

JAERI-M  
83-152

JMTR照射低濃縮UO<sub>2</sub>核被覆粒子の  
Pu核分裂割合

1983年9月

小川 徹・福田 幸朔・伊藤 忠春  
井川 勝市

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村 日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1983

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 日立高速印刷株式会社

JMTR 照射低濃縮  $\text{UO}_2$  核被覆粒子の Pu 核分裂割合

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部  
小川 徹・福田幸朔・伊藤忠春<sup>+</sup>・井川勝市

(1983年8月29日受理)

JMTR で照射した低濃縮  $\text{UO}_2$  核被覆粒子について、 $\text{Ru}^{106}$ 、 $\text{Cs}^{137}$ 、 $\text{Ce}^{144}$  の  $\gamma$  スペクトロメトリー法による定量結果をもとに、全燃焼率に占める Pu 核分裂割合を評価した。評価に用いた計算手法とその結果について報告する。また、低濃縮被覆燃料粒子の照射挙動にかかわる幾つかの問題について、ここで得られた結果を応用し、考察を加えた。

Percent fissions in Pu of the low-enriched  $UO_2$  coated particles irradiated in JMTR

Toru OGAWA, Kosaku FUKUDA, Tadaharu ITOH<sup>+</sup> and Katsuichi IKAWA  
Department of Fuels and Materials Research, Tokai Research  
Establishment, JAERI

(Received August 29, 1983)

The percent fissions in Pu of the total burn-up was estimated from the  $\gamma$ -spectrometric measurements of  $Ru^{106}$ ,  $Cs^{137}$  and  $Ce^{144}$  within low-enriched  $UO_2$  coated particles irradiated in JMTR. Computational procedure as well as the results of estimation is described. Applications of the results to some aspects of irradiation performance of low-enriched coated fuel particles are discussed.

Keywords : Pu Fission, Burn-up, Pd Attack, Oxygen Release,  
Cs Release, JMTR,  $UO_2$ , Low-enriched Coated  
Particles, Irradiation

---

+ Department of Research Reactor Operation, Tokai, JAERI

## 目 次

1. 序 論 .....	1
2. 試料および測定 .....	2
3. 解 析 .....	4
4. 結果と考察 .....	6
4.1 Pu核分裂割合と燃焼率 .....	6
4.2 燃焼率と熱中性子照射量 .....	6
5. 応 用 .....	10
5.1 Pd生成 .....	10
5.2 UO <sub>2</sub> からの酸素放出 .....	10
5.3 破損粒子のCs <sup>137</sup> 放出 .....	10
6. 結 論 .....	13
謝 辞 .....	13
参考文献 .....	13
附録A 計算プログラムの概略 .....	15
附録B 手計算による簡便法 .....	17
附録C 軽水炉燃料の燃焼 .....	20

## Contents

1.	Introduction .....	1
2.	Samples and measurements .....	2
3.	Analysis .....	4
4.	Results and discussion .....	6
4.1	Percent fissions in Pu and burn-up .....	6
4.2	Burn-up and thermal neutron fluence .....	6
5.	Application .....	10
5.1	Pd generation .....	10
5.2	Oxygen release from $UO_2$ .....	10
5.3	$Cs^{137}$ release from failed particles .....	10
6.	Conclusion .....	13
	Acknowledgements .....	13
	References .....	13
	Appendix A Outline of computation program .....	15
	Appendix B Simplified manual calculation .....	17
	Appendix C Burn-up of LWR fuel .....	20

## 1. 序 論

低濃縮ウランの燃焼においてはPu核分裂の寄与を無視することができない。このことは、特に、低濃縮UO<sub>2</sub>核 Triso 被覆粒子の照射挙動において重要な意味を有する。同粒子の定常照射中の主な破損機構としては、以下の3つが知られている。

- ・粒子内圧蓄積による圧力容器破壊
- ・アマーバ効果による被覆層の減肉
- ・核分裂生成物（FP）、特にPdによるSiC層の腐食

このうち、内圧破損では、U-FP-O多元系における熱力学的な酸素バランスが、粒子内部のCO圧を定める重要な因子である<sup>(1)</sup>。また、アマーバ効果においても、系の酸素ポテンシャルが重要な役割を果たしていると考えられている<sup>(2)</sup>。Pu<sup>239</sup>の核分裂生成物の平均原子価はU<sup>235</sup>のそれに比べて著しく小さい。そのために、燃焼に占めるPu<sup>239</sup>の寄与は系の酸素バランスに大きく影響する。また、Pdの核分裂収率がPu<sup>239</sup>ではU<sup>235</sup>の約10倍であるため、Pd腐食はPu核分裂割合の大きい低濃縮ウランの場合に特に問題となる。

また、さらに、被覆層が破損せずに健全性を保ったとしても、金属FPのうちAg<sup>110m</sup>は高温では被覆層によって十分保持されず、一次系中に放出される<sup>(3)</sup>。そして、Pdと同様、Agの生成もPu核分裂割合に依存する。

このように、被覆燃料粒子の照射挙動の十分な把握のためには、Pu核分裂割合は燃焼率や高速中性子照射量と並んで重要なパラメータである。そして、照射試験の結果から実炉条件での燃料挙動を予測するには、各照射試料におけるPu核分裂割合に関する知見を欠くことができない。ここでは、被覆燃料粒子の照射後γ線スペクトロメトリーの結果をもとにPu核分裂割合を評価する方法を提出した。また、同法によって、4本のJMTR照射キャプセルに装荷した、計20試料について解析を行い、JMTR照射孔におけるPu核分裂割合<sup>(注1)</sup>の濃縮度、燃焼率依存性を得た。

照射後のγ線スペクトルでは、Ru<sup>106</sup>(Rh<sup>106</sup>)、Cs<sup>137</sup>、Ce<sup>144</sup>(Pr<sup>144</sup>)の3つの核種に着目した。Ru<sup>106</sup>はPu<sup>239</sup>からの収率が大きく、Ce<sup>144</sup>はU<sup>235</sup>からの収率が大きくCs<sup>137</sup>はU<sup>235</sup>とPu<sup>239</sup>とで収率が大きく異なるという特徴を有しているからである。しかし、Ru<sup>106</sup>、Ce<sup>144</sup>の半減期はそれぞれ367日、284日と比較的短いので、炉内滞在期間が長い照射試験ではその間の崩壊の補正が一つの問題となる。ここでは、次章に示すように、これらの核種の生成と崩壊を含む微分方程式を立て、ある単純化された前提のもとに解く方法を採用した。

測定値の精度と、解析に含まれる幾つかの単純化を考慮するなら、ここで得られたPu核分裂割合の値は将来別のより厳密な方法<sup>(注2)</sup>によるものと比較検討されるべきであろう。しかし、JMTR照射UO<sub>2</sub>被覆粒子について他のデータが存在しない現状では、最初の粗い評価値として有用であろうと考える。

(注1) 全燃焼率に占めるPu核分裂の百分率(%Pu fission)として以下に表示。

(注2) 附録C参照。

## 2. 試料および測定

試料は73 F 13 A, 74 F 9 J, 75 F 4 A, 75 F 5 Aの4本のJMTR照射キャプセルに装荷されたものである。このうち、73 F 13 Aのみが燃料領域孔で、他は反射体(Be)第1層照射孔で照射された。各キャプセルの照射位置をFig.1の中性子等束線図<sup>(4)</sup>上に示した。燃料領域孔、Be第1層照射孔の中性子スペクトルは文献(4)、(5)に詳しい。

試料はいずれも $\text{UO}_2$ 核Triso被覆粒子であり、75 F 5 Aキャプセル以外では黒鉛ホルダーの試料孔中にルーズな粒子の状態で収められた。75 A 5 Aキャプセル試料は黒鉛マトリックス中に被覆粒子を分散した、いわゆる燃料コンパクトとして装荷した。照射後に燃料コンパクトは電気化学的に解砕され、被覆粒子と黒鉛粉とに分離された。 $\text{UO}_2$ 核(～95%TD)の直径は約500～600 $\mu\text{m}$ であり、被覆粒子としての直径は約750～950 $\mu\text{m}$ であった。被覆層のうち、厚さ25 $\mu\text{m}$ はSiCであり、他は熱分解炭素である。また、ウラン濃縮度は4, 8, 12%の3種であった。

これらの試料は1650 $^{\circ}\text{C}$ 以下で照射された。照射後の黒鉛ホルダー等の $\gamma$ 線スペクトロメトリーや、被覆粒子の酸浸出試験の結果を参照し、被覆粒子からのFP放出量は以下のFP生成量測定結果に影響する程ではないと判断した。ただし、73 F 13 Aキャプセル試料のうち照射条件の最も苛酷であったものについては、著しいアメーバ効果が生じているなど、FP生成量測定値に疑いが持たれたため、以下の計算の対象からは除外した(§5.3参照)。

測定粒子は硝酸浸出後に各種10～100粒を採取し、X線ラジオグラフィーによって著しい損傷のないことを確認後、Ge検出器を用い $\gamma$ 線スペクトルを得た。検出効率 $\text{Eu}^{152}$ 標準線源によって求め、SPECTRAN-Fコード<sup>(注)</sup>で定量計算を行った。各試料中のU量は粒子寸法、密度データから計算によって求めた。

(注) CANBERRA INDUSTRIES, INC., 45 Gracey ave., Meriden, CT U.S.A.



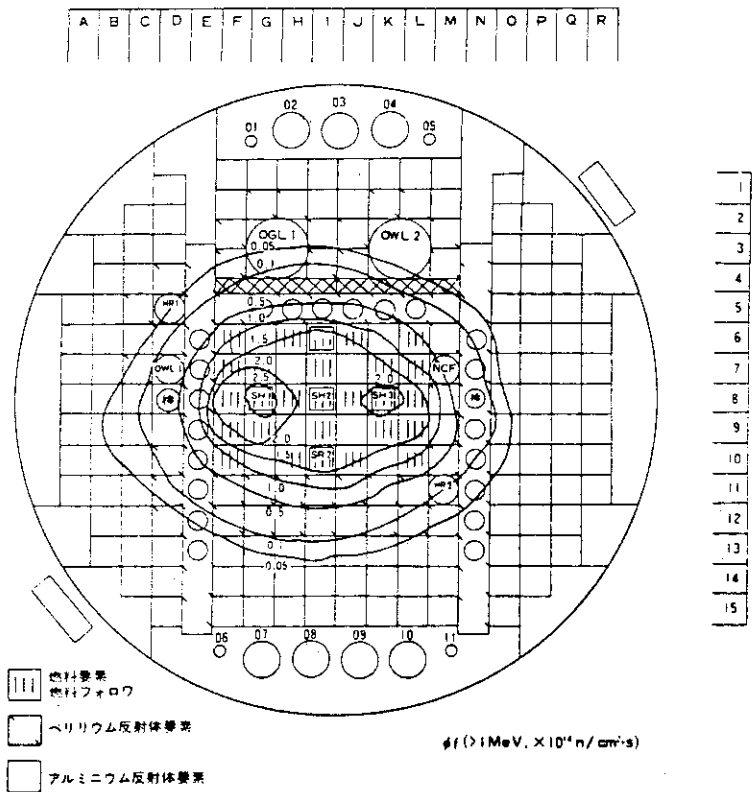
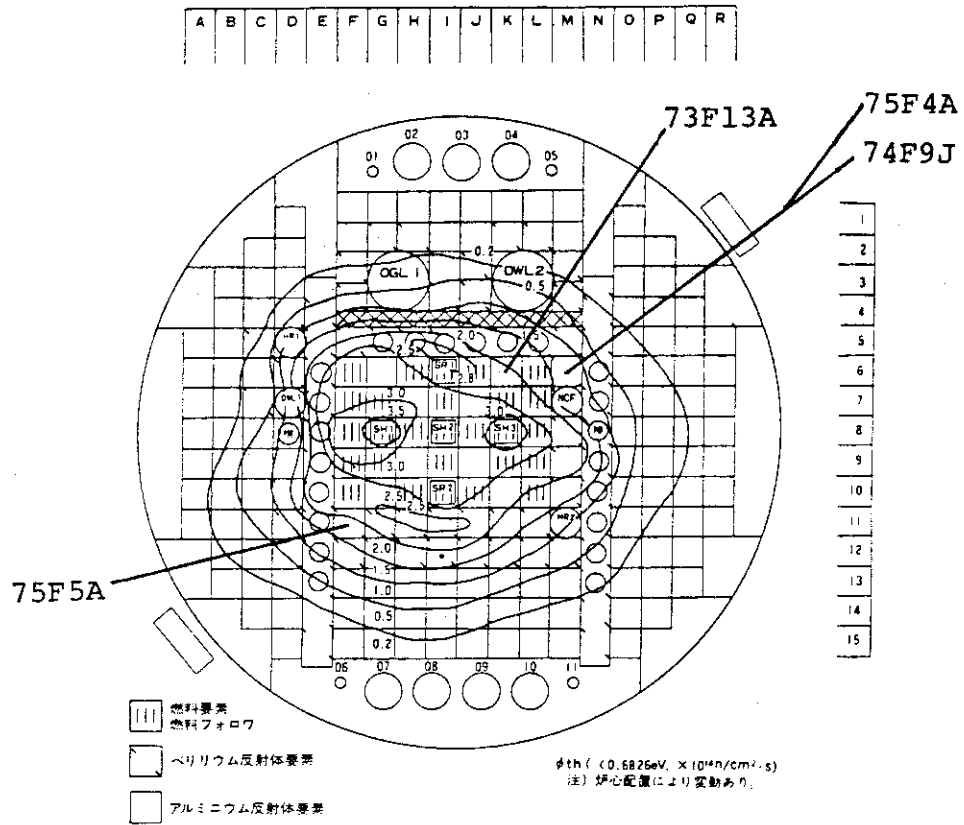


Fig. 1 Neutron flux distribution and capsule positions in JMTR core. (a) thermal neutron, (b) fast neutron (E 1MeV)

## 3. 解 析

JMTR 照射孔におけるアクチニド核種の実効中性子断面積等の諸パラメータを不問とし、照射後に実測された  $\text{Ru}^{106}$ 、 $\text{Cs}^{137}$ 、 $\text{Ce}^{144}$  の量から燃焼率および Pu 核分裂割合を算出する計算プログラムを作成した。

いま、 $\Delta F_i$ 、 $\Delta t_i$  をそれぞれ、第  $i$  照射ステップにおける燃焼率 (FIMA)、照射時間 (sec) の増分とする。照射終了時の燃焼率  $F_0$ 、全照射時間  $t_0$  は、

$$F_0 = \sum_i \Delta F_i$$

$$t_0 = \sum_i \Delta t_i$$

である。

ある FP 核種の量を  $N$  (atoms/g-atom U) とすると、

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N + Y_{25} \phi_{25} + Y_{49} \phi_{49} \quad (1)$$

$\lambda$  : 崩壊定数 ( $\text{s}^{-1}$ )

$Y$  : 核分裂収率

$\phi$  : 核分裂密度 (fissions/s·g-atom U)

25 :  $\text{U}^{235}$

49 :  $\text{Pu}^{239}$

である。各照射ステップにおいては総体としての核分裂密度は一定とすると、

$$\phi_i = \phi_{25,i} + \phi_{49,i} = N_A \frac{\Delta F_i}{\Delta t_i} \quad (2)$$

$N_A$  : Avogadro 数

と置くことができる。また、第 1 近似として、Pu 核分裂割合  $f$  は燃焼率  $F$  に比例すると仮定する。

$$\left\{ \begin{array}{l} f = \alpha F = \alpha \left( \sum_{j=1}^{i-1} \Delta F_j + \frac{\Delta F_i}{\Delta t_i} t \right) \end{array} \right. \quad (3)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} f_0 = \alpha F_0 \quad (f_0 : \text{照射終了時の Pu 核分裂割合}) \end{array} \right. \quad (4)$$

$f$  は定義により、 $\phi$  と次のように関係づけられる。

$$f = \frac{\sum_{j=1}^{i-1} \int_0^{\Delta t_j} \phi_{49,j} dt + \int_0^t \phi_{49,i} dt}{\sum_{j=1}^{i-1} \int_0^{\Delta t_j} (\phi_{25,j} + \phi_{49,j}) dt + \int_0^t (\phi_{25,i} + \phi_{49,i}) dt} \quad (5)$$

(2) ~ (5) より、第  $j$  ステップにおいて、

$$\phi_{49,j} = 2 N_A \frac{\Delta F_j}{\Delta t_j} \frac{f_0}{F_0} \left( \sum_{k=1}^{j-1} \Delta F_k + \frac{\Delta F_j}{\Delta t_j} t \right) \quad (6)$$

$$\phi_{25, j} = N_A \frac{\Delta F_j}{\Delta t_j} - \phi_{49, j} \quad (7)$$

となる。したがって、(1)は次のように書き直される。

$$\begin{aligned} \frac{dN}{dt} = & -\lambda N + \left\{ Y_{25} + 2 \alpha (Y_{49} - Y_{25}) \sum_{j=1}^{i-1} \Delta F_j \right\} \phi \\ & + 2 \alpha (Y_{49} - Y_{25}) \frac{\Delta F_i}{\Delta t_i} \phi t \end{aligned} \quad (1')$$

この微分方程式の解は次式で与えられる。

$$N = N_0 e^{-\lambda t} + \frac{\lambda \beta - \gamma}{\lambda^2} (1 - e^{-\lambda t}) + \frac{\gamma t}{\lambda} \quad (8)$$

$$\beta = \left\{ Y_{25} + 2 f_0 (Y_{49} - Y_{25}) \sum_{j=1}^{i-1} \frac{\Delta F_j}{F_0} \right\} \phi$$

$$\gamma = 2 f_0 (Y_{49} - Y_{25}) \frac{(\Delta F_i / F_0)}{\Delta t_i} \phi$$

ただし、 $N_0$  は第  $i$  ステップの開始時における  $N$  の値である。

計算プログラムでは、 $Ru^{106}$ 、 $Cs^{137}$ 、 $Ce^{144}$  の実測量  $N_{exp}$  と  $\Delta F_i / F_0$ 、 $\Delta t_i$  等を入力とし、(8)式を用いて計算した値  $N_{cal}$  が実測  $N_{exp}$  とほぼ等しくなるような、 $F_0$  と  $f_0$  の組を見出している。計算の具体的な流れについては附録Aにおいてやや詳しく述べてある。

なお、上記の比較的詳細な解析法の他に、手計算に適した簡便な評価法も検討した（附録B参照）。

## 4. 結果と考察

### 4.1 Pu核分裂割合と燃焼率

Pu核分裂割合(% Pu fission)の燃焼率依存性をFig.2にまとめた。解析では1次の依存性を仮定したが、解析結果のプロットはそれよりやや複雑な傾向を示している。しかし、1次依存性の仮定は第1近似としては悪くないことが認められよう。図中実線はPWR燃料(3.4% eU)の質量分析結果から得たものである(附録C参照)。JMTRとPWRとでは中性子スペクトルが違い、直接比較できないが濃縮度の接近した4% eU試料の結果が良く似た燃焼率依存性を示していることが分かる。また、一点鎖線は低濃縮 $UO_2$ 被覆粒子についてのMartinによる値<sup>(10)</sup>であるが、濃縮度等の詳細は不明である。

Fig.3はFig.2のデータから次式を介して求めたものである。

$$\% FIMA = (\% eU) \times \frac{F_{25}}{N_{25}^0} + (1 - \% eU) \frac{F_{49}}{N_{28}^0} \quad (9)$$

ここで、 $N^0$ は初期原子数、 $F$ は核分裂数、添字25, 28, 49は、それぞれ $U^{235}$ ,  $U^{238}$ ,  $Pu^{239}$ を示す。上記PWRのデータは少なくとも2.5% FIMAまでは次式で良く近似できる(図中実線)。

$$\left( \frac{F_{49}}{N_{28}^0} \right) = 0.0413 \left( \frac{F_{25}}{N_{25}^0} \right)^{2.12} \quad (10)$$

そこで、JMTR照射試料のデータについて同型の式であてはめ、次式を得た(図中破線)。

$$\left( \frac{F_{49}}{N_{28}^0} \right) = 0.185 \left( \frac{F_{25}}{N_{25}^0} \right)^{3.04} \quad (11)$$

Fig.2の破線は(11)式を用いて(9)式により逆算したものである。それぞれ濃縮度、照射孔等の異なる試料から得られたデータであるにも関わらず、良い整合性が得られていると言えよう。

### 4.2 燃焼率と熱中性子照射量

Fig.4には、(9)式による $F_{25}/N_{25}^0$ を、フルエンス・モニター<sup>(注)</sup>から評価した熱中性子照射量( $\phi \times t$ )と比較した。同図は濃縮度によって $U^{235}$ の燃焼の熱中性子照射量依存性が若干異なることを示している(図中破線)。しかし、濃縮度、照射孔の違いを無視すれば、 $F_{25}/N_{25}^0$ と $\phi t$ の関係は次式によって粗い近似が可能である。

$$\begin{aligned} \left( \frac{F_{25}}{N_{25}^0} \right) &= 0.8 (1 - e^{-\sigma \phi t}) \\ \sigma &= 353 - 44 \times 10^{-21} \phi t \quad (10^{-24} \text{ cm}^2) \end{aligned} \quad (12)$$

(注) 0.17% Co-Alワイア。

Fig.5には、(9)、(11)、(12)式による燃焼率(実線)を測定値と比較した。計算による予測の精度は決して良いとは言えないが、照射計画の立案の際の一つの目安としては用いることができよう。なお、図中破線はFig.4の破線を用いた計算結果であり、こちらの方が当然、測定値との一致が良い。

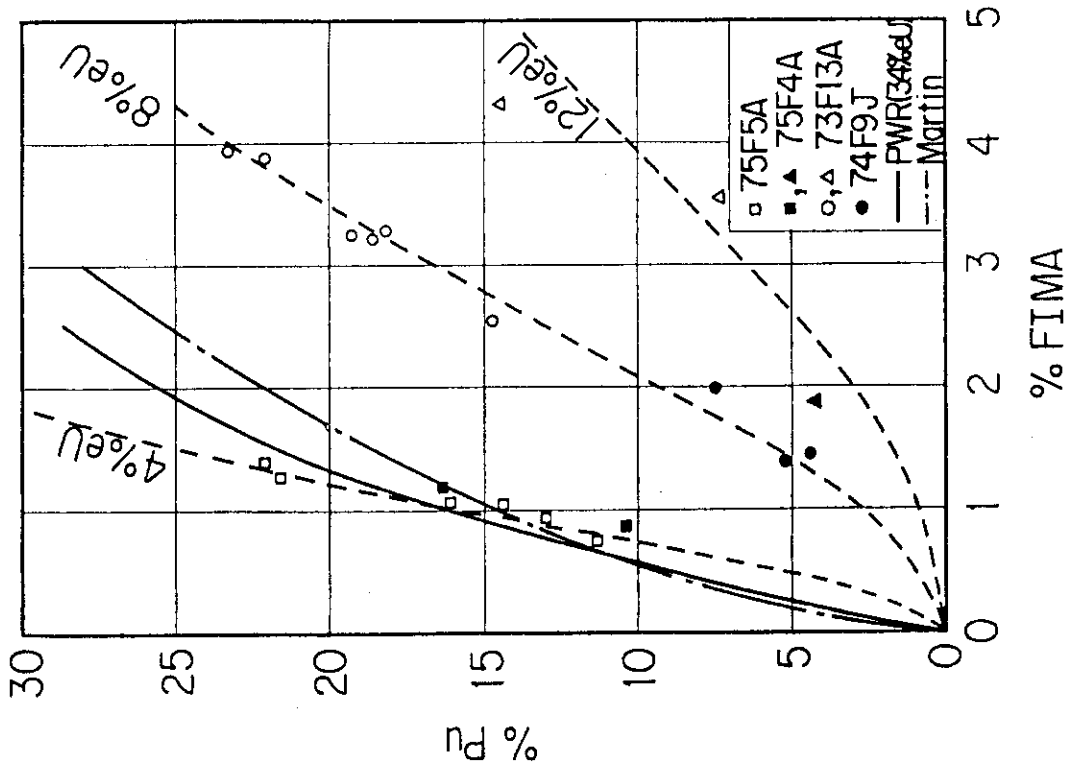


Fig. 2 Percent fissions in Pu vs. burn-up. Solid line is for PWR fuel (Appendix C) and chain line for LEU-HTGR fuel (ref.(11)). Broken lines were calculated from eqs.9 and 11.

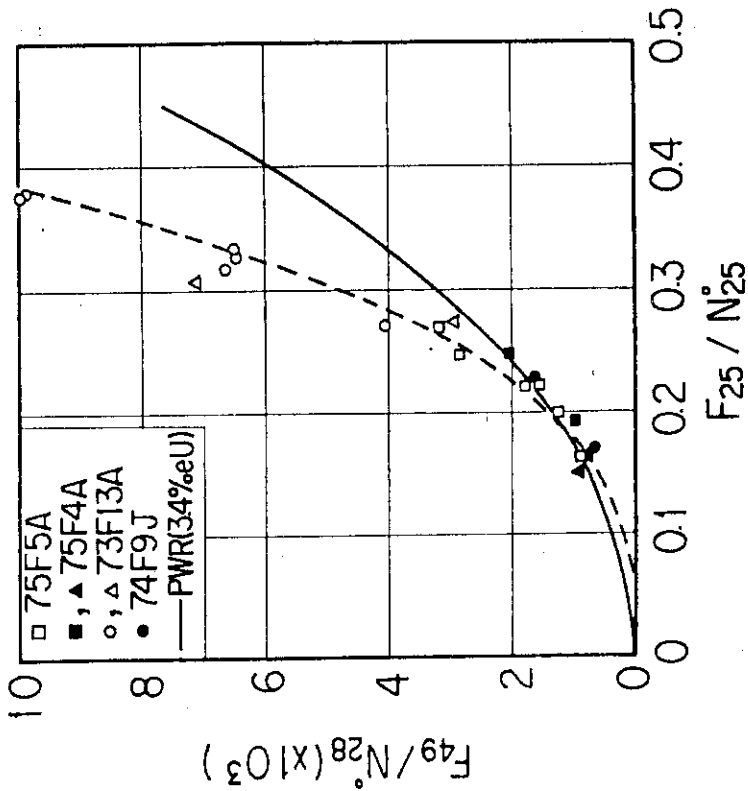


Fig. 3  $F_{49}/N_{28}$  vs.  $F_{25}/N_{25}$  where  $F/N$  denotes fissions-to-initial-atom ratio. Solid line is for PWR fuel (Appendix C) and broken line by eq.11.

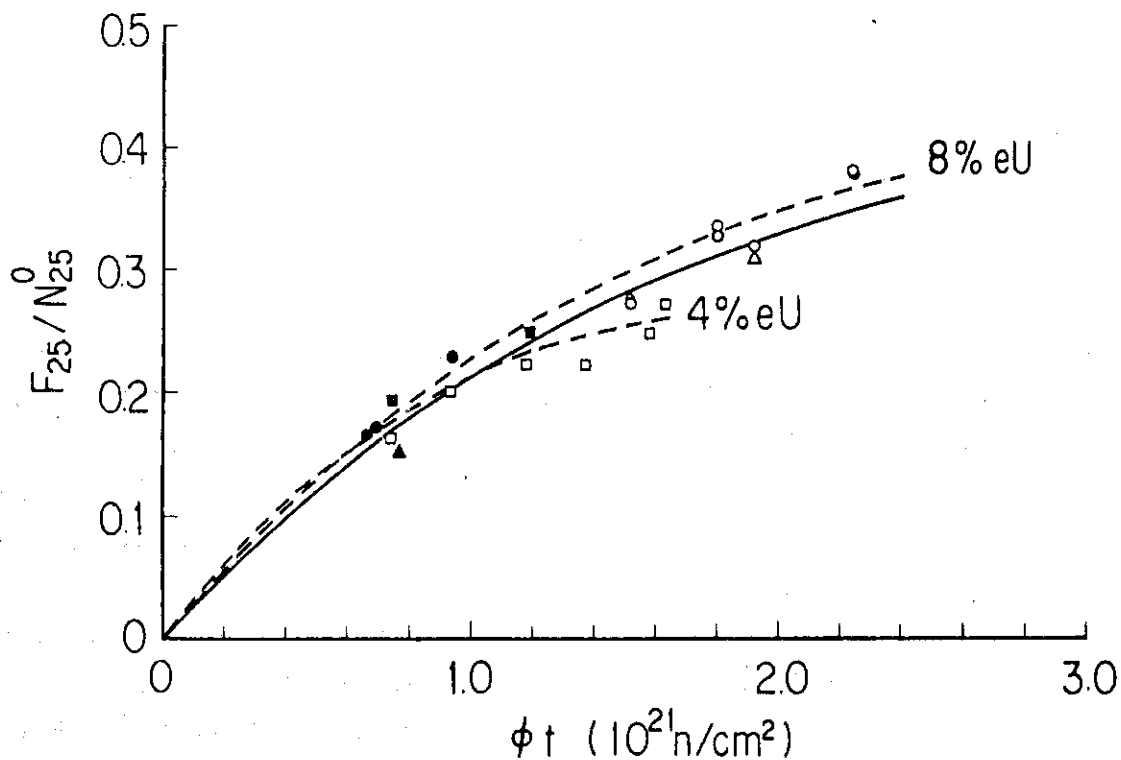


Fig. 4  $F_{25}/N_{25}^0$  vs. thermal neutron fluence.

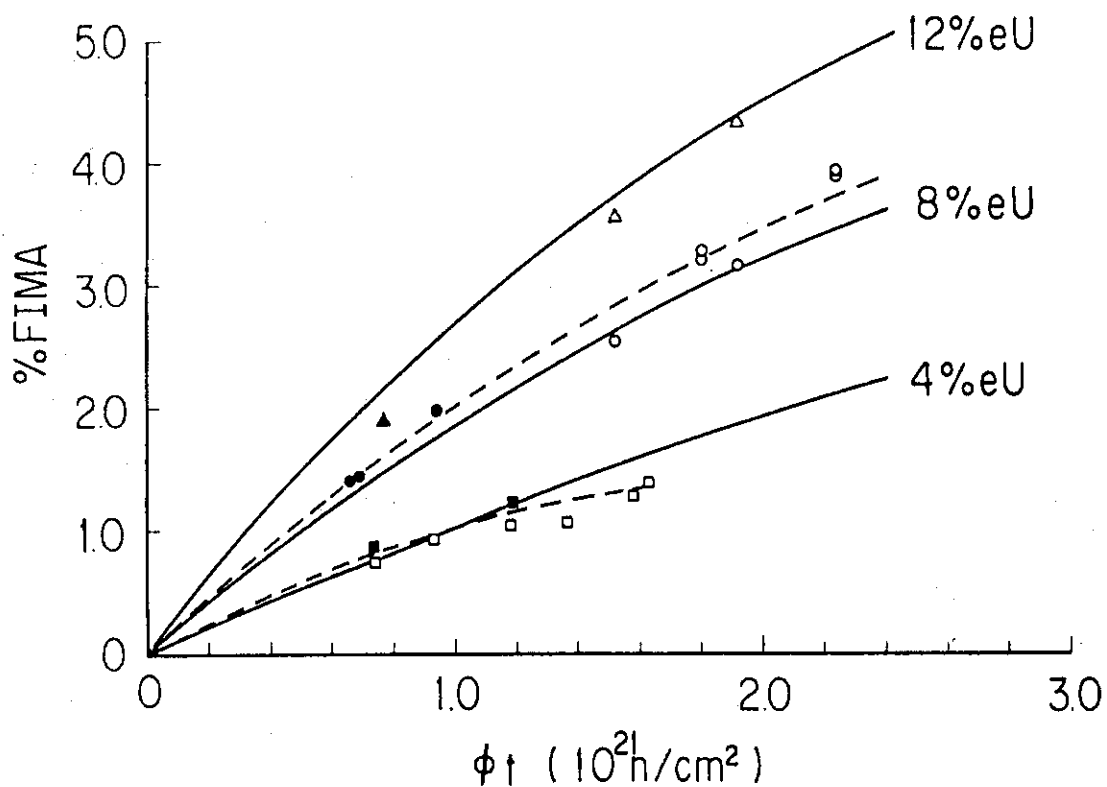


Fig. 5 Burn-up vs. thermal neutron fluence.

## 5. 応 用

### 5.1 Pd 生成

核分裂により生成するPdの長半減期あるいは安定同位体は、質量数105, 106, 107, 108の4つである<sup>(注1)</sup>。このうち、Pd<sup>106</sup>の親核種は半減期367日のRu<sup>106</sup>であって、照射中に一部が崩壊してPd<sup>106</sup>になるだけである。これら同位体の核分裂収率<sup>(6)</sup>とFig.2の関係から、Pd生成量は容易に予測できる。結果をFig.6に示した。実線はPd<sup>106</sup>を含み、破線は含んでいない。炉内装荷期間約200日ではRu<sup>106</sup>の20%程度がPd<sup>106</sup>になるだけなので、Pd量は実線の方に近いが、照射日数が増すにしたがって破線に近づく。

これから、例えば、75F4Aキャプセルで照射した12%濃縮UO<sub>2</sub>粒子の1粒(約1mg U)中のPd生成量は、燃焼率約2%FIMAなので約 $8 \times 10^{14}$  atomsにすぎないことが分かる。にもかかわらず、同粒子ではSiC層中深さ約9 μmに達するPd腐食が観察された<sup>(7)</sup>。先にTiegsはPd腐食について $1.9 \times 10^{15} \sim 2.0 \times 10^{16}$  atoms/粒の範囲でPd濃度のしきい値はないと結論した<sup>(8)</sup>が、今回の観察はこの結論の妥当性を支持するものと言えよう。すなわち、しきい値が存在したとしても実炉条件では問題とならないくらい低いと考えられる。

### 5.2 UO<sub>2</sub> からの酸素放出

希土類FP(Yを含む)がUO<sub>2</sub>中に4価の酸化物として固溶すると仮定すると、理論的には、1核分裂当りU<sup>235</sup>では0.133原子、Pu<sup>239</sup>では0.629原子の酸素が過剰となり、燃料核から放出される。そして、照射の温度が高く、長期にわたる場合には、酸素放出量は上の理論値に近づくことになる<sup>(1,9)</sup>。

Fig.7は1核分裂当りの平均酸素放出量が、例えば4%濃縮UO<sub>2</sub>では約2%FIMAで、希ガスの放出量(約0.3 atoms/fission)<sup>(注2)</sup>とほぼ等しくなることを示している(実線)。また、アマーバ効果と関連する被覆粒子内のCO+CO<sub>2</sub>圧の点では、4%濃縮UO<sub>2</sub>の2.0%FIMAと12%濃縮の3.5%FIMAがほぼ等価になることになる(一点鎖線)。

### 5.3 破損粒子のCs<sup>137</sup> 放出

Cs<sup>137</sup>はSiC層さえ健全であれば被覆粒子中に保持される。しかし、SiC層に破損が生じると、Csは熱分解炭素層によっては十分保持されず、被覆粒子の外に放出されることになる。したがって、SiC層に損傷がある場合、Cs<sup>137</sup>の量から燃焼率を求めることはできない。それに対して、Ru<sup>106</sup>は燃料核中の4d遷移金属FPの合金相に含まれ、また、Ce<sup>144</sup>は恐らく

(注1) Pd<sup>107</sup>の半減期は $7 \times 10^7$ 年。

(注2) UO<sub>2</sub>粒中の拡散を無視した、理論的上限值。



UO<sub>2</sub>中に安定な酸化物として固溶し、SiC層が破損しても粒子外に放出される割合はきわめて少ないものと考えられる。

第3章に略述した解析法を応用すれば、被覆粒子中に残留するRu<sup>106</sup>、Ce<sup>144</sup>の量から、燃焼率、Pu核分裂割合、したがってCs<sup>137</sup>生成量を推定することは容易である。73F13A試料のうち、Cs<sup>137</sup>放出が疑われたため先の解析の対象から除外したものについて、この方法で推定を行った。結果をTable 1に示した。これら2試料について得られた燃焼率とPu核分裂割合の関係は、Fig.2の傾向と良く一致している。

表中の照射後貫通破損割合( $\phi_{EOL}$ )は被覆粒子の酸浸出試験によるものであり、ここではCe<sup>144</sup>の浸出率で代表させてある。(A-B)/Aの値は、酸浸出後、すなわち被覆層貫通破損粒子を除いた。残りの粒子についてSiC層が破損していた割合に対応している。したがって、照射後のSiC層破損割合( $\phi'_{EOL}$ )は、表中の $\phi_{EOL}$ と(A-B)/Aを加えた値によって代表させることができる。ただし、SiC層が破損していてもすべてのCs<sup>137</sup>が放出されてしまうわけではないので、真の $\phi'_{EOL}$ はこれより大きいはずである。したがって、表では不等号を付しておいた。これらの試料は実効照射時間約110日のうち約30日間にわたって1650°Cで照射され、照射後の金相観察では著しいアメーバ効果が認められた。SiC層は多くアメーバ効果に伴うCO腐食<sup>(2)</sup>によって破損したものと考えられる。

Table 1 Estimation of Cs<sup>137</sup> concentrations for coated fuel particles which are supposed to have defective SiC layers.  $\phi_{EOL}$  is the end-of-life through-coating failure determined from acid-leached fraction of Ce/Pr<sup>144</sup>;  $\phi'_{EOL}$  the estimated defective SiC fraction.

Sample	Tmax(°C)*	%eU	%FIMA	%Pu fission	Ci/gU		100 $\frac{A-B}{A}$	$\phi_{EOL}(\%)$	$\phi'_{EOL}(\%)$
					A(Cs <sup>137</sup> <sub>cal.</sub> )	B(Cs <sup>137</sup> <sub>obs.</sub> )†			
74FC1	1650	8	4.4	26	0.137	0.114	17	0.4	>17
74UC1	1650	8	5.3	32	0.165	0.137	17	16	>33

\*Maximum irradiation temperature.

†Observed concentration for particles having whole kernels after acid leaching.

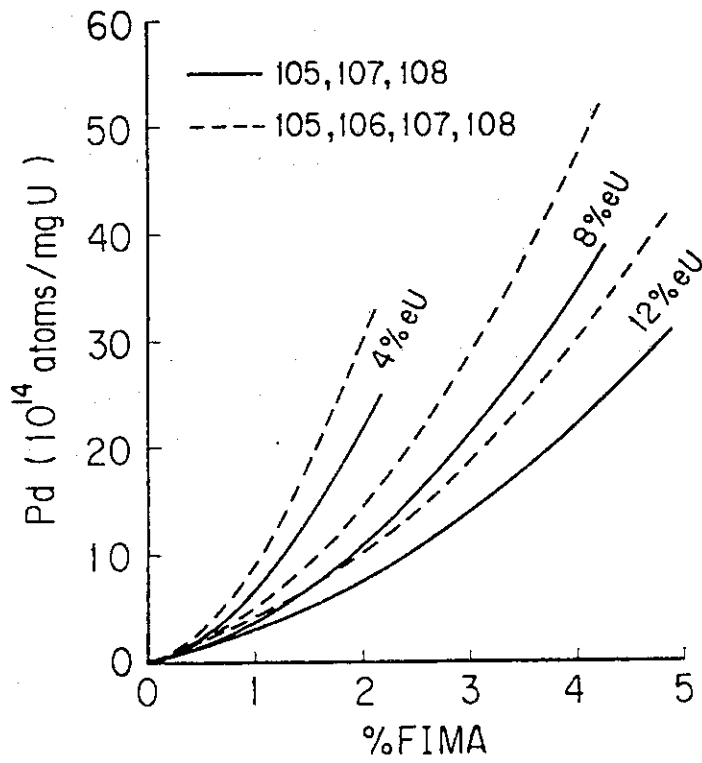


Fig. 6 Predicted Pd generation vs. burn-up.

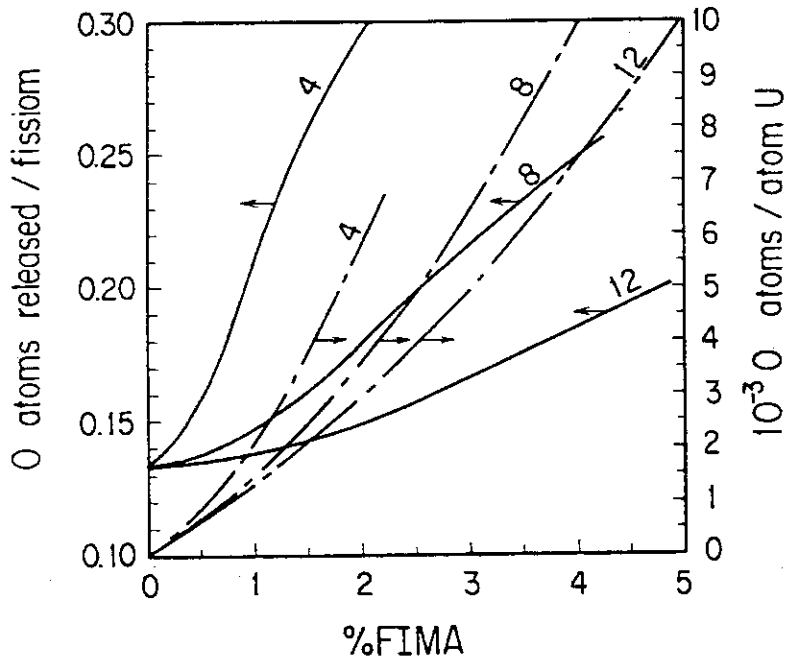


Fig. 7 Theoretical oxygen release per fission (solid line) and cumulative oxygen release per initial atom U (chain line).

## 6. 結 論

濃縮度 4, 8, 12% の  $\text{UO}_2$  核被覆粒子について, JMTR で照射後に  $\text{Ru}^{106}$ ,  $\text{Cs}^{137}$ ,  $\text{Ce}^{144}$  を  $\gamma$  スペクトロメトリー法で定量し, 全燃焼率に占める Pu 核分裂の寄与を評価した。

全燃焼率を次式で表わすと,

$$\% \text{FIMA} = (\% \text{eU}) \times \frac{F_{25}}{N_{25}^0} + (1 - \% \text{eU}) \frac{F_{49}}{N_{28}^0} \quad (9)$$

本研究のデータの範囲内では JMTR の Be 第 1 層, 燃料領域孔に限って, 近似的に次式が成立する。

$$(F_{49}/N_{28}^0) = 0.185 (F_{25}/N_{25}^0)^{3.04} \quad (11)$$

ここで,  $F_{25}/N_{25}^0$  は初期の  $\text{U}^{235}$  原子が核分裂した割合,  $F_{49}/N_{28}^0$  は初期の  $\text{U}^{238}$  原子が  $\text{Pu}^{239}$  として核分裂した割合を示す。したがって, (9) 式第 2 項が Pu 核分裂の寄与に相当する。

上の 2 式を応用し, 低濃縮  $\text{UO}_2$  核被覆粒子の照射挙動, 特に Pd 腐食, 酸素放出, 破損粒子からの Cs 放出評価について考察を加えた。

## 謝 辞

本文中の計算のための入力データのうち, キャプセル内発熱量の推移は大洗研究所材料試験炉部照射 1 課による。また, 中性子照射量は同計画課によるものである。照射後の測定にいたる種々の作業は, 研究炉管理部ホットラボ管理室によって行われた。以上の課室の諸氏に感謝します。

燃焼率測定開発室の中原嘉則氏には, 附録 C で用いた同位体相関法について御教示を受けた。また, 御助言と御激励をいただいた燃料工学部岩本多実部長に感謝します。

## 参考文献

1. G.W. Horsley et al., J. Am. Cer. Soc. 59 (1976) 1.
2. R.H. Flowers and G.W. Horsley, AERE-R 5949 (1968).
3. H. Nabilek et al., Jül-1407 (1977).
4. 日本原子力研究所, 大洗研究所材料試験炉部, 「JMTR 照射ハンドブック」(1980).
5. 桜井文雄, 新保利定, 日本原子力学会誌 25 (1983) 372.
6. B.F. Rider and M.E. Meek, NEDO-12154-2 (1977).
7. 湊 和生 他, JAERI-M 投稿予定

## 6. 結 論

濃縮度 4, 8, 12% の  $\text{UO}_2$  核被覆粒子について, JMTR で照射後に  $\text{Ru}^{106}$ ,  $\text{Cs}^{137}$ ,  $\text{Ce}^{144}$  を  $\gamma$  スペクトロメトリー法で定量し, 全燃焼率に占める Pu 核分裂の寄与を評価した。全燃焼率を次式で表わすと,

$$\% \text{FIMA} = (\% \text{eU}) \times \frac{F_{25}}{N_{25}^0} + (1 - \% \text{eU}) \frac{F_{49}}{N_{28}^0} \quad (9)$$

本研究のデータの範囲内では JMTR の Be 第 1 層, 燃料領域孔に限って, 近似的に次式が成立する。

$$(F_{49}/N_{28}^0) = 0.185 (F_{25}/N_{25}^0)^{3.04} \quad (11)$$

ここで,  $F_{25}/N_{25}^0$  は初期の  $\text{U}^{235}$  原子が核分裂した割合,  $F_{49}/N_{28}^0$  は初期の  $\text{U}^{238}$  原子が  $\text{Pu}^{239}$  として核分裂した割合を示す。したがって, (9) 式第 2 項が Pu 核分裂の寄与に相当する。

上の 2 式を応用し, 低濃縮  $\text{UO}_2$  核被覆粒子の照射挙動, 特に Pd 腐食, 酸素放出, 破損粒子からの Cs 放出評価について考察を加えた。

## 謝 辞

本文中の計算のための入力データのうち, キャプセル内発熱量の推移は大洗研究所材料試験炉部照射 1 課による。また, 中性子照射量は同計画課によるものである。照射後の測定にいたる種々の作業は, 研究炉管理部ホットラボ管理室によって行われた。以上の課室の諸氏に感謝します。

燃焼率測定開発室の中原嘉則氏には, 附録 C で用いた同位体相関法について御教示を受けた。また, 御助言と御激励をいただいた燃料工学部岩本多実部長に感謝します。

## 参考文献

1. G.W. Horsley et al., J. Am. Cer. Soc. 59 (1976) 1.
2. R.H. Flowers and G.W. Horsley, AERE-R 5949 (1968).
3. H. Nabielek et al., Jül-1407 (1977).
4. 日本原子力研究所, 大洗研究所材料試験炉部, 「JMTR 照射ハンドブック」(1980).
5. 桜井文雄, 新保利定, 日本原子力学会誌 25 (1983) 372.
6. B.F. Rider and M.E. Meek, NEDO-12154-2 (1977).
7. 湊 和生 他, JAERI-M 投稿予定

## 6. 結 論

濃縮度 4, 8, 12% の  $\text{UO}_2$  核被覆粒子について, JMTR で照射後に  $\text{Ru}^{106}$ ,  $\text{Cs}^{137}$ ,  $\text{Ce}^{144}$  を  $\gamma$  スペクトロメトリー法で定量し, 全燃焼率に占める Pu 核分裂の寄与を評価した。全燃焼率を次式で表わすと,

$$\% \text{FIMA} = (\% \text{eU}) \times \frac{F_{25}}{N_{25}^0} + (1 - \% \text{eU}) \frac{F_{49}}{N_{28}^0} \quad (9)$$

本研究のデータの範囲内では JMTR の Be 第 1 層, 燃料領域孔に限って, 近似的に次式が成立する。

$$(F_{49}/N_{28}^0) = 0.185 (F_{25}/N_{25}^0)^{3.04} \quad (11)$$

ここで,  $F_{25}/N_{25}^0$  は初期の  $\text{U}^{235}$  原子が核分裂した割合,  $F_{49}/N_{28}^0$  は初期の  $\text{U}^{238}$  原子が  $\text{Pu}^{239}$  として核分裂した割合を示す。したがって, (9) 式第 2 項が Pu 核分裂の寄与に相当する。

上の 2 式を応用し, 低濃縮  $\text{UO}_2$  核被覆粒子の照射挙動, 特に Pd 腐食, 酸素放出, 破損粒子からの Cs 放出評価について考察を加えた。

## 謝 辞

本文中の計算のための入力データのうち, キャプセル内発熱量の推移は大洗研究所材料試験炉部照射 1 課による。また, 中性子照射量は同計画課によるものである。照射後の測定にいたる種々の作業は, 研究炉管理部ホットラボ管理室によって行われた。以上の課室の諸氏に感謝します。

燃焼率測定開発室の中原嘉則氏には, 附録 C で用いた同位体相関法について御教示を受けた。また, 御助言と御激励をいただいた燃料工学部岩本多実部長に感謝します。

## 参考文献

1. G.W. Horsley et al., J. Am. Cer. Soc. 59 (1976) 1.
2. R.H. Flowers and G.W. Horsley, AERE-R 5949 (1968).
3. H. Nabielek et al., Jül-1407 (1977).
4. 日本原子力研究所, 大洗研究所材料試験炉部, 「JMTR 照射ハンドブック」(1980).
5. 桜井文雄, 新保利定, 日本原子力学会誌 25 (1983) 372.
6. B.F. Rider and M.E. Meek, NEDO-12154-2 (1977).
7. 湊 和生 他, JAERI-M 投稿予定

8. T.N. Tieggs, ORNL/TM-7203 (1980).
9. E.Proksch et al., J. Nucl. Mater. 107 (1982) 280.
10. D.G. Martin, Nucl. Technol. 42 (1979) 304.

## 附録 A 計算プログラムの概略

### ① 入力データ

番号	変数名	型	内 容
1	TITLE	18 A 4	タイトル。
2	ICASE	I 3	計算事例数。以下③～⑦は ICASE 回反復。
3	NCYCLE	I 3	照射ステップ数。
4	TRAD	E 10.0	各ステップ毎の照射日数 ( $\Delta t_i$ )
	TCOM	E 10.0	各ステップ毎の冷却日数 ( $\Delta t_{c,i}$ )
			④は NCYCLE 回だけ反復。TCOM (NCYCLE) は照射終了後の冷却日数。
5	JCASE	I 3	試料数。⑥, ⑦を JCASE 回反復。
6	SAMP	3 A 4	試料名。
	NRU	E 10.0	$Ru^{106}$ (Ci/gU)
	NCS	E 10.0	$Cs^{137}$ (Ci/gU) 測定時の放射能。
	NCE	E 10.0	$Ce^{144}$ (Ci/gU)
	NFAC	I 1	NFAC = 1 のとき, $\Delta F_i / F_0$ は前の試料と同じで, ⑦省略。
7	FACTOR	E 10.0	各ステップ毎の $\Delta F_i / F_0$ を NCYCLE 回入力。

なお, ここでは  $\Delta F_i / F_0$  を, JMTR 照射サイクル毎のキャプセル内筒発熱量の GENGTC (1次元熱計算コード)<sup>(1)</sup> による計算結果をもとに求め, 入力した。

### ② 計算の流れ

- 照射終了後の冷却中の崩壊補正。(Cs<sup>137</sup> については, 後述の照射中の崩壊補正も行う)
- Ci/gU から atoms/g-atom U に単位変換。
- $R = N(Ru^{106}) / N(Cs^{137})$  から, 次式により Pu 核分裂割合  $f_0$  の出発値  $f_0'$  を得る。

$$f_0' = \frac{Y_{25}^{137} \cdot R - Y_{25}^{106}}{(Y_{49}^{106} - Y_{25}^{106}) - (Y_{49}^{137} - Y_{25}^{137}) R}$$

$Y_{25}$  : U<sup>235</sup> の核分裂収率

$Y_{49}$  : Pu<sup>239</sup> の核分裂収率

- $f_0'$  と  $N(Cs^{137})$  から, 燃焼率  $F_0$  (FIMA) の初期推定値  $F_0'$  を得る。
- $f_0'$ ,  $F_0'$ ,  $\Delta F_i / \Delta F_0$ ,  $\Delta t_i$ ,  $\Delta t_{c,i}$  から, 本文 (8)式を用いて,  $Ru^{106}$ ,  $Ce^{144}$  の計算値  $N_{cal}$  を得る。
- $r_e = [N(Ru^{106}) / N(Ce^{144})]_{exp}$  と,  
 $r_e = [N(Ru^{106}) / N(Ce^{144})]_{cal}$  とを比較。

4~6を,  $r_e \approx r_c$  あるいは  $(r_e - r_c) / r_e$  がほぼ最小となるまで,  $f_e'$  を漸増させながら反復する。なお, 上述のように  $Cs^{137}$  については,  $Y_{25}$  と  $Y_{49}$  の差が小さいことと, 炉内滞在期間に比べて半減期が十分長いことから, 照射中の崩壊は次式によって近似補正した。すなわち, 照射終了時の量を  $N'$  としたとき,

$$N = \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}} N'$$

とする<sup>(注)</sup>。核分裂収率は文献(2)の値を採用した。

③ 出力例

75 F 4 A キャプセル下段試料についての結果を Fig. A 1 に示した。ここで照射データの第3列目が各ステップにおける  $\Delta Fi / Fo$  の値であり, 第4列目が  $\Sigma \Delta Fi / Fo$  の値である。Ru<sup>106</sup>, Ce<sup>144</sup> については, 最終的な計算値  $N_{cal.}$  をも示してある。FP生成量は照射終了時の値である。

```

75F4A  12%EU(760PC3),4%EU(76FPC1,75FPC4A)
SAMPLE  EDL CONCENTRATION (ATOMS/GATOM-U)
          RU106      RU106-CAL    CS137      CE144      CE144-CAL
75FPC-4A  0.3089E+20  0.2971E+20  0.3202E+21  0.1775E+21  0.1699E+21

          %PU FISSION  %FIMA
          0.1085E+02  0.8606E+00

IRRADIATION DATA OF 75FPC-4A

IRRAD. DAYS  COOL. DAYS  FRACTION TOTAL FIMA  CUMUL. FRACTION
0.7667E+01  0.2083E+01  0.1080E+00  0.1080E+00
0.4000E+01  0.1125E+02  0.5600E-01  0.1640E+00
0.1079E+02  0.4121E+02  0.1510E+00  0.3150E+00
0.7583E+01  0.6375E+01  0.1140E+00  0.4290E+00
0.1058E+02  0.5646E+02  0.1590E+00  0.5880E+00
0.1075E+02  0.3458E+01  0.1280E+00  0.7160E+00
0.9958E+01  0.1244E+03  0.1170E+00  0.8330E+00
0.9208E+01  0.3421E+02  0.7400E-01  0.9070E+00
0.1158E+02  0.5410E+03  0.9300E-01  0.1000E+01
    
```

Fig. A1 Example of output

参考文献

1. H.C. Roland, ORNL-TM-1942.
2. B.F. Rider and M.E. Meek, NEDO-12154-2 (1977).

(注) 附録B参照。



## 附録 B 手計算による簡便法

序論に述べたように我々がPu核分裂割合を求めるのは、被覆粒子燃料の照射挙動の理解の助けとすることを目的としているのであって、精度に対する要求はそれほど厳しいものではない。そこで、手計算で行える簡単な評価法を検討し、附録Aの計算プログラムによる結果と比較した。

照射期間中の核分裂収率Yを一定と仮定し、各核種の照射終了時の量をN'とすると、照射中の崩壊は次のようにして補正される。まず、崩壊がない場合FP核種の生成量は、

$$N = Y \phi t \quad (\phi: \text{核分裂速度})$$

である。一方、照射中に崩壊がある場合は、生成量は

$$N' = \frac{Y \phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t})$$

となる。ゆえに

$$N = \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}} N' \quad (1)$$

として、照射中の崩壊を近似補正できる。

$$R = N(\text{Ru}^{106}) / N(\text{Cs}^{137}) \quad (2)$$

とすると、Pu核分裂割合は

$$f = \frac{Y_{25}^{137} \cdot R - Y_{25}^{106}}{(Y_{49}^{106} - Y_{25}^{106}) - (Y_{49}^{137} - Y_{25}^{137}) R} \quad (3)$$

$Y_{25}$  :  $U_{235}$  の核分裂収率

$Y_{49}$  :  $Pu_{239}$  の核分裂収率

と求まる。上において、照射サイクル間の炉停止中の崩壊も考慮するためには、 $t$ として実効照射日数ではなく炉内滞在時間を採用する。燃焼率は $N(\text{Cs}^{137})$ と $f$ から単純に求まる。

上記の方法では照射中の $Y\phi$ を一定とする点で物理的には不正確なものである。実際には照射中に $Y$ は変化し、 $\phi$ は減少する。しかし、上記(1)～(3)から求めたPu核分裂割合は、より詳細な解析から得られた値とそれほど大きく異なることが分かった。Fig. B1に見るように両者の差は、 $\pm 3\%$  Pu fission程度にすぎない。一方、FP量の測定値の誤差、 $\Delta Fi/Fo$ の値の不確かさを考慮するなら、計算プログラムによる結果の方が特に正確であるという保証はない。

簡便法による結果からは、本文(9)式のかわりに次式の関係が得られた。

$$(F_{49}/N_{28}^0) = 0.3 (F_{25}/N_{25}^0)^{3.43}$$

この式から得られたPu核分裂割合(破線)と、本文(11)式から得られたもの(実線)とを、

Fig. B 2 に比較した。個々のデータのばらつきが統計的にならされた結果，両者の一致はFig. B 1 に見るよりも，さらに良くなっている。

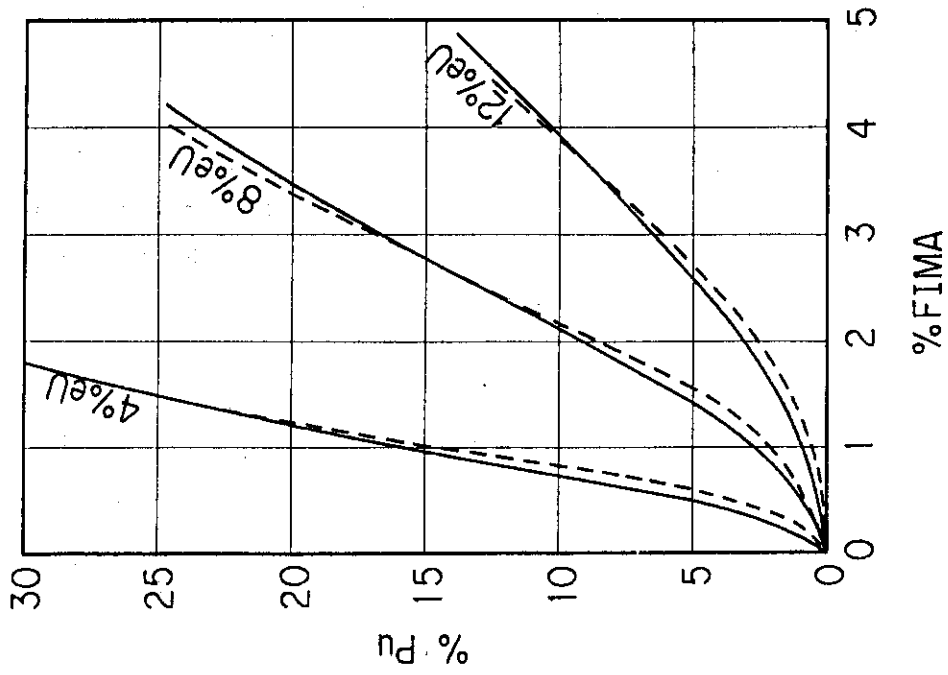


Fig. B2 Dependence of percent fissions in Pu on burn-up by computer calculation (solid line) and that by simplified manual calculation (broken line).

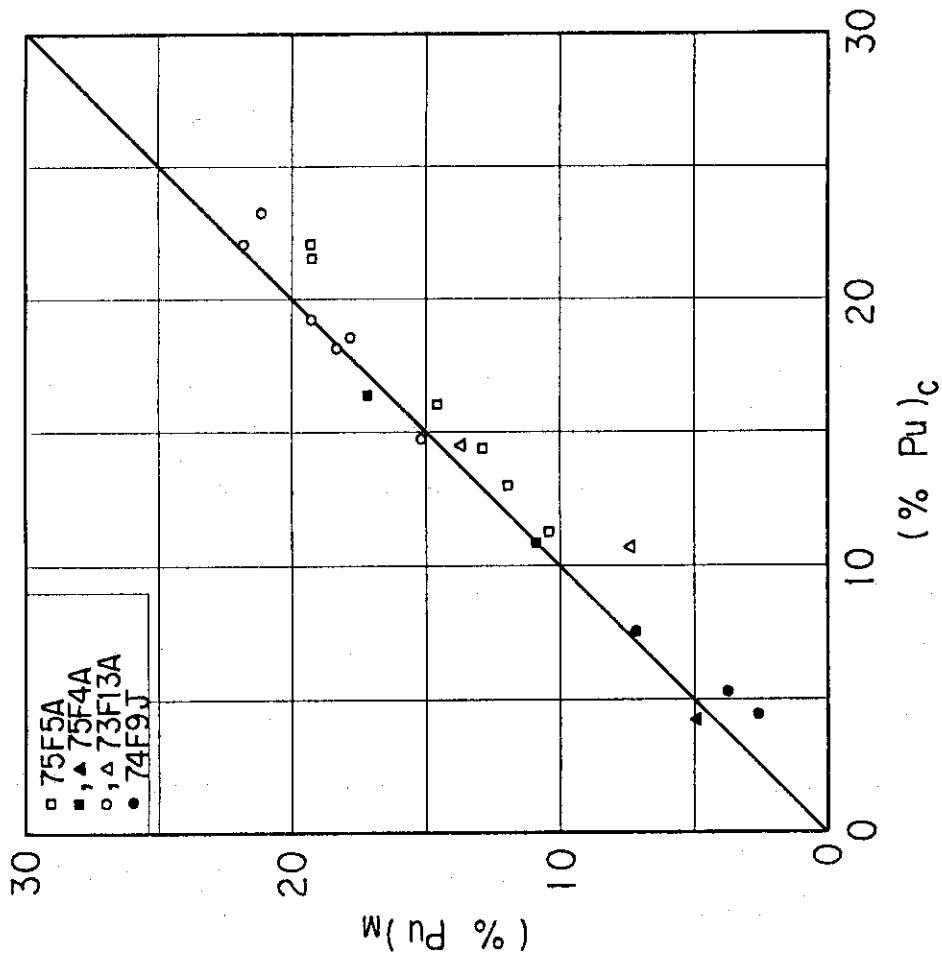


Fig. B1 Comparison between percent fissions in Pu by computer calculation, (%Pu)<sub>c</sub>, and that by simplified manual calculation, (%Pu)<sub>m</sub>.

## 附録 C 軽水炉燃料の燃焼

Fig. C 1 は Yankee 炉 (PWR) 燃料の質量分析結果<sup>(1)</sup>をもとに、燃焼率に占める各アクチノイド核種の寄与を同位体相関法<sup>(2)</sup>によって試算した結果である。同法では、燃焼率は照射前後における、 $U^{235}$ ,  $U^{236}$ ,  $U^{238}$ ,  $Pu^{239}$ ,  $Pu^{240}$ ,  $Pu^{241}$ ,  $Pu^{242}$  の増減をもとに推定される。なお、Fig. C 1 は Vidal ら<sup>(3)</sup>による PWR に対する炉物理的な計算による予測結果と傾向的によく一致している。

本文 Fig. 2 の実線は同図に基づいている。しかし、本文中の解析では無視してあるが、Yankee 炉のデータは  $U^{238}$  自体の核分裂が必ずしも無視できないことを示している。 $Ru^{106}$ ,  $Ce^{144}$  の  $U^{238}$  核分裂収率は、 $U^{235}$  と  $Pu^{239}$  のその中間の値をとる。したがって、生成量が  $U^{235}$  核分裂収率からの予測値と異なる分をすべて  $Pu^{239}$  核分裂の寄与に帰した場合、Pu 核分裂割合を過大評価していることになる。 $Ru^{106}$  と  $Ce^{144}$  の生成量からの Pu 核分裂割合の推定はこの意味で本来的なある不正確さを有していることに留意されたい。

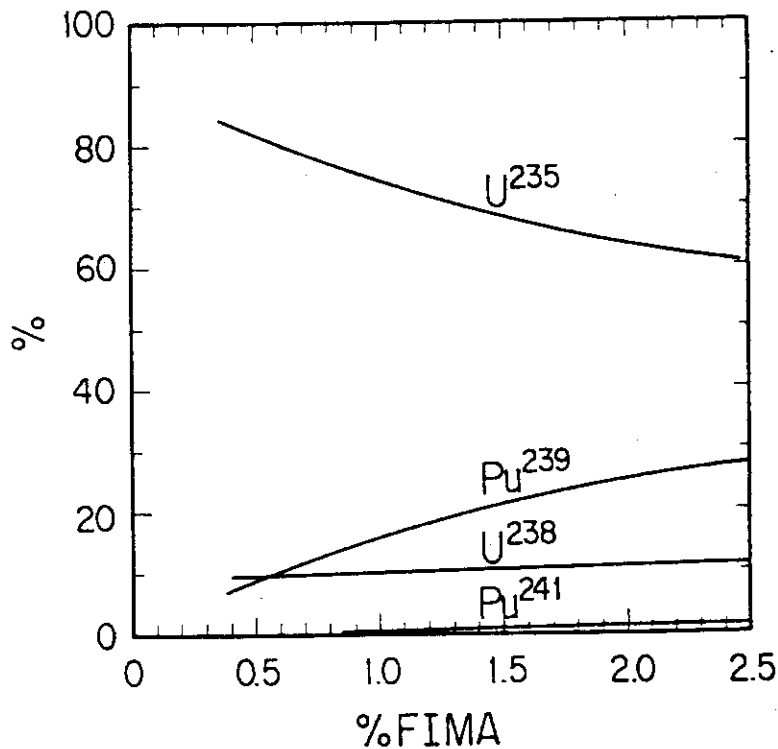


Fig. C1 Isotopic contributions to total burn-up of PWR fuel.

### 参考文献

1. R.J.Nodvik, WCAP-6068 (1965)
2. H.Umezawa and Y.Nakahara, in "Nuclear Safeguards Technology 1982-Vol.I", IAEA, Vienna (1983), p.473
3. R.Vidal et al., in "Behaviour and Chemical State of Irradiated Ceramic Fuels", IAEA, Vienna (1974), p.67.