

特集 放射性物質と放射線 —その基礎から除染まで—

核分裂炉における放射性物質の生成及び燃料サイクルの基礎

Fundamentals of Radioactive Material Production in Nuclear Fission Reactors and of Nuclear Fuel Cycle

森 山 裕 丈*

Hirotake Moriyama

1. はじめに

核分裂炉（または原子炉）は、ウランなどの核分裂性物質を燃料として、中性子による核分裂の連鎖反応を制御しながら持続させる核反応装置である。核分裂炉で発生するエネルギー、即ち発熱量は、化石燃料の燃焼反応に比べると桁違いに大きく（単位重量当たりの燃料で百万倍のオーダー）、今日では広く発電に利用されている。また中性子が多量に発生するのでエネルギー源としての利用に止まらず、産業利用や学術研究などのための中性子源としても利用されている。

核分裂炉では、ウランの同位体（原子番号 Z が同じで質量数 A が異なる原子核）の一つ、ウラン235 (^{235}U) の核分裂反応とともに、燃料や炉材料中の種々の原子核による中性子捕獲反応等の中性子核反応、それに伴う放射性崩壊が並行して起こる。このため、特に燃料中には、セシウム137 (^{137}Cs) などの核分裂生成物 (fission product, FP) とともに、プルトニウム239 (^{239}Pu) などの超ウラン (trans-uranium, TRU) 核種（原子核の種類）が生成・蓄積する。いわゆる核燃料サイクルの一環として、使用済燃料の再処理、放射性廃棄物の処理処分が行われる所以である。

本稿では、ハンドブック¹⁾などを参考に、核分裂炉での放射性物質の生成と燃料サイクルの基礎について概説する。

2. 核分裂とエネルギー

2.1 原子核の質量と結合エネルギー

化石燃料の燃焼などの化学反応では質量保存の法則が成り立つとされているが、核分裂や核融合などの原子核の反応では成立しない。Einsteinの特殊相対性理論によれば質量とエネルギーは等価 ($E=mc^2$) であり、原子核の反応では反応前後の物質（原子核）の質量が変化し、大きなエネルギーの授受が起こるからである。化学反応ではその反応に関わる物質の構造や安定性（もしくは結合エネルギー）を理解する必要があるように、核反応の場合は原子核の構

造と安定性を理解する必要がある。

縦軸を原子番号 Z （陽子数）、横軸を中性子数 N として、図1の核図表に、安定な原子核の分布を示す。原子核を構成する陽子と中性子は、核子と総称され、核力と呼ばれる強い力で互いに結合しているが、安定な原子核は β 安定曲線と呼ばれる曲線上に分布し、この曲線から離れるほどに不安定性が増す。この図から、原子核の安定性について、例えば Z や N が偶数の場合に安定な原子核が形成されること、質量数 A （核子数： $Z+N$ ）が大きくなるにつれて、安定な原子核では陽子数に比して中性子数が増えることなどが読み取れる。図中の数字（2, 8, 20, 28, 50, 82, 128）は、原子核内の核子の殻構造によるものであり、魔法数と呼ばれる。 Z や N がこれらの数になるとより安定な原子核が形成される。

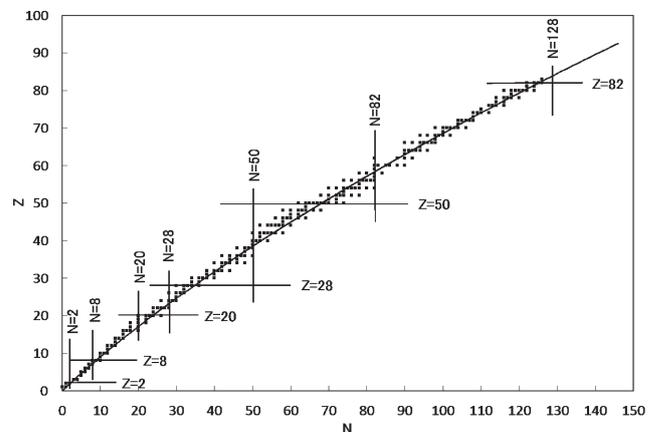


図1 安定な原子核の分布と魔法数

原子核の結合エネルギーは非常に大きいので、ある原子核の質量はそれを構成している陽子と中性子がそれぞれ単独に存在している場合の質量の合計より小さくなる。この質量の差、即ち質量欠損の値から原子核の結合エネルギーが計算される。得られた核子当たりの結合エネルギーを図2に示す²⁾。図から、結合エネルギーは質量数50~60で最も大きく、鉄の付近の元素や原子核が最も安定であることがわかる。 ^{235}U の核分裂の場合、後で述べるように140付近と95付近の2つの原子核に分裂するので、分裂前後の原子核で核子当たりの結合エネルギーが増して質量欠損が

*京都大学原子炉実験所

〒590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西2-1010

E-mail: moriyama@rri.kyoto-u.ac.jp

生じ、エネルギーが発生する。核融合のように、水素などの軽い2つの原子核が融合する場合も同様である。

なお、核反応で授受されるエネルギーの大きさは、反応前後の物質の質量の差から計算できる。²³⁵Uの核分裂の場合、約200MeV (2×10^{10} kcal/kg) のエネルギーが発生する。

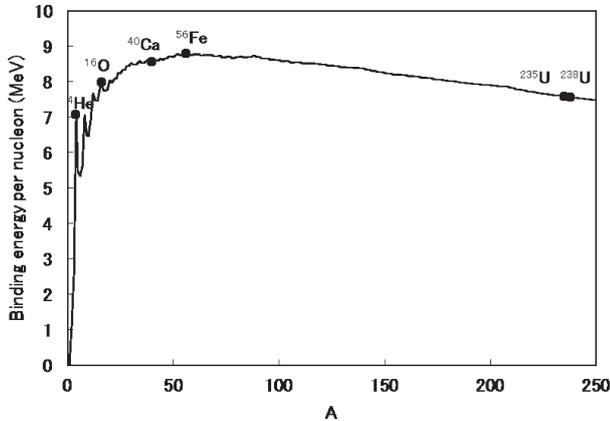


図2 核子当たりの結合エネルギー

2.2 放射性崩壊

図2からもわかるように、鉄の付近の元素や原子核が最も安定であり、これに比べると、その他の元素や原子核は不安定である。不安定性が大きくなるとその原子核はより安定な原子核へと自発的に崩壊（壊変）する。これが放射性崩壊である。放射性崩壊は圧力、温度などによらず時間だけに依存し、放射性核種の半分が崩壊するのに必要な時間を半減期 (half-life) と称する。代表的な崩壊形式として、 α 崩壊、 β 崩壊、 γ 崩壊がある。

α 崩壊では、 α 粒子 (α 線) としてヘリウムの原子核 (⁴He) が放出され、親となる核種から質量数が4、原子番号が2小さい娘核種が生成する。崩壊に伴って失われた質量に相当するエネルギーはこの崩壊のQ値と呼ばれる。重い核種の α 崩壊ではこのエネルギーの大部分が α 粒子の運動エネルギーとなるが、 α 粒子を閉じ込めている原子核の障壁を通り抜ける（透過する）必要があり、天然の放射性核種では希土類の一部とウランなどの原子番号82以上の核種で α 崩壊が起こる。一般にQ値が大きくなると、 α 粒子のエネルギーが大きくなり、その崩壊の半減期が短くなる。

β 崩壊は、親核種の質量数が変化せず原子番号が変化する崩壊形式であり、 β 線として陰電子または陽電子が放出される場合や、原子の軌道電子が原子核に捕獲される場合 (electron capture, EC) がある。例えば陰電子が放出される場合は、親核種から質量数が同じで原子番号が1大きい娘核種が生成する。 β 線とともにニュートリノ (中性微子) と呼ばれるもう一つの粒子が放出されるので、 α 崩壊とは異なり、 β 線のエネルギーは特定の値にならず、0からQ値の近くまで連続的な分布を示す。核分裂で生成する

核種は中性子過剰となっており、陰電子を放出する β 崩壊によって安定な核種へと連鎖的に崩壊する (崩壊連鎖)。

γ 崩壊は、励起状態の核種からその過剰なエネルギーが γ 線 (電磁波) として放出される場合であり、 γ 線を放出する核種の質量数も原子番号も変化しない。 α 崩壊や β 崩壊で生成する娘核種は γ 崩壊を起こす場合が多く、このため、燃焼中の核燃料や使用済燃料には、ウランなどの α 線を放出する核種とともに、核分裂で生成したのと同じ β 線や γ 線を放出する核種が燃料の燃焼度 (burnup, MWd/t) に応じて多量に含まれる。

2.3 核分裂

H. Becquerelによる放射能の発見 (1896年) に続いて、放射性崩壊や同位体の存在が発見され、1920年に中性子が発見されてからは、電荷がないので核反応を起こしやすいということで、中性子をさまざまな原子核に照射する研究が進められ、1938年から1939年にかけてウランの核分裂が発見、報告された。

図3に²³⁵Uの核分裂反応の様子を示す。核分裂は²³⁵Uのような核分裂性 (fissile) の原子核が中性子と反応 (相互作用) することによって起こる。形成された不安定な複合核²³⁶Uは2つの核分裂片 (原子核) に分裂し、分裂前後の原子核の質量の差に相当する膨大な量のエネルギーを放出し2~3個の新しい中性子を放出する。条件がよければ、放出された中性子は別の²³⁵Uと反応し、核分裂連鎖反応を起こす。連鎖反応の速度を一定に保つには、中性子の密度を制御する必要があり、余分の中性子を制御棒に含まれているホウ素¹⁰(¹⁰B) など、非核分裂性の原子核に吸収させる。

なお、核分裂反応の過程で放出される中性子に加えて、核分裂によって生じた核分裂生成物から放出される中性子があり、前者を即発中性子、後者を遅発中性子と言う。原子炉の運転に際しては、後者の寄与も考慮する必要がある。

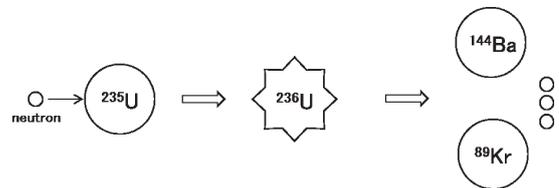


図3 ²³⁵Uの核分裂の例

3. 核分裂で生成する放射性物質

3.1 核分裂生成物 (FP)

図4に²³⁵Uの核分裂片質量分布³⁾を示す。図からわかるように、核分裂では、140付近と95付近の2つの原子核に分裂し、さまざまな放射性核種が核分裂生成物として生成される。2つのピークがみられることについては、図1に示された魔法数を考慮すれば、140付近のピークがZ=50

^{235}U が中性子を吸収 (absorption) すると主に核分裂を起こすが、一部は中性子を捕獲 (capture) して非核分裂性の ^{236}U になる。また ^{238}U が中性子を吸収すると短寿命の ^{239}U となり、2回の β 崩壊を経て核分裂性の ^{239}Pu となる。この ^{239}Pu が中性子を吸収するとその多くは核分裂するが、一部は中性子を捕獲して ^{240}Pu となる。続いて ^{240}Pu がもう1個の中性子を吸収すると核分裂性の ^{241}Pu となり、その一部から β 崩壊や中性子捕獲反応によってそれぞれ ^{241}Am や ^{242}Pu が生成する。燃料の燃焼に伴いこれらのTRU核種が蓄積して核分裂連鎖反応の持続性 (反応度) に影響を与える。また核分裂生成物と比較して半減期が長くその多くは α 崩壊を起こすので、使用済燃料の処理処分の際に留意する必要がある。

図6に軽水炉の例として、加圧水型炉 (PWR)、燃焼度60GWd/tの使用済燃料の崩壊熱とその成分を示す⁴⁾。図には示されていないが、原子炉停止直後の全崩壊熱 (図5の場合は約2.2MW/t) は、燃料の初期組成や燃焼度によらず、その95%程度が短寿命のFPによるものである。時間の経過とともに、FPの成分は急激に減少し、停止後60~70年でTRU成分より少なくなる。

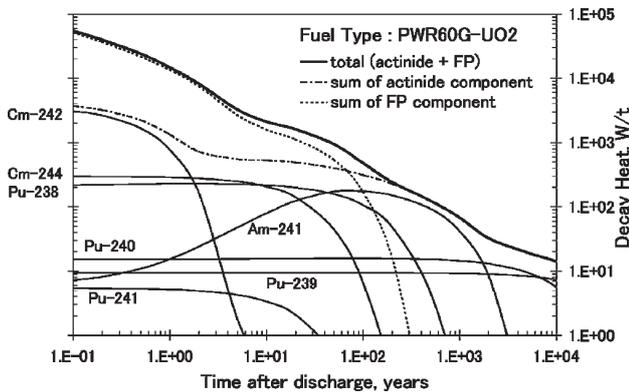


図6 使用済燃料 (60GWd/t) の崩壊熱⁴⁾

3.3 放射化生成物

中性子は燃料ばかりではなく、冷却材や構造材中の原子核とも反応するので、それらの材料中には中性子捕獲反応等の中性子核反応による放射化生成物 (activation product) が蓄積する。このため、軽水炉の場合、その冷却水には水や水中の不純物からの放射化生成物 (^{16}N や ^{24}Na)、また放射化した構造材からの腐食生成物 (^{51}Cr , ^{58}Co , ^{60}Co など) が含まれる。 ^{16}N は原子炉運転中の主な γ 線核種として遮蔽設計上重要であり、 ^{51}Cr などの腐食生成物は定期検査時等の被曝線源として安全管理上重要である。

4. 燃料サイクル

4.1 燃料サイクルの構成

天然に存在するウランが核燃料として利用されるまで、および原子炉から取り出された後、廃棄物として処理処分されるまでの全過程を核燃料サイクル (nuclear fuel cycle)、または単に燃料サイクルという。そして、特に原子炉で利用するまでを核燃料サイクルの上流部 (up-stream)、原子炉から取り出された後を下流部 (down-stream) といい、濃縮ウランを燃料とし、再処理を行う軽水炉燃料の場合を例にとると、図7に示すように、概ね次の諸過程に分けられる。

- ①採鉱・製錬 (mining・refining)
- ②転換・濃縮 (conversion・enrichment)
- ③再転換・加工 (re-conversion・fabrication)
- ④原子炉 (reactor)
- ⑤冷却・貯蔵 (cooling・storage)
- ⑥再処理・MOX加工 (reprocessing・MOX fabrication)
- ⑦廃棄物処理処分 (waste treatment & disposal)

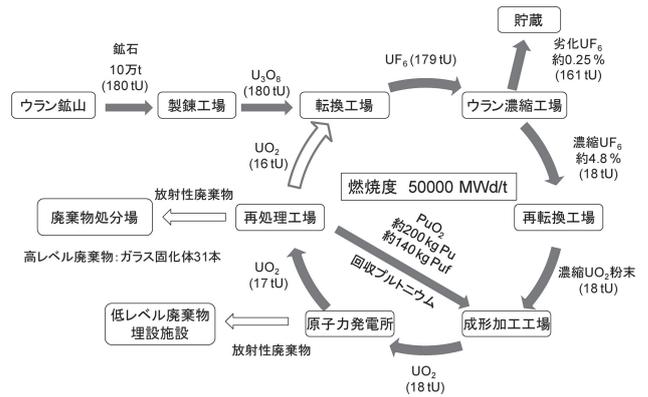


図7 燃料サイクル (数字は100万kW級PWRの年間所要量¹⁾)

ウラン鉱石から原子炉燃料としてのUもしくはその化合物を得る工程は、鉱石よりイエローケーキと呼ばれる精鉱 (U_3O_8) を得るまでの粗製錬と、イエローケーキから UF_4 等に至るまでの精製錬とに分けられる。粗製錬は鉱山現場あるいはそれに近い場所で行われ、精製錬は転換とともに別の場所で行われるのが通例であり、軽水炉のように濃縮Uを必要とする場合は、転換工場において F_2 ガスによるフッ化で UF_4 を沸点 56.5°C の UF_6 に転換する。転換工場で作られた UF_6 は、ウラン濃縮工場に送られ、濃縮が行われる。ウラン濃縮は、核分裂性の同位体である ^{235}U の濃度を天然の0.7%から軽水炉燃料に必要な3~5%まで高めるものであり、核燃料サイクル上流部の要とも言える過程である。代表的な方法としては、ガス拡散法と遠心分離法がある。ウラン濃縮工場で作られた濃縮ウランは UF_6 であり、 UO_2

等への再転換を経て、燃料集合体へ成型加工される。なお、軽水炉の使用済燃料から回収されたPuを再び利用する、いわゆるMOX燃料の場合も、Puの添加割合が比較的小さいので、加工の工程はほぼ同様である。

軽水炉での燃焼に伴い、核分裂性物質 (^{235}U) の減少、FPの生成、非核分裂性TRU (^{237}Np , ^{241}Am , ^{242}Cm など) の蓄積が進み反応度が低下する。核分裂親物質 (fertile materials, ^{238}U) からの新しい核分裂性物質 (^{239}Pu) の生成も進み、これは反応度を上昇させる方向に働くが、通常の軽水炉では全体として反応度の低下は避けられない。また放射線損傷などのために燃料体の健全性が低下する。このため、燃料は一定の燃焼を終えると原子炉外に取り出され、冷却・貯蔵を経て再処理工場に送られる。

冷却・貯蔵を経た使用済燃料は、再処理工場において順次再処理されるが、その目的は、未使用Uの回収、Puの回収、FPやTRUの分離であり、技術的には製錬の工程と類似する点が多い。再処理工程に特有の問題は、高放射線対策 (従事者に対する放射線障害防止、再処理工程での放射線効果対策など)、臨界安全管理 (臨界事故防止) である。軽水炉燃料に対して現在広く実用化されている再処理の方法は、湿式法の一つでPUREX法と呼ばれるものであり、これは、使用済燃料を硝酸水溶液に溶解し、有機溶媒を用いる溶媒抽出法によりU, Pu, FP等を分離するものである。

4.2 放射性廃棄物

核燃料サイクルにおける各施設の運転には、放射性廃棄物の発生が伴う。発生する放射性廃棄物の形態とその量は種々様々であり、管理に当たって何らかの適切な操作を加えることを処理 (treatment) という。また、放射線のレベルに従って、環境に放出、あるいは環境から隔離する最終的な過程を処分 (disposal) という。

軽水炉発電所での放射性廃棄物の場合、主な発生源は、燃料体からのFPの漏洩 (leak) によるものと腐食生成物、空気および水自体の放射化によるものである。問題となる核種は、気体では ^{85}Kr , ^{133}Xe , 液体では ^3H , ^{51}Cr , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{131}I , ^{133}I , ^{137}Cs などであり、処理の方法としては、気体の場合は吸着法、液体の場合はイオン交換法などが採用されている。国際放射線防護委員会 (ICRP) によれば、放射線はいかに微量でも生体に影響を与えるものとして取り扱い、環境への放出などはALARA (as low as reasonably achievable) の精神に基づいてできる限り少なくすることが目標とされている。我が国では、これらの発電所からの放射性廃棄物は低レベル放射性廃棄物として区分され、処理、処分されている。

一方、再処理工場では種々の廃棄物が発生するが、特に問題となるのは放射能レベルの高い、いわゆる高レベル放射性廃棄物 (HLW) である。放射性廃棄物の管理に関す

る負担および安全性に対する懸念は後世に残さないことが望ましく、このため、HLWの処分 (場合によっては使用済燃料の直接処分) については、従来いくつかの方法が提案され、検討されている。その結果、現在では多くの国々で、これらの放射性廃棄物を深地層に処分して生活圏から隔離する、いわゆる地層処分の方法が最も確実として選択され、その実施に向けて種々の取り組みが進められている。

図8に、PWRの使用済燃料 (45GWd/t, 5年冷却) の潜在的放射性毒性を示す⁵⁾。潜在的放射性毒性とは、公衆への影響を表す指標として、使用済燃料に含まれる各核種の放射能 (Bq) を公衆の経口摂取による被ばく線量 (Sv) に換算して得られるものであり、比較のため、新燃料1tを得るために必要な天然ウラン7.5tの毒性も示している。 α 線、 β 線、 γ 線、そしてそれらのエネルギーの人体への影響の違いが考慮されており、この図から、特に長期的には α 線を放出する核種の影響が重要であることがわかる。HLWの処分あるいは使用済燃料の直接処分の安全性評価の研究において、TRUが重要視される所以である。

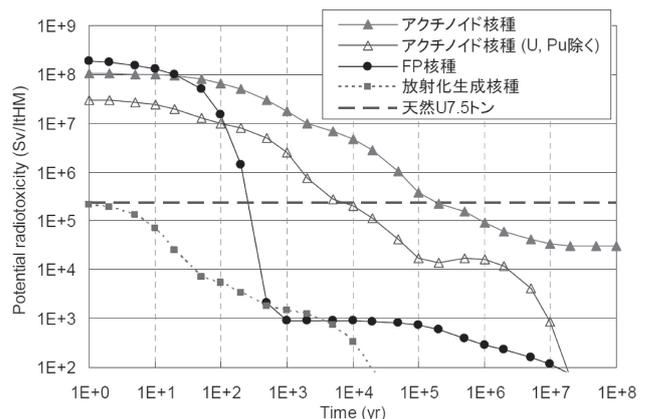


図8 使用済燃料 (45GWd/t) の潜在的放射性毒性⁵⁾

なお、HLWの問題に対しては、HLWの資源化とその処分の効率化の観点から、HLWに含まれる元素や放射性核種をその半減期や利用目的に応じて分離するとともに、TRUなどの長寿命核種を短寿命核種に変換する技術の研究も行われている。

5. おわりに

本稿では、核分裂炉での放射性物質の生成と燃料サイクルについて、特に軽水炉関係のデータを用いて説明した。1950年代に開発された軽水炉については既に半世紀以上の歴史を重ねているが、将来に向けてはその改良を含めて、次世代の核分裂炉に関する研究開発が行われている。これまでに蓄積された知見や経験は、これらの次世代の核分裂炉とその燃料サイクルに活かされていくものと期待される。

なお、本稿で述べた事柄の一部、即ち原子核の崩壊や核

反応, また核分裂とその利用については, 放射線の特徴や利用とともに, 高等学校で学ぶことになっている. 体系的に学ぶのは大学以降である.

参考文献

- 1) 原子力ハンドブック編集委員会; 原子力ハンドブック, (2008), オーム社.
- 2) G. Audi, A.H. Wapstra and C. Thibault; The AME2003 atomic mass evaluation (II). Tables, graphs and references, Nuclear Physics A, 729, (2003), 337-676.
- 3) K. Shibata, T. Kawano, T. Nakagawa, O. Iwamoto, J. Katakura, T. Fukahori, S. Chiba, A. Hasegawa, T. Murata, H. Matsunobu, T. Ohsawa, Y. Nakajima, T. Yoshida, A. Zukeran, M. Kawai, M. Baba, M. Ishikawa, T. Asami, T. Watanabe, Y. Watanabe, M. Igashira, N. Yamamuro, H. Kitazawa, N. Yamano and H. Takano; "Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision-3: JENDL-3.3," J. Nucl. Sci. Technol. 39, 1125 (2002).
- 4) 羽倉尚人, 吉田 正; 軽水炉における使用済みMOX燃料からのアクチニド崩壊熱の核データ由来の誤差評価, 日本原子力学会和文論文誌, 9, (2010), 29-39.
- 5) 西原健司; 使用済核燃料の潜在的放射性毒性評価のためのデータベース, JAEA-Data/Code 2010-012, P.17, 図5, (2010).