

J A E R I - M
84-228

燃料中心温度測定実験試料の燃焼度評価

1984年12月

河村 弘・小向 文作・酒井 陽之

川又 一夫・井沢 君江・武石 秀世

伊藤 忠春・桜井 文雄・小山田六郎

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

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。
入手の問合せは、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、このほかに財團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 Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura,
Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1984

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 (株)高野高速印刷

燃料中心温度測定実験試料の燃焼度評価

日本原子力研究所大洗研究所材料試験炉部

河村 弘・小向 文作・酒井 陽之
川又 一夫・井沢君江⁺・武石 秀世⁺
伊藤忠春⁺⁺・桜井 文雄・小山田六郎

(1984年11月29日受理)

軽水炉燃料の安全性研究のために実施した実験で得た照射中のデータを補完し、さらに詳しく照射挙動を解析する上で、照射後試験によるF Pガス分析、XMA観察、燃焼度測定等が重要になる。それらの試験結果の内、燃焼度は、燃料物性の評価上、特に重要な因子である。

本研究では、J M T Rでの燃料中心温度測定実験で用いた燃料棒から切断採取したUO₂ペレット片について γ 線スペクトル測定と化学分析（試料UO₂ペレット片を溶解した後、U量及び¹³⁷Cs量を定量し、燃焼度を算出すること）を行ない、各々から得た¹³⁴Cs/¹³⁷Cs比と燃焼度との相関を調べた。その結果、両者が±7%の標準偏差内で直線相関していることを明らかにし、両者の相関式を求めた。また、上記 γ 線スペクトル測定により求めたF P核種の放射能と、燃焼計算コードORIGENにより求めたF P核種の放射能とが、¹⁴⁴Ceを除いて±10%の誤差範囲内で一致していることを確認した。

⁺ 東海研究所原子炉化学部

⁺⁺ 東海研究所研究炉管理部

Burn-up Evaluation of the Fuel Rods used at the Fuel
Centerline Temperature Measuring Experiment

Hiroshi KAWAMURA, Bunsaku KOMUKAI, Haruyuki SAKAI,
Kazuo KAWAMATA, Kimie IZAWA⁺, Hideyo TAKEISHI⁺,
Tadaharu ITO⁺², Fumio SAKURAI and Rokuro OYAMADA

Department of JMTR Project
Oarai Research Establishment, JAERI

(Received November 29, 1984)

The post-irradiation examinations are important for analyzing the irradiation behavior in detail and reinforcing the data under the irradiation. Among the results of the post-irradiation examinations, the burnup is especially important to be evaluated for investigating the change of the fuel properties by the irradiation.

In this work, the measurement of γ -ray spectrum and the chemical analysis of the UO_2 pellet pieces taken from the fuel rods which had been irradiated in JMTR were performed, and the correlation between the $^{134}Cs/^{137}Cs$ ratio and the burnup was obtained. It was confirmed $^{134}Cs/^{137}Cs$ ratio and the burnup showed a linear relation with the standard variations of less than $\pm 7\%$, and this correlation could be formulated. It was shown, in addition, that the activity of the fission products calculated by the ORIGEN code agrees with the results of the γ -ray spectrum measurement within the error of less than $\pm 10\%$.

Keywords: Burn-up, LWR, ORIGEN Code, $^{134}Cs/^{137}Cs$ Ratio, JMTR, γ -ray Spectrum, FP

+ Department of Chemistry, Tokai Research Establishment

+2 Department of Research Reactor Operation, Tokai Research Establishment

目 次

1. 序論.....	1
2. 実験と結果.....	4
2.1 試料.....	4
2.2 燃料棒の γ スキャニング.....	9
2.3 マイクロ γ スキャニングと γ 線スペクトル測定.....	18
2.4 燃焼度評価用UO ₂ ペレット片の γ 線スペクトル測定.....	27
2.5 化学分析による燃焼度評価.....	37
3. 考察.....	40
3.1 燃焼度評価用UO ₂ ペレット片の γ 線スペクトル測定結果と化学分析結果の相関.....	40
3.2 燃焼計算によるUO ₂ ペレット片中のFP生成量評価.....	43
4. 結論.....	58
5. あとがき.....	59
謝辞.....	59
参考文献.....	60

CONTENTS

1. Introduction	1
2. Experiment and Result	4
2.1 Irradiation fuels used in this burnup evaluation	4
2.2 γ scanning of the fuel rods	9
2.3 Micro- γ scanning and γ -ray spectrum measurement of the horizontal section fuels	18
2.4 γ -ray spectrum measurement of the UO_2 pellet pieces to evaluate the burnup	27
2.5 Burn-up evaluation by the chemical analysis	37
3. Discussion	40
3.1 Correlation between the results of the γ -ray spectrum measurement and the results of the chemical analysis	40
3.2 FP production estimate in the UO_2 pellet pieces by the burnup calculation (ORIGEN code)	43
4. Conclusion	58
5. Concluding Remarks	59
Acknowledgements	59
References	60

Table Contents

- Table 1 Summary for the fuel centerline temperature measuring experiments
- Table 2 Setting condition of the γ -ray spectrum measuring instrument
- Table 3 Dose rate of the UO_2 pellet pieces (Rod. 1)
- Table 4 Dose rate of the UO_2 pellet pieces (Rod. 2)
- Table 5 Dose rate of the UO_2 pellet pieces (Rod. 3)
- Table 6 Dose rate of the UO_2 pellet pieces (Rod. 4)
- Table 7 FP nuclides of the UO_2 pellet pieces at the sampling position S_1 (Rod. 1)
- Table 8 FP nuclides of the UO_2 pellet pieces at the sampling position S_2 (Rod. 1)
- Table 9 FP nuclides of the UO_2 pellet pieces at the sampling position S_1 (Rod. 2)
- Table 10 FP nuclides of the UO_2 pellet pieces at the sampling position S_2 (Rod. 2)
- Table 11 FP nuclides of the UO_2 pellet pieces at the sampling position S_1 (Rod. 3)
- Table 12 FP nuclides of the UO_2 pellet pieces at the sampling position S_2 (Rod. 3)
- Table 13 FP nuclides of the UO_2 pellet pieces at the sampling position S_1 (Rod. 4)
- Table 14 FP nuclides of the UO_2 pellet pieces at the sampling position S_2 (Rod. 4)
- Table 15 Chemical Analysis results of the UO_2 pellet pieces (Rod. 1)
- Table 16 Chemical Analysis results of the UO_2 pellet pieces (Rod. 2)
- Table 17 Chemical Analysis results of the UO_2 pellet pieces (Rod. 3)
- Table 18 Chemical Analysis results of the UO_2 pellet pieces (Rod. 4)
- Table 19 Determination of ^{137}Cs ($\mu\text{Ci}/\text{Umg}$) and $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio in the UO_2 pellet pieces (Rod. 1)
- Table 20 Determination of ^{137}Cs ($\mu\text{Ci}/\text{Umg}$) and $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio in the UO_2 pellet pieces (Rod. 2)
- Table 21 Determination of ^{137}Cs ($\mu\text{Ci}/\text{Umg}$) and $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio in the UO_2 pellet pieces (Rod. 3)
- Table 22 Determination of ^{137}Cs ($\mu\text{Ci}/\text{Umg}$) and $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio in the UO_2 pellet pieces (Rod. 4)
- Table 23 Heat generation ratio (F_H)

- Table 24 Axial thermal neutron flux distribution factor (F_Z)
Table 25 Neutron Flux and Neutron Spectrum at the irradiation position
Table 26 Comparison between the γ -ray spectrum measurement results and
the calculation results
Table 27 Degree of the coincidence between the γ -ray spectrum measurement
results and the calculation results

Figure Contents

- Fig. 1 Division of the burn-up evaluation works
- Fig. 2 JMTR Core
- Fig. 3 Cut-away view of the instrumented fuel assembly (77LF-33J)
- Fig. 4 UO₂ pellet pieces sampling position for the burn-up evaluation
- Fig. 5 Fuel centerline temperature history about the sampling position S₁ (Rod. 1)
- Fig. 6 Fuel centerline temperature history about the sampling position S₁ (Rod. 2)
- Fig. 7 Fuel centerline temperature history about the sampling position S₁ (Rod. 3)
- Fig. 8 Fuel centerline temperature history about the sampling position S₁ (Rod. 4)
- Fig. 9 Axial γ scan system for the fuel rods
- Fig. 10 Axial γ scan for Rod. 1 (Gross γ -ray)
- Fig. 11 Axial γ scan for Rod. 2 (Gross γ -ray)
- Fig. 12 Axial γ scan for Rod. 3 (Gross γ -ray)
- Fig. 13 Axial γ scan for Rod. 4 (Gross γ -ray)
- Fig. 14 Axial γ scan for Rod. 1 (⁹⁵Zr-⁹⁵Nb γ -ray)
- Fig. 15 Axial γ scan for Rod. 2 (⁹⁵Zr-⁹⁵Nb γ -ray)
- Fig. 16 Axial γ scan for Rod. 3 (⁹⁵Zr-⁹⁵Nb γ -ray)
- Fig. 17 Axial γ scan for Rod. 4 (⁹⁵Zr-⁹⁵Nb γ -ray)
- Fig. 18 Sampling position of the specimens used for the micro- γ scan and γ -ray spectrum measurement
- Fig. 19 System for the radial micro- γ scan and γ -ray spectrum measurement
- Fig. 20 Metallograph of the micro- γ scan samples (A, B: scan direction)
- Fig. 21 Radial micro- γ scan for Rod. 1 (a)-A (Gross γ -ray, ⁹⁵Zr-⁹⁵Nb γ -ray, ¹³⁷Cs γ -ray)
- Fig. 22 Radial micro- γ scan for Rod. 1 (a)-B (Gross γ -ray, ¹³⁷Cs γ -ray)
- Fig. 23 Radial micro- γ scan for Rod. 1 (b)-A (Gross γ -ray, ⁹⁵Zr-⁹⁵Nb γ -ray, ¹³⁷Cs γ -ray)
- Fig. 24 Radial micro- γ scan for Rod. 1 (b)-B (Gross γ -ray, ⁹⁵Zr-⁹⁵Nb γ -ray, ¹³⁷Cs γ -ray)
- Fig. 25 γ -ray spectrum measurement of Rod. 1 (a) sample
- Fig. 26 γ -ray spectrum measurement system of the UO₂ pellet pieces
- Fig. 27 γ -ray spectrum example of the UO₂ pellet pieces
- Fig. 28 Flow chart of the chemical analysis

- Fig. 29 Relation between the ^{137}Cs and the burnup
Fig. 30 Relation between the $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio and the burnup
Fig. 31 Product process of the nuclide obtained by the γ -ray spectrum measurement
Fig. 32 Burnup calculation process
Fig. 33 Irradiation history of 77LF-33J assembly
Fig. 34 Neutron Depression in the UO_2 pellet
Fig. 35 Relation between the $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio obtained by the calculation and the burnup
Fig. 36 Correcting Factor of $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio

1. 序論

軽水炉燃料の安全性研究のために、材料試験炉（Japan Materials Testing Reactor : J M T R）¹⁾を用いた照射実験が盛んに行なわれている。これらの実験で用いる照射試料（UO₂燃料棒）には各種の計装品が取付けられており、照射中の燃料中心温度、燃料棒内圧、燃料棒伸び等のデータが得られるようになっている。それらのデータを補完し、さらに詳しく照射挙動（特に照射による燃料物性等の変化）を解析する上で、照射後試験が重要になってくる。照射後試験には、寸法測定、X線写真撮影、F Pガス分析、直径ギャップ測定、金相試験、XMA観察、燃焼度測定等がある。特に、燃焼度は、燃料物性の評価上、重要な因子であり、燃焼度を正確に把握しない限り、試験結果の厳密な解析は不可能である。

上記の観点から、今回は、J M T Rの水ループOWL-1で実施した燃料中心温度測定実験で用いた燃料棒について燃焼度測定を試みた。燃料中心温度測定実験は、第1次から第3次に亘って実施したシリーズ実験であり、今回の燃焼度評価に用いた試料は、第1次実験で用いた77LF-33J集合体を構成する4本の燃料棒から切断採取したUO₂ペレット片である。なお、燃料中心温度測定実験試料の概要をTable 1に示す。

燃焼度の測定方法としては、試料のUO₂ペレット片を溶解した後、U量及び¹³⁷Cs量を定量し、燃焼度を算出する方法（以下、化学分析法と称す）と γ 線スペクトル測定法がある。化学分析法によると、試料を溶解するため、試料組成を均一化できるが、操作に長期間を要する。他方、 γ 線スペクトル測定法は化学分析法と比較して簡便であるが、測定試料による γ 線のセルフシールディング効果等のため、測定精度が不十分である。従って、本研究では、試料の一部について化学分析と γ 線スペクトル測定の両法を行ない、その結果から前者と後者の相関関係を求め、その係数を用いて他の試料の γ 線スペクトル測定の結果を校正することとした。

本燃焼度評価の目的は、次の3つである。

- ① 燃料中心温度測定実験に用いた燃料棒の燃焼度を実測すること。
- ② J M T Rで照射されている他の軽水炉燃料の燃焼度評価に利用可能なデータ入手すること。^{14), 15)}
- ③ 今回得た結果を用いて燃焼計算コードORIGENの検証を行なうこと。

なお、本燃焼度評価のために必要な作業は、化学分析、非破壊検査など多種広範な分野に跨ったものであるため、大洗研究所・ホットラボ課（以下、大洗研H・Lと称す）、東海研究所・分析センター及び東海研究所・ホットラボ管理室（以下、東海研H・Lと称す）の協力を得て、Fig.1に示す作業分担により実施したことを探記しておく。

Table 1 Summary for the fuel centerline
temperature measuring experiments

Item \ Assembly No.	77LF - 33J				78LF - 35J			79LF - 39J				
Fuel Rod Number	1	2	3	4	1	2	3	1	2	3		
Irradiation Schedule	S.54.11.12~S.55.2.10 (48~49 cycle)				S.56.9.24 ~ S.57.2.13 (55~57 cycle)			S.57.3.13~58.6.22 (58~63 cycle)				
Pellet - Cladding Diametral Gap (μm)	100 200 300 400				200			200				
Cladding Material	Normal				Normal	with Cu barrier	with Zr Liner	Normal				
Gap Gas Component	He 100 %				He 100 %			He 75%He20%				
100%Xe25%Xe80%								2.3				
235U Enrichment (w/o)	1.5				1.5							
Thermocouple for Fuel Centerline Temperature	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○		
Fuel Rod Elongation Detector	○				○	○	○	○	○	○		
FP Gas Pressure Gauge			○					○				
SPND	Emitter Rh	○	○	○	○	○	○	○	○	○		
	Emitter Co							○	○	○		
UO ₂ Pellet	L / D	1.03	1.04	1.05	1.06	1.04			1.04			
	Density	95 % T.D										
	O/U Ratio	2.005			2.009			2.01				
	Pellet Shape	Flat										

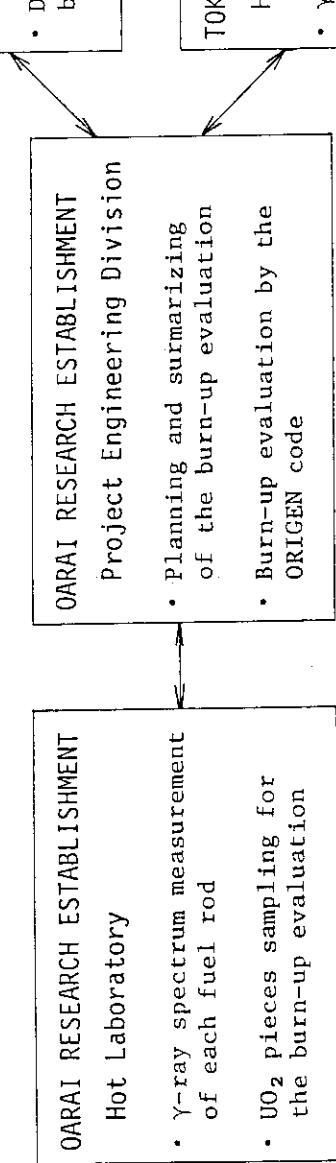


Fig. 1 Division of the burn-up evaluation works

2. 実験と結果

2.1 試料

γ 線スペクトル測定及び化学分析用試料は、JMTRの水ループOWL-1で実施した第1次燃料中心温度測定実験に用いた4本の燃料棒から切断採取した。JMTRの炉心図をFig.2に、また上記燃料棒は集合体形状で照射されたため、その集合体(77LF-33J)鳥瞰図をFig.3に示す。なお、4本の燃料棒の切断採取位置S₁の近傍(Fig.4)の燃料中心温度履歴をFig.5～Fig.8に示す。

これらの燃料棒の軸方向上下2カ所から約 $\phi 12.5\text{ mm} \times t 10\text{ mm}$ の被覆管付きUO₂ペレットを切断採取した。そのUO₂ペレットに対して、表面及び内面各々3カ所から1辺2mm～3mmの立方体形状UO₂ペレット片を切断採取し、試料とした。試料の採取手順をFig.4に示す。

なお、金相試験用試料として別途採取したUO₂ペレット(Fig.20参照)もUO₂ペレット径方向のマクロな燃焼履歴評価のために用いた。

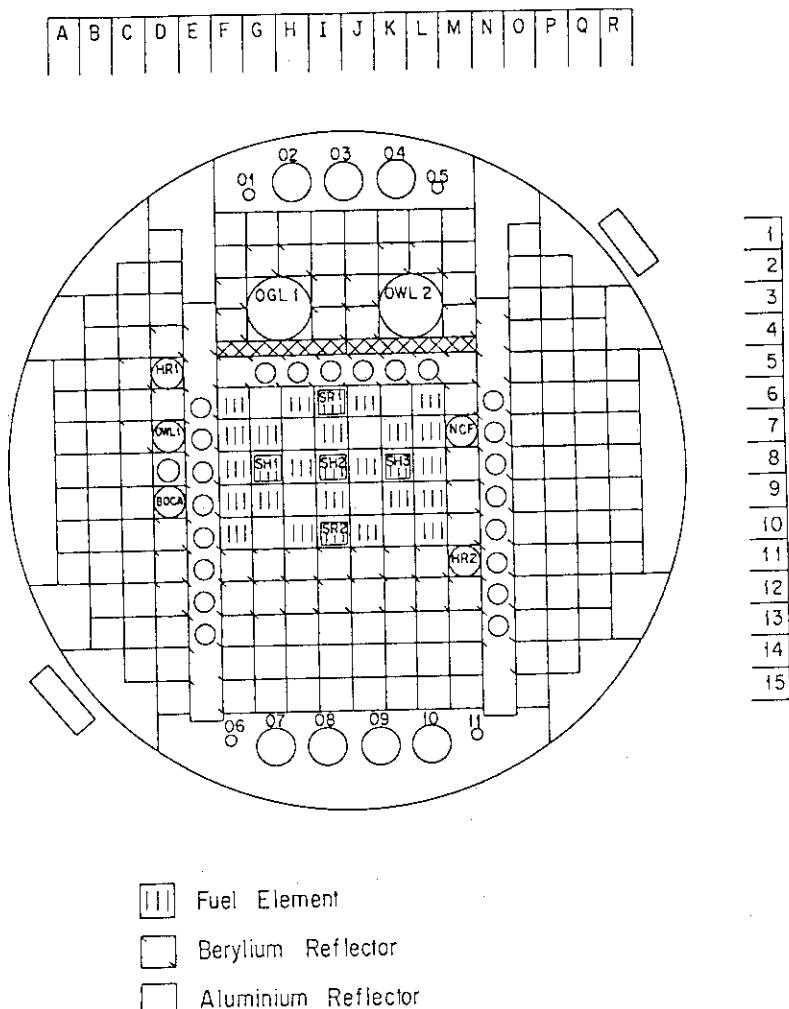


Fig. 2 JMTR Core

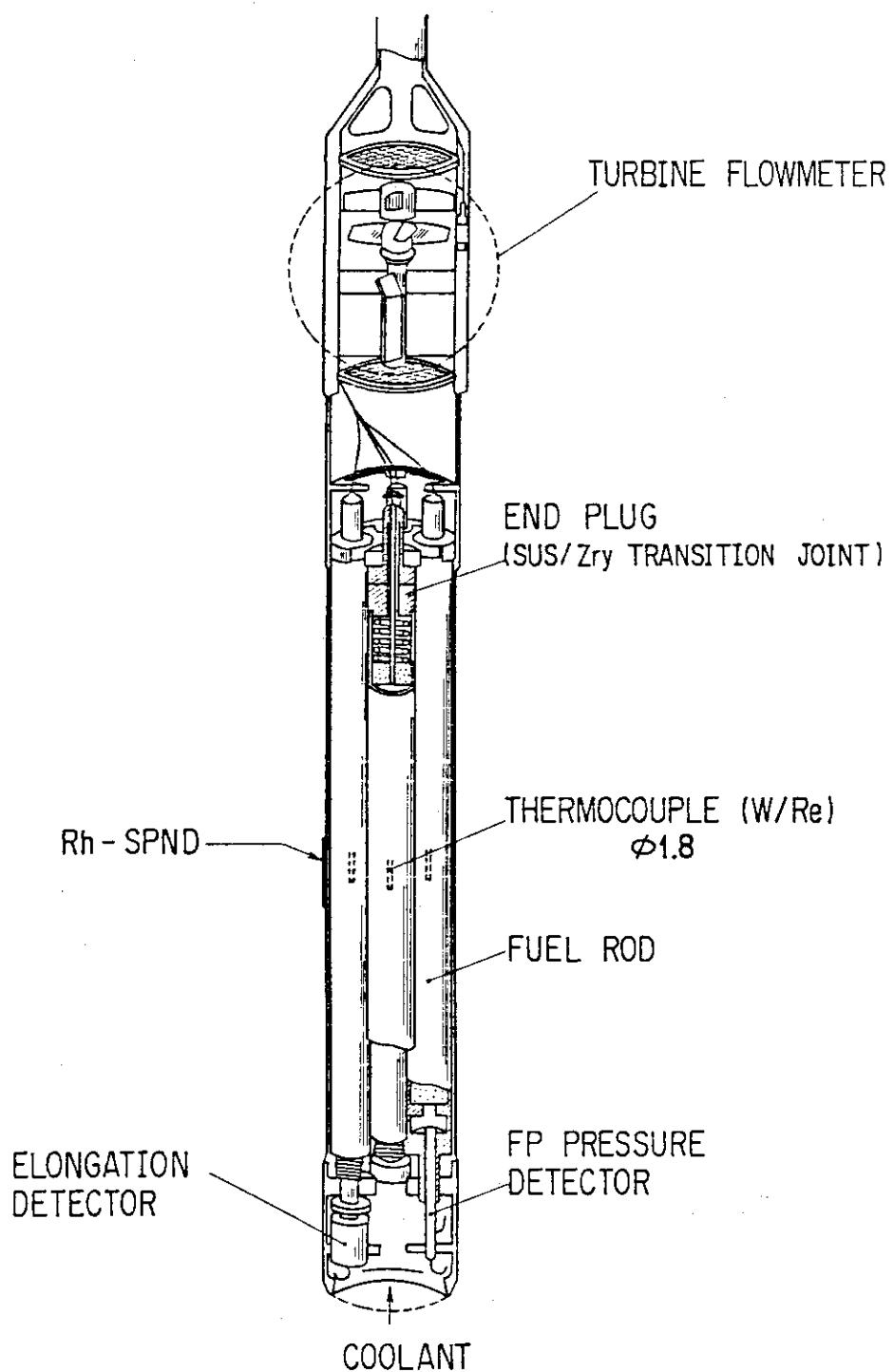
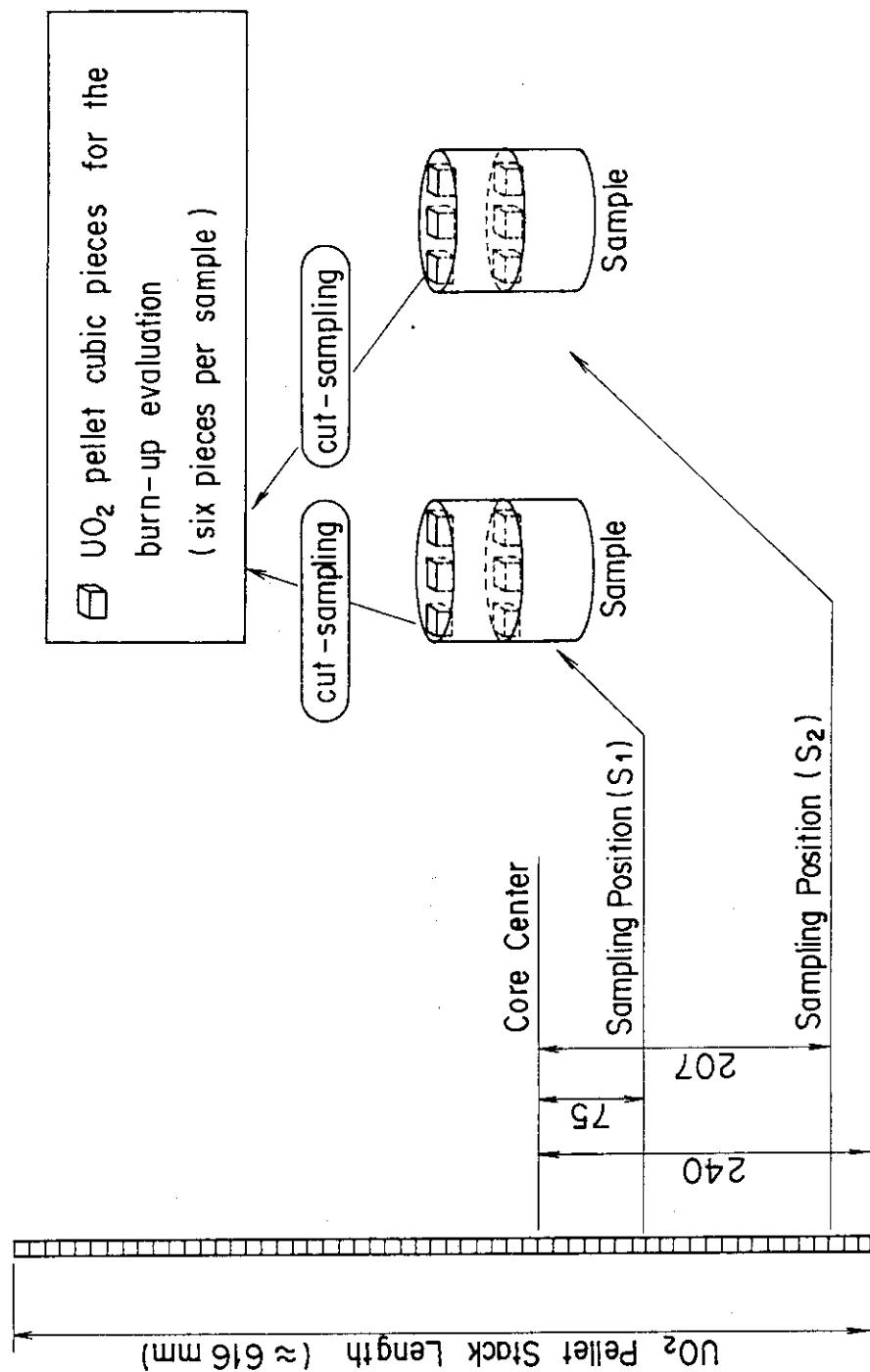


Fig. 3 Cut-away view of the instrumented fuel assembly (77LF-33J)

Fig. 4 UO_2 pellet pieces sampling position for the burn-up evaluation

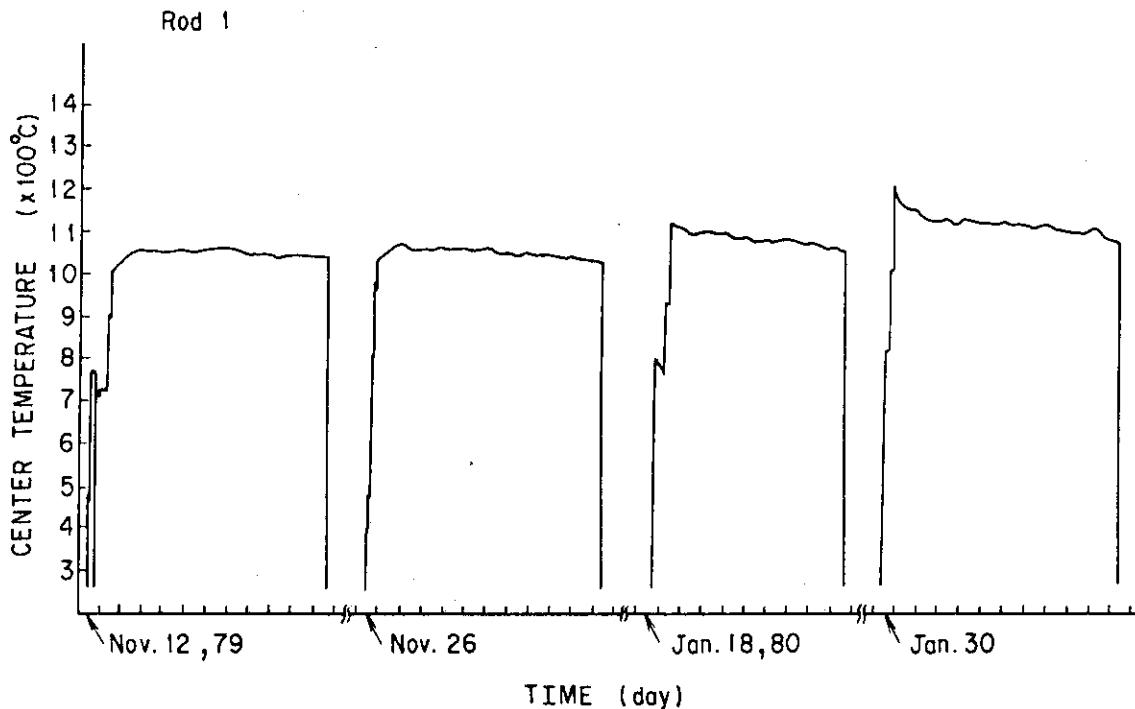


Fig. 5 Fuel centerline temperature history about the sampling position S_1 (Rod. 1)

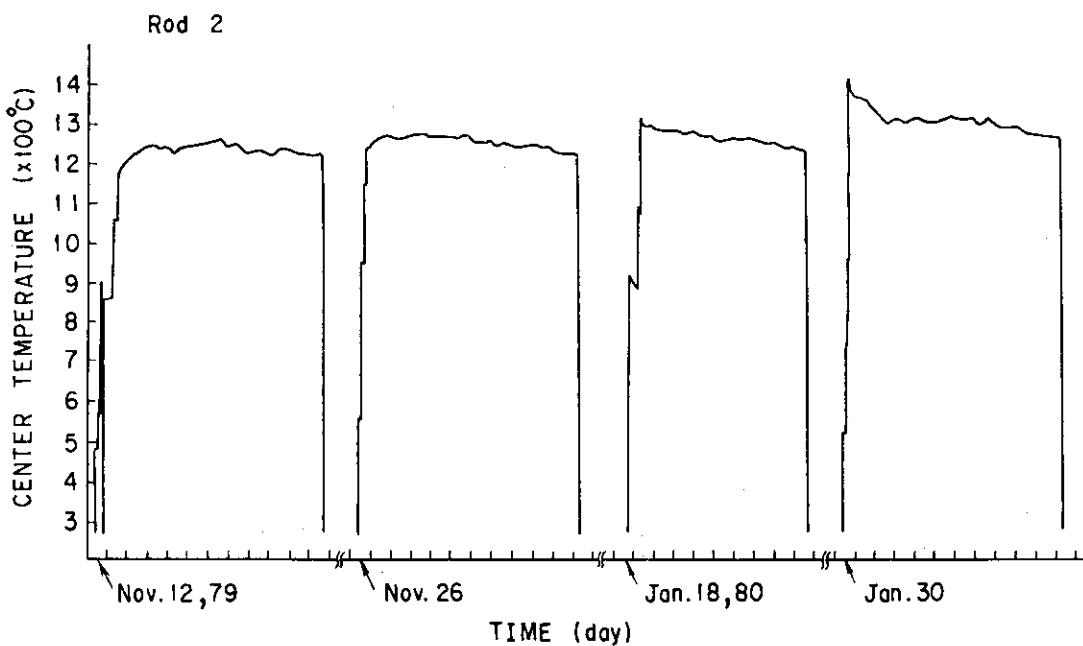


Fig. 6 Fuel centerline temperature history about the sampling position S_1 (Rod. 2)

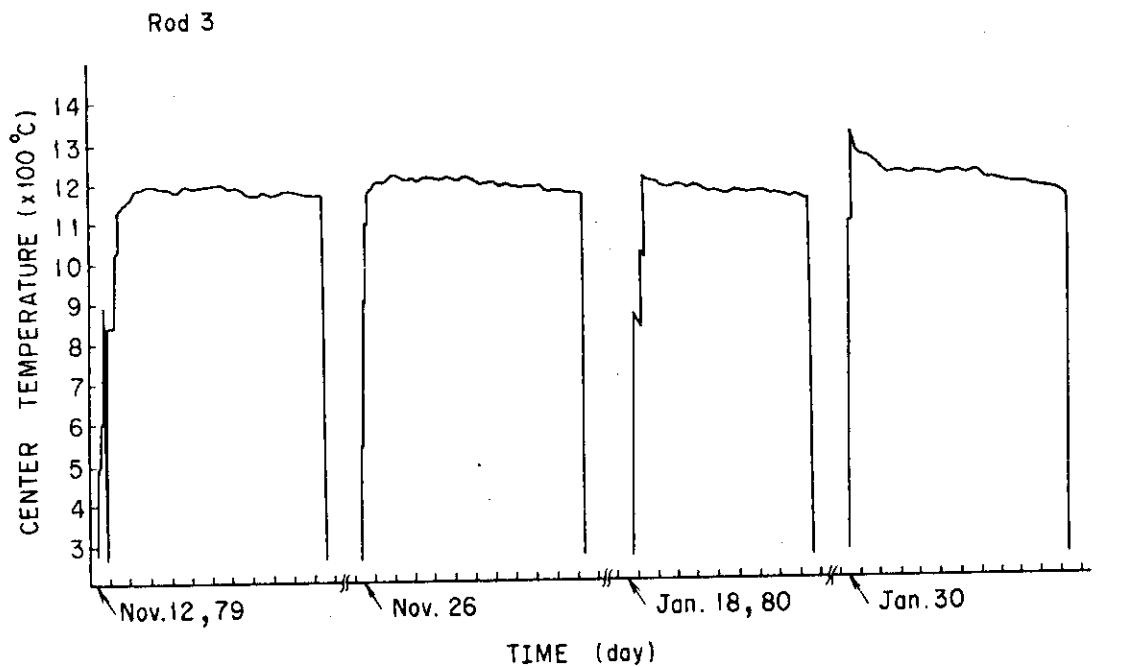


Fig. 7 Fuel centerline temperature history about
the sampling position S₁ (Rod. 3)

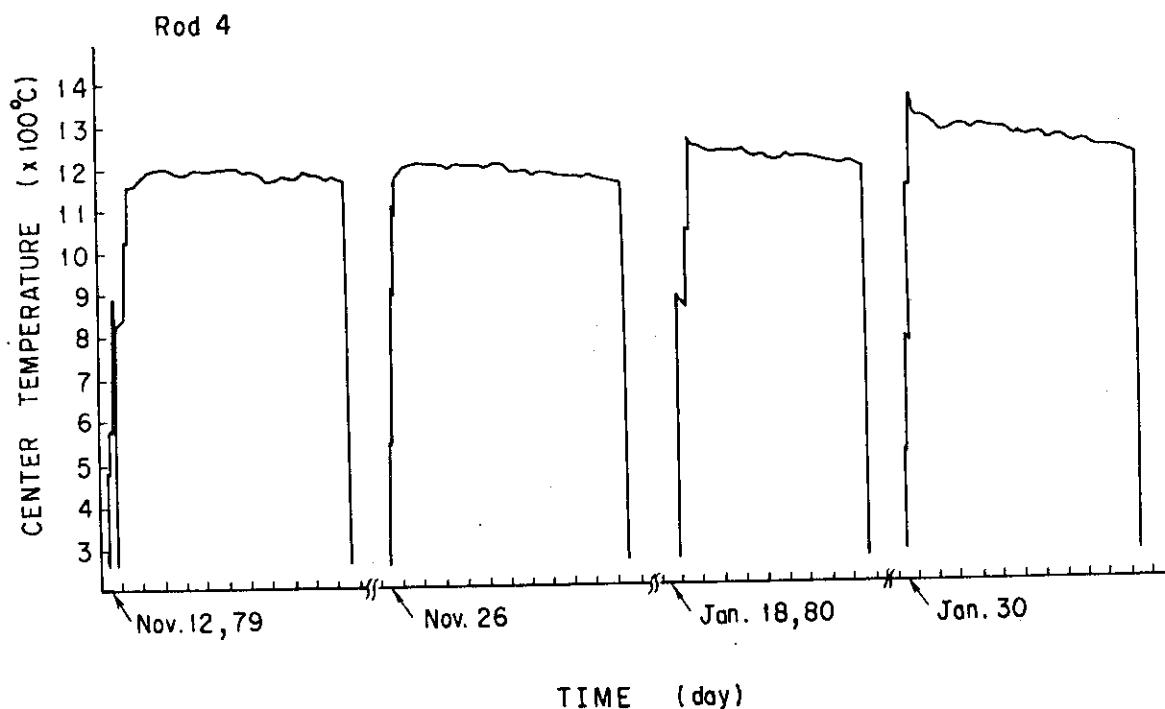


Fig. 8 Fuel centerline temperature history about
the sampling position S₁ (Rod. 4)

2.2 燃料棒の γ スキャニング

4本の燃料棒から成る集合体の総発熱量に対する各燃料棒の発熱量評価に必要な出力分担比 (F_H) 及び燃焼度測定用 UO_2 ペレット片のサンプリング位置における単位長さ当たりの発熱量 (W/cm) 評価に必要な軸方向出力分布係数 (F_Z) を求めるために、各燃料棒の全長にわたってグロスマ γ 線と $^{95}Zr-Nb$ γ 線の強度をNaI検出器を用いて非破壊により測定した（於大洗研H・L）。

γ スキャニング測定系の構成をFig.9に示す。燃料棒は、試料駆動装置により軸方向に5～250 mm/minの速度で移動する。 γ 線計測には、遮蔽壁内に据付けられた鉛あるいはタンクステン製のコリメータ (ϕ 0.3～ ϕ 1.5の孔及び幅0.2～1.0 mmのスリット) を併用した。得た γ スキャニング結果をFig.10～17に示す。

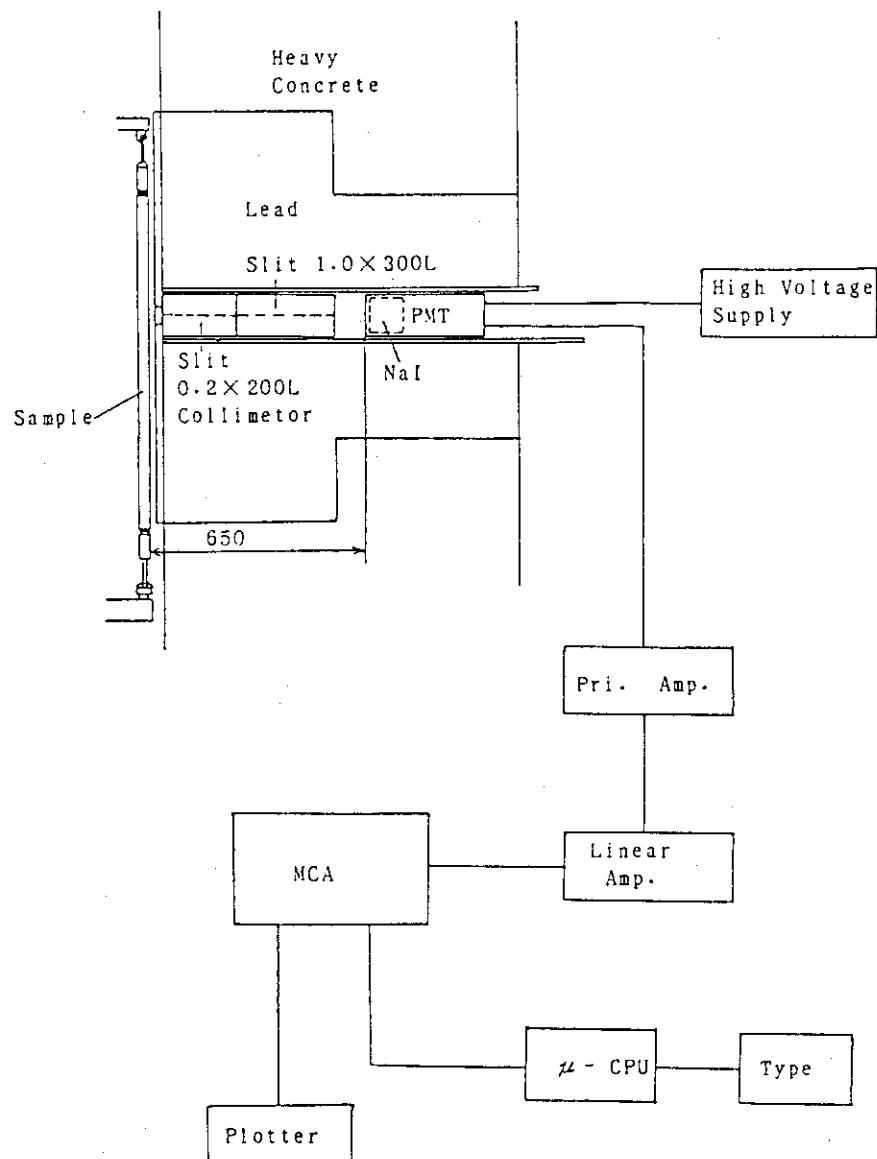
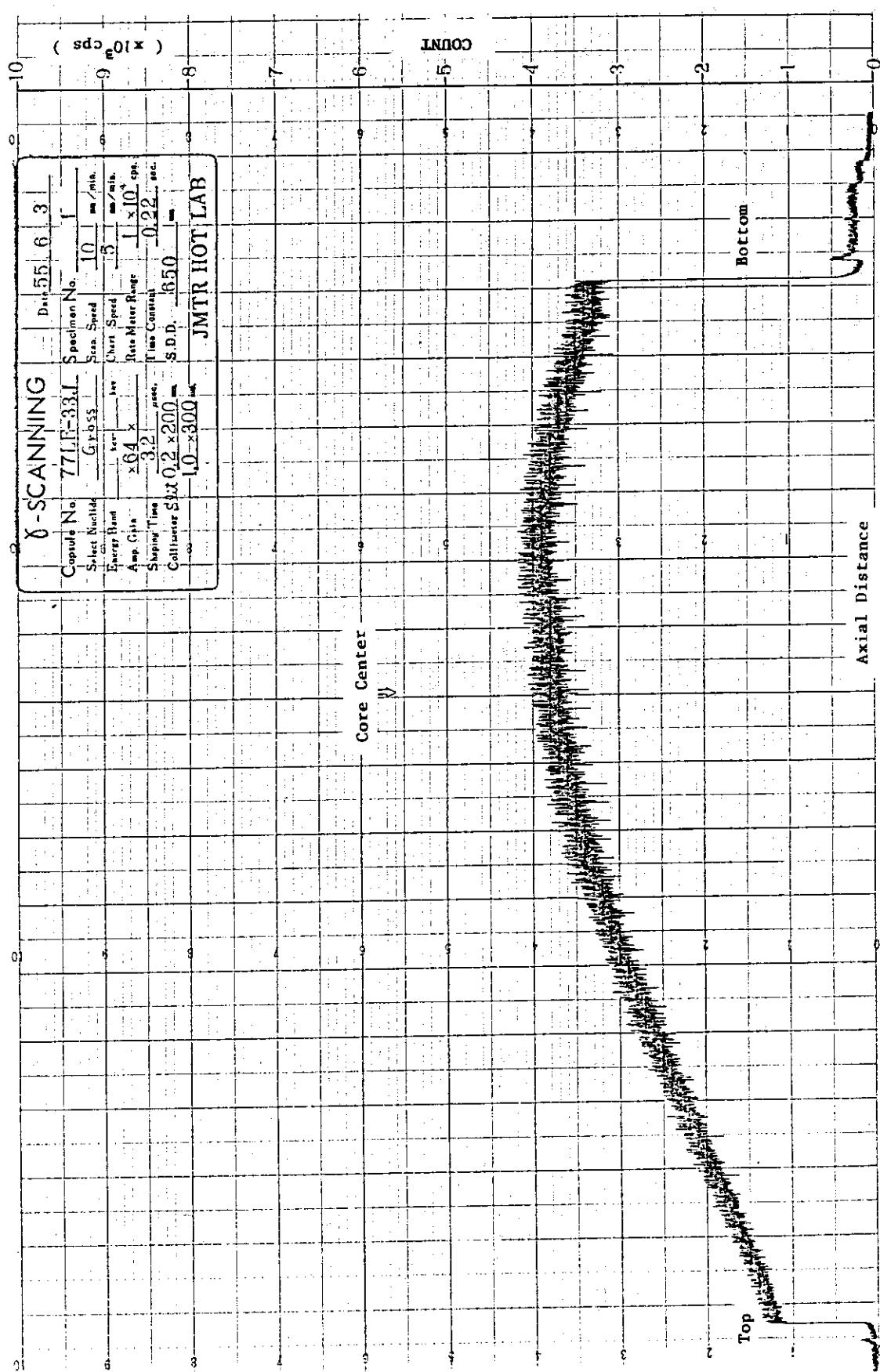


Fig. 9 Axial γ scan system for the fuel rod

Fig. 10 Axial γ scan for Rod. 1 (Gross γ -ray)

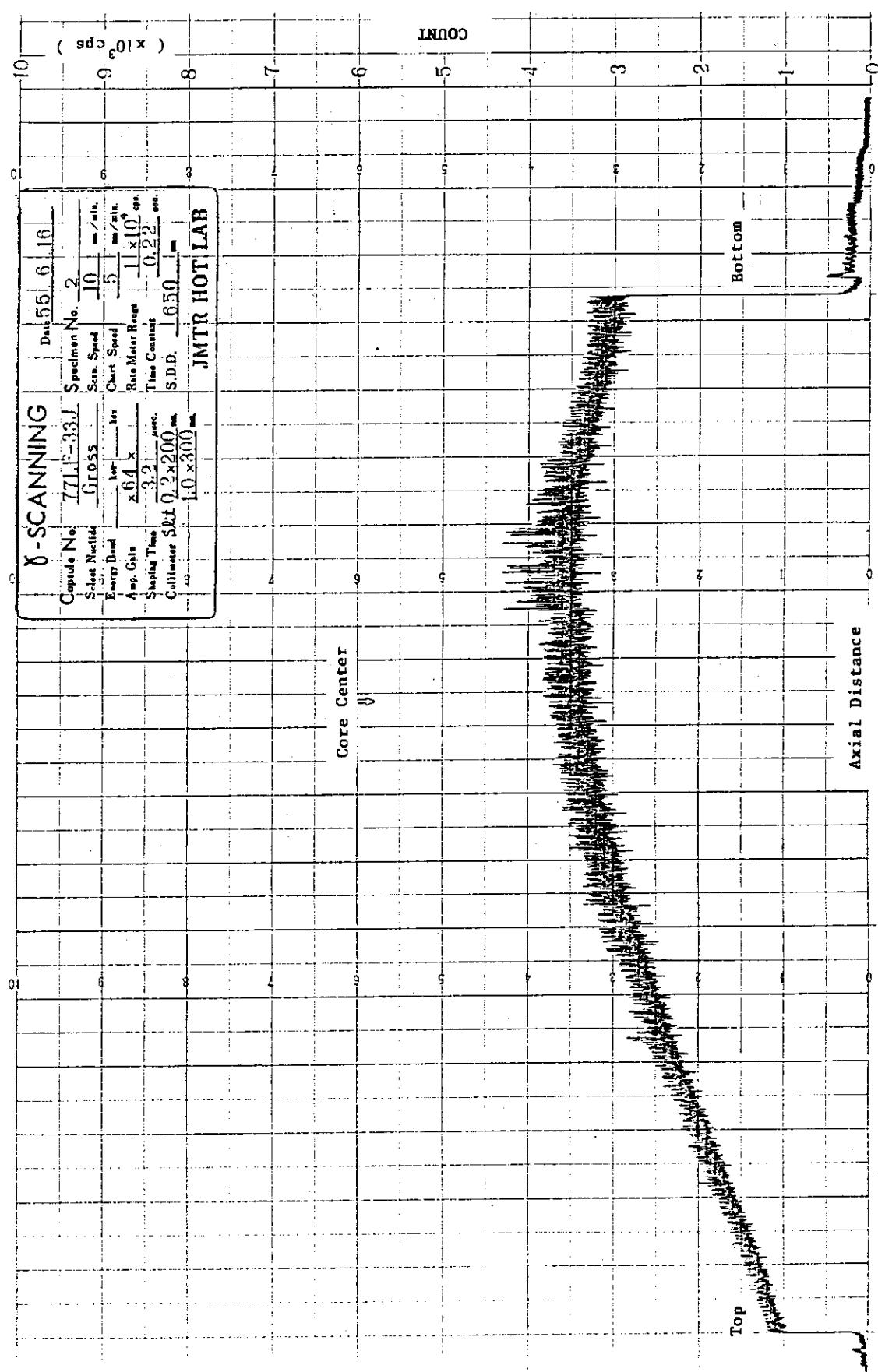
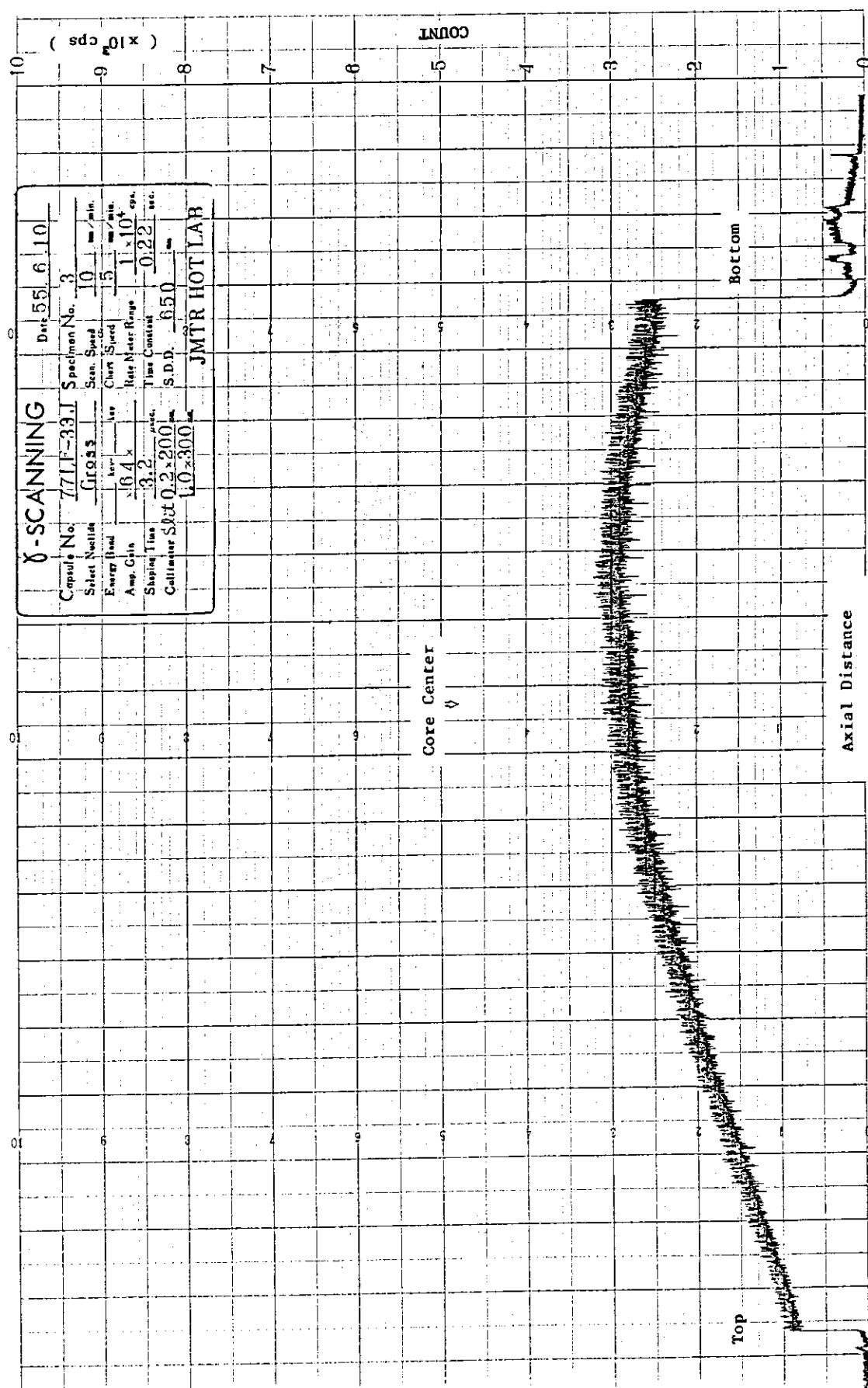
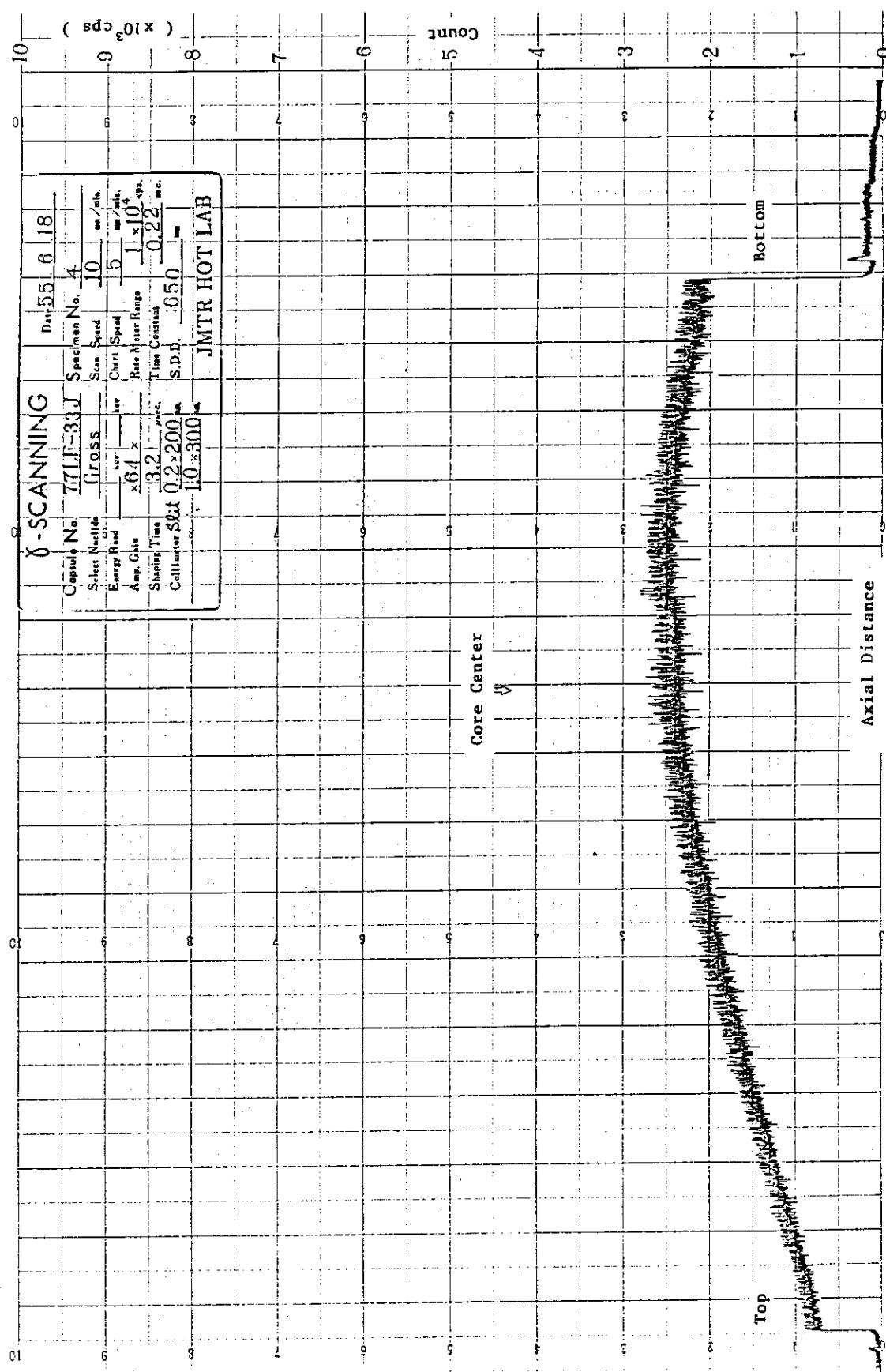
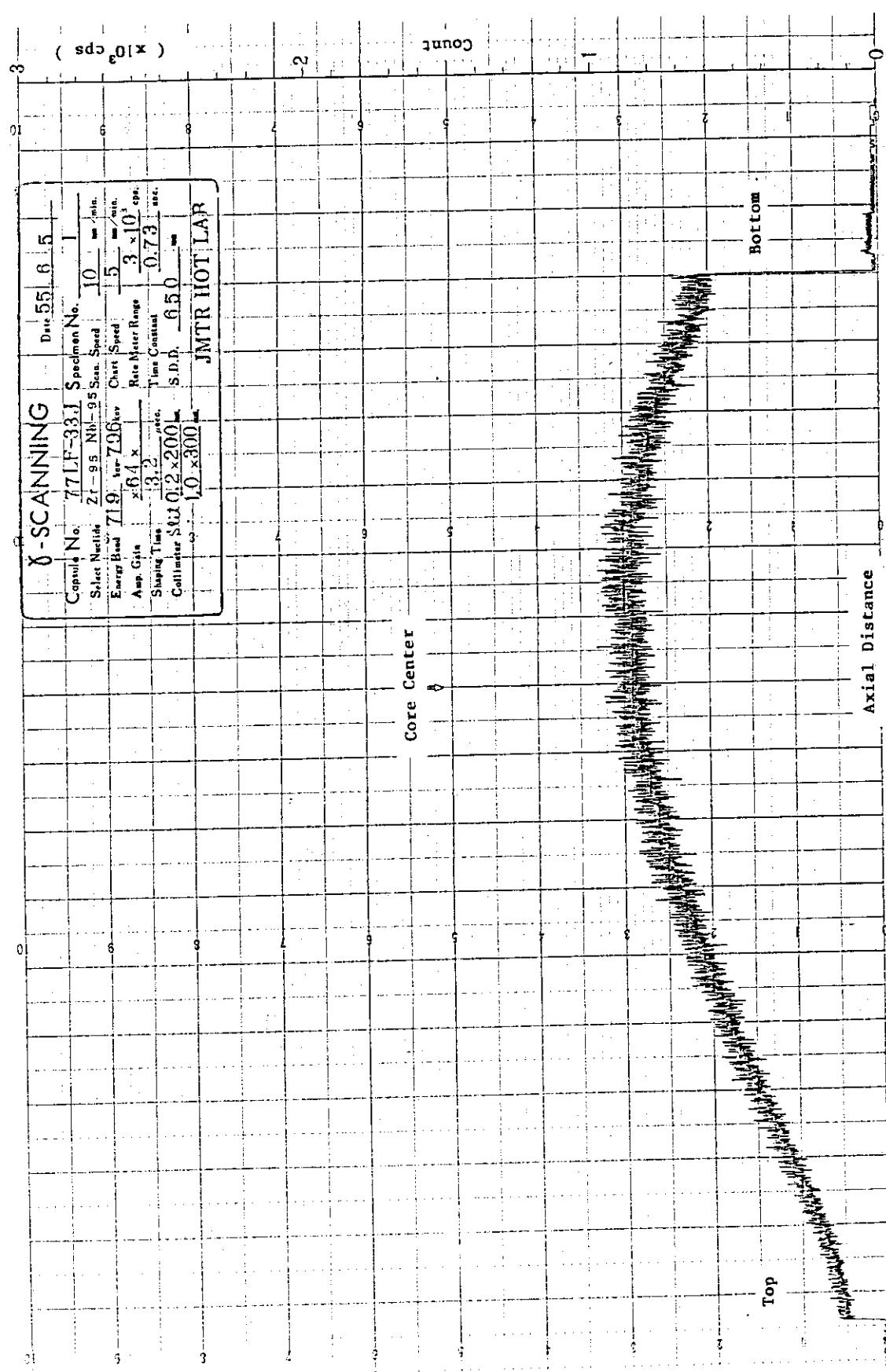
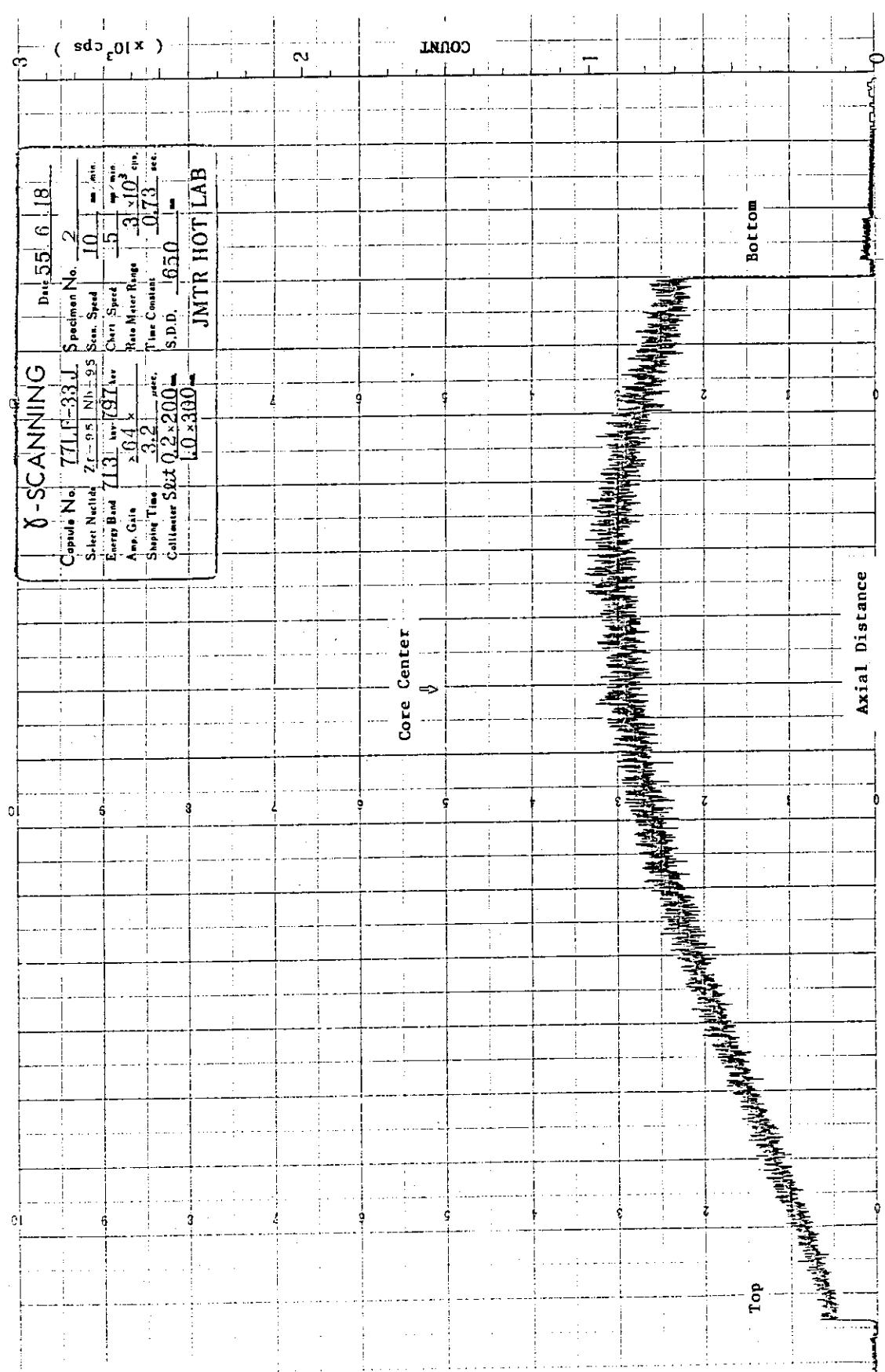


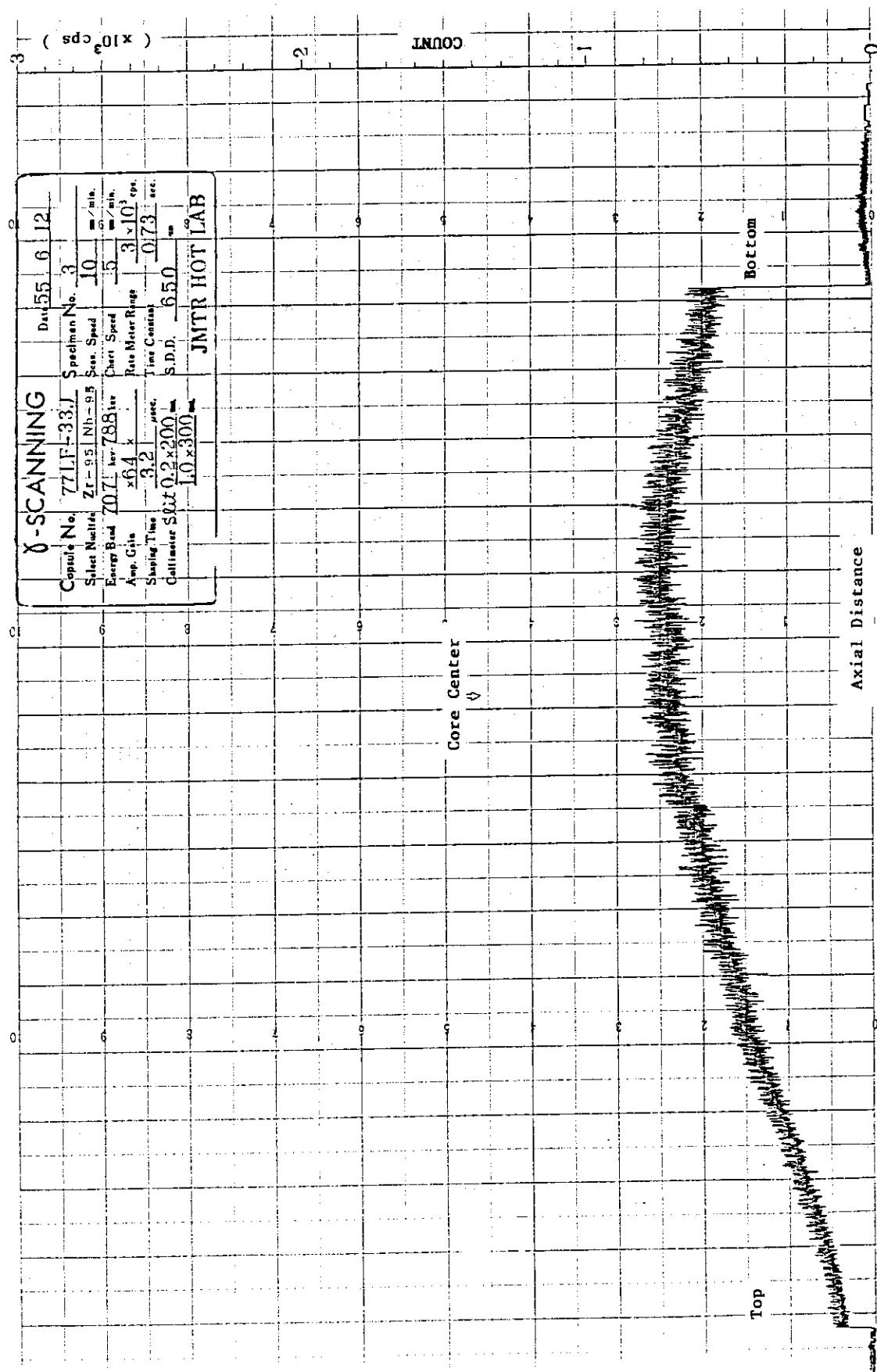
Fig. 11 Axial γ scan for Rod. 2 (Gross γ-ray)

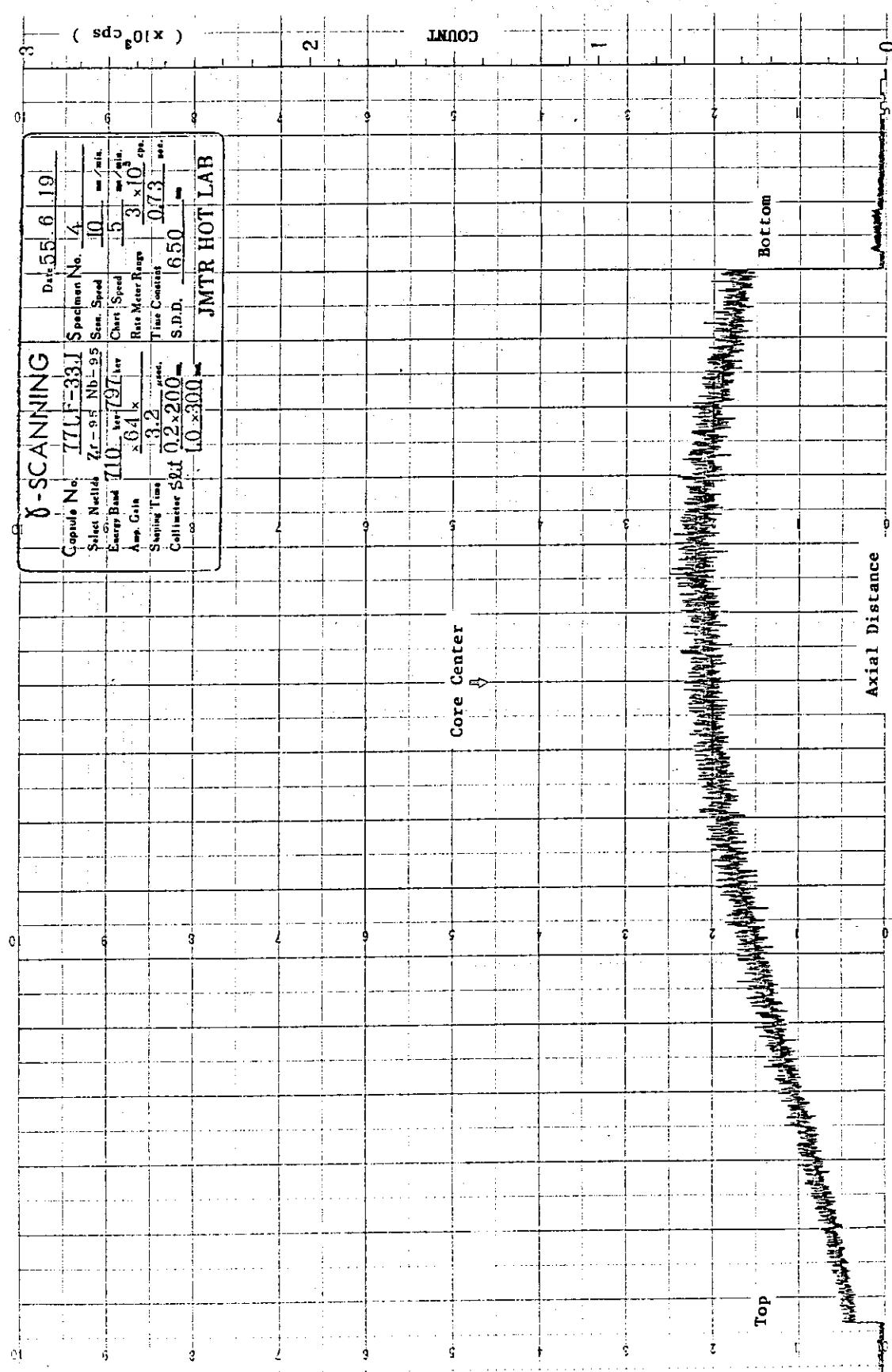
Fig. 12 Axial γ scan for Rod. 3 (Gross γ -ray)

Fig. 13 Axial γ scan for Rod. 4 (Gross γ -ray)

Fig. 14 Axial γ scan for Rod. 1 ($^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ γ -ray)

Fig. 15 Axial γ scan for Rod. 2 ($^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ γ-ray)

Fig. 16 Axial γ scan for Rod. 3 ($^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ γ -ray)

Fig. 17 Axial γ scan for Rod. 4 (⁹⁵Zr-⁹⁵Nb γ-ray)

2.3 マイクロ γ スキャンニングと γ 線スペクトル測定

測定試料として、77LF-33J集合体中のNo.1燃料棒（Rod. 1）から採取した2個の横断面試料を用いた。その採取位置をFig.18に示す。これら2個の試料についてマイクロ γ スキャンニングを実施するとともに、その内の1個の試料については合せて γ 線スペクトル測定も実施した（於大洗研H・L）。

マイクロ γ スキャンニング及び γ 線スペクトル測定系の構成をFig.19に示す。用いた試料は、2.2節で述べた燃料棒の軸方向 γ スキャンニングにより、最も γ 線強度が強い位置（Fig.4のS₁位置に相当する）から採取し、金相用試料として樹脂に埋込み、表面をバブ研磨したものである。試料の研磨面マクロ写真をFig.20に示す。Fig.20中の(a)は中実ペレット部、(b)は中空ペレット部である。マイクロ γ スキャンニングでは、ペレット中心を通る直線上を90度・2方向（A方向とB方向）についてスキャンニングし、測定した。なお、スキャンニング γ 線として、グロス γ 線、⁹⁵Zr-⁹⁵Nb γ 線及び¹³⁷Cs γ 線を用いた。それらの結果をFig.21～24に示す。

γ 線スペクトル測定は、Fig.18の(a)横断面試料について実施した。その結果をFig.25に示す。²¹⁾ ¹³⁴Cs核種及び¹³⁷Cs核種について γ 線スペクトル解析コードBOB-75によりデータ処理し、各々の核種のカウント数を求めた。下表にそれらの値を示す。

Nuclide Peak Energy (keV)	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs
605	2402	—
662	—	30381
796	1844	—

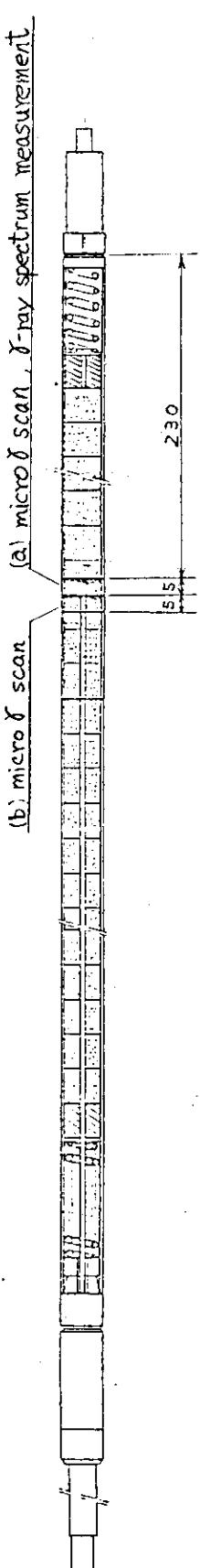


Fig. 18 Sampling position of the specimens used for the
micro- γ scan and γ -ray spectrum measurement

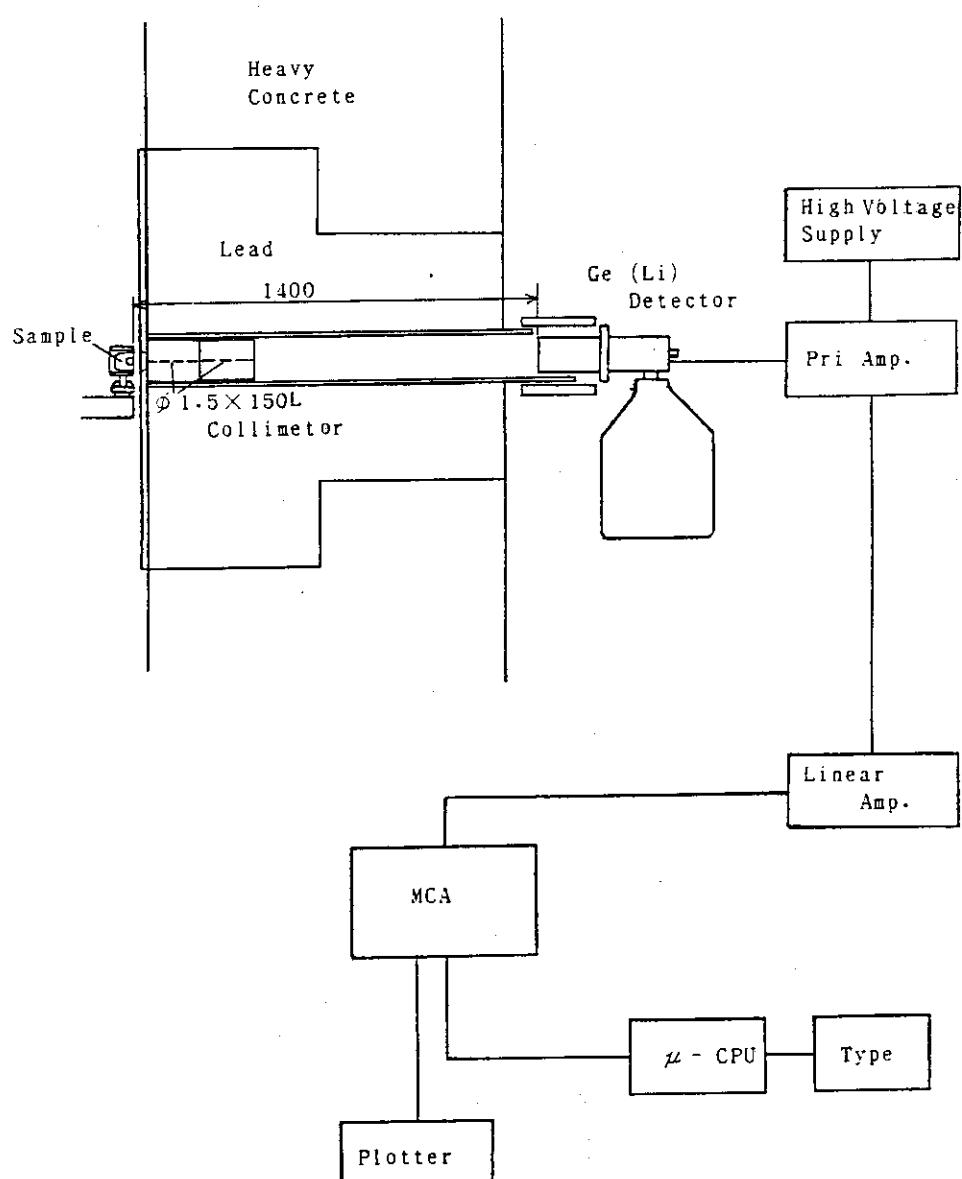


Fig. 19 System for the radial micro- γ scan and
 γ -ray spectrum measurement

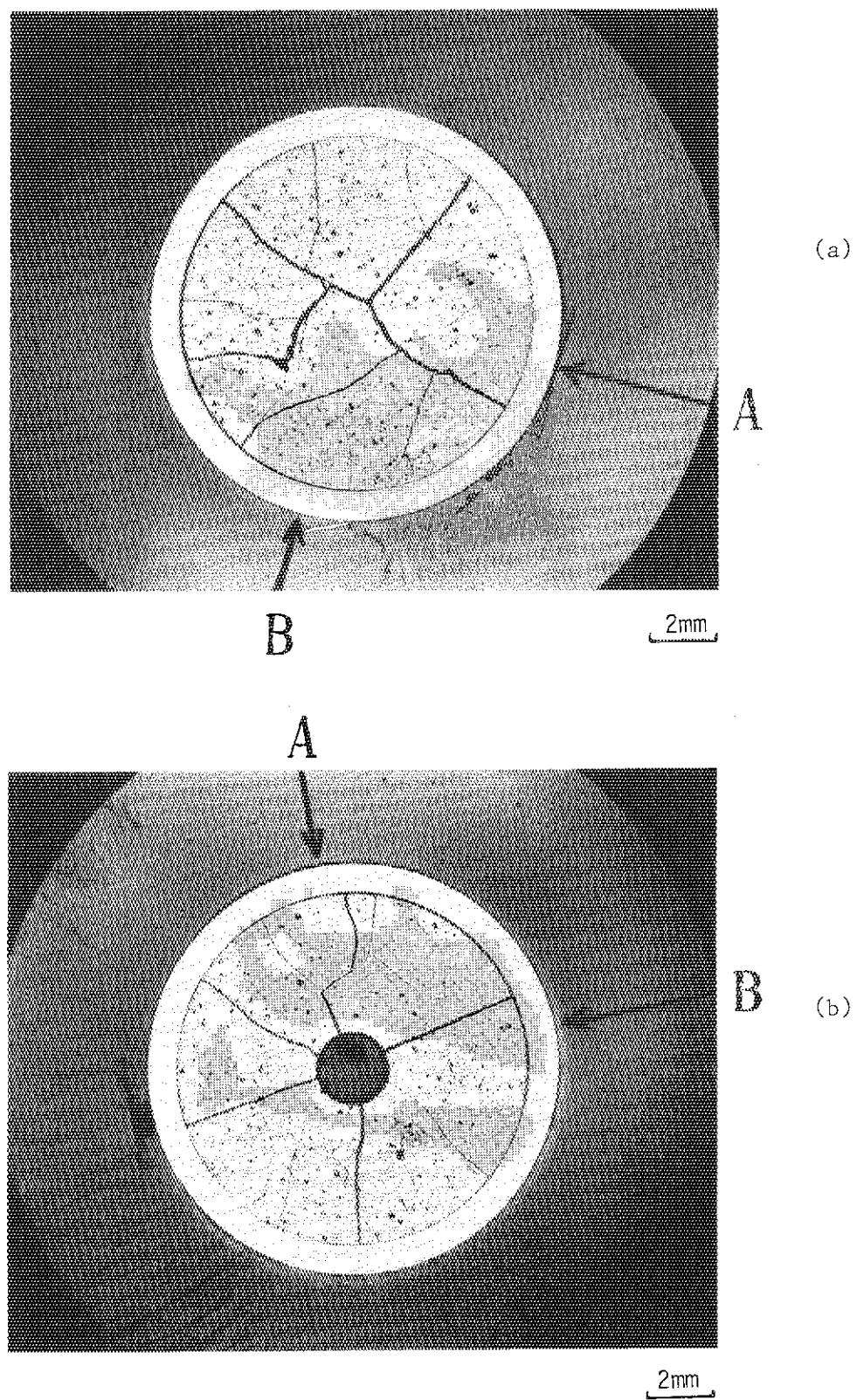


Fig. 20 Metallograph of the micro- γ scan samples
(A, B: scan direction)

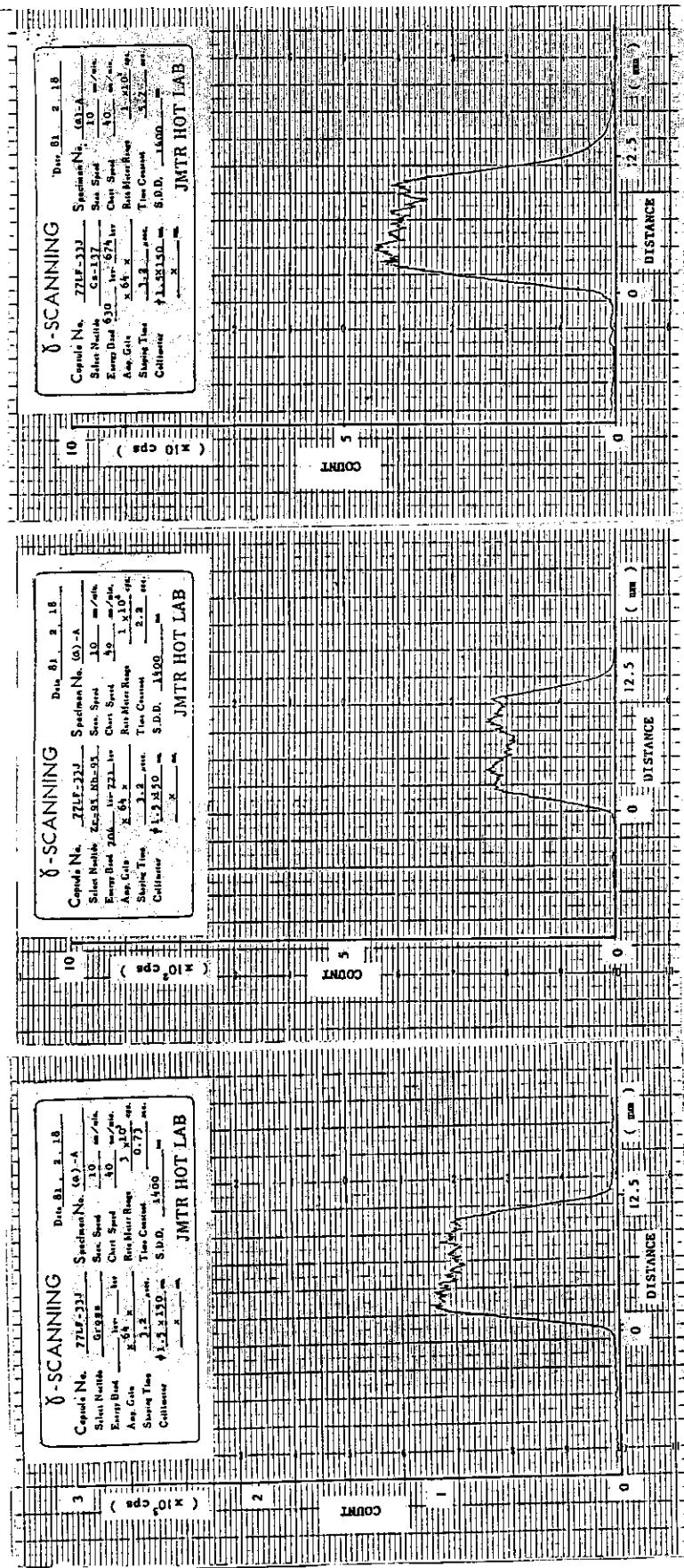


Fig. 21 Radial micro- γ scan for Rod. 1 (a)-A
(Gross γ -ray, ^{95}Zr - ^{95}Nb γ -ray, ^{137}Cs γ -ray)

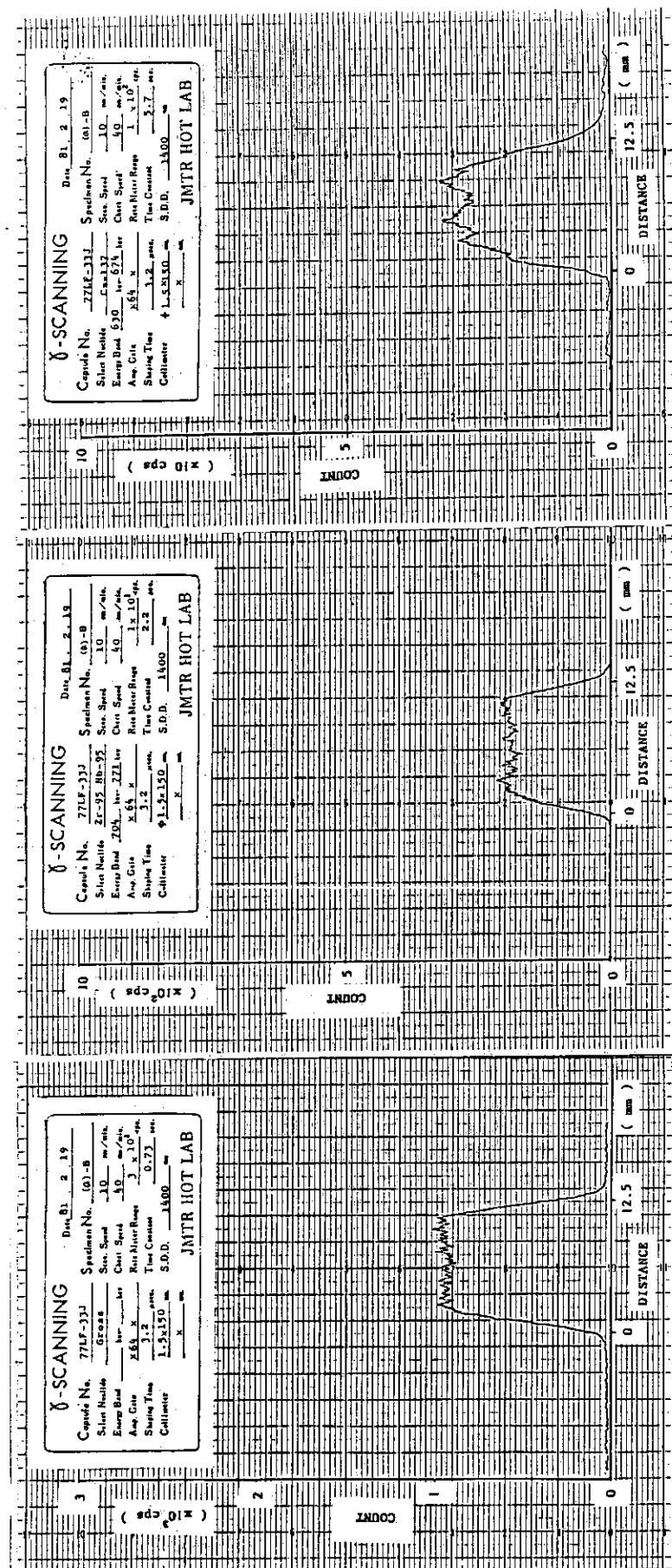


Fig. 22 Radial micro-γ scan for Rod. 1 (a)-B
(Gross γ-ray, $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ γ-ray, ^{137}Cs γ-ray)

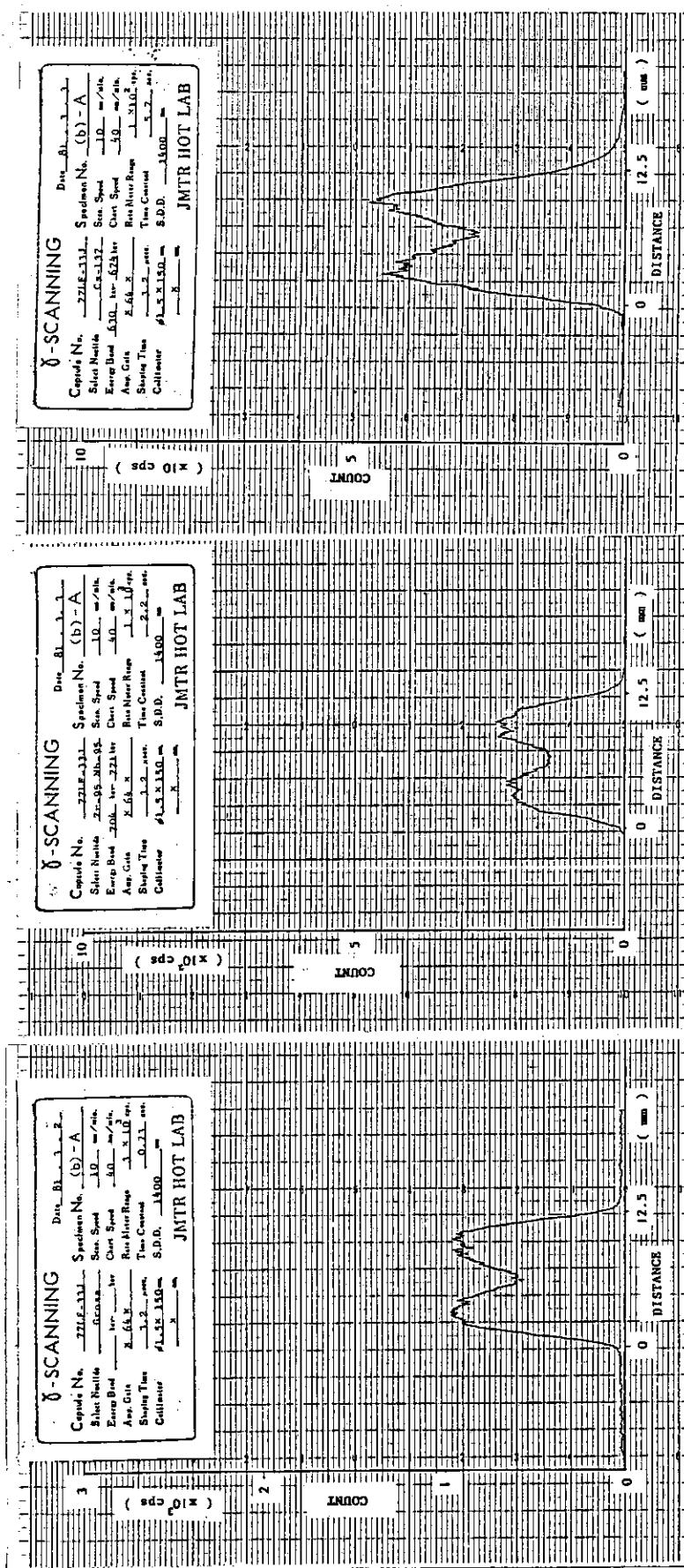


Fig. 23 Radial micro-γ scan for Rod. 1 (b)-A
(Gross γ-ray, ^{95}Zr - ^{95}Nb γ-ray, ^{137}Cs γ-ray)

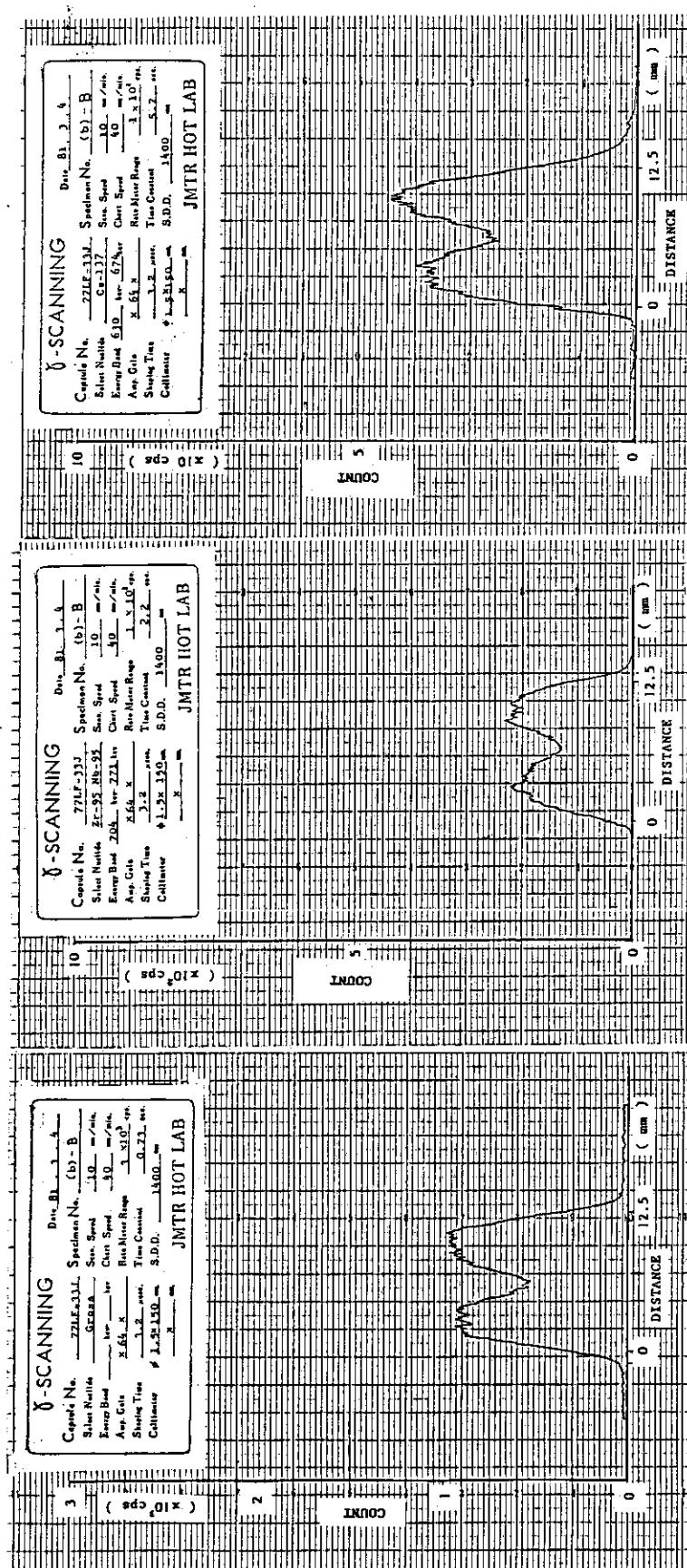


Fig. 24 Radial micro- γ scan for Rod. 1 (b)-B
(Gross γ -ray, ^{95}Zr - ^{95}Nb γ -ray, ^{137}Cs γ -ray)

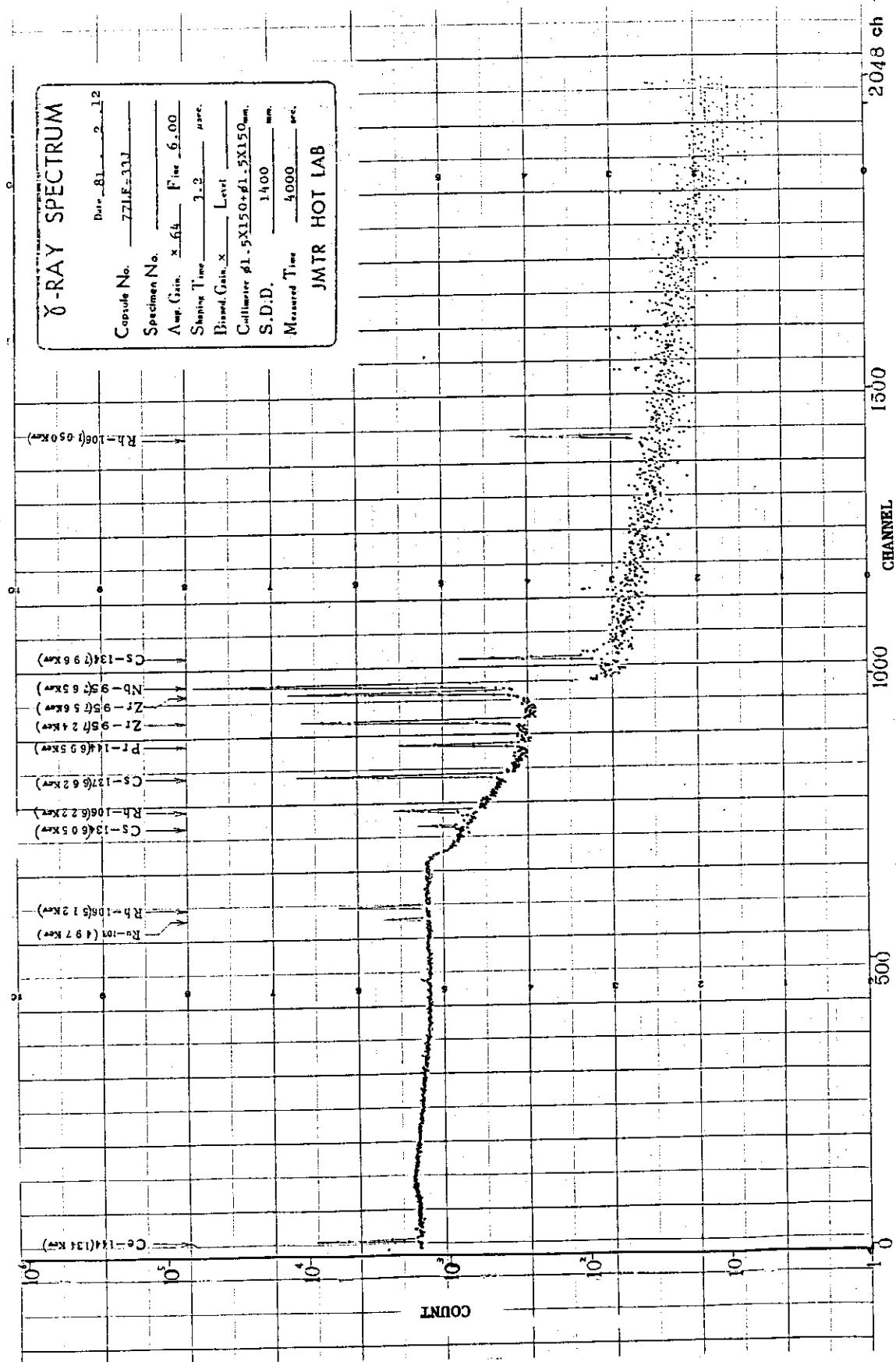


Fig. 25 γ -ray spectrum measurement of Rod. 1 (a) sample

2.4 燃焼度評価用UO₂ペレット片の γ 線スペクトル測定

「2.1 試料」で述べた1辺が2～3mmのUO₂ペレット片について γ 線スペクトル測定を行なった（於 東海研H・L）。測定にあたって、試料をガラス秤量瓶（Φ 18 × H 30 mm）に詰め替え、表面に汚染のないことを確認後、ポリ袋で包み、シールしたものを測定試料とした。なお、最初に試料UO₂ペレット片を収納したアルミニウム製容器表面はFPにより10⁶dpm程度汚染されていたため、この操作を行なった。

測定系の構成をFig.2 6に示す。なお、測定試料（1辺が2～3mmの立方体UO₂ペレット片）と校正用標準線源（Φ 15 mm × t 2 mm）との形状の違いによる検出効率の差をなくし、パイルアップ効果を除去するために、試料と検出器との距離を800 mmにした。この条件での¹³⁷Csの分解能は1.6 keV(FWHM)である。また、バックグラウンドによる影響をなくすために検出器を中空円筒状の鉛遮蔽体で覆った。各測定機器の動作条件をTable 2に示す。

東海研H・Lのコンクリートケーブ内は、バックグラウンドが高いことやクロスコンタミネーションにより測定値に正の結果をもたらすことを考慮して、測定はケーブ操作室で実施した。まず、 γ 線スペクトル測定の計数時間及び測定試料 扱い時の被曝線量の目安を得るために、測定前に試料表面から30 cm離れた位置での線量 を電離箱型サーベイメータで測定した。その結果をTable 3～6に示す。線量 測定後、その試料をGe 検出器の中心線上の前方にセットした。次に、FP核種を検索し、 γ 線スペクトル測定エネルギー範囲を50～2500 keVとした。本条件下で校正用標準線源（¹⁵²Eu）^{*1}を用いてエネルギー校正を行い、検出効率を求め、その後、校正した測定系を用いて試料の γ 線スペクトルを測定し、試料中の核種の同定及び γ 線強度測定を行なった。測定に際しては、指標核種である¹³⁷Csのフォトピークの統計誤差が1%以下になるように計数時間を設定した。最後に、測定試料片を収納したガラス秤量瓶の吸収補正係数を求めた。

試料の γ 線スペクトルの例をFig.2 7に示す。¹⁴⁴Ceの133.45 keVから¹⁴⁴Prの2183.3 keVまでのフォトピークを測定した。測定したデータをディスクケットに収録し、Dec LSI-11/23コンピュータ・システムで γ 線スペクトル解析コード（スペクトランF Ver.2）^{*2}を用いて解析した。各試料中の⁹⁵Zr、⁹⁵Nb、¹⁰⁶Rh、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs、¹⁴⁴Ce及び¹⁴⁴Prの放射能量をTable 7～14に示す。

*1 ¹⁵²Eu ; (仮) LMRI, Source type EGMA3, Activity 19.42 μCi at 23.11, 1981 12:00

*2 CANBERRA INDUSTRIES, INC., 45 Gracey ave., Meriden, CT, U.S.A

Table 2 Setting condition of the γ -ray spectrum measuring instrument

Instrument	Model	Condition
Detector	Ortec Model GEM-15190S HpGe	Resolution at 1.33MeV 1.64keV FWHM Efficiency 1.74%
High Voltage Supply	Ortec Model 459	2500V POS
Linear Amp.	Ortec Model 572	Coarse Gain 2.0 Fine Gain 0.93 Shaping Time 3 μ sec
Multi-Channel P•H•A	Canberra Model S-40	ADC Gain 4096 Memory 1/1 LLD 0.1 ULD 8.0
Computer	Dec Model LSI-11/23	—
Plotter	H.P. Model 7220C	(X-Y Plotter)

Table 3 Dose rate of the UO₂ pellet pieces (Rod. 1)

Rod. 1

Sample No	Container No	A	Dose Rate (mR/h)	
			B	C
1	1	1	1600	19
2	2	1	600	6.6
3	3	2	870	10
4	4	1	600	6.2
5	5	1	1700	19
6	6	1	1100	24
7	7	1	3400	28
8	8	1	2200	22
9	9	1	1820	15.6
10	10	1	3100	28
11	11	1	3100	26
12	12	1	2700	15

1) A is the number of the UO₂ pellet pieces in the container.

2) B and C indicate the position where the dose rate is measured.

B : surface on the container

C : 30cm from the container

Table 4 Dose rate of the UO₂ pellet pieces (Rod. 2)

Rod. 2

Sample No	Container No	A	Dose Rate (mR/h)	
			B	C
13	13	1	2800	22
14	14	1	3000	25
15	15	1	2300	22
16	16	2	3500	35
17	17	3	3300	24
18	18	2	2500	15.6
19	19	1	2600	22
20	20	1	2800	20
21	21	1	2300	13.4
22	22	1	2200	20
23	23	1	2300	23
24	24	2	2500	21

1) A is the number of the UO₂ pellet pieces in the container.

2) B and C indicate the position where the dose rate is measured.

B : surface on the container

C : 30cm from the container

Table 5 Dose rate of the UO₂ pellet pieces (Rod. 3)
Rod. 3

Sample No.	Container No	A	Dose Rate (mR/h)	
			B	C
25	25	1	2000	18.3
26	26	1	2200	17.5
27	27	1	2400	23
28	28	1	1700	14.8
29	29	3	1780	17.1
30	30	2	2000	15
31	31	1	1730	18
32	32	1	1930	14
33	33	1	1100	10.3
34	34	1	1890	17
35	35	2	1800	17.5
36	36	1	2400	18.3

1) A is the number of the UO₂ pellet pieces in the container.

2) B and C indicate the position where the dose rate is measured.

B : surface on the container

C : 30cm from the container

Table 6 Dose rate of the UO₂ pellet pieces (Rod. 4)
Rod. 4

Sample No.	Container No	A	Dose Rate (mR/h)	
			B	C
37	49	1	2100	17
38	38	1	1100	14
39	39	1	1400	13
40	40	1	2100	17.3
41	41	2	1300	14.3
42	42	1	1010	13
43	43	1	1520	14.3
44	44	2	1070	11
45	45	1	1220	11.5
46	46	1	1030	11
47	47	2	840	8.1
48	48	1	1500	15.1

1) A is the number of the UO₂ pellet pieces in the container.

2) B and C indicate the position where the dose rate is measured.

B : surface on the container

C : 30cm from the container

Table 7 FP nuclides of the UO₂ pellet pieces at the sampling position S₁ (Rod. 1)

		Rod.1 (Sampling Position:S ₁)					
UO ₂ Pellet Piece No.	Nuclide	1	2	3	4	5	6
	⁹⁵ Zr	6.00×10 ⁻¹	2.21×10 ⁻¹	3.45×10 ⁻¹	2.30×10 ⁻¹	4.26×10 ⁻¹	4.85×10 ⁻¹
	⁹⁵ Nb	1.44	5.04×10 ⁻¹	7.05×10 ⁻¹	4.63×10 ⁻¹	8.66×10 ⁻¹	9.48×10 ⁻¹
	¹⁰⁶ Rh	1.37×10 ²	4.20×10 ¹	6.25×10 ¹	4.18×10 ¹	7.78×10 ¹	8.21×10 ¹
	¹³⁴ Cs	1.03×10 ¹	3.01	4.51	2.97	5.50	5.91
	¹³⁷ Cs	2.37×10 ²	7.83×10 ¹	1.16×10 ²	7.67×10 ¹	1.46×10 ²	1.50×10 ²
	¹⁴⁴ Ce	1.53×10 ²	6.55×10 ¹	1.40×10 ²	9.39×10 ¹	1.13×10 ²	9.64×10 ¹
	¹⁴⁴ Pr	6.65×10 ²	2.28×10 ²	3.31×10 ²	2.27×10 ²	4.14×10 ²	4.37×10 ²

(Dimension: μCi/Sample)

Table 8 FP nuclides of the UO₂ pellet pieces at the sampling position S₂ (Rod. 1)

		Rod.1 (Sampling Position:S ₂)					
UO ₂ Pellet Piece No.	Nuclide	7	8	9	10	11	12
	⁹⁵ Zr	7.27×10 ⁻¹	5.61×10 ⁻¹	4.76×10 ⁻¹	7.81×10 ⁻¹	6.65×10 ⁻¹	7.59×10 ⁻¹
	⁹⁵ Nb	1.64	1.23	9.94×10 ⁻¹	1.71	1.44	1.51
	¹⁰⁶ Rh	1.23×10 ²	9.59×10 ¹	8.11×10 ¹	1.33×10 ²	1.17×10 ²	1.32×10 ²
	¹³⁴ Cs	8.11	6.46	5.40	8.59	7.69	8.69
	¹³⁷ Cs	2.52×10 ²	1.93×10 ²	1.65×10 ²	2.65×10 ²	2.36×10 ²	2.48×10 ²
	¹⁴⁴ Ce	1.04×10 ²	1.13×10 ²	1.25×10 ²	1.74×10 ²	1.66×10 ²	1.78×10 ²
	¹⁴⁴ Pr	7.26×10 ²	5.57×10 ²	4.68×10 ²	7.63×10 ²	6.80×10 ²	6.99×10 ²

(Dimension: μCi/Sample)

Table 9 FP nuclides of the UO₂ pellet pieces at the sampling position S₁ (Rod. 2)

UO_2 Pellet Piece No. Nuclide	Rod.2 (Sampling Position:S ₁)					
	13	14	15	16	17	18
⁹⁵ Zr	6.56×10^{-1}	6.29×10^{-1}	4.64×10^{-1}	7.93×10^{-1}	5.62×10^{-1}	3.48×10^{-1}
⁹⁵ Nb	1.28	1.32	9.83×10^{-1}	1.71	1.18	7.92×10^{-1}
¹⁰⁶ Rh	1.21×10^2	1.11×10^2	8.13×10^1	1.54×10^2	1.01×10^2	7.16×10^1
¹³⁴ Cs	8.99	8.25	6.23	1.20×10^1	7.42	5.54
¹³⁷ Cs	2.17×10^2	2.05×10^2	1.47×10^2	2.70×10^2	1.83×10^2	1.38×10^2
¹⁴⁴ Ce	1.29×10^2	1.40×10^2	1.21×10^2	1.86×10^2	1.54×10^2	1.11×10^2
¹⁴⁴ Pr	6.12×10^2	6.02×10^2	4.20×10^2	7.58×10^2	5.39×10^2	3.70×10^2

(Dimension: $\mu\text{Ci}/\text{Sample}$)Table 10 FP nuclides of the UO₂ pellet pieces at the sampling position S₂ (Rod. 2)

UO_2 Pellet Piece No. Nuclide	Rod.2 (Sampling Position:S ₂)					
	19	20	21	22	23	24
⁹⁵ Zr	6.55×10^{-1}	6.47×10^{-1}	4.55×10^{-1}	5.34×10^{-1}	5.47×10^{-1}	4.99×10^{-1}
⁹⁵ Nb	1.49	1.49	1.05	1.24	1.12	1.01
¹⁰⁶ Rh	1.21×10^2	1.13×10^2	8.08×10^1	1.02×10^2	9.58×10^1	8.50×10^1
¹³⁴ Cs	8.28	7.57	5.41	7.42	6.73	5.56
¹³⁷ Cs	2.42×10^2	2.24×10^2	1.61×10^2	1.99×10^2	1.82×10^2	1.64×10^2
¹⁴⁴ Ce	1.66×10^2	1.30×10^2	1.01×10^2	1.37×10^2	1.36×10^2	1.21×10^2
¹⁴⁴ Pr	6.87×10^2	6.53×10^2	4.62×10^2	5.68×10^2	5.14×10^2	4.78×10^2

(Dimension: $\mu\text{Ci}/\text{Sample}$)

Table 11 FP nuclides of the UO₂ pellet pieces at the sampling position S₁ (Rod. 3)

		Rod.3 (Sampling Position:S ₁)					
UO ₂ Pellet Piece No.	Nuclide	25	26	27	28	29	30
	⁹⁵ Zr	4.12×10 ⁻¹	5.20×10 ⁻¹	6.09×10 ⁻¹	3.64×10 ⁻¹	3.60×10 ⁻¹	2.92×10 ⁻¹
	⁹⁵ Nb	9.77×10 ⁻¹		1.08	1.45	8.81×10 ⁻¹	8.43×10 ⁻¹
	¹⁰⁶ Rh	8.33×10 ¹	8.92×10 ¹	1.16×10 ²	7.29×10 ¹	6.77×10 ¹	6.56×10 ¹
	¹³⁴ Cs	5.37	5.71	7.78	4.63	4.35	4.27
	¹³⁷ Cs	1.54×10 ²	1.71×10 ²	2.26×10 ²	1.37×10 ²	1.30×10 ²	1.20×10 ²
	¹⁴⁴ Ce	1.17×10 ²	1.28×10 ²	1.42×10 ²	1.02×10 ²	1.33×10 ²	1.10×10 ²
	¹⁴⁴ Pr	4.22×10 ²	5.04×10 ²	6.33×10 ²	3.85×10 ²	3.78×10 ²	3.42×10 ²

(Dimension: μCi/Sample)

Table 12 FP nuclides of the UO₂ pellet pieces at the sampling position S₂ (Rod. 3)

		Rod.3 (Sampling Position:S ₂)					
UO ₂ Pellet Piece No.	Nuclide	31	32	33	34	35	36
	⁹⁵ Zr	3.80×10 ⁻¹	4.57×10 ⁻¹	1.51×10 ⁻¹	4.40×10 ⁻¹	4.72×10 ⁻¹	4.70×10 ⁻¹
	⁹⁵ Nb	8.91×10 ⁻¹	1.14	3.71×10 ⁻¹	1.00	8.94×10 ⁻¹	1.07
	¹⁰⁶ Rh	7.33×10 ¹	8.13×10 ¹	2.89×10 ¹	7.80×10 ¹	6.42×10 ¹	7.79×10 ¹
	¹³⁴ Cs	4.37	4.70	1.86	4.38	3.75	4.65
	¹³⁷ Cs	1.39×10 ²	1.64×10 ²	5.60×10 ¹	1.56×10 ²	1.33×10 ²	1.59×10 ²
	¹⁴⁴ Ce	1.30×10 ²	1.05×10 ²	5.46×10 ¹	8.90×10 ¹	1.01×10 ²	1.16×10 ²
	¹⁴⁴ Pr	3.89×10 ²	4.71×10 ²	1.63×10 ²	4.45×10 ²	3.84×10 ²	4.63×10 ²

(Dimension: μCi/Sample)

Table 13 FP nuclides of the UO_2 pellet pieces at the sampling position S_1 (Rod. 4)

UO_2 Pellet Piece Nuclide No.	Rod.4 (Sampling Position: S_1)					
	37	38	39	40	41	42
^{95}Zr	4.47×10^{-1}	2.79×10^{-1}	2.37×10^{-1}	5.67×10^{-1}	2.10×10^{-1}	2.45×10^{-1}
^{95}Nb	9.33×10^{-1}	6.13×10^{-1}	5.75×10^{-1}	1.27	5.16×10^{-1}	5.85×10^{-1}
^{106}Rh	7.67×10^1	4.72×10^1	4.49×10^1	9.64×10^1	3.94×10^1	4.59×10^1
^{134}Cs	4.85	2.90	2.90	6.36	2.44	2.92
^{137}Cs	1.41×10^2	9.01×10^1	8.74×10^1	1.90×10^2	7.57×10^1	8.86×10^1
^{144}Ce	1.25×10^2	7.18×10^1	5.84×10^1	1.23×10^2	8.68×10^1	8.37×10^1
^{144}Pr	3.92×10^2	2.64×10^2	2.52×10^2	5.44×10^2	2.23×10^2	2.59×10^2

(Dimension: $\mu\text{Ci}/\text{Sample}$)Table 14 FP nuclides of the UO_2 pellet pieces at the sampling position S_2 (Rod. 4)

UO_2 Pellet Piece Nuclide No.	Rod.4 (Sampling Position: S_2)					
	43	44	45	46	47	48
^{95}Zr	3.69×10^{-1}	1.64×10^{-1}	3.03×10^{-1}	2.38×10^{-1}	1.87×10^{-1}	3.03×10^{-1}
^{95}Nb	8.04×10^{-1}	4.51×10^{-1}	7.14×10^{-1}	5.80×10^{-1}	4.14×10^{-1}	6.79×10^{-1}
^{106}Rh	6.43×10^1	3.25×10^1	5.18×10^1	4.62×10^1	3.01×10^1	5.14×10^1
^{134}Cs	3.74	1.86	2.98	2.54	1.69	3.05
^{137}Cs	1.26×10^2	6.64×10^1	1.09×10^2	9.20×10^1	6.12×10^1	1.02×10^2
^{144}Ce	1.04×10^2	5.58×10^1	8.19×10^1	6.00×10^1	7.80×10^1	8.47×10^1
^{144}Pr	3.55×10^2	1.94×10^2	3.13×10^2	2.62×10^2	1.80×10^2	2.88×10^2

(Dimension: $\mu\text{Ci}/\text{Sample}$)

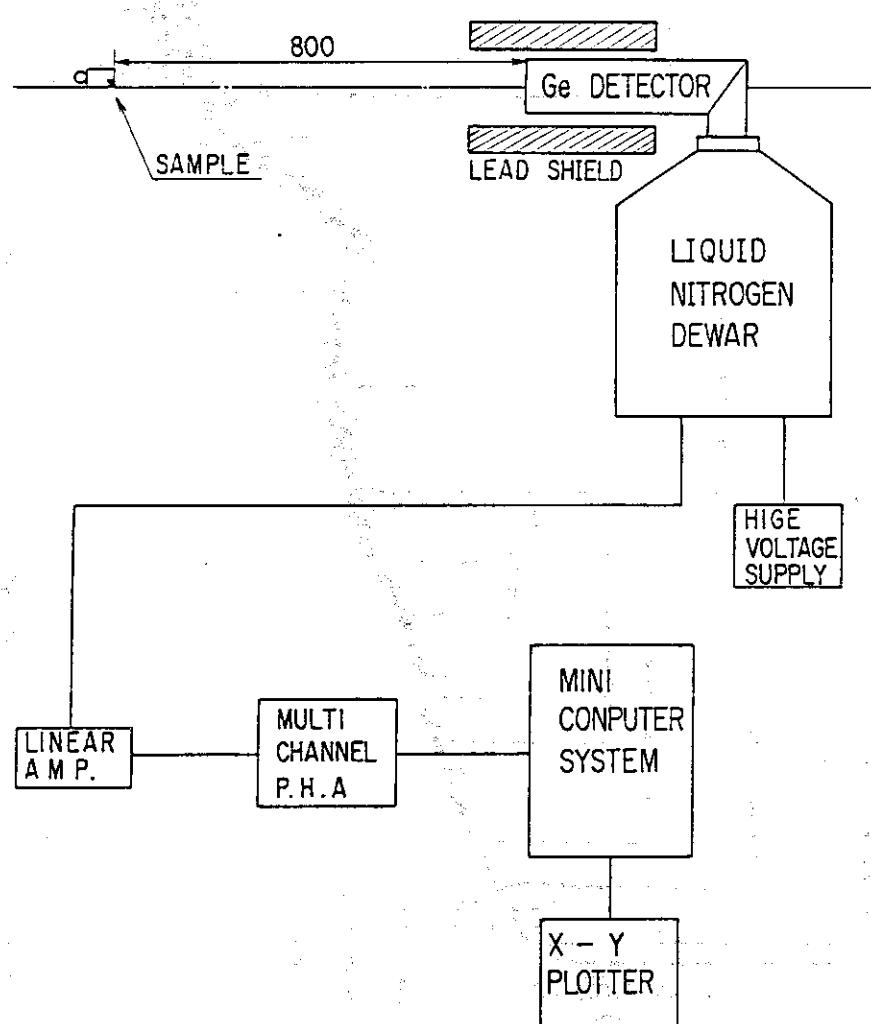
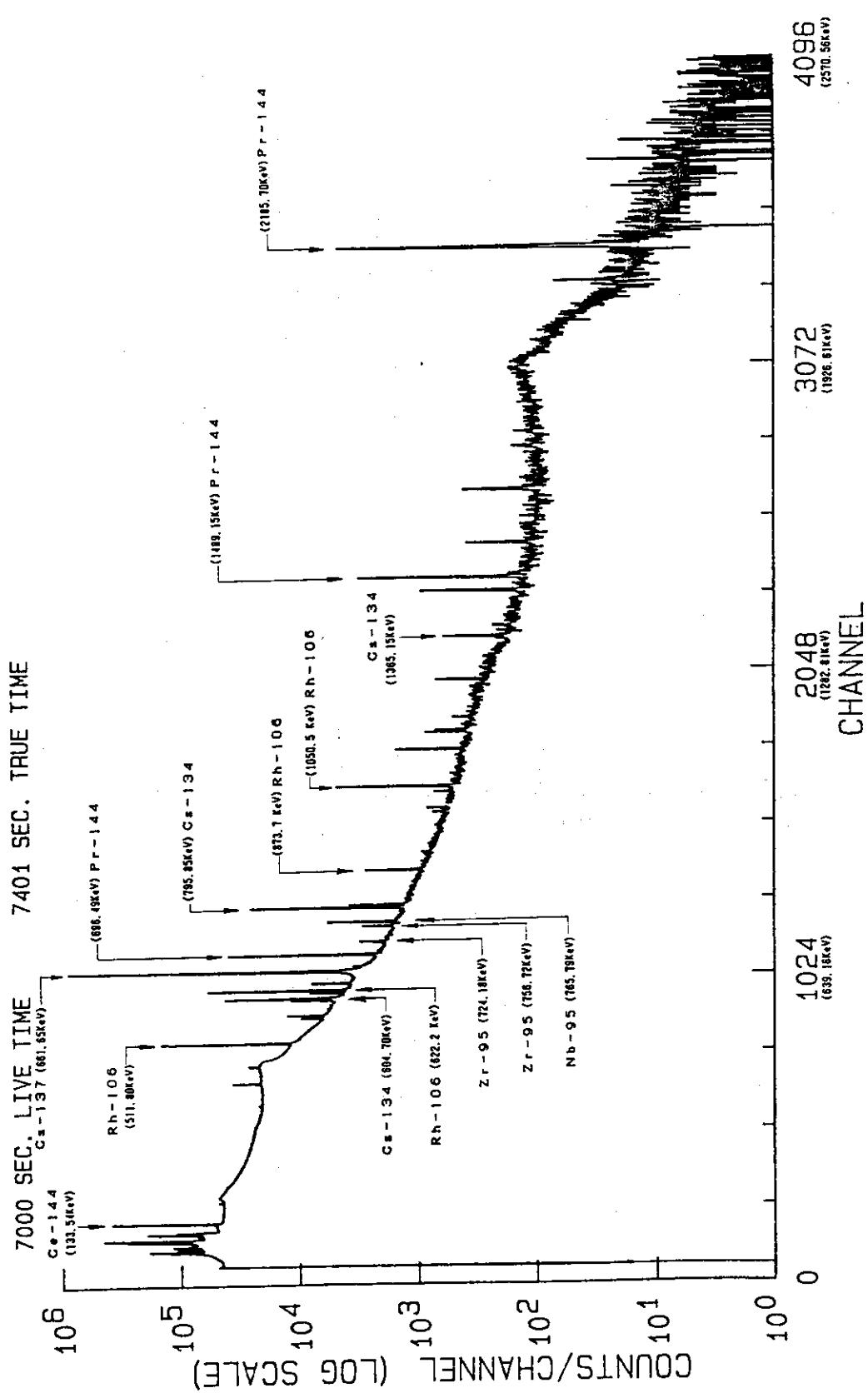


Fig. 26 γ -ray spectrum measurement system
of the UO_2 pellet pieces

Fig. 27 γ -ray spectrum example of the UO_2 pellet pieces

2.5 化学分析による燃焼度評価

燃焼度評価用 UO_2 ペレット片の γ 線スペクトル測定後、同じ試料を用いて化学分析により O/U 比と燃焼度を求めた。燃焼度の算出手順を Fig. 28 に示す。

まず、試料（20～80 mg）をピリジンに浸してエポキシ系樹脂を除き、風乾後、¹⁸⁾ 強リン酸によって加熱溶解した。そして、溶解液を希釈した後、電位差滴定法（Davies-Grays 法）により、溶液中の総 U 量を定量した。結果を Table 15～18 第 2 欄に示す。

次に、希釈試料溶液の一部をガラス製棒瓶に取り、Ge(Li) 半導体検出器とマルチチャンネル波高分析器を用いて、¹³⁷Cs の 662 keV γ 線を計数した。標準 ¹³⁷Cs 線源の計数値と比較し、試料中の ¹³⁷Cs の放射能を求めた。

総 U 量と ¹³⁷Cs の放射能から次式を用いて試料の燃焼度を算出した。

$$\text{燃焼度 (MWd/t)} = \frac{1.383 \times 10^{-5} \cdot \alpha \cdot T \cdot \exp(-\lambda t)}{Y \cdot \{1 - \exp(-\lambda T)\}} \quad \dots \dots \dots (1)$$

ただし、

α : 単位ウラン質量当りの ¹³⁷Cs の放射能 (Ci/g)

T : 燃料照射期間 (sec)

λ : ¹³⁷Cs の壊変定数 ($= 7.32 \times 10^{-10}$) (sec^{-1})

t : 冷却期間 (sec)

Y : ¹³⁷Cs の ²³⁵U 核分裂収率 ($= 0.0623$) (—)

その算出結果を Table 15～18 最終欄に示す。

Table 15 Chemical Analysis results
of the UO₂ pellet pieces
(Rod. 1)

Rod.1		
UO ₂ Pellet Piece No.	U weight (mg)	Burn-up (MWD/t)
1	52.0	1770
2	20.9	1390
3	27.7	1430
4	19.2	1390
5	35.6	1500
6	36.0	1480
7	74.0	1360
8	53.8	1300
9	46.0	1360
10	76.3	1240
11	68.1	1270
12	63.9	1420

Table 16 Chemical Analysis results
of the UO₂ pellet pieces
(Rod. 2)

Rod.2		
UO ₂ Pellet Piece No.	U weight (mg)	Burn-up (MWD/t)
13	48.7	1680
14	47.7	1640
15	32.8	1590
16	54.0	1650
17	44.5	1570
18	—	1690
19	64.5	1310
20	61.0	1350
21	—	—
22	47.6	1500
23	42.8	1470
24	45.3	1240

Table 17 Chemical Analysis results
of the UO₂ pellet pieces
(Rod. 3)

Rod.3		
UO ₂ Pellet Piece No.	U weight (mg)	Burn-up (MWD/t)
25	—	1370
26	50.0	1190
27	63.0	1230
28	37.5	1300
29	37.9	1130
30	31.1	1170
31	39.2	1290
32	57.5	980
33	15.3	1340
34	54.5	1040
35	45.7	1030
36	52.5	1020

Table 18 Chemical Analysis results
of the UO₂ pellet pieces
(Rod. 4)

Rod.4		
UO ₂ Pellet Piece No.	U weight (mg)	Burn-up (MWD/t)
37	38.6	1230
38	28.1	1140
39	25.6	1160
40	57.0	1080
41	24.5	1070
42	33.6	900
43	39.0	1130
44	22.8	1020
45	37.8	1010
46	32.2	1030
47	21.4	1020
48	31.5	1100

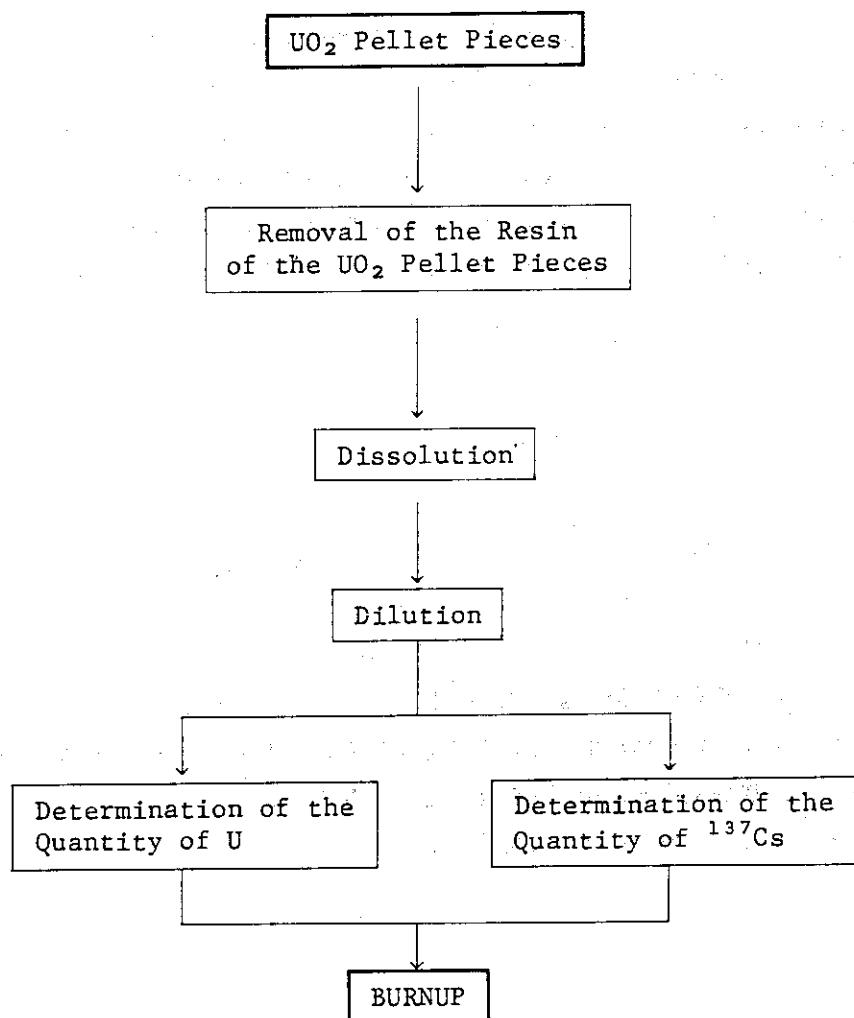


Fig. 28 Flow chart of the chemical analysis

3. 考 察

3.1 燃焼度評価用 UO_2 ペレット片の γ 線スペクトル測定結果と化学分析結果の相関

Table 7～14に掲げた ^{134}Cs 量及び ^{137}Cs 量の測定結果と、化学分析により求めたウラン重量（Table 15～18）とから、単位ウラン重量当りの ^{137}Cs の放射能（ $\mu\text{Ci}/\text{Umg}$ ）及び $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比を求めた。結果をTable 19～22に示す。それらの結果と、化学分析結果から算出した燃焼度との相関を調べた。 ^{137}Cs 量（ $\mu\text{Ci}/\text{Umg}$ ）と燃焼度の相関をFig. 29に、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比と燃焼度の相関をFig. 30に示す。前者は±5%の標準偏差内で直線相関しており、後者は±7%の標準偏差内で直線相関していることが明らかになった。それら各々の相関式を以下に示す。

$$y_1 = 2.81 \times 10^{-3} \cdot x \quad \dots \dots \dots \quad (2)$$

$$y_2 = 2.63 \times 10^{-3} \cdot x \quad \dots \dots \dots \quad (3)$$

ここで、

y_1 : ^{137}Cs 量 ($\mu\text{Ci}/\text{Umg}$)

y_2 : $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比 (—)

x : 燃焼度 (MWd/t)

なお、(2)式を用いて燃焼度を評価するためには、 γ 線スペクトル測定による ^{137}Cs 量の定量及び化学分析によるウラン重量の定量を要する。(3)式を用いると γ 線スペクトル測定結果から直接燃焼度を求めることができ。燃焼度の評価用校正曲線としては簡便であるが、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比は照射時の中性子スペクトルに影響されやすいという難点がある。

Table 19 Determination of ^{137}Cs ($\mu\text{Ci}/\text{Umg}$) and $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio in the UO_2 pellet pieces (Rod. 1)

UO_2 Pellet Piece No.	^{137}Cs ($\mu\text{Ci}/\text{Umg}$)	$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ($\times 10^{-2}$)
1	4.56	4.35
2	3.75	3.84
3	4.19	3.89
4	4.00	3.87
5	4.10	3.77
6	4.17	3.94
7	3.41	3.22
8	3.59	3.35
9	3.59	3.27
10	3.47	3.24
11	3.47	3.26
12	3.88	3.50

Table 20 Determination of ^{137}Cs ($\mu\text{Ci}/\text{Umg}$) and $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio in the UO_2 pellet pieces (Rod. 2)

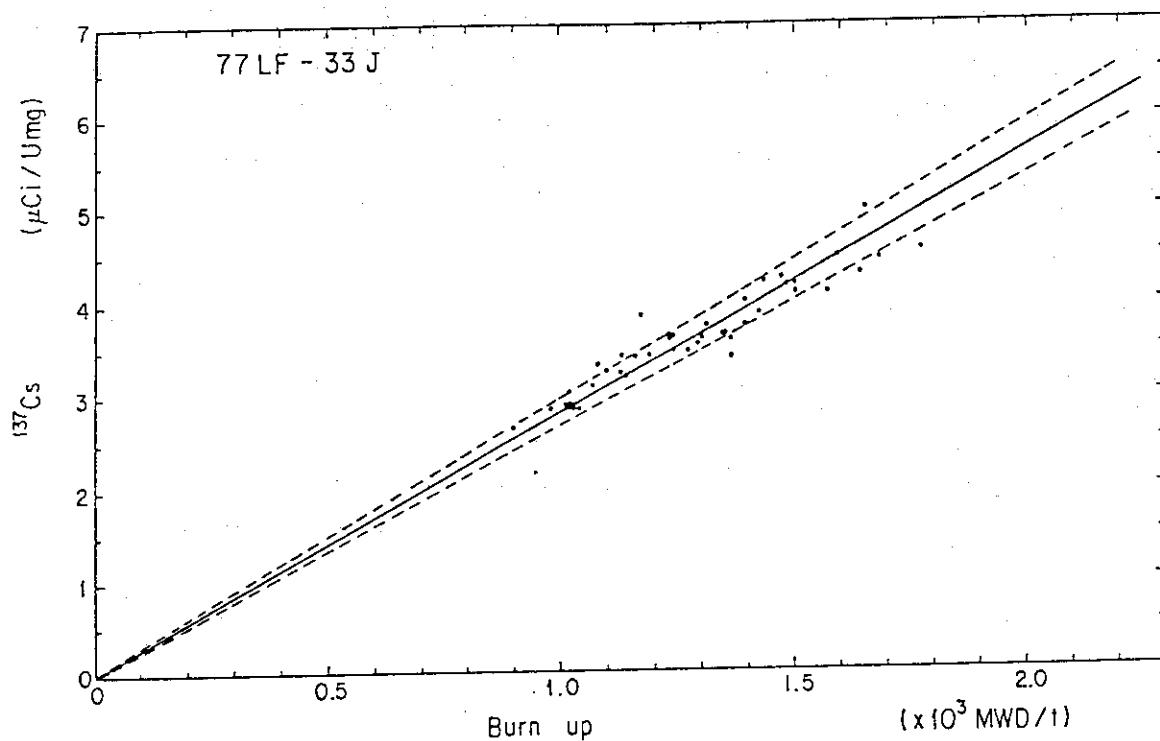
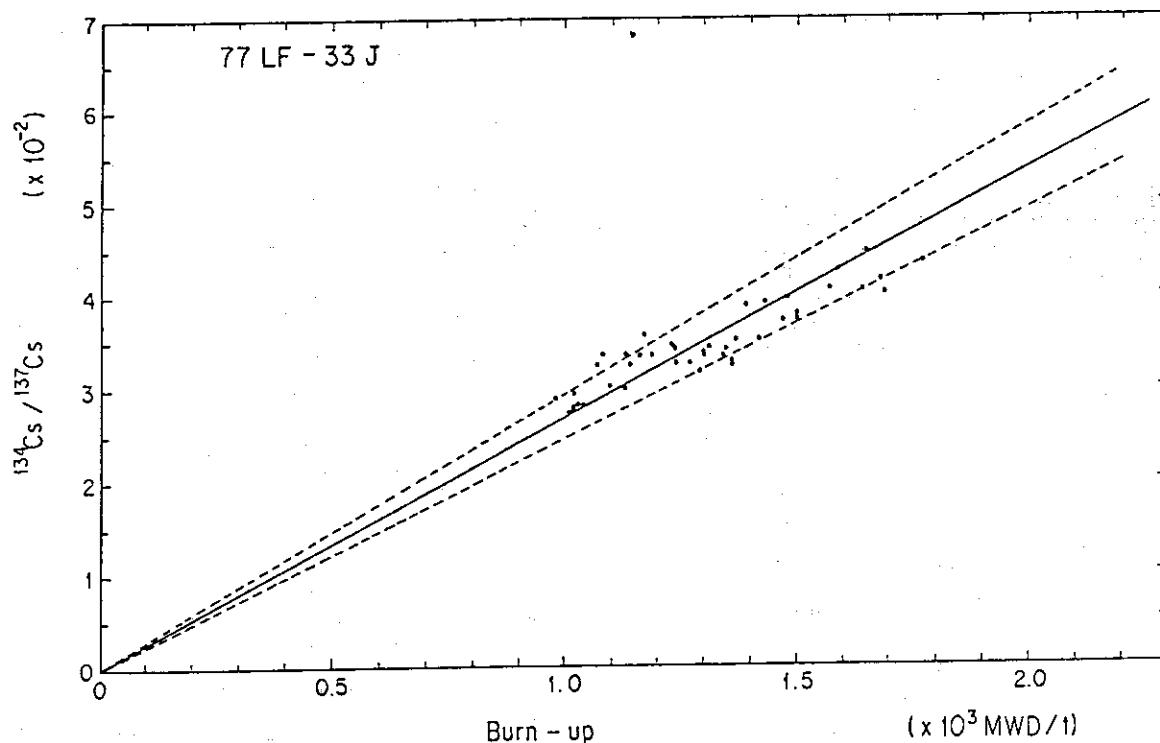
UO_2 Pellet Piece No.	^{137}Cs ($\mu\text{Ci}/\text{Umg}$)	$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ($\times 10^{-2}$)
13	4.46	4.14
14	4.30	4.03
15	4.48	4.24
16	5.00	4.44
17	4.11	4.05
18	—	4.01
19	3.75	3.42
20	3.67	3.38
21	—	3.36
22	4.18	3.73
23	4.25	3.70
24	3.62	3.39

Table 21 Determination of ^{137}Cs ($\mu\text{Ci}/\text{Umg}$) and $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio in the UO_2 pellet pieces (Rod. 3)

UO_2 Pellet Piece No.	^{137}Cs ($\mu\text{Ci}/\text{Umg}$)	$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ($\times 10^{-2}$)
25	—	3.49
26	3.42	3.34
27	3.59	3.44
28	3.65	3.38
29	3.43	3.35
30	3.86	3.56
31	3.55	3.14
32	2.85	2.87
33	3.66	3.32
34	2.86	2.81
35	2.91	2.82
36	3.03	2.92

Table 22 Determination of ^{137}Cs ($\mu\text{Ci}/\text{Umg}$) and $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio in the UO_2 pellet pieces (Rod. 4)

UO_2 Pellet Piece No.	^{137}Cs ($\mu\text{Ci}/\text{Umg}$)	$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ($\times 10^{-2}$)
37	3.65	3.44
38	3.21	3.22
39	3.41	3.32
40	3.33	3.35
41	3.09	3.22
42	2.64	3.30
43	3.23	2.97
44	2.91	2.80
45	2.88	2.73
46	2.86	2.76
47	2.86	2.76
48	3.24	2.99

Fig. 29 Relation between the ^{137}Cs and the burnupFig. 30. Relation between the $^{134}\text{Cs} / ^{137}\text{Cs}$ ratio and the burnup

3.2 燃焼計算によるUO₂ペレット片中のFP生成量評価

使用済燃料中のFP核種、アクチニド核種等の生成量を評価するための計算コードとして、ORIGEN、DCHAIN等が公開されている。これらは、1群断面積を用いた1点近似の燃焼計算コードである。⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾ 今回の燃焼計算ではORIGENコードを使用し、UO₂ペレット中心部の試料片（直径2mmで長さ10mm）を計算対象とした。⁽¹⁵⁾ γ 線スペクトル測定により求めたFP量と燃焼計算により求めたそれを比較するために、上記燃焼計算結果にW/W₀を乗じた。ここでは、Wは γ 線スペクトル測定した試料中のウラン重量（Table 15～18）であり、W₀は燃焼計算した直径2mmで長さ10mmの試料片中のウラン重量（0.2883g）である。なお、照射されているUO₂ペレット内では中性子勾配による燃焼の偏心あるいは温度勾配によるFP核種の移動（特にCs）が生じることが考えられるが、燃焼計算ではUO₂ペレット内の発熱分布を対称形とし、その発熱分布に従ってFPが生成し、移動しないものと仮定した。

着目したFP核種は、上記 γ 線スペクトル測定で取扱った7核種（⁹⁵Zr, ⁹⁵Nb, ¹⁰⁶Rh, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ¹⁴⁴Ce, ¹⁴⁴Pr）である。これらの核種の生成過程をFig.31に示す。以後、Fig.32に示された燃焼計算手順に従って述べる。

3.2.1 燃焼計算に必要な諸データ

3.2.1.1 77LF-33J集合体の照射履歴

77LF-33J集合体の照射履歴をFig.33に示す。Fig.33中に示した燃料試料の核発熱量（Q_N）の算出方法について以下に示す。Q_Nは、核分裂によって放出される全エネルギーの内、熱エネルギーに変換されるエネルギーから求められる。水ループOWL-1では、Q_Nは、熱収支法により測定されている試料総発熱量（Q_S）から燃料試料で発生するガンマ発熱量（Q _{γ} ）を引いた値に、1核分裂当りの発生熱エネルギー（E₁）と1核分裂当りの冷却水入熱エネルギー（E₂）との比を乗じて得られる。すなわち、

$$Q_N = (Q_S - Q_{\gamma}) \cdot E_1 / E_2 \quad \dots \dots \dots \quad (4)$$

となる。ここで、Q _{γ} = ^{*}5.5 KW, E₁ = 201.7 MeV, E₂ = 18.6 MeVとした。

3.2.1.2 UO₂ペレット片の線出力Q_P

UO₂ペレット中心部の直径2mmで長さ10mmの試料片について、線出力Q_P（W/cm）は次式により求めた。

$$Q_P = \frac{Q_N \cdot F_H \cdot F_Z}{N \cdot L} \cdot D_P \quad \dots \dots \dots \quad (5)$$

ただし、

Q_N : 燃料集合体核発熱量 (W)

* Q _{γ} = 試料重量 (3.068 kg) × OWL-1位置 γ 線加熱率 (1.79 W/g)

- F_H : 出力分担比 (一)
 F_Z : 軸方向出力分布係数 (一)
 D_P : UO_2 ペレットの径方向出力分布係数 (一)
 $(= 3.448 \times 10^{-2})$
 N : 燃料集合体中の燃料棒の数 (一)
 $(= 4)$
 L : UO_2 ペレットスタック長 (一)
 $(= 61.6)$

以下、 F_H 、 F_Z 及び D_P について具体的に述べる。

① 出力分担比 (F_H)

燃料集合体における各燃料棒の発熱量は、燃料集合体の核発熱量 (Q_N) に {出力分担比 (F_H) / 燃料棒の本数 (N) } を乗じて求められる。出力分担比は、大洗研H・Lで測定したグロス τ 線及び $^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$ τ 線による燃料棒の軸方向 τ 線スキャニングから求めた。燃料棒 i の出力分担比 (F_H^i) は次式で与えられる。

$$F_H^i = \frac{A_i}{\sum_{i=1}^N A_i / N} \quad \dots \dots \dots \quad (6)$$

ただし、

A_i : 燃料棒 i の軸方向放射能強度をペレットスタック長で積分した値
 N : 燃料棒の数
 F_H の計算結果を Table 2.3 に示す。今回の FP 生成量の計算には、 $^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$ の τ スキャニング結果から得た F_H を使用した。

② 軸方向出力分布係数 (F_Z)

燃料棒の UO_2 ペレット切断採取位置 (S_1 あるいは S_2) における線出力は、燃料棒発熱量に { 軸方向出力分布係数 (F_Z) / ペレットスタック長 (L) } を乗じて求められる。その軸方向出力分布係数 (F_Z) は、出力分担比 (F_H) と同様に燃料棒の軸方向 τ スキャニングから求めた。燃料棒 i の UO_2 ペレット切断採取位置における軸方向出力分布係数は次式で与えられる。

$$F_Z^i = \frac{a_i}{\bar{A}_i} \quad \dots \dots \dots \quad (7)$$

ただし、

a_i : 燃料棒 i の UO_2 ペレット切断採取位置の放射能強度
 \bar{A}_i : 燃料棒 i の軸方向平均放射能強度
 F_Z の計算結果を Table 2.4 に示す。なお、 S_1 及び S_2 は、各々 UO_2 ペレット切断採取位置 (炉中心から -85mm 、 -217mm) を示している (Fig.4 参照)。FP 生成量の計算には、出力分担比 (F_H) と同様に $^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$ の τ スキャニング結果から得た F_Z を使用した。

③ UO_2 ペレットの径方向出力分布係数 D_P

採取した UO_2 ペレット片の発熱量は、 UO_2 ペレット片採取位置における発熱量にペレット径方向

出力分布係数 (D_P) を乗じて求められる。ここでは D_P を次式で定義する。

$$D_P \equiv \frac{\int_{V_i} \Sigma_f \phi dV}{\int_{V_o} \Sigma_f \phi dV} \quad \dots \dots \dots \quad (8)$$

ただし、

$$\int_{V_o} \Sigma_f \phi dV : \text{UO}_2\text{ペレットの核分裂反応率}$$

$$\int_{V_i} \Sigma_f \phi dV : \text{UO}_2\text{ペレット片の核分裂反応率}$$

今回の UO_2 燃料の場合、その発熱の約 9.5% は熱中性子によって生じる。²⁰⁾ 従って、ペレット径方向の出力分布を熱中性子スペクトル計算コード THERMOS により求め、ペレット中心から半径 1 mm の領域内における出力分布係数 (D_P) を推定した。THERMOS 計算による UO_2 ペレットの径方向出力分布を Fig. 3.4 に示す。この THERMOS 計算結果から求めた D_P は 3.448×10^{-2} となつた。

3.2.1.3 中性子スペクトル指標

ORIGEN コードでは、3 群に分けられた中性子スペクトルインデックスを与えることにより、種々の中性子反応に対する 1 群縮約断面積 σ_{eff} が次式で算出される。

$$\sigma_{eff} = \sigma_{2200} \cdot \text{THERM} + R_I \cdot \text{RES} + \sigma_{ff} \cdot \text{FAST} \quad \dots \dots \dots \quad (9)$$

ただし、 σ_{2200} は 2200 m/sec の中性子に対する反応断面積、 R_I は共鳴積分、 σ_{ff} は 1 MeV 以上のエネルギーを有する中性子に対する反応断面積である。THERM, RES 及び FAST は、中性子スペクトル指標と呼ばれ、次のように定義されている。

THERM : 0.5 eV 以下のエネルギーの熱中性子に対する平均反応断面積と、 2200 m/sec の中性子に対する値との比であり、熱中性子スペクトルに依存する量である。熱中性子温度を $T_n (\text{K})$ とし、 $1/v$ 吸収体と仮定した場合

$$\text{THERM} = \sqrt{\frac{\pi}{4} \cdot \frac{T_o}{T_n}}$$

$$(T_o = 296.16 \text{ K})$$

RES : 単位レサジー当たりの共鳴領域中性子束 / 热中性子束。

中性子エネルギー範囲は、 $0.5 \text{ eV} \sim 1 \text{ MeV}$ 。

FAST : $1.45 \times (1 \text{ MeV} \text{ 以上の中性子束} / \text{热中性子束})$ 。

入力データとして使用した中性子スペクトル指標は、JMT-R 炉心核計算結果（第 48 サイクル、第 49 サイクル）より求めた。OWL-1 位置の 1 ~ 4 群の中性子束及び中性子スペクトル指標を Table 2.5 に示す。

3.2.2 燃焼計算結果

7核種のFP生成量について、本燃焼計算、 γ 線スペクトル測定及び化学分析 (^{137}Cs のみ) により求めた値をTable 26に示す。これらの結果から、各核種に対する計算値と γ 線スペクトル測定値の一一致度を調べるために、(計算値/ γ 線スペクトル測定値)の平均値及びその標準偏差(σ)を求めた。その結果をTable 27に示す。 γ 線スペクトル測定結果に対して、計算結果は ^{144}Ce を除いて±10%の誤差範囲内で一致した。 γ 線エネルギーの低い ^{144}Ce についての不一致は、 UO_2 ペレットによる自己吸収により γ 線スペクトル測定結果(γ 線強度)が小さくなっているためと思われる。なお、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比については、 γ 線スペクトル測定値に対して±10%の誤差範囲内で一致している。

3.2.3 燃焼度と $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比の相関

計算で求めた $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比(放射能強度の比)と化学分析結果から求めた燃焼度との関係をFig. 35に示す。それらの相関は次式で示される。

$$y = 2.70 \times 10^{-5} x \quad \dots \dots \dots \quad (10)$$

ただし、

$$y : {}^{134}\text{Cs}/{}^{137}\text{Cs} \text{ 比} \quad (—)$$

$$x : \text{燃焼度} \quad (\text{MWd}/\text{t})$$

なお、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比は、測定までの冷却期間に依存するため、Fig. 36に示す補正を要する。照射直後で規格化した補正係数は、 $\exp(-8.588 \times 10^{-4} t)$ で与えられる。ただし、 t は冷却期間(日)を示す。

Table 23 Heat generation ratio (F_H)

Rod No γ -ray	Rod 1	Rod 2	Rod 3	Rod 4
$^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$	1.03	1.21	0.89	0.88
Gross γ	1.25	1.15	0.95	0.65

Table 24 Axial thermal neutron flux distribution factor (F_Z)

Rod No γ -ray	Rod 1	Rod 2	Rod 3	Rod 4
$^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$	S_1	1.38	1.34	1.43
	S_2	1.07	1.12	1.14
Gross γ	S_1	1.28	1.23	1.27
	S_2	1.11	1.11	1.12

(S₁, S₂; See Fig. 4)

Table 25 Neutron Flux and Neutron Spectrum at the irradiation position

(1) Neutron Flux (Cell Mean)

Energy Group	Energy Range	4 8 cycle	4 9 cycle
1	$> 1 \text{ MeV}$	2.52×10^{13}	2.40×10^{13}
2	$0.183 \sim 1 \text{ MeV}$	2.89×10^{13}	2.73×10^{13}
3	$0.682 \text{ eV} \sim 0.183 \text{ MeV}$	9.14×10^{13}	8.82×10^{13}
4	$< 0.682 \text{ eV}$	1.01×10^{14}	1.02×10^{14}

(2) Mean Thermal Neutron Velocity at UO_2 Pellet (\bar{v})

$$\bar{v} = 3825.8 \text{ m/sec}$$

(3) Neutron Spectrum Index (ORIGEN Code Input Data)

T H E R M	0.575
R E S	0.082
F A S T	0.362

Table 26(a) Comparison between the γ -ray spectrum measurement results and the calculation results

Dimension: $\mu\text{Ci}/\text{Sample}$

FP Nuclide	Rod No. Sample No. <i>U weight (mg)</i>	Rod 1 (S_1)		Rod 1 (S_2)	
		No.2	No.5	No.8	No.11
		20.9	35.6	53.8	68.1
^{95}Zr	A	2.30×10^{-1}	3.92×10^{-1}	4.56×10^{-1}	5.77×10^{-1}
	B	2.21×10^{-1}	4.26×10^{-1}	5.61×10^{-1}	6.65×10^{-1}
	A/B	1.06	0.92	0.81	0.87
^{95}Nb	A	4.99×10^{-1}	8.50×10^{-1}	9.89×10^{-1}	1.25
	B	5.04×10^{-1}	8.66×10^{-1}	1.23	1.44
	A/B	0.99	0.98	0.80	0.87
^{106}Rh	A	4.39×10^1	7.48×10^1	8.07×10^1	1.02×10^2
	B	4.20×10^1	7.78×10^1	9.59×10^1	1.17×10^2
	A/B	1.05	0.96	0.84	0.87
^{144}Ce	A	2.47×10^2	4.20×10^2	4.94×10^2	6.25×10^2
	B	6.55×10^1	1.13×10^2	1.13×10^2	1.66×10^2
	A/B	3.77	3.72	4.37	3.77
^{144}Pr	A	2.47×10^2	4.20×10^2	4.94×10^2	6.25×10^2
	B	2.28×10^2	4.14×10^2	5.57×10^2	6.80×10^2
	A/B	1.08	1.01	0.89	0.92
^{134}Cs	A	3.36	5.73	5.24	6.63
	B	3.01	5.50	6.46	7.69
	A/B	1.12	1.04	0.81	0.86
^{137}Cs	A	8.70×10^1	1.48×10^2	1.73×10^2	2.20×10^2
	B	7.83×10^1	1.46×10^2	1.93×10^2	2.36×10^2
	C	8.85×10^1	1.63×10^2	2.13×10^2	2.64×10^2
	A/B	1.11	1.01	0.90	0.93
	A/C	0.98	0.91	0.81	0.83
$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$	A	3.86×10^{-2}	3.87×10^{-2}	3.03×10^{-2}	3.01×10^{-2}
	B	3.84×10^{-2}	3.77×10^{-2}	3.35×10^{-2}	3.26×10^{-2}

A: Calculation Result by ORIGEN Code

B: γ -ray Spectrum Measurement Result obtained at Hot Laboratory,
TOKAI Research EstablishmentC: γ -ray Spectrum Measurement Result obtained at Analytical
Chemistry Laboratory, TOKAI Research Establishment

Table 26(b) Comparison between the γ -ray spectrum measurement results and the calculation results

		Dimension: $\mu\text{Ci}/\text{Sample}$			
		Rod 2 (S_1)		Rod 2 (S_2)	
FP Nuclide	Rod No. Sample No. U weight (mg)	No.14	No.17	No.20	No.23
		47.7	44.5	61.0	42.8
^{95}Zr	A	5.85×10^{-1}	5.45×10^{-1}	6.20×10^{-1}	4.35×10^{-1}
	B	6.29×10^{-1}	5.62×10^{-1}	6.47×10^{-1}	5.47×10^{-1}
	A/B	0.93	0.97	0.96	0.80
^{95}Nb	A	1.27	1.18	1.35	9.44×10^{-1}
	B	1.32	1.18	1.49	1.12
	A/B	0.96	1.00	0.91	0.84
^{106}Rh	A	1.19×10^2	1.11×10^2	1.20×10^2	8.39×10^1
	B	1.11×10^2	1.01×10^2	1.13×10^2	9.58×10^1
	A/B	1.07	1.10	1.06	0.88
^{144}Ce	A	6.37×10^2	5.95×10^2	6.82×10^2	4.79×10^2
	B	1.40×10^2	1.54×10^2	1.30×10^2	1.36×10^2
	A/B	4.55	3.86	5.25	3.52
^{144}Pr	A	6.37×10^2	5.95×10^2	6.82×10^2	4.79×10^2
	B	6.02×10^2	5.39×10^2	6.53×10^2	5.14×10^2
	A/B	1.06	1.10	1.04	0.93
^{134}Cs	A	9.93	9.26	8.91	6.25
	B	8.25	7.42	7.57	6.73
	A/B	1.20	1.25	1.18	0.93
^{137}Cs	A	2.26×10^2	2.11×10^2	2.42×10^2	1.70×10^2
	B	2.05×10^2	1.83×10^2	2.24×10^2	1.82×10^2
	C	2.38×10^2	2.14×10^2	2.51×10^2	1.92×10^2
	A/B	1.10	1.15	1.08	0.93
	A/C	0.95	0.99	0.96	0.89
$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$	A	4.39×10^{-2}	4.39×10^{-2}	3.68×10^{-2}	3.68×10^{-2}
	B	4.02×10^{-2}	4.05×10^{-2}	3.38×10^{-2}	3.70×10^{-2}

A: Calculation Result by ORIGEN Code

B: γ -ray Spectrum Measurement Result obtained at Hot Laboratory,
TOKAI Research Establishment

C: γ -ray Spectrum Measurement Result obtained at Analytical
Chemistry Laboratory, TOKAI Research Establishment

Table 26(c) Comparison between the γ -ray spectrum measurement results and the calculation results

		Dimension: $\mu\text{Ci}/\text{Sample}$			
		Rod 3 (S_1)		Rod 3 (S_2)	
FP Nuclide	Rod No. Sample No. U weight (mg)	No.26	No.29	No.32	No.35
		50.0	37.9	57.5	45.7
		A	4.78×10^{-1}	3.58×10^{-1}	4.26×10^{-1}
^{95}Zr	B	5.20×10^{-1}	3.60×10^{-1}	4.57×10^{-1}	4.72×10^{-1}
	A/B	0.92	0.99	0.93	0.71
	A	1.04	7.77×10^{-1}	9.23×10^{-1}	7.26×10^{-1}
^{95}Nb	B	1.08	8.43×10^{-1}	1.14	8.94×10^{-1}
	A/B	0.96	0.92	0.81	0.81
	A	9.02×10^1	6.82×10^1	7.67×10^1	6.09×10^1
^{106}Rh	B	8.92×10^1	6.77×10^1	8.13×10^1	6.42×10^1
	A/B	1.01	1.01	0.94	0.95
	A	5.26×10^2	3.99×10^2	4.80×10^2	3.81×10^2
^{144}Ce	B	1.28×10^2	1.33×10^2	1.05×10^2	1.01×10^2
	A/B	4.11	3.00	4.57	3.77
	A	5.26×10^2	3.99×10^2	4.80×10^2	3.81×10^2
^{144}Pr	B	5.04×10^2	3.78×10^2	4.71×10^2	3.84×10^2
	A/B	1.04	1.06	1.02	0.99
	A	6.46	4.89	4.73	3.76
^{134}Cs	B	5.71	4.35	4.70	3.75
	A/B	1.13	1.12	1.01	1.00
	A	1.86×10^2	1.41×10^2	1.71×10^2	1.36×10^2
^{137}Cs	B	1.71×10^2	1.30×10^2	1.64×10^2	1.33×10^2
	C	1.82×10^2	1.31×10^2	1.71×10^2	1.44×10^2
	A/B	1.09	1.08	1.04	1.02
$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$	A/C	1.02	1.08	0.99	0.94
	A	3.47×10^{-2}	3.47×10^{-2}	2.77×10^{-2}	2.76×10^{-2}
	B	3.34×10^{-2}	3.35×10^{-2}	2.87×10^{-2}	2.82×10^{-2}

A: Calculation Result by ORIGEN Code

B: γ -ray Spectrum Measurement Result obtained at Hot Laboratory,
TOKAI Research Establishment

C: γ -ray Spectrum Measurement Result obtained at Analytical
Chemistry Laboratory, TOKAI Research Establishment

Table 26(d) Comparison between the γ -ray spectrum measurement results and the calculation results

Dimension: $\mu\text{Ci}/\text{Sample}$

FP Nuclide	Rod No. Sample NO.	Rod 4 (S_1)		Rod 4 (S_2)	
	U weight (mc)	No.38	No.41	No.44	No.47
		28.1	24.5	22.8	21.4
^{95}Zr	A	2.56×10^{-1}	2.21×10^{-1}	1.63×10^{-1}	1.53×10^{-1}
	B	2.79×10^{-1}	2.10×10^{-1}	1.64×10^{-1}	1.87×10^{-1}
	A/B	0.92	1.05	0.99	0.82
^{95}Nb	A	5.56×10^{-1}	4.79×10^{-1}	3.54×10^{-1}	3.32×10^{-1}
	B	6.13×10^{-1}	5.16×10^{-1}	4.51×10^{-1}	4.14×10^{-1}
	A/B	0.91	0.93	0.78	0.80
^{106}Rh	A	5.00×10^1	4.35×10^1	3.01×10^1	2.83×10^1
	B	4.72×10^1	3.94×10^1	3.25×10^1	3.01×10^1
	A/B	1.06	1.10	0.93	0.94
^{144}Ce	A	2.91×10^2	2.53×10^2	1.89×10^2	1.77×10^2
	B	7.18×10^1	8.68×10^1	5.58×10^1	7.80×10^1
	A/B	4.05	2.91	3.39	2.27
^{144}Pr	A	2.91×10^2	2.53×10^2	1.89×10^2	1.77×10^2
	B	2.64×10^2	2.23×10^2	1.94×10^2	1.80×10^2
	A/B	1.10	1.13	0.97	0.98
^{134}Cs	A	3.58	3.12	1.86	1.75
	B	2.90	2.44	1.86	1.69
	A/B	1.23	1.28	1.00	1.04
^{137}Cs	A	1.04×10^2	9.08×10^1	6.75×10^1	6.33×10^1
	B	9.01×10^1	7.57×10^1	6.64×10^1	6.12×10^1
	C	9.82×10^1	8.00×10^1	7.10×10^1	6.66×10^1
	A/B	1.15	1.20	1.02	1.03
	A/C	1.06	1.14	0.95	0.95
$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$	A	3.44×10^{-2}	3.44×10^{-2}	2.76×10^{-2}	2.76×10^{-2}
	B	3.22×10^{-2}	3.22×10^{-2}	2.80×10^{-2}	2.76×10^{-2}

A: Calculation Result by ORIGEN Code

B: γ -ray Spectrum Measurement Result obtained at Hot Laboratory,
TOKAI Research EstablishmentC: γ -ray Spectrum Measurement Result obtained at analytical
Chemistry Laboratory, TOKAI Research Establishment

Table 27 Degree of the coincidence between the γ -ray spectrum measurement results and the calculation results

Nuclide	M* ¹	S* ² (%)
⁹⁵ Zr	0.92	11
⁹⁵ Nb	0.90	9
¹⁰⁶ Ru	0.99	9
¹⁴⁴ Ce	3.80	20
¹⁴⁴ Pr	1.02	7
¹³⁴ Cs	1.08	13
¹³⁷ Cs	1.05	8
¹³⁷ Cs	0.97* ³	9* ⁴
¹³⁴ Cs/ ¹³⁷ Cs	1.02	6

*1 Mean value of A/B

*2 Standard deviation of A/B

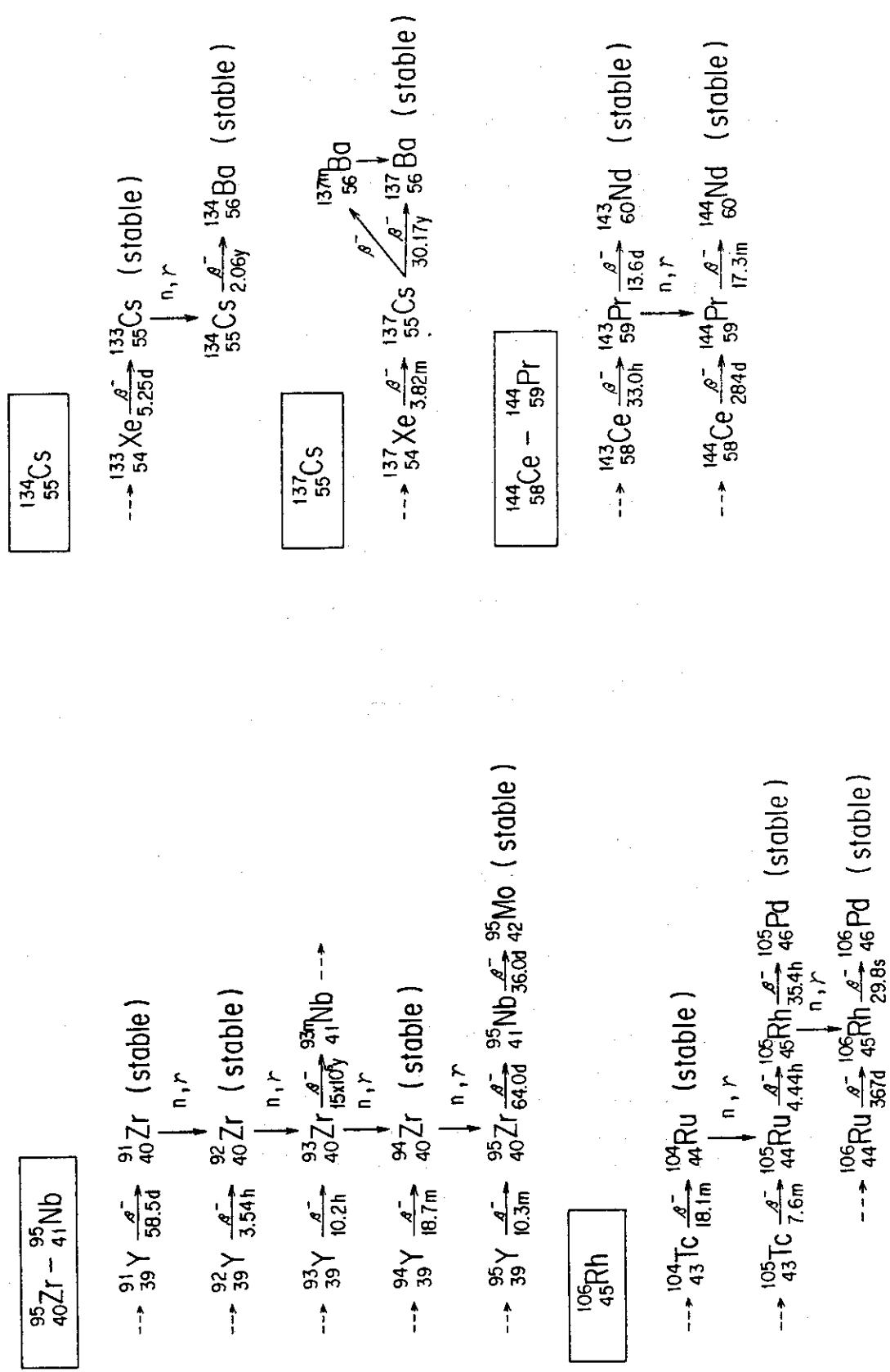
*3 Mean value of A/C

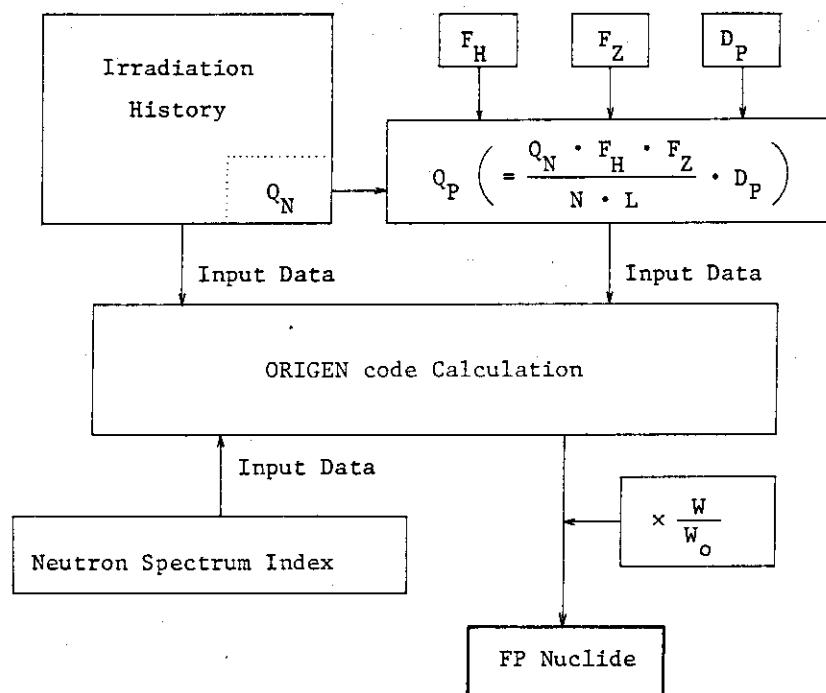
*4 Standard deviation of A/C

A: Calculation result by ORIGEN code

B: γ -ray spectrum measurement result obtained at Hot Laboratory, TOKAI Research Establishment

C: γ -ray spectrum measurement result obtained at Analytical Chemistry Laboratory, TOKAI Research Establishment

Fig. 31 Product process of the nuclide obtained by the γ -ray spectrum measurement



Q_p	Linear Heat Rate of ϕ_2 UO ₂ Pellet	(W/cm)
Q_N	Nuclear Heat Generation of Each Fuel Rod	(W)
F_H	Heat Generation Ratio	(-)
F_Z	Axial Power Distribution factor	(-)
D_P	Depression Factor	(-)
N	Number of Fuel Rods (=4)	(-)
L	Stack length (=61.6)	(cm)
W	Weight of UO ₂ Pellet Pieces used for γ -ray Spectrum Measurement	(g)
W_o	$\phi_2 \times 10$ mm UO ₂ Pellet Weight (=0.2883)	(g)

Fig. 32. Burnup calculation process

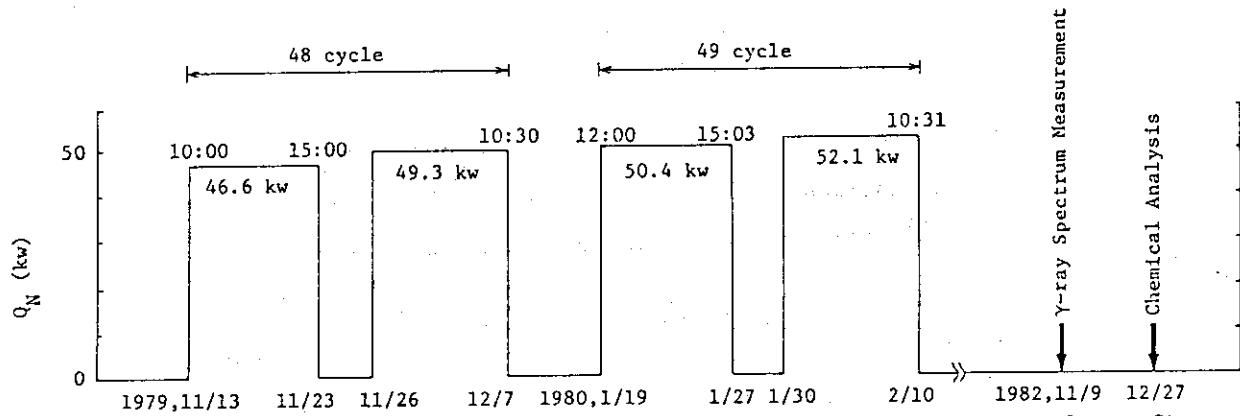
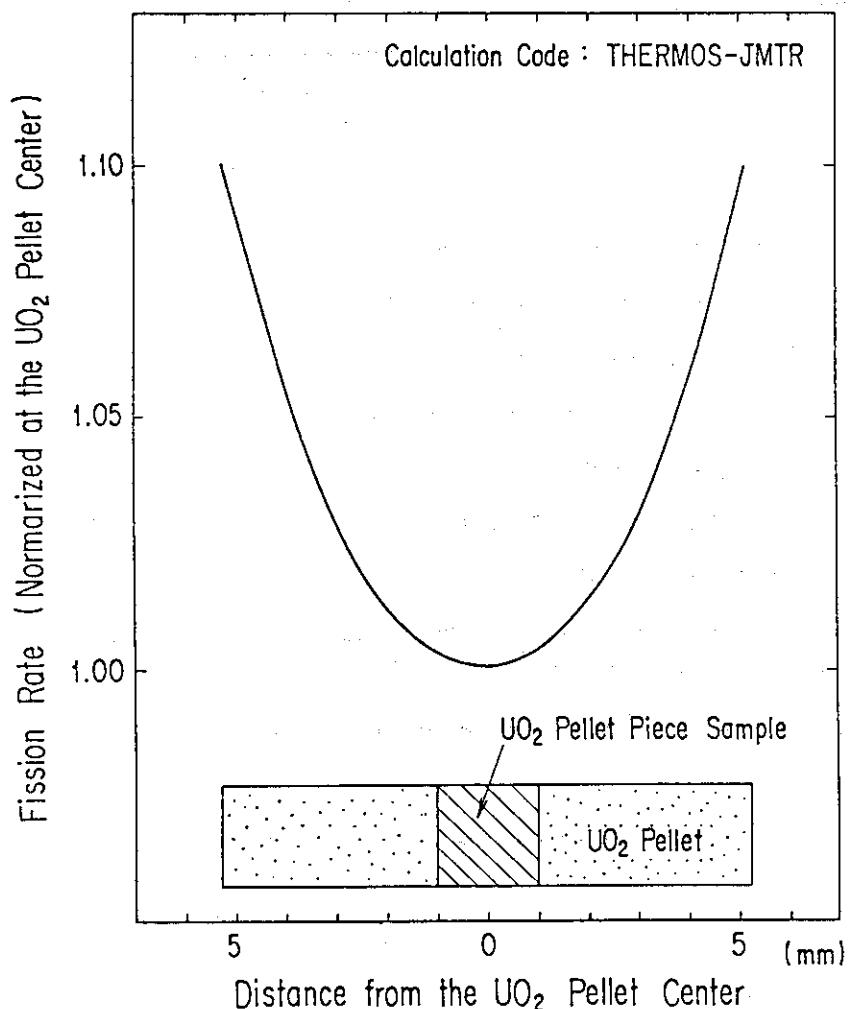


Fig. 33 Irradiation history of 77LF-33J assembly

Fig. 34 Neutron Depression in the UO_2 pellet

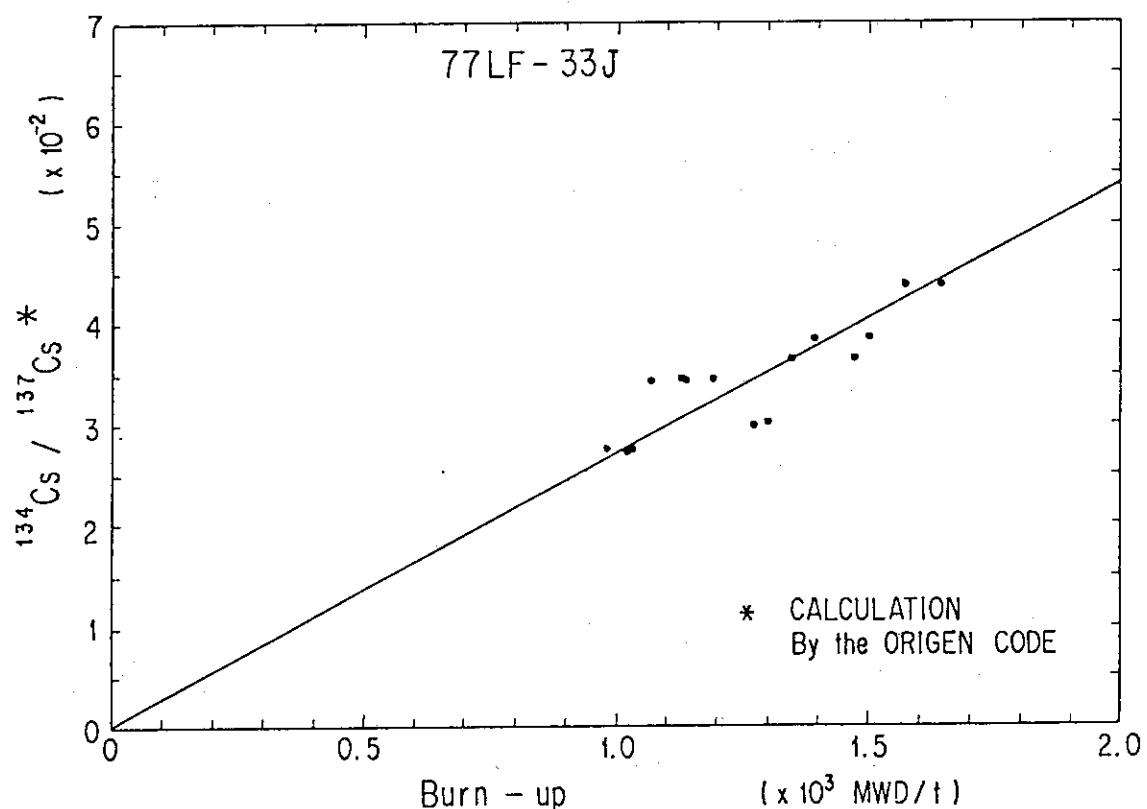


Fig. 35 Relation between the $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio obtained by the calculation and the burnup

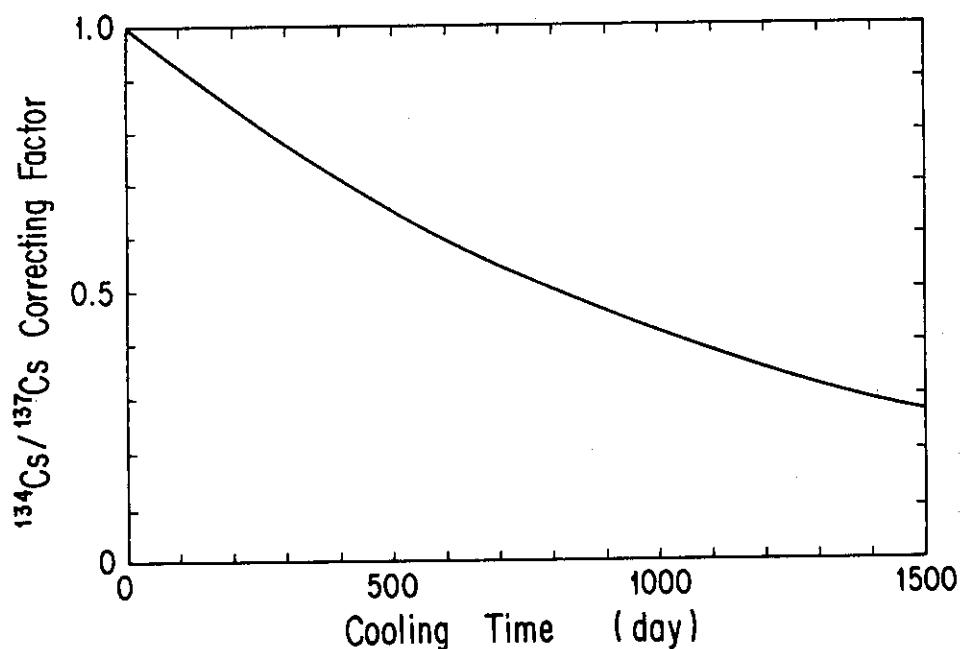


Fig. 36 Correcting Factor of $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio

4. 結 論

今回実施した燃焼度評価結果について以下に要約する。

(1) γ 線スペクトル測定により求めた ^{137}Cs 量及び $^{134}\text{Cs} / ^{137}\text{Cs}$ 比と、化学分析結果から算出した燃焼度との相関を調べ、次の相関式を得た。

$$y_1 = 2.8 \times 10^{-3} x$$

$$y_2 = 2.6 \times 10^{-5} x$$

ただし、

y_1 : ^{137}Cs 量 ($\mu\text{Ci}/\text{Umg}$)

y_2 : $^{134}\text{Cs} / ^{137}\text{Cs}$ (—)

x : 燃焼度 (MWd/t)

なお、これらの式は照射が終了してから、1000日後の相関を示したものであるため、冷却期間が異なる場合には ^{134}Cs 及び ^{137}Cs の崩壊補正を要する。

(2) 燃焼計算コードORIGENを用いて、7種類のFP核種の生成量を求め、それらの値と γ 線スペクトル測定により求めたFP量とを比較した。結果、 ^{144}Ce を除いた他の6核種(^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{106}Rh , ^{134}Cs 及び ^{144}Pr)について計数量と実測値とは±10%の誤差範囲内で一致した。

5. あとがき

今回は、大洗研H・Lで燃料棒切断前に燃料棒の γ 線スペクトルを測定できなかつたため、燃料棒から切断採取したUO₂ペレット片についてのみ、 γ 線スペクトルを測定し、得た¹³⁷Cs量及び¹³⁴Cs/¹³⁷Cs比と、化学分析により求めた燃焼度との相関を明らかにした。

次回は、さらに燃焼の進んだ（最大約2500MWd/t）第2次燃料中心温度測定実験用試料78LF-35J集合体（集合体は3本の燃料棒から構成されている）を用いて、より簡便で正確な燃焼度評価法を確立するために以下の4項目について検討する予定である。

- ① 今回と同じ手法により、燃料棒から切断採取したUO₂ペレット片を用いて、Fig.29及びFig.30に示した相関領域を約2500MWd/tまで拡大する。
- ② 非破壊による燃料棒の γ 線スペクトル測定から得た¹³⁷Csのカウント数及び¹³⁴Cs/¹³⁷Cs比（カウント数の比）と、化学分析により求めた燃焼度との相関を求める。
- ③ ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs以外の核種、例えば¹⁴⁴Pr、¹⁰⁶Rhを用いて、 γ 線スペクトル測定結果に含まれた他の情報を得る。
- ④ 化学分析により、UO₂ペレット中のPuを定量し、Pu生成量を用いて計算コードを検証する。

謝辞

本燃焼度評価を実施するにあたり、材料試験炉部計画課長（現材料試験炉部次長）佐藤雅幸氏、前ホットラボ課長大内正博氏に多大な支援をいただいた。ホットラボ課清水道雄氏及び小野崎勉氏には、照射済UO₂ペレットから1辺が2~3mmの立方体形状UO₂ペレット片を切断採取していただいた。放射線管理課（現保健物理部・放射線管理第2課）北野匡四郎氏、ホットラボ課富田衛氏及び中川哲也氏には、上記UO₂ペレット片の輸送に関して助言をいただいた。また、大洗研H・Lで実施した γ 線スペクトル測定結果のデータ処理にあたり、千代田メイテナンス株式会社の照沼光男氏に支援いただいた。

原子炉化学部・分析センター武藤博氏、青柳寿夫氏、木原壮林氏（現京都大学）、安達武雄氏、吉田善行氏及び分析センター室長小森卓二氏には、照射済UO₂ペレット片の化学分析に対して多大な支援をいただいた。また、同部放射化学研究室米澤仲四郎氏には、照射済UO₂ペレット中の¹³⁷Cs量の定量に対して支援していただいた。

研究炉管理部・ホットラボ管理室長石本清氏及び同室鈴木紘氏には、同ホットラボを利用するにあたり、配慮及び助言をいただいた。また、同室喜多川勇氏及び宮西秀至氏には、 γ 線スペクトル測定を実施していただいた。

原子炉化学部・燃焼率測定開発室長岡下宏氏及び同室岡崎修二氏には、本報告書をまとめる上で有意義な助言をいただいた。

以上、記して心から謝意を表します。

5. あとがき

今回は、大洗研H・Lで燃料棒切斷前に燃料棒の γ 線スペクトルを測定できなかつたため、燃料棒から切斷採取したUO₂ペレット片についてのみ、 γ 線スペクトルを測定し、得た¹³⁷Cs量及び¹³⁴Cs/¹³⁷Cs比と、化学分析により求めた燃焼度との相関を明らかにした。

次回は、さらに燃焼の進んだ（最大約2500MWd/t）第2次燃料中心温度測定実験用試料78LF-35J集合体（集合体は3本の燃料棒から構成されている）を用いて、より簡便で正確な燃焼度評価法を確立するために以下の4項目について検討する予定である。

- ① 今回と同じ手法により、燃料棒から切斷採取したUO₂ペレット片を用いて、Fig.29及びFig.30に示した相関領域を約2500MWd/tまで拡大する。
- ② 非破壊による燃料棒の γ 線スペクトル測定から得た¹³⁷Csのカウント数及び¹³⁴Cs/¹³⁷Cs比（カウント数の比）と、化学分析により求めた燃焼度との相関を求める。
- ③ ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs以外の核種、例えば¹⁴⁴Pr、¹⁰⁶Rhを用いて、 γ 線スペクトル測定結果に含まれた他の情報を得る。
- ④ 化学分析により、UO₂ペレット中のPuを定量し、Pu生成量を用いて計算コードを検証する。

謝辞

本燃焼度評価を実施するにあたり、材料試験炉部計画課長（現材料試験炉部次長）佐藤雅幸氏、前ホットラボ課長大内正博氏に多大な支援をいただいた。ホットラボ課清水道雄氏及び小野崎勉氏には、照射済UO₂ペレットから1辺が2～3mmの立方体形状UO₂ペレット片を切斷採取していただいた。放射線管理課（現保健物理部・放射線管理第2課）北野匡四郎氏、ホットラボ課富田衛氏及び中川哲也氏には、上記UO₂ペレット片の輸送に関して助言をいただいた。また、大洗研H・Lで実施した γ 線スペクトル測定結果のデータ処理にあたり、千代田メイテナス株式会社の照沼光男氏に支援いただいた。

原子炉化学部・分析センター武藤博氏、青柳寿夫氏、木原壮林氏（現京都大学）、安達武雄氏、吉田善行氏及び分析センター室長小森卓二氏には、照射済UO₂ペレット片の化学分析に対して多大な支援をいただいた。また、同部放射化学研究室米澤仲四郎氏には、照射済UO₂ペレット中の¹³⁷Cs量の定量に対して支援していただいた。

研究炉管理部・ホットラボ管理室長石本清氏及び同室鈴木紘氏には、同ホットラボを利用するにあたり、配慮及び助言をいただいた。また、同室喜多川勇氏及び宮西秀至氏には、 γ 線スペクトル測定を実施していただいた。

原子炉化学部・燃焼率測定開発室長岡下宏氏及び同室岡崎修二氏には、本報告書をまとめる上で有意義な助言をいただいた。

以上、記して心から謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 材料試験炉部編：JAERI-M 83-053，“JMT-R照射ハンドブック”(1983)
- 2) 燃料工学部編：JAERI-memo 3767(公開)，“第2回燃料・材料照射討論会報告”(1969)
- 3) 夏目晴夫，岡下宏，梅沢弘一：日本原子力学会誌，15, No.4, 239 (1973)
- 4) 夏目晴夫，他：日本原子力学会誌，15, No.6, 361 (1973)
- 5) R.R. Edwards：“A Review of Recent Studies of Nondestructive Assay Methods for Irradiated Nuclear Fuels” Nucl. Applications, 4, 245 (1968)
- 6) R.S. Forsyth, W.H. Blackadder：“Use of the Fission Product Pu-106 Gamma Activity as a Method for Estimating the Relative Number of Fission Events in ^{235}U and ^{239}Pu in Low Enriched Fuel Elements” Symposium on Progress in Safeguards Techniques, Kahlsruhe, IAEA SM-133/4 (1970)
- 7) 安藤弘栄，河村弘，他：JAERI-M 9202，“JMT-Rにおける燃料中心温度測定実験(I)－第1次燃料試料の実験解析－”(1980)
- 8) 中島照夫，他：JAERI-M 9600，“JMT-Rにおける燃料中心温度測定実験(I)－第1次燃料試料(77LF-33J)の設計と製作－”(1981).
- 9) 酒井陽之，他：JAERI-M 82-034，“JMT-Rにおける燃料中心温度測定実験(I)－第1次燃料の照射後試験－”(1982).
- 10) 安藤弘栄，他：JAERI-M 83-003，“燃料中心温度測定実験第1次試料(77LF-33J)の実験総合報告”，(1983).
- 11) 河村弘，他：JAERI-M 82-020，“JMT-Rにおける燃料中心温度測定実験(IV)－第2次試料の予備実験－”，(1982).
- 12) 伊藤昇，他：JAERI-M 82-187，“JMT-Rにおける燃料中心温度測定実験(V)－第2次燃料試料の設計製作－”，(1982).
- 13) 河村弘，他：JAERI-M 83-133，“JMT-Rにおける軽水炉燃料の局所線出力評価法(OWL-1照射孔)”，(1983).
- 14) Bell M. J. : ORNL-4628 (1973).
- 15) 小山謹二，他：JAERI-M 8229，“ORIGEN-JR, 同位体元素の生成消滅解析及び放射線源計算コード”(1979).
- 16) Sorin Kihara, T. Adati and H. Hashitani : Fresenius Z. Anal. Chem., 28, 303 (1980).
- 17) Sorin Kihara, Zenko Yoshida et al : Anal. Chem., 52, No 11, 1601 (1980).
- 18) ASTM C 696-80

- 19) 田坂完二：JAERI-1250，“DCHAIN，放射線ならびに安定核種の生成崩壊解析コード”(1976).
- 20) 飯田浩正, 永岡芳春：JAERI-M 6079, “熱群セル計算コードの改良 (THERMOS-JMTR)” (1975).
- 21) H. Baba, T. Sekine et al : JAERI-1227, “A Method of the Gamma-Ray Spectrum Analysis FORTRAN IV Program, “BOB-73” for Ge(Li) Detectors and “NAISAP” for NaI(Tl) Detectors” (1973).