核燃料の燃焼測定と解析

「核燃料燃焼計測」研究専門委員会*

(1977年 7月13日 受理)

Measurement and Analysis of Burnup of Nuclear Fuel

By Research Committee on Burnup Measurement

Recent advance in measurement techniques of irradiated reactor fuels was reviewed and the significance of the measured results was studied from the viewpoint of reliable management of nuclear fuel. This article deals with the present status of non-destructive measurement techniques of power distribution, burnup, Pu accumulation and change in fuel shape. Of power distribution and burnup, correlation between measured results and calculated ones is also discussed. In addition, the outline of isotope correlation technique is given due to the importance of application of it to safeguards purposes and reactor analyses.

KEYWORDS: LWR type reactors, burnup, plutonium accumulation, nuclear fuels, gamma-ray spectrometry, power distribution, isotope correlation, safeguards, reactor analysis, performance, fission products, spent fuel elements, gamma fuel scanning

I. ま え が き

原子炉内で核燃料がどのように燃焼したかを理解することは、原子炉における核物質管理や再処理工場でのプロセス管理のみならず、原子炉の安全性を考慮しつつ核燃料からいかに有効にエネルギーを取り出すかという原子炉の経済性の追求に大きく貢献するものである。そのために、それぞれの原子炉には燃焼計算に基づく燃料管理コードが整備されているのはいうまでもない。しかし、その計算がどのくらい正しく行われているかを実験的に確かめた例はほとんどなく、これが燃料燃焼の最適化を目指す開発研究の大きな障害となっているのが現状である。

過去4年間、「核燃料燃焼計測」研究専門委員会は、照射済み燃料の各種測定技術および測定結果から得られる情報の意味について検討を続けてきた。核燃料の燃焼計測に関する研究は、試料が高放射性であるため特殊の施設を必要とし、各種の高度な測定技術を総合しなければならないため、世界的にみても研究者の数は意外に少ない。しかし、そのように限られた条件の中でも、ここ数年の間にいくつかの国々で実験が進められ、成果がまとめられつつある。

照射済み燃料をホットラボまたは再処理工場で溶解

し、化学処理ののち精密な化学分析を行う、いわゆる破壊測定技術は、軽水炉燃料に関してはほとんど確立されているのでここでは省略する。本稿では、わが国でも近年実験が行われ始めてきた、非破壊測定技術の進歩の状況ならびに燃焼計算における問題点の摘出を中心にまとめ、あわせて測定データの評価に最近広く利用されるようになった同位体相関技術の紹介を行う。

(主査 原研・夏目晴夫)

II. 照射核燃料測定技術

原子炉内での核燃料の燃焼特性を系統的かつ詳細に理解するために、炉の出力分布、中性子スペクトル、燃焼率と核種転換率およびそれらの分布、さらに燃料体

* 設置期間1973年4月～1977年3月

構成委員32名(敬称略、順不同。◎主査、○幹事)

◎夏目 晴夫(原 研)	浜田 博美(東 電)	五藤 博(原 研)
○渡辺 昌介(動 燃)	松本智恵博(四国電)	佐藤 均(動 燃)
○木村 逸郎(京大炉)	竹田 隼三(日 立)	坂野 和雄(原 研)
○岡下 宏(原 研)	関口 晃(東 大)	八木 秀之(原 研)
○松浦洋次郎(原 研)	奈木野陽一(関 電)	安川 茂(原 研)
清瀬 豊平(東 大)	植松 邦彦(動 燃)	山崎 亮吉(原 電)
平田 実徳(原 研)	西村 和明(原 研)	大井 昇(NFD)
内藤 奎爾(名 大)	矢田 実(原燃工)	堤 健一(動 燃)
嶋田昭一郎(MAPI)	森 竜二(NFD)	辻 信雄(動 燃)
神田 啓治(京大炉)	笹本 宣雄(原 研)	江連 秀夫(原 研)
黒沢 文夫(NAIG)	内藤 淑孝(原 研)	

の材質および形状の変化等を非破壊的に測定する技術の開発と応用がこの数年種々試みられている。出力分布や燃焼率の非破壊測定法として、 γ スペクトロメトリ、カロリメトリ、中性子計数法、等価反応度測定法等の応用が試みられて来ているが、現時点では γ スペクトロメトリの開発が γ 線測定技術とデータ処理技術の進歩に支えられて最も進んでいる。しかし、この方法にはそれ自身では絶対値の測定ができず、また測定対象が核物質そのものでなく核分裂の残影であるという弱点がある。他の方法にもそれぞれ長所短所があるので、お互いがその特長を発揮できるように組み合わせられた非破壊測定系の開発が望まれる。

燃焼に伴う燃料体の形状と材質の変化に関しても、伸び、歪み、欠陥等を測定するいくつかの技術が、主にハルデン・プロジェクトを中心としていくつか開発されて来た。さらに、それらを燃焼特性とも関連づけた測定技術に発展させようとする努力がなされている。

本章では、軽水型動力炉燃料についてのこれらの測定技術の現状をわが国での活動を中心に述べる。

1. γ スペクトロメトリによる燃焼測定

照射済み核燃料中に蓄積される核分裂生成物(F.P.)の特定の核種が放射する特定のフォトリックの強度を測定して、燃焼に関する諸量を決定しようとする試みはかなり以前からなされていた。この測定は、原子炉サイトの使用済み燃料貯蔵プールあるいはホットケープに設置された燃料スキャンナ、コリメータ、 γ 線検出器の系を用いてなされる。

測定系の重点のひとつはスキャンナの位置分解能であるが、これは測定目的に応じて ± 10 mm程度のものから ± 0.025 mmという超精密なものまでが使われている。燃料棒の測定でX-Y 2次元スキャンニングを行いデータ解析によって切片のマイクロスキャンニングと同程度の情報を得ているものもある⁽¹⁾。また測定現場が一般の研究室と異なり、バックグラウンドの高い場合が多いので、コリメーション、有害な低エネルギー γ 線のカット、検出器の遮蔽等に考慮が払われる⁽²⁾。

γ 線検出として初期にはNaI(Tl)型検出器が用いられたが、分解能の不十分さのため得られる結果も限られていた。最近ではもっぱら高分解能のGe(Li)型検出器が1,000~4,000チャンネル程度の波高分析器と組み合わせて使用されている。波高分析器で得られたスペクトルデータに関して、①フォトリックの検出、②ピークエネルギーの決定、③核種の同定、④ピーク計数値の決定、⑤時間減衰補正等が計算機によってなされる。高分解能の γ スペクトロメトリが利用できる

ようになった結果、F.P.の核種ごとの解析が可能となり、得られる情報が非常に多様化して来ている。

燃焼測定の観点から γ スペクトロメトリの対象となる核種はかなり限られており、それらはその測定値の有する物理的意味から大きく3つのグループに分類できる。

グループ1(半減期の比較的短いF.P.核種):これには ^{91}Sr , ^{99}Mo , ^{133}I , ^{135}X , ^{140}Ba , ^{140}La , ^{143}Ce , ^{103}Ru , ^{95}Zr 等が認められる。これらの核種の燃料内濃度分布は原子炉停止時からその核種の半減期の2, 3倍の期間の運転時出力分布を表現する。

グループ2(半減期の比較的長いF.P.核種):これには ^{106}Ru , ^{137}Cs , ^{144}Ce がある。これらの γ 線強度は燃料の積分燃焼値の指標となる。特に、燃料温度が約 $1,600^\circ\text{C}$ を超えていないようなときには ^{137}Cs 濃度は燃焼率の非常によい指標となる。また、 ^{106}Ru はUとPuで生成率が約10倍異なるので、これはUとPuとの核分裂比やPuの蓄積量の指標を与える。

グループ3(2次生成核種):これには ^{134}Cs と ^{154}Eu がある。これらは核分裂時にはほとんど生成されず、F.P.の ^{133}Cs と ^{153}Eu とがそれぞれ中性子を吸収して出来るものである。この中性子吸収には共鳴吸収の影響が大きく、 $^{133}\text{Cs} \rightarrow ^{134}\text{Cs}$, $^{153}\text{Eu} \rightarrow ^{154}\text{Eu}$ の転換は $^{238}\text{U} \rightarrow ^{239}\text{U} (\rightarrow ^{239}\text{Pu})$ の転換と顕著な相似性がある。したがって、これらの核種の γ 線強度比 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$, $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ は燃焼率の指標であると同時に、U燃料に対するPu蓄積量やあるいは照射中の熱外中性子と熱中性子の平均的強度等の指標になりうる。

照射済みの燃料集合体やそれを解体して得た燃料棒について、上記の核種の γ 線強度やそれら相互の比を測定して、燃焼特性の把握と燃焼計算の検証が試みられつつある。

(1) 燃料棒の燃焼特性

炉内の燃焼について空間的に詳細な情報を得ようとする場合には、燃料棒単位の非破壊測定が必要である。破壊法による測定(化学分析)では試料採取数が限られるので、特定の燃料棒の局所的な値か、再処理時に溶解液から抽出される数体の燃料の平均値のみが得られる。一方、集合体単位の測定値は炉内の燃焼特性値のグローバルな分布を与えるが、位置分解能が限られる。現段階で最も望ましい測定のあり方は、燃料棒測定、集合体測定、破壊法による絶対値校正の3つを合理的に組み合わせたものと考えられる。

JPDRの1つの集合体から抜き出された8本の燃料棒について γ 線測定がなされている⁽³⁾⁽⁴⁾。この燃料は

冷却が長く ^{106}Ru , ^{137}Cs , ^{144}Ce - ^{144}Pr , ^{134}Cs , ^{154}Eu のみが認められた。この測定では非破壊法と破壊法との対比がなされ、 ^{137}Cs の γ 線計数率と燃焼率との相関性、 γ 線強度比 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ あるいは $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ と原子数密度比 Pu/U との相関性が非常に良いことが示された。

(2) 燃料集合体の燃焼測定

原子炉や再処理施設の燃料貯蔵プールに燃料スキャナを設けて燃料集合体の測定が試みられているが、まだその例は少ない。わが国では沸騰水型原子炉の燃料集合体について、出力分布と燃焼分布に関するデータを得て設計計算法の精度評価をするために、F.P. γ 線の測定が燃料貯蔵プールで行われた例がある⁽⁶⁾。燃料集合体は上下移動と回転のできる燃料準備機上に置かれ、その4つの角を高さ方向0.5 ft おきに全長12 ft にわたって測定された。

このようにして測定された燃料(冷却時間約120日)からの γ 線スペクトルが第1図に示されている。この測定では、信号発生器からのパルスF.P. γ 線と同時に計数し、検出系の不感時間補正をするよう工夫されている。

第1図 照射燃料の γ 線波高スペクトル

波高分析器に記録された γ 線スペクトルを解析し、各測定点について、各核種からの相対的 γ 線強度が得られる。燃料集合体の同じ高さにある4つの角の γ 線強度を平均すると、その高さで発生している γ 線強度にはほぼ比例する値が得られることが、別になされた計算と実験で確かめられている。したがって、4つの角の測定平均値から燃料集合体の軸方向F.P.核種相対濃度分布が得られる。一方、原子炉の運転履歴を追跡した計算から、燃料集合体の軸方向F.P.濃度分布を得ることができ、測定値との比較により計算手法の精

度評価を行うことができる。

F.P.核種の軸方向濃度分布の例が第2図に示されている。第2図(a)は ^{140}La 分布の実測値と計算値および原子炉停止直前の出力分布の計算値を示し、第2図(b)は ^{137}Cs 分布の実測値と計算値および燃焼度分布の計算値である。この例では、実測値と計算値はかなりよい一致を示している。しかしまだ対象集合体数が10数体と少なく、燃焼度も限られている。今後、より多くの測定データを得て、より詳細に精度評価を行う必要がある。

第2図 照射燃料の軸方向F.P.核種濃度分布

出力分布については、クォードシティ原発1号炉の燃料集合体でも測定されている⁽²⁾。また、燃焼率あるいは Pu/U と γ 線測定値との相関が、トリノ炉やガリアーノ炉の集合体について試みられている⁽⁶⁾⁽⁷⁾。トリノ炉についてはよい相関を得ているが、ガリアーノ炉では必ずしも結果はよくない。BWRでは出力履歴とともに、ボイドや水ギャップによる中性子スペクトルの場所依存を考慮に入れた解析が必要と考えられる⁽³⁾。(NAIG・黒沢文夫, 原研・松浦祥次郎)

2. 燃焼に伴う形態変化の測定

燃料が原子炉に装荷されて出力運転が開始されるとその出力に従って燃料棒内の温度分布がきまり、それ

に応じて燃料の各部に熱膨脹差を生じ、これに対応した応力が発生する。この応力の発生で円筒型のペレットは「つぶみ型」に変形する。また、中心部と表面の温度差のためペレットに数個の放射状の割れが入る。

燃焼がある程度進行してくると、核分裂片による照射損傷、ペレットの内部応力によるクリープ、ホットプレス効果などにより「焼しまり」が起る。また、中心の高温部には気孔の移動による中心孔が形成される。一方、被覆管はこの段階で高い外圧により徐々にクリープして直径が減少する。

被覆管とペレットが照射開始時に接触しているような場合、あるいは被覆管のクリープによりペレットと接触した場合には、両者ともその変形が相互に拘束され、被覆管のペレット端面に対応する部分の直径が他の部分より大きくなる「リッジング」現象を生ずる。

さらに燃焼が進行すると、内蔵する F.P. に起因してスウェリングによる変形が付加され、全体として膨脹を続ける。また同時に、ペレット内各領域の温度差によるスウェリング率の相違のため内部応力を発生し、前段階と同様の機構で変形が続く。

このような燃焼の進行中に出力の低下-上昇サイクルが加わると、大きな熱応力を受けたペレットには塑性変形が生じたり、割れに伴って発生したペレット片が移動したりして、ペレット全体として直径が増大し、被覆管にも大きな応力を生じて塑性変形へとつながっていく可能性がある。

原子炉の安全工学的見地から、このような燃料変形解明の重要性に対する認識が高まるにつれて、種々の燃焼条件で照射された燃料棒の変形を原子炉内・外で直接測定する技術が著しく進歩し、従来、燃料照射後試験で取り扱われてきた燃料断面の金相組織解析や、被覆材の機械強度測定などと併わせて、複雑な現象解明の有力な手掛りが得られるようになってきた。

このような変形測定技術の 1 例として、照射済み燃料棒の直径の変形量を、長さ方向の γ 線強度分布や被覆材の欠陥などの情報と関連づけて評価する方法が挙

げられる。写真 1 にこの種の測定装置の例を示す。例示した装置は燃料棒の変形量、 γ 線強度分布および被覆材の欠陥の 3 種のデータをホットセル内において遠隔操作により高精度で採取できるもので、全長約 4 m に及ぶ発電用燃料棒を、長さ方向の任意の位置で測定できるようになっている。全高 5.2 m のこの装置は、燃料棒を上下および回転運動させる駆動装置、変形量測定装置、 γ スキャンニング装置および渦電流試験装置から構成されており、

- (1) 9~19 mm の直径測定範囲で変形量 1 mm に対して $\pm 2 \mu\text{m}$ の高精度測定ができる。
- (2) 燃料棒をピッチ 1~8 mm の 5 段階区分で回転させることにより、直円度の測定ができる。
- (3) γ スキャンニングにより燃料棒長さ方向の燃焼度分布と関連するデータを得ると同時に、燃料棒内のペレット・スタック長さの変化量、ペレットの脱落(スランピング)、割れ、ペレット端面ギャップなどの情報を直径変化と対応させて得られる。
- (4) 被覆管の局所的な直径変化および燃料棒内の変化に正確に対応して渦電流試験信号を求め、信号の根拠となる傷、欠陥その他の変化の評価を総合的に行う。

などの特徴をもっている。

燃焼に伴う燃料形態変化の解析技術面では、近年、構造力学的な手法(有限要素法)による局部変形挙動解析が盛んに行われるようになってきた。しかし、これらの解析では、変形にかかわるペレットの割れ、焼しまり、スウェリング、クリープなどや、被覆管の照射成長、クリープなどの個々の複雑な現象を単純化したモデルで取り扱うので、究極的にモデルの妥当性を評価したり精度を検証するためには、具体的な形態変化についての測定データの集積が必要となる。このような観点から、今後ともこの分野の測定技術の開発には、一層の努力が払われるべきであろう。

(日本核燃料開発・森 竜二)

Ⅲ. 燃焼解析計算と測定値との比較

1. 燃焼解析計算の目的

計算の目的は 2 つに大別できる。1 つは、現象を事前に予測して計画に資することであり、他は、実際に測定することが困難な現象を理解することである。燃焼計算において前者に対応するものとして、①炉心設計、②燃料交換計画、③制御材調整計画がある。後者に対応するものとしては、①実測データをもとにしての炉

写真 1 燃料棒変形測定装置

内熱出力分布の推定, ②使用済み燃料中に含まれる核種の推定がある。

2. 燃焼解析計算手法の概要

計算の流れを第3図に示す。まず, 炉心をいくつかの状態の異なるセルに分割する。核データとセルの構成材より中性子のエネルギー分布を求め, そのエネルギー分布を重みにして炉定数を作成する。この炉定数を炉心各部のセルの種類ごとに割り当て, 炉心内中性子束分布, 発熱分布, 燃焼度分布を求め, 燃料中に含まれる各核種の組成変化を求める。

第3図 計算の流れ

3. 測定値による計算結果の評価例

計算結果と測定値を比較する重要な目的は, 計算精度の評価である。この評価は, 計算手順の各段階において行われる。すなわち, 核データの評価, 炉定数の評価, 炉内中性子束分布または発熱分布の評価および燃料中各核種組成の評価である。

核データの評価には, 各エネルギー・レベルでの断面積の評価と反応率等の積分量としての評価がある。F.P.の核データとして, わが国において多く使用されている ENDF/B, Cook のデータおよび JNDC データの評価を第4図⁽⁸⁾に示す。これは, オランダの原子炉 STEK でパイル・オン・レタ法により測定された実測値をもとに各核種の反応率を評価したものである。

炉定数計算の評価は, 核データと中性子エネルギー

第4図 F.P. 同位元素の反応度値変化

・スペクトル計算の両者を一緒にした評価で, 通常臨界集合体を用いて, 反応度および反応率の測定データと計算値との比較により行われる。

炉内中性子束分布または発熱分布計算の評価は, 空間分布の計算法の評価が主目的であり, 各原子炉型ごとに行う必要がある。実測は, 各原子炉に設置されている炉内出力分布測定装置(BWR では TIP, PWR では LPM)により行われるのが一般的である。第5図⁽⁹⁾に, BWR における TIP の実測値と計算結果の例を示す。中性子束を測定することにより, 炉内の発熱分布を求める手法の問題点は, 測定値と燃料の発熱量の対応が直接的でなく, 測定値より燃料の発熱分布を求める過程で, その対応関係を求める計算が必要になる。この対応関係は, 制御棒の配置, 減速材の状態, 燃焼の度合により異なるばかりでなく, 注目する燃料体の炉内位置により異なる。それゆえ, この対応関係を求めるには, 注目する燃料体の近傍の状態を示すインデックスと全炉心中性子束分布に対するインデックス

第5図 TIP 実測データと TIP 計算値との比較(燃焼度 3,300 MWD/ST)

の2つが必要であり、この算出において多くの誤差を含む可能性がある。また、炉内発熱分布の計算のためには、炉内減速材の温度およびボイド量の計算が必要であり誤差評価を困難にしている。

燃料中各核種組成計算の評価は、上述の核データの

第6図 ヤンキー1号炉の反応度変化に関する計算値と測定値との比較

第7図 燃料体内の超Pu軸方向分布

評価から炉内発熱分布の評価までのすべてを含んだ総合的评价ということになる。関係する測定量は燃焼に伴う炉内反応度変化、使用済み燃料より放出される γ 線および中性子線強度および破壊法による核種分析データがある。燃焼に伴う炉内反応度変化は、炉心を臨界にするために必要な制御材の燃焼に伴う変化より推定する。この方法による評価は、間接的なものであるが簡便であり1つの測定として用いられる。アメリカのヤンキー炉で行われた例を第6図⁽¹⁰⁾に示す。使用済み燃料より放出される γ 線および中性子線強度を用いての評価は、燃焼度を測定するための有力な手段である。F.P.核種の放射線強度より燃焼分布を評価した例は前節に示されている。破壊法による核種分析データを用いての評価は最も直接的なものである。原研において行われた分析データと計算により求めた結果との比較例を第7図⁽¹¹⁾に示す。

4. 解析計算の現状と今後の課題

核データに関しては ^{236}U 、Am、Cmの中性子断面積の誤差が大きく、今後さらに評価作業を行なっていく必要がある。Cfについては、Puサイクルを考えると欠かさない核種であるが核データが少ない。炉定数計算は経験の蓄積により精度は向上しているが、燃料集合体内の構成が複雑になってきており、それを完全に追跡しているかどうかは今後の評価作業が必要である。炉内発熱分布の計算も経験の蓄積により精度が向上し、誤差が10%以内に入るようになってきている。燃料中各核種組成の計算は、主として炉内発熱分布の計算の精度に依存しているが、炉内のU、超U元素ならびにF.P.核種の量を定量的に求めるためには、核データの整備をさらに行う必要がある。

以上燃焼解析計算を概観してきたが、この中で最も欠けているのは系統的な誤差評価である。最も標準的な手法により計算を行なったとき、計算の各段階で含まれる誤差を定量的に評価する体系を作ることが必要であり、この観点に立って今後の作業方針を検討する必要がある。

(原研・内藤俊孝)

IV. 同位体相関技術⁽¹²⁾

核燃料サイクルを通じて核物質は種々の過程を経るが、U濃縮ならびに原子炉照射においてはその同位体組成に必然的に変化が起る。前者ではU同位体のみが関与するが、後者の場合には ^{235}U の減少・ ^{236}U の生成などのほかにPuおよび超Pu元素の各同位体が蓄積する。さらにF.P.として多彩な核種が生成する。これら種々の同位体の蓄積・減少の間の関係、あるい

は燃焼率など核燃焼の状況を表わすパラメータとの間の関係を同位体相関という。

U濃縮の場合には、いわゆる minor isotope である ^{234}U の存在比をプラントのシステム・パラメータに用いる可能性がある。例えば、同じ原料Uから得られる濃縮U中の $^{235}\text{U}/^{234}\text{U}$ 比は、同じ濃縮度でもカスケード特性により異なるので、この同位体比を監視することで濃縮プラント特性の変化を検出できる。

原子炉照射に関わる同位体相関は多様である。燃焼の計測のみならず核物質の計量管理全般の見地から重要な応用が期待される。これまでの研究開発では、測定データの収集と蓄積されたデータを基に相関を調べるといった経験的なやり方が主体になっている。これにはデータバンクが重要な役を果たす。他方、対象とする同位体の生成・減少に対する炉型あるいは運転に関するパラメータの影響を理解し、同位体相関適用の基盤になるような物理的モデルを得るため、燃焼計算による理論的解析も行われている⁽¹³⁾。本章では、この照射核燃料を対象にした同位体相関技術の現状を述べる。

1. 照射核燃料の同位体相関⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾

原子炉における核燃料の燃焼に伴う各種同位体の生成・減少度は燃焼状況の媒介変数である。その変化は照射終了と同時に停止し、放射性壊変以外にはそのまま凍結され、再処理に入るまで一切の燃焼の記録が固定保有されている。このことによって、同位体相関技術は、再処理で得られるデータと原子炉の照射記録との照合の確実性を著しく高めることに役立つ。

Uおよび超U元素の各同位体ならびに安定 F.P. 同位体については、再処理過程での測定値が対象になる。質量分析計によるこれらのデータは精度が良く、得られる相関の信頼性も高い。しかし、 γ 放射性 F.P. 核種に着目すれば、原子炉サイトでの非破壊測定も可能であって、燃料集合体間の相対測定あるいは集合体の同定の手法に応用することができる。このように種類の同位体の利用が考えられるが、着目する同位体の種類によって次の3種に大別されよう。

(1) 重元素同位体相関^{(14)~(17)}

Uおよび超U元素同位体が対象である。U濃縮度の減少(D5)、各種 Pu 同位体比($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, $^{241}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ など)と燃焼率、あるいは Pu/U 比などとの相関が研究されている。必要なデータは、大部分再処理の業務分析から得られる。U や Pu では多くの同位体を用いて種々の相関を適用できるので、クロスチェックで信頼度を高めることができる。すでにかなり多くのデー

タが蓄積されており、最も実用化の近い技術である。

問題点としては、再処理の溶解バッチ中に照射履歴の不揃いなものを含めぬようにすること、溶解用硝酸の再循環による前のバッチからの混入分を補正することなどがあげられよう。

これまでアメリカのバッチル研究所を初めユーラトムのイスブラとカールスルーエ研究所、ベルギーのモル研究所、およびわが国の原研等において、再処理のインプット Pu の量を確認する方法の確立を目標にした研究開発が進められている。バッチルのデータバンクにおける蓄積データは PWR 4基、BWR 6基、HWR 2基ならびに GMR 2基からの使用済み燃料にわたり、再処理溶解 353 バッチに達している。また、Christensen らによって、PWR と BWR の U-Pu 同位体データについて、統計的方法による最適相関の詳細な検討が行われている⁽¹³⁾。

(2) 安定 F.P. 同位体相関⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾⁽¹⁸⁾

希ガスと Nd の同位体が注目されている。F.P. のうち中性子捕獲反応により2次的に生成する割合の多い同位体と少ない同位体との比をとると、燃焼率など中性子束に比例する量との間に良い相関が得られる。

Nd については、 ^{148}Nd を同位体希釈分析で定量して燃焼率を定める方法が一般化しているので、他の Nd 同位体データを得るのは容易である。 $^{148}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$ および $^{144}\text{Nd}/^{142}\text{Nd}$ 比が利用できよう。

$^{132}\text{Xe}/^{131}\text{Xe}$, $^{84}\text{Kr}/^{83}\text{Kr}$ 比などによる相関は、ユーラトム超U研究所で Koch らが意欲的に研究している。再処理の溶解槽の排気スタックからサンプリングすればよいので、プラント操業への支障は少ない。硝酸の再循環による影響はなく、また溶解・混合不十分な場合もほとんど支障ない。しかし、現在は希ガスの同位体組成測定が業務分析項目に入っている再処理プラントはほとんどなく、まだ系統的なデータが得られていない。今後、環境安全問題とも関連して、排ガスの捕集測定がより重要視されるであろうことも考えれば、希ガス F.P. の同位体相関の利用は注目すべきものであろう。

(3) γ 放射性 F.P. 同位体相関⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾⁽¹⁸⁾

イスブラ研究所、原研、IAEA など積極的に研究されている。照射期間の初期の結果まで見るためには余り短寿命の核種は適当でない。中性子捕獲による2次生成が主である、いわゆる遮蔽核種が最も望ましい。適当なものは限られており、使えるのは $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ と $^{154}\text{Eu}/^{157}\text{Cs}$ 比ぐらいである。そのほかには Pu 核分裂のパラメータに適した ^{106}Ru 、高温でも移動しない

^{144}Ce などがあげられるに過ぎない。

γ 放射性核種の利点は、原子炉サイトでの非破壊測定が可能なことである。放射性壊変による減衰の補正が重要であるため、同じ照射履歴の燃料の相対測定には良いが、照射冷却期間の異なった場合には破壊測定による較正が必要になるといった問題もある。しかし再処理前の使用済み燃料の測定技術として、核物質の計量管理上極めて有効である。再処理あるいは照射後破壊試験の結果と、もとの燃料集合体の同一性の判定は実際にしばしば要求されることであり、 γ 放射性 F.P. 同位体相関はそのような問題を解決できる唯一の実際的方法であろう。しかしながら、この技術はまだ予備的開発の段階で、今後の研究開発が期待される。

2. 核燃料再処理のインプット Pu の測定⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾

原子炉照射で U 燃料中に生成した Pu は、再処理過程で初めて実際の測定にかかる。ここで Pu 量を確実に把握することは、核物質計量管理上極めて重要な問題である。同位体相関技術はこの問題に効果的である。

通常の再処理プラントでは、計量タンクで燃料溶液全量の容積を計り、一部試料をとって Pu 濃度を分析して求めて全 Pu 量を算出する方法がとられる。精度は高いが、分析労力も大きい。

これに対し、燃料溶液中の Pu/U 比を測定すれば、次式によりインプット Pu の絶対量が求められる。

$$\text{Pu} = \frac{\text{Pu}}{U_f} \cdot \frac{U_f}{U_0} \cdot U_0$$

ここで、 U_0 : U 初期装荷量 (未照射燃料の計量値であるから精度は良い)

U_f : 照射終了後の U 量

したがって、 $(U_f/U_0) = 1 - (\text{燃焼率})$ であるから、燃焼率 3% 程度であれば、計算値を用いて $\pm 10\%$ の誤差が燃焼率に付随していても、 (U_f/U_0) の値の不確かさとしては高々 $\pm 0.3\%$ に過ぎない。

通常の容量法を実施しているプラントにおいて、この Pu/U 比法も併用するのは容易であり、Pu/U 比に対しては重元素、F.P. ともに多くの相関が適用できる。同位体相関技術で Pu/U 比の測定結果を予測確認できれば、インプット Pu の測定値を独立に検証する手法になる。核燃料サイクルを通じての全般的な核物質計量管理を効果的ならしめるためにも、燃料加工過程における U 計量 (原子炉の燃焼計算および再処理過程での U+Pu 計量) の結果を総合的に評価できる Pu/U 比を含む同位体相関の確立が期待される。

このため IAEA では、核物質の保障措置技術の一環として同位体相関技術のためのデータバンク開発の

協力研究を始めている。現在、パッテル研究所、超 U 研究所、モル研究所ならびに原研がこれに参加して、ソフトウェアの整備と技術開発を進めている。

3. 将来の期待

同位体相関技術は、1980 年代以降に期待される大規模な核燃料サイクルに対し、大きな利用価値を潜有しているものと思われる。多くの相関を確立して、それらに基づく検証・同定技術の適用を図れば、核物質の計量管理における労力を軽減して効果を増大させ得ると期待される。さらに、この手法を用いて原子炉における燃焼状況の中途モニタリング、再処理バッチの最適化、あるいは超 Pu 元素の蓄積および核燃焼状況の把握などの技術が確立されれば、核物質の最適管理技術の向上に大きく貢献することができよう。

(原研・梅沢弘一)

V. あとがき

以上、核燃料の燃焼に関する計測法ならびに解析法について現状を解説した。近年、わが国でも原子炉サイトでの使用済み燃料の測定計画が徐々に進められており、燃料管理コードのより詳細な見直しも要請され始めている。核燃焼計測法のうち非破壊 γ 線スペクトロメトリーは、技術的な面ではほとんど固まっており、種々の現場で実用可能であろう。しかし、その測定結果から、燃焼の詳細な情報がどのくらい引き出せるかは、これまでのデータ量が乏しいため正確なことはわからない。今後、種々の炉型ならびに燃焼度の燃料について、測定実験の強化ならびに計算コードとの整合が必要である。

なお、本稿では省略した破壊測定分野で、核燃料の化学分析に関する国際比較が種々行われており、IAEA 主催の PAFEX 計画 (Plutonium Analysis Field Experiment), U.S. ERDA 主催の SALE 計画 (Safeguard Analytical Laboratory Evaluation) およびドイツのカールスルーエ研究所主催の IDA 計画 (Isotope Dilution Analysis Experiment) などがある。わが国からもいくつかの機関が参加して優秀な成績をおさめていると聞いている。

(主査・夏目晴夫)

— 参考文献 —

- (1) PHILLIPS, J.R.: *Nucl. Technol.*, 28[2], 282 (1976).
- (2) WHITESEL, R.N.: *EPRI/NP-214*, (1976).
- (3) MATRUURA, S, et al.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 12[1], 24 (1975).
- (4) 松浦祥次郎, 他: 原子力工業, 21[4], 38 (1975).
- (5) 牧野裕次, 他: 東芝レビュー, 30[8], 595 (1975).
- (6) ADILETTA, G., et al.: *EUR 5289e*, (1974).

- (7) BRESESTI, A.M., *et al.*: EUR 5334e, (1975).
 (8) KIKUCHI, Y., *et al.*: JAERI-1248, (1976).
 (9) 丸山博見, 他: 本会昭51年会要旨集, A35, (1976).
 (10) PONCELET, C.G.: WCAP-6070, (1965).
 (11) 江連秀夫: JAERI-M 6234, (1975).
 (12) GUPTA, D.: 第12回日本アイソトープ会議報文集, P 247 (1976), 原産.
 (13) FOGGI, C., *et al.*: IAEA-SM-201/44, (1975).
 (14) BERG, R., *et al.*: Value and use of isotopic correlations in irradiated fuels, *Proc. Symposium Practical Applications R & D in Field of Safeguards*, ESARDA, Rome, (1974).
 (15) CHRISTENSEN, D.E., SCHNEIDER, R.A.: IAEA-SM-201/10, (1975).
 (16) 夏目晴夫: 前出(12), P 293.
 (17) RIDER, B.F., *et al.*: GEAP-3373, (1960).
 (18) KOCH, L., *et al.*: IAEA-SM-133/25, (1970).
 (19) SANATANI, S.: IAEA-SM-201/100, (1975).

投、稿 歓 迎!

(1975.11. 一部改正)

本誌「投稿欄」の内容は、次のとおりです。

◆掲載料は1篇5ページ以内は1ページにつき5,000円, 6~10ページは1ページにつき10,000円, 11ページ以上は1ページにつき15,000円に改定されましたので, ご留意願います。◆

① 研究論文	研究の対象・方法あるいは結果に独創性・創造性があり, かつ明確で価値ある結論や事実を含み, 未公開のもの。
(欧文は「欧文誌」に掲載)
② 技術報告	材料の製作・施設・設備・装置等の設計・試験・運転などの新しい経験やその結論をまとめた実用価値のある論文で, 未公開のもの。(欧文は「欧文誌」に掲載)
③ ショート・ノート(3頁以内)	研究・技術上の独創的かつ重要な発見または結論を含む論文の速報。(欧文は「欧文誌」に掲載)。
④ レター(1~2頁)	掲載論文に対する質疑応答および意見。
(欧文は「欧文誌」に掲載)
⑤ 資料	研究・技術に関する参考資料および調査集計報告など。
(欧文は「欧文誌」に掲載)
⑥ 私のノートから(2頁以内)	各専門分野の研究または技術上の経験, 斬新なアイディア, 珍しい実験結果など。(掲載料不要)
⑦ 談話室(2頁以内)	内外の会議・学会などの見聞記・感想, あるいは原子力を含む科学・技術に対する提言など。(同上)
⑧ 新刊紹介(約0.5頁)	会員の役に立ち, 興味のあると思われる内外の出版物の書評および紹介。(同上)
⑨ 会員のこえ(約0.5頁)	本会および本誌などに対する批判的ご意見・ご希望・ご提案などの自由投書(用紙自由, 誌上匿名可)。(同上)

巻頭言, 特別寄稿, 解説, 総説, 講演, 特集等は編集委員会で立案・企画して執筆依頼する。

ご投稿には, 「投稿規程」および「投稿の手引」に従って, 所定の原稿用紙(30枚綴り1冊200円千140円; 欧文は市販のタイプ用紙)により, 「投稿票」(付チェックリスト)(1部50円, 千50円)を添付して事務局宛ご送付下さい。