

# 「常陽」使用済燃料の崩壊熱の測定評価(2)

(研究報告書)

2001年1月



核燃料サイクル開発機構

大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせ  
ください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2001

## 「常陽」使用済燃料の崩壊熱の測定評価(2)

### (研究報告書)

前田 茂貴\*1、野瀬 正一\*2、長崎 英明\*3、青山 卓史\*1

#### 要 旨

使用済燃料の崩壊熱を精度良く把握することは、原子炉冷却系、使用済燃料の取扱・貯蔵設備等の設計において重要であり、「常陽」では実際の使用済 MOX 燃料の崩壊熱データを蓄積し、それを基に解析法の精度向上を進めている。

今回、使用済の MK-II 燃料（集合体平均燃焼度約 6.6 万 MWd/t）について、冷却期間 40～150 日における崩壊熱を詳細に測定し、実測値  $1446 \pm 24 \sim 663 \pm 20$  W を得た。崩壊熱計算では“ORIGEN2”計算に加え、炉心管理コードシステム“MAGI”を用いた中性子スペクトルを反映した燃焼計算を基に崩壊熱を算出し、 $C/E=0.94 \sim 0.90$  を得た。

測定対象集合体は、全照射期間を通じて「常陽」の炉心第 1 列に装荷されており、計算条件が単純なため、解析上の誤差要因が少ない。今回みられた計算値と測定値の系統的な差は FP 崩壊熱の計算誤差（1～2%）や測定誤差（ $1\sigma=1.7 \sim 3.0\%$ ）より大きく、その主要因はアクチニド崩壊熱の計算誤差によるものと考えられ、これらの核種生成に係る断面積や燃焼組成の不確かさ等の影響を検討する必要があることが明らかとなった。

---

本報告書の内容には、原子カシステム（株）が核燃料サイクル開発機構（機構担当部課室：実験炉部 技術課）との契約により実施した業務成果に関するものを含み、核燃料サイクル開発機構が取りまとめたものである。

\*1 大洗工学センター 照射施設運転管理センター 実験炉部 技術課

\*2 現、大洗工学センター 照射施設運転管理センター 実験炉部 原子炉一課

\*3 原子カシステム株式会社

## Measurement and Analysis of JOYO MK-II Spent MOX Fuel Decay Heat(2)

Shigetaka MAEDA\*<sup>1</sup>, Shoichi NOSE\*<sup>2</sup>, Hideaki NAGASAKI\*<sup>3</sup> and Takafumi AOYAMA\*<sup>1</sup>

### ABSTRACT

Decay heat of the spent MOX fuel is important not only from the viewpoint of reactor safety concerning a decay heat removal at the reactor shut down, but also for the thermal design of the spent fuel storage and handling facility.

In order to obtain the experimental data and to improve the accuracy of calculation, the decay heat of spent fuel subassemblies of the JOYO Mk-II core was measured. The burn-up was 66 GWd/t and the cooling time was between 40 and 150 days. Measured decay heat of the spent fuel subassemblies was approximately  $1446 \pm 24 \sim 663 \pm 20$  W. The decay heat was calculated by "ORIGEN2" code and then it was compared with the measured value. In the "ORIGEN2" calculation, the JENDL-3.2 cross section library and the JNDC-V2 decay data library were used and fuel power calculated by the core management code system "MAGI" was used as a input. The ratios between calculated and experimental values, C/Es, were approximately between 0.94 and 0.90.

The discrepancy between calculation and measurement was considered to be larger than the experimental error ( $1\sigma=1.7\sim3.0\%$ ) or the uncertainty of calculated FP decay heat (1~2%). It appears due to the uncertainty of actinides decay heat and that indicates cross sections of actinides and initial composition of actinides are important to evaluate decay heat accurately.

---

\*1 Reactor Technology Section, Experimental Reactor Division, Irradiation Center, Oarai Engineering Center, JNC

\*2 Presently at Reactor Operation Section, Experimental Reactor Division, Irradiation Center, Oarai Engineering Center, JNC

\*3 Nuclear Engineering System Inc.

## 目次

1. 緒言 .....	1
2. 評価対象集合体 .....	1
3. 崩壊熱測定 .....	1
3. 1 測定装置 .....	1
3. 2 崩壊熱の測定 .....	1
3. 3 模擬発熱体による測定装置の較正 .....	2
3. 4 測定装置外への放射線漏洩の補正 .....	2
3. 5 崩壊熱の測定精度 .....	3
3. 6 MK-II 炉心燃料集合体の崩壊熱 .....	4
4. 崩壊熱計算 .....	4
4. 1 計算方法 .....	4
4. 2 燃焼度測定による軸方向出力分布の補正 .....	5
4. 3 崩壊熱計算結果 .....	6
5. アクチニド生成量の崩壊熱への影響 .....	6
6. 結言 .....	7
謝辞 .....	7
参考文献 .....	8

## 表リスト

表 2.1	測定集合体の概要 (PFD601) .....	9
表 2.2	測定集合体の概要 (PFD602) .....	10
表 4.1	崩壊熱の計算手法.....	11
表 4.2	軸方向核分裂率分布の計算値と測定値の比較 (PFD601) .....	11
表 4.3	PFD601 の崩壊熱.....	12
表 4.4	PFD602 の崩壊熱.....	12
表 5.1	核種生成量及び崩壊熱計算値の比較 (PFD601) .....	13

## 図リスト

図 2.1	測定集合体の照射履歴 .....	14
図 3.1	崩壊熱測定装置の系統図 .....	15
図 3.2	模擬発熱体の概略図 .....	16
図 3.3	崩壊熱測定装置の較正試験結果 (流量 0.5 l/m) .....	17
図 3.4	崩壊熱測定装置の較正試験結果 (流量 0.3 l/m) .....	17
図 3.5	QAD-CG コードの計算体系 .....	18
図 3.6	発熱損失補正係数の冷却期間依存性 (PFD601、PFD602) .....	19
図 3.7	出入口温度差の測定値に対する誤差 .....	20
図 3.8	崩壊熱測定結果 (PFD601、PFD602) .....	21
図 4.1	ORIGEN2 用 1 群断面積作成の流れ .....	22
図 4.2	燃焼度測定装置概略図 .....	23
図 4.3	$\gamma$ 線測定装置概略図 .....	24
図 4.4	$\gamma$ 線スペクトル測定結果 (PFD601) .....	25
図 4.5	$\gamma$ 線計数率の軸方向分布 (PFD601、集合体全体図) .....	26
図 4.6	$\gamma$ 線計数率の軸方向分布 (PFD601、燃料上端部詳細図) .....	27
図 4.7	$\gamma$ 線計数率の軸方向分布 (PFD601、燃料下端部詳細図) .....	28
図 4.8	軸方向核分裂率分布の比較 (PFD601) .....	29
図 4.9	崩壊熱計算結果 (PFD601、PFD602) .....	30
図 4.10	崩壊熱の C/E の推移 (PFD601) .....	31
図 4.11	崩壊熱の C/E の推移 (PFD602) .....	31
図 5.1	アクチニドの燃焼チェーン .....	32

## 1. 緒言

使用済燃料の崩壊熱を精度良く把握することは、原子炉冷却系、使用済燃料の取扱・貯蔵・保管設備等の設計において重要である。このため、高速実験炉「常陽」では、実際の使用済混合酸化物 (MOX) 燃料の崩壊熱データを蓄積し、それを基に解析法の精度向上を進めている。今回、炉内での照射条件が単純な MK-II 燃料集合体を選定し、冷却期間 40～150 日における崩壊熱を詳細に測定した。

崩壊熱計算は、原研シグマ研究委員会を中心に整備された ORIGEN2 コード<sup>[1]</sup>により行い、JNDC 崩壊熱データライブラリーと「常陽」MK-II 炉心の中性子スペクトルで縮約した JENDL-3.2 ベースの断面積ライブラリーを使用した。また、炉心管理コードシステム「MAGI」の燃焼計算で求めた組成を ORIGEN2 コードに入力した場合についても評価した。これらの比較により、計算法の違いによる核種生成量の差や崩壊熱の計算誤差の要因を検討した。

## 2. 評価対象集合体

今回測定した集合体は、MK-II 炉心の第 6 次取替燃料集合体の PFD601 及び PFD602 であり、第 30 サイクル初期に装荷され、第 35 サイクル終了後に取り出されるまで全運転期間を通じて炉心第 1 列で照射されたものである。測定対象集合体の主要な燃料仕様、中性子照射量及び燃焼度と炉内装荷位置を表 2.1、2.2 に、これらの照射履歴を図 2.1 に示す。

## 3. 崩壊熱測定

### 3.1 測定装置

「常陽」の使用済燃料集合体は、ナトリウムを洗浄した後に冷却水を入れた缶詰缶に封入され、この缶詰缶ごと水冷却池のラックに貯蔵される。崩壊熱測定装置は、この缶詰缶を収納する測定容器、測定容器に冷却水を供給する水循環ポンプと配管、冷却水温度を測定する測温抵抗体、流量計及び測定データを処理する小型計算機システムから構成される<sup>[2]</sup>。崩壊熱測定装置の系統図を図 3.1 に示す。本装置は、「常陽」原子炉付属建家の使用済燃料水冷却池の壁面に設置され、使用済燃料集合体を缶詰缶ごと測定容器に装荷して崩壊熱を測定する。

使用済燃料の崩壊熱は、測定容器内の冷却水の出入口温度差と流量及び比熱から求まるヒートバランスにより測定する。崩壊熱測定装置を循環する冷却水の出入口温度は、入口側と出口側の各 2 箇所を設置した白金測温抵抗体の温度計で、また、冷却水流量は測定容器入口側に設置したオーバル歯車式容積流量計で測定する。

### 3.2 崩壊熱の測定

使用済燃料集合体の崩壊熱  $Q_D$  (W) は、測定装置の冷却水出入口温度差  $\Delta T$  (°C)、冷却水の流量  $V$  (kg/s) と比熱  $C_p$  (kcal/kg°C) 及びエネルギー変換係数  $F$  ( $4.187 \times 10^3$  W・



s/kcal) により次式で表されるヒートバランスから求めた。

$$Q_D = FC_p \Delta T V A_S A_\gamma \quad (1)$$

(1)式において、 $A_S$ は測定装置からプール水への放熱による発熱損失を補正する係数である。また、 $A_\gamma$ は使用済燃料から放出される放射線のうち、装置外に漏れて測定装置のヒートバランスに寄与しない $\gamma$ 線による発熱分を補正する係数である。 $A_S$ 、 $A_\gamma$ の評価方法の詳細を以下に述べる。

### 3.3 模擬発熱体による測定装置の較正

$A_S$ を求めるため、電気ヒータを内蔵した缶詰缶の模擬発熱体(図 3.2 参照)を用いて崩壊熱測定装置の較正試験を行った。ここで、 $A_S$ は電気ヒータによる入熱量 $Q_h$ と測定装置のヒートバランスから得られる除熱量 $Q_m$ の比で定義される( $A_S = Q_h / Q_m$ )。

まず、測定装置の温度計、流量計等の計測機器を較正した。温度計及び流量計は、信号変換器(抵抗体用変換器、周波数-電圧変換器)と記録計にそれぞれ模擬信号を入力することにより信号変換値及び記録計指示値を較正した。また、模擬発熱体については、電流と電圧の積によるジュール熱が発熱量として与えられるため、電流計及び電圧計に模擬信号を入力することによりそれぞれの指示値を較正した。

次に、測定装置の較正( $A_S$ の測定評価)を行った。ここでは、今回の測定で想定される崩壊熱の範囲 1.4~0.2kW において較正曲線の精度を向上させるため、十分な測定点数を取得することとし、冷却材流量を 0.5 l/min に固定して発熱量と除熱量の関係をプロットした。また、崩壊熱が 200W 以下(冷却期間で 250 日以上)の範囲については、測定誤差を低減させるため、出入口温度差を大きくするよう低流量での試験を実施した。この場合、流量を小さくしすぎると模擬発熱体からの発熱による自然対流と冷却水の強制循環のバランスが崩れ、出口温度が平衡に達しない等の理由から、流量を 0.3 l/min に設定した。

冷却水の流量が 0.5 l/min の場合の較正試験結果を図 3.3 に示す。 $Q_m$ は全ての流量範囲で $Q_h$ より 12%程度小さいが、両者は良好な直線関係を示している。図 3.3 より、最小二乗近似で求まる比例係数 $A_S$ は 1.116 である。一方、冷却水の流量が 0.3 l/min の場合(図 3.4 参照)についても発熱量が低い時は直線性を有しており、 $A_S$ は 1.127 であった。しかし、400W 及び 500W では、2つの出口温度計の計測値は安定していたものの、約 0.8℃の差があることから、装置内の温度が均一にならず、直線から外れた結果となった。したがって、0.3 l/min での較正曲線は 250W 以下の崩壊熱に限定して使用することとした。

### 3.4 測定装置外への放射線漏洩の補正

使用済燃料の崩壊熱は、核分裂生成物(Fission Product: FP)、アクチニド及び構造材の放射化物からの放射線による発熱で生じる。これ以外に、水中体系での減速中性子等による誘導核分裂の発熱も考えられるが、ORIGEN2<sup>[3],[4]</sup>による計算では、その発熱量は使用済

燃料集合体1体あたり  $5 \times 10^5 \text{W}$  程度であり、本測定においては無視した。

使用済燃料が放出する放射線のうち、 $\alpha$ 線及び $\beta$ 線は飛程が短いため、そのエネルギーは全て測定装置内での発熱に寄与するが、 $\gamma$ 線は透過力が大きいため、その一部は装置外に漏れ、測定装置のヒートバランスに寄与しない。そこで、測定装置外での $\gamma$ 線発熱による損失割合を以下のように評価し、 $A_\gamma$ として(1)式の発熱量を補正した。

まず、ORIGEN2により、それぞれの測定対象集合体の $\gamma$ 線強度を求め、点減衰核積分コード QAD-CG<sup>[5]</sup>を用いて、使用済燃料集合体から測定容器外側へ透過する $\gamma$ 線による Fe の発熱量を計算した。 $\gamma$ 線透過計算の体系を図 3.5 に示す。 $\gamma$ 線源は燃料スタック部のみとし、透過計算では燃料物質による $\gamma$ 線の自己吸収とラッパ管、缶詰缶及び測定容器（いずれもステンレス鋼製）による吸収を考慮し、散乱線の計算には Fe のエネルギー吸収に対するビルドアップ係数を用いた。測定装置外への漏洩 $\gamma$ 線による発熱損失割合は、 $\alpha$ 線及び $\beta$ 線を含めた全発熱量に占める $\gamma$ 線発熱の割合に、装置外への $\gamma$ 線の透過率（全 $\gamma$ 線発熱に対する装置外における $\gamma$ 線発熱の割合）を乗じて求めた。

FP や構造材の放射化物の崩壊熱は、 $\gamma$ 線及び $\beta$ 線による発熱が支配的であるため、JNDC ライブラリー<sup>[6]</sup>で与えられている各核種ごとの $\gamma$ 線と $\beta$ 線のエネルギーから $\gamma$ 線成分の相対比を求め、これに ORIGEN2 による崩壊熱を乗じ、これらの総和を全崩壊熱で除することによって $\gamma$ 線の発熱損失割合を算出した。一方、アクチニドの崩壊熱は $\alpha$ 崩壊による発熱が支配的であるため、 $\gamma$ 線発熱損失はないものとした。

この結果、測定装置外での $\gamma$ 線発熱による損失割合 (Y) は、図 3.6 に示すように燃焼終了後 40~150 日で約 9~4% であり、冷却期間とともに減少する。これは、冷却が進むにつれて全崩壊熱に対する FP の発熱 ( $\gamma$ 線発熱が支配的) 割合が減少することと $\gamma$ 線のスペクトルが軟らかくなり透過率が小さくなるためである。また、FP や構造材の全放射能に占める $\gamma$ 線の割合が冷却とともに減少することも一因である。

以上より、測定装置外における $\gamma$ 線発熱の損失補正式  $A_\gamma$  として、

$$\text{PFD601 集合体: } A_\gamma = \frac{1}{1 - 0.1123 \times e^{-0.00707 T_c}} \quad (2)$$

$$\text{PFD602 集合体: } A_\gamma = \frac{1}{1 - 0.1132 \times e^{-0.00707 T_c}} \quad (3)$$

を得た。ここで、 $T_c$  は燃焼終了後の冷却日数である。

### 3.5 崩壊熱の測定精度

本装置の測定では、模擬発熱体による較正試験で得られた放熱損失補正と測定装置外への漏洩 $\gamma$ 線による発熱損失補正を行うことより、系統誤差は無視できる。よって、ここでは崩壊熱測定装置の各機器の測定誤差のみを考慮し、温度計あるいは流量計とこれらの信

号変換器及び記録計の各誤差の自乗和の平方根を、温度及び流量測定系それぞれの誤差とした。

温度測定系及び流量測定系の誤差評価結果を図 3.7 に示す。温度測定系の誤差は、冷却水の出入口温度差  $\Delta T$  が  $5^{\circ}\text{C}$  の時で約 9% であり、 $\Delta T$  が小さいほど誤差は大きくなる。また、流量測定系の誤差は、冷却水の流量が  $0.2\text{ l/min}$  以上であれば 1% 以下である。これらを総合した本装置の測定誤差 ( $1\sigma$ ) は、流量が  $0.5\text{ l/min}$  以上の場合については、 $\Delta T=10^{\circ}\text{C}$  で 4.7%、 $\Delta T=20^{\circ}\text{C}$  で 2.5% である。

### 3.6 MK-II 炉心燃料集合体の崩壊熱

今回の崩壊熱測定結果として、PFD601 及び PFD602 集合体について冷却期間 40 日から 150 日まで計 20 回測定した崩壊熱の減衰曲線を図 3.8 に示す。崩壊熱の実測値は  $1446.0 \pm 24.0\text{ W}$  ~  $663.0 \pm 19.7\text{ W}$  であり、従来の集合体よりも約 100W 高い。これは、被測定集合体が炉心第 1 列で照射され、比出力が大きく、短半減期の FP 核種の崩壊熱が高かったためである。

## 4. 崩壊熱計算

### 4.1 計算方法

使用済燃料の崩壊熱計算は、崩壊熱評価に係る核種の崩壊データや核データの見直し等の最新の知見を反映するため、日本原子力研究所シグマ研究委員会を中心に整備された高速炉用ライブラリーを用いた ORIGEN2 により行った。このうち、崩壊データ及び核分裂収率データについては JNDC 崩壊熱計算ライブラリーを用い、断面積については JENDL-3.2 ベースのデータを用いることとし、「常陽」MK-II の炉心中心の中性子スペクトルで縮約した「常陽」MK-II 炉心用ライブラリー（以下、「常陽」ライブラリーと称する）を使用した。また、燃焼計算に伴う核種生成量の違いによる影響を評価するため、炉心管理コードシステム“MAGI”<sup>[7]</sup>の燃焼計算で求めた核種生成量を ORIGEN2 に入力した場合についても評価した。

ここで、「常陽」MK-II 炉心用の断面積ライブラリーは、大洗工学センターの炉心技術開発 Gr. で整備された「高速炉用 ORIGEN2 新ライブラリ作成システム」<sup>[8]</sup>を用いて新規に作成した。作成手順を図 4.1 に示す。断面積の縮約に用いた 70 群の中性子スペクトルは、照射期間中の代表として、CITATION により計算した第 34 サイクルの炉心第 1 列での値を使用した。

また、MAGI では FP はランプ化した仮想的な核種として取り扱われ、核種ごとの生成量を計算できないため、全 FP 生成量を MAGI で求め、個々の FP 核種の生成割合は ORIGEN2 の内蔵データを用いることにより、FP の崩壊熱を評価した。さらに、測定値との比較では燃料スタック部(55cm)のみではなく、インシュレータ(熱遮蔽)ペレット及びその上下の構造材についてもそれぞれ計算し、燃料スタック部の崩壊熱に加算した。

燃焼及び冷却に関しては、測定対象集合体が炉内に滞在した全期間について、各サイクルごとの運転日数及びサイクル間の燃料交換や定期検査による炉停止期間等の照射履歴（図 2.1 参照）を模擬した。また、照射前の燃料組成の分析日から炉心での照射開始日までの崩壊計算を行い、照射開始までの燃料組成の変化（特に、半減期が比較的短い  $^{241}\text{Pu}$  の  $\beta$  崩壊による  $^{241}\text{Am}$  の生成）を考慮した。

ORIGEN2 の計算では、異なる断面積ライブラリーを使用した場合でも核分裂反応数（燃焼率）を保存するよう出力一定条件で計算した。燃料集合体出力は、照射履歴を模擬するため、MAGI 記録計算結果を用いることとし、各運転サイクルの BOC と EOC における集合体出力の平均値を用いた。

MAGI の主要な計算条件を表 4.1 に示す。核特性は、3 次元六角格子（Hex-Z）について 7 群拡散理論により計算しており、 $X$ - $Y$  平面は集合体ピッチを 81.5mm とする 331 の六角格子に分割している（実際の炉心集合体数は 313 体、うち燃料集合体は 67 体）。また、軸方向は、MK-II 炉心燃料集合体の燃料スタック部 55cm（各メッシュ 5cm で 11 分割）とその上下のステンレス鋼反射体部を含む 140cm の計算範囲を 20 メッシュに分割している。ただし、燃料スタック長が 50cm の MK-III 外側燃料集合体が装荷され、MK-II 燃料集合体と混在している第 32 サイクル以降は、燃料上下端部及びインシュレータペレット部の軸方向メッシュを 2.5cm に細分割し、合計 24 メッシュに増加した。炉定数セットには、JENDL-3.2 に基づく JFS-3-J3.2 セットの 70 群断面積を領域依存のスペクトルで 7 群に縮約したものを使用した。さらに、 $\gamma$  スキャンで測定した軸方向の燃焼度分布を用いて MAGI の出力分布を補正した。燃焼度分布測定については以下で述べる。

#### 4.2 燃焼度測定による軸方向出力分布の補正

燃焼度測定装置本体と  $\gamma$  線測定部の構成を図 4.2 及び 4.3 に示す<sup>[9]</sup>。本装置は、缶詰缶に封入された使用済燃料集合体を上下及び回転駆動する燃料スキャン部、 $\gamma$  線測定用の高純度 Ge 半導体検出器、 $\gamma$  線の入射方向を制限するコリメータ、 $\gamma$  線強度を調整するアブソーバ及び計測制御装置からなり、崩壊熱測定装置と同様に「常陽」原子炉付属建家の使用済燃料水冷却池壁に設置されている。

燃料スキャン装置で缶詰缶を軸方向に移動させながら、約 2~10mm の間隔で  $\gamma$  線測定を行った。測定された  $\gamma$  線スペクトルの一例（測定対象集合体：PFD601）を図 4.4 に示す。 $\gamma$  線スペクトルから、FP 核種として  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{106}\text{Rh}$ ,  $^{144}\text{Pr}$ ,  $^{140}\text{La}$ 、構造材の放射化核種として  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{60}\text{Co}$  が同定された。これらの核種の軸方向計数率分布を図 4.5~4.7 に示す。ここで、FP 核種の計数率が急激に低下し始める測定ポイントを燃料スタックの境界と判断した。

図 4.5 より、FP の計数率分布は概ね燃料スタック部で上側に凸の分布をしているが、このうち計数率が最大である  $^{140}\text{La}$  を燃焼度分布の指標核種とした。 $^{140}\text{La}$  は  $^{144}\text{Pr}$  と同様に希土類元素に属し、セシウムのように温度勾配等による移動がほとんどない。また、 $^{140}\text{La}$  は、

$^{140}\text{Ba}$  (半減期 12.7 日) の娘核種で  $^{140}\text{Ba}$  と過渡平衡が成立しており、半減期が短いことから、 $^{140}\text{La}$  の放射能は照射末期の核分裂率に比例する。したがって、 $^{140}\text{La}$  の  $\gamma$  線ピーク (1596keV) の軸方向計数率分布を MAGI の中性子束で計算した照射末期の核分裂率分布と比較した。

実測の  $^{140}\text{La}$  計数率分布は、全測定点を多項式で近似して燃料スタックの上下端位置が MAGI の計算メッシュに合うように対応させた。一方、計算では  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  の 5 核種について、それぞれの核分裂断面積と第 35 サイクル EOC における MAGI の中性子束及び燃焼計算で得られた原子数密度を乗じて、それらの総和をとることにより燃料集合体単位長さ当たりの核分裂率を求めた。

いずれも炉中心レベルを 1 に規格化した相対分布となっており、両者を比較した結果を図 4.8 及び表 4.2 に示す。これまでの MK-II 炉心燃料の照射後試験 (PIE) 結果から炉中心レベルでの燃焼率測定値 (Nd 法) は MAGI 計算値とよく一致していることから、計算による軸方向の相対分布を実測値に基づいて補正することとした。これより、MAGI の核分裂率と  $^{140}\text{La}$  計数率の比 (C/E) の燃料スタック部での平均値 0.978 を得た。これを用いて MAGI による出力計算値を補正して ORIGEN2 の計算に用いた。なお、今回燃焼度測定を実施した集合体は PFD601 のみであったが、MAGI 計算値の補正は、当該集合体の PFD601 及びこれと照射条件が類似しているため PFD602 集合体の両方を補正した。また、MAGI の燃焼組成を用いて崩壊熱を計算する場合については、MAGI 計算値に対して FP 生成量は直接補正し、アクチニド生成量は燃焼初期と末期の原子数密度の差分を補正することとした。

#### 4.3 崩壊熱計算結果

崩壊熱計算値及び測定値との比 (C/E) の推移を表 4.3、4.4 及び図 4.9~4.11 に示す。PFD601 及び PFD602 集合体ともに、MAGI と ORIGEN2 (「常陽」ライブラリー) による計算値は、実測値を 4~10%過小評価している。また、冷却期間が長くなるにつれて C/E が低下したが、その傾向がこれまでの報告<sup>[2]</sup>のものと比べて小さかった。なお、インシュレータペレットとその上下の構造材部の崩壊熱は、全体の発熱量に対して約 1.2%程度の寄与であった。

#### 5. アクチニド生成量の崩壊熱への影響

崩壊熱計算値の誤差要因を調べるため、PFD601 集合体について、照射終了後 70 日における核種生成量及び崩壊熱の内訳を各計算ケース間で比較して表 5.1 に示す。ここでは、燃料スタック部 (55cm) の計算値についてのみ検討した。この時点での崩壊熱の内訳は総発熱量の 75%が FP 核種、25%がアクチニドによるものである。表 5.1 より、ORIGEN2 (「常陽」ライブラリー) と MAGI の計算値を比較すると、FP 及びアクチニドの崩壊熱は、 $^{239}\text{Pu}$  と  $^{241}\text{Cm}$  を除いてよく一致している。

FP 崩壊熱については、MAGI と ORIGEN2 (「常陽」ライブラリー) とは 2%程度の差が生じているが、これは両者の内蔵している発熱定数 (核分裂当たりの発生エネルギー) の違い等が主な原因と考えられる。

また、今回測定した冷却期間では FP 崩壊熱が支配的であるが、FP 生成量については FP 核種である Nd を指標に用いた燃焼率測定が実施されており、その結果より MK-II 炉心第 1 列では MAGI の計算結果と実測値が 1~2%で一致することが確認されている。

今回みられた系統的な C/E の差は、測定誤差や FP 崩壊熱の計算誤差より大きく、その主要因としてアクチニド崩壊熱の計算誤差によるものが考えられる。そこで、アクチニド生成量の差について、生成量は少ないものの、発熱量の 82%を占める  $^{242}\text{Cm}$  に着目した。アクチニドの燃焼チェーンを図 5.1 に示すが、これから  $^{242}\text{Cm}$  の生成には  $^{241}\text{Am}$  の(n,  $\gamma$ ) 反応を介した生成チェーンが直接影響するため、 $^{241}\text{Am}$ (n,  $\gamma$ )断面積の不確かさによる誤差を検討する必要がある。また、 $^{241}\text{Am}$  自身及び燃焼チェーンでその上流側の核種で、核特性には大きな影響を与えない  $^{238}\text{Pu}$  ( $^{238}\text{Pu}$  はそれ自身も主要なアクチニド崩壊熱源となる) 等の微量マイナーアクチニド及び  $^{240}\text{Pu}$  の初期組成の不確かさによる誤差も今後検討する必要がある。

## 6. 結 言

使用済の MK-II 燃料 (集合体平均燃焼度約 6.6 万 MWd/t) について、冷却期間 40~150 日における崩壊熱を詳細に測定し、実測値  $1446\pm 24\sim 663\pm 20\text{W}$  を得た。崩壊熱計算では "ORIGEN2" 計算に加え、炉心管理コードシステム "MAGI" を用いた中性子スペクトルを反映した燃焼計算を基に崩壊熱を算出し、C/E=0.94~0.90 を得た。

測定対象集合体は、全照射期間を通じて「常陽」の炉心第 1 列に装荷されており、計算条件が単純なため、解析時の誤差要因が少ない。今回みられた計算値と測定値の系統的な差は FP 崩壊熱の計算誤差 (1~2%) や測定誤差 ( $1\sigma=1.7\sim 3.0\%$ ) より大きく、その主要因はアクチニド崩壊熱の計算誤差によるものと考えられ、これらの核種生成に係る断面積や燃焼組成の不確かさ等の影響を検討する必要があることが明らかとなった。

## 謝 辞

本研究を進めるにあたり、崩壊熱測定に係る燃料取扱作業でサイクル機構 大洗工学センター 照射施設運転管理センター 実験炉部 原子炉第 1 課 燃料取扱チームの各位に、試験及び計算作業で原子力システム株式会社の玉井晃氏、検査開発株式会社の柘井智彦氏並びにアイ・ティ・ジェイ株式会社の加藤雄一氏にご協力を頂いた。ここに記して謝意を表す。

参考文献

- [1] K. Suyama et al.、"Development of Libraries for ORIGEN2 Code Based on JENDL-3.2"、Proc. 1997 Symp. On Nuclear Data, JAERI, Tokai, 9 (1998).
- [2] 青山卓史他、"使用済高速炉燃料の崩壊熱"、日本原子力学会誌 Vol.41, No. 9, pp.946~953 (1999).
- [3] Croff, A. G.、"A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code"、ORNL-5621 (1980).
- [4] Croff, A. G.、"ORIGEN2: A Versatile Computer Code for Calculating The Nuclide Compositions and Characteristics of Nuclear Materials"、Nuclear Technology, 62, 335 (1983).
- [5] Cain, V. R.、"A Users Manual for QAD-CG, the Combinatorial Geometry Version of the QAD-P5A Point Kernel Shielding Code"、ORNL CCC-307 (1977).
- [6] K. Tasaka et al.、"JNDC Nuclear Data Library of Fission Products - Second Version -"、JAERI 1320 (1990).
- [7] 有井祥夫他、"高速実験炉「常陽」MK-III炉心の炉心・燃料管理経験"日本原子力学会誌, Vol. 39, No. 4, pp.315~325 (1997).
- [8] 須山賢也他、"JENDL-3.2 に基づく ORIGEN2 用ライブラリ"、JAERI-Data/Code 99-003 (1999).
- [9] 高松 操他、"使用済高速炉燃料中性子放出率の測定と評価" JNC TN9410 98-011 (1997).

表2.1 測定集合体の概要(PFD601)

MOX燃料仕様	$^{235}\text{U}$ 濃縮度 : 18.5 wt. % Pu富化度 : 29.3 wt. %
照射条件	炉内滞在期間 : 30~35サイクル (1997.3.21 ~ 2000.5.31) 照射日数 : 369 days
$\Phi$ total (集合体平均)	$1.14 \times 10^{23}$ n/cm <sup>2</sup>
燃烧度 (集合体平均)	66,000 MWd/t

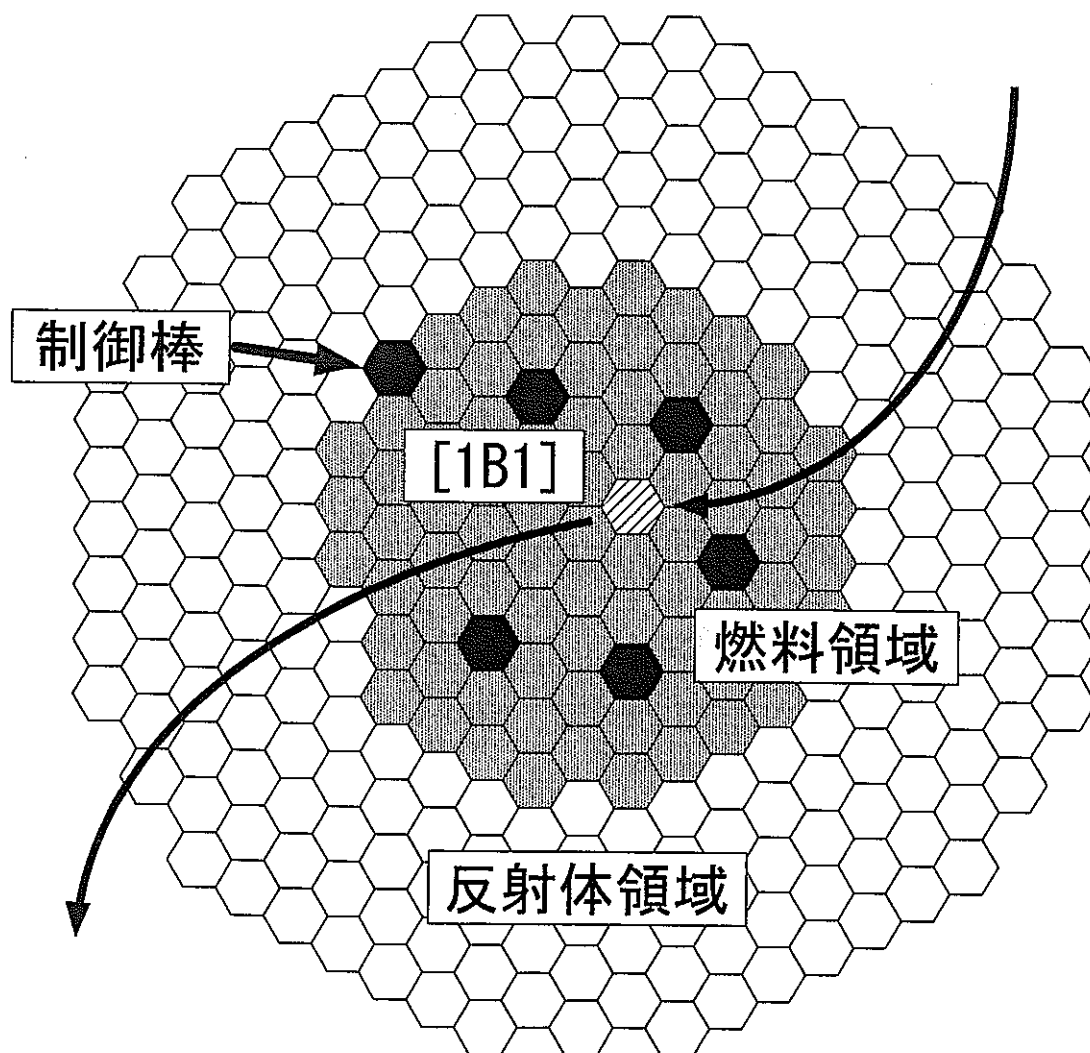




表2.2 測定集合体の概要(PFD602)

MOX燃料仕様	$^{235}\text{U}$ 濃縮度 : 18.5 wt. % Pu富化度 : 29.2 wt. %
照射条件	炉内滞在期間 : 30~35サイクル (1997. 3. 21 ~ 2000. 5. 31) 照射日数 : 369 days
$\Phi$ total (集合体平均)	$1.14 \times 10^{23}$ n/cm <sup>2</sup>
燃焼度 (集合体平均)	65,600 MWd/t

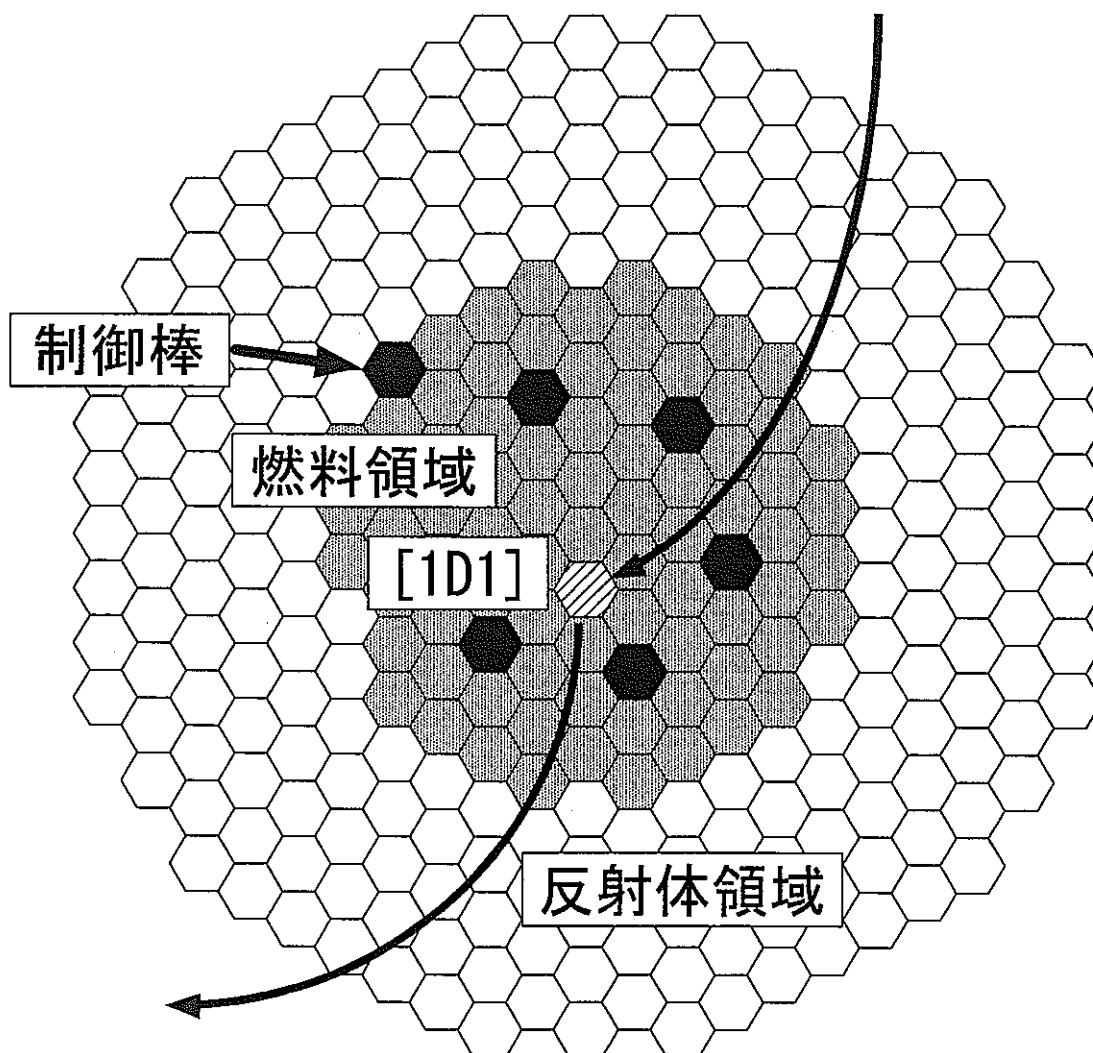


表 4.1 崩壊熱の計算手法

項目	MAGI	ORIGEN2
断面積	JFS-3-J3.2*	JENDL-3.2
計算体系	3次元Hex-Z	一点炉近似
エネルギー群数	7群	1群
中性子束計算	拡散計算	---
燃焼計算	行列指数法	---
核分裂収率、崩壊定数	JFS-3-J3.2*	JNDC-V2

\*JAERI Fast Set version 3(based on JENDL-3.2)

表 4.2 軸方向核分裂率分布の計算値と測定値の比較 (PFD601)

ノード 番号	軸方向位置 <sup>*1</sup> (cm)		MAGI 計算値		測定値		備考	
	上限	下限	核分裂率 <sup>*2</sup> (fission/s/cc)	核分裂率 (相対値)	<sup>140</sup> La計数率 (cps/cm)	核分裂率 (相対値)	軸方向位置 <sup>*3</sup> (mm)	
							下限	上限
1	52.5	62.5	—	—	—	—	1440	1540
2	42.5	52.5	—	—	—	—	1540	1640
3	32.5	42.5	—	—	—	—	1640	1740
4	30.0	32.5	9.600E+11	0.015	—	—	1740	1765
5	27.5	30.0	1.245E+12	0.020	—	—	1765	1790
6	25.0	27.5	3.513E+13	0.566	1.769E+03	0.638	1790	1815
7	22.5	25.0	3.909E+13	0.630	1.903E+03	0.686	1815	1840
8	17.5	22.5	4.489E+13	0.724	2.103E+03	0.758	1840	1890
9	12.5	17.5	5.168E+13	0.833	2.353E+03	0.848	1890	1940
10	7.5	12.5	5.694E+13	0.918	2.559E+03	0.922	1940	1990
11	2.5	7.5	6.032E+13	0.973	2.703E+03	0.974	1990	2040
12	-2.5	2.5	6.201E+13	1.000	2.775E+03	1.000	2040	2090
13	-7.5	-2.5	6.196E+13	0.999	2.769E+03	0.998	2090	2140
14	-12.5	-7.5	6.014E+13	0.970	2.690E+03	0.969	2140	2190
15	-17.5	-12.5	5.639E+13	0.909	2.545E+03	0.917	2190	2240
16	-22.5	-17.5	5.073E+13	0.818	2.353E+03	0.848	2240	2290
17	-25.0	-22.5	4.549E+13	0.734	2.191E+03	0.790	2290	2315
18	-27.5	-25.0	4.202E+13	0.678	2.081E+03	0.750	2315	2340
19	-30.0	-27.5	1.580E+12	0.025	—	—	2340	2365
20	-32.5	-30.0	1.324E+12	0.021	—	—	2365	2390
21	-47.5	-32.5	—	—	—	—	2390	2540
22	-57.5	-47.5	—	—	—	—	2540	2640
23	-67.5	-57.5	—	—	—	—	2640	2740
24	-77.5	-67.5	—	—	—	—	2740	2840

注)\*1 炉中心レベルからの軸方向距離を示す。

\*2 第35サイクル(EOC)の中性子束、核分裂断面積及び原子数密度を用いて計算した。

\*3 燃焼度測定装置で缶詰缶を最下端に下げた位置を0とした時のスキャン装置の表示位置を示す。

表 4.3 PFD601 の崩壊熱

No.	冷却日数 (日)	崩壊熱(W)			C/E	
		計算値		測定値 (補正後)	MAGI	ORIGEN2
		MAGI	ORIGEN2			
1	40	1377.11	1342.33	1446.02	0.952	0.928
2	41	1357.45	1323.17	1412.82	0.961	0.937
3	46	1270.86	1238.38	1333.70	0.953	0.929
4	47	1255.34	1223.24	1327.87	0.945	0.921
5	48	1240.23	1208.09	1324.84	0.936	0.912
6	54	1159.20	1129.30	1243.35	0.932	0.908
7	55	1147.21	1117.17	1227.42	0.935	0.910
8	70	999.28	972.45	1066.13	0.937	0.912
9	88	874.49	850.50	938.50	0.932	0.906
10	89	868.61	844.73	928.37	0.936	0.910
11	96	829.84	806.72	891.09	0.931	0.905
12	97	824.59	801.65	880.43	0.937	0.911
13	98	819.44	796.58	873.63	0.938	0.912
14	118	728.27	707.34	774.71	0.940	0.913
15	119	724.16	703.38	767.25	0.944	0.917
16	120	720.17	699.43	770.11	0.935	0.908
17	124	704.49	684.12	747.32	0.943	0.915
18	125	700.70	680.46	746.73	0.938	0.911
19	146	628.42	609.77	672.78	0.934	0.906
20	147	625.26	606.73	667.83	0.936	0.909

表 4.4 PFD602 の崩壊熱

No.	冷却日数 (日)	崩壊熱(W)			C/E	
		計算値		測定値 (補正後)	MAGI	ORIGEN2
		MAGI	ORIGEN2			
1	42	1330.04	1296.33	1398.80	0.951	0.927
2	43	1311.53	1278.17	1387.76	0.945	0.921
3	56	1126.32	1098.38	1195.78	0.942	0.919
4	67	1015.84	991.04	1083.91	0.937	0.914
5	68	1007.16	982.59	1080.27	0.932	0.910
6	69	998.78	973.60	1050.73	0.951	0.927
7	83	897.00	875.17	961.57	0.933	0.910
8	84	890.70	867.45	953.26	0.934	0.910
9	85	884.51	859.90	946.02	0.935	0.909
10	110	754.94	734.83	816.20	0.925	0.900
11	111	750.42	730.02	808.65	0.928	0.903
12	112	746.22	725.75	798.67	0.934	0.909
13	113	741.90	721.58	794.16	0.934	0.909
14	131	671.83	652.84	714.36	0.940	0.914
15	132	668.36	649.38	712.65	0.938	0.911
16	133	664.78	646.03	707.91	0.939	0.913
17	134	661.31	642.42	704.06	0.939	0.912
18	144	628.37	610.56	670.07	0.938	0.911
19	145	625.22	606.57	662.95	0.943	0.915

表 5.1 核種生成量及び崩壊熱計算値の比較 (PFD601)

[冷却期間 70 日]

核種	生成量(g)		ORIGEN2	生成量(Bq)		ORIGEN2	崩壊熱(W)		ORIGEN2
	MAGI	ORIGEN2	MAGI	MAGI	ORIGEN2	MAGI	MAGI	ORIGEN2	MAGI
<sup>242</sup> Cm	1.58E+00	1.50E+00	0.95	1.94E+14	1.84E+14	0.95	1.93E+02	1.83E+02	0.95
<sup>238</sup> Pu	3.88E+01	3.51E+01	0.91	2.46E+13	2.22E+13	0.91	2.20E+01	1.99E+01	0.91
<sup>241</sup> Am	8.76E+01	8.70E+01	0.99	1.11E+13	1.11E+13	0.99	9.99E+00	9.92E+00	0.99
<sup>240</sup> Pu	7.65E+02	7.53E+02	0.98	6.45E+12	6.35E+12	0.98	5.43E+00	5.35E+00	0.98
<sup>239</sup> Pu	1.67E+03	1.67E+03	1.00	3.83E+12	3.85E+12	1.00	3.20E+00	3.21E+00	1.00
<sup>244</sup> Cm	1.45E-01	2.74E-01	1.90	4.33E+11	8.22E+11	1.90	4.09E-01	7.77E-01	1.90
<sup>241</sup> Pu	1.69E+02	1.70E+02	1.01	6.44E+14	6.49E+14	1.01	5.40E-01	5.43E-01	1.01
アクチニド	1.00E+04	1.00E+04	1.00	8.91E+14	8.78E+14	0.99	2.35E+02	2.23E+02	0.95
FP	7.46E+02	7.32E+02	0.98	7.38E+15	7.24E+15	0.98	7.37E+02	7.23E+02	0.98
放射化生成物	5.76E+03	5.76E+03	1.00	1.02E+14	1.02E+14	1.00	1.47E+01	1.47E+01	1.00
Total	1.65E+04	1.65E+04	1.00	8.37E+15	8.22E+15	0.98	9.86E+02	9.61E+02	0.97

(PFD601、PFD602)

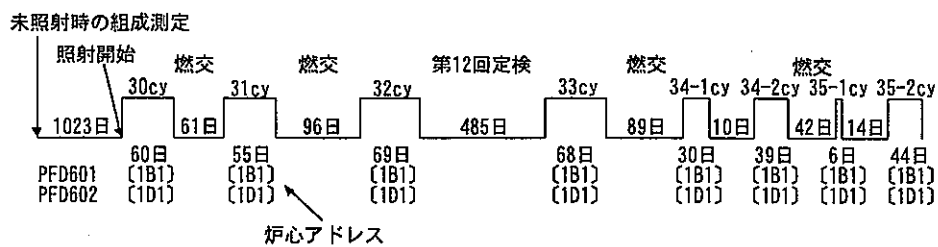


図 2.1 測定集合体の照射履歴

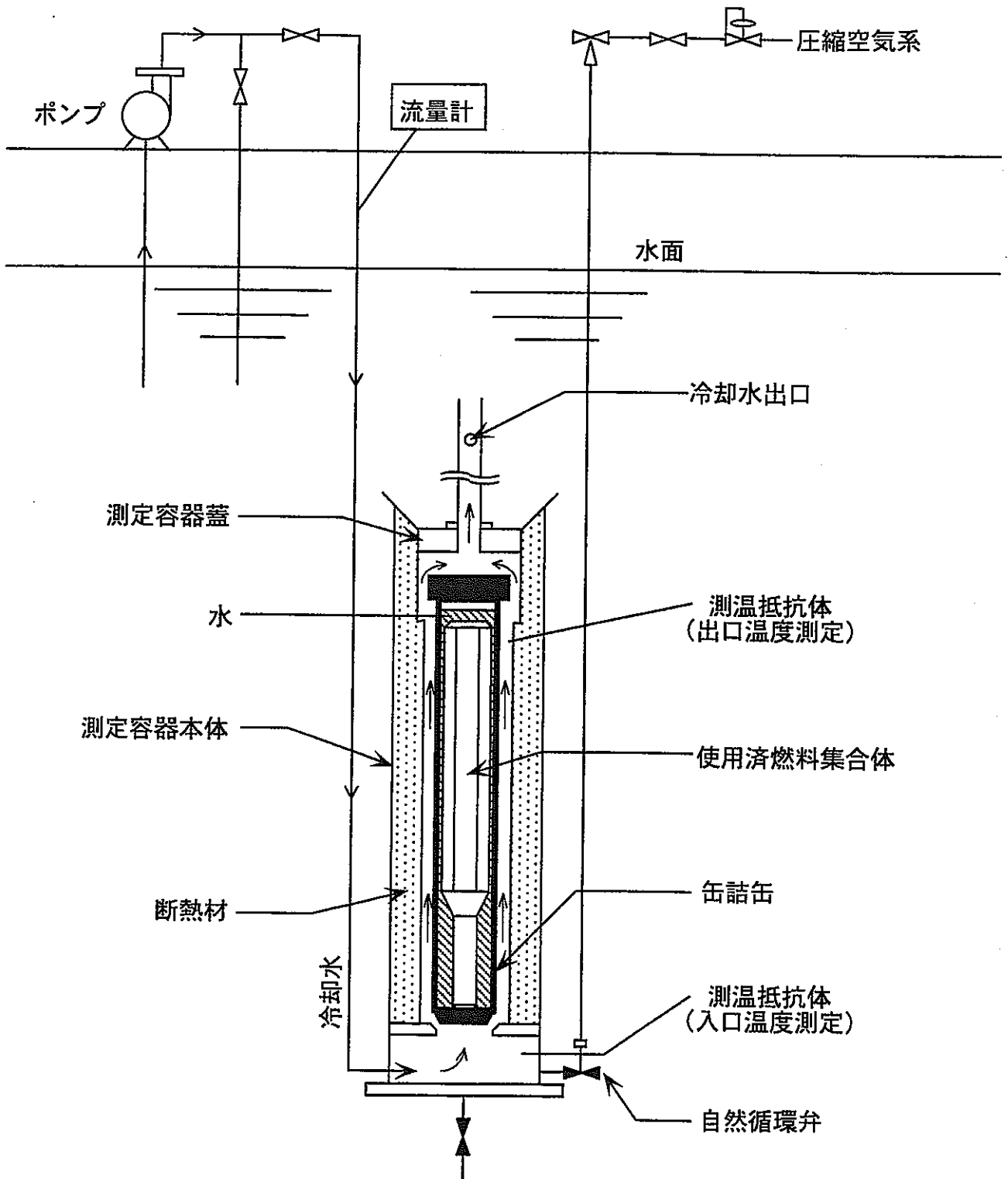


図3.1 崩壊熱測定装置の系統図

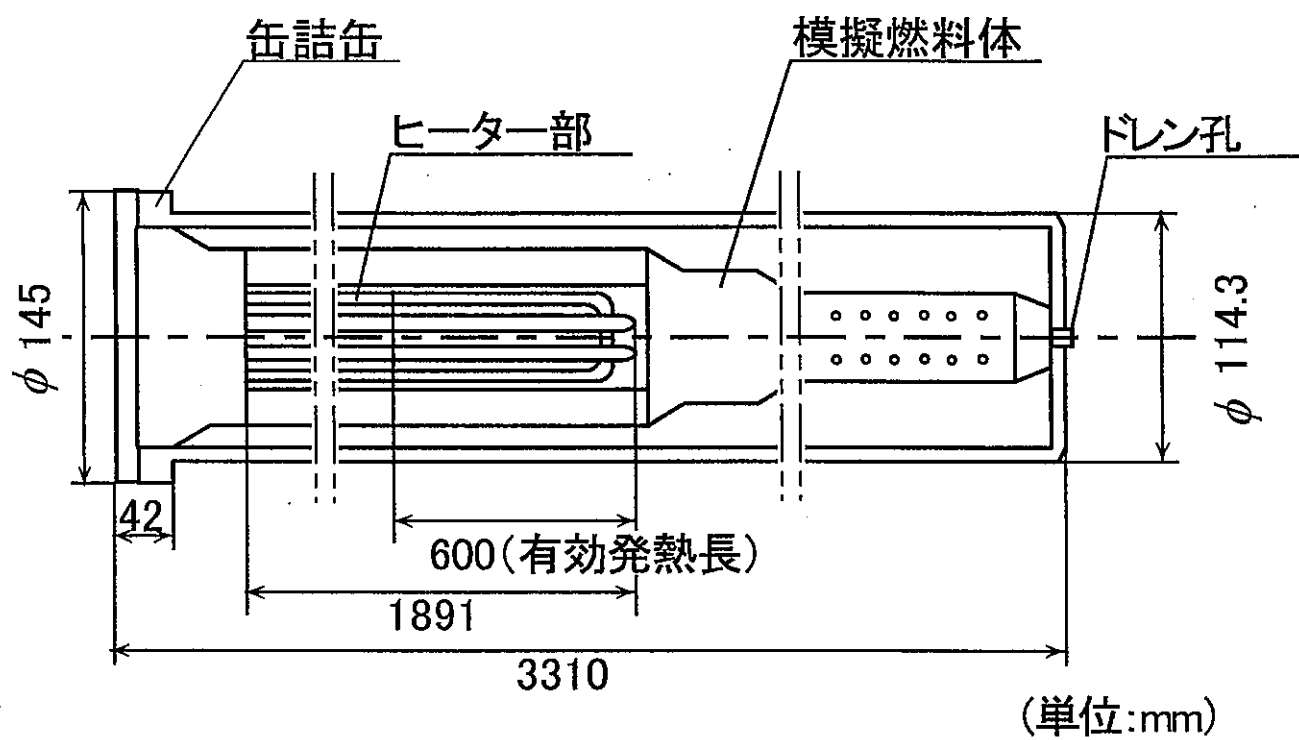


図3.2 模擬発熱体の概略図

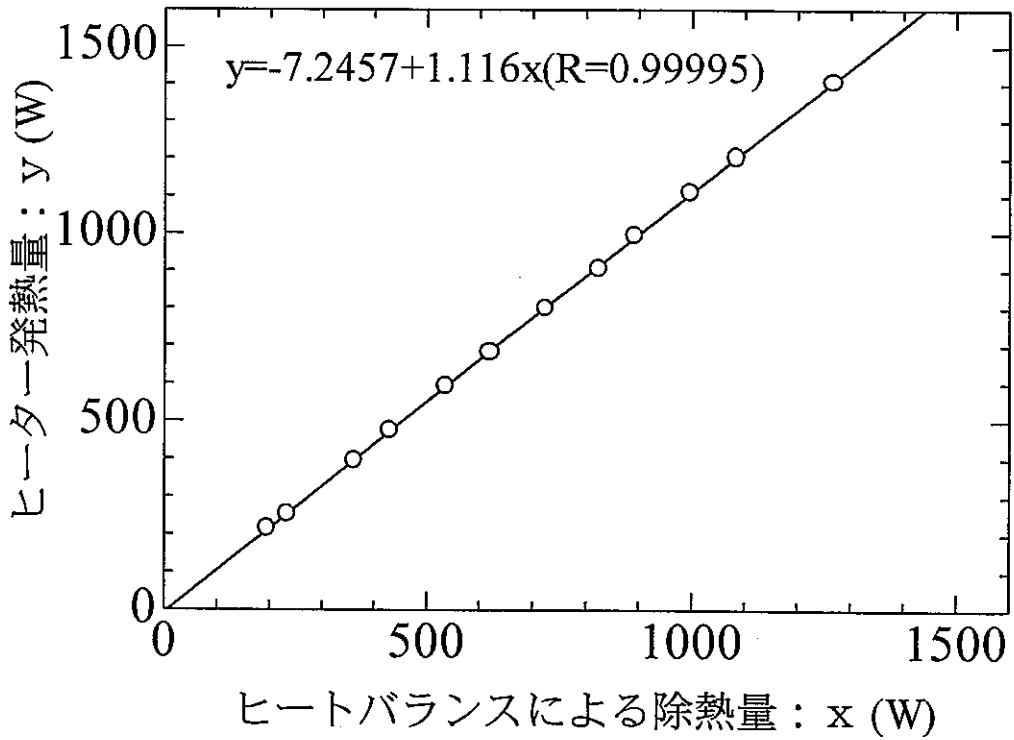


図 3.3 崩壊熱測定装置の較正試験結果 (流量 0.5 l/min)

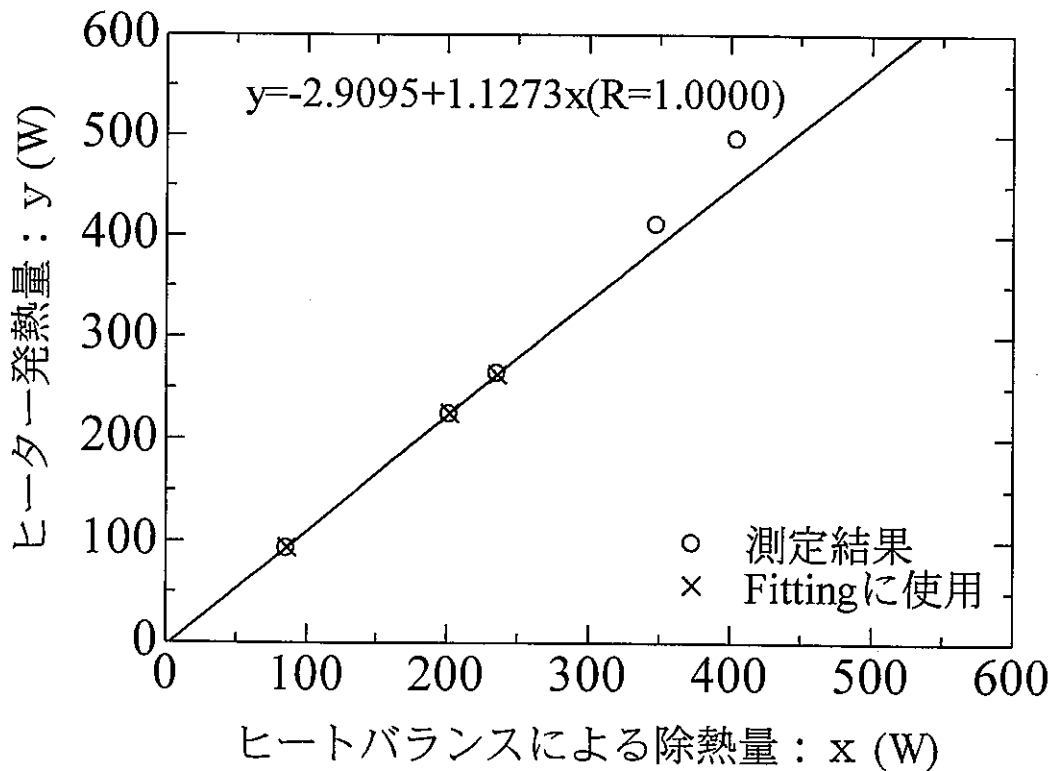


図 3.4 崩壊熱測定装置の較正試験結果 (流量 0.3 l/min)



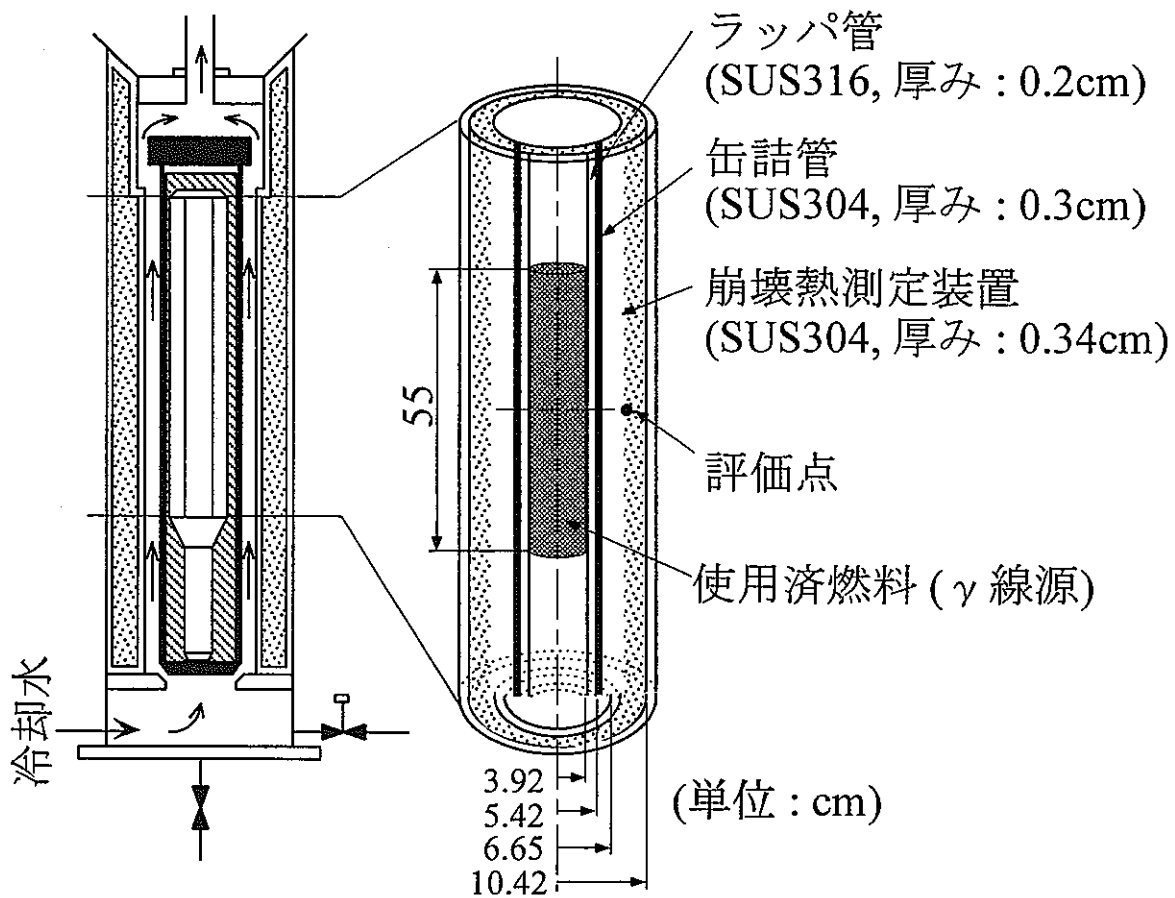


図3.5 QAD-CGコードの計算体系

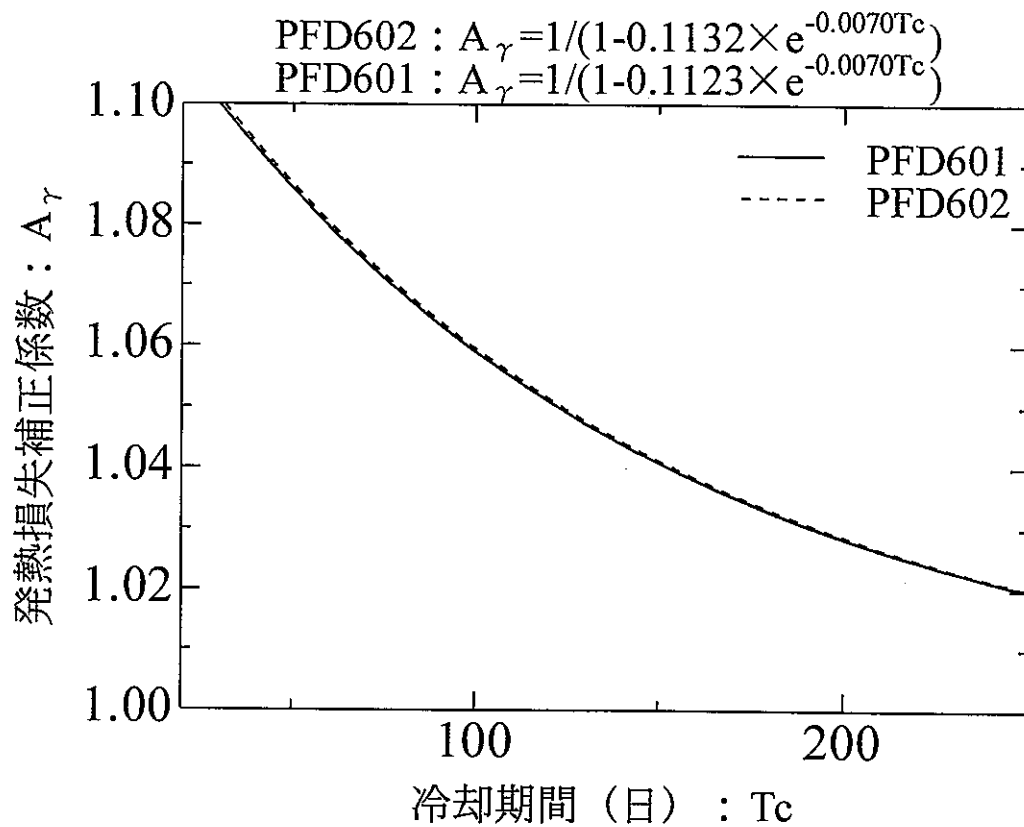


図 3.6 発熱損失補正係数の冷却期間依存性 (PFD601、PFD602)

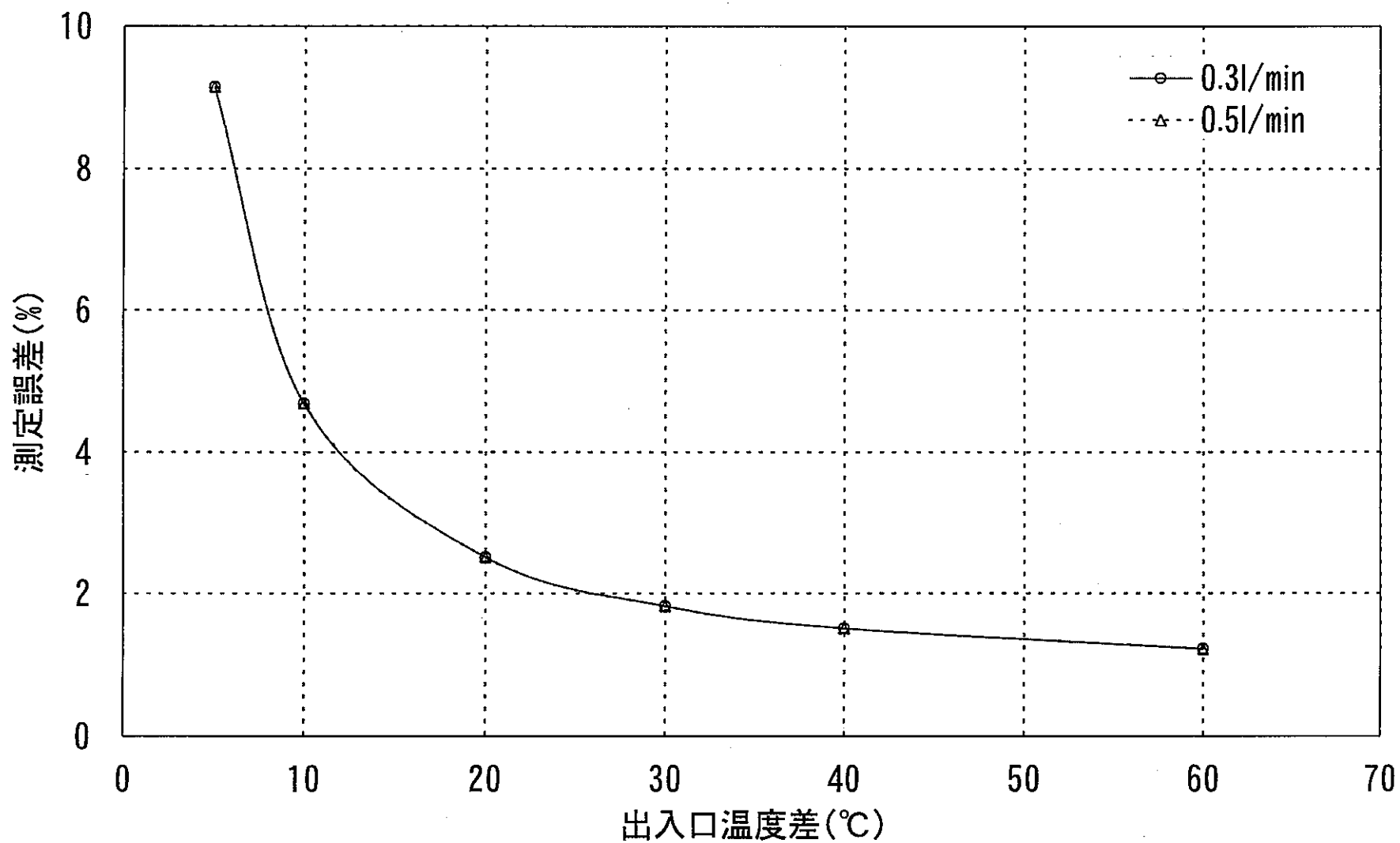


図3.7 出入口温度差の測定値に対する誤差

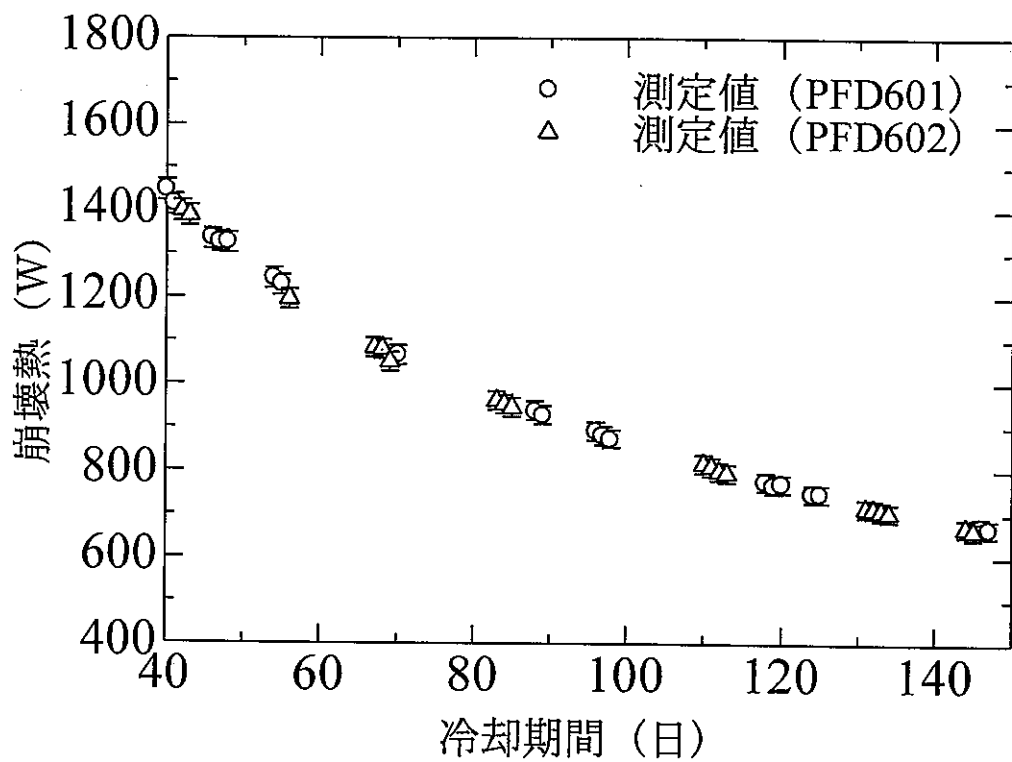


図 3.8 崩壊熱測定結果 (PFD601、PFD602)

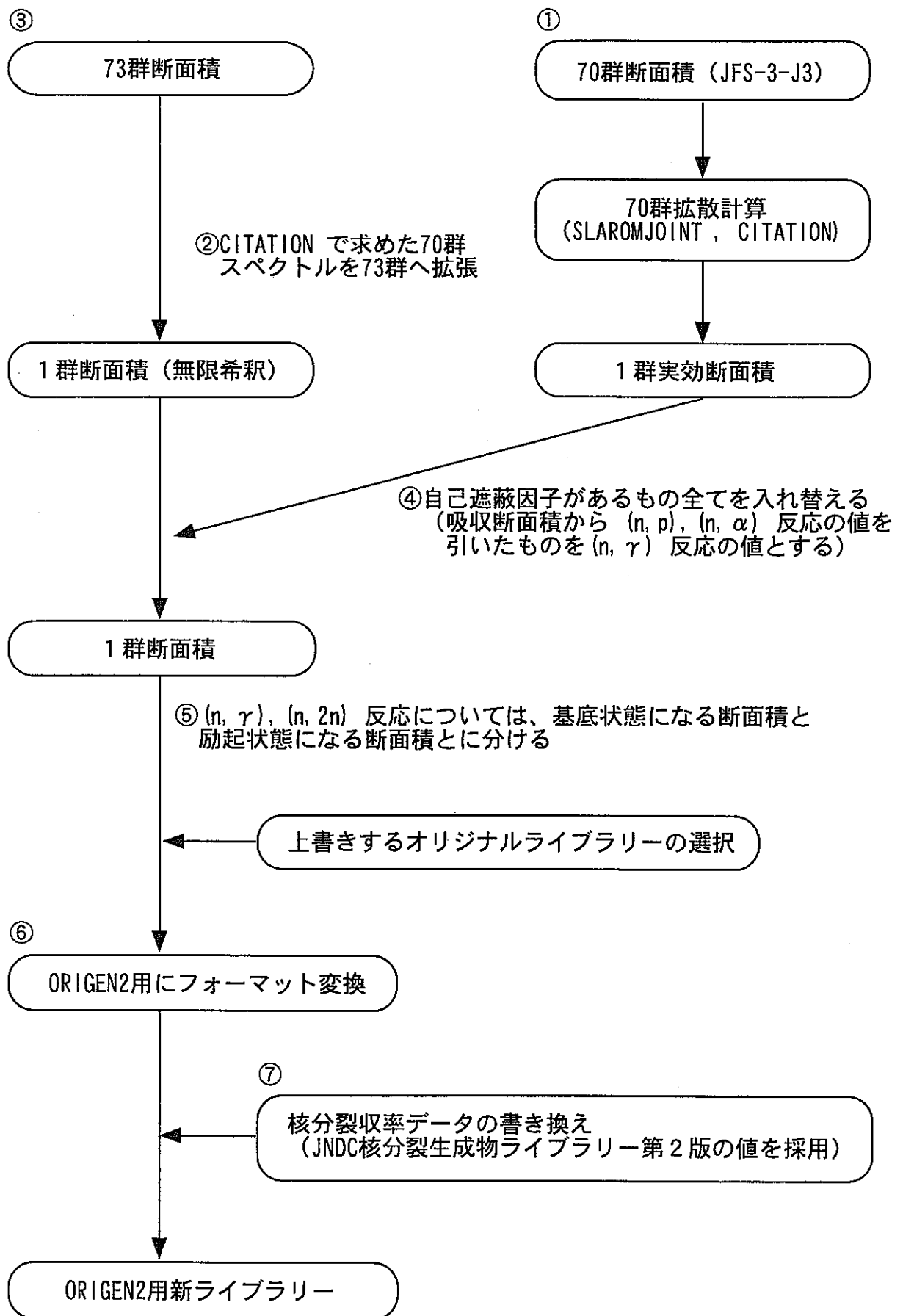


図4.1 ORIGEN2用1群断面積作成の流れ

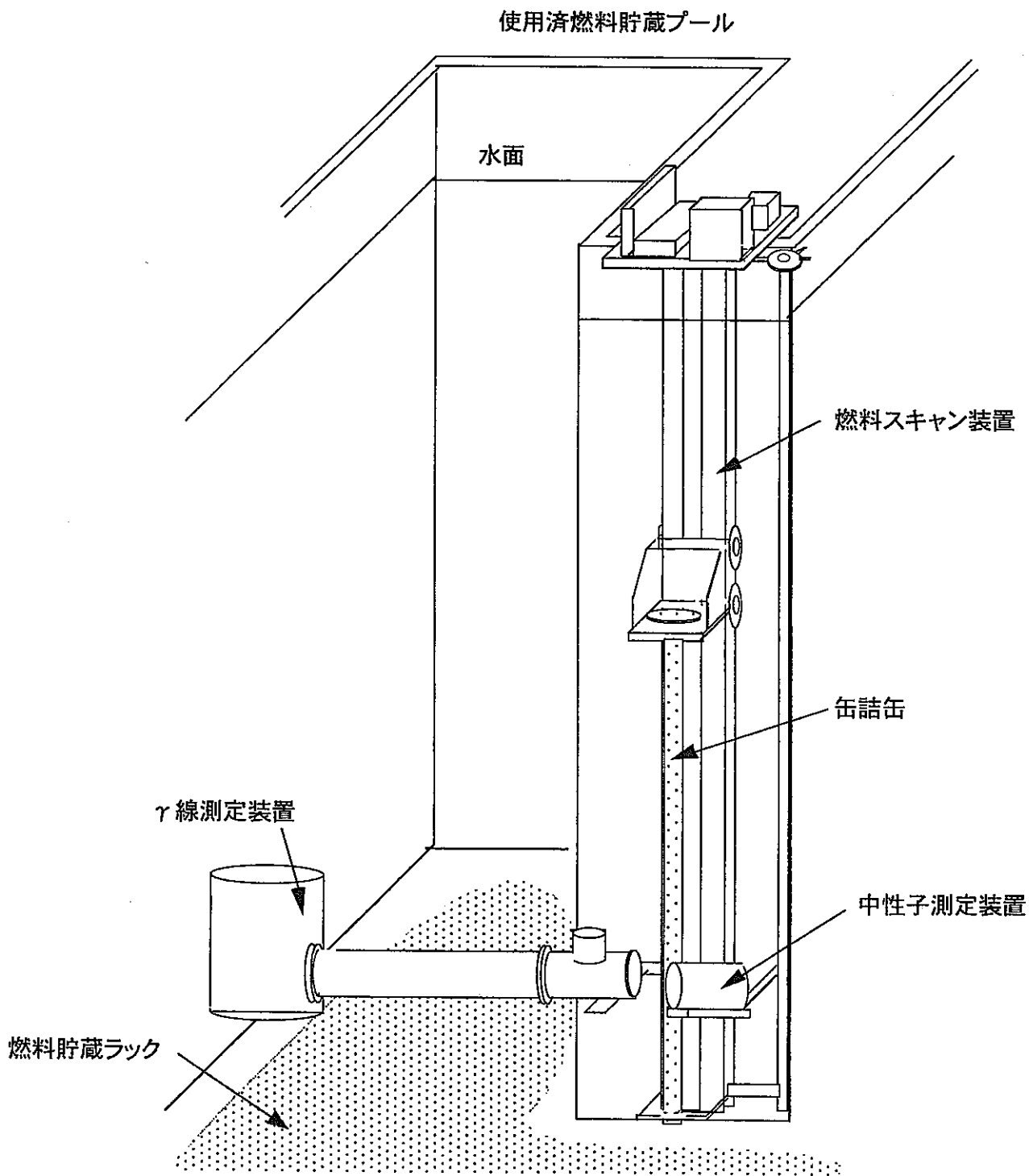


図4.2 燃焼度測定装置概略図

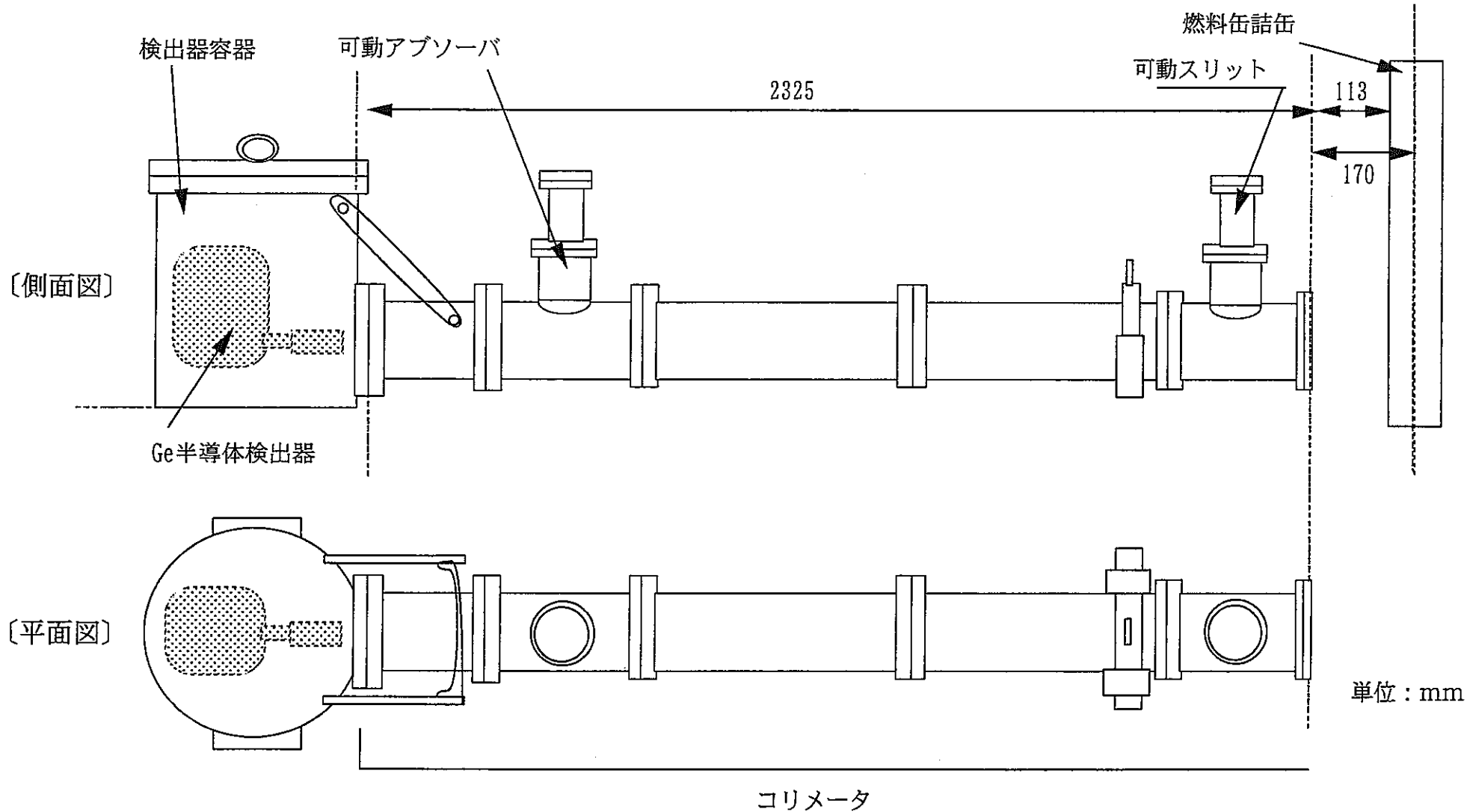


図4.3  $\gamma$ 線測定装置概略図

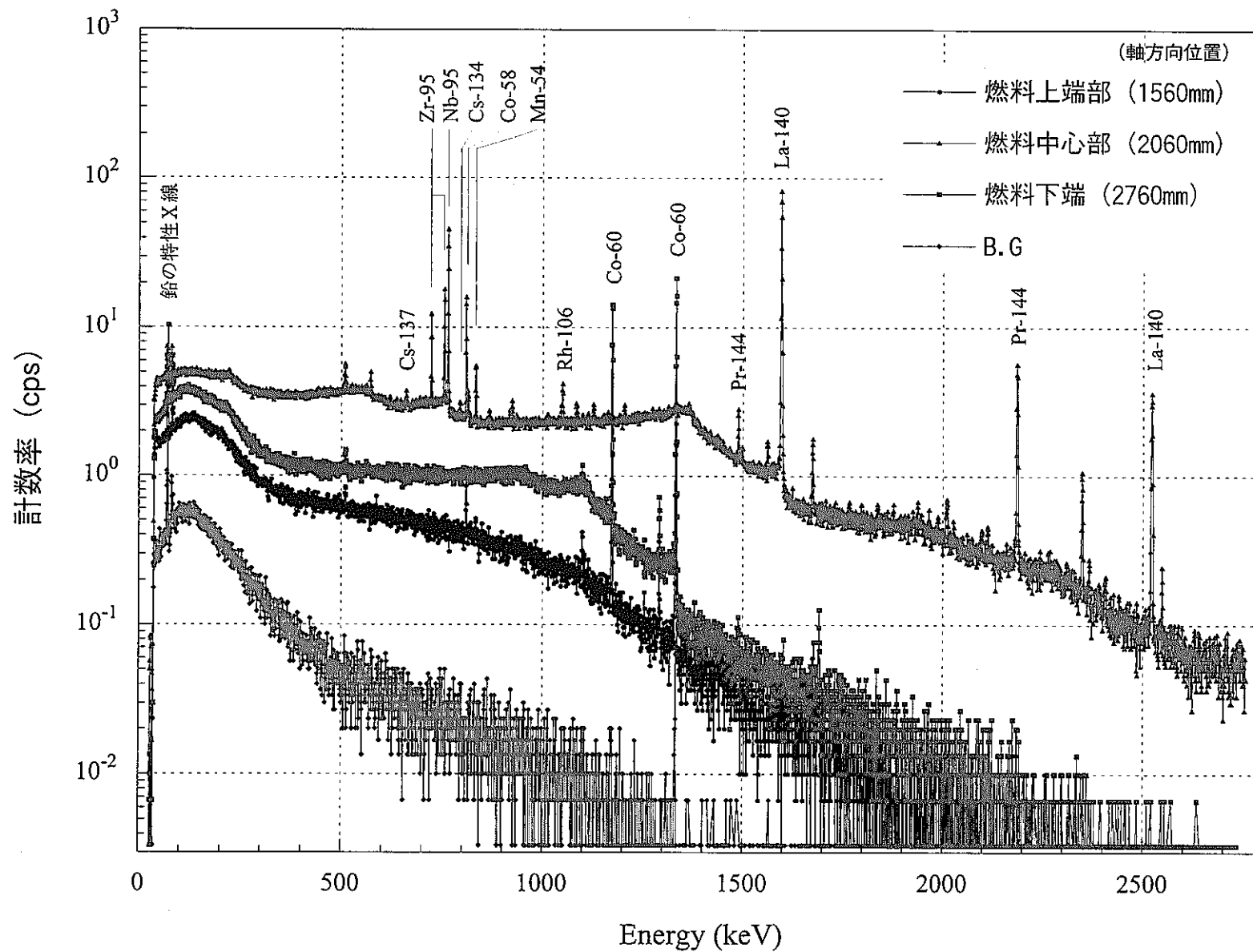


図4.4  $\gamma$ 線スペクトル測定結果 (PFD601)



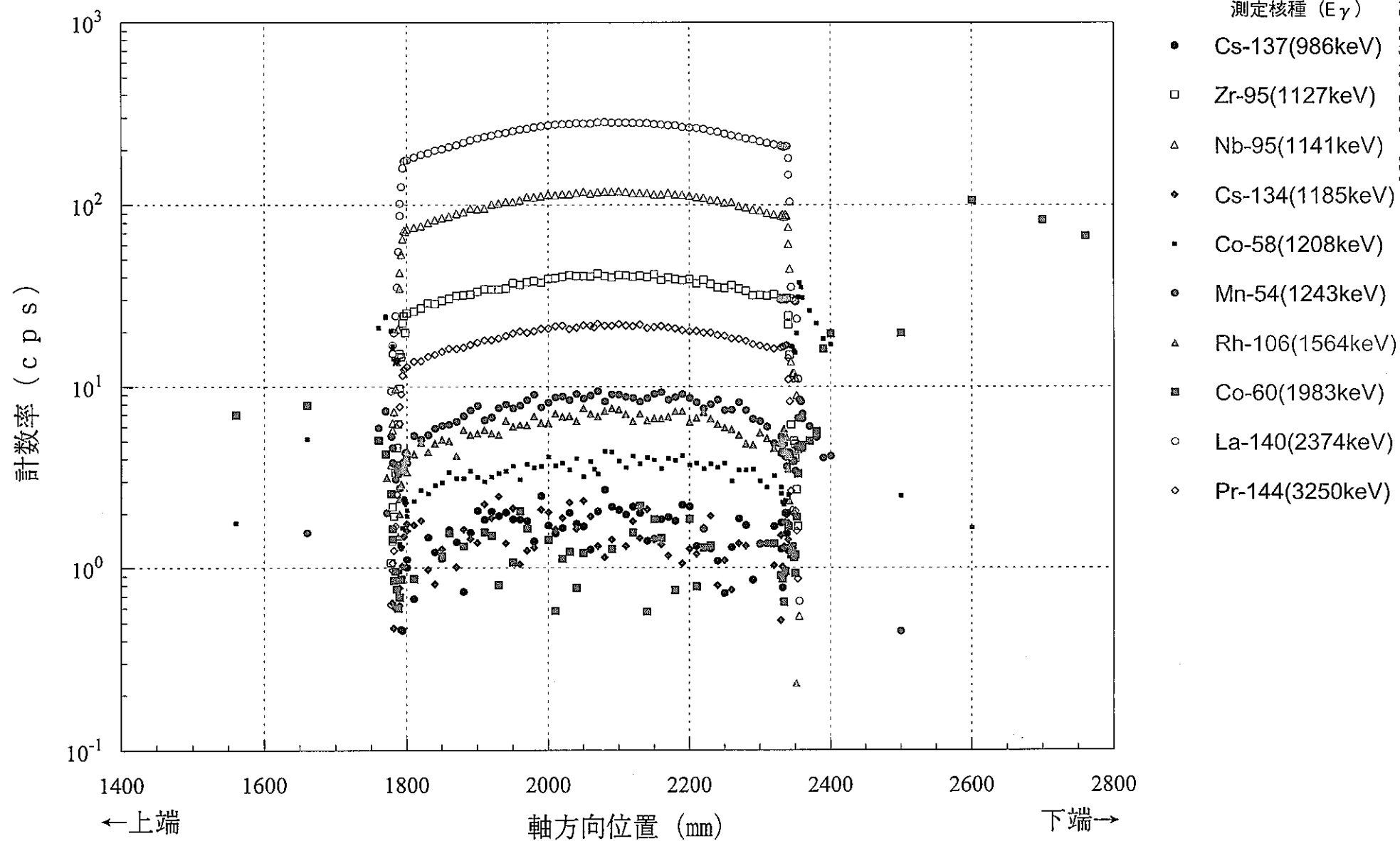


図4.5  $\gamma$ 線計数率の軸方向分布 (PFD601、集合体全体図)

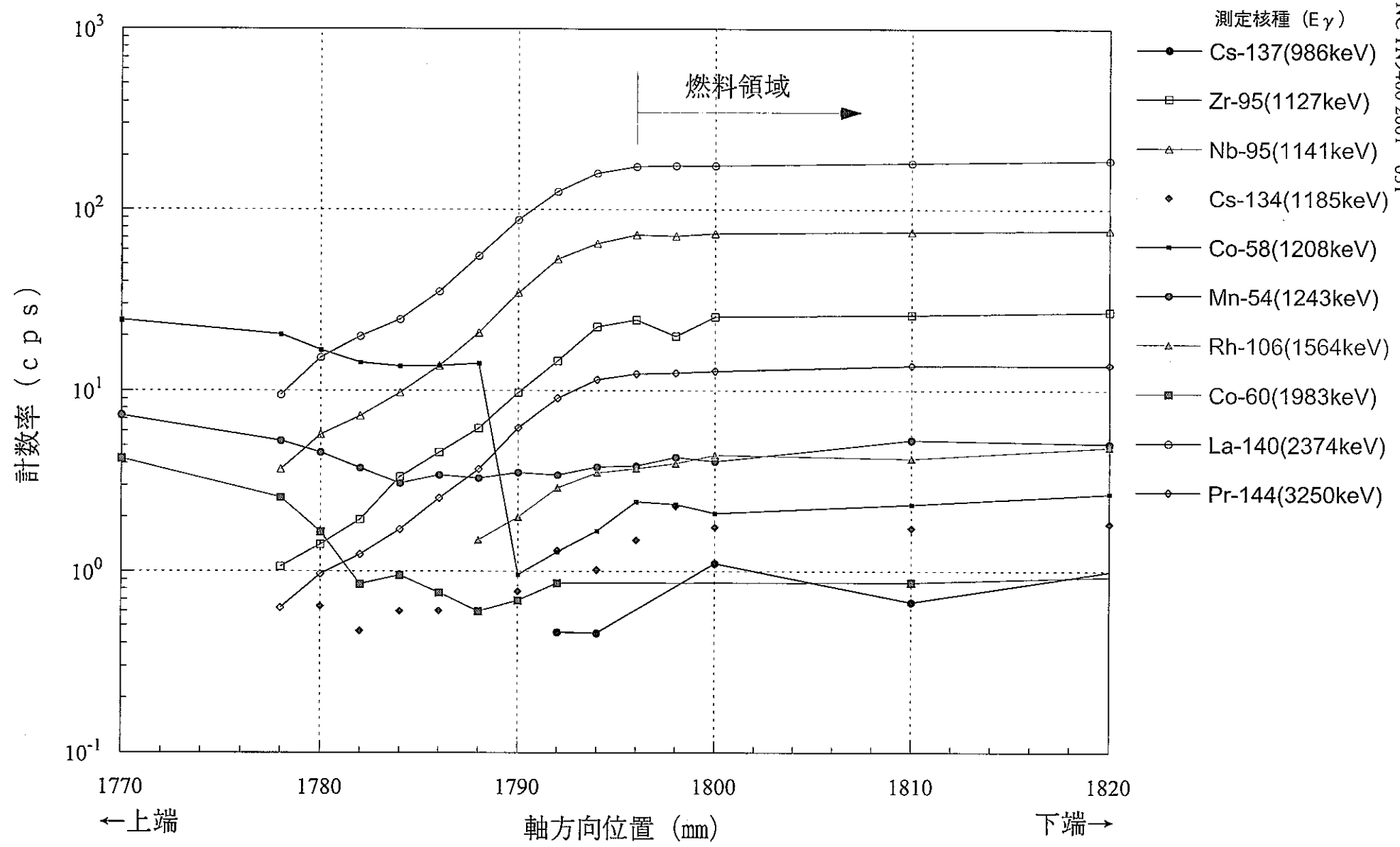


図4.6  $\gamma$ 線計数率の軸方向分布 (PFD601、燃料上端部詳細図)

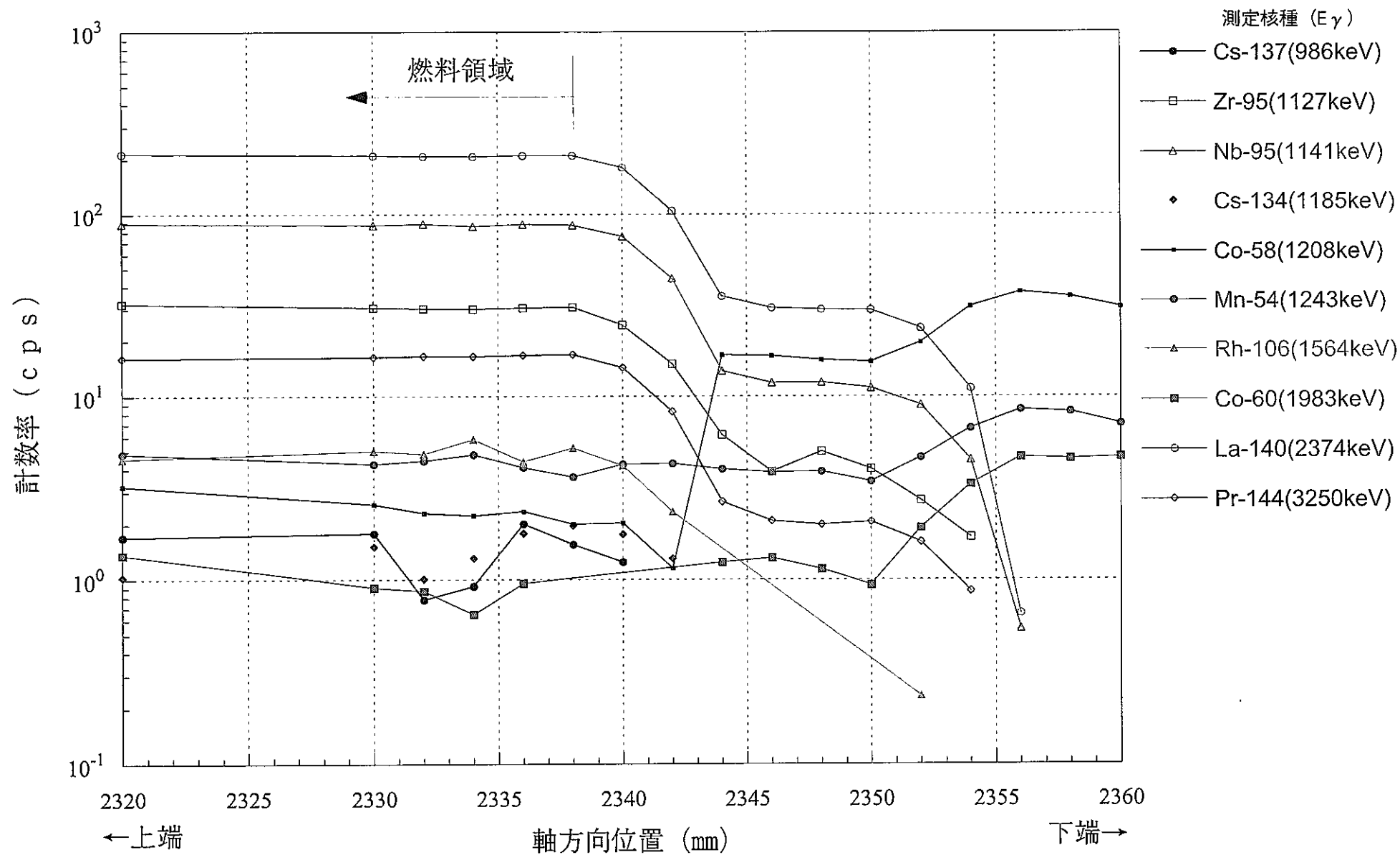


図4.7  $\gamma$ 線計数率の軸方向分布 (PFD601、燃料下端部詳細図)

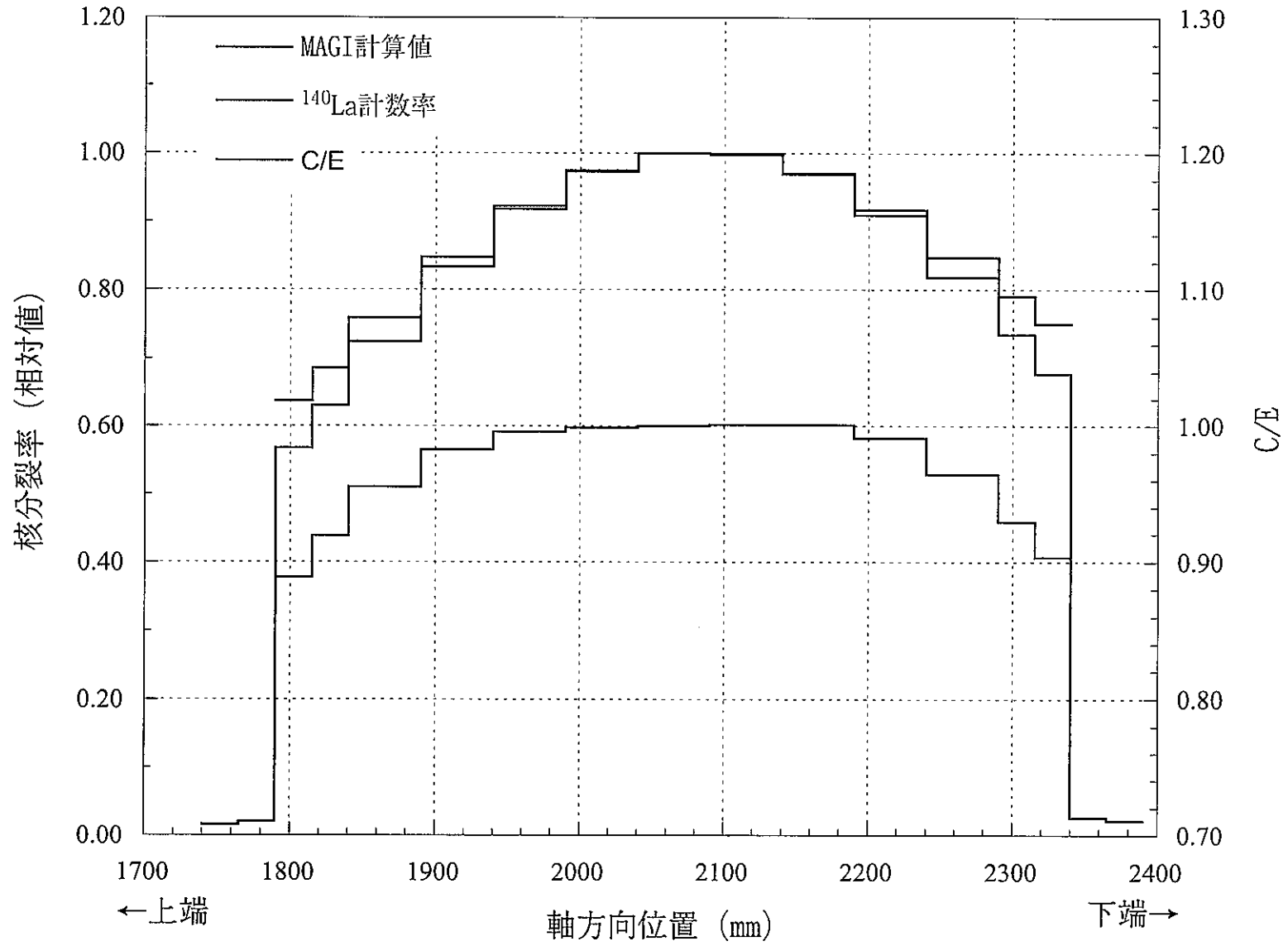


図4.8 軸方向核分裂率分布の比較 (PFD601)

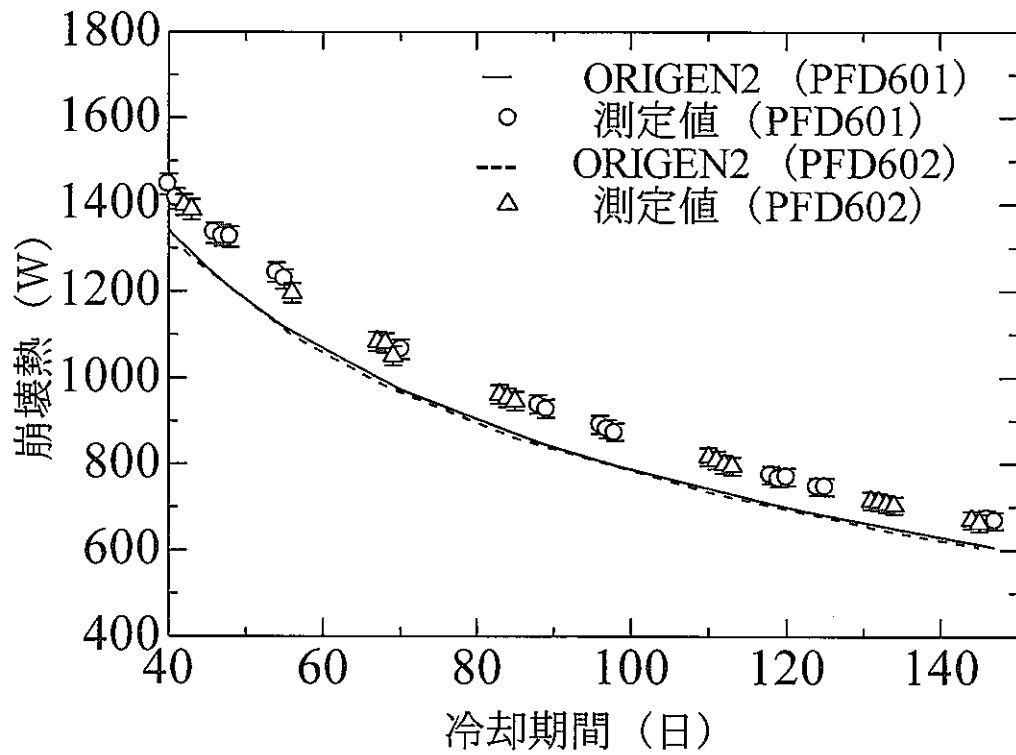


図 4.9 崩壊熱計算結果 (PFD601、PFD602)

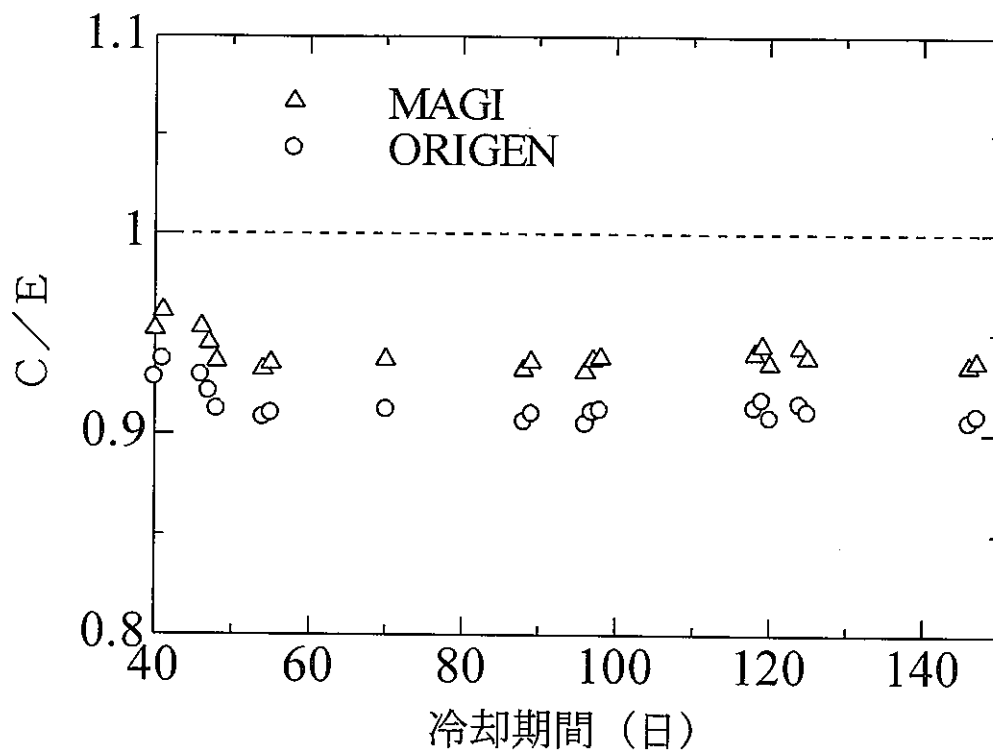


図 4.10 崩壊熱の C/E の推移 (PFD601)

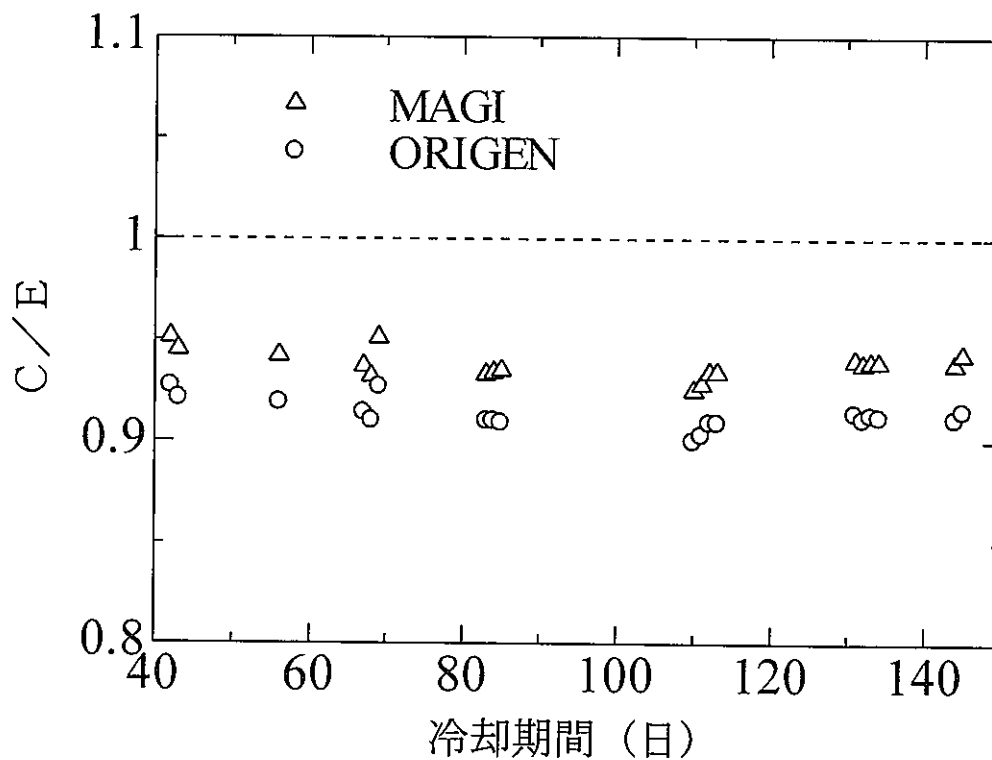


図 4.11 崩壊熱の C/E の推移 (PFD602)

