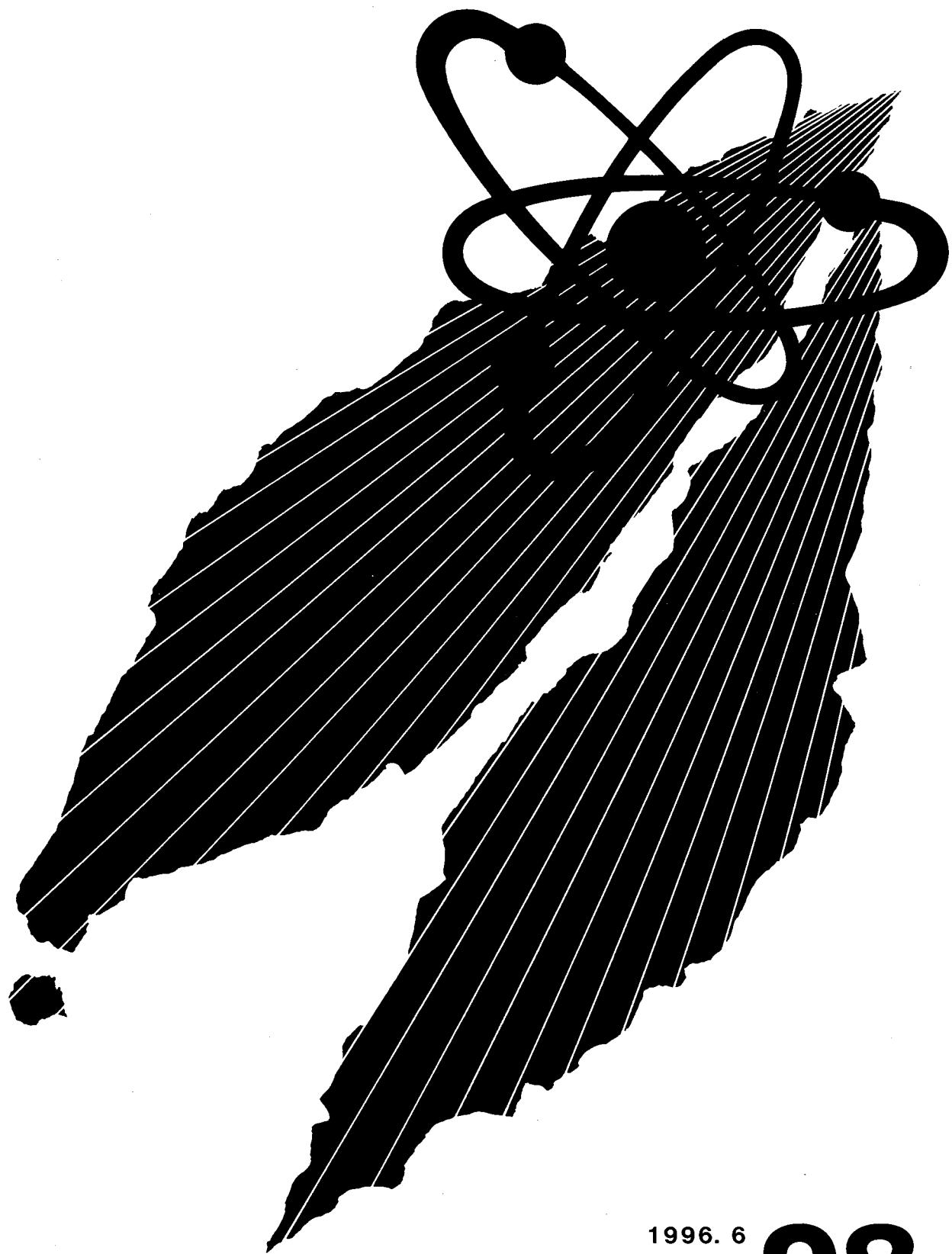


動燃技報

PNC Technical Review



1996. 6
No. 98

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

技術報告

高速炉機器信頼性データベースの開発	18
栗坂 健一	
再処理工場オフガスからのヨウ素除去用	
「銀添疎水性吸着材」の開発	32
伊波 慎一 野上 隆雄 槙 彰	
小形 佳昭 竹下 健二 九石 正美	
熊谷 幹郎	

技術小論

鉛エプロンの着用に伴う体幹部不均等破ばくについて	43
辻村 憲雄 百瀬 琢磨 篠原 邦彦	
ラドン娘核種粒径分布の測定	48
伊藤 公雄 古田 定昭 中島 裕治	
検層深度誤差の原因と補正	54
飯田 義正 池田 幸喜 鶴田 忠彦	
伊藤 洋昭 後藤 淳一	
炉心損傷時の融体ジェット—冷却材相互作用に 関する実験的研究	59
小西 賢介 磯崎三喜男 今堀 真司 D. J. Brear	
顆粒粉末の製造に向けた噴霧熱分解法の開発	65
加藤 良幸 川瀬 啓一 高橋 芳晴 都所 昭雄	
フラクタル理論による堆積岩中の透水係数分布の推定	71
前川 恵輔 尾方 伸久 柳澤 孝一 高瀬 博康	
炭素鋼オーバーパックの長期寿命予測モデルの開発	77
谷口 直樹 本田 明 石川 博久	
高レベル放射性廃棄物の高減容処理研究	85
米谷 雅之 河村 和廣 山下 照雄	
持 賢一 五十嵐 寛 大内 仁	

国際協力

国際会議、海外派遣等	91
------------	----

活動

外部発表・特許・実用新案	92
--------------	----



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、平成7年度の計画停止作業を終了後、定格出力にて運転を継続している。

1月30日には、法律に基づき「ふげん」の3カ年運転計画を策定し、科技庁、通産省に届け出た。

3月12日には新燃料輸送を実施し、二酸化ウラン燃料14体を受け入れた。

また、「ふげん」の定期安全レビュー(PSR)に係わる運転試験の包括的評価、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。

なお、平成7年度の「ふげん」の運転は、年度当初の運転計画どおり順調に推移し、プラントとしての年間設備利用率は本格運転開始以降最高の86.2%を達成するなど、安定な運転実績を示した。

平成7年度第4四半期の運転実績は、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 (%)
8年1月	122,760	744	100.0	100.0
8年2月	114,840	696	100.0	100.0
8年3月	122,760	744	100.0	100.0
合計	360,360	2,184	100.0	100.0

2. 研究開発

新型転換炉に関する研究開発は、「新型転換炉実証炉建設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、「ふげん」の運転に係わる安全性向上及び経済性の向上に必要な研究開発を継続実施することとし、その他基盤技術研究について、早期にその成果をとりまとめることとした。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。

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、被ばくの低減化及び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が、前述の原子力委員会決定を受けて、電源開発(株)と調整のうえ、試験内容、試験工程の見直しを行った。この結果、新型転換炉技術確証試験は、総合評価試験終了に伴う作業等を実施し、平成8年11月末で終了することとした。

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性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評価を実施した。

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および解析を実施している。

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。

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、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、最良健全性、構造健全性を確かめる炉外試験の報告書作成を完了した。

「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一環として、亜鉛注入下での試験を平成 8 年 1 月より実施している。

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7,500時間に達したので試験を終了した。圧

力管余寿命評価手法の開発については、今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、これらを用いて寿命評価を行うプログラムを作成した。第 2 回圧力管ラウンドロビンテスト（カナダ主催）を実施している。さらに、ふげん圧力管の破損確率評価を実施した。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を行った。

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うち、腐食量測定試験、三点曲げ試験を終了した。引き続き引っ張り試験、水素吸収量測定等を実施する。

(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」で照射された市有剛体のうち、2 体目について破壊試験を原研東海研究所において開始した。

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終了した。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実施した。

ハルデン炉で照射する MOX—Gd₂O₃燃料要素の加工を終了し、輸送準備を行った。

（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。「もんじゅ」ナトリウム漏洩事故に関連して、1次・2次冷却系の熱電対ウェル部の点検作業を実施した。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に係わる製作設計対応を実施した。また、新規製作する主中間熱交換器の材料検査を実施した。

2. 高速増殖炉もんじゅ

平成7年12月8日、「もんじゅ」の2次主冷却系Cループにおいて、ナトリウム漏洩事故が発生、原子炉を手動トリップした。漏洩が発生した2次主冷却系Cループと1次主冷却系Cループのナトリウムをドレンした後、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・清掃作業、原因究明のため漏洩部温度計の切り出し、ロストパーティ探索作業等を実施した。

ナトリウムが漏洩した2次主冷却系Cループ中間熱交換器出口温度計部について1月7日から8日にかけてX線撮影を実施した結果、温度計ウェルの細管部が喪失し、温度計シース部が配管内のナトリウムの流れ方向に約45度折れ曲がっているのが確認された。当該温度計部を2月7日から9日にかけて切り出し、破面等の調査を行っているところである。

また、2次系A・Bループに設置されている温度計全数に対し、健全性確認のための非破壊検査を実施したところ、温度計部にナトリウム漏洩の痕跡は認められなかった。当該ループの中間熱交換器入口温度計についても切り出しを行い、大洗工学センターにて詳細な調査を行っている。その

他のCループ温度計についても非破壊検査を実施しているところである。

現状設備の健全性を強化するために、2次系A・Bループに設置されている温度計全数に対し、コンプレッションフィッティングの取り付けによるシール性強化を行った。

ロストパーティ探索では、漏洩部から過熱器までの2次系Cループの主冷却系配管および補助冷却系配管等の水平部、過熱器リングヘッド部等の放射線撮影を実施したが、温度計ウェル細管部と認められる映像は確認されなかった。3月25日よりCCDカメラによる過熱器の分配器内部の探索を実施したところ、3月28日に温度計ウェル細管部を確認した。

(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。今後、過熱器の分配器内で確認された温度計ウェル細管部の回収作業を実施する予定である。

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拡大防止に関する、ボ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、日欧での共通バージョンを整備し、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、総合検証研究と実機への適用研究を進めている。

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・評価を継続した。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、全試験を終了し、試験後の検査およびコードによる解析評価を進めた。また、平成 8 年度からの次期共同試験計画 (CABRI—FAST (Reactivity Accidents and Fuel Tests)) の試験内容の具体化を進めた。

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と過渡的な炉心冷却特性を結合して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、不活性ガス中でのヨウ素蒸気の高温での拡散係数の測定を実施した。

格納施設の安全評価手法の開発については、デブリからの FP 放出解析モデルの詳細な調査・検討を進めた。

冷却材の安全性については、「もんじゅ」の事故に関連してナトリウム漏洩燃焼の模擬実験と燃焼解析を実施している。また、蒸気発生器でのナトリウム／水反応に関して、伝熱管の高温ラップチャヤに関する模擬実験 (TRUST 試験) の準備を行うとともに、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、温度感知合金を用いた自己作動型炉停止機構の不作動確率の評価方法の検討を進めている。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、配管信頼性解析を進めた。

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・整備を進めている。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、新型ドシ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 燃焼炉心や Pu 利用炉心については、ボイド反応度、ドップラー反応度、燃焼反応度等の核特性改善を目的とした検討を行っている。また、MA 核種、FP 核種の核断面積データ、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、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より、 $6.5\text{mm}\phi$ までの被覆管を試作し、目標クリープ強度を達成していることを確認した。また、CEA との ODS フェライト鋼開発に関する共同研究を進め、合金設計、粉末製造を実施した。

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、改良材の合金成分と熱処理条件を決定した。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行った。

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、および材料照射リグ (CMIR) で照射した材料について、透過電子顕微鏡観察による析出物やボイドの形態変化を調査した。また、FFTFF で照射した MFA-1 燃料集合体のうちのラッパ管の密度測定、透過電子顕微鏡観察を行い、PNC316 鋼のスエリング挙動を評価した。

「常陽」における溶融限界線出力評価試験 (B 5 D-2) については、24 本の試験ピン中 14 本について、溶融限界位置の評価を終了し、溶融限界線出力と試験パラメータとの相関評価を継続実施した。

「もんじゅ」燃料の高燃焼度照射については、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、マイナーアクチニド(MA)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FFT照射試験にて照射した改良SUS316鋼被覆管燃料ピン(燃焼度147GWd/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、日本においても照射後試験を開始した。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年末に計画したすべての試験を終了し、取得したデータの評価を実施した。

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が停止中のため待機中である。

燃料集合体の開発に関しては、燃料集合体の湾曲挙動評価精度の向上のため、炉心湾曲挙動解析コード(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照射後の硬さ値から評価するため、ラッパ管の硬さ測定試験を実施した。

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放出挙動やスエリング挙動の評価を継続した。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ラウド管とB₄Cペレットの両立性試験を継続した。

燃料ピン挙動解析コードCEDARの過渡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に加え、TREAT試験の温度測定データ、変形データを用いた検証に着手した。

バンドル・ダクト相互作用解析コード(BAM-BOO)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および照射クリープ変形による偏平化モデルを組み込む改良を実施し、高燃焼度バンドルの変形解析を開始した。また、破損燃料挙動

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、建家内の電気設備、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、MARICO再組立設備の遠隔操作保守試験および模擬体による組立性能試験を行っている。試験機のうち、ピン試験機については単体自動性能試験を継続するとともに、集合体試験装置については、除熱性能試験およびナトリウム付集合体移送容器の開封確認試験を完了した。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終了後、試料駆動装置の遠隔保守試験を行った。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・機能検査が完了し、合格証が交付された。

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)とキャスク内洗浄設備との取合試験を実施した。

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、クリープ疲労強度の基準化の他、詳細3次元モデルを用いた溶接継ぎ手強度の基準化、ナトリウム、水/蒸気、中性子環境効果の基準化等の材料強度の基準化に係わる検討を行った。SMATへのデータ登録を行った。

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るとともに溶接容器モデルの熱応力解析や段付円筒形状試験体の熱過渡試験等を実施している。

信頼性評価技術の開発については、分子動力学を用いた高温材料損傷シミュレーション技術の開発を行った。また、異常ナトリウム環境、アルカリ環境等の環境効果評価法の開発を進めている。また、寿命・余寿命診断法開発に向けて、クリープ疲労途中中断試験材および長時間試験材等を対象に損傷機構解明に係わる材料解析を実施している。

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のうち、地震波加振試験を終了し、免震要素基礎特性試験に必要な試験計画等の検討を実施している。

構造解析技術の開発については、ラッパ管の曲げ剛性や圧縮剛性等の基本特性試験およびラッパ管単体の湾曲試験等を実施した。「もんじゅ」事故の原因究明のために温度計の震動解析、応力解析、疲労損傷評価等を行った。

2次系削除システムの開発については、2重伝熱管の伝熱流動特性に関する検討・評価を継続した。また、破損検出システムについては、PHOENICS 解析コードを用いて高温湿分計による内管リーク検出特性の予測評価を行い従来型との比較を行った。

伝熱・流動については、流体一構造相互作用、複雑形状空間における熱流動、核熱流動の結合等に対する計算科学的手法による統合シミュレーション研究を進めている。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について解析を実施した。

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総合的な試験を終了した。

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設計を進めるとともに、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、炉心性能の向上検討、運転・保守技術の高度化、ならびにプラント技術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へいし、研究開発を進めている。

なお、12月のナトリウム漏洩事故に鑑み、関連するプラント設計技術の評価検討および高度化対策等の対応を進めている。

(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25回取替燃料(20体)の製造を継続して実施した。

(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)による照射後試験、解析評価を継続した。また、BR-2炉(PWR用)による照射後試験、解析評価を終了した。

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-II 29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の融点測定試験を継続し、データ整理を行った。

(4) プルトニウム燃料加工施設

ATR実証炉建設中止に伴いプルトニウム燃料

加工施設の新たな活用方策が、平成7年12月8日に原子力委員会および関連自治体に対し説明された。

その内容に伴い、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政策設計を中止するとともに、新たな活用方策についての検討を開始した。

2. プルトニウム混合転換技術開発

(1) プルトニウム転換技術開発

プルトニウム転換技術開発施設(転換能力:10kgMOX/日)は、混合転換運転を引き続き継続した。

(2) 混合転換技術開発

新たな粉末製造法である噴霧分解法を用いた「顆粒粉末製造試験」において、模擬試験による顆粒生成およびペレット成形試験を継続した。

(3) 湿式回収技術開発

二酸化プルトニウムの溶解効率向上を目的とした「電解溶解法」の基礎試験を継続し、銀の再利用を図るための回収を実施した。

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)
(核燃料施設計画部)



再処理技術の開発

1. 再処理工場の現状

東海再処理工場は、95—2 キャンペーン終了後、インター キャンペーンに入り、工程内機器の点検整備等を実施した。その後、平成 8 年 1 月 31 日より処理運転（96—1 キャンペーン）開始し、6 月までに約 60 トンの使用済燃料を処理する予定としていた。しかしながら、96—1 キャンペーンについては、昨年 12 月に発生した「もんじゅ」事故を巡っての諸情勢等を勘案し、慎重に検討を進めていく必要があると判断し、開始時期を延期することとした。

2. 再処理技術の開発

(1) 高信頼性機器の開発

新材料を用いた酸回収蒸発缶小型モックアップ試験設備は、長期運転試験を継続した。

(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

遠隔継手開発については、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報告書を作成した。

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。

5. リサイクル機器試験施設 (RETF) 建設

建築工事は、地下 2 階軸体工事を終了し、引き続き地下 1 階軸体工事を開始した。

内装工事は、先入機器の製作、軸体埋設配管等の据付工事を継続した。

許認可関連では、建物設工認変更（第 2 回）は、平成 8 年 2 月 6 日に認可を受けた。内装設工認その 1 は、平成 8 年 3 月 4 日に変更申請を行った。また内装設工認その 2 は、平成 8 年 3 月 22 日に補正申請を行った。

（核燃料リサイクル技術開発部）
（核燃料施設計画部）



ウラン資源・探鉱と 技術開発

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、試錐調査および物理探査を実施し、試錐6孔において放射能異常(最高0.85% U₃O₈×0.6m)を確認した。

ドーンレイクでは、試錐調査および物理探査を実施し、試錐6孔において放射能異常(最高2.46%

U₃O₈×1.7m)を確認した。

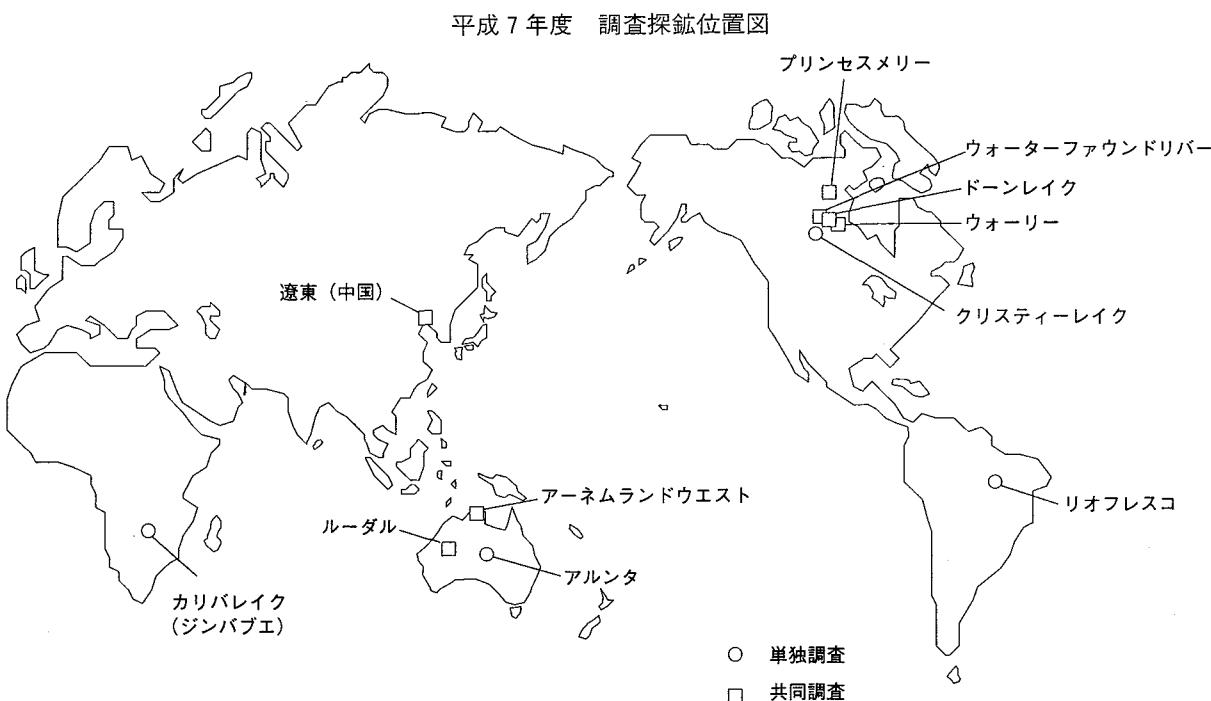
ウォリーおよびウォーターファウンドリバーでは、試錐調査等を実施し、岩芯中で変質および石墨を確認した。また、北西準州・プリンセスメリーでは、アンドリューレイク鉱床およびエンド鉱化帯の鉱量計算結果の取りまとめを行った。

1.2 オーストラリア

西オーストラリア州・ルーダルでは、1996年の探査計画の検討および調査準備を行った。

北部準州・アルンタでは、調査結果の解析および取りまとめを行った。また、調査規模縮小に伴う鉱区放棄申請を行った。

アーネムランドウエストでは、現地の先住民会社との共同調査契約書に調印した。



1.3 アフリカ

ジンバブエ共和国・カリバレイクでの現地地表調査地域を対象に実施したヘリボーン調査結果の解析を行った。

1.4 中国

遼東の1996年調査計画を決定するとともに、調査準備を開始した。

1.5 ブラジル

リオフレスコでの調査は、本年度をもって中止することを決定した。

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として、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、ウラン需給予測に係わる情報収集を行った。

ウラン資源ポテンシャル調査として、システム(GIASURA)への旧ソ連の地図データの入力を行った。また、アフリカ大陸のポテンシャル解析方法の取りまとめを行った。

マルチメディア資源データベース開発として、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 探査技術開発

リモートセンシング技術開発として、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の解析結果の取りまとめを行った。

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プログラムの特性解析結果の取りまとめを行った。

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行った。また、東濃鉱山坑道内でのラドン平衡係数の測定を行った。

2.3 製錬技術開発

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行った。

新製錬法技術開発として、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うとともに、これまでの試験結果の取りまとめを行った。

2.4 環境保全技術開発

鉱滓処置技術開発として、夜次鉱滓の基礎特性把握のため、評価プログラム(Dtransu)による解析を行った。また、坑廃水処置技術開発では、ウラン吸着細菌によるウラン吸着試験を行った。

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）開発運転

遠隔保守機器等の設備、機器の点検・保守を行うとともに、試験運転結果のまとめを実施した。

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 工学試験装置のガラス溶融処理能力を把握することを目的に試験を行った。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実施するとともに、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、ろ液を対象にした吸着・溶離試験を行った。また、高レベル廃液の特性評価の一環として、コールド試験による分析を行っている。

(3) ガラス固化体品質評価・保証技術開発

固化体特性評価試験および核種インベントリ推定コードの開発を実施した。

(4) その他

ドイツ FZK との高レベル廃棄物管理の分野における協力協定を平成 8 年 2 月 13 日より 5 年間延長した。

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・施工に関する試験研究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、上記(1)、(2)の成果も取り入れつつ、地層処分システムにおけるシナリオの解析、地下水と人工バリア材や岩石鉱物との相互作用の研究、ニアフィールドにおける熱・水理・化学・力学的諸条件に関する研究、人工バリアおよび天然バリア中の放射性核種の移動の制御に関する研究、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

スイス 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、カナダ AECL と AECL の地下研究施設 (URL) におけるトンネルシーリング性能に関する共同研究を開始した。

(5) その他

平成 8 年 2 月 7 日および 8 日に、東海事業所地層処分基盤研究施設において、地層処分研究情報交換会 (INTEGRATE'96) を開催した。

4. 地層科学的研究

天然事象に関する研究では地層科学研究検討部会を開催し、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

なお、地層科学的研究にその成果を反映することとし、科学技術庁が進める「地震総合フロンティア研究」の一環として、「陸域地下構造フロンティア研究」を開始した。本研究では、地下空間における地殻の動きに着目した地震発生機構の研究や新たな地震観測手法の開発を行う。

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・固定化技術に関する中間報告書の作成を行っている。また、イオン注入固定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置工事を実施するとともに、設備製作の使用前検査を行っている。

(2) TRU 廃棄物管理技術開発

減容安定化技術開発として、ヨウ素の揮発挙動を調査するコールド基礎試験を開始した。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、低コスト化を図る上での解析・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回転性能試験を行った。

(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継続し、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、濃度安定性試験および軽ガスリークイン試験を行った。

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、 γ 線エネルギー特性試験を行い、ICRU の提案する個人線量計の校正基準量 Hslab (10) と比較して良好なエネルギー特性を持っていることを確認した。TLD のグロー曲線解析システムの開発については、TLD 自動リーダーとの接続を終了し、オンラインでのグロー曲線データの保存やその解析が可能となった。また中性子個人線量計の校正方法に関する研究については、ファントムと線源間の距離が個人線量計のレスポンスに与える影響等を実験的に調べ、校正方法の標準化に関する基礎データを得た。

(2) 内部被ばく線量測定・評価技術の向上

Ge 検出器を用いた高感度・高分解能型の肺モニタシステムを製作し、放射線保健室鉄遮蔽室内に設置した。同システムは、従来の NaI/CsI ホスウェイチ型肺モニタに較べエネルギー分解能が特段に優れており、検出効率も同程度以上の性能を有しているため、混在する複数の核種の定量に威力を発揮することが期待される。

肺モニタ測定時の胸部厚に基づく検出効率補正の検討については、超音波診断装置の画像出力をパソコンコンピュータ上で処理して組織厚を簡単に判別できるように改良した。これにより、被測定者の体格の違いを考慮することにより測定精度の向上と緊急時の迅速な対応が期待される。

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

ガスモ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、実験を行った。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測定精度および測定時間の面から最適な測

定条件を調べるとともに、基準照射線量（率）の決定および不確かさ評価をほぼ終了した。

(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挙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、中性子検出ガス比例計数管に関する応答解析用計算コードの構築を終了し、試験結果との比較検証を進めている。また、これまでに行ったシミュレーション応答解析結果の全体的なレビューを行っている。

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よう素測定技術に関しては、試作機を用いて実施した。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、操作性、容易な保守管理について、改良箇所および改良方法を検討し、実用機の仕様を決定した。

(2) 放射線管理情報集中処理システムの開発

APD システムの構築については、ハードおよびそれに伴うソフトウェアの総合試験を終了した。

エキスパートシステム展開法検討については、市販ソフトを使用し放射線監視モニタの代表モニタについて知識の入力を終了し、原因究明までの診断を実行した。この結果、個々のモニタ指示値上昇時の原因究明までの推論の展開が可能であることを確認した。

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

については、核燃料サイクル施設の環境影響を地球規模で総合的に解析することを念頭においた「リスク評価手法の検討」、「大気および海洋での広域拡散評価モデルの調査」を継続実施し、今年度の成果を取りまとめた。また、表層土壤圏における核種動態等に関する研究として実施してきた土壤粒子への吸着因子調査のためのトレーサ実験結果の解析を行い成果を取りまとめた。さらに、事故時の環境影響評価を目的としたダイナミックエコロジカルモデルの開発として植物創造装置による移行パラメータ取得実験を継続実施し、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, ²³⁹²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am 等の放射性核種の分析・測定を継続実施し、環境中における分布を調査した。Tcに関する挙動評価研究として、フィールドデータの解析を実施するとともに、土壤環境中における移行挙動評価の観点からカラム試験、バッチ試験等を行い、土壤への吸着因子を明らかにした。

(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.) による妨害元素の分離・精製方法を確立し、実環境試料への適用のための検討を継続実施した。また、軟ベータ放射性核種である⁶³Ni, ⁷⁵Se 等の分析法については、抽出法等の分離・精製方法を継続して検討した。

(4) 大気中ラドン濃度の測定

前期に引き継いで、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、ラドン標準校正チェンバ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、前期採取した湖沼湖底堆積物中¹³⁷Cs 等分析データの整理・解析を継続した。また、平成7年度全体の研究成果のまとめと、今後の計画について検討した。

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終了し、ワークステーションによる挙動評価を実務レベルで実施できることを確認した。また、核燃料施設内の気流解析結果のデータ整理を終了した。

(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、大型グローブボックス内におけるグローブ、ケーブル等の燃焼試験を実施した。また、燃焼物に紙、ウエス、ケーブルを用いてグローブボックス内火災の検知に関する試験を実施した。

(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 混合溶媒と硝酸の二相系の反応速度解析の検討を進めるとともに、加速速度熱量計を用いて、TBP-硝酸平衡溶媒の発熱量、圧力変化等の測定を進めた。また、プロセス反応熱量計の調整を進めた。

(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行うとともに、SCALE 4 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、EGS 4 汎用ユザーズコードの高度化のための作業を行うとともに、北海道大学において取得したガンマ線スカイシャインデータを用いて EGS 4 のベンチマーク計算を行った。

(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) 平成7年12月末時点における動燃事業団のプルトニウム管理状況の調査を開始した。
- (2) 平成7年度の海外におけるプルトニウムの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) DOEとの共同研究としている「遠隔監視」については、PNC側で使用する機器等についてDOE側と調整を行った。また、「透明性」の概念に関する調整等を進めた。
- (3) 透明性向上策として、インターネットを介して、核不拡散情報の発信を開始した。(3月)
- (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。(2月)

3. 核物質防護

- (1) もんじゅ建設所の核物質防護管理者の選任・解任届を科学技術庁長官へ申請した。
- (2) 輸送における取決め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) | 58 |
| (b) 実在庫量明細報告書 (PIL) | 12 |
| (c) 物質収支報告書 (MBR) | 11 |
| (d) 国籍管理報告書 (OCR) | 103 |
- 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61条の8に基づく計量管理規定に従い、以下の施設で実在庫の確認が行われた。

事業所	施設
東海	東海R&D施設

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 (Super GBAS) の改良を実施している。また、東海事業所のMOX施設に係わる技術会合を米国ロスアラ莫斯研究所において実施し、既存タスクに関する技術的な検討を行うとともに、新規のタスクの計画等について協議した(3月25日～3月29日)。

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 硝酸ウラニル溶液

② 照射部材

③ 回収ウラン

(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

を完了した。

「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、詳細設計を完了した。

(核物質管理部)



高速炉機器信頼性データベースの開発

栗坂健一

大洗工学センター基盤技術開発部

資料番号：98-1

Development of Component Reliability Database for an LMFBR

Kenichi Kurisaka
(Advanced Technology Division, O-arai Engineering Center)

高速炉の安全研究の一環として、機器信頼性データベースシステム（CORDS）を開発した。CORDSは日米の高速炉関連施設におけるナトリウム系の機器を中心に運転・故障経験を蓄積している。本開発の結果、①対話型の信頼性データ検索機能を用いた登録機器の運転・故障履歴の効率的な検索、②機器の設計仕様、運転環境、年齢の違いを考慮した故障率の系統的な定量化、③故障機器の修復性、共通原因故障、あるいは経年劣化と予防保全の検討のための運転経験に基づく基礎データの提供が可能となった。また、本システムからもとめられた機器故障率は我が国の高速増殖原型炉の確率論的安全評価等に適用されてきた。本稿では、データの収集および分類の基準ならびにテーブル構成、CORDSが有する検索機能および統計解析機能について詳述する。

1. はじめに

1. 1 開発の背景

高速炉の安全研究の一環として、動燃事業団では確率論的安全評価（PSA）研究を実施している。PSAは米国の Reactor Safety Study¹⁾以来、原子炉の安全性を包括的に分析する手法としてその有効性が注目されてきた。精度の高い PSA を実現するためには解析手法の高度化のみならず、PSA の入力データとなる機器故障率等の機器信頼性データベースの構築がきわめて重要である。

一方、高速炉の安全設計評価方針の策定に当たり、設備信頼度を考慮した安全機能の重要度分類を検討するため、あるいは異常事象発生頻度に着目した安全評価事象区分の検討を行うためには、プラントを構成する機器の運転・故障データを収集しておくことが必要不可欠となる。さらに、保全分野において最近注目を集めている信頼性重視保全（RCM）^{2),3)}を実施するには、保全対象機器の故障率、故障復旧時間などの情報が整備されていなければならない。

以上の必要性から、高速炉プラントおよびナトリウム試験ループにおける機器の運転・故障実績

を収集し、これに基づいて機器故障率をはじめとする各種機器信頼性パラメータの評価を行い、その結果を PSA、安全設計評価方針の検討、RCM 等の基礎データとして整備することを目的として標題の研究を実施した。

1. 2 開発の経緯

動燃事業団におけるナトリウム機器を対象とした運転・故障実績の収集活動は、大洗工学センターのナトリウム試験ループと高速実験炉「常陽」から始まった。データの収集および管理は実験炉部にて開発された大型計算機上で稼働する 1 次データベースシステム⁴⁾を用いて行われた。一方、米国ではオークリッジ国立研究所が中心となって EBR-II (Experimental Breeder Reactor II) や FFTF (Fast Flux Test Facility) など液体金属冷却炉の機器を対象とした信頼性データベースシステム CREDO/JOSHUA の開発が進められた⁵⁾。

データ母集団の拡充およびデータベースシステムの共同開発のため、動燃事業団は米国エネルギー省との協力協定を結び、1985 年から 1992 年まで日米両国の高速炉関連施設の機器を対象に使用実

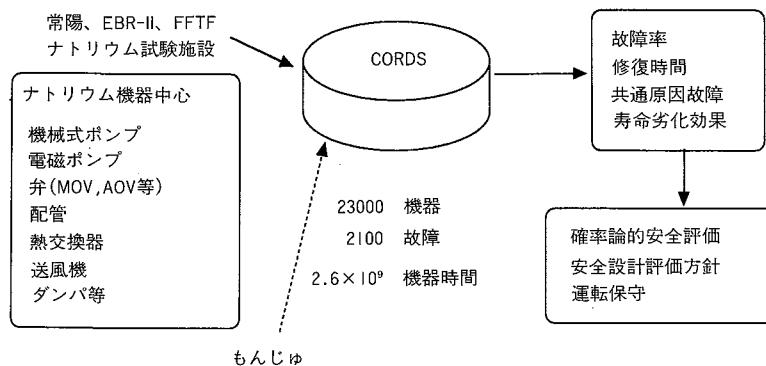


図1 CORDS の概要

績、故障経験等の信頼性データを収集整備してきた。信頼性データ分析を通じて統計的信頼性解析手法の開発を進めながら⁶⁾、動燃事業団では協定終了後もこれらの改良を重ね、独自に発展させてワークステーション上に高速炉機器信頼性データベースシステム (CORDS : Component Reliability Database and Statistical Analysis System for an LMFBR) を新たに開発した。

1. 3 CORDS の概要

CORDS は図1に示すように高速炉に特有の機器を中心に機器の運転・故障実績を蓄積している。主なデータソースは動燃事業団の高速実験炉「常陽」、米国の高速炉 EBR-II および FFTF ならびに日米のナトリウム試験施設である。今後は我が国の高速増殖原型炉「もんじゅ」のデータも登録する予定であり、現在データ収集活動およびデータ充足度検査、キーワードタイプエラー検査等のデータスクリーニング活動を進めている。

蓄積されたデータを活用するために、機器故障率、故障修復時間、共通原因故障などのパラメータを定量化してそれらを体系的に分析する機能を CORDS に組み込んだ。

CORDS の開発に当たっては、

- ① データベースの保守管理を単純化し移植性を高めること
- ② 技術の継承および利用者の拡大を図ること
- ③ 機器信頼性データの系統的な傾向分析を可能にすること

を目的として掲げ、システム設計に当たって次の3つの基本方針を設定した。

- ① データベースの設計に当たってはできる限り煩雑さを避けて簡潔な構成とすること
- ② 取扱い説明書を見なくても使えるユーザー

インターフェイスを構築すること

- ③ リレーショナル型データベース管理システム (DBMS) を採用し、これを活用することによって複雑な検索条件に対する機器信頼性データの検索処理および統計解析を効率的に実行すること

本論文では、まず CORDS のデータベース構成、データ収集および分類のガイドラインそしてデータ品質確保について2章で触れ、対話型データ検索機能およびユーザーインターフェイスについて3章で詳述し、様々な統計的信頼性解析手法を用いた機器信頼性データ分析機能について4章で述べる。

2. データベースの構築

本章では、まず2.1でデータベースの構成とデータ収集実績について説明する。一方、データベースの構築ではデータの品質確保が必要不可欠である。機器信頼性データベースについてこれを達成するためには、機器境界の定義、故障データの収集ガイドライン、機器運転時間の算出方法、および機器故障モードの定義を明確にすることが重要となるため、これらについて2.2および2.3の中で詳述する。最後にデータ品質確保として何を行ってきたかについて述べる。

2. 1 データテーブル構成

CORDS データベースの骨格は、機器工学データ、故障事象データおよび施設運転データの3種類のデータテーブルで構成される。各データテーブルに含まれるデータ項目一覧を表1に示す。

機器工学データは機器1件毎に作成されるデータ記録であり、施設への据え付け日、撤去日、運転係数等の機器の運転に係わる情報、機器の属性

表 I 収集データ項目一覧

(a)機器工学データ

1. 報告書ID	・機能	・インペラ材質
・サイト	・用途	・本体材質
・ユニット	・中性子束レベル	7. 設計・使用環境パラメータ (機械式ポンプの場合)
・報告日	・同一予備品の有無	
・報告者	・設計寿命	
2. 機器ID	4. 機器運転係数、サイクル率	・駆動能力
・機器名	・モード別運転係数	・駆動設計電流
・CREDO ID	・モード別サイクル率	・駆動設計電圧
・プラント保護系統か否か	5. 保全、点検、試験データ	・入口口径
・サイトID (タグ番号)	・保全の周期と項目	・最大設計流量
・型式番号	・試験点検の周期と項目	・最大設計周波数
・製造社名	6. 機器の属性・材質 (機械式ポンプの場合)	・最大設計温度
・適用仕様・規格	・種類	・最小設計流量
・品質等級	・駆動装置	・最小設計温度
・関連図面番号	・速度制御方式	・運転流量
・据え付け日	・据え付け方向	・運転揚程
・撤去日	・流体	・運転圧力
・撤去分類	・液中軸封方式	・運転回転数
・改造変更の有無	・インペラ形式	・運転温度
3. 機能、用途等		・出口口径
・システム		8. 備考
・サブシステム		

(b)故障事象データ

1. 報告書ID	・発見から応急処置までの時間	テム、その他への事象の影響と損失時間
・サイト	4. 事象発生機器データ	5. 是正措置
・ユニット	・システム	・保全上の是正措置
・事象発生日	・サブシステム	・管理上の是正措置
・事象発生時刻	・機器名	・暫定は正措置
・異常報告書	・CREDO ID	・恒久は正措置
・関連報告書	・サイトID (タグ番号)	6. 保全情報
・報告日	・機器説明	・修復所要時間
・報告者	・故障タイプ	・修復所要人時間
・件名	・故障モード	・直近の保全からの経過時間
2. 事象状況説明	・故障原因	・直近の試験からの経過時間
3. 事象発見/応急処置	・1次・2次故障の種別	・保全状況説明
・事象発見日	・故障の程度	7. 人の作用
・事象発見時刻	・PSA用故障モード	・人の過誤の有無
・発見時のユニット、システム、サブシステムの状態	・故障部分	・人の関与/人間工学上の可能性
・発見方法	・ユニット、サブシステム	8. 備考

(c)施設運転データ

1. 報告書ID	終了日)	・計画運転休止回数と時間
・サイト	・報告者	・計画外運転休止回数と時間
・ユニット	2. モード別運転時間	・過渡運転回数と時間
・報告日	3. 施設データ	4. 備考
・報告開始時期 (年と四半期)	・設計出力	
・報告期間 (開始日と	・公称出力	
	・総出力	

および仕様に係わる設計情報、運転温度などの使用条件に関する情報、定期保全に係わる情報が含まれる。故障事象データは機器1件毎として故障事象1件毎に作成される。事象の発生日時、概要の記述、応急処置に関する情報、故障のタイプ、モード、原因などの分類、系統や施設への影響に関する情報、故障の修復に係わる情報、ヒューマンファクターの関与に関する情報等が記録される。施設運転データは、あらかじめ施設毎に定めた3~5種類の運転モード別に機器登録施設の運転時間を3ヶ月単位で集計して記録したものである。このほかに施設の計画停止および計画外停止に係わる情報も含まれる。機器の運転履歴については精度と簡便さのバランスから運転係数(Operating Factor)およびサイクル率(Cycling Rate)により表現する方法を採用した。

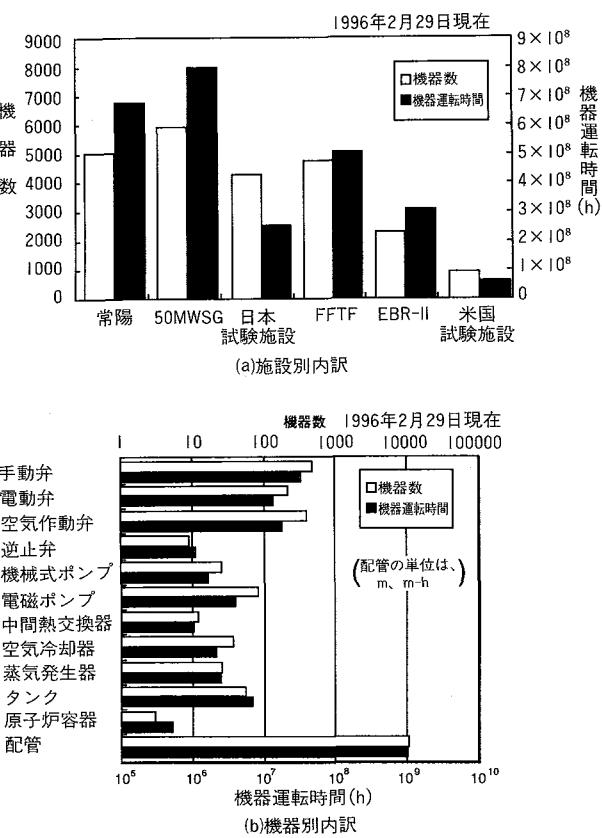


図2 データインベントリ

ンファクターの関与に関する情報等が記録される。施設運転データは、あらかじめ施設毎に定めた3~5種類の運転モード別に機器登録施設の運転時間を3ヶ月単位で集計して記録したものである。このほかに施設の計画停止および計画外停止に係わる情報も含まれる。機器の運転履歴については精度と簡便さのバランスから運転係数(Operating Factor)およびサイクル率(Cycling Rate)により表現する方法を採用した。

図2にこれまでの収集実績を示す。原子炉施設では収集した機器数が各々2000~5000にのぼり、累積機器運転時間では3~7億機器時間に達する。ナトリウム機器については、手動弁、電動弁、空気作動弁が各々数百台、ポンプ、熱交換器、タンク類は各々数十基分の機器を収録しており、これらの累積運転時間は 10^6 ~ 10^7 機器運転時間である。またナトリウム配管については配管総延長が約1万メートル、配管長を考慮した累積運転時間が約10億メートル時間となっている。

2.2 機器境界と故障データ収集基準

機器故障率データを収集し、これをPSA等に提供するためには機器と故障を適切に分類定義し

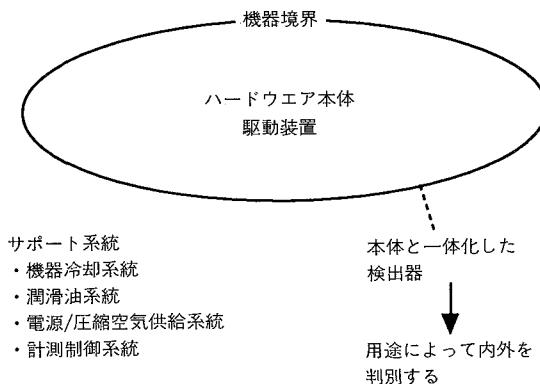


図3 一般的な機器の境界

なければならない。分類定義に当たっては、機器および故障を重複して数えないこと、数え落としないこと、他の故障率データベースにおける分類定義との矛盾がないことなどに留意する必要がある。データベース構築の目的がP S Aへの利用、高速炉プラントの稼働率の向上策の検討等への活用であることから、これまでのP S Aにおいて考えられている機器境界、プラントにおける機器の物理的な境界および機器の保全管理上の取り扱いを参考にして機器の分類および故障の定義を定めた。

(1)機器境界

機器とは特定の操作または機能を遂行するように設計された構成単位であり、一つまたは複数の異なる種類の部品から構成されているものである。着目した部品がある機器の一部であるか否かは、その機器に対して設計された特定の操作または機能を遂行するために当該部品が必要か否かで判断する。この考え方に基づいて機器の分類すなわち機器境界を定めた。ポンプ、送風機、圧縮機、弁、制御棒駆動装置等の動的機能を主機能とする機器は、図3に示すように主機能を果たすべきハードウェア本体と駆動装置を機器境界の中に含める。機能達成に必要であってもサポート系統は機器境界の中に含めない。サポート系統の具体例として、機器冷却系、潤滑油系、電源供給系、計測制御系が挙げられる。機器の本体と一体化した検出器についてもこの判定方法にしたがって判断する。

(2)故障データの収集ガイドライン

CORDSに登録される故障事象とは、「注目機器が異常な特性を呈すること」である。プラントにおけるこのような事象の抽出は、表2に示す4種類の場合で表わされる。PSAで数え上げるべき故障はすべてCORDSの故障事象の中に含まれる。

表2 故障データ報告のガイドライン

報告する場合	備考、具体例
計画外の保守または補修行為が機器に対して施される場合	故障した機器、または機能異常を呈した機器
プラント、システムまたはサブシステムが機器の動作不良、故障のため通常状態からの予期せぬ変化が生じた場合	機器の動作不良や、故障に起因する予定外のスクラムあるいは運転状態の逸脱、安全系統の作動
必要に応じて修理または交換を実施するよう定められた計画保守点検について機器の修理または交換が行われる場合	点検によって機器が交換を必要とする程度まで劣化していることがわかった場合
保守点検時に、機器が異常な特性を呈しているのを発見した場合	リミットスイッチの設定値ずれ（許容範囲外）

着目した機器について故障事象が認められた場合に、表3に示すように事象の直接の原因が着目機器の機器境界内部にあるか外部にあるかによって、故障事象は1次故障と2次故障に分類される。システムの信頼性評価に当たっては機器の1次故障が必要となるため、故障事象データの収集は1次故障を中心に進めてきた。

データベースに登録される故障事象は、注目機器が異常な特性を示した場合すべてを対象としており、この中には兆候程度の異常から機能が完全に喪失したものまでが含まれる。PSAでは機器が設計機能を遂行できない状態を評価の対象とするため、PSAへの利用を考えた場合にはこの観点から故障データを分類する必要がある。稼働率評価

表3 故障データの分類

分類	定義	具体例
原因と機器境界	1次故障	機器境界外の要因に起因するものではなく、機器境界内部の欠陥・劣化による故障
	2次故障	機器自身に欠陥・劣化がないにも拘わらず、その機器の設計機能遂行を妨げるような事象
厳しさ	機能喪失	設計機能を遂行できない状態
	機能低下	設計機能を遂行できるが定められた運転性能を維持できない状態
	兆候	機器は設計機能を満足に遂行し定められた運転性能を維持しているが、いずれは機能喪失または運転性能維持不能に至る可能性のある兆候を呈している状態

への利用等も考慮した上で、故障事象を厳しさによって機能喪失、機能低下、兆候の3区分に分類した。表3に分類定義を示す。

2.3 機器運転時間と機器故障モード

故障率の算定に深く係わる運転係数、サイクル率そして機器故障モードについて述べる。運転係数とは機器の稼働率に相当し、カレンダー時間に対する運転時間の割合を表わすものである。例えば、ある施設の運転モードとして出力運転モード、高温停止モードおよび低温停止モードを想定し、その施設の機械式ポンプが出力運転時には常時運転し、高温停止時には当該期間の20%が運転状態にあり、低温停止時には常に停止状態にあるとする。この場合、その機械式ポンプの運転係数は、施設の運転モードに対応して、100、20、0という数値が%単位で記録される。施設のモード別運転時間の累積値にモード別運転係数を乗じて総和をとることにより、機械式ポンプの累積運転時間が算出される。

機械式ポンプの例では、機器の運転状態を「ポンプ運転中」と定めている。煩雑さを避けるために機器の運転モードは運転と停止の2状態しか考えなかった。このため、電動の機械式ポンプで主モータとポンモータを備えている場合、主モータ運転とポンモータ運転の両者が運転状態となり、両者間の区別はない。

サイクル率とは、一定のカレンダー時間内の機器毎に定められた運転サイクル数であり、単位時

間当たりのサイクル数として表現される。例えば機械式ポンプでは、「運転状態→停止状態→運転状態」を1サイクルと定義しており、サイクル率と施設運転時間を乗ずることにより運転実績に基づいた機械式ポンプの累積起動回数および累積停止回数が得られる。

機器故障率はPSAの中では故障モード毎に整理される。機器毎に定められた機能喪失レベルの事象を、分類整理することにより、故障モードを定めた。主たる利用先がPSAであることから、ここではこれをPSA専用故障モードと呼ぶ。一例として、機械式ポンプに対するPSA専用故障モードを表4に示す。動的なモードとしては起動失敗、運転継続失敗、主モータからポンモータへの引継ぎの失敗が挙げられ、静的なモードとしては内部流体の漏洩と流路の閉塞が挙げられる。機器故障率は故障事象件数を機器運転時間で除して算出される。機械式ポンプの運転時間は故障モードに応じて表4のように選定された。このように故障モードに応じたきめ細かな故障率評価が可能となった。

今までの故障モードは、用途を特定せずにすべての故障事象を対象として故障様式を一語で記述するという立場から設定されている。このモードに対しては、兆候程度の故障も含めて分類できるように現象面の故障記述から機能面の故障記述まで幅広い故障モード選択肢が用意されている。この故障モードはCORDSに登録した故障事象データすべてに記入されており、検索対象故障事象の概要を把握するために有効な指標となっている。

2.4 データ品質確保

CORDSデータベースの品質確保として、機械的データスクリーニングと工学的データスクリーニングを行ってきた。

機械的データスクリーニングとはコンピュータのプログラム処理による登録データの自動的な検査である。検査項目には、必須データフィールドの充足度、キーワード型データのタイプエラー、設計パラメータの工学単位の選択エラー、データベース内部の機器IDの整合性、機器設置日と撤去日と故障発生日間の矛盾、データレコードの2重登録の可能性、故障修復時間の内訳と合計の間の整合性、モード別運転時間の合計と報告期間のカレンダー時間との整合性などが含まれる。

工学的スクリーニングは、例えば故障事象データの登録時に機器分類が妥当であるか、故障モ-

表4 機械式ポンプのPSA用故障モード分類と運転時間の選定

故障モード定義		運転時間
起動失敗	停止状態から運転状態への移行、即ち起動ができないこと	ポンプ停止時間（但し、デマンド故障確率に対してはポンプ起動停止サイクル数）
運転失敗	運転状態における異常であり、運転を継続できなくなること（但し、漏洩と閉塞を除く）	ポンプ運転時間
引継失敗	ポンモータを備えたポンプに対して定義するモードであり、主モータ運転からポンモータ運転への切替時に生じた異常で、ポンモータ運転に引き継ぐことができないこと	主モータ運転時間+施設が出力運転状態のときのポンプ運転時間
漏洩	主たる流体の外部漏洩であり、系統内の流体のインベントリを著しく減少される規模のもの（インベントリ確保のための措置が必要となる程度）	ポンプが流体に接している時間+ポンプ運転時間
閉塞	循環を不能にする流路の障害	ポンプに流体が流れている時間+ポンプ運転時間

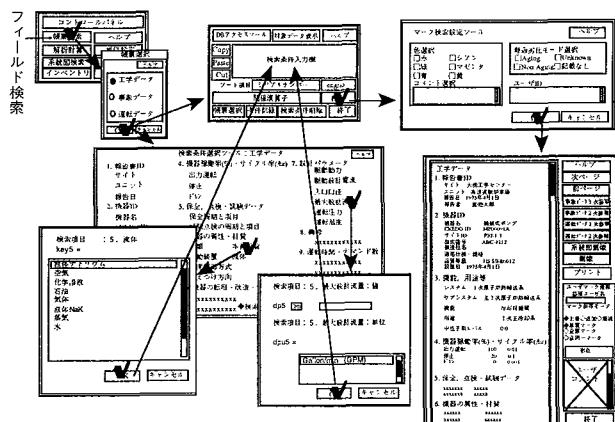


図4 フィールド検索の流れ

ド、原因等のキーワード選択が適切かといったデータの内容と分類の適切さに関する確認を施設におけるデータ作成者とCORDS管理者が連絡を取りながら行うものである。

系統的に検査できるものについては機械的スクリーニングで処理し、残りは工学的スクリーニングを地道に行うことによってデータの品質確保を達成してきた。

3. 対話型信頼性データ検索機能

CORDS は複数の利用者の同時使用を可能にする対話型機器信頼性データベースシステムである。信頼性データ検索命令の保存と呼び出し、個別のデータに対するコメントの書き込み、統計解析作業によって生成される解析結果出力ファイルなどを利用者毎に管理することを目的として、システム起動時に利用者が入力するユーザー ID によって利用者の識別を行う。

CORDS のデータベースは Informix という市販の DBMS を利用して構築された。データベー

スと利用者の間を結ぶユーザーインターフェイスは、Informixとの連携機能を有するスプレッドシート型ソフトウェアのWingzをはじめとして、このほかにC、Perl、SQL (Structured Query Language)、C-shell言語などを用いて構築されている。現在CORDSはワークステーションSun SPARC Station2の上で稼働しており、社内LANを介してX端末から接続して使用する形態を取っている。

ユーザーインターフェイスの中の画面設計に当たっては GUI (Graphic User Interface) を使用しており、見やすく単純な操作方法となるような画面を製作した。図 4 と図 5 に示すようにシステムの起動直後に現れるコントロールパネルを出発点として、パネルの中に描かれた操作項目をマウスを用いて選択すると次の操作メニューが現れる。利用者は希望する項目を順に選択していくことでデータ検索等の目的とする作業を実行することができます。

平易な操作性を追求するために、画面に現れるすべての操作パネルには「ヘルプ」と呼ばれるボタンを用意した。CORDSを利用している途中で、操作あるいは用語に関して分からぬことが生じた場合にそれに応えるのがこの機能である。パネルの中に描かれている選択項目の意味を知りたい場合は、そのパネルの中の「ヘルプ」を選択し、次に現れるパネルの中から「操作解説」を選択すれば良い。最低限これだけを記憶しておけば、使いながら CORDS の操作方法を学習することができる。また、データベースのデータ項目に係わる様々な用語の解説が知りたい場合には、「ヘルプ」の後に「用語解説」を選択すればよい。

CORDS は機器信頼性データベースシステムであるため、故障も含めて登録機器に関する情報の検索が主要な利用目的になると考えられる。基本的な検索の形態はデータベースに登録されたフィールド情報を組み合わせて検索対象を指定する方法であり、この他に施設系統図をたどって検索対象機器を指定する方法や、一つの検索結果に追加条件を加えて検索する方法など様々な検索が可能である。

3. 1 フィールド検索

データベースに登録されたフィールド情報を組み合わせて検索したい機器を指定し、その機器に関連する機器工学データ、故障事象データあるいは施設運転データを帳票イメージで画面に表示させる機能をフィールド検索と呼んでいる。フィー

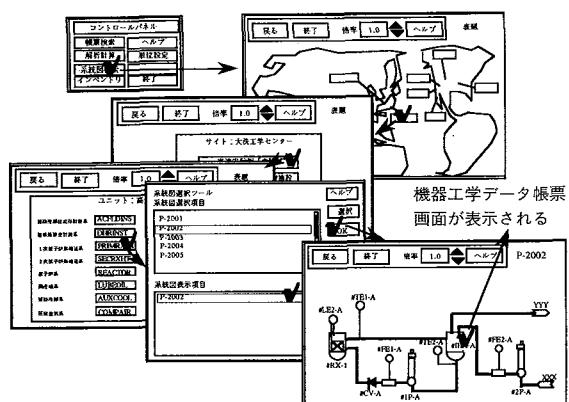


図5 系統図検索の流れ

ルド検索はどのような条件でも指定できる汎用的な検索機能である。検索条件設定のためのユーザーインターフェイスの設計に当たっては、汎用性を維持しつつも操作が単純であることを要求した。CORDS のフィールド検索の利点は次の 2 点である。

- ① 単純な操作と少ないタイプ入力で複雑な条件を指定した検索が可能であること
- ② 定常的な検索業務に対しては検索条件の保存・呼出機能を用いて簡便な操作で対応できること

CORDS の主要なデータテーブルが 3 種類であることはすでに述べたが、最も単純な検索は例えば機器工学データの情報のみで機器工学データを検索する場合、故障事象データの情報のみで故障事象データを検索する場合等、検索条件が検索対象データテーブルの中に含まれる情報のみで構成される場合である。図 4 に検索の流れを示す。コントロールパネル上でフィールド検索を選んだ後、検索対象を 3 種類のデータテーブルの中から一つ選ぶと、帳票画面に似た検索条件選択パネルと DB アクセスツールと呼ばれる検索条件設定パネルが画面に表示される。前者を使って利用者が検索条件を指定していくと、後者のパネルの中に SQL 言語に翻訳された検索条件文が自動的に順番に記述される。前者は、タイプエラーを避けることと入力の手間を軽減することを目的として用意した検索条件設定用のユーザーインターフェイスである。検索条件設定の観点からデータの種類を分類すると、キーワード、日付、数値、テキストに分類される。キーワードは利用者が選択肢リストの中から選ぶ方式をとり、それ以外については各々年月日、数値およびテキストを利用者がタイプ入力し関係演算子をリストの中から選択する方式をとっている。関係演算子リストはデータの種類に合わせて適切なものを画面上に表示する。後者は、複雑な検索条件を生成するために用意した検索条件編集画面である。画面の中の検索条件は SQL 言語で記述されるが、「AND」、「OR」、括弧等の論理演算子を組み合わせると、どのような複雑な検索条件でも生成できる。ここで編集した検索条件文は保存することが可能であり、一旦保存した検索条件は何度でも呼び出して実行することができる。

3.2 組合せ検索

登録機器に関連する原子炉施設またはナトリウム試験施設の施設系統図の情報を CORDS に内

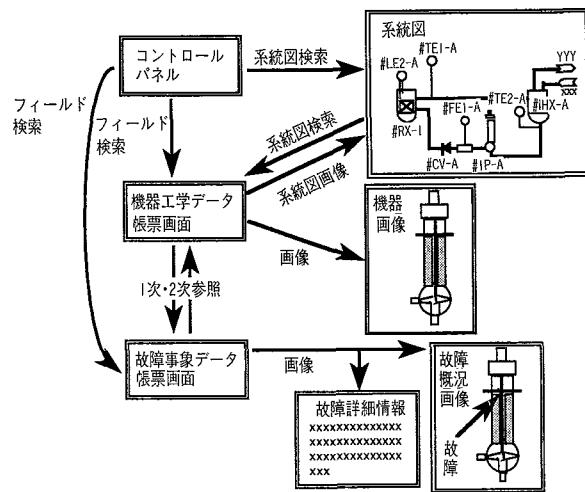


図 6 組合せ検索の流れ

蔵させた。システム図検索はこの図をたどって機器の情報を検索するものである。図 5 に検索画面の流れを示す。最初に世界地図が現れ、利用者はその中から検索したいサイトを選ぶ。次に現れるユニット(施設)リストの中の一つを選び、順にシステム、システム図を選択すると画面上にシステム図が現れる。画面の大きさは限られているが、倍率の変更でシステム図を自由に拡大・縮小することができる。なお、熱電対または予熱ヒーターはタンクなどの機器一つに対して数多く備わっている場合がある。この場合は作画スペースが限られることから詳細図を別パネルに描き、そのパネルを呼び出すボタンを該当する位置に配置している。機器の詳細情報を検索するためには、システム図中に描かれた機器の絵またはそのタグ番号(サイト ID)を選択すればよい。システム図検索機能は以下の利点を有する。

- ① データベースに登録されている施設、系統、機器を施設系統図の上で把握することができる。
- ② ポンプや配管などの冷却系構成機器であれば、ループの対称性、機器の接続関係などを模式的に描いた施設系統図の中で確かめながら詳細な機器の情報を検索することができる。
- ③ 検索対象機器が施設、系統そしてその中の配置関係によって特定できる場合に有効である。

3.3 組合せ検索

(1) 複数のテーブルに係わるフィールド検索

PSA 用の機器故障率の定量化および分析作業でよく行う検索の一つに特定の設計仕様を有する機器の特定モードの故障事例の検索が挙げられ

る。CORDS ではテーブル間のリレーションを利用することによりこの類の検索を実現した。具体的には、図 6 に示すように機器工学データのフィールド検索を実施した後、「2次参照」と呼ぶ2段階目の検索を故障事象データを対象として行う。通常のフィールド検索と全く同じ要領で「2次参照」の検索条件を設定するが、内部では機器工学データの検索条件との AND 条件で故障事象データを検索する。このように「2次参照」機能を利用した検索例とその用例を二つほど示す。

- ① 液体ナトリウムを内部流体とする電動弁の外部漏洩事象データの検索：まず、「液体ナトリウムを内部流体とする電動弁」という条件で機器工学データを検索した後、事象データ 2 次参照機能を用いて「外部漏洩故障モード」という条件を満たす故障事象データを検索する。
- ② 1 次故障で運転継続失敗を経験したことのある運転温度が400°C 以下の液体ナトリウム用機械式ポンプの機器工学データの検索：まず「機械式ポンプの運転継続失敗モードの 1 次故障」という条件で事象データを検索した後、工学データ 2 次参照機能を用いて「内部流体が液体ナトリウムでかつ運転温度が 400°C 以下の機械式ポンプ」という条件を満たす機器工学データを検索する。

他にも複雑な検索は可能であるが、機器信頼性データの分析でこれまで頻繁に検索した実績をもつのは上述の例である。この他に一つの帳票画面から直接関連する他の種類の帳票データを即座に検索して表示する「1次参照」機能を設けた。例えば、画面上に表示している機器工学データに対する故障履歴を参照する場合、画面上の故障事象データに対する機器の詳細情報を参照する場合等に利用する。

(2) 利用者の付加した情報による検索

機器工学データ、故障事象データおよび施設運転データの 3 データに対して一般の利用者は参照が許されているのみで書き換える権利は与えられていない。しかしながら、帳票画面では各々のデータレコードに対して利用者毎にコメント欄を用意しており、データ分析の過程で発生した個人のコメントをここに記録することができる。また、利用者毎に帳票画面の中のデータに彩色することを許しており、この機能を用いて重要な部分あるいは目立たせたい部分に色で印を付けることが可能となる。データベースに登録された情報による検索条件に加えて、利用者が付加したこれらの情報を用いたデータ検索をすることによりデータベ

ースの利用方法に幅が生じてくるものと期待される。図 4 の「マーク検索設定ツール」が画面上の色や利用者コメントによる検索条件設定を行う部分であるが、例えば「ナトリウム用機械式ポンプの運転継続失敗故障事例の中でコメント欄に特定の文字列を含むレコードのみを検索する」ということが可能となるため、CORDS 利用者の利用形態に応じて必要な情報をデータベースのデータに付加することによりデータ検索は一層効率的に進められる。

(3) 画像情報等の検索表示

基本 3 データテーブルに加えて、すでに述べた系統図像、機器の構造あるいは作動原理を描いた画像、故障概況を視覚的に描いた画像、そして故障事象に関わる調査報告書などの長い文書を補助的なデータとして活用できるようにデータテーブルとデータ検索システムを作成した。図 6 にこれら們の相互関係を示す。機器構造図あるいは機器作動原理図については、機器工学データとのリレーションをとり、故障概況図および故障に関する長文書データについては故障事象データとのリレーションをとった。また、系統図については図 5 に示すようにサイト、ユニットおよびシステムとのリレーションをとり、系統図の中に描かれた個々の機器は機器工学データとのリレーションをとっている。これらのデータは各々リレーションをとった帳票画面上からボタン操作一つで参照することができるようになっている。

画像データの利点は機器の全体像の理解と故障事象の概要理解を促進することであると考えられる。PSA の分野の技術者をはじめとして CORDS を利用する者すべてがプラント構成機器に精通しているとは限らない。むしろ利用者を限定しないためには、画像情報を通して情報を提供する方が情報の理解の観点で効率的と考えられる。

特に系統図についてはもう一つの利点として、プラント施設内における機器の接続関係を理解することができることが挙げられる。これは故障原因分析、多重故障解析あるいは伝播型故障を分析する場合に有効となる。冗長な系統やトレイン、対称な構成となっているループ、シリーズに接続している機器、一方が他方をサポートしているような関係を一目で把握することができるからである。複数の検索機能を組み合わせることによってこのような分析が可能となった。

4. 信頼性データ分析機能

機器故障率を中心とする機器信頼度パラメータ

の値とその傾向を高速炉機器の運転実績に基づいて把握するために、以下の各種信頼性データ分析機能を設計し CORDS に組み込んだ。①故障率の定量化、②故障寿命傾向分析、③経年劣化分析、④RAM（信頼性・稼働性・保全性）解析、⑤故障修復時間集計、⑥共通原因故障分析

4. 1 故障率の定量化

故障率の定量化は、利用者が指定した解析対象母集団（機器工学データと故障事象データ）に対して機器故障率を計算し出力するものである。例えば、「原子炉施設で使われているナトリウム機械式ポンプ」というように解析対象母集団を指定すると、原子炉施設で使われているナトリウム機械式ポンプの運転故障実績に基づいて故障率を計算する。また、表1の機器工学データフィールドの中の「6. 機器の属性・材質」および「7. 設計・使用環境パラメータ」の中の項目で母集団を分類して故障率を定量化する機能を備えている。ナトリウム機械式ポンプといつても速度制御方式、インペラ形式、最大設計流量、運転温度などについて多様性があり、機器故障率はこれらの中のどの指標に大きく左右されるかを見極めねばならない。故障率をどのように分類整理するかを把握するために本機能を利用する。

また、機器の運転期間を幾つかに分割して個々の運転期間毎に故障率を計算する機能、機器年齢を同様に幾つかに分割して機器年齢区分毎に故障率を定量化する機能を備えている。

機器故障率評価にあたっては表4に示したように故障モードに応じて機器運転時間を適切に選ばねばならない。精度と簡便さのバランスより、ポンプの例ではポンプ累積運転時間、ポンプ累積停止時間、両者の和であるポンプ設置時間、ポンプ運転停止サイクル数の合計4種類を計算して表4に示すような故障モードの故障率を算出している。なお、配管については単位配管長当たりの故

障率を算出する。

故障率は限られた機器の運転・故障母集団を用いて統計的に算出するため、統計的な不確かさ幅を併せて評価するのが普通である。CORDS では不確かさ幅の算出に当たって、 $\chi^2_{0.95}(2n+2) / (2T)$ 、 $\chi^2_{0.05}(2n) / (2T)$ として計算される。

故障率を確率変数と見たときの確率密度分布に関する情報を有している場合には、ベイズの定理による故障率確率密度の更新を行って事後分布を定量化することも可能である。

これらの分析機能は、フォールトツリー等を用いてシステム信頼性を定量的に解析する際に機器故障率をどのように分類整理すればよいかを検討するために用いられる。図7にナトリウムを内部流体とする機械式ポンプの運転失敗モードの故障率を設計流量毎に定量化した結果と運転温度毎に定量化した結果を示す。設計流量については4 kt/h 以下のデータを蓄積しており、この範囲で故障率はほぼ同じ値をとると判断できる。また、運転温度については300°C ~ 600°C の範囲のデータを蓄積している。コールドレグにポンプを配置する場合運転温度はほぼ400°C 以下と考えられ、この領域の故障率は全母集団から算出した値と大差ないといえる。なお、CORDS では摂氏温度などの単位はS I 単位系ではなく産業界で一般に使用される工学単位系を用いている。

故障率の不確かさは①統計的な不確かさ、②個体間のばらつき、③信頼性データ分析者の判断の不確かさの3種類に分類される。統計的な不確かさは統計母集団が有限であることから生じる不確かさであるため故障率については故障母集団が増加するとともにこの不確かさ幅は減少する。そして、この不確かさ幅は前述の χ^2 乗片側推定法に

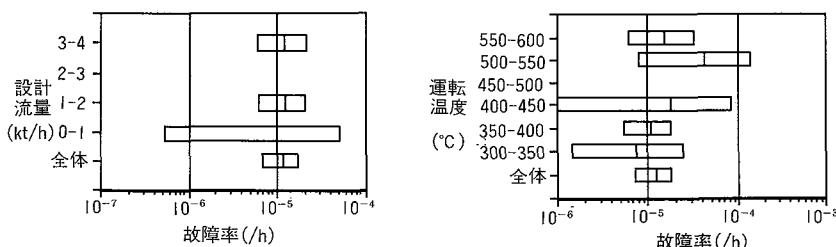


図7 ナトリウム機械式ポンプ運転失敗故障率

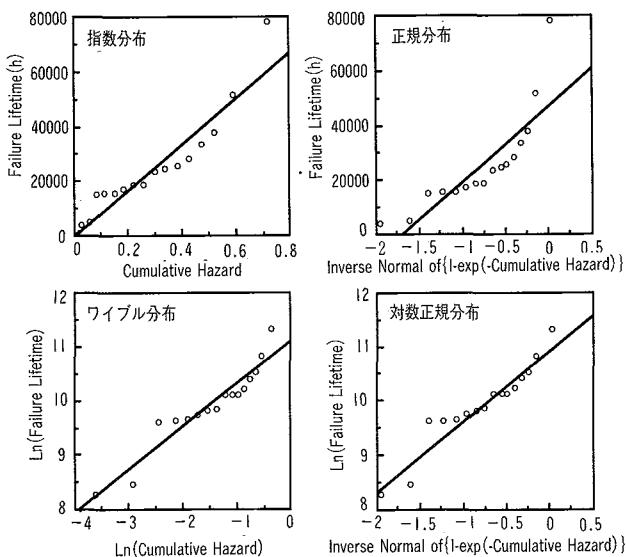


図 8 ナトリウム機械式ポンプ運転失敗モードのハザードプロット

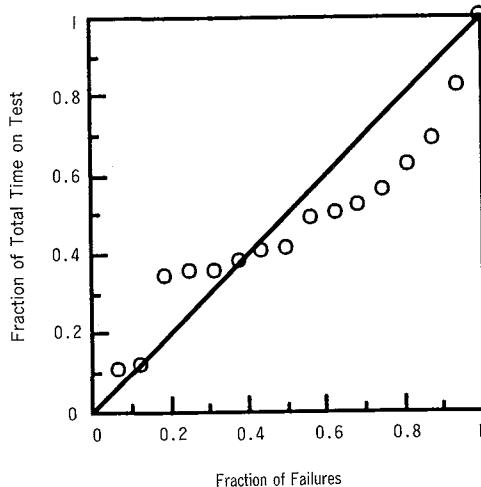


図 9 ナトリウム機械式ポンプ運転失敗モードの TTOT プロット

より評価している。個体間のばらつきは、信頼性データ母集団に様々な設計仕様の機器が含まれる場合、あるいは様々な運転条件で使われた機器が含まれる場合に生じる性質のものである。したがって図 7 のような分析を通じて工学的にはばらつき幅を設定する必要がある。信頼性データ分析者の判断の不確かさは、例えば故障事象が機能喪失であるか否かの判断がどの程度正しいかというような確からしさの評価である。この場合、機能喪失に加えて機能低下も故障とみなして導出した故障率を判断の不確かさによる故障率の上限値と評価するのがよいと考えられる。このように 3 種類の不確かさ幅を CORDS を使った信頼性データ分析により評価し、それらすべてを包絡するように故障率の不確かさ幅を設定する。

4. 2 故障寿命傾向分析

CORDS には故障寿命 (time to failure および time between failures) のばらつきがどのような分布形態をとるかを調べる機能としてハザードプロット解析⁷⁾とトータルタイムオンテスト (TTOT) プロット解析⁸⁾がある。この機能を用いると、故障寿命データに基づいて故障率と時間との関係を定量的または定性的に把握できる。一般的な PSA ではシステム解析の簡便さから故障率は時間に対して一定であるという仮定を用いている。この仮定を採用する際には、故障率の時間に対する変動幅を CORDS の故障寿命傾向分析機能を用いて評価し、その結果をも考慮して故障率

の不確かさ幅を設定するのがよいと考えられる。

CORDS のハザードプロット解析を行うと故障寿命データは時間と累積ハザードに変換された後、指数分布、正規分布など数種類の確率密度関数に対して各々線形化した座標軸上にプロットされる。プロット曲線が直線に近い関数ほど故障寿命の確率密度を良く近似できることを表す。図 8 にナトリウム機械式ポンプの運転失敗モードの故障間隔データを故障寿命データとして解析したハザードプロットを示す。故障間隔の確率密度は図 8 に示したどの分布で近似しても大差ないと見える。

TTOT プロット解析は故障寿命の定性的な傾向を把握するのに有効な解析である。時間 τ まで生存している機器の数を $N(\tau)$ と表すと $N(\tau)$ を τ について 0 から時間 t まで積分したものが時間 t に対する TTOT である。TTOT プロットとはすべての故障寿命 t について、 t 以下の故障寿命の件数を横軸に t に対する TTOT を縦軸にプロットしたものである。プロット点の最大を両座標軸とも 1 に規格化すると、原点を通り傾き 1 の直線を境にプロット点が上にあるか下にあるかによって故障率が時間に対して増加型であるか減少型であるかを判定することができる。図 8 と同じデータを用いた TTOT プロットを図 9 に示す。図 9 を見る限り TTOT の短いところでは故障率は増加傾向にあり、逆に長いところでは減少傾向にあるといえる。

4. 3 経年劣化分析

機器の経年劣化が実際に観測されたかどうかを

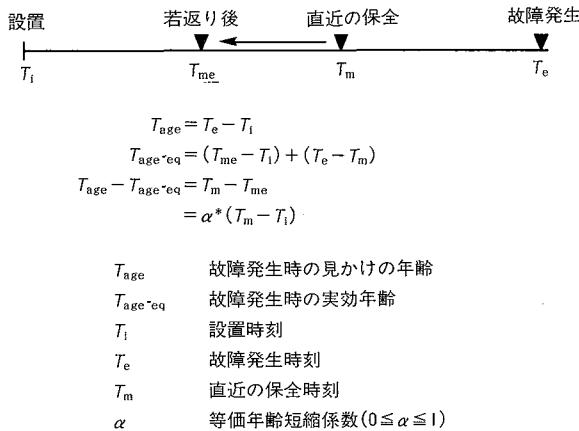


図10 保全による年齢若返り効果

調べ、経年劣化が機器信頼度（故障率）に及ぼす影響を定量化し、経年劣化防止に有効と思われる予防保全の効果を併せて定量的に検討するためにCORDSに経年劣化分析機能を組み込んだ。現状では経年劣化モードによる分析と等価年齢短縮係数による分析の2種類の機能を備えている。

(1) 経年劣化モード分析

まずCORDS利用者は故障事象データを1件ずつ分析して故障メカニズムに基づき経年劣化型の事象(Aging)であるか経年劣化型でない事象(Non-Aging)であるかを判定し、故障データ帳票画面を通じて判定結果を個人情報として記録する。このように準備したデータに基づいて故障データの分類を行い、経年劣化型故障の全故障に占める割合(Aging Fraction)を機器運転年齢別に定量化する。実際の分析において、AgingかNon-Agingか判定が不可能な故障が存在する場合には、この事象の数に応じてAging Fractionの不確かさ幅が定められる。Aging Fractionが機器運転年齢の増加につれてどのように振る舞うかを調べることによって、経年劣化型故障が故障率の著しい増加の原因となり得るかどうかを検討することができる。

(2) 予防保全効果の検討

機器に対して予防保全を施すとその機器の年齢は若返ると想定する。特に故障の直前に行われた予防保全が故障時の機器の年齢を決定すると考える。図10に示すように故障時の機器の見かけ上の年齢(T_{age})と実質的な年齢($T_{age\cdot eq}$)との差(即ち故障直前に行われた予防保全による機器の若返り具合)は最大でも故障直前の予防保全時の機器の見かけ上の年齢($T_m - T_i$)を超えることはない。この両者の比を等価年齢短縮係数(α)として定義

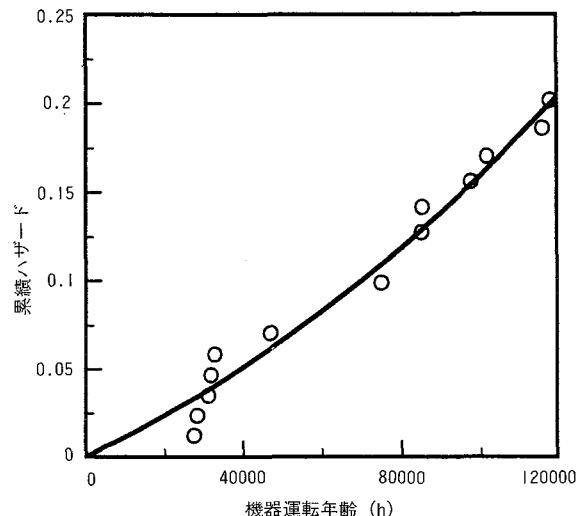


図11 ナトリウム弁のハザードプロット

する。このとき α は、若返りの程度を表す指標となる。 $\alpha = 0$ は予防保全により機器の年齢が若返らないことを意味し、 $\alpha = 1$ は予防保全が機器の年齢を0歳に若返らせることを意味する。本分析機能では α を用いて各故障事象発生時の機器の実効年齢を推定している。

一方機器の経年劣化は故障率の増加をもたらす要因になると想定され、故障率と機器運転年齢の関係をLinear Aging Modelを導入して表す。この場合、機器故障率への経年劣化の影響は単位時間当たりの故障率の増加(寿命加速率)として表わされる。機器年齢毎の故障率の定量化あるいはハザードプロット解析と同様のデータ処理を施して故障率を時間の関数としてもとめる。故障率を考える際の時間軸として若返り効果を考慮した実効的な機器運転年齢を採用する点が異なる。累積ハザードを実効機器運転年齢に対してプロットし、これらのデータを最小二乗法により処理して実効機器運転年齢に関する2次曲線をもとめる。2次の項の係数の2倍が寿命加速率である。予防保全を行っている場合には、実効年齢が見かけ上の年齢に比べて若返っているために見かけ上の年齢に対する寿命加速率は低く抑えられていると考えられる。実効年齢に対する寿命加速率は予防保全を行わない場合の寿命加速率に等しい。同一機器について予防保全を実施する場合としない場合の運転故障実績がある場合には、この性質を利用して α をサーベイすることにより予防保全の年齢若返り効果を推定することができる。

一例として特定施設のナトリウム弁の累積ハザードを実効機器運転年齢に対してプロットした図

を図11に示す。これは上述の $\alpha = 0$ とした場合に対応する図であるが、時刻 0 での故障率が約 $1 \times 10^{-6}/\text{h}$ となり、寿命加速率は約 $9 \times 10^{-8}/\text{h}/\text{年}$ となった。10年で故障率が約 2 倍になる傾向が表れている。このように経年劣化の観点から機器信頼性データを分析することが可能となった。これらの弁について故障内容と定期保全内容を調べた結果、故障の大部分は定期保全でカバーされていない部品に係わるものであることが確認された。このことは定期保全が保全対象部品に対して有効に機能していることを表していると解釈できる。

4.4 RAM 解析^{9)~11)}

RAM (Reliability Availability Maintainability) 解析とは機器の信頼性、稼働性、保全性の定量的指標を用いて、CORDS 利用者が指定した機器の集合の中で個々の機器の相対的な重要度ランクをもとめるものである。各重要度指標を図12のように定量化する。

CORDS に登録された高速炉関連施設の任意の系統を対象として故障頻度の高い機器、稼働率の低い機器、そして修復時間の長い機器が過去の運転実績に基づいて同定される。この結果は予防保全強化対象機器の選定あるいは現行の定期保全計画の妥当性評価の判断材料として活用することが期待される。

4.5 故障修復時間集計

機器信頼度評価に当たっては、故障率のみならず事後保全における修復性パラメータとしての故障修復時間が重要となる。高速炉施設の安全系の中でも比較的猶予時間の長い崩壊熱除去系を構成する機器の場合、修復を期待できる機器については故障が発生しても猶予時間以内に修復されれば系統の機能喪失には至らない。そこで、このような機器を対象とした信頼度を議論する場合には故

障率のみならず修復時間も重要な機器信頼度パラメータとなる。

CORDS の故障事象データ項目の中には、故障修復に費やした時間と人工数（人・時間）が含まれている。故障修復時間の傾向を故障実績に基づいて調べるために、故障事象データに記録された故障修復時間を CORDS 利用者が指定した故障母集団毎に集計して、平均値、標準偏差、最大値、最小値、対数平均値、および対数標準偏差を定量化する機能を設けた。これまでに、ナトリウムポンプ、弁、空気冷却器用ベーンとダンパーなどについて故障修復時間の傾向分析を実施しており、ベーンおよびダンパーについては PSA への適用実績を有する。

高速炉施設におけるナトリウム弁の故障修復時間データの分布を一例として図13にまとめた。ベローズシール破損等、ナトリウムの外部への微少な漏洩を伴う故障の修復は短くても 10 時間を越えるが、開閉機能の低下または喪失モードの故障は駆動源の種類により違いがあるものの故障の半分が数時間で修復されることがわかる。

4.6 共通原因故障分析

高い信頼性を有する多重性を備えたシステムの信頼度評価においては共通原因故障によるシステム機能喪失の寄与を適切に評価することが重要となる。機器信頼性データベース構築に当たっては、機器運転故障実績の中に共通原因故障が存在したかどうかを検索できるようにしておく必要がある。PSA で通常取り扱う共通原因故障は共通の原因により共通の故障モードで冗長な機器が同時に故障することを定義される。但し、故障時刻については完全に一致しなくとも近接して発生すれば冗長な機能は損なわれるため、ここでは故障時刻が近接して発生したものは共通原因故障として考へる。近接度のしきい値は検討目的に応じて定め

信頼性に関する重要度 : $\frac{\text{機器 } i \text{ の故障率}}{\text{系の故障率}}$	$\sim \frac{\lambda_i}{\sum_j \lambda_j}$
稼働性に関する重要度 : $\frac{\text{機器 } i \text{ のアンアベイラビリティ}}{\text{系のアンアベイラビリティ}}$	$\sim \frac{\lambda_i \tau_i}{\sum_j \lambda_j \tau_j}$
保全性に関する重要度 : $\frac{\text{機器 } i \text{ の平均修復時間}}{\text{系の平均修復時間}}$	$\sim \frac{\tau_i}{\sum_j \tau_j / \sum_k \lambda_k}$

λ_i 機器 i の故障率

τ_i 機器 i の平均修復時間

図12 RAM 重要度指標の定義

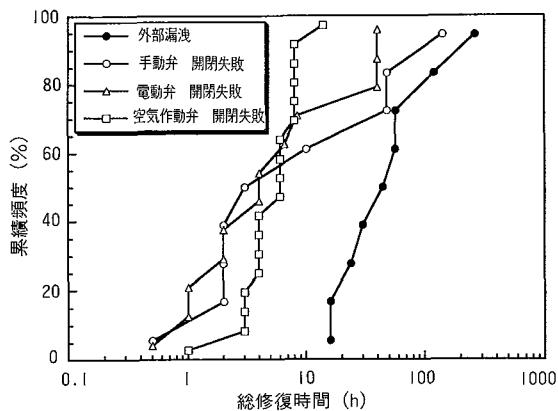


図13 高速炉施設のナトリウム弁の故障修復時間

る必要がある。CORDSで採用した共通原因故障候補同定の流れを図14に示す。機器と故障の共通性はデータベースのキーワード情報を用いて判断し、故障発生の近接度は故障事象発生日を用いて計算する。なお、軽微な故障とはPSAで評価対象とすべきものではない兆候を指す。また、フォールトツリーを用いたPSA解析においては共有サポート機器の故障による冗長な機器の機能喪失はツリー上でモデル化されるため、1次故障のみが共通原因故障候補として摘出される。

摘出された候補が故障時刻の近接度の観点から従属故障としての取り扱いを行うべきものであるかどうかを調べるために、故障発生シミュレーション機能を作成した。各機器の故障発生時刻は、故障率と乱数によって定めるが、複数の機器の故障を発生させるときに乱数間に相関性を持たせることによって強制的に故障を近接して発生させることができる。シミュレーションで作成した故障履歴データを用いて異なる機器間の故障時刻の近接度を整理し、上述のCORDSの機器運転故障実績データに基づいて同定された共通原因故障候補の故障近接度データと比較することにより、機器運転故障実績がどの程度の相関性に相当するかを明らかにする。この機能を用いて分析を進めることにより、故障発生シミュレーションを用いて信頼性評価を行う場合の相関性パラメータを推定することが可能となる。

5. おわりに

高速炉プラントのPSAへの利用を主たる目的として機器信頼性データベースシステムCORDSを開発した。その結果得られた成果を以下にまとめると、

① フィールド検索と系統図検索機能により、

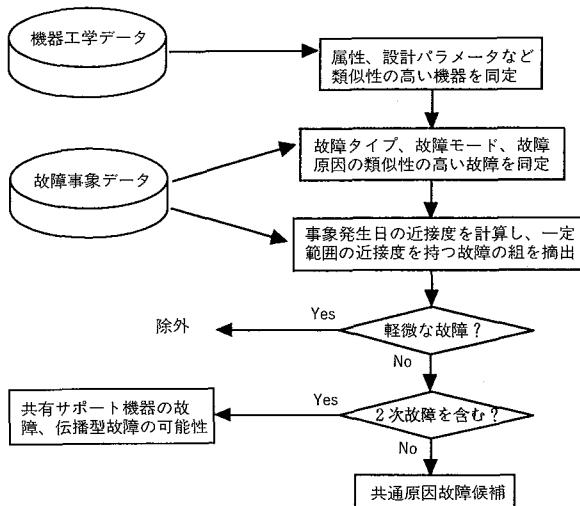


図14 共通原因故障候補同定の流れ

機器故障事例の効率的な調査分析が可能となつた。

- ② PSA技術の最も重要な基盤はPSAからの要求、定義に合致した信頼性データの導出とその品質の確保であり、これらは本システムにおける様々な統計解析支援機能と信頼性データ分析によって達成された。特に、設計パラメータおよび使用環境の違いを考慮した機器故障率データを提供することが可能になつた。
 - ③ 共通原因故障（伝播型故障や多重故障）および経年劣化等の扱いはPSA手法上の重要な課題であるが、これらの課題を検討するための基礎データを機器信頼性データに基づいて導出することが可能となつた。
 - ④ GUIを駆使した画面設計とオンライン説明機能の付加により、専門的な知識がなくとも本システムを利用できるようになった。
- 以上のような直接的な成果のほかに、本システムはナトリウム系を中心とする機器故障率データの提供を通じて、高速増殖原型炉を対象としたリビングPSAおよび運転保守要領の検討、大型高速増殖炉のレベル1PSA、安全設計・評価方針の検討等に有効に活用されてきた。

今後はCORDSの適用研究を進めるとともに、分析評価済みの故障率を即座に検索する「オンライン故障率データハンドブック」機能を設ける等、機能の充実を図る予定である。そして、それらの機能を今後広く活用することにより、以下の波及効果が期待される。

① PSAの技術基盤をさらに強固なものにす

- るとともに PSA の効用が高まること
- ② PSA による検討を通じて、高速炉の安全設計および運転保守の適切化並びに合理的安全論理の構築に資すること
- ③ 経年劣化分析或いは RAM 解析を通じて信頼性重視保全の検討を進めることにより CORDS を保守計画の検討に活用すること

参考文献

- 1) U.S. Nuclear Regulatory Commission; "Reactor Safety Study-An Assessment of Accident Risks in U.S. Commercial Nuclear Power Plants", WASH - 1400 (NUREG/75-014), (1975).
- 2) T.D., Matteson, et al.: "Commercial Aviation Experience of Value to the Nuclear Industry", EPRI NP-3364, (1984).
- 3) G.L., Crellin, et al.: "Use of Reliability-Centered Maintenance for the McGuire Nuclear Station Feedwater System", EPRI NP-4795, (1986).
- 4) R. Nakai, et al.: "Development of FREEDOM/CREDO Database for LMFBR PSA", IAEA Tech. Committee Mtg. on Evaluation of Reliability Data Sources, Vienna, (1988).
- 5) H.E. Knee, et al.; "Technical Note: CREDO-The Centralized Reliability Data Organization- A Data Base and Data Analysis Center for Advanced Reactors," Nucl. Safety J., 26, 300~304, (1985).
- 6) K. Kurisaka; "Analysis of Operating Experience of LMFBR Components Using the CREDO Database," Int. Top. Mtg. on Sodium Cooled Fast Reactor Safety, (1994).
- 7) W. Nelson; "Hazard Plotting for Incomplete Failure Data," J. of Quality Technology, 1, 27~52, (1969).
- 8) R.E. Barlow, et al.: "Reliability and Fault Tree Analysis," (1975).
- 9) M.J. Haire, et al.: "An Examination of Maintenance Activities in Liquid Metal Reactor Facilities; An Analysis by the CREDO," Reliability '87 Conf., Birmingham, U.K., (1987).
- 10) B.L. Humphrys, et al.: "An Examination of Reliability Critical Items in Liquid Metal Reactors; An Analysis by the CREDO," Int. Conf. Fast Breeder Systems, Kennewick, Washington, (1987).
- 11) K.H. Koger, et al.: "The Centralized Reliability Data Organization (CREDO) Assessment of Critical Component Unavailability in Liquid-Metal Reactors," Nucl. Tech, 85, 251 ~258, (1989).



技術報告



再処理工場オフガスからのヨウ素除去用 「銀添疎水性吸着材」の開発

伊波慎一 野上隆雄 横 邦
小形佳昭 竹下健二* 九石正美*
熊谷幹郎*

東海事業所再処理工場工務部
*(財)産業創造研究所

資料番号：98-2

Development of Silver-impregnated Hydrophobic Adsorbent for Removal of Iodine from Reprocessing Plant Off-Gas

Shinichi Inami Takao Nogami Akira Maki Yoshiaki Ogata
Kenji Takeshita Masami Sazarashi Mikio Kumagai
(Tokai Reprocessing Plant, Tokai Works)
(* Institute of Research and Innovation)

東海再処理工場では、ヨウ素を効率的に捕集できるとともに廃棄物の減容を可能とするために、疎水性を有するポリマー (Polymer) に銀 (Ag) を添着した銀添疎水性吸着材 (AgP) に着目して、その研究開発を平成元年度より進めてきた。

これまでに、AgP の担体構造、銀分散性、吸着過程等の試験、研究を行い、最適なヨウ素吸着条件を明らかにしてきた。本報告では、これらに加え、最適条件を実現するための製造技術（量産技術）、化学的な安定性・安全性および減容化の可能性についての試験結果も併せて紹介する。

1. はじめに

使用済み核燃料の再処理工場において発生する放射性気体廃棄物（オフガス）には、トリチウム (^3H)、クリプトン (^{85}Kr)、ヨウ素（主に ^{129}I ）等の放射性核種が含まれている。このうち、ヨウ素 (^{129}I) は長半減期核種（半減期=1,600万年）であり、放出基準値を厳しく設定し、環境放出を極力低減することとしている。

東海再処理工場では、このヨウ素捕集をアルカリ洗浄による廃液中への捕集と換気系に出てくる残りのヨウ素を銀ゼオライト吸着材 (AgX : 合成ゼオライトに銀をイオン交換して分散させたもの) へ捕集し、ヨウ素放出量を放出基準値以下の微量に抑えて安定した運転を確保している。

しかし、再処理工場のオフガス中には NO_x と湿分が存在するため、NO_x 耐性が低く親水性である AgX は銀を有効に利用しないまま劣化し、除染係数 (DF) が低下する傾向が見られる。また、DF の低下によって交換した使用済み吸着材（廃棄物）は、減容処理を行わず保管管理しているため、工場の運転に伴い廃棄物の容積が増加しつつ

あり、その処理が課題となっている。

そこで、東海再処理工場では吸着材の銀利用率の向上と同時に廃棄物の減容化のため、耐水性に優れかつ減容率が高い銀添疎水性吸着材 (AgP, P : Polymer) に着目し、平成元年度から、この AgP について、担体構造、銀分散性の最適化によるヨウ素吸着性能の向上をはかるとともに、実用化に向けて吸着材の製造技術、化学的安定性や安全性試験および使用済み吸着材の減容化について試験を行ってきた。

本報告では、これらの内容について紹介する。

2. ヨウ素吸着材

銀系吸着材を用いた乾式のヨウ素捕集方法は、オフガス中のヨウ素をヨウ化銀 (AgI) として吸着材に捕集している。

現在、使用されている吸着材としては、銀ゼオライト (AgX) の外に、AgX と同様に銀をイオン交換した銀モルデナイト (AgZ)、多孔質の非結晶シリカに硝酸銀を添着した銀シリカゲル (AgS) やアルミナに AgS と同様に硝酸銀を添着した銀

アルミナ (AgA) 等がある¹⁾。

これらの吸着材は、ヨウ素捕集に高い実績をあげているが、AgX の NOx 耐性が低いことや、いずれの吸着材も親水性であるため、長期間にわたり再処理工場のオフガスにさらされた場合には、水蒸気の凝縮により吸着性能が低下する可能性がある²⁾。東海再処理工場の実オフガス条件下で行っている AgX 等の吸着材比較試験においても、DF の低下や試験後の吸着材の外観観察により水蒸気の凝縮が確認されている^{3),4)}。

また、いずれの吸着材も担体に無機物質を使用しているため、それほど高い減容率は期待できず、廃棄物の減容化の点で不利である。

このため、あらたに吸着材を開発するうえでは、オフガスに含まれる水蒸気や NOx によって吸着性能が影響されずに安定であること、また、使用済み吸着材の減容が簡易に行えること等が課題となる。

3. 銀添疎水性吸着材のヨウ素吸着性能試験

3.1 吸着材担体の合成

3.1.1 疎水性担体の選択

吸着材の担体には、水分が付着しにくい疎水性物質を用いた。疎水性の担体にはテフロン、スチレン-ジビニルベンゼン共重合体等の有機ポリマーやシリカゲル等の親水性無機担体の表面をシラン化処理したものがある。

この中でもスチレン-ジビニルベンゼン共重合体 (SDB) は、①粒子径や粒子構造の制御が容易なこと、②放射線分解しにくいこと、③吸着材の使用温度範囲である 50°C ~ 100°C では熱的に安定であり、300°C 以上では熱分解すること等の特長を有する。さらに、SDB は水-水素交換反応による重水素、トリチウムの濃縮用の白金触媒担体としても利用されており、既存の製造技術の知見が既にある⁵⁾。吸着材構造の最適化や使用済み吸着材の減容等に有利な特長を有する SDB を、本研究では吸着材担体として選択した。

3.1.2 SDB 担体の合成

SDB のような高分子粒子を合成する方法には、乳化重合、懸濁重合およびカプセル重合等があるが、吸着材を充填したときの圧力損失を考慮すると、粒子径は 500 μm ~ 2 mm 程度が適当であること、単分散性のよい粒子を合成する必要があることから、本試験ではこの SDB の製造にカプセル重合法を用いた^{6),7)}。合成は、スチレンとジビニルベンゼン (架橋剤) のモノマー溶液に多孔質化剤

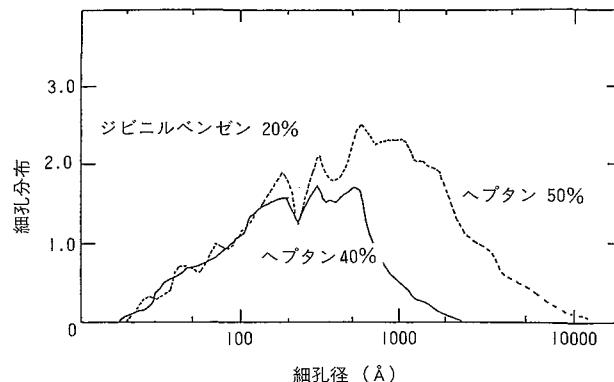


図 1 SDB 担体の細孔分布

を加えて重合した。重合後、カプセル化剤と多孔質化剤を除去し、乾燥して SDB 担体を得た。

3.1.3 SDB 担体の多孔質化

(1) 細孔形成

SDB 担体の製造過程において、担体を多孔質化するためにモノマー溶液には多孔質化剤としてヘプタンを加えた。ヘプタンはモノマー (スチレンやジビニルベンゼン) には溶解するが、ポリマー (スチレン-ジビニルベンゼン共重合体) とは相分離する性質がある。したがって、モノマー中にヘプタンを加えておけば、重合中にポリマーとヘプタンが相分離するために、重合後ヘプタンを除去したところに細孔が形成される。

(2) 細孔分布

モノマー中のヘプタンやジビニルベンゼン (DVB, 架橋剤) の割合を変化させて担体を合成し、担体の細孔分布を測定した。

測定には、水銀圧入ポロシメータを用いた。この結果を図 1 に示す。ヘプタンの割合が増加するとともにマクロ細孔が多く形成された。このことから、ヘプタンの混合割合を変えることで、細孔分布をある程度制御できる。

表 1 SDB 担体の製造条件と多孔質の関係

粒子名	モノマーの混合比 (vol%)			細孔容量 (ml/g-SDB)			平均粒径 (Å)
	S ¹	DVB ^{**}	ヘプタン	全容量	300 Å 以下	300 Å 以上	
SDB-1	48	12	40	0.97	0.54	0.43	250
SDB-2	40	10	50	1.59	0.57	1.02	500

* スチレン

** ジビニルベンゼン

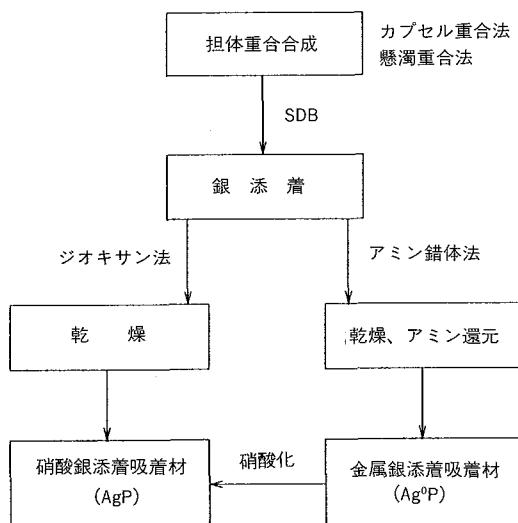


図2 吸着材製造フロー図

(3) 細孔容量

表1に、モノマー溶液の組成と合成された2種類のSDB担体(SDB-1, SDB-2)を示す。細孔容量は水銀圧入法で測定した。

この表から、ヘプタンを増やすと細孔容量は増加し、特に300 Å以上のマクロ細孔の割合が増加した⁷⁾。

3.2 吸着材担体への銀添着

3.2.1 銀添着方法

SDB担体は疎水性であるために、硝酸銀水溶液への浸漬では硝酸銀を添着できない。

このため、SDB担体に親和性のある有機溶媒を用いる必要がある。そこで、図2に示すようにSDBに対して膨潤性(溶媒が高分子架橋構造に入りこんで高分子鎖を押し広げる効果)のあるジオキサンを用いて硝酸銀と混合するジオキサン法、硝酸銀をアミンに溶解させて銀アミン錯体を用いるアミン錯体法により、硝酸銀および銀の添着を行った⁸⁾。

3.2.2 ジオキサン法

本法はSDBに硝酸銀を添着する方法である。添着方法は、硝酸銀を含む水溶液にジオキサンを適当な割合で混合した含浸溶液中にSDB粒子を添加し、1時間程度攪拌する。ジオキサンはSDB担体を膨潤する性質があるため、硝酸銀水溶液は溶媒とともにSDB担体の内部にまで浸透する。含浸後、窒素気流中において約70°Cで十分に乾燥して硝酸銀添着吸着材を得た⁸⁾。

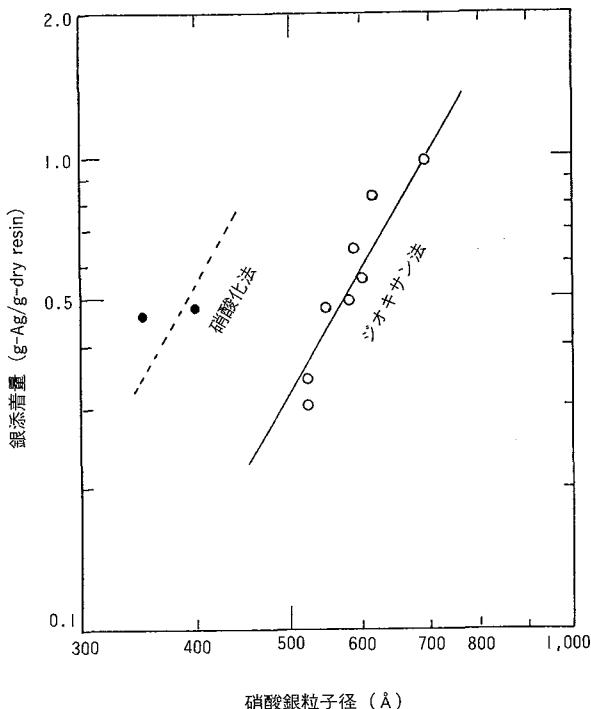


図3 硝酸銀粒子径と銀添着量(硝酸銀添着吸着材)

3.2.3 アミン錯体法

本法はSDBに金属銀を添着する方法である。銀の含浸溶液として、硝酸銀のアミン溶解液を用いる。アミンは硝酸銀と銀アミン錯体($\text{Ag}(\text{R}_2\text{NH})_{2+}$)を作ると同時にSDB担体を膨潤する。

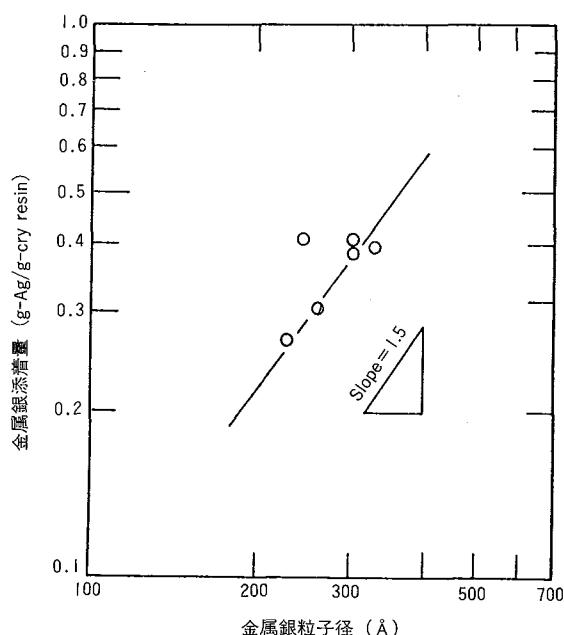


図4 金属銀粒子径と銀添着量(金属銀添着吸着材)

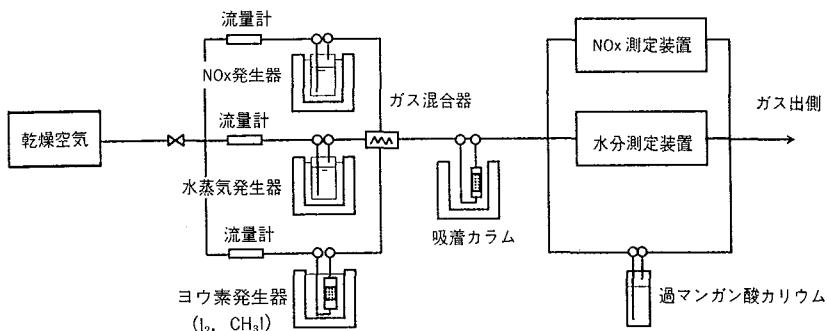


図5 カラム試験装置

含浸後 SDB 中に含まれるアミン錯体を約180°C の窒素気流中で分解することにより、金属銀添着吸着材を得た⁸⁾。

3.2.4 添着銀の粒子径

硝酸銀添着吸着材と金属銀添着吸着材の銀粒子径を XRD (X 線回析法) により測定して、銀添着量と銀粒子径の関係をもとめた。

図 3 に硝酸銀添着吸着材の硝酸銀粒子径と銀添着量の関係を、図 4 に金属銀添着吸着材の金属銀粒子径と銀添着量の関係を示す。ジオキサン法による硝酸銀添着吸着材は、銀添着量を増やすと硝酸銀粒子径が大きくなり、添着銀の分散性を良くするには銀添着量を抑える必要がある。一方、アミン錯体法による金属銀添着吸着材の銀粒子径は、100 Å ~ 300 Å 程度で粒子径は小さく、分散性が良いことがわかった。

3.3 ヨウ素吸着特性

3.3.1 カラム法によるヨウ素吸着試験

ヨウ素吸着特性は、図 5 に示すカラム試験装置で確認した⁹⁾。カラム試験装置は、模擬オフガス発生部、吸着カラム、分析部から構成される。模擬オフガスは、乾燥空気にヨウ素 (I₂) もしくはヨウ化メチル (CH₃I)、窒素酸化物 (NOx)、水蒸気を定量混合し、ヨウ素 (ヨウ化メチル)、NOx、水蒸気の濃度は、それぞれ230ppm、0 ~ 5 vol%、0 ~ 2.4 vol % の範囲で調整した。

吸着材は、内径15mm、高さ50mm の吸着カラムに10mm の層高に充填した。分析部では、吸着材からの流出ガスのヨウ素 (ヨウ化メチル)、NOx、水蒸気の濃度をガスクロマトグラフィ、ケミルミネッセンス式 NOx 分析計、デジタル湿度計を用いて測定した。吸着材から流出するガス中のヨウ化メチル、NOx、水蒸気濃度の時間変化からヨウ素 (ヨウ化メチル) の破過曲線をもとめた。

3.3.2 銀添着量の影響

(1) 硝酸銀添着吸着材のヨウ化メチル破過特性

図 6 に硝酸銀添着吸着材に対する硝酸銀添着率とヨウ化メチル破過特性との関係を示す。試験ガスは、乾燥空気に230ppm のヨウ化メチルを混合したものである。銀添着率は0.06、0.09、0.30 (g-Ag/g-Adsorbent) に変化させた。ヨウ化メチルの吸着量は銀添着率の増加にしたがって増加した。また、破過曲線から銀利用率を算出すると、銀添着率0.06、0.09、0.30の吸着材に対して、銀利用率はそれぞれ91、85、73%であり、銀添着率の増加にしたがって銀利用率は低下した。

(2) 金属銀添着吸着材のヨウ素破過特性

図 7 に金属銀添着吸着材に対する金属銀添着率とヨウ素 (I₂) 破過特性との関係を示す。試験ガスは乾燥空気に200ppm のヨウ素 (I₂) を混合して用いた。銀添着率は0.082、0.12、0.28 (g-Ag/g-Adsorbent) に変化させた。ヨウ素の

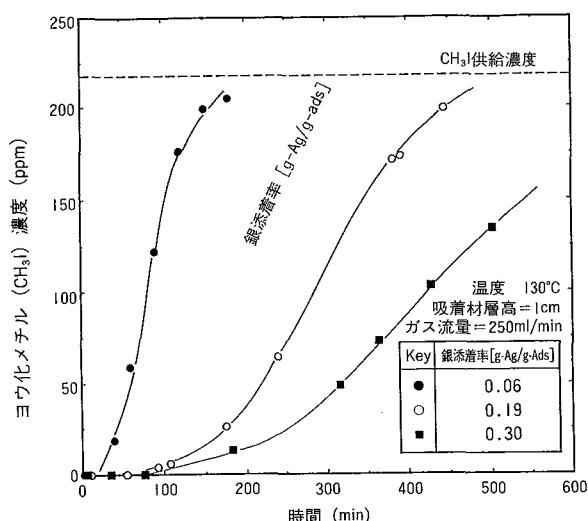


図6 ヨウ化メチル破過特性に対する銀添着量の影響 (硝酸銀添着吸着材)

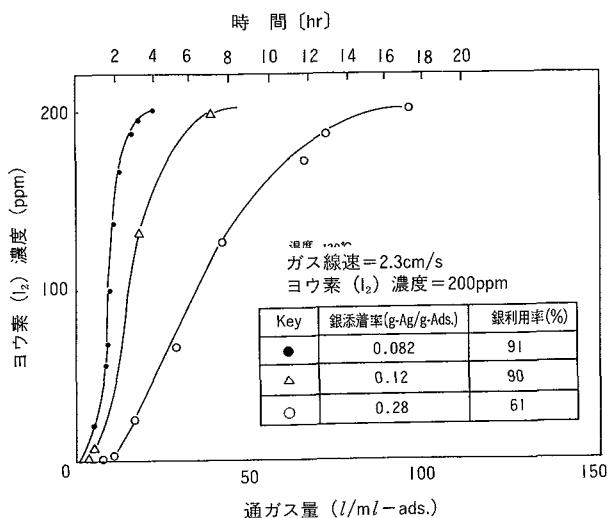


図7 ヨウ素破過特性に対する銀添着量の影響
(金属銀添着吸着材)

吸着量は銀添着率の増加に伴い増加した。しかし、硝酸銀添着吸着材と同様に、破過曲線から銀利用率を算出すると、銀添着率0.082、0.12の吸着材での銀利用率は90%以上であるのに対し、銀添着率0.28の場合には61%まで低下した。

3.3.3 吸着材の高性能化

(1) 細孔構造の制御

硝酸銀添着吸着材および金属銀添着吸着材のいずれも銀添着量が増加すると吸着容量が低下することにより、銀添着量の増加によってヨウ素と銀が十分に反応しないことがわかった。こ

れは、銀添着量の増加によって細孔径が減少あるいは細孔の一部が閉塞され、吸着材の内部までヨウ素が拡散しなかったためと考えられる。

そこで、細孔構造の異なるSDB-1およびSDB-2の担体に金属銀を添着した吸着材を用いて、ヨウ素(I₂)の破過特性を調べた。表1に示すように、SDB-2はSDB-1よりも多くのマクロ細孔を有する。

図8に試験結果を示す。SDB-2のようなマクロ細孔の多い担体を用いると、銀利用率が向上し吸着容量が増加した。マクロ細孔を有する担体を用いることにより吸着性能が改善されることがわかった。

(2) 添着銀の高分散化

図4より金属銀添着吸着材の銀分散性が良いことに着目し、金属銀を硝酸化して硝酸銀にすることにより、硝酸銀の分散性の向上をはかった。

アミン錯体法によって合成した金属銀添着吸着材をNO₂と水蒸気の混合ガス中で金属銀を硝酸化した¹⁰⁾。

この方法で製造した硝酸銀添着吸着材（硝酸化法）とジオキサン法で製造した吸着材の硝酸銀添着量と硝酸銀粒子径との関係を図3に示す。同一の銀添着量で比較すると、硝酸化法で得られた吸着材の添着硝酸銀の粒子径は、ジオキサン法のものに比較して小さかった。したがって、硝酸化法は、ジオキサン法よりも硝酸銀を高分散添着できる。

図11には、カラム法で行った銀添着率0.19,

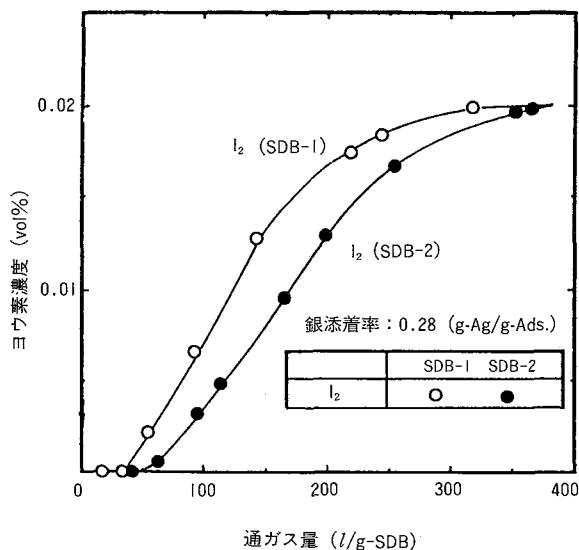


図8 ヨウ素吸着に対する細孔構造の影響

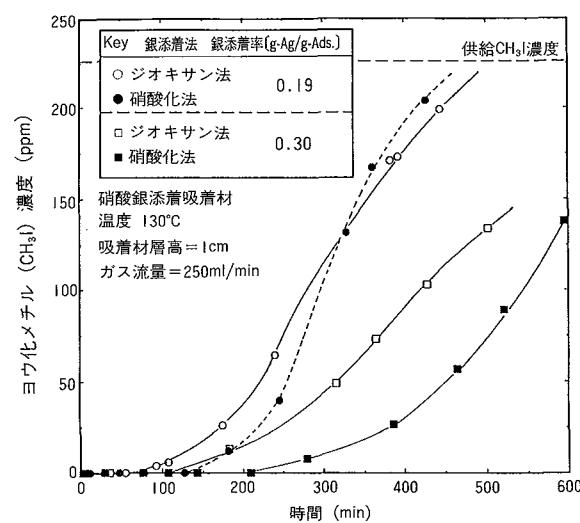


図9 硝酸銀添着吸着材のヨウ化メチル破過特性

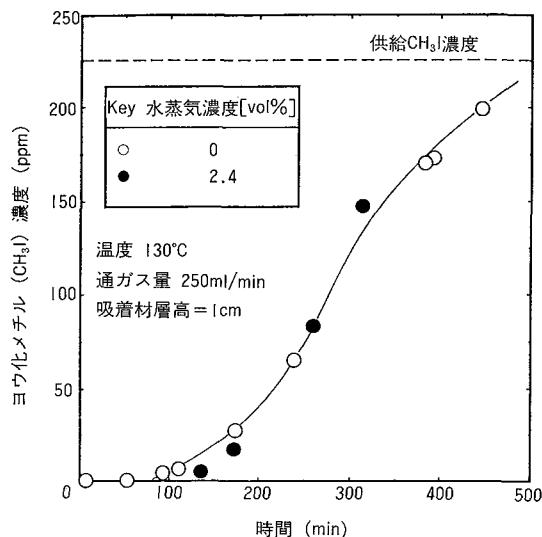


図10 ヨウ化メチル破過特性
(水蒸気の影響)

0.30 (g-Ag/g-Adsorbent) の硝酸銀添着吸着材に対するヨウ化メチル破過特性を示す。銀添着率0.19の吸着材では、硝酸化法による硝酸銀の高分散化の影響はあまり見られないが、銀添着率0.30の吸着材では、ヨウ化メチルの吸着容量は、

$$2.94 \times 10^{-3} \text{ mol-CH}_3\text{I/g - SDB}$$

から

$$3.68 \times 10^{-3} \text{ mol-CH}_3\text{I/g - SDB}$$

に大きく増加した。銀利用率もジオキサン法による吸着材では73%であったものが、硝酸化法では92%に増加した。このことから、硝酸銀の高分散化により、ヨウ化メチルの吸着性能が大幅に向かうことがわかった¹⁰⁾。

3.4 ヨウ素吸着への水蒸気、NOx の影響

3.4.1 水蒸気の影響

図9にヨウ化メチル吸着に対する水蒸気の混入の影響を示す。吸着材には、銀添着率0.19(g-Ag/g-Adsorbent)の硝酸銀添着吸着材を用いた。試験ガス中の水蒸気濃度は2.4vol %とした。ヨウ化メチル破過特性に対して、水蒸気の影響は見られなかった。

3.4.2 NOx の影響

図10にはヨウ化メチルの吸着に対するNOxの影響を示す。このときのヨウ化メチルの濃度は200 ppm、NOx濃度は10,000 ppmとし、キャリアガスには窒素を用いた。キャリアガスは窒素(N₂)であるためにNOxの大部分はNOであった。硝酸銀添着吸着材では多量のNOの混入によって、やや吸着容量が低下した。使用済み吸着材のXRD分析

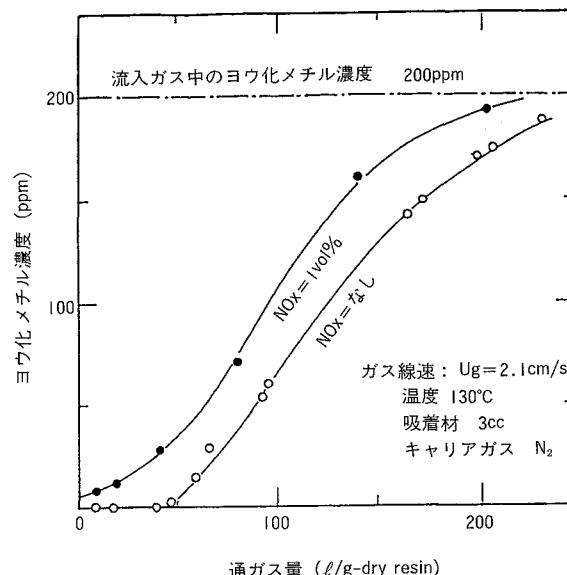


図11 硝酸銀添着吸着材のヨウ化メチル破過特性
(窒素酸化物の影響)

の結果、金属銀の存在を確認した。吸着容量が低下した原因としてはNOによる硝酸銀の金属銀への還元が考えられる。

3.5 吸着材担体の大量合成法の検討

吸着材担体を実証規模で生産するには、担体を大量に合成する必要がある。しかし、カプセル重合法は単分散性のよい担体を合成できるものの、その製造能力には限りがある。そこで、大量製造の可能性として、通常の懸濁重合法を試みた。

この懸濁重合法で合成した担体とカプセル重合法で合成した担体を赤外線吸収スペクトルで比較した結果、懸濁重合法で合成した担体には若干のビニル基は残存しているが、ピーク位置はいずれも一致し重合状態は両者ともほぼ同じであった。

表2に合成条件を変化させたSDB担体を、図12にカプセル重合法、図13に懸濁重合法で合成したSDB担体(SBP-3)の赤外吸光分析による赤外線吸光スペクトルの結果を示す。これにより、SDB担体の大量合成は懸濁重合法で十分代替えできることがわかった。

表2 合成SDB担体(懸濁重合法)

粒子名	架橋度 (wt%)	細孔容量 (cc/g)
SBP-1	10	0.699
SBP-2	15	1.273
SBP-3	20	1.477

*架橋度はモノマー溶液中のジビニルベンゼン濃度

*SBP: スチレンジビニルベンゼンポリマー

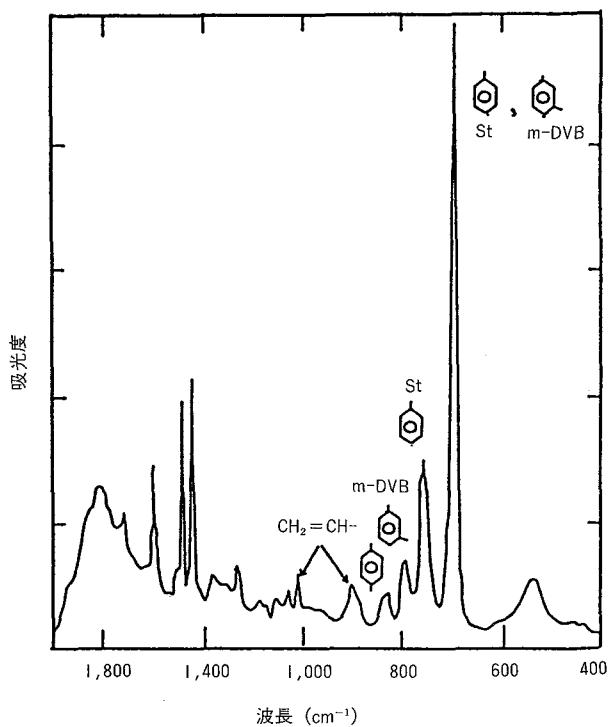


図 12 カプセル重合法で合成した SDB 担体の赤外吸光分析

3.6 まとめ

- (1) 銀添疎水性吸着材のヨウ素吸着性能は、吸着材の細孔構造や添着銀の分散状態等、吸着材の構造的な因子によって影響される。吸着材にマクロ細孔をもたせること、添着銀の粒子径を小さくして高分散化をはかることによって、ヨウ素吸着容量は増加した。銀添着量0.3 (g-Ag/g-Adsorbent) の吸着材においても、90%以上の銀利用率を得ることができた。
- (2) 銀添疎水性吸着材のヨウ素吸着性能は、水蒸気の存在によって影響されなかった。しかし、NO が多量に存在すると、硝酸銀添着吸着材では硝酸銀の一部が金属銀に還元されるためにヨウ化メチルの吸着性能が低下することがわかった。
- (3) 本吸着材担体を懸濁重合法により大量合成できることを確認した。

4. 使用済み吸着材の減容法の検討

銀添疎水性吸着材は、担体が有機物なので加熱すれば軟化し、さらに昇温すれば担体自身は分解する。この特徴を利用すれば、使用済み吸着材を減容することができる。減容処理することによって、その後の保管および処分が容易になる。

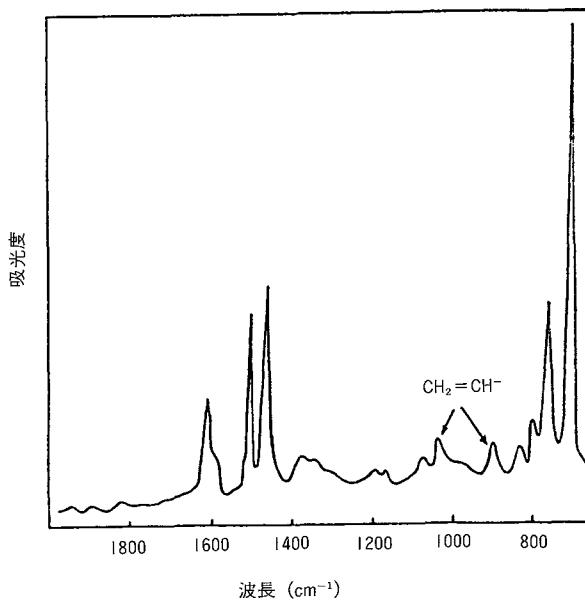


図 13 懸濁重合法で合成した SDB 担体の赤外吸光分析

減容方法として、次の 2 つの方法について検討した。

(1) 乾留減容法

吸着材をさらに高温まで加熱して有機物を分解、ガス化して減容する方法¹¹⁾

(2) 加熱圧縮法

吸着材を加熱して軟化させ、プレスして減容する方法⁹⁾

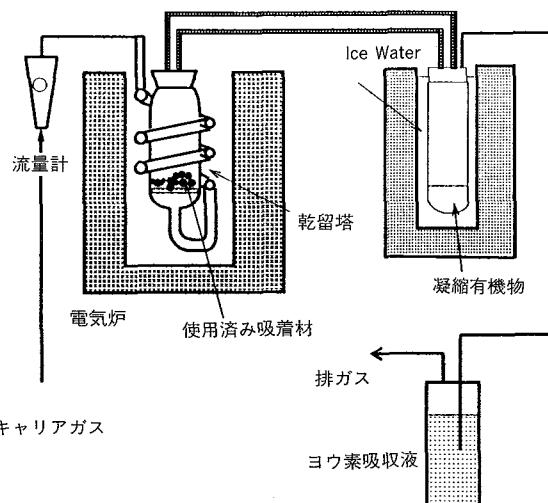


図 14 吸着材乾留減容試験装置

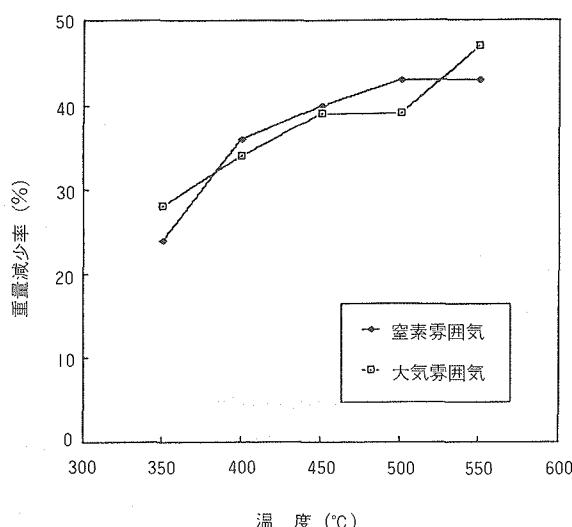


図 15 乾留温度と重量減少率

4.1 乾留減容試験

乾留減容法は、窒素雰囲気あるいは大気雰囲気で加熱して吸着材担体のSDBを熱分解する方法である。図14には試験装置を示す。使用済み吸着材をガラスカラムの乾留塔に充填して、窒素雰囲気下で加熱した。分解ガス中の有機成分はIce-waterバスでトラップした。分解ガス中のヨウ素は過マンガン酸カリウム吸収液で測定した。

図15には乾留温度と重量減少率の関係を示す。乾留温度が350°C ~ 550°Cに上昇するに伴い、吸着剤重量が減少した。500°Cでは担体の有機物が消失

表3 使用済み吸着材の加熱減容試験

温度 (°C)	圧力 (kg/cm ²)	加圧時間	降圧温度 (°C)	試料	雰囲気	表面処理法	減容後形状
150	470	35min	150	I ₂ 吸着	大気	タルク塗布 (0.28)*	9.4 mm 厚
200	470	35min	200	I ₂ 吸着	大気	タルク塗布 (0.28)*	9.4 mm 厚
250	470	15min	200	I ₂ 吸着	大気	タルク塗布 (0.28)*	9.1 mm 厚
300	470	15min	200	I ₂ 吸着	大気	タルク塗布 (0.28)*	9.2 mm 厚
300	470	1.0hr	200	I ₂ 吸着	大気	—	9.3 mm 厚 (0.28)*
350	470	15min	—	I ₂ 吸着	N ₂	白煙発生 (熱分解)	—
350	470	15min	200	ポリマー	大気	タルク塗布 (0.26)*	11 mm 厚

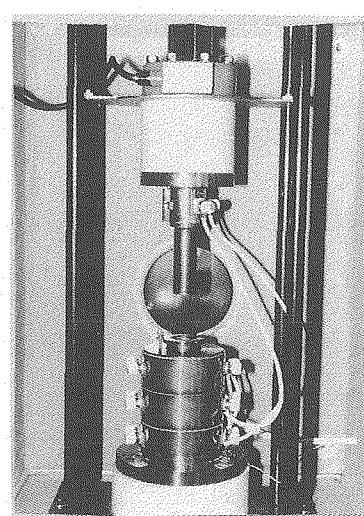
* : 減容率 = 試験後体積 / 初期体積

して、ヨウ素と銀のみになることを確認した。しかし、この方法には分解した有機物が常温で液体となること、排ガス中に微量のヨウ素が放出される等の欠点があることがわかった。

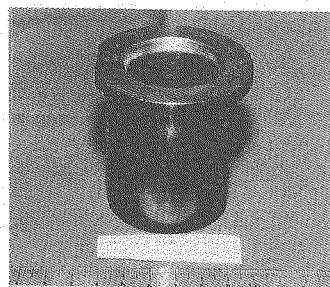
4.2 加熱圧縮法

加熱圧縮法は、吸着材を加熱して担体であるSDBを軟化した上で、圧縮加熱して吸着材の細孔や空隙を消滅させる方法である。写真1に示す装置により、加圧→昇温→降温→降圧操作を行った。試料は使用済み吸着材(15g, 33cc, 33mm厚)およびポリマー担体(10g, 43cc, 43mm厚)を用いた。

この減容処理の結果を表3に示す。また、減容する前と減容後の試料の外観を写真2に示す。

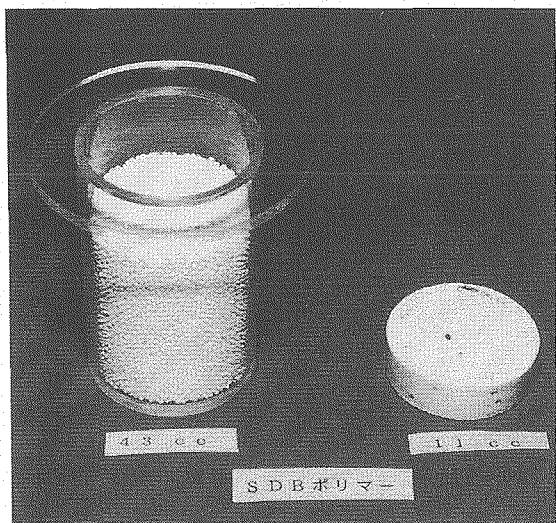


(a) 加熱プレス部

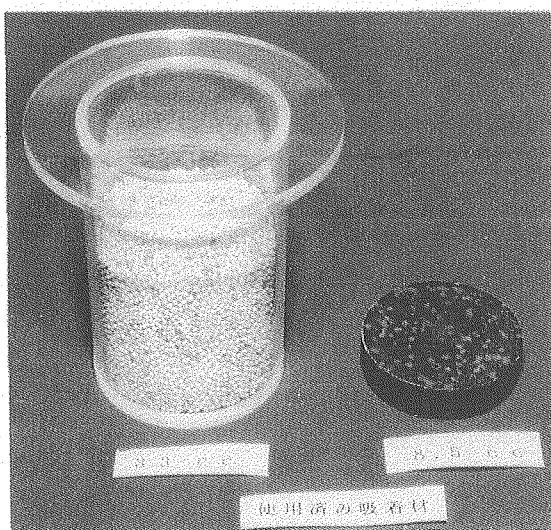


(b) 試料成形用金型

写真1 加熱圧縮試験装置



(a) SDBポリマー



(b) 使用済み吸着材

写真2 減容処理試料と減容成形体

使用済み吸着材は、300°C以下の温度では問題ないが、350°C以上では白煙を出して熱分解し、液状化となって流出する現象が見られた。

減容後の減容率は加熱温度にかかわらず初期体積の28%であり、減容効率は乾留減容法ほど良くはなかった。

以上の結果から、乾留減容法と加熱圧縮法の長所と短所をまとめると次のようになる。

- (1) 乾留減容法の長所は、減容率が大きくかつ最終化学形態がAgIのみなので長期的に安定な廃棄物が得られる。短所は、分解生成物中の微量ヨウ素の再回収、分解生成物の回収、AgIの

再固化などの操作が必要になり、工程が複雑となることである。

- (2) 加熱圧縮法の長所は、操作が単純であり、取り扱いが容易な固化体が得られるが、短所は乾留減容法に比較して減容率が低いことである。
- (3) 乾留減容法と加熱圧縮法を比較すると、操作が簡単な加熱圧縮法による減容化が適当である。

5. 吸着材の安全性

未使用吸着材および使用済み吸着材について、以下に示す試験を実施し、吸着材の安全性を評価した。

(1) 熱分析試験

- ① 示差走査熱量測定 (DSC)
(DSC : Differential Scanning Calorimetry)
- ② 熱重量測定 (TGA)
(TGA : Thermal Gravity Analysis)
- (2) クルップ式発火点試験
- (3) 落つい感度試験
- (4) 摩擦感度試験
- (5) 弹道臼砲試験
- (6) 圧力容器試験

5.1 热分析試験

未使用吸着材と使用済み吸着材について、各々DSCとTGAを行った。使用済み吸着材の分解反応は吸熱反応であるが、ある温度条件ではニトロ化したポリマーの分解による発熱反応であることが示唆された。この発熱反応による熱は、爆発燃焼物質の目安である300cal/gには達してはいなかった。

5.2 クルップ式発火点試験

未使用吸着材と使用済み吸着材の発火点を調べた。試験は、クルップ式発火点試験器を用いて、工業火薬会規格法(ES-11「発火点試験法」)により行った。未使用吸着材、使用済み吸着材とも本法による測定では、発火温度が測定できないほど発火しにくい物質であることが確認された。

5.3 落つい感度試験

機械的な衝撃による分解の起こり易さを調べた。本試験はJIS-K4810に基づいて行った。鉄ついの高さを変えて落下させた結果、未使用吸着材、使用済み吸着材とも押しつぶされるのみで分解、爆発は起こらないことを確認した。

5.4 摩擦感度試験

機械的な摩擦による分解の起こり易さを調べた。試験は JIS-K4810に基づき、最大荷重36kgfにおける試験を6回繰り返した結果、未使用吸着材、使用済み吸着材とも分解、爆発は起こらないことを確認した。

5.5 弾道臼砲試験

大きな爆発衝撃を与えたときの吸着材の爆発性の激しさを調べた。試験方法は、臼砲本体に雷管と吸着材を装填して、雷管を起爆させたときの臼砲本体の振れ幅を測定し、基準爆薬である TNT（トリニトロトルエン）あるいは不活性物質のホウ酸による振れ幅と比較するものである。未使用吸着材に比較して使用済み吸着材の値がやや大きくなる傾向があるものの、その激しさは十分に小さいものであることを確認した。

5.6 圧力容器試験

加熱分解の程度を調べた。本試験で用いた圧力容器の概念図を図16に示す。圧力容器のオリフィス口径を1mmにして、電気炉で400°Cまで加熱し、そのときに破裂板が破裂するかどうかを確認した。

この操作を5回繰り返した結果、1mmのオリフィス口径で5回繰り返しても破裂板は破裂しなかった。また、9mmのオリフィス口径においても破裂しないことを確認した。このことより、未使用吸着材、使用済み吸着材とも熱的な安定性はよいと考えられる。

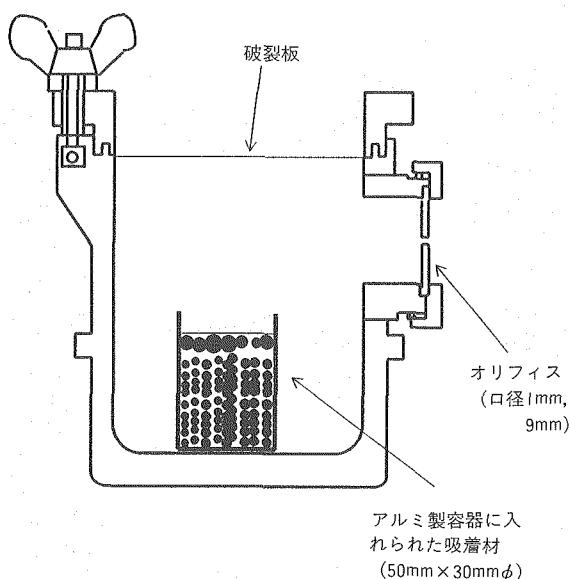
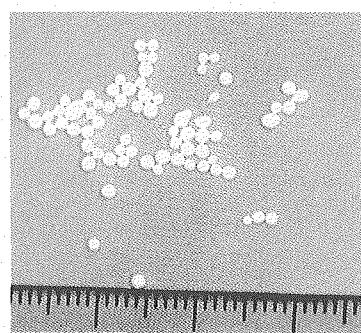


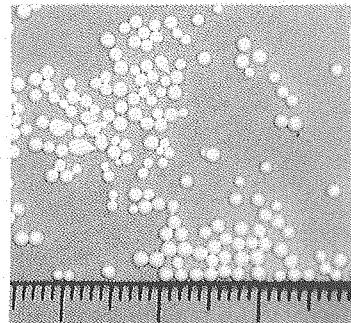
図 16 圧力容器概念図

5.7 安全性試験のまとめ

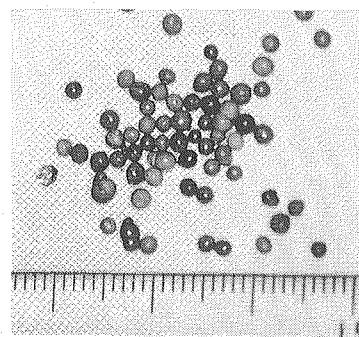
各種の安全性試験を行った結果、未使用吸着材および使用済み吸着材とも機械的衝撃によっては、爆発も分解も起こさないが、熱分析試験の結果から使用済み吸着材の場合、ニトロ化による発熱反応を生じさせる可能性が示唆された。各試験により吸着材の機械的な安全性を各試験により確認することができたが、高 NO_x 環境下での安定性についてはさらに検討する必要がある。



(a) SDB



(b) AgP
[0.37g-AgNO₃/g-SDB]



(c) AgOP
[0.218g-Ag/g-SDB]

写真 3 吸着材の外観

6. おわりに

平成元年から平成5年まで、「銀添疎水性吸着材」に関する基礎的な開発を行ってきた。

今後は、基礎開発で示唆された吸着材の耐NO_x性について検討を行い、再処理工場の実機試験に向けた開発を行っていく予定である。

なお、平成6年には再処理工場の実オフガスを用いて銀添疎水性吸着材（金属銀添着吸着材、硝酸銀添着吸着材）とAgX、AgSとの吸着性能の比較試験を50ccのカラム規模で行った。この結果、硝酸銀添着吸着材はAgX等と同等の性能を示したことを見出し、参考としてこの試験で使用した吸着材の外観を写真3に示す。

おわりに、本研究開発にあたり多大なる協力を頂いた財産業創造研究所に深く感謝すると同時に、本研究開発について指導、助言を頂いた関係各位にあわせて感謝する次第である。

参考文献

- 1) S. Hattori et al.: "Removal of Iodine from Off-gas of Nuclear Fuel Reprocessing Plants with Silver Impregnated Adsorbents", Proc. 18th DOE Nucl. Airborne Waste Management and Air Cleaning Conf., P1343(1985).
- 2) J. G. Wilhelm et al.: "Head-end Iodine Removal from a Reprocessing Plant with Solid Sorbent", Proc. 14th ERDA Air Cleaning Conf., 447(1987).
- 3) S. Inami et al.: "Development of Iodine Removal Technology at the Tokai Reprocessing Plant", RECOD'91 (1991).
- 4) 伊波慎一、小松久人、他：“東海再処理工場におけるヨウ素除去技術の開発”，原子力学会「1993秋の大会」予稿集。
- 5) 清田史巧 他：“新型転換炉「ふげん」における重水精製”，動燃技報 79 (1989)
- 6) S. Matsumoto et al.: "A Production Process for Uniform-size Polymer Particles", *J. Chem Eng. Japan*, 22, 691(1989).
- 7) 竹下健二、松本史朗、他：“疎水性銀添吸着剤によるヨウ素吸着”，日本原子力学会誌，34, 1166 (1992).
- 8) K. Takeshita et al.: "Research and Hydrophobic Adsorbent for Iodine Removal", Proc. 20th DOE/NRC Nucl. Air Cleaning Conf., 205 (1988).
- 9) K. Takeshita et al.: "Development of Silver-impregnated Hydrophobic Adsorbent for Removal of Radioactive Iodine", RECOD'94 (1994).
- 10) K. Takeshita et al.: "Effect of Grain Size of AgNO₃ Loaded in Porous Material on Adsorption of CH₃I", *J. At. Energy Soc. Jpn.*, 32, 941 (1995).
- 11) 九石正美 他：“使用済み疎水性吸着剤の減容処理”，日本原子力学会誌，35 P49 (1993).



鉛エプロンの着用に伴う体幹部不均等被ばくについて

辻村憲雄 百瀬琢磨 篠原邦彦

東海事業所安全管理部

資料番号: 98-3

Comparison Between the Chest Dose and the Neck Dose of Workers with Protective Aprons at PNC Plutonium Fuel Fabrication Facilities

Norio Tsujimura Takumaro Momose Kunihiko Shinohara
(Health And Safety Division, Tokai Works)

動燃事業団東海事業所プルトニウム燃料取扱施設でグローブボックス作業等に従事する作業者が、鉛エプロン内側胸部と外側頸部に着用した個人線量計から求めたそれぞれの部位の受ける線量の関係を調べた。

その結果、胸部の1 cm 線量当量に対する頸部の1 cm 線量当量、実効線量当量の比は、それぞれ約3~4、約2倍であった。また、ICRPの1990年勧告で変更された組織荷重係数を用いて、新勧告の下での実効線量当量を試算し、不均等被ばくによる作業者の実効線量当量は、新勧告の適用によって減少することが分かった。

1.はじめに

動燃事業団東海事業所のプルトニウム燃料取扱施設では、プルトニウム241の娘核種であるアメリシウム241が放出する γ 線（主に59.5keV）による被ばくの低減対策の一環として、放射線業務従事者は防護衣（鉛エプロン）を着用している。そのため、鉛エプロンに覆われた部分とその外側（主に頭頸部）の受ける線量に差異が生じ、体幹部が不均等な被ばくを受ける可能性があるため、作業者は鉛エプロンの内側胸部に1個、外側頸部（作業着の襟部）に1個の合計2個の線量計を着用し、個人の被ばく管理を行っている。

本報告では、東海事業所プルトニウム燃料取扱施設の放射線業務従事者が胸部と頸部に受けた線量当量の関係を調べた。また、ICRP Publication60（以下、Publ.60のように記す）で勧告された組織荷重係数を用いて新勧告の下での実効線量当量を計算し、ICRP Publ.60が法令に採り入れられた場合の個人被ばく線量の変化を試算した。なお、ICRP Publ.60では従来の実効線量当量を実効線量と名称を改めているが、ここでは従来の表現のままとする。

2.不均等被ばく時の線量当量の評価

「不均等被ばく」とは、「胸部（女子の場合は腹部）に装着した個人線量計だけでは、実効線量当量と比較して十分に安全側の線量評価のできない被ばく形態」と言える。ICRP Publ.35¹⁾では、個人線量計の着用部位に関する勧告として「鉛エプロンのような防護衣が、身体のある部分に入射する放射線を大きく減衰させる特殊な状況においては、2個以上の線量計が必要になるかもしれない。」と述べており、またICRP Publ.33²⁾でも同様な記述があるが、これらの勧告では具体的な線量評価法については言及していない。

一方、国内ではICRPの1977勧告³⁾を受けて「放射性同位元素等による放射線障害の防止法令」等の法令が改訂され、平成元年度より施行された。この法令では、体幹部を頭頸部、胸部および上腕部、腹部および大腿部に三区分したとき、それぞれの区分の受ける線量当量に差異があると特定できる場合には「体幹部不均等被ばく」の条件に該当し、各区分の受ける1 cm 線量当量の重み平均から実効線量当量を評価することを定めている。このとき用いる部位別の荷重係数を表1に、その

表1 部位別荷重係数

体幹部の区分	頭部および頸部	胸部および上腕部	腹部および大腿部	残りの組織
部位別荷重係数	0.05	0.33	0.32	0.30

表2 部位別荷重係数の内訳⁴⁾

	生殖腺	乳房	赤色骨髄	肺	甲状腺	骨表面	残りの組織	部位別小計	部位別荷重係数
全身	0.25*	0.15*	0.12*	0.12*	0.03*	0.03*	0.30*	—	—
頭頸部			0.012		0.03	0.006		0.05	0.05
胸部		0.15	0.042	0.12		0.006		0.32	0.33
上腕部			0.006			0.006		0.01	
上腹部			0.012					0.01	
下腹部	0.25		0.036			0.006		0.29	0.32
大腿部			0.012			0.006		0.02	

*全身が均等に照射されたとき、ある組織・臓器の照射による確率の影響のリスクの、リスク全体に対する割合 (ICRP Publ.26による)

係数の導出過程を表2に示す。これらの部位別荷重係数は、ICRP Publ.26で勧告された「生殖腺」、「乳房」、「赤色骨髄」、「肺」、「甲状腺」、「骨表面」および「残りの組織」の放射線の照射による確率の影響のリスクを、その臓器の重量比を基に上述した体幹部の三区分に割り振って決定している⁴⁾。

現在行われている不均等被ばく時の線量当量の基本的な評価方法は次式のとおりである⁵⁾。

$$H_E = 0.05 \cdot H_a + 0.33 \cdot H_b + 0.32 \cdot H_c + 0.30 \cdot H_m \quad \cdots (1)$$

H_E : 体幹部不均等被ばく時の実効線量当量

H_a : 頭部または頸部に装着した個人線量計から得た1 cm 線量当量

H_b : 胸部に装着した個人線量計から得た1 cm 線量当量

H_c : 腹部に装着した個人線量計から得た1 cm 線量当量

H_m : 体幹部の中で最も多く放射線を受けるおそれのある区分に装着した個人線量計から得た1 cm 線量当量

(1)式では、体幹部の中で最も多く放射線を受けるおそれのある区分に装着した個人線量計から得た1 cm 線量当量に、表1の「残りの組織」に対する係数0.30を割り振っている。これは ICRP Publ.26³⁾では詳しい内訳が明示されていない「残りの組織」を、とりあえず最大の線量を受ける部位に割り振ることによって、安全側に実効線量当量を評価するためである。

東海事業所の作業環境の場合、こうした体幹部

が不均等な被ばくを受ける可能性があるのは、ウラン-プルトニウム混合酸化物（以下、「MOX」）という）燃料取扱作業に伴い比較的エネルギーの低い γ 線を被ばくし、かつ頭頸部を除く体幹部を鉛エプロン等の防護衣で覆った場合に限定して良い。図1にグローブボックスでの標準的な作業形態を示すが、両腕をボックス内に挿入するポート部から漏洩する主にアメリシウム241の γ 線によって、防護衣に覆われていない頭頸部が胸部に比べて高い線量を受ける。図1のような作業形態の場合、身体の各部位の受けける線量当量の値は、頭

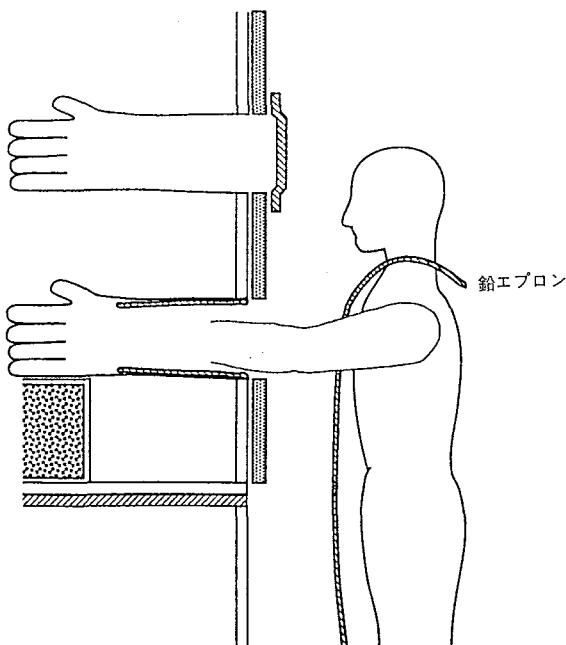


図1 グローブボックス作業形態

頸部>胸部>腹部の関係になることが、人体形状ファントムを用いた実験およびグローブボックス近傍の γ 線線量率分布のシミュレーション計算⁶⁾より判明しているので、東海事業所では(1)式の胸部と腹部、頭頸部と体幹部のうち最大の被ばくを受ける部位とをそれぞれ一つの項として、胸部と頸部に装着した2個の個人線量計を用い、

$$\begin{aligned} H_E &= (0.33+0.32) \times H_{\text{(胸)}} \\ &\quad + (0.05+0.30) \times H_{\text{(頸)}} \\ &= 0.65 \times H_{\text{(胸)}} + 0.35 \times H_{\text{(頸)}} \quad \cdots (2) \end{aligned}$$

$H_{\text{(胸)}}$ ：胸部に装着した個人線量計から得た

1 cm 線量当量

$H_{\text{(頸)}}$ ：頸部に装着した個人線量計から得た

1 cm 線量当量

より個人の不均等被ばく時の実効線量当量を評価している。防護衣の上下に装着した2個の線量計と(2)式を用いた実効線量当量の評価方法は、医療系の放射線業務従事者の個人モニタリングも含めて国内で一般に適用されている方法である。

なお、こうした複数個の個人線量計を用いて、不均等被ばく時の線量を評価するという方法については、国外でも幾つかの提案があり、例えば、Faulkner ら⁷⁾は人体形状ファントムを用いた実験から、X線技師らの被ばく防護を目的として頭頸部と胸腹部の係数として0.6および0.4を用いることを提案している。また、Matheny ら⁸⁾は頭頸部に係数0.06を割り振ることを提案している。ICRP Rubl.26ではその内訳が明示されていなかった「残りの組織」を身体のどの臓器に割り振るかによって、頭頸部に対する係数の値は様々であり、国際的に合意の得られた方法は現在まだ無い。

3. 東海事業所における不均等被ばくの現状

3.1 不均等被ばく管理対象者数

現在、東海事業所のMOX燃料製造工程および一部の研究開発部門等でグローブボックスでプルトニウム燃料を取り扱う作業者の全員が不均等被ばく管理用の個人線量計を着用しており、その数は一ヶ月間の被ばく管理期間の者で約400名、三ヶ月間の被ばく管理期間の者で約50名であり、年間ではのべ5000名程度である。

3.2 個人線量計

放射線業務従事者の個人被ばく線量当量の評価には、動燃事業団の公式個人線量計であるTLDバッジ⁹⁾を使用している。TLDバッジは、実効原

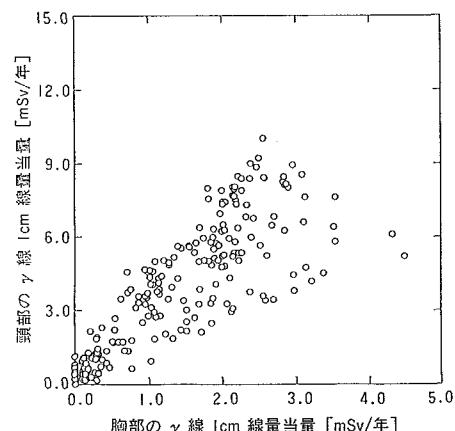


図2 胸部と頸部の γ 線 1cm 線量当量の比較

子番号が生体組織とほぼ同等であるホウ酸リチウムを線量評価用TLDとして用い、さらにその前面に厚さ1000mg/cm²の樹脂フィルターを配置しているため、 γ 線による1cm線量当量を精度良く評価することが可能である。通常、作業者は鉛エプロン内側の胸部と外側頸部にTLDバッジを着用する。検出限界は0.1mSvである。

3.3 胸部と頸部の線量当量の関係

平成6年4月から平成7年3月の期間にプルトニウム燃料工場のMOX燃料製造工程で放射線作業を行った作業者が実際に着用した個人線量計から胸部と頸部の γ 線の1cm線量当量を評価し、それらの関係を調べた。解析に用いたデータ総数はのべ2106名分、このうち年間を通じてほぼ定常的に γ 線による被ばく線量が有意値として記録された者は合計220名である。

図2に、個人別に一年間にわたって積分した胸部と頸部の線量の関係を示す。胸部と頸部の差が鉛エプロン等による低エネルギー γ 線被ばく防護効果に相当し、頸部の線量当量を防護衣を着用しない場合の線量と考えれば、鉛エプロンの着用によって胸部の線量当量は1/3～1/4程度に低減することが分かる。

また、作業工程によって頸部と胸部の線量比が若干変化することが判明しているが¹⁰⁾、頸部に対する胸部の1cm線量当量の比が3～4倍程度の者が全体の約半数を占め、比較的高い線量側では4倍を超える者はほとんどいない。

3.4 胸部の線量当量と実効線量当量の関係

図3に、個人別に一年間にわたって積分した場合の胸部の1cm線量当量と体幹部不均等被ばく

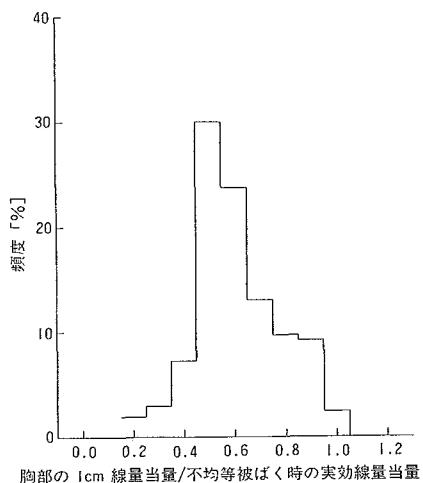


図3 不均等被ばく時の実効線量当量に対する胸部の1cm線量当量の比の分布（ICRP Publ.26の組織荷重係数を用いた場合）

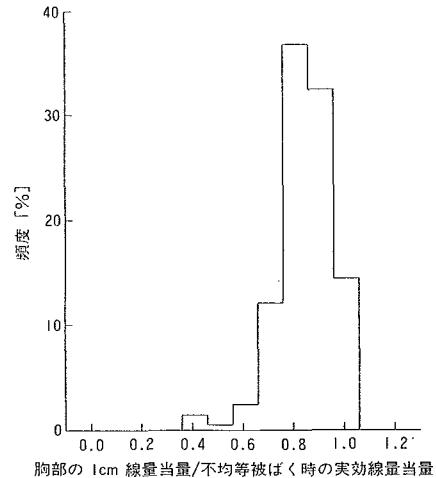


図4 不均等被ばく時の実効線量当量に対する胸部の1cm線量当量の比の分布（ICRP Publ.60の組織荷重係数を用いた場合）

時の実効線量当量の比の分布を示す。図3に示した分布は、鉛エプロンの着用状況や作業形態の違いによって、頸部/胸部比が3～4倍と1～2倍の2つのグループによる分布から構成されているため、胸部/実効線量当量比が0.4～1の範囲で広がっており、胸部の1cm線量に比べて実効線量当量が2倍程度の者が全体の60%程度を占めている。

また、これまでの基本勧告であるICRP Publ.26の改訂版であるICRP Publ.60¹¹⁾で組織荷重係数の値が変更された。ICRP Publ.60では、放射線の生物学的影響の最新の知見に基づき、表2に示した臓器に加え、胃、肝臓など胸腹部の臓器が追加され、さらにICRP Rubl.26では明示されていない「残りの組織」の内訳と、それらの組織荷重係数が与えられている。中でも、不均等被ばく時の実効線量当量を評価する上での最も大きな変更点は、「残りの組織」に対するリスク係数が従来の0.30から0.05に変更されたことであり、したがつて(1)式の体幹部の中で最も多く放射線を受ける部位に対する部位別荷重係数の値が大きく変化する。現行法令の考え方と同様に、重量比に基づいて臓器・組織の組織荷重係数を各部位に割り振り不均等被ばく評価のための部位別荷重係数を試算すると、(2)式の胸腹部と頭頸部の部位別荷重係数は0.90と0.10程度となる^{12),13)}。

この係数を用いて、胸部の1cm線量当量と体幹部不均等被ばく時の実効線量当量の関係を試算すると、図3に示した頻度分布は図4に示す分布になる。頭頸部に対する部位別荷重係数が現行法令と比べて小さな値となるため、頸部と胸部の線

量当量比の大小は(2)式による実効線量当量の計算にはあまり影響しない。胸部の線量当量と実効線量当量の相違は、平均して1.2～1.3倍程度である。

4. おわりに

動燃事業団東海事業所のプルトニウム燃料取扱施設の放射線業務従事者が鉛エプロンの内側胸部と外側頸部に着用した個人線量計から得られるそれぞれの部位の線量当量の関係を調べた結果、頸部/胸部比が3～4倍程度のものが約半数を占め、4倍を超えるものはわずかであった。また、胸部の線量当量に対する不均等被ばく時の実効線量当量の比は、現行法令の下では1.5～2倍、ICRPの新勧告の下では1.2～1.3倍程度となることが分かった。この結果、不均等被ばくによる作業者の実効線量当量は、ICRPの新勧告の適用によって減少することが確認された。今後法令改正に当たって、個人線量計の着用規準等不均等被ばく管理の方法を検討していく必要がある。

参考文献

- ICRP Publication 35, "General Principles of Monitoring for Radiation Protection of Workers", (1982).
- ICRP Publication 33, "Protection Against Ionizing Radiation from External Sources Used in Medicine", (1982).
- ICRP Publication 26, "Recommendations of the International Commission on Radiological Protection", (1977).
- 浜田達二：“日常の管理における線量当量の評価”，個人被ばく管理における実効線量当量評価に関する短期研究会報告，KURRI-TR-283, (1985).
- “外部被ばくにおける線量当量の測定・評価マニュアル”，原子力安全技術センター, (1988).
- 伴信彦, 二之宮和重, 他：“核燃料施設における放射線防護の最適

- 化”, 動燃技報, 81, (1992).
- 7) K.Faulkner and R.M.Harrison, “Estimation of effective dose to staff in diagnostic radiology”, Phys.Med.Biol., 33, 1, p83-91 (1988).
 - 8) M.D.Matheny et al., : “Exposure Reductions Encouraged by the Determination of the effective Dose Equivalent for Non-uniform Exposures”, WSRC-MS-94-0404, (1994).
 - 9) 石黒秀治, 武田伸莊：“Li₂B₄O₇(Cu)素子による自動読取型個人被曝線量計の開発(I) - γ 線, β 線線量当量評価法 - ”, 保健物理, 16 (1981).
 - 10) 井崎賢二, 他：“プルトニウム燃料工場における作業者の被ばく解析”, 日本保健物理学会第31回研究発表会 (予定).
 - 11) ICRP Publication 60, “Recommendations of the International Commission on Radiological Protection”, (1990).
 - 12) 藤田稔, 今井盟, : “不均等被ばくにおける実効線量当量と1cm線量当量の比較 一体幹部に個人線量計を2個装着した従事者の1990年度のデーター”, フィルムパッジ・ニュース, 187,(1992).
 - 13) 辻村憲雄, 百瀬琢磨, 他：“鉛エプロンの着用に伴う体幹部不均等被ばく事例の解析”, 日本原子力学会, 1995年春の年会.



ラドン娘核種粒径分布の測定

伊藤公雄 古田定昭 中島裕治

人形峠事業所安全管理課

資料番号：98-4

Measurement of Radon Progeny Size Distribution

Kimio Ito Sadaaki Furuta Yuji Nakashima
(Health and safety section, Ningyo-toge works)

大気中ラドン娘核種の挙動評価、肺の被ばく線量評価等の際、ラドン娘核種の粒径分布が重要なパラメータとなるため、ラドン娘核種の粒径分布測定について検討した。

一般にエアロゾル粒子を粒径別に捕集するには粒子の拡散沈着を利用するものと慣性衝突を利用するものに大別される。拡散バッテリーは、通過する粒子をバッテリー内に拡散沈着させる装置であり、バッテリーを通過する透過率は粒径に依存している。数種類の拡散バッテリーを使用することにより、ラドン娘核種の透過曲線を求め、逐次近似計算によってラドン娘核種の粒径分布を求めることができることを確認した。

1. はじめに

大気中のラドン(Rn-222)は、崩壊してポロニウム(Po-218)になる。Po-218は、生成直後には原子イオンと考えられているが、速やかに大気中の水分子等と結合して一種のクラスターを生成する。このクラスター状のPo-218は、大気中に存在している種々のエアロゾルに付着して放射性エアロゾルを形成する(図1)。この間にPo-218は崩壊を続け、鉛(Pb-214)、ビスマス(Bi-214)、ポロニウム(Po-214)に変換していく。これらを総称してラドン娘核種エアロゾル(以下、ラドン娘核種)という。

大気中のラドン娘核種の挙動評価、被ばく評価等の際に、基本的なパラメータとしてラドン娘核種粒径分布は重要である。

ラドン娘核種粒径分布の測定法については、種々の測定方法が考案されているが、主に粒子の慣性衝突を利用したカスケードインパクター法と粒子の拡散を利用した拡散バッテリー法に大別できる^{1)~3)}。拡散バッテリー法は装置全体をコンパクトに製作することが可能であり、種々の環境での測定のための移動に適している。このため、拡散バッテリーを用いたラドン娘核種の粒径分布測定法を確立したので報告する。

2. 拡散バッテリーによるラドン娘核種粒径分布測定

2.1 測定の概要

拡散バッテリーは、空気中の微粒子を拡散によりバッテリー内に沈着させるものの総称であり、拡散バッテリーの流入前後の比(個数濃度、重量、放射能濃度等)から、その粒径を推定する。

図2に測定方法を示す。図2(a)に示すように、拡散バッテリーの通過前後の濃度比をあるパラメータ(流量、スクリーンメッシュの枚数(後述)等)を替えて測定し、図2(b)のような透過曲線を求める。この透過曲線から計算により粒径分布(図2(c))を求める。

粒径分布の計算方法も種々の計算方法が考案さ

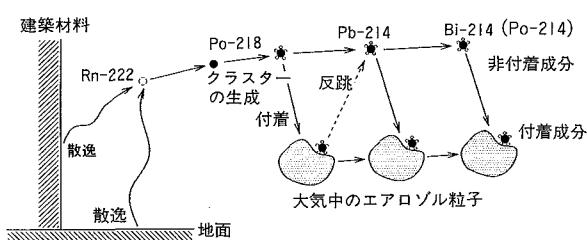


図1 ラドン娘核種の挙動

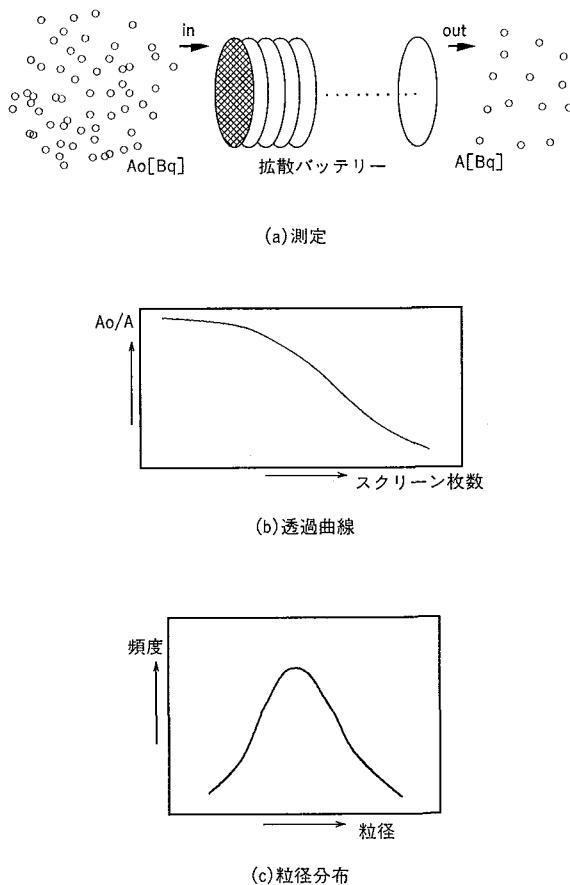


図2 ラドン娘核種粒径分布の測定

れているが、現在では、容易に分布の概形を知ることができること、粒径分布をあらかじめ仮定する必要がないこと、等の理由から逐次近似法による近似解を求めるのが一般的となっている。

2.2 拡散バッテリー

拡散バッテリーには種々のタイプ(平行平板型、スクリーンメッシュ型、拡散チューブ型等)が考案されているが、ラドン娘核種粒径分布測定には、可搬型の装置が製作可能なスクリーンメッシュ型の拡散バッテリーが使用されている。

スクリーンメッシュは目の細かい金網の一種であり、n枚のスクリーンメッシュを通過するときの粒子(直径 d_p [m]、拡散係数 D [m^2/s]、密度 ρ_p [kg/m^3]とする)の透過率 P は、以下の式で表される^{4),5)}。

$$P = \exp [-4\alpha nwE_T / (\pi (1-\alpha) d_f)] \quad \cdots (1)$$

ここで、w はスクリーンメッシュの厚さ [m]、 d_f はスクリーンメッシュを構成している金属繊維の

直径 [m]、 α はスクリーンメッシュの体積率であり、以下の式で計算される。

$$\alpha = 4m_s / (\pi d_s^2 w \rho_s) \quad \cdots (2)$$

m_s はスクリーンメッシュの重量 [kg]、 d_s はスクリーンメッシュの直径 [m]、 ρ_s はスクリーンメッシュの密度 [kg/m^3] である。

また、 E_T は金属繊維単体での捕集効率に相当するもので、拡散による寄与 E_D 、接触による寄与 E_R 、慣性による寄与 E_I 、接触と慣性による寄与の補正項 E_{DR} により、以下の式で表わされる。

$$\begin{aligned} E_T &= E_D + E_R + E_I + E_{DR} \\ E_D &= 2.7Pe^{-2/3} \\ E_R &= f(R) / (2Ku) \\ E_I &= ISt / (2Ku) \\ E_{DR} &= 1.24(KuPe)^{-1/2}R^{2/3} \\ Pe &= d_f U / D \\ D &= kTC / (3\pi\mu d_p) \\ C &= 1 + \lambda [2.514 + 0.8\exp(-0.55d_p/\lambda)] \\ f(R) &= (1+R)^{-1} - (1+R) + 2(1+R)\ln(1+R) \\ I &= (29.6 - 28\alpha^{0.62})R^2 - 27.5R^{2.8} \\ R &= d_p / d_f \\ Ku &= -0.5\ln(2\alpha/\pi) + 2\alpha/\pi - 0.75 - (\alpha/\pi)^2 \\ St &= (\rho_p d_p^2 C) / (9\mu d_f) \end{aligned}$$

定数、パラメータ等は、

$$\begin{aligned} k &: ボルツマン定数 (1.38 \times 10^{-23} [J/K]) \\ \lambda &: 平均自由行程 \\ &(1\text{気圧}, 293\text{K} の時, 0.65 \times 10^{-7} [\text{m}]) \\ T &: 温度 (293 [\text{K}]) \\ \mu &: 空気の粘性係数 \\ &(1\text{気圧}, 293\text{K} の時, 1.83 \times 10^{-5} [\text{kg}/\text{m}/\text{s}]) \end{aligned}$$

である。なお、Pe、Ku、St は、流体力学でよく用いられる無次元数で、各々ペクレ数、クヌッセン数、ストークス数であり、C はカニンガムの補正項と呼ばれている変数である。

拡散バッテリーは、このスクリーンメッシュが層状にセットされたもので、スクリーンメッシュの枚数を変えて測定すると、横軸をスクリーンメッシュの枚数、縦軸を放射能濃度比とした透過曲線が得られる。この透過曲線から粒径分布が計算される。

2.3 透過曲線

透過曲線は、粒径分布を計算する最も基本的な

データとなるものであり、この透過曲線の描き方で求められる粒径分布が決定されるといつても過言ではない。また、透過率が約1から0.3程度(さらに低い透過率が得られる方が望ましい)までの広い領域について測定データが得られることが求められる。

一般にスクリーンメッシュ型の拡散バッテリーにより得られた透過率をそのまま入力データとすると測定誤差により滑らかな透過曲線とならず、結果として粒径分布も得られないため、何らかのスムージングが必要となる。スムージングの方法には、目視により適当に曲線を描く方法から任意の関数にフィッティングする方法まで種々の方法があるが、測定者の意思に影響されず、しかもできるだけ収束しやすい曲線にフィッティングさせるため、三元の指數関数にフィッティングさせることとした。

3. 逐次近似法による粒径分布計算

以上で述べた拡散バッテリーによる測定で透過曲線が得られる。この透過曲線から粒径分布を求めるには、分布を仮定することなく、容易に分布を得られる逐次近似法を用いるのが一般的である。

逐次近似法にも、種々のアルゴリズムが考案されている。限られた範囲の文献調査ではあるが、ラドン娘核種の粒径分布測定に適用されている逐次近似法には3つの方法(池辺法⁶⁾、EMax法⁷⁾、Twomey法⁸⁾)がある。

スクリーンメッシュ枚数N_sの拡散バッテリー通過後のエアロゾル濃度あるいは放射能の比Z(N_s)は、応答関数R(N_s,x)を用いて次式で表される。ここで、xは粒径、f(x)はエアロゾル粒径分布である。

$$Z(N_s) = \int R(N_s, x) \cdot f(x) dx \quad \cdots (1)$$

実際の測定では、測定値Zを連続したデータとして得ることはできず、離散化したものとなり、分布fもある幅(通常は対数等間隔:Δx)を持つたf(x)Δxとして求められる。従って、(1)式は、行列を用いて

$$|Z| = |R| \cdot |f| \quad \cdots (2)$$

と表わされる。

求めたい分布fを得るには、応答行列Rの逆行列R⁻¹を(2)式に左から掛ければ求められるが、わずかの測定誤差のためfに振動が現れ、分布が負

の値にもなり得る。このような現象を避けるため、逐次近似法は、解析的な解ではないものの近似解を求める有効な方法と考えられている。

3.1 池辺法

池辺法では、以下のアルゴリズムを用いている。

$$|Z^{(N)}| = |R| \cdot |f^{(N)}|$$

$$f_i^{(N+1)} = f_i^{(N)} \cdot (Z_i^{(N)} / Z_i^{(obs)})$$

ここで、f_i、Z_iは、各々行列f、Zの要素であり、i=1~nとする。Nは近似回数である。Z_i^(obs)は測定値とする。fとZが同じ要素数であるため、応答行列Rは、n次の正方行列である必要がある。近似の方法は、Z_iの計算値と実測値の比を掛けて新しい分布を求めるもので、線形反復法のひとつである。

3.2 EMax法

EMax法では、Rが正方行列である必要はなく、(n*m)行列とすると、Zは(n*1)行列、fは(m*1)行列となる。アルゴリズムは、

$$f_j^{(N+1)} = f_j^{(N)} \cdot \sum_i [Z_i^{(obs)} / Z_i^{(N)} \cdot r_{ij}] / r_{+j}$$

$$r_{+j} = \sum_i r_{ij}$$

である。ここで、r_{ij}は行列Rの要素であり、i=1~n、j=1~mとする。近似の方法は、Z_iの計算値と実測値の比の行列Rのi成分で重み付けした平均を掛けて新しい分布を求めていく。

3.3 Twomey法

Twomey法もEMax法と同様、Rが正方行列である必要はなく、アルゴリズムは、

$$f_j^{(N+1)} = f_j^{(N)} \cdot [1 + (Z_j^{(obs)} / Z_j^{(N)} - 1) \cdot r_{ij}]$$

である。近似の方法は、Z_iの計算値と実測値の比から1を差し引いた誤差を行列Rの成分で重み付けしたものを掛けて新しい分布を求めており、非線形反復法の応用である。

3.4 各逐次近似法の比較⁹⁾

種々の模擬データ(単分散分布、多分散分布(1山)、同(2山))を作成して各逐次近似法を比較したところ、何れの方法においても入力データどおりの分布が得られた。しかしながら、収束までの計算回数は、逐次近似の方法と分布の形状によ

って大きく異なることが分かった。

池辺法では、総じて少ない計算回数で収束するが、入力データに誤差を与えた場合には、収束が悪い場合もある。収束の仕方は分布の形状には比較的影響されなかった。

EMax 法は分布の形状によっては非常に多くの計算回数が必要であるが、入力データに誤差を与えても得られる分布には大きな影響を受けない。

Twomey 法の場合は EMax 法と同様、分布の形状に影響を受けやすいが、EMax 法と異なり誤差にも影響を受けやすいことが分かった。

3.5 収束条件

測定値には誤差が含まれるため、逐次近似を完全に収束させると、誤差をもった測定値を真とした分布に収束してしまう。この現象を防ぐため、収束条件が必要となる。

収束条件も研究者により種々のものが考えられているが、下ら³⁾によって用いられている方法を採用した。この方法では、逐次近似により求められた粒径分布から透過率を再計算し、その結果がフィッティングした透過曲線（入力データ）の 5 %以内に入るまで逐次近似を続ける。

他に、 χ^2 二乗値（透過率の再計算値と透過曲線との差の 2 乗を合計したもの）を求めて、収束を判断する方法や、単に計算回数により収束を判断する方法がある¹⁰⁾。

3.6 計算条件の決定

粒径分布の範囲（最小径、最大径）、粒径区分は、計算では任意に選ぶことが可能であるが、ここではカスケードインパクターによる測定結果（後述）と比較する必要から、0.018~0.8 μm とした。また、粒径分布の分割数については、文献等によれば、

実際の測定では誤差が伴うため、5 分割程度が適当である⁶⁾。入力データ数については、池辺法が、計算中に正方行列を用いているため、入力データ数と粒径分布の分割数は同じでなければならず、他の逐次近似法についても 5 つのデータを入力することとした。

4. ランド娘核種粒径分布測定器の試作

4.1 測定器の概要

実際の測定環境では、ラドン濃度、エアロゾル濃度が常に変化しているため、できるだけ短時間に透過曲線を求めることが望ましい。他方、屋外での測定を考慮すると装置全体はコンパクトであることが望ましい。

試作した測定装置のブロック図を図 3 に示す。測定装置は、一度に 4 本の拡散バッテリーでサンプリングすることができる。低濃度の環境でも測定でき、高濃度の環境では Po-218、Po-214 の α 線を弁別測定できるようサンプリングと同時に α 線を測定できるオンライン型の測定とした。 α 線測定にはシリコン障壁型半導体検出器を用いており、4 系統の α 線測定データをルーターを介して、1 系統の入力として多重波高分析器（MCA）でスペクトル測定を行う。

スクリーンメッシュ枚数が、0（プランク）、1、3、6、10、20、46、100 枚の 8 種類の拡散バッテリーを用意した。これらの拡散バッテリーは 2 個を接続して使用することもでき、最大で 146 枚のスクリーンメッシュ枚数を設定できる。用いたスクリーンメッシュの網目の細かさは、250 メッシュ（1 インチ当たり 250 の網目がある）とした。

4.2 測定方法

実際の環境では、ラドン濃度、エアロゾル濃度

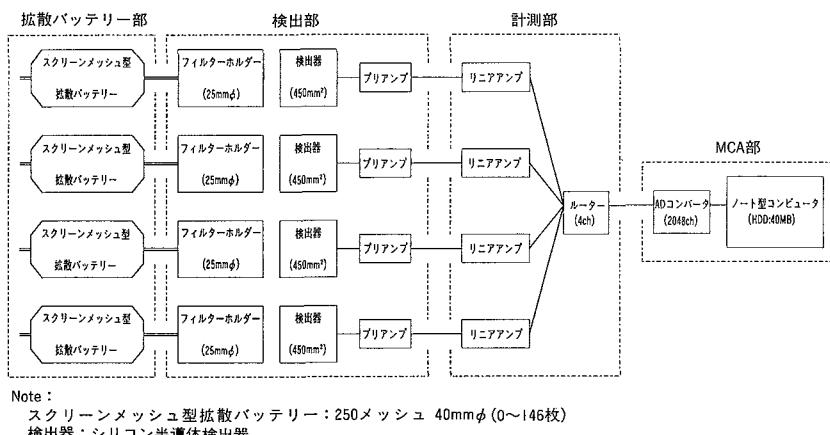


図 3 ラドン娘核種粒径分布測定装置ブロック図

が常に変化しているためできるだけ短い時間で測定することができが、低濃度の環境での測定では、充分な計数を得るためにある程度の時間が必要である。また、一度に4種類の拡散バッテリーしか測定できないため、透過率の広い範囲にわたって透過曲線を得るために最低2回の測定が必要となる。

以上のことから、実際の測定方法としては下記のとおりとした。

①測定イ)

0、20、46、100枚の拡散バッテリーで30分間

②測定ロ)

0、1、10、146枚の拡散バッテリーで30分間

③透過曲線の作成

④逐次近似法による粒径分布計算

なお、測定のイ)、ロ)の順序は逆になつてもかまわないものとした。

5. カスケードインパクターとの比較測定⁹⁾

5.1 比較測定

カスケードインパクターは粒子の慣性衝突を利用して粒径別に捕集する装置である。以前は、捕集できる粒子の最小粒径が大きかったため、ラドン娘核種の粒径分布測定には不適当といわれていた。しかしながら、低压カスケードインパクターの開発により、最小粒径が小さくなり、近年、ラドン娘核種粒径分布測定にも適用されてきており^{10,11)}、比較測定を実施した。なお、粒径が約0.02 μm の粒子まで測定できる低压カスケードインパクターでは、吸引により約40mmHgまで気圧を低下させるため、大容量のポンプが必要である。このため、移動しやすいコンパクトな装置を作成することは現状では困難である。

2カ所で比較測定を実施した。1カ所(A点)

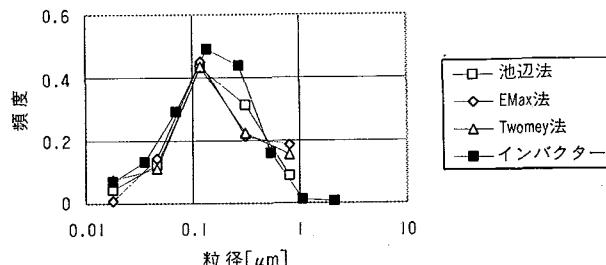


図4 ラドン娘核種粒径分布比較測定結果(A)
(一般環境)

は一般的の環境、もう1カ所(B点)は海拔1200mの高所である。

A点では、3回の測定を実施した。測定結果を図4に示す。個々の測定では、拡散バッテリーのデータのばらつきが大きく、比較の結果も満足できるものではなかったため、得られたデータを平均して求めた粒径分布とカスケードインパクターの結果(平均値)を比較した。池辺法によって得られた分布は比較的良く一致した。EMax法、Twomey法によって得られた結果は、分布の形は、0.2μm以上の粒径の大きいところで、やや異なっていた。

B点では2回の測定を実施した。測定結果を図5に示す。A点同様、2回の測定結果の平均値で比較すると、粒径が0.2μm前後のところでやや異なる分布を示し、平均粒径がやや小さい分布となった。B点は標高約1200mの高地にあり、周囲の大気圧は約850mmHgである。カスケードインパクターのカットオフ径(捕集効率が50%のときの粒径)は入口気圧の低下により、大きくなるといわれていること、また、逆に拡散バッテリーでは、結果として得られる粒径分布が小さくなることから、気圧の影響が理由のひとつと考えられる。

5.2 測定結果のまとめ

限られた条件での比較測定ではあるが、測定結果から、池辺法が最もカスケードインパクターの結果に近い分布を与えることが示唆された。模擬データを用いた数値実験からは条件のわずかな変化により収束しない場合も見られた。また、他のEMax法、Twomey法では、非常に良く似た分布が得られるが、池辺法とはやや異なる分布であった。これは、逐次近似の方法が異なることはもちろんであるが、収束条件にも依存していると考えられる。

今回用いた収束条件では、池辺法が比較的良い分布を与えており、まず、池辺法により計算し、

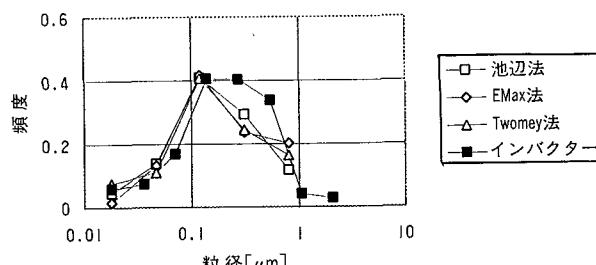


図5 ラドン娘核種粒径分布比較測定結果(B)
(海拔 1200m)

その結果により EMax 法あるいは Twomey 法で計算することを検討すればよいと考えられる。

6. おわりに

拡散バッテリーによるラドン娘核種粒径分布の測定方法について、その測定原理と実際の測定の概要について述べた。

装置全体をコンパクトに製作するにはスクリーンメッシュ型の拡散バッテリーによる測定が適当であり、文献調査等により、以下のような測定条件が適当であることを確認した。

- ① 1インチ当たりの網目数：250メッシュ
- ②スクリーンメッシュ枚数：最大146枚
- ③測定：6種類のスクリーンバッテリー
：サンプリングと同時に α 線測定
- ④透過曲線：3元指數関数にフィッティング
- ⑤粒径分布：池辺法による逐次近似

また、試作した測定器とカスケードインパクターとの比較測定では、概ね一致した測定結果が得られた。

今後は、エアロゾルに付着していないラドン娘核種（非付着成分）の測定について検討していく。

なお、カスケードインパクターとの比較測定では、ザルツブルグ大学物理・生物理学科スタイン

ホイスラー教授の協力を得た。ここに記して、謝意を表する。

参考文献

- 1) R.E.Hillamo, E.I.Kauppinen : "On the performance of the Berner low pressure impactor", *Aerosol Sci. and Tech.* 14, P33-47 (1991).
- 2) J.Kesten, G.Butterweck, et al. : "An online α -impactor for short-lived radon daughters", *Aerosol Sci. and Tech.* 18, P156-164 (1993).
- 3) 下道国、池辺幸正、他："大気中のラドン娘核種エアロゾルの測定—スクリーンバッテリ法による粒径分布測定—"、出典"統一 大気中のラドン族と環境放射能", P47 (1990).
- 4) Y.S.Cheng, H.C.Yeh : "Theory of a screen diffusion battery", *J. Aerosol Sci.* 11, P313-320 (1980).
- 5) A.Reinerking, J.Porstendorfer : "High-volume screen diffusion batteries and α -spectroscopy for measurement of the radon daughter activity size distributions in the environment", *J. Aerosol Sci.* 17, 5 P873-879 (1986).
- 6) Y.Ikebe : "Determination of the size distribution of polydisperse submicron aerosol by a response matrix method", *Pure Appl. Geophys.* 98, P197-212 (1972)
- 7) E.F.Maher, N.M.Laird : "EM algorithm reconstruction of particle size distributions from diffusion battery data", *J. Aerosol Sci.* 16, 6 P557-570 (1985).
- 8) S.Twomey : "Comparison of constrained linear inversion and iterative nonlinear algorithm applied to the indirect estimation of particle size distribution", *J. Computational Phys.* 18, P188-200 (1975).
- 9) K.Ito, F.Steinhardt : "Study on the measurement of radon progeny size distribution", *PNC TN6410 95-010* (1995).
- 10) 高橋幹二："応用エアロゾル学", 養賢堂 (1984).



検層深度誤差の原因と補正

技術小論

飯田義正 池田幸喜 鶴田忠彦
伊藤洋昭* 後藤淳一*

東濃地科学センター
*動燃カナダ法人

資料番号：98—5

Cause of Depth Error of Borehole Logging and its Correction

Yoshimasa Iida Koki Ikeda Tadahiko Tsuruta * Hiroaki Ito
* Junichi Goto
(Tono Geoscience Center, * PNC Exploration (Canada) Co.
Ltd.)

地質構造の詳細な解析に試錐孔内検層の情報が利用できる。しかし、通常、携帯用検層器の深度は、深度400～500m レベルで、数メートル程度ずれる。したがって、深度誤差の原因を知るとともに、できるだけ正確な検層深度補正を行う必要がある。

カナダ・アサバスカ盆地で実施した試錐について、試錐孔の全深度にわたるロッド内放射能検層の深度と試錐岩芯深度との詳細な対比を行った。その結果、検層深度のズレに共通する傾向のあることが分かり、これに関する経験式（2次の多項式）を求め、更正曲線とした。また、この式の物理的な意味づけを行い、深度誤差の原因を考察した。

1. はじめに

地質構造を詳細に解析するためには、地層を精密に対比する必要がある。試錐を用いた調査の場合、地層対比のためには、採取試料の観察記載データに加え、孔内検層の情報が利用できる。しかし、一般に、検層深度と試錐岩芯の深度が完全に一致することはない。石油探査用の大深度試錐の研究例では、試錐深度と検層深度のズレが、深度約3000mで、1.5～4mと報告されている¹⁾。

我々はカナダ・アサバスカ盆地東部クリスティーレイク地区でのウラン探査に従事しており、これまでに約70孔の放射能検層を実施した。ウラン探査の場合、試錐深度は数百メートルと石油探査に比べて浅いが、ケーブルの細い携帯用の検層器を用いるためか、深度400～600m レベルで、通常2m程度、最大6.2mのズレが認められた。ウラン鉱化帯については、岩芯の放射能測定と放射能検層データのマッチングが容易であり、これまで、鉱化帯部分だけの検層深度を補正していた。

昨年実施した試錐の一部で、ウラン鉱化を伴う逆断層が認められた。この断層の垂直変位量は約15mだが、上位の地層中では断層が分散し、個々

の断層の変位はより小さくなる傾向がある。断層はウラン鉱化帯の上方に続いている。試錐の全深度にわたって地質層準を詳細に解析・対比する必要が生じた。このため、できるだけ正確な検層深度補正を全深度にわたって行うことが現場の課題となった。

そこで、試錐孔の全深度にわたるロッド内放射能検層の深度と試錐岩芯深度との詳細な対比を行った。その結果、検層深度のズレに共通する傾向のあることが分かり、これに関する経験式（2次の多項式）を求め、更正曲線とした。また、この式の物理的な意味づけを行い、深度誤差の原因を考察したので報告する。

2. 試錐・検層条件および地質セッティング

今回検討した試錐は18孔である。ワイヤーライン工法で実施し、サイズ規格はN Q、孔径75.7mm、ロッド内径60.3mm、岩芯の直径47.6mmである。放射能検層には、EG & G Mount Sopris Instruments 社製のポータブル検層システム Model II (2500)を使用した。検層ケーブルは直径2.54mmの単針、スチール被覆のもので、重量は

300mあたり8.7kg。プローブの直径は32mm、重量は2.9kgである。検層はすべてロッド内で行い、深度0.1mごとに計測数と深度のデジタルデータを記録した。

なお、検層深度は、ワインチからケーブルが送り出される部分にある計測用ホイールの回転で計測する形式が使われている。

検層データはプローブの「下げ」と「上げ」時の両方とも測定しているが、今回の検討には、深度計測誤差が小さいと考えられる「下げ」時のデータを用いた。

放射能検層深度を岩芯深度（試錐深度）に対比するために、岩芯の放射能を詳しく計測し、異常値を示す部分について、カウント数と深度を記録した。この計測には携帯用シンチレーションカウンター（SPP-2）を用いた。

調査地区の地質は、表層部の10~70mが氷河成の堆積物、深度410~480mまでが堆積岩（アサバスカ層群マニトーフォールズ累層）、その下が結晶質基盤岩（变成堆積岩ないし花崗岩類）となっている。堆積岩は石英質砂岩および礫岩から構成され、下部ほど礫質となる傾向がある。

3. 深度対比の方法と結果

深度対比には次の2種類の方法を用いた。(1) 岩芯の放射線計測で記録された異常点の深度と検層ピークとを対比する方法（ピーク対比）、および(2) 明瞭な砂岩と礫岩の境界と検層図の高低の境界を対比する方法（地層境界対比）、の2つである。

ピーク対比を行う場合、計測値が小さくても明瞭にバックグラウンドから識別できるピークはあるべく捨てないように心がけた。砂岩・礫岩層中のこのような弱い放射能異常は、ウランないしトリウムを含む碎屑性の重鉱物が堆積過程でいくぶん濃集した、礫の多い層に対応する場合が多い。

地層境界対比については、砂岩層と礫岩層との間のシャープな境界を選択し、検層値が急激に変化するポイントに対比した。調査地区的砂岩は、礫岩に比べて分級度が高く、放射性のカリウムを含む粘土鉱物の含有率が低い。また、砂岩の方が放射性重鉱物の含有率も低い。このため、砂岩層の方が礫岩層よりも放射能が弱いため、放射能検層によって両者の境界が判別できる。

対比する場合、明瞭なものから合わせて、全体の傾向をつかんでいくことが重要であり、記録表と検層グラフを見比べながら、できるだけ綿密に作業を行った。地層境界対比は、大まかな傾向を把握する上で有効であった。なお、深度200m以浅

表1 深度対比の例（CB-58号孔）

対比方式	試錐 深度 (m)	岩芯 放射能 (cps)	検層 深度 (m)	検層 放射能 (cps)	深度 偏差 (m)	備考
ピーク	241.15	53	238.2	82	2.95	
ピーク	268.55	65	265.2	97	3.35	
ピーク	305.3	70	301.6	91	3.7	
境界	344.8		340.8		4.0	砂岩/礫岩
境界	345.2		341.2		4.0	砂岩/礫岩
境界	350.4		346.3		4.1	ユニット4/3
ピーク	376.4	110	372.0	211	4.4	
境界	386.8		382.4		4.4	ユニット2/1
ピーク	441.2	100	436.1	74	5.1	
ピーク	528.3	110	n/a		n/a	
ピーク	535.5	115	529.6	220	5.9	
ピーク	560.7	115	554.7	214	6.0	
ピーク	575.2	550	569.0	1433	6.2	

は、淘汰の良い砂岩が卓越しているため、明瞭なピークや地層境界が少なく、対比データが欠如する場合が多かった。

深度対比の結果の例を表1に掲げる。

4. 更正曲線の決定

検層深度を横軸、深度差（試錐深度から検層深度を引いたもの）を縦軸にとって、ある試錐孔の対比データをプロットしたものを、「検層深度偏差グラフ」と呼ぶことにする。岩芯の深度データは、おおむね0.3m程度の誤差を含むと考えられ、グラフ上のデータ点を、誤差を考慮にいれて適当にフィッティングした曲線（直線）が検層深度の更正曲線となる。

検層深度は、深度0ではズレがないように合わせており、深度400~500mレベルになると、前述のように、2m程度岩芯深度に対して浅めになる場合が多い。このことから、当初は、深度に対してズレが直線的に増加するものと予想し、回帰直線を求めて、更正曲線（直線）とすることを考えた。

この予想は、おおむね合っているように思われたが、実際に回帰直線を引くと、原点を通る直線とはならず、y軸（縦軸）のプラス側を通ることに気付いた（図1a）。いったんは、原点を通る条件を加えた回帰直線を採用することも考えたが（図1b）、うまくフィットせず（決定係数も減少した）、結局、一次式を使うのをあきらめて、原点を通り上に凸の二次曲線が適当だと判断した（図1c）。

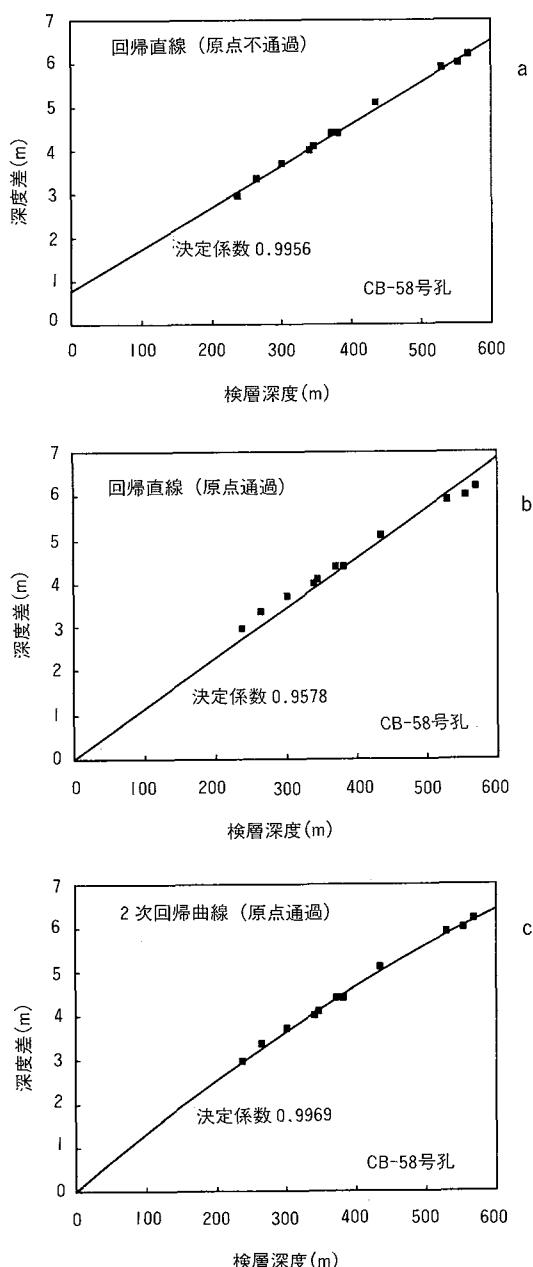


図1 検層深度更正曲線の例 (CB-58号孔)

この、更正曲線の一般式は、次のようになる。

$$y = ax^2 + bx$$

ただし、x は検層深度、y は試錐深度から検層深度を引いた値。a と b は更正係数で、a は負、b は正の数となる。

x^2 と x の 2 つを説明変数とし、y を従属変数として回帰分析して係数を決定する。なお、データが少なかったり、深度のズレが小さくて、強いて二次式としなくとも一次式で充分だと思われる場

表2 試錐孔ごとの検層深度更正係数

試錐番号	更正係数	更正係数
	a (E-6)	b
CB-54	-2.52	0.0046
CB-55	n/a	n/a
CB-56	-5.74	0.0074
CB-57	-3.15	0.0060
CB-58	-4.78	0.0136
CB-59	-2.56	0.0055
CB-60	-3.40	0.0057
CB-61	-2.09	0.0123
CB-62	-3.48	0.0144
CB-63	-3.63	0.0050
CB-64	-7.21	0.0081
CB-65	-2.23	0.0057
CB-66	-6.22	0.0071
CB-67	-6.12	0.0071
CB-68	-3.08	0.0057
CB-69	n/a	n/a
CB-70	-2.09	0.0054
CB-71	-4.22	0.0063

合には、原点を通る回帰直線($y = kx$ 、ただし k は定数)を更正曲線とした。このようにして求めた、各試錐孔の更正係数を表2に示す。また、検層深度偏差グラフの例を図2、図3に示す。

5. 検層深度偏差の物理モデル

上記経験式の一次の項の係数(b)は正の数となっている。すなわち、検層深度が一定の割合で短めに記録されていることになる。検層深度は検層器のケーブルの送り出しの部分についているホイ

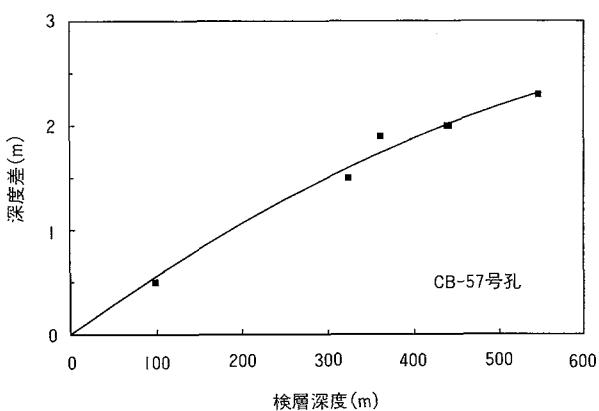


図2 検層深度更正曲線の例 (CB-57号孔)

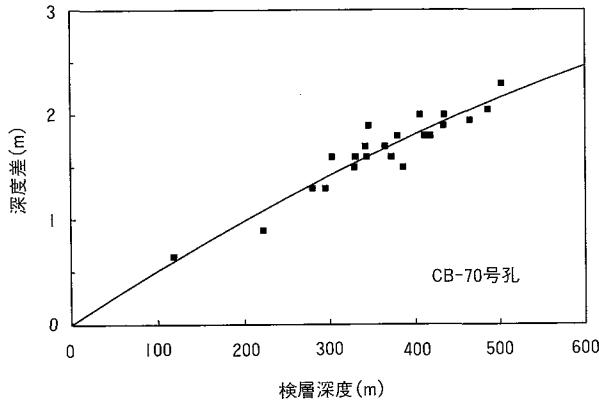


図3 検層深度更正曲線の例 (CB-70号孔)

ールの回転によって記録されている。もし、ケーブルに付着する泥や鉄屑などがホイールの溝にたまつてホイールの実効直径が長くなっていると、ホイールの一回転に対応するケーブルの長さが長くなり、計測深度は一定の率で短めに記録される。ケーブルに泥や水などが付着していてケーブルの断面径が大きくなっていた場合も同様である。また、もともと、ホイールがどれだけ規格どおり正確に作られていたかどうか、という問題もある。

表2のように係数bが倍以上変動することも、ホイール溝への屑の付着状態の変化で説明できる。このように考えると、係数bは深度計測ホイールの実効直径に関係すると推定してよさそうである。係数bの値は0.003~0.014の範囲にある。ホイールの半径は5 cm (2インチ) であり、これが0.5mm 違えば、1% (0.01) の偏差を生じる。これは、充分ありうることだと思われる。

一方、二次の項の係数(a)は必ず負の数になっている。これは、前記の一次の項とは逆センスであり、検層深度が増加するにしたがって、ケーブルが短縮していると解釈される。ここで重要なのは、ケーブルが、ポーリー通過時の長さに比べて孔内では短くなる、ということである。ポーリーを通過する時は、すでにケーブルに荷重がかかっているので、無荷重時よりも伸びた状態になっていると考えられる。

孔内では、ケーブルが孔壁 (ロッド壁) にくつついで擦れた状態になっているため、摩擦力によって荷重の一部が保持されて、ケーブルにかかる張力が減少し、ケーブルが多少短縮する(もどる)はずである。ただし、傾斜孔の場合でも、もし孔曲がりがなくて完全に直線状であれば、ケーブルのある点 (または単位長) について考えると、孔壁に垂直な方向の力はその部分だけの重さの傾斜

に垂直な成分であり、これは非常に小さい。したがって、これに比例する摩擦力はより小さいし、深度に関係なく一定のはずである。つまり、これではケーブル全体の短縮は非常に小さい上に、一次関数的にしか変化しないことになり、二次の項を説明できない。

では次に、孔曲がりのある場合を考えてみよう。ケーブルの任意の一点についてみると、ケーブル方向の引っ張り力に、その部分の孔の曲率を掛けたものが孔壁に垂直方向の力 (ケーブルを孔壁に押しつける力) であり、これに摩擦係数を掛けたものが摩擦力になる。これに、さらにフック定数を掛けたものがケーブルが (単位長あたりで) 縮む長さになる。つまり、ある点の短縮長は、荷重と孔の曲率に比例する。

荷重は、その点より下のケーブル (とプローブ) の重さに傾斜角 (鉛直方向から計った角度) のコサインを乗じたものだから、ケーブル長の一次式になる。したがって、ある点のケーブルの短縮は、その点より下のケーブル長の一次式で表される。さらに、これをケーブル全長について積分したもの、すなわちケーブル全長 (つまり深度) の二次式、が全体での短縮長となる (ただし、傾斜角や曲率、諸係数が全深度にわたって一定だと仮定した時)。したがって、係数aは、結局、曲率に比例することになると予想される。

このモデルの妥当性を調べるために、実際の孔データのうちデータ数が多く信頼性が高いものの平均曲率と係数aをグラフにプロットした (図

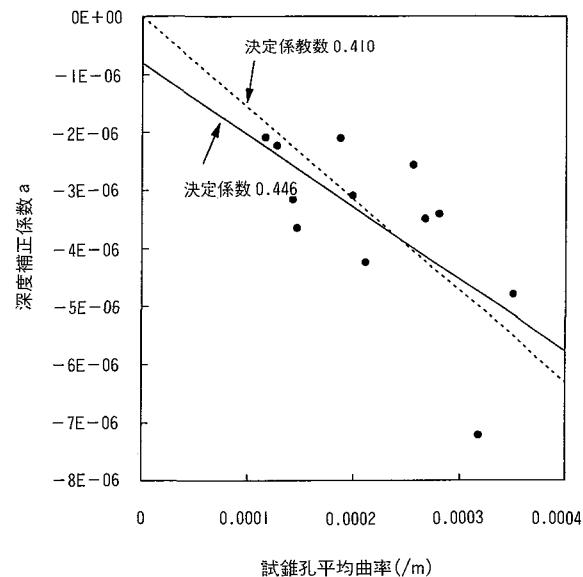


図4 試錐孔平均曲率と検層深度補正係数aの関係

4)。図4中の実線は通常の回帰直線、点線は原点通過の条件を加えた回帰直線である。モデルと整合するように両者の間に比例関係が認められる。点の数が少ないので決定的なことはいえないが、モデルはおおむね妥当なものと思われる。

6. おわりに

試錐孔検層の深度データは、試錐調査の最も基礎的な情報の一つである。しかし、その計測誤差に関しては、一般に、現場で対症療法的に対処されるだけで、その傾向や原因、対策などが検討されることはなかった。

今回、探査現場の必要から、検層深度の誤差を検討・調査した。その結果、検層深度のズレに共通する傾向のあることが分かり、これに関する経験式（2次の多項式）を求め、更正曲線とした。また、この式の物理的な意味づけを行い、深度誤差の原因を考察した。

なお、今回の調査のために検層深度と岩芯深度を詳細に対比したところ、2孔において、試錐岩芯の深度札の置き間違いによる岩芯深度の誤りを認めた。深度札はロッド1本の長さである3mごとに置かれるので、深度札の誤りは最小3mの深度誤差を生む。このミスはいずれも、岩石の変質・破断が著しく、岩芯の回収率が極めて低い部分において生じており、これに作業員のシフトエンジが重なったために発生したものであった。このように、検層深度のズレの傾向が把握されれば、逆に試錐深度のチェックにも利用できることを付記しておく。

参考文献

- 1) Humphreys, B., Lott, G.K.; An investigation into nuclear log responses of North Sea Jurassic sandstones using mineralogical analysis. Geol. Soc. Spec. Pub. 48, p.223-240 (1990).



炉心損傷時の融体ジェット - 冷却材相互作用に関する実験的研究

小西 賢介 磯崎三喜男 今堀 真司
D.J. Brear

大洗工学センター安全工学部

資料番号：98—6

Experimental Study on Molten Jet-Coolant Interactions
in Core Disruptive Accident.

Kensuke Konishi Mikio Isozaki Shinji Imahori
D.J. Brear
(Safety Engineering Division, O-arai Engineering Center)

高速炉の炉心損傷時に想定されるジェット状の融体と冷却材との相互作用を解明するために、模擬物質を用いた実験研究を行った。低融点合金の融体ジェットと水の相互作用試験の結果、両液体の温度の組み合わせに応じて現れる4種の基本相互作用モードを明らかとした。さらに、これらのモード間の違いを適切に説明できる最小膜沸騰温度モデルを作成し、その有効性を確認した。これらの知見を高速炉の酸化物燃料-ナトリウム系条件へ予備的に適用した結果、ジェット状に侵入しない、比較的穏やかな相互作用により、燃料の効果的な分散・冷却が達成される可能性が高いとの見通しを得た。

1. はじめに

高速増殖炉における仮想的な炉心損傷事故時の事象推移シナリオを明確化し、適切な安全評価手法を確立するためには、溶融炉心物質の移行・再配置挙動の解明と解析モデルの開発が必要である。特に高温の溶融物質（融体）が冷却材中に侵入する際の急速熱伝達に伴う相互作用(FCI: Fuel-Coolant Interactions)挙動を解明して、これによる機械的影響度と溶融物質の分散・冷却性を把握することは、炉心物質の炉容器内保持シナリオを構築する上できわめて重要である。そこで、大洗工学センターの高速炉安全工学室では、融体が冷却材中にジェット状に侵入するシナリオを想定し、その際のFCI挙動に着目した実験的研究^{1),2)}を実施している。

融体ジェットが冷却材中に侵入する際の挙動に関しては、FCI発生時の圧力や冷却材中でジェット形状を保つ距離（侵入距離）等が、従来よりの研究対象とされ、軽水炉を対象とした研究も含めて国内外で実験的・解析的研究が行われている。^{3)~6)}それは、FCI発生時の圧力による機械的負荷や高温溶融物質のアタックによる構造材への熱

的負荷が原子炉構造の健全性に対する影響の観点から重要と考えられるためである^{7)~9)}。

本研究では、高周波誘導加熱による融体挙動試験装置 MELT-II を用いて、様々な温度組み合わせで低融点合金ジェットを水中に侵入させ、相互作用挙動を観察する試験シリーズを実施して、相互作用の基本モードを明らかにするとともに、侵入距離が短く、溶融物質の効果的な分散・冷却が可能となる温度組み合わせ条件を見出し、この条件を記述するモデルを導出した。

2. 試験方法

使用した試験装置の概略を図1に示す。装置はヒータ容器部、ノズル部、反応容器部の3つの部分で構成される。ヒータ容器部（内径200mm 深さ400mm）は、試料を加熱し溶融させる部分で、プラグ引き抜きによる任意のタイミングでの試料の流下を実現する。ノズル部は、電気ヒータでの予熱により、溶融試料を均質な温度にて反応容器部にジェット状で導く。反応容器部は内断面280mm×280mm、高さ2180mmのポリカーボネート製の透明水槽であり、所定温度の温水が1300mm

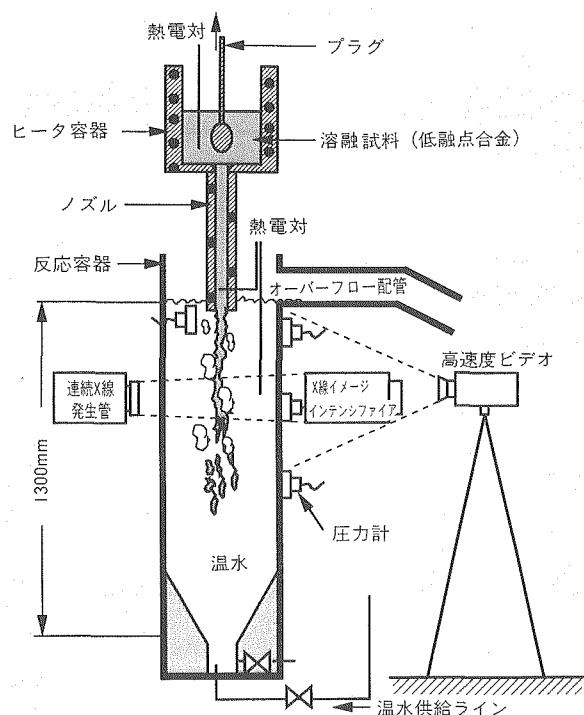


図1 試験装置

の水位に満たされる。水面位置には、オーバーフロー管が接続されており、融体の流入に伴う水位上昇分の水はこの管より排出される。

本試験では、試料として10~30kgの低融点合金Uアロイ（組成：Bi;60%, Sn;20%, In;20%、融点79°C）を用い、ヒータ容器内で所定の温度に加熱した後、ノズルからジェット状に自由落下させ、水との相互作用挙動を高速度ビデオ（2000又は3000フレーム/秒）および高速度X線撮影にて可視化収録した。水槽内には、ノズル近傍及び水槽壁面に4個の半導体圧力計を設置して、FCI発生時の圧力および発生の場所を測定した。試験パラメータは、低融点合金の初期温度（92~614°C）、水の初期温度（8~97°C）、融体ジェット径に対応するノズルの内径（内径5.8、10、14mmの3通り）である。試験はいずれも大気圧下で実施し、侵入時のジェット流速はノズル直径に依存して2.1~2.7m/秒である。ノズル先端部は水面下10mmまで侵入させて、非凝縮性気体の巻き込みや液面の乱れを防止している。

3. 試験成果の概要

3. 1. 基本的なFCI挙動

試験の結果、低融点合金ジェットと水との相互作用挙動は両者の初期温度の組み合わせに応じて

異なること、設定したノズル直径の範囲ではノズル直径の違いによる有意な挙動の変化はないことが明らかになった。相互作用挙動をジェット状での侵入距離の長さ、FCIに関与する融体の量およびFCIの発生位置の違いに基づいて分類することにより、下記のような4種の典型的なFCIモード（ここではモードA~Dと呼ぶ）が発生することを見出した。

① モードA

融体試料の初期温度が低く（200~300°C）、冷却材のサブクール度（沸点からの過冷度）が小さい（~10°C）場合のモードであり、融体ジェットは激しい相互作用を起こすことなく、冷却材中に安定かつ連続的に侵入する挙動が見られた。ジェットの周囲では冷却材の沸騰に伴う蒸気泡の生成・上昇・凝縮が継続的に観察された。

② モードB

融体ジェットの初期温度がモードAの場合よりも高く、かつ次のモードCよりも低い350~450°Cの限定された条件で発生するモードである。融体ジェットが侵入する過程で、ジェット全体に伝播する激しい相互作用が間欠的（約0.5~1.5秒の周期）に発生する挙動が観察された。個々のFCI挙動においては、融体ジェットの侵入の後、FCIのトリガー（引き金）となるイベントの発生、相互作用の急速な伝播とジェット全体の破碎と融体の分散、ジェット状での再侵入の過程を繰り返す挙動が現れた。個々のFCI発生時には、水面直下から水深の深い位置に至るまで圧力パルス信号（半値幅10ミリ秒オーダー、ピーク値0.1MPa程度）が観察されたことから、ジェットに含まれる融体全体が一齊に相互作用に関与したものと推定される。

③ モードC

融体ジェットの初期温度がモードBよりも高い条件で観察された。融体は安定かつ連続的にジェット状に侵入し、有意なFCI現象は生じなかった。

④ モードD

冷却材のサブクール度が20~40°Cで、比較的大きい場合に観察された。融体は、ノズルから冷却材中に侵入する際に少量ずつ冷却材と相互作用し、ジェット状に侵入することはない。FCIによる圧力パルスは水面近傍の圧力計においてのみ観測され、その発生周期は、モードBの場合に比べて短く、0.01秒オーダーであった。すなわち、このモードでは融体は冷却材への侵入直後から少量ずつ小規模なFCIを連続的に起こす結果、ジェット状に侵入しないまま連続的かつ効果的に微粒化・分散することになる。

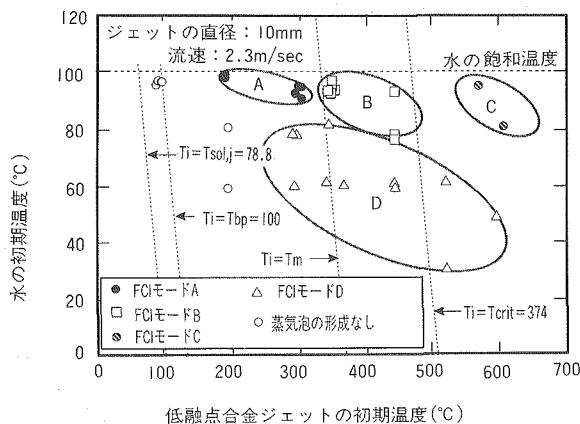


図2 FCI挙動基本モードの温度条件マップ

これらの4種の相互作用モードが現れる温度条件の範囲を図2に、各モードの映像例を図3(A)～(D)に示す。図2中の破線は、瞬時接触界面温度 T_i （半無限長の2媒質が瞬時接触した時の界面温度、相変化無視）と各物性値（試料の融点 $T_{sol,j}$ 、冷却材の沸点 T_{bp} 、冷却材の臨界温度 T_{crit} ）の関係を目安として示したものである。

$$T_i = \frac{T_h \sqrt{k_h \rho_h c_h} + T_c \sqrt{k_c \rho_c c_c}}{\sqrt{k_h \rho_h c_h} + \sqrt{k_c \rho_c c_c}} \quad (1)$$

ここで、 T_h は高温媒質の初期温度、 T_c は低温媒質の初期温度を表し、 k 、 ρ および c は、各々熱伝導度、密度および比熱を表す。融体の固化が支配的な領域は含まれていないものの、試験条件として設定した温度範囲は十分広く、結果として得られた上記4種のモードは、種々の物質の組合せにおける基本的なFCIモードを網羅している。

3. 2. メカニズムの解釈

上記のような各FCI挙動の観察より、これらのモードの違いは融体と冷却材の温度条件の違いに起因し、特に冷却材の相変化（沸騰）の形態や融体ジェットの表面に形成される蒸気膜の安定性に依存して現れることが推定された。そこで、融体ジェットから冷却材への熱伝達のメカニズムに着目した蒸気膜形成モデルを検討した。

(1) 過熱限界温度

加熱面（融体ジェットに相当）に接した液体（冷却材）の表面が液体のままで存在できる最高温度（過熱限界温度） T_m は、理論的に状態方程式から $27/32 T_{crit}$ （ T_{crit} は液体の臨界温度）と表せる¹⁰⁾。瞬時接触界面温度がこの温度となる条件

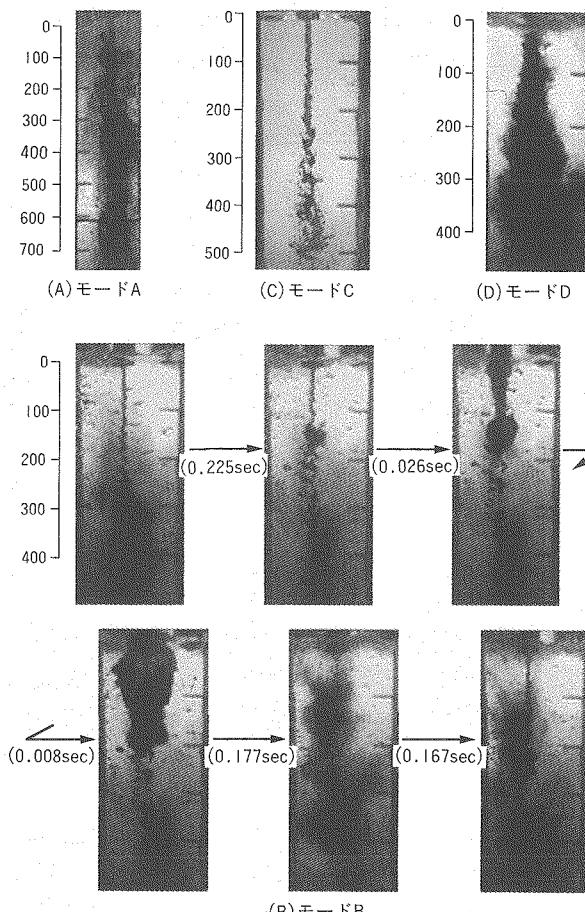


図3 試験で観察された基本的FCI挙動モード

$$T_i = T_m = \frac{27}{32} T_{crit} \quad (2)$$

を図2中に破線で示した。界面温度がこれを超えると冷却材は必ず界面で蒸発し、加熱面に蒸気膜が形成されることになる。モードBおよびCは概ねこの破線よりも温度が高い領域に現れており、このことからも、これらのモードにおいては融体ジェットが冷却材に接触した瞬間に冷却材の蒸気膜による融体ジェットのブランケティングが起きていることが理解された。

(2) 最小膜沸騰温度モデル

実際の液体では過熱面温度 T_h が過熱限界温度よりも低い場合にも蒸気膜の形成は生じることが実験的に知られており、飽和状態（飽和温度 T_{sat} ）の液体については、経験的に次式のように膜沸騰の起きる加熱面の下限温度（最小膜沸騰温度）が得られている。

$$T_{min,sat} = C(T_m - T_{sat}) + T_{sat} \quad (3)$$

ここで、C は経験的パラメータであり、Olek¹¹⁾によれば水の場合には 0.64、ナトリウムの場合には 0.6 程度の値となることが分かっている。

一方、冷却材がサブクールされている場合には、蒸気膜を介した熱伝達の効果を併せて考慮する必要がある。すなわち、熱伝導と輻射により融体から蒸気/冷却材境界に供給される熱量が境界から冷却材バルクへの熱移行により除去される熱量よりも大きい場合においてのみ、蒸気膜は維持され得る。この関係は次式で表される。

$$\left(\frac{D}{\delta} + Nu_r\right) \Delta T_s > \gamma Nu_c \Delta T_{sub} \quad (4)$$

ここでは、蒸気膜での輻射熱伝達のヌッセルト数を Nu_r で、代表長さを D で、蒸気膜の厚さを δ で、液体/蒸気の熱伝導度比を γ で、冷却材への熱伝達に関するヌッセルト数を Nu_c で表す。また、 ΔT_{sub} は冷却材のサブクール度 ($T_{sat}-T_c$) を、 ΔT_s は蒸気膜を隔てた加熱面と冷却材の温度差 (T_h-T_{sat}) を表す。(4)式から、冷却材のサブクール度が高いほど冷却材への熱移行（損失）が大きくなるため、蒸気膜を維持するためには加熱面の温度は高くなければならないことが分かる。一方、蒸気膜が薄くなった場合にも、界面の乱れ等により膜沸騰が維持されなくなることが予想される。そこで、蒸気膜が維持されるための最小膜厚さ δ_{min} を導入して、(3)、(4)式の組み合わせから、次式で表される一般化された最小膜沸騰温度モデルを得た。

$$T_{min} = C(T_m - T_{sat}) + T_{sat} + \frac{\gamma Nu_c \Delta T_{sub}}{\frac{D}{\delta_{min}} + Nu_r} \quad (5)$$

上式において、右辺第 3 項は冷却材のサブクール度により、最小膜沸騰温度が上がる効果があることを表している。実験的に決めるパラメータは C および δ_{min} の 2 つのみであり、本研究では Dhir と Purohit¹²⁾ の加熱金属球を水中に投入して蒸気膜維持条件を調べた実験のデータをフィッティングして評価した。図 4 に示すように、推奨値として $C=0.6$ および $\delta_{min}=100\mu m$ を用いた場合に実験データとの良好な一致を得た。また、この結果は、Farahat¹³⁾によるナトリウムを用いた同種の実験の評価にも適用し、その適用性を確認している。

(3) モデルの適用結果と考察

上記のように、(5)式のフィッティングは、金属球-水系の実験を基に行ったものであるが、ここではこれを本研究の融体ジェット-水の液液系への適用を試みる。(5)式から得られる最小膜沸騰温度が融体ジェットの初期温度と等しくなる条件を、

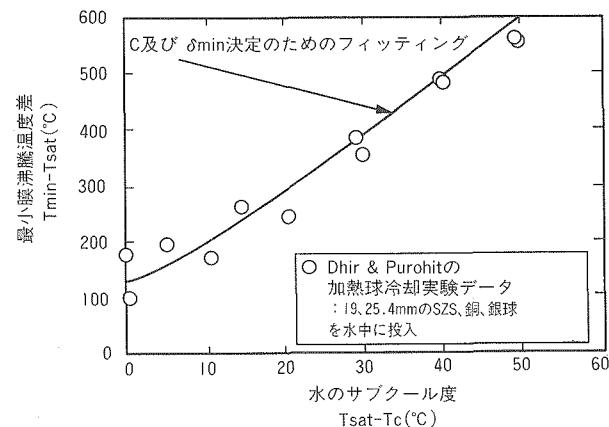


図 4 パラメータ C および δ_{min} の決定

図 5（プロットは図 2 と同じ）上に実線で示した。この実線より上の斜線領域が、最小膜沸騰温度モデルにより蒸気膜の維持が推定される領域であり、試験で観察された FCI モードのうち A, B および C がここに含まれる。また、モード D は、安定な蒸気膜が生じない条件で現れることが理解される。

モード A の領域は、蒸気膜が形成されていると予想されるが、完全な蒸気膜は安定には存在できない可能性のある領域である。このことは、菊池等¹⁴⁾が指摘しているように、蒸気膜を隔てて部分的に加熱面（溶融試料表面）と冷却材が接触する場合に相当するものと理解される。

モード B では、融体ジェットの冷却材への侵入時には蒸気膜がブランケッティングし、ジェット状で侵入するが、ある深さまで侵入した所で局所的な FCI が発生し、これがトリガーとなってジェ

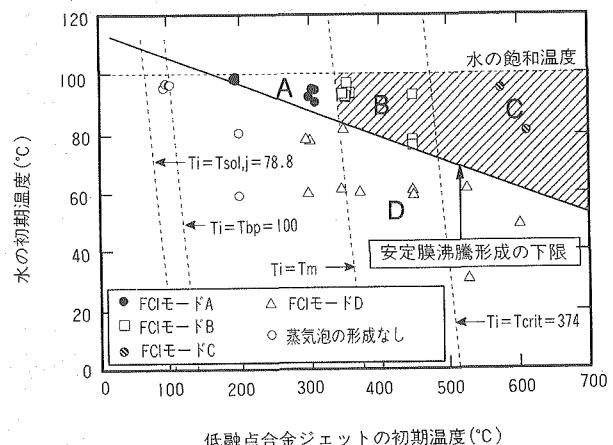


図 5 最小膜沸騰温度ジェットの初期温度 (°C)

ット長全体にわたって一斉にFCIが発生している。これは蒸気膜を介しての熱伝達によりジェット表面が冷却され、(5)式の膜沸騰を維持する条件が満たされなくなり、局所的に蒸気膜が崩壊し、液液接触によるFCIが誘起されたものと考えられる。このことは、ジェットの初期温度が高い場合の方がトリガーとなるFCIの発生位置が深くなっていることからも裏付けられる。局所的な液液接触が生じると急速な熱伝達による圧力の発生が短時間で伝播し、ジェット全長にわたっての蒸気膜の崩壊と一斉のFCIを引き起こすことになる。

モードCでは、融体ジェットの周りに形成される蒸気膜が十分安定かつ厚いため、モードBで生じたような蒸気膜の崩壊が生じないまま、やがてジェット自体の分散が生じる。分散された融体は冷却材中で徐々に冷却され、一斉のFCIを誘発するようなトリガー現象は生じない。

モードDでは、融体が冷却材中に侵入した瞬間から安定な蒸気膜が生成することではなく、液液接觸による高い熱伝達によりFCIが連続的に生じる。融体のジェット状の侵入ではなく、個々のFCIには少量の融体のみが寄与する小規模な相互作用である。このモードでは、融体は機械的影響を及ぼすような激しいFCIを生じることはなく、冷却材中で効果的に分散・冷却されることになる。

以上4種のFCIモードに対する分析・考察の結果、ある程度の融体の質量の関与を伴う激しいFCIが発生するのは、きわめて限定された熱的条件の範囲であるとの重要な結果が得られた。また、研究で作成した最小膜沸騰温度モデルが、融体ジェット-冷却材系に適用できること、冷却材のサブクール度が大きい場合には、激しいFCIを生じることなく融体の効果的な分散・冷却が達成される可能性が高いなどの見通しが得られた。

4. 酸化物燃料-ナトリウム系への予備的適用

ここでは、前節までの検討結果を高速増殖炉の炉心物質系に予備的な外挿を行う。すなわち、制御棒案内管相当の直径100mmの溶融燃料がナトリウム中へ侵入し相互作用する場合を想定し、(5)式の最小膜沸騰温度モデルを適用した結果を図6に示す。高速炉の炉心損傷時に想定される温度条件は、斜線で示した膜沸騰形成領域には含まれず

(すなわち、激しいFCIを生じるモードBとはならない)、圧力発生が小規模かつ効果的分散・冷却と早期の固化が達成される可能性が高いこと(すなわち、モードD)が推定される。水を用いた低温模擬実験結果の高温ナトリウム条件への適用性

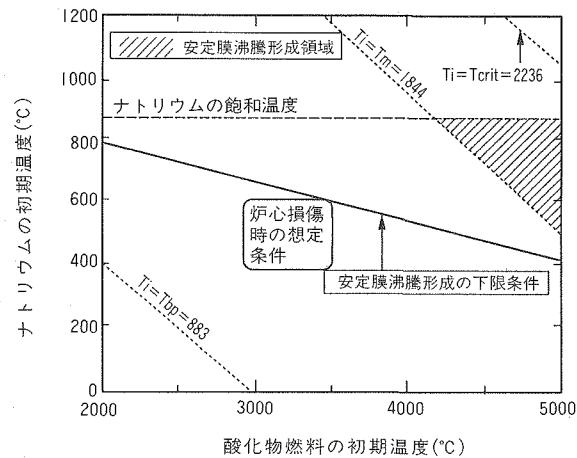


図6 燃料-ナトリウム系への予備的適用結果

については、今後さらに確認のための研究が必要となるが、このことは、事故後の炉容器内での炉心物質の保持・安定冷却を達成する上できわめて有用な結果である。

5. おわりに

低融点合金をジェット状に水中に注入する試験シリーズを実施し、様々な温度の組み合わせで現れるFCI挙動を基本的な4種のモードに分類した。さらに一般性のある最小膜沸騰温度モデルによるモード分類の解釈を行って適用性を確認した。これらの結果を、高速炉の炉心損傷時に想定される条件へ予備的に外挿した結果、圧力発生が小規模かつ効果的分散・冷却と早期の固化が達成されるモードとなる可能性の高いことが推定された。これらは、事故後の炉容器内での炉心物質の保持、安定冷却を達成する上できわめて有用な結果である。

今後は、モデルの一般性(ナトリウム条件への適用性)を確認するとともに、同モデルを組み込んだ安全解析コード(SIMMER-III)¹⁵⁾による実験解析等を通じて、より定量的な知見を蓄積していく。

参考文献

- 1) M. Saito, K. Sato, et al. : "Experimental Study on Penetration Behaviors of a Water jet into Freon-11 and Liquid Nitrogen", Proc. of ANS 1988 National Heat Transfer Conf., Houston, Texas(1988).
- 2) S. Kondo, K. Konishi, et al. : "Experimental Study on Simulated Molten Jet-Coolant Interactions", Nucl. Eng. Des., 155 (1995).
- 3) M. Epstein and H.K. Fauske : "Steam Film Instability and the Mixing of Core-melt Jets and Water", Proc. of ANS 1985 National Heat Transfer Conf., Denver, Colorado(1985).

- 4) J.P. Schneider, M.J. Marciak, et al. : "Breakup of Metal Jets Penetrating a Volatile Liquid", Proc. of the 5th Int. Top. Mtg. on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-5) Salt Lake City, Utah (1992).
- 5) S.K. Wang, C.A. Blomquist, et al. : "Modeling of Thermal and Hydrodynamic Aspects of Molten Jet/Water Interactions", Proc. of ANS 1988 National Heat Transfer Conf., Philadelphia, Pennsylvania(1988).
- 6) D. Magallon, et al. : "Pouring of 100-kg-scale Molten UO₂ into Sodium", *Nuclear Technology*, 98(1992).
- 7) M. Saito, K. Sato, et al. : "Melting attack of solid plates by a high temperature liquid jet - Effect of crust formation", *Nucl. Eng. Des.*, 121(1990).
- 8) K. Sato, A. Furutani, et al. : "Melting attack of solid plates by a high temperature liquid jet [II] - Erosion behavior by a molten metal jet", *Nucl. Eng. Des.*, 132 (1991).
- 9) 佐藤浩司, 磯崎三喜男, 他 : "高温溶融ジェットによる構造材の溶融浸食挙動に関する実験的研究", 動燃技報, 78 (1991).
- 10) P. Spiegler, J. Hapenfeld, et al. : "Onset of stable film boiling and the foam limit", *Int. J. Heat Mass Transfer*, 6(1963).
- 11) S. Olek et al. : "A simple correlation for the minimum film boiling temperature", *J. Heat Transfer*, 113(1991).
- 12) V.K. Dhir and G.P. Purohit : "Subcooled film-boiling heat transfer from spheres", *Nucl. Eng. Des.*, 47(1978).
- 13) M.M.K. Farahat and D.T. Eggen : "Pool boiling in subcooled sodium at atmospheric pressure", *Nucl. Sci. Eng.*, 53(1975).
- 14) Y. Kikuchi et al. : "Measurement of liquid-solid contact in film boiling", *Int. J. Heat Mass Transfer*, 35, 6 (1992).
- 15) 近藤悟, 飛田吉春, 他 : "高速炉の核熱流動安全解析コードSIMMER-IIIの開発", 動燃技報, 89(1994).



顆粒粉末の製造に向けた噴霧熱分解法の開発

加藤 良幸 川瀬 啓一 高橋 芳晴
都所 昭雄

東海事業所核燃料技術開発部

資料番号：98-7

Development of Granular Powder Manufacturing Technology by Spray Pyrolysis

Yoshiyuki Katoh Keiichi Kawase Yoshiharu Takahashi
Akio Todokoro
(Nuclear Fuel Technology Development Division, Tokai Works)

MOX 燃料製造工程における原料粉末の取扱性向上や工程改良（工程短縮および簡素化）を目的として、顆粒粉末の製造技術開発に取り組んでいる。顆粒粉末は、粒子形状が球状であるため流動性に優れ、粒径制御が容易であることから、粉末飛散や装置内への滞留等を低減することが可能である。さらに、粉末物性の制御が容易であるため、安定した原料粉末を供給することが可能である。顆粒粉末を製造するプロセスとして、噴霧熱分解法に注目し、基礎的な試験の実施およびプロセス成立性等の評価を進めている。今回の試験結果より、噴霧熱分解法で流動性に優れた球状粒子を生成でき、これを用いて高密度ペレット燃料製造を行えることを確認し、燃料製造プロセスに適用できる見通しが得られた。

1. はじめに

現在、再処理工程より回収した硝酸プルトニウム溶液は、転換工程において、硝酸ウラニル溶液と混合したのちマイクロ波加熱直接脱硝法(MH法)により MOX (Pu/U=1) 粉末に転換し、燃料ペレット製造用の原料粉末として供給している。この方法で得られる MOX 粉末は微細な粉末で活性度の高い特性を有している。MH 法は内部加熱による熱分解反応で粉末を生成するため、活性度等の粉末物性値を任意値に制御することが難しく、ペレット製造にあっては前工程において安定化処理（熱処理）を行っているのが現状である。さらに、微細な粉末であるために燃料製造工程における粉末の飛散等が問題となっている。

そのため、これらの現行 MOX 燃料製造プロセスの高度化に向けた原料粉末の製造を目的とした技術改良が重要な項目の 1 つとなっている。

技術改良として、原料粉末の物性の安定化、流動性等の粉末取扱性の向上が可能であると考えられる顆粒粉末に着目した新しい転換技術の開発を進めている。この顆粒粉末の製造方法には、大き

く分けて湿式法(主にゾル-ゲル法)と乾式法の 2 つの方法がある。

この顆粒粉末製造法のうち二次廃棄物の発生が少なく、工程も比較的単純で、しかも直接ペレット成形の可能な粉末が生成できる、乾式法の 1 つである噴霧熱分解法に着目して技術開発を進めてきた。

本報では、硝酸セリウム溶液を用いたコールド試験および硝酸ウラニル溶液を用いた試験で得られた知見について報告を行う。

2. 噴霧熱分解法について

噴霧熱分解法の特徴は、液滴径や加熱条件等を制御することにより生成する粉末の形状、物性を制御できる可能性のあることである。このときの加熱条件制御はヒータ等を用いるため任意の設定が可能である。また、溶液の状態で燃料組成の調整を行うことで多成分系でも均一な粉末を生成できる。また、反応化学的には単なる熱分解法であるため工程が単純で遠隔自動化が容易である。

なお、動燃事業団においてはマイナーアクチニド

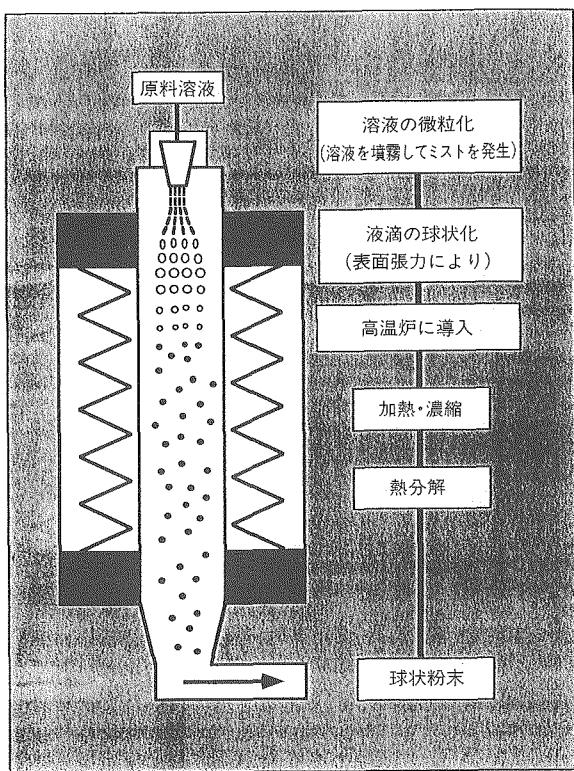


図1 噴霧熱分解法の原理

元素を燃料としてリサイクルする、いわゆる先進的核燃料リサイクルに関する技術開発を進めているが、これを行うためには完全遠隔操作による燃料製造技術の開発等が必要であり、本法はそれを解決できる可能性を有している。

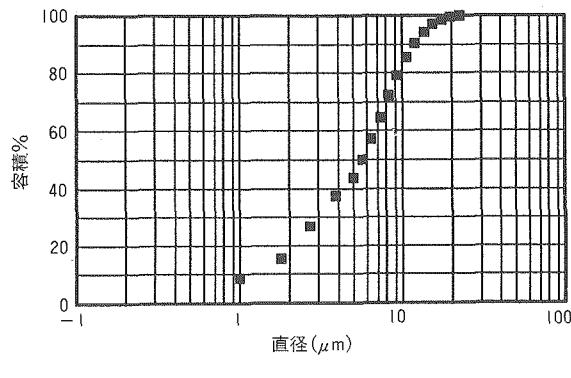
ここで、噴霧熱分解法の原理を図1を用いて説明する。まず、原料溶液を噴霧ノズルにより微粒化して液滴を生成させ、表面張力により液滴を球状化する。その状態で高温の熱分解炉に導入し、瞬間に加熱・濃縮を行い、最終的に硝酸塩の熱分解まで行って、酸化物の粉末として回収する。

この方法において、液滴を発生させる方法としては、一般的に遠心式、圧力ノズル式、二流体ノズル式、振動ノズル式の4つがあるが、本検討では噴霧量等の条件が小規模の試験に適している二流体ノズル式をコールド試験に、さらにビーカースケールの試験に適した振動ノズル式をウラン試験に用いた。

3. 噴霧熱分解試験

3.1 コールド試験

コールド試験に使用した二流体ノズルの構造、生成液滴径分布を図2に示す。試験は、熱分解炉温度、溶液中の金属濃度、硝酸濃度をパラメータ



生成液滴径分布（水噴霧）

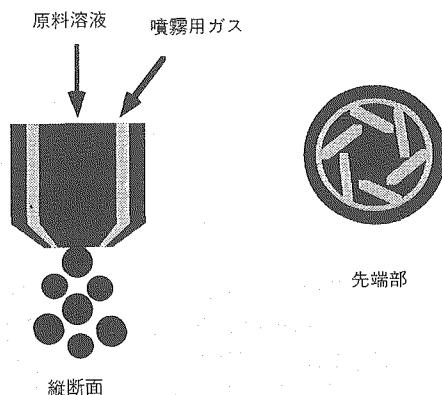
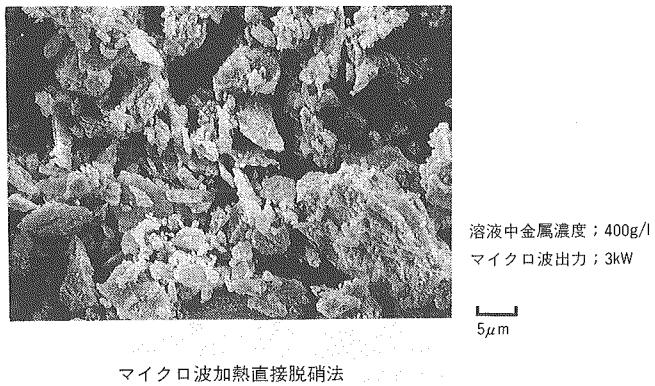


図2 二流体ノズル

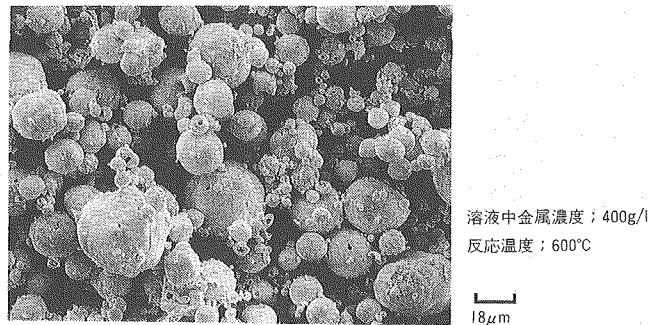
とし、噴霧条件を一定にして実施した。試験には、溶液中の化学的形態が硝酸ウラニル等と類似している硝酸セリウムを模擬物質として用いた。生成した顆粒粉末は、走査型電子顕微鏡(SEM)による粒子形状および表面状態観察、遠心沈降法およびレーザ散乱回折法による平均粒子径、さらに、パウダーテスターによるカサ・タップ密度、安息角等の粉末物性を測定した。さらにそれらの値を評価解析し、試験パラメータが生成する粉末に与える影響を調べた。

本法(400g/l, 600°C)およびMH法(400g/l, 3kW)により、生成した酸化セリウム粉末のSEM写真を写真1に示す。両者を比較すると、MH法の粉末は形状が複雑なものとなっており一次粒子が1μm程度のものが大部分を占めているのに対し、本方法で生成した粉末は球状をしており数μm~50μm程度の分布をもち、平均で20μm程度の粒子であった。さらに拡大して粒子表面を観察したところ、蒸発や熱分解の過程で内部からの揮発成分の放出によって形成されたと考えられる孔やクラックがみられた。

酸化セリウム粉末の粒度分布の測定結果を図3



マイクロ波加熱直接脱硝法



噴霧熱分解法(二流体ノズル)

写真1 生成した酸化セリウム粉末

に、平均粒子径の溶液中金属濃度との相関を図4に示す。平均粒子径では、体積基準で50%粒子径で比較をするとMH法で生成した粉末は $1.5\text{ }\mu\text{m}$ 程度であるのに対し、本方法で生成した粉末は $20\text{ }\mu\text{m}$ となっており、大粒径側にシフトしている。また、粒度分布の幅についてもMH法に比べて狭くなっていることを確認した。溶液中の金属濃度と平

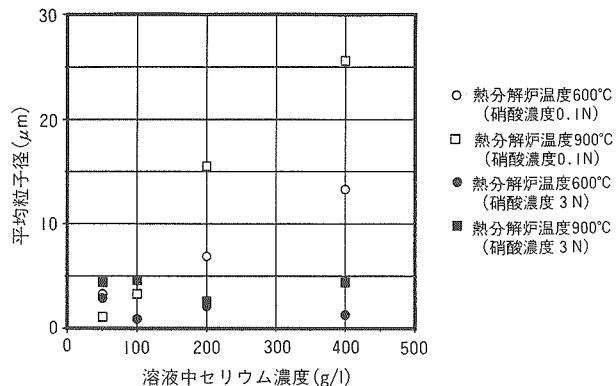


図4 溶液条件による平均粒子径変化

均粒子径の関係では、硝酸濃度が低い場合には金属濃度が上昇するにしたがって平均粒子径も大きくなる傾向を確認したが、硝酸濃度が3Nの場合にはその傾向は確認されず、どの金属濃度でも数 μm の粒子径であった。このような違いが生じた原因については、現状では反応の素過程の解明ができておらず、今後の試験を実施していく上で粉末の物性を制御する条件選定のためにも解明してゆく課題である。

次に粉末の流動性の指標である圧縮度、安息角、スパチュラ角を比較したものを表1に示す。これらの指標の値が小さいほど（流動性指数は、大きくなる）流動性に優れた粉末ということができ、MH法の粉末に比べて噴霧熱分解法で生成した粉末の方が流動性に優れていることを確認した。

3.2 ウラン試験

コールド試験のデータをもとにウラン試験を行った。ウラン試験に使用した振動ノズルの構造、生成液滴径分布を図5に示す。試験はコールド試験時と同様に熱分解炉温度、溶液中のウラン金属濃度をパラメータとして実施した。生成した顆粒

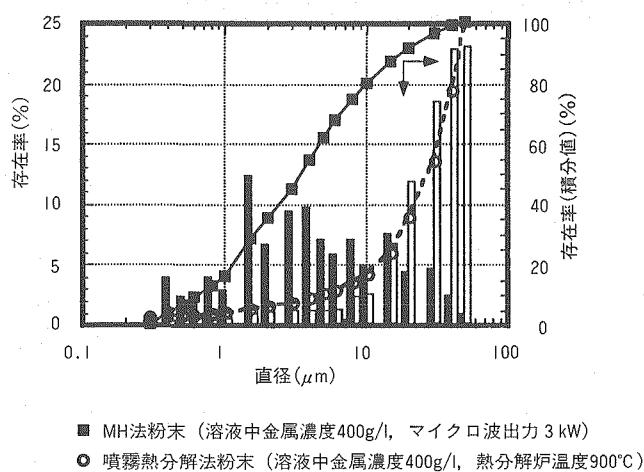


図3 酸化セリウム粉末の粒度分布

表1 酸化セリウム粉末物性の比較

脱硝条件等		緩み見掛け比重 (g/ml)	固め見掛け比重 (g/ml)	圧縮度 (%)	安息角 (度)	スパチュラ角 (度)	流動性指數
MH法	ON-200g/l (ボールミル5hr)	0.7	1.3	49	50	63	50
噴霧熱分解法	0.1N-200g/l 900°C	1.2	1.8	34	42	59	61
	1N-200g/l 900°C	1.2	1.8	34	53	57	58
	3N-200g/l 900°C	1.1	1.5	23	41	55	69

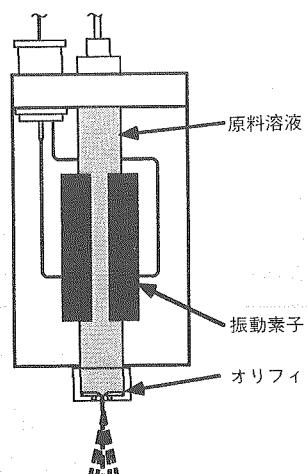
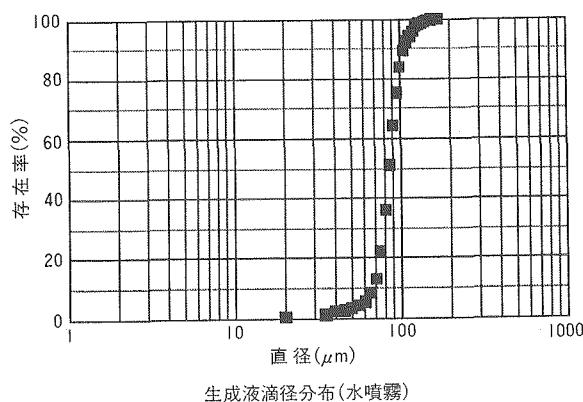


図 5 振動ノズル

粉末は、SEMによる外観観察等の粉末物性評価を行い、試験パラメータが生成する粉末に与える影響を調べた。

生成した酸化ウラン粉末のSEM写真を写真2に、粒度分布の測定結果を図6に示す。これをMH法の粉末と比較すると、本法で生成した粉末

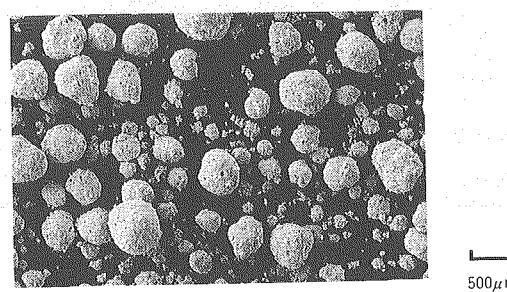
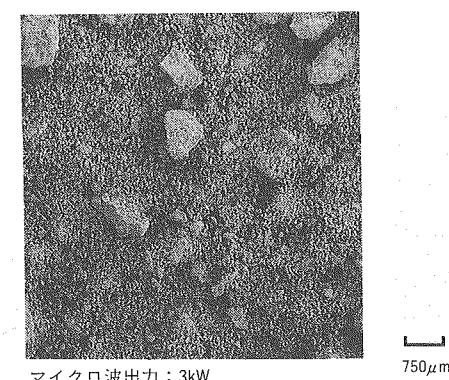


写真2 生成した酸化ウラン粉末

は、比較的粒度が均一に生成しており、微細粉末の発生もごく少量であることが分かる。また、本法で生成した粉末の粒度分布は、粒子径が10μm～400μm程度の分布となり、平均で100μm程度の粒子が生成していることを確認した。さらに、粒子表面を観察すると、本法で生成した粉末は、蒸発や熱分解の過程で内部からの揮発成分の放出によって形成されたと考えられる孔やクラックが

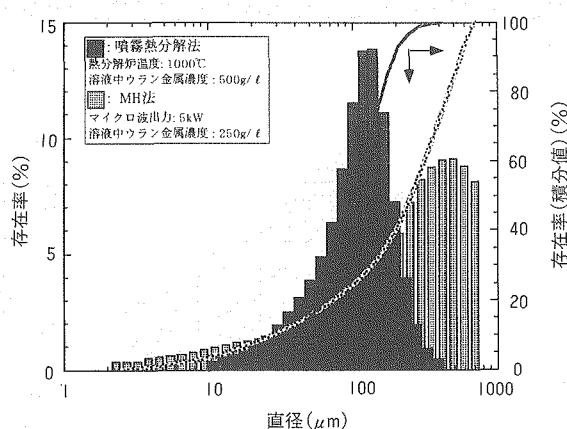


図 6 酸化ウラン粉末の粒度分布

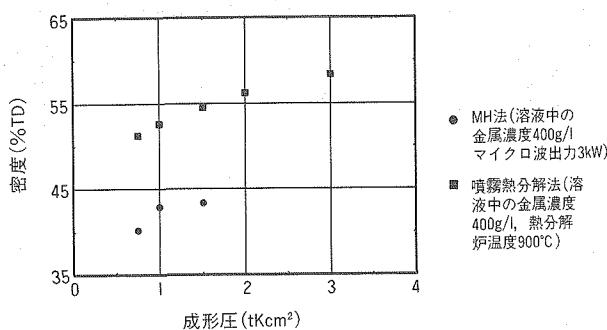


図 7 酸化セリウム粉末の圧粉体密度

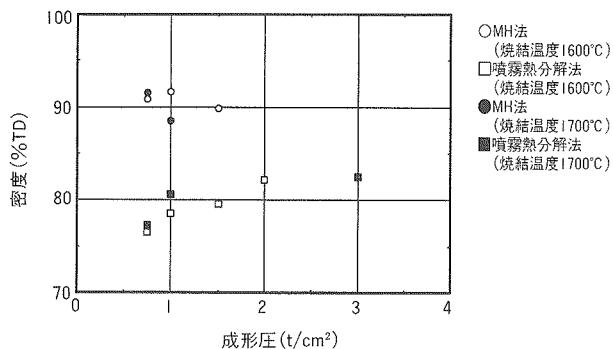


図8 酸化セリウム粉末の焼結密度

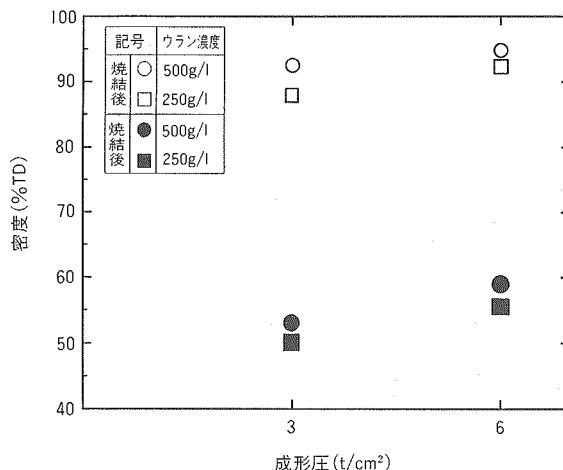


図9 酸化ウランペレットの密度

みられる。

4. 成形試験

4.1 コールド試験

噴霧熱分解法で生成した酸化セリウム粉末を用いてペレット成形性評価を行い、MH法で生成したものと比較した。成形条件は、ハンドプレスを用いて成形圧を0.7~3 t/cm²で行い、焼結条件は1600、1700°Cで2.5時間として、密度の変化を調査した。まず、成形圧と圧粉体密度の関係を図7に示す。MH法粉末と比較した場合、噴霧熱分解法で生成した粉末を用いた方が同一圧力で圧粉体密度が10%程度高くなっている、成形圧の上昇と共に密度が上昇した。つぎに、焼結後の密度と成形圧の関係を図8に示す。MH法粉末の場合、成形圧および焼結温度に依存せず90%程度の焼結密度が得られるが、噴霧熱分解法粉末を用いた場合、焼結密度は成形圧に正の相関をもって増加する傾向がみられた。この要因は、MH法粉末に比べて噴霧熱分解法粉末は粒子径が大きく、焼結速度が遅いためであると考える。焼結前後のペレットの外観写真を写真3に示す。このペレットの製造条件は、成形圧が2t/cm²で焼結温度が1700°Cのものである。ペレットの外観上に問題となるようなクラック等の発生はみられなかった。

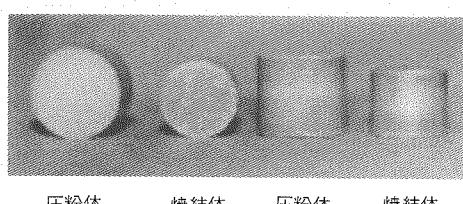


写真3 酸化セリウムペレット外観写真

4.2 ウラン試験

各種の脱硝条件による噴霧熱分解法で生成した酸化ウラン粉末を用いてペレット成形性評価を行った。成形条件は、小型の成形機を用いて3 t/cm²と6 t/cm²、焼結条件は1750°Cで5時間とし、成形密度および焼結密度の変化を調査した。成形圧と圧粉体密度の関係を図9に示す。この結果から、原料の硝酸ウラニル溶液のメタル濃度が高くなるとペレットの密度も高くなった。この要因は、どちらの溶液条件でも生成する粒子の球径に差がないことから、溶液のメタル濃度に起因する单一球内の粒子密度の違いによるものであると考える。焼結前後のペレットの外観写真を写真4に示す。このペレットの製造条件は、原料溶液のメタル濃度が500g/lのものを成形圧が6t/cm²で成形し、焼結温度が1750°Cで焼結したものである。この場合もペレットの外観上に問題となるようなクラック等の発生はみられなかった。

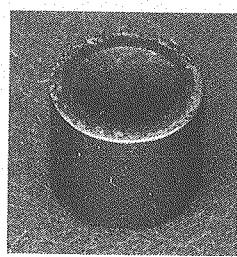


写真4 酸化ウランペレット外観写真

5. おわりに

今回の試験結果より、噴霧熱分解法により流動性の優れた球状の顆粒粉末が生成でき、また、生成する粉末は熱分解時の熱処理条件および噴霧液滴径を制御することで、粉末粒子径を変化させることができ確認できた。

さらに、成形顆粒粉末を使用したペレット成形性評価の結果、高密度ペレットを製造できる見通しが得られたことから、本法は粉末調製工程を削除することが可能な高密度ペレット燃料製造用原料粉末の製造として有望であると考える。



フラクタル理論による堆積岩中の透水係数分布の推定

前川恵輔 尾方伸久 柳澤孝一 高瀬博康*

東濃地科学センター
*日揮株式会社

資料番号：98-8

Modelling of Transmissivity Field in Sedimentary Rocks
Using Fractal Theory

Keisuke Maekawa Nobuhisa Ogata Koichi Yanagizawa
* Hiroyasu Takase
(Tono Geoscience Center, * JGC Corporation)

地層中の水理学的な不均質性を表現するための手法として、フラクタル理論を用いた推定手法がある。本研究は、岐阜県東濃鉱山での試錐孔を利用した調査試験データを用いて、この推定手法による水理学的な観点での岩盤のモデル化および地下水流动解析という一連の解析手法を実際の地層に適用し、本解析の有効性を検討したものである。本研究の結果、以下のことが明らかとなった。

- (1) 本手法によって推定した透水係数分布は、堆積構造に対応した層状の分布パターンを示した。
- (2) 地下水流動解析の結果、断層に相当する部分の遮水壁的な役割が推定された。
- (3) 推定したウラン分布がγ線強度の高い部分とほぼ一致したことから、本解析手法の有効性を示すことができた。

1. はじめに

動燃事業団では、地層処分研究に関する基盤的な研究として、我が国の地質環境が本来有している地質や地下水、岩盤の力学的な特性等の把握を目的とした「地層科学研究」を進めている。地層科学研究の一環として行っている地下水流动に関する調査研究では、地表から地下深部までの水理学的環境を調査解析する技術と、その調査解析結果に基づく地下水流动解析の結果の妥当性を評価するための手法の確立を目的とした様々な調査、試験および解析を実施している¹⁾。

一般に、対象とする領域における地下水流动を把握する際には、まず対象領域の地下深部に存在する岩盤の種類や分布、透水性を調べるために、地表から地下深部へ掘削した試錐孔を利用して透水試験や物理検層などの調査を行う。そして、それらの調査データに基づいてコンピュータを用いた地下水流动解析を行い、対象領域における地下水の流动方向や流速、流量等の評価を行っている。こうした解析を精度よく行うためには、実際の調

査から得られる地下深部の情報を計算上できるだけ現実的かつ詳細に考慮することが重要であるが、試錐孔を利用した調査から得られる情報は、3次元の空間的な広がりを持った対象領域においては点ないし1次元の線の情報に過ぎず、この情報量の不足は何らかの推定によって補わなければならない。特に、地下水の流动経路となり得る地層中の連続した高透水性部の存在は、領域内の地下水流動を規制する要因となるため、これを把握することは重要である。しかしながら、現実の地層には、亀裂や断層などの不連続面や堆積構造等による地質構造的な不均質性が存在するため、現実的な推定は困難となっている。

地層中における透水係数等の物性値の空間的な分布を推定する手法としては、地球統計解析手法(Geostatistics)²⁾が挙げられる。この手法は、空間内にランダムに分布するサンプル点での値には、サンプルの空間的な配置によって決定される関数が存在するという仮定に基づいている。一般的な地球統計解析では、サンプルの離間距離と統

計量（バリオグラム）との関係を定型の関数で近似するため、不均質性が高い領域に対しては近似の精度は悪くなってしまう。本報告で紹介するフラクタル理論による解析手法³⁾は、サンプル点での値に対して近似の自由度が高いべき乗形式の関数を推定し、この関数を満足するように対象領域内のすべての点における値を統計的に割り当てることが可能なため、現実の地層にみられる不均質性や不規則性の表現に適している。

本手法については、これまでに不均質な透水係数分布を人工的に作成した模型実験によって、実験室レベルでの妥当性の検討は行っている⁴⁾ものの、我が国の実際の地層に対する適用、検討には至っていない。本報告では、このフラクタル理論に基づく透水係数分布の推定手法について、実際の地層に対する適用性を検討するために、岐阜県東濃鉱山の堆積岩層に対する適用を試みた。そして、透水係数分布の推定、地下水流动解析という一連の解析手法の妥当性を検討するために、この解析手法に基づいて対象領域に存在するウランの分布位置を推定し、実際の調査結果との比較を行ったので、その結果を報告する。

2. フラクタル理論による堆積岩中の透水係数分布の推定

2.1 解析対象領域

解析対象領域は、岐阜県南東部に位置する東濃鉱山の敷地内に掘削した、ほぼ直線上に並ぶ4本の試錐孔（試錐孔名：TH-1～4）を含む、水平方向100m、鉛直方向100mの2次元鉛直断面とした。この領域では、4本の試錐孔において、掘削時に

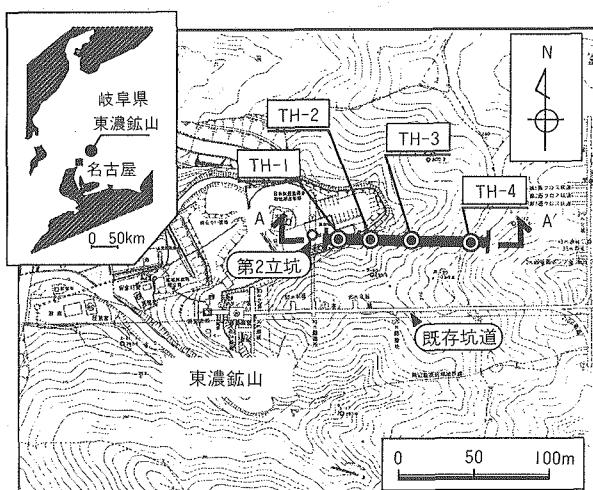


図1 解析対象領域（平面図）

採取した岩芯を用いた岩芯観察のほか、試錐孔を利用した透水試験や電気検層、 γ 線検層等の物理検層を実施しており、実測データが豊富である。また、こうした調査結果から、この領域の地下深部にはウラン鉱化部が存在することが分かっていたため、このウランの分布位置を解析結果の妥当性の検討に利用する目的から、鉛直方向の領域はウラン鉱化部が散在する標高100m～200mの範囲とした（図1、2）。

対象領域は、花崗岩を基盤岩とし、標高100m付近から上部には瑞浪（みずなみ）層群と呼ばれる新第三紀の堆積岩が分布している。対象領域の大部分を占める瑞浪層群中の土岐夾（きょう）炭累層は、河川～湖沼成堆積物を母層とし、新第三系堆積前の旧河川系（チャンネル構造）に沿って堆積したものと考えられ、泥岩、砂岩、礫岩、凝灰質砂岩等から構成されている⁵⁾。

岩芯観察の結果などから、対象領域の地層はほぼ水平な層構造を示していることが推定され、領域内西側の3本の試錐孔を横切る断層（月吉断層）が確認されている（図2）。

2.2 解析手順

解析の手順は以下の通りである。

- (1) フラクタル理論による透水係数分布の推定
- (2) 推定した透水係数分布に基づく地下水流动解析
- (3) 求められた透水係数分布および地下水流动解析の結果の妥当性を確認するため、ウラン分布位置の推定

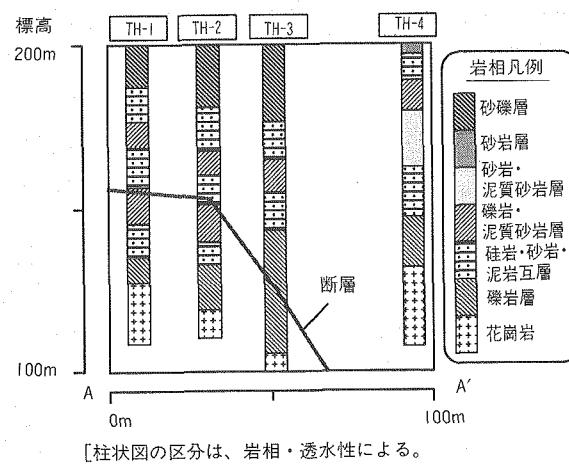


図2 解析対象領域（鉛直断面図）

[図1のA-A'断面]

以下に、解析の手順に沿って本研究内容を説明する。

2.3 透水係数分布の推定

2.3.1 透水係数分布の推定手法

試錐孔を利用して実施した透水試験の結果は、試錐孔内のわずか数m程度の範囲ごとに限定された離散的な“点”のデータに過ぎないため、このデータを用いて透水係数の空間分布を推定する場合には、データの不足とともに推定結果の信頼性の低下は避けられない。

これまでの東濃鉱山での調査の結果、堆積岩の部分において対象領域に含まれる4本の試錐孔で実施した透水試験の結果と、電気検層の結果から得られた見かけ比抵抗分布との間に良好な相関関係が認められている。そこで、この相関関係に基づいて、各試錐孔の堆積岩部分における鉛直方向に連続な透水係数分布を求めた⁹⁾。データ間隔は1mとし、データ総数は299である。

対象領域における堆積構造を考慮すると、水平方向と鉛直方向とでは透水性に関する不均質性は異なることが予想される。そこで、水平および鉛直方向のそれぞれについて独立に不均質性を考慮することとした。

水平方向および各試錐孔ごとの鉛直方向のバリオグラム $\gamma(h)$ は、次式により求めた。

$$\gamma(h) = \langle \{\psi(x) - \psi(x+h)\}^2 \rangle \quad (1)$$

ここで、 $\psi(x)$ はサンプル点（位置 x ）における透水係数、 h は異なる2つのサンプル点の離間距離、 $\langle \cdot \rangle$ は離間距離 h の2点から成るサンプル群において $\langle \cdot \rangle$ 内の統計量の平均値を求める演算を意味する。求めたバリオグラムに(2)式で表される関数（フラクタルスケーリング則）をフィッティングすることによって、定数 a 、 p を決定した。

$$\gamma(h) = ah^{2p} \quad (a, p : \text{定数}) \quad (2)$$

フラクタル理論によるモデル（フラクタルモデル）の考え方とは、統計量であるバリオグラムが(2)式のフラクタルスケーリング則に従うとする、統計的自己相似性が成り立つという仮定に基づいている。定数 p ($0 < p < 1$) が小さいほど、隣接する2点間の相関性は低く粗い不均質性が表現され、逆に p が大きいほど、隣接した2点間の相関性が高い滑らかな不均質性が表現される。こうした滑らかさの程度は、フラクタル特性に関する基

本的な指標であり、ユークリッド幾何学における次元 n (= 1 [直線]、= 2 [平面]、= 3 [空間]) に対して、 $n+1-p$ をフラクタル次元 D と呼ぶ。式から明らかのように、フラクタル次元 D は p を決めてることで求められる。

対象領域の水平方向のフラクタル次元 D_x は 1.4 ~ 1.6 の間にあることが推定された。各試錐孔での深度方向のフラクタル次元 D_y は、各試錐孔で求めたバリオグラムから 1.6 ~ 1.9 の間にあることが推定された。このことから、各方向のフラクタル次元を、水平方向については 3通り ($D_x = 1.4, 1.5, 1.6$) 鉛直方向については 4通り、($D_y = 1.6, 1.7, 1.8, 1.9$) 設定し、それぞれのケースを組み合わせた合計 12通りのケースごとに透水係数分布の推定を行った。推定の手順は次の通りである。まず対象領域を直交格子に分割し（今回の場合は、水平方向 50 × 深度方向 100）、試錐孔位置に透水試験結果と見かけ比抵抗分布との相関から求めた1次元の透水係数分布を割り当てる。次にこの透水係数分布から、各格子間の距離に応じて a 、 p および(2)式で表される分布特性を満足するようなデータの組み合わせを、ランダムに複数個発生させる。そして、各サンプル点での推定値が実測値（各試錐孔での値）と一致するように各推定値の重み係数を調整し、複数のデータ群のうちから、その分散が実測値の分散に最も近いものを最適解として選択した。

各ケースごとに推定した透水係数分布における分散の程度は、それぞれのフラクタル次元の適合性に関する尺度として捉えることができることから、推定結果の分散が最も小さかった ($D_x, D_y = (1.6, 1.9)$) の異方的なフラクタル次元の組み合わせを、最も適切な推定結果として採用することとした。

2.3.2 透水係数分布の推定結果

対象とした2次元鉛直断面における透水係数分布の推定結果を図3に示す。

図より、前項のようにして決定した透水係数分布の推定結果が、領域内の4本の試錐孔での岩芯観察などの調査結果から直接推定した層状の堆積構造を表現していることが示された。

2.4 地下水流動解析

2.4.1 解析条件

対象領域における地下水流動を把握するためには、地下水の浸透流解析を実施した。解析は、領域内での完全飽和を仮定した、差分法による定常

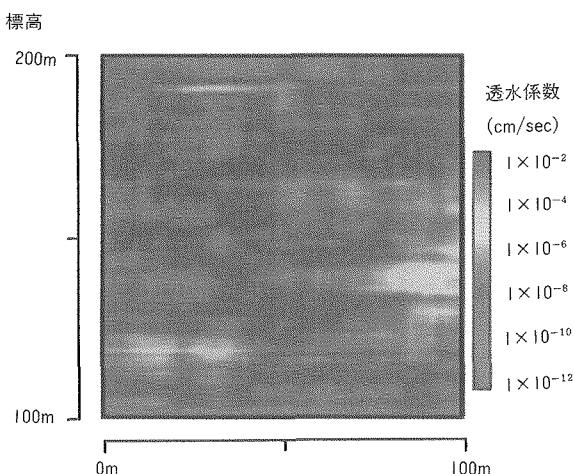
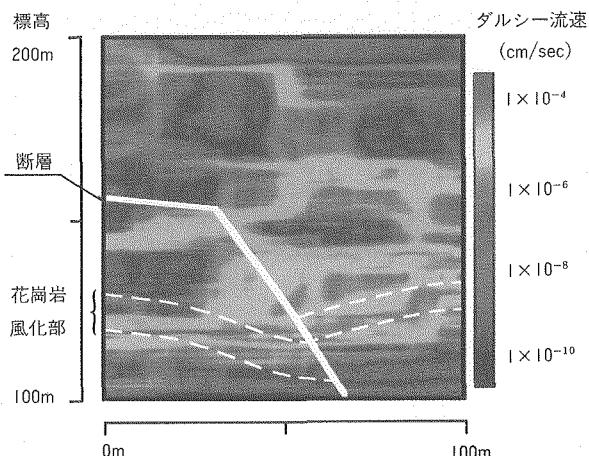
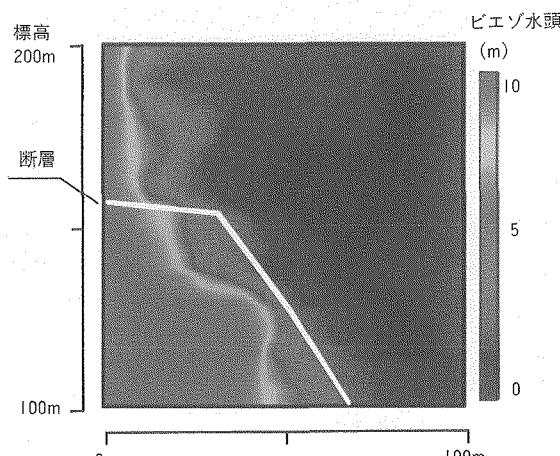


図3 透水係数分布の推定結果

図4 地下水流動解析結果
(ダルシー流速分布)図5 地下水流動解析結果
(ピエゾ水頭分布)

解析とした。

境界条件は、これまでに東濃地域を対象として実施してきた地質調査などの結果である花崗岩上部のチャンネル構造の形狀⁵⁾から、対象とした断面では西から東へ向かう地下水流动が卓越していることが推定されているため、領域の西側から東側へ水頭差が生じるように設定することとした。水頭差は、対象領域の両境界での実測値がないため、一つの参考値として動水勾配が0.1となるよう、西側から東側へ10mの水頭差を設定した。また、対象領域の上面は粘土化の進んだ部分であり、底面は花崗岩の健全部であることから、上面および底面は不透水の条件を設定した。

2.4.2 地下水流動解析結果

地下水流动解析の結果を図4、5に示す。

流速分布図(図4)から、領域内において明らかに地下水の流れやすいチャンネル状の部分が複数推定された。

また、ピエゾ水頭分布図(図5)からは、領域内の断層に相当する部分を境とした水頭の急激な変化が認められた。対象領域の透水係数分布を推定する段階で、断層部分の透水性については、不透水の条件を与えるなどの特別な条件設定を行っていないにも係わらず、図5のような結果が生じた。このことは、各試錐孔の断層部分が比較的低い透水係数を有していたことにより、フラクタルモデルによる透水係数分布の推定時に、自動的にこの断層部分の連続性が発生されたものと考えられる。このことから、断層のような水理学的な不均質性を生じる因子の表現に対して、本解析手法が有効である可能性を示すことができたものと考える。

2.5 解析手法の妥当性について

これまでの東濃鉱山でのウラン鉱床に関する調査研究から、東濃地域のウラン鉱床はウランが地下水によって堆積岩中を移動し、還元環境のもとで鉱化して形成されたものと推定されている。ウラン鉱化部における岩石中のウラン含有量と透水性の関係を調べた結果からは、ウラン鉱化部のうちウランが相対的に多く濃集している部分では、他の部分に比べて透水性も相対的に高いことが分かっている。また、 α -オートラジオグラフや走査型電子顕微鏡(SEM)などによる岩石中の空隙構造調査から、ウラン鉱化部では鉱物粒子間の空隙にウランが濃集していることが確認されている⁶⁾。これらのことから、東濃地域のウランの移

行・濃集には、岩石の持つ収着能力だけでなく、地下水が流れることができる移行経路の有無が大きな影響を及ぼしていることが考えられる。このような知見に基づいて、ここでは地球化学的な影響を考慮した厳密な意味でのウランの鉱化過程の推定を行うのではなく、地下水の移流によるウランの移動のみに着目し、ウランが多く移行する位置、すなわちウランが濃集する可能性が高い位置の推定を行った。そして、実際にウランが存在する位置を示す γ 線検層結果との定性的な比較を行うことによって、本解析手法の妥当性を示すこととした。

具体的な手順は次の通りである。まず、地下水流动解析の結果複数推定された地下水の流れやすいチャネル状の部分の上流を、対象領域へのウランの供給源と仮定した。そして、これらの各点から、ウランに見立てた粒子を投入し、時間の経過とともに地下水によって移動する粒子の分布位置を計算した（こうした解析手法は粒子追跡法と呼ばれる）。実際の計算では、粒子の供給源として合計7ヶ所の点を仮定した。粒子の移行経路を明瞭に表現するために、粒子の投入はそれぞれ1ヶ所の供給源からのみを行い、合計7通りの計算を行った。時間ステップは、単位時間 $100 \times Rd$ 年（ Rd ：遅延係数）ごとに10ステップを設定したため、合計70通りの粒子の分布データが得られた。これらのデータを重ね合わせることにより、ウランに見立てた粒子が多く通過する位置の分布が求められた。

計算の結果を図6に示す。試錐孔を利用した γ 線検層の結果、実際にウランが分布していると推定される γ 線強度が高い部分（図中の楕円で囲ま

れた部分。 γ 線強度5,000cpm以上）と、粒子が多く通過している箇所は、定性的によい一致を示した。

3. おわりに

3. 1 結論

本研究によって、以下の知見が得られた。

- (1) フラクタル理論による透水係数分布の推定手法によって、実際の堆積岩層中での堆積構造に対応した層状の分布パターンを示すことができた。
- (2) 解析領域内に存在する断層の位置や透水性について、これらをモデル上考慮していないにも係わらず、地下水流动解析の結果、断層部分を境にして水頭差が生じた。このことから、本解析手法によって、水理学的な不均質性を生じる断層のような地質構造が推定できることが示され、断層に相当する部分が遮壁的な役割を果たしていることが推定できた。
- (3) 透水係数分布の推定および地下水流动解析の結果に基づいて行った粒子追跡法によるウラン分布（正確には、ウランが分布する可能性が高いと思われる部分）の推定結果が、領域内の各試錐孔で行った γ 線検層の結果 γ 線強度が高かった部分とほぼ一致したことから、本解析手法の妥当性を示すことができた。

3. 2 今後の課題

現実の地層を対象として、より精度の高いモデル化手法を構築するために、以下のような検討が必要である。

- (1) 一般に、地層中には透水性に関する不均質性とともに異方性が存在する。また、地層中の収着能力等がウラン鉱床の形成過程に影響を及ぼしていると考えられる。そこで、地層中の透水異方性や収着の効果などの、水理および地球化学的な要因を考慮できるよう手法の改良を行う。
- (2) 本解析手法によって広範囲な領域における地下水流动を把握するために、より広い領域における本解析手法の適用性を検討する。また、対象領域のスケールに関する適用範囲を明らかにするための検討を行う。
- (3) 実際の現象をより正確に近似するために、3次元領域を対象とすることができるよう、本解析手法を拡張、改良する。
- (4) 例えば、本解析手法によって推定される地下水の流动経路等の特徴的な結果に基づいて、対

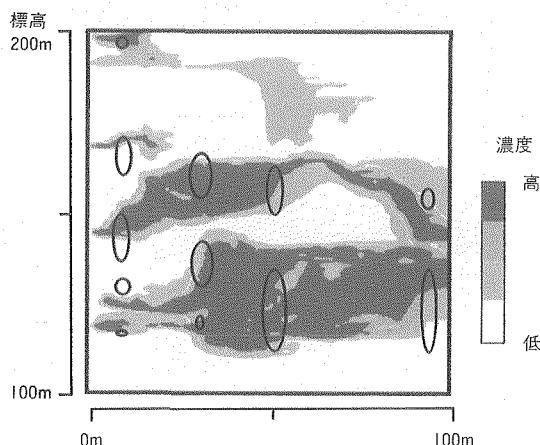


図6 パーティクル分布の推定結果
(楕円内は、高 γ 線強度部分)

象領域をモデル化する上で必要な調査用の新規試験孔の位置を提示するなど、解析結果を実際の調査の方針に還元することによって、解析モデルの精度を向上させる手法を開発する。

参考文献

- 1) 動燃事業団：“地層処分研究開発の現状（平成5年度）”、動燃技術資料、PNC TN1410 94-094 (1994).
- 2) A.G. Journel, Ch. J. Huijbregts: "MINING GEOSTATISTICS", Academic Press (1978).
- 3) P. Grindrod, M.D. Impey: "Channeling and Fickian Dispersion in Fractal Simulated Porous Media", *W.R.R.*, 29, 12, p4077-4089 (1993).
- 4) K. Hatanaka, S. Watari: "Experimental Study on Groundwater Flow and Mass Transport in a Heterogeneous Porous Medium", MRS Fall Meeting (1995).
- 5) 糸魚川淳二：“瑞浪地域の地質”，瑞浪市化石博物館研究報告，1, p9-42 (1974).
- 6) 尾方伸久, 大澤英昭, 他：“堆積岩の地質学的特性および透水係数、見かけ比抵抗相互の関係とその水理地質構造モデル化への適用”、応用地質、32, 6, p51-62 (1992).
- 7) H. Yoshida, M. Yui, et al.: "Flow-Path Structure in Relation to Nuclide Migration in Sedimentary Rocks—An Approach with Field Investigations and Experiments for Uranium Deposit, Central Japan", *J. Nucl. Sci. Technol.* 31, p803-812 (1994).



炭素鋼オーバーパックの長期寿命 予測モデルの開発

谷口直樹 本田 明 石川博久

東海事業所環境技術開発部

資料番号：98—9

A Modelling Study for Long-Term Life Prediction of Carbon Steel Overpack for Geological Isolation of High-Level Radioactive Waste

Naoki Taniguchi Akira Honda Hirohisa Ishikawa
(Waste Technology Development Division, Tokai Works)

高レベル放射性廃棄物の地層処分において、廃棄物（ガラス固化体）が封入されるオーバーパックには数百年以上放射性核種を封じ込める機能が期待されている。この機能は地下水による腐食により失われると想定される。オーバーパックの有力な候補材料である炭素鋼について、その腐食寿命を腐食メカニズムに基づいて評価するためのモデルの開発を行った。モデル開発においては、処分環境下で炭素鋼に起こりうる全面腐食と局部腐食を対象とした。全面腐食モデルでは酸素と水の還元による腐食を考慮した。また、局部腐食については酸素の輸送に基づいて、進展期間を評価するモデルと質量保存の式を支配方程式とする進展速度評価モデルを開発した。

1. はじめに

現在、高レベル放射性廃棄物の地層処分の研究が各国で行われている。地層処分における安全確保のための多重バリアシステムの一部として、オーバーパックには主に、放射能レベルの高い初期の一定期間高レベル放射性廃棄物を封じ込め、地下水との接触を防止する機能が期待されている¹⁾。この機能は腐食により失われると想定されることから、オーバーパック候補材料の腐食挙動を評価することが重要である。オーバーパックの候補材料として炭素鋼、銅、チタン（低合金チタンを含む）、ニッケル基合金等の金属材料が考えられている²⁾。我が国においては、炭素鋼は有力なオーバーパックの候補材料とされており、その腐食寿命を予測するための研究が行われている³⁾。

炭素鋼の腐食形態は、不動態化するか否かで大きく異なる。不動態化しない場合には、金属の全表面が比較的均一に腐食する全面腐食が進行する。一方、不動態化した場合には不動態皮膜を破壊する作用のある化学種（塩化物イオン等）が存在すると、孔食、すきま腐食などの局部腐食を受ける

可能性がある。一般に炭素鋼は中性の天然水中では不動態化しにくく、全面腐食が進行する。しかし、ある程度酸化性で、かつアルカリ性の環境では不動態化して局部腐食の起きる可能性がある。

後に2.4で述べるとおり、オーバーパックの置かれる環境は、初期の比較的酸化性の環境から徐々に地下本来の還元性になると想定される。このような環境の酸化還元性の変化に伴って局部腐食の発生／進展は制限され、全面腐食速度も小さくなると考えられる。したがって、適当な腐食代を設定することにより、炭素鋼オーバーパックは腐食寿命を確保することができると考えられる。

炭素鋼オーバーパックの腐食代を設定するためには、健全性の確保が期待される期間に見合う腐食深さを合理的に予測することが必要である。単に室内試験のデータを経験則に従い外挿するだけでは必ずしも十分ではない。炭素鋼の処分環境における腐食メカニズムに基づいて、評価の妥当性が支持されねばならない。

本稿ではオーバーパックの置かれる環境について述べた後、全面腐食と局部腐食のそれぞれに關

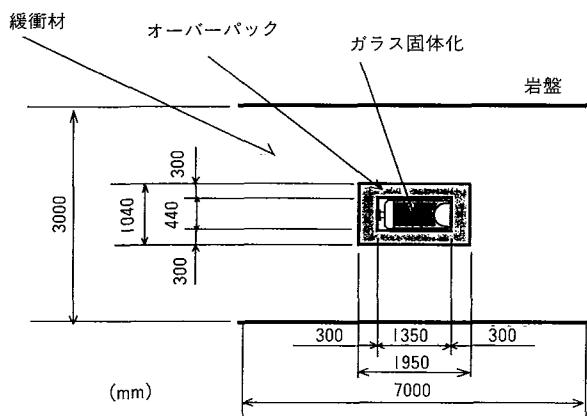


図1 人工バリアシステムの構成

し腐食メカニズムに基づく寿命予測の方法と現状のモデルによる予測について述べる。

2. オーバーパックの置かれる環境

地層処分では、オーバーパックに封入した廃棄物(ガラス固化体)の周囲に圧縮ベントナイト(粘土)層を設け、地下数百mより深い地層に埋設する方法が考えられている¹⁾。ここでは、地層処分の化学的環境に関する研究のこれまでの成果¹⁾に基づき、オーバーパックの置かれる環境について述べる。今回の検討の対象とした人工バリアシステムの構成を図1に示す。

2.1 温度

熱による緩衝材の変質を防止するため、オーバーパック周囲の温度が100°Cを超えないように適切な間隔を置いて廃棄物を埋設することを設計上考えている¹⁾。したがって、オーバーパック外面の温度は初期に100°C程度まで上昇したのち、放射能の減衰により、その地層本来の温度(例えば深度1000m付近で50°C程度³⁾)まで経時に低下すると考えられる。

2.2 圧力

オーバーパックに働くと想定される圧力には、緩衝材の膨潤圧力(数MPa)、静水圧(10MPa程度)、腐食生成物によるオーバーパックの体積膨張に起因する圧力、腐食に伴い発生する水素ガスの圧力および岩圧(最大56MPa程度)¹⁾がある。

2.3 地下水の化学的条件

一般に日本の地下水は、ナトリウム、カリウム、カルシウム、マグネシウム等の陽イオンと塩化物

イオン、硫酸イオン、炭酸水素イオン等の陰イオンを含み、その濃度は場所により異なる。pHは特異な地下水を除けば、弱酸性から弱アルカリ性までの範囲に入る。ただしオーバーパックと接触する地下水のpHは、ベントナイトの化学的緩衝性により中性から弱アルカリ性となる¹⁾。

2.4 溶存酸素濃度

深部地下水中的溶存酸素濃度は低く還元性の条件であるが、処分場の掘削、埋め戻しの際に地上から持ち込まれる酸素により、処分場閉鎖直後は本来の深部地下水の溶存酸素濃度よりも高いレベルになると予想される。しかしオーバーパックの腐食および緩衝材に含まれる鉄鉱物(例えば黄鉄鉱)による消費並びに岩体中への散逸等により、やがて溶存酸素濃度は低下していく。溶存酸素濃度の低下とともに、オーバーパック周囲の環境は酸化性から地下深部本来の還元性になると考えられる。

3. 腐食メカニズムに基づくモデル開発とモデルによる評価

処分環境において炭素鋼が不動態化しない場合には、オーバーパックの寿命期間を通じて全面腐食が進行すると想定される。一方炭素鋼が不動態化した場合には、処分開始初期の酸化性の期間には局部腐食の進展することが予想される。しかし、局部腐食の進展はオーバーパック周辺の環境が還元性となるにつれてやがて停止し、全面腐食が進行すると考えられる。

このように処分環境において、炭素鋼オーバーパックに起こりうる腐食形態として全面腐食と局部腐食の2種類を考慮し、それぞれの腐食挙動を評価するためのモデル開発を行った。全面腐食についてはその進展速度を評価するモデルを作成し、局部腐食についてはその進展期間と進展速度を評価するモデルを作成した。

3.1 全面腐食モデル

3.1.1 全面腐食モデルの基本構成

まず海外での検討⁴⁾を参考に、炭素鋼オーバーパックの全面腐食を評価する腐食モデルの基本ケースとして、保守的な仮定に基づく均一腐食モデルを作成した。このモデルでは、ベントナイトは完全に地下水で飽和した状態のみを検討の対象としており、初期の不飽和期間は考慮していない。また、全面腐食による最大侵食深さを評価することを目的として、腐食反応に及ぼす皮膜の影響は

無視した。ペントナイト中のような中性から弱アルカリ性の環境では、鉄の腐食反応は、鉄の溶解反応 ($\text{Fe} \Rightarrow \text{Fe}^{2+} + 2\text{e}^-$) であるアノード反応と、酸素および水の還元反応であるカソード反応がバランスして進行する。酸素によるカソード反応 ($\text{O}_2 + 2\text{H}_2\text{O} + 4\text{e}^- \Rightarrow 4\text{OH}^-$) の反応速度は、ペントナイト中における溶存酸素の拡散に律速されるものとした。したがって、オーバーパック表面での溶存酸素濃度を近似的に 0 と仮定してペントナイト層中の以下の拡散方程式を解くことにより、酸素の供給速度が与えられ反応速度が計算される。なお酸素のペントナイトへの吸着はないものとして扱った。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_a \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{D_a}{r} \frac{\partial C}{\partial r} \quad (1)$$

C : 溶存酸素濃度 (g/m³)

D_a : 溶存酸素のみかけの拡散係数 (m²/s)

t : 時間 (s)

r : 半径方向距離 (m)

水の還元反応 ($2\text{H}_2\text{O} + 2\text{e}^- \Rightarrow 2\text{OH}^- + \text{H}_2$) によるカソード電流および鉄の溶解反応によるアノード電流は、前述のように皮膜の影響を無視して活性化律速を仮定すると、以下のような Butler-Volmer 型の速度式で記述できる。

$$i_{\text{H}_2\text{O}} = i_{\text{H}_2\text{O}}' \exp(-n_{\text{H}_2\text{O}}(1-\beta'') \cdot FE/RT) \quad (2)$$

$$i_{\text{Fe}} = i_{\text{Fe}}' \exp(n_{\text{Fe}}\beta' \cdot FE/RT) \quad (3)$$

$i_{\text{H}_2\text{O}}'$: 飽和カロメル電極 (SCE) との電位差 0V における電流密度 (A/m²)

β' , β'' : 電荷移動に係わる係数

T : 温度 (K)

F : フラデー定数 (C/mol)

R : 気体定数 (J/mol · K)

n : 電荷移動数

E : 腐食している金属の電位 (V_{vs.} SCE)

酸素および水の還元によるカソード電流を I_{O_2} , $I_{\text{H}_2\text{O}}$ とすると、電荷のバランスから鉄の溶解電流 I_{Fe} との間に(4)式の関係が成り立つ。

$$I_{\text{O}_2} + I_{\text{H}_2\text{O}} = I_{\text{Fe}} \quad (4)$$

酸素の還元によるカソード電流は(1)式の解で与えられるので、この(4)式を満足する $I_{\text{H}_2\text{O}}$ および I_{Fe} を与える電位 E が(2), (3)式から決定され、鉄の平均腐食速度が計算される。

3. 1. 2 入力パラメータの評価

飽和ペントナイト中での溶存酸素の拡散係数は、酸素還元反応の拡散限界電流密度の測定により評価した。人工海水で飽和した精製ナトリウムペントナイト中の溶存酸素の実効拡散係数 D_e (m²/s) は以下のように表された⁵⁾。

$$D_e = 3.2 \times 10^{-9} \cdot \exp(-3.7 \rho) \quad (5)$$

ρ : ペントナイトの乾燥密度 (g/cm³)

上式は常温での式であり、以下に示すようにアレニウス型の温度依存性を示すものとして温度補正を行った(活性化エネルギーは、3490cal/mol とした⁶⁾)。

$$D_e = D_0 \exp(Q_0/RT) \quad (6)$$

T : 絶対温度

D_0 : T → ∞における拡散係数

Q_0 : 活性化エネルギー

速度式(2), (3)の係数は、窒素ガス雰囲気 (酸素濃度 1ppm 以下) のグローブボックス内における、脱気した試験溶液中のアノードおよびカソード分極測定により求めた。試験溶液としては、3.5% NaCl 水溶液を使用した。これは、平均腐食速度として可能な限り大きな値が算定されるように、安定な皮膜の生成を妨げる塩化物の水溶液 (海水レベルの塩化物濃度を想定した) とし、試料電極表面での固体塩析出による反応抵抗の増加を避けるためである。試験片は、SM400B(JIS G3106) を使用し、前処理として、湿式研磨(エメリー紙#800)、アセトン脱脂を施して試験に供した。分極速度は 0.2mV/min. とし、気相中で生成する初期皮膜の除去のため、-1300mV vs. SCE で 2 分間のカソード処理を実施した。分極曲線上のターフェル直線部 (電位と電流の対数が直線関係を示す部分) での勾配 (b_c , b_a) から、以下の式に従い電荷移動に係わる係数を評価した。

$$n_{\text{H}_2\text{O}}(1-\beta'') = 2,303 \cdot RT/b_c F \quad (7)$$

$$n_{\text{Fe}}\beta' = 2,303 \cdot RT/b_a F \quad (8)$$

表1. 分極曲線から求められた電気化学速度式の定数

温度(℃)	n(1- β')	n β'	$i_{\text{H}_2\text{O}}'$ (A/m ²)	i_{Fe}' (A/m ²)
50	5.10×10^{-1}	1.23	1.43×10^{-8}	8.37×10^{-13}
80	5.58×10^{-1}	1.80	2.87×10^{-8}	4.57×10^{-18}
90	5.56×10^{-1}	1.87	8.00×10^{-8}	6.91×10^{-18}

また、飽和カロメル電極 (SCE) との電位差0Vにターフェル直線を外挿し、電流密度(i_0')を求めた。測定データを表1に示す。

3.1.3 モデルによる評価結果および検討

図1に示すような実際の人工バリアを想定して計算された乾燥密度 1.8 g/cm^3 、厚さ98cmの圧縮ベントナイト中での腐食速度の経時変化を図2に示す。本計算ではベントナイト中での温度勾配は考慮せず、ベントナイト外側では溶存酸素濃度は一定(8ppm)とした。図中には、50°Cにおける酸素による腐食速度の経時変化と50°C、80°C、90°Cにおける腐食速度(水と酸素による)の経時変化を示した。酸素による腐食速度は経時に減少し、 10^{-3} 年以降は腐食量のはほとんどは水の還元反応によるものとなった。よって地下水で飽和した圧縮ベントナイト中では、酸素による腐食への寄与はほとんど無視できると考えられる。

次に、圧縮ベントナイト中(厚さ6mm)で実施した腐食試験⁷⁾により得られた平均腐食速度とモデルによる計算値を図3に示す。前述したとおり、本モデルは全面腐食による最大侵食深さを評価することを目的として皮膜による腐食の抑制の効果を無視しているため、モデルによる予測値は実験値に比べて過大な値となっている。還元条件において地下水を想定した水溶液中で、腐食速度が時間とともに低下することはBlackwoodら⁸⁾やSimpson⁹⁾によっても実験的に確認されている。また、安定な皮膜の形成されていない浸漬開始直後の鉄の腐食速度が比較的大きいという報告もある¹⁰⁾。一方、還元条件における皮膜の腐食抑制機構についてはほとんど解明されておらず、皮膜が形成された状態で腐食速度を律速している過程は明

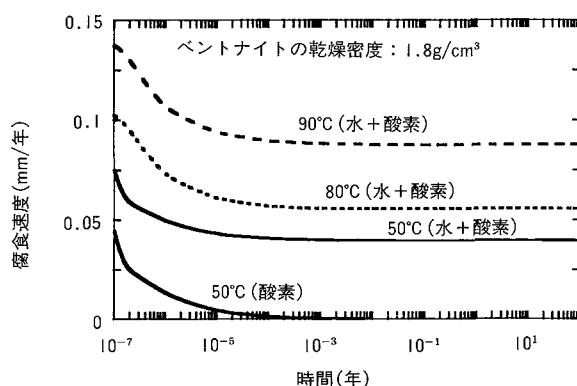


図2 処分環境における炭素鋼オーバーパックの腐食速度の経時変化(モデルによる計算値)

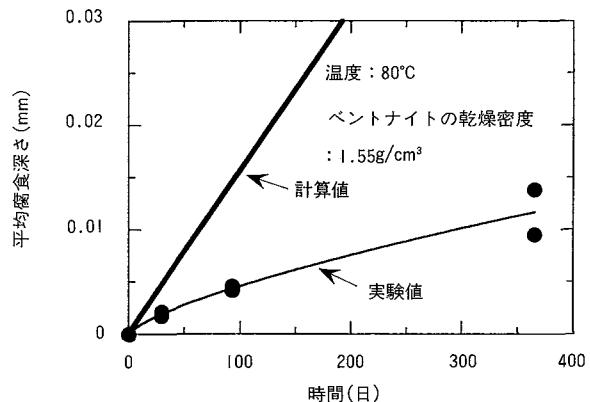


図3 80°Cにおける平均腐食深さの経時変化
(モデルによる予測値と実験値の変化)

らかではない。N. Platts らは腐食反応生成物である水素の皮膜内での輸送が律速段階となっているとした¹¹⁾。しかし、他の腐食反応生成物(鉄イオン等)やカソード反応物質の輸送が律速段階となっている可能性もある。今後、より現実に近い評価を行うためには、皮膜の形成下での腐食機構、腐食速度の律速過程を調査するとともに還元条件で皮膜の形成に伴う腐食反応抵抗の変化を調査し、皮膜の腐食抑制効果をモデルに導入する必要がある。

3.2 局部腐食モデル

3.2.1 局部腐食進展期間評価モデル

(1) 局部腐食進展期間評価モデルの概要

不動態破壊型の局部腐食が維持されるためには、不動態保持電流を上回るカソード電流を流しうるだけの水以外の酸化剤の供給が必要である¹²⁾。天然水中では溶存酸素が、この酸化剤としての役割を果たす。

一方、処分の環境ではオーバーパックは圧縮ベントナイトに取り巻かれており、この圧縮ベントナイトが地下水で飽和されれば、その中の物質の移動は拡散のみによると考えて良いことから、溶存酸素のオーバーパックへの供給速度は式(9)で示される。

$$J = -D_e \frac{\partial C}{\partial r} \quad (9)$$

J : 溶存酸素の供給速度 ($\text{mol}/\text{m}^2 \text{s}$)

C : 溶存酸素の濃度 (mol/m^3)

D_e : 反応物質の圧縮ベントナイト中における実効拡散係数 (m^2/s)

r : 座標 (m)

したがって、上記のような場において不動態破壊型の局部腐食が維持される条件は(10)式で示される。

$$I_{\text{pass}} \leq -nFD_e \cdot \frac{\partial C}{\partial r} \quad (10)$$

I_{pass} ：不動態保持電流密度 (A/m^2)

n ：酸素 1 分子の反応で授受される電子数

F : Faraday 定数 (C/mol)

式(10)の条件を満たしうる期間が局部腐食の進展しうる期間であるから、圧縮ベントナイト中の溶存酸素の拡散方程式を解くことにより、局部腐食の進展しうる期間が評価できる。

(2) 計算方法

円筒状のベントナイト層における酸素の移行は、以下の拡散方程式で記述される。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = Da \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + (Da/r) \frac{\partial C}{\partial r} \quad (11)$$

C ：酸素濃度 (g/m^3)

r ：半径方向座標 (m)

t ：時間 (s)

Da ：酸素のみかけの拡散係数 (m^2/s)

オーバーパック表面での酸素フラックス（オーバーパック表面での酸素消費速度）は、 I_{pass} 相当として、オーバーパック表面での境界条件を(12)式のように設定した。

$$-De \cdot \frac{\partial C}{\partial r} = I_{\text{pass}} \cdot M/nF \quad (12)$$

De ：酸素の実効拡散係数 (m^2/s)

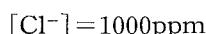
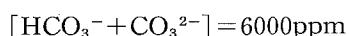
I_{pass} ：不動態保持電流密度 (A/m^2)

F ：ファラデー定数 (C/mol)

M ：酸素の分子量

n ：酸素 1 分子の反応で授受される電子数

I_{pass} は以下の条件の溶液中での値を用いた¹³⁾。



pH10

温度：室温

ベントナイト中の溶存酸素の拡散係数は3.2 で述べたとおり、ベントナイト中の酸素の還元反応の拡散限界電流の測定により評価した¹³⁾。また、ベントナイトの外側境界では酸素濃度一定（飽和濃度）の境界条件を与えた。初期条件は、全領域で酸素濃度一定（飽和濃度）とし、(11)式の差分解をもとめた。計算には以下の物性値を使用した。

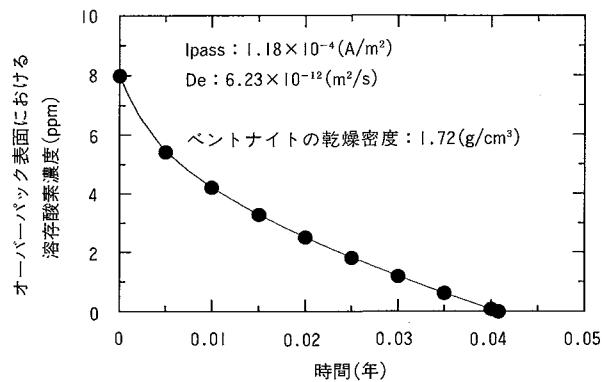


図4 オーバーパック表面の溶存酸素濃度の経時変化

不動態保持電流密度: 1.18×10^{-4} (A/m^2)

酸素のみかけの拡散係数: 1.72×10^{-11} (m^2/s)

酸素の実効拡散係数: 6.23×10^{-12} (m^2/s)

ベントナイトの空隙率: 0.33

オーバーパックの半径: 0.52 (m)

ベントナイトの外径: 1.52 (m)

飽和酸素濃度: 8 (g/m^3)

(3) 計算結果

計算により得られたオーバーパック表面の溶存酸素濃度の経時変化を図4に示す。オーバーパック表面の酸素濃度は経的に減少し、0.04年後には0 となった。したがって、水で飽和した圧縮ベントナイト中では、不動態保持電流密度に相当する酸素フラックスが供給され、局部腐食の進展が可能な期間は、0.04年と評価された。この期間は、オーバーパックに期待されている腐食寿命（数百年以上）¹¹⁾や圧縮ベントナイトが飽和に至るまでの期間（百年程度）¹¹⁾と比較してきわめて短い。この計算結果は、圧縮ベントナイトが地下水で飽和してしまえば局部腐食の進展を考慮する必要はほとんどなく、局部腐食の進展しうる期間は、ほとんど圧縮ベントナイトが飽和に至るまでの期間に対応することを示している。

3. 2. 2 局部腐食進展速度評価モデル

(1) 局部腐食進展速度評価モデルの概要

局部腐食進展速度については、国際的に最も進んでいるモデルのひとつである、Harwell 研究所の“CAMLE”¹⁴⁾に基づき、動燃事業団で改良を行い、モデル化を実施している。

“CAMLE”は孔食、すきま腐食の形状を、平行な側壁をもつスロットとして扱った 2 次元の有限要素モデルである。“CAMLE”では図5に模式的に示すように孔食（すきま腐食）内外での化学種の

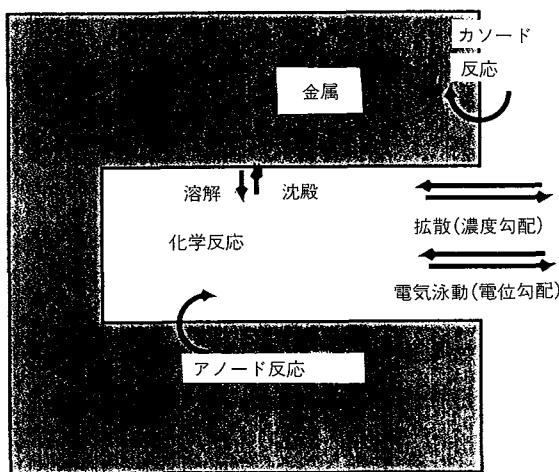


図5 局部腐食進展速度評価モデルC A M L Eの模式図

拡散、電気泳動、化学反応を考慮している。したがって、水溶性化学種の輸送は以下の質量保存の方程式により記述される。

$$\partial C_i / \partial t = D_i \nabla^2 C_i + z_i D_i \cdot \nabla (C_i \nabla \phi) / RT + R_i \quad (13)$$

C_i : 化学種 i の濃度

D_i : 化学種 i の実効拡散係数

z_i : 化学種 i の価数

R_i : 化学種 i の生成・消滅速度

R : 気体定数

T : 絶対温度 (K)

ϕ : 系の静電ポテンシャル

ここで静電ポテンシャル ϕ は以下の Poisson の方程式で示される。

$$\nabla^2 \phi = \rho / \epsilon \quad (14)$$

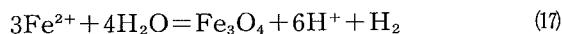
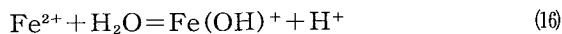
ρ : 空間電荷密度

ϵ : 電解質溶液の誘電率

水の誘電率 ϵ は80であるから、 ϵ^{-1} は電気的中性条件からの逸脱をきわめて速やかに修復する力が働くのに十分な大きさを持つ。この力は電荷の勾配を、拡散に伴う電荷勾配形成より遙かに短い時間で動かす。それゆえ、Poisson の方程式は(15式)の局所的な電気的中性の式で置き換えることができる。

$$\sum z_i C_i (x) = 0 \quad (15)$$

化学種については、7種の水溶性化学種(Fe^{2+} 、 $FeOH^+$ 、 Na^+ 、 Cl^- 、 $FeCl^+$ 、 H^+ 、 OH^-)および、固相として $FeCl_2$ と Fe_3O_4 を仮定し、以下の化学平衡を考慮している。



(13式)の質量保存の方程式群を解くために、質量保存の方程式群を無次元化し、方程式を加減することで、化学反応の項を消去する。化学反応の項が消去された方程式群は数値計算により解かれ、ピット内のイオンの濃度と電位降下が予測される。予測されたある点での電位から溶解速度を算出する。

電位と溶解速度の関係は、次のように実験的に評価した。孔食内の溶液は $FeCl_2$ で飽和しているものと想定されることから、 $FeCl_2$ で飽和した溶液中でアノード分極測定を行い、そのアノード分極データを孔食内の鉄の溶解速度として用いた。孔食内の壁面の溶解速度は、式(21)、(22)のように電位の関数として示された¹⁵⁾。

$$E > -500mV(SCE) \quad i = i_A + KE \quad (21)$$

$$E < -500mV(SCE) \quad i = i_0 \exp [\alpha F (E - E_0) / (RT)] \quad (22)$$

i : アノード溶解電流密度 (A/m^2)

i_0 : 交換電流密度 (A/m^2)

E_0 : アノード溶解反応の平衡電位 (mV/SCE)

E : 局所的な電極電位 (mV/SCE)

F : Faraday 定数 (C/mol)

α : 電荷移動度係数

i_A : (20式)による-500mV(SCE)での i

K : 液抵抗の逆数

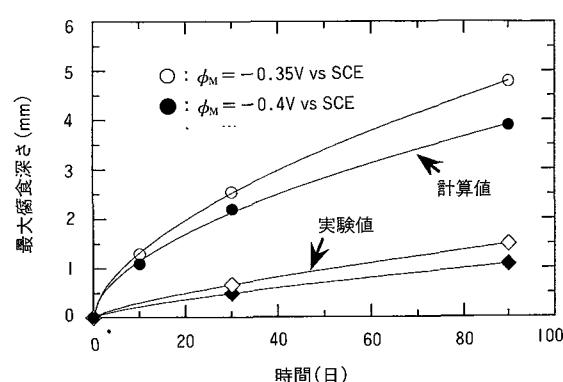


図6 局部腐食進展速度評価モデルによる最大腐食深さの予測と実験値の比較

(2) 計算結果

モデルによる予測値と実験的に求められた腐食深さの経時変化を図6に示す。実験データについては、以下の溶液中で浸漬試験を行い試験結果に局値統計法を適用して、オーバーパック一体の表面積における最大腐食深さとして得られた値を示した¹⁵⁾。

$$[\text{Cl}^-] = 1000 \text{ ppm}$$

$$[\text{HCO}_3^- + \text{CO}_3^{2-}] = 600 \text{ ppm}$$

温度：80°C

モデルによる予測値は実験値よりも大きな値を示した。この要因として、このモデルがカソード反応の制限を無視していることが挙げられる。実際の腐食反応では金属表面の酸素濃度や電位によってカソード反応速度が変化するとともに、アノード反応とカソード反応の電荷バランスが保たれる。しかし、このモデルでは無限のカソード電荷が供給されることを仮定しており、カソード反応側の抑制が考慮されていない。また、腐食生成物による影響を考慮していないことも要因のひとつと考えられる。実際の腐食反応では腐食の進展に伴って腐食生成物が堆積し、ピット外側の物質輸送が制限され、ピット内部の電位分布に影響を与えることが想定される。現在、より現実に近い評価を行うために、これらの抑制要因を考慮したモデルに改良するための研究が進められている。

4. おわりに

全面腐食についてはアノード反応として鉄の溶解反応を、カソード反応として酸素の還元反応と水の還元反応を考慮したモデルを作成した。鉄の溶解反応と水の還元反応は、活性化律速にあるとして Butler-Volmer 型の速度式で表した。酸素の還元反応は溶存酸素の輸送が律速するとして、圧縮ベントナイト中の溶存酸素の拡散を評価することにより、酸素の還元反応の速度を評価した。このモデルでは皮膜の効果を無視するという保守的な仮定を置いているため、実験値よりも大きな腐食速度が算定された。

全面腐食モデルについては皮膜の影響等を考慮した、より現実的なモデルに改良することが今後の課題である。この場合、還元条件における皮膜形成下での腐食速度の律速段階を評価するとともに皮膜の存在下での不均一腐食の影響を考慮しなければならない。しかし、現状ではこれらについて定量的な研究例はほとんどなく、今後検討が必

要である。

局部腐食については、その進展しうる期間を、不動態保持電流以上のカソード電流を流せるだけの酸素のフラックスが維持される期間として、ベントナイト中の酸素の拡散を評価した。その結果、地下水で飽和した圧縮ベントナイト中では局部腐食は短期間で停止することがわかった。局部腐食の進展挙動については、質量保存の方程式を支配方程式とする腐食モデルを開発した。現状のモデルは、保守的にカソード反応による抑制要因とピット外側における物質移動制限による抑制要因を無視しており、過度に大きな腐食速度を与える。現在、このような抑制要因を考慮した、より現実的なモデルに改良するための研究が進められている。

参考文献

- 1) 動力炉・核燃料開発事業団：“高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書”，PNC TN1410 92-081(1992).
- 2) 石川博久、本田明、他：“海外におけるオーバーパックの検討例について”，PNC TN8420 92-010 (1992).
- 3) 石川博久、本田明、他：“オーバーパックの候補材料選定と炭素鋼オーバーパックの寿命評価”，PNC TN8410 92-139 (1992).
- 4) G. P. Marsh and K. J. Taylor：“An Assessment of Carbon Steel Containers for Radioactive Waste Disposal”，Corros. Sci. 28, 3, pp. 289-320 (1988).
- 5) 川崎学、本田明：“ベントナイト中における溶存酸素の実効拡散係数の測定”，原子力学会「1994 秋の大会」予稿集 K-9.
- 6) B. Case：“The Diffusivity of Oxygen in Dilute Alkaline Solution from 0 °C to 65°C”，Electrochimica Acta. 18, 293 (1973).
- 7) H. Ishikawa, A. Honda, et al.：“Long Life Prediction of Carbon Steel Overpacks for Geological Isolation of High-Level Radioactive Waste”Proc. of NACE Conf. on ‘Life Prediction of Corrodible Structures’(1991).
- 8) B. J. Blackwood, A. R. Hock, et al.：“Research on Corrosion Aspects of Advanced Cold Process Canister”，SKB TR94-12 (1994).
- 9) J. P. Simpson, P. H. Valloton：“Experiments on Container Materials for Swiss High-Level Waste Disposal Projects Part III”，Nagra Technical Report 86-25 (1984).
- 10) K. Noda, Y. Hirota, et al.：“Evaluation of Uniform Corrosion Rate of Carbon Steel in Deraeted Carbonate Solutions”，Draft Proceeding of International Symposium on ‘Plant Aging and Life Prediction of Corrodible Structures’，(1995).
- 11) N. Platts, D. J. Blackwood, et al.：“Anaerobic Oxidation of Carbon Steel in Granitic Groundwater:A Review of the Relevant Literature”，SKB TR94-01 (1994).
- 12) G. P. Marsh, A. H. Harker, et al.：“Corrosion of Carbon Steel Nuclear Waste Containers in Marine Sediment”，Corrosion, 45, 7, pp. 579-589(1989).
- 13) 谷口直樹、本田明、他：“圧縮ベントナイト中における炭素鋼オーバーパックの局部腐食進展期間の評価”、「第 41 回腐食防食討論会」講演集、B-315(1994).
- 14) S. M. Sharland, C. C. Naish, et al.：“An Experimental

- Study of the Localized Corrosion of Carbon Steel Overpacks for the Geological Disposal of Radioactive Waste", *Proc. of NACE Conf.* on 'Life Prediction of Corrodible Structures'(1991).
- 15) A. Hoch, A. Honda, et al.: "A Modelling Study and Experimental Study for Long-Term Prediction of Localized Corrosion in Carbon Steel Overpacks for High-Level Radioactive Waste", *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, 353, pp. 703-710 (1995).



高レベル放射性廃棄物の高減容処理研究

米谷 雅之 河村 和廣 山下 照雄
槇 賢一 五十嵐 寛 大内 仁

東海事業所 環境技術開発部

資料番号：98-10

Experiments on High-waste-loading Process of High-Level Liquid Wastes

Masayuki Yoneya Kazuhiro Kawamura Teruo Yamashita
Kenichi Sasage Hiroshi Igarashi Jin Ohuchi
(Waste Technology Development Division, Tokai Works)

高レベル廃棄物ガラス固化体の廃棄物含有率は、高レベル固化体中の相分離、ガラス溶融炉運転への影響および発熱元素の固化体特性に与える影響などから、現在では約25wt%に制限されている。この制限を緩和し、廃棄物の減容化を図るために、夫々の制限因子となっているMo、Pd・Ru、Cs・Srの各元素を高レベル廃液から分離すると共に、これらを固化処理することが必要である。

本稿では、それらの元素を分離して固化する一連の高減容プロセス概念を構築し、実験データをもとにその技術的実現性を示した

1. はじめに

核燃料サイクルから発生する放射性廃棄物量を低減するための努力が各国で実施されている^{1),2)}。

高レベル廃棄物量の低減化を目指した技術の高度化は今後の課題と考えられている。使用済燃料の再処理工程から発生する高レベル廃液に含まれる核分裂性生成物、アクチニド元素、腐食生成物等(以下、廃棄物成分と呼ぶ。)は、処理・貯蔵・処分の観点から安定な形態に固定化するために、ガラスを媒体として高温で溶融し高レベル廃棄物のガラス固化体にされる。現在のガラス固化体の製造に関して減容率を制限している諸因子を検討し、これへの有効な対策が立てられれば、高レベル廃棄物の管理負担が低減できる廃棄物減容化への見通しが明らかになると期待される。

2. 高減容化の着眼点

廃棄物量低減の主対象とした、再処理により発生する高レベル廃液については、それを固定化したガラス固化体をいかに減容できるかが課題となる。高レベル廃液に含まれる廃棄物成分がガラス固化体中で占める含有率を高めることができれば、その分ガラス固化体の減容が可能となる。し

かし現状では、以下の理由によって廃棄物含有率は約25%に制限されている。

- ① 廃棄物含有率を増加させると、ガラス固化体中に相分離物が生じる。この相分離物には、水に溶け易いモリブデン(Mo)が主成分として含まれるため、ガラス固化体の化学的耐久性が低下すること。
- ② 高レベル廃液はガラス原料と混合され、直接受電加熱により溶融後固化されるが、廃棄物含有率が高くなると、これに含まれる電気伝導性の高い白金族元素濃度も増大し、溶融炉の運転に影響を与えること。
- ③ 核分裂生成物などの崩壊熱によりガラス固化体そのものが発熱しているため(図1)、廃棄物含有率が高くなると発熱密度が増加しガラス固化体の温度が高くなる。ガラス固化体の温度が長期間にわたって管理値を越える場合には、ガラス固化体は結晶化し化学的耐久性が低下すること。ガラス固化した直後では、ガラス固化体1本あたりセシウム(Cs)、ストロンチウム(Sr)およびそれぞれの娘核種の発熱量の全合計0.95kWは、ガラス固化体全発熱量1.2kWの80%を占める。同時に、ガラ

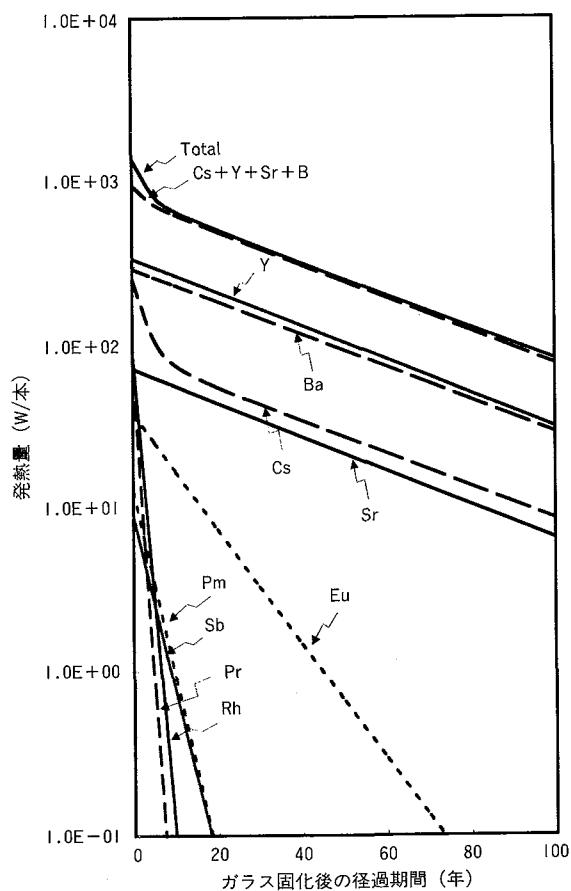


図1 発熱量の経年変化 (PWR, 28000MWD / MTU, U-235 (4.0wt %))

(燃焼度が28000MWD/MTU、比出力35MW/MTUの使用済燃料を再処理し、発生した高レベル廃棄物含有率25wt%でガラス固化するとした。なお、原子炉から取り出した後0.5年間を経て再処理し、5年間廃液を貯蔵後ガラス固化したものと仮定した。)

ス固化後50年を経過すると全発熱量0.25kWの95%を、100年を経過すると全発熱量0.8kWの92%を占める。

したがって、減容化のためには廃棄物含有率を増加させてもこれらの現象が発生しないように、これを誘発する廃棄物成分元素を分離し、かつ分離した元素と残った残渣を各々安定な形態に固化し、廃棄物量を低減できるプロセスの構築が重要である。

本稿は、高レベル廃棄物の減容プロセスについて、相分離の原因となるMo、白金元素であるパラジウム(Pd)・ルテニウム(Ru)、主要な発熱元素であるセシウム(Cs)・ストロンチウム(Sr)の廃棄物成分からの分離、およびそれらの固化体並びに高減容固化体に関する試験結果を報告するものである。

3. 高レベル廃液からの元素分離と固化

3. 1 元素分離

高レベル廃液からのMo, Pd・Ru, Cs・Srの元素

分離については、大内らの研究がある^{4)~6)}。

廃棄物含有率を高めると、高レベル廃液中には、Moを主成分とする沈殿物が存在することから、これを分離することにより、高レベル廃液中のMoを分離できる⁴⁾。

高レベル廃液に溶存した白金族元素であるPd・Ruは、電解法によりそれぞれ分離できる⁵⁾。

高レベル廃液の液性が中性では、Cs・Sr以外の大部分の廃棄物成分は沈殿する一方で、発熱元素であるCs・Srは、酸性から中性のpH値に対して溶存する特性を持つため薬液性を制御することによりCs・Srをろ過分離できる⁶⁾。なお、3液中にCs・Srと共に存在する試素のNaとの分離には、ゼオライトによる吸着・溶離を適用する⁷⁾。

3. 2 固化

廃棄物成分から分離した元素およびそのあとに残った残渣の安定な形態への固化には、マトリックスの選定が重要である。固化体のマトリックスとしてホウケイ酸ガラス、リン酸ガラス、結晶化ガラスなどが考えられるが、廃棄物含有率の増大に適応できる本研究の固化のためのマトリックスとしては、標準的なガラス固化体のベースとしているホウケイ酸ガラスを選択し、その適用性の拡張可能性を見ることとした。

以下では、分離されたMoを主成分とする沈殿物の固化体を「Mo沈殿物固化体」、分離された発熱元素であるCs・Srの固化体を「発熱元素固化体」、分離されたあとに残った残渣の固化体を「高減容ガラス固化体」と呼ぶ。分離されたPd・Ruは白金属元素としての有効利用が期待できるため⁸⁾、マトリックスを添加した固化体を考慮しなかった。発熱元素固化体は発熱密度が高いため、冷却性能の高い貯蔵が必要となる。

3. 3 高減容プロセスの構成

放射性廃棄物処理プロセスには、一般的に単純な方法であること、試薬添加により2次廃棄物量を増やさないことが要求されるため、高減容プロセスにおいてもこの条件を満足する必要がある。

この観点から、3種類の元素分離工程を一連のプロセスにするため、前段工程の分離操作が後段工程の分離性能に影響しないように分離工程の順序を検討した。高減容プロセスの概念フローを図2に示した。プロセスの第1段階では、Moを主成分とする沈殿物を液性の変化なしに、固液分離により高レベル廃液から分離し、分離された沈殿物をMo沈殿物固化体にする。第2段階では、沈殿

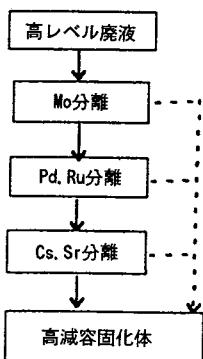


図2 高減容プロセスの概念

物が除去された高レベル廃液から液性はそのまままで、Pdは還元により、またRuは酸化（揮発性 RuO_4 の形態）によりそれぞれ電解法によって分離する。第3段階では、第2段階の高レベル廃液にギ酸を添加して脱硝し、廃液の液性を中性に変更してCs・Sr以外の元素を沈殿させ、固液分離によりCs・Srを溶液側に分離する。この後Cs・Srを含む溶液は発熱元素固化体に、また沈殿物はガラス固化体に処理するものである。

4. 試験

東海再処理工場の高レベル廃液貯槽からサンプリングした実高レベル廃液を試験に使用した。組成を知るために、ホット試験施設(CPF: Chemical Processing Facility)で廃液を分析した。一方、ORIGENを用いた計算結果により、使用済燃料の組成を決め、この組成にしたがって、模擬高レベル廃液を調整した。実高レベル廃液と模擬高レベル廃液の組成を表1に示す。

4. 1 Mo 分離試験⁴⁾

Moを主成分とする沈殿物を、模擬することは難しいため、実高レベル廃液中の沈殿物を用いてMo分離試験を行った。

ガラス纖維ろ紙（直径5.5cm、孔径0.6μm）をロートに取付け、ロート出口部に真空ポンプをつないだ。50mℓの実高レベル廃液をロートに注ぎ、真空ろ過した。このとき得られたろ液を分析した。

分離した各元素の分離率を、実高レベル廃液中の元素量とろ液中の元素量とから、(1)式により定義した。

$$\text{分離率}(\%) = \frac{\text{HLLW 中の元素量} - \text{ろ液中の元素量}}{\text{HLLW 中の元素量}} \times 100 \quad (1)$$

Mo分離試験で得られた実高レベル廃液中の各

表1 供試高レベル廃液の組成

	実高レベル廃液 ¹⁾ (g/L)	模擬高レベル廃液 ²⁾ (g/L)
Na	21	22.55
Fe	6.9	4.34
Ni	1.2	0.55
Cr	1.2	0.21
P	N.D.	0.39
Se	N.D.	0.04
Rb	N.D.	0.31
Sr	0.97	0.77
Y	0.48	0.43
Zr	2.0	3.29
Mo	1.9	2.94
Ru	1.8	1.71
Rh	N.D.	0.35
Pd	1.2	0.92
Ag	N.D.	0.04
Cd	N.D.	0.05
Sn	N.D.	0.04
Te	N.D.	0.04
Cs	N.D.	2.14
Ba	1.8	1.33
La	1.2	1.10
Ce	3.1	8.25
Pr	1.1	1.05
Nd	4.1	3.61
Sm	0.87	0.77
Eu	0.17	0.12
Gd	N.D.	0.06
HNO ₃	—	2.5mol/L

* 1 東海再処理工場の高レベル廃液貯槽から採取し、CPFにて発光分光法で分析した。N.D.は分析下限値を示す。

* 2 燃焼度28,000MWd/MTU、炉取り出し後5.5年冷却の軽水炉使用済燃料を再処理したとき発生する高レベル廃液組成。

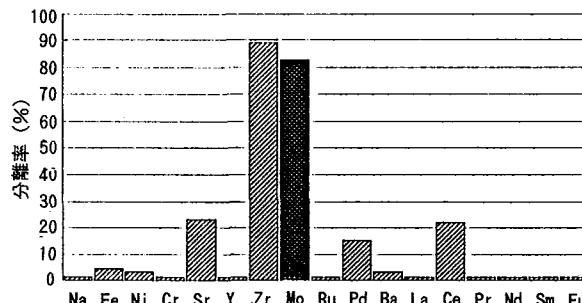


図3 沈殿物分離による実高レベル廃液中の各元素の分離率

元素の分離率を図3に示す。Moの分離率は83%であった。高レベル廃液中のZrは沈殿物に含まれる。このため、他の元素に比し、Zrの分離率は高く90%であった。

4. 2 Pd 分離試験、Ru 分離試験⁵⁾

(1) 電解法によるPd分離試験

フラスコに模擬高レベル廃液（200mℓ）を入れ、この廃液に白金製ワイヤー状の陰極（2φ）と陽極（1φ）を挿入し、さらに銀・塩化銀参照電極を入れる。陰極、陽極、参照電極はポテンシオスタット電源につなぐ。

以上の準備の後、陰極の銀・塩化銀参照電極に

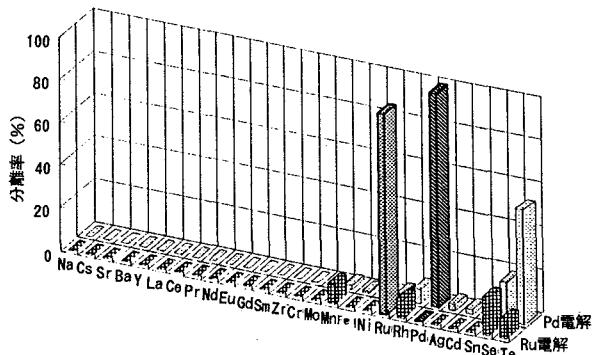


図4 模擬高レベル廃液から電解法でPd, Ruを分離したときの各元素の分離率

対する電位が常に0Vになるように、陰極と陽極に直流電流を720分間流し続けた。通電終了後、陰極の付着物を分析し、フラスコ内の模擬高レベル廃液の組成を分析した。

付着物はPdであったこと、通電終了後の模擬高レベル廃液中のPd濃度は、通電前に比し減少していたことから、電解法により廃液中のPdは還元され、陰極に析出したものと考えられる。

(2) 電解法によるRu分離試験

Pdを分離したあとの模擬高レベル廃液に、白金製ワイヤー状の陰極(1φ)と白金製メッシュ円筒状の陽極(161cm²)をそれぞれ挿入し、さらに銀・塩化銀参照電極を挿入する。陰極、陽極、参照電極はポテンシオスタット電源につなぐ。フラスコ内上部の気相部分に管をとりつけ、管の一方は塩酸溶液に浸す。

以上の準備の後、陰極の銀・塩化銀参照電極に対する電位が常に1.8Vになるように、陰極と陽極に直流電流を720分間流し続けた。通電中、模擬高レベル廃液中に1ℓ/minの空気を供給した。通電終了後、塩酸溶液、模擬高レベル廃液、それぞれの組成を分析した。

塩酸溶液にRuが存在したこと、通電終了後の模擬高レベル廃液中のRu濃度が、通電前に比し減少していたことから、電解法により廃液中のRuは揮発し、分離されたと考えられる。

電解を行う前の廃液中の元素量と、電解を行った後の廃液中の元素量とから、分離した元素の分離率を(2)式により定義した。

$$\text{分離率}(\%) = \frac{\text{電解後の HLLW 中の元素量}}{\text{電解前の HLLW 中の元素量}} \times 100 \quad (2)$$

Pd分離試験、Ru分離試験で得られた各元素の分離率を図4に示す。他の元素に比し、Pd・Ruの分離率は高く、それぞれ90%以上であった。

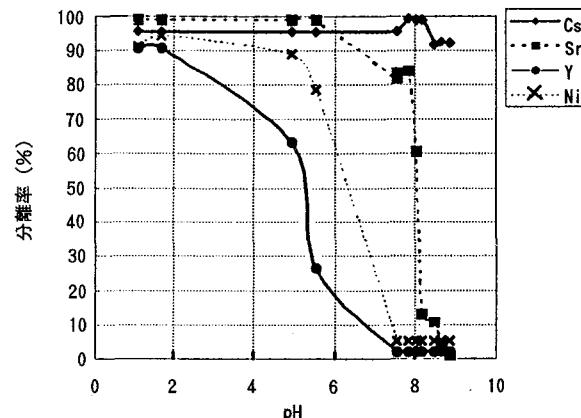


図5 模擬高レベル廃液脱硝・ろ過後の各元素の分離率

4.3 Cs・Sr 分離試験⁶⁾

模擬高レベル廃液(0.3ℓ)をフラスコに入れ、95°Cに加熱する。フラスコの気相部はコンデンサーで冷却し、凝縮水はフラスコに還流する。加熱開始後、廃液にギ酸を添加する。ギ酸添加が終了したのち、廃液の加熱を停止し、室温で冷却する。室温まで冷却された廃液のpHを測定する。この廃液をろ過(ミリポアフィルター、孔径0.45μm)し、ろ液を分析する。

ギ酸の全供給量を変えて(廃液硝酸量の1.4倍、1.7倍、1.9倍、2.1倍)、以上の操作をそれぞれ行った。

ギ酸の全供給量を変えた、すべての場合において、ギ酸を添加すると廃液からNOxが発生した。また、ギ酸添加によって廃液のpHは高くなった。ギ酸の供給量が多いほど、廃液のpHは高くなつたことから、廃液は脱硝されたものと考えた。

脱硝による液性の変化で廃棄物成分に沈澱が見られるが、これをろ過したときの各元素の分離率を、脱硝した廃液中の元素量と、ろ液の元素量とから、(3)式により定義した。

$$\text{分離率}(\%) = \frac{\text{ろ液中の元素量}}{\text{HLLW 中の元素量}} \times 100 \quad (3)$$

Cs・Sr分離試験で得られた各元素の分離率を図5に示す。pHが、7から7.5の範囲では、Cs・Srの分離率は高く、かつ他の元素の分離率は低い。

4.4 固化体の組成設計と特性評価

表2に分離試験で得られた分離率と、高減容プロセスにおいて設定した分離率とを示す。設定した分離率で元素は分離され、分離された元素は固化されると仮定し、この固化体の組成を設計した(表3参照)。

表2 高減容プロセスにおける各元素の分離率

	分離率(%)	
	実験値	設定値
Mo	82.8	80
Pd	98.9	95
Ru	96.1	95
Cs	97.7	90
Sr	99	90

(1) 組成設計

1) Mo沈殿物固化体

Mo沈殿物固化体は、Moを多く含むため相分離を生じやすい、したがって、廃棄物含有率を高めても相分離を生じないように、標準的なガラス固化体組成に対し、 B_2O_3/SiO_2 比を高くした。すなわち、標準的なガラス固化体組成において $B_2O_3/SiO_2=0.30$ とし、これに比し、Mo沈殿物固化体組成では $B_2O_3/SiO_2=0.43$ とした。化学的耐久性を低下させない(浸出率を増加させない)ために、 Al_2O_3/Li_2O 比、 ZnO/Li_2O 比、を高くした。すなわち、標準的なガラス固化体組成($Al_2O_3/Li_2O=1.7$ 、 $ZnO/Li_2O=1.0$)に比し、Mo沈殿物固化体組成では $Al_2O_3/Li_2O=24$ 、 $ZnO/Li_2O=19$ とした。

$O=19$ とした。

2) 発熱元素固化体

発熱元素固化体の化学的耐久性を低下させないために、標準的なガラス固化体組成に対し、 Al_2O_3/Li_2O 比、 ZnO/Li_2O 比、を高くするため、発熱元素固化体における Li_2O の含有量をゼロとした。

3) 高減容ガラス固化体

高レベル廃液から元素分離を行ったあとに残る残渣を、標準的なガラス固化体の廃棄物含有率より高い廃棄物含有率で固化し、高減容化する場合、廃棄物含有率増加により生じる現象は起こらない。したがって、標準的なガラス固化体に用いられたガラス原料と残渣を固化すると想定し、高減容ガラス固化体組成を決めた。

2) 特性評価

模擬固化体を組成設計に基づいて1200°Cで溶融固化し作成した固化体の浸出率、粘性、電気抵抗、密度の測定結果^{9~11)}を表4に示す。

表4から試作した各固化体の特性は、標準的なガラス固化体の特性と同等であることが分る。

表3 高減容プロセスからの固化体と標準的なガラス固化体の組成

		標準的なガラス固化体	高減容プロセスから発生する固化体 (wt %)		
			Mo沈殿物固化体	発熱元素固化体	高減容ガラス固化体
ガラス原料成分	SiO ₂	46.60	41.3	42.2	34.27
	B ₂ O ₃	14.20	17.7	12.80	10.45
	Al ₂ O ₃	5.0	7.10	4.50	3.69
	Li ₂ O	3.0	0.30		2.20
	Na ₂ O	10.0	10.00	10.00	10.00
	CaO	3.0	3.00	2.70	2.20
	ZnO	3.0	5.70	2.70	2.20
廃棄物成分	P ₂ O ₅	0.3	0.3		0.04
	Fe ₂ O ₃	2.04			9.91
	NiO	0.23			1.04
	Cr ₂ O ₃	0.10			0.46
	Rb ₂ O	0.11			
	Cs ₂ O	0.75			
	SrO	0.30			
	BaO	0.49			
	ZrO ₂	1.46	7.0		2.01
	MoO ₃	1.45	8.0		0.54
	RuO ₂	0.74			0.15
	Rh ₂ O ₃	0.14			0.03
	PdO	0.35			0.08
	MnO ₂	0.37			1.40
	Ag ₂ O	0.02			0.04
	CdO	0.02			0.09
	SnO ₂	0.02			0.08
	SeO ₂	0.02			0.04
	TlO ₂	0.19			0.71
	Y ₂ O ₃	0.18			0.88
	La ₂ O ₃	0.42			2.06
	CeO ₂	3.34			4.14
	Pr ₂ O ₃	0.42			1.74
	Nd ₂ O ₃	1.38			6.72
	Sm ₂ O ₃	0.29			1.43
	Eu ₂ O ₃	0.05			0.22
	Gd ₂ O ₃	0.02			0.12
合計		100.0	100.0	100.0	100.0
廃棄物含有率		25	25	35	45

表4 高減容固化体と標準的なガラス固化体の物性値の比較

	標準的なガラス固化体	Mo沈殿物固化体	発熱元素固化体	高減容ガラス固化体
浸出率(g/m ² ・d) ^{*1}	0.23	0.18	0.47	0.18
粘性(log(Pa・sec)) ^{*2}	0.89	1.32	1.00	0.59
電気抵抗(Ω・cm) ^{*2}	11	21	18	7.75
密度(g/cm ³)	2.74	2.65	2.93	3.17

* 1 静的浸出試験：98°C、1日、蒸留水、SA/V=300m⁻¹

* 2 粘性と電気抵抗の測定時のガラス溶融温度：1200°C

5. 廃棄物量の試算

Mo沈殿物固化体、発熱元素固化体、高減容ガラス固化体の重量、およびそれぞれの固化体において測定された密度から1MTUあたりの固化体の体積を試算した(表5参照)。なお、高レベル廃液から分離された元素は、必ずしもマトリックスが添加された固化体にする必要はない。表5では、有効利用が考えられる Pd・Ru は金属形態、再利用が考えられる Na は酸化物形態を想定した。

試算から、高減容プロセスから発生する廃棄物量の合計体積0.061m³/MTUは、標準的なガラス固化体の体積0.11m³/MTUに比べて、1/2なので減容効果が得られたものと考えられる。

6. おわりに

元素分離に基づく高減容プロセスの概念の成立性を検討するために、実高レベル廃液および模擬高レベル廃液を用いて基礎試験を行った。基礎試験で得られた各元素の分離率から高減容プロセスから発生する固化体の組成を検討した。この組成に基づいて試作した固化体それぞれの特性は、標準的なガラス固化体と同等であった。さらに高減容プロセスから発生する廃棄物量を試算した結果

表5 高減容プロセスから発生する廃棄物量

	廃棄物量(m ³ /MTU)	密度(g/cm ³)	廃棄物含有率(wt%)
Mo沈殿物固化体	0.023	2.653	25
Pd, Ru	0.0002	12	100
発熱元素固化体	0.005	2.933	35
高減容ガラス固化体	0.0278	3.165	45
Na ₂ O ^{*1}	0.0058	2.39	100
合計体積	0.0608		
標準的なガラス固化体	0.11	2.7	25

* 1 高レベル廃液中のNa₂Oは30kg/MTU含まれており、このうち15kg/MTUを高減容固化体のマトリックス材として使用し残り15kg/MTUは、Na₂O廃棄物とした。

果、標準的な固化体量と比較し廃棄物量は半分程度となった。以上の結果から、高減容プロセスの成立する可能性が示された。

今後は、実験室規模の試験を継続し高減容プロセスの分離率の変動に与える要因を調べ、この要因と分離率との定量的関係を明らかにしていくとともに、プロセスの単純化についても検討していく予定としている。

参考文献

- 1) Masson, H. and Runge, S., "Waste Management Issues: Reprocessing or Direct Disposal", Proceedings of the Fourth International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management, RECOD '94, London, UK, Apr. 24-28, (1994), 1.
- 2) Revenko, Y.A., Lazarev, L.N. and Romanovsky, V.N., "Radioactive Waste Management of Radiochemical Plant under Construction near Krasnoyarsk", Proceedings of the International Topical Meeting on Nuclear and Hazardous Waste Management, SPECTRUM '94, Atlanta, GA, U.S.A., August 14-18, 2015-2018, (1994).
- 3) Wiese, H. and Ewest, E., "Industrial Vitrification of High Level Liquid Wastes in the PAMELA Plant", Proceedings of the Symposium on Waste Management, Tucson, Arizona, U.S.A., Feb28-Mar3, 2, 173-179, (1988).
- 4) 大内、他：高レベル廃液からのモリブデン沈殿物分離試験、日本原子力学会1994年春の年会 A24 (1994).
- 5) 大内、他：電解法による高レベル廃液からのルテニウム除去試験 (ID、日本原子力学会1993年秋の大会 L49 (1993).
- 6) 大内、他：脱硝による高レベル廃液からの発熱元素分離、日本原子力学会1993年春の年会 H40 (1993).
- 7) Mimura, H., Kobayashi, T., Akiba, K., Hanamoto, Y. and Kawamura, K., "Separation of Cesium and Strontium from High-Level Liquid Wastes by Columns of Mixed Zeolites", Proceedings of the Fourth International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management, RECOD '94, London, UK, Apr. 24-28, 3, (1994).
- 8) IAEA, Technical Report Series No.308, 1989 Feasibility of Separation and Utilization of Ruthenium, Rhodium and Palladium from High Level Wastes.
- 9) 大内、他：高レベル廃液分離物の固化試験、日本原子力学会1995年秋の大会 J34 (1995).
- 10) Kawamura, K. and Ohuchi, J., "Characterization of Highly Waste Loaded Glass for HLW", Materials Research Society Symposium Proceedings Volume 353, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII, Symposium held October 23-27, (1994), Kyoto, Japan.
- 11) Yoneya, M., Kawamura, K., Igarashi, H. and Ohuchi, J., "Technical Incentive to High-waste-loading process of HLLW", Proceedings of the Fifth International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation, Berlin, Germany, Sept. 3-8, (1995).



国際会議 海外派遣等

平成8年1月から3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

期日	開催場所	会議名および内容
2/20~21	東海	「ISTC政府支援プロジェクト専門家会議」 国際科学技術センター（ISTC）の日本政府支援プロジェクト検討会議
3/18~3/19	大洗	「ISTC政府支援プロジェクト専門家会議」 国際科学技術センター（ISTC）の日本政府支援プロジェクト検討会議

(2) 海外派遣・留学

派遣・留学先	期間	人数	目的
IAEA	1996.2.17~1999.2.16	1名	保障措置査察業務

(3) 主要外国人の来訪

訪問日	訪問場所	訪問者
2/22	東海・大洗	米ローレンスバークレー国立研究所（LBNL）シャンク所長
3/8	もんじゅ	第7回アジア地域原子力協力国際会議参加者一行

活動

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 関	発 表 者	
		所 属	氏 名
IAEAにおける高速炉炉心耐震解析国際共同研究の成果	日本原子力学会誌 Vol.38, No3	動 燃	森下 正樹
EVALUATION OF NEUTRONIC CHARACTERISTICS OF IN-PILE TEST REACTOR FOR FAST REACTOR SAFETY RESEARCH	International Conference on the Physics of Reactor (PHYSOR 96')	同 上	宇都 成昭、大野 修司 川太 徳夫
過渡熱応力リアルタイムシミュレーションコードPARTSの開発-	サンエンティック・システム研究会	//	笠原 直人
A STUDY OF PASSIVE SAFETY FEATURES BY UTILIZING INTR-SUBASSEMBLY-EQUIPED SELF-ACTUATED SHUTDOWN MECHANISM	ICONE-4 American Society of Mechanical Engineering	//	宇都 成昭、家田 芳明 佐藤和二郎
Feasibility Study on Application of Ductless Fuel Assembly	同 上	//	柴原 格
Density Wave Oscillation Beyond Dryout under Forced Circulation	//	//	望月 弘保
「常陽」MK-II炉心の核特性測定と評価	研究炉等の運転管理および改良に関する研究会(弥生研究会)	//	長沖 吉弘、有井 祥夫
「常陽」温度制御型材料照射装置の開発および照射実績	同 上	//	揃 政敏、片岡 一 宮川 俊一
高速炉MOX燃料ペレットのリム領域における挙動	連合シンポジウム「核分裂エネルギー・システムにおける界面効果」東大・原子力産業会議	//	前田 宏治、浅賀 健男 三次 岳志
Development of Oxide Dispersion Strengthened Ferritic Steels for Fast Reactor Code Application	Meteorid Chemistry '96, 国際シンポジウム つくば市 金材研	//	鶴鉈 重治、西田 俊夫 岡田 浩一、他
RESEARCH ON CREATION OF ADVANCED MATERIALS IN NUCLEAR SEVERE ENVIRONMENT	同 上	//	加納 茂機、館 義昭 井上 賢紀他
Research on Creation of Advanced Ceramics	//	//	館 義昭、平川 康 吉田 英一、他
Research on Creation of Functionally Gradient Materials	//	//	齊藤 淳一、西田 俊夫 丸山 忠司、他
Development of Advanced Control Rod Materials for FBR	//	//	丸山 忠司、小野瀬庄二
高速炉「MOX」システムの現状および将来技術に基づく発電コスト分析	日本原子力学会 1996年 春の年会	//	小藤 博英、中島 一郎 鹿倉 栄、他
燃料破損時のプレナムガス放出モデルの開発	同 上	//	川田 賢一、丹羽 元
FBR安全性炉内試験計画SERAPH(8)-主要課題における試験要求条件	//	//	丹羽 元、佐藤 一憲 飛田 吉春、他
地震PASにおける損傷の相関の評価手法に関する考察	//	//	山口 彰
境界要素法による構造物の熱的応答評価コードBEMSETの開発	//	//	村松 寿晴
高速炉遮蔽プラグにおけるカバーガス空間内放射伝熱量の評価	//	//	土井 稔浩、大平 博昭
サブチャンネル解析コードASFRE-IIIの検証	//	//	大高 雅彦、大島 宏之 上出 英樹
サブチャンネル解析コードASFRE-IIIの並列計算機への適用	//	//	大島 宏之
プラント動特性解析コードSuper-COPDの検証(II)－自然循環適用解析	//	//	大滝 明

件 名	発 表 機 間	発 表 者	
		所 属	氏 名
ラッパ管湾曲に及ぼす断面の力学的特性の検討	日本原子力学会 1996年 春の年会	動 燃	月森 和之
コモンデッキ方式機器上下免震構造の開発—その1 全体概要と基本的構造概念	同 上	同 上	森下 正樹
コモンデッキ方式機器上下免震構造の開発—その4 免震要素としての皿ばねの構造解析手法	//	//	坂井 哲也、月森 和之 森下 正樹
Development of a Preprocessor to Generate Monte Carlo Code Input and its Application to Analysis of MASURCA	//	//	石川 真、J. K. F I
Pu vector Sensitivity Study for a 600 MW (e), Pu Burning, Fast Reactor	//	//	若林 利男、Hunter
高速炉炉心用酸化物分散強化型フェライト鋼の開発—強度異方性に及ぼす結晶粒形状および集合組織の影響評価	//	//	岡田 浩一、井上 賢紀 鶴飼 重治
過渡過出力事象における燃料ピンの破損挙動評価	//	//	皆藤 咸二、岡田 浩一 水野 朋保、他
原子力極限環境材料の開発に関する研究—耐 Na 性・耐放射線性新素材の開発	//	//	加納 茂機、館 義昭 小野瀬庄二、他
原子力用人工知能を具備した原子力施設のシステム評価研究—(1)自律型運転制御プロイタイプシステムの開発	//	//	小沢 健二、須田 一則 大草 享一、他
自然循環時のインターラッパーフロー現象に関する研究—PLANRTL-DHX を用いたナトリウム過渡試験	//	//	桃井 一光、林 謙二 上出 英樹
ミキシング係数を考慮した集合体内多次元熱流動評価手法の開発	//	//	西村 元彦、上出 英樹
FBR 安全性炉心試験計画 SERAPH (9) —駆動炉心による加熱特性	//	//	宇都 成昭、大野 修司 川太 徳夫
CABRI-FAST 試験概略評価 (1) —パルス型過出力時の中空燃料拳動	//	//	佐藤 一憲、深野 義隆
CABRI-FAST 試験概略評価 (2) —ランプ型過出力時の中空燃料拳動	//	//	深野 義隆、佐藤 一憲
FBR 安全性炉内試験計画 SERAPH (7) —再臨界排除に向けた研究課題	//	//	飛田 吉春、野中 信之 守田 幸路、他
FBR 安全性炉内試験計画 SERAPH (10) —主要試験に対する性能評価	//	//	川太 徳夫、宇都 成昭 大野 修司、他
火薬トーチ模擬試験による蒸気発生器伝熱間破損評価法の検証	//	//	浜田 広次、栗原 成計
316FR 鋼板のクリープ強度に及ぼすナトリウム環境の影響	//	//	古川 智弘、吉田 英一 加藤 章一
酸化物分散強化型フェライト鋼の高温 Na 中における腐食特性—相変態領域の組織・構造の検討	//	//	平川 康、伊藤 卓志 吉田 英一
低炭素窒素添加ステンレス鋼中の炭化物生成・成長に関する計算検討	//	//	黒田 哲宏、渡士 克己
コモンデッキ方式機器上下免震構造の開発—その2 最適な上下免振特性の設定	//	//	大岡 誠、森下 正樹
コモンデッキ方式機器上下免振構造の開発—その3 縮小モデルによる振動試験	//	//	堀切 守人、大岡 誠 森下 正樹、他
2重管 SG 信頼性評価における異なる内外管破損による Na 一水反応事象の排除	//	//	若井 隆純、古川 智弘 木曾原直之
高速炉燃料からの He 放出挙動評価	//	//	勝山 幸三、浅賀 健男
高速炉構造用316の強度特性に及ぼす中性子照射効果	//	//	宮地 紀子、阿部 康弘 浅山 泰、他
高速炉用中性子吸収材料としての B ₄ C/BN 複合材料の試作	//	//	丸山 忠司、小野瀬庄二
高速炉ドジメトリーにおける He 蓄積型フルエンスモニタの開発	//	//	伊藤 主税、青山 卓史 鈴木 惣十
高速炉プラントの CP 挙動測定へのシンチレーション光ファイバの適用	//	//	住野 公造、青山 卓史 齋藤 圭、他
液面に衝突する上向き平面噴流の自励振動；噴流の可視化と進行流速の計測	//	//	飯田 将雄
高速炉用中性子吸収材料としての B ₄ C/BN 複合材料の試作	//	//	丸山 忠司、小野瀬庄二
高速増殖原型炉もんじゅの建設（その65）炉内ガンマ線量分布測定	//	//	松宮 勝人、宇佐美 晋 田林 正雄、他

件 名	発 表 機 間	発 表 者	
		所 属	氏 名
圧力管型重水炉の MOX 燃料格子における冷却材ボイド反応度の挙動解明	重水炉の高度化に関する国際会議 IAEA	動 燃	福村 信男、小綿 泰樹 猪原 敏照
THE APPLICATION OF AI-BASED REFUELING SYSTEM TO THE FUGEN NPP	ICONE-4 ASME, JSME	同 上	前田 康一、中村 信二 西村 弘、南光 隆 川崎 昇
「ふげん」原子炉出力制御操作支援システムの開発	日本原子力学会 1996年 春の年会	//	白鳥 芳武、中嶋 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) - 廉外熱クリープ特性	同 上	//	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	//	//	鶴志田 洋、稻田 卓 望月 弘保
熱処理 Zr-2.5% Nb 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、他
カナダ アサバスカ地域におけるウラン探査技術の現状と課題	次世代資源探査技術開発に関する検討会	//	山岸 明子
多原子分子の非平衡膨張流れ	「極度に非平衡な反応性流れの解説」日本航空宇宙学会	//	鈴木 栄二、須藤 収 高橋 武士
Uranium Isotope Exchange between Gaseous UF ₆ and Solid UF ₅	ICONE-4 ASME, JSME	//	矢戸 弓雄、須藤 収 船坂 英之、岸本洋一郎 笛尾 信之
アジ化水素酸の Purex プロセス内挙動に関するプロセスフローシート解析	日本原子力学会 1996年 春の年会	//	林 直美、武田 伸莊
Tc 共存硝酸水溶液中における材料浸漬試験	同 上	//	竹内 正行、永井 崇之 武田誠一郎、鹿倉 栄
空間走行型セル内点検装置の開発 - 走行装置の改良 -	//	//	植野 和浩、石橋 祐三 小泉 務、武田誠一郎 鹿倉 栄
NMR による CMPO/TBP 系におけるラントニド錯体の構造解析	//	//	佐野 雄一、田中 康正 岡本 文敏、青瀬 晋一
FBR 燃料溶解液中の I ¹²⁹ I 分析法の開発 (2)	//	//	篠崎 忠宏、田中 康正 岡本 文敏、菅沼 隆
低 Pu, U 混合燃料体系に対する SCALE-4 の臨界ベンチマーク計算	//	//	白井 更知、須藤 俊幸
TOMASS の概要と設備保全実績	//	//	谷口 隆幸、岩崎 省悟 深野木真二
軽水炉 MOX 燃料処理のためのミキサー・セトラ抽出挙動調査 (1)	//	//	大曾根 隆、宮地 茂彦 田辺 陽司、他
EXAFS 測定による再処理工程内の第三相構造解析 (1)	//	//	佐藤 宗一、黒沢 明 池田 久、他
東海再処理工場におけるプロセスシミュレータの開発 (2)	//	//	田口 克也、巖淵 弘樹 池田 久、他
東海再処理工場のせん断装置の特性評価 (その2)	//	//	弘田 好幸、吉岡 龍司 中島 節男
超音速冷却ノズル内流れの可視化	//	//	水書 稔治、齊藤 龍郎 鈴木 栄二、他
MOX 燃料施設の設計基準事象評価について	//	//	由利 明哉、熟田 芳治
プルトニウムの非破壊測定技術の開発 (1)	//	//	寺門 茂、関 成一 古川 登、他
MOX-Gd ₂ O ₃ 燃料開発 (2) 燃料設計	//	//	菊地 圭一、植松 真一
プルトニウム燃料の分析技術開発 (5) 高速液体クロマトグラフ法による MOX-Gd 燃料中の Gd の定量分析	//	//	影山十三男、檜山 敏明 上村勝一郎
ODS フェライト鋼の溶接技術開発 (3) - 抵抗溶接技術の会社 (2) -	//	//	西山 元邦、関 正之 上村勝一郎
MOX-Gd ₂ O ₃ 燃料開発 (1) 燃料製造及び照射試験計画	//	//	加藤 正人、小幡 真一 関 正之、他
噴霧熱分解法によるカリゅう粉末製造技術開発	//	//	加藤 良幸、川瀬 啓一 高橋 芳晴、他

件 名	発 表 機 間	発 表 者	
		所 属	氏 名
乾式回収粉の MOX 燃料ペレット焼結密度に与える影響	日本原子力学会 1996年 春の年会	動 燃	遠藤 秀男、成田 大祐 上村勝一郎
プルトニウム非破壊測定技術の開発 (2) — プルトニウムス クラップ・マルチプリシティカウンタ (PSMC) —	同 上	同 上	石川進一郎、舛井 仁一 中島 勝昭、他
MOX 燃料体検査における外観検査法の開発	//	//	白茂 英雄、中島 勝昭 松崎 壮晃、他
プルトニウム燃料の分析技術開発 (5) 高速液体クロマトグラフ法による MOX—Gd 燃料中の Gd の定量分析	//	//	影山十三男、檜山 敏明 上村勝一郎
ODS フェライト鋼の溶接技術開発 (3) — 抵抗溶接技術の 開発 (2) —	//	//	西山 元邦、関 正之 上村勝一郎
Development on FBR Fuel Reprocessing Technology in PNC	Fourth International Conference on Nuclear Engine ASME	//	武田誠一郎、河田東海夫
電解法による高レベル廃液からの Ru 分離試験	新湿式法再処理システム技術開発検討委員会 財団法人産業創造研究所	//	花本 行生
放射性廃棄物の処理・処分を考える	エネメイト講演会 原子力発電技術機構	//	大沢 正秀
諸外国の FEP との対比	地層処分性能評価シナリオに関する FEP 検討会	//	梅木 博之、内藤 守正
動燃における FEP データベース 地層処分システム性能評価におけるシナリオ開発のためのデータベースに関する研究	同 上	//	梅木 博之、内藤 守正
地層処分研究情報交換会の発表用 OHP 集	地層処分研究情報交換会 (INTEGRATE'96)	//	佐々木憲明
動燃における解体技術活動の概要 (OVER VIEW OF DISMANTLING ACTIVITIES IN PNC)	スロバキア支援全体会議 (財) 原子力施設デコミッショニング研究協会 (RANDEC)	//	朝倉 祥郎
Radionuclides removal from high salt content Low Liquid waste from the reprocessing plant—experiment results	Waste Management '96	//	小林 師、飯島 和毅 宮本 陽一
地層処分システム性能評価のための核種移行データベース開発の現状	第 1 回 NUCEF セミナー 日本原子力研究所	//	油井 三和
二座配位型抽出剤による高レベル廃液の核種分離	同 上	//	小沢 正基
地層科学研究とその技術開発	原子力への先端技術応用研究専門委員会 日本原子力学会	//	柳沢 孝一
青森県ガラス固化体に係わる安全性チェック検討会報告書	青森県ガラス固化体に係わる安全性チェック検討会 (第 4 回)	//	久保田和雄
Some Considerations for Future IAEA's Programme	Potential Sponsors Meeting	//	太田久仁雄、梅木 博之 内藤 守正、他
高性能透明中性子遮断材の開発	日本原子力学会 1996年 春の年会	//	館 義昭、加納 茂機
レーザ光による放射性廃棄物の除去法の開発	同 上	//	福井 康太、根本 正信 谷本 健一
アクチニドリサイクルにおけるリサイクル形態の最適化の検討	//	//	塩月 正雄、中島 一郎
結晶質岩中の物質移行経路としての割れ目構造解析	//	//	天野 健治、吉田 英一
1,000m 対応水理試験装置の開発	//	//	竹内 竜史、中野 勝志 田村 雅彦
1,000m 対応採水装置の開発	//	//	濱 克宏、瀬尾 俊弘
高レベル廃液からの TRU 元素の湿式分離研究 (15) — 実液を用いた三価アクチニドと希土類元素の分離試験 (2) —	//	//	駒 義和、田中 康正 小沢 正基、他
高レベル廃液からの TRU 元素の湿式分離研究 (14) — 実液を用いた三価アクチニドと希土類元素の分離試験 (1) —	//	//	渡部 雅之、田中 康正 小沢 正基、他
周辺岩体中の核種移行特性および複数の廃棄体の存在を考慮したニアフィールド中の核種移行挙動に関する検討	//	//	吉田 隆史、牧野 仁史 大井 貴夫
地層処分性能評価のための PNC—TDB の設備と現状	//	//	瀧谷 早苗、芦田 敬 油井 三和
ガラス固化体の溶解およびそれに伴う緩衝材中の核種移行に関する感度解析	//	//	牧野 仁史、吉田 隆史
ベントナイトに対する Ni の吸着挙動に関する研究	//	//	瀧谷 朝紀、油井 三和

件 名	発 表 機 間	発 表 者	
		所 属	氏 名
クリプトンガスのイオン注入固定化試験(X) —クリプトン注入合金の加熱によるKrガスの挙動	日本原子力学会 1996年 春の年会	動 燃	林 晋一郎、神谷 茂 宮本 陽一、他
クリプトンガスのイオン注入固定化試験(IX) —イオン注入容器のプラズマ解析—	同 上	同 上	神谷 茂、林 晋一郎 宮本 陽一、他
低放射性廃液中の放射性核種の挙動検討(II) —ニトロシリルテニウム錯体の共沈挙動—	//	//	小林 師、飯島 和毅 宮本 陽一
低放射性廃液からの核種除去試験(VI) —ヨウ素の沈殿除去—	//	//	飯島 和毅、小林 師 宮本 陽一、他
ガラス溶融炉内部構造物の観察性評価試験	//	//	二村 浩尔、五十嵐 寛 大内 仁、他
高レベル固化ガラス特性のプロセス管理	//	//	山下 照雄、五十嵐 寛 大内 仁
工学規模ガラス溶融炉の解体試験	//	//	小林 洋昭、五十嵐 寛 大内 仁
円筒電極直接通電型溶融炉の熱流動解析	//	//	吉田 勝、五十嵐 寛 大内 仁、他
ハル等廃棄物の高圧縮試験(I)	//	//	小嶋 裕、阿部 隆
YAGレーザによるハル缶切断技術の開発(I)(切断特性)	//	//	倉形光一郎
アクティブ中性子法によるTRU核種測定技術開発(3) —均質マトリクス補正手法の評価—	//	//	家村 圭輔、薄井 和也 入之内重徳、他
電気化学反応による有機物分解処理法の研究(1) 銀メディエータによるCMPOの間接電解酸化挙動	//	//	小沢 正基、小泉 健治 田中 康正
電気化学反応による有機物分解処理法の研究(2) CMPOの分解速度に及ぼすパラメータ解析	//	//	小泉 健治、小沢 正基 田中 康正
坑道の近傍における発破振動測定	資源 素材学会 平成8年度春季大会	//	佐藤 稔紀、菊地 正 杉原 弘造
放射性廃棄物処分場ニアフィールドの連成解析—DECOVALEXプロジェクトBMT3—	土木学会 第27回岩盤力学に関するシンポジウム	//	藤田 朝雄
ボーリング孔掘削時の水理応答観測による透水性割れ目調査	同 上	//	澤田 淳、内田 雅大 澤田 淳、他
原位置における粘土グラウト試験	//	//	藤田 朝雄、杉田 裕
スウェーデン Hard Rock Laboratory 坑道掘削に伴う地下水位低下予測解析	//	//	内田 雅大、澤田 淳
弾性波を利用した結晶質岩における既存坑道周りの掘削影響調査	//	//	松井 裕哉、佐藤 稔紀 杉原 弘造
坑道と交差する断層の周辺岩盤の変形挙動について	//	//	佐藤 稔紀、杉原 弘造
新第三系堆積岩での立坑掘削影響の計測と解析	//	//	杉原 弘造
ボーリング孔掘削時の水理応答観測による透水性割れ目調査	//	//	澤田 淳、内田 雅大 仙波 裕
不飽和岩石のサクションフラックス計測	地盤工学会(不飽和地盤の透水にかかる諸問題シンポジウム)	//	杉原 弘造
高レベル放射性廃棄物の地層処分における緩衝材中の水分移動について	同 上	//	藤田 朝雄、菅野 裕
高レベル放射性廃棄物の地層処分における緩衝材中の水分移動について	地盤工学会(不飽和地盤の透水にかかる諸問題シンポジウム)	//	藤田 朝雄、菅野 裕
神戸沖にみられる大阪湾断層の完新世における累積変位について	1996年地球惑星科学関連学会合同大会	//	荒木 龍介、石丸 恒存 藤原 治
日本列島における第四紀地形解析—火山地形の定量化の試み—	同 上	//	梅田 浩司
The Tono Natural Analogue Study Program	//	//	吉田 英一、花室 孝広
東濃地域の花崗岩を用いた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
津波堆積物からみた房総半島南部の隆起運動の周期	//	//	藤原 治
野島断層周辺(淡路島北西部)を対象とした空中電磁探査	//	//	石丸 恒存
岐阜県土岐における地下水位観測:遠地大地震前の変化	//	//	梅田 浩司
フラクタル理論による堆積岩中の透水係数分布の推定	//	//	前川 恵輔
3次元反射法地震探査による、淡路島北淡町小倉地域の野島断層の地下構造調	//	//	石丸 恒存

件 名	発 表 機 間	発 表 者	
		所 属	氏 名
釜石原位置試験場周辺の花崗閃綠岩中の水理地質構造調査—試錐時の圧力応答観測に基づく透水性亀裂の特定—	1996年 地球惑星科学 関連学会 合同大会	動 燃	澤田 淳、内田 雅大 他
Si飽和条件での廃棄物ガラスと火山ガラスの溶解挙動の比較	同 上	同 上	三ツ井 誠一
光核反応微細構造と光学ポテンシャル	日本原子力学会研究専門委員会	//	原田 秀郎、和田 幸男
平成7年電力技術革新のあゆみ(17) 新型動力炉および核燃料サイクルの開発	電気評論 1月	//	菊地 三郎、津野 博美
動燃核不拡散国際フォーラムを開催して	核物質管理センターニュース 25巻2号	//	持地 敏郎
Study on distribution and behavior of Long-Lived radionuclides in surface soil environment	International Workshop on Improvement of Environmental Transfer Models and Parameters	//	森田 重光、片桐 裕実 渡辺 均、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(京都大学原子炉 実験所研究成果報告書)	//	森田 重光、渡辺 均 片桐 裕実、他
Gd—Cl8の単離とキャラクタリゼーション—Cl8構造異性体との非核	第10回フラー・レン総合シンポジウム要旨集	//	山本 和典、杉山 顕寿 船坂 英之
Recent Discussions on Some Non-Proliferation Issues	第4回原子力エンジニアリング国際会議 米国機械学会／日本機械学会	//	千崎 雅生
光核反応における巨大共鳴微細構造と核消滅処理研究	ワークショップ「0.2から1.2Gev 電子・ γ 線による原子核研究」東 北大学理学部	//	原田 秀郎
アクロスシステム開発研究の現状報告	地球惑星科学関連学会 1996年 合同大会	//	花木 達美、山川 稔 坪田 浩二、他
アクチニド元素の光化学分離についての基礎研究(7)— PuとNpの光化学分離と共抽出実証—	日本原子力学会 1996年 春の年会	//	和田 幸男、森本 恭一
FEL用高性能鏡に関する研究開発	同 上	//	北谷 文人、須藤 収
放射性核種の土壤環境中における分布と挙動	//	//	森田 重光、片桐 裕実 渡辺 均、他

■特許・実用新案

平成8年1月より平成8年3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	1913418	7. 3. 9 (7. 11. 20)	破過検出装置	山本 文雄 (他3名)	(株)日立製作所より持分承継
特許	1995699	7. 12. 8	焼結分散強化型耐熱鋼成形部材	柴原 格、野村 茂雄 中嶋 元治、榎戸 裕二 他(5名)	
特許	1997118	7. 12. 8	超音波加工装置	柚原 俊一、野村 茂雄 佐藤 義則、曾我部 清	
特許	1997167	7. 12. 8	ブルトニウム原料の搬送容器	栗原 豊、伊藤 透 飛田 洋二	
特許	2000315	7. 12. 8	プラントの異常診断方法	渡辺 兼秀	
特許	2003241	7. 12. 20	自己作動型原子炉停止機構	斎藤 誠、軍司 稔	
特許	2003242	7. 12. 20	一体型圧力容器構造の原子炉	川太 徳夫	
特許	2003248	7. 12. 20	重水バーリング式原子炉緊急停止装置	川太 徳夫	
特許	2003723	7. 12. 20	気体状ルテニウムの生成を抑制した放射性廃液のガラス溶融固化処理方法	松中 一久、佐々木憲明	
特許	2003748	7. 12. 20	高転換高燃焼圧力管型原子炉	若林 利男	
特許	2003763	7. 12. 20	原子炉用緊急停止装置	川太 徳夫	
特許	2005607	8. 1. 11	プラントの異常診断方法	渡辺 兼秀、玉山 清志	
特許	2008369	8. 1. 11	燃料交換機	高橋 健司	
特許	2008959	8. 1. 11	○リング装着方法	川崎 隆夫	
特許	2009640	8. 2. 2	超電導磁気分離装置およびその運転方法	和田 幸男、塚本 修巳 三宅 千枝、西嶋 茂宏 小原 健司、見目 善弘	
特許	2011530	8. 2. 2	遮蔽プラグに回転力を与える装置	友松 健一、林 健一	
特許	2011531	8. 2. 2	遮蔽プラグに回転力を与える装置	友松 健一、林 健一	
特許	2012342	8. 2. 2	着脱装置	林 健一、友松 健一	
特許	2018371	8. 2. 19	高放射性廃棄物の処理方法	堀江 水明、福本 雅弘	
特許	2020452	8. 2. 19	自己作動型原子炉制御装置	斎藤 誠、軍司 稔	
実用新案	2105533	8. 2. 21	ノズル角度可変型噴射ガン	萩谷 昭男 (他1名)	
特許	1991835	7. 11. 22	焼結皿挿持装置	皆川 進、藤原 茂雄 (他2名)	(株)ボタと共有
特許	1998279	7. 12. 8	放射性廃液のガラス固化処理方法および装置	虎田真一郎、正木 敏夫 (他1名)	石川島播磨重工業(株)と共有
特許	1998404	7. 12. 8	配管溶接のパックシール方法	石橋 祐三 (他1名)	三菱電機(株) 電力10社と共有
特許	2004378	7. 12. 20	放射性廃液の蒸発濃縮器		(1名) 富士電機(株)と共有
特許	2006004	8. 1. 11	放射性核種を含む水の浄化に使用する可燃性粉末オキシン炭フィルター	森田 聰 (他2名)	住友重機械工業(株)と共有
特許	2008781	8. 1. 11	水・水素同位体交換反応装置の制御方法	清田 史功、北端 琢也 (他2名)	昭和エンジニアリング(株)と共有
特許	2018109	8. 2. 19	放射性廃棄物の溶融固化処理装置	稻田 栄一、会川 英昭 坂本 勉 (他3名)	日揮(株)と共有
実用新案	2087926	7. 11. 6	往復ケーブルのシール装置		(1名) 三菱重工業(株)と共有
実用新案	2093777	7. 12. 18	ガラス溶融炉		(1名) 石川島播磨重工業(株)と共有
実用新案	2103978	8. 2. 21	遠隔着脱コネクタ装置	川妻 伸二、田地 弘勝 (他1名)	株明電舎と共有
実用新案	2103979	8. 2. 21	遠隔着脱コネクタ装置	川妻 伸二、田地 弘勝 (他1名)	株明電舎と共有
実用新案	2105228	8. 2. 21	溶融炉の流下ノズル	緒方 義徳、白石 鶴美 正木 敏夫 (他1名)	石川島播磨重工業(株)と共有
アメリカ	5476641	1995.12.19	METHOD OF SEPARATING AND RECOVERING PLUTONIUM AND NEPTUNIUM FROM PLUTONIUM-AND NEPTUNIUM-CONTAININGNITRIC ACID SOLUTION	都所 昭雄、木原 義之 岡田 尚	
アメリカ	5479017	1995.12.26	SCANNING MECHANISM FOR RADIATION TV SET	菅谷 敏克、堂野前 寧	
アメリカ	5499276	1996. 3.12	METHOD FOR MINOR ACTINIDE NUCLIDES INCINERATION	若林 利男	
スウェーデン	SE0327271	1992. 7.15 (1994.10.18)	PROCESS FOR COMPACTING RADIOACTIVE METAL WASTES	稻田 栄一、塩月 正雄 (他4名)	(株)神戸製鋼所より持分承継
ロシア	2041847	1995. 8.20	APPARATUS FOR TRANSFERRING A SOLUTION BETWEEN SEALED CONTAINERS	雑 哲郎	
イギリス	GB364209	1994. 6.15	METHOD OF DISSOLVING SPENT NUCLEAR FUEL	大塚 勝幸、高橋 芳晴 大内 仁	
イギリス	BG0327271	1992. 7.15 (1995. 9.29)	PROCESS FOR COMPACTING RADIOACTIVE METAL WASTES	稻田 栄一、塩月 正雄 (他4名)	(株)神戸製鋼所より持分承継
イギリス	BG0361773	1993.12.29	METHOD OF RECOVERING RADIOACTIVE IODINE IN A SPENT NUCLEAR FUEL RETREATMENT PROCESS	大塚 勝幸、大内 仁 鈴木 徹	

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
フランス	FR364209	1994. 6.15	METHOD OF DISSOLVING SPENT NUCLEAR FUEL	大塚 勝幸、高橋 芳晴 大内 仁	
フランス	BG0361773	1993.12.29	METHOD OF RECOVERING RADIOACTIVE IODINE IN A SPENT NUCLEAR FUEL RETREATMENT PROCESS	大塚 勝幸、大内 仁 鈴木 徹	
フランス	FR0327271	1992. 7.15 (1994.10. 3)	PROCESS FOR COMPACTING RADIOACTIVE METAL WASTES	稻田 栄一、塩月 正雄 (他 4 名)	(株)神戸製鋼所より持分承継
フランス	FR0491040	1995. 3. 1	ELECTRODE MATERIAL OF GLASS MELTING FURNACE	正木 敏夫、佐々木憲明 虎田真一郎、五十嵐 寛 (他 2 名)	
ドイツ	364209	1994. 6.15	METHOD OF DISSOLVING SPENT NUCLEAR FUEL	大塚 勝幸、高橋 芳晴 大内 仁	
ドイツ	68911817	1993.12.29	METHOD OF RECOVERING RADIOACTIVE IODINE IN A SPENT NUCLEAR FUEL RETREATMENT PROCESS	大塚 勝幸、大内 仁 鈴木 徹	
ドイツ	69017460	1995. 3. 1	ELECTRODE MATERIAL OF GLASS MELTING FURNACE	正木 敏夫、佐々木憲明 虎田真一郎、五十嵐 寛 (他 2 名)	
ドイツ	P68902062.7	1992. 7.15 (1995. 1.24)	PROCESS FOR COMPACTING RADIOACTIVE METAL WASTES	稻田 栄一、塩月 正雄 (他 4 名)	(株)神戸製鋼所より持分承継

■特許・実用新案紹介

検査用ペリスコープ反射鏡装置

(特許第1767536号、特許公報平4-51002)

1. 本発明の背景

放射性物質等を取り扱う施設で、人が立入ることのできないような外部から隔離された室(セル)等に設置された長円筒状の装置内部を検査する場合、ペリスコープと観察鏡を組合せた検査装置が使用されている。

従来はペリスコープと観察鏡が一体となった形式で、それらが機械的に剛に結合されており、観察鏡が単独で検査対象物近傍への移動が不可能なため狭い検査範囲に限定されたり、また長円筒状の内部を観察する場合、観察鏡を伸縮自在の機構先端に取付けて行うため装置が大型化し、隔離された室等での使用には問題があった。

本発明は、これらを解決するためペリスコープと観察鏡とをそれぞれ独立な装置とし、光学的結合によって自由度を確保し、長円筒状の内部で観察鏡が隔離された室外から遠隔制御により上下・左右に可動し、広い範囲の検査を可能とする検査用ペリスコープ反射鏡装置に関するものである。

2. 本発明の内容

本発明は、ペリスコープと独立して検査対象物

からの光をペリスコープに導く反射鏡装置とからなり、次のような手段を特徴とする検査用ペリスコープ反射鏡装置である。

①反射鏡装置を検査対象物に対向させる移動手段を備え、②その移動手段が床面又は天井に設置され反射鏡装置を昇降させ、③観察鏡からペリスコープへの出射光路を確保するため昇降機構が中空であり、昇降させるためのワイヤと観察鏡を駆動し制御するための電気ケーブルが中空部外に配置されている。④ペリスコープの先端部に内蔵された反射鏡を前後・左右・俯仰方向に駆動する手段を備え、⑤反射鏡装置が照明手段と、観察鏡からの出射光がペリスコープ先端部の反射鏡中心になるよう回転・俯仰させる手段を備えている。

3. 特徴と効果

本発明は、上述したようにペリスコープと反射鏡装置とをそれぞれ独立な装置とし、光学的結合によって自由度が確保されており、図1に示すように操作室側からの遠隔制御により、反射鏡装置は長円筒状の検査対象物の中を昇降装置により移動し、その内部の観察鏡はペリスコープ先端部の反射鏡中心へ出射光が届くよう回転・俯仰し、また検査対象物への設定誤差があってもペリスコープ先端部の反射鏡は、前後・左右・俯仰して観察鏡との光軸を合わせることができる。さらにこの像は、操作室側からペリスコープの接眼レンズで直接観察するか、テレビカメラを取付けモニタに映し出すこともできる。

本発明は、株式会社日立製作所と共同で成したものであり、動燃事業団では、本発明を具備した検査用ペリスコープ反射鏡装置を同社と共同して開発し、東海事業所再処理工場セル内溶解槽の点検等の作業に供用している。

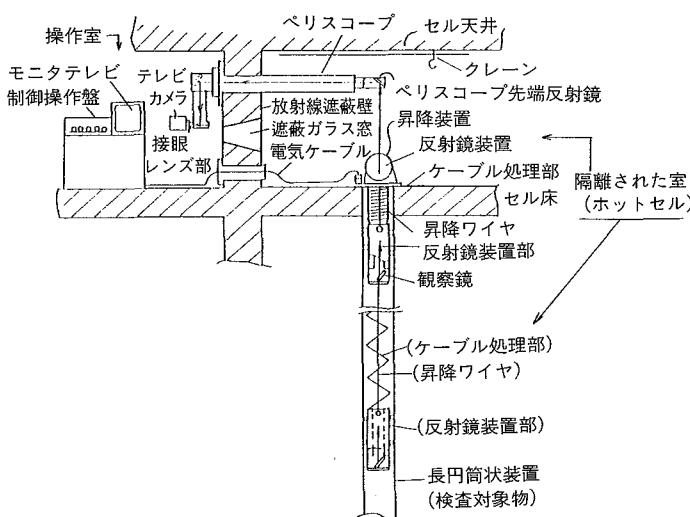


図1 検査用ペリスコープ反射鏡装置の実施例

特許・実用新案紹介についての問合せ先
動力炉・核燃料開発事業団
技術協力部 技術協力室
東京 (03) 3586-3311

動燃技報 1996. 6 No.98
平成 8 年 6 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 菜根出版
東京都千代田区平河町1-8-13

Abstracts(PNC Technical Review)

Development of Component Reliability Database for an LMFBR

Kenichi Kurisaka

PNC Technical Review No. 98 p. 18—31 (1996)

As a part of safety study of fast reactors, the component reliability database and statistical analysis system (CORDS) was developed. The CORDS contains operating records and failure histories of components primarily used in sodium system of fast reactors and sodium test facilities in the U. S. and Japan. As a result, development of the CORDS made it possible : (1) efficiently to retrieve the operational records and failure histories using the interactive retrieval function, (2) systematically to quantify the failure rate considering difference of design specification, operating environment and age among components, and (3) to provide fundamental data based on the operating experience in examining repairability of failed components, common cause failures, or aging degradation and preventive maintenance. In addition, the component failure rate derived from the CORDS has been applied into probabilistic safety assessment of the Japanese prototype fast breeder reactor, etc. This paper describes the guideline of data collection and categorization, table structure of the database, the retrieval function, and the statistical analysis function of the CORDS in detail.

Key Words: Reliability, Failure Rate, Relational Database, Fast Reactor Component, Statistical Analysis, Probabilistic Safety Assessment, Common Cause Failure, Failure Lifetime, Restoration Time

Development of Silver-Impregnated Hydrophobic Adsorbent for Removal of Iodine from Reprocessing Plant Off-Gas

Shinichi Inami Takao Nogami Akira Maki Yoshiaki Ogata Kenji Takeshita Masami Sazarashi Mikio Kumagai

PNC Technical Review No. 98 p. 32—42 (1996)

Since 1989 we have been developing the silver impregnated hydrophobic adsorbent (AgP, P: Polymer) in order to reduce the environmental release of radio-iodine and spent adsorbent wastes. AgP is the porous styrene-divinylbenzene copolymer (SDB) impregnated with metallic silver or silver nitrate, which is repellent against water vapor and allows efficient volume reduction as wastes.

We examined the effects of the pore distribution of SDB, and the dispersion of loaded silver on the adsorption rate of iodine and found the suitable particle structure for iodine adsorption. We also investigated the way of the mass production, safety feature of the adsorbent, and the volume reduction as wastes.

Key Words: Iodine-129, Organic Iodine, Adsorption, Styrene-divinylbenzene Copolymer Metallic Silver, Silver Nitrate, Dispersion, Porous Materials, Volume Reduction

Comparison Between the Chest Dose and the Neck Dose of Workers with Protective Aprons at PNC Plutonium Fuel Fabrication Facilities

Norio Tsujimura Takumaro Momose Kunihiko Shinohara

PNC Technical Review No. 98 p. 43—47 (1996)

The dose equivalents recorded by a chest dosimeter under the protective apron and a neck dosimeter above the apron, worn by workers in the fabrication process of MOX fuels at PNC Tokai works, are compared. The ratio of the chest and neck dose equivalent is from 3 to 4.

The effective dose equivalent calculated from a weighted combination of the dosimeter readings is about 2 times of the dose under protective aprons.

Key Words: Effective Dose Equivalent, Protective Aprons, Plutonium-241, Americium-241.

Measurement of Radon Progeny Size Distribution

Kimio Ito Sadaaki Furuta Yuji Nakashima

PNC Technical Review No. 98 p. 48—53 (1996)

The method for a measurement of radon progeny size distribution is reviewed and researched because the size distribution is one of the important factor to estimate the behavior of the radon progeny and the lung dose due to inhalation.

Generally, two methods have been developed to measure a size distribution. One method is based on the diffusion of a particle and another is on the impaction of a particle. The diffusion battery is a equipment to collect the particle by the diffusion attachment in the battery. The penetration through the battery is dependent on the particle diameter. The penetration curve is obtained from the measurement with several diffusion batteries and the radon progeny size distribution can be calculated by an iterative algorithm.

Key Words: Radon, Radon Progeny, Size Distribution, Diffusion Battery, Iterative Algorithm, Lung Dose

Cause of Depth Error of Borehole Logging and its Correction

Yoshimasa Iida Koki Ikeda Tadahiko Tsuruta

Hiroaki Ito Junichi Goto

PNC Technical Review No. 98 p. 54—58 (1996)

Data by borehole logging can be used for detailed analysis of geological structures. Depths measured by portable borehole loggers commonly shift a few meters on the level of 400 to 500 meters deep. Therefore, the cause of depth error has to be recognized to make proper corrections for detailed structural analysis.

Correlation between depths of drill core and in-rod radiometric logging has been performed in detail on exploration drill holes in the Athabasca basin, Canada. As a result, a common tendency of logging depth shift has been recognized, and an empirical formula (quadratic equation) for this has been obtained. The physical meaning of the formula and the cause of the depth error has been considered.

Key Words: Borehole Logging, Logging Depth

Experimental Study on Molten Jet-Coolant Interactions in Core Disruptive Accident

Kensuke Konishi Mikio Isozaki Shinji Imahori D.J. Brear

PNC Technical Review No. 98 p. 59—64 (1996)

Molten fuel-coolant interactions in a jet contact mode were studied with respect to the safety of liquid-metal-cooled fast reactors (LMFRs). From a series of molten Wood's metal (melting point: 79°C, density: ~8400kg/m³) jet-water interaction experiments, several distinct modes of interaction behaviors were observed for various combinations of initial temperature conditions of the two fluids. A semi-empirical model for a minimum film boiling temperature criterion was developed and used to reasonably explain the different interaction modes. It was concluded that energetic jet-water interactions are only possible under relatively narrow initial thermal conditions. Preliminary extrapolation of the present results to an oxide fuel-sodium system suggests that mild interactions with short breakup length and coolable debris formation should be most likely in LMFRs.

Key Words: FBR, Core Disruptive Accident, Simulant Experiments, Wood's Metal, Molten Jet, Fuel-Coolant Interaction (FCI), Four FCI Modes, Vapor Film, Minimum Film Boiling Temperature Criterion

Development of Granular Powder Manufacturing Technology by Spray Pyrolysis

*Yoshiyuki Katoh Keiichi Kawase Yoshiharu Takahashi
Akio Todokoro*

PNC Technical Review No. 98 p. 65—70 (1996)

For shortening of mixed-oxide (MOX) fuel manufacturing process and improvement in treatment of MOX-powder, we have been developing the granular powder production technology. Since the granular powders have excellent fluidity owing to the spherical shape, there is the possibility of modifying scattering and adhesion of the powder in the process equipment.

In this paper, spray pyrolysis process is adopted as the process of manufacturing the process of manufacturing the granular powders and the basic feasibility study has been carried out. The experimental results show that the manufactured granular powders have excellent fluidity and the diameter of the powders is controllable. Furthermore, high density pellets are formed by sintering the powders. Thus, it is clarified that this process is promising for the actual MOX fuel fabrication.

Key Words: Spray Pyrolysis, Granular Powder, Scattering, MOX Fuel, Fluidity, Spherical Powder

Modelling of Transmissivity Field in Sedimentary Rocks Using Fractal Theory

*Keisuke Maekawa Nobuhisa Ogata Koichi Yanagizawa
Hiroyasu Takase*

PNC Technical Review No.98 p. 71—76 (1996)

In order to provide justification for the use of fractal theory to construct a hydrogeological model of sedimentary rocks with heterogeneity, we applied an analytical method to a practical area in the Tono uranium mine, Gifu, Japan.

This study consisted of a modelling the transmissivity field from borehole data, a groundwater flow analysis, and a particle tracking simulation to validate the methodology.

The results were as follows:

- (1) Using this method, we found that the transmissivity field had a laminate structure corresponding to a real geological setting.
- (2) The groundwater flow analysis showed that the fault acted as hydraulic barrier.
- (3) The result of a particle tracking analysis to simulate the advective uranium migration qualitatively corresponded to data from gamma-ray logging. So we have shown the validity of the methodology.

Key Words: Hydrogeological Model, Transmissivity, Heterogeneity, Fractal Theory, Sedimentary Rocks, Groundwater Flow Analysis, Particle Tracking

A Modelling Study for Long-Term Life Prediction of Carbon Steel Overpack for Geological Isolation of High-Level Radioactive Waste

Naoki Taniguchi Akira Honda Hirohisa Ishikawa

PNC Technical Review No. 98 p. 77—84 (1996)

Current plans for the geological disposal of High-Level Radioactive Waste (HLW) in Japan include metal overpacks which contain HLW. Overpacks may be required to remain intact for more than several hundred years in order to provide containment of radioactive nuclides. The main factor limiting the performance of overpacks is considered to be corrosion by groundwater. Carbon steel is one of the candidate materials for overpacks. A mathematical model for life prediction of carbon steel overpack has been developed based on corrosion mechanism. General corrosion and localized corrosion are considered because these are likely to initiate in repository conditions. In general corrosion model, the reduction of oxygen and water are considered as cathodic reaction. In localized corrosion model, we have constructed a model which predict the period for localized corrosion based on oxygen transport in bentonite. We also developed a model which predict the propagation rate of localized corrosion that is based on mass balance within the corroding cavity.

Key Words: Geological Isolation, High Level Radioactive Waste, Overpack, Carbon Steel, General Corrosion, Localized Corrosion, Modelling, Electrochemical Kinetics, Oxygen, Diffusion

Experiments on High-Waste-Loading Process of High-Level Liquid Wastes

*Masayuki Yoneya Kazuhiro Kawamura Teruo Yamashita
Kenichi Sasage Hiroshi Igarashi Jin Ohuchi*

PNC Technical Review No.98 p. 85—90 (1996)

High-waste-loading Process is an advanced concept for conditioning of HLW (High-Level Wastes). The purpose of this is to reduce the volume of HLW by partitioning the elements such as Mo, Pb-Ru, Cs-Sr that limit the waste loading and by conditioning the partitioned elements to make the high-waste-loaded matrix. Laboratory scale experiments showed waste volume from the process was nearly half of that for typical waste loading (25wt%) by reference vitrification. As the result, the process feasibility for future developments were shown as promising.

Key Words: High-waste-loading, High-Level Liquid Wastes, Separation, Vitrification, Minimization, Molybdenum, Palladium, Ruthenium, Cesium, Strontium.

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	岡山県苫田郡上斎原村 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