

中性子吸収材による使用済み核燃料における 潜在的放射性毒性の低減



研究ノート

竹田 敏*

Suppression of Potential Radiotoxicity on Spent Fuel by Neutron Absorber

Key Words : Potential radiotoxicity, Neutron absorber, Spent fuel

はじめに

原子力発電所の利用に関し、大きな関心事の一つは使用済み燃料における放射性毒性である。特に、核燃料サイクルの議論においては、しばしば潜在的放射性毒性を指標として用いている。潜在的放射性毒性とは、経口摂取した場合の被ばく量に相当する。使用済み燃料における潜在的放射性毒性を低減するためには、使用済み燃料に含まれているプルトニウムやアメリシウムなどを核変換により低減させることが現実的な方法として考えられる。このような背景もあり、これまで国内外の多くの研究者が、効率的に核変換をすることが可能な原子炉を検討してきた。

核変換のための原子炉として、まずは高速炉が挙げられる。軽水炉と比較し、高速炉ではより多くの中性子を核変換のために用いることができる。高速炉は核変換以外の観点でもメリットがあり、数多くの種類の高速炉が提案されてきた。日本においては、特にナトリウム冷却型原子炉が検討されてきた。日本で最初に建設された高速炉である常陽や、原型炉であるもんじゅがナトリウム冷却型高速炉である。ナトリウム冷却型高速炉の大規模な利用が可能となれば、効果的に核変換を行うことができ、使用済み燃料における潜在的放射性毒性を大幅に低減することができるだろう。一方で、もんじゅは既に廃炉が

決定されており、現状としては新しいナトリウム冷却型高速炉の建設は予定されていない。

核変換を目的として、加速器駆動システムも検討されている。加速器駆動システムとは、加速器により加速された陽子をターゲットに照射し、核破砕により発生した中性子を未臨界の炉心で増倍させ、得られる中性子を核変換等に用いるシステムである。一般的な軽水炉や高速炉と異なり、運転中でも炉心は未臨界であるため、原子炉の暴走に対する余裕が大きいことが特徴である。加速器駆動システムでも使用済み燃料における潜在的放射性毒性を大幅に低減できると考えられ、多くの国で開発が進められている。

一方で、現在日本でも商業的に用いられている軽水炉においても潜在的放射性毒性を低減する検討が進められている。軽水炉からは潜在的放射性毒性の高い使用済み燃料が出るが、この使用済み燃料における潜在的放射性毒性を少しでも低減しよう、という試みである。一つの研究成果として、ウラン濃縮度を上げることでウラン燃料の使用済み燃料における潜在的放射性毒性を低減できるということがわかった¹⁾。ただし、ウラン濃縮度を上げると、燃料の反応度が増えるため、そのままでは燃料として利用することはできない。そこで、本研究では、燃料の反応度を抑え、かつ使用済み燃料における潜在的放射性毒性をさらに低減できる中性子吸収材を検討する。

潜在的放射性毒性の大きい核種とその生成経路

原子炉から取り出して100年程度までは、ウラン濃縮度の高い燃料の使用済み燃料における潜在的放射性毒性において、超ウラン核種の中ではPu238とPu241が支配的となる。そこで、これらの核種の生成経路に注目する。図1にウラン、ネプツニウ



* Satoshi TAKEDA

1986年9月生まれ
現在、大阪大学大学院 工学研究科
環境・エネルギー工学専攻
助教 博士(工学) 原子炉物理
TEL : 06-6879-7902
FAX : 06-6879-7903
E-mail : takeda@see.eng.osaka-u.ac.jp

ム、プルトニウムの燃焼チェーンを示す。プルトニウムはβ崩壊によりアメリシウムを生成するが、アメリシウムやさらに原子番号の大きい核種はPu238およびPu241の生成に大きな影響を与えないため省略している。

まず、Pu238の生成経路を確認する。ウラン濃縮度の高い燃料の場合、U235 → U236 → U237 → Np237 → Np238 → Pu238の生成経路が支配的である。この生成経路は反応別に示すと、U235の捕獲反応、U236の捕獲反応、U237のβ崩壊、Np237の捕獲反応、Np238のβ崩壊で構成される。β崩壊を抑制することは実質的に不可能であるため、Pu238の生成抑制には、U235、U236、Np237の捕獲反応を抑制する中性子吸収材が望ましい。

Pu241については、U238 → U239 → Np239 → Pu239 → Pu240 → Pu241の生成経路が支配的となる。この生成経路は反応別に示すと、U238の捕獲反応、U239のβ崩壊、Np239のβ崩壊、Pu239の捕獲反応、Pu240の捕獲反応で構成される。β崩壊を抑制することが困難であることをふまえると、Pu241の生成抑制には、U238、Pu239、Pu240の捕獲反応を抑制する中性子吸収材が望ましい。

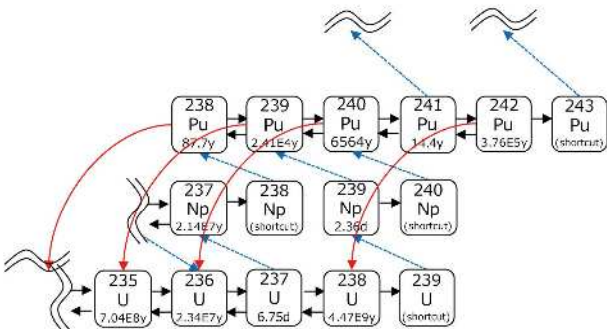


図1 U・Np・Puの燃焼チェーン

中性子吸収材が反応率に与える影響

生成経路を確認した結果、Pu238の生成を抑制するためにはU235、U236、Np237の捕獲反応を抑制すること、Pu241の生成を抑制するためにはU238、Pu239、Pu240の捕獲反応を抑制することが望ましいとわかった。そこで、中性子吸収材がこれらの捕獲反応率に与える影響を調査する。

図2に示すBWRを模擬したピンセル体系に対し、モンテカルロ計算コードMVP²⁾を用いて評価する。

境界条件は反射、ボイド率は40%、高温全出力状態とする。母材となる燃料としては、潜在的放射性毒性を抑えるために濃縮度を高めた10 wt% ウラン燃料を用いる。中性子吸収材の添加量は10 wt% ウラン燃料の無限増倍率が4 wt% ウラン燃料と同程度になるように調整する。中性子吸収材として添加する核種はサマリウム、ユーロピウム、ガドリニウム、ディスプロシウム、エルビウムの核種とする。

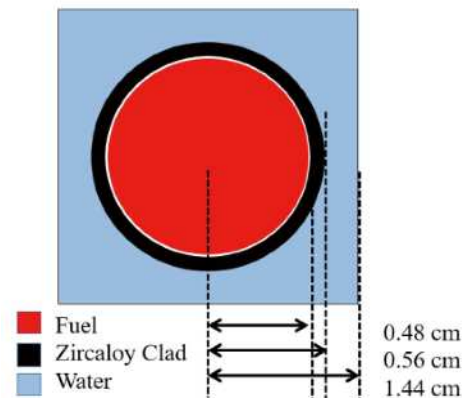
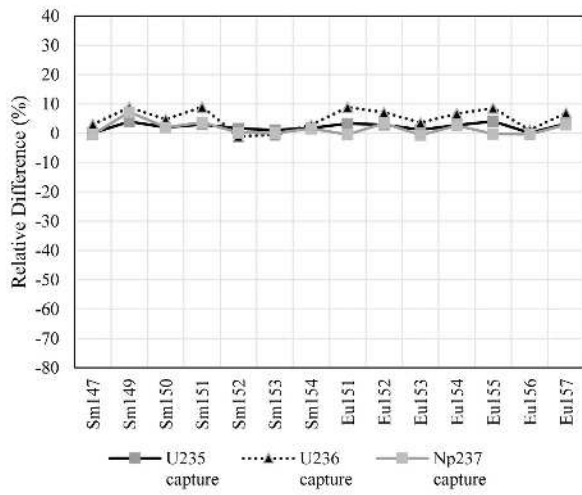


図2 反応率を評価するピンセル体系

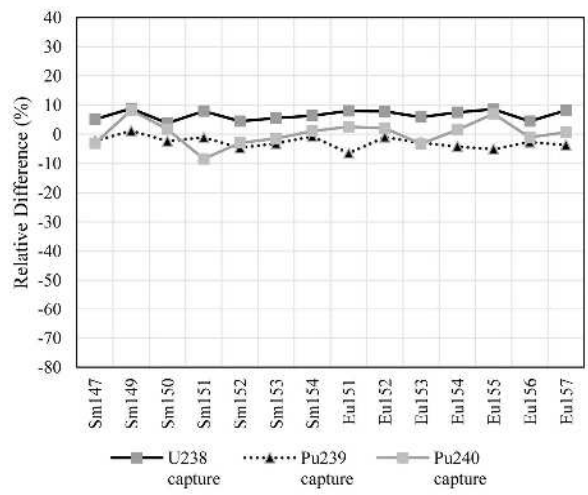
Pu238の生成に寄与するU235、U236、Np237の捕獲率を図3に示す。この捕獲率は生成率で規格化している。図3より、Dy162、Er162を添加する場合にU236の捕獲率を大きく低減できることが確認できる。

Pu241の生成に寄与するU238、Pu239、Pu240の捕獲率を図4に示す。図3と同様に、捕獲率は生成率で規格化している。図4より、U238、Pu239、Pu240の捕獲率を大きく抑えることのできる核種は調査した範囲では存在しないことがわかった。

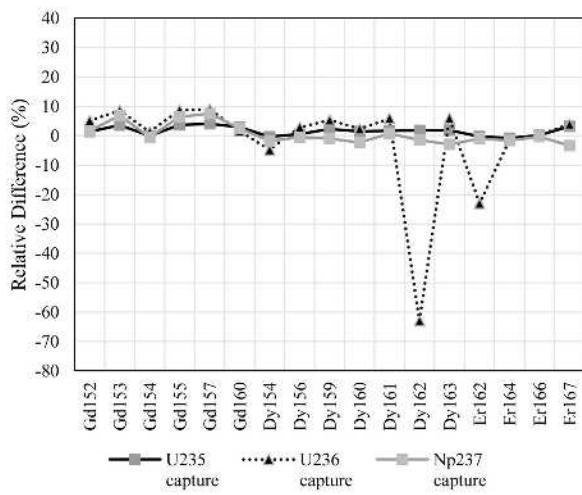
Dy162とEr162を添加した場合にU236の捕獲率を低減できた理由を議論するため、U236との断面積の比較を図5に示す。U236は主に約5.5eV付近の中性子に対して捕獲反応をおこなすが、図5より同じ約5.5eV付近にDy162とEr162の共鳴が存在することが確認できる。約5.5eV付近の中性子をDy162やEr162が捕獲しやすいことから、Dy162やEr162を添加するとU236に捕獲される約5.5eV付近の中性子の割合が減少し、U236の捕獲率が低減されるのである。



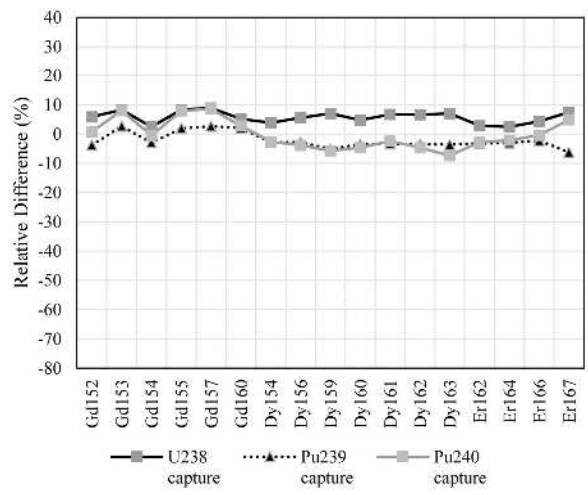
(a) Sm, Eu



(a) Sm, Eu



(b) Gd, Dy, Er



(b) Gd, Dy, Er

図3 中性子吸収材を添加した場合の Pu238 の生成に寄与する捕獲率

図4 中性子吸収材を添加した場合の Pu241 の生成に寄与する捕獲率

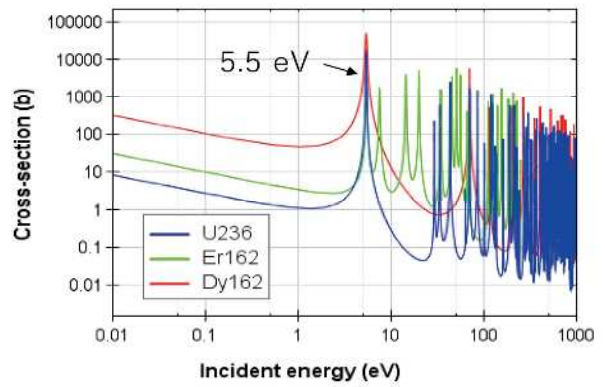


図5 U236・Dy162・Er162の捕獲断面積

まとめ

本稿では、使用済み核燃料における潜在的放射性毒性を低減するための中性子吸収材に関する研究内容をまとめた。使用済み燃料における潜在的放射性毒性を低減する方法の一つとして、ウラン濃縮度を上昇させる方法が提案されているが、その場合は反応度を低下させるために中性子吸収材を添加する必要がある。そこで、中性子吸収材を添加することで潜在的放射性毒性をさらに低減させることを目的とし、潜在的放射性毒性の寄与の大きいPu238およびPu241の生成経路を整理し、その生成経路における反応を抑制する中性子吸収材を調査した。調査の結果、Pu238の生成に寄与するU236の捕獲反応について、Dy162およびEr162は反応抑制効果があることが明らかになった。U236は約5.5eVの中性子を捕獲する割合が高く、Dy162およびEr162はこ

の約5.5eVの中性子を捕獲することでU236の捕獲を抑えるためである。

参考文献

- 1) S. Wada, R. Kimura, S. Sakurai, K. Hiraiwa, K. Yoshioka, T. Sugita, "Reduced-radiotoxicity-production system by increasing initial and residual fuel enrichment," Chengdu, China, Reactor Physics Asia 2017, August 24-25, (2017).
- 2) Y. Nagaya, K. Okumura, T. Mori, M. Nakagawa. "MVP/GMVP II: General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations Based on Continuous Energy and Multigroup Methods," Japan Atomic Energy Research Institute. JAERI 1348, (2005).

