軽水炉における使用済み MOX 燃料からのアクチニド崩壊熱の 核データ由来の誤差評価

羽倉 尚人¹, 吉田 正^{1,*}

Analysis of Prediction Accuracy for Actinide Decay Heat of Spent MOX Fuel from Light Water Reactors

Naoto HAGURA¹ and Tadashi YOSHIDA^{1,*}

¹Tokyo City University, 1-28-1 Tamadutsumi, Setagaya-ku, Tokyo 158-8557, Japan

(Received September 14, 2009 and accepted in revised form November 6, 2009)

On the basis of the background of the global warming and energy resource problems, the programs for utilization of nuclear power are now being revised upward around the world. This situation leads to expansion in utilization of uranium-plutonium mixed oxide (MOX) fuels in existing thermal reactors. The MOX fuels include larger amounts of heavy actinide nuclides as the initial components than conventional uranium fuels. This means that the decay heat of spent fuels becomes much larger than that of uranium fuels. In the present study, prediction accuracy is evaluated for actinide decay heat in one of the typical cases of spent MOX fuels in light water reactors on the basis of covariance data in JENDL-3.3. There are few studies on burnup sensitivity analyses focused on the actinide decay heat of spent fuels; the present study provides a good starting point for future works. The present results show that the errors of actinide decay heat are 35.1 ± 0.9 kW/t (2.7%), 3.27 ± 0.12 kW/t (3.7%), and 2.37 ± 0.05 kW/t (1.9%) at a 68% confidence level in the cases of MOX fuels of 0.1, 10, and 50 year cooling after reactor shutdown, respectively. In order to improve the prediction accuracy of the MOX decay heat, it is important to reduce the uncertainty of the cross section of actinide nuclides including the capture reaction in Pu-238, -239, -242, Am-241, -243, and the fission in Pu-241 followed by capture in Cm-244.

KEYWORDS: *sensitivity analysis, actinide decay heat, spent fuel, MOX, JENDL-3.3, covariance, SWAT, ORIGEN, ERRORJ*

I. 緒 言

温暖化とエネルギー資源問題を背景として、原子力エネルギー利用計画が世界中で見直しされている。我が国においては、既存の軽水炉における、ウランとプルトニウムの混合酸化物(MOX)燃料の利用が進められようとしている。MOX 燃料は、初期組成に多くのプルトニウムを含んでいるため、使用済み MOX 燃料からの全崩壊熱に占めるアクチニド核種に起因する成分(以下、アクチニド崩壊熱)がウラン燃料に比べ 1 桁程度高くなる^{1,2)}。このことは、使用済み燃料からのアクチニド崩壊熱をより高い精度で把握することがウラン燃料の場合にも増して非常に重要であることを示している。

使用済み燃料の崩壊熱は、しばしば、アクチニド崩壊熱と核分裂生成物崩壊熱(以下、FP 崩壊熱)に分けて議論される。FP 崩壊熱は、FP 核種に短半減期核が多いため原子力発電所におけるシビアアクシデントの 1 つである冷却材喪失事故において特に重要であり、日本原子力学会の推奨値³⁾および原子力安全委員会の指針⁴⁾等が公表されている。参考文献 5) によると、FP 崩壊熱の誤差は、約 1~3%であると評価され、この誤差が原子力学会推奨値に付されている。一方、原子力安全委員会の指針では、「軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の性能評価指針(ECCS 指針)」における崩壊熱データとして学会推奨値を採用するに当たっては、適切な安全余裕を見込まなければならないとし、報告書「崩壊熱の推奨値とその使用法」³⁾から求められる学会推奨値に付された誤差の 3 倍を上乗せするべきである、としている。一方、アクチニド崩壊熱に関しては、推奨値や誤差値がいまだに整備されていない。MOX

¹ 東京都市大学大学院 工学研究科エネルギー量子工学専攻

* Corresponding author, E-mail: tyoshida@tcu.ac.jp

燃料の利用拡大に伴い、今後これらの整備が重要になってくるであろう。

評価済み核データライブラリに格納されている共分散データ(断面積誤差データ)を用いた核特性の予測精度評価は、標準的な核特性誤差評価手法として定着しつつある。日本の評価済み核データライブラリ JENDL-3.3 には、多くの重要な核種の共分散データが格納されている。共分散データを用いた核特性予測精度評価は、すでにいくつか発表されているが、それらは主に、原子炉の設計や運転で問題になる実効増倍率、制御棒反応度、冷却材ボイド係数など、炉心の静的核特性に対して行われている⁶⁾。これに対して、本研究では、軽水炉におけるアクチニド崩壊熱に関する体系的な誤差評価研究がまだほとんどなされていない現状を鑑み、アクチニド崩壊熱に対する感度解析を行う。特にアクチニド崩壊熱がウラン燃料の場合に比べ大幅に増大すると考えられる使用済み MOX 燃料を主たる対象とする。ここで得られる感度係数と JENDL-3.3 に格納されている共分散データを用いて核データに由来するアクチニド崩壊熱予測精度を評価する。さらにこの評価を通じて、アクチニド崩壊熱の予測誤差低減の目的から重要性の高い核種および反応の抽出を行う。

続く第 II 章で今回用いたアクチニド崩壊熱予測精度評価方法を示し、第 III 章ではいくつかの典型的な冷却時点におけるアクチニド崩壊熱の核種別内訳について細論する。第 IV 章ではアクチニド崩壊熱計算値に含まれる核データ由来の誤差の算出結果を示し、第 V 章では、アクチニド崩壊熱の核データ由来の誤差について、核種・反応ごとの内訳を示し分析する。第 VI 章で結論を述べる。

II. 計 算 方 法

1. 計算条件

始めに、本研究における計算条件を述べる。燃料の初期組成およびその他の原子炉運転仕様は、参考文献 7) から引用した。典型的な PWR のピンセルモデルにおける燃料ピンの組成を Table 1 に示す。ここでは参考文献 7) の組成呼称法に倣い、例えば、組成名称 PWR60G-MOX は取り出し燃焼度を 60 GWd/t とした PWR 用 MOX 燃料を意味している。取り出し燃焼度は、33 GWd/t, 45 GWd/t,

60 GWd/t の 3 種類とした。運転出力は、すべてのケースにおいて 38 MW/t 一定とし、比較のために、ウラン燃料についても検討した。原子炉停止後の使用済み燃料の冷却期間としては原子炉停止後、0.1, 10, 50, 100, 1,000, 10,000 年の 6 つの時点に着目した。

2. 燃焼感度係数

アクチニド崩壊熱予測精度評価には、アクチニド崩壊熱の中性子反応断面積に対する感度係数が必要になる。感度係数を得る目的で、燃焼計算を多数回繰り返すことになるが、燃焼計算には SWAT コードシステム⁸⁾を用いた。SWAT コードは燃料ピンセル核定数計算コード SRAC⁹⁾と燃焼計算コード ORIGEN2¹⁰⁾をそれぞれ外部モジュールとして利用している。SRAC モジュールでは、衝突確率法によりピンセル平均の一群実効断面積を算出し、この一群断面積を用いて、ORIGEN2 コードにより燃焼計算を行う。

SWAT コードでは、核反応断面積ライブラリとして SRAC ライブラリと SWAT ライブラリが用意されており、そのうちのいずれかを核種ごとに選択して燃焼計算に使用することができる。SWAT ライブラリは、上限 20 MeV までの 147 群の無限希釈断面積として構成され、SRAC ライブラリよりも多くの核種が格納されている。SWAT コードでは、核反応断面積ライブラリとして SRAC ライブラリと SWAT ライブラリが用意されており、そのうちのいずれかを核種ごとに選択して燃焼計算に使用することができる。SWAT ライブラリは、上限 20 MeV までの 147 群の無限希釈断面積として構成され、SRAC ライブラリよりも多くの核種が格納されている。通常 SRAC ライブラリに格納されている核種で対応できる計算の場合には、自己遮蔽効果を適切に扱うことのできる SRAC ライブラリを用い、SWAT ライブラリは補助的に用いる。一方、本研究では、感度解析の対象となる 1 つ 1 つの核種についてのみ SWAT ライブラリからの定数を用い、この定数を群ごとに 20% 変化させ、変化の前後の崩壊熱計算値の差を取ることで当該核種の感度係数を計算した。このとき、感度係数計算の対象とする核種以外は、SRAC ライブラリを用いた。

核特性数を m 、エネルギー群数を n とすると、感度係数 G は m 行 $\times n$ 列の行列となり、その行列要素 G_{ij} は次式のように表される。今回の計算では、 m は前節の終わりに記した崩壊熱を計算する冷却時点の数で 6 となる。

$$G_{ij} = \frac{\Delta R_i}{R_i} \frac{\Delta \sigma_j}{\sigma_j} \quad (1)$$

ここで R_i は i 番目の冷却時点におけるアクチニド崩壊熱を、 σ_j は j 群のミクロ断面積を、それぞれ意味する。また $\Delta \sigma_j$ はミクロ断面積の微小変化量を、 ΔR_i はミクロ断面積が $\Delta \sigma_j$ だけ変化したとしたときのアクチニド崩壊熱の変化量を意味している。

Table 1 Initial fuel composition

Fuel Type	Enrichment (wt%)		Pu vector	
	U-235	Pu		(wt%)
PWR60G-MOX	0.23	7.9	Pu-238	1.32
PWR45G-MOX	0.23	6.3	Pu-239	60.32
PWR33G-MOX	0.23	5.3	Pu-240	24.27
PWR60G-UO2	5.0	—	Pu-241	8.33
PWR45G-UO2	3.9	—	Pu-242	4.95
PWR33G-UO2	3.2	—	Am-241	0.81
			Pu fissile/Pu	68.65

Table 2 Energy group structure

No.	Upper energy	No.	Upper energy	No.	Upper energy
1	1.00E+07 ^{a)}	13	1.23E+03	25	5.32E-01
2	4.72E+06	14	5.83E+02	26	3.89E-01
3	2.23E+06	15	2.75E+02	27	3.20E-01
4	1.05E+06	16	1.30E+02	28	2.57E-01
5	4.98E+05	17	6.14E+01	29	2.01E-01
6	2.35E+05	18	2.90E+01	30	1.52E-01
7	1.11E+05	19	1.37E+01	31	1.10E-01
8	5.45E+04	20	6.48E+00	32	7.43E-02
9	2.48E+04	21	3.06E+00	33	4.58E-02
10	1.17E+04	22	1.64E+00	34	2.42E-02
11	5.53E+03	23	1.13E+00	35	9.38E-03
12	2.61E+03	24	7.73E-01	36	1.47E-04

^{a)} read as 1.00×10^7 eV.

本研究ではエネルギー群数は36とした。36群へのエネルギー群分割を **Table 2** に示す。解析の対象として Np-237, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Pu-242, Am-241, Am-243, Cm-242, Cm-244, Cm-246 の11核種の中性子捕獲反応と核分裂反応、合わせて22核種・反応を選定した。この選定については、IV章で詳しく述べる。これら22核種・反応それぞれに対して36のエネルギー群を各々別々に20%増加させた計22×36個の SWAT ライブラリを作成した。断面積変化量の20%は、変化量が小さ過ぎることによる桁落ちを避け、なおかつ断面積変化に対する感度係数の線形性が保たれるようにすることを考慮し決定した。例えば、Am-243 の第20群の中性子捕獲断面積であれば、SWAT ライブラリの Am-243 における中性子捕獲断面積の 3.06 eV から 6.48 eV における断面積を20%増加させたファイルを新たに作成し、この変更後の SWAT ライブラリを Am-243 にのみ適用し計算する。そして得られた結果と、Am-243 のみオリジナルの SWAT ライブラリを用いて計算した結果とを比較することにより感度係数を得た。このような計算を繰り返すことで、22×36個の感度係数行列 G を求めた。

3. 共分散データ

評価済み核データライブラリには、「共分散データ」が格納されている。共分散データは、あるエネルギーにおける断面積の誤差である「相対標準偏差」と、エネルギー群間の相関を表す「相関マトリックス」からなる。日本で整備されている評価済み核データライブラリである JENDL-3.3 には、以下のアクチニド核種の共分散データが収められている。それは、U-233, U-235, U-238, Np-237, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Pu-242, Am-241, Am-242m, Am-243 および Cm-244 である¹¹⁾。評価済み核データライブラリ JENDL-3.3 に格納されている共分散データの、前節で述べた36エネルギー群構造への変換には ERRORJ コード¹²⁾を用いた。結果は(エネルギー群数)

×(エネルギー群数)、すなわち36行×36列の行列 M として得られる。なお、核種によっては反応間の相関に関するデータが与えられているが、今回の研究ではこれは用いなかった。

ある冷却時点における、核定数の不確かさに由来するアクチニド崩壊熱予測精度は、この共分散 M と、(1)式によって算出された6行×36列の感度係数行列 G を用いて次のような行列演算によって算出される。

$$V = GMG^t \quad (2)$$

ここで、 G^t は、 G の転置行列、誤差 V は「核データ由来の誤差」であり、6行×6列の行列となる。(2)式の計算を22回行い、22の核種・反応それぞれに起因するアクチニド崩壊熱誤差を求めた。今回は反応間の相関は無視し、この22の核種・反応に対する誤差の二乗平均を、核データの不確かさに起因するアクチニド崩壊熱誤差とした。ここでは、純粋に核データ由来の誤差を議論し、実験誤差やモデル誤差といったそのほかの誤差については考慮していない。なお、各アクチニド核種の崩壊定数と崩壊エネルギーも核データであるが、アクチニド崩壊熱における重要核種は α 崩壊核であることから、これらはすでに精度よく把握されていると考えることができ、本研究では誤差要因と考えない。例えば、評価済み核構造データファイル ENSDF¹³⁾によると、Cm-244 の α 崩壊に関する Q 値は、 5901.61 ± 0.05 keV であり、その誤差は、 $10^{-3}\%$ 以下であるとされている。

III. アクチニド崩壊熱の内訳

本章では、原子炉停止後0.1年から1万年にかけての崩壊熱の変化の様子を整理する。**Fig. 1** は、初装荷燃料1t当たりの全崩壊熱、FP 崩壊熱、アクチニド崩壊熱、およびアクチニド崩壊熱への主要な核種からの寄与を示す。取り出し燃焼度は60 GWd/t である。以下 Fig. 1 を中心として、取り出し燃焼度の異なる場合やウラン燃料の場合も含めて相互に比較しつつ整理し第 IV, V 章に備える。

1. 原子炉停止直後

図には示していないが、原子炉停止直後においては、燃料の初期組成や燃焼度によらず、全崩壊熱の95%程度が FP 崩壊熱である。今回の計算では、停止の瞬間における全崩壊熱は、ほぼ2.2 MW/t であった。短寿命核分裂生成物の生成量は原子炉停止直前の運転出力に依存し、これが原子炉停止直後の全崩壊熱を支配している。

この時点で主に寄与する FP 核種は、Sb-130m(6.3 m), I-134(52.5 m), Tc-104(18.3 m), Cs-138(33.4 m) などである。ここで、カッコ内の数字は半減期である。各核種の寄与の割合は、高いものでも2%程度であり、こうした核種が80以上存在する。一方、この時点でアクチニド崩壊熱に寄与する核種は、U-239(23.5 m), Np-239(2.4 d) であり、この2核種がアクチニド崩壊熱の90%を占める。

Fig. 1 Decay heat of spent LWR fuels and its component-wise breakdown

これら2つの主要核種の存在量は、取り出し燃焼度にはほとんど依存しない。

2. 原子炉停止0.1年後

原子炉停止から約1ヵ月後の時点では、使用済み燃料はサイト内の貯蔵プールで冷却されていることが想定される。この時点の全崩壊熱は、取り出し燃焼度が33 GWd/t, 45 GWd/t, 60 GWd/tのそれぞれに対して、60 kW/t, 70 kW/t, 90 kW/tである。一方、ウラン燃料では、60 GWd/tにおいて55 kW/tとなり、MOX燃料の方が60%以上大きい。Fig. 1 からわかるように、この増加をもたらしているのはFP崩壊熱成分ではなく、アクチニド崩壊熱成分である。全崩壊熱に占めるアクチニド崩壊熱の割合は、取り出し燃焼度が33 GWd/t, 45 GWd/t, 60 GWd/tに対して、それぞれ28%, 34%, 40%である。アクチニド崩壊熱に対して主に寄与する発熱核種は、Cm-242 (163 d), Cm-244 (18.1 y), Pu-238 (87.7 y)であり、特に、Cm-242がアクチニド崩壊熱の90%以上を占める。なお、ウラン燃料の場合には、60 GWd/tを例にとるとアクチニド崩壊熱成分は7%しかない。

一方、FP崩壊熱に主に寄与する核種は、Rh-106 (29.8 s), Pr-144 (17.3 m), Nb-95 (35.0 d), Zr-95 (64.0 d)などで

ある。Rh-106とPr-144の半減期は短い、それぞれ崩壊チェーンの直前に、Ru-106 (1.0 y), Ce-144 (285 d)が存在するために、0.1年後においても比較的に大きな寄与をする。

3. 原子炉停止10年後

これまでサイト内の貯蔵プールで冷却されていた使用済み燃料は、原子炉停止後10年前後で中間貯蔵施設等に輸送され専用の容器で貯蔵されることが想定される。この時点での全崩壊熱は、取り出し燃焼度33 GWd/t, 45 GWd/t, 60 GWd/tのそれぞれに対して2.1 kW/t, 3.2 kW/t, 4.5 kW/tである。ウラン燃料では、60 GWd/tで2.1 kW/tである。この時点の崩壊熱は、原子炉停止後0.1年に比べて20分の1から30分の1に低下する。

全崩壊熱に占めるアクチニド崩壊熱の割合は、取り出し燃焼度33 GWd/t, 45 GWd/t, 60 GWd/tのそれぞれに対して71.3%, 71.2%, 73%である。この時点ではすでにアクチニド崩壊熱がFP崩壊熱を上回っている。一方、ウラン燃料の場合はアクチニド崩壊熱からの寄与は25%程度であり、依然としてFP崩壊熱が支配的である。

Figure 1より、発熱核Am-241は他の核種と異なり原子炉停止後1年当たりから100年にかけて徐々に増加し、最大で1桁程度上昇することが確認できる。これは、原子炉停止時のPu-241が、半減期14.1年で β^- 崩壊しAm-241となるためである。ちなみにPu-241自身が β^- 崩壊する際に放出される β 線のエネルギーは平均10 keV程度と小さく、ほとんど無視できる。このとき γ 線は放出されない。

アクチニド崩壊熱に対して主に寄与する核種は、今述べたCm-244, Am-241 (432 y)およびPu-238であり、燃焼度の異なるすべてのケースにおいてこれら3核種が、アクチニド崩壊熱の8割以上を占める。取り出し燃焼度60 GWd/tの場合を例にとるとCm-244, Pu-238, Am-241のそれぞれの比率は、43%, 30%, 19%である。一方、FP崩壊熱に対して主に寄与する核種は、Ba-137m (2.6 m), Y-90 (2.7 d), Cs-137 (30 y)であり、この3核種でFP崩壊熱の7割以上を占める。Ba-137mは、Cs-137の娘核種であり、分岐比95%で生成される。Y-90は、Sr-90 (29 y)の娘核種である。

上述したアクチニド崩壊熱の割合は取り出し燃焼度が30 GWd/tで71.3%, 45 GWd/tで71.2%とわずかではあるが大小逆転している。この逆転は、Fig. 2(a)からわかるように、冷却時間10年直前で起きる。これは燃焼度が低い方が、Am-241の親核種であるPu-241の燃え残りが相対的に多く、それに比例して娘核Am-241も相対的に増加するためである(Fig. 2(b))。60 GWd/tと33 GWd/tの間の反転はFig. 2(a)からわかるように冷却時間15年近傍で起こる。

(a) Ratio of actinide decay heat to total decay heat

(b) Ratio of Am-241 component to total decay heat

Fig. 2 Behavior of actinide components in total decay heat

4. 原子炉停止50年後

中間貯蔵開始から数10年後の、この時点での全崩壊熱は、取り出し燃焼度 33 GWd/t, 45 GWd/t, 60 GWd/t のそれぞれに対して 1.7 kW/t, 2.2 kW/t, 2.8 kW/t である。ウラン燃料の場合 60 GWd/t で 940 W/t である。

全崩壊熱に占めるアクチニド崩壊熱の割合は、取り出し燃焼度 33 GWd/t, 45 GWd/t, 60 GWd/t のそれぞれに対して 88%, 85.7%, 85.5% である。ここでも、前節末尾で述べたことと同じ理由によりアクチニド崩壊熱割合の逆転がみられる。一方、ウラン燃料の場合、アクチニド崩壊熱の割合は 60 GWd/t で 43% である。

アクチニド崩壊熱に対して主に寄与する核種は、Am-241, Pu-238 であり、すべてのケースにおいてこれらの 2 核種が、アクチニド崩壊熱の 8 割以上を占める。各々の取り出し燃焼度における Am-241 と Pu-238 の割合は、33 GWd/t でそれぞれ 64% と 24%, 60 GWd/t で 51% と 30% である。一方、FP 崩壊熱に対して主に寄与する FP 核種は、原子炉停止10年後と変わらず Ba-137m, Y-90, Cs-137 である。

5. 原子炉停止100年以後

原子炉停止後100年における全崩壊熱は、取り出し燃焼度 60 GWd/t に対して、2.0 kW/t である。ウラン燃料で

は 80 W/t である。全崩壊熱に占めるアクチニド崩壊熱の割合は 94% であり、ウラン燃料では 66% である。ウラン燃料では原子炉停止後60年から70年経過し、ようやくアクチニド崩壊熱が支配的になる。アクチニド崩壊熱に対して主に寄与する核種は、原子炉停止50年後と変わらず Am-241, Pu-238 である。崩壊熱に主として寄与する FP 核種は、原子炉停止後10年から変わらない。

原子炉停止後1,000年における全崩壊熱は、取り出し燃焼度 60 GWd/t に対して 377 W/t で、ウラン燃料の 68 W/t の 5~6 倍ある。全崩壊熱に占めるアクチニド崩壊熱の割合は、すべてのケースにおいてほぼ 100% である。アクチニド崩壊熱に対して主に寄与する核種は、Am-241, Pu-240 ($6,600$ y), Pu-239 (2.4×10^4 y) である。FP 核種は、すべてのケースにおいて Sb-126m (19 m) と Tc-99 (2.1×10^5 y) の 2 核種で 8 割以上を占める。Sb-126m は、Sn-126 (1.0×10^5 y) の娘核種である。

原子炉停止後10,000年における全崩壊熱は、取り出し燃焼度 60 GWd/t に対して 47 W/t である。ウラン燃料では 14 W/t である。アクチニド崩壊熱に対して主に寄与する核種は、Pu-239 と Pu-240 であり、Pu-239 が 45% から 59% を占める。崩壊熱として寄与する FP 核種は、原子炉停止後1,000年と変わらない。なおこの時点まで使用済み燃料が集合体の形で存在しているか否かは別にして、原子炉停止後1,000年を過ぎると、使用済み MOX 燃料の崩壊熱は、燃焼前の燃料の崩壊熱を下回る。これは炉心での燃焼によって上記の Pu-239, -240 が消費され減損したためである。

IV. 予備検討とアクチニド崩壊熱感度係数計算結果

本章ではアクチニド崩壊熱予測精度を評価するにあたり、その対象とする核種を選定する。

感度解析の対象とする核種を決定するために ORIGEN2 コードを用いて 1 群の燃焼計算を行い、着目する核種の蓄積量に対する 1 群の感度係数を求めた。対象とする核反応は、軽水炉系において支配的な中性子捕獲反応と核分裂反応とした。中性子捕獲反応についての結果を **Fig. 3** に示す。この図は、前章で明らかになった主要なアクチニド崩壊熱発生源である Pu-238, (Am-241 の親核種としての) Pu-241, Am-241, Cm-242, Cm-244 の蓄積量に対する核種ごとの中性子捕獲反応の感度係数を示している。この結果からこれら 5 核種の生成に対しては、主にプルトニウム、アメリシウム同位体が感度をもっていることがわかる。そこで、感度解析の対象としては、このプルトニウムとアメリシウムに、マイナーアクチニドであるネプツニウムとキュリウムを加えた Np-237, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Pu-242, Am-241, Am-243, Cm-242, Cm-244, Cm-246 の 11 核種とした。U-235 と U-238 の感度はほとんどないか (U-235) または比較的小さい (U-238)。さ

らに MOX 燃料アクチニド崩壊熱を待つまでもなく、この 2 核種の核データの精度と信頼性の向上は必須のものと認識され、そのための努力が絶え間なくなされているので、ここでは取り上げない。なお、JENDL-3.3 には、上記核種中の Cm-242, Cm-246 の共分散データは格納されていないので、Cm-244 の共分散データで代用することとする。

Figure 4 にいま述べた諸核種に関連する全核種の反応および壊変のネットワークを、**Fig. 5** に本章で着目する主要な崩壊熱生成核種の支配的な生成経路を示す。なおこの Fig. 5 の内容に関しては、第 V 章でさらに詳しく言及する。

Figure 6 に、第 II 章で説明した方法に基づいて計算した結果のうち、取り出し燃焼度 60 GWd/t についての、原子炉停止後の特徴的な時点におけるアクチニド崩壊熱の核データ由来の誤差を示す。図中の (a) は絶対誤差、(b) は相対誤差である。この核データ由来の誤差は (2) 式をもとに計算し、 1σ レベル (68% confidence) で表示している。本研究では、感度係数の算出において 11 核種 $\times$ 2 反応を対象としたが、核種間および反応間の相関はないものと仮定したので、この 22 核種・反応から来る誤差の二乗平均が Fig. 6 の誤差になっている。原子炉停止後 0.1 年、10 年、50 年における結果は、それぞれ $35.05 \pm 0.83 \text{ kW/t} (\pm 2.4\%)$, $3.27 \pm 0.12 \text{ kW/t} (\pm 3.7\%)$, $2.367 \pm 0.045 \text{ kW/t}$

Fig. 3 Sensitivity coefficients of actinide decay heat to capture reactions calculated by ORIGEN2 code

($\pm 1.9\%$) である。取り出し燃焼度 60 GWd/t について、第 V 章でさらに詳しく論じる。結果として、アクチニド崩壊熱の核データ由来の誤差は、冷却期間 0.1~50 年では 2% から 4% 程度である。

V. アクチニド崩壊熱予測精度の内訳

本章では、第 IV 章において示した原子炉停止後の各冷却時点におけるアクチニド崩壊熱の核データ由来の誤差を

(a) Dominant generation paths leading to Cm-242

(b) Dominant generation paths leading to Cm-244

(c) Dominant generation paths leading to Pu-238

(d) Dominant generation paths leading to Am-241

Fig. 5 Generation paths leading to dominant decay-heat generators

Fig. 4 Network of actinide-nuclide transmutation

(a) Absolute error

(b) Relative error

Fig. 6 Prediction accuracy of actinide decay heat calculated from the JENDL covariance data at 60 GWd/t burn-up

核種・反応別に分析する。ここでは、取り出し燃焼度を 60 GWd/t に限定し、また、原子炉停止後の年数は、0.1 年、10 年、50 年に絞って整理する。**Fig. 7** に原子炉停止後の各々の時点における核データ由来の誤差への寄与の大きい 10 核種・反応を示す。これら上位 10 核種・反応から来る誤差の二乗平均だけで、**Fig. 6** の誤差(すでに述べたように、全 11 核種×2 反応からの誤差への寄与の二乗平均)に十分近い値になっている。

1. 原子炉停止 0.1 年後

第 III 章第 2 節で述べたが、この冷却時点では Cm-242 がアクチニド崩壊熱の 90% 以上を占めている。**Fig. 8** に燃焼度に対する Cm-242 の蓄積量を示す。図中の U-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Am-241 は燃焼前の初期組成に含まれていた核種であり、同図の曲線はこれら 5 核種にそれぞれ由来する Cm-242 蓄積量が燃焼度に対してどのように変化するかを示している。この計算は、MOX 燃料の初期組成の各核種について、それぞれの核種に由来する Cm-242 の生成量をみるために、OIRGEN2 コードを用い中性子束一定のもとで、MOX 燃料組成およびこれを構成する各核種単体の組成を燃焼させた。このとき、断面積の燃焼度依存性は考慮していない。これより、燃焼初期で

(a) 0.1 year

(b) 10 years

(c) 50 years

Fig. 7 Reaction-wise break-down of the error in actinide decay-heat prediction at 60 GWd/t burn-up

Fig. 8 Inventory increase of Cm-242 during reactor operation and its ancestor nuclides

Fig. 9 Sensitivity coefficient of actinide decay heat against the Am-241 capture reaction after 0.1 year cooling and its relative standard deviation

は、反応パスの短い Am-241 からの生成が主であり、燃焼中期から後期になるに従い、反応パスの長いプルトニウム同位体からの生成が漸次増加していくことがわかる。U-238 からの生成はほとんどない。

Figure 7(a) にこの冷却時点における崩壊熱予測精度の反応別の内訳を示す。Am-241 と Pu-239 の中性子捕獲反応、Pu-241 の核分裂反応が上位 3 位にある。Fig. 5(a) に崩壊熱への寄与の 90% 以上を占める Cm-242 の生成に至る主要な反応経路を示すが、これら上位 3 反応には黒矢印 A を付した。この 3 反応だけで誤差の大勢を占める。

Figures 9, 10, 11 に、アクチニド崩壊熱の Am-241, Pu-239 の中性子捕獲断面積および Pu-241 核分裂断面積に対する感度係数(黒色実線, 左軸)と断面積の相対標準偏差(灰色実線, 右軸)を、それぞれ示す。Fig. 7(a) は Am-241 の中性子捕獲反応が相対誤差全体の 80% を占めることを示している。Fig. 9 より、27 群の共鳴ピーク (0.31 eV) に対応した感度が、全体の誤差を支配していることが確認できる。このピークに対応する相対標準偏差は 9% とかなり大きい。Fig. 10(a) からわかるように、Pu-239 の核データの誤差は比較的小さいものの、感度係数はピークにおいて 0.25 と無視できない大きさがあり、また、比較的広いエネルギー範囲に広がっている。同図(b) に示した相関マトリックスの白丸の範囲 (0.31 eV ピーク近傍) で正の相関がみられる。結果的に Pu-239 捕獲反応からの誤差への寄与が無視できなくなっている。ちなみに、同図(a) の 1-7 eV 間で誤差が非常に大きくなっているが、これは 2 本の共鳴 (0.31 eV と 7.5 eV) 間の断面積の谷間に対応するため断面積は小さく、このエネルギー領域からの核特性への感度は小さい。Pu-241 の核分裂については、Fig. 11 にみられるように、0.26 eV の大きな共鳴の低エネルギー側で感度係数と断面積誤差の重なりが大きくなっているため、伝播誤差が比較的大きくなっている。

Figure 5(a) をみると、Pu-240 の中性子捕獲断面積も Cm-242 生成において重要なパスの一部であるとわかる。

(a) Sensitivity coefficient and relative standard deviation

(b) Correlation matrix

Fig. 10 Sensitivity coefficient of actinide decay heat against the Pu-239 capture reaction after 0.1 year cooling and the relative standard deviation (a), and its correlation matrix (b)

The strength of correlation is expressed as gray tone from white to black as shown at upper right-hand. Symbol $\times$ means negative correlation.

Fig. 11 Sensitivity coefficient of actinide decay heat against the Pu-241 fission reaction after 0.1 year cooling and its relative standard deviation

そこで、Fig. 12 に Pu-240 の中性子捕獲反応に対する感度係数と相対標準偏差を示す。感度係数は 1.06 eV の共鳴 (第 23 群) に由来する大きさが約 0.5 の鋭いピークを示して

Fig. 12 Sensitivity coefficient of actinide decay heat against the Pu-240 capture reaction after 0.1 year cooling and its relative standard deviation

Fig. 13 Sensitivity coefficient of actinide decay heat against the Cm-242 capture reaction after 0.1 year cooling

いる。しかしながら、同群の核データの相対標準偏差は0.8%と非常に小さいために、上述の3核種より、この冷却時点における相対誤差全体への寄与は小さい。

また、Fig. 13 から Cm-242 の捕獲反応の感度係数が負となることからわかるが、この反応はここでの崩壊熱を支配する熱源である Cm-242 自身を減少させる側に働くためである。しかしその値はピークにおいて-0.0057と非常に小さい。これは、原子炉運転時における Cm-242 の中性子捕獲反応率 $\sigma\phi$ (今回の計算では、 $6 \times 10^{-10} \text{ s}^{-1}$ 程度) と崩壊定数 λ ($4.9 \times 10^{-8} \text{ s}^{-1}$) が $\sigma\phi \ll \lambda$ という関係にあり、捕獲反応はほとんど起こらないためである。

2. 原子炉停止10年後

第II章3節で述べたが、この冷却時点では熱源としての Cm-244, Pu-238 が、それぞれアクチニド崩壊熱の43%と30%を占めている。Fig. 6によれば、この時点におけるアクチニド崩壊熱の核データ由来の誤差は3.7%である。

Figure 7(b)にこの冷却時点における崩壊熱予測精度の反応別の内訳を示す。Am-243, Pu-238 および Pu-242 の中性子捕獲反応が上位3位までを占める。Fig. 5(b), (c)

Fig. 14 Sensitivity coefficient of actinide decay heat against the Am-243 capture reaction after 10 years cooling and its relative standard deviation

Fig. 15 Sensitivity coefficient of actinide decay heat against the Pu-238 capture reaction after 10 years cooling and its relative standard deviation

Fig. 16 Sensitivity coefficient of actinide decay heat against the Pu-242 capture reaction after 10 years cooling and its relative standard deviation

に、上記 Cm-244 と Pu-238 の生成に至る主要な反応経路を示すが、上位3反応には黒矢印Bを付した。Cm-244の生成経路上の Am-243, Pu-242 の中性子捕獲反応の感度が高く、Pu-238 については、Pu-238 自身の中性子捕獲反応の感度が高いことがわかる。

Figures 14, 15, 16 に、前段落で述べた Am-243, Pu-

Fig. 17 Sensitivity coefficient of actinide decay heat against the Cm-244 capture reaction after 10 years cooling and its relative standard deviation

238 および Pu-242 の捕獲断面積に対する感度係数(黒色実線, 左軸)と断面積の相対標準偏差(灰色実線, 右軸)をそれぞれ示す。Am-243 の中性子捕獲反応は相対誤差全体の60%を占めるが, Am-243 の1 eV 付近の共鳴ピーク(22群)に対応した感度係数が鋭く立ち上がっていることが Fig. 14 から確認できる。さらにこのピークに対応する相対標準偏差が6.6%と比較的大きいのが, 誤差への寄与が大きな理由である。Pu-238 中性子捕獲反応の感度係数は最大でも-0.03程度と小さいが(Fig. 15), 0.1 eV 当たりの核データの誤差は20%とこれまでみてきた他のアクチニド核種に比べても非常に大きい。したがって, Pu-238 の捕獲反応に由来する崩壊熱誤差が大きくなっているのである。Pu-242 は Cm-244 生成にとって主たる親核種であり, その中性子捕獲反応は, Cm-244 生成の主要なパスの一部である。Fig. 16 によれば Pu-242 捕獲反応に対する感度係数には, 21群に0.6のピークがみられる。ここでの核データの誤差は約4%と, 共鳴ピーク近傍の断面積誤差としては比較的大きい。

Figure 17 にみられるように, Cm-244 自身の中性子捕獲反応に対する崩壊熱の感度係数は10 eV の共鳴(第19, 20群)に対応したピークに集中しているが, 値は-0.07と小さい。核データの誤差は約10%と大きく評価されているが, 全体の誤差への寄与は Pu-239 の核分裂反応に次いで第5位である(Fig. 7(b))。

3. 原子炉停止50年後

第II章第4節で述べたが, この時点では Am-241 と Pu-238 がそれぞれアクチニド崩壊熱の51%, 30%を占めている。Fig. 6 によれば, この時点におけるアクチニド崩壊熱の核データ由来の誤差は1.9%である。

Figure 7(c)に, この冷却時点における崩壊熱予測精度の反応別の内訳を示す。Pu-238, Am-243, Pu-239 の中性子捕獲反応が上位3位までを占める。Fig. 5(b), (c), (d)に, Cm-244, Pu-238 と Am-241 に至る生成経路を示す

が, この上位3反応に黒矢印Cを付した。この時点では, アクチニド崩壊熱の8割を Am-241 と Pu-238 の発熱が占めており, Cm-244 からの寄与はこれらより小さい。それに関わらず Cm-244 の生成経路上の Am-243 が上位に表れているのは以下の理由による。すなわち, この時点でアクチニド崩壊熱として効いている Am-241 は, 原子炉停止時点での Pu-241 が β^- 崩壊(半減期14.4年)によって Am-241 に転じたものであり, かつ Pu-241 の生成経路上の核データの誤差は小さい。また, V-2 節で確認したように, Am-243 の中性子捕獲反応の相対標準偏差は大きい。したがって, Cm-244 の生成経路上の Am-243 が相対的により上位に表れているのである。

Pu-239 と Pu-238 の中性子捕獲反応の感度係数と断面積の相対標準偏差については, V-2 節, V-1 節ですでに述べた。

VI. 結 論

エネルギー資源の乏しい我が国においては, 原子力発電をより効率よく利用することが必要不可欠と考えられる。使用済燃料の再処理能力向上や高速炉の導入が待たれるが, 当面, 軽水炉における MOX 燃料の利用は重要な要素である。また, 使用済燃料の特性を適切に把握することは, 輸送や貯蔵などあらゆるフェーズにおいて重要である。特に, 使用済み MOX 燃料には, 従来のウラン燃料よりも, 多くのアクチニド核種が含まれており, その発熱量を適切に把握することが必要となる。本研究では, 使用済み MOX 燃料のアクチニド崩壊熱を冷却年数ごとに整理するとともに, 核データ由来の誤差を算出した。共分散データを用いた計算精度の評価は主に高速炉の分野で進んでいるが, 軽水炉においても有効な手法であると考えられる。本研究では始めに, 取り出し燃焼度や, 燃料の初期組成の異なる使用済み燃料から放出される崩壊熱について述べ, 原子炉停止後の各年数において熱源として主に寄与する核種を摘出した。さらに, これら核種の生成経路に関わる感度係数を算出し, JENDL-3.3 に収められている核データの共分散から, 各冷却時点における核データ由来の誤差を算出した。

アクチニド崩壊熱予測における核データ由来の誤差に関する分析を総合すると, ここで特徴的な要求としては, Am-241, -243 と Pu-238, -242 の中性子捕獲断面積の精度向上が何より望まれる。また主要プルトニウム同位体については, Pu-239 の捕獲断面積と Pu-241 の核分裂断面積が重要であるが, これらは MOX 燃料のアクチニド崩壊熱以外の観点からも特別に重要であることはいうまでもない。

高速炉「常陽」において, 集合体からの崩壊熱を直接測定するという息の長い努力がなされたが¹⁴⁾, 冷却期間は FP 崩壊熱が支配的な領域に限られる。本研究が目的としたアクチニド崩壊熱の直接測定はいまのところ例がなく,

実施には大きな困難が伴うと予想される。したがって、発熱源として特に重要なアクチニド核種、Pu-238, Am-241, Cm-242, Cm-244 等の使用済み燃料中の生成量分析結果と計算の比較による核データの精度向上が望まれる。しかし、燃料ペレットサンプルの破壊分析の精度はかなり高いとしても、サンプルの燃焼経歴の同定や計算モデル化に起因する誤差の混入は避け難く、数%の精度を問題にするのは容易ではない。ミクロな観点からの、上記 Pu-238, Am-241, Cm-242, Cm-244 を含むマイナーアクチニド核種の核データの精度向上は今後も執拗に迫られるべきである。主要プルトニウム同位体においても、Pu-239 の捕獲断面積や Pu-241 の核分裂断面積の重要性は、崩壊熱以外の観点からもうまくもない。

— 参考文献 —

- 1) N. Hagura, T. Yoshida, "Sensitivity analysis of actinide decay heat focused on mixed oxide fuel," *Proc. of the 2006 Symp. on Nucl. Data*, (JAEA-Conf 2008-006), Tokai, Japan, Jan. 25-26, 2007, 125-128 (2008).
- 2) N. Hagura, T. Yoshida, "Systematic analysis of actinide decay heat focused on the mixed oxide fuel," *Proc. of the Int. Conf. on Nucl. Data for Sci. and Tech.*, Nice, France, Apr. 22-27, 2007, 903-906 (2008).
- 3) 日本原子力学会「原子炉崩壊熱基準」研究専門委員会編, "原子炉崩壊熱とその推奨値," 日本原子力学会, 東京 (1989).
- 4) 原子力安全委員会, 軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の性能評価指針 付録 III, 原子力安全委員会, 東京 (1992).
- 5) J. Katakura, S. Iijima, "Analysis of uncertainties in summation calculations of decay heat using JNDC FP nuclear data library," *J. Nucl. Sci. Tech.*, **29**[1], 11-23 (1992).
- 6) G. Aliberti, G. Palmiotti, M. Salvatores *et al.*, "Sensitivity of advanced reactor and fuel cycle performance parameters to nuclear data uncertainties," *Proc. of the Int. Workshop on Nucl. Data Needs for Gen. IV Nucl. Energy System*, Antwerp, Belgium, 81-100 (2005).
- 7) Y. Ando, K. Nishihara, H. Takano, "Estimation of spent fuel compositions from light water reactors," *J. Nucl. Sci. Tech.*, **37**[10], 924-933 (2000).
- 8) K. Suyama, T. Kiyosumi, H. Mochizuki, *Revised SWAT—The Integrated Burnup Calculation Code System—*, JAERI-Data/Code 2000-027, Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) (2000), [in Japanese].
- 9) K. Okumura, K. Kaneko, K. Tsuchihashi, *SRAC95; General Purpose Neutronics Code System*, JAERI-Data/Code 96-015, Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) (1996), [in Japanese].
- 10) A. G. Croff, *A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code*, ORNL/TM-7175, Oak Ridge National Laboratory (ORNL) (1980).
- 11) K. Shibata, T. Nakagawa, "Uncertainty analyses of neutron cross sections for nitrogen-15, lead-206, 207, 208, bismuth-209, plutonium-238, americium-242m, and curium-244 in JENDL-3.3," *J. Nucl. Sci. Tech.*, **44**[1], 1-9 (2007).
- 12) G. Chiba, M. Ishikawa, "Revision and application of the covariance data processing code, ERRORJ," *Proc. of the Int. Conf. on Nucl. Data for Sci. and Tech.*, Santa Fe, USA, Sept. 26-Oct. 1, 468-471 (2005).
- 13) ENSDF, <http://www.nndc.bnl.gov/ensdf/index.jsp>.
- 14) S. Maeda, T. Sekine, T. Aoyama, "Measurement and analysis of decay heat of Fast reactor spent MOX fuel," *Ann. Nucl. Energy*, **31**, 1119-1133 (2004).