



原子力工学第六講座(核燃料工学)

井 本 正 介*

本講座では核燃料——核反応によって生ずるエネルギーが利用できる燃料——に関する研究を行っている。核燃料とは、通常は原子炉の燃料、特にウランを指すわけであるが、核融合炉まで考えると、水素同位体(重水素、三重水素)もその中に含まれてくる。本研究室でも最近、後者の比重が増している。

現在の研究室の構成は、井本正介教授、三宅千枝助教授、足立裕彦助手、田辺哲朗助手、小倉恭子事務官の5職員の外、大学院学生6名、学部学生5名である。本研究室における主な研究テーマを基礎的なものと応用的なものに分けて次に簡単な説明と共に列挙し、研究室紹介にかえたいと思う。

1. 基礎研究

1. 1. ふつうでない原子価を持つウラン

「ふつうでない」とは unusual とか、less-common とかの意味で、英語でも un とか less がついている所を見ると、肯定的な用語はないようである。ウランはふつうは4価または6価の原子価を持つが、3価または5価のものも存在する。これらは一般には不安定であるが、安定・不安定は周囲の化学的環境にも依存するので、環境によっては安定に存在する。5価ウランについてはすでに数年間、いろいろの化合物を合成してきた。5価ウランは原子価電子としてはたった1このf電子を持つだけなので、その理論的取扱いが比較的容易である。UCl₅のような化合物では、その可視スペクトル、帯磁率、ESR を、ウランを5価イオンと考えることによってうまく説明できる。しかし NaUO₃ などでは同様の説明は成功していない。これは、NaUO₃ のウランを5価イオンと見ること

に無理があるためではないかと考えている。NaUO₃ は UCl₅ に比べると非常に安定であり、安定・不安定という一見、何でも無い事柄が、ある説明ができない・できるという問題と深くかかわっているようである。では同じようなことが3価のウランにもあるだろうか。これが次の課題であり、手はじめに UCl₃、UBr₃ などの化合物を合成しようとしている。本年の4月にホノルルで行われた日米合同化学会で、三塩化物によるアクチニド分離の研究が発表されていたが、これは核拡散防止に見合う再処理方式であり、われわれの研究も全く学問的な興味に止まるものではないと思う。なお、学問的な面では、NaUO₃ や UCl₅ には磁気的な超交換相互作用のあることが知られている。

1. 2. 遷移金属中の水素の電子状態

Sc から Cu に至る第一遷移金属の系列の金属が水素を吸収した場合、金属と水素との結合はどうなるか、また水素の電子状態はどこにあるか、金属間の結合は強くなるか、あるいは弱くなるのか、これが研究課題である。金属結晶の中に水素が入ったとき、水素原子は電子を失ってプロトンの形になる、という説が今までかなり支配的であった。いろいろの現象を説明する上で、水素を吸収したものではフェルミレベルが上昇すると考えた方がよく、フェルミレベルの上昇は水素原子から金属原子に電子が流れたからであると解釈されてきたからである。しかし、最近光電子分光や軟X線分光などによって、金属-水素の結合レベルがエネルギーの下の方に見出され、電子は、上記の説と逆に、金属原子から水素に流れていると考えねばならなくなり、かつて説明できた現象との間に矛盾があるように思えた。

この矛盾は次のようにうまく解決された。水素と金属との相互作用により、下の方に結合レ

* 井本正介 (Shosuke IMOTO), 大阪大学, 工学部, 原子力工学科, 教授, 工博, 核燃料工学

ベルが生じ、上の方に反結合レベルが生ずる。反結合レベルはもとの金属レベルよりも上位にあり、結局フェルミレベルは押し上げられることになる。すなわち、結合レベルの存在とフェルミレベルの上昇とはたがいに矛盾しない結果なのである。この研究は、研究室の足立博士が SCC-DV-X α 法という一種の分子軌道計算によって行ったものである。これは数年前に Ellis らによって開発された方法をさらに整備したもので、すでに多くの化合物、錯体、表面をシミュレートしたクラスター、結晶を近似したクラスターなどに適用して大きな成功を収めている。

1. 3. 金属の水素透過の研究

鉄鋼材料は一般に水素ガスを透過しやすいものである。これが原子力関係で特に問題となるのは、高温原子炉をナフサなどのクラッキングに用いようとする場合、核融合炉の第一壁の場合、ならびに三重水素の容器の場合である。このような場合、水素が鉄鋼材料の壁を透過して反対側に漏出することが大へん困るのである。今まで精密な測定を行ってきた所では、次のような中間結論を得ている。材料が鉄とニッケルとでできている限りでは、何のへんてつもない。しかし、クロムを含んだものでは、水素中に残っている僅かな酸素、または水蒸気によってクロムの酸化が起こり、材料表面に新しい表面層が形成される。Si や Mn も Cr に準ずる役割をする。その結果、水素透過速度は減少（場合によってはほぼ一桁も）する。これを利用して、はじめにうすい酸化層を作っておけば、材料の水素透過度を少なくできるわけである。所が核融合炉の第一壁のように、三重水素が高速で表面に衝突する場合には、この表面層をつき抜けてしまう可能性がある。しかも表面層をつき抜けた水素は大へん速く材料の壁を通り抜けるといわれている。一方、高速の水素イオンが材料表面に多量に衝突すると、表面に blister といわれている水ぶくれのようなものができる。また、一度吸収された水素が逆戻りして入射面から放出されることもある。写真 1, 2 はこれらの現象をしらべるためにつくられた装置で、これは水素イオンに関する限り、

いわばプラズマと第一壁との相互作用を模擬する装置といえよう。小型の軽イオン加速器 (30 KeV, 500 μ A), 二次イオン質量分析計 (SIMS), 四重極質量分析計 (QMAS) などから成っていて、入射後の水素透過、表面状態などをしらべることができる。表面状態については、同室にエネルギー分散型の走査型電顕もあり、表面の形状変化と化学組成を同時に知ることも可能である。今まで、SUS 316 を中心として、この装置で、先ず表面の characterization を行い、次に水素の注入による blister 生成をしらべ、表面形状の変化を見、さらに blister そのものに起こる化学組成の変化を見出してきた。今後は水素透過を含め、プラズマ-壁相互作用で一体何が起るかを少しでも知る方向に進みたいと考えている。

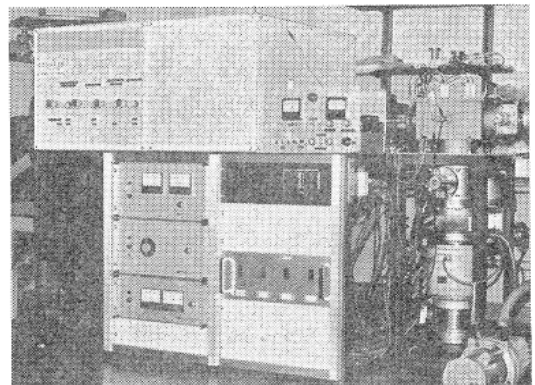


写真1. イオン注入装置

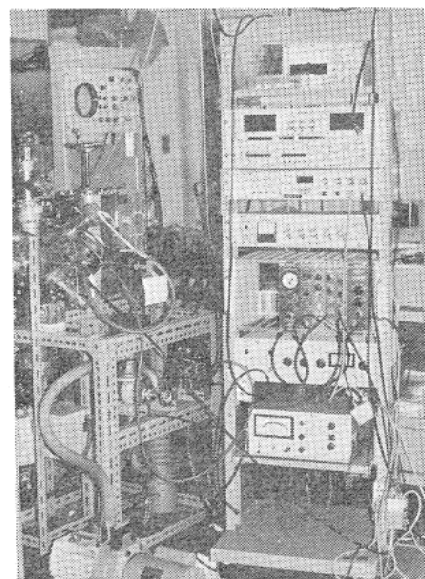


写真2. 二次イオン質量分析計

2. 応用研究

2. 1. 重水素・三重水素濃縮の研究

粉末状の金属ウランは200℃以下で水素をよく吸収し、三水素化ウランとなる。これを450℃以上に加熱すると逆に水素を放出し、金属ウランに戻る。その速さはいずれの方向も速く、金属ウランは、温度の上下のみで水素の出し入れを行う、いわば水素の入れものと考えられることができる。いまたとえば、水素と重水素とを等量に一たん金属ウランに吸収させ、次にこれを半分だけ放出させるとする。つまり半分はガス相に導びき、半分は固相に残すわけであるが、ここで両者の化学組成をしらべると、ガス相には重水素が濃縮されていることが分った。水とアルコールとの混液を蒸溜すると、蒸気の中のアルコールの割合が増えるのと同じである。本研究室ではこの基礎研究を3年間行ってきたが、その結果、分離係数がほぼ1.3であることが判明し、この方法を用いて濃度の高い重水を製造できると考えている。三重水素の濃縮についても同様の傾向が予想される。いうまでもなく、重水素と三重水素とは核融合炉の燃料であり、また重水素の酸化物である重水は、わが国で開発中の新型転換炉（本年3月、全出力運転に入ったふげんがこれにあたる）の減速材として多量に要求されるものである。現在は、簡単な5段のカスケード（写真3）をつくり、実用

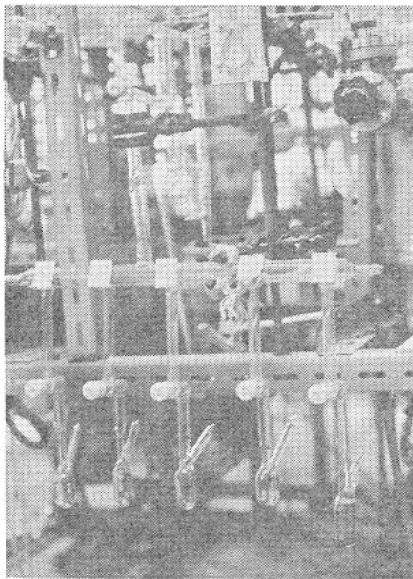


写真3. 重水素濃縮実験装置

へのスケール・アップの方向に一歩ふみ出している。今の所、基礎実験で得られた結果がそのまま再現し、偶然や間違いによる濃縮効果がないことを証明している。

なほ、金属ウランは水素のよい吸収体であるため、三重水素の貯蔵に用いることが考えられる。ただそのためには、水素の平衡解離圧が十分に低いとはいえず、むしろウラン—ジルコニウム合金の方が適しているようである。この研究も早くはじめる予定である。

2. 2. キレート樹脂によるウランの吸着

褐炭が地中で炭化し、石炭になる途中で泥炭や褐炭など、炭化度の低い段階を通る。所がこの中間段階のものが非常によくウランを吸着することが知られている。われわれは十年来これに興味を持ち、いろいろ調べた結果、現在までに分ったことは、泥炭や褐炭の中に含まれているフミン酸のカルボキシル基がウランとキレート錯体を作るのではないかということである。すでに20年も前に、信州大学の北條教授（本学応用化学科卒）が没食子酸樹脂を合成し、これによるウランの吸着量を測定されたことがある。このカルボキシル基を持つ樹脂はウランの吸着量がずば抜けて大きい上、製法も容易である。この位の高いウラン資源の極めて少ないわが国では、りん鉱石のようなウラン含量の比較的多い場合、しかしウラン鉱石の概念からすれば品位の非常に低いものからのウランの回収は重要な課題である。西ドイツでは海水からのウランの採取に藻を利用しようとしていたが、これは成功せず、今はキレート樹脂を試みているとの噂さもある。われわれの所でも、遅ればせながら、毎水の3000倍のウラン濃度を持つ液から、上記の没食子酸樹脂を用いてウラン回収の実験をはじめようとしている所である。

なほ、原子力工学科では強力14 MeV中性子工学実験装置の建設が進められているが（本誌7月号3号、住田健二教授研究ノート、P.49参照）及び2.1の三重水素の回収・貯蔵の研究に一方ではこの建設に役立つと共に、また装置の完成によって大きく進展するものと期待している。