

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B1)

(11) 特許番号

特許第5614821号  
(P5614821)

(45) 発行日 平成26年10月29日 (2014. 10. 29)

(24) 登録日 平成26年9月19日 (2014. 9. 19)

(51) Int. Cl. F I  
**G 2 1 G** 1/06 (2006. 01) G 2 1 G 1/06  
**G 2 1 G** 4/08 (2006. 01) G 2 1 G 4/08  
**G 2 1 C** 3/62 (2006. 01) G 2 1 C 3/62 M

請求項の数 8 (全 18 頁)

<p>(21) 出願番号 特願2013-197431 (P2013-197431)                  (22) 出願日 平成25年9月24日 (2013. 9. 24)                  審査請求日 平成26年2月27日 (2014. 2. 27)                   早期審査対象出願</p>	<p>(73) 特許権者 513225969                  株式会社京都ニューロニクス                  京都府京都市下京区新町通綾小路下る船鉾                  町379番地 トランスベックビル403                  号室                   (74) 代理人 100129540                  弁理士 谷田 龍一                   (74) 代理人 100082474                  弁理士 杉本 丈夫                   (72) 発明者 亀井 敬史                  京都市下京区中堂寺南町134 京都高度                  技術研究所ビル8F 株式会社京都ニュー                  トロニクス内</p>
---	--

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ウラン233製造方法、トリウム核燃料製造方法、医療用ラジオアイソトープ製造方法、及び、医療用ラジオアイソトープ製造用ターゲットプレート製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

金属トリウム又はトリウム含有物に中性子源から中性子を照射してトリウム232原子核総数の0.1乃至1%のトリウム232原子核をプロトアクチニウム233原子核に核変換させるプロセスと、前記核変換によるプロトアクチニウム233原子核を該プロトアクチニウム233がウラン233原子核に壊変する半減期の5倍以上の期間をかけてウラン233に壊変させるプロセスと、前記プロトアクチニウム233の壊変によるウラン233を抽出することによりウラン233が99%以上のウランを得るプロセスと、を含み、

前記中性子源が、重陽子イオンビームを加速してベリリウムターゲットにぶつけることにより中性子を発生させる加速器中性子源を含み、該ベリリウムターゲットが前記金属トリウム又はトリウム含有物に密着配置されるとともに、前記ベリリウムターゲットが金属トリウム又はトリウム含有物とともに軽水減速材中に収容され、該軽水減速材がグラフィットに囲まれている、ウラン233製造方法。

【請求項2】

前記グラフィットの内側に前記軽水減速材を囲むように配置された核燃料集合体を更に含むことを特徴とする請求項1に記載のウラン233製造方法。

【請求項3】

金属トリウム又はトリウム含有物に中性子源から中性子を照射してトリウム232原子核総数の0.1乃至1%のトリウム232原子核をプロトアクチニウム233原子核に核

変換させるプロセスと、前記核変換によるプロトアクチニウム $^{233}$ 原子核を該プロトアクチニウム $^{233}$ がウラン $^{233}$ 原子核に壊変する半減期の5倍以上の期間をかけてウラン $^{233}$ に壊変させるプロセスと、前記プロトアクチニウム $^{233}$ の壊変によるウラン $^{233}$ を抽出することによりウラン $^{233}$ が99%以上のウランを得るプロセスと、ウラン $^{233}$ が99%以上の前記ウラン $^{233}$ とトリウム $^{232}$ とを機械的或いは化学的に混合させるプロセスと、を含み、

前記中性子源が、重陽子イオンビームを加速してベリリウムターゲットにぶつけることにより中性子を発生させる加速器中性子源を含み、該ベリリウムターゲットが前記金属トリウム又はトリウム含有物に密着配置されるととともに、前記ベリリウムターゲットが金属トリウム又はトリウム含有物とともに軽水減速材中に収容され、該軽水減速材がグラフィットに囲まれていることを特徴とするトリウム核燃料製造方法。

【請求項4】

前記グラフィットの内側に前記軽水減速材を囲むように配置された核燃料集合体を更に含むことを特徴とする請求項3に記載のトリウム核燃料製造方法。

【請求項5】

金属トリウム又はトリウム含有物に中性子源から中性子を照射してトリウム $^{232}$ 原子核総数の0.1乃至1%のトリウム $^{232}$ 原子核をプロトアクチニウム $^{233}$ 原子核に核変換させるプロセスと、前記核変換によるプロトアクチニウム $^{233}$ 原子核を該プロトアクチニウム $^{233}$ がウラン $^{233}$ 原子核に壊変する半減期の5倍以上の期間をかけてウラン $^{233}$ に壊変させるプロセスと、前記プロトアクチニウム $^{233}$ の壊変によるウラン $^{233}$ を抽出することによりウラン $^{233}$ が99%以上のウランを得るプロセスと、ウラン $^{233}$ が99%以上の前記ウランとアルミニウムとの合金を製造するプロセスと、前記合金をターゲットプレートに成形するプロセスと、を含み、

前記中性子源が、重陽子イオンビームを加速してベリリウムターゲットにぶつけることにより中性子を発生させる加速器中性子源を含み、該ベリリウムターゲットが前記金属トリウム又はトリウム含有物に密着配置されるととともに、前記ベリリウムターゲットが金属トリウム又はトリウム含有物とともに軽水減速材中に収容され、該軽水減速材がグラフィットに囲まれていることを特徴とする、医療用ラジオアイソトープ製造用ターゲットプレート製造方法。

【請求項6】

前記グラフィットの内側に前記軽水減速材を囲むように配置された核燃料集合体を更に含むことを特徴とする請求項5に記載の医療用ラジオアイソトープ製造用ターゲットプレート製造方法。

【請求項7】

金属トリウム又はトリウム含有物に中性子源から中性子を照射してトリウム $^{232}$ 原子核総数の0.1乃至1%のトリウム $^{232}$ 原子核をプロトアクチニウム $^{233}$ 原子核に核変換させるプロセスと、前記核変換によるプロトアクチニウム $^{233}$ 原子核を該プロトアクチニウム $^{233}$ がウラン $^{233}$ 原子核に壊変する半減期の5倍以上の期間をかけてウラン $^{233}$ に壊変させるプロセスと、前記プロトアクチニウム $^{233}$ の壊変によるウラン $^{233}$ を抽出することによりウラン $^{233}$ が99%以上のウランを得るプロセスと、ウラン $^{233}$ が99%以上の前記ウランとアルミニウムとの合金を製造するプロセスと、前記合金をターゲットプレートに成形するプロセスと、前記ターゲットプレートに中性子を照射することで、ウラン $^{233}$ 核分裂生成物からラジオアイソトープを抽出するプロセスと、を含み、

前記中性子源が、重陽子イオンビームを加速してベリリウムターゲットにぶつけることにより中性子を発生させる加速器中性子源を含み、該ベリリウムターゲットが前記金属トリウム又はトリウム含有物に密着配置されるととともに、前記ベリリウムターゲットが金属トリウム又はトリウム含有物とともに軽水減速材中に収容され、該軽水減速材がグラフィットに囲まれていることを特徴とする医療用ラジオアイソトープ製造方法。

【請求項8】

10

20

30

40

50

前記グラファイトの内側に前記軽水減速材を囲むように配置された核燃料集合体を更に含むことを特徴とする請求項 7 に記載の医療用ラジオアイソトープ製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、トリウムを主原料とするウラン 233 製造方法、該ウラン 233 製造方法により製造されたウラン 233 とトリウムからトリウム核燃料を製造するトリウム核燃料製造方法、及び該ウラン 233 製造方法により製造されたウラン 233 に中性子を照射することで、核分裂法により医療用ラジオアイソトープを製造する製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

トリウム - ウラン燃料サイクルは、天然トリウムの埋蔵量が天然ウランに比べて豊富であり、マイナーアクチノイドの生成量が少ないため高レベル放射性廃棄物の管理期間が短くて済む等、ウラン - プルトニウム燃料サイクルに対して多くの利点を有している。しかし、天然トリウムには中性子供給源となる核分裂性物質が含有されておらず、そのままでは核燃料として利用することができない。つまり、トリウム - ウラン燃料サイクル用の核燃料を得るためには、トリウムに核分裂性物質を添加する必要がある。

【0003】

非特許文献 1 には、既存原子炉の一つとして沸騰水型軽水炉を取り上げ、これに (Pu + Th) O<sub>2</sub> 燃料ペレットを装荷して 400 日程度燃焼させることで、1.5 トンのウラン 233 を製造することが開示されている。生成されたウラン 233 を化学処理により燃料ペレットから取出し、トリウム 232 と機械的により混合させることで、核燃料親物質であるトリウム 232 と核分裂性物質であるウラン 233 とが適度の濃度比で混在するトリウム核燃料を製造する。

【先行技術文献】

【非特許文献】

【0004】

【非特許文献 1】三田地紘史、他 4 名、「BWR を用いたトリウム熔融塩炉起動用 233 U の生成」、日本原子力学会和文論文誌、第 8 巻、第 1 号、p. 1 - 10

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

しかしながら、上述したように (Pu + Th) O<sub>2</sub> 燃料ペレットを 400 日程度の燃焼を行った後、ペレットからウランを化学処理で取出した場合、核分裂性のウランが 48%、非核分裂性のウランが 52% 含まれる同位体組成となる。トリウムからウラン 233 への転換率が優れる熔融塩増殖炉でも、表 1 に示すように平衡組成ではウラン 233 以外のウラン同位体が多数含まれる。

【0006】

【表 1】

表 1 熔融塩増殖炉の平衡組成でのウラン同位体組成例

項目	組成比率	種類
ウラン 232	20 ~ 80 ppm	非核分裂性物質
ウラン 233	64.5%	核分裂性物質
ウラン 234	23.2%	非核分裂性物質
ウラン 235	6.0%	核分裂性物質
ウラン 236	6.3%	非核分裂性物質

【0007】

上述の同位体組成は、燃焼日数など原子炉の運転状態、また燃料ペレット取出後の冷却期間の長さなどによって大きく変化するため、ウラン集合体（ウラン $233$ とウラン $233$ 以外のウラン同位体が含まれる同位体組成物。）とトリウム $232$ とを混合してトリウム核燃料を製造する場合、精度の高い核分裂性物質濃度を有する高品質なトリウム核燃料の製造を困難にする。またウラン $234$ 以上の同位体比率も $30\%$ を超えており、これら質量数の大きな同位体の存在が、高レベル放射性廃棄物の管理期間が短くて済むというウラン-トリウム核燃料サイクルの大きな利点をなくしてしまう。

【0008】

本発明は、斯かる事情を鑑みてなされたものであり、その主たる目的は、ウラン $233$ の組成比率が $99\%$ 以上となるウラン集合体を製造することにある。

10

【課題を解決するための手段】

【0009】

上記目的を達成するため、本発明に係るウラン $233$ 製造方法は、第1の手段として、金属トリウム又はトリウム含有物に中性子源から中性子を照射してトリウム $232$ 原子核総数の $0.1$ 乃至 $1\%$ のトリウム $232$ 原子核をプロトアクチニウム $233$ 原子核に核変換させるプロセスと、前記核変換によるプロトアクチニウム $233$ 原子核を該プロトアクチニウム $233$ がウラン $233$ 原子核に壊変する半減期の $5$ 倍以上の期間をかけてウラン $233$ に壊変させるプロセスと、前記プロトアクチニウム $233$ の壊変によるウラン $233$ を抽出することによりウラン $233$ が $99\%$ 以上のウランを得るプロセスと、を含み、前記中性子源が、重陽子イオンビームを加速してベリリウムターゲットにぶつけることにより中性子を発生させる加速器中性子源を含み、該ベリリウムターゲットが前記金属トリウム又はトリウム含有物に密着配置されるとともに、前記ベリリウムターゲットが金属トリウム又はトリウム含有物とともに軽水減速材中に収容され、該軽水減速材がグラファイトに囲まれている。

20

【0010】

上記ウラン $233$ 製造方法において、前記グラファイトの内側に前記軽水減速材を囲むように配置された核燃料集合体を更に含む。

【0011】

また、本発明に係るトリウム核燃料製造方法は、金属トリウム又はトリウム含有物に中性子源から中性子を照射してトリウム $232$ 原子核総数の $0.1$ 乃至 $1\%$ のトリウム $232$ 原子核をプロトアクチニウム $233$ 原子核に核変換させるプロセスと、前記核変換によるプロトアクチニウム $233$ 原子核を該プロトアクチニウム $233$ がウラン $233$ 原子核に壊変する半減期の $5$ 倍以上の期間をかけてウラン $233$ に壊変させるプロセスと、前記プロトアクチニウム $233$ の壊変によるウラン $233$ を抽出することによりウラン $233$ が $99\%$ 以上のウランを得るプロセスと、ウラン $233$ が $99\%$ 以上の前記ウラン $233$ とトリウム $232$ とを機械的或いは化学的に混合させるプロセスと、を含み、

30

前記中性子源が、重陽子イオンビームを加速してベリリウムターゲットにぶつけることにより中性子を発生させる加速器中性子源を含み、該ベリリウムターゲットが前記金属トリウム又はトリウム含有物に密着配置されるとともに、前記ベリリウムターゲットが金属トリウム又はトリウム含有物とともに軽水減速材中に収容され、該軽水減速材がグラファイトに囲まれていることを特徴とする。

40

【0012】

上記トリウム核燃料製造方法において、前記グラファイトの内側に前記軽水減速材を囲むように配置された核燃料集合体を更に含むことが好ましい。

【0013】

また、本発明に係る医療用ラジオアイソトープ製造用ターゲットプレート製造方法は、金属トリウム又はトリウム含有物に中性子源から中性子を照射してトリウム $232$ 原子核総数の $0.1$ 乃至 $1\%$ のトリウム $232$ 原子核をプロトアクチニウム $233$ 原子核に核変換させるプロセスと、前記核変換によるプロトアクチニウム $233$ 原子核を該プロトアクチニウム $233$ がウラン $233$ 原子核に壊変する半減期の $5$ 倍以上の期間をかけてウラン

50

233に壊変させるプロセスと、前記プロトアクチニウム233の壊変によるウラン233を抽出することによりウラン233が99%以上のウランを得るプロセスと、ウラン233が99%以上の前記ウランとアルミニウムとの合金を製造するプロセスと、前記合金をターゲットプレートに成形するプロセスと、を含み、前記中性子源が、重陽子イオンビームを加速してベリリウムターゲットにぶつけることにより中性子を発生させる加速器中性子源を含み、該ベリリウムターゲットが前記金属トリウム又はトリウム含有物に密着配置されるとともに、前記ベリリウムターゲットが金属トリウム又はトリウム含有物とともに軽水減速材中に収容され、該軽水減速材がグラファイトに囲まれていることを特徴とする。

【0014】

前記医療用ラジオアイソトープ製造用ターゲットプレート製造方法において、前記グラファイトの内側に前記軽水減速材を囲むように配置された核燃料集合体を更に含むことが好ましい。

【0015】

また、本発明に係る医療用ラジオアイソトープ製造方法は、金属トリウム又はトリウム含有物に中性子源から中性子を照射してトリウム232原子核総数の0.1乃至1%のトリウム232原子核をプロトアクチニウム233原子核に核変換させるプロセスと、前記核変換によるプロトアクチニウム233原子核を該プロトアクチニウム233がウラン233原子核に壊変する半減期の5倍以上の期間をかけてウラン233に壊変させるプロセスと、前記プロトアクチニウム233の壊変によるウラン233を抽出することによりウラン233が99%以上のウランを得るプロセスと、ウラン233が99%以上の前記ウランとアルミニウムとの合金を製造するプロセスと、前記合金をターゲットプレートに成形するプロセスと、前記ターゲットプレートに中性子を照射することで、ウラン233核分裂生成物からラジオアイソトープを抽出するプロセスと、を含み、前記中性子源が、重陽子イオンビームを加速してベリリウムターゲットにぶつけることにより中性子を発生させる加速器中性子源を含み、該ベリリウムターゲットが前記金属トリウム又はトリウム含有物に密着配置されるとともに、前記ベリリウムターゲットが金属トリウム又はトリウム含有物とともに軽水減速材中に収容され、該軽水減速材がグラファイトに囲まれていることを特徴とする。前記グラファイトの内側に前記軽水減速材を囲むように配置された核燃料集合体を更に含むことが好ましい。

【発明の効果】

【0016】

本発明に係るウラン233製造方法によれば、ウラン233の組成比率が99%を超えるウラン集合体が製造でき、トリウムと混合してトリウム核燃料を製造する際、核分裂性物質と核分裂親物質と比率を厳密に調整できるようになり、品質の高いトリウム核燃料の製造が可能となる。

【図面の簡単な説明】

【0017】

【図1】第一実施形態に係るウラン233製造方法の概略構成を示すフロー図である。

【図2】ウラン製錬プロセスの概略構成を示す説明図である。

【図3】第二実施形態に係るウラン233製造方法の概略構成を示すフロー図である。

【図4】第二実施形態及び第3実施形態に用いられる中性子発生用タンDEM加速器の概略構成を示す模式図である。

【図5】第二実施形態の中性子照射プロセスにおける加速器中性子源の(a)平面図と、(b)A-A線縦断面図である。

【図6】第二実施形態の中性子照射プロセスにおける加速器中性子源の、照射部分の寸法図である。

【図7】第三実施形態のウラン233製造方式の概略構成を示すフロー図である。

【図8】第三実施形態の中性子照射プロセスにおける加速器駆動未臨界炉中性子源の(a)

10

20

30

40

50

) 平面図と、(b) A - A 線縦断面図である。

【図 9】第四実施形態のウラン 233 製造方法の概略構成を示すフロー図である。

【図 10】第四実施形態の中性子照射プロセスにおける原子炉中性子源の概略構成を示す平面図である。

【図 11】第一乃至第四実施形態のウラン 233 製造方法により製造されたウラン集合体から、軽水炉向けトリウム核燃料ペレットを製造するプロセスを示すフロー図である。

【図 12】第一乃至第四実施形態のウラン 233 製造方法により製造されたウラン集合体から、トリウム溶融塩核燃料を製造するプロセスを示すフロー図である。

【図 13】第一乃至第四実施形態のウラン 233 製造方法により、トリウム核燃料を量産する製造方法を示すフロー図である。

【図 14】第一乃至第四実施形態に係るウラン 233 製造方法により製造されたウラン集合体から、医療用ラジオアイソトープを製造するプロセスを示すフロー図である。

【発明を実施するための形態】

【0018】

以下、図及び表を用いて本発明の実施形態について説明する。

【0019】

まず、本発明に係るウラン 233 製造方法の第一実施形態について説明する。図 1 は、本発明に係るウラン 233 製造方法の第一実施形態の概略構成を示すフロー図である。なお、以下の説明において、説明の便宜上、金属トリウム又はトリウム含有物（トリウム酸化物、トリウム弗化物等のトリウム化合物、或いは、アルミニウム、銅、銀などの金属元素とトリウムとが結合した金属間化合物、合金を含む。）からなる出発原料と、該出発原料に以下に述べる処理を施してトリウム原子核の一部が核変換しているものとを総称してトリウム集合体と称する。

【0020】

図 1 に示すように、第 1 実施形態のウラン製造方法は、中性子照射プロセス 10、被照射トリウム集合体保管プロセス 20、及びウラン抽出プロセス 30 の 3 つのプロセスがカスケードに配置された構成をとる。トリウム集合体 100 はこのカスケードプロセスで処理されることにより、ウラン集合体 200 へ転換する。

【0021】

中性子照射プロセス 10 は、中性子源 11、中性子減速材 12、及び中性子減速材 12 内に設置されたトリウム集合体 100 からなる。中性子源 11 は毎秒 S 個の中性子を全周方向に均等に放出する。中性子減速材 12 の大きさが、減速材の拡散距離 L より十分大きな寸法を有する場合、中性子源 11 から r 離れた地点の中性子束密度 (r) は式 1 で表される。

【0022】

【数 1】

$$\varphi(r) = \frac{S}{4\pi D} \cdot \frac{e^{-r/L}}{r} \quad \dots(1)$$

【0023】

ここで、D は中性子減速材 12 の拡散係数を示す。なお、主要減速材の熱中性子に対する拡散パラメータを表 2 に示す。

【0024】

10

20

30

40

## 【表 2】

表 2 熱中性子に対する拡散パラメータ

減速材	拡散係数 D (cm)	拡散距離 L (cm)
軽水 (H <sub>2</sub> O)	0.16	2.85
重水 (D <sub>2</sub> O)	0.87	170
ベリリウム (Be)	0.50	21
黒鉛 (C)	0.84	59

10

## 【0025】

中性子源 11 と中性子減速材 12 から形成される中性子束により、トリウム集合体 100 内のトリウム 232 原子核が中性子を吸収し、核変換反応によって、プロトアクチニウム 233 原子核へと変換する。すなわち、中性子照射プロセス 10 は、NTD (中性子変換ドーピング) 手法により、トリウム集合体 100 にプロトアクチニウム 233 原子核を生成する機能を有する。なお、中性子照射プロセス 10 での中性子照射は、トリウム集合体 100 内に含まれるトリウム原子核の 0.1 ~ 1% が中性子を吸収した時点で終了する。中性子照射プロセス 10 で、トリウム原子核の 1% 以上が中性子を吸収した状態で、さらに照射を継続すると、生成されたプロトアクチニウム 233 が更に中性子を吸収する反応が頻発するようになり、その結果ウラン 234 が多数生成されるようになる。純度 99% 以上のウラン 233 を製造するためには、このウラン 234 生成量をウラン 233 生成量の 0.5% 以内に抑えなければならない。このため、トリウム集合体 100 内に含まれるトリウム原子核の 0.1 ~ 1% が中性子を吸収した時点で中性子照射を終了させる。

20

## 【0026】

被照射トリウム集合体保管プロセス 20 は、中性子照射プロセス 10 で生成されたプロトアクチニウム 233 原子核がドーピングされたトリウム集合体 100 を、6 ヶ月程度保管しておくプロセスである。プロトアクチニウム 233 原子核は、約 27 日の半減期でベータ崩壊し、ウラン 233 原子核へと壊変する。すなわち、被照射トリウム保管プロセス 20 は、トリウム集合体 100 にドーピングされたプロトアクチニウム 233 原子核の殆どがウラン 233 原子核に壊変するのを待つためのプロセスであり、その保管期間は半減期約 27 日の 5 倍以上の期間、すなわち 135 日以上である。

30

## 【0027】

ウラン抽出プロセス 30 は、トリウム集合体 100 に含まれているウランを抽出し、金属ウランとして製錬するプロセスである。ウラン抽出プロセス 30 内の、ウラン製錬プロセス 31 の一例を図 2 に示す。図 2 において、ウランを含むトリウム集合体 100 n は、まず細かく粉碎され、その後濃硫酸にて溶解し、次いで苛性ソーダでウラン化合物として沈降させる。この段階で精製されたウランはイエローケーキと呼ばれる。イエローケーキは重ウラン酸ナトリウム (Na<sub>2</sub>U<sub>2</sub>O<sub>7</sub>) を主成分としており、これをマグネシウム還元操作をしてやることで、金属ウランが得られる。また、固液分離過程でトリウム集合体 100 n に含まれていたトリウムを回収して再利用する構成としている。

40

## 【0028】

ウラン製錬プロセス 31 は、従来から用いられてきたウラン鉱石製錬工程とほぼ同一のプロセスとなる。従って、図 2 では硫酸浸出法を採用した例を示したが、他にもアルカリ浸出法、溶媒抽出法、イオン交換法など、実績のある多数のプロセスが存在し、また適用可能である。高品位ウラン鉱石に含まれるウランは 0.1 ~ 1% 程度である。従って、トリウム集合体 100 n に含まれるウラン 233 濃度を 0.1% 以上にすることで、図 2 に示したウラン製錬プロセス 31 が問題なく適用できるようになる。

## 【0029】

次に、第一実施形態のウラン 233 製造方法の動作について説明する。説明を具体的に行うため、図 1 において、トリウム集合体 100 は金属トリウムで構成し、その寸法は高

50

さ 30 cm × 幅 30 cm × 奥行き 1 cm とする。金属トリウム<sup>232</sup>の密度は 11.7 g/cm<sup>3</sup> であるから、トリウム集合体 100 の重量は約 10 kg となる。また、中性子減速材 12 には重水を適用し、中性子源 11 は熱中性子源とする。このとき、中性子源 11 とトリウム集合体 100 との距離を r cm とすると、式 1 よりトリウム集合体 100 周辺の中性子束  $\phi(r)$  は式 2 で表される。

【0030】

【数2】

$$\phi(r) = \frac{S}{10.9} \cdot \frac{e^{-r/170}}{r} \quad \dots(2)$$

10

【0031】

中性子源 11 からトリウム集合体 100 の中心部までの距離を 15 cm となるよう設置した場合、トリウム集合体 100 表面の中性子束密度平均値  $\phi_{AVE}$  は、式 3 で近似できる。

【0032】

【数3】

$$\phi_{AVE} = 0.0056 \cdot S \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec} \quad \dots(3)$$

20

【0033】

すなわち、中性子源 11 の中性子イールドを  $1.0 \times 10^{16}$  個/秒とした場合、トリウム集合体 100 周辺の中性子束密度として、 $\phi_{AVE} = 5.6 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>・sec を得ることが可能となる。

【0034】

なお、図 1 ではトリウム集合体 100 を金属トリウムで構成した場合について記載したが、例えば酸化トリウムやフッ化トリウムなど、他のトリウム化合物、或いは、例えばアルミニウム、銅、銀などの金属元素とトリウムとが結合した金属間化合物や合金などによりトリウム集合体 100 を構成してもよい。また図 1 では、中性子源 11 として熱中性子源（単色中性子源）を使用しているが、これはウラン 233 製造原理を説明し易くするための手段であり、実際のシステムでは、後述の図 3、図 7、或いは図 9 に示すように、幅広いエネルギーの中性子スペクトルを持った、加速器中性子源、加速器駆動未臨界炉中性子源、或いは原子炉中性子源を使用する。

【0035】

図 1 において、中性子照射プロセス 10 では、トリウム集合体 100 内に含まれるトリウム 232 原子核の 0.1% が中性子を吸収した時点で照射を終了する。トリウム集合体 100 は金属トリウムで構成されているので、その原子核密度は  $3.0 \times 10^{22}$  個/cm<sup>3</sup> であり、熱中性子に対するトリウム原子核の吸収断面積は 8 バーンであるから、トリウム集合体 100 内に含まれるトリウム 232 原子核の 0.1% が中性子を吸収するのに要する照射時間は約 26 日間となる。中性子を吸収したトリウム 232 はトリウム 233 になるが、トリウム 233 は 22 分の半減期でベータ崩壊してプロトアクチニウム 233 へ壊変する。更にプロトアクチニウム 233 は、27 日の半減期でベータ崩壊してウラン 233 へ壊変する。一方、プロトアクチニウム 233 は 40 バーンといふかなり大きな熱中性子吸収断面積を持っており、中性子を吸収してプロトアクチニウム 234 になり、プロトアクチニウム 234 は 6.7 時間の半減期でベータ崩壊してウラン 234 に壊変する。

30

40

50



## 【 0 0 3 6 】

中性子照射プロセス 1 0 における 2 6 日間の中性子照射を終えた直後の、トリウム集合体 1 0 0 の組成を表 3 に示す。トリウム集合体 1 0 0 への照射時間を 2 6 日、すなわち、トリウム 2 3 2 原子核の 0 . 1 % が中性子を吸収するのに要する時間とした場合、プロトアクチニウム 2 3 3 の中性子吸収により生じるウラン 2 3 4 の量は、わずか 0 . 0 0 0 2 8 % に抑制できる。

## 【 0 0 3 7 】

## 【表 3】

表 3 トリウム集合体 1 0 0 の組成

	トリウム集合体 1 0 0 の成分モル比 (%)				
	232Th	233Pa	233U	234U	FP(注)
照射前	100	0	0	0	0
2 6 日間の照射直後	99.9	0.074	0.024	0.00028	0.00036

注：照射中に 233U が核分裂して発生した核分裂生成物

10

## 【 0 0 3 8 】

中性子照射プロセス 1 0 による 2 6 日間の照射を終えたトリウム集合体 1 0 0 は、被照射トリウム集合体保管プロセス 2 0 に移行する。ここでは、トリウム集合体 1 0 0 を長期保管する。図 1 の例では、その保管期間を 6 ヶ月としている。6 ヶ月の保管期間の間にトリウム集合体 1 0 0 に含まれているプロトアクチニウム 2 3 3 の 9 9 % がベータ崩壊してウラン 2 3 3 に壊変する。中性子照射プロセス 1 0 での照射時間に対して、被照射トリウム集合体保管プロセス 2 0 での保管期間が長いため、被照射トリウム集合体保管プロセス 2 0 では複数のトリウム集合体 1 0 0 A、1 0 0 B、...、1 0 0 Z が同時に保管される。従って、被照射トリウム集合体保管プロセス 2 0 では F P からの放射線遮蔽とともに、保管している複数のトリウム集合体による臨界事故の防止にも注意しなければならない。半年間の保管を終えたトリウム集合体 1 0 0 の組成を表 4 に示す。ここではプロトアクチニウム 2 3 3 の崩壊によりウラン 2 3 3 がほぼ 0 . 1 % の割合を占めるようになる。

20

## 【 0 0 3 9 】

## 【表 4】

表 4 トリウム集合体 1 0 0 の組成

	トリウム集合体 1 0 0 の成分モル比 (%)				
	232Th	233Pa	233U	234U	FP
2 6 日間の照射直後	99.9	0.074	0.024	0.00028	0.00036
半年間の保管後	99.9	0.00073	0.099	0.00028	0.00036

30

40

## 【 0 0 4 0 】

ウラン抽出プロセス 3 0 では半年間の保管期間を終えたトリウム集合体 1 0 0 n から金属ウランを製錬する。ウラン鉱石の場合と違って、トリウム集合体 1 0 0 n ではトリウム以外の不純物が殆ど含まれないため、その製錬効率はほぼ 1 に近くなる。すなわち表 4 に下段に示した量のウラン 2 3 3 及びウラン 2 3 4 を、金属ウランの形態でウラン集合体 2 0 0 として抽出できる。本実施例では、ウラン集合体 2 0 0 は金属ウラン 1 0 . 4 g であり、その金属ウランの 9 9 . 7 % は核分裂性物質であるウラン 2 3 3 が占めている。

## 【 0 0 4 1 】

次に、本発明に係るウラン 2 3 3 製造方法の第二実施形態について説明する。図 3 は本発明に係るウラン 2 3 3 製造方法の第二実施形態の概略構成を示すフロー図である。第二

50

実施形態のウラン233製造方法では、加速器中性子源を用いた中性子照射プロセス70を適用する。なお、被照射トリウム集合体保管プロセス20、及びウラン抽出プロセス30は、図1に示した第一実施形態と同一である。

#### 【0042】

加速器中性子源には、タンデム加速器中性子源40を適用することができる。タンデム加速器中性子源40は、例えば、図4に示すように長さが約3mの線形加速器であり、重陽子イオン源41、高電圧加速部42、及びベリリウムターゲット43から構成される。本実施例では、重陽子イオンビームを2MeVまで加速し、加速電流34mAでベリリウムターゲット43にぶつけることにより、 $2.3 \times 10^{13}$ 個/秒の中性子を発生させる。

10

#### 【0043】

中性子照射プロセス70における加速器中性子源の構成を図5に示す。図5において、図4に示したタンデム加速器中性子源40と同一仕様の加速器を12本使用している。すなわち、40A、40B、40C、...、40L、及び40Mがタンデム加速器中性子源であり、それぞれが $2.3 \times 10^{13}$ 個/秒の中性子を発生させる。従って、図5における中性子源強度Sは、 $S = 12 \times 2.3 \times 10^{13}$ 個/秒 =  $2.8 \times 10^{14}$ 個/秒、となる。

#### 【0044】

また、図5において、46はグラファイトによる中性子減速材、45は軽水による中性子減速材を示している。各タンデム加速器中性子源が発生する中性子の平均エネルギーは250keVと熱中性子よりはるかに大きなエネルギーを持つため、図5の体系であれば減速材として重水を用いるより、グラファイトを用いた方がトリウム集合体100内におけるトリウム232の中性子吸収反応を加速化できる。また軽水減速材45は、タンデム加速器中性子源のベリリウムターゲット、及びトリウム集合体の冷却材も兼ねている。

20

#### 【0045】

図5におけるトリウム集合体100付近の寸法図を図6に示す。軽水減速材45は、軽水の中性子吸収断面積が大きいいため、その幅を5cmと極力小さくしている。5cmの幅がベリリウムターゲットを冷却するのに十分な流量を確保できる限界値である。トリウム集合体100は中性子発生源であるベリリウムターゲットに密着させる配置とすることで、トリウム集合体100近傍における中性子束強度を極力高めるようにした。なお、図5、及び図6でのトリウム集合体100の寸法は、高さ30cm×幅120cm×奥行き1cmであり、金属トリウムよりなる。従って、その重量は約42kgとなる。

30

#### 【0046】

図3において、中性子照射プロセス70では、トリウム集合体100内に含まれるトリウム232原子核の0.1%が中性子の吸収を完了するのに要する時間は、約12日間となる。式1は中性子が単色(熱中性子のみ)の場合にしか成立せず、図5のように、中性子が連続スペクトルを持つ体系では、中性子の振る舞いを、例えばモンテカルロ法等を用いたコンピュータ解析で求めざるを得なくなる。トリウム232原子核の0.1%が中性子の吸収を完了するのに要する時間が、第一実施形態の26日間から、12日間へと減少した理由については、(1)中性子源とトリウム集合体とを密着させたこと、(2)重陽子を2MeVまで加速する加速器中性子源では前方(0°方向)への中性子イールドが増えること、(3)トリウム232の共鳴ピークによる中性子吸収が増えたこと、等があげられる。

40

#### 【0047】

中性子照射プロセス70において、照射前と照射後のトリウム集合体100の組成比較を、表5に示す。照射時間が短くなった分、ウラン234原子核数、及び核分裂生成物の占める割合は、第一実施形態に比べ少なくなる。表5の最下行に、引き続き被照射トリウム集合体保管プロセス20を終えた後の、すなわち、12日間の照射を終えてから6ヶ月間の保管を経た後のトリウム集合体100の組成比率も記載しておく。

#### 【0048】

50

【表 5】

表 5 中性子照射プロセス70におけるトリウム集合体100の組成比較

	トリウム集合体100の成分モル比 (%)				
	232Th	233Pa	233U	234U	FP
照射前	100	0	0	0	0
12日間の照射直後	99.9	0.084	0.016	0.00013	0.00018
6ヶ月保管後	99.9	0.00083	0.099	0.00013	0.00018

10

## 【0049】

すなわち、図3において、ウラン抽出プロセス30では表5の最下行に示した量のウラン233及びウラン234を、金属ウランの形態でウラン集合体200として抽出する。従って、第二実施形態では、ウラン集合体200は42.1gの金属ウランであり、その金属ウランの99.87%は核分裂物質であるウラン233が占めている。中性子照射プロセス70での照射時間は約12日間であるため、図3のプロセスをフル稼働させた場合、ほぼ純粋なウラン233による金属ウランを年間で約1.3kg製造できることになる。

## 【0050】

次に、本発明に係るウラン233製造方法の第三実施形態について説明する。図7は本発明に係るウラン233製造方法の第三実施形態の概略構成を示すフロー図である。第三実施形態のウラン233製造方法では、加速器駆動未臨界炉中性子源を用いた中性子照射プロセス80を適用する。なお、被照射トリウム集合体保管プロセス20、及びウラン抽出プロセス30は、第三実施形態においても、図1に示した第一実施形態と同一である。

20

## 【0051】

中性子照射プロセス80における加速器駆動未臨界炉中性子源の構成例を図8に示す。図8において、12本のタンデム加速器中性子源、すなわち、40A、40B、40C、...、40L、及び40Mを用いて、トリウム集合体100へ中性子を照射する。減速材46にはグラファイトを、冷却材を兼ねた減速材45には軽水を適用する。以上の構成は、図5に示した第二実施例における加速器中性子源と同一の構成となる。但し、図8に示した未臨界駆動加速器中性子源では、減速材45を囲むように核燃料集合体47を配置する。こうすることで、核燃料集合体47により各加速器中性子源からの中性子が増倍され、トリウム集合体100近傍の空間を未臨界状態にすることができる。

30

## 【0052】

核燃料集合体47による中性子実効増倍係数 $k_{eff}$ によって、中性子照射プロセス80を用いた図7のウラン233製造方法では、生産効率の大幅な増大が可能となる。すなわち、図3に示した第二実施形態のウラン233製造方法では、その製造能力は年間1.3kgであった。これに対して、図7に示した第三実施形態のウラン233製造方法では、製造能力を大幅に高めることができる。ここでは、詳細な核計算は省略するが、一点近似的な扱いで概略評価した製造能力の比較を表6に示す。

40

## 【0053】

【表 6】

表 6 ウラン 233 製造能力の比較

製造プロセス構成	中性子実効増倍係数 $k_{eff}$	ウラン 233 製造能力 (注)
図 3 (第二実施形態)	0	1.3 kg
図 7 (第三実施形態)	0.95	2.4 kg
	0.96	3.1 kg
	0.97	4.2 kg
	0.98	6.3 kg
	0.99	13.0 kg

注：プロセスをフル稼働させた場合に 1 年間で製造できるウラン 233 の重量

10

## 【0054】

核燃料集合体 47 は、後述のトリウム核燃料ペレット 400 を燃料集合体に装填することで実現する。既存軽水炉の使用済核燃料が入手可能な場合は、使用済核燃料による集合体で、核燃料集合体 47 を構築してもよい。後述のトリウム核燃料ペレット 400 を適用した場合、既存ウラン - プルトニウム核燃料サイクルとは全く独立した形態で、トリウム - ウラン核燃料サイクルを確立できる。

## 【0055】

次に、本発明に係るウラン 233 製造方法の第四実施形態について説明する。図 9 は本発明に係るウラン 233 製造方法の第四実施形態の概略構成を示すフロー図である。第四実施形態のウラン 233 製造方法では、原子炉中性子源を用いた中性子照射プロセス 90 を適用する。なお、被照射トリウム集合体保管プロセス 20、及びウラン抽出プロセス 30 は、第四実施形態においても、図 1 に示した第一実施形態と同一である。

20

## 【0056】

中性子照射プロセス 90 における原子炉中性子源の構成を図 10 に示す。図 10 において、61 は核燃料集合体、62 はグラフィイトによる中性子反射材、63 は中性子照射を行うための照射孔 (中空パイプ) である。ここでも詳細な核計算は省略するが、核燃料集合体 61 にウラン 233 によるトリウム溶融塩燃料を用いた場合、中性子照射孔 63 内の中性子束密度を、 $1 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  以上の大きさにすることができる。なお、トリウム溶融塩燃料の組成は色々な組合せが考えられるが、例えば  ${}^7\text{LiF} - \text{BeF}_2 - \text{ThF}_4 - {}^{233}\text{UF}_4$  を適用することで、図 10 おいて長寿命の高中性子束炉心 (ハイフラックス炉心) が実現できるようになる。

30

## 【0057】

図 9 に示した第四実施形態によるウラン 233 製造方法では、非常に高い中性子束で一度に大量のトリウムを照射できるため、フル稼働させた場合、年間 500 kg を超えるウラン 233 の製造が可能となる。

## 【0058】

図 11、図 12 に、ウラン集合体 200 とトリウム集合体 100 から、トリウム核燃料を製造するプロセスを示す。図 11 のプロセスでは、トリウム 232 : ウラン 233 のモル比率が 96 : 4 の酸化物によるトリウム核燃料ペレット 400 を製造する。この核燃料ペレット 400 は、既存軽水炉でも適用可能であるが、図 8 に示した加速器駆動未臨界炉中性子源用の核燃料集合体 47 に装填することもできる。また、図 12 のプロセスでは、トリウム 232 : ウラン 233 のモル比率が 98 : 2 のフッ化物溶融塩によるトリウム溶融塩核燃料 500 を製造する。このトリウム溶融塩核燃料 500 は、トリウム溶融塩炉向け核燃料として汎用的な使用ができるが、図 10 に示した原子炉中性子源にも装填できる。なお、図 11、図 12 において、トリウム集合体 100 は、中性子照射プロセスによる中性子照射を行う前のものを使ってもいいし、或いは中性子照射完了後に 6 ヶ月間の保管を行ったあとのものを使ってもよい。また、トリウム集合体の代わりに天然トリウムを使

40

50

ってもよい。

【 0 0 5 9 】

図 1 3 に、第二実施形態、第三実施形態、及び第四実施形態によるウラン 2 3 3 製造方法を組み合わせることで、トリウム核燃料量産プラントを建設する手順を示す。まず、第 1 ステップとして、第二実施形態、すなわち加速器中性子源によるウラン 2 3 3 製造プラントを建設する。ここでは年間数 k g 程度のウラン 2 3 3 製造が可能であり、ここで製造したウラン 2 3 3 を用いて、加速器駆動未臨界炉向けのトリウム核燃料ペレット 4 0 0 を製造する。次に、第 2 ステップとして、第三実施形態、すなわち加速器駆動未臨界炉中性子源によるウラン 2 3 3 製造プラントを増設する。加速器駆動未臨界炉中性子源の核燃料集合体 4 7 は、第 1 ステップで製造したトリウム核燃料ペレット 4 0 0 を装填して実現するが、ウラン核燃料製造工場で製造された未使用ウラン核燃料ペレット、或いは原子力発電所内の既存軽水炉から取出された使用済ウラン核燃料ペレットを装填してもよい。第三実施形態でのウラン 2 3 3 製造プラントでは、年間数十 k g のウラン 2 3 3 の製造が可能となり、図 1 0 の原子炉中性子源を構成するに足る量のトリウム溶融塩核燃料 5 0 0 が製造できる。最後に、第 3 ステップとして、第四実施形態、すなわち、原子炉中性子源によるウラン 2 3 3 製造プラントを増設し、年間数百 k g レベルのウラン 2 3 3 量産体制を確立し得る。

10

【 0 0 6 0 】

図 1 3 の手順でトリウム核燃料量産プラントを建設する場合、建設の際にウラン - プルトニウム燃料サイクルでの核分裂性物質、すなわちウラン 2 3 5 とプルトニウム 2 3 9 を全く使わずに、量産プラントの構築が可能となる。なお、1 0 0 0 k W e 出力のトリウム原子炉で使用するトリウム核燃料を製造するためには、3 0 k g のウラン 2 3 3 が必要になる。従って、図 1 3 の手順で建設したトリウム核燃料量産プラントでは、年間で 2 0 百分の 1 0 0 0 k W e 出力トリウム原子炉向けトリウム核燃料を製造できることになる。

20

【 0 0 6 1 】

図 1 4 に、第二実施形態、第三実施形態、及び第四実施形態によるウラン 2 3 3 製造方法により製造したウラン集合体 2 0 0 から、医療用ラジオアイソトープを製造するプロセスの手順を示す。ウラン集合体 2 0 0 は 9 9 % 以上のウラン 2 3 3 を含む金属ウランである。まず、ウラン集合体 2 0 0 とアルミニウムの合金を製造する。このウラン・アルミ合金は、重量比でウラン：アルミニウムの比率を 7 : 8 程度にしておく。この合金を成形することで、ウラン・アルミ合金製ターゲットプレートを製造する。

30

【 0 0 6 2 】

従来、医療用ラジオアイソトープ製造用に使われているターゲットプレートは、高さ 2 0 0 m m × 幅 5 0 m m × 厚さ 1 . 6 6 m m のサイズで、2 0 % 濃縮金属ウランでできている。従って、ターゲットプレート 1 枚の重量は約 3 1 5 g となり、この中に 0 . 1 5 モルのウラン 2 3 5 が含まれている。この低濃縮ウラン製ターゲットプレートに中性子を照射すると、ターゲットプレート内のウラン 2 3 5 が核分裂して多量の核分裂生成物が生じる。この核分裂生成物にはモリブデン 9 9、或いはヨウ素 1 3 1 等、医療向けに有効に使える放射性核種が含まれる。ターゲットプレートを化学処理し、医療向けに有効な放射性核種を取り出すことで、医療用ラジオアイソトープの製造を行ってきた。

40

【 0 0 6 3 】

しかしながら、低濃縮ウランプレートを用いた場合、中性子照射時にウラン 2 3 8 が中性子を吸収しプルトニウム 2 3 9 に核変換するため、核拡散抵抗性に脆弱なシステムとなっていた。また、放射性核種抽出時に発生する放射性廃棄物も量が多くなるという欠点があった。

【 0 0 6 4 】

ウラン・アルミ合金製ターゲットプレートは、前記ウラン・アルミ合金を高さ 2 0 0 m m × 幅 5 0 m m × 厚さ 1 . 6 6 m m の直方体に成形することで製造する。プレート 1 枚の総重量は約 7 5 g であり、プレート内には 3 5 g、すなわち 0 . 1 5 モルのウラン 2 3 3 が含まれている。このターゲットプレートに中性子を照射するとウラン 2 3 3 が核分裂を

50

起こして大量の核分裂生成物が生じる。ウラン233核分裂生成物と、ウラン235核分裂生成物の質量分布はほぼ等しく、従って、中性子照射後のウラン・アルミ合金製ターゲットプレートからも、医療用ラジオアイソトープの製造は可能となる。

【0065】

ウラン・アルミ合金製ターゲットプレートには、核分裂親物質が全く含まれておらず、中性子を照射することで核分裂性物質が発生することはない。従って、核分裂性物質の管理がし易い、核拡散抵抗性に優れた、医療用ラジオアイソトープ製造方法の確立ができる。更に、ウラン・アルミ合金製ターゲットプレートでは、ウラン濃縮という工程が不要であり、ターゲットプレートを非常に安価に製造できる。また、ウラン・アルミ合金ターゲットプレートでは、放射性廃棄物の量が少なくなり、廃棄物処理も含めた医療用ラジオアイソトープの製造コストを大幅に削減できるという利点がある。

10

【符号の説明】

【0066】

- 100 トリウム集合体
- 200 ウラン集合体
- 400 トリウム核燃料ペレット
- 500 トリウム熔融塩核燃料
- 600 ウラン・アルミ合金製ターゲットプレート
- 10、70、80、90 中性子照射プロセス
- 20 被照射トリウム集合体保管プロセス
- 30 ウラン抽出プロセス
- 31 ウラン製錬プロセス
- 40 タンデム加速器中性子源
- 45、46 中性子減速材
- 47、61 核燃料集合体
- 62 中性子反射材
- 63 照射孔

20

30

【要約】

【課題】

ウラン233の組成比率が99%以上になる、ウラン233製造方法を提供する。

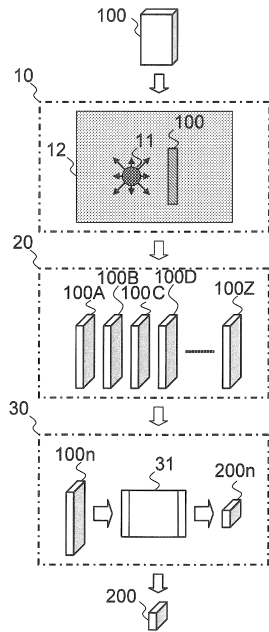
【解決手段】

金属トリウム又はトリウム含有物からなるトリウム集合体100に中性子を照射して、トリウム集合体100に含まれるトリウム232原子核総数の0.1乃至1%のトリウム232原子核をプロトアクチニウム233原子核に核変換させる中性子照射プロセス10と、トリウム集合体100を、プロトアクチニウム233原子核がウラン233原子核に壊変する半減期の5倍以上の期間保管する被照射トリウム集合体保管プロセス20と、トリウム集合体100からウラン233を抽出するウラン抽出プロセス30と、を含む。

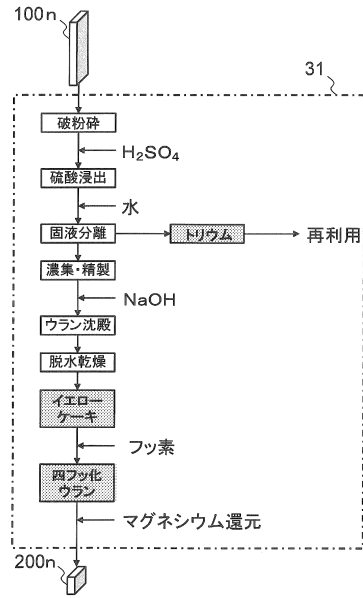
40

【選択図】 図1

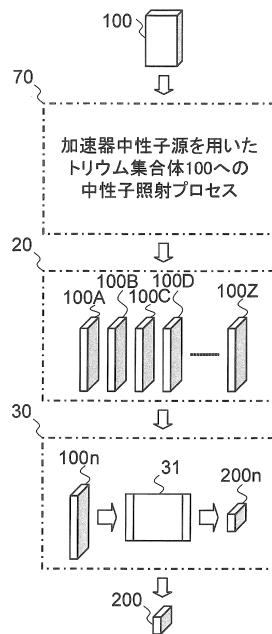
【図1】



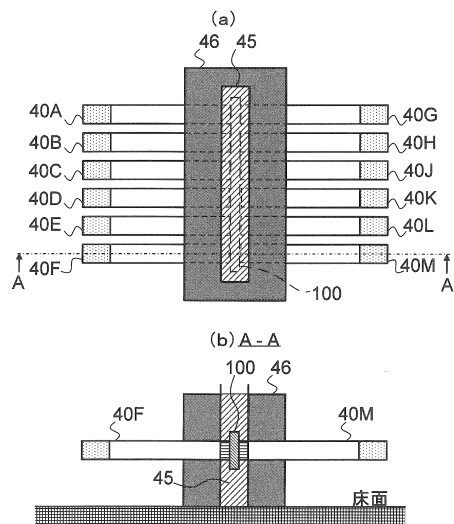
【図2】



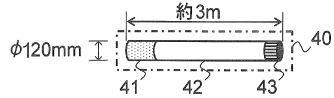
【図3】



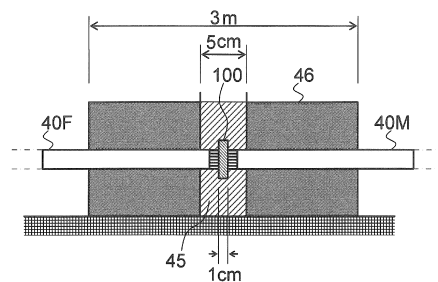
【図5】



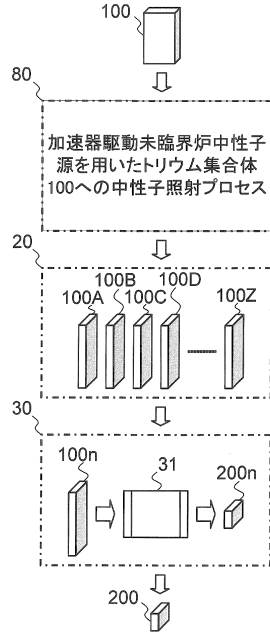
【図4】



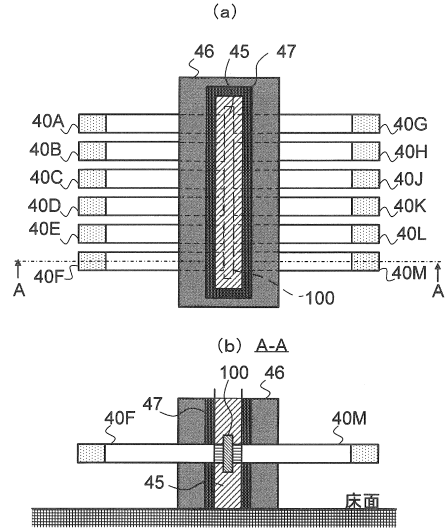
【図6】



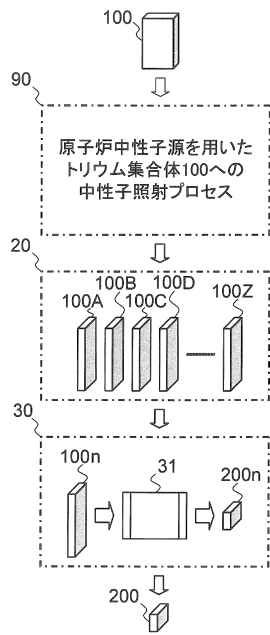
【図7】



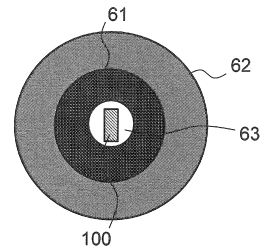
【図8】



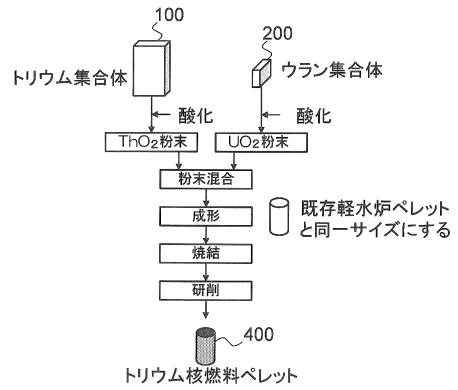
【図9】



【図10】

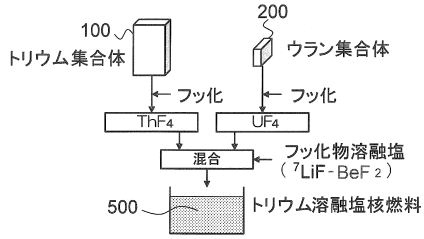


【図11】

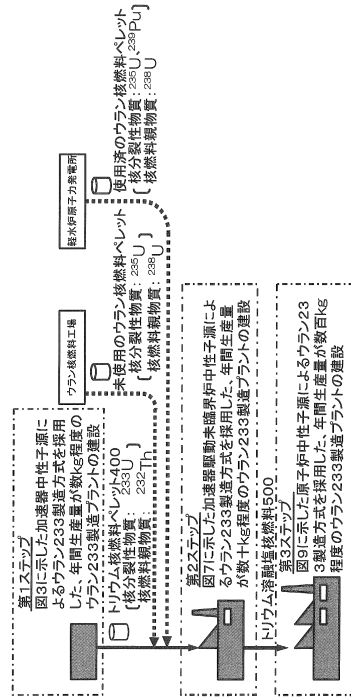




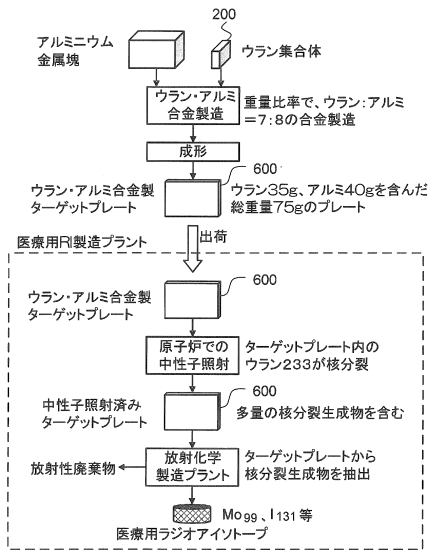
【図12】



【図13】



【図14】



## フロントページの続き

(72)発明者 平井 敦彦

京都市下京区中堂寺南町134 京都高度技術研究所ビル8F 株式会社京都ニュートロニクス内

(72)発明者 古久保 雄二

京都市下京区中堂寺南町134 京都高度技術研究所ビル8F 株式会社京都ニュートロニクス内

審査官 鳥居 祐樹

(56)参考文献 特表平09-506171(JP,A)

特表2005-503568(JP,A)

特表2004-534225(JP,A)

特開2009-222714(JP,A)

A. S. Gerasimov, G. V. Kiselev, A. P. Rudik, "Influence of Neutron Spectrum on Formation of <sup>233</sup>U from <sup>232</sup>Th", Soviet Atomic Energy, ロシア, 1984年11月, Volume 56(5), Page 287-360

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

G21G 1/00 - 7/00

G21C 3/62

G21H 1/00 - 7/00

G21J 1/00 - 5/00

G21F 9/00