



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	https://doi.org/10.18910/103106
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

博士学位論文

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

平岩 宏司

2025年 5月

大阪大学大学院工学研究科
環境エネルギー工学専攻

「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」

1	序論.....	1
1.1	本研究の目的.....	1
1.2	従来研究と課題.....	1
1.3	本研究で取り組んだ研究と得られた成果.....	3
1.4	本論文の構成.....	5
1.5	本章の参考文献.....	6
2	可燃性毒物と組み合わせた場合の TRU 生成低減効果.....	8
2.1	本章の背景.....	8
2.2	燃料集合体内での可燃性毒物棒仕様.....	9
2.3	燃焼にともなうガドリニア濃度変化.....	19
2.4	使用済燃料中の TRU 核種濃度.....	26
2.5	本章のまとめ.....	32
2.6	本章の参考文献.....	33
3	放射性毒性と崩壊熱が天然ウラン鉱石レベルに減衰する時間の短縮.....	34
3.1	本章の背景.....	34
3.2	放射性毒性、崩壊熱の評価条件とフェードアウト時間の定義....	36
3.3	使用済燃料および高レベル放射性廃棄物中の TRU 放射性毒性..	40
3.4	使用済燃料および高レベル放射性廃棄物中の TRU 崩壊熱.....	44
3.5	使用済燃料および高レベル放射性廃棄物中の TRU 重量割合	47
3.6	本章のまとめ.....	50
3.7	本章の参考文献.....	51
4	アメリシウム核変換を行った場合の高レベル放射性廃棄物削減.....	53
4.1	本章の背景.....	53
4.2	想定する燃料仕様、燃料サイクル概念および評価方法.....	56
4.3	核変換を行わない場合の TRU 崩壊熱と重量割合	62
4.3.1	TRU 生成低減燃料の ^{235}U 濃縮度増加時 TRU 生成メカニズム	62
4.3.2	TRU 生成低減燃料のアメリシウムとキュリウムの生成特性	73
4.4	アメリシウム核変換時の ^{241}Am と ^{244}Cm の崩壊熱	76
4.5	本章のまとめ.....	84
4.6	本章の参考文献.....	85
5	結論.....	87
	謝辞	88

表一覧

表 2-1 TRU 生成低減燃料の仕様.....	11
表 2-2 燃焼解析の条件.....	12
表 2-3 本研究で検討する TRU 核種.....	13
表 2-4 可燃性毒物棒の本数およびガドリニアの重量割合	14
表 3-1 使用した解析コードおよび時間経過の定義.....	38
表 3-2 ^{241}Am と TRU の放射性毒性のフェードアウト時間.....	42
表 3-3 ^{241}Am と TRU の崩壊熱のフェードアウト時間.....	45
表 4-1 TRU 生成低減燃料集合体の仕様.....	58
表 4-2 燃焼解析の条件.....	59
表 4-3 核変換 x1 ケースのアメリシウム添加重量割合	78
表 4-4 ^{241}Am と ^{244}Cm の単位重量あたりの崩壊熱.....	79

図一覧

図 2-1 可燃性毒物棒および通常燃料棒の集合体内位置	15
図 2-2 燃料集合体のガドリニア濃度とガドリニアの総量	16
図 2-3 ガドリニアを添加した場合の燃料集合体無限増倍率	17
図 2-4 炉心の余剰反応度	18
図 2-5 ガドリニウム同位体の燃焼変化(^{235}U 濃縮度 3.8wt%)	20
図 2-6 ガドリニウム同位体の燃焼変化(^{235}U 濃縮度 20wt%)	21
図 2-7 ^{155}Gd の燃焼変化	22
図 2-8 ^{157}Gd の燃焼変化	23
図 2-9 未燃焼時の熱中性子束	24
図 2-10 取出時の熱中性子束	25
図 2-11 可燃性毒物の無い場合の残留 TRU 核種重量割合	27
図 2-12 可燃性毒物がある場合の残留 TRU 核種重量割合	28
図 2-13 TRU 核種重量割合の相対変化率	29
図 2-14 TRU 核種相対重量割合の ^{235}U 濃縮度依存性(可燃性毒物なし)	30
図 2-15 TRU 核種相対重量割合の ^{235}U 濃縮度依存性(可燃性毒物あり)	31
図 3-1 TRU 核種ごとの内部被ばく係数と Q 値	39
図 3-2 長期冷却時の ^{235}U 増加に対する TRU 核種の放射性毒性変化	43
図 3-3 長期冷却時の ^{235}U 増加に対する TRU 核種の崩壊熱変化	46
図 3-4 使用済燃料中の TRU 核種の ^{235}U 濃縮度に対する変化	48
図 3-5 ^{243}Am と ^{244}Cm の ^{235}U 濃縮度に対する重量割合の変化	49
図 4-1 燃焼解析で用いる TGBLA の重核種反応チェーン	60
図 4-2 アメリシウム核変換を行う炉システム	61
図 4-3 燃料棒中の 3 エネルギー群の中性子束の濃縮度変化	65
図 4-4 主要 TRU 核種の ^{235}U 濃縮度変化に伴う生成量変化	66
図 4-5 主要 TRU 核種の ^{235}U 濃縮度変化に伴う減少量変化	67
図 4-6 主要 TRU 核種の ^{235}U 濃縮度変化に伴う残留量変化	68
図 4-7 濃縮度変化による ^{241}Pu の関連成分の重量割合変化	69
図 4-8 濃縮度変化による ^{241}Am の関連成分の重量割合相対変化	70
図 4-9 濃縮度変化による ^{243}Am の関連成分の重量割合変化	71
図 4-10 濃縮度変化による ^{244}Cm の関連成分の重量割合変化	72
図 4-11 核変換なし時のアメリカン核種の崩壊熱	74
図 4-12 核変換なし時のアメリカン同位体重量割合	75
図 4-13 ^{241}Am and ^{244}Cm 合計崩壊熱に対する核変換による影響	80
図 4-14 ^{241}Am と ^{244}Cm の合計崩壊熱の核変換による効果	81
図 4-15 複数炉分を装荷した場合の核変換時の崩壊熱変化	82
図 4-16 ^{241}Am 減少量と ^{244}Cm 増加量の比の濃縮度変化	83

1 序論

1.1 本研究の目的

本研究の目的は、軽水炉を用いた高レベル放射性廃棄物(HLW)中の超ウラン元素に伴う潜在的放射性毒性（以後、放射性毒性と記す）およびHLW物量低減である。

我が国は、資源の有効利用、HLWの減容化・放射性毒性低減等の観点から、使用済燃料(SNF)を再処理し、回収されるプルトニウム等を有効利用する核燃料サイクルを前提としている。この核燃料サイクルにともない使用済燃料問題が生じている[1]。ここで使用済燃料問題とは SNF の発生にともなう様々な核燃料サイクルでの問題を指すが、この研究においては放射性毒性と HLW の物量増大との 2 点に着目する。SNF や HLW には核分裂生成物(FP)や超ウラン元素(TRU)が含まれている。これらの放射性核種の存在によって放射性毒性と崩壊熱による HLW 物量への影響が生じることになる。

1.2 従来研究と課題

原子力発電にともなう放射性毒性と崩壊熱による HLW の発生の課題に対して、国内外で核変換に関する幅広い研究が進められてきた。核変換とは半減期が数千年等の長寿命の放射性核種を原子核反応によって短寿命または安定な核種に変換する技術である。対象としては一部の長寿命 FP (LLFP) について小規模な研究が行われたものの主として TRU が核変換対象になりうるとされている[2]。本研究においては TRU 核変換も適用することを想定していることから着目する放射性核種は TRU のみとした。前掲の報告[2]によれば、我が国の核変換技術分野は加速器駆動システム(ADS)などのコンパクトなシステムで構成する階層型と呼ぶシステムと高速増殖炉(FBR)を組み合わせた FBR サイクル利用型システムの 2 種を想定した開発が行われてきた。研究開発について前者は基礎的な取り組みとし、後者は FBR 実用化を目指した研究開発と一体に進めるとされた。しかしながら FBR 原型炉とされた「もんじゅ」は廃止が正式決定されており[3]もんじゅを利用した実用化が当面は不可能な状況になった。つまり放射性毒性と崩壊熱による HLW の発生の課題に FBR サイクル利用型システムによって対処するとしてきた研究開発の実現が不透明になった問題があった。

以上のような核変換を想定していた FBR サイクル利用型システムが利用できない状況を踏まえ放射性毒性と崩壊熱による HLW の発生の課題を軽水炉によって改善するための研究開発が文部科学省の委託研究事業としてシリーズで行われた[4]。これらの研究では主として BWR 燃料と炉心の条件を幅広く設定して放射性毒性や崩壊熱への影響について基礎的な研究が行われた。その研究で得られた最も重要な研究成果は TRU 生成低減ウラン燃料（以降においては TRU 生成低減燃料と呼ぶ）を考案したことである。

この TRU 生成低減燃料では TRU がウラン濃縮度の増加によってその生成量が減る特性がある。TRU は Pu とそれより高次のアクチニドであるが ^{239}Pu を出発点として 1 回の中性子捕獲反応でひとつ高次の核種が生成される関係がある。濃縮度を増加させるとマクロ核分裂断面積が増加する。いっぽう熱出力一定となる発電炉の燃料内では核分裂密度が一定であるため濃縮度を増加させた場合に核分裂密度が一定となるように中性子束は減少することになる。ある核種に対しひとつ高次の核種生成量は中性子の捕獲反応量で生じるため、中性子束が減少すると生成される TRU 核種の量は減ることになる。さらに高次の核種ほど中性子捕獲反応回数を多く経験する。この結果、 ^{239}Pu を出発点として高次の核種ほど生成量が減ることになる。これが TRU 生成低減燃料で TRU 生成が減る基本メカニズムである。

この TRU 生成低減燃料はウラン濃縮度を従来の軽水炉燃料の上限とされてきた 5wt%を上限 20wt%までの範囲に拡大し、さらに取出燃焼度は一定値とすることを特徴とする燃料である[5-7]。TRU 生成低減燃料はウラン濃縮度を増加するにしたがって使用済燃料中の TRU のうち ^{239}Pu 以外の TRU 核種の生成量が減少する特徴があり、TRU 核種を原因とする放射性毒性と崩壊熱が減少する。つまり核変換を適用する以前に放射性毒性と崩壊熱を減少できることになる。また TRU 生成低減燃料から得られる核分裂プルトニウム組成比が増加したプルトニウムを利用した MOX 燃料の場合において崩壊熱の減衰する時間の短縮効果が得られることも示した。

TRU 生成低減燃料は軽水炉で従来使用されてこなかった濃縮度が 5wt%以上かつ 20wt%以下の範囲で使用される。ただし取出燃焼度については 45WGd/t の一定値とした。このことから通常燃料の燃焼度を増大する場合に必要になる燃料被覆管は新たな開発の必要がなく従来の燃料のまま使用できるなど新たな燃料開発の必要がない利点がある。5wt%を超えるウラン濃縮度を軽水炉に適用する場合の課題と実用化における課題については経済産業省の補助事業として行われた研究がある[8]。この研究のスコープはウラン濃縮度上限 10wt%とした場合に軽水炉燃料サイクルのうちの濃縮以降のフロントエンド、原子炉での高燃焼度燃料の使用、使用済燃料輸送から再処理までのバックエンド施設での遮蔽や除熱、臨界安全性に関して許認可で要求される一連の安全性への影響検討である。この研究の結論として濃縮度上限 10wt%の範囲では実用化を妨げるような致命的な問題点は無いとのものであった。なおこの研究では濃縮度増加の効果による放射性毒性や再処理後の崩壊熱への影響に関しての言及はない。前記研究と同様に 5wt%を超えて上限を 7wt%とした炉と燃料サイクルの特性に与える影響に関する研究が米国で行われている[9]。この研究において原子炉の安全上の障害はなく、燃料サイクルの特性に関してフロントエンドへの物量の影響

は大きいものの、バックエンドでの環境への影響は発電量当たりの比較をするとほぼ影響はない結論した。また再処理後の崩壊熱への影響に関しては燃焼度増加の影響からアクチニド成分がやや減少する影響があるとしたがウラン濃縮度増加による影響の言及がない点も前期研究と同様となっている。上記ふたつの研究の結論は濃縮度の検討範囲においては大きな問題点は予測されず技術的には利用可能であるというものであった。また両研究ともに濃縮度増加による TRU 生成低減効果に着目した知見は含まれていない。5wt%を超えるウラン濃縮度を軽水炉の適用する場合の二つの研究例を示したが、濃縮度増加による TRU 生成低減効果を利用する燃料概念は従来知られていない新規な概念となっている。なお現在では 5wt%以上かつ 20wt%以下の濃縮度範囲のウランは HALEU(High Assay Low Enriched Uranium の略)と称されるようになってきている。以上のように HALEU は技術的には利用可能であり、TRU 生成低減燃料に適用することは可能であると考えられた。いっぽうで TRU 生成低減燃料の核的特性は十分な分析がされていなかった課題もあった。

1.3 本研究で取り組んだ研究と得られた成果

このような背景のもと、本研究では、既存の BWR において HALEU 燃料を適用した TRU 生成低減燃料を利用することによる放射性毒性低減と HLW 物量削減の効果を評価するとともに分析を行った。

そのうえで本研究においては下記の研究にとりくんだ。

- 1) TRU 生成低減燃料と可燃性毒物と組み合わせた場合の TRU 核種生成への影響に関する研究[10]
- 2) 放射性毒性と崩壊熱が新燃料ウランと同等水準まで減衰する時間短縮の効果に関する研究[11]
- 3) ^{241}Am を TRU 生成低減燃料での核変換した場合の高レベル放射性廃棄物の低減効果に関する研究[12]

1 番目の研究は従来の TRU 生成低減燃料を用いた研究では可燃性毒物を使用しない条件での評価を行っていた。TRU 生成低減燃料ではウラン濃縮度を増加する一方で取出燃焼度を固定した。このため燃料の持つ反応度が増加するにしたがって運転時の余剰反応度は増加することになるが、原子炉は通常の BWR であるため増えた余剰反応度を十分に抑制できるように可燃性毒物を使用する必要がある。さらに可燃性毒物の添加によって運転時の中性子束が変化して TRU 生成低減効果に影響を与えることが考えられた。場合によっては可燃性毒物の添加によって TRU 生成低減効果が損なわれることもあり得た。そこでウラン濃縮度ごとに運転時の余剰反応度が適切な範囲になるように可燃性毒物量を調整した場合の TRU 生成低減効果を評価した。研究の結果、濃縮度の増加にともなって可燃性毒物の添加量を増やす必要があるが余剰反応度が適切な範囲になる

ように可燃性毒物の添加量を調整可能であることを示した。さらにその場合に中性子束が増大することで TRU 生成低減燃料による TRU 生成低減効果をある程度損なう影響が生じるものとの主要な TRU の生成低減効果は大きくは変化しないことが示された。なお濃縮度の範囲は上記した 2 件の従来研究では 10wt% 以下と 7wt% 以下としていたが、本研究では放射性毒性と崩壊熱による HLW の発生の低減を課題としていることから TRU 生成低減燃料の効果を最大限取りめるよう濃縮度上限を拡張した。具体的な制約条件としては米国の核セキュリティ・核不拡散の観点からの政策があり我が国での利用には制約があり[13]、さらに米国発の技術である軽水炉での 20wt% を超えた利用も困難と考えられたため上限は HALEU 範囲と同じく 20wt% とした。

2 番目の研究では 1 番目の研究結果を踏まえ、可燃性毒物の無い燃料を用いた場合の TRU 生成低減燃料による放射性毒性と崩壊熱が天然ウラン鉱石と同等水準に至る期間の短縮効果を検討した。高レベル放射性廃棄物に含まれる放射性毒性と崩壊熱が埋設処分後に管理の不要な水準まで低下する時間が有意に短縮されるならば TRU 生成低減燃料を利用することで使用済燃料問題の緩和の一助となりうる。このことから放射性毒性と崩壊熱が天然ウラン鉱石レベルまで減衰するのに要する期間を評価した。この検討によって減衰時間は放射性毒性と崩壊熱ではやや効果が異なるが 1~10 万年から数千年までの短縮効果が得られることがわかっている。

3 番目の研究では、2 番目の TRU 生成低減燃料を用いた研究から HLW 物量が決まる再処理時点での崩壊熱については主成分の ^{241}Am の崩壊熱が制約となって放射性廃棄物の量を大きく低減できないことが明らかとなっていた。このことは再処理後の TRU 中の崩壊熱の ^{241}Am について第 2 の成分の ^{244}Cm は濃縮度増加による減少率は ^{241}Am の数倍以上であることから ^{241}Am を狙い撃ちにして減少できれば更に放射性廃棄物の全体量を減らすことが可能になると考えられた。そこで ^{241}Am が TRU 生成低減燃料を使用して BWR 内で核変換することにより HLW 物量をどの程度削減可能か検討した。軽水炉での ^{241}Am 核変換自体は従来も研究例があり[14,15]、核変換自体は十分可能であることがわかっているものの ^{241}Am の核変換で生じる ^{244}Cm の崩壊熱があり、合計の崩壊熱が減るのか増えるのかが評価されていないという課題が残っていた。本研究の結果、 ^{241}Am の核変換を TRU 生成低減燃料でおこなうと濃縮度が現在の軽水炉で使用されるのと同程度の濃縮度 3.8wt% では単位重量あたりの崩壊熱が ^{241}Am の 25 倍ほど大きい ^{244}Cm が生成されると核変換によって ^{241}Am と ^{244}Cm の合計の崩壊熱は大幅に増加してしまうことが明らかとなった。濃縮度を増加させていくと TRU 生成低減燃料の特性から熱中性子束が減少して ^{241}Am から ^{244}Cm への核変換量が減少する。この結果、 ^{241}Am と ^{244}Cm の合計の崩壊熱の増大量は少なくなつて

いき、濃縮度 7.5wt%を超えたところで合計の崩壊熱は核変換なしの場合より減少していく結果となった。この結果は TRU 生成低減燃料と ^{241}Am 核変換を組み合わせることで HLW 物量を減らさせることを意味しており、従来知られていなかった新しい知見である。

1.4 本論文の構成

本研究で取り組んだ 3 件の研究は従来から用いられている BWR 燃料と原子炉をそのまま使い、ウラン濃縮度のみを増加させるだけで高速炉による核変換システムを導入することなく放射性毒性と崩壊熱の及ぼす影響を低減できることを示しており、貴重な成果となっている。

2 章に可燃性毒物と TRU 生成低減燃料を組み合わせた場合の TRU 生成低減効果を、3 章に TRU 生成低減燃料による放射性毒性と崩壊熱の減衰時間短縮効果を、4 章に ^{241}Am 核変換した場合の高レベル放射性廃棄物の低減効果を 5 章に結論を述べる。

1.5 本章の参考文献

- [1] 資源エネルギー調査会原子力小委員会,核燃料サイクル・最終処分に関する現状と課題, 平成 26 年 9 月(2014)
- [2] 大井川宏之,"高 レベル放射性廃棄物の核変換技術の現状と展望" *Radioisotopes* 61.11 (2012): 571-586.
- [3] 安念潤司, "高速増殖炉 「もんじゅ」 の来歴 (2)", Chuo University (2017).
- [4] 平岩宏司, 他,"環境負荷低減軽水炉を用いた核燃料サイクル概念構築
(1)全体計画と 2016 年度成果概要"日本原子力学会の秋の大会 予稿集 (2017) 2M15
- [5] 桜井俊吾, 他,"環境負荷低減軽水炉を用いた核燃料サイクル概念構築
(7)-FORSETITM型リサイクルの環境負荷低減効果評価-” 日本原子力学会
秋の大会 予稿集 (2018) 2L04
- [6] 平岩宏司, 他,"環境負荷低減軽水炉を用いた核燃料サイクル概念構築
(8)- FORSETITM概念適用による超ウラン元素生成低減と崩壊熱低減効果にす
る検討-” 日本原子力学会の秋の大会 予稿集 (2018) 2H08
- [7] 和田怜志, 他,"環境負荷低減軽水炉を用いた核燃料サイクル概念構築
(9) FORSETITM 概念適用による冷却期間がサイクル諸量へ与える影響評価”
日本原子力学会の秋の大会 予稿集 (2018) 2H09
- [8] Hiraiwa, Kouji, Tatsuhiro Yoshizu, and Hiromi Maruyama. Development of High Burnup Fuel for Next Generation Light Water Reactor (Total Performance of 5wt%-10wt% Enrichment High Burnup Fuel). No. IAEA-TECDOC-1918 (SUPPLEMENTARY FILES). 2020.
- [9] Burns, Joseph R., et al. "Reactor and fuel cycle performance of light water reactor fuel with 235U enrichments above 5%." *Annals of Nuclear Energy* 142 (2020): 107423.
- [10] Hiraiwa, Kouji, et al. "TRU generation suppression by HALEU fuel with fixed discharge burnup using burnable poison." *The Proceedings of the International Conference on Nuclear Engineering (ICONE) 2023.30. The Japan Society of Mechanical Engineers*, 2023.
- [11] HIRAIWA, Kouji, et al. "Fade-out time shortening on radiotoxicity and decay heat using TRU generation reduction fuel." *Mechanical Engineering Journal* 11.2 (2024): 23-00381.
- [12] HIRAIWA, Kouji, et al. "Impact on the amount of high-level waste of minor actinide in combination with americium transmutation and TRU generation reduction UO2 fuel in BWR" *Annals of Nuclear Energy* 216 (2025): 111308.
- [13] 宇根崎博信. "試験研究炉の低濃縮化に関する取り組みと国際動向."

日本原子力学会誌 ATOMOΣ 65.10 (2023): 608-612.

- [14] Tran, V. T., et al. "Study on transmutation of minor actinides as burnable poison in VVER-1000 fuel assembly." *Science and Technology of Nuclear Installations* 2019 (2019): 1-12.
- [15] Shelley, A., and Mahmud Hasan Ovi. "Use of americium as a burnable absorber for VVER-1200 reactor." *Nuclear Engineering and Technology* 53.8 (2021): 2454-2463.

2 可燃性毒物と組み合わせた場合の TRU 生成低減効果

2.1 本章の背景

使用済燃料 (SNF) と高レベル放射性廃棄物 (HLW) は、原子炉の運転により発生する主要な放射性廃棄物である。SNF にはウラン (U)、プルトニウム (Pu)、マイナーアクチニド (MA)、核分裂生成物 (FP) が含まれ、HLW には MA と FP が含まれる。またアクチニドのネプツニウム (Np) も HLW には含まれる。これらの HLW は、放射性毒性と呼ばれる内部被ばくリスクと、廃棄物を埋設処分する際に必要となる処分場の必要面積を確保しなければならないなどの環境負荷がある。

このような環境負荷を低減するため放射性核種の分離・変換技術によって HLW の放射性毒性低減や廃棄物減容を目指す研究が各国で数多く行われている [3]。しかし、これらの研究は、高速炉などの核変換システムの実用化を前提としてきたが、高速炉の実用化計画は未だ決定されていない。

これに対し、高速炉の実用化が遅れても環境影響を抑制できるように SNF 段階で TRU 核種の発生を抑制できる軽水炉燃料の研究が進められている。このような研究の一例として、燃料構造は既存の BWR と同じ構造としたまま、燃料の ^{235}U 濃縮度のみを 5wt%を超える燃料を用いた研究がある[4]。この研究は可燃性毒物を考慮しない評価であったが、取出燃焼度一定の条件で ^{235}U 濃縮度を増加することで使用済燃料に含まれる放射性毒性は ^{235}U 濃縮度増加とともにあって大きく減少することを示した。しかし、通常は原子炉の運転に使用する BWR 燃料集合体では可燃性毒物入り燃料棒が含まれることから可燃性毒物の存在が放射性毒性に与える影響が明らかになっていないという課題が残っていた。一連の TRU 生成低減燃料の研究[5][6]では、 ^{235}U 濃縮度と TRU 生成量、放射性毒性との関係が示されているが、可燃性毒物の影響については考慮されていなかった。そこで、本研究では、TRU 生成低減燃料に可燃性毒物を添加した場合の放射性毒性低減効果への影響を明らかにすることを目的とした。研究では、まず始めに可燃性毒物を添加した TRU 生成低減燃料の無限増倍率を繰り返し評価し、適切な範囲の余剰反応度になるような可燃性毒物の量を決定した。次に、軽水炉燃料における放射性毒性が大きい TRU 核種を選択し、各核種の重量割合の可燃性毒物添加による影響を評価した。

以下、2.2 節では TRU 生成低減燃料の仕様を示すとともに余剰反応度を適切な範囲に設定できる可燃性毒物量の設定結果について、2.3 節では可燃性毒物であるガドリニウム同位体核種の燃焼変化について、2.4 節では TRU 生成低減燃料に可燃性毒物を添加した場合の生成された TRU 核種濃度の濃縮度依存性について述べる。2.5 節ではまとめを述べる。

2.2 燃料集合体内での可燃性毒物棒仕様

本研究では、可燃性毒物として天然組成の酸化ガドリニウム（ガドリニア）を用いた。TRU 生成低減燃料の集合体の寸法諸元を表に示す。燃焼評価の解析条件を表、表に示す。燃料集合体の構造はいわゆる 9x9 燃料であり既存の BWR プラントでそのまま使用可能な仕様となっている。

TRU 生成低減燃料の ^{235}U 濃縮度の上限は、将来、商業炉で使用されることを想定し、HALEU の上限である 20wt%とした。基準とする下限の濃縮度は既存の軽水炉で使用されている 3.8wt%とした。

運転期間は 15 ヶ月、炉心サイクル燃焼度は 12GWd/t とした。このケースでは燃料交換バッチ数は 3.75 である。燃料の燃焼解析では定格出力運転を模擬する。集合体内の平均ボイド率は 40%、減速材軽水の温度は 286°C に設定した。チャンネル外およびウォータロッド内のボイド率はゼロである。

使用された燃焼解析コードは TGBLA[7]である。これは BWR 燃料中の可燃性毒物を有する燃料の解析において豊富な経験があるコードである。このコードの重核種の燃焼チェーンは ^{228}Th から ^{244}Cm までの 25 の核種を含んでいる。本研究で燃焼特性を評価し、そのうち 6 つの核種を選択して炉停止直後の生成量を比較検討した。選択した TRU 核種を表に示す。6 つの TRU 核種を選択した理由は、2.4 節で説明する。

炉心の余剰反応度は無限増倍率を用いて余剰反応度を繰り返し計算して求めた。余剰反応度は無限増倍率を用いて線形反応度モデル[8]により以下の式により求めた。

$$k_{\text{ex}}(E) = \frac{k^{\infty}(0+E) + k^{\infty}(12+E) + k^{\infty}(24+E) + 0.75 \times k^{\infty}(36+E)}{3.75} - k_{\text{bias}} \quad (1)$$

式 (1) によると、サイクル燃焼度 E (単位 : GWd/t) における過剰反応度 $k_{\text{ex}}(E)$ は、無限増倍率 $k^{\infty}(E)$ から求められ、 k_{bias} は固有値バイアスであり、解析では一定値であり、ここでは 1.04 を使用した。

その結果、燃料交換バッチ数は 3.75 となり、12GWd/t の運転サイクル燃焼度、45GWd/t の取出燃焼度、15 ヶ月の定格出力運転という運転条件を満たす。

図 2-1 に可燃性毒物含有燃料棒の本数と配置を、表に可燃性毒物含有燃料棒の可燃性毒物重量割合を示す。これらは、運転サイクルの終了時を除き、運転サイクル全体で余剰反応度が $1\% \Delta k$ から $3\% \Delta k$ の範囲になるように、可燃性毒物含有燃料棒の本数と可燃性毒物濃度を変化させた反復解析により得られたものである。ここで UO_2 燃料棒と可燃性毒物含有燃料棒の ^{235}U 濃縮度はすべて同じと仮定した。また可燃性毒物含有燃料棒のガドリニア濃度もすべて同じである。

可燃性毒物含有燃料棒の位置は、以下のすべてのルールを満たすように決定した。

ルール 1：可燃性毒物を含む燃料棒は隣接しない位置に配置すること。

ただし以下のルール 2 および 3 が満たされない場合は、隣接して配置してもよい。

ルール 2：2 辺が水の燃料棒と隣接しない位置に配置すること。

ルール 3 が満たされない場合は、2 辺が水の燃料棒と隣接して配置してもよい。

ルール 3：集合体の最外周に面する位置に配置しない。

これが不可能な場合は、外枠への配置が許可される。

図 2-2 は、可燃性毒物含有燃料棒におけるガドリニアの濃度とその総量、および初期 ^{235}U 濃縮度との関係を示している。ガドリニアの濃度（点線）は濃縮度とともに増加し濃縮度 7.5 wt%以上では飽和する。これは可燃性毒物含有燃料棒が隣接するにしたがって可燃性毒物棒の 1 本あたりの反応度価値が減少していくためである。一方、ガドリニア総量（実線）は濃縮度に比例して増加する。

図 2-3 に無限増倍率の燃焼度依存性を示す。濃縮度が高くなるにつれ、無限増倍率のピーク値は減少してくる。また無限増倍率が最大となる燃焼度は、濃縮度 5wt%以上では 12GWd/t を超えるようになる。5wt%以上の濃縮度における可燃性毒物濃度の変化挙動は次節で詳しく説明する。

炉心の余剰反応度は図 2-4 に示されている。炉心の余剰反応度は、おおむね運転サイクル中に $3\%\Delta k$ を超えない範囲でほぼ一定に推移するように設定した。濃縮度は 5wt%以上の場合、余剰反応度はサイクル末期において正值となり、ゼロにはならないが、余剰反応度の平坦さは維持されている。

表 2-1 TRU 生成低減燃料の仕様

Item	Value
Fuel Rod Configuration	9×9 [1]
Number of Fuel Rod	74 [1]
Fuel Active Length(cm)	371 [1]
Cladding Diameter(cm)	1.12 [1]
Water Rod Diameter(cm)	2.49 [1]
Fuel Pellet Diameter(cm)	0.96 [1]
1/2 Fuel Bundle Gap(cm)	0.79 [1] [2]
Channel Box Material	Zircaloy [1]
Cladding Material	Zircaloy [1]
Number of Water Rod	2 [1]
Fuel Bundle Pitch (cm)	15.5 [2]
Fuel Rod Pitch (cm)	1.44 [1]
Cladding Thickness (cm)	0.071 [1]
Chanel Inside Width (cm)	13.41 [1]

表 2-2 燃焼解析の条件

Item	Value
Void fraction in Chanel	0.4
Void fraction in Water Rod	0.0
Void fraction outside Fuel Bundle	0.0
Temperature of Moderator (°C)	286
Power density (kW/l)	50
Operation cycle Length (month)	15
Operation cycle exposure (GWd/t)	12
Discharge exposure (GWd/t)	45
Bundle Average ^{235}U enrichment (wt%)	3.8,5.0,7.5,10.0,15.0,20.0
Refueling batch size	3.75

表 2-3 本研究で検討する TRU 核種

Nuclide	Isotopes
Pu	^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu
MA	^{241}Am , ^{244}Cm

表 2-4 可燃性毒物棒の本数およびガドリニアの重量割合

^{235}U wt%	Number of Poison rod <i>A</i>	Concentration of Gd_2O_3 (wt%) to IHM <i>B</i>	Gd_2O_3 content <i>AxB</i>
3.8	15	3.5	53
5.0	17	7.5	128
7.5	19	12.5	238
10.0	25	12.5	313
15.0	38	12.5	475
20.0	45	13.5	608

U-235 Enrichment :3.8wt%

1	2	3	4	5	6	7	8	9
1								
2			G				G	
3	G	G	G	G			G	
4	G		W W	G				
5			W W W					
6	G	W W	G					
7	G	G				G		
8	G			G				
9								

U-235 Enrichment :5.0wt%

1	2	3	4	5	6	7	8	9
1								
2			G	G			G	
3	G	G	G	G			G	
4	G		W W	G				
5			W W W					
6	G	W W	G	G				
7	G	G	G			G		
8	G			G				
9								

U-235 Enrichment :7.5wt%

1	2	3	4	5	6	7	8	9
1								
2			G	G				G
3	G	G	G	G			G	G
4	G		W W	G				
5			W W W					
6	G	W W	G	G				
7	G	G	G	G		G	G	G
8	G			G			G	G
9								

U-235 Enrichment :10.0wt%

1	2	3	4	5	6	7	8	9
1								
2		G		G	G			
3	G	G	G	G			G	
4	G		W W	G	G			
5		G	W W W	W	G			
6	G	G	W W		G	G		
7	G		G	G	G			
8	G	G		G		G		
9								

U-235 Enrichment :15.0wt%

1	2	3	4	5	6	7	8	9
1								
2			G	G	G	G	G	
3	G	G	G	G	G	G	G	
4	G	G		W W	G	G		
5	G	G	W W W	W	G	G		
6	G	G	W W	G	G	G		
7	G	G	G	G	G		G	
8	G	G	G	G	G			
9								

U-235 Enrichment :20.0wt%

1	2	3	4	5	6	7	8	9
1								
2				G				
3				G	G	G	G	
4				G	G	G	G	G
5				G	G	W W	G	G
6				G	G	W W W	G	G
7				G	G	W W	G	G
8				G	G	G	G	G
9					G	G		

□UO₂ Rod [G] Poison (Gd₂O₃) Rod [W] Warer Rod Area

図 2-1 可燃性毒物棒および通常燃料棒の集合体内位置

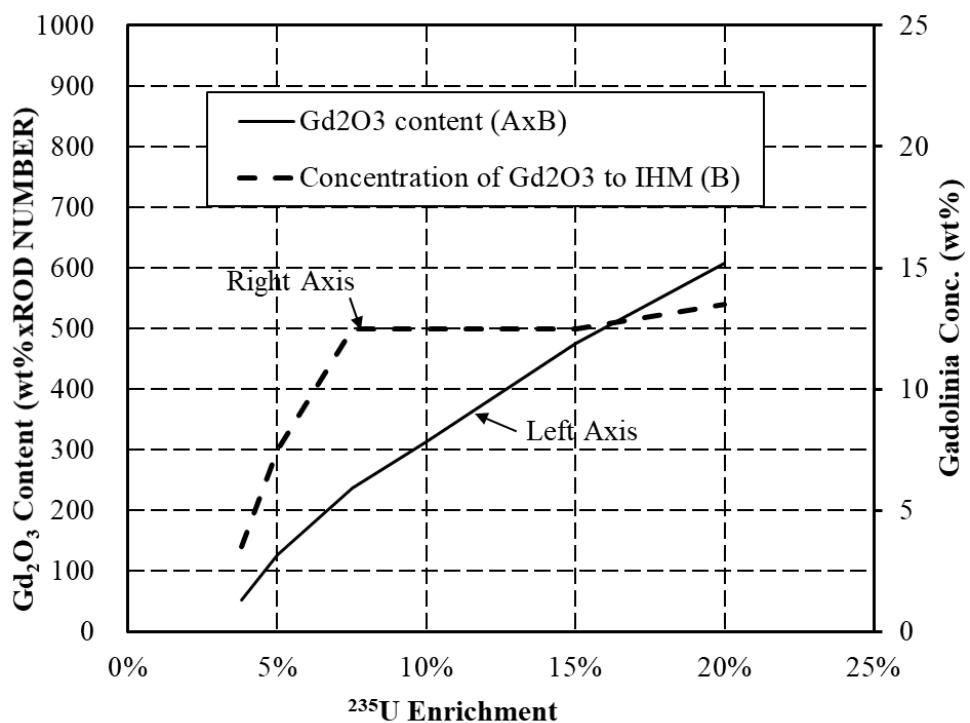


図 2-2 燃料集合体のガドリニア濃度とガドリニアの総量

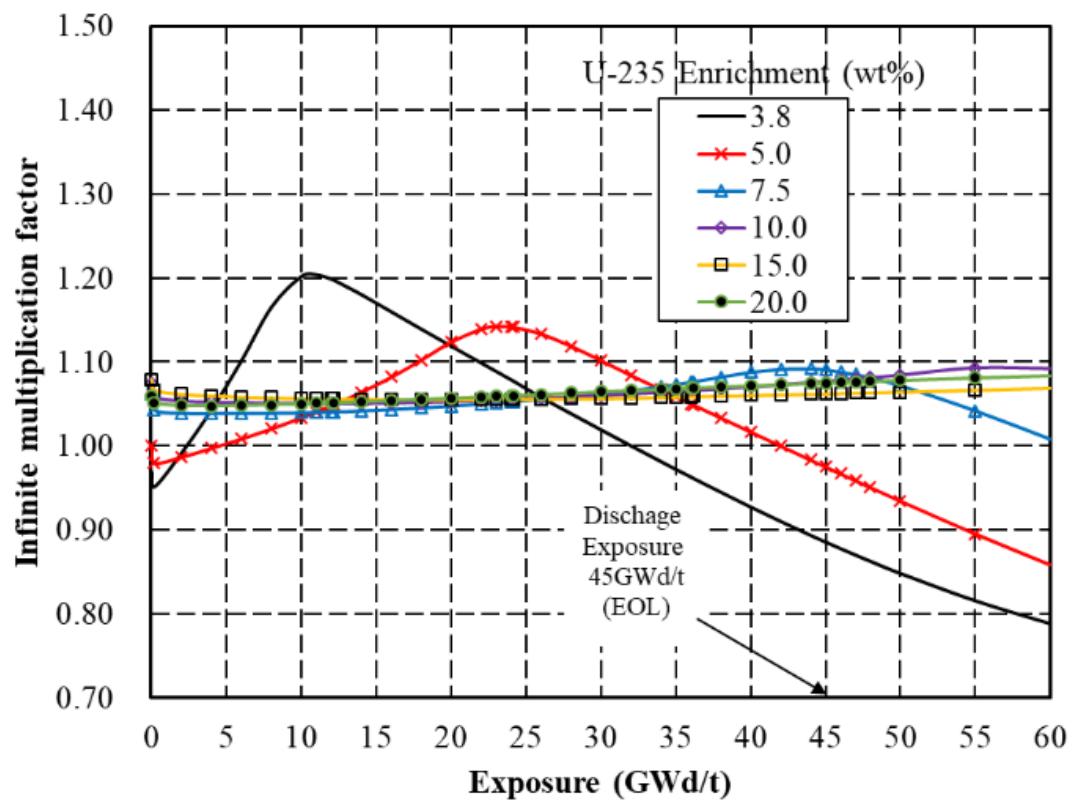


図 2-3 ガドリニアを添加した場合の燃料集合体無限倍率

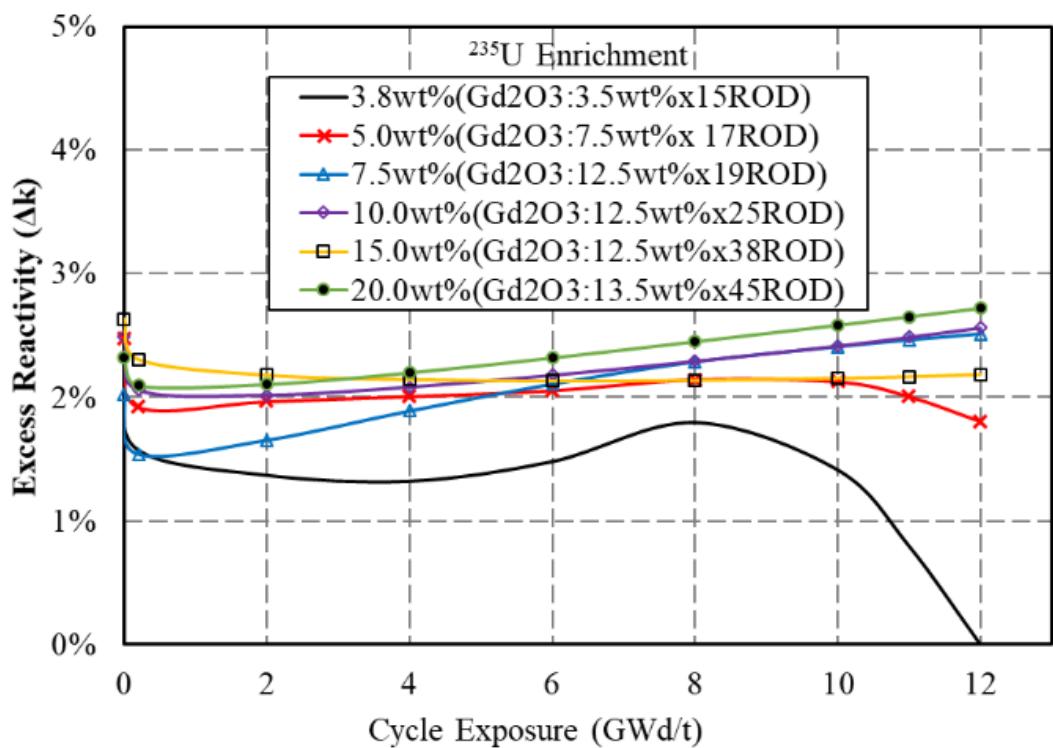


図 2-4 炉心の余剰反応度

2.3 燃焼にともなうガドリニア濃度変化

ガドリニウム同位体の重量割合の燃焼度変化を図2-5,図2-6に示す。前者は濃縮度が3.8wt%の場合の結果であり、後者は濃縮度が20wt%の場合の結果である。可燃性毒物として使用されるガドリニウムには、 ^{154}Gd から ^{160}Gd までの6つの同位体が存在し、その同位体重量比は図2-5中の枠内に示している。良く知られているように、ガドリニウム同位体のうち熱中性子断面積が最も大きい2つの核種は、 ^{155}Gd と ^{157}Gd である。そこで燃焼中の中性子吸収の変化を調べるために、この2つの核種の結果を図2-7、図2-8に示す。濃縮度3.8wt%の場合、1サイクルの燃焼度である12GWd/t前後で ^{155}Gd と ^{157}Gd の濃度はほぼゼロとなる。また濃縮度20wt%の場合には、2つの核種の濃度は燃焼の増加に伴いほぼ直線的に減少する。これらの2つの核種は燃焼によって直線的に減少し、その燃焼度に対する傾きは ^{235}U の濃縮度にほぼ影響されない。また2つのガドリニア核種の残留量は、それらの強い中性子吸収効果により熱中性子束に影響を与える。これらの結果は、図2-9と図2-10に示す。

図2-9は未燃焼時（BOLと表記）の結果であり、可燃性毒物の存在により熱中性子束が10~20%増加している。 ^{235}U の濃縮度が高まるにつれ、中性子束は一様に減少する。燃焼解析は一定出力密度（50kW/l）で行われ、濃縮度と可燃性毒物の増加があっても核分裂密度が一定になるように中性子束は自動的に調整されている。

図2-10は取出時（EOLと表記）の結果である。図から ^{235}U の濃縮度が高くなるほど残留する可燃性毒物が増え、その結果、中性子束がわずかに増加することがわかる。ただし残留した可燃性毒物による中性子束の増加の割合は可燃性毒物が無い場合に比べて最大でも20%程度である。

以上のことから、可燃性毒物の追加による熱中性子束の増加はBOLとEOLでせいぜい20%の範囲である。

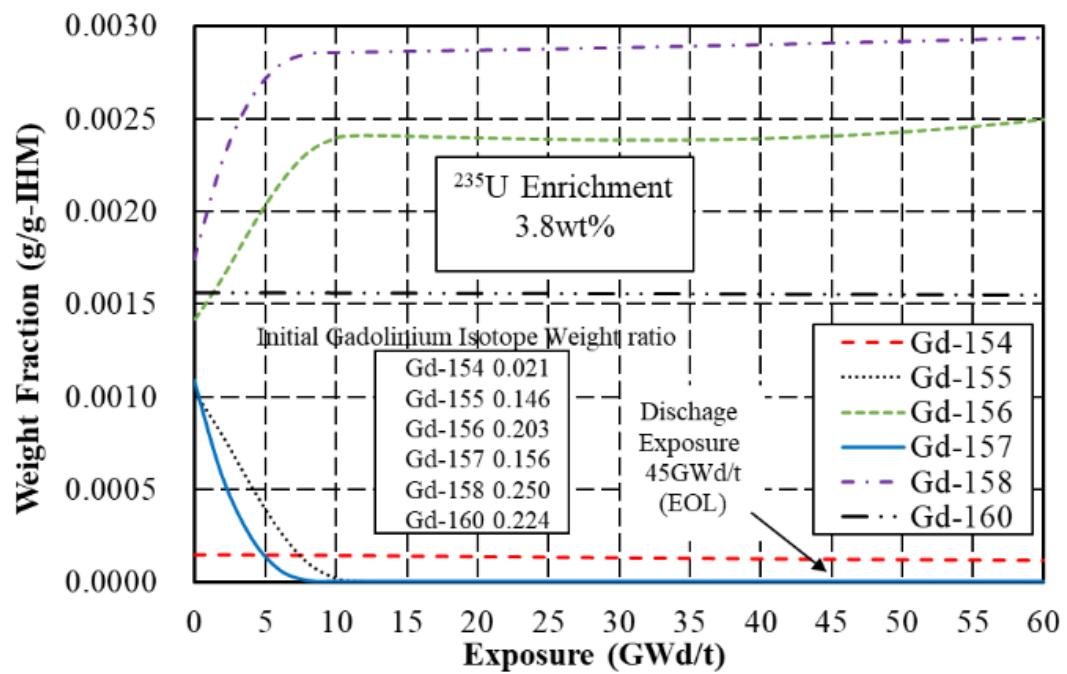


図 2-5 ガドリニウム同位体の燃焼変化(235U 濃縮度 3.8wt%)

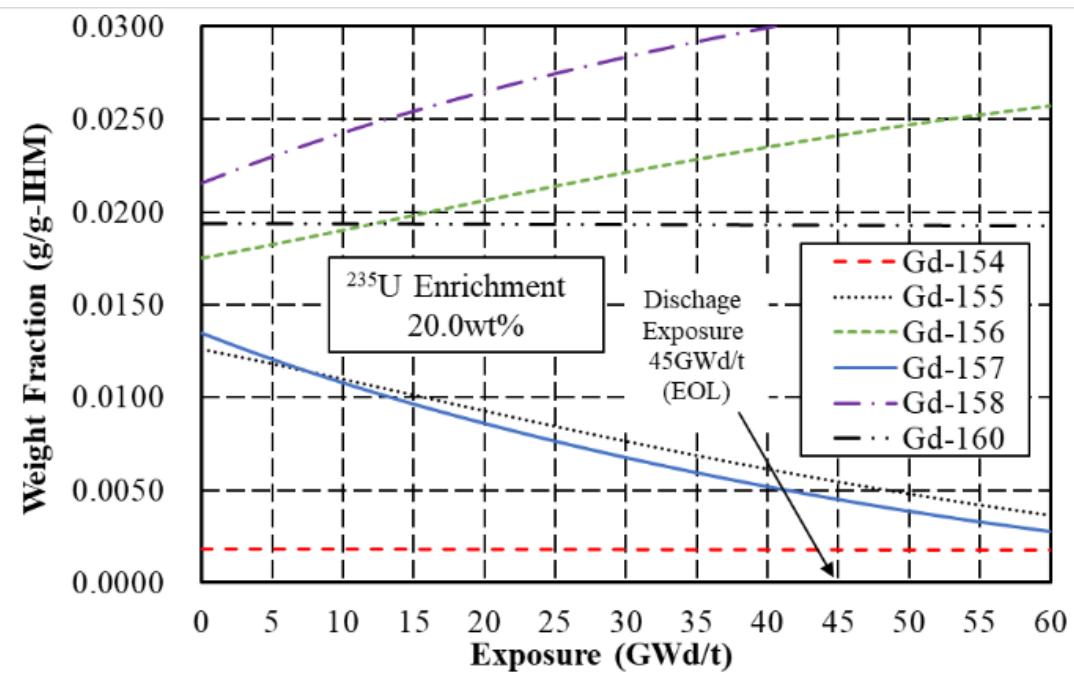


図 2-6 ガドリニウム同位体の燃焼変化(^{235}U 濃縮度 20wt%)

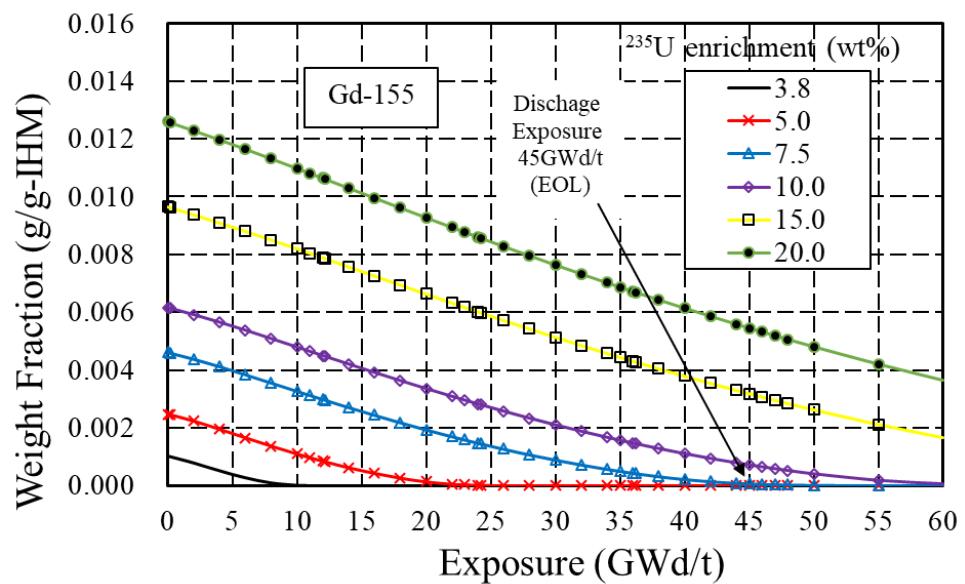


図 2-7 ^{155}Gd の燃焼変化

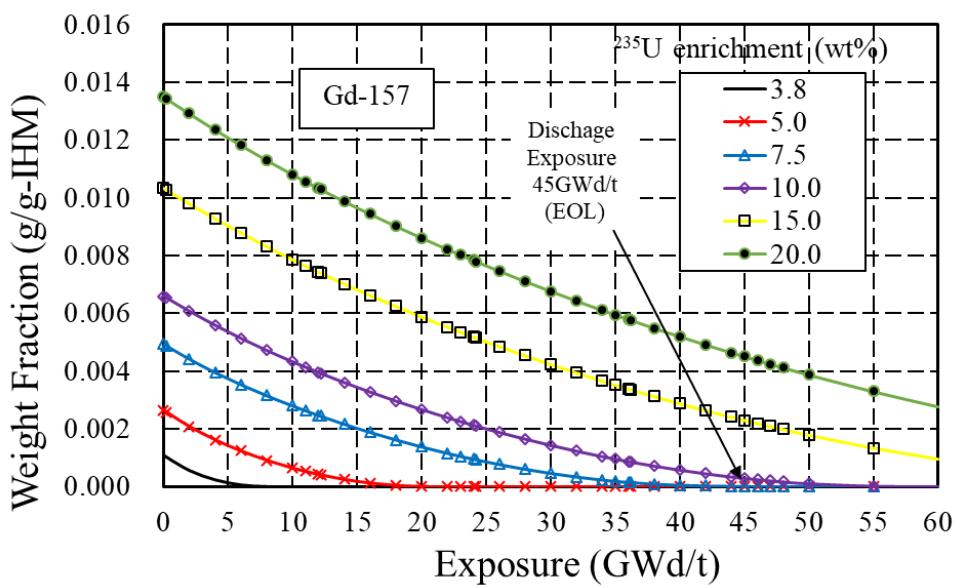


図 2-8 ^{157}Gd の燃焼変化

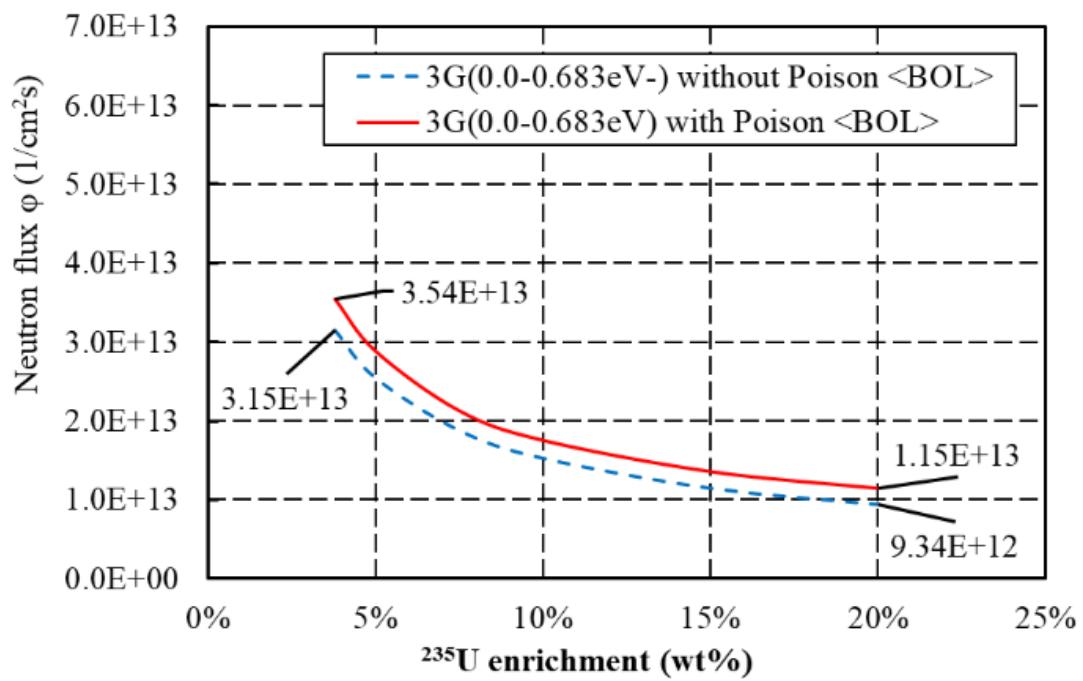


図 2-9 未燃焼時の熱中性子束

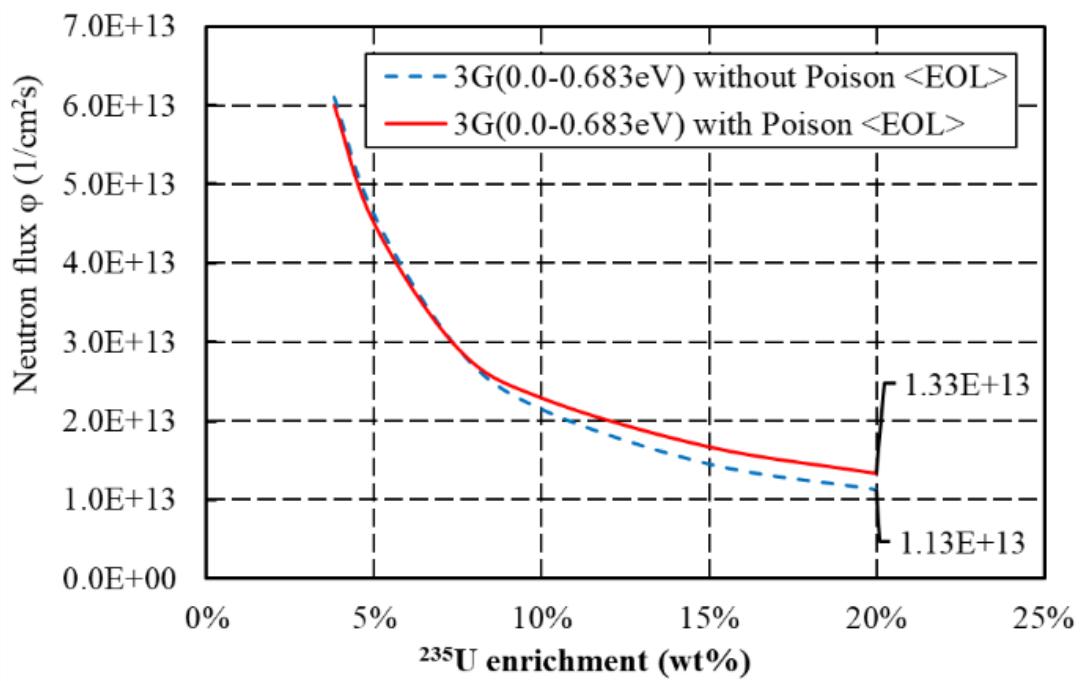


図 2-10 取出時の熱中性子束

2.4 使用済燃料中の TRU 核種濃度

以下では、放射性毒性値が大きいと考えられる 6 つの核種について、45GWd/t における TRU の重量割合への影響を検討する。

6 つの核種は PWR 燃料を燃焼後 5 年間の冷却後に放射性毒性を評価した研究 [9] および PWR と BWR の燃焼解析による評価 [10] 結果をもとに決定した。これらの文献によると、表に示す 6 核種の TRU の放射性毒性（娘核種による毒性を含む）は天然ウランの放射性毒性 (10^5 Sv/t-IHM) よりも大きく、その他の重核種の放射性毒性は天然ウランの放射性毒性と同等か、それ以下となっている。さらに、6 つの TRU の中で最も放射性毒性の低い核種は ^{239}Pu であり、その放射性毒性は 10^7 Sv/t-IHM 以上である。7 番目に放射性毒性の高い TRU 核種は ^{243}Am であり、その放射性毒性は 10^6 Sv/t-IHM 未満である。また ^{239}Pu と ^{243}Am の放射性毒性には 10 倍以上の差があるため 2 核種の順位は変化しないとして 6 つの TRU 核種を選択した。

図 2-11 と図 2-12 は燃焼度 45GWd/t における可燃性毒物添加の有無による各 TRU 核種の残留重量割合を示している。両図の相対的な差異を図 2-13 に示す。この図で示された差異は濃縮度が 3.8 wt% の場合、可燃性毒物の影響は無視できるほど少ない。濃縮度が増加するにしたがって差異は増加するがその値は ^{239}Pu を除いて 20% 以内である。 ^{239}Pu では可燃性毒物の添加によって差異は大きくなり最大で 50% を超える。

次に、可燃性毒物の添加の有無の違いによる TRU 生成低減燃料中の TRU 核種に対する ^{235}U の濃縮度増加の影響を調べた。図 2-14 は、可燃性毒物を添加しない 3.8 wt% の場合を基準とした場合の残留重量割合の相対変化を示し、図 2-15 は可燃性毒物を添加した場合を示す。濃縮度を 3.8 wt% を基準として 5.0 wt% から 20 wt% に増加させた場合の 6 つの TRU 核種の重量割合の変化率は、図 2-14、図 2-15 ともに ^{238}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Pu については約 60% の減少、 ^{241}Am についてはより小さな減少、 ^{244}Cm についてはほぼ 100% に近い減少である。 ^{239}Pu については約 40% の増加である。ただし ^{239}Pu のみは濃縮度 15 wt% では増加率は約 80% まで増加している。以上のように選択した TRU 核種の重量割合の相対的变化は、可燃性毒物の有無に関わらず、 ^{239}Pu を除いてほぼ同じである。 ^{239}Pu の放射性毒性は 6 つの核種の中で最も小さく、TRU 全体の放射性毒性は ^{238}Pu 、 ^{241}Pu 、 ^{244}Cm 、 ^{241}Am の合計値によって支配されている。つまり 3.8 wt% を基準として濃縮度を増加した場合の TRU 生成低減燃料における炉停止直後の TRU 核種個々および合計の放射性毒性の減少率は可燃性毒物の有無により大きく影響されない。

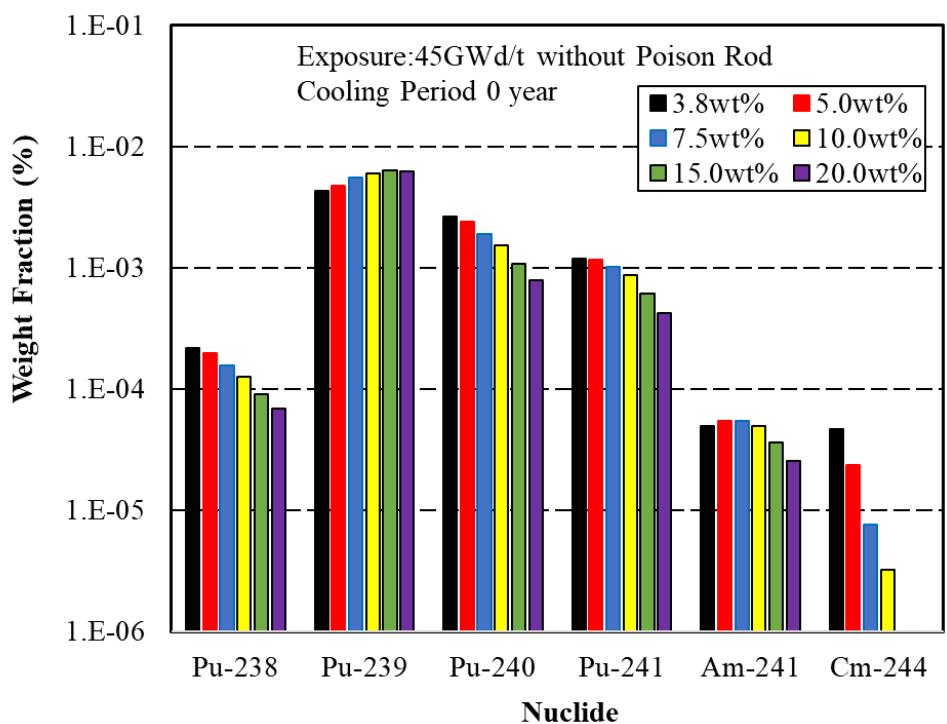


図 2-11 可燃性毒物の無い場合の残留 TRU 核種重量割合

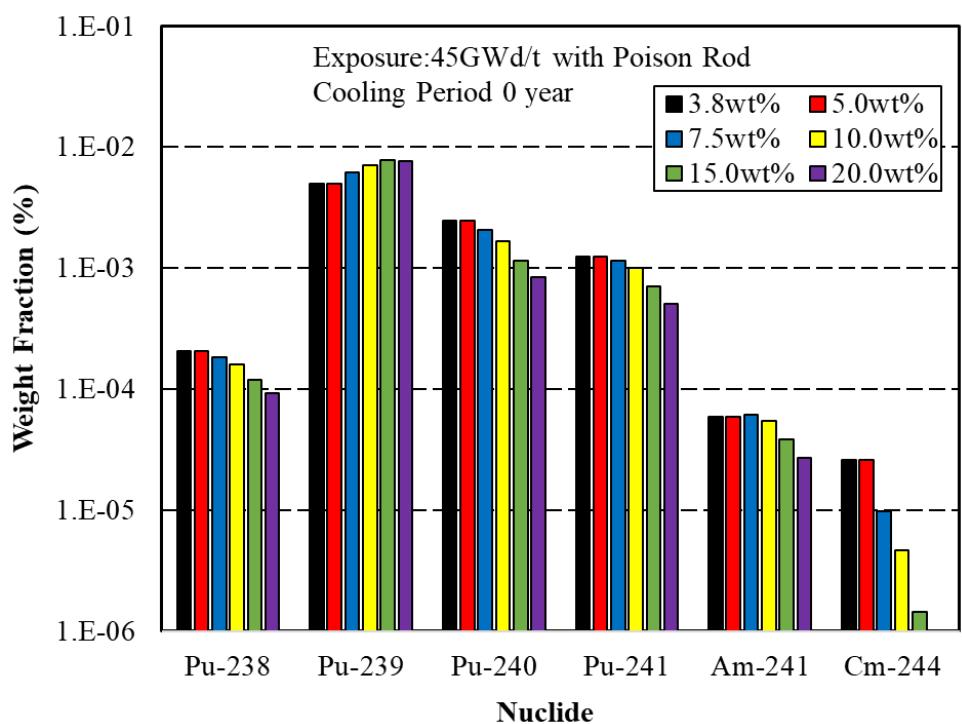


図 2-12 可燃性毒物がある場合の残留 TRU 核種重量割合

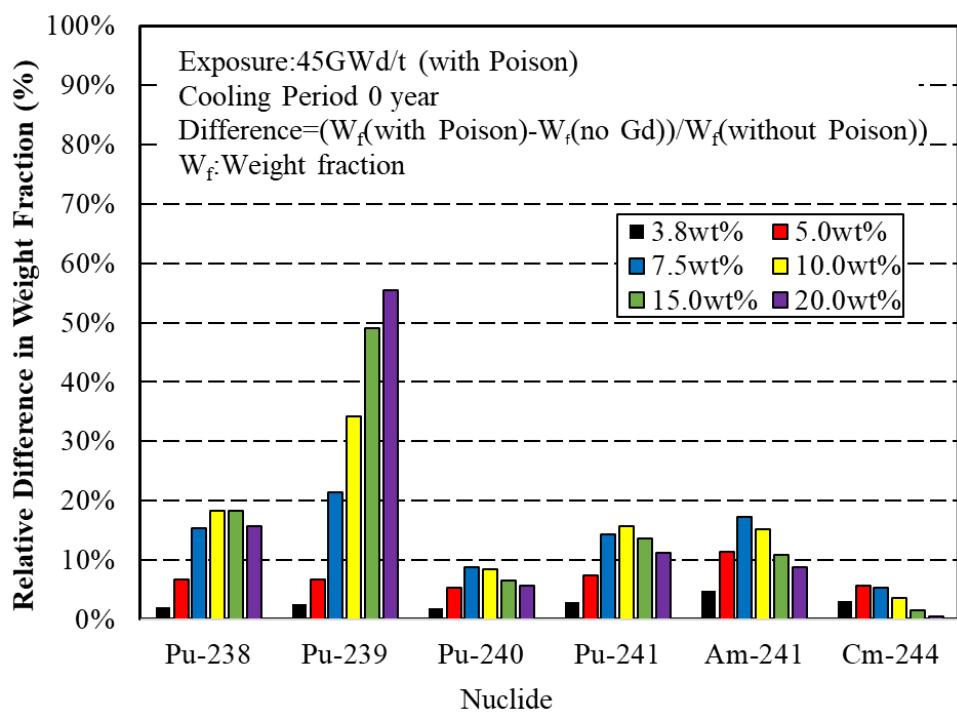


図 2-13 TRU 核種重量割合の相対変化率

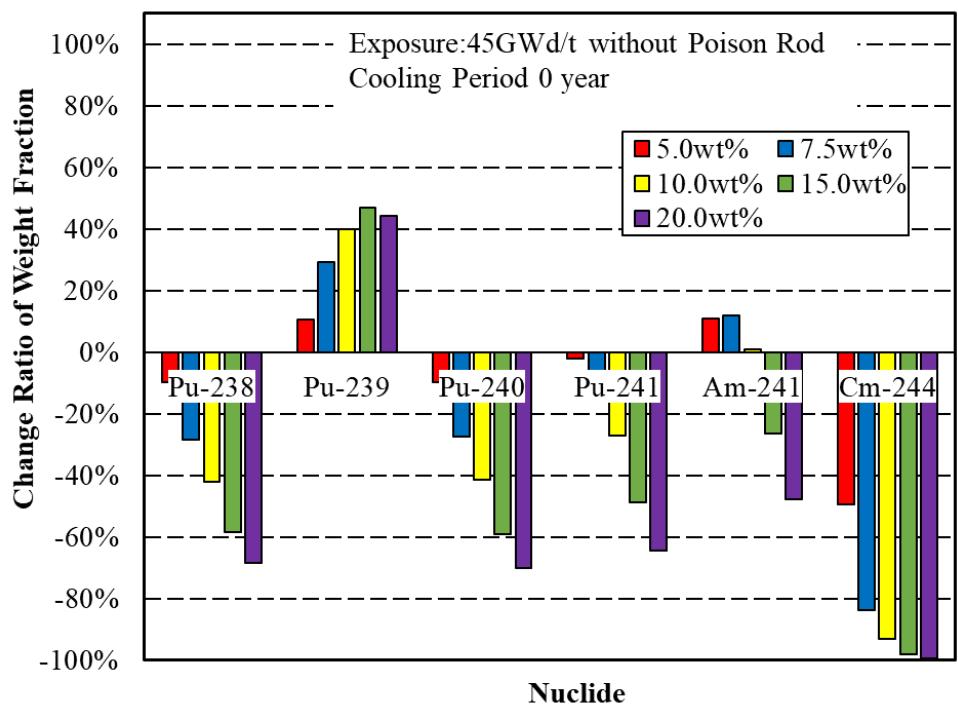


図 2-14 TRU 核種相対重量割合の ^{235}U 濃縮度依存性(可燃性毒物なし)

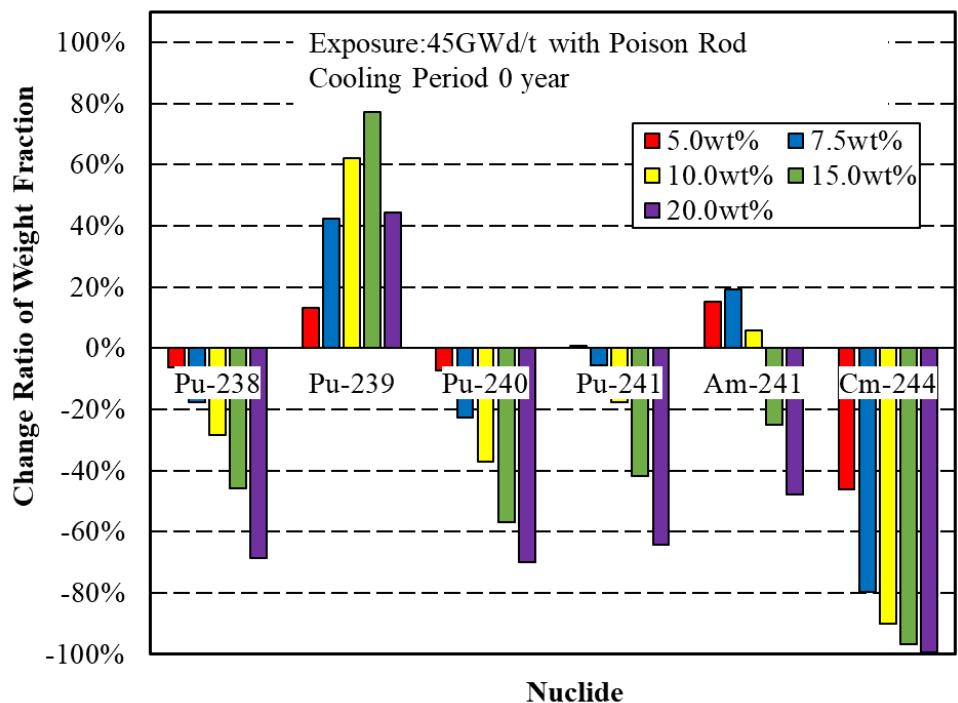


図 2-15 TRU 核種相対重量割合の ^{235}U 濃縮度依存性(可燃性毒物あり)

2.5 本章のまとめ

^{235}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ることを示した。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については、 ^{235}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、中性子吸收材として作用する ^{155}Gd と ^{157}Gd の残留量は、 ^{235}U の濃縮度が 3.8 wt%を超えると増加していく。可燃性毒物の添加により、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。

濃縮度を 3.8 wt%を基準として 5.0 wt%から 20 wt%に増加させた場合の 6 つの TRU 核種の重量割合の相対的变化は、可燃性毒物の有無に関わらず、 ^{239}Pu を除いてほぼ同じとなる。 ^{239}Pu の放射性毒性は 6 つの核種の中で最も小さく、TRU 全体の放射性毒性は ^{238}Pu 、 ^{241}Pu 、 ^{244}Cm 、 ^{241}Am の合計値によって支配されている。したがって、3.8 wt%を基準として濃縮度を増加した場合の TRU 生成低減燃料における炉停止直後の TRU 核種個々および合計の放射性毒性の減少率は可燃性毒物の有無により大きく影響されない。

2.6 本章の参考文献

- [1] 9x9 Fuel Bundle for Boiling Water Reactor, Toshiba Licensing Report TLR057 Rev.2 (1994) [in Japanese]
- [2] Fuel Lattice Geometry for Boiling Water Reactor, Toshiba Licensing Report TLR056 Rev.0 (1998) [in Japanese]
- [3] Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Eleventh Information Exchange Meeting San Francisco, California, USA, OECD NEA2010
- [4] Sakurai, S. Yoshioka, K. Hiraiwa, K. et al., "Concept of a nuclear fuel cycle using an environmental load-reducing light-water reactor (7)- The environmental load reduction effect of FORSETITM-", J At. Energy Soc. Jpn., Fall meeting 2L04 (2018) [in Japanese]
- [5] Hiraiwa, K. Kimura, R. Wada, S. et al., "Concept of a Nuclear Fuel Cycle Using an Environmental Load-Reducing Light-Water Reactor (8) Reduction of TRU Generation and Decay Heat Obtained by FORSETITM Fuel Design Concept" J At Energy Soc. Jpn., Spring meeting 2H08 (2020) [in Japanese]
- [6] Wada, Satoshi, et al. "Fuel-Cycle Scenario to Reduce Radioactive Waste from Light-Water Reactor." EPJ Web of Conferences. Vol. 247. EDP Sciences, 2021.
- [7] Method of BWR lattice nuclear characteristics, Toshiba Licensing Report TLR006 Rev.1 (2008) [in Japanese]
- [8] Parks, G. T. "A piecewise linear reactivity fuel-cycle model." Annals of Nuclear Energy 16.8 (1989): 417-422.
- [9] Nishihara, K. "Data for Estimating Potential Radiotoxicity of Spent Nuclear Fuel", Tokai-mura (Japan): Japan Atomic Energy Agency; (JAEA-Data/Code 2010-012) [in Japanese]
- [10] Ando, Y. Takano, H." Evaluation of composition of nuclide from LWR spent nuclear fuel", Japan Atomic Energy Research Institute; Tokaimura (Japan);(JAERI-Research 99-004) (1999) [in Japanese]

3 放射性毒性と崩壊熱が天然ウラン鉱石レベルに減衰する時間の短縮

3.1 本章の背景

再処理により発生する使用済燃料や高レベル放射性廃棄物に含まれる多くの核種は、高い放射能を維持し、数10万年あるいはそれ以上の期間にわたって崩壊熱を発生し続ける。放射能は、経口摂取した場合に有害な影響（放射性毒性）を引き起こす潜在的な可能性がある。崩壊熱については、ガラス固化体埋設時に用いる廃棄体としての健全性を維持するために発熱量に設計の限界が設定されているため、発熱量が増大するほど埋設する廃棄物の体積が増大する。放射性毒性と廃棄物量は長期にわたって環境に影響を与えるため、その影響を低減し、影響が継続する期間を短くすることが課題となっている。

使用済燃料や高レベル放射性廃棄物に含まれる放射性核種には、FPやTRU元素が含まれる。これらの処理に伴う環境負荷を低減するために、使用済燃料中の放射性核種の分離と高速炉などを利用した核変換に関する研究が行われている（Dujardin and Choi, 2012）[1]。しかし、日本では、高速炉を核変換システムとする実用化計画が未だ決定されておらず、分離変換システムの整備が遅れているという問題がある。このような核変換炉を持たない状況においてもTRUの生成量を減らす放射性毒性や崩壊熱を低減可能とすることを目的とした研究が継続して行われてきている（Sakurai et al., 2018[2]; Hiraiwa et al., 2020）[3]。これらの研究の目的は、燃料燃焼中にTRUの生成を低減できる燃料を使用することで、TRUの放射性毒性と崩壊熱を低減し、核変換システムを不要にすることである。TRUの生成を低減したウラン燃料は FORSETI™（Fuel cycle Of light-water-Reactor with Surplus Enriched uranium for TRU-production Inhibition）型燃料¹とも呼ばれている。この燃料では、初期のウラン濃縮度を HALEU の範囲とし、濃縮度に関わらず燃料の取出燃焼度は 45GWd/t 一定とする。このような燃料を使用することによって使用済燃料中の残留 TRU 量が低減し、それにより TRU による放射性毒性と崩壊熱を低減できる。一方、初期ウラン濃縮度が HALEU の範囲にある場合の使用済燃料の燃焼後の核種組成とその燃料サイクルへの影響について、さまざまな側面から評価した報告もある（Ando et al., 2012[4]; Burns et al., 2020[5]）。しかし、これらの 2 つの研究では、濃縮度の上昇に伴い、取出燃焼度も上昇すると仮定している点で、Sakurai、Hiraiwa らの研究とは異なっている。TRU 生成低減燃料を用いた研究では、核変換システムのない条件下において、HALEU の範囲でウラン濃縮度のみを上昇させることで、環境への影響を低減できる可能性を示していた。しかし、これまでの研究では、再処理を考慮しておらず、炉停止直後の TRU のみを研究対象としていた。そのため、再処理における放射性毒性

¹ FORSETI は株式会社 東芝の商標です。

や崩壊熱への影響やその後の長期的な影響については、これまでの研究では十分に考慮されていなかった。また TRU 核種の崩壊に伴う詳細な分析が必ずしも十分ではなかったという問題もあった。

本章では、これらの課題に対処するため、TRU 生成低減燃料の使用済燃料における支配的な TRU 核種と、再処理後の HLW の放射性毒性と崩壊熱の長期的な減衰特性に焦点を当てる。この評価により、TRU 生成低減燃料のウラン濃縮度の上昇による放射性毒性と崩壊熱の長期的な崩壊特性を明らかにする。

以下、本章の構成を示す。3.2 節では、放射性毒毒性と崩壊熱のフェードアウト時間の定義と解析条件を示す。3.3 節では、放射性毒性と支配核種の長期的な崩壊特性について、3.4 節では、崩壊熱について同様の研究を示す。3.5 節では、放射性毒性と崩壊熱に共通して影響を与える主要な TRU 核種の重量割合を示す。3.6 節では、本章で得られた結論をまとめる。

3.2 放射性毒性、崩壊熱の評価条件とフェードアウト時間の定義

燃料集合体の構造と燃焼解析条件は、前章[8]で評価対象とした ABWR の 9x9 燃料と同じである[6][7]。ただし、可燃性毒物の影響については、以前の報告で分析済みであるため、添加なしの条件で検討した。

ウラン燃料の ^{235}U 濃縮度は、商業炉への適用を想定した場合の上限値である低濃縮度範囲の 20wt%とした。これは、HALEU の上限値でもある。下限値と参考濃縮度は同じとし、現在の軽水炉に適用可能な 3.8wt%とした。平均燃焼度は、TRU 生成低減燃料の考え方方に沿い、すべての濃縮度で 45GWd/t 一定とした。燃料燃焼条件は、定格出力 100% 運転を模擬している。したがって、燃料集合体内の平均ボイド率と軽水減速材の温度は、これらの条件に整合した条件になっている。炉心運転期間は 15 ヶ月であり、100% 出力に相当するサイクル燃焼度は 12GWd/t である。表 3-1 は、燃料燃焼計算に適用された解析コードと、その後のステップにおける使用済燃料および高レベル放射性廃棄物の冷却計算を示している。また、同じ表には再処理等の時刻定義も示されている。原子炉の定格運転模擬の条件で TGBLA コード [9] を使用して燃料燃焼度解析を実施する。燃焼度解析の起点は -4.625 年、終点は 0 年である。TGBLA コードにおける重核種の燃焼連鎖には 25 核種が含まれている。本評価では、原子番号 93 (Np) 以降の重核種に焦点を当てる。使用済燃料の再処理は、運転終了後 15 年目に行われる。その時点で、使用済燃料中のウランとプルトニウムを除いた状態でのアクチニド核種が HLW の組成となる。一方、HLW 中には、HLW 貯蔵段階で MA 核種から崩壊したプルトニウム核種 (^{239}Pu 、 ^{240}Pu など) が含まれる。FP 核種は再処理工程で除去されるものとし、 ^{237}Np は再処理工程で除去されずに HLW 側に移行するものとした。原子炉停止後の再処理のラグタイムは、日本の再処理プラントにおけるせん断工程までの冷却期間が 15 年以上であることから 15 年と想定し [10]、この値を基準値として採用した。0 年以降の冷却解析では、時刻 0 における TGBLA 燃焼解析で出力された重核種の重量割合を、ORIGEN2 [11] に入力し、放射性核種の崩壊連鎖に従って解析時刻における核種の重量割合を求める。時刻 15 年時点での冷却解析が行われる。

各 TRU 核種の放射性毒性と崩壊熱は、式 (1) と式 (2) によって求められる。

$$T_n = W_n \times B_n \times D_n \quad [\text{Sv/g-IHM}] \quad (1)$$

$$H_n = W_n \times B_n \times Q_n \quad [\text{W/g-IHM}] \quad (2)$$

ここで各項は以下で定義される。

T_n Radiotoxicity of nuclide n per unit weight of IHM [Sv/g-IHM]

H_n	Decay heat of nuclide n per unit weight of IHM [W/g-IHM]
W_n	Weight fraction of heavy metal nuclide n [g/g-IHM]
B_n	Specific radioactivity of nuclide n [Bq/g]
D_n	Dose coefficient of nuclide n [Sv/Bq]
Q_n	Q value of nuclide n [J/Bq]

放射性毒性 T_n (Sv/g-IHM) および崩壊熱 H_n (W/g-IHM) は、放射性毒性および崩壊熱の一般的な単位であり、両者の唯一の違いは、係数として含まれる線量係数 D_n (Sv/Bq) および Q 値 Q_n (J) だけである。図 3-1 は D_n と Q_n の値を示している。TRU 核種のうち、 ^{241}Pu と ^{242}Cm は線量係数 D_n が他の核種よりも小さい値となっている。一方、 ^{241}Pu 以外の核種の Q 値は比較的類似している。一方、 ^{242}Cm は線量係数とは対照的に、他の核種とほぼ同程度の値となっている。

本研究では、長期崩壊後の放射性毒性と崩壊熱を低減するための目標値として、天然ウラン鉱石の値を使用する。天然ウラン鉱石の重量割合は、式 (3) の W_f で与えられる。天然ウランの ^{235}U 濃縮度は 0.711wt% であり、濃縮後の廃棄物の ^{235}U 濃縮度は 0.2wt% である。

$$W_f = \frac{(e_p - e_t)}{(e_f - e_t)} \times W_p \quad (3)$$

Here,

W_f	Weight fraction of uranium feed (g/g-IHM)
W_p	Weight fraction of ^{235}U of fuel (g/g-IHM)
e_f (0.711wt%)	Weight fraction of ^{235}U in uranium feed
e_p	Weight fraction of ^{235}U in fuel
e_t (0.02wt%)	Weight fraction of ^{235}U in uranium in the tail

表 3-1 使用した解析コードおよび時間経過の定義

Time (year)	Location of Fuel and HLW	Plant or Site Operation	Analysis/ Code	Analyzed Nuclides
-4.625 - 0.0 ^{#1}	Reactor	Full Power ^{#2}	Burnup/TGBLA3	Nuclides in Fuel ^{#3}
0.0	Reactor	Shutdown (Zero Power)	-	-
0.0 - 15.0	SFP ^{#4}	SNF Cooling	Decay/ORIGEN2	Actinides in SNF ^{#5}
5.0 ^{#6}	RP ^{#7}	Nuclides Separation ^{#8}	-	-
15.0 - 10 ⁶	Geological disposal site	HLW Cooling	Decay/ORIGEN2	Actinides in HLW ^{#9}

#1 4.625 [years] is fuel residence period of the full power operation.

4.625 [years] = 15 [month (cycle length)] * 3.75 [- (refueling batch size)]

#2 Power density is 50kW/l. #3 Fresh fuel contains ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U as heavy nuclides.

#4 SFP; SNF Pool #5 SNF contains U, Pu and MA as heavy nuclides.

#6 Assumption of cooling time for this study. More than 15 years are required for the cooling time before chopping of SNF in the latest license of Rokkasho-RP in Japan.

#7 RP; Reprocessing Plant #8 U and Pu are removed from HLW for Pu recycling.

#9 The actinide contains U and Pu by decay reactions from parent MA.

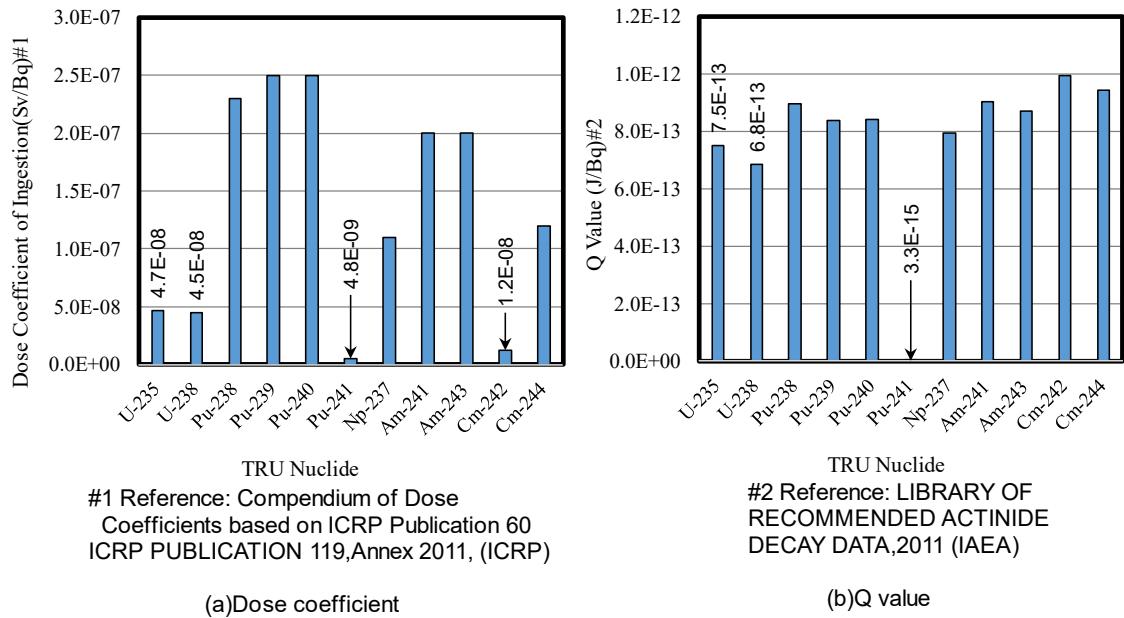


図 3-1 TRU 核種ごとの内部被ばく係数と Q 値

3.3 使用済燃料および高レベル放射性廃棄物中の TRU 放射性毒性

式 (1) によって求めた主要な TRU 核種の放射性毒性 (Sv/g-IHM) を図 3-2 に示す。同図 (a)、(b)、(c) は、それぞれ ^{235}U 濃縮度が 3.8wt%、10wt%、20wt% の場合である。太い灰色の線は、式 (3) を重量割合として適用して求めた燃料用濃縮ウランを製造するために必要な天然ウラン鉱石の放射性毒性である。本研究では、高レベル放射性廃棄物の固化の有無や地層処分条件を考慮しないと仮定すると、天然ウラン鉱石の放射性毒性は高レベル放射性廃棄物として管理する必要のないレベルであると考えられる。ウランの線量係数は、同図 (a) に示すように TRU 核種のその数分の 1 である。図中の TRU のフェードアウト時間とは、その放射性核種の放射性毒性が天然ウラン鉱石の値にまで減衰する時点を意味する。同様に、 ^{241}Am 核種単独のフェードアウト時間も図中に示されている。

まず、再処理前の 15 年間の TRU 全体の放射性毒性と比較すると、 ^{235}U の濃縮度が 3.8wt% から 20wt% に増加することに対応して、放射性毒性への影響は数 10% の減少となる。また、TRU 全体の放射性毒性も、炉停止(0 年)から再処理(15 年)までの時間経過による変化はほとんどない。

次にフェードアウト時間は、図 3-2 (a) の ^{235}U 濃縮度 3.8wt% における TRU 合計の時間は 10 万年となる。この結果は、再処理後の TRU の放射性毒性は天然ウラン鉱石レベルに達するのに 10 万年必要であることを意味する。言い換えば、放射能の消滅時間は、ほぼ常に ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{240}Pu 、 ^{239}Pu の放射性毒性の合計によって決定される。また同図は ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{240}Pu 、 ^{239}Pu の放射性毒性の合計により、TRU のフェードアウト時間がほぼ 10 万年になることを示している。同図(b) の ^{235}U 濃縮度が 10wt% の場合は ^{243}Am 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu のレベルが低下するため、TRU のフェードアウト時間は 1 万年に短縮される。さらに、同図(c) では ^{235}U 濃縮度が 20wt% 濃縮の場合、TRU のフェードアウト時間は 3,000 年となることがわかる。 ^{241}Am のフェードアウト時間については、後述するように、 ^{235}U 濃縮度の上昇による ^{241}Am 重量割合の減少はわずかである。したがって、仮に濃縮度が 3.8wt% から 20wt% に増加しても、 ^{241}Am のフェードアウト時間は 4,000 年から 2,000 年に 2,000 年短縮されるだけであり、TRU 全体のフェードアウト時間短縮効果に比べるとわずかである。 ^{241}Am のフェードアウト時間と TRU のフェードアウト時間の関係を、 ^{235}U の濃縮度とともに表 3-2 にまとめる。TRU のフェードアウト時間は、 ^{235}U の濃縮度が高まると短くなる。TRU のフェードアウト時間は短くなるが、下限値である ^{241}Am の値よりも短くなることはない。

FP および LLFP の放射性毒性については、以下の崩壊挙動が知られている。ウラン使用済燃料中の FP の放射性毒性は、原子炉停止後、数百年程度で燃料

として使用される天然ウランのレベル以下になる（西原、2010）[12]。LLFP はさらに小さい。したがって、FP は放射性毒性の評価から除外した。

表 3-2 ^{241}Am と TRU の放射性毒性のフェードアウト時間

^{235}U (wt%)	Year (Ratio to 3.8wt%)	
	^{241}Am	TRU
3.8	4,000 (1.00)	100,000 (1.00)
10.0	3,000 (0.75)	10,000 (0.10)
20.0	2,000 (0.50)	3,000 (0.03)

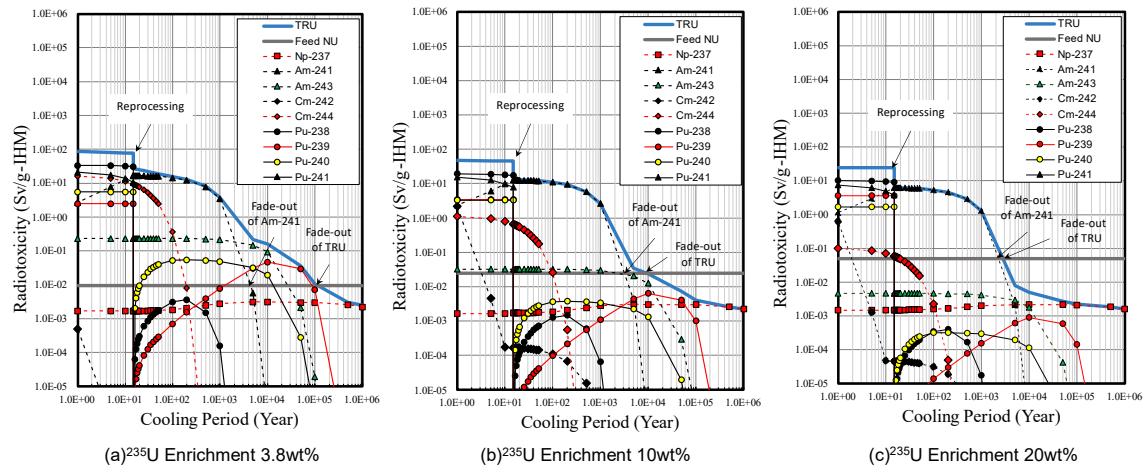


図 3-2 長期冷却時の ^{235}U 増加に対する TRU 核種の放射性毒性変化

3.4 使用済燃料および高レベル放射性廃棄物中の TRU 崩壊熱

式 (2) で求めた主要 TRU 核種の崩壊熱 (W/g-IHM) を図 3-3 に示す。灰色の直線は、式 (3) で燃料の重量割合として求めた、燃料用濃縮ウランを製造するために必要な天然ウラン鉱石の崩壊熱である。崩壊熱のフェードアウト時間は、図 3-2 と同様に高レベル放射性廃棄物の固化の有無や地層処分条件を考慮せず、天然ウラン鉱石の必要量に相当するものとした。同図におけるフェードアウト時間の意味は、放射性毒性の場合と同じである。

放射性毒性の場合と異なり、崩壊熱は再処理前の時期に明らかな減少を示している。再処理前の崩壊熱の比率が最も高い TRU 核種は ^{238}Pu (半減期 87.7 年) である。一方、TRU の中で Q 値が最も大きく、半減期が最も短い (162.8 日) ^{242}Cm は、原子炉停止後約 1 年で TRU の中で最も大きな崩壊熱を持つ。このため、原子炉停止後約 1 年までの冷却期間では、TRU 全体の崩壊熱は凹状の曲線を描いて減少する。

次にフェードアウト時間について、同図 3(a) の ^{235}U 濃縮度 3.8wt% における TRU 総量のフェードアウト時間は 4 万年である。次に、同図 3(b) の ^{235}U 濃縮度 10wt% における全 TRU のフェードアウト時間は、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu の崩壊が重なり、3,300 年に短縮される。さらに、同図 3(c) の ^{235}U 濃縮度 20wt% の TRU のフェードアウト時間は 2,000 年である。

放射性毒性の場合と比較すると、一般的にフェードアウト時間は短くなる。放射性毒性の場合は、天然ウラン鉱石の線量係数は同図 1(a) に示すように他の核種に比べて極めて小さい。一方、Q 値は他の核種とほぼ同じである。つまり、フェードアウト時間が短いのは、天然ウラン鉱石の Q 値と線量係数の物質的な性質の違いによるものである。

その結果をフェードアウト時間として表に示した。合わせて ^{241}Am 単独のフェードアウト時間も併せて示す。 ^{235}U 濃縮度を 20wt% まで高めると、放射性毒性の結果と同様に、全 TRU のフェードアウト時間は 3.8wt% の ^{241}Am 単独のフェードアウト時間以下に減少する。

使用済燃料中の FP 核種の崩壊熱は、原子炉停止後約数百年で、FP 総崩壊熱が $1.0 \times 10^{-6}\text{W/g}$ を下回る値まで減少する (Hagura and Yoshida, 2010) [13]。一方、天然ウラン鉱石の崩壊熱は図 3-3 から $1.0 \times 10^{-7} \sim 1.0 \times 10^{-6}$ (W/g) の範囲であり、原子炉停止後数百年経過した時点での FP 核種個々の崩壊熱は天然ウランの崩壊熱と同程度の大きさになる。このことから FP は崩壊熱の評価から除外した。

表 3-3 ^{241}Am と TRU の崩壊熱のフェードアウト時間

^{235}U (wt%)	Year (Ratio to 3.8wt%)	
	^{241}Am	TRU
3.8	3,100 (1.00)	40,000 (1.00)
10.0	2,200 (0.71)	3,300 (0.08)
20.0	1,060 (0.34)	2,000 (0.05)

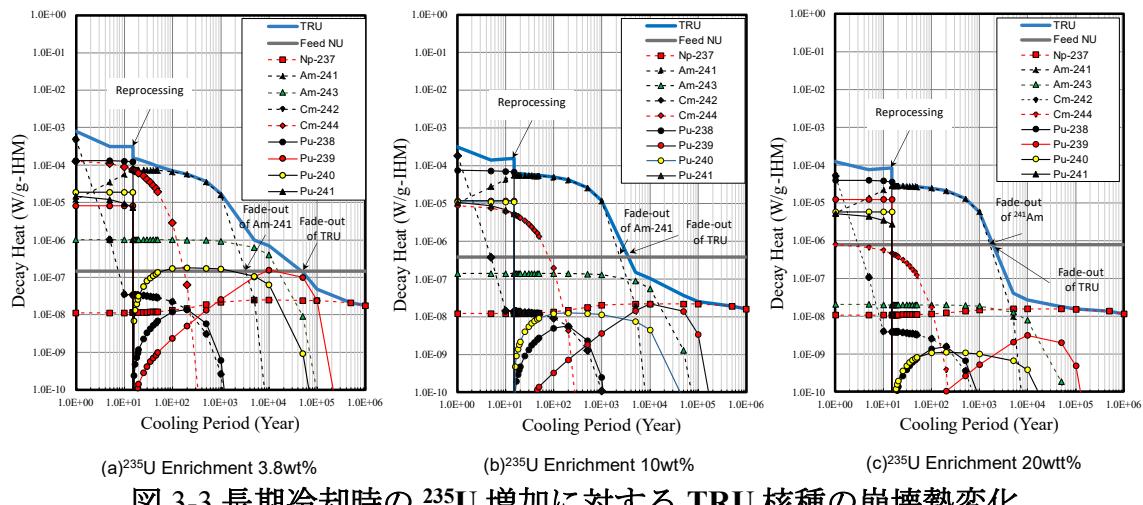
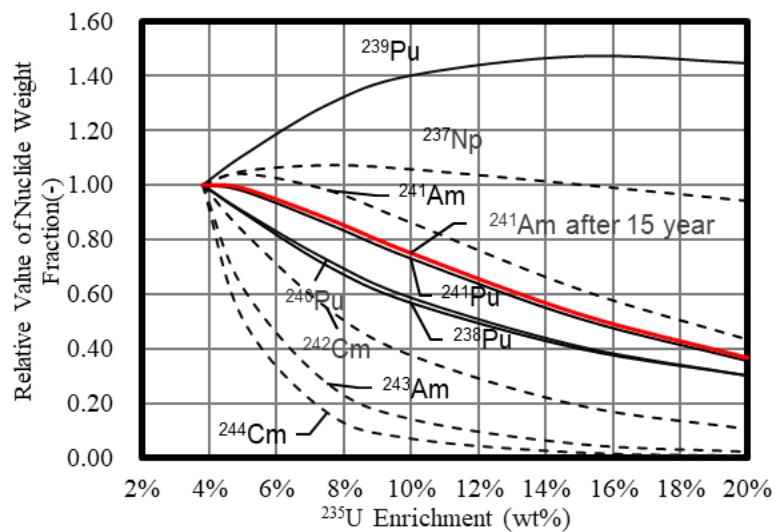


図 3-3 長期冷却時の ^{235}U 増加に対する TRU 核種の崩壊熱変化

3.5 使用済燃料および高レベル放射性廃棄物中の TRU 重量割合

本節では放射性毒性（式（1））と崩壊熱（式（2））の共通項目である重量割合について検討した。 ^{235}U 濃縮度に対する TRU 核種の重量割合の感度を、図 3-4 に示す。 ^{242}Cm は、炉停止後約 1 年間だけ崩壊熱が支配的となるが、 ^{235}U の濃縮度增加に伴う生成量の減少に対する感度は、 ^{244}Cm と ^{243}Am に次いで 3 番目に大きい。 ^{241}Am については、 ^{241}Pu の崩壊成分も時間経過に伴って加わるため、15 年間の冷却に対する値も赤線で示している。相対値は、各核種について、濃縮度 3.8wt%の値を 1.0 として定義されている。注目すべきは、 ^{244}Cm と ^{243}Am は、初期ウラン濃縮度が 10wt%以上の範囲においては 80%以上減少という大きな感度を持つことである。3.3 節および 3.4 節で示したように、これらの 2 つの核種の量は、HLW 全体に占める放射性毒性と崩壊熱の割合が大きい娘核種である ^{239}Pu （半減期 24,000 年）と ^{240}Pu （6,560 年）のピークレベルを決定する。 ^{243}Am と ^{244}Cm の SNF 中の量は、他の核種よりも感度が高く、ウラン濃縮度の増加に伴い減少する。その結果、図 3-5 に示すように、 ^{239}Pu と ^{240}Pu のピーク値は、濃縮度の上昇に対する減少の感度が比較的大きい。したがって、TRU 生成低減燃料では、 ^{235}U 濃縮度の増加により、使用済燃料中の ^{243}Am と ^{244}Cm の生成が大きく減少するため、高レベル放射性廃棄物の放射性毒性と崩壊熱の天然ウラン鉱石レベルの減少までの時間が大幅に短縮されることになる。

図 3-4 使用済燃料中の TRU 核種の ^{235}U 濃縮度に対する変化



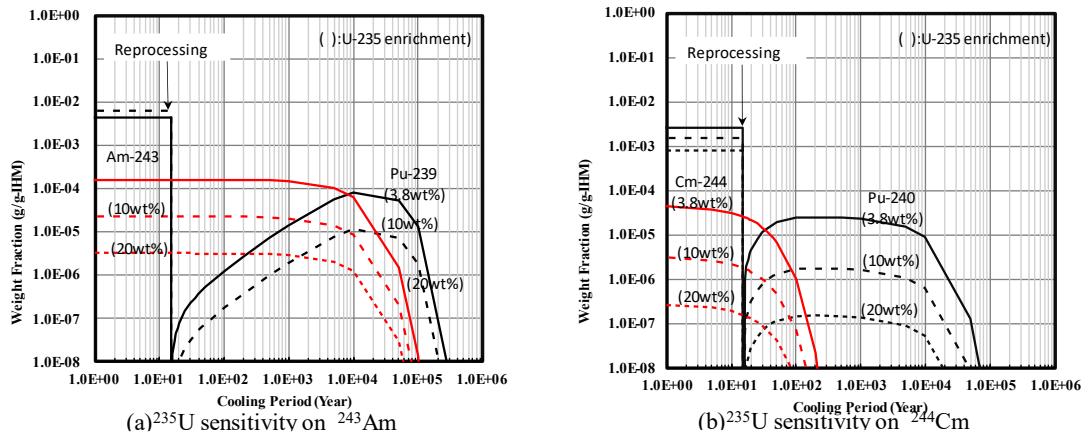


図 3-5 ^{243}Am と ^{244}Cm の ^{235}U 濃縮度に対する重量割合の変化

3.6 本章のまとめ

冷却に伴う放射性毒性と崩壊熱の濃縮度増加にともなう長期間の減衰傾向について SNF、再処理、HLW の時系列に沿って順に評価した。再処理前の 15 年間の全 TRU の放射性毒性と崩壊熱は、 ^{235}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フェードアウト点は、天然ウラン鉱石の値になる点とした。これは、TRU 核種の放射性毒性と崩壊熱を HLW として管理する必要がなくなるレベルとして設定した。TRU 生成低減燃料の HLW の放射性毒性と崩壊熱は、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{239}Pu 、 ^{240}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。さらに、HLW 中のこれらの 4 つの核種の放射性毒性と崩壊熱は、初期 ^{235}U 濃縮度の増加に伴い大幅に減少する。その結果、TRU の放射性毒性と崩壊熱のフェードアウト時間は、 ^{241}Am 単独のフェードアウト時間を下限として、初期 ^{235}U 濃縮度の増加に伴い短くなる。その結果、初期 ^{235}U 濃縮度を 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。放射性毒性と崩壊熱の起源となる核種である ^{243}Am と ^{244}Cm の重量割合は、 ^{243}Am と ^{244}Cm の生成量が、3.8 wt%の軽水炉燃料における値と比較して、10 wt%では 80%以上、20 wt%では 90%以上減少する。HLW で生成される ^{243}Am と ^{244}Cm の娘核種である ^{239}Pu と ^{240}Pu のピーク値は、 ^{235}U の濃縮度が高まるにつれて、 ^{243}Am と ^{244}Cm とほぼ同じ感度で減少する。

3.7 本章の参考文献

- [1] Dujardin, T., Choi Y-J., OECD/NEA activities related to partitioning and transmutation. (2012), pp.25-30, OECD/NEA.
- [2] Sakurai, S., Yoshioka, K., Hiraiwa, K., Kimura, R., Wada, S., Sugita, T., and Takahashi, Y., Concept of a nuclear fuel cycle using an environmental load-reducing light-water reactor (7) -The environmental load reduction effect of FORSETI™ -. Transactions of J At Energy Soc. Jpn., Fall meeting 2L04, p. 839 (2018), (in Japanese).
- [3] Hiraiwa, K., Kimura, R., Wada, S., Yamaoka, M., and Yoshioka, K., Concept of a Nuclear Fuel Cycle Using an Environmental Load-Reducing Light-Water Reactor (8) -Reduction of TRU Generation and Decay Heat Obtained by FORSETI™ Fuel Design Concept -. Transactions of J At Energy Soc. Jpn., Spring meeting 2H08, p. 622 (2020), (in Japanese).
- [4] Ando, Y., Nishihara, K., and Takano, H., Estimation of spent fuel compositions from light water reactors. Journal of nuclear science and technology Vol.37, No.10 (2000), pp.924-933.
- [5] Burns, J. R., Hernandez, R., Terrani, K. A., Nelson, A. T., and Brown, N. R., Reactor and fuel cycle performance of light water reactor fuel with 235U enrichments above 5%. Annals of Nuclear Energy Vol.142 (2020), pp.1-33.
- [6] Toshiba Corporation, 9x9 Fuel Bundle for Boiling Water Reactor. Toshiba Licensing Report TLR-057 Rev.2, pp.1-58 (1994), (in Japanese)
- [7] Toshiba Corporation, Fuel Lattice Geometry for Boiling Water Reactor. Toshiba Licensing Report TLR-056 Rev.0, pp.1-4 (1998), (in Japanese)
- [8] Hiraiwa, K., Kimura, R., Wada, S., Sugita, T., Yoshioka, K., Takeda, S. and Kitada, T., TRU generation suppression by HALEU fuel with fixed discharge burnup using burnable poison. Proceedings of the 30th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE30), pp. 1-7 (2023) , Paper No. ICONE30-01546.
- [9] Toshiba Corporation, Method of BWR lattice nuclear characteristics. Toshiba Licensing Report TLR-006 Rev.1, pp. 1-73 (2008), (in Japanese)
- [10] Nuclear Regulation Authority, Japan, Business Permit of JNFL Rokkasho Reprocessing Facility. pp.1-22 (2020), (online), available from <<https://www.nra.go.jp/data/000335126.pdf>>, (accessed on 28 August, 2023).
- [11] Croff, A. G. ORIGEN2: a revised and updated version of the Oak ridge isotope generation and depletion code. ORNL/TM-5621, Oak Ridge National Lab. (1980), pp. 1-58.

- [12] Nishihara, K., Data for estimating potential radiotoxicity of spent nuclear fuel. JAEA-Data/Code 2010-012, pp. 14-17 (2010), Japan Atomic energy Agency, (in Japanese).
- [13] Hagura, N., and Yoshida, T. Analysis of prediction accuracy for actinide decay heat of spent MOX fuel from light water reactors. Transactions of the Atomic Energy Society of Japan, Vol.9, No.1 (2010), pp. 29-39, (in Japanese).

4 アメリシウム核変換を行った場合の高レベル放射性廃棄物削減

4.1 本章の背景

軽水炉使用済燃料の再処理により発生する高レベル放射性廃棄物 (HLW) は、環境負荷の増大につながるため、核燃料リサイクルにおける課題となっている。HLW には長期間にわたって崩壊熱を発生するマイナーアクチニド (MA) や核分裂生成物 (FP) が含まれるため、その安定性を保つために、HLW の大部分はガラス固化体として地層処分される。これらのガラス固化体の処分には、数万年以上の地層処分期間が必要であり、高レベル放射性廃棄物の発生に伴うガラス固化体の量の増加により、環境への負荷が高まることになる。

最初の問題は、MA (娘核種を含む) 核種に半減期が長いものがあり、崩壊熱が十分に減衰するには数万年を要することから生じことである。

2 つ目の問題は、ガラス固化された高レベル放射性廃棄物が崩壊熱量に比例して増加することである。この問題は、処分場のサイズの増加にもつながる。具体的には、ガラス固化体となった HLW には 1 体あたりに発熱量に制限があり、また、崩壊熱を発生させる元素の濃度にも上限がある[1]。したがって、ガラス固化時の崩壊熱が大きいほどガラス固化した HLW の総体積は大きくなり、処分場の規模に直接影響することになる。

上記 2 つの問題に対応するため、使用済燃料に含まれる TRU 核種発生量を低減できる燃料に関する一連の研究が行われてきた。これらの研究は、軽水炉使用済燃料 (SNF) における TRU 発生量を抑制することで、TRU 核種の崩壊熱および放射毒性に関連する環境への影響を低減することを目的として行われた[2][3]。これらは HLW の管理と処分に関する課題の解決策を見出す上で極めて重要な研究と考える。最初の研究では、既存の軽水炉および燃料構造物において、燃焼度を一定に保ち、ウラン濃縮度を HALEU の範囲で増加させることで、TRU 生成を非常に簡単に削減できることが示されている。TRU 生成低減燃料は、ウラン濃縮度を HALEU まで高めた燃料である。しかし、燃焼度を濃縮度に応じて高めないこと、再処理後の TRU 量を減らすことに主眼を置いていること、EOC で正の反応度を許容するなど、これまでにない燃料設計概念を採用している。

1 番目の研究では、可燃性毒物を使用することで、濃縮度を大幅に高めた TRU 生成低減燃料でも、サイクル中に平坦な余剰反応度を達成できることが示された。具体的には、45GWd/t の燃焼度で 15 ヶ月間運転する TRU 生成低減燃料の場合、ガドリニア濃度と可燃性毒物入り燃料棒本数を適切に組み合わせることで、従来の炉心と同様に、過剰反応度が適切な範囲（最大濃縮度 20wt%）に調整できることが示された。さらに、ウラン濃縮度の上昇に伴う中性子束の減少により、²³⁹Pu 以外の TRU の生成量が減少する。さらに、可燃性毒物の存在により、中性子束がわずかに増加し、TRU 生成量の減少による効果が部分的に小さくな

るが、影響は小さい。

2番目の研究は、HLW中の重核種の崩壊熱に焦点を当てている。崩壊熱が天然ウラン鉱石のレベルまで減少するのに必要な時間(フェードアウト時間)が大幅に短縮されることが示されており、TRU発生抑制燃料が第2の課題に対する解決策となる可能性があることを示している。本研究により、燃焼度を一定とし、 ^{235}U の濃縮度を増加させた場合、 ^{239}Pu から始まる中性子捕獲反応により生成され、質量数が1増加する使用済燃料中のTRU核種の重量比は、質量数が増加するほど減少することが示された。その結果、 ^{241}Am の生成率の減少率と比較すると、 ^{243}Am と ^{244}Cm の生成率は大幅に減少するようになる。結果としてウラン濃縮度を高めたTRU生成低減燃料ではガラス固化時点のMAの崩壊熱は ^{241}Am 成分が支配的になる。

再処理後はMAが崩壊熱の主要成分となるためMAの核変換に関する研究が行われてきた[4]。例えば、SCWR、PBMR、PWR、FBRなど、さまざまな燃料タイプや原子炉タイプにおけるマイナーアクチノイドの核変換に関する研究が数多く発表されている[5][6][7][8]。ただし、これらはアメリシウム核転換に焦点を当てたのではなく、各炉型で広くMAを原子炉に装荷して核変換することを研究しており、必ずしも ^{241}Am 単独での核変換を扱った研究ではなかった。

また、 ^{241}Am を可燃性毒物として使用する軽水炉での核変換に関する研究もある[9][10]。これら2つの研究では、 ^{241}Am などのMAを燃料に添加した。燃焼前後のMAの増減の影響を評価し、 ^{244}Cm が副生成物として増加する問題を定性的に指摘した。これらの研究は、既存の軽水炉で ^{241}Am の核変換が可能であることを示した点で意義がある。しかし、これらの研究では、核変換に伴う ^{244}Cm の生成による崩壊熱の増加の定量的な影響は評価されていない。そのため、HLWの量への影響が不明確な点が課題として残った。

なおBWR燃料において濃縮度の増加によって再処理後の崩壊熱はむしろわずかに増加するという報告をCumberlandらが行なっている[11]。この報告はHiraiwaらの報告[3]とは逆の結果となっている。両者の違いの理由は明確である。前者では燃焼度をウラン濃縮度の増加に合わせて増加させ、かつ崩壊熱にFPも含めている。つまりCumberlandらの評価では、濃縮度と燃焼度の増加によって増加するFP崩壊熱成分が含まれていることで濃縮度増加によって崩壊熱全体として増加する結果になっている。

本研究では、濃縮度の上昇によりMA崩壊熱の ^{241}Am 成分は他のMA核種に比べてわずかにしか減少しないという、前述の先行研究における課題を解決するために、アメリシウム核種を核変換することでMA崩壊熱の総量をさらに低減できるかどうかを定量的に検討する。具体的には、使用済TRU生成低減燃料の再処理で生成されるアメリシウム核種をすべて分離し、TRU生成低減燃料に

添加して核変換する。この時、分離した ^{244}Cm は核変換の対象としない。その後、核変換後の ^{241}Am と ^{244}Cm の合計と、核変換を行わなかった ^{244}Cm の崩壊熱の合計を算出する。これにより TRU 生成低減燃料中の使用済燃料を再処理して抽出したアメリシウムを核変換することで、合計の MA 崩壊熱を低減できる濃縮度の条件を明らかにする。これらの検討により、FP を含まず MA のみを含む場合のガラス固化体の体積割合への影響を明らかにする。

4.2 想定する燃料仕様、燃料サイクル概念および評価方法

表 4-1 は、本解析で使用した燃料集合体の寸法仕様をまとめたものである。燃料集合体の構成は、74 本の燃料棒と 2 本の水ロッドを持つ、x9 型 BWR バンドル下部のものと同じである。表 4-2 は、燃焼解析のいくつかの条件を示している。これらの燃料集合体の仕様および燃焼解析条件は、文献[2]と同じである。TRU 生成低減燃料の仕様に基づき、燃料は BWR 用の 9x9 ウラン燃料と、燃料の ^{235}U 濃縮度は 3.8wt%から 20wt%の範囲とした。TRU 生成低減燃料は ^{235}U 濃縮度に関係なく、定格出力運転後の取出燃焼度が 45GWd/t に達した時点で炉から取出すとする。燃焼解析コードは TGBLA であり、TGBLA における重核種反応連鎖を図 1 に示す。TGBLA は、BWR 燃料の形状をそのまま解析でき、3 次元炉心シミュレーション用の核定数を出力できる燃焼解析コードである。TGBLA の使用している核データライブラリは、 ^{235}U 、 ^{238}U 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu については ENDF/B-V であり、その他の核種については ENDF/B-IV を使用している。TGBLA の解析手法は、3 エネルギ一群拡散方程式と多群の輸送方程式の組み合わせに基づく。TGBLA は、日本の 9x9 BWR 燃料の原子炉設置変更許可申請におけるライセンス解析コードとして承認された実績のある解析コードである。

TRU 核種の核変換のための核燃料サイクル施設と物質の流れの構成を図 4-2 に示す。図に示されている施設には、 n 番目のサイクルで処理されることを示すパラメータ n が付されている。各運転サイクル n では質量収支が同一であるため、パラメータ n の施設から出る物質量は、パラメータ $n+1$ の施設に入る物質量と同一である。ただし、これは質量収支が平衡状態にあることを意味するものではない。このサイクルプロセスでは、非核変換炉は TRU 生成低減燃料を使用し、アメリシウム核変換炉は 45GWd/t の燃焼済みで再処理後に抽出したアメリシウムを添加したウラン燃料を使用する。いずれの炉も同じ ^{235}U 濃縮度を使用し、その範囲は 3.8wt%から 20wt%である。3.8wt%の場合、EOC における余剰反応度はゼロとなっている。いっぽう 3.8wt%を超える濃縮度の場合は EOC における余剰反応度は余っており正値となっている。上述の通り、各サイクルにおける新燃料の初期濃縮度は 3.8wt%から 20wt%の範囲の値にしており、サイクル終了時の反応度に関係なく固定の値である。

このように、各サイクルにおける炉心と燃料の運転条件はケースごとに固定されており、その意味では平衡状態ではない。使用する原子炉はすべて BWR とし、非核変換炉 ($^{n}\text{U}_{i=1,1}$) を複数基設置する。非核変換炉は複数存在するが、実際の評価では基数は最大 4 基と設定した。非核変換炉の数を最大 4 基とした理由は、4.4 節で説明する。非核変換炉の燃料は、Am 核種を添加しないウラン燃料である。非核変換炉の使用済燃料は再処理工場 ^{n}R で再処理される。その時点で MOX 燃料用にウラン (U) とプルトニウム (Pu) が分離され、FP、Am、Cm、

その他の MA 核種も分離される。分離された U と Pu は ^{n+1}PuU と表記している。なお MOX 燃料から発生する TRU 核種や崩壊熱については、本評価の対象外である。非核変換炉の使用済燃料を再処理して分離した Am 核種は、Am 核種を核変換するために核変換炉の燃料に添加する。Am 以外の MA 核種はリサイクルされず、高レベル放射性廃棄物となる。核変換炉は ^{n+1}T と表記する。核変換炉から排出された使用済燃料を再処理して得られる MA 核種はすべてリサイクルの対象外である。すなわち、アメリシウムの核変換は非核変換炉で 1 回燃焼した後に取り出されるもののみとし、核変換炉からのアメリシウムは核変換の対象とはせず全て高レベル放射性廃棄物に移行する。すべての高レベル放射性廃棄物は再処理工場でガラス固化され、FP 廃棄物 $^{n+1}\text{V}_F$ と TRU 廃棄物 $^{n+1}\text{V}_H$ (TRU からプルトニウムとウランを除いたもの) となる。TRU に分類されないネプツニウムも廃棄物 $^{n+1}\text{V}_H$ に含まれるが、その崩壊熱はアメリシウムやキュリウムと比較して無視できるため、総崩壊熱の計算には含まれない。原子炉停止から再処理による MA 分離までの期間は 15 年と固定し、最短の期間として原子炉停止から再処理までの期間は 15 年とした。これは日本の再処理プラントの事例を参考として設定した[12]。したがって、ガラス固化の時点は原子炉停止から 15 年後となる。上述の核変換炉システムを想定し、再処理により分離されたアメリシウムとキュリウムがガラス固化プロセスで $^{n+1}\text{V}_H$ に移行した場合の崩壊熱を評価する。

表 4-1 TRU 生成低減燃料集合体の仕様

Item	Value
Fuel Rod Configuration	Lower part of 9×9 fuel
Number of Fuel Rod	74
Fuel Active Length(cm)	371
Cladding Diameter(cm)	1.12
Water Rod Diameter(cm)	2.49
Fuel Pellet Diameter(cm)	0.96
1/2 Fuel Bundle Gap(cm)	0.79
Channel Box Material	Zircaloy
Fuel Cladding Material	Zircaloy
Number of Water Rod	2
Fuel Bundle Pitch (cm)	15.5
Fuel Rod Pitch (cm)	1.44
Cladding Thickness (cm)	0.071
Chanel Inside Width (cm)	13.41

表 4-2 燃焼解析の条件

Item	Value
Void fraction in Channel (%)	40
Void fraction in Water Rod (%)	0
Void fraction outside Fuel Bundle (%)	0
Temperature of Moderator (°C)	286
Power density (kW/l)	50
Operation cycle Length (month)	15
Operation cycle exposure (GWd/t)	12
Discharge exposure (GWd/t)	45
Bundle Average ^{235}U enrichment (wt%)	3.8,5.0,7.5,10.0,15.0,20.0
Refueling batch size	3.75

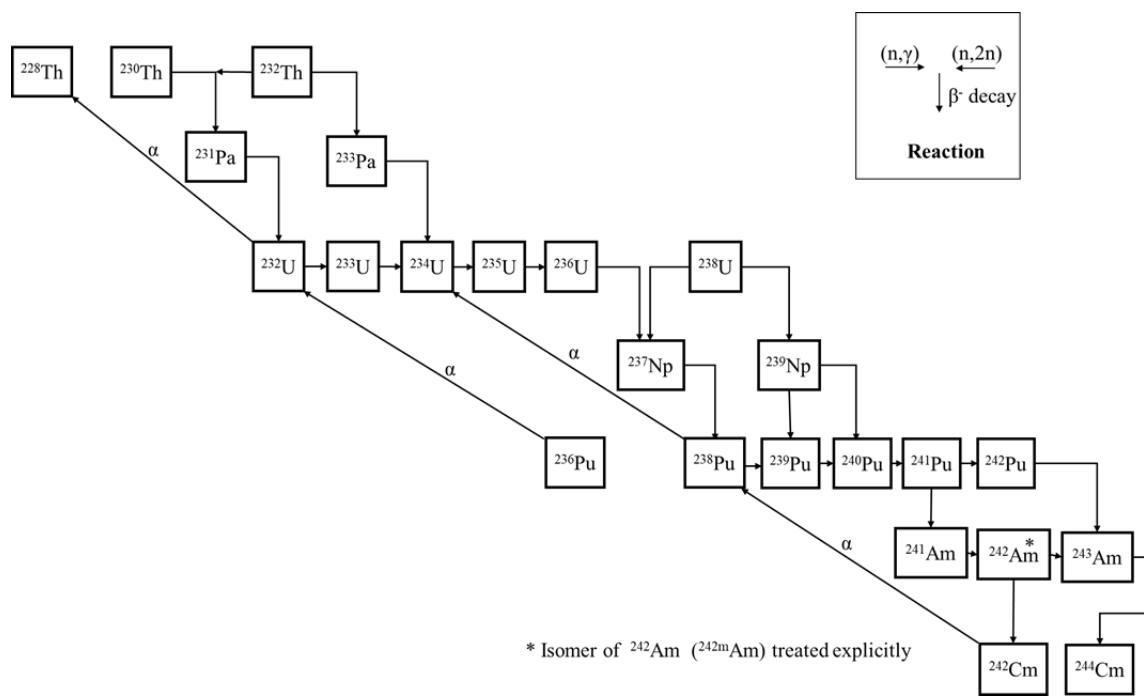


図 4-1 燃焼解析で用いる TGBLA の重核種反応チェーン

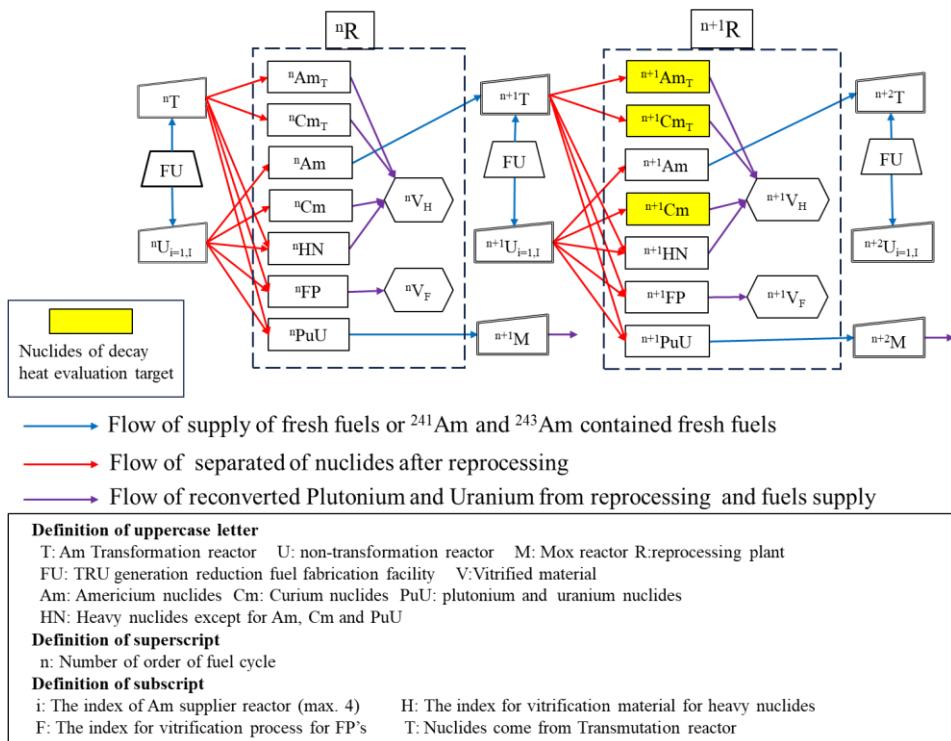


図 4-2 アメリシウム核変換を行う炉システム

4.3 核変換を行わない場合の TRU 崩壊熱と重量割合

4.3.1 TRU 生成低減燃料の ^{235}U 濃縮度増加時 TRU 生成メカニズム

ここでは、TRU 生成低減燃料における TRU 発生量と ^{235}U 濃縮度の関係についての解析結果を示す。本節では、いずれのケースも初期燃料重金属 (IHM) 重量は同一とした。また、TRU 重量比が初期燃料重量に対する比であることを明確に示すため、重量割合を示す単位として (g/g-IHM) を使用した。もちろん、 ^{235}U 濃縮度を高めることで、その分 ^{238}U が減少する。

図 4-3 は、定格出力 100% 運転で 45GWd/t まで燃焼した場合の燃料棒平均の中性子束を示しており、中性子エネルギー群数は 3 群である。第 1 群は高速エネルギー領域 (5.53eV~10MeV)、第 2 群は共鳴エネルギー領域 (0.625eV~5.53keV)、第 3 群は熱エネルギー領域 (0.625eV 以下) となっている。主に核分裂が生じている第 3 群の中性子束では ^{235}U 濃縮度が 3.8wt% から 20wt% への約 5 倍の増加に対して、約 $6 \times 10^{14} (1/\text{cm}^2\text{s})$ から約 $1 \times 10^{13} (1/\text{cm}^2\text{s})$ へほぼ 1/5 に減少する影響が生じている。この特性は、 ^{235}U の濃縮度が増大しても出力密度は一定で核分裂密度も一定であるために ^{235}U の濃縮度の増加に対して第 3 群の中性子束が濃縮度に概ね反比例することに対応している。いっぽうで第 2 群の中性子束については約 $7 \times 10^{14} (1/\text{cm}^2\text{s})$ から約 $3 \times 10^{13} (1/\text{cm}^2\text{s})$ へほぼ 40% に減少し第 2 群の中性子束の方が ^{235}U 濃縮度増加に対する減少率が第 3 群の約半分となっている。このことは第 3 群の中性子吸収断面積の大きい ^{235}U の濃縮度増加によりいわゆる中性子スペクトルが硬化したことに対応する。

上記で説明した特性のうち ^{235}U の濃縮度が増大することで第 3 群の中性子束が大きく減少することが、以下で説明するように TRU の生成量が減少する主な理由でとなっている。

生成した TRU 核種の重量割合の濃縮度増加に対する変化の検討するために、 ^{240}Pu 、 ^{241}Pu 、 ^{242}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm を主要な TRU 核種として選択して検討した。これらの核種は、 ^{244}Cm を含め、後でアメリシウム核種の核変換や崩壊熱発生の特徴を説明するために不可欠であるため選んだ。まず、燃焼度 45GWd/t における主な TRU 核種について、濃縮度の上昇に伴う生成、減少、残留核種の反応率の変化の特性について確認した。図 4-4、図 4-5、図 4-6 は、原子炉停止時の燃焼度 0 から 45GWd/t までの反応率を積分した結果であり、主な TRU 核種の生成、減少、残留の反応量を重量割合単位で対数目盛にて表している。

図 4-4 は、中性子捕獲反応による ^{240}Pu 、 ^{241}Pu 、 ^{242}Pu 、 ^{242}Pu 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm の生成項を示している。ここで生成項とは対象の核種が親核種の中性子捕獲反応で生じた炉停止時の娘核種の量を燃料の初期重金属重量に対する重量割合で示している。例えば図中に示した ^{240}Pu の反応量は ^{239}Pu の中性子捕獲反応から生じている。同図において各核種の重量割合の濃縮度増加に対する傾きは負で

あり、その傾きの絶対値は質量数の大きい核種ほど大きくなる結果である。これは²³⁵U濃縮度が大きいほど第3群の中性子束が大きく減少し濃縮度が高いほど捕獲反応量が少なくなり、さらに質量数の大きい核種ほど中性子捕獲反応回数を多く経験することが重ね合わさった結果である。つまり質量数の大きい核種ほど重量割合の値は小さくなり、質量数が大きい重い核種ほど濃縮度増加に対する減少率が大きくなっている。また²⁴¹Puの生成量の減少率が²⁴⁰Puと同程度となって減少率の変化が少なく²⁴⁰Puの減少率と同程度となっているのは、²⁴⁰Puの中性子捕獲反応量が濃縮度に対する減少率が第3群の半分程度と小さい第2群の中性子束での反応が支配的となっているためである。

図4-5は、図4-4と同じ核種の減少項を示している。濃縮度増加による変化について、質量数が大きいほど値が減少し、濃縮度増加に対する傾きは質量数の増加につれて傾きが急になっている点は図4-5とほぼ同じである。

図4-6は、図4-4と図4-5と同じ核種についての残留項および²⁴¹Amの残留項についても合わせて示した。ここで残留項とは生成項から減少項を差し引いた値である。²⁴¹Amの残留項は他のTRU核種の傾向と大きく異なることを示すため、この図では新たに追加して示した。²⁴¹Am以外の核種の残留量の濃縮度に対する傾向は、濃縮度に関係なく質量数が増加するにつれて値が減少し、濃縮度増加に対する減少率は増加するというものである。この傾向は図4-4と図4-5と同じである。このように図4-6の濃縮度に対する傾向が図4-4、図4-5の傾向と同じようになるのは、減少項が核種の反応量であるのに対して生成項がひとつだけ質量数の小さい核種の反応量であるため、減少項は必ず生成項より小さく、濃縮度増加に対する減少率は大きくなる。したがって生成項と減少項の差分をとった残留項についても濃縮度が増加するほど減少し、減少率は生成項と減少項の中間の値を取る。このことから濃縮度増加に対する残留項の値と減少率の変化の傾向は生成項、減少項と同様になる。ただし²⁴¹Puのみは濃縮度に対する傾きは²⁴⁰Puとほぼ同じ程度か、やや緩やかになる点で異なる。これは先に説明したように²⁴¹Puの生成量が濃縮度増加に対する中性子束減少率が小さい第2群の中性子による²⁴⁰Puの捕獲反応により支配される一方で²⁴¹Puの消滅量が第3群の中性子による反応に支配されるため生成と消滅の量と傾きが²⁴⁰Puと²⁴¹Puで近くなるためである。²⁴¹Amの残留量の濃縮度に対する変化の傾向については²⁴¹Puと似るが、より低い方向にシフトしているという点で異なる。なお個々の核種の残留項の濃縮度変化の特性は後述するように核種ごとに大きく異なるため、それについて以下に説明する。

図4-7に²⁴¹Puの生成量、減少量、残留量をリニアスケールで反応別に示す。²⁴¹Puの残留量は、²⁴⁰Puの中性子捕獲により生成される量と²⁴¹Puの減少量の差である。ここで、²⁴¹Puのβ崩壊の寄与は図中に示されたように²⁴¹Puの中性子

捕獲と核分裂による減少量に対して比率が非常に小さい値になるため、 ^{241}Pu の総減少量は中性子捕獲反応および核分裂によって決まってくる。結果として ^{241}Pu の濃縮度に対する減少の特性は ^{240}Pu の中性子捕獲のカーブを減少方向に平行移動したようになっている。その結果、 ^{241}Pu 残留量の濃縮度度増加に対する減少率は ^{242}Pu 以上の質量数の核種と比較して小さく、減少の特性も直線的になっている。これが原因で ^{241}Pu の濃縮度上昇に対する残留量の減少率は ^{242}Pu 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm よりも小さくなっている。

図 4-8 に原子炉停止直後（黒破線）と停止後 15 年後（赤破線）の ^{241}Am の生成量、および原子炉停止直後で冷却されていない ^{241}Pu の量（黒実線）を示す。それぞれの値は ^{235}U の濃縮度は 3.8wt% の場合を 1.0 として示している。原子炉停止後の冷却期間は、日本の再処理工場の最新の許認可で燃料集合体の切断工程までの使用済燃料は 15 年以上と規定されているため、前述したように 15 年と設定した。同図より原子炉停止後 15 年経過時点での ^{241}Am の濃度変化は、 ^{241}Pu の濃度変化と一致している。なぜなら ^{241}Am は ^{241}Pu から β 崩壊（半減期 14 年）により増え、この寄与が支配的になるからである。つまり原子炉停止後 15 年経過時点では、両者は放射平衡状態になる。同図に示されているように、 ^{241}Pu の濃縮に対する減少率は小さく、 ^{241}Am は原子炉停止後 15 年後、 ^{241}Pu と放射平衡の状態になる。これらの反応により、 ^{241}Am の ^{235}U 濃縮度に対する減少の傾きは ^{241}Pu と同様の小さい値になっている。

図 4-9 に ^{243}Am の各成分の濃縮度変化を示す。同図から ^{243}Am の残留量は ^{242}Pu の生成量に支配されていることがわかる。 ^{243}Am の減少量寄与は生成量寄与より大幅に小さいため、 ^{243}Am の残留量の傾きはより顕著になっている。

図 4-10 に ^{244}Cm の各成分の濃縮度変化を示す。 ^{244}Cm の生成項は、Oizumi[13]も指摘しているように ^{243}Am の寄与によるものであり、 ^{244}Cm の減少項も大幅に小さいため、 ^{243}Am と同様に ^{244}Cm の残留量の濃縮度増加による減少率も大きくなっている。

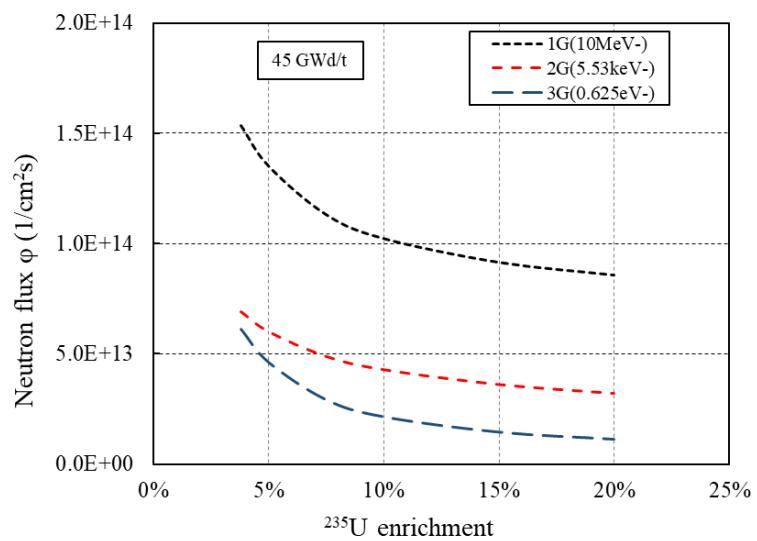


図 4-3 燃料棒中の 3 エネルギー群の中性子束の濃縮度変化

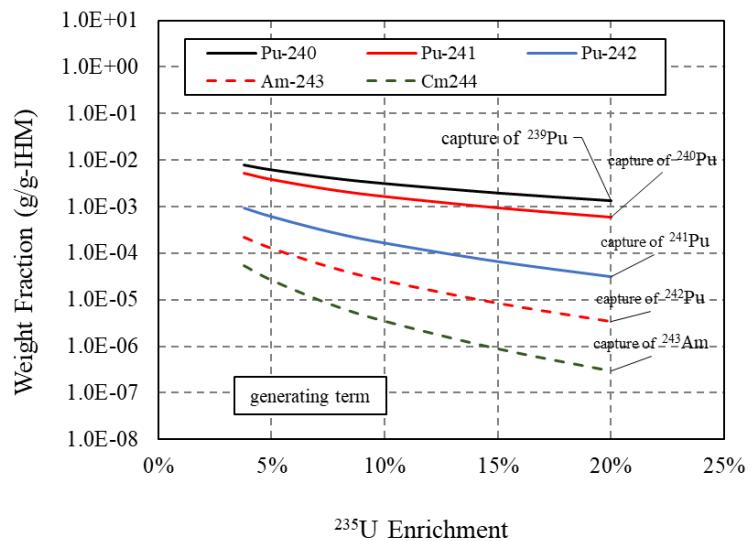


図 4-4 主要 TRU 核種の ^{235}U 濃縮度変化に伴う生成量変化

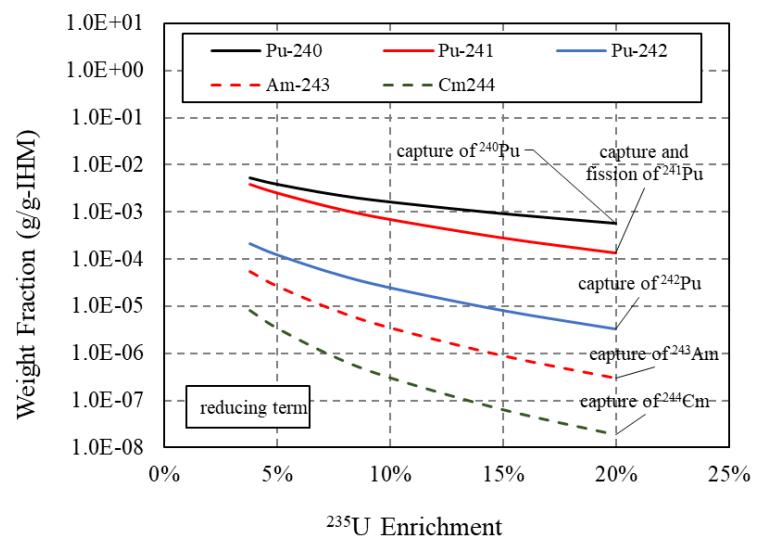


図 4-5 主要 TRU 核種の ^{235}U 濃縮度変化に伴う減少量変化

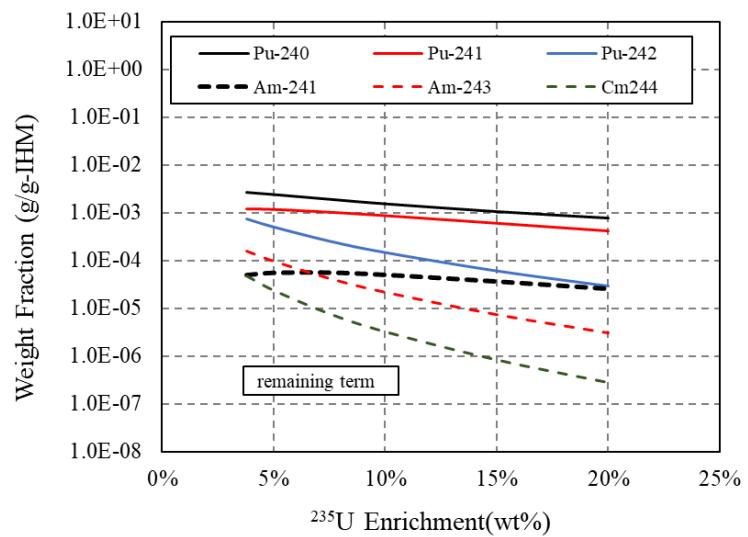


図 4-6 主要 TRU 核種の ^{235}U 濃縮度変化に伴う残留量変化

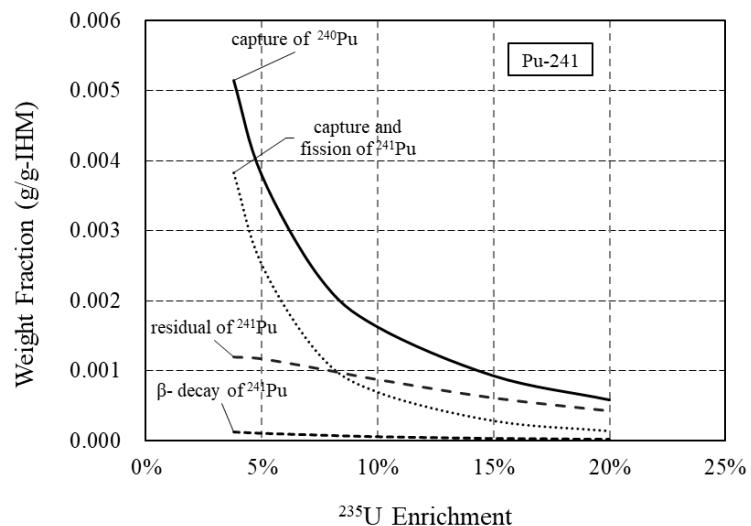


図 4-7 濃縮度変化による ^{241}Pu の関連成分の重量割合変化

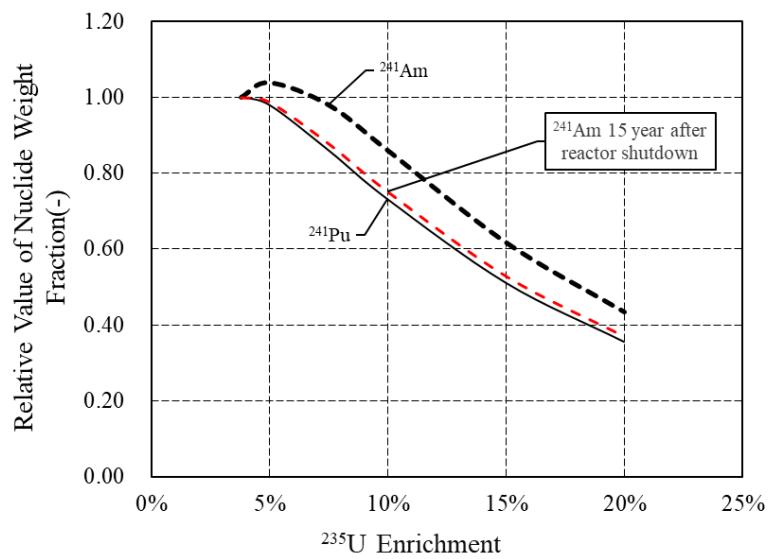


図 4-8 濃縮度変化による ^{241}Am の関連成分の重量割合相対変化

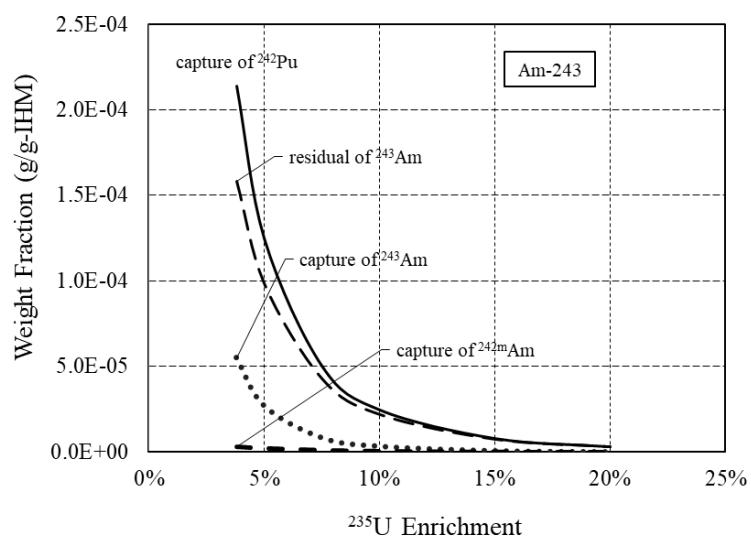


図 4-9 濃縮度変化による ^{243}Am の関連成分の重量割合変化

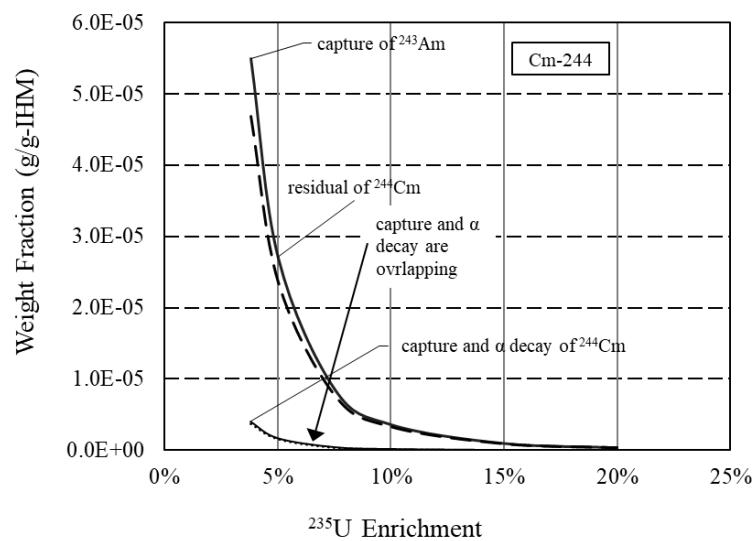


図 4-10 濃縮度変化による ^{244}Cm の関連成分の重量割合変化

4.3.2 TRU 生成低減燃料のアメリシウムとキュリウムの生成特性

原子炉停止直後の 15 年間の ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm の崩壊熱と、これらの核種の合計値を図 4-11 に示す。3 本の実線は、 ^{235}U の濃縮度増加に伴う単位初期燃料重量当たりの崩壊熱を示す。点線は、3 つの合計の値を示している。

^{235}U 濃縮度が 3.8wt% の場合は ^{241}Am と ^{244}Cm の崩壊熱はほぼ同じになる。 ^{241}Am の崩壊熱は ^{235}U 濃縮度の増加に伴い減少するが、 ^{235}U 濃縮度の値が 20wt% の場合は、崩壊熱は濃縮度 3.8wt% の場合の約 60% となる。これに対し、 ^{244}Cm の崩壊熱は大幅に減少し、20wt% の濃縮度では濃縮度 3.8wt% の場合の約 1/100 まで減少する。さらに、 ^{243}Am の崩壊熱は濃縮度に関係なく ^{244}Cm の 1/10 以下であり、ウラン濃縮度の上昇に伴う減少の程度は ^{244}Cm とほぼ同じ程度になっている。以上の通り、濃縮度の上昇に伴う ^{241}Am の崩壊熱の濃縮度増加にともなう減少率は、 ^{244}Cm や ^{243}Am の減少率よりも小さくなる。その結果、合計の総崩壊熱（破線）は ^{241}Am （赤実線）の崩壊熱に支配され、20wt% 濃縮の総崩壊熱は 3.8wt% の約 60% に減少しない。このことから合計の崩壊熱をさらに低減するためには ^{241}Am の崩壊熱成分を低減する必要がある。前の章で従来の検討例を示したように、アメリシウムは軽水炉で核変換が可能であることはすでに知られている。しかし、軽水炉でのアメリシウムの核変換では ^{243}Am から ^{244}Cm への核変換によって崩壊熱が増加してしまう可能性があった。しかし、TRU 生成低減燃料を用いることで、 ^{244}Cm の生成量を大きく低減することができることからアメリシウムの核変換を行った場合でも、合計の崩壊熱としては低減できる可能性もある。そこで以下では、TRU 減速燃料を用いたアメリシウムの核変換を行った場合の合計の崩壊熱を評価した。

図 4-12 に原子炉停止後 15 年経過後の ^{235}U の濃縮度上昇に伴うアメリシウムの主要同位体の重量割合の濃縮度変化を示す。濃縮度の上昇に伴う $^{242\text{m}}\text{Am}$ の減少の傾向は ^{241}Am の減少と同様であり、さらに $^{242\text{m}}\text{Am}$ の濃度は ^{241}Am の約 1/100 である。 ^{242}Am は半減期が 16 時間であり、高レベル放射性廃棄物の崩壊熱を考慮する必要がないため、図には示されていない。アメリシウムの核変換は同位体ごとではなく核種ごとに行うため $^{242\text{m}}\text{Am}$ も核変換の対象となるが、その濃度は上述したように ^{241}Am の約 1/100 であるため、 ^{244}Cm の崩壊熱への影響は無視できる。そこで核変換の解析では ^{241}Am と ^{243}Am のみを取り扱い、 ^{242}Am と $^{242\text{m}}\text{Am}$ の濃度はゼロとした。

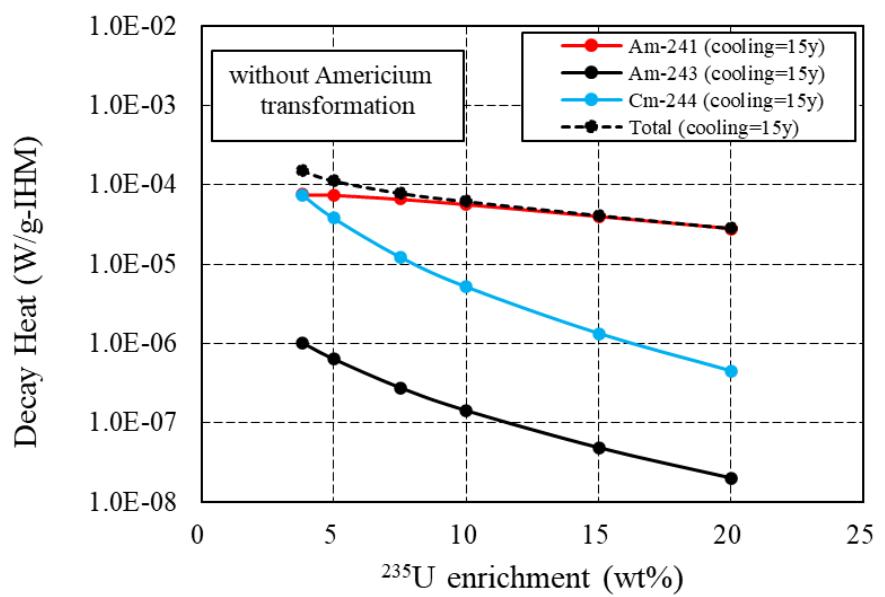


図 4-11 核変換なし時のアメリシウム核種の崩壊熱

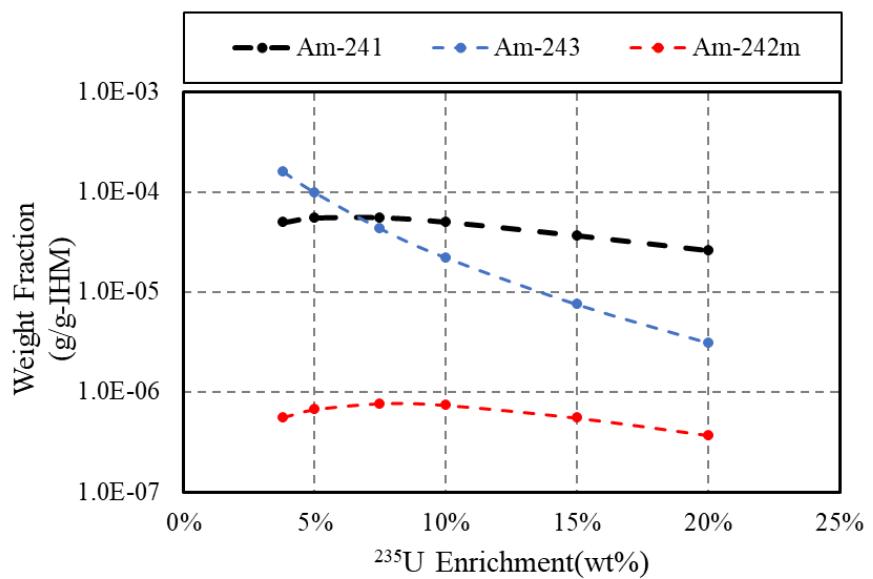


図 4-12 核変換なし時のアメリシウム同位体重量割合

4.4 アメリシウム核変換時の ^{241}Am と ^{244}Cm の崩壊熱

図 4-13 に核変換を行った場合および核変換なしの場合の ^{241}Am と ^{244}Cm の崩壊熱を比較して示す。核変換した場合については 2 ケースを示しており、それぞれの炉心に添加するアメリシウムの量は、1 炉心分の装荷（図では Am loading - x1 と表示）と 4 炉心分の装荷（Am loading - x4 と表示）とした。1 炉心装荷の場合の ^{241}Am と ^{243}Am の初期重量割合は表 4-3 に示しており、Am 装荷量 x4 の場合における核種の濃度は表示していないが、1 炉心装荷の場合の 4 倍である。

同図のオレンジ色の 3 本の線は、 ^{241}Am の崩壊熱を示している。また青色の 3 本の線は、 ^{244}Cm の崩壊熱をしている。各ケースの崩壊熱は、図 2 において黄色の四角で囲まれたアメリシウムとキュリウムの崩壊熱を炉心数で割った炉心当たりの平均値で示した。例えば、核変換を行わない場合は炉心数が 1 基であり、4 基の炉心で核変換を行う場合は 5 基である、その基数で除した平均値である。アメリシウムを核変換すると、核変換対象炉心が増えるにつれて崩壊熱の ^{241}Am 成分が減少する。例えば、濃縮度 3.8wt% の場合、核変換対象炉心が 1 基の場合と比較して、 ^{241}Am 成分は約半分になる。一方、 ^{244}Cm 成分はアメリシウム核種に含まれる ^{243}Am の核変換の影響で増加し、濃縮度 3.8wt% では ^{244}Cm 成分の崩壊熱增加の影響はかなり大きくなる。具体的には核変換を行わない場合の ^{244}Cm の崩壊熱と比較すると、x1 のケースでは約 2 倍の崩壊熱増加となる。さらに濃縮度を増加すると ^{241}Am の崩壊熱は直線的に減少し ^{244}Cm の成分は濃縮度の増加に伴い指数関数的に減少する。

次にアメリシウム核変換による崩壊熱への影響を評価するため、 ^{235}U 濃縮度增加による ^{241}Am と ^{244}Cm の合計崩壊熱の相対的な変化を調べた。濃縮度 3.8wt% でアメリシウム核変換を行わない場合の崩壊熱を基準値 100%（破線）とすると、図 4-14 に示すように、濃縮度 3.8% から 5.0wt% の範囲ではアメリシウム核変換に伴い 2 核種合計の崩壊熱は基準値に対して増加になる。濃縮度 7.5wt% では、核変換によって崩壊熱の増減がなく中立的である。さらに、10wt% 以上の濃縮度では基準値に比べて合計の崩壊熱は減少するようになる。例えば、核変換に 4 炉心分を使用する場合、濃縮度 10wt% では基準値の 30.4% まで減少し、濃縮度 20wt% では 11.5% まで減少する結果となっている。

これに対して、核変換なしの場合、崩壊熱は基準値に対してそれぞれ 41.1%、18.8% まで減少する結果である。前述の通り、濃縮度 3.8wt% の場合はアメリシウム核変換により ^{241}Am と ^{244}Cm の合計の崩壊熱はむしろ数 10% 増加となる。これに対し、TRU 生成低減燃料と核変換との両者を組み合わせた効果により一定の濃縮度以上では核変換を行わない場合よりも崩壊熱がさらに低下できる。

図 4-15 は ^{235}U 濃縮度が 10wt%、20wt% の場合について、アメリシウム添加量を 1 炉心分から 4 炉心分に 1 炉心分ずつ増加して核変換した場合の ^{241}Am と

^{244}Cm の合計の崩壊熱を炉心数で除した平均値の変化を示している。 ^{235}U の濃縮度を 10wt%、20wt%とした場合、添加するアメリシウムの量が増えるにつれて、 ^{241}Am と ^{244}Cm の崩壊熱の合計は徐々に減少するがその減少の程度は 1 炉心の分の核変換では約 10%減少であり、2 炉心以上では減少の程度が小さくなり、炉心数を多くしても効果が飽和する傾向となる。

図 4-16 は x1 ケースの ^{244}Cm 生成量と ^{241}Am 減少量の比を%単位で示している。この比は、 ^{235}U の濃縮度の上昇に伴い一様に減少する傾向を示しており、濃縮度約 7.5wt%付近を越えると 4.1%を下回るようになる。 ^{241}Am と ^{244}Cm の単位重量当たりの崩壊熱の値と関連する値を表 4-4 に示すが、単位重量当たりの崩壊熱は Q 値とアルファ崩壊の半減期から求められる値である。ここで核種の単位重量当たりの崩壊熱は、 ^{241}Am が 0.115W/g、 ^{244}Cm が 2.83W/g であり、その比は 4.1%となっている。つまり崩壊熱比が 4.1%なる濃縮度では ^{241}Am の重量割合の減少による崩壊熱の減少と、 ^{244}Cm の重量割合の増加による崩壊熱の増加が釣り合うということになる。 ^{235}U 濃縮度の 7.5wt%付近以上の濃縮度では ^{241}Am の核変換による崩壊熱の減少が ^{244}Cm による崩壊熱の増加を上回り、合計の崩壊熱は減少する。この結果は図 4-14 のアメリシウムの核変換あり x1 ケースと核変換なしの曲線が 7.5wt%付近で交差しているという結果と整合している。

なお本評価では全てのケースで可燃性毒物なしで評価を行なったが、もし可燃性毒物を添加する場合はその重量割合が数パーセントオーダーになるのに対しアメリシウム核変換で添加する ^{241}Am の重量割合はこれに比較して非常に小さい。このため核変換でアメリシウムを数炉心分添加したとしても原子炉の核特性への影響は無視できる程度に小さいと考えられる。

以上説明してきたように、既存の BWR 燃料を使用し、その濃縮度を高めるだけで TRU の崩壊熱発生量を低減できるという TRU 生成低減燃料のメリットを有するものの、TRU 崩壊熱低減において残された課題の一つであった ^{241}Am 低減効果が ^{244}Cm の低減効果に比べて低くなっていた点についても核変換も合わせて適用することで改善が可能であることがわかった。

表 4-3 核変換 x1 ケースのアメリシウム添加重量割合

(単位 IHM の wt%)

^{235}U	^{241}Am	^{243}Am
3.8	6.57×10^{-2}	1.58×10^{-2}
5.0	6.49×10^{-2}	9.82×10^{-3}
7.5	5.77×10^{-2}	4.29×10^{-3}
10.0	4.93×10^{-2}	2.20×10^{-3}
15.0	3.47×10^{-2}	7.52×10^{-4}
20.0	2.42×10^{-2}	3.11×10^{-4}

表 4-4 ^{241}Am と ^{244}Cm の単位重量あたりの崩壊熱

核種	崩壊 モード	Q 値 (MeV)	半減期 (year)	崩壊熱 (W/g)
^{241}Am	α	5.64	432.2	0.115
^{244}Cm	α	5.90	18.1	2.833

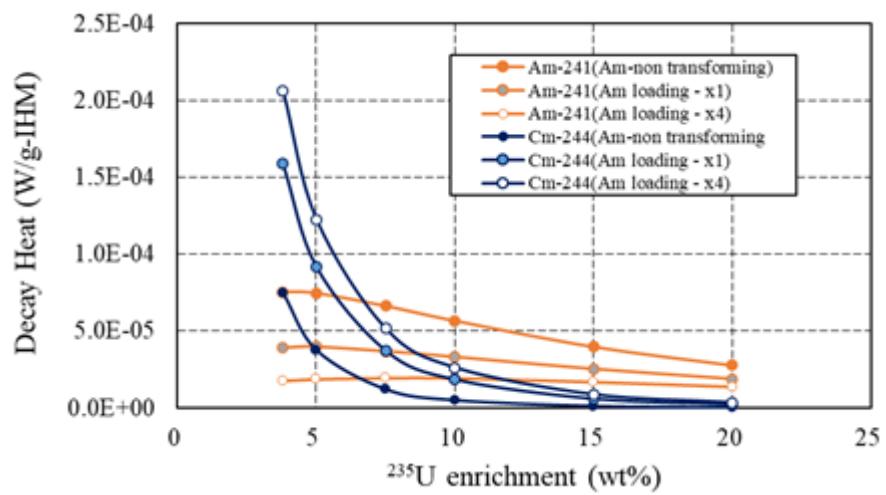


図 4-13 ²⁴¹Am and ²⁴⁴Cm 合計崩壊熱に対する核変換による影響

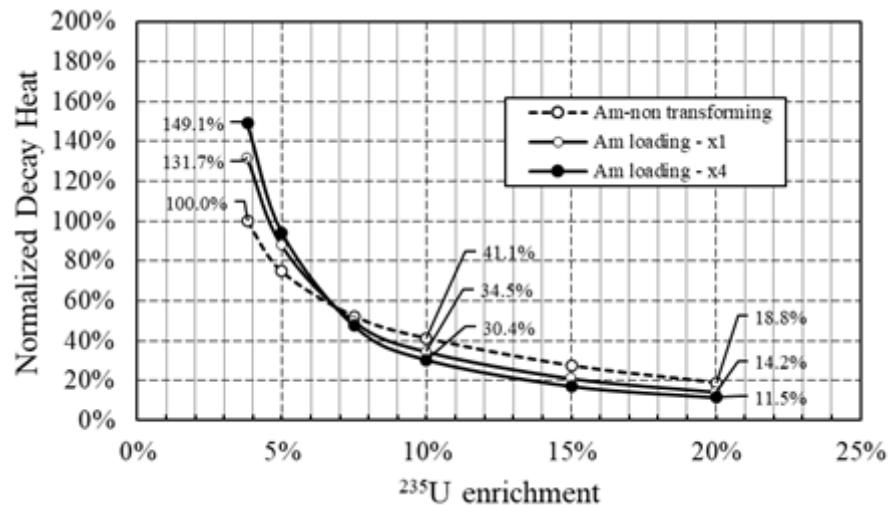


図 4-14 ^{241}Am と ^{244}Cm の合計崩壊熱の核変換による効果

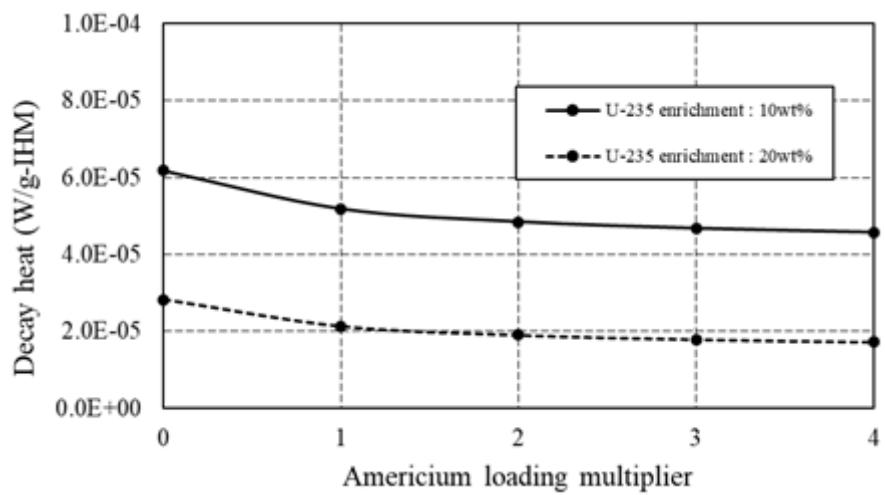


図 4-15 複数炉分を装荷した場合の核変換時の崩壊熱変化

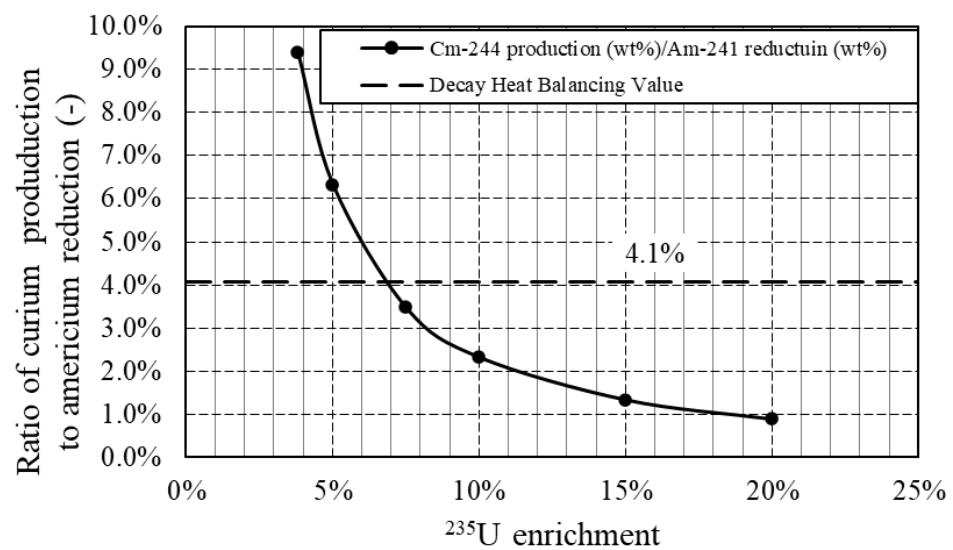


図 4-16 ^{241}Am 減少量と ^{244}Cm 増加量の比の濃縮度変化

4.5 本章のまとめ

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 ^{241}Am と ^{244}Cm の崩壊熱を低減できるかどうかを検討した。 ^{235}U の濃縮度を上昇させた TRU 生成低減燃料を用いた核変換ありの場合と核変換なしの場合について、 ^{241}Am と ^{244}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 ^{241}Am と ^{244}Cm の生成量は減少するため、両核種の崩壊熱も減少する。濃縮度の増加に対する両核種の生成量は、 ^{244}Cm では指数関数的に減少し、 ^{241}Am では直線的減少となり両者の濃縮度増加に対する減少の感度には顕著な違いがある。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、 ^{241}Am と ^{244}Cm の崩壊熱はほぼ同じになる。TRU 生成低減燃料の使用済燃料から抽出された複数の同位体を含むアメリシウム核種を同燃料に添加して核変換すると、 ^{235}U 濃縮度 3.8wt%の燃料では、 ^{241}Am と ^{244}Cm の合計の崩壊熱は核変換の結果増加となる。これは ^{243}Am の核変換から生じる ^{244}Cm の生成による崩壊熱の増加が ^{241}Am の核変換による崩壊熱の減少を上回るためである。濃縮度 7.5wt%程度では、核変換による ^{241}Am の崩壊熱の減少と ^{244}Cm の崩壊熱の増加が相殺しあう。さらに濃縮度が高くなると、核変換による ^{241}Am の崩壊熱の減少が ^{244}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ようになる。以上の結果を基準とする濃縮度 3.8wt%の場合と比較すると、濃縮度 20wt%では核変換なしでは基準の 18.8%までの低減にとどまるのに対し、核変換によって崩壊熱は基準の 11.5%まで低減できる。この崩壊熱の減少割合は FP を含めない MA のみを含むガラス固化体の廃棄物の量の減少割合にほぼ対応すると考えることができる。

4.6 本章の参考文献

- [1] Kawata, T., "Preparing for the Transition from LWR Era to FBR Era", Nippon Genshiryoku Gakkai-Shi 49 (2007), (in Japanese).
- [2] Hiraiwa, K., et al. "TRU generation suppression by HALEU fuel with fixed discharge burnup using burnable poison." The Proceedings of the International Conference on Nuclear Engineering (ICONE) 2023.30. The Japan Society of Mechanical Engineers, 2023.
- [3] Hiraiwa, K., et al. "Fade-out time shortening on radiotoxicity and decay heat using TRU generation reduction fuel." Mechanical Engineering Journal 11.2 (2024): 23-00381.
- [4] Nishihara, K., et al. "Impact of partitioning and transmutation on LWR high-level waste disposal." Journal of Nuclear Science and Technology 45.1 (2008): 84-97.
- [5] Alnassar, Nassar, et al. "Searching for an optimal fuel for a supercritical water reactor (SCWR) to dispose of minor actinides resulting from the nuclear waste." Nuclear Engineering and Technology (2024).
- [6] Mohsen, Mohamed YM, et al. "Investigating the possible advantages of using different concentrations of transuranic elements with thorium-uranium dioxide as a fuel for PBMR-400." Progress in Nuclear Energy 178 (2025): 105512.
- [7] Galahom, A. Abdelghafar, and Iman Mohamad Sharaf. "Finding a suitable fuel type For the disposal of the accumulated minor actinides in the spent nuclear fuel in PWR." Progress in Nuclear Energy 136 (2021): 103749.
- [8] Yamaji, Akifumi, et al. "The impact of americium target in-core loading on reactivity characteristics and ULOF response of sodium-cooled MOX FBR." Nuclear Technology 171.2 (2010): 142-152.
- [9] Tran, V. T., et al. "Study on transmutation of minor actinides as burnable poison in VVER-1000 fuel assembly." Science and Technology of Nuclear Installations 2019 (2019): 1-12.
- [10] Shelley, A., and Mahmud Hasan Ovi. "Use of americium as a burnable absorber for VVER-1200 reactor." Nuclear Engineering and Technology 53.8 (2021): 2454-2463.
- [11] Cumberland, Riley M., et al. *Isotopic and Fuel Lattice Parameter Trends in Extended Enrichment and Higher Burnup LWR Fuel, Volume II: BWR*. No. ORNL/TM-2020/1835. Oak Ridge National Lab.(ORNL), Oak Ridge, TN (United States), 2021.
- [12] Nuclear Regulation Authority JAPAN, "Business Permit of JNFL Rokkasho Reprocessing Facility, 2020,

(online), available from <<https://www.nra.go.jp/data/000335126.pdf>>,
(accessed on 28 August 2023)

- [13] Oizumi, A., et al. "Physical mechanism analysis of burnup actinide composition in light water reactor MOX fuel and its application to uncertainty evaluation." *Annals of Nuclear Energy* 81 (2015): 117-124.

5 結論

本研究では、既存の BWR において HALEU 燃料を適用することによる TRU 生成低減効果が得られることを見出し、さらに放射性毒性低減と高レベル放射性廃棄物の物量削減の効果について TRU 生成低減燃料を用いた下記の研究に取り組んだ。

- 1) TRU 生成低減燃料と可燃性毒物を組み合わせた場合の TRU 核種生成への影響に関する研究
- 2) 放射性毒性と崩壊熱が天然ウラン鉱石レベルまで減衰する時間短縮の効果に関する研究
- 3) ^{241}Am を TRU 生成低減燃料で核変換した場合の高レベル放射性廃棄物の低減効果に関する研究

1 番目の研究では TRU 生成低減燃料で可燃性毒物添加の TRU 生成量に対する影響を確認する検討を行った。研究の結果、濃縮度の増加にともなって可燃性毒物の添加量を増やす必要があるが余剰反応度が適切な範囲になるように可燃性毒物の添加量を調整可能であることを示した。さらにその場合に中性子束が増大することで TRU 生成低減燃料による TRU 生成低減効果をある程度損なう影響が生じることが分かったが主要な TRU の生成低減効果は大きくは変化しないことを示した。

2 番目の研究では 1 番目の研究結果を踏まえ、可燃性毒物の無い燃料を用いた場合の TRU 生成低減燃料による放射性毒性と崩壊熱が新燃料ウランと同等水準に至る期間の短縮効果を検討した。この検討によって減衰時間は放射性毒性と崩壊熱ではやや効果が異なるが 1~10 万年から数千年までの短縮効果が得られることを示した。このように ^{235}U 濃縮度のみを増加させることで再処理後に残る TRU の長期的影響を大幅に低減できることはこれまで確認されていなかった効果であり、高速炉などによる核変換を前提にせずにこのように TRU 削減効果が得られることが学会、産業界等で認知されていけば高速炉や高速炉用の再処理システムとの比較検討や導入検討が本格的に行われることも考えられる。

3 番目の研究では、 ^{241}Am を TRU 生成低減燃料によって BWR 内で核変換する場合に ^{243}Am 核変換にともなって生じる ^{244}Cm の崩壊熱の影響を補って TRU 合計の崩壊熱を低減でき、その低減効果が得られる濃縮度下限値を示すことができた。この結果は TRU 生成低減燃料と ^{241}Am 核変換を組み合わせることで高レベル放射性廃棄物の物量を減らすことを意味しており、この知見も従来知られていなかった新しいものである。

以上のように本研究で TRU 生成低減燃料を用いた燃料サイクルの評価および分析によって使用済燃料問題の大きな改善効果が得られることを示すことができた。これによって核燃料サイクルの抱える課題解決に資することができる可能性を示せた点は大きな本研究の成果と考える。

謝辞

本研究の端緒となった（株）東芝の社内研究の研究開発予算確保と研究推進に多大なご支援をいただきました柳瀬悟郎氏と東芝エネルギーシステムズ（株）相澤利枝氏に心より感謝申し上げます。

研究全般および論文投稿と学位論文執筆について有益かつ粘り強いご助言と励ましをいただきました東芝エネルギーシステムズ（株）吉岡研一博士に心より感謝いたします。

本研究の基本原理となった TRU 生成低減燃料を考案するきっかけとなった文部科学省の委託研究の推進に多大な協力をいただきました、木村礼博士、和田怜志氏、杉田宰氏、桜井俊吾氏、松宮浩志氏、山岡光明氏、高橋優也博士に深く感謝いたします。

本研究を進めるにあたり、粘り強くご指導をいただきました 大阪大学大学院 工学研究科環境エネルギー工学専攻 北田孝典教授、竹田敏准教授に深く感謝いたします。

在職中の論文投稿に関わる研究をマネージャーとしてご支援いただきました 東芝エネルギーシステムズ（株）井上史章氏に深く感謝いたします。

学位論文全体の記載に関して網羅的なご助言をいただきました原子燃料工業（株）の渡辺亮太氏に深く感謝いたします。

本研究を広く支えていただきました東芝エネルギーシステムズ（株）エネルギー・システム技術開発センター 原子力システム・量子応用技術開発部、磯子エンジニアリングセンター 原子力安全システム設計部の皆様に深く感謝いたします。