

# エネルギー材料学概論

## 第10回(材料系第3回) 核分裂炉材料

核燃料サイクル  
再処理、処分  
その他の原子炉(軽水炉以外)  
原子力発電所事故

### 10-1 核燃料サイクル

ウラン鉱山  
閃ウラン鉱、遷青ウラン鉱

精錬工場  
酸浸出 → イエローケーキ  
代表例 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>U<sub>2</sub>O<sub>7</sub>  
(重ウラン酸アンモン、ADU)  
U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>に換算して取引

転送  
ADU → UF<sub>6</sub> (昇華温度56℃)

濃縮  
遠心分離、ガス拡散、レーザー

再転送  
UF<sub>6</sub> → UO<sub>2</sub>



### 10-2 核分裂生成物

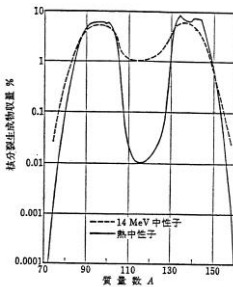


表4.3.3 長寿命および安定FPの核分裂収率 (235U, 熱中性子)

	%Yield		%Yield
(Se)	0.4	(Sb)	0.1
(Br)	0.3	(Te)	2.5
(Kr)	3.8	(Xe)	1.0
(Rb)	1.3	(Cs)	20
(Sr)	4.8	(Ba)	6.7
(Y)	36.9	(La)	6.6
(Zr)	25	(Ce)	12.3
(Nb)	6.1	(Pr)	5.9
(Mo)	8.3	(Nd)	20.5
(Tc)	4.9	(Pm)	2.3
(Ru)	1.4	(Sm)	1.9
(Rh)	0.2	(Eu)	0.2
(Pd)	0.1		
(Ag)			
(Cd)			

図 2.7 熱中性子および 14 MeV 中性子による 235U の核分裂生成物収率

□: ガスFP ○: 揮発性FP

表 2.1.2 主要な核分裂生成物

核種	核分裂収率 (%)	半減期	β線	γ線	備考
<sup>85</sup> Kr	0.3	10.8 年	0.672	0.514	
<sup>85</sup> Sr	4.8	51 日	1.463	—	
<sup>90</sup> Sr	5.8	28 年	0.544, (2.27)	—	2.27 の β線は平衡に存在する <sup>90</sup> Y による
<sup>90</sup> Zr	6.2	65.5 日	0.396, 0.360	0.235, 0.722, 0.754	
<sup>131</sup> I	3.1	8.05 日	0.608, 0.335	0.365 他多数	
<sup>133</sup> Xe	6.6	5.27 日	0.347	0.081	
<sup>135</sup> Xe	6.3	9.14 時	0.91	0.250	
<sup>137</sup> Cs	6.2	30 年	0.514 (0.662)	—	
<sup>144</sup> Ce	6.0	285 日	0.309, 0.175	0.134 他多数	γ線は平衡に存在する <sup>137m</sup> Ba による
<sup>147</sup> Pm	2.0	2.64 年	0.225	—	

β線およびγ線は主要なもののみを示す。単位はMeV。

表 1.1 (a) 核分裂生成物生成量の半減期による区分け (数値: 重量%)

半減期区分	主要核種	核分裂生成物発生源		
		使用済燃料 <sup>1)</sup>	<sup>235</sup> U <sup>2)</sup>	<sup>239</sup> Pu <sup>3)</sup>
1 年未満	多数	1.0	4.4	3.0
1 年~10 年	<sup>136</sup> Ru, <sup>134</sup> Cs, <sup>141</sup> Pm, <sup>137</sup> Eu	1.3	1.5	3.0
10 年~30 年	<sup>85</sup> Kr (10.7 年)*, <sup>90</sup> Sr (28.5 年), <sup>137</sup> Cs (30.0 年)	5.3	6.3	4.8
30 年~100 年	<sup>131</sup> I (90 年)	0.03	0.3	0.5
100 年~1 万年	なし	0.0	0.0	0.0
1 万年~50 億年	<sup>90</sup> Zr (150 万年), <sup>99</sup> Tc (21 万年), <sup>107</sup> Pd (650 万年), <sup>129</sup> I (約 10 万年), <sup>129m</sup> I (1570 万年), <sup>135</sup> Cs (300 万年)	6.6	9.8	11.2
50 億年以上	<sup>87</sup> Rb (480 億年), <sup>142</sup> Ce (> 5x10 <sup>16</sup> 年), <sup>144</sup> Nd (2.1x10 <sup>15</sup> 年), <sup>150</sup> Nd (> 5x10 <sup>18</sup> 年), <sup>147</sup> Pm (1060 億年), <sup>148</sup> Sm (7x10 <sup>15</sup> 年), <sup>149</sup> Sm (> 1x10 <sup>16</sup> 年)	9.5	7.9	7.4
安定	多数	76.3	69.8	70.1

\*) かつこ内数値: 半減期

1) 3,410MW PWR 使用済燃料 (燃焼率: 33GWd/MT, 150 日冷却)  
燃焼計算コード: SRAC-FPGS, 核データ: JENDL-2

2, 3) <sup>235</sup>U, <sup>239</sup>Pu の熱中性子による核分裂 150 日冷却

### 10-3 使用済燃料

表 2.1 原子炉の使用済燃料中の FP、および、アクチノイド核種 (合計 1 トン当たり)  
(a) PWR-UO<sub>2</sub> 燃料、新燃料 U 濃縮度 4.1%、取出し燃焼度 43GWd/t

核種	取出し直後		10年冷却後		100年冷却後		1000年冷却後		10000年冷却後	
	重量 [放射能]	発熱	重量 [放射能]	発熱	重量 [放射能]	発熱	重量 [放射能]	発熱	重量 [放射能]	発熱
半減期(年)	(kg) (Bq)	(kW)	(%) (Bq)	(kW)	(%) (Bq)	(kW)	(%) (Bq)	(kW)	(%) (Bq)	(kW)
総量	441.6, 24181	19963	441.1, 24141	1.18	441.1, 64151	0.12	441.9, 14111	3.2e-5	441.8, 8e11	2.2e-5
内訳(%)										
FP	1.81	99.23	99.85	5.0e-4	44.82	69.10	4.0e-5	48.90	79.68	4.0e-9
1 - 10 <sup>4</sup>	1.38	0.63	0.13	0.11	7.42	12.81	4.0e-5	0.01	0.03	0
10 - 30	1.63	0.06	0.01	1.27	20.58	8.11	0.14	20.06	8.26	2.0e-5
30 - 100 <sup>5)</sup>	2.53	0.08	0.01	2.80	27.17	9.99	0.36	30.98	12.02	2.0e-5
100 - 1万	5.0e-6	5.0e-6	2.0e-9	5.0e-6	1.0e-6	4.0e-6	5.0e-6	1.0e-5	4.0e-5	3.0e-6
1万-50億 <sup>6)</sup>	6.63	6.63	5.0e-7	6.64	0.01	9.0e-4	6.64	0.05	0.01	6.64
> 50億 <sup>6)</sup>	7.85	7.85	2.0e-12	9.09	2.0e-8	8.0e-9	9.11	2.0e-7	8.0e-8	9.11
安定	77.17	0	0	80.09	0	0	83.74	0	0	84.34

表中で、6.2e18, 2.0e-5 などの表記は、それぞれ 6.2x10<sup>18</sup>, 2.0x10<sup>-5</sup> と読む。

また、\*1: 主な核種は <sup>90</sup>Y, <sup>106</sup>Rh, <sup>136</sup>Sh, <sup>136</sup>Ba, <sup>137</sup>Ce

\*2: 主な核種は <sup>136</sup>Ru, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Pm, <sup>137</sup>Eu

\*3: 主な核種は <sup>137</sup>Kr, <sup>90</sup>Sr

\*4: 主な核種は <sup>135</sup>Sm, <sup>137</sup>Cs

\*5: 主な核種は <sup>90</sup>Zr, <sup>99</sup>Tc, <sup>107</sup>Pd, <sup>129</sup>Sn, <sup>129m</sup>I, <sup>135</sup>Cs

\*6: 主な核種は <sup>87</sup>Rb, <sup>142</sup>Ce, <sup>144</sup>Nd, <sup>150</sup>Nd, <sup>147</sup>Pm, <sup>148</sup>Sm, <sup>149</sup>Sm

### 10-3 使用済燃料

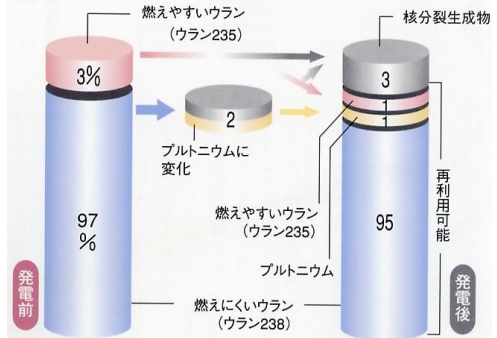
表 2.1 原子炉の使用済み燃料中の FP、および、アクチノイド核種 (合計 1 トン当たり)

(a) PWR-UO<sub>2</sub>燃料、新燃料U濃縮度 4.1%、取出し燃焼度 43GWd/t

核種名	取出し直後			10年冷却後			100年冷却後			10000年冷却後		
	重量 (%)	放射能 (Bq)	発熱 (kW)	重量 (%)	放射能 (Bq)	発熱 (kW)	重量 (%)	放射能 (Bq)	発熱 (kW)	重量 (%)	放射能 (Bq)	発熱 (kW)
総量	956	1.6e18	1.15	956	4.5e15	0.32	956	6.3e14	0.26	956	3.7e13	0.02
内訳 (%)												
<sup>238</sup> U	0.94	9.6e-8	4.6e-7	0.94	3.6e-5	2.0e-4	0.94	2.0e-4	0.96	9.6e-4	8.6e-4	1.09
<sup>235</sup> U	0.53	2.6e-6	8.6e-6	0.55	6.6e-4	3.0e-3	0.56	4.6e-3	0.58	0.02	0.01	0.72
<sup>239</sup> Pu	97.30	1.6e-6	7.6e-6	97.30	5.6e-4	2.9e-3	97.30	0.01	0.01	97.30	0.06	0.05
<sup>240</sup> Pu	0.07	2.6e-6	1.6e-5	0.07	7.4e-4	4.0e-3	0.09	0.01	0.01	0.20	0.06	0.24
<sup>241</sup> Pu	0.02	0.02	0.11	0.02	6.19	38.38	1.6e-2	21.6	23.7	1.6e-5	0.08	0.08
<sup>242</sup> Pu	0.59	2.6e-3	9.6e-3	0.60	0.59	3.38	0.60	4.16	4.23	0.58	16.61	15.94
<sup>243</sup> Pu	0.26	3.6e-3	0.02	0.26	0.93	5.42	0.26	6.62	6.81	0.24	24.61	23.87
<sup>244</sup> Pu	0.17	0.37	4.6e-3	0.10	84.15	0.98	1.0e-3	7.85	0.02	3.6e-7	0.01	1.6e-5
<sup>245</sup> Pu	0.07	1.6e-5	6.6e-5	0.07	4.6e-3	0.02	0.07	0.03	0.03	0.07	0.12	0.11
<sup>246</sup> Pu	0.01	8.6e-4	5.6e-3	0.07	3.72	23.15	0.15	58.03	63.61	0.04	56.53	58.52
<sup>247</sup> Pu	0.01	1.6e-4	8.6e-4	0.01	0.05	0.27	0.01	0.32	0.34	0.01	1.20	1.21
<sup>248</sup> Pu	2.6e-3	0.28	1.97	3.6e-7	0.01	0.10	2.6e-7	0.07	0.08	3.6e-9	4.6e-3	5.6e-6
<sup>249</sup> Pu	5.6e-3	0.02	0.12	3.6e-3	4.27	27.96	1.6e-4	0.97	1.12	0	0	0
その他	0.01	99.31	97.77	3.6e-3	0.09	0.33	0.01	0.30	0.09	0.03	0.75	0.19

### 発電前後の燃料

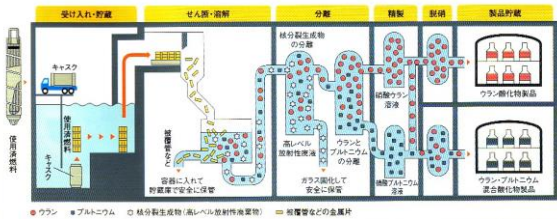
原子力発電によるウラン燃料の組成の変化 (電気事業連合会)



### 10-4 再処理と処分

再処理: 使用済燃料から再利用できる物質 (燃料) を取り出すこと

再処理方法: 湿式法 (ピューレックス法、レドックス法、ブテックス法) 乾式法 (金属電解法、酸化物電解法)



### 再処理 (ピューレックス法) Plutonium uranium reduction extraction



使用済み燃料を、切断、硝酸溶解し、有機溶媒 (TBP等) で抽出する代表的湿式再処理法

核燃料物質 (U,Pu) は有機溶媒相に抽出され易く、核分裂生成物 (FP) は水相に残り易い

TBP: リン酸トリブチル (Tributyl Phosphate)

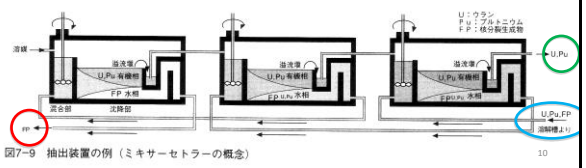
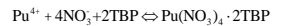
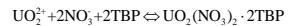


図7-9 抽出装置の例 (ミキサーセタラーの概念)

### 乾式再処理の例

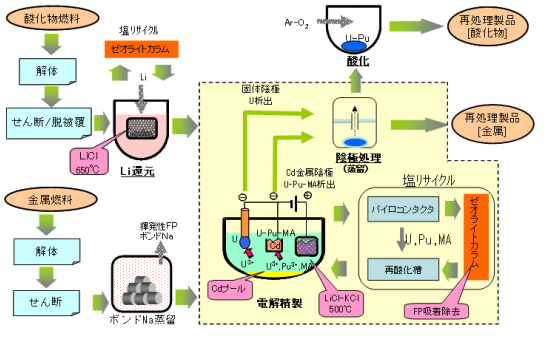


図1 金属電解法乾式再処理プロセス

[資料提供] 核燃料サイクル開発機構

表3 高レベル廃棄物に含まれる有用核種(元素)と主な利用法

核種	半減期	放射線 <sup>1)</sup>	主な利用法
Np-237	2.1 × 10 <sup>6</sup> y	αとγ0.086	Pu-238製造原料 Pu-238はエネルギー源
Am-241	432y	αとγ0.060	中性子源 (n,α)による中性子源
Cm-242	162.8d	αとγ	比熱量がPu-238より高いエネルギー源
Cm-244	18.1y	αとγ	Cf-252製造用ターゲット 小型原子炉
Sr-90	28.9y	β max0.546	熱エネルギー源
Cs-137	30.2y	βとγ0.662	γ線照射用線源
Tc-99	2.1 × 10 <sup>5</sup> y	β max0.292 γ74keV	耐食性鋼材、触媒、 超電導素材
Ru	約35年後に 74Bq/gRu Ru-106(367d, γ0.512, 0.622)		触媒、電極材、貴金属
Rh	約50年後に 74Bq/gRh		触媒、ガラスファイバ
Pd	Pd-107(6.5 × 10 <sup>6</sup> y, βのみ)		触媒

1) 種類とそのエネルギー(MeV)

下記の出典をもとに作成した。

【出典】久保田益充: 「高レベル廃棄物の群分離の研究開発」、日本原子力学会誌、29(9)、775 (1987)

## 高レベル放射性廃棄物 固化方法(長期安定性(機械的、化学的)を重視)

表1 各種代替固化体の性状

固化体	浸出率 (g/cm <sup>2</sup> 日)	熱伝導度 (W/m℃)	耐圧強度 (MPa)	長期安定性	強度	密度 (g/cm <sup>3</sup> )
リン酸ガラス	2.8×10 <sup>-5</sup>	0.8~1.2	800~1000	失速の可能性あり	かたくて柔らかい	2.8
ホウケイ酸ガラス	2.9×10 <sup>-5</sup>	0.8~1.2	1000~1200	失速の可能性あり	かたくて柔らかい	2.8
ガラスセラミックス	2.9×10 <sup>-5</sup>	1.5	1200	安定	かたくて丈夫	2.5
セラミックス	2.9×10 <sup>-5</sup>	~2.0	>1600	安定	かたくて丈夫	3.4~4.7
ガラス-金属複合体	優れている	~10	250~500	安定	耐衝撃性が良好	~6
シンシロク	10 <sup>-6</sup> ~10 <sup>-7</sup> (セシウム)	~3.0	~1100	安定	かたくて丈夫	4.5

注: \* 比較のためガラス固化体の性状も記載した。  
[出典: 日本原子力発電協会(編): 放射性廃棄物管理ガイドブック 1994年版 (1994年), p.66]

## 高レベル放射性廃棄物 ガラス固化体

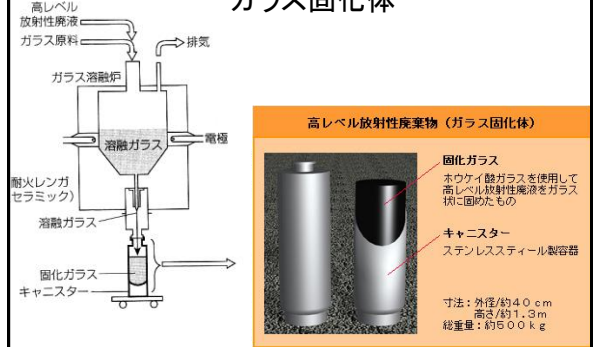


図8-8 高レベル放射性廃液のガラス固化

## ガラス固化体の特性(例)

固化体の特性	JNFL	JAEA	AREVA NC(参考)
放射性核種濃度	$\beta$ : $\leq 2.17 \times 10^{10}$ Bq $\alpha$ : $\leq 1.29 \times 10^9$ Bq	$\beta$ : $\leq 1.5 \times 10^{10}$ Bq $\alpha$ : $\leq 2.6 \times 10^8$ Bq	$\beta$ : $\leq 2.8 \times 10^{10}$ Bq $\alpha$ : $\leq 1.4 \times 10^8$ Bq
高レベルガラス固化体表面浸出率			$\beta$ -イソトープ 表面: $1.4 \times 10^{-9}$ g/y以下 中性子線 表面: $5.1 \times 10^{-9}$ g/y以下
固化ガラス化学組成	Na <sub>2</sub> O: 目標値 10%, 製造管理範囲 8~12wt% 全金属物酸化化合物含有量 目標値 22.1%, 製造管理範囲 20~30 wt% SiO <sub>2</sub> : 46.2wt% B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 14.8wt% Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 3.2wt% Li <sub>2</sub> O: 3.1wt% CaO: 3.1wt% ZnO: 3.1wt% FP 酸化物: 9.2wt% AC 酸化物: 1.0wt% CP 酸化物: 0.2 wt% Oxide: 1.5%	Na <sub>2</sub> O: 目標値 10%, 製造管理範囲 8~12wt% 全金属物: 目標値 20%, 製造管理範囲: 20wt%以下 SiO <sub>2</sub> : 46.7wt% B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 14.3wt% Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 3.0wt% Li <sub>2</sub> O: 3.0wt% CaO: 3.0wt% ZnO: 3.0wt% FP 酸化物: 9.2wt% AC 酸化物: 2.5wt% NGO: 0.2wt% Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 0.1wt% P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> : 0.3wt%	7.5% < (FP+2+アクチノイド) 酸化物及び全金属化合物 < 18.5% 42.4% < SiO <sub>2</sub> < 51.7% 12.4% < B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> < 16.5% 3.6% < Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> < 6.6% 1.6% < Li <sub>2</sub> O < 2.4% 3.5% < CaO < 4.8% 2.2% < ZnO < 2.8% 60.0% < SiO <sub>2</sub> +Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> +B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 4.5% NiO: 0.5% Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : 0.6% P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> : < 1.0% RuO <sub>4</sub> +Rh+Pd < 3.0%
放射量(放射線量インベントリ)	2.3k以下 (製造時)	1.4k以下 (製造時)	<2.0k(W/輸送時)
高レベルガラス固化体重量	約 500 kg	約 380 kg	約 492 kg

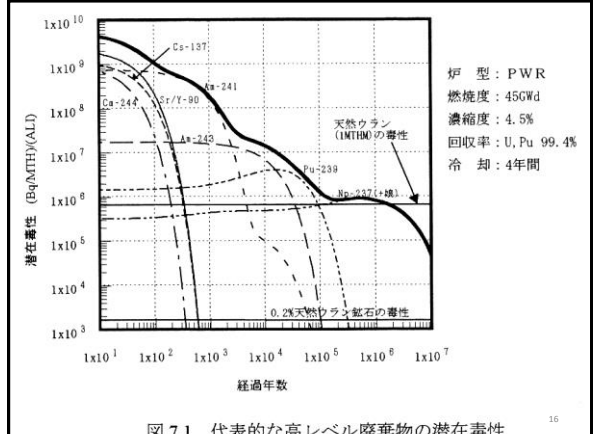
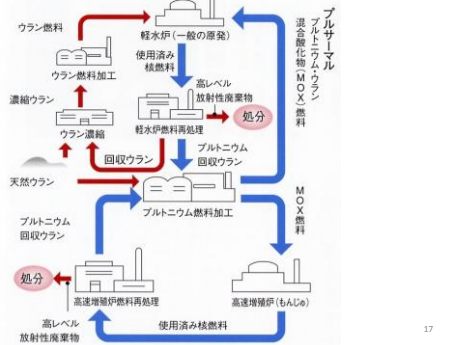


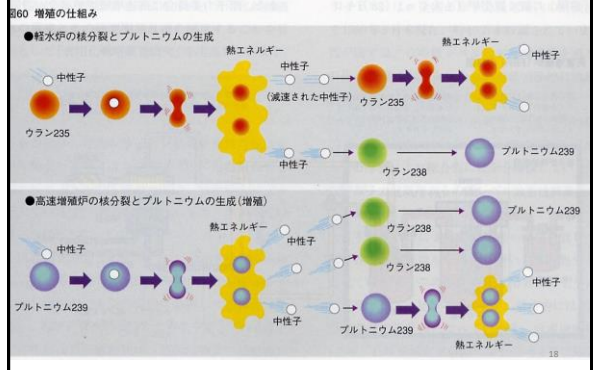
図7-1 代表的な高レベル廃棄物の潜在毒性

## 10-5 高速増殖炉

### 核燃料サイクルの概念図



## 10-5-1 高速増殖炉内の核分裂反応





### 10-5-4 高速増殖炉(Pu、U)

表 5.3 プルトニウムの変態

変態	$\alpha \rightarrow \beta$	$\beta \rightarrow \gamma$	$\gamma \rightarrow \delta$	$\delta \rightarrow \delta'$	$\delta' \rightarrow \epsilon$	$\epsilon \rightarrow$ 液体
変態温度 $^{\circ}\text{C}$	122	203	317	453	478	639.5

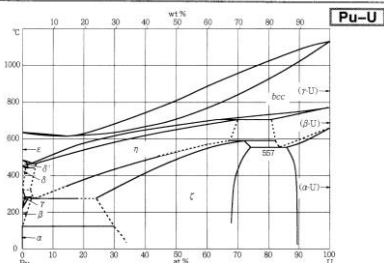


図 5.3 Pu-U 系相図 (資料: 立方,  $\delta$  斜方,  $\epsilon$  面心立方,  $\delta'$  と  $\gamma$  は体心立方, A2 型は高温で連続している。)

表 5.5 金属ウラン、 $\text{UO}_2$  および UC の諸性質

	金属ウラン( $\alpha$ 相)	二酸化ウラン( $\text{UO}_2$ )	炭化ウラン (UC)
結晶構造	斜方晶系	ほぼ石型立方晶系	食塩型立方晶系
密度( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	19.04	10.96	13.63
U 含有量( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	19.04	9.66	12.97
融点( $^{\circ}\text{C}$ )	1132 (変態660)	2800	2300
比熱( $\text{kcal}/\text{kg}^{\circ}\text{C}$ )	0.032	0.052	0.071
熱伝導率( $\text{kcal}/\text{mh}^{\circ}\text{C}$ )	25	1.8	22
電気抵抗( $\Omega\text{-cm}$ )	$29 \times 10^{-6}$	$7.8 \times 10^{-1}$	$(30 \sim 100) \times 10^{-6}$

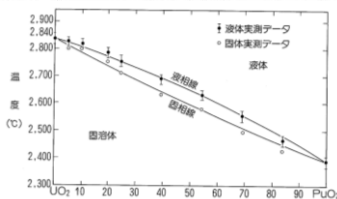


図 1  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ 系相図

### 10-6 高温ガス炉

日本最初の商業炉は  
ガス炉(東海1号)

高温ガス炉  
HTTR

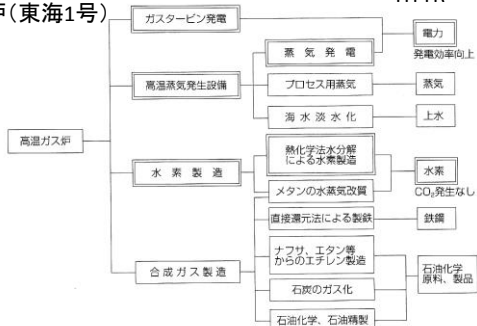


図 11-4 高温ガス炉の熱利用体系

黒鉛の昇華温度:  $\sim 3600^{\circ}\text{C}$

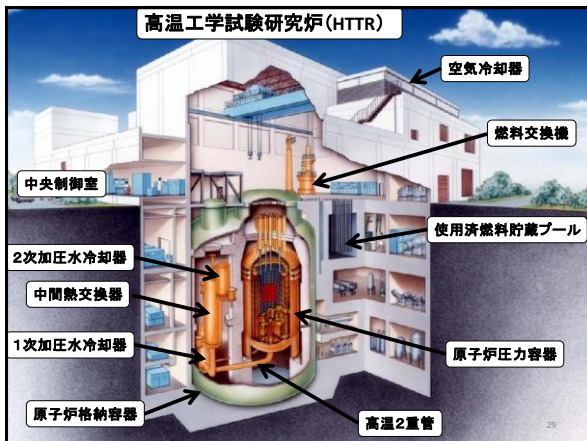
SiCの融点:  $\sim 2700^{\circ}\text{C}$



図 11-5 高温ガス炉の燃料形態と原子炉

(参考: 日本原子力研究所, 「高温工学試験研究の現状」(1998))

### 高温工学試験研究炉 (HTTR)



### 10-7 その他の原子炉 (CANDU)

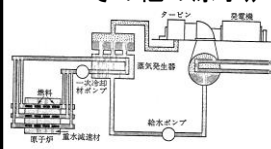


図 5.20 加圧重水冷却炉 (CANDU-PHW) の系統

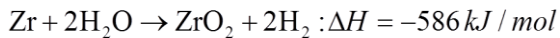


Canadian Deuterium Uranium Reactor  
重水減速重水冷却横置き  
天然ウラン  
運転中に燃料交換が行える

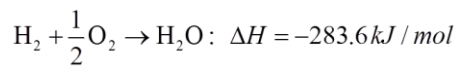
カナダ、韓国、中国、アルゼンチン、ルーマニアなど







800kg～水素ガスボンベ(7m<sup>3</sup>) 1300本  
1時間で反応が終了したとすると平均出力は～30000kW



$$283.6 \times 8 \times 10^5 / 2 = 1.1 \times 10^8 \text{ kJ} \\ = 113 \text{ GJ}$$

43

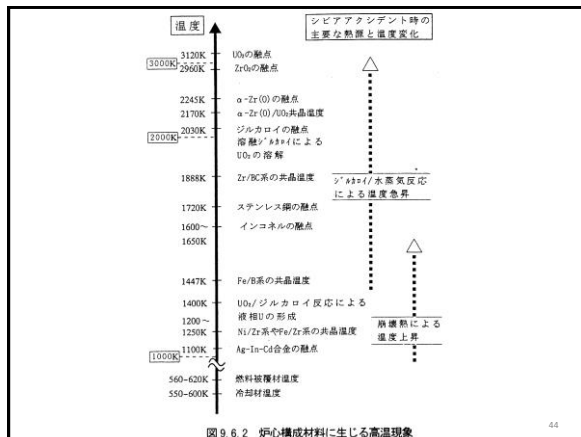


図 9.6.2 炉心構成材料に生じる高温現象

44

## 課題—10

1. 高速増殖炉のメリット、デメリットを記せ。
2. 代表的な核分裂生成物(核分裂収率および半減期)を記せ。
3. 再処理および処分の方法を挙げよ。
4. 福島第一原発の事故は防ぐことが可能であったと思うか？可能であればその方法は？

解答には、氏名、今日の日付を記入のこと。また、図表を除き手書きのこと。

45