

分置

高速増殖炉サイクルにおける長寿命核種の  
分離変換技術の研究開発（基礎・基盤）成果  
(2001から2004年度まで)

（調査報告）

2005年3月

核燃料サイクル開発機構  
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

電話：029-282-1122（代表）

ファックス：029-282-7980

電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technical Cooperation Section,

Technology Management Division ,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu , Tokai-mura , Naka-gun , Ibaraki 319-1184 ,

Japan

© 核燃料サイクル開発機構

(Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2005

(S)

## 高速増殖炉サイクルにおける長寿命核種の分離変換技術の研究開発(基礎・基盤)成果 (2001から2004年度まで)

山下清信<sup>\*1</sup>、小澤正基<sup>\*1</sup>、池上哲雄<sup>\*2</sup>、原田秀郎<sup>\*3</sup>、  
逢坂正彦<sup>\*4</sup>、大木繁夫<sup>\*5</sup>、館 義昭<sup>\*6</sup>、古高和禎<sup>\*1</sup>、中村詔司<sup>\*1</sup>

### 要 旨

「長寿命核種の分離核変換技術の研究開発」の課題評価委員会(2000年8月)にて研究項目についての事前評価を受け、この評価結果に基づいて研究開発を進めてきたところ以下の成果を得た。分離技術では、使用済燃料中の全アクチニドを一括して分離するための有望な2種の新抽出系を特定し、ソフト配位子を装荷したイオン交換樹脂が高度なマイナーアクチニド(MA)とランタニド(Ln)の分離機能及びAmとCmの分離機能を有することを明らかにした。核データの測定では、全立体角  $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BG0)検出器等の開発により広エネルギー領域の中性子捕獲断面積が測定できる高度な技術を開発し、世界初となる核データを含む7核種のMA及び核分裂生成物(FP)の中性子捕獲断面積を決定した。炉物理では、高速実験炉「常陽」で照射したMAサンプルの測定結果の解析により、 $^{241}\text{Am}$ 捕獲反応の核異性体比の不確かさを大幅に低減した。不活性母材燃料では、模擬試料を用いた作製試験を通して、既存技術に適合する基本製造プロセスを確立した。新しい核換技術・概念の検討では、簡易熱処理を行った軽水炉使用済燃料を高速炉で燃焼した場合に40万MWd/tもの燃焼度を達成できる概念「複合処理燃料サイクル」を提案した。

事前評価以後、分離変換技術を充実する観点から新たに加えた研究項目については、以下の成果があった。希少元素FPの分離・利用では、触媒(Pd他)を利用した電解採取法による希少元素FP(Ru, Rh, Pd, Tc他)の分離回収技術を開発した。また、水電解水素製造の過程で、希少元素FPを混合析出した電極が高い触媒活性能を有することを見出した。長寿命核分裂生成物(LLFP)ターゲットでは、ヨウ素化合物の有望な6種類の候補試料(CuI, BaI<sub>2</sub>等)の基礎的物性を評価した。地層処分については、従来の“放射性毒性”に替わる新たなものとして、環境影響指標を導入するとともに、地層処分の効果を定量評価する手法を整備した。

本報は、第2段階の研究開発を効率的にすすめるため、以上の第1段階の研究開発の成果をまとめたものである。

\*<sup>1</sup>: 大洗工学センター システム技術開発部 分離変換工学グループ

\*<sup>2</sup>: 大洗工学センター システム技術開発部

\*<sup>3</sup>: 東海事業所 環境保全・研究開発センター先進リサイクル研究開発部システム設計評価グループ

\*<sup>4</sup>: 大洗工学センター 燃料材料試験部 照射燃料試験室

\*<sup>5</sup>: 大洗工学センター システム技術開発部 中性子工学グループ

\*<sup>6</sup>: 大洗工学センター 燃料材料試験部 照射材料試験室

**Results of Fundamental Research and Development of  
Partitioning and Transmutation Technology of Long-Lived-Nuclides for  
Fast Breeder Reactor Cycle (from 2001 to 2004 Japanese Fiscal Years)**

Kiyonobu YAMASHITA<sup>\*1</sup> Masaki OZAWA<sup>\*1</sup> Tetsuo IKEGAMI<sup>\*2</sup>  
Hideo HARADA<sup>\*3</sup> Masahiko OHSAKA<sup>\*4</sup> Shigeo OHKI<sup>\*5</sup>  
Yoshiaki TACHI<sup>\*6</sup> Kazuyosi FURUTAKA<sup>\*1</sup> Shoji NAKAMURA<sup>\*1</sup>

**Abstract**

Research Evaluation Committee carried out a pre-evaluation of "Research and Development of Partitioning and Transmutation Technology of Long-Lived-Nuclides" in Aug. 2000. Following results are obtained from the research and development. Two extractant systems, capable of recovering all actinides in spent fuel, were newly nominated. Tertiary pyridine resin process possesses high abilities on Am/Cm as well as Miner Actinides(MA)/Lanthanides (Ln) separations. Neutron capture cross sections of 7 nuclides of MA and Fission Products (FP) were determined in nuclear data measurements. Some of those measurements are for the first time in the world. An advanced measurement system of a full solid angle Bi<sub>4</sub>Ge<sub>3</sub>O<sub>12</sub> detector etc., was developed to measure the energy dependence of the neutron capture cross sections. Uncertainty in isometric ratio of <sup>241</sup>Am neutron capture reactions was reduced through analyses of MA samples irradiated in the experimental fast reactor "JOYO". Main production processes of inert-matrix fuels were developed through trial-production experiments with mock materials. A complex process fuel cycle concept was proposed that was able to burn LWR spent fuels up to 400GWd/t only with heat treatment without reprocessing.

Following results are also obtained from the research and development newly added after the pre-evaluation of Research Evaluation Committee, to establish Partitioning and Transmutation Technology of Long-Lived-Nuclides. Catalytic-electrolytic extraction was successfully developed to recover rare metal fission products (RMFP) as Ru, Rh, etc. RMFP-deposit electrodes showed high catalytic ability on the hydrogen production by water electrolysis. Material properties of 6 promising Iodine compounds such as CuI, BaI<sub>2</sub> were selected for <sup>129</sup>I- transmutation targets. An environmental Impact index was newly introduced instead of conventional radio-toxicity for quantitative evaluation of geological repository effect.

These achievements in the first phase are summarized in this report to promote the research and development in the second phase effectively.

---

\*<sup>1</sup>:Nuclides Partitioning and Transmutation Technology Development Group, System Engineering Technology Division, O-arai Engineering Center, JNC

\*<sup>2</sup> System Engineering Technology Division, O-arai Engineering Center, JNC

\*<sup>3</sup> Recycle System Analysis and Design Group, Advanced Fuel Recycle Technology Division, Tokai Works, JNC

\*<sup>4</sup> Alpha-Gamma Section, Fuel and Materials Division, Irradiation Center, O-arai Engineering Center, JNC

\*<sup>5</sup> Reactor Physics Research Group, System Engineering Technology Division, O-arai Engineering Center, JNC

\*<sup>6</sup> Materials Monitoring Section, Fuel and Materials Division, Irradiation Center, O-arai Engineering Center, JNC

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 実用化戦略調査研究との役割分担 .....	3
3. 基礎・基盤の研究開発体制及び研究費 .....	5
4. 分離技術に関する研究項目 .....	9
4.1 全アクチニドの一括抽出分離プロセス .....	9
4.2 Am/Cm/ランタニドの相互分離法 .....	16
5. 核変換技術に関する研究項目 .....	21
5.1 核データ .....	21
5.2 炉物理 .....	32
5.3 燃料 .....	42
5.4 新しい核変換技術・概念の検討 .....	50
6. 事前評価以後追加した研究項目 .....	55
6.1 核分裂生成物の分離・利用技術 .....	55
6.1.1 希少元素核分裂生成物の分離・利用 .....	55
6.1.2 長寿命核分裂生成物(LLFP)の同位体分離 .....	67
6.2 LLFP .....	73
6.3 地層処分 .....	80
7. 今後の研究開発の進め方 .....	84
8. おわりに .....	87
 添付資料-1 : 「長寿命核種の分離変換技術の研究開発」についての事前評価 .....	89
 添付資料-2 : 研究開発課題評価委員会「長寿命核種の分離変換技術の研究開発」 の評価結果(事前評価)に対する措置 .....	97

## 図リスト

- 第 1.1 図 分離変換技術を組み込んだ高速増殖炉サイクルの概念
- 第 2.1 図 基礎・基盤研究と実用化戦略調査研究との役割分担
- 第 3.1 図 サイクル機構内の基礎・基盤研究の研究開発体制
- 第 3.2 図 基礎・基盤研究における国内外の研究機関との連携体制
- 第 4.1-1 図 主なアクチニド及び核分裂生成物の分離スキーム
- 第 4.1-2 図 二座配位型抽出剤
- 第 4.1-3 図 フッ素系希釈剤 Fluoropole
- 第 4.2-1 図 3 級ピリジン樹脂を用いた塩酸-メタノール混合溶媒による Ln(III) と An(III) のクロマトグラム conc. HCl:MeOH=7:3
- 第 4.2-2 図 アクチニドと希土類元素の分離係数
- 第 4.2-3 図 3 級ピリジン樹脂を用いた Am と Cm 分離例 conc. HNO<sub>3</sub>:MeOH=2:3
- 第 4.2-4 図 Am と Cm の分配係数の硝酸濃度依存性
- 第 4.2-5 図 イオン交換法による革新的再処理スキーム
- 第 5.1-1 図 全立体角 BGO 検出器
- 第 5.1-2 図 <sup>237</sup>Np の中性子捕獲断面積測定結果
- 第 5.1-3 図 即発ガンマ線分光法による熱中性子捕獲断面積測定
- 第 5.2-1 図 <sup>241</sup>Am 中性子捕獲反応の核異性体比
- 第 5.2-2 図 使用済燃料内重金属からの崩壊熱、中性子線、及びガンマ線の不確かさ
- 第 5.2-3 図 減速材付き核変換集合体による <sup>60</sup>Co 生成実験の解析結果
- 第 5.3-1 図 MgO-AmO<sub>2</sub>酸化物ターゲットの基本作製プロセス及び模擬試料作製結果
- 第 5.3-2 図 Am 含有 MOX 燃料の酸素ポテンシャル及び化学熱力学モデルによる評価
- 第 5.3-3 図 「常陽」照射済 MOX 燃料中の Cm 同位体含有量の分析結果
- 第 5.4-1 図 高速炉・軽水炉の複合システムの例
- 第 5.4-2 図 複合処理燃料サイクル概念
- 第 5.4-3 図 炉心構成
- 第 6.1.1-1 図 希少元素 FP をフロー物質とする、水素・燃料電池 / 原子力共生エネルギー系統
- 第 6.1.1-2 図 電解還元開始 3 時間後における各元素の析出率に及ぼす 硝酸濃度の影響
- 第 6.1.1-3 図 Ru/Pd 及び Re/Pd 混合系 (2.5M 硝酸溶液) における Pd 添加時の 各元素の析出挙動
- 第 6.1.1-4 図 電解析出法による白金属元素等の回収フローシート
- 第 6.1.1-5 図 希少元素析出電極の電解水素発生反応に纏わる電力消費 W<sub>c</sub> (カソード寄与分)
- 第 6.1.1-6 図 RMFP 析出 Pt 電極の水素製造における触媒活性 (Pt 電極基準)
- 第 6.1.1-7 図 新バックエンドサイクルの概念 : Fission-Energy Cycle 及び Fission-Product Cycle
- 第 6.1.2-1 図 天然 Rb の共鳴線 D2 スペクトル
- 第 6.2-1 図 ヨウ素化合物の調査フロー
- 第 6.2-2 図 焼結性試験により得られた焼結体

- 第 6. 2-3 図 600°C × 1000 時間後の SUS316 鋼の表面形態  
第 6. 2-4 図 ステンレス鋼の質量変化  
第 6. 2-5 図 BaI<sub>2</sub>、CuI、RbI の熱伝導率  
第 6. 3-1 図 PWR 燃料の環境影響評価結果  
第 6. 3-2 図 FBR 燃料の環境影響評価結果  
第 7. 1 図 FBR サイクル実用化戦略調査研究の展開  
第 7. 2 図 基礎・基盤研究に関する当面 5 年間の計画（案）

#### 表リスト

- 第 3. 1 表 基礎・基盤の研究費実績  
第 4. 1-1 表 硝酸ウラニル溶液(Caq. init. 80gU/l, 2MHN03)における An, Eu の分配比 (O/A=1, Temp. 22±2°C) 30% (HexO)<sub>2</sub>/Et<sub>2</sub> in fluoropol-1083 系  
第 4. 1-2 表 U 及び Eu による第 3 相の生成  
第 4. 1-3 表 研究開発スケジュール(分離技術)  
第 5. 1-1 表 中性子捕獲断面積の測定技術開発成果  
第 5. 1-2 表 LLFP 等の放射性核種の中性子捕獲断面積データに関する研究成果  
第 5. 1-3 表 MA の中性子捕獲断面積データに関する研究成果  
第 5. 1-4 表 研究開発スケジュール(核データ)  
第 5. 2-1 表 核データに起因する MA 核種の生成量の不確かさ  
第 5. 2-2 表 研究開発スケジュール(炉物理)  
第 5. 3-1 表 研究開発スケジュール(燃料)  
第 5. 4-1 表 リサイクルによる変化(軽水炉ウラン使用済み燃料)  
第 5. 4-2 表 研究開発スケジュール(新しい核変換技術・概念の検討)  
第 6. 1. 1-1 表 電解還元開始 3 時間後における Ru 及び Re の析出率に及ぼす共存する陽イオンの影響  
第 6. 1. 1-2 表 研究開発スケジュール(希少元素 FP 分離・利用技術)  
第 6. 1. 2-1 表 LLFP の同位体分離効果  
第 6. 2-1 表 研究開発スケジュール(LLFP)  
第 6. 3-1 表 研究開発スケジュール(地層処分)

#### 写真リスト

- 第 6. 1. 2-1 写真 レーザー化学法によるアルカリ金属同位体分離実験装置  
第 6. 1. 2-2 写真 析出 RbH 層

## 1. はじめに

分離変換技術は、原子力利用の結果生じる放射性廃棄物の中に存在する長寿命核種を短寿命化あるいは安定核種に変換し、放射能及び潜在毒性が人類の時間スケールをはるかに越える長期間に及ぶことに起因する不安を軽減すると共に、最終処分される廃棄物量の低減や処分場の合理化に繋がる可能性を秘めた核燃料リサイクルの高度化技術である。さらに、アクチニドの回収率を向上すると共に、全アクチニドをリサイクルして燃焼させることによるウラン資源利用率のさらなる向上等の可能性も併せ持つ技術である。この分離変換技術を組み込んだ高速増殖炉(FBR)サイクルを第1.1図に示す。

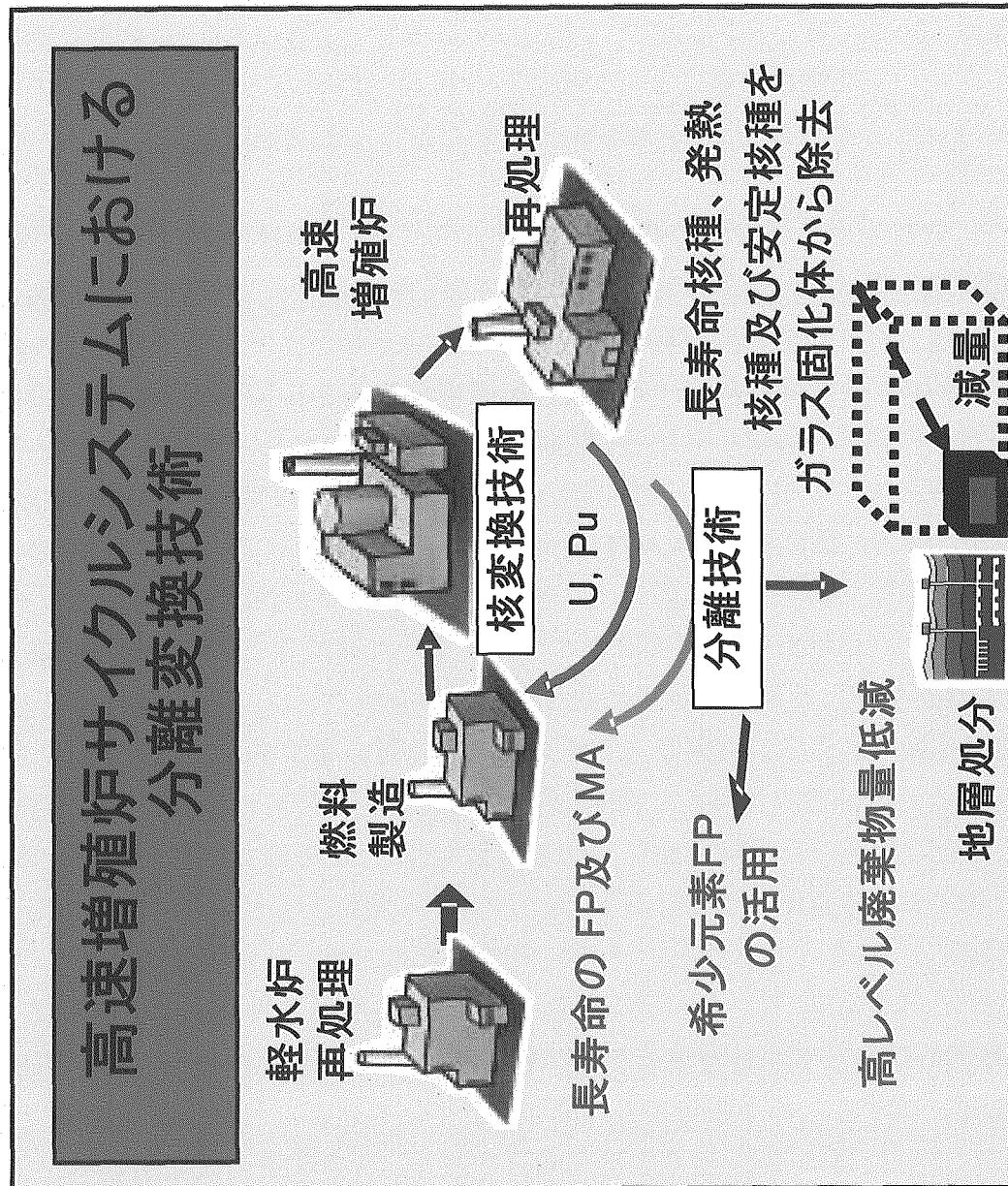
このように分離変換は有用な技術であることから、「長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方」について原子力バックエンド対策専門部会で審議され、今後も引き続き研究開発を着実に進めることが適当であると報告された<sup>脚注1)</sup>。これを受け原子力委員会は、この技術を核燃料サイクルに関する技術と捉え、他の研究開発との関連を考慮しながら、定期的な評価を行いつつ研究開発を進めることが重要であると決定した<sup>脚注2)</sup>。核燃料サイクル開発機構（以下、サイクル機構）では「長寿命核種の分離変換技術の研究開発」の計画を作成し、これについての外部委員からなる研究開発課題評価委員会（高速炉・燃料サイクル課題評価委員会）で事前評価を実施した（添付資料-1、2000年8月）。また、事前評価の中での指摘事項に対し、サイクル機構は5年毎を目安に研究成果のチェック・アンド・レビューを行うと共に、実用化戦略調査研究と緊密な連携を取ること等の措置をとることとした。

この事前評価で評価された「研究項目、内容」に加え、更に分離変換技術を充実する観点から新たな研究項目を加え研究開発を進めてきた。この新たに加えた研究項目を含めた分離核変換技術開発基本計画<sup>脚注3)</sup>について、大洗工学センター内の技術会議で審議（2002年9月27日）され、その結果をも含めてサイクル機構内のプロジェクト会議（2003年1月21日）及び理事会議（2003年3月13日）に報告している。2005年度は事前評価から5年目となることからこれまでの成果をまとめ、今後の研究開発計画の策定に資するため本報告書を作成することとした。なお、事後評価用資料とするためには本報告書に2005年度の研究成果を加え、日本原子力研究所（以下、原研）と統合（2005年10月）後の研究開発方針及び組織体制を今後の研究開発の進め方に反映することが必要である。

脚注1) 原子力バックエンド対策専門部会「長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方」(2000年3月).

脚注2) 原子力委員会「長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の進め方について」(2000年4月11日).

脚注3) 池上哲雄、小澤正基、”分離変換技術開発基本計画、” JNC TN9410 2003-001、(2003年4月).



第1.1図 分離変換技術を組み込んだ高速増殖炉サイクルの概念

## 2. 実用化戦略調査研究との役割分担

分離変換技術の研究開発のうち、基礎・基盤研究と実用化戦略調査研究との役割分担を第2.1図に示す<sup>脚注1)</sup>。これは、事前評価段階で計画した実用化戦略調査研究と基礎・基盤研究の役割分担（添付資料-1）を、その役割分担の明確化及び研究開発内容を充実するという観点から補ったものである。その明確化の主なものとしては、長寿命核分裂核種(LLFP)ターゲットの基礎物性及び照射試験の検討を基礎・基盤の研究項目としたことが挙げられる。研究開発内容の充実という観点からは、分離した希少元素核分裂生成物の利用技術研究、地層処分施設への負荷低減のための分離変換の役割についての検討の2つが挙げられる。実用化戦略調査研究と基礎・基盤研究の役割分担の考え方を以下に示す。

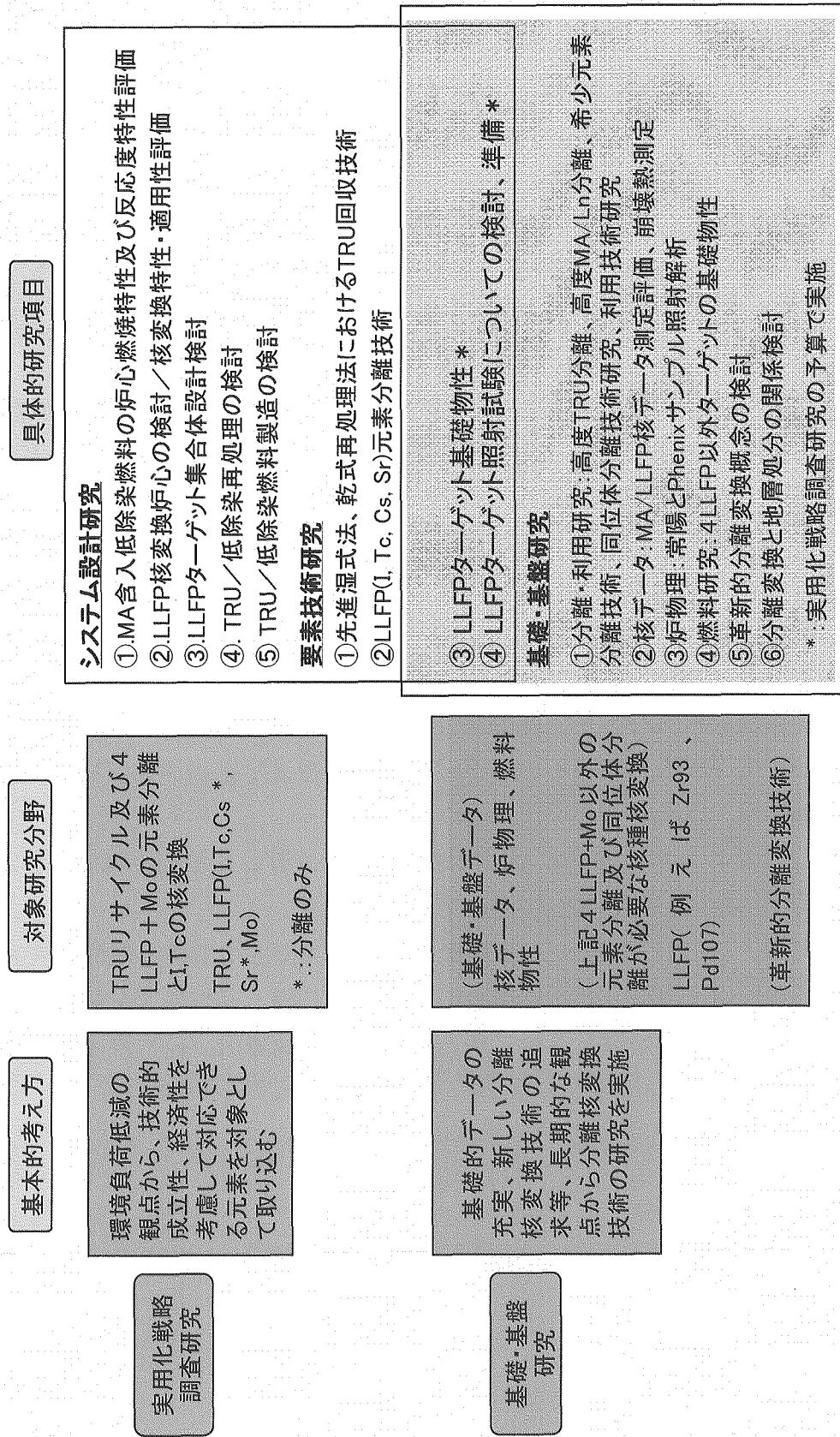
- ・原子力バックエンド対策専門部会報告書では、“分離変換技術開発は核燃料サイクル検討と連動させ、その一環として検討を進めることが望ましい”とされている。従って、核データ整備や希少元素の分離・有効利用等の各種核燃料サイクルシステム候補概念に共通する技術及び基礎的色彩の強い技術については、基礎・基盤研究の位置づけで研究開発を進める。一方、超ウラン元素(TRU)及び核分裂生成物(FP)の内5種のTc、I、Sr、Cs及びMoを対象とした分離変換技術に関するシステム設計検討及び主要要素技術開発については、実用化戦略調査研究の中で開発を進める。ただし、要素技術研究のうち、基礎物性取得や照射試験の検討・準備等は、実用化戦略調査研究の予算を当てるものの、研究開発の推進は基礎・基盤研究の範疇のものとして進める。

- ・両者は独立に進められる性格のものではないため、互いに情報を共有し、相互の進捗を常に認識し合い一体となって進めていく。

- ・上記の5種のFPにおいても、Cs核変換についてはまさに基礎・基盤研究として取り組む性格のものであることが判明しつつあり、基礎・基盤側で分離技術、核データ整備や照射試験等の研究を進めてから実用化戦略調査研究側に戻すことも必要となりつつある。

---

脚注1) 池上哲雄、小澤正基、”分離変換技術開発基本計画、”JNC TN9410 2003-001、(2003年4月)。



### 3. 基礎・基盤の研究開発体制及び研究費

サイクル機構内の研究開発体制は、システム技術開発部分離変換工学グループを中心に各研究グループと協力して研究開発をすすめ得られた研究成果をFBRサイクル実用化戦略調査研究に反映する構成としている。研究開発体制を第3.1図に示す。基礎・基盤研究は、約6研究グループにまたがり、研究者数は、現状で約15名程度であるが、これに専従するものばかりではない。長寿命核種の分離変換技術については、種々の概念や方法が提唱され研究が進められているが、それらの間には共通課題が多いため、国内外の研究機関、大学等との共同研究、研究協力を強化し、少ない人員でより効果の上がる効率的な研究を進めてきた。東京工業大学（東工大）等と独創的なアイディアを活かした研究に対する協力も積極的に進めてきた。第3.2図に国内外の研究機関との協力関係を示す。

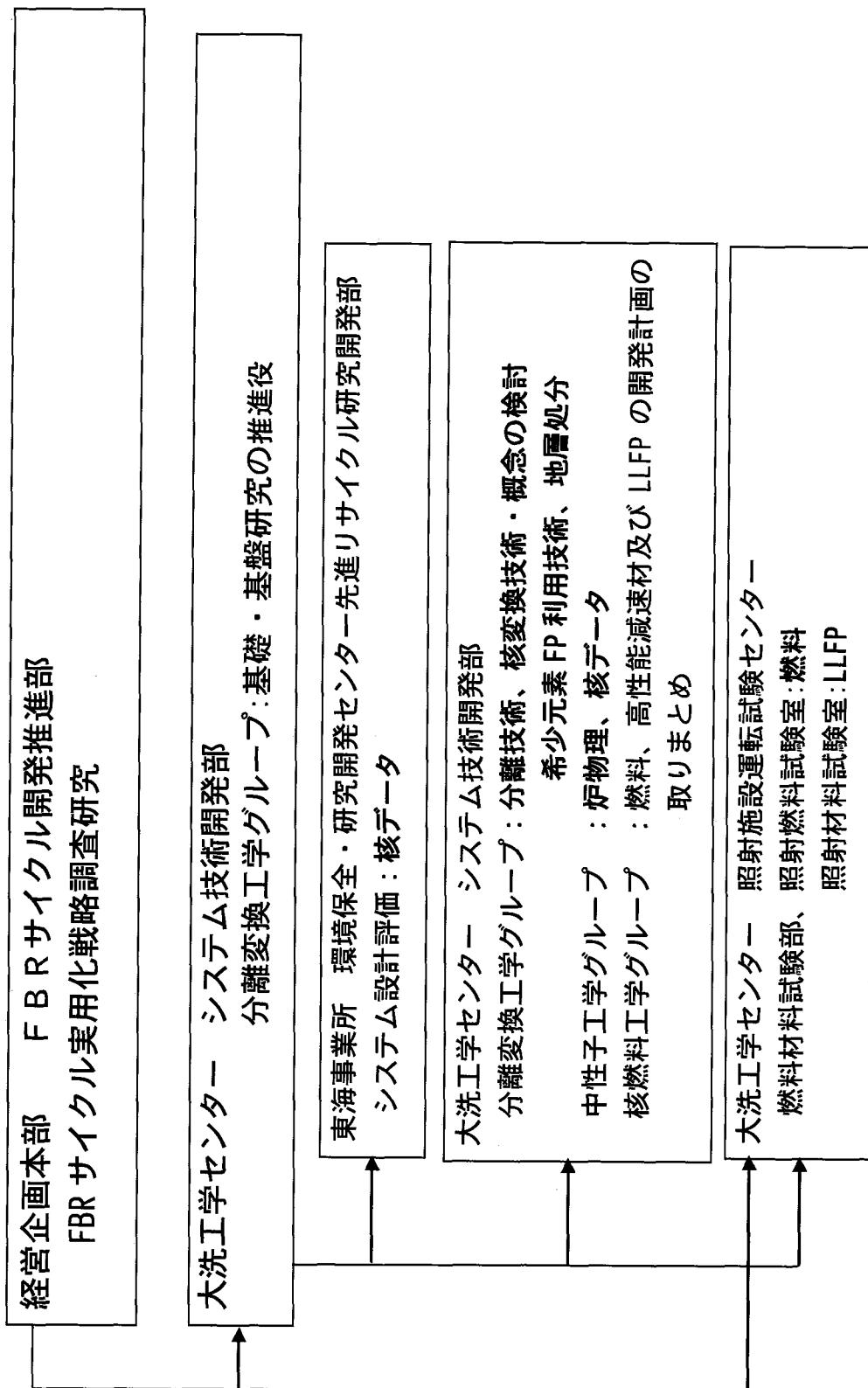
基礎・基盤研究の研究費の実績及び当初の計画を第3.1表に示す。当初は、スーパーフェニックスにおけるマイナーアクチニド(MA)及び希土類元素のサンプル照射実験のデータを用いて核計算、燃焼計算コードの解析精度の検証するため研究費が認可されていた。しかし、最初の2カ年はフランス側の照射試験が順調に進まなかつたことから、この資金は返却している。後期から燃料の開発資金が増加しているがこれはMA燃料ターゲットの製作及び照射試験を進めるためのものである。これは、本研究が加速器駆動による核変換の燃料開発に対しても有用であることから原研との融合研究として進めてきた。地層処分への負荷低減効果の検討は、分離変換技術として何を研究開発すべきかを明確にするために実施した。この地層処分の研究資金には、新しい核変換・概念の検討の研究資金の一部を当てた。MAを含む不活性母材燃料の製作及び照射試験の費用の増加を除けば、研究費は計画値に対して同額あるいはそれ以下の値に留まった。2001年から5年間の研究費のトータルの実績は約3.6億円で、事前評価段階で計画していた6.5億円の約1/2であった。

第3.1表 基盤・基礎の研究費実績  
(単位:万円)

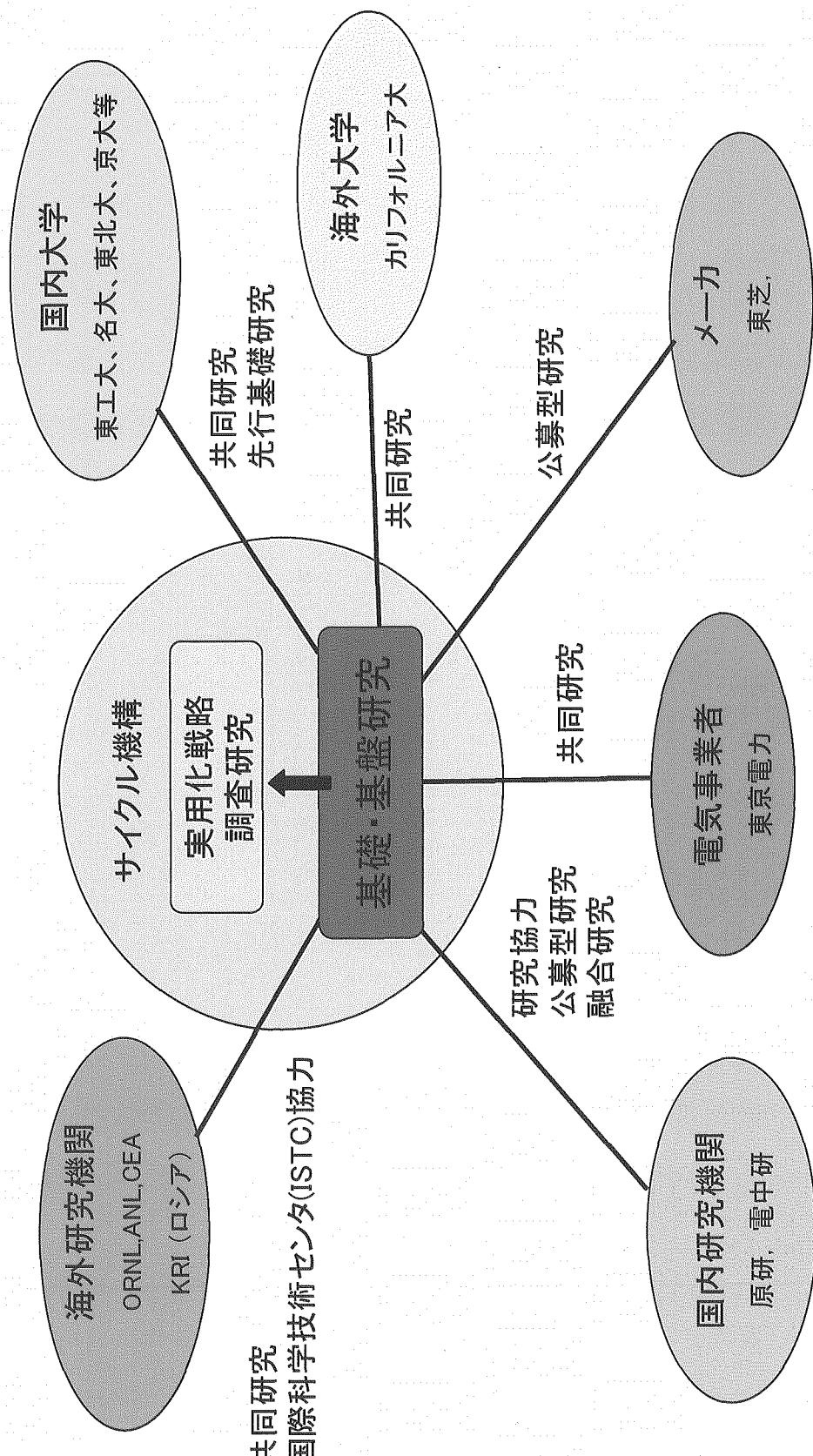
研究項目＼西暦(年)	2001	2002	2003	2004	2005
<b>実用化戦略調査研究 事前評価で計画した研究項目</b>					
<b>基本的方向性検討</b>					
① 分離技術	0 (200)	0 (200)	0 (800)	0 (300)	0 (0)
② 核データ	1917 (1900)	2567 (2600)	2129 (2000)	2126 (2400)	1744 (2500)
③ 炉物理	2100 (1893)	1836 (2128)	1078 (1832)	1091 (1482)	958 (1333)
④ 新しい核変換・概念の検討	198 (4191)	179 (4143)	822 (3732)	769 (3342)	692 (2983)
②+③+④の小計	(4000) (4000)	(4000) (4000)	(2900) (2900)	(3000) (3000)	(3000) (3000)
⑤ 燃料	0 (0)	0 (0)	939 (0)	1349 (500)	4536 (700)
<b>事後評価以後の新たな研究項目</b>					
<b>「①分離技術研究費」に含む:</b>					
⑥ 希少元素FPの利用技術	0 (0)	(1400) 0	(1700) 1549	(1700) 1711.9	(1800) 1813.5
⑦ LLFP*	(0) (0)	(1621.1) (1748.5)	(1748.5) (1816.9)	(1816.9) (6550)	1076.6 (6550)
⑧ 地層処分	<b>「④ 新しい核変換・概念の検討」の研究費に含む</b>				
実績(認可予算) 資金計画	6108 (6100)	6710 (8200)	6800 (7400)	6817 (7900)	9263 (8000)

数値は、認可予算に基づく値、( )内は資金計画段階に必要と見積もった金額  
 \* : LLFPの研究費は実用化戦力調査研究に負うが、役割分担では基礎・基盤の研究項目に  
 含めることとしている。

### 第3.1図 サイクル機構内の基礎・基盤研究の研究開発体制



## 国内外連携体制



第3.2図 基礎・基盤研究における国内外の研究機関との連携体制

#### 4. 分離技術に関する研究項目

長寿命核種の分離変換技術の研究開発－基礎・基盤研究に関する研究計画－の事前評価時に提示された研究項目及び内容で、分離技術に関するものは下記のように整理できる。

##### 【アクチニドの分離】

- 新しい分離抽出剤の研究においては、実廃液を用いたパラメータ実験にだけたよるのではなく、計算化学やシミュレーション技術と実験を組み合わせて効率的に実施する。
- 湿式分離に関する基礎研究では、高硝酸性溶液からの分離を前提として、種々の抽出剤による抽出分配挙動を調査・検討する。

##### 【核分裂生成物の分離】

- 使用済燃料から長半減期 FP ( $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{126}\text{Sn}$ ,  $^{107}\text{Pd}$  等) や有用希少元素 FP (Pd, Ru, Rh, Se, Te, Ag 等) を分離する技術(乾式、湿式等)について、調査・検討を行う。
- 長寿命 FP のうち毒性低減ならびに半減期の長い核種生成を防ぐ等の観点において、同位体分離が必要と考えられる核種については、核種の特性、同位対比等を勘案して、可能な技術を調査・検討する。

##### 【分離に共通する課題】

- 二次廃棄物の処理処分及び発生量低減について検討する。

分離技術の基礎・基盤技術開発では、これらの課題をうけ個々の分離の要素技術の研究開発を進めた。以下要素技術ごとに、該当課題、成果、総括、今後の研究開発の進め方、波及効果及び主な研究成果物について纏める。

#### 4.1 全アクチニドの一括抽出分離プロセス

##### (1) 課題

##### 【アクチニドの分離】

- 新しい分離抽出剤の研究においては、実廃液を用いたパラメータ実験にだけたよるのではなく、計算化学やシミュレーション技術と実験を組み合わせて効率的に実施する。
- 湿式分離に関する基礎研究では、高硝酸性溶液からの分離を前提として、種々の抽出剤による抽出分配挙動を調査・検討する。

##### 【分離に共通する課題】

- 二次廃棄物の処理処分及び発生量低減について検討する。

アクチニドの分離研究では、ロシア・フローピンラジウム研究所（KRI）との共同研究により中性二座配位型有機リン配位子を極性の有機フッ素化合物で希釈した溶媒による再処理/MA 分離融合プロセスの開発を実施することとした。溶媒組成では TBP の共同効果や極性希釈剤の特性を検討した。本研究開発は KRI ガッチナの  $\alpha$   $\gamma$  実験施設を利用し、3 年間 (FY2002–2004；第Ⅰ期) の基礎研究を実施した。最初の 2 年間の基礎試験で主要アクチニドの抽出条件、FP 分離挙動及び第 3 相生成領域の明確化を行い、有望な抽出剤システムの摘出を図った。それを用いて FY2004 では使用済燃料溶解液を利用した回分式多段抽出試験を実施した。計算化学やシミュレーションによる抽出剤設計あるいはプロセス設計は実施しなかった。

## (2) 成果

核燃料サイクルの環境負荷低減性の向上を図るには、長寿命で放射性毒性の高い超ウラン(TRU)元素は、高速炉などによって核変換してサイクル系内に極力閉じ込めることが望ましい。このため分離工程では従来の再処理工程 (U, Pu 分離工程) に MA 分離工程を付加することが必要となるが、もし単味溶媒で全アクチニド (An) を同時に一括して抽出分離することができれば、抽出サイクルの多重化やそれにともなう廃棄物の発生が避けられ、分離に纏わる経済性を向上させることができる。本研究開発はこのような再処理システム (第 4.1-1 図<sup>1)</sup> 中段、All Actinides . . . で示す) の実現を図るための基礎研究である。

### 1) 基礎物性

供試した二座配位型抽出剤を第 4.1-2 図に示す。一般に二座配位型抽出剤の P 置換基をアルキル (R) 基からアルコキシ基 (R-O) に替えると、塩基性の低下により抽出能は低下するが相両立性は増す。供試フッ素系希釈剤 Fluoropole を第 4.1-3 図に示す。希釈剤分子の分岐度や極性の増大によっても抽出錯体の溶解性が増す。選定した Fluoropole は、放射線損傷に関する G 値が TBP やケロシンに比べ約 1/2 以下と低く、安定であり、また誘電率  $\epsilon$  はエタノールや超臨界水に匹敵する。

### 2) 抽出基礎特性

二座配位型 CMP 化合物を Fluoropole に溶解させた各種溶媒によるアクチニド及び核分裂生成物に対する分配比、それに及ぼす U 飽和度の影響並びに第 3 相の分相限界などを検討した。一例として<sup>2)</sup>、( $\text{HexO}_2/\text{Et}_2$ ) を fluoropol-1083 で希釈した新規溶媒による、アクチニド及び Eu の分配比 (D 値) を硝酸濃度及び U 飽和度をパラメータに検討した結果を示す。一般に溶媒中 U 飽和度の上昇で U、共存 TRU 及び FP の D は低下する。極性希釈剤は非極性希釈剤に比べ分配比は高く維持された。本溶媒では  $C_{\text{aq.}}^{\text{init.}} 100 \text{gU/l}$  の条件で Am は  $D_{\text{Am}} < 1$  となるが、Pu 及び U は  $D_{\text{Pu,U}} > 10$  で維持された。しかしながら  $C_{\text{aq.}}^{\text{init.}}$  を  $50 \text{gU/l}$  に低下させると  $D_{\text{Am}}$  の硝酸濃度依存性が顕著となり

$C_{\text{HNO}_3}$  5MHN<sub>3</sub> のとき 3.5 に増大した。第 4.1-1 表は  $C_{\text{aq.}}^{\text{init}}$  を 80gU/l とした場合の例で、多価アクチニド (U, Pu, Np) はいずれも  $D > 5$  で十分な抽出性に示した。また  $D_{\text{Am}}$  は約 2 で抽出可能である。このとき第 3 相は生成していない。U についての第 3 相生成境界濃度は、0.2MCMP0/1.4MTBP/nDD 系に比べ、 $C_{\text{HNO}_3}$  2.5–6.0M の濃度範囲で約 20 倍に拡大した。

第 4.1-2 表に各種溶媒の第 3 相生成データを示す（試験パラメータが少ないため、マップ作成まで至っていない）。表中、30% (HexO)<sub>2</sub>Et<sub>2</sub>CMPO/fluoropole-1083 及び 0.2M0  $\phi$  [iB]CMPO/30%TBP/fluoropole-732 の溶媒系は全濃度領域に渡って第 3 相は生成せず、本目的に合致することが認められた。Eu についてはいかなる条件においても第 3 相は生成せず、従って第 3 相の生成は  $M^{+4, +6}$  イオンに特有の現象であることが判った。ちなみに通常の TRUEX 溶媒（表中、最上段の溶媒）は U>5g/l で第 3 相が生ずるので、極性希釈剤の著しい第 3 相生成抑制効果が明らかである。その後、(HexO)<sub>2</sub>/Et<sub>2</sub>CMPO は還元不純物が多く、しかも現在商品生産がなされていないことが判明し、以降の詳細な検討は 0.2M0  $\phi$  [iB]CMPO/30%TBP/fluoropole-732 抽出系で進めることとした。

### 3) フローシート設計

全アクチニドを同時に一括して分離・回収するためのフローシート設計では、操作パラメータ (O/A 比、U 飽和度、温度等) 及び使用する錯化剤の種類等で種々のバリエーションが考えられる。0.2M0  $\phi$  [iB]CMPO/30%TBP/fluoropole-732<sup>3)</sup> では初期 U 濃度が 100g/l 以下では第 3 相は全く生成しない。100 g U/l では U 及び Np の分配比が十分高く ( $D_{\text{Np}}=27.9$ )、50gU/l に低下させると Pu 及び  $M^{3+}$  (Eu で代表) の分配比が十分となる ( $D_{\text{Pu}}=12.8$ ,  $D_{\text{Eu}}=36.9$ )。従って例えば、「第 1 抽出部」で高ウラン飽和条件で操作して大部分の U 及び Np を抽出し、「第 2 抽出部」で Pu、Am、Cm 及び U、Np 残部を回収するフローシート設計が可能である。

### (3) 総括

中性二座配位型有機リン配位子を有機フッ素化合物で希釈した溶媒は、溶解液相当の高濃度硝酸ウラニル溶液系において十分な TRU (Pu, Np, Am) 抽出能を示し、従来法で必要とされる U の前分離を必要とせず、使用済み燃料溶解液から直接、全てのアクチニドを同時に一括して抽出分離するフローシートの構築が可能であることが示された。抽出された 30% (HexO)<sub>2</sub>Et<sub>2</sub>CMPO/fluoropole-1083 と 0.2M0  $\phi$  [iB]CMPO/30%TBP/fluoropole-732 の 2 つの溶媒系については日露共同特許出願している（日、露、米、仏）<sup>4)</sup>。現在 KRI で実施中のホット試験では、Am 一括抽出性及び第 3 相生成領域の確認の他、逆抽出条件の把握、FP 分離挙動を明確化した。

将来的にはダイナミックな条件での向流多段試験に移行して、システム工学上の課題の解決を図るとともに、MA/Ln 分離機能の導入を図る必要がある。超長期的には全

ての抽出剤分子構造及び分離試薬の Salt-Free 化 (CHON) を目指すことが望ましい。

#### (4) 今後の研究開発の進め方

プロセス成立性を確証するための基礎試験は一旦終了させる。今後はロシア KRI との研究協力を引き続き維持し、実液試験で明らかにされた研究課題についての限定的な研究開発を進める。今後の研究開発スケジュールを第 4.1-3 表に示す

#### (5) 波及効果

現状では特にないが、単一抽出剤による、再処理・群分離が融合したアクチニド分離プロセスが構築できれば、環境負荷低減に寄与し、より経済的なバックエンドサイクルが構築できる。

#### (6) 文献リスト

- 1) 「分離核変換工学」専門委員会 ((社)、日本原子力学会)、「総説-分離変換工学」、4 章 分離技術、pp4-1～4-6、4.1.1(1) ネオジウムの分離化学、pp4-6～4-12、4.1.2(1)2) 核分裂生成物の分離と利用、pp4-23～4-24、4.3 同位体分離技術 pp4-44～4-47 (2004).
- 2) M. Ozawa, V. Babain, Yu. Fedorov, V. Romanovsky, A. Shadrin, I. Smirnov, B. Zilberman, "Potential of Bifunctional Neutral Phosphoorganic Compounds for Reprocessing of Spent Fuel", Global' 2001 International Conference on Back-End of the Fuel Cycle: From Research to solutions, Poster session, Part I Advanced and Present Reprocessing, No. 178 (2001).
- 3) Shadrin A., Strelkov S., Kiseleva R., Murzin A., Ozawa M., "Combined recovery of f-elements by carbamoylphosphineoxide-based extractant", Submitting to Mendeleev Communication (2004).

#### 4) 酸性溶液中のアクチニド元素を回収するための混合抽出剤

特願 2004-324949 平成 16 年 11 月 9 日

15-動開-003RF、管理番号 D2913

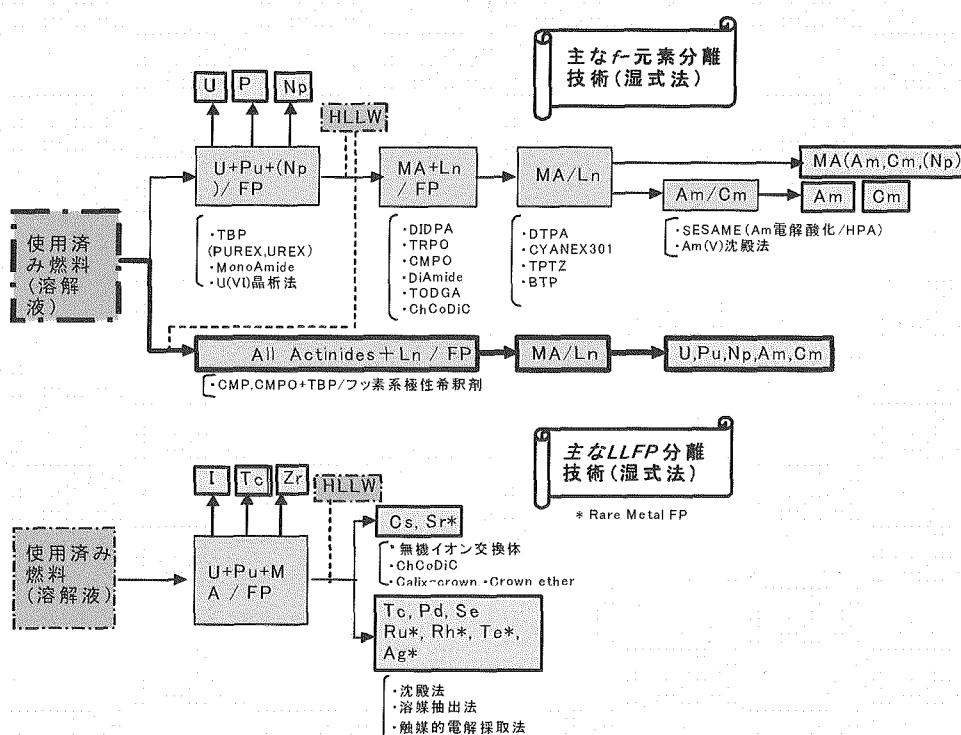
小澤正基、ババイン ウシーリー アレクサンド ロビッヂ、ヨード ロフ ユーリーステパンビッチ、シャドリン アンドレイ ユーリエビッヂ、ロマノフスキイ ワレーリー ニコラエビッヂ、スマルノフ イーコリ ワレンチノビッヂ、ジルベルマン ポリス ヤコブ レビッヂ (露国 フローヒンラジウム研究所 (KRI))

(露国出願) Extraction Mixture for Recovery of Actinide Elements from Acidic Solutions

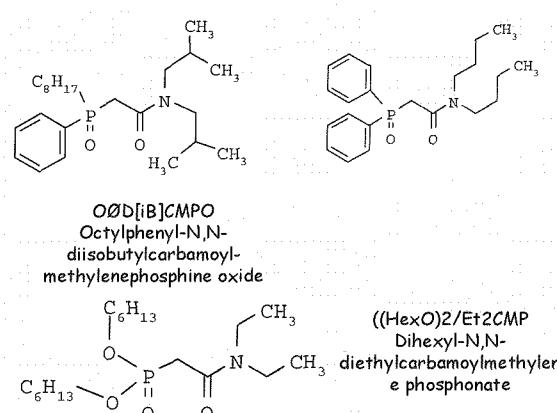
1) Application date: 13 Aug. 2004

2) Application No. : 2004124918

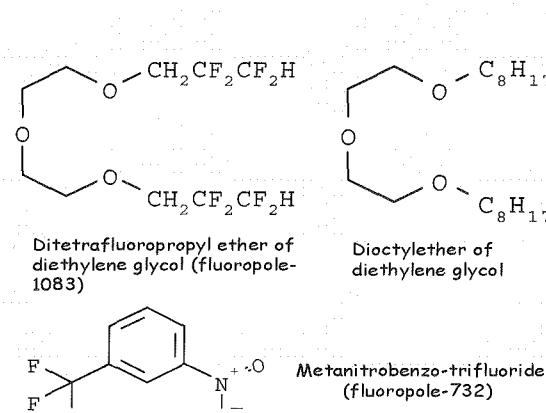
Masaki Ozawa、V. Babain, Yu. Fedorov, A. Shadrin, V. Romanovskiy, I. Smirnov, B. Zilberman (露国フローヒンラジウム研究所 (KRI))



第4.1-1図 主なアクチニド及び核分裂生成物の分離スキーム



第4.1-2図 二座配位型抽出剤



第4.1-3図 フッ素系希釈剤 Fluoropole

第4.1-1表 硝酸ウラニル溶液 ( $C_{aq}$  init. 80gU/l, 2M $HNO_3$ ) におけるAn, Euの分配比 (0/A=1, Temp. 22±2°C)30 % (HexO)<sub>2</sub>/Et<sub>2</sub> in fluoropol-1083系

Element	U	Pu	Np	Am	Eu
D	17	45	7	2,1	1,4

第4.1-2表 U及びEuによる第3相の生成

Feed organic solution	Aqueous initial concentration, g/l		Presence of third phase or precipitate
	U	Eu	
0.2 M OØD[iB]CMPO in 30% TBP + dodecane		300	third phase*
	5	-	no
	20		third phase**
	50		precipitate
	100		precipitate
	276		precipitate
	50	2	precipitate
0.2 M OØD[iB]CMPO in fluoropole-1083	50	2	precipitate
	276		precipitate
	-	300	no
0.2 M OØD[iB]CMPO in 10% TBP in fluoropole-1083	50	2	precipitate
	276		precipitate
	-	300	no
30 % (HexO) <sub>2</sub> Et <sub>2</sub> CMPO in fluoropole-1083	50		no
	100		no
	200		no
0.2 M OØD[iB]CMPO in 30% TBP + fluoropole-732	50	2	no
	276		no
	-	300	no
		2	no

第4.1-3表 研究開発スケジュール（分離技術）

工程	オメガ計画C&R	第1段階目標終了					第2段階目標終了					
		2000～2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015
全アクチニドの一括抽出分離プロセス(ロシアKRI共同研究)	抽出剤の選定(基礎試験) プロセス成立性(ホット基礎試験)	C&R FP除染係数 Ln分離係数	プロセス評価試験(限定試験) FP除染係数 Ln分離係数	分離性の確認(基礎試験) プロセス成立性(ホットトレーサ試験)	プロセス評価 プロセス評価	プロセス成立性(ホット基礎試験) ・アクチニド吸脱着特性 RMFP吸脱着特性 ・塩酸溶解特性 ・フローシート簡素化	プロセス評価 システム工学評価試験 C&R シス					

Am/Cm/ランタニドの相互分離法(東工大共同研究)

イオン交換法による希少元素分離機能を有する新廻り処理システムの開発(東工大共同研究)

## 4.2 Am/Cm/ランタニドの相互分離法

### (1) 課題

#### 【アクチニドの分離】

- ・新しい分離抽出剤の研究においては、実廃液を用いたパラメータ実験にだけによるのではなく、計算化学やシミュレーション技術と実験を組み合わせて効率的に実施する。
- ・湿式分離に関する基礎研究では、高硝酸性溶液からの分離を前提として、種々の抽出剤による抽出分配挙動を調査・検討する。

#### 【分離に共通する課題】

- ・二次廃棄物の処理処分及び発生量低減について検討する。

アメリシウム (Am) 及びキュリウム (Cm) に随伴するランタニド (Ln) 元素を高効率 (例えば、Ln/MA < 5%) に分離するために、窒素系ソフト配位子であるピリジン、BTP あるいはカリックスアレンなどを出発物質として、新しいソフト配位子を創製する。さらに Am 及び Cm を相互分離する技術を開発する。本研究は「先行基礎工学研究」の枠組みで行い、東工大が研究開発中の 2 つの方法、即ち 3 級ピリジン樹脂による方法 (東工大原子炉研) 及び生態模倣ゲルを用いた方法 (東工大資源研) を同時に並行して研究開発を進めた。研究期間は FY2002-2004 の 3 年間で、最初の 2 年間でコード及びトレーサー試験により抽出剤の合成法や基本特性を確認した後、FY2004 年度には大洗工学センター燃料材料試験部 AGF において実照射済み燃料を用いた確証試験を実施した。

### (2) 成果

使用済み核燃料中に含まれる長寿命放射性元素を短寿命核種あるいは安定核種に核変換する場合、そのターゲットとなるアクチニドを使用済核燃料中から分離する必要がある。使用済み核燃料中には量的には少ないが長寿命の MA (Am, Cm 等) と、MA と化学的性質が類似する希土類元素 (Ln) が多量に (Ln/Am ≈ 10~20wt) 含まれており、MA 及び Ln を群分離後、さらに Am/Cm を相互分離し単味製品 (Am 製品、Cm 製品) として回収する事は上述の核変換、即ち“アクチニドリサイクル”成立の観点から非常に重要な課題となっている。

本研究では MA/Ln 群分離、Am/Cm の相互分離に対し、シリカ担持型三級ピリジン樹脂を用い、塩酸-メタノール混合溶液及び硝酸-メタノール混合溶液による溶離クロマトグラフィ法の分離研究を実施した。具体的には、希土類元素を約  $0.1\text{mmol}/\text{dm}^3$  溶解させた塩酸-メタノール混合溶液  $1\text{cm}^3$  をシリカ担持型 3 級ピリジン型樹脂充填のカラム ( $\Phi 1\text{cm}$ 、樹脂高  $50\text{cm}$ ) に導入し、流出液中の各元素濃度を ICP 発光分光分析装置

で測定し、希土類元素間の相互分離における流速条件、塩酸-メタノール混合比の及ぼす影響を評価した。同様にして、Am、Cm および Ln の分離性を確認した。Ln の元素濃度は Ge 検出器で、Am と Cm は  $\alpha$  線検出器で評価した。塩酸-メタノール混合溶液による Am/Cm 分離試験もほぼ同様な条件で実施した。

### 1) MA/Ln 分離特性

希土類元素の相互分離への流速依存性は、流速  $10\text{cm}^3/\text{h} \sim 100\text{cm}^3/\text{h}$  の範囲ではほとんど変化が見られない。塩酸濃度、メタノール濃度は Ln と MA の吸着特性及び分離特性共に大きく影響を及ぼす。第 4.2-1 図に  $50\text{cm}$  カラムで得られた濃塩酸：メタノール=7:3 の分離結果を示す。Ln と MA は高効率で分離した。各々の元素のピーク位置から分離係数を算出した。この溶媒組成に加え、メタノール濃度を 30%に固定し塩酸濃度を下げたときに得られる分離係数を第 4.2-2 図に示す。ここでは Ln で最も An 寄りに溶出される Ce を基準にして分離係数を評価した。塩酸系では Ce/Am, Cm の分離係数は約  $> 6$  であり、塩酸濃度を低下させるとこの分離係数は著しく低下する。Am/Cm の相互分離係数は低い。

### 2) Am/Cm 分離特性

濃硝酸とメタノールの混合比が 2:3 のときの、硝酸-メタノール混合溶媒系での Am/Cm の分離クロマトグラムを第 4.2-3 図に示す。この系では Am と Cm が非常によく分離した。メタノール濃度が一定 (60vol%で固定) で、硝酸濃度を変化させた結果を第 4.2-4 図に示す。濃硝酸の混合比が 30vol% (10M 硝酸に相当) のとき Am 及び Cm 共に分配比のピークを持つことが確認された。これは希土類元素の分離試験での結果と同様の傾向であった。分配比から Am/Cm 分離係数は約 2-5 と算出された。なお分離係数および分解能についての硝酸濃度の影響は小さい。

## (3) 総括

高速実験炉「常陽」で高度に照射した照射済み MOX 燃料 (143.8GWD/t) を用い、大洗工学センター AGF において上記のアクチニド分離法を確認した。再処理前段には 3 級ピリジンゲルを置き (プレフィルトレーション)、イオン交換妨害核種でありかつ希少元素 FP でもある白金族元素 FP ( $^{106}\text{Ru}$  等) やテクネチウム ( $^{99}\text{Tc}$ ) の除去を図った。その結果以下の結果が得られた。

- 1) 希少元素 FP のプレフィルトレーションではほぼ完全に  $^{106}\text{Ru}$  が除去できた ( $\text{Tc}$  の挙動については今後の課題である)。
- 2) 再処理工程で、Ln+FP、MA 及び Pu (+Np+U) の 3 群に群分離された。
- 3) MA の相互分離工程で、Am 及び Cm はほぼ純粋なプロダクトとして回収できた。

従来技術では達成困難とされてきた MA/Ln 分離及び Am/Cm 分離をホット実証できたことは画期的であり、さらに再処理一段で Ln/MA/Pu の分離を、さらに第二段で Am/Cm

の相互分離が達成できたことは、従来必要とされた 4 ステップの分離を一気に 2 ステップに削減できることを示し、経済的にも非常に意義深い結果を提供する（第 4.2-5 図）。本分離操作は常温、常圧操作であり、しかも相変化やアクチニドの原子価変換を必要としないので、二次的廃棄物の発生が少なく、工学システムとしても簡素化が達成できる。

なお本 3 級ピリジン樹脂を用いた MA (Am/Cm/Cf) 分離法については東工大－JNC の共同特許として出願している（日、米、仏）。

#### （4）今後の研究開発の進め方

今後は第 4.2-5 図に示した革新的再処理スキームの構築とその改善を目的として、東工大との共同研究を継続する。主なホット試験施設として大洗工学センター AGF 及び（可能であれば）ロシア KRI を想定し、3 施設の異なる特徴（AGF：ホットトレーサ試験、KRI：高濃度 An、実液試験、東工大：コールド、ウラン試験）を生かしつつ、効率的に進める。本研究は連携大学院を研究テーマの枠組みの中で行い、学生研究生の教育研究訓練のフィールドとして活用する。今後の研究開発スケジュールを第 4.1-3 表に示す。

#### （5）波及効果

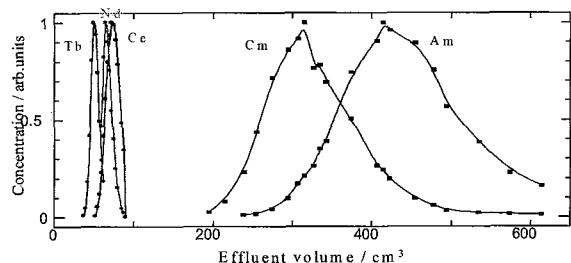
従来技術では達成しえなかった、常温・常圧、相変化及び原子価変化をともなわないシンプルで、高効率の MA/Ln 及び Am/Cm 分離法を、実照射済み燃料を用いて確認したことの意義は大きい。さらに 3 級ピリジン樹脂の分子構造自体がシンプルであるので、分子構造の複雑化に向かう欧米の路線に対するアンチテーゼとなろう。実液ホット試験の結果は日本原子力学会「2005 年秋の大会」で発表し、周知を図る。またプレス発表を検討する。3 級ピリジンイオン交換樹脂による分離研究については東工大－JNC の連携大学院協定の枠組みの一環として実施し、学生研究生を AGF でのホット試験に参加させた。この模様は NHK 地上波デジタル放送で放映された。本件では NHK-TV 取材チームへのレクチャーも行い、アクチニド分離の意義や効果等について周知することができた。

#### （6）文献リスト

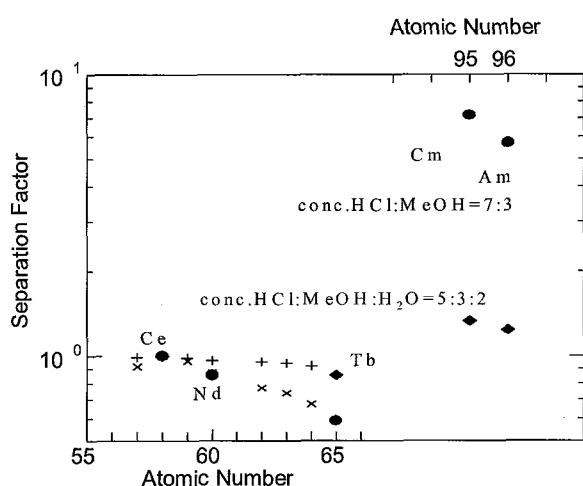
- 1) T. Suzuki, et al. J. Radioanal. Nucl. Chem. 255 (2003) 581.
- 2) T. Suzuki et al. to be published in J. Alloys & Compounds (2005).
- 3) T. Suzuki, K. Ito, A. Ikeda, Y. Fujii, M. Ozawa, M. Hara, T. Mitsugashira, "Separation of Americium and Curium by Chromatographic Technique using Tertiary Pyridine type Resin", 8<sup>th</sup> Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning & Transmutation, OECD/NEA, Las Vegas, Nevada,

USA, 9-11 November (2004).

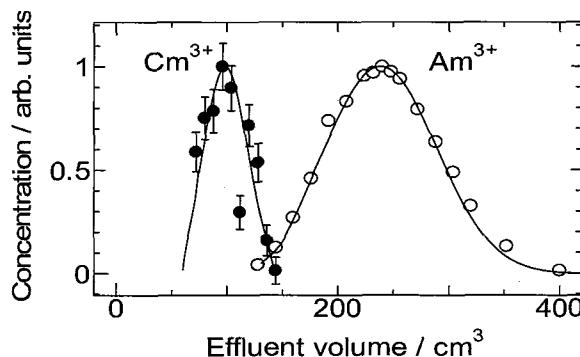
- 4) Atsushi IKEDA, Tatsuya SUZUKI, Masao AIDA, Kouhei OTAKE, Yasuhiko FUJII, Keisuke ITOH, Toshiaki MITSUGASHIRA, Mitsuo HARA and Masaki OZAWA, "Chromatographic Separation of Trivalent Actinides by Methanolic Nitric Acid Solutions", Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 41, No. 9, pp915-918 Sep. 20 (2004).
- 5) Atsushi Ikeda, Tatsuya Suzuki, Masao Aida, Yasuhiko Fujii, Toshiaki Mitsugashira, Mitsuo Hara, Masaki Ozawa, "Novel Chlomatographic Separation Technique Using Tertiary Pyridine Resin for the Partitioning of Trivalent Actinides from Lanthanides", The 1<sup>st</sup> COE-INES International Symposium, INES-1, #10, pp. 23 Tokyo, Japan, Oct. 31-Nov. 4 (2004).
- 6) 鈴木達也、藤井靖彦、小澤正基  
「アチノド元素の分離方法」  
特願 2004-039808 平成 16 年 2 月 17 日  
15-動開-011RF、管理番号 D2883



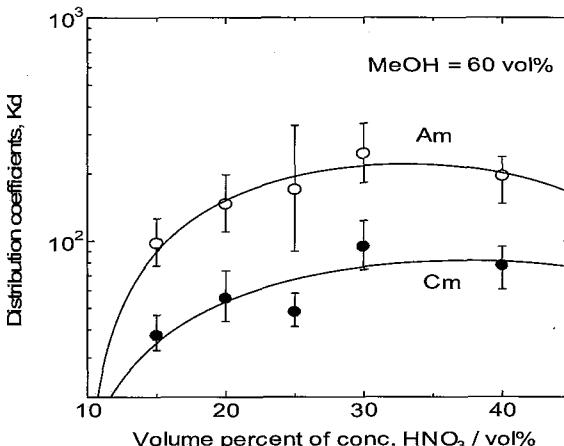
第4.2-1図 3級ピリジン樹脂を用いた  
塩酸-メタノール混合溶媒  
によるLn(III)とAn(III)の  
クロマトグラム  
conc. HCl:MeOH=7:3



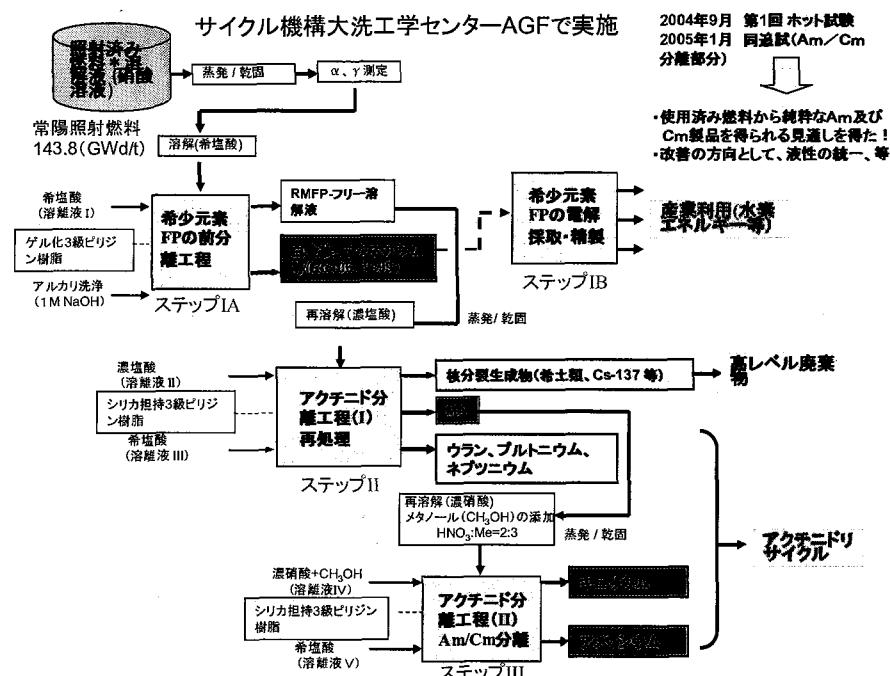
第4.2-2図 アクチニドと希土類元素の分離係数



第4.2-3図 3級ピリジン樹脂を用いたAm  
とCm分離例  
conc. HNO<sub>3</sub>:MeOH=2:3



第4.2-4図 AmとCmの分配係数の硝酸濃度  
依存性



第4.2-5図 イオン交換法による革新的な再処理スキーム

## 5. 核変換技術に関する研究項目

### 5.1 核データ

#### (1) 課題

研究開発当初、MA 及び LLFP の核データ整備状況は決して満足のいくものではなかった。これを受け、事前評価では、核データに関し以下の 5 個の研究項目を計画した。

- ① MA 核種の中性子捕獲断面積を中心とした測定・評価を実施する、
- ② MA 核種の崩壊熱データの測定・評価を実施する、
- ③ LLFP 核種については、I, Cs, Tc 核種の核データ精度を向上させる、
- ④  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{126}\text{Sn}$ ,  $^{107}\text{Pd}$  等核種の核データは、システム設計側からの要求精度を検討して実施する、
- ⑤ 高分解能・高エネルギー光子スペクトロメータや熱中性子から高速中性子領域までの広領域中性子捕獲断面積測定用スペクトロメータを開発し今まで測定できなかった核種の測定や測定精度の向上を図る。

本計画に基づき第 1 段階として、 $^{237}\text{Np}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  などの重要核種の測定精度向上に取り組むとともに、 $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{126}\text{Sn}$ ,  $^{107}\text{Pd}$  などの測定値が欠如している核種の核データ整備を行うために必要となる核データ測定技術の開発を進めた（研究開発スケジュール参照）。実施に当たっては、米国オークリッジ国立研究所(ORNL)、京都大学原子炉実験所、東京大学弥生炉等国内外の大学・研究機関との共同研究も活用して核データ整備を進めることを課題とした。

#### (2) 成果

核データ整備に求められる各種測定技術（第 5.1-1 表）を開発すると共に、これらの技術を適用することにより、LLFP 核データの整備状況を第 5.1-2 表に示し、MA 核データの整備状況を第 5.1-3 表に示す。

- ① 热中性子から高速中性子領域までの広領域中性子に対する中性子捕獲断面積のエネルギー依存性を測定できる飛行時間測定法(TOF 法)の開発では、ガンマ線に対する検出効率の高い  $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  シンチレーション結晶(BGO)から構成する全立体角 BGO 検出器(第 5.1-1 図)を開発すると共に、放射線信号波形を直接記録するフラッシュ・アナログデジタル変換器(FADC)をベースとする革新的なデータ収集システムを開発した。全立体角 BGO 検出器と FADC から構成される測定システムを京都大学原子炉実験所のパルス中性子源である電子ライナック加速器施設に設置し、開発した測定システムの性能試験を実施<sup>1)</sup>すると共に  $^{237}\text{Np}$  の中性子捕獲断面積を 0.02 eV から 100 eV のエネルギー範囲で測定(第 5.1-2 図)することに成功した<sup>2)</sup>。また、ORNL の電子線加速器施設(ORELA)に LLFP の中性子捕獲断面積測定専用ラインを設置した。

②中性子エネルギー依存性データの整備としては、上述の機構が主体的に実施した研究のほかに、外部機関への委託研究も活用し実施した。実験研究としては、代表的な長半減期核分裂生成物である<sup>129</sup>Iの中性子捕獲断面積の測定を、京都大学原子炉実験所への委託研究として実施した<sup>3)</sup>。また、これまでに委託研究で蓄積したマイナーアクチナイド(MA)及び核分裂生成物(FP)の核データ測定結果を、原研核データセンターへの委託により、核データライブラリの改訂へ反映させた<sup>4, 5, 6)</sup>。

③放射化法では、2重中性子捕獲反応及び2段階照射法などの照射技術や、中性子自己遮蔽計算法、長期間用中性子束モニターなどの周辺技術を開発し<sup>7, 8)</sup>、<sup>238</sup>Npの熱中性子捕獲断面積<sup>9)</sup>、<sup>90</sup>Srの共鳴積分値<sup>10)</sup>、<sup>166m</sup>Hoの共鳴積分値<sup>11)</sup>について、世界初となるデータの取得に成功した。さらに<sup>99</sup>Tcの中性子捕獲断面積の測定精度を向上するためガンマ線放出率の精密測定<sup>12)</sup>を実施し、従来の測定精度を2倍以上向上させた。また、MAの熱中性子捕獲断面積を測定する際に、低エネルギー領域に存在する共鳴ピークが測定値に大きな影響を与える問題を解決するため、従来よりも薄い中性子遮蔽材(薄型Cdシールド)を用いる解決法を提案した。この手法を<sup>237</sup>Npの熱中性子捕獲断面積及び共鳴積分値の測定<sup>13)</sup>に適用した結果、従来の測定値は再検討の必要があり、今後、中性子捕獲断面積導出に必要なガンマ線放出率データを正確に決定する必要があることがわかった。

④即発ガンマ線分光法については、ORNLの所有する未解析の即発ガンマ線データを解析することにより、<sup>99</sup>Tc、<sup>107</sup>Pd、<sup>93</sup>Zrの熱中性子捕獲断面積の下限値を決定した<sup>14, 15)</sup>。特に<sup>107</sup>Pdの結果は、従来の評価値より約10倍以上大きい結果を得た。今後、我が国での実験も可能とするために、京都大学原子炉実験所の中性子導管施設において、即発ガンマ線分光法の技術開発<sup>16, 17)</sup>を進めた。即発ガンマ線は、従来のゲルマニウム(Ge)検出器測定範囲よりもエネルギーが高い。このような高エネルギーガンマ線を精度よく測定するため、高分解能・高エネルギー光子スペクトロメータの概念を発展させ、高エネルギーガンマ線に対する信号対雑音比に優れるペアースペクトロメータを開発し、これらの応答関数を測定<sup>18)</sup>するとともに応答関数の高精度計算手法の開発を進めた。また、高分解能・高エネルギー光子スペクトロメータを用いた高エネルギーガンマ線分光技術の高度化研究を進めた<sup>19, 20, 21)</sup>。

⑤崩壊熱測定研究に関しては、東京大学弥生炉に専用の気送管、ガンマ線及びベータ線検出器を設置し、高速炉中性子スペクトルで照射した<sup>237</sup>Np、<sup>235</sup>Uの核分裂生成物の崩壊熱測定を実施<sup>22)</sup>した。

以上の研究成果は、(6)の文献リストに示すとおり16件の論文にまとめ日本原子力

学会等の専門誌に投稿した。

### (3) 総括

最新の放射線測定手法を駆使して、核データ高精度化のための技術を開発すると共に、主要な MA および LLFP に対して核データ整備を実施した。

MA 核種の中性子捕獲断面積測定・評価に関しては、 $^{237}\text{Np}$  の熱中性子捕獲断面積を測定すると共に、世界初となる高次  $^{238}\text{Np}$  の実効熱中性子捕獲断面積の測定に成功した。 $^{237}\text{Np}$  の熱中性子捕獲断面積は、従来のデータとの差が明確となり、今後確認試験が必要であることを示した。

MA 核種の崩壊熱データの測定・評価に関しては、東京大学弥生炉にて専用の装置を開発・設置し、 $^{237}\text{Np}$  のガンマ線崩壊熱を測定したが  $\beta$  線崩壊熱の測定精度はさらに向上させる必要がある。

LLFP の内、I, Cs, Tc 核種の核データ精度向上に関しては、放射化法と即発ガンマ線分光法の異なった手法の両方を適用し、 $^{99}\text{Tc}$  の熱中性子捕獲断面積の精度を向上した。放射化法を用いた研究により、 $^{90}\text{Sr}$  や  $^{166m}\text{Ho}$  の中性子捕獲断面積について、世界初となるデータを得た。

LLFP の内、 $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{126}\text{Sn}$ ,  $^{107}\text{Pd}$  等の核データ整備に関しては、 $^{93}\text{Zr}$  及び  $^{107}\text{Pd}$  の熱中性子捕獲断面積の下限値を ORNL との共同研究により決定したが、絶対値（上限値）の決定は今後の課題である。また、放射性サンプルの整備を進めた。

測定技術の開発に関しては、中性子捕獲断面積のエネルギー依存性を測定できる飛行時間測定法(TOF 法)及び即発ガンマ線分光法の技術開発を実施すると共に、放射化法による測定技術を高度化した。

### (4) 今後の研究開発の進め方

MA 核種の中性子捕獲断面積測定・評価に関しては、Am 及び Cm の中性子捕獲断面積を測定すると共に、第 1 段階では終了しなかった評価を実施する。特に、第 5.1-3 表に示すとおり高速中性子の捕獲断面積の測定値がないことから、測定技術の開発を進め、断面積測定に着手する。MA 核種の崩壊熱データの測定・評価に関しては、 $\beta$  線崩壊熱の測定精度向上を図ると共に、Am, Cm 核種に対する崩壊熱測定に努める。

LLFP の内、I, Cs, Tc 核種の核データ精度向上に関しては、熱中性子捕獲断面積の整備が終了したため、第 2 段階では、エネルギー依存性データを整備する。

LLFP の内、 $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{126}\text{Sn}$ ,  $^{107}\text{Pd}$  等の核データ整備に関しては、 $^{93}\text{Zr}$  及び  $^{107}\text{Pd}$  の熱中性子捕獲断面積の絶対値及びエネルギー依存性データを整備する。

測定技術の開発に関しては、第 1 段階で開発した測定技術を JRR-3 や J-PARC 等に導入し、系統的なデータ取得環境の整備に努める。

## (5) 波及効果

- ①第1段階で開発した TOF 測定技術及び高エネルギーガンマ線測定技術を発展させた概念である全エネルギー吸収型 Ge スペクトロメータを提案した。現在、大学、原研と共同で文部省公募型研究<sup>23, 24)</sup>として開発を進めている。
- ②TOF 測定技術を応用し、核燃料中の核種組成分布測定等に適用可能な非破壊核種分析技術を提案した<sup>25)</sup>。
- ③半減期の短い核種の中性子捕獲断面積を2重中性子捕獲反応で測定できることを実証した。高燃焼度研究等で重要な高次 TRU 核種の燃焼生成量が測定<sup>9)</sup>可能になったことにより、測定可能核種の範囲が大きく広がった。

## (6) 文献リスト

- 1) O. Shcherbakov, K. Furutaka, S. Nakamura, H. Harada, K. Kobayashi, "A BGO detector system for studies of neutron capture by radioactive nuclides," Nucl. Instr. Method. A517, 269 (2004).
- 2) O. Shcherbakov, K. Furutaka, S. Nakamura, H. Sakane, K. Kobayashi, S. Yamamoto, J. Hori, H. Harada, "Measurement of neutron capture cross section of  $^{237}\text{Np}$  from 0.02 to 100eV," to be published in J. Nucl. Sci. Technol. **42**, No.2 (2005).
- 3) 小林 捷平, 「鉛スペクトロメータを用いたヨウ素-129 の中性子捕獲断面積測定」, JNC TJ9400 2001-021, (2002).
- 4) T. Nakagawa, O. Iwamoto, A. Hasegawa, "Improvement of Evaluated Neutron Nuclear Data for  $^{237}\text{Np}$  and  $^{241}\text{Am}$ ", JAERI-Research, 2001-059, (2002).
- 5) T. Nakagawa, O. Iwamoto, A. Hasegawa, "Re-evaluation of Neutron Nuclear Data for  $^{242m}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  and  $^{140}\text{Ce}$ ", JAERI-Research, 2002-035, (2002).
- 6) T. Nakagawa, A. Hasegawa, "Re-evaluation of Neutron Nuclear Data for  $^{129}\text{I}$  and  $^{143}\text{Nd}$ ", JAERI-Research 2003-020, (2003).
- 7) O. Shcherbakov and H. Harada, "Resonance Self-Shielding Corrections for Activation Cross Section Measurements", J. Nucl. Sci. Technol. **39**, No.5, 548 (2002).
- 8) S. Nakamura, H. Wada, O. Shcherbakov, K. Furutaka, H. Harada, and T. Katoh, "Measurement of the Thermal Neutron Capture Cross Section and the Resonance Integral of the  $^{109}\text{Ag}(n, \gamma)^{110m}\text{Ag}$  Reaction", J. Nucl. Sci. Technol. **40**, No.3, 119 (2003).
- 9) H. Harada, S. Nakamura, T. Fujii, and H. Yamana, "Measurement of Effective Capture Cross Section of  $^{238}\text{Np}$  for Thermal Neutron", J. Nucl. Sci. Technol. **41**, No.1, 1 (2004).
- 10) S. Nakamura, K. Furutaka, H. Wada, T. Fujii, H. Yamana, T. Katoh, and H. Harada, "Measurement of the thermal neutron capture cross section and the resonance integral of the  $^{90}\text{Sr}(n, \gamma)^{91}\text{Sr}$  reaction", J. Nucl. Sci. Technol. **38** No. 12,

1029 (2001).

- 11) T. Katoh, S. Nakamura, K. Furutaka, H. Harada, T. Baba, T. Fujii, and H. Yamana, "Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the Reaction  $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$  using Two Step Irradiation Technique", J. Nucl. Sci. Technol. **39**, No.7, 705 (2002).
- 12) K. Furutaka, S. Nakamura, H. Harada, T. Katoh, T. Fujii, and H. Yamana, "Precise measurement of  $\gamma$ -ray emission probabilities of  $^{100}\text{Ru}$ ", J. Nucl. Sci. Technol. **38** No. 12, 1035 (2001).
- 13) T. Katoh, S. Nakamura, K. Furutaka, H. Harada, K. Fujiwara, T. Fujii, and H. Yamana , "Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the  $^{237}\text{Np}(n, \gamma)^{238}\text{Np}$  Reaction", J. Nucl. Sci. Technol. **40**, No.8, 559 (2003).
- 14) K. Furutaka, H. Harada, S. Raman, "Prompt gamma rays emitted in thermal-neutron capture reaction by  $^{99}\text{Tc}$  and its reaction cross section", J.Nucl.Sci.Tech., **41**, No.11, 1033 (2004).
- 15) S. Nakamura et al., 平成17年度に発表の予定 (日本原子力学会)
- 16) I. Miyazaki, T. Shimizu, M. Shibata, A. Taniguchi, K. Kawade, H. Sakane, K. Furutaka, H. Harada , "Reliability of prompt  $\gamma$ -ray intensities for the measurement of neutron capture cross sections", International Conference on Nuclear Data for Science and Technology Sept. 26-Oct 1, 2004 Santa Fe, New Mexico, USA submitted (2004).
- 17) H. Sakane, K. Furutaka, O. Shcherbakov, H. Harada, T. Fujii, H. Yamana, "Development of a method of thermal-neutron capture cross section measurement by unfolding prompt gamma ray spectra", International Conference on Nuclear Data for Science and Technology Sept. 26-Oct 1, 2004 Santa Fe, New Mexico, USA submitted (2004).
- 18) Y. Shigetome and H. Harada, "Development of twin Ge detector and its performance", Nucl. Instr. Method. **A469**, 185 (2001).
- 19) H. Harada, K. Furutaka, H. Ohgaki, and H. Toyokawa, "Fine structure of Giant resonance in  $^{28}\text{Si} + \gamma$  absorption reaction", J. Nucl. Sci. Technol. **38** No. 7 (2001) 465.
- 20) H. Harada, K. Furutaka, H. Ohgaki, and H. Toyokawa, "Super-high-resolution measurement of photo-nuclear cross sections", J. Nucl. Sci. Technol. Supplement 2, (2002) 608.
- 21) 特許：「光核反応断面積の判定方法、原子核変換方法およびゲルマニウム検出器」  
発明者：原田秀郎、佐藤 勇  
登録日：平成13年8月17日  
番号：特許第3222725号
- 22) Y. Ohkawachi, A. Shono, "Decay Heat Measurement of Actinides at YAYOI", Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology (ND2001), October 7-12,

- 2001, Tsukuba, Japan, J. Nucl. Sci. Technol., Supplement 2, p.493 (2002).
- 23) M. Igashira, M. Mizumoto, M. Ohshima, A. Hasegawa, J. Kataura, H. Harada, N. Yamano, H. Yamana, M. Baba, K. Kato, M. Sugawara, Y. Nagai, and K. Kawade, "A Nuclear Data Project in Japan", International Conference on Nuclear Data for Science and Technology Sept. 26-Oct 1, 2004 Santa Fe, New Mexico, USA submitted (2004).
- 24) M. Sugawara, J. Goto, M. Oshima, H. Harada, K. Furutaka, M. Igashira, T. Ohsaki, M. Mizumoto, A. Osa, M. Koizumi, Y. Nagai, and K. Kawade, "Design of a Compact  $4\pi$  Ge Spectrometer for the Measurement of Neutron Capture Cross Sections of Minor Actinides", to be published in J. Nucl. Sci. Technol. (2004).
- 25) 特許願：「パルス中性子透過法による非破壊分析方法及び装置」  
発明者：原田秀郎、オレグ アレキセビッチ シエルバコフ  
提出日：平成16年6月22日  
番号：特願2004-184237

第 5.1-1 表 中性子捕獲断面積の測定技術開発成果

測定手法	特徴	第1段階の成果
①TOF法	加速器で得られるパルス中性子を一定の距離を離し、放出される即発ガンマ線を測定する。中性子の飛行時間も測定することにより、中性子エネルギーの関数として、中性子捕獲断面積を導出する。	<ul style="list-style-type: none"> <li>・全エネルギー観測型BGO検出器を開発。</li> <li>・フランシュADCを基本とするデータ収集系を開発した。</li> <li>・フランシュADCデータ収集系の高速化は、平成17年度実施。</li> <li>・ORNLに専用のTOF測定ラインを開発した。</li> </ul>
②放射化法	原子炉中で照射し、中性子捕獲反応により生成する核種の量から中性子捕獲断面積を導出する。	<ul style="list-style-type: none"> <li>・中性子自己吸収補正の計算法を開発し、解析精度を高めた。</li> <li>・2重中性子捕獲反応を適用して、高次MA核種の測定を可能とした。</li> <li>・崩壊ガンマ線の測定精度を向上するために、BGOアンチシンシンス付Ge検出器を開発</li> </ul>
③即発ガンマ線分光法	原子炉の中性子導管より得られる中性子ビームをサンプルに照射し、照射中に放出される即発ガンマ線を測定することにより中性子捕獲断面積を導出する。	<ul style="list-style-type: none"> <li>・即発ガンマ線分光用ビームコスを京大炉にて開発。</li> <li>・即発ガンマ線測定用のBGOアンチシンシンシールド付Ge検出器を開発。</li> <li>・より高精度化を目指したペアスペクトロメータを開発中。(平成17年度完成)</li> <li>・Ge検出器の高エネルギーガンマ線に対する応答閾値を測定すると共に、ミュレーション計算と比較することにより、応答閾値計算手法を開発した。</li> <li>・高エネルギー領域までの検出器の検出効率校正用にN-14標準を作成した。</li> </ul>
④崩壊熱測定法	サンプルを原子炉で照射した後、放出されるガンマ線及びベータ線のエネルギー分布を一定の時間毎に測定する。	<ul style="list-style-type: none"> <li>・東京大学弥生炉に気送管及び崩壊熱測定装置を設置(現在、崩壊熱測定装置は撤去済)。</li> <li>・Np-237, U-235の崩壊熱測定を実施。</li> </ul>
⑤サンプルの整備	放射性サンプルの取得、整形	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ORNL研究所照射済み燃料よりTc-99, Zr-93, Pd-107(平成17年度)を分離した。</li> <li>・金属Tc作製法に関する研究実施した。</li> <li>・照射済み燃料よりSe-79生成法の検討を行なった。</li> </ul>

第5.1-2表 LLFP等の放射性核種の中性子捕獲断面積データに関する研究成果

核種	半減期	熱断面積	第1段階の成果		
			共鳴積分値	高速中性子	
I-129	1570 万年	○	○	△	
Pd-107	640 万年	x→△	x	△	即発ガンマ線解析により熱中性子捕獲断面積の下限値を決定、さらにサンプル整備中
Cs-135	230 万年	○	△	x	
Zr-93	153 万年	x→△	x	△	即発ガンマ線解析により熱中性子捕獲断面積の下限値を決定、さらにサンプル整備中
Se-79	48 万年	x	x	x	サンプル作製の検討を実施(現状では困難)
Cl-36	30 万年	x	x	x	
Sn-126	24 万年	x	x	x	
Tc-99	21 万年	△→○	△	△→○	即発ガンマ線解析により熱中性子捕獲断面積の精度を向上、またTOF法用にサンプルを整備した。2005年に高速中性子データ整備
C-14	5730 年	x	x	x	
Ho-166m	1200 年	x→△	x→△	x	2段階照射法を開発し、熱中性子捕獲断面積及び共鳴積分値を測定した。
Sm-151	93 年	x	x	x	
Cs-137	30 年	△	△	×	
Sr-90	29 年	△	x→△	x	
Nb-93m	16 年	x	x	x	放射化法により共鳴積分値を測定
Cd-113m	14 年	x	x	x	
Kr-85	11 年	△	x	x	

○: 誤差10%未満

△: 誤差10%から50%

×: 誤差50%以上または測定値なし

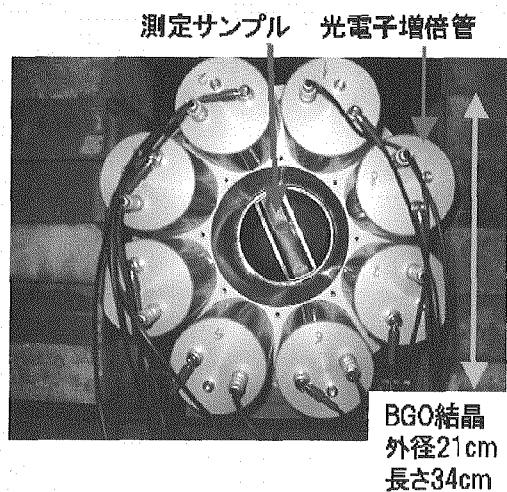
第5.1.-3表 MAの中性子捕獲断面積データに関する研究成果

核種	半減期	熱断面積	共鳴積分値	高速中性子	第1段階の成果
Np-237	214 万年	○ →△	△	△	放射化法及びTOF法を用いた詳細な研究により 従来データの見直しが必要であることを示した。
Np-238	2 日	× →△	×	×	2重中性子捕獲反応により高次MA核種の実効 熱中性子捕獲断面積を決定
Am-241	432 年	△	△	△	
Am-242	141 年	△	×	×	
Am-243	7370 年	○	○	△	
Cm-242	163 日	△	△	×	
Cm-243	29 年	○	○	×	
Cm-244	18 年	○	○	×	
Cm-245	8500 年	○	○	×	

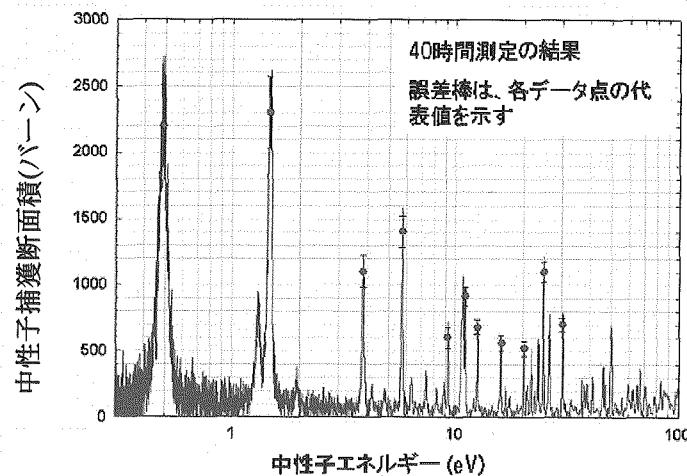
○: 誤差10%未満      △:誤差10%から50%      ×:誤差50%以上または測定値なし

第5.1-4表 研究開発スケジュール（核データ）

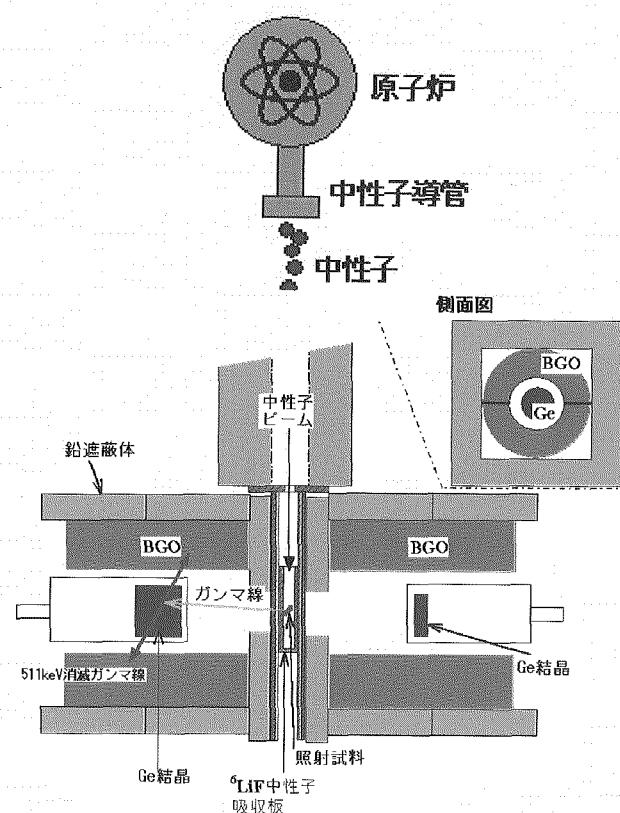
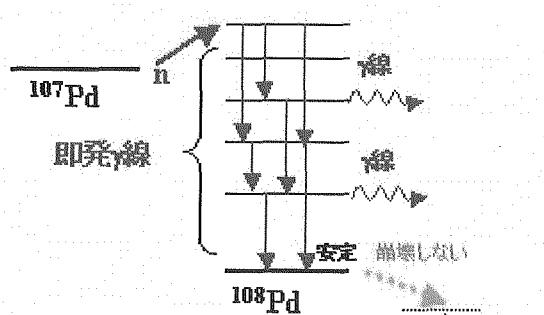
工程	オペレーションC&R		第1段階目標終了		第2段階目標終了							
	2000-2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016～2020
MA核種の中性子捕獲断面積測定・評価												
$^{237}\text{Np}$ , $^{238}\text{Np}$ の熱断面積測定												
$^{237}\text{Np}$ の0.02-100eV断面積測定												
$^{241}\text{Am}$												
$^{243}\text{Am}$												
$^{245}\text{Cm}$												
$^{237}\text{Np}$ の崩壊熱測定(γ)												
中断												
JRR-3等に装置設置・整備												
MAの崩壊熱測定												
LLFP( $^{79}\text{Se}$ , $^{93}\text{Zr}$ )の中性子捕獲断面積測定・評価												
$^{99}\text{Tc}$ の測定												
$^{93}\text{Zr}$ 及び $^{93}\text{Zr}$ 安定同位体												
$^{107}\text{Pd}$ 及び $^{107}\text{Pd}$ 安定同位体												
$^{129}\text{I}$ 及び $^{129}\text{I}$ 安定同位体												
$^{126}\text{Sn}$ , $^{107}\text{Pd}$ の核データ研究												
中性子捕獲断面積の測定技術開発												
即発γ線分光技術の開発												
放射化法の開発												
飛行時間測定技術の開発												
JRR-3等に装置設置・整備												
測定手法の高度化												
飛行時間測定データ解析コードの整備												
高次MAの中性子捕獲断面積測定法の研究												



第5.1-1図 全立体角BGO検出器



第5.1-2図  $^{237}\text{Np}$  の中性子捕獲断面積測定結果



第5.1-3図 即発 $\gamma$ 線分光法による熱中性子捕獲断面積測定

## 5.2 炉物理

### (1) 課題

事前評価において、それまでの概念検討を中心とした炉物理分野の研究を、試験が伴う実証段階へ移行させることが議論され、次の4個の研究項目が計画された。

- ① 高速実験炉「常陽」の燃料及びMAサンプルの照射後試験結果を用いたMA核種の核変換量及び生成量の解析、
- ② フランスの高速実証炉「スーパーフェニックス」におけるMA及びFPサンプル照射実験(Super-PROFIL実験)の解析、
- ③ MA装荷炉心の臨界実験計画作成、
- ④ LLFP装荷炉心の臨界実験の必要性の検討。

### (2) 成果

#### ① 「常陽」照射後試験解析

「常陽」MK-I炉心燃料ならびにMK-II炉心で照射したMAサンプル( $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ )について、燃焼計算手法の確立とMA核データの検証を目的とした照射後試験解析を行った。典型的な高速炉における主なMA核種の生成量について、核データに起因する不確かさを第5.2-1表にまとめた。MAや高次Puの捕獲反応断面積や核異性体比が不確かさをもたらしており、これらの検証を本研究では狙っている。

MK-I炉心燃料の解析<sup>1)</sup>では、U及びPuに関する約80点の核種組成分析結果を解析し、 $^{235}\text{U}$ や $^{239}\text{Pu}$ 等の主要核種について、良好な測定値と計算値の一致性を確認した。 $^{236}\text{U}$ と $^{241}\text{Pu}$ については、これらを生成する捕獲反応断面積の検証に解析結果を利用できる見通しを得た。

MAサンプルについては計16個のサンプルのうち、2個の $^{243}\text{Am}$ 、1個の $^{244}\text{Cm}$ サンプルの核種組成分析と予備解析を実施した<sup>2)</sup>。 $^{243}\text{Am}$ サンプルに含まれる $^{241}\text{Am}$ から $^{242m}\text{Am}$ への核変換の測定により、 $^{241}\text{Am}$ 中性子捕獲反応の核異性体比( $^{242m}\text{Am}/(^{242m}\text{Am}+^{242g}\text{Am})$ 、第5.2-1図参照)について、従来まで一般に用いられていた値0.2を下回る、約0.15が確からしいことを示した。この結果は、米国の核データライブラリの最新評価における参考データの一つとして役立つなど注目を受けた。

なお、照射後試験解析に関連して、燃焼感度解析コードのシステム化整備、核種生成量評価コードORIGEN2用の断面積ライブラリの作成を行った。

燃焼感度解析コードは、照射後試験解析結果を核データの検証や炉心設計で用いる炉定数の改良に反映させるために必要である。まず、UとPuのみに限られていた燃焼チェーンをNp, Am, CmといったMAまで扱えるよう拡張し、それら核種の燃焼における核データライブラリ依存性の分析に活用した<sup>3)</sup>。しかし、同コードは燃焼感度の理論の複雑さとシステム上の制限からユーザーの負担が大きく、解析作業が極めて非効

率という問題を有していた。そこで、オブジェクト指向とスクリプト言語の技術を利用したシステム化整備を行い、利便性と拡張性の面で著しい改善を図った<sup>4)</sup>。

照射後試験結果を広範な分野の研究に役立たせる一方策として、多くの分野で使用実績のある核種生成量評価コード ORIGEN2 用の断面積ライブラリの作成を原研と協力して行った<sup>5)</sup>。2002 年に公開された我が国の最新核データライブラリ JENDL-3.3 をベースとし、上で述べた  $^{241}\text{Am}$  の核異性体比の新推奨値といった照射後試験解析で得た最新の知見を取り入れたものとした。

## ② Super-PROFIL 実験

Super-PROFIL 実験では、高速実証炉「スーパーフェニックス」で既に照射の終了していた MA 及び FP サンプルを、照射用集合体ごとフランス原子力庁がネルサ (NERSA) 社から買い取り、照射後試験を行う予定であった。しかし、経費の詳細見積りの結果、Super-PROFIL 実験だけのために、「スーパーフェニックス」用の大型集合体を扱うことのできる照射後試験施設を稼働させることは得策でなく、新たにサンプルを調達し、高速原型炉「フェニックス」を用いて一から照射を行い、「フェニックス」の集合体を扱える稼働中の試験施設で照射後試験を行った方が良いということになった。そこで、「フェニックス」を用いたサンプル照射実験『PROFIL-R 実験』に計画を変更し、実験の準備が進められた。サイクル機構はこれに参画すべく、フランス原子力庁との共同研究契約の締結に取り組み、契約締結の一歩手前までこぎ着けた。しかしながら、フランス側の照射計画が「フェニックス」のトラブルにより遅延したため、2002 年になって、2003 年度のサイクル機構の分離変換研究開発予算が大幅に縮減される見通しとなった。このため、PROFIL-R 実験への参画の道は、残念ながら閉ざされることとなった。なお、PROFIL-R 実験はサイクル機構の参画なしで計画実施に移されており、「フェニックス」での照射が 2003 年 12 月より開始されている。

## ③ MA 装荷炉心の臨界実験

MA 装荷炉心の臨界実験の計画作成の一環として、現状では非常に大きいといわれる MA の核データの不確かさが、MA 装荷炉心の核特性や、取出燃料集合体の発熱量などの燃料サイクル関連量に対して、どのくらいの影響を与えるかを評価した<sup>6)</sup>。これにより、優先的に核データの精度向上を図るべき MA 核種・反応を選び出すとともに、どの程度の精度向上を行えばよいかの目安を与えた。核データに起因する不確かさ評価の一例を第 5.2-2 図に示す。

一方、先行して MA 装荷炉心の臨界実験が行われている諸外国の実験データの入手に取り組んだ。ロシア物理エネルギー研究所より、炉心中心領域に kg オーダーの Np を装荷した臨界実験データ入手し、同実験データを用いた Np 装荷炉心の核設計精度の

向上を狙った解析を進めている<sup>7)</sup>。また、Amの生成源である高次Puに着目した臨界実験データをフランス原子力庁から入手し、解析を行った<sup>8)</sup>。この実験解析からは、<sup>240</sup>PuのkeVエネルギー領域における捕獲反応断面積の過大評価傾向など、その後の核データ改訂を指示する結果を得た。

#### ④ LLFP 装荷炉心の臨界実験

LLFP 装荷炉心の臨界実験の必要性判断の一助とするために、フランス原子力庁より高速原型炉「フェニックス」において実施された減速材付きターゲット集合体を用いた<sup>60</sup>Co 生成実験データを入手し、減速材付き核変換集合体の解析精度の検証を行った<sup>9)</sup>。第 5. 2-3 図に同実験の減速材付きターゲット集合体の断面図と解析結果を示す。<sup>60</sup>Co 生成率についての測定値と解析値の一致性は概ね良好であったが、集合体内の C/E 値依存性や、ターゲット周辺のブランケット燃料の組成の不確かさの影響、反射体に含まれる鉄などの散乱断面積の不確かさの影響が課題として残っており、これら不確かさの低減が必要である。

以上の研究成果は、(6) の文献リストに示すとおり公開文献にまとめ日本原子力学会等の専門誌への投稿や国際会議等で発表を行っている。

#### (3) 総括

MA と LLFP の核変換に関する炉物理分野の研究開発は、試験を伴う実証研究のフェーズへと移行した。「常陽」で照射した MA サンプルの照射後試験解析による断面積検証、kg オーダーの Np を装荷した炉心の臨界実験解析など、貴重な実験解析データが蓄積された。

課題に対する達成状況は次のとおりである。

① 「常陽」照射後試験解析では、MK-I 炉心燃料の解析を完了、MA サンプルについては 16 個中 3 個の予備解析まで実施した。進捗は概ね順調である。MK-II 炉心のドライバ燃料及び残りの MA サンプル 13 個の解析が残されている。

② Super-PROFIL 実験については、予算の大幅な縮減のため、課題を達成することができなかった。

③ MA 装荷炉心の臨界実験については、諸外国において先行して取り組まれた臨界実験データの解析・評価を実施するとともに、MA 核データの精度向上目標の定量化を行った。具体的な臨界実験計画の作成までは完了しなかった。

④ LLFP 装荷炉心の臨界実験については、「フェニックス」において実施された減速材付きターゲット集合体を用いた<sup>60</sup>Co 生成実験の解析を行い、その結果より、炉物理上の課題を考察した。

#### (4) 今後の研究開発の進め方

今後の研究開発の進め方は次のとおりである(第5.2-2表に示す研究開発スケジュールを参照のこと)。「常陽」照射後試験解析については、解析対象をMK-II炉心のドライバ燃料に拡大し、U及びPuに加えMAの生成に関するデータの拡充を進める。「常陽」MAサンプルについては、引き続き照射後試験及び解析を継続し、データ数を増やすとともに、詳細評価を行っていく。MAに関するこれら積分実験データは、2009年に公開予定の我が国の次期核データライブラリJENDL-4の検証に役立てる。ここで、積分実験結果を断面積の改善傾向分析や炉心設計で用いる炉定数の改良に反映させるために必要となる燃焼感度解析コード、炉定数調整計算コードについて、MAを扱えるよう改良・整備していく。

MA装荷炉心の臨界実験に関しては、これまでに具体的な計画作成は完了していない。しかし、既に入手したロシアのNp装荷炉心実験を超える規模の臨界実験を近い将来に行うことは現実的でなく、ましてやkgオーダーのAmやCmを用いた臨界実験にいたっては、MAの調達、試験施設、予算の観点から考えて実現性が乏しいと判断される。

MAの核データに起因する核特性の不確かさを評価したが、幸いにも発電炉で燃料に薄くMAを混入させ核変換を行うならば、MA核データの精度向上要求はそれほどハードルの高いものではない。模擬度の良いモックアップ実験は断念しても、臨界実験装置でのMA核分裂率測定、MAサンプル反応度価値測定、高速炉実機でのMAサンプル照射試験といった実現可能な実験データをできるだけ集め、それらと断面積共分散による誤差推定とを合わせる方法で核設計精度評価を行っていくことが可能と考えられる。

LLFPの核変換に関しては、LLFPの核データだけでなく、減速材の散乱則や、減速材付きターゲット集合体内の中性子束分布、反射体の影響など、炉物理上の課題が数多く存在する。これら課題の解決のために必要な実験計画の作成、既存実験データの入手等を今後とも進めていく必要がある。

#### (5) 波及効果

①「常陽」のMAサンプル照射試験やNp装荷炉心の臨界実験は、高速炉エネルギー領域のMAの捕獲反応断面積の検証に役立たせることができる。特に、我が国の次期核データライブラリJENDL-4の検証への活用が期待できる。

②燃焼感度解析システムを用いた断面積感度分析は、高速炉における実績しかなく、熱中性子炉での照射後試験解析側から注目されている。今後、熱中性子炉側への技術移転が考えられる。

③サイクル機構が進める発電用高速炉でのMA・LLFP核変換に関する炉物理研究は、加速器駆動未臨界システムの炉物理研究とMeV以下のエネルギー領域において重なる部分があり、双方の有する実験データベースの相互利用等での協力効果を見込むこと

ができる。

(6) 文献リスト

- 1) K. Yokoyama and T. Jin, Analysis of Post-Irradiation Experiments on the Core Fuel Subassemblies of the Fast Experimental Reactor "JOYO" MK-I, JNC TN9400 2004-009, Japan Nuclear Cycle Development Institute, (2004), [in Japanese].
- 2) S. Ohki, "Validation of MA Nuclear Data by Sample Irradiation Experiments with the Fast Reactor JOYO," Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology (ND2004), Sept. 26 –Oct. 1, 2004, Santa Fe, New Mexico, USA, [submitted].
- 3) S. Ohki and T. Jin, "Dependence of Fast Reactor Fuel Burnup Characteristics on Nuclear Data Libraries," J. Nucl. Sci. Technol., [submitted].
- 4) M. Tatsumi and H. Hyoudou, Systemization of Burnup Sensitivity Analysis Code, JNC TJ9400 2003-012, Japan Nuclear Cycle Development Institute, (2004), [in Japanese].
- 5) J. Katakura, M. Kataoka, K. Suyama, T. Jin and S. Ohki, "A Set of ORIGEN2 Cross Section Libraries Based on JENDL-3.3 Library: ORLIBJ33," JAERI-Data/Code 2004-015, Japan Atomic Energy Research Institute, (2004), [in Japanese].
- 6) S. Ohki, K. Yokoyama, K. Numata and T. Jin, "Target accuracy of MA nuclear data and progress in validation by post irradiation experiments with the fast reactor "JOYO"," Proc. of the 2003 Symposium on Nuclear Data, November 27-28, 2003, JAERI, Tokai, Japan, JAERI-Conf 2004-005, p.40 (2004).
- 7) T. Hazama, W. Sato, M. Ishikawa and A. Shono, Evaluation of Nuclear Characteristics of Minor Actinide Loaded Core - An Analysis of BFS-67 Critical Experiment -, JNC TN9400 2003-035, Japan Nuclear Cycle Development Institute, (2003), [in Japanese].
- 8) S. Ohki and T. Iwai, "Analysis of the CIRANO Experiment for Plutonium Burning Fast Reactor using JNC's Calculation Scheme," Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology (ND2001), October 7-12, 2001, Tsukuba, Japan, J. Nucl. Sci. Technol., Supplement 2, p.888 (2002).
- 9) S. Ohki and J. Tommasi, "Analysis of Cobalt-60 Production Experiment in the Fast Reactor PHENIX," Proc. Int. Conf. PHYSOR 2002, October 7-10, 2002, Seoul, Korea (2002).

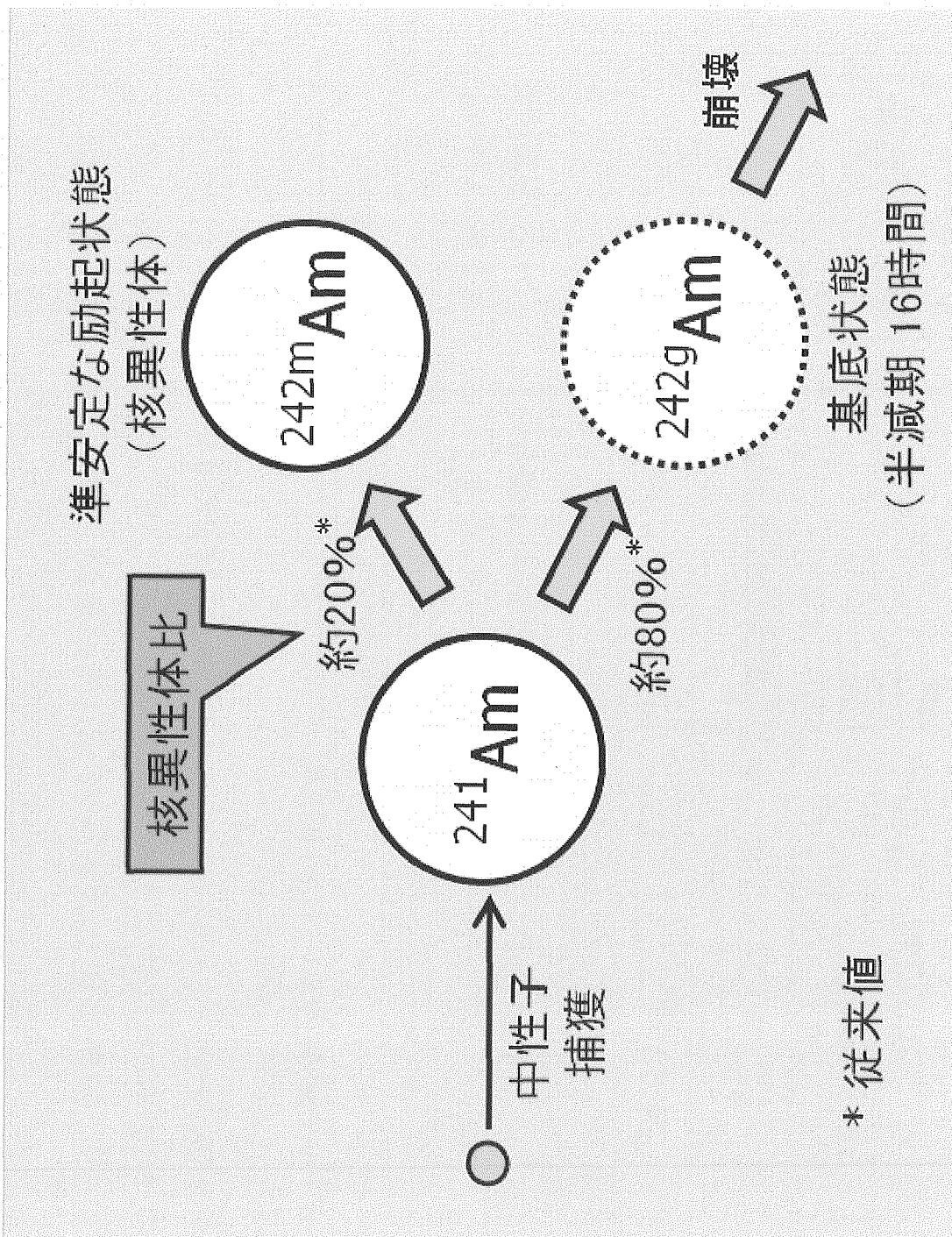
第5. 2-1表 核データに起因するMA核種の生成量の不確かさ

核種	核データに起因する不確かさ (核データライブラリ間のバラツキ から暫定的に推定)	不確かさの原因となる 核データ*
$^{238}\text{Pu}$	5~10%	$^{237}\text{Np} \sigma_c, ^{238}\text{Pu} \sigma_c,$ $^{241}\text{Am} \sigma_c, ^{241}\text{Am IR}$
$^{241}\text{Am}$	3~5%	$^{240}\text{Pu} \sigma_c, ^{241}\text{Pu} \sigma_c, ^{241}\text{Am} \sigma_c$
$^{242m}\text{Am}$	50~100%	$^{241}\text{Am} \sigma_c, ^{242m}\text{Am} \sigma_f$
$^{243}\text{Am}$	5~10%	$^{242}\text{Pu} \sigma_c, ^{243}\text{Am} \sigma_c$
$^{243}\text{Cm}$	30~50%	$^{241}\text{Am} \sigma_c, ^{241}\text{Am IR},$ $^{242}\text{Cm} \sigma_c, ^{243}\text{Cm} \sigma_c, ^{243}\text{Cm} \sigma_f$
$^{244}\text{Cm}$	5~10%	$^{243}\text{Am} \sigma_c, ^{244}\text{Cm} \sigma_c$

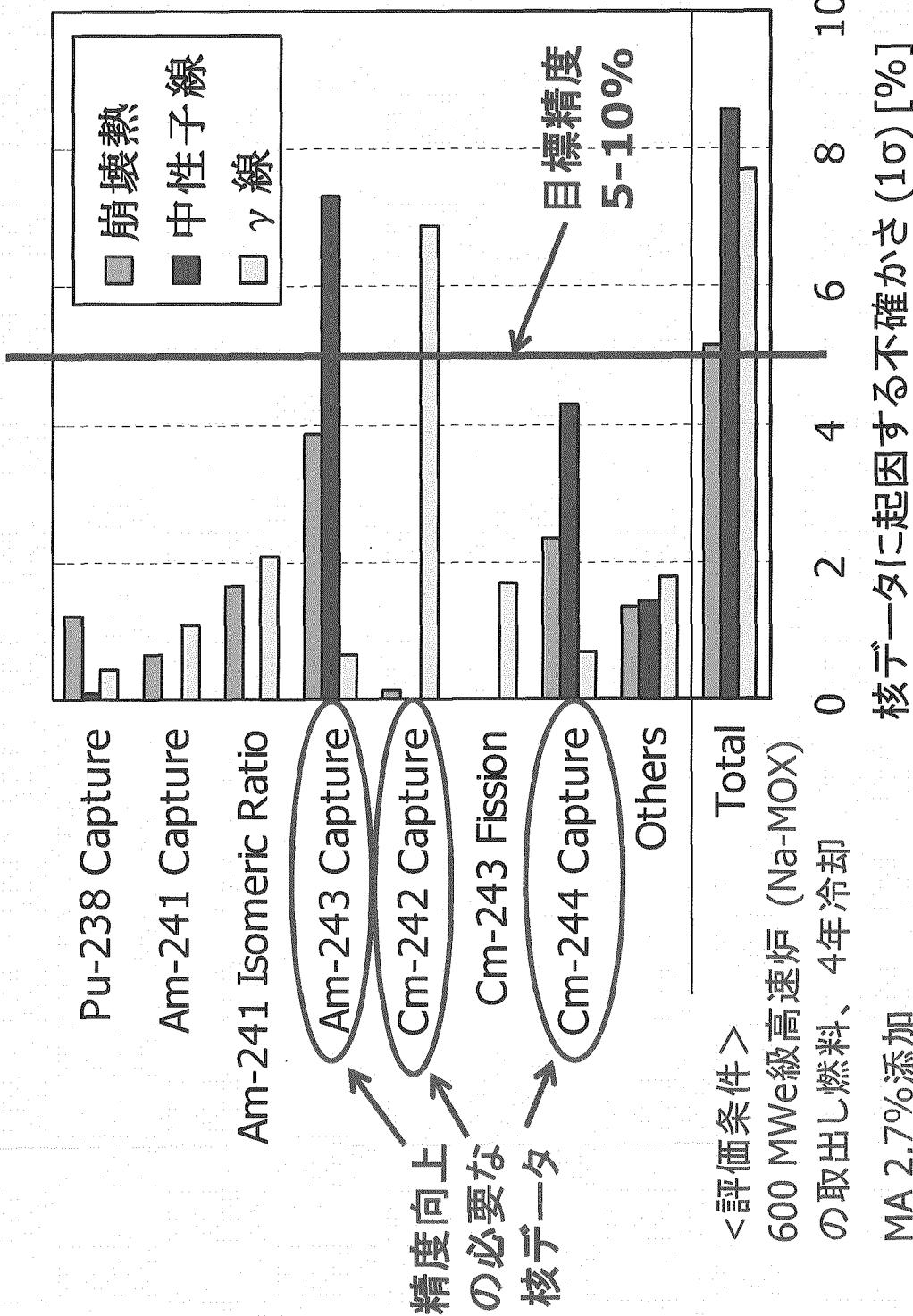
\*  $\sigma_c$ : 捕獲反応断面積、 $\sigma_f$ : 核分裂反応断面積、IR: 捕獲反応の核異性体比

第5.2-2表研究開発スケジュール（炉物理）

工程	「常陽」照射後試験 解析					「オメガ計画C & R」 （第1段階目標終了）					（第2段階目標終了）				
	2000-2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2020		
MK-I 炉心燃料解析															
MK-II 炉心ドライバ燃料解析															
MAサンプル解析															
次期核データライブラリ (JENDL-4)の検証															
JENDL-4 リース予定															
MA炉定数調整計算コード のシステム化整備															
燃焼感度解析コード のシステム化整備															
ORIGEN2用 断面積ライブラリの作成															
Super-PROMFI実験 共同研究契約準備 → 中止															
MA装荷炉心 の臨界実験															
高次Pu 臨界実験解析															
Np装荷炉心 の臨界実験解析															
MA核データ 目標精度の検討															
LJFP装荷炉心 の臨界実験															
$^{60}\text{Co}$ 生成実験解析															
必要な実験の検討、既存実験データの入手															



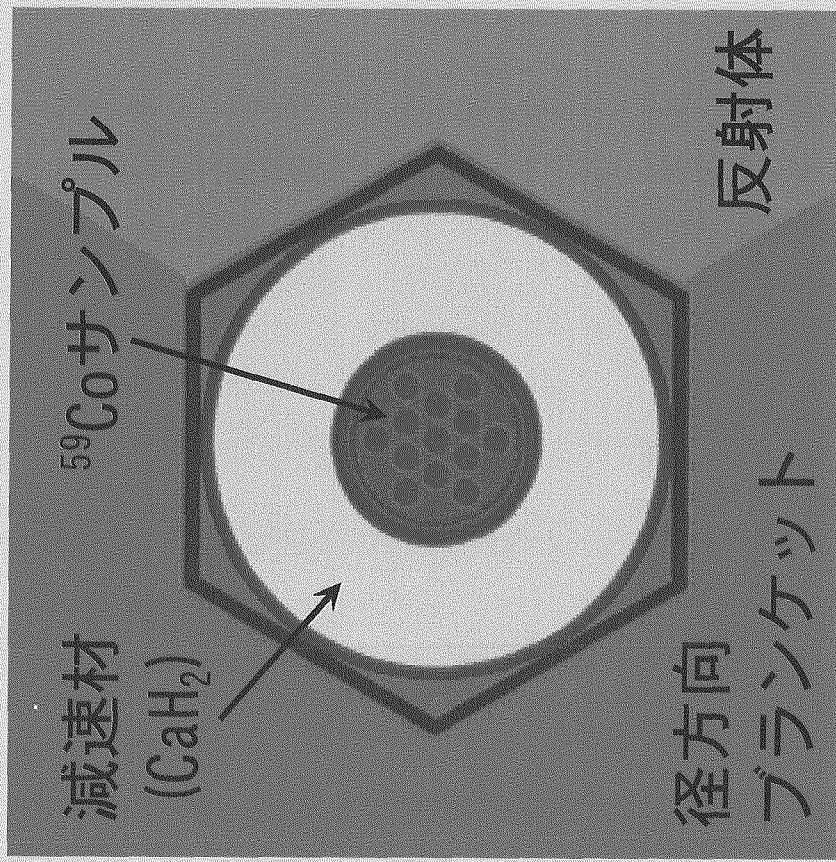
第5. 2-1図  $^{241}\text{Am}$  中性子捕獲反応の核異性体比



第5.2-2図 使用済燃料内重金属からの崩壊熱、中性子線、及びガンマ線の不確かさ  
(核データに起因するもの)

$^{60}\text{Co}$ 生成率についてのC/E値  
(軸方向炉中心位置)

外側サンプル 平均	1.02
中側サンプル 平均	1.03
中心サンプル	0.96



第5.2-3図 減速材付き核変換集合体による $^{60}\text{Co}$ 生成実験の解析結果  
(フェニックス照射)

### 5.3 燃料

#### (1) 課題

TRU を含有する燃料については、これまでフランスを中心としたヨーロッパ共同体において盛んに開発が進められてきた。しかしながら、高放射能に起因する試料取扱いの困難さ等から、試料製造技術開発・特性データ整備状況は十分とは言えず、最適な燃料形態、仕様等については未だ決定されていない。このため、将来核燃料サイクルに柔軟に適合する TRU 含有燃料の開発は、TRU 及び関連材料に関する基礎・基盤技術開発とともに、重要な課題となっている。このような状況の下、事前評価において、TRU を不活性母材と組み合わせた燃料（以下、ターゲットとする）を有望な候補とし、不活性母材の基礎的特性評価、ターゲットの製造技術開発ならびに基盤的特性・照射挙動評価を行うことが計画された。

本計画に基づき、以下の事項を課題として、東京工業大学、大阪大学等の国内大学、フランス CEA 等の国内外研究機関との共同研究も活用して、研究開発を進めてきた。

- 不活性母材の基礎的特性評価
- TRU 含有不活性母材燃料（ターゲット）の製造技術開発・基礎的特性評価  
(TRU と母材の共存性評価を含む)
- TRU 含有酸化物の基礎的特性評価
- 照射済燃料中の TRU 分析技術開発及び核変換特性評価

#### (2) 成果

高速炉ターゲット用不活性母材を選定するために、熱的特性、製造性等に係る基準を策定した。これに基づき、国内外の広範な関連文献調査及び「常陽」を用いた不活性母材の特性測定による照射挙動評価<sup>1, 2)</sup>、熱的特性等測定・評価結果をレビューし、様々な化合物の母材としての適性を基準に照らしあわせて評価した。その結果、最終的に MgO 及び Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> を有望な母材として選定した。同時に各母材の特性を考慮して、母材ごとに最適なターゲット形態を設定するとともに<sup>3)</sup>、AmO<sub>2</sub> 模擬物質として非放射性の CeO<sub>2</sub> を用いた製造試験を通して、現有技術への適合性を有するターゲットの基本製造技術を確立し、製造試料における TRU と母材の反応性を評価した（第 5.4-1 図）<sup>3, 4)</sup>。これらの基本技術を用いて実際に TRU を含有したターゲットを作製していくために、小型焼結炉等の作製設備・装置を設計・制作した。

不活性母材と組み合わせる TRU 含有酸化物については、Am または Np を含有した MOX 燃料の高密度焼結体作製技術を確立するとともに<sup>5, 6)</sup>、その焼結挙動等を評価中である<sup>7)</sup>。得られた TRU 含有酸化物の物性、熱的特性を評価するために、X 線回折、金相観察、元素分析等による構造解析<sup>8)</sup>、酸素ポテンシャルの測定<sup>9)</sup>、融点の測定<sup>10)</sup>を実施した。特に Am を含有した MOX 燃料については、Am 添加量がわずか 4.5% であっても酸素ポテ

ンシャルが非常に高くなることが明らかとなった。これらが照射挙動へ与える影響を評価するために、化学熱力学モデルにより酸素ポテンシャル曲線を解析し、実験値を良好に再現することに成功した（第 5.4-2 図）<sup>11)</sup>。またこれらの実験的研究と並行して、大阪大学との共同研究により、CALPHAD 法（ギブスエネルギー最小原理に基づく相状態評価手法）及び分子動力学法を用いた TRU 含有酸化物の物性・相状態評価を実施し、データが皆無に近い領域のデータを評価することに成功した<sup>12, 13)</sup>。これら実験的・解析的評価結果より、特に Am 含有酸化物については特異な挙動を示す可能性が示唆され、今後の更なる評価が必要である。

照射挙動評価のための基礎データとして資するために、照射済み燃料中の TRU 分析技術の開発及び実験値に基づいた TRU 核変換特性評価を行った。照射済み燃料中に極微量しか含まれておらず Am との化学的性質が類似しているために分離・分析が困難な Cm について、原子価調整及びイオン交換法を組み合わせた Cm の分析技術を開発した<sup>14)</sup>。本技術及びこれまでに確立した Am 及び Np の分析技術を照射済燃料／サンプルに適用し、燃焼度、中性子スペクトル等の照射条件が異なる燃料／サンプルの系統的なデータを取得した（第 5.4-3 図）<sup>15-18)</sup>。これまでに、本研究のように高速炉照射済み燃料の系統的データが取得された例は無い。さらに測定値から Cm の実効半減期、Am の核異性体分岐比等を評価し、既存の評価済データとの違いを明らかにした<sup>19, 20)</sup>。今後は同位体サンプルの分析等を通じて高精度なデータを拡充し、核データ、計算コード等への反映を行っていく必要がある。

以上の研究成果は、(6)の文献リストに示すとおり 10 件の論文にまとめ日本原子力学会等の専門誌に投稿した。

### (3) 総括

世界的に見ても知見が少ない TRU 含有酸化物及び不活性母材燃料の特性評価、製造技術開発を実験・解析の両面から推進した。

不活性母材の特性評価については、高速炉用の候補母材を選定し、熱伝導度等の特性評価を開始した。

TRU 含有酸化物の基礎的特性評価として、TRU を含有する MOX 燃料の特性測定及び解析評価を実施し、これまでに報告例の無いデータを得た。

照射済燃料中の TRU 分析技術開発及び核変換特性評価に関して、Cm 分析技術の開発、系統的な高速炉照射済み燃料の分析及び評価を行った。

### (4) 今後の研究開発の進め方

今後も、引き続き国内外大学・研究機関等との有機的な連携による実験・解析両面からの研究開発を推進していく（第 5.3-1 表）。

不活性母材の基礎的特性評価については、「常陽」照射試験による照射損傷効果の

評価等をすすめる。TRU 含有不活性母材燃料（ターゲット）の製造技術開発・基礎的特性評価については、実際に TRU を含有する試料の作製技術を確立すると共に、「常陽」照射試験による照射挙動を含めた特性評価を実施する。

TRU 含有酸化物の基礎的特性評価として、TRU に特有な効果の解明に資するべく、「常陽」照射試験を通じて、実験・解析両面からの評価をすすめる。

照射済燃料中の TRU 分析技術開発及び核変換特性評価に関して、更なるデータ拡充を実施するとともに、FP、希土類元素の分析技術開発を行っていく。

#### (5) 波及効果

- ①Am 含有 MOX 燃料の酸素ポテンシャルの化学熱力学モデルによる解析を通じて、化学種間の相互作用パラメータを得た。本パラメータは CALPHAD 法による相状態評価に必要な熱力学データとして使用することができる。
- ②照射済燃料中の TRU 分析技術は、MOX 燃料に限らず、ターゲット、TRU サンプル等の組成・形態が異なる試料についても適用可能である。

#### (6) 文献リスト

##### ・不活性母材の基礎的特性評価

- 1) M. Akiyoshi, N. Akasaka, Y. Tachi, T. Yano, "Interstitial atom behavior in neutron-irradiated beta-silicon nitride," *J. Ceram. Soc. Japan*, **112**, 1490(2004).
- 2) M. Akiyoshi, N. Akasaka, Y. Tachi, T. Yano, "Relation between Macroscopic Length Change and the Crystal Structure in Heavily Neutron-irradiated Ceramics," *J. Nucl. Mater.*, **329-333**, 1466(2004).
- 3) M. Osaka, H. Yoshimochi, T. Donomae, M. Inoue, "Selection study of Am-Target candidates for the irradiation in fast reactors," JNC TN9420 2003-002, Japan Nuclear Cycle Development Institute report, (2003). [in Japanese]
- 4) T. Yano, M. Osaka, T. Namekawa, "Development of manufacturing processes of Am-bearing target materials based on Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> inert matrix," JNC TY9400 2004-002, Japan Nuclear Cycle Development Institute report, (2004). [in Japanese]

##### ・TRU 含有酸化物の基礎的特性評価

- 5) H. Yoshimochi, M. Nemoto, S. Koyama, T. Namekawa, "Fabrication technology for MOX fuel containing AmO<sub>2</sub> by an in-cell remote process," *J. Nucl. Sci. Technol.* **41**, 850 (2004).

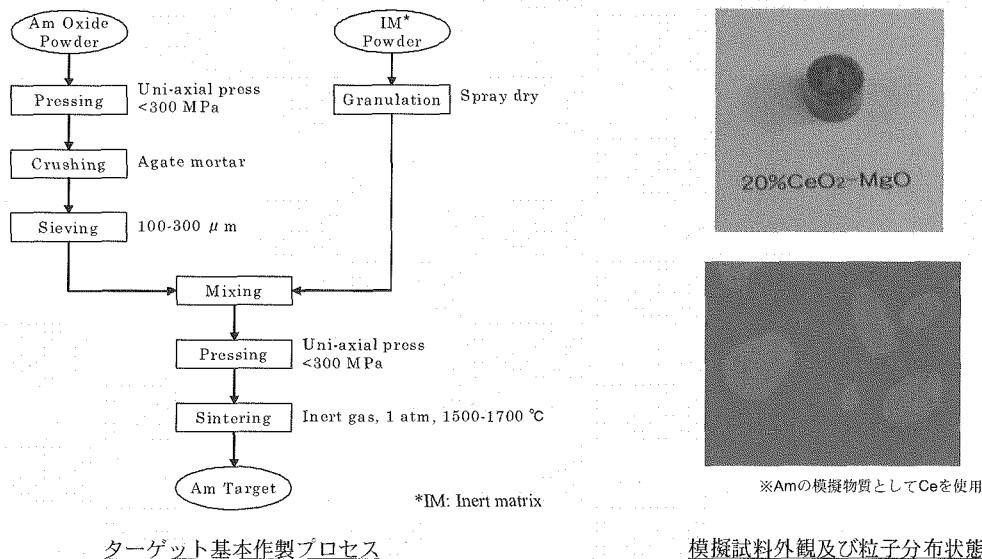
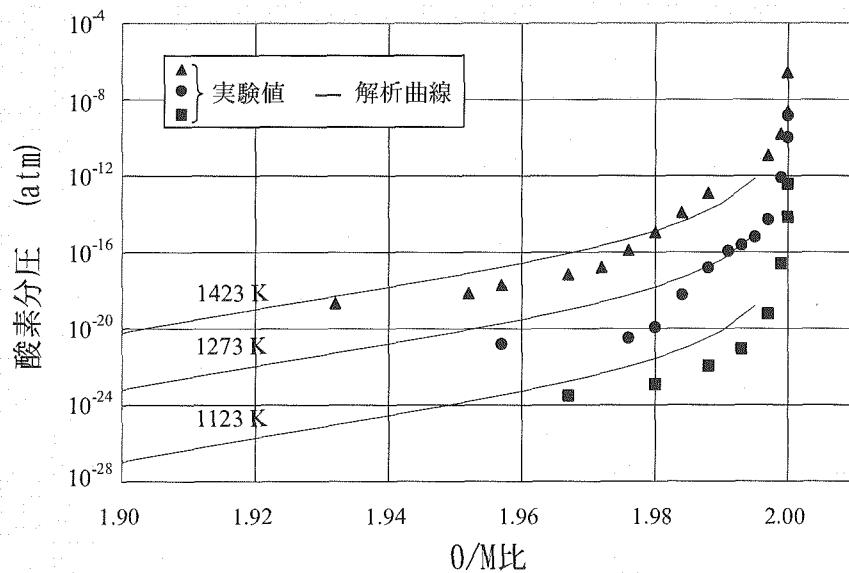
- 6) K. Tanaka, H. Yoshimochi, T. Asaga, "Remote fabrication of MOX pellets containing AmO<sub>2</sub> in hot-cell, " ANS winter meeting, Washington D.C., USA, 14-18 November, 2004.
- 7) S. Miwa, M. Osaka, H. Yoshimochi, K. Tanaka, T. Seki, S. Sekine, "Effect of oxygen potential on the sintering behavior of MOX fuel containing Am, " to be presented at Actinide 2005.
- 8) M. Osaka, S. Miwa, H. Yoshimochi, K. Tanaka, K. Kurosaki, S. Yamanaka, "An experimental investigation of effects of americium addition to (U, Pu)O<sub>2-x</sub>, " to be presented at Actinide 2005.
- 9) M. Osaka, I. Sato, T. Namekawa, K. Kurosaki, S. Yamanaka, "Oxygen potentials of (U<sub>0.685</sub>Pu<sub>0.270</sub>Am<sub>0.045</sub>)O<sub>2-x</sub> solid solution, " *J. Alloys Comp.*, to be published.
- 10) T. Hirosawa, et al., "Development of fabrication technique for MOX pellet containing americium by the remote control (VII) – outline of improved apparatus and melting temperature measurement of Am-containing MOX fuel-, " In: Proceedings of Fall Meeting of Atomic Energy Society of Japan, Kyoto, Japan, 15-17 September, 2004, p. 573. [in Japanese].
- 11) M. Osaka, T. Namekawa, K. Kurosaki, S. Yamanaka, "Chemical thermodynamic representation of (U,Pu,Am)O<sub>2-x</sub>, " *J. Nucl. Mater.*, to be published.
- 12) K. Kurosaki, M. Imamura, I. Sato, T. Namekawa, M. Uno, S. Yamanaka, "Molecular Dynamics Studies of Minor Actinide Dioxides, " *J. Nucl. Sci. Technol.*, **41**[8], 827(2004).
- 13) K. Kurosaki, M. Imamura, I. Sato, T. Namekawa, M. Uno, S. Yamanaka, "Molecular dynamics studies of neptunium dioxide, " *J. Alloys Comp.*, **387**, 9(2004).
  - ・照射済燃料中の TRU 分析技術開発及び核変換特性評価
- 14) M. Osaka, S. Koyama, K. Morozumi, et al, "Analysis of curium isotopes in mixed oxide fuel irradiated in fast reactor, " *J. Nucl. Sci Technol.*, **38**[10], p.912(2001).
- 15) M. Osaka, S. Koyama, T. Mitsugashira, "Analysis of curium in MOX fuel irradiated in fast reactor, " GLOBAL 2003, New Orleans, USA, 16-20 November, 2003.
- 16) M. Osaka, S. Koyama, T. Mitsugashira, "Analysis of irradiated <sup>237</sup>Np in the experimental fast reactor JOYO for the evaluation of its transmutation behavior in a fast reactor, " *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **4**, 9(2003).
- 17) S. Koyama, M. Osaka, T. Sekine, et al, "Measurement of burn-up in FBR MOX fuel irradiated to high burn-up, " *J. Nucl. Sci. Technol.*, **40**[12], 998(2003).
- 18) S. Koyama, M. Osaka, T. Namekawa, M. Ito, "Current status of PIE activities in

o-arai engineering center of JNC on FBR MOX fuel, " ICNC 2003, Tokai-mura, Japan, 20-24 October , 2003.

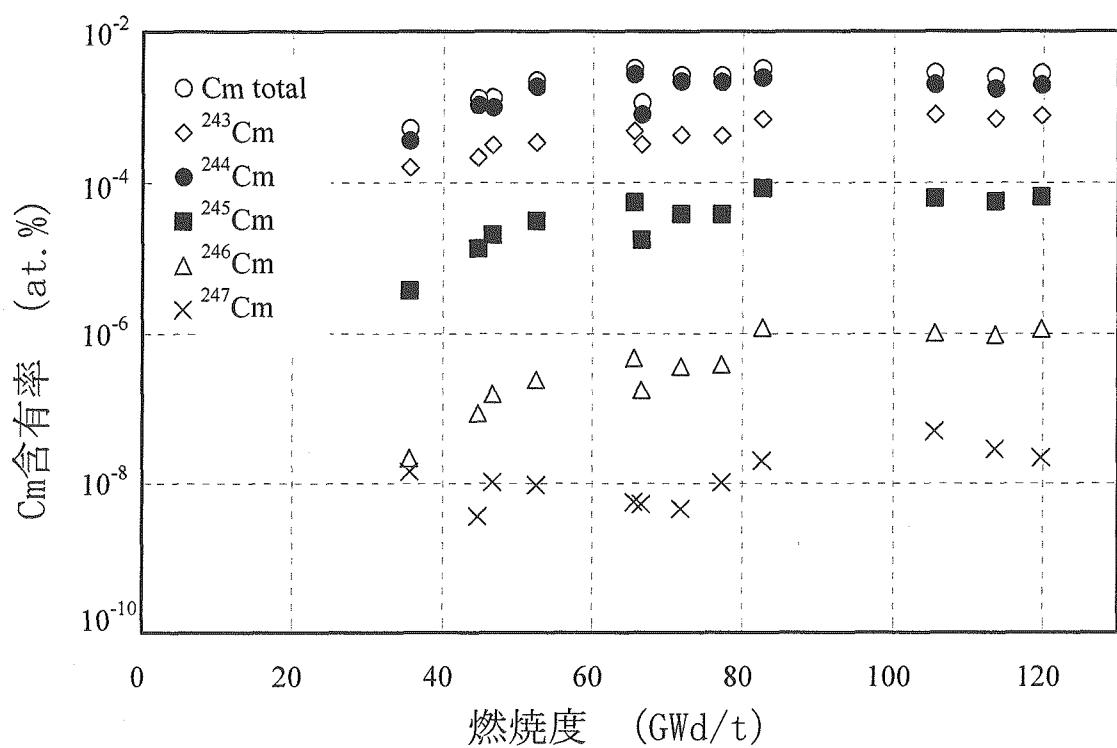
- 19)M. Osaka, S. Koyama, T. Mitsugashira, "Analysis of curium in mixed oxide fuel irradiated in the experimental fast reactor JOYO for the evaluation of its transmutation behavior, " *J. Nucl. Sci Technol.*, **41**[9], p.907(2004).
- 20)M. Osaka, S. Koyama, S. Maeda, T. Mitsugashira, "An experimental investigation of accumulation and transmutation behavior of americium in the MOX fuel irradiated in a fast reactor, " *Annals Nucl. Energy*, to be published.

第5.3-1表 研究開発スケジュール（燃料）

工程	オペレーションC&R		第1段階目標終了		第2段階目標終了							
	2000-2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016～2020
不活性母材の基礎的特性評価												
TRU含有不活性母材・燃料(ターダベット)の製造技術開発・基礎的特性評価												
物性測定・候補選定												
物性・照射拳動評価( $MgO$ , $Si_3N_4$ , $ZrO_2$ 他)												
製造技術開発・特性測定												
「常陽」照射												
PIE・照射拳動評価												
Am/Pu/U酸化物												
Am/Pu/FP/U酸化物												
Cm含有酸化物												
Np/Am/Cm												
照射済燃料中のTRU分析技術開発及び核変換特性評価												
FP, 希土類元素												

第5.3-1図 MgO-AmO<sub>2</sub>酸化物ターゲットの基本作製プロセス及び模擬試料作製結果

第5.3-2図 Am含有MOX燃料の酸素ポテンシャル及び化学熱力学モデルによる評価



第 5.3-3 図 「常陽」 照射済 MOX 燃料中の Cm 同位体含有量の分析結果

## 5.4 新しい核変換技術・概念の検討

### (1) 課題

長寿命核種を分離変換により減量するにあたっては、分離過程における回収率の向上及び核変換過程における核変換効率の向上が減量効果を左右することが判明している。また、核変換効率向上のためには、適切な中性子スペクトル場と高燃焼度化が重要であることもこれまでの核変換特性検討結果が示唆している。

上記を踏まえ、以下の2項目を課題とした。

- ① MA 及び LLFP ( $^{79}\text{Se}$ 、 $^{93}\text{Zr}$ 、 $^{99}\text{Tc}$ 、 $^{107}\text{Pd}$ 、 $^{126}\text{Sn}$ 、 $^{129}\text{I}$ ) について、高速エネルギーから熱外エネルギーまでの幅広い中性子エネルギー領域から、変換対象核種の核反応の特徴に合わせ適切な中性子エネルギーを各々の核種について選択し核変換特性を向上できる新しい炉心概念の検討
- ② 高燃焼度化のためには被覆管やラッパ管の中性子照射制約から開放された炉心の検討が必要である。その一つのアプローチとして、軽水炉使用済み燃料について、被覆管（ラッパ管）を乗り換え、燃料ミート部は可能な限りそのまま次の燃料に引き継ぐ簡易熱処理（通常の再処理の前処理工程で行う脱被覆、粉碎に相当）を行つただけで再使用燃料製造して高速炉炉心に装荷し、マルチリサイクルを行う複合処理燃料サイクル炉心概念の検討

尚、事前評価においては次の2項目についても計画されていたが、FBR サイクルの実用化戦略調査研究の中で実施されたためここには含めなかった。

- ・低エネルギーの中性子を利用する場合については、変換効率を悪化させる中性子の空間自己遮蔽を抑制するために、対象核種要素の表面積を増大させた集合体概念の導入
- ・水素化ジルコニウムを含む高速炉炉心での TRU 及び LLFP の核変換フィージビリティ・スタディ

### (2) 成果

- ① LLFP 核種により適する核変換場が高速炉と軽水炉に分かれる。高速炉を中心とし、軽水炉を含む複合システムについて LLFP 核変換特性を評価し以下の知見を得た<sup>1)</sup>。
  - ・単独システムとしては、余剰中性子数と必要中性子数のバランスや全 LLFP 平衡インベントリ（生成と消滅が釣り合うインベントリ）合計の少なさから、高速炉の方が軽水炉よりも優れている。
  - ・ $\text{UO}_2$  燃料軽水炉は  $^{129}\text{I}$ 、 $^{126}\text{Sn}$ 、 $^{151}\text{Sm}$  の核変換性能が高速炉より高い。
  - ・低減速軽水炉は  $^{99}\text{Tc}$ 、 $^{129}\text{I}$ 、 $^{126}\text{Sn}$ 、 $^{135}\text{Cs}$ 、 $^{151}\text{Sm}$  の核変換性能が高速炉より高い。
- $^{79}\text{Se}$ 、 $^{93}\text{Zr}$ 、 $^{107}\text{Pd}$  に関しては、高速炉の方が核変換能力が高く、複合システムにおいては高速炉側でリサイクルする必要がある。

・複合システムの一例として、第 5.4-1 図のように高速炉：低減速軽水炉 = 4 : 1 の割合で導入するシステムが考えられる。このシステムでは同位体分離の場合、LLFP の平衡インベントリを高速炉単独システムの約 12 ton/GWe から約 10 ton/GWe に低減可能である。

- ② 複合処理燃料サイクル炉心概念<sup>2), 3), 4), 5)</sup>を第 5.4-2 図に示す。複合処理燃料サイクル炉心として、通常の径方向非均質炉心における内部プランケット領域に簡易熱処理しただけで再使用燃料製造した軽水炉使用済燃料を装荷する径方向非均質炉心を採用することとした（第 5.4-3 図）。軽水炉使用済燃料として BWR プルサーマル燃料（燃焼度：6 万 MWd/t）及び BWR ウラン燃料（燃焼度：6 万 MWd/t）を用いた場合について検討し以下の知見を得た。
- ・軽水炉使用済燃料の到達燃焼度：BWR ウラン燃料の場合は 40 万 MWd/t 以上（BWR プルサーマル燃料の場合は 30 万 MWd/t 以上）
  - ・軽水炉使用済燃料中の MA 量（単位発電量当たり）：LWR ウラン使用済燃料の約 1/3（プルサーマル使用済燃料の約 1/5）
  - ・軽水炉使用済燃料の簡易熱処理のみのリサイクル回数：BWR ウラン燃料の場合は 6 回以上（BWR プルサーマル燃料の場合は 4 回以上）（第 5.4-1 表）

### (3) 総括

課題①については、高速炉と軽水炉の複合システムを組むことにより、差は小さいものの平衡インベントリをそれぞれの炉単独システムよりも低減できる場合があることを示した。一方、LLFP については、中性子スペクトルの選択のみでは核変換効率を大幅に向上させることに限界があることも判明した。従って、本件についてはこれを持って一旦検討を収束させたい。

課題②については、簡易熱処理しただけの軽水炉使用済燃料を高速炉でリサイクルすることにより、軽水炉使用済燃料は 4～6 回のマルチリサイクルを行い、30～40 万 MWd/t 以上の燃焼度達成が可能であり、単位発電量当たりの MA 量を 1/3～1/5 に減量可能なことを示し、本概念が多くの可能性を秘めた概念であることが判明した。従って、当初の目的を充分に達成したと考える。

核変換効率の向上は、炉心概念の検討のみでなく再処理概念を含めたサイクルシステムとしての検討が不可欠であり、この観点ではサイクルシステム全体を俯瞰している実用化戦略調査研究との連携が重要である。

### (4) 今後の研究開発の進め方（第 5.4-2 表参照）

LLFP の核変換特性については、原子炉での核変換の限界も含め多くの知見を得るに至り、有意な核変換を行うためには同位体分離を含む分離技術に負うところが大きい

ことを明らかにした。今後は分離技術の研究開発と歩調を合わせる形で進める。

核変換効率向上のための高燃焼度化を目指して開始した複合処理燃料サイクル炉心の検討については、軽水炉使用済燃料を対象にした場合、燃焼度を5倍以上に向上可能であると同時に、経済性、資源有効利用性、核拡散抵抗性の効果が期待できることが見えてきたので、今後は、マスバランスの検討及び高速炉の使用済み燃料に対しても簡易熱処理しただけでリサイクルする可能性検討を中心にこの概念の特性把握をさらに進める。

#### (5) 波及効果

複合処理サイクル概念では、再処理が大幅に簡略化されることによる経済性向上、高レベル廃棄物量低減による環境負荷低減効果、高燃焼度化による資源有効利用効果、MAやFPを一括でリサイクルすることによる核拡散抵抗性、軽水炉使用済み燃料の蓄積抑制効果等多くの副次効果がある。

上記を含め、本研究開発により新たな核燃料サイクル概念の創生が期待できる。

#### (6) 文献リスト

- 1) 池上哲雄、鈴木聖夫、山岡光明、横山次男、 “高速炉を中心とする軽水炉との複合システムの核変換特性”、日本原子力学会「2003秋の大会」
- 2) 池上哲雄、 “複合処理燃料サイクル炉心”、日本原子力学会「2004秋の大会」
- 3) T. Ikegami, “Core Concept of Compound Process Fuel Cycle”, The First COE-INES International Symposium, INES-1, Oct. 1-Nov. 4, 2004, Tokyo, Japan (2004)
- 4) 池上哲雄、 “複合処理燃料サイクル概念”、日本原子力学会「2005春の年会」
- 5) T. Ikegami, “Compound Process Fuel Cycle concept and Core Characteristics”, to be published.
- 6) 特許願：「使用済み燃料の再利用方法及び高速炉の炉心構造」

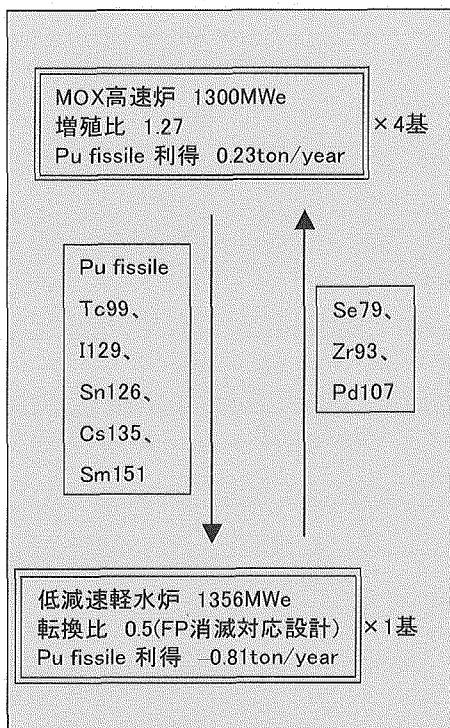
発明者：池上哲雄、提出日：平成16年7月16日、番号：特願2004-209621

第5.4-1表 リサイクルによる変化（軽水炉ウラン使用済み燃料）

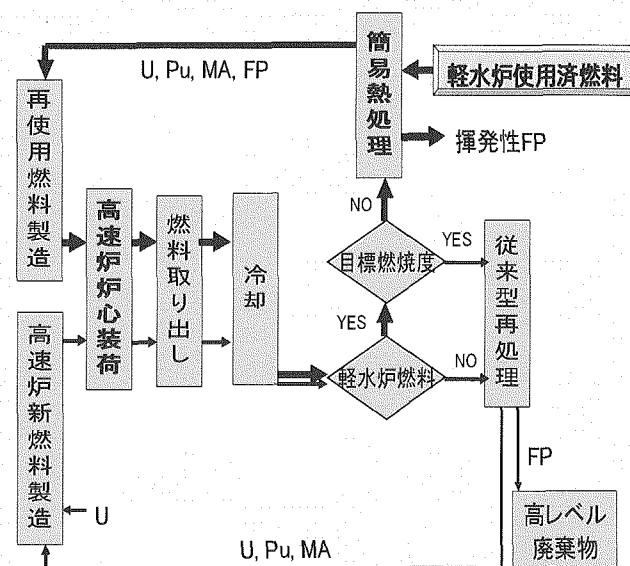
	LWR-U S/F	1回リサイ クル後	2回リサ イクル後	3回リサ イクル後	4回リサ イクル後	5回リサ イクル後	6回リサ イクル後
燃焼度 (MWd/t)	60,000	23,300	47,000	59,600	77,200	73,500	87,700
積算燃焼度 (MWd/t)	60,000	83,300	130,00	190,000	267,000	341,000	428,000
Pu富化度(%)	1.11	5.88	10.2	13.4	15.9	17.8	19.4
MA量相対値	1.0	1.49	1.74	1.92	2.1	2.28	2.38
増殖比	---	1.13		1.06		0.99	

第5.4-2表 研究開発スケジュール（新しい核変換技術・概念の検討）

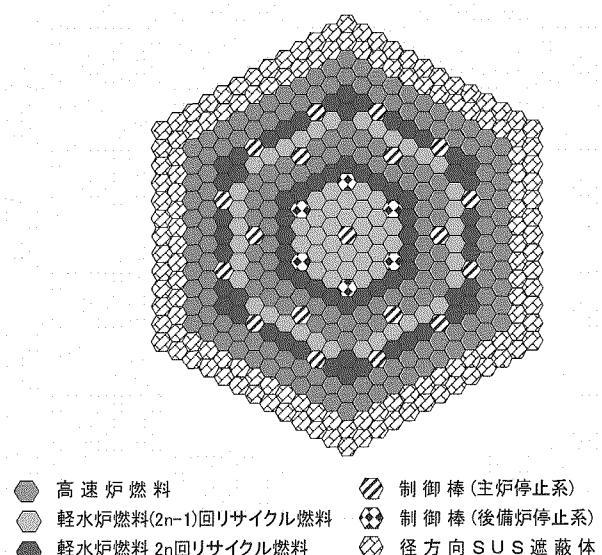
工程	オガ計画C&R		第1段階目標終了		第2段階目標終了		2016~2020					
	2000~2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	
適切な中性子スペクトラル場の評価検討 とする軽水炉との複合システム検討												
高燃焼度化炉心の 検討												
複合処理燃料サイクル サイクル炉心検討												
LLFP分離技術開発の進展												
中性子スペクトル可変炉心検討												
複合処理燃料サイクル概念 実用化設計研究												
実用化に向けたC&R												



第5.4-1図 高速炉・軽水炉の複合システムの例



第5.4-2図 複合処理燃料サイクル概念



第5.4-3図 炉心構成

## 6. 事前評価以後追加した研究項目

事前評価以降、分離変換技術を充実する観点から新たに加えた研究項目は以下のとおりである。

- ①核分裂生成物の分離・利用技術
- ②LLFP のターゲット検討
- ③地層処分と分離変換の整合

これらの研究開発から得られた成果を以下に述べる。

### 6.1 核分裂生成物の分離・利用技術

#### 6.1.1 希少元素核分裂生成物の分離・利用

##### (1) 課題

###### 【核分裂生成物の分離】

- ・ 使用済燃料から長半減期 FP ( $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{126}\text{Sn}$ ,  $^{107}\text{Pd}$  等) や有用希少元素 FP (Pd, Ru, Rh, Se, Te, Ag 等) を分離する技術（乾式、湿式等）について調査検討を行う。

###### 【分離に共通する課題】

- ・ 二次廃棄物の処理処分及び発生量低減について検討する。

これまでの自社研究により、模擬高レベル廃液を電解還元することにより希少元素 FP イオン (Pd, Se 他) は選択的に析出し、さらに  $\text{Pd}^{2+}$  等の金属イオンの添加により Ru, Rh 及び Re (Tc 模擬) の析出率が著しく向上することが見出されている（触媒的電解採取法 (CEE)）。本研究ではこれをさらに進め、単味系、2 元系及び 4 元系のイオン組成からの電解析出特性を検討するとともに、これを利用して触媒電極の製造を行った。また  $^{106}\text{RuNO}_3^{3+}/^{99}\text{TcO}_4^-$  单味溶液や実溶解液を用いて放射線環境下での触媒効果等を確認した。前者のコールド及び  $^{99}\text{Tc}$  を用いたトレーサー試験は民間との共同研究（委託研究の形をとる）で行い、後者の高濃度  $^{106}\text{RuNO}_3^{3+}/^{99}\text{TcO}_4^-$  を用いた基礎試験は原研 NUCEF 及びロシア・KRI との共同研究で実施した (FY2002-2003)。

$d$ -元素は本質的に触媒活性が高く、FP 由来であっても燃料電池 (FC) や水素製造・精製の触媒としての利用が望める。高速炉 (FR) と FC は異質ではあるが、共に持続的かつ C-Free であり、その組み合わせは将来のエネルギー供給体系の候補システムの一つと想定できる。FR はエネルギーを生産した後の核廃棄物中の長寿命 TRU と一部 LLFP を自ら核変換処理して後始末の強化を行うと同時に、水素生産及び水素燃焼のための一次電力と触媒、その他有用元素・核種を提供する。このコンセプトを第 6.1.1-1 図に示す。核変換で生成した安定  $^{100}\text{Ru}$  及び  $^{130}\text{Xe}$  も有効利用する。本研究では、 $d$ -元素析出電極 (Ru/Rh/Pd/Re/Tc) によるアルカリ水及び人工海水の電解水素製造特性を検討した。

また「先行基礎工学研究」では、 $\beta$  線照射による  $\text{TcO}_2$  ナノ粒子の生成メカニズムの

解明及びその利用に向けた基礎化学特性の把握（東北大理）や Cs/Sr 固化体の熱発電利用のための製造技術、固体物性、熱特性等の評価検討（東北大工）を実施した（FY2002-2004）。

## （2）成果

核分裂生成物として使用済核燃料中に含まれる Ru 等の白金族元素及び Tc は、電気化学的に貴であるという性質を有している。これら元素の各イオンから金属あるいは酸化物への標準酸化還元電位はいずれも比較的大きな正の値であり、水溶液中においてイオンとして存在する各元素を、電解（陰極還元）により金属あるいは酸化物の形で電極上に析出・分離できる可能性を示唆している。ここでは、このような電解還元による使用済燃料溶解液、高レベル廃液 (HLLW) 等の硝酸溶液中からの各元素の析出・分離技術（電解析出法）についてまとめる。

電解セルは、カチオン交換膜を介した容量 100ml の陽極室及び陰極室、及び陽陰極材として白金 (Pt) 電極 (チタン (Ti) 材に Pt コーティングしたもの；有効面積 20cm<sup>2</sup>) で構成した。電解は定電流電解法により行った。電解の進行に伴い、陰極液中に含まれる希少元素は陰極上に還元・析出された。なお、Re は同じ VII 族の Tc の模擬物質として使用した。

### 2) 硝酸溶液における白金族元素等の電解析出挙動<sup>2), 3)</sup>

第 6.1.1-2 図に電解還元開始 3 時間後における白金族元素 (Pd, Ru) 及び Re の析出率に及ぼす硝酸濃度の影響をまとめたものを示す。図中には各元素が単独で存在する系（以下、単独系）及び 3 元素が混合して存在する系（以下、混合系）それぞれについて得られた各元素の析出率をプロットしている。単独系においては、対象とする硝酸溶液の硝酸濃度が低い領域（硝酸濃度 0.5M）では各元素ともに 3 時間の電解還元により 60%以上の高い析出率が得られているが、硝酸濃度の増加（硝酸濃度 3M 及び 4.5M）に伴い、Pd を除く各元素の析出率はいずれも大きく減少した。このような硝酸濃度の増加に伴う析出率の低下は、高硝酸濃度領域における析出物の硝酸への再溶解の増大や各金属イオンと硝酸イオンとの錯形成に伴う析出電位の変化等に起因するものと考えられた。このような高硝酸濃度における Ru 及び Re の析出率低下は、混合系においても観測されているが、硝酸濃度が 3M 程度までは単独系に比べ硝酸濃度の増加による影響は小さくなっているが、各元素間に何らかの相互作用が存在することが伺える。

第 6.1.1-3 図は、Ru 及び Re を含む 2.5M 硝酸溶液の電解還元において、Pd が共存しない系、電解開始時に溶液中へ Pd を一括して添加した系、及び同量の Pd を分割して添加した系それぞれにおいて得られた各元素の析出挙動を示した。Pd が共存しない系における Ru 及び Re の析出率はいずれも小さいが、Pd の添加によりこれらの析出率

は飛躍的に向上した。特に、電解中に Pd を分割して添加した系においてはその都度 Ru 及び Re の析出が促進され、6 時間の電解還元により Ru についてはほぼ全量 (99%) が、Re については約 45% がそれぞれ陰極上に析出・回収された。このような Pd 共存下における Ru 及び Re の電解析出挙動についてより詳細な情報を得るため、各元素を含んだ硝酸溶液及びその溶液を電解還元することにより得られる陰極析出物を対象とした各種の分析を実施した。サイクリックボルタモグラム (CV) 測定の結果から、Pd-Ru 混合硝酸溶液より得られる各元素の析出形態が Pd 及び Ru 硝酸溶液より得られるそれらとは異なっていることが認められた。この析出物については X 線回折等の測定結果より立方最密構造をもつ Pd-Ru 合金であること確認した。また、Pd-Ru 析出電極における各元素の析出電位について、Pd 析出電極及び Ru 析出電極における値からの貴側へのシフトが見られることから、Pd-Ru 合金が析出することによりこれら元素の析出過電圧が低下し、その析出が促進されることが示唆された。このように Pd-Ru 混合系における Ru の析出促進は陰極上での Pd-Ru 合金の析出に起因するものと考えられることから、Ru の析出率向上に対しては陰極上への Pd 及び Ru の同時析出を効率的に進行させる電解条件の選定が重要となる。一方、Re に関しては、系内の Pd の有無によらず  $\text{ReO}_3$  として陰極上に析出し、またその析出電位も Pd 共存の影響を受けないことが、X 線回折及び CV 測定により確認されており、Ru の場合とは異なる促進機構の存在が示唆された。第 6.1.1-1 表は電解還元開始 3 時間後における Ru 及び Re の析出率に及ぼす共存する各種陽イオンの影響をまとめたものである。Re の析出は、それ自身は析出しない  $\text{Fe}^{2+}$  及び  $\text{Fe}^{3+}$  イオンの共存によっても促進されることから、その機構は溶液中における各金属イオン間の相互作用等に起因するものと推定された。

### 3) 電解析出法を用いた硝酸溶液中からの Ru, Tc 等の回収フローシート<sup>4)</sup>

前項のような高濃度硝酸溶液中の Pd 共存下における希少元素の析出促進効果を利用した、使用済燃料溶解液、HLLW 等の高濃度硝酸溶液からの希少元素 FP の回収フローシートを検討した（第 6.1.1-4 図に示す）。本フローシートでは、まず第 1 の電解析出工程において、高電流密度により Pd 及び硝酸の連続添加を行いながら酸濃度を保ったまま（酸濃度の低下に伴う Pu 及び FP (Mo, Zr 等) の沈殿生成を抑制）、Tc 及び白金族元素を陰極上に析出させる。次に、第 2 の工程である電解溶解工程において、各元素が析出した電極を陽極として電解酸化により各元素を硝酸溶液に再溶解させる。第 3 の工程である電解析出工程では、低電流密度において硝酸溶液中の Pd のみを選択的に陰極上に析出・回収する。回収した Pd は最初の工程である電解析出工程における添加剤として繰り返し使用する。第 4 の工程である電解析出工程では、中電流密度において硝酸を連続的に添加しながら Se 及び Te を選択的に回収し、第 5 の工程である電解析出工程では、高電流密度において硝酸添加を行わずに Ru 及び Re を高回収率で回収する。これらの工程後に得られた溶液は出発溶液である溶解液あるいは

はHLLWと混合され、再度電解処理される。

このフローシートをもとにした物質収支では最初の電解析出工程におけるRu及びTcの模擬であるReの回収率がそれぞれ60%及び25%程度と十分ではなく、また第二の工程である電解溶解工程においても陰極上の析出物中に含まれる各元素の約20%が未溶解物（電極からの剥離物）として溶け残る等の課題が明らかにされた。今後電解の多段化等フローシート条件の最適化を行うとともに、電極からの析出物の剥離を防止する電解セル構造の検討等、使用機器についても各種改良を進めていく必要があるものと考えられる。

#### 4) 希少元素FPの利用研究

核燃料バックエンドサイクルの環境調和性の強化と新たな価値（資源）の創成を目指し、核分裂生成物（FP）の分離・利用研究を実施した。利用の一モデルとして、将来の持続的、非炭酸ガスのエネルギー・システムとして高速増殖炉（FBR）や軽水炉（LWR）とソフトエネルギー（水素製造、燃料電池等）との共生システムを提案している<sup>5)</sup>。前述第6.1.1-1図に示すモデルではFBRなどで生産する電力を水素製造のエネルギー源として利用するとともに、発電の際生ずる人工物質、即ち核分裂生成物（FP）も触媒として利用する構想である。核分裂反応における希少元素FP（Ru, Rh, Pd, Tc, Se, Te, 他）の生成量は、高燃焼度高速炉使用済み燃料で通常HM1トン当たり約30Kgに達する。希少元素FPの内、溶解した<sup>106</sup>Ru及び<sup>99</sup>Tcは現行の再処理除染性能を支配する核種であり、Tc、Pd及びSeは将来の核変換処理が対象とするLLFPの母元素である。白金族元素は需要の急速な拡大に比べ、天然資源としてはロシア（Pd, Rh）及び南ア（Ru, Rh, Pd）に偏在し埋蔵量も有限なので、将来石油と同様に先端産業を制する重要な戦略物質として取り扱われることを想定しておく必要がある。放射化学的には、FP・Pdは長寿命ではあるが放射性毒性は極めて低く、一方FP・Ru及びFP・Rhの比放射能は時間とともに急速に減衰し、数十年の冷却を経れば放射能影響を無視しうるレベルにまで低下する。特異な化学的能力と放射化学的特性並びに豊富な存在量によって、使用済燃料中の希少元素FPはU及びTRUに続く第2の「人工資源」としてその回収及び利用（リサイクル）が注目される。

希少元素FPのリサイクル実用化のための基礎研究として、以下の電気化学試験を実施した<sup>6)</sup>。まず模擬希少元素FPを含む硝酸溶液を定電流電解し、Ti基材電極板上に単一元素および混合組成のPd、Ru、Rh及びReをそれぞれ電解析出させ、SEM及びESCA/EPMAにより電極表面析出物の形状、粒径、化学形態及び元素組成を分析した。その析出電極の酸化還元特性を1Mカ性ソーダ溶液中においてCV(50mV/sec)により確認した後、同電析電極を水素極とし同液にて定電流電解試験(50°C)を行い、電解時の陰極電位、水素ガス発生量等を測定した。触媒活性の評価として水素過電圧η<sub>H</sub>、水素発生電流効率ε<sub>F</sub>、電力原単位W等を検討した。さらに同溶液中において<sup>60</sup>Co線

源による 10kGy/h 照射下での析出電極の自然電位の測定及び水電解試験を行い、水電解プロセスに及ぼす  $\gamma$  線照射の影響を検討した。その結果、以下の結果が得られた。

(a) Pd 及び Rh は Ti 基材上に迅速に電析した。Re 及び Ru は単独では還元されにくいが、Pd あるいは Rh との混合液中では容易に電析できた（触媒的電解採取法）。電析操作の終点判定は陰極電位が安定となる点を目安とできた。

(b) 析出元素は金属であったが、Re については金属の他に水和酸化物  $\text{ReO}_2 \cdot \text{XH}_2\text{O}$  が検出された。Ru についても金属以外に Ru(IV) のピークが認められた。

(c) CV 測定で得られたカソード電流の立ち上がり電位は Rh 及び Pd 析出電極及び混合析出電極で平滑白金電極よりも貴であった。特に 4 種混合析出電極は 0V に近い、貴な電位からの立ち上がりを見せ、触媒活性が極めて高いことを示唆した。

(d) 析出電極を陰極とした水電解システム全体としてエネルギー効率（即ち、触媒能）を電力原単位 ( $W$  : 製品単位質量を生産するのに要する電気エネルギー) で評価し、Ni 電極、Ti 電極及び平滑白金電極と比較した。本検討ではアノード側電圧は基本的に一定としたので、槽電圧をカソード電圧で代表させた  $W_c$  を求めた（第 6.1.1-5 図に示した）。見掛けの水素発生電位と  $W_c$  は概ね負の相関が認められ、特に混合析出電極系は通常アルカリ水電解で用いられる Ni 電極比で 20%程度電力消費量を削減でき、平滑白金よりも優れていることを確認した<sup>7)</sup>。

$$W = \frac{I V}{I \varepsilon_F / Q_0} = \frac{V_c Q_0}{\varepsilon_F}$$

$V$  ; 槽電圧、 $I$  ; 電解電流、 $Q_0$  ; 理論電気量、 $\varepsilon_F$  ; 電流効率（ここで  $V = V_A + V_c$  ( $V_A$ 、 $V_c$  ; アノード側およびカソード側電圧) であるが、本評価では  $V_A$  は一定とみなして  $V_c$  で  $V$  を代表した）

(e)  $\gamma$  線照射 (10kGy/h) により、1M NaOH 溶液中の自然電位は Ti 電極では貴側にシフトしたが析出電極では微小ではあるが逆に卑化する傾向が認められた。 $\gamma$  線照射により Ti 電極及び 4 種混合析出電極の双方で電解水素発生量 (ml/h) が若干減少する傾向が認められた。この時カソード電位は照射前後で変化しなかった。

### (3) 総括

本研究では Pd 等の触媒効果を利用する希少元素 FP の分離法、触媒的電解採取法の成立性と有効性を確認した。ロシア KRI 及び原研 NUCEF との共同研究では Tc の析出も促進されることが明らかにされた。これを利用した Ti 基材に希少元素を電析させた電極は、アルカリ水電解による水素製造触媒として極めて高い活性を示すことが明らかにされた。電極触媒組成の傾向としては、

単味 < 二元系合金 < 四元系合金

の順で触媒活性が高かった。この傾向は希少元素析出-Pt電極によるアルカリ水及び人工海水の電解でも明確に再現された（第6.1.1-6図）。活性支配元素としてのRuの効果、また単位析出量あたりの比較ではReが関与した混合析出系の活性が高い傾向が認められるので、Re(Tc)の役割にも留意したメカニズム研究を進める必要がある。

長寿命核種の核変換（消滅処理）並びに希少元素FPの有効利用（放射性廃棄物再資源化）の両視点から、分離・利用に関する新しい燃料サイクルコンセプトを創案した（第6.1.1-7図）。図中、上層はエネルギー生産・利用のための低品位アクチニド燃焼・一部LLFP核変換から成る“Fission-Energy Cycle”、下層は一般工業界と密接に結びついた、高品位FPから成る有用物質の生産・利用のための“Fission-Product Cycle”を示す。

#### （4）今後の研究開発の進め方

第6.1.1-7図のコンセプトの実現を目指すための要素技術開発を進める。実高レベル廃液を用いた希少元素FPの電解採取試験及び回収した希少元素FPによる電解水素製造ホット試験は、第II期(FY2005-2007)、ロシア・KRIの実験施設にて実施する予定である。また並行して析出電極のメタノール電解酸化特性を検討し、燃料電池触媒としての利用性を探る。これをベースに触媒組成最適化の検討を行い触媒設計に資したい。今後の研究開発スケジュールを第6.1.1-2表に示す

#### （5）波及効果

使用済み燃料中の希少元素FPの分離・利用法として触媒的電解採取法の有効性を見出した。本法は基本的にSalt-freeであり、二次廃棄物の発生は極めて少ないと推定できる。また本法は従来法では困難であった一部LLFP(Se等)の分離を可能とする。

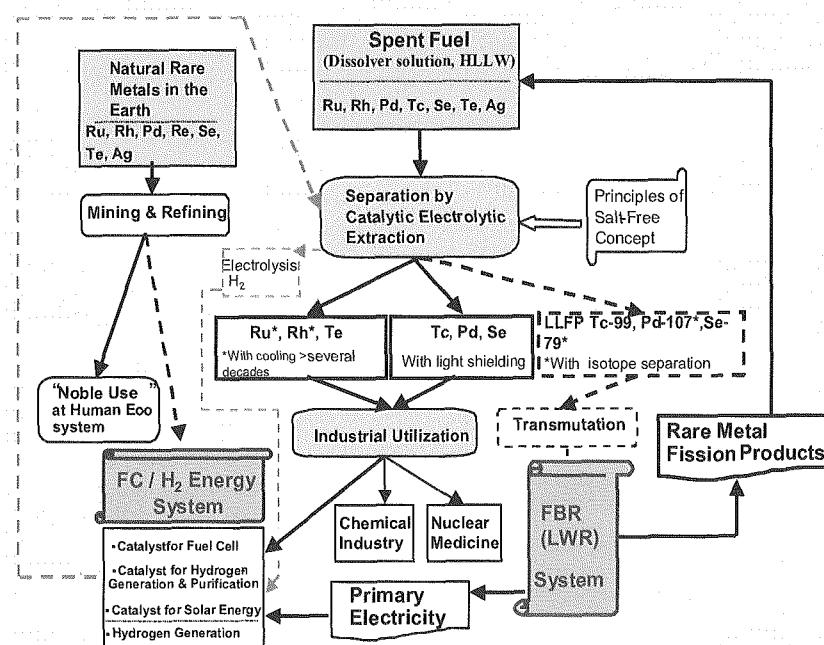
使用済み燃料中の希少元素FPの有望な利用先を見出すことができた。混合析出系に認められた高活性は一般産業界でも利用しうる現象である。これを種々の利用研究の先駆けとしたい。さらに有望な利用先を見出すための研究を進める。なお分離・利用に関しこれまで3件の特許出願をおこない、さらに1件準備中である。

#### （6）文献リスト

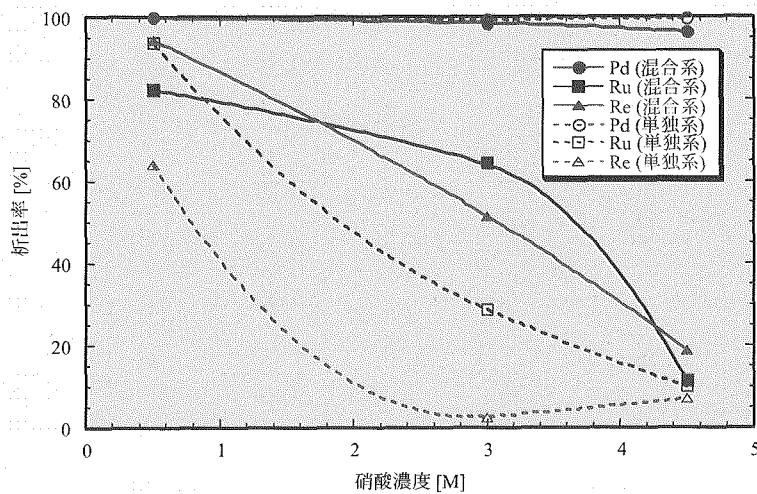
- 1) M. Ozawa, Y. Sano, C. Ohara and T. Kishi, “Radioactive Wastes Minimization by Electrolytic Extraction and Destruction in a PUREX-TRUEX Actinide Separation System”, Nuclear Technology, **130**, 2, 196 (2000).
- 2) Y. Sano, M. Ozawa, Y. Tanaka and A. Kato, “Electrolytic Extraction of Fission Noble Metals For Waste Minimizing In Advanced Actinide Separation System”, Proc. 5th International Nuclear Conference on Recycling, Conditioning and Disposal

(RECOD'98), Vol. 3, 717 (1998).

- 3) M. Ozawa, Y. Shinoda and Y. Sano, "The Separation of Rare Fission Products Toward Bridging the Nuclear and Soft Energy Systems", Nuclear Technology, in printing (2003).
- 4) M. Ozawa, M. Ishida and Y. Sano, "Strategic Separation of Technetium and Rare Metal Fission-Products in Spent Nuclear Fuel: Solvent Extraction Behavior and Partitioning By Catalytic Electrolytic Extraction", Radiochemistry, **45**, 3, 225 (2003).
- 5) 小澤正基、佐野雄一、篠田佳彦、「使用済核燃料中の希少元素F Pの分離回収方法およびこれを利用した原子力発電－燃料電池発電共生システム」、公開特許公報 特開2003-161798
- 6) 泉屋宏一、吉竹正美、中森 祐、小澤正基、"希少元素F P電析電極による電解水素製造基礎試験"、日本原子力学会2003秋の大会、I 62 (2003)
- 7) 小澤正基、池上哲雄、「使用済核燃料中の希少元素F Pを利用する水素製造触媒」、特願2003-400038 平成15年11月28日

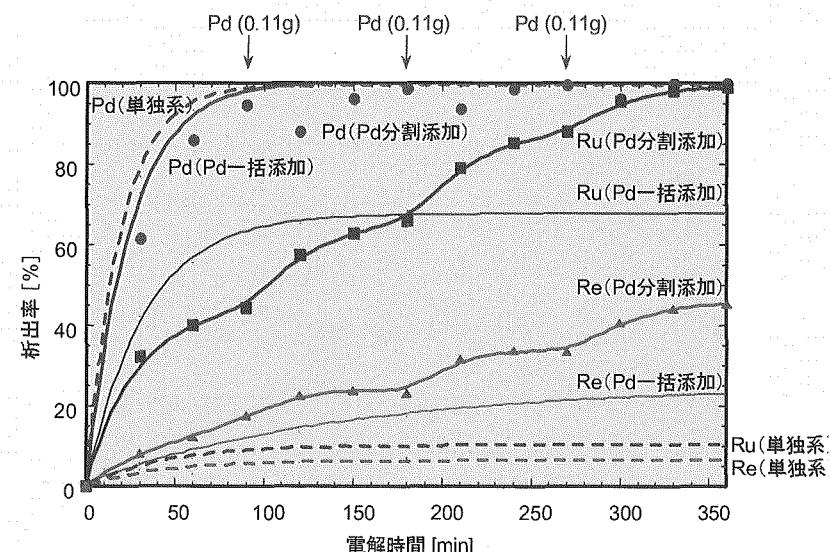


第 6.1.1-1 図 希少元素 FP をフロー物質とする、水素・燃料電池／原子力共生  
エネルギーシステム



第 6.1.1-2 図 電解還元開始 3 時間後における各元素の析出率に  
及ぼす硝酸濃度の影響

( [Pd]<sub>initial</sub>=100ppm, [Ru]<sub>initial</sub>=100ppm, [Re]<sub>initial</sub>=100ppm)



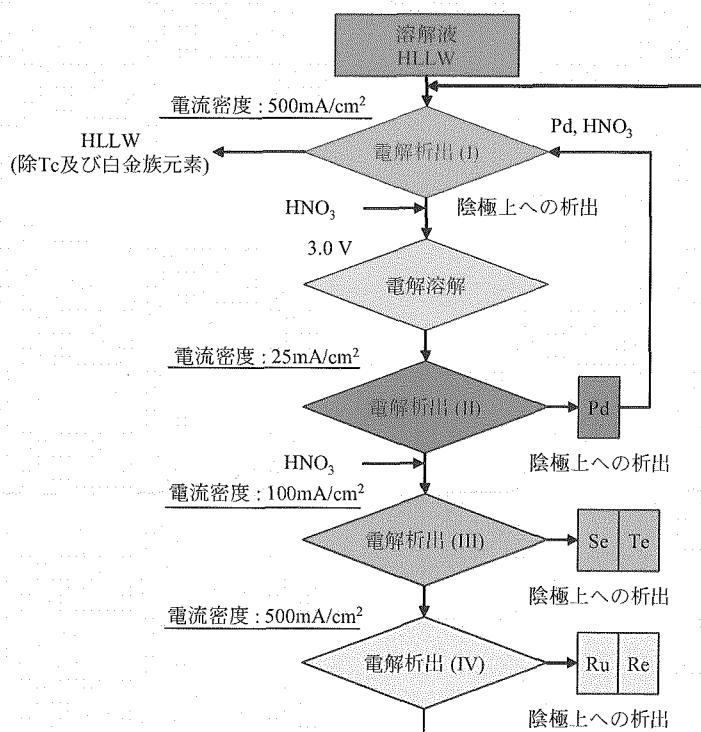
第 6.1.1-3 図 Ru/Pd 及び Re/Pd 混合系 (2.5M 硝酸溶液) における Pd 添加時の各元素の析出挙動

( $[Pd]_{initial}=750\text{ppm}$ ,  $[Ru]_{initial}=1200\text{ppm}$ ,  $[Re]_{initial}=500\text{ppm}$ )

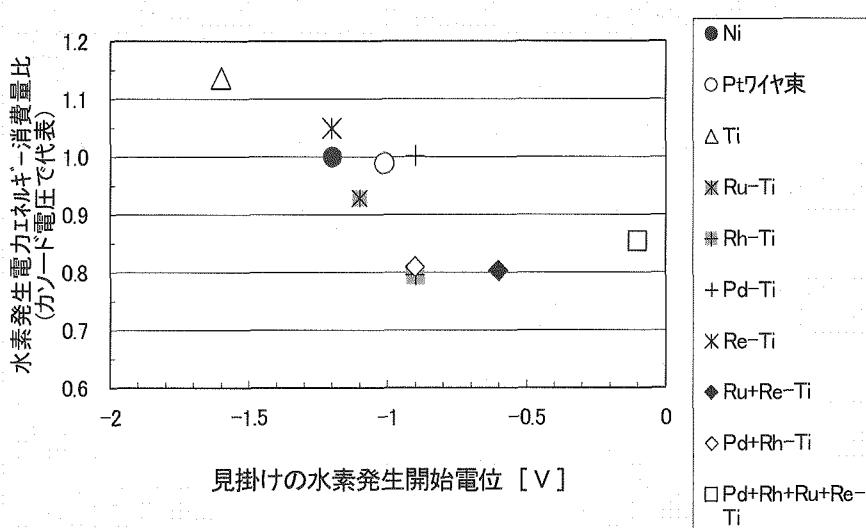
第 6.1.1-1 表 電解還元開始 3 時間後における Ru 及び Re の析出率に及ぼす共存する陽イオンの影響

陽イオン (750ppm)		無し	$\text{Sn}^{2+}$	$\text{Sn}^{4+}$	$\text{Fe}^{2+}$	$\text{Fe}^{3+}$	$\text{Pd}^{2+}$
析出率 (%)	Ru	7.1	0	0	0	0.3	38.1
	Re	7.0	8.9	4.1	12.5	16.4	16.5

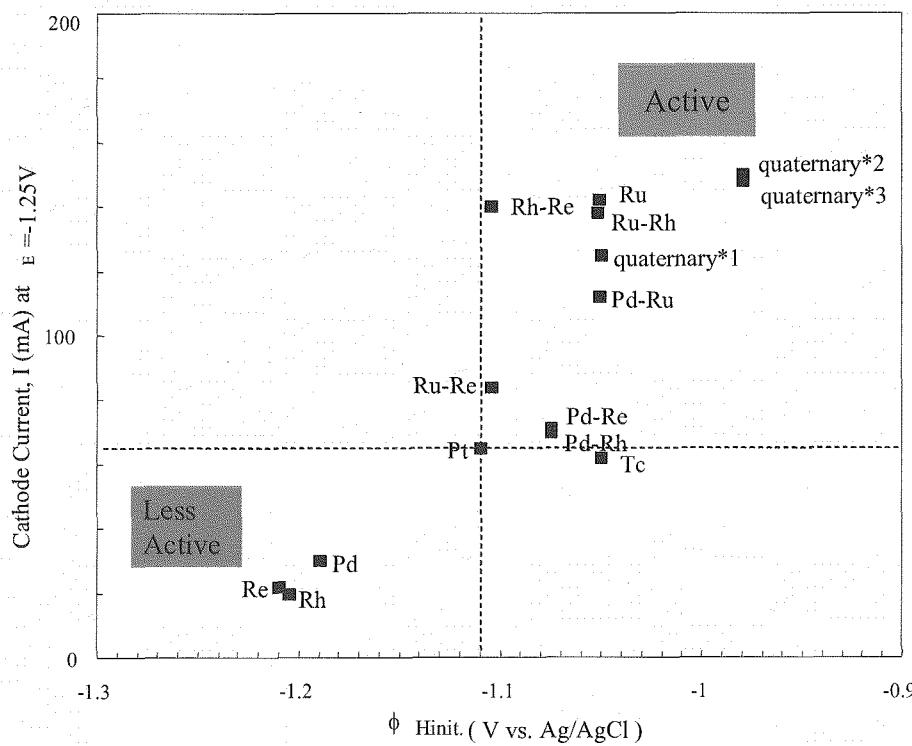
$[Ru]_{initial}=1200\text{ppm}$ ,  $[Re]_{initial}=500\text{ppm}$



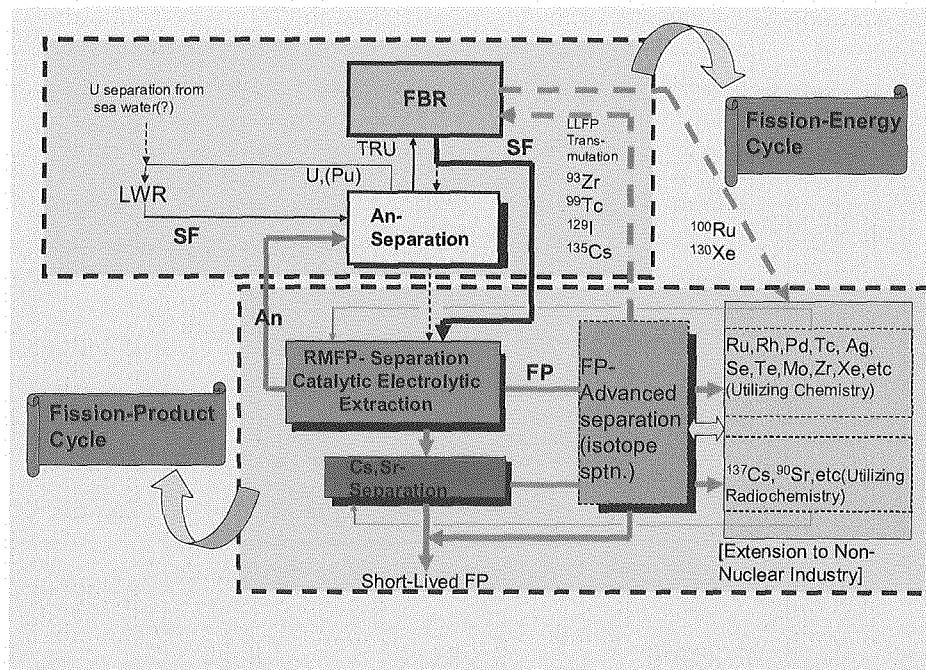
第 6.1.1-4 図 電解析出法による白金族元素等の回収フローシート



第 6.1.1-5 図 希少元素析出電極の電解水素発生反応に纏わる電力消費  $W_c$  (カソード寄与分)



第 6.1.1-6 図 RMFP 析出 Pt 電極の水素製造における触媒活性 (Pt 電極基準) ; 見かけの水素発生開始電位 ( $\phi_{Hinit.}$ ) と任意に設定した電位、-1.25V (Vs. Ag/AgCl)) における水素発生電流との関係 (1M NaOH). Deposits from the quaternary ionic solution; \*1, Pd:Ru:Rh: Re=1:1:1:1, \*2, Pd:Ru:Rh:Re=3.5:4:1:1 (Pd2+ bloc addition), \*3, Pd:Ru:Rh:Re=3.5:4:1:1 (Pd2+ divided addition)



第 6.1.1-7 図 新バックエンドサイクルの概念 : *Fission-Energy Cycle* 及び *Fission-Product Cycle*

第6.1.1-2表 研究開発スケジュール（希少元素FP分離・利用技術）

工程	第1段階目標終					第2段階目標終				
	2000~2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014~2015
希少元素核分裂生成物の分離										
分離技術開発(基礎試験)										
プロセス成立性(Ru, Tc試験)										
電極触媒製造技術開発										
電解条件最適化										
組成最適化										
コスト評価										
希少元素核分裂生成物の利用										
水素電解試験(基礎試験)										
水素製造触媒										
触媒最適化試験										
触媒ホット試験(ロシアKRI)										
メタノール電解触媒										
燃料電池触媒										
システィム工学評価試験										
長寿命核分裂生成物(LLFP)の同位体分離										
レーザー化学法基礎試験										
Rb85/Rb87分離										
Cs135分離基礎試験										

### 6.1.2 長寿命核分裂生成物(LLFP)の同位体分離

#### (1) 課題

##### 【核分裂生成物の分離】

- ・長寿命FPのうち毒性低減ならびに半減期の長い核種生成を防ぐ等の観点において、同位体分離が必要と考えられる核種については、核種の特性、同位対比等を勘案して、可能な技術を調査・検討する。

##### 【分離に共通する課題】

- ・二次廃棄物の処理処分及び発生量低減について検討する。

機構内外から同位体分離に関する専門家を集めたタスクフォースチームを結成し、放射性廃棄物の長期的放射能低減(ニーズ)及び核変換における必要中性子数の低減(効果)の双方から、長寿命核分裂生成物(LLFP)の同位体分離に関する必要性を検討した。また既往の同位体分離技術を調査し、LLFPの分離に適する技術を摘出、同位体分離技術開発に着手する場合を想定してそれぞれ研究開発課題を整理した。一方、ISTC ロシア支援計画の中の「レーザー照射によるアルカリ金属の同位体分離研究(#A-635 project, FY2002-2004)」について、海外コラボレーターとして研究を支援した。

#### (2) 成果

核燃料サイクルの環境負荷低減性の向上を図るには、長寿命で放射性毒性の高いTRUや核分裂生成物(LLFP)は、高速炉などによって短寿命核種に核変換した後サイクル系内に極力閉じ込めるか(放射能及び放射性毒性の低減)、それらの放射化学あるいは化学特性に応じ、冷却あるいは遮蔽などの処置を施した後、有効利用することが望ましい(廃棄物量の低減、新たな価値の創成)。その両者において、LLFP同位体の選択的、経済的分離が可能になれば LLFP の核変換処理の実用化に大きく寄与とともに、有効利用の観点からも分離の意義が大きい。

##### 1) 同位体分離の意義

LLFP(Se, Zr, Tc, Pd, Sn, I 及び Cs)のうち各元素中に占める長寿命同位体の重量%はそれぞれ 18%(<sup>79</sup>Se)、26%(<sup>93</sup>Zr)、ca. 100%(<sup>99</sup>Tc)、21%(<sup>107</sup>Pd)、25%(<sup>126</sup>Sn)、77%(<sup>129</sup>I)、36%(<sup>135</sup>Cs)であるので、Tc 及び I を除いた LLFP が同位体分離の評価対象となる。原子力活性化委員会報告書(平成 11 年 7 月)をベースに LLFP7 核種(<sup>79</sup>Se, <sup>93</sup>Zr, <sup>99</sup>Tc, <sup>107</sup>Pd, <sup>126</sup>Sn, <sup>129</sup>I 及び <sup>135</sup>Cs)に関し、放射性廃棄物の放射能及び放射性毒性低減効果(ニーズ)及び核変換における同位体分離効果(必要中性子数の低減効果)を評価し第 6.1.2-1 表にまとめた。廃棄物中の超長期的放射能インベントリを低減するには、(前提条件

としての) アクチニドに加え、LLFP の分離と核変換(消滅)が必要であることを前提として、

- 1) LLFP 7 核種について、環境負荷低減上の「インパクト」と核変換に及ぼす同位体分離の「効果」を評価した。優先的に核変換すべき核種として、 $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$  及び  $^{135}\text{Cs}$  を特定した (FP Pd 有効利用の観点でのニーズが創出されれば、 $^{107}\text{Pd}$  の分離・核変換のインセンティブが増す)。
- 2)  $^{79}\text{Se}$  及び  $^{126}\text{Sn}$  についてはそれぞれの元素を構成する同位体の生成量及び捕獲断面積が小さく中性子経済上の改善効果は比較的小さいため、同位体分離の必要性は低い。
- 3)  $^{93}\text{Zr}$  は“中性子節約効果”及び“平衡インベントリ低減”的両面で同位体分離効果は最大である。 $^{135}\text{Cs}$  は環境インパクトが大であり、同位体分離効果は大きい。 $^{99}\text{Tc}$  及び  $^{129}\text{I}$  の核変換には同位体分離は不要である。

を導出した。さらに現時点での経営戦略では、LLFP 核変換はアクチニド核変換の「下位」の概念であり世界的にも研究事例はない。従って多くの研究投資は望めないが、実現(ホット実証)すると「技術の優位性」が生じ、大きな「波及効果」が期待できる。また、技術開発を実施する場合は最小の研究投資で最大の効果を狙う。国際貢献(研究者を育てる、増やす)も重要等、を結論とした。

本評価結果では  $^{135}\text{Cs}$  及び  $^{93}\text{Zr}$  に対する同位体分離の必要性が高く、次いで  $^{107}\text{Pd}$  の順となった。

## 2) 同位体分離技術の評価

同位体の分離科学では、核の質量数差のみならず、核の体積、歪及び核スピン、化学種の振動数、化学反応選択性等において種々の同位体効果が報告されている。分離技術の選択では出発元素の性状(金属蒸気、気体分子、イオン)、対象長寿命核種の質量数、順位及び奇数核同位体か否か等で適用する手法も絞られるが、これまで上記 LLFP の同位体分離については具体的に検討されたことがない。

- ・物理的手法の各法(遠心分離法、電磁法等)は原理実証度が高く実用化には最も近いと考えられるが、システム工学的な確認と実証及び改善が必要である。経済的なブレークスルーは期待できない。ホット実証のための研究投資額は大きく、技術的波及効果も小さい。

- ・化学交換法の各法(溶媒抽出・イオン交換法、気相吸着法、光化学法等)は独創性に富むがいずれも原理実証の段階の「萌芽技術」であり、今後かなりの開発時間要する。研究への初期投資額は小さく、ブレークスルーがあった場合の技術的波及効果は大きい。投資対効果は期待できるので、少なくとも原理実証が見えた段階で本格研究に移行するのがよい。

- ・物理化学的手法(レーザー化学法等)は両者の中間の特徴を有し、成功の暁には

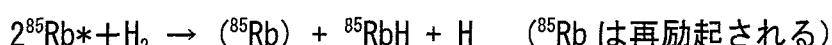
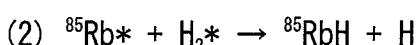
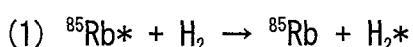
かなりのインパクトが期待できる戦略技術と考えられる。実核種を用いてのホット原理実証が必要な段階にある。

核種別にみると、<sup>93</sup>Zr の同位体分離については奇数核種 (<sup>91</sup>Zr, <sup>105</sup>Pd) 分離の実施例があることから原子レーザー法が適用できる可能性がある。<sup>135</sup>Cs の分離については実施例はないが、ISTC#A-635 プロジェクトの研究支援を通じ <sup>135</sup>Cs 分離可能性の評価を行う。

### 3) レーザー化学法によるアルカリ、アルカリ土類金属の同位体分離技術の現状

1970 年代前半、広スペクトル領域（約 2000 Å ~ 20 μm）をカバーする波長可変レーザー (tunable laser) の開発を機に、LIS 法 (laser isotope separation) が開発された。一方、異なる同位体の、質量、体積及び核スピンの違いは、同位体効果として、原子吸収スペクトルに発現することが知られている。レーザー法はこの波長可変レーザーを用い、同位体シフト（同位体による吸収波長の違い）より狭い線幅の単色レーザーを目的同位体の吸収スペクトル線に調節して照射し、目的同位体を選択的に光励起させ（内部エネルギーの増加；第一ステップ）、さらに適切な波長の二次的レーザー照射により励起原子をイオン化（第二ステップ）させることにより分離する方法である (two step selective photo ionization)。通常であれば電場によりイオンを中性原子から分離するが、#A-635 プロジェクト「レーザー化学法によるアルカリ金属元素の同位体分離」では、イオン化種 <sup>85</sup>Rb と水素ガスとの選択的水素化反応を利用して Rb-85/87 を分離するのが特徴である。実験装置を第 6.1.2-1 写真に示す。

実験では、Rb 金属蒸気に対しレーザー照射を行い、エネルギーレベルを第一励起レベルまで励起させ（第 6.1.2-1 図 <sup>85</sup>Rb: 5<sup>2</sup>P3/2 (→D2 線)、Cs: 62P1/2, 3/2)、充填した水素分子により励起原子の水素化物を生じせしめた。通常、基底状態のアルカリ金属蒸気は水素ガスとは反応しないことを利用する。反応終了後、水素ガスと未反応の金属蒸気を排出し、レーザー照射を止め、セルを冷却した。ついで析出層の付着した窓を約 300°Cまで加熱し、水素化物を解離させた。これによりセル窓に濃縮同位体の数ミクロンの RbH 析出層が出現させることができた（第 6.1.2-2 写真）。分離率として、出発の天然 Rb（原子量 <sup>85</sup>Rb : <sup>87</sup>Rb (β 核種) = 3:1）の組成に対し、<sup>85</sup>Rb は約 6 倍濃縮されていることが見出された。推定される化学反応メカニズムとして、二段階の反応機構を想定した。即ち、第一段階の反応で励起 Rb 原子の消光により励起水素分子が生成する。励起水素分子は別の励起 Rb 原子と衝突して水素化物を生成する（第二段階）。



### (3) 総括

LLFP の 7 核種のうち、核変換における同位体効果が期待できる核種として  $^{93}\text{Zr}$  及び  $^{135}\text{Cs}$  を特定した。レーザー化学法によるアルカリ金属の目的同位体の選択的励起と水素化反応による分離研究 (#A-635 project, FY2002-2004) の海外コラボレーターとして、Rb-85/87 の同位体分離試験をモニタリングした。天然 Rb の同位体分離試験では、出発の天然 Rb (原子量  $^{85}\text{Rb}$  :  $^{87}\text{Rb}$  ( $\beta$  核種) = 3:1) の組成に対し、 $^{85}\text{Rb}$  は約 6 倍濃縮されていることが見出された。一方 Cs については基礎的なスペクトル情報の確認にとどまり、同位体分離試験まで移行できなかった。

### (4) 今後の研究開発の進め方

現在にいたるまで、サイクル機構 (及び我国) 及び海外においても LLFP の同位体分離技術の研究開発への着手はみられない。それはもっぱら TRU 及び一部 LLFP ( $^{129}\text{I}$ 、 $^{99}\text{Tc}$ ) の分離変換に優先的に研究資本が投入されているためで、今後この状況はしばらく変わらないであろう。従って本研究は一旦終息させる。しかしながら「レーザー化学法」の可能性が見出されたので、今後種々の機会を捉えて Cs133/135/137 の同位体分離研究を開始するよう働きかける。今後の研究開発スケジュールを第 6.1.1-2 表に示す

### (5) 波及効果

世界に先駆けて LLFP の同位体分離研究に取り組んだ。従来のレーザー法に化学分離を組み合わせた、ユニークな同位体分離法、「レーザー化学法」を開発した。本研究の成果は核燃料サイクルにおける国際シンポジウム、*The 1<sup>st</sup> COE-INES International Symposium INES-1* (Tokyo, 2004)、で発表した。今後種々の同位体分離に応用されることが期待できる。

### (6) 文献リスト

- 1) 小澤正基、池上哲夫、長寿命核種の分離研究における新戦略 (3) LLFP の同位体分離技術 日本原子力学会「2002 年秋の大会」B40 pp. 506 2002 年 9 月 15 日
- 2) A. Badalyan, V. Chaltykyan, Yasuhiko Fujii, Yu. Malakyan, Masaki Ozawa, A. Papoyan, and S. Shmavonya, "Studies of Laser Induced Cesium and Rubidium Hydride Formation in Vapor Cells and Their Application for Isotope Separation", *The 1<sup>st</sup> COE-INES International Symposium INES-1*, #13, pp. 26, Tokyo, Japan, Oct. 31-Nov. 4 (2004).

第6.1.2-1表 LLFPの同位体分離効果

LLFP	ニーズ(環境負荷低減)	同位体分離効果						同位体分離の必要性の技術的評価
		元素分離		同位体分離		判定		
V.F./長 期放射能低減	被爆 リスク低減	必要中性子数 (1核分裂あたり) A	平衡インペントリ重量 (t/GWe) B	必要中性子数 (1核分裂あたり) C	平衡インペントリ重量 (t/GWe) D	中性子節約効果 (A-C)	インペントリ低減効果 (%) E	
Se-79	○	—	0.011	2.45	0.001	0.02	0.01	◎ 123
Zr-93	○	—	0.454	113.05	0.037	2.29	◎ 0.417	◎ 49
Tc-99	◎	—	0.060	0.87	0.060	0.87	0	不要
Pd-107	○	—	0.433	9.73	0.031	0.26	◎ 0.402	◎ 37
Sr-126	○	—	0.017	9.42	0.003	6.28	0.014	1.5
I-129	—	◎	0.021	0.62	0.015	0.52	0.006	1.2
Cs-135	○	—	0.177	8.17	0.079	3.80	○ 0.098	○ 2.2

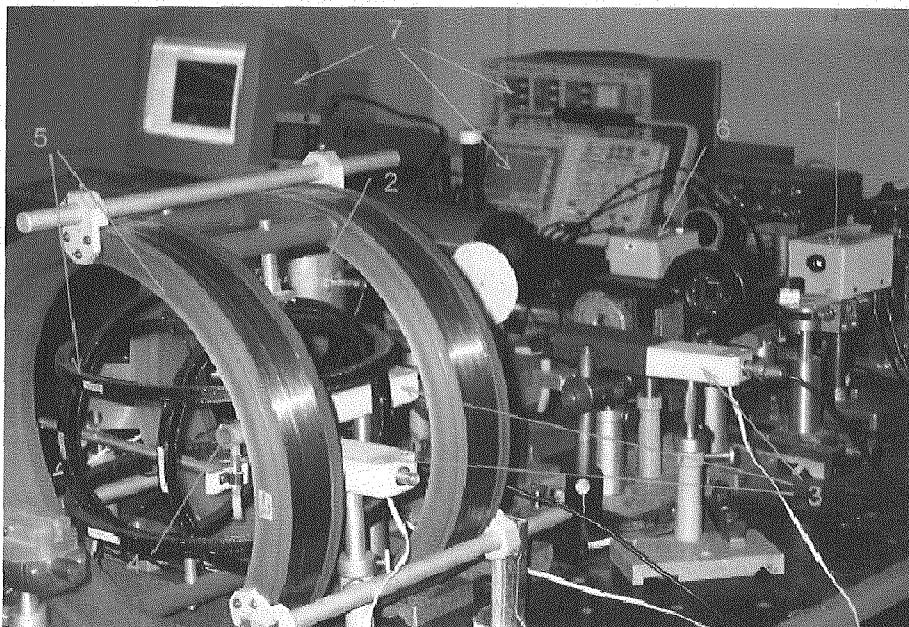
(1) 同位体分離効果: 高速炉径方向ブランケットにおける値。中性子束は  $1 \times 10^{15} n/cm^2/sec$ 、想定したLLFP化学形は、Se<sub>x</sub>Zr<sub>y</sub>, Zr(metal), Tc(metal), Pd(metal), SnO<sub>2</sub>, NaI, CsCl。出典 原子力活性化委員会報告書「整合性ある原子力システムの開発シナリオ(平成11年7月)」、(株)東芝販社内資料(2002年5月)、他。

(2) 核変換必要中性子数: 対象LLFPを核変換させるために必要な、1核分裂あたりの中性子数。元素分離と同位体分離の差は中性子無駄吸収効果を含む。

(3) 平衡インペントリ: 対象LLFPのリサイクル時における平衡インペントリ。炉心領域における核分裂生成量とターゲットのブランケット領域における核変換消滅のバランス。

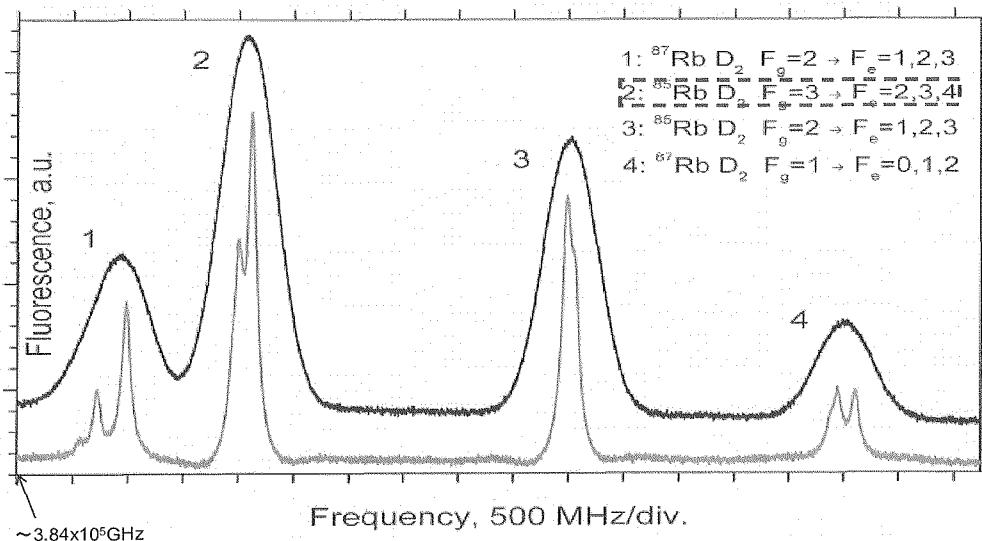
(4) ニーズ: JNCの分離要検査対象核種の評価に基づく。◎は第一段階対象核種、○は第二段階対象核種(要求低濃度: 99.9%のものを○、99%のものを○)を示す。

(5) 同位体分離効果の判定: ◎は1オーダー以上の低減、○はファクターの低減効果を示す。



1:波長可変ダイオードレーザー、2:Rb(Cs)セル、3:発光ダイオード、4-7説明省略

第6.1.2-1写真 レーザー化学法によるアルカリ金属同位体分離実験装置



RbについてはD1とD2を検討、CsについてはD2を検討。より大きな遷移可能性と所謂“Cycling”遷移の存在により、D2線が有利と判断。85Rb分離ではD2線を使用。黒色線はDoppler-broadened signal(ドッパーひろがり)を反映、灰色線は準ドッパー構造。85Rbと87Rbの遷移は離れており、選択的光励起には充分。どの同位体も励起ターゲット同位体になりうると判断

第6.1.2-1図 天然Rbの共鳴線D2スペクトル



出力50mWのレーザー照射により、析出層は約20分で形成。平均層厚は約 $2\mu$ 、面積は約 $4\text{mm}^2$ 。約 $20\mu\text{g}$ の濃縮 $85\text{Rb}$ に相当。非光沢鍍金に似る。

第6.1.2-2写真 析出RbH層

## 6.2 LLFP

### (1) 課題

使用済核燃料に含まれる長寿命核分裂生成物（LLFP）をターゲット状にして高速炉に再装荷し、安定な核種もしくはより半減期の短い放射性核種へ変換させ、放射性廃棄物による環境負荷を低減することを目的とする。LLFP ターゲットの製造において、ターゲット本体と減速材からなるターゲット集合体の設計及び製造技術開発のための基礎データ集積が課題となる。当面は、I と Tc を対象にターゲット材の化合物選定とその設計用物性値整備及びターゲット製造法の調査・研究を進める。

### (2) 成果

使用済燃料に含まれる長寿命核分裂生成物（LLFP）を高速炉に再装荷し、安定な核種もしくはより半減期の短い放射性核種へ変換させ、放射性廃棄物による環境負荷を低減することを目的に、炉内再装荷に最適な LLFP の形態調査を進めた。

代表的な LLFP である Cs、Sr、I、Tc のうち、高速炉での核変換が期待でき、かつ費用対効果が大きいとの観点から、FBR 実用化戦略調査研究（FS）では I と Tc を当面の核変換対象核種として位置付けている。I はハロゲンの一種であり、融点が 118°C、沸点が 185°C であり、融点付近でも非常に蒸気圧が高く揮発しやすい性質を有している。一方、Tc は安定同位体を有さない放射性金属であるが、融点が 2140°C の高融点金属である。高速炉内環境を想定した場合、炉内の温度は 600°C に達し、Tc については単体金属を装荷することで大きな問題は生じないと考えられるが、I では蒸発が起こり、単体での炉内装荷は不適当である。

そこで、技術的な課題の多い I を対象に、2 元系の高融点（600°C 超）化合物の組成を調査し、炉外試験による特性評価を実施した。第 6.2-1 図のフローに従って、2001 年度に文献情報に基づく調査から、MgI<sub>2</sub>、NiI<sub>2</sub>、BaI<sub>2</sub>、CuI、KI、RbI、YI<sub>3</sub> の 7 種類の候補組成を選定した。選定の基準は、核的特性、融点、ステンレス鋼との共存性、製造プロセス、リサイクル性の観点において、核変換体として適していることを条件とした。2002 年度からはこれら 7 種類の化合物に対して放射性核種でない非放射性の I を用いて粉体の特性を確認するための焼結性試験、被覆管候補材料との共存性を確認するための共存性試験、装荷体設計に必要となる熱伝導率データの取得を開始した。焼結性試験の条件は、各ヨウ素化合物の融点の 6~7 割の温度を加熱温度とし、5MPa の荷重を付加し約 6 時間保持する方法で実施した。この高温保持時の粉体の収縮挙動から粉体の焼結挙動を評価した。共存性試験は、各ヨウ素化合物とステンレス鋼（SUS316 鋼、PNC-FMS 鋼）を直接接触させ、炉内温度を想定した 600°C で、1 時間、50 時間及び 1000 時間それぞれ保持した。試験後にヨウ素化合物の性状の変化、ステンレス鋼の外観変化、質量変化を調査した。熱伝導率測定は、レーザフラッシュ法により熱拡散

率を測定し、熱力学データベースの比熱容量を用いて熱伝導率を算出した。測定は室温から、最高 600°Cまで実施した。

各試験において、これまでに得られている結果は以下の通りである。

### ①焼結性確認

第 6.2-2 図に示すように  $\text{NiI}_2$  及び  $\text{KI}$  を除いた各ヨウ素化合物はいずれも焼結体の製作が可能であるが、 $\text{MgI}_2$ 、 $\text{YI}_3$  では焼結時に比較的大きな荷重を必要とすることが明らかとなった。一方、 $\text{NiI}_2$  は 330°C付近に分解点のあることが判明し 600°Cの炉内装荷には適さず、 $\text{KI}$  は原料粉末が市場に流通しておらず原料粉末の製造方法の確認に課題が残っている。

### ②被覆材候補材料との共存性確認

$\text{NiI}_2$ 、 $\text{KI}$  を除く 5 種のヨウ素化合物について共存性試験を実施した結果、第 6.2-3 図に示すように  $\text{CuI}$ 、 $\text{YI}_3$ 、 $\text{MgI}_2$ においてはステンレス鋼に有意な変化が確認された。 $\text{CuI}$  は高温保持中に遊離した Cu がステンレス鋼表面に凝縮付着し、 $\text{MgI}_2$  と  $\text{YI}_3$  においてはステンレス鋼表面に侵食の形跡が認められた。一方、 $\text{BaI}_2$ 、 $\text{RbI}$  については、最長 1000 時間までの高温保持において良好な共存性を有していた。また、第 6.2-4 図に示すように PNC-FMS 鋼の方が SUS316 鋼よりも大きな質量変化を示した。

### ③熱伝導率測定

第 6.2-5 図に示すように、 $\text{BaI}_2$ 、 $\text{RbI}$ 、 $\text{CuI}$  について最高 600°Cまでの熱伝導率を測定した結果、 $\text{CuI}$ 、 $\text{RbI}$  は温度依存性が大きく、高温ほど熱伝導率が低くなる。一方、 $\text{BaI}_2$  の熱伝導率には温度依存性がほとんどなく一定の値を示した。500°Cにおける熱伝導率は、 $\text{BaI}_2$  が 0.295W/mK、 $\text{RbI}$  が 0.267W/mK、 $\text{CuI}$  が 0.187W/mK であり、いずれも  $\text{ZrO}_2$  や  $\text{MgO}$  などの無機材料の熱伝導率と比較して非常に小さい値であることが明らかとなった。

## (3) 総括

I を対象とした化合物選定において、高温安定性と被覆管候補材との共存性に重点を置いた調査並びに炉外試験により、5 種類の化合物に対する材料情報を明らかにした。また、高温での熱伝導率データの取得やこれまでに得られた炉外試験データに基づく供試体の選定により照射試験に向けた準備を完了した。

## (4) 今後の研究開発の進め方、

2005 年度までに得られた炉外試験データに基づいて、炉内装荷形態として有望な組成のヨウ素化合物を選定し、「常陽」での第一回目の照射試験を実施する。この照射試験は第 6.2-1 表の研究開発スケジュールに示すとおり 2007 年ごろからの開始を目指し、放射性核種でない I を用いて 2~4 サイクルの照射によるヨウ素化合物の安定性、

被覆材の健全性を確認する。得られた結果に基づき、再度、ヨウ素化合物の炉内装荷形態の検討を行い、最適な化合物形態を選定する。

その後、2010年頃から、選定された化合物形態による模擬集合体照射を実施する。模擬集合体照射では、核変換効率を高めるための減速材とともに照射を行い、可能であれば放射性の<sup>1</sup>Iの供試体を使用する。模擬集合体照射試験においても、照射後試験としてはヨウ素化合物の安定性、被覆材の健全性に重点をおいた評価を行う。模擬集合体照射により良好な試験結果が得られた場合、最終的に、放射性の<sup>1</sup>Iを用いたリサイクル実証試験（照射試験）を2015年以降に行い、それまでの開発成果の検証し、実用化を図ることを計画予定している。放射性の<sup>1</sup>Iの供試体を使用する。模擬集合体照射試験においても、照射後試験としてはヨウ素化合物の安定性、被覆材の健全性に重点をおいた評価を行う。模擬集合体照射により良好な試験結果が得られた場合、最終的に、放射性の<sup>1</sup>Iを用いたリサイクル実証試験（照射試験）を2015年以降に行い、それまでの開発成果の検証し、実用化を図ることを予定している。

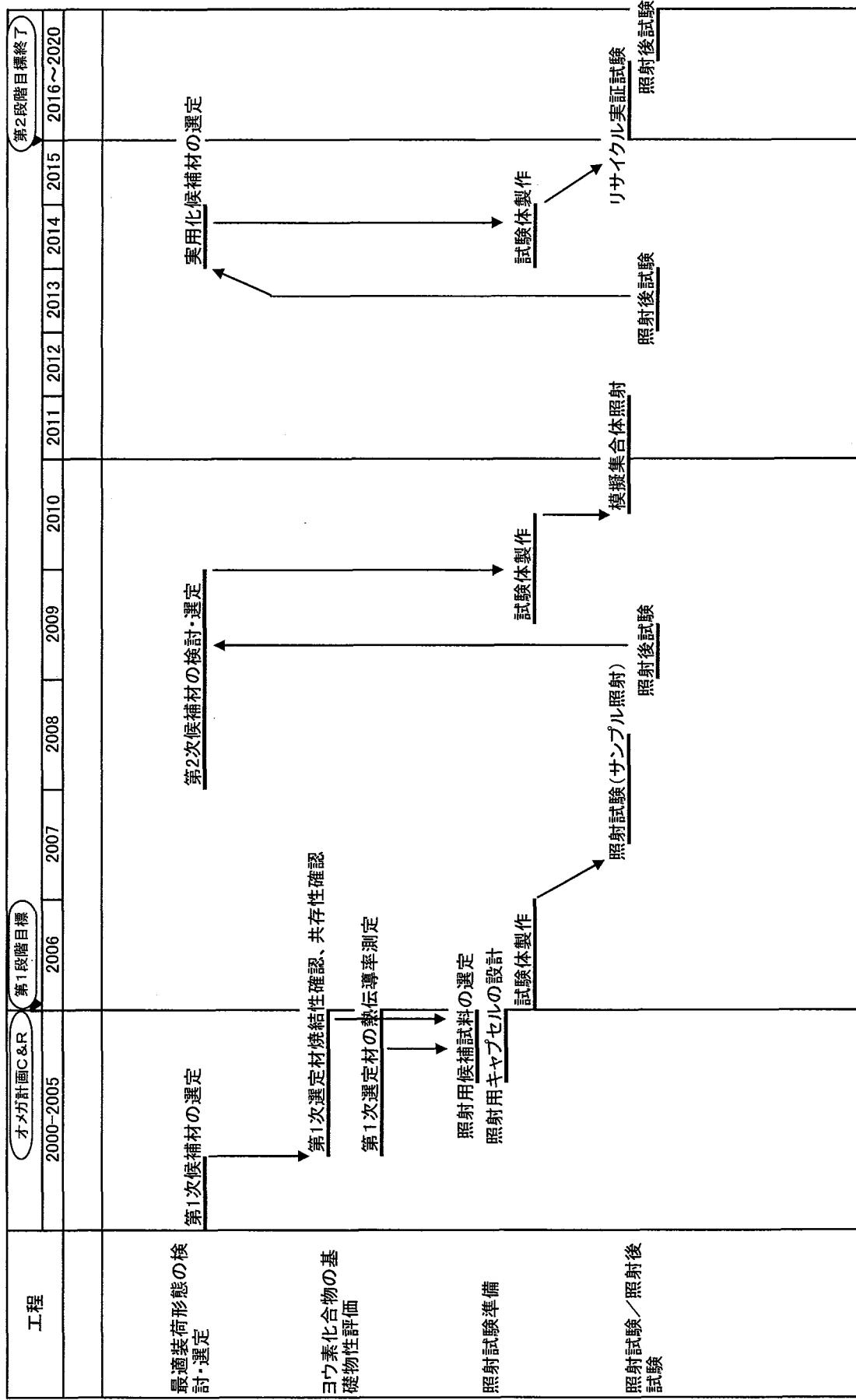
#### (5) 波及効果

核変換体としての炉内装荷形態の調査・開発であるため、特に他分野への波及効果はない。しかしながら、反応性の高いハロゲン元素を高温にて長期間、原子炉内という厳しい環境下に装荷するための試験研究データが取得できるため、ステンレス鋼とハロゲンとの化学的相互作用に関する基礎的な、貴重なデータ及び情報が得られている。

#### (6) 文献リスト

- 1) 池上 哲雄、小澤 正基、「分離変換技術開発基本計画（技術報告）」, JNC TJ9410 2003-001, (2003).
- 2) 堂野前 貴子、他、「分離・変換技術開発における LLFP 化合物の選定（調査報告書）」, JNC TN9420 2002-003, (2002).
- 3) 館 義昭、他、「長寿命核分裂生成物（LLFP）核変換要素の検討 -ヨウ素化合物の調査-（研究報告）」, JNC TN9400 2004-63, (2003).

第6.2-1表 研究開発スケジュール (LLFP)



## 文献情報等による調査

- 1) 相手元素の選定
- 2) 核的特性 (RI低減指數 > 0)
- 3) 融点 ( $> 600^{\circ}\text{C}$ )
- 4) 被覆管材料(ステンレス鋼)との共存性
- 5) 製造性(化合物回収プロセスに適合)
- 6) リサイクル性

### 第1次候補材の選定(7種類)

$\text{NiI}_2, \text{MgI}_2, \text{BaI}_2, \text{CuI}, \text{KI}, \text{RbI}, \text{YI}_3$

### 炉外試験による確認・検証 (非RI核種での実験)

- 1) 粉末の焼結性確認(ペレットの製造性)
- 2) 被覆材候補との共存性確認
- 3) 基礎的物性データ(熱伝導率)の取得

### 照射試験用候補材の絞込み(3種類)

$\text{BaI}_2, \text{CuI}, \text{RbI}$

### 照射試験①

(非RI核種での照射)

#### ・サンプル照射試験

高温中性子照射による

- ①ヨウ素化合物の性状変化の確認
- ②被覆管材料の健全性確認

### 最適な核変換体形態(組成)の選定

### 照射試験②

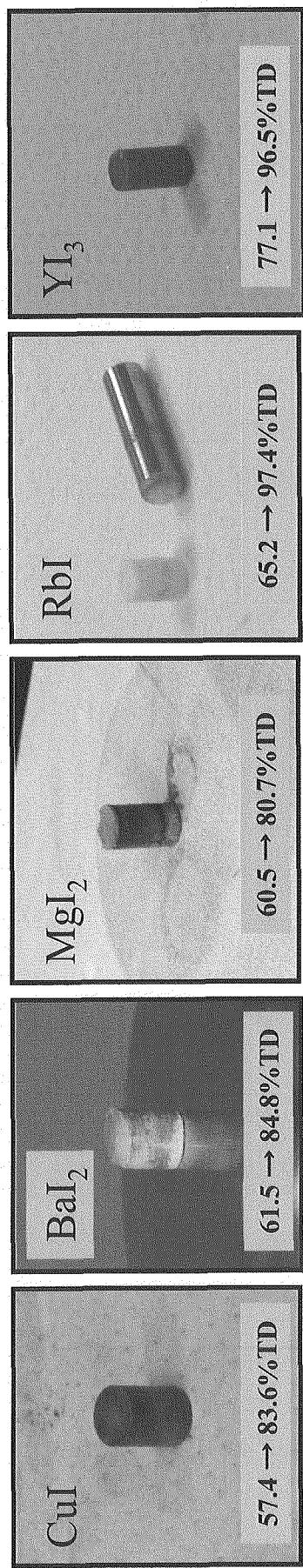
(RI核種での照射)

#### ・模擬集合体照射試験

#### ・リサイクル実証照射試験

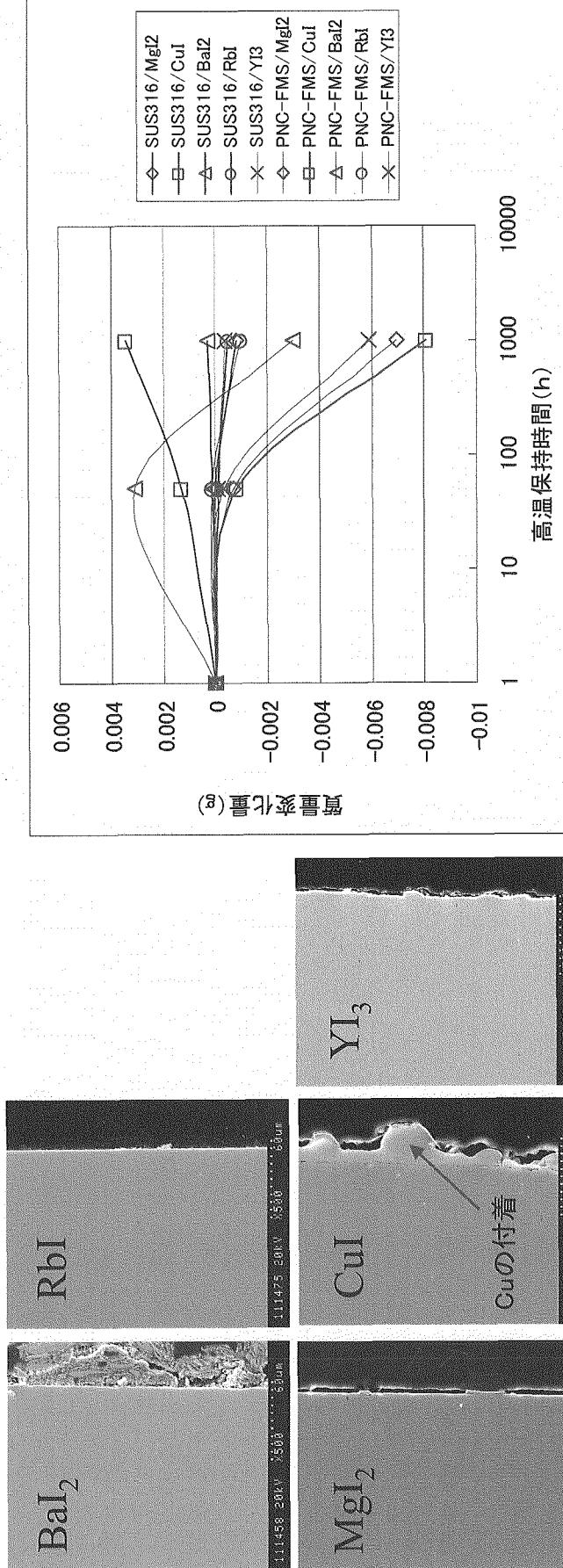
第6. 2-1図 ヨウ素化合物の調査フロー

## ヨウ素化合物の焼結性



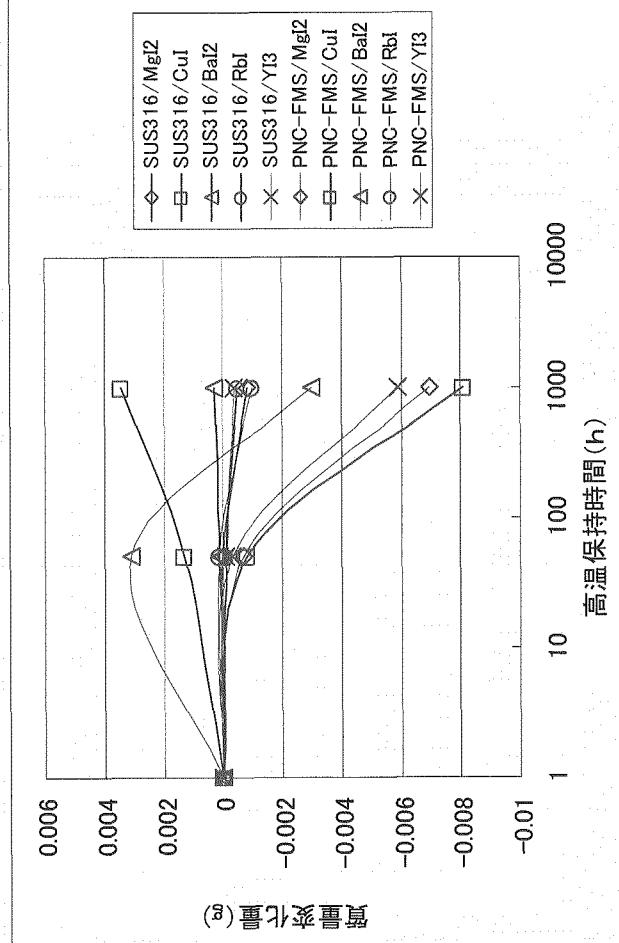
第6.2-2図 焼結性試験により得られた焼結体 ( $\text{NiI}_2$ : 330°C付近に分解点確認)

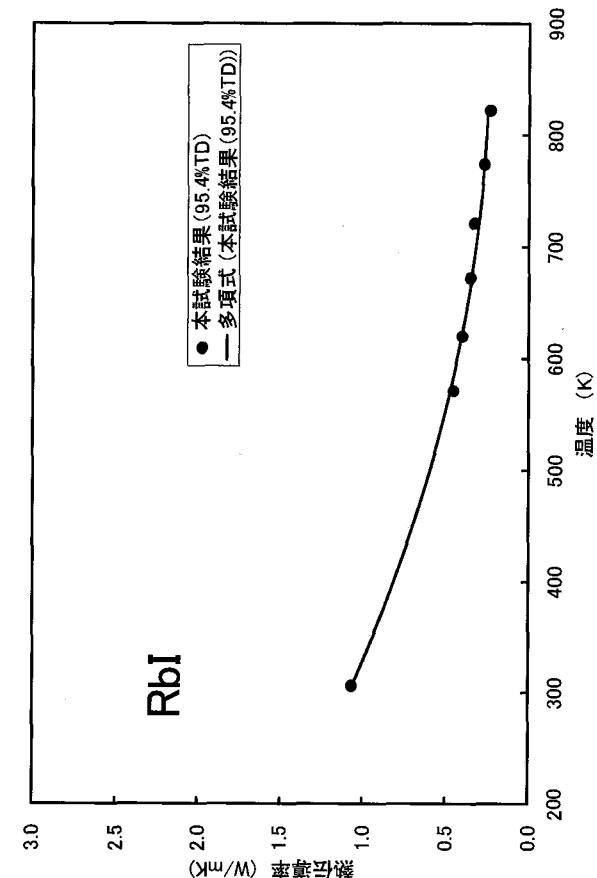
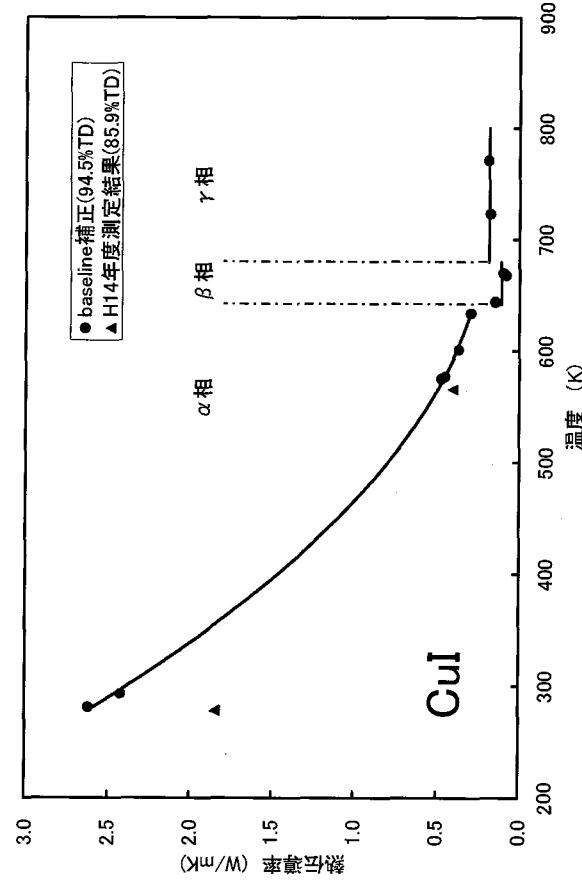
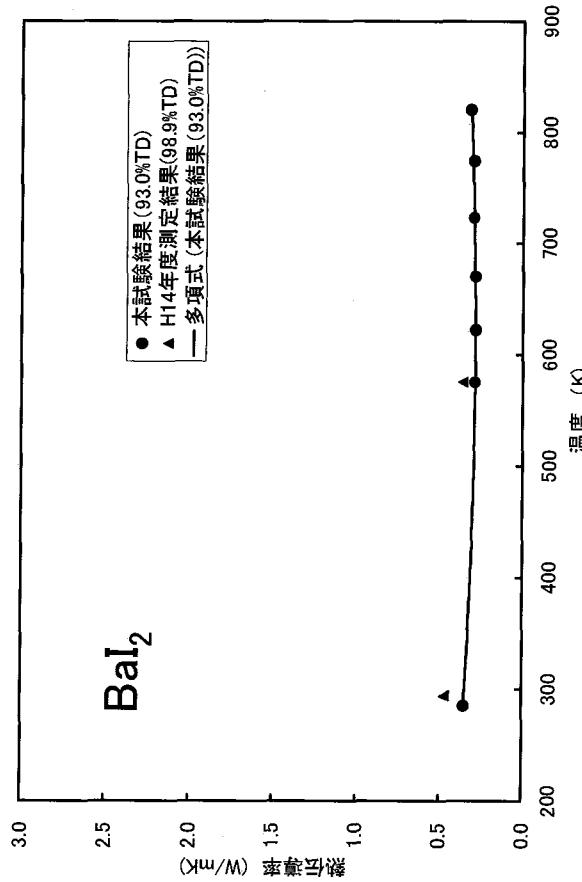
## ヨウ素化合物と被覆管候補材との共存性確認



第6.2-3図 600°C × 1000時間後のSUS316鋼の表面形態

第6.2-4図 ステンレス鋼の質量変化





第6.2-5図 BaI<sub>2</sub>、CuI、RbIの熱伝導率

### 6.3 地層処分

#### (1) 課題

分離変換技術は原子力利用の結果生じる放射性廃棄物中に存在する長寿命核種を短寿命あるいは安定核種に変換し、最終処分される廃棄体量低減などの効果を利用するにより、単位発電量に対する処分場の負荷の低減に繋がる可能性を秘めた核燃料サイクルの高度化技術であるが、これまでそのような観点から分離変換技術導入による地層処分の負荷低減効果を定量的に評価した例はない。

そこで、種々の燃料サイクルと分離変換プロセスの組み合わせによって発生する廃棄物を処分した場合の負荷を定量的に評価し、それを元に地層処分の負荷低減のために必要な分離変換の技術目標の導出を検討することを課題とした。

尚、本件は事前評価時点では計画に上っていなかった項目である。

#### (2) 成果

実施にあたっては、カリフォルニア大学バークレー校との共同研究の形で進め、これまでに以下の成果を得た。

##### ① 新たな指標、”環境影響” (Environmental Impact (EI)) の導入<sup>1), 2)</sup>

従来からよく用いられている“放射性毒性”は高レベル廃棄物(HLW)が発生した時点の毒性あるいはガラス固化体になった時点の毒性であり、地層処分する効果が全く考慮されない指標であったのに対し、この新たな指標 EI は処分場境界の外に出ていく放射性核種の毒性として定義している。従って、処分場での放射性核種の挙動を考慮し、バッファー及び near field rock 領域を含む地層処分の効果が考慮された毒性として定義される点が従来から用いられている毒性と大きく異なる点である。

$$EI_i [m^3] = \lambda_i [1/s] 6.02 \times 10^{23} [1/mol] M_i [mol] / 3.7 \times 10^{10} [Bq/Ci] / (MPC)_i [Ci/m^3]$$

ここに、 $\lambda_i$ 、 $M_i$ 、 $(MPC)_i$  はそれぞれ核種  $i$  の、崩壊定数、放射性核種量、最大許容摂取量である。

##### ② 環境影響 (EI) の評価適用結果<sup>1), 2), 3)</sup>

PWR 燃料（燃焼度 28GWd/t、廃棄物側への移行率が U で 0.604%、Pu で 0.2966%）と FBR 燃料（燃焼度 150GWd/t、TRU の廃棄物側への移行率が 0.1%）について、上で定義した環境影響 (EI) を評価した結果を第 6.3-1 図及び第 6.3-2 図に示す。

図より、LWR からの HLW は FBR からのそれより約 20 倍大きな環境影響 (EI) を持つ。同一発電量当たりで比較すると、LWR サイクルの環境影響 (EI) は  $1.7 \times 10^8 m^3/GWyear$ 、FBR サイクルの環境影響 (EI) は  $4.4 \times 10^6 m^3/GWyear$  となり、FBR サイクルは約 1/40 となる。また、FBR サイクル (TRU の回収率が 99.9 %) の場合、Np の環境影響 (EI) が LLFP (Li129, Cs135) と同程度となっており、TRU の回収率は 99.9 % で充分である可能性があることを示唆している。

### (3) 総括

2003 年度から開始し、実質 2 年しか経過していないため、未だ研究途上の状態である。これまででは、地層処分の負荷低減効果を定量的に評価するために必要となる指標や評価手法の整備が主体であり、地層処分の負荷低減効果を充分定量的に評価するに至っていない。評価手法をほぼ確立したのでこれからが本番である。

### (4) 今後の研究開発の進め方

評価手法をほぼ確率したので、分離変換技術導入による地層処分の負荷低減効果の定量的評価を進める。その際、分離変換する長寿命核種を変えて評価することにより、長寿命核種毎の効果を把握する。今後の研究開発スケジュールを第 6.3-1 表に示す。

上記の結果を基に、分離変換する対象核種と分離変換を行う程度（回収率等）の目標値を得る。

### (5) 波及効果

これまで分離変換技術と地層処分技術の間の相互の情報交換は多少不足ぎみであったが、本研究はその情報交換を高めるものであり、相互の情報交換を活発にすることにより新たな研究領域を切り開くと同時に、新たな知見が得られることが期待される。

### (6) 文献リスト

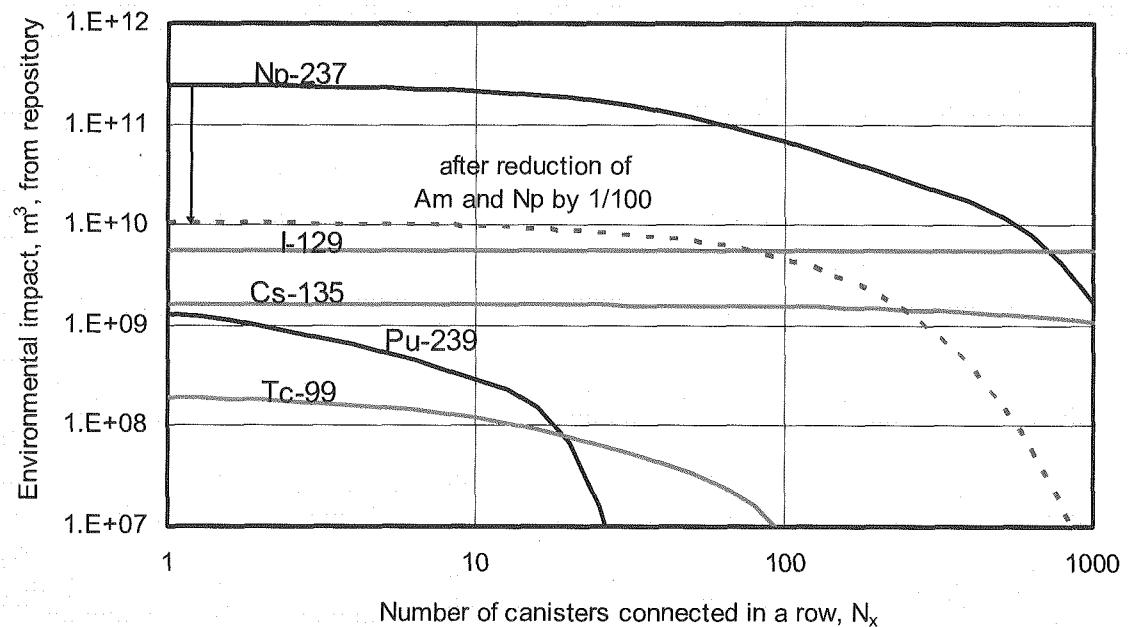
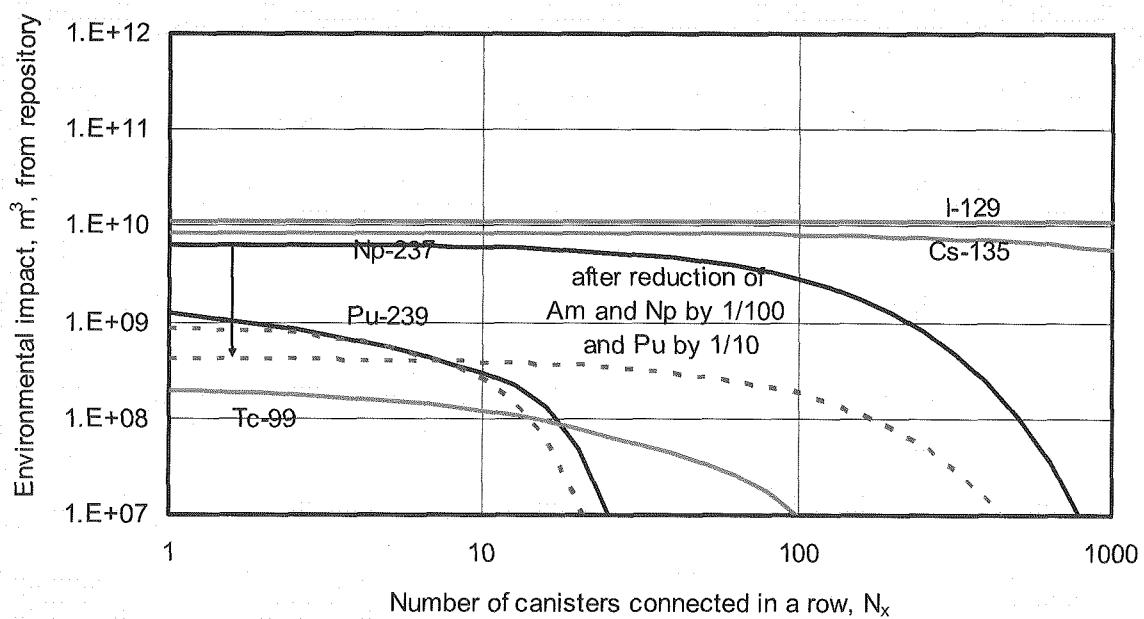
- 1) J. Ahn, T. Ikegami, "Effective Application of Partitioning and Transmutation Technologies to Geologic Disposal", 8<sup>th</sup> Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning & Transmutation, Las Vegas (2004).
- 2) J. Ahn, T. Ikegami, "Repository Environmental Impacts of HLW from Na-Cooled FBR", ANS 2005 Annual Meeting, San Diego (2005).
- 3) M. Cheon, J. Ahn, T. Ikegami, "Linear Programming Approach for Modeling Solidification of HLW from PWR", ANS 2005 Annual Meeting, San Diego (2005).

第6.3-1表 研究開発スケジュール（地層処分）

工程	オメガ計画C&R 2000-2005	第1段階目標終了					第2段階目標終了 2016～2020				
		2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015
分離変換技術導入による地層処分の負荷低減効果検討	指標及び評価手法整備										

```

graph TD
    A[指標及び評価手法整備] --> B[負荷低減効果の定量評価]
    B --> C[暫定的選定]
    B --> D[分離変換対象選定]
    C --> E[分離変換対象核種と分離変換の程度策定]
    D --> E
    E --> F[2016～2020]
  
```

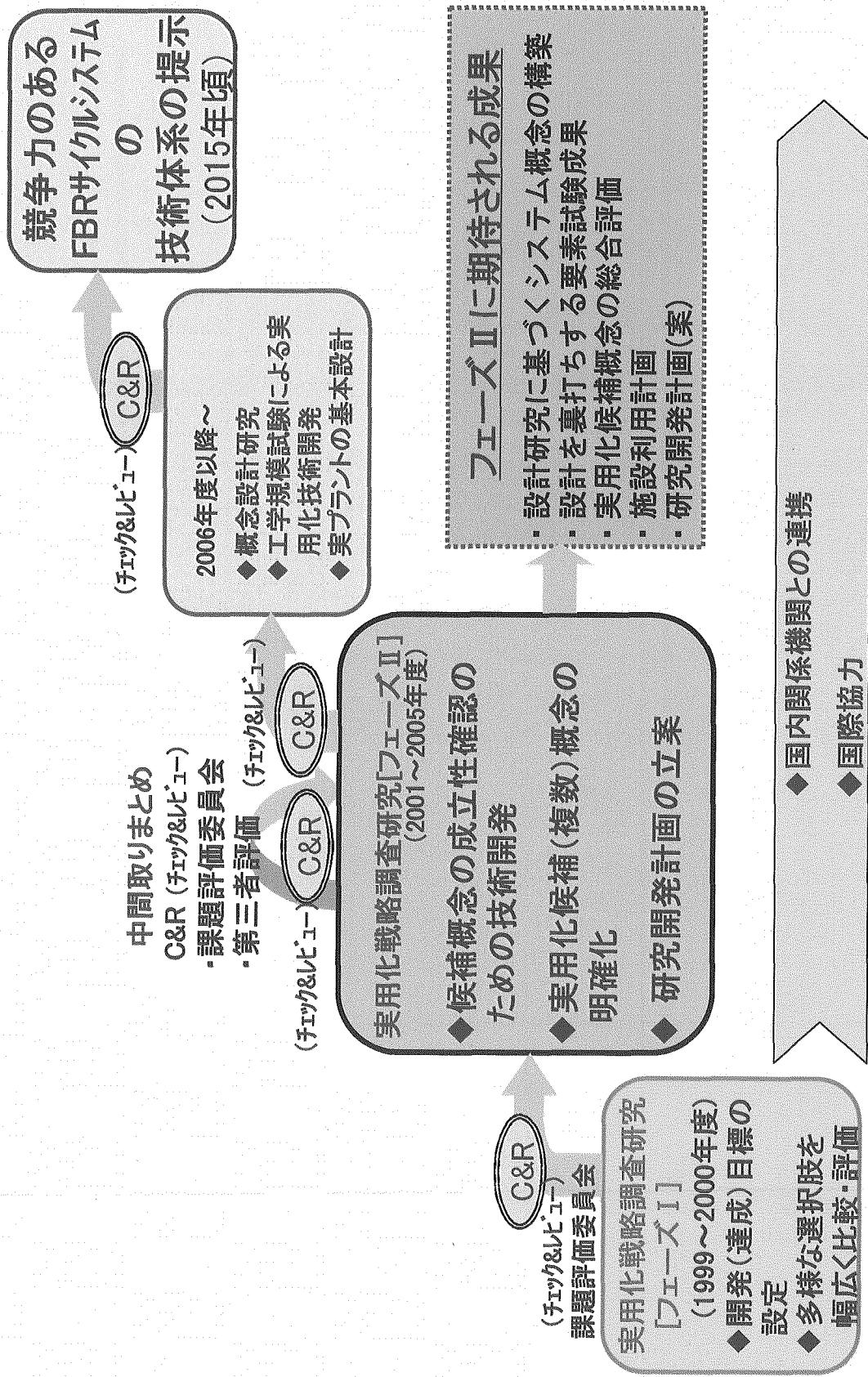
第 6.3-1 図 PWR 燃料の環境影響評価結果<sup>1)</sup>第 6.3-2 図 FBR 燃料の環境影響評価結果<sup>1)</sup>

## 7. 今後の研究開発の進め方

サイクル機構内の今後の研究開発はこれまで通り第3.1図に示す体制で、また、研究開発を効率良くすすめるため、国内外の研究機関、大学等との連携は第3.2図に示すこれまでどおりの体制に基づいてすすめる予定である。しかしながら、原研との統合で組織変更等で研究方針の変更が必要となった場合には、それらに応じて所内外の体制を見直すこととする。

本研究開発は、第7.1図に示すFBRサイクルの実用化戦略調査研究と連携をとって進める。このため、基礎的なデータベースの整備、ブレークスルーにつながる分離変換技術の検討等を行い、環境負荷低減を目指すFBRサイクルに反映することを目的としている。この所期の研究開発の目的を引き続き、これまでの研究成果及び研究項目をレビューすると、今後第2段階の研究開発は、以下の観点から進めるべきと考える。

- ①分離技術は、新しい概念・方法等の実行性及び有用性を実験室規模で確認する
  - ②核データについては、MAの熱中性子捕獲断面積の測定・評価はほぼ揃いつつあるものの、まさに高速増殖炉サイクルで必要としている高速中性子捕獲断面積の測定・評価の殆どは実施されていないか、または実施されていたとしてもその誤差はおよそ50%程度と大きい。MAの高速中性子捕獲断面積の測定・評価のデータは、実用化戦略調査研究での設計研究に不可欠であることからこれらのデータの取得は積極的にすすめる。
  - ③燃料では、MA核変換率の向上、高性能化を目指して不活性母材燃料（非均質サイクル）の開発を継続してすすめる。この研究は、加速器駆動システムで使用する燃料の開発にも役立つことから、原研との融合研究として進める。
  - ④炉物理では、複雑な燃焼チェーンや非均質性の大きな核変換集合体を扱う解析手法を整備するとともに、炉物理実験データの収集を進め、核データの改善傾向分析、高速炉サイクル設計で用いる炉定数の改良を行う。
  - ⑤新しい核換技術・概念の検討では、核変換技術・概念の検討に燃料サイクルを加えた革新的分離核変換概念検討をすすめる。
  - ⑥希少元素FPの利用技術は、新しい概念・方法等の実行性及び有用性を実験室規模で確認する
  - ⑦LLFPターゲットの基礎物性及び照射試験は、実用化戦略調査研究の予算のもとに、基礎・基盤データを整備する
  - ⑧分離変換と地層処分の有機的な関連づけを目指し、分離変換で何を行えば地層処分施設への負荷を低減できるかという観点から検討を進める。
- これら研究項目の2006年以降の資金計画(案)を第7.2図に示す。なお、これには原研との統合による影響は考慮していない。



第7.1図 FBRサイクル実用化戦略調査研究の展開

研究項目	西暦	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010
1. 実用化戦略調査研究								
2. 基礎・基盤研究		フェーズ2			フェーズ3			
① 分離技術 *	分離・ホットプロセス化学試験・評価	希少元素FPの分離・利用試験(Ⅰ)遷元機能触媒の開発	希少元素FPの分離・利用試験(Ⅱ)酸化機能触媒の開発					
② 核データ	測定技術開発 Zr同位体の測定	MA LLFPの高精度中性子捕獲断面積測定(測定コス改良整備)	MA LLFPの高精度中性子捕獲断面積測定	(0.25億円)	(0.25億円)	(0.25億円)	(0.25億円)	(0.25億円)
③ 炉物理	「常陽」照射後試験解析 燃焼感度解析コードの整備	国内外の実験解析情報に基づくMA炉実験データの整合性評価	炉内数調整システムの機能拡張(高速炉炉内数調整用MA炉サイクル設計用MA炉炉内数評価)	(0.19億円)	(0.19億円)	(0.18億円)	(0.23億円)	(0.23億円)
④ 燃料	基礎データ取得、 実燃料を用いた試料製造	TRU入り不活性母材の物性試験、照射連の照射用試料作製、TRU入り不活性母材の常陽照射、TRU入り不活性母材の照射後試験	TRU入り不活性母材の常陽照射	(0.1億円)	(0.1億円)	(0.1億円)	(0.1億円)	(0.1億円)
⑤ 車新約分離核変換概念 (核変換技術・概念の検討)	複合処理サイクル概念の検討	中間貯蔵燃料を含む軽水炉使用資源み燃料中のアクチニド及びFPを有効に燃焼処理する核燃料サイクル概念の検討	放射性廃棄物を飛躍的に抑制するサイクル概念の検討	(0.45億円)	(0.38億円)	(0.38億円)	(0.38億円)	(0.38億円)
⑥ LLFP	基礎物性データ取得、 照射試験検討	「常陽」での照射試験 照射試験体製作 LLFP用GBの整備	第1次候補 LLFP変換データの生状確認 試験、被覆材の健全性確認	(0.04億円)	(0.04億円)	(0.04億円)	(0.04億円)	(0.04億円)
⑦ 地層処分	地層処分への負荷軽減効果の評価	地層処分の負担軽減効果の評価 の対象核種と目標レベルの検討	地層処分の定量評価を行い、分離変換	(0.05億円)	(0.25億円)	(0.65億円)	(0.20億円)	(0.20億円)

\* FPの利用技術開発を含む  
LLFP:長寿命の核分裂生成物

FP:核分裂生成物 MA:マイナアクチニド TRU:超ウラン元素

第7.2図 基礎・基盤研究に関する当面5年間の計画(案)

## 8. おわりに

「長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発」についての課題評価委員会の事前評価(2000年8月)に基づいて、分離技術、核データ、炉物理、燃料、新しい核変換・概念について研究開発を進めてきた。2005年度に見込まれる事後評価を目前にして2004年度末までに得られた主な研究成果は以下の通りであり、これら研究成果は、日本原子力学会誌等の専門誌に論文として合計約30件を投稿した。また、この間研究費の合計は約2.6億円であった。

### ①分離技術

使用済燃料中の全アクチニドを一括して分離するための、有望な2種の新抽出系を特定した。ソフト配位子を装荷したイオン交換樹脂にMA/Ln及びAm/Cmの高度な分離機能を見出した。

### ②核データ

全立体角BG0検出器とフラッシュAD変換器の開発により広領域の中性子捕獲断面積が測定できる高度な技術を開発した。これらを活用し、主に低エネルギー領域で世界初となる核データ含む7核種のMA及びFPの中性子捕獲断面積を決定した。

### ③炉物理

「常陽」で照射したMAサンプルの照射後試験解析により、 $^{241}\text{Am}$ 捕獲反応の核異性体比の不確かさを大幅に低減した。我が国で初めて、数キロのNpを装荷した炉心の臨界実験解析を行い、Npによる解析予測精度の悪化が生じないことを確認した。

### ④燃料

MgOを母材とした不活性母材燃料について、模擬試料を用いた作製試験を通して、既存技術に適合する基本製造プロセスを確立した。またMA酸化物の酸素ポテンシャル、相状態等の基礎的特性を実験的に評価した。

### ⑤新しい核換技術・概念の検討（革新的分離核変換概念）

簡易熱処理を行った軽水炉使用済燃料を高速炉で燃焼すると40万MWd/t以上の燃焼度を達成でき、単位発電量当たりのMA量を1/5までも減量可能な上、経済性及び核拡散抵抗性の効果が期待できる新たな概念「複合処理燃料サイクル」を提案した。

事前評価以後、分離変換技術を充実する観点から新たに加えた研究項目については、以下の成果があった。

### ⑥希少元素核分裂生成物の分離・利用

触媒(Pd他)を利用した電解採取法による希少元素FP(Ru, Rh, Pd, Tc他)の分離回収技術を開発した。水電解水素製造の過程で、希少元素FP混合析出電極の高触媒活性を見出した。

#### ⑦LLFP ターゲット

2元系のヨウ素化合物のなかから高速炉内装荷に有望な6種類の候補試料( $\text{CuI}$ 、 $\text{BaI}_2$ 、 $\text{MgI}_2$ 、 $\text{RbI}$ 、 $\text{KI}$ 、 $\text{YI}_3$ )を選出し、基礎的物性及び被覆材との共存性を評価した。「常陽」での照射試験用試料を選定し、照射試験に向けた準備を完了した。

#### ⑧地層処分

従来からよく用いられている“放射性毒性”に替わる新たな指標すなわち、環境影響(Environmental Impact (EI))を導入すると同時に、地層処分の効果を定量評価する手法を整備した。

本研究開発は、引き続きFBRサイクルの実用化戦略調査研究と連携をとり、基礎的なデータベースの整備、ブレークスルーにつながる分離変換技術の検討等を進め、環境負荷低減、ウラン資源の有効利用を目指すFBRサイクルの開発に資する。

## 添付資料-1：「長寿命核種の分離変換技術の研究開発」についての事前評価

サイクル機構は、「国の研究開発全般に共通する評価の実施方法の在り方についての大綱的指針」（平成9年8月7日、内閣総理大臣決定）及びサイクル機構の「研究開発外部評価規程」（平成10年10月1日制定）等に基づき、「長寿命核種の分離変換技術の研究開発」に関する事前評価を研究開発課題評価委員会（高速炉・燃料サイクル課題評価委員会）に諮問した。

これに対する答申の中で、本研究開発の目的、意義は明確であり、重要性も高く、また、目標の設定や研究開発計画、資金計画、実施体制のいずれも適切であると評価して頂き、以下の点に留意する必要があるとの指摘をうけた。

- ・適切な年限ごとに評価を行い、それに応じて分離変換技術の実用化計画を見直すことが望ましい。
- ・長期間にわたる研究開発が必要であるため、研究の進展に応じ、また実用化戦略調査研究の進捗度、選択肢の絞込みに応じて柔軟に対応することが望ましい。
- ・分離変換技術に伴って発生する二次廃棄物の処理・処分等の課題にも留意して研究を進める必要がある。
- ・国内外の研究機関、大学等との連携の中で、効率良く実施していくことが望ましく、それらの機関との間の協力体制作りが重要である。
- ・研究成果は学会などを通じて速やかに公開するとともに、専門家の評価を受けることが望ましい。また、本研究の背景を考えれば、国民一般に成果を明らかにし、原子力への理解を得られるようにすることも重要である。

評価の対象となった「長寿命核種の分離変換技術の研究開発」<sup>脚注 1)</sup>の抜粋を以下に示す。

### 1. 事前評価の課題名

長寿命核種の分離変換技術の研究開発

－基礎・基盤研究に関する研究計画－

### 2. 背景

#### 2. 1 経緯

使用済み燃料中に含まれる長寿命の放射性物質（超ウラン元素：TRU、長寿命核分裂生成物：LLFP）を分離し、原子炉等で核変換をさせ、短寿命核種あるいは安定

脚注 1) 核燃料サイクル開発機構ホームページ  
(<http://www.jnc.go.jp/siryou/hyouka/HY000905/>)で公開している。

な核種に変換する技術を、分離変換技術と言う。

サイクル機構は、中長期事業計画において原子力利用による環境負荷低減の観点から、FBR による超ウラン元素(TRU)や長寿命核分裂生成物(LLFP)の分離変換技術の研究開発を長期的なテーマとして取り組むこととしている。

また、原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会において、報告書「長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と進め方」(平成12年3月31日)ができるが、原子力委員会において原子力バックエンド対策専門部会の報告を受けて、本技術の研究開発の推進を決定した(平成12年4月11日)。

## 2. 2 分離変換の効果及び意義

我が国では、高レベル放射性廃棄物のガラス固化体を地層処分することとしている。現行の高レベル放射性廃棄物の地層処分システムは、諸外国で提案されている安全基準を十分に下回るなど、現在の技術で安全性は確保できると考えられる。また、分離変換技術が実現されたとしても、わずかであるが長寿命核種を含む放射性廃棄物が不可避的に発生するため、それらを処分するための地層処分が必要となる。すなわち、分離変換技術は、地層処分の必要性を変えるものではない。

産業活動に伴う有害廃棄物の発生を極力抑制することは社会的な要求となっている。分離変換技術によって高レベル放射性廃棄物に含まれる長寿命核種を除去し、長期的な放射能インベントリを低減すること等は、この社会的要件に適うものである。TRU核種及びFP核種の分離変換技術の効果、意義としては、以下のことが考えられる。

### (1) TRU核種

- ①TRU の分離変換は、長期的な放射能インベントリーを低減し、潜在的な危険性を軽減することができる。 TRU核種は、核変換において、同位体分離は必要なく、元素分離だけで対応できる。
- ②TRU は核分裂エネルギーとして発電に利用できる。
- ③MA を 99-99.9%、分離変換することにより、地層処分の長期的安全性における人間侵入シナリオのリスクを低減できる可能性がある。

### (2) FP核種

- ①長半減期の I-129 は、高レベル放射性廃棄物にはほとんど含まれないが、再処理施設から発生する使用済みのヨウ素フィルター(廃銀吸収材)に多く含まれる。 I-129 は溶解度が高く、地層への吸着が小さい。この核種の分離変換により、廃銀吸収材を地層処分する場合に、安全確保のための隔離が要求される期間を短くできる可能性がある。ここでは、ヨウ素フィルターからの回収技術開発がポイントとなる。

- ②長半減期の Cs-135 は、地層処分研究開発第2次とりまとめにおける地層処分の地下水移行シナリオに基づく被ばく線量評価において被ばく線量のピークを支配する核種であり、分離変換することにより、最大被ばく線量を低減することが可能となる。Cs については、元素分離したものを核変換に使用できる可能性がある。
- ③I-129、Cs-135 に Tc-99、Se-79、Zr-93、Sn-126、Pd-107 を加えたFP核種及びMA の分離変換により、放射能及び放射性毒性の天然ウランレベルまでなる期間を大幅に低減できる可能性がある。Tc-99 については、元素分離により核変換可能であるが、Se-79、Zr-93、Sn-126、Pd-107 については、同位体分離が必要となるものがある。
- ④Sr,Cs 等、発熱量の大きい核種を分離除去することにより、高レベル放射性廃棄物を減容し、その貯蔵期間の短縮あるいは定置面積の減少が可能になるとを考えられる。Cs は元素分離したものを核変換に使用できる。技術的達成のし易さ、分離・保管の方法やそれに要する費用等を総合的に評価する必要がある。
- ⑤その他の核種として、白金族は21世紀中にも枯渇が予想され、戦略的元素と位置付けられる可能性がある。
- ⑥白金族、Mo 等の分離はガラス固化プロセスの負担を軽減できる可能性がある。

### (3)留意点

分離変換技術による毒性低減においては、廃棄物中に移行する Pu の回収率を向上させることに加えて、対象となる核種の分離回収率向上が重要である。

## 2. 3 高速炉の核変換における特長

高速炉での TRU 核種の核変換の特長としては、高いエネルギーの中性子が多いため、熱中性子炉に比べて核分裂による核変換が中性子捕獲反応による核変換よりも多くなり、高次の長半減期の TRU(Am-243,Cm-245,Cm-246 等)ができるにくいという特徴をもっている。また、中性子束も高く、熱中性子炉に比べて高い TRU 核変換率が得られると考えられる。また、長半減期 LLFP についても、炉心から漏れてくる中性子をブランケット領域等で減速材を用いて減速し、高速炉の炉心特性にあまり影響を与えないで核変換が可能となる。このように、高速炉は、TRU核種やLLFPの核変換に適した炉型であるといえる。

以上述べたような経緯、分離変換の効果と意義、高速炉の核変換における特長を踏まえて、また、核燃料サイクル全体を視野に入れて、長寿命核種の分離変換技術の研究開発を、関係各機関と協力して効率的に進めていくために、「長寿命核種の分離変換技術の研究開発計画(基礎・基盤研究に関する部分)」を具体化したので事前評価を受けることとした。

### 3. 全体計画の概要

長寿命核種の分離変換技術の研究開発は、実用化戦略調査研究の一環として進められるものと、今回の事前評価の対象となる基礎・基盤研究の両者で連携を取りつつ進めるものとする。また、国内外の大学や研究機関の研究動向に注目しつつ、それらと協力して進めるものとする。第 A1.1 図に事前評価段階での長寿命核種の分離変換技術研究開発における実用化戦略調査研究と基礎基盤研究の役割分担を示す。

実用化戦略調査研究では、経済的なりサイクル技術(分離、加工、核変換、保管)の確立を目標とすることから、当面は元素分離の範囲で行える核種を、重点的に取り組むものとする。そして、それらの核種についてシステム設計研究と技術的成立性を確認する要素技術研究を実施する。

TRU核種としては以下のものを選定する。

**Np、Am、Cm**

また、FP 核種については、平成12年度の実用化戦略調査研究の結果を基に最終的に選定するが、以下のものが考えられる。

**I、Cs、Tc、Sr**

基礎・基盤研究では、核データ測定・評価や炉物理等の共通な基礎・基盤データベースを構築する研究、将来のブレーク・スルーにつながる新しい分離技術や核変換技術、長期的な観点から研究開発を進める必要があると考えられる核種の分離変換研究等、幅広い分野を研究対象とする。基礎・基盤研究により技術的見通しが得られた技術、対象核種は、経済性評価を含めて実用化への実現性を検討する実用化戦略調査研究に引き継がれ、システム設計研究に反映される。

長期的な観点から検討する核種の例を以下に示す。これらの核種の中には、炉心特性の観点から同位体分離が必要となる核種もある。また、分離技術の性能によっては(例えば、DF の低い乾式分離)、これ以外の核種でも中性子吸収が大きいため、炉心特性に影響を与える可能性も考えられる。この点を留意して、核種、研究項目(核データ測定等)を検討していく必要がある。

**・Se-79、Zr-93、Sn-126、Pd-107**

**・Mo、白金族**

当面 5 年間の基礎・基盤研究では、幅広い技術分野にわたり、実現可能性を判断するための基礎データの整備を目標とする。研究分野としては、分離技術、核データ、炉物理、燃料、新しい核変換概念等とする。

#### 4. 研究の目的

本研究の目的は、長寿命核種の分離変換技術の基礎・基盤に関する幅広い研究を行い、分離技術、核データ、炉物理、燃料物性等の基礎的なデータベースを充実させるとともに、分離変換技術のブレークスルーを検討しフィージビリティを確認することにより、効率的な分離変換技術確立に反映することである。

#### 5. 課題評価を受ける範囲

長寿命核種の分離変換技術の研究開発計画のうち、基礎・基盤研究について、研究開発の進め方(研究開発項目、内容等)、国内外の研究機関や大学との協力の考え方、体制等について評価を受ける。

#### 6. 必要性及び緊急性

##### (1) 必要性

循環型社会の実現、地球環境保全等の観点から社会的な要求になっており、原子力についても有効な対策を講じることが求められている。長寿命核種の分離変換技術は、放射性廃棄物に含まれる長期的な放射能インベントリーを低減するなど、この要求にかなった有用な技術となる可能性があり、幅広い基礎・基盤研究を含めた研究を推進していく必要がある。

##### (2) 緊急性

FBRサイクル実用化戦略調査研究は、2015年頃を目途に安全性、経済性、資源の有効利用、環境負荷低減、核不拡散性に優れたFBRサイクル技術の見通しを得ることを目標に進めている。環境負荷低減に寄与する分離変換技術の基礎・基盤研究は、リードタイムを要する研究であり、研究成果をタイムリーに実用化戦略調査研究に反映し、2015年頃までに環境負荷低減に関するFBRサイクル技術の見通しを得るようにするには、早急に着手する必要がある。

#### 7. 研究開発の進め方

長寿命核種の分離変換技術の基礎・基盤に係わる研究について、具体的研究項目、内容、国内外の研究機関や大学との協力、資金、体制について以下に示す。また、

##### 7. 1 研究項目、内容

###### (1) 分離技術

- ・使用済み燃料から長半減期FP(Se-79、Zr-93、Sn-113、Pd-107 等)や有用希少元素 FP(Pd,Ru,Rh,Se,Te,Ag 等)を分離する技術(乾式、湿式等)について、調査・検討を行う。

- ・長寿命FPのうち毒性低減ならびに半減期の長い核種生成を防ぐ等の観点において、同位体分離が必要と考えられる核種については、核種の特性、同位体比等を勘案して、可能な技術を調査・検討する。
- ・新しい分離抽出剤の研究においては、実廃液を用いたパラメータ実験だけに頼るのではなく、計算化学やシミュレーション技術と実験を組み合わせて効率的に実施する。
- ・湿式分離に関する基礎研究では、高酸性溶液からの分離を前提として、種々の抽出剤による抽出分配挙動を調査・検討する。
- ・二次廃棄物の処理処分及び発生量低減について検討する。

### (2) 核データ

- ・MA 核種の核データについては、中性子捕獲反応断面積を中心に測定・評価(積分、微分データ)を行い、測定結果は既測定データと合わせ評価を行い、JENDL 核データライブラリ改訂に反映する。
- ・MA核種の崩壊熱データは今まで測定されたものはほとんどないのが現状である。MA核種の崩壊熱データの測定・評価を実施し、崩壊熱データのデータベースを構築する。
- ・LLFP 核種の核データについては、熱中性子から高速中性子エネルギー領域まで、I, Cs, Tc の核種について、測定・評価(積分、微分データ)を行い、核データライブラリーの精度向上に反映する。
- ・Se-79,Zr-93,Sn-126,Pd-107 等の核種の測定・評価は、現状達成している核データの精度、システム設計側からの要求精度を検討し、実施する。
- ・高分解能・高エネルギー光子スペクトロメータや熱中性子から高速エネルギー領域までの広領域中性子断面積測定用スペクトロメータの開発を行い、今まで測定できない核種の測定や測定精度向上を図る。

### (3) 炉物理

- ・「常陽」照射燃料、「常陽」MA サンプルの照射後試験結果を用いて、MA 核種の核変換量及び生成量の解析を行い、核計算、燃焼計算コードの解析精度の検証を行う。
- ・スーパーフェニックスにおける MA 及び RE サンプル照射実験(Superprofile 実験)の解析を行い、核計算、燃焼計算コードの解析精度の検証を行う。
- ・MA 装荷炉心の臨界実験については、必要性(解析精度、必要な資金を考慮して)を明確にした上で計画を作成する。
- ・LLFP 装荷炉心の臨界実験については、必要性(解析精度、必要な資金を考慮して)を検討し、評価を受けたあとで計画を作成する。

#### (4) 燃料

- ・TRUの燃焼効率を向上させるために、不活性母材(アルミナ、マグネシア等)にTRUを混入させた燃料が考えられる。不活性母材の基礎的物性、不活性母材とTRUの共存性、不活性母材入りTRU製造法等について調査・研究を実施する。

#### (5) 新しい核変換技術・概念の検討

核変換効率を向上させる革新的概念の検討を実施する。以下にその例を示す。

- ・マイナー・アクチニド及び長半減期核分裂生成物(Se-79, Zr-93, Sn-126, Pd-107)について、高速エネルギーから熱外エネルギーまでの幅広い中性子エネルギー領域から、変換対象核種の核反応の特徴に合わせ適切な中性子エネルギーを各々の核種について選択し核変換特性を向上できる新しい炉心概念を検討する。
- ・低エネルギーの中性子を利用する場合については、変換効率を悪化させる中性子の空間自己遮蔽を抑制するために、対象核種要素の表面積を増大させた集合体概念を導入し、核変換効率の向上を図る。
- ・水素化ジルコニウムを含む高速炉炉心でのTRU及びLLFPの核変換フィージビリティ・スタディを実施する。

長寿命核種の分離変換技術の基礎基盤研究に関する当面5年間の計画を第A.1.2図に示す。

### 7.2 国内外の研究機関、大学との協力

長寿命核種の分離変換技術には、共通課題が多く、国内外の研究機関、大学等と協力して研究開発を進めていく。また、核燃料サイクル諸技術と共通するものも多いため、核燃料サイクルの技術開発の成果を共有しつつ研究開発を進めていくものとする。更に、国内外の研究機関、大学等と独創的なアイディアを活かした研究に対する協力も積極的に進めるものとする。実験・試験等の実施に当たっては、国内外の既存の研究施設を利用するなど効率的に研究開発を行うものとする。また、サイクル機構の施設も、国内外に広く開放し、活用できるように整備していく。表1に国内外の研究機関、大学との協力の可能性について示す。

### 7.3 資金計画

長寿命核種の分離変換技術の基礎・基盤研究に関する予算は、平成13年度から新規に要求していくものとする(初年度は約1億円)。平成13年度から5年間トータルでは、6.5億円が見積もられる。

#### 7. 4 体制

本研究の実施体制を示す。サイクル機構における基礎・基盤研究に関連する人員は13名程度になると想定される(但し、専従ではない)。また、国内外の研究機関、大学等と共同研究、情報交換等を行い、協力して進めていくものとする。(7. 2参考)

#### 8. 期待される成果及び反映先

長寿命核種の分離変換技術に基礎・基盤研究により以下の成果が期待できる。

・分離研究：長寿命核分裂生成物の新しい分離技術の可能性、同位体分離の適用性

・核データ研究：評価用核データベースの充実、核データライブラリーの精度向上

・炉物理研究：TRU、LLFP の核変換性能、核設計コードの精度向上

・燃料研究：不活性母材の基礎物性データベースの充実

・革新的核変換研究：核変換能力を向上させる概念の提案

これら研究成果は、FBRサイクル実用化戦略調査研究に反映する。また、「常陽」、「もんじゅ」の利活用計画の検討にも反映していく。

#### 9. 成果に対する情報公開の考え方

長寿命核種の分離変換技術の基礎・基盤研究の成果は、サイクル機構の報告書にまとめて公開するとともに、国内外の関連学会の会合や学会誌、国際会議等で積極的に発表していくこととする。

添付資料—2

**研究開発課題評価委員会  
「長寿命核種の分離変換技術の研究開発」の評価結果(事前評価)  
に対する措置<sup>脚注1)</sup>**

平成 12 年 8 月 10 日  
核燃料サイクル開発機構

「長寿命核種の分離変換技術の研究開発」のうち、今回評価の対象とした、基礎・基盤に関する研究計画について、適切であるという評価を頂いたので、本計画に従い研究開発を進めていくこととします。

なお、主要な御指摘については以下の措置をとるとともに、その他の御指摘についても計画書に反映し研究開発を進めています。

**1. 研究開発の進め方**

「適切な年限ごとに評価を行い、それに応じて分離変換技術の実用化計画を見直すことが望ましい。」、「長期間にわたる研究開発が必要であるため、研究の進展に応じ、また実用化戦略調査研究の進捗度、選択肢の絞込みに応じて柔軟に対応することが望ましい。」という御指摘に対し、

- ・5年毎を目安にチェック・アンド・レビューを行い、研究計画を見直して行きます。
- ・実用化戦略調査研究と基礎・基盤研究は、緊密な連携を取って研究を進め、両者の研究成果を反映して、計画の見直し、実施に柔軟に対応していきます。

また、「分離変換技術に伴って発生する二次廃棄物の処理・処分等の課題にも留意して研究を進める必要がある。」という御指摘に対し、

- ・分離技術の研究は、発生する二次廃棄物が、処理・処分に適した性質を有するかどうかについても考慮して進めていきます。また、二次廃棄物発生量の低減方策についても検討していきます。

**2. 国内外の研究機関、大学との協力**

「国内外の研究機関、大学等との連携の中で、効率良く実施していくことが望ましく、それらの機関との間の協力体制作りが重要である。」という御指摘に対し、

---

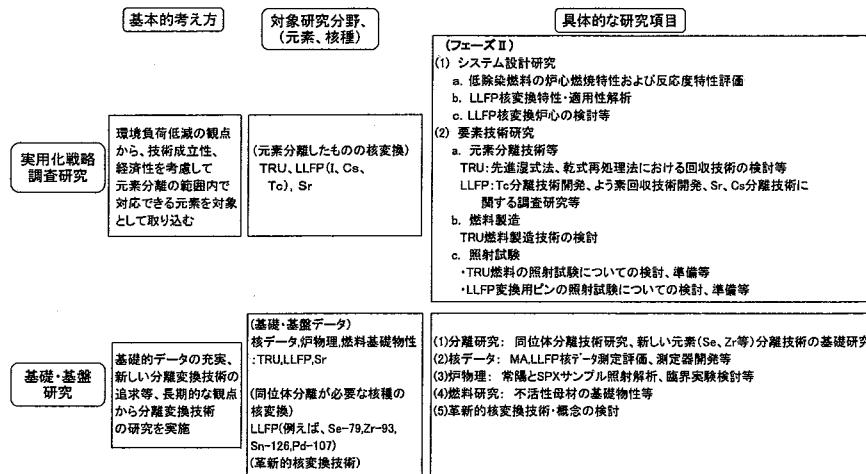
脚注1) 核燃料サイクル開発機構ホームページ  
(<http://www.jnc.go.jp/siryou/hyouka/HY000905/>)で公開している。

- ・国内外の研究機関、大学等のそれぞれの持っているポテンシャルを十分に引き出せるように、研究協力体制を構築していきます。原研との間では、当面の役割分担について合意しています。今後は、研究の進展に伴い協議し、役割分担を見直していきます。また、理研、大学、海外の研究機関との協力についても協議を進め、実効的な連携が行われるように努力していきます。

### 3. 成果に対する情報公開

「研究成果は学会などを通じて速やかに公開するとともに、専門家の評価を受けることが望ましい。また、本研究の背景を考えれば、国民一般に成果を明らかにし、原子力への理解を得られるようにすることも重要である。」という御指摘に対し、

- ・成果は速やかに公開するとともに専門家による評価を受けていきます。また、一般の人にも分かりやすい公表の仕方を検討し、理解が深まるように努力していきます。



第 A1, 1 図 長寿命核種の分離変換技術研究開発における実用化戦略調査研究と基礎基盤研究の役割分担（事前評価）

#### 事前評価時の分離変換技術の基礎・基盤研究に関する5年間の計画

研究項目	年	2000	2001	2002	2003	2004	2005
1. 実用化戦略調査研究							
2. 基礎・基盤研究							
①分離技術	フェーズ1			随時成集 後反映	随時成集 後反映		
②核データ	設計側から の対象LLFP の提示	新しい分離技術調査 分離抽出剤基礎試験	新しい分離技術調査 分離抽出剤基礎試験	LLFP同位体分離 技術調査・基礎試験	LLFP同位体分離 技術調査・基礎試験	LLFP同位体分離 の適用性評価	
③炉物理	(0.2億円)	MA断面積測定評価 LLFP断面積測定評価 測定器開発	MA断面積測定評価 LLFP断面積測定評価 測定器開発	高精度測定器を用いたMA, LLFP断面積 測定評価、 測定器改良設備、 崩壊熱測定準備	高精度測定器を用いたMA, LLFP断面積 測定評価、 測定器改良設備、 崩壊熱測定	高精度測定器を用いたMA, LLFP断面積 測定評価、 崩壊熱測定	
④燃料	(0.35億円)	常陽照射サンプル解 析、 スーパーフェニック MAFPサンプル照 射後試験、 臨界実験の検討	常陽照射サンプル解 析、 スーパーフェニック MAFPサンプル照 射後試験、 臨界実験の検討	スーパーフェニック MAFPサンプルの 変換率等の解析、 臨界実験の検討	スーパーフェニック MAFPサンプルの 変換率等の解析、 臨界実験計画策定	解析結果のコード 精度向上への反 映、臨界実験準備	
⑤革新的核変換概念	(0.25億円)	不活性母材の調査検討 DEAとの情報交換	TRU入り不活性母材の 基礎物性試験準備	TRU入り不活性母材 の基礎物性試験	TRU入り不活性母材 の基礎物性試験	TRU入り不活性 母材の共存性等 試験	
	(0.1億円)	核変換効率向上を目指した革新 炉心の検討	革新炉心概念 設計評価				

第 A. 1, 2 図 基礎・基盤研究に関する事前評価段階での計画