

使用済燃料直接処分における放射性核種の瞬時放出率設定手法の構築

北村暁*1 赤堀邦晃*1,*2 長田正信*1

使用済燃料の深地層中への直接的な処分（直接処分）とは、使用済燃料を再処理せず処分容器に封入して処分する概念である。使用済燃料からの放射性核種の放出挙動はガラス固化体を地層処分した場合とは大きく異なる。本論文では、直接処分における核種の放出挙動を評価するためのパラメータのひとつである瞬時放出率（IRF）について、諸外国の最新の安全評価報告書を基に、核分裂生成ガス放出率（FGR）と相関関係がある元素に対する値の設定手法を構築した。FGRについては、わが国の使用済燃料に対して取得されたデータを収集したうえで、軽水炉燃料解析コード FEMAXI-7 を使用して推奨値と最大値を算出した。また、算出した FGR や諸外国で取得された IRF 実測値を用いて、わが国の加圧水型原子炉（PWR）の使用済燃料における IRF の推奨値と最大値を推定し、諸外国の最新の安全評価報告書の設定値と比較検討した。

Keywords: 使用済燃料直接処分、核種放出挙動、瞬時放出率（IRF）、核分裂生成ガス放出率（FGR）、軽水炉燃料解析コード FEMAXI-7

Direct disposal of spent nuclear fuel (SNF) in deep underground repositories (hereafter “direct disposal”) is a concept that disposal canisters stored fuel assemblies dispose without reprocessing. Behavior of radionuclide release from SNF must be different from that from vitrified glass. The present study established a methodology on determination of instant release fraction (IRF) of radionuclides from SNF, which is one of the parameters on radionuclide release based on the latest safety assessment reports in other countries, especially for IRF values proportional to a fission gas release ratio (FGR). Recommended and maximum values of FGR have been estimated using the fuel performance code FEMAXI-7 after collecting FGR values on Japanese SNFs. Furthermore, recommended and maximum values of IRF for Japanese SNFs used in a pressurized water reactor (PWR) have been estimated using the presently obtained FGR values and experimentally obtained IRF values on foreign SNFs. The recommended and maximum IRF values obtained in the present study have been compared with those of the latest safety assessment reports in other countries.

Keywords: direct disposal of spent nuclear fuel, radionuclide release behavior, instant release fraction (IRF), fission gas release ratio (FGR), Light Water Reactor Fuel Analysis Code FEMAXI-7

1 はじめに

わが国では使用済燃料の全量を再処理し、ウランとプルトニウムを抽出した後の高レベル放射性廃液をガラス固化したうえで、地下 300 m 以深の地層中に処分することが定められている（特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律、平成十二年六月七日法律第百十七号（最終改正：平成二十六年六月十三日法律第六十九号））。一方で、使用済燃料を再処理せず直接処分容器に封入して深地層中に処分（以下、直接処分）することなどについて、「幅広い選択肢を確保し、柔軟な対応を可能とする観点から、使用済燃料の直接処分など代替処分オプションに関する調査・研究を着実に推進する」といったことも求められている（エネルギー基本計画（平成 30 年 7 月 3 日閣議決定）および特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針（平成 27 年 5 月 22 日閣議決定））。このことから、代替処分オプションの検討のひとつとして、使用済燃料の直接処分のための処分システムの設計と安全性の評価が求められている。

使用済燃料の直接処分において、処分容器の核種閉じ込め性能が喪失した際の核種の放出挙動は、ガラス固化体とは大きく異なる。燃料集合体に含まれる放射性核種とその分布状況を Fig.1 (after [1]) に示す。すべてのアクチニド元素および約 98 % の核分裂生成物は、主に酸化物として UO_2

マトリクス中に固溶しており[2]、 UO_2 マトリクスと調和的に溶解するものと考えられる (Fig.1 中に青字で記した各元素)。また、使用済燃料ペレット内のいたるところに金属状の放射性核種も存在すると考えられる[1]。マトリクス部分やリム部に含まれる放射性核種については、その放出速度は比較的遅いものと考えられる[1]。一方、気体状および揮発性核種や、ギャップおよび粒界に存在する核種 (Fig.1 中に赤字で記した各元素) は比較的速やかに放出されると考

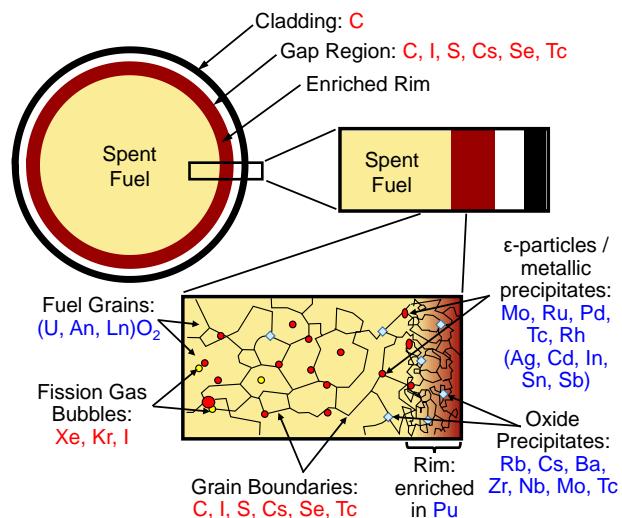


Fig.1 Schematic illustration of the microstructure of spent fuel and the distribution of actinides, fission and activation products following burn-up in a reactor (after [1]).

Red labels indicate nearly instantaneous release upon contact with water; blue indicates slower release rates. An = actinides and Ln = lanthanides in solid solution in the UO_2 matrix.

Development methodology on determination of instant release fractions for generic safety assessment for direct disposal of spent nuclear fuel by Akira KITAMURA (kitamura.akira@jaea.go.jp), Kuniaki AKAHORI and Masanobu NAGATA

*1 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
Japan Atomic Energy Agency
〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

*2 三菱マテリアル株式会社
Mitsubishi Materials Corporation
〒330-8508 埼玉県さいたま市北袋町 1-297
(Received 28 September 2020; accepted 17 November 2020)

えられることから、瞬時放出成分として取り扱われている。放出される核種の量に対する瞬時放出成分の割合を瞬時放出率 (IRF: Instant Release Fraction) と呼び、直接処分の安全評価におけるパラメータのひとつとなっている。

使用済燃料直接処分の研究開発に関する平成 25 年度までの現状の技術レベルと課題をとりまとめた「直接処分第 1 次取りまとめ」[3]では、代表ケースとした加圧水型原子炉 (PWR) 使用済燃料 (燃焼度 45 GWd/MTU, 原子炉からの取り出しから処分開始まで貯蔵期間として 50 年を想定) の処分システムに近いイスの Opalinus Clay Project (EN2002) 報告書[2]の IRF 設定値をそのまま採用した。しかしながら、燃料ペレットや燃料集合体の構造材の成分などは原子炉の型式によって異なる上、燃料の照射環境 (燃焼度、出力など) が原子炉ごとに異なることから、諸外国の設定値をそのまま採用することには慎重であるべきであり、わが国の照射環境に応じた設定を行うことが重要である。

わが国は使用済燃料を全量再処理する方針であるため、これまでに深部地下水への核種の溶出を想定した IRF の評価は実施されていない。その一方で、商用原子炉燃料の健全性を確認する観点から、燃料棒 1 本あたりから放出される核分裂生成ガス (主にクリプトン (Kr) やキセノン (Xe)) の生成量に対する放出量を表す核分裂生成ガス放出率 (FGR: Fission Gas Release rate) については、国内燃料に対しても使用済燃料の特性評価を目的として使用されている。諸外国における直接処分の安全評価報告書 (たとえば[2]) では、高温の原子炉内において揮発する可能性がある Cl-36, I-129, Cs-135, Cs-137 などの核種について、IRF が FGR と相關することが指摘されている。すなわち、一部の核種の IRF を設定するためには、FGR もパラメータとして設定することが必要であると言える。

以上を踏まえ、本論文では FGR と相關関係がある元素に対する IRF の設定を行うことに着目し、諸外国で公開されている最新の報告書類を参考にしつつ設定手法を構築することとした。また、構築した手法を用いて、国内燃料の照射後試験 (PIE: Post Irradiation Examination) で得られている FGR データなどをもとに、「直接処分第 1 次取りまとめ」[3]において代表ケースとして設定した PWR 使用済燃料を例として、FGR および IRF を設定することとした。あわせて、FGR と相關関係がない元素の IRF についても、諸外国の設定値を参考に設定することとした。さらに、いずれの IRF についても、推奨値だけではなく最大値も評価することとした。ただし、わが国における使用済燃料について、公開されている FGR データの代表性や網羅性についても十分な情報が得られていないこと、また処分量や将来の発生数の予測について十分な公開データがないことから、本論文で設定する FGR や IRF は「暫定値」に位置づけることとした。

2 諸外国における IRF 設定の最新状況

使用済燃料の直接処分を推進している国はスウェーデン、フィンランド、カナダなどがあり、そのほか海外再処理委

託の凍結によるガラス固化体との併置処分が検討されているイス、将来的な政策変更への対処などを念頭に置いているフランスなどが検討を進めている。このうちスウェーデンでは、2011 年 3 月に実施主体のスウェーデン核燃料・廃棄物管理会社 (SKB) が使用済燃料最終処分場の立地・建設許可申請書を政府に提出し、その後審査手続きが続いている。フィンランドでは、実施主体である Posiva 社が 2012 年 12 月に使用済燃料最終処分場の建設許可申請書を政府に提出し、その後 2015 年 11 月に政府より建設許可が下りている。これらの国々における直接処分の安全評価における IRF の設定については、長田ほか[4]が詳しい。

直接処分の性能評価に関する最近の公開資料としては、スウェーデン SKB の SR-Site 性能評価書[5]、フィンランドの TURVA-2012 性能評価書[6]、英国の DSSC (Disposal System Safety Case) 性能評価書[7]、イスの第 2 段階サイト選定計画 (SGT-E2) のための設定値[8]などがある。英国の原子炉の炉型は大半が改良型ガス冷却炉 (AGR) であり、わが国の商用原子炉と同じ炉型はサイズウェル原子力発電所の PWR が 1 基あるのみである。また、DSSC 性能評価書[7]では IRF の根拠データの詳細は公開されていないものの、世界中の軽水炉燃料の IRF 設定値を参照して設定したとの記載があることから、基本となる根拠データは長田ほか[4]が整理した根拠データと大きく変わらないと考えられる。イスの SGT-E2 向けの設定[8]では、EN2002 [2] の FGR 設定が主に PIE の結果を根拠としていたのに対し、実在する 4ヶ所の原子炉 (PWR および沸騰水型原子炉 (BWR) が 2 基ずつ) におけるすべての使用済燃料の照射履歴を用いて、取り出し時の燃焼度 (最大 65 GWd/tHM) における FGR を計算コードにより算出し、燃焼度と FGR との分布図を作成したうえで、IRF の設定に使用する FGR を設定している。同じ計算コードを使用した FGR の設定手法は、60 GWd/tHM の高燃焼度燃料を対象としたスウェーデンの SR-Site 性能評価書にも適用されている。EN2002 [2] におけるセシウム (Cs) の IRF の設定については、IRF と FGR の関係を傾き 1 の直線で与えていたが、SGT-E2 向けの設定[8]では $IRF(Cs):FGR = 1:\sqrt{3}$ の関係[9]を支持している。その関係は、核分裂生成ガスと Cs のギャップおよび結晶粒界からの放出現象の違いについて、Xe ガスと Cs の拡散係数の違いとして表現する手法を用い、拡散方程式と実測データを適合させることで導出している。瞬時放出率 (IRF) と FGR の相關については、欧州連合 (EU) の“First-Nuclides”プロジェクトにおいても取り上げられており、30 kW/m 以上の高線出力密度のデータを除けば、ヨウ素 (I) の IRF は FGR の値を、Cs の IRF は FGR の $1/\sqrt{3}$ 倍の値を下回るとしている[10]。さらに、SGT-E2 向けの設定[8]では、リム領域に起因する核種の瞬時放出の可能性についても議論されており、I と Cs のリム領域のインベントリ (それぞれの核種において生成した全放射能のうちの 4 %) を瞬時放出として取り扱っている。その根拠として、リム領域を対象とした浸出試験において顕著な放出量の増加は確認されていない[11]ものの、根拠データである浸出試験の期間が短く、数万年後の IRF を外挿法により予測するうえでの不確実性を含むことを挙げている。

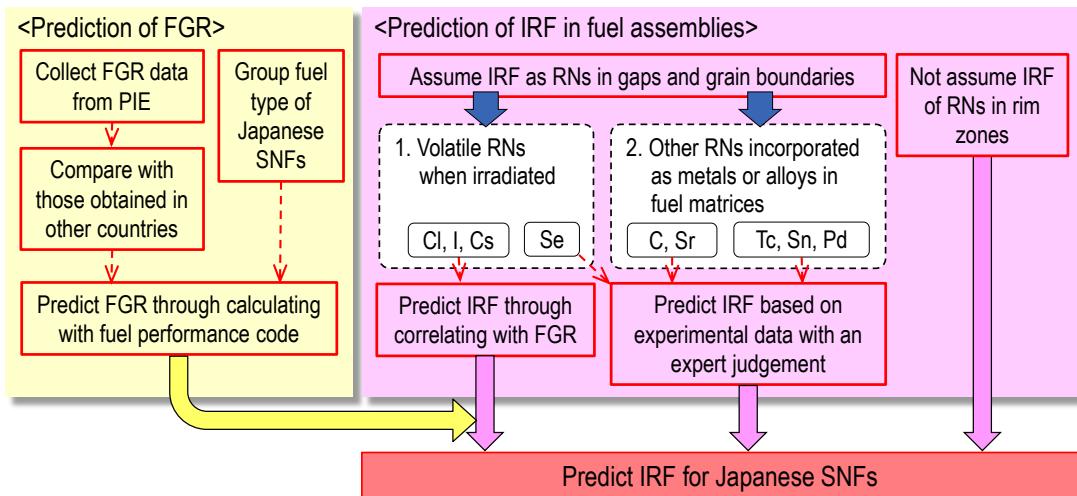


Fig.2 Schematic of prediction of instant release fraction (IRF) and fission gas release ratio (FGR)

3 IRF 設定の基本方針

前項で述べた諸外国の IRF 設定状況を参考に策定した IRF の設定手順を Fig.2 に示す。瞬時放出の可能性がある核種は、「直接処分第 1 次取りまとめ」[3]と同様に、スウェーデン、フィンランドおよびスイスにおいて共通で取り扱われている C-14, Cl-36, Se-79, Sr-90, Tc-99, Pd-107, Sn-126, I-129, Cs-135 および Cs-137 の 10 核種とした。これらの核種のうち、1 章で FGR との相関関係が指摘されていると述べた Cl-36, I-129, Cs-135 および Cs-137 については、FGR を設定し、各元素の IRF と FGR との相関関係を議論したうえで IRF を設定することとした。そのほかの核種については、ギャップや粒界のインベントリ評価データや諸外国の IRF 値を参考として、FGR によらない一定値を設定することとした。C-14 については、燃料ペレットから放出されるものと構造材（被覆管の酸化被膜）から放出されるものがあり、IRF の設定では両者を区別して取り扱った。なお、リム領域からの核種の瞬時放出については、前述したとおり SGT-E2 向けの設定[8]では考慮されているものの、既往の浸漬試験においてリム領域に起因する核種放出量の増加が確認されていないこと、国内 PIE の調査結果においてもリム領域の生成と核分裂ガスの放出挙動に関連性が認められないことから、本論文では瞬時放出現象に寄与しないものとして取り扱うこととした。

4 国内使用済燃料に対する FGR の設定

1 章で述べたとおり、Cl, I および Cs については IRF と FGR との相関関係があることが指摘されていることから、これらの元素の IRF の推奨値と最大値を設定するために、FGR の推奨値と最大値を設定することとした。FGR の設定にあたっては、わが国の PIE データや軽水炉燃料解析コードを活用した。

4.1 FGR の評価方法の検討

わが国では直接処分のための試験は行われていないもの

の、使用済燃料の特性評価試験の一環として FGR が評価されている。本論文では、わが国の軽水炉に対するこのような FGR の公開データを調査した。その結果、(独) 原子力安全基盤機構（現原子力規制庁）およびその前身組織が実施した核燃料の実証試験の主要な成果報告書（1986～2007 年）[12-15]、日本原子力研究所（現（国研）日本原子力研究開発機構）で実施した照射後試験データ[16]を収集した。PWR 使用済燃料と BWR 使用済燃料の平均燃焼度と FGR の関係をそれぞれ Fig.3 に示す。PWR 使用済燃料の FGR は平均燃焼度 10～40 GWd/tHM の範囲で 1 %以内、40～60 GWd/tHM の範囲でも 3 %以内となっている。一方、BWR 使用済燃料は PWR 使用済燃料に比べて FGR が高く、特に初期型の燃料（8×8 型）の FGR が顕著であることが確認されている。ただし、本論文で収集したデータは公開情報のみであり、何らかの異常が見られた燃料の特性評価を行った可能性など、試料の代表性に疑問が残る。諸外国では、逆に PWR 使用済燃料の FGR の方が高くなるという報告もある[17]。BWR 使用済燃料の直接処分における FGR の設定を精緻に行う必要が生じた場合は、燃料集合体の型式の変遷、試料の取得場所、照射条件など、使用したデータの代表性などをよく吟味する必要がある。

4.2 軽水炉燃料解析コードによる FGR 評価

国内の実燃料の照射試験については、実施事例があるものの公開文献が少ないとことから、FGR の評価には、照射条件の多様性を補完するため、国内で開発された軽水炉燃料解析コード FEMAXI-7[18]を使用した。FEMAXI-7[18]では、FGR を平衡論モデルと速度論モデルの 2 種類で算出することが可能となっている。平衡論モデルでは、粒界における核分裂生成物（FP）ガスの蓄積量を常に計算し、その粒界面積あたりの蓄積量が温度・バブル半径・バブルの粒界カバー率などで決まる限界率を超えると粒内から粒界へのトンネルが形成され、その限界値を超えた分の FP ガスが自由空間へ放出されると仮定している。また、蓄積量が限界値を超えてトンネルが形成された状態では、粒内より粒界へ拡散してくる追加のガス（限界を超えた量）はトンネル

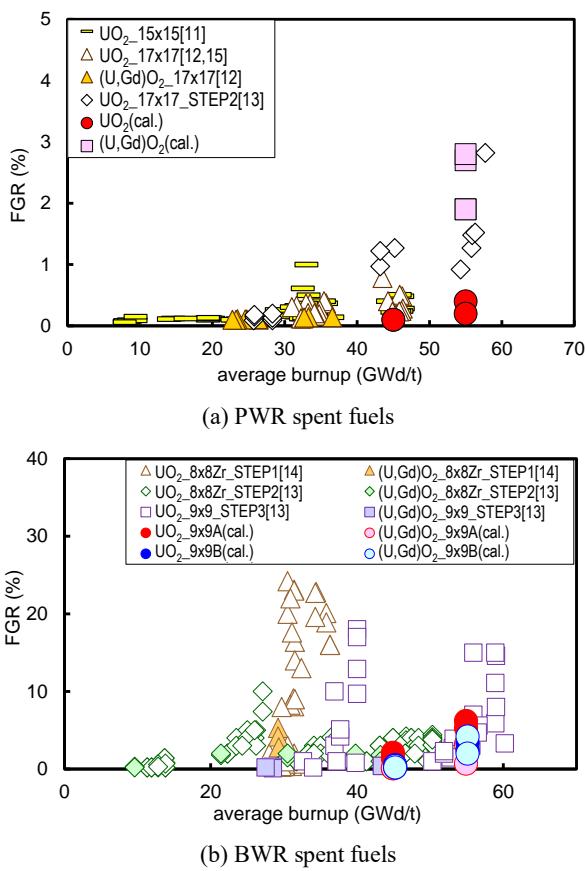


Fig.3 Published FGR values of spent fuel rods after post-irradiated examinations (PIEs) and calculated FGR values using the fuel performance code FEMAXI-7 [18] as a function of average burnup

へ入り、ペレット自由表面に直ちに放出されると仮定している。なお、いったんトンネルの形成によりガスの放出が開始されても、温度低下などによって蓄積量が限界値を下回った場合は、放出が停止される。速度論モデルでは、前述の平衡論モデルと同様の現象を仮定したうえで、粒界バブル半径の変化、すなわちバブルが成長する速度を計算する。

FEMAXI-7 [18]による解析の信頼性を高めるため、PIE結果を参考しつつ、計算に使用する入力値の最適化を図ることとした。参照したPIE結果は、高浜原子力発電所3号機(PWR)、バンデロス原子力発電所2号機(PWR)および福島第2原子力発電所1号機および2号機(BWR)で照射された高燃焼度燃料確証試験データ[13-15, 19-44]である。筆者らは、燃料ペレットや被覆管内側の温度分布とFPガス放出挙動のモデルやパラメータなどがFGRに最も影響を与える因子であると考え、FEMAXI-7 [18]の熱解析モデルとFPガス放出モデルのパラメータを変数とし、それ以外のパラメータにはFEMAXI-7 [18]の初期設定値を与えた。また、FEMAXI-7 [18]に与える径方向線出力分布は、燃焼計算コードRODBURN-1 [45]の計算結果を使用した。感度解析の結果、FGRに対する感度が高い入力値は、下記の6件であり、それぞれ以下のとおり設定することが最適である

と判断した。

- ① FPガス放出モデルの選択(平衡論または速度論)：平衡論モデルを使用
- ② 高燃焼度リム組織モデルの選択(使用の有無を含む)：温度による結晶回復効果を加味した「実効燃焼度」の概念を導入したJAEAモデル[18]を使用
- ③ FPガス原子の拡散係数モデルの選択：初期設定モデル(Turnbull et al. [46])を使用
- ④ 粒界バブル限界半径 [cm]：初期設定値(5×10^{-5})を使用
- ⑤ 粒界境界層幅(RB) [μm]：初期設定値 $2.0 \times 10^{-6} \mu\text{m}$ に対して、最適値(燃料の種類により $2.2 \times 10^{-6} \sim 3.7 \times 10^{-6}$)に変更
- ⑥ レンズ状バブルが粒界を覆う割合 [%]：初期設定値(0.25)を使用

粒界境界層幅(RB)は、FPガス原子が再溶解する境界層の厚みをコントロールするパラメータである。RBの修正前後のFGRの結果をFig.4に示す。RBを大きく(すなわち粒界境界層幅を広く)すると、FGR計算値が低下する。

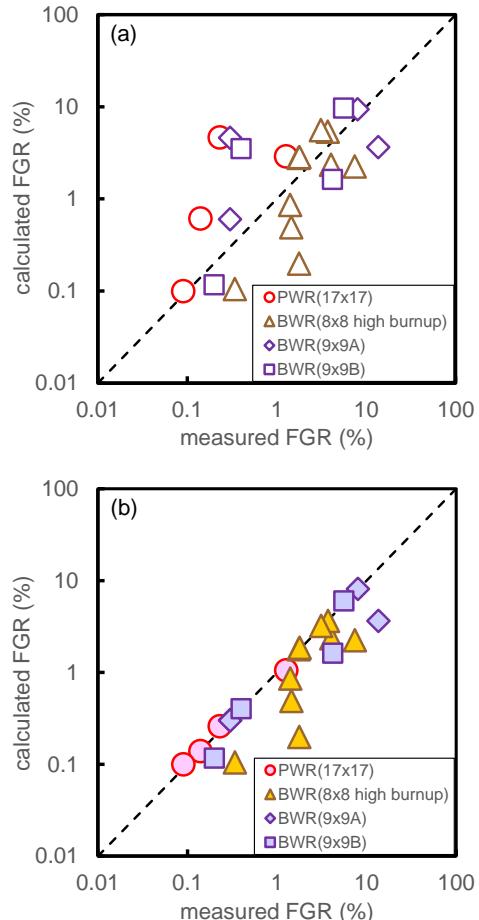


Fig.4 Correlation between measured and calculated FGR values (a) before and (b) after optimization of RB value. Dotted line shows a one-to-one relationship between calculated and measured FGR values.

のことから、RB 値を最適化することにより、実測値に比べて過大に評価されていた FGR 計算値の再現性が高まった。一方、実測値に比べて過小に評価されていた FGR 計算値については、RB 値を変化させても FGR 計算値に顕著な変化は見られなかった。このような結果が得られた燃料は、いずれも燃焼度 40 GWd/tHM 以下の BWR 燃料であったことから、低燃焼度の BWR 燃料では核分裂性ガス放出メカニズムとして RB 以外の寄与があるものと考えられる。ただし、後述する評価には影響を与えないことから、本論文ではこれ以上の原因究明は行わないこととした。

以上の結果を踏まえて、現行型の PWR 燃料 (17×17 型) および BWR 燃料 (9×9A および 9×9B 型) の FGR について、FEMAXI-7 [18]を用いて評価した。燃料ペレットは、 UO_2 ペレットとガドリニア添加 ($(\text{U},\text{Gd})\text{O}_2$) ペレットの 2 種類とした。到達燃焼度は、PWR では 55 GWd/tHM の 1 ケース、BWR では 45 GWd/tHM と PWR との比較のため 55 GWd/tHM の 2 ケースとした。運転サイクルは、1 サイクルを 13 ヶ月 (390 日) とし、4 サイクルおよび 5 サイクルで目標燃焼度に達するように一定の線出力を与えた。さらに、FGR の最大値を評価するため、通常の運転期間後に最大線出力密度 (MLHGR) の制限値である 44 kW/m [47]で 12 時間照射するケースもあわせて実施した。

PWR 使用済燃料の FGR の計算結果について、既往文献値を示した Fig.3(a)にあわせて示す。 UO_2 燃料に対する FGR は 0.2~0.4 %、 $(\text{U},\text{Gd})\text{O}_2$ 燃料に対する FGR は 1.9~2.8 % となった。

BWR 使用済燃料の FGR の計算結果について、既往文献値を示した Fig.3(b)にあわせて示す。FGR の計算結果は、燃焼度 45 GWd/tHM のケースで 0.1~2.1 %、55 GWd/tHM のケースで 0.7~6.2 % となった。また、燃焼度が 35~40 GWd/tHM の範囲の突出した実測値を除けば、燃焼度が高くなるに従って FGR が上昇する傾向が実測値の傾向と一致した。

通常運転後に MLHGR の制限値である 44 kW/m で 12 時間照射した場合の FGR の計算結果を Fig.5 に示す。PWR 使用済燃料 (Fig.5(a)) の場合、 UO_2 燃料に対する FGR は約 17 % となり、国内使用済燃料の線出力と FGR の線形相関性をもとに推定した結果と同じ結果が得られた。BWR 使用済燃料 (Fig.5(b)) の場合についても、 UO_2 燃料に対する FGR は 7.9~10.0 % であり、国内使用済燃料 (9×9B 型) の線出力と FGR の線形相関性を外挿することで推定した結果と概ね一致した。このことから、 UO_2 燃料において MLHGR を想定して FGR の最大値を設定する考え方は妥当であると考えられる。ただし、Fig.5(b)に示したとおり、BWR 使用済燃料では 9×9A 型燃料の FGR が非常に高く、この実測値を外挿することで MLHGR の制限値 44 kW/m における FGR を推定すると 47 % という非常に高い値が得られる。前項で述べたとおり、公開されている FGR 実測値の代表性に疑問が残ることから、この最大値を使用することには注意を要する。

一方、 $(\text{U},\text{Gd})\text{O}_2$ 燃料の FGR の計算結果は、PWR と BWR のいずれの場合でも UO_2 燃料の 2 倍程度大きくなる結果となった。この原因是、熱伝導率の差違に起因していると考え

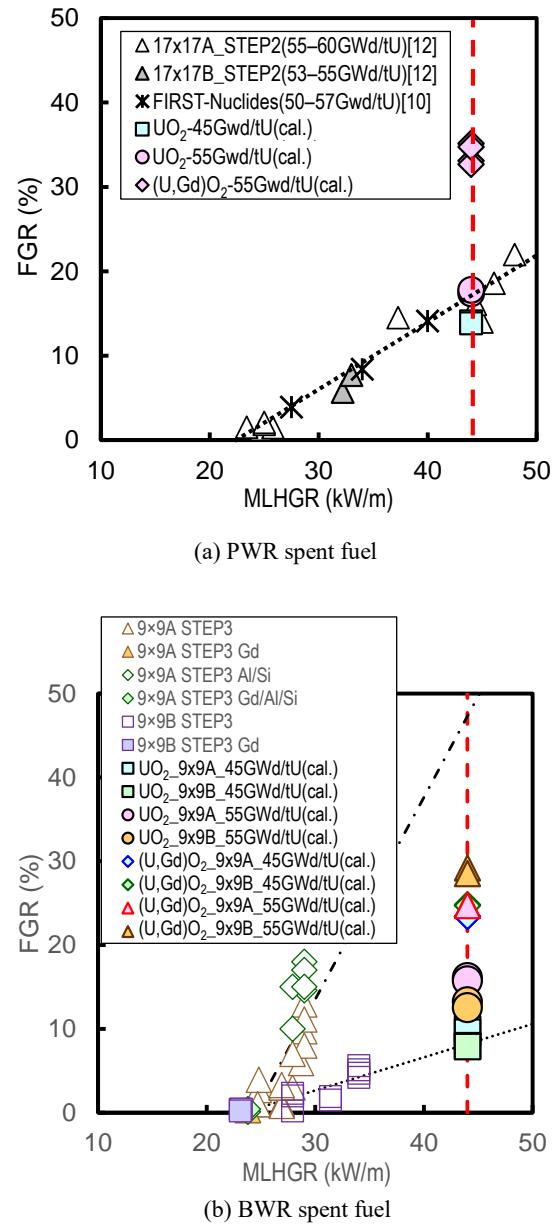


Fig.5 Estimation of maximum FGR values at the expected maximum linear heat generation rate (MLHGR).
Dashed, dotted, and dash-dot-dash lines denote MLHGR limit (44 kW/m), extrapolation of FGR for typical fuel types, and extrapolation of FGR for the most pessimistic case of BWR SNF, respectively.

えられる。 $(\text{U},\text{Gd})\text{O}_2$ の熱伝導率は、Gd の添加率に応じて低下することが知られており [48]、本計算でも Gd 添加を考慮したモデル [49]を用いている。熱伝導率が低いと燃料ペレットの中心温度が相対的に高くなることから、FP ガスが発生しやすい、すなわち FGR が高くなることが予想され、本計算の結果と定性的に整合している。一方、Fig.3 によれば、燃焼度 30~40 GWd/tHM における FGR の実測値が UO_2 燃料と同等であることが確認される。実測値と計算値の相違の原因是明らかではないものの、FP ガスの拡散係数 (モデル) の不確実性 (特に O/U 比の相違等) や、Gd-155 および Gd-157 の熱中性子吸収反応に伴う何らかの影響 (ただし、

この反応で生成する Gd-156 および Gd-158 は安定核種なので、結晶構造の変化は考えにくい) などが、FEMAXI-7[18]を用いた計算に反映されていない可能性が考えられる。

4.3 IRF の設定に使用する FGR の設定

以上の結果を踏まえ、「直接処分第 1 次取りまとめ」[3]のレファレンスケースである PWR 使用済燃料（燃焼度 45 GWd/tHM）を例に、FGR を評価することとした。Fig.3 に示したように、使用済燃料の FGR は燃料集合体の型式により異なっている。国内使用済燃料の FGR の代表値を評価するためには、直接処分の対象となる使用済燃料について、型式ごとの発生量の推定が必要となると考えられる。しかしながら、国内メーカーが自社の燃料集合体の照射実績を集計した技術報告[50]は見つかったものの、公開時点では高燃焼度領域に対応した STEP2 燃料もしくは STEP3 燃料が少なく、将来的な設計仕様やさらなる高燃焼度領域までを網羅した使用済燃料の発生体数を評価した事例はなかった。このことから、燃料型式ごとの発生数が同数であるという仮定を置いたうえで、直接処分の性能評価に必要な FGR の代表値を評価することとした。

4.1 節で述べた PWR 国内使用済燃料の確認試験で得られ

Table 1 Tentative mean and maximum FGR values proposed for PWR spent fuels

Fuel type	FGR [%]		Number of generated SNF assemblies
	Recommended	Maximum	
15×15	1	1	a *1
17×17 STEP1	1	1	a *1
17×17 STEP2	2	17	a *1
For all PWR spent fuels	(F _{mean} =) 2.0	(F _{max} =) 7.0	3 a

*1 Assuming same numbers among all reactor types.

Table 2 Proposed FGR and IRF values of various elements compared with those selected in European safety assessment reports

Country	Japan		Switzerland		Sweden	Finland	
Project name	Present (recommended)	Present (maximum)	EN2002 [2]	SGT-E2 [8]	SR-Site [5]	TURVA-2012 [6]	
Reactor type	PWR		PWR	PWR-UO ₂	PWR	PWR	
Burnup	45 [GWd/tHM]		48 [GWd/tHM]	54~64 [GWd/tHM]	60 [GWd/tHM]	60 [GWd/tHM]	
FGR [%]	2.0	7.0	1	1.8	4.3	—	
IRF [%]	C from SF	10.0	14.0 (= 11+3)	10	10	11	5.5
	Cl	6.0 (= F _{mean} × 3)	24.0 (= F _{max} × 3+3)	10	5.4	13	8.2
	Se	1.0	7.0 (= 4+3)	4	0.2	0.65	0.4
	I	2.0 (= F _{mean} × 1)	10.0 (= F _{max} × 1+3)	4	5.8	4.3	5.0
	Cs	1.2 (= F _{mean} / √3)	7.0 (= F _{max} / √3+3)	4	5	4.3	5.0
	Sr	1.0	4.0 (= 1+3)	1	1	0.25	1.0
	Tc	1.0	5.0 (= 2+3)	2	1	0.2	1.0
	Pd	1.0	5.0 (= 2+3)	2	1	0.2	1.0
	Sn	0.1	7.0 (= 4+3)	4	0.1	0.03	0.1
	C from metals (chemical form)	20 (organics)	40 (organics)	20 (org. & inorg.)	20 (org. & inorg.)	20 (not specified)	20 (not specified)

た燃料型式ごとの FGR の値として、15×15 型および 17×17 型では、Fig.3(a)における燃焼度 45 GWd/tHM 以下の実測値の分布を参考に、推奨値および最大値のいずれについても 1%とした。一方、17×17 STEP2 型では、Fig.3(a)における燃焼度 45 GWd/tHM 以下の実測値で 1%を超える値が見られることから、推奨値を 2%に設定するとともに、Fig.5(a)に基づき最大値を 17%に設定した。また、全燃料に対する FGR の推奨値と最大値は、各燃料型式が同数発生すると仮定し、次式で示す加重平均により算出した。

$$\text{推奨値} : F_{\text{mean}} = \sum (F(\text{std})_k \times W_k) / \sum W_k \quad (1)$$

$$\text{最大値} : F_{\text{max}} = \sum (F(\text{max})_k \times W_k) / \sum W_k \quad (2)$$

ここで、F_{mean}: 各燃料型式に対するFGR推奨値の加重平均値,

F_{max}: 各燃料型式に対するFGR最大値の加重平均値,

W_k: 燃料型式kの発生数,

F(std)_k: 燃料型式kのFGR推奨値,

F(max)_k: 燃料型式 k の FGR 最大値

算出した結果を Table 1 に示す。上記の手法に基づき、わが国における IRF の設定に資する FGR の推奨値は 2.0 %、最大値は 7.0 %と算出された。

5 PWR 使用済燃料に対する IRF の設定

PWR 使用済燃料に対する IRF の推奨値および最大値について、諸外国の安全評価報告書で設定された値と比較できる形で Table 2 に示した。以下にそれぞれの値を評価した根拠を示す。

5.1 FGR と相関関係がある元素

元素ごとの IRF について説明するため、元素 X の IRF 値

を $IRF(X)$ と表す。また、後述する **Figs.6–10** におけるプロットは実測値を示しており、特に断りがない限り「IRF データベース」[51]の掲載値である。

FGR と $IRF(I)$ の関係を **Fig.6** に示す。 $IRF(I)$ については、Gray [52]が、核分裂性ガスの放出率が比較的高い承認済試験材料 106 番 (ATM-106) の実測値をもとに $FGR:IRF(I) = 1:1$ の関係を提案して以降、諸外国の安全評価における I の IRF の設定においてこの関係が取り入れられている。新たな知見も見つかっていないことから、 $IRF(I)$ の推奨値は FGR と同じ値とした。

FGR と $IRF(Cs)$ の関係を **Fig.7** に示す。Gray [52] は $FGR:IRF(Cs) = 3:1$ の関係を提案しており、EN2002 [2] では、 $IRF(Cs)$ の設定でこの関係が適用されていた。SR-Site 性能評価書では、 $FGR:IRF(Cs) = 3:1$ よりも保守側であり、 $I-129$ と同じである、 $FGR:IRF(Cs) = 1:1$ の関係が適用されている。SGT-E2 向け設定[8]では、前述の Lassmann et al.[9]が提案した $IRF(Cs) = FGR \times 1/\sqrt{3}$ の相関性を適用している。**Fig.7** によると、 $FGR:IRF(Cs) = 1:1$ の関係では過度に保守的であり、 $IRF(Cs) = FGR \times 1/\sqrt{3}$ の関係で十分な保守性を保てると考えられるため、 $IRF(Cs)$ は FGR の $1/\sqrt{3}$ 倍とした。

FGR と $IRF(Cl)$ の関係を **Fig.8** に示す。 $IRF(Cl)$ の実測値は、Tait et al.[53]が実施した CANDU 炉用 UO_2 使用済燃料の浸漬試験結果のみであり、諸外国の安全評価では **Fig.8** の結果を根拠に $IRF(Cl) = FGR \times 3$ を設定している。SGT-E2 向け設定[8]以降は新たな知見が見つかっていないため、本研究でも同様に $IRF(Cl)$ を FGR の 3 倍とした。

FGR と相関関係がある元素について設定された IRF を **Table 2** に示す諸外国の安全評価における設定値と比較すると、多くの場合小さめの値となっていることがわかる。これは、 FGR の設定値が比較的小さいことと、 IRF と FGR との相関式が異なっていることが理由である。今後、本報告では限定的である FGR の情報が充実して値の信頼性が高まれば、 IRF 設定値の信頼性も高まると考えられる。

5.2 FGR と相関関係がない元素

5.1 節で取り上げなかつた、 FGR と相関関係がない元素の IRF の推奨値については、**Table 2** に示した欧州各国（スウェーデン、フィンランド、スイス）における最新の安全評価（すなわち EN2002 [2] 以外）の IRF 設定値を包含するような値を設定した。

$IRF(C)$ は、燃料ペレットを起源とするもの ($IRF(C)_{SF}$) と被覆管の酸化皮膜を起源とするもの ($IRF(C)_M$) がある。諸外国の安全評価では、 $IRF(C)_{SF}$ として、燃料ペレットにおける C-14 インベントリの 10 % が設定されている。近年、 $IRF(C)_{SF}$ を評価するための試験が、EU の“FIRST-Nuclides”プロジェクトにおいて実施されている。このうち、スイス Gösgen 原子炉の PWR 使用済燃料を用いたパンクチャ試験 [54] では、プレナム部のガス分析により 0.13 vol.% の二酸化炭素が含まれていたことが報告されている。また、ベルギー Tihange 原子力発電所 1 号機の PWR 使用済燃料試料の浸漬試験 [55] では、 $IRF(C)_{SF}$ として 1~2 % の結果が得られている。しかしながら、これらの結果だけでは既往の $IRF(C)_{SF}$ 設定値を見直すだけの十分な根拠になるとは言い難いこと

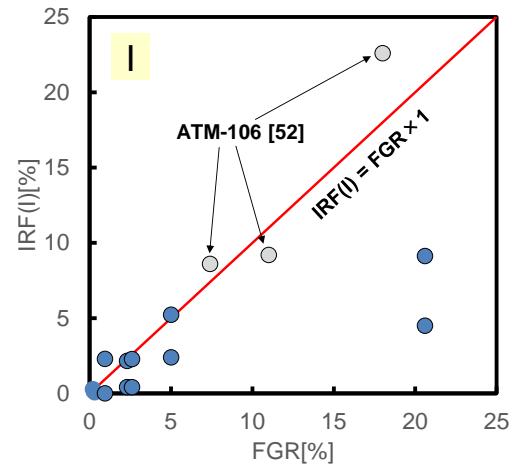


Fig.6 Evaluated IRF of iodine as a function of FGR . Plots are experimental data taken from [51] (except for specific notes) and a line is correlation between IRF and FGR (ditto with later Figures).

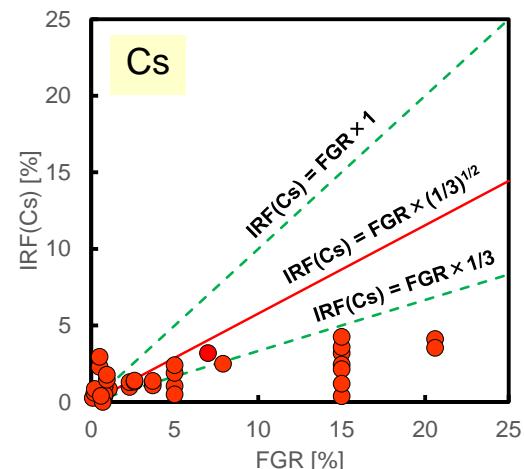


Fig.7 Evaluated IRF of cesium as a function of FGR

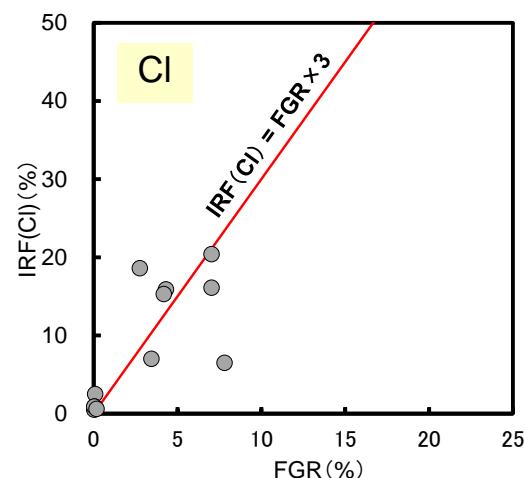


Fig.8 Evaluated IRF of chlorine as a function of FGR . Experimental data have been obtained only for spent CANDU fuel.

から、本研究では既往の $IRF(C)_{SF}$ 設定値である 10 %を採用した。

一方、 $IRF(C)_M$ については、諸外国の安全評価のいずれもが、ジルカロイ被覆管における C-14 インベントリの 20 %を設定している。その根拠となっているのは、Yamaguchi et al. [56]による、国内 PWR 使用済燃料（燃料棒平均燃焼度 47.9 GWd/tHM）被覆管せん断片（ハル）の浸漬試験結果で得られた、酸化膜中の C-14 の存在割合が全ハル試料中の 16.7 %であるという測定結果である。その後、Sakuragi [57]が、国内 BWR 使用済燃料（燃料棒平均燃焼度 41.6 GWd/tHM）中のジルカロイ被覆管の酸化被膜に含まれる C-14 のインベントリが 7.5 %であると評価している。この結果は、現実的な測定・評価により $IRF(C)_M$ を低減できる可能性を示していると考えられるものの、新たな知見も試験データ数も限定的であるため、本研究でも Yamaguchi et al. [56]の結果をもとに 20 %と設定した。

ストロンチウム (Sr) は、大部分が UO_2 マトリクスに固溶するものの、ギャップや粒界での存在も指摘されている [58]。また、 $IRF(Sr)$ は FGR との相関がないと考えられている [5]。既往の文献値を収集して得られた軽水炉燃料の FGR と $IRF(Sr)$ の関係を Fig.9 に示す。 $IRF(Sr)$ が FGR との相関が確認されていないことがわかる。参考までに、SGT-E2 向けに設定された $IRF(Sr)$ [8] と SR-Site の $IRF(Sr)$ 設定値 [5] を Fig.9 中に併記した。Fig.9 より、実測値がいずれも 0.4 %未満であることから、 $IRF(Sr) = 1\%$ でも十分に保守側であることがわかる。FIRST-Nuclides プロジェクトでは、Tihange 1 号機の PWR 使用済燃料（平均燃焼度（計算値）50.5 GWd/tHM）について、被覆管付き試料と被覆管除去切断片試料の 367 日後の浸漬試験結果が示されており、どちらの試料でも $IRF(Sr) = 0.2\%$ となっている [19]。これらの結果を踏まえ、 $IRF(Sr)$ は 1 %に設定した。

テクネチウム (Tc) は、モリブデン (Mo) と同様 UO_2 マトリクス中に固溶せず、軽水炉燃料中で白色析出相として確認される金属元素であり、粒界中に存在するとされている [58]。既往の文献値を収集して得られた軽水炉燃料の FGR と $IRF(Tc)$ の関係を Fig.10 に示す。参考として、SGT-E2 向けに設定された $IRF(Tc)$ [8] と SR-Site の $IRF(Tc)$ 設定値 [5] を Fig.10 中に併記している。前述した Sr と同様に、SGT-E2 向けの $IRF(Tc)$ の設定値 (1 %) が十分に保守的であることがわかる。FIRST-Nuclides プロジェクトの浸漬試験結果を調査しても、1 %を超える $IRF(Tc)$ は示されていない（例えば [55, 59]）。これらの結果を踏まえ、 $IRF(Tc)$ は 1 %に設定した。

セレン (Se) は複数の酸化状態をとりうる元素である。金属状態として存在する場合は、I, Cs, Cl と同様に炉内照射時の温度条件下で揮発性となる可能性があると考えられている。最新の知見として SGT-E2 向けの設定値 [8] では 0.2 %、FIRST-Nuclides プロジェクトでは 360 日間の浸漬試験の結果として最大 1 %程度の累積放出率を報告している [60]。また、ペレット内における Se の存在形態について、使用済燃料の微小 X 線吸収端スペクトル (μ -XANES) や微小 X 線蛍光 (μ -XRF) 分析の結果や、第一原理 (*ab initio*) 計算に基づく XANES の推定結果から、Se-II が UO_2 格子

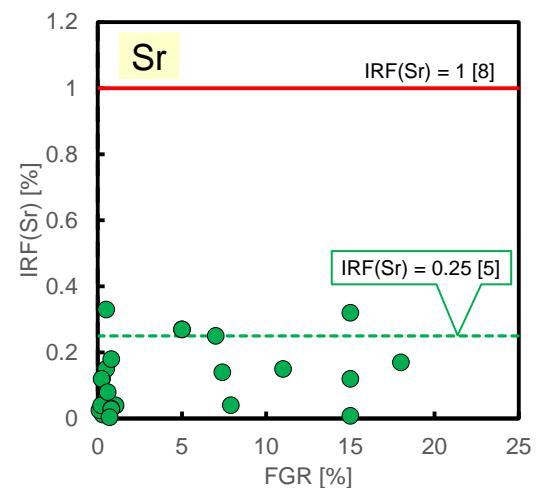


Fig.9 Evaluated IRF of strontium as a function of FGR

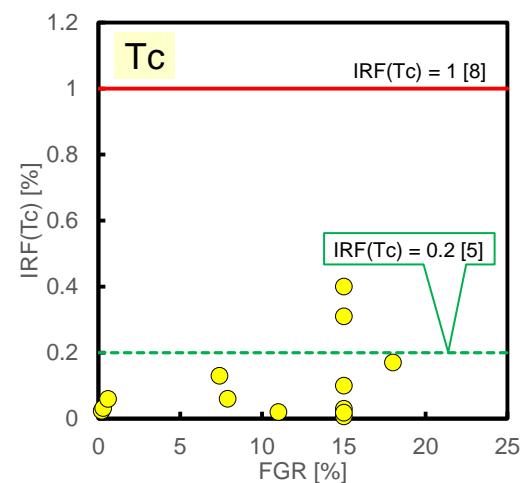


Fig.10 Evaluated IRF of technetium as a function of FGR

内の酸素と置換した分子構造が推定されたことが報告されている [61]。この結果は、Se が UO_2 マトリクス内に取り込まれていることを示唆していると考えられる。したがって、Se が揮発性である可能性はあるものの、一定値を与えることが適切であると考えられる。以上の結果を踏まえ、 $IRF(Se)$ は 1 %に設定した。

パラジウム (Pd) およびスズ (Sn) については、最新の知見が得られていない。SR-Site [5] や TURVA-2012 [6] では、いずれも $IRF(Pd) = 1\%$ 、 $IRF(Sn) = 0.1\%$ に設定されている。このことから、 $IRF(Pd)$ と $IRF(Sn)$ についてはこれらの設定値を踏襲することとした。

5.3 IRF の最大値の評価

わが国においては、代替処分オプションのひとつである直接処分についての詳細な性能評価手法が定まっていない。しかしながら、今後、性能評価を行うことを想定すると、性能評価上の各種設定値の不確実性評価は必須と言える。IRF は、性能評価のための核種移行解析で特に着目すべき C-14 や I-129 を含む核種放出挙動を定義することから、その不確実性評価は重要である。このことから、前項までに

設定した IRF の推奨値に対して、性能評価上保守側の値となる最大値の算出を定性的に行うこととした。算出の方針は下記のとおりとした。

- FGR との相関関係がある元素 (I, Cs および Cl) の IRF については、4.3 節で評価した FGR の最大値 (7.0 %) を 5.1 節で述べたそれぞれの相関式に入力して算出される IRF 値に、後述する不確実性の寄与 (3 %) を加算する。
- IRF が FGR によらず一定の値をとる元素の IRF については、IRF(C)_M を除き、諸外国の安全評価報告書で設定された値のうち最大のものを抽出し、さらに後述する不確実性の寄与 (3 %) を加算する。
- IRF(C)_M については、Yamaguchi et al. [56] が評価したジルカロイ表面の酸化膜だけでなく、ステンレス鋼やインコネルで生成する酸化膜や、燃料に付着するクラッド (一次冷却水中の成分がジルカロイ表面に付着したもの)、モリブデン酸ジルコニウム等の不溶性残渣などからも C-14 が放出される可能性があるとの指摘[62]に基づき、暫定的に最大値を推奨値の 2 倍である 40 % に設定する。

不確実性の寄与については、処分後の長期間における結晶粒界からの核種放出によって、結晶粒界やギャップへ移行する核種の割合が増加する可能性を考慮することとした。Ferry et al. [63] は、使用済燃料中で放出される α 線による自己照射が放射性核種の拡散に影響を及ぼすと考え、種々の燃焼度における結晶粒界からの核種放出率の経時変化を推定している。その結果、処分直後における IRF からの増加率は、処分後の 1,000 年で約 3 %、処分後 10,000 年で約 5 % となる可能性が示されている。このことから、本報告では処分後 1,000 年で地下水が使用済燃料と接触するという「直接処分第 1 次取りまとめ」[3] のシナリオでの仮定に基づき、加算する不確実性の寄与を 3 % に設定した。

以上のように設定した IRF の最大値は、Table 2 に示す諸外国の安全評価における設定値を包含するような高い値となっていることがわかる。過渡に保守的な設定が含まれている可能性はあるものの、保守性という観点からは十分な値であると考えられる。

6 まとめ

わが国の直接処分の研究開発をとりまとめた「直接処分第 1 次取りまとめ」[3] 以降に公開された最新知見および国内軽水炉使用済燃料の PIE データをもとに、FGR と相関関係がある元素に対する IRF を設定する手法を構築した。あわせて、構築した手法を用いて、PWR 使用済燃料 (燃焼度 45 GWD/tHM) における IRF を設定し、推奨値が諸外国の最新の評価値よりやや小さめである一方、最大値が諸外国の最新の評価値を包含するような値であることを確認した。あわせて、FGR と相関関係がない元素の IRF についても、諸外国の設定値を参考に推奨値と最大値を設定した。

本報告で設定した IRF は、燃料型式ごとの使用済燃料について、公開されている FGR データの代表性や網羅性について十分な情報が得られていないこと、また処分量および

将来的な発生数について十分な公開データがないことから、暫定的な IRF 設定としている。然るべきときに、明確な根拠のもとに燃料型式ごとの集合体本数を設定するとともに、FGR 実測値の代表性や信頼性を確保することで、本手法を用いて設定する IRF 設定は信頼性の高いものになると考えられる。

謝辞

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁の委託事業「平成 27~28 年度地層処分技術調査等事業 (直接処分等代替処分技術開発)」、「平成 29 年度地層処分に関する技術開発事業 (直接処分等代替処分技術開発)」および「平成 30 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 (直接処分等代替処分技術高度化開発)」の研究成果の一部である。また、(国研) 日本原子力研究開発機構の宇田川豊氏には FEMAXI-7 の取り扱いについて指導していただいたほか、(一財) 高度情報科学技術研究機構の中村光行氏と細山田龍二氏には、FEMAXI-7 を用いた FGR の算出について御協力をいただいた。ここに感謝の意を表する。

参考文献

- [1] Bruno, J., Ewing, R. C.: Spent nuclear fuel. *Elements* **2**, pp.343-349 (2006).
- [2] National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (Nagra): Project Opalinus Clay – Safety report. Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste (Entsorgungsnachweis). Nagra Technical Report NTB 02-05 (2002).
- [3] 日本原子力研究開発機構バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所環境技術開発センター基盤技術研究開発部: わが国における使用済燃料の地層処分システムに関する概略的評価－直接処分第 1 次取りまとめ－. JAEA-Research 2015-016, p.213 (2015).
- [4] 長田正信, 近沢孝弘, 赤堀邦晃, 北村暁, 館幸男: 諸外国における使用済燃料直接処分のソースターム評価－(1) 使用済燃料および構造材からの瞬時放出率の評価. 原子力バックエンド研究 **23**(1), pp.31-52 (2016).
- [5] Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company (SKB): Data report for the safety assessment SR-Site. SKB Technical Report TR-10-52, p.76 (2010).
- [6] Posiva Oy: Safety case for the disposal of spent nuclear fuel at Olkiluoto, - Models and data for the repository system 2012. Posiva Report 2013-01 (Part 2) (2013).
- [7] Nuclear Decommissioning Authority (NDA): Geological disposal waste package evolution status report. NDA Report No. DSSC/451/01 (2016).
- [8] Johnson, L.: A model for radionuclide release from spent UO₂ and MOX fuel. Nagra Working Report NAB 13-37 (2014).

- [9] Lassmann, K. A., Schubert, A., van de Laar, J., Walker, C. T.: On the diffusion coefficient of caesium in UO_2 fuel. *Fission Gas Behaviour in Water Reactor Fuels (Seminar Proceedings)* Cadarache, France, September 26-29, 2000, pp.321-334 (2000).
- [10] Kienzler, B., Metz, V., Valls, A. (ed.): Fast / instant release of safety relevant radionuclides from spent nuclear fuel FIRST-Nuclides, Final scientific report. Deliverable No.5.13, European Commission (2014).
- [11] Serrano-Purroy, D., de las Heras, L. A., Winckel, S. V., Torrents, A. M., Sureda, R., Glatz, J. P., Rondinella, V. V.: WP3. Dissolution based release IRF corrosion tests of commercial UO_2 BWR spent nuclear fuel. *Final Workshop of the FIRST-Nuclides Project (FIRST-Nuclides Deliverable report No. 5.4, Final (3rd) Annual Workshop Proceedings)*, Karlsruhe, Germany, September 1-2, 2014, pp.105-114 (2014).
- [12] (財)原子力工学試験センター, (財)発電設備技術検査協会: 原子力発電施設信頼性実証試験の現状(昭和61年) (1986).
- [13] (財)原子力発電技術機構(NUPEC): 平成10年度軽水炉改良技術確証試験(高燃焼度等燃料に関するもの)に関する報告書 (1999).
- [14] NUPEC: 平成13年度高燃焼度等燃料安全試験に関する報告書 (PWR 高燃焼度燃料総合評価編) (2002).
- [15] (独)原子力安全基盤機構(JNES): 平成18年度高燃焼度 9×9 型燃料信頼性実証成果報告書(総合評価編) .07 基炉報-0002 (2007).
- [16] 土内義浩, 石島清見, 山原武: 高燃焼度 PWR 燃料の照射後試験データ – 燃料棒: B15 (燃料集合体: NO1G13) . JAERI-Data/Code 98-002 (1998).
- [17] SKB: Spent nuclear fuel for disposal in the KBS-3 repository. TR-10-13, SKB (2010).
- [18] 鈴木元衛, 斎藤裕明, 宇田川豊, 天谷政樹: 軽水炉燃料解析コード FEMAXI-7 のモデルと構造(改訂版) . JAEA-Data/Code 2013-014 (2013).
- [19] NUPEC: 軽水炉改良技術確証試験: 高燃焼度等燃料確証試験に関する調査報告書(平成4年度) (1993).
- [20] NUPEC: 軽水炉改良技術確証試験(高燃焼度等燃料に関するもの)に関する調査報告書(平成5年度) (1994).
- [21] NUPEC: 平成6年度軽水炉改良技術確証試験(高燃焼度等燃料に関するもの)に関する調査報告書 (1995).
- [22] NUPEC: 平成7年度軽水炉改良技術確証試験(高燃焼度等燃料に関するもの)に関する調査報告書 (1996).
- [23] NUPEC: 平成9年度軽水炉改良技術確証試験(高燃焼度等燃料に関するもの)に関する調査報告書 (1998).
- [24] NUPEC: 平成11年度軽水炉改良技術確証試験(高燃焼度等燃料に関するもの)に関する調査報告書 (2000).
- [25] NUPEC: 平成12年度高燃焼度等燃料安全試験に関する報告書 (2001).
- [26] NUPEC: 平成13年度高燃焼度等燃料安全試験に関する報告書 (2002).
- [27] NUPEC: 平成13年度高燃焼度等燃料安全試験に関する報告書 (BWR 高燃焼度燃料総合評価編) (2002).
- [28] NUPEC: 燃料集合体信頼性実証試験に関する報告書 (BWR9 $\times 9$ 型燃料照射試験編) (平成4年度) (1993).
- [29] NUPEC: 燃料集合体信頼性実証試験に関する報告書 (BWR9 $\times 9$ 型燃料照射試験編) (平成5年度) (1994).
- [30] NUPEC: 平成6年度燃料集合体信頼性実証試験に関する報告書 (高燃焼度 9×9 型燃料照射試験編) (1995).
- [31] NUPEC: 平成7年度燃料集合体信頼性実証試験に関する報告書 (高燃焼度 9×9 型燃料照射試験編) (1996).
- [32] NUPEC: 平成8年度燃料集合体信頼性実証試験に関する報告書 (高燃焼度 9×9 型燃料照射試験編) (1997).
- [33] NUPEC: 平成9年度燃料集合体信頼性実証試験に関する報告書 (高燃焼度 9×9 型燃料照射試験編) (1998).
- [34] NUPEC: 平成10年度燃料集合体信頼性実証試験に関する報告書 (高燃焼度 9×9 型燃料照射試験編) (1999).
- [35] NUPEC: 平成11年度燃料集合体信頼性実証試験に関する報告書 (高燃焼度 9×9 型燃料照射試験編) (2000).
- [36] NUPEC: 平成12年度燃料集合体信頼性実証試験に関する報告書 (高燃焼度 9×9 型燃料照射試験編) (2001).
- [37] NUPEC: 平成13年度燃料集合体信頼性実証試験に関する報告書 (高燃焼度 9×9 型燃料照射試験編) (2002).
- [38] NUPEC: 平成14年度燃料集合体信頼性実証試験に関する報告書 (高燃焼度 9×9 型燃料照射試験編) (2003).
- [39] NUPEC: 平成15年度燃料集合体信頼性実証試験に関する報告書 (高燃焼度 9×9 型燃料照射試験編) (2003).
- [40] JNES: 平成15年度高燃焼度 9×9 型燃料信頼性実証成果報告書. 04 基炉報-0002 (2004).
- [41] JNES: 平成16年度高燃焼度 9×9 型燃料信頼性実証成果報告書. 05 基炉報-0003 (2005).
- [42] JNES: 平成17年度高燃焼度 9×9 型燃料信頼性実証成果報告書. 06 基炉報-0003 (2006).
- [43] JNES: 平成18年度高燃焼度 9×9 型燃料信頼性実証成果報告書-付録1: 9×9 A型燃料照射後試験結果. 07 基炉報-0002 付録1 (2007).
- [44] JNES: 平成18年度高燃焼度 9×9 型燃料信頼性実証成果報告書-付録2: 9×9 B型燃料照射後試験結果. 07 基炉報-0002 付録2 (2007).
- [45] 内田正明, 斎藤裕明: 燃料棒内出力計算コード RODBURN. JAERI-M 93-108 (1993).
- [46] Turnbull, J. A., Friskney, C. A., Findlay, J. R., Johnson, F. A., Walter, A. J.: The diffusion coefficients of gaseous and volatile species during the irradiation of uranium dioxide. *J. Nucl. Mater.* **107**(2-3), pp.168-184 (1982).
- [47] 平川直弘, 岩崎智彦: 連載講座 原子炉物理 第11回 代表的な原子炉と炉物理. 日本原子力学会誌 **43**(3), pp.237-249 (2001).
- [48] Fukushima, S., Ohmichi, T., Maeda, A., Watanabe, H.: The effect of gadolinium content on the thermal conductivity of near-stoichiometric $(\text{U},\text{Gd})\text{O}_2$ solid solutions. *J. Nucl. Mater.* **105**, pp.201-210 (1992).
- [49] Baron, D.: About the modelling of fuel thermal conductivity degradation at high burn-up accounting for recovering processes with temperature. *Thermal Performance of High*

- Burn-up LWR Fuel (Seminar Proceedings)*, Cadarache, France, March 3-6, 1998, pp.129-143 (1998).
- [50] 佐治悦郎, 井田俊一, 若松明弘, 河越稔之, 清水純太郎, 堀元俊明: PWR 燃料・炉心の更なる信頼性向上・高度化に向けた取組み. 三菱重工技報 **46**(4), pp.28-32 (2009).
- [51] Valls, A., Duro, L., González-Robles, E.: IRF Database - State of the art report (3rd edition). Deliverable D5.1, European Commission (2014).
- [52] Gray, W. J.: Inventories of iodine-129 and cesium-137 in the gaps and grain boundaries of LWR spent fuels. *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXII (Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 556)*, (Wronkiewicz, D. J. and Lee, J. H. ed.) Boston, USA, November 30-December 4, 1998, pp.487-493. (1999).
- [53] Tait, J. C., Cornett, R. J. J., Chant, L. A., Jirovec, J., McConnell, J., Wilkin, D. L.: Determination of Cl impurities and ³⁶Cl instant release from used CANDU fuels. *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XX (Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 465)*, (Gray, W. J. and Triay, I. R. ed.) Boston, USA, December 2-6, 1996, pp.503-510 (1997).
- [54] González-Robles, E., Bohnert, E., Loida, A., Müller, N., Metz, V., Kienzler, B.: Fission gas measurements and description of leaching experiments with of KIT's irradiated PWR fuel rod segment (50.4 GWd/tHM). *1st Annual Workshop Proceedings of the Collaborative Project "Fast / Instant Release of Safety Relevant Radionuclides from Spent Nuclear Fuel" (7th EC FP CP FIRST-Nuclides)*, (Kienzler, B., Metz, V., Duro, L., Valls, A. ed.) Budapest, Hungary, October 9-11, 2012, pp.61-69 (2013).
- [55] Mennecart, T., Lemmens, K., Cachoir, C.: Characterisation and leaching tests for the experimental determination of IRF radionuclides from Belgian high-burnup spent fuel. *Final Workshop of the FIRST-Nuclides Project (FIRST-Nuclides Deliverable report No. 5.4, Final (3rd) Annual Workshop Proceedings)*, Karlsruhe, Germany, September 1-2, 2014, pp.137-144 (2014).
- [56] Yamaguchi, T., Tanuma, S., Yasutomi, I., Nakayama, T., Tanabe, H., Katsurai, K., Kawamura, W., Maeda, K., Kitao, H., Saigusa, M.: A study on chemical forms and migration behavior of radionuclides in hull wastes. *The 7th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation ICEM'99*, Nagoya, Japan, September 26-30, 1999 (1999).
- [57] Sakuragi, T.: Final report on Zr alloys corrosion studies at RWMC (D3.19). CAST Project Report, European Commission (2017).
- [58] Johnson, L. H., Tait, J. C.: Release of segregated nuclides from spent fuel. SKB Technical Report 97-18, p.6 (1998).
- [59] Roth, O., Askeljung, C., Puranen, A., Granfors, M., Cui, D., Low, J.: Leaching of high burn up spent fuel with and without matrix dopants. *Final Workshop of the FIRST-Nuclides Project (FIRST-Nuclides Deliverable report No. 5.4, Final (3rd) Annual Workshop Proceedings)*, Karlsruhe, Germany, September 1-2, 2014, pp.173-190 (2014).
- [60] Puranen, A., Granfors, M., Roth, O.: Aqueous leaching of ⁷⁵Se from spent nuclear fuel. *Final Workshop of the FIRST-Nuclides Project (FIRST-Nuclides Deliverable report No. 5.4, Final (3rd) Annual Workshop Proceedings)*, Karlsruhe, Germany, September 1-2, 2014, pp.167-172. (2014).
- [61] Curti, E., Froideval-Zumbiehl, A., Martin, M., Bullemer, A., Günther-Leopold, I., Puranen, A., Jädernäs, D., Roth, O., Grolimund, D., Borca, C. N., Velea, A.: X-ray absorption spectroscopy of selenium high-burnup UO₂ spent fuel from the Leibstadt and Oskarshamn-3 reactors. *Final Workshop of the FIRST-Nuclides Project (FIRST-Nuclides Deliverable report No. 5.4, Final (3rd) Annual Workshop Proceedings)*, Karlsruhe, Germany, September 1-2, 2014, pp.127-136 (2014).
- [62] 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 24 年度地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処分技術ヨウ素・炭素処理・処分技術高度化開発報告書(第 3 分冊) —放射化金属廃棄物中の C-14 の放出挙動評価—. p.2-10 (2013).
- [63] Ferry, C., Lovera, P., Poinsot, C., Johnson, L.: Quantitative assessment of the Instant Release Fraction (IRF) for fission gases and volatile elements as a function of burnup and time under geological disposal conditions. *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXVII (Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 807)*, (Oversby, V. M. and Werme, L. O. ed.) Kalmar, Sweden, June 15-19, 2003, pp.35-40 (2004).