

軽水炉高燃焼度使用済み燃料の核種組成および 線源強度の評価とその計算解析に及ぼす核データの 影響に関する研究

学位論文内容の要旨

現在、商用再処理施設の建設が進められているが、再処理施設の処理能力を超えた分の使用済み燃料は、中間貯蔵施設で再処理されるまでの期間、貯蔵・管理される。また、軽水炉発電が今後とも長期にわたり重要なエネルギー供給源を担っていくことにより、再処理で回収されるプルトニウムは、軽水炉で MOX 燃料として有効利用される。そのため、今後は高燃焼度の使用済みウラン燃料及び MOX 燃料についても中間貯蔵施設で貯蔵・管理していく必要がある。これらの燃料は従来の燃焼度の燃料に比較して、発熱量やガンマ線・中性子放出量が増加するため、その計算予測精度の把握と向上が必要である。また、中間貯蔵施設の臨界安全解析では、新燃料の燃料組成を仮定して保守的な反応度評価を行っており、高燃焼度ウラン燃料や MOX 燃料の場合には、一層保守的な設計となり、燃料の燃焼を考慮した合理的な評価が必要である。本研究は、高燃焼度ウラン燃料や MOX 燃料について、線源評価や臨界安全解析に使用できるガンマ線や中性子放出量、使用済み燃料中の核種組成データを取得し、さらに計算によるこれらの量の比較評価、計算精度の向上方法を検討したものである。

線源については、使用済み燃料棒の軸方向に沿った ^{106}Ru , ^{134}Cs , ^{137}Cs の γ 線測定を実施して分布データを取得した。さらに、ORLIBJ32 を用いた ORIGEN2.1 計算で求めた γ 線強度に自己遮へい係数を乗じることで、PWR-UO₂ 及び PWR-MOX 燃料では、 ^{137}Cs は 13% 以内、 ^{134}Cs 及び ^{106}Ru は 20% 以内で測定値に一致した。燃料ペレット半径方向の γ 線源分布については、セシウムの移動に伴う $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ γ 線強度比の減少を確認した。この強度比の減少から情報を引き出すために ^{133}Cs , ^{134}Cs , ^{137}Cs に関する簡易生成チェーンを作成して、セシウム移動の解析を行い、セシウム移動開始燃焼度及び移動割合と $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ γ 線強度比との相関を明らかにし、セシウムの移動が生じた燃焼度と、その時の移動割合の推定方法を提案した。燃料棒軸方向の中性子放出率については、測定値と ORLIBJ32 を用いた ORIGEN2.1 による中性子放出率の計算値との比較から、中性子放出率を過小に計算評価することがわかった。

核種組成分析については、高燃焼度 PWR-UO₂ 燃料棒から、燃焼度 64.7, 52.8, 60.0, 63.5 MWd/kgHM の 4 試料、PWR-MOX 燃料棒から、燃焼度 46.0, 46.6 MWd/kgHM の 2 試料について核種組成分析を実施し、アクチニド核種は、ウラン、ネプツニウム、プルトニウム、アメリカシウム、キュリウムの核種組成データを取得し、核分裂生成核種は、ルビジウム、ストロンチウム、イットリウム、ルテニウム、アンチモン、セシウム、ランタン、セリウム、プラセオジウム、ネオジウム、プロメチウム、サマ

リウム、ユーロピウム、ガドリニウムの核種組成データを取得した。統合化燃焼計算コード SWAT と評価済核データライブラリ JENDL-3.2, JENDL-3.3, ENDF/B-VI.5, ENDF/B-VI.8, JEF-2.2 および JEFF-3.0 を用いて、PWR-UO₂ 及び PWR-MOX 燃料の単一格子体系の計算を行い、核種生成量の計算値と分析値の比 (C/E) で整理して、計算精度を把握した。

核分裂生成核種については、使用済み燃料中で γ 線源や崩壊熱に寄与する重要な核種、燃焼度の指標として利用される核種及び生成量の大きい核種のうち、C/E から生成量の計算精度が低い核種として、⁸⁸Sr, ⁹⁰Sr, ⁸⁹Y, ¹⁰⁶Ru, ¹³³Cs, ¹³⁴Cs, ¹³⁵Cs, ¹⁴⁴Nd を抽出し、精度向上の対象核種とした。これらの核種の簡易燃焼計算チェーンを作成し、生成量に対する核分裂収率および捕獲断面積の感度係数を求め、大きな感度係数を有する生成経路の絞り込みを行った。さらに対象核種の生成量に大きな感度を有する核種を決定し、核分裂収率や捕獲断面積の補正量を感度係数から求めた。この補正と生成経路上の各核種の生成挙動を検討した結果、⁸⁸Sr, ⁹⁰Sr, ¹⁰⁶Ru は自分自身を生成する核分裂収率の補正によって生成量が改善することを示した。⁸⁹Y, ¹⁴⁴Nd は、その先行核種である ⁸⁹Sr 及び ¹⁴⁴Ce の核分裂収率の補正によって生成量が改善した。¹³³Cs, ¹³⁴Cs の場合には主に ¹³³Xe の核分裂収率に、¹³⁵Cs の場合には ¹³⁵Xe の核分裂収率または捕獲断面積の補正によって生成量が改善した。ライブラリ間の比較では、ENDF/B-VI.5 と JEF-2.2 で計算した ¹⁵⁴Eu の捕獲断面積は、他のライブラリの捕獲断面積に比較して小さいため、その C/E を過大に評価し、¹⁵⁴Eu の β 崩壊によって生成する ¹⁵⁴Gd にも影響を与えて過大に評価する結果となった。ENDF/B-VI.5 で計算した ¹⁵⁵Eu の捕獲断面積は、他のライブラリで計算した捕獲断面積よりも大きく、一方、¹⁵⁴Eu の捕獲断面積は他のライブラリの捕獲断面積に比較して小さい。これが原因で ENDF/B-VI.5 で計算した ¹⁵⁵Eu の生成量は小さくなり、C/E を過小に評価した。¹⁵⁵Gd は ¹⁵⁵Eu の β 崩壊で生成するため、¹⁵⁵Eu の生成量の影響を受けて過小に評価した。

アクチノイド核種については、ORIGEN 及び SWAT コードを用いて、C/E を求めた。使用済み燃料の主な中性子源である ²⁴⁴Cm の生成量は、両計算結果とも約 20% 過小評価した。そのためアクチノイド核種の簡易燃焼計算チェーンを作成し、捕獲断面積及び核分裂断面積に対する感度係数を求めた。²⁴⁴Cm の生成に影響を与える核種として、文献などを参考に ²⁴³Am, ²⁴⁰Pu 及び ²⁴¹Pu 各々の捕獲断面積に 16.3, 5, 5% の補正を行った結果、²⁴⁴Cm 生成量が改善することを示した。この結果から、²⁴³Am だけではなく、プルトニウムの捕獲断面積も再評価することで ²⁴⁴Cm の計算精度は向上し、中性子放出率も改善すると考えられる。また、出力履歴が核種生成量に与える影響を調べるために、PWR-UO₂ 燃料を対象に、詳細出力履歴と一定出力履歴による燃焼計算を実施し、炉心取り出し直後、1 年冷却後、2 年冷却後の核種の生成量を比較した。その結果、^{242m}Am の生成量に 1% の差異があった。²⁴¹Am, ¹⁵⁵Gd は、炉心取出時に 1~4% の差異があるが、冷却が進むにつれて出力履歴に対する依存性が少ない核種からの β -崩壊の寄与が増し、差異が減少した。また、¹³⁵Cs, ¹⁴⁹Pm, ¹⁴⁹Sm, ¹⁵⁵Sm は燃焼の最終ステップの出力レベルに対して大きな依存性をもつことを明らかにした。

本研究で取得したデータは、中間貯蔵施設設計への燃焼度クレジットの導入、合理的な遮へいや臨界安全評価及び使用済み燃料の健全性に重要となる熱解析評価に利用できるものであり、次世代軽水炉の設計等に使用する炉心計算コードの燃焼計算精度の検証や廃棄物処分、原子炉の事故時のソースターム評価精度の向上にも利用できるものである。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 鬼 柳 善 明
副 査 教 授 島 津 洋 一 郎
副 査 教 授 板 垣 正 文

学 位 論 文 題 名

軽水炉高燃焼度使用済み燃料の核種組成および 線源強度の評価とその計算解析に及ぼす核データの 影響に関する研究

軽水炉発電が今後とも長期にわたり重要なエネルギー供給源を担っていくと考えられており、再処理で回収されるプルトニウムは、軽水炉で MOX 燃料として有効利用される。そのため、高燃焼度の使用済みウラン燃料及び MOX 燃料は再処理されるまでの間、中間貯蔵施設で貯蔵・管理していく必要がある。これらの燃料は従来の燃焼度の燃料に比較して、発熱量やガンマ線・中性子放出量が増加するため、その計算予測精度の把握と向上が必要である。また、中間貯蔵施設の臨界安全解析では、新燃料の燃料組成を仮定して保守的な反応度評価を行っており、今後、燃料の燃焼を考慮した合理的な評価をすべきである。本研究は、高燃焼度ウラン燃料や MOX 燃料について、線源評価や臨界安全解析に使用できるガンマ線や中性子放出量、使用済み燃料中の核種組成データを取得し、さらに計算によるこれらの量の比較評価、計算精度の向上方法を検討したものである。

線源については、使用済み燃料棒の軸方向に沿った ^{106}Ru , ^{134}Cs , ^{137}Cs の γ 線強度分布データを取得した。さらに、ORLIBJ32 を用いた ORIGEN2.1 計算で求めた γ 線強度に透過係数を乗じることで、PWR- UO_2 及び PWR-MOX 燃料では、 ^{137}Cs は 13% 以内、 ^{134}Cs 及び ^{106}Ru は 20% 以内で測定値に一致していることを示した。燃料ペレット半径方向の γ 線源分布については、セシウムの移動に伴う $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ γ 線強度比の減少を確認した。セシウムに関する簡易生成チェーンを作成して、セシウム移動開始燃焼度及び移動割合と $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ γ 線強度比との相関を明らかにし、セシウムの移動が生じた燃焼度と移動割合の推定方法を提案している。燃料棒軸方向の中性子放出率については、測定値と計算値との比較から、高燃焼度においても計算値は過小に評価することを明らかにしている。

核種組成分析については、高燃焼度 PWR- UO_2 燃料棒から、燃焼度 52.8, 60.0, 63.5, 64.7MWd/kgHM の 4 試料、PWR-MOX 燃料棒から、燃焼度 46.0, 46.6MWd/kgHM の 2 試料について核種組成分析を実施し、17 種のアクチニド核種と約 40 種の核分裂生成核種についての核種組成データを取得している。統合化燃焼計算コード SWAT と評価済核データライブラリ JENDL-3.2, JENDL-3.3, ENDF/B-VI.5, ENDF/B-VI.8, JEF-2.2 および JEFF-3.0 を用いて、PWR- UO_2 及び PWR-MOX 燃料の単一格子体系の計算を行い、核種生成量の計算値と分析値の比 (C/E) で整理し

て、計算精度を把握している。

核分裂生成核種については、使用済み燃料中で γ 線源や崩壊熱に寄与する重要な核種、燃焼度の指標として利用される核種及び生成量の大きい核種のうち、C/E から生成量の計算精度が低い核種を抽出し、計算精度向上のために、簡易燃焼計算チェーンを作成し、生成量に対する核分裂収率および捕獲断面積の感度係数を求め、大きな感度係数を有する生成経路の絞り込みを行っている。さらにこれらの核種の生成量に大きな感度を有する核種を決定し、核分裂収率や捕獲断面積の補正量を感度係数から求めた結果、 ^{88}Sr , ^{90}Sr , ^{106}Ru は自身を生成する核分裂収率の補正によって、また、 ^{89}Y , ^{144}Nd は、その先行核種である ^{89}Sr 及び ^{144}Ce の核分裂収率の補正によって、さらに ^{133}Cs , ^{134}Cs の場合には主に ^{133}Xe の核分裂収率の補正によって、 ^{135}Cs の場合には ^{135}Xe の核分裂収率または捕獲断面積の補正によって生成量が改善することを明らかにしている。

アクチニド核種については、SWAT コードを用いて C/E を求めた。使用済み燃料の主な中性子源である ^{244}Cm の生成量は約 20% 過小評価となっていた。そのためアクチニド核種の簡易燃焼計算チェーンを作成し、捕獲断面積及び核分裂断面積に対する感度係数を求めている。 ^{244}Cm の生成に影響を与える核種として、 ^{243}Am , ^{240}Pu 及び ^{241}Pu 各々の捕獲断面積に 16.3, 5, 5% の補正を行った結果、 ^{244}Cm 生成量が改善することを示した。この結果から、 ^{243}Am だけではなく、プルトニウムの捕獲断面積も再評価することで ^{244}Cm の計算精度は向上し、中性子放出率も改善出来ることを示した。

これを要するに、著者は高燃焼度ウランおよび MOX 使用済み燃料について核種組成と線源分布を測定し、計算結果と比較検討することによって、中間貯蔵施設等の核及び熱設計に重要なデータを得ると共に計算予測精度の向上策についても提言しており、原子力工学の発展に大きく貢献した。よって著者は、北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格あるものと認める。