

Xe-133、Xe-135の放射能比からの実効増倍率の推定（改訂1）

北海道大学
エネルギー環境システム部門
原子炉工学研究室

千葉豪、川本洋右

平成 25 年 8 月 3 日

福島第一原発の溶融（した）炉心において、どの程度核分裂連鎖反応が起きているのか、どの程度臨界に近いのかを定量的に知ることは、今後の事故処理において非常に重要である。その一方で、現状において測定可能な物理量、プラントパラメータからそのような情報を得ることは容易ではない。

現在、溶融炉心は未臨界状態にあるが、原子炉の運転によって生成した Cm-242、Cm-244 の自発核分裂により中性子が定常的に発生し、その中性子が U-235、Pu-239 といった核分裂性核種と衝突することによって核分裂反応が起き、さらなる中性子が発生している。炉心は未臨界であるため、この連鎖反応は少ない世代で終息するが、炉心には一定数の中性子が存在することになる。

炉心の実効増倍率を k としたとき、自発核分裂により毎秒 S 個の中性子が発生するならば、炉心の全中性子数は $S/(1-k)$ となる。つまり、 $1/(1-k)$ だけ中性子が増倍する。

さて、核分裂によりアクチノイド核種は 2 ないし 3 の核分裂生成物（fission product, FP）に分裂するが、この FP の生成分布はアクチノイド核種によって異なる。仮に、Cm-242、Cm-244 の自発核分裂で発生する FP が、U-235 や Pu-239 の中性子誘起核分裂で発生する FP と大きく異なるのであれば、炉心で生成された FP の分布から、自発核分裂により発生した中性子がどの程度増倍しているかを知ることが出来る筈である。

ここで、Xe-133、Xe-135 の累積核分裂収率を Table 1 にまとめる。なお、中性子誘起核分裂については JENDL/FPY-2011 の評価値、自発核分裂については JEFF-3.1.1 の評価値をそれぞれ引用している。また、括弧内は JENDL/FPY-2011 に与えられているそれぞれのパラメータの相対的な不確かさを示す。

Table 1: Cumulative fission yields of Xe-133 and -135

	Xe-133	Xe-135	Xe-135/Xe-133
U-235 (thermal fission)	6.68E-2 (0.64*)	6.51E-2 (0.01)	0.97
Pu-239 (thermal fission)	7.00E-2 (0.64)	7.58E-2 (0.01)	1.08
Pu-241 (thermal fission)	6.73E-2 (0.64)	7.16E-2 (0.02)	1.06
U-238 (fast fission)	6.77E-2 (0.64)	6.90E-2 (0.01)	1.02
Cm-242 (spontaneous fission)	5.65E-2 (0.14)	6.55E-2 (0.33)	1.16
Cm-244 (spontaneous fission)	3.99E-2 (0.04)	5.64E-2 (0.04)	1.41

* Relative uncertainty.

この表より、Xe-135 と Xe-133 の核分裂収率の比は、U、Pu の中性子誘起核分裂と比較して、Cm の自発核分裂の方が有意に大きいことが分かる。Xe-135、Xe-133 はともに半減期が短く（それぞれ約 9 時間と約 5 日）すぐに放射平衡に達するため、それらの放射能は核分裂収率に比例する¹。従って、炉心に生成される Xe-135 と Xe-133 の放射能の比は、炉心の中性子増倍がゼロであるならば 1.16 から 1.41 の値をとり、炉心が限りなく臨界に近いならば 0.97 から 1.08 の値をとることが言える。

ただし、核分裂収率の不確かさを考慮した場合、中性子誘起核分裂における Xe-133 の収率の不確かさがどのアクチニドについても 64%と大きい² こと、Cm-242 の自発核分裂による Xe-133、Xe-135 の収率の不確かさが大きい³ ことから、Xe-135 と Xe-133 の放射能比の不確かさは非常に大きいと考えられる。

上記について定量的な評価を行うため、以下のような数値計算を行った。

典型的な軽水炉の UO₂ 燃料を 20GWd/t および 45GWd/t まで一定出力で燃焼させ（ピンセルモデル、FP は 1400 核種程度考慮）、その燃料ペレットの組成と水を体積で 4:6 の割合で混合した無限均質媒質を考えた。それに対して B-10 を添加することで系の実効増倍率を調整し、燃焼後 1000 日の時点での、 k と、Xe-135 と Xe-133 の放射能比の関係を調べた。なお、燃焼後 1000 日間については、Cm-242、Cm-244 の自発核分裂から発生する中性子（エネルギースペクトルは JENDL/FPD-2011 のものを利用）を固定源とした計算で得られた中性子エネルギースペクトルを用いて各反応率を計算し、燃焼計算を行った。

計算の結果得られた k と放射能比の関係を Fig. 1 に示す。燃焼度が低いほうが中性子誘起核分裂に占める U-235 の寄与が大きくなるため、曲線の勾配は大きくなる。

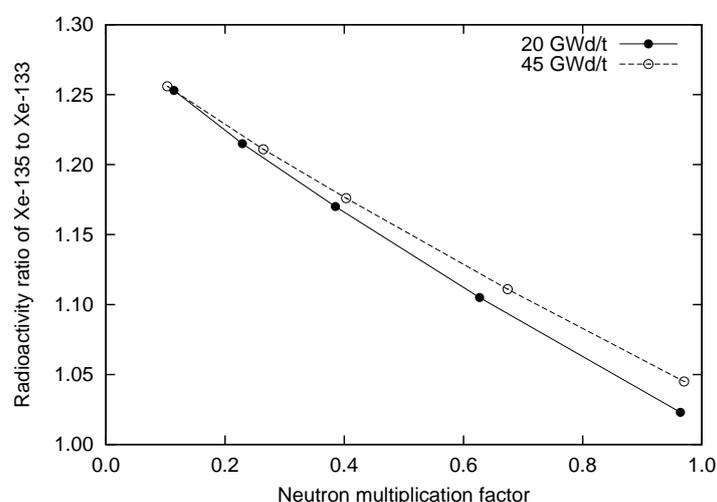


Fig. 1: Dependence of radioactivity ratio of Xe-135 to Xe-133 to neutron multiplication factor

以上より、溶融燃料領域中の Xe-133 と Xe-135 の放射能を数%の精度で測定することが出来、U、Pu の中性子誘起核分裂反応、Cm-242、Cm-244 の自発核分裂反応の Xe-133、Xe-135 の

¹中性子束レベルが高い場合には Xe-135 の中性子捕獲の影響を考えなければならないが、中性子束レベルは十分に低いであろう。

²ただし、U-235 の熱中性子核分裂による Xe-133 の収率の不確かさは JEFF-3.1.1 では 1.6%と与えられており、評価済み核データファイルによって不確かさの評価値が大きく異なっている。

³Cm-242 と Cm-244 の半減期はそれぞれ約 163 日、約 18 年であるので、ある程度時間が経過したあとは（核分裂収率の不確かさの小さい）Cm-244 の自発核分裂が支配的となる。ただしこの場合は中性子源自体も弱くなることを意味する。

収率の精度が数%程度であれば、Xe-135 と Xe-133 の放射能比から炉心の実効増倍率を推定する（ただし 0.2 程度の幅で）ことが可能と考えられる。

溶融燃料領域中の Xe 同位体の放射能を測定することは困難が伴うことが予想される。そこでここでは格納容器中のガスをサンプリングすることを考える。

炉心と格納容器（気相）の 2 領域に問題を単純化し、Xe の炉心から格納容器への実効的な移行係数を D^{CV} 、格納容器から外部への移行係数を D^V と定義する。炉心、格納容器における Xe 同位体の数密度をそれぞれ N^C 、 N^V とした場合、それらが従う微分方程式は以下となる。

$$\frac{dN^C}{dt} = S - \lambda N^C - D^{CV} N^C, \quad (1)$$

$$\frac{dN^V}{dt} = D^{CV} N^C - \lambda N^V - D^V N^V \quad (2)$$

ここで S は炉心での Xe 同位体の生成率を示す。 N^C 、 N^V が平衡状態であるとするならば、それらに対する時間微分はゼロとなるので以下が得られる。

$$N^C = \frac{S}{\lambda + D^{CV}}, \quad (3)$$

$$N^V = \frac{D^{CV} N^C}{\lambda + D^V} = \frac{D^{CV} S}{(\lambda + D^V)(\lambda + D^{CV})} \quad (4)$$

これらを用いると、格納容器内の Xe-135 と Xe-133 の放射能比は以下のように書ける。

$$\frac{\lambda_5 N_5^V}{\lambda_3 N_3^V} = \frac{S_5}{S_3} \cdot \frac{(\lambda_3 + D^V)(\lambda_3 + D^{CV})}{(\lambda_5 + D^V)(\lambda_5 + D^{CV})} \cdot \frac{\lambda_5}{\lambda_3} \quad (5)$$

ここで、 D^V について評価する。文献（「福島第一原子力発電所 2 号機の格納容器からの Xe135 の検出について」、東京電力株式会社、平成 23 年 11 月 4 日）によると、格納容器の気相体積は $3,000\text{m}^3$ 、 N_2 の注入量は $14\text{m}^3/\text{hr}$ であることから、 $D^V = 14/3600/3000 = 1.3 \times 10^{-6} [\text{s}]$ となる。半減期より、 $\lambda_3 = 1.53\text{E-}6$ 、 $\lambda_5 = 2.11\text{E-}5$ なので、式 (5) は次のように書ける。

$$\frac{\lambda_5 N_5^V}{\lambda_3 N_3^V} = 1.74 \cdot \frac{S_5}{S_3} \cdot \frac{(\lambda_3 + D^{CV})}{(\lambda_5 + D^{CV})} \quad (6)$$

炉心から格納容器への移行係数 D^{CV} の評価は難しいが、 $D^{CV} \gg \lambda$ と見做せる場合は

$$\frac{\lambda_5 N_5^V}{\lambda_3 N_3^V} = 1.74 \cdot \frac{S_5}{S_3} \quad (7)$$

となり、逆に $D^{CV} \ll \lambda$ の場合は

$$\frac{\lambda_5 N_5^V}{\lambda_3 N_3^V} = 0.13 \cdot \frac{S_5}{S_3} \quad (8)$$

となる。なお、 S_5/S_3 は、前述の数値計算で求めた Xe-135 と Xe-133 の放射能比と等価である。

以上のように、炉心から格納容器への移行係数の不確かさを考えると、格納容器のガス中の Xe-135 と Xe-133 の放射能比から炉心の実効増倍率を推定するのは困難が伴うと考えられる。

参考情報として、Xe-133、Xe-135の崩壊により生じるガンマ線のエネルギースペクトルを Fig. 2 に示す。なお、データ元は JENDL/FPD-2011 である。

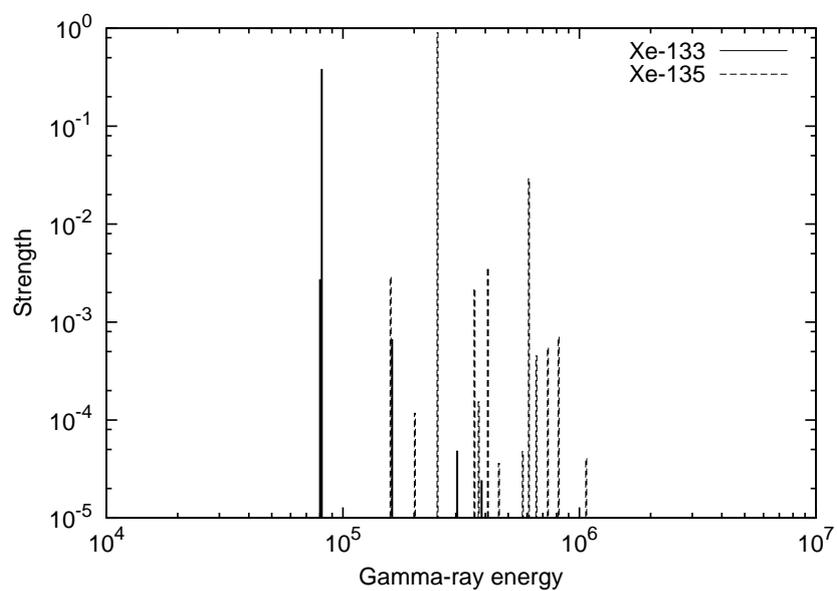


Fig. 2: Energy spectra of gamma-ray emitted from decay of Xe-133 and Xe-135