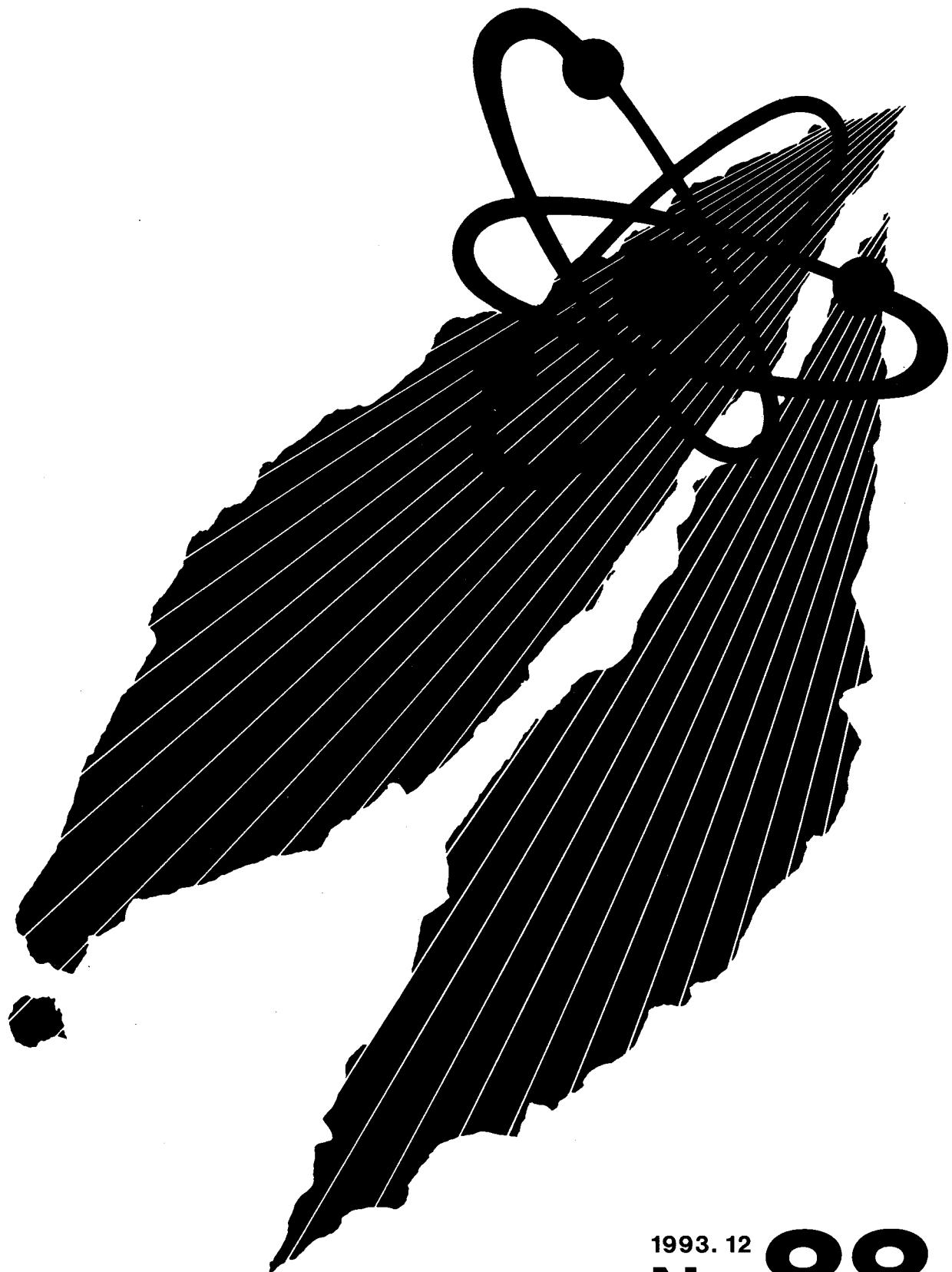


動燃技報

PNC Technical Review



1993. 12
No. 88

動燃技報 No.88 もくじ

概況

新型転換炉の開発	1
高速増殖炉の開発	3
核燃料サイクルの開発	8
再処理技術の開発	9
ウラン資源・探鉱と技術開発	10
廃棄物処分の開発	12
ウラン濃縮技術の開発	14
安全管理技術の開発	15
核物質管理業務	18

技術報告

大電流電子線形加速器の開発	19
遠山 伸一 谷 賢	
圧力晶析法による抽出溶媒中のnドデカンの分離・精製試験	29
根本 剛 都所 昭雄	
硝酸溶液中のプルトニウムとネプツニウムの光化学的原子価調整に関する基礎研究	40
和田 幸男 森本 恭一 五位潤孝幸 富安 博	
ATR原型炉「ふげん」MOX燃料の製造と技術開発	54
三浦 満 助川 宣夫 沖田 高敏 渡邊 健治 出口 守一 横須賀好文 石田 忍 大谷 誠二	

技術小論

クロムモリブデン鋼のクリープ疲労評価法に関する研究	64
青砥 紀身 和田 雄作	
ATR運転高度化支援装置「FATRAS」の開発	71
金闇 卓男 桜井 直人 小堀 勝 西村 弘 池田 博	
東海再処理工場・ウラン脱硝施設の脱硝塔連続処理運転の確立	76
渡辺 敦 内田 豊実 松田 昇 滝 清隆 横 彰 秋山 荒爾	
地層処分基盤研究施設の概要と研究計画について	80
間野 正 石川 博久	
自然界におけるウラン系列核種の放射非平衡分析方法と応用	84
沖田 正俊 落合 洋治	

国際協力

国際会議、海外派遣等	88
------------	----

活動

外部発表・特許・実用新案	89
--------------	----



新型転換炉の開発

1. 新型転換炉「ふげん」

新型転換炉「ふげん」発電所（定格出力16.5万kW）は、運転計画に基づき平成5年8月18日に原子炉を停止し第11回定期検査を開始した。9月末現在定期検査期間中の主要作業を終了し、今後格納容器漏洩率試験等の設備、機器の機能確認試験を実施して11月中旬には原子炉を再起動させる予定である。

第11回定期検査では、原子炉施設や蒸気タービン等の各設備の点検、検査を行うとともに、燃料集合体40体を新燃料に取り替える。また、燃料交換装置の保守性向上対策、原子炉冷却材浄化系熱交換器および原子炉給水系配管の腐食、浸食対策等の改造工事を実施する。

平成5年度第2四半期の運転実績は以下のとおりである。

	発電電力量 (MWh)	発電時間 (h)	時間稼働率 (%)	設備利用率 (%)
5年7月	122,444	744	100.0	99.7
5年8月	68,787	419	56.3	56.0
5年9月	0	0	0	0
合計	191,231	1,163	52.7	52.5

2. 研究開発

新型転換炉に関する研究開発は、大洗工学センターの四つの実規模試験施設および原型炉「ふげん」を中心として展開している。

原型炉「ふげん」については、新型転換炉の機器・システムの性能・信頼性の向上と運転保守管理技術等の高度化、被ばくの低減化およびMOX燃料の照射健全性の確認と評価を重点に進めている。

ATR実証炉の設計・建設・運転に資することを目的とした新型転換炉技術確証試験は、電源開発㈱

が通商産業省の委託を受けて実施している。動燃事業団は、電源開発㈱より平成5年度分の依頼を受け実施している。その実施区分は、①主要機器・設備技術確証試験、②炉心特性確証試験、および③安全性確証試験である。また、実証炉の燃料の高燃焼度化に係わる設計および研究開発を継続して実施している。

2.1 「ふげん」における技術開発

新型転換炉の機器・システムの性能・信頼性向上については、燃料交換作業の効率化を図るためにAI（人工知能）を利用した「燃料交換作業支援システム」を開発したが、さらにこの「燃料交換作業支援システム」を発展させ、その機能を有効に利用した燃料取扱設備制御システム」を実機に導入すべく開発を進めている。

また、原子炉起動時の制御棒操作の自動化を図り、運転制御の高度化を目指した「原子炉核加熱自動制御システム」のシステム検討を進めている。

被ばく低減の一環として原子炉冷却系系統除染後の運転による系統への放射性物質の蓄積傾向を評価している。また、使用済イオン交換樹脂の処理技術の開発を実施している。

MOX燃料高度化の一環として、引き続きガドリニア燃料集合体の照射を、炉心での健全性を確認・評価しつつ継続して実施しているが、今回の定期検査時に炉心より一時的に取り出し、各種の検査を行いその照射健全性を確認した。その他、圧力管監視試験片および国産圧力管材の照射を継続して実施している。

2.2 設計研究

設計コード（運転コード）については、「ふげん」の第16サイクルから照射されている照射用ガドリニア燃料集合体の燃焼特性について、運転実績との比較評価を実施している。

実証炉の設計コードについては、「ふげん」運転データおよび大洗の試験結果に基づいた精度評価を実施するとともに、ガドリニア入り燃料の燃焼特性評価および核特性評価を継続して行った。

2.3 炉物理研究

ATR実証炉の反応度投入事象解析コードとして整備している空間依存動特性コードEUREKA-ATRを実証炉の冷却材喪失事故事象へ適用させるため、ブローダウン解析コードによる解析結果を用いた予備解析を実施した。

2.4 伝熱流動研究

実証炉の取替燃料として開発を進めている高燃焼度燃料（54本クラスタ）の大洗工学センターにおける伝熱流動試験として、定常バーンアウト試験を計画している。現状の設計データをもとにして試験体部品の製作を開始した。

2.5 安全性研究開発

ATRにおいて事故がある程度設計基準事象を超える場合、プラントがこれに対処できる余裕を備えていることを定量的に示すための評価手法の開発を行っている。原子炉停止系の機能喪失を想定したシビアアクシデントに関しては燃料チャンネルが破損した場合の重水中ボイド挙動について圧力管／カランドリニア管の同時破断時のデータを3次元的に処理する作業を行っている。これらにより負の反応度が精度良く見積もれるようになる。また、反応度事故に伴う燃料破損量の解析を実施している。

2.6 部品・機器試作開発

燃料フレッティング磨耗解析コードの開発の一環として、フレッティング磨耗特性に及ぼす因子を定量的に求めるための試験に使用する装置の製作を完了した。圧力管余寿命評価手法の開発については、圧力管照射の整備およびロールド・ジョイント部の残留応力の余寿命に対する影響をみるための解析モ

デルの開発を行っている。また、水素化物を非破壊法で測定するための開発試験を行っている。

「ふげん」一次系化学除染法の開発の一環として、原子炉内に燃料を装荷した状態で、系統化学除染を行う際の除染剤の燃料集合体構成部材に及ぼす影響を調べるために、材料健全性、構造健全性を確かめる炉外試験を実施している。

2.7 燃料・材料研究開発

(1) 構造材料

「ふげん」の第10回定期検査時に取り出した圧力管材料照射試験片について引張試験を実施し、終了した。

(2) MOX (ATR用) 燃料の研究・開発

① 実証炉のための燃料照射試験

実証炉のための燃料照射試験については、電源開発㈱からの受託研究として「ふげん」で燃焼度約24,400MWd/tまで照射された36本燃料集合体の照射後試験を大洗工学センターおよび原研東海研究所において継続実施中である。

② 高燃焼度燃料開発のための照射試験

燃料の高燃焼度化を図るためにMOX-Uガドリニア燃料集合体6体の「ふげん」における照射を継続した。

③ 解析

ハルデンで日負荷追従試験を実施している燃料集合体(IFAF54/555)からオンライン計装で得られた36,500MWd/tまでの燃料棒伸び、内圧データ等の燃料照射挙動データの整理を継続している。また、今年度よりハルデン炉で実施する予定のセグメント燃料棒の出力急昇試験については、試験試料となる燃料は「ふげん」でベース照射したものであり、この1体目の燃料についての非破壊試験を終了し、ハルデンへの輸送準備を継続した。2体目の燃料については、「ふげん」でのベース照射を終了し、現在冷却中である。

（動力炉開発推進本部
核燃料サイクル技術開発部）



高速増殖炉の開発

1. 高速実験炉

平成5年3月27日から開始した第10回定期点検作業を継続中である。格納容器内窒素雰囲気（床下）機器の点検や制御棒案内管交換作業のため主冷却系配管内および一部の原子炉容器内ナトリウムをドレンタンクに移送した。

定期点検作業では、中性子検出器や制御棒案内管の交換作業、1次・2次冷却系の機器・設備点検等計画どおり順調に行われている。また、12月に実施される格納容器全体漏洩率試験の準備を継続して実施した。

照射技術の高度化、照射炉心の高性能化を図るための高度化計画（MK-III計画）に関しては、今年度から設計・製作を開始する主中間熱交換器と新燃料交換機の発注作業を開始した。

2. 高速増殖原型炉「もんじゅ」の建設および試運転

高速増殖原型炉「もんじゅ」の建設工事は、平成5年9月末現在の総合進捗率が約99%（臨界で100%）に達した。

機電の各工事従事者は9月末現在全体で約287名であった。

2.1 試運転状況

燃料装荷前の総点検が7月に完了し、引き続き燃料装荷前準備作業を開始した。また、8月には科学技術庁による保安規定および核燃料物質防護規定遵守状況調査が行われた。点検・保守作業として、設備維持点検が、7月に完了した。

2.2 原型炉に係わる技術開発

原型炉までの技術を集約するとともに、技術の高度化を進めて実証炉以降の開発に反映させるために、①「もんじゅ」成果に基づくFBR技術の評価、②FBRシステム・機器の高度化 ((a)プラントインテリジェント化、(b)信頼性高度化、(c)保守・管

理技術高度化、(d)プラント特性を活した研究開発)、③FBRによるプルトニウム利用の高度化について計画の具体化等を引き続き進めている。

「もんじゅ」成果に基づくFBR技術の評価としては、設計技術の評価として、もんじゅの設計資料の保管・分類状況について確認するとともに設計根拠等のデータベース化を継続した。

FBRシステム・機器の高度化については、プラントインテリジェント化として、原型炉総合データベースとプラントデータ収録システムの開発を進めている。原型炉総合データベースについては、データベース管理システムのハードウェアおよびソフトウェアを整備し、データベースの構造の検討を進めている。プラントデータ収録システムについては、データ収録部の開発を終え、定常データを順調に収録中であり、機能向上のため、プラントからの入力信号増設工事を並行して進めている。また運転管理支援システムの開発として、プラント機器基本データの整備を進めるとともに機器仕様管理システムの開発を進めている。信頼性高度化としては、CREDO対応としてCREDOを包括したデータベースの取り扱いについて検討している。保守・管理技術の高度化としては、機器・保守技術関連の研究開発計画を立案し検討を進めた。プラント特性を活した研究開発については、使用済燃料管理について動向調査を継続した。

2.3 その他

① 工場製作状況

燃料集合体等炉心構成要素の製作を継続して実施した。

3. 大型炉設計研究

FBRの実用化方策の検討の一環として、大型MOX炉を主体とした各種プラント概念の構築とその技術的、総合的見通しを得るために設計研究を行っている。

大型MOX炉の設計研究については、現状で成立性が見通せる新技術を採用したプラント概念を構築するため、「もんじゅ」の経験が有利に活用できるループ型で、かつ実用化移行段階で想定されるプラントを対象としてさらに具体的な検討を進めるとともに、2次系削除システムおよび窒化物燃料等の革新的技術を積極的に導入し、受動的安全性を追求したプラント概念の検討を行っている。

中小型炉の設計研究については、大型炉の補完という目的にしたがって、安全性の一層の向上に主眼を置くとともに、新型燃料を含む先端技術を積極的に取り入れたプラント概念の検討を進めている。

また、新型燃料に関しては、窒化物燃料を主な対象に、関係部門との協力の下に炉心特性、照射特性等を考慮して安全性、経済性に優れた炉心・燃料概念の検討を行っている。超ウラン元素(TRU)の消滅処理の一環として、優れた消滅特性を有するFBRの積極的活用を図る観点から、TRUの効率的な消滅処理に適した炉心・燃料概念、TRU装荷方法および超長寿命炉心の核的特性等の検討を行っている。

4. 炉物理研究開発

大型炉心の核特性評価手法の開発では、3次元6角体系用ノード法輸送計算コードの開発を継続するとともに、「常陽」の燃焼詳細解析に備えて解析コードの整備を進めている。

新型燃料炉心・TRU添加炉心の核設計手法の開発・整備のため、日本原子力研究所との共同研究として、FCAを用いた窒化物燃料炉心臨界実験を引き続き実施するとともに、TRU核種の核データ・炉定数の整備を進めている。

遮蔽研究では、日米共同で実施してきた大型炉遮蔽ベンチマーク実験(JASPER計画)について得られたデータに基づく解析・評価を進めている。

高速炉燃料再処理施設の実用化に向けて設計、運転管理を行うための基盤的技術である臨界安全管理手法を確立するための炉物理研究を継続して実施している。また、重水臨界実験装置(DCA)を未臨界度測定試験施設とする整備計画を進めており、DCAの改造に係わる工事発注作業を開始した。また、臨界安全技術開発に係わる実験計画、施設の設計を継続している。

5. 機器研究開発

コンパクト高性能電磁ポンプの開発として、耐熱コイルの高温特性試験を継続している。強磁场発生型電磁ポンプのナトリウム中性能試験を実施するた

めの準備を進めている。

大型炉用の新型炉停止機構については、評価コード(SASSTAC)を用いて、大型炉の炉心上部機構に適合する自己作動型炉停止装置の構造成立性について、流動や熱過渡の観点から検討を行っている。また、「常陽」炉内機能確認試験の準備として実施した試験体の基本設計の結果をまとめるとともに、電磁部分の詳細な磁界解析を行っている。

蒸気発生器の研究開発については、2重伝熱管型蒸気発生器の伝熱流動特性を把握するため、小型2重管型蒸気発生器モデルを用いて静特性試験、流動安定性試験を実施した。ここで得られたデータを基に、それぞれの解析コードPOPAI 6、BOSTの検証、改良作業を進めている。また、内外管リーク検出特性を把握するための小型モデル試験の準備、および2重管蒸気発生器伝熱管の健全性についての評価を進めている。2次系削除プラントの安全論理を構築するため、50MW蒸気発生器注水素試験データを用いて水素気泡溶融挙動および反応生成物移行挙動を評価するモデルの開発を行っている。さらに、合理的設計基準リークを選定するため、高温ラップチャの評価手法の整備を進めるとともに検証試験の準備を進めている。

プラント動特性解析評価については、総合機能試験データを用いて解析コードSuper-COPDの検証を進めている。

供用期間中検査装置の開発に関しては、原子炉容器廻り検査装置を用いて実施した「もんじゅ」の供用前検査の結果の解析を進めている。1次主配管検査装置および蒸気発生器伝熱管検査装置の開発については、データ処理技術へ高度化を進めている。また、伝熱管の内面状況を可視化するための装置開発に着手した。

6. 燃料・材料研究開発

被覆管材料の中で、将来的に長寿命燃料の有望鋼種である酸化物分散強化型(ODS)フェライト鋼については、平成4年度の成果をレビューし、課題を摘出した。引き続き、強度異方性を改善し延性・韌性を向上させるための冷間加工・再結晶および α/β の変態に関する評価試験を実施した。また、ODS鋼中の酸化物の形態とマトリックスとの整合状態を透過型電子顕微鏡(TEM)による格子像により調査した。

改良オーステナイト鋼(15Cr25Ni)については、クリープ破断データを継続して取得している。

高Ni合金については、15Cr35Niをベースに炭窒化物析出強化型の合金設計を行い、板材試作を開始

するとともに、 γ' 強化型についても合金設計を実施した。

被覆管材料の照射試験としては、温度制御型材料照射挙動測定装置（MARICO-1）用内圧封入試験片の立会検査を実施し、全数合格した。また、CMIR-5（炉心材料用照射リグ）に装荷する試験片の準備を継続して行った。CMIR-4照射試料については、中間検査をほぼ終了しデータのとりまとめを行っている。また、実用鋼におけるボイドスエーリングの改善要因をミクロ組織解析結果に基づいて検討を継続し、微量添加元素の効果を明らかにした。

「常陽」における高線出力照射試験(PTM-2)の照射後試験については、一部の試験ピンについて燃料組織観察を実施し溶融限界軸方向位置を確認した。また、「もんじゅ」燃料の高燃焼度照射、改良オーステナイト鋼被覆管燃料照射等を継続している。

国際協力による燃料の照射試験については、日米燃料材料共同開発プログラムの一環としてFFTF照射試験に関する第7回日米技術会議を開催し、これまで得られた成果をレビューするとともに今後の進め方についての討議を行った。FFTF照射試験のうち、昭和62年11月より照射した改良SUS316鋼被覆管燃料ピン(燃焼度147,000MWd/t、ペレットピーク)については、取得データの評価および日本に一部の燃料ピンを輸送するための準備を継続、実施した。一方、改良オーステナイト鋼被覆管燃料集合体についても、照射後非破壊試験を継続、実施した。日米共同で実施しているEBR-II運転信頼性試験(運転時過渡試験(OTT)と破損燃料継続照射試験(RBCB))においては、長寿命燃料を対象としたPhase-IIのOTT試験で、改良SUS316鋼被覆管燃料、改良オーステナイト鋼、および高強度フェライト／マルテンサイト鋼被覆管燃料の過渡過出力試験後の照射後試験を継続して実施するとともに、ODSフェライト鋼被覆管燃料ピンを含む改良燃料の予備照射を継続した。また、詳細な照射後試験を動燃事業団にて実施するため、輸送試料の選定、輸送準備を継続、実施した。Phase-IIのRBCB試験では、これまでに得られている破損信号を総合的に解析、評価した。日仏交換照射では、「常陽」における仏製改良オーステナイト鋼被覆管燃料の照射を継続した。一方、Phenix炉における動燃事業団の改良SUS316鋼被覆管を用いた大型バンドル照射については、定格運転開始後に照射を開始すべく準備を進めている。

燃料集合体の開発に関しては、「常陽」で測定された集合体引抜き荷重データを整理し、ラッパ管のスエーリング予測値に基づき、炉心湾曲挙動を評価し

た。また、「常陽」での集合体頂部変位測定について、担当者間でその方法・精度について検討した。

制御棒の開発については、高燃焼度B₄Cペレットの照射物性評価を継続して実施した。ナトリウムボンド型中性子吸収ピンについては、照射後試験を継続した。また、寿命改善のための方策を検討し、今後のR&D計画を調整した。高性能中性子吸収材では、ペレットの割れと熱伝導度改善を目的として、B₄C/Cu、B₄C/BN複合材の試作試験を行い、特性評価を開始した。

燃料ピン挙動解析コードCEDARの定常条件解析能力の向上を図った新バージョン確定作業が終了し、引き続き過渡時の解析精度向上のための改良を進めている。

燃料ピンバンドル挙動解析コードの開発については、高BDI条件下での計算精度を上げるとともに、計算時間の効率化を図るための改造を継続して実施した。また、破損燃料挙動解析コードSAFFRONについては、軸方向亀裂進展の弾・塑性解析を実施した。スエーリングシミュレーションコードについては、実用鋼のスエーリング特性評価のためのパラメータ解析に着手した。

燃料・材料のデータベースについては、燃料材料データベースへの「常陽」燃料のPIEデータの登録を継続している。また、「もんじゅ」燃料を対象としたデータベース開発の検討を進めている。

「もんじゅ」等の大型燃料集合体の照射後試験施設については、1996年操業開始に向けて、建屋、電気、換気空調設備工事、内装設備の製作設計、試験機の製作設計等を継続している。建屋、電気、換気空調設備工事については、建家内部仕上げ塗装工事、外構工事、風量・負圧調整および窒素系の性能確認を行っており、9月末をもって竣工した。また、内装設備および試験機については、各設備機器の製作設計を行い、工場製作を進めている。そのうち、集合体試験装置横型試験機については、9月に大洗工学センターに搬入しメカトロニックス応用棟にてセル外性能試験を開始した。

燃料集合体の輸送技術開発については、「もんじゅ」照射後試験用燃料輸送容器として、PIE-SA型輸送容器製作(2基)を引き続き進めている。

被覆管試験セルの整備については、セル内機器の解体および除染を継続して実施中である。

7. 構造材料研究開発

構造設計解析法の研究開発に関しては、汎用非線形構造解析プログラムFINASの拡張・整備、非軸対称座屈解析法および繰返し塑性構成方程式の構

築、炉心わん曲解析のための要素の開発等非線形構造解析技術の高度化を進めている。また、構造物強度評価支援システムの開発を進めている。

構造物強度に関する研究では、構造不連続部、溶接部等の構造要素の熱過渡強度試験を実施し、クリープ疲労評価法、ラチェット評価法の検討を進めている。座屈評価法については、せん断一曲げ相互作用を考慮した簡易評価法の開発を進めるとともに、熱座屈試験の結果をもとに座屈評価で用いる安全率の検討を行っている。

構造物強度確性試験については、溶接容器モデルの熱過渡強度試験を終了し供試体の解体検査を進めている。また、構造不連続部の熱応力の集中挙動を調べるため、次の供試体（フィレット付容器モデル）を組み込むための準備を進めている。

耐震構造試験については、機器上下免震構造要素の振動試験データから得られた基礎的振動特性をまとめている。流体一構造連成振動解析については、欧州とのベンチマーク解析として2重半円球殻の動的座屈解析を実施した。さらに、ヘッドアクセスプラントのスロッシング解析等の耐震評価を行っている。

構造健全性評価法確立のための研究開発に関しては、高速炉機器に破壊力学を適用した評価手法を開発するため、円筒容器試験体のき裂進展試験を継続実施している。

炉心構造設計法の開発については、炉心変形評価法の全体研究開発計画を策定した。炉心の群振動評価法については、IAEA/IWGFRが主催する国際共同ベンチマーク解析に参加し、イタリアPECで行われた衝突試験に対応する解析を進めている。

大気中およびナトリウム中構造材料試験については、高速炉構造用316および高クロムモリブデン鋼の母材および溶接継手クリープ疲労試験等の材料特性試験を継続して実施しており、材料強度基準の拡充・整備を進めている。

構造材料の寿命・余寿命診断法の開発については、SUS304の損傷付加試験、多軸クリープ疲労試験を実施し金属組織学的に検討を行っている。

構造材料の中性子環境効果に関しては、「常陽」構造材料照射リグおよびJMTR照射リグを用いて炉内構造物材料の照射を行うとともに照射後試験を継続して実施している。ナトリウム機器材料環境効果に関しては、高速炉構造用316鋼のナトリウム中の腐食、クリープ、引張試験を実施している。

燃料材料の炉外材料特性の評価については、改良オーステナイト鋼、酸化物分散強化型フェライト鋼、高強度フェライト／マルテンサイト鋼等を対象

にナトリウム中強度試験、腐食特性試験を実施しナトリウム環境効果の評価法を検討している。

放射性ナトリウム技術に関しては、CP（腐食生成物）抑制技術の開発として、CP挙動を解明するための試験解析およびCP挙動解析コードの改良を進めた。

ナトリウム分析に関しては、「常陽」のナトリウムおよびカバーガスアルゴンの純度管理のための分析を継続実施している。

8. 安全研究

炉心部ナトリウム過渡熱流力試験については、自然循環時の炉心部伝熱流動特性を精度良く評価できるようにするために、集合体間の熱移行の影響を含めた炉心部流量再配分特性試験を実施している。

炉体構造水流動試験においては、自然循環除熱時における炉心チャンネルでの逆流現象の発生条件、上部プレナム内の低温流体の炉心部へのもぐり込み等に関する熱流動挙動を調べる炉心プレナム相互作用基礎水試験を実施している。また、炉心部での局所異常が発生した場合の燃料ピンの冷却限界を調べるために局所異常冷却限界試験の試験体の据付けを実施し、装置の機能試験を行っている。

プラント過渡応答試験では、自然循環除熱時のプラントシステム全体としての熱流動現象を解明するため、崩壊熱除去系作動時熱過渡試験を実施している。

熱流動安全解析コードの開発に関しては、炉心過渡伝熱解析手法の高度化を目的として、集合体内単相サブチャンネル解析コードASFREの物理モデルの見直しを行っている。また、汎用多次元熱流動解析コードAQUAの自然循環解析の高精度化を図るとともに、温度ゆらぎ現象を詳細に評価するための乱流直接シミュレーションコードDINUSの開発を進めている。さらに液面揺動解析コード(SPLASH)の開発を進めている。

炉心物質移行挙動試験については、仮想的の炉心崩壊事故時における溶融炉心物質の炉容器内保持能力を評価するため、高温模擬試験装置（MELT-II）を用い、融体NaCl/水系での融体－冷却材相互作用試験を開始するとともに、ナトリウムを冷却材とした高温試験の準備を行っている。また、炉心プール内での熱流力挙動を解明するための炉外模擬試験を継続して進めている。

安全解析コードの開発では、各種事故シーケンス解析のためのコード群の改良・整備を進めている。起因過程解析コードについては、SAS4Aのモデル改良および詳細解析コードPAPASのモデル改良を進

めている。また、炉心崩壊過程解析コードSIMMER-IIIの開発として、流体力学部のシステム化(Version 1)を行い、コードの検証・改良を進めている。

国際協力で進めている炉内安全性試験では、仮想的炉心崩壊事故における燃料ピン過渡挙動に係わる主要現象を解明し、実機評価精度の向上を図るために、国際共同で実施してきたCABRI-2試験成果の国際的総合評価作業を進めている。CABRI-2試験に引き続いて実施しているCABRI-FAST試験について、試験の実施、解析・評価を進めている。

SCARABEE炉内試験では、隣接集合体への破損伝播を模擬したPI-A試験の解析評価および解析モデルの機能検証・改良を進めるとともに、隣接集合体への融体放出を模擬したPV-A試験の解析評価を進めている。

原型炉をモデルプラントとした確率論的安全評価(PSA)については、炉停止時や地震等の外的要因に係わるレベル1 PSA評価を進めている。また、運転保守要領の検討に資するため、試験間隔等をパラメータにした感度解析を実施している。さらに、PSAを運転安全管理に利用するためのリビングPSAシステムの開発整備を進めている。大型炉モデルプラントへのPSAの適用として、主要な安全設備の信頼度評価を行うとともに、炉心損傷事象推移について予備解析等を行い、事故シナリオの検討を進めている。

米国エネルギー省と共同で整備を進めてきた信頼性データベース(CREDO)については、その拡充としてデータの収集・整備を継続するとともに、得られたデータの分析評価を行っている。

さらに、FBR安全性試験炉の設計研究として、高速炉の実用化に向け必要となる炉内安全性試験の検討と、それに対応可能な試験施設の概念を抽出し、その技術的成立性に見通しを得るための検討を継続して進めている。

模擬燃料からのFP放出挙動に関する試験については、コールド試験装置を用いFPのNaベーパー中の物理的・化学的形態等を明らかにするための試験を進めている。

格納系の安全性に関しては、格納容器内総合応答解析コードCONTAINの整備を進めており、コンクリート放出水モデルの実験検証、デブリFP放出モデルの開発を行っている。

ナトリウム燃焼試験では、ナトリウム棒状漏洩流の実験等でこれまでに得られた試験結果を用いて、3次元ナトリウム燃焼解析コードSOLFASの開発を進めるとともに、コード検証のための燃焼試験を実施している。FP蒸気泡挙動に関しては、ヨウ素気泡のナトリウム中溶解挙動に関する予備試験として、水を用いた基礎試験を実施した。また、水素燃焼に関しては、ナトリウム酸化物エアロゾル霧閉気下での燃焼伝播試験を実施している。

蒸気発生器の安全性に関する研究では、合理的な設計基準水リーク事象の選定のため、高温ラブチャ型破損の解析評価を実施している。また、二次系削除システムの安全評価手法の整備のため、冷却系内の水素気泡溶解挙動の評価コードを開発するとともに反応生成物移行モデルの作成を進めている。

(動力炉開発推進本部
核燃料サイクル技術開発部)



核燃料サイクルの開発

1. 燃料開発および製造

(1) FBR燃料の開発

ペレット製造工程連続焼結炉の作動不良が発生し「もんじゅ」初装荷用MOX燃料の製造を中断した。

(2) ATR燃料の開発

第20回取替燃料（27体）の製造を終了するとともに第21回取替燃料（16体）の製造を継続した。

(3) プルトニウム燃料の利用技術開発

1) プルサーマル照射試験

電力との共同研究で進めている敦賀炉照射試験については、大洗工学センターにおける照射後破壊試験を終了し、データ解析結果をとりまとめた。

ドッドワード炉（BWR仕様）、ハルデン炉（PWR仕様）およびBR-2炉（PWR仕様）での照射を継続した。

2) 炭・窒化物燃料に関する研究

窒化物燃料の物性、照射挙動に関する文献調査を実施するとともに、これに基づき挙動解析コードCEDAR-MNの開発を継続している。

炭・窒化物燃料の基礎照射試験に関する原研との共同研究を継続して実施し、照射燃料ピンの詳細設計を行った。また、未照射燃料を含む照射後試験の内容について検討を継続した。

(4) プルトニウム燃料製造施設

プルトニウム燃料製造施設の第三開発室のATRラインについては、FBRラインの経験の反映および工期の短縮化等に向けて設計の見直しを継続した。

2. プルトニウム混合転換技術開発

(1) プルトニウム転換技術開発

プルトニウム転換技術開発施設（転換能力：10kg MOX／日）において、「常陽」取替用原料の混合転換を終了した。

(2) 混合転換技術開発

大型転換施設設計の一環として進めている連続脱硝装置の開発については、改良したスクリュー式連

続脱硝装置を用いて脱硝試験を行った結果、長時間運転可能な操作条件を設定できた。また、転換プロセス工程短縮化の一環として、直接還元試験で得られた粉末特性は、焙焼還元粉末とほぼ同様の特性を示していることが判明した。さらに、脱硝ゾーンのマイクロ波電力を向上させるために、セラミックス材料でスクリューを製作した。

(3) 湿式回収技術開発

湿式回収工程（精製設備、脱硝設備、試験設備）の3設備について、MOX燃料スクラップを用いたプルトニウム、ウランの精製・分離回収試験を継続した。

今期間は、プルトニウム富化度の高いFBR系燃料スクラップ約6kg MOXの回収試験を行い、各々の工程運転における改良ポイントの摘出を実施した。

また、プルトニウム富化度の高い燃料スクラップの溶解時に発生する未溶解残渣の回収方法および、再溶解方法についての検討を進めるため、小規模の溶解試験を行うための試験装置を準備した。

さらに、PuO₂単体の溶解法を検討するために、電解溶解法の小規模試験を開始した。

(4) プルトニウム混合転換装置の開発

混合転換基礎試験として、硝酸プルトニウム溶液、脱硝中間生成物（溶液）の脱硝メカニズム解明試験の生成物の焙焼還元試験を継続している。

3. ウラン転換

(1) 回収ウラン転換技術開発

電力会社と共同で実施する回収ウラン転換実用化試験のための原料（UO₃）輸送容器の原子炉等規制法に基づく容器承認書を7月8日に交付された。

改造工事は、施設設計を進めるとともに、新設・移設設備の現地工事を開始した。

（核燃料サイクル技術開発部）
（核燃料施設計画部）



再処理技術の開発

1. 再処理工場の現状

東海再処理工場は、第2回計画停止時の各工程設備の保全工事・点検整備等を終了し、平成5年9月20日より運転（93-2キャンペーン）を開始した。

2. 再処理技術の開発

(1) 高信頼性機器の開発

新材料を用いた酸回収蒸発缶小型モックアップ試験設備については、設備の保守および耐食性評価のための肉厚測定、表面観察を終了し、運転を再開した。9月末の累積運転時間は約26,000時間である。

(2) 前処理工程の高度化技術開発

軽水炉燃料再処理技術の改良・高度化等に対応した新型プロセス機器の開発を継続した。また、平成5年度分の前処理工程施工設計作業を開始した。

(3) 供用期間中検査技術開発

セル内の機器を遠隔で点検するための試験装置の高度化改良に関する検討および新検査システムの検討を終了し、基礎試験を開始した。

(4) 遠隔技術開発

大型塔槽類の解体・撤去・据付技術開発については、信頼性・効率化向上等のシステム改良検討を継続した。また、除染に係わる検討を継続した。

3. 高速炉燃料再処理技術開発

(1) プロセス技術開発

1) 前処理工程技術開発
レーザ解体試験装置の製作に係わる部材加工を行っている。

2) 主分離工芸技術開発

遠心抽出器については、リサイクル機器試験施設

(RETF)用機の詳細設計に基づく試作機の性能確認試験を継続した。また、新型電解酸化槽基礎試験を継続した。

(2) 材料技術開発

ホット腐食試験の一環として、先に行ったγ線照射下での各種金属材料の浸漬腐食試験の結果を踏まえ、より詳細な反応機構を検討するための試験を継続した。

(3) 遠隔技術開発

遠隔サンプリングシステムのうち、サンプルステーションを試作し、機能試験を行っている。

遠隔継手開発として、耐蝕性試験を継続した。

(4) 分析技術開発

溶液中のPu・U濃度、原子価等の分析を対象に発光法、吸光度法等を利用した分析技術の開発として、試作装置の評価試験および装置改良を継続した。

4. 施設設計

リサイクル機器試験施設(RETF)について、調整設計を継続した。また、RETFに関わる設置変更承認申請は、8月3日に内閣総理大臣の承認を得た。

5. 高レベル放射性物質研究施設(CPF)

フェニックス燃料（第18回）および「常陽」C型特殊燃料（第19回）を用いた溶解試験結果のデータ整理・解析を継続実施した。また、連続抽出試験を実施している。

（核燃料サイクル技術開発部）
（核燃料施設計画部）



ウラン資源・探鉱と 技術開発

1. 海外調査探査

1.1 カナダ

サスカチュワン州・ドーンレイクプロジェクトでは、夏期調査として物理探査（VLF比抵抗探査）を実施した。クリスティーレイクプロジェクトでは、冬期調査の解析として地化学データの統計処理、X線による鉱物同定等を実施した。

北西準州・プリンセスメリープロジェクトは、SWグリットで19孔の補完試錐を実施し、多くの試錐孔でこれまでの推定値を上回る鉱化を認め、アンドリューレイク鉱床の鉱量が増大した。ENDグリッドでは8孔／3374mの試錐調査を実施し、5孔で良好な鉱化を捉えた（最高値0.92% eU₃O₈×57m）。

1.2 オーストラリア

西オーストラリア州・ルーダルプロジェクトは、フィングーン地区で検出したブレッチャーパイプをターゲットとした簡易試錐を実施し、2孔で弱放射能異常を検出した。サンデークリーク地区の簡易試錐で捉えた放射能異常を伴う構造、酸化鉄変質帯を追跡するため深掘試錐を実施したが、顕著な放射能異常変質帯は確認されなかった。ポイントン地区の試錐では砂岩・基盤岩境界付近の珪長質岩で1000ppmeUの放射能異常を検出した。

北部準州・プラトープロジェクトでは、空中物理探査により選定された地区で、地上物理探査を実施した。

また、プロジェクト開拓の各地区では夏期現地調査を実施した。

1.3 アフリカ

ニジェール・テッシリプロジェクトは、マダウエラ鉱床の予備フィージビリティスタディ(F/S)仮文報告書を作成した。

ジンバブエ・カリバレイクプロジェクトは、フワング北方コックロフトブリッジ地区においてグリッ

ト調査を実施し、放射能異常の北方への連続を確認した。

1.4 中 国

建昌プロジェクトは、宝国老地区で試錐2孔を完孔したが、鉱化作用は認められなかった。西菅當子地区では、炭質物を含む花崗岩質礫岩の分布を確認するとともに地表部で弱ウラン鉱化を認めた。

1.5 ブラジル

リオフレスコプロジェクトは、ウラン共同調査の予備契約締結に向けての交渉を継続した。

1.6 海外法人等

① カナダ現地法人

北米の各プロジェクトの実施、共同調査の管理および新規プロジェクト開拓のための情報収集・解析、交渉等を実施した。

② オーストラリア現地法人

オーストラリアの各プロジェクトの実施、共同調査の管理および新規プロジェクト開拓のための情報収集・解析、交渉等を実施した。

③ パリ事務所

アフリカのウラン探鉱プロジェクトの支援と新規プロジェクト開拓についての情報収集・解析を行った。

④ 北京事務所

建昌プロジェクトの支援および新規プロジェクト開拓についての情報収集・解析を行った。

2. 探鉱技術開発

2.1 探査技術開発

リモートセンシング技術開発として、オーストラリア・アルンタ地域の衛星画像を用いた岩相区分および地質構造の抽出を行った。また同地域において岩石反射スペクトル測定のためのサンプリングを

行った。

物理探査技術開発ではオーストラリア・ルーダルプロジェクトに資するため、キンタイア鉱床の磁気異常を「磁気探査3次元モデリングプログラム」によって解析し、地質構造を推定した。

2.2 採鉱技術開発

放射線防護採鉱技術開発として、「動的ラドン娘核種試験設備」の基本機能を試験するため吸排気、エアロゾル投入等によるラドンや娘核種の濃度変化を調査した。

2.3 製錬技術開発

不純物含有量の多いウラン鉱石からのウラン回収・

処理技術開発としてイオン交換樹脂によるウランと不純物元素の分離試験を開始した。また、過酸化水素法によるイエローーケーキ沈殿試験を実施した。

3. 環境保全技術開発

安全評価技術開発の一環として、モニタリングデータの取得およびデータ集の作成を継続して行った。また、処置設計技術開発は鉱滓の脱水試験および土壤・岩石吸着容離試験を行った。坑廃水処理技術開発については微生物によるウランおよびラジウムの吸着試験と骨炭によるウラン吸着試験を引き続き行った。

(国際部資源開発室)



廃棄物処理処分の開発

1. ガラス固化技術開発施設(TVF)試運転

- (1) 固化プロセス運転試験（コールド試験）
 - ① 固化プロセス運転試験(III)を開始し、約4.1トンの模擬廃液のガラス固化体を製造した。
 - ② 固化プロセス運転試験(II)のデータ整理、解析、評価および報告書の作成を行っている。
- (2) 遠隔操作・保守試験（コールド試験）
 - ① 遠隔操作・保守試験(III)のデータ整理、試験結果の評価作業、および遠隔保守データベース（脱着手順、位置データ、映像情報等）の作成を行っている。
 - ② 遠隔継手の点検、廃液およびガラスの遠隔サンプリングを実施した。

2. 高レベル廃棄物処理技術開発

- (1) ガラス溶融炉開発

JCEM（高性能溶融炉）工学試験装置に関し、模擬廃液を直接供給してガラス溶融試験を行い、1.3m³の廃液を使用し800kgの固化体とした。これにより、供給速度と溶融炉の加熱条件についてのデータを得ることができた。
- (2) 高減容ガラス固化試験

CPFの第10回受入れ高レベル廃液を対象に、高減容ガラス固化体の試作の可能性と分離前処理／組成調整の方法について検討した。その結果、脱硝時にpHを調整して生成した沈殿を溶液から分離することにより、廃液物の含有率が高いガラス固化を行える見通しを得た。ただし、同時にナトリウム、白金族等が増し、これらの影響がどのようになるか調査するためコールドでの予備試験を行う予定である。

3. 低レベル・TRU廃棄物処理処分技術開発

- (1) クリプトン除去技術開発

開発運転の運転計画書を策定した。本運転では、施設内保有のクリプトンを使用して定期検査を受検

した後、再処理工場からオフガスを受け入れクリプトンの回収試験を実施する予定である。

(2) 再処理低レベル廃液減容技術開発

低レベル濃縮廃液からのルテニウムの除去性能向上を図るため、硫化コバルトを共沈剤に用いた方法および亜鉛添着活性炭を用いた方法による試験を実施している。

(3) 核燃料施設解体技術開発

電解研磨除染技術開発として、電解シミュレーションコードの開発を円筒形状を解析対象にして行っている。

4. 廃棄物処分技術開発

(1) 地質環境条件の調査研究

日本の地質環境の概略を把握するため、全国的な視野で地層の分布、地質構造、岩石の化学的特性や力学的特性・熱特性、地下水の水理や地球化学的特性等に関する調査研究を継続した。

(2) 処分技術の研究開発

人工バリアおよび処分施設に要求される性能を確保し得る技術的方法を具体的に明らかにするために、人工バリアの設計・製作・施工および処分施設の設計・建設・操業・閉鎖の要素技術に関する工学的検討を継続した。

(3) 性能評価研究

地層処分システムの長期的な性能の検討を行うために、上記(1)、(2)の成果も取り入れつつ、地層処分システムに対するシナリオの解析、地下水の性質の解析、ニアフィールドにおける熱・水理・化学・力学的諸条件の解析、人工バリアおよび天然バリア中の放射性核種の移動の抑制に関する研究、人工バリア材料の研究、人工バリアのナチュラルアナログ研究を継続した。

(4) 地層科学研究

地盤の侵食、断層運動に関する研究の仕様検討および隆起・沈降に関する研究の実施計画の検討を継

続し、また、調査機器開発として、1,000m対応の水理試験装置および孔間部水理試験装置の開発を継続した。

(5) 国際共同研究

スイスNAGRAおよびスウェーデンSKBとの共同研究である、サイト特性調査技術開発、水理地質モデル開発、核種移行特性に関する原位置試験を継続した。また、米国DOEと不均質多孔質媒体中の水理・物質移動に関する共同研究を継続した。

(6) その他

東海事業所に建設を進めてきた、地層処分研究のための研究施設「地層処分基盤研究施設」が平成5年8月に完成した。

5. 放射性廃棄物管理

(1) 東海事業所における廃棄物管理

1) プルトニウム廃棄物管理

プルトニウム燃料製造施設等から発生した固体廃棄物をプルトニウム廃棄物貯蔵施設および屋外固体廃棄物貯蔵庫に受け入れ、貯蔵管理を実施した。また、プルトニウム廃棄物処理開発施設においては貯蔵施設から固体廃棄物を受け入れ、減容処理を実施した。

2) ウラン廃棄物処理

ウラン焼却施設および中央廃水処理場の運転を実施した。また、固体廃棄物をウラン系廃棄物貯蔵施設および廃棄物貯蔵庫に受け入れ、貯蔵管理を実施した。

3) 再処理廃棄物処理

再処理施設から発生した固体廃棄物については高放射性固体廃棄物貯蔵庫、第二高放射性固体廃棄物貯蔵施設、または第一、第二低放射性固体廃棄物貯蔵場に受け入れ、貯蔵管理を実施した。また、液体廃棄物については低放射性濃縮廃液をアスファルト固化処理施設に、廃溶媒等は廃溶媒処理技術開発施設に受け入れ、固化処理し、固化体を第二アスファルト固化体貯蔵施設へ移送して、貯蔵管理を実施した。

(2) 大洗工学センターにおける廃棄物処理

固体廃棄物前処理施設において、照射燃料集合体試験室等から受け入れた高線量 α 廃棄物の減容処理、低線量 $\beta\gamma$ 廃棄物の解体処理および低線量 α 廃棄物の解体処理を行い、中央廃棄物処理場に搬出した。「常陽」廃棄物処理建家では、常陽および照射燃料集合体試験室等から受け入れた燃料洗浄廃液等の処理を行い、中央廃棄物処理場に移送した。

(環境技術開発推進本部)



ウラン濃縮技術の開発

1. 研究開発

(1) 新素材を用いた遠心機開発

日本原燃および電気事業者との共同研究として実施している高度化機開発は、分離流動試験に向けての試験設備の整備および回転胴改良設計のための解析・検討を行った。また、遠心法先導的技術開発として、回転胴用新素材の物性評価試験および制振機構に係わる開発を進めた。

(2) 分子レーザ法濃縮技術の開発

基礎試験の一環として、分離測定装置を用いた分離スキームの最適化試験を継続した。

また、レーザガス供給設備について、茨城県による高压ガス定期保安検査を受験し合格した。

2. 濃縮工学施設

パイロットプラントで使用した遠心機の処理技術開発として、表面汚染密度測定試験を行った。

また、実用規模カスケード試験装置に関しては、ホット起動試験を7月末まで行い、その後高压ガス取締法等の法令に基づく設備・機器の点検を行った。

3. 原型プラント

第一運転単位(DOP-1)、第二運転単位(DOP-2)とも操業運転を継続した。

(核燃料サイクル技術開発部)
(核燃料施設計画部)



安全管理技術の開発

1. 個人被ばく線量当量測定・評価技術の開発

(1) 外部被ばく線量測定・評価技術の高度化

自動読み取り指リング線量計について、 β 線および γ 線に対するエネルギーレスポンスの測定を終了した。また、実用素子（500個）について標準照射を行い、素子毎の感度補正係数を算出した。

米国オークリッジ国立研究所で実施している個人線量計の相互比較研究(PDIS18)に今年度も参加した。

(東海事業所)

(2) 内部被ばく線量測定・評価技術の向上

Ge型肺モニタシステムの実用・導入を目的として、Ge検出器単体のリバモアファントムに対する計数効率をシミュレーション計算により算出するための検出を開始した。また、現行の鉄室に備えつけるGe肺モニタの実用システムの基本設計を開発した。

(東海事業所)

2. 放射線測定技術の開発

(1) 放射線測定器の保守・校正技術の改良と標準化

放射線管理モニタ品質規格の高度化に関する調査研究に関しては、今年度の活動計画について検討し、エリアモニタ等を対象とした故障状況調査結果から原子力施設における放管モニタの品質保証のあり方について検討することとした。 γ 線基準照射設備品質保証技術の標準化に関する研究に関しては、ガラス線量計による事業所間の相互比較手法を標準化し、各事業所の照射設備に適用するため、各事業所の照射用治具の調査を行った。また、計量法に基づく計量標準認証制度に対応するための文献調査、収集を継続して行った。

(東海事業所)

(2) プルトニウム取扱施設における中性子スペクトルの測定

ICRP Pub.60の法令取り入れへの対応として、中性子線の測定精度の向上を図るため、中性子エネルギースペクトルの測定を実施している。今期は、前

期に引き続き、プルトニウム燃料第三開発室のペレット製造工程ラインにおける作業環境中の中性子エネルギースペクトルを中性子スペクトロメータを用いて測定を行った。

(東海事業所)

(3) 放射線モニタのシミュレーション応答解析に関する研究

実験的に感度評価が困難な核種、エネルギー等に対する放射線モニタの感度評価を目的として、計算機(EWS)を用いたシミュレーション応答解析に関する研究を行っている。

今期は、作業環境等の放射性ガス濃度測定等に使用している1.5 l 円筒型電離箱の電離効率および濃度換算係数のシミュレーション計算の手法および結果について、「第3回EGS 4研究会」(高エネ研)において発表した。

今後、未実施の核種のガスモニタについてシミュレーション計算を行うとともに、本手法を改良・整備し、ガスモニタの校正手法の高度化を図っていく予定である。

(大洗工学センター)

3. 放射線管理技術の開発

(1) 排気中放射性物質評価技術の開発

再処理施設から大気中に放出される放射性物質のうちヨウ素、トリチウム、炭素-14について、その測定技術の高度化を実施している。

有機ヨウ素の光化学反応による無機ヨウ素への分解法については、標準ガスによる測定を行い、実験時の設定条件の検討を開始した。

トリチウム、炭素-14の連続測定技術開発については、レーザによる測定事例について文献調査を継続して行った。

(東海事業所)

(2) 放射線管理情報集中処理システムの開発

放射線管理関係業務別の計算機処理について、作

業運行フローを基に計算機処理の範囲と処理方式等のシステム適用に係わる具体的な検討を継続して行った。また、業務別システム構築の一つとして運用を目指す放射線作業管理システムについては、計画書・報告書の入力処理を簡略化するテキストリーダの採用やアラームメータの被ばくデータ読み取り装置との連動組入れに係わる検討を実施した。

(東海事業所)

4. 環境安全技術の開発

(1) 環境影響評価手法に関する研究

再処理施設平常運転時における環境影響評価手法の開発としては、「自然環境汚染の影響と評価に関する調査研究」において、環境影響評価研究に関する文献を調査するとともに、今後の研究の進め方について検討を行った。また、「表層土壤圈における核種動態等に関する研究」においては、土壤の物理・化学的性状を文献等で調査するとともに、実験計画を立案した。なお、事故時の環境影響評価を目的としたダイナミックエコロジカルモデルの開発については、試作したコードのテストランを行い、その成果を取りまとめた。

(東海事業所)

(2) 放射性核種の環境移行に関する研究

各種環境試料中の³H, ¹⁴C, ⁹⁹Tc, ¹²⁹I, ^{239,240}Pu, ²⁴¹Am等の放射性核種の分析・測定を継続的に実施し、環境中における分布および挙動を調査した。

また、ヨウ素の大気から葉菜・米への移行係数、^{239,240}Puの海産生物への濃縮係数等の結果を整理した。

(東海事業所)

(3) 分析技術の開発に関する研究

ICP-MSを用いた²³⁷Npの分析法の開発として、海産生物試料の分析法の検討を継続して行った。⁹⁹Tcの分析法の開発については、ICP-MS分析高度化研究として、イオンクロマトアナライザおよび電熱気化装置を試料導入部に接続し、高感度化を図った。

また、⁶³Niおよび⁷⁵Seの分析法の開発については、安定NiおよびSeの物理・化学的性質について文献調査を行った。

(東海事業所)

(4) 大気中ラドン濃度の測定

前期に引き続いて、積分型測定器による大気中ラドン濃度の測定および地表からのラドン散逸量の測定を実施した。

(人形峰事業所)

(5) 湖沼系における放射性核種移行調査

今期は、8月に湖沼の定期検査として、湖沼水、湖底堆積物を船上から採取した。³H, ¹³⁷Cs等のオールアウト核種の分析の他、湖沼水のpH、塩素量、SS等を測定した。特に、今回の調査では、湖沼内の水の混合および滞留状況把握のため電磁流向流速計を用いて流向流速を測定した。これらの測定結果は、現在、整理、解析中であり、移行モデル構築に反映させて行く予定である。

(大洗工学センター)

5. 安全工学研究

(1) 放射性物質の閉じ込めに関する研究

① 空気中放射性物質挙動評価技術の開発

測定技術の開発については、空気流線自動測定装置の不具合箇所（プログラムおよび可動部）の修正、修理を行った。また、解析コードの開発については、前年度に行った重力沈降モデルの調査を基に、熱流動解析コード(AQUA)に重力沈降モデルを組み込むための準備を進めた。

(東海事業所)

② グローブボックス内火災挙動研究

グローブボックス内火災消火試験として消火ガスに窒素ガスを用いて試験を行い、消火時間や換気計の応答等についてのデータ収集を行った。

(東海事業所)

(2) 核燃料施設の臨界・遮蔽安全に関する研究

臨界安全については、MOX燃料加工施設を対象とした臨界安全ガイドブック作成の構成・内容の検討を行うとともに、SCALE 4 コードにより計算した臨界安全データのまとめを継続して行った。MCNP 4 コードによりPu酸化物およびMOX粉末系を対象とした臨界ベンチマーク計算を行った。また、米国で9月に開催されたOECD/NEAの臨界ベンチマーク定期会合およびANSトピカルミーティングに参加し、最新の臨界安全に関する情報を得た。遮蔽安全については、中性子線スカイシャイン評価コードシステム(SKYLARK)およびガンマ線スカイシャイン評価コードシステムの整備を実施した。

(東海事業所)

(3) 核燃料施設の確率論的安全評価に関する研究

信頼性データの収集・整備については、モデルプラントPSAに用いる信頼性データの適用性の確認を引き続き行った。

PSA手法の開発・整備については、動的換気系評価コードRIDOに用いる換気系移行モデルプログ

ラムの詳細化のための検討を引き続き行った。

また、支援システムの今年度の整備としては、化学プラントを参考にしたHAZOPの手法による整備を開始した。モデルプラントへのPSA適用研究については、再処理モデルプラントの高放射性廃液貯

蔵工程を検討対象に設定し、適用・検討を開始した。

(東海事業所)

(安全部)



核物質管理業務

1. 核物質利用

(1) 核物質使用状況調査

「ふげん」「常陽」「もんじゅ」に係わる核物質の使用履歴および利用に関するデータを整理するためのソフト開発フェーズIIを終了し、入力データを継続作成中である。

事業所	施設
人形峠	精練転換
大洗	R & D
//	照射装置組立検査施設
東海	プルトニウム燃料施設
//	プルトニウム燃料製造施設
//	プルトニウム転換技術開発施設

2. 核物質防護

(1) 施設関係の核物質防護

ふげん、大洗およびもんじゅの各原子炉施設について、科技庁による核物質防護規定遵守状況調査が実施された。

(2) 輸送関係の核物質防護

輸送における核物質防護装置の内容を科学技術庁長官へ3件申請した。

3. 保障措置

(1) 定常業務

① 計量管理報告

核原料物質、核燃料物質および原子炉の規制に関する法律第67条および国際規制物資の使用に関する規則第7条に基づき、科学技術庁へ以下の報告書を提出した。

[件数]

- (a) 在庫変動報告書(ICR) 70
- (b) 実在庫量明細報告書(PIL) 17
- (c) 物質収支報告書(MBR) 17
- (d) 国籍管理報告書(OCR) 96

② 実在庫確認(PIT)および実在庫検認(PIV)

核原料物質、核燃料物質および原子炉の規制に関する法律第61条の8に基づく計量管理規定にしたがい、以下の施設で実在庫の確認が行われた。

(2) 技術開発

現在、以下の項目について開発を進めている。

- ① 非破壊入量計量分析装置の開発（再処理工場）を継続中。
- ② 米国オークリッジ研究所と共同で実施している「ルテチウム・トレーサ法」の開発を継続中。
- (3) その他
 - ① 保障装置技術開発のためのPNC/EC共同研究を継続中。
 - ② 保障措置の合理化・効率化のための検討（外部委員会等を含む）を継続中。

4. 核物質の輸送

- ① 「ふげん」使用済燃料集合体
- ② 「ふげん」取替用新燃料集合体等の輸送業務を実施した。

5. 輸送容器の開発

プルトニウム航空輸送容器開発については、輸送容器の解析評価を実施した。

新型転換炉実証炉新燃料輸送容器開発については、安全性実証試験実施に係わる諸準備を継続した。

また、「もんじゅ」照射後試験用燃料輸送容器のナトリウム付着燃料集合体輸送に係わる安全解析書作成作業を開始した。

(核物質管理部)



大電流電子線形加速器の開発

遠山 伸一 谷 賢

大洗工学センター技術開発部

資料番号：88-1

Development of High Power CW Electron Linac

Shin-ichi Tōyama Satoshi Tani
(Technology Development Division, O-arai Engineering Center)

オメガ計画の一環として、動燃事業団では長寿命核分裂生成物を加速器により消滅処理する可能性を検討している。将来の消滅処理システムで必要となる加速器の大電流化技術を開発することを目的として、大電流電子線形加速器を設計し、その構成要素であるクライストロン、加速管等の試作・評価を実施した。本加速器のエネルギーは10MeVであるが、最大／平均ビーム電流が100mA/20mAと既存の加速器に比べてきわめて高い点に特徴がある。試作機器による大電力試験の結果、全般的に良好な特性を示し、開発目標を達成できる見通しが得られた。本年度から加速器要素の本格的な製作を開始し、平成8年度にはすべての要素・機器の据付を終了する予定である。

1. はじめに

わが国では高レベル放射性廃棄物中に含まれるTRU核種（ネプツニウム、アメリシウム、キュリウム等の超ウラン元素）および長寿命核分裂生成物（ストロンチウム、セシウム、テクネチウム、ヨウ素等）を分離し、これらを原子炉、加速器等により消滅する可能性を探る研究をオメガ計画として推進している。

オメガ計画は、昭和62年6月に改定された「原子力開発利用長期計画」を受けて、昭和63年10月に原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会で策定されたものである。本計画は、科技庁バックエンド推進室の指導の下、動燃事業団、原研、電中研が中心となって、長期的・基礎的研究として推進している。

動燃事業団では、TRU核種の消滅には、高速炉を利用することが適切と考えており、そのための研究開発を実施している。一方、長寿命核分裂生成物については通常の原子炉で消滅するのが困難であることから、加速器等による消滅処理の可能性を検討している¹⁾。

加速器等による消滅処理としては、電子加速器、陽子加速器を単独で用いる方法、加速器と未臨界炉を組み合わせる方法等が提案されている。このうち電子加速器による消滅処理は、加速器で得られる高

速の電子線を対象核種に直接、あるいはタンクステンのようなターゲットに衝突させ、発生したガンマ線による(γ, n)反応を利用して短寿命核種または安定核種に変換するものである。図1にセシウム-137を消滅する場合を例に電子加速器による消滅処理の原理を示す。

電子加速器による消滅処理の特徴としては、(γ, n)反応を用いるので副次的な放射能の発生が少ないこと、また、加速器技術としての基盤が高エネルギー物理学での利用や産業用として、陽子加速器に比べて整備され充実していることがあげられる。しかしながら、実際に原子炉内で生成する長寿命核種を消滅する場合を想定すると、従来にない大電流の電子加速器が必要となる。

図2にセシウム-137を消滅する場合に必要な電

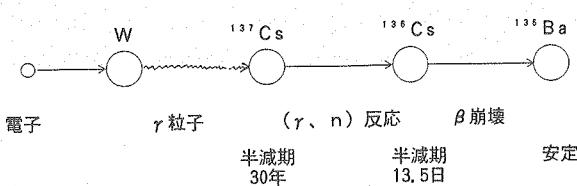


図1 電子加速器による消滅処理の原理
(例： ^{137}Cs の場合)

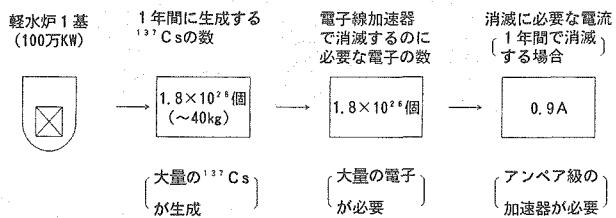


図 2 消滅処理に必要な電流の計算例
(^{137}Cs の場合、変換率を100%と仮定)

流値の計算例を示す。100万kW級の軽水炉1基中で1年間に生成するセシウム-137を、電子加速器1基で1年間で消滅するのに必要な電流は消滅効率を理論上100%と仮定しても0.9Aとなり、少なくともアンペア級の大電流加速器が必要であることがわかる。一方、加速エネルギーとしては100MeV程度が必要と考えられる。これは消滅対象核種が何であっても、(γ, n)反応のピークはガンマ線のエネルギーが10数MeV付近にあり、このエネルギーのガンマ線を効率良く発生させるには、電子線のエネルギーとしては100MeV程度必要であることによる。処理量の向上のためにはアンペア級の加速器を複数台用いてターゲットに照射することが考えられる。

図3に世界の代表的電子線形加速器を示す。従来の加速器開発は素粒子分野で新しい物理現象を発見することを目指して、加速エネルギーを高めることに重点が置かれており、すでにスタンフォード大学では30~50GeVクラスの電子加速器が稼働している。これに対して、将来の消滅処理システムで必要となる加速器には、前述のようにアンペア級の大電流が要求され、これまでの加速器開発の方向とは異なり、世界にも例のない性能を目標とするものである。

必要なエネルギーおよび電流を一挙に達成することは技術的にも予算的にも困難であるので、動燃事業団では当面、加速器の大電流化技術の開発に重点を置くこととして、エネルギー10MeV、最大/平均ビーム電流100mA/20mAを開発目標として設定した。エネルギーを10MeVに抑えたのは、これを超えると、空気の放射化が生じて加速器のメンテナンス等がやりにくくなる恐れがあること、10MeVまで加速する技術が確立すれば加速管を追加することにより100MeVの達成は比較的容易に見通せると考えられることによる。空気の放射化は10MeVでの運転経験を生かして、もれビームを極力へらすことにより低減する。最大ビーム電流を100mAとしたのは、現在の加速器要素・付帯設備技術レベルから

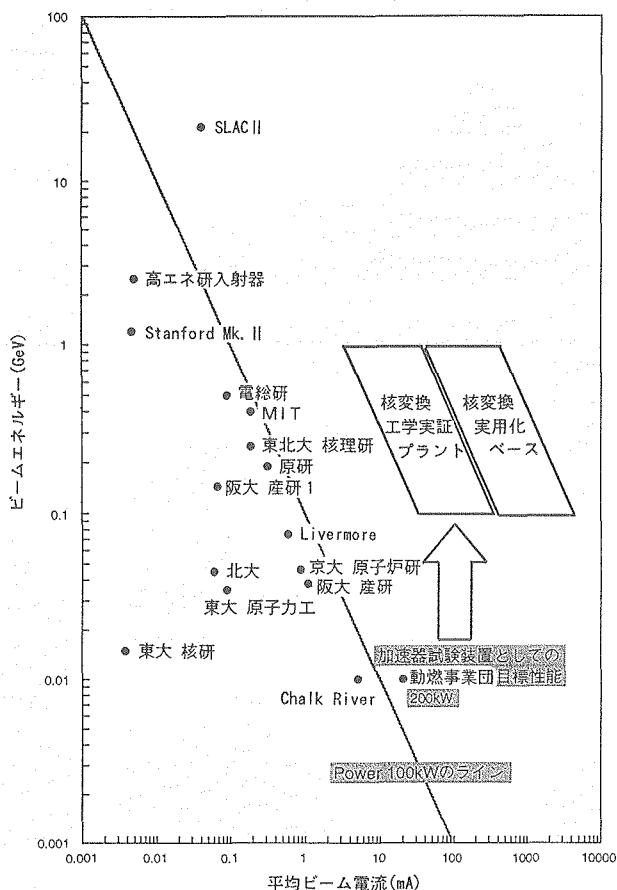


図3 世界の代表的電子線形加速器の性能比較

ら見て達成できる可能性が高いこと、将来アンペア級にスケールアップできるかどうかを判断するのに適切な値であることによる。

大電流化にあたっての基本的な技術課題としてはビーム発散の防止と加速管等の耐熱・除熱の問題が挙げられる。多数の電子が加速される場合、自らが形成した電場の影響によって、電子が軌道から発散する傾向が強くなる。この現象はBBU(Beam Break Up)と呼ばれており、大電流になればなるほどその防止対策が重要となる²⁾。また、大量の熱が発生するため、耐熱材料を用いたり、適切な除熱を行う必要がある。これらの具体的な内容については、次章以降で記述する。

上述のように本加速器は世界にも例を見ない大電流電子線形加速器であるため、設計研究を行うのは勿論のこと、クライストロン、加速管等の主要構成要素については試作を行い、その性能を確認する必要がある。そのため、高エネルギー物理学研究所と共に大電力試験等を実施している。本報では、加速器の特徴、設計の概要、今までの試験結果および今後の予定について報告する。

2. 加速器の特徴

動燃事業団で開発している電子加速器は、前章でも述べたように現在の技術レベルをしのぐ大電流電子ビームを加速する必要がある。そのためには、通常のパルスライナックが持つデューティファクター(ビームの加速時間／加速器の運転時間)を大幅に増大するか、ビーム電流を飛躍的に高めるかのいずれかの方策をとることになる。後者は、電磁誘導を原理とした高効率のインダクションライナックであり、そのピーク電流は100万Aに達する³⁾。しかし、機器の保全のためそのビーム加速時間(パルス)は凡そ50ns以下であり、その繰り返し数は数10秒に1回と小さいため、大電流化への改良の余地は少ない。一方、マイクロ波を利用したRF(Radio Frequency)ライナックは、原理的に100%デューティの粒子加速器が可能であり、ビームの品質も優れている。このため、基本的な方針としては、デューティファクタ100%、すなわち、CW(Continuous Wave)を最終目標として、加速器の大電流化を図ることとした。

RFライナックのデューティファクターについては、表1に示すように、1950年代には0.01%程度であったものが、1990年代には米国CEBAF等でCW電子加速器が出現しつつある。現在動燃事業団で開発を進めている加速器の基本仕様を表2に示す。エネルギーは10MeVに設定し、電流値を既存の電子線形加速器では最も高い最大100mA、平均20mAとした。平均で20mAの電子ビームをRFライナック

表2 加速器基本仕様

エネルギー	(MeV)	10
最大ビーム電流	(mA)	100
平均ビーム電流	(mA)	20
エネルギー分散		5×10^{-3}
パルス幅	(ms)	4
繰り返し数	(Hz)	50
デューティー	(%)	20
平均ビーム出力	(kW)	200
加速周波数	(MHz)	1249, 135
マイクロ波波長	(cm)	24.0
加速モード		$2\pi/3$
加速管の本数		8
加速ユニット数		2
クライストロン数		2
クライストロン出力	(MW)	1.2
加速器の全長	(m)	16.0

で加速した例ではなく、それを実現するためには、大電力RF源の開発、RFの壁損失による熱の除去等の課題がある。このほかにビーム安定性の確保や効率向上という重要な課題があるが、それは次章で述べる。

大電流を加速するためには、大電力RFを加速管に供給することが必要である。それには、中出力のRF源と超電導加速管の組合せまたは大出力RF源と常電導加速管の組合せが考えられる。高エネルギー加速器では一般に前者が採用されている。これは、既存のクライストロンを流用でき、ビーム電流が小さいのでビームローディング特性(ビーム電流変動に伴う加速管内エネルギーの負荷変動)が良好であり、ヘリウム冷凍機のコストを考えても全体として安価であるためである。しかし、大電流では温度上昇による超電導状態の喪失が生じやすく、超電導加速管は使えないため、本加速器では後者を採用した。これは機器の構成が単純で、総合的な運転が容易であるという利点があり、今後、大強度ライナックのRF系として定着して行くものと思われる。ただし、本加速器用の大出力RF源として、1.2MWという世界最大級のクライストロンを開発する必要がある。

本加速器でのRFパワーは通常のライナックの10倍以上なので、導波管接合部等にも熱が発生しやすく細心の注意が必要である。また、加速管の熱負荷は最大で加速管1本あたり約20kWに達する。質の良いビームを得るためにには、運転中の加速管内部の温度を±0.1°Cの精度で制御する技術開発が必要である。

3. 設計の概要

3.1 ビームダイナミックス

本加速器の構成を図4に示す。加速器は入射部と加速部(レギュラーパー)に分かれしており、入射部は

表1 世界各地に設置された大電流電子ライナック

RFライナック		
第一世代 数μA 0.01%DF*	第二世代 数10μA 0.1~1%DF	第三世代 数100μA 100%DF
1950 オルセイ(仏)2.3GeV スタンフォード(米)1.2GeV	1960 SLAC(米) 20GeV MIT(米) 700MeV マインツ(独) 350MeV サスカチュワーン(加)	1970 サクレー(仏) 730MeV CEBAF(米) 4GeV(建設中) 東北大(日) 300MeV NBS(米) 150MeV グラスゴウ(英) 150MeV ダルムシュタット(独) 60MeV チョークリバー(加) 10MeV
		1980~90 CEBAF(米) 4GeV 東北大(日) 150MeV マインツ(独) 820MeV
国内のRF電子ライナック 名工試(12MeV)	阪大放研(15MeV) 東大核研(6MeV) 東北大(300MeV)	原研(190MeV) 電総研(500MeV) 北大(45MeV) 高エネ研(2.5GeV) 東大原研(35MeV) 阪大産研(30MeV)
インダクションライナック** 1960 サンディア研(米) 10MeV-400W	1970 陸軍ハリー研(米) 10MeV-7kW リバモアETA(米) 3.5MeV-600W	1990 リバモアATA(米) 50MeV-500W CESTA(仏) 20MeV-3kW(建設中) 高エネ研(日) 1.6MeV-10W

* デューティファクタ: ビーム発生の実時間

** インダクションライナックは数1000~100000Aの電子ビームを加速するがDFは0.0001%以下である。

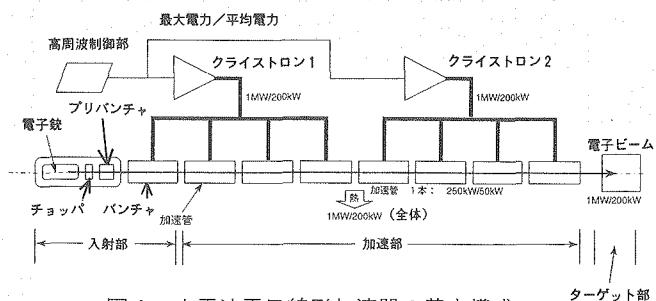


図4 大電流電子線形加速器の基本構成

電子銃、チョッパ、プリバンチャ、パンチャからなり、レギュラー部は7本の加速管からなる。ライナックのビーム品質は、電子が光速に加速される入射部の段階ではほぼ決まるので、電子銃で安定度の高い電子を出し、チョッパ、プリバンチャではビーム加速方向以外の横方向運動量を加えず、パンチャで電子ができるだけこぼさないように加速する。このため、電子銃には電子エネルギー200kVで1.0%以下の精度が要求される。

入射部でのビーム軌道計算の例を図5に示す。ここではビームはチョッパ（図5のA）で60°、プリバンチャ後（図5のB）で15°、パンチャ後（図5のC）で5°以内にパンチ（集群化）されている。パンチャに入る電子ビームパンチはRF位相で約60°の位相安定性領域に入っているため、加速効率は約65%程度であるが、電子ビームが光速に達するレギュラー部では80%以上の効率で電子を加速できる。したがって、本加速器では、電源効率を通常の90%とすると、全体の効率は、加速効率×RF変換効率×電源効率=0.8×0.65×0.9=0.47となりほぼ50%の効率でビームを加速できる。これは、通常の

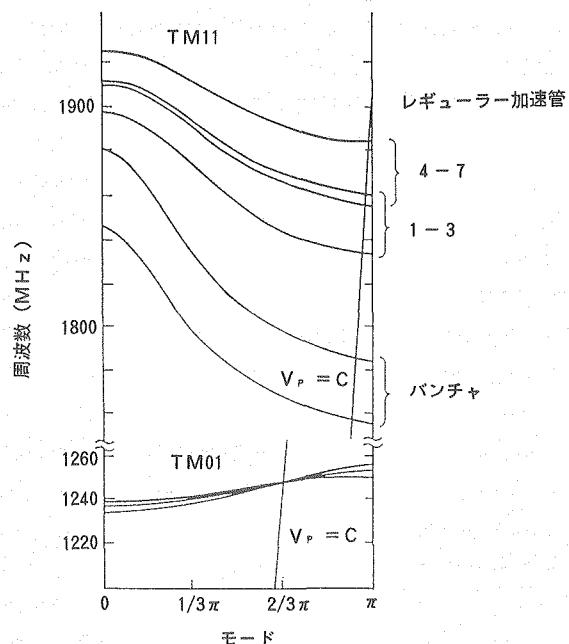


図6 BBU防止のための高周波モードの離調

RFライナックの効率に比べて2倍以上高い。

一般にライナックでは長さに応じてBBUが発生する可能性がある。ビームが基準軸上を運動する際にはBBUは原理的に生じないが、本加速器のように大強度の場合はビーム径が大きくなり易いので無視できない。BBUを防止するため、本加速器では以下の対策をとっている。①管内の高次のRFを可能な限り小さくするため、図6に示すように、共振周波数を加速管内空洞毎にずらし、管内で高次のRFが増大することを防止する。②加速管の利得（加速電界）を小さくし、かつ実効長を短くし、加速管の間にはビーム補正用の電磁石をつける、③特にビームが発散し易い入射部にはソレノイド磁場により、ビーム軌道をそろえる。

また、電子銃のエミッタンスを小さくすれば、BBUを防止するだけでなくビーム品質の向上という付加価値が期待できるので、そのための検討も行っている。現在までの解析では、 $50\pi\text{mm}\cdot\text{mrad}$ 以下のエミッタンスを得る可能性があり、これは自由電子レーザー等へのビーム利用の観点からも優れている。

以上のこととは、一本の加速管に対してであり、縮退型BBUと呼ばれるものである。これに加えて、蓄積型BBUという加速管を多数配することによって生じるものがある。これは、一本の加速管でわずかにビームに残った変調成分が增幅されるもので、これを予防するため、本加速器では3段階にわけて

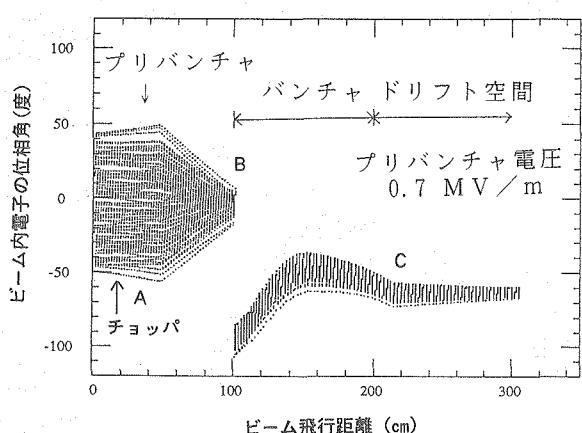


図5 入射部のビームダイナミックス

表3 クライストロン仕様

CW運転パラメータ	
制御方式	アノード変調型
動作周波数 (MHz)	1249, 135
飽和出力 (MW)	1, 2
ビーム電圧 (kV)	90
ビーム電流 (A)	25
パービアンス ($\text{AV}^{-3/2}$)	1×10^{-5}
空洞数	6
最大コレクター損失 (MW)	0.8
コレクター冷却方式	蒸発冷却
コレクター供給流量 (ℓ/m)	50
目標効率 (%)	65
電力利得 (dB)	50
ヒーター加熱電力 (W)	250
パルス運転パラメータ	
飽和出力 (MW)	4.1
ビーム電圧 (kV)	147
パルス幅 (μs)	800
繰り返し周波数 (Hz)	50
デューティーファクター(%)	4.0

8本の加速管の空洞寸法を変え、かつ、各加速管の間の電磁石により、ビーム形状をコントロールしている。これらにより、凡そ150mAまでBBUは生じないことが計算により予測されている。

3.2 クライストロン

表3に、本加速器で使用されるクライストロンの仕様を示す。この特徴は、本加速器が所定の性能目標を達成した後に行う種々の実験の範囲を広げるために、CWとパルスの2つの運転モードを有することである。すなわちCWモードでは、1.2MWの大出力で大電流を加速し、パルスモードでは平均値は小さいが、最大で4.1MWを出力し、高エネルギー加速を行うものである。これは加速管内パワーが加速電界の2乗に比例するという関係を利用している。このため、クライストロンのビーム電圧は最大147kVに設定されている。効率は6段スタガー空洞を用いて65%という、Lバンド(1~2GHz)用としては世界トップクラスのものである。

また、本クライストロンは、コスト低減のために出力窓形式としてピルボックス型を採用している⁴⁾。これは同軸型に比べて、構造が単純で安価であるためである。ただし、窓材のセラミックに熱負荷がかかりやすいので設計には注意を要する。

本クライストロンの設計では、熱の問題以外に90kVと147kVの両モードでのビーム安定性を確保することが重要である。このため、147kVの電子ビームでも集束可能な磁界を発生できる構造としている。

3.3 レゾナントリング

本加速器の最大の特徴は電子加速に通常の進行波型、定在波型ではなく、進行波還流型加速管(レゾ

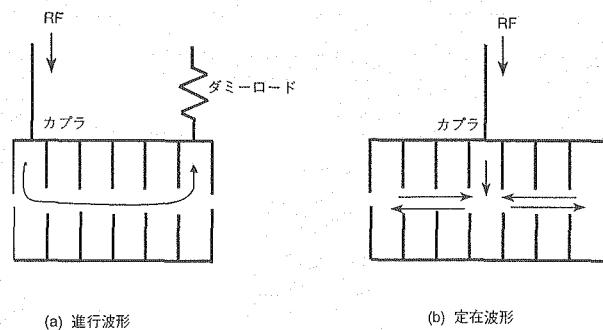


図7 加速管の原理

ナントリング)を用いていることである。

進行波型とは、図7(a)のように加速管に単純にRFを電子ビームと同じタイミングで通し、加速管の終端部でダミーロードに吸収させるもので、運転が容易であるが効率が悪いという欠点を有する。定在波型とは、図7(b)のように加速管内にRFを蓄積し、定在波を作ることから効率が良い。しかし、正確な共鳴を得るために、進行波管よりはるかに複雑な構造になり、また電力反射が生ずるとクライストロンを直撃し、破壊する可能性が高いこと等、運転時に注意を要する。

進行波還流型とは、これらの利点を集めたもので、構造的に簡単で、安全性にも優れたものである。レゾナントリングそのもののアイディアは古く、1950年代の後半に考案されており、その目的は小出力のクライストロンから実効的に大出力を得ることであった⁵⁾。本加速器で用いられるレゾナントリングの概要を図8に示す。レゾナントリングは進行波加速管、移相器、スタブチューナ、RF結合器、ダミーロードおよびそれらを結合する導波管か

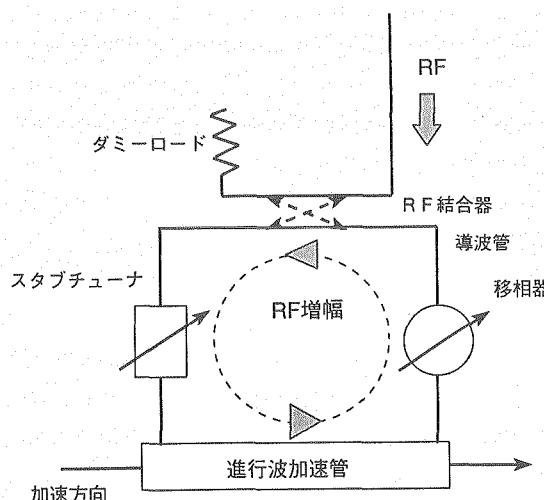


図8 レゾナントリング構成図

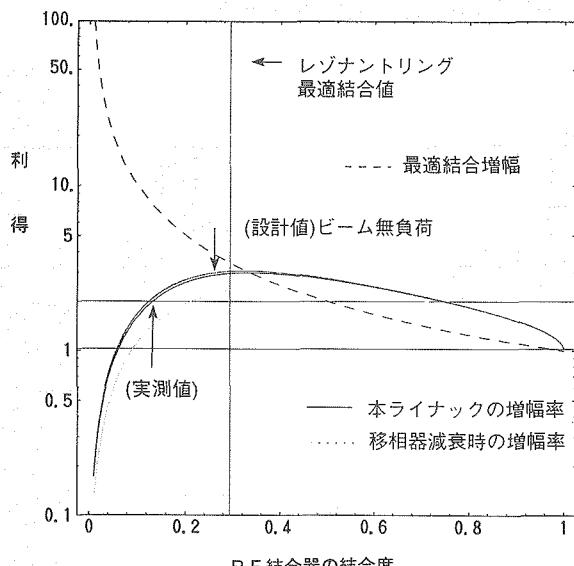


図9 レゾナントリング利得

らなる。レゾナントリングの利点は、加速管は進行波型というきわめて簡単な構造であり、RF特性の調整はすべて移相器とスタブチューナで行えるので、製作、メインテナンスが容易であることである。またレゾナントリングは、加速に用いられたRFを再利用するため、実効的に管内電力を高めることができる。

図9にRF結合器の結合度と、管内電力増幅度の関係を示す。これはレゾナントリングのRF減衰が0.95(ビーム無負荷時)の場合の計算である。レゾナントリングのRF減衰が、0.8以上であればレゾナントリング内では2倍以上の増幅があり、定在波型加速器よりも高い電力を得ることができる。本加速器の減衰は、ビームローディング時でも0.85なので、4倍の電力利得が得られる。しかし、同時にレゾナントリング自体の減衰が小さいことが要求される。導波管自体の減衰は0.001以下であり問題がないが、特に移相器等の挿入物による減衰を小さくする必要がある。この様な機器配置による減衰や反射は電力増幅を著しく低下させるので、移相器、スタブチューナの調整や、レゾナントリングの温度調節が重要となる。

レゾナントリングは、電力利得だけでなく、効率の面でも優れている。図10に加速電流を変えた時の加速効率を示す。これでわかるように、本レゾナントリングは100mAで65%の効率をもち、さらに大電流では、RF結合器の結合度を変えることにより80%以上の効率を得ることができる。

進行波還流型加速管を本加速器のような大電力レベルで用いることは世界初であるので、未知の事項

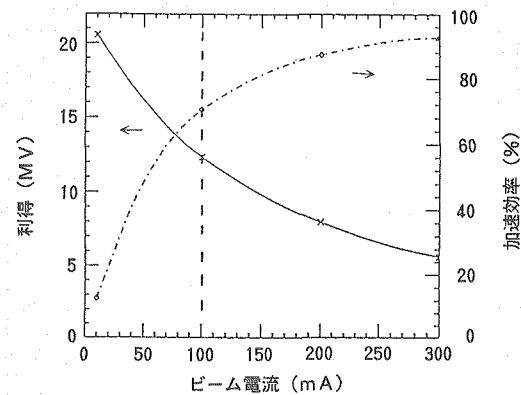


図10 レゾナントリング効率

も多い。例えば、ビームローディングの変化に対応した共振の維持や、大電力時の電力反射抑制等、新たな技術的対策が必要となる。このため、加速器の製作に先立ち、各要素の試作を行い、後述するように実際の運転に対応した電力で試験を行い、問題点の摘出を行った。

4. 現在までの試験結果

クライストロン、加速管等の重要な構成要素に関しては、前述の設計に基づく試作を行い、高エネルギー物理学研究所と共同でその性能を確認した。

4.1 クライストロン

本加速器用のRF源として、前出表3に示す仕様の大電力クライストロンの開発を進めている。まず、CWモード時におけるRF相互作用部の設計妥当性を評価するために、パルスクリアイストロンを試作し、入出力特性と陰極効率をショートパルス試験により評価した。測定結果の1例を図11に示す。その結果、実測値が設計値とほぼ一致していること、ビーム電圧90kV、ビーム電流22Aの時、効率が約63%、飽和利得が51dBとなることが明らかになった。63%という効率は目標値に比べて若干低いものの、Lバンドのクライストロンとしては世界最高水準の値であり、これにより開発に自信を深めた。

この成果を受けて、写真1に示すCWクライストロンを試作し、各種性能試験を実施した⁶⁾。大電力クライストロンにおいては、出力窓の熱応力破壊の防止が重要な課題であり、そのため窓材として熱伝導率の良いペリリアを採用するとともに、冷却水路を設けたピルボックス型窓とした。

CWモードでは出力電力300kWが得られたが、この時の窓の温度上昇が計算値の約2倍の90°Cに達し、窓が破損する恐れが生じた。そのため、それ以

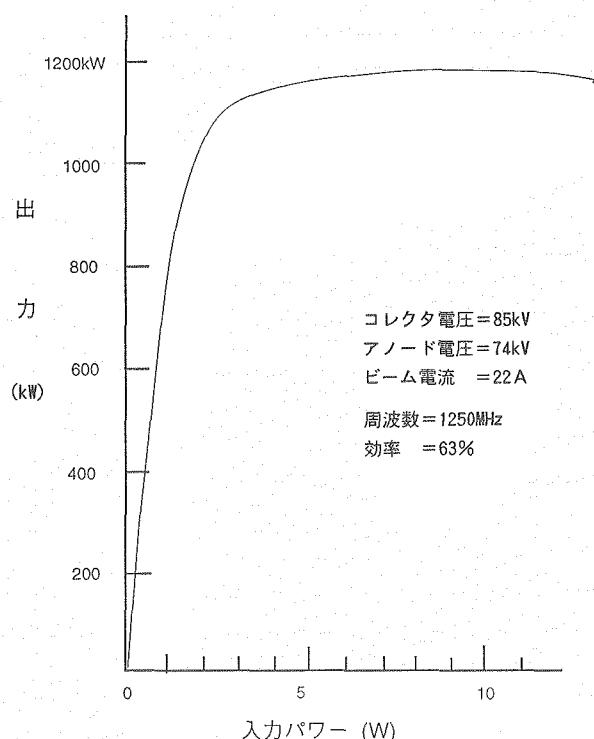


図11 パルスクライストロンの入出力特性

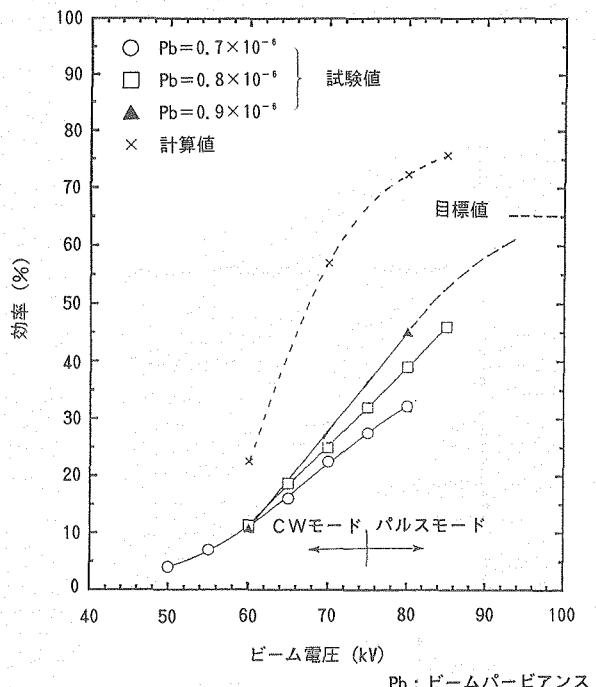


図12 試作クライストロンのビーム電圧と効率の関係

降は窓の熱負荷が少なくなるパルスモード(パルス巾50ms、繰り返し1s)に切り換え、エージングを行

いながら試験を継続した。図12にビーム電圧と効率の関係をビームパービアンス(Pb)をパラメータとして示す。パルスモードでは最大出力780kW、最大効率46%が得られ、ビーム電圧をさらに上げることにより、効率65%程度が達成できる見通しが得られた。

窓の耐電力特性をさらに正確に評価するとともに、窓の材質、形状の影響を把握することを目的として、レゾナントリングを用いた耐電力試験を行った⁷⁾。図13に試験体系を示す。レゾナントリングでは遷流部内の電力を投入電力の約40倍に増幅させることができるので、窓試験に必要な1.2MWの電力が得られる。窓としては下記の3種類を用いた。

- ① ベリリアスタンダード窓
試作クライストロンの窓と同一のもの
- ② ベリリアロング窓
窓表面での電界を下げるため、ピルボックスの全長を約2倍としたもの
- ③ アルミナロング窓
②と同一形状で材質がアルミナ

窓の反射係数と電界分布を計算により評価した結果、ロング窓はスタンダード窓よりマルチパクタリング⁸⁾(なだれ電子によるセラミックの発光)の発生を低く抑えるとともに、窓のセラミックス部分におけるパワーロスを低減できるという特徴を有することがわかった。

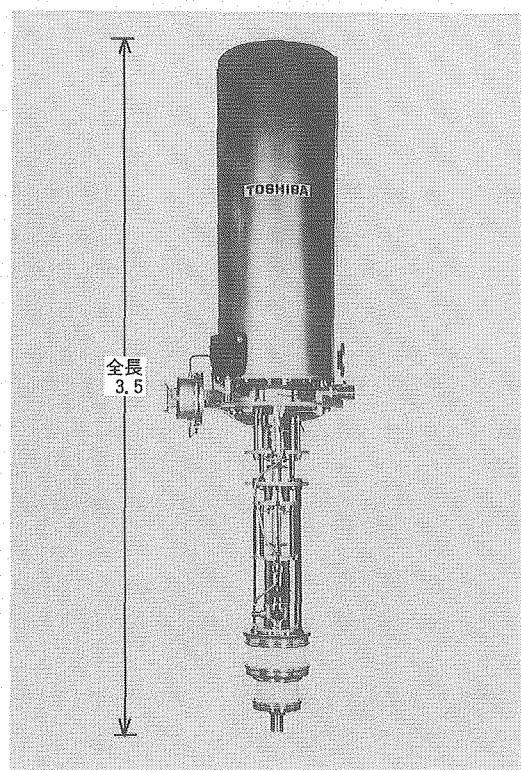


写真1 試作クライストロンの外観

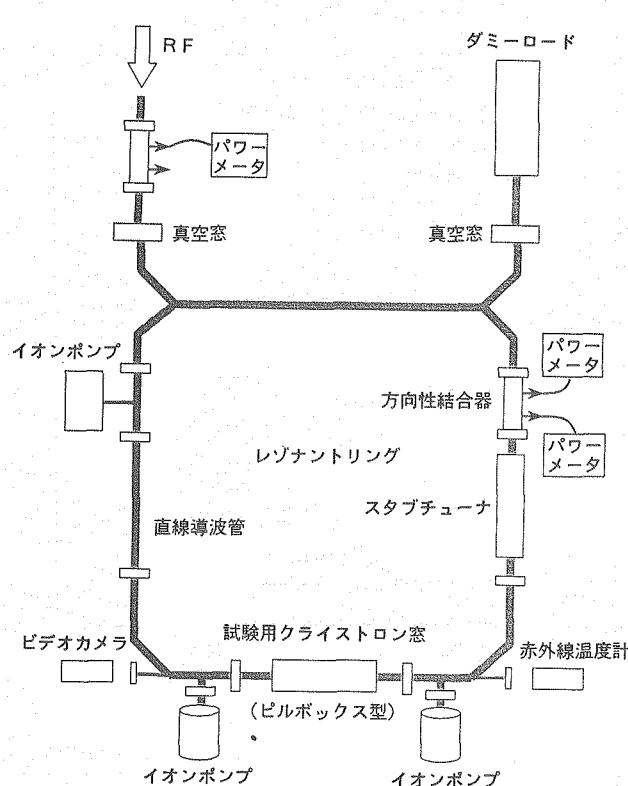


図13 クライストロン窓・耐電力試験体系図

CWモード時の投入電力と窓の温度上昇の関係を図14に示す。ベリリアロング窓に対しては、CWと1MW以上でのパルス(5~20%)を併用してエー

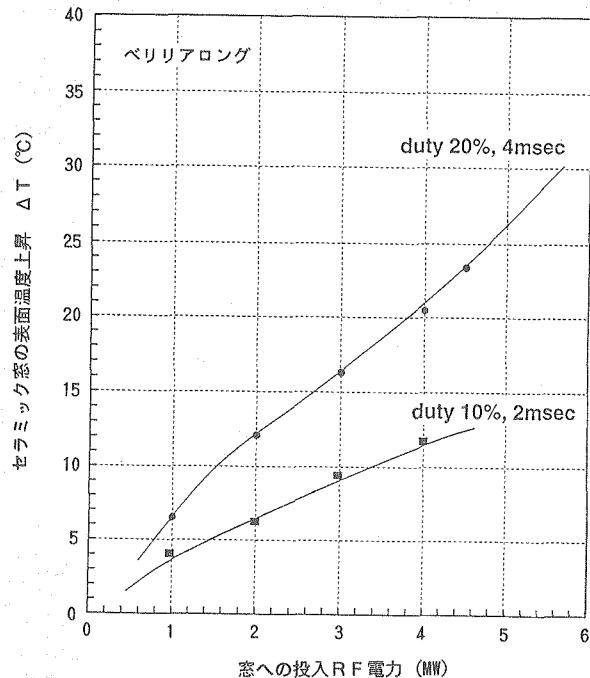


図15 セラミック窓の温度上昇 (パルスモード)

ジング(耐電圧を上げて行くこと)を行った結果、目標を超える1.7MWまでのCWモードによるRFの印加に成功した。最大RFを印加した時の窓の温度上昇はたかだか50°C程度であり、マルチパクタリングも観測されなかった。

ベリリアスタンダード窓ではRF印加とともに500kW付近から青白い発光現象が観測され、1MW付近からマルチパクタリングが定常的に発生した。

アルミナロング窓については460kWまでのRF印加を行ったが、温度上昇幅が139°Cと最も大きく、500kWで窓の破壊にいたった。このような温度上昇の原因は、他の窓よりも高い電圧定在波比(VSWR)により、試験体系の窓セラミック位置の電界強度が大きくなつたためと推定される。

パルス耐電力試験には、ベリリアロング窓のみを使用し、2ms, 4 msパルスマードの繰り返し50Hzで4.5MWのRF入力まで行った。結果を図15に示す。RFのデューティファクタは10%と20%であるが、4 MWまではマルチパクタリングは観測されなかつた。ただし、4.25MWを越えると窓表面周辺部に寿命数分程度の青白い発光が生じ、4.5MWではセラミックの表面の温度変化率の上昇が生じた。

以上の結果、ベリリアロング窓についてCWモードでは1.7MWまで、パルスマードではデューティファクタ10, 20%の時に4.5MWまでのRF電力の透過に耐える窓構造の開発に成功した。今後は、ロングピルボックスのクライストロン全体としての効果

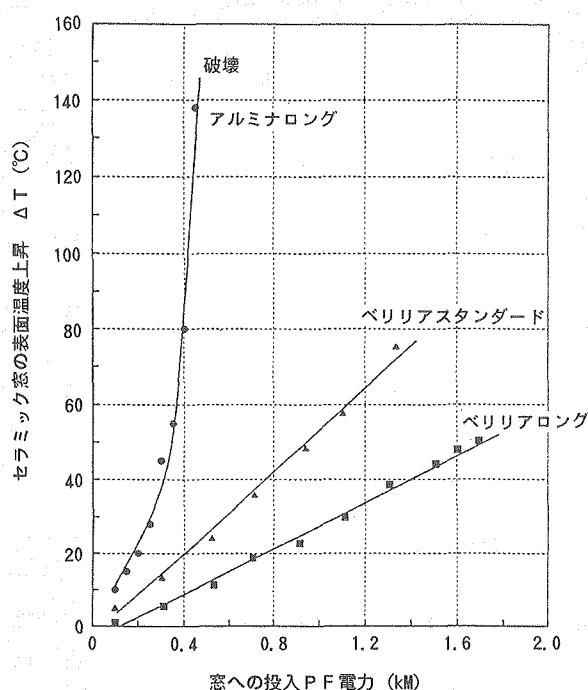


図14 セラミック窓の温度上昇 (CWモード)

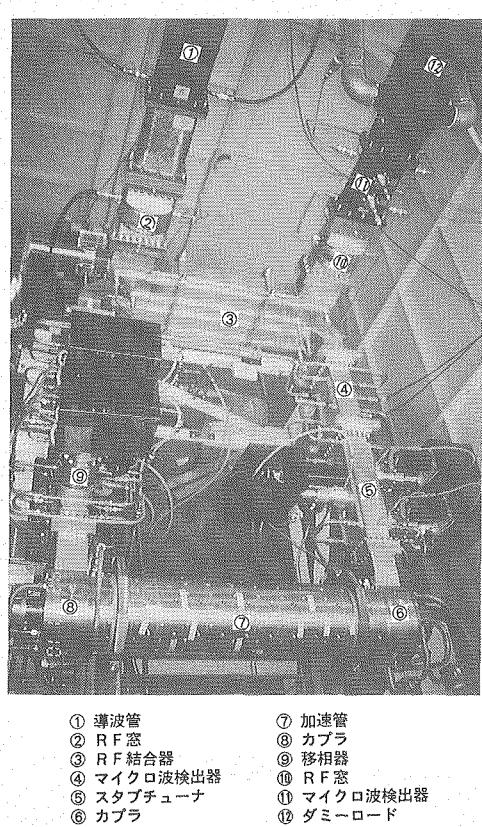


表4 加速管のRF特性

	計算値	実測値
電力増幅率	9.06	9.12
Q値 ⁽¹⁾	10797	11478
電力棄却率	0.015	0.016
$d\theta/d\phi^{(2)}$	9.22	9.00
$d\psi/d\phi^{(3)}$	68.7	70.2

(1) レゾナントリングのエネルギー蓄積力を示す量

(2) 還流部を流れるRF入力位相の還流部内位相に対する変化率

(3) ダミーロードに流れるRF位相の還流部内位相に対する変化率

測定データからRF電力および温度が変動した場合の周波数変化として次の値が得られた。

RF電力当りの周波数変化 $-50.1 \text{ kHz}/100\text{kW}$ RF電力当りの温度変化 $2.1^\circ\text{C}/100\text{kW}$ 温度当りの周波数変化 $-23.4 \text{ kHz}/^\circ\text{C}$

温度当りの周波数変化については低電力試験で冷却水温度を変化させて測定した周波数変化値 $-25.3 \text{ kHz}/^\circ\text{C}$ とほぼ一致している。

また、本加速器の電力増幅率を安定に保つための運転パラメータとして、レゾナントリング反射に対する安定性を調べた。スタブチューナを調節した場合の反射による電力増幅率の変化を図17に示す。反射係数が0.1以下 ($\text{VSWR}=1.2$ 以下) では $3.0 \sim 2.9$ の電界増幅率をもつことが実験的に判明した。今後は、加速器運転中に自動制御により反射係数を0.1以下に保つことが重要な課題となる。

以上の結果から、加速管に対しては、放電や熱変形を生じることなく、開発目標の 800kW までの電力の印加に成功した。また、大電力条件下でも計算で期待されるとおりのRF特性が得られることがわかった。

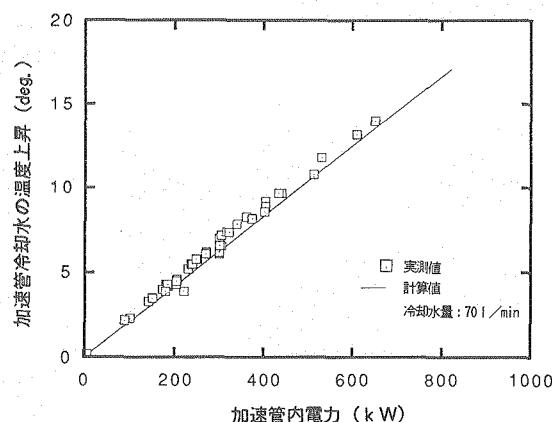


図16 加速管冷却水の温度上昇

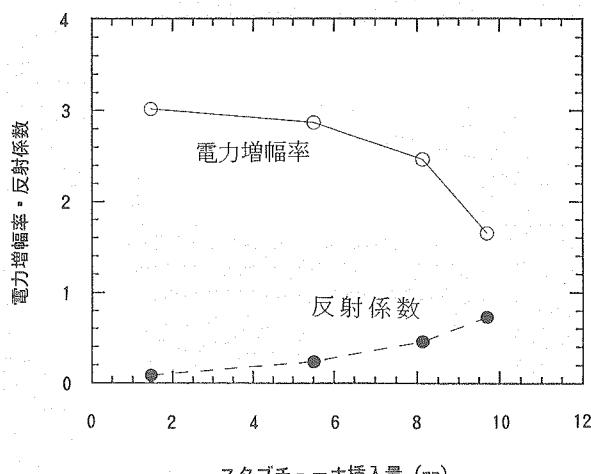


図17 スタブチューナ調整による増幅率、反射係数の変化

5. 今後の予定

以上述べてきたように、従来に例を見ない大電流の電子加速器の開発に向けて、設計、解析評価を行うとともに、クライストロン、加速管等の特に重要な構成要素については試作を行い、その性能を大電力試験等により確認した。その結果、目標とする大電流の達成に自信を深めた。

平成5年度からは加速器要素の本格的な製作を開始し、平成8年度にはすべての要素・機器の据付を終了する予定である。その後、徐々にビーム出力をあげていき、目標の最大／平均ビーム電流100mA/20mAを達成する計画である。それ以降は加速器の改良・高度化を目指した研究を行うとともに、本加速器で可能な範囲での核変換関連試験（反応断面積の測定、ターゲットの熱除去試験等）を実施する。

さらに大電流電子加速器の特徴を生かして、本加速器を消滅処理研究以外に広く利用することも検討しており、今のところアンジュレータを附加して自由電子レーザーの研究に利用すること、各種強力照射源として利用すること（電子線、ガンマ線、中性子線を利用した物性研究、材料照射等）、大強度陽電子源として物性研究等に利用することが考えられている。

6. 謝辞

本研究の実施に当たって、佐藤勇主幹教授をはじめとする高エネルギー物理学研究所の関係者各位には設計、実験、解析等のすべての面で共同研究者としてご協力いただいた。また、放射線医学総合研究所平尾泰男部長をはじめとする「大強度CW加速器研究会」委員各位には、広い御指導をいただいた。これらの方々に深く感謝致します。

参考文献

- 1) 若林、山岡他、高速炉および加速器による核変換研究の現状、動燃技報 No.82 (1992).
- 2) R.Neal, "The Stanford two-mile Accelerators", Academic Press, (1970).
- 3) P.A.Miller, R.I.Butler et al., "Propagation of Pinched Electron Beams for Pellet Fusion", Physical Review Letters, Vol.39 No.2 (1977).
- 4) H.Arai and N.Goto, "An Analysis of a Vacuum Window for Lower Hybrid Heating" IEEE Transaction on Plasma Science, Vol.PS-14 No.6, (1986).
- 5) S.J.Miller, "The Traveling Wave Resonator and High Power Microwave Testing" Micro Wave Journal, Sep. (1970).
- 6) 遠山、平野他、大強度CW電子線型加速器の要素開発(III)－クライストロンの開発－、日本原子力学会、1992年秋の大会
- 7) 平野、江本他、大強度CW電子線型加速器用クライストロン出力窓の開発、日本原子力学会、1993年秋の大会
- 8) M.Yoshida, S.Isagawa et al., "Instabilities due to Multipactoring, Modulation Anode Emission Found for TRISTAN High Power Klystron", Proceedings of the 6th Symposium on Accelerator Science and Technology, Oct. (1980).
- 9) 尾下、遠山他、大強度CW電子線型加速器用加速管の開発、日本原子力学会、1993年秋の大会



圧力晶析法による抽出溶媒中のnドデカンの分離・精製試験

根本 剛 都所 昭雄

東海事業所核燃料技術開発部

資料番号：88-2

Separation and Purification of n-Dodecane from Spent Organic Solvent in Nuclear Fuel Reprocessing by High Pressure Crystallization

Takeshi Nemoto Akio Todokoro
(Nuclear Fuel Technology Development Division, Tokai Works)

圧力晶析法は、冷却晶析法のように溶液を冷却する代わりに、結晶生成の駆動力として圧力を制御しながら、結晶化あるいは融解する新しい晶析プロセスである。今回、抽出溶媒からのnドデカン分離への本法の適用性について、模擬溶媒を使用して試験を実施した。その結果、次のような結論を得た。

- ① 冷却温度約-10°C、圧力100MPaの条件で分離すると、純度約98.5%のnドデカンを分離することができる。
 - ② 分離したnドデカンは再処理プロセスの抽出工程や希釈剤洗浄工程に再使用できる。
 - ③ 物質の相変化を利用した分離法であるため、新たな二次廃棄物を発生しない分離・回収プロセスである。
- これらの結果から、抽出溶媒中のnドデカンを分離・回収できる新しいタイプの分離プロセスとして利用できる。

1. はじめに

使用済燃料再処理プロセスあるいは核燃料加工工場の燃料スクラップ湿式回収プロセスにおいて、实用化段階にあるPurex法は硝酸を使用するTBP抽出技術であり、TBP-nドデカン系抽出溶媒を使用している。この抽出溶媒は放射線損傷等による劣化が少ないとされているが、抽出操作を継続して行っている間に溶媒中に含まれる放射性核種からの放射線による放射線分解¹⁾、硝酸による加水分解、熱等により劣化し、その結果第三相の生成、相分離の低下、核物質の廃液側へのリーク等²⁾を起こす。このため、抽出溶媒中に蓄積される劣化物は、現在炭酸ナトリウム、水酸化ナトリウム溶液を試剤とするアルカリ洗浄法³⁾で除去している。

しかし、この洗浄処理に伴って発生する洗浄液はまさに二次廃棄物であるため、放射性廃棄物の大きな発生源となり、この発生量をいかに低減化するかが重要な課題である^{4),5)}。近年、このアルカリ洗浄法の代替法として、炭酸／シウ酸ヒドラジン洗浄液

等^{6),7)}によるソルトフリープロセスが研究されているが、原理的には従来のアルカリ洗浄法と同様、中和反応に基づく方法であり、後処理として放射性洗浄液の分解処理等が必要である⁶⁾。

放射性廃棄物発生量の低減化の観点からは、試剤を全く使用しないソルトフリープロセスによる処理方法が望ましい。このため、著者らは物質の相変化に基づく方法、例えば凍結真空乾燥法^{8),9)}、真空蒸留法^{8),9)}による原理実証試験を行ってきたが、何れの方法も基本的にはnドデカン、TBPおよび劣化物の蒸気圧の差を利用して、蒸気圧の高い順に昇華または蒸留しながら、抽出操作に悪影響を及ぼすといわれる分子量の大きい劣化物を残液として除去する方法である。しかし、これらの方法は室温以下の低温領域で処理するため、処理に伴う分解等を伴わず、分離性に優れているが、一方では処理対象液の蒸気圧が低いために、処理速度が遅い等の課題があり、装置の開発や大型化が避けられない欠点を伴っている⁸⁾。

この分離処理速度の改善策として、著者らは前述の凍結真空乾燥法や真空蒸留法で処理対象液を全量処理するのではなく、nドデカンの結晶性を利用して抽出溶媒の70%を占めるnドデカンを前処理により分離除去した後、TBPやDBPを主成分とする残液のみを前述の真空蒸留等により処理する方法を考案した。この前処理法は冷却晶析法によりnドデカンがある条件下で結晶化することに着目し、処理対象液の約70%を占めるnドデカンを結晶体（固体）、TBP、DBP等の非結晶体を液体とし固液分離するものであり、これまでこの適用性について基礎試験を進めてきた。この方法のポイントは、nドデカンの結晶生成時の温度条件、冷却速度等を適切に制御することであるが、この制御はかなり困難である。このため、結晶生成時の液の乱れや温度勾配等により、nドデカン結晶の成長時にTBP等を同伴し、必ずしもnドデカンを高純度で効率良く分離できないという問題点が判明した。

本研究では、冷却晶析法のように晶析温度や速度の影響を受けない方法として、高加圧のみで結晶生成条件を容易に制御でき、かつnドデカンを高純度で精製分離が可能な圧力晶析法¹⁰⁾について、模擬抽出溶媒を使用し、nドデカンの結晶化および融解挙動を観察するとともに、nドデカンからのTBPやDBP等の分離性能を確認し、前処理技術としての可能性を検討した。本論では圧力晶析法による原理実証試験で得られた結果を中心に報告する。

2. 圧力晶析法の基本原理および操作法

2.1 純物質

一般に、純粋な液体を冷却すると、図1(a)に示すように一定の温度 T_0 で結晶が析出し始める。この固液変態温度を融点と呼ぶ。同様に、純粋な液体を等温的に加圧すると、図1(b)に示すように液体の圧縮に続いている圧力 P_0 で固液変態による急激な体積減少を伴いつつ結晶が析出する。この結晶が析出し始める固液変態圧力を温度操作時の融点に対して融解圧と呼ぶこととする。さらに、液体全量が固化した後は、固体が圧縮され、体積変化は少なくなり、圧力が急激に上昇する。

2.2 単純共晶2成分系混合物

一方、単純共晶2成分系混合物での温度や圧力による固液平衡状態変化を図2に示す。不純物を含む液体を加圧すると、沸点上昇や凝固点降下と同様の効果により純物質の融解圧 P_0 よりも高い圧力 P_1 で結晶析出が始まる（点B）。さらに、加圧を続けると純度の高い結晶の析出が続き、これに伴い不純物

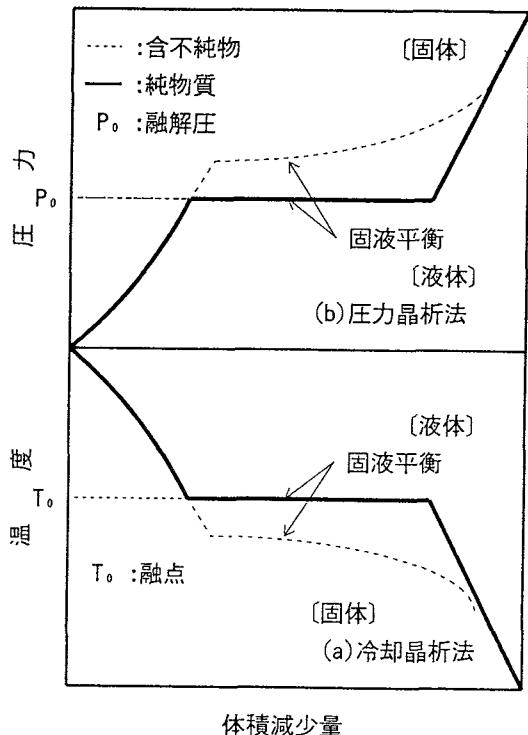


図1 純粋な液での圧力および温度と体積減少との関係

が母液中に濃縮される（点C）。この状態で圧力を維持したまま固液分離を行うと、高純度の結晶が回収できる。しかし、このまま加圧を続け圧力 P_E を越えると母液が共晶組成となり系全体が固化し、高純度物質の分離が不可能になる。この状態変化は、冷却晶析法において温度 T_1 まで冷却して結晶を析出させ（点B'）、さらに結晶を析出させながら冷却

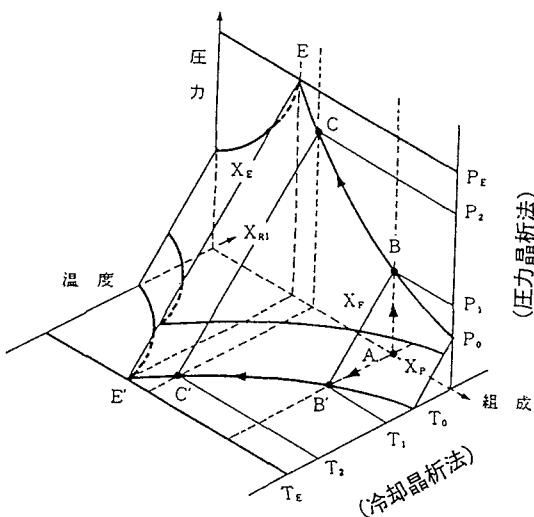


図2 単純共晶2成分混合物での圧力晶析（等温操作）と冷却晶析の比較

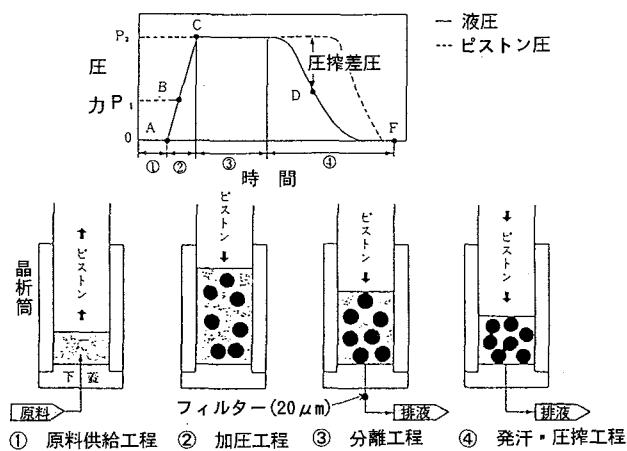


図3 圧力晶析時の操作ステップ概略図

し続け（点C'）、最終的に温度 T_E にて共晶組成となり、全体が固化する場合と同様の変化を示す。

2.3 圧力晶析法の操作

冷却晶析法では結晶を析出させた後、図2のC'点で遠心分離機やフィルタープレス等で固液分離を行うが、圧力晶析法では高圧状態を維持したまま図2の点Cで固液分離を行う。

圧力晶析法の操作ステップの概略図¹¹⁾を図3に示す。③の分離工程では分離圧力（ピストン面圧） P_2 を保持しながら、金網状のフィルターを通じて母液（未結晶液）を晶析筒外へ排出する。この時の排出速度は排液筒内に組み込まれたノズルで調節する。分離が進むと筒内の結晶が徐々に密になり、これに伴い液圧が徐々に下がり、純度の低い液に接している結晶表面から優先的に部分結晶融解（減圧発汗現象）が起こる。また、これと同時に結晶は分離圧 P_2 と液圧との差圧により圧搾され、母液（不純物）や発汗液が絞り出される。したがって、発汗・圧搾を段階的に繰り返したまたは連続的に行うことにより、最終的に得られる製品（結晶）は飛躍的に純度が向上する。このように、圧力晶析法は④の発汗と圧搾が有効に作用するため、冷却晶析法に比べて容易に高純度の製品が得られるという大きな特徴を有している。

3. 試験方法

3.1 模擬抽出溶媒

再処理プロセスあるいは湿式回収プロセスにおいて使用した実使用済溶媒を用いた試験は、試験装置あるいは分析等多くの制約を受けるため、本試験では次に示す組成の模擬抽出溶媒を調整し、試験試料とした。

試料(1) : n ドデカン (純度: 98.4%)

試料(2) : 30%TBP-70%n ドデカン

(DBP含有量: 0.013%)

試料(3) : 28%TBP-2%DBP-70%n ドデカン

試料(4) : 試料(2)の γ 線照射液

(DBP含有量: 0.3%)

これらの試料の調整に使用した試薬は、何でも試薬特級品である。なお、試料(4)の試料は、日本原子力研究所高崎研究所の ^{60}Co 照射施設において、線量等量率 $4.77 \times 10^{12}\text{ Sv/hr}$ 、照射時間20hr、全照射線量 $2.58 \times 10^3\text{ C/kg}$ ($1 \times 10^7\text{ R}$) 照射したものである。

3.2 試験装置

本試験において使用した装置は、高圧下で物質が変化する様子を観察する高圧結晶観察装置¹²⁾と実際に試験試料を圧力晶析法で分離試験する小型圧力晶析試験装置¹³⁾であり、その概略仕様をそれぞれ表1および表2に示す。また、小型圧力晶析試験装置の簡単な構成図¹³⁾を図4に示す。

表1 高圧結晶化観察装置

光学セル	
使用圧力	0~400MPa
使用温度範囲	-20~120°C
観察精度	10 μ
試料容量	4 μl
観察装置	
顕微鏡	総合倍率×16~200 対物レンズ×0.8~5
テレビカメラ	カラー 40万画素
テレビモニタ	カラー 12インチ
VTR	VHS
スーパーバインボーズ	圧力、温度、時間の表示
観察精度	10 μm

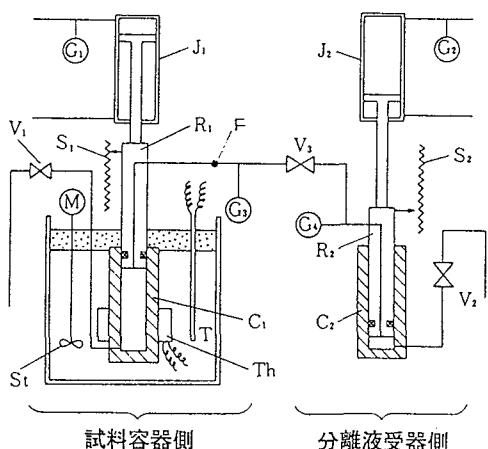
表2 小型圧力晶析試験装置

分離装置	
加圧容器容量	20 μl
最高圧力	400MPa
使用温度	-15~+80°C
ろ過フィルター	20 μm
ストローク	200mm

3.3 試験方法

(1) 高圧結晶観察装置を用いた固化試験

高圧下における結晶成長の目視観察は、圧力晶析等に代表されるように圧力応用の操作技術にとって重要である。そのため、模擬抽出溶媒を加圧した時の結晶（固体）の生成の有無、成長過程の観察および析出結晶の形状観察を行うとともに、析出（固化）条件を測定し、圧力晶析法での分離の可否および分離可能な場合の操作条件の参考にするため、次



C₁: 壓力容器1(晶析筒) C₂: 壓力容器2(排液筒)
Th: ヒーター T: 熱伝導
G: 油圧計 S: 変位計 St: 搅拌機 F: フィルター
J: ラム V_{1,2}: 給排用バルブ V₃: 仕切り用バルブ

図4 小型圧力晶析試験装置の構成図

の方法で固化試験を実施した。

模擬抽出溶媒約4μlを本装置のポリエチレン製の試料袋に封入し、所定の温度（今回は約-10°Cおよび室温）に調整した光学セル部に装着した後、加圧・減圧操作を行い、結晶の成長・溶解状況の観察および析出（融解）圧力を測定した。なお、これら一連の試験で得られた画像はビデオに記録し解析した。

(2) 小型圧力晶析試験装置を用いた分離試験

前述の固化試験で得られた試験条件で4種の模擬抽出溶媒を使用し、nドデカンとTBP、DBPの分離の可能性を確証するため、次に示す方法で試験を行った。

図4に示すように、恒温槽によりあらかじめ温度調整した圧力容器C₁（晶析筒）に処理対象液を注入した後、油圧で駆動するピストンR₁にて所定の圧力（約100MPa）まで加圧し結晶を析出させる。その後、バルブV₃を開いて晶析筒内の母液のみを圧力容器C₂（排液筒）に移す。この時、C₂側にはピストンR₂にて圧力をかけ、C₁内の圧力が所定の圧力に保たれるよう背圧をかけバランスさせて置く。なお、晶析筒C₁には金網状フィルター（20μm）が装着しており、このフィルターを通じて母液のみをC₂側に移行させる。

固液分離がほぼ終了した段階で、C₁およびC₂の圧力を徐々に下げ、発汗作用を効かせつつさらに圧密を継続する。最後に、C₂側を大気開放しピストンR₁にて約60~80MPaの圧力で圧搾を行った後、結晶と母液を取り出す。C₁側の分離直後の結晶はn

ドデカンを主成分とする白色の固体であるが、室温で放置すると短時間で融解する。なお、今回の分離試験時の試験条件は、分離試験結果と合わせて表4中に示した。

3.4 分析方法

nドデカンの分離効率は、原液、結晶および排液中のnドデカンおよびTBP、DBP、その他の不純物濃度分析値から評価した。すなわち、nドデカンおよびTBPは無極性カラム(DB-1またはDB-WAX)を使用してガスクロマトグラフにより分析した。またDBPは苛性ソーダにより抽出後、ICP法によりP濃度を定量しDBP濃度を算出した。なお、分析条件は図7および図8に示した。

nドデカンの純度は、検出した全ピークの面積値とTBPの面積値に面積補正係数を乗じた値の合計値に対するnドデカンのピーク面積値の百分率でもとめ、さらにDBP濃度で補正した。

4. 試験結果および考察

4.1 nドデカンの固化試験

(1) 結晶成長および融解観察

室温（約18°C）およびnドデカンの常圧融点である約-10°Cの2水準の操作温度において、試料(1)および試料(2)の加圧・減圧操作を行い、結晶の成長・融解状況等を高压結晶観察装置を用いて観察した。観察結果の概要および代表的な結晶状態をそれぞれ表3および写真1~11に示す。また、参考までに大気圧下で冷却結晶化させた時のn試料(2)のドデカン結晶成長状態を写真12に示す。

1) 試料(1)の結晶化および融解状態

試料(1)のnドデカンは写真1に示すように、融解圧以上の約170MPaで一気に結晶化するが、急激な加圧下ではやや微細結晶の塊状になる可能性がある。一方、加圧により生成したnドデカン結晶をゆっくり融解させ（写真2）、種晶が存在している状態から再加圧すると、写真3および写真4に示すように比較的大きくきれいな針状あるいは板状の単結晶が成長した。また、-10°Cの操作温度においても融解状態の大きな変化は認められなかった（写真5および写真6参照）。

今回はnドデカン結晶と未凍結体であるTBP等との固液分離の可能性を確認するため、結晶状態の外観観察を主目的に実施したが、このnドデカンの結晶構造については、A.I.Kitaigorodskii¹⁴⁾によって詳細に解析されている。この文献によれば、nドデカンのように-(CH₂)_n-で表わされるようなnパラフィン鎖でかつ途中に置換基を有しないnパラフィ

表3 結晶成長および融解状態の観察結果

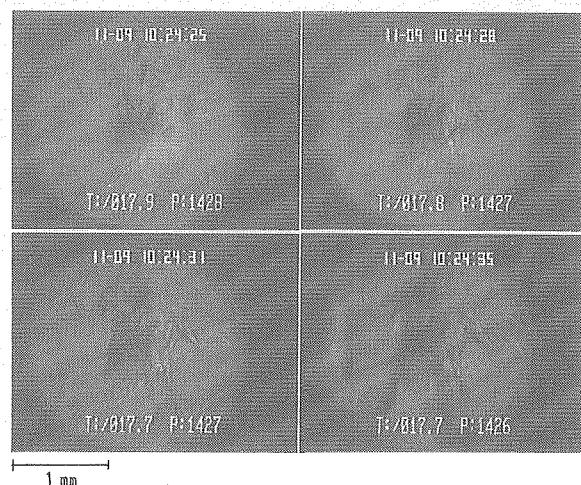
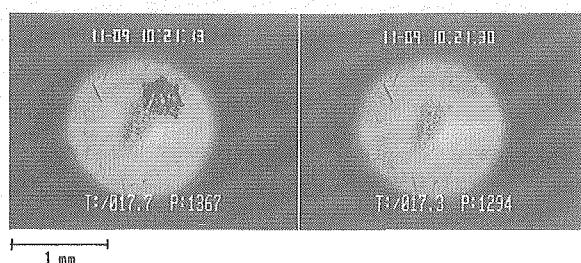
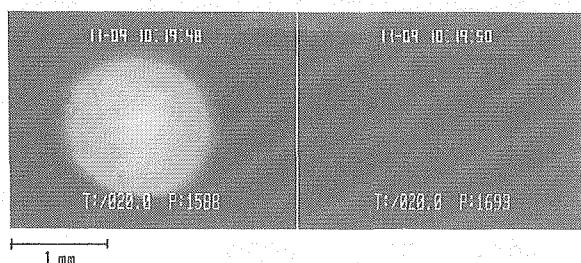
試料	操作温度(°C)	観察結果	参考写真
試料(1)	約17.5	(1) 加圧操作により約170MPaで一気に結晶化する。 (2) 結晶の性状は明確に把握できないが、不定形でやや塊状もしくは微細結晶の集合体の可能性があり、このままではフィルタによる捕集が困難になる可能性がある。	1
		(1) 減圧操作により、約130MPaで結晶がほぼ全量融解する。	2
		(1) 種晶を残した状態で再度加圧し結晶を成長させると、初期の段階では板状の結晶成長が起こる。 (2) その後、幅はないもののある長さの葉脈状の結晶が急激に成長する。何れもフィルター捕集の点で大きな問題とならない結晶と判断できる。	3 4
	約-10	(1) 加圧操作により約15MPaで一気に結晶化する。	5
		(1) 種晶を残した状態で再度加圧し結晶を成長させると、フィルター捕集の点で問題のない形状の結晶が得られた。また、析出状態は17.5°Cの場合とほぼ同じである。	6
試料(2)	約18.5	(1) 加圧操作により約180MPaで固体が析出し始める。析出状況は全面に雲が掛かったような状態であり、多量の微細結晶もしくは不定形状の塊状物が析出した状態である。このまでのフィルターによる捕集は困難である。	7
		(1) 減圧操作により、約150MPaで結晶がほぼ全量融解する。	8
	約-10	(1) 種晶を残して結晶を成長させると、晶癖の比較的明確な板状結晶成長が確認でき、フィルターによる捕集に適した良好な結晶が得られる。	9
		(1) 加圧操作により約30MPaで固体が析出する。	10
		(1) 減圧操作により約10MPaで結晶がほぼ全量融解する。	11

n系炭化水素の結晶構造は、平面ジグザグ構造型の鎖状に結晶し、単結合炭素原子間距離が全て約1.54 Å、結合角度は常に109°28'になる。また、nパラフィンの単位格子の断面積は、4.97×7.45 Åの矩形である。この単位格子の中心にはパラフィン鎖、四

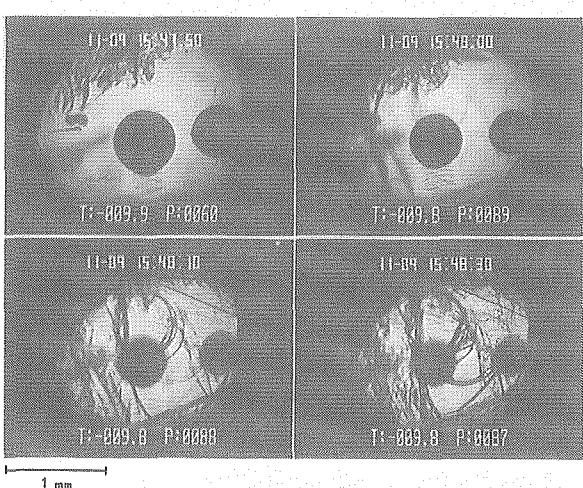
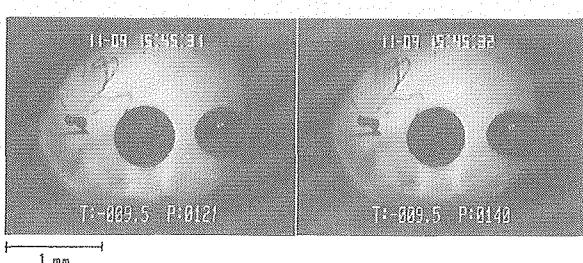
隅にはそれぞれ別に4つの鎖があり、各々の鎖の1/4が単位格子を共有している。したがって、連鎖1つ当たりの断面積は単位格子の1/2である。このように、nパラフィン系炭化水素の結晶構造については一部解明されていることから、今回対象としたnドデカンについてもこのようなパターン化した結晶が生成しているものと推定できる。

2) 試料(2)の結晶化および融解状態

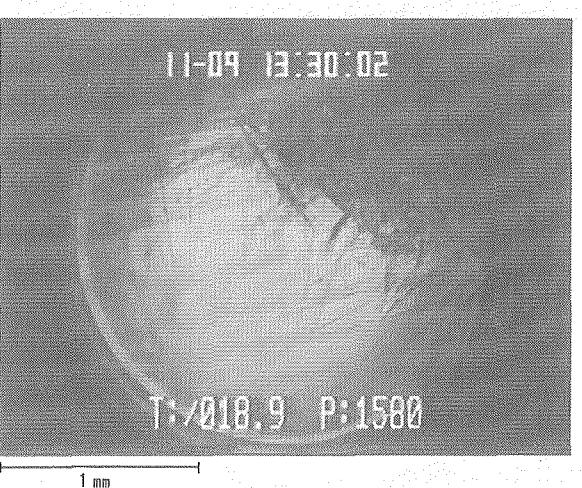
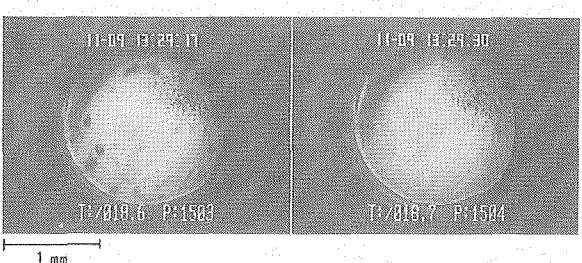
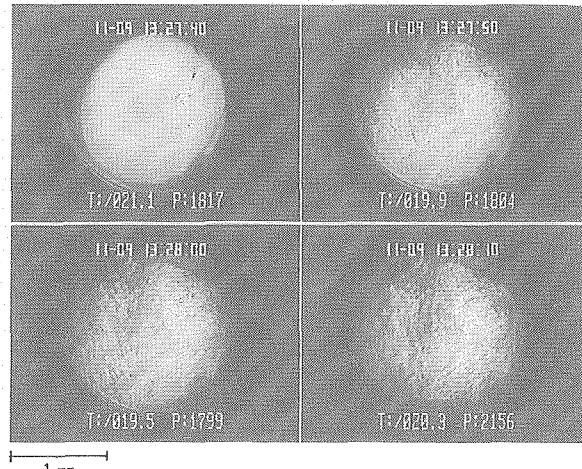
試料(2)は通常使用している30%TBP-70%nドデカン系抽出溶媒である。室温および約-10°Cにおける一連の結晶成長・融解時の状態をそれぞれ写真7



～9、写真10～11に示す。混入によるnドデカン結晶成長あるいは融解への影響が懸念されたが、結晶形状に対して顕著な影響は認められなかった。試料



(1)のnドデカン単体の時と同様にほとんど変わらず比較的明確な板状結晶成長が確認できた (写真9参照)。冷却晶析時では写真12に示すように、TBP-n



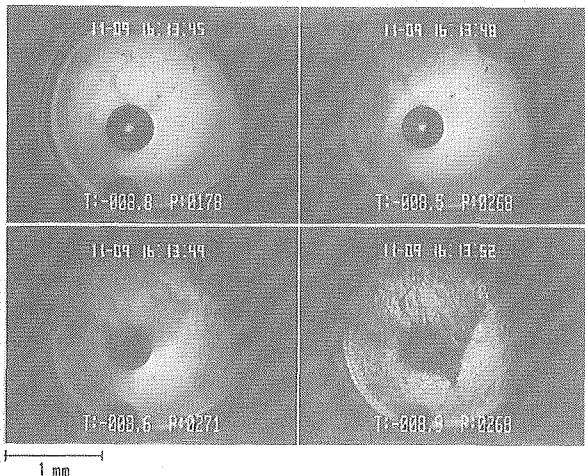


写真10 30%TBP-70%nドデカン（試料(2)
加圧時の結晶成長 （操作温度：約-8, 8°C）

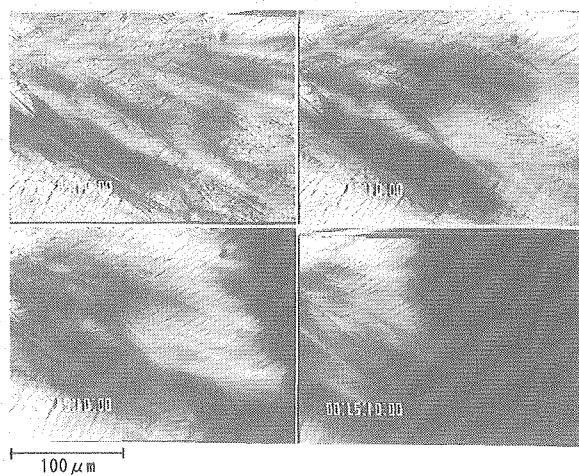


写真12 30%TBP-70%nドデカン（試料(2)
冷却時の結晶成長 （操作温度：約-11, 4°C）

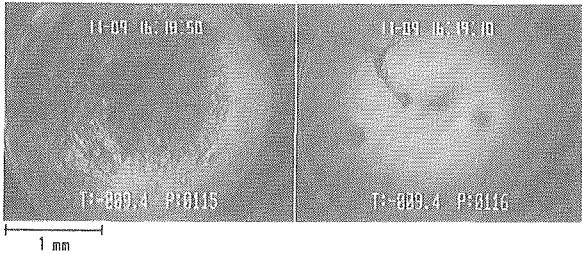


写真11 30%TBP-70%nドデカン（試料(2)
減圧時の結晶融解 （操作温度：約-9, 4°C）

ドデカンの相平衡を保ちながら急激に結晶が成長し、樹枝状の結晶を生成するのに対し、高圧下での結晶成長はnドデカン単体の結晶のようにきれいな針状結晶が観察されたことから、nドデカン結晶成長時の母液（TBP等）の取り込みがほとんど無いと考える。

温度を変数とする冷却晶析法¹⁵⁾においては、側面等から冷却するため、溶液内の温度勾配が生じやすく、また液の拡散を伴うので結晶化対象液が荒れた状態¹⁵⁾になり易く、nドデカンの結晶成長過程でTBP、DBP等を取り込んだ固液混合状態で固体になる。これに対して、高圧下の圧力を変数とする圧力晶析法では、圧力変化速度を速くしても圧力が系内に均一に作用する¹⁶⁾。その結果、均一状態で結晶が生成するため、一般に母液の取り込みの少ない比較的良好な結晶が得られる。今回の試験においても外見上母液の取り込みの少ない大きな針状あるいは板状の結晶が得られている。特に、nドデカン種晶を残した状態から結晶を成長させると、写真9に示すように晶癖の比較的明確な板状結晶が成長し、ろ過フィルターによる捕集に適した良好な結晶が得られることを確認した。冷却晶析法では抽出溶媒から

nドデカンの分離が困難であったのに対し、今回実施した高圧下での結晶成長時の観察結果から比較的固液分離が可能な結晶が得られたことから、nドデカン分離が可能であると考えられる。

(2) TBP-nドデカンの固液平衡状態図

圧力晶析法による分離条件を決めるためには、高圧下における固液平衡状態図を作成する必要がある。この固液平衡状態図は操作温度、処理対象液の組成を変えて加圧によって生成した結晶が全量融解し終わる圧力からもとめられるが、今回は前述した結晶成長観察時の値からもとめることにした。

TBP-nドデカン系抽出溶媒の固液平衡状態図は、nドデカンの相対濃度が100%、70%である試料(1)および試料(2)を用い、約-10°Cと室温下での融解状態からもとめた。融解圧と温度との関係を示す高圧状態概略図を図5に示す。

試料(1)および試料(2)ともに、圧力による結晶（固体）の析出が可能であり、析出条件は図5の斜線部と推定できる。したがって、今回のnドデカン分離精製試験時の分離条件は図5を参考に選定した。なお、試料(3)および試料(4)の分離条件についても基本的に試料(2)に準じて行った。

4.2 nドデカンの分離・精製試験

(1) nドデカン結晶の純度

前項の分離条件に基づき行った分離精製試験結果と分離条件を併せて表4に示す。また、実際に実施した試料(4)のnドデカン分離時の小型圧力晶析分離試験装置の試料液圧、晶析筒内の油圧、試料温度、ピストン変位等の操作状況の一例を図6に示す。

1) nドデカンの分離（試料(1)）

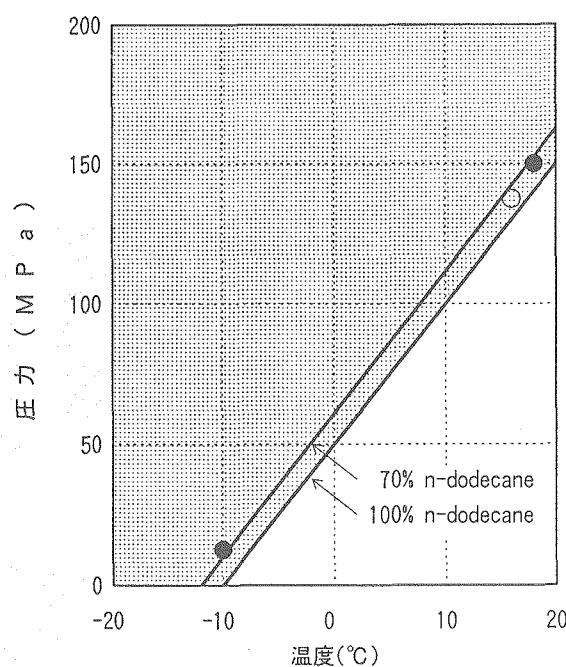


図5 TBP-nドデカン系抽出溶媒の高圧固液平衡状態の概略図
 ● 30%TBP-70%nドデカン
 ○ 100%nドデカン

結晶観察結果および図5の固液平衡状態図を参考に、まずnドデカンの常圧融点近傍の温度（約-10°C）で約50MPaまで加圧したところ、結晶析出に伴う著しい温度上昇（図6参照）が認められたため、この条件にて分離した。

表4の試験No.1で得られた結晶は、分離前のnドデカン純度（98.5%）に比べ若干の純度上昇（99.1%）が確認されたが、図7のガスクロマトグラムに示すように不純物中の主な2成分（nウンデカンおよびnトリデカン）については分離除去ができない。この成分は、圧力晶析時にnドデカンと同様に

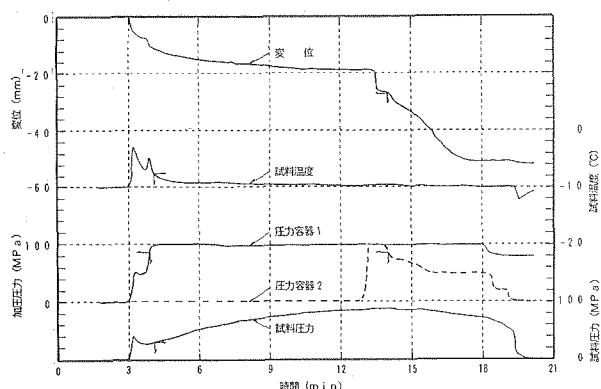


図6 試料(4)分離試験時の操作例（分離条件：加圧圧力約100 MPa、温度-10°C）

表4 圧力晶析法による分離試験時の操作条件と晶析体および排液の組成

試験No.	1	2	3	4	5	6	7	8
試料No.	(1)		(2)		(3)		(4)	
試料組成(vol%)	nDD*		30%TBP-70%nDD*		28%TBP-2%DBP-70%nDD*		(2)の60Co γ線照射試料	
分離条件 温度(°C)	-9.8	-5.1	-9.8	-14.7	-9.8	-14.7	-5.1	-14.7
圧力(MPa)	50	100	100	100	100	100	100	100
nDD*	99.06	98.95	98.15	97.12	97.96	97.13	98.50	98.33
結晶組成(wt%)	Undecane 0.58	Undecane 0.64	Undecane 0.52	TBP 0.00	Undecane 0.33	TBP 0.33	Undecane 0.34	TBP 0.03
Tridecane	0.31	0.34	0.34	DBP 0.00	0.00	0.31	1.09	0.02
TBP DBP その他	0.00	0.00	0.00	2.02	0.08	0.13	1.44	1.59
0.05	0.07	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.02
nDD*	26.91	38.96	16.63	17.53	13.86	12.63	14.77	11.68
Undecane	0.05	0.35	0.49	0.43	0.42	0.43	0.22	0.20
Tridecane	0.03	0.15	0.13	0.13	0.09	0.10	0.04	0.05
TBP DBP その他	0.00	0.00	82.53	81.47	79.85	82.65	81.91	85.22
3.01	0.54	0.20	0.20	0.19	5.69	4.10	2.95	2.75
概略收率** (%)	69	64	52	57	47	59	51	60

注*) n-Dodecane

注**) 概略收率は試験生データから求めたものであり、装置特性および試験操作上の誤差などを考慮していないので、実際ベースの收率は別途検討する必要がある。

結晶化するためであり、分離精製条件を厳密に制御しない限り除去は不可能であると思われる。しかし、これらの不純物は現在稼働中の実プラントの抽出溶媒中にも存在しており、仮に圧力晶析法で分離したnドデカン中に混入していても実用的には抽出

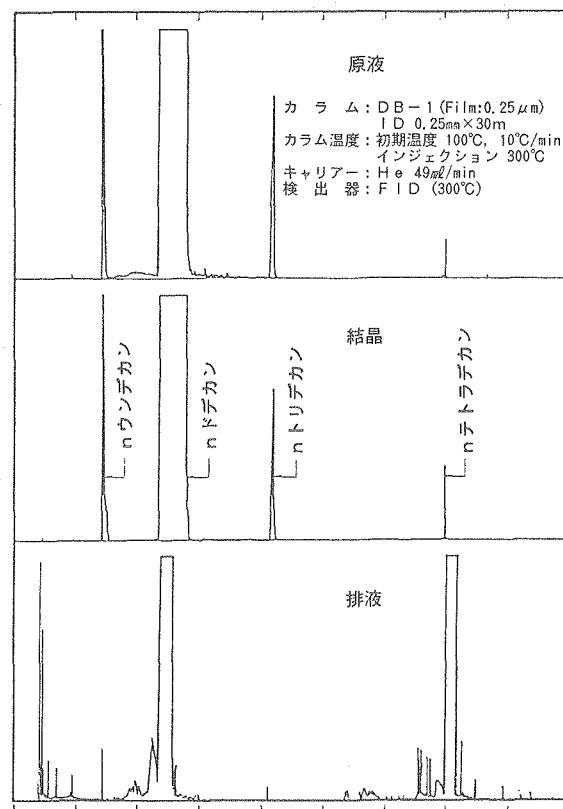


図7 試料(1)のnドデカン分離時の結晶体および母液のガスクロマトグラム

操作時への影響は全くない。

このように、圧力によるnドデカンの固化およびその後の固液分離が可能であるが、nドデカンと同じ結晶化挙動を示すnドデカンの近くのC₁₁、C₁₃等のパラフィン系炭化水素の不純物に対する精製効果については小さいことが判明した。

次に、発汗操作を多く効かせることによる結晶の純度向上の度合を確認するため行った試験No.2では、操作温度を-5°C、約100MPaまで加圧して分離を行ったが、著しい純度上昇は確認できず、-10°Cの場合と同様であった。

2) 30%TBP-70%nドデカン系のnドデカンの分離（試料(2)）

本系についても、1)と同じ分離条件（温度-9.8°C）で実施したところ、結晶析出に伴う著しい温度上昇が認められたので、結晶収率を上げるために100MPaまで加圧し分離した。この結果、TBPが排液側に移行することが確認され、混合物中からのnドデカンの分離が可能であることが実証できた。また、分離したnドデカン中に含まれる不純物としては、前述の試料(1)の場合と同様、nウンデカンおよびnトリデカンである。

さらに、収率を向上させるため操作温度を約-15°Cまで下げて実施したが、多少の収率アップがあつたものの-10°Cの場合とほぼ同じ結果を得た。

冷却晶析法によるnドデカンの分離は、生成したnドデカン結晶中にTBP等の混入が多く（約28%）、工学的に効率良くnドデカンをTBP等と分離することが困難であった。しかし、今回実施した圧力晶析法は処理条件の目標とした「相変化に基づく処理法」「試剤を全く使用しないケミカルフリー」「二次廃棄物を発生させない」等の条件を満足するとともに、純度97.1~98.2%のnドデカンを短時間に分離精製できることから、工学的にも十分利用できることを確認した。

3) 28%TBP-2%DBP-70%nドデカン系のnドデカンの分離（試料(3)）

本系は抽出工程プロセスで使用中に劣化した時の代表的な劣化物であるDBPを含む場合を模擬したものである。前項の系と同様に、特筆すべき大きな相違はなく、また分離後のnドデカン中のDBPの混入も0.1%以下（初期混入量に対する分離効率は約99%以上である）である。このように、DBP混入による影響はほとんどなく、nドデカンの分離精製が可能である。

4) 30%TBP-70%nドデカン系のγ線照射溶媒のnドデカンの分離（試料(4)）

試料(2)、試料(3)の分離結果とほぼ同様の結果を得

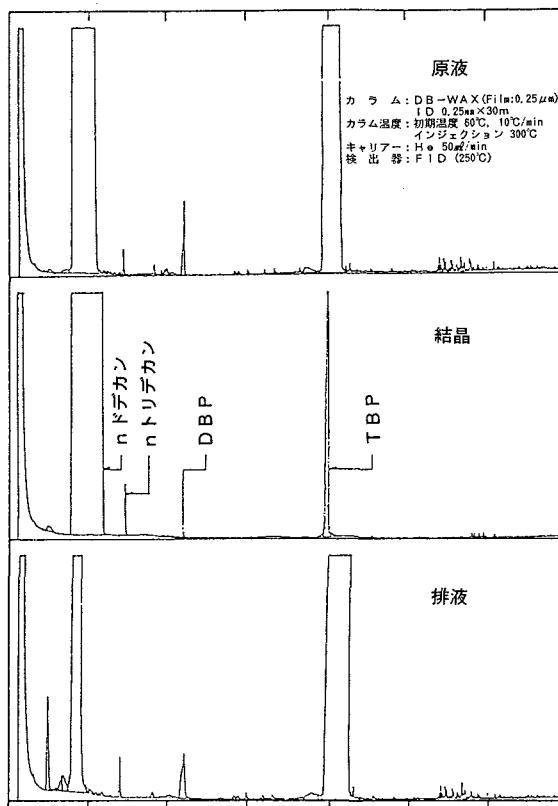


図8 試料(4)のnドデカン分離時の結晶体及び母液のガスクロマトグラム

た。試料(4)の原液、結晶および排液のガスクロマトグラムを図8に示す。原液中に含まれている種々の劣化物、例えばnドデカンの劣化物であるカルボン酸化合物、ニトロ化合物、ニトロソ化合物およびTBPの劣化物であるDBP、ジブチルエーテル等¹⁷⁾は、結晶として分離されるnドデカン中にはほとんど含まれず分離できていることが確認できた。したがって、実劣化溶媒の前処理としても本圧力晶析法の適用が可能であると考えられる。

(2) nドデカンの分離性

精製分離後の結晶体および排液の組成分析結果より、以下のことが確証できた。

- ① 本試験の分離目的成分であるTBPおよびDBPは、圧力晶析操作により排液側へ濃縮分離され、その際の分離結晶であるnドデカン純度は97~99%である。
- ② nドデカン中に含まれる不純物は圧力晶析操作により大半の成分が排液側に濃縮分離されるが、比較的含有率の多いnウンデカンやnトリデカンについては、今回実施した分離条件では不純物の物理的な物性がnドデカンと類似しているために完全な分離は困難である。
- ③ TBPおよびDBPは結晶成長状況および分離し

たnドデカン中の不純物含有率から推定し、今回の分離条件下ではnドデカンとの固溶体や共晶結晶の形成はほとんどないものと判断できる。したがって、nドデカン結晶中の残留TBPやDBPの大半は圧搾ろ過時の残存母液に起因するものと推定できる。

- ④ nドデカン結晶中に含まれるnウンデカンやnトリデカンは、排液中の濃度に対する結晶中の含有率が通常の共晶系原料を対象とした圧力晶析分離操作から推定される量に比べてかなり高い。この現象は分子量の近い脂肪族系混合物の圧力晶析法で分離する際にみられるものであり、簡便にかつ低コストで同時に除去することは一般に困難である。しかし、前に述べたようにこの不純物は現状の抽出工程プロセスに使用している抽出溶媒中に含まれており、抽出操作に悪影響を及ぼさないので、積極的に分離除去する必要がないと考える。

(3) nドデカンの回収率

今回実施した試験は、主として抽出溶媒からのnドデカンの選択的な分離精製の可能性を確認する目的で実施した。したがって、表4に示したnドデカンの回収率(50~60%)は今回実施した1段分離の試験条件で得られたデータから求めた値である。実際の場合は排液の再結晶操作(多段分離)¹⁸⁾を行うことにより、99%程度まで向上する。今後、操作条件、装置特性、純度と回収率の関係等を求める必要がある。

5. 今後の課題

今後は、圧力晶析分離プロセスの実用化レベルの設計エンジニアリングデータを取得するために、次に挙げるような試験を実施する必要がある。

① 基礎物性値の測定

断熱操作を基本とする実プラントの処理速度等を推算するため、TBP-nドデカン系抽出溶媒の高压固液平衡状態の測定、結晶化潜熱等の設計に必要な基礎物性値の測定もしくは加圧時の昇温量測定等の基礎物性値を測定する。

② 溶液組成

通常の圧力晶析法ではnウンデカンやnトリデカン等の特定成分の分離除去が困難な場合が生ずると推測される。したがって、除去不可能な物質の抽出操作に及ぼす影響を検討するとともに、実抽出溶媒の組成に近い模擬溶媒での分離試験を行い、分離不能特定成分を確認する。

③ 実溶媒処理時の装置概念設計

原理的に操作方法は同じであるが、放射性物質を含む抽出溶媒からnドデカンの分離回収に圧力

晶析法を適用するためには、構造上かなり考慮した新規装置の設計が必要であり、設計条件を検討しながら概念設計を進める。

6. おわりに

Purex法で使用している30%TBP-70%nドデカン系抽出溶媒の再生法の一環として、圧力晶析法による抽出溶媒中のnドデカンを分離精製する際の分離特性を模擬溶媒を使用し実験室規模で実施した。その結果、次に示す結論を得た。

- ① 抽出溶媒からのnドデカンの分離について、冷却晶析法では分離の面で困難であったが、抽出溶媒に高圧力を作用させることによって、数分~10数分といった短時間で晶析が起こり、かつ煩雑な温度制御もなく、nドデカンのような高級炭化水素とTBP、DBPのようなリン酸エステルとを効率よく分離することができる。
 - ② 通常使用する30%TBP-70%nドデカン(表4試料(4))について、分離したnドデカンの純度は約98.5%であり、また抽出に悪影響を及ぼすといわれるDBPが0.02%と少ないことから、再処理プロセス等の抽出工程の抽出溶媒および希釈剤洗浄液として再使用できる。
 - ③ この圧力晶析法は温度、圧力等を駆動力として対象物質の固相、液相、気相の相変化を利用して分離する方法である。この方法を抽出溶媒中のnドデカンの分離に適用した場合、二次廃棄物を全く発生することなく処理できるため廃棄物発生量低減化プロセスとして利用できる。
- 最後に、本研究を進めるにあたり、貴重な助言を頂いた環境技術開発部環境技術第一開発室 大内仁室長、核燃料技術開発部 堀江水明担当役、株式会社神戸製鋼所エネルギー・化学本部技術部 吉田紳吾氏に感謝の意を表わします。

参考文献

- 1) T.Tsujino et al, "Radiation Damage to TBP/Kerosene Solvent, (II)-Effect on Extraction Behavior of Uranium and Thorium and on their Loading Effect", J.Nucl.Sci.Technol., 3 [4], P20 (1966).
- 2) F.Baumgärtner, "The Purex process for the reprocessing of nuclear fuels with high Pu content and high burn-up", Kerntechnik., 18, P 245 (1976).
- 3) E.S.Lane, "Performance and Degradation of Diluents for TBP and the Cleanup of Degraded Solvents", Nucl.Sci.Eng., 17, P620 (1963).
- 4) H.Goldacker et al, "A newly developed solvent wash process in nuclear fuel reprocessing decreasing the waste volume", Kerntechnik., 18, P426 (1976).
- 5) 岸本洋一郎他, "再処理技術開発の現状と今後の課題", 原子力工業, 34, P20 (1988).
- 6) 檀竹直人他, "再処理溶媒再生工における放射性廃棄物低減技術の開発—ソルトフリー溶媒洗浄剤の洗浄性能と洗浄機構—", 日本原子力学会誌, 33 [4], P96 (1991).
- 7) O.K.Tallent et al, "An Alternative Solvent Cleanup Method Using a Hydrazine Oxalate Wash Reagent", Nucl.Technol., 59, P51 (1982).
- 8) 岡田尚他, "劣化溶媒の低温処理試験", 日本原子力学会「1990年会」予稿集, L37 (1990).

- 9) J.Ouchi et al, "Low Temperature Utilizing System for Nuclear Fuel Cycle Technologies (LOTUS)", ENC'90 ENS/ANS-Foratom Conference Transaction, IV, P2147 (1990).
- 10) 守時正人他, "圧力晶析法の開発", 化学工学, 51(6), P428 (1987).
- 11) 吉田紳吾, "圧力晶析", アロマティックス, 44 (7,8), P246 (1992).
- 12) ト部克文他, "高圧結晶観察装置—ミクロコスモスー", 神戸製鋼技報, 40 (4), P48 (1990).
- 13) 美藤 裕他, "圧力晶析法によるインドールの精製分離", 神戸製鋼技報, 39 (3), P13 (1989).
- 14) 研波忠夫監修, "石油炭化水素化学 2巻—炭化水素の物理的性質と分
析ー", P295, 共立出版 (1956).
- 15) 萩籠勝彦, "圧力晶析法で異性体の高効率分離", 化学と工業, 41, P43 (1988).
- 16) 守時正人, "高圧力による分別晶析法", 化学工学論文集, 5 (1), P79 (1979).
- 17) A.J.Huggard and B.F.Warner, "Investigations to Determine the Extent of Degradation of TBP/Odorless Kerosene Solvent in the New Separation Plant", Nucl.Sci.Eng., 17, P638 (1963).
- 18) 宗 重雄, "晶析技術の新分野", 化学工業, 14 (5), P34 (1970).



硝酸溶液中のプルトニウムとネプツニウムの光化学的原子価調整に関する基礎研究

和田 幸男* 森本 敏一 五位渕孝幸*

富安 博

東海事業所核燃料技術開発部

* 原子力技術科

** 東京工業大学原子炉工学研究所

資料番号88-3

Basic Study of Photochemical Valency Adjustment of Plutonium (Pu) and Neptunium (Np) in Nitric Acid Solution

Yukio Wada Kyoichi Morimoto TakaYuki Goibuchi*

** Hiroshi Tomiyasu

(Nuclear Fuel Technology Development Division, Tokai Works)

* Nuclear Engineering Corporation

** Tokyo Institute of Technology, Research Laboratory for Nuclear Reactor)

Pu, Np混合硝酸溶液からNpを分離するための光化学分離技術が、ピューレックス再処理技術に関連して検討された。試験試料中のそれらの原子価は、Pu(III)とNp(V)に調整され、これはピューレックス再処理の分配工程における、Pu製品流の原子価状態に模擬された。そしてPuとNpの濃度は、それぞれ $1 \times 10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{dm}^{-3}$ と $1 \times 10^{-3} \text{ mol} \cdot \text{dm}^{-3}$ であった。実験は、硝酸濃度と光照射強度を変化させた条件下で実施され、Puイオンの酸化還元反応速度は、酸濃度と同様に光照射強度にも強く影響されることがわかった。

これらの実験から、10倍当量のHAN、ヒドラジンを含む3N HNO₃溶液において水銀ランプ光、0.015Wの照射率、10分以内の照射で、95%以上のPu(III)がPu(IV)に酸化され、さらに継続する照射においても原子価は変化しないことが確認された。

一方、Np(V)は光照射の間、酸化も還元もされなかった。これらの原子価状態、Pu(IV)とNp(V)は、TBP-n-ドデカン/HNO₃溶媒抽出による分離に最適であることから、水銀ランプを用いた光化学分離が技術的可能性を有していると結論された。

1. はじめに

現在使用済燃料再処理工場では、湿式のピューレックス法が採用されている。この方法は、使用済燃料を硝酸で溶解し、TBP（トリブチルフォスフェイト）-nドデカンを用いた溶媒抽出により、回収目的元素のウラン(U)とプルトニウム(Pu)を、核分裂生成物(FP)、その他の元素から分離するものである。

この工程技術では通常、抽出および逆抽出工程の前の調整工程において、図1¹⁾に示されるような元素の分配係数に応じてこれらの元素は溶媒側に抽出されやすい、あるいは抽出されにくい原子価に、酸化還元試薬や硝酸濃度調整を用いて、調整されている。

このような原子価調整と抽出、洗浄、逆抽出等の操作を順次行うことにより、U, Puの製品側とその

他の元素 (FPおよびTRU元素) との高い分離係数が確保されている。

しかし、アクチノイド系列元素は、その化学的性質が類似しており、表1²⁾に示すように、工程条件の変動に伴って、多くの原子価状態をとり得るためU, Puとネプツニウム(Np)の分離は、多くの場合難しい課題である。そのため通常の再処理工程では、多くのNpがPuの製品側に混存しているとの報告が多い。表2³⁾に、種々の再処理関連施設での各工程におけるNpの原子価および分配挙動が、数多くの文献から調査され、まとめられている。ここに示されるように、各施設間の工程条件の差により、また同一工程内にあっても、その分配挙動は大きな変動があることがわかる。

一方最近、使用済燃料中のTRU元素を積極的に回収し、U, Puとともに燃焼させようとする研究が

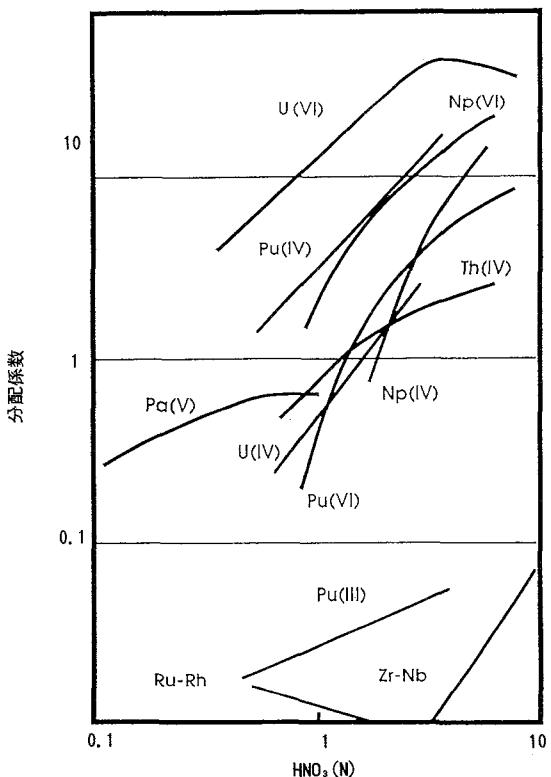


図 I 30% TBP/nドデカンと硝酸間のプルトニウムと
ネプツニウムの分配計数¹⁾

検討されはじめた。この研究を推進してゆくためには、その前提としてTRU元素の分離技術が必要であり、効率的な分離、精製回収方法の確立が求められることになる。

一つの可能性ある方法として1970年代ごろから光溶液化学の知識を再処理工学技術へ応用する研究が数多く実施され、その適用方法がしだいに確認されてきている^{4,5,6,7)}。そこで本報は、光エネルギーの照射により、目的元素を溶媒抽出分離に適した原子価状態にする、光酸化還元によるPu,Npの原子価制御の適用性について検討した。

その結果として、相互分離に必要な原子価制御が可能であるとの、基礎的な成果を得たので報告する。

表 I アクチニド 6 元素*のとりうる酸化状態²⁾

Th	Pa	U	Np	Pu	Am
4	3 (?) 4 5	3 4 5 6	3 4 5 6 7	3 4 5 6 7	2 † 3 4 5 6

*水溶液中の通常の酸化数をイタリック体で示す。

† CaF_2 中に遊離されているか、ジヨウ素化物として

表2 さまざまなピューレックスプロセスにおけるネプツニウムの挙動¹⁾

Plant	Np valence after dissolution	Extraction of Np at co-extraction stage	Np distribution at U-Pu separation stage			Np in raffinate at U purification stage
			reductant	U fraction	Pu fraction	
Trombey in India	(V) mainly, (IV) (30~35%) at higher acidity	80~90%	Fe (II)	~60%	~40%	~10%
ILLI in Germany	(V) oxidized to (VI) with prolonged boiling	~90%	U (IV)	50~85%	50~15%	99~99, 5% (dilute flowsheet)
WAK in Germany	//	~50%	U (IV)	30~93%	70~7%	—
ORNL in USA	IV : V : VI = 10:80:10	~80%	Fe (II)	~0%	~100%	—
Windscale in UK	(V)	~70%	Fe (II)	~85%	~15%	~100%

2. PuおよびNpの光化学挙動原理

PuおよびNpの混合硝酸溶液系では、光照射により、Pu, Npおよび硝酸による光吸收が生じる。

Pu, Npの各原子価状態別および硝酸溶液の光波長吸収特性が、各々図2、3⁸⁾および図4に示される。

これらの図に示されるように、Pu, Npの各原子価状態に応じて、紫外域から赤外域での吸収波長特性はかなり異なる。

一般的に、光を吸収した分子種は励起された後、次の3つの過程のいずれかを経て、基底状態に戻ると考えることができる。

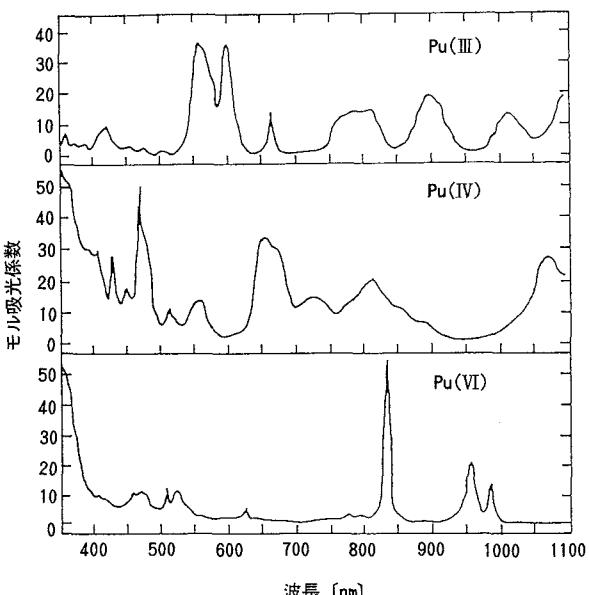
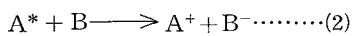


図2 Puの光吸收スペクトル⁸⁾

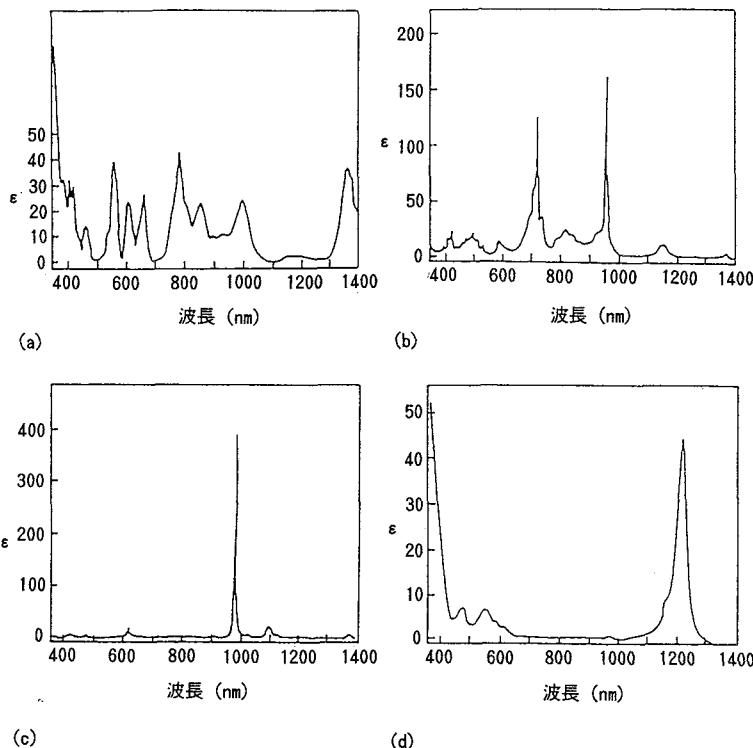


図3 2M過塩素酸溶液中のネプツニウムイオンの光吸収スペクトル⁸⁾
:(a)Np(III) : (b)Np(IV) : (c)Np(V) : (d)Np(VI)

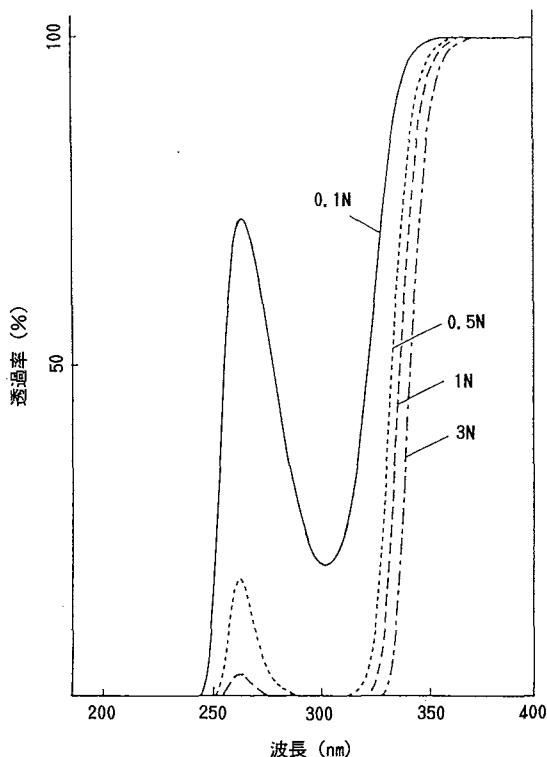


図4 硝酸の吸収スペクトル
[HNO₃] = 0.1N, 0.5N, 1N, 3N

(1)は、光吸収して励起状態にあるA*が他の分子種Bにエネルギーを与え、基底状態へ戻る過程、(2)は、A*が電子をBに与え、AはA⁺に酸化される。酸化的電子移動過程、(3)は、A*がBから電子を受け、AがA⁻に還元される、還元的電子移動過程である。

光吸収励起した分子種が、上記3つの反応の内どの過程をとるかは、それぞれがもつ酸化還元電位の相対的な差およびその度合に依存する。

Pu, Npの硝酸溶液中における光化学的挙動を考える場合、(2)および(3)の酸化還元過程が重要となる。この他に、硝酸溶液の場合、光を吸収し別の分子に分解し、その分解生成物が、共存する分子に対して、酸化還元反応を起こさせる過程も重要となる。一例として、硝酸の光分解は次のように表わされる。

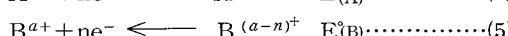
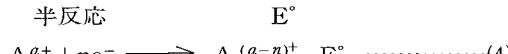


これらの様々な分子種が混存し、どの反応が優先的に起るかは、各々の酸化還元電位（標準電極電位、E°）の相対差により判断される。特に光を吸収し、励起された分子種に対する標準電極電位は、吸収した光のエネルギーに相当する電位だけ、酸化力が増加したり、還元力が増すと考えられる。そのため、光化学反応による原子価制御技術を考える場

合、特にこれらの、標準電極電位(E°)に係わる熱力学的考察が重要となる。

通常、酸化還元反応は、下記に示すように2つの半反応の標準電極電位 $E^\circ_{(A)}$ と $E^\circ_{(B)}$ を持った組み合わせにより起こると見なすことができる。

半反応



この2式が相反する矢印の方向に進行し、酸化還元反応が起こる場合、(4)式の A^{a+} は電子受容体(酸化剤)となり、(5)の $B^{(a-n)+}$ が電子供与体(還元剤)となって、酸化還元反応が成立していることになる。

いろいろな分子種が共存している場合、どの半反応とどの半反応が酸化還元反応を起こすかは、それぞれがもつ標準電極電位の差の大きさにより決まる。それは次の標準状態におけるギブスの自由エネルギーの差(ΔG°)と標準電極電位の差(ΔE°)の関係式からも判断される。

$$\Delta G^\circ = -nF\Delta E^\circ \quad (6)$$

ここで ΔE° :二つの半反応の電位差($E^\circ_{(A)} - E^\circ_{(B)}$)

F : ファラディー定数

このギブスの自由エネルギーの変化 ΔG° が負の場合には、変化過程は矢印の方向に自発的に起こり、 ΔG° が正の場合には、逆の方向に自発的に変化が起こる。平衡状態は ΔG° がゼロである。

また ΔG° は、次のように、反応の平衡定数との関係がある。

$$\Delta G^\circ = -RT\ell_nK = -2.303RT\log K \quad (7)$$

R : 気体定数, K : 平衡定数

すなわち、 ΔG° が負で大きければ、平衡定数は大きくなり、反応の自発的進行方向、程度についての情報を与える(しかし反応速度はわからない)。

以上のことから、いろいろな分子種が共存している場合、いつ、どの酸化還元反応の組合せが起こるかは、各半反応の標準電極電位の差の大きさの違いから主に判断される。

そこで、Pu, Npの混合硝酸溶液中における様々な分子種、および硝酸の光分解生成物の分子種の標準電極電位⁹⁾を整理し、図5に示した。

光吸収した後の励起された分子種の酸化還元電位は、同じ分子種であっても、図5に示される電位とは異なる。

すなわち、各半反応の左辺の分子種(電子受容体)が光励起されると、そのエネルギーだけ酸化力が増加し、右辺の分子種(電子供与体)が光励起されると、そのエネルギーだけ還元力が増加する。

その励起されたエネルギーは吸収した光の波長に

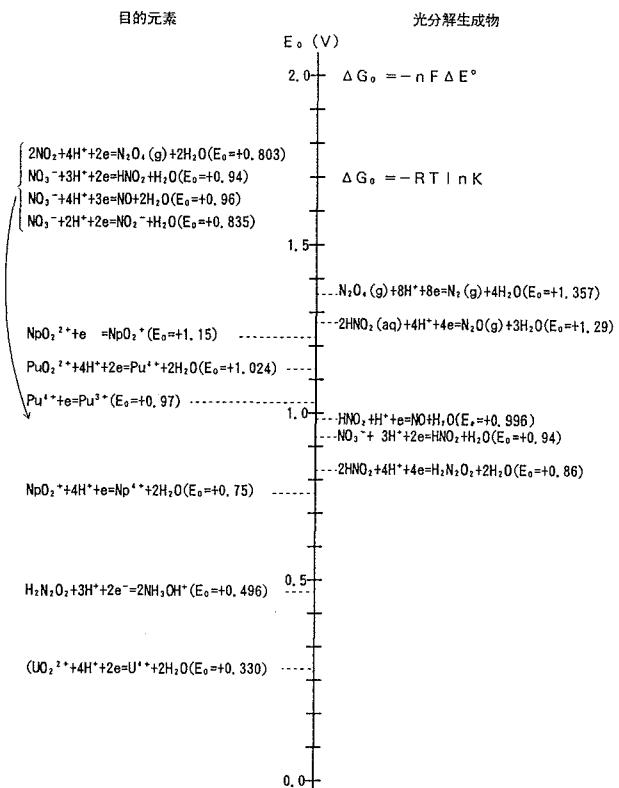


図5 硝酸溶液中のU, Pu, Npの標準電極電位

より、

$$E = h\nu \quad \text{で表わされる。}$$

ここで h : プランク定数

ν : 振動数

E : 光のエネルギー

そのエネルギーは波長が400nmで3.10eVとなり、800nmでは1.55eVとなる。

このエネルギーの大きさと、図5の電極電位の大きさから判断すると、水銀ランプのような波長約300nmから600nmの範囲の光を液中の分子種が吸収すると、その光励起された分子種は、共存する他のどの基底状態にある分子種よりもはるかに酸化力が強くなったり、還元力が強くなったりすると考えられる。

3. 光照射実験

Pu, Np混合硝酸溶液からPu, Npを光化学的に分離するための基礎試験を行うに当たり、ピューレックス再処理工程の各工程におけるU, PuおよびNpの原子価状態を、図5の標準電極電位と工程条件から解析した。

その検討結果を図6に示す。

まず溶解工程の約100°Cに加熱された硝酸溶解液中では硝酸、亜硝酸および亜硝酸ガスの発生により

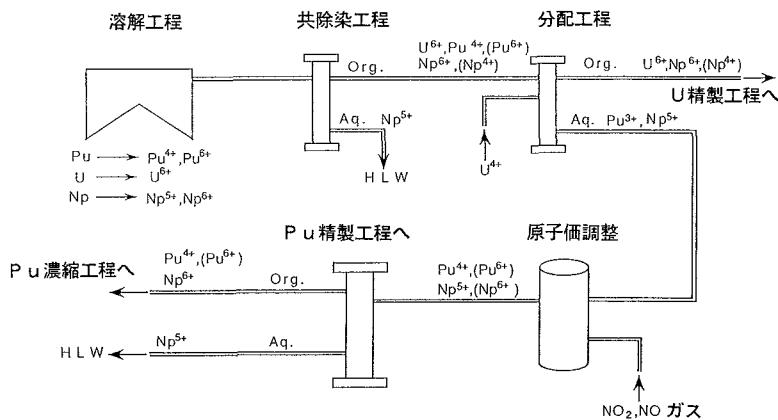


図6 再処理工場の工程におけるU, PuとNpの原子価状態

酸化状態が強く、U, PuおよびNpの原子価は各々、Pu(IV)、Pu(VI)、U(VI)およびNp(V)、Np(VI)になっている。溶解後この溶解液は、3N硝酸溶液に調整され、共除染工程に送られる。

共除染工程では、ほとんどのU, Puは溶媒側に抽出され、Npは図1から判断されるように、Np(VI)が溶媒側に、またNp(V)の3N硝酸での分配係数が約0.1である³⁾ことからNp(V)が水溶液側に分配される。

共除染された溶媒中のU, Puは、分配工程でウラナス(U⁴⁺)が添加され、Pu(IV)だったPuの原子価がPu(III)に還元される。このときNp(VI)もNp(V)さらに一部はNp(IV)にまで還元される。

これにより、Pu(III)は溶媒から水溶液中に逆抽出され、Np(V)も水溶液中に同伴する。Uは溶媒中に残り、Np(IV)も溶媒中に同伴する。

以後、UはU精製工程へ、Puは亜硝酸ガスで再びPu(IV)に酸化され、Pu精製工程で精製される。この亜硝酸ガスでの再酸化工程では、亜硝酸水溶液における酸化還元電位(HNO₂+H⁺+e=NO+H₂O E°=0.996)よりも、亜硝酸ガス発生工程からのガス(NO₂, NO)による酸化還元電位がかなり高いことから(2NO₂(g)+8H⁺+8e=N₂(g)+4H₂O E°=1.363、2NO(g)+4H⁺+4e=N₂(g)+2H₂O E°=1.678)⁹⁾NpはNp(VI)まで一部は酸化されていると考えられる。そのためそのNp(VI)は、Pu製品側に再び同伴してしまうものと思われる。

このような考察から、本研究では、光化学的手法の実験室規模の研究条件として、再処理工場において最も適用の可能性がある工程条件の中から、単純な系を選び、分配工程後のPuの再酸化(Pu(III)→Pu(IV))工程条件を取り上げることとした。

すなわち、Np(III)とNp(V)の混合硝酸溶液を、

この光照射実験の初期溶液とし、光照射により100%のPu(III)がPu(IV)に酸化されるのか、さらにPu, Npの相互分離に必要な原子価条件に制御できるのか、実験的に確かめることとした。

3.1 原子価濃度分析

光照射実験で使用した溶液の液量は約2mLの少量であることから、一定時間照射した後の分析のための1回ごとの試料採取量は、10~20μl程度でなければならない。またPu, Npの溶液濃度は各々1×10⁻⁴mol·dm⁻³および1×10⁻³mol·dm⁻³であり、その濃度は混合溶液中での従来法の吸光光度分析法では検出限界濃度で、しかも各原子価による相互の吸光スペクトルの影響があり、精度良い定量が困難であると判断した。

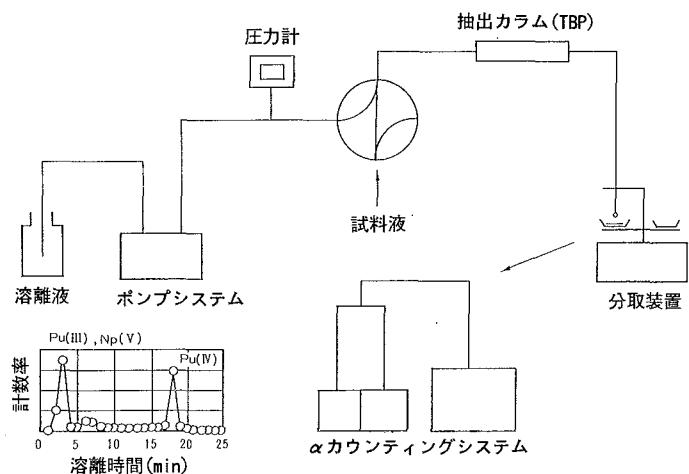
そこで本研究では、液体抽出クロマトグラフィーとα-放射能分析法を採用することとした。この方法の概略図を図7に示す。

まず試料溶液の20μlが、珪藻土系の担体にTBPが保持され、充てんされている液体クロマトカラム、(100~200メッシュ)中に通される。各原子価のPu, Npは、各々固有の時間カラムに保持された後、分別されてカラムから流出していく。流出液の一定液量(約1mL)ずつフラクションコレクターで、α-放射能分析用試料皿中に採取される。

各試料皿は蒸発乾固された後、α-放射能分析装置にかけられる。

抽出クロマトグラフ分析結果の一例を図8に示す。この試料溶液中には、Pu(III)、Pu(IV)、Pu(VI)およびPu(V)が混在し、各々の持つ固有の保持時間に従い、抽出分離されていることがわかる。

この結果では、Pu(III)とPu(V)はカラムでほとんど保持されないため、同時に流出していく。その

図7 抽出クロマトグラフ- α カウンティング分析法の系統図

ため、これらを分別するため、このフラクション溶液は α -波高分析により、PuとNpを分別定量した。 α -波高分析結果の一例を図9に示す。この図に示されるように、 α -波高分析により、Np-237からの α -放射線とPu-239、240および238からの α -放射線にエネルギー分別ができ、各々の比放射能と α -放射能計数率から、Pu(III)およびNp(V)の濃度が計算される。

3.2 光照射実験装置

本研究で用いられた光照射の実験装置を図10に示す。光源は水銀ランプ(200W)を用いた。この水銀ランプ光の波長特性を図11に示す。この光はフィルターで波長選択されることなく、コリメータで約1cm ϕ の平行ビームに絞られ、試料溶液に照射された。試料溶液の2ml入った照射セル部は、図に示されるように、セル下部にはスターが備えられ、光照射中常に溶液が均一になるようにされた。またセ

ルの両端には半導体製の恒温板が備えられ、セル内溶液温度が一定に保たれた。試料セルは10mm×10mm×30mmの石英製分光分析用セルを用いた。

3.3 光照射実験

光照射実験の手順を図12に示す。まずPu, Np混合溶液は原子価をPu(III)およびNp(V)に、HAN(硝酸ヒドロキミルアミン)とヒドラジン(N_2H_4)を用いて調整された。この一部を採取し、硝酸濃度を0.17N、1Nおよび3Nに調整した。水銀ランプの光照射強度は0.5Wと0.015Wの2水準を用い、一連の照射実験を行った。照射一定時間ごとに、20 $\mu\ell$ の照射試料溶液を採取し、抽出クロマトラカラムに通し、各々の原子価濃度分析を実施した。

抽出クロマトラカラムからの流出液は、保持時間が1分間ごとに、フラクションコレクターにより、 α -放射能分析用の試料皿に1mlずつ採取された。

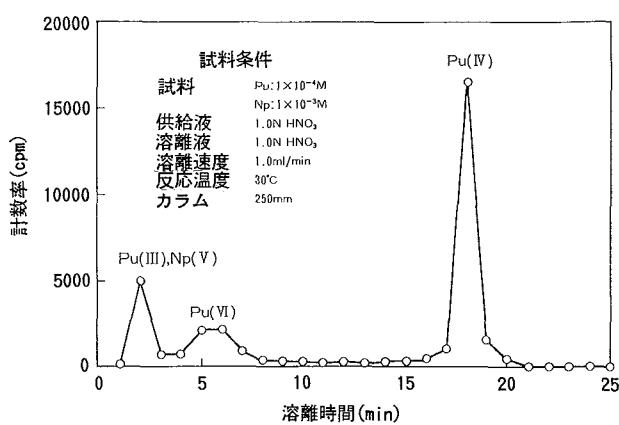
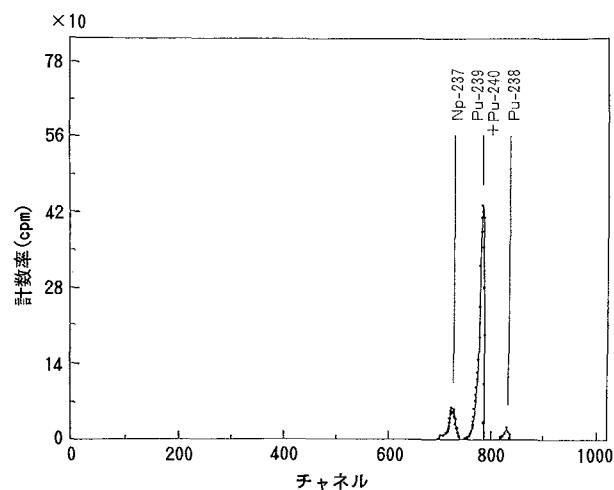


図8 抽出クロマトグラフによるPu, Np混合溶液の原子価分析

図9 PuとNpからの α -放射線の波高分析

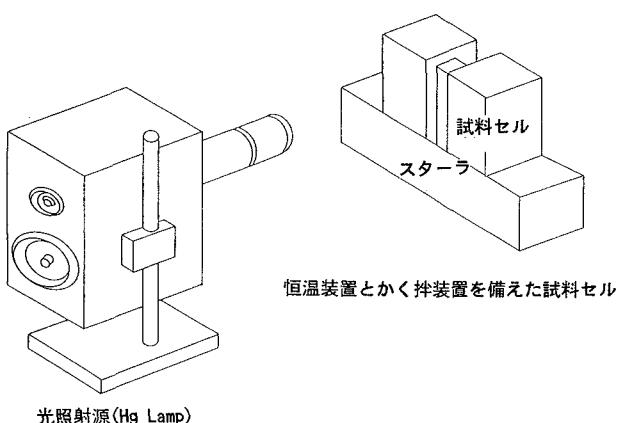


図10 光照射試験の装置の概観

各フラクションの α 放射能計数値の、各原子価による保持時間帯の合計を、その原子価の寄与によるものとして合計し、それをPuおよびNpの全放射能量で割って、その光照射時間における各原子価の存在率を計算により求めた。

4. 実験結果および考察

4.1 結果

光照射前のPu(III)およびNp(V)の3N硝酸混合溶液の抽出クロマト分析結果を図13に示す。Pu(III)およびNp(V)は抽出カラムにほとんど保持されないため、同一のフラクション中に分離されず得られた。この結果を図8と比較するとわかるように、Pu(III)およびNp(V)以外に他の原子価が存在していないことが確認される。

光照射実験のPuの光照射挙動結果を図14、15、16、17に示す。図14は、硝酸濃度が3Nで光照射強度が0.5W(1cm²の照射面積当たりで、しかも試料溶液

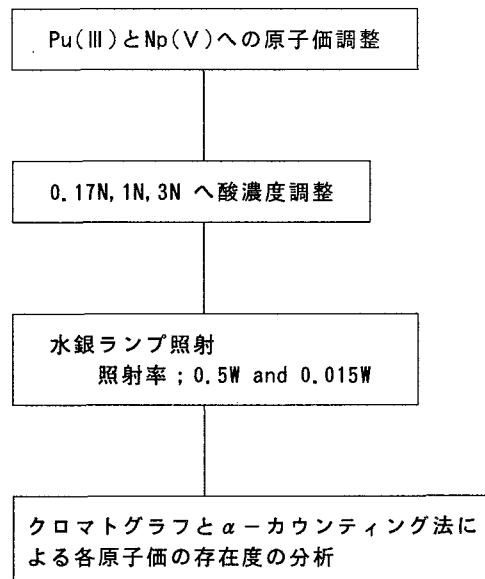


図12 光照射試験手順

2mLが吸収する熱量にも等しい)のときの、Pu原子価の光照射挙動を示したものである。はじめにPu(III)に調整されていた試料溶液は、光照射後直ちに酸化され、数分後にはPu(III)がほとんどゼロに達してしまった。これとは反対に、Pu(IV)は光照射後急激に増加し、数分後にはほぼ100%にまで達していることがわかる。しかしその後Pu(IV)はさらに酸化され、その存在率は徐々に減少し、反対にPu(VI)が徐々に増加し続けた。この実験結果から、このPu濃度(1×10^{-4} mol/l)、液量に対しても、光照射強度があまりにも強すぎることが判明した。

このため、次の実験から光照射強度を0.015Wにし、硝酸濃度を0.17Nから1N, 3Nと水準をと

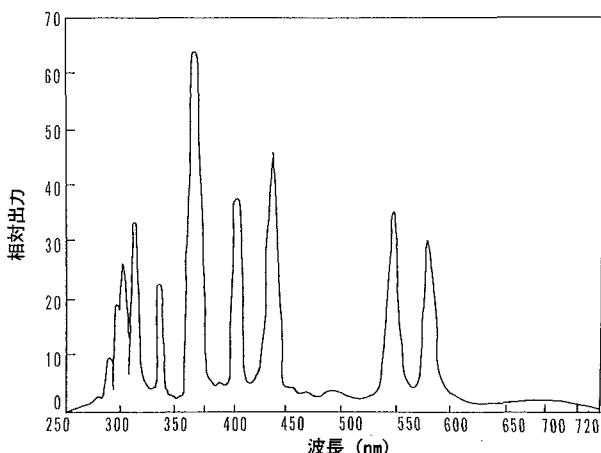


図11 水銀ランプ光の波長特性

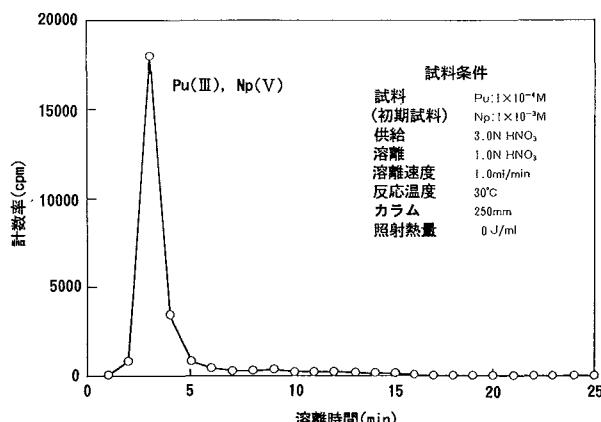


図13 抽出クロマトグラフによるPu, Npの混合溶液の原子価分析

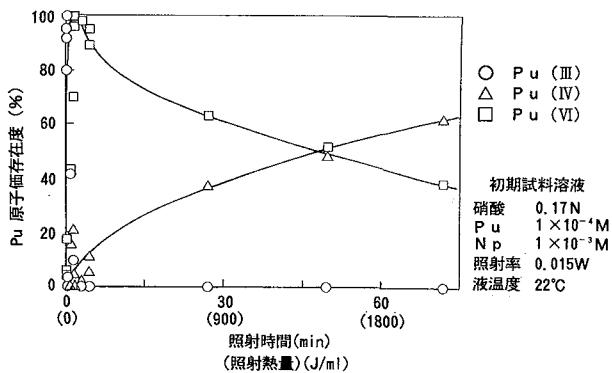


図14 光照射によるPuの酸化還元反応

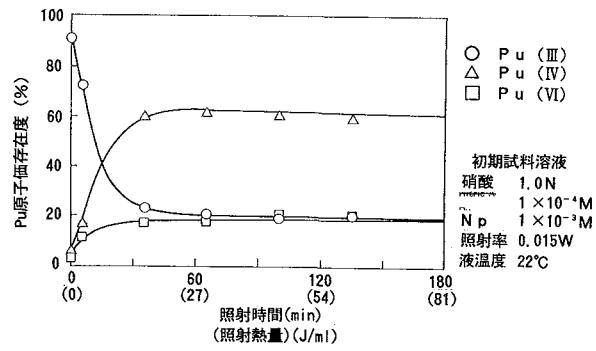
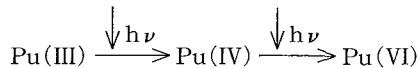


図16 光照射によるPuの酸化還元反応

り、光照射挙動を調べた。図15は、硝酸濃度が 0.17N のときのPuの光照射挙動である。光照射開始から徐々にPu(III)は酸化され、約90分後に約20%まで減少し、平衡に達した。同様にPu(IV)は光照射後90分で、その存在比が約60%に増加し、ほぼ平衡に達した。さらにPu(VI)も光照射直後から徐々に増加し、同じ時間の後、約20%になり、ほぼ平衡に達している。

この結果は、



の光照射による酸化が進んでいることを示している。

さらに、Pu(III)が約90分後に約20%の存在量で平衡状態にあることは、Pu(III)→Pu(IV)の酸化反応とPu(IV)→Pu(III)の還元反応が平衡に達していることを示している。

図16は、同じ照射強度で、硝酸濃度が 1N のときの結果である。この場合、 0.17N のときの結果と比較すると、Pu(III)はさらに速く酸化され、その存在比は減少して、前述の結果と同様、約20%で平衡に達している。その平衡までの時間は、 0.17N の場

合の結果の約1/3で、約30~40分であった。言い換えると、平衡に達するまでの時間は、硝酸濃度が 0.17N から 1N と増加したことにより、約1/3に短縮されたことを示している。しかし平衡に達する各原子価の濃度は同じであった。

図17は、 3N 硝酸の場合の結果である。この結果では、前述した結果の傾向がさらに顕著であり、Pu(III)の酸化は光照射後急激に起こり、約5分後には、ほぼゼロにまで減少している。一方Pu(IV)は、その反対に急激に増加し、約5分後には95%近くに達している。

さらに特徴的なことは、 3N の場合Pu(VI)が前述した二つの結果とは異なり、生成せず、ほぼゼロにあることである。

また、光照射の効果を確認するため、 3N 硝酸溶液の条件で、光照射しなかった場合（暗反応）のPuの挙動も調べた。

その結果は、図17中の点線で示されている。この図で示されるように、Pu(III)は、暗反応でも徐々に酸化され、5~6%の存在度まで減少するが、その平衡までの時間は、約120分以上と長い。

これらの結果の比較は、非常に興味ある。前述の

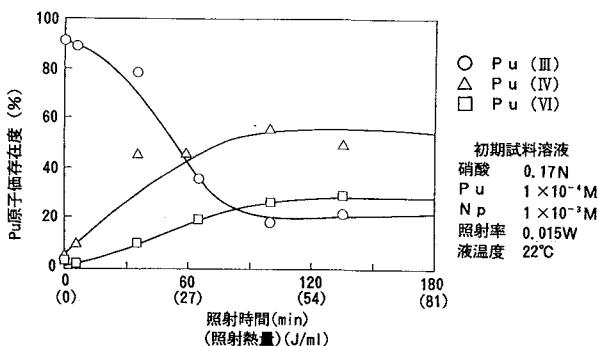


図15 光照射によるPuの酸化還元反応

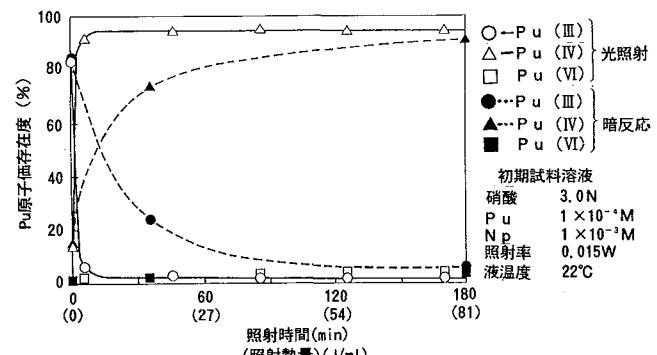


図17 光照射によるPuの酸化還元反応

0.17N および 1N 硝酸の場合には、Pu(III) および Pu(VI) の存在量が約 20% でほぼ平衡に達していたのが、3N 硝酸溶液の暗反応の場合は、Pu(III) が約 5% で平衡にあり、Pu(IV) は数% 以下で、Pu(III) と Pu(VI) との平衡時の存在量は等しくない。

この結果の考察として一つ考えられることは、Pu(IV) の不均化反応、すなわち、



Pu(IV) の反応において、光吸收励起状態での不均化反応における各々の原子価の割合は、光励起状態でない場合のそれとでは異なるのではないかと考えられることである。

この考え方方に立てば、光吸収し、励起状態からの Pu(IV) の不均化反応は、基底状態からの不均化反応に比べ、はるかに多いことになる。また、光照射がない場合には、Pu(IV) の不均化反応は、数% 以下にすぎないことを示している。

それでは、3N 硝酸溶液の条件下での光照射のとき、なぜ Pu(III) および Pu(IV) がほぼゼロであったのか。その一つの答えとしては、3N 硝酸溶液の場合でも、光吸收励起した Pu(IV) は、0.17N および 1N の場合と同程度の不均化反応をしていると仮定することである。しかし、3N 硝酸の条件下では、光吸収した NO_3^- 励起イオンが、0.17N および 1N の場合よりも多く、Pu(III) は、その強い酸化力により、直ちに Pu(IV) に戻される反応が、より多いと考えられる。

一方この光照射下での、初期に原子価調整された Np(V) の光照射挙動結果は、図18に示される。この結果は、3N 硝酸溶液で光照射量が 56 ジュール（光照射時間が約 2 時間）のときの Pu, Np 混合試料液の抽出クロマト分析結果を示している。この結果は、Pu は Pu(IV) 以外存在せず、Np は Np(V) のままで他の原子価が存在していないことを示してい

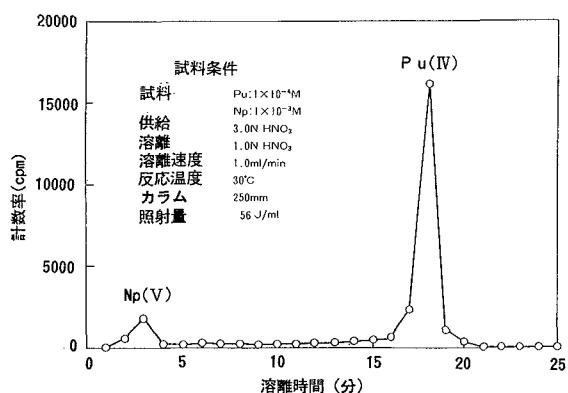


図18 抽出クロマトグラフによるPu, Np混合溶液の原子価分析

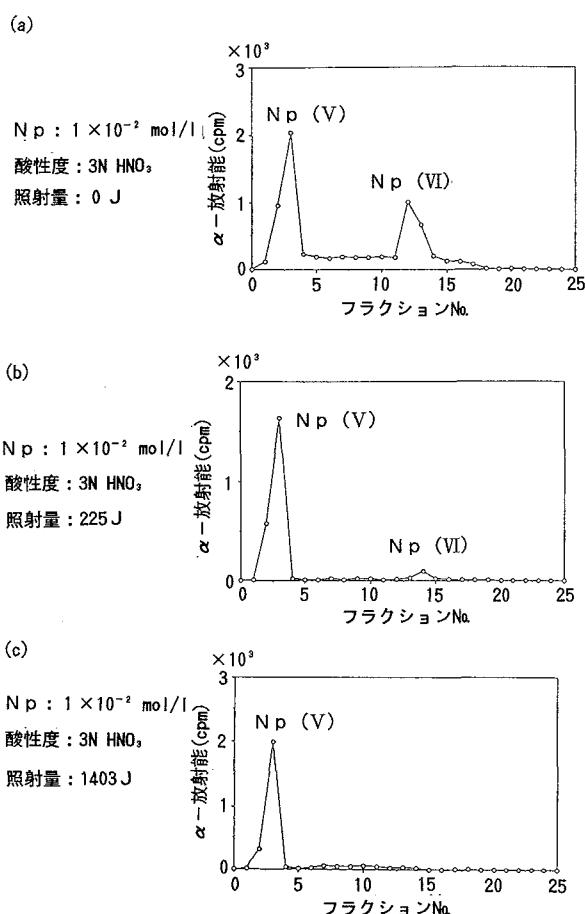
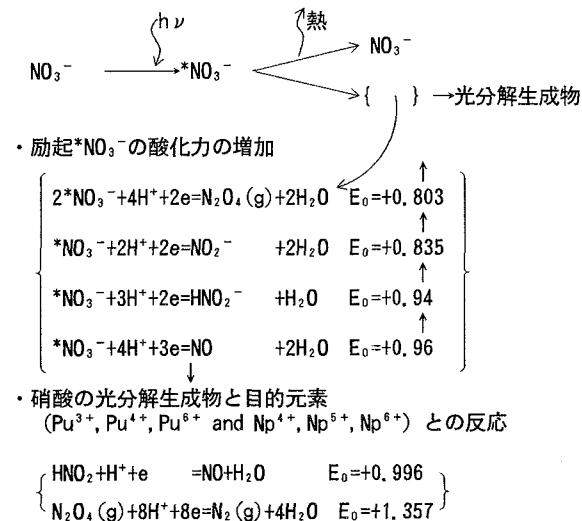


図19 水銀ランプ照射によるNp硝酸溶液の酸化還元反応

る。さらに詳細な Np の原子価の光照射挙動を調べるために、初期に Np(V) と Np(VI) が存在する状態での酸化還元挙動を調べた。その結果を図19に示す。試料溶液は Np の濃度が $1 \times 10^{-2} \text{ mol/l}$ で、硝酸溶液濃度は 3N である。図の(a)に示すように、初期には Np(V) と Np(VI) の存在比が約 2:1 であったものが、光照射量が 225 ジュールでは、その比が約 20:1 となり、1403 ジュールでは、Np(VI) はほとんど存在せず測定誤差程度となった。これは Np(VI) の光吸收励起により、電子親和力が増し Np(V) に還元されたことを示す。Np(V) は図 3 で示されるように、波長が 250~600 nm 付近の水銀ランプ光をほとんど吸収せず、光励起されないため、原子価の変動はないことを実証している。Np(IV) は、もし存在すれば水銀ランプ光で光励起され、Np(V) に酸化される。結局、Np の原子価の水銀ランプ光での光照射挙動は、Np(V) に最終的に調整されることが示された。

以上の結果から、3N 硝酸溶液で初期に Pu(III) および Np(V) に調整された Pu, Np の混合溶液は水銀ランプ光照射でほぼ 100% Pu(IV) および Np(V)

1) 硝酸, NO_3^- 

に調整できることが確認された。

4.2 光励起種の酸化還元挙動

以上のようなPu, Npの光照射挙動実験結果の考察として、硝酸溶液中でのPu, Npの光励起および酸化還元挙動原理を検討した。その結果を図20、21および22に示す。これらの図に示されるように、硝酸は光吸収励起し、熱を放出して基底状態に戻るか、または $*\text{NO}_3^-$ （光励起硝酸イオン）が様々な共存するイオン種と反応し、それ自身は数種の分解生成物になると考えられる。ここで硝酸分解のこれらの半反応の標準電極電位は、図中に示される電位（ E° ）に吸収波長のエネルギー（ $E = h\nu$ ）を加えた電位になるだろうと仮定した（ NO_3^- イオン種は半反応式の中で左辺にあり、電子受容体であるから）。平均吸収波長を300nmとするとそのエネルギーは約4.1eVとなり、励起硝酸イオンの酸化還元ポテンシャルは5eV程度で、非常に強い酸化剤としての作用をもつことになる。このことは、前述した光照射実験の結果で、硝酸イオン濃度が増加するにしたがい、Pu(III)は急激にPu(IV)へ酸化された一つの理由と解される。硝酸の光分解生成物の亜硝酸も、Pu, Npのような他の分子種が共存する場合、硝酸濃度が増加するにしたがって増加するものと考えられる。この亜硝酸イオンは、他の分子種を酸化または還元する働きをする。

図21のPuの光吸収励起反応系統図では、まず $*\text{Pu}^{3+}$ （ Pu^{3+} の光励起種）は半反応において右辺にあり、すなわち電子供与体であるため、励起後の電極電位はその吸収光エネルギーを減じた値、標準電極電位 ($E_o = +0.97$) - $h\nu$ (2.2eV) = -1.23eVと

(2) プルトニウム

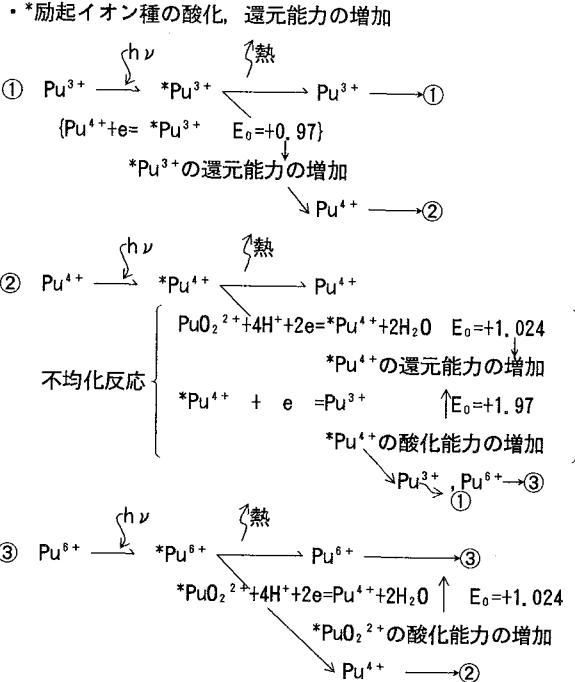


図21 硝酸溶液中のPuの想定される光化学反応

なり、非常に強い還元剤としての働きを他のイオン種におよぼし、それ自体は、Pu(IV)に酸化される。また光励起されないPu(III)でも、光励起硝酸

(3) ネプツニウム

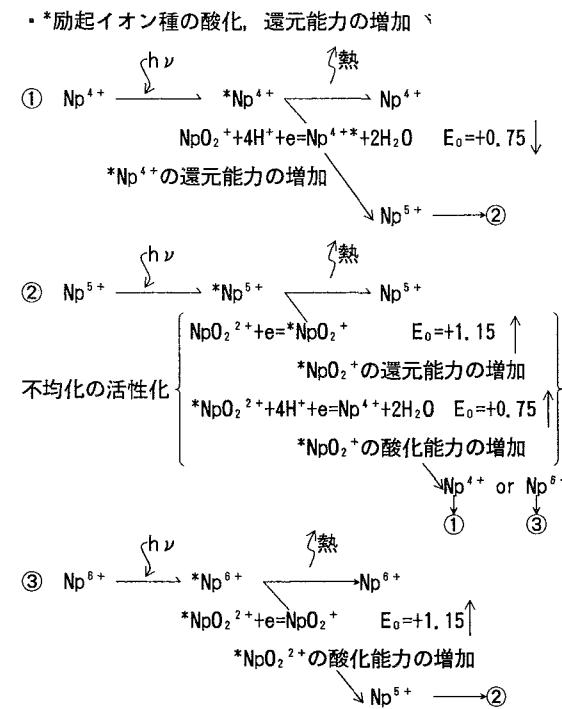


図22 硝酸溶液中のNpの想定される光化学反応

イオン $* \text{NO}_3^-$ とすばやく反応して、Pu(IV)に酸化される。

Pu(IV)は不均化反応し、Pu(III)またはPu(VI)へ酸化、還元される。光吸収励起した $*\text{Pu}(\text{IV})$ は、吸収エネルギーの平均を3.10eV(400nm)とすると、非常に強い酸化剤および還元剤として作用することになり、 $*\text{Pu}(\text{IV})$ は不均化反応してPu(III)およびPu(VI)になる。その考察の一例として、図15と図16中のPu(III)とPu(VI)の存在割合が約20%で平衡に達している結果が示される。

Pu(VI)の光励起種 $*\text{Pu}(\text{VI})$ は、電子受容体であり、吸収エネルギーの平均を3.54eV(350nm)とすると、非常に強い酸化剤の性質を示し、他を酸化してPu(IV)還元される。

Npの場合は図22に示すように、Np(IV)、Np(VI)の原子価は光吸収励起すると、前述したことと同様に酸化または還元され、Np(V)の場合は光励起種 $*\text{Np}(\text{V})$ が不均化反応し、Np(IV)およびNp(VI)になる。しかし本研究では、Np(V)を初期の試料としたため、Np(V)は水銀ランプ光をほとんど吸収励起せず、原子価変動がなかったものと考えられる。また一方でいえることは、かりに光吸収励起しなくとも、他の共存するイオン種が光吸収励起すれば、その非常に強い酸化作用または還元作用により、共存する基底状態のオイン種も酸化還元されなければならない。すなわち基底状態のNp(V)も酸化あるいは還元されて、Np(IV)およびNp(VI)が存在していなければならないことになる。実験結果ではNp(V)以外のNpの原子価がほとんど存在しなかったが、その理由の一つは、以下のように説明できる。図5に示されるPu、Np混合硝酸溶液中における、共存イオン種の標準酸化還元電位の中で最も高い半反応の電極電位は、



であり、また最も低い電極電位は、

$\text{NpO}_2^+ + 4\text{H}^+ + e = \text{Np}^{4+} + 2\text{H}_2\text{O}$ ($E^\circ = +0.75$)である。このことは、光励起された酸化作用の強いイオン種に最も酸化されやすいイオン種は、 Np^{4+} であり、また最も還元されやすいイオン種は NpO_2^{2+} であることになる。すなわち、Np(V)が不均化反応しNp(IV)およびNp(VI)が生成しても、共存する光励起イオン種に直ちに酸化、還元されNp(V)に戻る。そのためNp(V)以外のイオン種がほとんど存在しなかったと説明できる。

Pu、Np混合硝酸溶液中の全イオン種の、光励起による標準電極電位の変化量を表わしたもの図23に示す。この図から判断できることは、基底状態のイオン種と光励起種の電極電位の差 ΔE° は、約1eV

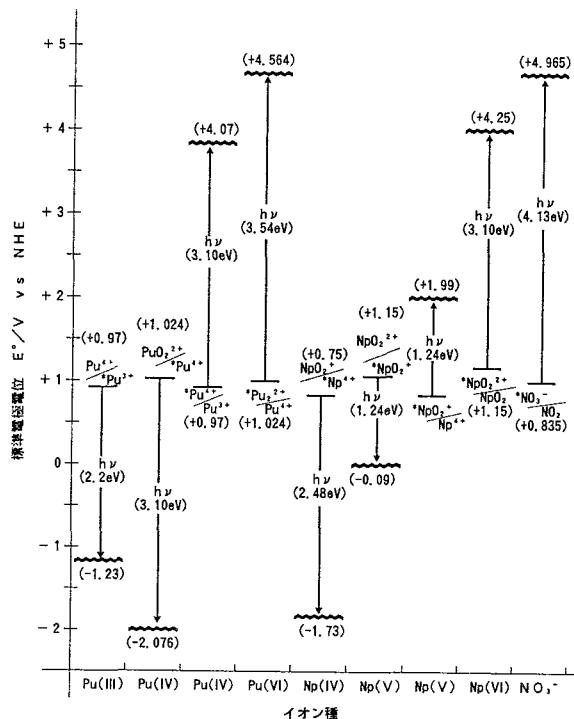
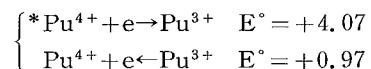


図23 光励起による標準電極電位の変化

~4eVにもなる。ギブスの自由エネルギーと電極電位の差 ΔE° および化学平衡定数Kとの関係から、 $\Delta E^\circ = 1\text{eV}$ で $K = \text{約}10^{17}$ に換算されるため、光励起種との酸化還元反応は完全に進むと考えられる。

また、これらの光励起イオン種は、非常に強い酸化剤または還元剤として作用するため、基底状態の同じイオン種とは全く異なるイオン種のように作用することが考えられる。極端な例を示せば、次のような半反応どうしの酸化還元反応も起こっているものと原理的には考えられる。



次に本研究の硝酸溶液中における、初期原子価がPu(III)に調整された試料溶液中での、可能性のある主要な酸化還元反応の系統図を検討した。その結果を図24および表3に示す。図24は、Pu(III)が水銀ランプ光照射を最初に受け、それ以後どのような主な酸化還元反応経路を経て、各々のPuの原子価が生成、減少しているかを模式的に示している。まず光励起された $*\text{Pu}(\text{III})$ および基底状態のPu(III)は、光励起硝酸イオン $*\text{NO}_3^-$ と反応して、Pu(IV)に酸化される。生成したPu(IV)の一部は光励起され、他の酸化型および還元型イオン種と不均化反応し、Pu(III)に戻るか、Pu(VI)にさらに酸化される。励起されないPu(IV)は、光励起された $*\text{NO}_3^-$ と反応して酸化され、Pu(VI)になる。Pu(VI)の一

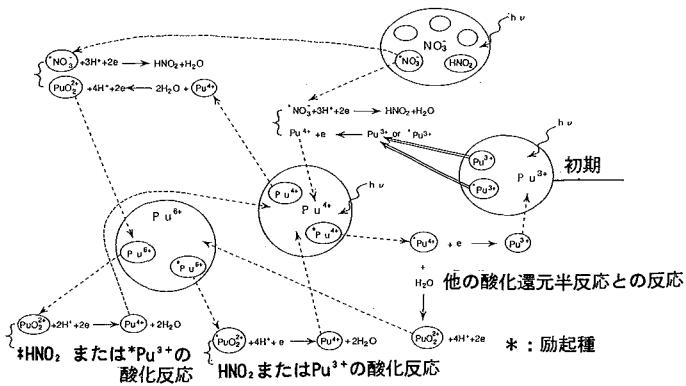


図24 光照射によるPu原子価の反応系統

部は、光吸収励起して、共有する還元型イオン種と反応してPu(IV)に還元される。光励起されないPu(VI)は、光励起された還元型イオン種（例えば*HNO₃あるいは*Pu³⁺）と反応してPu(IV)に還元される。このようにしてPuの酸化還元反応が進むものと考察される。図24の反応系統から各Puの原子価の増減反応を区別して整理すると、表3に示すような結果が得られる。

これらの反応の個々の反応速度定数が求められると、光照射に伴う各原子価濃度の時間変化がシミュレーションできる。

表3 Pu-Np混合溶液中の想定される光化学反応

	Pu ³⁺	Pu ⁴⁺	Pu ⁶⁺
增加	1 { *Pu ⁴⁺ + e → Pu ³⁺ + 還元剤の酸化反応 (HNO ₃ , Np ⁴⁺ , HNO ₂)	2 { *NO ₃ ⁻ + 3H ⁺ + 2e → HNO ₂ + H ₂ O + Pu ⁴⁺ + e ← Pu ³⁺	5 { PuO ₂ ²⁻ + 4H ⁺ + 2e ← *Pu ⁴⁺ + 2H ₂ O + 酸化剤の還元反応 (NO ₃ ⁻ , Np ⁶⁺ , Np ⁵⁺ , HNO ₂)
減少	3 { *NO ₃ ⁻ + 3H ⁺ + 2e → HNO ₂ + H ₂ O + Pu ⁴⁺ + e ← Pu ³⁺	4 { *PuO ₂ ²⁻ + 4H ⁺ + e → Pu ⁴⁺ + 2H ₂ O + 還元剤の酸化反応 (Np ⁴⁺ , Pu ³⁺ , HNO ₂)	6 { PuO ₂ ²⁻ + 4H ⁺ + 2e ← Pu ⁴⁺ + 2H ₂ O + 還元剤の酸化反応 (Np ⁴⁺ , Pu ³⁺ , HNO ₂)

* : 勵起種

4.3 光酸化還元技術の実用化概念

本研究は、再処理U, Pu分配工程からのPu製品側の工程条件 (Pu(III)、Np(V)) を模擬して実験を行った。その結果、水銀ランプの光を用いた光酸化

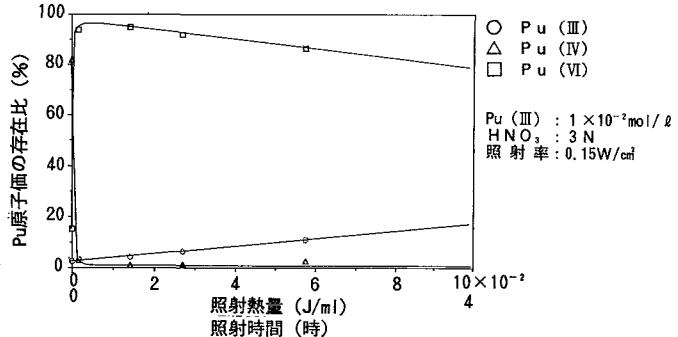


図25 硝酸溶液中のPu(III)の酸化還元反応

還元作用により、ほぼ完全にPu(III)→Pu(IV)の酸化が可能で、しかもNp(V)は変化しないでそのままNp(V)の状態に存在しえることが確認できた。

そこで、実工程へこの光酸化還元技術を工程技術として適応する場合の評価検討を行った。

まず、水銀ランプを用いたこの光酸化還元方法の量子収率が、どの程度であるか検討した。量子収率を計算する基となるデータは、Pu濃度($1 \times 10^{-2} \text{ mol/l}$ 、Pu(III))を用いた実験から得られたものである。その実験結果を図25に示す。図から判断されることは、光照射後急激にPu(III)はPu(IV)に酸化され、約3.5分後にはPu(IV)の存在比率がほぼ95%に達成している。残りの5%は、光照射によるPu(IV)の不均化反応による、Pu(VI)とPu(III)の存在と、測定誤差によるものと考える。

通常実工程では、次の工程のPu精製工程に送液される前に、再酸化された工程液は一時貯留タンクに一定時間滞留する。わずかに存在する可能性のある数%のPu(III)の多くは、その間にPu(IV)に酸化されると考えられることから、工程液はほぼ完全に再酸化されると考えられる。図25の、実験結果では、初期にPu(III)へ100%調整した後にその一部を分取し、それを3N硝酸溶液に酸濃度調整した段階で、Pu(III)は酸化され、Pu(IV)が約15%存在していた。そのため量子収率を計算するPu濃度として、Pu(III)の実質濃度を $1 \times 10^{-2} \text{ mol}$ の80%とした。Pu(III)→Pu(IV)の酸化還元電位は、0.97eVで、水銀ランプの入射光の平均波長を400nmとするとき、400nm光子(3.1ev)1個で1反応を起こすのに十分なエネルギーである。3.5分間の光照射エネルギーは、熱量計での測定結果から31.5ジュール/ 2ml (0.15 W/cm^2)に相当する。400nmの波長のエネルギーは、 $E = h\nu = 6.626 \times 10^{-34} \times 3 \times 10^8 / 400 \times 10^{-9} = 4.97 \times 10^{-19} \text{ ジュール}$ となる。31.5ジュールの光照射量の光子の数は、 $31.5 / 4.97 \times 10^{-19}$

$= 6.34 \times 10^{19}$ 個と換算される。図から、Pu(III)→Pu(IV)の光酸化したPuの原子数は $2 \times 1 \times 10^{-5} \times 0.8 \times 6.02 \times 10^{23} = 9.63 \times 10^{18}$ であり、結局この実験での量子収率は、 $(9.63 \times 10^{18} / 5.43 \times 10^{19}) \times 100 = 17.7\%$ となった。厚み1cmの試料溶液セルを透過していく光は、約1/10であったことから最終的な量子収率は、約20%と評価された。

現在のU, Pu分配工程後のPu製品側の再酸化処理工程に、本研究の光酸化処理技術を代替技術として導入する場合、現状のピューレックス工程の同程度の処理能力が要求される。量子収率を求めた実験では、 $0.8 \times 10^{-2} \text{ mol/l}$ （初期のPu(IV)濃度を減じた値）Pu濃度の2mlの全量をPu(III)からPu(IV)に酸化するのに、31.5ジュールの光量を必要とした。よって濃度 $1 \times 10^{-2} \text{ mol/l}$ の1mlでは、約19.7ジュール必要である。次に図26に示すような光原子価調整ユニットを考察した。このユニットの構成は試料セル部の厚さが3cm、内径30cmφで高さ10cmのドーナツ状の石英製の光照射用セル部（容量3.1l）と350Wの水銀ランプ5本からなって、図のように配置されている。このユニットを図27に示すように工程内に12器組み込む。これを光照射原子価調整器とすると、全体の液容量は37.2lとなる。1つのユニットでの光照射発生出力は、 $350 \text{ W} \times 5 = 1750 \text{ W}$ で、液容量が3.1lであるから $1 \times 10^{-2} \text{ mol/l}$ 濃度のPu(III)を全部Pu(IV)にするためには、 $19.7 \text{ J/ml} \times 3100 \text{ ml} = 6.11 \times 10^4 \text{ J}$ 必要であるから、光の照射時間

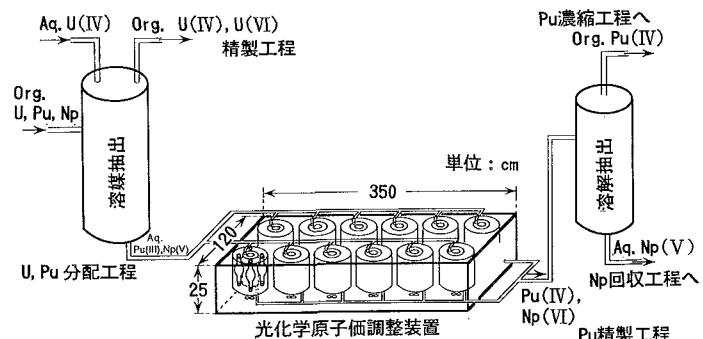


図27 再処理工程における光化学原子価調整装置の設置概念

は $6.11 \times 10^4 / 1.75 \times 10^3 \text{ J/sec} = 35 \text{ sec}$ となる。水銀ランプの光としての出力効率およびこのユニット内の光化学系等を含めた光照射効率を1/5程度と推定すると、必要な照射時間は $35 \text{ sec} \times 5 = 3 \text{ 分}$ となる。すなわち、照射セル内液交換と3分間光照射を3回、1時間以内に繰返し操作すれば、Pu(III)→Pu(IV)の再酸化工程処理能力が 112 l/hr となる。この再酸化工程液を一時バッファタンクに貯留して、次の工程のPu精製工程に送れば良いことになる。次工程のPu精製工程では、Puは溶媒側へNpは水溶液側に分配され、Npの除去回収も可能となる。水銀ランプ1本の値段は約4万円でさほど高価なものではなく、その光照射寿命は約1000時間である。この水銀ランプでの光原子価調整器は、1溶解当たりの液容量を3m³とすると、250バッチ分以上の水銀ランプ照射寿命があり、非常に低コストのPuの再酸化、Np分離処理のための原子価調整ができることになる。

次に現工程技術との比較検討を行った。現工程技術は、亜硝酸ソーダと硝酸の混合反応による亜硝酸ガス発生槽、Pu酸化槽および亜硝酸ガス追出し槽から主に構成されている。この現工程との比較した利点は次のように表わされる。

- ① Pu(III)、Np(V)に調整でき、次工程のPu精製工程で相互分離、Npの回収が可能となる。
- ② 光照射のみでPuの再酸化が可能となり、工程が簡素化される。
- ③ 現工程のような亜硝酸ソーダと硝酸による低レベル工程廃液はでない。
- ④ 溶媒劣化の要因の一つであった亜硝酸ガスを使用しないため、溶媒の劣化が減少する。
- ⑤ 工程機器が簡素化された分、セル使用面積が削減できる。

以上のようにPu、Npの水銀ランプを使用した酸化還元の試験結果の成果を基に、現工程へ適用した

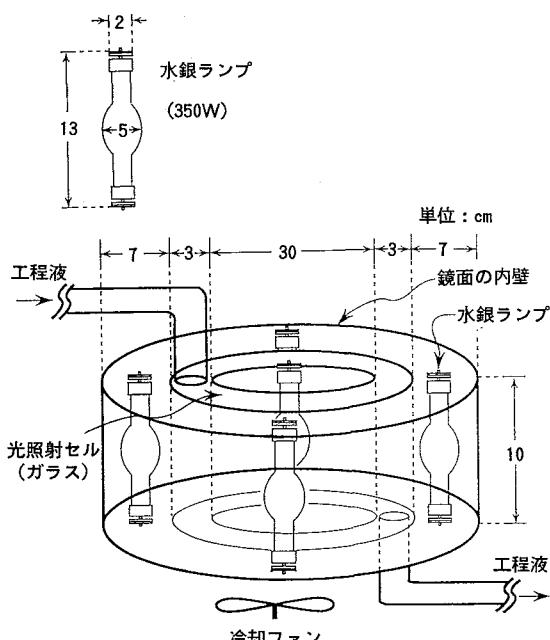


図26 光化学的原子価調整装置の概念

場合の検討結果を述べた。しかし実用化へは、工学規模でのコールド、ホットの実験等今後さらに多くの実証試験を積み重ねてゆかなければ、成立しえないことは当然である。

5. 結論および今後の課題

本研究の結果、その成果は以下のように要約することができる。

① Puについての光化学的挙動は、

- ・水銀ランプ光によりPu(III)はPu(VI)まで酸化されうる。
- ・Pu(III)→Pu(IV)への光酸化反応は、硝酸濃度が高いほど容易に進行する。
- ・Pu(IV)→Pu(VI)への光酸化反応は、硝酸濃度が低いほど進行しやすい。
- ・Pu(III)→Pu(IV)への光酸化の量子収率は約20%であった。

② Npについての光化学的挙動は、

- ・Np(V)は水銀ランプ照射により硝酸溶液中では酸化も、還元もされず、Np(V)のままで安定である。

③ 光溶液化学反応についての原理的な解析結果については、

- ・光溶液化学反応の原理的側面は、電気化学的原理と同様の手法により説明ができることが解った。
- ・すなわち、酸化還元反応式の半反応における標準電極電位、 E° は溶質分子種が光を吸収し励起することにより、大きく変化し、その変動の大きさは、吸収する光のエネルギーだけ変化しているだろうとの解釈に基づき説明できた。
- ・これにより、基底状態では反応が進行しないある一対の半反応どうしであっても、一方の酸化型イオン種または還元型イオン種が光吸収励起することにより、電極電位の差、 ΔE° が通常数eV以上になる。
- ・このことにより、熱力学的変量であるギブスの自由エネルギーと化学平衡定数Kの関係から、Kの値にして 10^{20} 以上の値になることになる。いいかえれば、光吸収励起したイオン種を基に、酸化あるいは還元が完全に進行するだろうと考察された。
- ・この考え方によりPu, Np混合硝酸溶液における、各原子価の光吸収波長特性からその平均的な吸収波長を求め、その波長のエネル

ギーに基づき、光吸収励起状態における各光励起イオン種の平均的なポテンシャル電位を明らかにした。

- ・Pu, Np混合硝酸溶液中における光励起種と基底状態の各イオン種による可能性のある酸化還元反応を明からにし、Pu原子価の光照射下での反応挙動系統図を明らかにした。
- ・これを基にPuの各原子価の増加または減少に係わる反応式を明らかにした。

④ Pu, Npの分離については、

- ・水銀ランプ光照射によりPuはほぼ100%Pu(IV)に、NpはNp(V)に原子価調整することが可能と判断され、溶媒抽出により相互分離ができると結論された。

⑤ 光溶液化学技術の実工程への適用性については、

- ・光照射原子価調整器が考案された。
- ・この装置により、再処理のU, Pu分配工程後のPu製品側工程液の再酸化工程技術へ代替技術として採用できる可能性のあることが結論された。
- ・従来できなかったNpの分離、回収が可能となる。

以上の結論のもと、今後の研究課題は、

- ・光原子価調整—溶媒抽出での実証試験
- ・各酸化還元反応の反応速度定数を求める実験
- ・求めた反応速度定数を基に、光照射量と各原子価濃度の関係を示すシミュレーションコードの開発
- ・Pu(IV)、Np(V)の光吸収励起不均化反応実験
- ・光原子価調整—溶媒抽出法によるPu, Np分離実証試験

等の基礎実験、解析評価が必要である。

参考文献

- 1) 高島洋一、田宮茂文：「核燃料再処理」アイ・エス・ユー (1977).
- 2) J.C. Bailar, et al., Comprehensive inorganic chemistry, Actinides master index ⑤ (1973).
- 3) 藤田泰治、久保田益充：ネプツニウムの回収—文献調査、JAERI-M-84-043 (1984).
- 4) T.Gangwer, "Photochemistry Relevant to Nuclear Waste Separation; Feasibility Study", BNL-50715 (1977).
- 5) M.Goldstein, J.J.Baker, et al., "Photochemistry in Nuclear Fuel Reprocessing", Nuclear Engineering International, 22, 69-73 (1977).
- 6) J.T. Bell and L.M. Toth, "Photo and Radiation Chemistry in Nuclear Fuel Reprocessing," Radiochimica Acta, 25, 225-230 (1978).
- 7) L.Toth and H.Friedman, "The Photo chemistry of Neptunium in Aqueous Nitric Acid Solution", Radiochimica Acta, 27, 173 (1980).
- 8) J.J.Katz, G.T.Seaborg and L.R.Moss; "The Chemistry of the Actinide Elements" Vol. 1
- 9) 化学便覧 基礎編II 日本化学会編



ATR原型炉「ふげん」MOX燃料の製造と技術開発

三浦 満 助川 宣夫 沖田 高敏
渡邊 健治 出口 守一 横須賀好文
石田 忍 大谷 誠二

東海事業所プルトニウム燃料工場製造加工部

資料番号88-4

Development and Fabrication of MOX Fuels for Fugen

Mitsuru Miura Nobuo Sukegawa Takatoshi Okita
Kenji Watanabe Morimoto Deguchi Yoshibumi Yokosuka
Shinobu Ishida Seiji Otani
(Plutonium Fuel Production Division, Plutonium Fuel Plant,
Tokai Works)

東海事業所プルトニウム燃料第二開発質ATRラインは、昭和46年の施設完成後、大洗工学センターに設置されている重水臨界実験装置DCAの燃料を製造し、昭和50年7月よりATR原型炉「ふげん」の燃料製造を主として行っている。

平成4年度には、「ふげん」のMOX燃料として、累計500体の製造を成し遂げた。これらは「ふげん」で発電に利用され、これまで一体の破損もなく、その燃料体の健全性を立証し続けている。

本報告では、累積500体にいたる燃料製造の経緯および最近実施した高速実験炉「常陽」のペレットを乾式回収して原料として使用する燃料製造技術開発について報告する。

1. 「ふげん」燃料製造の経緯

「ふげん」燃料は、昭和50年7月に初装荷燃料100体の製造を開始し、昭和53年3月に完了し、「ふげん」に輸送された。これらの燃料を装荷し、計画された炉の試験を行ったのち、昭和53年7月に送電を開始した。

昭和53年10月に取替用燃料の製造を開始し、平成4年5月に累積でMOX燃料製造500体を達成し、平成5年8月現在では約550体のMOX燃料の製造が終了している。これらの燃料製造の累積数を図1に示す。

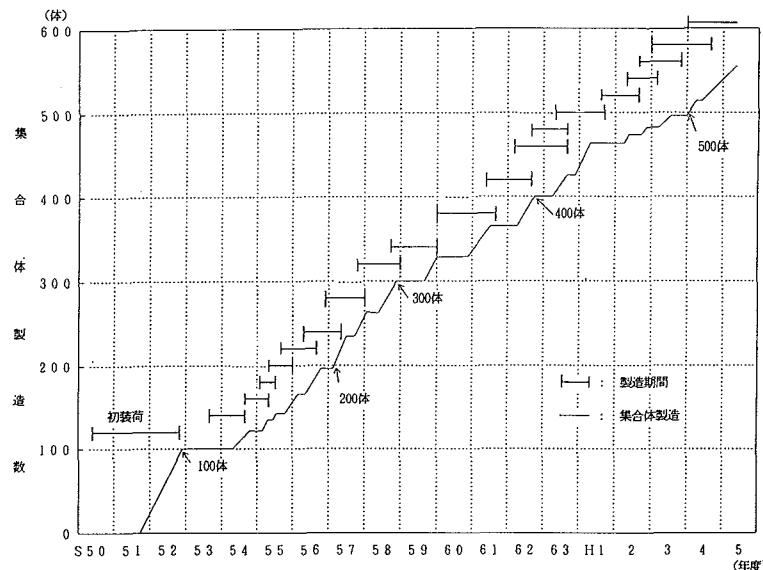


図1 「ふげん」燃料製造経過

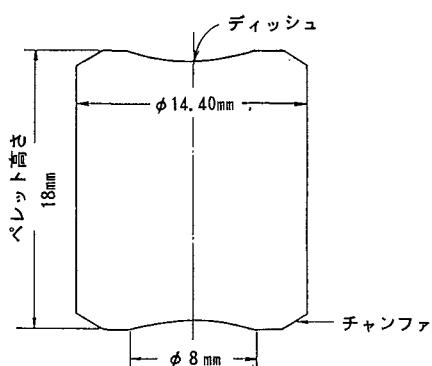


図2 燃料ペレットの形状

2. 「ふげん」 MOX燃料の製造

2.1 燃料の仕様

(1) 燃料ペレット

燃料ペレットは、被覆管との機械的相互作用を軽減するため、円柱形の端を面取り（チャンファ）し、さらにスエリングを吸収するため、両端面にくぼみ（ディッシュ）を有した形状となっている。図2に燃料ペレットの形状、表1に燃料ペレットの主な仕様を示す。

(2) 燃料要素

燃料要素は、ジルカロイ-2被覆管内に燃料ペレットを充填し、上・下部端栓で密封したもので、FPガスによる過度の内圧上昇を抑えるため、プレナムが上下に設けられている。燃料ペレットとプレナムスプリングの間には、燃料ペレットからプレナムへの熱伝導を遮断するため、アルミニウム断熱ペレットおよび天然ウランペレットが入れてある。なお、燃料要素には内層用、中間層用、外層用の3種類があり、端栓形状によりこれらを識別している。図3に燃料要素の概略を示す。

(3) 燃料体

「ふげん」用標準燃料体は、図4に示すように内層4本、中間層8本、外層16本の燃料要素28本を同心円状に束ねた構造になっている。この燃料体は、

表1 燃料ペレットの主な仕様

項目	仕様 (公称値)
・ペレット直径	14.40mm
・ペレット高さ	18 mm
・ペレット密度	95% T.D
・核分裂物質量 Bタイプ	2.27wt% Pu+U fis.
内層、中間層 外層	1.84wt% Pu+U fis.

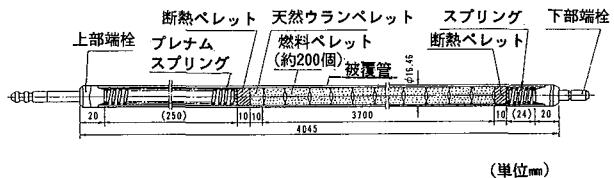


図3 燃料要素概略図

上・下部のタイププレートおよび12個のスペーサによって燃料要素相互の間隔が保持され、上・下部タイププレートに中間層の燃料要素が連結固定されている。

燃料体での発熱を平坦化するために、熱中性子束密度が低くなる内層および中間層は、外層よりもプルトニウムの富化度を高くしている。

2.2 製造方法

燃料の製造は、大別すると燃料ペレット製造、燃料要素加工、燃料体組立の3つの工程に分けることができる。図5に燃料体組立までのフローシートを示す。

(1) 燃料ペレット製造

① 混合

秤量した原料粉末 ($\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ 粉末、 PuO_2 粉末、 UO_2 粉末) を機械的にポールミルで粉碎・混合する。ポールミル混合条件は、ペレットの焼結性、プルトニウム、ウランの均一性およびプルトニウムスピットに影響するので、粉末構成および原料粉末ロットが異なる場合に回転数、時間を必要に応じて変える。

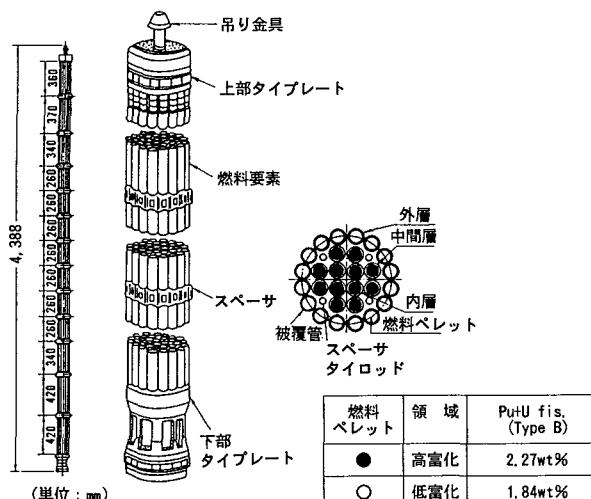
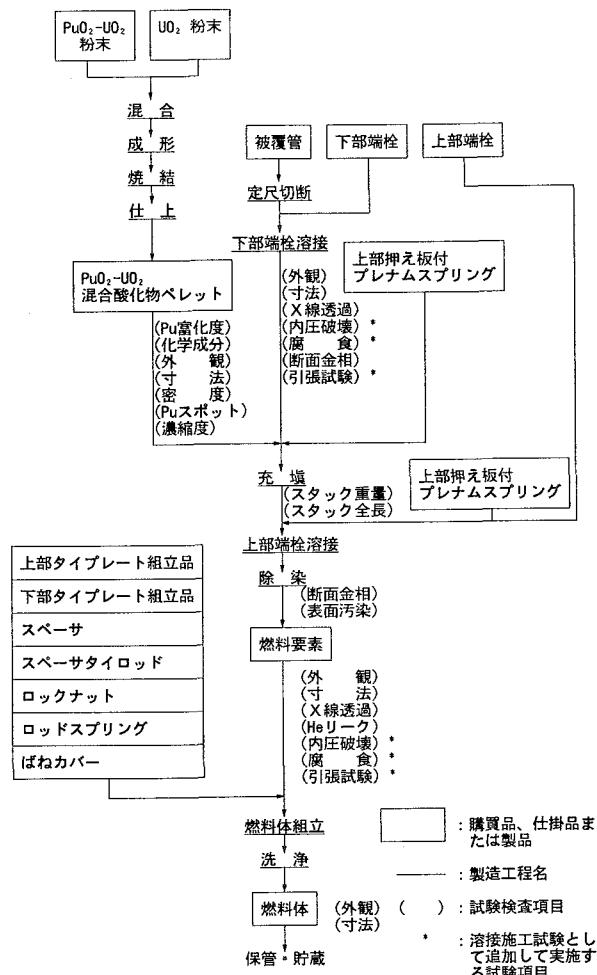


図4 燃料体概略図



② 成形

成形時における粉末の成形性を良くするため、成形前に適量の潤滑剤を添加する。成形は、上下加圧式成形機を使用して所定の圧粉末（グリーンペレット）を造る。

③ 焼結

まず予備焼結炉でグリーンペレット中の潤滑剤を加熱・分解し除去する。次に本焼結炉に入れ、高温で焼き固め所定の密度を得る。予備焼結および本焼結雰囲気には、水素と窒素の混合ガスを使用する。

④ 仕上

焼結後のペレットは、外径を仕様寸法にするためにセンタレスグラインダを使用し、湿式研削する。研削後のペレットに含まれる水分、蒸発性不純物を除去するため、真空炉で加熱する。その後、寸法、密度、外観検査を行う。

(2) 燃料要素加工

① 下部端栓溶接

被覆管の一端に仮端栓を取り付け、管端部と下部端栓を溶接室に入れて内部を真空にする。次に高純度のヘリウムガスを導入後、被覆管に下部端栓を取り付けてTIG溶接する。

② ペレット充填

下部端栓の付いた被覆管管口部に、プルトニウムの付着を防止するため管口マスクを取り付け、下部プレナムスプリングとアルミナ断熱ペレットを挿入する。次に燃料ペレットを入れ、最後にウランおよびアルミナ断熱ペレットを挿入する。ペレット充填終了後、管口マスクを取り外し、管口部の除染を行い、フィルタ付仮端栓を取付ける。

③ 上部端栓溶接

ペレット等が充填された燃料要素を脱ガス装置に入れた後、真空加熱し被覆管等に付着した水分等を除去する。脱ガス終了後、高純度のヘリウムガスを導入する。

次に、仮端栓を取り外し、上部プレナムスプリングを入れ、上部端栓を圧入して下部端栓溶接同様、ヘリウムガス雰囲気でTIG溶接する。

(3) 燃料体組立

① 燃料体組立

燃料体組立方法は、組立装置のベッド上に設置されている固定機構に下部タイププレートを固定する。この下部タイププレートに4本のスペーサタイロッドをねじ込み、これに12個のスペーサを取り付けて固定する。これをスケルトンと呼んでいる。

次に燃料要素を内層、中間層、外層の順に1本ずつ挿入する。途中、燃料要素相互間のギャップ検査を行い仕様を満足していることを確認する。燃料要素の挿入が終了した後に、燃料体の上部側の燃料要素端栓部にロッドスプリングを組込み、さらに上部タイププレートを取り付け、最後に燃料体上下の中間層燃料要素端栓のねじ部にロックナットを取り付け固定して完成する。

② 燃料体洗浄

燃料体の洗浄は、組立工程で付着した埃や油脂を除去する目的で行う。燃料体を洗浄筒に入れ洗浄液を循環させて洗浄を行う。

2.3 燃料製造上の特徴

「ふげん」用MOX燃料ペレットは、プルトニウムフィッサイル富化度により、低富化燃料ペレットと高富化燃料ペレットに分かれている。これらの燃料ペレットは形状が全く同じであるため、燃料ペレット製造工程ではその混入防止の観点から、富化度の異なる燃料ペレットを同一グループボックス内で同時に製造を行わないよう製造時期をずらすと

もに、富化度変更時にはグローブボックス内のクリーンアップ等を行うようにしている。しかし、グローブボックス内には各種燃料製造装置が設置されており完全なクリーンアップは難しく、異なる富化度の燃料ペレットが万一混入することも考えられる。このため、燃料要素加工後にガンマスキャン装置により確認を行っている。

燃料要素加工上の特徴としては、燃料要素端栓溶接部の固着汚染防止と内層、中間層および外層に分かれる燃料要素の識別方法が挙げられる。

燃料要素端栓溶接部の固着汚染は、被覆管への燃料ペレット充填時に被覆管の管口部にプルトニウム粉末が付着することにより起こるもので、管口部に口金（管口マスク）を付けることによりその防止を図っている。

また、燃料要素の識別方法としては、燃料要素の端栓形状を変えることにより行い、燃料体組み立て時の誤挿入を防止している。

2.4 原料粉末

燃料製造に使用した原料粉末は、プルトニウム酸化物粉末とウラン酸化物粉末である。プルトニウム酸化物粉末は、PuO₂単体粉末またはPuO₂-UO₂混合転換粉末であり、ウラン酸化物粉末については、天然UO₂粉末および回収UO₂粉末（使用済燃料の再処理により回収したウラン）である。また「ふげん」燃料製造ラインで発生するスクラップを回収処理し、乾式回収粉末として添加している。さらに、PuO₂-UO₂混合転換粉末の代替として初めてFBR系乾式回収粉末を「ふげん」第20回取替から用いた。

(1) プルトニウム酸化物粉末

PuO₂単体粉末はガス冷却炉の使用済燃料を海外において再処理し回収されたもので、初装荷燃料および第1、2次取替燃料の製造に使用した。

PuO₂-UO₂混合転換粉末は、軽水炉の使用済燃料を東海再処理工場で再処理した後、マイクロ波加熱直接脱硝法によって転換加工したものである。これら転換粉末のうち、第3次取替燃料から第9次取替燃料の製造には「マイクロ波加熱直接脱硝試験設備」で転換加工したものを、第10次取替燃料以降は「プルトニウム転換技術開発施設」で転換加工したものを使用した。プルトニウム転換工程概略フローを図6に示す。

(2) ウラン酸化物粉末

天然UO₂粉末は人形峠事業所で製錬されたイエローケーキおよび海外より購入された六フッ化ウランを国内の加工メーカによりUO₂粉末に転換加工

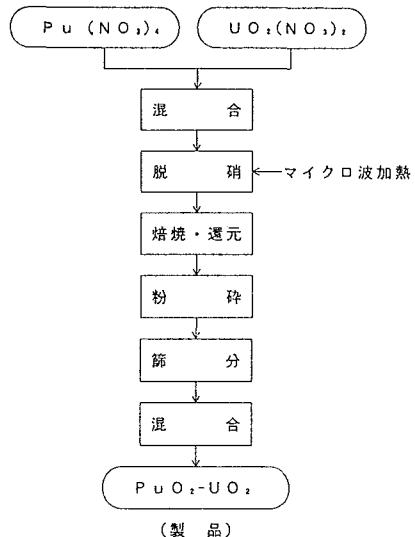


図6 プルトニウム転換工程概略フロー

したものを使用した。

回収UO₂粉末は、東海再処理工場で使用済燃料から回収したUO₂を硝酸ウラニルに溶解した後、マイクロ波加熱直接脱硝法でUO₂に転換加工したものである。この回収UO₂粉末は、上述の天然UO₂粉末に比べ粉末物性が異なるためその使用にあたっては、燃料ペレットの品質の観点から原料粉末への添加量を調整し第9次取替燃料に初めて使用した。第11次取替燃料以降も使用を継続している。回収UO₂粉末は0.9~1%程度のU濃縮度を有しているので、わずかではあるが原料プルトニウムを節約することができた。

(3) 乾式回収粉末

① ATR乾式回収粉末

上記原料粉末の他に製造工程から発生した燃料ペレットのスクラップを乾式回収し、スクラップ回収粉末として燃料製造にリサイクルした。乾式回収では、燃料ペレットのスクラップを粗砕機で砕き、焙焼還元炉で酸化還元を繰り返すことにより微粉末化を図った。しかし、原料ウラン粉末や原料プルトニウム粉末と比較すると乾式回収粉末はその物性値に大きな違いがあり、活性度の低い粉末である。このため、原料粉末にわずかずつ添加して使用する方法を採用した。

乾式回収粉末使用で最も影響を受けやすいのは燃料ペレットの密度である。対処策としては、粉末混合時のポールミル条件および成形時の圧力条件等を変えることが有効であり、これらをコントロールすることにより、所定の密度の燃料ペレットを製造した。この乾式回収粉末は、初装荷燃料以降のほとんどの燃料製造に使用しており、原料プルトニウムの

表2 製造に使用してきたプルトニウム・ウラン原料の多様性

— プルトニウム原料の種類 —

種類	製法	用途	備考
プルトニウム粉末	溶液状のプルトニウムを単体転換したもの	初装荷、1・2次取替に使用	海外から購入
混合酸化物粉末	溶液状のプルトニウムとウランをマイクロ波直接脱硝法で混合転換したもの	PuとUの割合が1:1, 10:1, 20:1を使用	動燃が独自に開発したもの

— ウラン原料の種類 —

種類	製法	用途	備考
天然ウラン粉末	UF ₆ をU ₃ O ₈ に転換し還元処理したもの	初装荷～20回取替に使用	活性な粉末であり不純物も少なく安定している
回収ウラン粉末	溶液状のウラニルをマイクロ波直接脱硝法で転換したもの	9次, 11次, 12次, 14次 19回取替に使用	ロット毎に ²³⁵ U率が変動する

— 乾式回収粉末の種類 —

種類	製法	用途	備考
ATR 乾式回収粉末	ペレットを機械的に碎き、酸化還元処理したもの	初装荷～20回取替に使用	不活性な粉末であるため添加量が増加すると密度が低下する
FBR 乾式回収粉末	同上	20回取替に使用	プルトニウム含有率が高いため粉化されにくい

節約に大きく寄与している。

② FBR乾式回収粉末

「常陽」ペレットは、原料プルトニウムの節約を図るためスクラップの回収処理を行い、乾式回収粉末として「ふげん」第20回取替燃料製造から初めて使用した。使用に当たり、プルトニウム富化度が高くなると粉末化されにくいため、塊状のものがペレット内に存在しPuスポットとなる問題が懸念された。「FBR」系乾式回収粉末を用いた「常陽」ペレット再利用試験については、3項で詳しく述べる。

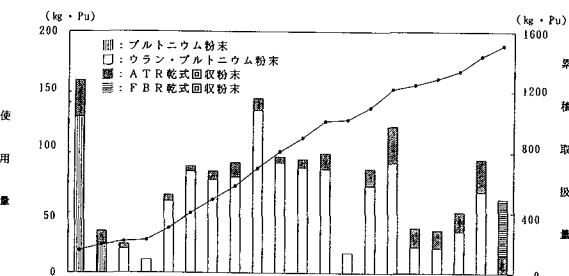


図7 初装荷から第20回取替までのプルトニウム使用量

このように「ふげん」燃料は、Pu原料、U原料として多様性をもつものを使用して製造を継続してきた。その主な特徴を表2に示す。

「ふげん」燃料製造でのプルトニウム原料の使用実績を図7に示す。

2.5 「ふげん」の核燃料サイクルの環

「ふげん」燃料製造のなかで特筆すべきことは、第12次(2)取替燃料製造で「ふげん」の使用済燃料から回収したプルトニウムを初めて使用したことである。昭和61年11月の86-2キャンペーンにおいて初のMOX燃料として「ふげん」燃料を34体、5.2トンを再処理し、回収したプルトニウムはプルトニウム転換技術開発施設へ移送し、「ふげん」の核燃料サイクルの環の完成に一翼を担うことができた。核燃料サイクルの概要を図8に示す。

2.6 品質保証および品質管理

燃料製造は十分な品質保証体制のもとで行い、これらの燃料体は「ふげん」で順調に照射され、その

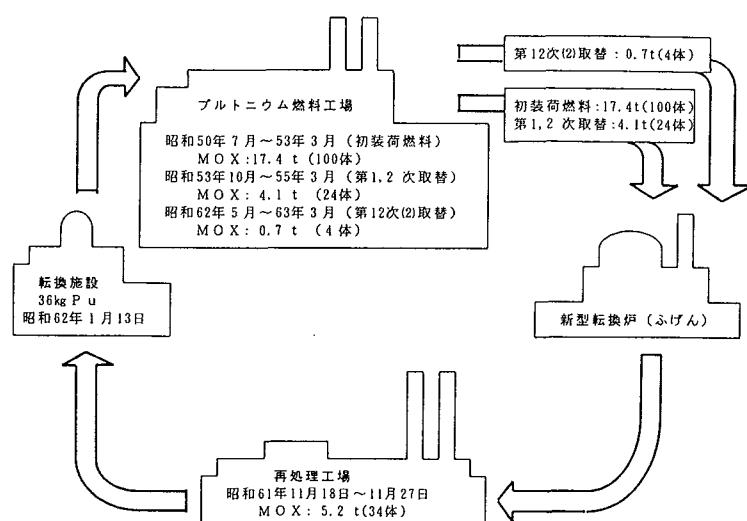


図8 核燃料サイクルの概要 (ATR)

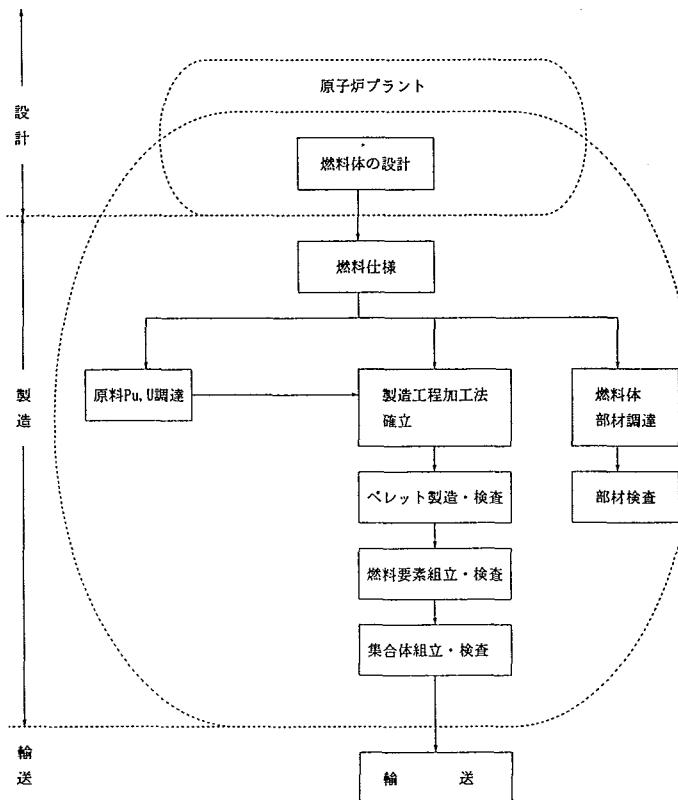


図9 品質保証業務範囲と責任の分担

健全性が実証されている。燃料製造における製品の品質保証は、品質保証計画およびこれに基づいて制定される品質保証文書類に従い行っている。品質保証計画書は、図9に示すように燃料の設計、核燃料物質や燃料部材の調達、燃料の製造、検査、燃料体の輸送等にかかる品質保証業務範囲と責任を明確にしている。

品質保証として、検査部門での品質確認は勿論、「品質を各工程でつくり込む」ことを主眼に各製造工程ごとに工程管理を行い、製品の信頼性を確保し製造を進めている。燃料製造に当たっては、検査部門と緊密な連絡を保ちながら検査情報を的確に保ち品質の維持、向上を図っている。図10に原料粉末から製品である燃料体にいたるまでの検査項目を示す。

3. 「常陽」ペレット再利用試験

3.1 概要

「常陽」スクラップを乾式回収した粉末を「ふげん」燃料用原料として使用する背景には再処理工場で回収されるPuは需要動向より優先的にFBR用に供給していく計画であるため、結果としてスクラップを有効に利用し「ふげん」燃料の安定供給を図らなければならないこと、そして「ふげん」用原料と

しての転換MOX粉末の代替となるものとして、FBR乾式回収粉末がPu濃度等で適当であったことがあった。乾式回収とは、硝酸でスクラップを溶かし、再びPuやUを得る湿式回収と異なり、スクラップペレットを破碎し塊状となったものを焙焼還元炉にて酸化還元反応を利用して粉末化する回収法である。乾式回収は溶液を使用しないため、湿式回収に比べ大バッチ処理が可能であるが酸化還元反応では「常陽」ペレットのようにPu酸化物の割合が多くなると粉末化されにくくなる。これらの特徴から「常陽」乾式回収粉末を原料として使用する際には、「ふげん」燃料と比べPu濃度が高いため粉末化されなかつた塊状のものが入るとPuスポットとなる問題が製造開始前から懸念されていた。PuスポットとはPuの集まった部分のことでPuスポットが大きくなると原子炉に装荷した際にペレットの局部的な発熱を引き起こす原因となる。このため今回「ふげん」第20回取替燃料の製造に先立ちPuスポットの問題について試験を実施したのでその結果を報告する。

3.2 試験方法と結果

従来使用してきた転換MOX粉末の代わりに「常陽」乾式回収粉末を用い、従来の工程と同じフロー

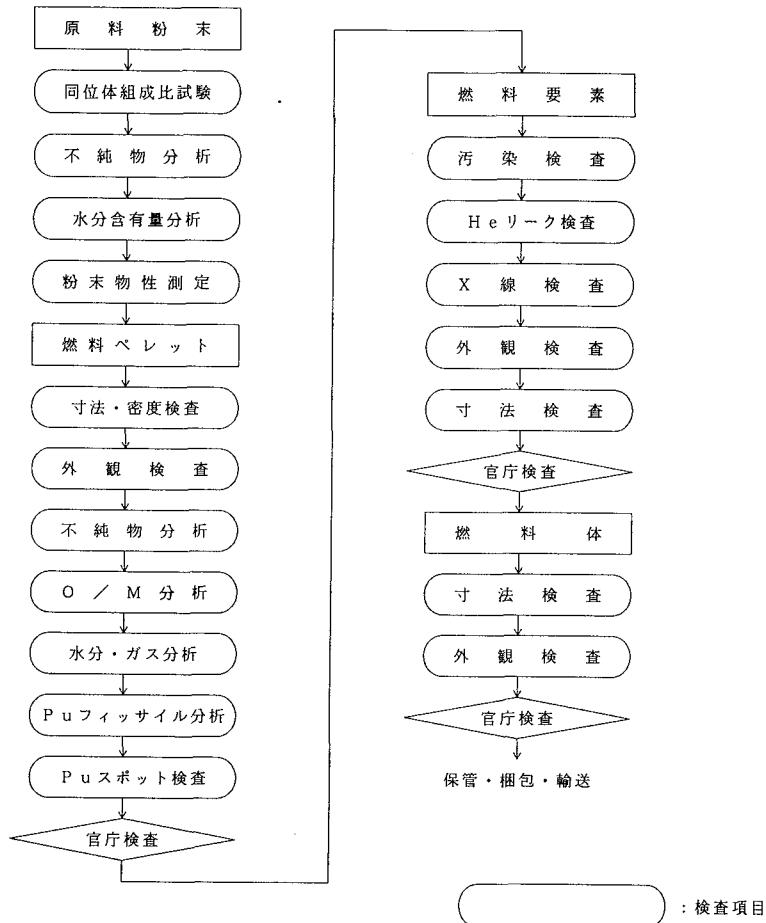


図10 「ふげん」 MOX燃料検査項目

でペレット製造を行いPuスポットの大きさを調べた。図11に試験製造フローを示す。原料には天然ウラン粉末、「常陽」乾式回収粉末、ATR乾式回収粉末の三種類の粉末を用い、これらの原料を所定のPu

フィッサイルとなるように秤量、混合し、ステアリン酸亜鉛を潤滑剤として添加し、成形加工によりペレットをつくった。これを予備焼結、本焼結により焼き固め、外周研削し、脱ガス処理を行い製品ペレットとした。Puスポットの測定は本焼結後にサンプルを採取した。

「ふげん」第20回取替燃料のPuスポット仕様値は $\phi 800\mu\text{m}$ (ただし、 $200\mu\text{m}$ を超えるものについては濃度換算法を用いる。) 以下である。表3からわかるように「常陽」乾式回収粉末を添加したペレットのPuスポットは第19回取替燃料と比べ最大値、平均値がともに大きく、濃度換算法を必要とするものがみられた。図12にPuスポット測定原理を、図13にペレット断面のPuスポット写真を示す。

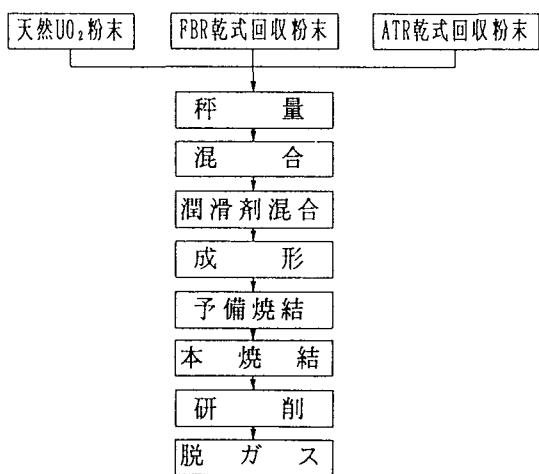


図11 試験製造フロー

表3 Puスポットの大きさ (μm)

	最大値	平均値
第19回取替燃料製造	153	96
FBR乾式回収粉末添加試験	265	143

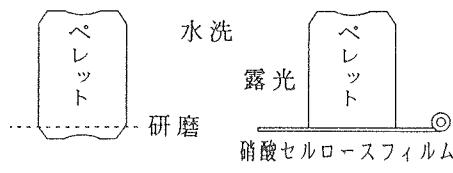


図12 Puスポット測定原理

す。写真から転換MOX粉末を用いたペレットと比べ「常陽」乾式回収粉末を用いたペレットではPuスポットが大きいことがわかる。

また、転換MOX粉末のPuスポットは一箇所に集中しているのに対して、「常陽」乾式回収粉末を用いたペレットにおいては破片状のものがみられることが特徴として挙げられる。

3.3 対策と再試験

以上の結果からPuスポットを200μm以下に小さくする検討をした。

- ① 現在の工程を変えずにボールミル粉碎混合条件を変更する
- ② 現在の工程に「常陽」乾式回収粉末の前処理工程を追加する

の2つの方法について再度試験を行った。

①の方法としてボールミル粉碎混合条件の検討を行った。ボールミルはボールミルポット、ボールで構成されている。図14にボールミルの構成を示す。「ふげん」燃料製造でのボールミル粉碎混合では、ボールにアルミナを用いておりボールの落下による粉碎効果を利用し乾式回収粉末を粉碎し、Puスポットを小さくすることを狙っている。ボールミル粉碎混合条件としては混合時間、回転速度等がある

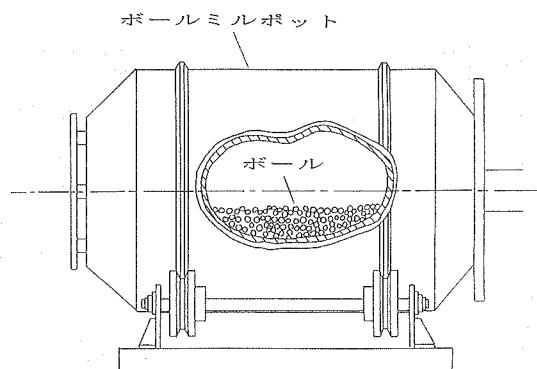


図14 ボールミル混合装置

が、現在行っている混合時間は、6時間でありそれ以上混合時間を増やすと作業時間への影響が大きいことから回転速度についてパラメータをふり試験をした。

回転速度はポット内に装荷した粉末がポット内面と同じ速度で回転が始まる臨界速度の割合で表わし、これまで使用してきた70%を基準として60、80%の計3点を採った。図15に示したように、Puスポットの大きさは臨界速度の70%が最も小さくなり、かつ焼結後の密度については仕様値の95±2%TDに対し臨界速度の70、80%が良好との結果になっている。

しかし、表3に示したように臨界速度の70%で粉碎しても、使用粉末の物性によっては大きいPuス

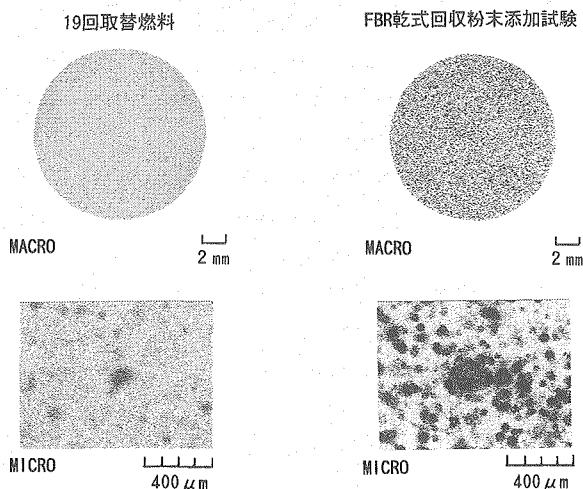


図13 Puスポット写真

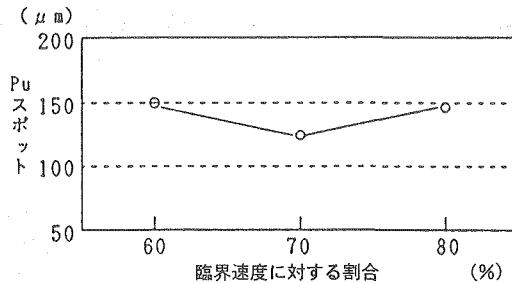
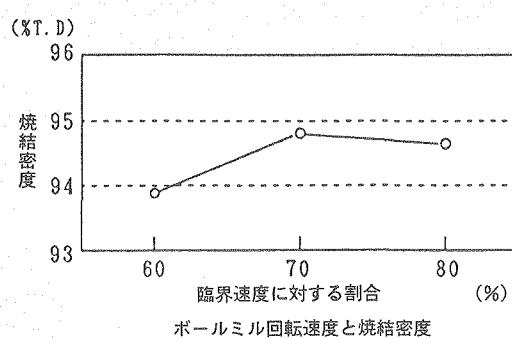


図15 ボールミル回転速度とPuスポット径

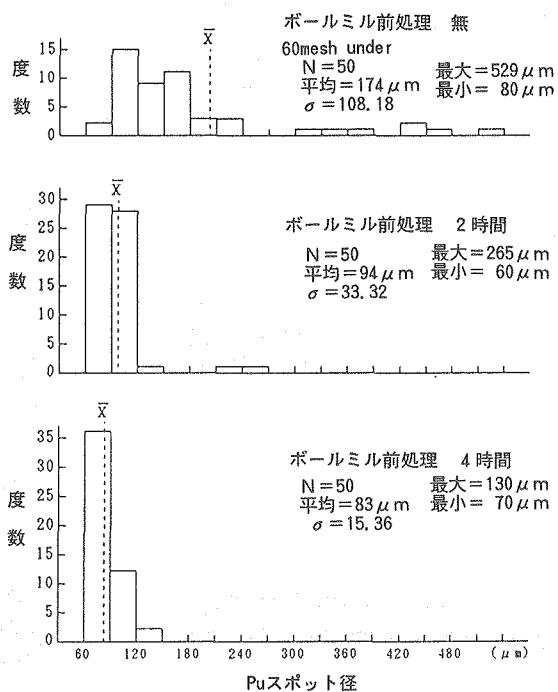


図16 粉碎条件とPuスポット径

スポットが発生することもある。以上のことからボールミル粉碎混合条件によりPuスポットを小さくすることは困難であるとの結果が得られた。

②「常陽」乾式回収粉末を前処理し、Puスポットを小さくする方策としては、粉末の微粉化を行う工程を新たに設け、小型高性能ボールミルを使用し、粉碎効果を高めることにした。

試験はボールミル処理2時間と4時間、それに比較のためにボールミル処理をせずに60メッシュのふるいを通したのみの粉末の計三種類の「常陽」乾式回収粉末を用いてペレットをつくりPuスポットの大きさを調べた。図16にそれぞれのPuスポットの大きさの分布を示す。

図16より60メッシュ以下の粉末を使用したときの

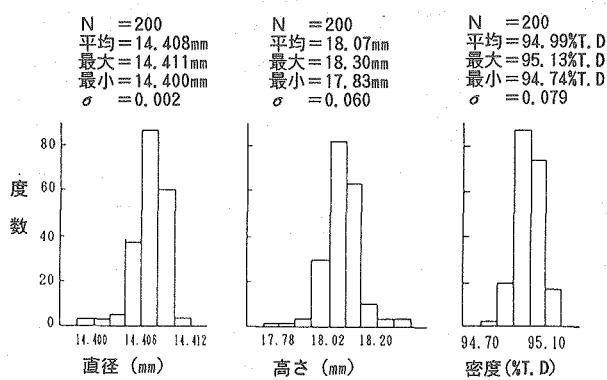


図17 寸法・密度測定結果

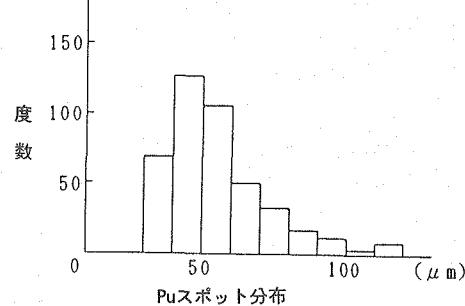


図18 Puスポット分布

Puスポットが最大で529μm、平均174μmあったものが、小型高性能ボールミル粉碎、2時間により最大265μm、平均で94μm、4時間により最大130μm、平均で83μmとなり、小型高性能ボールミルによる粉碎効果があることがわかった。

以上の結果から200μmを超えるPuスポットの対策として「常陽」乾式回収粉末は、前処理として小型高性能ボールミルによる粉碎処理を以下の条件で行って使用することとした。

条件

粉碎時間：4時間

回転速度：臨界速度の70%

3.4 先行試験項目

「ふげん」第20回取替燃料製造開始前に品質保証書に基づき先行試験を実施した。試験は、

- ① 寸法・密度測定
- ② Puスポット測定
- ③ 再焼結試験 について2ロットで行った。

3.5 先行試験結果と解析

① ロット1の寸法・密度測定結果を図17に示す。

外径、高さ、密度いずれも正規分布をしており、仕様を十分満足している。ロット2についても同様の結果を得ている。

② Puスポット測定結果を図18に示す。このヒストグラムはペレット1断面中のPuスポットの分布を表している。Puスポットは最大110μmであり、FBR乾式回収粉末については、小型高性能ボールミルで前処理として4時間粉碎することによりPuスポットを200μm以下に抑えることができた。

③ 再焼結試験結果を図19に示す。終結後のペレットを1700°Cで再焼結し、6時間後、12時間後、24時間後のペレット密度を測定した。密度は再焼結

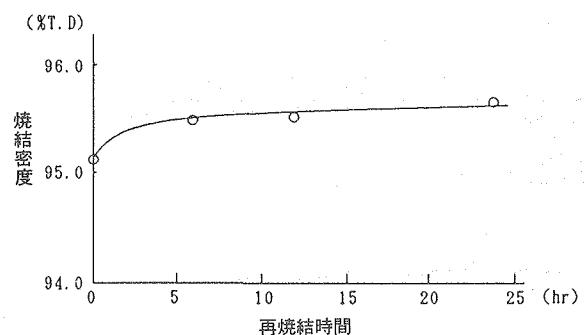


図19 再焼結試験結果

6時間以降あまり変化がみられず安定しており、問題はないと考えられる。

4. まとめ

試験、再試験を実施後本番製造開始前の先行試験を実施し、合格の判定を得てから「ふげん」第20回取替燃料ペレット（27体分）の製造を平成4年4月に開始し、高富化燃料76ロット・低富化燃料100ロット、製品ペレットとしてあわせて約16万個（約5ton MOX）の製造を平成5年3月に終了した。製造収率も約95%となり、今回の「常陽」乾式回収粉末を原料として、有効に利用できたことが確認さ

れたことから、回収品の本格利用が更に前進したといえる。今後の「ふげん」燃料製造に際しては、原料についてはFBR系乾式回収粉末を有効に利用していきたいと考えている。今後の課題として、現在使用しているFBR系乾式回収粉末は、「常陽」1～4次取替燃料製造に伴って発生したスクラップを乾式回収したものであり、含まれるPuの分離日は転換MOX粉末に比べ数年前となっている。Puは分離日以降時間の経過とともに²⁴¹Puが²⁴¹Amに変わるために、燃焼度等が同一であっても分離日の早かったFBR乾式回収粉末の方がAm含有量が多いことからγ線が増加することが予想され、その放射線管理上、配慮が必要である。また、今後使用していくFBR系スクラップは少量多品種のものが多いことから先行試験の頻度が多くなると予想される。先行試験は製造スケジュール上大きな影響を与えるため、ライン内でのスクラップの一時保管庫の設置や少量多品種スクラップの拡大均一化混合が必要となる。さらに「ふげん」燃料製造ラインは初装荷燃料製造開始後約20年を経過しており設備の老朽化が激しくなっているため設備の診断を含めた老朽化対策、設備更新を図っていく必要がある。今後これらの課題を解決し「ふげん」燃料の安定供給を図っていきたいと考えている。



クロムモリブデン鋼のクリープ疲労評価法に関する研究

青砥 紀身 和田 雄作

大洗工学センター機器構造開発部

資料番号：88-5

Study on Creep-Fatigue Evaluation of Chrome-Molybdenum Steel

Kazumi Aoto Yusaku Wada
(Systems and Components Division, O-arai Engineering Center)

巨視的な材料特性の違うクロムモリブデン鋼のクリープ疲労評価にSUS304を対象に構築された新概念延性消耗則に基づいた時間消費型評価法が有効であることを力学的評価および微視的観察結果に基づいて示した。特に、高温特性の優れたMod. 9 Cr-1Mo (NT)鋼はこれまで破損機構がステンレス鋼と異なる等の議論が行われてきたが、長時間クリープ疲労試験後の組織観察により粒界上にクリープキャビティが発生していることを示し、実機負荷レベルではステンレス鋼同様クリープ損傷支配となることを明らかにした。また、これまで多くの議論がなされてきたクロモリ鋼の圧縮保持による寿命低下の主因は從来検討されてきた平均応力効果や酸化物の楔効果ではなく、圧縮位置における酸化被膜の形成にあることを示し、そのうえで、その寿命低下は飽和することを明らかにした。

1. はじめに

高速炉の設計を目的としたクリープ疲労評価法の開発は、主要構造材料という観点からSUS304や高速炉構造用316といったステンレス鋼を対象に行ってきた。これまでに、新概念延性消耗則を背景とした時間消費型線形則にしたがったクリープ疲労評価法（時間消費型クリープ疲労評価法）がこれらの鋼種に有効であることを明らかにした¹⁾。一方、蒸気発生器や2次系配管等への適用が検討されるクロムモリブデン鋼（クロモリ鋼）のクリープ疲労評価については、図1に示すようにステンレス鋼とは違い、繰返し負荷に対して次第に軟化する傾向を呈する等特性の違いもあり、あらためてその損傷機構を明らかにし、適切な評価法を開発する必要がある。ここでは、主に焼ならし焼もどしMod. 9 Cr-1Mo(以後Mod. 9 Cr-1Mo (NT)鋼を対象にそのクリープ損傷機構を明らかにし、動燃事業団の提案する時間消費型線形則に沿ったクリープ疲労評価法の有効性を示す。また、クロモリ鋼で顕著な圧縮側ひずみ保持による寿命低下の機構についても議論する。

2. クリープ疲労評価法

2.1. 新概念延性消耗則の適用性

新概念延性消耗則とは、クリープキャビティの発生・成長が2次クリープひずみに支配され、材料の固有の延性がクリープ一様伸びとして導かれる理論である¹⁾。これは、キャビティの成長がクリープひ

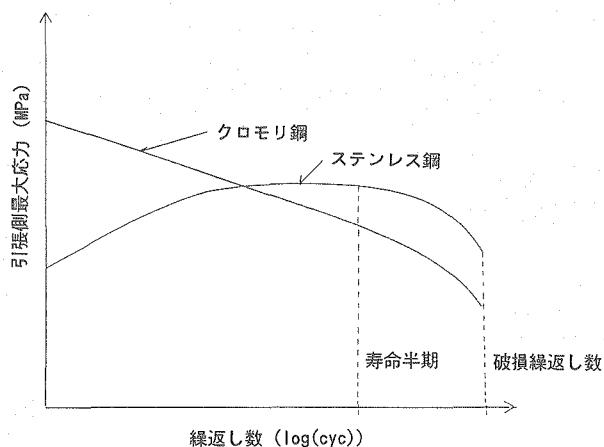


図1 材料の繰返し負荷に対する特性

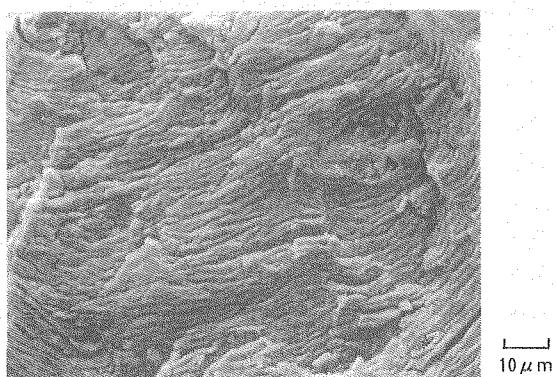
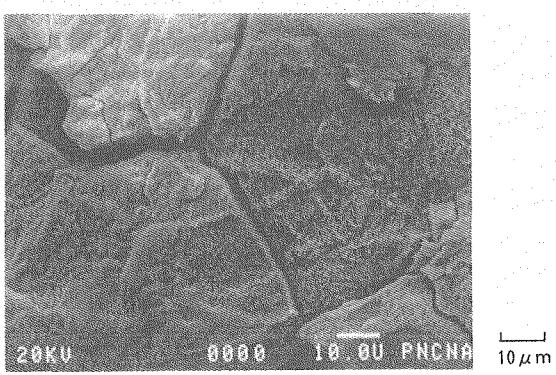
(a) $\Delta \epsilon : 0.5\%$, $\dot{\epsilon} : 0.1\%/sec$, $t_H : 6$ 分(b) $\Delta \epsilon : 0.5\%$, $\dot{\epsilon} : 0.1\%/sec$, $t_H : 60$ 分

写真1 クリープ疲労試験後の破面観察結果

ずみにより記述でき、延性限界を真破断延性と考える古典的な延性消耗則とは異なる。これらの延性消耗を基盤とするクリープ疲労評価法の体系については参考文献¹⁾に詳述した。

新概念延性消耗則は、実機負荷条件のようにクリープ損傷が支配的である領域では、クリープ疲労破損はキャビティの発生、成長およびその空間的偏在化により生じるという観察結果に基づいている²⁾。一方、今回対象としたMod. 9 Cr-1Mo (NT) 鋼を含むクロモリ鋼では、粒界の特定やクリープキャビティの観察が困難であり、これまでのところ、特にクリープ強度特性に優れるMod. 9 Cr-1Mo (NT) 鋼に関する報告例はほとんど見当たらない。ここでは、クリープ疲労試験後の破面観察や組織観察から同鋼のクリープ疲労破損機構についての知見を整理し、新概念延性消耗則の適用性について議論する。

写真1にクリープ疲労試験後の破面観察結果の例を示す。写真1(a)はひずみ範囲0.5%、ひずみ速度0.1%/sec、引張ひずみ保持時間6分の試験後の破

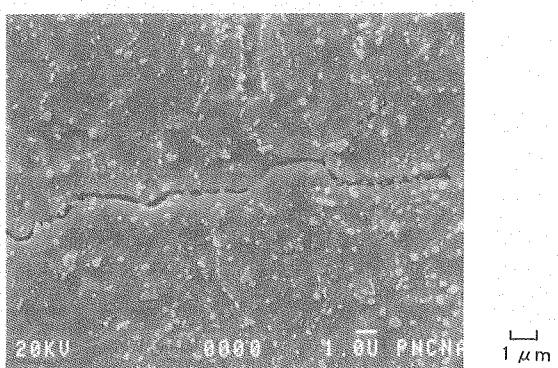


写真2 Mod. 9 Cr-1Mo (NT) 鋼クリープ疲労試験後のキャビティ発生の観察例

面である。破面は、試験中のき裂上下の衝突の影響を受けているが、ストライエーションが全体的に観察されるほぼ完全な疲労破面である。他方、ひずみ範囲0.5%、ひずみ速度0.1%/sec、引張ひずみ保持時間60分の試験後破面(写真1(b))では破壊形態は混合破面となっている。

写真2にひずみ範囲0.5%、ひずみ速度0.1%/sec、引張側ひずみ保持時間60分の試験後の試験片の走査型電子顕微鏡による観察結果(以下SEM観察)を示す。エッチングには塩酸ピクラル液(ピクリン酸1g、エチルアルコール50cc、塩酸2.5cc)を用いた。試験時間約1年のこの試験片内部には例示したようなクリープキャビティが複数認められた。これらのキャビティは、その形状や連結した様子から、旧オーステナイト粒界あるいは粒界三重点において発達したものと考えられたが、発生位置を確認するために、JIS G0551にしたがって結晶粒界を現出し、SEM観察を行った。観察結果の例を写真3に示した。粒界現出の過程は、熱処理1056°C × 10分後水冷し、耐水研磨紙#1000で研磨後、1μmアルミ

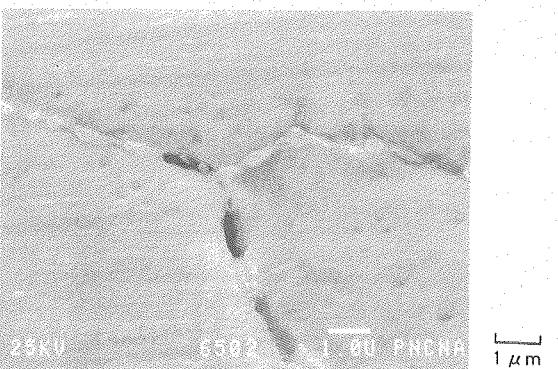


写真3 Mod. 9 Cr-1Mo (NT) 鋼クリープ疲労試験後の粒界上に観察されたキャビティの例

ナによりバフ研磨を行い、その後塩酸ピクリル酸(ピクリン酸2g、エチルアルコール50cc、塩酸2.5cc)で10秒間保持した。エッティングは非常にマイルドな条件で行っていることから粒界上の炭化物等の溶解やピットの現出は防げているものと思われる。これらの観察結果から、観察されたキャビティはいずれも粒界上に存在していることが分かる。

以上の観察結果は、さらに低ひずみ領域で保持時間が長い実機負荷条件下では、Mod.9Cr-1Mo(NT)鋼のクリープ疲労損傷がクリープキャビティの発生、成長によって支配されることを示唆しており、巨視的な材料挙動の違いにも係わらずステンレス鋼を対象に構築した新概念延性消耗則が同鋼に関しても有効であることを示している。

2.2. 評価手順における課題

ステンレス鋼を対象に体系化された時間消費型評価法³⁾をクロモリ鋼に適用するためには、2つの主要な課題に対する検討が必要である。以下では検討の内容を概説する。

(1) 代表繰返しサイクルの選択

—緩和開始応力の設定—

図2はMod.9Cr-1Mo(NT)鋼の引張試験から得られた静的応力ひずみ関係(第1サイクルにおける応力ひずみ関係に相当)と動的応力ひずみ関係(保

持のない低サイクル疲労の寿命半期におけるデータに基づくもので十分な繰返し軟化をうけている)の比較である。同図には参考のためクリープ疲労試験の第1サイクルおよび寿命半期における緩和開始応力を示した。この図から、実機負荷条件である0.3%以下(ひずみ振幅で0.15%以下)では、繰返し軟化の効果(静的応力ひずみ関係と動的応力ひずみ関係の差)は非常に少なく、保持の挿入による軟化分を考慮すればむしろ保守的な値となることがわかる。すなわち、同鋼において代表サイクルを寿命半期と設定し、緩和開始応力を動的応力ひずみ関係により求める手法は実機設計レベルのひずみ領域では十分な保守性を保つものと判断できる。

(2) ひずみ保持中の応力緩和挙動の記述

時間消費型評価では、ひずみ保持中の応力緩和挙動の記述が問題となるが、提案手法ではクリープひずみ式と古典的なひずみ硬化則により予測を行っている^{3),4)}。これに関して、保持直前の塑性ひずみ速度の効果等により緩和初期に急激な応力低下が生じ、比較的短時間保持試験では、見掛け上緩和応力がサイクルによらず一定となる現象が報告されている^{5),6)}。そこで、実機負荷条件である長時間保持側ではその影響が無視でき、応力緩和挙動は古典的なひずみ硬化則で十分記述できることを繰返し負荷後の長時間緩和試験により確認した⁷⁾。図3に解析結果を示した。図中実線が解析結果であるが、初期の急激な緩和の影響をわずかに受けてはいるが100時間の応力緩和挙動を記述するには、問題にはならない。また、緩和開始応力がほぼ同じであれば単調な応力緩和曲線(●)と繰返し負荷後の挙動(○)が長時間側ではほぼ一致することがわかる。

2.3. 評価結果

図4に時間消費型評価法による解析結果を例示す

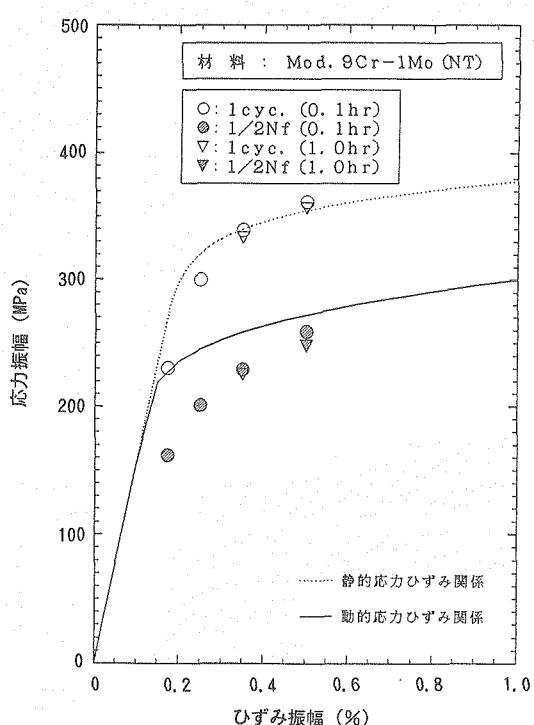


図2. Mod.9Cr-1Mo(NT)鋼の静的応力ひずみ関係と動的応力ひずみ関係の比較

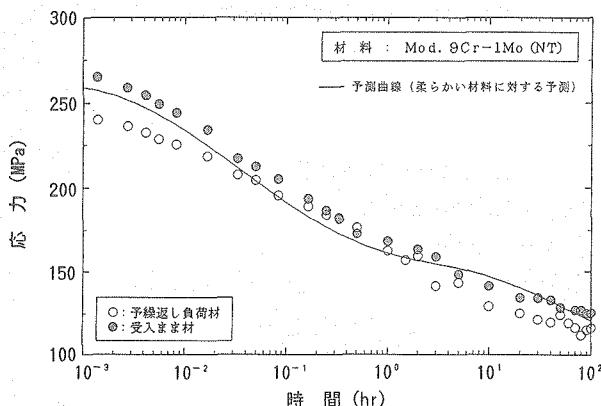
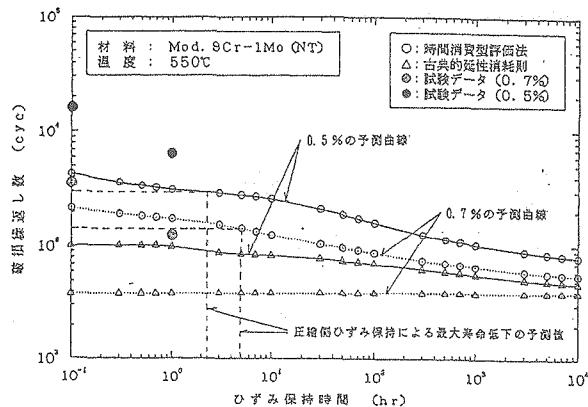
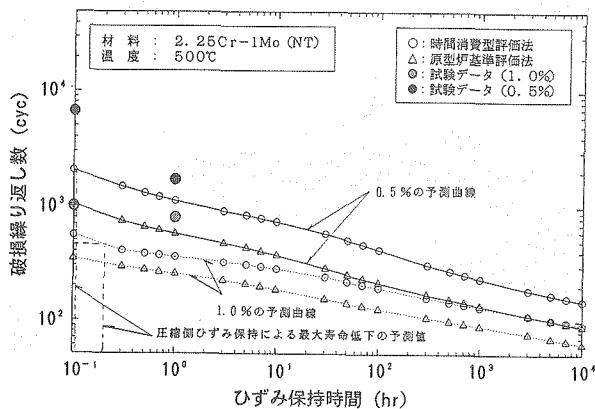


図3. Mod.9Cr-1Mo(NT)鋼の繰返し軟化後の応力緩和挙動



(a)Mod. 9Cr-1Mo (NT)鋼に関する解析結果



(b)2.25Cr-1Mo (NT)鋼に関する解析結果

る。図4(a)はMod. 9 Cr-1Mo (NT)鋼に関する評価結果で、参考のため材料試験の結果ならびに古典的な延性消費則^{8),9)}による評価結果を合わせて示した。解析に必要な材料特性は参考文献⁷⁾に記載した。この図から、新概念に基づく時間消費型評価法が、低ひずみ範囲短時間保持側では幾分保守側の予測となるが、Mod. 9 Cr-1Mo (NT) 鋼についても全体として妥当な評価を与えることがわかる。一方、古典的な延性消費概念による予測値は、すべての試験結果に対して過度に保守側となることが窺える。両者の差は、延性消費で表わされるクリープ損傷を2次クリープのみの支配とするかクリープひずみ支配と考えるかに因っている¹⁾。図4(b)は、原型炉の蒸気発生器構造材料として使用された2.25Cr-1Mo (NT)鋼に関する評価結果である。同図には、試験データならびに原型炉設計評価時に適用されたクリープ疲労評価法の予測結果を比較のために示した。両者の予測値の差は緩和開始応力の設定の差であるが、今回提案の評価法により未だ保守的ながら全体として合理化できることがわかる。

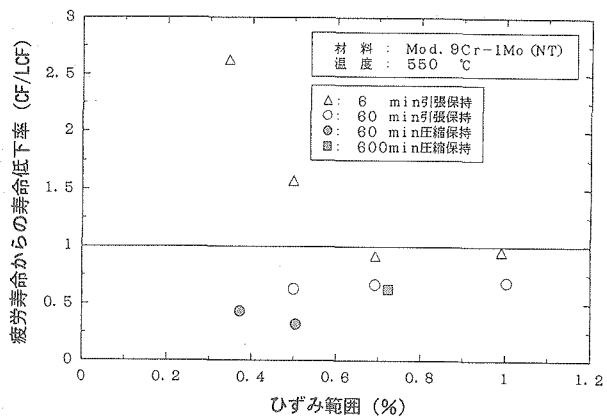


図5 Mod. 9 Cr-1Mo (NT)鋼におけるひずみ保持挿入による低サイクル疲労寿命の低下割合

3. 圧縮保持による低サイクル疲労寿命の低下

3.1. これまでの研究

クロモリ鋼における圧縮側ひずみ保持による低サイクル疲労寿命の低下機構については、これまでに幾つかの報告が行われている^{9)~11)}。動燃事業団における材料試験においても、圧縮側ひずみ保持挿入による寿命の低下が観察されている(図5参照)。この問題は、現行設計基準では¹²⁾引張側ひずみ保持と圧縮側ひずみ保持を厳密に区分せず、クリープ損傷を含む保持時間効果を保守的に包絡する評価を行うこととしていることからも十分検討しなくてはならない。高速炉構造材料で対象となる素材のうち、2.25Cr-1Mo (NT)鋼については、表面の酸化被膜のき裂発生に対する鋭敏化が寿命低下の主因であるとして説明され¹³⁾、実機負荷条件のようにクリープ損傷が主体となる領域では、その効果は軽微であると判断されている¹⁴⁾。Mod. 9 Cr-1Mo (NT)鋼の圧縮保持の効果についての初期の研究はBrinkman⁹⁾によってまとめられている。それによればMod. 9 Cr-1Mo (NT)鋼は酸化の耐性に優れることから同系鋼である2.25Cr-1Mo (NT)鋼と異なり、酸化被膜の成長によるき裂発生の鋭敏化に起因する寿命低下ではなく、圧縮保持によって引張側に生じる平均応力効果による寿命低下が起きる。この考えは複数の研究者によって支持されており、松原らは1サイクル当りのひずみエネルギーの違いに着目した評価を行っている¹⁰⁾。表1に動燃事業団で実施した圧縮保持試験の条件と平均応力および低サイクル疲労寿命からの低減率を示した。この表からは、平均応力の発生量、試験ひずみ範囲、保持時間、ならびに疲労寿命の低減率にはいずれも明瞭な相関は見られない。これは、松原の平均応力による整理結果¹⁵⁾からも明らかである。Mod. 9 Cr-1Mo (NT)鋼の圧縮側ひずみ保持による寿命低下を平均応力の効果に原因を求める

表 I 圧縮保持試験における平均応力と寿命低下率

ひずみ範囲 (%)	ひずみ速度 (%/sec)	圧縮保持時間 (hr)	平均応力 (MPa)	疲労寿命からの低減率
0.724	0.002	10.0	24.5	0.624
0.505	0.1	1.0	23.2	0.335
0.373	0.002	1.0	25.0	0.432

ることはこれらの結果を見るかぎり困難である。

一方、圧縮保持による寿命低下を楔効果を含む酸化被膜によるとする主張もある¹¹⁾。酸化被膜によるき裂発生の鋭敏化は、当初 Manning らが高温のオーステナイト系鋼の酸化による寿命低下を評価したモデル¹⁷⁾を Challenger らが 2.25Cr-1Mo の酸化による寿命低下の解析に適用して良好な結果を得た¹³⁾ことを背景としている。しかし、Mod. 9 Cr-1Mo (NT) 鋼に関して、緒方らは酸化被膜によるき裂発生の促進効果だけでは寿命低下を説明できないものとして真空中と大気中のき裂進展速さの違いやき裂進展に関する酸化物の楔効果に言及しているが明確な結論を得ていない¹¹⁾。

3.2. 組織観察結果による知見

写真 4 にひずみ範囲 0.72%、ひずみ速度 0.002%/sec、圧縮側ひずみ保持時間 600 分の破断面を示す。

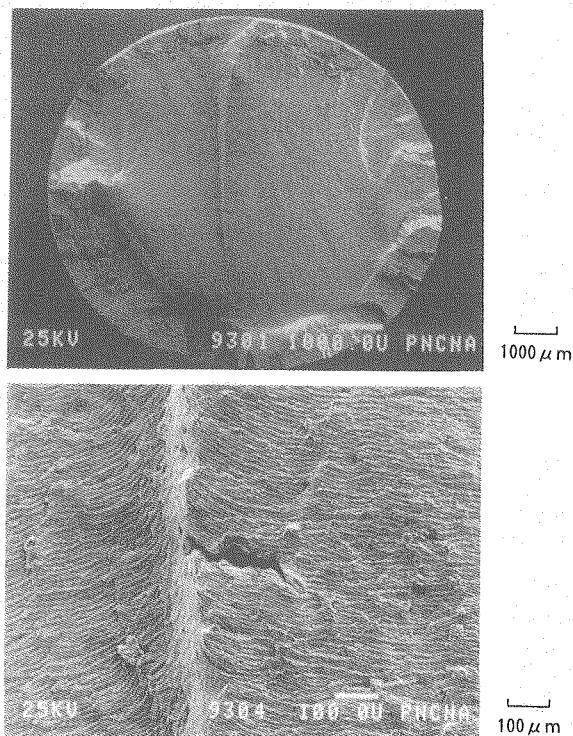
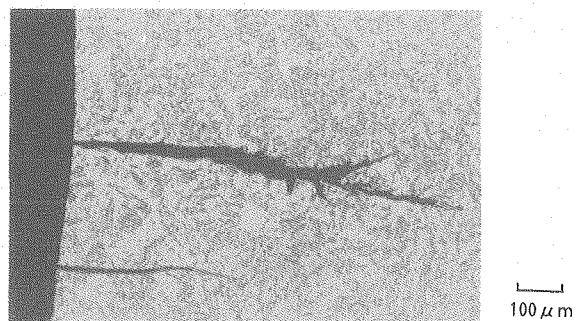
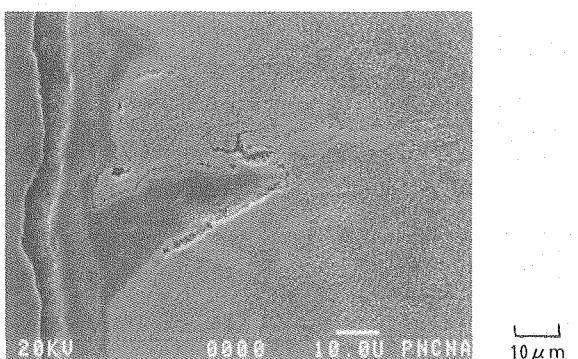


写真 4 $\Delta \epsilon = 0.72\%$ 、 $\epsilon = 0.002\%/\text{sec}$ 、圧縮側ひずみ保持時間 600 分の破面



(a) 圧縮側ひずみ保持の場合
($\Delta \epsilon = 0.72\%$ 、 $\epsilon = 0.002\%/\text{sec}$ 、 $t_h = 600\text{分}$)



(b) 引張側ひずみ保持の場合
($\Delta \epsilon = 0.5\%$ 、 $\epsilon = 0.1\%/\text{sec}$ 、 $t_h = 60\text{分}$)

写真 5 ひずみ保持を伴う低サイクル疲労試験片の側部におけるき裂の観察例

た。この観察結果から試験片表面から無数のき裂が発生した後、粒内を疲労き裂が伝播していく様子が窺える。これは、写真 1(b)に示した比較的低ひずみにおける引張側保持の破面とは異なるものである。また、写真 5(a)に試験片の側部から進展しているサブき裂の典型的な例を示した。比較のために写真 5(b)にひずみ範囲 0.5%、ひずみ速度 0.1%/sec、引張側ひずみ保持時間 60 分の試験片に発生したサブき裂の様子を示した。両者の比較から次のような事実がわかる。

- (1) ひずみ範囲等の条件の違いはあるが、引張保持ではき裂長さは高々数十 μm であるのに対して、圧縮保持では 0.5mm 程度に達するサブき裂が観察される。
- (2) 引張保持におけるき裂先端はすべて鈍化しているが圧縮保持におけるき裂先端は鋭利なままである。
- (3) 引張保持におけるき裂はその内部が酸化物によって満たされていることが多いが、圧縮保持におけるき裂は先端が薄い酸化被膜によって覆われている以外は空洞となっている場合が多い。
- (4) 圧縮保持時間が長い方が試験片表面に残る酸化

被膜の厚さが薄く、保持時間が長い方が酸化被膜の蓄積が大きい引張保持の場合とは反対の様相を呈する。

また、酸化被膜はひずみ変動過程／保持過程に関わりなく発生成長することは参考文献(13)、(15)によつて示されている。

3.3. き裂発生・成長に及ぼす酸化被膜の効果

前節の観察結果等を踏まえ、酸化被膜の形成がクロモリ鋼の低サイクル疲労寿命の低下に及ぼす効果を考察する。

(1) き裂発生・進展下限界に対する効果

酸化被膜の形成により、き裂発生の鋭敏化が起きることや被膜によりき裂成長下限界が低下することは複数の研究者によって報告されている^{15),17)}。しかし、これらの効果は、基本的に酸化被膜の形成があれば、保持の有無や位置にほとんど関係しないことから、真空中と高温大気中といった環境の差による寿命低下の主因であっても、同じ大気中における圧縮側ひずみ保持の寿命低下の原因とはなりえない。また、緒方らの指摘にあるようにき裂発生寿命が低サイクル疲労寿命の高々10分の1程度¹¹⁾であるとすれば、さらにその効果は小さくなり、これまで2.25Cr-1Mo (NT)鋼を対象に議論されてきた評価についても再度検討を加える必要がある。

(2) き裂進展挙動に及ぼす効果

酸化被膜が形成された表面におけるき裂進展挙動は一般的に2つに区分される^{17),18)}。1つは比較的薄い層状を呈する酸化被膜が対象であって、き裂進展下限界以上の応力が加えられるとき裂先端の滑り変形に対する抑止ができず、き裂は進展し続けるという機構である。他の1つは、形成された酸化被膜に加えられた初期の応力がき裂進展下限界以下である等の原因により、厚い層を形成した場合で、このとき裂先端の滑り変形は被膜により抵抗を受けることになる。き裂先端の滑り変形が抑えられるとき裂の成長は鈍り、酸化被膜は成長を続けることになり、最終的にはき裂が酸化層によって埋まってしまうことになる。

3.4. ひずみ保持位置による酸化被膜の効果

以上の知見を踏まえて、ひずみ保持の挿入位置による酸化被膜の効果を議論する。

(1) 圧縮側ひずみ保持 (図6(a)参照)

圧縮保持過程ではき裂は閉口することから外部からの酸素の供給は抑制され、酸化層の成長は先に形成された鉄元素の富んだ酸化物を主体とした酸化被膜からの酸素の拡散により生じる。酸化被膜の成長速度が抑えられるため比較的薄い酸化被膜がき裂先

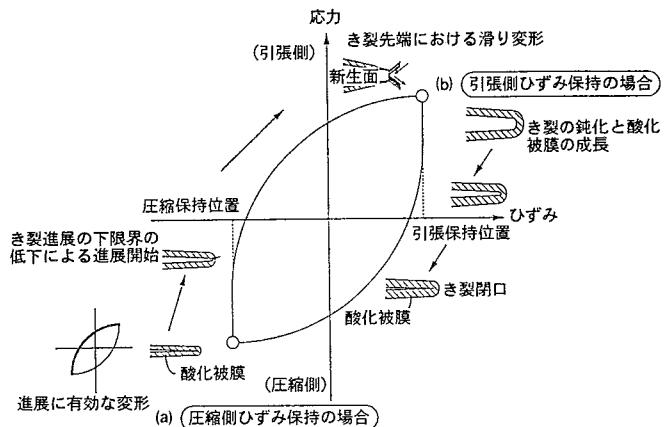


図6 き裂進展に及ぼす酸化被膜の形成の効果

端の新生面に形成される。形成された新たな酸化被膜は、き裂進展下限界の低下により引張変動過程中の早い段階でき裂が生じる。さらに、その後の引張変動過程のひずみ変化がき裂進展に寄与することになり、き裂進展の支配因子であるき裂先端の変形の大きさはほぼ変動ひずみ範囲に等しいことになる。圧縮側ひずみ保持による寿命低下は、き裂進展速度が保持のない場合に比較してき裂先端部の変形がほぼ倍になることから生じる加速によって引き起こされる。これは、圧縮側ひずみ保持の試験後の破面が全て粒内破壊であり、ストライエーションが見られることからも裏付けられる。

(2) 引張側ひずみ保持 (図6(b)参照)

引張保持過程では、外部からの酸素の供給が盛んであり、酸化被膜の成長は促進される。形成された酸化被膜には閉口する変形が加えられた後、開口に転じるが酸化被膜が厚いためき裂先端の滑り変形は抑制されさらに酸化層の成長が生じる。き裂内部に発達した酸化被膜により閉口が早く生じ開口点は押し上げられる。このため、試験片表面からのき裂発生の促進は圧縮保持の場合と同じであるが、き裂先端の酸化被膜に加わる変形は圧縮保持に比較して小さい。これにより、引張変動過程でのき裂進展は次第に抑制されることになり、き裂は停留しき裂内部は酸化物で満たされることになる。結果として表面からの無数の微小き裂の発生という酸化雰囲気の影響は免れないが、主たる損傷は内部のクリープ損傷となる。

(3) 圧縮側ひずみ保持における寿命低下の評価

一般に、疲労き裂進展速度は有効応力拡大係数で整理できる。圧縮側ひずみ保持において形成される

酸化被膜に加わる変形を保持を伴う場合の変動ひずみ範囲と同等程度とする。き裂進展速度が母相と酸化被膜とで変わらないとすれば、進展速度は応力拡大係数の割増分だけ加速されるため、Jamesらの結果¹⁹⁾から、2.5~3.5倍程度と算出できる。以上の議論を前提に、疲労のき裂発生が破損寿命の約10分の1程度とすると圧縮保持による寿命低下は同ひずみ(応力)条件の低サイクル疲労寿命の最大3分の1程度の減少に止まるという結果を得る。酸化被膜におけるき裂進展速度は母相よりも速いと考えられるため、1サイクル当たりのき裂進展量(約0.01~0.1μm)に相当する酸化被膜が形成される圧縮保持時間(550°C下で約1時間)以上では、ひずみ範囲や保持時間に依存せず基本的に寿命低下率は変わらないことになる。これは、本試験結果(図4や表1参照)や松原の整理結果¹⁶⁾にほぼ一致する。

図4中に今回提示した破損機構に基づき算出した各々の鋼種における圧縮側ひずみ保持による最大低下寿命の予測値を点線で示した。これによれば、クリープ強度に劣る2.25Cr-1Mo(NT)では、ほとんどの条件で引張側ひずみ保持による寿命低下が支配的となる。一方、高温強度に優れるMod. 9 Cr-1Mo(NT)でも数十時間保持以降はクリープ損傷支配の寿命低下となることがわかる。すなわち、両鋼とも低ひずみ長保持時間となる実機負荷条件下では、寿命低下は引張保持時のクリープ効果が酸化効果に優ると考えられるため、設計評価上の考慮は従来通り引張側保持を基本にして良いものと判断できる。

4. おわりに

- (1) 新概念延性消耗則に基づく時間消費型評価法はMod. 9 Cr-1Mo(NT)鋼等クロムモリブデン鋼のクリープ疲労評価に有効であり、妥当な寿命予測精度を示す。
- (2) 引張側ひずみ保持クリープ疲労試験後の微視的観察結果から以下の知見を得た。
 - ① Mod. 9 Cr-1Mo(NT)鋼の引張側ひずみ保持クリープ疲労破損は、ひずみ範囲1.0%、保持時間0.1時間のような高ひずみ短保持時間条件下では粒内破壊であるが、ひずみ範囲0.5%、保持時間1.0時間以上といった低ひずみ長保持時間条件となるに従い次第に粒界破壊の様相を呈する。
 - ② ひずみ範囲0.5%以下、保持時間1.0時間以上の低ひずみ範囲長時間のクリープ疲労負荷条件下では、Mod. 9 Cr-1Mo(NT)鋼の粒界上にクリープキャビティが発生・成長する。
 - ③ この破損にいたる機構は、オーステナイト系鋼と同様であり、これは、新概念評価法が同鋼のク

リープ疲労損傷を妥当に評価しうることを示している。

- (3) 試験片の微視的観察結果等に基づいて、圧縮保持による寿命低下機構を考察した。同鋼の圧縮保持による寿命低下は、従来議論が行われてきた平均応力効果や酸化物の楔効果ではなく、脆い酸化被膜におけるき裂発生の促進と圧縮保持時に形成される酸化被膜中のき裂成長の加速効果により説明できる。
- (4) 提示した破損機構に基づいた寿命予測では、圧縮側ひずみ保持による寿命低下は保持のない低サイクル疲労寿命の約3分の1程度で飽和した。この解析結果によれば、実機負荷条件下では表面効果であるこれらの酸化被膜による影響は失われ、ステンレス鋼同様キャビティの成長によるクリープ損傷が寿命低下の支配因子となると予想できる。

なお、今後、破損機構と酸化被膜の成長速度や組成の違いによる効果等、さらに微視的観察を含めた検討を実施していく予定である。

参考文献

- 1) 和田雄作、青砥紀身他、「ステンレス鋼のクリープ疲労破損機構とその評価に関する研究」、動燃技報No.87, (1993).
- 2) F.Ueno, K.Aoto, et al., "A Study on Creep Damage Parameters in Creep Cavity Growth Dominant Region under Creep-Fatigue Loading", Trans. 12th Int. Conf. SMiRT, Vol. L, NoL05/4 (1993).
- 3) K.Aoto, Y.Wada, et al., "An Analytical Approach to Creep-Fatigue Life Prediction for SUS304, 316 and 321 Austenitic Stainless Steels", Proc. ASME PVP, Vol.123, 43 (1987).
- 4) K.Aoto, T.Koakutsu, et al., "The Prediction of the Stress Relaxation Behavior of the High-Temperature Structural Materials by Creep-Strain Equations", Proc. Int. Conf. Creep, 496 (1986).
- 5) H.Kawasaki, H.Kagawa, et al., "Phenomenological Study on Stress Relaxation Behavior of Cyclic Softening Material by Real-Time Data", ASME PVP, Vol.172, 29 (1989).
- 6) M.B.Ruggles, B.Krempl, "Rate-Sensitivity and Short Term Relaxation Behavior of AISI Type 304 Stainless Steel at Room Temperature and at 650°C; Influence of Prior Aging", ASME PVP-172, 59 (1989).
- 7) K.Aoto, R.Komine, et al., "Creep-Fatigue Evaluation of Mod. 9 Cr-1 Mo(NT)", 6th Jap. Ger. Int. Sem., Stuttgart (1993).
- 8) 例えず、R.O.Bestwick, A.M.Clayton, "Design Methodology for Creep Fatigue Assessment Using Creep Ductility Criteria", 5th Int. Sem. Inel. Ana. Life Pre. High Tem. Env., Paris (1985).
- 9) C.R.Brinkman, "Creep-Fatigue Effects in Structural Materials Used in Advanced Nuclear Power Generating Systems", Proc. 27th Sagamore Army Mat. Res. Conf., 241 (1980).
- 10) 松原雅昭、新田明人、「改良9Cr-1Mo鋼高温疲労強度における寿命低下に関する考察」、第30回高温強度シンポジウム前刷集、154 (1992).
- 11) 緒方隆志、新田明人、「改良9Cr-1Mo鋼のクリープ疲労寿命に及ぼす雰囲気および波形効果」、第30回高温強度シンポジウム前刷集、149 (1992).
- 12) 永田敬、岡林邦夫他、「高速炉用高温構造設計基準に関する研究開発」、動燃技報No.65, 39 (1988).
- 13) K.D.Challenger, A.K.Miller, et al., ASME J. Eng. Mat. Tech., Vol. 103, 7 (1981).
- 14) Y.Wada, K.Aoto, "Status on Criteria of Creep-Fatigue Failure for LMFBR Structural Materials in PNC", Meeting Document, ASME SGETD, San-Diego (1993).
- 15) M.I.Manning, B.Metcalfe, "Oxide Spalling in Stainless Steel Superheater and Reheater Tubes and Possible Control Measures", Proc. Int. Conf. Fer. Ste. Fast Rea, SG, 121 (1977).
- 16) 松原雅昭、「改良9Cr-1Mo鋼の線形損傷則に基づくクリープ疲労強度評価法の改良」、電研報告T91058 (1992).
- 17) 西島敏、「金属材料の疲労寿命予測」、安全工学、Vol.30, No.6, 400 (1991).
- 18) Campbell Laird, "The Influence of Metallurgical Structure on the Mechanisms of Fatigue Crack Propagation", ASTM STP 415, 131 (1967).
- 19) L.A.James, K.W.Carlson, "The Fatigue-Crack Growth and Ductile Fracture Toughness Behavior of ASTM A387 Grade 91 Steel", ASME J Pre. Ves. Tech., Vol.107, 271 (1985).



ATR 運転高度化支援装置 「FATRAS」の開発

金関 卓男 桜井 直人 小堀 勝
西村 弘 池田 博

新型転換炉ふげん発電所

資料番号：88-6

Highly Developed Operation Supporting System "FATRAS"
for Fugen

Takuo Kaneko Naoto Sakurai Masaru Kobori
Hiroshi Nishimura Hiroshi Ikeda
(Fugen Nuclear Power Station, Power Generating Section)

新型転換炉原型炉「ふげん」は、重水減速軽水沸騰冷却圧力管型のATR原型炉であり、1979年の運転開始以来順調な運転を継続している。

ATR運転高度化支援装置「FATRAS」(Fugen ATR Advanced Simulator)は、「ふげん」の主要系統全体を模擬しており、フルスコープシミュレータ同様にプラント挙動を模擬することができ、ふげん発電所運転員の運転特性の学習や運転操作訓練の充実、さらにプラント制御装置開発に関する検討等多目的に使用可能なシステムとして開発されたものであり、1990年9月に、ふげん発電所構内の安全管理棟2階に設置され、運転員の教育訓練等に活用されている。

1. はじめに

わが国の原子力発電プラントの計画外停止はきわめて少なく高稼働率を維持しており、また原子力発電がベースロード運転をしているため、運転員のプラント操作の機会は少ない。そのため、プラントの挙動を計算機で模擬し、異常事象等を自由に発生できるシミュレータによる運転操作訓練がますます重要になってきている。これらは「ふげん」においても同様である。

「ふげん」の運転員の運転操作訓練は、特性が比較的類似しているBWRの運転員訓練用に開発されたBTC (BWR Training Center : BWR運転訓練センター) のシミュレータで行っている。しかし、重水・ヘリウム系、独立2ループ構成の原子炉冷却系、ATR特有系統の運転操作訓練は不可能であり、また、炉特性やプラント動特性等の把握は、机上学習が主体となっていた。そこで、ATR特有系統の運転操作訓練および炉特性やプラント動特性等の把握が可能であり、さらに運転操作手順の検討、プラント制御装置の開発、事故事象の解析等にも利用可能なATR運転高度化支援装置（以下「FATRAS」という）を開発し、運転員の教育訓練等に有効に活用し

ている。

ここでは、「FATRAS」の目的、システムの構成および機能、シミュレーションモデル、「FATRAS」を用いた運転学習・訓練等について述べる。

2. 「FATRAS」の目的

「FATRAS」は、次の2つを目的として開発した。

2.1 ATRプラント特性の学習および運転操作技術の向上

「FATRAS」は、主にBTCにおいて訓練が出来ないATR特有のプラント動特性の学習、インターロック等の習得、重水水位上昇操作から制御棒操作、ほう酸濃度制御による定格出力にいたるまでの起動操作、出力降下から復水器真空破壊までの停止操作等のプラント通常操作、各種制御系の故障や原子炉冷却系配管破損事故等の異常時対応操作等の運転操作技術の向上を目的としている。

2.2 運転操作手順の改善およびATRプラント制御装置の開発

運転操作手順の改善やプラント制御装置の開発

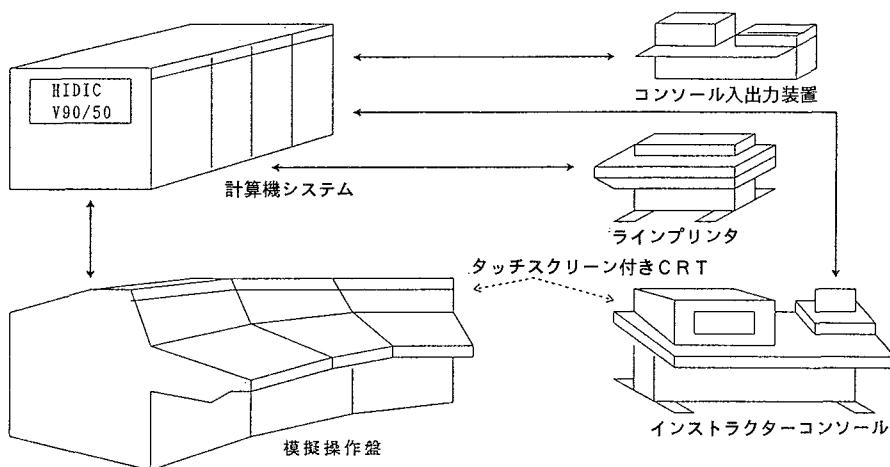


図1 システム構成 模擬操作盤は、小型ながらタッチスクリーン付きCRTによって、多数の操作・監視が可能である。また、計算機システムは制御用計算機 HIDIC V90シリーズによるマルチシステム構成を採用了。

等、運転高度化のための検証装置として利用可能であることを目的とした。

3. システムの構成

「FATRAS」は、学習者のマンマシンインターフェースである模擬操作盤、シミュレータの制御操作を行うインストラクターコンソールおよび各種演算処理を行う計算機システムで構成されている。

システム構成図を図1に示す。

3.1 模擬操作盤

模擬操作盤は、実機の中央制御盤の主要な機能を模擬したもので、プラントの機器操作とそれに伴うプラント挙動の監視を行うための装置である。運転操作上重要な給水制御装置等の監視操作器は、実機を模擬した小型のスイッチや指示計等で構成し、操作盤面上に配置することで操作感覚を体験できるようしている。その他の機器の操作やプロセス量の監視は、3台のタッチスクリーン付きCRTで行うことによって盤幅約3mという小型の操作盤で多数の監視操作を可能にしている。指示計への出力信号更新周期は1秒、CRT表示の更新周期は最速1秒とし、運転員が実プラント運転時と比較して違和感を感じないようにしている。また、プラント主要インターロックの動作や重要プロセスパラメータの異常等を容易に把握できるように、操作盤に132個のハード警報窓を設置する他に、CRT警報表示画面に95の警報を発生・表示できるようにしている。

なお、計算機インターフェイス用としてプロセス

入出力装置を有しており、ディジタル入力点（スイッチ接点取り込み用）340点、ディジタル出力点（ランプ・警報窓点灯用）400点、アナログ出力点（指示計出力用）33点の入出力を扱っている。

3.2 インストラクターコンソール

インストラクターコンソールは、インストラクターが学習者の学習・訓練の進行に合わせて、シミュレータを制御するための装置である。インストラクターコンソールのCRTもタッチスクリーン付きとし、機器の状態を個別に変更することができ、あらかじめ定めたマルファンクション（模擬異常事象）以外にも、任意のポンプの停止等異常事象模擬の範囲を拡大している。

3.3 計算機システム

計算機システム（HIDIC V90/50：中央演算処理装置2台）は、プラントシミュレーションモデルの計算やCRT表示制御等の機能をつかさどる装置である。また、計算機システム内で演算しているプラントパラメータ20点を外部へ出力する端子を設けており、試験対象装置を接続することにより、その装置の制御特性検証にも使用することができる。

4. システムの機能

「FATRAS」は、プラント起動・停止操作時および異常事象時のプラント主要パラメータを模擬し、重点的操作学習やプラント特性の理解力の向上を目的として以下の機能を有している。

4.1 ラン／フリーズ機能

ランはシミュレータを動かす機能で、フリーズはシミュレータの動きを停止してその状態を保持する機能である。この機能は、訓練途におけるインストラクターの説明時や、初期状態の更新時等に使用する。

4.2 セットバック機能

運転状態を所定時間前に戻す機能で、反復訓練を行う場合に有効である。本機能により、2分間隔で最大10分前までシミュレーション状態を戻すことが可能である。

4.3 マルファンクション

プラントの異常事象を発生させる機能で、機器の故障や事故時の学習・訓練に使用する。マルファンクションは65の項目が選定され登録されている。

4.4 スケジューリング機能

マルファンクションの実行や解除を、あらかじめ予約登録する機能で、多重マルファンクションを発生させることが容易に可能である。スケジューリングケース数は最大20ケースで、1ケースあたり最大8個のマルファンクションが設定できる。

4.5 初期状態登録機能

運転訓練過程で初期状態として保存が必要と判断した場合、長時間を必要とする起動・停止操作等のポイントを短時間で訓練する場合、および訓練を一旦中止したのち再び継続して訓練を行う場合等、必

要な初期状態を登録する機能で、最大30個の登録ができる。

4.6 運転員操作記録機能

模擬操作盤の操作面に設置している機器の操作や、CRTタッチスクリーン機能による機器の操作した時点と、時刻および操作内容（操作スイッチのON/OFF等）をラインプリンタに自動印字させる機能で、操作順序・タイミング等のチェックが可能である。

5. シミュレーションモデル

5.1 模擬範囲

模擬範囲は、給水制御弁切替操作、重水水位上昇・下降操作、ほう酸濃度制御操作、再循環ポンプ速度切替等ATR特有の運転操作やプラント挙動を学習し、訓練できることを重点に置いて選定している。なお、ATRの主な特徴である蒸気ドラムを含めた冷却系は、実機と同じく2ループ構成としている。

5.2 プラント動特性モデル

プラント動特性モデルは、図2に示すとおり、炉心、蒸気ドラム、再循環系を含む原子炉冷却モデル、タービン・発電機モデル、非常用炉心冷却系等の非常系モデル、重水・ヘリウム系や燃料の燃焼に伴う長期的な反応度補償のため重水中に液体ほう酸を注入するほう酸供給系等のATR特有系統のモデル、およびタービン制御、原子炉出力制御等をつかさどる制御系モデルで構成している。同図中の二重枠で示したモデルは、ATR特有の系統に対応している。

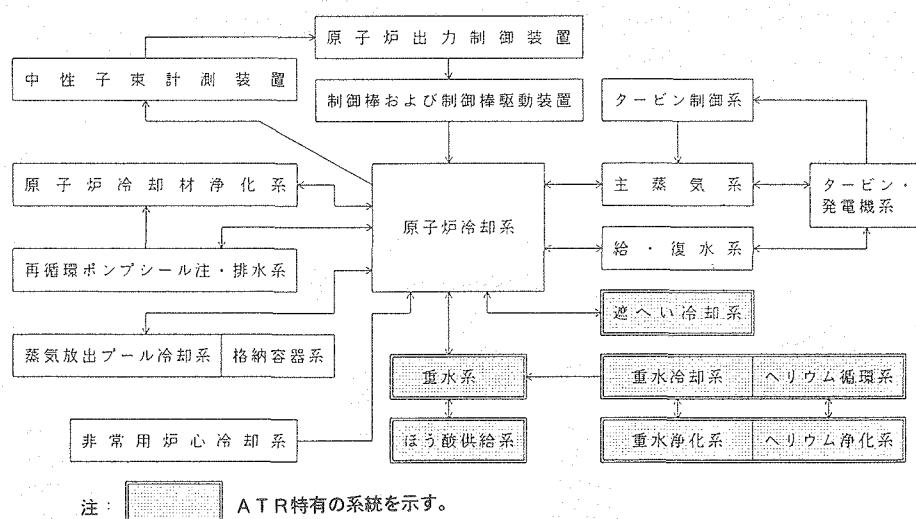


図2 プラント動特性モデルの構成 全体は38個のモデルで構成しており、その主要部を図に示す。

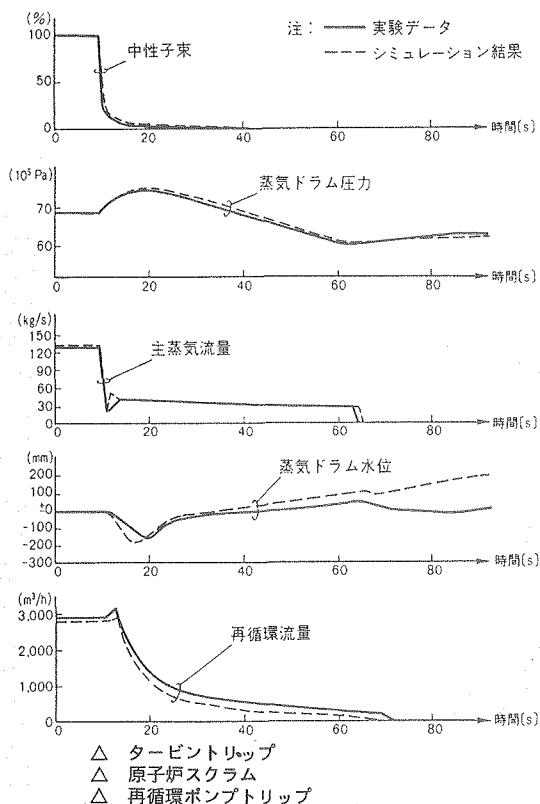


図3 タービントリップシミュレーション結果の例

5.3 特性評価

シミュレーションモデルの特性は、実機起動試験時に実行したプラント動特性試験（タービントリップ試験・蒸気ドラム水位設定変更試験等）の実データを用いて比較・評価した。図3にタービントリップ時のシミュレーション結果と実データの比較を示す。この事象は、タービントリップにより原子炉がスクラムする事象であり、原子炉スクラムにより冷却材中のボイドが減少するため蒸気ドラム水位は低下する。しかし、再循環ポンプの自動トリップによ

り蒸気ドラム水位は徐々に回復する。タービンバイパス弁容量が25%のため蒸気ドラム圧力が一時的に上昇するが、原子炉出力が急速に低下するため、蒸気ドラム圧力は徐々に低下する。図3からわかるように、このような過渡事象に対してシミュレーション結果と実データがほぼ一致しており、良好な結果が得られた。

シミュレーション精度の評価基準はANSI (American National Standards Institute : 米国国家規格協会) の基準(ANSI/ANS-3.5-1985 Nuclear Power Plant Simulators for Use in Operator Training)にしたがって評価した。その結果、原子炉出力・再循環流量・蒸気ドラム圧力等の主要パラメータの静特性は±2%以内、過渡応答も実機特性とよく一致することが確認できた。

6. 「FATRAS」を用いた学習・訓練

「FATRAS」での学習は、コンパクトシミュレータの利点を活かし、学習者各自の運転知識レベルに合わせて、学習者とインストラクターのマンツーマンの指導によって行っている。運転員は、通常運転時のプラント特性、軽微な異常時のプラント特性、およびインターロックの学習から始めることができ、個人の能力向上に効果を上げている。写真1に訓練風景を示す。

一方、実機の通常起動・停止工程に合わせ、事前に操作訓練を行うことや、定期的に中央制御室にて、実施される異常時模擬操作訓練の前に、プラントパラメータ変化の確認や初期対応の訓練を行っている。

このような操作訓練は、単独で行う系統機器の起動・停止操作に関する通常操作手順訓練から、数人で行う連携操作訓練（原子炉・タービン・電気操作）まで、訓練目的に応じて、また、訓練員の人



写真1 訓練風景

入社年数	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11										
運転員レベル	訓練	初級			中級			上級													
教育訓練項目																					
1. 「FATRAS」訓練 ①各系統の起動・停止訓練 ②プラント起動・停止訓練 ③異常時対応訓練 ④自主訓練 ⑤運転操作性確認訓練																					
2. BTC訓練 ①ファミリー訓練 ②標準訓練、短期基本訓練 ③再訓練 ④上級訓練 ⑤EPG訓練																					

表1 「FATRAS」および「BTC」における訓練内容

数、訓練時間等を考慮して幅広く行うことができ
る。表1に「FATRAS」と「BTC」における訓練
内容を示す。

7. 「FATRAS」を用いた運転技術の高度化

「ふげん」では、1992年に世界で初めてファジイ理論を適用した給水制御装置を原子力発電所に導入したが、本装置の開発初期には、「FATRAS」に使用しているシミュレータコード「FASIC」(Fugen ATR Simulator Code)を用いて、ファジイ制御による給水制御性の解析・検討を実施した。

また、1994年に導入が予定されているタービン制御装置のEHC (Electro Hydraulic Control System : 電気油圧式制御装置) のディジタル化においても、詳細設計にあたり「FATRAS」で運転操作面からの検討を行うとともに、FASICコードによる制御性の解析・検討を実施している。

このように、「FATRAS」は「ふげん」の制御特性および運転技術の高度化にかかる研究開発に利用されている。さらに、今後は徴候ベースのEOP (Emergency Operation Procedure : 緊急時運転手順) に関する学習・運転訓練を実施するために、「FATRAS」の一部改造を検討しており、現在BTCで行っているEPG (Emergency Procedure Guideline: 事故時運転ガイド) 訓練に加え、ATR特有の設

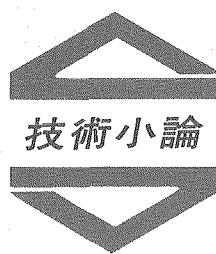
計事象を越えた事象に対するプラント特性の学習・操作訓練が行えるようにする計画である。

8. おわりに

「ふげん」は、原型炉といえども起動・停止の操作回数は実用炉と同様に少ない。また、運転員の世代交代に伴い、ますます運転員が実機での操作を行うことが少なくなっている。さらに、昨今原子力発電所の安全性の観点から、運転員に対するプラント知識、操作技術の高度化が要求されている。このような状況において、「FATRAS」は、プラント特性の把握やプラントインターロックの学習等のプラント知識の向上およびATR特有設備の運転操作訓練に有効に活用され成果を上げている。また、BTCによるフルスコープシミュレータでの運転操作訓練を組合せることにより、運転班のチーム力、運転員の通常プラントの操作技術、および事故時のプラント過渡応答対応操作に対する運転技術の向上を図っており、プラントの安全・安定運転に大きく寄与している。

参考文献

- 1) 川崎、他：ATRの運転高度化支援装置 日立評論 VOL.74 No.6 (1992 -6).
- 2) 桜井、他：Development of a Compact Simulator for the Prototype ATR FUGEN, 1993 Simulator Multi Conference (1993).



東海再処理工場・ウラン脱硝施設の脱硝塔連続処理運転の確立

渡辺 敦 内田 豊実 松田 昇
滝 清隆 横 邦 彰 秋山 菁爾

東海事業所再処理工場処理部

資料番号: 88-7

The Establishment of Continuous Operation for the Denitrator in Uranium Denitration Facility of Tokai Reprocessing Plant

Atsushi Watanabe Toyomi Uchida Noboru Matsuda
Kiyotaka Taki Akira Maki Kanzi Akiyama
(Processing Division, Tokai Reprocessing Plant, Tokai Works)

東海再処理工場のウラン脱硝施設(DN施設)は再処理工場の円滑な運転を目的として、再処理工場に設置されている従来の脱硝塔(既設脱硝塔)に加え新たに設置された。脱硝塔は硝酸ウラニル溶液(UNH)を流動層内に噴霧し硝酸を分解することにより三酸化ウラン粉末(UO_3)として回収する装置であり、使用流体等の特異性を考慮した運転が必要となる。

本脱硝塔は、処理能力として1t/日を有するものの長期連続運転が困難な状況にあったことから、種々の試験を行い長期連続処理運転を可能とする運転方法を確立した。

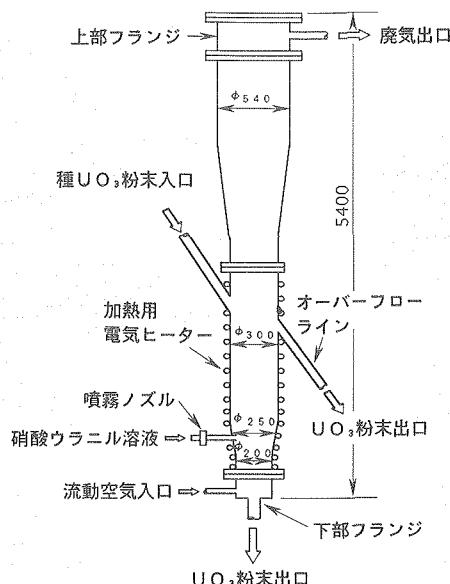
1. はじめに

東海再処理工場のウラン脱硝施設(DN施設)の試運転以降脱硝塔は長期連続運転が困難な状況にあったことから連続運転を阻害する要因を解明するため、1985年の試運転から1986年の本格運転前半までの14回の運転における脱硝塔停止要因の割合を調

査したところ、その約80%が噴霧ノズル閉塞によるものであった。そこでより長期連続運転のため要因分析・調査を行い、対策を実施した。

2. 脱硝塔概要

東海再処理工場・DN施設の脱硝塔を図1に示す。



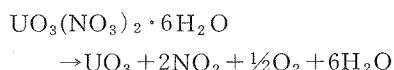
設計能力 (TON・U/日)	1
全 高 (mm)	5400
流動層部内径[D] (mm)	300
UO_3 エア一分離部内径 (mm)	540
加熱方法	塔外周部電気ヒータ
UO_3 粉末抜き出し方法	オーバーフロー

図1 脱硝塔概要図

す。DN施設は、2基の脱硝塔を有しており主要部分は約300°Cに加熱された流動用エアーを供給するための焼結金属製の多孔質分散板が取り付けられた下部フランジ部、UNHを噴霧する気・液2流体の外部混合型の噴霧ノズル部、脱硝塔内のUO₃ホールドアップを一定に保持するようオーバーフロー方式でUO₃粉末を回収するUO₃粉末抜き出し部、オフガスを排出する上部フランジ部から構成されている。

脱硝塔は、電気ヒータにより加熱され、流動用エアーとUO₃粉末により形成された流動層中に約1100 g/lに濃縮されたUNHを噴霧ノズルを用いて噴霧し、吸熱反応により脱硝するものである。

代表的な脱硝反応を以下に示す。



3. 噴霧ノズルの構造

噴霧ノズルは、本体と中芯からなる外部混合型ノズルであり、UNH供給ラインおよび噴霧エアーラインからそれぞれ供給されたUNHと噴霧エアーはノズル先端部で混合され、UNHは霧状に脱硝塔内へ噴霧される。図2に噴霧ノズル先端部を示す。

また、本ノズルには定期的に洗浄効果の高い液体“硝酸”または“純水”によって噴霧ノズルを洗浄し未然にノズル閉塞を防止するためのノズルクリーニングラインが設けられている。図3に噴霧ノズル供給系統図を示す。

4. ノズル閉塞の要因

ノズル閉塞とは、噴霧ノズルの先端部にケーキングが付着・成長し、UNHの噴霧が阻害されることをいう。DN施設脱硝塔の運転を基にノズル閉塞発生の要因を解明するため、調査・検討を行った。

どのような状態の時にノズル閉塞が発生していたか調査した結果、

(1) 設計段階においてノズル閉塞を予測し、これを

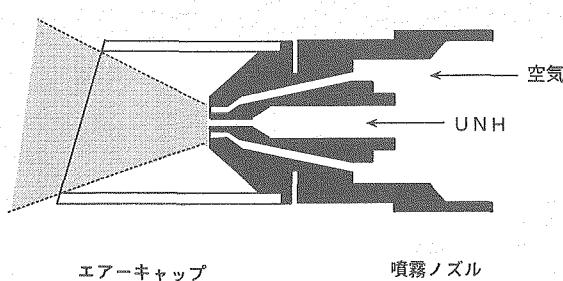


図2 噴霧ノズル先端の詳細

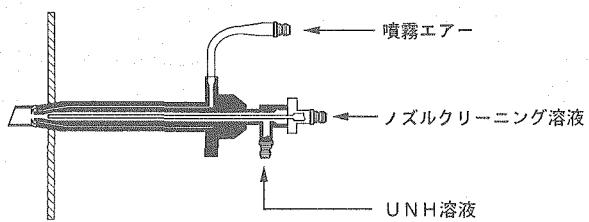


図3 噴霧ノズル供給系統図

防止する目的で定期的に実施していたノズルクリーニングの後に多く発生している。

- ② 脱硝塔への供給UNH濃度の上昇に伴ってノズル閉塞の発生頻度が増加するが、UNH濃度950 g/l以下であればほとんど発生しないことが判明した。

5. ノズルクリーニングとノズル閉塞の関係

定期的な自動ノズルクリーニング（1～2時間間隔で3Nの硝酸を1秒間噴霧）を実施した場合は、運転開始約8時間後にノズル閉塞が発生しその後頻繁にノズル閉塞が発生した。一方、自動ノズルクリーニングを行わなかった場合はノズル閉塞傾向が発生した時のみノズルクリーニングを実施することにより所定量の処理を終えるまで運転を継続することができた。何故定期的なノズルクリーニングによってノズル閉塞が発生し易くなるのか以下に考察を述べる。

(1) 脱硝塔内でのガス流速

脱硝塔内には、流動用空気、噴霧用空気およびUNHの分解ガスが流れるため、塔内ガス流速は一様ではない。表1に脱硝塔内の各位置におけるガス流速を示す。

通常の運転において、表1に示す流量で安定している脱硝塔内に、1回約20cc/sのノズルクリーニングを行った場合の脱硝塔内の流速の変化を図4に示す。

(2) ノズルクリーニングのガス流速

ノズルクリーニング時は、クリーニング液が瞬時

表1 脱硝塔内の各位置におけるガス流速

脱硝塔位置	気体名	流量	ガス流速
下 部 (200φ)	流動用空気	15Nm ³ /h	29cm/s
ノズル部 (250φ)	流動用空気 噴霧用空気	19Nm ³ /h (15+4)	23cm/s
流動層部 (300φ)	分解ガス [N ₂ , O ₂ , NO ₂ , NO, H ₂ O]	52Nm ³ /h	44cm/s

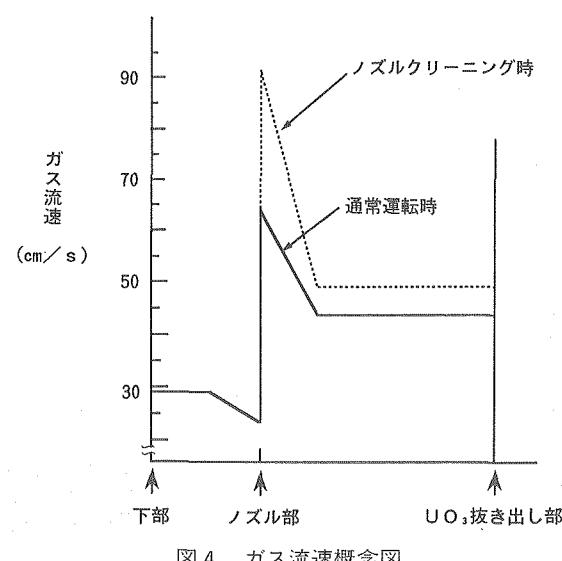


図4 ガス流速概念図

に気化し多量の分解ガスが発生するためガス量上昇に伴いガス流速が通常運転時の約1.5倍に上昇する。この急激なガス流速の上昇により UO_3 粉末の層に気泡が発生し流動層は不安定な状態となり、噴霧状態に変動が生じノズル閉塞を誘発するものと考えられる。

6. UNH濃度とノズル閉塞の関係

図5にUNH濃度とノズル閉塞発生頻度の相関を示す。この図より供給UNH濃度が950g/lを超えると濃度上昇とともにノズル閉塞の発生頻度が増加するが、950g/l以下ではほとんど発生していないことがわかる。

UNH溶液の噴霧において、UNH溶液の一部が液滴としてノズル先端部に付着した状態で脱硝反応が起こりケーキングが発生するが、文献等によってもスプレーノズルを使用した造粒操作においては不可避的にある程度の割合で生成すると報じられている。しかし、この時UNH溶液の濃度が高くなると

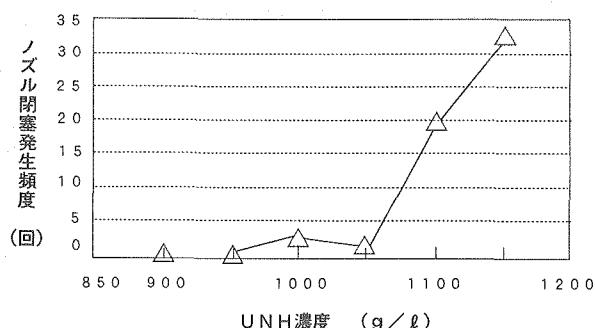


図5 UNH濃度とノズル閉塞発生頻度の相関

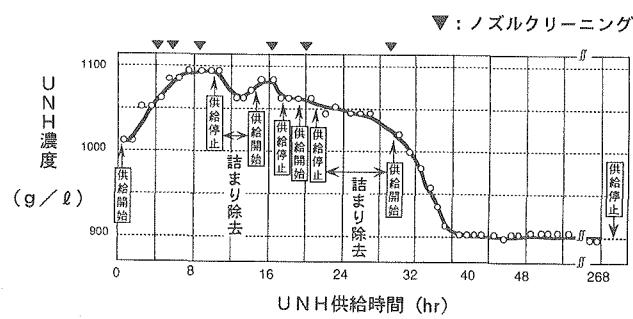


図6 UNH濃度とノズル閉塞の関係

溶液の粘度も高くなり、液滴として付着する割合が増大しケーキングが成長し、最終的にノズル先端全體がケーキングで覆われノズル閉塞を誘発すると考えられる。

文献によればUNH濃度と粘性の関係は、25°Cではほぼ比例関係になっており本脱硝塔では高温でUNHを取り扱っているものの濃度の上昇に伴って粘性は上昇していると推定できる。

実際の運転に於ける一例を図6に示す。このようにUNH濃度が1000g/l以上のは、ノズルに閉塞傾向が発生するため手動によるノズルクリーニングを実施したが、900g/lに下げた後はノズルの詰まり事象はなくなった。

7. まとめ

ノズル閉塞を防止するために1986年のDN施設の本格運転開始から順次、定期的なノズルクリーニングの停止、供給UNH濃度の900~950g/lへの調整、合わせて噴霧ノズルの組立方法の標準化を行った。これらの総合効果として、ノズル閉塞は皆無となり約1ヶ月の長期連続処理運転が可能となった。表2

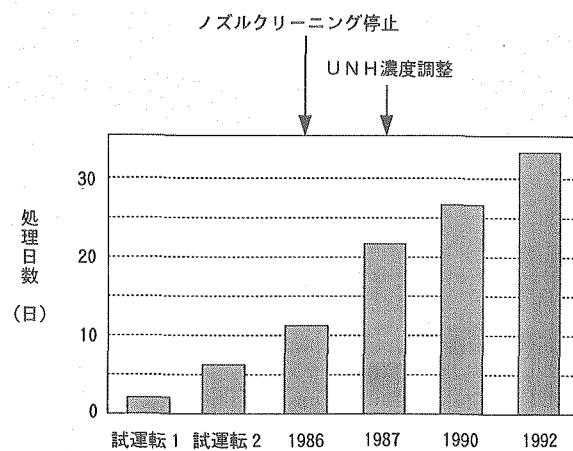


表2 年度毎の連続処理日数

に年度毎の連続処理日数を示す。

1992年現在までの約1ヶ月の連続処理運転日数は、供給UNHの処理完了によるものであり、今後さらに長期の運転が可能であると考える。

参考文献

- 1) S.HARTLAND, R.J.NESBITT : J.APPL.CHEM., (LONDON) 14, 406 (1964).
- 2) YAMAZAKI, ETC : KAGAKU KOGAKU RONBUNSHU 1, 143 (1975).
- 3) A.R.OTERO, V.GONZALEZ : CHEM. ENG. PROG. SYMP 66, 267 (1970).



地層処分基盤研究施設の概要と 研究計画について

間野 正 石川 博久

東海事業所環境技術開発部

資料番号：88-8

Outline of Geological Isolation Research Facility and Test
Program of R & D in this Facility

Tadashi Mano Hirohisa Ishikawa
(Waste Technology Development Division, Tokai Works)

現在進めている地層処分研究開発は、わが国で想定される幅広い地質環境条件下での、多重バリアシステムにおける様々な現象を支配する物理／化学法則を見出し、それら法則に基づき長期的挙動を正しく解析できることを実験等を通じて確認していくことを当面の課題としている。

このために、この度、東海事業所に完成した地層処分基盤研究施設では、深部地下で生じる様々な現象について、深い地下の環境条件を地上につくりだして、基礎試験から大型試験までを実施し、実験的に確かめていく。本施設における研究の概要を紹介する。

1. はじめに

動燃事業団は、高レベル放射性廃棄物の地層処分研究開発における中核推進機関として、研究開発および地質環境調査の着実な推進を図ることを求められている。

現在進めている地層処分研究開発は、わが国で想定される幅広い地質環境条件下において、人工バリアと天然バリアからなる多重バリアシステムにおける様々な現象を支配する物理／化学法則を見出し、それらに基づいて長期的挙動を正しく解析できるということをいろいろな実験や長期におよぶ自然現象の研究（ナチュラルアナログ研究という）によって確認することが当面の課題となる。

この課題に対しては、深部地下の環境下で生じる熱、応力、化学反応、水理、物質移動等の複合現象を理解し、それらの現象を長期にわたって予測するモデルを開発し、そのモデルの妥当性を確認する必要がある。

そのためには、個別現象に関する基礎試験や原位置試験、ナチュラルアナログ研究等に加えて、深部地下の環境条件を幅広く制御した試験系や個別現象を複合させた工学規模の試験等が不可欠である。

この度、東海事業所に建設された「地層処分基盤研究施設」は、人工バリアおよび性能評価に関する

研究をさらに進めるために実験室規模から工学規模までの諸設備を有するとともに、動燃事業団の各施設で行われている地層処分研究をとおして得られる成果を本施設に集約する機能を持つ施設である。

2. 地層処分基盤研究施設の概要

本施設は、東海事業所の南東地区に平成3年度から建設され、平成5年8月に竣工した。建屋は研究棟と試験棟の二棟からなり、研究棟では各種の分析設備を有し計算機を用いた解析業務が主として行われ、試験棟では、工学規模の試験業務が主として行われる。研究棟は地上4階の鉄筋コンクリート造で建築面積が約1350m²、延べ床面積が約4500m²であり、各種計算機、精密分析機器、シミュレーション設備等が設置されている。試験棟は地上1階の鉄骨造で建築面積は約1500m²で工学規模の複合試験設備や重量物の取扱いが可能なようにクレーンが設置されている。

本施設の特徴は次のとおりである。

- ① 放射性物質を用いないコールドの施設である。
- ② 深い地下の環境条件を地上で作りだせる。
- ③ 基礎試験から大型試験まで一括して実施できる。
- ④ 様々な現象のシミュレーションができる。

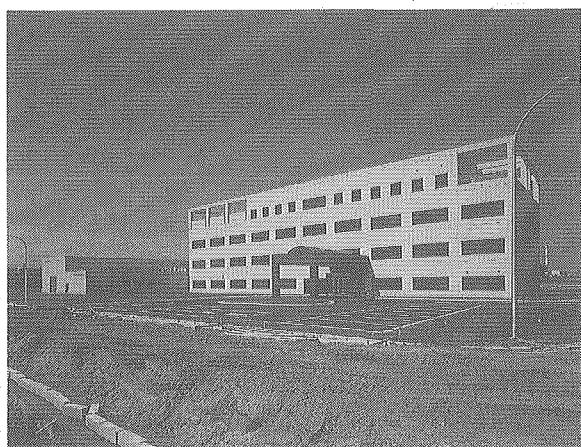


図1 地層処分基盤研究施設（右側：研究棟、左側：試験棟）

研究棟および試験棟に設置されている計算機システムは、地層処分研究のデータ・情報を画像処理し、地層処分で想定される様々な現象や多重バリアの性能を解析した結果を大型スクリーン等に表示させるビジュアリゼーション機能のための計算機システムのほか、試験設備から得られるデータを管理するプロセスデータ管理用計算機システム、一般的な情報処理を行う情報管理用計算機システム等で構成される。また、各部屋の端末や各試験設備の端末を介して本システムにアクセス可能であり、さらに画像データの伝送が可能な施設内LAN(LOCAL AREA NETWORK)が組まれている。

(図1に施設の外観を示す)

3. 試験設備の概要と研究計画

本施設では、地層処分で想定される様々な現象のうち、地下水影響過程に着目し、地下水に対する多重バリアシステムのふるまいを試験し、解析、評価していく。

本施設の代表的な試験設備と研究内容を紹介する。

(1) ニアフィールド化学環境変化試験設備

人工バリアおよびその周辺の岩盤（合わせてニアフィールドと呼ぶ）と地下水との間で生じる化学反応や化学反応を伴う物質移動現象に関する試験を行い対象となる場の化学特性の変化を解明する。

1) 化学平衡反応試験

地下水と人工バリア材（金属材料、粘土材料等）や天然バリア材（岩石、鉱物）との反応過程を調べるために、地下深部の環境である低酸素濃度および低二酸化炭素濃度で地下水と各バ

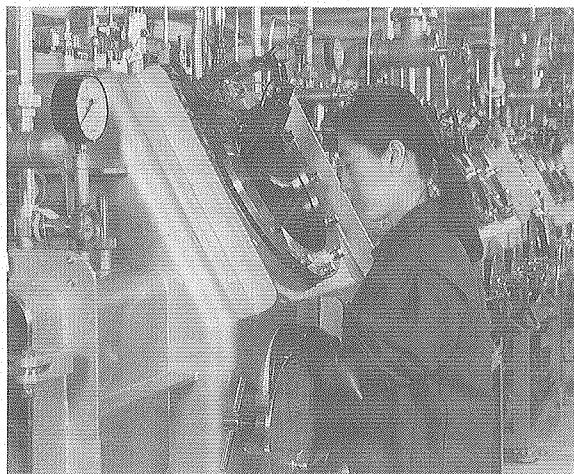


図2 化学平衡反応試験設備
(EDAS : Exploratory Data Acquisition System)

リア材との化学反応試験を行う。これらの試験の結果は、地球化学コードを用いた解析結果と比較し、地球化学コードの適用性を確認するとともに、不足しているデータの取得を実施していく。

(図2参照)

2) 地下水水質形成過程試験

深部地下水の水質は、雨水や海水が地下にしみ込んでいく過程で岩石と反応して決まると考えられる。この過程は地下水と岩石との化学反応と物質移動が組み合わせた現象である。この現象を解明するために、溶液の移動と固液間の化学反応が同時に進行するフローセルを用い、岩石等を充填したカラム中に模擬地下水を通水し、溶液組成の変化を測定する。この試験結果は、化学反応と物質移動を組み合わせた地球化学速度論モデルによる解析結果と照合することによってモデルの確証に役立てる。

(図3参照)

(2) ニアフィールド連成現象試験設備

深部地下における地下水の流れや廃棄物からの発熱、地圧等が相互に作用した複合現象等に関して、試験条件を様々に変化させて以下のような試験を行い、熱、水理、応力等が同時に関連する現象を調べる。

これらの試験は、原位置における試験と相互補完的に実施し、信頼性の高い解析手法の確立に役立てる。

1) 亀裂状媒体水理試験

カコウ岩のような固い岩の中の水や物質の移動は、岩中の亀裂を通って起こると考えられ

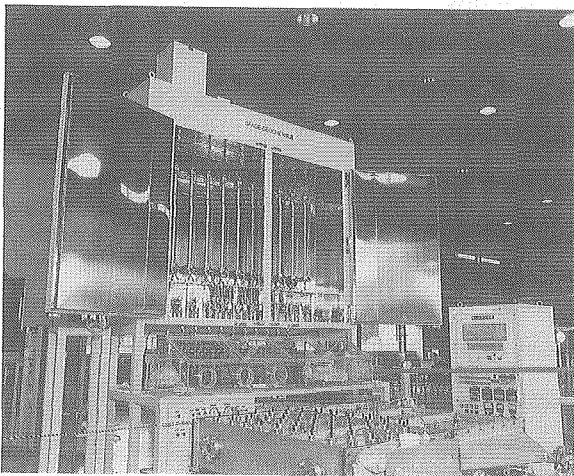


図3 地下水水質形成過程試験設備
(IMAGE-GEOCHEM: Integrated Simulation of Mass-transport and Geochemistry)

る。しかし、地下深部では、地圧等の影響で亀裂は非常にすきまが狭く、水等が動きにくい状態になっていると考えられる。このような条件での水や物質の動きを調べるために、深い地下の亀裂がある岩をそのままの状態で掘り出して、地上でその亀裂中の水等の動きを調べる。試験に用いる岩は、単一の亀裂を持つカコウ岩で、試験中も地下と同じ条件の地圧を試験体へかけ、トレーサとして塩水等を用いて試験する。(図4参照)

2) 多孔質媒体水理試験

砂岩や泥岩のような堆積岩の中の水や物質の移動は、細かい粒子のすきまと通っておこると考えられる。実際の岩は不均質な粒径の粒子の

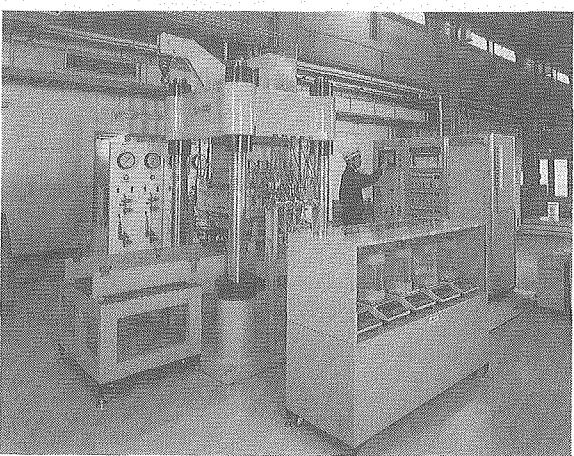


図4 亀裂状媒体水理試験設備
(LABROCK : Laboratory Test and Fractured Rock)

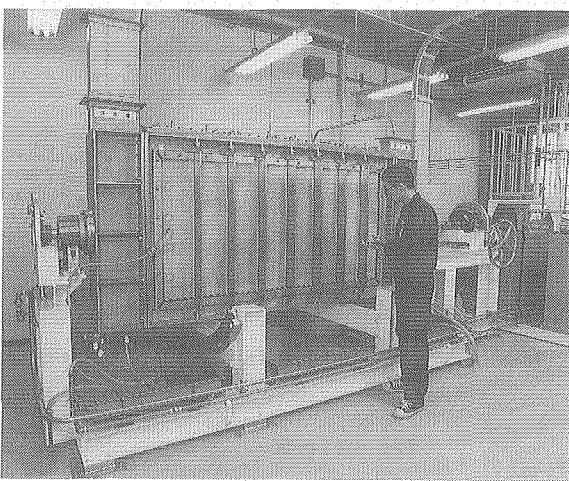


図5 多孔質媒体水理試験設備
(MACRO : Mass Transport Characterization in Host Rock)

集まりでありその中の水の流れも一様ではない。この試験では、粒径を変えたガラスビーズで不均質な媒体を造り、その中の水の流れや広がり方を試験し実際の岩体中の水の移動の解析に用いるモデルの開発を行う。

(図5参照)

3) 熱-水-応力連成試験

人工バリアとその周辺の岩でおこる現象は、廃棄物からの熱と地下水の流れおよび地圧等の応力が組み合わさった現象である。本試験では、実際の岩の中に緩衝材を詰め、中心部にヒーターを置き、周囲から地圧に相当する圧力をかけて、温度変化や応力の変化等を試験する。この結果は、大型緩衝材試験設備（通称Big Ben）等を用いて開発を行っている熱-水-応力連成コードによる解析結果と比較し、その正しさを確認する。

(図6参照)

(3) 人工バリア構造力学試験設備

地下水移行シナリオに影響を与える可能性のある人工バリアの構造力学的変化について実験的観察を行い、性能評価シナリオの同定を行う。

1) 水素ガス移行挙動試験

金属等の腐食に伴い水素ガスが発生する。そのガスが緩衝材の中でどのように挙動し、緩衝材の変形や水の動きにどのように影響するかを試験する。設備は防爆構造の中に設置されたカラン中に緩衝材を詰め、水素ガスを圧入しその挙動を調べる。

(図7参照)

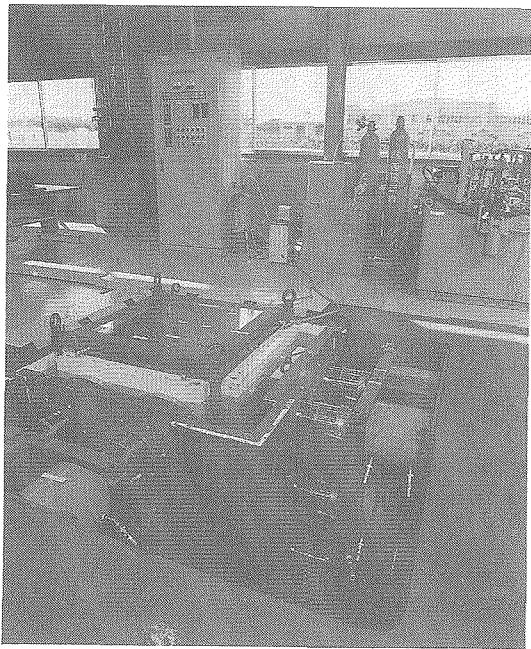


図 6 熱－水－応力連成試験設備
(COUPLE : Coupled Hydro-Thermal-Mechanical Process)

2) 緩衝材流出挙動試験

緩衝材が岩の亀裂等を通って流出する可能性とその程度について試験する。本設備は、アク

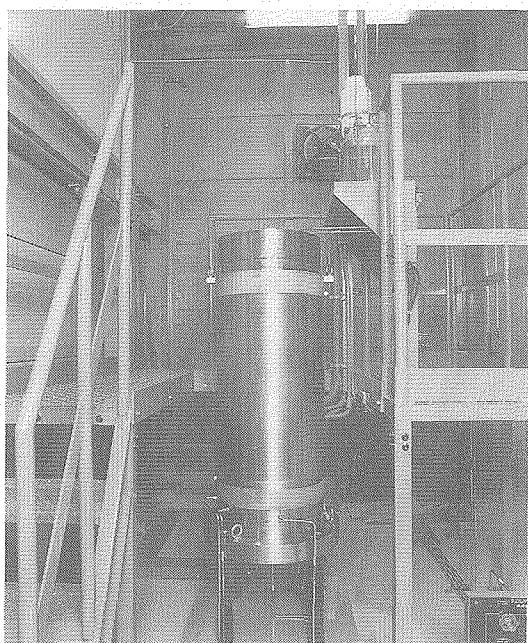


図 7 水素ガス移行挙動試験設備
(HYDROGEN)

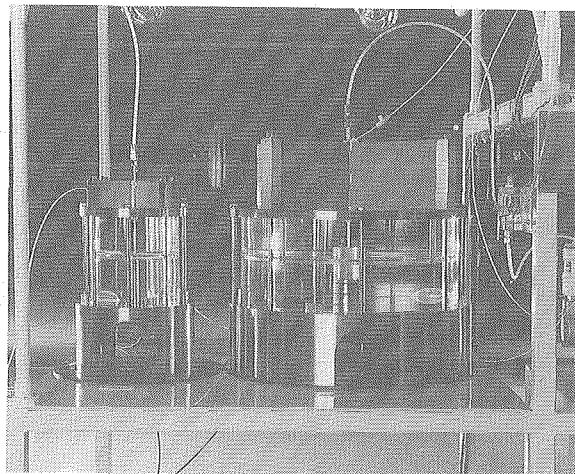


図 8 緩衝材流出挙動試験設備
(BENTFLOW : Bentonite Flow Simulation)

リル製で内部が透視可能な人工的なすきまの中心部に圧縮したペントナイトを設置し、水をペントナイトまたは人工的なすきまに注水し、そのすきまで緩衝材がどのように挙動するかを試験する。

(図 8 参照)

(4) 試験データの処理方法

これらの試験設備で得られた試験結果は、プロセスデータ管理システムで集約していくとともに、高速計算機を用いて、解析結果を画像処理して大型スクリーンへ表示する等、わかりやすくしていくことを目指している。

4. おわりに

地層処分基盤研究施設は、地下深部でおこる様々な現象を地上で条件を変化させながら工学規模で試験できる施設として世界に類を見ないものである。これは、わが国が処分サイトを特定していないことから、ニアフィールドでおこる諸現象をその機構まで掘り下げて解明し、普遍的な研究結果を得るために必要なものであり、海外からも注目される施設である。したがって今後、国内外から多くの研究者が本施設を訪れ、活発な議論が展開されることを期待する。

最後に、本施設の建設および設備の製作に協力いただいた関係各位に深く感謝するとともに、地層処分研究開発に本施設の成果が大きく貢献することを願うものである。



資料番号: 88-9

自然界におけるウラン系列核種の放射非平衡 —分析方法と応用—

沖田 正俊 落合 洋治

中部事業所

Uranium Series Disequilibrium in Natural Environment
—Chemical Procedures and Applications—

Masatoshi Okita Yoji Ochiai
(Chubu Works)

ウラン系列核種間の放射非平衡は、風化、溶解、濃集等の地球化学的過程の中で、親核種と娘核種が異なる挙動をして、相互に分離したために起こっている現象である。親核種と娘核種が分離した時点から、各核種はそれぞれ固有の半減期で壊変してゆくので、ウラン系列核種の放射非平衡分析によって、岩石、鉱石、自然水等がたどってきた地球化学的な現象に、時間軸を与えることができる。

本稿では、岩石や自然水中のウラン系列核種を α 線スペクトル法で分析する際に不可欠な、前処理操作法の迅速化試験結果、ならびにウラン鉱石試料の放射非平衡分析データに基づいた、ウラン鉱床中でのウランとその娘核種の移行規模を研究した例や、ウラン探査に応用した例について、これまでに得られた成果の中から紹介する。

1. はじめに

ウラン鉱石や自然水の中で、ウラン系列の ^{238}U と ^{234}U の間に放射平衡の成立していない例が、旧ソ連の Cherdynstev によって 1950 年代に発見された¹⁾。同一元素の同位体は同じ化学的挙動をする、というのが化学の常識であることから、この発見はしばらくの間懐疑的に受け取られていた。しかし、その後の多くの研究によって、天然のウラン鉱石、岩石、自然水の中で、図 1 に示した長半減期のウラン系列核種は、放射非平衡状態になっている場合が多いことが確かめられた^{2),3),4)}。そして現在では、ウラン系列核種の放射非平衡分析は、対象物がたどってきた地球化学的な履歴を解明する重要な手段として、地球化学、海洋化学、地球年代学等の分野では、広汎に利用されるようになっている。

化学的挙動が同じであるはずの ^{238}U と ^{234}U の間で、放射非平衡が生じるメカニズムは、 ^{238}U の α 壊変における娘核種 ^{234}Th (^{234}Pa を経て ^{234}U になる) の反跳効果であることが、木越⁵⁾によって実験的に示された。その他のウラン系列核種間で、放射非平衡が生じる原因は、元素の違いによる物理的、化学

的形態の相違が主である。

本小論では、岩石や自然水の中に含まれているウラン系列核種の放射非平衡状態を分析する際に不可欠な前処理操作法の検討試験結果、ならびにウラン系列核種の放射非平衡分析の応用について、これまでに得られた成果から紹介する。

2. 分析方法

ウラン系列核種のうち、地球の歴史の尺度となる核種は、図 1 に示した半減期が比較的長い放射性の

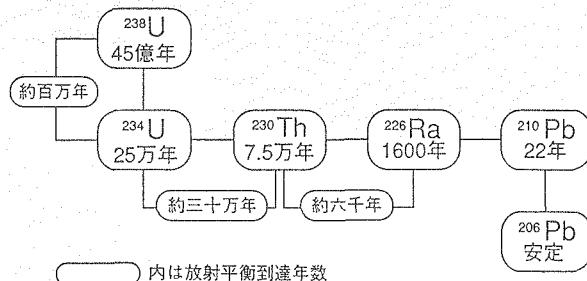


図 1 ウラン系列長寿命核種

5核種と、安定な²⁰⁶Pbである。このうち中部事業所では、²³⁸U、²³⁴U、²³⁰Thはシリコンの半導体検出器を用いた α 線スペクトル法で、²²⁶Raと²¹⁰Pbは高純度ゲルマニウム半導体検出器を用いた γ 線スペクトル法で分析している。なお、校正用標準試料として、 α 線分析用にはフランスLMRIの²³²U-²²⁸Th溶液を、また γ 線分析用にはアメリカNBLのウラン鉱石をそれぞれ使用している。

ここでは、岩石および自然水サンプルを α 線スペクトル法で分析する際の前処理操作方法について、より迅速、簡便で精度の良い方法にすることを目的として実施し得られた最近の成果について報告する。

2.1 岩石サンプル

岩石中の²³⁸U、²³⁴U、²³⁰Thを α 線スペクトル分析するためには、試料を完全に溶解してウラン同位体とトリウム同位体に分離し、それぞれを精製して不純物を除去した後、ステンレス板に電着するという前処理操作が必要である。これは α 線エネルギーが近接しているために、あらかじめ化学的方法によってウラン同位体とトリウム同位体に分離しておかないと、シリコン半導体検出器で α 線スペクトル測定する際にスペクトルが重なって妨害となるからである。また、岩石中に含まれている様々な元素をあらかじめ化学的方法によって除去するのは、共存元素も一緒にステンレス板上に電着され、それが α 線を吸収するため測定精度を著しく悪くするからである。

従来の α 線スペクトル分析の前処理操作では、イ

オン交換分離操作を何度も繰り返して分離・精製する操作法であったため、岩石10サンプルを処理するのに7日間もの日数を要しており、迅速性に欠けるだけでなく、化学的収率が作業者によって大きくバラツクという問題点があった。また、鉱石のようにウラン濃度が高いサンプルでは、SUS板上に電着されたウラン自身によって α 線が自己吸収されて、スペクトルがブロードになってしまい、分析誤差の原因となることから、サンプリング量を設定する必要もあった。

そこで、これらの問題点を解決するために、溶媒抽出条件、電着条件等の検討試験を繰り返し、イオン交換法と溶媒抽出法を組合せた図2のような前処理操作法を確立した。この操作法によって、所要日数は岩石10サンプルにつき4.5日間に短縮でき、化学的収率も80%前後の安定した値が得られるようになった。さらに、電着するウラン量が200 μg 以下になるように、サンプリング量を調節することによって、シャープな α 線スペクトルが測定できるようになった。

この新しい前処理操作法で、いろいろなウラン濃度を持つ岩石中の²³⁸U濃度を分析し、同時に他の湿式分析法でウラン濃度を分析して比較した結果(72サンプル)を図3に示した。1 ppmオーダーの低濃度岩石から1% (10000 ppm) オーダーのウラン鉱石まで、 α 線スペクトル分析の結果は湿式分析値と良く一致していることから、正確に分析されていることがわかる。

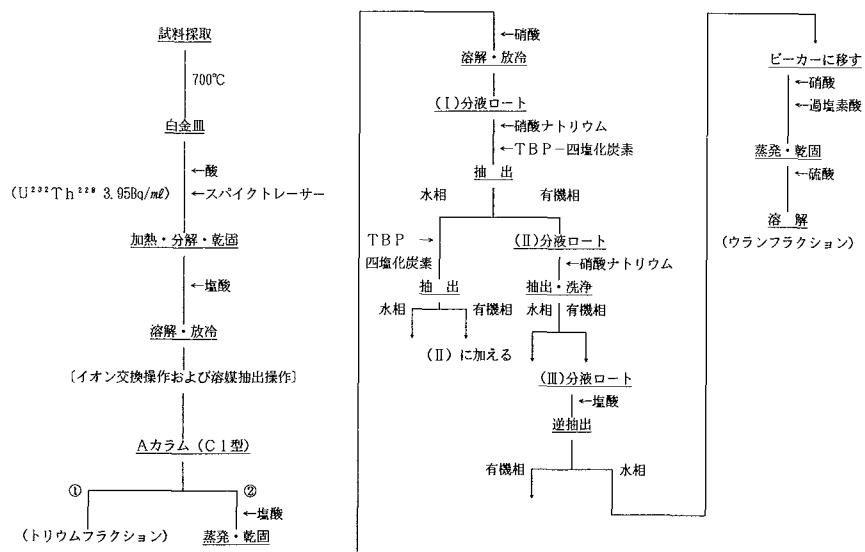


図2 岩石中の α 線スペクトル分析前処理法

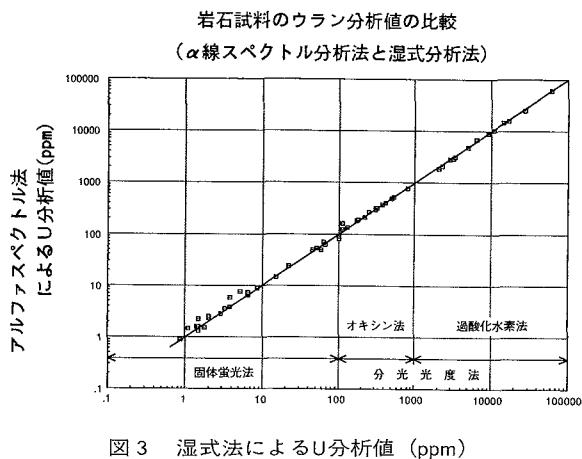


図3 湿式法によるU分析値 (ppm)

2.2 自然水サンプル

自然水中のウラン濃度はきわめて低く、東濃ウラン鉱山の周辺でも、地下水では $0.01\sim0.001\text{ppb}(\mu\text{g}/\ell)$ 程度、河川水では $0.1\sim0.01$ 程度である。したがって、これらの極低濃度サンプル中に含まれている ^{238}U と ^{234}U を、 α 線スペクトル分析法で精度良くかつ迅速に分析するには、それらの核種だけを 100ℓ 以上の大量の試料水から、分離濃縮するための前処理操作が必要となる。自然水中の ^{230}Th 濃度はウランよりも数桁低いので、この核種も分析しようすれば、さらに大量の試料から分離濃縮する前処理操作が必要となる。

この前処理法には、試料中の ^{238}U と ^{234}U を水酸化第二鉄とともに沈殿させたあと、濾過して分離する水酸化第二鉄共沈法が使われていることが多い⁶⁾。この方法は、試料中のウラン濃度が高くて、 10ℓ 以下の少量サンプリングでよい場合には適した方法であるが、サンプリング量が多くなるにしたがって、次のような問題点があった。

- ① 水酸化第二鉄の沈殿を濾過するのに時間を要する。
- ② 沈殿を作るために添加する試薬量が多くなり、その試薬中に不純物として含まれるウランを無視できなくなり、分析精度が低くなる。
- ③ 大きな容器の器壁に付着した沈殿は回収が困難になり、化学的収率が下がってくる。

そこで、自然水中の ^{238}U と ^{234}U を α 線スペクトル法で分析する際に、大量の試料から効率的に分離濃縮する前処理操作法を確立するために、キレート樹脂またはイオン交換樹脂のカラムを使う方法について検討試験を行った。文献に基づいて選択した塩基性陰イオン交換樹脂が4種類、キレート樹脂が3種類の合計7種類の中から、試験の結果、分析用マク

ロポーラス型強塩基性陰イオン交換樹脂であるバイオラド社製のAGMP（商品名）が、最も優れたウランの吸着分離性能を持っていることが分かった。このイオン交換樹脂AGMPは不純物含有量がきわめて低く、硫酸酸性でも高いウラン吸着性能を有しているので、サンプリングした後は試料を酸性状態にして保管する自然水では、ウランを分離濃縮するのに適した樹脂である。

硫酸酸性 ($\text{pH}=1.2$) にして ^{232}U スパイク溶液を添加した地下水約 100ℓ を、AGMP樹脂を充填した $1\text{cmD}\times20\text{cmL}$ のカラムに $7\text{mL}/\text{min}$ の流速で通して、ウラン同位体を吸着させて、大量の地下水から分離した後、 6N の塩酸でウラン同位体を溶離するという前処理法によって、水酸化第二鉄共沈による分離法よりも、迅速で確実に操作できるようになった。

3. 応用

1955年にウランの炭酸塩鉱物で、ウラン系列核種である ^{238}U と ^{234}U が放射平衡状態でなく、 ^{234}U が ^{238}U より濃集している ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}=3.7$) ことが発見された。その後、ウラン鉱石だけでなく岩石や自然水でも、多くの場合ウラン系列核種は放射非平衡状態になっていることが明らかになってきた。このような放射非平衡は、風化、溶解、濃集等の地球化学的プロセスの中で、親核種と娘核種とが異った挙動をとって分離した結果として起こっている現象である。そして、親核種と娘核種とが異った挙動をとつて分離した時点から、各核種がそれぞれ固有の半減期で壊変してゆくので、放射非平衡状態の解析によって、岩石、ウラン鉱石、自然水等が今まで経てきた様々な地球化学的現象に時間軸を与えることができることが、最大の特徴である。

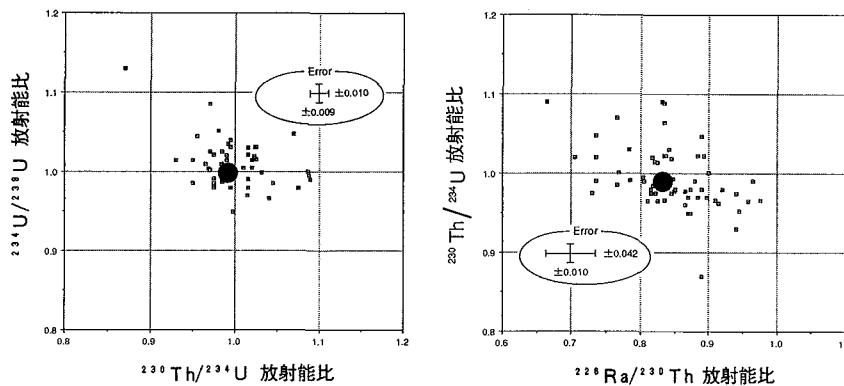
これまでに実施した、千件以上の地球化学的試料の分析例の中から、二つの応用例について紹介する。

3.1 ウラン鉱床中のウラン移動

ウラン系列核種がどの程度の時間的、空間的規模で、ウラン鉱床内を移動しているかを調査する目的で、東濃鉱山の調査坑道で 1m^3 立方の鉱体部を 25cm^3 立方の64ブロックに分けてサンプリングして、各ブロックごとに ^{238}U , ^{234}U , ^{230}Th , ^{226}Ra , ^{210}Pb のウラン系列核種について、放射非平衡分析を行った⁷⁾。

図4に示した $^{238}\text{U}-^{234}\text{U}-^{230}\text{Th}-^{226}\text{Ra}-^{210}\text{Pb}$ 間の放射非平衡分析結果、および ^{230}Th は地下水によって溶解移動しないということから、以下のこと事が明らかになった。

- (1) ウラン (^{238}U , ^{234}U) は、 25cm^3 立方の各ブロック

図 4 1 m³立方のウラン鉱体中の放射非平衡分布

■ ; 25cm³立方のブロック (64サンプル)
● ; 1 m³立方全体

クごとでは、溶脱、濃集に伴って放射非平衡になっているが、1 m³立方全体では過不足が相殺されて、相対的に放射平衡関係になっている。

$^{238}\text{U}-^{234}\text{U}$ の二核種間で放射平衡が成立するには、100万年程度の年月が必要であるので、今から少なくとも100万年前以降に、ウランは1 m以内のごくわずかの距離しか移動していない。

(2) 一方、ラジウム (^{226}Ra) は、25 cm³立方のブロック内でも、1 m³立方全体でも溶脱されている。

$^{230}\text{Th}-^{226}\text{Ra}$ 間の放射平衡が成立するには、約7～8千年程度の年月が必要であることから、ラジウムは今から六千年前以降に選択的に溶脱され、1 m以上の距離を移動している。

このようにウラン系列核種は、地層中での超長期にわたる物質移行を研究する上で、天然のトレーサーとして、また天然の時計として、幅広い利用が可能である。

3.2 ウランの探査

南オーストラリア地域において、ウラン探査の有望地域を見つける目的で、飛行機を利用した放射能探査を実施していたところ、雨期にのみ水が流れる川の岸に、広範囲にわたってきわめて高い放射能異常が発見された。この異常地の地表部分には、ウランは見つからず、ラジウムが大規模に存在していた。目的とするウラン鉱床を発見するには、この川の上流部、下流部、または異常地の地下のうち、どこを精査すればよいかを判断する際に、ウラン系列核種の放射非平衡分析が利用された。

このサンプルを分析した結果、各核種の放射能比には、 $^{238}\text{U} > ^{234}\text{U} \ll ^{230}\text{Th} = ^{226}\text{Ra}$ という関係があった。水に溶解して移行することがない ^{230}Th が、 ^{226}Ra と同程度存在することは、その親核種であるウラン

も数十万年前までは、そこに存在していたことを意味している。したがって現在は、ウランだけが水で下流部に運び去られているので、下流部の精査によって、ウランが発見できる可能性があることが明らかになった。

なお、残念ながら、ラジウム異常地の下流部で大ウラン鉱床を発見することはできなかった。しかし、ウラン系列の放射非平衡分析が、ウラン探査の効率化にも役立つことが認識されるキッカケとなり、その後、ウラン鉱床の成因研究や鉱量計算にも利用されている。

4. おわりに

地球上で現在の地形、植生、生物等の分布が決まったのは、今から2百万年程度前から始まる第四紀とよばれる地質時代である。地球環境の将来への関心が高まるにつれて、この第四紀の研究（第四紀学）は、最近は地殻変動、地下水活動、防災、気候、海洋等多くの分野で、必須の学問になってきている。この第四紀の地球化学的物質循環の歴史を解く有力な手段であるウラン系列の放射非平衡分析は、ウラン探査の分野だけでなく、地球環境中の物質移行の将来予測研究にも、広く利用されると予想される。

参考文献

- Cherdynstev, V.V. ; Trans 3rd Session Commiss. Determ. Abs. Age Geol. Form, P.175 Izd. Akad. Nauk SSSR (1955).
- Rosholt, J.R. et al ; Anal. Chem. vol.29, P1398 (1957).
- Osmond, J.K. et al ; Science, vol.162, P997 (1968).
- Chelov, P.I. et al ; Dokl. Akad. Nauk. SSSR, vol.189 P.89 (1966).
- Kigoshi, K ; Science, vol.173, P47 (1971).
- Ivanovich, M. ; Uranium Series Disequilibrium, Clarendon Press. Oxford Science Publications (1982).
- Ochiai, Y. et al ; Report of the 3rd meeting of CEC Natural Analogue Working Group, 126 (1988).



国際会議 海外派遣等

平成5年7月から9月までの間の国際会議の開催および参加、動燃事業団への主要外国人の来訪および海外派遣は次のとおりである。

(1) 国際会議

期 間	開 催 場 所	会 議 名 お よ び 内 容
6／30～7／2	フランス	〔放射性核種の地球化学に関する専門家会合〕 PNC/CEA先端技術の研究開発に関する協力協定に基づく情報交換会議
7／13～16	大洗・ふげん	〔異常検出システムに関する日露技術会議〕 旧ソ連・東欧の原子力安全に関する支援の一環として協力をを行う異常検出システムについての支援計画等の協議
8／27	東 海	〔FBR中空ペレット燃料開発に関する専門家会合〕 PNC/AEA先進的技術の研究開発に関する協力協定に基づく情報交換会議
9／20～24	東海・本社	〔高速炉燃料再処理協力レビュー会議〕 PNC/DOE高速炉燃料再処理技術開発協力の1993年度の活動報告
9／23～24	フランス	〔高速炉用制御棒および炉心材料に関する専門家会合〕 PNC/CEA先端技術の研究開発に関する協力協定に基づく情報交換会議

(2) 海外派遣・留学

派 遣・留 学 先	期 間	人 数	目 的
オーストリア IAEA	1993. 9. 1～1995. 3. 31	1名	保障措置分析業務（共同研究）
米国 在米日本大使館	1993. 7. 20～1995. 6. 20	1名	原子力外交全般支援
米国 サンディア国立研究所	1993. 7. 28～1994. 6. 27	1名	プルトニウム航空輸送容器の開発（共同研究）
米国 ゴールダーアソシエイツ社	1993. 8. 2～1994. 8. 1	1名	高レベル放射性廃棄物地層処分に関する研究（留学）
フランス フェニックス発電所	1993. 9. 1～1994. 2. 28	1名	PNC/CEA協定に基づく調査研究
ドイツ カールスルーエ原子力研究所	1993. 9. 11～1994. 3. 31	1名	日独仏高速炉協定に基づく自然循環による崩壊熱除去に関する試験に参画（共同研究）

(3) 主要外国人の来訪

訪 問 日	訪 問 先	訪 問 者
7 / 2	もんじゅ	フランスCOGEMA社 リコー副社長 他5名
7 / 12	東 海	米国オークリッジ国立研究所 ポストマ前所長 他5名
7 / 13	ふ、げん	フランス原子力庁 プシャール原子炉局長 他3名
7 / 22	本 社	米国FFTTF調査委員会 ランディス委員長
8 / 27 30 31	本 社 もんじゅ 大 洗	フランス スーパーフェニックス公聴会 プロノスト議長
9 / 29	東 海	英国原子力公社 ウッド本部長 他2名
9 / 30	もんじゅ	スイス連邦内務省科学庁 ウルショブルング長官 他3名

活動

外部発表

特許・実用新案

■外部発表

平成5年7月～9月において外部発表を終了したものは次のとおりである。

件 名	発表機関	発 表 者	
		所 属	氏 名
自律型運転制御システムの開発	日本原子力学会 「熱流動解析の革新的技術」研究専門委員会	動 燃	遠藤 昭
Axial Distribution of in the Heterogenous FBR Fuel Pins	Jouranal of Nuclear Materials	動 燃 九州大学	鹿倉 栄 鶴岡 重治 小屋 廣高 他
高速実験炉「常陽」における中性子照射量評価技術の開発	核データニュー ス核物質管理セ ンター	動 燃	茶谷 恵治
Creep-fatigue crack propagation tests and the development of an analytical for surface cracked pipe	Nuclear Engineering and Design	動 燃 川 重 東 芝	渡士 克己 川島 貴司 高橋 浩之
Creep-fatigue crack propagation behavior in a surface cracked plate	同 上	動 燃 三菱重工 富士電機	渡士 克己 金子 秀明 山下 満男
Development of Pressure-Tube Inspection Equipment and Experience in Fugen (ATR)	Jouranal of Nuclear Science and Technology	動 燃	成尾 一輝 中村 孝久
FBRの動特性について	第32回SICE学術講演会	同 上	仲井 悟
Crwp-Fatigue Failure Test and Analysis of Vessel-type Structure Subjected to Cyclic Thermal Transients	International Journal of Nuclear Engineering and Design	"	梅田 寿雄 菊池 政之 岩田 耕司 他
Seismic Behavior of a Large Free-standing Core	Nuclear Engineering and Design (SMiRt-11 特集号)	"	森下 正樹 岩田 耕司
Frequency Evaluation of Temperature Fluctuations to Related Thermal Stripping Phenomena Using a Direct Numerical Simulation Code DINUS-3	1993 ASME Pressure Vessels and Piping Conference (Jul.26-29, '93)	"	村松 寿晴
Partial correlation consideration in quantification of seismic failure sequences of a fast breeder reactor	第6回構造物の安全性と信頼性に関する国際会議 (1993年8月9日～13日)	"	山口 彰
AN EVALUATION METHOD FOR PLASTIC BUCKLING OF CIRCULAR CYLINDRICAL SHELLS UNDER SHEAR FORCES	第12回国際原子炉構造工学会議 (SMiRt12)	"	岡田 純二 永田 敬 月森 和之 岩田 耕司

件 名	発表機関	発 表 者	
		所 属	氏 名
高温クリープ疲労のミクロ損傷の研究	日本材料学会 高温強度部門委員会寿命・余寿命評価検討WG	動 燃	上野 文義
Creep-Fatigue Evaluation Method for Mor.9 Cr-1Mo Weldment	第12回国際原子炉構造工学会議 (SMiRt12)	同 上	浅山 泰 和田 雄作 長谷部慎一 平川 康
Fracture Toughness and Criterion of Unstable Ductile Fracture of Mod.9 Cr-1Mo Steel and Its Weldment	Post SMiRt12 Conference Seminar on "INELASTIC MANALYSIS, FATIGUE, FRACTURE AND LIFE PREDICTION"	"	小井 衛 青砥 紀身 和田 雄作 上野 文義
A STUDY ON CREEP DAMAGE PARAMETERS IN CREEP CAVITY GROWTH DOMINANT REGION UNDER CREEP-FATIGUE LOADING	第12回国際原子炉構造工学会議 (SMiRt12)	"	上野 文義 青砥 紀身 和田 雄作
高速増殖原型炉もんじゅにおけるナトリウム計装について	計測自動学会流体制御部会	"	井上 和彦
Creep-Farigue Evaluation of Mod.9 r-1Mo (NT)	第6回国際原子力工学セミナー	"	青砥 紀身 小峰 竜司 上野 文義 他
FBRによる消滅処理	「21世紀に向けた原子燃料サイクルの課題と展望」シンポジウム	"	若林 利男
Thermal Transient Stresses at Structural Discontinuities	Post SMiRt Conference No.11 セミナー (設計基準)	"	永田 敬
DETAILED FEM ANALYSIS FOR DEVELOPMENT OF BUCKLING EVALUATION EQUATION	SMiRt 12 ポストセミナー (設計基準関係)	"	岡田 純二 岩田 耕司 月森 和之 永田 敬
Exploratory research on creep and fatigue properties of 9Cr-steels for the steam generator of an FBR	Nuclear Engineering and Design	"	一宮 正和
Advanced evaluation of thermal ratchetting of FBR components	同 上	"	一宮 正和

件 名	発表機関	発 表 者	
		所 属	氏 名
液体金属システム国際セミナー	日本原子力学会誌「国際会議の窓」	動 燃	加納 茂機 吉田 英一
Natural Circulation Analysis of A 300KWe Lunar Base Reactor Under Decay Power Level	ICENES'93	同 上	羽賀 一男 野村 茂雄 大坪 章
FAST REACTOR SYSTEMS FOR DEEP SEA RESEARCH -深海調査高速炉システム-	同 上	"	大坪 章 羽賀 一男
自律型運転制御システムの開発 一分散型協調知識ベースシステム知識構築機能-	人口知能学会	"	佐伯 昭 大草 亨一 遠藤 昭
Mechanical Properties Change by Irradiation and The Evaluations for Heat-Treated Zr-2.5wt% Nb Pressure Tube	第10回ジルコニウムシンポジウム	"	池田 通崇 柴原 格 秋山 隆 永松 健次
三流体モデルに基づく環状噴霧流の予測手法のに関する研究(5) -非整定区間内の液膜および液滴の挙動-	混相流シンポジウム'93	動 燃	菅原 悟 鈴鹿工専 藤松 孝裕 藤田 英臣
三流体モデルに基づく環状噴霧流の予測手法のに関する研究(4) -小口径円管内大気圧力水野流沸騰CFDの検討-設定文字	同 上	動 燃	菅原 悟 京都大 三島嘉一郎 吳田 昌俊
音響による原子炉冷却材漏洩検知システム	高压ガス 高压ガス保安協会	動 燃	森下 喜嗣
Development of Pressure-Tube Inspection Equipment and Experience in "FUGEN" (ATR)	JOURNAL OF NUCLEAR SCIENCE AND TECHNOLOGY 平成5年7月	同 上	成尾 一輝 中村 孝久
核燃料サイクルをとりまく諸問題	軽水炉燃料に関する技術セミナー	"	桂川 正巳
Application of Fuzzy Logic Control System for Reactor Feed-Water-Control	IFSA&韓国ファジィ数理システム学会	"	飯島 隆 中島 良昭
新型転換炉ふげん発電所のアイソレーション管理支援システム	技術誌「FUJITSU」 1993.9月号	動 燃	磯村 和利 岡村 繁紀 菅波 潤
軽水炉と新型炉の開発(うち重水炉)	日本原子力産業会議原子力年鑑 平成5年版	動 燃	正木 信次
Estimation of Scale Effect on Effective Porosity and Longitudinal Dispersivity of a Tertiary Sedimentary Rock by Laboratory Tracer Tests and a Field Tracer Test	「Selected Papers of Hydrogeology」Vol.4	動 燃	杉原 弘造 清水建設㈱ 同和工営 石川 泰
Chloride pyrometallurgy of Uranium Ore 1, Chlorination study of the ore	原子力学会 欧文誌 H5年8月	動 燃	滝 富弘 河本 薫明 佐藤 修彰 竹中 俊英
Corrosion of detrital sand grains in uranium ores from the Kanyemba-1 deposit Zimbabwe	Ann. Rep. Inst. Geosci Univ. Tsukuba No.19	動 燃	小室 光世 小山 和俊
カナダ産試料の研磨薄片作製 -粘土鉱物に富み石英を伴わない脆弱な試料の研磨薄片作製-	日本岩石鉱物特殊技術研究会 研究討論会	同 上	大塚 康夫 藤木 伸一
赤外分光分析用極薄研磨薄片作製について	同 上	"	大塚 康夫

件 名	発表機関	発 表 者	
		所 属	氏 名
立坑掘削に伴う岩盤内のひずみの変化	土木学会第48回年次学術講演会	動 燃	杉原 弘造 鶴大林超技術研究所 吉岡 尚也 畠 浩二
サーボマニピュレータの操作性に関する考察 一マスターーム-	第32回計測自動制御学会学術講演会	動 燃	川妻 伸二
核燃料再処理工程の異常診断システム	ファジィの新しい技術展開と応用事例研究会	動 燃	巖渕 弘樹 清水 甫 菱田 正彦
Batchwise distribution studies of actinides on TRUEX partitioning method by use of high level liquid waste	GLOBAL'93	動 燃	佐藤 宗一 西田 恭輔 久野 祐輔 他
Japanese Experience in Application of the TRUEX Process to High Level Waste from Reprocessing	同 上	同 上	河田東海夫 野村 和則 駒 恭和 他
ウラン濃縮施設における保障措置	第15回保障措置講座テキスト	"	山脇 弘幸
「今後何を解決すればよいのか 一地層処分研究開発の課題と今後の展開-」	第26回原子力安全研究総合発表会	"	大和 愛司
ブルトニウムの輸送について	第25回炉物理夏季セミナー	"	久保 稔
OECD/NEA国際ストリーバ計画を振り返えって	原子力学会第9回放射性廃棄物セミナー(石川県7月7日)	"	佐久間秀樹
釜石鉱山KD-90坑道への湧水量予測解析	第9回「放射性廃棄物・夏期セミナー」	動 燃	澤田 淳 内田 雅大 Golder Associates Inc T.W.Doe P.C.Wellmann
炭素鋼オーバーパックの腐食寿命評価	同 上	動 燃	本田 明 谷口 直樹 石川 博久
純粹モンモリナイトの作製	"	動 燃	柴田 雅博 伊藤 雅和 岡本真由美
FULL-SCALE TEST ON THERMO-HYDRO-MECHANICAL PROCESS IN ENGINEERED BARRIER SYSTEM	1993 JOINT CSCE-ASCE National Conference	動 燃	藤田 朝雄 茂呂 吉司 原 啓二 雨宮 清
地質統計法を用いたスウェーデンフィンランドサイトの透水係数分布推定およびトレーサ試験解析	The Forth INTRAVEL Phase-2 Workshop	動 燃	畠中耕一郎 石黒 勝彦
国内外の高レベル放射性廃棄物処分研究の現状と動向	「21世紀に向けた原子燃料サイクルの課題と展望」シンポジウム	同 上	佐々木憲明
Performance Assessment Study in PNC/H-3 - A Japanese Approach -	SAFEWASTE 93	"	大和 愛司 増田 博之 佐久間秀樹 他
NEAR-FIELD GEOLOGIC ENVIRONMENT AS AN EFFECTIVE BARRIER AGAINST RADIO NUCLIDE TRANSPORT	1993 International Conference on Nuclear Waste Management and Environmental Remediation	"	内藤 守正 佐久間秀樹 石黒 勝彦 他
深層を含む広域地下水流动調査研究	放射性廃棄物処分-地質科学からの展望 日本学术会議	"	柳澤 孝一
地層処分研究の現状	同 上	"	山川 稔

件 名	発表機関	発 表 者	
		所 属	氏 名
A study on Treatment Method of Salt Waste Generated in Electrorefining of Pyroprocess	GLOBAL'93	動 燃 産業創造研究所	小林 洋昭 池田 孝久 熊谷 幹郎 高島 洋一
ベントナイトの鉱物組成分析	第37回粘土科学討論会	動 燃 タニミネ工業㈱	柴田 雅博 佐々木康雄 伊藤 雅和 他
ベントナイトによる地下水の水質変化に関する実験的研究	同 上	動 燃	佐々木康雄 柴田 雅博 油井 三和 石川 博久
Effect of Temperature on the Entrainment of Ruthenium, Technetium and Selenium in Continuous Calcination of Simulated High-Level Liquid Waste	Journal of Science and Technology Vol. 29 No.6 p.576-581	同 上	五十嵐 寛 加藤 功 高橋 武士
The Alteration of Charge Location in Expandable Layers at The Initial Stage of Iltization	第10回国際粘土学会	動 燃 上越教育大学	柴田 雅博 油井 三和 石川 博久 渡辺 隆
圧縮ベントナイトの水分拡散係数と水分特性について	農業土木学会平成5年度大会	動 燃 検査開発㈱ 東大・農学部	竹内 真司 原 啓二 鈴木 英明 中野 政詩
レーザウラン濃縮(2)分子レーザ法	第8回核燃料・夏期セミナー	動 燃	島崎 善広
汎用ユーザーズ版EGS4のスカイシャイン線量評価への適用検討	第3回「EGS4研究会」	動 燃 原子力システム	野尻 一郎 成田 翁 深作 泰宏
大強度CW電子線形加速器の開発の現状	第18回リニアック技術研究会	動 燃	遠山 伸一 江本 隆 野村 昌弘 他
The Concept of Rarallel Input/Output Processing for An Electron Linac	同 上	同 上	江本 隆
大強度CW電子線形加速器用加速管の大電子力試験	"	"	尾下 博教 遠山 伸一 野村 昌弘 他
レゾナンストリングによるL-バーンド高周波窓の耐電力試験	"	"	平野耕一郎 江本 隆 遠山 伸一 他
大強度CW電子線形加速器用電子銃の開発(II)	"	"	野村 昌弘
ガス捕集用電離箱の電離効率の計算	第3回EGS4研究会	"	鳥居 建男
核燃料施設における被ばく低減化対策と最適化の試み	ワークショップ「放射線防護の最適化」	"	石田順一郎
超高温処理法による群分離・高減容固化の研究	第9回「放射性廃棄物・夏期セミナー」	"	堀江 水明
赤外多光子解離反応により生成したUF ₆ 微粒子のX線光電子スペクトル	第30回理工学における同位元素研究発表会	"	上原 典文 須藤 収 島崎 善広 他

件 名	発表機関	発 表 者	
		所 属	氏 名
Effect of the Dispersion of SiO ₂ Particles on Thermal Recovery in Deformed Copper	JIMIS-7 ASPECTS OF HIGH TEMPERATURE DEFORMATION AND FRACTURE IN CRYSTALLINE MATERIALS	動 燃 東京農工大	吉武 康光 長谷川 正徳 高橋 堀内 良
Analysis on VAMAS Low Cycle Fatigue Round Robin Test in Japan	ISIJ International Vol.33 (1993), No.8	動 燃 IHI NRIM	小峰 竜司 北川 正樹 山口 弘二 他
人体形状ファントムモデルを用いた線量当量計算へのEGS4汎用ユーザーズ版の適用	第3回「EGS4研究会」講演レポート	動 燃 三菱原子力 原子力システム	野尻 一郎 成田 翁 岩井 敏 泰宏
High Power CW Linac in PNC	第9回加速器科学研究発表会	動 燃	遠山 伸一 王 元林 江本 隆 他
NEW TRANSMUTATION METHOD BY USING MOVING TARGET (II)	ICENES'93	動 燃 東北大・金研	野村 昌弘 中村 昭司 小無 健司
STUDY ON TRANSMUTATION OF MINOR ACTINIDES AND FISSION PRODUCTS IN A PROTOTYPE FAST REACTOR WITH MIXED-OXIDE FUEL	同 上	動 燃 B. N. L	原田 秀郎 高下 浩文 高橋 武士 高橋 博
Recovery and Utilization of Valuable Metals from Spent Nuclear Fuel (1)	1993 International Conference on Nuclear Waste Management and Environmental Remediation	動 燃	明珍 宗孝 川瀬 啓一 和田 幸男 岸本洋一郎
FEASIBILITY, STUDY OF PHOTOCHEMICAL MUTUAL SEPARATION TECHNOLOGY BETWEEN NEPTUNIUM AND PLUTONIUM IN NITRIC ACID SOLUTION	Actinides-93	動 燃 東京工業大学	和田 幸男 森本 審一 富安 博
Transmutation of Long-Lived Radioactive Nuclides	GLOBAL'93	動 燃 B. N. L	高下 浩文 原田 秀郎 高橋 博
核燃料施設の機器免震に関する研究	土木技術セミナー	動 燃 ㈱奥村組	中山 一彦 瓜生 满 栗本 雅裕 稻葉 金正
核燃料施設の機器免震に関する研究(その8 三次元部分免震装置の概要)	1993年日本建築学会	動 燃	中山 一彦 瓜生 佐藤 寿人 他
高気圧炭酸ガスレーザ光を用いた四光波混合過程における単一パルス内中心周波数のショット毎のふらつき	1993年秋期第54回応用物理学学会学術講演会	同 上	鈴木 島崎 美寿善 廣
新型冷却機構バラ水素ラマントレーザ発振特性	同 上	動 燃 理化学研究所	宮本 泰明 川上 重秋 島崎 善広 田代 英夫
安定フラーレンC ₈₆ ,C ₈₈ の分離と検出	日本化学会第66秋期年会	動 燃	山本 和典 鹿野 祥晴 石黒 敏明 船坂 英之

■特許・実用新案

平成5年7月より9月の間に登録および承継された特許・実用新案は次のとおりである。

種類	登録番号	登録年月日	発明の名称	備考
特許	I657827	4. 4. 21 (5. 3. 22)	ノズル内面コーナ部の超音波探傷法	三菱重工㈱より持分承継
特許	I712888	4. 11. 27 (5. 5. 24)	放射性廃液処理用カートリッジおよびその製造法	旭ファイバーグラス㈱より持分承継
特許	I737449	5. 2. 26 (5. 5. 24)	コンデンサ型耐高温・耐放射線マイクロホン	赤井電機㈱より持分承継
特許	I775957	5. 7. 28	液体金属冷却型高速増殖炉の主冷却系装置	
特許	I780054	5. 8. 13	マイクロ波加熱焙焼・還元装置	
特許	I775963	5. 7. 28	圧力管型原子炉	
特許	I774923	5. 7. 14	三次元変位検出器	
特許	I777705	5. 7. 28	高温液体容器におけるオーバーフロー系統の液位変更装置	
特許	I770625	5. 6. 30	滴下液滴の光学的定量方法	
特許	I782916	5. 8. 31	コールドトラップ	
特許	I770126	5. 6. 30	マスク・スレーブマニピュレータの制御方法	㈱明電舎と共有
特許	I768600	5. 6. 30	連続式UO ₃ 水和装置および方法	不二パワーダル㈱と共有
実用新案	I951056	5. 1. 28	プロワー付防じん・防毒マスク	興研㈱と共有
実用新案	I978178	5. 8. 11	マニピュレータの起動機構	㈱明電舎と共有
実用新案	I972605	5. 6. 25	スクラバ	石川島播磨重工業㈱と共有
カナダ	I317690	1993. 5. 11	Calandria Tank for Pressure Tube Type Nuclear Reactor	
カナダ	I319207	1993. 6. 15	Nuclear Reactor of a Unitary Pressure Container Structure	
フランス	8908342	1993. 6. 25	Procede de Preparation de Tetrafluorure d'Uranium	
フランス	9001307	1993. 6. 4	Reacteur Rapide Refroidi par Metal Liquide	
フランス	9003390	1993. 6. 4	Système d'arrêt Automatique d'un Reacteur Nucleaire	
アメリカ	5211742	1993. 5. 18	Method of Converting Uranium Dioxide Into Metallic Uranium Lump	
アメリカ	5223223	1993. 6. 29	Method of Concentrating Plutonium Nitrate Solution at Low Temperature	
イギリス	BG0190657	1992. 4. 15	Silica Glass Optical Conductor	三菱電線工業㈱と共有
フランス	FR0190657	1992. 4. 15	Silica Glass Optical Conductor	三菱電線工業㈱と共有
ドイツ	P36847925	1992. 4. 15	Silica Glass Optical Conductor	三菱電線工業㈱と共有
イタリー	IT0190657	1992. 4. 15	Silica Glass Optical Conductor	三菱電線工業㈱と共有

■特許・実用新案紹介

「放射性廃液の固化処理装置」

(特許第1628361号)

1. 本発明の背景

原子力発電所で使用された燃料、いわゆる使用済燃料の再処理過程で分離される高レベル放射性廃液を、取扱が容易なより安定な状態とするため、ガラス原料と高い温度で溶融し、キャニスターと呼ばれるステンレス製の容器に入れ、ガラス固化体とする処理法の研究開発が進められている。

従来の方法では、放射性廃液はガラス原料とともに直接溶融炉内へ供給され溶融されるため、放射性廃液が溶融したガラス面(1,000~1,100°C)と接触して激しく沸騰し、微粉やミストの発生により排ガス処理系での閉塞が生じたり、多量の熱が奪われる等による処理能力の低下がおこっている。

本発明は、これらの状態を改善し処理能力の向上と溶融炉自体を簡素化する放射性廃液の固化処理装置の改良に関するものである。

2. 本発明の内容

本発明は、放射性廃液を吸水性の良好なカートリッジにしみ込ませ、それを加熱処理することによって、放射性物質を固定化するための装置であって、放射性廃液を吸水性のカートリッジに吸収させた被処理物を加熱処理する炉本体と、その炉本体の上部と連動し略水平に延びる被処理物供給路と、そ

の被処理物供給路の基端側に位置するカートリッジ供給配管ならびにカートリッジ押出装置と、被処理物供給路の中間部に接続される廃液供給配管と、炉本体上部に接続された排ガス管とからなることを特徴とする放射性廃液の固化処理装置である。

3. 特徴と効果

本発明は、上記のように構成した放射性廃液の固化処理装置で図1に示すように、被処理物を加熱処理する炉本体に被処理物供給路、カートリッジ供給配管、カートリッジ押出装置、廃液供給配管等が一体として取付けられた構成であり、しかも乾燥溶融のための炉が一つで済むので装置は非常に簡単な構造で済み、乾燥生成物の付着したカートリッジではなく、廃液のしみ込んだカートリッジを炉本体に直接供給するので微粉の飛散をきわめて低く抑えるとともに、排ガス管が炉本体上部に直接取付けられる構成であるので、排ガス処理がスムーズにかつ容易にできるほか、全体として固化処理工程を著しく簡素化することができるといった優れた効果がある。

動燃事業団では、本発明の基本的な原理を「ガラス固化技術開発施設」(平成4年4月完成)の主要工程であるガラス溶融工程に採用している。

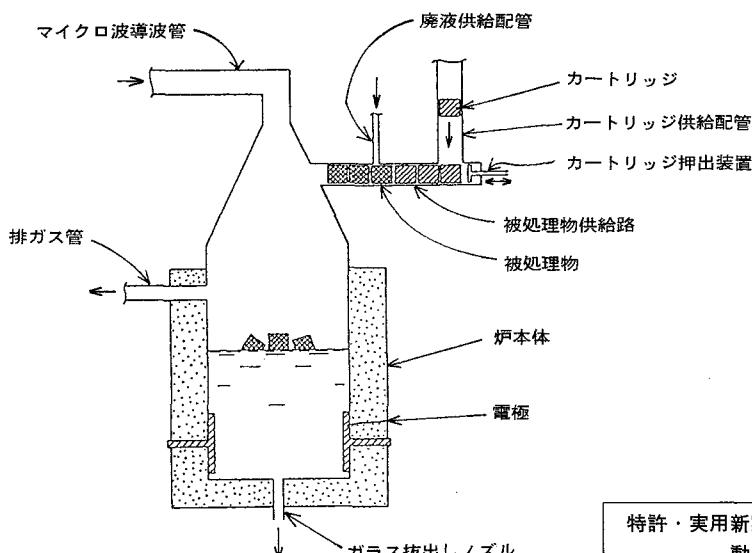


図1 「放射性廃液の固化処理装置」の実施例

特許・実用新案紹介についての問合せ先

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術協力室

東京 (03) 3586-3311

動燃技報 1993. 12 No. 88
平成5年12月発行

©1993 POWER REACTOR AND NUCLEAR FUEL
DEVELOPMENT CORPORATION

禁無断転載

編集発行 動力炉・核燃料開発事業団
技術協力部 技術管理室
東京都港区赤坂1-9-13
(三会堂ビル) 〒107
Tel. 03 (3586) 3311(代)

印 刷 株式会社 菜根出版
東京都千代田区平河町1-8-13

Abstracts (PNC Technical Review)

Development of High Power CW Electron Linac

Shin-ichi Tōyama Satoshi Tani

PNC Technical Review No. 88 p. 19 — 28 (1993)

Based on the OMEGA program, PNC has been pursuing a possibility to transmute long-lived fission products using accelerators. To develop high beam acceleration techniques, which will be needed in the future transmutation systems, a high power CW electron linac was designed and main components such as a klystron and an accelerator guide were trially fabricated and tested. The energy of the accelerator is limited to 10 MeV, but the maximum/average beam current are 100 mA/20 mA, which are extremely high compared those of the existing electron linacs.

As a result of high power test, the klystron and the accelerator guide showed excellent performance, thus, it has been demonstrated that the high beam current will be obtained at the actual linac. Fabrication of accelerator components will be started next year and all the components will be installed in 1996.

Key Words: OMEGA Program, Long-Lived Fission Products, Transmutation, Electron Linac, Klystron, Accelerator Guide, High Power Test.

Separation and Purification of n-Dodecane from Spent Organic Solvent in Nuclear Fuel Reprocessing by High Pressure Crystallization

Takeshi Nemoto Akio Todokoro

PNC Technical Review No. 88 p. 29 — 39 (1993)

The high pressure crystallization is a newly developed crystallization process where pressure instead of cooling temperature is controlled as the motive force to crystallize or to melt. The applicability of this process for separating n-dodecane from solvent was studied by using simulated solvent.

This paper reports on behaviour of crystal growth and melt of n-dodecane in solvent, and on separation of n-dodecane from solvent. The conclusions are as follows:

- 1) A high purity over 98.5% has been attained under the conditions that the feed concentration of n-dodecane was 70%, and the separation temperature and pressure were -10°C and 100 MPa, respectively.
- 2) It is possible to reuse in nuclear fuel reprocessing as solvent for extraction and diluent washer process.
- 3) This process is the method by means of phase change of substance. Therefore it does not produce any other waste, and it can be used for reducing the generation radioactive waste.

From these results, it is suggested that this high pressure crystallization process will provide a new type of separation process for n-dodecane in solvent.

Key Words: Solvent Regeneration, Fuel Reprocessing, Salt Free Process, High Pressure Crystallization.

Basic Study of Photochemical Valency Adjustment of Plutonium (Pu) and Neptunium (Np) in Nitric Acid Solution

Yukio Wada Kyoichi Morimoto Takayuki Goibuchi

Hiroshi Tomiyasu

PNC Technical Review No. 88 p. 40 — 53 (1993)

A photochemically-induced valency adjustment method has been studied to remove Np from the mixed nitric acid solutions of Pu and Np in connection with the Purex reprocessing. The valencies of Pu and Np ions were adjusted to be Pu(III) and Np(V) under the initial conditions and their concentrations were 1×10^{-4} and 1×10^{-3} mol · dm⁻³ respectively. Experiments were carried out under various conditions changing irradiation intensities of the Hg lamp in various concentrations of HNO₃. It was found that the rates of redox reactions of Pu ions were significantly affected by the irradiated light as well as the acid strength. Under the irradiation of a 0.015W Hg lamp in 3M HNO₃ solution containing a tenfold excess of hydroxylamine and hydrazine, more than 95% Pu(III) was oxidized rapidly to Pu(IV) within 10 minutes irradiation and it remained at the same valency even after continuous further irradiation. On the other hand, the irradiation did not change the valency of Np(V) under the conditions studied. These valency conditions, i.e. Pu(IV) and Np(V), are appropriate for separating Np from Pu by solvent extraction with TBP-n-dodecane. The present results lead to the conclusion that the photochemical method has a high potential for removing Np from mixed solution of Pu and Np.

Key Words: Photochemical Separation, Purex Process, Valency Adjustment, Plutonium, Neptunium, Transuranium, Solvent Extraction, Refining, Redox Reaction, Redox Potential, Hg Lamp, Valency Control, Photo-Excitation.

Development and Fabrication of MOX Fuels for Fugen

Mitsuru Miura Nobuo Sukegawa Takatoshi Okita

Kenji Watanabe Morimoto Deguchi Yoshibumi Yokosuka

Shinobu Ishida Seiji Otani

PNC Technical Review No. 88 p. 54 — 63 (1993)

Fabrication of MOX fuel for Fugen has started in Plutonium Fuel Fabrication Facility (PFFF) at Tokai Works, PNC in July, 1975. 500 MOX fuel assemblies was fabricated by May, 1992. Up to now, about 550 MOX fuel assemblies have been fabricated.

These assemblies have been irradiated in Fugen without any failure, and good performance was demonstrated.

Experience and features of Fugen MOX fuel fabrication and the recent study of using a dry recovered powder from Joyo pellets as Fugen raw materials are described in the paper.

Key Words: Plutonium, Mixed Oxides, ATR, FBR, JOYO, FUGEN, PFFF, DCA, Mixed Oxide Fuel.

Study on Creep-Fatigue Evaluation of Chrome-Molybdenum Steel

Kazumi Aoto Yusaku Wada

PNC Technical Review No. 88 p. 64 — 70 (1993)

Though chrome-molybdenum steel has quite different basic material properties from austenitic stainless steel, the life fraction rule based on an advanced ductility exhaustion theory proposed for SUS304 is able to give proper prediction for creep-fatigue life of chrome-molybdenum steel. The applicability of the present evaluation method to chrome-molybdenum steel is validated by both mechanical study and micro-structural observation. The mechanism of creep-fatigue failure of Mod.9Cr-1Mo(NT) is one of the most controversial subjects among researchers. However, it is clarified in this report that creep-fatigue damage of this material under actual loading conditions is dominated by creep-cavitation of grain boundaries as same way as that of austenitic stainless steel.

Furthermore, for the life reduction of low cycle fatigue of chrome-molybdenum steel with compression-side strain hold, both effects of mean stress and oxide-wedge are denied and it is insisted that the acceleration of fatigue-crack propagation is occurred by oxide-progress location and its thickness.

Key Words: Chrome-Molybdenum Steel, Creep-Fatigue, Creep Damage, Creep Cavity, Linear Damage Rule, Life Fraction, Ductility Exhaustion, Compression Strain Hold, Oxide, Fatigue Crack Propagation, Elevated Temperature Structural Design.

Highly Developed Operation Supporting System "FATRAS" for Fugen

Takuo Kaneko Naoto Sakurai Masaru Kobori

Hiroshi Nishimura Hiroshi Ikeda

PNC Technical Review No. 88 p. 71 — 75 (1993)

Highly developed operation supporting system which can simulate the plant's behavior just as well as a fullscope simulator has been introduced to the prototype advanced thermal reactor (ATR) Fugen since 1990. This system (FATRAS) is used for many purposes including learning ATR's characteristics, operation training and examination related to improvement in operation technology.

This FATRAS has touch-screen CRTs and a main control panel simulation board. Several small simulation indicators and switches are provided on this board. With these switches and CRTs, a trainee can experience many operations in the same way as with the actual plant equipment.

Through such experience, operators of the plant learn ATR plant dynamics and plant interlocks, and practice operation.

Key Words: Operation supporting system, Plant's behavior, Simulator, Learn ATR's characteristics, Operation training, Development system organization, Function, Simulation model.

The Establishment of Continuous Operation for the Denitrator in Uranium Denitration Facility of Tokai Reprocessing Plant

Atsushi Watanabe Toyomi Uchida Noboru Matsuda

Kiyotaka Taki Akira Maki Kanzi Akiyama

PNC Technical Review No. 88 p. 76 — 79 (1993)

Uranium Denitration Facility was constructed to establish the continuous operation of Uranium Denitration Process, causing the stable operation of TRP. At the beginning, this facility had experienced only one week continuous operation under the designed capacity, 1 t/day. It had been difficult to maintain the long term continuous operation of this facility, because the injection nozzle of uranyl nitrate was clogged frequently.

So that, we carried out various tests to find out the factor of nozzle clogging, and finally, we established the condition of the long term continuous operation for the facility.

Key Words: Uranium Denitration Facility, Uranium Denitration Process, continuous operation, injection nozzle, nozzle clogging.

Outline of Geological Isolation Research Facility and Test Program of R&D in this Facility

Tadashi Mano Hirohisa Ishikawa

PNC Technical Review No. 88 p. 80 — 83 (1993)

R&D work to confirm technical feasibility of the geological disposal concept of HLW is underway based on the multi-barrier concept with a variety of geological environment. With this in mind, major objectives of the study have been defined to clarify the physical and chemical laws which dominate the phenomena in a repository.

The new facility for performance assessment study of geological isolation system has been constructed to investigate phenomena anticipated in the multi-barrier system of geological disposal. The facility has engineering scale test equipment which can provide deep underground conditions and can examine how multi-barrier system behaves under such conditions. The outline of the research and development at the facility is described in this paper.

Key Words: Geological Isolation, Performance Assessment, Multi-barrier, Engineering Scale, Underground Condition, Coupled Process, Physical Phenomena, Chemical Phenomena, Validation Experiment.

Uranium Series Disequilibrium in Natural Environment

—Chemical Procedures and Applications—

Masatoshi Okita Yoji Ochiai

PNC Technical Review No. 88 p. 84 — 87 (1993)

The radioactive disequilibrium within U-series nuclides occur as a result of geochemical separations due to different geochemical behaviour of each nuclide through weathering, alteration and mobilization in near-surface environment. After the separation of parent and daughter nuclides, each nuclide decreases independently according to the law of radioactive decay. The analytical interpretation of U-series disequilibrium tells us, therefore the geochemical behavior of radioactive nuclides in the rock, ore and natural water during the last one million years.

In this report, advanced quick chemical pretreatment methods for alpha spectrum analysis are discussed based on recent our research work in the chemical pretreatment. Its analysis on migration of U-series nuclides based on radioactive disequilibrium and its application to uranium exploration are also described.

Key Words: Uranium Series Disequilibrium, Geochemistry of Uranium, Chemical Pretreatment, Migration of Uranium Series Nuclides, Uranium Exploration.

動力炉・核燃料開発事業団

本 社	東京都港区赤坂 1-9-13 三会堂ビル	〒107	TEL (03)3586-3311
人形峠事業所	岡山県苫田郡上齋原村 1550	〒708-06	TEL (0868)44-2211
中部事業所	岐阜県土岐市泉町定林寺園戸959-31	〒509-51	TEL (0572)54-1271
東海事業所	茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33	〒319-11	TEL (0292)82-1111
大洗工学センター	茨城県東茨城郡大洗町成田町 4002	〒311-13	TEL (0292)67-4141
敦賀事務所	福井県敦賀市木崎 65-20	〒914	TEL (0770)23-3021
新型転換炉 ふげん発電所	福井県敦賀市明神町 3	〒914	TEL (0770)26-1221
高速増殖炉 もんじゅ建設所	福井県敦賀市白木 2-1	〒919-12	TEL (0770)39-1031

<海外事務所>

WASHINGTON	PNC Washington Office Suite715, 2600 Virginia Avenue, N. W., Washington D.C.20037 U. S. A.	TEL 202-338-3770 FAX 202-333-1097
PARIS	PNC Paris Office 4-8, Rue Sainte-Anne, 75001 Paris France	TEL 1-4260-3101 FAX 1-4260-2413
北京	北京事務所 中華人民共和国 100004 北京市朝陽区東三環北路5号 北京發展大厦602房間	TEL (1)501-0564 FAX (1)501-0566
VANCOUVER	PNC Exploration(Canada)Co. Ltd. 2401-650, West Georgia Street, Box 11571 Vancouver Centre, Vancouver, B. C. V6B 4N8 Canada	TEL 604-681-6151 FAX 604-682-3452
SYDNEY	PNC Exploration(Australia)Pty. Ltd. 16th Floor, Royal Exchange Bldg., 56 Pitt Street, Sydney, N. S. W. 2000 Australia	TEL 2-241-1594 FAX 2-251-1584
PERTH	PNC Exploration(Australia)Pty. Ltd. Perth Branch 26 Lyall Street, South Perth W. A. 6151	TEL 9-474-1120 FAX 9-474-3709