行なって定量する。しかし、 α 線測定と γ 線測定とは、実際の手順が少し異なる。

γ 放射性核種は、Ge(Li)検出器による γ 線スペクトロメトリーで測定する。破壊法の γ 線計測においては、試料の量ならびに形状を最適測定条件に則して調製できるので、正確な測定ができる。 ^{95}Zr - ^{95}Nb , ^{106}Ru - ^{106}Rh , ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{144}Ce - ^{144}Pr , ^{154}Eu , ^{155}Eu などは、とくに化学分離をしなくとも直接 γ 線スペクトロメトリーで十分定量される。なお、プルトニウム同位体の特性X線および γ 線を測定する研究も進めている。

α 放射性核種の定量には、 2π 比例計数管による全壊変率測定と、表面障壁型 Si 検出器を用いる α スペクトロメトリーを併用する。ウラン・トリウム以外のアクチノイド核種は、この方法で定量できる。とくに、 ^{238}Pu および超プルトニウム元素の定量に適している。

これらの測定器校正のため、IAEA など諸機関から配布される標準線源をできるだけ入手している。一方、 $4\pi\beta(\alpha)$ 計数あるいは $4\pi\beta(\alpha)-\gamma$ 同時計数法による絶対測定技術を開発し⁽⁷⁾⁽⁸⁾、独自に比較線源の校正ができる態勢を確立した。また、 γ 線測定用に ^{152}Eu , α 線測定用に ^{238}Pu 標準線源を調製した。

IV. データ処理およびデータ解析

使用済燃料試片に種々の定量法をほどこして生データを得、これに核データを組み合わせ処理する評価過程を経て、燃焼率が決定される。近年、たとえば Ge(Li)検出器による γ 線スペクトロスコピーのように、測定器の開発に伴いデータ量は急増してきた。これに対応して本プロジェクトにおいては、信頼できるプログラムを用いて電子計算機により処理する方式を採用している。その測定システムにおけるデータの流れを Fig. 3 に示す。

Fig. 3 Flow chart of the data analysis

1. γ 線スペクトル測定系のソフトウェア

測定系は、Ge(Li) 検出器、2, 3 の増幅回路モジュールなどをもつ測定室で得られたアナログ信号を、約 100 m 離れた γ 線測定センターの多重波高分析計に伝送する方式を採用した(Fig. 4)。測定室に置いたテレタイプにより指令できるこの波高分析計は、GEOS・PDP-11 構成であり、CANBERRA 社製“CLASS”語で操作される。

CLASS 語に含まれる波高分析器操作の命令語群“QUANTA”を適当に組み合わせ、測定条件に沿ったサブルーチンプログラムを作成した。測定条件を指定する“ON”，データを高速紙テープパンチャで任意の書式に出力させる“PTOUT”，ピーク位置を正確に求める“TOP”などのプログラムを開発し、実用に供している。

2. γ 線スペクトル解析

紙テープの形で出力されたスペクトルデータは、FACOM 230-35 を用いてカードまたは磁気テープに変換され、FACOM 230-60 によりスペクトル解析コード“BOB73”⁽⁹⁾にかけられる。

“BOB73”は、Fig. 5 に示すように、スペクトルデ

Fig. 4 Block diagram of the γ -ray spectrum measurement system

データの平滑化 (SMART), ピーク探索 (PKREC), ピークフィッティング (PKFIT) を行なったのち, エネルギー同定ならびに計数効率補正 (ENGEF) を行なって結果を出力する (OUTPUT)。計算結果をプロットすることも可能である (SPECTR)。

Fig. 5 Flow chart of BOB 73

3. 定電位電量分析データの解析

定電位電量分析法では, 通常, 電解終点まで通電を続ける。電解電流は指数関数的に減少するため, 電解速度定数の比較的小さいウランの場合, 終点到達にかなりの時間を要する。また, 終点に近づくとバックグラウンド電流の寄与が大きくなる。これらの困難を克服するため, 電解初期過程のデータから終点を定める方法¹⁰⁾を採用した。

電解開始後, 一定時間間隔 Δt で積算クーロン量を出力し, これを(1)および(2)式に代入して電解終点における全クーロン量 Q_{∞} ならびに電解速度定数 k を算出する。

$$Q_{\infty} = Q_t + \frac{(Q_{t-1} - Q_t)^2}{2Q_{t-1} - (Q_{t-2} + Q_t)} \quad (1)$$

$$k = \frac{Q_t - Q_{t-2}}{2 \cdot \Delta t} \cdot \frac{1}{Q_{\infty} - Q_{t-2}} \quad (2)$$

ここで, Q_t , Q_{t-1} および Q_{t-2} は, 電解時間 t , $t - \Delta t$ および $t - 2 \cdot \Delta t$ における積算クーロン量である。

本法によれば, 電解率90%以前に全クーロン量を決定でき, 所要時間は1/3~1/4に短縮される。電解速度定数は, 電解条件が正常か否かの判定に用いる。実際には, データ平滑化の作業を含め, ミニコンピュータ PDP-11 を使用している。

4. 燃焼率の計算

ある試料に着目し, F.P. モニタ核種の生成原子数を P , その有効核分裂収率を Y とし, 重元素原子数を H とするとき, 燃焼率 B は(3)式で定義される。

$$B = \frac{P/Y}{P/Y + H} \times 100 \quad (3)$$

^{148}Nd ならびに ^{137}Cs は, ^{235}U および ^{239}Pu の核分裂で極めて近い収率を与えモニタ核種として適当である。前者は安定核種なので汎用可能であるが, 分離・定量が煩雑である。後者は燃料中での拡散が問題となるほか, 放射性核種のため減衰の補正を必要とする。そのために, 原子炉運転記録から放射性 F.P. の炉内生成・減衰を評価する計算コードを作成した。

軽水炉燃料の場合, ウランおよびプルトニウムの原子数之和は, (3)式中の H の99.9%以上になり, ネプツニウム, アメリシウムおよびキュリウムの原子数は無視してよい。

照射前・後のウランおよびプルトニウム同位体比から燃焼率を算出する方法も重要であるが, 評価に用いる各核分裂性核種の実効 α 値(核分裂断面積/中性子吸収断面積)が不確実であり誤差を拡大する。

燃焼率の算出には, 正確な核データならびに炉定数

を要するが、現状では、化学分析技術がそれらに先行している。このため、同一試料片からできるだけ多くの情報を得るよう、多種の放射性ならびに安定 F.P. 核種およびアメリカウム・キュリウムを含む重元素同位体比を必要に応じて定量し、これらの値の相対比から炉内条件を推定する方法の開発に着手している。

V. 燃焼率測定セルの整備

高レベル使用済燃料試片の化学処理には、しかるべき遮蔽を備え、かつ α 放射体の取扱い可能な施設が必要であり、これに原研再処理特別研究棟の分析セルを転用することとした。セル内の気密向上のために、インナーボックスおよびコンベア機構に改良を加え、給排気フィルタを増設し、試料搬入・廃棄物搬出機構などを新設した⁽¹¹⁾。

この燃焼率測定セルは、前面：鉛 15 cm、天井および側面：鉄 15 cm、床および背面：鉄 20 cm で囲まれた 10 個の独立コンパートメントおよび放射能モニタ用ボックスから成り、それぞれはコンベアで連絡している。各コンパートメントには、1 双のトンクが備えてあり、気密保持用ステンレス鋼製インナーボックス内の化学処理操作を行う。

Ⅲ章で述べた系統分離システムをこのセルに組み込んだ。各コンパートメントにおける機能、内装機器、およびプルトニウムならびに使用済燃料の最大許容使用量を Table 1 に示す。

トンクの有効操作範囲はかなり限られており、溶解、希釈、分取および濃縮装置の製作には工夫を要した。また、とくに考案した遠隔イオン交換装置を採用して

いる⁽¹²⁾。

JPDR-I 使用済燃料試片を用いて行なったホット試験で、セル内操作の安全性ならびに内装機器の安定性を確認して初期の目的を達成した。将来、さらに内装機器に改良を加え、セル内操作の自動化を指向している。

VI. 試験測定における二、三の成果

1. 各種燃焼率測定法の比較

JRR-4 燃料について、ウランを電量分析法、 ^{137}Cs を放射化学分析法で定量して求めた燃焼率と、ウランおよび ^{148}Nd の同位体希釈分析結果から定めた燃焼率との比較を Fig. 6 に示す。両者間には、約 1% の系統偏差がみられるが、核分裂収率、半減期など、分析値から燃焼率を算出するときに用いる核データの正確度を考え合わせれば、有意差とは認められない⁽¹³⁾。

JPDR-I 燃料に関して、上の 2 法ならびにウラン・プルトニウム同位体比法⁽¹⁵⁾により評価した燃焼率を

Fig. 6 Comparison of the burnup values obtained from the ^{137}Cs -U and the ^{148}Nd -U methods

Table 1 Equipments of burnup measurement cell

Compartment name	Function	Equipment	Permissible amounts	
			Pu(g)	Spent fuel (γCi)
L	Loading, Taking out	Manipulator, Storing box	50	100
A1	Weighing	Remote balance	10	20
A2	Dissolution	Heater, Glassware	10	20
A3	Dilution, Sampling	Glassware, Remote pipetter	10	20
B1	Concentration	Evaporator	10	20
B2	Chemical separation	Ion exchange apparatus	10	20
B3	Chemical separation	Ion exchange apparatus	10	20
C	Maintenance	—	10	20
D	Chemical purification	Ion exchange apparatus	10	20
E	Chemical purification	Ion exchange apparatus	10	20
M	Taking in, Taking out	Radiation monitor	3	0.01

Table 2 Burnup evaluation on the JPDR-I fuel(%)

Sample	F.M. method†		I.R. method††
	¹⁴⁸ Nd	¹³⁷ Cs	
71-B-001	0.289	0.27	0.272
71-B-002	0.453	0.43	0.405
71-B-003	0.430	0.42	0.396
71-B-004	0.352	0.34	0.323
71-B-005	0.306	0.30	0.280
71-B-006	0.577	0.54	0.530

† F.P. monitor method

†† Heavy element isotope ratio method

Table 2 に示す。

¹⁴⁸Nd 法の結果に比べ、¹³⁷Cs 法は 4%，同位体比法は 8%低い。しかし、この系統偏差に比べ、精度はそれぞれ $\pm 2.0\%$ および $\pm 1.5\%$ である⁽¹⁴⁾。JPDR-I は酸化物燃料であるが、比較的低出力、低燃焼度であって、アルカリ金属の偏析も重要因子とは考えられない。これらの差異の究明には、核データ・炉定数の再評価を中心として、さらに詳細な研究が必要である。

2. 同位体相関技術

F.P. 核種とこれが中性子捕獲をして生成した核種との比は、中性子束の関数となるので、中性子スペクトルにあまり差がない範囲では、燃焼率に対する良いパラメータとなることが期待される。

JRR-4 燃料における ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 比と燃焼率との関係を Fig. 7 に、また JPDR-I 燃料における ¹⁵⁴Eu/¹⁴⁴Ce 比と燃焼率との関係を Fig. 8 に示す。いずれの場合も良い相関関係がある。同じ範疇の燃料試料については、代表的な試料を用いてこの関係を定めれば、他試料の燃焼率は直接 γ 線スペクトロメトリーのみによって定めることができる。この技術は、JRR-2 燃料の燃焼率測定に実際に応用された。

また、超プルトニウム元素の各核種の比が、プルトニウム生成量の良い尺度となることも見出された。

3. 初期ウラン濃縮度ならびに α_s 値の決定

JRR-4 燃料では、初期ウラン同位体組成が不明確であったため、使用後の破壊測定結果のみにもとづいて解析を行なった。

未知数である初期の ²³⁵U および ²³⁸U 同位体存在比をそれぞれ R_0^s および R_0^u とし、使用後に定量した ²³⁵U, ²³⁸U, 全ウラン, ネプツニウム, プルトニウムおよび超プルトニウム元素の各原子数をそれぞれ N_s , N_u , N_{Np} , N_{Pu} , N_{Tp} ならびに N_{Tp} とし、さらに全核分裂

Fig. 7 Relation between the ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs ratio and the burnup on the JRR-4 fuel **Fig. 8** Relation between the ¹⁵⁴Eu/¹⁴⁴Ce ratio and the burnup on the JPDR-I fuel

数を N_F とすると、燃料使用前後の全原子数のバランスから次の関係が成立する。

$$\frac{N_s + N_{Np}}{N_F} = R_0^s$$

$$\left(\frac{N_F + N_U + N_{Pu} + N_{Np} + N_{Tp}}{N_F} \right) + \alpha_s \quad (4)$$

$$R_0^s = \frac{N_s + N_F(1 + \alpha_s)}{N_F + N_U + N_{Pu} + N_{Np} + N_{Tp}} \quad (5)$$

ここで、 α_s は ²³⁵U の $(n, \gamma)/(n, f)$ 断面積比である。

もし、 R_0^s , R_0^u および α_s 値が同一で、燃焼率の異なる複数の試料が与えられれば、上の関係からそれらの値を求めることができる。JRR-4 燃料では、 N_{Np} と

Fig. 9 Estimation of R_0^0 and α_s of the JRR-4 fuel from the data of destructive test

Table 3 Initial enrichment of the JRR-4 fuel determined from an analysis of the data of destructive test

Distance from top of U-region (cm)	Initial enrichment, R_0^0 (%)
10	89.93 ₇
20	89.93 ₃
30	89.93 ₀
40	89.94 ₇
50	89.93 ₉
Mean	89.93 ₇
Standard deviation	0.006 ₄

N_{TP} は無視できた。同一燃料板から採取した5試料について、 N_0/N_F 比を $(N_U + N_{Pu} + N_F)/N_F$ に対してプロットすると、Fig. 9 にみられるように、 α_s と R_0^0 が良い精度で定められた。この α_s 値を(5)式に代入して初期ウラン濃縮度 R_0^0 を算出した。結果をTable 3 に示す。

Ⅶ. 結 語

これまで、燃焼率測定は散発的に臨時のチーム編成で行われていた。したがって、測定法の選択は多分に便宜であった。また試料分割の誤差が意外に大きく、そのため燃焼率決定上相補的な情報となるべき各定量値の精度に精粗を生じ、最終結果の信頼度を低下させていた。

本報で述べた燃焼率測定技術開発プロジェクトは、原子炉内におけるエネルギー・物質収支の完全な把握のための総合測定システムを指向した初めての試みである。研究用原子炉ならびに動力試験炉の使用済燃料

数10試料を用いた試験測定の実施により、燃焼率測定セルを中心に行うべく構成された破壊測定システムの実用性は十分確証された。各測定法は、合目的性を深く吟味して選択され、定量値の精度は良く均衡している。最終結果として得られる燃焼率が、どれかひとつの測定精度で致命的に左右されることはない。とくに、 γ 線スペクトロメトリー技術を確立したので、同位体相関法の信頼性が向上した。

施設面では、目下作業中である高レベル廃液一時貯留槽ならびにプルトニウム用大型グローブボックスの設置が完了すれば、当初第1段階の目標としたJPDR-II 燃料の燃焼率測定を実施できる態勢となる。

しかしながら、実際の測定実施にあたっては、原子炉関係者はもとよりホットラボを初め多くの関連部門との緊密な協力が不可欠である。また、各測定値にもとづいて燃焼率を評価するための解析方法の研究ならびに必要な核データの整備が今後重要となろう。化学処理技術としては、高燃焼度軽水炉燃料、高速炉燃料および多目的炉燃料についての検討が、これからの問題である。

本研究は、原研燃焼率測定開発室の岡崎修二、鈴木敏夫、園部 保、大貫 守、中原嘉則、市川進一、白田重和、ならびに分析センター質量分析グループの小森卓二、田村修三、郡司勝文、田村公子のメンバーの協力のもとに行われた。研究の各部における上記諸氏の多大の貢献に感謝する。

燃焼率測定セルの外装設計に関して適切な助言を賜わり、また本計画に関連して試料採取過程を担当されたホットラボ管理室の本間俊二室長以下技術グループおよび開発グループの諸氏ならびに γ 線測定系の確立にご協力いただいた原子炉計測研究室の川口千代二、五藤 博、八木秀之の諸氏に厚くお礼申し上げる。

γ 線スペクトル解析コード“BOB 73”は、製造技術課の馬場 宏、馬場澄子両氏との共同研究によるものである。

最後に、本計画の遂行に当って不断のご指導ならびにご鞭撻をいただいた原研理事上田隆三博士、同東海研副所長天野 昇博士、原子炉化学部長石森富太郎博士ならびに技術情報部大森栄一氏に感謝します。

— 参 考 文 献 —

- (1) NATSUME, H., UMEZAWA, H., OKAZAKI, S., SUZUKI, T., SONOBE, T., USUDA, S.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **9** [12], 737~742 (1972).

- (2) 梅沢弘一, 岡崎修二, 鈴木敏夫, 園部 保, 臼田重和, 夏目晴夫: *JAERI-memo* 4984 (未公開), (1972).
- (3) 臼田重和, 梅沢弘一, 夏目晴夫: *JAERI-memo* 5109 (未公開), (1973).
- (4) 岡崎修二, 園部 保, 梅沢弘一, 夏目晴夫: *JAERI-memo* 5052 (未公開), (1972).
- (5) 梅沢弘一, 臼田重和, 市川進一, 夏目晴夫: *JAERI-memo* 5004 (未公開), (1972).
- (6) 岡崎修二, 岡下宏, 夏目晴夫: *JAERI-memo* 4554 (未公開), (1971).
- (7) BABA, H., BABA, S., SUZUKI, T., ISHIKAWA, I., UMEZAWA, H.: *J. Appl. Radiat. Isotop.*, **21**, 607 (1970).
- (8) BABA, H., UMEZAWA, H., ISHIKAWA, I., BABA, S.: *ibid.*, **22**, 141 (1971).
- (9) BABA, H., OKASHITA, H., BABA, S., *et al.*: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **8**[1], 41 (1971); *JAERI-1216* (1971); *JAERI-227* (1973).
- (10) STEPHAN, F.B., JAKOB, F., RIGDON, L.P., HARPER, J.E.: *Anal. Chem.*, **42**, 764 (1970).
- (11) 大貫 守, 他: 未発表.
- (12) 園部 保, 大貫 守, 岡崎修二, 梅沢弘一, 岡下 宏, 夏目晴夫: *JAERI-memo* 5128 (未公開), (1973).
- (13) 夏目晴夫, 他: 未発表.
- (14) 夏目晴夫, 他: 未発表.
- (15) 青地哲男, 小森卓二, 江村 悟, 高柳 弘, 山本忠史: 本誌, **12** [1], 7~12 (1970).

プラズマ物理学

後藤憲一著 大学2年修了程度の知識を前提とし, プラズマ物理学全般にわたって, その基礎的事項を入門的に解説し, あわせて最新の理論にも触れた。……………A 5・1800円

プラズマ物理学入門

伊藤 博・科野邦蔵訳 プラズマ物理の基本的な現象を平易に解説。内容は超高温プラズマにおける現象・熱核反応の最近の研究原理などを網羅した。……………B 6・650円

原子核

野中 到編 原子核物理学の実験的研究に必要な実験手段の原理と実際面が詳述され, とくに原子核の分光学について十分なページが費されている。……………A 5・6500円

原子炉

伏見康治編 原子炉物理・原子核物理の実験および, これらの実験を行なうについて不可欠な注意としての保健物理の実際の3編から構成され具体的に記述した。…A 5・3800円

原子炉物理

中性子インポートランスと原子炉雑音の理論——大塚益比古著 中性子インポートランスの理論と原子炉雑音の理論を理解するのに必要な一般理論を平易に解説した。……………A 5・850円

原子核・放射線の基礎

真田順平著 本書は原子核研究の歴史からはじまり, その相互作用・構造など原子核・放射線の基礎となるべき内容を初学者に理解できるように平易に解説した。……………B 6・800円

核融合入門

高温プラズマの閉じ込め——吉川庄一・飯吉厚夫著 幾つかのプラズマ閉じ込め装置について, その原理および具体的な実験について平述した。……………A 5・1300円

環境放射能測定法

山県 登著 各核種の放射化学分析法を重点に解説するとともに, 分析に先立つ調査計画の立案・サンプリングの重要性・放射線の正しい計測など付け加えた。……………B 6・750円