

核分裂収率に着目した核分裂生成物の発熱量低減に関する研究

大阪大学大学院 工学研究科 環境・エネルギー工学専攻

博士課程前期 1 年 山口 光

1. はじめに

原子炉で発電を行う際に発生する高レベル放射性廃棄物(HLW)は、ガラス固化体に処理し地層処分する計画となっている。ガラス固化体の体数は発熱量に依存していることから、発熱量を削減することで体数の削減、それに伴い最終処分場の面積削減が可能である。HLWはマイナーアクチニド(MA)と核分裂生成物(FP)からなる。現在、分離変換技術の進展により、MAに関しては高速炉や加速器駆動システム(ADS: Accelerator Driven System)を用いた核変換処理の見通しがすでに立っている[1]。FPの発熱はSr-90、Cs-137、これらの娘核種であるY-90、Ba-137の崩壊熱によるものである。Sr-90とCs-137は発生後の処理が困難なため、発生抑制による削減を検討した。

Sr-90とCs-137の収率に着目したところ、Sr-90は高次の核種になるほど収率が小さいことが分かった。このことから、U-235による核分裂をより高次の核種に置き換えることでFPの発熱性核種を削減できると考えた。そこで、本研究ではU-235の核分裂をより高次の核種に置き換える燃料利用や運転を行うことで、FPの発熱性核種の発生抑制し、その削減度の評価を行った。

2. 計算方法

本研究では、軽水炉でのUOX燃料とMOX燃料の燃焼によるSr-90、Cs-137の発生量の評価を行うため、計算コードCASMO-4E[2]を用いた。加圧水型原子炉(PWR)の燃料集合体を用いて燃焼計算を行った。集合体体系図を図1に示す。表1に集合体体系情報を示す。燃焼計算よりSr-90とCs-137の発生量を求め、その結果から発熱量を評価した。この時の運転条件を表2に示す。

本研究では、

- ・同じ反応度を持つMOX燃料の利用
- ・スペクトルを硬くしU-238のPu-239の転換・燃焼を促進する運転(スペクトルシフト運転)

によってU-235の代わりにPu-239、Pu-241を多く燃焼させた。この2ケースについて、UOX燃料を用いて通常運転したものと比較し、削減率の評価を行った。

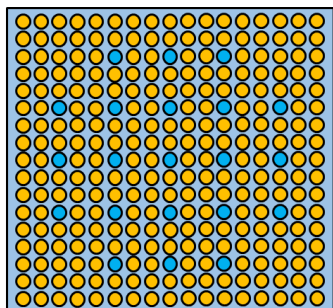
2つ目のケースに関しては20GWd/tでスペクトルシフトをして運転したものを対象とし評価を行った。スペクトルシフト運転とは、燃焼期間の途中で減速材量を変え、スペクトルを変える運転のことである[3]。反応度の高い運転サイクルの前半においては炉心内の減速材量を減少させ、低減速状態を作る。この状態では、中性子の減速効果が若干弱まり、炉心内の熱中性子が減少し、余剰反応度が低下するとともにプルトニウムの生成が促進される。燃焼中盤で炉心内の減速材量を増やし、熱中性子の割合を増やす。これにより残存しているウランと生成されたプルトニウムが効率よく核分裂する。

PWRでは、減速材調整制御棒を用いて減速材を減少させている。本研究では、水素原子数対重金属原子数比(H/HM)が通常状態では4.3、低減速状態では1.2となるよう水密度を調整し計算を行った

表1 PWR 集合体体系情報

燃料棒	
燃料棒ピッチ	1.2
燃料棒外径	0.475
燃料棒内径	0.410
集合体配列ピッチ	21.50

[単位: cm]



● 燃料棒 ● 案内シムル

図1 PWR 燃料集合体体系図

表 2 PWR 運転条件

燃料本数	17×17-25	
境界条件	完全反射	
断面積ライブラリ	ENDF/B-IV	
出力密度	104.5	
原子炉圧力	155	
燃料温度 [K]	900	
減速材温度 [K]	600	
減速材密度[g/cm ³]	通常状態(H/HM=4.3)	0.649
	低減速状態(H/HM=1.2)	0.713

3. 計算結果

UOX 燃料を用いて通常運転したもの、MOX 燃料を用いて通常運転したもの、同じ UOX 燃料を用いてスペクトルシフト運転をしたものの 3 ケースでの Sr-90、Cs-137 による発熱量とその合計、その削減率を表 3 に示す。

表 3 60 GWd/t における発熱量とその削減率

	UOX [W/t]	MOX [W/t]	シフト 20 [W/t]	削減率 (M-U)/U	削減率 (シ-U)/U
Sr-90	2.07.E+03	1.06.E+03	1.94.E+03	-48.6%	-6.0%
Cs-137	1.30.E+03	1.31.E+03	1.30.E+03	0.9%	0.0%
合計	3.37.E+03	2.37.E+03	3.24.E+03	-29.5%	-3.7%

4. 考察

4.1 MOX 燃料

熱中性子による Sr-90 と Cs-137 の累積収率を表 4 [4]に示す。これを踏まえ、組成の違いによる影響を見るため、UOX 燃料と MOX 燃料の核分裂への核種毎寄与率を確認した。図 2、3 に UOX 燃料と MOX 燃料の各燃焼度における核分裂への核種毎寄与率を示す。燃焼を通じての核種毎寄与率において、UOX 燃料と MOX 燃料におけるプルトニウムの寄与率は MOX 燃料の方が約 55%高い。これは MOX 燃料の利用により U-235 の核分裂が Pu-239、Pu241 の核分裂に置き換わったためである。この核分裂への核種の寄与率の差が Sr-90 の削減につながったといえる。Cs-137 に関しては核分裂性核種による収率の差が小さいため、発生量への影響がほとんどなかったと考えられる。

表 4 熱中性子による Sr-90 と Cs-137 の累積収率

	Sr90	Cs137
U-233	6.647	6.2
U-235	5.73	6.221
Pu-239	2.013	6.588
Pu-241	1.51	6.28
(U-238)	(3.07)	(5.02)

(U-238 は主に核分裂を起こす高速中性子による累積収率)

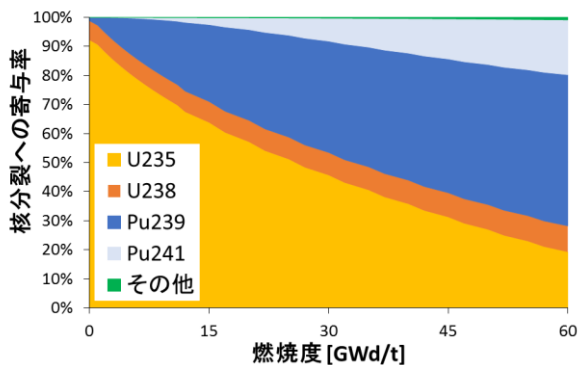


図 2 各燃焼度における UOX 燃料の核分裂への核種毎寄与率

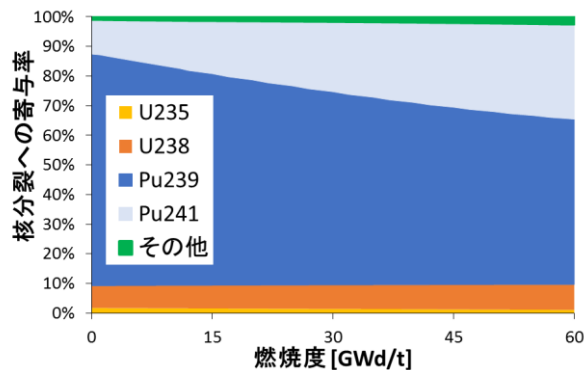


図 3 各燃焼度における UOX 燃料の核分裂への核種毎寄与率

4.2 スペクトルを硬くし U-238 の Pu-239 の転換・燃焼を促進する運転

まず通常運転時とスペクトルシフト運転時の各燃焼度における初期装荷燃料中の重金属に対する Pu-239 の重量割合を図 4 に示す。これより、スペクトルシフト運転によって U-238 から Pu-239 への転換がより多く起こっていることがわかる。また同時に U-235 の消費を抑制していることが分かった。

次に核分裂への核種毎寄与率を確認した。図 5 にスペクトルシフト運転時の各燃焼度における核分裂への核種毎寄与率を示す。前節で示した図 2 と比較すると、スペクトルシフト運転時は、スペクトルが硬くなっている 0~20 GWd/t において U-238 と Pu-239 が多く核分裂に寄与していることがわかる。スペクトルをシフトした後の 20~60 GWd/t においてはさらに多くの Pu-239 が核分裂に寄与していた。燃焼を通じての核種毎寄与率において、通常運転時とスペクトルシフト運転時におけるプルトニウムの寄与率はスペクトルシフト運転時の方が約 5% 高い。また、U-238 の寄与率が約 4% 高くなっていた。この核分裂への核種の寄与率の変化が Sr-90 の削減につながったといえる。

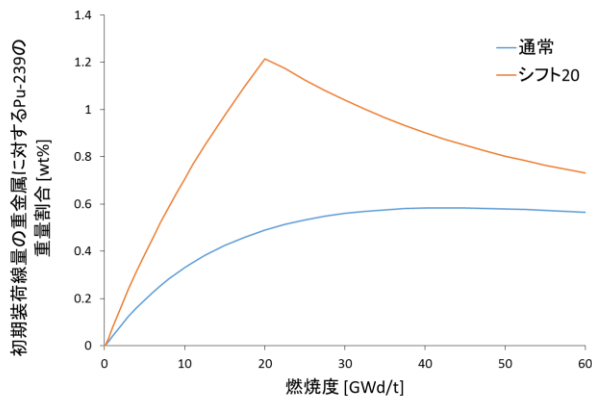


図 4z 初期装荷燃料中の重金属に対する Pu-239 の重量割合

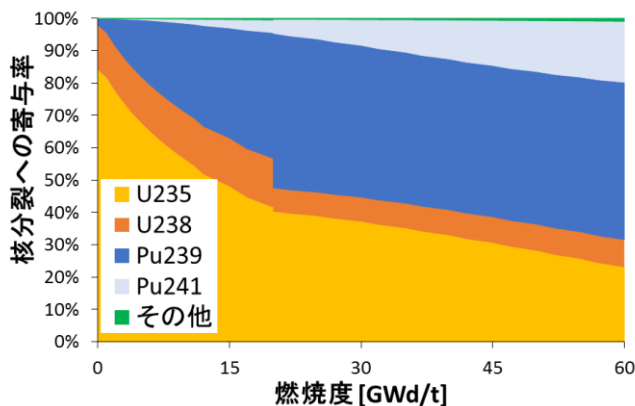


図 5 各燃焼度におけるスペクトルシフト運転時の核分裂への核種毎寄与率

5. 結論

本研究では、既存の原子炉を用いてFPによる発熱量の削減について検討を行った。核分裂収率に着目したところ、Cs-137は主な核分裂性核種においてほとんど差がなかったが、Sr-90は核種の原子番号が大きいほど収率が小さくなっていることが分かった。このことから、U-235の核分裂を抑制し、より高次の核種による核分裂を促進することでSr-90の削減を行った。

まずPu-239、Pu-241による核分裂を促進するために、MOX燃料を用いた削減法を検討した。PWRにおいて同じ運転条件、体系で同じ反応度を持つUOX燃料とMOX燃料を用いた時のFPの発熱性核種による発熱量の評価を行った。MOX燃料を利用することで、UOX燃料を利用した時と比べ、U-235の核分裂がPu-239、Pu-241に置き換わることで、プルトニウムが約55%多く核分裂した。その結果、Sr-90による発熱量は48.6%、総発熱量で29.5%の削減ができた。この検討よりUOX燃料においても燃焼が進むにつれてプルトニウムによる核分裂への寄与率が大きくなっていることが分かった。

UOX燃料においてより多くのプルトニウムを核分裂させるため、スペクトルシフト運転に着目した。スペクトルシフト運転は燃焼初期において減速材量を減らすことでU-238のPu-239への転換を促し、燃焼中盤で減速材量を戻すことで発生したプルトニウムを核分裂させるというものである。PWRにおいて同じ体系・燃料を利用し、通常運転をしたものと20GWd/tでスペクトルシフト運転したものの比較を行った。スペクトルシフト運転を行うことでU-235の核分裂がU-238、Pu-239に置き換わることで、通常運転時と比べプルトニウムが約5%多く核分裂した。その結果、Sr-90による発熱量は6.0%、総発熱量で3.7%の削減ができた。

参考文献

- [1] 大井川 宏之, “放射性廃棄物の核変換技術への挑戦-日本原子力研究開発機構,” JAEA, 18 2 2014. [オンライン]. Available: <https://www.jaea.go.jp/04/tokai/forum2014/oigawa.pdf>. [アクセス日: 2017/2/6].
- [2] Studsvik Scandpower, Inc., *CASMO-4 A FUEL ASSEMBLY BURNUP PEOGRAM User's Manual*, 2009.
- [3] 福井県原子力安全対策課, “敦賀発電所 3、4号機の安全性の確認について 本文1,” [オンライン]. Available: <http://www.atom.pref.fukui.jp/turu34/report-1p-28p.pdf> [アクセス日: 2017/10/1].
- [4] IAEA, “Nuclear Data for Safeguards,” [オンライン]. Available: <https://www-nds.iaea.org/sgnucdat/c3.htm>. [アクセス日: 2017/2/6].