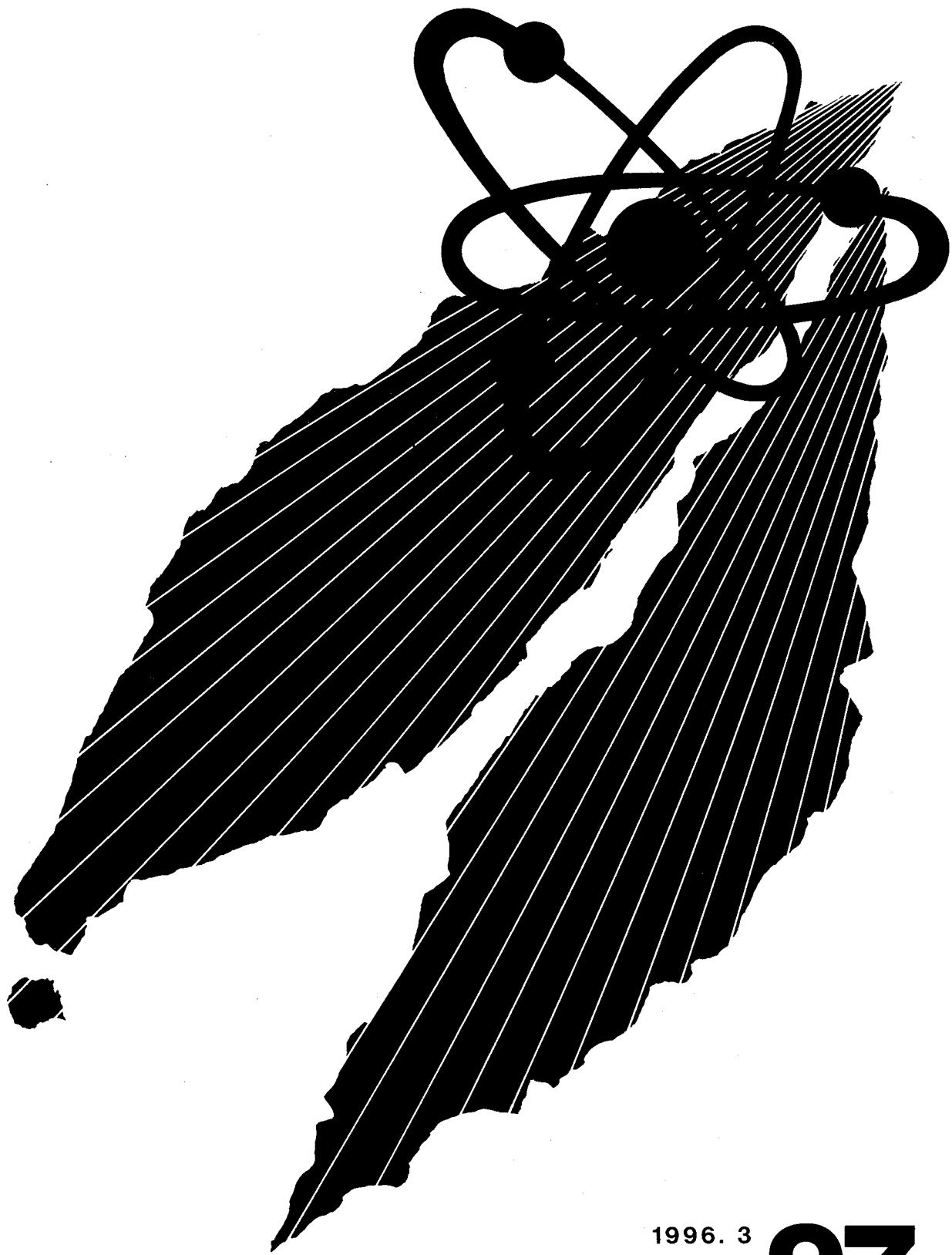


動燃技報

PNC Technical Review



1996. 3
No. 97

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	7
再処理技術の開発	8
ウラン資源・探鉱と技術開発	9
廃棄物処理処分の開発	11
ウラン濃縮技術の開発	13
安全管理技術の開発	14
核物質管理業務	16

放射性廃棄物核種の中性子断面積の研究	132
原田 秀郎 中村 詔司 加藤 敏郎 和田 幸男	
リアルタイムエキスパートシステムによるウラン	
濃縮プラントシミュレータの開発	137
児玉 信一 近藤 千博	
表層水理観測システムによる水収支の算定	
—岐阜県東濃鉱山におけるケーススタディー	145
小林 公一 中野 勝志 小出 馨	
「常陽」廃棄物処理施設の建設と運転	151
宇佐美朋之 会川 英昭 飛田 祐夫	

技術報告

TRUEX溶媒の熱特性および硝酸との発熱反応に関する試験	18
林 直美 武田 伸莊	
アサバスカ層群マニトーフォールズ累層の地球化学的特性と試錐孔評価（その1）—統計的データ解析によるしきい値の設定と変質度指数の導出—	29
飯田 義正	
大電流CW電子線形加速器入射部の開発について	46
江本 隆 野村 昌弘	
超耐熱Nb基およびMo基合金の設計開発	57
齊藤 淳一 館 義昭 加納 茂機 森永 正彦	
古井 光明 井上 聰	
三価ランタニドの溶解度測定	67
瀧谷 早苗	

国際協力

国際会議、海外派遣等	157
------------	-----

活動

外部発表・特許・実用新案	158
--------------	-----

技術小論

γ線基準校正場の品質保証	76
三上 智 豊田 素子	
涸沼におけるフォールアウト核種の移行挙動研究	
—湖底堆積物中の ¹³⁷ Csの挙動—	82
武石 稔 中島 尚子 渡辺 均	
航空機リモートセンシングデータを利用したスペクトル指標による岩相識別	87
山岸 明子	
高速炉の受動的炉停止方策に関する研究	94
家田 芳明 宇都 成昭	
「常陽」照射用炉心の炉心冷却材流量配分評価	103
鈴木 俊宏 磯崎 和則 鈴木 惣十	
「常陽」シミュレータによる運転教育訓練とその高度化計画	110
澤田 誠 寺野 壽洋 舟木 功	
3次元六角体系用輸送ノード法の開発	115
杉野 和輝	
グローブボックス用遠隔取扱治具の開発	122
富田 豊 根本 剛 出沼 昭生 都所 昭雄	
鉄共存下におけるMOX燃料中のプルトニウム電量分析	126
影山十三男 檜山 敏明 山本 純太 上村勝一郎	



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は、定格出力（16.5万kW）にて運転を継続していたが、11月2日より第23回目の燃料取替のための計画停止に入った。

今回の計画停止では、MOX燃料19体、ウラン燃料9体、照射用ガドリニア燃料4体の計32体を取り出し、MOX18体、ウラン燃料14体を装荷した。これにより、累積の燃料装荷体数は、MOX燃料620体、ウラン燃料541体となった。

なお、計画停止作業は予定どおり完了し、11月23日に原子炉を起動、翌11月24日に発電を再開、11月28日には計画どおり定格出力に到達し以降安定運転を継続している。今後、平成8年4月から予定している第13回定期検査まで運転を継続する。

「ふげん」の定期安全レビュー(PSR)に係わる運転経験の包括的評価、最新の技術的知見の反映、アクシデントマネジメントに関する評価作業を引き続き進めている。

また、「新型転換炉実証炉建設計画の見直しについて」(平成7年8月25日 原子力委員会決定)を受け、関係機関間で協議を進めてきた「ふげん」等新型転換炉関連施設の活用方策が、科学技術庁を中心とりまとめられ12月8日に原子力委員会および地方自治体へ報告された。これに関連し、「ふげん」の活用方策等に係わる技術的検討、調整を実施し動燃事業団の方針策定に資するとともに、関連業務の見直し等所要の対応を行った。

平成7年度第3四半期の運転実績は、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 (%)
7年10月	121,745	744	100.0	99.99
7年11月	25,497	190	26.4	21.5
7年12月	122,760	744	100.0	100.0
合 計	271,002	1,678	76.0	74.4

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開発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(株)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(株)より平成7年度分の依頼を受け施行しているが、平成7年8月25日の原子力委員会決定を受けて、今後の進め方について電源開発(株)と調整中である。

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、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線物質の蓄積傾向を評価している。また、亜鉛イオン注入、使用済イオン交換樹脂の処理技術に係わる技術開発を継続して実施している。

2.2 設計研究

「ふげん」の(運転コード)を用いて、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。

「ふげん」高燃焼度燃料の核的特性評価手法の高度化のため、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

核計算手法高度化のため、格子計算コードWIMS-ATRと連続エネルギーモンテカルロ計算コードとでDCA実験解析結果の比較検討を実施している。

重水臨界実験装置(DCA)では、ATR炉心の炉心核特性の詳細評価を目的とする基礎的な炉物理実験が実施されている。

2.4 伝熱流動研究

高燃焼度燃料(54本クラスタ)の伝熱流動試験として、軸方向出力分布の効果を明らかにするためのバーンアウト試験およびデータ整理を継続して実施している。また、FIDASコードで試験解析を行い、54本クラスタ燃料のバーンアウト特性の解明を実施している。

2.5 安全性研究開発

ATRで溶融燃料挙動を解析するためのコード整備を行った。また、このコードと動燃事業団で開発してきたコードとのベンチマークを終了した。また、溶融燃料が圧力管内に放出された時の圧力管の熱影響を実験的に調べるための試験を行い、結果の解析を行っている。

「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品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終了し報告書作成を行っている。

「ふげん」定期検査時の被ばく低減化を目指して実施を予定している亜鉛注入に関連して、炉心構成部材の腐食特性を調べる試験の試験片および試験装置の製作を完成した。

2.6 部品・機器試作開発

高燃焼度54本クラスタ燃料の耐久試験を行い、トータル3,200時間に達したので試験を停止して

燃料をテスト部より取り出した。トータル1,400時間までの中間データを測定している。圧力管余寿命評価手法の開発については、現在まで得られている国産圧力管照射材データ、クリープデータおよび非照射材データのデータベース化のための入力作業をほぼ終了した。また、今まで入力したデータのチェックを行い、これらを処理するプログラムを検討している。第2回圧力管ラウンドロビンテスト(カナダ主催)を実施するため、装置の点検を行っている。さらに、ふげん圧力管の健全性評価のための条件を検討した。また、水素化物を非破壊法で測定するための定量化精度向上を目的としたウェーブレット解析の計画を作成した。

2.7 燃料・材料研究開発

(1) 構造材料

「ふげん」の第12回定期検査時に取り出した第4回圧力管材料監視試験片の腐食試験およびフラックスモニターの調整作業を行っている。また、第2回および第3回監視試験の報告書を作成している。

(2) MOX(ATR用)燃料のR&D

実証炉のための燃料照射試験については、電発からの受託研究として「ふげん」で照射された集合体のうち、2体目について非破壊試験を原研東海研究所において終了した。

ハルデン炉における日負荷追従試験については、照射燃料棒の照射後破壊試験を継続した。また、ハルデン炉における出力急昇試験については、照射燃料棒の照射後非破壊試験を開始した。これらの試験については、実証炉計画中止に伴い、試験内容の変更および一部中止を検討した。

ハルデン炉で照射するMOX-Gd₂O₃燃料要素の加工を終了し、報告書を作成した。

(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. 高速実験炉常陽

平成7年5月10日に開始した第11回定期検査を継続した。主な点検・作業としては、2次主循環ポンプ・主冷却機など2次系機器、1次系・2次系プロセス計器等の点検・交換を実施した。

また、燃料交換機、燃料交換機制御系および回転プラグ制御系等の改造工事を継続している。

照射技術の高度化、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、更新する機器等の製作設計対応を実施した。また、MK-III燃料および新規製作する主中間熱交換機の設工認を受領した。

2. 高速増殖原型炉もんじゅ

高速増殖原型炉もんじゅは、10月から11月にかけて計画どおり起動試験を実施した。その後、12月6日に原子炉を起動し、40%出力試験の一環としてのプラントトリップ試験のため出力上昇中の12月8日19時47分、2次主冷却系Cループにおいてナトリウム漏洩が発生したため、同日21時20分に原子炉を手動停止した。さらに、補助冷却系設備による冷却を行い、プラントを低温停止状態へ移行させた。1次主冷却系Cループと漏洩が発生した2次主冷却系Cループのナトリウムを抜き取った後、2次主冷却系の各室に飛散したナトリウム化合物の除去・回収作業を実施している。

(1) 工場製作状況

取替用の制御棒、炉心燃料集合体およびブランケット燃料集合体の製作を継続して実施した。

(2) 試運転状況

現在、原子炉を停止した状態で、2次系ナトリウム漏洩に関する原因調査を実施中である。

3. 高速増殖炉固有の技術開発

3.1 安全性の研究

集合体内の局所的な異常の拡大防止に関連し

て、ポーラス状閉塞の冷却限界を調べるための実験的・解析的研究を実施している。

安全解析コードの開発では、炉心損傷事象評価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(SAS4A)については、プレナムガス放出モデルの改良を終了し、実機への適用性評価を進めた。遷移過程評価コード(SIMMER-III)については、基礎検証研究の評価とまとめおよび総合検証研究を進めている他、実機への適用研究を行っている。

炉心物質移行挙動試験については、高温融体と冷却材の相互作用(FCI)試験を進めており、これまでの試験結果の整理・評価を継続するとともに、融体としてステンレス鋼を使用する高温実験の準備を進めている。仏国との共同研究として実施しているCABRI-FAST試験については、試験後解析を継続するとともに、残りの2回の試験を11月および12月に実施した。また、平成8年度よりの次期共同試験計画の具体化を進めている。

受動安全性に関しては、受動的な炉停止システムや崩壊熱除去システムについての検討を進めるとともに、核的なフィードバックも含めて過渡的な炉心冷却特性を評価するための解析コードシステムの開発を進めている。

また、炉内安全性試験計画(SERAPH)については、再臨界排除、炉心局所異常の安定冷却性、高性能燃料の過渡時健全性を重点とした炉内安全性試験課題の検討と、それに対応可能な試験施設概念の検討を継続している。

ソースターム評価手法の開発に関しては、実燃料からのFP放出挙動評価のためのホット試験装置による予備試験を継続している。また、ヨウ素気泡のNa中溶解挙動やFPの気液平衡分配係数に関する試験を行っている。解析研究としては、炉内ソースタームの挙動解析コード(TRACER)の検証・適用性検討等を行っている。

格納施設の安全評価手法の開発については、デブリ／コンクリート相互作用に関する検討、水素燃焼に関する実験等を行うとともに、CONTAINコードの適用性向上のためのモデルの改良・追加・検証を行っている。

冷却材の安全性については、Na燃焼の解析コードであるSOLFASコードの検証のための燃焼試験を実施しており、特に3次元的な効果に着目して試験および解析を進めている。また、蒸気発生器でのNa／水反応に関する模擬実験(TRUST試験)を行うとともに、その評価手法の開発を進めている。

確率論的安全評価(PSA)については、事象推移の動的解析手法の開発等を継続したほか、リビングPSA評価手法の運用整備を進めている。また、原型炉に対する炉停止時のPSA評価や大型炉を対象としたPSA評価を継続している。さらに、信頼性データベースについては、「常陽」、「もんじゅ」等のデータをもとにデータベースの拡充・整備を進めているほか、確率論的破壊力学手法を取り入れた配管信頼性評価方法の検討を行い、配管信頼性解析を実施した。

3.2 炉心・燃料の開発

核特性評価手法の開発については、3次元Hex-Z輸送ノード法コードの改良を継続するとともに、大型集合体炉心での検証を進めている。また、遮蔽特性評価手法の高度化・合理化を目的として、大型炉遮蔽ベンチマーク実験(JASPER実験)の最新の核データライブラリに基づく評価を進めている。

「常陽」での照射技術の高度化については、中性子束分布や燃焼による組成変化等の照射条件を明確にするために、新型ドジメータ等を用いた精度向上等の炉心管理手法の高度化や中性子照射量、温度等の照射条件を精度よく評価するための評価技術の整備を行っている。

MA燃焼炉心については、ボイド反応度の低減を目的とした検討を進めている。Pu利用炉心については、ドップラー反応度や燃焼反応度の改善を目的とした検討を行っている。また、MA核種、FP核種の核断面データ、崩壊熱データ等のデータベースの整備・拡充を継続している。

炉心・燃料設計手法の高度化として、「もんじゅ」炉心体系での炉心湾曲解析コードの整備、中空燃料設計用データベースの整備等を進めた。

燃料・材料研究開発について、被覆管材料の中で、将来の長寿命燃料の有望鋼種である酸化物分

散強化型フェライト鋼については、冷間加工・再結晶法を適用することにより、棒材を用いて強度異方性と延性を改善できる見通しが得られた。この方法を用いた試作試験において8.5mmØまでの被覆管試作ができた。また、CEAとのODSフェライト鋼開発に関する共同研究の調印を行い、合金設計を開始した。また、10月にPNC/CEA会議を開催し、意見交換を行った。

改良オーステナイト鋼(14Cr25Ni)については、長時間側のクリープ破断データを継続して取得するとともに、改良材の合金成分の検討を開始した。高Ni合金については、炭窒化物析出強化型合金および γ' 析出強化型合金の試作評価試験を継続して進めるとともに、加工・熱処理技術の改良を図った。

被覆管材料の照射試験については、C型特殊燃料集合体(PFC030)で照射した燃料被覆管、ラッパ管、および材料照射材について、透過電子顕微鏡観察による析出物やポイドの形態変化を調査し、被覆管のスエリングと照射誘起析出物の関係を評価した。また、スエリング解析コードを用い、PNC316鋼のスエリング挙動評価を継続して実施した。さらに、FFTFで照射したMOTA試験片、MFA-1燃料集合体のラッパ管、ワイヤを受入れた。

「常陽」における溶融限界線出力評価試験(B5D-2)については、24本の試験ピン中14本について溶融限界位置を評価するとともに、溶融限界線出力と試験パラメータとの相関評価に着手した。「もんじゅ」燃料の高燃焼度照射について、ピン外径データの拡充を行うとともに、データ整理・評価を実施している。また、実証炉用太径中空燃料ピン照射、日米共同フェライト鋼被覆管燃料照射、原研共研炭・窒化物燃料ピン照射、超ウラン(TRU)核種のサンプル照射等を行うB型特殊燃料集合体および温度制御型材料照射装置(MARICO)は第29サイクルの照射を終了し、現在炉内にて待機中である。

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中のFFTF照射試験にて照射した改良SUS316鋼被覆管燃料ピン(燃焼度147 GWd/t、ペレットピーク)、改良オーステナイト鋼被覆管燃料集合体(燃焼度162GWd/t)等については、米国における照射後試験を継続するとともに、日本への照射材料の輸送を実施した。同じく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))は、平成7年末までにすべて

の実施可能な試験を終了する計画で、米国内での照射後試験を継続中である。

日仏交換照射では、仏製改良オーステナイト鋼被覆管燃料は「常陽」で照射継続のため、炉内にて待機中である。一方、PhenixにおけるPNCの改良SUS316鋼被覆管大型バンドル照射は、Phenixにて照射を継続した。

燃料集合体の開発に関しては、燃料集合体の湾曲拳動評価精度の向上のため、炉心湾曲拳動解析コード(BEACON)の検証を照射後試験データに基づき進めている。また、ラッパ管の照射温度を評価するために、硬さ測定試験の準備を実施した。

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データとして、He放出拳動やスエリング拳動を評価した。また、ナトリウムベント機構選定のための炉外評価試験およびシェラウド管とB₄Cペレットの両立性試験を実施した。

燃料ピン拳動解析コードCEDARの過渡時における解析精度向上のための改良を進め、過渡解析に必要な被覆管の短時間高応力下での応力歪関係式を導入し、EBR-II運転信頼性試験の過渡照射試験データによるコードの検証を継続して実施した。

バンドル・ダクト相互作用解析コード(BAMBOO)の整備作業として、高燃焼度を模擬した厳しいBDI条件下の解析精度を向上するため被覆管の弾性変形による偏平化モデルを組み込む改良を実施中である。また、破損燃料拳動解析コードSAFFRONについては、改良した燃料ピン内酸素再分布計算モデルの検証計算を継続して実施している。

燃料・材料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実施している。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継続して進めている。

「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、建家の電気設備、換気空調設備、内装設備および試験機の総合調整試運転を継続実施している。内装設備については、キャスク内洗浄設備の除熱性能試験を行っている。試験機については、ピン試験機および集合体試験機の単体機能性能および自動化システムの取扱い試験を行っている。X線CT検査装置については、「もんじゅ」模擬体による炉外バンドル圧縮試験を実施している。また、施設の最終検査として、放管設備、換気空調設備等について、耐震機能検査を行い、合格した。

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(2基)の取扱試験準備を進めている。

被覆管試験セルの整備については、機器の最終調整作業を終了し、照射済被覆管の高温強度試験を開始した。

3.3 高温構造システムの研究

高温構造設計技術の開発については、材料強度の基準化として、クリープ疲労試験、溶接継ぎ手の性能評価、ナトリウム中環境効果等に関する試験を継続し、高速炉構造材料データ処理システム(SMAT)へのデータ登録を行った。また、第33回高温強度シンポジウムにおいて溶接継ぎ手強度の基準化に関する発表を行った。また、構造強度評価法の基準化に向けて、クリープ疲労評価法、ラチェット評価法、溶接部クリープ評価法の開発を進めている。

信頼性評価技術の開発については、き裂進展評価法についてき裂付円筒モデルに対する解析を開始した。また、寿命・余寿命診断法開発に向けて、粒／粒界損傷観察用負荷試験装置を用いたクリープ疲労予備試験を継続している。

荷重緩和技術の開発については、コモンデッキ方式免震構造の基礎振動試験を継続した。また、PNC/CEA炉心耐震共同実験(SYMPHONY)については、予備解析結果を元に、CEA側と協議を行い詳細な試験条件・計測条件を決定した。

構造解析技術の開発については、LBB評価法の高度化としてき裂進展評価法(CANIS-G,J)の改良および確率論的き裂評価法の開発を進めた。また、炉心湾曲の主要因の影響分析を継続するとともに、内容物を考慮した炉心湾曲の解析を実施した。

2次系削除システムの開発については、高流量下の伝熱流動試験を12月に終了し、2重伝熱管の伝熱流動特性、内外管リーク検出システム、2次系削除に係わる安全性評価手法等に関する検討・評価を継続した。また、破損検出システムについては、3次元伝熱流動解析コードPHOENICSを用いてガスプレナム内の蒸気リーク拳動について予備解析を継続している。

伝熱・流動については、炉内過渡伝熱流動解析コードAQUA、FLUSHに関してナトリウムミスト拳動モデルのプロトタイプを作成し試計算を行っている。また、原子炉冷却系総合試験について大型ナトリウム機器洗浄装置について検討した。

監視・計測技術については、2重伝熱管の外面検査手法である漏洩磁束探傷法の検出性能向上の

ため、改良したセンサおよび検出回路を用いて検出性能を確認するための試験を実施している。

4. プラントシステム設計研究

安全性、信頼性、経済性に優れた高速増殖炉の実用化を見通すとともに、環境への負荷の低減、核不拡散性への配慮等を目的とした先進的核燃料リサイクル技術の実証のため、大型炉設計研究とリサイクル試験炉の開発に関するプラントシステム設計研究を推進している。

大型炉設計研究については、130万kWe級の大型炉のプラント概念を構築し、その成立性を見通すとともに、新型燃料を用いたアクチニド・リサイクル技術との整合を図り、環境負荷の低減、核不拡散性等、将来の社会の多様なニーズに対応できる技術の可能性を追求する。そのため、プラントの基本的な概念の検討を進めている。

リサイクル試験炉の開発については、経済性に優れた再処理および燃料製造法に基づく燃料形態を採用し、先進的核燃料リサイクル技術を炉心規模で実証する。そのため、試験炉のプラント概念の検討を進めるとともに、燃料集合体形態、計装技術等、要素技術の検討を進めている。

5. 原型炉技術の総合評価と高度化技術開発

「もんじゅ」の成果を実証炉以降の開発に反映するため、原型炉技術の総合評価と高度化技術開発を進めている。

原型炉技術の総合評価では、設計裕度および増殖性能等について、総合機能試験段階、性能試験段階、本格運転段階と段階的に評価を進める計画であり、現在は、総合機能試験段階のデータに基づく評価を進めている。

また、高度化技術開発として、高線出力化、高燃焼度化、照射利用高度化等を目的とした炉心性能の向上検討を進めるとともに、プラント異常診断、運転、保守支援、信頼性評価等の運転・保守技術の高度化、ならびに、検査・補修技術、燃料交換技術、乾式キャスクによる燃料貯蔵検討等のプラントの高度化検討を進めている。

国際的に開かれた共同研究の場として、「もんじゅ」を用いた研究開発を推進する観点から、欧米より6名の国際特別研究員を招聘し、研究開発を進めている。

（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

プルトニウム燃料第3開発室FBRラインでは、「もんじゅ」第1次取替燃料の製造を継続実施した。

また、並行して工程内滞留量を低減化するため、回収作業を継続実施した。

(2) ATR燃料の開発

プルトニウム燃料第2開発室ATRラインでは、「ふげん」第24回取替燃料（18体）の製造を終了した。また、第25回取替燃料（20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

電力との共同研究として進めているドッドワード炉(BWR用)による照射を継続した。また、BR-2炉(PWR用)による出力急昇試験を継続した。

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ている。「常陽」MK-II29サイクルにて照射を開始した照射燃料ピンは、現在炉内にて待機中である。

照射用窒化物燃料製造設備については、ウラン試験を継続した。また、高温挙動試験装置によるUO₂の融点測定試験を開始するとともに、熱伝導率測定用試料の調整を行った。

(4) プルトニウム燃料加工施設

原子力委員会によるATR実証炉計画の中止決定およびそれに伴う関連施設の活用方策の検討結果を受けて対応することとし、前年度より進めてきたペレット製造工程設備および中央管理システムの製作設計は一時中断している。

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：10 kgMOX／日）は、12月20日に、第11回定期検を終了し、合格証を受領した。

(2) 混合転換技術開発

マイクロ波加熱直接脱硝法に関する技術開発成果報告書の一次案について、内部検討を実施した。

また、新たな粉末製造法である噴霧熱分解法を用いた「顆粒粉末製造試験」を継続し、模擬試料による顆粒生成試験を進めた。

(3) 湿式回収技術開発

プルトニウム等の難溶解性物質の溶解法を確立するために、電解溶解法によるMOXペレットおよび粉末の未溶解物を対象とした溶解試験を継続した。

3. ウラン転換

(1) 回収ウラン転換技術開発

電力会社と共同で進めている回収ウラン転換実用化試験を前期に引き続き継続した。

(核燃料サイクル技術開発部)
(核燃料施設設計画部)



再処理技術の開発

1. 再処理工場の現状

東海再処理工場では、平成7年9月25日より処理運転（95-2キャンペーン）を開始し、運転期間中に高放射性廃液蒸発缶の故障による予備機への切り換え作業に伴い一時運転を中断したが、約16トンの使用済燃料を処理し、12月25日に処理運転を終了した。その後、インターチャンペーンに入り工程内機器の点検整備等を実施している。

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は、長期運転試験を実施している。

(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、前処理工程施工設計の平成7年度設計作業を実施した。

(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は、東海再処理工場への適用に向けた装置開発を進めるとともに、赤外線を用いた新検査システムの基礎試験を進めた。

(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の検討を継続した。また、除染に係わる検討を合わせて進めている。

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
レーザー解体試験装置を用いて、切断性能評価試験を継続して進めている。

2) 主分離工程技術開発

遠心抽出器については、RETF用の試作機の性能確認試験を継続するとともに、試験データの解析評価を進めている。

(2) 材料技術開発

ホット腐食試験の一環として、RIを用いた各種金属材料の腐食試験を実施し、成果報告書を作成中である。

(3) 遠隔技術開発

遠隔維手開発については、耐食性試験を継続実施した。

(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を継続実施した。

4. 高レベル放射性物質研究施設（CPF）

「常陽」C型特殊燃料を用いた連続抽出試験（第20回）結果のデータ整理・解析を行うとともに、Np共抽出を目指したピューレックスプロセスの高度化に係わるホット試験を継続して進めている。

また、マイナーアクチニドの分離・抽出に関する基礎試験等を実施するための施設整備として、CPF改造に係わる設計作業を開始した。

5. リサイクル機器試験施設（RETF）建設

建築工事は、地中梁および地下鉄骨工事を終了し、引き続き地下2階軸体工事を開始した。

内装工事は、先入機器の製作を継続するとともに、軸体埋設配管等の据付工事を開始した。

許認可関連では、平成7年10月30日内装設工認（その2）の申請を行った。また、平成7年12月15日に建物設工認変更を申請した。

（核燃料サイクル技術開発部）
（核燃料施設設計画部）



ウラン資源・探鉱と 技術開発

海外において調査探鉱を実施するとともに、調査結果の解析およびウラン資源・鉱業に関する情報収集・解析を行っている。また、探鉱技術開発として、ウラン探査・探鉱・製錬および環境保全に係わる技術開発を行っている。

1. 海外調査探鉱

米大陸、アジア・オセアニア、アフリカにおいて現在11の調査探鉱プロジェクトを実施している。

1.1 カナダ

サスカチュワン州・クリスティーレイクでは、1996年探査計画の検討および調査準備を行った。

ドーンレイクでは、1996年探査計画および物理探査の準備として測線伐採を開始した。

ウォリーおよびウォーターファウンドリバーでは1996年探査計画の検討および調査準備を行った。また、北西準州・プリンセスメリーでは、ア

ンドリューレイク鉱床およびエンド鉱化帯の鉱量計算を行った。

1.2 オーストラリア

西オーストラリア州・ルーダルでは、コノートン地区における空中物理探査(GEOTEM)の準備を行った。

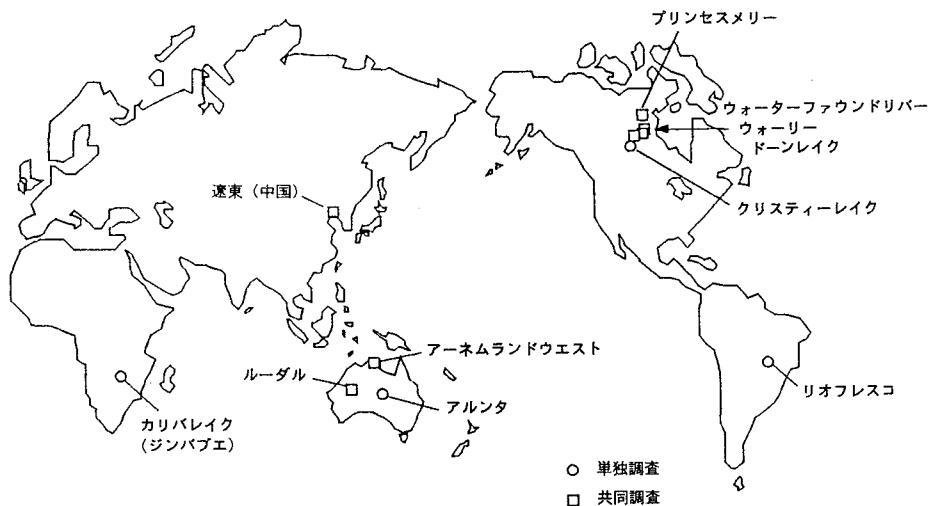
北部準州・アルンタでは、現地調査を終了し、調査結果の解析および取りまとめを行った。

アーネムランドウエストでは、申請鉱区に関して先住民と探査開始の合意に達し、合意書調印のための手続きを行った。

1.3 アフリカ

ジンバブエ共和国・カリバレイクでの現地調査を行い、礫岩中に強い放射能異常を確認した。また、同地域において、ヘリボーン調査を実施した。

調査探鉱プロジェクト



1.4 中国

遼東において地質・放射能調査、トレンチ、試錐調査等を行い、試錐調査で最高 $0.34\%U \times 2.5m$ の放射能異常を確認した。

1.5 ブラジル

リオフレスコでの探査に関して関係機関との調整を行っている。

1.6 海外法人等

カナダおよびオーストラリアの現地法人、フランスおよび中国の海外事務所に長期滞在員を派遣し、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を行っている。

1.7 資源情報調査

ウラン鉱業動向調査では、ウラン資源・ウラン産業に関する情報を収集・解析し、「ウラン」「動燃資源情報」として取りまとめ関係各所に提供した。また、ウラン需給解析を行うとともにカザフスタン、キルギスタンの現地調査等の取りまとめを行った。

ウラン資源ポテンシャル調査では、旧ソ連の地図データのシステム(GIASURA)への入力を行った。また、アフリカ大陸のポテンシャル解析方法の検討を行った。

マルチメディア資源データベース開発では、ウラン需給解析等を効率的に行うため、ウラン資源・ウラン産業に関する情報(ウラン鉱山等)のデータベース化および探査データを対象とした「オブジェクト指向データベース化」のための検討を行った。

2. 採鉱技術開発

2.1 採査技術開発

リモートセンシング技術開発では、岩石表面反

射スペクトルと岩石含有鉱物との関係について調査を行った。

物理探査技術開発では、アーネムランド地域等での電磁法の適用性を検討するため、3次元空中電磁法シミュレーションソフトの特性解析および同地域の電磁探査シミュレーションを実施した。

2.2 採鉱技術開発

放射線防護採鉱技術開発では、動的ラドン娘核種測定装置の性能評価に関する研究を開始した。また、東濃鉱山坑道内のラドン平衡係数の測定を行った。

2.3 製錬技術開発

鉱石処理試験では、不整合関連型ウラン鉱床の成因プロセス解析として、定量鉱化モデルの解析を実施中である。

新製錬法技術開発では、不整合関連型ウラン鉱石を対象とした樹脂法によるモリブデン溶離液からのモリブデン濃縮法の検討およびウラン溶離液からのウラン回収試験を行った。

2.4 環境保全技術開発

鉱滓処置場設計技術開発では、鉱滓の基礎特性把握のため、鉱滓堆積場内の鉱滓の採取および乾燥を行った。

坑廃水処理技術開発では、バイオテクノロジーの応用技術として、ウラン吸着細菌の固定試験を終了し、報告書として取りまとめた。

鉱害対策として、人形峠鉱山、東郷鉱山および旧倉吉鉱山の捨石堆積場等について鉱害防止、危害防止のための施設の維持・管理を行うとともに鉱山保安法および県協定等に基づく巡視・点検を行った。また、ヒープリーチング施設維持のための点検および施設周辺の整備を行った。

(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

平成7年9月18日より再開した試験運転において、20本のガラス固化体を製造するとともに使用前検査を受検し、10月27日、試験運転を終了した。12月1日、科技庁よりTVFの使用前検査合格証を取得し、これをもって、ホット試運転から開発運転の段階に移行した。

2. 高レベル廃棄物処理技術開発

(1) 溶融技術高度化試験

JCEM工学試験装置電源盤の改造工事を実施した。また、ガラス溶融炉熱流動解析の精度向上のための解析評価を開始するとともに、炉内検査技術開発および耐火物の分別・除染技術に関する検討を進めている。

(2) 高減容処理技術開発

高減容処理試験として、実廃液の脱硝試験で生じた沈殿物の分離・回収試験およびろ液を対象にした吸着・溶離試験を行った。また、高減容処理プロセスの研究および固化体特性評価試験を実施している。

(3) ガラス固化体品質評価・保証技術開発

TVFの模擬固化ガラスについて特性評価を実施し、ガラス固化体品質保証の検討を継続して進めている。

3. 高レベル廃棄物処分研究開発

(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、岩石の力学・熱特性、地下水の水理や地球化学的特性等に関するデータの取りまとめを継続した。

(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・施工ならびに処

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進めている。

(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、前記(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) 国際共同研究

イスラエルNAGRAおよびスウェーデンSKBとの共同研究として、それぞれ核種移行特性およびサイト特性調査技術開発／水理地質モデル開発に関する原位置試験を推進している。また、米国DOEと亀裂性媒体中の水理・物質移動およびアクチニド元素の溶解度に関する共同研究を継続した。また、シーリング性能に関する共同研究を開始する準備として、カナダAECLと契約の準備を進めた。

(5) 地層処分研究開発報告会（第3回）について

平成7年12月5日、一般公募者を含む554名の参加を得て、上記報告会を開催し、地層処分研究開発の概況報告ならびに成果報告として「地質環境の長期安定性」、「多重バリアシステムによる長期の安全確保」、「目で見る多重バリアの性能」の報告を行った。また、カナダ原子力公社のDr. Allanより「カナダの核燃料廃棄物管理計画の現状」の特別講演を行った。

4. 地層科学研究

天然事象に関する研究では地層科学研究検討会・検討部会を開催し、地震・断層、火山および隆起・沈降に関する研究を継続した。技術開発として、地下水調査機器および物理調査手法の開発を行っ

ている。また、地質環境特性に関する研究については、堆積岩および花崗岩を対象として以下の項目を実施した。

- ① 坑道掘削に伴う力学・水理学的影響研究
- ② 広域地下水流动調査研究
- ③ 地下水の地球化学的研究
- ④ 物質移行特性に関する研究

5. TRU廃棄物等処理処分技術開発

(1) クリプトン除去技術開発

クリプトン回収技術開発施設については、10月13日、定期検査運転において線量当量率等に関する検査を受検し合格するとともに、貯蔵シリンダの更新に係わる設工認変更の補正申請を11月8日に行った。また、イオン注入固化法による回収クリプトンの長期貯蔵技術開発については、ホット試験設備の設工認が10月12日に認可され、装置設計を開始した。12月からは、設備製作の工場立会検査を開始した。

(2) TRU廃棄物管理技術開発

減容安定化技術開発として、実低レベル濃縮廃液を用いた核種除去性能確証試験（ホット試験）を継続中である。また、ヨウ素含有廃棄物固化処理技術開発について、水熱固化処理コールド試験および金属マトリックス固化法の検討を行っている。

(3) 核燃料施設解体要素技術開発

核燃料施設解体の要素技術開発として、①放射線測定、②除染、③解体、④遠隔操作等の技術開発を実施した。

(4) TRU廃棄物処分研究開発

人工バリア材料に関して、変質・劣化挙動、ガスの透過挙動および核種挙動の研究を実施した。

6. 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等から固体廃棄物を受け入れ、減容処理を行った。

2) ウラン廃棄物管理

ウラン焼却施設および中央廃水処理場の運転を行った。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) 再処理廃棄物管理

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および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、固化処理した後、固化体を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管理

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」廃棄物処理施設では、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、中央廃棄物処理場へ移送した。

（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

高度化機開発は、分離流動試験、遠心機材料の物性試験、低コスト化を図るまでの解析・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、制振機構開発および高周速化要素開発に係わる振動解析および強度解析、高周速ガス抜き出し機構の解析・評価を行うとともに、高次曲げ危険速度通過型遠心機の設計および振動強度解析を行った。

(2) 分子レーザ法濃縮技術の開発

工学試験装置の高性能化のため、装置の一部改造および整備を行うとともに、分離性能の最適化を目指した工学試験を継続した。

工学試験としては、ノズル冷却温度およびレー

ザー波長をパラメータとしたノズル照射試験を実施し、分離特性に関するデータを蓄積した。

2. 濃縮工学施設

実用規模カスケード試験は、遠心機起動試験、濃度安定性試験、全還流試験および停電全還流・排気試験を実施した。

また、遠心機処理装置設置のため既設設備の撤去を実施した。

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

新型TLDバッジの開発については、単色中性子および γ 線に対するエネルギー特性試験を実施した。また、TLDのグロー曲線解析システムについては、種々の照射条件に対して得られるグロー曲線データの取り込みを行い、適当な領域の積分カウント数の相対比から正常なグロー曲線かどうかを判定する方法について検討した。

(2) 内部被ばく線量測定・評価技術の向上

複数のGe検出器を用いた高感度高分解能型肺モニタシステムの実用化に向けて、検出装置の最終仕様を決定し、製作を開始した。また、肺モニタによるプルトニウムの測定精度向上の観点から、個人の体格(特に胸部軟組織厚)に基づく計数効率の補正方法として、超音波診断装置を用いる方法を検討し、胸部撮影方法の標準化および測定画像の計算処理方法の整備を実施した。

2. 放射線モニタリング技術の開発

(1) 放射線測定器の校正技術の標準化

ガスマニタ校正技術に関する研究については、位置検出器による放射能絶対測定法に基づく計数装置を試作し、現在使用している基準電離箱との測定精度の比較を行う計画であり、ガスマニタ校正ループの組立てをほぼ終了した。また、計量標準認証制度対応については、照射線量、照射線量率に関して認定事業者の資格を取得する計画であり、特定二次標準器による線量測定・評価のためのベーシックプログラムを作成し、試験的に校正場の評価をした結果、今までの設定(値付け)値とほぼ一致しており、校正場の設定が適切に行われていたことを再確認した。

(2) 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類の感度評価を目的として、計算機を用い、モニタ等に使用している放射線検出器内での放射線拳動をシミュレーションすることにより検出器の応答を解析する研究を行っている。

現在は、中性子検出用ガス比例計数管の応答解析を行うための計算コードの整備を進めている。また、これまでに行ったシミュレーション応答特性の全体的なレビューを開始した。

3. 放射線管理技術の開発

(1) 新技術の適用による方法の改良と標準化

半導体検出器を用いた放射性元素の測定技術に関しては、試作機を用いて実施した95-1から95-2キャンペーンでの現場適用試験結果に基づき、実用機に求められる長期安定性と操作性また、容易な保守管理による作業性の向上について、改良箇所および改良方法の検討を実施した。

(2) 放射線管理情報集中処理システムの開発

APDシステムの構築に関しては、作業者の安全確保や被ばく低減化対策等を考慮して検討・決定してきた内容を踏まえ、ソフト製作を行った。また、ハード製作の終了に伴い検査を実施した。

エキスパートシステム展開法検討に関しては、放射線監視技術に係わる知識システムを「IF-THEN」形式で獲得し、事象から仮設までを明らかにしたフロー図を継続して作成した。また、エキスパートシステム構築用ツール「ARESS」を導入し試行するために、獲得した知識ベースを入力する準備を進めた。

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

自然環境汚染の影響と評価に関する調査研究については、原子力安全研究協会にて委員会を開催し、広域環境影響解析および環境リスク解析とい

う二つの観点から評価する手法について討議した。また、表層土壤圈における核種動態等に関する研究については、核種の土壤粒子への収着因子を調べるために、トレーサ実験を行った。なお、事故時の環境影響評価を目的としてダイナミックエコロジカルモデルの開発については、モデルに使用するフィールドデータの取りまとめを行うとともに、植物創造装置による移行パラメータ取得試験の予備実験として、トレーサ（安定Cs）の添加量および添加時期を変化させ、移行挙動への影響について調査した。

(2) 放射性核種の環境移行に関する研究

フィールドデータの収集および検討として、各種環境試料中の³H, ¹⁴C, ¹²⁹I, ²³⁹,²⁴⁰Pu, 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を調査した。また、移行パラメータの検討としては、Tcに関するフィールドデータをとりまとめ、表層土壤環境中における移行挙動の解析および土壤から植物への移行係数の試算を行った。

(3) 分析技術の開発に関する研究

ICP-MSを用いた⁹⁹Tcおよび²³⁷Npの分析法の高度化研究としては、キレート樹脂(Eichrom TRU spec. およびTeva spec.)による妨害元素の除去に関して、トレーサ実験を継続して実施し、樹脂量および洗浄液量ならびに溶離液量の最適条件を求めた。また、⁷⁹Seの分析法の開発としては、テトラメチル水酸化アンモニウムによる抽出法について検討し、効率良く溶液試料からSeを抽出できることを確認した。

(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等の調査を継続した。

また、ラドン標準校正チャンバーを利用した各種測定器の校正を実施した。

(5) 湖沼系における放射性核種移行調査

実湖沼における放射性核種の移行特性を調査し、湖沼系における放射性核種の移行モデルを検討している。

今期は、10月に湖沼のフォールアウト核種についての定期挙動調査を実施した。特に、今回の調査では、近年の湖底堆積物中¹³⁷Csの水平分布を把握するため採取地点数を増やした。現在、分析およびデータ解析を実施している。また、湖底堆積物中¹³⁷Csの1986年から1994年までの濃度変動

と降雨量観測結果から¹³⁷Csの湖沼での挙動を検討した。その結果、強い降雨時には湖沼上流部の¹³⁷Cs濃度の上昇と下流部の¹³⁷Cs濃度の減少が同時に起こること等が分かった。

5. 安全工学研究

(1) 空気中放射性物質の挙動評価技術の開発

汎用多次元熱流動解析コード(AQUA)の入出力ファイルの操作性向上を図るため、ワークステーションのデータファイル改良を行った。また、核燃料施設内の気流解析結果のデータ整理を行った。

(2) 放射性物質の閉じ込めに関する研究

火災により発生する煤によるHEPAフィルタの目詰まり試験として、グローブやケーブルが燃焼する時に発生する煤を用いて、煤の負荷量とHEPAフィルタの圧損に係わる試験やグローブボックス内に設置されているプレフィルタの有効性に関する試験を進めた。

(3) 異常事象挙動に関する研究

示差走査熱量計を用いた、CMPO/TBP混合溶液と硝酸の二相系の発熱量と活性化エネルギー等の測定およびCMPO、TBP、ドデカン混合溶液についてTBP、ドデカンの混合割合を変化させた場合の発火点測定を継続実施するとともに、加熱速度発熱量計を用いて、TBP-硝酸平衡試料の発熱量、圧力変化等の測定を進めた。

(4) 核燃料施設の安全解析手法の開発・整備

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の作成を進めるとともに、SCALE4を用いてOECD/NEA燃焼度クレジット臨界ベンチマークのための計算を行った。また、遮蔽安全解析については、EGS4汎用ユーザコードの高度化のための作業を行うとともに、ガンマ線スカイシャインベンチマークデータ取得のための測定試験を継続実施した。

(5) 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、改良整備を行った信頼性データベースプログラムの機能拡張のための作業を継続して行った。PSA手法の開発・整備については、再処理施設のヒューマンファクター分析に関するシステム開発のための作業を行った。また、モデルプラントへのPSA適用研究では、再処理モデルプラントのプルトニウム転換工程にPSAを適用するための検討を引き続き行った。

(安全部)



核物質管理業務

1. 核物質管理

(1) 核物質使用状況調査

平成6年末時点における動燃事業団のプルトニウム管理状況について、科学技術庁へ報告した。

また、平成7年度の海外におけるプルトニウム利用の動向調査を継続した。

2. 核不拡散

- (1) 核不拡散に関する国際的な動向の調査を実施した。
- (2) 「遠隔監視」、「透明性」に関するDOEとの共同研究計画を検討するとともに、DOEより特別研究員1名を受け入れた。
- (3) 透明性向上策として、核不拡散情報伝達システムの構築準備を進めた。また、核不拡散国際フォーラムを開催した。
- (4) 国への支援として、カザフスタン共和国に対する核物質管理制度確立への支援およびプルトニウムの国際管理関係国会合のフォローを行った。
- (5) 外部有識者を中心として構成される核不拡散対応研究会を開催した。(10月、12月)

3. 核物質防護

(1) 施設関係の核物質防護

東海事業所使用施設核物質防護規定の変更申請が認可された。(11月)

(2) 輸送関係の核物質防護

輸送における取決めの締結確認申請書を科学技術庁長官へ3件提出した。

4. 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) 68
- (b) 実在庫量明細報告書(PIL) 13
- (c) 物質収支報告書(MBR) 10
- (d) 国籍管理報告書(OCR) 126

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。

事 業 所	施 設
人 形	ウラン濃縮施設
大 洗	重水臨界実験装置DCA
もんじゅ	高速増殖原型炉もんじゅ
ふ げ ん	新型転換炉ふげん

(2) 技術開発

PNC/DOE保障措置技術協力協定の基、「もんじゅ」においては使用済燃料検認用の出口ゲートモニターの試験、プルトニウム燃料製造施設においては工程内核物質測定用の改良型非破壊測定装置(MAGB)の開発およびペレット製造工程内残留プルトニウム測定用非破壊測定システム(GBAS)の改良を実施している。

第9回PCG会合(PNC/DOE共研に関する定期会合)が12月6日～7日に米国アルバカーキで開催され、既存タスクの現状評価と今後の取り組みについて協議した。また、新規タスクの実施計画等について協議した。

また、再処理工場において、入量計量中のウラン・プルトニウムの迅速分析法の開発および廃棄物の分析・測定技術向上のためのレーザー光音響分析法の開発を実施中である。

5. 核物質の輸送

(1) 輸送業務

- ① 「ふげん」取替用新燃料
- ② 回収ウラン
- ③ 「もんじゅ」取替用新燃料
- ④ 硝酸ウラニル溶液
- ⑤ 照射部材

(2) 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、1/5スケールモデル試験結果を踏まえ、今後の開発計画を検討した。

新型転換炉実証炉新燃料輸送容器開発については、安全性実証試験結果等を踏まえ、取りまとめを継続実施した。

「もんじゅ」照射後試験用燃料輸送容器の開発については、大型照射後試験施設での取扱試験を継続実施した。

「もんじゅ」使用済燃料輸送容器の開発については、詳細設計を継続実施した。

(核物質管理部)



TRUEX溶媒の熱特性および硝酸との発熱反応に関する試験

林 直美 武田 伸莊

東海事業所安全管理部

資料番号：97-1

Investigation of Thermal Properties of TRUEX Solvent and Exothermic Reaction of TRUEX Solvent/Nitric Acid

Naomi Hayashi Shinso Takeda
(Health and Safety Division, Tokai Works)

先進的核燃料リサイクル技術の研究開発において、Am, Cm等のマイナーアクチニド核種を高レベル放射性廃液から分離するための抽出溶媒の一つであるTRUEX溶媒(CMPO/TBP/nドデカンの混合溶媒)の安全性を確認するために、TRUEX溶媒を構成するそれぞれの溶媒および混合溶媒について、引火点、発火点の測定を行った。また、これらの溶媒と硝酸の発熱反応における発熱量の測定を、硝酸平衡溶媒のみを測定対象とした単相系および溶媒と硝酸を共存させた二相系について、密閉セルを用いた示差走査熱量計(SC-DSC)により実施した。

CMPOの引火点は179°C、発火点は280°Cであった。SC-DSCを用いた密封非断熱系での測定では、CMPO/硝酸二相系の飽和発熱量は硝酸/CMPOモル比が25以上のとき21kJ/g-CMPOでTBPの飽和発熱量とほぼ等しかった。また、0.2M CMPO-1.0M TBPと13.4N硝酸の平衡溶媒の発熱量は1.7kJ/g-平衡溶媒であり、100% TBPと13.4N硝酸との平衡溶媒の1.5kJ/g-平衡溶媒とほぼ等しく、発熱量はPUREX溶媒もTRUEX溶媒も大きな差がないことを確認した。

1. はじめに

動燃事業団では先進的核燃料リサイクル技術の研究開発として、従来、高レベル廃棄物としてサイクル外に排出されていたAm、Cm等のマイナーアクチニド元素を分離回収して、高速炉にて燃焼させる高速炉燃料サイクルの高度化研究が行われている。現在のPUREXプロセス(抽出剤-希釈剤として30% TBP-nドデカン)では、UやPuの抽出に対する選択性は高いが、マイナーアクチニド元素の抽出分離性能は低い。そのため、CMPO等の新抽出剤の開発や新しいプロセスの開発研究が行われている¹⁾。CMPOは米国アルゴンヌ国立研究所(ANL)がハンフォードにあるプルトニウム精製工場の抽出残液からマイナーアクチニド元素を抽出するために開発したTRUEX法に使用される抽出剤であり、0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカン(TRUEX溶媒)としてTBPとともに用いられる¹⁾。

一方、1993年4月6日、ロシアの再処理施設ト

ムスク7において、硝酸ウラニル溶液の酸濃度を調整するタンクに濃硝酸を攪拌せずに注入した時、調整タンク内に存在した溶媒と硝酸の急激な発熱反応が起り、内圧が上昇してタンクが破裂するという事故が発生した²⁾。

この事故においては、過去に発生した米国の再処理施設でのレッドオイル爆発事故^{3)~5)}に比べて特徴的な問題として、硝酸水溶液の沸点以下の温度(約85°Cと推定)から発熱反応が発生したことが指摘されており、日米においてトムスク事故の特異性や事故原因を明らかにする調査研究^{6)~15)}が行われた。その結果として、オペレーションミスを除けば、ロシアで使用されていた希釈剤中の芳香族炭化水素等の成分、あるいは硝酸ブチル等のTBPの劣化生成物と硝酸による比較的低温から開始した発熱反応と換気能力の不足が原因と推定^{2),11),14)}されている。

有機物と硝酸との反応は硝酸酸化やニトロ化反応が知られており、いずれも発熱反応である¹⁶⁾。

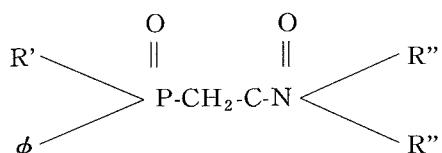
PUREXプロセスについては、過去に米国で発生したレッドオイル爆発事故について、その原因と対策が明らかにされ^{3),17)-21)}、我が国においては蒸発缶等の加熱機器に対する熱的制限値の設定やnパラフィン系の希釈剤nドデカンの使用、希釀剤洗浄工程等によって加熱機器内への溶媒の混入を最大限防止するなどの対策が行われ、プロセスの安全性が担保されている。

TRUEX溶媒については、放射線による劣化生成物に関する試験等¹⁾が実施されているが、火災・爆発に係わる安全評価等に必要な研究は、ほとんど実施されていない。化学反応等の安全性に係わる研究としては、引火点、発火点等の確認の他、密封非断熱系の試験条件、例えば密封セル示差走査熱量計(Differential Scanning Calorimeter with Sealed Cells、以下SC-DSC)を用いた発熱量等の測定試験、断熱系での暴走反応に係わる試験、開放非断熱系での定温反応試験等を行い、総合的な評価が行われている²²⁾。本報告ではTRUEX溶媒の安全性の評価に関連する引火点、発火点および発熱反応に係わる試験として、

- (1) CMPO、TBP、nドデカンおよびこれらの混合溶媒の引火点、発火点の測定
 - (2) CMPO、TBP、nドデカンおよびこれらの混合溶媒と硝酸の反応による発熱量の密封セル示差走査熱量計(SC-DSC)を用いた測定
- を実施したので報告する。

2. TRUEX法に用いられる新抽出剤CMPOとその物理的性質

TRUEX溶媒に使用されるCMPOは二官能性有機リン系抽出剤で、アクチニドやランタニドの選択的抽出剤である。一般的にはalkyl(phenyl)-N,N-dialkyl carbamoyl methyl phosphine oxideと呼ばれ、その構造式は以下のとおりである¹⁾。



ここで、 ϕ : フェニル基

R': 直鎖あるいは側鎖型のC₆~C₁₂のアルキル基かアルコキシル基

R'': C₃~C₆のアルキル基

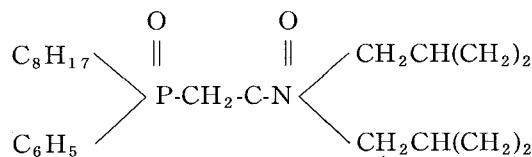
本研究ではもっとも選択的で効果的な抽出特性を与えるとして、小沢らによって抽出挙動等の研究¹⁾が進められている新抽出剤 Octyl(phenyl)-

表 I CMPOの物理的性質

項目	物性値	測定方法
分子量	407.58	
密度(g/ml)	1.0462(20°C液体) 0.9725(40°C液体)	ピクノメータ法
屈折率	1.4985(40°C液体)	アッペ法
融点(°C)	47.3	示差走査熱量計(DSC)測定法
比熱(cal/g°C)	0.3776(20°C) 0.3988(40°C)	DSC測定法
蒸気圧(mmHg)	5.1×10 ⁻⁵ (100°C) 8.5×10 ⁻⁴ (125°C) 7.1×10 ⁻³ (150°C)	気体流通法蒸気圧測定装置
粘度(cp)	538(40°C)	回転粘度計法

N,N-diisobutyl carbamoyl methyl phosphine oxide ([O ϕ D(IB) CMPO]と略称されるが、本報告では単にCMPOと呼ぶ)を対象に硝酸との発熱反応等の試験を実施した。

CMPOは化学式C₂₄H₄₂NO₂Pの常温で白色固体の物質である。これまでに小沢らによって確認されているCMPOの物理的性質を表Iに、また、構造式を以下に示す。



3. 実験の方法および条件

ここでは、TBP、CMPO、nドデカンおよび混合溶媒の引火点、発火点の測定方法について示す。また、SC-DSCを用いた各溶媒と硝酸の発熱量の測定法についても示す。

3.1 引火点および発火点の測定

3.1.1 引火点の測定法

引火点の測定方法には、密閉状態で加熱する方法(クローズドカップ法)および開放状態で加熱する方法(オープンカップ法)の二つがあり、同一試料では、通常、オープンカップ法で測定した引火点が、クローズドカップ法で測定した引火点よりも高い値を示す²³⁾。

なお、引火点の測定は①ペンスキーマルテンス密閉式自動引火点試験器(以後PM.C.C.と呼ぶ)、②タグ密閉式自動引火点試験器(以後T.C.C.と呼ぶ)、③高温用セタ自動引火点試験器(以後S.C.C.と呼ぶ)、④クリーブランド開放式引火点試験器(以後C.O.C.と呼ぶ)を用いて行い、測定条件や測定方法はJIS K2265「原油および石油製品引火点試験方法」²³⁾および消防庁監修「危険物確認試験法実施マニュアル」²⁴⁾にしたがった。

3.1.2 発火点の測定法

発火点の測定値は試料の状態や量、加熱の方法などに左右されるため、測定装置によって異なることがある。ここでは、液体石油製品の発火点測定法としてASTMにおいて規格化された方法(ASTM法)^{24),25)}に準拠して測定を実施した。ASTM法は、一定温度に加熱した容器内に試料を滴下して発火温度を測定する滴下式定温発火温度測定法に属するものであり、液体可燃物の発火点測定法としてもっとも広く用いられている²⁶⁾。本試験では、容器に500ml丸底フラスコを用い、電気炉でフラスコ内を一定温度にし、試料50~250μlを順次注入して、もっとも低い発火温度を発火点とした。なお、CMPOについては約50°Cで加温し、液体状にしたもの注入し、発火点の測定を行った。

3.2 密封セル示差走査熱量計(SC-DSC)と発热量の測定法

3.2.1 示差走査熱量計(DSC)の測定原理

DSCは試料を加熱しても発熱や吸熱をしないリファレンス試料とともに一定速度で昇温加熱し、試料の化学変化や相変化に伴う発熱や吸熱を直接測定できる。DSCには温度補償型と熱流速型の2つの方式があり、本研究に使用したのは温度補償型である。

温度補償型DSCの原理図を図1に示す。温度補償型では、試料とリファレンス試料の入ったセル(ステンレス製)を温度補償用の内部ヒータを組み込んだ電気炉内に対称に設置して一定速度で昇温させる。この時、両者の温度差が常に零になるよう内部ヒータの電流を調整する。例えば、試料が発熱すると、その温度差はリファレンス試料が内部ヒータで加熱されて補われるので、その電

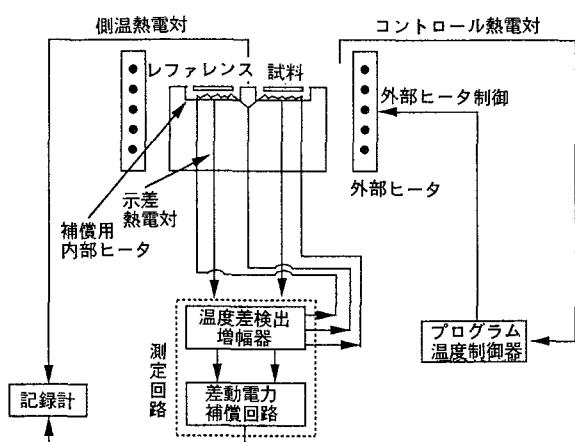


図1 示差走査熱量計の原理図

流の変化が発熱ピーク(DSC曲線)として得られる。そして、このDSC曲線の面積より反応熱をもとめることができる。

また、開放式のDSCセルで不安定物質の分解熱や反応熱の測定(DSC測定)を行うと反応前や反応中に試料の蒸発が起こり、測定値が不正確になることや²⁷⁾、試験に硝酸を使用するので測定装置の腐食を防止するために、本研究では、測定に密封セルを用い、密封非断熱系での試験を実施した。

3.2.2 DSC装置と測定条件

(1) 測定装置

示差走査熱量計(DSC-7000型、真空理工社製)

(2) 測定条件

- ① 昇温速度 10°C/min
- ② 測定温度範囲 室温~400°C
- ③ 電気炉中の雰囲気 N₂ (200ml/min)
- ④ 使用セル SUS304製密封セル
(50kg/cm²耐圧、内容積
20 μl)
- ⑤ 試料量 5~10 μl

(3) 測定試料の状態

SC-DSCによる発熱量の測定や反応速度の解析では、溶媒と種々の濃度の硝酸を接触させ、平衡にした後、溶媒相(硝酸平衡溶媒)だけを分離して測定する単相系の試験と溶媒と硝酸を密封セル内に二相で共存させた二相系の試験を実施した。

3.3 測定試料の調整

(1) 使用試薬

- ① TBP(特級試薬、純度99.5%以上)
- ② nドデカン(特級試薬、純度99%以上)
- ③ CMPO(純度99.6%)
- ④ 硝酸(特級試薬、純度61%)

(2) 混合溶媒

- ① TBP/nドデカン
TBP濃度として10~95vol%まで変化させて、TBPとnドデカンを混合した。
- ② CMPO/TBP/nドデカン
0.02モルのCMPOと0.08~0.14モルのTBPを混合し、100mlのnドデカンで希釈して以下の混合溶媒を調整した。
0.2M CMPO-0.8M TBP-nドデカン
0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカン
0.2M CMPO-1.2M TBP-nドデカン
0.2M CMPO-1.4M TBP-nドデカン

③ CMPO/TBP

CMPOとTBPをモル比1:5で混合した。この混合溶媒を0.2M CMPO-1.0M TBPと呼ぶ。

(3) 硝酸平衡溶媒

溶媒と1~13.4Nまでの硝酸をそれぞれ50mLずつ分液ロートに取り、振とう、静置、分離を3回繰り返した有機相7~8μlをSC-DSCの測定試料とした。

4. 試験結果と考察

4.1 引火点と発火点

4.1.1 TBP、nドデカンとCMPOの引火点

各溶媒に適応する測定法で測定したTBP、nドデカン、CMPOの引火点を表2に示す。TBPの引火点については、文献値として145.6°C²⁸⁾が知られているが、PM.C.C.を用いて測定を実施したところ、引火点が確認できなかった。このため、高粘性液体や難引火性液体の引火点測定^{29),30)}に使用されている密閉式試験器であるS.C.C.（高温用）と開放式のC.O.C.を用いて測定を行った。TBPの引火点として144.8°C(S.C.C.)と175°C(C.O.C.)が得られた。

CMPOの粘性係数は538cpとTBP(3.32cp)よりさらに高いので、TBPと同様にS.C.C.とC.O.C.による測定を行い、引火点として179.4°C(S.C.C.)と244°C(C.O.C.)が得られた。

nドデカンの引火点は、73.9~82.2°C^{31),32)}と文献値の幅が広い。この原因は、測定方法およびnドデカンに含まれる不純物の影響と考えられる

表2 TBP、nドデカン、CMPOおよび混合溶媒の引火点

対象溶媒	測定値(°C)				文献値
	PM.C.C.*1	T.C.C.*2	S.C.C.*3	C.O.C.*4	
TBP	引火せず 83.2	144.8 82.4	175 92	145.6 ²⁸⁾ 73.9 ~82.2 ^{31),32)}	
nドデカン					
CMPO		179.4	244		
10%TBP-nドデカン	85.6	83.6	94		
20%TBP-nドデカン	87.7	85.0			
30%TBP-nドデカン	88.6	85.8	98		
40%TBP-nドデカン	90.0	86.4			
50%TBP-nドデカン	90.8	87.2	102		
60%TBP-nドデカン	91.6	90.0			
70%TBP-nドデカン	94.6	92.0	109		
80%TBP-nドデカン	99.0				
90%TBP-nドデカン	109.0				
95%TBP-nドデカン	118.8				
0.2M CMPO-0.8M TBP-nドデカン	87.8		99		
0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカン	88.4		99		
0.2M CMPO-1.2M TBP-nドデカン	88.4		100		
0.2M CMPO-1.4M TBP-nドデカン	89.0		103		

*1) PM.C.C.；ベンスキーマルテンス密閉式引火点試験器

*2) T.C.C.；タグ密閉式引火点試験器

*3) S.C.C.；セタ密閉式引火点試験器

*4) C.O.C.；クリーブランド開放式引火点試験器

が、今回の測定結果のうち、密閉式では、82.4°C(T.C.C.)と83.2°C(PM.C.C.)であった。また、開放式では92°C(C.O.C.)となり、密閉式に比べて約10°C高い値となった。

4.1.2 混合溶媒の引火点

(1) TBP/nドデカンの引火点

TBP/nドデカン混合溶媒のPM.C.C.およびT.C.C.で測定した結果と参考のためC.O.C.で測定した結果を表2に示す。

相対的に引火点が高い(難引火性の)TBPの濃度が増すにしたがい、引火点の低いnドデカンの蒸気圧が減少するために混合溶媒の引火点は上昇する。通常PUREX法で使用されている30%TBP-nドデカンでは、T.C.C.での測定で85.8°C(100%nドデカンとの差は、+3.4°C)、PM.C.C.の測定で88.6°C(100%nドデカンとの差+5.4°C)であった。TBPとnパラフィンの混合溶媒について、理想溶液を仮定して、引火点を推定する方法^{33)~34)}が提案されている。ここでは上原³⁴⁾が提案している式を用いて実験値との比較を行う。

$$\frac{1}{T_N} = \frac{1}{T_0} + \frac{2.303 R}{L} \log N \quad \dots \dots \dots (1)$$

ここで、

N ; 純希釈剤のモルフラクション

T₀ ; 純希釈剤の引火点(K)

T_N ; 希釈剤のモルフラクションがNなる混合溶媒の引火点(K)

R ; 気体定数 8.314J/mol K

L ; 平均モル蒸発熱(J/mol)

$$L = (\Delta H_1^v + \Delta H_2^v)/2$$

であり、 ΔH_1^v および ΔH_2^v はT₀付近の各成分のモル蒸発熱(J/mol)であるので、

$$\Delta H_1^v = 61.3 \times 10^3 \text{ J/mol} - n\text{ドデカン}^{35)}$$

$$\Delta H_2^v = 71 \times 10^3 \text{ J/mol} - \text{TBP}^{32)}$$

とすると、 $L = 66.2 \times 10^3 \text{ J/mol}$

図2にTBP/nドデカンの引火点測定結果(PM.C.C.による実験値)と(1)式に基づく計算値を示す。実験値と計算値は0~40%TBP-nドデカン(nドデカンのモルフラクションとして1.0~0.643)では、比較的良い一致を示したが、nドデカンが60%以下の場合は実験値の方が低い値となつた。

(2) CMPO/TBP/nドデカンの引火点

CMPO/TBP/nドデカン混合溶媒についてPM.C.C.で測定した引火点とC.O.C.で測定した結果を表2に示す。0.2M CMPOに対して、TBP

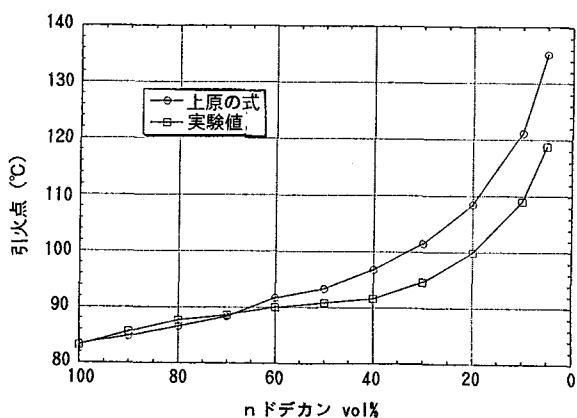


図2 TBP/nドデカン混合溶媒の引火点の実験値(PM.C.C)と計算値の比較

を0.8Mから1.4Mまで変化させ、nドテカンで希釈して引火点を測定したが、PM.C.C.の測定結果は87.8~89°Cであった。また、C.O.C.で測定した結果は、99~103°Cであり、PM.C.C.で測定した引火点より、十数度高い値を示したが、同じ測定法で得た引火点の変動幅は小さかった。

4.1.3 各溶媒の発火点

各溶媒の発火点の測定結果を表3に示す。nドデカンの発火点は、文献値の203°C³⁶⁾に対して200°Cでほぼ同等の値が得られた。また、TBPとCMPOについて、315°Cと280°Cが得られた。混合溶媒の発火点については、30%TBP-nドデカンで215°C、0.2M CMPO-(0.8~1.4)M TBP-nドデカンでは200~217°Cとなり、nドデカンの発火点付近の値となった。

4.2 SC-DSCによる溶媒／硝酸系の発熱反応における発熱量の測定

CMPOはTRUEX溶媒 (0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカン) として使用する。そこで、本研究ではCMPO/硝酸、CMPO/nドデカン/硝酸、CMPO/TBP/硝酸等の発熱反応における発

表3 各溶媒の発火点

対象溶媒	測定値 (°C)	文献値 (°C)
nドデカン	200	203 ³⁶⁾
TBP	315	—
CMPO	280	—
30%TBP-nドデカン	215	—
0.2M CMPO-0.8M TBP-nドデカン	200	—
0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカン	212	—
0.2M CMPO-1.2M TBP-nドデカン	215	—
0.2M CMPO-1.4M TBP-nドデカン	217	—

熱量の測定を行った。また、PUREX溶媒については既に小池ら⁷⁾の詳細な報告等があるが、ここではCMPOとの比較のためTBP、nドデカンおよびTBP/nドデカンについても硝酸との反応における発熱量の測定を行った。

4.2.1 DSC曲線と発熱量の計算

DSCを用いて測定された吸発熱曲線（DSC曲線）からは発熱量(J/g)、反応開始温度（ベースラインとDSC曲線からの接線との交点）、最高発熱（ピーク）温度、曲線の特徴等を読み取ることができる。発熱量はDSC曲線とベースラインで囲まれた部分の面積に比例することから、これを校正するため、純粋なスズ、インジウム、硝酸カリウム等の融解熱が既知の物質の融解曲線を測定して、装置定数の温度による変化を求め、次式により発熱量を求める²⁷⁾。

ここで、M : 試料の質量 (mg)

ΔH ：試料の単位質量当たりのエネルギー

变化量(mJ/mg)

f ; 装置定数(mJ/mJ^*)

A : ピーク面積(mJ^{*})

ただし、 mJ^* は測定したDSC曲線の面積から得られた熱量を表す。

4.2.2 nドデカンと硝酸の反応における発熱量

*n*ドデカン1μlに対して、10N硝酸の量を4～9μlと変化させて密封セル内に封入し、発熱量が飽和したときのDSC曲線（硝酸7μl）を図3に示す。また、*n*ドデカンと硝酸のモル比と発熱量の変化を図4に示す。

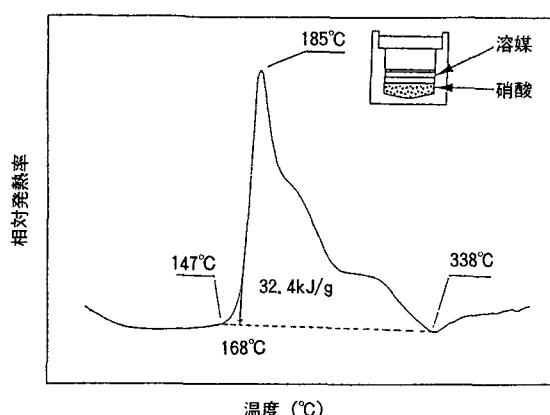


図3 nドекан／硝酸(二相系)飽和発熱時のDSC曲線

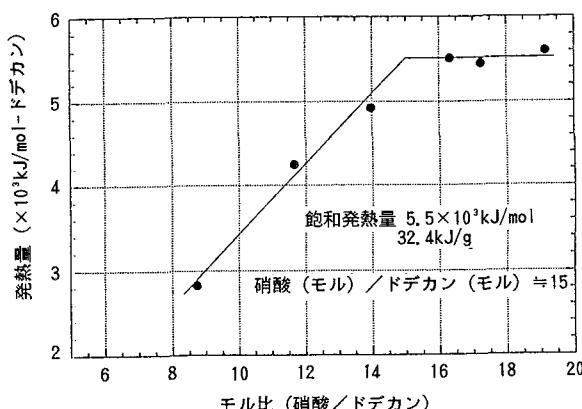


図4 nドデカンと硝酸の二相系での発熱量の変化
(飽和発熱量)

nドデカンと硝酸の平衡溶媒では、ドデカン中に溶解している硝酸量が少ないために発熱は生じなかつたが、硝酸を混在させた二相系では、168°Cから発熱反応が始まり、338°C付近で反応が終了する。nドデカンと硝酸との反応では、nドデカン1モル当たりの飽和発熱量（最大発熱量）は $5.5 \times 10^3 \text{ kJ/mol}$ (32.4 kJ/g -nドデカン) という結果が得られた。飽和発熱量は後述するTBP 1g当たりに比べて1.5倍程度高い値であった。また、SC-DSC測定において、nドデカン1モルと反応する硝酸は図4より約15モルであった。

小池⁷⁾らは、nドデカンと硝酸との反応で、完全な酸化分解反応の化学式を以下のように仮定し、



このときの反応熱（発熱量）は 7636 kJ/mol -nドデカン (44.8 kJ/g -nドデカン) と計算している。これは、SC-DSC測定で得た発熱量 32.4 kJ/g -nドデカンに比べて約1.4倍高い値である。この熱力学的に求めた反応熱とSC-DSCで求めた発熱量の差は、nドデカンと硝酸の化学量論的なモル比は、ほぼ同じ値となったものの、生成物が CO_2 、 H_2O 、 N_2 まで分解されず一部が中間生成物でとどまっているためと考えられる。なお、小池らも同様に示差熱計(DTA)を用いてnドデカンと硝酸の二相系における発熱量を測定して飽和発熱量を 32 kJ/g -nドデカン、この時の硝酸とのモル比を15と報告している⁷⁾。

4.2.3 TBPと硝酸の反応における発熱量

(1) TBPの熱特性

TBPは 110°C 以上で熱的に不安定で、ゆっくり

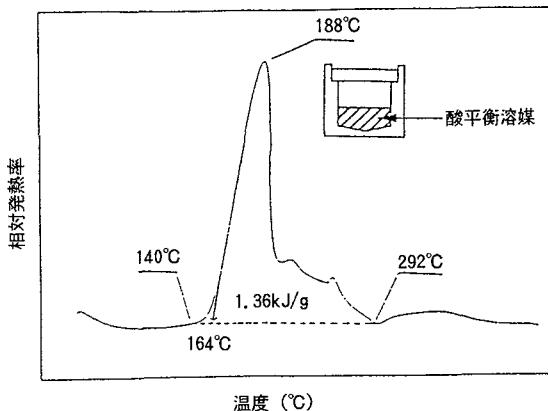
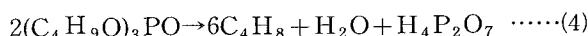


図5 TBP-硝酸平衡溶媒(10N)のDSC曲線(単相系)

分解し、分解速度は沸点に近づくにつれて増加する。そして蒸気圧の実験式から $268\sim293^\circ\text{C}$ が沸点域と評価されている³³⁾。この熱分解の反応式は次のように推定される¹⁰⁾。



Barneyらは純粋なTBPの熱分解をアルゴン雰囲気下、 $112\sim268^\circ\text{C}$ の温度範囲で、DTA(開放セル)-マススペクトルメータを用いて測定した。気相中の熱分解生成物は、 H_2O と C_4H_8 (1-ブテン)のみであり、この温度範囲でのTBPの分解熱は 228 J/g -TBP、反応の活性化エネルギーは 79.4 kJ/mol と評価されている¹⁰⁾。

(2) TBP/硝酸平衡溶媒(単相系)の発熱量

100%TBPと10N硝酸の平衡溶媒のDSC曲線を図5に示す。また、100%TBP平衡にさせる硝酸の濃度を変化させた時の発熱量の変化を表4に示す。TBPと10N硝酸との平衡溶媒(単相系)では 164°C から反応が始まり、ピーク温度が 188°C で 292°C 付近で反応が終了した。また、平衡にする硝酸濃度が上昇するに従い発熱量も増加した。硝酸平衡溶媒の発熱量は、硝酸平衡溶媒中に存在する硝酸量に比例することが報告されている⁷⁾。

表4 TBP-硝酸平衡溶媒の硝酸濃度変化時の発熱量変化

硝酸濃度(N)	反応開始温度(°C)	ピーク温度(°C)	発熱量(J/g)
1	178	202	179
5	172	192	977
7	168	190	1267
10	164	188	1357
13.4	159	185	1510

注) 測定値は3回測定の平均値

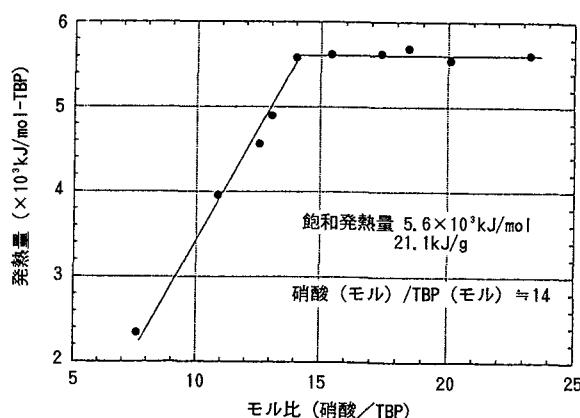


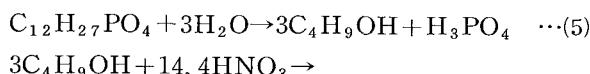
図 6 TBPと硝酸の二相系での発熱量変化（飽和発熱量）

(3) TBP/硝酸の二相系での発熱量

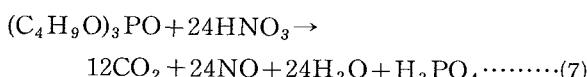
TBP $1\mu l$ に対して10N硝酸の量を $4 \sim 9\mu l$ 変化させて添加した時の発熱量の変化を図6に示す。

二相系における発熱反応は166°C付近から始まり、ピーク温度も単相系とほぼ同様であった。図6からTBP/硝酸のモル比約14以上で発熱量が飽和し、その飽和発熱量は 5.6×10^3 kJ/mol (21.1 kJ/g-TBP)という結果が得られた。この値は13.4Nの濃硝酸と平衡な100%TBP(単相)の酸平衡溶媒での発熱量1.5kJ/g-TBP酸平衡溶媒の約14倍の値を示した。これは、水相から有機相に硝酸が供給されるためTBP/硝酸平衡溶媒に比べて反応が進行するためと考えられる。

小池らも同様な実験を行っており、100%TBPの飽和発熱量を20kJ/g-TBP、この時のモル比を13と報告している⁷⁾。また、小池らはTBPと硝酸の反応に対して、次の反応式を提案し、熱力学的な反応熱(発熱量)として(6)式から28.5kJ/g-TBPを与えていた⁷⁾。



一方、Barneyは開放系におけるTBPと硝酸の酸化反応について次の反応式を提案している¹⁰⁾。



この時の反応熱(発熱量)の熱力学的な計算結果は766kcal/mol(約12kJ/g-TBP)としている。DTAによる開放系でのTBP/濃硝酸系での発熱量は実験値から控えめに見て150J/g-TBP程度と考え、濃硝酸によって飽和されたTBP単相中

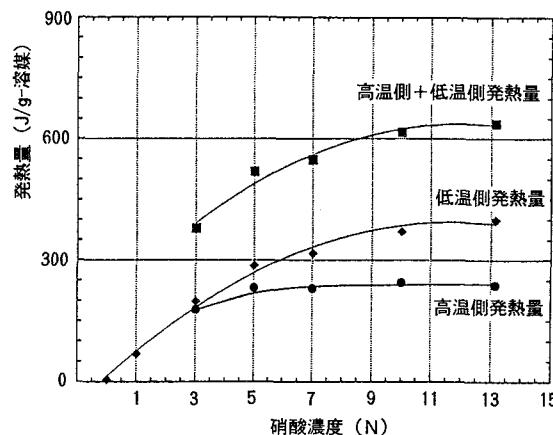


図 7 硝酸濃度変化時の30%TBP-nドデカンの発熱量変化(単相系)

に含まれる硝酸28wt%と水3.2wt%による吸熱を310J/g-TBPと見積り、TBP/硝酸系の開放系における酸化による発熱量を460J/g-TBPとしている。また、この値は反応熱の4%以下でしかなく、したがって4%以下のTBPしか開放された工程のベッセル中では反応しないと評価している¹⁰⁾。

4.2.4 30%TBP-nドデカンと硝酸の反応における発熱量

(1) 30%TBP-nドデカン/硝酸平衡溶媒(単相系)の発熱量

30%TBP-nドデカンを硝酸(1~13.4N)平衡とした試料の発熱量の測定結果を図7に示す。図8には10N硝酸と平衡な30%TBP-nドデカンのDSC曲線を示すが、2つの発熱ピークが存在する。10N硝酸では低温側のピークの反応開始温度

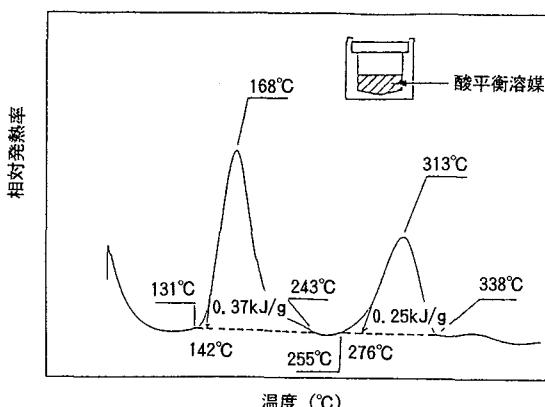


図 8 30%TBP-nドデカン-硝酸平衡溶媒(10N)のDSC曲線(単相系)

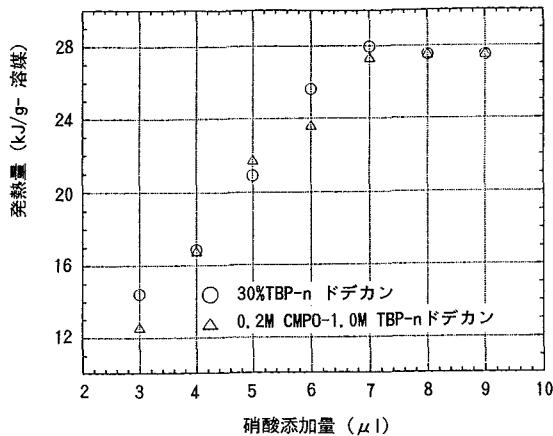


図9 30%TBP-nドデカンおよび0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカンと硝酸の二相系での発熱量変化(飽和発熱量)
(試料溶媒1μlに10N硝酸添加)

は142°C、ピーク温度は168°Cであり、高温側ではそれぞれ276°C、313°Cであった。

また、図7から硝酸濃度が高くなるに従い低温側、高温側のピークとも反応熱量が増加するが、増加の割合は低温側のピークの方が大きいことがわかる。

(2) 30%TBP-nドデカン／硝酸の二相系での発熱量

30%TBP-nドデカンと硝酸との平衡溶媒(単相系)では、発熱反応が2か所で確認されたが、10N硝酸を混合させた系においては平衡溶媒の低温側ピークに相当する温度範囲での発熱が大きくなり、高温側ピークに相当する部分は低温側ピークのテーリングに含まれていた。30%TBP-nドデカン／硝酸の二相系での反応の開始温度やピーク温度は、100%TBP／硝酸二相系とほぼ等しく、これは、30%TBP-nドデカン-10N硝酸平衡溶媒(単相系)の低温側ピークと比べて反応開始温度では17°C程度、ピーク温度では16°C程度高温側にシフトしていた。

30%TBP-nドデカン(1μl)に対する10N硝酸の添加量を変えた時の発熱量の変化を図9に示す。図9から30%TBP-nドデカンの飽和発熱量は27.7kJ/g-混合溶媒であった。

4.2.5 CMPOと硝酸の反応における発熱量

(1) CMPOの熱特性

CMPOのみを密封セルに封入し、室温から400°Cまで測定を行った結果、50°C付近に吸熱ピークが認められたが、それ以上の温度では変化がなかった。この吸熱ピークはCMPOの融解熱と考えら

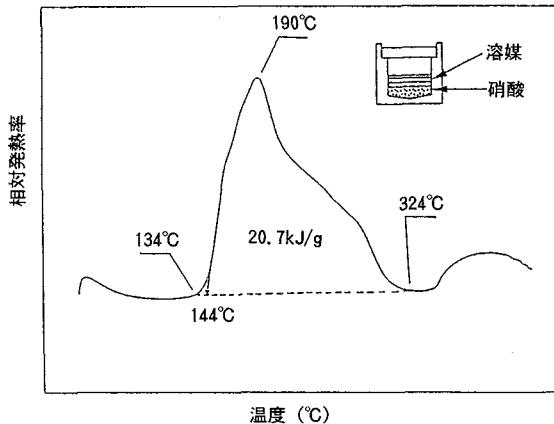


図10 CMPO/硝酸(二相系)のDSC曲線
(CMPO 1mgに10N硝酸 9μl添加)

れ、その融点は47°C、融解熱は73.3J/gであった。

(2) CMPO/硝酸の二相系での発熱量

CMPOと硝酸溶液は振とう後、静置しても分離しにくく、懸濁した状態になるのでCMPO/硝酸平衡溶媒(单相)での試験は実施しなかった。二相系の測定において密封セルにCMPO 1mgと10N硝酸 9μlを封入して測定したDSC曲線を図10に示す。また、CMPOに対して硝酸の量を変化させたときの発熱量の変化を図11に示す。

CMPOと10N硝酸の二相系でのDSC曲線では、反応開始は144°C付近であり反応終了は324°C付近であった。この反応開始温度はTBP/硝酸系、nドデカン／硝酸系(いづれも二相系)の反応開始温度より低温側にシフトした。CMPOと硝酸との飽和発熱量測定はCMPOと硝酸のモル比の他、昇温速度も変化させて試験した。モル比25以上の発熱量は19~25kJ/g-CMPO(平均で

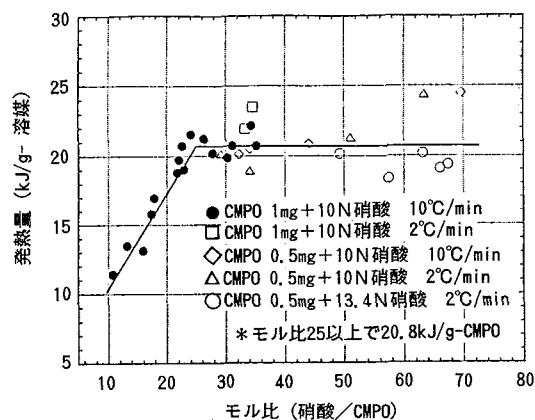
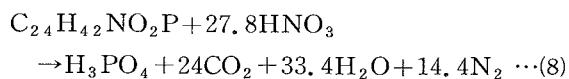


図11 CMPOの硝酸の二相系での発熱量変化(飽和発熱量)

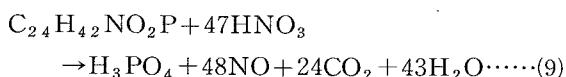
20.8 kJ/g-CMPO) であった。TBPと比べてバラツキが大きい理由としては、CMPOと硝酸の反応がTBPと硝酸の反応よりさらに複雑であるためと考えられる。また、CMPO自体が粘性の高い物質であり、密封セル内で硝酸との反応が不均一になっている可能性も考えられる。そこでCMPOの粘性を下げるために、CMPOとすでに飽和発熱量がわかっているTBPを2:1、1:1、1:2(重量比)で混合し、その飽和発熱量からCMPOの飽和発熱量を求める試験を行った。TBPの飽和発熱量は21.1 kJ/g-TBPとするときCMPOの飽和反応熱量は21.4 kJ/g-CMPO (8.7×10^3 kJ/mol-CMPO)となり、単位重量当たりではTBPとほぼ同等の飽和発熱量であることがわかった。

また、密封セル内で飽和発熱量を示すCMPOと硝酸のモル比は約25であり、TBPの場合の14より大きな値を示した。CMPOの加水分解や放射線分解に起因する主な劣化生成物については、現在研究が進められ、中性のMO₄PO (methyl octyl phenyl phosphine oxide)と酸性化合物であるH[O₄P] (octyl phenyl phosphoric acid)が知られている¹⁾が、酸化分解についての知見はない。ここで、CMPOの硝酸による酸化分解について、TBPに対する小池⁷⁾らの扱いと同様にリン酸とCO₂、H₂O、N₂まで反応が進むと仮定すると次式が提案できる。



(8)式からは化学量論的にCMPO 1モルと反応する硝酸のモル数は27.8モルとなり、実験的にもとめたモル比25とほぼ一致する。

また、Barneyら¹⁰⁾と同様に、開放系での反応生成物をリン酸とNO、CO₂、H₂Oとし、NOが反応の系外へ出ると仮定すると次式が提案できる。



4.2.6 CMPO/TBP/nドデカンと硝酸の反応における発熱量

(1) 0.2M CMPO-1.0M TBP-硝酸平衡溶媒(単相系)の発熱量

CMPOとTBPをモル比で1:5に混合した溶媒に対して1Nから13.4Nまでの硝酸を平衡にさせた硝酸平衡溶媒についてSC-DSC測定を行った。DSC曲線の例として、10N硝酸平衡試料のDSC曲線を図12に示す。図12では図5に示した

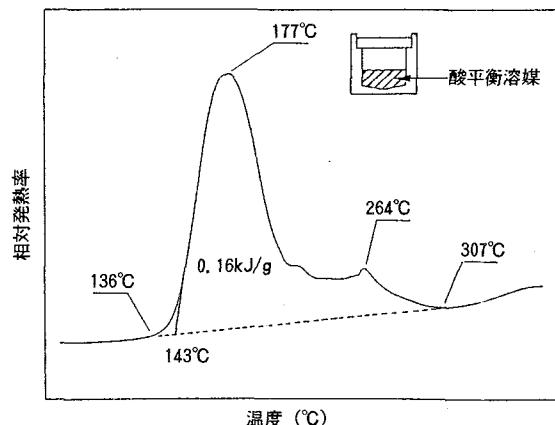


図12 0.2M CMPO-1.0M TBP-硝酸(10N) 平衡溶媒のDSC曲線(単相系)

TBP-10N硝酸平衡溶媒と同様な波形を示しているが、0.2M CMPO-1.0M TBP-10N硝酸平衡溶媒の場合、反応開始温度が143°C(図5の場合164°C)、ピーク温度が177°C(図5の場合188°C)となり、100%TBPに比べ、反応開始温度、ピーク温度とも低温側にシフトした。

また、溶媒と平衡にする硝酸の濃度を変化させたときの発熱量の変化を図13に示す。硝酸濃度が高くなるに従い、発熱量も増大し、10N硝酸で1.6kJ/g-平衡溶媒、13.4Nで1.7kJ/g-平衡溶媒となつた。

(2) 0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカン/硝酸平衡溶媒(単相系)の発熱量

0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカン/硝酸平衡溶媒試料の発熱量の測定結果を表5に示す。

硝酸濃度は1~10Nと変化させたが、10N硝酸平衡試料では二相に分離した。DSC曲線の例として、7N硝酸平衡試料のDSC曲線を図14に示す。

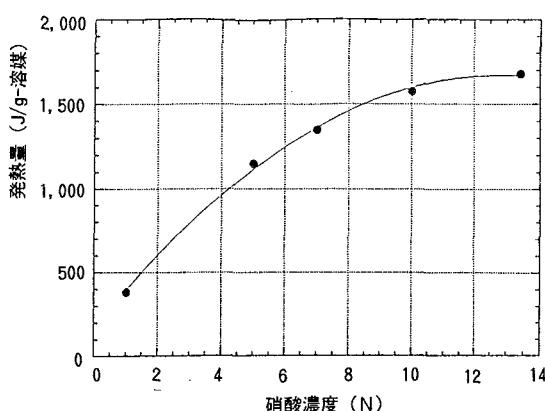


図13 0.2M CMPO-1.0M TBP-硝酸平衡溶媒の硝酸濃度変化時の発熱量変化

表5 0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカン-硝酸平衡溶媒の硝酸濃度変化時の発熱量変化(単相系)

硝酸濃度 (N)	低温側ピーク			高温側ピーク			高温側発熱量 + 低温側発熱量 (J/g)
	反応開始温度 (°C)	ピーク温度 (°C)	発熱量 (J/g)	反応開始温度 (°C)	ピーク温度 (°C)	発熱量 (J/g)	
1	165	182	83	—	—	—	83
5	152	172	351	266	300	125	476
7	145	170	429	266	315	140	569
10(軽溶媒相)	139	165	178	282	324	84	262
10(重溶媒相)	138	165	821	240	285	170	991

注) 測定値は3回測定の平均値

DSC曲線からは、発熱ピークが2か所で認められ、低温側のピークの反応の開始温度は145°C、ピーク温度が170°C、また、高温側のピーク温度は315°Cとなった。この低温側のピークはCMPOを含まない30%TBP-nドデカン／硝酸平衡試料とほぼ同様の波形、反応開始温度、ピーク温度となつた。

7N硝酸平衡試料の場合の低温側ピークと高温側ピークの合計の発熱量は569J/gとなつた。10N硝酸平衡試料では、二相に分離した有機相の軽溶媒相で262J/g、重溶媒相で991J/gとなり、重溶媒相と軽溶媒相の発熱量の比は3.8であった。これは軽溶媒相と重溶媒相の組成が異なり、重溶媒相では、軽溶媒相にくらべてCMPOやTBPの濃度が高く、硝酸の存在量が多くなつたためと考えられる。

(3) 0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカン／硝酸の二相系の発熱量

0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカンの1μlに対して10N硝酸を添加し、発熱量が飽和したときのDSC曲線を図15に示す。また、30%TBP-nドデカン-硝酸系と0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカン-硝酸系の発熱量の比較を図9に示す。

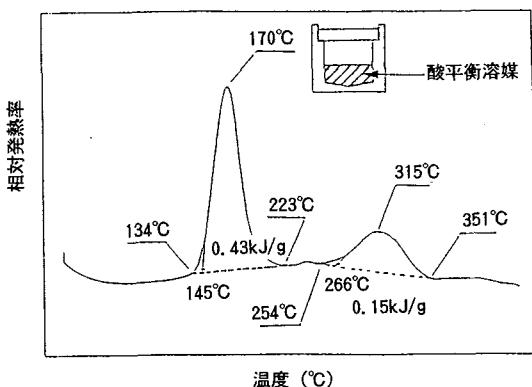


図14 0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカン-硝酸平衡溶媒(7N)のDSC曲線(単相系)

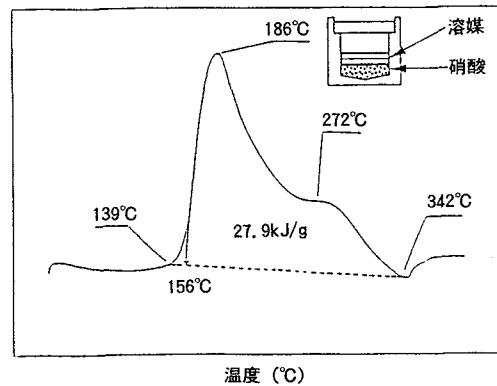


図15 0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカン／硝酸(二相系)の飽和反応時のDSC曲線

硝酸を共存させた二相系では30%TBP-nドデカン／硝酸系と同様に低温側ピークの発熱量が大きくなり、高温側ピークはそのテーリングに隠れた形になっている。図15では反応開始温度は156°Cであり342°Cで反応が終了する。反応開始温度は平衡溶媒系(単相系)に比べ10°C程度高温側にシフトした。

図9から30%TBP-nドデカン／硝酸系、0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカン／硝酸系それぞれの飽和発熱量は、27.7、27.5kJ/g-混合溶媒となり、ほぼ同じ値を示している。また、双方ともに混合溶媒1μlに対して、10N硝酸7μl以上を共存させた場合、飽和発熱量を示した。

5. おわりに

TRUEX溶媒の熱的、化学的安全性を確認するため、引火点、発火点の測定とSC-DSCを用いた溶媒と硝酸の反応における発熱量の測定を実施した。

引火点や発火点は有機溶媒による火災との関連性が高いが、CMPOの引火点は179°CでTBPの145°Cより高くなつたが、発火点は280°CでありTBPの315°Cより低い結果が得られた。TBP/nドデカン、CMPO/TBP/nドデカン混合溶媒の引火点は、nドデカンのモル比の減少に伴つて、nドデカンの引火点より高くなり、60~100vol%nドデカンでは理想溶液を仮定した計算値と良い一致を示した。0.2M CMPO-(0.8~1.4)M TBP-nドデカンの引火点は87.8~89.0°Cであり、30%TBP-nドデカンの88.6°Cと同等であった。また、30%TBP-nドデカンと0.2M CMPO-(0.8~1.4)M TBP-nドデカンの発火点は、nドデカンの発火点より0~15°C高い値となつた。実際に再処理プロセスで使用する混合溶媒として考える

表 6 溶媒と硝酸の反応における発熱量の比較

溶媒	試験条件	発熱量(kJ/g)
TBP	13.4N硝酸平衡溶媒(単相系) 飽和発熱量(二相系)	1.5 21
nドデカン	飽和発熱量(二相系)	32
30% TBP-nドデカン	13.4N硝酸平衡溶媒(単相系) 飽和発熱量(二相系)	0.64 28
CMPO	飽和発熱量(二相系)	21
0.2M CMPO-1.0M TBP	13.4N硝酸平衡溶媒(単相系)	1.7
0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカン	7N硝酸平衡溶媒(単相系) 飽和発熱量(二相系)	0.57 28

とPUREX溶媒とTRUEX溶媒の引火点、発火点はほぼ等しく、安全上の問題は特に考えられない。

溶媒と硝酸の発熱反応の反応熱(発熱量)については、SC-DSCで測定し、各溶媒の発熱量と硝酸濃度との関係を把握した。主な発熱量のデータを表6にまとめて示すが、二相系における単位重量当たりの飽和発熱量は、CMPOとTBP、0.2M CMPO-1.0M TBP-nドデカンと30% TBP-nドデカンで、それぞれほぼ等しい値となった。また、単相系における100%TBPと0.2M CMPO-1.0M TBPの各硝酸濃度における平衡溶媒の発熱量も単位重量当たりではほぼ等しい値であり、発熱量としてはPUREX溶媒とTRUEX溶媒で大きな差はなかった。発熱量が飽和したときの溶媒と硝酸のモル比は、TBPやCMPOが硝酸により完全に酸化すると仮定した反応式の化学量論値とほぼ一致した。

SC-DSCで測定した反応開始温度は、100%TBP(単相系)と0.2M CMPO-1.0M TBP(単相系)で比べると後者の方が低温側にシフトする傾向があった。また、100%TBPと100%CMPOの二相系についても100%CMPOの方が低温側にシフトする傾向があった。この反応開始温度の差については、今後反応速度の測定とともに検討したい。

TRUEX溶媒の安全性に係わる引火点、発火点および密封非断熱系における硝酸との反応の発熱量に係わる基礎的なデータは、ほぼ収集できたので、今後はより苛酷な条件である密封断熱系や実際のプロセス条件に近い開放非断熱系での反応機構等に係わる試験を行い、TRUEX溶媒の安全な操作範囲をさらに確認していく計画である。

参考文献

- 1) 小沢他：“二座配位型抽出剤による再処理高レベル廃液中のアクチニド元素の湿式分離研究” 動燃技報, 82, (1992).
- 2) 科学技術庁：ロシアのトムスク再処理施設の事故に関する調査報告書 (1994).
- 3) T.J. Colven, et al.: “TNX Evaporator Incident January 12, 1953”, DP-25 (1953).
- 4) W.S. Durant, “Red Oil Explosion at the Savannah River Plant” DP-MS-83-142 (1983).
- 5) L.W. Gray, : “An Explosion and Fire during Conversion at Liquid Uranyl Nitrate to Solid Uranium Oxide”, Nuclear Safety, 19, 1, pp91~99 (1978).
- 6) Y.Kuno et al.: “CHEMICAL BEHAVIOR OF DEGRADATION PRODUCTS of TRIBUTYLPHOSPHATE IN PUREX REPROCESSING”, PNC TN8410 95-061 (1995).
- 7) 小池他：“再処理施設における溶媒と硝酸の熱分解反応に関する安全性実証試験”, JAERI-Tech 95-005 (1995).
- 8) 西尾他：“再処理施設における溶媒の熱化学反応に関する安全性実証試験”, JAERI-Tech 95-027 (1995).
- 9) 朝倉他：“再処理溶液系における1-ブタノールの分配挙動”, JAERI-Tech 95-027 (1995).
- 10) G.S.Barney et al.: “The Chemistry of Tri-butyl Phosphate at Elevated Temperatures in the Plutonium Finishing Plant Process Vessels” WHC-EP-0737 (1994).
- 11) E.Nazin et al. : “Analysis of Thermal Explosion at Tomsk-7”, LA-UR-94-4270 (1994).
- 12) J.R.Smith et al. : “Isothermal Heat Measurem ent of TBP-Nitric Acid Solution (U)”, WSRC-TR-94-0540 (1994).
- 13) Fauske & Associates, : “Tributyl Phosphate-Nitric Acid Reaction and Vent Requirement” FAI/94-68 (1994).
- 14) M.L.Hyder: “Safe Handling of TBP and Nitrates in the Nucler Process Industry (U)”, WSRC-TR-94-0372 (1994).
- 15) DOE : “Evaluation of Safety Concerns Related of Potential Nitrate-Organic Chemical Hazards at Department of Energy Facilities”, DOE/DP-0127 (1994).
- 16) 難波他：“硝酸酸化”, 有機合成化学, 24, 10 (1966).
- 17) R.M.Wagner : “Investigation of Explosive Characteristics of Purex Solvent Decomposition Products (Red Oil)”, HW-27492 (1953).
- 18) R.A.Pugh: “Notes Pertaining to Recuplex Product Evaporation”, HW-32100 (1954).
- 19) G.S.Nichols : “Decomposition of Tributyl Phosphate-Nitrate Complexes”, DP-526 (1960).
- 20) R.G.Wilbown: “Safety Aspects of Solvent Nitration in HTGR Fuel Reprocessing”, GA-A14372 (1977).
- 21) L.Stieglitz et al. : “Properties of Heavy Organic phase and their Formation in the Purex Process”, KfK-3983 (1985).
- 22) 菊地：“ARCによる反応性化学物質の熱暴走危険性の評価”, 住友化学, 1989-I (1989).
- 23) JIS K 2265-1989 “原油および石油製品引火点試験法”.
- 24) 消防庁：危険物確認試験法実施マニュアル.
- 25) ASTM E659-1978.
- 26) 福山：安全工学実験法, 日刊工業社 (1983).
- 27) 吉田：化学薬品の安全, 大成出版 (1982).
- 28) 化学大辞典, 共立出版.
- 29) 長谷川他：“粘性液体の引火点測定に関する研究”, 安全工学26, 3 pp.139-147 (1987).
- 30) 岩田他, “難引火性液体の引火点測定に関する研究”, 安全工学34, 1 pp.32-35 (1995).
- 31) H.Pollock : “A STABLE DILUENT FOR PUREX PROCESS EXTRACTANTS”, DP-294 (1958).
- 32) L.L.Buger, “COMPARISON OF DILUENTS FOR TRIBUTYL PHOSPHATE”, HW-19065 (1950).
- 33) L.L.Buger, “PHYSICAL PROPERTIES”, in Wallace. W. Shultz. et al., “SCIENCE and TECHNOLOGY of TRIBUTYL PHOSPHATE Vol.1” CRC Press (1984).
- 34) 上原, “二成分系溶液の引火温度についての考察”, 安全工学7, 3 pp.210-216 (1968).
- 35) 浅原他：“溶媒ハンドブック”, 講談社サイエンティフィック (1975).



資料番号：97-2

アサバスカ層群マニトーフォールズ累層の 地球化学的特性と試錐孔評価(その1) —統計的データ解析によるしきい値の設定と 変質度指数の導出—

飯田 義正

東濃地科学センター

Geochemical Characteristics of the Manitou Falls Formation
of the Athabasca Group, and Evaluation of Exploration Drill
Holes (part1)
—Selection of Thresholds and Introduction of Alteration
Index by Statistical Analyses—

Yoshimasa Iida
(Tono Geoscience Center)

カナダ、サスカチワン州北部の不整合関連型ウラン鉱床地帯に位置し、動燃事業団の単独鉱区であるクリスティーレイクB地区において、鉱床を覆う砂岩層（アサバスカ層群マニトーフォールズ累層）の地球化学的特性を調査中である。これまでの調査結果を基に、鉱床を取り巻く鉱物・元素ハローの特徴を把握するとともに、それを表わす地球化学的指標の各変量に対するしきい値（異常と識別する下限の値）を定めた。また、多変量統計解析の主成分分析により、各探査試錐孔ごとの、砂岩層に関する地球化学的な総合的評価点（変質度指数）を求めた。今後、これらの結果を実際の探査に適用することにより、鉱床の発見効率が向上するものと期待される。

1. はじめに

世界一の低コスト・ウラン鉱床群が分布するアサバスカ盆地は、カナダ中央部のサスカチワン州北部に位置する。アサバスカ盆地では1968年に最初の鉱床が発見されて以来、これまでに約15の主要鉱床が捕捉された。1970年代の中ごろまでに、胚胎深度が浅く、鉱体の一部が地表に露出するような鉱床は放射能探査によって発見されついたため、それ以後は、深部の鉱床（潜頭鉱床）が探査対象となった。この地域で現在探査活動中の多くの鉱区では、対象鉱床深度が300~700mとなっている。それとともに、電磁探査を中心とする物理探査と地化学探査（地球化学的探査）が探査手法の主体となつた¹⁾。

アサバスカ盆地のウラン鉱床は、不整合関連型鉱床と呼ばれ、堆積盆地基底の不整合付近に胚胎される。主要な鉱床地帯である盆地東部では、砂岩層からなるマニトーフォールズ累層が、結晶質岩からなる基盤岩を不整合に覆って、広く分布しており²⁾、鉱床探査に伴って、詳しく調査されてきた。

鉱床付近の岩石は、熱水変質作用の影響を受けて、鉱物組成や化学組成、電気的特性、岩石力学的特性等が周辺の岩石と比べ変化しており、変質ハローと総称される。地化学探査の目的は、変質ハローの検出・識別にある。地化学探査で得られたデータの特徴としては、判別の困難なハローの周縁部の検出が可能であること、数値データであるため数量解析が容易に行えること、調査者によるバイアスが無視できるので一律にデータを扱えること、が挙げられる。変質ハローの模式断面図を図1に示す。

砂岩層中の変質ハローの広がりは、鉱床のサイズや基盤岩中の変質ハローよりも大きいので、広域概査段階からの探査指針となりうる。また、砂岩の鉱物・化学組成は比較的単調なので、基盤岩に比べ地球化学的データの解釈が簡単である。これまでに複数の鉱床においてマニトーフォールズ累層中の変質ハローが調査され、その特徴が理解されつつある^{3)~6)}。しかし、バックグラウンドを含めた鉱床周囲の広い範囲を系統的に調査し、統計

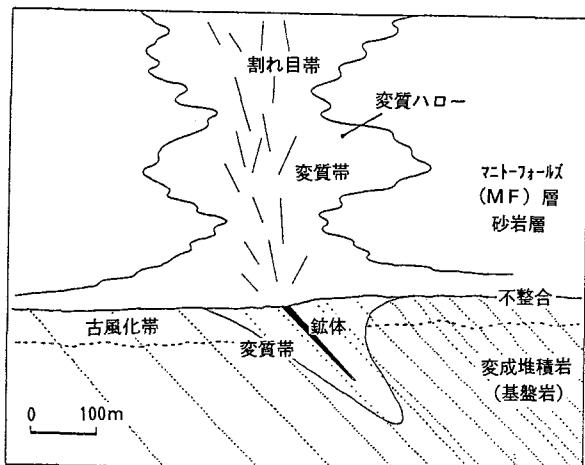


図1 アサバスカ盆地の不整合関連型鉱床の変質ハロー模式断面図

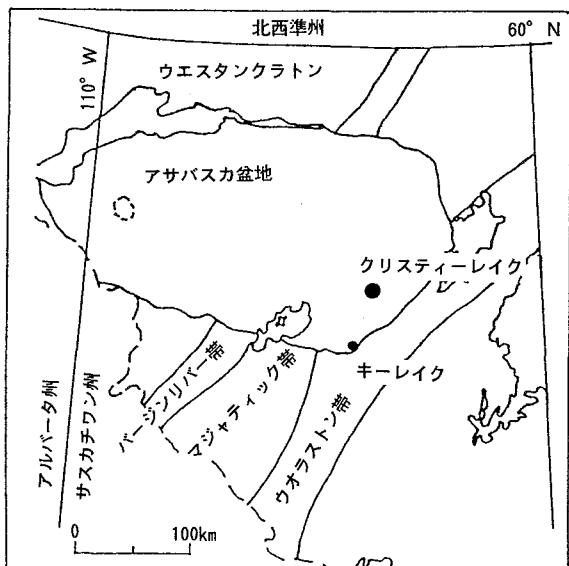
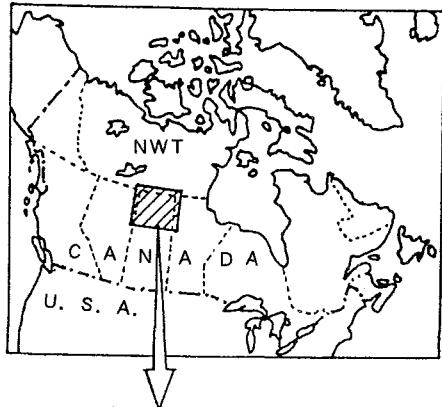


図2 調査位置図

解析により砂岩層中の変質ハローの全貌を把握したような例はなかった。このため、地化学探査の実務上重要なしきい値（異常とバックグラウンドの境界値）を統計的に決定することができず、探査会社の調査員ごとに経験的に妥当と思う値を与える等、データの解釈に混乱をきたしていた。

クリスティーレイクB地区は、アサバスカ盆地東部に位置する動燃事業団カナダ法人の単独鉱区である。同鉱区調査位置を図2に示す。これまでの調査により鉱床が発見されるとともに、鉱床周辺の岩石に関し多数の化学分析データが蓄積された。このデータを用いて統計解析を行い、各分析項目ごとに確立分布モデルを設定し、異常群とバックグラウンド群の識別を行った。また、各探査試錐孔ごとの砂岩層についての地球化学的な総合指数(変質度指数)を多変量統計解析の主成分分析により求めた。これらの結果を以下に報告する。

2. マニトーフォールズ累層の概要

マニトーフォールズ累層（以下MF層と略す）は、アサバスカ盆地西部の一部を除く地域において、堆積盆地の基底累層を成す。その厚さは盆地中央部において最大1,000mに達する。地層の傾斜は非常に緩く、数キロメートル程度の範囲内ではほぼ水平とみなせる。基底不整合面も地層の傾斜とほぼ平行であり、水平に近い。

本累層は河川成の石英質砂岩・礫岩から構成される。おおむね上方細粒化の傾向が認められ、礫の含有程度で4つの部層(MFa, MFb, MFc, MFd)に区分されている²⁾。

堆積当時の強い風化作用を反映して、砂および

礫の粒子のほとんどは石英からなる。また、風化に対する抵抗性の強いジルコンやモナズ石などの重鉱物粒子が微量に含まれる。

石英粒子間のマトリックス部分は粘土鉱物と赤鉄鉱（ないし水酸化鉄鉱物）から構成される。粘土鉱物は、カオリナイトとマイカクレイが一般的である。マイカクレイは、イライトやセリサイト、ハイドロマイカなどと称される白雲母類縁の粘土鉱物である。単一の化学組成を持つ鉱物ではなく、ある組成幅を持った鉱物グループとした方が実際的なので、ここではこの種の鉱物の総称である雲母粘土鉱物(mica clay minerals)を略してマイカクレイと呼ぶことにする。カオリナイトが初生的な粘土鉱物であり、マイカクレイは堆積後の続成作用または変質作用によって生成したと考えられる。

鉱床付近の変質ハローでは、MF層のマイカクレイ/カオリナイト比が増加することがミッドウ

エスト鉱床等で報告された^{3,4)}が、キーレイク鉱床では逆にこの比が低下している^{4,7)}。また、変質ハローでは、スドーアイト（2・3八面体型緑泥石の一種）や微粒のアルカリ・フリー・ドラバイト（電気石の一種；以下AFドラバイトと略す）が生成していることが多い^{8~11)}。

MF層は通常、含有する赤鉄鉱によって、赤色調を呈する。赤鉄鉱が溶脱されて白色を呈することをブリーチング（脱色）と称している。ブリーチングは変質ハローの部分で顕著となる傾向があるが、それ以外の部分にも認められる。特に、最上部のMFd層は広範囲にブリーチングされており、続成作用によるものと推定されている。

鉱床直近部は石英が溶脱されて著しく粘土鉱物に富み、粘土帯を形成する場合が多い。これに伴って岩石強度も低下し、割れ目が発達している。また、粘土帯の外側では、逆に二次的に石英が成長して珪化帯を作っている。

3. 調査地区

調査地区は動燃事業団の単独鉱区であるクリスティーレイクB地区（以下B地区と略称する）である。この地区は、北緯57度50分、西経104度50分付近にあり、アサバスカ盆地東部の鉱床地帯に位置する（図2、3）。近隣には代表的な不整合関連型ウラン鉱床であるシガーレイク鉱床とマッカーサーリバー鉱床が存在する。

B地区では1989年に高品位鉱に着鉱、その後の

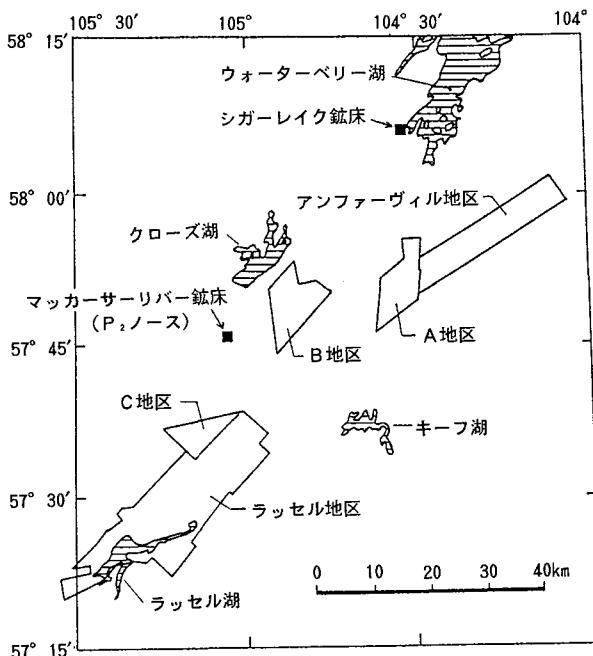


図3 鉱区位置図

追跡調査により7つの鉱化帯を確認し、さらに追跡調査を継続中である。これまでに71孔の試錐を実施した。

本地区のMF層の厚さは約400mで、地層はほとんど水平である。MF層を切る断層が地区北東部で確認されたが、その垂直変位量はたかだか15mであった。なお、全域は、数十メートルの厚さの氷河成堆積物により被覆されている。

4. 20m規格化データの統計解析

4.1 サンプリング、分析項目、データのチェックと規格化

B地区のうち、顕著な鉱化変質帯が確認されている地区北東部のポールベイグリッドについて、1989~1994年に実施した48の試錐孔から採取した試錐岩芯化学分析データを使って、MF層の統計解析を行った。試錐位置は鉱化変質帯の中軸部を中心に、結果的にランダムに近く配置されているものと見なせる（図4）。

岩芯のサイズ規格はNQ（直径47.6mm）である。

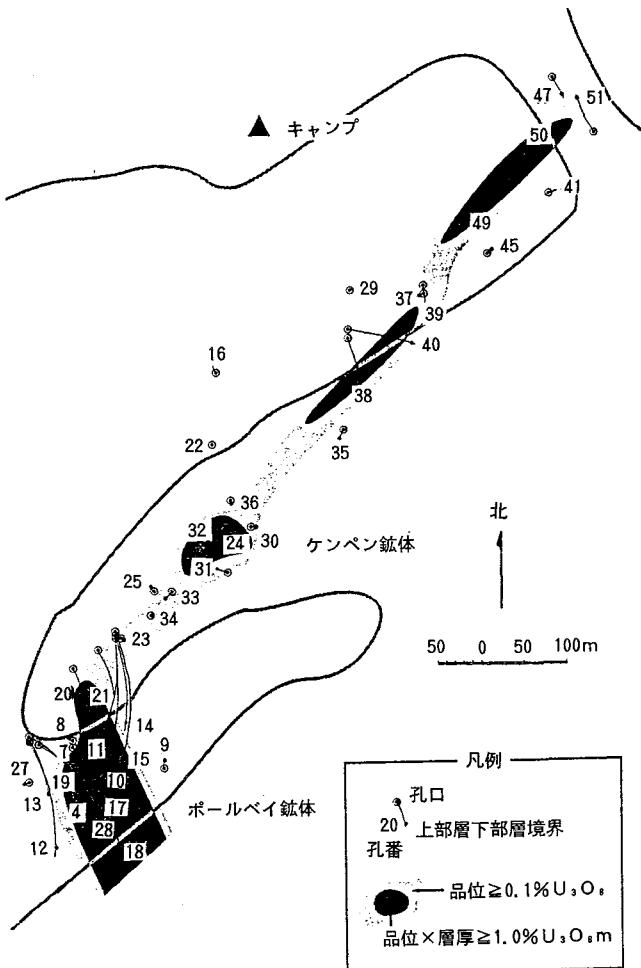


図4 ポールベイグリッド平面図（1994年現在）

MF層の岩芯の1.5mごとに厚さ2cmの岩片を採取し、それを掘進長20mないし10m分（一部5m）をまとめたものを混合試料として分析に供した。なお、MF層の上下端部分はサンプル長が端数となる。

このようなサンプリング方法は、アサバスカ地域で一般的であり、他の地区でも採用しているため、これにならい、定常的に現場で実施している。

分析項目は、主要元素がアルミ(Al_2O_3)、鉄(全鉄 Fe_2O_3)、マグネシウム(MgO)、カリウム(K_2O)であり、微量元素としては、ウラン(U)、鉛(Pb)、ニッケル(Ni)、コバルト(Co)、銅(Cu)、亜鉛(Zn)、バナジウム(V)、ホウ素(B)である。定量化学分析は、地元サスカチワン州政府機関のサスカチワン・リサーチ・カウンセル(SRC)に委託した。ウランについては蛍光分析法を、それ以外はプラズマ発光分析(ICP)法を用いた。試料は、主要元素についてはフッ酸を含む強酸による全溶解を、微量元素については、対酸抵抗性の強い碎屑性重鉱物中に含有されているものを排除し、なるべく変質過程で付加された元素のみが分析されるよう、硝酸・塩酸混合液による部分溶解を行っている。

分析データの品質は、20試料ごとに行う標準リピート試料によりチェックされる。また、アルミ、マグネシウム、カリウムおよびホウ素のデータについては、組成共生図表(AKMダイアグラム¹²⁾；後述)にデータをプロットすることによってチェックし、疑わしいデータは再度分析を依頼している。

このようにして得られたデータを、統計解析のためのデータとして、試錐長20mに規格化した。すなわち、10m分の混合試料のデータについては、隣あう2つのデータの平均を20m規格化データとした（サンプル長5mの場合は4つの平均）。得られた20m規格化データの総数は845であった（バナジウムについては537）。

なお、一部の試錐孔は、地形的に機械設置場所が限られる等の理由で傾斜孔となっているが、鉛直方向からの角度は最大16度と垂直に近いので、孔傾斜に関する規格化は行わなかった。また、前述のようにMF層上下端部のサンプル長は端数となっているが、サンプル長が15~25mの場合は20mに近いとみなして採用し、それ以外はデータとして用いなかった。

4.2 地球化学的指標

岩石の化学分析データから、変数相互の簡単な

演算により意味のある変数を作ることができる場合がある。MF層については、鉄、アルミ比($\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$)およびマグネシウム・カリウム比($\text{MgO}/\text{K}_2\text{O}$)が地球化学的に有意な指標であり、各々の元素分析値とともに、統計解析の基礎的なデータとなる。

(1) 鉄・アルミ比($\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$)

MF層の堆積当時、砂岩の間隙部分（マトリックス）は粘土鉱物（カオリナイト）と酸化鉄鉱物の微粒子が埋めていたと考えられる。Alは粘土鉱物に、Feは酸化鉄鉱物に含まれるので、AlとFeの堆積当時の含有率は、砂層に含まれる微粒子の比率、すなわち砂層の粒子の分級度を反映していたはずである。また、当時のAlとFeの比は分級度に関係なく一定であったと仮定される。

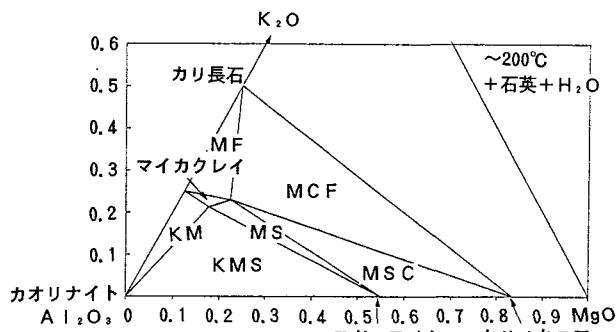
MF層の場合、礫質になるほど（礫の含有率が高いほど）分級度が低下する傾向がある。Alは溶解度が非常に低いので、堆積後の増減はほとんど無く、(Siの溶脱が著しいために残留成分の含有率が相対的に高くなっている鉱床直近部を除き)現在のAl含有率は堆積当時の値から大きく変化していないとみなされる。実際、礫の多いMF層下部ではAl含有率が高く、礫が少なく分級度の高いMF層上部のAl含有率は低い傾向がある。また、ブリーチングの弱い部分では、Fe含有率にも同様の傾向がある。

一方、前述のようにブリーチング部分ではFeが溶脱されている。したがって、現在のFe含有率は、砂岩の分級度とブリーチングの2つの要素を反映している。そこで、分級度のみに関係するアルミ含有率で、鉄含有率を割った値($\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$)はブリーチングの程度だけを表す指標となる。ここではブリーチング指標と呼ぶことにする。

(2) マグネシウム・カリウム比($\text{MgO}/\text{K}_2\text{O}$)

次にマグネシウム・カリウム比について説明する。MF層の構成鉱物のうち、AFドラバイトを除いた珪酸塩鉱物の集合は、 $\text{SiO}_2\text{-}\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}\text{K}_2\text{O}\text{-}\text{MgO}\text{-}\text{H}_2\text{O}$ の5成分系とみなすことができ、その組成共生関係は $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}\text{K}_2\text{O}\text{-}\text{MgO}$ 三角図表(AKMダイアグラム¹²⁾)で表現できる(図5)。MF層の組成はAKMダイアグラムの2つの小三角形(図5のKMとKMS)の中にプロットされる。すなわち、MF層の鉱物組み合わせ、マイカクレイ+カオリナイトと、マイカクレイ+カオリナイト+スドーアイトの2種類に限定される。したがって、MF層のマグネシウム・カリウム比は鉱物組み合わせを反映する指標となる。

ただし、AKMダイアグラムで表される系か

図5 AKMダイアグラム。Iida (1993)¹²⁾ を一部修正

らは、ホウ素を含むAFドラバイトは外れるので、上記のマグネシウム・カリウム比を計算するときには、AFドラバイト中に含まれるMg量を除外する必要がある¹²⁾（なお、KはAFドラバイトには含まれない）。MF層構成鉱物のうち、AFドラバイトだけが鉱物の主要構成元素としてホウ素を含む。粘土鉱物等に微量に含有されるであろうホウ素は無視し、全岩中のホウ素のすべてはAFドラバイトのものと近似的にみなすことができる。AFドラバイトのマグネシウム・ホウ素比(MgO/B)と全岩のBの分析値からAFドラバイトが寄与する分のMgOが計算できる。これを全岩のMgO含有率から差し引いてMgO値を補正する。この補正に用いたAFドラバイトのMg/B比(原子比)の値は0.62である（なお、その後の分析により、この値は0.66と若干修正された）。

なお、上記関係鉱物の化学式は理想式から離れているので、現在その詳細な化学組成を分析中であり、その結果は別途報告する予定である。

4.3 確率分布モデルのあてはめとしきい値の設定

上記データを用いて、各項目ごとに確率グラフ(正規確率紙)を用いた確率分布モデルのあてはめを行った。解析を行った変数は、カリウム(K₂O)、マグネシウム(MgO)（以上の単位は重量%）、マグネシウム・カリウム比(MgO/K₂Oモル比)、鉄・アルミ比(Fe₂O₃/Al₂O₃重量比)、ウラン、鉛、ニッケル、コバルト、銅、バナジウム、亜鉛、ホウ素（以上の単位はppm）である。

市販の正規確率紙は、標準正規分布の分布関数 $\Phi(u) = \alpha$ (確率密度関数 $\phi(x)$ を区間 $-\infty \sim u$ で積分したもの) の α を縦軸の u 点はパーセント表示で目盛り、横軸は普通目盛りをほどこしたグラフ用紙である。対数正規確率紙は、この横軸を対数目盛りにしたものである。 u は標準正規分布の下

限100 α %点と呼ばれる。なお、用紙によっては縦軸に上側100 α %を目盛ってあるものもある。正規確率紙に累積頻度とデータ値をプロットしたものが直線上にのれば正規分布とみなされる。

本稿では、データ点をすべて計算してプロットした、下限100 α %点はHastingsの近似式で計算した。 u あるいは下限100 α %点は、変数の順序統計量を標準正規化したものなので、標準正規変位値(Standard Normal Quantileの直訳)と呼ぶことができる。本稿では、標準正規変位値を横軸に、変数（または変数の対数値）を縦軸にとった。こうすると、直線の傾斜が標準偏差となるので便利である。この形式のグラフを、ここでは確率グラフと呼ぶことにする。なお、%目盛りを付すのは煩雑なので割愛した。

このような方法による解析の結果、いずれの変数についても、対数変換した方が線形に近くなることが分かった。しかし、単純な対数正規分布とみなせるものは少なく、多くの場合、もっと複雑な分布モデルをあてはめる必要がある。

単純な対数正規分布を示さないものには2つのタイプがある。一つは、ポリモーダルな分布で、2つ以上の対数正規分布の複合とみなせるものであり、二つめは、確率グラフが折れ線状になるタイプである。前者は、地化学探査において一般によく認められる分布であり¹³⁾、その確率分布モデルを複母集団モデルと呼ぶことにする。後者は、ある区間の変数を適当に線形変換すれば、全体を正規化できるタイプであり、折れ線モデルと称することにする。両者の模式的な確率密度グラフと確率グラフを図6に示す。

複母集団モデルの分布の正規確率グラフは、ロングSの字を傾けたような形状をとる。個々の集団は互いに重なっているので、集団間の境界を一義的に決めるることはできない。通常は便宜的に、確率グラフの変曲点(S字の中心の点；より正確には変曲点のうち1次導関数のグラフが上に凸となるもの)をもって集団間の境界とし、しきい値を定義することが多い。ただし、バックグラウンドとみなせる集団と異常値の集団との間にしきい値を設定する場合で、なるべく異常値を取りこぼしたくない時にはしきい値を下げ（しかしバックグラウンドのデータを異常と誤認する危険は増大する）、逆に、バックグラウンドの母集団に属するデータをなるべく排除して、異常集団に属するものだけを拾いたい時にはしきい値を高くする（しかし異常値をバックグラウンドとみなしてしまう可能性は高くなる）。今回は、なるべくバッ

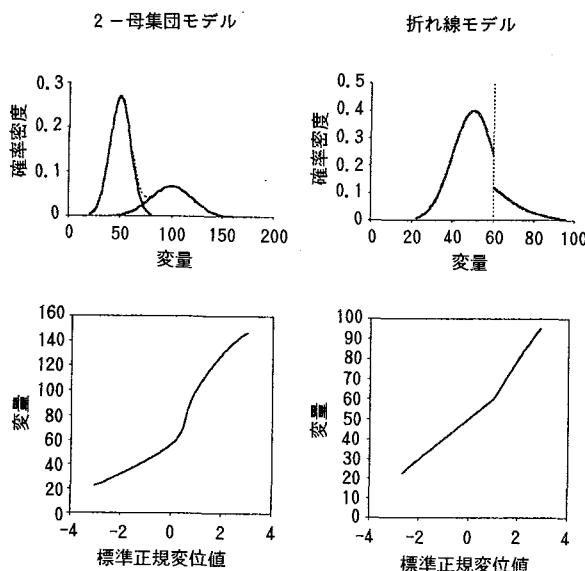


図 6 2種類の確率分布モデルの確率密度グラフおよび確率グラフ

クグラウンド集団の $+2\sigma$ (97.9%点)以上になるよう、いくぶん高めにしきい値を設定した。複数の異常集団が認められる場合、確率グラフの変曲点を集団間の境界(しきい値)とした。

一方、折れ線モデルの分布では、単純に、確率グラフの屈折点をもって境界とし、しきい値を定義できる。

なお、以上の例外として、元の変数に定数を加えてから対数をとることで線形化できるものがある。今回取り扱った変数のうちニッケルがこの型の分布であった。南アフリカの漂砂性金鉱床の金の品位がこの型の分布をとることで有名である¹⁴⁾。

各変数の確率分布のタイプと諸元を表1にまとめた。多くの場合、最も値の小さい側の集団をバックグラウンド、それより値の大きい側の集団を異常と定義できる。なお、表に示した部分集団の平均と標準偏差のうち、折れ線モデルとみなされる分布のものは、確率グラフ上であてはめた直線を屈折点を超えてグラフ全長に延長した直線が表す分布の値であり(直線の傾斜が標準偏差、切片が平均値となる)、個々の集団そのものの統計量ではない。

4.4 各元素の確率分布とその解釈

(1) ウラン(U)

鉱床探査にも最も重要な化学指標の一つである。確率グラフ(図7)は3つの変曲点を持ち、4つの母集団からなる複母集団モデルをあてはめることができる。最も値の小さい側の集団(第1

表1 20m規格化サンプルの地球化学的指標の確率分布モデルと部分集団の統計量

変数	単位	分布モデル	部分集団	平均(対数値)	標準偏差(対数値)	存在比(%)	しきい値	解釈
U	ppm 複母集団	1	~0.47	0.228	66	—	バックグラウンド	
		2	0.28	0.195	18	1.0	異常1	
		3	0.86	0.229	14	3.6	異常2	
		4	1.75	0.210	1	28	異常3	
B	ppm 複母集団	1	1.42	0.245	78	—	バックグラウンド	
		2	2.18	0.204	15	80	異常1	
		3	2.70	0.167	7	320	異常2	
Pb	ppm 折れ線	1	-0.17	0.270	95	—	バックグラウンド	
		2	-1.66	1.109	5	2.05	異常	
Ni	ppm 定数加算	1	0.78	0.128	100	—	バック(+2ppm)	
Co	ppm 折れ線	1	0.07	0.114	54	—	バックグラウンド1	
		2	-0.10	0.429	46	0.87	バックグラウンド2	
Cu	ppm 対数正規	1	0.56	0.267	100	—	バックグラウンド	
V	ppm 折れ線	1	0.34	0.248	94	—	バックグラウンド	
		2	-0.81	0.972	6	5.4	異常	
Zn	ppm 複母集団	1	-0.08	0.175	36	—	バックグラウンド1	
		2	0.49	0.202	64	1.4	バックグラウンド2	
MgO/K2O	モル比 折れ線	1	-0.50	0.176	59	—	バック(KM帶)	
		2	-0.59	0.578	41	0.34	異常(KMS帶)	
K2O	% 折れ線	1	-0.03	0.510	5	—	バックグラウンド	
		2	-0.56	0.207	86	0.12	バックグラウンド?	
		3	-0.45	0.128	10	0.52	異常	
MgO	% 折れ線	1	-1.38	0.176	11	—	バックグラウンド1	
		2	-1.34	0.218	15	0.025	バックグラウンド2	
		3	-1.24	0.382	38	0.033	バックグラウンド3	
		4	-1.27	0.457	24	0.08	異常?	
		5	-1.06	0.288	12	0.22	異常	
Fe2O3/Al2O3	重量比 折れ線	1	-0.48	0.209	57	0.375	異常(ブリーチング)	
		2	-0.47	0.242	43	—	バックグラウンド	

集団)がバックグラウンドとみなされる。第1集団と第2集団の間のしきい値は1.0ppmとするのが妥当である。また、これを超える値を持つ試料群は、鉱床をとりまくハロー状の空間分布をとるので、1.0ppm以上をウラン鉱床に伴う異常とみ

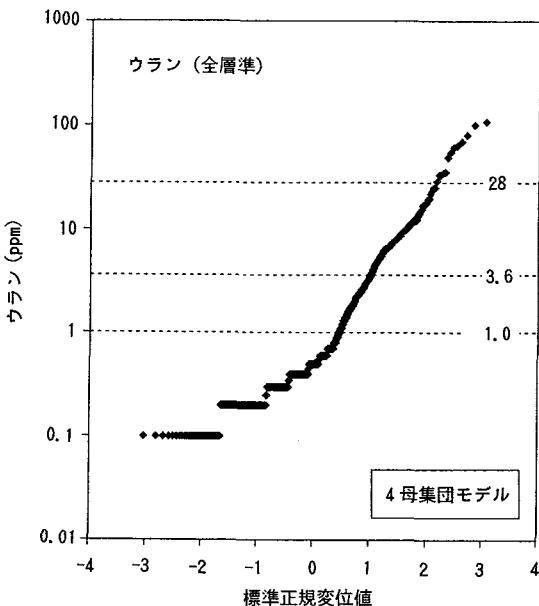


図7 ウランの確率グラフ

なしてよい。

鉱床付近（おおむね数10m以内）の砂岩中でウラン二次鉱物（燐銅ウラン石など）が観察される場合がある。そのようなところのウラン含有率は100ppmのオーダーを超えており、上記の4つの母集団のうち、最も値の高い側の集団（第4集団）のものは、主にウラン二次鉱物の形でウランが存在している可能性がある。ウランと後述する鉛のハローは、鉱床生成の後に、鉱床から周囲へ拡散する形で形成されたものと推定する。

第3集団以下の集団において、ウランがどのような形で存在しているのかは不明である。粘土鉱物などヘイオンないし錯イオンの形でウランが吸着されていることや、鉱物表面に超微小なウラン鉱物が生成している場合などが想定されるが、実態は判っていない。今後、なぜ4つの集団に統計的に分けられるのかが、鉱物化学的および界面化学的に説明できれば、変質ハローの形成過程と内部構造についての理解がより明確になるであろう。

(2) ホウ素(B)

ホウ素はウランと共に最も重要な化学指標の一つである。その確率グラフ（図8）は2つの屈曲点を持ち、3つの母集団からなる複母集団モデルをあてはめることができる。最も値の小さい側の集団（第1集団）がバックグラウンドとみなされる。第1集団と第2集団の間のしきい値は80ppmとするのが妥当である。また、これを超える値を

持つ試料群は、鉱床をとりまくハロー状の空間分布をとるので、80ppm以上を鉱化変質に伴う異常とみなしてよい。

前述のように、MF層中のホウ素は、もっぱらAFドラバイトに含まれると考えられる。異常値の集団（第2、第3集団）にはAFドラバイトが存在していると考えられる。実際、比較的ホウ素含有率の高い変質砂岩からはAFドラバイトが検出されている。しかし、異常値の集団が2つあることの意味は今のところ不明である。

また、バックグラウンド集団（第1集団）のホウ素が、どういう状態で存在するのか、よく分かっていない。たぶん、粘土鉱物に微量成分として含有されているか、碎屑性の電気石に含まれたものなのだろうと予想するが、AFドラバイトが僅かに存在する可能性を完全に否定する確証もない。

(3) 鉛(Pb)

鉛の確率グラフ（図9）は1つの屈曲点を持ち、折れ線モデルをあてはめることができる。値の小さい側の集団（第1集団）がバックグラウンドとみなされる。第1集団と第2集団の間のしきい値は2.05ppmである。また、これを超える値を持つ試料群は、鉱床近傍に認められることが多いので、第2集団を鉱化変質に伴う異常値の集団とみなしてよい。

鉛がどのような形で存在しているのかは不明である。粘土鉱物などヘイオンないし錯イオンの形で鉛が吸着されていることや、鉱物表面に超微小

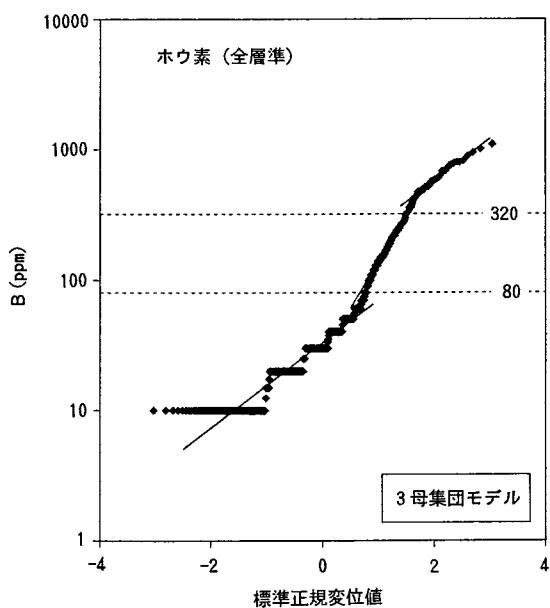


図8 ホウ素の確率グラフ

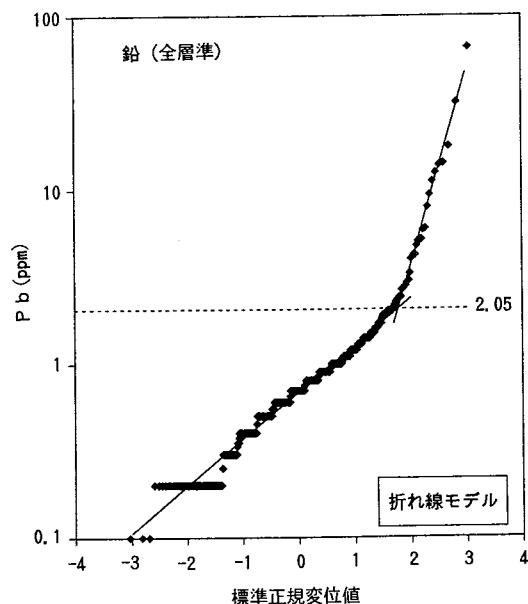


図9 鉛の確率グラフ

な鉛鉱物が生成している場合等が想定されるが、実態は判っていない。キレイク鉱床では、鉱床近傍の砂岩中に方鉛鉱の塊が観察され⁷⁾、ウランの放射壊変により生成された鉛が移動して二次濃集したものと推定される。第2集団の鉛は、このような方鉛鉱の微粒子として存在している可能性がある。

(4) ニッケル(Ni)

ニッケルの値に定数(2.0 ppm)を加えると対数正規化される(図10)。前述のように、漂砂性金鉱床の品位分布がこの形をとるのが知られている。MF層のニッケルの場合も、これに似て、堆積性の微量のニッケル含有鉱物が全岩のニッケル含有率をコントロールしている可能性がある。

いずれにしても、データはすべてバックグラウンド集団に属し、鉱化・変質に伴う異常値は認められない、と解釈される。なお、20m規格化サンプルとしては異常値の集団は捉えられなかったが、鉱床の極近傍では高いニッケル値が得られる場合があり、経験的には10 ppmをしきい値としている。

(5) コバルト(Co)

コバルトの確率グラフ(図11)は1つの屈曲点を持つ折れ線となる。値の小さい側の集団を第1集団、値の高い方を第2集団とする。第1集団と第2集団の境界値は0.87 ppmである。第1集団と第2集団の値は、鉱床を中心としたハロー状の空間分布をとらない。したがって、両集団とも異

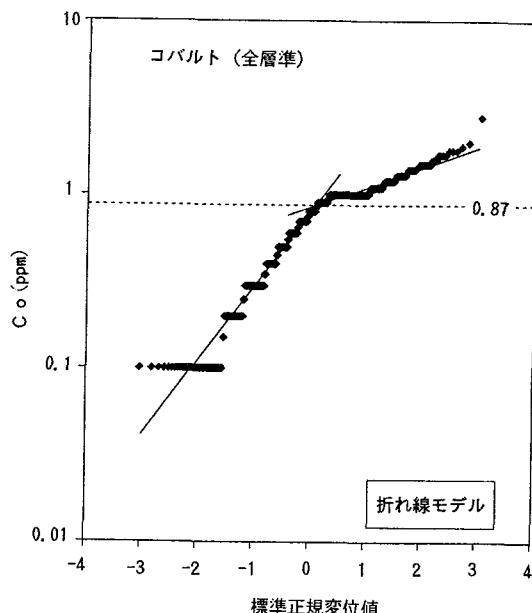


図11 コバルトの確率グラフ

常集団とはみなせず、いずれもバックグラウンドと判断した。なお、コバルト値は、分析年度によって高低の傾向があるようにみえるので、2つの集団は、分析条件による見かけ上のものの可能性がある(これについての詳細な吟味は未だ行っていない)。

20m規格化サンプルとしては異常値の集団は捉えられなかったが、鉱床の極近傍では高いコバルト値が得られる場合があり、経験的には2 ppmをしきい値としている。

(6) 銅(Cu)

銅の確率グラフ(図12)は直線状を呈するので、その分布は単純な対数正規分布とみなされる。データはすべてバックグラウンド集団に属し、鉱化・変質に伴う異常値は認められない、と解釈される。なお、20m規格化サンプルとしては異常値の集団は捉えられなかったが、鉱床の極近傍では高い銅の値が得られる場合があり、経験的には20 ppmをしきい値としている。

(7) バナジウム(V)

バナジウムの確率グラフ(図13)は1つの屈曲点を持ち、折れ線モデルをあてはめることができる。値の小さい側の集団(第1集団)がバックグラウンドとみなされる。第1集団と第2集団の間のしきい値は5.4 ppmである。また、これを超える値を持つ試料群は、鉱床近傍に認められるので、第2集団を鉱化変質に伴う異常値の集団とみなしてよい。

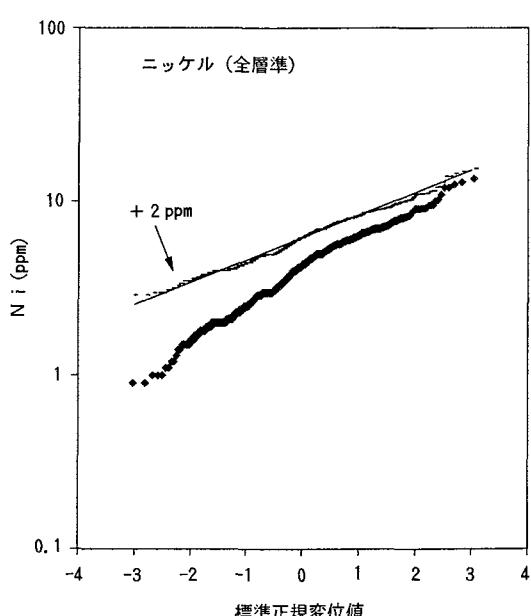


図10 ニッケルの確率グラフ

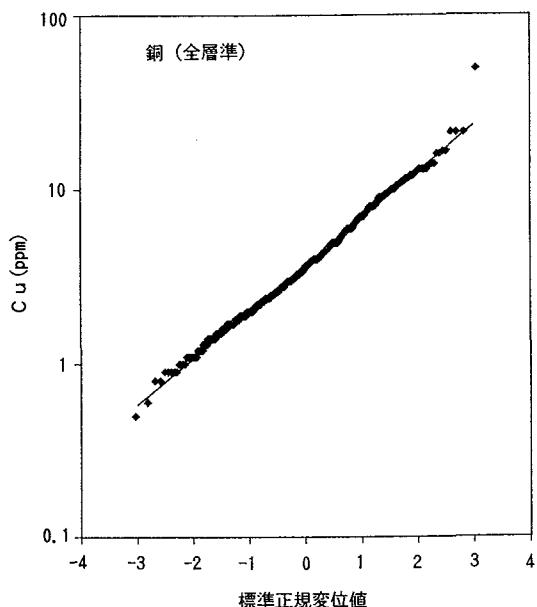


図12 銅の確率グラフ

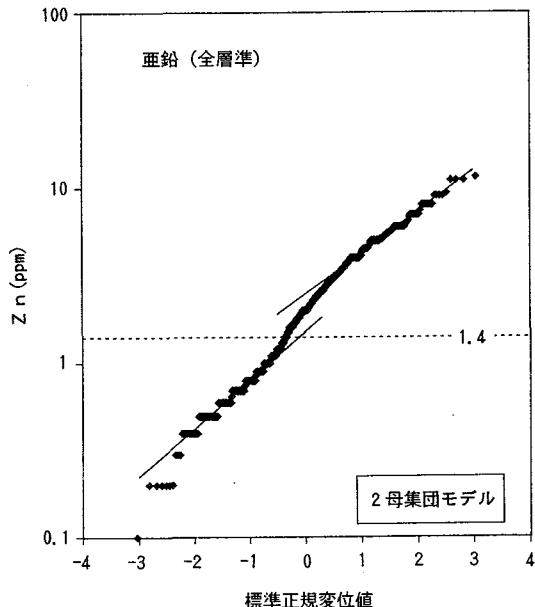


図14 亜鉛の確率グラフ

(8) 亜鉛(Zn)

亜鉛の確率グラフ(図14)は1つの変曲点を持ち、2つの母集団からなる複母集団モデルをあてはめることができる。第1集団と第2集団の間のしきい値は1.4ppmとするのが妥当である。

第1集団と第2集団の値は、1つの試錐孔でも何度も交差に現れ、鉱床を中心としたハロー状の空間分布をとらない。したがって、両集団とも異

常集団とはみなせず。いずれもバックグラウンドと判断した。

(8) マグネシウム・カリウム比(MgO/K₂O)

マグネシウム・カリウム比の確率グラフ(図15)は1つの屈曲点を持ち、折れ線モデルをあてはめることができる。第1集団と第2集団の間のしきい値は0.34である。この値は、カオリナイトと共に生できるマイカクレイのうち、高Mg側の端成分

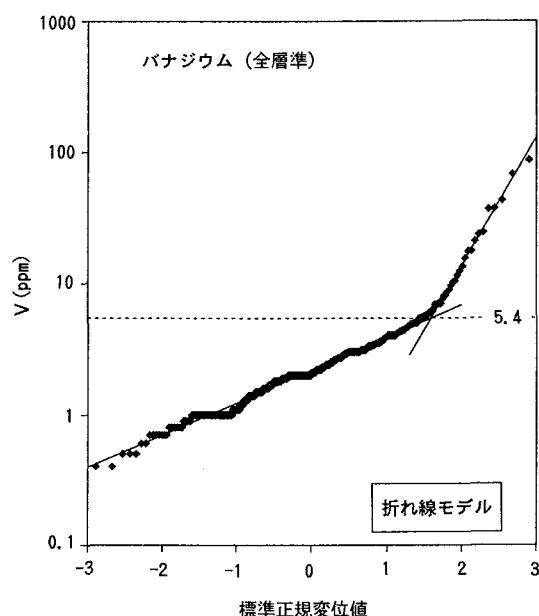


図13 バナジウムの確率グラフ

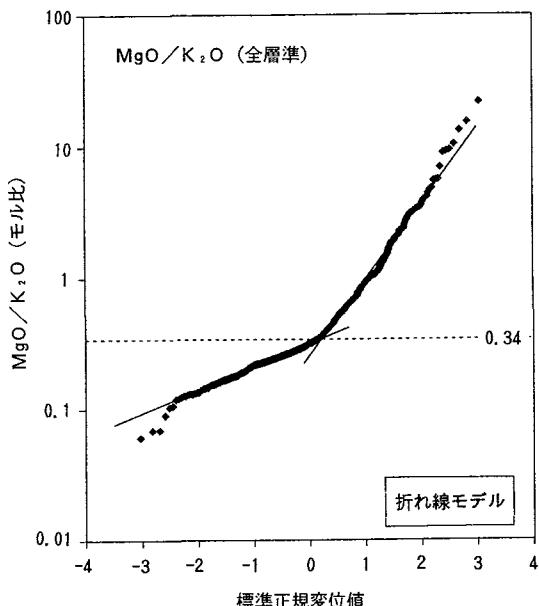


図15 マグネシウム・カリウム比の確率グラフ

からなるもののMgO/K₂O値に相当する。しかって、0.34以下の集団（第1集団）はカオリナイト+マイカクレイの鉱物共生、第2集団はカオリナイト+マイカクレイ+スドーアイトの鉱物共生に対応する。後者が出現する空間をスドーアイトゾーンと称し、鉱化溶液によって形成された変質帶であると解釈される¹²⁾。したがって、マグネシウム・カリウム比はMF層の変質ハロー解析のための重要な指標となっている。

このようなMF層のマグネシウム・カリウム比は、確率分布と鉱物組成共生関係の対応が明瞭であり、地球化学的な統計量に鉱物学的な説明を与えることを示す好例となっている。

(10) カリウム(K₂O)

カリウムの確率グラフ（図16）には、2つの屈曲点を持つ折れ線をあてはめることができ、3つの集団に区分できる。各集団間の境界値は、0.12%および0.52%である。最も値の高い側の集団（第3集団）を異常と解釈する。第2集団の解釈は難しいが、ここでは一応バックグラウンドと考える。第1集団は明瞭なバックグラウンド集団である。

(11) マグネシウム(MgO)

マグネシウムの確率グラフ（図17）は、一見すると、2つの母集団からなる複集団モデルが当てはまるように見える。しかし、S字中央部の直線状の区間が長すぎて、2つの対数正規分布でうまく当てはめることができない。それよりも、確率グ

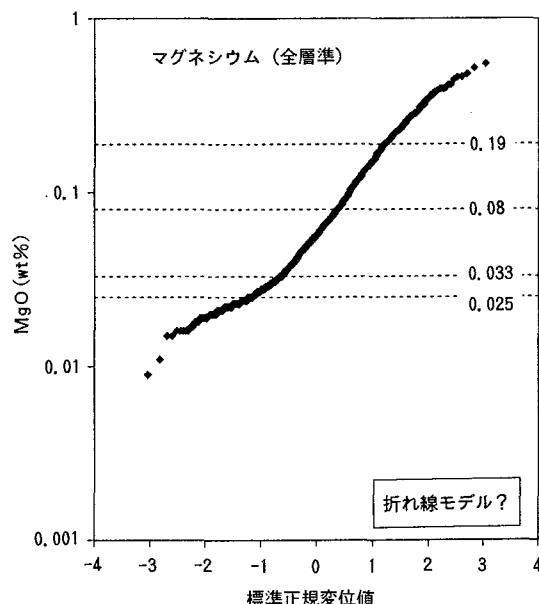


図17 マグネシウムの確率グラフ

ラフを4つの屈曲点を持つ折れ線とみなし、5つの集団に区分した方が、うまく当てはめが行えると判断した。

各集団の境界値は、0.025%、0.033%、0.08%、0.22%である。各集団を、値の小さい方から、第1～第5集団とする。その解釈は難しいが、第5集団は、明らかに変質作用によってマグネシウムが付加されたものと考えられる。第4集団の解釈は難しいが、ここでは一応異常集団と考える。第1～第3集団はバックグラウンド集団と解釈される。

このように複雑な分布をとるのは、マグネシウムが、前述のように鉱物共生に規制されるとともに、各マグネシウム含有鉱物（スドーアイト、マイカクレイ、およびAFドラバイト）の量にも規制されるからであろう。

(12) 鉄・アルミ比(Fe₂O₃/Al₂O₃)

ブリーチング指標鉄・アルミ比の確率グラフ（図18）は、一見すると一本の直線のようだが、よく見ると中央部でわずかに屈曲する折れ線になっている。値の小さい側の集団（第1集団）は、比較的強くブリーチングされた集団、第2集団はブリーチングの弱い集団とみなされる。第1集団と第2集団の間のしきい値は0.375である。また、標準正規変位値が-1 (0.22) 以下を、比較的強くブリーチングされた試料と定義する。

4.5 層準による変化の検討

前節では、MF層（調査地区での厚さ約400

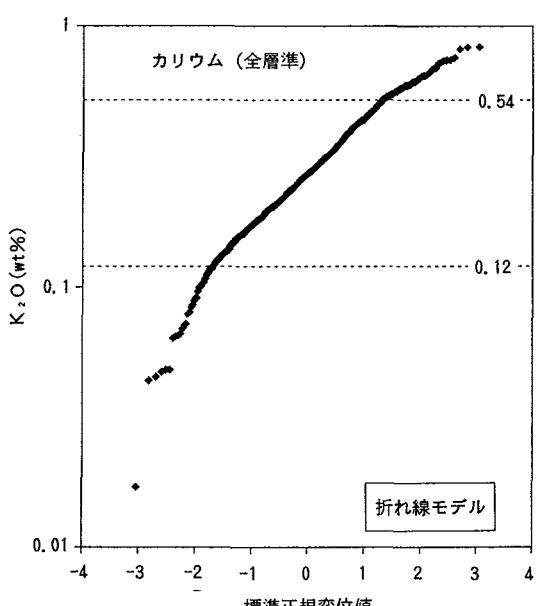


図16 カリウムの確率グラフ

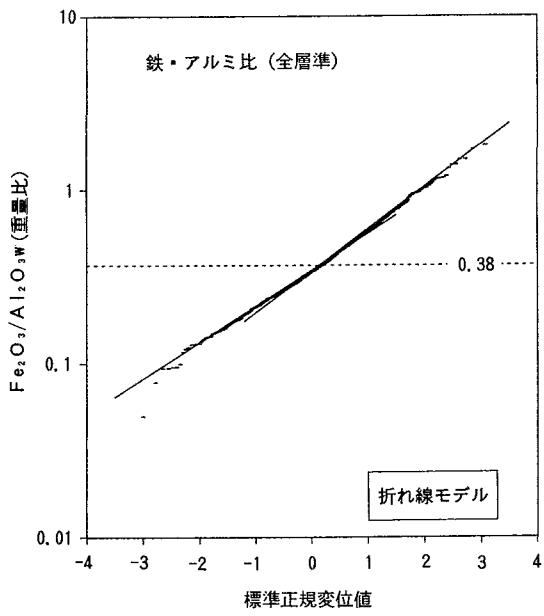


図18 鉄・アルミ比の確率グラフ

m) を層準によらず一律に扱ってきた。そのように扱ってよいのか、それともMF層の層準が確率分布を規制しているのかどうかが次の問題になる。層準ごとに異なるしきい値を決める必要があるのか、それとも一定のしきい値を使ってよいのかという問題は、探査の実務上重要な課題である。

この点を確かめるために、データを層準によって上部と下部の2つのグループに分けて、それぞれの確率分布を検討・比較した。ここで、上部層準としたものはMF層上部の厚さ180m、下部層準は下部200mのものである。規格化データの数は、上部層準が378、下部層準が410である。検討した変数は、もっとも重要で、かつ、前節で異常と定義した値が上部・下部ともに認められる、ウラン、ホウ素、鉛、マグネシウム・カリウム比の4つである。

その結果を表2にまとめた。なお、表1と同様に、表に示した部分集団の平均と標準偏差のうち折れ線モデルとみなされる分布のものは、確率グラフ上であてはめた直線を屈折点を超えてグラフ全長に延長した直線が表す分布の統計量であり（直線の傾斜が標準偏差、切片が平均値となる）、個々の集団そのものの平均値などではない。

(1) ウラン

図19にウランについての両層準の確率グラフを並べて示した。全層準からのデータでは、ウランは、前節の様に4つの部分集団が識別されたが、上部層準ではこのうち第1と第2の2つの集団だけが認められる。なお、少數のデータは第3集団に属すると思われるが、データ数が少ないので明確ではない。一方、下部層準では4つの部分集団に分けることができる。

上部層準は鉱床から距離があるため、第3・第4集団に属する高いウラン異常値が出現していないだけで、基本的には、下部層準と同じ確率分布の構造を持つと解釈される。したがって、全層準を統計的に一律に扱ってよく、バックグラウンド集団（第1集団）は、全層準について1.0ppm以下と規定するのが実務上適当である。

従来、MF層のウラン値の解釈について、特に上部層準に関して、1ppm以下の非常に低い値を仮定したり、あるいは、一定のしきい値を規定せずに機械的に分析データ群の+2σ以上を異常とみなす（結果的に1ppm以下の値がしきい値となる場合が多い）ことがあった。しかし、今回の解析の結果、このようなやり方は不適切であり、偽の異常が多数得られるために、かえって探査能力を低下させる危険のあることが分かった。また、同様のことは、後述する鉛などについても言える。

(2) ホウ素

上部・下部層準のホウ素の確率グラフを図20に

表2 上部層準と下部層準の確率分布の比較

変数・ 単位	分布 モデル	部分 集団	上 部 層 準				下 部 層 準				解釈
			平均 (対数値)	標準偏差 (対数値)	存在比 (%)	変曲点・ 屈折点	平均 (対数値)	標準偏差 (対数値)	存在比 (%)	変曲点・ 屈折点	
U	ppm	複母集団	1 0.54	0.224	90	—	-0.33 0.36 0.88 1.77	0.260 0.161 0.224 0.25	45 23 28 3	— 1.2 3.7 29	バックグラウンド 異常1 異常2 異常3
			2 0.20	0.153	10	1.0	0.36 0.88 1.77	0.161 0.224 0.25	23 28 3	1.2 3.7 29	
			3 2.26	0.242	14	90	2.18 2.73	0.167 0.171	17 8	80 300	
			4 2.69	0.16	5	380	— 0.15 -1.41	— 0.273 1.129	— 90 10	— 1.82	
B	ppm	複母集団	1 1.39	0.243	82	—	1.43 2.18 2.73	0.271 0.167 0.171	74 17 8	— 80 300	バックグラウンド 異常1 異常2
			2 2.26	0.242	14	90	— 0.15 -1.41	— 0.273 1.129	— 90 10	— 1.82	
Pb	ppm	折れ線	1 -0.17	0.263	99	—	-0.15 -1.41	0.273 1.129	— 10	— 1.82	バックグラウンド 異常
			2 -1.35	0.79	1	2.64	— -0.525	— 0.163	— 58	— 0.32	
MgO/K2O	モル比	折れ線	1 -0.487	0.187	52	—	-0.525 -0.638	0.163 0.726	— 42	— 0.32	バック(KM) 異常(KMS)

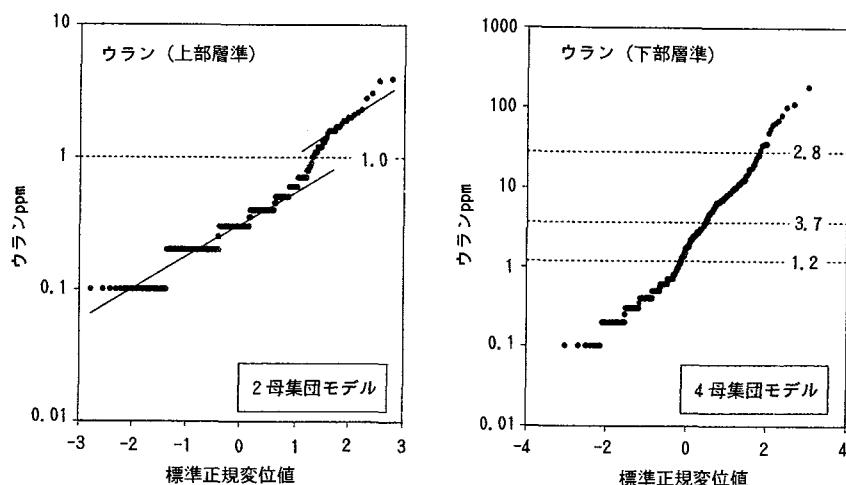


図19 上部層準および下部層準のウランの確率グラフ

示す・一見して明らかなように、両層準での分布の違いは小さく、基本的に、同一の分布モデルをあてはめてよい。

比較的高い異常値が、上部層準にも認められることがウランとは異なっている。このような異常の空間分布（ハロー）形状の違いは、ハローの形成メカニズムの違いによるものだと解釈される。なお、これについては、本稿でこれ以上議論する余裕が無く、別の機会にゆずりたい。

(3) 鉛

両層準の確率グラフを図21に掲げる。上部層準の異常集団（第2集団）は少数であり、その推定統計量の不確かさが大きいものの、両層準とも基本的に同じ折れ線モデルがあてはまるとなせる。確率グラフの屈折点は、両グラフで多少の違いがあるが、概略 2 ppm を異常値のしきい値とし

てよい。

(4) マグネシウム・カリウム比

図22に上部・下部層準の確率グラフを示す。両グラフとも折れ線状を呈し、屈折点の値は両者ともほぼ一致した値をとる。したがって、両層準とも、前節で述べた鉱物共生関係に規制されていると解釈できる。

第1集団の統計量は、両層準とともに、似た値を示す。しかし、第2集団の標準偏差（直線の傾斜）は、下部層準に比べ上部層準では小さくなってしまい、極端にマグネシウム・カリウム比(MgO/K₂O 値)の高い（スドーアイトに富みマイカクレイの少ない）試料は下部層準に限られている。このことは、スドーアイトがマイカクレイを置換する度合いが層準で異なっていたことを暗示する。この原因として、例えば、生成温度条件の層準による

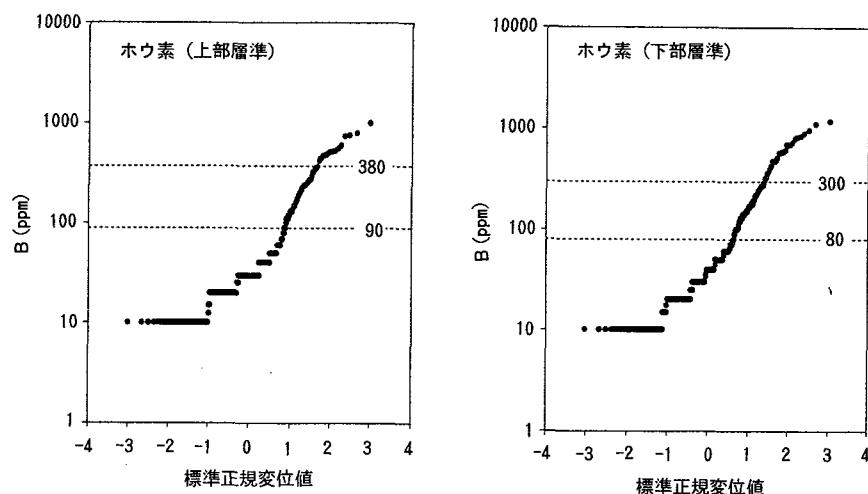


図20 上部層準および下部層準のホウ素の確率グラフ

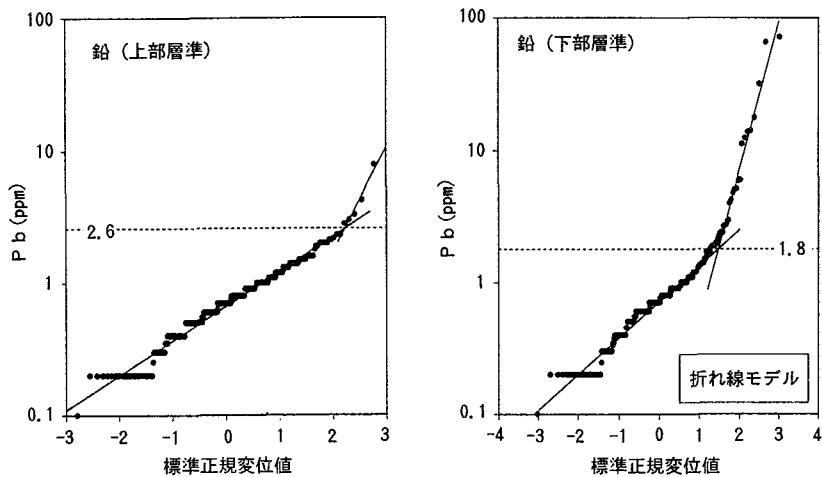


図21 上部層準および下部層準の鉛の確率グラフ

多少の違いが考えられ、今後の調査・検討が必要である。

一方、スドーアイトを含み、異常（変質）と解釈される第2集団の出現率は、表2に示すように、上部層準の方が下部よりも多少高くなっている。このことは注目すべき点である。今後、変質ハローの形成についてさらに考察するとき、この点にも注意を払う必要がある。

(5) 層準の検討のまとめ

以上のように、各変数の確率分布の基本構造は全層準共通であり、しきい値も全層準一定の値を使うのが妥当である。異常集団の出現率が下部層準ほど高いものと、層準による変化の小さいものがある。異常集団の確率分布は、 MgO/K_2O を除き、層準による変化が小さい。

5. 主成分分析による探査試錐孔の評価

多数の探査試錐孔の各々に、有望度をひょうす客観的な評価点を付けることができたならば、実務上便利である。そこで、各探査試錐孔ごとのMF層についての地球化学的な総合指標（変質度指数）を、多変量統計解析の主成分分析により求めた。利用したデータは、B地区で1995年までに実施した試錐岩芯の化学分析値である。

5.1 変数の選択と規格化

前章での解析から、MF層の重要な化学指標（異常の空間分布が比較的広いという意味で重要な指標）として、ウラン、ホウ素、マグネシウム・カリウム比、カリウム、マグネシウム、鉄・アルミニ比が挙げられる。これから、主成分分析に必要な変数の独立性を考慮し、マグネシウム・カリウ

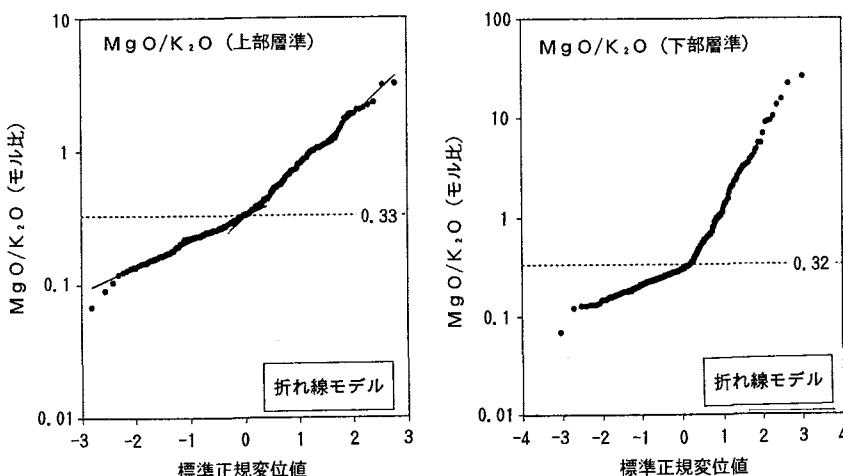


図22 上部層準および下部層準のマグネシウム・カリウム比の確率グラフ

ム比を除いた5つの変数を解析の対象とした。ただし、AFドラバイトはホウ素とマグネシウムと共に含むので、両者が完全に独立とは言えない。しかし、ほとんどの場合、全岩中のマグネシウムの大部分はスドーアイトおよびマイカクレイに含まれているので、両変数はほぼ独立に近いとみなすことができる。

主成分分析のデータとして、各指標の試錐孔ごとの平均を用いた。MF層の厚さは試錐孔ごとに異なるので、今回は、MF層の基底不整合から上位350mレベルまでのデータについての荷重平均をとった。なお、傾斜孔については、試錐長ではなく、垂直方向のレベル差で350mとなるようにした。このようにして得られたデータを表3に示す。データ総数は69である。

5.2 変数の標準正規化

規格化された各変数の確率分布を、確率グラフを用いて予備的にチェックした結果、鉄・アルミ比だけが対数正規分布をとるが、その他のものは、線形分布とみなせないことが分かった。

そこで、前節で説明した要領で、各変数の下側累積頻度（下側 $100\alpha\%$ 値）から標準正規変位値

表4 標準化した試錐孔地球化学的指標間の相関行列

	カリウム	マグネシウム	ホウ素	ウラン	鉄・アルミ比
カリウム	1.0000	0.4703	0.3281	0.3391	-0.3479
マグネシウム	0.4703	1.0000	0.7918	0.6272	-0.3833
ホウ素	0.3281	0.7918	1.0000	0.5034	-0.4520
ウラン	0.3391	0.6272	0.5034	1.0000	-0.5226
鉄・アルミ比	-0.3479	-0.3833	-0.4520	-0.5226	1.0000

を求ることによって、変数を標準正規化した。

5.3 主成分分析

標準正規化した各変数相互の相関係数を計算し、表4に示す相関行列を得た。また、変数間相互の散布図を図23に示す。鉄・アルミ比（ブリーチング指標）を除く変数は、値が大きいほど変質程度が高い傾向の変数であり、それら相互の相関係数は正の値をとる。鉄・アルミ比だけは、値が小さい方が変質度が高い傾向があり、これと他の変数との相関は負の値となっている。

次に、相関行列の固有値問題を、べき乗法によって解き、固有値と固有ベクトルを求めた。その結果を表5に掲げる。

このようにして得られた固有ベクトルから、各データの主成分を計算した。主成分相互の散布図を図24に示す。

第1主成分の固有ベクトルの係数は、鉄・アル

表3 MF層の地球化学的指標の試錐孔別平均（クリスティーレイクB地区、層厚350mの平均）

試錐孔番号	MgO %	K2O %	B ppm	U ppm	Fe2O3/AI2O3 重量比	試錐孔番号	MgO %	K2O %	B ppm	U ppm	Fe2O3/AI2O3 重量比
1	0.049	0.329	18	0.44	0.466	38	0.151	0.343	288	5.49	0.433
2	0.066	0.251	20	0.43	0.523	40	0.157	0.374	231	3.30	0.397
3	0.023	0.197	18	0.81	0.519	41	0.069	0.363	51	0.72	0.482
4	0.049	0.269	14	1.39	0.454	43	0.040	0.274	27	0.29	0.431
5	0.034	0.283	11	0.46	0.382	44	0.020	0.131	18	0.28	0.905
6	0.054	0.163	20	0.48	0.687	45	0.103	0.297	186	0.67	0.382
7	0.051	0.291	23	4.18	0.313	46A	0.037	0.163	15	0.19	0.565
8	0.046	0.294	11	3.43	0.401	47	0.077	0.269	123	1.48	0.392
9	0.063	0.311	15	1.52	0.542	48	0.060	0.337	36	0.48	0.370
10	0.080	0.369	27	3.88	0.397	49	0.057	0.297	48	3.40	0.416
11	0.077	0.343	25	2.45	0.498	50	0.097	0.400	96	11.94	0.230
12	0.054	0.269	12	1.68	0.628	51	0.103	0.331	105	1.97	0.311
13	0.057	0.297	13	2.06	0.469	52	0.069	0.371	45	0.31	0.309
14	0.097	0.326	25	1.35	0.656	53	0.026	0.246	25	1.18	0.238
15	0.080	0.337	31	3.36	0.431	54	0.137	0.254	212	1.09	0.331
16	0.129	0.383	82	1.62	0.372	55	0.043	0.303	24	0.30	0.721
17	0.057	0.266	17	1.75	0.509	56	0.066	0.266	56	1.41	0.404
18	0.069	0.277	17	1.57	0.546	57A	0.046	0.274	20	0.33	0.570
19	0.063	0.320	23	2.83	0.364	58	0.057	0.331	21	0.32	0.467
20	0.089	0.309	113	3.76	0.388	59	0.057	0.271	31	0.33	0.544
21	0.094	0.334	56	2.56	0.505	60	0.077	0.357	61	2.42	0.350
22	0.114	0.380	70	1.28	0.259	61	0.054	0.283	26	0.47	0.656
23	0.143	0.297	107	15.49	0.355	62	0.069	0.391	34	1.87	0.445
24	0.123	0.337	168	6.29	0.380	63	0.049	0.263	28	0.41	0.556
25	0.137	0.274	142	6.73	0.413	64	0.094	0.357	53	1.00	0.482
26	0.040	0.254	25	2.65	0.282	65	0.060	0.203	13	0.35	0.671
27	0.043	0.320	23	1.78	0.414	66	0.131	0.291	137	1.53	0.544
28	0.051	0.269	28	1.92	0.671	67	0.063	0.343	30	0.55	0.379
29	0.109	0.409	54	2.78	0.595	68	0.051	0.303	16	0.32	0.672
30	0.106	0.374	60	1.87	0.490	69	0.151	0.343	145	4.92	0.430
31	0.169	0.343	119	1.20	0.469	70	0.051	0.260	14	0.37	0.553
32	0.169	0.297	243	6.60	0.314	71	0.106	0.280	56	5.82	0.395
33	0.134	0.283	119	3.52	0.438	平均	0.083	0.304	69	2.43	0.454
34	0.160	0.309	109	6.01	0.288	標準偏差	0.040	0.056	77	2.66	0.130
35	0.103	0.403	42	1.54	0.313	最高	0.186	0.409	435	15.49	0.905
36	0.120	0.357	130	4.13	0.264	最低	0.020	0.131	11	0.19	0.230
37	0.186	0.254	435	6.19	0.276						

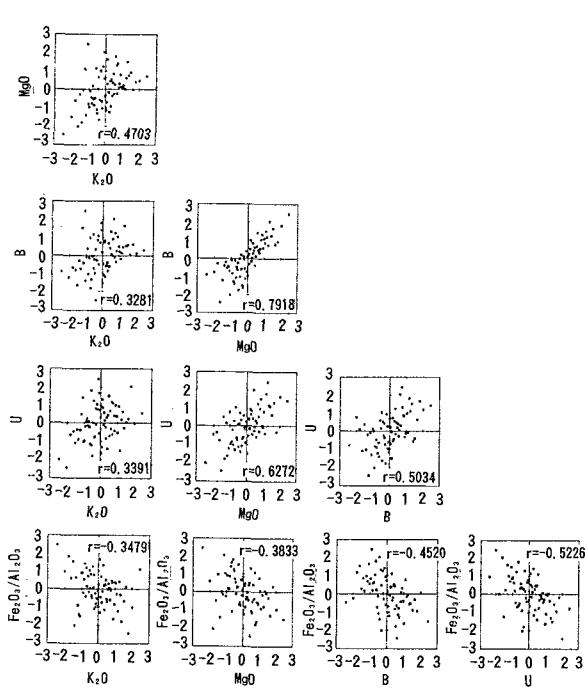


図23 標準正規化した試錐孔別地球化学的指標間の相関図

表5 試錐孔地球化学的指標間の相關行列の固有ベクトルと固有値

変量	主成分				
	I	II	III	IV	V
カリウム	0.3587	0.8658	0.3077	0.0227	-0.1627
マグネシウム	0.5126	-0.2164	0.3943	0.0438	0.7301
ホウ素	0.4831	-0.3929	0.2718	-0.4555	-0.5752
ウラン	0.4618	-0.1572	-0.2912	0.7806	0.2604
鉄・アルミ比	-0.4023	-0.1561	0.7688	0.4252	-0.2046
固有値	2.9412	0.7347	0.7023	0.4667	0.1550
寄与率	0.5882	0.1469	0.1405	0.0933	0.0310
累積寄与率	0.5882	0.7352	0.8757	0.9690	1.0000

ミ比を除き正の値、鉄・アルミ比は負の値なので、第1主成分は変質の程度を総合的に表す指標と解釈される。第1主成分の固有値(分散)は2.9412、標準偏差は1.715である。解析に便利なように、主成分を標準偏差で割って標準化した値(偏差値)を、総合的な変質度指数と定義する。

変質度指数を用いて、探査試錐の有望度のランクづけを行うことができる。表6にB地区を試錐孔のランキングを掲げる。表の右欄には実際にはどの程度の鉱化が捕捉されたかが示されている。変質度指数によるランキングは、概査試錐孔の評価に有効である。変質度指数-1.5ないし-2以下のものの有望性は低いと評価され、有望性の低いものの足切りとして、この指標を利用するものが実際的な運用法の一つと考えられる。今後、このような評価手法が効率的な探査の実施に寄与するものと期待される。

第2主成分の固有ベクトルの計数は、カリウム

表6 変質度指数による試錐孔ランキング(クリスティーレイクB地区)

ランク	試錐孔番号	変質度指数	ウラン鉱化	ランク	試錐孔番号	変質度指数	ウラン鉱化
1	37	1.94	★★	41	14	-0.29	
2	50	1.81	★★★★	42	26	-0.32	
3	32	1.77	★★★★	43	27	-0.40	★
4	40	1.45	★	44	13	-0.50	★
5	38	1.42	★★★	45	9	-0.52	★
6	34	1.40	★	46	53	-0.55	
7	23	1.40	★	47	18	-0.56	★★★★
8	36	1.38	★	48	58	-0.64	★
9	24	1.28	★★★	49	8	-0.66	★
10	69	1.25	★	50	28	-0.70	★★★★
11	25	1.09	★	51	17	-0.71	★★★★
12	22	1.02	★	52	1	-0.72	★
13	16	0.92		53	59	-0.77	
14	35	0.84		54	61	-0.81	
15	51	0.78	★	55	4	-0.87	★★★★
16	31	0.77	★	56	2	-0.91	
17	29	0.70	★	57	63	-1.01	
18	33	0.69	★	58	43	-1.05	
19	60	0.69	★★★	59	12	-1.08	
20	20	0.69	★★★★	60	57	-1.22	
21	71	0.63	★	61	68	-1.25	★
22	54	0.60		62	70	-1.34	
23	10	0.56	★★★★	63	6	-1.36	★
24	45	0.53		64	5	-1.37	
25	30	0.53	★	65	55	-1.39	
26	15	0.39	★★★	66	3	-1.45	
27	62	0.38	★	67	65	-1.53	
28	66	0.35	★	68	46	-2.13	
29	21	0.33		69	44	-2.64	
30	47	0.23	★				
31	52	0.18	★				
32	19	0.16	★★★				
33	7	0.15	★★★★				
34	64	0.14					
35	49	0.14	★★★				
36	11	0.11	★★★★				
37	41	0.08					
38	67	0.04	★★				
39	48	0.03	★★				
40	56	-0.12	★				

無印 顯著な鉱化なし
★ ウラン弱鉱化
★★ GT>0.1
★★★ GT>1
★★★★ GT>10%U308 · m

だけが大きな正の値をとり、その他は小さな負の値となっている。したがって、第2主成分はカリ

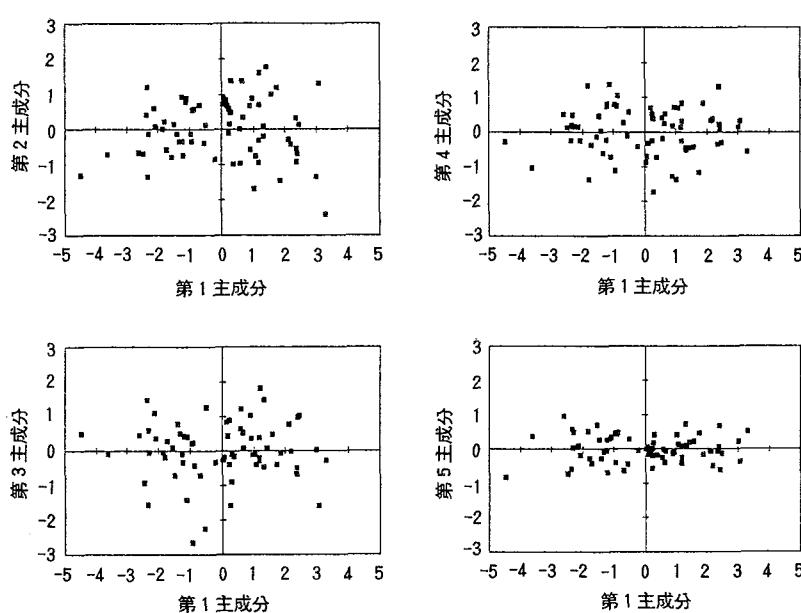


図24 主成分得点相互の散布図

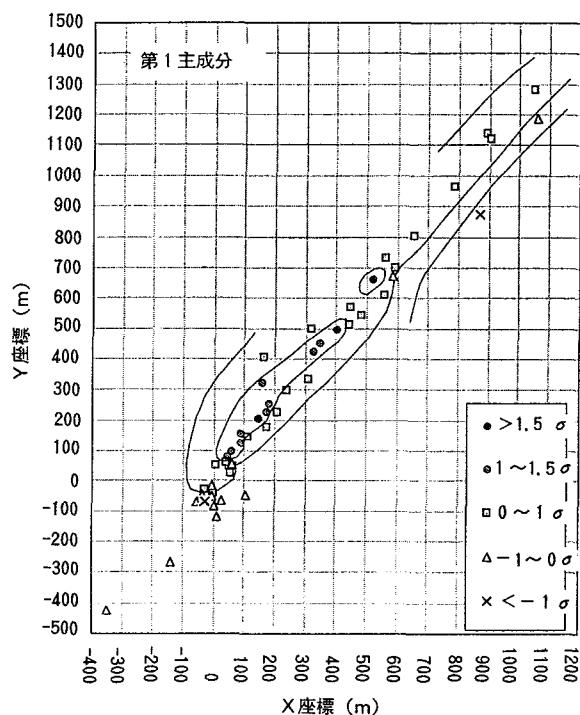


図25 変質度指数(標準化した第1主成分)の平面分布。クリスティーレイクB地区ポールベイグリッド

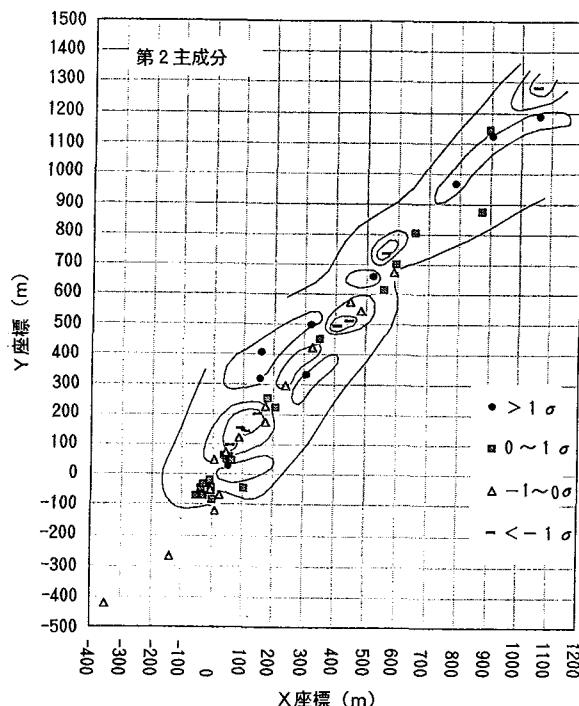


図26 標準化した第2主成分(アウターハロー指標)の平面分布。クリスティーレイクB地区ポールベイグリッド

ウムの付加を示す成分であり、鉱物的にはマイカクレイの異常を表す指標と解釈される。

鉱化変質帯の確認されているB地区ポールベイグリッドにおける、標準化した第1主成分(変質度指数)の平面分布を図25に示す。また、同じ場所での、第2主成分を標準化した値の平面分布を図26に掲げる。2つの図を比較すると、第2主成分の得点が高い部分は、変質度指数の高い変質帯中心部を取り巻くように分布している。また、図24の散布図でも、第1主成分の中央付近で第2主成分が大きくなる傾向が見られる。これは、変質ハローの比較的外側でマイカクレイが多くなっていることに対応している。このように、第2主成分の高得点は変質ハローの比較的外側(アウターハロー)の部分を示すと考えられるので、標準化した第2主成分をアウターハロー指標と定義する。

次に、第3主成分は、寄与率が第2主成分のそれとあまり差がなく、何らかの意味を持っていそうである。鉄・アルミ比の係数だけが大きな正の値になっており、その他の係数は、ウランを除いて比較的小さな正の値となっている。ブリーチングの程度が弱く、かつ、ウラン以外の変数の高いものに高得点を与える成分といえる。このような

成分が、変質ハローのどのような側面を意味するのか、まだよく解らない。

第4、第5主成分については、今回は適当な解釈を与えることができなかった。これらの寄与率は小さいので、意味づけをせずに捨ててよいと思われる。

6. おわりに

化学分析データをできるだけ有効に解析して鉱床探査に利用しようという観点から、基礎的な統計解析を行った。機械的な解析処理に満足せず、なるべく鉱物学的ないし地球化学的な意味を考えるように努めた。

鉱床周辺の地球化学的異常域(ハロー)を適切に認識するために実務上重要なしきい値を、MF層の主要化学指標に対して与えることができた。また、しきい値はMF層の層準によらず一律としてよいことを明らかにした。これは、MF層の上位の層準ほどしきい値が低下するだろうという、従来の考えを覆す結果となった。

また、探査試錐孔の評価方法として、MF層の変質度指数を考案した。今回は、評価対象をMF層の厚さ350mに規格化したが、今後は、探査対象が浅く、MF層が薄い地区の評価にも利用でき

るよう、規格の条件をを変えた場合の検討を行うなど、この手法を実際に運用するための考察を積み重ねていく必要がある。

参考文献

- 1) 黒沼長助, 長谷川 健, 他:“カナダ, サスカチワン州, アサバスカベーズンのウラン鉱床探査—クリスティーレイク地区の探査活動をケーススタディーとして—”, 鉱山地質, 39, p.95–106 (1988).
- 2) P.Ramaekers:“Geology of the Athabasca Group, NEA/IAEA Athabasca Test Areas”, *Geol. Surv. Can. Paper 82-11*, p.15–25 (1983).
- 3) J.Hoeve:“Host rock alteration and its application as an ore guide at the Midwest Lake uranium deposit, northern Saskatchewan, CIM Bull”, August 1984, p.63–72 (1984).
- 4) V.J. Sopuck, A.De Carle, et al.:“Application of lithogeochemistry to the search for unconformity-type uranium deposits in the Athabasca Basin”, *Geol. Surv. Can. Paper 82-11*, p.191–205 (1983).
- 5) S.A.M. Earle, V.J. Sopuck:“Regional lithogeochemistry of the eastern part of the Athabasca Basin uranium province, Saskatchewan, Canada”, IAEA – TECDOC – 500, p.263–296 (1989).
- 6) M.Millinger, D.Quirt, et al.:“Geochemical signatures of uranium deposition in the Athabasca basin of Saskatchewan, Canada”.
- 7) G.Ruhrmann:“The Gaertner uranium orebody at Key Lake (Northern Saskatchewan, Canada) after three years of mining: An update of the geology”, *Saskatchewan Geol. Soc. Spec. Pub. 8*, p.120–137 (1987).
- 8) Ey, F., Gauthier-Lafaye, F., et al.:“Auranium unconformity deposit:the geological setting of the D orebody(Saskatchewan–Canada)”, *Geol. Assoc. Can. Spec. Paper 29*, p.121–138 (1985).
- 9) J.B. Percival, H.Kodama:Sudoite from Cigar Lake, Saskatchewan”, *Can. Mineral.*, 27, p.633–641 (1990).
- 10) M.Pagel, M.Svab:“Petrographic and geochemical variations within the Carswell structure metamorphic core and their implications with respect to uranium mineralization”, *Geol. Assoc. Can. Spec. Paper 29*, 55–70 (1985).
- 11) D.Quirt, T.Kotzer, et al.:“Tourmaline, phosphate minerals, zircon and pitchblende in the Athabasca Group:Maw Zone and McArthur River areas. Saskatchewan”, *Saskatchewan Geol. Surv. Miscellaneous Rept.*, 91–4, p.181–191 (1991).
- 12) Y.Iida:“Alteration and ore-forming processes of unconformity-related uranium deosits”, *Resource Geol. Spec. Issue 15*, p.299–308 (1993).
- 13) A.J. Sinclair:“Selection of threshold values in geochemical data using probability graphs”, *Jour. Geochem.Expl.*, 3, p.129–149 (1974).
- 14) D.G. Krige:“Statistical applications in mine valuation”, *Jour. Inst. Mine Surv. S.A.*, 12, 2, 3 (1962).



大電流CW電子線形加速器入射部の開発について

江本 隆 野村 昌弘

大洗工学センター基盤技術開発部

資料番号：97-3

Design of the High Power CW Electron Linac Injector

Takashi Emoto Masahiro Nomura
(Advanced Technology 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の研究を進めている。消滅処理研究に必要となる加速器の大電流技術を開発することを目的として、加速エネルギー10MeVおよび最大／平均ビーム電流100mA/20mAの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。本稿では、加速器要素の入射部を構成する電子錠、RFチョッパー、バンチャー、ビーム輸送系、モニター等の機器について設計方針および電子ビーム輸送のシミュレーションによる結果を述べる。

1. はじめに

長期的・基礎的研究として推進されているオメガ計画の一環として、動燃事業団では高レベル放射性廃棄物中に含まれるマイナアクチニド（ネプツニウム、アメリシウム、キュリウム等）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推進している。動燃事業団では、マイナアクチニドの消滅には、高速炉を利用することが適切と考えている。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、加速器を単体で用いる方法、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。これらのうち電子加速器による消滅処理は、加速器から得られる高エネルギー電子線を対象核種に直接、あるいは重い元素のターゲットに衝突させ、発生したガンマ線による光核反応（ (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。電子加速器による消滅処理の特徴は、光核反応を用いるので副次的な放射性核種の生成が少ないこ

と、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、他の粒子加速器（陽子、重イオン加速器）に比べて整備され、充実されており、大電流化（平均電力の観点から）が容易である点にある。しかしながら、実際に原子炉から生成する長寿命核分裂生成物を消滅させるには、従来にない大電流の電子加速器が必要になる。

開発中の電子線形加速器の概要については他の報告書²⁾に譲るが、実用段階では加速器としてアンペア級の大電流が要求されると考えられる。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、加速器の大電流技術の開発に重点を置いて開発を進めており、エネルギー10MeV、最大／平均ビーム電流100mA/20mAを開発目標に据えた。このエネルギーを超えると、機器要素、空気の放射化により加速器の試験、保守等が困難となること、10MeVまで大電流が加速できる技術が確立されればエネルギーを高めることは比較的容易に達成できると考えられることによる。最大ビーム電流を100mAに選んだのは、現在の加速器要素・付帯設備の技術レベルから見て到達できる可能性が高く、アンペア級の加速器に

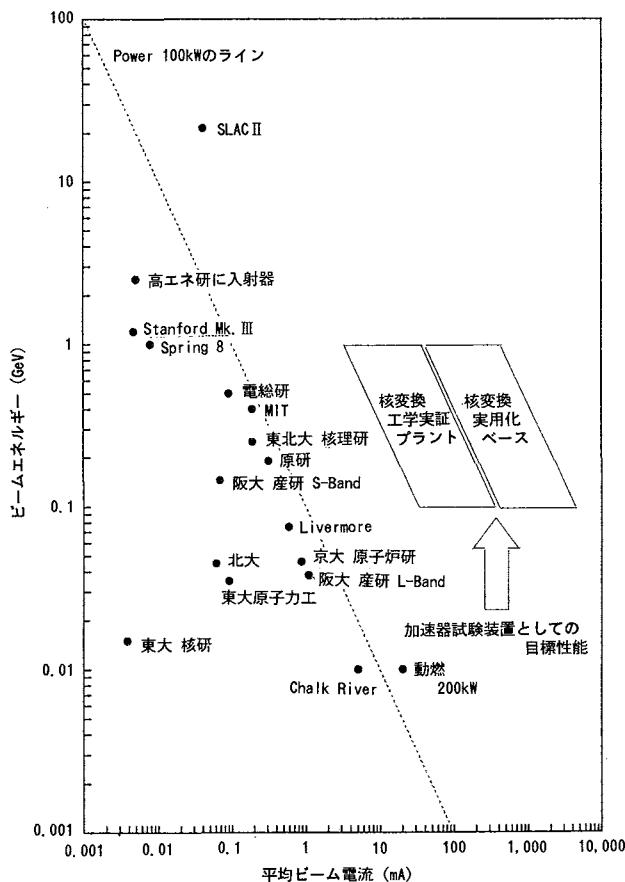


図 1 代表的電子線形加速器の性能比較

移行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。図 1 に世界の代表的電子線形加速器をビームエネルギーと電流について示す。本加速器はビームのエネルギーを高めるというこれまでの加速器開発の方向とは異なり、世界にも例のない大電力・大平均電流を目標とするものである。

大電流化にあたっての基本的な技術課題は従来の加速器とは異なり電子銃の構成、ビーム発散対策、ビームローディング（加速管に供給する高周波とビーム電流の関連）による加速管温度の制御等が挙げられる。さらにこれらの課題は相互に関連しているので、これまでの高エネルギー化の加速器開発とは異なり、ビームの安定性、加速管の熱除去、制御が重要な開発課題となる。上述のように本加速器は新たな技術課題があるため、設計研究を行うのは勿論のこと、加速管、クライストロン等の主な構成要素については試作を行い、その性能試験を高エネルギー物理学研究所と共同で実施した²⁾。これらの試験結果を踏まえて本加速器の設計を行った。表 1 に動燃事業団で開発を進めている加速器の基本仕様を示す。

表 1 加速器基本仕様

エネルギー	10 MeV
最大ビーム電流	100 mA
平均ビーム電流	20 mA
エネルギー分散	0.5%
パルス幅	4 msec
繰り返し数	50 Hz
デューティーファクター	20 %
平均ビーム出力	200 kW
加速周波数	1249.135 Hz
加速モード	$2\pi/3$
加速管の本数（含むバンチャーチャー）	8 本
クライストロン数	2 台
クライストロン出力	1.2 MW
加速器全長	16 m

本加速器の基本構成と入射部の構成を図 2 に示す。入射部の構成は電子ビームをカソードから引き出し 200 keV まで加速する電子銃、直流電子ビームを加速管の高周波位相にビームを乗せるためにビームを変調する高周波チョッパー、チョッパーで高周波位相に乗ったビームを位相方向にまとめるプリバンチャーおよびバンチャー、これらのビームを半径方向に集束したり、位置を制御するビーム輸送系、ビームの位置および形状を測定するビームモニタ、高周波をプリバンチャーおよびバンチャーに供給する高周波電源からなる。

入射部とは電子銃から打ち込まれた電子がほぼ光の速度に達するまで加速される部分で加速器の初段を構成している。電子がこの領域まで加速されるまでは空間電荷の影響を受け易く、また加速電場を電子の速度に合せて加えるため構造も複雑となる。それに対して加速部は電子の速度がほぼ光速に達して一定なので加速管のエネルギーによらず、ほぼ同じ構造となる。それゆえ電子線形加速器においては同じ構造の加速管を並べることにより加速エネルギーを増加することができ、ビームの特性においても初期の特性を維持しながら加速することができる。一方、入射部はその特性が加速器全体の特性を決定してしまう重要な部分である。

ビームの質を記述するパラメータの一つとして半径方向にビームの広がりを示す量（エミッタンス）がある。この量は自由空間や加速を伴わない集束コイル等では保存されるので、電子を発生させる電子銃が最初のエミッタンスを決定し、以下チョッパー、バンチャーとエミッタンスを劣化させる要因が連なっている。入射部の設計はいかにエミッタンスを劣化させずに加速部が受け入れられるエネルギーまで加速するかが主な設計目標で

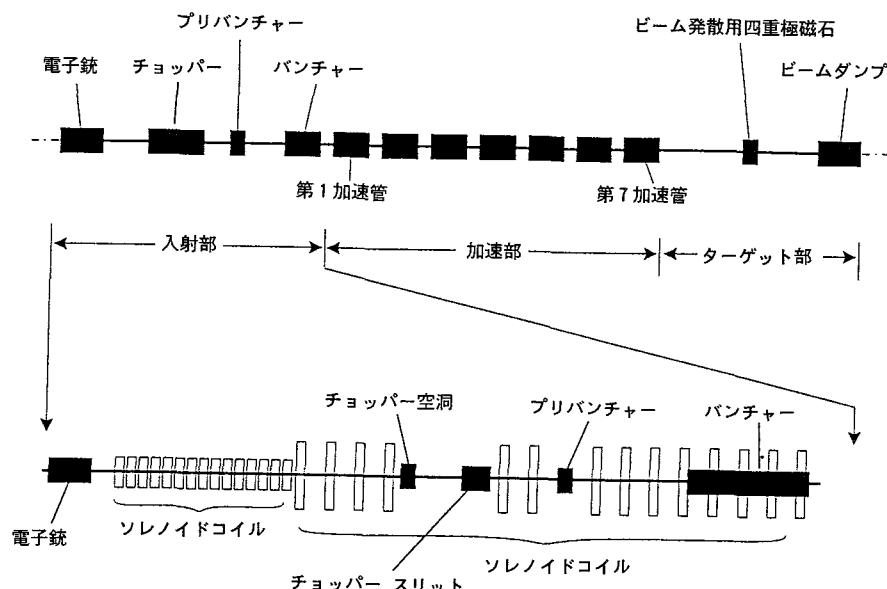


図2 加速器本体と入射部の基本構成

ある。

本報では加速器の入射部を構成する電子銃、RFチョッパー、バンチャー、ビーム輸送系、ビームモニタ、高周波供給部について設計の概要およびこれらを設計したビームシミュレーションについて報告する。

2. 設計の概要

入射部を構成する要素の概要と設計については以下の項目で述べるが、それ以外に付帯設備としてバンチャー等を恒温に保つ精密温度調節装置、高周波を供給するクライストロンおよびそのパルス電源の設計は割愛した。

3. 電子銃

3.1 電子銃の概要

本電子銃はアパーチャーグリッドを用いた熱陰極型である。電子銃の仕様を表2に、概略構造を図3に示す。本加速器の平均ビーム電流は、多くの電子線形加速器がマイクロアンペア級であるのに比べ、2～3桁高く、通常電流制御に用いる

メッシュグリッド方式（被制御電子ビームが制御用グリッドを通過する方式）ではグリッドに流れる電流が大きく熱的な限界に達してしまい採用できない。さらに冒頭で述べたように電子ビームを最初に発生させる電子銃は、加速器全体のエミッタスを決定してしまうので、大電流の加速を後段で安定に行うためには、電子銃から出していくビームのエミッタスを極力小さくしなくてはならない。

本電子銃では図3に示すように、カソードから出たビームがグリッドに直接当たらないアパーチャーグリッドを設け、その影響による電位面の変位は第二グリッドにより補償し、エミッタスの増加を抑えている。電子を取り出すカソードは現段階で安定で寿命の長い、含浸型カソードを用

表2 電子銃ビーム仕様

エネルギー 電流値（ピーク） パルス幅 繰り返し数 ビーム径 規格化工ミッタス	0.2MeV 100 μ～400mA 100 μ～4 msec 50Hz 1cm以下 10 π mm・mrad以下
--	--

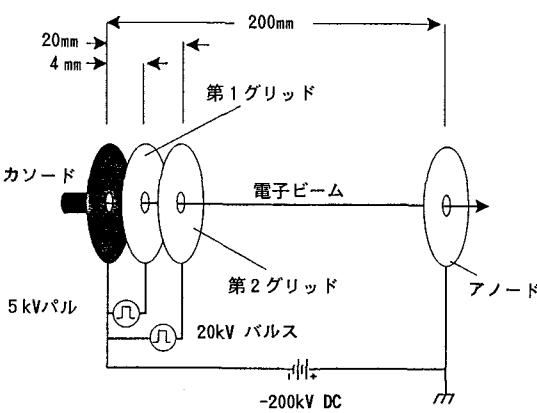


図3 電子銃概念図

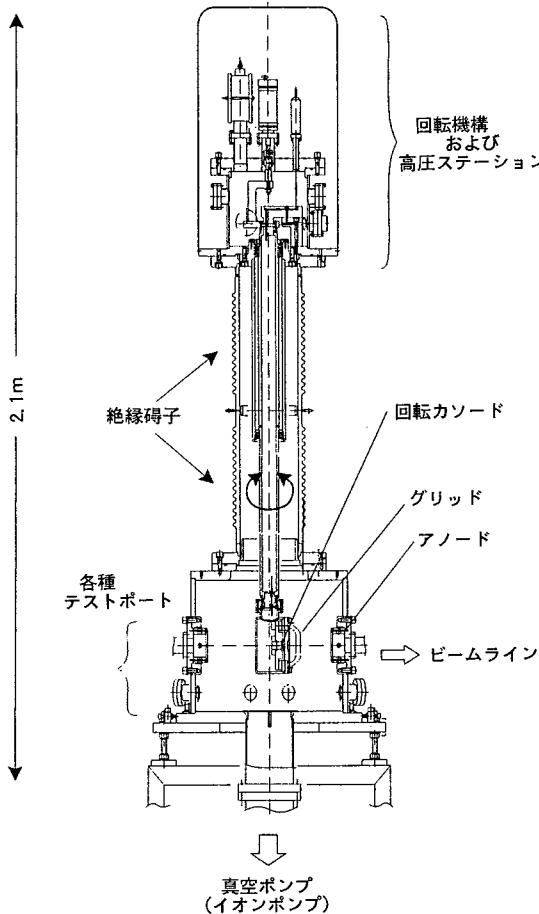


図 4 電子銃側面図

いている。カソードの寿命は取り出す電流と時間で決まるので、本電子銃のようにデュティーファクターの高い電子銃においては根本的な問題である。寿命、エミッタンスの問題について加速器に装着状態で試験できるように、図4に示すように通常のものと異なり縦型で、カソードの部分が回転できる構造になっている。これにより、電子銃を他の出口に向け電子ビームを引き出し、種々の測定が真空を破らずに可能な構造となっている。これはカソードの物性等を測定するのに非常に有益である。

3.2 電子銃の設計

電子銃の構造としてダブルアーチャーグリッド方式を採用し、その電子銃電極の幾何学的形状を電子軌道解析コードEGUN³⁾によって解析、最適化した。EGUNは空間電荷効果を含んだ2次元の有限差分法でポアソン方程式の解を求めるものである。

最適化はカソード、グリッド、アノードの間

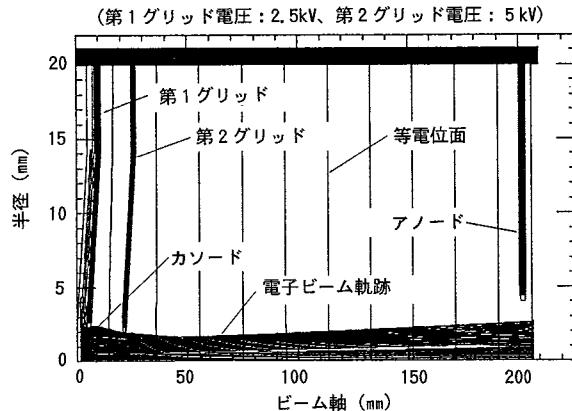


図 5 EGUNによるビーム軌道の計算例

隔、径をパラメータとしてエミッタンス、電流制御特性について行った。その結果、電子銃の仕様にそったビーム電流値10mA～400mAの範囲でエミッタンスを $10\pi\text{mm} \cdot \text{mrad}$ 以下に押さえる電極形状を決めることができた。図5にEGUNによるビーム軌道と電極形状を示す。

3.3 電子銃制御用電源

ダブルアーチャーグリッド方式を採用したことにより、第一、第二グリッド各々に5kV、20kVのカットオフ電圧が必要となった。メッシュグリッド方式では、100V以下であることに比べるとその制御用電源は複雑なものを採用せざるを得ない。グリッドパルス幅が数 μsec 以下であれば種々の波形整形回路やパルス変圧器等が採用できるが、パルス幅4 msec、5kVの電圧波形に対しては多数の電界効果素子(FET)を重ねてスイッチング素子として使用した。

グリッドパルスの立ち上がり、立ち下がりはそのまま電子ビームのそれとなるので、各種のビーム利用を考慮し $1\mu\text{sec}$ となるように設計された。第二グリッドは安全のために、第一グリッドのパルスを覆うように立ち上がりの遅いパルスで20kVをFETのスイッチにより発生させ電子銃を二重にカットオフにさせる。

4. 高周波チョッパー

4.1 高周波チョッパーの概要

電子銃から引き出されたビームは概略図6に示されるよう高周波空洞内の磁場により左右に振られ、その先に設けたスリットで切り取られ、加速位相に乗る部分だけがプリバンチャーに送られる。チョッパーでのビームと垂直方向の運動量の増加はエミッタンスを劣化させる。しかしスリッ

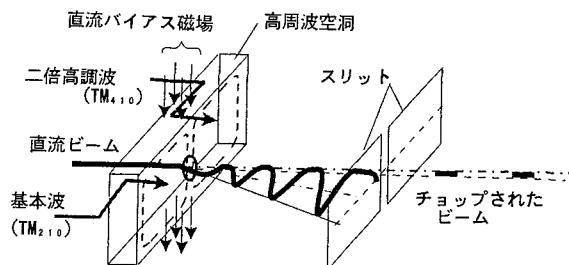


図 6 高周波チョッパー概略図

トの幅を狭くしてエミッタスを良くしようとすると取り出される位相角が減少し電子銃からのビームが効率良く利用できない上、スリットで大量のビームを受け止めなくてはならず熱除去の問題が生じる。本チョッパーでは、この問題を解決するために高周波空洞に加える高周波を基本波、二倍の高調波および直流バイアス磁場をビームに加えることにより、エミッタスの増加を極力抑え、位相角120度（直流ビーム1/3の電流）を取り出すことを可能とした。

本方式の概要は高周波空洞を通過するビームに対して加える磁場を通常の高周波チョッパーでは基本波のみであるところに二倍高調波およびバイアス磁場を調整し図7の太線に示す磁場を加える。これによりY軸方向の磁場がゼロとなり狭いスリットにビームを通過できる平坦部ができる。この磁場は空洞に基本波に対しては TM_{210} モード、二倍高調波には TM_{410} モードが励起されるよう、空洞の形状を決める。図8にこれら二つのモードが作る磁場を示す。ビームに作用する磁場はこれらの重ね合せとなる。

4.2 チョッパーの設計

前述の考案を具体化するために、チョッパー空洞の形状の決定、空洞に生じる他の高調波モード

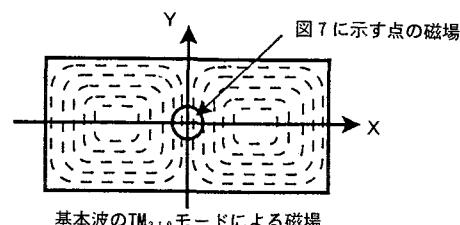


図7に示す点の磁場

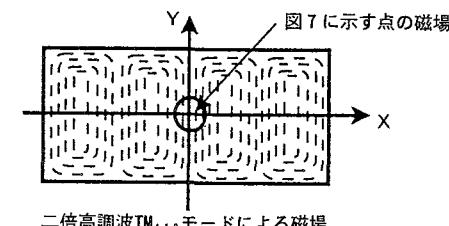


図8 高周波空洞内に励起される磁場分布

の検索、電子ビームの軌道解析を三次元電磁場解析コードMAFIA⁴⁾によって行った。MAFIAは三次元の有限差分法でMaxwell方程式の解を求めるものである。

空洞の形状は二つのモードが励起できる値を決め、アルミニウム製の試作空洞を作り、測定により最終形状を定めた。空洞には高周波を供給するカプラー、空洞での共鳴を微調整するスタブチューナが取り付けられる。

スリットは空洞から約50cmのところに置かれ、スリット幅はビーム径と同じである5mmとし、スリット上でビームを40mm偏向できるように、基本波、二倍高調波の高周波電力を加える。スリットは10kW程度の電力が捨てられるため、楔型としビームに対して傾け、広い面積にビームが照射されるような形状とした。スリットに入射される電子ビームのエネルギー損失はモンテカルロ電子・光子輸送コードEGS⁵⁾によって解析され、スリットの形状を設計した。

設計されたチョッパー空洞とスリットにより切り取られるビームのシミュレーションを図9に示す。計算はMAFIAコードにより行った。

5. プリバンチャーおよびバンチャー

5.1 プリバンチャーおよびバンチャーの概要

チョッパーから切り取られたビームは加速管に入射される前にプリバンチャーおよびバンチャーにより位相方向にまとめ、できるだけ多くの電子が加速管の安定な加速位相の領域に入るようとする。高周波電場によって、入射ビームのあるものは加速され、あるものは減速され、バンチャーを

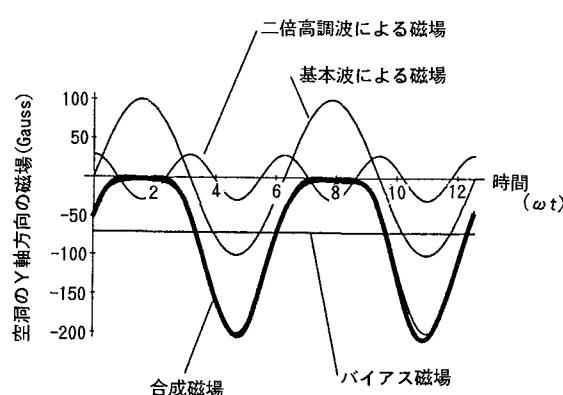


図7 高周波空洞でのY軸方向の磁場

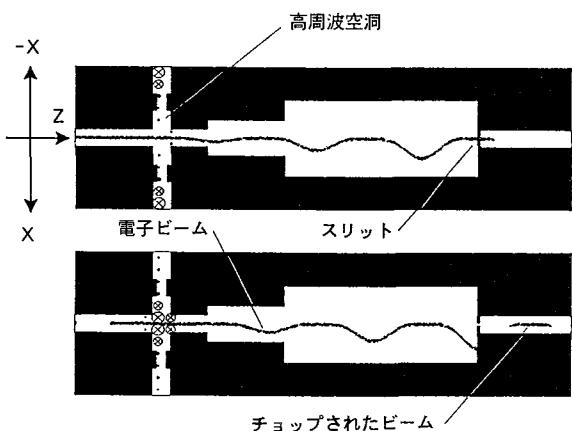


図9 チョッパーのビーム軌道シミュレーション
(1/4周期前後を示す)

出るときにはその高周波位相に応じて異なる速度をもつ(速度変調)、バンチャーフラフから適当な距離

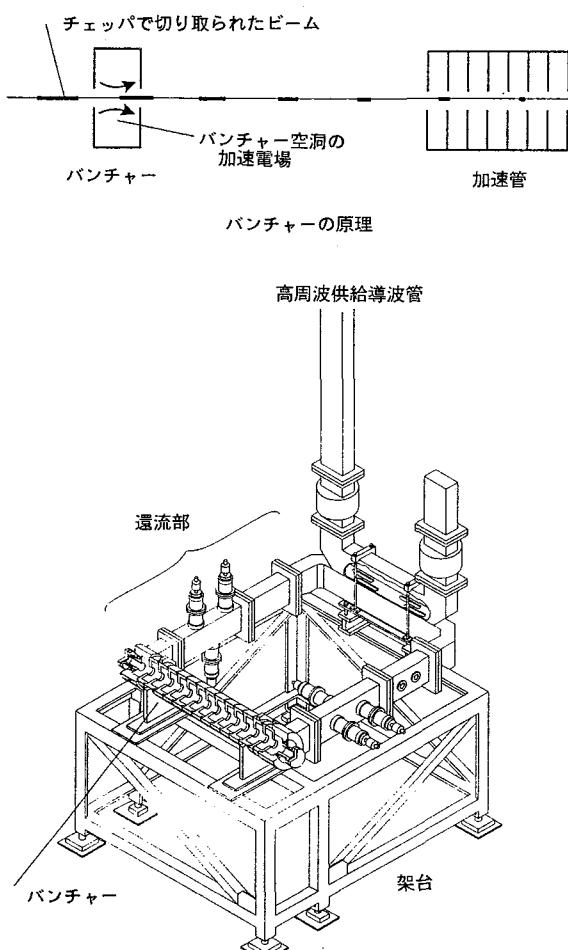


図10 進行波還流型バンチャーフラフの外観図とバンチャーフラフの原理

の点では速度の違う電子は走行時間の違いからある位相のところに電子が時間的に集団する(バンチする)。これがビーム圧縮の原理である。図10にビーム圧縮の原理および概要を示す。

本加速器のビーム圧縮部分は定在波リエントラント型空洞からなるプリバンチャーフラフおよび図10に示すような加速管とほぼ同じ構造からなる進行波還流型バンチャーフラフから構成されている。バンチャーフラフは進行波還流型の加速管とほぼ同じ構造で空洞が加速管より1つ多い16空洞よりできている。進行波還流型のバンチャーフラフおよび加速管の設計については他の報告書⁷⁾に譲る。

バンチャーフラフにおいて、集団できる度合いは、空間電荷効果により制限されるので、比較的短いドリフト区間で強い電場により集団する必要がある。そこでプリバンチャーフラフではビームは位相角を120度から30度まで絞り、さらにバンチャーフラフでは30度から15度まで絞り込む。プリバンチャーフラフおよびバンチャーフラフの位置、位相角、空洞内の電場については8章に述べるビーム輸送のシミュレーションにより、エミッターンスの増加等を考慮しながら決定された。

5.2 プリバンチャーフラフの高周波設計

プリバンチャーフラフでの問題点にビームが空洞内を通過することによる誘導電場(beam-induced rf field)がある。空洞をLCR並列共振回路と置き換えて考えると少ない電力でバンチャーフラフの電場を高めるには、回路のQ値を高くしなくてはならない。しかしQ値が高いことにより、チョッパーで切り取られたビーム(チョッパーは基本周波数で動作しているので、ビームは基本周波数成分が主な高周波と見なせる)により電圧を誘起する。この電圧は空洞に供給する高周波電圧より大きくなることがあり、さらにビームに対して集団させる位相角をずらしてしまう。

これらの問題に対して、供給電圧の許される範囲でQ値を下げ、空洞に取り付けたスタブチューナーにより位相角を補正することにより解決した。Q値を下げるには高周波に対して抵抗の高い金属で空洞を製作すればよいが、一般的に電気抵抗の高い金属は熱抵抗も高く空洞の除熱が難しくなる。そこで図11に示すように、胴の部分はステンレススチールで、熱の逃げにくい電極部分は銅で製作した。空洞の高周波損失等電気的特性は二次元(軸対称)電磁場解析コードSUPERFISH⁶⁾により計算した。

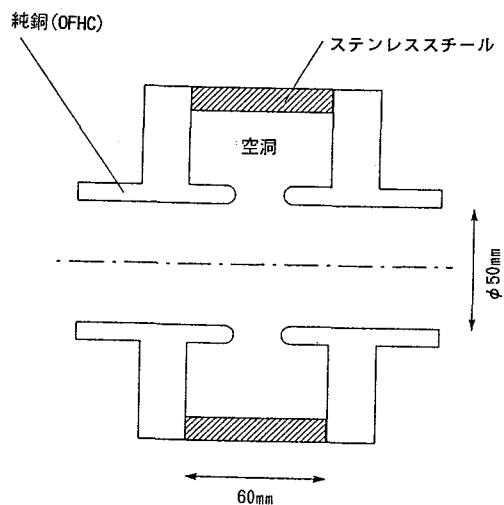


図11 プリバンチャーハーの断面図

6. ビーム輸送系およびビームモニタ

6.1 概要

ビーム輸送系はビームが半径方向に発散するの制御する要素から成り立っている。図12に入射部の機器配置を示す。電子銃から出た電子は2台の磁気レンズにより絞られて、12台のソレノイドコイルからなるドリフト区間に入る。ソレノイドコイルは一様な軸方向の磁場により、ビームを半径方向に集束するものである。ドリフト区間は電子銃室と加速管室を分ける2.3mの遮蔽壁の区間で、エミッタンスを劣化させることなくビームをチョッパーに送る必要がある。チョッパーの手前には直径2cmのコリメータがある。コリメータはビームを絞る目的ではなく、ビームが万一コリメータに当った場合、直ちにビームを止めるための電流検出器として使用するものである。バンチャーハーの手前にもう1台のコリメータが置かれて

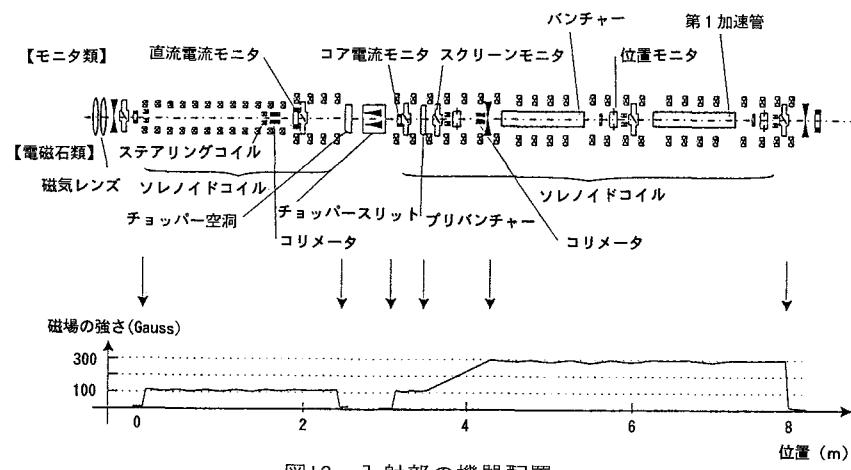
いる。加速管室内ではチョッパーの部分を除きソレノイドコイルが第一加速管の先まで、ビームの位置を上下、左右に調整するステアリングコイルが5台ほど等間隔で設置されている。ステアリングコイルによりビームを中心に向けるように制御し、ビームを後段の加速管へ導く。これらビーム輸送に対するコイルの位置、磁場の強さ等の設計、最適化は8章で述べる。

ビームモニタはビームのプロファイル（形状、位置）および電流を測るものに分けられる。プロファイルモニタとしてスクリーンモニタ、位置モニタとして静電誘導型ボタンモニタ、電流モニタとして直流電流モニタ、コア電流モニタ、等が図12に示すように配置されている。

大電流CW電子線形加速器というかつて先例のない加速器においては、これらモニタは加速器の振る舞いを観測するのに重要な道具である。それゆえ、モニタ類は配置が許す限り取り付けてある。本加速器のビーム測定で問題なのはビーム電流が大きくスクリーンモニタ等接触型のプロファイルモニタが使用できない点である。現状では、ビームのパルス幅を短くし、繰り返しを減らすことによってビーム電流を下げ、スクリーンモニタを使用して測定し、パルス幅を広げてもビーム光学は変わらないとする仮定を取っている。しかしながらそれが正しい保証はない。非接触型のプロファイルモニタとしては残留ガスの発光を用いたもの等いくつかあるが適当なものもなく、現在開発中である。そのため、スクリーンモニタを挿入する部分は4方向に汎用ポートとし、将来の使用を考慮してある。

6.2 プロファイルモニタ

(1) スクリーンモニタ



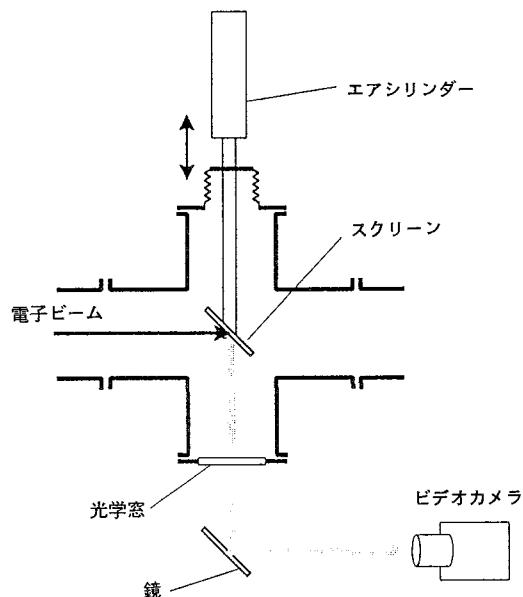


図13 スクリーンモニタ概念図

スクリーンをビームラインに直接出し入れしてビームの形状や位置を測る方法で加速器では良く用いられている。図13に示すように、スクリーンをエアシリンダーによって出し入れするものである。螢光板には適当な発光量があり、放射線の影響のないものが好ましい。一般的には各種セラミックスが用いられる。本モニタには、紫外線領域 ($\sim 320\text{nm}$) で短い時間の発光、赤い可視光領域 ($\sim 680\text{nm}$) で長い発光をする酸化クロムを含んだアルミナのセラミックス (Desmarquet 社 AF995R) を使用している。短い時間の発光は加速位相に乗って集団された電子ビームの様子が観測できる程高速なので、この光をストリークカメラで観測し位相角を測定する。また長い発光ではプロファイルを測定する。

螢光板からの光は光学素子で作られたのぞき窓から何段かの鏡を経てビデオカメラまたはストリークカメラに入る。ストリークカメラとは空間と時間を変数として光の強度を記録できるもので、時間分解能は 2 psec である。

(2) 位置モニタ（静電誘導型ボタンモニタ）

非接触型の位置モニタとして本加速器において唯一、フルビームで使用できるモニタである。図14に示すように、X軸、Y軸に並べられた電極にビームが通過する際、静電誘導により誘起された電位を測定し、X、X'、Y、Y'の電位の重心から位置を求めるものである。実際には感度をあげ、S/N比を上げるために、ビームがチョッパーにより

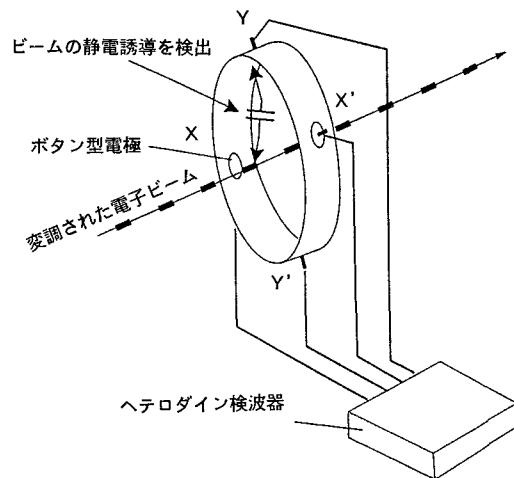


図14 位置モニタ

変調（チョッパーまたは加速高周波）されているので、電極からの検出信号に 70MHz 低い高周波を加えヘテロダイン検波をしている。

6.3 電流モニタ

(1) 直流電流モニタ

本加速器のビームパルスは非常に長く ($\sim 4\text{ msec}$) 検出器の低域周波数特性を確保するために、また電子銃から出た直流ビームを測定するため、直流から感度のある磁気変調型電流トランス方式の既成品を採用した。表3に本モニタの仕様を示す。

(2) コアモニタ

コアモニタは図15に示すように、ビーム電流を 1 ターンの巻線とした変圧器を構成している。ビームパルス幅が従来の加速器のものに比べて長いため、通常用いられる電流変圧器に電流帰還をかけ、時定数を大きくしている。これにより 4 m sec のパルスをほぼ測定でき、立ち上がり時間が 1 msec 位まで観測できるように設計した。コアモニタは時間に関する情報を与えてくれるので、ビームの発散やビームローディングの観測に不可欠のモニタとなる。

表3 直流電流モニタ仕様

測定電流	10 $\mu\text{A} \sim 500\text{mA}$
測定精度	$\pm 10\text{\AA}$ 以下 $\pm 200\text{\AA}$ 以下
周波数特性	DC $\sim 500\text{Hz} (-3\text{dB})$

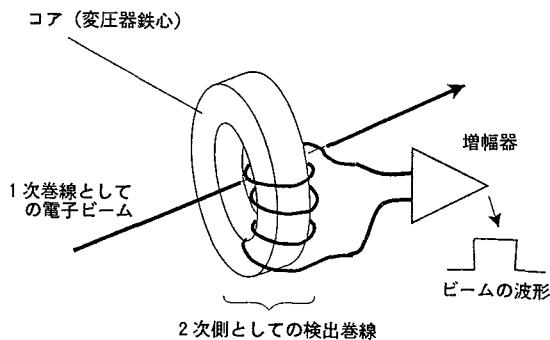


図15 コアモニタ（電子ビームをトーンコイルとする変圧器を構成する）

7. 高周波給電部

前述の高周波チョッパー、プリバンチャーバンチャーハイ周波電力を供給する部分である。図16に入射部機器の高周波回路を示す。基準信号の1249.135MHzは3系統に分岐され、2系統はLバンド1.2MWのクライストロンを駆動しバンチャーハイ周波電力を供給され、1系統は2倍に倍されSバンド2kWクライストロンを駆動し高周波チョッパーに供給される。これら3系統の増幅器の出力から基準信号に対して振幅および位相の帰還をかけ、基準信号に対して1度以内の位相変動に安定化している。ビームに対するチョッパー空洞での基本波、高調波の位相および加速位相の安定度はビームを設計どおりパンチし加速し、

ビームエネルギーの安定度に寄与する重要な要因である。安定化された高周波電力はハイブリッドカプラにより分岐され各入射部機器に供給される。各要素側には位相を調整する移相器、電力を調整する減衰器、各要素に供給される電力をモニタする方向性結合器が導波管により接続されている。移相器、減衰器、導波管等大電力を制御する大型の要素であり、かつ除熱し恒温に保つ必要がある。

8. ビーム輸送シミュレーション

8.1 計算の概要

入射部の主なビーム輸送のシミュレーションは電子軌道解析コードPARMELA⁸⁾ (Phase And Radial Motion in Electron Linear Accelerator)により行った。PARMELAは多粒子（多くの電子を一つの粒子で代表したもの）シミュレーションコードで、線形加速器、ビーム輸送系の軸方向を独立変数とし扱い、トレースしている粒子の情報を渡して行くチェーン行列法(chain-matrix method)を用いている。コードは6次元で作られているが、空間電荷効果を扱う部分は軸方向と半径方向に切られたドーナツ状のメッシュで電荷を扱っている。

コード自体は変更したり、いろいろな目的に利用できる柔軟な構造に作られている。本計算においても、磁気レンズ、チョッパースリット要素の付加、本加速器の体系で精度を上げるためメッ

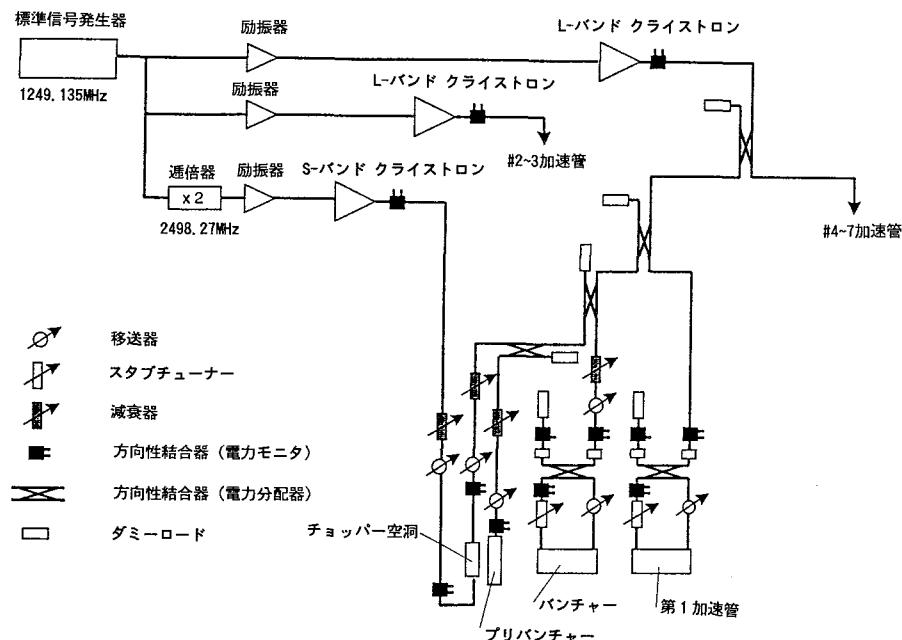


図16 入射器高周波回路

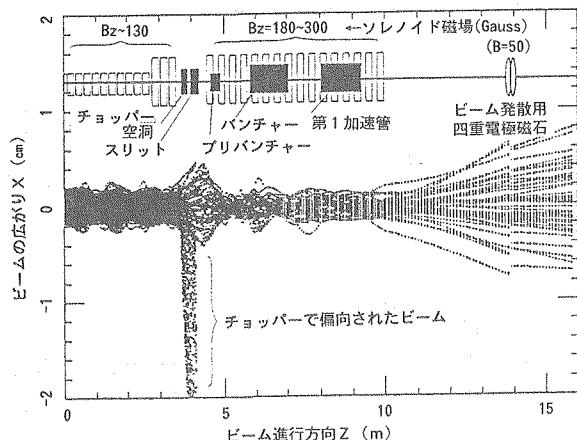


図17 電子銃からビームダンプまでの電子ビーム軌道

シユ数の拡大等の機能をコードにつけ加えた⁹⁾。入射部の各要素の配置、ソレノイドコイルの磁場強度、エミッタスの最適化等、PARMELAによって行われた。

8.2 計算結果

代表的な計算結果として図17に電子銃出口からチョッパー、プリバンチャ、バンチャ、加速管、ビームダンプの熱負荷を軽減するために電子ビームを発散させる四重極電磁石を通過するまでのX軸方向の電子ビームの広がりを示す。電子銃出口からチョッパー空洞までの約3mの自由空間には先に述べたようにコイルを設置し、ビームラインに平行な磁場を作っている。磁場強度は、電子ビームの空間電荷効果による反発力と磁場による収束力が等しく成るように設定し、電子ビームの流れが層流になるようにし、電子ビームの品質の劣化を防いでいる。

チョッパーでは電子ビームを水平方向に振り電子ビームを位相角にして約120度だけ切り出す。このためチョッパー空洞からチョッパースリットの間には磁場のない領域を設けている。チョッパーによる電子ビームの切り出しの様子を図18に示す。この図から、チョッパー空洞により偏航された部分がチョッパースリットにより削り取られ位相角にして約120度だけがチョッパースリットを通過しているのが理解できる。この磁場のない領域のために切り出された電子ビームは広がってしまう。この広がった電子ビームは再びソレノイド磁場により集束させられて、プリバンチャにに入射される。

プリバンチャおよびバンチャでは効率良く加速するために電子ビームをRFで速度変調しそ

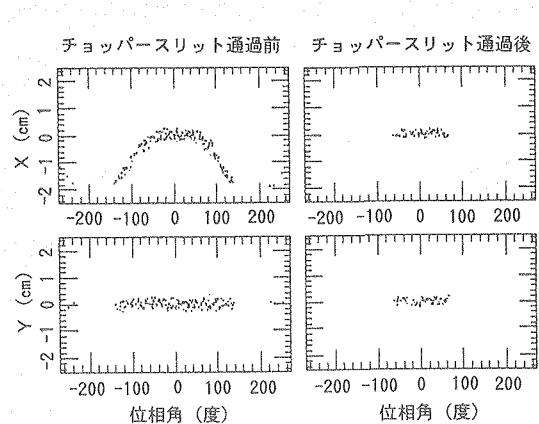


図18 チョッパースリット前後での電子軌道の広がり

れぞれ、位相角にして約30度、約15度に圧縮し、加速管に入射する。この様子を図19に示す。

圧縮する位相角の大きさや、プリバンチャ、バンチャ、第一加速管の位置は、電子ビームのエミッタスとエネルギーの広がりを最小にするように決定した。

9. おわりに

大電流CW電子線形加速器の入射部について、構成する各要素の設計概要およびビーム輸送のシミュレーションについて述べた。他に例のない大電流加速器の入射部をいくつかの新しい考案を含めて設計した。シミュレーションの結果はエミッタスを劣化させずにビームを通過できる入射部を設計できることを示した。

入射部は電子線形加速器の性能を決定する重要な部分である。それゆえ加速器全体を一度に製作、据え付けるのではなく、入射部および第1加

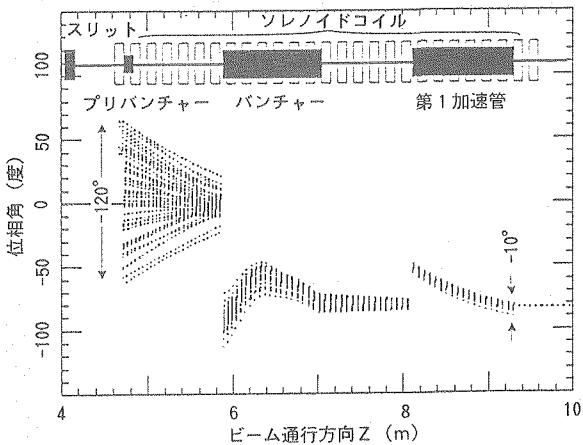


図19 スリットから加速管までの電子ビーム軌道

速管の部分を製作し試験する入射部試験を計画している。現在は入射部試験に向けて据え付けられた機器の試験および調整を行っている。その結果を加速部の製作に反映し平成8年末に加速器全体の据え付けおよび調整を完了する。その後はビーム電流を徐々に上げて目標性能であるエネルギー10MeV、電流20mAを目指す試験および制御を行う予定である。

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, 82, P19 (1992).
- 2) 遠山, 谷, “大電流電子線形加速器の開発”, 動燃技報, 88, P19 (1993).
- 3) William B Herrmannsfeld, "EGUN an electron optics and gun design program", SLAC—Report—331, (October 1988).
- 4) CST (Computer-Simulationstechnik), Lauteschlägerstrabe 38, D—64289 Darmstadt Germany.
- 5) W.R.Nelson, H.Hirayama, et. al., "The EGS4 Code System", SLAC—Report—265, (1985).
- 6) M.T. Menzel : H.K. Stokes, "User's Guide for POISSON/SUPERFISH Group of Codes", LA—UR—87—115, (January 1987).
- 7) Y.L.Wang, Isamu Sato et. al.: "Design of High Power Electron Linac at PNC", Journal of Nuclear Science and Technology, 30, 12, P1261, (December 1993).
- 8) R.A.Jameson, computer code PARMELA (Accelerator Technology Division, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico, USA).
- 9) S.Toyama, M.Nomura, et. al., in Proceedings of the 1994 International Linac Conference, edited by K. Takata, Y. Yamazaki, and K. Nakahara (National Laboratory for High Energy Physics, Japan, 1994) /, p199.



超耐熱Nb基およびMo基合金の設計開発

斎藤 淳一 舘 義昭 加納 茂機
森永 正彦* 古井 光明* 井上 聰²

大洗工学センター基盤技術開発部
* 名古屋大学工学部
*2 沼津工業高等専門学校機械工学科

資料番号：97-4

Design and Development of Super-Heating Resisting Nb-based and Mo-based Alloys

Jun-ichi Saito Yoshiaki Tachi Shigeki Kano
Masahiko Morinaga* Mitsuaki Furui* Satoshi Inoue ²
(Advanced Technology Division, O-arai Engineering Center
* School of Engineering, Nagoya University
*2 Department of Mechanical Engineering, Numazu College of
Technology)

Nb基およびMo基合金は高融点金属であり、高温での新しい原子力システム用構造材料として有望な材料である。そのため、高温での高強度ならびに高温アルカリ液体金属環境下での優れた耐食性を有するNb基およびMo基超耐熱合金の設計開発を行った。合金設計は、分子軌道法を利用したd電子合金理論を適用した。機械的特性である常温および高温硬さや加工性の実験データを取得し、d電子合金理論の合金パラメータを用いて、それらを整理し予測を行った。また、クリープ寿命の指標となる合金の融点を合金パラメータを用いて整理し融点の予測式を作成した。さらに、2元系Nb基およびMo基合金の1,200°C液体Li中腐食試験を行い、耐食性の向上に有効な元素を検討した。以上のことから、高温強度とともに耐食性に優れたNb基およびMo基合金系を見出すことができた。

1. はじめに

高速炉の高熱効率化や高温アルカリ金属技術のフロンティア領域を開拓するために、高温で高強度および高温液体Liに対して、優れた耐食性を有する新しい構造材料の開発が望まれている。さらに、核燃料サイクル分野においても高温で高強度、高耐食性の材料への需要が高くなっている。超高温で高強度さらに液体アルカリ金属に対して優れた耐食性を有する合金はこれまでなく、これらの要求特性を満足する新しい合金の開発が期待されている。このような高温用の耐熱合金は、原子力分野のみならず、航空・宇宙分野、他のエネルギー分野においてもその需要が高く、他分野への応用が十分に期待できる。

本研究では、これまでよりも厳しい原子力環境下に耐えうる材料として、高融点金属であるNbおよびMoを基材とする合金を候補として選び、超高温(1,200°C)で高強度、高アルカリ金属耐

食性を有する新しい合金の設計と開発を行った。これまで、合金開発には膨大な時間と費用、労力が必要であった。本研究では、合金の設計と特性評価にd電子合金理論を適用し、理論的に合金元素の選択や添加量を決め、新しいNb基およびMo基合金の設計開発を効率的に行なった^{1),2)}。本報ではd電子合金理論とそれに基づく合金設計法について概略を説明し、最後にNb基およびMo基合金の合金設計の結果得られた合金系と特性評価について報告する。

2. d電子合金理論

d電子合金理論^{3),4)}は、これまで膨大な時間と労力をついやし試行錯誤で行っていた合金開発を、理論的かつ効率的に行なう合金設計手法である。この合金設計手法では、まず分子軌道法(DV-X α クラスター法)により、母金属中の合金元素の特徴を表わす合金パラメータを理論的にもとめ

る。本研究で求めた合金パラメータはBo(結合次数)およびMd(d軌道エネルギーレベル)である。ここで、もとめられた合金パラメータを用いて、個別の実験データを体系化し、その情報を基に合金特性の向上に有効な合金元素の選択やその添加量を決定する。このように合金元素の効果を表わすパラメータを分子軌道法により理論的にもとめることで、多くの実験データを容易に体系化することができ、合金設計が合理的に短い時間で行えるのが大きな利点である。

2.1 DV-X α クラスター法

次に、本研究で用いている分子軌道法の一つであるDV-X α クラスター法について説明する。電子構造を計算する本方法の詳細については論文や解説がある^{5~7)}ので、ここでは簡単な説明にとどめることとする。

この計算方法は、数個～数十個からなる原子の集合体(クラスター)模型を用いて行う分子軌道法である。本研究で用いている体心立方格子(bcc)のクラスター模型を図1に示す。これは、中心の合金元素Mと、それから第1近接および第2近接位置にある母金属NbまたはMo原子、14個からなるMNb₁₄またはMMo₁₄クラスターである。クラスター模型の大きさをもっと大きくとることもできるが、計算時間が非常に長くなるため、適當な大きさのクラスター模型を用いる方がよい。格子定数はNb:0.33066nm、Mo:0.31469nmと一定とした。クラスターの電子構造を計算する場合に

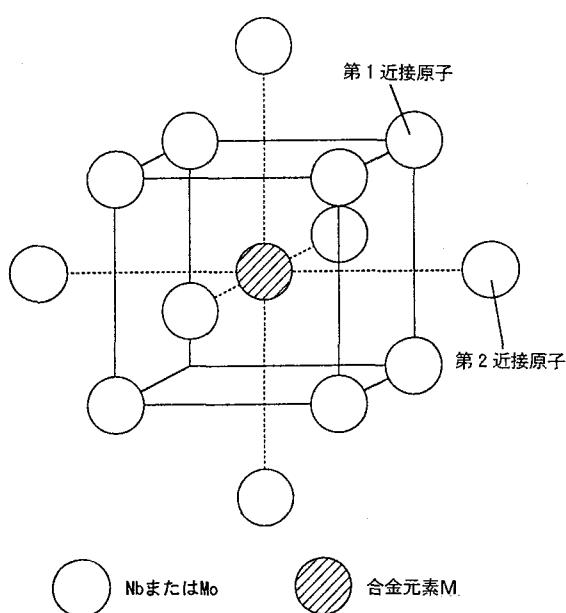


図1 クラスター模型

本法ではシュレーデンガーの波動方程式の中の電子間の交換相互作用を表わすポテンシャルに(1)式のX α ポテンシャルを用いて、セルフコンシステントに解く。

$$V_{XC}(r) = -3 \alpha [3/8 \pi \cdot \rho(r)]^{1/3} \quad (1)$$

これは、スレーターの提案した⁶⁾電子の交換ポテンシャル V_{XC} で電子密度 $\rho(r)$ の $1/3$ 乗に比例するという簡単な形で近似している。ここで、 α はパラメータであり、H原子では0.978、He原子では0.773となり、その後、原子番号の増加とともに徐々に減少していき、遷移金属で $2/3$ に近づく。通常の分子軌道計算では、すべての原子について $\alpha=0.7$ としても大きな誤差にならない。また、0.7程度の値に固定して用いることにより、計算時間が桁違いに短くなる。また、分子(ここではクラスター)の軌道関数 u_l を(2)式のように、通常、構成する原子の軌道関数 ϕ の一次結合(Linear Combination Atomic Orbital)の形で表わす。

$$u_l = \sum (i) C_{il} \phi_i \quad (2)$$

さらに、本法では通常の方法とは異なり、永年方程式を解くときに、空間にランダムに選んだサンプル点でハミルトニアンと重なり積分の行列要素を計算し、電子のエネルギー固有値と固有関数を数値的にもとめるのが特徴である。

実際に本研究では中心の合金元素Mを3d、4dおよび5d遷移金属または非遷移金属(Al, Si)に置き換えたときのそれぞれの電子構造を計算し、個々の合金パラメータをもとめた。この電子構造の計算方法は無限に拡がった周期的な場における電子の動きを見る方法であるバンド計算と異なり、局所電子状態を調べるのに適している。したがって、合金元素の特徴を表わすパラメータをもとめるのに適した計算方法といえる。

2.2 合金パラメータ

次に、本計算よりもとめた合金パラメータについて説明する。

(1) 結合次数(Bond Order: Bo)

原子間の結合の強さを表わすパラメータとして結合次数(Bond Order: Bo)がある。図2(a)には、簡単のために、M原子とN原子の2原子分子で説明する。ここで、MとNの原子軌道をそれぞれ ϕ_M 、 ϕ_N としたとき、MとNの2原子からなる分

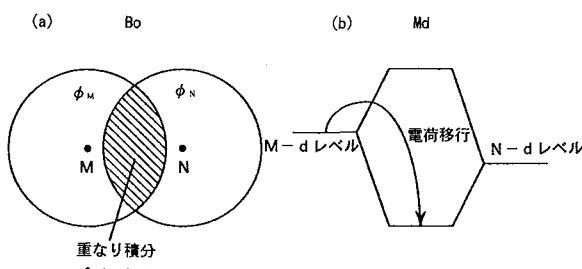


図2 合金パラメータ
(a) 結合次数Bo、
(b) d軌道エネルギーレベルMd

子軌道 ψ は、(3)式のように表わせる。

$$\psi = C_M \phi_M + C_N \phi_N \quad (3)$$

ここで、 C_M 、 C_N はそれぞれの軌道の混ざり具合を示すパラメータである。このとき、M-N原子間の結合次数Boを

$$Bo = 2C_M C_N \int \phi_M \phi_N dv \quad (4)$$

で定義する。ここで、 $\int \phi_M \phi_N dv$ は原子軌道の重なり積分である。これが大きいと原子間の相互作用が大きく、原子間に強い共有結合が存在することを意味する。NbやMoといった不対d電子をもつ遷移金属において、d電子が最も結合に寄与するため、Mのd軌道とNのd軌道の重なり度合いが特に重要となる。このd軌道による結合次数が増加するほど、M-N間の原子間結合力は強くなる。

(2) d軌道エネルギーレベル

(d-orbital Energy Level : Md)

図2(b)に示すように、M原子とN原子が分子をつくる場合、低いエネルギーの結合レベルと高いエネルギーの反結合レベルが現れる。図のように、もし結合前の自由原子MのエネルギーレベルがNのそれよりも高いとすると、水が高いところから低いところへ流れるように、MからNへの電荷の移行が起こる。このとき高いエネルギーレベルの金属Mは電子をはき出でて、小さな電気陰性度をもち、一方低いエネルギーレベルの金属Nは電子をもらうため、大きな電気陰性度をもつと理解できる。このように軌道のエネルギーレベルは、電気陰性度と相関をもつ。

また、エネルギーレベルは、金属半径とも関係がある。原子の大きさが大きくなるにつれて、核外電子が中心にある核から受ける束縛力が減少するので、そのエネルギーレベルは高くなる。も

し、Mの金属半径がNのそれよりも大きいとすれば、Mは電子を放出して原子半径を小さくし、反対にNは電子をもらって半径を大きくしようとする。このような金属半径の調整が合金内では起っていると考えられる。本研究ではNbおよびMoの遷移金属を対象としており、d電子の振る舞いが重要なため、d軌道エネルギーレベルの位置が大切である。このd軌道エネルギーレベルは計算される分子軌道の中の一一番上の占有軌道（フェルミレベル）近傍に現れる。ここで、占有軌道とは電子がつまっている軌道のことである。そのフェルミレベル近傍に現れる合金元素Mのいくつかのd軌道のエネルギー値を平均し、その値を合金元素Mのd軌道エネルギーMdとした⁸⁾。

(3) 合金パラメータの適用方法

電子構造の計算から得られたNb基およびMo基の合金パラメータを表1に示す。これらパラメータを実際にどのように合金へ適用するかが問題となる。そこで、本研究では単純に合金パラメータを以下の式(5)～(7)に示すように、組成平均をして合金の平均Bo、平均Mdおよび平均△Mdをもとめた。

$$\text{平均}Bo = \sum Bo_i \cdot C_i \quad (5)$$

$$\text{平均}Md = \sum Md_i \cdot C_i \quad (6)$$

$$\text{平均} \Delta Md = \sum |Md_i - Md_{Nb}| \cdot C_i \quad (7)$$

表1 電子構造の計算から得られた合金パラメータ

M	M for Nb		M for Mo	
	Bo	Md(eV)	Bo	Md(eV)
3d				
Ti	5.470	3.017	5.238	2.799
V	5.481	2.319	5.212	1.893
Cr	5.463	1.826	5.068	1.187
Mn	5.319	1.287	4.849	0.781
Fe	5.168	1.262	4.716	0.691
Co	5.012	1.182	4.614	0.667
Ni	4.901	1.015	4.459	0.265
Cu	4.709	0.477	4.248	-0.307
4d				
Y	5.761	4.299	5.549	4.233
Zr	5.828	3.666	5.511	3.457
Nb	5.867	2.999	5.578	2.651
Mo	5.825	2.376	5.453	1.890
Tc	5.659	1.744	5.236	1.237
Ru	5.259	1.384		
Rh	5.130	1.366		
Pd	4.925	1.021		
Ag	4.692	0.517		
5d				
Hf	5.890	3.758	5.630	3.523
Ta	5.930	3.139	5.642	2.819
W	5.905	2.540	5.554	2.113
Re	5.750	1.925	5.337	1.462
Os	5.452	1.398		
Ir	5.250	1.431		
Pt	4.854	1.049		
Au	4.707	0.484		
Al	5.264	—	5.264	—
Si	5.031	—	5.031	—

ここで、平均 B_o 、平均 M_d および平均 ΔM_d は各々合金の結合次数およびd軌道エネルギーレベルおよびd軌道エネルギーレベル差、 B_{oi} および M_{di} は各々i元素の結合次数、d軌道エネルギーレベル、 N_{bi} はNbのd軌道エネルギーレベル、 C_i はi元素の原子分率である。

3. 合金の特性評価

本研究ではNb基およびMo基合金の機械的特性、腐食特性、溶接性および熱的相安定性等の種々の特性評価試験を行い、それらの特性を電子構造の計算より得られたパラメータを用いて整理した。さらに、それら系統的なデータを基に各特性の予測を行った。ここでは、紙面の都合上、機械的特性と腐食特性のみについて述べる。なお、本研究で対象としている合金は高温(1473K)での熱的相安定性を考慮し、すべて単相の固溶強化型合金とした。さらに、各種試験に用いた合金は、トリアーク炉を用いて高純度アルゴン(99.999%)雰囲気中で溶製した。その後、1723Kにおいて3.6ksの均質化熱処理後、試験片形状に加工・研磨を施し、特性評価を行った。

3.1 機械的特性

(1) 常温および高温引張強度

超耐熱合金では、高温での引張強度が重要であり、合金を設計する上では不可欠な因子である。合金の引張強度と硬さは定性的に相関があることが知られている^{9),10)}。また、両者の温度依存性は非常によく一致している。そこで、本研究では高温および常温での引張強度の試験として、簡易的な硬さ試験を代用した。試験でもとめた常温および高温硬さを合金パラメータを用いて整理し、予測式を作成した。次に、常温および高温の硬さと引張強度の相関から予測を行った。常温および高温硬さの測定は、マイクロビッカース硬さ試験機を用いて荷重1.96N、保持時間10sec、真空中で行った。さらに、マイクロビッカース硬さは5点測定し、最大値、最小値を除いた、3点の平均値を測定値とした。以下に、Nb基合金の強度予測方法を述べる。

種々の2元系および3元系Nb基合金の常温硬さを平均 ΔM_d で整理した結果を図3に示す。この図より、合金の硬さと平均 ΔM_d には正の相関があり、平均 ΔM_d の値が大きいほど硬さが増加していることがわかる。このことから、Nb基合金の組成から平均 ΔM_d をもとめることにより、常温硬さが容易に予測できることがわかる。同様

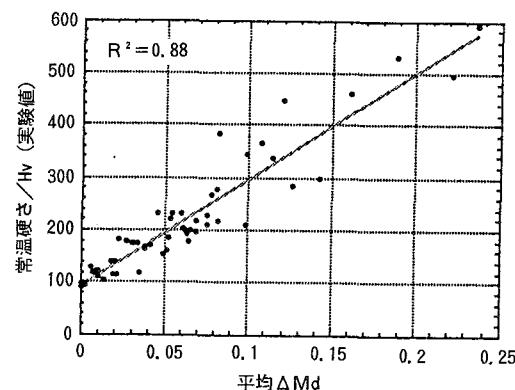


図3 Nb基合金の硬さと平均 ΔM_d の関係

に実験より得られた高温(1,373K)硬さの整理と予測も平均 ΔM_d を用いて行った。図4には計算により予測した合金の常温および高温硬さの計算値と実験値の関係を示す。この図から、計算値と実験値は比較的よく一致していることがわかる。Nb基合金の硬さと引張強度の間の定量的な相関関係は導出されていない。しかしながら、両者の温度依存性は非常によく似た傾向を示すことが知られている¹¹⁾。そこで、文献からのデータ^{12),13)}を基に回帰分析したところ、(8)式の関係を得た。

$$T.S. = 2.72 \text{ Hv} - 185 \quad (8)$$

ここで、T.S.は引張強度[MPa]、Hvはビッカーベ

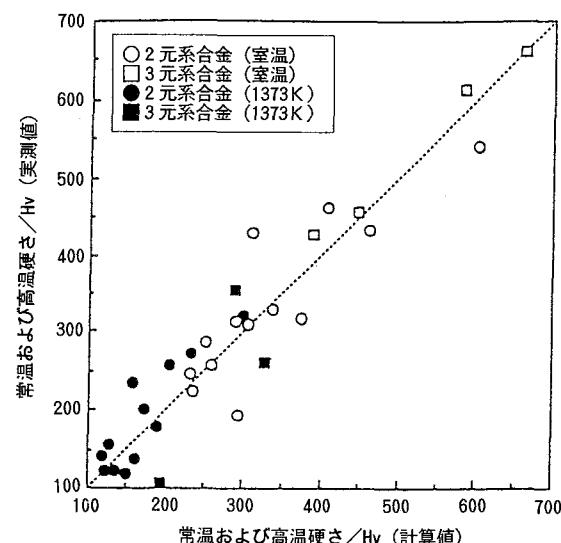


図4 Nb基合金の常温および高温硬さの実験値と計算値の関係

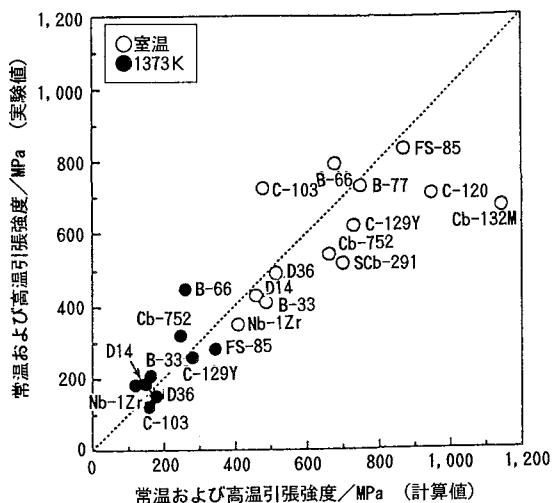


図 5 Nb基合金の常温および高温引張強度の実験値と計算値の関係

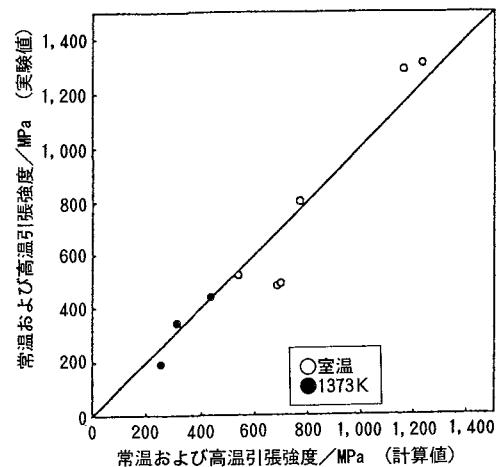


図 6 Mo基合金の常温および高温引張強度の実験値と計算値の関係

ス硬さ [Hv]である。この式を用いることにより、合金の硬さから、引張強度をもとめることができる。図 5 には(8)式により得られた引張強度(計算値)と実験よりもとめられている引張強度(実験値)との関係を示す。計算値と実験値の間には、比較的良好な相関が認められる。このことから、Nb基合金の常温および高温の引張強度は合金組成から平均 ΔM_d と硬さを計算することにより予測することができることがわかった。

同様に、Mo基合金についても平均 ΔM_d を用いて、常温および高温硬さの整理を試みた。しかしながら、Mo基合金については合金パラメータ(平均 ΔM_d)を用いた整理よりも原子半径差や弾性定数差といった合金元素に固有のパラメータ(物性値)を用いた方がよい相関が得られた。そのため、Mo基合金の常温および高温硬さの予測にはそれらのパラメータを採用した。さらに、Nb基合金を同様に硬さと引張強度との相関から引張強度の予測式を得た。その予測式よりもとめた常温および高温の引張強度の計算値と実験値との相関を図 6 に示す。この図から、計算値と実験値の間には良い相関が得られていることがわかる。したがって、Mo基合金の常温および高温引張強度についても合金組成から容易に予測できることができた。

Nb基合金とMo基合金では、常温および高温硬さを予測するときのパラメータの違いがある。これらの違いはNbとMoの金属の基本的な違いを理解するうえで重要な点といえる。しかしながら、この違いの原因についてはわかっておらず、今後、

究明すべき課題である。

(2) 加工性

構造材料として利用される場合、高温強度とともに加工性も重要な設計因子といえる。特に純Moは延性-脆性遷移温度(Ductile-Brittle Transition Temperature : DBTT)が常温付近にあり、常温では脆性破壊を起こす。そのため、Reを多量に添加し、金属中の酸素の分布や酸化物の形態を変え、さらに変形時に双晶を形成させることでDBTTを下げ、結果的に延性を増すRe効果¹⁴⁾や微量の炭素を添加することにより、脆弱な結晶粒界が強化され延性改善がされるといった延性改善の方法¹⁵⁾が報告されている。純NbのDBTTは通常、常温以下であり一般に加工性は良好である。しかしながら、合金元素の固溶強化等により、加工性が低下する可能性がある。これらのことから、両合金系にとって合金設計を行う上で、加工性は重要な因子である。

本研究では2元系および多元系Nb基およびMo基合金の3点曲げ試験を行い、曲がり角度を合金パラメータで整理し、加工性の合金設計の指針を得ることとした。図 7 には3点曲げ試験の模式図を示す。試験片の幅は3 mm、厚さ2 mmで支点間距離は14 mmとした。図中の θ は中央の圧子を移動させたときの試験片の曲がり角度を示す。この曲がり角度 2θ が大きい程、良好な加工性を有している合金といえる。3点曲げ試験は常温、大気中で行い、圧子移動速度は 8.3×10^{-6} m/sec (0.5 mm/min)とした。曲がり角度は試験片が破断したときの値である。破壊に至らない試験片では、試験

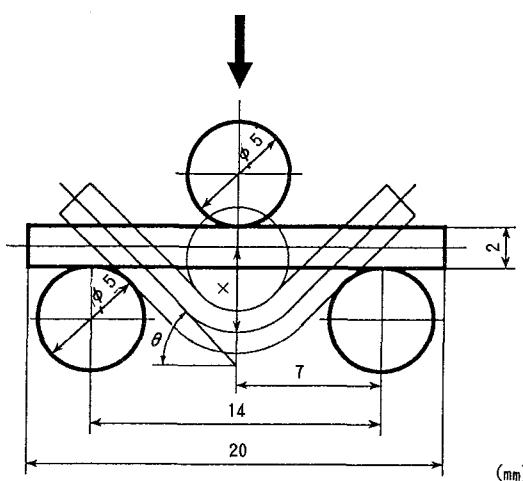


図 7 3 点曲げ試験治具の形状

機の最大圧子移動量 ($X = 6.5\text{ mm}$ 、曲がり角度約 160°) に達したときに試験を停止した。

Nb基合金の曲がり角度を合金パラメータ平均 ΔMd を用いて整理した結果を図 8 に示す。図中の縦軸は合金の曲がり角度で、横軸は合金の平均 ΔMd である。この図から、合金の平均 ΔMd が 0.05 を境界に曲がり角度が大きく違っていることがわかる。平均 ΔMd が 0.05 以下の合金は曲がり角度が大きく、もともとの良好な加工性が保たれている。平均 ΔMd が 0.05 以上の合金は曲がり角度が極端に減少し、加工性が低下している。この現象は、合金元素に依存することなく起きている。Nb基合金の良好な加工性を保つためには平均 ΔMd を 0.05 を臨界値として合金設計をすればよいといえる。また、前述したように平均 ΔMd

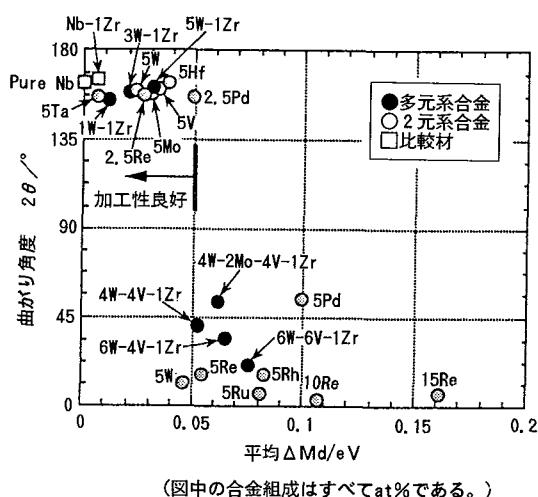
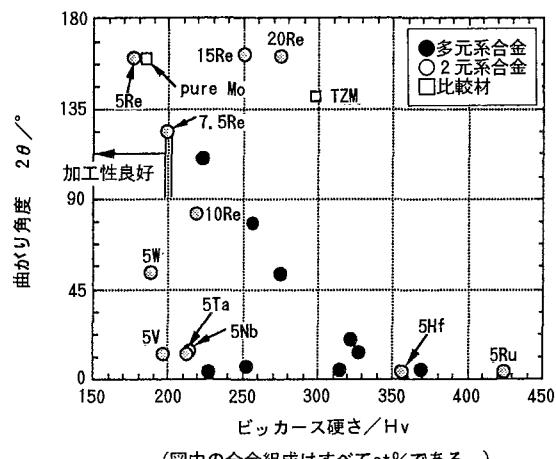
図 8 Nb基合金の曲がり角度と平均 ΔMd の関係

図 9 Mo基合金の曲がり角度と硬さの関係

と硬さとは相関があるため、合金の平均 ΔMd が 0.05 のときの硬さ 200HV を加工性の臨界値として用いることができる。

Mo基合金においても Nb基合金と同様に、合金の平均 ΔMd または硬さを指標として加工性を予測することができる。図 9 には、Mo基合金の曲がり角度と常温硬さとの関係を示す。Mo-Re 2 元系合金を除き、ほとんどの合金で曲がり角度が小さくなっているが、Mo-5W 合金では比較的曲がり角度が大きくなっていた。したがって、Mo-5W 合金の硬さである約 200HV 以下で比較的良好な加工性が得られるといえる。また、Reを添加した合金は硬さが 200HV を越えても曲がり角度が大きく良好な加工性を示しており、前述の Re 効果が現れていることがわかる。図中の TZM(Mo-0.5wt%Ti-0.1wt%Zr) 合金は粉末冶金法により製造された合金で実験に用いた溶製合金に比べ、結晶粒径が極端に小さいため曲がり角度が大きく、良好な加工性を示している。Mo基合金の加工性を向上させるためには、硬さを 200HV 以下にするように合金組成を制御すればよいといえる。また、実験結果から Mo基合金の加工性は Re 添加により、大きく向上し Re は有効な元素であることがわかった。

(3) クリープ寿命

超耐熱合金の重要な特性の一つに高温クリープもあげられる。一般にクリープ寿命は、その合金の融点が高いほど、良好であることが知られている¹⁶⁾。そこで、本研究では合金のクリープ寿命の優劣を判断する指標として合金の融点を用い、その予測を行った。2元系および3元系の Mo基合金の融点を平均 Bo-平均 Md 図上に整理した結果

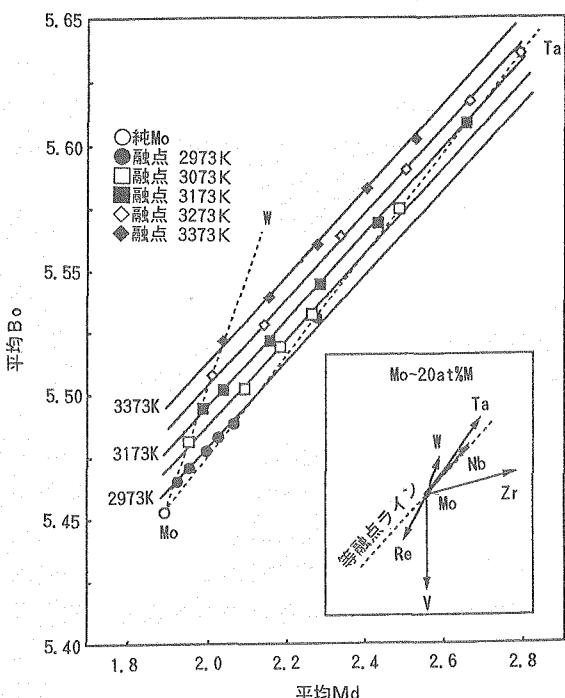


図10 Mo基合金の平均Bo、平均Mdを用いた融点予測

を図10に示す。これは、2元系および3元系状態図より、合金の融点と組成を読み取り、等融点の合金を平均Bo—平均Md図上にプロットしたものである。この図から、Mo基合金の融点は合金パラメータを用いて整理することができる。さらに、(9)式に示す平均Bo、平均Mdを用いたMo基合金の融点の予測式が得られる。

$$T_m[K] = (\text{平均Bo} - 0.165 \cdot \text{平均Md} - 4.899) / 9.279 \times 10^{-5} + 273 \quad (9)$$

多元系Mo基合金において、合金組成から(5)、(6)式と、さらに(9)式から融点を予測することができる。この融点の予測により、Mo基合金の高温クリープ寿命の優劣はほぼ推定できると考えられる。

Nb基合金の融点の予測についても、同様に合金パラメータを用いて行ったが、個々の合金元素の融点の組成平均よりもとめた計算値の方が精度良く予測できることがわかった。そのため、多元系Nb基合金の融点の予測は、合金元素の組成平均を用いることとした。

以上のことより、超耐熱Nb基およびMo基合金の機械的特性である高温および常温の引張強度、加工性およびクリープ寿命について合金パラメータ等を用いることにより、容易に予測できること

がわかった。さらに、これらの予測方法を利用することにより合金設計が可能であるといえる。

3.2 高温液体Li腐食特性

本研究では液体アルカリ金属技術のフロンティア領域の開拓を目指しており、特に高温液体Li中で優れた耐食性を有する合金の開発を目的としている。液体Liは沸点が1317°Cと高く、また比熱が高いことや低密度であることから、熱媒体としては現在の高速増殖炉に使われているNaよりも優れている¹⁷⁾。しかしながら、LiはNaよりも高い腐食性を示すことが知られている。そのため、超耐熱合金の開発においては、合金の液体Li中への溶解、侵入型不純物元素との反応、元素移行や粒界腐食等を十分に考慮する必要がある。

液体Liに対する耐食性は重要な設計因子であり、そのための合金設計指針を得ることは不可欠である。現在、国内で液体Li腐食試験ができる設備は、本研究において開発した高温アルカリ金属腐食装置(High-temperature Alkali-metals Test Apparatus : HATA)を除いてはない。本研究における高温液体Li中の腐食試験は、すべてこの装置を用いて行った。以下に、開発した試験設備(HATA)の説明とそれを用いた超耐熱Nb基およびMo基合金の腐食試験結果について述べる。

(1) 試験設備と試験方法

高温アルカリ金属試験装置(HATA)は腐食試験に用いるカプセルの溶接とLiおよび腐食試験片のカプセルへの組み込み、これらの取り扱いに利用するグローブボックスと常用1,200°Cまで利用可能な高温電気炉から構成されている。

図11には、腐食試験に用いるNb-1wt%Zr合金製の内側カプセルおよび試験片ホルダーを示す。試験片は10mm×10mm×2mmの板状で、1回の試験で12枚まで組み込むことができる。試験中は内側カプセルを外側ホルダーに入れて、Liが漏洩しないように2重構造の容器になっている。さらに、試験中の高温加熱時には容器の酸化防止のためにアルゴン雰囲気中で保持した。また、試験片の組み込みおよび取り出しは、酸素、窒素、水分が制御された高純度アルゴン雰囲気のグローブボックス中で行い、試験は100時間ごとにカプセルの健全性を確認しながら行った。

これまで、Nb基およびMo基合金の腐食特性に及ぼす合金元素の効果を調べた研究の報告はない。そこで、本腐食試験では1,200°Cの液体Li中の合金元素の効果を明らかにすることを目的とした。試験片はNb-5at% X (X: Mo, Ru, Hf, Ta,

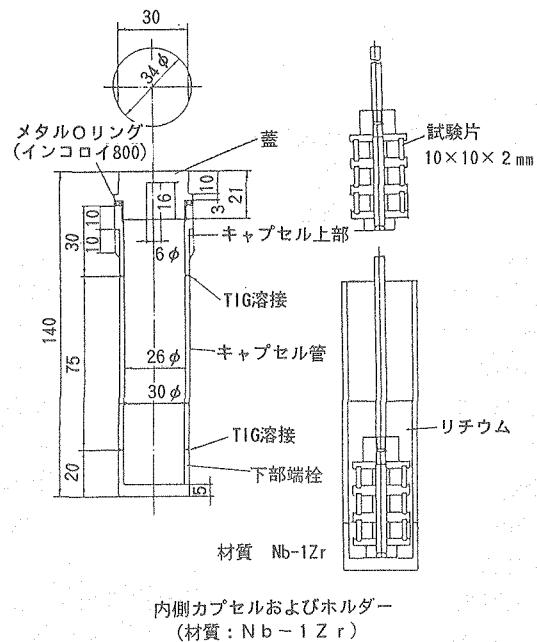


図11 腐食試験片およびカプセル、ホルダー

W, Re)、Mo-5at % M (M:Nb, Ru, Hf, Ta, W, Re)の2元系合金とし、比較合金としてNb-1Zrを用いた。試験片表面はエメリー紙#1,200まで湿式研磨を行った。試験時間は最長300時間とした。

(2) 試験結果

2元系Nb基合金の腐食試験後の重量変化の結果を図12に示す。いずれの合金も原子炉構造材料の耐食性の目安となる $25 \mu\text{m/year}$ (約 $1.2 \text{mg}/\text{cm}^2$)¹⁸⁾を下回っていることがわかった。Mo, W添加合金は重量増加、Re, Ru, Hf添加合金は重量減少を示し、その変化量は浸漬時間とともに増加した。Hf, W添加合金は重量変化が小さく、良好な耐食

性を示していることがわかる。特にHf添加の合金は重量変化が最も小さかった。Re添加合金は試験片の端が割れたため大きな重量減少を示した。比較合金のNb-1Zrは大きな重量増加を示した。この原因として、試験片表面への生成物の付着や液体Li中の不純物元素の合金中への侵入などが考えられるが、この原因解明には詳細な分析を必要とする。

腐食試験片表面を光学顕微鏡により観察した結果を写真1に示す。(a)はNb-Ru合金、(b)はNb-Hf合金の100時間ごとの表面状態である。Nb-Ru合金は100時間ごとに割れが大きく進行しているのがわかる。また、表面の腐食生成物も時間とともに大きくなっている。Nb-Hf合金では腐食生成物が観察されず、結晶粒界と粒内が均一に腐食されている様子がわかる。このように、合金元素により腐食による重量変化量や腐食表面形態に大きな違いがあることが明らかになった。これらのことから、Nb基合金の設計指針として、耐食性の向上にはHf添加が有効であることがわかった。しかしながら、Nb基合金はすべての合金で表面に微細な割れが生じており、この原因解明とその抑制が今後の重要な課題である。

図13には2元系Mo基合金の腐食試験後の重量変化の結果を示す。この図から、Ru, 添加合金は重量減少を示した。Hf添加合金は非常に小さい重量変化であった。Nb, Ta, WおよびRe添加合

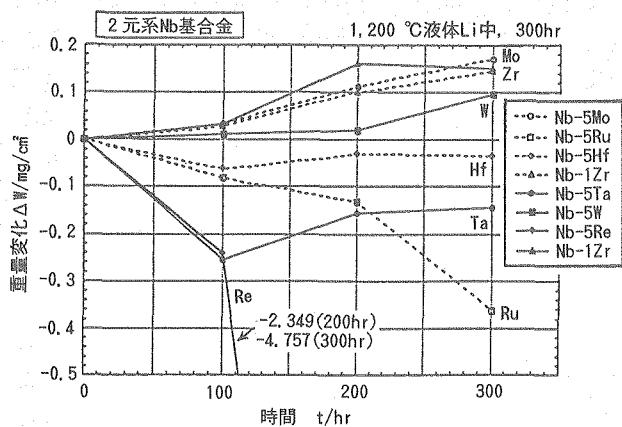


図12 2元系Nb基合金の浸漬時間と重量変化の関係

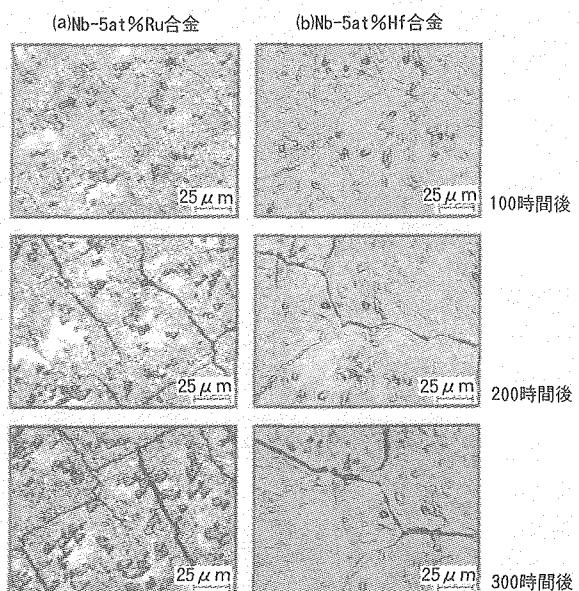


写真1 2元系Nb基合金の腐食試験片の表面観察結果

(a) Nb-5at%Ru合金、
(b) Nb-5at%Hf合金

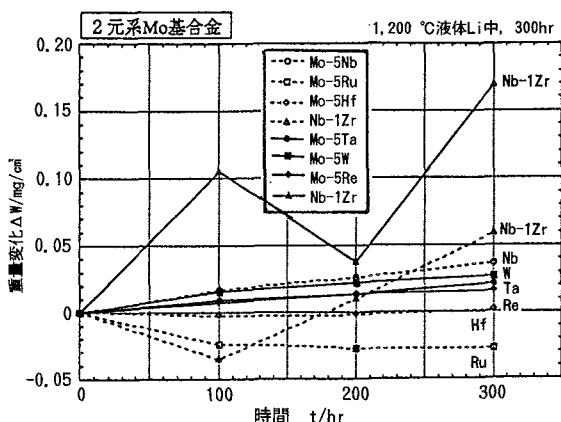


図13 2元系Mo基合金の浸漬時間と重量変化の関係

金は重量増加を示した。また、比較合金であるNb-1Zrは時間による重量変化が大きく、300時間終了後には大きく重量増加を示した。この結果から、Mo基合金においてもHf添加は耐食性向上に有効であることが明らかになった。

Nb基合金とMo基合金を比較すると、Mo基合金の重量変化は1/10程度と著しく小さく、液体Li中で優れた耐食性を示すことがわかった。この原因の一つには1,200°Cでの液体Liに対するNbとMoの溶解度の違いがあげられる。Nbの溶解度は約 3×10^{-3} wt %でMoのそれは約 3×10^{-4} wt %と約10倍大きいことがわかっている。このように、Li中の単純溶解の違いがある。Na中の不純物元素で酸素が問題であることはよく知られているが、Li中では窒素が問題となる。そこで、窒化物生成自由エネルギーを比較すると、 Mo_2N の生成自由エネルギーは1,200°Cで Li_3N と同程度である。しかしながら、 Nb_2N の生成自由エネルギーは Li_3N のそれに比べかなり低く、Nbの窒化物が生成しやすいといえる。このことは、Nb基合金の方が液体Li中の窒素と相互作用により、窒化物の腐食生成が生じやすいことを示している。以上のこととは、Mo基合金の方がNb基合金に比べ優れた耐食性を示す原因と考えられる。各合金系における合金元素の系統的な評価は、今後、詳細な解析を進めるとともに行っていく予定である。

4. 合金設計

これまでの実験および合金パラメータを用いた整理により、機械的特性（常温および高温の引張強度、加工性、クリープ寿命）と液体Li耐食性の向上のための設計指針を得た。そこで、これらの指針を基に超耐熱Nb基およびMo基合金の合金設

計を行った。

4.1 Nb基合金の設計

Nb基合金の合金設計は高温強度および液体Li耐食性を重点において行った。高温でのクリープ寿命の向上には合金の融点を上げる元素であるMo, TaおよびWが有望である。高温での引張強度を向上させるにはMo, Ru, WおよびReが硬さと強度の相関による予測式より有効であることがわかる。以上のことから、高温での機械的特性の向上のためにはNbと全率固溶するWを合金元素として選択した。さらに、液体Li耐食性の向上のためには2元系合金の腐食試験結果より、Hf添加が最も有効であるとの指針を得ている。以上のことから、Nb-W-Hf合金系を高温強度と耐食性に優れた最適成分系として選択した。さらに、この合金系において加工性が良好に保たれる平均 ΔM_d が0.05以下になるように合金添加量の最適化を行うことにより、高温での引張強度と耐食性に優れた最適合金組成を得ることができる。しかしながら、液体Li腐食試験において、表面に微細なクラックが生じており、今後、クラック発生の原因解明と抑制を行うことにより、合金成分系を改良する必要がある。

4.2 Mo基合金の設計

Mo基合金の合金設計においては、加工性が最も重要なと考えられる。Moの加工性を効果的に向上させる元素として、本研究の3点曲げ試験の結果からも、Reが有効であることがわかった。さらに、Mo基合金の不純物元素をトラップするスキャベンジング効果を狙ってZrを微量添加することとした。また、Mo基合金は優れた耐食性を示すが、さらに耐食性を向上させるにはHf添加が好ましいと考えられる。以上のことより、Mo-Re-Zr(-Hf)合金系を最適成分系として選択した。さらに、加工性や高温強度を加味することにより、高温強度と耐食性に優れた最適合金組成を得ることができる。さらに、Mo基合金は粒界破壊が生じる。その抑制のために粒界強化元素等をさらに添加する可能性が考えられる。

5. おわりに

高速炉の高熱効率化や高温アルカリ金属技術のフロンティア領域を開拓することを目的として、高温で高強度および高温液体Liに対して優れた耐食性を有する新しい超耐熱合金の設計開発を行っ

た。分子軌道法を利用したd電子合金理論を本合金系に適用することにより、高温での機械的特性、加工性等が容易に予測でき、設計指針を得ることができた。さらに、2元系Nb基およびMo基合金の高温での液体Li耐食性の試験を行い、耐食性の向上に有効な合金元素は両合金系ともHfであることが明らかになった。以上のことから、合金設計を行いNb基およびMo基の高温強度と耐食性に優れた最適合金系が得られ、さらにその合金組成も得られることが明らかになった。

今後は、高温液体Li中での腐食機構の解明と耐食性の指標にd電子合金理論を適用し、液体アルカリ金属腐食に対して、理論的に腐食原因の究明をすることが必要である。

参考文献

- 1) 加藤真人、加納茂機、他、日本金属学会誌、57, 233, (1993).
- 2) 井上聰、加藤真人、他、日本金属学会誌、58, 826, (1994).
- 3) 森永正彦、湯川夏夫、他、日本金属学会会報、27, 165, (1988).
- 4) 森永正彦、湯川夏夫、他、日本金属学会会報、23, 911, (1984).
- 5) 足立裕彦、量子材料化学入門、三共出版、(1991).
- 6) J.C. Slater, The Calculation of Molecular Orbitals, New York, (1979).
- 7) F.W. Averill and D.E. Ellis, J.Chem. Phys., 59, 6413, (1973).
- 8) S.Inoue, J.Saito et al., J.Phys.:Condens. Matter, 6, 5081, (1994).
- 9) 寺沢正男、硬さと強さの研究、1, 40, (1970).
- 10) L.A. Gypen and A.Deruyttere, Metal Progress, Feb., 27, (1985).
- 11) U.Gennari and E.Kny, Modern Developments in Powder Metallurgy, 18, 201, (1988).
- 12) Metals Handbook 10th Edition, Ed. by S.R. Lampman and T.R.Zorc, Materials Park, Ohio, 2, 557, (1990).
- 13) Metals Handbook 9th Edition, Ed. by D. Benjamin, Metals Park, Ohio, 3, 314, (1980).
- 14) D.J. Maykuth, F.C. Holder et al, Renium, Electrochemical Society Symposium, 114, (1962).
- 15) 平岡裕、日本金属学会誌、86, 161, (1992).
- 16) G.D. MacAdam, J.Institute of Metals, 93, 559 (1964-65).
- 17) 鈴木正、液体金属リチウムの核融合炉システムへの応用、科学研究費補助金エネルギー特別研究、19, (1984).
- 18) 鈴木正、鉄と鋼、75, 1991, (1989).



技術報告



三価ランタニドの溶解度測定

瀧谷 早苗

東海事業所環境技術開発部

資料番号97-5

Solubility Measurement of Trivalent Lanthanide for
Performance Assessment

Sanae Shibutani
(Waste Technology Development Division, Tokai Works)

高レベル廃棄物の地層処分システムの核種移行研究には、溶解度評価の観点から信頼性の高い熱力学データベースが必要である。たのこめ、関連の元素について熱力学データの取得・確証を行っている。アメリシウム等の三価アクチニドの挙動研究のため化学的類似性があり、かつ廃棄物中に核分裂生成物として多量に含まれるランタニドのうちのサマリウム、ネオジムについて、水酸化物、水酸化炭酸塩の溶解度測定から加水分解定数などの熱力学データを取得した。結果はアメリシウムの溶解度とほぼ一致するものであった。得られたデータから地層処分条件下におけるサマリウム、ネオジムの溶解度は $10^{-6} \sim 10^{-8}$ mol/lと見積もられた。

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物地層処分システムの性能評価研究においては、核種のガラスからの溶出、人工バリア中の拡散・吸着など移行挙動を予測する際にその溶解度を評価することが重要となる。特定の条件での着目する元素の溶解度は、その環境条件をモデル化し、熱力学平衡論を用いて熱力学データから計算するが、熱力学データの質と量によって、計算結果の信頼性や現実性は大きく影響される。そこで、地層処分研究では信頼性が高く、充実した熱力学データベースを整備することを目的として、溶解度測定による熱力学データの取得・確証を進めている。

本報告においては、廃棄物中に核分裂生成物として多量に含まれるアクチニド、ランタニド系の元素についてのデータはまだ十分に整備されていない現状を踏まえ、ランタニドのうちサマリウムおよびネオジウムについての水酸化物、水酸化炭酸塩の溶解度測定から、加水分解定数等の熱力学データを取得し、そのデータを用いて地層処分条件下におけるランタニドの溶解度を評価する。

2. 三価のランタニドの溶解度測定

2.1 目的

高レベル放射性廃棄物中には、核分裂生成物(FP)としてランタニドが多量に含まれている。ランタニドは水溶液中で三価を取りやすく、その化学的性質はセリウムを除いて良く類似している。また、三価のランタニドは三価のアクチニドとも化学的類似性があり、その化学的挙動を研究することは、アメリシウム(元素記号Am)等アクチニドの挙動を研究する上でも重要なとなる。そこで、本研究においてはランタニドのうちサマリウム(元素記号Sm)、ネオジム(元素記号Nd)に關し、溶解度測定を実施し、熱力学データを取得した。

2.2 溶解度制限固相の設定

地層処分条件下におけるガラス固化体周辺の地下水組成は、人工バリア材(炭素鋼オーバーパック、緩衝材など)との相互作用により、pHは中性～弱アルカリ性、還元状態となることが予測されている¹⁾。また、炭酸等のイオンも存在する²⁾。そのような環境条件下におけるランタニドの存在形

態は、Amの溶解度評価例³⁾から水酸化物、水酸化炭酸塩であると推定されるため、本研究においても、水酸化物と水酸化炭酸塩に関してデータを取得した。

3. 水酸化物の溶解度測定

水酸化ネオジムについては、既に溶解度測定によりデータ取得が行われている⁴⁾。そこで、Smについてもその手法を参考にして水酸化サマリウムの合成および溶解度測定を行うこととした。

水酸化物の合成および溶解度測定は、気相中の二酸化炭素の影響を避けるため、二酸化炭素濃度を低く制御した霧囲気制御グローブボックス中で行った。試験に使用した蒸留水は、すべて脱イオンした蒸留水を霧囲気制御グローブボックス中で24時間以上アルゴンを通気し溶存二酸化炭素を除去したもの(以下、脱気水と記す)である。また、NaOH水溶液は炭酸イオンフリーのものを調整した。

3.1 水酸化サマリウム合成操作

0.1mol/lのSmCl₃水溶液50mLにNaOH水溶液を添加し、pH12に調整した。水酸化サマリウムのゲル状沈澱が生成した懸濁液をホットプレート上で約70°Cに保ちながら、約12時間沈澱の熟成を行った。沈澱熟成後、分画分子量300,000のメンブランフィルターで固液分離を行い、固相をpH9のNaOH水溶液で二回、脱気水で一回洗浄した後、霧囲気制御グローブボックス中で24時間以上自然乾燥させた。乾燥後、X線回折分析装置(以下「XRD」という)を用いて合成した固相の同定を行い、結晶質の水酸化サマリウム(Sm(OH)₃(cr))であることを確認した。図1にXRDスペクトルを示す。

3.2 溶解度測定

平衡状態の確認のため、初期溶液中のサマリウム濃度が溶解度に対して未飽和側および過飽和側からの溶解度を測定した。

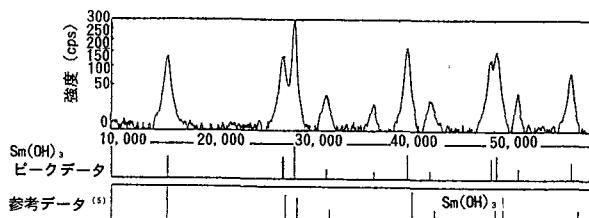


図1 合成したSm(OH)₃(cr)のXRDスペクトル

(1) 未飽和側からの溶解度測定

試験中のpH調整や固相の溶解により試験液のイオン強度が変化しないように、0.1mol/lのNaClO₄水溶液によりイオン強度を0.1に調整した。それを50mL試験管にとり、あらかじめ HClO₄もしくはNaOH水溶液を加えてpHを調整しておき、合成したSm(OH)₃(cr)粉末約20mgを添加後、所定のpHになるように再調整をした。その後、所定期間静置し、液相中のSm濃度が一定になるまで待った。浸漬期間中は時々試料を振とうし、また、pHを測定した。所定期間経過後、分画分子量10,000の限外ろ過フィルターを用いて固液分離を行った。試料溶液にSm(OH)₃(cr)を加えてから固液分離までの実験系の温度は、24~27°Cであった。固液分離後の固相は、XRDにより同定した。液相は誘導結合プラズマ質量分析装置(以下「ICP-MS」という)によりサマリウム濃度を測定した。実験条件を以下にまとめて示す。

浸漬から固液分離までの温度：24~27°C

固相：Sm(OH)₃(cr)約20mg

液相：0.1mol/l-NaClO₄水溶液50mL

気相：Ar99.99%以上(CO₂分圧<1ppm,
O₂分圧<1ppm)

pH範囲：4~12(HClO₄, NaOHで調整)

浸漬期間：14, 33, 63, 100日間

(2) 過飽和側からの溶解度測定

未飽和側からの測定と同様、0.1mol/lのNaClO₄水溶液によりイオン強度を0.1に調整し、水溶液を作成し、あらかじめ pHを調整しておき、0.01mol/lのSmCl₃水溶液5mLを添加後、所定のpHになるように再調整した。その後の操作は、未飽和側からの測定と同様であった。実験条件を以下にまとめて示す。

浸漬から固液分離までの温度：24~27°C

液相：0.1mol/l-NaClO₄水溶液45mL

0.01mol/l-SmCl₃水溶液5mL

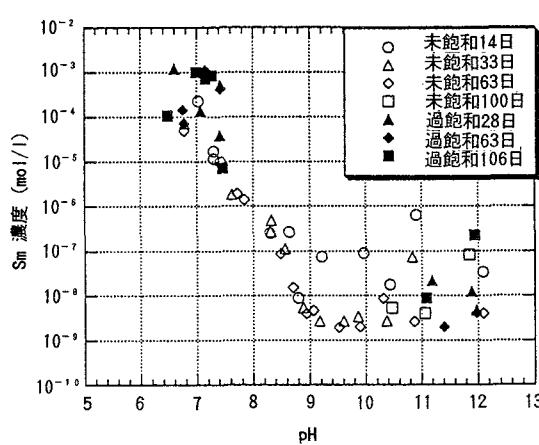
気相：Ar99.99%以上(CO₂分圧<1ppm,
O₂分圧<1ppm)

pH範囲：5~12 (HClO₄, NaOHで調整)

浸漬期間：28, 63, 106日間

3.3 試験結果

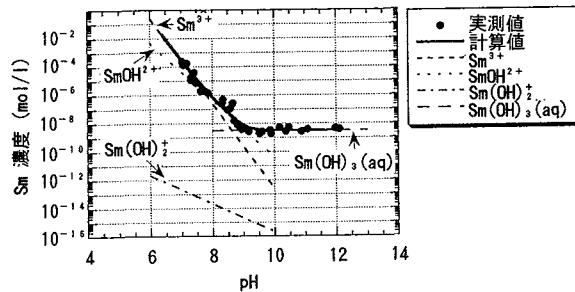
所定期間浸漬後の、液相中サマリウム濃度のpH依存性を図2に示す。本研究においては、未飽和側からの溶解度測定ではほとんど固相の変化は見られなかったが、浸漬期間14日の浸漬後pHが9.27以上の試料の固相は、非晶質の水酸化サマリウム(Sm(OH)₃(am))であった。浸漬期間が長くなるに

図2 Sm(OH)₃溶解度測定結果

つれ結晶質へと変化してゆき、浸漬期間1カ月以上では、ほとんどの試料がSm(OH)₃(cr)となった。過飽和側からの溶解度測定では、初期pHが約8, 9, 10の試料のみ、Sm(OH)₃(cr)の生成が確認された。これよりも低pH側では固相の生成が確認されず、またこれより高pH側ではSm(OH)₃(am)のみが確認された。ただし、初期pHが約8の試料でもSm(OH)₃(cr)が生成しない場合もあった。このことは、水酸化サマリウムの生成および結晶化に時間、pHが関係することを示唆するものである。ただし、地層処分システムにおいては長期的な移行挙動を評価すること、また、ガラス固化体近傍における地下水のpH範囲は、ベントナイトの緩衝作用によりpH7～10に保持されると考えられている⁴⁾ことから、地層処分条件下におけるサマリウムの溶解度制限固相として、非晶質ではなく結晶質の水酸化サマリウムが挙げられる。よって、Sm(OH)₃(cr)について加水分解平衡定数を算出することとし、浸漬後の固相がSm(OH)₃(am)であった試料は、解析に供しなかった。浸漬後の固相がSm(OH)₃(cr)であった試料について、液中サマリウム濃度のpH依存性を図3に示す。これによると、pHの増加にしたがってサマリウム濃度が減少し、pH9以上では一定になることが確認された。この傾向は、水酸化ネオジムの溶解度⁴⁾の傾向とよく似ている。

3.4 水酸化サマリウムの加水分解反応とその平衡定数の導出

図3によると、pHに対する液中サマリウム濃度の傾きは-3～0であることから、Sm(OH)₃(cr)の加水分解反応を以下のように仮定した。なお、

図3 Sm(OH)₃(cr)溶解度のpH依存性

高pH領域での存在が報告されている Sm(OH)₄⁻⁵⁾などの高次加水分解化学種の生成については、それを示唆する高pH側での溶解度の立ち上がりは本試験では確認されなかつたため、考慮しなかつた。

- ① $\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{cr}) + 3\text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Sm}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O}$
- ② $\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{cr}) + 2\text{H}^+ \rightleftharpoons \text{SmOH}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$
- ③ $\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{cr}) + \text{H}^+ \rightleftharpoons \text{Sm}(\text{OH})_2^+ + \text{H}_2\text{O}$
- ④ $\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{cr}) \rightleftharpoons \text{Sm}(\text{OH})_3(\text{aq})$

このとき、それぞれの液相化学種は以下のように定義される。

$$\begin{aligned} [\text{Sm}^{3+}] &= (\text{Sm}^{3+})/\gamma_3 \\ [\text{SmOH}^{2+}] &= (\text{SmOH}^{2+})/\gamma_2 \\ [\text{Sm}(\text{OH})_2^+] &= (\text{Sm}(\text{OH})_2^+)/\gamma_1 \\ [\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{aq})] &= (\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{aq}))/\gamma_0 \end{aligned}$$

ここで [] は濃度を示し、() は活量を示す。 γ_i は土イオンの、イオン強度0.1、温度25°Cの場合の活量補正係数を示す。それぞれの γ_i は以下のDebye-Hückelの式から計算した。

$$-\log \gamma_i = \frac{A \cdot (Z_i)^2 \sqrt{I}}{1 + 1.5 \sqrt{I}} \quad \dots \dots \dots \quad (1)$$

A : 0.5085 (定数；25°C)

Z_i : 対象化学種の電荷

I : イオン強度

①～④のそれぞれの加水分解反応に対する平衡定数をK₁～K₄とおくと、液相中の全サマリウム濃度(m_{Sm})は以下の式で表される。

$$\begin{aligned} m_{\text{Sm}} &= [\text{Sm}^{3+}] + [\text{SmOH}^{2+}] + [\text{Sm}(\text{OH})_2^+] \\ &\quad + [\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{aq})] \dots \dots \dots \quad (2) \\ &= \frac{(\text{Sm}^{3+})}{\gamma_3} + \frac{(\text{SmOH}^{2+})}{\gamma_2} + \frac{(\text{Sm}(\text{OH})_2^+)}{\gamma_1} \end{aligned}$$

表 I Sm(OH)₃(cr)の加水分解反応に対する平衡定数

加水分解反应式		log K (平衡常数)
$\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{cr}) + 3\text{H}^+$	\longleftrightarrow	$\text{Sm}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O}$
$\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{cr}) + 2\text{H}^+$	\longleftrightarrow	$\text{SmOH}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$
$\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{cr}) + \text{H}^+$	\longleftrightarrow	$\text{Sm}(\text{OH})_2^+ + \text{H}_2\text{O}$
$\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{cr})$	\longleftrightarrow	$\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{aq})$

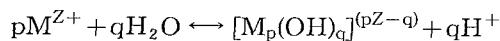
$$= \frac{(H^+)^3 K_1}{\gamma_3} + \frac{(H^+)^2 K_2}{\gamma_2} + \frac{(H^+) K_3}{\gamma_1} + \frac{K_4}{\gamma_o} \dots \dots \dots \quad (3)$$

m_{Sm} , (H^+) にそれぞれ実測値を代入し、最小二乗法により(3)式にフィッティングを行うことにより、平衡定数 K_1 , K_2 , K_3 , K_4 を算出した。解析の結果を表1、図3に示す。これによると、pH 8以下、pH 8~9, pH 9~12のpH領域において支配的となる水溶性化学種はそれぞれ Sm^{3+} , $SmOH^{2+}$, $Sm(OH)_3(aq)$ であり、 $Sm(OH)_2^+$ の寄与分は各pH領域において小さいと考えられる。

3.5 考察

以上より得られた水酸化サマリウムの加水分解反応定数を、P.J. Brownらの提唱した加水分解定数の予測手法⁷⁾を用いて計算した予測値と比較し、検討を行った。

以下の反応式を考えた時、



その平衡定数 β_{pq} は以下の式で算出できる。

$$-\log \beta_{pq} = q(\text{切片}) + q(\text{傾き}) [g_1(Z/r^2) + g_2] \quad \dots \dots \dots \quad (4)$$

$$\text{ここで } g_1 = (1+2S+D)(Z+2)$$

$$g_2 = g(n)(Z-1) + 0.1e(n-3)^2(1-S)$$

D=原子の（結合に有効な）d軌道電子

2. イオンの量外軌道電子数

n : イオンの量外殻主量子数

$\alpha(n)$: Slater による閾数

7・由心金属イオンの電荷

r : イオン半径

計算の際、それぞれの値は文献(7)より引用した。本研究結果および式(4)から計算した予測値を表

表2 予測値との比較

$-\log \beta_{pq}$	加水分解反応式	本研究	予測値
$-\log \beta_{11}$	$\text{Sm}^{3+} + \text{H}_2\text{O} - \text{H}^+ \longleftrightarrow \text{SmOH}^{2+}$	- 7.2	- 8.24
$-\log \beta_{12}$	$\text{Sm}^{3+} + 2\text{H}_2\text{O} - 2\text{H}^+ \longleftrightarrow \text{Sm}(\text{OH})_2^+$	- 21.7	- 16.48
$-\log \beta_{13}$	$\text{Sm}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O} - 3\text{H}^+ \longleftrightarrow \text{Sm}(\text{OH})_3(\text{aq})$	- 24.9	- 24.72

2に示す。これによると、 $\log \beta_{13}$ はほぼ一致しているといえるが、 $\log \beta_{12}$ はかなり異なっている。これは、それぞれの水溶性錯体の生成反応が競合しており、解析においても生成定数が連動しているため、解析上のわずかな誤差が大きく影響しているためと考えられる。 $\log \beta_{11}$ の予測値との差が有意なものかどうかは誤差の取り方により異なるが、pH条件によってはpHのわずかな変動が溶解度に大きく影響し、研究におけるpH 7～9の範囲ではデータのバラツキが大きく、±1桁程度になる場合もある。この測定誤差から $\log \beta_{11}$ の計算値にも系統誤差が生じることになる。本研究においては、測定値のバラツキの範囲（±1桁）をそのまま $\log \beta_{11}$ の誤差範囲として用いることとする。次に、 $\log \beta_{12}$ の予測値との差について、それが誤差かどうかを検討した。図3でも示したように、 $\text{Sm(OH)}_3(\text{cr})$ の溶解度を評価する上で、 Sm(OH)_2^+ の寄与分はごくわずかであって、その存在は計算の上でのみ生じるものである。比較のために、(2)式中の SmOH^{2+} の項に±1桁の誤差があるものとして、 $\log \beta_{12}$ がどの程度変化するのかを計算してみた。計算方法としては、(2)式中の K_1, K_4 を2.3(4)章で算出した値に固定し、 $\log K_2$ が-6.2から-8.2まで変化する場合に $\log K_3$ がどの程度変動するかを計算することとした。その結果、

$\log K_2 = -6.2$ のとき $\log K_3 = -21.4$

$\log K_2 = -8.2$ のとき $\log K_3 = -16.6$

となり、 $\log K_3$ は $\log K_2$ の値のわずかな変動により大きく変動することが確認された。これは $\text{Sm}(\text{OH})_2^{+}$ の寄与分が SmOH^{2+} の寄与分に比較して非常に小さいためと考えられる。

以上の検討の結果、本研究結果と式(4)から求めた値とは誤差の範囲内で一致するものと考えられる。しかし、本研究における液相化学種の存在割合、生成定数の算出結果は、加水分解反応式モデルの設定に依るところが大きく、各液相化学種を同定、実測したわけではない。したがって、今後、液相化学種を同定した測定や、さらに実験データの精度を高めた測定が必要である。

4. 水酸化炭酸塩の溶解度測定

SmとNdについて水酸化炭酸塩を合成し、その溶解度を測定した。水酸化炭酸塩の合成方法は、A.N. Christensenの報告例⁸⁾を参考にした。

合成、溶解度測定試験では、気相中の二酸化炭素濃度が大きく影響する。本研究においては、試験期間を通して安定した二酸化炭素濃度を保持できるよう、大気中ですべての操作を行った。試験に用いた水は、すべて脱イオンした蒸留水を24時間以上大気中に静置して大気と平衡にさせたものである（以下、蒸留水と記す）。

(1) 水酸化炭酸塩の合成

0.15mol/lのSm(NO₃)₃水溶液50mL、または0.15mol/lのNd(NO₃)₃水溶液50mLに1mol/lのNaHCO₃水溶液15mLをかくはんしながら滴下し、沈殿を作成した。沈殿熟成のためにホットプレート上で0.5～1時間沸騰させた。熟成後5Bろ紙でろ過し、蒸留水で洗净後、デシケーター中で減圧乾燥させた。乾燥後、XRDを用いて沈殿物の同定を行い、それぞれSmOHCO₃(cr), NdOHCO₃(cr)であることを確認した。合成した固相のXRDスペクトルを図4に示す。これによると、合成した水酸化炭酸塩のXRDスペクトルは、ともに参考データにあるSmOHCO₃(cr), NdOHCO₃(cr)のスペクトル⁸⁾によく一致した。これは、Sm³⁺とNd³⁺のイオン半径がそれぞれ1.09 Å, 1.12 Å⁶⁾とよく似ており、本研究で用いた結晶の合成方法が同じであったことから、同形の結晶構造を持つこととなったと考えられる。

られた。また、走査型電子顕微鏡付き、エネルギー分散型X線回折分析装置（以下「SEM-EDX」という）を用いて組成分析を行ったところ、合成時に用いた試薬中のNaや、他のラニタニド等不純物は確認されなかった。また、示差熱重量分析（以下、「TG-DTA」という）の結果、重量減少量から逆算した分子量がそれぞれSmOHCO₃, NdOHCO₃の分子量と一致したことから、合成した固相はそれぞれSmOHCO₃(cr), NdOHCO₃(cr)と判断して、溶解度試験に供した。

4.2 溶解度測定試験

Sm, Ndとともに同じ試験操作で溶解度測定を行った。平衡状態の確認のため、初期溶液中のSm, Nd濃度が未飽和側および過飽和側から溶解度測定を行った。操作はすべて大気中で行った。

(1) 未飽和側からの溶解度測定

0.1mol/lのNaClO₄水溶液によりイオン強度を0.1に調整した。それを50mL試験管にとり、あらかじめpH調整剤(HClO₄もしくはNaOH)を加えてpHを調整しておき、合成した水酸化炭酸塩粉末約20mgを添加後、さらに所定のpHになるように再調整した。その後、25±0.1°Cに設定した恒温槽中に所定期間静置し、液相中のSm濃度が一定になるのを待った。浸漬期間中は、時々試料を振とうし、また、pHを測定した。所定期間経過後、分画分子量10,000の限外ろ過フィルターを用いて固液分離を行った。試料溶液に水酸化炭酸塩

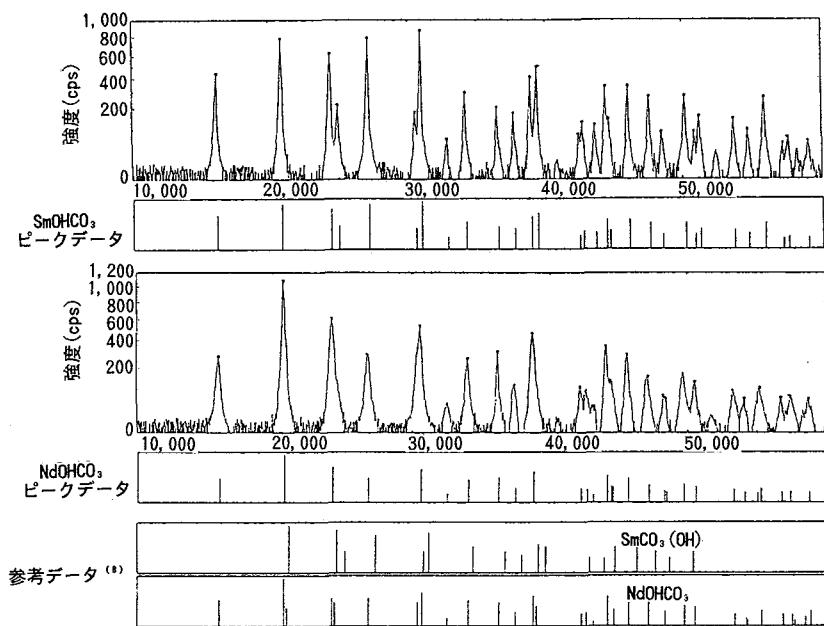


図4 合成したSmOHCO₃(cr)(上), NdOHCO₃(cr)(下)のXRDスペクトル

を加えてから固液分離までの実験系の温度は、 $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$ であった。固液分離後の固相は、XRDにより、変化のないことを確認した。液相の一部は総炭酸濃度分析計により総炭酸濃度を、一部はICP-MSによりネオジム、サマリウム濃度を測定した。試験条件を以下にまとめて示す。

恒温槽内の温度： $25 \pm 0.1^\circ\text{C}$

浸漬から固液分離までの温度： $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$

固相 : NdOHCO₃(cr)約20mg

SmOHCO₃(cr)約20mg

液相 : 0.1mol/lのNaClO₄水溶液50ml

気相 : 大気

pH範囲 : 5~12.5(HClO₄, NaOHで調整)

浸漬期間 : 14, 31, 59, 71, 92日間

(2) 過飽和側からの溶解度測定

0.1mol/lのNaClO₄水溶液によりイオン強度を0.1に調整した。それを45ml試験管にとり、あらかじめpH調整剤(HClO₄もしくはNaOH)を加えてpHを調整しておき、0.01mol/lのNdCl₃水溶液もしくは0.01mol/lのSmCl₃水溶液5mlを添加後、さらに所定のpHになるように再調整した。その後、恒温槽中の所定期間静置以降の操作は未飽和側からの測定と同様であった。

試験条件を以下にまとめて示す。

恒温槽内の温度： $25 \pm 0.1^\circ\text{C}$

浸漬から固液分離までの温度： $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$

液相 : 0.1mol/l-NaClO₄水溶液45ml

0.01mol/l-SmCl₃水溶液もしくは

0.01mol/l-NdCl₃水溶液5ml

気相 : 大気

pH範囲 : 7~12.5(HClO₄, NaOHで調整)

浸漬期間 : 35, 70, 106日間

4.3 試験結果

(1) XRDによる固相の同定

未飽和側からの溶解度測定では、浸漬前後で固相のXRDスペクトルに変化はみられなかった。浸漬期間による差も確認されなかった。過飽和側からの溶解度測定では、70日までの浸漬期間において、初期pHが高い試料では { SmOHCO₃(cr), NaSm(CO₃)₂(cr) }, { NdOHCO₃(cr), NaNd(CO₃)₃(cr) } の混在した状態が確認された。他のpH領域の試料については、水酸化炭酸塩のみが確認された。ガラス固化体近傍において、地下水のpH範囲は5~10と考えられることから、本研究においては、水酸化炭酸塩のみを評価対象とした。データの解析時には、正確な加水分解定数を算出するため、

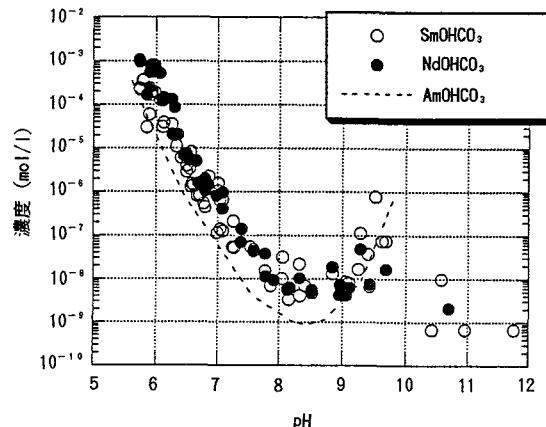


図 5 SmOHCO₃, NdOHCO₃溶解度測定結果

固相が複数確認された試料についてのデータは用いなかった。

(2) 液相中のSm, Nd濃度

固液分離した液相中のSm, Nd濃度のpH依存性を図5に示した。これによると、SmOHCO₃(cr), NdOHCO₃(cr)の溶解度はAmOHCO₃(cr)の溶解度¹⁰⁾と傾向がよく似ていることが確認された。

4.4 平衡状態の確認

加水分解反応の平衡状態の確認のため、pHと液相中総炭酸濃度の経時変化を調べた。作業としては、SmとNd両方に共通するものである。以下、Smについて記述する。

(1) pH経時変化

未飽和側からの測定における、固液分離前の液相のpH経時変化を図6に示す。これによると、未飽和側からの試験では、初期pHが10以下では短期間で安定するのに対し、初期pHが10.5以上になると、59日以上で安定状態になった。一方、過飽和からの試験結果では、35以降106日までの

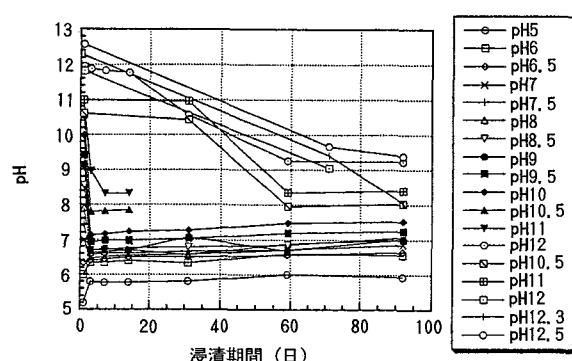
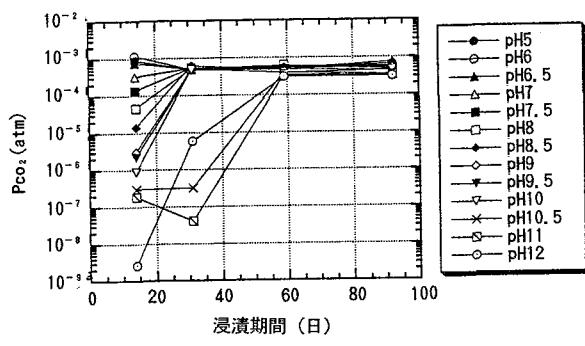


図 6 浸漬期間中のpH変化（未飽和側）

図 7 浸漬期間中のPco₂変化（未飽和側）

間pHに大きな変化はみられなかった。

(2) 液相中総炭酸濃度

未飽和側からの測定における、pHおよび液相中総炭酸濃度から換算した、二酸化炭素分圧(atm)の対数値(Pco₂)の経時変化を図7に示した。

未飽和側からの試験のPCO₂の経時変化からは、pH10以下では、1ヵ月で、pH10.5以上では59日以上で安定状態になることが確認された。過飽和側からの試験結果では、pH12.5以外は試験期間を通してPCO₂に大きな変化はみられなかった。pH12.5は70日以上でほぼ安定した。

以上のpHとPco₂の経時変化から、未飽和側からの試験では、初期pHが10以下では1ヵ月以上、pH10.5以上では59日以上で、水酸化炭酸塩の加水分解反応が安定したと考えられた。過飽和側からの試験では、初期pHが12.5未満では35日以上で、初期pHが12.5の試料は70日以上で、SmOHCO₃(cr)の加水分解反応が安定したと考えられた。

(3) 液相中サマリウム濃度

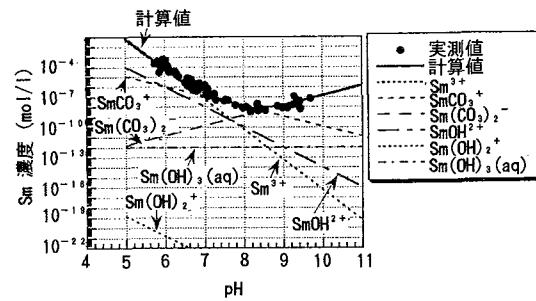
pHとPco₂の安定した期間における浸漬後の固相が、SmOHCO₃(cr)のみであった試料について、液相中サマリウム濃度のpH依存性を図8に示した。これによると、浸漬期間によるサマリウム濃度変化はほとんど見られなかった。よって、これらは定常状態にあるものとして、加水分解定数の算出に用いた。

4.5 加水分解平衡定数の算出

図8において、pHに対する溶解度の対数値の傾きは、pH5~10の範囲において-3~+1であることから、以下の3つの加水分解反応を仮定した。

- ① SmOHCO₃(cr)+3H⁺↔ Sm³⁺+2H₂O+CO₂
- ② SmOHCO₃(cr)+H⁺↔ SmCO₃⁺+H₂O
- ③ SmOHCO₃(cr)+CO₂↔ Sm(CO₃)₂⁻+H⁺

また、前述のヒドロキシ錯体の生成も考えられる

図 8 SmOHCO₃(cr)溶解度のpH依存性

ことから、以下の3つの加水分解反応も考慮した。

- ④ SmOHCO₃(cr)+2H⁺↔ SmOH²⁺+CO₂+H₂O
- ⑤ SmOHCO₃(cr)+H⁺↔ Sm(OH)₂⁺+CO₂
- ⑥ SmOHCO₃(cr)+H₂O↔ Sm(OH)₃(aq)+CO₂

測定されたサマリウム濃度は、これらの反応により生成する水溶性化学種濃度の総和であることから、サマリウムの実測濃度(m_{Sm})は以下の式で表せる。

$$m_{Sm} = [Sm^{3+}] + [SmCO_3^+] + [Sm(CO_3)_2^-] + \\ [SmOH^{2+}] + [Sm(OH)_2^+] + [Sm(OH)_3(aq)] \quad (5)$$

それぞれの液相化学種は以下のように定義される。

$$[Sm^{3+}] = (Sm^{3+})/\gamma_3 \\ [SmCO_3^+] = (SmCO_3^+)/\gamma_1 \\ [Sm(CO_3)_2^-] = (Sm(CO_3)_2^-)/\gamma_1 \\ [SmOH^{2+}] = (SmOH^{2+})/\gamma_2 \\ [Sm(OH)_2^+] = (Sm(OH)_2^+)/\gamma_1 \\ [Sm(OH)_3(aq)] = (Sm(OH)_3(aq))/\gamma_0$$

$$\gamma_i = \pm i \text{ 値イオンの活量補正係数}$$

よって、式(5)は以下のように書き表される。

$$m_{Sm} = \frac{(Sm^{3+})}{\gamma_3} + \frac{(SmCO_3^+)}{\gamma_1} \\ + \frac{(Sm(CO_3)_2^-)}{\gamma_1} + \frac{(SmOH^{2+})}{\gamma_2} \\ + \frac{(Sm(OH)_2^+)}{\gamma_1} + \frac{(Sm(OH)_3(aq))}{\gamma_0} \\ = \frac{K_1(pH)^3}{\gamma_3(Pco_2)} + \frac{K_2(pH)}{\gamma_1} + \frac{K_3(Pco_2)}{\gamma_1(pH)} \\ + \frac{K_4(pH)^2}{\gamma_2(Pco_2)} + \frac{K_5(pH)}{\gamma_1(Pco_2)} + \frac{K_6}{\gamma_0(Pco_2)} \quad (6)$$

表3 SmOHCO₃(cr)の加水分解反応に対する平衡定数

加水分解反応式	log(平衡定数)
SmOHCO ₃ (cr) + 3H ⁺ ↔ Sm ³⁺ + 2H ₂ O + CO ₂	logK = 9.46
SmOHCO ₃ (cr) ↔ Sm ³⁺ + H ₂ O - H ⁺ + CO ₃ ²⁻	logK = -8.69
SmOHCO ₃ (cr) + H ⁺ ↔ SmCO ₃ ⁺ + H ₂ O	logK = -0.05
Sm ³⁺ + CO ₃ ²⁻ ↔ SmCO ₃ ⁺	logK = 8.64
SmOHCO ₃ (cr) + CO ₂ ↔ Sm(CO ₃) ₂ ⁻ + H ⁺	logK = -13.64
Sm ³⁺ + 2CO ₃ ²⁻ ↔ Sm(CO ₃) ₂ ⁻	logK = 13.20

pH, P_{CO₂}, m_{Sm}の試験結果および、3章で算出したヒドロキシ錯体の生成定数から計算したK₄, K₅, K₆を(6)式に代入し、最小二乗近似により、K₁, K₂, K₃を算出した。それぞれの値を反応式とともに表3に示した。液相化学種であるサマリウム炭酸錯体については、その生成定数を付記した。

得られた平衡定数を(6)式に代入してもとめたSmOHCO₃(cr)の溶解度のpH依存性を図8に実線で示す。同図に、支配的となる液相化学種の溶解度を点線で示す。

4.6 NdOHCO₃(cr)加水分解反応定数の算出

SmOHCO₃(cr)の場合と同様にして、NdOHCO₃(cr)加水分解反応に対しても平衡定数の算出を行った。結果を表4に、NdOHCO₃(cr)溶解度のpH依存性を図9に示す。

5. 地層処分条件下におけるサマリウム、ネオジムの溶解度評価

5.1 目的

3、4章で算出したサマリウム、ネオジムに関する熱力学データと既存の水酸化ネオジムに関する熱力学データを用いて、地層処分条件下におけるサマリウム、ネオジムの溶解度を評価する。溶解度を予測する際には、地下水組成や空隙水組成、反応鉱物など環境条件を模擬するための設定が必要となる。本研究においては、文献3での溶解度評価例と比較するため、これら環境条件を同

表4 NdOHCO₃(cr)の加水分解反応に対する平衡定数

加水分解反応式	log(平衡定数)
NdOHCO ₃ (cr) + 3H ⁺ ↔ Nd ³⁺ + 2H ₂ O + CO ₂	logK = 10.26
NdOHCO ₃ (cr) ↔ Nd ³⁺ + H ₂ O - H ⁺ + CO ₃ ²⁻	logK = -7.89
NdOHCO ₃ (cr) + H ⁺ ↔ NdCO ₃ ⁺ + H ₂ O	logK = -0.39
Nd ³⁺ + CO ₃ ²⁻ ↔ NdCO ₃ ⁺	logK = 7.50
NdOHCO ₃ (cr) + CO ₂ ↔ Nd(CO ₃) ₂ ⁻ + H ⁺	logK = -13.51
Nd ³⁺ + 2CO ₃ ²⁻ ↔ Nd(CO ₃) ₂ ⁻	logK = 12.53

一のものに設定する。また、溶解度制限固相の設定も重要なポイントである。本研究においては、水酸化物と水酸化炭酸塩の2種類を溶解度制限固相の候補として、設定された初期溶液中におけるこれら固相の溶解度を、地球化学計算コードPHREEQE¹¹⁾により計算した。

5.2 溶解度計算のための地下水組成および空隙水組成の設定

溶解度を計算する際に必要となる、ガラス固化体に接する空隙水組成（初期溶液組成）としては、ニアフィールドにおける4種類の地下水（降水系低pH型、降水系高pH型、海水系低pH型、海水系高pH型）¹²⁾が、緩衝性が維持された状態でのベントナイト、オーバーパック腐食生成物と平衡になったときの空隙水組成(C₂)¹³⁾を選定した。

5.3 溶解度計算結果

初期C₂溶液中におけるサマリウム、ネオジムの溶解度制限固相は水酸化炭酸塩であることが示された。表5にそれぞれの初期溶液中におけるサマリウムとネオジムの水酸化炭酸塩の溶解度計算結果を示した。それぞれの溶解度はSmで2.5 × 10⁻⁷ ~ 1.2 × 10⁻⁸(mol/l)、Ndで3.3 × 10⁻⁷ ~ 1.6 × 10⁻⁸(mol/l)であった。これは、同条件におけるAmの溶解度³⁾と比較すると、SRHPを除いてほぼ同じである。SRHPでは1桁程度高い溶解度を

表5 溶解度評価のための初期溶液組成(mol/l, 25°C)

固相	初期溶液			
	FRLP	FRHP	SRLP	SRHP
SmOHCO ₃ (cr)	2.5 × 10 ⁻⁷ Sm(CO ₃) ₂ ⁻ SmCO ₃ ⁺	1.2 × 10 ⁻⁸ Sm(CO ₃) ₂ ⁻ SmCO ₃ ⁺	1.3 × 10 ⁻⁷ Sm(CO ₃) ₂ ⁻ SmCO ₃ ⁺	3.6 × 10 ⁻⁸ Sm(CO ₃) ₂ ⁻ SmCO ₃ ⁺
NdOHCO ₃ (cr)	3.3 × 10 ⁻⁷ Nd(CO ₃) ₂ ⁻ NdCO ₃ ⁺	1.6 × 10 ⁻⁸ Nd(CO ₃) ₂ ⁻ NdCO ₃ ⁺	1.2 × 10 ⁻⁷ Nd(CO ₃) ₂ ⁻ NdCO ₃ ⁺	4.0 × 10 ⁻⁸ Nd(CO ₃) ₂ ⁻ NdCO ₃ ⁺
AmOHCO ₃ (cr)	2.0 × 10 ⁻⁷ Am(CO ₃) ₂ ⁻ AmCO ₃ ⁺	6.3 × 10 ⁻⁸ Am(CO ₃) ₂ ⁻ AmCO ₃ ⁺	2.9 × 10 ⁻⁸ Am(CO ₃) ₂ ⁻ AmCO ₃ ⁺	6.3 × 10 ⁻⁹ Am(CO ₃) ₂ ⁻ AmCO ₃ ⁺

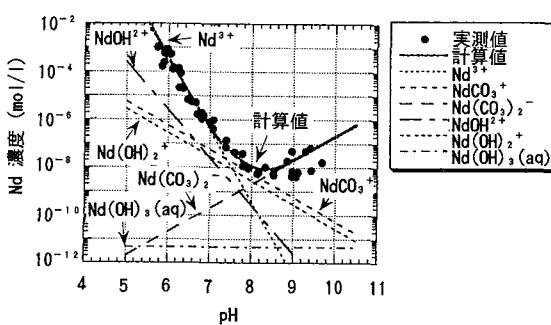
下段は支配的となる水溶性化学種

FRLP: ニアフィールドにおける降水系低pH型地下水

FRHP: ニアフィールドにおける降水系高pH型地下水

SRLP: ニアフィールドにおける海水系低pH型地下水

SRHP: ニアフィールドにおける海水系高pH型地下水

図9 NdOHCO₃(cr)溶解度のpH依存性

示している。これは、この条件において支配的となる水溶性化学種が、Amでは $\text{Am}(\text{CO}_3)_3^{3-}$ であるのに対し、Sm, Ndにはこのような高次の炭酸錯体データが入力されておらず、支配化学種に違いが出たためと考えられる。しかし、溶解度での差は1桁程度と小さいため、性能評価上大きな影響は無いと考えられる。

4. おわりに

本研究においては、地層処分条件下におけるランタニドの溶解度を評価するため、サマリウムとネオジムを例として、その水酸化物と水酸化炭酸塩の熱力学データを取得・整備した。得られた結果を用いて、地層処分条件下における人工バリア空隙水中のサマリウムとネオジムの溶解度を見積もったところ、両元素とも $10^{-6} \sim 10^{-8} \text{ mol/l}$ の溶解度を持つことが予測された。

5. 謝辞

本研究を遂行するにあたり、近藤吉隆氏、斎藤和則氏には、液相中炭酸濃度、サマリウム濃度を測定して頂きました。また、油井三和氏、吉川英樹氏、牧野仁史氏、瀧谷朝紀氏には、有意義な議論をして頂きました。ここに、深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 動燃事業団：“高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書－平成3年度－”，PNC TN410 92-081 (1992).
- 2) Sasaki, Y., M.Shibata, et. al : “Experimental Studies on the Interaction of Groundwater with Bentonite”, *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII* pp.337-344 (1995).
- 3) 油井三和、牧野仁史、他：“ガラス固化体からの元素の溶出挙動と人工バリア空隙水中の溶解度評価”，PNC TN8410 92-161 (1992).
- 4) 牧野仁史、矢島達也、他：“水酸化ネオジムの加水分解定数と溶解度の測定”，日本化学会誌, 5, p445~450 (1993).
- 5) Roy & McKinstry : *Acta Cryst.*, 6, 366 (1953).
- 6) Baes, C.F., R.E. Mesmer : “The Hydrolysis of Cation. Wiley and Sons, New York (1976).
- 7) Brown, P.J., R.N. Sylva : “An Equation for Predicting the Formation Constants of Hydroxo-metal Complexes”, *J.Chem. Soc. DALTON TRANS.* (1985).
- 8) Christensen, A.N : “Hydrothermal Preparation of Rare Earth Hydroxycarbonates. The Crystal Structure of NdOHCO_3 ”, *ACTA CHEMICA SCANDINAVICA*, 27 p 2973-2982, (1973).
- 9) Akinc, M., D.Soldelet, et al.: *Adv. Ceram. Mat.* 3 p211 (1988).
- 10) Felmy, A.R., D.Rai, et al.: “The Solubility of $\text{AmOHCO}_3(\text{c})$ and the Aqueous Thermodynamics of the System $\text{Na}^+ - \text{Am}^{3+} - \text{HCO}_3^- - \text{CO}_3^{2-} - \text{OH}^- - \text{H}_2\text{O}$ ”, *Radiochimica Acta* 50 p193-204 (1990).
- 11) Parkhurst, D.L., D.C. Thorstensen , et al. : “PHREEQE-A Computer Program for Geochemical Calculations, U.S. Geological Survey”, *Water-Resources Investigations* 80-96, (1980).
- 12) 油井三和、武田精悦、他：“高レベル廃棄物地層処分の性能評価における地下水の地球化学的特性に関するモデル化”，PNC TN 8410 92-166 (1992).
- 13) 油井三和、柴田雅博、他：“高レベル破棄物地層処分の人工バリアシステムによる地下水の化学的緩衝作用とモデル化”. PNC TN 8410 92-162 (1992).



γ線基準校正場の品質保証

三上 智 豊田 素子

東海事業所安全管理部

資料番号：97-6

Quality Assurance of Reference Photon Calibration Field

Satoshi Mikami Motoko Toyoda
(Health and Safety Division, Tokai Works)

動燃事業団の5つの事業所（東海事業所、大洗工学センター、もんじゅ建設所、ふげん発電所、人形峠事業所）には、サーベイメータや個人線量計等の放射線測定器を校正するためのγ線基準校正場を設置している。各事業所の校正場は全て国家標準までのトレーサビリティを確保しており、事業所ごとに適切に維持してきたが、校正における品質保証強化を図る目的で、相互比較により各事業所の校正場の照射精度を検証した。その結果、各事業所校正場は適切な精度で維持されていることを確認した。本稿では複数の校正場の横断的な精度の検証およびその簡便手法も含めてγ線基準校正場の品質保証への取組みについて紹介する。

1. はじめに

国際標準化機構(ISO)が1987年に制定した品質認証システムに関する国際規格であるISO9000シリーズ規格は、欧州を中心に急速に普及が進み運用されている。また、米国においては10年以前から放射線測定に対する測定結果の保証問題が課題となっており、トレーサビリティ体系を明確化した測定の品質保証プログラムを発足させている。

我が国においても、1992年5月に計量法が改正されたのに伴い、校正に関する部分がトレーサビリティ制度として法制化され、1993年11月から施行される等品質保証活動の確立がなされてきている。

動燃事業団においてもさまざまな品質保証活動を実施しており、放射線管理に用いる各種放射線測定器についてもその品質を維持するために、電気的な試験・検査を行うとともに、γ線や中性子線等の基準校正場あるいはα線やβ線を放出する校正用面線源等により定期的に校正している¹⁾。本稿では特にサーベイメータ等を校正する場であるγ線基準校正場の品質保証への取り組みについて、校正場の相互比較を中心に紹介する。

2. γ線基準校正場のトレーサビリティ

動燃事業団の5つの事業所（東海事業所、大洗工学センター、もんじゅ建設所、ふげん発電所、人形峠事業所）では、サーベイメータや個人線量計等を校正するための校正用γ線源と校正場の線量率を決定する（以下「値付け」という）電離箱型の基準線量計を所有している。東海事業所の基準線量計は国家標準機関である通商産業省工業技術院電子技術総合研究所（以下「電総研」という）で校正されており、ふげん発電所の基準線量計は電総研大阪ライフエレクトロニクス研究センターにて校正されている。また、大洗工学センター、もんじゅ建設所および人形峠事業所の基準線量計は東海事業所計測機器校正施設において定期的に校正されている。このように、各事業所の基準線量計はすべて電総研までトレーサビリティが確保されており、γ線基準校正場は各事業所ごとに適切に維持されている。図1にγ線基準校正場のトレーサビリティ体系を示す。

3. 基準校正場の相互比較

サーベイメータ等の放射線測定器は定期的に基準校正場で校正されている。放射線測定器による

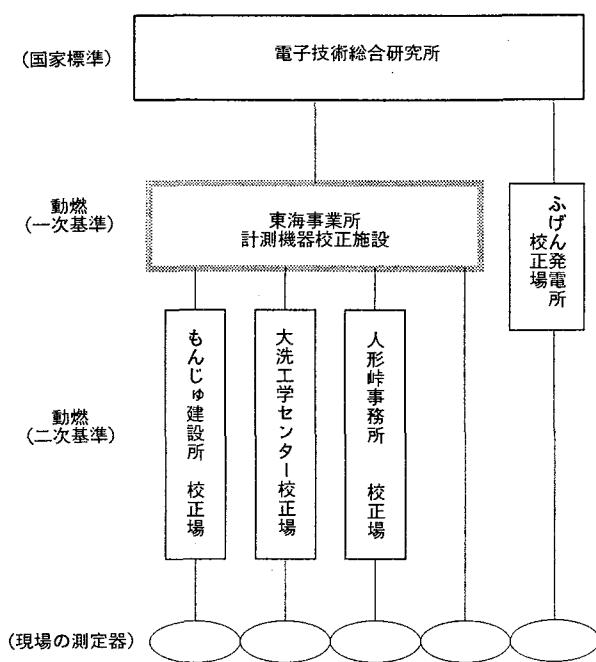


図1 γ線基準校正場のトレーサビリティ

測定結果は直接現場の放射線管理に反映されるので、機器の校正結果、ひいては基準校正場の設定は信頼性の高いものでなければならない。ところが基準γ線測定には不確かさが含まれ、さらに、校正設備・機器の経年劣化や作業者の交代等に起因する誤差が生ずる恐れがある。このようなさまざまな要因による校正場の測定精度の異常等を発見し修正するため、また各事業所校正場における基準γ線照射技術の向上、および基準線量(率)の均一性の確認等、基準γ線の測定および照射技術の品質保証強化を図るには複数の事業所間で基準校正場の相互比較を行うことが有効である。そこで、動燃事業団における放射線標準施設としての性格を有する東海事業所計測機器校正施設が中心となって、γ線基準校正場の相互比較を実施した。

4. γ線基準校正場の事業所間相互比較

各事業所で所有し基準校正場の値付けに使用したγ線用基準線量計はすべて米国 VICTOREEN 社製の電離箱型照射線量計(商標名；ラドコン線量計500型)である(以下「基準線量計」という)。平成4年にはトレーサビリティの健全性を調査することを目的に、基準線量計を使用した各事業所γ線基準校正場の設定精度の相互比較を実施した。

4.1 実施方法

東海事業所で所有している基準線量計を厳重に

クッション等を用いて梱包し他の事業所に回付した。同時に東海事業所の基準線量計を操作する専任の作業者が他事業所に出向いて各事業所校正場の線量を測定した。

評価方法は東海事業所の基準線量計を用いて各事業所のγ線基準校正場の照射線量率を測定し、あらかじめ各事業所で測定されている値とを比較した。相互比較の対象とした線源は¹³⁷Csと⁶⁰Coであり、比較評価上¹³⁷Cs高線量率(2.6×10^{-3} c/kg/h(10R/h)以下)、¹³⁷Cs低線量率(7.7×10^{-6} c/kg/h(30mR/h)以下)および⁶⁰Co(3.4×10^{-4} c/kg/h(1.3R/h)以下)に分類した。また、比較距離は¹³⁷Cs高線量率は1m、2m、3m、および4mの4点とし¹³⁷Cs低線量率および⁶⁰Coについては1m、および2mの2点とした。相互比較の対象とした線源の種類と強度を表1に示す。

4.2 比較結果

各事業所校正場の各距離における照射線量率に關し、東海事業所の基準線量計を用いて測定した値と、あらかじめ各事業所が独自に測定した値との比をもとめ、東海事業所の基準線量計による測定値からのずれを偏差の割合で評価した。

¹³⁷Cs高線量率および¹³⁷Cs低線量率グループの結果は±3%以内でよく一致した。また、⁶⁰Coの比較結果についても±3%以内でよく一致した。代表例として¹³⁷Cs高線量率グループの結果を図2に示す。いずれの結果も電総研における一次基準測定器の校正精度である±3%内で一致した。

日本工業規格(JIS Z 4511)²⁾との対応については東海事業所とふげん発電所の基準校正場は一次照射線量率基準に、その他の事業所は二次照射線量率基準に相当し、それぞれの基準校正の精度は±4%以内、±6%以内と定められている。今回の結果は各事業所校正場ともJIS基準を満足するものであり、国家標準からのトレーサビリティの移行が良好に行われていることおよび適切な精度で維持されていることを確認した。

表1 相互比較を実施した線源の種類と強度

	¹³⁷ Cs高線量率 2.6×10^{-3} c/kg/h(10R/h)以下	¹³⁷ Cs低線量率 7.7×10^{-6} c/kg/h(30mR/h)以下	⁶⁰ Co 3.4×10^{-4} c/kg/h(1.3R/h)以下
東海事業所	1.11TBq	3.7 GBq	3.7 GBq
大洗工学センター	1.11TBq	3.7 GBq	3.7 GBq
もんじゅ建設所	1.11TBq	7.4 GBq	3.7 GBq
ふげん発電所	740 GBq		37 GBq
人形峠事業所		2.59GBq	1.85GBq

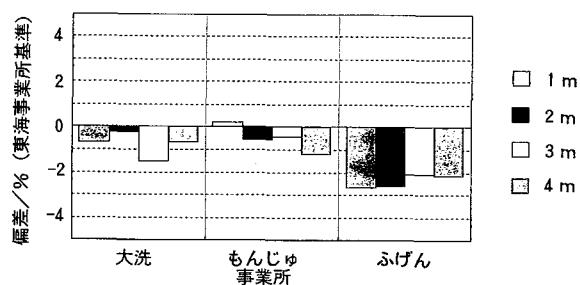


図2 基準線量計による相互比較結果 (^{137}Cs 高線量率)

4.3 基準線量計による相互比較の問題点

事業所間相互比較は基準校正場の健全性の確認には有効な手段であり、定期的に実施することが望ましい。しかし、電離箱型基準線量計は微小な電流を測定するもので非常に敏感であり振動や湿気の影響を受ける。したがって、相互比較のために事業所間を輸送することに伴う、輸送中の振動、湿度の管理等を考慮すると定期的な相互比較の実施に基準線量計を使用することはリスクが高い。その他、精度のよい測定をするためには少なくとも24時間以上のウォーミングアップが必要であり、また基準線量計の取り扱いに精通した作業者が操作のために各事業所に出向かなければならず、労力も大きい等の問題点があった。

5. 簡便な相互比較方法の検討

日本原子力研究所東海研究所（以下「原研」という。）の協力を得て、平成4年から平成5年にかけて、より簡便で定期的な相互比較実施に適用できる相互比較方法を検討した。

そこで、取り扱いが簡便で特別な保管管理を必要としない線量計として、近年著しく読み取り精度の向上したガラス線量計あるいは従来から広く使用され実績の豊富なTLDを相互比較に適用すべく両者の特性の比較試験を行った³⁾。

5.1 ガラス線量計システム

今回の試験には東芝硝子㈱製のSC-1型ガラス線量計およびFGD-20型の線量読取装置（リーダ）を使用した。ガラス線量計は放射線が照射されたガラス（銀活性リン酸塩ガラス）が紫外線励起によってオレンジ色の蛍光を発する現象（ラジオフォトルミネッセンス；RPLという）に基づく積算型の固体線量計である。また、リーダは連続パルス発振のできる窒素ガスレーザを紫外線励起源とする高感度のリーダで、線量計を一度に20

個まで連続読み取りできるものである。ガラス線量計の特長として①線量の読み取り操作により蛍光中心が消滅しないので繰り返し測定ができる。②ガラス線量計間の感度のバラツキが小さい。③フェーディング（退行）がきわめて少ない。等が挙げられる⁴⁾⁵⁾。

5.2 TLDシステム

パナソニック㈱製のTLD（UD-200S型）およびリーダ（UD-215P型）を使用した。TLDは放射線が照射された硫酸カルシウムが、熱励起によって蛍光を発する現象に基づく積算型の固体線量計である。リーダはヒータ（420°C）を熱励起源とし、加熱されたTLDが発する蛍光を光電子増倍管で検出する。

TLDは個人線量計等に広く使用され、動燃事業団においても豊富な使用経験があり、そのさまざまな特性が把握されている信頼性の高い線量計である。

5.3 ガラス線量計およびTLDの特性試験

(1) エネルギー特性

エネルギー特性試験に使用した線源は、X線（線質指標QI : 0.8）で24.1keV～203keVおよびγ線が ^{137}Cs （662keV）と ^{60}Co （1250keV）である。ガラス線量計とTLDのエネルギー特性は光子に対してほぼ同様の特性を示し、200keV以上の範囲で±5%程度の感度変化であった（図3）。よって、 ^{137}Cs 線源や ^{60}Co 線源の相互比較を実施する場合には、コンプトン散乱が180°散乱で約200keVであるので上述の感度変化で測定できる。

(2) 方向特性

ガラス線量計を横軸方向と縦軸方向に回転させ

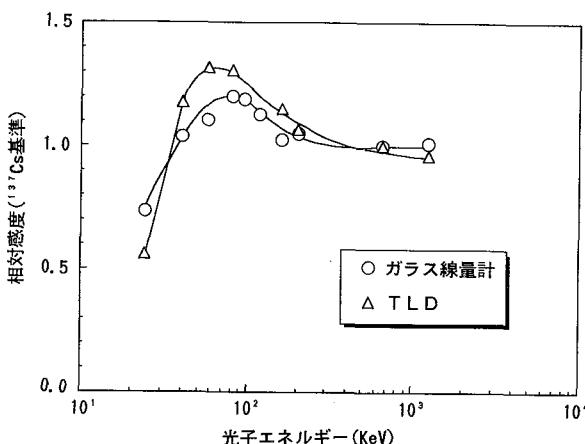
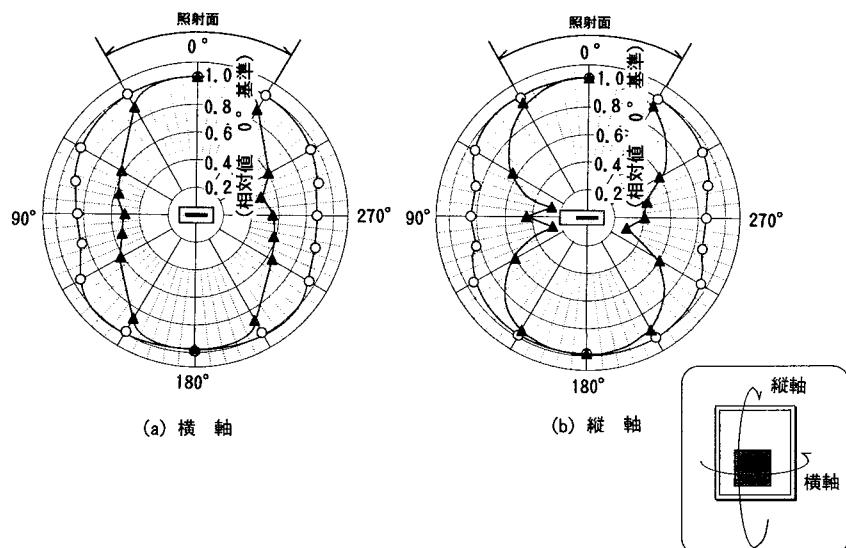


図3 エネルギー特性試験

図4 ガラス線量計の方向特性 (○: ^{137}Cs ▲: X線80keV)

た場合の感度の変化は、 ^{137}Cs γ 線で横軸方向と縦軸方向が最大で15%低下し、80keV X線では横軸方向と縦軸方向とともに最大で約60%低下した。しかし、照射面(入射0°方向に対して $\pm 30^\circ$)における感度変化は ^{137}Cs γ 線で1%以内、80keV X線では10%程度であった(図4)。同様にTLDの感度変化は、横軸方向および縦軸方向ともにガラス線量計より少ない。照射面における感度変化は ^{137}Cs γ 線で1%以内、80keV X線で5%程度と良好であった。なお、TLDは横・縦軸ともに左右対称であるので片側の180°までの試験とした(図5)。

(3) 指示誤差試験

指示誤差試験の方法は、散乱線の影響を少なくするためにバドミントンラケット上に各線量計を1個ずつセットし各照射線量に対して5セット照射した。照射線量の範囲は $7.7 \times 10^{-7} \text{ c/kg} \sim 1.3 \times 10^{-3} \text{ c/kg}$ (3mR~5R)の範囲で照射線量を変化させて11点の照射野で試験した。測定値は個々の線量計の感度補正とリーダの感度補正を行ってもとめ、ガラス線量計については5回の読み取り値の平均とした。その結果、ガラス線量計の感度の平均値および標準偏差は 1.003 ± 0.0013 であり、したがって全体としては1.6%程度の誤差で測定で

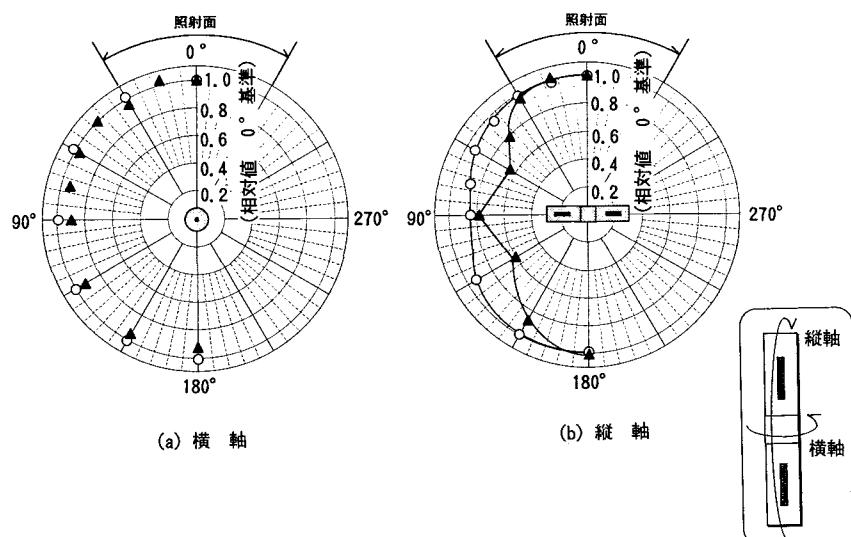
図5 TLDの方向特性 (○: ^{137}Cs ▲: X線80keV)

表2 ガラス線量計およびTLDの指示誤差試験結果

照射線量 (mR)	ガラス線量計			TLD		
	測定値 (mR)	感度	変動率 (±%)	測定値 (mR)	感度	変動率 (±%)
5000	5019.7 ± 20	1.004	0.40	5220 ± 87	1.04	1.6
2000	1968.6 ± 6.8	0.984	0.34	2070 ± 50	1.04	2.4
1000	1026.5 ± 1.5	1.026	0.15	1030 ± 15	1.03	1.5
500	506.1 ± 1.7	1.012	0.34	512 ± 4.2	1.02	0.8
200	202.2 ± 0.7	1.011	0.34	206 ± 2.4	1.03	1.2
100	100 ± 0.3	1.000	0.31	106 ± 1.8	1.06	1.7
50	49.71 ± 0.2	0.994	0.34	51.1 ± 0.4	1.02	0.7
20	19.82 ± 0.0	0.991	0.23	20.9 ± 0.4	1.05	1.8
10	9.82 ± 0.1	0.982	0.6	10.4 ± 0.2	1.04	2.0
5.0	4.97 ± 0.2	0.994	4.6	5.3 ± 0.1	1.06	1.9
3.0	2.92 ± 0.1	0.973	2.3			
平均値	1.003 ± 0.013	※1		1.04 ± 0.013	※2	

※1 平均値は、20(mR)以上の線量に対する感度の平均と標準偏差である。
※2 平均値は、10(mR)以上の線量に対する感度の平均と標準偏差である。
測定値は、各線量計の読み取りに校正定数を乗じた値である。

きる。TLDは 1.04 ± 0.0013 であり、全体として $\pm 5\%$ 程度の誤差で測定できる。指示誤差試験の結果を表2に示す。

5.4 相互比較への適用

ガラス線量計システムとTLDシステムについて基本的な測定条件を定めて基礎特性試験を行った結果、 ^{137}Cs あるいは ^{60}Co 線源を対象とした相互比較試験の条件下で総合的に達成し得る精度はガラス線量計が $\pm 2\%$ 、TLDが $\pm 4\%$ となった。よって簡便な相互比較手法としてガラス線量計システムを採用することとした。

6. ガラス線量計による相互比較試験

ガラス線量計による相互比較手法の有効性の確認のため、試験的にガラス線量計を用いて動燃事業団東海事業所と原研との間で γ 線校正場の比較を行った結果、1%以内で一致しており、ガラス線量計による相互比較が有効であることを確認した。次に、動燃事業団の上述の5事業所を対象に相互比較を実施した。

6.1 相互比較の条件および方法

(1) 条件

①相互比較の対象とした線源は ^{137}Cs 高線量率と ^{137}Cs 低線量率、および ^{60}Co に分類しそれぞれの線源強度は表1のとおりである。②比較距離は ^{137}Cs 高線量率は1mと2m、 ^{137}Cs 低線量率は1m、 ^{60}Co については1mないし2mとした。③照射線量率は照射時間を考慮して $5.2 \times 10^{-6} \text{ c/kg/h}$ (20mR/h)以上とし、照射線量は $1.3 \times 10^{-5} \text{ c/kg}$ (50mR)～ $1.3 \times 10^{-4} \text{ c/kg}$ (500mR)程度とした。④相互比較には原研で校正されたガラス線量計(東芝硝子(株)製SC-1)を使用した。⑤照射線量の測定には1点当たり3個の線量計を使用した。⑥照射の際、散乱線を少なくするためにバドミントンラケット上に線量計を固定した。

R)～ $1.3 \times 10^{-4} \text{ c/kg}$ (500mR)程度とした。④相互比較には原研で校正されたガラス線量計(東芝硝子(株)製SC-1)を使用した。⑤照射線量の測定には1点当たり3個の線量計を使用した。⑥照射の際、散乱線を少なくするためにバドミントンラケット上に線量計を固定した。

(2) 方法

ガラス線量計は原研にて前処理後、封筒にいれて各事業所に郵送し表1に示す線源で照射を行った。各事業所での照射終了後、ガラス線量計を原研に返送し、ガラス線量計の照射線量の読み取りを行った。測定精度の向上を図るために、①線量計個々に校正定数を与えること、②蛍光中心を安定させるため測定前に線量計を熱処理すること③リーダの感度補正等を行った。

相互比較の評価方法は、それぞれの事業所の各線源、各距離において、ガラス線量計による測定値(照射線量率に換算)と各事業所が所有する基準線量計で測定した基準照射線量率との比をもとめ、基準線量計で測定した値からのずれを偏差としてまとめた。

6.2 相互比較結果

相互比較結果を以下に紹介する。

^{137}Cs 高線量率の結果は、大洗工学センターの2mの点が3.5%のずれであった。それ以外は2%以内で一致した。

^{137}Cs 低線量率の結果は、人形峰事業所の1mで2.7%であったのを除いてすべて2%以内で一致した。

^{60}Co の結果は、すべての比較点で2%以内で一致した。結果を図6に示す。

比較結果は各事業所とも日本工業規格(JIS Z 4511)¹⁾に示される基準校正の精度内で一致している。

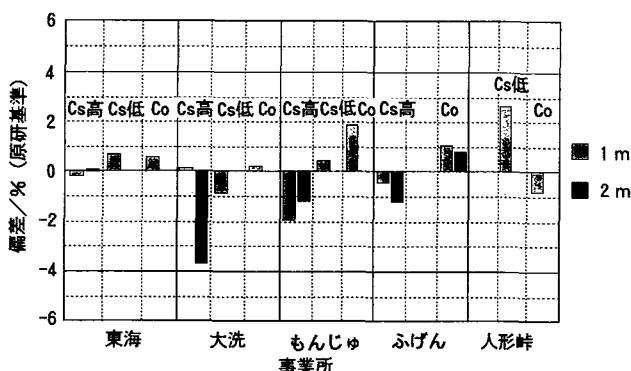


図6 ガラス線量計による相互比較結果(平成6年 ^{60}Co)

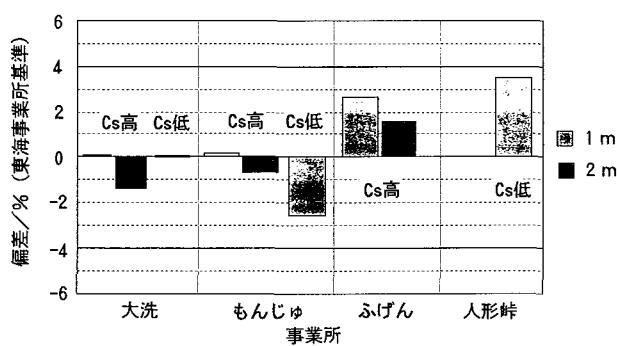


図 7 ガラス線量計による相互比較結果（平成 7 年¹³⁷Cs高線量率）

た。今回の結果からガラス線量計がこのような相互比較の目的にも使用できることおよび動燃事業団各事業所の基準校正場が適切に維持管理されていることが改めて確認できた^{6),7)}。

7. ガラス線量計による相互比較の定期実施

以上の結果を踏まえて、定期的に相互比較を実施する目的で、平成 6 年に東海事業所計測機器校正施設にガラス線量計システムを整備した。

平成 7 年には整備したガラス線量計システム（東芝硝子^株製；線量計 SC-1、リーダ FGD-202）を使用して、東海事業所を基準として¹³⁷Cs線源に関して相互比較を行った。今回の結果も各事業所とも JIS の基準校正の精度内で一致するものであった。結果を図 7 に示す。したがって、動燃事業団における γ 線基準校正場における品質保証の手法の一つとしてガラス線量計による相互比較を定期的に実施していく。また、この方法は原子力関係施設の類似の校正施設への適用も可能であると考える。

8. おわりに

これまでの試験の検討結果から各事業所とも γ

線校正場が精度よく維持されていることがわかつた。換言すれば、電総研からの標準の移行が適切に行われており、すなわち、トレーサビリティ体系が適切に維持されていることが確認できた。また、各事業所校正場間の横断的な基準照射線量（率）の一貫（コンパティビリティ）も同時に確認することができた。

今後とも動燃事業団の γ 線基準校正場のトレーサビリティの確認および各校正場間の基準照射線量（率）の均一性の確認のためにガラス線量計による事業所間相互比較を定期的に実施していく。一方で γ 線基準校正場の品質保証に係わる研究の一環として、計量法に基づく認定事業者制度に参画することとし、東海事業所では電総研から計量法に基づく特定二次標準器の校正証明書を取得し校正および基準線量（率）の設定方法の標準化に努めている。

参考文献

- 1) 百瀬琢磨, 長谷川市郎, 他; “放射線管理用計測機器の保守・校正技術”, 動燃技報, 81, p33, (1992).
- 2) 日本工業規格, “照射線量測定器および線量当量測定器の校正方法”, JIS Z 4511 (1990).
- 3) 百瀬琢磨, 三上智, 他; “校正用 γ 線場の相互比較手法の検討”, 日本保健物理学会第28回研究発表会要旨集, A-4, (1993).
- 4) 石川達也, 村上博幸, 他; “個人線量測定用ガラス線量計の基本特性”, フィルムバッジニュース, 200, p3, (1993).
- 5) 石川達也, 村上博幸, 他; “蛍光ガラス線量計の基本特性”, JAERI-Tech, 94-034, (1994).
- 6) S.Mikami, T.Momose : “Quality assurance of reference calibration field—Proposal of Reference Dose Value Intercomparison using RPL glass Dosimeter—”, PROCEEDINGS OF THE IAEA/RCA WORKSHOP ON CALIBRATION OF DOSIMETERS & SURVEY INSTRUMENTS FOR PHOTONS, November 28~December 2, 1994, Tokai, Japan, JAERI-Conf 95-014, (1995).
- 7) 三上智, 大閑清, 他; “ガラス線量計を用いた校正用 γ 線場の相互比較”, 日本保健物理学会第30回研究発表会要旨集, A-1, (1995).



涸沼におけるフォールアウト核種の 移行挙動研究

—湖底堆積物中の¹³⁷Csの挙動—

武石 稔 中島 尚子 渡辺 均*

大洗工学センター安全管理部
東海事業所安全管理部

資料番号97-7

Study on Migration Behavior of Fallout Nuclides in Lake Hinuma
—Migration Behavior of ¹³⁷Cs in Lake Sediments—

Minoru Takeishi Naoko Nakashima Hitoshi Watanabe *
(Health and Safety Division, O-arai Engineering Center,
* Health and Safety Division, Tokai Works)

Chernobyl accidentにより我が国に降下した、主要なフォールアウト核種である¹³⁷Csの涸沼湖底堆積物中の移行挙動を研究した。湖底堆積物は、 Chernobyl accident事故以降1986年から毎年8月～10月に船上から採取した。その結果、涸沼湖底堆積物中の¹³⁷Csは、主に主要な流入河川(涸沼川)を経由して供給されるが、排出作用も活発であるため湖底堆積物中の¹³⁷Cs濃度は、ほぼ陸上土壤中の濃度に等しく、¹³⁷Csの涸沼湖底への蓄積作用は小さいことが推察された。

1. はじめに

湖沼系は、一般的に流域に沈着した物質を集積する傾向がある。このため、フォールアウト核種の降下量が短期的に増加した際には、湖沼環境試料中の濃度もその影響を受け変動すると予想される。湖沼系の集積作用は、主に降雨により増大するが、同時に湖沼からの流出水量も増加するため核種の湖沼外への流出(以下、排出と呼ぶ)量も増加する。したがって、降雨に伴い必ずしも核種が湖底に蓄積するとは限らない。これは、湖沼の閉鎖性に依存する。筆者らは、 Chernobyl accident事故(1986年4月26日)以降、毎年、涸沼の湖水、湖底堆積物等を採取し、¹³⁷Cs等のフォールアウト核種の濃度を測定する等、その移行挙動を調査してきた^{1)～5)}。そこで、これらの調査結果の中で特に湖底堆積物中の¹³⁷Csの挙動について報告する。

2. 採取および分析方法

図1に涸沼の外観および湖底堆積物の採取地点を示す。涸沼は、湖面積9.35km²の汽水湖で、水深2.5m～3.5mの比較的浅い湖沼である⁶⁾。流入河川は7河川、流出河川は2河川であるが、流量率

から見ると流入、流出ともに、同名の涸沼川が主要な経路である。そこで、涸沼を図1に示すように流入河川(涸沼大橋地点)、上流部、中央部、下流部および流出河川(大貫橋地点)に分け、各地点で湖底堆積物を毎年8月～10月に採取した。採取は、船上で行ったが、位置の特定が困難なため、毎年採取場所が若干移動した。図1にはその採取地点を範囲で示す。採取した湖底堆積物は、

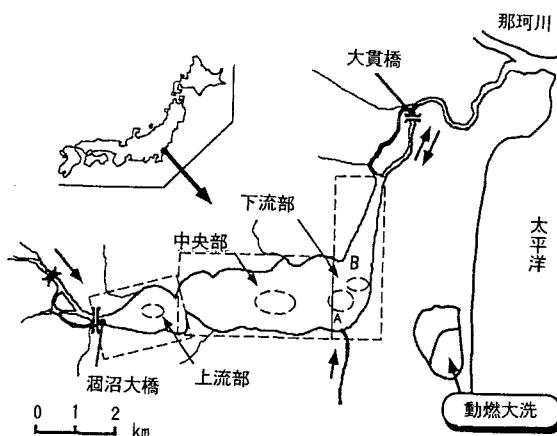


図1 潶沼の形状および湖底堆積物採取地点

約100°Cで約3日間乾燥後、2mmメッシュのふるいで選別し、 γ 線核種は、相対効率45%のGe半導体検出器で定量した⁷⁾。 $^{239,240}\text{Pu}$ （以下、 ^{239}Pu と表記する）は、硝酸系で有機物を分解、浸出し、塩酸系陰イオン交換法で分離、調整後、ステンレス板上に電着、Si(Li)半導体検出器を用いた α 線スペクトロメトリにて定量した⁷⁾。 ^{90}Sr は、硝酸で有機物分解後、シウ酸塩法にて ^{90}Sr を分離、約2週間静置して生成した ^{90}Y をミルキングし、低バックグラウンドガスフロー検出器で β 線を測定した⁷⁾。

また、大気からの ^{137}Cs の降下量は、動力炉・核燃料開発事業団大洗工学センター（以下、動燃大洗と呼ぶ）の高さ約10mの屋上に設置した受水面積0.5m²の大型水盤を用いて1ヶ月毎に降下塵を捕集し、降下塵中の ^{137}Cs を γ 線スペクトロメトリにて測定した。

3. 結果および考察

3.1 チェルノブイリ事故に起因する湖底堆積物中フォールアウト核種

図2に1986年から1994年までに観測した大気からの ^{137}Cs の降下量を示す。チェルノブイリ事故時の影響がもっともあった1986年5月には、 $10^8\text{Bq}/\text{km}^2$ を超える ^{137}Cs の降下があった。その影響は、7月には $10^5\text{Bq}/\text{km}^2$ まで低下し、以後4月頃に若干有意な値が検出されたものの、急速に低下した。

チェルノブイリ事故の影響により、種々の核種が動燃大洗でも検出された⁸⁾。図3に1986年8月20日に採取した湖底堆積物中の主なフォールアウト核種の上流側から下流側にかけての濃度分布を示す。 ^{134}Cs , ^{103}Ru は、半減期が各々2.06年、39.3日であるとともに、降下塵中においても降下量の上昇が観測されたこと等から⁸⁾、チェルノブイリ事故の影響であると考えられる。

図3において、 ^{134}Cs , ^{103}Ru は、上流部の濃度が中

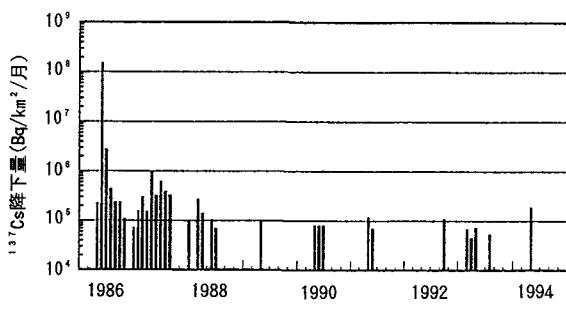


図2 ^{137}Cs の月間降下量

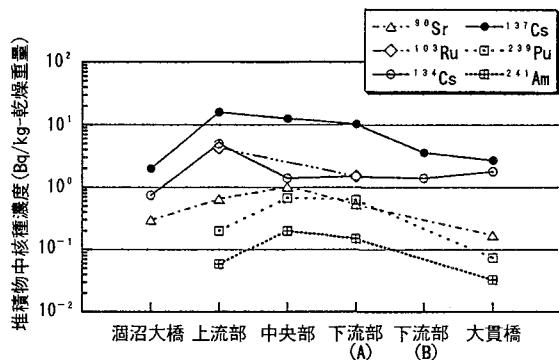
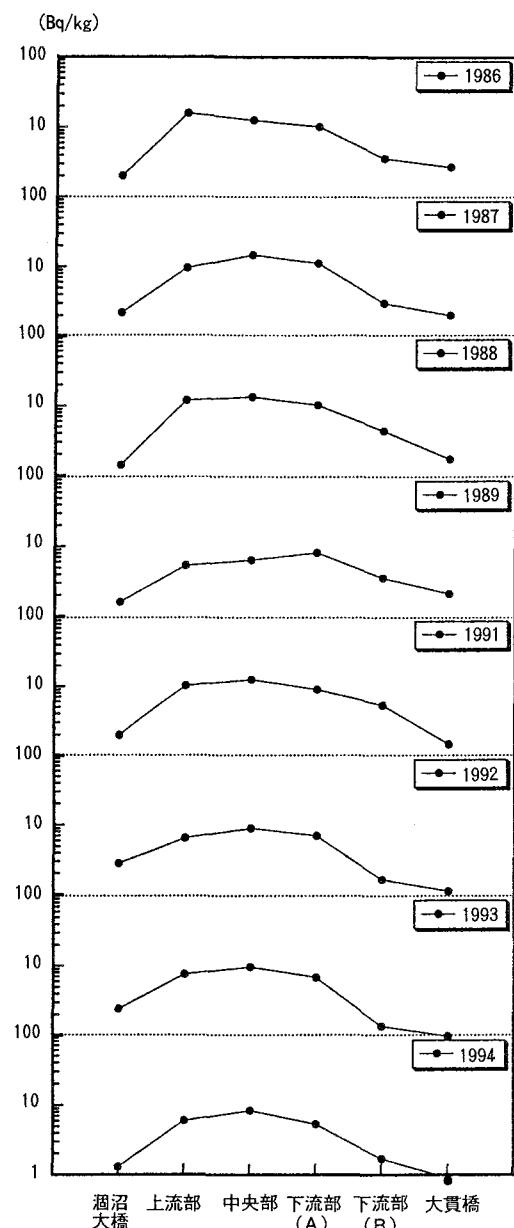


図3 1986年8月20日における涸沼の湖底堆積物中の核種分布

央部および下流部より高い。 ^{137}Cs は、 ^{134}Cs , ^{103}Ru ほど明確ではないが上流部の濃度が中央部、下流部より若干高い。また、図2に示したように ^{137}Cs は、チェルノブイリ事故により涸沼に降下したことが明らかである。これに対して、 ^{239}Pu , ^{241}Am は、中央部の濃度が、上流部、下流部より高い山形の分布を示していた。 ^{90}Sr は、中央部の濃度が上流、下流部より高いものの ^{239}Pu などと比べると、上流部が下流部(A)より高い。 ^{239}Pu , ^{241}Am は、過去の大気圏内核実験による影響でチェルノブイリ事故の影響でないことが降下塵等の分析結果から報告されている⁹⁾。これらのことからチェルノブイリ事故に起因する核種は、いずれも上流部の濃度が高い傾向にあり、それ以外の核種は中央部が高いことが分った。したがって、チェルノブイリ事故時に降下した堆積物中の ^{103}Ru , ^{134}Cs , ^{137}Cs 等の核種は、流域から涸沼上流部に供給されたと推察される。また、涸沼湖底堆積物中の ^{137}Cs 濃度は、約10Bq/kg-乾燥重量であり、流域の陸上土壤と同レベルであった。

3.2 湖底堆積物中 ^{137}Cs 分布の推移

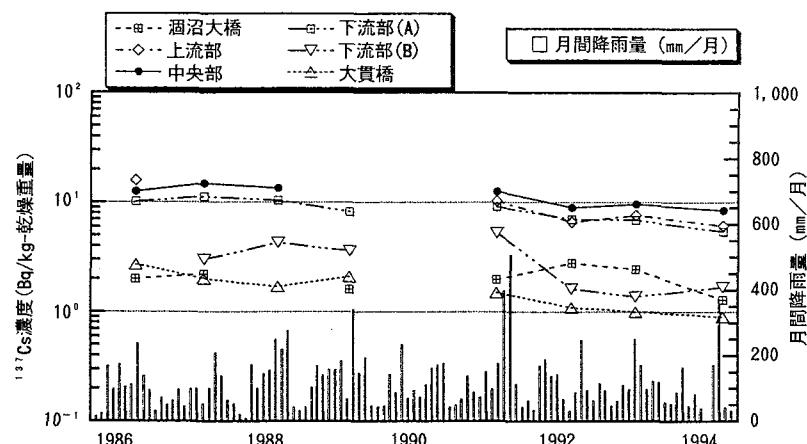
次に、これらの核種の分布がその後どのように推移したかを調査した。図4に1986年から1994年までの涸沼各地点の湖底堆積物中 ^{137}Cs 濃度分布の推移の観測結果を示す。全体的に見ると、1986年から1994年にかけての全地点の平均濃度は、緩やかな減少傾向にあるが、詳細に見ると、1986年の分布は、若干ではあるが上流部の濃度が中央部、下流部に比べ高いことが分かる。しかし、1987年は上流部の濃度が下がり中央部および下流部(A)が高くなつた。つまり、上流部から下流部に ^{137}Cs が移動したように見える。この現象は、1988年から1989年にかけても見られた。1991年から1992年

図4 潤沼湖底堆積物中¹³⁷Cs分布の推移

にかけては、潤沼大橋地点での¹³⁷Cs濃度の急激な上昇、下流部(B)での急激な低下が観測された。また、中央部は、¹³⁷Cs濃度が若干低下したもののはほぼ一定と見なせた。したがって、1991年から1992年にかけては、¹³⁷Csの上流部への流入と下流部から潤沼外への排出が同時に生じ、結果として、中央部の濃度が見かけ上一定となったと考えられる。これらのことから、潤沼においては、¹³⁷Csは、まず上流部に供給され、その後、中央部、下流部に移っていくと考えられる。つまり、流域に沈着した¹³⁷Csの潤沼川経由の上流部供給量が、湖面沈着や潤沼川以外の流入河川等その他の経路を経由して流入する量より多いことが示唆された。

3.3 流域から潤沼への移行に及ぼす降雨の影響

次に、上流部への供給を促す因子を検討する。図2に示したように、¹³⁷Csの降下量は、1986年以降急速に減少した。また、一般的に流域に沈着した物質は、降雨により湖沼に集積される。そこで、降雨量と潤沼各地点毎の湖底堆積物中の¹³⁷Cs濃度の推移を比較してみる。なお、降雨量は、潤沼から約2km離れた動燃大洗のマス転倒式雨量計で連続観測した。図5にその結果を示す。降雨量は月合計値として、同図にヒストグラムで示す。図4で上流部の濃度が比較的高かった1986年、1988年、1991年における湖底堆積物の採取日前1ヶ月間の日降雨強度を詳細に見ると、1986年は198mm/日、1988年は93mm/日、1991年は、6日間の間に40mm/日と40.5mm/日合計85.5mmの降雨があった。しかし、上流部の¹³⁷Cs濃度が高くなかった1987年は17mm/日、1992年は32mm/日と少なかった。ただし、1989年は採取日の10日前に133.5

図5 採取地点別潤沼湖底堆積物中の¹³⁷Cs濃度の推移

mm/日の強い降雨があった。1989年を除き、上流部の¹³⁷Cs濃度が高かった年にはいずれもきわめて強い降雨があったことから考え、上流部に¹³⁷Csを供給する主要な因子は、やはり降雨であることが示唆された。1989年については、各地点ともに¹³⁷Cs濃度が、前年の1988年に比べ低下している。133.5mm/日の降雨前15日間は最高でも4.5mm/日の降雨しか降っていない。つまり、25日間ほとんど雨が降らない状態において、1日のみ強い降雨があった。そこで、133.5mm/日の降雨は、流域から上流部への¹³⁷Csの流入量の増加より涸沼からの排出量の増加に寄与したことが考えられる。この理由としては、単独の強い降雨では、降雨の降り出しに伴い流域からの¹³⁷Csの流入量が増加するが、流入量は降雨が続いても飽和して増えない。しかし、降雨量は増加を続けるため、涸沼に流入する水量および流量率は増加し、堆積物中¹³⁷Csの排出量は増加を続けたと考えられる。

3.4 潟沼内における湖底堆積物中¹³⁷Csの移行

次に、湖底堆積物中¹³⁷Csの移行に及ぼす降雨の影響をさらに確認するため、流入河川部である涸沼大橋地点、流出部である下流部(B)および大貫橋地点における湖底堆積物中¹³⁷Cs濃度変動について検討する。1991年は、9月に397mm/月、10月に507.5mm/月ときわめて多量の降雨があった。日降雨強度は最高191mm/日であり、100mm/日を超える降雨が3回、20~60mm/日の強い雨が連日降り続いた。1991年の湖底堆積物の採取は8月に行っており、これら降雨の前である。図5から涸沼大橋地点、下流部(B)および大貫橋地点の湖底堆積物中¹³⁷Cs濃度を1991年と1992年の値で比較すると、涸沼大橋地点は増加し、下流部(B)および大貫橋地点では減少している。そこで、涸沼大橋地点では、降雨とともに流域からの¹³⁷Csの流入量が増加したが、下流部や大貫橋地点付近では、湖沼からの流出水量増加に伴い湖底堆積物の再浮遊等により¹³⁷Csの排出が活発となり、¹³⁷Cs濃度が低下したのではないかと考えられる。しかし、涸沼中央部の¹³⁷Cs濃度レベルは、図6に示すが同時期の流域の陸上土壤の濃度にほぼ等しく、変動も緩慢で長期的に減少傾向であった。以上のことから、強い降雨により流域からの¹³⁷Csの流入量は増加するが、同時に排出量も増加するため、結果として、涸沼中央部への蓄積作用は小さいことが示唆された。次に、湖底堆積物からの排出量に関係する因子として、浮遊固体物質の分布

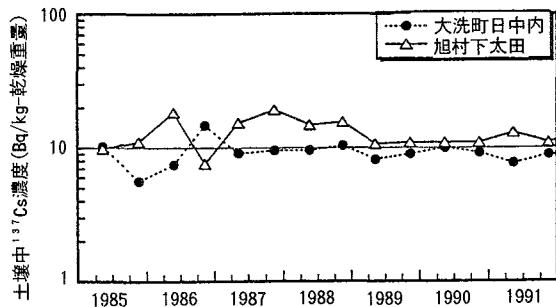


図6 潟沼流域土壤中¹³⁷Cs濃度の推移

について調査した。 $8\mu\text{m}$ のミリポアろ紙でろ過した浮遊固体物質の濃度および流速分布の測定例を図7に示すが、中央部の底層水で特に浮遊固体物質の濃度が高い。また、表層水では、上流部から下流部にかけて浮遊固体物質濃度が上昇している。なお、流向は上流部から下流部に向っており、流速は、中央部では表層、底層の差がなく、ほぼ10cm/sであった。これらのことから中央部の湖底で再浮遊した固体物質が一部は再沈着するものの下流に流れながら上下混合し、表層水の浮遊固体物質濃度を上昇させたことが示唆された。涸沼の排出作用が活発な主要な理由としては、潮汐に伴う流動や地理的状況など種々考えられるが、湖水の流動に伴う湖底堆積物の再浮遊が活発であることも一因であると推察された。

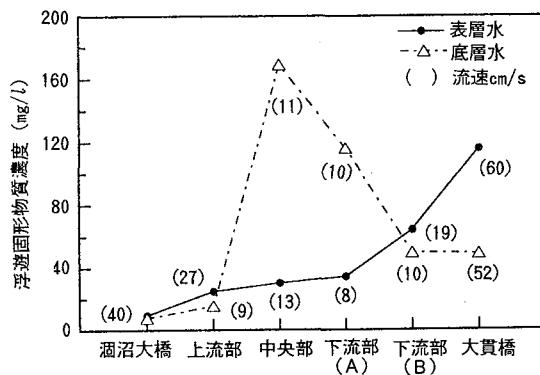


図7 潟沼における浮遊固体物質濃度分布測定結果
(1993年8月4日)

4. おわりに

涸沼における湖底堆積物中¹³⁷Csの濃度の推移を測定し、¹³⁷Csの移行挙動を調査した。その結果、以下の知見を得た。

- ① 潟沼湖底堆積物中の¹³⁷Csは、主に流域

から降雨に伴い主要な流入河川である涸沼川を経由して涸沼上流部に供給される。

② 潶沼中央部の湖底堆積物中¹³⁷Cs濃度は、流域の陸上土壤の濃度にはほぼ等しく、流域から涸沼への流入と、涸沼からの排出がほぼバランスしており、¹³⁷Csの湖底への蓄積作用は小さい。

参考文献

- 1) 武石稔, 井上尚子, 他：“湖沼系におけるフォールアウト核種の挙動に関する調査（I）”, 日本保健物理学会第27回研究発表会要旨集, 27, (1992).
- 2) 武石稔, 中島尚子, 他：“湖沼系におけるフォールアウト核種の挙動に関する調査（II）”, 日本保健物理学会第28回研究発表会要旨集, 28, (1993).
- 3) 武石稔, 佐藤規子, 他：“湖底堆積物吸着放射性核種の再浮遊に関する研究”, 日本保健物理学会第29回研究発表会要旨集, 29, (1994).
- 4) 武石稔, 篠原邦彦：“湖沼系におけるフォールアウト核種の動的移行モデルに関する研究”, 日本保健物理学会第30回研究発表会要旨集, 30, (1995).
- 5) 武石稔, 川村将, 他：“涸沼におけるフォールアウト核種の移行挙動に関する研究（I）”, 保健物理, 28, 283, (1993).
- 6) 環境庁編：“日本の湖沼環境－第3回自然環境保全基礎調査報告書－”, 大蔵省印刷局, (1989).
- 7) 飛田和則, 渡辺均, 他：“動力炉・核燃料開発事業団東海事業所標準分析作業法－周辺環境管理編－”, PNC TN 8520 94-009, (1994).
- 8) 五十嵐孝行, 進藤勝利, 他：“動燃大洗工学センターにおけるソ連 Chernobyl 原子力発電所事故に伴う環境放射能特別調査結果”, PNC TN 9410 86-117, (1986).
- 9) 木下睦, 他：“ソ連 Chernobyl 原子力発電所事故に伴う特別環境放射能調査”, PNC TN 8420 86-10, (1986).



航空機リモートセンシングデータを利用したスペクトル指標による岩相識別

山岸 明子

東濃地科学センター

資料番号：97-8

Lithological Discrimination Using AMSS Data Based on Spectral Indices

Akiko Yamagishi
(Tono Geoscience Center)

航空機搭載の多バンド光学センサーは、変質鉱物や炭酸塩鉱物が特徴的な吸収スペクトルを示す波長域に、数10~100のバンドを有する。したがって衛星データでは、試行錯誤で興味ある岩相の強調を行っていたのに対し、多バンドデータの場合、地質的な解釈の加わった画像を作成することが可能となる。東濃地科学センター・技術開発課では、前報（No.87）の反射スペクトルデータベースを基に、各鉱物に特有の吸収特性を定量化し（スペクトル指標）、そこで求まった変換係数を画像データに適用することによって岩相識別を行った。この手法により砂漠地帯の画像データであるが、ウラン探査に重要な鉱物である緑泥石の分布について、現地調査結果との整合性が確認された。

1. はじめに

最近、数10~100のバンドを有する、高スペクトル分解能の光学センサーを搭載した航空機によるリモートセンシングデータを、地表の変質鉱物の抽出に用いた解析例が報告されるようになってきた^{1)~3)}。動燃事業団においても、ウラン資源探査をより効率的に行う方法の一つとして、岩石の表面反射スペクトル情報に基づき、種々のリモートセンシングデータから岩相区分を行う技術の確立を目指している。

今回はオーストラリア・ジオスキャン社所有の航空機マルチスペクトルスキャナーMKII(Airborne Multi-Spectral Scanner MK II以下、AMSS MK II)のデータを用いて、スペクトル指標に基づく岩相識別法について検討し、ウラン探査に重要な鉱物である緑泥石の抽出を行ったので、その結果について報告する。

2. 背景

数バンドの観測波長領域しか持たない衛星データを資源探査に利用する場合、判読し易い画像を

作成し、その画像からリニアメント（線状の模様）等の地質構造を抽出したり、色調や肌理等の違いで岩相を相対的に区分することが主な作業であった。この時、地質図のない未踏査地域では画像から地質等の絶対的な情報が得られず、岩相区分はあくまでも相対的なものにとどまっていた。一方、今回使用したAMSS MK IIデータは、可視光から熱赤外域の広い領域にわたって24のバンドを持ち（表1）、衛星データよりも多くの地表の鉱物の情報を有している。特にAMSS MK IIのバンド11~18の短波長赤外域は、2.0~2.5 μmに現れる粘土鉱物および炭酸塩鉱物などによる吸収を識別する波長域として有用性が高い。このことから今回、AMSS MK IIデータを用い、衛星データでは識別できない緑泥石の識別を目的として、AMSS MK IIデータのような多バンドデータの処理・解析手法について検討を行った。詳細な検討内容は、第4章で述べる。

3. テスト地域の概要

テスト地域は図1に示すように、西オーストラ

表 I センサーの観測波長域

バンド番号	中心波長(μm)	バンド幅(μm)
1	0.491	0.052
2	0.554	0.068
3	0.622	0.066
4	0.690	0.022
5	0.712	0.021
6	0.734	0.022
7	0.779	0.022
8	0.822	0.020
9	0.864	0.022
10	0.906	0.021
11	2.034	0.044
12	2.082	0.048
13	2.129	0.046
14	2.170	0.044
15	2.217	0.044
16	2.262	0.044
17	2.305	0.046
18	2.345	0.042
19	8.648	0.544
20	9.168	0.512
21	9.624	0.512
22	10.088	0.512
23	10.544	0.496
24	11.016	0.488

リア州北中部に位置するヌラジン川の支流の一部を含む横680ピクセル×縦800ライン(約6.8km×8.0 km)の範囲である。中心位置はおよそ南緯21°38'、東経120°21'、データの取得時期は2月である。テスト地域は標高150~500m程度の丘陵地帯で、降雨もほとんどなく、ヌラジン川の川辺に灌木が見られる他は、主な植生は針葉の葉を持つスピニフェックス(草類、一部山火事により焼失)である。

西オーストラリア州の地質調査所が発行した、ヌラジン図幅⁴⁾によれば、この地域には主に始生代のワラウーナ累層に属する火山岩類と、前期原生代のフォーテスキュ累層に属するマウント・ロウ玄武岩等が見られる。ワラウーナ累層は、珪長

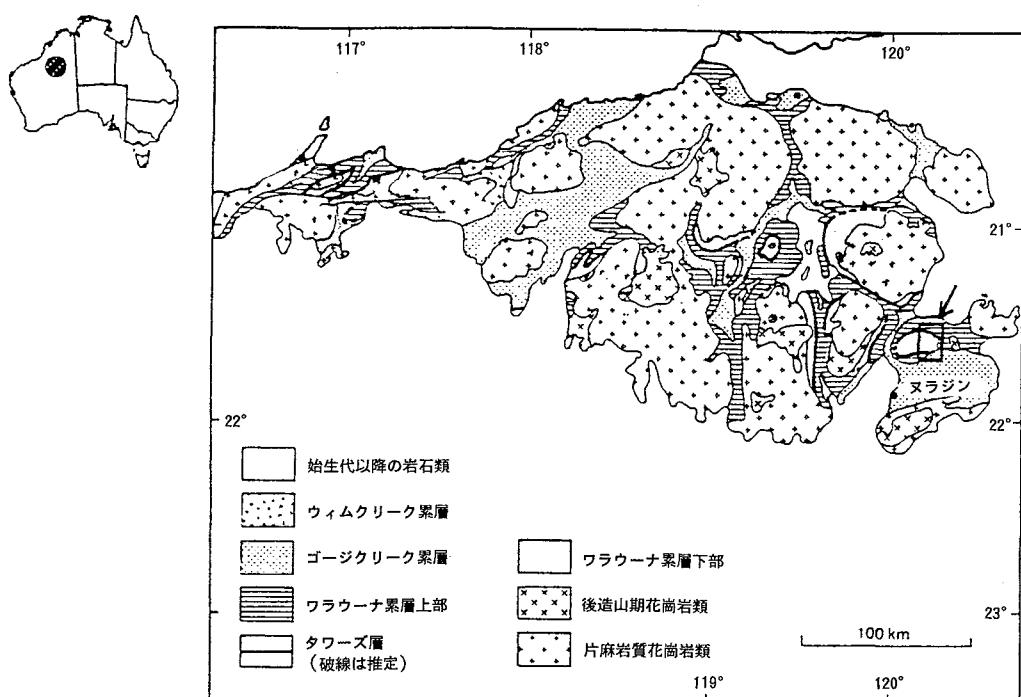
質火山岩類(Aa)、苦鉄質火山岩類(Ab)に分けられ、珪長質火山岩類の岩石(流紋岩や珪長質片岩等)は、絹雲母化、緑泥石化、および炭酸塩化作用を受けている。一方、ワラウーナ累層の半分近くを占めている苦鉄質火山岩類は、角閃岩相の変成作用を受け、主に角閃石-斜長石からなるが、部分的に透角閃石-緑泥石の組合せも見られる。

4. 結果

4.1 解析フロー

図2に岩相識別のための解析手順を示す。図中、右側のフローは、スペクトル指標を求めるための変換係数を、岩石と鉱物の表面反射スペクトルパターンから決定する手順を示す。なお、反射スペクトルデータベースは、米国航空宇宙局ジェット推進研究所(NASA/JPL)が鉱物試料について測定したもの⁵⁾と、動燃事業団がオーストラリアに保有する鉱区内で採取した岩石について測定したもの⁶⁾を使用した。

一方、左側のフローは画像データに関する処理について示したものである。スペクトルパターンを比較するため、画像データを反射率の次元に変換する必要がある。ここでは、ログ残差法⁷⁾を用いて見掛け反射率へ変換し、その変換した画像データに前述の変換係数を適用することによってスペクトル指標を算出した。



出典 : D. R. KELLY, E. PHILLIP, et al : "Geology and Mineral Resources of Western Australia", Geology Survey of Western Australia

図 I データ取得地域の地質概略

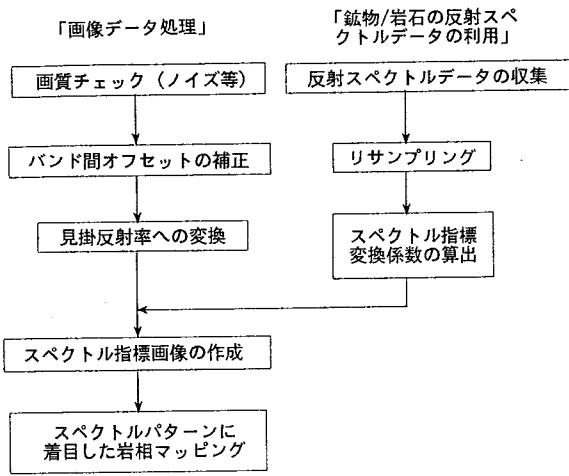


図2 解析フロー

最後に、このようにして得られたスペクトル指標値をもとにスペクトル指標画像の解釈を行った。

4.2 画像データの見掛け反射率への変換

AMSS MK IIデータの観測値は次の近似式によって表わされる。

$$DN = G \cdot (R \cdot I + P) + B$$

ただし、

- DN : 観測された放射輝度（ラジアンス）を2階調で表したデジタル値
- G : 観測機器の設定ゲイン
- R : 地表の表面反射スペクトル
- I : 太陽の入射照度
- P : パスラジアンス（大気による後方散乱等）
- B : 観測機器の設定オフセット

である。

以下、画像の作成は、ジオスキャン社により後方散乱補正の施されたデータを入手し使用した。それに対し、加算的因子である、観測機器によるオフセットを、反射光が0とみなせる河川域におけるバンド毎の最小値として求め、その値を各バンドから差し引いた。

このように画像データを乗法的因素のみにした後、ログ残差法を使って見掛け反射率へ変換した。この方法の導出について以下に簡単に述べる。

ログ残差法は、センサーで観測されるラジアンス（ここではDで表わす）が、地表物質の反射率と地形効果および照射効果の3者の積で表わされるとの仮定に基づき、以下の関係式で表わされる。

$$D_{in} = T_i \cdot R_{in} \cdot I_n \quad (1)$$

ただし、添字のi, nはそれぞれピクセル（画素）とバンドを表わす。また、式中のTは地形効果を、またIは照射効果を表わす。（1）のiピクセルにおける全バンドの幾何平均 D_i は、（2）式のように表わされる。

$$D_i = T_i \cdot R_i \cdot I_n \quad (2)$$

（以下、添字”.”は幾何平均を表わすものとする。）（1）式と（2）式の比を取ることにより、 T_i を除去することができる。

$$D_{in}/D_i = R_{in}/R_i \cdot I_n/I_i \quad (3)$$

さらに、照射効果を除去するために、（3）式からピクセルに関する幾何平均を求める（（4）式）。

$$D_{..}/D_i = R_{..}/R_i \cdot I_n/I_i \quad (4)$$

（3）式と（4）式の比を求めると（5）式になる。

$$\frac{D_{in}}{D_i} / \frac{D_{..}}{D_i} = \frac{R_{in}}{R_i} / \frac{R_{..}}{R_i} \quad (5)$$

このようにログ残差法は、地形の効果と照射の効果を同時に除去し、ラジアンスを地表物質の反射率のみで表わす方法である。実際には（5）式の両辺の対数を取って見掛け反射率を求める。

4.3 スペクトル指標

スペクトル指標は、最初にKauthとThomas⁸⁾によって提案された方法であり、その後、Jackson⁹⁾によって、より一般的なn次元のスペクトル指標の考え方方が提唱されている。ここでは3次元空間における3つのスペクトル指標について検討した。図3に、スペクトル指標変換係数を求めるもとなる、岩石と鉱物の表面反射スペクトル（0.5～2.5 μmの範囲）を示す。

この表面反射スペクトルに対し、AMSS MK IIの応答特性によるリサンプリングを行った（図4）。リサンプリングとは、センサーのバンド毎の応答特性（図4の下方に記す）に対する反射スペクトルの平均反射率を求め、その値をバンドの中心波長での反射率と定義したものである。図5にリサンプリング後の応答パターンを示す。図5から、連続した3つのバンドからなるパターンにより、どのバンド位置に吸収が存在するかがわかる。

緑泥石は、2.26および2.34 μm付近に中程度の吸収を示すが、表1からわかるように、2.34 μm

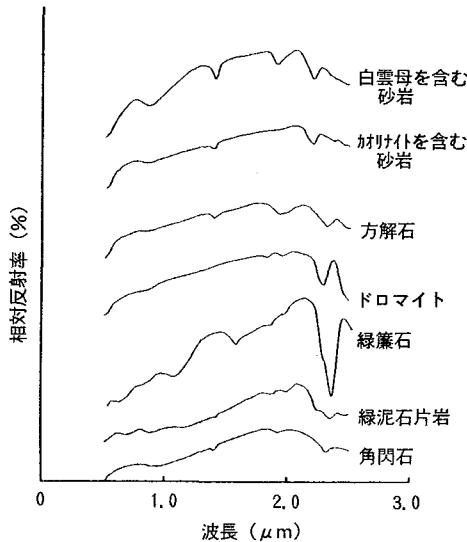


図3 代表的な岩石および鉱物の反射スペクトル

の吸収位置がちょうどAMSS MK IIのバンド18の中心波長に一致する。そこで、バンド(16, 17, 18)が緑泥石抽出に、また、一般的な粘土鉱物である、絹雲母・カオリナイトの抽出には、バンド(14, 15, 16)が有効であると考え、これら2組の連続した3バンドについて、スペクトル指標変換係数の算出を行った。

3次元の変換係数算出として、山口¹⁰⁾がふよう1号の短波長赤外域のバンドを使った提案を行っている。その考えにより、まず連続した3バンドの反射率の値を3次元直交座標にプロットする。

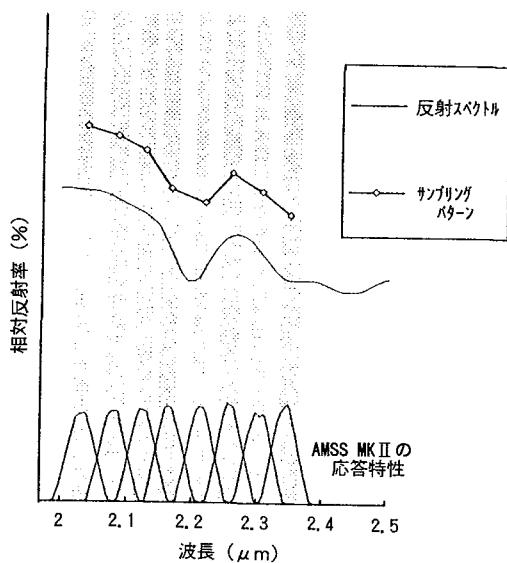


図4 AMSS MK IIに対するリサンプリング

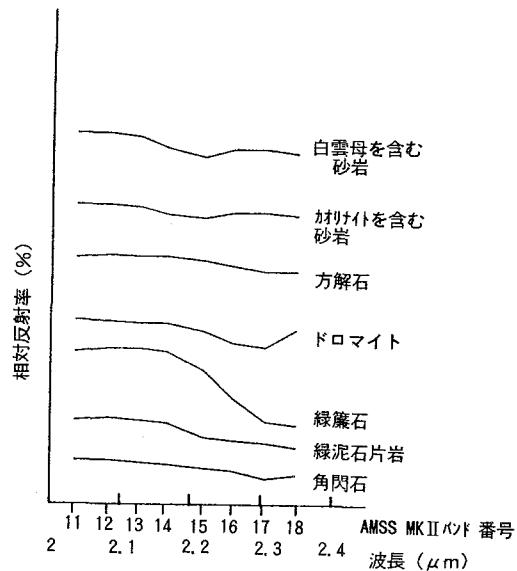


図5 AMSS MK IIに対する反射スペクトルの応答パターン

3バンドすべて同じ反射率であると平坦なパターンになり、その場合、原点と最大反射率の点(100, 100, 100)を結ぶ線上にプロットされることになる(図6)。この線をベースラインと呼ぶが、このラインは対象物の表面の明るさを示す尺度と考えられる。このラインにそった単位ベクトルが、第1のスペクトル指標“brightness”的変換係数となる。

次に他の2つの指標について直交性のあるものの抽出を行った。そのために、3次元空間にプロットされたクラスターが、ベースラインの周りをどのように分布するのか、クラスターをベースラインと原点で直交する平面に投影して調べた。

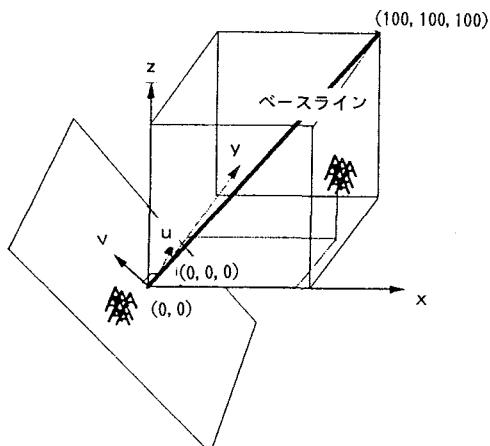


図6 3次元空間におけるベースライン法の概念

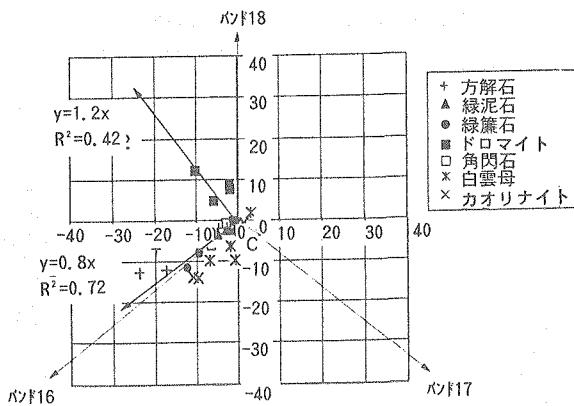


図7 バンド(16, 17, 18)のクラスター プロット

リサンプリングにより得られた39サンプルの岩石と鉱物のスペクトルパターンについて、上記にしたがってバンド(16, 17, 18)の反射率の値を、平面上に投影したものと図7に示す。図7中、バンド17に吸収を示すドロマイ特のクラスターとバンド18に吸収を示す緑簾石・緑泥石のクラスターとがほぼ互いに直交することが読み取れる。すなわち、ドロマイ特のクラスターの方向を示す近似直線は、傾き-1.20であり、緑簾石・緑泥石のクラスターのそれは傾き0.8であって、両者の傾きの積は-1にほぼ等しい。このことから、第2・第3の2つの指標をそれぞれドロマイ特指標(DLI)および緑泥石指標(CRI)と定義することとし、これらの指標を求めるための係数を決定した。

まず“brightness”指標の変換係数は、先述のようにベースラインを表す単位ベクトルを取ればよく、(0.58, 0.58, 0.58)と定まる。その後、DLIおよびCRI指標の変換係数をグラムシュミットの直交化⁹⁾により求めた。その時計算に用いたバンド(16, 17, 18)の反射率を表2に、変換係数の計算結果を表3に示す。各変換係数が単位ベクトルであること、および、各々の係数が互いに直交性を保つことは表3の値からわかる。

次に、バンド(14, 15, 16)の組合せに対しても前述と同じ手順で求めた。この場合、バンド15に相当する波長位置(2.2 μm付近)に吸収スペク

表2 バンド(16, 17, 18)に対するクラスターの反射率平均値

	バンド16	バンド17	バンド18
ベースライン	50.0	50.0	50.0
ドロマイ特群	46.6	38.5	51.0
緑簾石・緑泥石群	34.0	22.2	19.7

表3 スペクトル指標(DLI, CRI)を求めるための変換係数

指標	バンド16	バンド17	バンド18
brightness	0.58	0.58	0.58
DLI	0.14	-0.76	0.63
CRI	0.81	-0.28	-0.51

トルを示す絹雲母等と、吸収を示さないその他の鉱物のクラスターが、ほぼ直交関係にあることがわかったため、絹雲母等を示す指標(SRI)とその他の鉱物を示す指標(OTI)の変換係数の導出を行った。その結果について表4に示す。

表3および表4の変換係数を、図5のようにして求めた、39サンプルのスペクトルパターンのバンド(16, 17, 18)と(14, 15, 16)に適用して指標値を算出し、新たに(CRI, DLI)と(SRI, OTI)を軸とした2次元直交座標にプロットしたものが、それぞれ図8および9である。これらの図から、今回検討に用いた鉱物と輝度の関係は、ほぼ表5のようにまとめられる。

5. スペクトル指標画像とその考察

4.2節で見掛け反射率に変換した画像データ値に、表3および表4に掲げた変換係数を適用してCRI、DLI、SRIおよびOTIを計算し、各々の値をシングルチャンネルとして画像化したものを写真1に示す。写真1の左上のCRI画像を考察すると、輝度が中程度の部分(図中明るいグレーを示す)が、輝度の低い半円弧状に分布する部分を挟んで、上下に半円弧状に2筋分布するのが見られる。

CRI値の輝度が中程度であることから、表5の輝度の尺度により、この部分には角閃石、緑泥石および絹雲母・カオリナイトの存在が予想できる。そこで写真1左下のSRI画像と対比すると、輝度の非常に高い部分と、CRI値の輝度が中程度の部分とが一部重なっている。これから、CRI画像で中輝度を示す部分でかつ、SRI画像では高輝

表4 スペクトル指標(SRI, OTI)を求めるための変換係数

指標	バンド14	バンド15	バンド16
brightness	0.58	0.58	0.58
SRI	0.55	-0.78	0.33
OTI	0.68	-0.03	-0.73

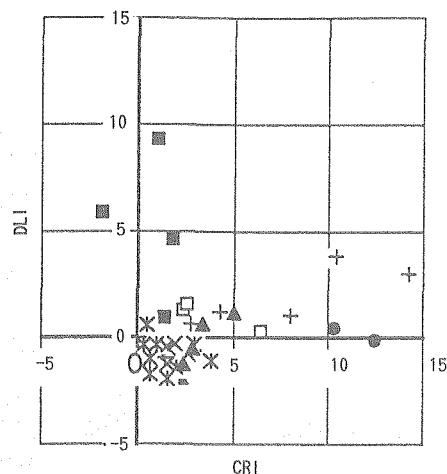


図 8 CRIおよびDLI指標を用いたプロット

度を示す部分に、絹雲母・カオリナイトが分布すると推定される。

このように各スペクトル指標画像の輝度の高低によって、指標に応じた鉱物の存在が推定できるが、カラー化した画像の方がさらに解釈しやすい。そこで、OTI、CRI、およびDLIの3つの画像に色の三原色であるRGBをそれぞれ割り当ててカラー合成画像を作成した。それをヌラジン図幅より抜粋した地質図とともに写真2に示す。合成画像では、緑泥石は黄色、絹雲母・カオリナイトは緑色で示される。画像と地質図とを対比させると、画像中央に分布するマウント・ロウ玄武岩(Pfr)の大部分は絹雲母の存在を示唆する緑色に発色している。現地調査から環状に分布するマウント・ロウ玄武岩は、より古い時代の珪長質岩(Aa)を不整合に覆っているが、下層の絹雲母化作用を受けている珪長質岩がところどころ地表に見られることが確認されている。このため、絹雲母

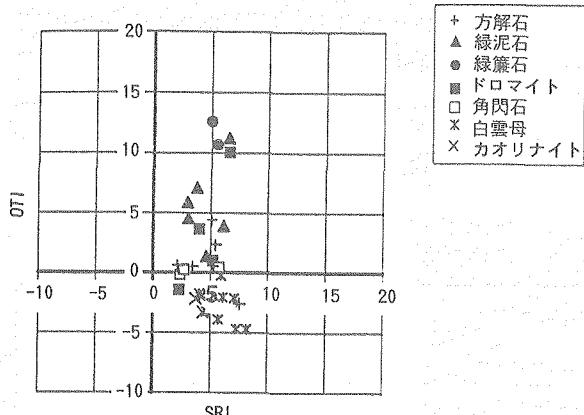


図 9 SRIおよびOTI指標を用いたプロット

表 5 主な鉱物の各指標に対する輝度

鉱物 \ 指標	DLI	CRI	SRI	OTI
角 閃 石	中	中	中	0
緑 泥 石	0	中	中	高
緑 簾 石	0	高	中	高
白雲母・絹雲母	0	0~中	中	0
ドロマイト	高	0	低	中~高
方 解 石	中	中~高	中	低
カオリナイト	0	中	中	0

の効果が画像に現れていると解釈できる。画像中の緑色に発色している場所に、必ず絹雲母が分布するかどうかの調査は行っていないが、少なくとも現地で絹雲母の分布が確認された所は写真2で緑色で示されていた。

一方、苦鉄質火山岩類(Ab)についてであるが、現地調査で、玄武岩は緑泥石化およびカオリナイト化作用を、また、安山岩は絹雲母化およびカオリナイト化作用を受けていることが確認されている。したがって、画像右側の北北東方向の断層より東側の地質図でAbに対応する部分のうち、黄色の分布は緑泥石の分布を示唆すると考えられる。このAbの分布は、南北で色が異なっているが、青色に見える部分にはスピニフェックスが分布することが確認されている。

また、画像北辺に水色系(シアン)とピンク系

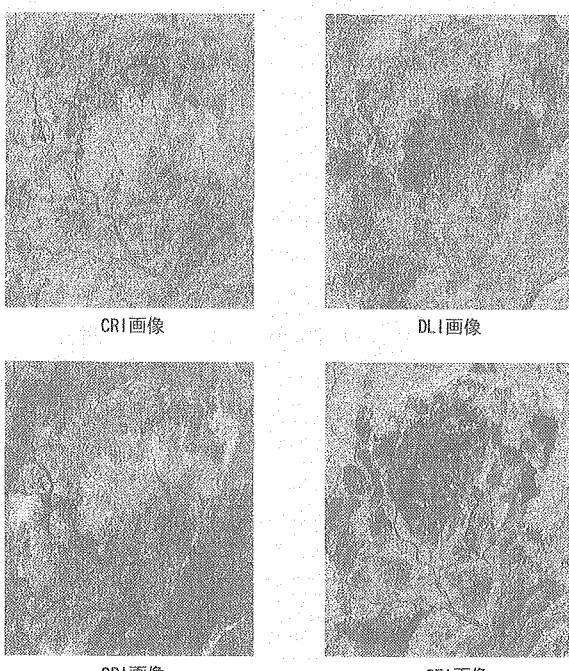


写真1 スペクトル指標画像

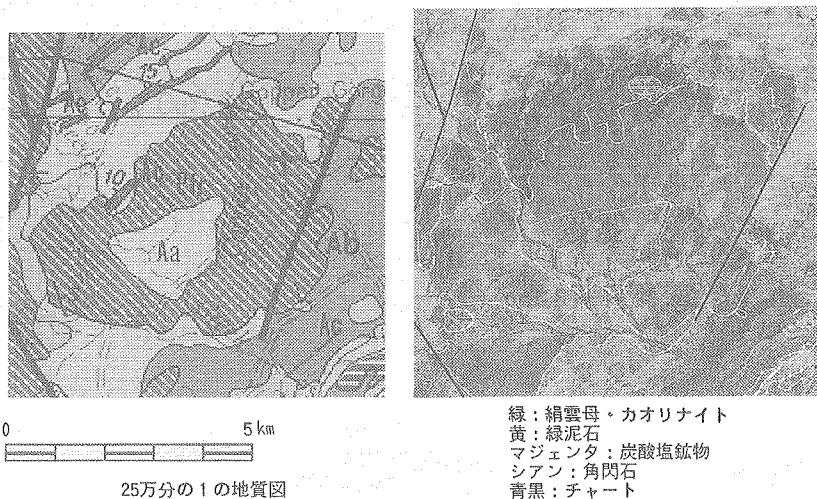


写真2 スペクトル指標を使ったカラー合成画像

(マジエンタ) の分布が見られるが、これらもそれぞれ角閃石と炭酸塩鉱物に対応した色が現れていると考えられる。

6. おわりに

今回、衛星データでは識別のできない緑泥石について、スペクトル指標画像による把握を試み、砂漠地域において良好な結果を得た。これは、使用したAMSS MK IIのバンド仕様が緑泥石による吸収スペクトルの情報を捉えるのに適していたためであり、緑泥石のような中程度の吸収しか示さない鉱物でも、AMSS MK IIデータによる識別の可能性について指摘できた。また、各種鉱物の反射スペクトルから求めたスペクトル指標変換係数は、同じ観測波長仕様を持つ衛星あるいは航空機MSSデータに対しても適用することができ、今後それらMSSデータの処理・解析の際の一つの指針としていきたい。

最後に、パラメータの算出に関してご教示を頂いた、地質調査所の山口靖氏に深く感謝の意を表したい。

参考文献

- 1) 山口靖、浦井稔、他：“スペクトル指標による岩相識別—Geoscan

AMSS MKIによるオーストラリアでの例ー”日本リモートセンシング学会、9、3、291-301 (1989)。

- 2) “半植生地域における変質鉱物抽出技術の研究（その2）”, 平成2年度資源衛星データ解析技術開発調査報告書, 金属鉱業事業団・資源観測解析センター (1991).
- 3) “半植生地域における変質鉱物抽出技術の研究（その2）”, 平成3年度資源衛星データ解析技術開発調査報告書, 金属鉱業事業団・資源観測解析センター (1992).
- 4) A.H. Hickman, :“1:250000 Geological Series Explanatory Notes Nullagine Western Australia”, *Geological Survey of Western Australia Publication SF51-5* (1978).
- 5) C.I. Grove, S.J. Hook, et al: “Laboratory Reflectance Spectra of 160 Minerals, 0.4 to 2.5 Micro-meters”, *JPL Publication 92-2, PNC TL79095-001*.
- 6) “オーストラリアのウラン資源探査地域における岩石の反射スペクトルデータカタログ”, *PNC TN745093-005* (1993).
- 7) A.A. Green, M.D. Craig, : “Analysis of Aircraft Spectrometer Data with Logarithmic Residuals”, *Proceedings of the Airborne Imaging Spectrometer Data Analysis Workshop, Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology, Pasadena CA*, 111-119 (1985).
- 8) R.J. Kauth, G.S. Thomas, : “The tasseledcap—A graphic description of the spectral-temporal development of agricultural crops as seen by Landsat”, *Proceedings of the Symposium on Machine Processing of Remotely Sensed Data, Purdue University, West Lafayette, Indiana*, 41-51 (1976).
- 9) R.D. Jackson: “Spectral Indices in n-Space”, *Remote Sensing of Environment*, 13, 409-421 (1983).
- 10) Y. Yamaguchi, : “Possible Techniques for Lithologic Discrimination using the Short-Wavelength-Infrared Bands of the Japanese ERS-1”, *Remote Sensing of Environment*, 23, 117-129 (1987).



高速炉の受動的炉停止方策に関する研究

家田 芳明 宇都 成昭*

大洗工学センター基盤技術開発部
* 大洗工学センター安全工学部

資料番号97-9

Study on Passive Shutdown Feature for Fast Reactor

Yoshiaki Ieda Nariaki Uto*

(Advanced Technology Division, O-arai Engineering Center,
* Safety Engineering Division, O-arai Engineering Center.)

高速炉の実用化に向けて従来にも増して一般社会が理解しやすい安全性を実現するため、受動的な炉停止方策に関する研究開発を実施している。

現状までに得られた成果は以下の通りである。

- ① 有望な受動的炉停止方策を選択し、プラントに導入する際の適切な組み合わせを見いだす方法論を提案した。また、この方法を用いて、受動的な炉停止方策の推奨される組み合わせ例を提示した。
- ② いくつかの受動的な炉停止方策について、静的な核特性、過渡応答特性を定量化する解析を実施するとともに、構造的具体化を図った。

1. はじめに

高速炉では、通常、原子炉停止系として制御棒による独立した2系統の急速停止系を設置することにより、軽水炉と同等、またはそれ以上の信頼性を確保している。しかし、高速炉の炉心特性を把握し、炉心が十分な安全裕度を有していることを確認する観点から、原子炉停止系の作動失敗を仮想した炉心崩壊事故(Core Disruptive Accident: CDA)の評価が行われている。これに加えて、例え原子炉停止系が作動しない場合でも原子炉が自然に停止しCDAに至ることがないよう、また、仮にCDAへの移行を想定しても自然に事象が終息しその影響が限定されたものになるよう、受動的な安全特性を積極的に活用することが検討されている。

受動的な炉停止方策を実際の高速炉プラントに採用するためには、

- ① 種々の受動的炉停止方策の中から最も適切な方策の選択
- ② 受動的炉停止方策の作動特性等の確認
- ③ 受動的炉停止方策を採用したプラントの過渡特性を評価する解析評価手法の整備

が必要である。原子炉工学室および熱流体技術開発室では、①～③に関連する研究開発を進めている¹⁾。本報では現在までの成果および今後の課題について概説する。

2. 受動的な炉停止方策の比較評価

過去に国内外で種々の受動的な炉停止方策が提案されている。しかし、それらを総合的に相互比較した研究は少ない。そこで、本研究では、まず種々の方策のプラス面、マイナス面を比較し有望なものを選択する方法論を提案し、これを用いて今後の研究開発の対象とする方策の絞り込みを行った。

受動的な炉停止方策を比較評価する方法として、図1に示すような手順を採用了。まず、国内外で過去に提案された種々の受動的炉停止方策を洗い出すとともに新たな方策をいくつか考案した。これらを、「ランク付け」のための評価の観点から採点し、有望な方策を選定した。受動的炉停止方策は多くの場合、単独では炉停止を達成するには不十分であるため、適切に組み合わせて採用する必要がある。組み合わせを決める準備段階

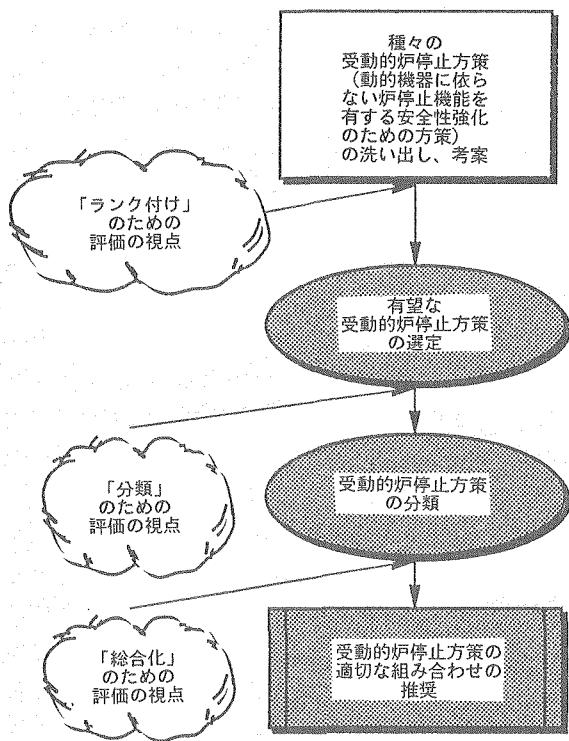


図1 受動的炉停止方策の評価の手順

として、「分類」のための評価の視点で各方策の特徴を分析、分類した。最後に「総合化」のための評価の視点により、プラス面、マイナス面からバランスの良い組み合わせを提案する。

2.1 検討対象とした受動的炉停止方策

検討の対象とした受動的炉停止方策は、以下のとおりである。

- 1) 炉心損傷事故の発生防止機構
 - ① 炉心外への中性子漏洩の促進
 - ・ガス膨張機構(Gas Expansion Module: GEM)²⁾、ナトリウムプレナム付炉心³⁾等、3種類
 - ② 固体吸収材の炉心内への挿入
 - ・キュリ一点式自己作動型炉停止機構(Self Actuated Shutdown System:SASS)⁴⁾、集合体内SASS⁵⁾等、4種類
 - ③ 燃料と吸収材の相対変位
 - ・制御棒駆動軸の膨張促進機構(メカニズム3種類)^{6),7)}
 - ④ 炉心形状の変化
 - ・炉心弯曲効果の促進機構(メカニズム2種類)⁸⁾
 - ・炉心軸方向膨張促進機構(高膨張率材で燃料ピンを支持)⁸⁾

- ⑤ 液体または気体吸収材の炉心内への投入
 - ・燃料ピン上部または下部への吸収材封入⁸⁾

2) 炉心損傷事故の影響緩和

- ① 中性子吸収材の炉心内への投入
 - ・吸収材上部設置型集合体⁹⁾
- ② 燃料の炉心外への排出
 - ・制御棒案内管の薄肉化⁸⁾、中空ペレット⁸⁾、集合体内SASS⁵⁾等、6種類

以上、延べ21種類の受動的炉停止方策を対象に検討を行った。これらの原理については参考文献を参照されたい^{2)~4),6)~9)}。ここでは例として、炉心損傷事故の発生防止、影響緩和の両方に有効であるとして動燃事業団の丹羽らにより考案された集合体内SASS⁵⁾の原理を説明する(図2参照)。集合体内SASSは一種の特殊燃料集合体であり、内部に不活性ガスを満したダクトが設置されている。そのダクトの上部に中性子吸収ボールが低融点合金により保持されている。通常の原子炉停止系が作動しなかった場合でも、炉心冷却材の異常な上昇により低融点合金が溶けて中性子吸収ボールが炉心内に投入され、原子炉が自然に停止する。この機構の作動には電気的な信号の伝達や駆動源の供給を必要とせず、また、落下する中性子吸収材の形状も制御棒とは異なるため、通常の原

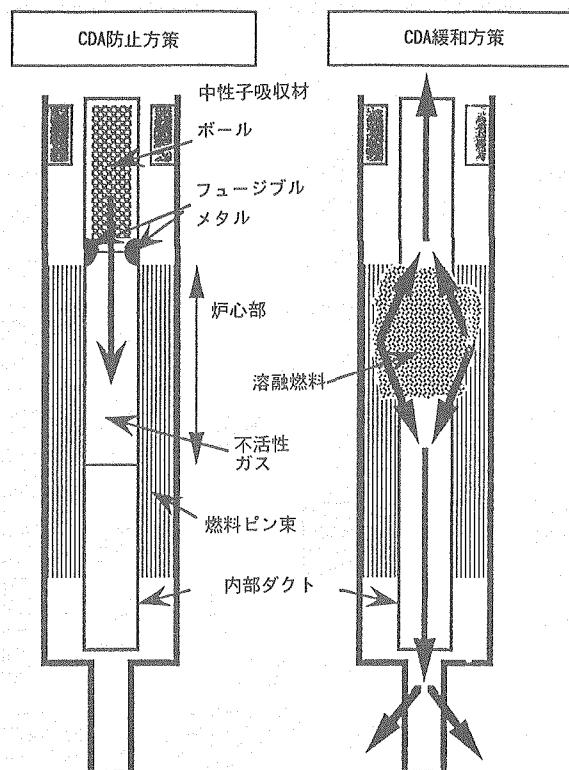


図2 集合体内SASSの概要

子炉停止系との多様性の程度も高い。

一方、仮に中性子吸収ボールが落下せず原子炉停止に失敗したとすると、炉心燃料の溶融に至ることが想定される。しかしこのような場合でも、溶融燃料の温度は3,000°Cを超えていたため、内部ダクトと炉心下部に設けられた仕切り板をラップ管と同様ステンレス系(融点~1,500°C)で構成すれば、これらを通じて溶融燃料を炉心外に有效地に排出することが可能となる。そのため、炉心内での大規模溶融燃料プールの形成による再臨界に至る現象を排除できることが期待される。

2.2 受動的炉停止方策の評価の視点

図3には、受動的炉停止方策の評価の視点を示した。まず「ランク付け」の視点としては、メカニズム、確実性、経済性、運転制御性の4つに大別される合計16項目を設定した。それぞれの項目に対する評価基準を規定し、種々の方策のプラス面、マイナス面の採点に用いる。「分類」の視点としては、メカニズム、事故シナリオとの関連の2つに大別される合計8項目を挙げ、それぞれの方策の特徴を明らかにするのに用いる。「総合化」の視点は、受動的炉停止方策によって、高速炉の安全性を精粗なくバランス良く高めるための着目点を示したものであり、4項目の視点を基に受動的炉停止方策の適切な組み合わせの検討に用いる。各項目についての詳しい説明は、参考文献8)を参照されたい。

例えば、「ランク付け」、「分類」の両方の視点に挙げているメカニズムに係わる評価項目の「受動性の程度」は、炉停止方策が作動する際の外部トリガー信号の必要性および作動原理の物質移動

への依存性により判断した。固体の移動に依存する方策では固体の要素が移動する過程で固着する可能性がゼロとは言えない。物質の移動に依存しない、例えばドップラー反応度を活用したような方策は受動性の程度が最も高く、ランク付けの上では高得点となる。

「総合化」の視点の内、「深層防護」ではCDAの発生防止のみならず、仮に発生した場合の影響緩和への対応も要求することとした。高速炉の安全設計では、CDAに至る要因となり得る事象を網羅的に分析し、十分な対策を施してCDA発生に対する安全上の強固なバリアを確保する。そのバリアとして受動的安全特性を巧く活用したものを見出し、安全上の厚みを増すのが第1のポイントである。一方、仮に想定していなかった要因でCDAに至ったとしても、CDAの事象進展における主要な素過程を捉え、事象進展が緩やかな方向に向かうような方策(影響緩和方策)を施しておけば未知の事象に対する対応も可能となる。これが第2のポイントである。

「多様性の担保」では、共通原因故障をできるだけ排除してCDAの発生頻度をより一層低減させるために、受動的炉停止方策と従来の炉停止系との間の多様性を重視する。

「想定される代表的な事故事象への対応」では、代表的な事故事象すべてに対応可能なように受動的炉停止方策の組み合わせを検討する。少なくとも流量減少型(Loss of Flow: LOF)と過出力型(Transient Over Power: TOP)の両方の事象への対応を考慮しておく必要がある。

「事故シーケンス全体への抜けのない対応」では、事故シーケンス全体に対して有効となるよう

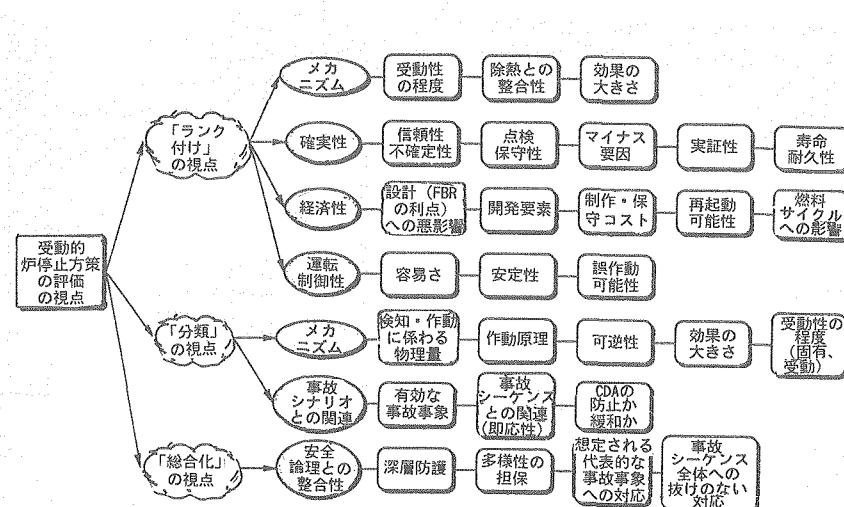


図3 受動的炉停止方策の評価の視点

な受動的炉停止方策の組み合わせを検討する。特に負の反応度効果を現すまでの時間遅れが大きい方策は即効的な方策と組み合わせたり、効果が可逆的で事象推移とともに正の反応度を投入するような方策は他の非可逆的な方策と組み合わせたりすることが重要である。

2.3 有望な受動的炉停止方策の選定

「ランク付け」の視点による評価結果のまとめを表1に示す。前述の16の評価項目について、それぞれA～Cの3段階で採点した。利点が多い方策を明らかにするためAランクとなった評価項目の数を（加点法）、また、欠点の多い方策を明らかにするためCランクとなった項目数と具体的な項目名を（減点法）示した。なお、各項目の評価基準および詳しい評価結果については、参考文献8）を参照されたい。

表より、キュリ一点式SASSや制御棒駆動軸の膨張促進機構は利点が多く欠点がほとんどない方策といえる。評価結果から、有望で今後研究開発の対象とすべき方策を選択した。ただし、今回の評価は半定量的な評価であることから、この結果

表1 「ランク付け」の視点による評価結果総括表

	受動的炉停止方策	総合評価	
		加点法 (Aランク数)	減点法 (Cランク数および項目)
① C D A の 発 生 防 止	GEM	10	0
	Naブレナム付き炉心	9	0
	人工的リードチャンネル：先行的Na沸騰	4	2（除熱との整合性、点検保守性）
	フローティング型SASS	5	I（点検保守性）
	キュリ一点式SASS	13	0
	中性子束高により中性子吸収材の炉心混入	7	I（点検保守性）
	集合体内SASS	7	I（点検保守性）
	制御棒駆動軸の膨張促進機構	14	0
	炉心内の集合体拘束方式の工夫	8	4（点検保守性、開発要素、再起動可能性、誤作動の可能性）
	ラップ管バッドの剛性強化	11	0
② C D A の 影 響 緩 和	膨張率の高い材料で集合体内燃料を支持	6	0
	燃料ビンへの吸収材封入	5	4（効果の大きさ、点検保守性、燃料サイクルへのインパクト、誤作動の可能性）
	I) 吸収材上部設置型集合体	7	0
	集合体内SASS機構（影響緩和）	7	0
	中空ペレット	9	0
	人工的リードチャンネル：先行的燃料放出	3	I（開発要素）
	軸ブランケット短縮化	6	0
	集合体スペーサーバッドの軸方向間隔の確保	5	2（効果の大きさ、マイナス要因）
	制御棒案内管の薄肉化	11	0

のみから小数の方策に絞り込むことは現時点では得策でないと考え、特に欠点が多く利点が余り多くないいくつかの方策のみ、例えば、人工的リードチャンネル、出力／流量比を他の集合体より大きくした集合体を負のボイド反応度領域に設置し、ナトリウム沸騰を先行的に発生させるものを研究開発対象から外すべきものと判断した。有望なものとして選定した方策を、表1の方策名の欄に網掛けして示した。今後、より定量的な評価を実施して、有望な方策をさらに絞り込んでいく予定である。

2.4 受動的炉停止方策の分類

有望なものとして選択した方策を「分類」の視点により分類した結果の概要を表2に示した（詳しくは参考文献8）参照）。表から、単独で十分な反応度効果を有する方策は主に固体吸収材を落下させる方策であるということに気が付く。その他の方策については、おおむね、他の方策との組み合わせが必要となる。また、有効な事象が限定される方策、即応性に欠ける方策、可逆的な方策についても他の方策との組み合わせが必要である。作動原理についても示したが、通常の炉停止系との多様性の観点から着目すべきポイントである。これらの知見は、次項の組み合わせの検討に活かされる。

2.5 受動的炉停止方策の組み合わせの検討

表2の分類結果を参照しながら、「総合化」の視点に基づいて、受動的炉停止方策の組み合わせを検討した（図4参照）。

独立2系統の制御棒により構成される通常の炉停止系は、安全裕度を持って十分に大きな負の反応度効果を有しており、また、十分に高い信頼性を有している。炉停止系の信頼性をさらに高めようとする場合は、受動的な炉停止方策を付加することが効果的である。「深層防護」の観点から、受動的な炉停止方策として、CDAの発生防止に効果的な方策と影響緩和に効果的な方策の両方を導入することが望まれる。CDAの発生防止方策としては、通常の炉停止系が作動しない場合でも崩壊熱レベルまで炉出力を低減できる程度の、また、影響緩和方策としては、炉心が損傷した状況においても炉心を恒久的な未臨界状態に維持できる程度の負の反応度効果を有するものを選択する必要がある。

まず、CDAの発生防止方策について考察する。十分な負の反応度効果を有する方策としては、

表2 「分類」の視点による分類結果の概要

受動的炉停止方策	検知・作動に係わる物理量	作動原理 (負の反応度効果の印加原理)	可逆性	負の反応度効果の大きさ (崩壊熱相当まで出力低下させる反応度を基準として) ○: 単独で十分 △: 組合せ必要	受動的性の程度 (固有か受動か)	有効な事故事象		事故シーケンスとの関連 (即応性) ○: 複合せ不要 ×: より即応的な方策との組合せ必要	CDAの防止か緩和か
						LOF	TOP		
GEM	炉心冷却材流量	中性子漏洩+吸収	非可逆的	○	受動	○	×	○	防止
Naブレナム付き炉心	ナトリウムブレナム部冷却材密度	冷却材密度係数+ボイド反応度	可逆的	△	固有	○	○	○	防止
フローティング型SASS	炉心冷却材流量または集合体上部構造材料温度	固体吸収材落下	非可逆的	○	受動	○	○	○	防止
キュリー点式SASS	制御棒駆動部温度	固体吸収材落下	非可逆的	○	受動	○	○	○	防止
中性子束高により中性子吸収材の炉心混入	炉内中性子束	固体吸収材落下	非可逆的	○	受動	○	○	△	防止
集合体内SASS	集合体上部構造材料温度	固体吸収材落下	非可逆的	○	受動	○	○	△	防止
制御棒駆動軸の膨張促進機構	制御棒駆動軸温度	固体吸収材押し込み+落下	非可逆的	○	受動	○	○	○	防止
ラッパ管パッドの剛性強化	ラッパ管温度	炉心形状変化	可逆的	△	今後のR&Dで固有に近付ける	○	○	△	防止
膨張率の高い材料で集合体内燃料を支持	炉内構造材料温度	炉心形状変化	可逆的	△	固有	○	○	○	防止
吸収材上部設置型集合体	集合体上部構造材料温度	固体吸収材落下	非可逆的	○	受動	○	○	—	緩和
集合体内SASS機構(影響緩和)	集合体上部構造材料温度・燃料温度	融融燃料排出	非可逆的	○	固有に近い	○	○	—	緩和
中空ペレット	燃料中心部温度	融融燃料排出	非可逆的	△	受動	×	○	—	緩和
軸プランケット短縮化	燃料温度	融融燃料排出	非可逆的	△	受動	○	○	—	緩和
制御棒案内管の薄肉化	燃料温度	融融燃料排出	非可逆的	○	固有に近い	○	○	—	緩和

GEM、集合体内SASS等が挙げられる。しかし、「想定される代表的な事故事象への対応」の観点から考察すると、特定の事象のみに有効な方策は他の方策との組み合わせが必要になる。表2の分類結果を見る限りは、互いに補完し合う適切な組み合わせは考えられない。特定の事象にのみに有効な方策は、結局、広い範囲の事象に有効な方策との組み合わせが必要になってしまい、採用する意味が小さい。したがって、比較的広範囲の

事象に対応できる炉心の温度上昇をトリガーとするようなタイプの方策を選択することが望ましい。反応度効果の大きさも加味すると、固体吸収材の落下、挿入により負の反応度効果を投入する方策の中から適切なものを選ぶことになる。

「多様性の担保」の観点から考察すると、固体吸収材を落下、挿入するタイプの方策は、検出信号が不要で能動的な手段に依存しないという点で有効である。しかし、固体吸収材を落下、挿入す

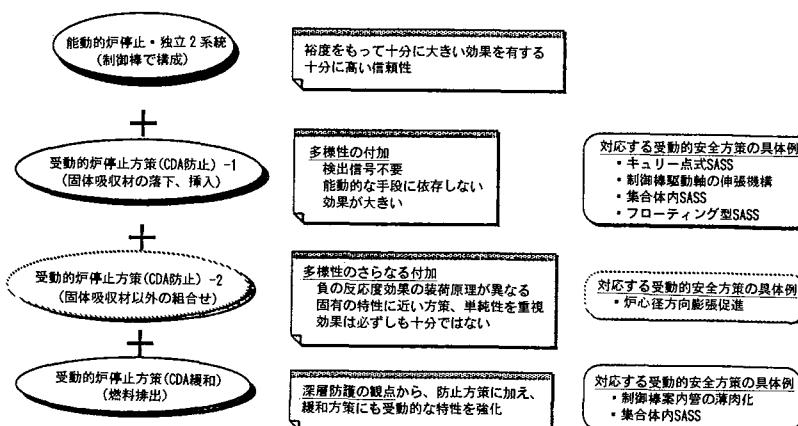


図4 受動的炉停止方策の組み合せの推奨例

るという原理自体は通常の炉停止系と類似である。他の原理の方策と組み合わせることによって、さらに多様性を高めることができると望まれる。また、このタイプの方策は、作動までの時間遅れが存在し即効性に欠けるものもある。「事故シーケンス全体の抜けのない対応」の観点からは、即効性の高い方策との組み合せが望ましい。これら2つの主旨から付加するCDA防止方策としては、炉心特性に対する悪影響が小さく、また、コストアップに繋がらないものであれば、温度上昇等に伴う高速炉固有の物理的変化を負の反応度投入に巧く活用できるような設計上の工夫、例えば、炉心の径方向膨張を促進するような方策ができるだけ多く取り込むことが望ましい。

次に、CDAの影響緩和方策について考察する。これまでの解析的知見によれば、溶融燃料を炉心外に排出することがCDAの影響緩和にきわめて有効であるとされている⁹⁾。さらに、「多様性の担保」の観点からも、固体吸収材を落下する方式よりも溶融燃料を炉心外に排出する方式が望ましく、制御棒案内管の薄肉化や集合体内SASSが候補として挙げられる。前者は従来の炉心構造物に軽微な変更を加えるのみであり、炉心設計への影響は小さい。後者はCDA発生防止方策と共に機構を活用でき、また、必要体数を装荷した場合でも反応度損失が過大にはならない。よって、両者とも採用する上での課題は比較的少ないと考えられる。一般に、CDAの事象進展における主要な素過程は種々の起因事象に対して共通となるため、その素過程を捉えて事象進展が穏やかな方向へ向かうような緩和方策を施せば、「想定される代表的な事故事象への対応」の観点からも効果が大きい。

以上の検討結果から、受動的な炉停止特性を強化する方法の一例として、以下の方策を組み合わせて採用することが考えられる。

① 集合体内SASS

② 制御棒軸伸長促進機構

③ 炉心径方向膨張の促進機構（炉心温度上昇時の炉心変形により正の反応度が投入されることがないようにラッパ管のパッドの剛性等を工夫する）

④ 制御棒案内管の薄肉化

①、②、③はCDAの発生防止に、①、④は影響緩和に効果的な方策である。①は十分大きな負の反応度効果を投入するために装荷するものである。②～④は、炉心構造物の大幅な変更を要せず、従って炉心設計や経済性に与える影響は比較

的小さいと考えられることから、受動的安全方策として適用する価値は高いと言える。ただし、誤作動の防止や作動の信頼性等について、今後炉外試験等を通じ確認することが必要である。また、これらの受動的炉停止特性をお互いの干渉効果を含めて定量評価していく必要がある。

3. 受動的炉停止方策の設計の具体化

3.1 負の反応度効果の定量評価

前章では、種々の受動的炉停止方策を総合的に評価し、実際の高速炉に適用する際の適切な組み合わせ案を提示した。評価に当たっては簡易計算等も行ったが、基本的には定性的な評価である。現状では各方策に関する知見が不十分なため、最もの方策を確定することが困難で、有望なものとして比較的多種の受動的炉停止方策を選び、今後の選択の幅を広くしている。しかし、研究開発の深さを増すにつれて、より小数の方策に絞り込んでいく必要がある。絞り込みのためには、高速炉の炉心にそれぞれの方策を実際に導入した状態を想定し、より定量的に利点、欠点を評価する必要がある。特に、それぞれの方策が有する負の反応度効果を明らかにし、どの程度の数量導入する必要があるのか、それが核設計に悪影響を及ぼさないのかを確認する必要がある。

出力100万KWeの混合酸化物燃料を用いた高速炉レファレンス炉心を設定し、種々の受動的炉停止方策を導入した場合の静的核特性解析を実施した。同一の炉心に種々の受動的炉停止方策を導入した場合を想定した定量的な比較は、過去の研究においてもほとんど実施されていない。代表的な方策に関する解析結果を表3に示した。炉心サイズ一定の条件で、投入可能な負の反応度効果（利点）と、炉心内にそれぞれの方策を設置したこと

表3 代表的な受動的炉停止方策の反応度効果および反応度損失

方策	動作原理	上段：反応度効果[Δk/kk ²] / 下段：反応度損失[%Δk/kk ²]			
		0.25	0.5	0.75	1.0
GEM	冷却材動圧により圧縮されていたガスが冷却材流量喪失により炉心部へ延伸 → 炉心外への中性漏洩促進	[Bar chart]	72体設置	150体設置	(反応度損失 = 0 % Δk/kk ²)
制御棒軸伸長促進機構	制御棒駆動軸に設置された熱膨張促進材が異常な温度上昇時に膨張 → 制御材の炉心への部分挿入	[Bar chart]	25体C/R 10cm伸長	25体C/R 20cm伸長	(反応度損失 = 0 % Δk/kk ²)
集合体内SASS	温度感知の低融点金属に支持され、集合体上部に設置された吸収材が、異常な温度上昇による金属の溶融により支持力を喪失 → 吸収材自由落下	[Bar chart]	3体設置	6体設置	
フローティング型SASS	冷却材動圧及び温度感知の低融点金属に支持され、集合体上部に設置された吸収材が、冷却材流量喪失または異常な温度上昇による金属の溶融により支持力を喪失 → 吸収材自由落下	[Bar chart]	6体設置	12体設置	

による反応度損失（欠点）とを、設置数量をパラメータにして棒グラフで表している。GEMは、炉心の外周部に設置するため反応度損失は無視できる程度であるが、100万KWe程度の大型炉心では150体設置した場合でも負の反応度効果は1.5\$程度である。制御棒駆動軸の軸伸長機構については、主および後備炉停止棒全数（25本）に設置することを想定しており、特別な炉停止径を付加するものではないので、反応度損失は無視できる。投入できる負の反応度は、伸長量が10cm程度では1\$強である。CDA発生防止の観点からは、燃料破損が生じる可能性の小さい炉心冷却材の温度上昇の範囲（200°C程度の温度上昇）で20cm程度の伸長が期待できる機構とすることが望まれる。集合体内SASSは、3体という小数の設置によっても2\$以上の負の反応度効果を期待できる。小数の設置で良いため、反応度の損失も比較的小さく、有望な方策といえる。フローティング型SASSは、動圧により吸収材を浮遊させるという要求条件から1体当たりの負の反応度効果が限定され、集合体内SASSよりは多い6体の設置体数が必要となり、反応度損失も相対的に大きくなる。

核的な特性を定量評価した結果としては、表中の4方策の中では、制御棒駆動軸の軸伸長促進機構と集合体内SASSが有望な方策と評価される。

3.2 受動的炉停止方策の構造の具体化

研究開発の対象として選定した受動的な炉停止方策について、その特性を調べる基礎試験を行う準備として、構造の具体化を進めている。例として、集合体内SASSについて紹介する。集合体内SASSの原理については第2章で説明した。構造の具体化のキーポイントは、ボロン球の支持方式の選定、低融点金属の材料選定、作動遅れ時間の短縮等である。

暫定的に設定した構造を図5に示す。ボロン球の支持方式としては、支持板を低融点金属製の工具で湖底する方式とした。低融点金属としては、種々の合金をサーベイした結果、成分比により物性値が変化する合金よりは単体金属を採用した方が温度設定点等の不確定性が小さくなることを重視して、アルミニウムを選定した。また、集合体内SASS機構の内部ダクト周辺に設置した3列の燃料ピン束間を流れた冷却材が、時間遅れなく低融点金属を過熱するような構造としている。さらに、構造検討の結果、通常運転状態でのボロン球の冷却やボロンの(n, α)反応で発生するヘリウムガスによる内部ダクト内の圧力上昇にも考慮

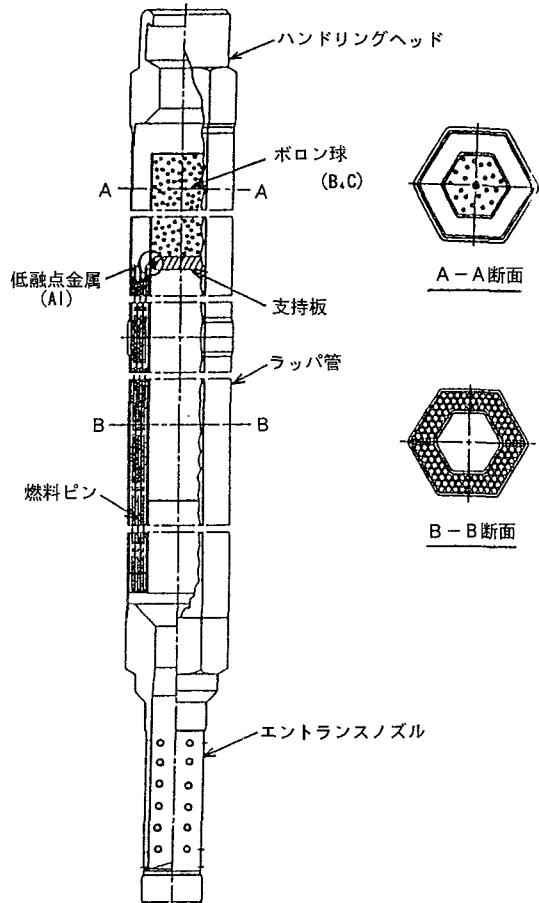


図5 集合体内SASSの構造の具体化

した設計とする必要があることが明らかとなった。今後、作動特性試験を実施しながら構造の詳細化を進めることとしている。

4. 受動的炉停止方策を導入したプラントの過渡応答評価

受動的な炉停止方策の有効性を確認するためには、静的な特性のみならず、実際にそれを導入したプラントの事故時の過渡対応特性を確認する必要がある。

4.1 集合体内SASSを導入したプラントのULOF時の過渡応答特性

集合体内SASSを設置した高速炉について、流量喪失事象時に通常の炉停止系が作動しなかった場合(Unprotected Loss of Flow: ULOF)を想定し、プラント応答を解析した。解析結果の一例を図6に示す。なお、この解析例では、ポニーモータへの引き継ぎに失敗し、自然循環流量に移行する状況を想定した。事象発生後、流量と出力のアンバランスにより炉心の温度が急激に上昇する。

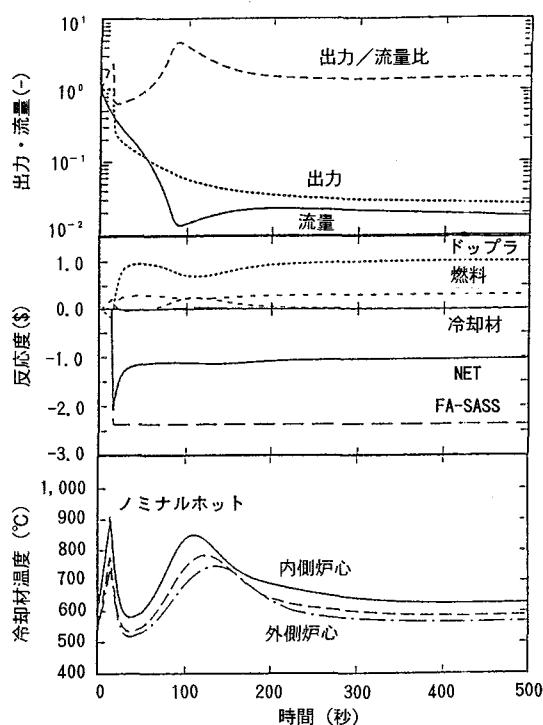


図 6 集合体内SASSを設置した高速炉におけるULOF時のプラント応答

このケースでは、約15秒で集合体内SASSが作動し、ボロン球が炉心内に投入されるため出力が低下する。最終的には自然循環流量と出力がほぼバランスし、事象は静定しており、集合体内SASSの受動的な炉停止特性が有効に機能していることが判る。

解析結果は低融点金属の溶融設定温度・溶融遅れ時間等によって大きく異なり、条件によっては一時的な冷却材の沸騰や燃料の溶融が生じる。今後、プラント過渡応答解析や基礎試験、特性確認試験を実施し、受動的な炉停止特性が有効に機能するような条件を確認しながら集合体内SASSの構造設計を詰めていく予定である。

4.2 プラント過渡応答評価手法の今後の開発課題

受動的な炉停止方策は、一般的には、従来の能動的な炉停止装置ほど大きくかつ即効的な負の反応度を投入できない。前述の解析では、複数体設置した集合体内SASS機構が全数同時に作動するものとしている。しかし、現実には炉心内に温度分布が存在するため、最も温度が高くなる位置に設置された1体がまず作動することになる。これにより炉心の出力がある程度低下するため、同時に全数が作動すると仮定した場合よりも事象の進

展が緩慢になる可能性がある。また、1体のみが作動した状態では炉心の出力に局所的な歪みが生じるという点について、大型炉においては特に留意する必要がある。このような事象進展の特徴は、キュリ一点式SASS制御棒駆動軸の軸伸長機構を採用した場合でも同様である。このため、受動的な炉停止方策を採用したプラントの安全評価には、事象進展の緩慢さ、作動の非同時性やそれに伴う局所的な出力歪みを十分考慮した上で対象とする方策の有効性を確認できるよう解析評価手法を整備する必要がある。

まず、事象進展の緩慢さと関連する問題として、炉心の出力が、定格運転条件と崩壊熱条件との間の中程度の状態に長時間維持される可能性が指定できる。この程度で、場所によってはナトリウム沸騰に至ることも有り得る。高出力状態ではないため、沸騰が生じても比較的長時間にわたって燃料ピンを安定に冷却できる可能性がある。プラントの安全裕度が適切に担保されていることを定量的に示すには、このような条件下でのナトリウム沸騰現象を精度良く評価できる解析コードを整備することが重要となる。特に、並列複数チャンネルで沸騰が生じた場合の流動安定性や、従来の安全評価では重視されていなかった凝縮過程に関する評価手法の高度化が重要である。現在、関連する2相流相関式を整備するための試験計画を進めている。

一方、受動的炉停止方策の作動の非同時性や過渡的な炉心の出力歪みに関しては、プラント動特性解析コードを高度化し、3次元核特性を考慮できるようにする必要がある。そこで過去の動特性関連の文献を基に具体的な方法の選定について検討した。

体系に何らかの摂動が生じた場合、ある遷移時間を経た後、中性子束分布は漸近的形状（すなわち摂動後の体系に対し最終的に形成される中性子束分布）に到達する。ところが、一般に高速炉は即発中性子寿命が短く、かつ中性子平均自由行程が長いため、摂動による核的な応答が体系全体に伝わる時間は極めて短くなる。そのため、摂動を受けた体系の中性子束は遷移時間を費やす、言い換えれば摂動を受けると同時に漸近的形状に到達するという、いわゆる準静近似による評価が十分妥当であるとされている¹¹⁾。

準静近似をさらに近似した、遅発中性子先行核分布の中性子束分布形成に対する時間遅れが無視できるとする断熱近似によっても、我々が対象としている比較的緩慢な反応度印加事象に対しては

十分な精度を有することが確認されている^{11),12)}。

断熱近似法に基づく3次元核特性を考慮した動特性解析は、新たな3次元空間依存動特性解析コードの開発を必要とせず、静的核特性解析コード、フローネットワークと1点炉近似動特性解析に基づくプラント動特性解析コード、さらには摂動計算コードといった既存の使用実績豊富な解析コードをインターフェイスコードにより結合するのみで実効可能である。したがって、コード群の整備期間、解析の簡便性並びに解析精度を勘案し、断熱近似法に基づく解析コード群の整備が最も妥当であるとの結論に達し、現在整備を進めている。

5. おわりに

高速炉の実用化に向けて従来にも増して一般社会が理解しやすい安全性を実現するため、受動的な炉停止方策を採用することが検討されている。本報では、受動的な炉停止方策に関して原子炉工学室と熱流体技術開発室で進めている研究開発の成果と今後の課題を解説した。現状までに得られた成果は以下の通りである。

- 1) 種々の受動的な炉停止方策について、プラス面、マイナス面を総合的に比較し、有望な方策を選択し、プラントに導入する際の適切な組み合わせを見いだす方法論を提案した。
 - 2) 上記の方法を用いて、受動的な炉停止方策の推奨される組み合わせ例を提示した。
 - 3) いくつかの受動的な炉停止方策について、核的な特性を定量化する解析を実施した。その結果、制御棒駆動軸の軸伸長機構と集合体内SASSは、負の反応度効果が十分に大きく、設計への悪影響が小さい有望な方策であることを明らかにした。
 - 4) 集合体内SASSの構造の具体化を図った。
 - 5) 集合体内SASSを導入したプラントのULOF時の過渡応答解析を実施し、受動的な炉停止特性が有効に機能する見通しを得た。
- また、今後の課題として、以下の項目が挙げられる。
- ① 有望な受動的炉停止方策について、特性

確認試験とプラント過渡応答解析を進めながら、設計の詳細化を進める必要がある。

- ② 炉心の局所的な出力歪みを考慮したプラント過渡応答や部分出力状態での冷却材の沸騰現象等を対象とした解析評価手法の高度化を進める必要がある。

6. 謝辞

本報告の内、集合体内SASSの構造検討およびそれを採用したプラントの過渡応答評価に際しては、東芝の遠藤寛氏、秋田晴夫氏、有吉昌彦氏に技術的な支援をしていただいた。ここに感謝の意を表します。

参考文献

- 1) Y.Ieda, H.Niwa, et al. : "Assessment of Proposed Passive Prevention and Mitigation Measures for Future Fast Breeder Reactors", Proc.of Int'l.Top. Mtg Advanced Reactor Safety (ARS'94), Pittsburgh, (1994).
- 2) J.B/Waldo, et al.: "Application of the GEM Shutdown Device to the FFTF Reactor", *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 53, 312 (1986).
- 3) V.I.Matveev, et al.: "Physical Grounds for Further Improvement of Fast Sodium Power Peactor Safety", *Intl. Fast Reactor Safety Mtg.*, Snowbird, Utah, Aug.12-16 (1990).
- 4) R.B.Tupper, et al.: "Development of a Self-Actuated Shutdown System", *ASME-JPGC-NE-8* (1981).
- 5) 丹羽元、飛田吉春：特許出願中
- 6) K.Satoh, et al. : "A Study of Enhanced Safety Systems for LMFBRs", *Intl. Conf. Design and Safety of Advanced Nuclear Power Plants* (ANP92), Tokyo, Oct.25-29 (1992).
- 7) M. Edelmann, et al. : "Enhanced Thermal Expansion Control Rod Drive Lines for Improved Passive Safety of Fast Reactors", *Intl. Conf. Design and Safety of Advanced Nuclear Power Plants* (ANP92), Tokyo, Oct.25-29 (1992).
- 8) SERAPH計画技術検討グループ：“FBR安全性炉内試験計画（SERAPH計画）の検討”，動燃事業団成果報告書PNC TN9410 94-154 (1994).
- 9) 林 秀行, 私信 (1992).
- 10) H.Miwa: "Future Research Needs on Material Interaction and Relocation in LMER Safety", Proc. of Technical Committee Mtg. on Evaluation of Material Coolant Interaction and Material Movement and Relocation in Liquid Metal Fast Reactors, IAEA-IWGFR, O-arai, (1994).
- 11) K.O. Ott, D.A. Meneley: "Accuracy of the Quasistatic Treatment of Spacial Reactor Kinetics," *Nucl. Sci. Eng.*, 36, 402 (1969).
- 12) W.M. Stacey, Jr.: "Space-and Energy-Dependent Neutronics in Reactor Transient Analysis", *Reactor Technol.*, 14, 169 (1971).



「常陽」照射用炉心の炉心冷却材 流量配分評価

鈴木 俊宏 磯崎 和則 鈴木 惣十

大洗工学センター実験炉部

資料番号97-10

In-core Flow Rate Distribution Measurement Test of the
JOYO Irradiation Core

Toshihiro Suzuki Kazunori Isozaki Soju Suzuki
(Experimental Reactor Division, O-arai Engineering Center)

高速実験炉「常陽」照射炉心（MK-II炉心）第29サイクル運転後の炉心構成において、炉心構成要素を流れる冷却材流量を電磁流量計により直接測定し、流量配分が適切に行われていることの確認、および解析予測流量との比較評価を実施した。

「常陽」は、照射用炉心として約38,000時間運転され、燃料集合体等の炉心構成要素も延べ約550体が交換されていることから、炉心構造物の経年変化、燃料集合体交換等による影響に着目し、測定評価した。

この結果、「常陽」は炉心構造物等の経年変化の影響はなく、流量配分が適切に行われていることを確認した。

1. はじめに

高速実験炉「常陽」の照射用炉心（MK-II炉心）定格第29運転サイクル後の炉心体系において、増殖炉心（MK-I炉心）の性能試験から数えて第5回目（MK-II炉心では3回目）の炉心内流量配分測定試験を実施した。

今まで「常陽」は、MK-II炉心初臨界以来約38,000時間運転され、計30サイクル以上（第0サイクル含む）の定格運転と延べ約550体の炉心構成要素（燃料集合体、反射体等）交換を通して、数多くの照射試験用集合体による照射試験を行ってきた。今回の測定試験は、現在動燃事業団において進めている「常陽」の照射能力高度化計画（MK-III計画）への炉心移行前に、炉心の健全性を確保する上で極めて重要な冷却材の炉心内流量配分が、MK-II炉心の最終段階においても集合体出力に応じて安定かつ適切に維持されていることを確認する目的で実施したもので、特にJ2燃料の採用による高燃焼度化や炉心構成物の経年変化の影響の有無等に着目して評価を行った。

2. 系統設備の概要

2.1 原子炉本体

図1に原子炉の概略構造を示す。原子炉は、主な構造物として原子炉容器、その内部に設置される炉心構成要素である燃料集合体、反射体、および炉心上部機構ならびに原子炉容器上部に配置した回転プラグ等により構成される。

2.2 炉内冷却材流路

図2に炉心構造物の断面を示す。原子炉容器入口ノズルから下部プレナムに流入した冷却材は、炉心支持構造物の周りに設けられている開孔を通って高圧プレナムに流入する。高圧プレナムに流入した冷却材は二つに分岐し、一方は高圧プレナム内の炉心支持板連結管の開孔を通って炉心燃料集合体に流入し上部プレナムに至る。もう一方は、高圧プレナムより低圧プレナムに、エントランスノズル先端部にスリットが設けられている一部の反射体、および各炉心構成要素エントラスノズルの連結管下部嵌合部から流入し、制御棒、反射体、および中性子源等の炉心構成要素を通過

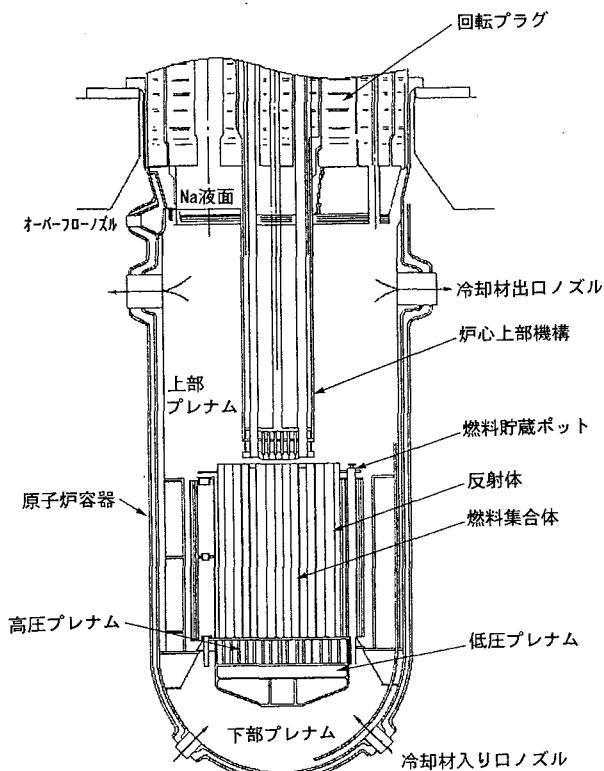


図1 「常陽」原子炉容器概略構造

して上部プレナムに至る。上部プレナムに流入した冷却材は、原子炉容器出口配管から流出する。

以上に説明した炉心内における冷却材の流路を、ブロック形式にまとめたものを図3に示す。

3. 試験内容

図4に示すように、「常陽」ではこれまでに、MK-I炉心において、MK-I性能試験時（1977年6月実施）、およびMK-I第5運転サイクル終了時（1981年10月実施）の2回、MK-II炉心においては、MK-II性能試験時（1983年1月実施）、およびMK-II第7運転サイクル終了時（1985年4月実施）の2回、合わせて4回の炉心内流量配分測定試験を今回と同様の方法で実施し、適切な流量配分がなされていることを確認してきている。

3.1 測定装置の概要

(1) 測定装置

図5に炉心内流量配分測定装置の概略図を示す。また、測定装置内電磁流量計の概略図を図6に示す。

本装置は、上下駆動機構と流量検出ポールより構成されており、検出ポールの先端には永久磁石式の小型電磁流量計および熱電対が組み込まれている。また、付帯設備としてドアバルブ、軸封装置、

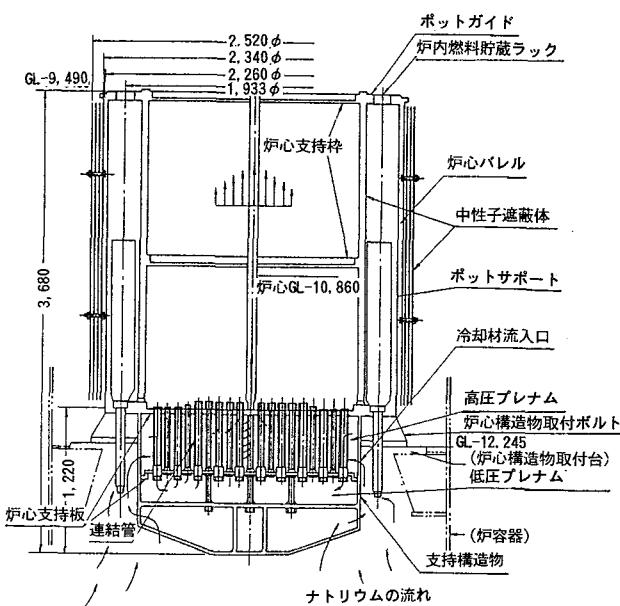


図2 炉心構造物断面

およびガス配管ラック等がある。これら付帯設備を回転プラグ上の燃料交換機孔に据付け、流量検出ポールを付帯設備を通して炉内に挿入する。

炉内に挿入した流量検出ポールは、通常の燃料交換の要領で大・小回転プラグを回転させることにより位置決めを行い、燃料集合体他の炉心構成要素のハンドリングヘッド頂部に着座させること

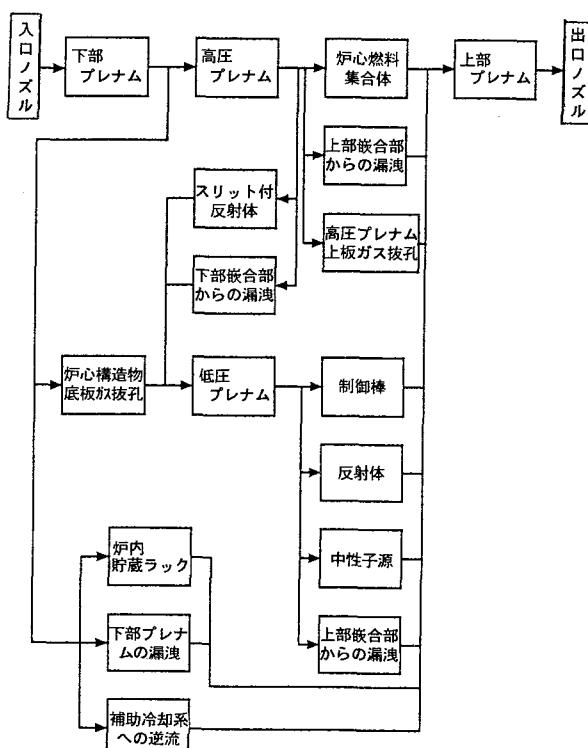


図3 炉心冷却材流路

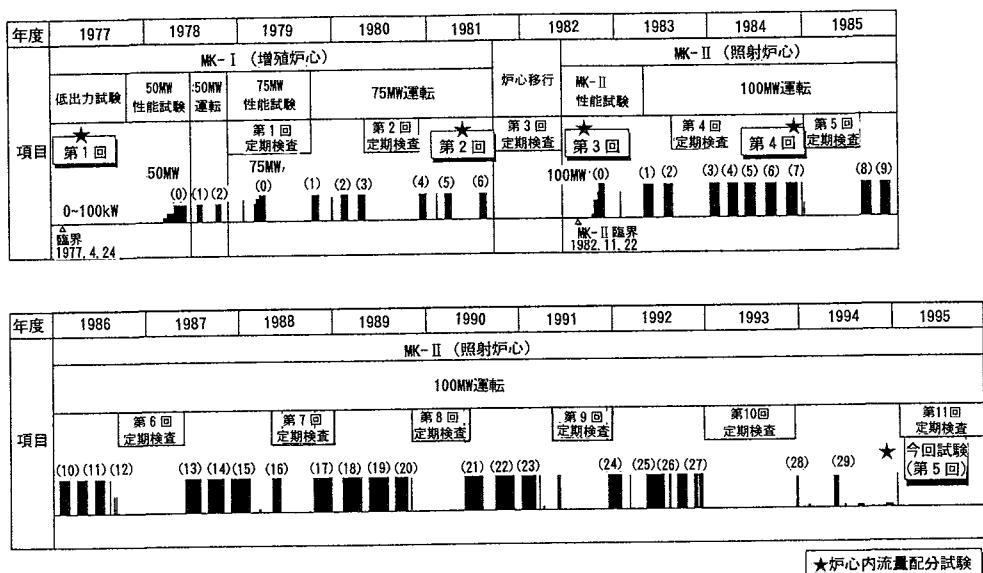


図4 高速実験炉「常陽」運転サイクルと炉心内流量配分測定試験

により流量測定を行う。

(2) 計測システム

本試験の計測システム概略ブロック図を、図7に示す。

流量検出ポールからの流量信号は、直流増幅器により50倍に増幅し、計算機室に設置される炉内

流量データ収録装置に入力する。また、熱電対からの温度信号は、補償導線により零接点温度補償器を介して、流量信号と同様に計算機室の炉内流量データ収録装置に入力する。

データ収録では、測定装置からの流量信号と1次系主流量の流量信号を1秒周期でサンプリングし、100回の平均値をデータとして採用した。温度信号に関しても同様の方法とした。採取した

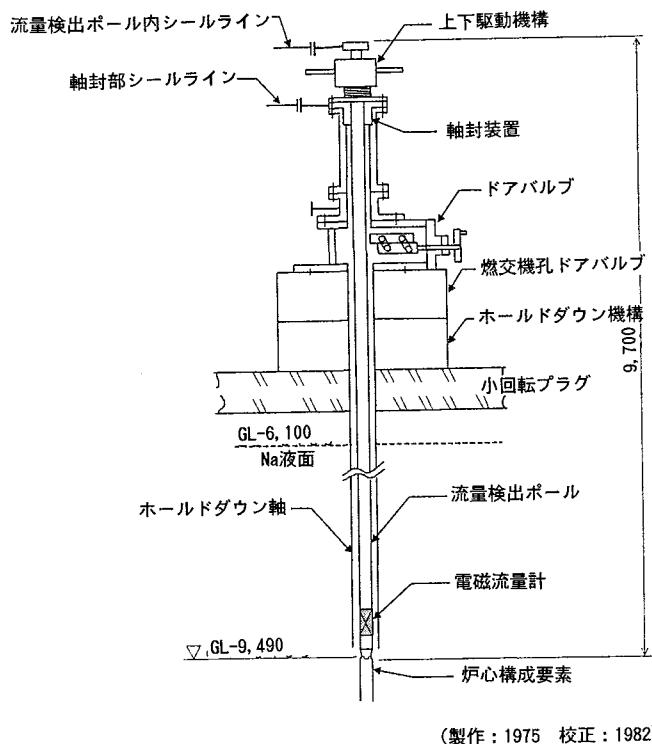


図5 炉心内流量配分測定装置概略図

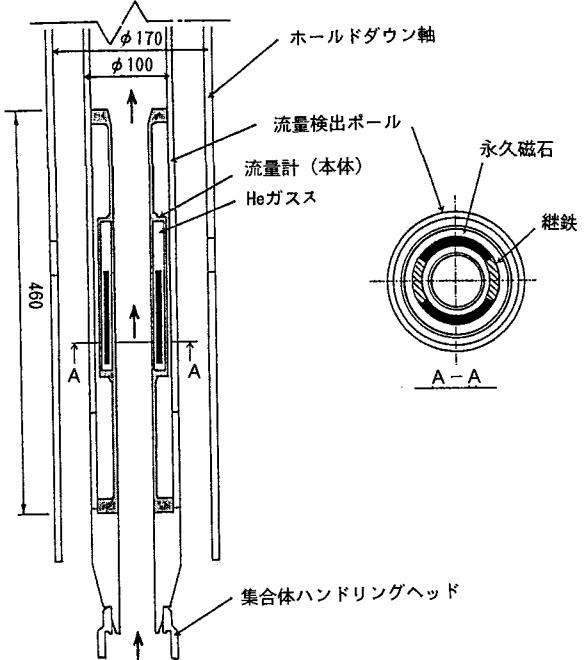


図6 測定装置内電磁流量計概略図

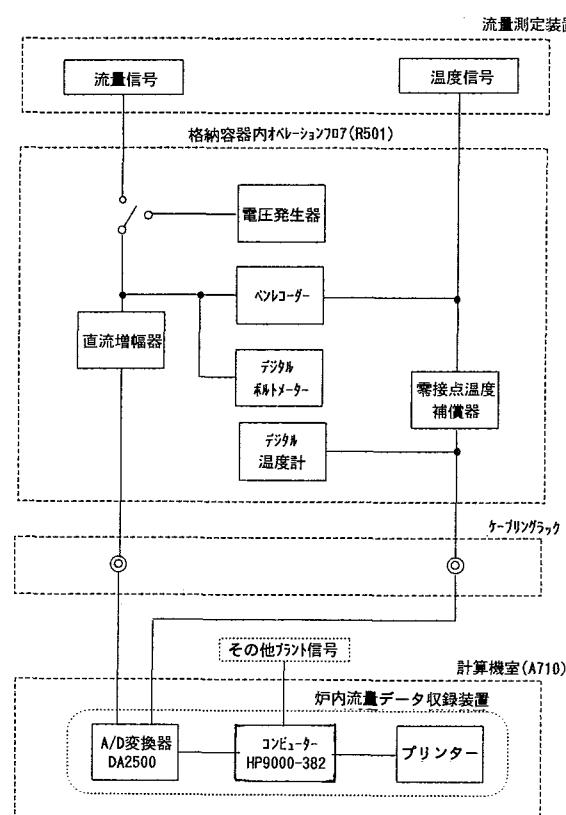


図 7 測定システムブロック図

データは、フロッピーディスク等の外部記憶装置に保存するとともに、プリンタに出力する。

また、以上の構成とは別に、試験中におけるデータの監視のため、格納容器内オペレーションフロア上にて流量信号（増幅前）をデジタルボルトメータで、流量計温度をデジタル温度指示計で監視し、それをパンレコーダで記録する構成とした。

(3) 測定装置の校正

本測定装置内の電磁流量計は、製作から20年(1975年製作)、試験での使用回数3回、前回の校正(1981年10月)から14年、および前回の試験(1985年4月)から10年が経過しているという状況にあり、流量計の特性変化による測定精度の低下が懸念された。このため、「流量配分測定試験」の前に「流量計特性確認試験」を実施し、1次主冷却系に設置されている本設の流量計との相対校正を行い、特性の経年変化を補正することで測定精度を確保した。

3.2 試験方法

(1) 流量計特性確認試験

「流量計特性確認試験」は、流量計を通過する

冷却材流量と流量計の出力電圧から、それらが比例関係にあるかどうか（直線性があるかどうか）、前回試験のデータと比較してどう変化しているか（特性変化があるか）を確認するものである。測定の結果、流量計の特性に変化が生じていれば、測定した流量を正しく評価するための補正係数を算出する。

試験は、中心燃料集合体アドレス[000]に流量検出ポールを着座させた状態で、1次主循環流量を0%から20, 40, 60, 75, 90, 100%と変化させて各ステップの安定時に測定を行い、1次主循環流量と中心燃料集合体流量の関係から電磁流量計の特性の確認を行った。

なお本試験は、流量配分測定試験実施期間中の特性変化が生じなかったことを確認するために、試験前と後の2回実施した。

(2) 流量配分測定試験

流量配分測定試験では、定格運転時の炉心内流量配分状態を想定した1次系90%流量の「高流量配分測定試験」と、燃料交換時およびポンモータによる崩壊熱除去運転時を想定した1次系20%流量の「低流量配分試験」の2条件で測定を行った。

「高流量配分測定試験」の1次系流量(90%)は、制御棒浮き上がり防止の観点から設定されたものであり、従来の試験条件に合わせている。しかしながら、実際に制御棒の浮き上がりが発生しないことを、核計装応答を監視することにより試験中も確認した。

それぞれの測定値は、「常陽」の運転監視コードシステム“MAGI”中の、フローネットワークモデルを使用して解析した解析値と比較し評価を実施した。

以上に述べた流量配分測定試験の実施フローを図8に示す。

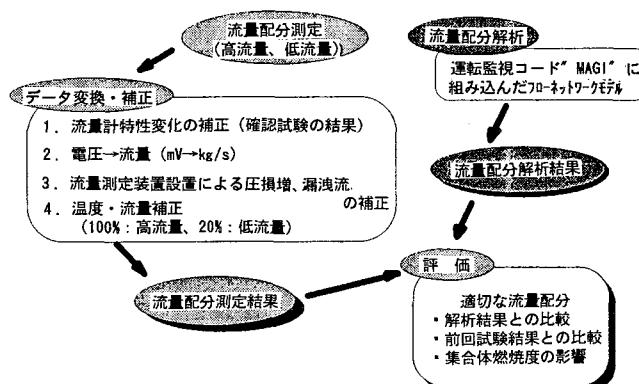


図 8 流量配分測定試験実施フロー

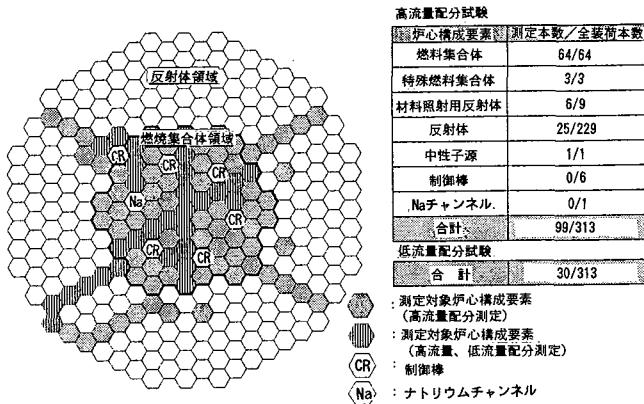


図9 測定対象炉心構成要素

(3) 測定対象の選定

図9に、測定を行った炉心構成要素を示す。

試験での測定対象炉心構成要素は、前回試験結果との比較の観点、および試験期間との関係から、基本的に以下のように設定した。

① 高流量配分測定試験

燃料集合体は、「冷却材の必要流量確保の確認」の観点から、炉心構成要素の中でもっとも重要なものであるため、前回試験に合わせて64体全数について測定した。

反射体についても、前回試験と同様の25体について測定した。その測定位置は、原子炉容器内の周方向流量配分の対称性を確認するため、前回試験と同様に原子炉入口ノズルが設置されている方向と、それから約60度ずれたノズルを設置していない方向の反射体について測定した。

さらに、今回炉心に装荷されている特殊燃料集合体、および1991年の第9回定期検査時に移設された制御棒廻りの炉心構成要素の流量を測定した。

今回の高流量配分測定試験で測定した炉心構成要素は、計99体である。

② 低流量配分測定試験

前回試験と同様に、高流量配分測定試験の1/3程度の炉心構成要素について測定した。

燃料集合体は、中心燃料集合体アドレス[000]を通り基本方位方向の1列と、それから60度ずれた方向の列について流量を測定した。

反射体は、高流量配分測定試験の反射体側定位位置を中心に、データの連続性を考慮した列について測定を実施した。

また、移設した制御棒廻りの集合体、反射体についても測定を実施した。

今回の低流量配分測定試験で測定した炉心構成要素は、計30体である。

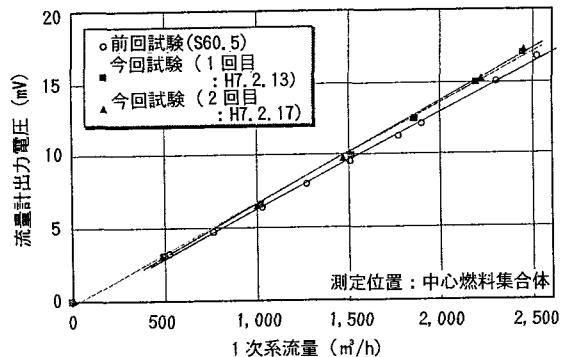


図10 流量計特性確認試験結果

4. 試験結果

4.1 流量計特性確認試験

今回の試験における流量計特性確認試験の結果を図10に示す。

1次系流量に対する流量計出力の直線性は維持されており、1回目と2回目の測定データ間にはほとんど差はなかった。しかし、前回試験と比較すると、直線の傾きが大きくなつた（感度が上昇した）ことから、流量配分測定試験結果に対して、この変化分の補正を加えた。

4.2 流量配分測定試験

図11に流量配分測定試験における、燃料集合体、反射体の集合体列毎にまとめた流量の測定値と解析値を示す。

高流量配分測定試験での、燃料集合体領域の測定値は、炉心中心部の第0、1列で約9 kg/sで、燃料集合体領域外側の5列に向かうに従って徐々に減少し、5列では約6 kg/s程度の流量配分であった。測定値と解析値との差は、0~3列の範囲で測定値の方が解析値より多め、4列がほぼ一致、5列では解析値の方が多め、という結果が得

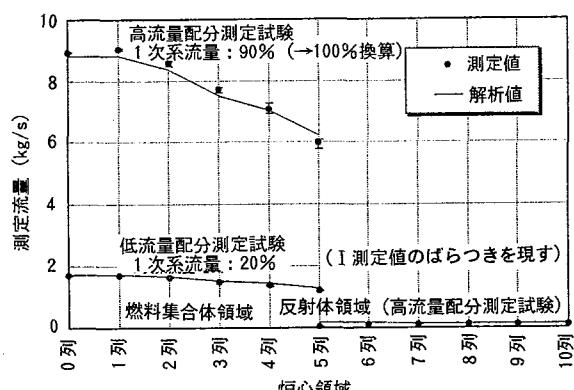


図11 流量配分測定試験結果

られ、約+3%～-4%の差であった。また、外周部側(4、5列)で測定値のばらつきが大きくなる傾向にあった。また、反射体領域では、燃料集合体に比較して非常に流量が少なく、流量測定値と解析値の差の割合は大きくなつたが、その絶対量の差は約0.1kg/s以下であった。

低流量配分測定試験における燃料集合体領域の測定値は、炉心中心部の第0、1列で約1.7kg/s(1列平均値)で、燃料集合体領域外側の5列に向かうにしたがって徐々に減少し、5列では約1.2kg/s程度の流量配分であった。また、解析値との差は、絶対値で0.1kg/s以下であり、その差の割合としては1～3列の範囲で解析値より約1～2%低めの値、4、5列で解析値より約5～7%低めの値となつた。

また、原子炉容器内のノズル方向、非ノズル方向という周方向の流量配分という観点においても、その分布がばらつくような特異なものはなく、良好な対称性が得られていることが分かった。

5. 検討・評価

5.1 前回試験結果との比較

高流量配分測定試験における燃料集合体について流量を比較したものを図12に示す。

測定値、解析値とも今回試験の方が流量が多めで、その差は測定値で0.08kg/s以内である。燃料集合体の列毎の流量配分の傾向としては、前回試験、今回試験ともほぼ同様で、燃料集合体の1列から4列まで測定値の方が解析値より多めで、5列のみ解析値の方が多めの値を示した。

その他の炉心構成要素についても、前回試験と今回試験の流量配分の傾向に変化はほとんどなく、MK-II炉心運転時間の増大に伴う、炉心平均燃焼度増大、集合体交換本数の増大、および炉内構造物等の経年変化の影響は現れておらず、適

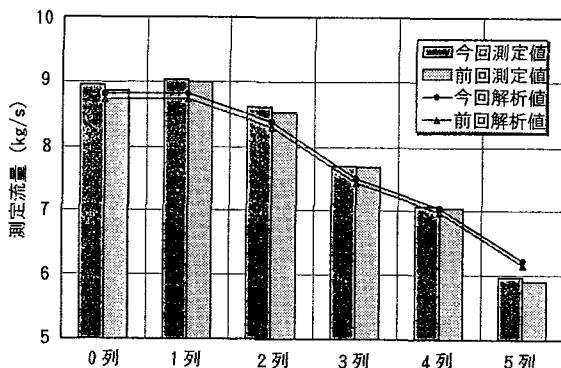


図12 前回試験と今回試験の比較

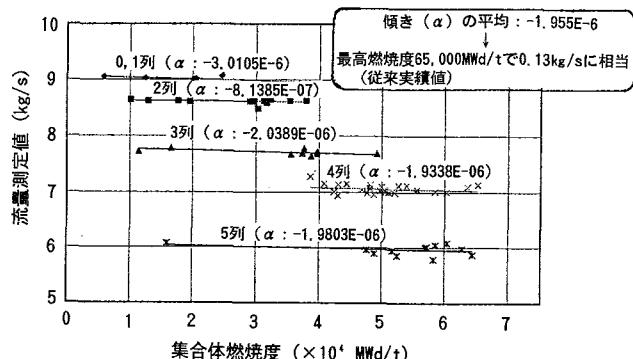


図13 集合体燃焼度と流量測定値の関係

切な流量配分が確保されていることを確認した。

5.2 集合体燃焼度と流量配分

図13に、列毎の集合体燃焼度と流量測定値の関係を示す。炉心中心に近い列ほど流量が多くなっている。また、すべての列において集合体燃焼度が高くなるにしたがい流量測定値が小さくなる傾向にあり、最小二乗法によって近似した直線の傾きは右下がりになっている。この列毎の直線の傾きを平均すると、 -1.955×10^{-6} となり、集合体の最高燃焼度約65,000MWd/t(従来実績値)に相当する流量低下は約0.13kg/sになる。流量低下の原因としては、燃焼度増加に伴うスエリング、燃料被覆管の内圧増大等に伴う被覆管径の増大によるラッパ管内冷却材流路断面積の減少が考えられるが、その量はごくわずかであることが分かった。

また、列毎の集合体燃焼度と流量測定値標準偏差の関係を表わしたものを見ると、今回試験の炉心構成では、炉心中心の第0列を除き炉心外周側に向かうほど集合体燃焼度が増加するが、この傾向と同様に流量測定値の標準偏差(kg/s)も、

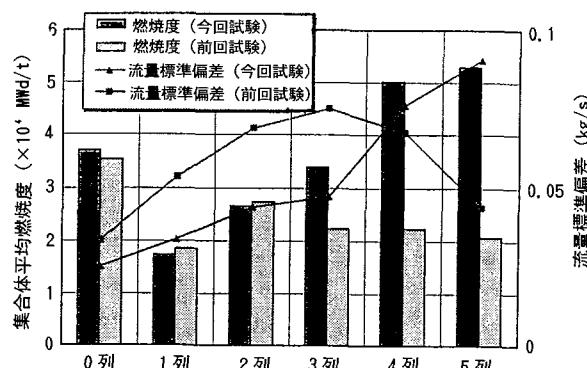


図14 集合体燃焼度と流量測定値の標準偏差

炉心外周側に向かうほど大きくなることが分かった。前回試験においても、集合体燃焼度が高い方が流量測定値標準偏差が高くなる傾向が確認された。

全体的な傾向としては、前述したように燃料被覆管の径の増大による流路断面積の減少で流量が低下するものの、被覆管の変形の具合によっては、被覆管の偏り等により流動抵抗の少ない広い流路の部分が生じ、圧損低下により流量の増える集合体が存在することも原因として考えられる。

しかし、集合体燃焼度増大に伴う流量配分の変化量は、いずれも非常に小さく、燃料の健全性上問題とならないことを確認した。

6. おわりに

6.1 結論

今回の炉心内流量配分測定試験によって得られたデータを評価・検討した結果、以下のことが明らかとなった。

- (1) 燃料集合体流量の測定値と解析値は良く一致した。
- (2) 前回試験との比較の結果、炉心構造物の経年変化等の影響による有意な流量配分の変化がないことを確認した。

(3) 燃料集合体燃焼度の増大に伴い、燃料集合体の流量がわずかに低下する傾向、および流量測定値がばらつく傾向が見られたが、炉心の健全性上無視できるものであることを確認した。

以上のことから、燃料の健全性を維持する上で極めて重要な炉心内流量配分が、MK-II炉心の最終段階においても適切に行われていることを確認した。

6.2 今後の予定

今回の試験により、現在計画中のMK-III炉心設計に資するデータの獲得に加え、MK-III炉心での炉心内流量配分測定試験を実施するにあたっての知見を蓄積することができた。

今回の炉心内流量配分試験での知見を今後の研究に生かしていくとともに、他の炉心特性に係わる研究を進め、総合的な炉心管理手法の高度化を図っていく予定である。

参考文献

- 1) 松野 義明：“特集高速実験炉「常陽」のプラント性能評価”，日本原子力学会誌，24，11（1982）。



「常陽」シミュレータによる運転教育訓練とその高度化計画

澤田 誠 寺野 壽洋 舟木 功

大洗工学センター実験炉部

資料番号97-11

Education and Training For Operators Using a Full Scope Simulator and an Its Upgrading Program in JOYO

Makoto Sawada Toshihiro Terano Isao Hunaki
(Experimental Reactor Division, O-arai Engineering Center)

「常陽」フルスコープシミュレータは、昭和58年に設置されて以来、年間70%を超す高い稼働率で運用されており、質の高い運転員の育成を通して「常陽」の安定かつ安全な運転の確保に大いに貢献している。シミュレータは、模擬制御盤と計算機システム等を有し、原子炉およびプラントの運転挙動およびシーケンスインターロック制御動作を模擬することができる。現在、「常陽」の照射能力の向上を目指したMK-III計画に対応して、シミュレータの模擬精度の向上を始めとした高度化計画を進めており、これによりシミュレータの有効性を更に高めることができる。

1. はじめに

高速実験炉「常陽」は、昭和52年の初臨界から昭和56年にかけて増殖炉心（MK-I炉心）での各種試験運転を行い、その後、昭和58年から照射炉心（MK-II炉心）での本格的な運転を開始した。「常陽」ではこれに備えて、運転員の教育訓練の充実を図り「より質の高い運転員」の育成を目的として、昭和58年にシミュレータを導入した。シミュレータを用いた訓練では、運転員は実機と変わらぬ臨場感を持って原子炉の運転操作訓練を行うことができることから、シミュレータは、質の高い運転員の育成に大きな効果を發揮している。「常陽」では、このシミュレータ訓練とともに、机上學習と現場でのOJTを主体とした教育訓練を系統的かつ計画的に進めており、これらの充実した教育訓練の成果は、「常陽」のこれまでの長年にわたる安定かつ安全な運転の確保という実績面に表れている。

また、「常陽」の照射能力の向上を目指したMK-III計画¹⁾に対応して、訓練機能と模擬精度の向上を図ることにより、より幅広いニーズへの対応を可能とした高度化計画を、現在進めている。

る。

本稿では、シミュレータによる運転訓練とその高度化計画について紹介する。

2. 「常陽」における運転教育訓練

「常陽」における運転員の教育訓練²⁾は、運転技術資料を用いた机上學習および現場操作や現場パトロールなど現場でのOJTを主体とした「教育訓練コース」と、シミュレータを用いた「シミュレータ訓練コース」とからなり、年度毎に予め策定した運転教育訓練計画にしたがって計画的かつ系統的に行われている。

2.1 教育訓練コース

「教育訓練コース」は、次の4つのコースに区分され、各自の運転経験に応じて段階的に教育訓練が行われている。「常陽」では、運転技術を習得するに当たって必要となる各種技術資料を体系化して整備し、各コースでの教育訓練を効率的かつ合理的に行っている。

① 入門コース

現場パトロールを行うことができるレベル

を目指した導入教育で、訓練期間は約4ヵ月である。

② 初級コース

全施設の運転ができるレベルを目指した訓練で、訓練期間は1~2年である。

③ 中級コース

異常措置ができるレベルを目指した訓練で、訓練期間は2~3年である。

④ 上級コース

設計想定事象を含めたすべての異常措置および陣頭指揮ができるレベルを目指した訓練で、訓練期間は3~5年である。

運転員はこの他、動燃事業団内(東海事業所)で開催される各種講習会や、日本原子力研究所の原子力総合研修センター、BWR運転訓練センター(BTC)等の外部機関で行われる外部研修等にも積極的に参加し、運転技術の向上に努めている。

2.2 シミュレータ訓練コース

(1) シミュレータの概要

シミュレータは、中央制御室の主要な制御盤5面を忠実に模擬した制御盤と、原子炉およびプラントの動特性計算を行うダイナミック計算機とシーケンスインターロック制御動作を模擬するロジック演算機を有する計算機システム、ならびにシミュレータの操作、シミュレーション状態の監

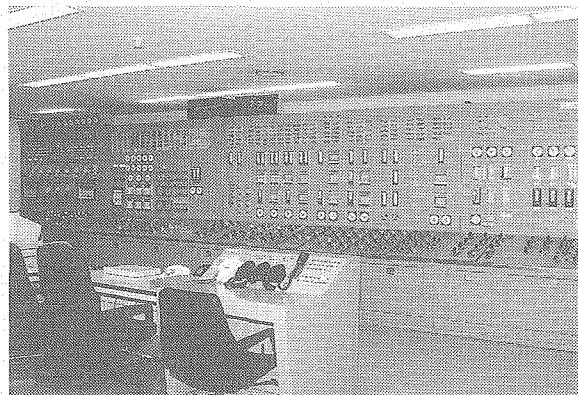


写真1 シミュレータの全景写真

視、およびデータ管理等を行うインストラクタコンソールから構成される。写真1にシミュレータの全景写真を、また、図1に計算機システム構成図を示す。

シミュレータは、実時間での運転挙動の模擬を実現するために、動特性計算のサブルーチン化とともに、ある程度の演算モデルの簡略化が図られているが、実機プラントの臨場感を出すために、ポンプ特性等については、実機データを基にフィッティング法にてモデル化を行う等の工夫が取り入れられている。動特性計算は、原子炉および1次・2次主冷却系を始めとして、特に重要な設備を対象に行われている。図2に動特性モデルの全体概念を示す。

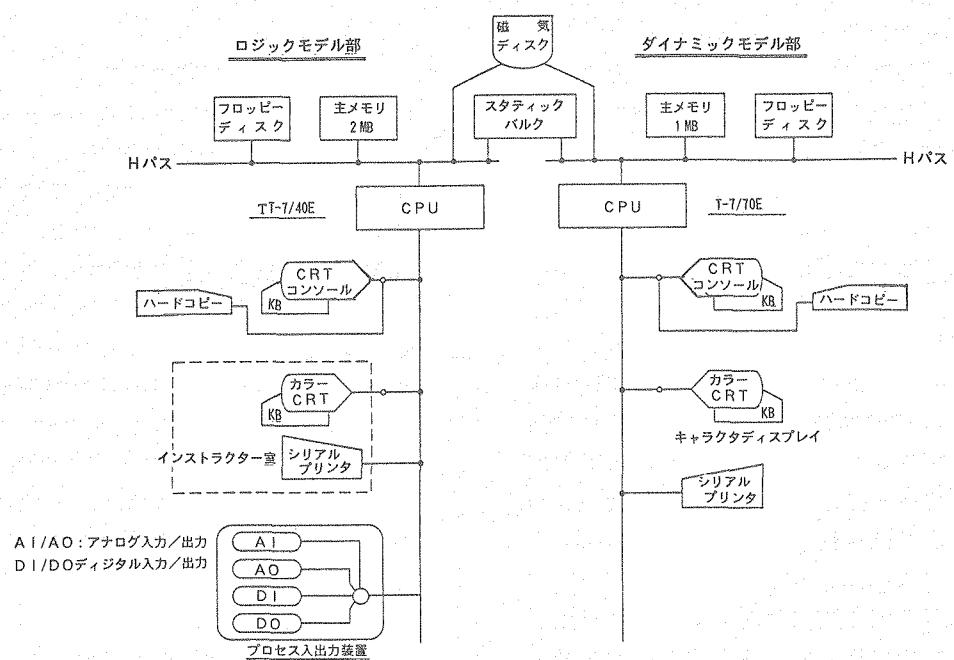


図1 「常陽」運転訓練シミュレータハードウェアシステム構成

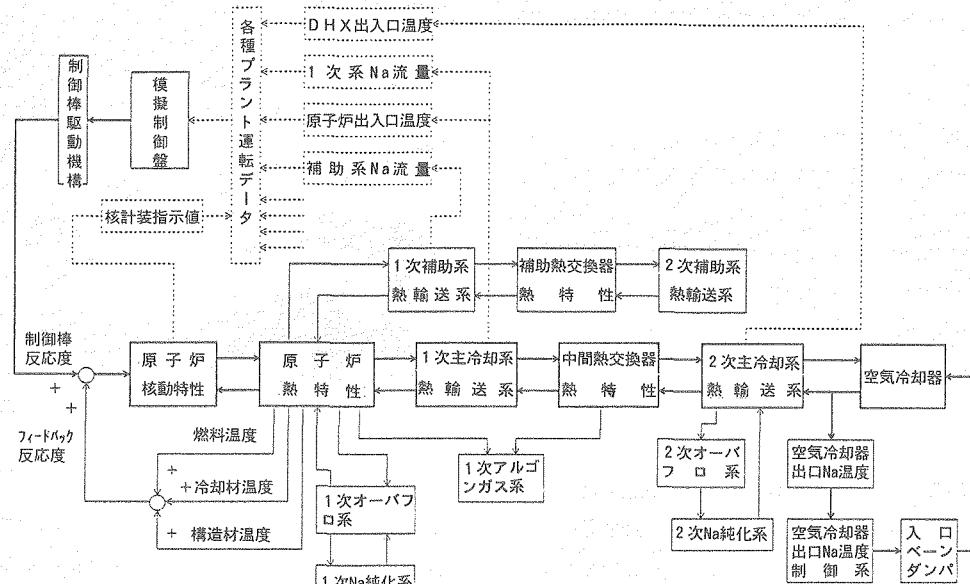


図2 動特性モデルの全体概念

一方、ロジック演算は、「常陽」のほとんどの設備を対象範囲として、機器・弁類の駆動、警報動作、温度制御等のシーケンスインターロック制御動作を忠実にプログラム化した演算モデルを用いて行われる。

なお、シミュレータは、実時間はもとより倍速あるいは1/2倍速にて運転挙動を模擬することができる他、訓練内容を任意に再現できる機能や訓練中のデータをトレンド表示できる機能など様々な訓練機能を有しており、これらの機能を活用して訓練の効率化を図ることができる。

(2) シミュレータ訓練

シミュレータ訓練では、通常時および異常時における原子炉プラントの運転挙動ならびにシーケンスインターロック制御動作を、実機と変わらぬ臨場感を持って運転操作訓練を行うことができる。これから運転員は、効率良く合理的に運転操作技術を習得することができる。シミュレータ訓練には、臨界近接、出力上昇、出力調整、および出力下降の各運転モードにおける運転操作やポンプ・プロワ等の起動・停止操作等、通常行う運転操作を対象とした「通常運転操作訓練」と、約160種類にもおよぶプラント異常事象に対する措置訓練を行う「異常時運転操作訓練」があり、次の3つの訓練コースが設けられている。

① 研修コース

新規に原子炉の運転に従事する者を対象としたコースであり、最も基本的な通常起動・停止操作について訓練を行う。

② 再訓練コース

通常運転操作技術の維持・向上、および異常時の対応操作技術の向上を目指したコースであり、前述の初級・中級・上級コース毎に各運転直班より選定された同レベルの運転員から構成した小集団グループにて訓練を行う。

③ ファミリー訓練コース

主として、異常時の対応措置についてチームワークとしての運転操作技術の向上を目指したコースであり、運転直班の単位で訓練を行う。

3. シミュレータ訓練の実績

図3に平成6年度におけるシミュレータ訓練の実績を示す。図中の訓練件数は、1つの訓練事象を1件にカウントしたもので、平成6年度においては総計718件の訓練が行われた。内訳は、通常運転操作に関連するものが94件、異常時措置操作に関連するものが624件であり、異常時措置に係わる訓練が圧倒的に多いことが分かる。異常時措置訓練項目としては、外部電源喪失事象関連が約35%を占めてもっとも多く、次いで1次・2次循環ポンプ（機械式）トリップ事象（約18%）、格納容器霧廻り調整系異常事象（約15%）、電磁ポンプトリップ事象（約10%）、ナトリウム漏洩事象（約6%）等の順となっている。

これらの運転訓練の件数は例年ほぼ同数であり、シミュレータは、今や「常陽」の安全運転に欠かせぬ重要な運転訓練ツールとして、年間70%

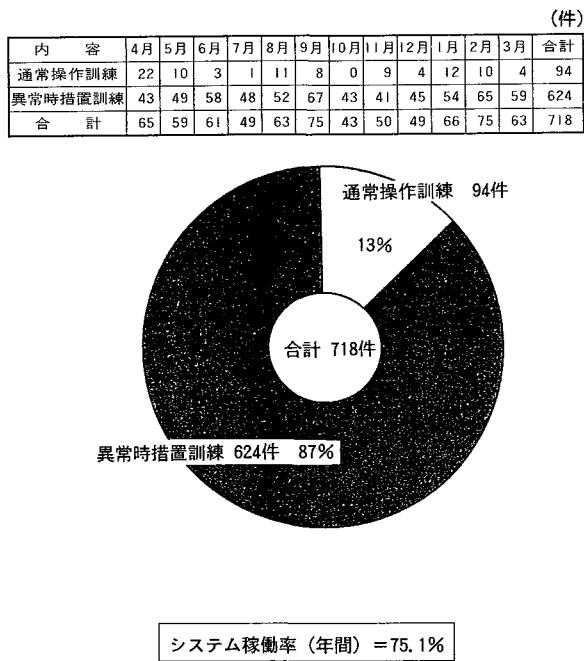


図3 シミュレータ訓練実績(平成6年度)

以上の高い稼働率で運用されている。

4. シミュレータの高度化計画

MK-III炉心への移行に伴って、原子炉の核・熱特性、主冷却系のヒートバランス等の運転特性を初めとして、安全保護動作、1次主循環ポンプ制御方法、1次・2次主冷却系相互トリップインターロック等の運転制御ロジックが大幅に変更となる。シミュレータでは、これらのMK-III計画に対応した改造と併せて、より幅広いニーズに対応できることを目指した高度化計画を進めている。

具体的には、この計画により2点の高度化が図られる。1点目は、原子炉内部や中間熱交換器内部等、温度計、流量計等の計測器が設置されていないことから詳細な運転データを把握できなかったものを、CRT上に表示する可視化機能を新たに付加し、スクラム失敗(ATWS)事象や崩壊熱除去機能喪失事象(LOHRS)等、現状システムでは炉内の詳細情報等が得られないことから訓練効果が得られない緊急時対応措置訓練を、実効のある訓練として実施できるようにすることである。2点目は、シミュレータの動特性計算の解析精度を向上させて、プラント特性試験や高線出力試験(PTM)、燃料ピン破損限界照射試験(RTCB)等の特殊照射試験の実施に先立ち、プラントの安全性(原子炉出口温度上昇率等)を事前に評価する試験評価用ツールとして活用できるように高度化す

るものである。

これらの高度化を実現するため、次のような機能の付加とモデルの改修を行う。

① 可視化機能の付加

原子炉内部の運転データとして、燃料ピンの軸方向温度分布、燃料被覆管の最高温度、燃料集合体出口頂部の温度、および流量分布について、ならびに中間熱交換器や空気冷却機の伝熱管の軸方向温度分布等重要機器の内部データを対象として、それらの箇所の動特性計算結果を基に、運転員にその特性を提示する。このため新たにエンジニアリング・ワークステーション(EWS)を付加する。

② 核動特性計算精度の向上

現状は、6本とも同一の反応度値を有している原子炉モデル中の制御棒反応度計算プログラムを、各々固有の値を有するよう改修する。

③ 核計装指示に係る応答性の改善

現状システムは、制御棒操作から核計装指示値の変化に至るまでの応答がやや遅い。

これは、制御棒駆動指令と核計算指令の信号処理をシリーズに行っていることと、回転数に依らず一定したトルクを得ることが困難である直流モータを使用していることに起因している。これを改善するため、関連制御信号をパラレルに処理するよう信号処理を変更するとともに、安定性と応答性の優れたサーボモータ等へのハードの交換を行う。

④ 热流動計算精度の向上

原子炉モデルについては、現状の单一チャンネルモデルから多チャンネル、多ノード化を図るとともに、冷却材および構造材料物性値の温度依存性の考慮、集合体間の径方向熱移行効果の考慮、低流量時の圧損特性の変更等を行う。また、中間熱交換器と空気冷却機モデルについては、1次胴側と2次管側の伝熱部の多ノード化や、低流量における熱伝達式の変更、および空気冷却機の自然通風特性の変更を行う。

これら原子炉および主冷却系の熱流動計算モデルの高度化の概念図を図4に示す。

5. おわりに

シミュレータは、通常時および異常時における原子炉プラントの運転挙動とシーケンスインテロック制御動作を実時間模擬できることから、運転員は、実機と変わらぬ環境下にて運転操作訓練を行うことができる。昭和58年に設置されたシ

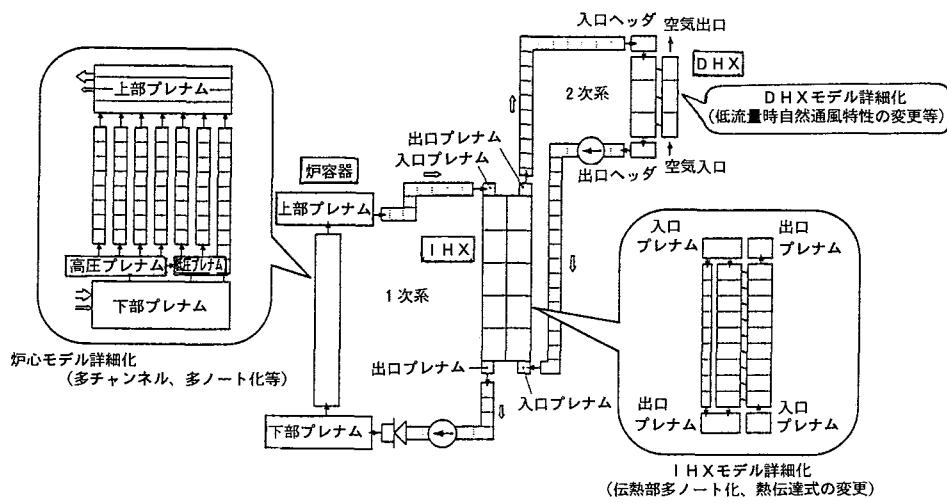


図4 高度化の概念図（主冷却系）

ミュレータは、年間70%を越す高い稼働率で運用されており、「質の高い運転員の育成」を通して、「常陽」の安定かつ安全な運転の確保という面で大いに貢献している。

現在、MK-III計画に対応して、訓練機能と模擬精度の向上を図り、緊急時対応措置訓練への対応や、各種試験の特性を事前に評価する試験評価用ツールとしての活用を目指した高度化計画を進めている。これにより、シミュレータの有効性を一層高めることができるとともに、今後益々その

活用範囲が広がるものと期待される。

参考文献

- 1) 大洗工学センター実験炉部：“「常陽」による高速炉技術開発の成果と将来展望”，高速実験炉「常陽」臨界15周年記念技術資料，P81-88 (1992)。
- 2) 大久保利行, 澤田誠, 他：“「常陽」における運転員の教育訓練と計算機を利用した運転支援”，研究炉等の運転・管理および改良に関する研究会, 東京大学工学部(東大弥生炉), P8-1-8-3 (1994)。



3次元六角体系用輸送ノード法の開発

杉野 和輝

大洗工学センター基盤技術開発部

資料番号97-12

A Development of Nodal Transport Calculation Method
for Three-Dimensional Hexagonal Geometry

Kazuteru Sugino
(Advanced Technology Division, O-arai Engineering Center)

実機高速炉の炉心詳細解析には中性子輸送計算が不可欠であるが、一般に高精度な輸送計算を行うには膨大な計算機記憶容量および計算時間が必要である。そこで、それらの合理化を図るために3次元六角体系用輸送ノード法計算コード「NSHEX」の開発を行っている。これまで、主に「NSHEX」コードの収束性および計算精度の向上を図ってきたが、中性子束の角度分布を詳細に取り扱い、新しい横方向もれ取り扱い手法を導入することにより、従来の輸送ノード法に対し実効増倍率に関して約6分の1に誤差を低減することができた。今後、さらなる開発を進め、「NSHEX」を実機の詳細評価を行うための標準コードとして確立させていく予定である。

1. はじめに

高速炉の経済性向上には、炉心核特性の予測精度向上による設計裕度の合理化、炉心の高性能化が重要である。予測精度の向上には、より高い精度の評価が可能な炉心計算コードの開発が不可欠であるが、併せて適切な計算時間・計算機記憶容量で評価できるコードとすることも重要な開発目標となる。一般に炉心計算は拡散計算により行われるが、高速炉の詳細評価を行う場合、拡散計算と輸送計算との差は無視できないため、輸送補正のための輸送計算が必要である。一方、動燃事業団は現時点では、「もんじゅ」、大型高速増殖炉等の輸送計算を次のような方法で行っている。

- ① 六角格子体系を四角格子体系(XYZ体系)にあてはめ、XYZ体系用の輸送計算コード「TRITAC」¹⁾を用いて解析。
 - ② 中性子束分布あるいは中性子バランスの有限差分法による取り扱い。
- ①の取り扱いに関しては、六角体系をXYZ体系で取り扱った場合、格子間の中性子バランスを正確に取り扱うことができず、形状効果による誤差が避けられないと考えられる。

②の有限差分法に関しては、中性子束分布を空間メッシュにおいて一様と仮定することによる誤差(メッシュ誤差)の補正、すなわち、無限メッシュ相当の結果に外挿する必要がある。その時に、メッシュ補正の外挿性を少なくするため、ある程度メッシュを細かくとる、すなわち六角格子をさらに三角格子にメッシュ分割する必要がある。3次元炉心計算では、さらに、軸方向のメッシュ分割も必要であるから、この方法は膨大な計算機記憶容量および計算時間を要する。

これらの問題を解決する方策として、①の計算体系に対しては忠実に六角体系とし、②に対してはノード法を適用することが有効であると考えられる。ノード法とは、比較的大きな領域、例えば高速炉の1燃料集合体の空間分布を関数形(多項式展開)で取り扱う方法である。したがって、ノード法を適用することにより、少ない計算機記憶容量および計算時間で炉心計算を行うことができ、さらに、メッシュ誤差も許容できる範囲に低減することができる。

本論では、ノード法について簡単に触れ、その後に、新しく開発された六角体系用輸送ノード法計

算コード「NSHEX」について、ノード法基礎式の導出、従来計算コードとの相違、ベンチマークの結果等を報告する。

2. ノード法

ノード法は、現在、軽水炉の炉心設計において標準的に用いられている。本論で説明するノード法は、基本的には多次元の空間分布を方向毎（例えばx, y, z方向）に分割して各方向毎に1次元の詳細解析を行い、多方向の解析結果を組み合わせることにより、最終的な多次元空間分布を得るというものである。

有限差分法では1つの空間メッシュ（単位計算要素）に対して、1つの代表的な値（例えば平均値）のみが情報として与えられていたが、ノード法では有限差分法のメッシュに対応してノードと呼ばれる空間領域をとり、ノード内の1次元空間分布を多項式展開によって取り扱い、それを多方向にわたって組み合わせることにより多次元分布を解析的に取り扱う。そのため、有限差分法で用いられるメッシュよりも大きな空間を単位計算要素とすることができる。したがって、計算要素数を少なくすることができます、計算機記憶容量の低減および計算時間の短縮を図ることができる。具体的な手法として、まず、2次元または3次元の中性子輸送方程式を注目する1つの方向に対し、ノード内で横方向（直交方向）に空間的に積分することにより、1次元の輸送方程式に変換する。

本論で説明する「NSHEX」コードは六角体系に対応しているため、図1に示すように径方向に3方向と軸方向の計4方向の計算が必要である。そして、その1次元輸送方程式を各ノード各方向にわたって解析的に解き、4つの方向の結果を組み合わせることにより、最終的な3次元中性子束分布が得られる。

3. 「NSHEX」コードの開発

すでに説明したように、六角体系用輸送ノード法は、形状効果による誤差がないこと、計算時間短縮と計算機記憶容量低減が図れることから有効であることが知られており、「NSHEX」コードの開発以前には、六角体系用の輸送ノード法としてWagnerにより「HEXNOD」コード²⁾が開発されていた。しかしながら、後述するように十分な計算精度を有するには至っていなかった。そこで、動燃事業団は1991年に大阪大学の協力の下に「NSHEX」コード³⁾の開発を開始した。

「NSHEX」コードは基本的には、XYZ体系用

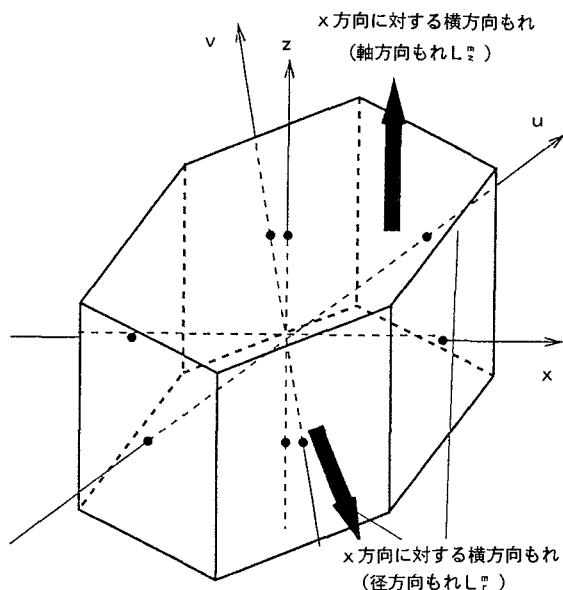


図1 六角体系におけるノード法

の輸送ノード法としてLawrenceとDorningらによって開発された手法⁴⁾を六角体系用に変換することにより作成されたものである。そして、計算精度の向上、および計算の効率化のために種々の改良を行ってきた。以下、「NSHEX」コードの特徴、ノード法基礎式の導出、「HEXNOD」コードとの相違について説明する。

3.1 「NSHEX」コードの特徴

「NSHEX」コードでは、ノード内中性子束の角度分布は「TRITAC」、「HEXNOD」コード等と同じ離散化座標法(S_N 法)、すなわち、角度空間をメッシュ分割することにより離散的に取り扱われている。また、ノード内中性子束分布は解析的に2次の多項式展開により取り扱われている。

さらに、先行して開発された「HEXNOD」コードに対する「NSHEX」コードの特徴として、以下に示す中性子束、横方向もれの角度分布取り扱い手法が挙げられる。

- ① ノード内中性子束：注目方向に対する仰角方向成分のみの取り扱い（1次元 S_N 法）に対し、全立体角方向成分にわたる取り扱い（2次元 S_N 法）。
- ② ノード境界中性子束：一方のノードからみた流出・流入それぞれに関する1次のルジャンドル多項式による取り扱い(Double P_1 近似）に対し、2次元 S_N 法による取り扱い。
- ③ 横方向もれ：等方近似に対し、2次元 S_N 法による取り扱い。

「NSHEX」コードで用いられているこれら3つの取り扱いは、結果のところで述べるが、計算精度上非常に有効である。

3.2 ノード法基礎式導出の概要

ノード法基礎式は、3次元輸送方程式をノード内で横方向積分することにより、1次元輸送方程式に変換し、得られた輸送方程式を解き、中性子束、横方向もれ等の空間分布を有する変数を多項式展開することにより導出される。以下、「HEXNOD」コードとの相違も含め、具体的に説明する。

3.2.1 1次元輸送方程式への変換

まず、図2に示すノードを考える。ノード内は均質であると仮定する。ノード内の空間座標はノードのサイズにより規格化されており、それぞれの変数の定義域は $-1/2 < x < 1/2$, $-y_s(x) < y < y_s(x)$, $-1/2 < z < 1/2$ となっている。なお、関数 $y_s(x)$ は図中に示されているように座標xにおけるx軸からy方向のノード境界面までの距離であり、次式で与えられる。

$$y_s(x) = \frac{1}{\sqrt{3}}(1 - |x|) \quad (1)$$

次に、次式に示す3次元輸送方程式を考える。

$$\begin{aligned} & \frac{\mu^m}{h_r} \frac{\partial}{\partial x} \psi_g^m(x, y, z) + \frac{\eta^m}{h_r} \frac{\partial}{\partial y} \psi_g^m(x, y, z) \\ & + \frac{\xi^m}{h_z} \frac{\partial}{\partial z} \psi_g^m(x, y, z) + \sum_{t,g} \psi_g^m(x, y, z) \\ & = Q_g(x, y, z) \end{aligned} \quad (2)$$

ここで

μ^m , η^m , ξ^m : それぞれ中性子の飛行方向の

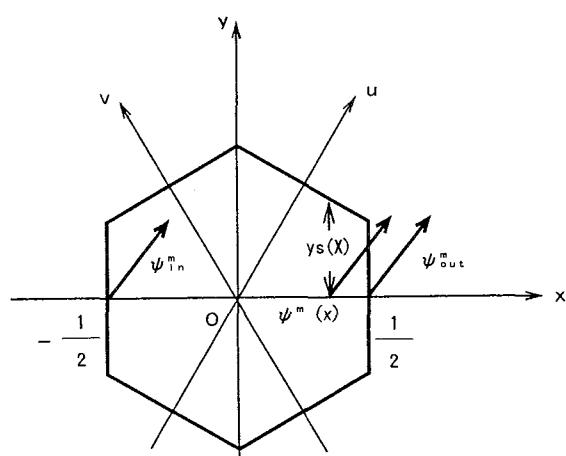


図2 六角ノードにおける座標の取り方

	x, y, z軸に対する方向余弦
Ψ_g^m	: 角度中性子束
g	: 中性子エネルギー群
m	: 角度中性子束の角度メッシュ (飛行方向) 番号
h_r	: ノード (集合体) 対面間距離
h_z	: 軸方向ノード幅
$\Sigma_{t,g}$: マクロ全断面積
Q_g	: 核分裂および散乱による中性子源

ただし、

$$Q_g = \sum_g \left(\frac{x_g}{k_{eff}} v \sum_{f,g} + \Sigma_{s,g \rightarrow g} \right) \phi_g \quad (3)$$

ここで、

x_g	: 核分裂スペクトル
k_{eff}	: 実効増倍率
$v \sum_{f,g}$: マクロ生成断面積
$\Sigma_{s,g \rightarrow g}$: マクロ散乱断面積
ϕ_g	: スカラー中性子束

であり、散乱および核分裂によって生じる中性子の等方性が仮定されている。

さらに、スカラー中性子束は角度中性子束と

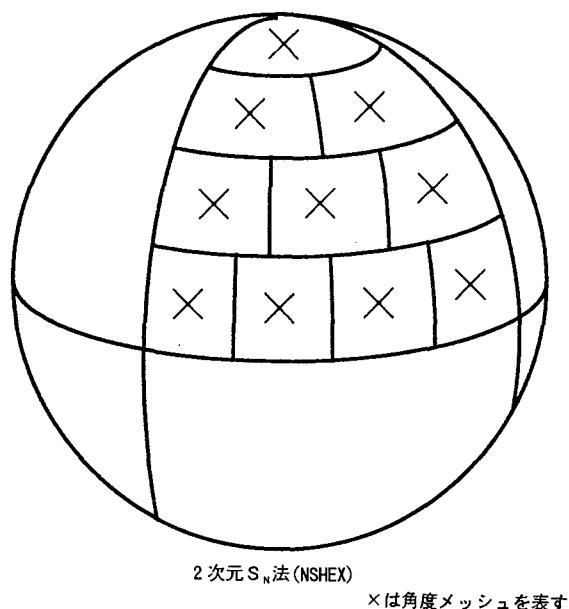
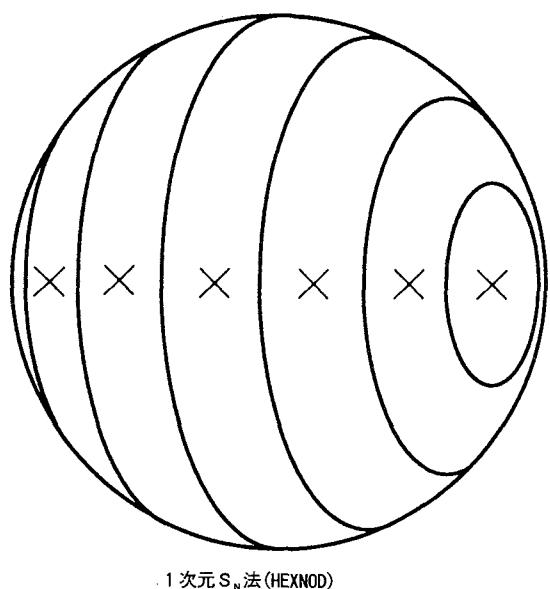
$$\phi_g = \sum_m w^m \psi_g^m \quad (4)$$

w^m : 角度メッシュmのweight
の関係がある。

ここで、3.1の①で挙げた角度分布の取り扱いに関する「HEXNOD」コードとの相違を述べておく。前述したように「HEXNOD」コードでは1次元S_N法が、「NSHEX」コードでは2次元S_N法がそれぞれ用いられているが、それぞれの角度メッシュの取り方は図3に示すとおりであり、図中×で示されている領域がそれ(2)、(4)式中の角度メッシュmに対応している。「HEXNOD」コードと比べ、「NSHEX」コードの角度分布の取り扱いがより詳細であることが分かる。

続いて、径方向に関するノード法基礎式の導出について考える。なお、軸方向(z方向)のノード法基礎式は径方向に比べ導出が容易であり、基本的には同じ手順なのでここでは省略する。(2)式を横方向すなわちy方向($-y_s(x)$ から $y_s(x)$)とz方向($-1/2$ から $1/2$)に積分する。すると、次式に示す1次元ノード内輸送方程式が導かれる。

$$\begin{aligned} & \frac{\mu^m}{h_r} \frac{d}{dx} \left\{ y_s(x) \psi^m(x) \right\} + \sum_t y_s(x) \psi^m(x) \\ & = y_s(x) Q(x) - L_r^m(x) - y_s(x) L_z^m(x) \end{aligned} \quad (5)$$

図3 1次元S_n法と2次元S_n法

ここで、中性子のエネルギー群を表わす添字gは省略されている。

(2)式のy方向とz方向の中性子ストリーミング項（左辺第2項と第3項）が(5)式ではそれぞれ横方向もれ項（右辺第2項と第3項）に変化している（図1参照）。このようにノード法では、着目方向以外の中性子バランスは横方向もれにより考慮される。この横方向もれに関して、「HEXNOD」コードでは3.1の③で挙げたように等方近似が用いられており、角度メッシュによる離散化が行われていなかった。

3.2.2 1次元輸送方程式からのノード法基礎式の導出

(5)式を入射中性子束 Ψ_{in}^m を境界条件として解くと、次式に示すように中性子束分布 $\Psi^m(x)$ が得られる。

$$\begin{aligned} & y_s(x) \psi^m(x) \\ &= \frac{h_r}{\mu^m} \int_{-\frac{1}{2}}^x dx' q^m(x') \exp\left(\frac{\sum_t h_r}{\mu^m}(x' - x)\right) \\ &+ \frac{1}{2 \sqrt{3}} \exp\left(-\frac{\sum_t h_r}{\mu^m}\left(x + \frac{1}{2}\right)\right) \cdot \psi_i^m \end{aligned} \quad (6)$$

ただし、 $q^m(x')$ を次のように定義した。

$$q^m(x) = y_s(x)Q(x) - L_r^m(x) - y_s(x)L_z^m(x) \quad (7)$$

ここで、さらに3.1の②で挙げたノード境界中性子束に関する「HEXNOD」コードとの相違を述べておくと、「HEXNOD」コードではDP₁近似によるスカラー中性子束と部分中性子流を基にした境界条件であったが、「NSHEx」コードでは、(6)式に見られるように1つの角度メッシュのノード内中性子束の計算において、それに対応する角度メッシュの入射中性子束が境界条件として与えられている。

次に空間分布を有する変数を多項式展開する。例えば中性子束は次式に示すように多項式展開される。

$$\psi^m(x) = \sum_i \psi_i^m h_i(x) \quad (8)$$

(8)式に示されている $h_i(x)$ は展開関数系であり、六角ノード内で直交性を示すよう定義されている。

そして、(6)式において、このような形で右辺の $q^m(x')$ を多項式展開し、 $x=1/2$ を代入することにより、ノード流出中性子束 Ψ_{out}^m のノード法基礎式が得られ、さらに、(6)式に対して展開関数系の直交性を利用した荷重残差法を適用することにより中性子束のノード法基礎式が得られる³⁾。

3.2.3 横方向もれの取り扱い手法

次に(5)式の右辺の横方向もれ項について説明する。横方向もれはノード法における重要な概念の一つであり、特に六角体系ではその取り扱いが困難である。六角体系では(5)式にみられるとおり、横方向もれは径方向もれ $L_r^m(x)$ と軸方向もれ $L_z^m(x)$ からなっている。径方向もれの取り扱い手法に関

しては現在も改良を進めており、現時点では、中心 ($x=0$) を境にノードを 2 分割し、それぞれの領域毎で平均値による一定値とおいており、詳細には取り扱っていない。

他方、軸方向もれについてであるが、最近開発された収束性に優れた取り扱い手法⁵⁾について簡単に述べることにする。軸方向もれは次のように表される。

$$L_z^m(x) = \frac{\xi^m}{h_z} [\psi_{z+}^m(x) - \psi_{z-}^m(x)] \quad (9)$$

ただし、

ψ_{z+}^m, ψ_{z-}^m : 軸方向上部および下部ノード境界
角度中性子束

(9)式から明らかなように、軸方向もれの取り扱いに必要な情報はノード境界面の角度中性子束分布であるが、ノード法基礎式を用いて解析的に得られるのはその平均量であるから、分布をもとめるために次の方法を用いた。

まず、ノード境界面の角度中性子束をそのノード境界面を挟む 2 つのノード内角度中性子束の軸方向内挿により表わすことを考える。ところが、角度中性子束の軸方向内挿を行う際、直接角度中性子束の内挿を用いると計算が常に発散したため、スカラー中性子束の内挿を用いることとした。そして、得られたノード境界面のスカラー中性子束の分布形状をそのまま角度中性子束の分布に反映させる。

このような手法を用いることにより、これまで収束しなかった制御棒挿入体系においても計算を収束させることができた。

4. 「NSHEX」コードのベンチマーク炉心体系への適用

4.1 計算体系

「NSHEX」コードの適用例として、国際 3 次元中性子輸送ベンチマーク問題⁶⁾における検証計算について示す。国際 3 次元中性子輸送ベンチマークは、1991年に大阪大学主催で行われ、提案された XYZ 体系や六角体系の各炉心モデルに対し、世界各国の研究施設が所有する様々な決定論的輸送計算コードあるいはモンテカルロ計算コードを用いて体系計算を行った結果を比較したものである。あらかじめ計算体系毎に群定数が与えられていたので、各コードにより得られた計算結果には炉心各領域毎の格子計算モデルの差は含まれず、純粹に輸送計算コードの計算モデルの比較を行うことができる。ただし、このベンチマークでは計算時間の比較には触れられていない。

今回の「NSHEX」コードの検証に用いた体系は図 4 に示す小型 FBR モデル（KNK-II 炉心モデル）である。この炉心は、小型炉であるから体系からの中性子のもれが多く、また、燃料と反射材の一部に減速材が混入されているために非均質性が強く、炉心計算を行うと計算コード上のモデルの違いが如実に現れる体系となっている。

4.2 計算結果

「NSHEX」コードを用いた結果と他の輸送計算コードを用いた結果との比較を実効増倍率について表 1 に、領域平均中性子束については表 2 にそれぞれ示す。これらの表は、モンテカルロ法（「MOCA」コード）計算結果を参照解として、「NSHEX」コードの結果と従来のノード法計算

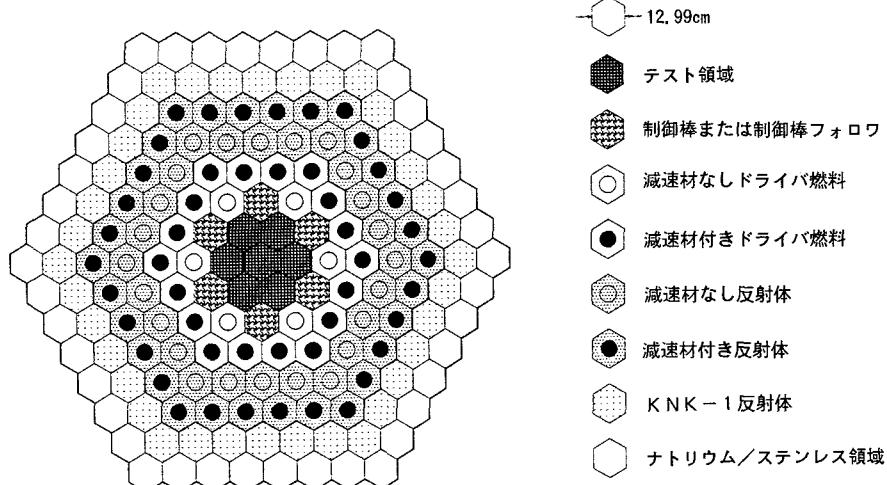


図 4 検証体系領域図 (KNK-II 小型FBRモデル 径方向炉心中央)

表1 実効増倍率および制御棒価値計算結果の比較

	MOCA	NSHEX	HEXNOD
制御棒全引き抜き	1.0952 ±0.0004	1.0961 (+0.08)* ¹	1.0889 (-0.58)* ¹
制御棒全挿入	0.8800 ±0.0004	0.8806 (+0.07)* ¹	0.8748 (-0.59)* ¹
制御棒価値	22.33 ±0.06* ²	22.33* ² (-0.00)* ³	22.48* ² (+0.15)* ³

*1: モンテカルロ法計算結果に対する相対誤差 (単位: %Δk/k)

*2: (単位: %ρ(Δk/kk'))

*3: モンテカルロ法計算結果に対する相対誤差 (単位: %Δρ)

コード「HEXNOD」の結果とを比較したものである。炉心計算におけるモンテカルロ法は、炉心内の中性子の挙動をシミュレーションし、多数のシミュレーションの結果を統計的に処理することにより、最終結果を得る手法である。そのため、輸送計算モデル上の誤差ではなく、基準計算としてはふさわしいと考えられる。ただし、十分な計算(統計)精度を得るには、ノード法と比べて膨大な計算時間を要する。

まず、実効増倍率の計算結果を見ると、「HEXNOD」コードではモンテカルロ法の結果に対し約0.6%Δk/kの誤差が見られ、十分な計算精度が得られていないことが分かる。それに対し、「NSHEX」コードではいずれの制御棒挿入状態においても、モンテカルロ法の結果に対し約0.1%Δk/k以内の一一致がみられ、「HEXNOD」コードに対して誤差が約6分の1に低減されていることが分かる。制御棒価値に関しても「NSHEX」コードによる結果の方が良い一致がみられる。

次に、領域平均中性子束について見る。制御棒全引き抜き体系では「HEXNOD」コードの結果は1%を越える誤差が見られるのに対し、「NSHEX」コードの結果では1%以内でモンテカルロ法の結果との一致が見られる。また、制御棒全挿入体系については、両コードとも誤差が大きくなる傾向にある。「NSHEX」コードではテスト領域において1%を越える誤差が見られるが、それを除けば1%以内で一致がみられる。1%を超える誤差の原因は径方向もれが詳細に取り扱われていないことによると考えられる。それに対し、「HEXNOD」コードでは「NSHEX」コードで見られた以外の領域平均中性子束にも1%を超える誤差がみられ、特に制御棒領域の低エネルギー群において6%の誤差がみられる。これらの結果から、「NSHEX」で用いられている中性子束、横方向もれの角度分布取り扱いの詳細化は計算精度向上の観点から非常に有効であることが分かる。

表2 領域平均中性子束計算結果の比較

- 制御棒全引き抜き -				
領域	上部群境界エネルギー	MOCA	NSHEX	HEXNOD
テスト領域	10.0 MeV	1.35E-04(0, 11)	-0.43	-1.40
	1.35MeV	1.08E-04(0, 14)	+0.51	-0.59
	86.5 keV	3.09E-05(0, 26)	-0.29	-0.01
	961 eV	3.87E-06(0, 51)	-0.80	+3.06

- 制御棒全挿入 -				
領域	上部群境界エネルギー	MOCA	NSHEX	HEXNOD
テスト領域	10.0 MeV	1.68E-04(0, 11)	-1.52	-2.11
	1.35MeV	1.16E-04(0, 14)	+0.54	-0.04
	86.5 keV	2.17E-05(0, 31)	+0.15	+0.55
	961 eV	1.16E-06(0, 42)	-2.35	+2.39
制御棒領域	10.0 MeV	9.49E-05(0, 11)	+0.47	+1.68
	1.35MeV	6.90E-05(0, 12)	+0.49	+1.07
	86.5 keV	1.33E-05(0, 23)	+0.46	+2.09
	961 eV	9.44E-07(0, 44)	+0.97	+6.12

※それぞれの計算コードの値は

MOCA : 中性子束の値 (標準偏差 (%))

NSHEX, EXNOD : MOCAに対する相対誤差 (単位: %) を表す。

5. おわりに

現在の「NSHEX」コードは、国際3次元中性子輸送ベンチマーク体系において、実効増倍率、領域平均中性子束とも従来の六角体系用輸送ノード法コードと比べ、モンテカルロ法に対しより良い一致を示しており、径方向もれを詳細に取り扱う手法を開発すれば満足できる計算精度を有することが期待できる。

今後の計画として、炉心の大型化に伴い燃料集合体の対面間距離が大きくなると、径方向もれを詳細に取り扱わないことによる誤差が増大することが予想されるので、その新しい手法の開発を進めていく。また、今回検証の行われた体系計算は大洗工学センターの大型計算機FACOM M-1800を用いてCPU時間で約30分要したが、もんじゅ等の実機体系になるとおよそ2~4時間におよぶと予想される。したがって、今後、特にコードの収束性の改善も行っていく予定である。

さらに汎用性を高め、将来的には、実機高速炉炉心の詳細評価を行うための標準コードとして確立させていく計画である。

参考文献

- 1) T. Yamamoto, T. Takeda: "Present Status of "TRITAC" Code Development and its Application to Fast Reactor Calculations", Proc. Int. Conf. on Mathematics and Computations, Reactor Physics, and Environmental Analyses, Oregon, I, P.470 (1995).
- 2) M. R. Wagner: "Three-Dimensional Nodal Diffusion and Transport Theory Methods for Hexagonal-z Geometry", Nucl. Sci. Eng., 103, P.377 (1989).

- 3) H. Ikeda, T. Takeda: "A New Nodal S_N Transport Method for Three-Dimensional Hexagonal Geometry", *J. Nucl. Sci. Technol.*, 31, 6, P.497 (1994).
- 4) R. D. Lawrence, J. J. Dorning: "A Discrete Nodal Integral Transport Theory Method for Multidimensional Analysis and Shielding Computations", *Proc. Topcl. Mtg. on Advances in Reactor Physics and Shielding, Sun Valley*, P.840 (1980).
- 5) K. Sugino, T. Takeda: "An Improvement of Nodal S_N Transport Calculation Method in Hexagonal-Z Geometry", *J. Nucl. Sci. Technol.*, to be published.
- 6) T. Takeda, H. Ikeda: "Three-Dimensional Neutron Transport Benchmarks", *NEACRP-L-330* (1991).



グローブボックス用遠隔取扱治具の開発

富田 豊 根本 剛 出沼 昭生
都所 昭雄

東海事業所核燃料技術開発部

資料番号：97-13

Development of Remote Handling Tools for Glove Box

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

先進的核燃料リサイクル技術開発の一環として、MOX燃料スクラップ中に存在するAmの溶媒抽出法による分離回収試験を実施する予定であるが、グローブ操作時の²⁴¹Amのγ線による手部および全身の被ばくの低減化が大きな課題である。根本的な防護対策としてグローブボックス用の遠隔操作可能な多関節型取扱治具の試作機を製作して基本機能試験試験を実施し、グローブボックスシステムで²⁴¹Amのような高線量物質の取扱いが可能な遠隔取扱治具の技術的見通しを得た。

1. はじめに

従来から考えられている核燃料サイクルでは、使用済核燃料の再処理によって長半減期のマイナーアクチニド元素は高レベル放射性廃棄物に移行しているが、動燃事業団では廃棄物処理の負担の軽減化、核不拡散性の向上のためにマイナーアクチニド元素も積極的にリサイクルする先進的核燃料リサイクル技術開発を進めている。

転換技術開発室では、先進的核燃料リサイクル技術開発の一環として、Amを照射試験試料の製造用原料として供給するため、平成8年度からMOX燃料スクラップ中に存在するAmの抽出剤としてCMPO溶媒を用いた湿式分離プロセスであるTruex法によって分離回収試験を実施する予定である。この分離回収試験において、グローブ操作時の²⁴¹Amのγ線による手部および全身の被ばくの低減化が大きな課題である。従来のように鉛入りグローブの使用や作業時間の管理等による防護対策では、試験内容やAmの取扱量によっては、限界がある。根本的な防護対策としては、グローブボックス用の遠隔操作可能な取扱治具が考えられる。この種の治具としてはグローブボックス内ロボットとマスタースレイブマニピュレータが

開発されている。グローブボックス内ロボットは、通常本体ごとグローブボックス内に設置するので、本体が核物質等により汚染されるためにメンテナンスが困難である。マスタースレイブマニピュレータは、本体をグローブボックス天井から挿入設置するので、グローブボックス内上部のスペースを有効に利用できない。また、Am分離回収試験用グローブボックスは、重量物運搬用の天井クレーンを設置するため、マスタースレイブマニピュレータは使用することができない。以上のようにグローブボックス内ロボット、マスタースレイブマニピュレータとも特有の欠点を持つことから、メンテナンスが容易でグローブボックス上部のスペースを有効に利用できる多関節型遠隔取扱治具の開発を目的として試作機を製作した。次に試作機を使用してAm(OH)₃を回収した金属フィルター(Am量：7g/batch)の移動等の作業を行う上で必要な基本機能を確認するための基本機能試験を実施した。

本報告では、試作したグローブボックス用遠隔取扱治具の概要および基本機能試験結果について報告する。

2. 設計方針

設計にあたり、以下の設計方針に基づき設計を行った。

- ① いずれのグローブポートにも取り付けが可能であり、かつ既存のグローブポートに容易に取り付け取り外しができる構造とする。
- ② 作業者の被ばく低減のため、グローブボックスから離れた位置で操作が可能な取扱治具とする。
- ③ 機能としては人の手で扱える大きさのサンプルピン、小型バルブ等について「つかむ」「運ぶ」「回す」等の基本的な操作ができる。
- ④ 定常的な作業は、あらかじめプログラムされた内容で動作し、非定常的な操作はオペレーターがボックス内の操作対象物を見ながら操作盤の操作によって作業できるようにする。

3. 遠隔取扱治具の概要

前述の設計方針にそって製作した本治具のシステム概略図を図1に示す。大別すると機構部と制御部から構成されている。各々の概要について以下に述べる。

(1) 機構部

- ① 本治具の機構部は、肩（ねじり、伸縮）、肘（旋回）、腕（ねじり）、手首（旋回、ねじり）、ハンド（開閉）の合計7自由度で構成されているため動作範囲が広い。機構部の外観および仕様をそれぞれを図2および表1に示す。
- ② 駆動方式として外部モータからのワイヤー方式を採用した場合、配線が複雑になることやワイヤー方式特有の関節部のねじれが生じるために本治具では肩の関節は手動方式、肘・腕・手首は内蔵モータ直結のギヤー方式、ハ

表1 機構部仕様

動作形態		多関節型治具		
設置条件		グローブボックスのポート		
最大可搬重量	爪で挟んでの移動	1 kg		
	吊り下げる移動	3 kg		
自由度	部位	動作	動作範囲	駆動方式
	肩	ねじり	-180°～+180°	手動
	伸縮	254mm		
	肘	旋回	-2°～+91°	モータ (10°/sec)
	腕	ねじり	-46°～+42°	モータ (20°/sec)
		旋回	-44°～+45°	モータ (15°/sec)
	手首	*ねじり範囲 回転角度 0° -45° +45°	-91°～+94° -136°～+46° -46°～+137°	モータ (20°/sec)
ハンド		開閉	50mm	エアシリンダ

*構造が動作歯車のため手首の旋回角度によってねじりの動作範囲が異なる

ンドの開閉はエアーシリンダを使用した空気圧力方式を採用した。

- ③ 操作対象物の材質や重量に応じて、爪のつかみ圧は空気圧力によって調整できる。
- ④ 本治具においてグローブボックス内の放射性物質によって汚染される部位は爪を含むハンド部のみであり、ハンド部以外は汚染されないようにαタイトブーツでグローブボックス内の気密を保持して放射性物質をグローブボックス外へ漏洩しない構造になっている。
αタイトブーツの取り付け方法は写真1に示

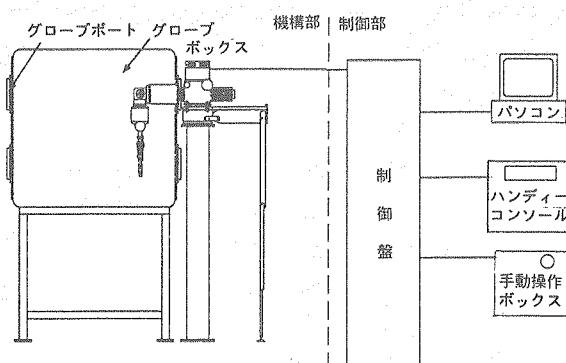


図1 遠隔取扱治具システム概略図

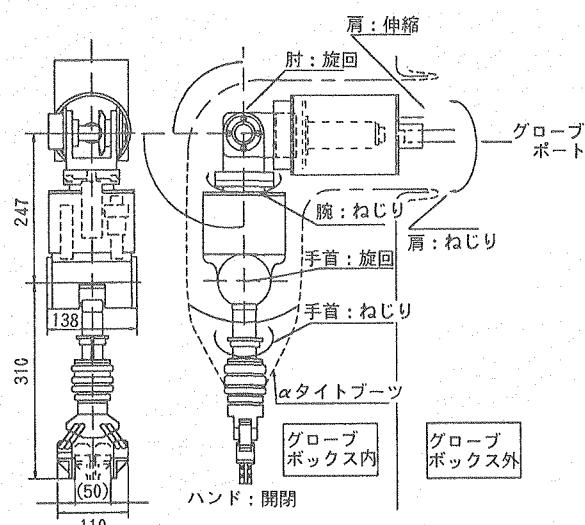


図2 機構部外観図

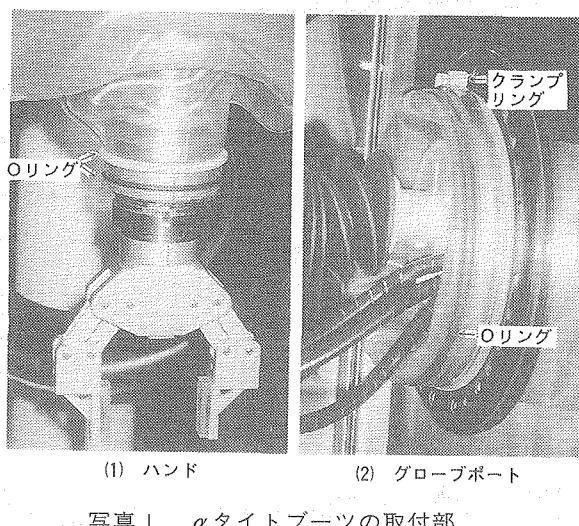


写真1 αタイトブーツの取付部

すようにハンド部とは2本のOリングによって固定し、グローブポートとはクランプリングとOリングによって固定することでグローブボックス内の気密を保持する。このように、本治具ではハンド部以外の機構部は汚染されないため、本体ごとグローブボックス内の汚染される環境に設置して使用するタイプのロボットと比較するとメンテナンスがはるかに容易である。

⑤ ハンド部のαタイトブーツ固定部から分離することができるため、移動型の架台に機構部を設置することで他のグローブポートにも取付けて使用することができるほか、使用しない場合は邪魔にならない場所へ移動することもできる。

⑥ ハンド、爪についても分離できるため、操作対象物の形状に適合したものに交換することができる。

(2) 制御部

① 制御部は制御盤、プログラム作成用パソコン、ハンディコンソールおよび手動操作ボックスから構成されている。制御部の主な仕様を表2に示す。

② 非定常的な操作は作業者がボックス内の操作対象物を見ながら小型の手動操作ボックスの操作によって手動運転を行うことができる。

③ 定常的な作業は、あらかじめプログラムした内容で自動運転することができる。

④ 自動運転に必要な操作はすべてハンディコンソールで行うことができるが、ハンディコンソールの表示画面が小さいため、数百ス

表2 制御部仕様

制御盤の基本機能	
CPU	μPD70236 (V53) 16MHz
制御軸数	5軸 (モータ4軸、エアシリンダ1軸)
制御モータ	DCサーボモータ
位置検出方式	ロータリエンコーダ
動作方式	PTP制御
外部出入力	16点 (増設可能)
プログラム編集機能	
プログラム容量	1,000ステップ (増設可能)
外部記憶装置	3.5インチドライブ
制御モード	
自動モード	プログラムによる自動運転
手動モード	スイッチによるON/OFF制御
手動操作箱	
軸数	5軸 (モータ4軸、エアシリンダ1軸)
スイッチ	スナップスイッチ
ケーブル長	5m

テップからなる自動運転用のプログラム作成および編集等の作業は、パソコンを使用して効率的に作業が行えるシステムになっている。

⑤ 自動運転中に機構部とボックス内の機器やグローブとの接触の恐れがある場合は、制御盤または手動操作ボックスに取り付けてある非常停止ボタンを押すことで、機構部の動作を止めることができる。

⑥ 作業者の被ばく低減のためにグローブボックスから離れた位置で操作できるようにハンディコンソール、手動操作ボックスはともに制御盤と5mのケーブルで接続している。

4. 基本機能試験

本治具の基本機能を確認するために以下の項目について試験を実施した。

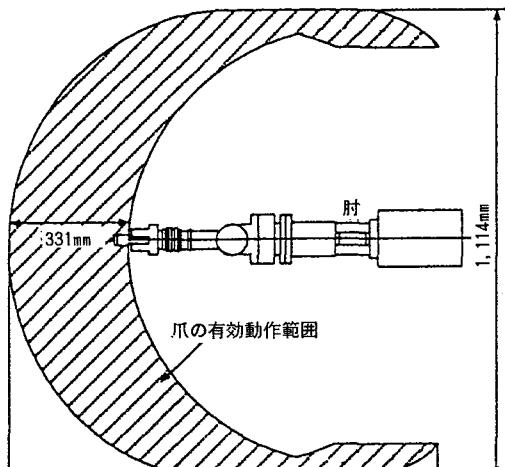
(1) 有効動作範囲確認試験

各軸の最大動作範囲を測定して、爪で作業を行うことができる有効動作範囲の確認を行った。測定結果を図3に示す。測定結果から、本治具がグローブボックス内で作業を行うのに必要な動作範囲を十分カバーできることが確認できた。

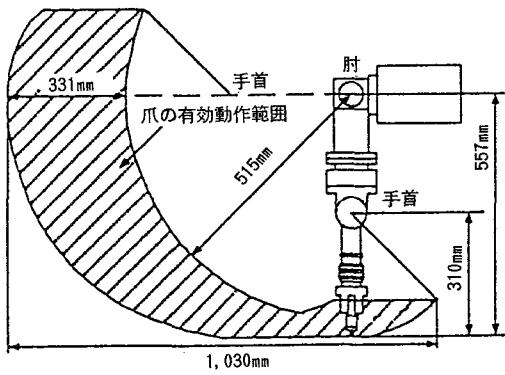
(2) 位置繰返し精度確認試験

位置繰返し精度を求めるため、プログラムによる自動運転を行った際の治具の位置を測定した。測定回数は20回である。

試験の結果、標準偏差は0.026mmで高い位置繰返し精度を示すことから、自動運転によって定常作業を行うことが可能であることが確認できた。



(1) 平面図



(2) 側面図

図3 爪の有効動作範囲

(3) 取扱機能試験

設計段階で想定したボックス内で行う代表的な作業について試験を行った。試験方法および作業

表3 取扱機能試験結果

作業名	作業方法	作業性の評価
物品の移動	サンプルピン、ポリビン（250mℓ～1ℓ）を爪で挟み移動する。	重量が約1kgまでは、問題なく移動できる。
液体の移し替え	液体の入ったサンプルピンを爪で挟み、ビーカーに液体を移す。	サンプルピン内の液体をこぼさないようにするために手首を水平な状態に保ち動作しなければならない。したがって作業範囲が限られる。
小型バルブの開閉	小型バルブのハンドルを爪でつかみ、開閉操作を行う。	治具の手首のねじりによって開閉できるタイプのハンドルが付いているボールバルブならば可能である。
落下液の拭きとり	下段のグローブポートに治具を設置してグローブボックス床面に落下した液体を爪で挟んだ紙タオルで拭き取る。	現状でも拭きとり作業は可能であるが、紙タオルのつかみ方を工夫すれば、さらに作業性が向上する。

評価を表3に示す。試験の結果、作業に必要な基本機能を有していることが確認できた。

5. おわりに

以上のように、グローブボックスシステムで、²⁴¹Amのような高線量物質の取扱いが可能な遠隔取扱治具の技術的な見通しを得ることができた。

今後さらに機能試験を実施し、Am分離回収試験設備完成後は、この設備に本治具を取り付けてシステムの確証試験を行い、実際に使用するまでの改良点を抽出して、必要に応じて改造を行なながらAm分離回収試験設備に適用する計画である。

最後に本治具の開発にあたり、技術的な助言を頂いた日本放射線エンジニアリング株式会社 三浦信氏、東京精機株式会社 片桐正春氏、腰越金一氏に感謝の意を表します。



鉄共存下におけるMOX燃料中の プルトニウム電量分析

影山十三男 檜山 敏明 山本 純太
上村勝一郎

東海事業所核燃料技術開発部

資料番号：97-14

Determination of Plutonium in MOX Fuel in the Presence of Iron by Controlled Potential Coulometry

Tomio Kageyama Toshiaki Hiyama Junta Yamamoto
Katsuichiro Kamimura
(Nuclear Fuel Technology Development Division, Tokai Works)

定電位電量分析法によるFeを含むPu-U混合酸化物(MOX)燃料中のPu分析法を開発した。溶解したMOX試料中に共存するFeは、FeとPuの酸化還元電位が近接していることから、定電位電量分析法によるPu分析の妨害となる。本法では、試料溶液中に共存するFeが、*o*-フェナントロリンと錯形成することにより、Feの酸化還元電位がアノード側にシフトすることを利用し、Feの妨害を除去した。添加した*o*-ナントロリンはFeの20倍量以上である。Uは重量比でPuの10倍量まで影響を及ぼさなかった。本法の相対標準偏差は0.3%以下($n=7$)であった。

1. はじめに

現在、混合酸化物燃料（以下MOX燃料）中のPu分析法としては、電位差滴定法¹⁾、同位体希釈質量分析法（ID-MS法）²⁾、定電位電量分析法³⁾等が採用されている。電位差滴定法は滴定試薬を標準化することで、Puを標準試料としなくてもPu滴定が可能である。しかし、酸化還元反応を伴う物質（例えば、Np等）が混入すると大きな誤差を生じるといった問題点を有している¹⁾。

ID-MS法は、目的元素の定量を行うと同時に目的元素以外の元素についても核種判定を行うことができるが、同位体既知の標準試料が必要であり、一件当たりの前処理操作（イオン交換）に長時間を要するとともに、イオン交換樹脂、廃液等の廃棄物が多量に発生する。

定電位電量分析法は、絶対測定法であるため標準物質を必要とせず、対象元素を精度良く分析することができる。しかし、共存元素の酸化・還元電位が目的元素の酸化・還元電位に近接している場合、共存元素の電量値も同時に計測するといった問題がある。

例えば、MOX原料粉中またはMOX燃料中のPuを分析する場合、試料中に数百～千ppmのFe

が含まれていることがあるため、定電位電量分析法では、Feも同時に計測し、Puの分析結果に正の誤差を与える要因となる。したがって、定電位電量分析法により試料中のプルトニウムを分析する場合、何らかの手法によりFe量を測定し、Puの測定値を補正する必要がある。

その補正のために、英国のハーウエル研究所⁴⁾では、セリウム(Ce)IV価を用いた方法を検討した。この方法では、Ce(IV)により、Pu、Feとともに酸化し（このときの原子価はPuはVI価、FeはIII価）、続いて電極電位を下げPuをIII価へ、FeをII価へ還元し、さらに電位を規制しPuをIV価へ、FeをIII価へ酸化する。これら一連の操作における酸化還元反応は、PuはVI-IV価、FeはIII-III価であり、電気化学的にFeは影響しないことにより、Feの影響を除くことができた。また、ロスアラ莫斯国立研究所⁵⁾では、溶媒を塩酸系とすることにより、PuとFeの酸化還元電位が異なることに着目し、PuのIII-IVへの酸化反応を利用しPuの分析を行った。一方、動燃事業団のプルトニウム燃料施設では試料中のFeを分光光度法により分析し、Feを含むPuの電量値から鉄量を差し引くことによりFeの補正を行っている。

これらは方法は、グローブボックス作業では不向きである塩酸系で使用するか、あるいは他の方法を併用する方法であるため、より簡便迅速なPu分析法を開発する必要がある。

一方、他元素が混在する溶液中の目的元素を分離する方法としては、溶媒抽出法またはイオン交換分離法等が考えられる。しかし、これらの前処理法はPu分析を行う際、煩雑となる他、誤差の要因となりうる。これらの前処理を行わずにFeの影響を除去する方法としては、Feのみを電着法により電極に電着させる、またはFeと選択的に反応するキレート試薬を用いてFeを錯形成させ、Feの酸化・還元電位を変化させた後電気分析を行う方法が考えられる。しかし、電着法ではPuの酸化・還元電位が近接していることによりFeのみを選択的に電着させることは困難である。

錯形成に関して、Milnerら⁶⁾は、少量のFeを含むPu溶液中のPuの定電位電量分析において、o-フェナントロリンおよびパーソーフェナントロリンを用いてFeの影響を除去する方法について検討している。しかし、作用極に白金電極を用いた場合、電極の反応に影響を及ぼすことが示されている。

そこで、本試験では、水に可溶であり、Feと速やかに反応し、選択性を有するo-フェナントロリンを用い、電極に金メッキを施した白金電極を使用して、Puの分析値に及ぼすFeの影響を除去することを目的とし、試験を実施したところ、良好な結果が得られたので報告する。

2. 試験方法

2.1 装置

(1) 定電位電量分析装置

本試験で使用した、定電位電量分析装置の概略を図1に示す。

本試験では、電位の制御を行うためにポテンシオ-ガルバノスタットを、電流密度および電量値

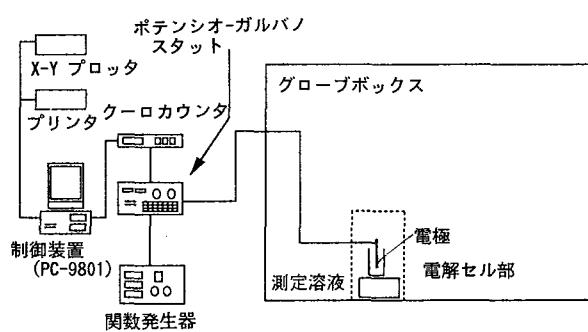


図1 電量分析装置概略図

の測定のためにクロカウンタを使用した。また、これらの装置の操作およびデータ処理にはパソコンを使用し、プリンタまたはX-Yプロッタによりデータの出力を行った。

(2) 電解セル

電解セルには、50mLガラスビーカーを使用した。電流-電位曲線の測定のために行った、アノード分極およびサイクリックボルタメトリー測定には、作用極として微小白金電極、対極として隔壁(多孔質ガラス)を有する白金電極、参照電極として飽和カロメル電極(SCE)を使用した。また、電量値の測定のため行った定電位電量分析には、作用極として金メッキを施した白金網電極、対極として隔壁(多孔質ガラス)を有する白金電極、参照電極としてSCEを使用した。

PuおよびU試験溶液の濃度測定は、電位差滴定装置を用いて行った。

2.2 試薬類

(1) プルトニウム試験溶液 (5mg/mL)

プルトニウム同位体組成比が既知である二酸化プルトニウム粉末を硝酸および少量のふつ化水素酸で加熱溶解し、イオン交換により不純物をPuから分離するため、過酸化水素水を加え、PuをIV価に原子価調整した。この溶液を陰イオン交換樹脂を用いてPuからAm, Np等不純物を分離・除去した溶液をPu試験溶液とした。また、このときのPu量を電位差滴定法により分析したところ、Pu濃度は4.78mg/mLであった。

(2) ウラン試験溶液 (15mg/mL)

二酸化ウラン(ADU法により精製した天然ウランを二酸化ウランに転換したもの)1.7gを8M硝酸で溶解し、乾固寸前まで加熱濃縮した後、0.5M硝酸で全量を100mLとした。さらに、電位差滴定法によりU濃度を確認したものを試験溶液とした。この溶液のU濃度は15.4mg/mLであった。

(3) 鉄(II)標準溶液 (1000mg/mL)

硫酸第一鉄アンモニウム・六水和物0.7gを採取し、1M硫酸50mLで溶解した後、水を加えて全量を100mLとした。

水は蒸留水製造装置により製造した蒸留-イオン交換水を使用した。他の試薬はすべて特級品を使用した。

2.3 電位挿引による電流値測定操作手順

電解セル中にPu試験溶液1mLを入れ、0.5M硫酸溶液を加え30mLとした。この溶液をマグネットスターで攪拌しながら、溶液中に窒素ガス

を通気することにより脱氣を30分間行った。次に、この電解セルに作用極として微小白金電極、対極には隔壁を有する白金電極(電極内は0.5M硫酸溶液)、参照電極としてSCEを挿入した後、窒素ガス通気用のガラス毛細管を液面から取り出し、測定を行った。

電流-電位曲線の測定のため、-200~1000mV(vs SCE)において、挿引速度を5~50mV/秒の範囲で電位を挿引し、そのときの電流密度(電極単位面積あたりの電流値: $\mu\text{A}/\text{cm}^2$)を測定した。

2.4 定電位電量分析法の操作手順

2.3の操作手順と同様に測定溶液を調整した後、電解セルに作用極として金メッキを施した白金網電極、対極には隔壁を有する白金電極(電極内は0.5M硫酸溶液)、参照電極としてSCEを挿入した後、窒素ガス通気用のガラス毛細管を液面から取り出し、電解セル中の気相を窒素雰囲気とした。電量値を測定し、電解セル中のPu含有量をもとめるため、測定溶液は、0mV(vs SCE)で5分間還元処理を行った後、650mV(vs SCE)にて溶液中のPuを酸化させた。

3. 結果および考察

3.1 アノード分極またはサイクリックボルタメトリーによる検討

(1) Pu, Feの電流-電位曲線の測定

Pu溶液およびFe溶液を用いて電位を掃引することにより電流密度の変化を測定した。得られたI-E曲線を図2-a)に示す。これより、PuのIII価からIV価への酸化において約450mV(vs SCE)から電流値が正となり、FeのII価からIII価への酸化においては約550mV(vs SCE)から電流値が正となることが分かった。Puの電量分析を行う場合、迅速にかつ完全にPuをIII価からIV価へ酸化する必要があり、このままの状態でPuの電量分析を行うとFeの影響を受けてしまうことが明らかである。

(2) Feの影響の除去(電流-電位曲線)

Feと選択的に錯形成する試薬としては、Fe(II)と反応する試薬として $\alpha\alpha'$ -ジビリジル、 σ -フェナントロリン、バソーフェナントロリンおよび2、4、6、-トリビリジル-1、3、5-トリアジン(TPTZ)等が、Fe(II)と反応する試薬として、5-スルホサリチル酸、チロン等フェノール誘導体等が知られている⁷⁾。しかし、Puの測定においては、測定前に還元電位を印加するため、Fe(II)と

速やかに反応する試薬を用いることが望まれる。また、電解溶液中に有機溶媒が混入すると電極の反応性に影響を及ぼす可能性があるため、可能な限り水溶性の試薬を選択する必要がある。さらに、錯形成試薬がPuと全く反応しないことが必要条件である。 σ -フェナントロリンは、Fe(II)と選択的に反応し、300倍の水に溶解する。したがって上記条件を満たしていることから、本試験では、 σ -フェナントロリンを選択し、以後の検討を行うこととした。

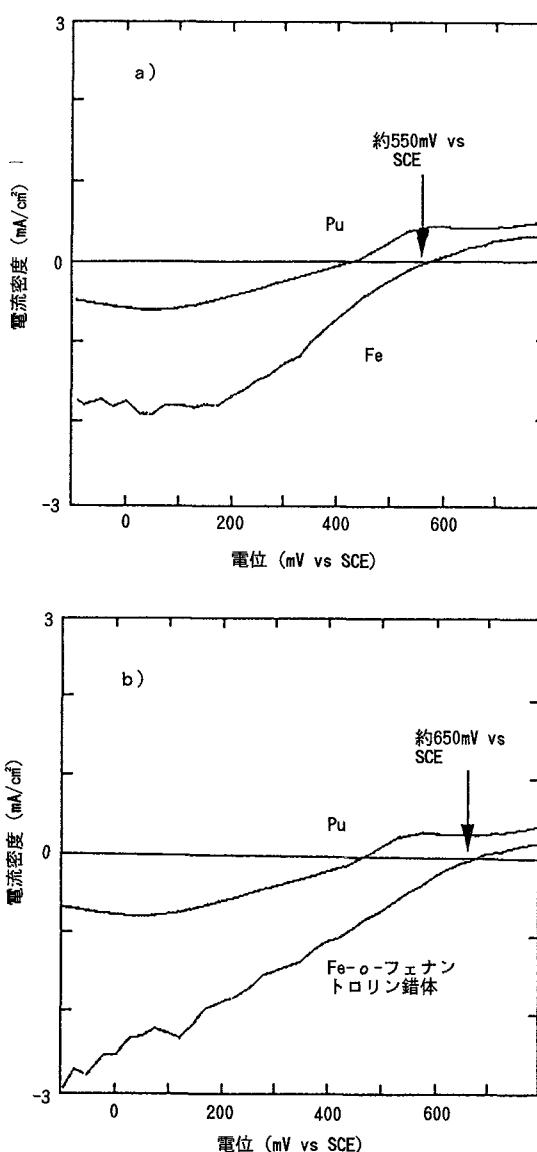


図2 Pu, FeおよびFe- σ -フェナントロリン錯体の電流-電位曲線

Pu量: 4.78mg

Fe量: 1.0mg

σ -フェナントロリン: 4.5×10^{-4} mol

作用極: 微小白金電極

参照電極: 飽和カロメル電極 (SCE)

Feに α -フェナントロリン溶液を添加したときのI-E曲線を図2-b)に示す。Fe(II)と α -フェナントロリンは1:3の錯体を形成する⁷⁾ため、Feの酸化電位がシフトすることが期待できる。本試験結果より、Fe溶液に α -フェナントロリンを添加すればFeのみの場合と比べ、アノード側にシフトすることが分った。

3.2 定電位電量分析法による検討

(1) 還元条件の設定

PuのIII-IV価の酸化還元電位はShults³⁾らによれば、0.5M硫酸酸性下において0.49mV(vs SCE)である。よって、本検討においては、Pu溶液を用いてPuの還元電位を200mV(vs SCE)で還元し、電流密度が30 μ A/cm²以下となった際に還元を終了すると設定した。しかし、還元電位が長くなってしまい、Puを酸化したときの電量値が低値を示した。そこで、還元電位をさらに下げ検討した結果、0mV(vs SCE)においては還元電位が短く、良好な結果を得ることができた。

Uの影響を調べるために、Pu-U混合溶液を用いて同じく還元電位0mV(vs SCE)として試験を行ったが、その影響は見られなかった。

さらに、この溶液を用いて還元電位を0mV(vs SCE)、酸化電位を650mV(vs SCE)としたとき、還元において電流密度が30 μ A/cm²以下となった際に還元を終了と設定し、Puの還元時間の影響について検討した。この結果、Pu1mgに対し、還元時間を40秒以上に設定した場合、試料溶液中のPuを完全に還元することができた。したがって、以後の試験では、還元時間は試料溶液中のPu1mgに対し60秒に設定した。

(2) 酸化条件の設定

酸化電位は、共存する他元素の酸化・還元電位も考慮し、他の元素の酸化電位と重ならず、かつPuを酸化できる電位に設定する必要がある。0mV(vs SCE)で還元処理を行った後、酸化電位を変化させたところ、600mV(vs SCE)以上の酸化電位のとき、Puは完全に酸化されていることが分かった。しかし、650mV(vs SCE)よりアノード側であるとFe- α -フェナントロリン錯体の影響を受けることから、本試験の酸化電位は650mV(vs SCE)に設定することとした。

(3) 電量値に及ぼすFeの影響

本試験では、4.78mgのPuに、Fe添加量を変化させてPuの電量分析を行った。横軸にFe添加量を、縦軸にPuのみの測定溶液を用いて分析した際の電量値を100とし、相対電量値でプロットし

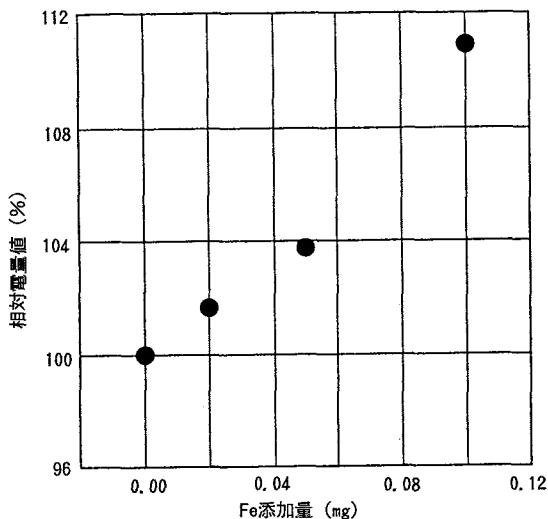


図3 電量値に及ぼすFe添加量の影響

Pu量: 4.78mg

還元電位: 0mV vs SCE

酸化電位: 650mV vs SCE

* Pu溶液の電量値を100とする

た。結果を図3に示す。Feの添加量の増加に伴い測定値は増加した。また、Pu4.78mgに対して0.1mgのFeを添加しているが、これはPu富化度3%MOXを対象とした場合、550ppmのFe量に相当する。

(4) α -フェナントロリン添加の効果

0.1mgのFeを含むPu試料溶液(Pu:4.78mg)に α -フェナントロリンの添加量を変化させたときの電量値を測定した。横軸には α -フェナントロリン/Fe比(モル比)を、縦軸にはPuのみの測定溶液を用いたときの電量値を100とし、相対電量値でプロットした。結果を図4に示す。この結果から、 α -フェナントロリンがFe量に対しモル比で20倍量以上添加すれば、Feの影響を完全に除去できることが分かった。また、Pu試料溶液に添加する α -フェナントロリン量を変化させた場合、Puの電量値に変化は見られなかった。したがって、 α -フェナントロリンを過大に添加しても電量値には影響を及ぼさないとことが分かった。

本試験では、Pu:Fe=約50:1(重量比)までしか検討していないが、MOX燃料中に含有するFe濃度を考慮すると、Pu分析を行うには十分である。

(5) 電量値に及ぼすUの影響

核燃料物質中のPuの電量分析を行う際に、Uが共存すると分析値に影響を与えることが報告されている⁸⁾。そこで、Puの電量値に及ぼすUの影響を検討した。Pu測定溶液(Pu:4.78mg)にUを

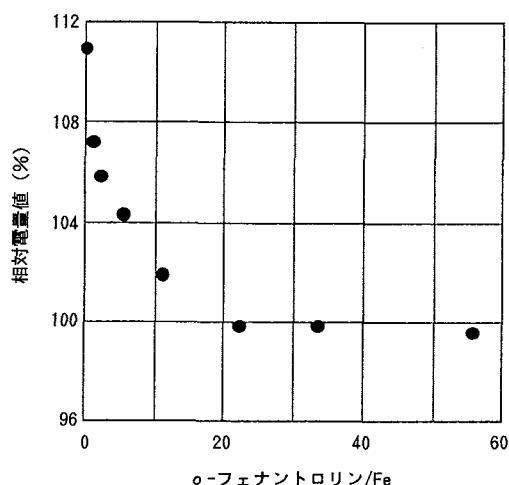


図4 電量値に及ぼすo-フェナントロリン添加量の影響

Pu量: 4.78mg

Fe量: 0.1mg

還元電位: 0mV vs SCE、300秒

酸化電位: 650mV vs SCE

* Pu溶液の電量値を100とする

U/Pu重量比で1~20倍量まで変化させたときの電量値を測定した。結果を図5に示す。その結果、U/Pu比10倍量までは電量値に影響を及ぼさないことが分かった。しかし、20倍量では電量値は低値を示した。ASTM⁹⁾では、U/Pu比10倍量まではPu分析値に影響がなく、それ以上のU/Pu比の場合に影響があると述べられており、本試

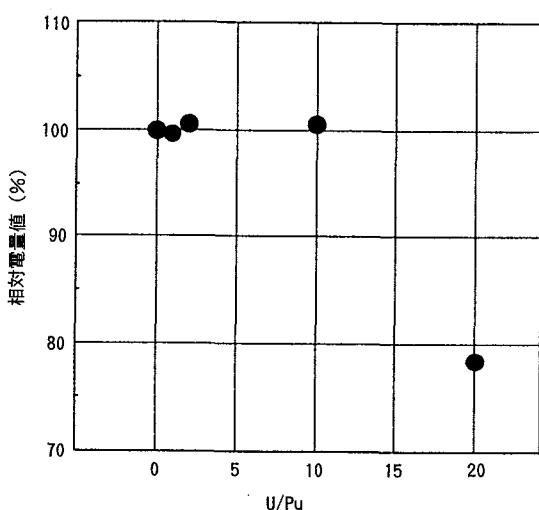


図5 電量値に及ぼすU添加量の影響

Pu量: 4.78mg

還元電位: 0mV vs SCE、300秒

酸化電位: 650mV vs SCE

* Pu溶液の電量値を100とする

表 I Pu分析結果

Pu添加量 (mg)	Fe添加量 (mg)	o-フェナントロリン 添加量(mol)	分析値 (mg) Av.±SD
4.78	—	—	4.782±0.013 (n=3)
4.78	0.1	—	5.285±0.019 (n=3)
4.78	0.1	4.5×10 ⁻⁵	4.781±0.013 (n=7)

験の結果と一致した。

(6) 精度の確認

精度の確認を行う目的で、以下に示す3種類の試料について繰返し分析を行った。

① 4.78mgPu溶液試料（試料1）

② 試料1に0.1mgのFeを添加した試料（試料2）

③ 試料2に4.5×10⁻⁵molのo-フェナントロリンを添加した試料（試料3）

繰返し分析の結果を表1に示す。この結果、各試料の分析値および標準偏差は試料1で4.78±0.013(n=3)、試料2で、5.285±0.019(n=3)、試料3で4.781±0.013(n=7)であった。つまり、Pu溶液にFeを添加した試料（試料2）では、Fe添加の影響を受けて分析値は高値を示すが、o-フェナントロリンを添加すれば、Feの影響を完全に除去でき、その時の相対標準偏差(RSD)は、0.27%であった。

4. おわりに

Fe溶液にo-フェナントロリンを添加すると、I-E曲線は、Feのみの場合と比べアノード側にシフトすることが分かった。また、試料溶液中にFeが共存した場合でも、o-フェナントロリンをFeの絶対量の20倍以上添加することにより、Feの影響を完全に除去することができた。このときのPu分析における相対標準偏差は0.27%(n=7)であり、Feが共存しない場合と同様な分析精度が得られた。また、Pu量に対してU10倍量までは、Pu分析値に影響を与えるなかった。これ以上のUを添加した場合は低値を示した。

本試験の結果より、本方法はU/Pu比の小さいFBRタイプ燃料中のPuの分析には適用可能である。ただし、U/Pu比が10倍を越える低富化Pu含有燃料中のPu分析に適用するためには、Uの影響を除く試験を行う必要がある。

参考文献

- J. L. Drummond, R. A. Drant: "Potentiometric determination

- of plutonium by argentie oxidation, freeous reduction and dichromate titration." *Talanta*, 13, p477-488 (1966).
- 2) 小森卓二、田村修三：“安定同位体を用いる同位体希釈質量分析法”，分析化学，23(7)，p 804-809 (1974).
- 3) W.D.Shults：“Applications of controlled-potential coulometry to the determination of plutonium”，*Talanta*, 10, p883-849 (1963).
- 4) G.Phillips, D.Crossley : UKAEA Harwell AERE-R-8885 (1977).
- 5) D.D.Jackson, R.M.Hollen : Los Almos Scientific Labolatory (1978).
- 6) G.W.C.Milner, G.Phillips et.al. : "Chemical Analysis of Ceramic Materials, Containing Uranium and Plutonium Arising from the Development of Nuclear Fuels." *Talanta*, 15, p1241-1257 (1968).
- 7) 滝井 駿、坂田 衛 共著：“環境分析のための機器分析”，日本環境測定分析協会 (1980).
- 8) ISO : "Controlled potential coulometric assay of Plutonium", ISO/TC/85/SC5/WG3 (1992).
- 9) Anual Book of ASTM Standards, 12. 01 C698 (1990).



放射性廃棄物核種の中性子断面積の研究

原田 秀郎 中村 詔司 加藤 敏郎^{*}
和田 幸男

東海事業所核燃料技術開発部

資料番号：97-15

Research on Neutron Capture Cross Section of Radioactive Fission Products

Hideo Harada Shoji Nakamura Toshio Kato
Yukio Wada
(Nuclear Fuel Technology Development Division, Tokai Works)

長寿命核分裂生成核種の消滅処理評価を行うための基礎データ整備の一環として、放射性核分裂生成核種に対する中性子吸収断面積の精密測定を行った。カドミニウム・シールドがある場合とない場合で原子炉中性子照射を行い、それぞれに対し、2種類の放射化検出器で中性子束をモニターした。ターゲットからの強いガンマ線場中で核反応生成核からの微弱なガンマ線を測定するための計測システムを開発し、放射能測定に利用した。この結果、¹³⁷Cs、⁹⁰Sr、⁹⁹Tcおよび¹²⁹Iの熱中性子吸収断面積と共鳴積分値の誤差を5～10%という高い精度で測定できた。

1. はじめに

原子炉から発生する長寿命放射性廃棄物核種を加速器等を利用して積極的に安定あるいは寿命の短い核種に変換させるための研究を消滅処理研究と呼ぶ。消滅処理研究対象核種としては、核燃料の核分裂反応で生成する⁹⁰Sr、¹³⁷Cs等の核分裂生成核種と核燃料の中性子吸収反応で生成する²³⁷Np、²⁴¹Am等の超ウラン元素がある。先端技術開発室では、ガンマ線による長寿命核分裂生成核種の消滅処理評価の一環として熱中性子吸収断面積の測定を実施してきた。

本測定では、原子炉中の中性子吸収により生成した核種の放射能とターゲット放射能を同時に測定することによりデータの信頼性を高めた。また、Cdシールドとマルチフラックスモニタを用いることにより、熱中性子吸収断面積のみならず共鳴積分値も測定された。本稿では、これらの測定技術に関するR&Dの結果と、これまでに測定が終了した⁹⁰Sr、¹³⁷Cs、⁹⁹Tc、¹²⁹Iの実験結果について報告する。

示すように¹³⁷Csは約30年の半減期で崩壊し、662 keVのエネルギーを持つガンマ線を放出する。この¹³⁷Csが中性子で放射化されると（すなわち、中性子を吸収すると）¹³⁸Csに変化するが、この原子核は約33分の半減期で、安定な核種である¹³⁸Baへと崩壊する。この時、1010、1436、2218 keVの

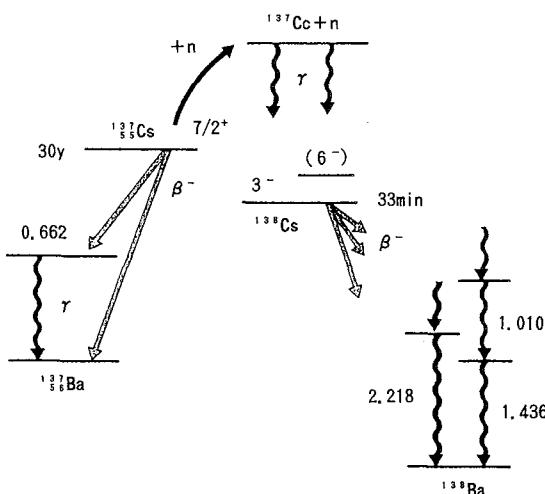


図1 ¹³⁷Csおよび¹³⁸Csの崩壊図

2. 実験原理

2.1 放射化法

実験原理を¹³⁷Csを例に取り説明する。図1に

エネルギーを持つガンマ線が放出される。 ^{138}Cs が1回崩壊した時に、これらのガンマ線が放出される割合は、すでにわかっているので、1010、1436、2218keV等のガンマ線の強度を測定することにより生成した ^{138}Cs の量を求めることができます。

我々の測定したい中性子吸収断面積という物理量を求めるためには、生成した ^{138}Cs の量だけでなく、ターゲットである ^{137}Cs の量も知る必要がある。原子炉の短期間照射で生じる ^{138}Cs の放射能は、ターゲットである ^{137}Cs の放射能に比べ桁違いに小さいので、第3章で述べる注意深い測定が必要となる。

2.2 反応速度と断面積

中性子吸収反応の起こる速度Rは、

$$R = \frac{A}{N} \cdot [1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{T_{IR}}{T_{1/2}}}]^{-1} \quad \dots \dots \dots \textcircled{1}$$

で与えられる。ここで、Aと $T_{1/2}$ は、それぞれ中性子吸収反応で生成した原子核の放射能と半減期であり、Nは、ターゲット原子核の数、 T_{IR} は原子炉中での照射時間である。 ^{138}Cs と ^{137}Cs の放射能の比は、簡単に①式中のA/Nに換算できるので、放射能の比、すなわち相対値を測定するだけで、Rを求めることができる。

よく熱化された原子炉中の中性子スペクトルは、マックスウェル分布をした熱中性子束とエネルギーに反比例した熱外中性子束を合成したものとして近似される。¹⁾この場合、原子炉中の中性子束は、2つのパラメータの ϕ_1 と ϕ_2 で記述することが可能となり、反応速度Rと次式の関係で結ばれる。

ここで出てくる量 σ_0 が、 2200m/s の速度を持つ中性子に対する吸収断面積、すなわち、熱中性子吸収反応断面積である。 σ_0 は、

$$S_0 = \frac{2}{\pi^{1/2}} \cdot \left(\frac{I_0}{\sigma_0} - 0.45 \right) \quad \dots \dots \dots \quad (3)$$

なる式で表される量である。 I_0 は、

で定義され、共鳴積分値と呼ばれる量である。ここで、Eは中性子のエネルギー、 $\sigma(E)$ は、エネルギーEの中性子に対する吸収断面積、 E_C は、Cdカットオフエネルギーである。 σ_0 と s_0 のわかっている2つの独立な核種（これを放射化検出器と呼ぶ）をターゲットと同じ中性子束場で照射することにより、②式の ϕ_1 および ϕ_2 を求めることができる。さらに、照射を熱中性子吸収力の大きなCdシールド中で行うと中性子束は ϕ_1 、 ϕ_2 から大きく変化し、
 ②式は、

となる。②と同様に、2つの独立な放射化検出器を用いることにより、 ϕ'_1 と ϕ'_2 も求めることができる。ターゲット核種に対する R および R' を測定すれば、②および②'の連立方程式を解くことにより、 σ_0 と s_0 を独立に求めることができる。さらに③式より I_0 も求まる。このように、反応速度を Cd シールドがある場合とない場合で、それぞれ測定することにより、熱中性子吸収断面積 σ_0 と共鳴積分値 I_0 を求めることが可能となる。

3. 実験方法

実験は、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{99}Tc 、および ^{129}I について、それぞれ独立に行った。 ^{90}Sr と ^{137}Cs の実験は、日本原子力研究所研究炉JRR4で行った。 ^{99}Tc と ^{129}I の実験は、立教大学原子力研究所の研究炉で行った。これら4核種に対する実験では、一貫して、原子炉中性子による放射化法を採用した。照射場における中性子束をモニターするため、Co/Al合金ワイヤーとAu/Al合金ワイヤーを、放射化検出器として使用した。照射ターゲットおよびこれら2種類の放射化検出器を、いずれも、熱中性子をよく遮蔽する能力を有するCdシールドがある場合とない場合とで照射した。生成する放射能の量を、ゲルマニウム半導体検出器により測定した。

3.1 ターゲットおよび照射

¹³⁷Csターゲット量は、1つ当たり、約0.4MBqであり、その化学形態は塩化セシウムであった。ポリエチレンカプセル中で赤外ランプで暖めることにより水分を蒸発させ乾燥させた。照射はJRR-4の気送管で行った。Cdシールドがある場合は、10分、ない場合は、2分間照射した。照射で生じる²⁴Naと³⁸Clを除去するため、照射済みターゲットにNaCl溶液を混ぜ、ついで、ゼオライト

を混ぜてCsを吸着させて、フィルターで分離した。 ^{90}Sr ターゲットはガンマ線を放出しないため、 ^{85}Sr 同位体をトレーサーとして混入した。照射前に、 ^{85}Sr と ^{90}Sr 放射能の比は、ベータ線測定とガンマ線測定により131±7と測定された。 ^{90}Sr ターゲット量は、1つ当たり、約2MBqであり、その化学形態は塩化ストロンチウムであった。照射済みターゲットをイオン交換法により、放射能を有する Na^+ 、 Cl^- 、 Y^{3+} イオンから分離した。照射は ^{137}Cs と同様、JRR4の気送管を行い、Cdシールドがある場合10分、ない場合は、5分間照射した。

^{99}Tc は、観測し易いガンマ線を放出しないが、半減期が長いため、比放射能を液体シンチレーションカウンターを用い前もって測ることにより、重量測定でターゲット量を知ることができる。ターゲット量は、約370kBqである。生成する ^{100}Tc の半減期は、15秒と短いため、照射後、測定を迅速に開始することのできる立教大学原子炉を用いて照射した。照射位置は、Cdシールドを利用できる回転試料棚中とし、2分間照射した。

^{129}I も ^{99}Tc の場合と同様に、前もってターゲット溶液の比放射能を測定し、重量測定により、ターゲット量を求めた。Cdシールド中照射用のターゲットは約2600Bq、Cdシールドなし照射用のターゲットは約260Bqとし、それぞれ10分間回転試料棚中で照射した。

3.2 放射能測定

照射済みターゲット中には、ターゲット自身か

らの強い放射能ばかりではなく、核反応で生成する微弱な放射能が混在する。これら強度の大きく異なる放射能をゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線測定により求めた。ターゲットからの強いガンマ線場中で核反応生成核種からの微弱なガンマ線を測定するため、ガンマ線計測装置の処理速度を高める必要がある。このため、図2に示すように、トランジスタ・リセット型の前置増幅器(preampl)および、450MHzアナログデジタル変換器(ADC)を用いた。デジタル化されたガンマ線のエネルギー情報は、高速でCAMACモジュールのヒストグラムメモリーに蓄えられた。このヒストグラムすなわちガンマ線エネルギースペクトル情報は、一定時間間隔でコンピュータに転送され、オンラインでモニターされた。この計測システムは、14キロカウント/秒の高いデータ取り込み速度でも、不感割合は約8%であった。用いたゲルマニウム半導体検出器のエネルギー分解能は、1.33MeVのガンマ線に対し、半値幅で2.1keVであった。検出効率は、3インチ $\phi \times$ 3インチのNaI(Tl)検出器に対し90%という高効率のものであった。検出効率が大きいことは、全カウント数におけるフルピークカウント数の割合を高める上で有効であった。

4. 結果および議論

図3は、測定されたガンマ線エネルギースペクトルの一例を示す。 ^{137}Cs からの強い662keVガンマ線と同時に、 ^{138}Cs からのガンマ線が1010keV、1436keV、2218keVに観測された。上図がCd

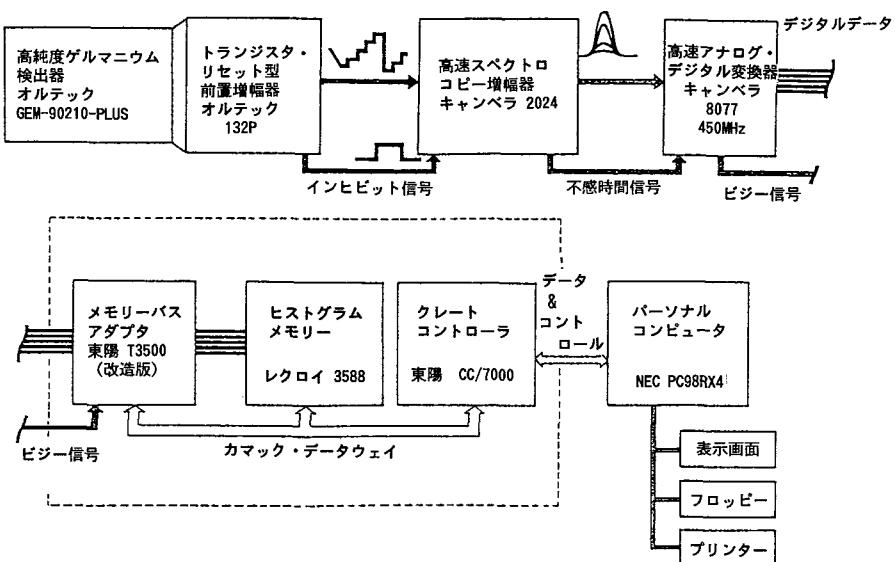


図2 高速放射線計測システム

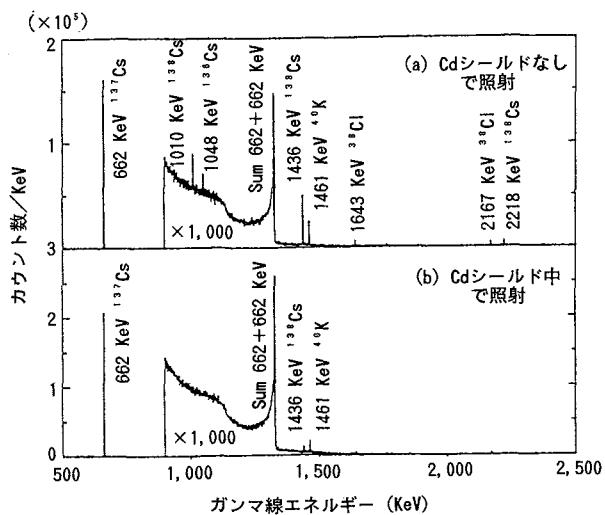


図3 ガンマ線スペクトルの測定例。上図が、Cdシールド無しで照射したターゲットを測定したものであり、下図が、Cdシールド中に照射したターゲットを測定したものである。

シールドがない場合のスペクトルで、下図がシールドがある場合のスペクトルである。

これらのガンマ線のカウント数から崩壊による減衰の補正を行うことにより①式の反応速度Rを求めた。この値を②および②'式に代入し、 σ_0 および I_0 を求めた。測定の誤差としては、統計的誤差の他に、検出効率校正の誤差、中性子束測定の誤差等の系統的誤差も考慮された。表1に得られた結果^{2)~5)}のまとめを以前の測定データ^{6)~9)}と共に示す。

^{137}Cs の σ_0 は以前の測定値より2.3倍大きな結果であった。また、 I_0 の値が初めて測定された。測定誤差は、27%から8%と小さくなつたが、これはガンマ線スペクトルの質が以前のNaIガンマ線検出器を用いた測定に比べ向上したためである。

表1 放射性核分裂生成核種の熱中性子吸収断面積と共鳴積分値

核種	過去のデータ	PNCのデータ
^{137}Cs	$\sigma_0 = 0.11 \pm 0.03\text{b}$ (ステュベニア'60)	$\sigma_0 = 0.25 \pm 0.02\text{b}$ $I_0 = 0.36 \pm 0.07\text{b}$
^{90}Sr	$\sigma_0 = 0.8 \pm 0.5\text{b}$ (ザイゼル'66)	$\sigma_0 = 15.3 \pm 1.3\text{mb}$ $I_0 \leq 0.16\text{b}$
^{99}Tc	$\sigma_0 = 20 \pm 2\text{b}$ $I_0 = 186 \pm 16\text{b}$ (ルーキャス'77)	$\sigma_0 = 22.9 \pm 1.3\text{b}$ $I_0 = 398 \pm 38\text{b}$
^{129}I	$\sigma_0 = 27 \pm 2\text{b}$ $I_0 = 36 \pm 4\text{b}$ (イーストウッド'58)	$\sigma_0 = 30.3 \pm 1.2\text{b}$ $I_0 = 33.8 \pm 1.4\text{b}$

また、以前の測定では、ターゲットの放射能が強いため、 ^{137}Cs からのガムマ線と ^{138}Cs からのガムマ線同じ幾何条件で測定できなかつた。このため、ガムマ線強度の絶対値測定が要求された。この方法では、計測システムの不感時間の補正等が必要である。我々の測定手法では、これらの問題を考慮する必要がない分、誤差の要素も減つてゐる。

^{90}Sr の σ_0 は、以前の測定値より50倍以上小さい結果であった。この差は、以前の測定値の誤差が非常に大きく、このデータは σ_0 の上限値しか与えていないと考えると理解できる。 ^{90}Sr の I_0 値は小さく、我々の測定においても、その上限値しか求めることができなかつた。今後、より精度の高い実験手法の開発が、0.16バーン以下という小さな I_0 を持つ核種に対して望まれる。

^{99}Tc の σ_0 は、以前の測定値と誤差の範囲で一致し、15%大きいという結果であった。ただし、 I_0 の値は約2倍大きな結果である。我々の測定値はむしろ中性子減速時間スペクトロメータによるエネルギー微分断面積測定で得られた結果¹⁰⁾に近い。以前の測定⁸⁾は、中性子スペクトルの硬い場が用いられていたが、この場合②式のよく熱化された中性子場という仮定の有効性に問題が生じ、これが差異の一因として考えられる。

^{129}I の σ_0 と I_0 は誤差の範囲で以前の値⁹⁾と一致しているが、測定誤差を2分の1以下とすることに成功している。

5. おわりに

核分裂生成核種の消滅処理評価に必要な核データ整備の一環として、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 ^{99}Tc および ^{129}I の熱中性子吸収断面積および共鳴積分値が測定された。放射化法による実験を高精度で行うことにより、これまでの実験データの誤差を飛躍的に減少させることができた。また、 ^{137}Cs と ^{90}Sr の共鳴積分値は、この研究で初めて測定された。精度の高い核データは、消滅処理システムを研究する上で重要であり、今後とも必要となる核反応断面積の精密測定が盛んに行われることが望まれる。

6. 謝辞

本研究を推進するに当たり、日本原子力研究所の関根俊明氏をはじめとする研究グループ、名古屋大学工学部の研究グループ、および戸村教授をはじめとする立教大学原子力研究所の皆様に大変お世話になった。ここに深く感謝したい。

参考文献

- 1) C.H. Westcott, W.H.Walker et al., "Effective Cross Section and Cadmium Ratios for the neutron spectra of Thermal Reactors", Proc. 2nd Geneva Conf. /6, p70 (1958).
- 2) T.Sekine, Y.Hatsukawa et al., "Measurement of Thermal Neutron Cross Section and Resonance Integral of the Reaction $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ ", J.Nucl.Sci. Technol. 30, 11, p1099 (1993).
- 3) H.Harada, T.Sekine et al., "Measurement of the Thermal Neutron Cross Section of the $^{90}\text{Sr}(n, \gamma)^{91}\text{Sr}$ reaction", ibid., 31, 3, p173 (1994).
- 4) H.Harada, S.Nakamura et al., "Measurement of Thermal Neutron Cross Section and Resonance Integral of the Reaction $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ ", ibid., 32, 5, p395 (1995).
- 5) S.Nakamura, H.Harada et al., "Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the Reaction $^{129}\text{I}(n, \gamma)^{130}\text{I}$ ", to be published in J. Nucl. Sci. Technol.
- 6) D.C.Stupegia, "The Thermal Neutron Capture Cross Section of the Reaction $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ ", J. Nucl. Energy, A/2, p16 (1960).
- 7) G.Zeisel, "Reaktionsquerschnitte an Sr^{90} für Reaktorneutronen", Acta. Phys. Austr., 23, p5223 (1966).
- 8) M.Lucas, R.Hagemann et al., "Determinations Des Sections Des Capture Neutronique D'isotopes Intervenant Dans Le Phénomène D'oklo Par Irradiation Dans Le Réacteur Triton", IAEA - TC - 119/14, p407 (1977).
- 9) J.C.Roy and D.Wuschke, "Neutron Capture Cross Section of Tl^{129} and Tl^{130} ", Canadian J. Chemistry, 36, p1424 (1958).
- 10) J.C.Chou and H.Werle, "(n, γ) - Cross - Section Measurements of ^{99}Tc , Eu, Sm, and Fe in the energy range 1eV to 50keV with a slowing-down time spectrometer", J. Nucl. Energy, 27, p811 (1973).



リアルタイムエキスパートシステムによる ウラン濃縮プラントシミュレータの開発

児玉 信一 近藤 千博*

人形峠事業所ウラン濃縮工場生産技術部
*原子力システム株式会社

資料番号97-16

Development of Simulator for the Uranium Enrichment Plant Using a Real-time Expert System

Shinichi Kodama Kazuhiro Kondo*
(Enrichment Service and Technology Division,Ningyo Toge Works
* Nuclear Energy System Incorporated)

人工知能技術のウラン濃縮プラントへの応用として、実用規模カスケード試験装置の運転支援を目的としたウラン濃縮プラントシミュレータを開発している。システム構築にはワークステーション上で動作するリアルタイムエキスパートシステム構築用ツールG2を使用した。

カスケードのホット定格モードを対象に原料供給系とカスケード設備をモデル化し、カスケードの詳細計算にはカスケード静特性計算コードを使用した。これらの計算値を基準として実測データの変動や異常の検出に利用している。特に、製品ウラン濃度については、目標濃度からのずれを検知した場合に、あらかじめデータベース化された知識により原因の推定を行なう機能を作成した。

1. はじめに

人工知能(AI)技術の応用分野のひとつとして、プラント運転の分野で人間の判断能力を補佐し、異常時対応の迅速化、正確化、効率化を図り、運転員の負担を軽減することがあげられる。

人形峠事業所ウラン濃縮工場でも、原型プラントおよび濃縮工学施設において濃縮プラントの異常診断システム、異常予測システム、運転支援システム等のAI技術を応用したシステムの開発を進めている。

濃縮工学施設では平成2年度より新素材胴遠心分離機による実用規模カスケード試験を電気事業者および日本原燃㈱と動燃事業団との共同研究として実施しており、その一環としてAI技術を応用した新素材胴遠心分離機カスケードの運転支援のためのウラン濃縮プラントシミュレータの開発を行ってきた。新素材胴遠心分離機は従来の金属胴遠心分離機に比べ温度、圧力の監視が重要であるが、将来の商業プラントでは監視できるプロセスデータは限られている。そこで従来より開発してきたカスケードシミュレーションコードとプラ

ントから得られるプロセスデータを組み合わせ、より精度の高い運転支援システムを目指し開発を行っている。

以下にカスケードシミュレーションコードのうち定常特性を扱う計算コードを利用した運転支援システムの構成、機能等について報告する。

2. ウラン濃縮プラントの概要

濃縮プラントは、遠心分離機を多数配列したカスケードを中心に、カスケードに六フッ化ウラン(UF_6)ガスを供給する原料供給系、カスケードから出てきた濃縮ウラン、劣化ウランを捕集する製廃品捕集系、遠心分離機に電力を供給する高周波電源設備、カスケード室等の管理区域の負圧・温度を一定に保つための給排気設備、遠心機に一定の温度の水を供給するためのユーティリティ設備およびこれらを監視・制御するための計装設備等から構成されている。(図1参照)

また、カスケードの運転状態は、カスケード内部の排気を行う真空排気モード、遠心機を定格回転数まで昇速させる遠心機起動モード、原料 UF_6

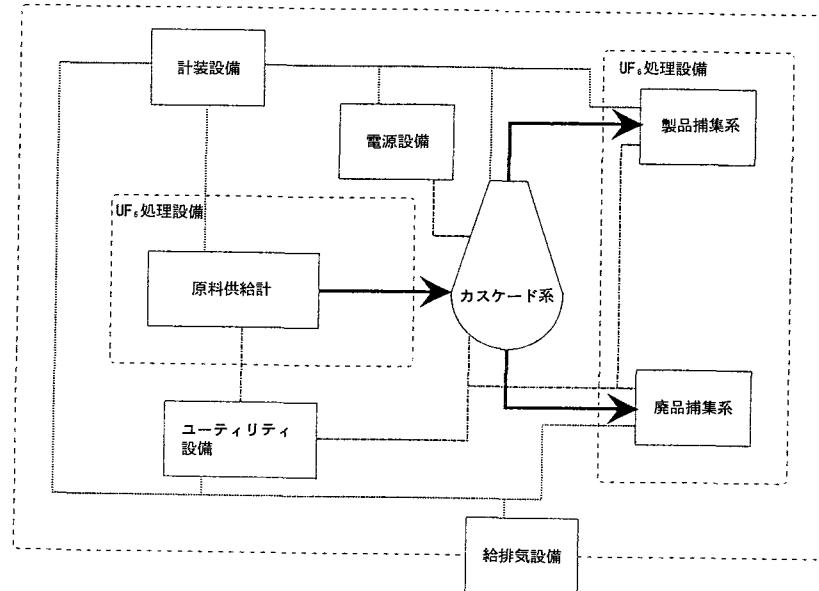


図1 濃縮プラント構成図

を供給するホット起動モード、定常運転によりウラン濃縮を行うホット定格モード、カスケードからウランを排氣するUF₆排気モード等に分類される。

本システムではカスケードの定常運転状態の監視を目的に、原料供給系およびカスケード設備を対象としてモデル化およびシステム構築を実施した。

3. システム構成

3.1 ハードウェア

本システムは、Ethernetによるネットワークとそれに接続された2台のワークステーションから構成される。ひとつはプラントシミュレーション

および比較・推論機能を実行するワークステーションであり、もう1台は運転データを送信するためのワークステーション（計装設備模擬システム用ワークステーション）である。その他、『实用規模カスケード試験装置運転データベース』（以下運転データベースという）のデータ転送にパソコンを利用している。（図2参照）

本システムは、将来的には実際の計装設備から発生する運転データをリアルタイムで受信することを想定しているが、現状の計装設備から直接ワークステーションにデータを送信するためには設備の改造が必要となる。そこで、既存の運転データベースに蓄積されている圧力、温度等の運転データを利用することにより、濃縮プラントか

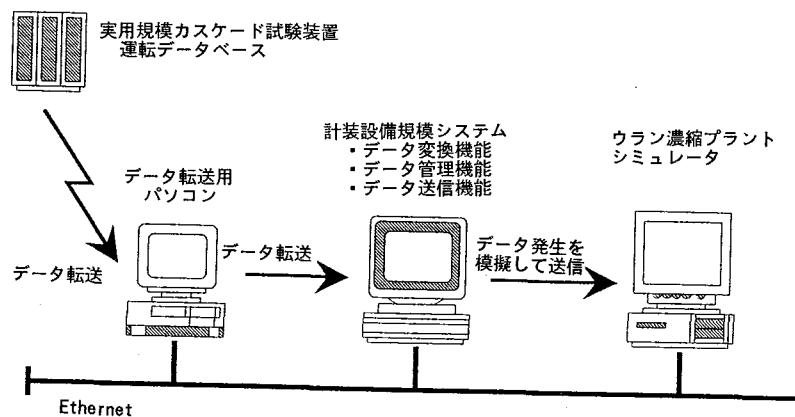


図2 ハードウェア構成

らのデータ発生を模擬し、ウラン濃縮プラントシミュレータに定期的にデータを送信する計装設備模擬システムを導入した。これにより送信の時間スケールを任意に変更することが可能となり、例えば数日にわたる変化を数時間で模擬することもできるため、システム開発の効率を向上させることができた。

3.2 ソフトウェア

(1) 開発言語

本システムは、米国Gensym社製のリアルタイムエキスパートシステム構築用ツールであるG2を使用して開発している。また、G2の外部とのインターフェイス部分にはC言語を使用し、カスケードの詳細計算には、従来開発してきたFORTRANプログラムを使用している。

G2は時間とともに変動するデータをリアルタイムで取り込みながら高速で推論を行う機能を持っているため、プロセス制御、電力、通信、ロボット等各種のリアルタイムシステムに適用されており、以下のような特徴を持つ。

- ① プラントのモデル化は、アイコン操作によるグラフィック表現と、平易な英文による知識表現により行うことができる。このため、ウラン濃縮プラントの各設備のプロセス機器と計測器の接続状態を記述するP&IDと呼ばれる図を模してシミュレーションモデルを作成することができ、直感的な理解が容易なものとなっている。また、C言語やPascal、BASICのような従来のプログラム言語に類似した構文を持つプロシージャによる制御も

可能である。

② 定義されたモデルのシミュレーションを、実時間に則して行うことができる。この機能を利用し、濃縮プラントシミュレーションモデルを実測データの受信と平行して動作させ、シミュレーションによる計算値との比較による実測データの監視を行うことができる。

③ 定期的に、あるいは特定の状況が起こったときに、あらかじめ記述された知識により推論および制御を行う。

(2) ソフトウェアモジュール

本システムのソフトウェアモジュールの構成を図3に示す。ウラン濃縮プラントシミュレータはプラントシミュレータとカスケード静特性計算コードから構成されている。

4. プラントシミュレータ

プラントシミュレータは本システムの中核であり、濃縮プラントシミュレーションモデル、リアルタイム比較・推論機能および各モジュールの全体の制御を行うコントロール部から構成される。

4.1 濃縮プラントシミュレーションモデル

このモジュールは、原料供給系およびカスケード設備をモデル化したもので、計装設備模擬システムから送られる実際の運転データを使用してモデル上の流量調節弁の設定圧力等を設定し、各機器の流量、圧力の変化をリアルタイムに計算する。また、プラント運転データの異常を判断するため、比較の対象となる値をリアルタイム比較・

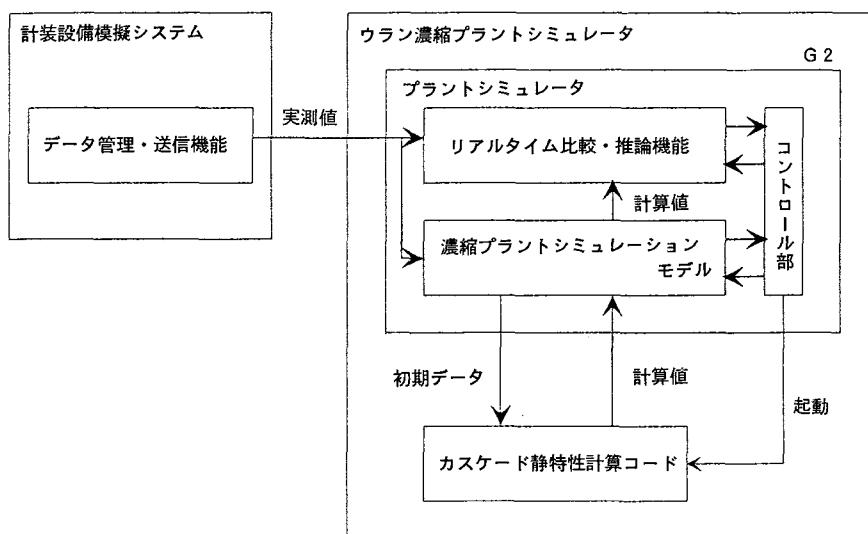


図3 ソフトウェア・モジュール構成

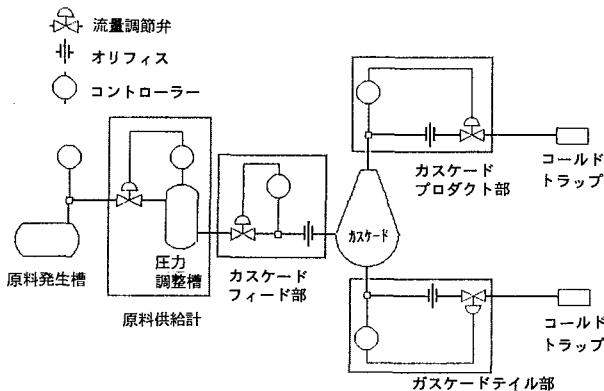


図4 シミュレーションモデル概要図

推論機能に提供するとともに、詳細なカスケード計算を実施するためカスケードの供給流量、取合圧力をカスケード静特性計算コードに提供する。

以下に、モデルの概要を説明する。(図4参照)

(1) 原料供給系

原料供給系は、UF₆の入ったシリングを加熱することにより、原料発生槽のUF₆ガスをカスケード設備の要求する流量、圧力に変換して供給する系統であり、上流側の原料発生系、および下流側のカスケード設備に起因する外乱を緩衝吸収し、安定なUF₆を供給する。この系統は圧力調整槽および流量調節弁からなり、槽内圧力が所定の圧力となるよう、調整槽前の流量調節弁で制御を行う。

(2) カスケード設備

① フィード部

流量調節弁とオリフィスから構成され、カスケードに供給するUF₆ガスの流量制御を行う。このために、オリフィスの入口圧力または流量のいずれかが一定になるよう、流量調節弁で制御を行う。

② カスケード部

フィード部から送られてきた原料UF₆ガスを処理し、濃縮UF₆ガスをプロダクト部から採取するとともに、劣化UF₆ガスをティル部から排出する。

G2のシミュレーション機能ではカスケード各部の圧力・流量・濃縮度を計算するには、負担が大きいため、従来より開発してきたカスケード静特性計算コードを利用している。プラントシミュレータは、カスケードの供給流量とプロダクト、ティル部の設定圧力をカスケード静特性計算コードに入力データとして与え、結果としてカスケードカットを受けることにより、プロダクトおよびティル部

の流量を計算する。

③ プロダクト部

プロダクト部はオリフィスとその後ろの流量調節弁から構成され、カスケードから採取された濃縮UF₆ガスの圧力制御を行う。このために、オリフィスの入口圧力が一定になるよう、流量調節弁で制御を行う。

④ テイル部

オリフィスとその後ろの流量調節弁から構成され、カスケードから排出される劣化UF₆ガスの圧力・流量制御を行う。このために、オリフィスの入口圧力、または流量のいずれかが一定になるよう、流量調節弁で制御を行う。

(3) シミュレーションモデル

原料供給系およびカスケード設備の各機器は上で述べたように、配管、圧力調整槽、オリフィス、流量調節弁等から構成されている。これらはその動作から大きく次の三種類に分けられる。

① 前後につながれた機器の圧力からその機器を通る流量を求める。
→ 流量調節弁、オリフィス

② 前後につながれた機器の流量からその機器内の圧力を求める。
→ 圧力調整槽、配管

③ 計算値、あるいは定数により流量、圧力を他の機器に分配する。
→ 原料発生槽との取合、コールドトラップとの取合、カスケード部

これらの機器はG2ではオブジェクトとして定義される。オブジェクトは図5に示すように階層構造を持つ。ここでは、流量調節弁を例にとって説明する。

① アイコン

個々のオブジェクトには図形(アイコン)

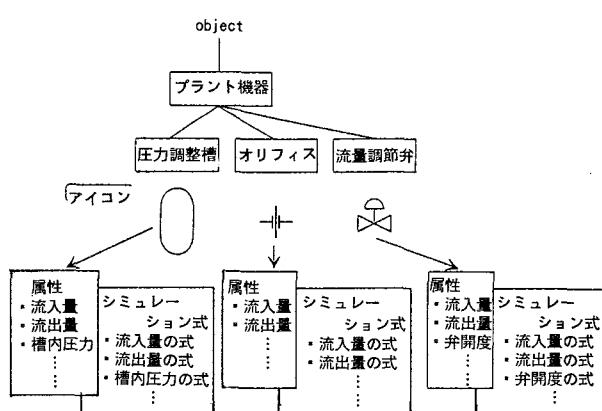


図5 G2の知識表現の例

が定義され、アプリケーション全体を分かりやすいグラフィックで表現している。また、アイコンにはコネクションが付加されており、これは画面上で各オブジェクト間のつながりを表すために使用されるアイテムである。流量調節弁の場合は配管のつながり、流量計および圧力計等の制御信号のつながりを示すために利用する。

② 属性

流量、弁開度等、流量調節弁が持ち得る値を属性として定義する。なお、上位の階層で定義された属性は下位のものに自動継承される。

③ シミュレーション式

定義された属性の値を求めるための式を、各属性毎に定義する。このシミュレーション式により各時間ステップごとに流量調節弁の流量、弁開度等が計算される。この式で使用される変数は、平易な英語の文章として定義できるという特徴を持つ。定義された式の例を図 6 に示す。

4.2 リアルタイム比較・推論機能

本システムが受け取った運転データをリアルタイムで監視し、異常時の警告、原因の推定を行う。

運転データが正常であるかどうかを判定するため、濃縮プラントシミュレーションモデルおよびカスケード静特性計算コードによって計算される値を利用し、運転データとの比較を行っている。

(1) 比較機能

計装設備模擬システムからの実測データを受けるごとに、対応する濃縮プラントシミュレーションモデルの計算値と比較し、差が一定値を越えた場合、該当するデータ項目名について差が生

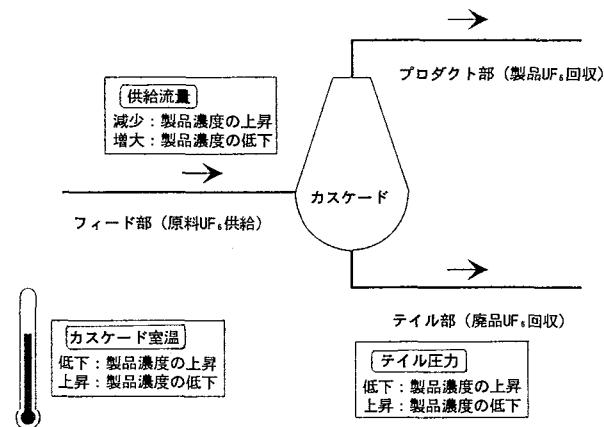


図 7 製品濃度変動の原因

じたことを警告として表示する。

(2) 製品濃度の変動の原因推定機能

比較機能により監視されるデータのうち、製品濃度の計算値と実測値の間にずれが生じた場合、原因として考えられる要因のデータをチェックすることにより原因を推定する。考えられる要因としては以下の要素がある。(図 7 参照)

製品濃度の上昇：供給流量減少

テイル圧力低下

遠心機室温の低下

製品濃度の低下：供給流量増大

テイル圧力上昇

遠心機室温の上昇

判定は以下の各項目にしたがって行われる。(図 8 参照)

① 製品濃度ずれ発生

実測値とシミュレータの値との差を監視し、シミュレーション開始時からの差のずれが一定値以上になった時、製品濃度のずれが

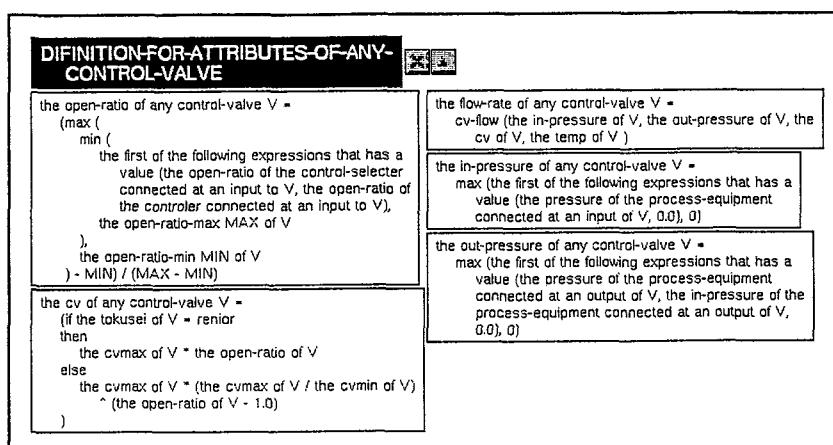


図 6 流量調節弁属性のシミュレーション式

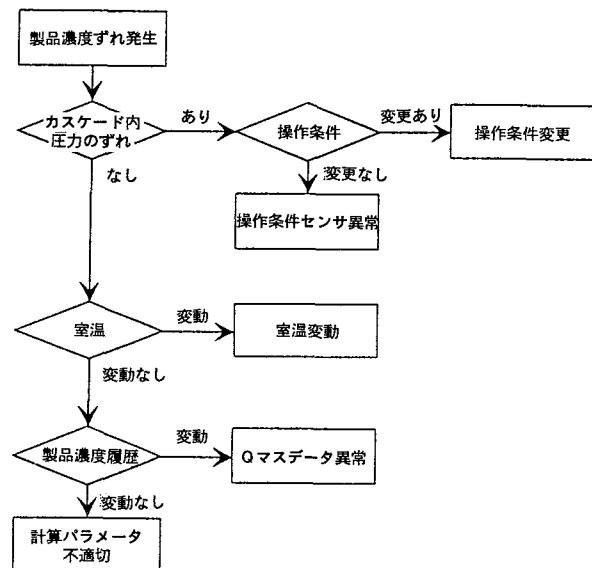


図 8 製品濃度原因推定機能の判定の流れ

- 発生したものとして以下の処理を実行する。
- ② テイル圧力、供給流量の変動
テイル圧力、供給流量のいずれかにおいて、実測値とシミュレータの値との差が一定値以上であれば、カスケード内部圧力をチェックする。
 - ③ カスケード内部圧力の変動
カスケード内部圧力の実測値とシミュレータの値を比較し、差が一定値以上であれば操作条件が変更されているものとして、テイル圧力、フィード流量の変動が製品濃度ずれの原因であるとして表示する。
 - ④ 室温履歴
テイル圧力、供給流量のいずれも変動がない場合には室温変動が原因と考えられるため、その履歴をチェックし、変動があれば、室温の変動を製品濃度ずれの原因として表示する。
 - ⑤ 濃度履歴
テイル圧力、カスケード内部圧力、室温のいずれにも変動が認められない場合、製品濃度の測定値に問題があると考えられるため、濃度測定データの履歴をチェックし、異常な変動があれば、濃度測定の異常を製品濃度ずれの原因として表示する。
 - ⑥ 計算パラメータ
以上の要因にすべて該当しなかった時、カ

スケード静特性計算コードが計算に使用しているパラメータに問題がある可能性があるため、これを原因として表示する。

(3) 製品濃度の臨界管理

ウラン濃縮プラントでは臨界管理のために、製品濃度に上限を設定して生産を行っている。このため本システムではカスケード静特性計算コードで計算される製品濃度を監視し、以下の条件に該当する時、これを警報として表示する。

- ① 製品濃度計算値が指定された値以上になつた場合
- ② 製品濃度は室温の変化により影響を受けるため、室温の履歴から一定時間後の製品濃度を予想し、算出された製品濃度が指定された値以上となる場合

4.3 コントロール部

コントロール部はプラントシミュレータの各モジュールを制御するとともにユーザインターフェースをつかさどる。特に、FORTRANプログラムであるカスケード静特性計算コードを制御し、定期的な自動起動を行う。

5. カスケード静特性計算コード

カスケード静特性計算コードはカスケードの定常特性を計算するFORTRANプログラムであり、カスケードの供給流量、取合圧力、カスケード室温等を入力データとして、カスケード内部圧力、製品・廃品濃度等のカスケードの詳細な運転状態を計算することができる。このプログラムをG2によるプラントモデルとリンクすることにより、CPU負荷を増大させることなくカスケードの詳細計算が可能となった。

6. 計装設備模擬システム

プラントシミュレータを実際の計装設備に接続することは技術的には可能であるが、設備の改造を必要とする。また、システム開発の観点からは時間スケールを可変にすることにより長期にわたる現象を短時間に検証できたほうが望ましい。このために既存の運転データベースに蓄積されている実測データを利用して、実プラントからのデータ発生を模擬し、プラントシミュレータにリアルタイムでデータを送る計装設備模擬システムを開発した。

このシステムは運転データベースの運転データを集約し、プラントシミュレータで利用できる形に変換した上で送信するものである。このため

に、データ変換機能、データ管理機能、データ送信機能を有している。なお、プラントシミュレータで必要とするデータは約30点であるが、将来の拡張性を考慮し実用規模カスケード試験装置で計測される全データ約1,300点を各時間ステップごとに送信している。

(1) データ変換機能

ワークステーション上に転送した運転データベースからのデータを、計装設備模擬システムで使用できる形式に変換する。

(2) データ管理機能

ワークステーション上に転送した運転データの開始および終了時刻を表示する。また、複数のデータファイルを結合して一つのデータファイルにする。

(3) データ送信機能

実プラントからのデータの発生を模擬し、データファイルのデータをリアルタイムでプラントシミュレータに送信する。送信のタイムスケールは任意に設定できる。

7. 使用例

本システムの使用例を以下に紹介する。

濃縮プラントシミュレータを起動すると計装設備模擬システムからシミュレーションに必要な初期値を取り込み、シミュレーションモデルの初期化を行う。本システムは定常運転特性をシミュレートするものであるが、濃縮プラントシミュレーションモデル自身は非定常をシミュレートできる動特性モデルとなっている。このため、初期値をもとに濃縮プラントシミュレーションモデルを動作させ、定常状態になるまで実行させる必要がある。濃縮プラントシミュレーションモデルが定常状態に達したあと、実シミュレーションを開始すると、計装設備模擬システムからのデータ受信を再開し、リアルタイム比較・推論機能が動作する。

図9はウラン濃縮プラントシミュレータをスタートし、計装設備模擬システムから濃縮プラントシミュレーションモデルの初期値の取り込みを開始した状態である。左側にコントロールパネルが表示され、プラントシミュレータへの主な指示を行う。右側はシミュレーションモデルのパラメータを設定する画面であり、タイムスケール、流量調節弁の制御方式等を設定する。

図10は実シミュレーション実行中の状態を示している。流量調節弁、オリフィス、圧力調整槽の圧力、流量が表およびグラフで表示される。また、

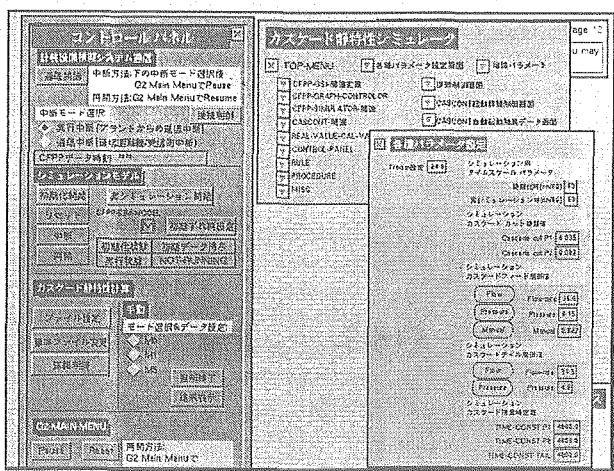


図9 ウラン濃縮プラントシミュレータ実行画面(1)

右側には流量調節弁の制御状態を示すパラメータが表示される。計装設備模擬システムからの実測値とシミュレーションによる計算値のずれが一定値以上になった場合にリアルタイム比較・推論機能による警告が左上部のMESSAGE BOARDに表示される。製品濃度の異常原因推定結果もここに表示される。

図11は自動起動されたカスケード静特性計算コードの計算結果を示す。実シミュレーション中は、一定期間ごとにこのコードが起動され、濃縮プラントシミュレーションモデルとリアルタイム比較・推論機能に計算値を供給する。

8. 今後の技術開発

カスケードの運転モードには今回対象としたホット定格モード以外にもいくつかの運転モード

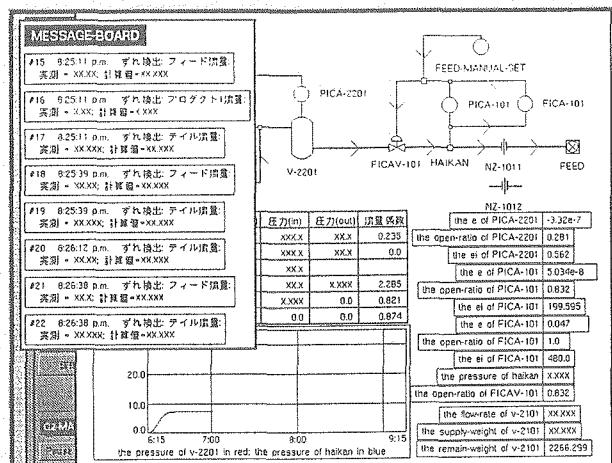


図10 ウラン濃縮プラントシミュレータ実行画面(2)

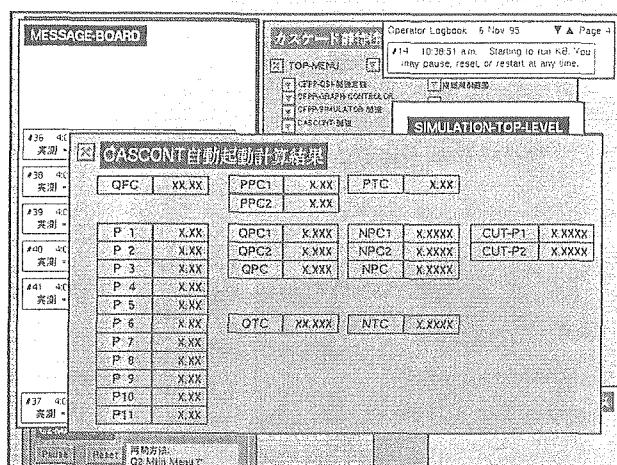


図11 ウラン濃縮プラントシミュレータ実行画面(3)

があり、それぞれのモードに対応するカスケードシミュレーションコードが開発されている。今回のシステムをこれらの運転モードに対応するよう拡張するための技術課題として以下の点が考えられる。

- (1) ホット定格モード以外は基本的に圧力、流量等が時々刻々変化する非定常モードでありシミュレーションコードも非定常を扱う動特性計算コードである。このコードをプラントシミュレータとリンクするには実測データと計算値との時間的な同期を取り必要がある。すなわち動特性計算コードをリアルタイムシミュレーションに対応できる

よう大幅な改造が必要となる。これを避けるためには、動特性計算コードのすべての機能を使用せずに、その中の一部のモデル（例えば、遠心機の回転胴温度計算モデル）を取り出しこれをG2のシミュレーション機能で作成するという方法が考えられる。

(2) CPU負荷が増大する可能性があるため、複数のワークステーションに分散してシステムを構築する方法を検討する必要がある。

また、今回のシステムでは濃縮プラントの一部の設備のみをモデル化したが、例えば図12に示すように計装設備のインターロック等をG2の機能を利用し容易にモデル化することが可能である。このように、モデル化を他の設備まで拡張することにより、本システムを運転・監視のみでなく、教育・運転訓練等にも利用可能になると考える。

9. おわりに

AI技術の応用として、実用規模カスケード試験装置を対象に運転支援を目的としたウラン濃縮プラントシミュレータを開発した。実測データの異常、変動を検知するために、シミュレーションモデルに従来開発してきたFORTRANプログラムをリンクしその計算値を基準値として利用するシステムを構築した。

今度動特性計算コードの利用、計装設備のモデル化等によりシステムの拡張を予定している。

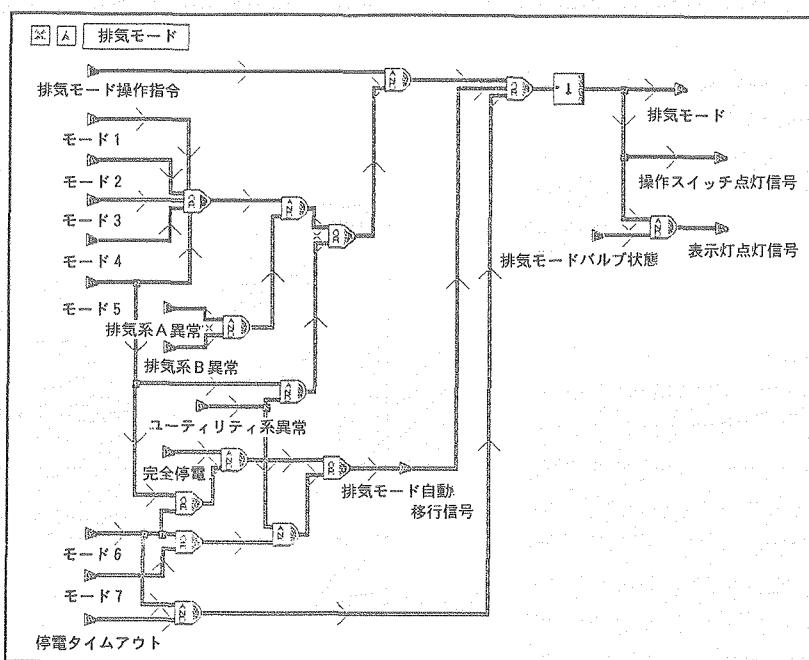


図12 G2によるインターロックモデルの作成例



表層水理観測システムによる 水収支の算定

—岐阜県東濃鉱山におけるケーススタディー

小林 公一 中野 勝志 小出 鑿

東濃地科学センター

資料番号：97-17

Estimation of Groundwater Recharge from the Subsurface
to the Rock Mass
— A Case Study of Tono Mine Area, Gifu Prefecture —

Koichi Kobayashi Katushi Nakano Kaoru Koide
(Geological Environment Research Section, Tono Geoscience Center)

地下水流动を把握するには、表層部から下層の岩盤への地下水の浸透量を推定することが必要である。水収支による浸透量は、降水量から河川流量と蒸発散量を差し引いた残余として求められる。東濃鉱山における流域での観測によれば、年間の降水量は1,000～1,900mmを示し、河川流量も降水量に応じて400～1,300mmで変動している。またペンマン法により推定した年間の蒸発散量は400～500mmで、降水量に比べて観測年の違いによる差は小さい。

これらの水収支の各成分から、本流域での年間の岩盤への浸透量は10mm～200mmと推定された。

1. はじめに

地下水の流动特性を明らかにするためには、地表から地下深部にわたる広い領域での水理データを取得する必要がある。特に表層における水理特性を地形、地質構造、気候の観点で把握することは、地下水流动を予測解析する際の上部境界条件を設定する上で重要である。なかでも岩盤への浸透量（涵養量）を面的にかつ定量的に把握するには、経年的な変動を考慮する必要があるため、長期間にわたる気象、河川流量、地下水位等の観測が不可欠である。

動燃事業団では、東濃鉱山の周辺地域において表層の水理特性を把握するために、気象、河川流量、地下水位および土壤水分（不飽和帯の水理ボテンシャル）の連続観測を行う表層水理観測システムを設置し、1989年5月から観測を実施している。なお表層水理観測システムについては、すでに中野・中島他（1991）¹⁾が詳細に紹介している。

それによれば観測記録から、1989年5月から1990年4月までの1年間における岩盤への浸透量が207.5mmと見積もられている。

本報告では、それ以降の観測結果に基づいて、水収支による岩盤への浸透量の算定と経年変化の

検討を行った。水収支式は、一定地域の一定期間における水の流入、流出の均衡状態を示したものであり、降水量、河川流量、蒸発散量（植物や地表から大気中へ蒸発した水の量）、浸透量の各成分からなっている。このうち降水量、河川流量、蒸発散量が測定できれば残りの浸透量は求められる。しかし蒸発散量は、直接計測する手法が確立されていないので、気象学的に算定するペンマン法²⁾を用い、さらに中川（1979）³⁾や高瀬・丸山（1978）⁴⁾の研究事例を基に推定した。

2. 調査流域

調査流域は東濃鉱山の東に位置し、流域面積は0.535km²である。図1に示すように、標高310m程度の定高性の尾根に囲まれている。

地表の地質は、大きく2つのユニット、すなわち瀬戸層群（鮮新世の未固結堆積物）、瑞浪層群（中新世の堆積岩）からなる。瀬戸層群は主に砂礫・粘土からなり、標高270m以上の高所に、瑞浪層群を覆って分布する。一般に未固結堆積物は隙率が大きく、帶水層をなしていることが多く、本地域でも瀬戸層群と瑞浪層群の境界面から地下水の浸出が随所で確認されている。本報告で



図 1 調査流域および観測施設位置図

求める浸透量は、図 2 に示すように地表面への浸透量ではなく瑞浪層群への浸透量であるので、後に述べる河川流量計は、瑞浪層群の露出している河床に設置している。

流域の植生は、主に樹高10m以上の松林となっているが、流域の北部から北東部にかけての尾根は、ゴルフ場の芝生地となっている。

3. 観測方法

水収支を算定するための気象、河川流量等の観測は、表層水理観測システムを用いて行った。以下に、解析に用いた観測項目の観測方法と観測値の処理方法について述べる。

3.1 気象観測

気象観測は、図 1 に示すように鉱山東縁の尾根上と鉱山の南東約 1 km の谷部の 2 地点で実施している。ここでは前者を鉱山気象観測地、後者を正馬様気象観測地と表記する。

鉱山気象観測地では、気温・湿度・風速のは

か、日照時間・日射量・純放射量を測定しており、蒸発散量の推定に必要な観測項目がすべて得られている。正馬様気象観測地では、気温・湿度・風速・降水量を測定している。

気温・湿度・風速は、10分ごとに観測値を記録し、日平均値を算定している。なお、気温・湿度については、2時間以上の欠測（観測値が得られないこと）が生じた場合、また風速については1時間以上の欠測が生じた場合には、それぞれ日平均値を欠測にしている。日照時間・日射量・純放射量・降水量については、日の積算値に欠測があれば、その日の観測値は欠測としている。

3.2 河川流量観測

河川流量計には、測定レンジの異なる 2 台のバーシャルフリームを用い、23~39,700ℓ/min の範囲の流量測定を可能にしている。前述のとおり、河川流量計は瑞浪層群の露出している河床に設置しており、伏流等による河川流量の計測漏れはほとんどないと考えられる。

観測値は10分ごとに記録して日平均流量を算定している。降水時に1時間以上の欠測が生じた場合や河川流量が測定レンジを越えている場合には、日平均流量値を欠測としている。

4. 水収支の各成分の算定

流域における水収支は、次式によって表される（図 2）。

$$P = E + R + \Delta D + G \quad (1)$$

P : 降水量

E : 蒸発散量

R : 河川流出量

ΔD : 流域の貯留量変化

G : 岩盤への浸透量

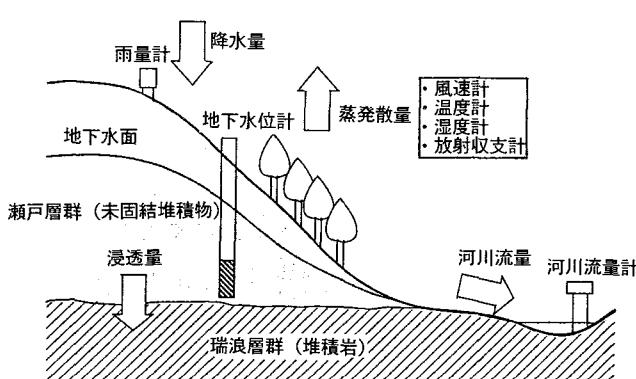


図 2 水収支の概念図

本地域には特に大きな池や河川の滞留が見られないことから、流域の貯留量 (ΔD) には、土壤層や瀬戸層群中の間隙水が該当する。これらの地質の間隙率の分布は十分に把握されていないため、貯留量変化を推定することは困難である。そのため貯留量変化をほとんど無視できる水収支の算定期間である1年ごとに水収支を算定した⁵⁾。しかしそれ精度を高めるため、算定期間の起日は、貯留量を反映していると推定される瀬戸層群中の地下水位が（図 3）期間の起日と終日でその差が小さくなるように、また、観測値の取り扱いの簡便さを考慮して決定した。その結果、4月 1

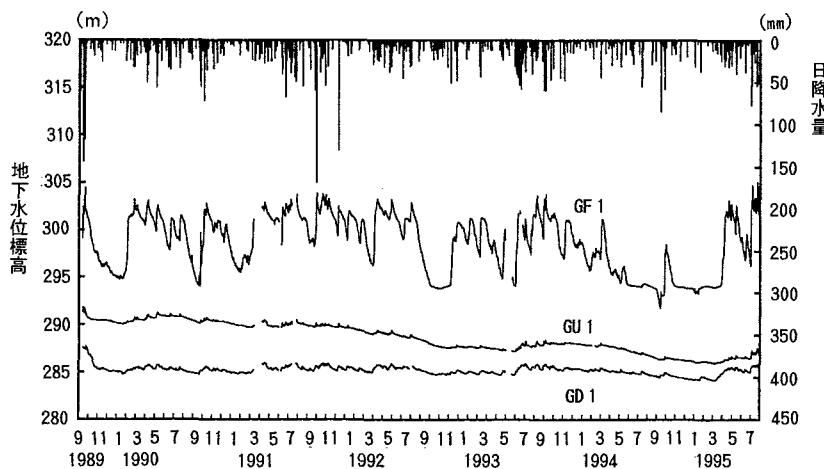


図3 濑戸層群の地下水位の変化
(GF1, GU1, GD1は、東濃鉱山内の山地斜面に設置された地下水観測孔の名称)

日を算定期間の起日とし、水収支の算定は1990年4月から1995年3月までの5年間を対象とした。

貯留量変化を無視したことから、(1)式は次のようになり、

$$P = E + R + G \quad (2)$$

求めようとする岩盤への浸透量は

$$G = P - E - R \quad (3)$$

となる。

なお、流域での瀬戸層群中の地下水位の分布を把握して、地形の流域界と瀬戸層群中の地下水の流域界が一致することを確認する必要があるが、地質踏査や地質ボーリング調査等により瀬戸層群と瑞浪層群の境界面は、ほぼ水平な不整合面であることが明らかになっていることから、瀬戸層群の地下水の流域界は地形の流域界とほぼ一致すると推定される。

以下に水収支式の各成分の推定結果を述べる。

4.1 降水量

降水量は、流域に最も近い位置にある正馬様気象観測地の値を用いているが、欠測の場合は、気象庁の柄石峠と多治見の観測所の欠測していない降水日の降水量での回帰分析を行い、その回帰式を用いて欠測値を推定した(表1)。柄石峠観測所は、多治見観測所よりも正馬様観測地の近くに位置するが、毎年10月中旬から5月上旬にかけての冬期間は観測を中止している。そのため、柄石峠観測所の観測期間においては、柄石峠観測所の値を、それ以外の期間においては多治見観測所の

値を推定に用いた。

柄石峠、多治見とともに正馬様と高い相関係数を示しているが、回帰式の傾きがいずれも1以下で切片が負の値となっていることから明らかなように、正馬様での降水量は柄石峠や多治見より少い傾向がみられる。正馬様観測地の雨量計の周辺には、障害となるような樹木、構造物はないことから地形的な影響を受けていると考えられる。

表2に年降水量を示すが、最小値が1,079mm、最大値が1,885mmとなっており、ほぼ倍近い差がある。

4.2 河川流量

河川流量は、日平均流量を積算して年間の流量を求めた。なお河川流量の値は、単位時間当たりの体積を流域面積で除して得られる流出高(単位:mm)で表わす。河川流量の欠測は、そのほと

表1 観測地点間の推定式

正馬様の観測値による鉱山の観測値の回帰式

観測項目	係 数	切 片	相関係数
気温	0.98	1.25	0.995
湿度	1.28	-20.29	0.937
地上2mの風速	1.38	0.32	0.848

柄石峠の観測値による鉱山の観測値の回帰式

観測項目	係 数	切 片	相関係数
降水量	0.93	-0.15	0.984

多治見の観測値による鉱山の観測値の回帰式

観測項目	係 数	切 片	相関係数
降水量	0.88	-5.1	0.977

表2 年度別の水収支一覧

	年 度	1990	1991	1992	1993	1994	平均
①	降 水 量	1,532	1,885	1,304	1,657	1,079	1,491
②	河 川 流 量	970	1,348	790	1,180	434	944
	降水量に対する河 川流量の割合	63%	72%	61%	71%	40%	61%
③	中川(1979)によ る蒸発散量	525	463	495	414	492	478
	降水量に対する蒸 発散量の割合	34%	25%	38%	25%	46%	33%
(①・②・③)	浸 透 量	37	74	19	63	153	69
	降水量に対する浸 透量の割合	2%	4%	1%	4%	14%	5%
	高瀬・丸山(1978) による蒸発散量	740	660	708	604	748	692

単位:mm

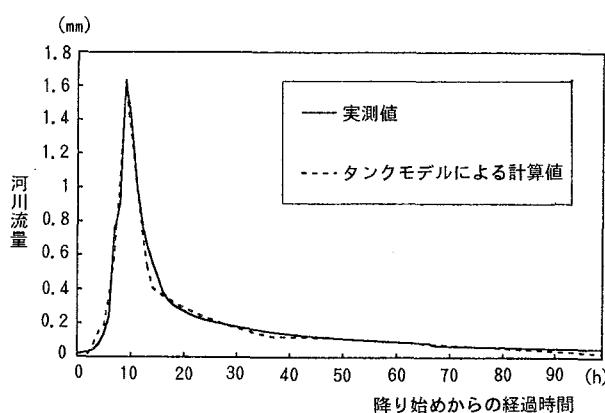


図5 河川流量の実測値と計算値の比較

などが降雨時の増水によって、河川流量が測定レンジを越えたことにより生じたものである。欠測時間は長くても4時間程度で、発生頻度も年間で数回程度である。欠測時の流量は、1時間単位の洪水時の流出モデルを作成して推定した。洪水流出のモデルには、様々な計算法が提案されているが、本研究ではタンクモデル⁶⁾を用いた。このモデルの長所は、降水の浸透現象や一時的な貯留による流量の遅滞時間を考慮している点にある。このモデルは図4に示すように、降水の河川への流出過程を、流出孔と浸透孔を持つタンクに置き換えて、単位時間当たりの河川流量を推定するものである。降水は最上段のタンクに注入され、流出孔からの流出は河川流量に、浸透孔からの流出は深部への浸透量におのの該当する。

タンクの流出孔の高さと乗数、および浸透孔の乗数といったパラメータは、特にピーク流量が最も整合するように設定した。図5は、実測値とタンクモデルによる計算値を比較したものである。減衰部の一部にやや実測値とずれてくるところがあるが、全体としては計算値は実測値に良く合っており、このタンクモデルを用いて欠測値を推定

した。

年間の河川流量は434~1,348mmを示している(表2)。

4.3 蒸発散量

純放射量、気温、水蒸気圧、風速等の気候条件と蒸発散量との関係は、物理的にはかなりの程度まで解明されている。しかし現実には、地表には植物が生育しており、植物の気孔からの蒸散は、水分生理(湿度や土壤水分量に対する生物的反応)や季節的な環境要因が関係してくるため、そのモデル化はまだ一般化されていない。そのため、Penman法²⁾によって算出された可能蒸発散量に蒸発散比を乗じて蒸発散量を推定した。

Penman法は、水面や植物で完全に覆われた地表面に十分に水分が供給された場合に失われる蒸発散量を可能蒸発散量と定義しており、実際の蒸発散量より大きな値となる。この補正をするのが蒸発散比であるが、植生や気候条件によって異なり、経験的に得られる。

本研究では、中川(1979)および高瀬・丸山(1978)に各々示されている蒸発散比を用いて蒸発散量を算出し、その値の妥当性について比較検討を行った。

Penman法による可能蒸発散量は次式で表わされている。

$$E_{PP} = \frac{\Delta}{\Delta + \gamma} \left(\frac{R_n}{L} \right) + \frac{\gamma}{\Delta + \gamma} f(u) (esat(\theta) - e_a) \quad (4)$$

E_{PP} : 蒸発散量 (mm/Day)

Δ : 飽和蒸気圧曲線の傾き

γ : 乾湿計定数 (mb/°C); 0.66

R_n : 純放射量 (J/m²/Day)

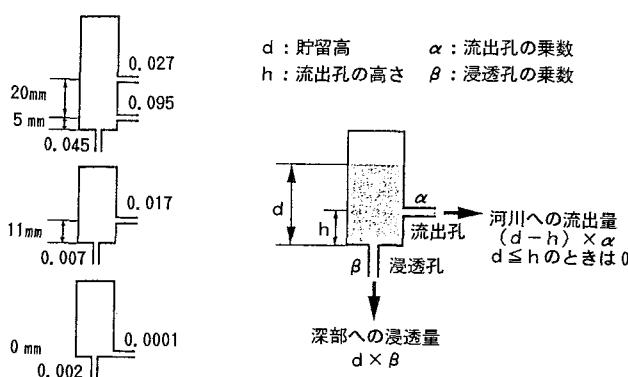


図4 タンクモデルの概要と設定した計算定数

θ : 日平均気温 (°C)
 L : 蒸発潜熱 (kJ/m²)
 $f(u)$: 風速関数
 $esat(\theta)$: 鮑和水蒸気圧(mb)
 e_a : 大気の水蒸気圧(mb)

$$f(u) = 0.26 (1.0 + 0.537u_2) \quad (5)$$

u_2 : 地上 2 m の日平均風速(m/s)

(4)式は可能蒸発量を潜熱の大気中への伝達として、熱収支と熱の大気中への伝達の式を組み合せて表わしたものである。また風速関数は、熱の拡散に係る項目で、経験的に(5)式が得られている²⁾。以上の(4)(5)式は、気象観測で測定されている純放射量、気温、湿度、風速の観測値から求められる。本報告では、鉱山気象観測地の値を用いて可能蒸発散量を算出している。気温、湿度、風速が欠測の場合は、正馬様観測地から回帰式を用いて推定した(表1)。また純放射量が欠測の場合は、次式により純放射量を推定した。

$$R_n = (1 - \alpha) Q_a (0.18 + 0.55n/N) - \sigma(t + 273.2)^4 \cdot (0.56 - 0.090 \sqrt{e_a}) (0.1 + 0.9n/N) \quad (6)$$

α : 地表面のアルベド (短波長の反射率)
 Q_a : 大気圏外日射量 (MJ/m²)
 n : 日照時間
 N : 可照時間(日の出から日没までの時間)
 σ : ステファン・ボルツマン定数
 $(\text{mm}/\text{Day}/\text{K}^4)$; 2.03×10^{-9}

純放射量は、地表面に供給される正味の放射エネルギーで、地表面の植生や温度による影響を受ける。大気圏外日射量と可照時間は、推定を行う月日と観測地点の緯度から計算することができる。地表面のアルベドは、これまでの純放射量の観測値から、季節変化を考慮して月ごとに求めた。

このようにして求めた可能蒸発散量に中川(1979)で示されている蒸発散比の0.7を乗じたものを短草被覆面の蒸発散量として、年ごとに積算した(表2)。

高瀬・丸山(1978)で算出されている可能蒸発散量も、(4)(5)(6)式を用いているが、異なるのは純放射量(R_n)を実測値ではなく地表面を水面と仮定したときの計算値を用いている点である。即ち、(6)式の地表面のアルベドに水面のアルベドである0.05を与えて純放射量を求め、さらにその値を(4)式に代入して水面可能蒸発散量を求めている。この水面可能蒸発散量に月ごとの蒸発散比(0.5~1.

0)を乗じたものを森林における蒸発散量としている。表2にこの方法求めた年ごとの蒸発散量を示した。

中川(1979)と高瀬・丸山(1978)の蒸発散量を比較すると、高瀬・丸山(1978)による値が200mm程度大きい。一般に蒸発散量は、芝生地等の短草地に比べて森林のほうが大きい⁷⁾が、降水量や河川流量と比較して、高瀬・丸山(1978)による蒸発散量は過大で、岩盤から表層への上向きの地下水流を考へなければならなくなる。しかし、東濃鉱山での間隙水压の観測⁸⁾によれば、岩盤中の地下水流动は下向きで、表層から岩盤への浸透が明らかであることから、高瀬・丸山(1978)による値は不適当である。したがって、蒸発散量は中川(1979)による値を用いることとした。

この値は、植生の条件を短草としており、本流域の植生と異なるという問題がある。しかし、本流域の土壤層が薄く保水性が悪いことから、一般的な森林に比べて土壤層から植物への水分の補給が少ないことが考えられる。

4.4 水収支の検討

以上の結果から岩盤への年間の浸透量を算定すると、19~153mmとなり、平均では69mmになる。年降水量に対する割合をみると、渴水であった1994年では14%であるが、それ以外は数%となっている。また、1989年5月から1990年4月までの期間で得られた値である207.5mm¹⁾を含めた平均値では、92mmとなる。浸透量は水収支の他の成分に比べて1オーダー小さい値を示している上に、水収支全体の誤差の影響を受けることを考慮すると、算出された値にはある程度の幅を持たせる必要がある。水収支の各成分の中で最も精度が低いのは年間の蒸発散量である。我が国における森林地域での年降水量に対する年蒸発散量の割合は、20~70%といわれており⁹⁾、それに対して本流域では25~46%の低い比率になっている。気候、植生、土壤の諸条件を検討する必要があるが、本流域の蒸発散量がこれより小さい値を示すことは考えにくく、算定された年間の浸透量は、実際より大きく見積もられている可能性がある。

また水収支の各成分の関係について検討してみると、河川流量は降水量の変化に応じて増減する傾向が認められ、異常渴水となった1994年度を除いては降水量の60~70%が河川流量となっている。蒸発量は、年による差が小さく、400~500mmのほぼ一定した値を示している。

5. おわりに

東濃鉱山の周辺地域で6年間に渡って実施している表層水理観測システムによる観測結果を基に、岩盤への浸透量を5年間にわたって算定した結果、年間10~200mmという値が得られた。

この値は、堆積岩である瑞浪層群への浸透量であるが、本地域には瑞浪層群のほかにも花崗岩が分布しており、今後は本システムを花崗岩の分布している流域にも設置し、花崗岩への浸透量も把握していく予定である。

また、水収支の各成分の推定で、最も誤差が大きいのは蒸発散量と考えられるので、本システムと同時に観測している土壤水分観測データを用いて、土壤水分量の変化と蒸発散量の変化を比較して、蒸発数量の算出手法を検証していく他、微気象の観測手法を検討して、より精度の高い推定が

行えるようにしていく予定である。

参考文献

- 1) 中野勝志、中島誠、他：“表層部における水収支の調査研究”，動燃技報，78, p 46-53 (1991).
- 2) Penman, H.L. : "Natural evaporation from open water, bare soil and grass", *Proc. Roy. Soc., A, 193*, 120-145 (1948).
- 3) 中川清隆：“輪島における熱収支・水収支の気候学的推定”，金沢大学教育学部紀要, 127, p15-25 (1979).
- 4) 高瀬恵次、丸山利輔：“水収支法による季別流域蒸発散量の推定”，農業土木学会論文集, 76, p1-6 (1978).
- 5) 市川正己：“水文学の基礎” (1973).
- 6) 日本河川協会編：“建設省河川砂防技術基準(案)調査編”, (1986).
- 7) 福島義宏、鈴木雅一、他：“芝生地の森林地に対する水文特性の相違”，新砂防, 40, 5, p 4-13 (1988).
- 8) 柳澤孝一、今井久、他：“立坑掘削に伴う地下水流动影響調査研究－東濃ウラン鉱山試験立坑を例として－”，応用地質, 33, 5, p 32-49 (1992).
- 9) 塚本良則編，“森林水文学－現代の林学⑥－” (1992).



「常陽」廃棄物処理施設の建設と運転

技術小論

宇佐美 朋之 会川 英昭 飛田 祐夫

大洗工学センター管理部

資料番号：97-18

Construction and Operation of JOYO Waste Treatment Facility

Tomoyuki Usami Hideaki Aikawa Hiroo Tobita
(Administration Division, O-arai Engineering Center)

「常陽」廃棄物処理施設は、平成元年から建設設計画を進め、平成6年8月末にすべての機器類の据付け調整を終え、平成7年2月10日にホット運転を開始した。

本施設は、高速実験炉「常陽」および照射燃料集合体試験施設等から発生する放射性廃液を、日本原子力研究所大洗研究所廃棄物処理場へ移送するための移送基準を満足するように、放射性物質濃度を低減する前処理施設である。廃液処理設備は、主な処理対象廃液である燃料洗浄廃液中の放射性腐食生成物が微粒子状で存在していることに着目し、ろ過器（中空糸膜フィルタ）、蒸発濃縮処理装置、マイクロ波固化装置等から構成される。

本報では、「常陽」廃棄物処理施設の建設とその後の運転状況について報告する。

1. はじめに

「常陽」廃棄物処理施設(JWTF)は、高速実験炉「常陽」および照射燃料集合体試験施設(FMF)等から発生する放射性廃液を受け入れ、隣接する日本原子力研究所大洗研究所廃棄物処理場（原研大洗廃棄物処理場）へ移送するための移送基準を満足するように、ろ過および蒸発濃縮処理等を行い放射性物質濃度を低減する前処理施設である。

JWTFの主な処理対象廃液は、燃料集合体等の炉心構成要素を洗浄する際に発生する洗浄廃液である。したがって、洗浄廃液中にはそれらに付着していた放射性腐食生成物(CP:Corrosion Products)とナトリウム（洗浄水と反応して水酸化ナトリウムとなっている）を含んでいる。

CPに含まれる主な放射性同位元素は、炉心材料の構成元素が放射化した⁶⁰Coや⁵⁴Mn等である。

JWTFは、旧廃棄物処理建家の施設の運転の効率化および建家の老朽化等の対応策として、平成元年から建設設計画を進めたもので、旧廃棄物処理建家のこれまでの運転経験および知見¹⁾を反映し、廃液処理設備においては、CPの特性(微粒子状)に着目し、廃液処理系統の前段にろ過器（中

空糸膜フィルタ）を導入した。また、中空糸膜フィルタの逆洗液および蒸発濃縮処理装置の濃縮液の処理には、マイクロ波加熱によりガラス状の固化体にする方式を採用した。

建設は平成4年4月に着工し、平成6年8月末に機器類の据付け調整および機能試験を終了し、コールド運転を経て、平成7年2月10日にホット運転を開始した。

本報は、JWTFの建設とその後のコールド運転およびホット運転状況について述べる。

2. 建設工程

JWTFの建設工程を図1に示す。平成元年から平成2年にかけて、建物については基本設計および詳細設計を、内装設備については詳細設計および調整設計を実施した。

建物は、平成4年4月に着工し、地耐力（支持地盤）検査、壁厚、配筋等の検査工程を経て、平成6年3月末竣工した。

内装設備のうち、地下2階に設置するタンク類は平成4年4月に工場製作に着手し、平成4年12月に現場搬入・据付けを完了した。また、それ以

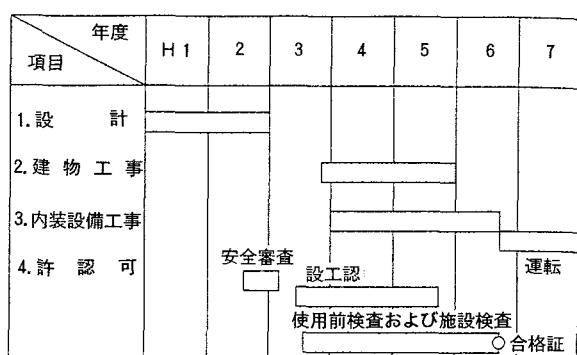


図1 JWTFの建設工程

外の内装設備（蒸発濃縮処理装置、マイクロ波固化装置、放射線管理設備、プロセス計装等）については、平成5年度に機器設計、製作および据付け工事を行い、平成6年8月末にすべての機器類の据付け調整および機能試験を終了した。

一方、許認可対応については、平成2年の安全審査を経た後、平成3年から平成5年にかけて建物工事および内装設備工事を進め、これらの進捗とほぼ並行して設計および工事の認可業務ならびに使用前検査および施設検査を受検した。平成6年12月中旬に最終の使用前検査および施設検査を受検し、平成7年1月上旬に合格証の交付を受け、コールド運転を経て、同年2月10日ホット運転を開始した。

3. 施設の概要

3.1 建物および設備機器

JWTFの鳥瞰図を図2に示す。JWTFは、高速実験炉「常陽」の敷地内に設置し、地下2階、地上2階（一部3階）、縦約21m×横約21m、地上約16m、地下約15mの鉄筋コンクリート造りの建物で、建築面積約440m²、延べ床面積約1,950m²である。

主な設備機器であるろ過器、蒸発濃縮処理装置およびマイクロ波固化装置等は地下1階に配置し、廃液の受け入れ、移送、中和処理等を行うためのタンク類は地下2階に配置している。

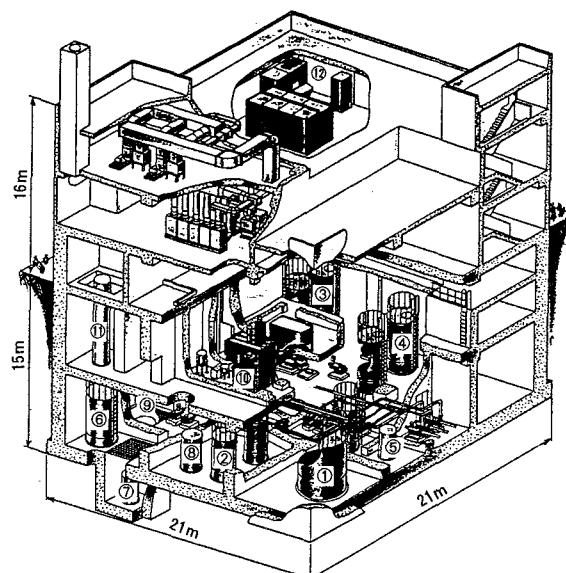
これらの運転操作は、操作室（非管理区域）において、遠隔による自動運転方式で行う。

3.2 廃液処理フローの概要

廃液処理フロー図を図3に示す。処理対象廃液は、放射性物質濃度によって低濃度廃液と高濃度廃液に区分して受け入れる。低濃度廃液は主に使用済み燃料プールドレン水、手洗い水等であり、高濃度廃液は主に燃料洗浄廃液等である。廃液受け入れ能力は、低濃度廃液が730m³/年、高濃度廃液が360m³/年である。

低濃度廃液は、低濃度廃液受入タンクに受け入れ、廃液移送タンクに移送後、タンク内の放射性物質濃度をサンプリングにより測定し、原研大洗廃棄物処理場への移送基準値未満であることを確認した後、原研大洗廃棄物処理場に移送する。

高濃度廃液は、高濃度廃液受入タンクに受け入れ、まずろ過器（中空糸膜フィルタ）を通してCPを含む固体分を除去する。燃料洗浄廃液の場合



- ①高濃度廃液受入タンク : 30m³ × 1基
5m³ × 1基
- ②廃液調整タンク : 5m³ × 2基
- ③廃液移送タンク : 10m³ × 2基
- ④低濃度廃液受入タンク : 10m³ × 2基
- ⑤逆洗液タンク : 1m³ × 1基
- ⑥濃縮液タンク : 5m³ × 1基
- ⑦洗浄廃液受入タンク A : 1m³ × 1基
- ⑧洗浄廃液受入タンク B : 2m³ × 1基
- ⑨ドレンサンプタンク : 3m³ × 1基
- ⑩蒸発濃縮処理装置 : 0.6m³/h
- ⑪マイクロ波固化装置 : 10ℓ/h
- ⑫操作室 (集中制御)

図2 JWTFの鳥瞰図

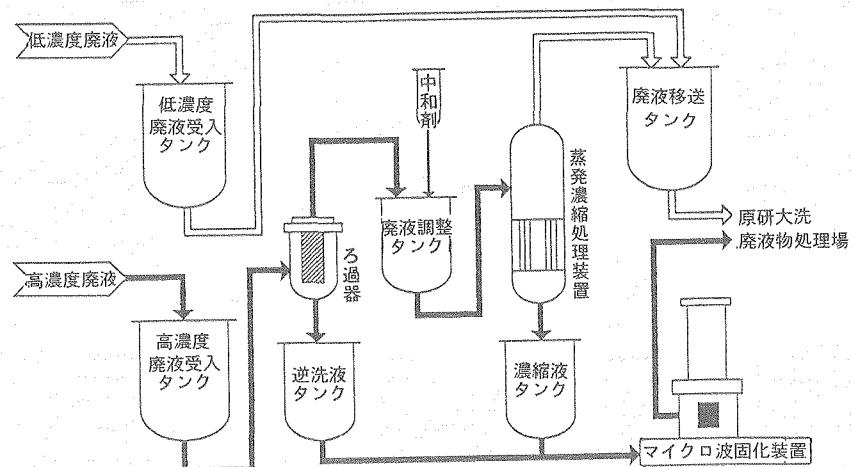


図3 廃液処理フロー図

は、水酸化ナトリウムによる強アルカリ性であるため、廃液調整タンクで硝酸による中和処理を行う。その後、蒸発濃縮処理装置で濃縮処理し、その凝縮水は、低濃度廃液と同様に原研大洗廃棄物処理場に移送する。

一方、ろ過器の逆洗液および蒸発濃縮処理装置の濃縮液はマイクロ波固化装置に移送し、ガラス添加剤とともに溶融固化する。マイクロ波固化装置により固化されたガラス状固化体は、高線量廃棄物貯蔵庫に一時保管した後、または直接原研大洗廃棄物処理場にキャスクにより運搬する。

3.3 ろ過器（中空糸膜フィルタ）

ろ過器の目的は、燃料洗浄廃液中に含まれるCPを回収し、廃液処理系統下流側の高線量化を防止することである。CPがミクロン単位の微粒子状で存在しているというこれまでの燃料洗浄廃液分析結果を反映し、ろ過器には中空糸膜フィルタを採用した。

中空糸膜フィルタの仕様を表1に、それを組み込んだモジュールの外観を写真1に示す。中空糸

膜フィルタは、表面に0.02~0.05 μmの微細孔を有する直径約0.6mm、長さ約1mの筒状のろ過膜を約1万本U字型に束ね、ユニット化したものである。材質は、耐アルカリ性のポリエーテルサルファンである。このモジュールは、中空糸膜フィルタと、アクリル製の保護罐、廃液とろ過液の境界を成すポッティングおよびリフティングプレートから構成される。

この中空糸膜フィルタの外側から内側に廃液を通水することにより、CPが膜の外表面に捕捉され、系統下流側へのCPの移行を低減する。

ろ過器の処理能力は1.2 m³/hであり、除染係数



写真1 中空糸膜フィルタモジュールの外観

表1 中空糸膜フィルタの仕様

項目	中空糸膜フィルタの仕様
種類	限外ろ過膜
寸法	160 φ × 520mm
ろ過面積	20m ²
材質	ポリエーテルサルホン
内径／外径	400／600 μm
分画分子量	100,000

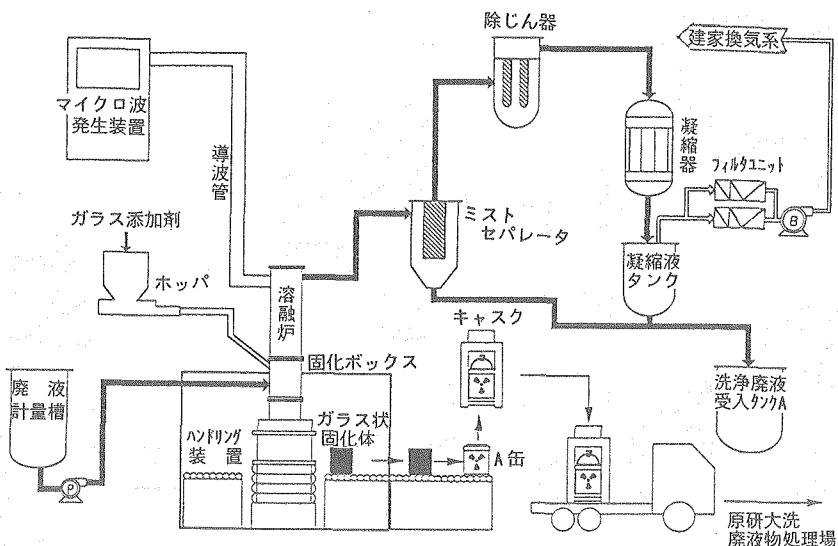


図4 マイクロ波固化装置処理フロー図

(設計値)は10である。また、膜差圧の上限値は $2.0\text{kg}/\text{cm}^2$ である。

一方、外表面に捕捉されたCPは、逆洗として膜の内側から約 $2\text{kg}/\text{cm}^2$ の水圧を加えることにより除去する。これにより膜は再生され、再使用が可能となる。

3.4 蒸発濃縮処理装置

蒸発濃縮処理装置の目的は、廃液を蒸気で加熱して蒸発濃縮し、最大350分の1に減容することである。本処理法は、加熱源に蒸気が必要であるが、廃液中の放射性物質の溶存状態に大きな影響を受けず、濃縮処理できる特徴を有している。

本装置は、廃液を濃縮する蒸発缶本体、蒸発蒸気を復水する凝縮器およびその復水を冷却するための凝縮液受槽、凝縮液冷却器等から構成される。

蒸発罐本体は、立型自然循環式であり、処理能力は $0.6\text{m}^3/\text{h}$ 、除染係数(設計値)は 10^2 (供給液基準)である。

3.5 マイクロ波固化装置

マイクロ波固化装置の目的は、濃縮された高濃度廃液であるろ過器の逆洗液および蒸発濃縮処理装置の濃縮液を、ガラス添加剤とともに加熱溶融し、安定なガラス状の固化体にすることである。本方式は、処理対象廃液が硝酸ナトリウム(NaNO_3)を多く含有していることから、廃液を蒸発乾燥により加熱分解して酸化ナトリウム(Na_2O)とし、ガラス添加剤であるホウ酸(B_2O_3)および二酸化ケイ素(SiO_2)とともに加熱溶融することで、ホウケイ酸ガラスをベースにしたガラス状の固化体とする

ものである。

マイクロ波固化装置処理フロー図を図4に示す。本装置は、供給系、固化系およびオフガス処理系から構成される。供給系は、廃液を供給する計量槽、供給ポンプおよびガラス添加剤を供給する供給ホッパより構成される。固化系は、溶融炉を収納する固化ボックス、マイクロ波発生装置、導波管および搬送設備より構成される。オフガス処理系は、溶融炉内の廃液の蒸発および溶融時に発生するオフガス中の飛散物等を分離するミストセパレータ、除じん器、ヘパフィルタおよび排風機等より構成される。

溶融炉の溶融温度は約 $1,000^\circ\text{C}$ であり、処理能力は 10l/h である。

4. 運転結果

4.1 コールド運転

JWTFのホット運転に先立ち、処理プロセス全体の性能、安全性等を確認するために、実廃液中の成分を非放射性物質で模擬した廃液(模擬廃液)を使用して、コールド運転を実施した。

主要機器について得た結果を以下に示す。

(1) ろ過器(中空糸膜フィルタ)

ろ過器(中空糸膜フィルタ)については、通水($1.2\text{m}^3/\text{h}$)と逆洗(200l/回, $1.2\text{m}^3/\text{h}$)を繰り返し行い、除染性能、膜差圧上昇特性および逆洗性能を確認した。模擬廃液として、酸化コバルト(CoO) (200ppm)+水酸化ナトリウム(NaOH)水溶液(pH11)を使用し、長期的な膜差圧上昇特性等の確認のために約500倍の加速試験を実施した。

その結果、ろ過液の酸化コバルト濃度は分析

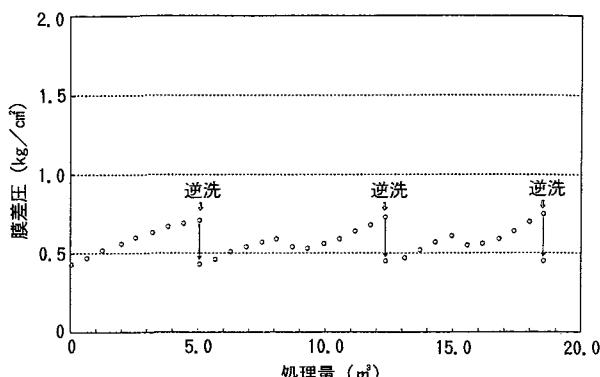


図 5 廃液処理量と膜差圧の関係（模擬廃液）

の検出限界 (0.05 ppm) 以下となり、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以上の粒子に対してほぼ全量捕捉できる (除染係数 10^3 以上) ことを確認した。膜差圧は約 2 m^3 の処理により $0.1\text{ kg}/\text{cm}^2$ 上昇した。廃液処理量と膜差圧の関係（模擬廃液）を図 5 に示す。この 2 m^3 は実機ベースでは約 $1,000\text{ m}^3$ の廃液処理量に相当することから、実廃液の処理では膜差圧の上昇は無視できるほど小さいことを確認した。また、逆洗性能については脱塩水による 2 回の逆洗により、膜差圧は 90% 以上回復した。

したがって、本フィルタが長期的に使用できる見通しを得た。

(2) 蒸発濃縮処理装置

蒸発濃縮処理装置については、濃縮液濃度をパラメータとし、処理量 $0.6\text{ m}^3/\text{h}$ の定格運転を行い、除染係数を確認した。模擬廃液としては、硝酸ナトリウム水溶液（供給液濃度： $0.1\text{ g}/\ell$ 、濃縮液濃度：最大 $30\text{ g}/\ell$ ）を使用した。

蒸発罐凝縮液のナトリウム濃度分析の結果、350 倍濃縮時の濃縮液濃度 ($30\text{ g}/\ell$) における除染係数としては、供給液基準で 10^2 以上、濃縮液基準で 10^5 以上を得た。

(3) マイクロ波固化装置

マイクロ波固化装置については、模擬廃液とガラス添加剤の混合率をパラメータとし、処理能力、除染性能および固化状況について確認した。模擬廃液としては、硝酸ナトリウム水溶液 ($30\text{ g}/\ell$) + 酸化コバルト (25g) を使用した。

その結果、酸化ナトリウムの混合率が 40% (モル比) 以下の条件で、処理能力は $10\text{ l}/\text{h}$ 以上が得られ、かつ、固化状況も良好であることを確認した。また、模擬廃液中の酸化コバルトのオフガス系への飛散割合から除染係数を評価した結果、 10^4 以上を得た。

さらに、オフガス系のミストセパレーターに付着

表 2 燃料洗浄廃液の性状

項目	燃料洗浄廃液の性状
pH	$10.7 \sim 11.6$
放射性物質濃度 (Bq/cm^3)	$\sim 1 \times 10^3 \sim$
SS 濃度 (ppm) *	0.4
粒径分布	$8\text{ }\mu\text{m}$ 以上 69%、 $0.3\text{ }\mu\text{m}$ 以下 7%
主要核種	^{60}Co , ^{58}Co , ^{51}Cr , ^{54}Mn
その他	沈降性及び固着性が強い

* SS (Suspended Solid)

した飛散物（主成分は硝酸ナトリウム）は、脱塩水による洗浄により十分除去できることを確認した。

4.2 ホット運転

ホット運転開始後から平成 7 年 12 月末までに、JWTF で受け入れた放射性廃液は、低濃度廃液が約 70 m^3 、高濃度廃液が約 20 m^3 である。この高濃度廃液について、ろ過、中和処理および蒸発濃縮処理を行い、各処理プロセスの実廃液に対する性能、安全性等を確認した。高濃度廃液は、主に高速実験炉「常陽」から発生した燃料洗浄廃液（使用済燃料および外側反射体の洗浄液）であり、放射性物質濃度は約 $1 \times 10^3 \text{ Bq}/\text{cm}^3$ 、pH は $10.7 \sim 11.6$ である。表 2 に燃料洗浄廃液の性状を示す²⁾。

(1) ろ過器（中空糸膜フィルタ）

ろ過器（中空糸膜フィルタ）については、CP の除染性能、膜差圧の上昇傾向およびろ過器表面線量当量率の確認試験を行った。試験フロー図を図 6 に示す。試験は、高濃度廃液受入タンクに受け入れた約 12 m^3 の燃料洗浄廃液について実施した。ろ過器への通水流量は $1.2\text{ m}^3/\text{h}$ で行い、そのろ過清液は全量廃液調整タンクに移送した。その

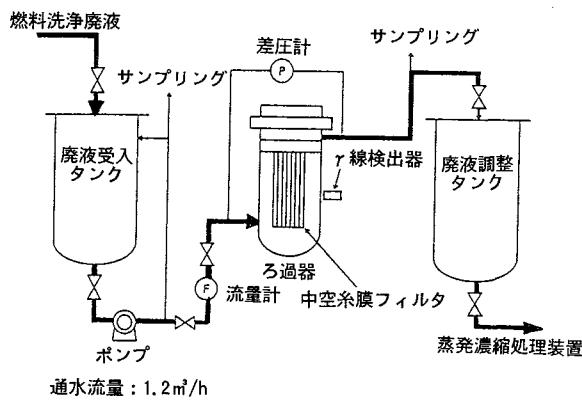


図 6 試験フロー図

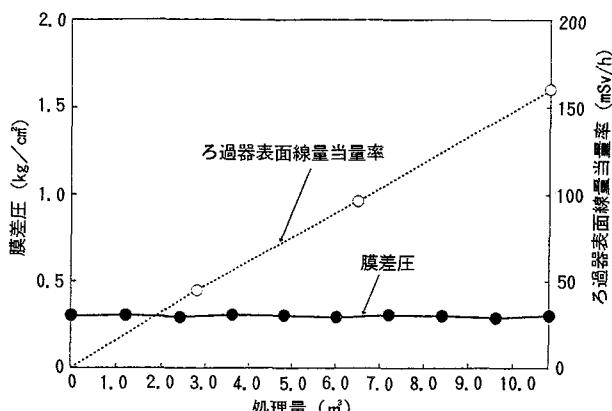


図7 廃液処理量と膜差圧およびろ過器表面線量当量率の関係（実廃液）

間、供給廃液とろ過済液を定期的にサンプリングして放射性物質濃度を測定した。また、膜差圧とろ過器表面線量当量率を、差圧計、 γ 線検出器によって各々連続的に監視した。

その結果、ろ過済液の放射性物質濃度は $10\text{Bq}/\text{cm}^3$ 以下となり、除染係数として $10^2 \sim 10^3$ を得た。また、ろ過器の表面線量当量率は $160\text{mSv}/\text{h}$ に達したが、膜差圧の上昇は認められなかった。廃液処理量と膜差圧およびろ過器表面線量当量率の関係（実廃液）を図7に示す³⁾。

したがって、本中空糸膜フィルタを廃液処理系統の前段に導入することにより、廃液処理系統下流側へのCPの移行が低減し、CPの付着・沈着による設備機器等の高線量化が十分防止できる見通しを得た。

(2) 蒸発濃縮処理装置

蒸発濃縮処理装置については、ろ過器のろ過済液等をあらかじめ中和処理した後濃縮処理し、除染係数を確認した。試験は、廃液調整タンクで自動中和処理後、処理量 $0.6\text{m}^3/\text{h}$ の定格運転で蒸発濃縮処理を行い、廃液調整タンク、蒸発罐および

凝縮液冷却器からサンプリングし、放射性物質濃度を測定した。

その結果、除染係数は供給液基準で 10^3 以上、濃縮液基準で 10^4 以上を得た。なお、自動中和処理は10~80分で終了した。

したがって、蒸発濃縮処理装置は、ろ過器の後処理系として、安定した処理が十分行えることを確認した。

5. おわりに

これまでのコールド運転およびホット運転の結果から、JWTFの一連の処理プロセスは、設計性能、安全性等を十分満足していることを確認した。したがって、今後発生する高濃度のCPを含む燃料洗浄廃液等の処理においても、廃液処理系統下流側の高線量化を防止し、効率的な前処理を行える見通しを得た。

今後は、以下の項目を中心に運転を行い、廃液処理のトータルシステムとしての検証を図る計画である。

- ① 中空糸膜フィルタについて、逆洗性能および長期的な膜差圧上昇特性を確認し、膜の寿命評価等を行う。
- ② 蒸発濃縮処理装置について、蒸発缶内放射性物質濃度の上昇に伴う除染係数の影響を確認する。
- ③ マイクロ波固化装置について、ホット運転を開始し運転データを取得する。

参考文献

- 1) 会川、大森、他：“大洗工学センターにおける放射性廃棄物管理の実績と現状”、動燃技報、82、(1992)。
- 2) 川部、前田、他：“FBRにおける放射性腐食生成物(CP)の抑制と除去”、日本原子力学会「昭61年会」要旨集、D 61、(1986)。
- 3) 宇佐美、会川、他：“「常陽」廃棄物処理施設におけるFBR燃料洗浄廃液の処理”、日本原子力学会「1995年秋の大会」要旨集、J 28、(1995)。



国際会議 海外派遣等

平成7年10月から12月までの間の主要な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
10/23～25	大 洗	〔PNC/欧洲燃料材料専門家会議〕 日欧高速炉協定に基づく、炉心材料及び制御棒開発に関する情報交換。
10/22～11/2	大 洗	〔PNC/仏原子力庁(CEA)安全評価専門家会議〕 PNC/CEA先端技術協力協定に基づく、スーパーフェニックス炉の安全評価に関する討議。
10/30～11/15	東 東 海 濃 釜 石	〔PNC/スイス放射性廃棄物管理共同組合(Nagra)専門家会議〕 PNC/Nagra廃棄物管理分野協力協定に基づく情報交換。
11/15～11/17	大 洗	〔PNC/欧洲FBR安全専門家会議〕 日欧高速炉協定に基づく、FBR安全解析コード開発検討。

(2) 海外派遣・留学

派 遣・留 学 先	期 間	人 数	目 的
ノルウェー OECDハルデン炉	1995.10.17～1996.10.16	1名	原子力発電所の運転ならびに信頼性向上のためのマン・マシンシステムに関する研究
仏国 CEAフェニックス発電所	1995.11.30～1996.11.30	1名	PNC/CEA協定に基づく、もんじゅ／フェニックス情報交換
英国 原子力公社・(AEA)ハイウェル研究所	1995.12.1～1996.11.30	1名	オーバーパックの長期腐食挙動に関する開発手法の習得

(3) 主要外国人の来訪

訪 問 日	訪 問 先	訪 問 者
10/ 7	もんじゅ	英國原子燃料公社(BNFL)チェンバレン会長
10/11	本 社	カナダ原子力公社(AECL)トーガソン副理事長
10/13	東 海	仏電力公社(EDF)カゾー総監査役
10/18	本 社	BNFLイオン技術開発部長
11/ 2	もんじゅ	CEAブリエール人事局長
11/ 8	もんじゅ	ロシア・チェリヤビンスク州政府代表団一行
11/ 9	本 社	AEAエラー総裁
12/ 4	大 洗	米ブルックヘブン国立研究所(BNL)バリ部長



外部発表 特許・実用新案

■ 外部発表

平成7年10月～12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 閣	発 表 者	
		所 属	氏 名
高速炉材料強度基準と安全裕度	原子力発電プラントの構造設計基準における安全裕度に関する国内シンポジウム (社)日本溶接協会	動 燃	和田 雄作
データフリーウェイ・システム分散型材料特性データベース	第32回情報科学技術研究集会 日本科学技術情報センター	同 上	加納 茂機、館 義昭
「原子力施設に対する安全研究の現状と課題の調査結果について」第3章高速炉の安全研究	日本原子力学会誌 37巻11号(1995)	//	近藤 晃、家田 芳明 宮原 信哉、他
Study on System Importance of LMFBR Plant based on Seismic PSA	PSA '95 韓国原子力学会、米国原子力学会、欧州安全・信頼性協会	//	中井 良大
Development of Accident Sequence Dynamic Analysis Method	同 上	//	日置 一雅
A Database System for Mutual Usage of Material Information (Data-Free-Way)	Computerization and Networking of Materials Property Date ASTM	//	加納 茂機、上野 文義
Intergated Structural Strength Database with Structural Analysis and Damage Evaluation System	Fifth Int. Sympo. on Computerization and Networking of Material Property Data ASTM	//	笠原 直人
オブジェクト指向過渡熱応力リアルタイムシミュレーションコードPARTS-(I)プロトタイプの設計	日本機械学会計算力学部門講演会	//	笠原 直人、井上 正明
Analysis of JUPITER Critical Experiments by JENDL-3,2	1995年核データ研究会シグマ研究会	//	石川 真
Study on Core Concept for MA Transmutation in Fast Reactor	日露高速炉専門家会議 (社)日本原子力産業会議	//	大木 繁夫
高速増殖原型炉もんじゅの耐震設計と安全性	原子力発電施設の耐震技術と安全対策講習会 工業技術会(株)	//	坪田 俊秀
Operating Experience of the JOYO MK-II Core and the Future Plan (the MK-II Program)	日露高速炉専門家会議 (社)日本原子力産業会議	//	有井 祥夫、青山 卓史 鈴木 憲十
消滅処理に関わる燃料開発の動向	日本原子力学会第3回シンポジウム 原子力発電の経済性とバックエンド技術の進展 原子力学会中部支部	//	野村 茂雄
Fabrication of FBR Fuel Shipping Cask for Post-Irradiation Examination	PATRAM '95 IAEA、財原安センター	//	宇留鷺真一、岩永 繁 宇佐美正行、北井 善隆
Corrosion Behavior of Super-Heat-Resisting Nb-based and Mo-based Alloys in Liquid	日本金属学会 秋期大会	//	齊藤 淳一、加納 茂機
Alloying Effects on the Corrosion Behavior of Binary Nb-based and Mo-based Alloys in Liquid	同 上	//	同 上
ステンレス鋼溶接金属のミクロ破損機構に関する検討(ステンレス鋼溶接部の長時間クリープ疲労評価法の開発-1)	第33回高温強度シンポジウム 日本材料学会	//	長谷部慎一、浅山 泰

件 名	発表機関	発表者	
		所属	氏名
ステンレス鋼溶接金属の材質劣化を考慮したクリープ評価 疲労ーステンレス鋼溶接部の長時間クリープ疲労評価法の開発－	第33回高温強度シンポジウム 日本材料学会	動燃	浅山 泰、長谷部慎一
燃料被覆管微量元素のNa中溶出挙動に及ぼす流速とクリープの影響	同上	同上	吉田 英一
ステンレス鋼の照射後引張特性およびクリープ特性の検討	//	//	宮地 紀子、阿部 康弘 浅山 泰、青砥 紀身
高速炉燃料要素のスペースワイヤ巻き付け技術の開発	日本原子力学会1995年秋の大会	//	野上 哲也、関 信夫 沢山 武夫、石橋 隆
高速炉燃料の集合体内出力分布評価手法の検討	同上	//	高下 浩文、山口 隆司
「常陽」照射用炉心の炉心冷却材流量配分の測定評価	//	//	鈴木 俊宏、磯崎 和則 鈴木 惣十
高速実験炉「常陽」のナトリウム機器の保守性評価	//	//	市毛 聰、大山 信美 坪 正義
炉心構成履歴を考慮した「常陽」炉心の機械的挙動評価	//	//	福家 賢、有井 祥夫
「常陽」制御型材料照射装置の温度制御特性	//	//	片岡 一、揃 政敏
「常陽」Naボンド型制御棒の開発	//	//	曾我 知則、飛田 公一
先進的リサイクル炉の概念—燃料集合体および原子構造—	//	//	一宮 正和
先進的リサイクル炉の概念(2)—炉心特性および安全性—	//	//	林 秀行
「常陽」廃棄物処理施設におけるFBR燃料洗浄廃棄液の処理	//	//	宇佐美朋之、会川 英昭 飛田 祐夫
FBR炉内安全性試験計画 SERAPH(2):FBR実用化のための炉内安全性試験課題	//	//	丹羽 元、佐藤 一憲 近藤 悟、野中 信之
事象推移の動的解析手法の開発	//	//	日置 一雅
ワークステーション版高速炉用機器信頼性データベースの開発	//	//	栗坂 健一
モンテカルロ法によるフェイズドミッショングラムの開発(2)一分散低減法の改良を中心としたプログラム機能－	//	//	三原 隆嗣
崩壊熱レベルでのナトリウム沸騰に関する研究相—相関式の改良による解析手法の高精度化－	//	//	早船 浩樹、磯崎 正
高速急速加熱バースト解析用弾塑性応力—ひずみ関連2直線近似法－	//	//	和田 雄作、青木 昌典
高速炉燃料集合体バンドル変形挙動の評価（炉外バンドル圧縮試験の評価）	//	//	上羽 智之、水野 朋保 中江 延男
高速炉燃料の高燃焼度におけるギャップコンダクタンスに関する一研究	//	//	石井 徹哉、水野 朋保 中江 延男
高速炉燃料の熱過渡時における破損限界の検討	//	//	水野 朋保、前田誠一郎 水田 俊治
高速炉燃料の熱過渡時破損試験評価－I（燃料ピン加熱試験装置による試験）	//	//	山本 一也、平井 功 三次 岳志
OECD/NEAアクチニド燃焼炉心ベンチマーク計算	//	//	大木 繁夫
ビルディングブロック型FBRプラントシミュレータの開発	//	//	須田 一則、大草 享一 吉川 信治、小沢 健二
ナトリウム体系での集合体内潜り込み現象初生条件	//	//	林 謙二、小松崎清美 上出 英樹
高速炉の自然循環除熱時におけるインターラッパーフロー現象の評価	//	//	上出 英樹、林 謙二 桃井 一光、磯崎 正
超音波流速分布計測装置(UVP)による配管内ナトリウム流速分布の計測	//	//	鶴志田 洋、林 謙二 小松崎清美、武田 靖

件 名	発 表 機 間	発 表 者	
		所 属	氏 名
FBR安全性炉内試験計画SERAPH(1)：計画の目的と検討の概要	日本原子力学会 1995年秋の大会	動 燃	野中 信之、近藤 悟 前田 清彦
FBR安全性炉内試験計画SERAPH(3)：試験炉特徴と概念	//	//	川太 徳夫、家田 芳明 野中 信之、他
FBR安全性炉内試験計画SERAPH(4)：駆動炉心の炉心特性検討	//	//	大野 修司、宇都 成昭 山口 勝久、他
FBR安全性炉内試験計画SERAPH(5)：駆動炉心燃料概念検討	//	//	佐藤 一憲、山口 勝久 河野 秀作、川太 徳夫
FBR安全性炉内試験計画SERAPH(6)：物質移動計装システムの特性評価	//	//	小西 賢介、深野 義隆 川太 徳夫、野中 信之
小型2重管型蒸気発生器内管リーク検出特性評価	//	//	寺奥 拓史、木曾原直之 中垣 正悟
PFR蒸発器での蒸気注入試験時水素挙動解析	//	//	浜田 広次
ナトリウムプールからの揮発性FPの蒸気放出に関する研究(1) —セシウムの気液平衡分配係数の温度依存性と濃度依存性—	//	//	西村 正弘、中桐 俊男 宮原 信哉
ナトリウムプールからの揮発性FPの蒸気放出に関する研究(2) —Na, NaIの非平衡蒸発モデルの開発—	//	//	中桐 俊男、宮原 信哉
2重伝熱管の疲労き裂面通気特性に及ぼす蒸気酸化と残留ひずみの影響	//	//	古川 智弘、渡士 克己 和田 雄作
SUS304高速使用配管材のクリープ強度評価	//	//	加藤 章一、青木 昌典 吉田 英一
高燃焼度高速炉燃料のFPガス放出挙動	//	//	前田 宏治、三次 岳志 浅賀 健男
照射済MOX燃料中のMA分析技術開発(2)—Npの分析—	//	//	大塚 優子、小山 真一 両角 勝文、他
BeO-UO ₂ ペレットの熱伝導度評価	//	//	阿部 和幸、久田 雅樹 三次 岳志、梶谷 幹男
高速炉MOX燃料の高燃焼度での融点評価	//	//	廣沢 孝志、勝山 幸三 船橋 英之、他
高速炉用中性子吸収材の照射挙動—高燃焼度におけるスエリング挙動—	//	//	堀内 博人、皆藤 威二 小野瀬庄二、丸山 忠司
「常陽」照射用炉心における燃焼反応度分布測定と解析	//	//	長沖 吉弘、鈴木 惣十
Full System Chemical Decontamination of the Fugen Nuclear Power Station	OECD NEA 「ISOEトピカルセッション」	//	樋口 常久
Analysis and Evaluation of Failure Data in the Fugen Maintenance Management System	PSA'95 韓国原子力研究所 他	//	素都 益武、井口 幸弘 磯村 和利
Plant Response Analysis of Core Coolability of the Fugen by Heavy Water Moderator	同 上	//	桜井 直人、小堀 勝 田口理一郎
Outline of Development of ATR and its In-Service Inspection Technology	国際原子力安全セミナー 日本原子力研究所	//	小池 通崇
Ultrasonic Testing Technique for Pressure-tube Assemblies in "FUGEN" Reactor	原子炉配管検査技術に係わる日露WG 専門家会議 ロシア原子力省、科技庁	//	成尾 一輝
MOX燃料棒照射挙動評価コード「FEMAXI-ATR」の開発	日本原子力学会 1995年秋の大会	//	小貫 徳彦、植松 真一 栗田 一郎
疵検出条件最適化によるATR圧力管の超音波探傷技術高度化	同 上	//	成尾 一輝
「ふげん」原子炉出力制御操作支援システムの開発	//	//	白鳥 芳武、中島 良昭 松尾 秀彦、他
熱処理Zr-2.5Nb圧力管材料のクリープ特性に関する研究 (その1)—炉外熱クリープ特性—	//	//	宇野 謙一、小池 通崇
熱処理Zr-2.5Nb圧力管材料のクリープ特性に関する研究 (その2)—熱クリープ特性と照射クリープ特性—	//	//	小池 通崇、宇野 謙一
燃料集合体からの輻射による崩壊熱除去特性	//	//	鷗志田 洋、稻田 卓 望月 弘保
熱処理Zr-2.5Nb圧力管材料の機械的特性に及ぼす照射の影響	//	//	大原 清海、阿部 康弘 小池 通崇、鶴飼 重治

件 名	発表機関	発表者	
		所属	氏名
Radiation-Damage Rims Revealed by Cathodoluminescence in Detrital Quartz Grains in Sands Tones Around	ANN. REP. INST. GEOSCI, UNIV. TUKUBA	動燃	福島 竜朗、小山 和俊
航空機MSSデータを利用したスペクトル指標による岩相マッピング手法の検討－砂漠地域における緑泥石分布の把握を目的－	第93回物理探査学会学術講演会	同上	山岸 明子
Operational Experience at the Tokai Reprocessing Plant	OECD/NEA/FCSWG (OECD/NEA核燃料サイクル安全性ワーキンググループ)	//	中井 俊郎、金盛 正至 野島 康夫、他
窒化物燃料の研究開発と ¹⁵ N濃縮について	第7回同位体分離特別専門委員会 日本原子力学会	//	上村勝一郎
再処理分離技術の高度化	東北大学素材工学研究所第四回研究懇談会	//	小沢 正基
再処理分離技術の高度化－アクチニド分離の進展－	平成7年度「アクチニド元素の化学と工学」専門研究会 京都大学原子炉実験所	//	小沢 正基
核燃料の再処理および放射性廃棄物処理の現状と将来	特許庁向講演	//	小島 久雄、梅原 隆司
数理統計手法を用いたプラント異常診断手法の開発	計測自動制御学会学術講演会および 講演論文集	//	杉枝 典岳、長谷川一宏 根本 審伯、他
動燃事業団における分子レーザー法ウラン濃縮技術開発の現状	第108回「同位体分離」特別専門委員会 日本原子力学会	//	須藤 収
ディップチューブを用いた液量測定における気泡形状の数値計算および気泡形状と圧力変化の実測	第16回核物質管理学会日本支部年次大会	//	細馬 隆
金属塙造粒の基礎研究（硝酸セリウム単一液滴の熱分解過程の実験的研究）	第4回微粒化シンポジウム 日本微粒化学会	//	都所 昭雄、高橋 芳晴 川瀬 啓一
MOX燃料加工施設のスカイシャイン線評価に関する検討	日本原子力学会1995年秋の大会	//	清水 義雄、石川 博史 由利 明哉、高橋 俊夫
高繰り返し炭酸ガスレーザーに対するZnSe光学窓の耐光	同上	//	川越 浩、鈴木 美寿 亀田 昭二、他
赤外多光子解離過程における解離量のボアソン分布	//	//	鈴木 美寿、須藤 収
アクチニドリサイクルのための臨界安全データの調査研究	//	//	野尻 一郎、山名 元 駒 義和
ATR実証炉燃料の出力急昇試験(3)－低燃焼燃料のシングルステッププランプ試験－	//	//	矢野総一郎、上村勝一郎 飯島 隆、河野 秀作
光励起硝酸による室温での溶解基礎試験－UO ₂ 粉末溶解のパラメータ試験－	//	//	和田 幸男、森本 恭一
プルトニウム燃料製造施設への電解溶解法の適用性の研究(3)－固体廃棄物の除染試験－	//	//	綿引 政俊、木原 義之 都所 昭雄
高速炉照射済燃料の再処理に関する研究－溶解および85Kr放出挙動－	//	//	柴田 淳広、田中 康正 岡本 文敏、根本 慎一
PUREXプロセスにおけるNpの共抽出に関する研究	//	//	根本 慎一、田中 康正 岡本 文敏、他
電解アマルガム化法によるアクチニドと希土類元素の分離に関する考察	//	//	山名 元
再処理施設における放射線作業管理システムの構築	//	//	米澤 理加、石田順一郎 二之宮和重、他
TRUEX溶媒の安全性確認試験(2)	//	//	林 直美、武田 伸莊 蛭町 秀
炭化珪素製脱硝皿の開発	//	//	高橋 芳晴、加藤 良幸 都所 昭雄
東海再処理工場における高放射性廃液蒸発罐の運転経験	//	//	田中 等、綿引 優 佐々木 実、山本 隆一
レーザー誘起光音響分光法による再処理溶液中の微量プルトニウム分析の開発(I)	//	//	駿河谷直樹、佐藤 宗一 日野田正博、他
管球X線を用いた非破壊入量、出量保障措置分析システムの開発	//	//	永山 哲也、駿河谷直樹 日野田正博、他
硝酸環境における配管内面コーティング膜の長期耐食性評価	//	//	永井 崇之、武田誠一郎 鹿倉 栄

件 名	発表機関	発表者	
		所属	氏名
配管内面への耐食コーティング技術の開発	日本原子力学会1995年秋の大会	動燃	永井 崇之、武田誠一郎
プルトニウム燃料技術開発の30周年を振り返って	同上	同上	岸本洋一郎
ペントナイトおよび岩石中の核種移行データ	環境中微量物質の挙動パラメータ検討専門研究会 京都大学原子炉実験所	//	油井 三和
Study on Sealing System and Performance Assessment	3rd Int'l Workshop on Design & Construction of Final Repositories (ANDRA)	//	秋好 賢治、原 啓二
地層処分システムによる放射性廃棄物の受容に関するロバスト性	東工大原子炉研究会 核エネルギー・システムからの最終放射性廃棄物の許容限度	//	梅木 博之、牧野 仁史
Overview of the Nuclear Waste Management Program in JAPAN	AECL/PNC第2回協力会議	//	佐々木憲明
Recent Development in Hlw Disposal Programme in JAPAN	第11回PAAG会議 OECD/NEA	//	梅木 博之
Development of Vitrification Technology for High-Activity	放射性廃棄物使用済燃料管理国際セミナー 日本原子力研究所	//	五十嵐 寛
緩衝材中の天然有機物の分析	第11回日本腐植物質研究会	//	岡野 誠司、油井 三和 吉川 英樹、柴田 雅博
A Natural Analogue Study of Uranium Migration in the Tono Mine	MRS 1995 Fall Meeting Material Research Society	//	前川 恵輔、尾方 伸久 柳沢 孝一
高レベル放射性廃棄物処分の安全評価の現状と課題Ⅴ. 地層処分における安全評価Ⅰ. 安全評価の一般的手法	日本原子力学会誌 37巻11号 (1995)	//	梅木 博之
高レベル廃棄物に係わる安全研究	同上	//	大和 愛司
Detection of permeable fractures in granitic rock by hydrophone VSP	第3回SEGJ/SEG国際シンポジウム Geotomography 物理探査学会	//	長谷川 健、藪内 聰 青木 和弘
高レベル放射性廃棄物処分に係る技術的課題安全評価手法 : 安全評価手法(シナリオ、影響解析)の現状	特別講演会 高レベル放射性廃棄物処分に係る技術的課題 日本原子力情報センター	//	梅木 博之
ペントナイト:ペントナイトの特性(水理・力学・熱)	同上	//	石川 博久
Experimental Study on Groundwater Flow and Mass Transport	Symposium V at the 1995 MRS Fall Meeting	//	畠中耕一郎、内田 雅大
Effects of Aging on the Solubility of Palladium	同上	//	小田 治恵、吉川 英樹 油井 三和
深地層中の地下水流动特性解析評価へのアプローチ	放射性廃棄物管理専門研究会 京都大学原子炉実験所	//	小出 鑑
地層処分システムの長期性能評価研究の現状	21世紀の基盤科学技術ワークショップ 東北大工学部附属破壊力学応用研究施設	//	石黒 勝彦
イスNagra, Kristallin-Iにおける地下水流动解析	日環協 深地層における地質環境評価技術の調査	//	梅木 博之
小型油圧インパクターによる反射法地震探査	構造地質研究会1995年度冬の例会	//	長谷川 健、藪内 聰
放射性廃棄物核種の中性子吸収断面積測定	原子力研究総合センターシンポジウム 東京大学	//	原田 秀郎、加藤 敏郎 中村 詔司
地層処分研究開発成果	地層処分研究開発報告会(第3回) 動燃事業団	//	時澤 孝之、須田 忠義 武田 精悦、他
長寿命放射性廃棄物の地層処分の環境的および倫理的基礎(仮説)	同上	//	綿谷 茂、大沢 正秀
黄鉄鉱生成における表面状態の変化	平成7年度 秋季三鉱学会 資源地質学会、日本岩石鉱物鉱床学会、日本鉱物学会	//	岩月 輝希
東濃地域における地下水の地球化学的研究 - 化学平衡論に基づく水質形成機構のモデル化 -	1995年度 日本地球化学会	//	岩月 輝希、瀬尾 俊弘 濱 克宏
1,000M対応水理試験装置の開発	日本原子力学会中部支部研究発表会	//	田村 雅彦、中野 勝志
1,000M対応採水装置の開発	同上	//	豊嶋 賢治、濱 克宏 瀬尾 俊弘、中野 勝志

件 名	発 表 機 間	発 表 者	
		所 属	氏 名
植生を指標とした地下水流出域の抽出(その2)	日本写真測量学会 平成7年度秋季学術講演会	動 燃	小出 鑑、小林 公一 柳沢 孝一
リニアメント判読による地質構造区分の手法について	同 上	同 上	小林 公一、小出 鑑
1,000m対応採水装置の開発	日本地下水学会1995年度秋季講演会	//	濱 克宏、瀬尾 俊弘 中野 勝志、西垣 誠
1,000m対応水理試験装置の開発	同 上	//	竹内 龍史、中野 勝志 尾方 伸久
東濃鉱山における掘削影響試験の概要	日本応用地質学会中部支部第1回研究発表会	//	菊地 正、杉原 弘造
音波探査による神戸沖海域の活断層調査－活断層の分布および累積変位量の調査手法の検討－	同 上	//	荒木 竜介、石丸 恒存 藤原 治
リニアメントの分布特性に基づく地質構造区分	//	//	小林 公一、小出 鑑
金石鉱山における栗橋花崗岩中の割れ目形態と空げき構造	//	//	天野 健治、吉田 英一 笛本 広
水酸化サマリウムの溶解度測定と加水分解定数の算出 —Unified Theoryの適用妥当性について—	第39回放射化学討論会	//	瀧谷 早苗、瀧谷朝紀 吉川 英樹、油井 三和
河川水の流量および水質による表層部の地下水流动の推定	日本応用地質学会平成7年度研究発表会	//	尾方 伸久、梅田 浩司
コールドクルーシブル誘導溶融法のガラス溶融への適用研究 —Ni-Cr合金製クルーシブルによるガラス溶融試験－	日本原子力学会1995年秋の大会	//	河村 和広、小林 洋昭 五十嵐 寛、大内 仁
亀裂性媒体中における水理・物質移行研究の現状	同 上	//	内田 雅大
低放射性廃液中の放射性核種の挙動検討(I)－ニトロシルルニウム錯体の共沈挙動－	//	//	小林 師、飯島 和毅 宮本 陽一
アスファルトから浸出する可溶性有機成分に関する評価試験(3)	//	//	加川 昭夫、須黒 寿康 福本 雅弘、宮本 陽一
ヨウ化物イオンの吸着試験	//	//	福本 雅弘、宮本 陽一 中西 芳雄
高レベル廃液からのTRU元素の湿式分離研究(2)－三価アクチニド／希土類分離のフロシートの構成と硝酸逆抽出－	//	//	駒 義和、田中 康正 根本 慎一、他
Pu含有ガラス固化体からのPuの溶解挙動に関する研究	//	//	黒羽 光彦、瀧谷 朝紀 油井 三和、芦田 敬
不均質多孔質媒体中の物質移動現象に関する実験的研究	//	//	畠中耕一郎、内田 雅大
ナトリウム型ベントナイトのカルシウム型化に伴う形状因子の変化	//	//	三原 守弘、伊藤 勝
低放射性廃液からの核種除去試験(4)－Sr吸着剤およびCs吸着剤の吸着特性－	//	//	飯島 和毅、小林 師 宮本 陽一、中西 芳雄
低放射性廃液からの核種除去試験(5)－実廃液を用いた核種除去試験結果－	//	//	小林 師、飯島 和毅 宮本 陽一、中西 芳雄
電解法による高レベル廃液からのルテニウム除去試験(4) －電解時の水素発生－	//	//	花本 行生、米谷 雅之 五十嵐 寛、大内 仁
実高レベル放射性廃液の高減容処理試験	//	//	山下 照雄、清宮 弘 河村 和広、他
高レベル廃液分離物の固化試験	//	//	捧 賢一、河村 和広 米谷 雅之、他
圧縮ベントナイト中におけるコロイドの移行	//	//	油井 三和、吉川 英樹
処分環境下でのPd-H ₂ Oの溶解度について	//	//	油井 三和、吉川 英樹 小田 治恵
地球統計解析による間げき水圧の3次元分布推定	//	//	山根 正樹、尾方 伸久 小出 鑑
空洞の周辺岩盤中のき裂数と壁面からの距離の関係	//	//	石島 文代、杉原 弘造 吉田 英一
花崗岩割れ目からの物質のマトリックス拡散に関する研究	//	//	花室 孝広、吉田 英一
クラックテンソル理論による掘削損傷のモデル化	//	//	松井 裕哉
地殻変動の将来予測に関する研究(I)－堆積環境の復元による第四紀の隆起運動の解析精度の向上－	//	//	藤原 治

件 名	発表機関	発表者	
		所属	氏名
ラドン阻止剤の研究	日本原子力学会1995年秋の大会	動燃	永崎 靖志
アクチニドリサイクルにおけるアクチニドの回収効果	同上	同上	藤田 雄二、山名 元
緩衝材間隙水中での核種溶解度の解析評価（その1）電気2重層モデルによる近似解析	//	//	油井 三和、瀧谷 朝紀 梅木 博之
先進的核燃料リサイクルにおけるリサイクルすべき核種についての考察	//	//	塩月 正雄、山名 元 中島 一郎
東海ガラス固化施設における保障措置	//	//	岩本 友則、奥田 審一 吉岡 正弘、富川 裕文
環境モニタリングの実際	第18回環境放射線モニタリング課程 放射線医学研究所	//	赤津 康夫
国内計量管理制度(SSAC)国際トレーニングコースに参加して	核物質管理センターニュース	//	加藤 浩
Safety Analysis Report for TN6-4 Package	米国NRC (Public Document Room)/ DOT	//	宇留鷺真一、伊藤 正彦 北井 善隆
半導体放射線触媒法による水の分解水素製造	平成7年度第2回機能材料の基礎と 応用研究専門委員会 日本原子力学会	//	和田 幸男
Operational Data of the Spene Fuel Storage Pool in TRP	BEFAST—3 第3回研究調整会議 IAEA	//	大谷 吉邦、大西 徹 中島 節男、吉岡 竜司
Development of Underwater Welding System for Pool Lining	同上	//	大谷 吉邦、中島 節男 吉岡 竜司
「職場災害ゼロへの挑戦」—安全意識の向上を目指して—	QCサークル秋季大会（茨城地区）	//	石井 清登、市坪 浩二 本橋 昌博、他
Present Status of PNC High Power CW Electron LINAC	第10回加速器科学研究会 日本原子力研究所	//	江本 隆、大村 明子 平野耕一郎、他
土壤環境中における長半減期放射性核種の移行挙動について	環境中微量元素の挙動パラメータ 検討専門研究会 京都大学	//	森田 重光、渡辺 均 片桐 裕実、赤津 康夫
第Ⅰ期フロンティア研究成果報告会（要旨集）	第Ⅰ期フロンティア研究成果報告会 動燃事業団	//	宮本 寛、須藤 收 和田 幸男、他
「核不拡散国際フォーラム」結果速報	核不拡散国際フォーラム 動燃事業団	//	千崎 雅生
Evaluation of Neutron Production Rate in Electron Acceleration	1995年核データ研究会 日本原子力研究所	//	重留 義明、原田 秀郎
High energy resolution measurement method of photonuclear	同上	//	原田 秀郎、重留 義明 和田 幸男
PSA Application Study for the HAW Storage Process	International Conference on PSA Methodological App 日本原子力研究所 韓国原子力研究所	//	野尻 一郎、成田 健
緊急時放射線モニタリングシステムの開発	第37回環境放射能調査研究成果発表会 科学技術庁	//	今泉 謙二、叶野 豊 清水 武彦、片桐 裕実
沿岸における ^{239, 240} Puおよび ²⁴¹ Amの分布と挙動	第23回放医研環境セミナー 放射線医学総合研究所	//	住谷 秀一
光化学の核燃料サイクル技術への応用に関する基礎的研究	博士論文発表（公聴）会 東京工業大学	//	和田 幸男
シンチレーション光ファイバーによる放射線分布測定	放射線利用検討会 日本原子力産業会議	//	江本 武彦
Transport of Fresh MOX Fuel Assemblies for MONJU Initial Core	PATRAM '95 (Packaging and Transportation of Radioactive Materials)	//	大内祐一郎、倉上 順一 宇佐美正行
核燃料施設におけるTLDバッジと固体飛跡検出器の相関関係(2)—作業環境中の中性子エネルギー分布との関連—	日本原子力学会1995年秋の大会	//	辻村 憲雄、百瀬 琢磨 篠原 邦彦
放射能画像解析手法を用いたRn娘核種弁別測定法に関する研究	同上	//	田崎 隆、石田順一郎 二之宮和重、猿田 順一
核燃料サイクル施設のための信頼性データベースの作成	//	//	野尻 一郎、金盛 正至
有機よう素の無機化技術	//	//	稻葉 久美、石田順一郎 二之宮和重、水庭 春美
ミハルゾ法における検出器特性の影響評価	//	//	羽様 平、大谷 嘉夫

■特許・実用新案

平成7年10月より12月の間に登録および承継の手続きが完了した特許・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	事業団発明者等	備考
特許	1970182	7. 9. 18	高放射性廃棄物の処理方法	堀江 水明、福本 雅弘 米谷 雅之	
特許	1974971	7. 9. 27	溶媒精製方法	大塚 勝幸、大内 仁 近藤 獻	
特許	1974992	7. 9. 27	使用済溶媒の処理法	大塚 勝幸、近藤 獻 鈴木 徹	
特許	1975007	7. 9. 27	凍結真空乾燥法による放射性ヨウ素の回収及び貯蔵方法	大塚 勝幸、大内 仁 鈴木 徹	
特許	1977282	7. 10. 17	流動床システム	大塚 勝幸、中島 恒 橋本 裕	
特許	1979806	7. 10. 17	廃棄物処理用溶融炉及びその加熱方法	五十嵐 寛	
特許	1979813	7. 10. 17	配管器具の内壁を探傷するための装置及び方法	成尾 一輝	
特許	1979814	7. 10. 17	燃料集合体	神戸 満、羽賀 一男	
特許	1979826	7. 10. 17	小型液体金属冷却高速炉	神戸 満、金城 勝哉	
特許	1979843	7. 10. 17	放射性廃棄物の消滅処理方法	小無 健司、笛尾 信之	
特許	1980201	7. 10. 17	高速増殖炉用炉心内核計装	此村 守、中村 寿	
特許	1981507	7. 10. 25	低温金蒸気レーザ装置	大内 和美	
特許	1981510	7. 10. 25	ハライド銅蒸気レーザ	大内 和美	
特許	1981563	7. 10. 25	核燃料ペレットの充填用案内装置	野上 哲也、榎原 博	
特許	1981612	7. 10. 25	圧力管内のクラッドの電磁的捕集方法	大久保成史郎、尾嶋弘行 林 健一、友松 健一	
特許	1983270	7. 10. 25	気送管内付着・滞留粉末の除去方法	吉元 勝起、中井 宏二 (他1名)	
特許	1984307	7. 10. 25	レーザー同位体分離装置	笛尾 信之、山口 大美	
特許	1984944	7. 10. 25	ターピン発電機	片岡 一	
特許	1988056	7. 11. 8	液体金属冷却高速炉	神戸 満、羽賀 一男	
特許	1988066	7. 11. 8	放射性廃油等を含む機器の解体・撤去方法	浅野 孝、佐藤 清志	
特許	1989209	7. 11. 8	銅蒸気レーザの高効率化法	大内 和美	
特許	1992294	7. 11. 22	圧力管内のクラッドの電磁的捕集方法	大久保成史郎、友松健一 林 健一、尾嶋 弘行	
実用新案	2081539	7. 10. 3	漏洩液体金属貯留用燃焼抑制槽	佐々木和一、宮原 信哉	
実用新案	2084785	7. 10. 18	放射性廃棄物のHIP処理カプセル及びその吊り具	塙月 正雄、川村 重義	
実用新案	2088895	7. 11. 21	ホイストの脱落防止装置	吽野 一郎、鶴飼 重治	
特許	1969099	7. 9. 18	スイング移動式配管群自動検査装置	谷本 健一 (他1名)	株式会社マシンと共に
特許	1971296	7. 9. 27	放射線遮蔽装置	飯島世津男 (他2名)	日揮株式会社と共に
特許	1979092	7. 10. 17	中性子遮蔽材	大内祐一朗 (他6名)	木村化工機株式会社と共に
特許	1992276	7. 11. 22	放射性廃棄物の溶融固化処理方法	大塚 勝幸、会川 英昭 (他2名)	新日本無線株式会社と共に
実用新案	2077236	7. 9. 4	上部解放形箱型構造物の深さ計測装置	竜輪 正彦、太田 恒男 斎藤 守、清水 武範 岡本 弘信 (他1名)	三菱重工業株式会社と共に
実用新案	2083028	7. 10. 3	超音波洗浄装置	斎藤 守、竜輪 正彦 清水 武範 (他1名)	三菱重工業株式会社と共に
実用新案	2085575	7. 10. 18	サンプリング操作装置	(1名)	石川島播磨重工業株式会社と共に
アメリカ	5446773	1995. 8. 29	FAST REACTOR CORE	若林 利男	
アメリカ	5457264	1995. 10. 10	METHOD OF MELTING TREATMENT OF RADIOACTIVE MISCELLANEOUS SOLID WASTES	小林 洋昭、大内 仁	
アメリカ	5457997	1995. 10. 17	LASER ULTRASONIC DETECTION METHOD AND APPARATUS THEREFOR	成尾 一輝 (他1名)	
アメリカ	5463099	1995. 10. 31	EXTRACTANT FOR SELECTIVELY EXTRACTING STRONTIUM FROM AQUEOUS SOLUTION CONTAINING THE SAME	渡部 雅之、小沢 正基 富樫 昭夫、小夫家芳明	
アメリカ	5464512	1995. 11. 7	METHOD OF URANIUM ISOTOPE ENRICHMENT BY UTILIZING PHOTOCHEMICAL SELECTIVE EFFECT	佐藤 宗一、横山 友	
アメリカ	5465849	1995. 11. 14	COLUMN AND METHOD FOR SEPARATING PARTICLES IN ACCORDANCE WITH THEIR MAGNETIC SUSCEPTIBILITY	和田 幸男、山本 和典 塙本 修巳、小原 健司 三宅 千枝、森 定雄	
イギリス	2264702	1995. 11. 29	APPARATUS FOR TRANSFERRING A SOLUTION BETWEEN SEALED CONTAINERS	雑 哲郎	
ドイツ	3348380	1995. 6. 14	WARMEBEHANDLUNGSVORRICHTUNG	宮崎 仁、大塚 勝幸 宮田 和俊	
スイス	685926	1995. 11. 15	VERFAHREN ZUR STEUERUNG EINER WASSER/WASSERSTOFF-ISOTOPEN-AUSTAUSHRE AKTIONSANLAGE	清田 史功、北端 琢也 (他2名)	
カナダ	2055362	1995. 9. 12	MICROWAVE HEATING APPARATUS	近藤 獻、加藤 良幸	

■特許・実用新案紹介

ガラス溶融炉における滴下ガラス発生防止方法

(特許第1851082号・特許公報 平5-69778)

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り扱いが容易なより安定な形態とするため、ガラス原料とともに高い温度で溶融し、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、溶融槽内の放射性廃液と混合された溶融ガラスを流下ノズルを通してキャニスターに注入する場合、流下ノズルの全長周囲にらせん状の加熱コイルを取り付け高周波電流を通電し加熱することにより、流下ノズル内においても溶融ガラス状態にして注入し、また注入を停止する場合は通電を停止し、流下ノズル周囲に配した冷却エアノズルから冷却エアを吹き付け、流下ノズルの温度を下げ流下ノズル内で溶融ガラスを固化させて停止していた。

このため流下ノズル全体を加熱するので、流下ノズル下方から徐々に溶融流動はじめ、滴状の滴下ガラスとなって糸状の尾を引きながら滴下状態が続き、連続的な注入に至るまでに時間がかかり、また滴下ガラスはキャニスターに到達するまでに、キャニスターへの案内管内壁に粘着したり糸状の尾が引っかかって固化したりして溶融ガラスの流れを閉塞する場合があった。

本発明は、これらの状態を改善し処理能力の向上をはかるための滴下ガラス発生防止方法に関するものである。

2. 本発明の内容

本発明は、図1に示すように、ガラス溶融炉底部の溶融ガラス取り出し口周囲に加熱手段および冷却手段を設け、加熱により内容物を加熱溶融して流下させ、冷却により内容物を固化して流下を

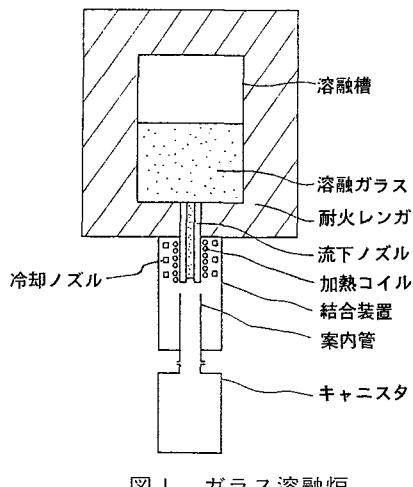


図1 ガラス溶融炉

停止させるようにした溶融ガラス取り出し方法であって、図2に示すように、溶融ガラス取り出し初期には取り出し口全体を加熱するとともに、取り出し口先端部を冷却し、溶融ガラスが取り出し口先端部まで流下したときに取り出し口先端部の冷却を停止すること、また他の方法としては図3に示すように、取り出し口上部を加熱する第1の加熱手段と、取り出し口下部を加熱する第2の加熱手段によりなり、溶融ガラス取り出し初期には第1の加熱手段により取り出し口上部を加熱溶融し、溶融ガラスが取り出し先端部まで流下したときに第2の加熱手段により取り出し口先端部を加熱することを特徴とするガラス溶融炉における滴下ガラス発生防止方法である。

3. 特徴と効果

本発明は、上述のように構成したもので、図2に示すように流下ノズルの周囲に設けた加熱コイルに高周波電流を通電して流下ノズル内のガラスを加熱溶融しながら、同時に流下ノズルの先端部を冷却エアで冷却し、先端部まで溶融ガラスが流下したときに流下ノズル先端部の冷却を停止することにより、また他の方法としては、図3に示すように流下ノズルの上部を先ず加熱し、溶融ガラスが流下ノズル先端部まで流下したときに先端部を加熱することにより、滴下ガラスを発生することなく溶融槽内の溶融ガラスを連続的に、かつ円滑に流下させキャニスターに注入させることができる。

動燃事業団では、本発明による方法で試験を重ね、効果と信頼性を確認し「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炉に採用している。

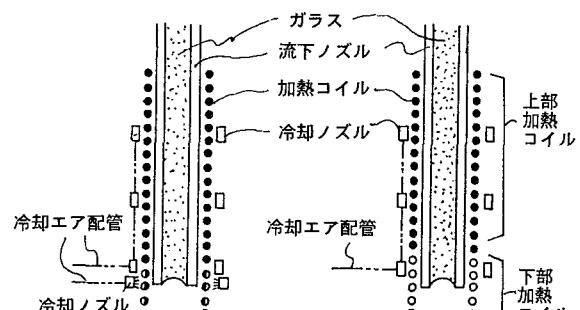


図2 実施例1
流下ノズル先端冷却式加熱法の概念図

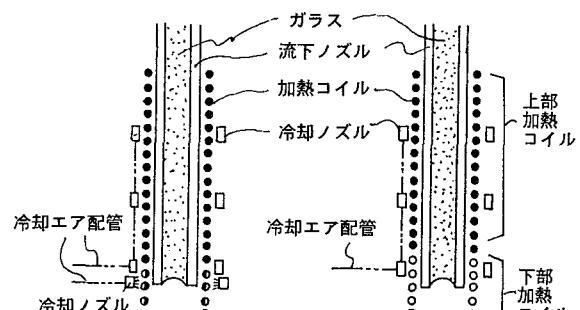


図3 実施例2
流下ノズル上部・下部分割加熱法の概念図

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 1996.3 No.97
平成8年3月発行

©1996 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 菓根出版
東京都千代田区平河町1-8-13

Abstracts(PNC Technical Review)

Investigation of Thermal Properties of TRUEX Solvent and Exothermic Reaction of TRUEX Solvent/Nitric Acid

Naomi Hayashi Shinso Takeda

PNC Technical Review No.97 p.18-28 (1996)

In studies on advanced nuclear fuel cycle, a solvent extraction process using TRUEX solvent (CMPO/TBP/n-dodecane mixture) has been developed for separating of MA from high level activity liquid waste. In the safety study on TRUEX solvent, flash and ignition points of each organic reagent of TRUEX solvent and their mixed solutions were obtained. Calorific values for the exothermic reactions between these solvents and nitric acid in single phase of solvents equilibrated with nitric acid and two phases of solvents/nitric acid were measured by a differential scanning calorimeter with sealed cells (SC-DSC).

Flash point 179°C and ignition point 280°C for CMPO were obtained. The saturated calorific value for the exothermic reaction of CMPO/nitric acid (two phases) was 21kJ/g-CMPO over 25 of nitric acid/CMPO mole ratio, which value was almost equal to that of TBP/nitric acid (two phases). The calorific value of 0.2M CMPO-1.0M TBP equilibrated with 13.4N nitric acid were 1.7kJ/g-saturated solvent and that of 100% TBP was 1.5kJ/g-saturated solvent. There were little difference between the calorific values for PUREX solvent/nitric acid and those for TRUEX solvent/nitric acid measured with SC-DSC.

Key Words: TRUEX Solvent, CMPO, TBP, Nitric Acid, Calorific Value, Exothermic Reaction, Flash Point, Ignition Point, SC-DSC.

Geochemical Characteristics of the Manitou Falls Formation of the Athabasca Group, and Evaluation of Exploration Drill Holes (Part 1) – Selection of Thresholds and Introduction of Alteration Index by Statistical Analyses –

Yoshimasa Iida

PNC Technical Review No.97 p.29-45 (1996)

Geochemical characteristics of the Manitou Falls formation of the Athabasca group, that overlies ore deposits, are under investigation in the Christie Lake Area B, a PNC's sole property, located in the northern Saskatchewan, Canada. The characteristics of mineralogical and chemical halos surrounding ore deposits have been grasped, and the threshold values for each geochemical variable have been determined so far by the investigation. Also, an comprehensive geochemical index for each exploration drill hole has been found by use of the principal component analysis. The discovery rate of ore deposits is expected to increase in future by applying the results to actual exploration.

Key Words: Alteration Halo, Athabasca Group, Boron Metasomatism, Geochemical Exploration, Hydrothermal Alteration, Iron Bleaching, Magnesium Metasomatism, Potassium Metasomatism.

Design of the High Power CW Electron Linac Injector

Takashi Emoto Masahiro Nomura

PNC Technical Review No.97 p.46-56 (1996)

As a part of the OMEGA program, PNC has been studying the feasibility of transmuting long-lived fission products with accelerators. The project has designed a high power CW electron linac and evaluated main components such as a klystron and an accelerating tube with the purpose of developing high power beam acceleration techniques for a future transmutation system.

This paper describes the design concept and beam transport simulation for the accelerator injector components such as an electron gun, an RF chopper, a buncher, beam transport components and beam monitors.

Key Words: OMEGA Program, Long-live Fission Products, Transmutation, Electron Linac, RF Chopper, Buncher, Beam Transport, Beam Monitor.

Design and Development of Super-Heating Resisting Nb-based and Mo-based Alloys

*Jun-ichi Saito Yoshiaki Tachi Shigeki Kano
Masahiko Morinaga Mitsuaki Furui Satoshi Inoue*

PNC Technical Review No.97 p.57-66 (1996)

Nb-based and Mo-based alloys which are refractory metals are ones of the promising materials for advanced nuclear power systems of high temperature applications. Alloy design of Nb-based and Mo-based super-heat resisting alloys was performed in order to develop these alloys possessing high temperature strength and excellent corrosion resistance under alkali liquid metal environment. A d-electrons alloy theory using a molecular orbital calculation was applied to present alloy design. The micro-Vickers hardness at room and elevated temperature which was mechanical property, workability and melting point which was index of creep properties, were obtained by various experiments. And, they were arranged and estimated using the theoretical alloy parameters. The corrosion tests were carried out with binary Nb-based and Mo-based alloys in liquid Li at 1473K. The alloying element which was effective in improving the corrosion resistance was investigated from the experimental results. Accordingly, the Nb-based and Mo-based alloys systems having the higher strength at elevated temperature and excellent corrosion resistance were found out from these results.

Key Words: Super-Heat-Resisting Alloys, Nb-Based Alloys, Mo-Based Alloys, Alloy Design, Molecular Orbital Calculation, d-Electrons Alloy Theory, Mechanical Property, Liquid Li Corrosion.

Solubility Measurement of Trivalent Lanthanide for Performance Assessment.

Sanae Shibutani

PNC Technical Review No.97 p.67-75 (1996)

The solubility is estimated using thermodynamic data for performance assessment of the geological disposal system for high level radioactive waste. To calculate reliable solubility, the development of thermodynamic database is needed. We obtained the hydrolysis constants of $\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{cr})$, $\text{SmOHCO}_3(\text{cr})$ and $\text{NdOHCO}_3(\text{cr})$ by solubility measurements.

The solubility measurements of $\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{cr})$ were conducted under low CO_2 concentration system($\text{Ar}>99.99\%$), $24\sim27^\circ\text{C}$, ionic strength $I=0.1$, $\text{pH}7\sim12.1$. For hydroxido-carbonates were conducted in air, $25 \pm 0.5^\circ\text{C}$, ionic strength $I=0.1$, $\text{pH}5.7\sim9.7$. The solubilities were similar to those of americium. The results were $\text{Sm}(\text{OH})_3(\text{cr}) \rightleftharpoons \text{Sm}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O} - 3\text{H}^+$; $\log K = 66.4$, $\text{SmOHCO}_3(\text{cr}) \rightleftharpoons \text{Sm}^{3+} + \text{H}_2\text{O} - \text{H}^+ + \text{CO}_3^{2-}$; $\log K = -8.69$, $\text{NdOHCO}_3(\text{cr}) \rightleftharpoons \text{Nd}^{3+} + \text{H}_2\text{O} - \text{H}^+ + \text{CO}_3^{2-}$; $\log K = -7.89$.

The solubilities of samarium and neodymium under the geological disposal condition were estimated at $10^{-6}\sim10^{-8}$ mol/l.

Key Words: Geological Disposal, Performance Assessment, Solubility, Thermodynamics, Samarium, Neodymium, Hydroxide, Hydroxo-Carbonate, Hydrolysis, Formation Constant.

Quality Assurance of Reference Photon Calibration Field

Satoshi Mikami Motoko Toyoda

PNC Technical Review No.97 p.76-81 (1996)

Five sites of Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (PNC) have each calibration facility for radiation monitoring instruments such as survey meters and personal monitoring dosimeters. Each calibration field keep traceability to a national primary standard of Electro-technical Laboratory.

For the purpose of strengthening quality assurance on gamma calibration method, the intercomparison for the reference exposure values of the calibration fields among the 5 calibration facilities of PNC was conducted by means of ionization chambers. The result showed that every calibration facility had been maintained and well-controlled in good conditions. The intercomparison of reference calibration fields and its convenient method are subscribed as a inspection method for an accuracy of reference exposure value.

* Tokai Works, O-arai Engineering Center, Monju Construction Office, Fugen Nuclear Power Station, and Ningyo Toge Works.

Key Words: Reference Photon Calibration Field, Traceability, Compatibility, Inter-comparison, Ionization Chamber, Glass Dosimeter, Quality Assurance

Study on Migration Behavior of Fallout Nuclides in Lake Hinuma - Migration Behavior of ^{137}Cs in Lake Sediments -

Minoru Takeishi Naoko Nakashima Hitoshi Watanabe
PNC Technical Review No.97 p.82-86 (1996)

A lake has tendency to collect fallout materials on catchment area. Fallout radionuclides deposited on catchment area are transported to a lake mainly by overland flow of rainfall. Rainfall may also accelerate the discharge of radionuclides on the lake bottom. Therefore, accumulation of radionuclide on lake bottom is determined by the balance of radionuclide inflow and outflow. Migration behavior of ^{137}Cs in sediments was investigated to determine a characteristic of accumulation at Lake Hinuma after the Chernobyl accident. The results showed that most part of ^{137}Cs was carried through the main inflow river to the sediments of upstream area of the lake. Concentrations of ^{137}Cs in the sediments were almost equal to these in the surface soil at the catchment area. Concentration of ^{137}Cs in the sediments was reached an equilibrium. Lake Hinuma showed a characteristic of low accumulation of ^{137}Cs .

Key Words: Lake, Hinuma, Sediments, Cesium-137, Migration.

Lithological Discrimination Using AMSS Data Based on Spectral Indices

Akiko Yamagishi
PNC Technical Review No.97 p.87-93 (1996)

Airborne Multispectral Scanner (AMSS) has several tens of spectral bands in the short wavelength infrared region where many altered and carbonate minerals show distinctive reflectance features. Therefore lithologically *identified* images based on mineral features can be made from AMSS data whereas satellite data can only *discriminate* lithology enhanced by inter-band calculation.

Geotechnics Development Section at Tono Geoscience Center derived Spectral Index(SI) conversion coefficients using mainly reflectance spectrum database, which was reported on the earlier issue(No.87). The SI is a measure of absorption features of individual minerals.

As a result of applying the conversion coefficients to the image data which was normalized to the reflectance dimension beforehand, chlorite-rich region, which is a specially important mineral to the uranium exploration, was highlighted in the image.

This indicates that the SI method to the multi bands data is versatile to identify specific minerals.

Key Words: Remote Sensing, Image Processing, Airborne MSS, Reflection Spectrum, Spectral Band, Spectral Analysis, Spectral Index, Uranium Exploration.

Study on Passive Shutdown Feature for Fast Reactor

Yoshiaki Ieda Nariaki Uto
PNC Technical Review No.97 p.94-102 (1996)

Study on passive shutdown features has been carried out to establish the safety philosophy for fast reactor which is easily understood by the public toward the realization of commercial fast reactor. The results of this study up to now are as follows:

- (1) We proposed a procedure for selecting promising passive shutdown measures and for finding out the appropriate combination of measures. Based on this procedure we recommended examples of combination of measures.
- (2) Characteristics related to the static reactivity and the transient plant response for some promising passive shutdown measures were quantified. Conceptual designs were carried out for these measures.

Key Words: Passive Safety, Passive Shutdown, Fast Reactor, SASS, Intra-subassembly SASS, CDA, Prevention, Mitigation.

In-core Flow Rate Distribution Measurement Test of the JOYO Irradiation Core

Toshihiro Suzuki Kazunori Isozaki Soju Suzuki
PNC Technical Review No.97 p.103-109 (1996)

A flow rate distribution measurement test was carried out for the JOYO irradiation core (the MK-II core) after the 29th duty cycle operation. The main object of the test is to confirm the proper flow rate distribution at the final phase of the MK-II core. The each flow rate at the outlet of subassemblies was measured by the permanent magnetic flowmeter inserted avail of fuel exchange hole in the rotating plug.

This is third test in the MK-II core, after 10 years absence from the final test (1985). Total of 550 subassemblies were exchanged and accumulated reactor operation time reached up to 38,000hours from the previous test.

As a conclusion, it confirmed that the flow rate distribution has been kept suitable in the final phase of the MK-II core.

Key Words: JOYO MK-II Core, Fast Reactor, Flow Rate Distribution, Core Characteristics, Core Management.

Education and Training for Operators Using a Full Scope Simulator and an Its Upgrading Program in JOYO

Makoto Sawada Toshihiro Terano Isao Hunaki
PNC Technical Review No.97 p.110-114 (1996)

A JOYO full scope operator training simulator installed in 1983, is being used with high average unit availability factor of more than 70% per annum. The education and training for the operators using it has been greatly contributing to safety operation of the experimental fast reactor JOYO. The simulator mainly consisting of five control panels, a computer system having two computers and an instructor's console, is able to simulate the plant behaviors and the sequential processes with real time under normal or anomaly conditions.

Now, according as the JOYO MK-ILL project which enhances the irradiation capability of JOYO, an upgrading program of the simulator is proceeding with the aim of advancing its efficient usage by improving the training function and the analytical accuracy of the simulator.

Key Words: Full Scope Simulator, Instructor Console, Sequence and Interlock Processes, Operating and Training, Malfunction, Nuclear and Thermo-hydraulic Behaviors, Plant Dynamic Code, Plant Dynamic Analysis and Logic Models, Test Assessing Tool.

A Development of Nodal Transport Calculation Method for Three-Dimensional Hexagonal Geometry

Kazuteru Sugino
PNC Technical Review No.97 p.115-121 (1996)

For the detailed analyses of power fast reactor core, the neutron transport calculation is essential. However enormous computation memory and calculation time are generally required to obtain the accurate transport calculation results. In terms of the rationalization of those situation, the nodal transport calculation code for three dimensional hexagonal geometry 'NSHEX' has been developed. The 'NSHEX' code has ever been improved mainly in convergency and calculational accuracy. By treating the angular dependence of flux in detail and applying the new method of the treatment of transverse leakage, the 'NSHEX' code is enabled to reduce the error of multiplication factor by about one sixth as much as that produced by the previous nodal transport calculation method.

In future we will furthermore promote the development of the 'NSHEX' code and establish it as the standard transport calculation code to evaluate the power reactor core in detail.

Key Words: Neutron, Transport, Transport Correction, Nodal Method, Hexagonal Geometry, S_N Method, Polynomial Expansion, Transverse Leakage.

Development of Remote Handling Tools for Glove Box

Yutaka Tomita Takeshi Nemoto Akio Denuma Akio Todokoro
PNC Technical Review No.97 p.122-125 (1996)

For a part of advanced nuclear fuel recycling technology development, we will separate and recover Americium from the MOX fuel scrap by solvent extraction. When we carry this examination, reduction of exposure from Americium-241 is one of important problems. To solve this problem fundamentally, we studied many joints type of the remote handling tools for glove box and produced a trial production machine. Also, we carried out basic function examinations of it. As a result, we got the prospect of development of the remote handling tools which could treat Americium in glove box.

Key Words: Remote Handling Tools, Many Joints, Reduction of Exposure, α Tight Boots, Glove Box, Americium-241.

Determination of Plutonium in MOX Fuel in the Presence Iron by Controlled Potential Coulometry

*Tomio Kageyama Toshiaki Hiyama Junta Yamamoto
Katsuichiro Kamimura*
PNC Technical Review No.97 p.126-131 (1996)

A controlled potential coulometric method has been developed for the determination of plutonium in plutonium-uranium mixed oxide (MOX) fuel containing of iron. The coexisting iron in the dissolved MOX sample interferes with the determination of plutonium by coulometry, since the redox potential of iron is adjacent to the potential of plutonium. To avoid the interference of iron, the present method was developed under the consideration of the fact that *o*-phenanthroline reacts to iron to form the complex and then the redox potential of iron was shifted to the positive side. The added *o*-phenanthroline was more than 20 fold to the amount of iron. Uranium did not interfere at uranium to plutonium weight ratio of up to 10 fold. The relative standard deviation of the present method was less than 0.3% ($n=7$).

Key Words: Controlled Potential Coulometric Method, Plutonium, Uranium, Mixed Oxide, Iron, *o*-phenanthroline.

Research on Neutron Capture Cross Section of Radioactive Fission Products

Hideo Harada Shoji Nakamura Toshio Katoh Yukio Wada
PNC Technical Review No.97 p.132-136 (1996)

Neutron capture cross sections of radioactive fission products have been precisely measured to provide fundamental data for the research on nuclear transmutation methods. The targets were irradiated within and without a Cd shield by reactor neutrons, whose fluxes have been monitored using two kind of activation detectors. The fast electronics system was developed to measure weak γ -rays emitted from the activated nuclei in the environment of strong γ -ray field of the radioactive target nuclei. By using this system, the thermal neutron capture cross section and the resonance integral of ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{99}Tc , and ^{129}I were obtained with the error of 5~10%.

Key Words: Neutron Capture, Cross Section, Measurement, Nuclear Transmutation, Thermal Neutron, Resonance Integral, Activation Method, Cesium 137, Strontium 90, Technetium 99, Iodine 129.

Development of Simulator for the Uranium Enrichment Plant using a Real-time Expert System.

Shinichi Kodama Kazuhiro Kondo
PNC Technical Review No.97 p.137-144 (1996)

The uranium enrichment plant simulator of the new material centrifuge cascade for intelligent process monitoring and alarm generation has been developed by applying an artificial intelligence technology. The real time expert shell, G2 has been used for the system development.

The UF6 supply system and cascade equipment was modeled using G2. For a detailed calculation of the cascade, the cascade static characteristic FORTRAN program has been used. These calculation results have been used for the diagnosis of a suspicious behavior in measurement data. Especially, when the deviation of the product uranium concentration was detected, the cause of the deviation was inferred from the knowledge base.

Key Words: AI, Artificial Intelligence, Real-time Expert System, Uranium Enrichment Plant Simulator.

Estimation of Groundwater Recharge from the Subsurface to the Rock Mass

- A Case Study of Tono Mine Area, Gifu Prefecture -

Koichi Kobayashi Katushi Nakano Kaoru Koide
PNC Technical Review No.97 p.145-150 (1996)

The groundwater flow analysis involve the groundwater recharge from the subsurface to the rock mass. According to water balance method, annual groundwater recharge is calculated by the remainder of annual evapotranspiration and river flow from annual precipitation.

In this estimation, hydrological and meteorological data observed for 5 years on the watershed in Tono mine area is used. Annual precipitation ranges from 1,000 to 1,900mm and annual river flow ranges from 400 to 1,300mm, then river flow depends critically on precipitation.

Annual evapotranspiration calculated by Penman method ranges from 400 to 500mm. It is less fluctuant than annual precipitation.

As the result of examination of water balance in subsurface zone estimated, annual ground water recharge ranges from 10 to 200mm in this watershed.

Key Words: Groundwater Recharge, Water Balance, Penman Method, Evapotranspiration, Tono Mine Area.

Construction and Operation of JOYO Waste Treatment Facility

Tomoyuki Usami Hideaki Aikawa Hiroo Tobita
PNC Technical Review No.97 p.151-156 (1996)

Joyo Waste Treatment Facility (JWTF) of which construction started at 1989 and the installation of equipments completed in August, 1996, has been in hot operation since February 10, 1995.

JWTF is a pretreatment facility to reduce the activity of liquid waste to the acceptable level of the waste treatment facility of Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI). The liquid waste is generated in the experimental fast reactor JOYO and the fuel monitoring facility (FMF).

Considering that Main source of the liquid waste is cleaning water of fuel assemblies containing particles of corrosion products, JWTF adopted filters (hollow fiber filter) to remove them in addition to evaporator, microwave solidification apparatus and so on.

This report describes the outline and the present operation state of JWTF.

Key Words: JOYO Waste Treatment Facility, FBR, Fuel Rins Liquid Waste, Corrosion Product, Hollow Fiber Filter, Evaporator, Micro Wave, Vitrification, Construction and Operation.

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
東濃地科学センター	岐阜県土岐市泉町定林寺 959-31	〒509-51	TEL (0572)53-0211
東 海 事 業 所	茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33	〒319-11	TEL (029)282-1111
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 (029)267-4141
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. Level 10, 55 Hunter Street, Sydney, N. S. W. 2000 Australia	TEL 2-233-8799 FAX 2-233-8060