

氏 名	篠 原 伸 夫
授 与 学 位	工 学 博 士
学位授与年月日	平成 2 年 12 月 12 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 5 条第 2 項
最 終 学 歴	昭 和 54 年 3 月 東北大学大学院工学研究科原子核工学専攻 前期 2 年の課程修了
学 位 論 文 題 目	使用済核燃料中のアクチニドの定量法の開発
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 井上 泰 東北大学教授 武部 雅汎 東北大学教授 秋葉 健一 東北大学助教授 朽山 修

## 論 文 内 容 要 旨

原子炉から取り出された使用済核燃料には核分裂生成物および燃え残ったウランの他に、ネプツニウム、プルトニウム、アメリシウム、キュリウムなどのアクチニドが生成蓄積している。これらのアクチニドは多くが長寿命であり、しかもその大部分が危険度の高い $\alpha$ 放射性核種である。アクチニドの生成量ならびにこれらの元素の同位体組成に関する情報を正確に知ることは、使用済核燃料を安全に処理処分するための最も基本的でしかも非常に重要な研究課題である。しかしアクチニドはその取り扱いが難しいため、十分な研究成果があがっていないのが現状である。

使用済核燃料中のアクチニドを分析するには、 $\alpha$ 放射性核種を定量する必要がある。このためには使用済核燃料集合体を解体して燃料を取り出し、これを酸で溶解して化学分離する破壊法によらざるをえない。この破壊分析では次のような条件が満足されなければならない。すなわち

- (1) 使用済核燃料は放射線量レベルが高いので、ホットセル内作業のような遠隔操作ができること。
- (2) 被曝を最小限にするために、少ない試料で分析できること。
- (3) 分析操作が簡単で時間がかからないこと。
- (4) 分析結果の信頼性、すなわち精度と正確さに優れること。
- (5) 機器や器具の不必要な汚染がなく、廃棄物を少なくできること。

これまで破壊法によって使用済核燃料中のアクチニドの生成量を測定した例は極めて少なく、特に分析データの信頼性に問題があった。しかもこれまでの分析方法では、入手困難な特殊な標準試料が必要であったり、化学操作が複雑であった。このため分析に時間がかかり、日常分析には適さなかった。

本論文は、使用済核燃料中の主要アクチニド核種を定量する目的で、従来から実施されている方法にみられる欠点がなく、かつ上記の諸条件を満足する分析法を研究開発した結果をまとめたものである。

本論文は全編6章からなり、以下その概略を述べる。

## 第I章 緒 言

第1節では、核燃料サイクルで生成するアクチニド核種の一般的な特徴と問題点を述べた。

第2節では、使用済核燃料の破壊分析の条件を述べた。

第3節では、本研究の目的と意義について述べた。また、本論文の構成の概略を示した。

## 第II章 原子炉におけるアクチニドの生成と消滅

第1節では、核燃料の燃焼にともなうアクチニドの生成について概観した。

第2節では、使用済核燃料中のアクチニドの組成について分析値とORIGENコードを用いた計算値を対比した。

## 第III章 従来の使用済核燃料の分析法

従来の使用済核燃料の分析法の大要を述べ、問題点を指摘した。次いで、本研究で開発した分析法の特徴を述べた。

## 第IV章 アクチニドの定量方法

第1節では、本研究で開発したアクチニドの定量法の概要を述べた。

第2節では、測定誤差を概説し、次いで本論文で述べる精度と正確さを明確にした。

第3節では、使用済核燃料からアクチニドを相互に化学分離して目的元素を定量するために、系統的な3段階のイオン交換分離法を検討した。

硝酸および塩酸を主な溶離液とする陰イオン交換法(分族分離)により、希土類元素+超プルトニウム元素、ウラン、ネプツニウム、プルトニウムの各フラクションに分離した。

この希土類元素+超プルトニウム元素フラクションについては、さらに硝酸-メタノール系の陰イオン交換法(超プルトニウム元素の相互分離)によりアメリシウム、キュリウムおよび燃焼度モニターのネオジムを相互分離した。

また、分族分離で得たネプツニウムフラクションについては、ネプツニウムの $\alpha$ 線スペクトロメトリーのために硝酸と塩酸を溶離液とする陰イオン交換法(ネプツニウムの分離精製)によりネプツニウムを精製した。

以上のイオン交換法により、目的のアクチニドが簡単にしかも純度よく単離できることを明らかにした。

第4節では、質量分析法によるウラン、プルトニウム、アメリシウム、キュリウムおよびネオジムの同位体比測定法を検討した。

$^{233}\text{U}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  をスパイクとする同位体希釈質量分析法により、ウランとプルトニウムを分析誤差 0.3–1.4% で定量できることを明らかにした。また、 $^{150}\text{Nd}$  をスパイクとする同位体希釈質量分析法によるネオジムの定量値から、使用済核燃料の燃焼度を求めた。

1 粒のイオン交換樹脂を直接フィラメントにのせて質量分析を行うレジン・ビーズ法により、ウランとプルトニウムの同位体組成が同時にしかも 0.1–1% の精度で測定できることがわかった。

また、使用済核燃料の燃焼度の算出法を整理した。

第 5 節では、アクチニドを対象とする  $\alpha$  線スペクトロメトリーを述べた。

まず、 $\alpha$  放射能測定用線源の作製法を検討した。イソプロピルアルコール–塩酸系の電着法により、分解能の優れた (14.2–17.9keV, FWHM) 線源を作製できることを明らかにした。さらに、テトラエチレングリコールを用いて試料溶液を直接蒸発乾固することにより (直接蒸発乾固法)、簡単でしかも分解能の良い (20–30keV, FWHM) 線源を製作できることがわかり、使用済核燃料の分析に応用できることを示した。

次に、 $\alpha$  線スペクトロメトリーによる同位体希釈分析法を検討し、プルトニウムを分析誤差 0.13% で定量できることを把握した。

次いで、この方法を用いて  $\alpha$  線検出器の検出効率を校正するための高性能  $^{238}\text{Pu}$  標準線源 (放射能誤差 0.15–0.25%) を作製した結果を述べた。

第 6 節では、質量分析および  $\alpha$  線スペクトロメトリーを併用してアメリカシウムとキュリウムを定量した結果を述べた。

従来の方法では、アメリカシウムとキュリウムを定量的に (100% の収率で) 化学分離したのちに  $\alpha$  放射能を測定していた。しかし定量的分離は非常に困難であるため、分析値の信頼性に問題があった。また標準物質 (アメリカシウムおよびキュリウム金属) を用いる同位体希釈分析法も実施されているが、この標準物質の入手は困難である。

そこで、新しい分析法を開発した。すなわち、直接蒸発乾固法により  $\alpha$  放射能測定用線源を作製し、 $\alpha$  線スペクトロメトリーによりプルトニウムに対するアメリカシウムおよびキュリウムの  $\alpha$  線放射能比を求めた。さらに同位体希釈質量分析法で求めたプルトニウムの定量値と上記  $\alpha$  線放射能比の値から、アメリカシウムとキュリウムの量を算出した。また、 $\alpha$  線スペクトロメトリーで測定するのが困難な  $^{242\text{m}}\text{Am}$ ,  $^{245}\text{Cm}$ ,  $^{246}\text{Cm}$  については、質量分析法によりアメリカシウムおよびキュリウムの同位体組成を測定して定量した。アメリカシウムおよびキュリウムの分析誤差を 2.5–4.5% と評価した。

第 7 節では、使用済核燃料中に存在する  $^{243}\text{Am}$  と放射平衡にある  $^{239}\text{Np}$  を化学分離の収率モニターとしてネプツニウム ( $^{237}\text{Np}$ ) を定量した結果を述べた。

すなわち、第 6 節で述べた方法によって定量した  $^{243}\text{Am}$  との放射平衡関係から、化学分離前の燃料中の  $^{239}\text{Np}$  の量を算出した。次いで化学分離後のネプツニウムフラクション中の  $^{239}\text{Np}$  を  $\gamma$  線スペクトロメトリーにより定量した。化学分離前後の試料中の  $^{239}\text{Np}$  の含有量からネプツニウムの化学収率を求めた。

次に、化学分離後のネプツニウムフラクション中の  $^{237}\text{Np}$  の  $\alpha$  放射能あるいは  $^{237}\text{Np}$  の娘核種の

$^{233}\text{Pa}$ の $\gamma$ 線を測定して $^{237}\text{Np}$ の量を求め、化学収率を補正して使用済核燃料中の $^{237}\text{Np}$ を定量した。ネプツニウムの分析誤差を5%と評価した。

## 第V章 使用済核燃料中のアクチニドの分析

第1節では、これまで述べてきた研究結果を基に、新たに開発したアクチニドの定量方法を提案した。さらに、本法の分析誤差をまとめた。

第2節では、上記第1節で提案した分析法を実際の使用済核燃料中のアクチニドの定量に応用した結果を述べた。

## 第VI章 総 括

本論文に記述した研究成果を総括し要約した。

本研究で開発した分析法により、使用済核燃料中の主要アクチニド、すなわち $^{234}\text{U}$ — $^{238}\text{U}$ 、 $^{237}\text{Np}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ — $^{242}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$ — $^{243}\text{Am}$ および $^{242}\text{Cm}$ — $^{246}\text{Cm}$ の生成量を知ることができる。これらの分析値は、原子炉中での核燃料の燃焼挙動の把握や、核燃料サイクルにおける再処理および廃棄物の処理処分のための基礎資料となるものであり、本分析法の有用性は高いと考えられる。

## 審査結果の要旨

使用済核燃料中に含まれているアクチニド諸核種の量は、核燃料サイクル諸工程の設計のための基礎資料としてきわめて重要である。それにもかかわらず、これらを正確に定量する方法は未だ十分に確立されていない。本論文は、使用済核燃料中に含まれるアクチニド諸核種を比較的簡単な操作で迅速、かつ正確に定量する方法を確立した研究の経緯を述べたものであり、全編6章よりなる。

第1章は緒言であり、本研究の背景と目的を述べている。

第2章では、核燃料中における燃焼に伴うアクチニド核種の生成量を概説している。

第3章では、従来の分析法の問題点を明らかにしたのち、本研究で開発した方法の特徴を述べている。

第4章では、分析法の検討結果を述べている。すなわち、(1) 溶離液として主に硝酸および塩酸を用いる陰イオン交換法により Nd, U, Np, Pu, Am および Cm をそれぞれ単離する方法を確立している。(2) 質量分析による U, Pu, Am, Cm, および Nd の同位体比測定法を検討し、 $^{233}\text{U}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{150}\text{Nd}$  をスパイクとする同位体希釈質量分析法 (IDMS) により U, Pu, Nd を分析誤差 0.3~1.4% で定量できることを示している。また、本法をレジソ・ビーズ法に適用し核拡散防止条約の保障措置のための分析法にも有効であることを明らかにしている。さらに Nd の定量値から使用済核燃料の燃焼度を求めている。(3)  $\alpha$ 線スペクトロメトリー用の高分解能線源を得る方法を確立している。また、0.13%の誤差で Pu を定量できる  $\alpha$ 線スペクトロメトリーによる同位体希釈分析法を開発している。これらの方法を用いて  $^{238}\text{Pu}$  標準線源を作製している。(4) Am と Cm を、IDMS による Pu の定量値と、Pu に対する Am と Cm の  $\alpha$ 放射能比とから 2.5~4.5% の誤差で定量する方法を確立している。(5)  $^{243}\text{Am}$  と放射平衡にある  $^{239}\text{Np}$  を化学収率モニターとして用い、 $\alpha$ 線あるいは  $\gamma$ 線スペクトロメトリーにより Np を 5% の誤差で定量する方法を開発している。

第5章では、第4章の研究結果を基に考えた使用済核燃料中のアクチニド核種の系統的な定量分析法を提案し、本法を実際の試料に応用した結果を述べている。

第6章は総括である。

以上、要するに本論文は、使用済核燃料中に存在するアクチニド諸核種を正確に定量できる日常分析法を開発したもので原子核工学発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。