

TCA 使用済燃料の放射能量及び線量率の評価について

1. 概要

TCA の使用済燃料を NUCEF 施設の U 保管室で貯蔵するに当たり、使用済燃料に蓄積している核分裂生成物（以下「FP」という。）の放射能量及び線量率を評価する。

また、酸化トリウム燃料要素（以下「トリウム燃料」という。）については、主に ^{232}Th の娘核種である ^{208}Tl に由来するエネルギーの高い（約 2.6 MeV） γ 線による線量率を評価する。MOX 燃料については、 ^{241}Pu の崩壊により生成する ^{241}Am による低エネルギー（約 0.06MeV） γ 線による線量率を評価する。

2. 現在の TCA における使用済燃料の管理状況

TCA は最大熱出力 200W の臨界実験装置であり、約 50 年に亘る運転の総積算出力は約 14kWh である。これは ^{235}U の核分裂数に換算して 1.6×10^{18} であり、約 0.63 mg の ^{235}U が核分裂した場合のエネルギーに相当する。

上記のとおり、TCA は出力が小さいことから冷却設備を有していない。また、運転による燃料の消耗が極めて小さいため、設置許可書においても最高燃焼度に係る記載がない（燃料の消耗は無視できる旨の記載あり）。

TCA の使用済燃料は、現在、TCA の貯蔵室において 11 基の燃料要素格納容器に分割して保管されている。燃料の保管状況及び室内の線量率を図 1 に示す。

当該燃料要素格納容器は縦横 63cm×63cm、高さ 2m のアルミニウム製であり、遮へい及び冷却の機能は有していない。燃料要素格納容器の外観を図 2 に示す。

保管された燃料は年に数回、手作業により数量確認及び外観点検を実施している。作業場所における最大線量率は約 $30 \mu\text{Sv/h}$ である。これらの作業 1 回当たりの作業時間は 1 時間～2 時間であり、その際の点検作業員の被ばく量は $10 \mu\text{Sv}$ 程度である。今後、TCA 使用済燃料を NUCEF 施設で貯蔵する場合においても、現在の TCA における管理と同様の管理を行うことから、作業員の被ばく量についても、同等になる。

3. FP の放射能量、崩壊熱及び線量率の評価

3.1 FP の放射能量評価

- (1) 燃料内に蓄積された FP の放射能量は、ORIGEN-S により算出した。
- (2) 評価に当たっては、核分裂生成物の放射能量を保守的に見積もるため、総積算出力 (13,923Wh) 分の運転を最大熱出力 200W で連続 (約 70 時間) して行った後、約 6 年間 冷却するものとした。(2017 年 3 月末における F P の放射能量を評価)

(3) TCA の使用済燃料は酸化ウラン燃料 (1723 本)、MOX 燃料 (104 本)、酸化トリウム燃料 (30 本) の 3 種類である。本評価では、保守的な条件として使用済燃料の全量がこれまでの全ての運転で炉心に装荷されていたものとして評価するため、燃料の種類ごとに 1 炉心当たりの燃料中に含まれる FP 量を評価し、その結果を使用済燃料の全量に適用して合算することとした。

FP 量 = 1 炉心当たりの燃料中に含まれる FP 量 × (燃料貯蔵量 / 1 炉心当たりの燃料量)

評価の結果、運転終了後約 6 年経過時 (2017 年 3 月末) において、使用済燃料中に有意な量 (1Bq 以上) が残存する FP 核種を表 1 に示す。ここで、 ^{90}Sr - ^{90}Y 、 ^{106}Ru - ^{106}Rh 、 ^{137}Cs - $^{137\text{m}}\text{Ba}$ は放射平衡の状態にあるものとする。

3. 2 FP の崩壊熱の評価

FP 核種から放出される放射線のエネルギーが、全て熱エネルギーとして 1kg のアルミ被覆管に吸収されたと仮定した場合の温度の上昇率を次式により求めた。

$$T_x = A_x \times E_x \times 1.602 \times 10^{-19} / C_{AL} \times 2678400$$

温度の上昇率 T_x (°C/月)

核種 X の放射エネルギー A_x (Bq)

核種 X の 1 壊変当たりの放出エネルギー E_x (eV)

$$1\text{eV} = 1.602 \times 10^{-19} \text{ (J)}$$

アルミ被覆の比熱 C_{AL} : 896 (J / (kg · K))

1 ヶ月 = 2678400 (秒)

評価の結果を表 1 に示す。温度の上昇は、放熱を考慮しない場合でも 1 ヶ月で約 0.53°C であり、FP の崩壊熱の除去は不要である。

3. 3 FP による線量率の評価

使用済燃料中に残存する FP からの γ 線による線量率について評価する。

FP 核種を点線源としたときの距離 1 m の評価点における線量率は、次式により求めた。

実効線量換算係数は γ 線のエネルギーの関数であり、参考文献 [1] の記載のデータを補間して求めた。燃料ペレット及び棒状燃料収納容器の構造材による遮へいは考慮しないものとした。

$$E_{FP} = \frac{S}{4\pi r^2} \sum_{i=1}^{11} \epsilon_i (E/\phi)_i \cdot 3600$$

E_{FP} : 評価点の線量率 ($\mu\text{Sv/h}$)

S : 線源の放射能 (MBq)

r : 線源から評価点までの距離 (100 cm)

ϵ_i : γ 線 i の放出割合 (表 1 参照)

$(E/\phi)_i$: γ 線 i の実効線量換算係数 (表 1 参照) (pSv cm²)^[1]

評価の結果を表 1 に示す。ただし、これらは 1853 本の燃料に蓄積された FP の総量をまとめて点線源とした場合の評価結果である。実際には 9 基の燃料収納容器に分けて収納するため、収納容器 1 基当たりの FP による線量は、約 3.1 μ Sv/hとなる。

表 1 TCA 使用済燃料中の FP から放出される放射線^{[2][3]}

No	核種	放射エネルギー (MBq)	エネルギー (MeV)	放出割合 (%)	実効線量換算係数 (pSv cm ²)	線量率 (μ Sv/h)	温度上昇率 (°C/月)
1	⁸⁵ Kr	26.7	0.514 (γ 線)	0.43	2.5316	0.008	2.83E-05
2	⁸⁵ Kr		0.687 (β 線)	99.57	—	—	8.75E-03
3	⁹⁰ Sr	244	0.546 (β 線)	100	—	—	6.38E-02
4	⁹⁰ Y	244	2.279 (β 線)	99.99	—	—	2.66E-01
5	¹⁰⁶ Ru	21.1	0.0394 (β 線)	100	—	—	3.98E-04
6	¹⁰⁶ Rh	21.1	2.03 (β 線)	1.5	—	—	3.08E-04
7	¹⁰⁶ Rh		2.46 (β 線)	9.7	—	—	2.41E-03
8	¹⁰⁶ Rh		3.08 (β 線)	8.4	—	—	2.61E-03
9	¹⁰⁶ Rh		3.54 (β 線)	79.3	11.0800	5.314	2.84E-02
10	¹⁰⁶ Rh		0.512 (γ 線)	19.0	2.5383	0.292	9.83E-04
11	¹⁰⁶ Rh		0.616 (γ 線)	0.82	2.9790	0.015	5.10E-05
12	¹⁰⁶ Rh		0.622 (γ 線)	9.79	3.0040	0.178	6.15E-04
13	¹⁰⁶ Rh		0.874 (γ 線)	0.45	4.0109	0.011	3.97E-05
14	¹⁰⁶ Rh		1.051 (γ 線)	1.6	4.6682	0.045	1.70E-04
15	¹⁰⁶ Rh		1.128 (γ 線)	0.42	4.9412	0.013	4.79E-05
16	¹⁰⁶ Rh	1.562 (γ 線)	0.17	6.3343	0.007	2.68E-05	
17	¹³⁷ Cs	275	0.511 (β 線)	94.6	—	—	6.37E-02
18	¹³⁷ Cs		1.173 (β 線)	5.4	—	—	8.34E-03
19	^{137m} Ba	275	0.662 (γ 線)	89.9	3.1642	22.422	7.84E-02
合計						28.3	0.525

4. トリウムによる線量の評価

- (1) トリウムの量を保守的に評価するため、トリウム燃料の1本あたりの最大量である 1400 g を 1500 g と設定し、総量を 45 kg (160.5 MBq) とした。
- (2) γ 線源は ^{232}Th の他、トリウム系列の娘核種のうち高エネルギーの γ 線を出す ^{228}Ra 、 ^{212}Pb 及び ^{208}Tl を評価対象とした。娘核種はすべて放射平衡に達しているものとした。評価する γ 線エネルギー等を表 2 に示す。

表 2 トリウム燃料から放出される γ 線^[2]

No	核種	エネルギー (MeV)	放出割合 (%)	実効線量換算係数 (pSv cm ²)
1	^{232}Th	0.0638	16	0.3881
2	〃	0.141	0.021	0.7075
3	^{228}Ra	0.0877	0.0044	0.4682
4	〃	0.101	0.0012	0.5212
5	^{212}Pb	0.239	43.3	1.1989
6	〃	0.300	3.28	1.5100
7	^{208}Tl	0.277	6.3	1.3932
8	〃	0.511	22.6	2.5197
9	〃	0.583	84.5	2.8369
10	〃	0.861	12.4	3.9657
11	〃	2.615	99.2	8.9943

トリウム点線源から距離 1 m の評価点における線量率は、次式により求めた。
 実効線量換算係数は γ 線のエネルギーの関数であり、参考文献 [1] の記載のデータを補間して求めた。また、燃料ペレット及び棒状燃料収納容器の構造材による遮へいは考慮しないものとした。

$$E_{Th} = \frac{S}{4\pi r^2} \sum_{i=1}^{11} \epsilon_i (E/\phi)_i \cdot 3600$$

E_{Th} : 評価点の線量率 (Sv/h)

S : 線源の放射能 (MBq)

- r : 線源から評価点までの距離 (100 cm)
 ε_i : γ 線 i の放出割合 (表 2 参照)
 $(E/\phi)_i$: γ 線 i の実効線量換算係数 (表 2 参照) (pSv cm²)^[1]

評価の結果、トリウム点線源から距離 1 m において、線量率は 60 μ Sv/h となった。

5. MOX燃料による線量の評価

TCA使用済燃料のうち、全てのMOX燃料の²⁴¹Puの重量を合計すると□gである。これらが全て²⁴¹Amに壊変したと仮定すると、□MBqに相当する。

前出のトリウム点線源の線量評価と同様の考え方で線量率を評価すると、²⁴¹Am点線源から距離 1 m において、線量率は□ μ Sv/hとなった。しかしながら、²⁴¹Amの γ 線エネルギーは低いことから、燃料ペレットによる自己遮蔽効果が大きく、実測値では収納容器表面において130 μ Sv/h (トリウム燃料からの線量を含む)程度である。PuO₂燃料ペレットの直径は約1cmであり、²⁴¹Amの低エネルギー γ 線を遮蔽するに十分なものと推察される。参考として、²⁴¹Amからの γ 線の実効線量透過率(鉛の場合)を表4に示す。

なお、Am241はPu241(半減期約14年)の壊変で今後も増加するが、燃料受入後約44年が経過した現時点でPu241の約88%が壊変しているため、Am241による今後の線量率増加は約12%程度にとどまり、全体の線量率に大きな影響を与えることはない。

表3 MOX燃料から放出される γ 線^[3]

No	核種	エネルギー (MeV)	放出割合 (%)	実効線量換算係数 (pSv cm ²)
1	²⁴¹ Am	0.02635	0.24	0.3881
2	〃	0.05954	35.7	0.7075

表 4 (参考) ^{241}Am からの γ 線の実効線量透過率 [1]

鉛の厚さ (cm)	実効線量透過率
0	1.00
0.01	6.00E-1
0.02	3.58E-1
0.03	2.13E-1
0.04	1.26E-1
0.05	7.49E-2
0.07	2.63E-2
0.1	5.51E-3
0.15	4.28E-4
0.2	4.04E-5
0.25	6.20E-6
0.3	1.66E-6
0.35	5.81E-7
0.4	2.20E-7
0.45	8.48E-8

6. まとめ

TCA 使用済燃料の全量がこれまでの全ての運転で炉心に装荷されていたものとした保守的な条件で FP の放射エネルギーを評価した結果、温度の上昇は放熱を考慮しない場合でも約 $0.5^\circ\text{C}/\text{月}$ と小さく、冷却の必要がないことを確認した。また、FP からの γ 線による線量率について評価した結果、収納容器 1 基当たりの線量上昇は約 $3.1\mu\text{Sv/h}$ と小さいことを確認した。

しかしながら、トリウム燃料及び MOX 燃料からの放射線による線量率の上昇が見込まれるため、U 保管室の遮へい区分を区画Ⅲ ($\leq 60\mu\text{Sv/h}$) から区画Ⅳ ($> 60\mu\text{Sv/h}$) に変更する必要があると判断した。

6. 参考文献

- [1] 放射線施設のしゃへい計算実務マニュアル、財団法人 原子力安全技術センター (2007)
- [2] アイソトープ手帳第 11 版、社団法人 日本アイソトープ協会 (2011)
- [3] 放射線データブック 地人書館 (1982)

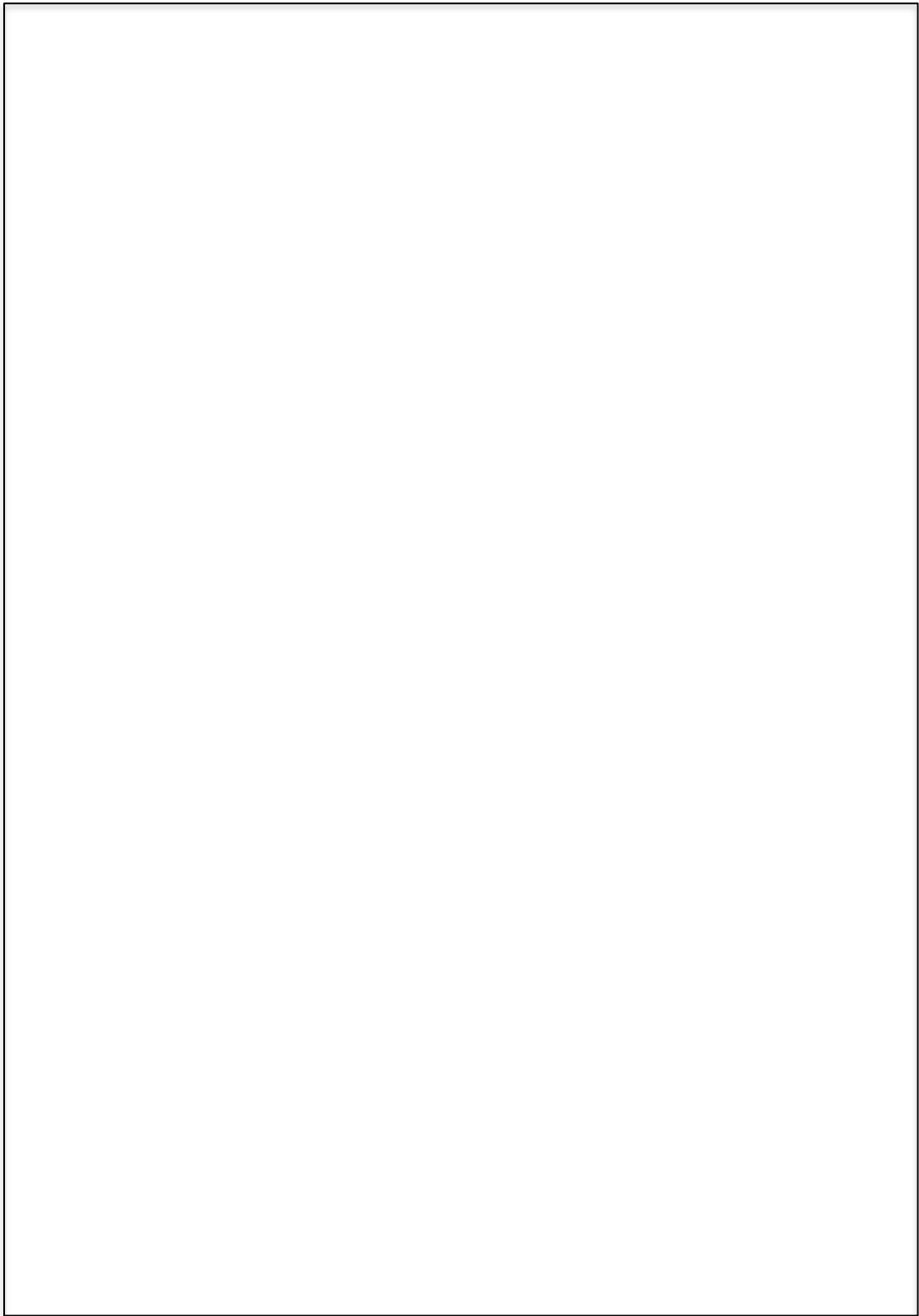


図 1. TCA における使用済燃料の保管状況及び線量率

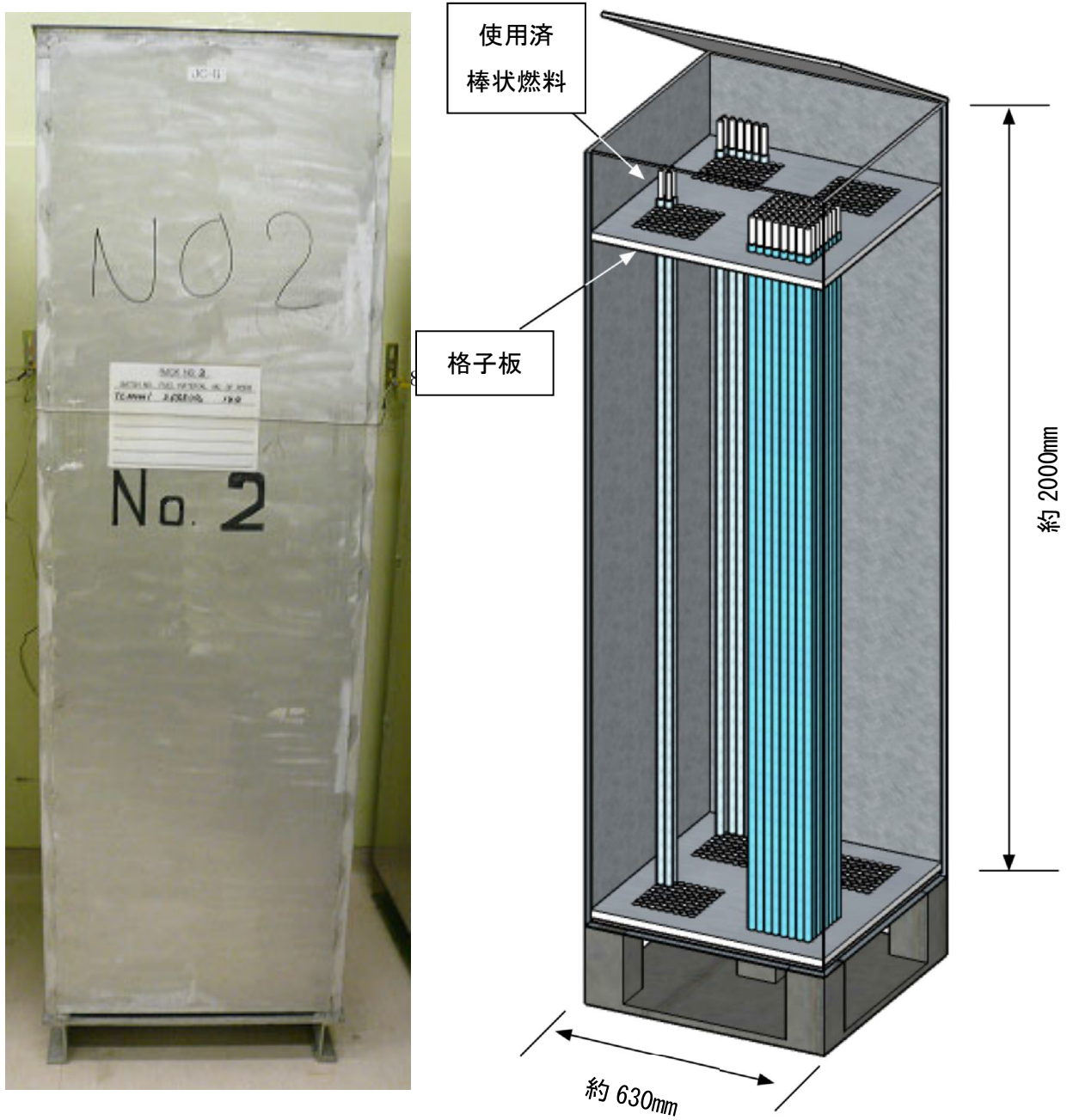


図 2. TCA 燃料要素格納容器（既設）の概要