



Title	軽水炉燃料におけるウラン濃縮度に着目した高レベル放射性廃棄物中の超ウラン元素による放射性毒性および崩壊熱の低減
Author(s)	平岩, 宏司
Citation	大阪大学, 2025, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.18910/103106">https://doi.org/10.18910/103106</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

## 論文内容の要旨

氏名 ( 平 岩 宏 司 )	
論文題名	軽水炉燃料におけるウラン濃縮度に着目した高レベル放射性廃棄物中の超ウラン元素による放射性毒性および崩壊熱の低減
論文内容の要旨	

1章では序論として研究の背景と学位論文の構成を記載した。

2章では<sup>235</sup>Uの濃縮度を高めたTRU生成低減燃料でガドリニアを可燃性毒物 (BP) として使用することで、余剰反応度を平坦化することができる事を示した。余剰反応度を平坦化するために必要なガドリニアの濃度は、<sup>235</sup>Uの濃縮度が高まるにつれて増加し、この傾向は飽和していく。その結果、中性子吸収材として作用する<sup>155</sup>Gdと<sup>157</sup>Gdの残留量は、3.8wt%を超える濃縮度では増加する。BPの添加により、BOLでは濃縮度に関係なく熱中性子束は最大約20%増加する。EOLでは、熱中性子束の増加は高濃縮度ほど顕著である。BPの添加の有無によるTRU重量割合の相対差は、<sup>235</sup>U濃縮度の増加に伴い、<sup>239</sup>Puを除いて20wt%を超えないことが示された。すなわちTRU生成低減燃料のTRU生成低減効果はBPを考慮してもしなくてもその効果は概ねほぼ同程度である。

3章では冷却に伴う有害度と崩壊熱の減衰傾向について、使用済燃料 (SNF)、再処理、HLWの時系列に沿って順に調査した。再処理前の15年間の全TRUの有害度と崩壊熱は、<sup>235</sup>U濃縮度が3.8wt%から20wt%に増加するにつれて、それぞれ数10%減少する。放射性毒性と崩壊熱の目標値は、天然ウラン鉱石のフェードアウトポイントとして設定した。これは、TRU核種の有害度と崩壊熱をHLWとして管理する必要がなくなるレベルである。TRU生成低減ウラン燃料の高レベル液の放射性毒性と崩壊熱は、<sup>241</sup>Am、<sup>243</sup>Am、<sup>239</sup>Pu、<sup>240</sup>Puによって支配されており、この4核種の和がTRU全体の崩壊時間をほぼ決定している。その結果、この4つの核種がフェードアウト時間を決定する。その結果、TRUの有害度と崩壊熱のフェードアウト時間は、<sup>241</sup>Am単独のフェードアウト時間を下限として、初期<sup>235</sup>U濃縮度の増加に伴い短くなる。その結果、初期<sup>235</sup>U富化度を3.8wt%から20wt%に増加させることにより、TRU生成低減燃料において、放射性毒性のフェードアウト時間が10万年から3千年に、崩壊熱のフェードアウト時間が4万年から2千年にそれぞれ短縮される効果がある。

4章ではTRU生成低減燃料を用いてアメリシウムを核変換することにより、ガラス固化時の<sup>241</sup>Amと<sup>244</sup>Cmの崩壊熱を低減できるかどうかを検討した。<sup>235</sup>Uの濃縮度の上昇を基に、TRU生成低減燃料を用いた核変換と核変換なしの場合について、<sup>241</sup>Amと<sup>244</sup>Cmの生成量と崩壊熱を評価した。また、FPを含まずMAのみを含む場合のガラス固化体の体積に対する影響を崩壊熱に基づいて明らかにした。核変換を行わない場合、燃料の濃縮度が高くなるにつれて<sup>241</sup>Amと<sup>244</sup>Cmの生成量は減少するため、両核種の崩壊熱も減少する。核種の生成量の減少に対する濃縮度の上昇の感度は、<sup>244</sup>Cmでは指數関数的に増加し、<sup>241</sup>Amの線形減少よりも大きくなる。核種別の崩壊熱を見ると、原子炉停止後15年経過時の濃縮度3.8wt%では、<sup>241</sup>Amと<sup>244</sup>Cmの崩壊熱はほぼ同じになる。TRU生成低減燃料から製造されたアメリシウムを同濃縮度同燃料で核変換した場合、<sup>235</sup>U濃縮度3.8wt%の燃料では、<sup>241</sup>Amと<sup>244</sup>Cmの総崩壊熱は核変換により増加する。この結果は、<sup>244</sup>Cmの生成による崩壊熱の増加がアメリシウムの核変換による崩壊熱の減少を上回るためである。TRU生成低減燃料の<sup>235</sup>U濃縮度が高まると、<sup>241</sup>Amの生成量よりも<sup>244</sup>Cmの生成量が減少する。この燃料の核特性により、<sup>243</sup>Amから<sup>244</sup>Cmへの核変換率が低下する。濃縮度7.5wt%程度では、核変換による<sup>241</sup>Amの崩壊熱の減少と<sup>244</sup>Cmの崩壊熱の増加が相殺しあう。濃縮度が高くなると、核変換による<sup>241</sup>Amの崩壊熱の減少が<sup>244</sup>Cmの崩壊熱の増加を上回り、濃縮度が高くなるほど崩壊熱は減少する。20wt%濃縮と3.8wt%濃縮を比較すると、崩壊熱低減効果は、核変換なしでは18.8%まで低減し、さらに核変換を行うことで11.5%まで低減される。また、この崩壊熱の減少は再処理直後に発生し、FPを含まないMAのみを含むガラス固化廃棄物の量の減少と同じと考えることができる。

5章では、各章で得られた成果を取りまとめ、軽水炉において可燃性毒物を添加したTRU生成低減燃料を導入することにより、運転中の余剰反応度を適切に調整できるだけでなく、高レベル放射性廃棄物量の減少ならびに放射性毒性の減衰時間を大幅に低減できることを述べた。

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏名 ( 平岩 宏司 )	
	(職) 氏名
論文審査担当者	主査 教授 北田 孝典 副査 教授 牟田 浩明 副査 准教授 竹田 敏

## 論文審査の結果の要旨

本研究では、高レベル放射性廃棄物（HLW）中の超ウラン元素による放射性毒性および崩壊熱を低減できる軽水炉燃料について評価しており、以下に示す五章で構成されている。

1章では序論として研究の背景と学位論文の構成が記載されている。

2章では<sup>235</sup>Uの濃縮度を高めたTRU生成低減燃料でガドリニアを可燃性毒物として使用することで、余剰反応度を平坦化することができることが示されている。余剰反応度を平坦化するために必要なガドリニアの濃度は、<sup>235</sup>Uの濃縮度が高まるにつれて増加し、この傾向は飽和し、その結果、中性子吸収材として作用する<sup>155</sup>Gdと<sup>157</sup>Gdの残留量は、3.8wt%を超える濃縮度では増加することが示されている。さらに、BPの添加により、BOLでは濃縮度に関係なく熱中性子束は最大約20%増加すること、EOLでは、熱中性子束の増加は高濃縮度ほど顕著であること、BPの添加の有無によるTRU重量割合の相対差は、<sup>235</sup>U濃縮度の増加に伴い、<sup>239</sup>Puを除いて20wt%を超えないことが示されており、TRU生成低減燃料のTRU生成低減効果はBPを考慮してもしなくともその効果は概ねほぼ同程度であることを明らかにしている。

3章では冷却に伴う放射性毒性と崩壊熱の減衰傾向について、使用済燃料、再処理、HLWの時系列に沿って順に調査した結果が示されている。再処理前の15年間の全TRUの放射性毒性と崩壊熱は、<sup>235</sup>U濃縮度が3.8wt%から20wt%に増加するにつれて、それぞれ数10%減少すること、さらに全TRUの放射性毒性と崩壊熱は、<sup>241</sup>Am、<sup>243</sup>Am、<sup>239</sup>Pu、<sup>240</sup>Puによって支配され、この4核種の和がTRU全体の崩壊時間をほぼ決定しており、この4つの核種がフェードアウト時間を決定することができる。その結果、TRUの有害度と崩壊熱のフェードアウト時間は、<sup>241</sup>Am単独のフェードアウト時間を下限として、初期<sup>235</sup>U濃縮度の増加に伴い短くなるため、初期<sup>235</sup>U富化度を3.8wt%から20wt%に増加させることにより、TRU生成低減燃料において、放射性毒性のフェードアウト時間が10万年から3千年に、崩壊熱のフェードアウト時間が4万年から2千年にそれぞれ短縮される効果があることを明らかにしている。

4章ではTRU生成低減燃料を用いてアメリシウムを核変換することにより、ガラス固化時の<sup>241</sup>Amと<sup>244</sup>Cmの崩壊熱を低減できるかどうかを検討した結果が示されている。<sup>235</sup>Uの濃縮度の上昇を基に、TRU生成低減燃料を用いた核変換と核変換なしの場合について<sup>241</sup>Amと<sup>244</sup>Cmの生成量と崩壊熱を評価し、さらにFPを含まずMAのみを含む場合のガラス固化体の体積に対する影響を崩壊熱に基づいて明らかにしている。核変換を行わない場合、燃料の濃縮度が高くなるにつれて<sup>241</sup>Amと<sup>244</sup>Cmの生成量は減少するため、両核種の崩壊熱も減少すること、核種の生成量の減少に対する濃縮度の感度は<sup>244</sup>Cmでは指数関数的に増加し<sup>241</sup>Amの線形減少よりも大きくなること、核種別の崩壊熱を見ると、原子炉停止後15年経過時の濃縮度3.8wt%では、<sup>241</sup>Amと<sup>244</sup>Cmの崩壊熱はほぼ同じになることが示されている。TRU生成低減燃料から製造されたアメリシウムを同濃縮度同燃料で核変換した場合、<sup>235</sup>U濃縮度3.8wt%の燃料では、<sup>244</sup>Cmの生成による崩壊熱の増加がアメリシウムの核変換による崩壊熱の減少を上回るため、<sup>241</sup>Amと<sup>244</sup>Cmの総崩壊熱は核変換により増加すること、TRU生成低減燃料の<sup>235</sup>U濃縮度が高まると、<sup>243</sup>Amから<sup>244</sup>Cmへの核変換率が低下し、<sup>241</sup>Amの生成量よりも<sup>244</sup>Cmの生成量が減少することが示されている。さらに濃縮度7.5wt%程度では、核変換による<sup>241</sup>Amの崩壊熱の減少と<sup>244</sup>Cmの崩壊熱の増加が相殺し、さらに濃縮度が高くなると、核変換による<sup>241</sup>Amの崩壊熱の減少が<sup>244</sup>Cmの崩壊熱

の増加を上回り、崩壊熱は減少することが示されている。その結果、20wt%濃縮と3.8wt%濃縮を比較すると、崩壊熱は、核変換なしでは18.8%まで低減し、さらに核変換を行うことで11.5%にまで低減されること、さらに、この崩壊熱の減少は再処理直後に発生し、FPを含まないMAのみを含むガラス固化廃棄物の量の減少と同じと考えることができるこを明らかにしている。

5章では、各章で得られた成果を取りまとめ、本研究の結論が示されている。

以上のように、本論文は高レベル放射性廃棄物中の超ウラン元素による放射性毒性および崩壊熱を低減できる軽水炉燃料について<sup>235</sup>U濃縮度に着目した評価を行い、軽水炉において可燃性毒物を添加したTRU生成低減燃料を導入することにより、運転中の余剰反応度を適切に調整できるだけでなく、高レベル放射性廃棄物量の減少ならびに放射性毒性の減衰時間を大幅に低減できることが示されている。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。