Fri. Mar 19, 2021

Room A

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 304-1 Thermal Hydraulics, Energy Conversion, Energy Transfer, Energy Storage

[3A01-04] Fuel Assembly Thermal Hydraulics 2

Chair: Yoichi Utanohara (INSS)
9:30 AM - 10:45 AM Room A (Zoom room 1)

[3A01] Research and development for understanding of liquid-film flow behavior around fuel rods in BWRs' fuel rod bundle
*Hajime Furuichi[1], Kiyoshi Fujimoto[1], Kenichi Katono[1], Masaki Ikeda[1], Kenichi Yasuda[1], Kazuaki Kito[1] (1. HGNE)
9:30 AM - 9:45 AM

[3A02] Research and development for understanding of liquid-film flow behavior around fuel rods in BWRs' fuel rod bundle
*Kiyoshi Fujimoto[1], Hajime Furuichi[1], Kenichi Katono[1], Masaki Ikeda[1], Kenichi Yasuda[1], Kazuaki Kito[1] (1. Hitachi GE Nuclear Energy, Ltd.)
9:45 AM - 10:00 AM

[3A03] Transient boiling analysis in partially and rapidly heated 5X5 rod bundle with TRACE code
*Riichiro Okawa[1], Masahiro Furuya[1], Takahiro Arai[1], Tsugumasa Iiyama[1], Kenetsu Shirakawa[1] (1. CRIEPI)
10:00 AM - 10:15 AM

[3A04] Numerical simulation study on effect of vane on two-phase flow in the fuel bundle
*Ayako Ono[1], Susumu Yamashita[1], Takayuki Suzuki[1], Hiroyuki Yoshida[1] (1. JAEA)
10:15 AM - 10:30 AM

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 304-1 Thermal Hydraulics, Energy Conversion, Energy Transfer, Energy Storage

[3A05-08] Boiling, Condensation, Heat Transfer

Chair: Yasunori Yamamoto (Hokkaido Univ.)
10:45 AM - 12:00 PM Room A (Zoom room 1)

[3A05] Evaluation of Correlation in a CFD Model for Condensation Heat Transfer
*Michio Murase[1], Yoichi Utanohara[1], Shigeo Hosokawa[2], Akio Tomiyama[2] (1. Institute of Nuclear Safety System, Inc., 2. Kobe University)
10:45 AM - 11:00 AM

[3A06] Effects of material of heat transfer surface on pool boiling heat transfer of nanofluid
*Koki Nakano[1], Yutaro Umehara[1], Yasuo Koizumi[1], Tomio Okawa[1] (1. UEC)
11:00 AM - 11:15 AM

[3A07] Numerical simulation of wall condensation of steam-air mixture in a circular tube and the effect of coarse computational grid
*Yoichi Utanohara[1], Michio Murase[1] (1. INSS)
11:15 AM - 11:30 AM

[3A08] Development of HTC Distribution near the Quenching Point during falling Liquid Film along high-temperature wall based on thermal-hydraulics phenomenon
*Yutaro Umehara[1], Tomio Okawa[1] (1. UEC)
11:30 AM - 11:45 AM

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 304-1 Thermal Hydraulics, Energy Conversion, Energy Transfer, Energy Storage

[3A09-12] Liquid Droplet &Aerosol

Chair: Yoshiro Nishioka (Toshiba ESS)
2:45 PM - 4:00 PM Room A (Zoom room 1)

[3A09] Experimental evaluation of gas-liquid two phase flow and aerosol behavior during pool scrubbing
*Kohei Yoshida[1], Kota Fujiwara[1], Akiko Kaneko[1], Yutaka Abe[1] (1. Univ. of Tsukuba)
2:45 PM - 3:00 PM

[3A10] Study on Evaluation Method for Aerosol Particle Behavior in a Reactor Building
*Koichi Nakamura[1], Takashige Sekiguchi[2], Naoki Horiguchi[3], Masashi Himi[1], Shinichiro Uesawa[3], Hiroyuki Yoshida[3], Satoshi Nishimura[1] (1. Central Research Institute of Electric Power Industry, 2. AdvanceSoft Corporation, 3. Japan Atomic Energy Agency)
3:00 PM - 3:15 PM

[3A11] Study on Evaluation Method for Aerosol Particle Behavior in a Reactor Building
*Takashige Sekiguchi[1], Koichi Nakamura[2], Naoki Horiguchi[3], Masashi Himi[2], Shinichiro Uesawa[3], Hiroyuki Yoshida[3], Satoshi Nishimura[2] (1. AdvanceSoft, 2. CRIEPI, 3. JAEA)
3:15 PM - 3:30 PM

[3A12] Study on Evaluation Method for Aerosol Particle Behavior in a Reactor Building
*Naoki Horiguchi[1], Koichi Nakamura[2], Takashige Sekiguchi[3], Shinichiro Uesawa[1], Masashi Himi[2], Hiroyuki Yoshida[1], Satoshi Nishimura[2] (1. JAEA, 2. CRIEPI, 3. AdvanceSoft)
3:30 PM - 3:45 PM

©Atomic Energy Society of Japan

Room B

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 301-1 Reactor Physics, Utilization of Nuclear Data, Criticality Safety

[3B01-04] Burunup Analysis (BWR)

Chair: Tomohiro Endo (Nagoya Univ.)
9:30 AM - 10:45 AM Room B (Zoom room 2)

[3B01] Whole Core Three-Dimensional Nuclide Inventory Calculation of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

*Keisuke Okumura[1], Masahiro Sakamoto[1], Kenichi Tada[1], Kenji Nishihara[1], Shinya Mizokami[2], Masato Mizokami[2], Miki Yousuke[3], Seiji Kaneko[3] (1. JAEA, 2. TEPCO HD, 3. TEPSYS)

9:30 AM - 9:45 AM

[3B02] Whole Core Three-Dimensional Nuclide Inventory Calculation of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

*Masahiro Sakamoto[1], Keisuke Okumura[1], Kenichi Tada[1], Kenji Nishihara[1], Shinya Mizokami[2], Masato Mizokami[2], Yousuke Miki[3], Seiji Kaneko[3] (1. JAEA, 2. TEPCO HD, 3. TEPSYS)

9:45 AM - 10:00 AM

[3B03] Evaluation of operating history effect on BWR fuel reactivity in storage rack

*Daiki Iwahashi[1], Tetsuo Nakajima[1] (1. NRA)

10:00 AM - 10:15 AM

[3B04] Improvement of high-efficiency random sampling method by using control variates method and sensitivity

*Takumi Kida[1], Go Tiba[1] (1. Hokkaido Univ.)

10:15 AM - 10:30 AM

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 301-1 Reactor Physics, Utilization of Nuclear Data, Criticality Safety

[3B05-08] Advanced Reactor

Chair: Takanori Sugawara (JAEA)
10:45 AM - 12:00 PM Room B (Zoom room 2)

[3B05] Core power distribution re-construction method based on the ex-core detector with power correlation between fuel regions

*Rei Kimura[1], Yuki Nakai[1], Satoshi Wada[1] (1. TOSHIBA ESS)

10:45 AM - 11:00 AM

[3B06] Core power distribution re-construction method based on the ex-core detector with power correlation between fuel regions

*Yuki Nakai[1], Rei Kimura[1], satoshi wada[1] (1. TOSHIBA ESS)

11:00 AM - 11:15 AM

[3B07] Measurement of Calcium Hydrate sample worth in UTR-KINKI

*Takashi Kanda[1], Kunihiro Nakajima[1], Atsushi Sakon[1], Tadafumi Sano[1], Rei Kimura[2], Satoshi Wada[2], Kengo Hashimoto[1] (1. Kindai Univ., 2. TOSHIBA ESS)

11:15 AM - 11:30 AM

[3B08] An inherent safety gas-cooled fast reactor concept of " Eco-KAMADO"

*Tetsuo Matsumura[1], Takanori Kameyama[1] (1. Tokai University)

11:30 AM - 11:45 AM

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 301-2 Reactor Design, Nuclear Energy Strategy, Nuclear Transmutation

[3B09-11] Advanced Reactor

Chair: Naoto Aizawa (Tohoku Univ.)
2:45 PM - 3:40 PM Room B (Zoom room 2)

[3B09] Development of Light Water Cooled Fast Reactor

*Junichi Miwa[1], Tetsushi Hino[1], Yuki Narushima[2], Kazuya Ishii[1], Yoshihiko Ishii[1], Takao Kondo[1], Soneda Hideo[1] (1. Hitachi-GE, 2. Hitachi)

2:45 PM - 3:00 PM

[3B10] Evaluation of the inherent neutron source and power density in the Intermediate Heat Exchanger of a small chloride-fueled molten salt fast reactor

*Willem F.G. van Rooijen[1], Jamiyansuren Terbish[2] (1. Univ. of Fukui, 2. National University Of Mongolia)

3:00 PM - 3:15 PM

[3B11] Neutronics Design of Molten Salt Accelerator-Driven System with Spent MOX fuel from PWR

*Takanori Sugawara[1], Yasutoshi Ban[1], Yasuhiro Tsubata[1] (1. JAEA)

3:15 PM - 3:30 PM

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 301-2 Reactor Design, Nuclear Energy Strategy, Nuclear Transmutation

[3B12-13] Advanced Reactor (Space Reactor)

Chair: Jun Nishiyama (Tokyo Tech)
3:40 PM - 4:20 PM Room B (Zoom room 2)

[3B12] Study on Application of Reprocessed Pu to Nuclear Thermal Propulsion Reactors: II

©Atomic Energy Society of Japan

*Masaki Okagaki[1], Willem F.G. van Rooijen[1] (1. Univ. of Fukui)

3:40 PM - 3:55 PM

[3B13] Investigation of a high performance heat-pipe cooled miniature nuclear reactor for lunar power application

*Natsumi Matsumoto[1], Dung Thi Nguyen[1], Michiya Honda[1], Takatsugu Echigo[1], Masaki Okagaki[1], Willem F.G. van Rooijen[1] (1. Univ. of Fukui)

3:55 PM - 4:10 PM

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 301-3 Research Reactor, Application of Neutron

[3B14] Research Reactor

Chair: Tetsuo Matsumura (Tokai Univ.)
4:20 PM - 4:45 PM Room B (Zoom room 2)

[3B14] Analysis on beyond-design basis accidents for a pool-type research reactor

*Takashi Tsumura[1], Toru Nakatsuka[1], Taisuke Yonomoto[1] (1. JAEA)

4:20 PM - 4:35 PM

Room C

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 303-1 Reactor Instrumentation, Instrumentation System, Reactor Control/303-2 Remote Control, Robotics, Image Processing

[3C01-02] Gamma Ray Measurement &Automatic Control of Construction Machinery

Chair: Akio Gofuku (Okayama Univ.)
11:20 AM - 12:00 PM Room C (Zoom room 3)

[3C01] Gamma ray measurement using a lead bismuth emitter self-powered detector

*Atsushi Fushimi[1], Koichi Okada[1], Yoshihito Sato[1], Yohei Murakami[1] (1. Hitachi)

11:20 AM - 11:35 AM

[3C02] Development of automatic drive control system for bulldozer

*Satoshi Ishihara[1], Akihisa Shindo[1], Haruo Nagamine[1] (1. TAISEI CORPORATION)

11:35 AM - 11:50 AM

Room D

Oral presentation | II. Radiation, Accelerator, Beam and Medical Technologies | 202-4 Medical Use of Quantum Beam

[3D01-04] Medical Applications

Chair: Keisuke Maehata (Teikyo Univ.)
10:45 AM - 12:00 PM Room D (Zoom room 4)

[3D01] X-ray Computed Tomography with a Low-noise Current-sensitive Preamplifier VIEC

*Ikuo Kanno[1], Junichiro Nishikawa[1], Hideaki Onebe[2] (1. Kyoto Univ., 2. Raytech Corp.)

10:45 AM - 11:00 AM

[3D02] Electron beam energy dependence of Ac-225 production amount using an electron accelerator

*Takahiro Tadokoro[1], Kento Nishida[1], Yuichiro Ueno[1], Yuko Kani[1], Takahiro Watanabe[2], Takahiro Sasaki[2], Makiko Shimada[2], Hidetoshi Kikunaga[3], Shigeru Kashiwagi[3], Tsutomu Ohtsuki[4] (1. Hitachi,Ltd. R&D Group, 2. Hitachi,Ltd. Smart Life Business Management Division, 3. Tohoku Univ., 4. Kyoto Univ.)

11:00 AM - 11:15 AM

[3D03] Study on Ac-225 radiopharmaceutical production from Ra-226 by an electron LINAC

*Kunihiro Miyoshi[1], Masafumi Ozeki[1], Kotaro Nagatsu[2], Hidetoshi Kikunaga[3], Shigeru Kashiwagi[3], Mitsuru Uesaka[1] (1. UTokyo, 2. NIRS, 3. Tohoku Univ.)

11:15 AM - 11:30 AM

[3D04] Study on Ac-225 radiopharmaceutical production from Ra-226 by an electron LINAC

*Masafumi Ozeki[1], Kunihiro Miyoshi[1], Kotaro Nagatsu[2], Masashi Yamamoto[3], Hidetoshi Kikunaga[4], Shigeru Kashiwagi[4], Mitsuru Uesaka[1] (1. UTokyo, 2. NIRS, 3. Accuthera, 4. Tohoku Univ.)

11:30 AM - 11:45 AM

Oral presentation | II. Radiation, Accelerator, Beam and Medical Technologies | 202-3 Neutron Source, Neutron Technology

[3D05-08] Neutronics &Small Neutron Facility

Chair: Kaoru Sakasai (JAEA)
2:45 PM - 4:00 PM Room D (Zoom room 4)

[3D05] Analysis of propagation of nuclear data uncertainty considering covariance in unfolding process

*Katsumi Aoki[1], Tadahiro Kin[1], Naohiko Otuka[2], Masaya Yamaguchi[1], Mary Alfonse George Mikhail[1], Md Kawchar Ahmed Patwary[1], Yukinobu Watanabe[1] (1. Kyushu Univ., 2. IAEA)

2:45 PM - 3:00 PM

[3D06] Evaluation of soft-error rates at the 18 MeV proton cyclotron-driven neutron source by energy-dependent neutron soft-error cross-

©Atomic Energy Society of Japan

sections

*Ryu Kiuchi[1], Hirotaka Sato[1], Takashi Kamiyama[1], Hidenori Iwashita[2], Yoshiharu Hiroshima[2], Yuichiro Okugawa[2], Michihiro Furusaka[1], Yoshiaki Kiyanagi[3] (1. Hokkaido Univ., 2. NTT Space Environment and Energy Laboratories, 3. Nagoya Univ.)

3:00 PM - 3:15 PM

[3D07] Characteristics of neutron spin-echo spectroscopy from the perspective of pulse time width

*Tatsuro Oda[1], Masahiro Hino[1], Hitoshi Endo[2], Hideki Seto[2], Yuji Kawabata[1] (1. Kyoto Univ., 2. KEK)

3:15 PM - 3:30 PM

[3D08] Improvement of the accelerator electron beam intensity and evaluation of the neutron beam at the compact neutron facility AISTANS

*koichi kino[1,2], Nagayasu Oshima[1,2], Hiroshi Ogawa[1,2], Brian O'Rourke[1,2], Hidetoshi Kato[1,2], Ryunosuke Kuroda[1,2], Daisuke Satoh[1,2], Ryoichi Suzuki[1,2], Norihiro Sei[1,2], Masahito Tanaka[1,2] (1. AIST, 2. ISMA)

3:30 PM - 3:45 PM

Room E

Oral presentation | II. Radiation, Accelerator, Beam and Medical Technologies | 201-1 Nuclear Physics, Nuclear Data Measurement/Evaluation/Validation, Nuclear Reaction Technology

[3E01-04] Nuclear Data Measurement 1

Chair: Tatsuya Katabuchi (Tokyo Tech)
9:30 AM - 10:45 AM Room E (Zoom room 5)

[3E01] Measurement of fission-fragment mass distributions in the multinucleon transfer channels of the $^{18}O+^{237}Np$ reaction

*Katsuhisa Nishio[1], Mark James Vermeulen[1], Kentaro Hirose[1], Kun Ratha Kean[2,1], Hiroyuki Makii[1], Riccardo Orlandi[1], Kazuaki Tsukada[1], Igor Tsekhanovich[3], Andrei Andreyev[4], Shouma Ishizaki[5] (1. JAEA, 2. TIT, 3. Bordeaux University, 4. University of York, 5. Kinki University)

9:30 AM - 9:45 AM

[3E02] Displacement cross-section of aluminum induced by neutrons and protons

*Shin-ichiro MEIGO[1], Keita Nakano[1], Hiroki Matsuda[1], Yosuke Iwamoto[1] (1. JAEA)

9:45 AM - 10:00 AM

[3E03] Experimental study on nuclear data for accelerator-driven systems using FFAG accelerator

*Hiroki Iwamoto[1], Shin-ichiro Meigo[1], Katsuhisa Nishio[1], Yoshihiro Ishi[2], Kentaro Hirose[1], Yosuke Iwamoto[1], Yasutoshi Kuriyama[2], Fujio Maekawa[1], Hiroyuki Makii[1], Keita Nakano[1] (1. JAEA, 2. Kyoto Univ.)

10:00 AM - 10:15 AM

[3E04] Measurement of nuclide production cross section of Bismuth by GeV proton irradiation

*Keita Nakano[1], Shin-ichiro Meigo[1], Hayato Takeshita[1,2], Hiroki Matsuda[1], Hiroki Iwamoto[1], Fujio Maekawa[1] (1. JAEA, 2. Kyushu Univ.)

10:15 AM - 10:30 AM

Oral presentation | II. Radiation, Accelerator, Beam and Medical Technologies | 201-1 Nuclear Physics, Nuclear Data Measurement/Evaluation/Validation, Nuclear Reaction Technology

[3E05-08] Nuclear Data Measurement 2

Chair: Shin-ichiro Meigo (JAEA)
10:45 AM - 12:00 PM Room E (Zoom room 5)

[3E05] Development of a neutron detector for nuclear data measurement using high-intensity neutron beam

*Hideto Nakano[1], Tatsuya Katabuchi[1], Gerard Rovira[2], Yu Kodama[1], Kazushi Terada[3], Atsushi Kimura[2], Shoji Nakamura[2], Shunsuke Endo[2] (1. Tokyo Tech, 2. JAEA, 3. Kyoto Univ.)

10:45 AM - 11:00 AM

[3E06] Measurements of neutron capture and total cross-sections and resonance analysis of ^{181}Ta

*Shunsuke Endo[1], Atsushi Kimura[1], Shoji Nakamura[1], Osamu Iwamoto[1], Nobuyuki Iwamoto[1], Gerard Rovira[1] (1. JAEA)

11:00 AM - 11:15 AM

[3E07] Isomer production ratio in neutron capture reactions on 112Cd

*Takehito Hayakawa[1], Yosuke Toh[2], Atsushi Kimura[2], Shoji Nakamura[2], Toshiyuki Shizuma[1], Nobuyuki Iwamoto[2], Toshitaka Kajino[3], Satoshi Chiba[4] (1. National Institutes for Quantum and Ragiological Science and Techonology, 2. Japan Atomic Energy Agency, 3. Beihang University, 4. Tokyo Institute of Techonology)

11:15 AM - 11:30 AM

[3E08] Photon energy dependence of photo-neutron production from the $^{197}Au(g,xn)$ reaction

*Tuyet Kim Tran[1], Toshiya Sanami[1,2], Hirohito

©Atomic Energy Society of Japan

Yamazaki[1,2], Toshiro Itoga[3], Yasuhito Sakaki[2], Linh Thi Truc Nguyen[4], Yoichi Kirihara[5], Hiroshi Nakashima[6], Shuji Miyamoto[7], Yoshihiro Asano[2] (1. SOKENDAI/KEK, 2. High Energy Accelerator Research Organization (KEK), 3. Japan Synchrotron Radiation Research Institute (JASRI), 4. University of Science, VNU-HCM, Vietnam, Nuclear Technique Laboratory , 5. Japan Atomic Energy Agency (JAEA) , 6. Hokkaido University, 7. University of Hyogo)
11:30 AM - 11:45 AM

Oral presentation | II. Radiation, Accelerator, Beam and Medical Technologies | 201-1 Nuclear Physics, Nuclear Data Measurement/Evaluation/Validation, Nuclear Reaction Technology

[3E09-12] Fission Theory 1

Chair: Katsuhisa Nishio (JAEA)
2:45 PM - 3:50 PM Room E (Zoom room 5)

[3E09] Improvement of fission calculation based on the 4D Langevin model

*Kazuya Shimada[1], Xuan Zhang[1], Chikako Ishizuka[1], Satoshi Chiba[1] (1. Tokyo Tech)
2:45 PM - 3:00 PM

[3E10] Study of fission fragment shape and fission mechanism using 4D Langevin model

*Xuan Zhang[1], Fedir Ivanyuk[2], Chikako Ishizuka[1], Tsunenori Inakura[1], Satoshi Chiba[1] (1. Tokyo Tech, 2. Kiev Institute for Nu Resh)
3:00 PM - 3:15 PM

[3E11] Transition in systematics of nuclear properties of fission fragments from actinoids to superheavy nuclei

*Chikako Ishizuka Ishizuka[1], Xuan Zhang[1], Mark Usang[2], Fedir Ivanyuk[3], Satoshi Chiba[1] (1. Tokyo Tech, 2. Malaysian Nuclear Agency, 3. Kiev Institute for Nuclear Research)
3:15 PM - 3:30 PM

[3E12] Study of fission dynamics with a multi-dimensional Langevin equation using Cassini shape parameterization

*Takahiro Wada[1], Kazuki Okada[1] (1. Fac. Eng. Sci., Kansai Univ.)
3:30 PM - 3:45 PM

Oral presentation | II. Radiation, Accelerator, Beam and Medical Technologies | 201-1 Nuclear Physics, Nuclear Data Measurement/Evaluation/Validation, Nuclear Reaction Technology

[3E13-16] Fission Theory 2

Chair: Futoshi Minato (JAEA)
3:50 PM - 5:00 PM Room E (Zoom room 5)

[3E13] Interaction dependence of charge polarization on U-236 using microscopic mean-field model

*Kazuki Fujio[1], Shuichiro Ebata[2], Tsunenori Inakura[1], Satoshi Chiba[1] (1. Tokyo Tech, 2. Saitama Univ.)
3:50 PM - 4:05 PM

[3E14] Pairing strength dependence of actinides in Relativistic Mean-Field theory

*Taiki Kouno[1], Tsunenori Inakura[1], Satoshi Chiba[1] (1. Tokyo Tech)
4:05 PM - 4:20 PM

[3E15] Charge polarization of the fission fragments deduced by the real time-dependent mean-field calculation from equal-energy contours

*Shuichiro Ebata[1], Shin Okumura[2], Chikako Ishizuka[3], Satoshi Chiba[3] (1. Saitama Univ., 2. IAEA, 3. Tokyo Tech)
4:20 PM - 4:35 PM

[3E16] Tenary Fission Studied by AMD

*Jingde Chen[1], Chikako Ishizuka[1], Satoshi Chiba[1], Akira Ono[2] (1. Tokyo Institute of Technology, 2. Tohoku University)
4:35 PM - 4:50 PM

Room F

Oral presentation | IV. Nuclear Plant Technologies | 403-1 Risk Assessment Technology, Application of Risk Information

[3F01-07] PRA Method

Chair: Hiroshi Ujita (AdvanceSoft)
10:00 AM - 12:00 PM Room F (Zoom room 6)

[3F01] Adjustment method with sensitivity coefficient based on Bayesian theory for performance shaping factor

*Satoshi Takeda[1], Takanori Kitada[1] (1. Osaka University)
10:00 AM - 10:15 AM

[3F02] A Trial Calculation Using a Human Reliability Analysis Methodology Phoenix

*Haruaki Ueda[1], Yoshikane Hamaguchi[1] (1. Regulatory Standard and Research Department, Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R))
10:15 AM - 10:30 AM

[3F03] A System Risk Analysis on Primary Containment Vessel Venting Focusing on Organizations Interactions

©Atomic Energy Society of Japan

*Naoki Hirokawa[1], Akira Yamaguchi[1], Takashi Takata[1], Sunghyon Jang[1] (1. University of Tokyo)
10:30 AM - 10:45 AM

[3F04] Risk-Imformed applications for Emergency Drills
*Kotaro Homma[1], Takeshi Kuwahara[1], Yasuo Ishizaki[2], Takashi Takiguchi[2], Masayuki Hiraide[2] (1. TEPSYS, 2. TEPCO HD)
10:45 AM - 11:00 AM

[3F05] Development of safety review method to cope with an aging degradation for the facilities using nuclear material
*Yuichi Tamaoki[1] (1. Japan Atomic Energy Agency)
11:00 AM - 11:15 AM

[3F06] Study for considering the Level 3 PRA results in time series
*Ryohei Ichikawa[1] (1. NRA)
11:15 AM - 11:30 AM

[3F07] Development of the risk assessment technique for EAL
*Takanori Aoki[1], Mika Tahara[2], Nobuhisa Takezawa[2], Takahiro Nakagawa[1] (1. Toshiba Plant Systems &Services, 2. TOSHIBA ESS)
11:30 AM - 11:45 AM

Oral presentation | IV. Nuclear Plant Technologies | 403-1 Risk Assessment Technology, Application of Risk Information

[3F08-13] External PRA

Chair: Sunhyon Jan (UTokyo)
2:45 PM - 4:30 PM Room F (Zoom room 6)

[3F08] Research on Seismic Correlation for PRA
*Yasuki OTORI Ohtori[1], Hitoshi Muta[1], Ken Muramatsu[1] (1. Tokyo City University)
2:45 PM - 3:00 PM

[3F09] A Framework of RI-PB Design Application for Seismic Events
*Toshiaki Sakai[1], Yasuki Ohtori[2], Yoshifumi Katayama[3], Hitoshi Muta[2] (1. CRIEPI, 2. TCU, 3. Chuden Engineering Consultants CO.,LTD)
3:00 PM - 3:15 PM

[3F10] A Framework of RI-PB Design Application for Seismic Events
*Yoshifumi Katayama[1], Yoshiaki Shiba[2], Yasuki Ohtori[3], Toshiaki Sakai[2], Hitoshi Muta[3] (1. CEC, 2. CRIEPI, 3. TCU)
3:15 PM - 3:30 PM

[3F11] A Framework of RI-PB Design Application for Seismic Events
*Mituharu Ohara[1], Yasuki Ohtori[1], Hitoshi Muta[1], Yoshifumi Katayama[2], Toshiaki Sakai[3] (1. TCU, 2. CEC, 3. CRIEPI)
3:30 PM - 3:45 PM

[3F12] Study on multi-unit PRA considering Correlation between Multiple Safety Systems using the Continuous Markov Monte Carlo Method
*Kento Sawada[1], Tomohiro Endo[1], Akio Yamamoto[1], Sunghyon Jang[2], Keisuke Maeda[3], Chikahiro Sato[3] (1. Nagoya Univ., 2. UTokyo, 3. TEPSYS)
3:45 PM - 4:00 PM

[3F13] Coupled analysis of reactor behavior and flooding propagation for ISLOCA and its impact on PRA-related parameters
*Hiroki Jojima[1], YOSHIKANE Hamaguchi[1], TOMOMICHI Ito[1] (1. Nuclear Regulation Authority)
4:00 PM - 4:15 PM

Room G

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 503-1 Reactor Chemistry, Radiation Chemistry, Corrosion, Water Chemistry,Water Quality Control

[3G01-05] Behavior of Radioactive Nuclides &Fuel Debris 1

Chair: Shunsuke Uchida (JAEA)
9:30 AM - 11:00 AM Room G (Zoom room 7)

[3G01] Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor unde severe accident
*Hidetoshi Karasawa[1], Shuuhei Miwa[1], Chiaki Kino[2] (1. JAEA, 2. IAE)
9:30 AM - 9:45 AM

[3G02] Estimation of Cs distribtion and characteristics in the reactor under severe accident
*Nakajima Kunihisa[1], Suzuki Eriko[1], Imoto Jumpei[1], Miwa shuhei[1], Osaka Masahiko[1] (1. JAEA)
9:45 AM - 10:00 AM

[3G03] Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor under severe accident
*Eriko Suzuki[1,2], Kunihisa Nakajima[1], Shuhei Miwa[1], Masahiko Osaka[1], Naoyuki Hashimoto[2], Shigehito Isobe[2], Hiroshi Oka[2] (1. JAEA, 2. Hokkaido Univ.)
10:00 AM - 10:15 AM

[3G04] Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor under severe

©Atomic Energy Society of Japan

accident

*Jumpei Imoto[1], Kunihisa Nakajima[1], Shuhei Miwa[1] (1. JAEA)

10:15 AM - 10:30 AM

[3G05] Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor under severe accident

*Shuhei Miwa[1], Hidetoshi Karasawa[1], Chiaki Kino[2], Kunihisa Nakajima[1], Eriko Suzuki[1], Junpei Imoto[1] (1. JAEA, 2. IAE)

10:30 AM - 10:45 AM

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 503-1 Reactor Chemistry, Radiation Chemistry, Corrosion, Water Chemistry,Water Quality Control

[3G06-08] Behavior of Radioactive Nuclides &Fuel Debris 2

Chair: Hidetoshi Karasawa (JAEA)

11:00 AM - 12:00 PM Room G (Zoom room 7)

[3G06] Study on revaporization of deposited CsI from stainless steel 304 surface in high-temperature steam atmosphere

*Muhammad Rizaal[1], Shuhei Miwa[1], Eriko Suzuki[1], Jumpei Imoto[1], Masahiko Osaka[1], Mélany Gouëllo[2] (1. Japan Atomic Energy Agency, 2. VTT Technical Research Centre of Finland)

11:00 AM - 11:15 AM

[3G07] Assembling Analysis System for Behavior of Water-Containing Fuel Debris - (III)

*Toru Ogawa[1] (1. JAEA)

11:15 AM - 11:30 AM

[3G08] Evaluation of Short and Long-Term Behavior of Radioactive Nuclides Distributed in Fukushima Daiichi NPP

*Shunsuke Uchida[1], Hidetoshi Karasawa[1], Chiaki Kino[2], Masahiko Ohsaka[1] (1. JAEA, 2. IAE)

11:30 AM - 11:45 AM

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 503-1 Reactor Chemistry, Radiation Chemistry, Corrosion, Water Chemistry,Water Quality Control

[3G09-11] Corrosion &Electrochemistry at High Temperature 1

Chair: Hiroshi Abe (Tohoku Univ.)

2:45 PM - 3:45 PM Room G (Zoom room 7)

[3G09] Effect of Catalysts Deposition on Carbon Steel Corrosion

*Koji Negishi[1], Takahiro Hara[1], Yusuke Horayama[1], Junichi Takagi[1] (1. TOSHIBA ESS)

2:45 PM - 3:00 PM

[3G10] Development of suppression method for deposition of radioactivity and mitigation of corrosive environment

*Tsuyoshi Ito[1], Hideyuki Hosokawa[1], Mayu Sasaki[2], Makoto Nagase[2] (1. Hitachi Ltd., 2. Hitachi-GE Nuclear Energy, Ltd.)

3:00 PM - 3:15 PM

[3G11] High Temperature Electrochemical Reaction Parameters for Electrochemical Corrosion Potential Model

*Yoichi Wada[1], Kazushige Ishida[1], Makoto Nagase[2] (1. Hitachi, 2. HGNE)

3:15 PM - 3:30 PM

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 503-1 Reactor Chemistry, Radiation Chemistry, Corrosion, Water Chemistry,Water Quality Control

[3G12-14] Corrosion &Electrochemistry at High Temperature 2

Chair: Koji Negishi (TOSHIBA ESS)

3:45 PM - 4:45 PM Room G (Zoom room 7)

[3G12] The effects of hydrogen addition on the corrosive conditions of PWR primary coolant under irradiation

*Kuniki Hata[1], Satoshi Hanawa[1], Yasuhiro Chimi[1], Shunsuke Uchida[1] (1. JAEA)

3:45 PM - 4:00 PM

[3G13] The effects of hydrogen addition on the corrosive conditions of PWR primary coolant under irradiation

*Satoshi Hanawa[1], Kuniki Hata[1], Yasuhiro Chimi[1], Shunsuke Uchida[1] (1. JAEA)

4:00 PM - 4:15 PM

[3G14] Corrosion test of T91 and SUS316L in liquid lead bismuth at 500 deg C

*Atsushi Komatsu[1], Chiaki Kato[1] (1. JAEA)

4:15 PM - 4:30 PM

Room H

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 504-3 Fuel Reprocessing

[3H01-04] MA recovery 1

Chair: Koichi Uozumi (CRIEPI)

9:30 AM - 10:45 AM Room H (Zoom room 8)

[3H01] Hybrid Process Combining Solvent Extraction

©Atomic Energy Society of Japan

and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

*Yuichi Sano[1], Tsuyoshi Arai[2], Kiyoharu Nakatani[3], Haruaki Matsuura[4], Shigeru Kunii[5] (1. JAEA, 2. Shibaura Inst. of Tech., 3. Univ. of Tsukuba, 4. TCU, 5. Chemicrea Inc.)

9:30 AM - 9:45 AM

[3H02] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

*Tatsuya Emori[1], Keisuke Morita[1], Yasutoshi Ban[1], Hiromori Sato[2], Fukuka Kida[2], Tsuyoshi Arai[2], Yuichi Sano[1] (1. JAEA, 2. Shibaura Inst. of Tech.)

9:45 AM - 10:00 AM

[3H03] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

*Yuka Kusano[1], Akihisa Miyagawa[1], Shigenori Nagatomo[1], Kiyoharu Nakatani[1], Yuichi Sano[2] (1. Univ. of Tsukuba, 2. JAEA)

10:00 AM - 10:15 AM

[3H04] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

*Atsushi Sakamoto[1], Yuichi Sano[1], Masayuki Takeuchi[1], Nobuo Okamura[1], Masayuki Watanabe[1] (1. JAEA)

10:15 AM - 10:30 AM

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 504-3 Fuel Reprocessing

[3H05-08] MA recovery 2

Chair: Hirokazu Hayashi (JAEA)

10:45 AM - 12:00 PM Room H (Zoom room 8)

[3H05] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

*Kenta Hasegawa[1], Yasunori Miyazaki[1], Hiromu Ambai[1], Yuichi Sano[1], Nobuo Okamura[1], Masayuki Watanabe[1] (1. JAEA)

10:45 AM - 11:00 AM

[3H06] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

*Masaaki Yoshida[1], Shuhei Nemoto[1], Midori Nagase[1], Tsuyoshi Arai[1], Tatsuya Emori[2], Keisuke Morita[2], Yasutoshi Ban[2], Sou Watanabe[2], Yuichi Sano[2], Shigeru Kunii[3] (1. Shibaura Inst. of Tech., 2. JAEA, 3. Chemicrea Inc.)

11:00 AM - 11:15 AM

[3H07] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

Tatsumi Tsuchiya[1], Makoto Okada[1], *Sou Watanabe[2], Yuichi Sano[2], Tsuyoshi Arai[3], Haruaki Matsuura[1] (1. TCU, 2. JAEA, 3. Shibaura Inst. of Tech.)

11:15 AM - 11:30 AM

[3H08] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

*Yoshiaki Kuzure[1], Akihisa Miyagawa[1], Shigenori Nagatomo[1], Kiyoharu Nakatani[1], Masaaki Yoshida[2], Shuhei Nemoto[2], Tsuyoshi Arai[2], Hiromu Ambai[3], Kenta Hasegawa[3], Yuichi Sano[3] (1. Univ. of Tsukuba, 2. Shibaura Inst. of Tech., 3. JAEA)

11:30 AM - 11:45 AM

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 504-3 Fuel Reprocessing

[3H09-10] Hydrogen explosion accident at reprocessing plant

Chair: Daisuke Fujiwara (TEPSYS)

2:45 PM - 3:30 PM Room H (Zoom room 8)

[3H09] Experiment on airborne release fraction in hydrogen explosion accident at Reprocessing plant

*Naoya SATOU[1], Yoshikazu TAMAUCHI[1], Hiroshi KINUHATA[1], Takashi KODAMA[1], Keita SAITO[2], Takahiro CHIKAZAWA[2] (1. JFNL, 2. MMC)

2:45 PM - 3:00 PM

[3H10] Experiment on airborne release fraction in hydrogen explosion accident at Reprocessing plant

*KEITA SAITO[1], Takahiro CHIKAZAWA[1], Yoshikazu TAMAUCHI[2], Takashi KODAMA[2] (1. MMC, 2. JFNL)

3:00 PM - 3:15 PM

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 504-3 Fuel Reprocessing

[3H11-15] Reprocessing technology

Chair: Yuichi Sano (JAEA)

3:30 PM - 5:00 PM Room H (Zoom room 8)

[3H11] Development of co-decontamination section on co-processing process

©Atomic Energy Society of Japan

*Shimpei Ohno[1], Yoshiaki Ichige[1], atsuhiro Shibata[1], Takehiko Sato[1], Masayuki Takeuchi[1] (1. JAEA)
3:30 PM - 3:45 PM

[3H12] Extraction of Ce(IV) in HNO_3 with imidazolium-type ionic liquids and fluorous solvent
*Masaru Yokouchi[1], Ryoma Sunakawa[1], Takaya Yamaguchi[1], Toshiyuki Inazu[1], Noriko Asanuma[1] (1. Tokai University)
3:45 PM - 4:00 PM

[3H13] R&D on Nitride Fuel Cycle for MA Transmutation to Enhance Safety and Economy
*Hirokazu Hayashi[1], Hiroki Shibata[1], Haruyoshi Otobe[1] (1. JAEA)
4:00 PM - 4:15 PM

[3H14] Development of spent salt treatment technology using zeolite
*Koichi Uozumi[1], Kazuto Takayama[2], Kenta Inagaki[1] (1. CRIEPI, 2. UTokyo)
4:15 PM - 4:30 PM

[3H15] Pyro-reprocessing of Molten Salt Reactor Fuel
*Taizo Shibuya[1], Ritsuo Yoshioka[2], Uhlir Jan[3], Masaaki Furukawa[1] (1. Thorium Tech Solution Inc., 2. International Thorium Molten-Salt Forum, 3. Centrum Výzkumu Řež)
4:30 PM - 4:45 PM

Room I

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-1 Radioactive Waste Management

[3I01-04] Nuclide Adsorption &Separation 5

Chair: Takayuki Sasaki (Kyoto Univ.)
9:30 AM - 10:45 AM Room I (Zoom room 9)

[3I01] Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of Soil contaminated by Radioactive Cesium
*Kenji Takeshita[1], Xiangbiao Yin[1], Shinta Watanabe[1], Tatsuya Fukuda[1], Masahiko Nakase[1] (1. Tokyo Institute of Technology)
9:30 AM - 9:45 AM

[3I02] Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of Soil contaminated by Radioactive Cesium
*TaTsuya Fukuda[1], Ryo Takahashi[1], Takuhi Hara[1], Shinta Watanabe[1], Xiangbiao Yin[1], Koji Ohara[2], Kazuo Kato[2], Daiju Matsumura[3], Masahiko Nakase[1], Kenji Takeshita[1] (1. Tokyo Tech, 2. JASRI, 3. JAEA)
9:45 AM - 10:00 AM

[3I03] Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of Soil contaminated by Radioactive Cesium
*Shinta Watanabe[1], Tatsuya Fukuda[1], Xiangbiao Yin[1], Miki Harigai[1], Masahiko Nakase[1], Kenji Takeshita[1] (1. Tokyo Tech)
10:00 AM - 10:15 AM

[3I04] Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of Soil contaminated by Radioactive Cesium
*Xiangbiao Yin[1], Shinta Watanabe[1], Tatsuya Fukuda[1], Masahiko Nakase[1], Kenji Takeshita[1] (1. Tokyo Tech)
10:15 AM - 10:30 AM

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-1 Radioactive Waste Management

[3I05-08] Waste Management 3

Chair: Kazuyoshi Uruga (CRIEPI)
10:45 AM - 12:00 PM Room I (Zoom room 9)

[3I05] Realization Development of the Flexible Waste Management System for MA P&T Technology
*Akihiro Suzuki[1], Yoichi Endo[1], Tetsuo Fukasawa[1], Yaohiro Inagaki[2], Tatsumi Arima[2], Yusa Muroya[3], Keita Endo[4], Daisuke Watanabe[4], Tatsuro Matsumura[5], Katsunori Ishii[5] (1. NFD, 2. Kyushu Univ., 3. Osaka Univ., 4. Hitachi-GE, 5. JAEA)
10:45 AM - 11:00 AM

[3I06] Realization Development of the Flexible Waste Management System for MA P&T Technology
*Yoichi Endo[1], Akihiro Suzuki[1] (1. NFD)
11:00 AM - 11:15 AM

[3I07] Realization Development of the Flexible Waste Management System for MA P&T Technology
*Koichi Kawaguchi[1], Katsunori Ishii[1], Yoichi Endo[2], Akihiro Suzuki[2] (1. JAEA, 2. NFD)
11:15 AM - 11:30 AM

[3I08] Realization Development of the Flexible Waste Management System for MA P&T Technology
*Tetsuo Fukasawa[1], Keita Endo[2], Daisuke Watanabe[2], Yusa Muroya[3], Tatsumi Arima[4], Yaohiro Inagaki[4], Yoichi Endo[1], Akihiro Suzuki[1] (1. NFD, 2. HGNE, 3. Osaka Univ., 4. Kyushu Univ.)
11:30 AM - 11:45 AM

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-1 Radioactive Waste Management

©Atomic Energy Society of Japan

[3I09-12] Debris 1

Chair: Masahiko Nakase (Tokyo Tech)
2:45 PM - 4:00 PM Room I (Zoom room 9)

[3I09] Research on the stability of fuel debris consisting of oxides and alloys

*Akira Kirishima[1], Daisuke Akiyama[1], Nobuaki Sato[1], Takayuki Sasaki[2], Masayuki Watanabe[3], Yuta Kumagai[3], Ryoji Kusaka[3] (1. Tohoku Univ., 2. Kyoto Univ., 3. JAEA)

2:45 PM - 3:00 PM

[3I10] Research on the stability of fuel debris consisting of oxides and alloys

*Yuta Kumagai[1], Masayuki Watanabe[1], Ryoji Kusaka[1], Daisuke Akiyama[2], Akira Kirishima[2], Nobuaki Sato[2], Takayuki Sasaki[3] (1. JAEA, 2. Tohoku Univ., 3. Kyoto Univ.)

3:00 PM - 3:15 PM

[3I11] Research on the stability of fuel debris consisting of oxides and alloys

*Ryoji Kusaka[1], Yuta Kumagai[1], Masayuki Watanabe[1], Daisuke Akiyama[2], Akira Kirishima[2], Nobuaki Sato[2], Takayuki Sasaki[3] (1. JAEA, 2. Tohoku Univ., 3. Kyoto Univ.)

3:15 PM - 3:30 PM

[3I12] Research on the stability of fuel debris consisting of oxides and alloys

*Takayuki SASAKI[1], Ryutaro Tonna[1], Taishi Kobayashi[1], Daisuke Akiyama[2], Akira Kirishima[2], Nobuaki Sato[2], Masayuki Watanabe[3], Yuta Kumagai[3], Ryoji Kusaka[3] (1. Kyoto Univ., 2. Tohoku Univ., 3. JAEA)

3:30 PM - 3:45 PM

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-1 Radioactive Waste Management

[3I13-15] Debris 2

Chair: Yuta Kumagai (JAEA)
4:00 PM - 5:00 PM Room I (Zoom room 9)

[3I13] Thermodynamic study on dissolution behavior of $UFeO_4$

*Ryutaro Tonna[1], Taishi Kobayashi[1], Daisuke Akiyama[2], Akira Kirishima[2], Nobuaki Sato[2], Takayuki Sasaki[1] (1. KYOTO UNIVERSITY, 2. Tohoku University)

4:00 PM - 4:15 PM

[3I14] Fuel debris renewal concept

*Naoyuki Takaki[1], Ayumu Obata[1], Kota Kawamoto[1], Yuto Sasaki[1] (1. Tokyo City University)

4:15 PM - 4:30 PM

[3I15] Fuel debris renewal concept

*Ayumu Obata[1], Kota Kawamoto[1], Yuto Sasaki[1], Naoyuki Takaki[1] (1. Tokyo city university)

4:30 PM - 4:45 PM

Room J

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-2 Waste Disposal and Its Environmental Aspects

[3J01-05] Waste

Chair: Taiji Chida (Tohoku Univ.)
9:55 AM - 11:20 AM Room J (Zoom room 10)

[3J01] Study on advanced nuclear energy system based on the environmental impact of radioactive waste disposal

*Hidekazu Asano[1], Tomofumi Sakuragi[1], Ryo Hamada[1], Chi Young Han[2], Masahiko Nakase[2], Tatsuro Matsumura[3], Go Chiba[4], Hiroshi Sagara[2], Kenji Takeshita[2] (1. RWMC, 2. Tokyo Tech, 3. JAEA, 4. Hokkaido Univ)

9:55 AM - 10:10 AM

[3J02] Study on advanced nuclear energy system based on the environmental impact of radioactive waste disposal

*Ryo Hamada[1], Tomofumi Sakuragi[1], Hidekazu Asano[1] (1. RWMC)

10:10 AM - 10:25 AM

[3J03] Study on Advanced Nuclear Energy System Based on the Environmental Impact of Radioactive Waste Disposal

*Chi Young HAN[1], Hiroshi SAGARA[1], Hidekazu ASANO[2] (1. Tokyo Tech, 2. RWMC)

10:25 AM - 10:40 AM

[3J04] Study on advanced nuclear energy system based on the environmental impact of radioactive waste disposal

*Tatsuro Matsumura[1], Yasuhiro Tsubata[1], Hidekazu Asano[2] (1. Japan Atomic Energy Agency, 2. RWMC)

10:40 AM - 10:55 AM

[3J05] Technical options of radioactive waste management for the second half of the 21st Century, in consideration of Pu utilization and less environmentally impacted geological disposal

*Eriko Minari[1], Tomohiro Okamura[1], Masahiko Nakase[1], Tomofumi Sakuragi[2], Ryo Hamada[2], Hidekazu Asano[1,2], Kenji Takeshita[1] (1. Tokyo Tech, 2. RWMC)

©Atomic Energy Society of Japan

10:55 AM - 11:10 AM

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-2 Waste Disposal and Its Environmental Aspects

[3J06-07] Material

Chair: Tatsuro Matsumura (JAEA)
11:20 AM - 12:00 PM Room J (Zoom room 10)

[3J06] Development of stable solidification process of radioactive Cesium from contaminated soil by functional porous silica glass and struvite

*Yuan Zhuofei[1], Nakase masahiko[1], Watanabe shinta[1], Harigai miki[1], Inaba yusuke[1], Takeshita kenji[1] (1. Tokyo Institute of Technology)

11:20 AM - 11:35 AM

[3J07] Effect of Dehydration Time on Pore Distribution of Metakaolin-based Geopolymer

*Yaru Yang[1], Thi Chau Duyen Le[1], Thi Mai Dung Do[1], Tadachika Nakayama[1], Suematsu Hisayuki[1] (1. Nagaoka University of Technology)

11:35 AM - 11:50 AM

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-2 Waste Disposal and Its Environmental Aspects

[3J08-10] Natural Barrier

Chair: Taishi Kobayashi (Kyoto Univ.)
2:45 PM - 3:35 PM Room J (Zoom room 10)

[3J08] Intrusion ratio of modern meteoric water into groundwater at Mizunami granite area deduced by I-129

*TOMOKO OHTA[1,2,3], Takuma Hasegawa[1], Shunichi Okamoto[1], Yusuke Watanbe[4] (1. CRIEPI, 2. Nagaoka Univ. of Tech., 3. UTokyo, 4. JAEA)

2:45 PM - 3:00 PM

[3J09] Some experimental trials on changes of mass transfer and hydraulic conductivity porosity in porous media , considering a drying process before the closure of repository

*Koichi Hayashi[1], Yuichi Niibori[1], Taiji Chida[1] (1. Tohoku University)

3:00 PM - 3:15 PM

[3J10] New backbone definition for radionuclide transport simulation using discrete fracture network and prediction of breakthrough curves by machine learning

*Shunya Hattori[1], Takumi Saito[1] (1. UTokyo)

3:15 PM - 3:30 PM

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-2 Waste Disposal and Its Environmental Aspects

[3J11-15] Migration/Sorption

Chair: Hajime Takao (JGC)
3:35 PM - 5:00 PM Room J (Zoom room 10)

[3J11] Characterization of the solubility controlling solid phases of mixed lanthanide oxides $(L_1,L_2,L_3)_2O_3$ (L_1,L_2,L_3= La,Nd,Eu,Tm)

*Mohammad Moniruzzaman[1], Taishi Kobayashi[1], Takayuki Sasaki[1] (1. Kyoto Univ.)

3:35 PM - 3:50 PM

[3J12] Determination of the sorption mechanism of Cs^+ and Eu^{3+} to sodium activated metakaolin-based geopolymers

*ANIL CAN YILDIRIM[1], TAKUMI SAITO[1], NOBORU AOYAGI[2] (1. UTokyo, 2. JAEA)

3:50 PM - 4:05 PM

[3J13] Gamma-irradiation-induced molecular-weight-dependent distribution of humic acid complexed with metal ions

*Qi Zhao[1], Taishi Kobayashi[1], Takayuki Sasaki[1], Takeshi Saito[2] (1. Kyoto Univ., 2. KURNS)

4:05 PM - 4:20 PM

[3J14] Estimation of the interaction of Europium and Ca-Al-Si Hydrates in the co-presence condition of Cesium and Barium

*Jinsei Amakawa[1], Taiji Chida[1], Yuichi Niibori[1] (1. Tohoku University)

4:20 PM - 4:35 PM

[3J15] Evaluation of the interaction between deep groundwater natural organic matter and metal ions using fluorescence spectroscopy and multivariate analysis

*Shusaku Nishi[1], Takumi Saito[1] (1. The University of Tokyo)

4:35 PM - 4:50 PM

Room K

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 501-2 Nuclear Fuel and the Irradiation Behavior

[3K01-06] Fast Reactor Recycling

Chair: Ken Kurosaki (Kyoto Univ.)
10:15 AM - 12:00 PM Room K (Zoom room 11)

[3K01] Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels

*Masato Kato[1], Masami Uno[2], Tatsumi Arima[3] (1.

©Atomic Energy Society of Japan

JAEA, 2. Fukui Univ., 3. Kyushu Univ.)
10:15 AM - 10:30 AM

[3K02] Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels
*Yuta Horii[1], Masato Kato[1], Shun Hirooka[1], Hiroki Uno[2], Tetsuya Tamura[2], Takeo Sunaoshi[2] (1. JAEA, 2. Inspection Development)
10:30 AM - 10:45 AM

[3K03] Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels
*Keisuke Yokoyama[1], Masashi Watanabe[1], Masato Kato[1], daishiro tokoro[2], Masatoshi sugimoto[2] (1. JAEA, 2. Inspection Development)
10:45 AM - 11:00 AM

[3K04] Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels
*Haruka Okazaki[1], Takashi Onitsuka[1], Masayoshi Uno[1] (1. Univ. of Fukui)
11:00 AM - 11:15 AM

[3K05] Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels
*Tatsumi Arima[1], Masato Kato[2] (1. Kyushu Univ., 2. JAEA)
11:15 AM - 11:30 AM

[3K06] Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels
*Takayuki Ozawa[1], Shun Hirooka[1], Masato Kato[1], Trevor J. Smuin[2], Colby B. Jensen[2], Nicolas E. Woolstenhulme[2], Daniel M. Wachs[2] (1. JAEA, 2. INL)
11:30 AM - 11:45 AM

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 501-2 Nuclear Fuel and the Irradiation Behavior

[3K07-10] Development for Fast Reactor Fuel

Chair: Tatsumi Arima (Kyushu Univ.)
2:45 PM - 3:55 PM Room K (Zoom room 11)

[3K07] X-Ray Computed Tomography Image Analysis of an Irradiated Joyo Fuel Assembly: Visualization of the Structural Changes in the Irradiated Fuels
*Tien-Hsiu Tsai[1], Shinji Sasaki[1], Kozo Katsuyama[1], Koji Maeda[1] (1. JAEA)
2:45 PM - 3:00 PM

[3K08] Granulation characteristics confirmation test of additive-free dry granulation technology for fast reactor fuel fabrication
*Tomoomi Segawa[1], Koichi Kawaguchi[1], Katsunori Ishii[1], Masahiro Nishina[1], Takayoshi Makino[1], Yuri Natori[2], Norihiro Ikemoto[2], Kazuo Yonehara[2], Katsuyoshi Tatenuma[2] (1. JAEA, 2. KAKEN)
3:00 PM - 3:15 PM

[3K09] Development of Light Water Cooled Fast Reactor
*kyoichi morimoto[1], Masashi Watanabe[1], Masato Kato[1], Tetsushi Hino[2] (1. JAEA, 2. HGNE)
3:15 PM - 3:30 PM

[3K10] Development of metal nanoparticle dispersion technique for liquid sodium
*Keiichi Nagai[1], Masahiko Ohtaka[1], Chikai Tei[1] (1. JAEA)
3:30 PM - 3:45 PM

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 501-1 Basic Properties

[3K11-13] Cs behavior evaluation / Effective utilization of FP

Chair: kyoichi morimoto (JAEA)
3:55 PM - 4:50 PM Room K (Zoom room 11)

[3K11] High-temperature Oxidation Behavior of Stainless Steel 304 in Argon Gas Containing Cesium Molybdate
*Thi Mai Dung Do[1], Tadachika Nakayama[1], Hisayuki Suematsu[1] (1. Nagaoka University of Technology)
3:55 PM - 4:10 PM

[3K12] The Caesium Retention Phenomena Related to Oxidation of the Reactor Coolant Boundaries Materials
*I Wayan - Ngarayana[1], Kenta Murakami[1], Thi Mai Dung Do[1] (1. Nagaoka University of Technology)
4:10 PM - 4:25 PM

[3K13] Study on Effective Utilization of Fission Products
*Asahi Nitta[1], Ryohei Hattori[1], Isamu Sato[1], Haruaki Matsuura[1] (1. TCU)
4:25 PM - 4:40 PM

Room L

Oral presentation | VI. Fusion Energy Engineering | 601-2 Fusion Reactor

©Atomic Energy Society of Japan

Material Science (Reactor and Blanket Materials, Irradiation Behavior)

[3L01-04] Chemical Compatibility of Materials 1

Chair: Teruya Tanaka (NIFS)
9:30 AM - 10:35 AM Room L (Zoom room 12)

[3L01] Corrosion Issues of Cu-alloy toward DEMO Divertor

*Motoki Nakajima[1], Yen-jui Huang[1], Naofumi Nakazato[2], Taisei Nemoto[2], Yu Seiriki[2], Takashi Nozawa[1], Hirotatsu Kishimoto[2] (1. QST, 2. Muroran IT)

9:30 AM - 9:45 AM

[3L02] Corrosion Issues of Cu-alloy toward DEMO Divertor

*Naofumi Nakazato[1], Taisei Nemoto[1], Yu Seiriki[1], Motoki Nakajima[2], Yen-Jui Huang[2], Takashi Nozawa[2], Hirotatsu Kishimoto[1] (1. Muroran IT, 2. QST)

9:45 AM - 10:00 AM

[3L03] Corrosion Issues of Cu-alloy toward DEMO Divertor

*Yen-Jui Huang[1], Motoki Nakajima[1], Naofumi Nakazato[2], Taisei Nemoto[2], Yu Seiriki[2], Takashi Nozawa[1], Hirotatsu Kishimoto[2] (1. QST, 2. Muroran IT)

10:00 AM - 10:15 AM

[3L04] Compatibility test of tritium permeation barrier coatings with pressurized water

*Takumi Chikada[1], Motoki Nakajima[2], Akiyoshi Suzuki[1], Teppei Otsuka[3], Masanori Hara[4], Takashi Nozawa[2] (1. Shizuoka Univ., 2. QST, 3. Kindai Univ., 4. Univ. of Toyama)

10:15 AM - 10:30 AM

Oral presentation | VI. Fusion Energy Engineering | 601-2 Fusion Reactor Material Science (Reactor and Blanket Materials, Irradiation Behavior)

[3L05-09] Chemical Compatibility of Materials 2

Chair: Naoko Oono-Hori (Hokkaido Univ.)
10:35 AM - 12:00 PM Room L (Zoom room 12)

[3L05] Material compatibility of cement and concrete materials with various liquid metals

*Katsuya Murakami[1], Yukihiro Miyakawa[1], Yuki Kano[1], Nobuhiro Chijiwa[1], Minho O[1], Teruya Tanaka[2], Masatoshi Kondo[1] (1. Tokyo Tech, 2. NIFS)

10:35 AM - 10:50 AM

[3L06] Fundamental study on fretting corrosion of various materials in solid breeder blanket

*Naoki Takahashi[1], Jae-Hwan Kim[2], Masaru Nakamichi[2], Masatoshi Kondo[1] (1. Tokyo Tech, 2. QST)

10:50 AM - 11:05 AM

[3L07] Detection of mass transfer in liquid metals by quartz crystal microbalance

*Leo Iizuka[1], Masatoshi Kondo[1], Satoshi Satou[2] (1. Tokyo Tech, 2. QST)

11:05 AM - 11:20 AM

[3L08] In-situ electrochemical impedance spectroscopy on self-healing behavior of oxide layer in liquid lead

*Atsushi Kawarai[1], Masatoshi Kondo[1] (1. Tokyo Tech)

11:20 AM - 11:35 AM

[3L09] Chemical compatibility of various steels for liquid Sn divertor concepts

*Yukihiro Miyakawa[1], masatoshi KONDO[1] (1. Tokyo Tech)

11:35 AM - 11:50 AM

Oral presentation | VI. Fusion Energy Engineering | 601-3 Tritium Science and Technology (Fuel Recovery and Refining, Measurement, Isotope Effect, Safe Handling)

[3L10-15] Tritium Engineering

Chair: Hirofumi Nakamura (QST)
2:45 PM - 4:30 PM Room L (Zoom room 12)

[3L10] Monte Carlo simulation of beta-ray induced X-ray spectrum of tritium in solid

*masanori hara[1], Kenjio Aoki[1], Tsukasa Aso[2] (1. University of Toyama, 2. National Institute of Technology, Toyama College)

2:45 PM - 3:00 PM

[3L11] Study on T-production Li rod for HTGR

*Yuki Koga[1], Hideaki Matsuura[1], Kazunari Katayama[1], Teppei Otsuka[2], Minoru Goto[3], Shimpei Hamamoto[3], Etsuo Ishitsuka[3], Shigeaki Nakagawa[3], Kenji Tobita[4], Ryoji Hiwatari[5] (1. Kyushu Univ., 2. Kinki Univ., 3. JAEA, 4. Tohoku Univ., 5. QST)

3:00 PM - 3:15 PM

[3L12] Study of WDS for DEMO applied with heavy water cooled blanket (2)

*Takahiko Sugiyama[1] (1. Nagoya Univ.)

3:15 PM - 3:30 PM

[3L13] Study on the Tritium Release Behavior from Neutron Irradiated Li_2TiO_3

*Akito Ipponsugi[1], Kazunari Katayama[1], Tsuyoshi Hoshino[2] (1. kyushu university, 2. QST)

3:30 PM - 3:45 PM

©Atomic Energy Society of Japan

[3L14] Computer simulation of tritium recovery from neutron-irradiated tungsten

*Yuji Hatano[1], Azusa Matsumoto[1] (1. Univ. of Toyama)

3:45 PM - 4:00 PM

[3L15] Study on tritium transfer behavior from soil to plants

*kazunari Katayama katayama[1], Takahiro Matano[1], Yutaro Wada[1] (1. Kyushu University)

4:00 PM - 4:15 PM

Room M

Oral presentation | VII. Health Physics and Environmental Science | Health Physics and Environmental Science

[3M01-04] Environmental Restoration

Chair: Michio Aoyama (Univ. of Tsukuba)
9:30 AM - 10:45 AM Room M (Zoom room 13)

[3M01] Application of CDE(Calculation system for Decontamination Effect) to decontamination work in the Interim Storage Facility site

*Takashi Jintoku[1], Naoe Kadota[1], Shoko Yashio[1], Hiroyuki Toyoshima[1], Masanobu Kato[1], Kazuya IKEDA[2] (1. OBAYASHI, 2. Ministry of the Environment)

9:30 AM - 9:45 AM

[3M02] Assembly and Operation Results of In-vehicle System of Laser Decontamination Machine

*Eisuke John Minehara[1], Takahiro Hirayama[2] (1. LDD, 2. NSG)

9:45 AM - 10:00 AM

[3M03] The preliminary methodology of Cs separation and collection from 2:1 clay minerals using Argon plasmall

*YUTAKA NISHIMURA[1], Glenn Harvel[2], Fumihito Mishima[1], Naoki Nomura[1], Shigehiro Nishijima[1], Takeyoshi Sunagawa[1] (1. FUT., 2. Ontario Tech. Univ.)

10:00 AM - 10:15 AM

[3M04] Radioactvity reduction study on removed soil after rating under 75μ m

*tadashi MURAKAMI murakami[1], sumito takahashi[1] (1. nuclear safety technology center)

10:15 AM - 10:30 AM

Oral presentation | VII. Health Physics and Environmental Science | Health Physics and Environmental Science

[3M05-08] Environmental Radioactivity &Radiation

Chair: Masahiko Machida (JAEA)
10:45 AM - 12:00 PM Room M (Zoom room 13)

[3M05] High efficient gamma and neutron shielding using Gd_2O_2S

*Kohichi Nakayama[1], Koichi Nittoh[2], Yukihiro Fukuta[3], Haruo Miyadera[1], Yukio Sonoda[2] (1. TOSHIBA ESS, 2. TTSI, 3. TMAT)

10:45 AM - 11:00 AM

[3M06] Evaluation of labile 137Cs in Fukushima rivers by diffusive gradients in thin films (DGT)

*Takuro Tanaka[1], Takumi Saito[1], Kenso Fujiwara[2], Motoki Terashima[2], Takahiro Nakanishi[2], Natsuko Kobayashi[1] (1. UTokyo, 2. JAEA)

11:00 AM - 11:15 AM

[3M07] Temporal changes in remaining radioactive Caesium in residential houses within former evacuation areas

*Hiroko Yoshida[1], Naohide Shinohara[2] (1. Tohoku Univ., 2. AIST)

11:15 AM - 11:30 AM

[3M08] Simplifying the Method of Measuring Radioactive Particles with Imaging Plate

*NAOKI NOMURA[1] (1. Fukui University of Tecnology)

11:30 AM - 11:45 AM

Oral presentation | VII. Health Physics and Environmental Science | Health Physics and Environmental Science

[3M09-15] Environmental Dynamics

Chair: Hiroko Yoshida (Tohoku Univ.)
2:45 PM - 4:45 PM Room M (Zoom room 13)

[3M09] Analysis of oceanic dispersal of ^{137}Cs derived from Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant using the Short-Term Emergency Assessment system of Marine Environmental Radioactivity

*Tsubasa Ikenoue[1], Hideyuki Kawamura[1], Yuki Kamidaira[1] (1. JAEA)

2:45 PM - 3:00 PM

[3M10] Dynamics of radiocesium in Lake Pnuma on Mt.Akagi

*YUKIKO OKADA[1], Naoto Kumagai[1], Haruaki Matsuura[1], Shun Watanabe[2], Seiichi Nohara[3], Yoshikazu Kikawada[4], Masanobu Mori[5], Yoshitaka Minai[6], Seiya Nagao[7] (1. Tokyo City University, 2. Gunma Prefectural Fisheries Experiment Station, 3. National Institute for Environmental Studies, 4.

©Atomic Energy Society of Japan

Sophia University, 5. Kochi University, 6. Musashi University, 7. Kanazawa University）

3:00 PM - 3:15 PM

[3M11] Dynamics of radiocesium in Lake Onuma on Mt. Akagi

*Haruaki Matsuura[1], Takamasa Nagahashi[1], Koki Sakashita[1], Naoto Kumagai[1], Seiichi Nohara[2], Yukiko Okada[1] （1. TCU, 2. NIES）

3:15 PM - 3:30 PM

[3M12] Dynamics of radiocesium in Lake Onuma on Mt. Akagi

*Naoto Kumagai[1], Haruaki Matsuura[1], Takahumi Uchiyama[1], Shun Watanabe[2], Seiichi Nohara[3], Yukiko Okada[1] （1. TCU, 2. Gunma Prefectural Fisheries Experiment Station, 3. NIES）

3:30 PM - 3:45 PM

[3M13] Tritium activity concentration and behavior at coastal region of Fukushima

*Michio AOYAMA[1,2], Sabine Charmasson[3], Yasunori Hamajima[4], Celine Duffa[3], Daisuke Tsumune[5], Yutaka Tateda[5] （1. Univ. of Tsukuba, 2. Fukushima Univ., 3. Institute de Radioprotection et de Sûreté nucléaire (IRSN), 4. Kanazawa Univ., 5. Central Research Institute of Electric Power Industry）

3:45 PM - 4:00 PM

[3M14] Relationships between dissolved form and sediment in radiocesium concentrations in the riverwaters in Hamadori, Fukushima

*Yukio Takeuchi[1], Hirotsugu Arai[1], Kazuki Fujita[1], Kazumi Katsuno[1], Kouki Nasu[1], Keisuke Taniguchi[2], Yuichi Onda[2] （1. FPCEC, 2. Univ. of Tsukuba, Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics）

4:00 PM - 4:15 PM

[3M15] Environmental Dynamics of Tritium in Fukushima Coastal Area and Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Port: Analysis of Monitoring Data

*Masahiko Machida[1], Ayako Iwata[1], Susumu Yamada[1] （1. JAEA）

4:15 PM - 4:30 PM

©Atomic Energy Society of Japan

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 304-1 Thermal Hydraulics, Energy Conversion, Energy Transfer, Energy Storage

[3A01-04] Fuel Assembly Thermal Hydraulics 2

Chair: Yoichi Utanohara (INSS)

Fri. Mar 19, 2021 9:30 AM - 10:45 AM Room A (Zoom room 1)

[3A01] Research and development for understanding of liquid-film flow behavior around fuel rods in BWRs' fuel rod bundle

*Hajime Furuichi[1], Kiyoshi Fujimoto[1], Kenichi Katono[1], Masaki Ikeda[1], Kenichi Yasuda[1], Kazuaki Kito[1] (1. HGNE)

9:30 AM - 9:45 AM

[3A02] Research and development for understanding of liquid-film flow behavior around fuel rods in BWRs' fuel rod bundle

*Kiyoshi Fujimoto[1], Hajime Furuichi[1], Kenichi Katono[1], Masaki Ikeda[1], Kenichi Yasuda[1], Kazuaki Kito[1] (1. Hitachi GE Nuclear Energy, Ltd.)

9:45 AM - 10:00 AM

[3A03] Transient boiling analysis in partially and rapidly heated 5X5 rod bundle with TRACE code

*Riichiro Okawa[1], Masahiro Furuya[1], Takahiro Arai[1], Tsugumasa Iiyama[1], Kenetsu Shirakawa[1] (1. CRIEPI)

10:00 AM - 10:15 AM

[3A04] Numerical simulation study on effect of vane on two-phase flow in the fuel bundle

*Ayako Ono[1], Susumu Yamashita[1], Takayuki Suzuki[1], Hiroyuki Yoshida[1] (1. JAEA)

10:15 AM - 10:30 AM

©Atomic Energy Society of Japan

BWR 燃料集合体内における燃料棒周りの液膜挙動解明に向けた研究開発
（3）光導波路センサを用いた大気圧条件における単一模擬燃料棒表面の液膜厚さ計測

Research and development for understanding of liquid flow behavior around fuel rods in BWRs' fuel rod bundle
(3) Measurement of liquid-film thickness on a single simulated fuel rod under atmospheric pressure condition using an optical waveguide sensor

*古市 肇[1]，藤本 清志[1]，上遠野 健一[1]，池田 正樹[1]，安田 賢一[1]，木藤 和明[1]
[1]日立ＧＥニュークリア・エナジー(株)

液膜ドライアウト挙動解明に向けて，光導波路センサによる液膜厚さ分布計測手法を開発し，模擬燃料棒表面の局所液膜厚さの計測結果の妥当性を可視化結果との比較により確認した．

キーワード：沸騰水型原子炉，燃料棒，気液二相流，液膜計測，光導波路

1. 緒言　日立ＧＥでは沸騰水型原子炉（BWR）燃料集合体内の気液二相流データベースの拡充を目的とした研究開発を推進している．液膜ドライアウト前後に生じる数十～百μm オーダーの液膜厚さ計測に向け，液膜評価試験を実施し，大気圧条件において光導波路センサによる液膜厚さ分布計測結果の妥当性を確認した．

2. 試験装置　液膜評価試験装置は，空気供給系，水循環系，試験体から構成され，試験体は外径 10mm の模擬燃料棒を内包する矩形流路(一辺 20mm)である[1]．光導波路は複数の光路を内包したフィルム状の光学素材であり，高い空間分解能(40μm)を特徴とする模擬燃料棒一体型のセンサである(Fig. 1)．前報[2]では液膜厚さの校正実験を実施し，局所静止液膜厚さと液膜表面の反射光強度との関係を示した．本研究は見かけ速度 j_G=10～50m/s，j_L=0.01m/s の環状噴霧流において模擬燃料棒の軸方向 2 点で液膜厚さを計測した．また，高速度カメラによりセンサ表面の液膜を側面から可視化し，光導波路センサの信号取得と同期撮影した．

3. 試験結果　Fig.2 に光導波路センサによる液膜厚さの計測結果を示す．軸方向に隣接する 2 点の液膜厚さと可視化から評価した液膜厚さの傾向が一致することが分かる．時刻 0.09s や 0.23s 付近で液膜厚さが大きくなるのはじょう乱波が通過したためである．Fig.3 に 2 秒間の時間平均液膜厚さを算出した結果を示す．液膜厚さ 0.15mm～0.45mm の範囲で光導波路センサによる計測結果が校正実験誤差（校正実験で得られた最大評価誤差 22%[2]）の範囲内で一致し，計測結果の妥当性を確認した．

参考文献 [1] 池田ら,原子力学会 2020 年秋の大会,2G13(2020/09)，[2] 古市ら,原子力学会 2020 年秋の大会,2G14(2020/09)

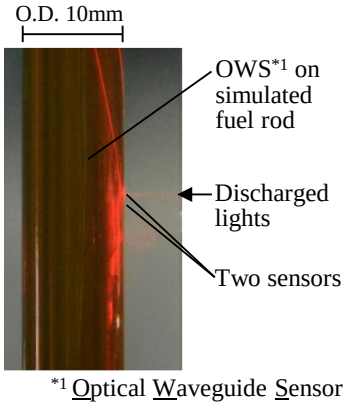


Fig. 1 Outline of OWS

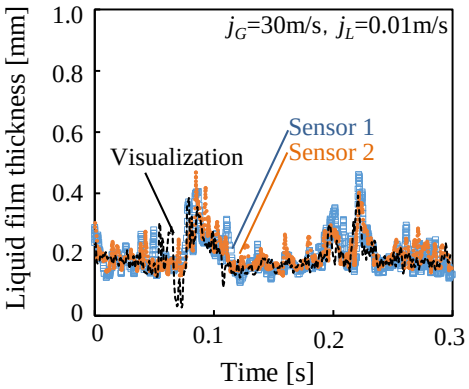


Fig. 2 Measurement results of liquid film thickness

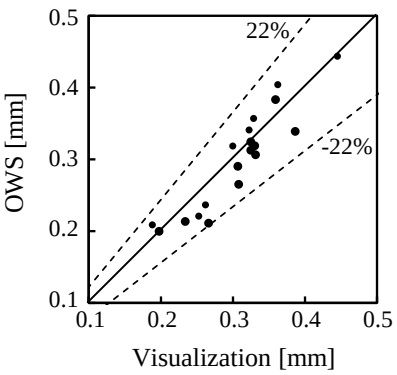


Fig. 3 Comparison of mean film-thickness

*Hajime Furuichi[1], Kiyoshi Fujimoto[1], Kenichi Katono[1], Masaki Ikeda[1], Kenichi Yasuda[1] and Kazuaki Kito[1]
[1]Hitachi - GE Nuclear Energy, Ltd.

BWR 燃料集合体内における燃料棒周りの液膜挙動解明に向けた研究開発
（4）大気圧下の部分長燃料棒の後流での液滴・液膜挙動評価

Research and development for understanding of liquid flow behavior
around fuel rods in BWRs' fuel rod bundle
(4) Experimental evaluation of effect on droplet and liquid-film behaviors in a wake flow
of a simulated partial-length-rod under atmospheric pressure

*藤本 清志[1]，古市 肇[1]，上遠野 健一[1]，池田 正樹[1]，安田 賢一[1]，木藤 和明[1]
[1]日立ＧＥニュークリア・エナジー(株)

液膜ドライアウト挙動解明の一環として，模擬部分長燃料棒（PLR : Partial Length Rods）を用いた大気圧下の空気-水試験において，PLR 後流の周囲壁面の液膜厚さ計測結果と液滴群付着位置との関係を考察した．

キーワード：沸騰水型原子炉，部分長燃料棒，液滴，液膜計測，超音波エコー法

1. 緒言　日立ＧＥでは沸騰水型原子炉（BWR）燃料集合体内の気液二相流データベースの拡充を目的とした研究開発を推進している．PLR 上端から飛散した液滴が周囲壁面に付着する高さ位置を実験的に評価した．

2. 試験装置・試験方法　Fig.1 に模擬 PLR 試験体を示す．試験体は外径 10mm の模擬燃料棒（SUS 製）とそれを内包する矩形流路（アクリル製）で構成されており，模擬燃料棒と矩形流路との隙間に空気と水が流れる構造である[1]. 矩形流路に対して, 模擬燃料棒長さを短尺とすることで PLR を模擬した. 本試験の目的は, PLR 上端後流領域での環状噴霧流中における気相に同伴する液滴の付着・飛散挙動を把握することである. そこで，流路内の可視化と共に，PLR 上端から飛散する液滴が周囲壁面に付着し液膜を形成する挙動を把握する観点から, 流路壁面に超音波探触子を設置し, 超音波エコー法[2]を用いて時間平均液膜厚さを計測した．

3. 結果・考察　Fig.2 に試験体側面から白色光（LED）を照射し露光撮影した可視化の一例を示す．(a)気相単相条件に比較して，(b)二相流条件では液滴の散乱光が検出されていることから液滴濃度が大きくなることを確認した．Fig.3 に液相見かけ速度 j_L=0.04m/s における平均液膜厚さを示す．横軸は PLR 上端から下流方向への距離 h である．平均液膜厚さは PLR 上端から下流方向で急激に増加し，図中矢印の距離 h_P でピークをとることが分かる．この結果から PLR 上端から飛散した液滴が下流域において周囲壁面に付着していると判断できる．また，気相見かけ速度 j_G=30，40，50m/s で比較し，平均液膜厚さがピークを示す傾向は変わらないこと，気相見かけ速度が増加するにしたがってピークを示す距離 h_P が下流方向にシフトする傾向を確認した．

参考文献　[1] 池田ら,原子力学会 2020 年秋の大会,2G13(2020/09)，[2] 古市ら,混相流,Vol.34(4),pp.520-531 (2020)

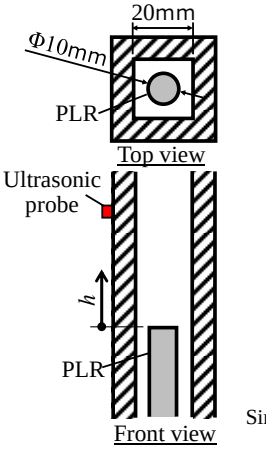


Fig.1 Test section

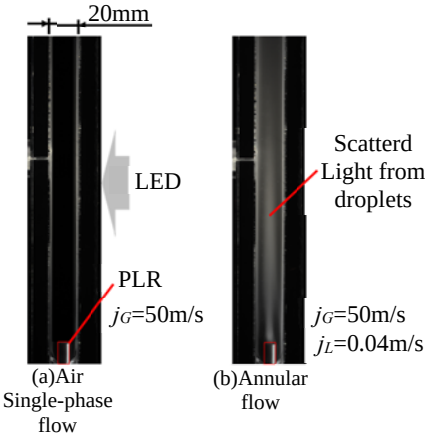


Fig.2 Example of visualized photos

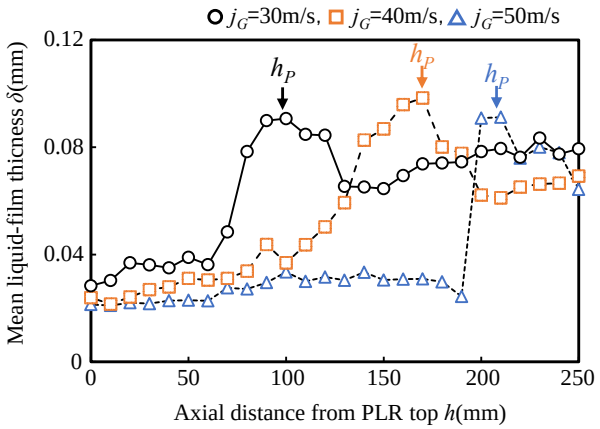


Fig.3 Experimental results (j_L=0.04m/s)

*Kiyoshi Fujimoto[1], Hajime Furuichi[1], Kenichi Katono[1], Masaki Ikeda[1], Kenichi Yasuda[1] and Kazuaki Kito[1]
[1]Hitachi - GE Nuclear Energy, Ltd.

TRACE コードを用いた部分出力上昇 5×5 バンドル流路の過渡沸騰解析

Transient boiling analysis in partially and rapidly heated 5×5 rod bundle with TRACE code

*大川 理一郎[1]，古谷 正裕[1]，新井 崇洋[1]，飯山 継正[1]，白川 健悦[1]

[1]電中研

BWR 燃料集合体内の不均一かつ急速な発熱に伴う過渡沸騰実験を対象として、熱流動解析コード TRACE を用いて再現解析を行った。5×5 バンドルに径方向分布を持つ非定常出力を印加し、その結果生じる過渡沸騰挙動を解析で求め、流路内ボイド率の変化やクロスフロー等について実験結果と比較した。

キーワード：TRACE コード、過渡沸騰、BWR 燃料集合体、ボイドクロスフロー

1. 緒言　BWR の過渡時における熱流動現象を最適評価する上では、炉心内の沸騰二相流の多次元的な非定常挙動を詳細に把握することが重要である。一例として電中研では、BWR 燃料集合体を模擬したバンドル流路を用い不均一かつ急速な発熱に伴う過渡沸騰挙動の可視化実験を実施している[1]。本報では TRACE コード(V5.0 Patch5)を用いてこの実験の再現解析を行い、過渡沸騰二相流におけるバンドル内のボイド率変化やクロスフローを実験結果と対比して考察する。

2. 実験・解析　実験[1]に用いた BWR 燃料集合体の模擬流路は鉛直上向きの 5×5 バンドル体系で、ロッドは外径 11.2 mm、ピッチ 14.3 mm、軸方向発熱長は 450 mm である。作動流体の水を下方から供給し、上方出口を大気圧開放としている。図 1 にバンドル印加出力の分布及び時間変化を示す。図中の赤色で示した 3×3=9 本のロッドが NCF600 製薄肉管のヒータ部であり、直接通電により加熱される。図中の数字は各ロッドの径方向相対出力比を表し、出力分布に傾斜を与えている。軸方向は一様分布としている。印加出力は、時刻 0.2 秒で目標値に上昇させて時刻 0.7 秒まで一定に保った後、瞬時遮断するよう与えた。

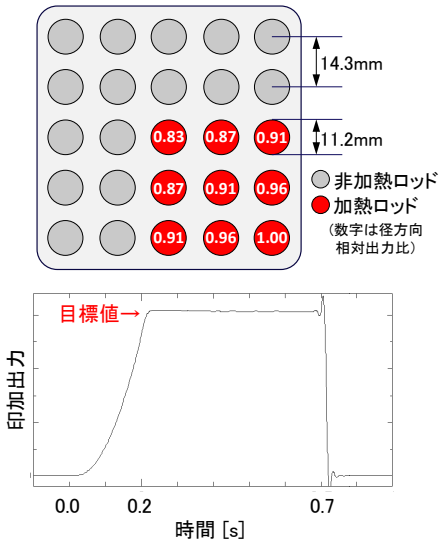


図 1 バンドル印加出力分布・時間変化

解析では、TRACE コードに実装されている三次元熱流動計算の可能な VESSEL コンポーネントを直交座標系で用いてバンドル流路を模擬し、入口境界で FILL コンポーネントに作動流体の流速及び温度を、出口境界で BREAK コンポーネントに系圧力をそれぞれ設定したノーディングモデルを構築した。VESSEL のノーディングは、水平(xy)方向にはロッドの中心を通る面で 10×10 に分割し、軸(z)方向には発熱長を 10mm 間隔に分割した。

3. 結果及び考察　図 2 に入口流速 0.3 m/s、入口温度 40℃、印加出力 258 kW（目標値）の条件における解析結果を、実験で得られた可視化画像と併せて示す。時刻 0.8 秒におけるスナップショットであり、加熱ロッドで発生した沸騰気泡が水平方向に移流（クロスフロー）して非加熱領域に侵入する様子が解析でも確認されている。また時間変化を対比し、沸騰による気泡群の発生と非加熱領域に侵入後サブクール水との接触による凝縮を繰返し、ボイド率が激しく振動する現象が解析でも再現された。

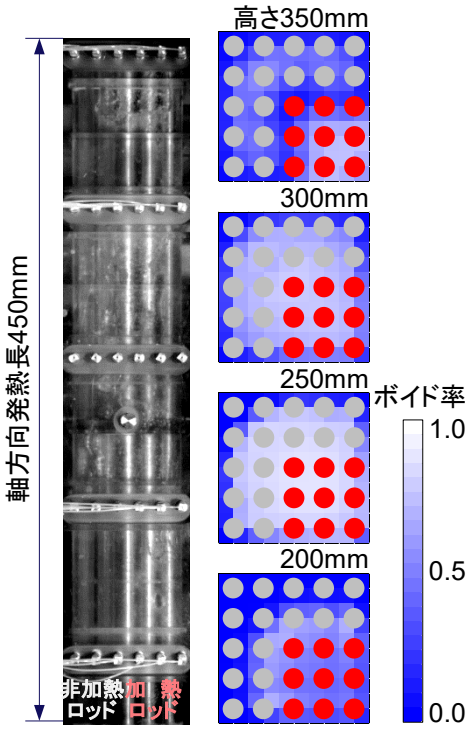


図 2 実験結果と解析結果の比較

4. 結論　TRACE コードを用いて、不均一かつ急速な出力を印加したバンドル流路で生じる沸騰気泡のクロスフローと凝縮による振動現象が解析により再現可能であることを確認した。

参考文献　[1] Takiguchi, H. *et al.*, 2018. Nuclear Engineering and Design, Vol.340, pp.447-456.

*Riichiro Okawa[1], Masahiro Furuya[1], Takahiro Arai[1], Tsugumasa Iiyama[1], Kenetsu Shirakawa[1]
[1]Central Research Institute of Electric Power Industry

詳細二相流解析による軽水炉燃料集合体内二相流動に対するベーン効果

Numerical simulation study in effect of vane on two-phase flow in fuel bundle

*小野　綾子[1]，山下　晋[1]，鈴木　貴行[1]，吉田　啓之[1]

[1]JAEA

機構論的流動解析手法である JUPITER で、スワールベーンおよびスプリットベーン付きの燃料集合体内の単相流解析と二相流解析を実施し、各種ベーンによる流動場および気泡挙動に与える効果について検討した。

キーワード：二相流、軽水炉、燃料集合体、VOF、限界熱流束

1. 緒言

原子力機構では、軽水炉燃料の安全性評価において必須である限界熱流束の評価について、機構論的手法に基づき評価するための研究を行っている。これにより、新型燃料設計に必要な大型モックアップ試験に関わるコストの低減や、評価結果の範囲拡大が期待できる。本研究では、原子力機構で開発中の機構論的解析手法である JUPITER[1]を用いて、PWR での沸騰事象を想定し、スワールベーンおよびスプリットベーン付きの燃料集合体内の単相流解析および二相流解析を実施することで、ベーンによる流動が与える影響を検討した。

2. 解析条件

単相流解析の解析体系はKAERIのMATiS-H[2]の実験装置と同等とし、燃料棒径dを25.4mm、ピッチpを33.12mmとする一方で、二相流解析ではPWR実機相当（d=9.5mmおよびp=12.6mm）となるように解析体系を縮小した。スペーサ形状にはスプリットベーン（SP）、スワールベーン（SW）を用い、図1に示すように入口からスペーサ部まで約30D（D:水力等価直径）、スペーサ下流に10Dの流路を設定した。単相流に対する解析条件はMATiS-Hの実験条件と同等し、二相流解析では常圧条件（0.1MPa、液相見かけ速度0.55m/s、気相見かけ速度0.06m/s）と実機条件（15.4MPa、液相見かけ速度6.18m/s、気相見かけ速度0.13m/s）とした。

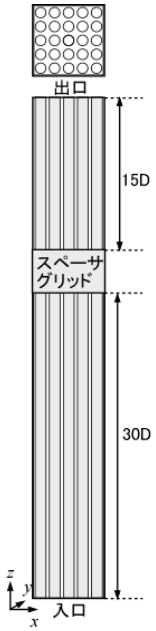


図1 解析体系

3. 解析結果

図2に単相流解析による xy 断面二次元速度分布（1サブチャンネル）および二相流解析によるボイド率分布（4サブチャンネル）を示す。単相流解析からSPにおいてはチャンネル間を移行する流れが見られ、二相流解析ではボイドが隣接燃料棒間に存在することが確認できる。SWの単相流解析においてサブチャンネル中央に顕著な渦が見られ、二相流解析では、その渦の効果で気相がサブチャンネル中央部分に集まることがわかる。

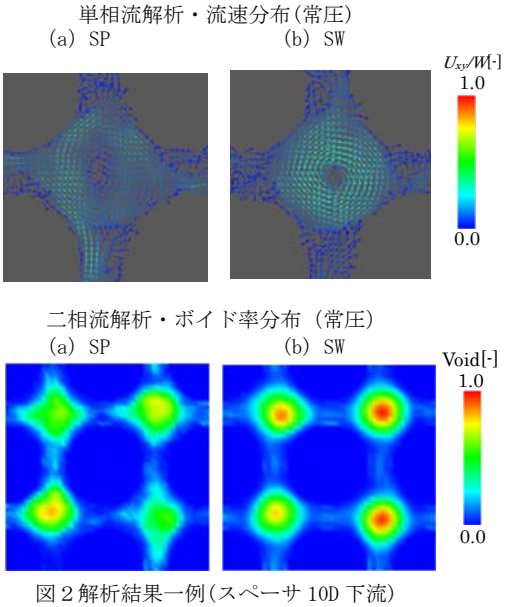


図2 解析結果一例（スペーサ10D下流）

謝辞　本研究は、日本原子力研究開発機構の大規模並列計算機SGI ICE-Xを用いた成果です。

参考文献　[1] S. Yamashita, et. al., NED, Vol.322, pp.301-312(2017).　[2] NRA/CSNI, “Report of the OECD/NEA KAERI Rod Bundle CFD Benchmark Exercises” (2013).

---

*Ayako Ono[1], Susumu Yamashita[1], Takayuki Suzuki[1], and Hiroyuki Yoshida[1]

[1]JAEA

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 304-1 Thermal Hydraulics, Energy Conversion, Energy Transfer, Energy Storage

[3A05-08] Boiling, Condensation, Heat Transfer

Chair: Yasunori Yamamoto (Hokkaido Univ.)

Fri. Mar 19, 2021 10:45 AM - 12:00 PM Room A (Zoom room 1)

[3A05] Evaluation of Correlation in a CFD Model for Condensation Heat Transfer

*Michio Murase[1], Yoichi Utanohara[1], Shigeo Hosokawa[2], Akio Tomiyama[2] (1. Institute of Nuclear Safety System, Inc., 2. Kobe University)

10:45 AM - 11:00 AM

[3A06] Effects of material of heat transfer surface on pool boiling heat transfer of nanofluid

*Koki Nakano[1], Yutaro Umehara[1], Yasuo Koizumi[1], Tomio Okawa[1] (1. UEC)

11:00 AM - 11:15 AM

[3A07] Numerical simulation of wall condensation of steam-air mixture in a circular tube and the effect of coarse computational grid

*Yoichi Utanohara[1], Michio Murase[1] (1. INSS)

11:15 AM - 11:30 AM

[3A08] Development of HTC Distribution near the Quenching Point during falling Liquid Film along high-temperature wall based on thermal-hydraulics phenomenon

*Yutaro Umehara[1], Tomio Okawa[1] (1. UEC)

11:30 AM - 11:45 AM

©Atomic Energy Society of Japan

CFD 計算モデル用の凝縮伝熱相関式の検討

Evaluation of Correlation in a CFD Model for Condensation Heat Transfer

村瀬 道雄[1]，歌野原 陽一[1]，細川 茂雄[2,]，冨山 明男[2]
[1]原子力安全システム研究所，[2]神戸大学，*現：関西大学

直径 49.5 mm の鉛直伝熱管内を下降する蒸気と空気の混合気体での凝縮伝熱を対象に、従来研究による拡散層モデルを用いてバルク（主流）での物理量を用いないで凝縮熱伝達率を近似計算できることを示した。

キーワード：鉛直管，蒸気・空気混合気体，凝縮伝熱，CFD 用相関式

1. 緒言　これまでに、直径 49.5 mm の鉛直伝熱管内を下降する飽和蒸気と空気の混合気体の半径方向温度分布を測定して熱流束の実験式を導出し[1]、凝縮熱伝達率 h_c を求めて Liao and Vierow [2]による拡散層モデルに基づく相関式と一致することを確認した[3]。拡散層モデルではバルク（主流）と凝縮面での物理量を用いて h_c を計算するが、CFD 解析ではバルクの定義が困難な場合がある。そこで、本報では、CFD 計算モデルへの適用性を考慮して、主流での物理量を用いないで凝縮熱伝達率を評価して測定値と比較した。

2. 評価の方法と結果　実験の入口条件は、圧力が約 0.125 MPa、蒸気流量 0.74～5.9 g/s、空気流量 1.5～9.0 g/s（空気質量流量比 0.36～0.92）、混合気体レイノルズ数 $Re_{g,in}$ = 3600～25000 である[1]。凝縮熱伝達率 h_c の計算には Liao and Vierow [2]による拡散層モデルを使用した。なお、レイノルズ数 Re_g やシャウッド数 Sh の代表長さ L に $2y$（y は凝縮面からの距離）を使用し、$y = R$ で $L = 2R = d$ になるようにした。半径方向の温度測定点 y^+ と凝縮面（$y^+ = 0$）での物理量を用いて計算した $h_{c,cal}$ と $h_{c,exp}$ [3]の比を図 1 に示す。乱流境界層内での温度変化は小さいため、$y^+ > 20$ での $h_{c,cal}$ の変化は小さく、平均値に対する最大値と最小値は±5 %であった。なお、$h_{c,cal}$ は y+ < 15 で急に小さくなる。$y^+ > 20$ での $h_{c,cal}$ の平均値と $h_{c,exp}$ の比較を図 2 に示す。$h_{c,cal}$ は、$h_{c,exp}$ に対して変化（流れ方向位置 z の影響）が小さいが、全般的に $h_{c,exp}$ とよく一致している。この結果は、$y^+ > 20$ の任意点での物理量を拡散層モデルに適用して h_c を近似計算できることを示す。

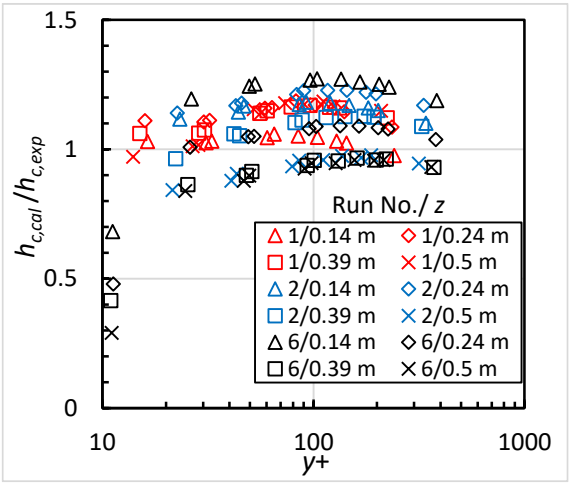


図 1　温度測定点 y^+で計算した $h_{c,cal}$

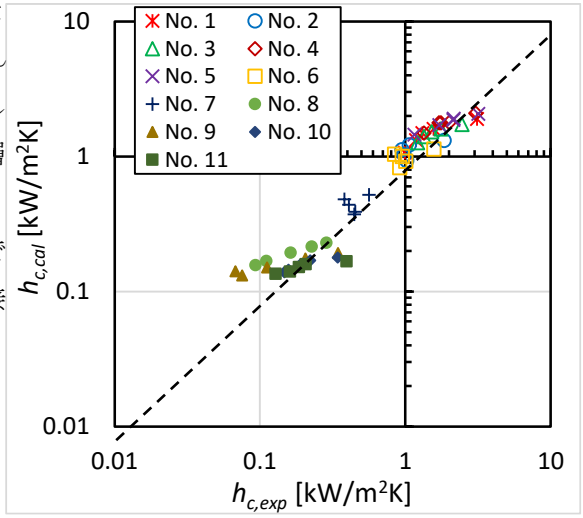


図 2　凝縮熱伝達率の計算値と測定値の比較
(z = 0.09、0.14、0.24、0.39、0.5 m)

3. 結論　拡散層モデルによる h_c の計算値 $h_{c,cal}$ は $y^+ > 20$ でほぼ一様であり、CFD 解析での凝縮量評価では凝縮面に隣接するセルの寸法を $y^+ > 40$ にすればよいことを示した。

参考文献

[1] M. Murase, et al., 混相流, **33**(4), pp. 405-416, 2019.
[2] Y. Liao and K. Vierow, J. Heat Transfer, **129**, pp. 988-994, 2007.
[3] M. Murase, et al., 混相流, **34**(4), pp. 510-519, 2020.

* Michio Murase[1], Yoichi Utanohara[1], Shigeo Hosokawa[2,*], Akio Tomiyama[2]
[1]Institute of Nuclear Safety System, Inc., [2]Kobe University, *Present affiliation: Kansai University

ナノ流体のプール沸騰熱伝達に及ぼす伝熱面材質の影響

Effects of material of heat transfer surface on pool boiling heat transfer of nanofluid

*中濃　昂輝[1]，梅原　裕太郎[1]，大川　富雄[1]，小泉　安郎[1]

[1]電気通信大学

ナノ流体中で核沸騰が生じると，伝熱面上にナノ粒子層が形成される．ナノ粒子層は伝熱面上に形成されることから伝熱面の材質は沸騰熱伝達へ影響を及ぼすことが考えられる．本研究では、伝熱面材質のナノ流体プール沸騰熱伝達への影響を調べた．

キーワード：ナノ流体，ナノ粒子層，プール沸騰熱伝達，伝熱面材質

1. 緒言

ナノ流体のプール沸騰熱伝達では，伝熱面上に形成されるナノ粒子層の毛管力や表面濡れ性により CHF が向上する(1)(2)．ナノ粒子層は伝熱面上に形成されるため伝熱面材質によって CHF や HTC へ影響を及ぼすことが考えられる．そこで本報では，伝熱面材質のナノ流体プール沸騰熱伝達への影響を実験的に調べた．

2. 実験方法

実験は Fig. 1 に示す装置で行った。伝熱面となる厚さ 0.1 mm の Cu 板，SUS 板を円筒容器装置底部に水平に挟み込み設置する。伝熱面裏面に直径 7 mm または 8 mm のレーザービームを鉛直上向きに照射し伝熱面を加熱した。伝熱面温度は伝熱面に熱電対を溶着させ測定した。熱流束はレーザービーム強度のパワーメーター計測値から求めた。試験流体には蒸留水と SiO_2 ナノ流体（一次粒径 20 nm，濃度 0.5 kg/m^3）を用いた．試験容器を蒸留水あるいはナノ流体で 92 mm まで満たし、0.1 MPa 下、伝熱面加熱レーザービーム強度を階段状に増加させ、CHF に至るまで継続した。

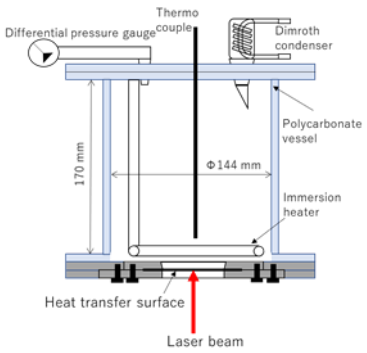


Fig. 1 Experimental apparatus

3. 実験結果及び考察

沸騰実験によって得られた沸騰曲線を Fig. 2 に示す．CHF は Cu 板と蒸留水で 1.3 MW/m^2，SUS 板と蒸留水で 1.1 MW/m^2，Cu 板と SiO_2 ナノ流体で 2.0 MW/m^2 以上，SUS 板と SiO_2 ナノ流体で 2.0 MW/m^2 以上であった．Cu 板，SUS 板のナノ流体時 CHF はどちらも蒸留水 CHF から約 2 倍以上向上化した．また，Cu 板，SUS 板で類似のナノ流体沸騰挙動が確認された。

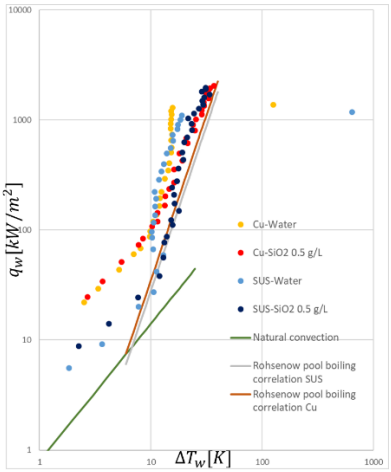


Fig. 2 Boiling curves

4. まとめ

ナノ流体プール沸騰熱伝達において Cu 板，SUS 板のどちらも蒸留水に比べ CHF は向上化された。Cu 板，SUS 板で類似のナノ流体沸騰挙動を示すことが確認され，伝熱面材質のナノ流体沸騰熱伝達への影響は小さいと考えられる．伝熱面材質を変えて、またナノ流体濃度を変えて、更に検討を継続する予定である。

謝辞　本研究は，文部科学省原子力システム研究開発事業「ハニカム冷却技術による超臨界圧軽水炉の IVR 確立」の一部として実施した．

参考文献

(1) S. J. Kim, et al., Surface Wettability Change During Pool Boiling of Nanofluids and Its Effect on Critical Heat Flux, Int. J. Heat Transf., 50, 4105-4116 (2007).
(2) T. Okawa, et al., Boiling time effect on CHF enhancement in pool boiling of nanofluids, Int. J. Heat Transf. 55, 2719-2725 (2012).

*Koki Nakano[1], Yutaro Umehara[1], Tomio Okawa[1], and Yasuo Koizumi[1]

[1]University of Electro-Communications.

空気・蒸気混合流の円管内壁面凝縮シミュレーションと計算メッシュ粗視化の検討

Numerical Simulation of Wall Condensation of Steam-Air Mixture in a Circular Tube and the Effect of Coarse Computational Grid

*歌野原 陽一[1]，村瀬 道雄[1]

[1]（株）原子力安全システム研究所

非凝縮性ガスである空気と蒸気の混合流の壁面凝縮熱伝達実験を対象に数値計算を行った。壁面凝縮伝熱モデルとして Dehbi らの提案するモデルを用い、実験データに近い壁面熱流束を再現することができた。また、壁面近傍で粗い計算メッシュを用いても妥当な計算解が得られるような補正方法の検討も行った。

キーワード：壁面凝縮熱伝達，数値シミュレーション，冷却材喪失事故

1. 緒言　PWR の LOCA 時における CV 健全性評価の一環として、CFD による LOCA 時の温度・圧力の予測に取り組んでいる[1]。CV 内の圧力・温度変化に影響する主要因子の 1 つとして、壁面凝縮伝熱が想定されるため、空気・蒸気混合気体の壁面凝縮伝熱量を測定し[2]、CFD で実験の再現に取り組んでいる[3][4]。

2. 実験・計算条件　配管内径 D = 49.5 mm，肉厚 5.5 mm の伝熱管内に蒸気・空気混合流（蒸気流量 5.9 g/s，空気流量 9.0 g/s、約 87℃）、伝熱管外面に冷却水（約 20℃）をそれぞれ流し、混合気体、伝熱管壁内、冷却水の温度分布を計測した[2]。CFD では管内面での蒸気質量流束 m_s [kg/(m^2 s)]の式として次式を用いた。

Case1: 質量保存から導かれる式（Dehbi ら[5]）$m_s = \frac{-\rho D}{(1-\omega)}\frac{\partial \omega}{\partial n}$, ρ 密度[kg/m^3], D 蒸気拡散係数[m^2/s]

壁面熱流束 q は潜熱 h_{fg} をかけて$q = m_s h_{fg}$ から求める。ただし、Dehbi らの式は濃度勾配 $\partial\omega/\partial n$ のために壁面上で詳細なメッシュが必要となり、実機プラント計算では現実的でない[6]。粗いメッシュを用いた場合の壁面熱流束を見積ると（図 1）、壁面 y^+の増加とともに過小評価となった。よって、図 1 のフィット式から

Case2: $m_s' = \frac{m_s}{\eta}$,　$\eta = \min\left(\frac{10.5}{y^{+0.92}}, 1\right)$　のような補正式を求め、壁面 y^+ = 50 の計算メッシュに適用した。

3. 結果　図 2 のように、Case1 では壁面熱流束の実験値を妥当に再現できたが、Case2 では過小評価となった。今後、定量的な再現性向上に取り組む予定である。

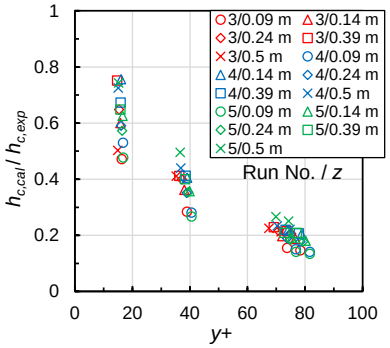


図 1 壁面熱伝達率のメッシュ解像度依存性見積もり

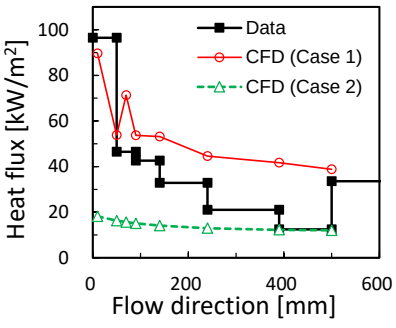


図 2 壁面熱流束

参考文献

[1]歌野原ら，原学会 2017 春, 3K15, [2] Murase et al.，混相流, Vol. 33, 2019, [3] Utanohara et al., ICAPP2017, No. 17394, [4] 歌野原ら，原学会 2020 春, 2G07 [5] Dehbi et al., NED, Vol. 258, 2013, [6] Murase et al.，混相流, Vol. 34, 2020

*Yoichi Utanohara[1] and Michio Murase[1]

[1]Institute of Nuclear Safety System, Inc.

高温面液膜冷却時のクエンチ点近傍における現象論的熱伝達率分布の開発

Development of HTC Distribution near the Quenching Point during falling Liquid Film along high-temperature wall based on thermal-hydraulics phenomenon

*梅原 裕太郎[1]，大川 富雄[1]
[1]電気通信大学

高温面に沿って、液膜が流下する際の表面熱伝達率分布は、これまでに多く提案されてきたが、実験的に求められたリウェット速度に合うように分布を仮定されたものである。本研究では、赤外線に透明な伝熱面を高温面として利用し、温度分布を測定するとともに、既存のプール沸騰の整理式を用いて、新たに熱伝達率分布を定義した。

キーワード：リウェット、流下液膜、熱伝達メカニズム、沸騰、ライデンフロスト効果

1. 緒言

シビアアクシデント時における燃料棒の緊急冷却の手法の一つに、スプレー冷却がある。圧力容器の上部から冷却水を注入することで、燃料棒の崩壊熱を除去することが目的である。安全性の向上には、流下する液膜が燃料棒表面を十分に覆うまでの時刻を正確に予測する必要がある。これまでに、スプレー冷却による液膜の進展具合を求めるために様々なモデルが提案されてきたが、実際に液膜流下時に生じる熱流動現象をもとにした機構論的モデルは提案されていない。本研究では、高速度赤外線カメラと高速度カメラを同期することで、液膜先端での熱流動現象を明らかにし、機構論の観点から熱伝達率分布を検討した。

2. 実験方法

伝熱面には、片面に ITO を成膜したシリコンウェハ（直径 101.6mm、厚さ 0.5mm）を用い、鉛直に設置した。伝熱面の両端をヒーター内蔵の角柱ではさみ、初期温度 200～250℃まで加熱した。試験流体には、96℃の蒸留水を用いた。試験流体は、流量 0.85L/min で、直径 1mm の円形ノズルから伝熱面に向けて水平に噴出させ、伝熱面上に流下液膜を形成した。伝熱面温度分布の時間変化と液膜の内外における相変化の状況を、各々IR カメラと高速度カメラを用いて 2000fps で同期撮影した。

3. 実験結果

Fig. 1 に、測定された温度分布を時間平均することで、算出した沸騰曲線と既存の核沸騰整理式、CHF 値、ΔT_{MHF} 値、との比較を示す。シリコンウェハの表面は、濡れ性向上のために SiO_2 膜が成膜されており、表面粗さは小さいもの濡れ性が向上することで、銅―水系の C_{sf} より大きい値で近似されていると考えられる。

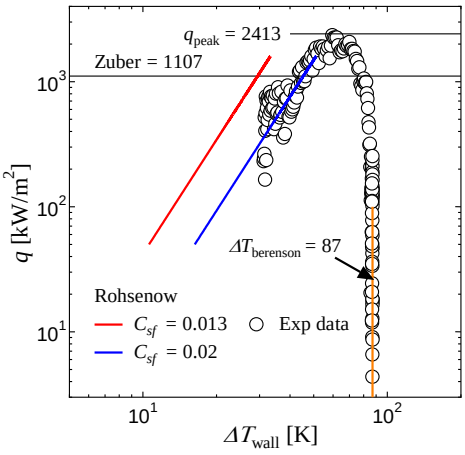


Fig. 1 Boiling curve
(T0 = 200℃, 0.5L/min, δ=0.5mm)

謝辞

本研究は中部電力（株）原子力安全技術研究所公募研究と JSPS 科研費 JP 18K03973 による成果の一部である。

参考文献

[1] B. B. Mikic and W. M. Rohsenow, (1969): 245-250.
[2] N. Zuber, On the stability of boiling heat transfer, Trans. Am. Soc. Mech. Engrs. 80 (1958).
[3] P. J. Berenson, Film-boiling heat transfer from a horizontal surface, J. Heat Transfer, 83 (1961), pp. 351-356.

*Yutaro Umehara[1] and Tomio Okawa[1]
[1]The University of Electro-Communications.

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 304-1 Thermal Hydraulics, Energy Conversion, Energy Transfer, Energy Storage

[3A09-12] Liquid Droplet &Aerosol

Chair: Yoshiro Nishioka (Toshiba ESS)

Fri. Mar 19, 2021 2:45 PM - 4:00 PM Room A (Zoom room 1)

[3A09] Experimental evaluation of gas-liquid two phase flow and aerosol behavior during pool scrubbing

*Kohei Yoshida[1], Kota Fujiwara[1], Akiko Kaneko[1], Yutaka Abe[1] (1. Univ. of Tsukuba)

2:45 PM - 3:00 PM

[3A10] Study on Evaluation Method for Aerosol Particle Behavior in a Reactor Building

*Koichi Nakamura[1], Takashige Sekiguchi[2], Naoki Horiguchi[3], Masashi Himi[1], Shinichiro Uesawa[3], Hiroyuki Yoshida[3], Satoshi Nishimura[1] (1. Central Research Institute of Electric Power Industry, 2. AdvanceSoft Corporation, 3. Japan Atomic Energy Agency)

3:00 PM - 3:15 PM

[3A11] Study on Evaluation Method for Aerosol Particle Behavior in a Reactor Building

*Takashige Sekiguchi[1], Koichi Nakamura[2], Naoki Horiguchi[3], Masashi Himi[2], Shinichiro Uesawa[3], Hiroyuki Yoshida[3], Satoshi Nishimura[2] (1. AdvanceSoft, 2. CRIEPI, 3. JAEA)

3:15 PM - 3:30 PM

[3A12] Study on Evaluation Method for Aerosol Particle Behavior in a Reactor Building

*Naoki Horiguchi[1], Koichi Nakamura[2], Takashige Sekiguchi[3], Shinichiro Uesawa[1], Masashi Himi[2], Hiroyuki Yoshida[1], Satoshi Nishimura[2] (1. JAEA, 2. CRIEPI, 3. AdvanceSoft)

3:30 PM - 3:45 PM

©Atomic Energy Society of Japan

プールスクラビングにおける気液二相流挙動およびエアロゾル挙動の相互評価

Experimental evaluation of gas-liquid two phase flow and aerosol behavior during pool scrubbing

吉田 滉平[1]，藤原 広太[1]，金子 暁子[1]，阿部 豊[1]
[1]筑波大学

過酷事故解析においてプールスクラビングによる放射性エアロゾルの除染係数（DF）を正しく評価することを目的に，ワイヤメッシュセンサ（WMS）を用いた気液二相流における気泡の体積・速度・表面積の計測手法の開発および定量評価を行った．その結果，気泡径と表面積の関係に対して流量の変化は大きく影響しないことがわかった．すなわち気泡の表面積を決定づける上で重要な気泡の形状の傾向は流量によって大きく変化しないことがわかった．

キーワード：プールスクラビング、除染係数、エアロゾル、ワイヤメッシュセンサ、気液二相流

1. 緒言

原子力発電所の過酷事故解析においてプールスクラビングにおける DF の評価が重要である．しかしながら，プールスクラビングにおける気液二相流挙動およびエアロゾル挙動を定量評価に関する知見が不足しており，エアロゾルの気液間輸送を評価する上で重要な指標となる気液界面積の定量評価が課題である．そこで本研究では，WMS を用いて気泡流における表面積を取得する手法を開発し，気泡表面積の定量評価および DF との相互評価を行った．

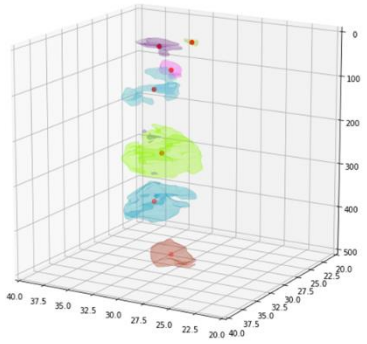


Fig1. 気泡の三次元再構成結果

2. 実験手法

空気単相を試験水槽に流量 30L/min および 60L/min で流入させて WMS によりボイド率を計測する．計測したボイド率をもとにポリゴン化し，追跡することで速度を計測することで Fig.1 に示すような気泡の三次元再構成と気泡体積，表面積，速度の定量評価を行う．

3. 結論

Fig. 2 に計測した流量 30L/min および 60L/min における気泡径と表面積の関係を示す．気泡径の増大とともに気泡表面積は二次関数的に増大していることがわかる．また，流量 30L/min および 60L/min において気泡径と表面積の関係に大きく差がないことがわかった．気相流量の変化によって気泡流における気泡の形状が大きく変化しないことを示唆しており，気泡径分布によって気液界面の総表面積が決定されると考えられる．すなわち気泡の形状よりも分裂挙動のほうが気液界面積において支配的であると考えられる．

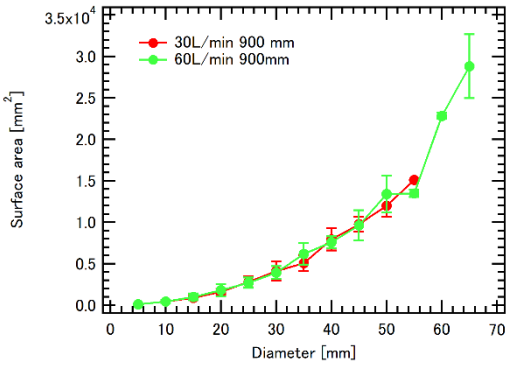


Fig2. 気泡径と表面積の関係

謝辞　本研究は令和 2 年度原子力施設等防災対策委託費(スクラビング効果個別試験)事業の一部として実施されたものである。

*Kohei Yoshida[1], Kota Fujiwara[1], Akiko Kaneko[1], and Yutaka Abe[1]
[1]Univ. of Tsukuba

原子炉建屋内エアロゾル粒子挙動評価手法に関する研究
ー（1）福島第一発電所 2 号機を対象とした建屋内エアロゾル挙動のベンチマーク解析の概要と進捗ー

Study on Evaluation Method for Aerosol Particle Behavior in a Reactor Building
(1) Main points and progresses of benchmark analysis on aerosol behavior in the reactor building Fukushima unit 2 -

*中村康一[1]，関口昂臣[2]，堀口直樹[3]，氷見正司[1]，上澤伸一郎[3]，吉田啓之[3]，西村聡[1]
([1]電中研, [2]アドバンスソフト, [3]JAEA)

本報では、シビアアクシデント（SA）解析コード MAAP による福島第一原子力発電所（1F）2 号機建屋のセシウム（Cs）エアロゾル挙動解析結果を報告する。さらに同じく 2 号機オペレーティングフロア（オペフロ）内の Cs 挙動を対象に実施する MAAP 及び CFD 解析コードによるベンチマーク解析の計画及び進捗を報告する。

キーワード：エアロゾル、原子炉建屋、オペレーティングフロア、ベンチマーク解析、MAAP

1. 緒言 1F 事故では 1～3 号機で炉心損傷を伴う事故が発生し、核分裂生成物（FP）が格納容器（CV）外へ放出された。2 号機では大規模な水素爆発は発生せず建屋内には大量の FP が残存している。本研究では SA 時の原子力発電所建屋内の Cs 沈着除去量を得ることを目的に、MAAP コードによる 1F2 号機の建屋内の Cs 挙動評価を行った。また、より詳細な評価を行うために MAAP 及び CFD 解析コードによるベンチマーク解析を実施する[1][2]。

2. 評価手法 MAAP5.03 を用いて 1F2 号機の事故進展解析を実施する。プラント設計条件及び事故時記録に基づくイベント（電源喪失、操作等）を設定し、炉内水位、炉心損傷、デブリ挙動、CV の圧力・温度及び FP 挙動等を解析する。プラント条件では炉心、圧力容器、CV に加え、建屋内の各部屋をモデル化した。

3 解析結果 MAAP による事故進展解析の結果、CV 内の事故時の測定記録（圧力、温度等）とは概ね整合することを確認した。CV から放出された Cs は建屋各階に沈着分布し、一部はオペフロのブローアウトパネル開口部より環境に放出された。事故後に計測された放射線量[3]の平均値と、MAAP による Cs 沈着量を建屋階数別に比較した（図 1）。線量値ではオペフロが最も高く Cs が大量に残存することを示唆する。MAAP ではオペフロを単一ノードで扱うケースと複数のノードに分割するケースを実施した。複数ノードに分割した解析結果は測定値と近い傾向となった。オペフロの Cs の空間的分布を詳細に解析することで測定値に近づく可能性を示す。

4. 結言 MAAP5.03 による 1F2 号機の事故進展解析により Cs の環境放出量及び建屋内の沈着分布を評価した。オペフロの床に最も Cs が多く残存し、オペフロ内の Cs 分布の詳細把握が重要である可能性を得た。今後は MAAP と CFD 解析コードによるオペフロ内 Cs 挙動に関するベンチマーク解析を実施することによりこれらの影響を明らかにする。

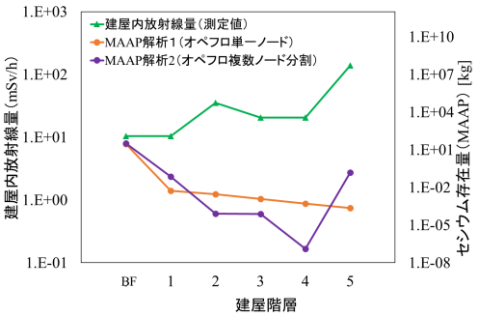


図 1 福島第一原子力発電所 2 号機建屋内放射線量と MAAP 解析に基づく Cs 存在量分布の比較

参考文献

[1] 関口ら，原子力学会 2021 春(2021). [2] 堀口ら，原子力学会 2021 春(2021).
[3] TEPCO，福島第一原子力発電所2号機原子炉建屋内調査結果（3階～5階）（平成 24 年 6 月 13 日実施），https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts_120614_02-j.pdf 他 web で公開されている線量測定結果

*Koichi Nakamura[1], Takashige Sekiguchi[2], Naoki Horiguchi[3], Masashi Himi[1], Shinichiro Uesawa[3], Hiroyuki Yoshida[3] and Satoshi Nishimura[1]
[1]CRIEPI, [2]Advancesoft, [3]JAEA

原子炉建屋内エアロゾル粒子挙動評価手法に関する研究 (2)MAAP コードにおけるノーディング分割による 建屋エアロゾル挙動評価への影響

Study on Evaluation Method for Aerosol Particle Behavior in Reactor Building
(2)Effects of node division with MAAP on aerosol behavior in the reactor building

*関口 昂臣[1]，中村 康一[2]，堀口 直樹[3]，氷見 正司[2]，上澤 信一郎[3]，吉田 啓之[3]，西村 聡[2]
[1]アドバンスソフト，[2]電中研，[3]JAEA

シビアアクシデント(SA)解析コードである MAAP5.03 を用いて福島第一原子力発電所 2 号機のオペレーティングフロア(オペフロ)を対象に実施した、ノーディング分割数とその方法を変更した場合の効果およびエアロゾル粒子挙動に影響を与える解析パラメータに対する感度解析の結果について報告する。

キーワード：エアロゾル，原子炉建屋，オペレーティングフロア，ベンチマーク解析，MAAP

1. 緒言

MAAP5.03 は核分裂生成物(FP)挙動の解析モデルを持つが、原子炉建屋内の FP 挙動については解析事例が少なく適用性の確認が必要である。測定線量値の公開データ[1]より 2 号機建屋のオペフロ部分の線量値が最も高いことから、オペフロ部分で最もセシウム(Cs)が沈着していると考えられる。本報は MAAP5.03 により、オペフロ内構造物を考慮してノード分割を行い、エアロゾル挙動に関する解析パラメータの感度解析を実施し、オペフロ部分における Cs の沈着および環境への放出量に対する影響について報告する。

2.評価手法

MAAP5.03 を用いて、第 1 報[2]を基に 2 号機オペフロ空間を 6 つの領域に分割し、原子炉ウェルから FP を含むガスがオペフロに流入し、ブローアウトパネルを経て環境へ放出する状況を解析した。FP としては Cs エアロゾルに注目して解析を行った。また浮遊水滴半径やエアロゾル粒子初期半径、動力学的形状係数、衝突係数などのエアロゾル粒子の粒径を変化させる働きをもつ解析パラメータに対し感度解析を行った。本解析では、これらの解析パラメータにエアロゾル粒子の粒径が増大するように変更を加えたため、エアロゾル粒子の重力沈降による壁や床面への沈着を促進させるが期待される。

3. 解析結果

図 1 にエアロゾルの衝突頻度を上げた感度解析のオペフロでの Cs 浮遊量と Cs 沈着量の結果を示す。図 1 からオペフロでの Cs 浮遊量・沈着量はともに基本解析に比べ減少していることが確認できる。また圧力容器内では Cs の沈着量は感度解析の方が増加しているのを確認している。これらの結果は、エアロゾル粒子の粒径が増加し沈着の促進効果がオペフロに到着前に表れたことを示唆するものである。一方、オペフロには沈着しにくい小粒径粒子が流入したと考えられる。このような傾向は他のパラメータでも見られた。以上よりエアロゾルの沈着を促進するパラメータの変更では、格納容器内に多くの Cs を沈着する結果、後段のオペフロには小粒径粒子が流入し沈着効果が低下することがわかった。今後はオペフロに至る経路・構造の影響の評価とともに MAAP‐DOSE による線量評価を進める。

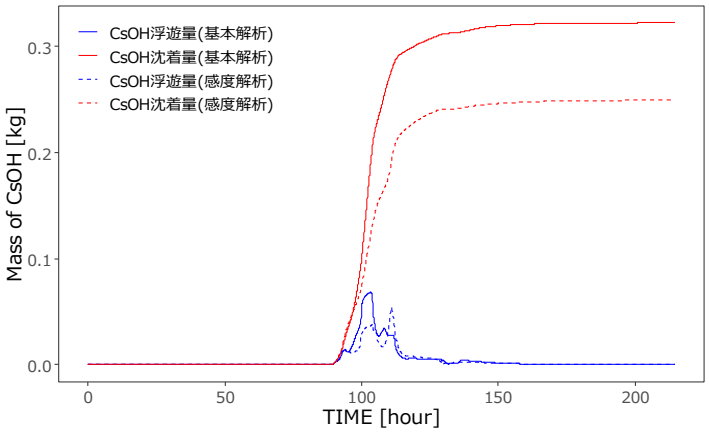


図 1 オペフロにおける Cs 沈着量と浮遊量

参考文献

[1] TEPCO, 福島第一原子力発電所 2 号機原子炉建屋内調査結果（3 階～5 階）(平成 24 年 6 月 13 日実施），https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts_120614_02-j.pdf 他 web で公開されている線量測定結果
[2] 中村ら，原子力学会 2021 春(2021)

*Takashige Sekiguchi[1], Koichi Nakamura[2], Naoki Horiguchi[3], Masashi Himi[2], Shinichiro Uesawa[3], Hiroyuki Yoshida[3], Satoshi Nishimura[2]
[1]AdovanceSoft, [2]CRIEPI, [3]JAEA

原子炉建屋内エアロゾル粒子挙動評価手法に関する研究
（3）CFD 解析による粒子挙動評価および流量・粒径の影響

Study on Evaluation Method for Aerosol Particle Behavior in a Reactor Building
(3) Evaluation of Aerosol Particle Behavior based on CFD Simulation, and Effect of Gas Flow Rate and Particle Diameter

*堀口 直樹[1]，中村 康一[2]、関口 昂臣[3]、上澤 伸一郎[1]、氷見 正司[2]、吉田 啓之[1]、西村 聡[2]
[1]JAEA，[2]電中研，[3]アドバンスソフト

原子炉建屋内エアロゾル粒子挙動を把握するため、建屋の一部を模擬した大空間を対象にしたベンチマーク解析を実施している。本報では、設定した問題に対して CFD 解析により評価した結果について報告する。

キーワード：エアロゾル粒子，原子炉建屋，オペレーティングフロア，ベンチマーク解析，CFD

1. 緒言

原子力施設の安全性向上や対策の検討のため、シビアアクシデント（以下、SA）時の原子炉建屋（以下、建屋）による放射性エアロゾル粒子捕集効果を評価する必要がある。本研究では、CFD 解析コードを用いた建屋内粒子挙動評価手法[1]を利用した参照解の提供により、捕集効果評価に用いる SA 解析コードを高度化することを目指し、ベンチマーク問題の設定、CFD 及び SA 解析コードによる解析を行っている。本報では、設定した問題に対して、参照解提供のための CFD 解析を適用した結果を報告する。

2. CFD 解析による評価手法

ベンチマーク解析は、第 1、2 報[2, 3]に基づき、複雑構造物を含む BWR オペレーティングフロア内の流れ場と粒子挙動対象とし、シールドプラグと床の隙間からエアロゾルが流入し、壁面沈着及び破損したブローアウトパネルから流出する状況を想定した。この問題に対し、粒子追跡法と CFD 解析を組み合わせた解析手法[1]を適用した。解析体系は奥行 45 m×幅 34 m×高さ約 17 m の空間とし、床面に断面積 0.05 m^2 の円形流入口、側壁面に断面積約 37 m^2 の矩形出口を設けた。空間内は常温常圧、空気に球状液体粒子(0.1-10 μm)が混入したエアロゾルが一定量（5-1000 L/min.）で流入させた。粒子間衝突は無視し、壁面では沈着のみ考慮した。

3. 解析結果

CFD による流れ場を用いて粒子の運動を求め、通過割合(流入個数に占める流出個数)を粒径毎に評価した結果、大粒径かつ小流量ほど低い通過割合となった(右図)。今後、床上のフェンスを考慮した解析による複雑構造の影響評価や、SA 解析コードとの比較を進める。

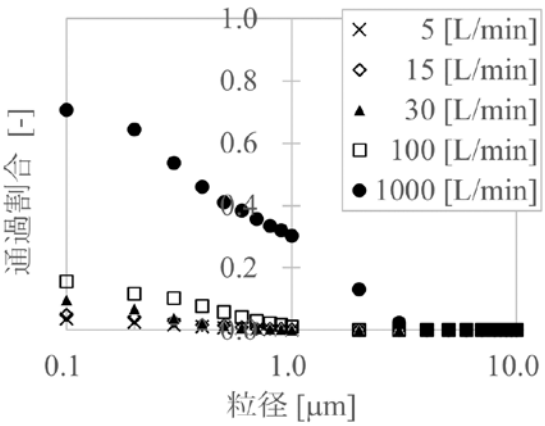


図 粒径毎の通過割合

参考文献

[1] N. Horiguchi, et al., Proc. of ICONE27, ICONE27-2158(2019).
[2] 中村ら，原子力学会 2021 春(2021).
[3] 関口ら，原子力学会 2021 春(2021).

*Naoki Horiguchi[1], Koichi Nakamura[2], Takashige Sekiguchi[3], Shinichiro Uesawa[1], Masashi Himi[2], Hiroyuki Yoshida[1] and Satoshi Nishimura[2]
[1]JAEA, [2]CRIEPI, [3]AdvanceSoft

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 301-1 Reactor Physics, Utilization of Nuclear Data, Criticality Safety

[3B01-04] Burunup Analysis (BWR)

Chair: Tomohiro Endo (Nagoya Univ.)

Fri. Mar 19, 2021 9:30 AM - 10:45 AM Room B (Zoom room 2)

[3B01] Whole Core Three-Dimensional Nuclide Inventory Calculation of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

*Keisuke Okumura[1], Masahiro Sakamoto[1], Kenichi Tada[1], Kenji Nishihara[1], Shinya Mizokami[2], Masato Mizokami[2], Miki Yousuke[3], Seiji Kaneko[3] (1. JAEA, 2. TEPCO HD, 3. TEPSYS)

9:30 AM - 9:45 AM

[3B02] Whole Core Three-Dimensional Nuclide Inventory Calculation of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

*Masahiro Sakamoto[1], Keisuke Okumura[1], Kenichi Tada[1], Kenji Nishihara[1], Shinya Mizokami[2], Masato Mizokami[2], Yousuke Miki[3], Seiji Kaneko[3] (1. JAEA, 2. TEPCO HD, 3. TEPSYS)

9:45 AM - 10:00 AM

[3B03] Evaluation of operating history effect on BWR fuel reactivity in storage rack

*Daiki Iwahashi[1], Tetsuo Nakajima[1] (1. NRA)

10:00 AM - 10:15 AM

[3B04] Improvement of high-efficiency random sampling method by using control variates method and sensitivity

*Takumi Kida[1], Go Tiba[1] (1. Hokkaido Univ.)

10:15 AM - 10:30 AM

©Atomic Energy Society of Japan

東京電力福島第一原子力発電所の全炉心 3 次元核種インベントリ計算 （1）背景と目的

Whole Core Three-Dimensional Nuclide Inventory Calculation of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station （1）Background and Purpose

*奥村 啓介[1]，坂本 雅洋[1]，多田 健一[1]，西原 健司[1]，溝上 伸也[2]，溝上 暢人[2]，
三木 陽介[3]，金子 誠司[3]
[1]JAEA，[2]東電 HD，[3]テプシス

全炉心 3 次元核種インベントリ計算手法を開発し、福島第一原子力発電所（1F）の各号機への適用を行っている。本発表では、既存の 1 F 核種インベントリデータベースからの改良点を中心に紹介する。

キーワード：福島第一原子力発電所，3 次元核種インベントリ計算，燃料デブリ，燃焼計算，放射化計算

1. 背景と目的　軽水炉では、炉内や取り出し燃料集合体の詳細な核種インベントリが必要な場合には、ORIGEN2 コード[1]などを用いた燃焼計算が行われてきた。しかし、この種のコードは、中性子スペクトルや燃焼度が大きく異なる領域が含まれていても、領域平均的な扱いがなされてきた。この扱いは、核種生成量が燃焼度に対して直線的に変化する核種については精度良く評価できるが、その他の核種については、系統的な誤差を発生させることになる。また、ORIGEN2 では Gd 入り燃料を正しく扱うことができない。そこで、炉内の全燃料を 3 次元ノードに分割し、ノード毎の非均質性や燃焼履歴、および Gd 同位体組成の燃焼変化を適切に考慮しつつ、領域毎の詳細な核種インベントリを計算する手法を開発した。本手法を、福島第一原子力発電所(1F)の各号機に適用し、事故直前における核種インベントリのデータを取得している。

2. 核種インベントリデータの改良　現在公開されている 1F 核種インベントリデータベースとしては、西原らにより事故後の間もない時期に簡易評価された炉心平均組成のデータがあり[2]、これまで広く利用されてきた。しかしながら、今後の 1F 廃炉の検討を進めるためには、量的にも質的にも見直しが必要になることが予想されることから、新しい 1F 核種インベントリデータ(安定、短寿命、超長寿命核種を含む約 1,600 核種を収納)を開発することとした。従来のデータベースからの主な改良ポイントは以下の通りである。

① 核データの変更 : JENDL-3.3 を基に作成された ORIGEN2 用ライブラリ[3]の使用から、多数の照射後試験解析ベンチマークによって検証されている JENDL-4.0 [4]に基づく断面積データの使用に変更。
② 連続エネルギーモンテカルロ法に基づく 2 次元燃料集合体非均質燃焼計算(MVP-BURN[5])の導入による、集合体内非均質性効果とその結果に基づく Gd 同位体組成内挿手法の導入。
③ 水平方向サイクル装荷領域（5～6 領域）に対する平均運転履歴を用いたインベントリ計算から、全炉心 3 次元ノード領域（2 号機の場合 13,152 ノード）毎のインベントリ計算への拡張。
④ 実機燃料集合体設計データ（幾何形状および初期組成）、ノード毎の運転管理データに基づく比出力の時間変化、および軸方向ボイド率の分布を考慮した燃焼計算の採用。
⑤ 微量不純物を起源とする放射化核種（^{60}Co や ^{14}C 等）の生成を考慮した、燃料集合体中の全ての構造材料および制御棒に対する放射化計算の採用。

本手法で得られた核種インベントリデータは、今後の事故進展解析の高度化、燃料デブリの臨界性評価、分析値の評価、非破壊測定技術の開発、放射性廃棄物評価などへの利用が期待される。

参考文献　[1] Croff, A.G., ORNL-5621 (1980), [2] 西原他, JAEA-Data/Code 2012-018, [3] 片倉他, JAERI-Data/Code 2004-015, [4] K. Shibata, et al., J. Nucl. Sci. Technol. 48, 1-30 (2011), [5]. K.Okumura, et al., J. Nucl. Sci. Technol. 37, 128-138 (2012),

*Keisuke Okumura[1], Masahiro Sakamoto[1], Kenichi Tada[1], Kenji Nishihara[1], Shinya Mizokami[2], Masato Mizokami[2], Yousuke Miki[3] and Seiji Kaneko[3]
[1]JAEA，[2]TEPCO HD，[3]TEPSYS

東京電力福島第一原子力発電所の全炉心 3 次元核種インベントリ計算 （2）計算手法と 2 号機に対する結果

Whole Core Three-Dimensional Nuclide Inventory Calculation of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station
（2）Calculation Method and Result for Unit-2

*坂本 雅洋[1]，奥村 啓介[1]，多田 健一[1]，西原 健司[1]，溝上 伸也[2]，溝上 暢人[2]，
三木 陽介[3]，金子 誠司[3]
[1]JAEA，[2]東電 HD，[3]テプシス

全炉心 3 次元核種インベントリ計算手法の概要と、本手法を用いて評価した福島第一原子力発電所(1F)2 号機の結果について報告する。

キーワード：福島第一原子力発電所，3 次元核種インベントリ計算，燃料デブリ，燃焼計算，放射化計算

1. 計算手法 2 号機炉内の全 13,152 領域（燃料集合体数 548×軸方向分割数 24）の各領域（ノード）に対し、可燃性毒物（Gd_2O_3）を含めた燃料の燃焼と微量不純物を含めた構造材の放射化により発生する約 1,600 核種の核種インベントリデータを取得した。本計算では、実際の燃料集合体仕様と実機運転管理データに基づく、燃料集合体の初期組成、炉内 3 次元ノード毎の比出力の時間変化、および軸方向ボイド率分布を考慮している。本手法の計算手順は以下の通りである。①モンテカルロ法に基づく中性子輸送・燃焼計算コード MVP-BURN[1]により、実機データに基づく 2 次元非均質燃料集合体燃焼計算を炉心軸方向位置 24 ノード層毎に行い、199 群中性子スペクトル、主要核種の実効 1 群断面積、Gd 同位体組成の燃焼変化テーブルを取得する。この段階では、炉停止を含む比出力の時間変化は考慮せず、運転中の軸方向ノード層毎の領域平均値で一定とする連続運転条件で計算を行う。②無限希釈多群断面積セット MAXS2015[2]と①で得た 199 群中性子スペクトルにより、MVP-BURN では扱わない核種（放射化を含む）の 1 群縮約断面積を作成する。これと MVP-BURN で得られた実効 1 群断面積を使い、軸方向ノード層毎に 1F2 号機専用の ORIGEN2 断面積ライブラリ（24 セット）を作成する。③作成した ORIGEN2 ライブラリと実機運転管理データに基づくノード毎の比出力変化を反映した ORIGEN2 計算を全領域に対して行う。ただし、Gd 同位体組成については、MVP-BURN で得られた軸方向位置毎の Gd 同位体組成テーブルから燃焼度内挿により取得する。

2. 計算結果 本計算結果を、従来の 2 号機の核種インベントリデータ[3]と比較したところ、燃焼度に対して、ほぼ直線的に生成される核種である ^{137}Cs や ^{90}Sr は約 2%以内でよく一致した。しかし、燃焼度に対して、2 次関数的に生成される ^{154}Eu は約 10%、べき乗で生成される ^{244}Cm は約 40%大きい値となった。これらの差異には領域平均の効果に加え、核データの違いによる効果も含まれる。図 1 に 4 サイクル期間の比出力を追従した 1 体の燃料集合体に対する結果を一例として示す。3 手法(本手法、MVP-BURN、ORIGEN2)の ^{155}Gd 燃焼変化を比較したが、従来の ORIGEN2 計算では取り扱いが困難だった可燃性毒物入り燃料の燃焼変化も、本手法では正確に考慮されていることが確認できる。発表ではその他の核種インベントリについても報告する予定である。

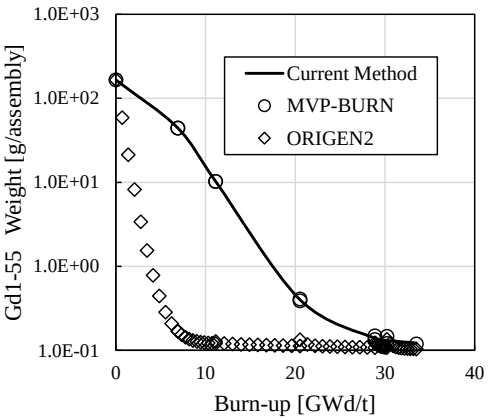


図 1 ^{155}Gd の燃焼変化の手法比較.

参考文献 [1] K.Okumura, et al., J. Nucl. Sci. Technol. 37, 128-138 (2012), [2] K. Okumura, et al., JAEA-Conf. 2015-003, pp.43-47, [3] 西原他, JAEA-Data/Code 2012-018.

*Masahiro Sakamoto[1], Keisuke Okumura[1], Kenichi Tada[1], Kenji Nishihara[1], Shinya Mizokami[2], Masato Mizokami[2], Yousuke Miki[3] and Seiji Kaneko[3]
[1]JAEA，[2]TEPCO HD，[3]TEPSYS

BWR 燃料のラック貯蔵時反応度の燃焼履歴による影響評価

Evaluation of operating history effect on BWR fuel reactivity in storage rack

*岩橋　大希[1]，中島　鐵雄[1]
[1]原子力規制庁長官官房技術基盤グループ

BWR 燃料の燃焼に伴い Pu が生成されるが、燃焼時の制御棒挿入やボイド率の条件によって Pu の生成量が異なる。Pu 生成量によってラック貯蔵時の燃料集合体の反応度が異なるので、燃焼条件をパラメータとした感度解析を行い、Pu 生成量がラック貯蔵時の反応度に及ぼす影響を評価した。

キーワード：BWR 燃料、ラック貯蔵時反応度、Pu 生成、燃焼履歴、中性子スペクトル硬化

１．緒言

BWR 使用済み燃料プールでは、Gd クレジットを用いた臨界安全評価が行われている。この手法では、実燃料の代わりに、全燃焼期間を通じての最大反応度を包絡する仮想的なモデルバンドルを用いて臨界安全評価が行われている。この手法の保守性は、ラック貯蔵時においてモデルバンドルの反応度が実燃料よりも大きいことを確認することで保証される。一方、実燃料では燃焼に伴い Pu が生成され、ラック貯蔵時には Pu による中性子スペクトル硬化によってラック材での熱中性子吸収効果が低下し、反応度は増加する傾向となる。このため、両者の冷温時、無限配列での反応度が同じ場合を仮定すると、ラック貯蔵時では中性子スペクトル硬化によって、反応度は実燃料の方がモデルバンドルよりも大きくなる。10×10 燃料では、燃焼時の Pu の生成に大きく影響する燃焼パラメータとしてボイド率と制御棒の挿入があり、特に制御棒の挿入が Pu 生成量を増加させ、ラック貯蔵時の最大反応度に大きく影響することが、文献[1]、[2]で示された。そこで、モデルバンドルの保守性を確認するために、国内で使われているタイプの燃料を対象に、様々な燃焼履歴を考慮した燃焼解析を行い、得られた無限増倍率(k∞)に基づき、ラック貯蔵時の反応度への影響を評価した。

２．ラック貯蔵時反応度の燃焼履歴に関する感度解析

ラック貯蔵時の反応度に対する燃焼履歴の効果を検討するため、BWR ステップⅢの 9×9 燃料の模擬バンドルを対象として、ラック貯蔵時の k∞の燃焼履歴に関する感度解析を実施した。感度解析では、燃焼期間中に制御棒全挿入又は全引き抜きを維持した状態の 2 ケース及び、ボイド率をパラメータとし、ラック貯蔵時の冷温状態での k∞の燃焼変化を解析した。模擬バンドルの炉心装荷時の燃焼計算及びラック貯蔵時の k∞の計算には、CASMO5 コードを用いた。図 1 に、燃焼燃料を B-SUS ラックに貯蔵した時の冷温状態での k∞の燃焼変化を、制御棒の挿入条件及びボイド率をパラメータとして示す。図 1 から、制御棒挿入で燃焼した燃料の k∞は、制御棒引き抜きで燃焼した燃料に比べて、いずれのボイド率においても大きく、最大で約 1%Δk 大きい結果であった。上記より、9×9 燃料においても、制御棒挿入による Pu 生成量増加の影響が大きいことが確認できた。

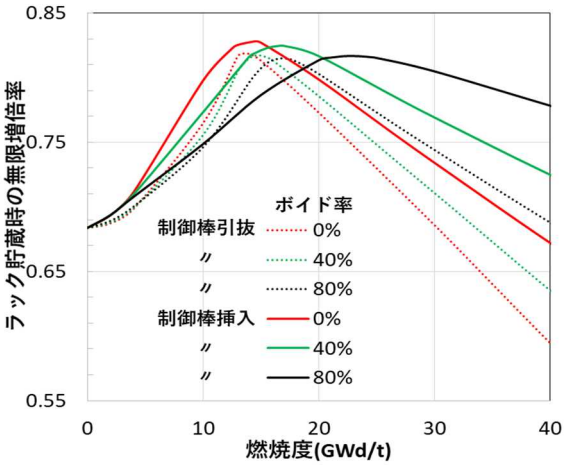


図 1　燃焼履歴毎のラック貯蔵時の k∞

３．結言

感度解析の結果、制御棒を全挿入し続けた条件での燃焼がラック貯蔵時の最大反応度に大きく影響することが示された。今後、制御棒の部分挿入等の現実的な条件やバイパス流減速材密度等の影響について、更に検討を進める。

参考文献

[1] W. B.J. Marshall, et al., “Technical Basis for Peak Reactivity Burnup Credit for BWR Spent Nuclear Fuel in Storage and Transportation Systems”, NUREG/CR-7194, U.S. NRC, 2015.
[2] M. Tardy, et al., “Gadolinium Credit Application for Transport and Storage Casks loaded with BWR UO_2 Spent Fuel Assemblies”, PATRAM 2013, CA, USA, 2013.

*IWAHASHI Daiki[1] and NAKAJIMA Tetsuo[1]
[1]Regulatory Standard and Research Department, Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R)

制御変量法と感度係数を利用した高効率ランダムサンプリング手法の改良 (2) BWR 燃料集合体の燃焼特性の不確かさ評価への適用

Improvement of high-efficiency random sampling method by using control variates method and sensitivity (2) Application to burnup characteristics of BWR fuel assembly

*木田 拓実[1]，千葉 豪[1]
[1]北海道大学

制御変量法と感度係数を組み合わせた CV-S 法を用いて、BWR 燃料集合体の燃焼中の中性子無限増倍率と燃料棒の核種数密度の不確かさ評価を行った。通常の計算結果との比較から、CV-S 法において、対象を燃料集合体体系とし類似パラメータを燃料ピンセル体系のものとしても、少ないサンプル数で炉物理計算結果の統計量を精度良く求められることを明らかにした。

キーワード：不確かさ評価、炉心燃焼計算、制御変量法、感度係数法、CV-S 法

1. 背景　これまでに、少ないサンプル数で炉物理計算結果の統計量を精度良く求めることができる CV-S 法が考案された[1]。CV-S 法とは、統計量を求めたい対象パラメータに対してその 1 次近似を類似パラメータとし、その 2 つの差分に注目することで統計量を少ないサンプル数で高精度に推定する方法である。この汎用性を高めるために、CV-S 法において対象パラメータとは異なるより簡易なパラメータの 1 次近似を類似パラメータとして計算するという改良を図っている。これまでに対象パラメータと類似パラメータの燃焼度を異なる値として計算を行い、燃焼中の中性子無限増倍率の不確かさ評価に関して良好な結果を得た[2]。本検討では、異なる体系間でも計算が行えることを確認する為にこの CV-S 法を BWR 燃料集合体体系に適用し、対象パラメータを BWR 燃料集合体のパラメータ、類似パラメータを燃料ピンセル体系のパラメータとして計算を行いその効果を確認した。

2.解析手法　本研究では OECD/NEA の燃焼度クレジットベンチマークのフェーズⅢ-C の BWR 燃料集合体体系を用いて計算を行った。対象パラメータは燃料集合体の中性子無限増倍率と集合体内の各燃料棒での核種数密度とし、類似パラメータはこの BWR 燃料集合体に装荷されている濃縮度の異なる 5 つの酸化ウラン燃料のピンセル体系のパラメータとした。類似パラメータの燃焼度は 40GWd/t に固定し、対象パラメータの燃焼度を 40GWd/t まで 5 GWd/t 刻みで変化させた。

3.計算結果　中性子無限増倍率の標準偏差を通常の計算方法と CV-S 法との二通りで求め、また、その標準偏差の不確かさを bootstrap 法を用いて求めた。対象パラメータと類似パラメータの燃焼度を 40GWd/t とし、類似パラメータとしてウラン濃縮度 3.4%の燃料棒の情報を用いて計算した結果を図 1 に示す。図の誤差棒は 1 σ の不確かさに対応する。この結果より、通常の計算方法に比べ CV-S 法では、少ないサンプル数で不確かさの小さい結果が得られることが明らかになり、BWR 燃料集合体を対象として類似パラメータに燃料ピンセル体系を用いた場合でも CV-S 法が良好な性能を示すことが分かった。

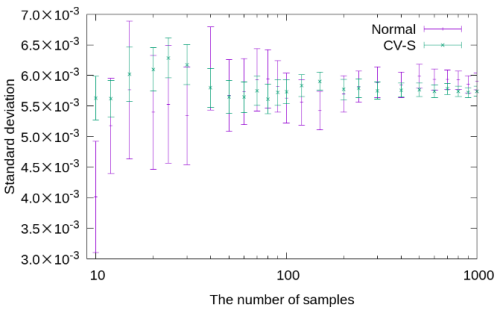


図 1　中性子無限増倍率の標準偏差

参考文献　[1]S. Nihira, G. Chiba, J. Nucl. Sci. Technol., 56, p.971-980 (2019).　[2]日本原子力学会「2020 年秋の大会」3H06

謝辞　本研究は原子力規制庁の委託事業の成果である。

* Takumi Kida[1], Go Chiba[1]
[1] Hokkaido University

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 301-1 Reactor Physics, Utilization of Nuclear Data, Criticality Safety

[3B05-08] Advanced Reactor

Chair: Takanori Sugawara (JAEA)

Fri. Mar 19, 2021 10:45 AM - 12:00 PM Room B (Zoom room 2)

[3B05] Core power distribution re-construction method based on the ex-core detector with power correlation between fuel regions

*Rei Kimura[1], Yuki Nakai[1], Satoshi Wada[1] (1. TOSHIBA ESS)

10:45 AM - 11:00 AM

[3B06] Core power distribution re-construction method based on the ex-core detector with power correlation between fuel regions

*Yuki Nakai[1], Rei Kimura[1], satoshi wada[1] (1. TOSHIBA ESS)

11:00 AM - 11:15 AM

[3B07] Measurement of Calcium Hydrate sample worth in UTR-KINKI

*Takashi Kanda[1], Kunihiro Nakajima[1], Atsushi Sakon[1], Tadafumi Sano[1], Rei Kimura[2], Satoshi Wada[2], Kengo Hashimoto[1] (1. Kindai Univ., 2. TOSHIBA ESS)

11:15 AM - 11:30 AM

[3B08] An inherent safety gas-cooled fast reactor concept of " Eco-KAMADO"

*Tetsuo Matsumura[1], Takanori Kameyama[1] (1. Tokai University)

11:30 AM - 11:45 AM

©Atomic Energy Society of Japan

燃料間出力相関を考慮した炉外計装による炉心出力分布再構成手法の開発 (1)：理論検討と解析による検証

Core power distribution re-construction method based on the ex-core detector with power correlation between fuel regions

(1): Theoretical examination and its verification

*木村 礼[1]，中居 勇樹[1]，和田 怜志[1]

[1]東芝エネルギーシステムズ株式会社

原子炉の安全性の担保の為には常時炉心内の状態を把握する必要があるが，そのために炉内へ核計装を設置した場合，特に小型炉においてコスト上昇やメンテナンス性低下を招く恐れがある．そこで，炉外に設置した核計装で出力分布などの炉内状態を把握できることが望ましいが，検出器到達までに多くの情報が失われるために事前の膨大なパターン解析などの準備が無い限り詳細な出力分布再構築は難しかった．そこで本研究では燃料領域からの検出器応答行列に対して燃料領域間の出力相関係数を導入し，出力分布再構築の精度を向上させる手法を考案した．更に，本手法の検証解析を行い局所的な出力変動を炉心水平断面上で同定できることを確認した．

キーワード：SMR，超小型炉，ヒートパイプ，受動的安全性，反応度制御

1. 緒言

分散電源としての利用が想定される小型原子炉では，安全上重要な炉内状況の把握・異常検知のために炉内へ核計装を設置すると，小型原子炉のコストやメンテナンス性低下を招く恐れがある．そこで炉外計装による炉内状況把握≒出力分布再構築が求められるが，中性子が炉内から検出器に到達するまでに多くの情報が失われ，事前の膨大なパターン解析などの準備無しには詳細な出力分布を得ることが難しい．そこで本研究では検出器応答に対する燃料間の出力相関を導入する事で出力分布再構築精度の向上を図る．

2. 検出器応答に対する燃料間出力相関係数の導入

本研究では検出器 D_i と燃料出力 Rn の関係を，$C_{n,i} = D_i/R_n$ を用いて(1)式と定義した．出力相関を考慮しない場合は(1)式で得られる検出器応答と実測値の差分が小さくなるように Rの最適化問題を解く事で出力分布を再構築する．次に燃料領域 m で発生した核分裂が燃料領域 nで核分裂を引き起こす確率を示す係数 $F_{m,n}$を用い，燃料間の出力相関を考慮した核分裂反応率を(2)式と定義する．すると検出器応答を$C'_{m,i} = \sum_{n=1}^{N} F_{m,n} C_{n,i}$ を用いて(3)式と書き直す事ができ，(1)式と同様に Rの最適化問題を解くことで出力分布再構築を行うことが出来る．

$$\begin{cases} D_1 = R_1 C_{1,1} + R_2 C_{2,1} + \cdots + R_n C_{n,1} \\ D_2 = R_1 C_{1,2} + R_2 C_{2,2} + \cdots + R_n C_{n,2} \\ D_3 = R_1 C_{1,3} + R_2 C_{2,3} + \cdots + R_n C_{n,3} \\ \vdots \\ D_i = R_1 C_{1,i} + R_2 C_{2,i} + \cdots + R_n C_{n,i} \end{cases} \quad (1)$$

$$R'_N = R_1 F_{1,N} + R_2 F_{2,N} + R_3 F_{3,N} + \cdots + R_N F_{N,N} \quad (2)$$

$$\begin{cases} D_1 = R_1 C'_{1,1} + R_2 C'_{2,1} + \cdots + R_N C'_{N,1} \\ D_2 = R_1 C'_{1,2} + R_2 C'_{2,2} + \cdots + R_N C'_{N,2} \\ D_3 = R_1 C'_{1,3} + R_2 C'_{2,3} + \cdots + R_N C'_{N,3} \\ \vdots \\ D_i = R_1 C'_{1,i} + R_2 C'_{2,i} + \cdots + R_N C'_{N,i} \end{cases} \quad (3)$$

3. 出力分布再構築結果

MVP3.0/JENDL4.0[1]および JEFF-3.2[2-3]を用い，MoveluX™ 炉心の一部燃料の濃縮度を高めた体系に対して出力分布の再構築を行った．図１にその結果を示す．本図において a)が参照解，b)が提案手法，c)が燃料間出力相関を考慮しない場合の出力分布である．本結果から，出力相関を考慮する事で炉心内側の出力分布を再構築出来ている事が分かる．

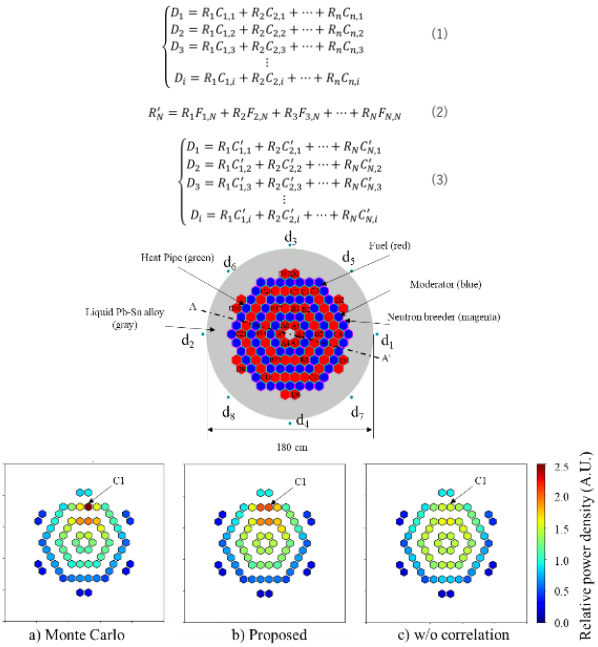


図１：炉心断面図と出力分布再構築結果

4. 結論

燃料間の出力相関を考慮する事で出力分布再構築の精度が向上し，特に炉心内側において出力分布を再現できた．今後の課題として実験による技術実証，係数不確かさ影響評価，初期値設定手法などが挙げられる．

参考文献

[1] Y. NAGAYA, et al., “MVP/GMVP II: general purpose Monte Carlo codes for neutron and photon transport calculations based on continuous energy and multigroup methods”, JAERI1348, Japan Atomic Energy Research Institute (2004), [2] K. SHIBATA, et al., "JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering," J. Nucl. Sci. Technol., 48, 1-30 (2011), [3] OECD/NEA Data Bank, JEFF-3.2 Evaluated Data Library - Neutron data (2014), http://www.oecd-nea.org/dbforms/data/eva/evatapes/jeff_32/,

*Rei Kimura[1], Yuki Nakai[1], Satoshi Wada[1]

[1]Toshiba Energy Systems & Solutions Corporation

燃料間出力相関を考慮した炉外計装による炉心出力分布再構成手法の開発 (2)：検出器信号の不確かさ影響評価

Core power distribution re-construction method based on the ex-core detector with power correlation between fuel regions

(2): Detector uncertainty effect

*中居 勇樹[1], 木村 礼[1], 和田 怜志[1]

[1]東芝エネルギーシステムズ株式会社

小型炉の開発が世界中で精力的に進められているが、小型炉の監視には従来の大型炉を踏襲して炉内計装と炉外計装の両方が採用される見通しである。しかし、メンテナンス性などの観点では炉外計装のみを用いた監視システムが望ましい。小型炉では炉外計装のみで炉内を監視できる余地があるため、炉外計装による燃料出力分布の再構成手法の開発を進めてきた。これまでは検出器の不定性による影響評価が不十分であったため、検出器不定性によって燃料出力の推定値がどの程度変動するかを評価した。

キーワード：炉外計装，状態監視，SMR，小型炉

1. 緒言

世界で開発が進められている小型モジュラー炉（SMR）やマイクロリアクターは次世代の分散型電源として期待されている。これらの核計装システムは、基本的には炉内へ設置されることが想定されている。炉内計装は炉内の情報を精確に取得できるものの、動作環境が過酷であるため頻繁にメンテナンスが必要となる。一方で、炉外計装は取得できる情報の質は劣るものの、動作環境は比較的穏やかである。炉外計装のみを用いた監視システムで十分な性能が担保できれば、メンテナンス性や長期信頼性が向上する。小型炉においては、その炉心サイズの小ささから炉外へと漏れ出る中性子数が増加し、炉外計装によって得られる情報の質が向上すると期待できる。そこで、炉外に設置した検出器信号から、炉内情報を用いて燃料出力の分布を再構成する手法を開発してきた。

2. 検出器の不確かさによる再構成値への影響評価

本再構成手法の性能は、シミュレーションを用いて評価してきた。しかし、実際の検出器では統計的な不定性に加え、電気的ノイズや背景事象による系統的な不定性をもつ。この検出器の不確かさによって、推定した燃料出力がどの程度揺らぐか評価する必要がある。そこで、検出器の不確かさを考慮し、再構成値への影響を評価した。

MVP3.0 [1]を用い、MoveluX™ [2]炉心の一部燃料の濃縮度を高めた体系に対して、出力分布と検出器応答を評価した。その後、得られた検出器応答に対してガウス分布に従った不定性をランダムに加え、本再構成手法を用いて燃料出力を推定した。この燃料出力の推定値の変動から、検出器の不確かさによる影響を評価した。図１にその結果を示す。実線は燃料出力のシミュレーション結果、破線は再構成結果を表す。推定値の誤差棒は検出器の不確かさを考慮したときの標準偏差に対応する。検出器の影響を組み込んだ場合でも、シミュレーションの結果を再構成できることが分かった。

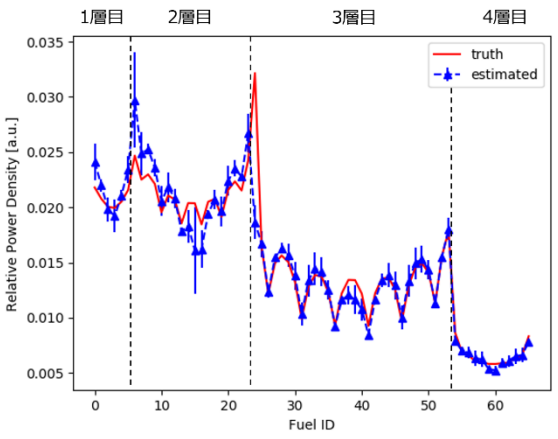


図１：シミュレーションでの燃料出力値（実線）と検出器の不確かさを考慮したときの推定値（破線）

参考文献

[1] Y. NAGAYA, et al., “MVP/GMVP II: general purpose Monte Carlo codes for neutron and photon transport calculations based on continuous energy and multigroup methods”, JAERI1348, Japan Atomic Energy Research Institute (2004),

[2] R. Kimura, et al, “Hydride moderated heat-pipe cooled very small modular reactor MoveluX (1): Overview of reactor system and core concept”, Proc. AESJ 2019 Annual Meeting, Mito, Japan, Mar. 20-22, 2019, Atomic Energy Society of Japan (2019)

*Yuki Nakai[1], Rei Kimura[1], and Satoshi Wada[1]

[1]Toshiba Energy Systems & Solutions Corporation

UTR-KINKI における水素化カルシウムのサンプルワース測定

Measurement of Calcium Hydrate sample worth in UTR-KINKI

*神田峻[1], 中嶋國弘[1], 左近敦士[1], 佐野忠史[1], 木村礼[2], 和田怜志[2], 橋本憲吾[1]
[1]近畿大学, [2]東芝エネルギーシステムズ株式会社

超小型原子炉システム MoveluX™ の固体減速材として CaH_2 が検討されているが、過去に CaH_2 についての臨界実験は実施されておらず、有益な臨界実験データが無い。本研究では近畿大学原子炉(UTR-KINKI)で CaH_2 のサンプルワース測定を実施し、臨界実験データの取得及び CaH_2 中の水素についての評価済み断面積ライブラリの積分評価を実施した。

キーワード：近畿大学原子炉，水素化カルシウム，サンプルワース， MVP， 核データライブラリ

1. 緒言

超小型原子炉 MoveluX™ は冷却システムにヒートパイプを採用し、動的機器排除および炉心の受動的除熱が実現可能な新型炉として研究開発が実施されている。本炉心の特徴は水素化カルシウム(CaH_2)などの固体減速材を適用することにより、高温下で CaH_2 が解離され、減速能力を失うことで受動的炉停止が可能な固有の安全性を有していることである。しかし、CaH_2 についての臨界実験は実施されておらず、有益な臨界実験データがない。更に CaH_2 の熱中性子散乱則を取り入れた水素の断面積データは JEFF ライブラリのみに格納されている。故に本研究では近畿大学原子炉(UTR-KINKI)を用いて CaH_2 試料の有無による過剰反応度差からサンプルワース測定を実施し、CaH_2 中の水素断面積の積分評価を実施した。

2. 実験条件

近畿大学原子炉(UTR-KINKI)において図 1 のようにϕ3.00cm × 2.54cm寸法の CaH_2 試料(26.45g)が入るアルミニウムの試料容器（5.08cm × 5.08cm × 3.02cm）を黒鉛容器に入れ、中央ストリンガーに設置した。この時、試料の中心は炉心の中心と一致するように設置した。過剰反応度は調整棒を下限、シム安全棒を上限位置とした状態で２つの手法で測定を実施した。測定手法は(1)スットプウォッチによる炉周期測定（従来法）、(2)核分裂計数管出力信号の時系列データのフィッテングによる炉周期測定（フィッテング法）である。測定は試料の有無毎に４回実施した。また、反応度解析を連続エネルギーモンテカルロコード MVP3.0 と JEFF-3.2 で実施し、ヒストリー数は9.0×10^8とした。

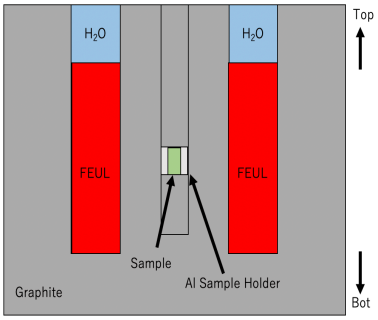


図 1：炉心配置図

3. 実験結果

表 1 に各測定法でのサンプルワースの結果を示す。各測定法による測定値はそれぞれの測定誤差内に収まった。本実験では約 6pcm 程度の反応度を従来法でも精度良く測定した。表 2 に MVP3.0 および JEFF-3.2 による計算値と従来法による実験値との比較を示す。C/E より、常温条件下で JEFF-3.2 の CaH_2 中の水素の断面積が概ね妥当であることがわかった。発表では更に統計誤差の小さい計算結果を報告する。

表 1：CaH_2 のサンプルワース結果

サンプルワース[pcm]			
従来法		フィッティング法	
-5.65 ±	1.43	-5.67 ±	1.64

表 2：計算値(C)と従来法での実験値(E)との比較

計算値[pcm]		C/E	
-5.93 ±	3.38	1.05 ±	0.65

*Takashi Kanda[1], Kunihiro Nakajima[1], Atsushi Sakon[1], Tadafumi Sano[1], Rei Kimura[2], Satoshi Wada[2] and Kengo Hashimoto[1]
[1]Kindai University, [2]Toshiba Energy Systems & Solutions Corporation

固有安全性を有するガス冷却高速炉“Eco-KAMADO”の概念
-事故時の炉心浸水にともなう反応度変化-

An inherent safety gas-cooled fast reactor concept of “Eco-KAMADO”
Reactivity change due to core inundation on accident

*松村 哲夫[1]、亀山 高範[1]
[1]東海大

不活性ガスを冷却材とし富化度 20%程度の MOX 燃料を用いた固有安全性を有する高速炉概念“Eco-KAMADO”を検討中である。チャンネルボックスを有する燃料集合体は大気圧の原子炉プール（ヒートシンク）内に設置され、LOCA/LOF 時には崩壊熱はチャンネルボックス(C-Box)表面から冷却される。核的な固有の安全性には燃料集合体の水没時にも負の反応度を得る必要があり、MVP3 を用いて燃料集合体の水没時の反応度変化を解析した。

キーワード：固有安全性、高速炉，ガス炉、炉心反応度、水没時

1. 炉心概念　MOX 燃料棒は図 1①に示すように C-Box に直接接触している。MOX 燃料棒で構成された燃料集合体（表 1）は大気圧の原子炉プールに設置される（図 2)。炉心の周囲は中性子反射体である黒鉛(0.3m)で囲われている。ブランケット燃料は使用していない。運転時の燃料の発熱は C-Box 内の CO_2 ガスで冷却され、C-Box 間の水ギャップは燃料に加熱され蒸気になる。LOCA/LOF 時にはこの水ギャップは再冠水し水・蒸気の二相流となる。燃料の崩壊熱はこの二相流で冷却されヒートシンクである原子炉プールに伝えられる。これにより動的な装置・機器を不要とする熱的な固有の安全性が達成できる[1-3]。

2. 核的な固有の安全性　本概念ではガス配管が破損した場合、燃料集合体が水没する可能性がある。このため、水没時の炉心の反応度変化を解析した。燃料温度上昇時の冷却材の密度変化による反応度の影響は小さく、燃料のドップラー効果による負の反応度変化が得られるため、水没時の炉心の反応度変化を負にできれば、核的な固有の安全性が達成できる。

3. 水没時の反応度変化の解析　連続エネルギー法モンテカルロ法コード(MVP3)[4]を用いて水没割合依存の燃料集合体の無限増倍係数(k_∞)を解析した。運転時(燃料平均温度:900K)と比べ水没時(300K)には反応度は低下する（図 1)。水素/重金属数密度比(H/HM)が 4 程度で最適減速条件になることが示された。一方、炉心の実効増倍係数(k_{eff})は、燃料集合体からの中性子漏洩が水没時には大きく減少するため、局所的な燃料集合体の水没時の炉心全体の増倍係数も評価する必要性がある。

［参考文献］ 1) ICAPP, 9370, Tokyo, Japan (2009). 2) IAEA-TECDOC-1485 (2006). 3) IAEA Advanced Reactors Information Systems (ARIS), https://aris.iaea.org/. 4) JAEA-Data/Code 2016-019.

表 1　燃料の諸元

Items	Values
Fuel Pellet	MOX
Pu enrichment	20%
Pellet Diamater	10 mm
Fuel Cladding	316FR
Cladding Outer Diameter	10.6 mm
Channel Box Width	74.8 mm
Number of Fuel Assemblies	1412

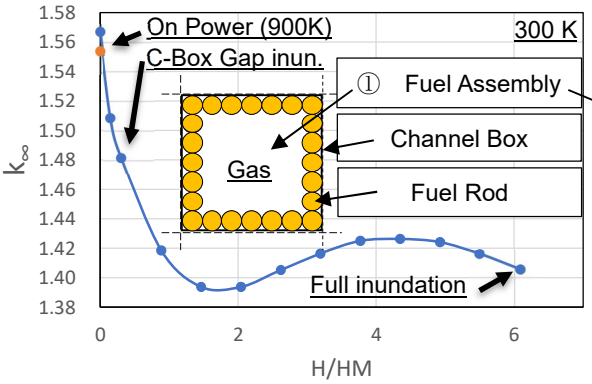


図 1　水没時の燃料集合体の無限増倍係数

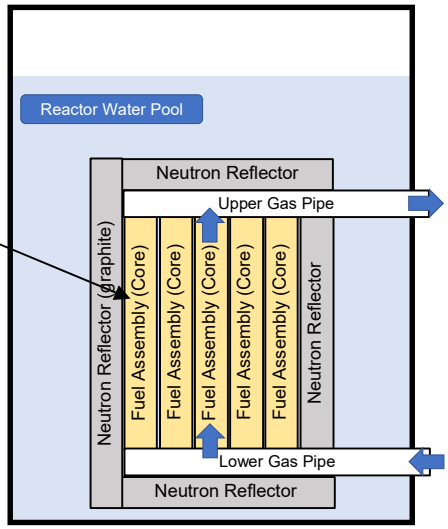


図 2 Eco-KAMADO の概念

* Tetsuo MATSUMURA[1] and Takanori KAMEYAMA[1]
[1]Tokai University

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 301-2 Reactor Design, Nuclear Energy Strategy, Nuclear Transmutation

[3B09-11] Advanced Reactor

Chair: Naoto Aizawa (Tohoku Univ.)

Fri. Mar 19, 2021 2:45 PM - 3:40 PM Room B (Zoom room 2)

[3B09] Development of Light Water Cooled Fast Reactor

*Junichi Miwa[1], Tetsushi Hino[1], Yuki Narushima[2], Kazuya Ishii[1], Yoshihiko Ishii[1], Takao Kondo[1], Soneda Hideo[1] (1. Hitachi-GE, 2. Hitachi)

2:45 PM - 3:00 PM

[3B10] Evaluation of the inherent neutron source and power density in the Intermediate Heat Exchanger of a small chloride-fueled molten salt fast reactor

*Willem F.G. van Rooijen[1], Jamiyansuren Terbish[2] (1. Univ. of Fukui, 2. National University Of Mongolia)

3:00 PM - 3:15 PM

[3B11] Neutronics Design of Molten Salt Accelerator-Driven System with Spent MOX fuel from PWR

*Takanori Sugawara[1], Yasutoshi Ban[1], Yasuhiro Tsubata[1] (1. JAEA)

3:15 PM - 3:30 PM

©Atomic Energy Society of Japan

軽水冷却高速炉の開発
(6) 現行炉心からの移行性を高めたPu利用向け四角格子炉心概念

Development of Light Water Cooled Fast Reactor

(6) Core concept of the square fuel lattice type light water cooled fast reactor with enhanced compatibility with the conventional BWR

*三輪 順一[1]，日野 哲士[1]，成島 勇気[2]、石井 一弥[1]、石井 佳彦[1]、近藤 貴夫[1]、曽根田 秀夫[1]
[1]日立GE、[2]日立

燃料サイクルの短中期課題であるPu利用促進に向け、現行BWRの取替え容易なコンポーネントの改造のみで実現できる軽水冷却高速炉の四角格子炉心の開発を進めている。現行 BWR 炉心からの移行性を高めるため、燃料有効長を現行BWRと同等にした四角格子炉心の長尺燃料概念を検討した。

キーワード：沸騰水型軽水炉，稠密配置燃料，低減速炉，Pu利用

1. 緒言

日立は原子力がめざすべき燃料サイクル（温暖化ガス排出量低減、エネルギー安定供給）の実現に向けて、沸騰水型軽水炉（BWR）で高速中性子スペクトルを活用し、資源有効利用を図る軽水冷却高速炉の開発を進めている。軽水冷却高速炉の六角格子炉心の概念を活用しつつ、現行プラントでのPu利用を促進するために正方チャンネルボックス内に燃料棒を稠密配置した四角格子炉心を検討している。

2. 長尺燃料

既報告の燃料棒を三角格子で稠密配置し燃料有効長を現行BWRの1/2とした短尺燃料（図1）[1]に対し、現行BWR炉心への追設（制御棒フォロア、水排除板）を不要とし、取替え容易なコンポーネントの改造のみで実現でき、Pu装荷量の増加による使用済MOX燃料体数削減を目的に燃料有効長を現行BWRと同等とした長尺燃料概念を構築した（図2）。長尺燃料では燃料棒を正方格子の稠密配置とすることで、燃料の長尺化による圧力損失増加の抑制と冷却性能確保を実現した。現行 BWR の取替燃料として長尺燃料を順次装荷することで、現行BWR炉心から軽水冷却高速炉四角格子炉心への早期移行が可能となる。

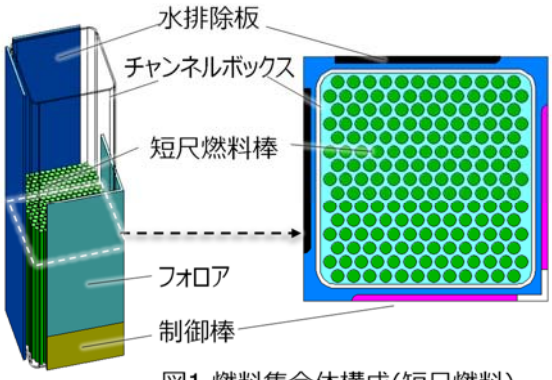


図1 燃料集合体構成(短尺燃料)

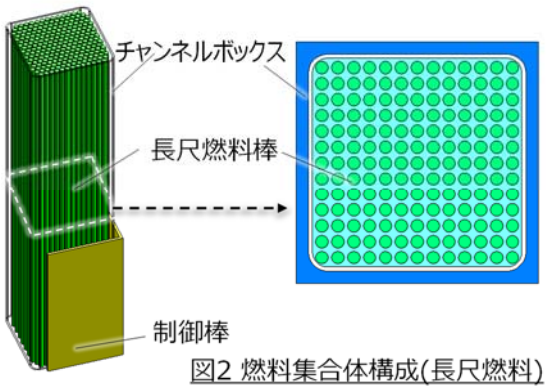


図2 燃料集合体構成(長尺燃料)

3. 結論

現行BWRへの早期導入が実現可能な軽水冷却高速炉の四角格子炉心の長尺燃料概念を構築した。

参考文献

[1] 三輪他、日本原子力学会2020年秋の大会 1I07「(3) Pu利用に適用する四角格子炉心の核・熱水力特性」

*Junichi Miwa[1], Tetsushi Hino[1], Yuki Narushima[2], Kazuya Ishii[1], Yoshihiko Ishii[1], Takao Kondo[1], Hideo Soneda[1]
[1]Hitachi-GE, [2]Hitachi

Evaluation of the inherent neutron source and power density in the Intermediate Heat Exchanger of a small chloride-fueled molten salt fast reactor

*Van Rooijen, Willem[1], Terbish Jamiyansuren[2]
[1]Research Institute of Nuclear Engineering, University of Fukui, [2]Nuclear Research Center, National University of Mongolia

Abstract The multiplication factor and power production in the Intermediate Heat Exchangers (IHX) of a small chloride-fueled fast-spectrum Molten Salt Ractor is investigated. Results indicate that the IHX are deeply sub-critical ($k_{eff} \approx 0.75$), power production remains limited ($P < 520$ kW), but the neutron flux level is very high, so that IHX lifetime is limited.

Keywords: Molten Salt Reactor, Chloride fuel, Fast Reactor, Intermediate Heat Exchanger, Delayed Neutrons, Criticality

1. Introduction In a fast-spectrum Molten Salt Reactor, there is no moderator in the core region, and thus the multiplication factor is determined only by the geometry of the primary system. Since the nuclear fuel is liquid, delayed neutron precursors are transported throughout the primary system. As a result, the entire primary system outside of the core region must be treated as a sub-critical, source-driven system. In the present work the multiplication factor, power production, and neutron flux level in the Intermediate Heat Exchanger (IHX) is investigated.

2. Reactor and IHX Design Data for the primary system is given in **Table 1**. The primary system is rated at 600 MWth and it is assumed that there are four IHX. A detailed design of the primary system does not exist, hence calculations were performed assuming a total primary system volume of $V_p = 2\,V_c$ (small system) and $V_p = 5\,V_c$ (large system). The IHX is a helical coil design based on the work in [1]. More details are given in [2].

Table 1: Core and IHX design data

Core / Primary circuit	
Power	600 MWth
Fuel composition	NaCl – $CaCl_2$ – UCl_3 – $PuCl_3$
Core Volume	5.97 m^3
Mass flow rate	9231 kg/s
IHX (150 MWth x 4)	
Secondary coolant	KCl – $MgCl_2$
Temp. (primary)	650℃ / 550℃
Temp. (secondary)	500℃ / 575℃

3. Analysis Method Neutron transport in the IHX is calculated with the Monte Carlo code MVP. Reaction rates are tallied in the IHX volume. The source strength due to delayed neutrons is calculated with a simplified model based on the residence time of the fuel in the core, the IHX, and other parts of the primary system [2]. Reflective boundary conditions are assumed for the IHX.

4. Results See **Table 2**. The multiplication factor is sufficiently low that criticality is not an issue for the IHX. The fission power due to multiplication of delayed neutrons is low, only several hundred kW. The average flux level in the IHX is on the order of 10^{12} n/cm^2/s . This flux level is so high that material degradation due to neutron fluence in the IHX is likely to set a limit on the lifetime of the IHX components.

Table 2: Results for small and large primary system

	$V_p = 2\,V_c$	$V_p = 5\,V_c$
k_∞	0.757516 (0.008%)	0.757516 (0.008%)
Power	516 kW	150.3 kW
Flux level	9.029×10^{12}	2.6617×10^{12}

Acknowledgment Support from the 2019 Fukui International Human Resource Development Center for Atomic Energy (FIHRDC-AE/WERC) and Mongolian Foundation for Science and Technology (MEST) project 2018/45.

References

[1] A. Di Ronco, A. Cammi, S. Lorenzi, “Preliminary analysis and design of the heat exchangers for the Molten Salt Fast Reactor”, Nuclear Engineering and Technology, 52, 51 – 58 (2020) doi: 10.1016/j.net.2019.07.013

[2] J. Terbish, W.F.G. van Rooijen, “Design and neutronics analysis of the Intermediate Heat Exchanger of a Fast-spectrum Molten Salt Reactor”, submitted, Nuclear Engineering and Technology (2020)

PWR からの使用済み MOX 燃料を対象とした溶融塩加速器駆動システムの核設計

Neutronics Design of Molten Salt Accelerator-Driven System with Spent MOX fuel from PWR

*菅原 隆徳，伴 康俊，津幡 靖宏
原子力機構

軽水炉から排出される使用済み MOX 燃料を対象として、溶融塩加速器駆動システムの核設計を行った。検討した概念は 400 MW 熱出力、800 MeV 陽子ビームを用いるもので、これにより MA を新たに生み出すことなく、使用済み MOX 燃料中のプルトニウムを、1 年あたり約 120kg 核変換することが可能である。

キーワード：使用済み MOX、核変換、溶融塩炉、加速器駆動システム（ADS）、SELECT プロセス

1. 緒言

もんじゅの廃炉が決定し、プルトニウムの高速炉利用が不透明な中、一部の軽水炉では、プルサーマルとしてプルトニウムが使用されている。しかしながら、この使用済み MOX 燃料の扱いについて具体的な議論がされていない。本研究では、この使用済み MOX 燃料に着目し、これを溶融塩加速器駆動システムにより核変換し、減容化できる可能性について検討した。

2. 溶融塩加速器駆動システム MARDS

文献[1]で提案した MARDS（Molten salt AcceleratoR Driven System）概念は、TRU の効率的な燃焼を狙い、塩化物を燃料塩とした概念であり、燃料塩に直接陽子ビームを入射するシンプルな ADS 概念となっている。本研究では、この既往研究をベースに、使用済み MOX 燃料由来の組成を用いて核設計を行った。

3. 核設計

3-1. 解析条件

PWR から排出された使用済み MOX 燃料を対象に、SELECT プロセス[2]で分離されたプルトニウムおよびMA を燃料（$TRUCl_3$-$PbCl_2$）として核設計を行った。解析には ADS3D コード[3]を用い、各データライブラリには JENDL-4.0 を用いた。400 MW 熱出力、800 MeV 陽子ビーム入射の条件で、燃焼特性を解析した。

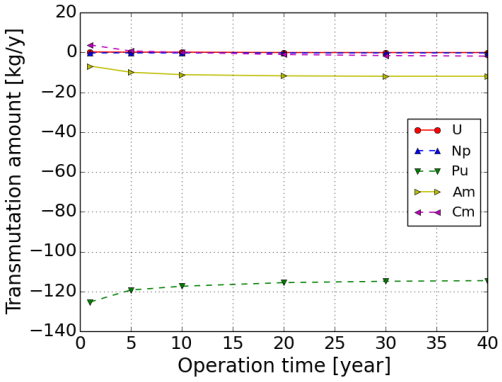


図 1 各元素の一年あたりの核変換量

3-2. 解析結果

解析結果の一例として、各元素の核変換量を図 1 に示す。約 120kgPu/年の核変換が可能であり、MA についても 40 年間の運転中、量が増えないことを確認した。実効増倍率を 0.98 とした場合、必要となる陽子ビーム電流値は 7.0 - 7.7 mA となり、円形加速器を用いることができる。

4. 結論

MARDS 概念により、PWR 由来の使用済み MOX 燃料のプルトニウムと MA を核変換できることを示した。

参考文献

[1] T. Sugawara, ANE 149, 107818 (2020).

[2] Y. Ban, et al., Solvent Extraction and Ion Exchange, 37(1), pp. 27-37 (2019).

[3] T. Sugawara, et al., JNST 53 (12), pp. 2018-2027 (2016).

---

*Takanori Sugawara, Yasutoshi Ban and Yasuhiro Tsubata

Japan Atomic Energy Agency

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 301-2 Reactor Design, Nuclear Energy Strategy, Nuclear Transmutation

[3B12-13] Advanced Reactor (Space Reactor)

Chair: Jun Nishiyama (Tokyo Tech)

Fri. Mar 19, 2021 3:40 PM - 4:20 PM Room B (Zoom room 2)

[3B12] Study on Application of Reprocessed Pu to Nuclear Thermal Propulsion Reactors: II

*Masaki Okagaki[1], Willem F.G. van Rooijen[1] (1. Univ. of Fukui)

3:40 PM - 3:55 PM

[3B13] Investigation of a high performance heat-pipe cooled miniature nuclear reactor for lunar power application

*Natsumi Matsumoto[1], Dung Thi Nguyen[1], Michiya Honda[1], Takatsugu Echigo[1], Masaki Okagaki[1], Willem F.G. van Rooijen[1] (1. Univ. of Fukui)

3:55 PM - 4:10 PM

©Atomic Energy Society of Japan

核熱ロケット推進用原子炉における再処理 Pu の利用：II

Study on Application of Reprocessed Pu to Nuclear Thermal Propulsion Reactors: II

*岡垣 昌樹[1]，ファン=ローイエン ウィレム[1]

[1]福井大学

抄録

本発表は、2020 年秋の学会「[1I03]核熱ロケット推進用原子炉における再処理プルトニウムの利用」の続編である。核熱ロケット推進は、次世代の推進機関であり、実現に向け研究が行われている。本研究では低濃縮ウラン燃料を使用したモデルに再処理プルトニウムを加えたモデルを作成し、それを SCALE および RELAP で解析してモデルの実現可能性を調査した。

キーワード：核熱ロケット，核熱推進，SULEU，再処理 Pu

1. 緒言

核熱ロケット推進の燃料として高濃縮 U 燃料が過去に使用されていたが、核保障の観点から低濃縮 U 燃料の使用が望まれている。そして日本のような非核兵器保有国では低濃縮 U 燃料の使用は絶対である。しかし、低濃縮 U 燃料では、性能の低下は免れない。そこで、現在提案されている低濃縮 U 燃料モデルに再処理 Pu を利用することによる性能への影響を解析し、最適化を行うことで、利用の可能性を探る。

2. 解析

前回の結果から、SULEU model[1] を基とした体系において宇宙環境特有の問題や燃料要素における熱的な挙動に関して大きな注意を向けることとなった。再処理 Pu 特有の問題である一部の Pu 核種の崩壊および太陽風などの宇宙放射線が炉心へ与える影響を SCALE によって、原子炉における熱的な挙動などを RELAP によって解析し、最適化を図った。

3. 結果

熱的な挙動の解析に関しては、体系が特殊で過酷な計算条件であるために RELAP によって完全な計算が不可能であった。そのため解析を簡易的な体系から段階的に希望の体系へ近づけることでおおよその数値を調査した。

Fig. 1 は、出力分布が一定かつ出力が元の約 4 割の簡易化体系を用いて計算を行った結果である。概算ではあるが、熱計算が正しく計算されていることが確認できた。また、冷却材の速度が流路内で音速まで加速されることは無いと判明した。その他の詳細については年会での発表で報告する。

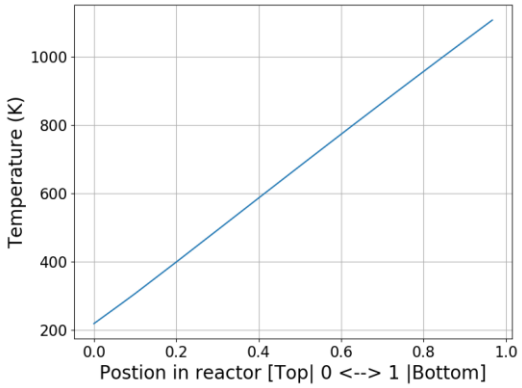


Fig. 1 Temperature distribution of simplified model.

4. 結言

本研究では、Pu 核種の崩壊および太陽風などの宇宙放射線が炉心へ与える影響ならびに原子炉における熱的な挙動などを解析し、最適化を行った。 結果として設計の改良により再処理 Pu を利用した体系を利用できる可能性が見いだされた。今後はさらに詳細な解析および最適化を実施していく。

参考文献

[1] P. F. Venneri, Y. Kim, P. Husemeryer and S. Howe. Development of the 900 Second Specific Impulse Carbide Low Enriched Uranium Nuclear Thermal Rocket. PHYSOR 2014. on CD-ROM

---

* Masaki Okagaki[1] and Willem F.G. van Rooijen[1]

[1]University of Fukui

月面電源用高性能ヒートパイプ冷却小型原子炉の検討

Investigation of a high performance heat-pipe cooled miniature nuclear reactor for lunar power application

*松本菜摘[1]，　Nguyen Thi Dung[1]，本多 倫也[1]，越後 鷹続[1]，岡垣 昌樹[1]，　Van Rooijen Willem F.G.[1]
[1]福井大学

抄録

現在宇宙開発が進み、月面で充分なエネルギーを得るための電源が求められている。本研究では月面で使用する 2000kW 級の超小型電源用原子炉の炉心設計を行い、核特性と質量について検討した。提案する原子炉はヒートパイプ冷却に基づく超小型高速炉であり、燃料として高濃縮窒化ウランと低濃縮窒化ウランを利用し炉心体積は数百リットル程度である。

キーワード：月面用原子炉，小型高速炉，核設計，ヒートパイプ冷却体型

1. 緒言　月面で人類が生活を行うためには安定した電力供給が必要不可欠である。今回は月面での生活を行う研究段階として 10 人程度の人間が簡単な実験を行いながら 1 ヶ月月面に滞在する状況を想定し、ロケットで運べる重さ・大きさでありながら十分な電力を供給できる原子炉を考え、宇宙空間で用いるのに最も適した原子炉の構造を検討した。

2. 解析　本研究の原子炉は電気出力が 2000kW の高速炉であり、冷却体系として Na ヒートパイプ、放熱系にラジエーター、発電体系にスターリングエンジンを用いた。ヒートパイプの熱効率や構造材の性質は[1]、[2]を参考に設定した。冷却材には Na を用いており、炉心温度 1200℃と非常に高くなることから高温に耐えられるよう燃料に窒化ウラン、構造材にグラファイトを選択した。炉心は図 1 のような六角体系であり、燃料棒は 1 本 1 本がヒートパイプを燃料で囲うような構造になっている。また燃料に高濃縮ウランと低濃縮窒化ウランを用いた場合について比較し、より効率の良い燃料について検討した。

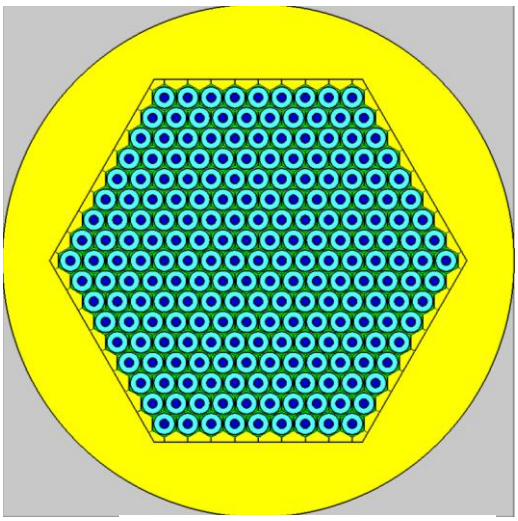


図 1　炉心構造

3. 結論

表 1　炉心仕様

	実行増倍率 (keff)	ウラン濃縮率 (%)	炉心半径 (cm)	炉心高さ (cm)	燃料とヒートパイプの合計質量(kg)
高濃縮窒化ウラン	1.077	93	13	40	130
低濃縮窒化ウラン	1.074	19	21	60	1320

表 1 に高濃縮窒化ウランと低濃縮窒化ウランを用いた場合の炉心特性と大きさについて示す。この結果から高濃縮窒化ウランを用いた場合の方が小型で軽い原子炉となるため月面への輸送に関しては高濃縮窒化ウランの方が優れていると言える。また低濃縮窒化ウランは熱中性子炉に変更する必要があると考えられる。

参考文献

[1] Mohamed S. El-Genk, Jean-Michel P. Tournier (2011), “Uses of liquid-metal and water heat pipes in space reactor power systems”, Fronitiers in Heat Pipes (FHP), 2, 013002

[2] 野村紀男、羽賀一男、片岡一、清野裕、大坪章、「月面原子動力プラントの検討」，PNC-TN9410-93-154，1993 年 8 月

*Matsumoto Natsumi[1] , Dung Thi Nguyen[1], Michiya Honda[1], Takatsugu Echigo[1], Masaki Okagaki[1] and Willem F.G. van Rooijen[1]
[1]University of Fukui

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 301-3 Research Reactor, Application of Neutron

[3B14] Research Reactor

Chair: Tetsuo Matsumura (Tokai Univ.)

Fri. Mar 19, 2021 4:20 PM - 4:45 PM Room B (Zoom room 2)

[3B14] Analysis on beyond-design basis accidents for a pool-type research reactor

*Takashi Tsumura[1], Toru Nakatsuka[1], Taisuke Yonomoto[1] （1. JAEA）

4:20 PM - 4:35 PM

©Atomic Energy Society of Japan

プール型試験研究炉の設計基準を超える事故の解析
その３　プール水喪失事故時の炉心の熱的挙動

Analysis on beyond-design basis accidents for a pool-type research reactor
Thermal behavior of reactor core during loss-of-pool-water-inventory accidents

*津村　貴史[1]，中塚　亨[1]，与能本　泰介[1]
[1] 日本原子力研究開発機構

試験研究炉 JRR-3 を対象に、設計基準を超える事故としてプール冠水維持に失敗する事象を熱水力解析コード RELAP5 により解析し、燃料被覆材温度変化の特徴等を明らかにした。

キーワード：JRR-3，graded approach，LOCA，RELAP5, loss of pool-water-inventory

1. 緒言

グレーデッドアプローチに基づく合理的な安全管理を行う上で試験研究炉の潜在的リスクを把握することは重要である[1]。そのため、JRR-3 を対象に、設計基準を超える極めて厳しい事故条件での炉心伝熱挙動やソースタームの解析を進めている[2-4]。これまで、JRR-3 が有する固有の安全特性（核熱結合効果、自然循環冷却特性等）から冠水機能が維持される限り、炉心冷却が維持される可能性を示してきた。本報では、プール冠水機能の維持に失敗する事故時の炉心の熱的挙動評価結果について述べる。

2. 評価条件

事故条件として、炉心中央部とほぼ同じ高さに位置する水平実験孔の破断に起因し、原子炉停止機能は維持されるもののプール冠水機能が喪失する状態を想定した。解析条件として、炉心底部に設置された自然循環弁の開放に失敗する場合を CASE1、成功する場合を CASE2 とした。ここで、自然循環弁は、炉心の下側に設置された炉心下部領域の水と外側のプール水を自然循環冷却のために連通するための弁で、通常運転時には閉鎖されており、事故時に遠隔または手動操作で開放される。

3. 評価結果

水平実験孔の破断を時刻ゼロとした燃料下部、中央部及び上部の燃料被覆材最高温度の時間変化（図１）から次のことが分かった。CASE1 では、炉心全体の冷却は約 1200 秒まで維持されるが、約 1700 秒で喪失する。一方、CASE2 では燃料上端部の気中への露出は CASE1 より早く生じるが、約 700 秒以降はプール側からの水の供給によって水位が維持され、燃料上部のみが燃料被覆材の融点を超える。

講演では、これらの結果に加え、破断条件や崩壊熱レベルの影響等を検討した結果とともに、大まかに燃料デブリやソースタームの挙動を検討した結果について報告する。

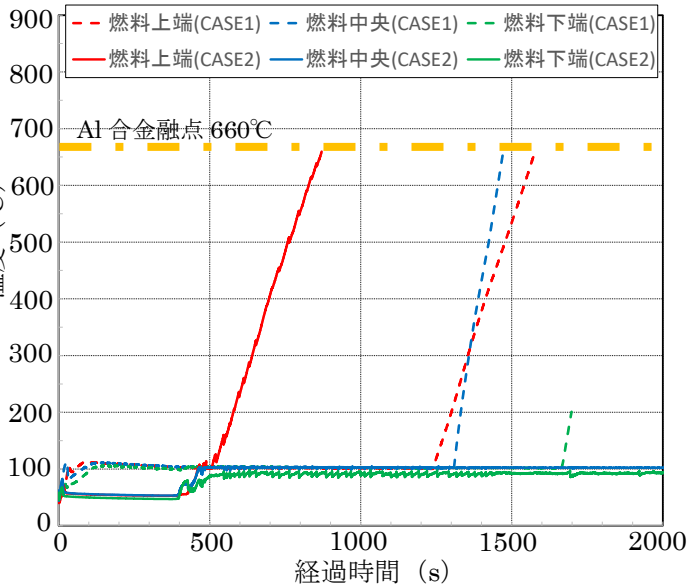


図１　事故発生後の燃料被覆材温度の変化

参考文献

[1] 与能本ら、2019 年春の年会 1N10，[2] 津村ら、2019 年秋の大会 2J22，[3] 津村ら、2020 年春の年会 1H01，[4] 津村ら、2020 年秋の大会 1H01

* Takashi Tsumura[1], Toru Nakatsuka[1] and Taisuke Yonomoto[1]　[1]Japan Atomic Energy Agency

Oral presentation | III. Fission Energy Engineering | 303-1 Reactor Instrumentation, Instrumentation System, Reactor Control/303-2 Remote Control, Robotics, Image Processing

[3C01-02] Gamma Ray Measurement &Automatic Control of Construction Machinery

Chair: Akio Gofuku (Okayama Univ.)
Fri. Mar 19, 2021 11:20 AM - 12:00 PM Room C (Zoom room 3)

[3C01] Gamma ray measurement using a lead bismuth emitter self-powered detector

*Atsushi Fushimi[1], Koichi Okada[1], Yoshihito Sato[1], Yohei Murakami[1] (1. Hitachi)
11:20 AM - 11:35 AM

[3C02] Development of automatic drive control system for bulldozer

*Satoshi Ishihara[1], Akihisa Shindo[1], Haruo Nagamine[1] (1. TAISEI CORPORATION)
11:35 AM - 11:50 AM

©Atomic Energy Society of Japan

鉛ビスマスエミッタ自己出力型検出器を用いたガンマ線計測

Gamma ray Measurement using a Lead-bismuth Emitter Self-powered Detector

*伏見 篤，岡田 耕一，佐藤 義人，村上 洋平
日立製作所 研究開発グループ

自己出力型ガンマ線検出器を原子炉出力監視に適用することを検討している。課題である高温環境下で計測可能であること、微弱電流信号を格納容器外まで引き出して計測可能であることの 2 点を試験的に評価し、原子炉出力監視に適用できる可能性があることを確認した。

キーワード：ガンマ線、計測、自己出力型、高温、鉛ビスマス

1. 緒言

沸騰水型原子炉(BWR)の出力監視には、国内では一貫して核分裂電離箱が用いられてきたが、海外ではガンマ線検出器も利用されている。ガンマ線検出器は、周囲の水密度の影響を受けにくく、核分裂物質が不要で取り扱いが容易というメリットがある。特に、自己出力型ガンマ線検出器（SPGD: Self Powered Gamma ray Detector)は検出器への給電が不要のためシステムを簡素化できる。過去に、原子炉向け SPGD として白金(Pt)を用いる構造が検討されている[1]。また，福島第一原子力発電所の線量率測定を想定し，鉛を用いた SPGD が開発されている[2]。本研究では、原子炉内の高温環境で使用可能な検出器構造を考案して性能を評価した結果を報告する。

2. 耐熱検出器構造と試験

鉛(Pb)やビスマス(Bi)は中性子に対する核反応確率が低く，中性子起因の電流値を低減できる。一方で融点が低いため、BWR の運転温度(288℃)において形状や感度が不安定となる。

そこで，検出部を鉛ビスマスとし，溶融した検出部をケースに封止する耐熱型 SPGD を考案した（図 1)。

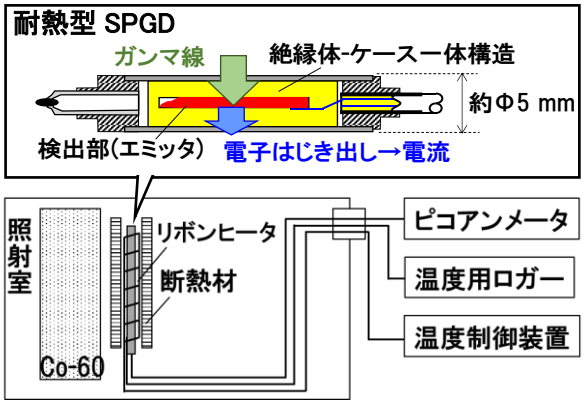


図 1　耐熱型 SPGD 検出器構造と試験体系

炉内の高温中における性能を確認するため、耐熱型 SPGD を 300℃に加熱し、0.9 kGy/h から 3.5 kGy/h のガンマ線を照射して電流値を測定した（図 2)。その結果、線量率と電流値の間には線形性が確認できた。線形性の精度は±0.7%FS であり，出力監視用の検出器に求められる±4%FS を満たした。

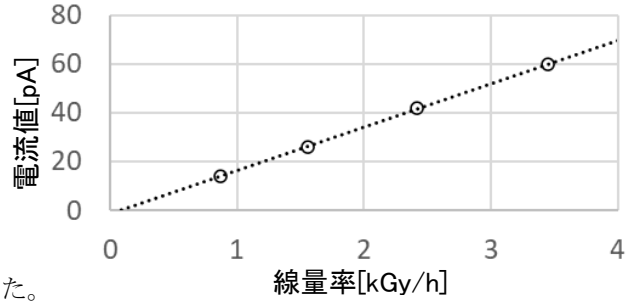


図 2　300℃環境における線量率線形性

また、炉内から格納容器外に相当する長さまでケーブル長を延長し、有意な電流の減衰が無いことを確認した。

3. 結論

耐熱型 SPGD が炉内の高温中で計測可能であること、格納容器外まで信号を引き出せることを確認できた。

参考文献

[1] N. P. Goldstaein, et. al., “Gamma-sensitive self-powered detectors and their use for in-core flux-mapping”, IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. NS-28, No. 1, p. 752 (1981).

[2] T. Takeuchi, et. al., “Development of a self-powered gamma detector”, J. Nucl. Sci. Technol., vol. 51, No.7-8, p. 939 (2014).

*Atsushi Fushimi, Koichi Okada, Yoshihito Sato and Yohei Murakami
Hitachi, Ltd. R&D group

ブルドーザの自動運転システム開発

Development of automatic drive control system for bulldozer

*石原 哲[1]，進藤 彰久[1]，長峰 春夫[1]
[1]大成建設株式会社

労働人口減少対策と省力化を目指し建設機械の自動化開発を進めている。土工事におけるブルワークが無人・自動で可能なブルドーザ自動運転システム開発を行った。

キーワード：自動化，ブルドーザ，空間検知，GNSS，LIDAR，建設工事

1. 緒言

施工省力化、労働人口減少対策で建機自動化が進められている。原子力分野でもバックエンド施設で土工事需要が見込まれる。センサで位置・姿勢と周囲空間を認識し、地盤高計測を基に運行経路とブレード調整を自動で行い、自動化を考慮した安全機能を備えたブルドーザ自動運転システムのプロトタイプを開発した。

2. 開発内容

2-1. ブルドーザ自動化に係る調査

ブルドーザ自動化開発は 2005 年頃から米国の自動化専門企業、建機/測器メーカー等で進められている。遠隔操作及びオペレータ搭乗時のブレード操作補助技術（MC/MG）が実用化しているが、大型ダンプ等と比較するとブルドーザ自動化は遅れ、各社で開発中の状況である。

2-2. システム設計とインテグレーション

土量管理をシステム設計の主目的に、独立性のため自社開発とした。測位に GNSS（ネットワーク補正）、空間検知/地盤高計測/ブレード計測に 2D-LIDAR×6、通信に無線 LAN、3G/4G、特定小電力無線を使用した。PC のプログラムで土量データベース（設計/計測値）に基づき自動運転する仕様で、PLC、サーボによる電気制御方式を採用した。

図-1　ブルドーザ自動運転システム

2-3. 試験ヤードでの実機動作検証

システムを D6 級ブルドーザに実装、動作試験した。本機の特徴である地盤計測に基づくエリア切盛りで仮想設計面を算出（土量管理）及び後方仕上り盤の計測と地盤高書換え（運土管理）の 2 種の基本機能を確認し、プログラム自動運転で水平押土成形、集土作業、押土盛り立て成形、自動均平作業を行った。また、安全装備の障害物回避、近接停止、境界逸走防止、緊急停止の機能確認を行い、自動運転での安全性を確保できる見通しを得た。

図-2　自動運転試験状況

2-4. 課題及び考察

IMU 統合型の GNSS で振動が要因と推定される測位の振れが生じたため、装置を変更した。自動運転性能は高く、オペレータ搭乗操作同様の円滑な動作を実現したが、前/後方の地盤高計測を行う 2D-LIDAR 及びジンバル機構の性能不足から計測精度が低下した。この点を改善するため 3D-LIDAR への変更を計画中である。

3. 結論

システムプロトタイプを完成した。今後 3D-LIDAR 適用性を確認後、実装して自動運転性能の向上を図る。

*Satoshi Ishihara[1], Akihisa Shindo[1] and Haruo Nagamine[1]

[1]Taisei Corporation

Oral presentation | II. Radiation, Accelerator, Beam and Medical Technologies | 202-4 Medical Use of Quantum Beam

[3D01-04] Medical Applications

Chair: Keisuke Maehata (Teikyo Univ.)

Fri. Mar 19, 2021 10:45 AM - 12:00 PM Room D (Zoom room 4)

[3D01] X-ray Computed Tomography with a Low-noise Current-sensitive Preamplifier VIEC

*Ikuo Kanno[1], Junichiro Nishikawa[1], Hideaki Onebe[2] (1. Kyoto Univ., 2. Raytech Corp.)

10:45 AM - 11:00 AM

[3D02] Electron beam energy dependence of Ac-225 production amount using an electron accelerator

*Takahiro Tadokoro[1], Kento Nishida[1], Yuichiro Ueno[1], Yuko Kani[1], Takahiro Watanabe[2], Takahiro Sasaki[2], Makiko Shimada[2], Hidetoshi Kikunaga[3], Shigeru Kashiwagi[3], Tsutomu Ohtsuki[4] (1. Hitachi,Ltd. R&D Group, 2. Hitachi,Ltd. Smart Life Business Management Division, 3. Tohoku Univ., 4. Kyoto Univ.)

11:00 AM - 11:15 AM

[3D03] Study on Ac-225 radiopharmaceutical production from Ra-226 by an electron LINAC

*Kunihiro Miyoshi[1], Masafumi Ozeki[1], Kotaro Nagatsu[2], Hidetoshi Kikunaga[3], Shigeru Kashiwagi[3], Mitsuru Uesaka[1] (1. UTokyo, 2. NIRS, 3. Tohoku Univ.)

11:15 AM - 11:30 AM

[3D04] Study on Ac-225 radiopharmaceutical production from Ra-226 by an electron LINAC

*Masafumi Ozeki[1], Kunihiro Miyoshi[1], Kotaro Nagatsu[2], Masashi Yamamoto[3], Hidetoshi Kikunaga[4], Shigeru Kashiwagi[4], Mitsuru Uesaka[1] (1. UTokyo, 2. NIRS, 3. Accuthera, 4. Tohoku Univ.)

11:30 AM - 11:45 AM

©Atomic Energy Society of Japan

低雑音電流敏感型前置増幅器 VIEC を用いた X 線コンピュータ断層撮影

X-ray Computed Tomography with a Low-noise Current-sensitive Preamplifier VIEC

*神野郁夫[1]，西川潤一郎[1]，尾鍋秀明[2]

[1]京都大学，[2]レイテック

新型電流敏感型前置増幅器 VIEC は，従来型より 3 桁近く小さい電流値の測定が可能であることを前回示した．今回は新型および従来型電流敏感型前置増幅器を用いた CT 測定を行い，CT 画像，CT 値プロファイルを比較する．

キーワード：X 線，CT，低被ばく，電流測定，低雑音，電流敏感型前置増幅器

緒言　X 線コンピュータ断層撮影(CT)では電流敏感型前置増幅器(電流 PA)を用いて X 線を測定する．この電流 PA は X 線由来の電流とともに検出器の暗電流をも電圧変換する雑音レベルが高い電子回路である．このため，有意な測定を行うには，暗電流の影響を低減すべく，大量の X 線を検出器に入射する必要がある．電流 PA の低雑音化のため，電荷敏感型前置増幅器を応用した電流 PA，VIEC を開発し，従来の電流 PA(IPA-6)の約 1/750 の電流値が測定可能であることを報告した[1]．本報告では，VIEC を用いた CT 画像および CT 値プロファイルを IPA-6 のそれらと比較し，低線量で CT 測定が可能であることを実証する．

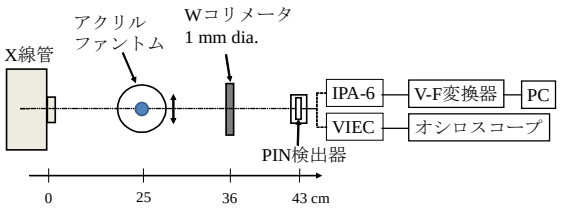


図 1.　実験配置図.

実験　実験配置を図 1 に示す. X 線管電圧は 100 kV であり，管電流は 1~3 mA とした．被検体は直径 30～50 mm のアクリルであり，中央の直径 5 mm の穴にヨウ素濃度 30 mg/cm^3 のヨウ素水溶液が注入されている．X 線は厚さ 1 mm，穴径 1 mm のタングステンコリメータを通過して, 5×5×0.5 mm の PIN 検出器に入射する．用いた VIEC は帰還容量電圧を手動でリセットするため, 測定に長時間を要する. そこで, 被検体を 0.4 mm ピッチで移動し透過撮影したデータを 30 回繰り返して CT データとした. IPA-6 では出力を電圧-周波数(V-F)変換器を通しパソコンでデータを取得した．VIEC では，出力電圧の時間変化をオシロスコープで記録し，オフラインで傾きを求め，電流値とした．

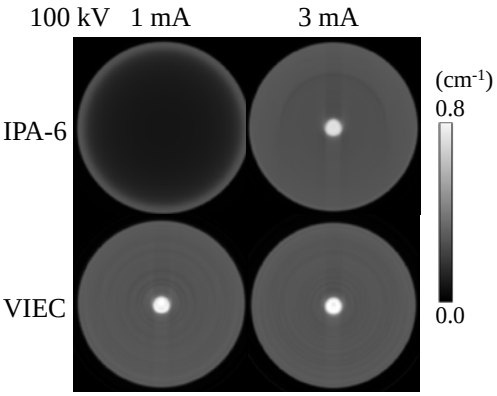


図 2.　VIEC および IPA-6 による直径 50 mm アクリルファントムの CT 画像.

結論　図 2 に VIEC および IPA-6 による CT 画像，図 3 に CT 値プロファイルを示す．IPA-6 では管電流 1mA の場合，被検体内部を通過した X 線による電流値が暗電流値以下となり，正常な測定ができない．一方，VIEC では管電流 1 及び 3 mA で CT 値プロファイルに変化がなく，低線量で CT 測定が可能である．今後，コリメータ径を小さくし，さらに低線量の測定を行う．

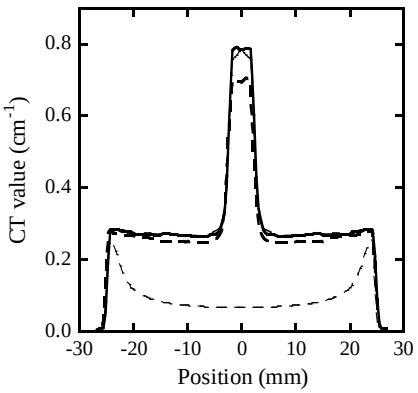


図 3.　VIEC(実線)と IPA-6(破線)による CT 値プロファイル．X 線管電流は 1 mA(細線)および 3 mA(太線).

[1] I. Kanno, H. Onabe, J. Nucl. Sci. Technol., **58**, 100-106 (2021).

*Ikuo Kanno[1] Junichiro Nishikawa[1] and Hideaki Onabe[2]

[1]Kyoto Univ., [2]Raytech Corp.

電子線形加速器を利用したAc-225製造量の電子線エネルギー依存性

Electron beam energy dependence of Ac-225 production amount using an electron accelerator

*田所 孝広[1], 西田 賢人[1], 上野 雄一郎[1], 可児 祐子[1], 渡辺 敬仁[2], 佐々木 貴裕[2],
島田 真生子[2], 菊永 英寿[3], 柏木 茂[3], 大槻 勤[4], 関本 俊[4], 稲垣 誠[4]
[1]日立研開, [2]日立ライフ事業統括本部, [3]東北大電子光, [4]京大複合研

ｱﾙﾌｧ線内用療法(TAT:Targeted Alpha Therapy)用核種として有望なAc-225に関して，小型高製造効率化が期待される電子線形加速器を利用した製造試験を実施した。電子線ｴﾈﾙｷﾞｰを変えた試験結果と、ｼﾐｭﾚｰｼｮﾝによるAc-225製造量の評価結果を比較したので、その結果を報告する。

キーワード：ｱﾙﾌｧ線内用療法，医療用放射性核種，Ra-226，Ac-225，電子線形加速器

1. 緒言

現在,TATに関する研究開発が世界中で進められている。TAT用核種として有望なAc-225は,現状,Th-229からの崩壊により製造されているが,製造量の不足が予測されており,加速器による製造が望まれている。

2. 試験条件、及び、測定・評価方法

試験条件を表 1 に示す。電子線ｴﾈﾙｷﾞｰ 33.3MeV、38.9MeV及び44.4MeVの3ｹｰｽで、Ac-225製造試験を実施した。原料には、石英容器内に封入したRa-226(Ra-226・Cl_2, 約50kBq)を用いた。Ac-225製造量をAc-225の子孫核種であるBi-213からのｶﾞﾝﾏ線の測定結果から導出し，PHITS[1]を用いた制動放射線の計算結果とAc-225生成断面積の理論値[2]を用いて評価した製造量と比較した。

表1 試験条件

電子線	ｴﾈﾙｷﾞｰ [MeV]	33.3	38.9	44.4
	平均電流 [μA]	138.8	125.7	157.9
	垂直方向径 [FWHM-mm]	6.1	4.6	2.8
	水平方向径 [FWHM-mm]	7.1	5.8	3.1
	照射時間 [hr]	6.0	5.95	6.0
Ra-226・Cl_2 [kBq]		48.6	49.9	49.1
試料-制動放射線発生位置間距離 [mm]		26.0	26.5	26.4

3. 結果・考察

表 2 に測定及び評価結果を示す。Ac-225製造量は、電子線ｴﾈﾙｷﾞｰの増加とともに増加するが、ｼﾐｭﾚｰｼｮﾝによる評価値に対する測定値は、電子線ｴﾈﾙｷﾞが高いほど小さくなっていることがわかった。

表2 測定及び評価結果

電子線ｴﾈﾙｷﾞｰ [MeV]	Ac-225製造量[Bq]		
	測定値(A)	評価値(B)	A/B
33.3	234.2	156.7	1.49
38.9	272.8	196.0	1.39
44.4	379.6	339.5	1.12

参考文献

[1] T. Sato et al. Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02, J. Nucl. Sci. Technol. 55. 684-690 (2018).

[2] TENDLE-2017 Nuclear data library Gamma sub-library for Ra(Z=88) and A=226, https://tendl.web.psi.ch/tendle_2017/gamma_html/Ra/GammaRa226xs.html

*Takahiro Tadokoro[1], Kento Nishida[1], Yuichiro Ueno[1],Yuko Kani[1], Takahiro Watanabe[2], Takahiro Sasaki[2], Makiko Shimada[2], Hidetoshi Kikunaga[3], Shigeru Kashiwagi[3], Tsutomu Ohtsuki[4], Shun Sekimoto[4], Makoto Inagaki[4]

[1]Hitachi, Ltd. Research & Development Group., [2]Hitachi, Ltd. Smart Life Business Management Division, [3]Research Center for Electron Photon Science, Tohoku University, [4]Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University.

電子線形加速器と Ra-226 を用いた Ac-225 放射性医薬品生成の検討
（1） 単離 Ra-226 ターゲット設計と Ac-225 収量評価

Study on Ac-225 radiopharmaceutical production from Ra-226 by an electron LINAC:
(1) Development of Ra-226 target and evaluation of Ac-225 yield

*三好 邦博[1], 尾関 政文[1], 永津 弘太郎[2], 菊永 英寿[3], 柏木 茂[3], 上坂 充[1]
[1] 東大, [2] 放医研, [3] 東北大

標的 α 線治療用の核種として注目される Ac-225 を、電子線形加速器と Ra-226 を用いて生成する実現可能性の検討を進めている。今回 Ra-226 を模擬した Ba ターゲットの作成と、実際の照射体系を想定した Ac-225 の収量計算を行なったので、その結果について報告する。

1. 緒言

近年、α 線放出核を用いた放射線医薬品による開発が世界中で進められているが、一般に α 線放出核の入手は容易ではない。電子線形加速器による制動放射線を用いた Ra-226(γ,n)Ra-225 光核反応は、α 線放出核である Ac-225 を生成する手法の 1 つとして注目されている。

2. Ac-225 収量評価

東北大学 ELPH での照射体系を想定し、PHITS による制動放射線データと TENDL-2019 データを用いて Ra-225 および Ac-225 の収量を評価した。その際、18.5 kBq の Ra-226 を標的とし 30 MeV, 100 μA, 8 時間照射を条件とした。

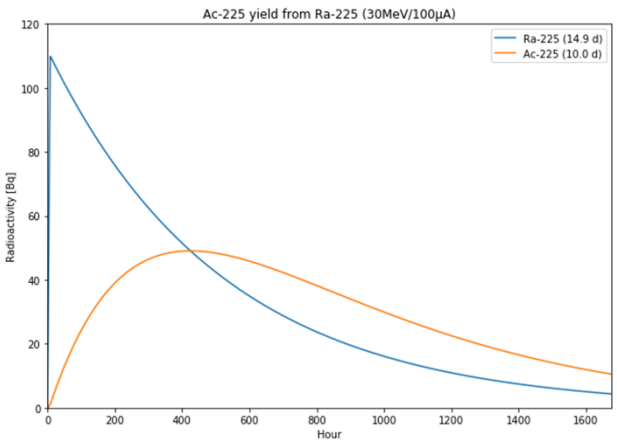


図 1　Ra-225/Ac-225 収量評価結果

3. Ra-226 ターゲット作成

Ra-226 ターゲットは電気めっき法にてアルミ板に電着させる方針とした。予備試験的に天然 Ba を Ra-226 の代替として利用し，ターゲット作成に関する電着装置及び電着条件の検討を行った。

4. 今後の予定

まず Ba ターゲットを用いて照射系全体の確認試験を行う。次に Ra-226 を用いた本試験を実施し、Ac-225 の収量評価および他核種の生成状況の評価を行い、実用化に向けた検討を進めていく。

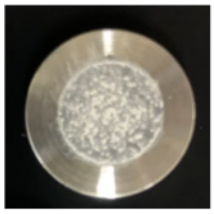


図 2　作成した Ba ターゲット

参考文献

[1] Tatsuhiko Sato et al., Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02, J. Nucl. Sci. Technol. 55(5-6), 684-690 (2018)

*Kunihiro Miyoshi[1], Masafumi Ozeki[1], Kotaro Nagatsu[2], Hidetoshi Kikunaga[3], Shigeru Kashiwagi[3], Mitsuru Uesaka[1]
[1]Univ. of Tokyo, [2]NIRS, [3]Tohoku Univ.

電子線形加速器と Ra-226 を用いた Ac-225 放射性医薬品生成の検討
（2）Ra-226 ハンドリング性と冷却効率を考慮した LINAC 専用照射容器設計

Study on Ac-225 radiopharmaceutical production from Ra-226 by an electron LINAC
(2) Design of LINAC irradiation container for Ra-226 considering handling ability and coolability

*尾関政文[1]，三好邦博[1]，永津弘太郎[2]，山本昌志[3]，菊永英寿[4]，柏木茂[4]，上坂充[1]
[1]東京大学，[2]放医研，[3]アキュセラ，[4]東北大

電子線形加速器を利用した Ac-225 生成を行う際, Ra-226 ハンドリングと冷却機構を考慮したターゲットリが重要である。Ra-226 ターゲット使用を想定して製作した空冷型ターゲットリと熱耐性試験結果を報告する。
キーワード：Ra-226, 電子線形加速器, 放射化, 熱設計

1. 緒言

Ra-226 は自然崩壊で Rn-222 ガスを放出するため, 密封を保持する必要がある。また照射中は密封容器に熱的負担があるため, 溶融を防ぐ冷却機構を備える必要がある。放射化の観点からアルミニウムを使用し，二重構造の照射容器を作製した。

2. PHITS と ANSYS による熱設計

電子線照射による発熱分布を PHITS で計算し，それを ANSYS の入力とすることで, 照射容器の温度分布を求めた。電子ビームは 30 MeV, 60 μA, 一次容器周りの境界条件を空冷として, 熱伝達係数 50 として計算した。その結果, アルミニウム温度上昇は融点以下の 376 ℃となることが分かった。

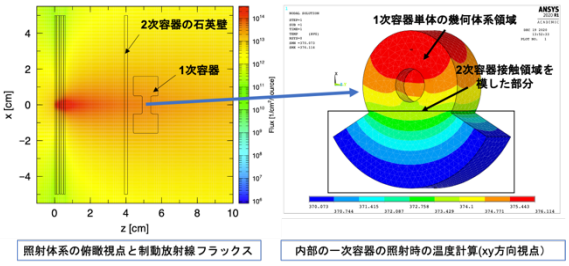


図 1　照射体系と熱計算結果

3. 熱耐性試験結果と考察

今回の熱耐性試験では Ra-226 の代替として Ba を使用した。8 時間照射した結果, 1 次容器, 2 次容器ともに溶融せずに熱耐性試験をクリアした。照射容器への熱的負担は電子線の影響が主である。さらなる照射体系や冷却機構の改善によって, RI の大量製造に必要な大電流の照射が可能になると考えられる。

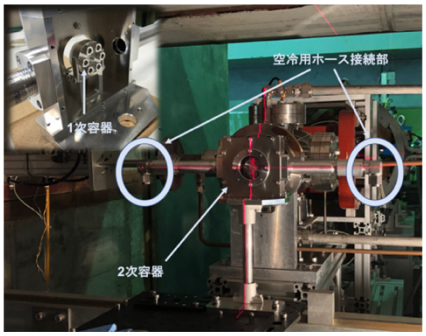


図 2　照射容器の外観

参考文献

[1] Tatsuhiko Sato et al., Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02, J. Nucl. Sci. Technol. 55(5-6), 684-690 (2018)
[2] Nagatsu Kotaro et al. 2019, 11th International Symposium on Targeted Alpha Therapy (TAT11).

*Masafumi Ozeki[1], Kunihiro Miyoshi[1], Kotaro Nagatsu[2], Masashi Yamamoto[3],
Hidetoshi Kikunaga[4], Shigeru Kashiwagi[4], Mitsuru Uesaka[1]
[1]Univ. of Tokyo, [2]QST, [3]Accuthera Inc., [4]Tohoku Univ.

Oral presentation | II. Radiation, Accelerator, Beam and Medical Technologies | 202-3 Neutron Source, Neutron Technology

[3D05-08] Neutronics &Small Neutron Facility

Chair: Kaoru Sakasai (JAEA)

Fri. Mar 19, 2021 2:45 PM - 4:00 PM Room D (Zoom room 4)

[3D05] Analysis of propagation of nuclear data uncertainty considering covariance in unfolding process

*Katsumi Aoki[1], Tadahiro Kin[1], Naohiko Otuka[2], Masaya Yamaguchi[1], Mary Alfonse George Mikhail[1], Md Kawchar Ahmed Patwary[1], Yukinobu Watanabe[1] (1. Kyushu Univ., 2. IAEA)

2:45 PM - 3:00 PM

[3D06] Evaluation of soft-error rates at the 18 MeV proton cyclotron-driven neutron source by energy-dependent neutron soft-error cross-sections

*Ryu Kiuchi[1], Hirotaka Sato[1], Takashi Kamiyama[1], Hidenori Iwashita[2], Yoshiharu Hiroshima[2], Yuichiro Okugawa[2], Michihiro Furusaka[1], Yoshiaki Kiyanagi[3] (1. Hokkaido Univ., 2. NTT Space Environment and Energy Laboratories, 3. Nagoya Univ.)

3:00 PM - 3:15 PM

[3D07] Characteristics of neutron spin-echo spectroscopy from the perspective of pulse time width

*Tatsuro Oda[1], Masahiro Hino[1], Hitoshi Endo[2], Hideki Seto[2], Yuji Kawabata[1] (1. Kyoto Univ., 2. KEK)

3:15 PM - 3:30 PM

[3D08] Improvement of the accelerator electron beam intensity and evaluation of the neutron beam at the compact neutron facility AISTANS

*koichi kino[1,2], Nagayasu Oshima[1,2], Hiroshi Ogawa[1,2], Brian O'Rourke[1,2], Hidetoshi Kato[1,2], Ryunosuke Kuroda[1,2], Daisuke Satoh[1,2], Ryoichi Suzuki[1,2], Norihiro Sei[1,2], Masahito Tanaka[1,2] (1. AIST, 2. ISMA)

3:30 PM - 3:45 PM

©Atomic Energy Society of Japan

アンフォールディング法における共分散を考慮した核データ不確かさの伝播解析

Analysis of propagation of nuclear data uncertainty considering covariance in unfolding process

*青木 勝海[1]，金 政浩[1]，大塚 直彦[2]，山口 真矢[1], Mary Alfonse George Mikhail[1],
Md Kawchar Ahmed Patwary[1]，渡辺 幸信[1]
[1]九大，[2]IAEA

原子炉や加速器中性子源の中性子スペクトルの測定手法として代表的なものとして多重箔放射化法がある。この手法では解スペクトルの導出に核データを応答関数としたアンフォールディングによる解析が必要である。本研究では、核データの不確かさの解スペクトルへの伝播を解析する手法を開発し、既存の代表的なアンフォールディングコードの不確かさ伝播をモンテカルロシミュレーションにて明らかにした。

キーワード：アンフォールディング、不確かさ伝播、ランダムサンプリング、共分散、多重箔放射化法、エネルギー微分中性子収量

1. 緒言

代表的な中性子スペクトル測定手法の一つに多重箔放射化法がある。放射化法は積分実験であるため、エネルギー微分中性子収量を導出するためにはアンフォールディングによる解析を行う必要がある。しかしながら、既存のアンフォールディングコード (GRAVEL や SAND-II など) の多くは核データの不確かさの伝播を取り扱うことができない。今回我々は、最もよく用いられる GRAVEL コードにおける核データの不確かさの伝播を評価する手法を提案し、その手法の性能検証を行う。

2. アンフォールディングにおける核データ不確かさの伝播解析

多重箔放射化法では、核データライブラリに格納されている中性子励起関数が応答関数となる。今回、JENDL-4.0 に格納されている励起関数が平均値となるように共分散に基づいてランダムサンプリングしたものを応答関数として用いる。また、多重箔内での核種生成量は PHITS（核データは JENDL-4.0 の値を使用）を用いて、C(d,n)中性子源（E_d = 20 MeV, 厚い炭素標的）によって照射して得られた値を使用した。そして、アンフォールディングによってエネルギー微分中性子収量を導出する。この一連の試行を繰り返し実施し、エネルギー微分中性子収量を 10,000 個得る。

3. 結果・考察

得られた 10,000 個のエネルギー微分中性子収量から、各中性子エネルギー群における中性子収量の標準偏差を導出する。その標準偏差をそのエネルギー群の中性子収量の不確かさとし、その結果を図 1 に示す。これより、中性子収量の不確かさにはエネルギー依存性があることがわかる。これまでアンフォールディングによる不確かさは概ね 20%近くあると言われることが多かったが、本解析によって、エネルギー領域によっては 5%程度の不確かさとなることが明らかとなった。

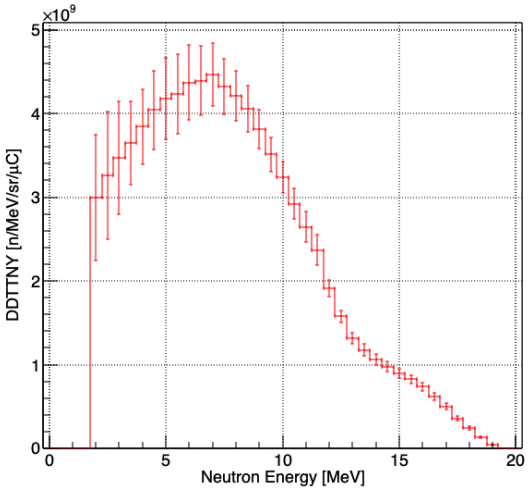


図 1. 開発した手法で導出したエネルギー微分中性子収量とその不確かさ

---

*Katsumi Aoki[1], Tadahiro Kin[1], Naohiko Otuka[2], Masaya Yamaguchi[1], Mary Alfonse George Mikhail[1], Md Kawchar Ahmed Patwary[1] and Yukinobu Watanabe[1]
[1]Kyushu Univ., [2]IAEA

実測された中性子エネルギー依存ソフトエラー断面積を用いた 18 MeV 陽子サイクロトロン施設中性子場におけるソフトエラー発生率評価

Evaluation of soft-error rates at the 18 MeV proton cyclotron-driven neutron source by energy-dependent neutron soft-error cross-sections

*木内 笠[1]，佐藤 博隆[1]，加美山 隆[1]，岩下 秀徳[2]，広島 芳春[2]，奥川 雄一郎[2]，古坂 道弘[1]，鬼柳 善明[3]

[1]北海道大学，[2]NTT 宇宙環境エネルギー研究所，[3]名古屋大学

高速中性子に起因する半導体メモリの中性子ソフトエラーが問題になっている。それを解決するに当たり、様々な中性子環境における中性子ソフトエラー発生率を推定することは不可欠な第一歩である。中性子環境の一つとして、18 MeV 陽子サイクロトロン施設中性子場におけるソフトエラー発生率の測定を行った。さらに、我々のグループにより既に測定済の幾つかの FPGA に対する 0.65 MeV から 800 MeV までの中性子エネルギー範囲におけるソフトエラー断面積と、粒子輸送シミュレーション計算で求めた中性子照射場の中性子エネルギースペクトルを用いて、ソフトエラー発生率の実測値をどの程度再現できるかについて検討した。

キーワード：高速中性子エネルギースペクトル，中性子ソフトエラー，エネルギー依存ソフトエラー断面積，陽子サイクロトロン中性子源，粒子輸送シミュレーション計算

1. 研究の背景と目的

半導体メモリの高集積化・微細化に伴い高速中性子に起因する中性子ソフトエラーが問題となっている。中性子ソフトエラーとは、半導体デバイスを構成するシリコン原子核に中性子が衝突して二次荷電粒子が発生し、その電荷によりメモリの保持情報が反転することで生じるエラーのことである。エラーの発生率は中性子場の中性子エネルギースペクトルとその中性子場にある半導体メモリのエネルギー依存ソフトエラー断面積[1]の積で計算できる。そこで、18 MeV 陽子サイクロトロン中性子源に関し、実測された中性子ソフトエラー発生率が、粒子輸送計算により得られた中性子エネルギースペクトルとエネルギー依存ソフトエラー断面積によって計算された発生率でどの程度再現できるかを調べた。

2. 中性子ソフトエラー発生率評価実験

実験は住重アテックス（株）所有の陽子エネルギーが 18 MeV のサイクロトロン中性子源を用いて行った。デザインルールが異なる数種類の FPGA（28 nm, 40 nm, 55 nm）に対して中性子を照射して中性子ソフトエラー発生数を測定した。測定された中性子ソフトエラー発生数から、加速器の陽子電荷量 1 μC 当たりの中性子ソフトエラー発生率を計算した。

3. 粒子輸送計算を用いた中性子ソフトエラー発生率の算出

前述の実験体系に対して MCNPX で粒子輸送計算を行って得られた試料位置における中性子エネルギースペクトルを図 1 に示す。また、このエネルギースペクトルと既知の中性子ソフトエラー断面積から中性子ソフトエラー発生率予測値を算出し、実験の結果得られた中性子ソフトエラー発生率と比較した結果を図 2 に示す。なお、用いた中性子ソフトエラー断面積について、断面積測定範囲外の 0.65 MeV 以下の領域については 0 cm^2/LSI とした。

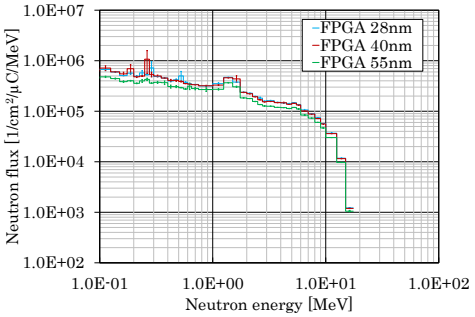


図1. 粒子輸送計算により算出した照射試料位置の中性子エネルギースペクトル

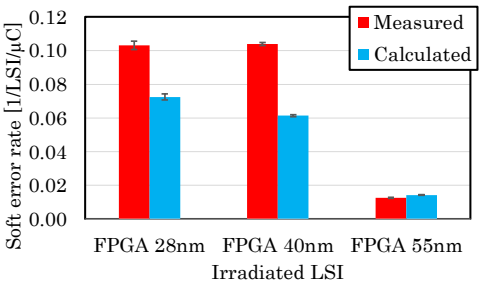


図2. 中性子ソフトエラー発生率の実験による実測値と計算値の比較

4. 考察と結論

中性子ソフトエラー発生率の計算値と実測値は概ね一致したが、ある程度の相違が観測された。これは、粒子輸送計算により求めた中性子エネルギースペクトルと実際のスペクトルとの差異と、1 MeV 以下の低エネルギー領域の中性子ソフトエラー断面積の測定精度の低さに起因していると考えられる。

参考文献

[1] H. Iwashita *et al*., “Energy-Resolved Soft-Error Rate Measurements for 1–800 MeV Neutrons by the Time-of-Flight Technique at LANSCE,” *IEEE Transactions on Nuclear Science* vol. 67, no. 11 (2020): 2363–2369.

*Ryu Kiuchi[1] , Hirotaka Sato[1] , Takashi Kamiyama[1] , Hidenori Iwashita[2] , Yoshiharu Hiroshima[2] , Yuichiro Okugawa[2] , Michihiro Furusaka[1] , Yoshiaki Kiyanagi[3]

[1]Hokkaido Univ., [2]NTT Space Environment and Energy Laboratories, [3]Nagoya Univ.

パルス時間幅の観点からみた中性子スピンエコー分光法の特徴

Characteristics of neutron spin-echo spectroscopy from the perspective of pulse time width

*小田達郎[1]，日野正裕[1]，遠藤仁[2]，瀬戸秀紀[2]，川端祐司[1]

[1]京大複合研，[2]KEK 物構研

J-PARC 物質・生命科学実験施設のパルス中性子ビームライン BL06 おいて，飛行時間法と組み合わせた中性子スピンエコー分光法の特徴に関する実験を行った．パルスビームの重要な特性であるパルス時間幅の波長依存性が，スピンエコーシグナルのコントラスト減少率から実験的に推定できることがわかった．

キーワード：中性子スピンエコー，パルス中性子ビーム，パルス幅，MIEZE，J-PARC

中性子スピンエコー法は，スピン自由度を利用して中性子のわずかな速度変化を検出することができる高分解能分光法である．大強度陽子加速器施設 (J-PARC) の物質・生命科学実験施設 (MLF) の中性子ビームライン BL06 [1] には 2 種類の共鳴型中性子スピンエコー分光器がある．Modulation of intensity with zero effort (MIEZE) と呼ばれる方法では，複数の高周波スピンフリッパーでつくられる中性子のエネルギー差から生じる干渉によって，偏極中性子強度の時間振動が観測される．コントラストの高い干渉パターンを観測するために，装置はスピンエコーと呼ばれる条件に調整されるが，そこからのずれ（離調と呼ぶ）がある場合のコントラスト減少率は波長分解能，したがってパルス幅 Δt_0 から決まる [2]．本研究では MIEZE 型スピンエコー分光器のコミッショニングで得られた実験データと MLF 中性子源のシミュレーションデータを比較することでこの特徴を検証する．解析の単純化のためにパルス中性子の放出時間分布として幅 Δt_0 をもつガウス関数を仮定すると，離調に対するコントラスト減少率もガウス関数となり，その拡がり σ はパルス幅 Δt_0 の逆数に比例する．図 1 に示した様々な離調に対する中性子波長 $\lambda = 4, 8, 12$ Å のエコーシグナルのコントラスト減少から，パルス幅を推定した結果（▲）と MLF 中性子源性能のシミュレーションデータ（○）[3] を比較したものを図 2 に示す．今後，ガウス関数を仮定しない実際のパルス形状を考慮した解析を行い，実験データの再現性について検討を行う予定である．

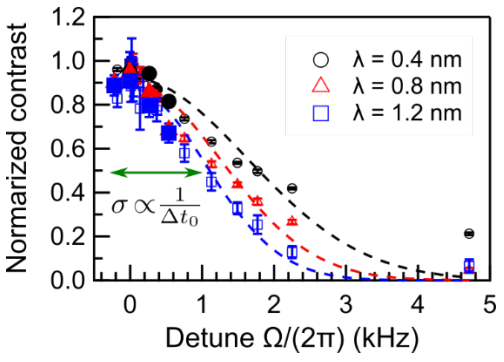


図 1. 離調 Ω に対するコントラスト変化．点線はガウス関数の最小二乗フィット[2]．

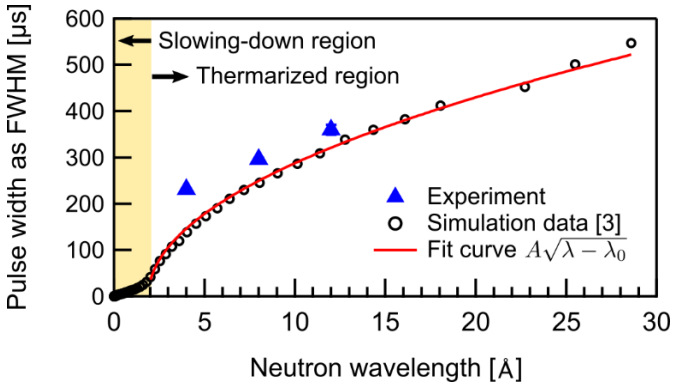


図 2. 半値全幅 (FWHM) で表したパルス幅の中性子波長依存性．シミュレーション（丸点）は MLF 公開データ [3]．

参考文献

[1] M. Hino, T. Oda, N.L. Yamada, H. Endo, H.Seto, M. Kitaguchi, M. Harada, and Y. Kawabata, J. Nucl. Sci. Technol. **54**, 1223 (2017).

[2] T. Oda, M. Hino, H. Endo, H. Seto, and Y. Kawabata, Phys. Rev. Appl. **14**, 054032 (2020).

[3] J-PARC.jp 「中性子源の性能」 https://j-parc.jp/researcher/MatLife/ja/instrumentation/

*Tatsuro Oda[1], Masahiro Hino[1], Hitoshi Endo[2], Hideki Seto[2], and Yuji Kawabata[1]

[1]Kyoto Univ., [2]KEK

小型中性子施設 AISTANS の加速器電子ビーム強度向上と中性子ビーム評価

Improvement of the accelerator electron beam intensity and evaluation of the neutron beam at the compact neutron facility AISTANS

*木野 幸一[1,2]，大島 永康[1,2]，小川 博嗣[1,2]，O'Rourke Brian[1,2]，加藤 英俊[1,2]，黒田 隆之助[1,2]，
佐藤 大輔[1,2]，鈴木 良一[1,2]，清 紀弘[1,2]，田中 真人[1,2]，豊川 弘之[1,2]，友田 陽[1,2]，林崎 規託[1,2,3]，
藤原 健[1,2]，古坂 道弘[1,2]，堀 利彦[2]，満汐 孝治[1,2]，室賀 岳海[2]，渡津 章[1,2]，帯名 崇[4]，
濁川 和幸[4]，古川 和朗[4]，佐藤 節夫[4]，猪野 隆[4]，大友 季哉[4]，瀬谷 智洋[4]，神山 崇[4]
[1]産総研，[2]新構造材料技術研究組合，[3]東工大，[4]高エネ研

産総研に設置の小型電子加速器中性子装置（AISTANS）は 2019 年に運転を開始し、2020 年から熱-冷中性子ビームを供給している。現在、加速器電子ビーム強度の向上と中性子ビーム評価に取り組んでいる。これらについて最新状況を報告する。

キーワード：パルス中性子ビーム，中性子源，電子加速器

1. 緒言

我々は産総研に設置したブラッグエッジイメージングに最適化した小型電子加速器中性子施設“AISTANS”[1,2,3]において 2020 年に熱～冷パルス中性子ビームの発生に成功し、そのスペクトルを本学会 2020 年秋の大会において発表した。これ以降、加速器電子ビーム強度向上のための電子加速器システムの高度化と中性子ビーム評価や試料計測の実施を進めており、これらの取り組みについて報告する。

2. 加速器電子ビーム強度向上のための取り組み

AISTANS は、高強度電子ビームからの熱負荷が問題となる加速器最下流部のチタン窓について、そこでの電子ビームプロファイルを、遷移輻射を通してイメージングするシステムを有している。強度向上に伴いプロファイルの定量分析が可能となるようシステム改善に取り組んでおり、この仕組みについて報告する。

3. 中性子ビーム評価及び試料計測

中性子ビームの評価として、中性子パルスの評価を、鉄鋼板状試料や鉄粉末試料を用いたブラッグエッジ測定にて行っている。暫定ではあるが、非結合型固体メタン減速材として期待される値に近い波長分解能が得られている。回折によるパルス計測の予定についても報告する。また、鉄鋼溶接、アルミニウム FSSW 試料等についても計測・解析を行なっており、ブラッグエッジスペクトルを紹介する。

謝辞

この成果は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託事業革新的新構造材料等研究開発の結果により得られたものです。

参考文献

[1] K.Kino *et al*., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A 927 (2019) 407–418.

[2] プレスリリース, 2020 年 1 月 22 日, https://www.nedo.go.jp/news/press/AA5_101275.html

[3] B.E. O'Rourke *et al*., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B 464 (2020) 41–44.

---

*Koichi Kino[1,2], Nagayasu Oshima[1,2], Hiroshi Ogawa[1,2], Brian O'Rourke[1,2], Hidetoshi Kato[1,2], Ryunosuke Kuroda[1,2], Daisuke Satoh[1,2], Ryoichi Suzuki[1,2], Norihiro Sei[1,2], Masahito Tanaka[1,2], Hiroyuki Toyokawa[1,2], Yo Tomota[1,2], Noriyosu Hayashizaki[1,2,3], Takeshi Fujiwara[1,2], Michihiro Furusaka[1,2], Toshihiko Hori[2], Koji Michishio[1,2], Takemi Muroga[2], Akira Watazu[1,2], Takashi Obina[2,4], Kazuyuki Nigorikawa[2,4], Kazuro Furukawa[2,4], Setsuo Sato[2,4], Takashi Ino[2,4], Toshiya Otomo[2,4], Tomohiro Seya[2,4], Takashi Kamiyama[2,4]

[1]AIST, [2]ISMA, [3]Tokyo Tech, [4]KEK

Oral presentation | II. Radiation, Accelerator, Beam and Medical Technologies | 201-1 Nuclear Physics, Nuclear Data Measurement/Evaluation/Validation, Nuclear Reaction Technology

[3E01-04] Nuclear Data Measurement 1

Chair: Tatsuya Katabuchi (Tokyo Tech)

Fri. Mar 19, 2021 9:30 AM - 10:45 AM Room E (Zoom room 5)

[3E01] Measurement of fission-fragment mass distributions in the multinucleon transfer channels of the $^{18}O+^{237}Np$ reaction

*Katsuhisa Nishio[1], Mark James Vermeulen[1], Kentaro Hirose[1], Kun Ratha Kean[2,1], Hiroyuki Makii[1], Riccardo Orlandi[1], Kazuaki Tsukada[1], Igor Tsekhanovich[3], Andrei Andreyev[4], Shouma Ishizaki[5] (1. JAEA, 2. TIT, 3. Bordeaux University, 4. University of York, 5. Kinki University)

9:30 AM - 9:45 AM

[3E02] Displacement cross-section of aluminum induced by neutrons and protons

*Shin-ichiro MEIGO[1], Keita Nakano[1], Hiroki Matsuda[1], Yosuke Iwamoto[1] (1. JAEA)

9:45 AM - 10:00 AM

[3E03] Experimental study on nuclear data for accelerator-driven systems using FFAG accelerator

*Hiroki Iwamoto[1], Shin-ichiro Meigo[1], Katsuhisa Nishio[1], Yoshihiro Ishi[2], Kentaro Hirose[1], Yosuke Iwamoto[1], Yasutoshi Kuriyama[2], Fujio Maekawa[1], Hiroyuki Makii[1], Keita Nakano[1] (1. JAEA, 2. Kyoto Univ.)

10:00 AM - 10:15 AM

[3E04] Measurement of nuclide production cross section of Bismuth by GeV proton irradiation

*Keita Nakano[1], Shin-ichiro Meigo[1], Hayato Takeshita[1,2], Hiroki Matsuda[1], Hiroki Iwamoto[1], Fujio Maekawa[1] (1. JAEA, 2. Kyushu Univ.)

10:15 AM - 10:30 AM

©Atomic Energy Society of Japan

$^{18}O + ^{237}Np$ の多核子移行反応を用いた核分裂片質量数分布の測定

Measurement of fission-fragment mass distributions in the multinucleon transfer channels of the $^{18}O+^{237}Np$ reaction

*西尾 勝久[1], M. J. Vermeulen[1], 廣瀬 健太郎[1], K. R. Kean[1,2], 牧井 宏之[1], R. Orlandi[1], 塚田 和明[1], I. Tsekhanovich[3], A. N. Andreyev[4,1], 石崎 翔馬[5], 奥林 瑞貴[5], 田中 翔也[5], 有友 嘉浩[5]

[1]原子力機構, [2]東工大, [3]ボルドー大学, [4]ヨーク大, [5]近畿大

$^{18}O+^{237}Np$ の多核子移行反応により 23 核種の複合核を生成し、これらの核分裂における核分裂片の質量数分布および励起エネルギー70MeV までの分布の変化を測定した。

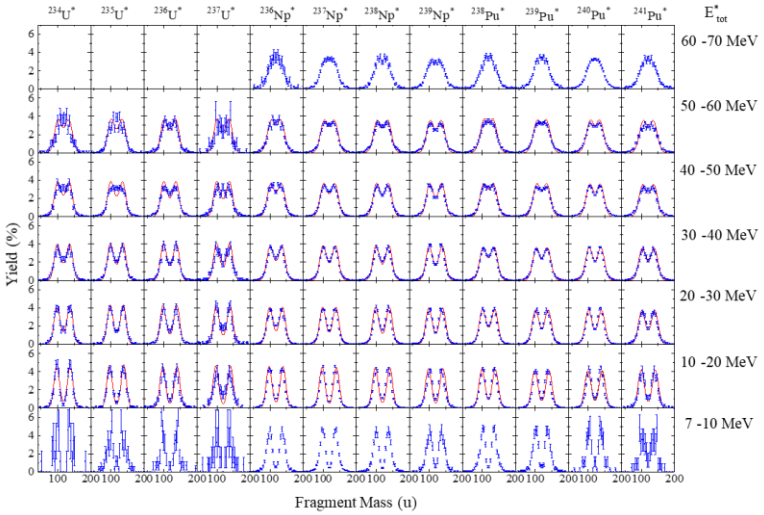
キーワード：多核子移行反応, 核分裂片質量数分布

1. 緒言

原子力機構では、多核子移行反応を用いることで多くの複合核核種を生成し、これらの核分裂片質量数分布を測定する手法を開発してきた[1,2]。本手法は、中性子数の多い核種など、既存の方法では取得が不可能な原子核の核分裂データを取得できる点で画期的である。本発表では、$^{18}O+^{237}Np$ 反応により 23 核種までのデータを取得した。なお、^{236}Np、^{238}Pu、および ^{245}Cm のデータは低エネルギー核分裂データとして最初のデータとなった。

2. 実験方法と結果

実験は、原子力機構タンデム加速器（東海）で得られる ^{18}O ビーム（162MeV）を ^{237}Np 薄膜標的に照射して行った。多核子移行反応で生成される散乱粒子をシリコンΔE-E 検出器で検出し、イベントごとに核種を同定し、複合核を識別した。この核分裂によって放出される２つの核分裂片を多芯線比例計数管によって検出し、運動学的に核分裂片の質量数を決定した。図は、得られた核分裂片質量数分布の一部である [3]。図の実線は、ランジュバン模型による計算結果であり、実験データをよく再現している。計算では、（１）反応後の励起エネルギーがすべて複合核に付与されると仮定するとともに、（２）マルチチャンス核分裂を取りいれた。発表では、角運動量についても議論する。



参考文献

[1] R. Léguillon et al., Phys. Lett. B **761**, 125 (2016).

[2] K. Hirose et al., Phys. Rev. Lett. **119**, 222501 (2017).

[3] M. J. Vermeulen et al., Phys. Rev. C **102**, 054610 (2020).

---

*Katsuhisa Nishio[1], Mark J. Vermeulen[1], Kentaro Hirose[1], Kun Ratha Kean[1,2], Hiroyuki Makii[1], Riccardo Orlandi[1], Kazuaki Tsukada[1], Igor Tsekhanovich[3], Andrei N. Andreyev[4,1], Shoma Ishizaki[5], Mizuki Okubayashi[5], Shoya Tanaka[5], Yoshihiro Aritomo[5]

[1]JAEA, [2]Tokyo Tech, [3]University of Bordeaux, [4]University of York, [5]Kindai University

中性子および陽子入射のアルミニウムの弾き出し断面積

Displacement cross-section of aluminum induced by neutrons and protons

*明午 伸一郎[1]，中野 敬太[1]，松田 洋樹[1]，岩元 洋介[1]

[1]J-PARC 原子力機構

極低温のアルミニウムにおける 14 MeV 中性子照射に伴う抵抗率変化の実験結果から、中性子入射の弾き出し断面積を導出した。中性子入射の断面積を陽子入射における断面積、および PHITS コードによる計算モデルと比較検討した。

キーワード：弾き出し断面積、NRT モデル、arc-dpa モデル、Al、PHITS

1. 緒言

加速器駆動核変換システム(ADS)等の大強度陽子加速器施設では、ビーム窓や標的に用いられる材料の損傷評価が重要となる。放射線に起因する材料の弾き出し損傷は、弾き出し断面積と粒子束との積による原子あたりの弾き出し数 (dpa)により評価される。弾き出し断面積の計算モデルの評価には、実験データが必要となるが、20 MeV 以上のエネルギー領域における陽子入射の実験データはほとんど無かったため、発表者らは、J-PARC 3 GeV シンクロトロン加速器および MR 加速器施設において、0.4～3 GeV、8 GeV および 30 GeV の運動エネルギーを持つ陽子を用いて弾き出し断面積を測定した[1)]。J-PARC の物質・生命科学実験施設(MLF)の核破砕中性子源では、アルミ合金製の陽子ビーム窓を用いている。建設計画中の ADS ターゲット試験施設(TEF-T)や中性子利用のための第 2 ターゲットステーション(TS2)では、陽子ビーム窓は MLF の 6 倍以上の高電流密度のビームを受けるため、さらに高い精度の弾き出し評価が必要となる。核破砕反応で生成する中性子による窓の弾き出しの評価には、中性子入射の弾き出し断面積の比較検討が重要であるので、極低温に冷却したアルミニウム試料に対する 14 MeV 中性子の照射に伴う実験データより、中性子入射における弾き出し断面積を導出し、陽子入射の弾き出し断面積と比較検討した。

2. 中性子入射による弾き出し断面積の導出

弾き出し断面積は、マティーセン則に従い試料の照射に伴う電気抵抗率変化を、粒子束とフレンケル対あたりの抵抗率増加を除する事により導出できる。LLNL の回転標的中性子源施設(RTNS-II)で実施した実験結果[2)]より、中性子入射の弾き出し断面積を導出した。この実験では、極低温(4.2 K)に冷却したアルミニウム試料に、D-T 反応による 14 MeV 中性子の照射に伴う抵抗率変化を測定した。陽子入射の断面積測定と同一のフレンケル対当たりの抵抗率増加を用い、14 MeV 中性子入射の弾き出し断面積を導出した。

3. 結果

図 1 に陽子および中性子入射の Al の弾き出し断面積の実験値を示し、一般的に dpa の評価に用いられる NRT モデルと欠陥の非熱的な再結合を補正した arc (athermal recombination corrected) dpa モデルによる PHITS の計算値と比較した。中性子入射も陽子入射と同様に、NRT モデルの計算は実験を過大評価し、arc-dpa モデルの計算は実験をよく再現した。計算による中性子入射の断面積は、20 MeV 付近で最大となり、これ以上のエネルギー領域において、陽子入射の断面積とほぼ等しくなった。中性子入射の場合では、低エネルギーの陽子において支配的なクーロン力の寄与が無い。陽子入射の高エネルギー領域では、原子核反応による弾き出し寄与が支配的となる。この結果、僅かなクーロン力の違いはあるものの、中性子および陽子入射の値はほぼ等しくなったと考えられる。

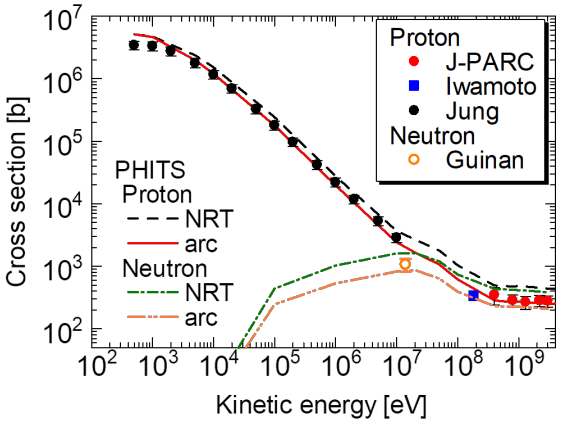


図 1 中性子および陽子入射のアルミニウムの弾き出し断面積の実験と計算との比較

1) H. Matsuda, et al., *J. Nucl. Sci. and Technol.* **57**, 1141 (2020)
2) M.W. Guinan, et al., *J. Nucl. Mater.* **133&134**, 357 (1985)

*Shin-ichiro MEIGO[1], Keita NAKANO[1], Hiroki MATSUDA[1], Yosuke IWAMOTO[1]
[1]J-PARC/JAEA

FFAG 陽子加速器を用いた ADS 用核データの実験的研究 研究の概要および鉄標的に対する中性子エネルギースペクトル測定

Experimental study on nuclear data for accelerator-driven systems using FFAG accelerator
Research outline and measurement of neutron energy spectrum for iron target

*岩元 大樹[1]，明午 伸一郎[1]，西尾 勝久[1]，石 禎浩[2]，廣瀬 健太郎[1]，岩元 洋介[1]，
栗山 靖敏[2]，前川 藤夫[1]，牧井 宏之[1]，中野 敬太[1]，岡部 晃大[1]，Orlandi Riccardo[1]，
大泉 昭人[1]，佐藤 大樹[1]，洲嵜 ふみ[1]，塚田 和明[1]，上杉 智教[2]，八島 浩[2]，森 義治[2]
[1]原子力機構，[2]京都大学

加速器駆動核変換システム(ADS)の研究開発を目的として、京都大学の FFAG 加速器を用いた ADS 用核データの実験的研究プログラムを開始した。

キーワード：中性子エネルギースペクトル，FFAG 加速器，加速器駆動システム，核データ測定，鉄標的

1. 緒言

加速器駆動核変換システム (ADS) の研究開発を目的として、京都大学の FFAG 加速器を用いた ADS 用核データの実験的研究プログラムを開始した。本プログラムは、「(1) 核破砕中性子エネルギースペクトルの測定」および「(2) 高エネルギー核分裂測定」の二つのサブプログラムから構成される。ADS 用核データとして欠落している数十 MeV～100 MeV 陽子入射反応に着目し、FFAG 加速器を用いて実験データを取得する。本発表では、プログラムの概要および実験の準備状況について紹介するとともに、最初の実験として実施する陽子入射鉄標的に対する中性子エネルギースペクトルの測定結果について報告する。

2. 中性子エネルギースペクトル測定

本実験では、FFAG 加速器により 100 MeV に加速された陽子ビームを真空チェンバ内に設置された厚さ 30 mm の鉄標的および厚さ 2 mm の鉄標的に照射し、標的から放出される中性子のエネルギースペクトルを、複数の放出角において測定する（それぞれの厚さの標的に対して TTNY および DDX と呼ぶ）。中性子の検出には小型の液体有機シンチレーション検出器（NE213＋光電子増倍管）を用いる。標的から約 5 m 離れた位置に中性子検出器を設置し、飛行時間法によってエネルギースペクトルを求める。**図 1** に FFAG 加速器施設と本測定における標的および真空チェンバの設置位置を示す。

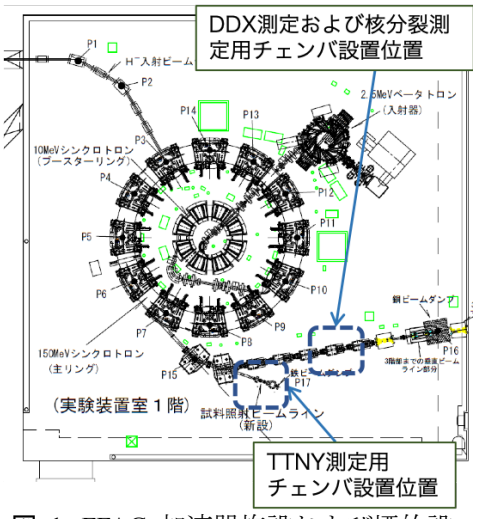


図 1: FFAG 加速器施設および標的設置位置

実験に先立って、室内散乱中性子の寄与を取り除くためのシャドーバーおよび標的を収めるための真空チェンバの開発を終了した。中性子検出器のテスト試験を原子力科学研究所の放射線標準施設 FRS で実施し、整備したデータ収集系とともに中性子のエネルギースペクトルを正常に測定できることを確認した。本実験は、今年度の 2 月および 3 月に実施する予定である。発表ではその測定結果についても報告する。

謝辞　本研究は文部科学省原子力システム研究開発事業の助成 JPMXD0219214562 を受けたものです。

---

*Hiroki Iwamoto[1], Shin-ichiro Meigo[1], Katsuhisa Nishio[1], Yoshihiro Nishi[2], Kentaro Hirose[1], Yosuke Iwamoto[1], Yasutoshi Kuriyama[2], Fujio Maekawa[1], Hiroyuki Makii[1], Keita Nakano[1], Kota Okabe[1], Riccardo Orlandi[1], Akito Oizumi[1], Daiki Satoh[1], Fumi Suzaki[1], Kazuaki Tsukada[1], Tomonori Uesugi[2], Hiroshi Yashima[2], Yoshiharu Mori[2]
[1]JAEA, [2]Kyoto University

GeV 領域の陽子による Bi の放射化断面積測定

Measurement of nuclide production cross section of Bismuth by GeV proton irradiation

*中野 敬太[1]，明午 伸一郎[1]，竹下 隼人[1,2]，松田 洋樹[1]，岩元 大樹[1]，前川 藤夫[1]
[1]JAEA，[2]九大

高レベル放射性廃棄物中の長寿命核種の処理法として加速器駆動核変換システム（ADS）が提案されている。ADS は中性子源標的として鉛ビスマス共晶合金を使用するため、残留放射能の推定に Pb と Bi の放射化断面積が必要とされている。本講演では、GeV 領域陽子による ^{209}Bi の放射化断面積の測定結果を報告する。
キーワード：加速器駆動核変換システム，^{209}Bi，放射化断面積，陽子, $(p, 4n)$

1. 緒言

高レベル放射性廃棄物中に含まれるマイナーアクチノイドの処理法として加速器駆動核変換システム (ADS) が提案されている。ADS では入射陽子ビームと中性子源標的及び冷却材として用いられる鉛ビスマス共晶合金の核反応により、あらゆる核種が生成される。生成される多様な核種を考慮した遮蔽設計や不純物挙動解析を行う上で、核種生成量を精度よく見積もる必要がある。これを踏まえ、当機構では J-PARC センターにて様々な標的核種に対する 0.4 から 3 GeV 陽子入射反応による核種生成断面積を測定してきた[1]。

本研究では、ADS 開発で重要となる ^{209}Bi に対する GeV 領域の陽子入射反応における核種生成断面積の新規測定を行う。得られた実験値と最新の核反応モデルによる計算を比較することで再現性の議論を行い、前述の解析の基礎となる核反応モデルのベンチマークを行う。

2. 実験

実験は J-PARC の 3 GeV シンクロトロン加速器施設 (RCS) にて実施した。陽子ビームライン上に真空チェンバーを設置し、内部に 25 mm 角、0.25 mm 厚の ^{209}Bi 標的を 3 つ設置した。各標的に対しそれぞれ 0.4, 1.5, 3.0 GeV の陽子を約2.9×10^{14}個照射した。照射陽子数は Current Transformer を用いて測定することで 3%程度の精度で得られた。3 時間冷却後、HPGe 検出器を用いた崩壊ガンマ線の測定により断面積を導出した。

3. 結果

図に本研究で得られた ^{209}Bi に対する陽子入射反応における ^{206}Po ($T_{1/2}$ = 8.8日) 生成断面積、先行研究による過去の測定値及び PHITS (INCL4.6/GEM) による計算値を示す。先行研究では、Titarenko らと Michel らの 1 GeV 以上の測定値に乖離が見られていたが、本研究はより小さな測定誤差で Titarenko らの結果を支持する測定値となった。新たに測定された 3 GeV のエネルギー点では、PHITS 計算値と実験値が統計誤差及び入射陽子数の誤差の範囲内で一致した。

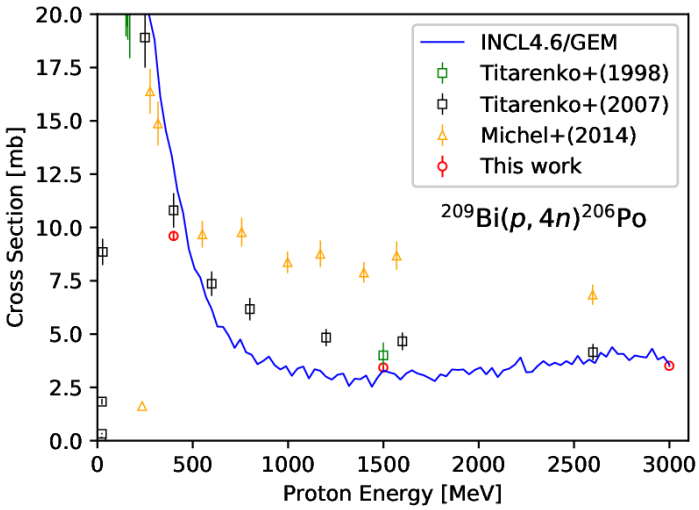


図. 得られた ^{206}Po 生成断面積。

参考文献

[1] H. Matsuda et al., J. Nucl. Sci. Technol. 55(8), 995-961 (2018).

---

*Keita Nakano[1], Shin-ichiro Meigo[1], Hayato Takeshita[1,2], Hiroki Matsuda[1], Hiroki Iwamoto[1], and Fujio Maekawa[1]
[1]JAEA, [2]Kyushu Univ.

Oral presentation | II. Radiation, Accelerator, Beam and Medical Technologies | 201-1 Nuclear Physics, Nuclear Data Measurement/Evaluation/Validation, Nuclear Reaction Technology

[3E05-08] Nuclear Data Measurement 2

Chair: Shin-ichiro Meigo (JAEA)

Fri. Mar 19, 2021 10:45 AM - 12:00 PM Room E (Zoom room 5)

[3E05] Development of a neutron detector for nuclear data measurement using high-intensity neutron beam

*Hideto Nakano[1], Tatsuya Katabuchi[1], Gerard Rovira[2], Yu Kodama[1], Kazushi Terada[3], Atsushi Kimura[2], Shoji Nakamura[2], Shunsuke Endo[2] (1. Tokyo Tech, 2. JAEA, 3. Kyoto Univ.)

10:45 AM - 11:00 AM

[3E06] Measurements of neutron capture and total cross-sections and resonance analysis of ^{181}Ta

*Shunsuke Endo[1], Atsushi Kimura[1], Shoji Nakamura[1], Osamu Iwamoto[1], Nobuyuki Iwamoto[1], Gerard Rovira[1] (1. JAEA)

11:00 AM - 11:15 AM

[3E07] Isomer production ratio in neutron capture reactions on 112Cd

*Takehito Hayakawa[1], Yosuke Toh[2], Atsushi Kimura[2], Shoji Nakamura[2], Toshiyuki Shizuma[1], Nobuyuki Iwamoto[2], Toshitaka Kajino[3], Satoshi Chiba[4] (1. National Institutes for Quantum and Ragiological Science and Techonology, 2. Japan Atomic Energy Agency, 3. Beihang University, 4. Tokyo Institute of Techonology)

11:15 AM - 11:30 AM

[3E08] Photon energy dependence of photo-neutron production from the ^{197}Au(g,xn) reaction

*Tuyet Kim Tran[1], Toshiya Sanami[1,2], Hirohito Yamazaki[1,2], Toshiro Itoga[3], Yasuhito Sakaki[2], Linh Thi Truc Nguyen[4], Yoichi Kirihara[5], Hiroshi Nakashima[6], Shuji Miyamoto[7], Yoshihiro Asano[2] (1. SOKENDAI/KEK, 2. High Energy Accelerator Research Organization (KEK), 3. Japan Synchrotron Radiation Research Institute (JASRI), 4. University of Science, VNU-HCM, Vietnam, Nuclear Technique Laboratory , 5. Japan Atomic Energy Agency (JAEA) , 6. Hokkaido University, 7. University of Hyogo)

11:30 AM - 11:45 AM

©Atomic Energy Society of Japan

高強度中性子ビームを用いた核データ測定のための中性子検出器の開発

Development of a neutron detector
for nuclear data measurement using high-intensity neutron beam

*中野 秀仁[1], 片渕 竜也[1], Gerard Rovira[2], 児玉 有[1], 寺田 和司[3]
木村 敦[2], 中村 詔司[2], 遠藤 駿典[2]
[1]東京工業大学, [2]日本原子力研究開発機構, 3 京都大学

核破砕中性子源による高強度の中性子ビームを直接測定するための中性子検出器を開発した。大強度陽子加速器施設(J-PARC)での中性子核データ測定研究において、高強度の入射中性子を直接、精度良く計測するための中性子モニターが必要とされている。本発表では、背景、目的(開発目標)、検出器の設計、性能試験及び試験結果について報告する。

キーワード：中性子検出器，J-PARC，核データ，核破砕中性子源，プラスチックシンチレータ

1. 緒言

核破砕中性子源の登場により、放射性核種のより高精度な中性子核データ測定が可能になった[1]。入射中性子数データは、断面積を導出するために必須の物理量である。従来の中性子検出器は不感時間が大きく核破砕中性子源からの高強度中性子ビームを直接測定することが難しい。高強度中性子ビームの照射による高検出率環境下での安定動作が開発する上での課題である。そのため、常時入射中性子を直接モニターできる新しい中性子検出器が必要とされている。

2. 実験

高検出率環境下で安定動作可能な中性子検出器を設計、製作した。適切な検出効率を得るために、^{6}LiF 薄膜と薄いシート型プラスチックシンチレータ、光電子増倍管の組み合わせを採用した。^{6}Li(n,t)^{4}He 反応により中性子を検出する。製作した中性子検出器を J-PARC の中性子核反応測定装置(ANNRI)で高強度中性子を照射し、性能試験を実施した。中性子エネルギーは飛行時間（TOF）法により決定した。光電子増倍管からの信号は TOF－波高の 2 次元データとして記録した。高速データ収集を可能にするために、データ収集系は CAEN V1720 を使用し波形取り込み法を採用した。本測定で ^{6}LiF 薄膜を使用し、バックグラウンド測定として ^{nat}LiF 薄膜を使用した。中性子源から 28.59m の位置に中性子検出器を設置した。

3. 結果

得られた波高スペクトルを図 1 に示す。^{6}Li(n,t)^{4}He 反応からの放出荷電粒子がピークとして観測できることが確認された。さらにデータ解析を行い、入射中性子スペクトルを導出した。本発表では、設計した検出器や性能試験、および得られた結果について報告する。

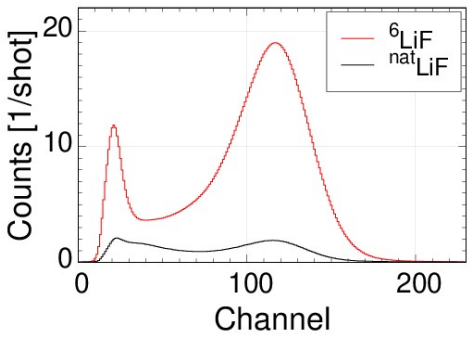


図 1 波高スペクトル

参考文献

[1] K Kino, et al. A,Vol. 626, pp. 58–66, 2011.

* Hideto Nakano [1], Tatsuya Katabuchi [1], Gerard Rovira [2], Yu Kodama[1], Kazushi Terada[3], Atsushi Kimura[2], Shoji Nakamura[2], Shunsuke Endo[2]

[1] Tokyo Institute of Technology, [2] Japan Atomic Energy Agency, [3]Kyoto Univ.

^{181}Ta の中性子捕獲断面積と全断面積の測定及び共鳴解析

Measurements of neutron capture and total cross-sections and resonance analysis of ^{181}Ta

*遠藤　駿典[1]，木村　敦[1]，中村　詔司[1]，岩本　修[1]，岩本　信之[1]，Gerard Rovira[1]
[1]原子力機構

原子炉構造材に含まれIAEAのクリアランスの対象となっている^{181}Taの中性子断面積および共鳴パラメータの高精度化を目指し、J-PARC・MLF・ANNRIにて中性子捕獲断面積と全断面積を測定した。得られた断面積の結果を共鳴解析コードREFITにより解析し、共鳴パラメータを導出した。

キーワード：タンタル 、中性子捕獲断面積、全断面積、J-PARC・MLF・ANNRI、REFIT、共鳴パラメータ

1. 緒言

^{181}Taの中性子吸収で生じる^{182}Ta(半減期114日)はIAEAのクリアランスの対象になっていることから[1]、生成放射能予測の観点でその断面積は重要である。また温度によって共鳴の幅が変化することを利用して試料の温度測定の研究が進められており[2]、その研究における透過率測定とPHITSによるシミュレーションからJENDL-4.0に載録された^{181}Taの第一共鳴の共鳴パラメータが異なっている可能性が指摘された[3]。このような現状を踏まえ、本研究では^{181}Taの中性子捕獲断面積測定と透過率測定(全断面積)の二つの測定の結果を組み合わせて、REFITコードによる共鳴解析を行うことで、共鳴パラメータの高精度化を目指した。

2. 測定

測定は大強度陽子加速器施設(J-PARC)の物質・生命科学実験施設(MLF)にある中性子核反応測定装置(ANNRI)にて行った。中性子飛行時間法(TOF 法)を用いて中性子のエネルギーを決定した。中性子全断面積(透過率)の測定は飛行距離28 mの位置に設置されたリチウムガラス検出器を用いて行い、試料を透過した中性子を計測した。試料として25 μm、100 μm、2 mm厚の三種類の純度99.9%の天然のTa試料を使用した。捕獲断面積測定は飛行距離21.5mの位置に設置されたゲルマニウム検出器を用いて行い、4 mmϕ、6 μm厚の天然のTa試料の中性子捕獲反応により生じるガンマ線を測定した。

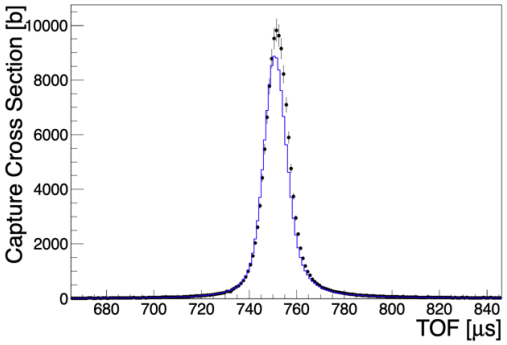


図 1 得られた捕獲断面積(黒点)と分解能関数を考慮したJENDL-4.0の断面積(青線)

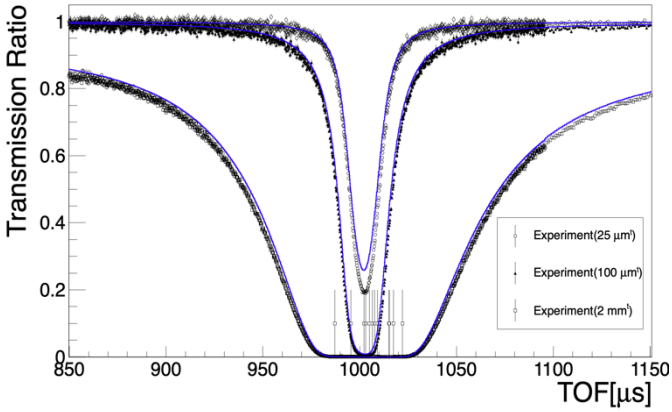


図 2　得られた透過率とJENDL-4.0(青線)

3. 結論

4.2eV の第一共鳴に対して得られた中性子捕獲断面積と透過率をJENDL-4.0とともにそれぞれ図1、2に示す。この他にもいくつかの共鳴でJENDL-4.0と断面積や共鳴エネルギーに差異があることを確認した。本講演では実験の詳細とともに得られた断面積と共鳴パラメータの結果について報告する。

参考文献

[1] IAEA Safety Standard Series No, RS-G-1.7, “Application of the Concepts of Exclusion Exemption and Clearance”, 2004

[2] T. Kai et al, Physics Procedia 88, (2017) 306

[3] 原かおる 他, “J-PARCにおけるTa-181中性子透過測定とシミュレーション計算”, 原子力学会 2019年春の年会

*Shunsuke Endo[1], Atsushi Kimura[1], Shoji Nakamura[1], Osamu Iwamoto[1], Nobuyuki Iwamoto[1] and Gerard Rovira[1]
[1]JAEA

^{112}Cd の中性子捕獲反応における核異性体生成比

Isomer production ratio in neutron capture reactions on ^{112}Cd

*早川 岳人[1]、藤 暢輔[2]、木村 敦[2]、中村 詔司[2]、静間 敏行[1]、岩本 信之[2]、
梶野 敏貴[3]、千葉 敏[4]
[1]量子科学技術研究開発機構、[2]日本原子力研究開発機構、[3]Beihang University、[4]東京工業大学

J-PARC の MLF の ANNRI を用いて、^{112}Cd をターゲットにして中性子捕獲γ線の計測を行った。^{113}Cd の基底状態のスピンとパリティーは 1/2$^+$であるが、264keV には 11/2$^-$のアイソマーが存在する。γ線の強度比から共鳴状態のスピンとパリティーを同定した。

キーワード：中性子捕獲反応、γ線核分光

1. 実験

アイソマーへの中性子捕獲反応断面積の計測方法として、中性子捕獲反応γ線の全エネルギーを計測する手法がある[1]。しかし、基底状態とアイソマーのエネルギー差が小さい場合には、Ge 半導体検出器によるγ線計測により、基底状態とアイソマーへの分岐比を中性子のエネルギーの関数として計測する手法が有効な方法の一つである[3]。そこで、本研究では ANNRI を用いて実験を行った。同位体濃縮試料に中性子を照射し、飛行時間測定法でγ線が検出された時刻とエネルギーを同時に計測した。図 1 の左は中性子のエネルギーでゲートしたγ線スペクトルの例である。図 1 の右は計測された ^{113}Cd の核構造を示す。基底状態とアイソマーに崩壊するγ線を計測した。これらのγ線強度からアイソマー生成比を評価し、さらに統計モデルの計算結果と比較した。これらのアイソマー生成比から、共鳴状態のスピンとパリティーを同定できる場合があることが判明し、本手法は共鳴状態の計測に有効である。

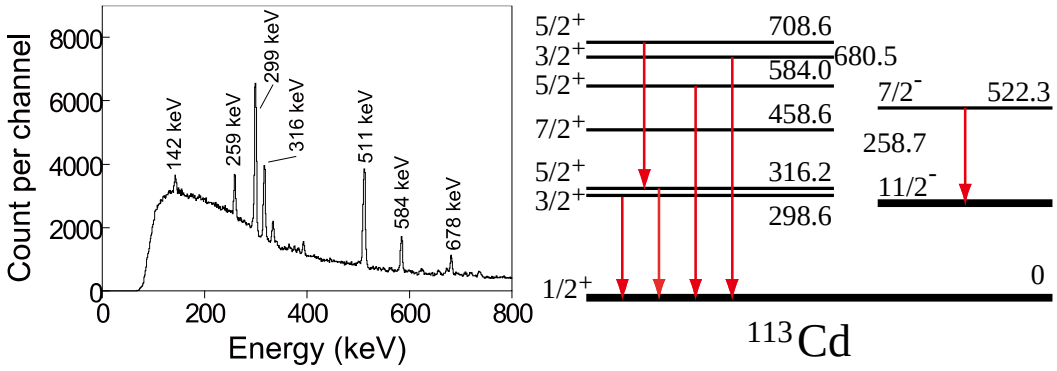


図 1　γ線スペクトルの例（右）、^{113}Cd の部分的なレベルスキーム（左）

参考文献

[1] D. Denis-Petit, et al. Phy. Rev. C 94, 054612 (2016).
[2] K. Kino et al., Nucl. Instr. Methods Phys. Res. A 736, 66 (2014).
[3] T. Hayakawa et al., Astrophys. J. 707, 859 (2009).
[4] T. Hayakawa et al., Phys, Rev. C. 94, 055803 (2016).

*Takehito Hayakawa[1], Yosuke Toh[2], Atsushi Kimura[2], Shoji Nakamura[2], Toshiyuki Shizuma[1], Nobuyuki Iwamoto[2], Toshitaka Kajino[3], Satoshi Chiba[4]
[1]National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology, [2]Japan Atomic Energy Agency, [3]Beihang Uni., [4]Tokyo Institute of Technology

Photon energy dependence of photo-neutron production from the ^{197}Au(γ,xn) reaction

*T.K.Tuyet[1], T.Sanami[1,2], H.Yamazaki[1,2], T.Itoga[3], Y.Sakaki[2], N.T.T.Linh[4], Y.Kirihara[5], H.Nakashima[6], Y.Namito[1,2], S.Miyamoto[7], Y.Asano[2]

[1]SOKENDAI, [2]KEK, [3]JASRI, [4]VNU-HCM, [5]JAEA, [6]Hokkaido University, [7]University of Hyogo

Double differential cross sections of the ^{197}Au(γ,xn) reaction for 14 MeV, 17 MeV and 20 MeV linearly polarized photon were measured at BL-01, NewSUBARU. The neutron energy distribution as a function of incident photon energy was discussed for the experimental data.

Keywords: photo-nuclear reaction, photon energy dependence, polarized photon, double differential cross section.

Introduction: The experimental data on double differential cross section (DDX) of photoneutron emission are important to evaluate photonuclear reaction models and parameters. In our previous studies, the energy spectra of photoneutron emitted from (γ,xn) reaction were obtained for medium-heavy targets with 16.6 MeV polarized photon [1,2]. The result indicates different angular dependences of low and high energy components of neutrons for all targets, and, the amount of high energy component increases with mass number of target. The energy distributions of the high energy components were not consistent with theoretical calculation [3]. Thus, the model implemented in the calculation should be improved to reproduce the experimental data. For the improvement, we measured additional experimental data on DDXs of the ^{197}Au(γ,xn) with different energies of the incident photons.

Data taking and analysis: To study the energy dependence of ^{197}Au(γ,xn) DDX, we used the same experimental setup mentioned in [2], but change the energy of incident photons. The mono-energetic, horizontal polarized photons were prepared through laser-Compton backscattering (LCS) that was collisions of the laser photons (λ=1.064 μm) and the high-energy electron beams at the NewSUBARU, BL-01. The photon energy is amplified by $4\gamma_L^2$ times at 180^0 back-scattering, where γ_L is the Lorentz factor of high-energy electrons. The electron's energies were adjusted to 892.6 MeV, 982.4 MeV, and 1068.8 MeV to select different LCS photon's maximum energies of 14 MeV, 17 MeV and 20 MeV, respectively. LCS photons were collimated to a gold target. Photoneutrons generated in the target were detected by a NE213 scintillator (12.7 cm^{ϕ}×12.7 cm^{L}) placed at 90° horizontally and 60 cm away from the target. Because NE213 scintillators can detect neutron and gamma from target, pulse shape discrimination technique was applied to separate neutron-gamma. The neutron energy was determined using time of flight method. The number of the incident photons were counted by plastic scintillator with a 5 mm thickness. The same data analysis mentioned in previous study [2] was applied. The DDX was obtained by the spectrum normalized with solid angle, number of incident photons, photon attenuation and neutron attenuation factors.

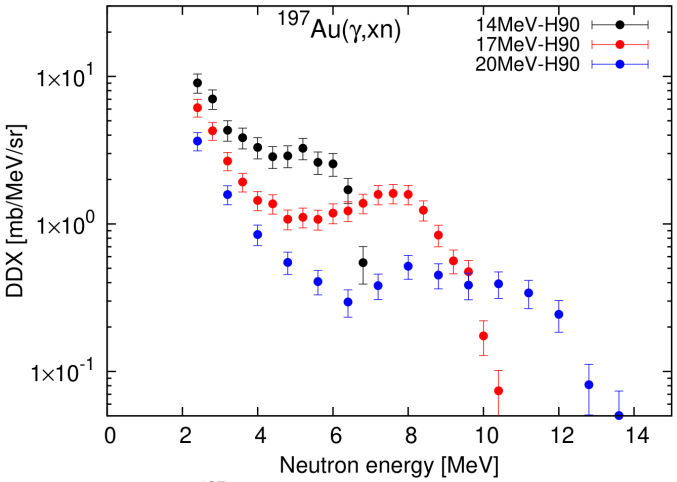


Fig. 1. DDX of ^{197}Au(γ,xn) measured with different γ energies.

Results: Figure 1 shows DDXs of the ^{197}Au(γ,xn) reaction for three photon energies at horizontal 90 degrees with respect to the incident photon direction. The black, red, and blue points are the DDX for 14 MeV, 17 MeV, and 20 MeV photon energies. The spectra indicate two energy components for all the incident photon energies. The low energy component shows evaporation shape and high energy doesn't. The 14 MeV result shows the highest neutron yield among three energies, that corresponds to energy dependence of the ^{197}Au(γ,xn) reaction cross section. The maximum energy of neutrons increases and the slopes of energy distribution of evaporation shaped component becomes gentle with the photon energy. The specific discussion on the photon energy dependence will be presented at the meeting.

References

[1] Y.Kirihara et al., J.Nucl.Sci.Technol. 57 (2020) 444-456
[2] T.K.Tuyet et al., Nucl. Intrum. Methods A 989:164965 (2021)
[3] T.K.Tuyet et al., JAEA-Conf 2020-001

Oral presentation | II. Radiation, Accelerator, Beam and Medical Technologies | 201-1 Nuclear Physics, Nuclear Data Measurement/Evaluation/Validation, Nuclear Reaction Technology

[3E09-12] Fission Theory 1

Chair: Katsuhisa Nishio (JAEA)

Fri. Mar 19, 2021 2:45 PM - 3:50 PM Room E (Zoom room 5)

[3E09] Improvement of fission calculation based on the 4D Langevin model

*Kazuya Shimada[1], Xuan Zhang[1], Chikako Ishizuka[1], Satoshi Chiba[1] (1. Tokyo Tech)

2:45 PM - 3:00 PM

[3E10] Study of fission fragment shape and fission mechanism using 4D Langevin model

*Xuan Zhang[1], Fedir Ivanyuk[2], Chikako Ishizuka[1], Tsunenori Inakura[1], Satoshi Chiba[1] (1. Tokyo Tech, 2. Kiev Institute for Nu Resh)

3:00 PM - 3:15 PM

[3E11] Transition in systematics of nuclear properties of fission fragments from actinoids to superheavy nuclei

*Chikako Ishizuka Ishizuka[1], Xuan Zhang[1], Mark Usang[2], Fedir Ivanyuk[3], Satoshi Chiba[1] (1. Tokyo Tech, 2. Malaysian Nuclear Agency, 3. Kiev Institute for Nuclear Research)

3:15 PM - 3:30 PM

[3E12] Study of fission dynamics with a multi-dimensional Langevin equation using Cassini shape parameterization

*Takahiro Wada[1], Kazuki Okada[1] (1. Fac. Eng. Sci., Kansai Univ.)

3:30 PM - 3:45 PM

©Atomic Energy Society of Japan

4 次元ランジュバン模型による核分裂計算の定量性の向上

Improvement of fission calculation based on the 4D Langevin model

*島田 和弥[1]，張 旋[1]，石塚 知香子[1]，千葉 敏[1]

[1]東工大

本研究では、我々が開発した 4 次元ランジュバン模型を用い、これまで 3 次元模型で決定してきたネックパラメータを最適化し、さらに各動力学変数のゼロ点振動エネルギーに相当するパラメータを導入して、核データ整備に向けて ^{236}U 等の TKE 分布と分裂片質量数分布を同時に高精度で再現する改良を行った。

キーワード：原子核物理，核データ，核分裂，運動エネルギー，ランジュバン模型、ゼロ点振動

1. 緒言

^{236}U などの核分裂の機構解明は基礎研究や工学的応用の観点から重要である。従来、計算には 3 次元ランジュバン模型が多く用いられてきたが、他グループの行っている 3 次元模型ではパラメータを原子核毎に設定する必要があり物理的根拠や予測能力に欠け、改善の余地があった。核分裂では多くの物理量が相関を持っているため、それらに対して統一的な記述を行えることが重要である。そこで、我々は 4 次元ランジュバン模型を開発した[1]。本研究では、これまで 3 次元模型で決定し固定してきたパラメータを最適化し、さらに物理的に合理的な新たなゼロ点振動パラメータを導入し、4 次元ランジュバン計算により ^{236}U の分裂片全運動エネルギー（TKE）の励起エネルギー依存性や質量数分布の高精度での系統的再現を目指し、核データ評価のツールとして利用可能とすることを目的とした。

2. 方法

自由エネルギーは 2 中心模型に基づいて微視的巨視的理論により計算した。さらに、Strutinsky 法と BCS ペアリングの微視的エネルギー補正を取り入れた。本研究ではネックパラメータを調整し、さらにゼロ点振動の振動数を自由度毎に設定する改良を行った。

3. 結果

入射中性子エネルギーと TKE の実験値[2]、計算結果の関係は図 1 のようになった。TKE の絶対値、並びに励起エネルギー増加に伴う TKE 減少がよく再現された。同時に TKE の標準偏差も大幅にずれることなく再現された。また、分裂片の質量数分布は図 2 のようになり、原子力で重要な低エネルギーでの再現がよくできていることが確認された。現在、マルチチャンス核分裂の補正を行いさらなる改良を施している。

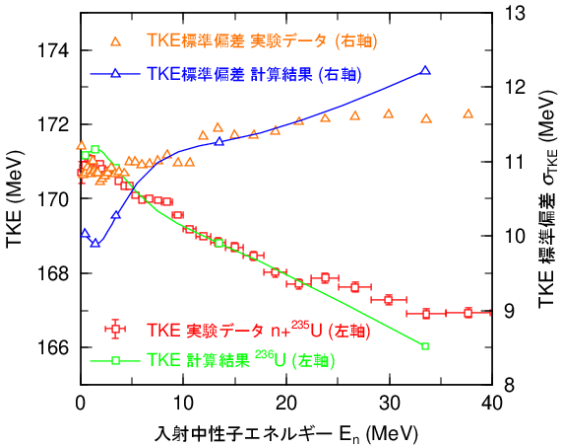


図 1 入射中性子エネルギーと TKE の関係

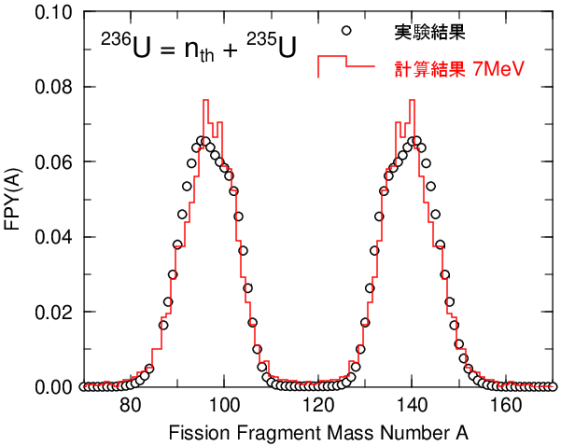


図 2 分裂片の質量数分布

4. 結論

4 次元ランジュバン模型の改良とパラメータの調整により、励起エネルギー増加に伴う分裂片 TKE 減少傾向と 2 山の分裂片質量数分布をよく再現することができた。

参考文献

[1] Chikako Ishizuka, Mark D. Usang, Fedir A. Ivanyuk, Joachim A. Maruhn, Katsuhisa Nishio, and Satoshi Chiba, Phys. Rev. C 96, 064616 (2017)

[2] D. L. Duke, F. Tovesson, A. B. Laptev, and S. Mosby, F.-J. Hambsch, T. Bry´s, and M. Vidali, Phys. Rev. C 94, 054604 (2016)

*Kazuya Shimada[1], Xuan Zhang[1], Chikako Ishizuka[1] and Satoshi Chiba[1]

[1]Tokyo Tech

4 次元ランジュバン模型を用いた核分裂片形状とそれに基づく核分裂機構の研究

Study of fission fragment shape and fission mechanism using 4D Langevin model

*張旋[1]，石塚知香子[1]，稲倉恒法[1]，Fedir A. Ivanyuk[2]，千葉敏[1]

[1]東工大 先導原研，[2]キエフ原子核研究所

今までの研究では我々が開発した 4 次元ランジュバン模型により，個々の核分裂片の形状を表す四重極モーメント Q_{20} 及び八重極モーメント Q_{30} の計算を可能にし，ウラン領域核では Q_{20} の核分裂片質量数依存性は即発中性子の鋸歯構造と非常に似た構造を示すことが分かった。核分裂片の四重極モーメント Q_{20} の質量数依存性が鋸歯構造，つまり重い分裂片側の Q_{20} が小さくなる要因は，ウラン領域においては二重魔法数を持つ安定核 ^{132}Sn で，超重核においては同じく二重魔法数を持つ ^{208}Pb であることを本研究で明らかにした。

キーワード：核データ，核分裂，ランジュバン模型，核分裂片

1. 緒言

ウラン領域から超重核領域にかけて，核分裂は非対称分裂であり，核分裂片の質量分布は二山分布または四山分布になることが多いことは知られている。また，先行研究において核分裂片の四重極モーメント Q_{20} の質量数依存性は鋸歯構造を示し，重い分裂片側の Q_{20} が小さくなることが分かった。本研究では，4 次元ランジュバン[1]用いて得られた核分裂のデータ及び形状データを元に，核分裂機構の解明を試みる。

2. 計算方法

4 次元ランジュバン理論を用いて核分裂計算を行った。計算では二中心模型により表現した原子核形状に対して，巨視的・微視的手法により自由エネルギーを計算し，殻補正の温度依存性を考慮した[2]。輸送係数は巨視的な流体模型により計算した。断裂直後の二つの分裂片のシャープカットな形状を直接用いてそれぞれの四重極モーメント Q_{20} と八重極モーメント Q_{30} を計算した。得られた核分裂のデータ及び分裂片の形状を比較して，その関係性を探した。

3. 結果

ウラン領域において，核分裂片の質量分布は二山分布になり，重い分裂片側のピーク質量数の Q_{20} はほぼセロになることが確認できた。この質量数は二重魔法数を持つ安定核である ^{132}Sn とも一致し，右図に示したように殻補正エネルギーの低い場所(^{132}Sn 近辺)にピークが存在することが読み取れる。これらのことから，^{132}Sn が分裂片の質量分布を左右したことが分かった。また，更に超重核領域において ^{132}Sn より同じく二重魔法数を持つ ^{208}Pb が決定的な影響を与えるようになり，四山分布に繋がることが分かった。

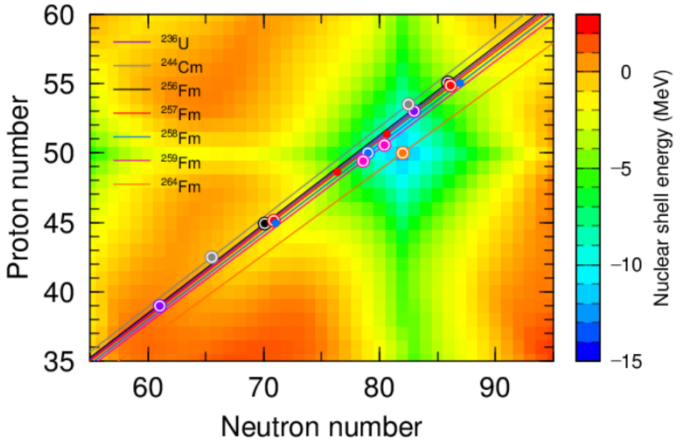


図 1 核分裂片のピーク質量数と殻補正エネルギー[3]の比較

◎はメインピーク，●はサブピークの質量数を表す

参考文献

[1] Chikako Ishizuka et al. Physical Review C **96**, 064616 (2017)

[2] F.A.Ivanyuk et al, Phys. Rev. C **97**, 054331 (2018)

[3] H. Koura, T. Tachibana, M. Uno and M. Yamada, Prog. Theor. Phys. 113 (2005) 305.

*Xuan Zhang[1], Chikako Ishizuka[1], Tsunenori Inakura[1], Fedir Ivanyuk[2], Satoshi Chiba[1]

[1]LANE, Tokyo Tech, [2]Kiev Institute for Nuclear Research

アクチノイドから超重核領域にわたる核分裂片の性質の系統的変化
Transition in systematics of nuclear properties of fission fragments from actinoids to super-heavy nuclei

*石塚　知香子[1]，張　旋[1]，ウサング　マーク[2]，
イワニュークフェディエール[3]，千葉　敏[1]
[1]東京工業大学先導原子力研究所，[2]マレーシア原子力庁，[3]キエフ原子核研究所

超重原子核の核分裂は超重元素合成やｒ過程元素合成で重要な役割を果たすが、その実験的なデータは限られる上、超重原子核の核分裂の予測は理論模型間による違いが大きい。そのため実験データの豊富な核種において十分検証を重ねた予言性のある理論模型を適用することが重要となる。本講演で 4 次元ランジュバン模型を用いてアクチノイドから超重核に至る核種での核分裂の系統的変化を実験値と比較しながら調査した結果について報告する。

キーワード：核分裂、超重核、ランジュバン模型、核データ、質量数分布、TKE

1. 緒言

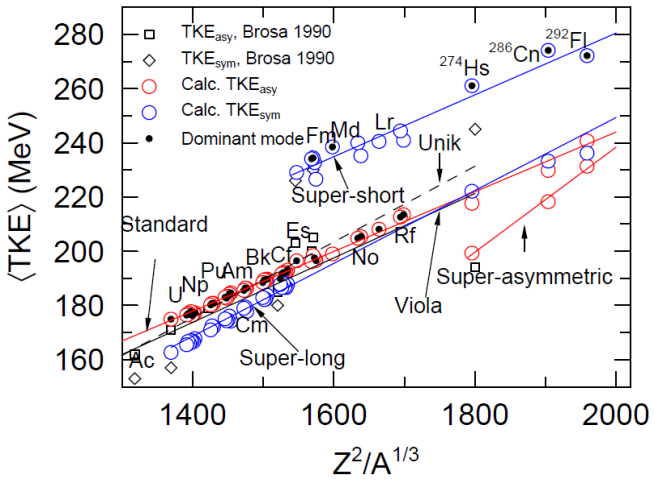
我々のグループで開発してきた 4 次元ランジュバン模型[1]は、鉛領域の中性子欠損核から超ウラン領域に亘る様々な質量数の原子核に対し、核分裂片の質量数分布や全運動エネルギー等の実験値を良く再現できる予言性の高い理論模型である[2]。前回秋の学会では、実験値[3]の存在する超重核核分裂では微視的模型による先行研究[4]と同様、我々の 4 次元ランジュバン模型を用いた計算でも、二重閉殻および二重魔法数の近傍に存在する核分裂のダイナミクス的に好まれる変形領域（基底状態が変形した領域）の両方が核分裂の性質を支配している様子を報告した[5]。

2. 手法

核分裂する原子核の形状は二中心モデル[6]で表現し、平均場ポテンシャルには有限深さのウッズサクソンポテンシャルを用いる。殻効果などの量子効果による補正には厳密なダンピング因子[7]を用いる。ランジュバン模型の輸送係数は巨視的に取り扱い、質量テンソルは Werner-Wheeler 近似、摩擦テンソルは wall-window 公式で計算する。

3. 結言

本講演では我々の 4 次元ランジュバン模型の強みである核分裂片の全運動エネルギー(TKE)の実験値再現性の良さに注目し、右図に示すような系統的性質を分析した結果について報告する。右図ではBrosa modelに基づいてTKEを分類した結果、アクチノイドから超重核に亘る、Standard mode、Super-long、Super-short mode の間の一貫した性質に加えSuper-asymmetric modeの寄与が見えてきた。本講演では、TKE だけでなく質量数ピークの系統性についても詳細に報告する。



参考文献

[1] C. Ishizuka, M. D. Usang, F. A. Ivanyuk, S. Chiba, Phys. Rev. C**96**, 064616 (2017).
[2] M. D. Usang, F. Ivanyuk, C. Ishizuka, S. Chiba, Scientific Reports **9**, 1525 (2019).
[3] M. G. Itkis, et al., J. Nucl. Radiochem. Sci. **3**, 57-61 (2002).
[4] G. Scamps, C. Simine, Nature **564**, 382 (2018).
[5] C. Ishizka X. Zhang, M. D. Usang, F. A Ivanyk, S. Chiba, Phys. Rev. C **101**, 011601(R) (2020).
[6] J. Maruhn & W. Greiner, Zeitschrift für Physik volume 251, pages431–457(1972).
[7] F.A. Ivanyuk, C. Ishizuka, M.D. Usang, S. Chiba, Phys. Rev. **C97**, 054331 (2018).

*Chikako Ishizuka[1], Xuan Zhang[1], Mark Usang[2], Fedir Ivanyuk[1,3] and Satoshi Chiba[1]
[1]Tokyo Institute of Technology, [2]Malaysian Nuclear Agency, [3]Institute for Nuclear Research, Kiev

Cassini パラメータを用いた多次元ランジュバン方程式による核分裂研究

Study of fission dynamics with a multi-dimensional Langevin equation using Cassini shape parameterization

*和田 隆宏[1]，岡田 和記[1]
[1]関西大学　システム理工学部

多自由度ランジュバン方程式による核分裂研究においては、パラメータ化した変形空間で原子核の形状を記述する。これまで分裂片の四重極変形をベースとしたパラメータが広く用いられてきているが、本研究では自由度のより高い Cassini パラメータを用いてアクチノイド領域に適用し、これまでの結果と比較する。

キーワード：核分裂動力学，ランジュバン方程式，核形状パラメータ

1. 緒言

多自由度ランジュバン方程式による核分裂研究は、アクチノイド領域における分裂片の質量分布の理解に重要な役割を果たしており、原子核形状を表すパラメータとしては、分裂片の四重極変形をベースとしたものが広く用いられている。Cassini パラメータは、自由が大きく様々な変形を扱えることから、静的な変形ポテンシャルの研究に用いられてきた[1]。本研究では、Cassini パラメータを核分裂動力学計算に用いる。

2. 変形パラメータ空間の選択

2-1. Cassini パラメータ

Cassini パラメータでは、Cassini 楕円の伸びを表すパラメータαと Cassini 楕円の変形を表すルジャンドル多項式による展開パラメータα_nによって形状を表し、n が奇数の時は非対称変形、偶数の時は対称変形に対応している[2]。

2-2. パラメータの選択

４自由度の変形空間として、$(\alpha, \alpha_1, \alpha_3, \alpha_4)$を用いた場合と$(\alpha, \alpha_1, \alpha_4, \alpha_6)$を用いた場合について議論する。このうち、αは原子核全体の伸びを表すパラメータである。α_1は分裂片の形状を球に近い形に保ちつつ質量非対称性を持つ形を表すことができるが、分裂片の一方が球でありもう一方が oblate 変形している形状を記述する際にα_3を含めることが有効である。一方、α_4は主に分裂片の 4 重極変形に対応しているが、分裂障壁や経路をより正確に記述するためにはさらにα_6が必要だと考えられる。本講演では分裂片が受けるα_3やα_6の寄与について、核分裂動力学計算の結果を報告する。

3. 結論

超重元素領域では、断裂点付近で軽い分裂片がほぼ球形を持つ一方、重い分裂片が大きく変形した形状が主要となるという予想がある。これに対応するため$(\alpha, \alpha_1, \alpha_3, \alpha_4, \alpha_6)$の５自由度の計算が必要と考えられ、アクチノイド領域を拠点として、超重核に向けての準備研究を進める予定である。

参考文献

[1] N. Carjan, F. A. Ivanyuk and Yu. Ts. Oganessian, Phys. Rev. C **99**, 064606 (2019).
[2] V. V. Pashkevich, Nucl. Phys. A **169**, 275 (1971).

---

*Takahiro Wada[1] and Kazuki Okada[1]
[1]Fac. Engineering Science, Kansai Univ.

Oral presentation | II. Radiation, Accelerator, Beam and Medical Technologies | 201-1 Nuclear Physics, Nuclear Data Measurement/Evaluation/Validation, Nuclear Reaction Technology

[3E13-16] Fission Theory 2

Chair: Futoshi Minato (JAEA)

Fri. Mar 19, 2021 3:50 PM - 5:00 PM Room E (Zoom room 5)

[3E13] Interaction dependence of charge polarization on U-236 using microscopic mean-field model

*Kazuki Fujio[1], Shuichiro Ebata[2], Tsunenori Inakura[1], Satoshi Chiba[1] (1. Tokyo Tech, 2. Saitama Univ.)

3:50 PM - 4:05 PM

[3E14] Pairing strength dependence of actinides in Relativistic Mean-Field theory

*Taiki Kouno[1], Tsunenori Inakura[1], Satoshi Chiba[1] (1. Tokyo Tech)

4:05 PM - 4:20 PM

[3E15] Charge polarization of the fission fragments deduced by the real time-dependent mean-field calculation from equal-energy contours

*Shuichiro Ebata[1], Shin Okumura[2], Chikako Ishizuka[3], Satoshi Chiba[3] (1. Saitama Univ., 2. IAEA, 3. Tokyo Tech)

4:20 PM - 4:35 PM

[3E16] Tenary Fission Studied by AMD

*Jingde Chen[1], Chikako Ishizuka[1], Satoshi Chiba[1], Akira Ono[2] (1. Tokyo Institute of Technology, 2. Tohoku University)

4:35 PM - 4:50 PM

©Atomic Energy Society of Japan

微視的平均場模型を用いた U-236 の荷電偏極の有効相互作用依存性

The study of separating the fission path energy of U-236 using the microscopic mean-field model

*藤尾 和樹[1], 江幡 修一郎[2], 稲倉 恒法[1],千葉 敏[1]

[1]東工大, [2]埼玉大学

微視的平均場模型から核分裂生成物に関する核データの整備を目指すために核分裂に関する物理量の有効相互作用依存性を調べる。既存の有効相互作用で U-236 の核分裂経路を計算し、核分裂片の荷電偏極を調べた結果を報告する。

キーワード：核データ、核分裂、平均場模型、有効相互作用、ポテンシャルエネルギー面、荷電偏極

1. 緒言

核分裂生成物から生じる遅発中性子の評価は原子炉の動特性解析に重要である。核分裂生成物の N/Z 比は、基本的に核分裂核種のそれと等しい Unchanged Charge Distribution (UCD)線に近接しているが、遅発中性子放出の境界と UCD 線が近接している為、遅発中性子放出数を正確に評価するには核分裂片の UCD からのズレである荷電偏極の評価が重要である。これまで荷電偏極は測定値を基にした Wahl [1]の経験的な方法で評価されていたが、測定可能な核種は限られる為、理論予測も必要とされている。そこで本研究では現象論を極力排除した、原子核を核子自由度から記述し、有効核子間相互作用から一貫した計算が可能な微視的平均場模型を用いる。ただし現状では、核分裂反応の記述に特化した有効相互作用は整備されていない。本研究では分裂片の荷電偏極が複数の既存の有効相互作用にどう依存するかを調べた。

2.計算方法

本研究では原子核の軸対称性を課さない拘束条件付き平均場模型 Skyrme-Hartree-Fock+BCS [2]を用いて、原子炉中の主要反応である U-235+n の複合核 U-236 系を対象に、原子核の伸長に対応する四重極(Q_{20})モーメント及び質量の偏り(質量非対称性)に対応する八重極モーメント(Q_{30})を拘束条件にポテンシャルエネルギーを計算した。有効相互作用は特徴の異なる SkM*, SLy4, SkI3 [3,4,5]の 3 種類を用いて相互作用依存性を調べた。核分裂時の原子核のネックの核子密度が最大密度の 2%以下になった場合を断裂とみなし、核分裂生成物の持つ核子数を基に荷電偏極を計算した。

3.結果

図 1 は SLy4 で計算した U-236 の荷電偏極(dZ)である。横軸は核分裂片の質量数(A_{FP})を示し、縦軸は核分裂生成物の荷電偏極を示している。荷電偏極は調べた 3 つのどの有効相互作用でも、質量数 118 (236/2)を中心とした点対称に分布し、130 付近と 105 付近にピークを持つ結果が得られた。また、対称核分裂成分や、生成物の質量非対称度が大きい範囲では荷電偏極が 0 に近づき UCD 上に乗ることがわかった。これは現象論に基づく Wahl の系統性とは異なる結果である。

講演ではピーク強度変化や、その原因を有効相互作用依存性及び陽子数と中性子数の観点から考察し、先行研究との比較を報告する。

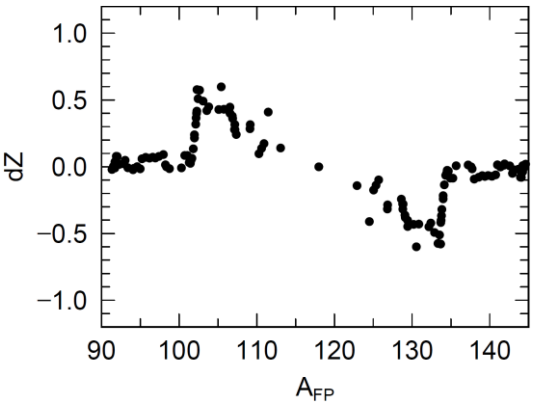


図 1: SLy4 で計算した荷電偏極

参考文献

[1] Arthur C. Wahl LA-13928 (2002)
[2] S. Ebata and T. Nakatsukasa, Physica Scripta **92** (2017) 064005.
[3] P.-G. Reinhard and H. Flocard, Nucl. Phys. A **584**, 467 (1995).
[4] E. Chabanat, P. Bonche, P. Haensel, J. Meyer,and R. Schaeffer, Nucl. Phys. A **635**, 231 (1998)
[5] J. Barrel, Ph. Quentin, M. Brack, C. Guet and H.-B. Hfikansson, Nucl. Phys. A **386,** (1982) 79.

*Kazuki Fujio[1], Shuichiro Ebata[2], Tsunenori Inakura[1] and Satoshi Chiba[1]
[1]Tokyo Institute of Technology, [2]Saitama Univ.

相対論的平均場理論によるアクチノイド領域核の対相関力の系統性

Pairing strength dependence of actinides in Relativistic Mean-Field theory(RMF)

*河野 大樹[1]、稲倉 恒法[1]、千葉 敏[1]

(1. 東京工業大学)

核分裂障壁や結合エネルギーの理論予測は非常に困難であり、現在、様々な理論による計算が行われているが 2~3 MeV 程度の誤差が生じることが多く報告されている。本研究では、アクチノイド領域核に対して相対論的平均場理論 (共変的密度汎関数法) を適用し、残留相互作用として BCS 対相関模型を用いて核分裂障壁を計算した。特に、核分裂障壁の実験値を再現するように対相関力の強度を調整することによって結合エネルギーと対回転における慣性能率の精度も向上する結果が得られた。これによりアクチノイド領域の対相関力の系統性を導出し、その正当性が示せたのでこれらの結果を報告する。

キーワード:核データ、相対論的平均場理論、核分裂障壁、対相関、アクチノイド

1 緒言

原子核への相対論的アプローチは、QHD の枠組みで議論され核子間に働く核力を σ, ω, ρ 中間子と仮想光子の交換によって記述する。Walecka らが考案した量子場の理論の近似として得られる RMF は簡便な方法でありながら核物質を記述する上で成功を収めてきた [1][2]。さらに、残留相互作用として対相関を導入し対相関力を調整することで核分裂障壁の実験値を再現でき対相関を評価する上で用いた対回転における慣性能率の精度も向上した [3][4][5]。

2 計算方法

相対論的共変なラグランジアンを導入し量子場の理論から RMF を導くために以下の近似を施した [1][2]。

1. 中間子場の量子力学的揺動を無視してその平均値だけに注目する古典近似
2. 核子の負エネルギー成分を無視する No sea 近似

$$\mathcal{L} = \bar{\psi}(i\gamma_\mu\partial^\mu - M)\psi + \frac{1}{2}\partial^\mu\sigma\partial_\mu\sigma - U(\sigma) - g_\sigma\bar{\psi}\psi\sigma - \frac{1}{4}\Omega^{\mu\nu}\Omega_{\mu\nu} + \frac{1}{2}m_\omega^2\omega^\mu\omega_\mu - g_\omega\bar{\psi}\gamma^\mu\psi\omega_\mu + U(\omega)$$
$$- \frac{1}{4}\vec{R}^{\mu\nu}\vec{R}_{\mu\nu} + \frac{1}{2}m_\rho^2\vec{\rho}^\mu\vec{\rho}_\mu - g_\rho\bar{\psi}\gamma^\mu\vec{\tau}\psi\vec{\rho}_\mu - \frac{1}{4}F^{\mu\nu}F_{\mu\nu} - e\bar{\psi}\gamma^\mu\frac{(1-\tau_3)}{2}\psi A_\mu$$

また、ラグランジアンを Euler-Lagrange 方程式に代入することで核子場に対する Dirac 方程式と中間子場に関する Klein-Goldon 型の方程式を得ることができこれらの方程式を連立して解くことで各場の情報を得ることができた。また、得られた各場の情報とラグランジアンをエネルギー運動量テンソルの第 00 成分に代入することで RMF における全エネルギーを得ることができた。さらに、対相関を残留相互作用として取り込み対相関力の強さを変えることで核分裂障壁の実験値を再現した。また、対相関力は核子対ポテンシャルより得られる対回転における慣性能率を使い評価した [3][4][5]。

3 結果

右図はアクチノイド領域核の核分裂障壁を再現する対相関力 G_{BEST} のクーロンエネルギー依存性を示していて $Z^2/A^{1/3}$ の関数としてフィッティングすることができた。講演ではフィッティング関数で予測される対相関力を用いて核分裂障壁、結合エネルギー、慣性能率を計算した結果を報告する。

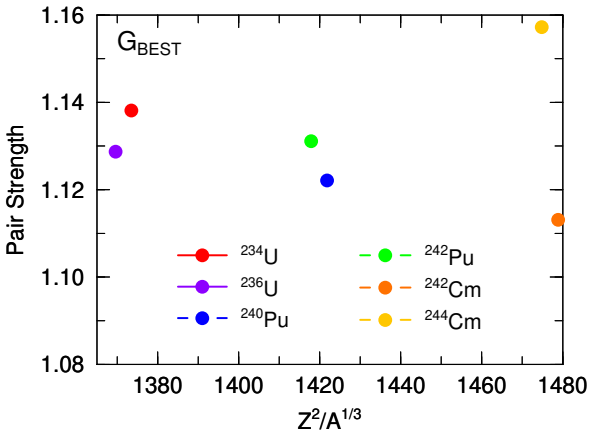


図 1　G_{BEST} のクーロンエネルギー依存性

参考文献

[1] B.D. Serot and J.D. Walecka,Adv. Nucl. Phys. 16 (1986)
[2] Klemens Rutz "Struktur von Atomkernen im Relativistic-Mean-Field-Modell", Dissertation, Johann Wolfgang Goethe-Universitat in Frankfurt am Main(1999)
[3] S.Karatzikos, A.V.Afanasjev, G.A.Lalazissis and P.Ring, Nucl. Phys. B **689** 72-81 (2010)
[4] N.Hinohara and W.Nazarewicz, Phys.Rev.Lett.116(2016)
[5] D. M. Brink and R. A. Broglia, Nuclear Superfluidity, Pairing in Finite Systems (Cambridge University Press, Cambridge, England, 2005)

*Taiki Kouno[1], Tsunenori Inakura[1] and Satoshi Chiba[1]
[1]Tokyo Institute of Technology

実時間平均場計算で等エネルギー面から導出した核分裂片の荷電偏極の評価

Charge polarization of the fission fragments deduced by the real time-dependent mean-field calculation from equal-energy contours

*江幡 修一郎[1], 奥村 森[2], 石塚 知香子[3], 千葉 敏[3]
[1]埼玉大, [2]IAEA, [3]東工大

核分裂片の荷電偏極は即発中性子収率、遅発中性子収率に大きな影響を与える。これまで、静的な微視的理論模型(3 次元座標表示 Skyrme Hartree-Fock＋BCS 模型)および、動的効果の為に、実時間平均場(正準基底表示 Hartree-Fock-Bogoliubov)を導入し、荷電偏極を計算してきた。これまで導出してきた荷電偏極は、核分裂経路を示すポテンシャル面の最低エネルギーに沿った結果であった。本講演では等エネルギー面を初期値状態とした動的方法で荷電偏極を求め、そのエネルギー依存性を報告する。

キーワード：核データ、核分裂、荷電偏極、理論核物理

1. 緒言

即発中性子放出前の核分裂片が持つ Z/A の中心値は親核のものから僅かにズレを持つと考えられている。このズレを核分裂片の荷電偏極(dZ)と呼ぶ。知られている荷電偏極の大きさは±0.5 程度と僅かであるが、ウラン、プルトニウム系の分裂において、分裂片の Z/A 比と遅発中性子放出の境界が近接する為、結果的に遅発中性子収量に大きな影響を与える。従って荷電偏極は原子炉の動特性パラメータの正確な予測のために理解すべき重要な現象である。遅発中性子放出データの詳細がない核種の予測精度向上には、既知の領域で検証した模型による高い精度の外挿が有効な手段になる。また、dZ は核分裂の物理的機構を理解する為に重要な核物理との接点である。我々は核データの少ない核種への適用を見据え、微視的理論から dZ を予測する方法を提案し、核分裂片の荷電分布を静的・動的な微視的理論を用いてこれまでに計算してきた。本講演では動的シミュレーションの初期状態の取り方が大きな影響を与える事を報告する。

2. 計算手法

原子核の伸長と非対称性を表す四重極変形度(Q_{20})と八重極変形度(Q_{30})を変数としたポテンシャル面を、静的な拘束条件付き Skyrme Hartree-Fock+BCS (CSHF+BCS) 理論模型[1]で計算し、動的な効果を排除した dZ を求めていた。動的効果を取り入れる為に、断裂前の配位を初期状態として正準基底表示時間依存 Hartree-Fock-Bogoliubov 法(Cb-TDHFB) [2]を用いて、動的効果を考慮した dZ を求めた。本講演ではこの Cb-TDHFB 計算の初期状態を Q_{20} に関する断裂前の配位ではなく、等エネルギー面の配位を初期状態に採用し、dZ を調べた。

3. 結果

図は Cb-TDHFB の初期状態に、全束縛エネルギー E=-1795 MeV で Q_{20} = 10,892[fm^2], Q_{30} = 60,000[fm^3] を持つ配位を用意し得た結果 (●)と静的な方法(×)で得た dZ を表している。中性子収量には Wahl [3]が示す様に対称核分裂から離れた核分裂片の dZ が重要になる。静的な方法では非対称性の大きい領域で dZ はゼロに収束し Wahl の現象論に比べ十分な大きさが得られなかったが、今回の方法で得られる可能性が示唆された。また、これは核分裂のエネルギー依存性を取り入れる事が dZ を正しく得る為に重要である事も示唆している。

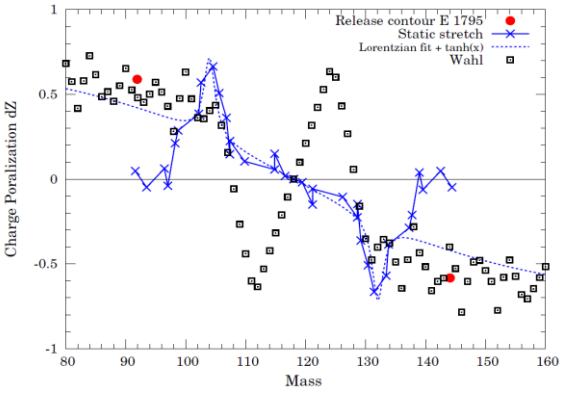


図 *E=-1795* MeV の配位を初期状態とした Cb-TDHFB (●)と CSHF+BCS(×及び実線)で得られた荷電偏極。□は Wahl の値[3]。横軸は核分裂片の質量数。

参考文献
[1] S. Ebata and T. Nakatsukasa, Physica Scripta **92** (2017) 064005.
[2] S. Ebata, et. al., Phys. Rev. C**82** (2010) 034306.
[3] A. C. Wahl, LA-13928 (2002)

*Shuichiro. Ebata[1], Shin Okumura[2], Chikako. Ishizuka[3], and Satoshi Chiba[3]
[1]Saitama University,
[2]IAEA
[3]Tokyo Institute of Technology

AMDによる三体核分裂の研究

Ternary fission researched by AMD

*陳 敬徳[1], 小野 章[2], 木村 真明[3], 石塚 知香子[1], 千葉 敏[1]
[1]東京工業大学, [2]東北大学, [3]北海道大学

反対称化分子動力学(AMD)モデルを使い、核分裂のシミュレーションを行います。今回はAMDモデルを使用して、アクチノイド核種の核分裂した後、軽い核種の分裂角度分布と軽い核種の全運動エネルギーを調べる。さらに、実験データと比較し、実験結果を検証し、三体核分裂からの軽い核種の出る確率が何によるかを調べる。

キーワード：反対称化分子動力学, 核分裂, 三体分裂

1. 緒言

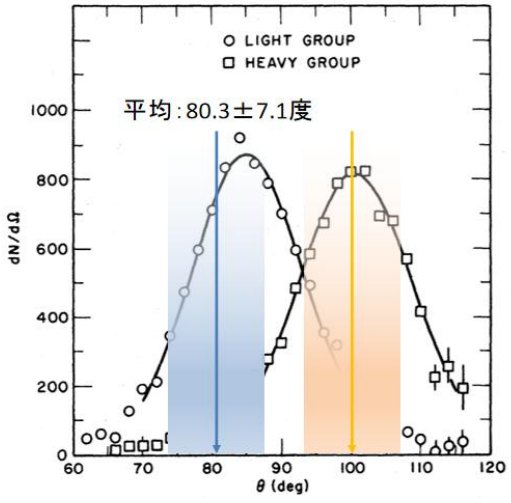
一般的には核分裂過程は、大きな原子核が2つフラグメントを生成する過程である。しかし、約0.2から0.4%の割合では、2つではなく3つのフラグメントが生成されて、それが三体核分裂ということである。我々は、AMD[1]という有限核子集団の量子効果を取り込んだ分子動力学模型で三体核分裂を記述しようと試みている。本研究では、Boostモデルのさらなる拡張を行い、計算結果の解析を行った。

2. 手法

Boostモデルとは微視的核子多体系を分裂方向に変形させる手法であり、Bonasera[2]らやGoddard[3]らの手法と同じく、基底状態の原子核をelongation方向に変形させるための運動量を与え、誘起核分裂の過程を模擬する方法である。今回は、前回の拡張として、AMDで複数回の核分裂シミュレーションを行い、この中の三体核分裂の確率を統計し、各イベントの物理量を研究する。本研究で計算する軽い核種の全運動エネルギーがAMDで計算した10000fm後の状態を既知条件で、数値計算のルンゲクッタ方で最終状態量を計算する。それから実験データを比較する。

3. 結論

AMDによる三体核分裂のシミュレーションであるBoostモデルのさらなる拡張に成功し、最終的には三体核分裂を再現した。右の図では、カラーマップに囲まれたのは今回計算した三体核分裂の軽い核種の分裂角度の平均値である。ご覧のとおり、実験値にあっている。更に、軽い核種の全運動エネルギーのルンゲクッタ方法のプログラミングを書いている。



参考文献

[1] A.Ono et al. , Progress of Thereotical Physics87,1185-1206(1992)
[2] Aldo Bonasera et al. , Physical Review Letters78,2,(1997)

---

*Jingde Chen[1], Akira Ono[2] , Masaaki Kimura[3], Chikako Ishizuka[1], Satoshi Chiba[1]
[1]Tokyo Tech., [2]Tohoku Univ., [3]Hokkaido Univ.

Oral presentation | IV. Nuclear Plant Technologies | 403-1 Risk Assessment Technology, Application of Risk Information

[3F01-07] PRA Method

Chair: Hiroshi Ujita (AdvanceSoft)

Fri. Mar 19, 2021 10:00 AM - 12:00 PM Room F (Zoom room 6)

[3F01] Adjustment method with sensitivity coefficient based on Bayesian theory for performance shaping factor

*Satoshi Takeda[1], Takanori Kitada[1] (1. Osaka University)

10:00 AM - 10:15 AM

[3F02] A Trial Calculation Using a Human Reliability Analysis Methodology Phoenix

*Haruaki Ueda[1], Yoshikane Hamaguchi[1] (1. Regulatory Standard and Research Department, Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R))

10:15 AM - 10:30 AM

[3F03] A System Risk Analysis on Primary Containment Vessel Venting Focusing on Organizations Interactions

*Naoki Hirokawa[1], Akira Yamaguchi[1], Takashi Takata[1], Sunghyon Jang[1] (1. University of Tokyo)

10:30 AM - 10:45 AM

[3F04] Risk-Imformed applications for Emergency Drills

*Kotaro Homma[1], Takeshi Kuwahara[1], Yasuo Ishizaki[2], Takashi Takiguchi[2], Masayuki Hiraide[2] (1. TEPSYS, 2. TEPCO HD)

10:45 AM - 11:00 AM

[3F05] Development of safety review method to cope with an aging degradation for the facilities using nuclear material

*Yuichi Tamaoki[1] (1. Japan Atomic Energy Agency)

11:00 AM - 11:15 AM

[3F06] Study for considering the Level 3 PRA results in time series

*Ryohei Ichikawa[1] (1. NRA)

11:15 AM - 11:30 AM

[3F07] Development of the risk assessment technique for EAL

*Takanori Aoki[1], Mika Tahara[2], Nobuhisa Takezawa[2], Takahiro Nakagawa[1] (1. Toshiba Plant Systems &Services, 2. TOSHIBA ESS)

11:30 AM - 11:45 AM

©Atomic Energy Society of Japan

ベイズ理論に基づく感度係数を用いた行動形成因子の係数調整手法

Adjustment method with sensitivity coefficient based on Bayesian theory for performance shaping factor

*竹田　敏[1]，北田　孝典[1]
[1]大阪大学

ベイズ理論に基づき、さらに感度係数を活用することで、人的過誤確率を算出する元データとなる行動形成因子の係数を調整する方法を開発した。開発した手法を用いる場合は、異なるシナリオ・文脈の実績データを用いて特定の行動形成因子の係数を調整できるため、シナリオ・文脈に応じた実績データが乏しい場合でも合理的な調整が期待できる。

キーワード：ベイズ理論，人的過誤確率，行動形成因子，感度係数

1. 緒言

シミュレータを用いた実験データを活用することで、ベイズ理論に基づいて人的過誤確率を調整する手法が近年検討されている。従来の研究では、SPAR-H 等の手法で求める人的過誤確率を調整することが検討されており、対象となるシナリオ・文脈が多岐にわたる場合は、シナリオ・文脈に応じて多数の実績データを用意する必要があった[1]。そこで本検討では、ベイズ理論と感度係数を活用し、行動形成因子の係数を調整することで、シナリオ・文脈の実績データが乏しい場合でも合理的な調整が可能となる手法を開発した。

2. 手法

この検討においては、この行動形成因子の係数が正規分布でばらつくと仮定して導出する。行動形成因子の係数p_{psf}の確率密度関数$P(p_{psf})$と、p_{psf}が与えられた場合の試行回数Nのうちk回が失敗となる実験結果の確率密度関数$P(N,k|p_{psf})$は

$$P(p_{psf}) \propto exp\left(-\frac{\left(p_{psf}-E(p_{psf,0})\right)^2}{2M}\right), \quad P(N,k|p_{psf}) = \frac{N!}{k!\,(N-k)!} p_{hep}^{p_{psf}k}\left(1-p_{hep}^{p_{psf}}\right)^{N-k} \tag{1}$$

となる。ここで、$E(p_{psf,0})$は行動形成因子の事前分布$p_{psf,0}$の期待値、Mはp_{psf}の分散、$p_{hep}^{p_{psf}}$はp_{psf}が与えられた時の人的過誤確率を示す。ここで、$p_{hep}^{p_{psf}}$を次式のとおり展開する。

$$p_{hep}^{p_{psf}} = p_{hep}^{E(p_{psf,0})} + S_{p_{hep}}^{p_{psf}}\left(p_{psf}-E(p_{psf,0})\right) \tag{2}$$

ここで、$S_{p_{hep}}^{p_{psf}}$はp_{hep}に対するp_{psf}の感度係数である[2]。ベイズ理論より、実験結果が得られた場合のp_{psf}の確率密度関数$P(p_{psf}|N,k)$は$P(p_{psf})P(N,k|p_{psf})$と比例関係となる。このため、式(2)を式(1)に代入すると、$P(p_{psf}|N,k)$はp_{psf}の関数として求められる。

3. 適用結果および結論

SPAR-H の行動形成因子の一つである Procedures を対象とし、Halden 炉のシミュレータ実験で実績のあるシナリオ IA[1]を用いて本手法を適用した。試行回数Nを 4 とし、失敗回数kを変化させて、行動形成因子の確率密度関数を評価した(図 1)。調整前の SPAR-H での人的過誤確率は 0.001 である。$k=0$の場合は調整量が小さく、kの増加に伴い行動形成因子の確率密度関数も正側に移行することから、定性的に妥当な調整が施されることを確認できた。

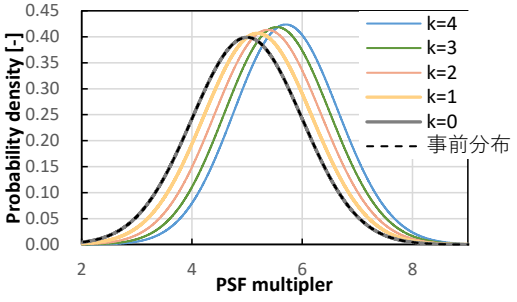


図 1 行動形成因子の確率密度関数

参考文献

[1] Katrina M.G., et al., Reliability Engineering & System Safety, vol. 128, 32-40, 2014.
[2] 竹田他，日本原子力学会 2020 年春の年会.

*Satoshi Takeda[1], Takanori Kitada[1], [1]Osaka Univ.

人間信頼性解析手法 Phoenix を用いた試解析

A Trial Calculation Using a Human Reliability Analysis Methodology Phoenix

*上田 治明[1]，濱口 義兼[1]
[1]原子力規制庁 長官官房技術基盤グループ

米国カリフォルニア大学ロサンゼルス校（UCLA）によって、人的過誤事象（HFE）からパフォーマンス影響因子（PIF）までの一連の因果関係を連結してモデル化が可能な人間信頼性解析（HRA）手法である Phoenix 手法の開発が進められている。原子力規制庁（NRA）において、重大事故等対処施設に係る操作等を対象に当該手法を用いて人的過誤確率（HEP）の試解析を実施した。その結果と解析における課題について報告する。

キーワード：確率論的リスク評価（PRA）、人間信頼性解析（HRA）、Phoenix 手法

1. 緒言　第 1 及び第 2 世代 HRA 手法の解析トレーサビリティ等の問題を改善するよう、米国 UCLA によって Phoenix 手法が開発されている[1]。今回、NRA において、Phoenix 手法を用いた確率論的リスク評価における HRA の検討のため、HEP に大きく影響する解析条件を特定するための試解析を実施した。

2. Phoenix 手法による解析方法

Phoenix 手法では、複数の運転員を 1 つのグループ（クルー）として考え、図に示すように以下の 3 つの段階を経て HEP を定量化する。第 1 段階として、一連の操作を分析するためにクルー対応ツリー（CRT）を作成し、HFE を特定した。第 2 段階として、フォールトツリーを用いて、第 1 段階で特定した HFE を対象に想定されるクルーの人的過誤タイプ（CFM）を選定した。

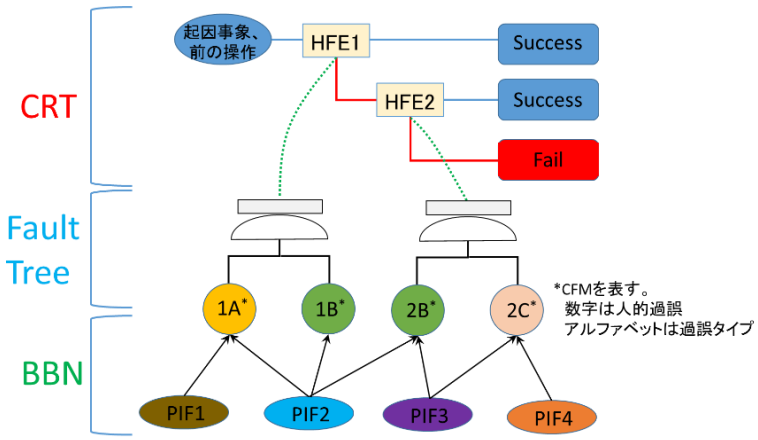


図　解析方法の概略

第 3 段階では、選定した CFM とその過誤の発生確率に影響する因子である PIF 間の因果関係を考慮し、PIF の影響可能性に応じた CFM の過誤確率を算出するため、ベイジアンビリーフネットワーク（BBN）でモデル化した。最終的には、上記解析を統合して、PIF による HFE への影響をモデル化することで HEP を定量化した。

3. 結論　CFM の選定、PIF の設定等 HEP に大きく影響する解析条件を特定するため、当該手法を用いて加圧水型炉の複数の事故シーケンスにおけるフィードアンドブリード運転、2 次系の冷却、高圧再循環等様々な操作を対象に試解析を実施した。従来、起因事象発生後の多くの HEP は 1E-1 から 1E-4 までの範囲にあると考えられる[2]が、今回得られた HEP の大半が 1E-1 を超えており、大きな HEP 値を得た。今後 CFM 選定等解析条件の HEP への影響について確認し、HEP が大きくなった原因について分析する予定である。

参考文献

[1] N. J. Ekanem, *et al.*, Reliab. Eng. Syst. Safe. 145, 301-15, 2016.
[2] A. Kolaczkowski, *et al.*, NUREG-1792, 2005

---

*UEDA Haruaki[1], HAMAGUCHI Yoshikane[1]
[1]Regulatory Standard and Research Department, Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R)

格納容器ベント実施判断における組織間相互作用に着目したシステムリスク分析 — STAMP/STPA とファジィ推論を組み合わせた定量的分析 —

A System Risk Analysis on Primary Containment Vessel Venting Focusing on Organizations Interactions – Quantitative Analysis Using STAMP/STPA and Fuzzy Inference Methods –

*廣川 直機[1]，山口 彰[1]，高田 孝[1]，張 承賢[1]
[1]東京大学

組織間の相互作用に着目したシビアアクシデントの定性的リスク分析（既報[1]）で抽出したハザード誘発要因について、ファジィ推論を用いて格納容器ベント実施を統合的に判断する定量的指標と方法を提案する。
キーワード：格納容器ベント、STAMP/STPA、ファジィ推論

1. 緒言　格納容器ベントは、原子力発電所のシビアアクシデント（SA）時の対策の一つと位置付けられ、その実施判断は発電所の責任と権限をもってなされるが、同時に、発電所、官邸、規制庁、自治体など複数の組織の連携と協調も必要である。STAMP/STPA（System Theoretic Accident Model and Processes/System-Theoretic Process Analysis）[2]は、「事故は構成要素間の相互作用から創発的に発生する」という概念に着目し、STPA が提案するガイドワードに従い定性的にハザード分析を行う手法であり、定量的分析の機能は不十分である。本稿では、STPA で抽出したハザード誘発要因（どのようなシナリオで矛盾や想定外が引き起こされるか）について、格納容器ベント実施を統合的に判断する方法をファジィ推論により定量的指標と方法を提案する。

2. 格納容器ベント実施判断におけるシステムリスク分析

2-1. STAMP/STPA による定性的な分析　既稿[2]では、発電所、本社、官邸・原子力規制庁、オフサイトセンター、自治体、住民といった格納容器ベント実施判断関わる組織等を対象に非安全なコントロールアクションおよびハザード誘発要因を特定した。また、時間経過に伴う状況の変化に対する格納容器ベント実施判断の困難さを表現することが定性的な分析において現れにくいという課題を摘出した。

2-2. ファジィ推論による定量的な分析　本稿では、STPA におけるハザード誘発要因に対して、ファジィ推論を組み合わせた定量的な指標と方法を提案する。格納容器ベントの実施判断に影響を及ぼすと考えられる格納容器雰囲気温度・圧力、格納容器除熱システムの復旧、住民の避難割合といった要因は事故進展に連れて変化することから、格納容器ベント実施判断の定量的指標の時間変化を評価した。

3. 結論　STAMP/STPA は機器故障／人的過誤を伴わないハザード誘発要因を定性的に分析できる特徴がある。これにファジィ推論を組み合わせることにより、STPA に定量的な分析手法を付与し（図 1 参照）、動的な相互作用に対して詳細な分析が可能となることを示した。

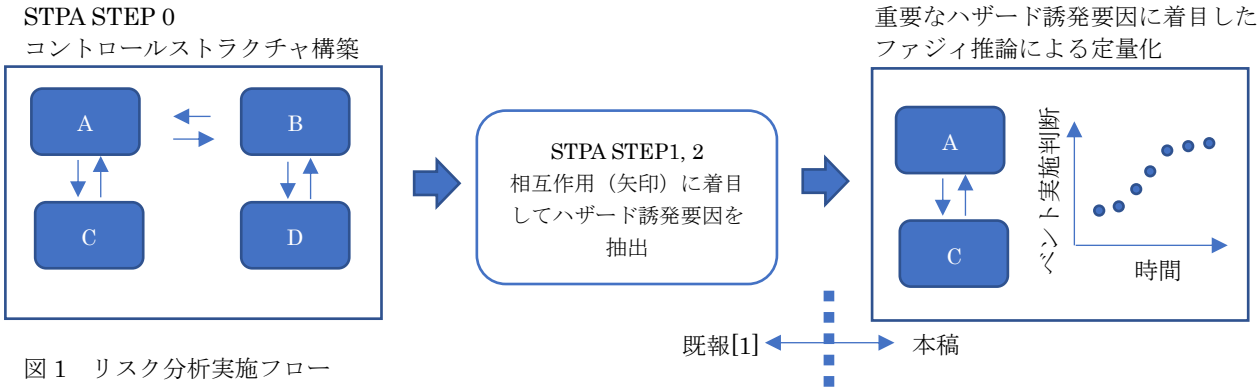


図 1　リスク分析実施フロー

参考文献

[1] 廣川，山口，高田，張，“格納容器ベント実施判断における組織間相互作用に着目したシステムリスク分析“，日本原子力学会 2020 年秋の大会

[2] Nancy G Leveson, “Engineering a Safer World: Systems Thinking Applied to Safety”, MIT Press, 2011.

*Naoki Hirokawa[1], Akira Yamaguchi[1], Takashi Takata and Sunghyon Jang[1]　[1]University of Tokyo

リスク情報を活用した教育訓練シナリオの検討

Risk-Informed Applications for Emergency Drills

*本間光太郎[1]，桑原武[1]，石崎泰央[2]，滝口剛司[2]，平出真之[2]
[1]株式会社テプコシステムズ，[2]東京電力ホールディングス株式会社

緊急時対応要員の緊急時対応能力の効果的な向上及びPRAの更なる品質向上を目的として、リスク情報を活用した教育訓練シナリオを検討した。

キーワード：PRA，リスク情報活用，教育訓練

1. **緒言**　PRAは、プラントにおいて想定される事故シーケンスや、設備及び操作が当該プラントのCDFに対して与える影響(寄与割合)等の情報といった、プラント毎の特徴を抽出でき、プラントに潜在するリスク情報を特定するツールとして有用である。また、CDFを算出するプロセスにおいて明らかになるプラントの事故シナリオや操作失敗後の事故進展の情報は、マルチエンディングな教育訓練シナリオの作成や、訓練後の事故シナリオの理解の促進に活用できる。そこで、リスク情報を活用し、プラントの特徴を考慮した教育訓練シナリオの作成の検討を通じ、教育訓練シナリオ構築時におけるリスク情報の有用性を確認した。

2. **検討方法**　柏崎刈羽原子力発電所の7号炉の内的事象運転時レベル1PRAにおいて、プラントの特徴的な事故シーケンスを含む二つの起因事象を選定し、イベントツリーで想定する事故進展及び緩和操作を踏まえ、教育訓練シナリオをフローとして整理した。教育訓練シナリオのフローにはPRA上重要な判断分岐を設け、判断分岐の成否による事故進展の変化や、必要な緩和操作の変化及び時間余裕等の情報を解説としてまとめ、想定される事故シーケンス毎に終状態を設定し、マルチエンディングを作成した。検討方法の概要を図1に示す。教育訓練シナリオを教育訓練シナリオ構築時や机上訓練時等、活用場面等を考慮し、三階層（概要書・解説書・根拠書）からなる文書としてとりまとめ、利便性の高い緊急時対応要員の教育訓練教材として整理した。

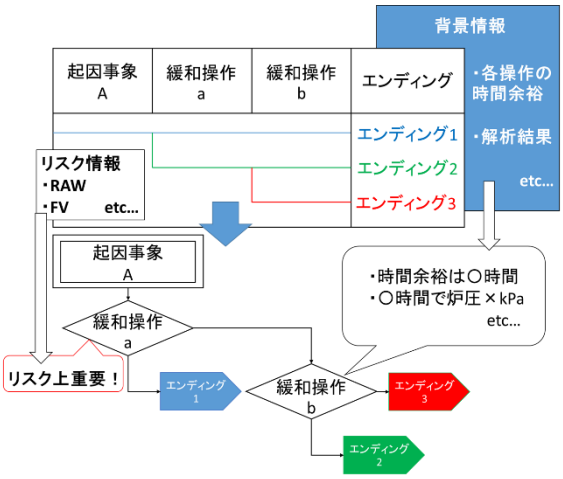


図1　教育訓練シナリオのフロー概要

3. **結果と今後の予定**　リスク情報の活用により、対象プラントの特徴にフォーカスしたプラント個別の教育訓練シナリオが作成でき、リスク上重要な事故シーケンスや操作に重点を置いた、より効果的な教育訓練が実施できる。今後は、実際の教育訓練への反映及び外的事象PRA等から新たに得られるリスク情報についても教育訓練シナリオ構築へ展開することで、総合的な安全性向上に向けた活動に貢献していく。また、リスク情報を活用した教育訓練シナリオに対する現場の意見をPRAモデルにフィードバックすることで、PRAの不確実さを補完し、更なる品質向上につなげることが期待される。

---

*Kotaro HOMMA[1], Takeshi KUWAHARA[1], Yasuo ISHIZAKI[2], Takashi TAKIGUCHI[2], Masayuki HIRAIDE[2]
[1]TEPCO SYSTEMS CORPORATION, [2]Tokyo Electric Power Company Holdings, inc.

核燃料物質使用施設の高経年化対策に係わる安全評価手法の開発 (2) 設備機器の高経年化リスク評価フローの検討

Development of safety review method to cope with an aging degradation for the facilities using nuclear material. (2) Risk assessment flow of equipments

*玉置 裕一[1], 磯﨑 涼佑[1], 鈴木 隆太[1], 赤田 雅貴[1], 澤幡 哲司[1], 米澤 諒真[1], 藤島 雅継[1], 水越 保貴[1], 坂本 直樹[1]
[1]日本原子力研究開発機構

高経年化した核燃料物質使用施設の保全活動に用いた安全評価手法について、これまでの活動実績と改善計画をもとに、設備機器の高経年化リスク評価フローを検討した。
キーワード：安全評価手法、運転管理、保全活動、核燃料物質使用施設

1．緒言

これまでの高経年化設備に対する安全評価手法［1］では、設備機器の補修課題を解消後にも、再発する等、施設運転に支障を来したものについて適切に考慮されていなかった。そこで保全活動の実績及び分析結果をもとに策定した安全評価の方針［2］を受け、新たに設備機器の高経年化に対するリスク評価フローを検討した。

2．設備機器の高経年化リスク評価フロー

リスク評価の流れを図 1 に示す。設備機器の故障発生時の影響を多角的に数値化し、リスクポイントの初期値とした。この値に経年化の影響（劣化の進行、補修課題、更新）を評価したポイントを加味することで、経時変化を定量的に把握できるようにした。また、設備機器が機能喪失に至ると想定されるリスクポイントを最大値に設定し、機能喪失までの期間を見極め、計画的な保全に資することとした。

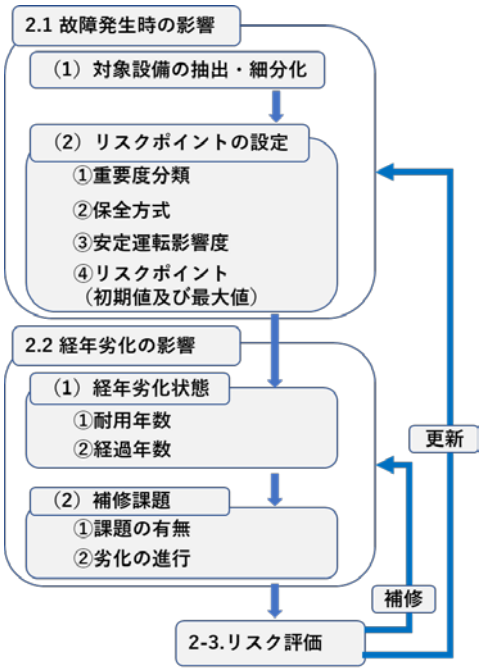


図.1 設備機器の高経年化リスク評価フロー

2．1故障発生時の影響

(1) 対象設備の抽出・細分化

施設で使用されている設備機器の中から対象とする設備機器を抽出し、構成機器や部品類まで細分化したリストを作成する。

(2) リスクポイントの設定

設備機器が有する重要度等により、リスクポイントの初期値及び最大値を求める。①重要度分類：使用施設運転上の設備機器重要度に応じて分類する。②保全方式の設定：設備機器の保全方式について、予防保全又は事後保全に分類する。③施設の安定運転影響度：設備機器の故障が発生した場合の「施設運転」、「放射線防護」、「照射後試験」へのそれぞれの影響を評価する。④リスクポイント：①から③を考慮し、リスクポイントの初期値及び最大値を設定する。

2．2経年劣化の影響（故障発生確率）

(1) 経年劣化状態

耐用年数に対する評価時の経過年数の割合を経過度として求め、リスクポイントに反映する。①耐用年数：各種規格、メーカーの交換推奨期間、これまでの運転経験、補修課題の再発等を考慮し、設備機器の耐用年数を定める。②経過年数：設置・更新、補修課題解消後の期間。

(2) 補修課題

設備機器の経年劣化等による補修課題の発生、進行状況を監視し、結果をリスクポイントに反映する。①課題の有無：評価時の補修課題の有無を確認する。②劣化の進行：経年劣化により生じる補修課題の軽重や進行の度合いを定期的に確認し反映する。更新や保守の実施による補修課題の解消時にも反映する。

2．3リスク評価

設備機器の機能喪失までの期間を把握するための指標として、リスクポイントの最大値に対する割合を定期的に確認するこ。この割合は、全ての設備機器を一律に比較することが可能であり、設備機器の重要度に関わらず計画的な保全に資することが期待できる。

3．結言

本検討の結果、補修課題の再発等を考慮した評価フローにより適切に設備機器を評価管理する見通しを得た。今後、本評価フローを具体化した評価シートを作成し、実際の設備機器への適用性を検討する。

参考文献

[1]藤島雅継 他：“核燃料物質使用施設の高経年化に係る安全評価手法の開発”, 保全学 Vol.13, No.2（2014）113-123
[2]坂本直樹 他：“核燃料物質使用施設の高経年化対策に係わる安全評価手法の開発（1）これまでの実績と改善計画”, 日本原子力学会 2020 年春の年会, 2J06.

---

*Yuichi Tamaoki[1], Ryosuke Isozaki[1], Ryuta Suzuki[1], Masataka Akada[1], Satoshi Sawahata[1], Ryoma Yonezawa[1], Tadatsune Fujishima[1], Yasutaka Mizukoshi[1], Naoki Sakamoto[1]
[1]Japan Atomic Energy Agency

レベル 3PRA の結果を時系列で分析するための検討

Study for considering the Level 3 PRA results in time series

*市川 竜平[1]

[1]原子力規制庁長官官房技術基盤グループ

従来のレベル 3PRA では、距離区分と防護対策設定に基づく評価対象に対する被ばく線量や健康影響の発生確率等の影響が、計算期間の積算値として示されてきた。積算値による整理からは、影響が大きくなるタイミングに関する情報を得られない。影響が大きくなるタイミングを特定し、リスクの観点から有効な対策を検討するため、時系列で影響を分析する手法を検討した。

キーワード：レベル 3PRA，WinMACCS，線量評価

1. 緒言

防護対策等の効果の分析や解析結果への寄与の大きなパラメータの分析につなげるため、レベル 3PRA により得られる被ばく線量や健康影響の発生確率等が大きくなる期間を特定したい。影響が大きくなる期間を特定することは、リスクを低減するための検討を行う観点から有効な手法であると考えられる。

2. 分析手法の検討

緊急事態の初期対応段階において、時間の経過とともに増加する影響を、年間の気象データを考慮するレベル 3PRA の手法を用いて分析する方法を検討した。レベル 3PRA コードとして、WinMACCS[1]を用いた。WinMACCS を用いた通常の解析では影響の経時変化を確認できないため、計算期間を区切った解析を複数回行うこととした。これにより、結果を時系列で整理した。

3. 検討の結果

検討した手法を用いた被ばく線量の経時変化について、年間の気象を用いて解析した結果を小さい値から累積したときの 50%と 95%にあたる値を図に示す。本検討では、3 ループ加圧水型軽水炉における、中破断冷却材喪失事故時の ECCS 注水失敗による過圧破損ケースのソースターム[2]を用いた。また防護対策として、放出がほぼ終了する約 5 日目まで屋内退避を継続することを仮定した。3 日目から 5 日目にかけて放射性物質の大規模な放出を設定しており、この間の実効線量の増加割合が大きいことが確認できる。

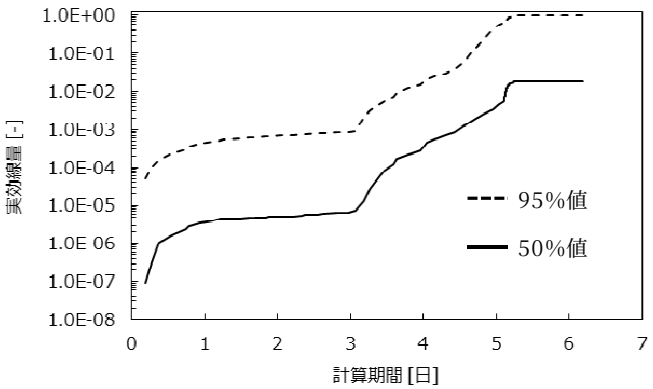


図 被ばく線量の経時変化（平均、個人、距離区分 5 から 30 km、95%値の最終的な実効線量を 1 として正規化）

被ばく経路別の影響の確認や、ほかの防護対策条件による結果を組み合わせることで、リスクを効果的に低減するための検討につなげられることを期待できる。

参考文献

[1] Chanin and Young, Code Manual for MACCS2: Volume 1, User’s Guide, NUREG/CR-6613, SAND97-0594, 1998.

[2] 独立行政法人原子力安全基盤機構，予防的防護措置範囲検討のためのレベル 2PSA の解析（PWR）, 2012.

*ICHIKAWA Ryohei[1]

[1]Regulatory Standard and Research Department, Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R)

EAL を対象としたリスク評価手法の開発
（2）EAL 深刻度評価

Development of the risk assessment technique for EAL
(2) The assessment of EAL severity

*青木 貴則[2]，田原 美香[1]，竹澤伸久[1]，中川 孝博[2]
[1]東芝エネルギーシステムズ（株），[2]東芝プラントシステム（株）

EAL の深刻度は、EAL 発生の条件付き FP 放出確率や EAL 発生から FP 放出までの余裕時間によって評価できると考えられる。このうち、条件付き FP 放出確率は我々が前回発表した EAL 発生頻度評価手法によって評価できる。そこで本発表では、EAL 発生から FP 放出までの余裕時間を評価するための EAL タイミング評価手法について報告する。

キーワード：EAL 深刻度，SE，GE

1. 緒言

各種の EAL 該当条件の中にはリスクの高いものから低いものまで様々なものが存在する。リスクの高い EAL とは、EAL 該当事象発生後 FP 放出に至る蓋然性が高く、かつ、避難開始から FP 放出までの時間の短いものを指す。このような EAL にかかわるリスクを定量的に把握できれば、社会的リスク低減に向けた様々な検討が可能になる。FP 放出の蓋然性は条件付き FP 放出確率で客観的に把握でき、この評価手法を我々は先に開発したが[1]、これに引き続き、避難にかけられる時間を評価するための手法を新たに開発した。

2. EAL タイミング評価手法

2-1. EAL タイミング評価ツールの作成

EAL の条件は、緩和機能の喪失や温度・圧力パラメータの推移など、その種類は多岐にわたる。任意の事象進展シナリオ上における各種条件の該当タイミングとこれら条件の組合せにより発生する EAL を統合的に扱える評価ツールを作成した。

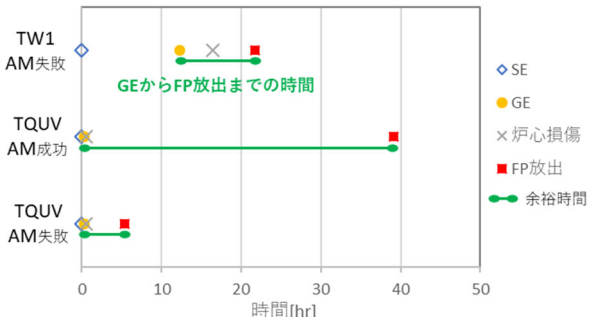


図 1 EAL 発生と FP 放出時間の例

2-2. 事象進展解析の実施

事象進展解析ソフト（本研究では米国 EPRI 製 MAAP を用いた）により、対象とするシナリオの事象進展解析を行う。その際、温度や圧力等のプラントパラメータが各種 EAL の条件に該当したタイミングを出力させるための入力条件を組み込んでおき、2-1.の EAL タイミング評価ツール上で扱えるようにシンボル化する。

2-3. EAL 発生及び FP 放出タイミング評価

2-1.で作成した評価ツールに 2-2.の解析アウトプットを読み込むことで、事象進展時間とともに EAL 発生タイミングを評価できる。評価結果から、当該シナリオにおける特定の EAL の発生から FP 放出までの余裕時間を求めることができる（図 1）。

3. 結論

本研究では EAL 発生から FP 放出までの余裕時間を評価する手法を開発した。本手法の評価結果と各 EAL の条件付き FP 放出確率の情報を合わせて分析することで EAL ごとの深刻度を評価することができる。この EAL 深刻度を活用すれば、既存の EAL の適正化や、より効果的な防護対策の検討が可能になる。

参考文献

[1] EAL を対象としたリスク評価手法の開発（1)レベル 1PRA モデルを利用した評価手法 原子力学会 2020 年秋の大会

*Takanori Aoki[2], Mika Tahara[1], Nobuhisa Takezawa[1] and Takahiro Nakagawa[2]
[1]Toshiba Energy Systems & Solutions Corporation, [2]Toshiba Plant Systems & Services Corporation

Oral presentation | IV. Nuclear Plant Technologies | 403-1 Risk Assessment Technology, Application of Risk Information

[3F08-13] External PRA

Chair: Sunhyon Jan (UTokyo)

Fri. Mar 19, 2021 2:45 PM - 4:30 PM Room F (Zoom room 6)

[3F08] Research on Seismic Correlation for PRA

*Yasuki OTORI Ohtori[1], Hitoshi Muta[1], Ken Muramatsu[1] (1. Tokyo City University)

2:45 PM - 3:00 PM

[3F09] A Framework of RI-PB Design Application for Seismic Events

*Toshiaki Sakai[1], Yasuki Ohtori[2], Yoshifumi Katayama[3], Hitoshi Muta[2] (1. CRIEPI, 2. TCU, 3. Chuden Engineering Consultants CO.,LTD)

3:00 PM - 3:15 PM

[3F10] A Framework of RI-PB Design Application for Seismic Events

*Yoshifumi Katayama[1], Yoshiaki Shiba[2], Yasuki Ohtori[3], Toshiaki Sakai[2], Hitoshi Muta[3] (1. CEC, 2. CRIEPI, 3. TCU)

3:15 PM - 3:30 PM

[3F11] A Framework of RI-PB Design Application for Seismic Events

*Mituharu Ohara[1], Yasuki Ohtori[1], Hitoshi Muta[1], Yoshifumi Katayama[2], Toshiaki Sakai[3] (1. TCU, 2. CEC, 3. CRIEPI)

3:30 PM - 3:45 PM

[3F12] Study on multi-unit PRA considering Correlation between Multiple Safety Systems using the Continuous Markov Monte Carlo Method

*Kento Sawada[1], Tomohiro Endo[1], Akio Yamamoto[1], Sunghyon Jang[2], Keisuke Maeda[3], Chikahiro Sato[3] (1. Nagoya Univ., 2. UTokyo, 3. TEPSYS)

3:45 PM - 4:00 PM

[3F13] Coupled analysis of reactor behavior and flooding propagation for ISLOCA and its impact on PRA-related parameters

*Hiroki Jojima[1], YOSHIKANE Hamaguchi[1], TOMOMICHI Ito[1] (1. Nuclear Regulation Authority)

4:00 PM - 4:15 PM

©Atomic Energy Society of Japan

地震 PRA における損傷相関に関する研究
その２：応答係数の共通変数と独立変数の分離に基づき生成した乱数を用いた DQFM 法

Research on Seismic Correlation for PRA
Part 2: DQFM using correlated random numbers based on
the concept of common and independent variability of response factors

*大鳥 靖樹[1]，牟田 仁[1]，村松 健[1]
[1]東京都市大学

損傷相関を考慮した地震 PRA を実施するために、地震動伝播経路の振動特性の類似性に基づき応答係数を共通変数と独立変数に分離して乱数を生成する方法を提案し、DQFM 法に実装してその有効性を確認した。
キーワード：損傷相関、応答相関、地震 PRA、共通原因故障、DQFM 法

1. 緒言

地震 PRA では機器の複数同時故障の可能性があるため、現実的な評価を行うには応答の相関を考慮した解析が必要となる。応答の相関については、SSMRP の結果から経験的に求めた相関係数[1]が提案され、用いられてきた。しかしながら、DQFM 法に実装して相関行列を三角行列に因数分解をする際に、行列の条件が悪く分解できないことがあるため、経験に基づき相関係数行列を修正する等の対応が行われてきた[2]。

本稿では、因数分解時の数値解析上の不安定性を回避するために、応答の相関係数行列の因数分解を伴わない乱数生成法を提案し、DQFM 法に実装したので、手法の概要とその結果について報告する。

2. 提案手法の概要

その１[3]で示した例題に対して、地震動の伝播経路の振動特性の相違を整理した結果を右の表に示す。ここで、$F_{R(1)}$は震源から解放基盤面まで、$F_{R(2)}$はサイトの地表面、$F_{R(3)}$は建物およびフロアー、$F_{R(4)}$は機器の応答係数である。また、各欄の識別記号は振動特性の相違を示し、括弧内の数値は不確実さβを示している。その１[3]では、共通する不確実さの大きさβ_Cを求めて相関係数行列を算出し、相関を有する乱数を生成した。本稿では、各欄の識別記号ごとに完全無相関な乱数を与えて各応答係数を算定し、$F_{R(1)}$～$F_{R(4)}$を掛け合わせることにより各機器に対する応答係数を算出する。例えば、機器(1)の応答係数 F_R は $F_{R(1)}$(DGM1)×$F_{R(2)}$(GF1)×$F_{R(3)}$(BF1)×$F_{R(4)}$(CMP1)となる。本手法を適用して応答の相関係数を算出したところその１[3]と一致する結果が得られた。また、DQFM 法に実装したところ、安定的に解が得られることが確認できた。

表：地震動の伝播経路の分析結果

機器番号	$F_{R(1)}$	$F_{R(2)}$	$F_{R(3)}$	$F_{R(4)}$
(1)	DGM1 (0.25)	GF1 (0.20)	BF1(0.10)	CMP1 (0.05)
(2)			BF2(0.10)	
(3)				
(4)		GF2 (0.20)	BF3(0.10)	

3. 結論

本稿では、応答係数を共通変数と独立変数に分離して乱数を生成する手法を示し、DQFM 法に実装し有効性を確認した。今後は、実規模システムに対して開発した手法を適用し、有効性を確認していく予定である。

参考文献

[1] Bohn, M.P., Lambright, J.A., NUREG/CR-4840 SAND88-3102, NUREG/CR-7237. U.S., 1990.
[2] Watanabe, Y., Oikawa, T., Muramatsu, K., Reliability Engineering & System Safety 79, 265-279, 2003.
[3] 大鳥・中島・牟田、地震 PRA における損傷相関に関する研究　その１、2017 年原子力学会秋の大会、2017.

*Yasuki Ohtori[1], Hitoshi Muta[1] and Ken Muramatsu[1]
[1]Tokyo City University

RI-PB に基づく新しい耐震設計体系のフレームワーク
その７：リスクプロファイルのバランス化に関する検討

A Framework of RI-PB Design Application for Seismic Events

Part7：Study on the Balanced Risk Profile

*酒井 俊朗[1]，大鳥 靖樹[2]，片山 吉史[3]，牟田 仁[2]

[1]電中研，[2]東京都市大，[3]中電技術コンサルタント

本報告では、システムの損傷確率の目標値からシステムのフラジリティ曲線の設定、さらに目標確率の分解、個々の機器・設備のフラジリティ曲線を設定する手法及び試解析の結果について述べる。

キーワード：RI-PB、目標リスク、フラジリティ評価

1. 検討手法

本検討は次の手順により、システムの目標リスクから FT（フォールトツリー）の逆方向解析により、リスクを分解し、個々の SSC に割り当てられた損傷確率を満足する SSC のフラジリティを定めるものである。

Step1: リスクダイアグラムに基づく目標リスクを満足するシステムフラジリティの設定

Step2: Step1 で算定されたシステムのフラジリティ曲線と地震ハザード曲線からリスク（損傷確率）に支配的な地震動強度と損傷確率を算定

Step3: Step2 で算定された損傷確率から各 SSC に要求されるフラジリティ曲線の中央値の算定

Step4: 各 SSC のフラジリティ曲線から、システム解析によりシステムの損傷確率を算定し、目標とするシステムとの損傷確率と比較、必要に応じて Step1-4 を繰り返す。

2. 試検討

図 1 に示す検討モデル及び損傷確率の分解の考え方を用いて提案手法の妥当性を検証した。

検討条件としては、システムの目標年損傷確率を 10^{-5}/年、システムフラジリティの不確実さ β=0.4，各ポンプ A～C は各々 4 つの部品からなり、総計 12 個の部品から構成されるものとして、個々の部品のフラジリティの不確実さ β は 0.30～0.50 の範囲で乱数発生により与えた。

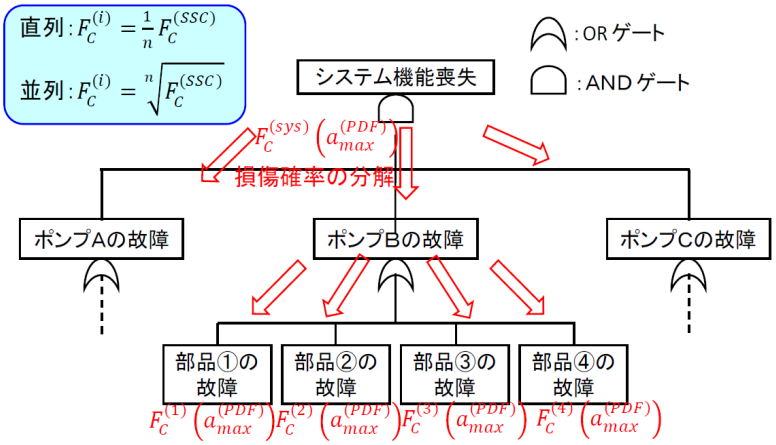


図 1 検討モデル

モンテカルロシミュレーションにより 100,000 回の計算を行い、システムの目標確率から各部品のフラジリティ曲線、損傷確率を算定し、同フラジリティ曲線によりシステムの損傷確率を算定したところ、1.03～1.04×10^{-5}/年が再現され、かつ、各ポンプの損傷確率値もバランスが確保されることを確認した。すなわち、システムの目標リスク（損傷確率）を与えた場合に、個別 SSC の目標フラジリティ、損傷確率を適切なバランスで設定が可能であり、システムの目標リスクに応じた個々の SSC の設計が可能であることとなる。

参考文献

[1]Sakai,T.,Katayama,Y.,Ohtori,Y.,Muta,H. and Nakajima,M.(2020) : A Framework of RI-PB Seismic Design/Part 1: Characeristics of the Proposed RI-PB Seismic Design, PSAM15,Venice, Italy.

---

*Toshiaki Sakai[1], Yasuki Ohtori[2], Yoshifumi Katayama[3] and Hitoshi Muta[2]

[1]CRIEPI, [2]TCU, [3]Chuden Engineering Consultants

RI-PB に基づく新しい耐震設計体系のフレームワーク
その８：強震動波形計算に基づいた周期間相関の評価

A Framework of RI-PB Design Application for Seismic Events

Part8：Evaluation of inter-period correlation based on strong ground motion simulations

*片山 吉史[1]，芝 良昭[2]，大鳥 靖樹[3]，酒井 俊朗[2]，牟田 仁[3]

[1]中電技術コンサルタント，[2]電中研，[3]東京都市大

本報告では，特定地震発生時の特定地点における応答スペクトルの周期間相関を，強震動波形計算によって算定した応答スペクトルを使って評価した結果を報告する。

キーワード：周期間相関，強震動波形計算，統計的グリーン関数法，応答スペクトル，確率論的リスク評価

1. はじめに

著者らは，加速度応答スペクトルの地震動予測式(GMPE)を使って固有周期の異なる耐震機器と免震機器から成る耐震多様性を有するシステムのリスク評価を行った[1]。GMPE は，マグニチュードや震源距離等を与えて，固有周期毎の応答加速度の平均値および標準偏差を算定できるが，異なる周期間の関係は考慮されていない。このため，文献[1]では，多数の地震および観測点における地震観測記録を回帰分析して求めた Baker の周期間相関[2]を用いて，それぞれの機器の応答加速度を評価した。本検討では，特定地震発生時の特定地点の周期間相関を，統計的グリーン関数法により算定した応答スペクトルを使って評価する。

2. 検討方法

検討ケースは，地震規模 M6.9 と M7.3，断層最短距離 R=5, 10, 20km を組み合わせた 6 ケースとした。断層パラメータのうち，地震モーメント M_0，短周期レベル A，アスペリティ位置，破壊開始点位置，破壊伝播速度 V_r は，文献[3]を参考に不確実さを与え，各ケースで 500 波を生成した。また，上記以外の断層パラメータは強震動予測レシピに基づき設定した。各検討ケースの周期間相関は，500 波の加速度応答スペクトルにおける GMPE と統計的グリーン関数法間の残差の相関係数として算定した。

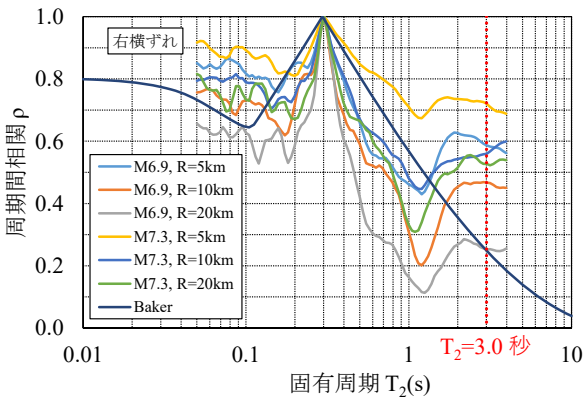


図 1　周期間相関(T_1=0.3 秒)

3. 検討結果と考察

各ケースの固有周期 T_1=0.3 秒に対する周期間相関 ρ を Baker と比較して図 1 に示す。M が大きいほど，最短距離 R が近いほど ρ は大きくなる傾向がある。文献[1]では，機器の固有周期を 0.3 秒と 3.0 秒と仮定して，Baker の ρ =0.25 を用いている。本検討で求めた周期間相関は ρ =0.25～0.72 となり，Baker の ρ より大きくなる傾向がある。したがって，サイトに近接する特定の大規模地震に対して耐震多様性システムのリスク評価に Baker の ρ を用いるとリスクを過少に評価する可能性があるため，このことを反映した評価をすることが望ましいと考えられる。

参考文献

[1]大鳥･他：地震 PRA における耐震多様性の評価，　2019 年春の年会

[2] Baker et al.：Correlation of Spectral Acceleration Values form NGA Ground Motion Models, Earthquake Spectra, Vol. 24(2008)

[3] 引田･他：断層モデルに基づく地震動応答スペクトル予測法と予測結果のばらつきに関する検討，日本建築学会構造系論文集(2015)

* Yoshifumi Katayama[1], Yoshiaki Shiba[2], Yasuki Ohtori[3], Toshiaki Sakai[2] and Hitoshi Muta[3]

[1]Chuden Engineering Consultants, [2]CRIEPI, [3]TCU

RI-PB に基づく新しい耐震設計体系のフレームワーク その 9：建屋内機器の応答の相関

A Framework of RI-PB Design Application for Seismic Events
Part9: Response correlation of components installed in a building

*大原 光晴[1], 大鳥 靖樹[1],牟田 仁[1], 片山 吉史[2], 酒井 俊朗[3]
[1]東京都市大学, [2]中電技術コンサルタント, [3]電力中央研究所

建屋内に耐震多様性を有する機器を設置する効果を把握するために、様々な固有周期を持つ機器の設置階を変えた解析を行い応答の相関係数の評価を行った。

キーワード： 確率論的リスク評価, 耐震多様性, 原子炉建屋, 相関係数, 床応答スペクトル

1. 緒言

原子力発電所の安全上重要な機器に振動特性の多様性を持たせることで共通原因故障を回避し、リスクを低減することが可能である[1]。しかしながら、建屋内のシステムに対して耐震多様性を有する機器の導入効果を定量的に検討した事例はない。本稿では、機器の固有周期と設置階を変えた解析を行い、様々な条件下の応答の相関係数の評価を行うと共に、既提案の相関係数との比較を行ったのでその結果について報告する。

2. 応答の相関係数の算出

建屋内に設置された機器の応答は、文献[2]で開発したスペクトルモーダル解析法に基づいて算出した床応答スペクトルより求めた。入力地震動は、地震ハザード解析の結果より各震源要素に対する応答スペクトルを求め、周期間相関を考慮して与えた。機器の固有周期を 0.1, 0.2, 0.5, 1.0, 2.0, 5.0[秒]の 6 つ、高さ 65［m］の原子炉建屋（9 質点モデル）を想定した。また、評価地点は全国 11 地点を想定したが、表には東京における相関係数の計算結果を示す。地震ハザード解析に反映される震源要素の数は、東京で約 46 万個あり、応答の相関係数の評価には全ての震源要素に対して発生確率を重みとして標準偏差、共分散を算出して求めた。括弧内には米国で用いられている相関係数を示す[3]。

表：東京における相関係数

			Floor	
			Same	Different
Period	Same	MIN～MAX	1.00	0.98～1.00
		AVERAGE	1.00 (1.00)	0.99 (0.75)
	Different	MIN～MAX	0.56～0.96	0.56～0.97
		AVERAGE	0.66 (0.50)	0.64 (0.00)

表より、既提案の相関係数に比べ大きな値となっていることが分かる。これは、評価に用いた地震動や建屋の条件に依存していると考えられる。また、地震ハザードに基づいた入力地震動を作成しているためマグニチュードが小さい地震の影響を強く受けていると考えられる。

3. 結論

同一建屋内の機器の応答の相関は既提案の値より大きくなる傾向にあった。今後は入力地震動との関係を検討するとともに、応答値との関係も分析していく予定である。

参考文献

[1] 大鳥・他、地震 PRA における耐震多様性の評価、2019 年原子力学会　春の年会
[2] 大原・他、原子力施設の周期特性の多様性を考慮したシステム解析コードの開発、2020 年原子力学会　秋の年会
[3] Bohn and Lambright、NUREG/CR-4840、1990 年

*Mituharu Ohara[1], Yasuki Ohtori,[1] Hitoshi Muta[1], Yoshifumi Katayama[2] and Toshiaki Sakai[3]
[1]Tokyo City Univ., [2] Chuden Engineering Consultants, [3]A Central Research Institute of Electric Power Industry

連続マルコフ過程モンテカルロ法による
複数機器間の相関を考慮したマルチユニット PRA に関する検討

Study on PRA considering Correlation between Multiple Safety Systems
using the Continuous Markov Monte Carlo Methods

*澤田憲人[1]，遠藤知弘[1]，山本章夫[1]，張承賢[2]， 前田佳祐[3]， 佐藤親宏[3]
[1]名古屋大学,[2]東京大学,[3]株式会社テプコシステムズ

近年、原子炉施設におけるユニット間の相互作用を考慮したリスク評価の有力な手法の一つとして、連続マルコフ過程モンテカルロ（CMMC）法を事故進展解析コードに組み合わせた CMMC カップリング手法の研究が進められている。本検討では、自作した簡易な事故進展解析コードに CMMC 法を適用することで、複数の原子炉ユニットで同時に SBO＋RCIC 喪失事象が発生した場合に、安全系操作の成功率が事故進展により変化すると仮定した解析を行い、マルチユニット PRA に対する CMMC 法の適用性を検証した。

キーワード：確率論的リスク評価，連続マルコフ過程モンテカルロ法，マルチユニット

1. 緒言 これまでに、システムが単純な SFP を対象とした事故進展解析を CMMC 法により実施し、CMMC 法により複数機器間の相互依存性を妥当に再現できることを確認した。これを受け、原子炉を対象とした緩和系を考慮した事故進展解析を CMMC 法により実施した結果、実機 PRA 相当の解析には非常に大きな計算時間を要することが分かった。本検討では、サンプリング方法の改良によりこの課題の解決を試みた。複数の原子炉における SBO＋RCIC 喪失発生時を対象とし、緩和系失敗率が RPV 状態に応じて変化すると仮定した事故進展解析を実施した。解析では実機 PRA 相当の緩和系失敗率を用い、CMMC 解析において逆関数法を用いたサンプリングを行うことで、現実的な時間でマルチユニットリスク評価が可能であるかを検討した。

2. 解析方法 公開情報に基づき、原子炉における SBO＋RCIC 喪失発生時の事故進展を簡易解析するコードを作成した。作成した解析コードを用い、2 基の原子炉を対象とし、緩和系（高圧代替注水系、格納容器ベント）を考慮した解析を行った。表 1 のように RPV の状態とベント失敗率に相関を持たせることで、RPV 破損に伴う空間線量の増加により現場作業が困難になる状況を模擬した。CMMC 解析では、逆関数法を用いたサンプリング方法によって高圧代替注水系が機能喪失するサンプルのみを解析することで、計算時間を削減した。

表 1 ベント失敗率の値（原子炉 1）

RPV 状態	値
RPV-1 健全、RPV-2 健全	7.8E-06 [/hour]
RPV-1 破損、RPV-2 健全	0.60 [/demand]
RPV-1 健全、RPV-2 破損	0.30 [/demand]
RPV-1 破損、RPV-2 破損	0.90 [/demand]

3. 結果・今後の課題 サンプル数10^6の解析時間は約 80[s]であり、逆関数法を用いたサンプリング方法により短時間で解析可能であることを確認した。サンプル数10^6における RPV 及び PCV 累積破損確率を図 1 に示す。PCV 累積破損確率が約 36[h]で増加するのは、自ユニットの RPV が健全であっても隣接ユニットの RPV が破損し、上昇した失敗率によってベントに失敗するシナリオが存在するためである。また、ベント失敗サンプルのうち、隣接ユニットの RPV からの影響で失敗したサンプルは約 35[%]であり、ベントの信頼性向上には他ユニットから受ける影響の低減が重要であることを確認した。今後の課題として、解析モデルの高度化、結果の評価方法の検討が挙げられる。

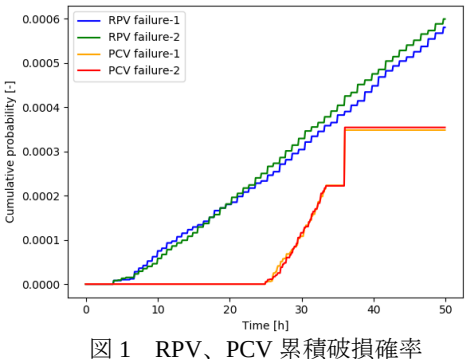


図 1 RPV、PCV 累積破損確率

*Kento SAWADA[1], Tomohiro ENDO[1], Akio YAMAMOTO[1], Sunghyon JANG[2], Keisuke MAEDA[3], and Chikahiro SATO[3]
[1]Nagoya University, [2]The University of Tokyo, and [3]TEPCO SYSTEMS CORPORATION

ISLOCA 時の原子炉の挙動と溢水伝播の連携解析及び PRA 関連パラメータへの影響

Coupled analysis of reactor behavior and flooding propagation for ISLOCA and its impact on PRA-related parameters

*城島 洋紀[1]，濱口 義兼[1]，伊東 智道[1]

[1]原子力規制庁長官官房技術基盤グループ

4 ループ PWR プラントを対象に原子炉プラントシステム解析コード Apros を用いて、インターフェースシステム冷却材喪失事故（ISLOCA）時の原子炉の挙動と原子炉建屋内の溢水伝播の連携解析を実施した。本連携解析で得られた機器の没水までの時間と破断流量を一定として計算した場合の機器の没水までの時間を比較し、その差異について分析し、確率論的リスク評価（PRA）における影響を検討した。

キーワード：確率論的リスク評価、溢水伝播、熱水力解析

1. 序論　原子炉建屋内の溢水を対象にしたリスク評価方法の高度化を目的として、原子炉プラントシステム解析コード Apros[1]を用いた原子炉の挙動と原子炉建屋内の溢水伝播の連携解析に取り組んでいる[2,3]。本稿では、原子炉の挙動と原子炉建屋内の溢水伝播の連携解析が、内部溢水 PRA で用いるパラメータである機器の没水までの時間及び人的過誤確率に与える影響を紹介する。

2. 手法　解析対象とする事象は、4 ループ PWR プラントの原子炉建屋内の溢水事象であり、かつ原子炉の挙動が変化する事象である ISLOCA とした。炉心損傷を防止する対策として、原子炉トリップ後、2 次系強制冷却により原子炉の冷却及び減圧を行い、蓄圧注入系及び低圧注入系から炉心へ注水を行うこととした。

Apros を用いて原子炉、原子炉周り及び建屋のモデルを作成することで、ISLOCA 時の原子炉の挙動と溢水伝播の連携解析を実施し、機器が没水するまでの時間を算出した。この時間を、破断時の配管の内圧等から得られる一定の破断流量並びに床面積及び機器の高さを用いて、簡易的に算出した機器が没水するまでの時間と比較することで、原子炉の挙動と溢水伝播の連携解析による人的過誤確率への影響を調べた。

3. 結論　右図に Apros を用いた連携解析による破断流量（case1）と原子炉の挙動を考慮しない場合の破断流量（case2）の結果を示す。ISLOCA 発生直後の両破断流量は同程度であるものの、その後、原子炉の挙動の影響により、破断流量の差異が大きくなっている。また、約 6651 秒で没水により低圧注入ポンプが機能喪失し、一次系の保有水量が減少することにより、破断流量が減少している。本連携解析により、溢水伝播解析の結果を原子炉の挙動に反映させることができた。右表は機器の没水までの時間を比較しており、算出方法により結果が大きく異なっている。これにより、溢水の隔離操作に係る人的過誤確率へ大きな影響があることが分かった。

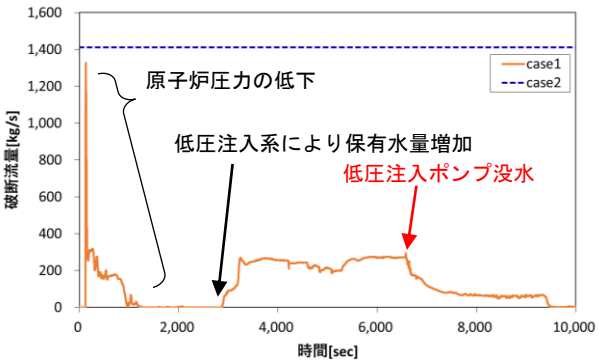


図　破断流量の比較

表　機器の没水までの時間の比較

	最大破断流量	低圧注入ポンプの没水までの時間
case1	約1327[kg/s]	約6651[s]
case2	約1411[kg/s] (破断流量は一定)	約397[s]

参考文献

[1] Fortum, Apros in recent BWR and PWR projects, http://www.apros.fi/en/industries/nuclear_power/recent_bwr_and_pwr_projects

[2] 伊東他、2018 年春の年会、3B10. [3] 濱口他、2018 年春の年会、3B11.

*JOJIMA Hiroki[1], HAMAGUCHI Yoshikane[1] and ITO Tomomichi[1]

[1] Regulatory Standard and Research Department, Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R)

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 503-1 Reactor Chemistry, Radiation Chemistry, Corrosion, Water Chemistry,Water Quality Control

[3G01-05] Behavior of Radioactive Nuclides &Fuel Debris 1

Chair: Shunsuke Uchida (JAEA)

Fri. Mar 19, 2021 9:30 AM - 11:00 AM Room G (Zoom room 7)

[3G01] Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor unde severe accident

*Hidetoshi Karasawa[1], Shuuhei Miwa[1], Chiaki Kino[2] (1. JAEA, 2. IAE)

9:30 AM - 9:45 AM

[3G02] Estimation of Cs distribtion and characteristics in the reactor under severe accident

*Nakajima Kunihisa[1], Suzuki Eriko[1], Imoto Jumpei[1], Miwa shuhei[1], Osaka Masahiko[1] (1. JAEA)

9:45 AM - 10:00 AM

[3G03] Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor under severe accident

*Eriko Suzuki[1,2], Kunihisa Nakajima[1], Shuhei Miwa[1], Masahiko Osaka[1], Naoyuki Hashimoto[2], Shigehito Isobe[2], Hiroshi Oka[2] (1. JAEA, 2. Hokkaido Univ.)

10:00 AM - 10:15 AM

[3G04] Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor under severe accident

*Jumpei Imoto[1], Kunihisa Nakajima[1], Shuhei Miwa[1] (1. JAEA)

10:15 AM - 10:30 AM

[3G05] Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor under severe accident

*Shuhei Miwa[1], Hidetoshi Karasawa[1], Chiaki Kino[2], Kunihisa Nakajima[1], Eriko Suzuki[1], Junpei Imoto[1] (1. JAEA, 2. IAE)

10:30 AM - 10:45 AM

©Atomic Energy Society of Japan

シビアアクシデント時の原子炉内におけるセシウム分布・性状の予測
（1）SAMPSON による原子炉内の Cs 化学吸着量の評価

Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor under severe accident

(1) Evaluation of amounts of chemisorbed Cs in the rector

*唐澤 英年[1]，三輪 周平[1]，木野 千晶[2]

[1]JAEA，[2]エネ総研

CsOH 蒸気濃度等が与える影響を評価可能とするために開発した化学吸着モデルを組み込んだ SA 解析コード SAMPSON により、福島第一原子力発電所事故時に圧力容器上部構造材に化学吸着した Cs 量を評価した。CsOH 蒸気の濃度は Mo の共存や温度降下によるエアロゾル生成により変化するため、本モデルに対する既往モデルの化学吸着量の割合は号機により変化した。これから、実機における化学吸着量評価には、既往モデルでは不十分であり本モデルの適用が必要であることが示された。

キーワード：シビアアクシデント(SA)、CsOH、化学吸着、構造材、ECUME、SAMPSON、実機評価

1. 緒言；

1F 廃炉に向けた圧力容器内の Cs 分布予測には、事故時の SUS への化学吸着量を正確に評価することが必要である。SA 時に燃料から放出される Cs は蒸気であり、化学形は CsOH が主とされている。CsOH 蒸気はステンレス鋼(SUS)の表面に化学吸着し、その速度に関しては、水への 1 時間の浸漬による Cs 溶解性から、water-soluble と water-insoluble の 2 種がガス温度の関数として得られている[1,2]。今回、化学吸着速度の CsOH 濃度依存性を改良した ECUME[2]の効果を確認するため、実機解析を行い吸着モデルの比較を行った。

2. 解析モデル；

SAMPSON では、燃料ペレット温度の関数である FP 放出割合を計算し、放出された FP の化学形態をガス温度の関数である熱化学平衡計算から求めた。そして、FP 量のうち、ガス温度での飽和蒸気圧以上の分をエアロゾルとし、残りを蒸気とした。CsOH 蒸気については、次式で上部プレナム、気水分離器、蒸気乾燥器等、圧力容器内への化学吸着量を下記で計算した。この後、物理形態・化学形毎にマスバランス方程式を解いた。

$$dC_g/dt = -v_{ins} A_l C_g \ , \qquad \text{ECUME 式；} v_{ins}(high) = 7.027 \sqrt{C_B}/C_g^{0.5225} \exp(-6552/T)$$

ここで、Cg は解析ノード l 中の CsOH 蒸気濃度、A_lは構造材表面積、v_{ins}は water-insoluble の化学吸着速度である。吸着速度には、Bowsher 式[1]と ECUME 式[2]を用いた。なお、壁への吸着・再蒸発における CsOH 蒸気の吸着速度は、water-soluble の Bowsher 式[1]を用いた。

3. 解析結果；

放出した Cs の化学形は CsOH, CsI, Cs_2MoO_4 であった。ECUME 式による Cs の化学吸着量は、各号機で初期インベントリーの約 0.01, 0.5, 2%であった。表 1 に、各号機で化学形が CsOH となる割合と、ECUME 式で求めた化学吸着量に対する Bowsher 式で求めた化学吸着量の割合を示す。

表 1　CsOH 割合と化学吸着量の割合

Item	Unit 1	Unit-2	Unit-3
Ratio of CsOH (%)	33	61	74
Water-soluble (-)	9.9	0.61	0.63
Water-insoluble (-)	58	0.73	2.1

各号機での化学吸着量の違いは、ガス温度が 1000K 以上となった 1, 3 号機では CsOH 蒸気の凝縮が抑制されるため、Cg が高くなり、Bowsher 式の方が上式で示すように Cg の平方根分多くなることで説明可能である。このように、化学吸着量は事故進展に応じた CsOH 蒸気量に大きな影響を受け、Bowsher 式は過大・過小評価していることが分かった。なお、本報には OECD/NEA ARC-F プロジェクトで解析した結果の一部を含む。

参考文献；[1] BR. Bowsher, AEEW-R 1863(1990).　[2] K. Nakajima, et.al., Mech. Eng. J. 7(3) (2020) 19-00564.

---

*Hidetoshi Karasawa[1], Shuhei Miwa[1] and Chiaki Kino[2]　[1]JAEA, [2]IAE

シビアアクシデント時の原子炉内におけるセシウム分布・性状の予測
（2）Cs 化学吸着挙動の評価

Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor under severe accident
(2) Evaluation of Cs chemisorption behavior

*中島 邦久[1]，鈴木 恵理子[1]，井元 純平[1]，三輪 周平[1]，逢坂 正彦[1]
[1]JAEA

水酸化セシウム（CsOH）蒸気とステンレス鋼（SUS304）との化学吸着実験で見つかった $CsFeO_2$ は、鉄の酸化状態によっては、463 K でも生成することから、これまで実施してきた温度（>873 K）よりも低い温度で化学吸着実験を行った。その結果、670 K 程度でも $CsFeO_2$ が生成し、化学吸着挙動を示すことが分かった。
キーワード：セシウム、化学吸着、ステンレス鋼

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所（1F）の圧力容器内には、表面積の大きな SUS304 製の気水分離器や蒸気乾燥器が存在するため、原子力機構では、これら上部構造材に固着する Cs の化学吸着挙動を明らかにするための実験を行ってきた[1]。これまで、CsOH 蒸気と SUS304 との化学吸着挙動については 873K 以上で起こると報告されていた[2]。しかし、最近見つかった化学吸着生成物の $CsFeO_2$ については、463 K でも生成することが報告されている[3]。また、炉内には、比較的温度が低い圧力容器上部構造材領域以外でも鋼材が多く用いられている。そのため、873 K よりも低い温度領域で、Cs の化学吸着挙動の有無を確かめるための実験を実施した。

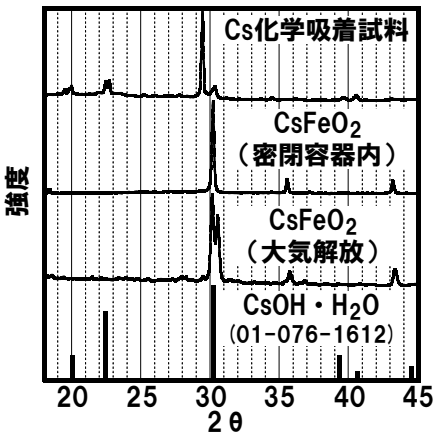


図 1　化学吸着実験（673K）後試料及び $CsFeO_2$ 標準試料の XRD パターン

2. 実験方法

Cs 化学吸着実験では、Ar-4%H_2-20%H_2O 雰囲気下、923 K で CsOH を上流側で蒸発させ、下流側に置かれた SUS304 試料を 673 K もしくは 773 K で 3 時間加熱した。実験後試料の Cs 化合物の同定には、レーザラマン分光光度計及び X 線回折（XRD）装置を用いた。また、標準試料として CsOH・H_2O と α-FeOOH との混合粉末から 673 K で調製した $CsFeO_2$ を用いた[4]。なお、$CsFeO_2$ は吸湿性が高いため、窒素で密封された試料ホルダーを用いてラマン分光分析及び XRD 測定を実施した。

3. 結果

673 K における化学吸着実験後試料の XRD パターン及びラマンスペクトルの測定結果を、それぞれ、図 1 及び図 2 に示す。標準試料に用いた $CsFeO_2$ との比較から、673 K でも $CsFeO_2$ が生成することが確認され、Cs の化学吸着は、気水分離器や蒸気乾燥器といった 1F 事故時に比較的温度が高かった圧力容器内の上部構造材領域だけでなく、格納容器鋼表面も含んだもっと広い領域で起きる可能性があることが分かった。

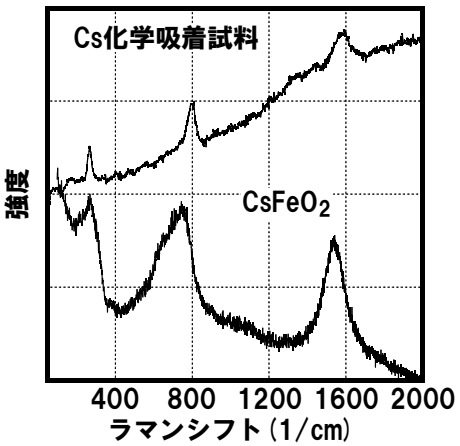


図 2　化学吸着実験（673K）後試料及び $CsFeO_2$ 標準試料のラマンスペクトル

参考文献

[1] 例えば S. Nishioka, et al., J. Nucl. Sci. Technol., 56, 988 (2019.).
[2] B. R. Bowsher, et al., AEEW-R 1863, (1990).
[3] 井元純平、他、原子力学会 2020 秋の大会 2E17. [4] 井元純平、他、原子力学会 2020 春の年会 1A12.

* Kunihisa Nakajima[1], Eriko Suzuki[1], Jumpei Imoto[1], Shuhei Miwa[1], Masahiko Osaka[1] [1]JAEA.

シビアアクシデント時の原子炉内におけるセシウム分布・性状の予測
（3）Cs 化学吸着生成物の化学形態評価

Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor under severe accident
(3) Chemical forms of Cs chemisorbed products

*鈴木 恵理子[1,2]，中島 邦久[1]，三輪 周平[1]，逢坂 正彦[1]，橋本 直幸[2]，礒部 繁人[2]，岡 弘[2]
[1]JAEA，[2]北海道大学

原子炉内の構造材に化学吸着したセシウム（Cs）の性状評価に資するために、過去に実施したステンレス鋼への Cs 化学吸着実験、熱力学データの整備及び熱力学平衡計算の結果を取り纏めるとともに、微細組織観察による酸化層内部の化学形態の調査を実施し、温度条件及び酸化層内の位置ごとの Cs 化学吸着生成物の化学形態を評価した。その結果、873~973 K では Cs-Fe-O 系、973~1273 K では Cs-Fe-Si-O 系、1073~1273 K では Cs-Si-O 系といった異なる化合物が生成することが分かった。

キーワード：セシウム化学吸着，ステンレス鋼、ECUME

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所（1F）事故時の原子炉圧力容器内の Cs 性状のより正確な評価のためには、原子炉内構造材への Cs 化学吸着により生成した Cs 化合物の化学形態に係る知見が重要となる。過去の米国での研究では、構造材である 304 ステンレス鋼（SUS304）への Cs 化学吸着により、1030～1270 K で Cs-Si-O 系化合物（$Cs_2Si_4O_9$ や $Cs_2Si_2O_5$）が生成する可能性が報告されている[1]。しかしながら、温度条件が限定されており、また、化学形態の同定には至っていなかった。本研究では、軽水炉シビアアクシデント時に想定される条件下で化学吸着した Cs の化学形態の把握を目的として、過去に実施した 873～1273 K における SUS304 への Cs 化学吸着実験結果[2-3]、及び Cs 化学吸着実験で新たに明らかとなった Cs 化学吸着生成物の熱力学データを用いた熱力学平衡計算の結果[4]を取り纏めるとともに、これまで不明であった酸化層内部の化学形態を微細組織観察を行うことで調査し、各温度条件及び酸化層内の位置における化学形態を評価した。

2. 実験方法

Cs 化学吸着実験では、873、973、1073、1273 K で 3 時間、Ar-5%H_2-5%H_2O 雰囲気下で SUS304 へ CsOH 蒸気を反応させ、SEM/EDS、XRD、HAXPES 等を用いて Cs 化学吸着生成物の化学形態を分析した[3]。さらに本件では、TEM/EDS を用いて酸化層内部の Cs 化学吸着生成物の化学形態を分析した。また、Cs 化学吸着実験で明らかとなった化学形態のうち、熱力学データが未知であった Cs 化学吸着生成物について、第一原理計算により熱力学データを整備した[4]。整備した熱力学データを用いた熱力学平衡計算結果を基に、各温度条件において、安定となる Cs 化学吸着生成物の化学形態を評価した。

3. 結果

反応後の分析の結果、SUS304 に数十 μm 厚さの酸化層が形成され、酸化層表面付近から内部にかけて Cs が分布することが分かった。図 1 に、各温度条件及び酸化層内の位置における Cs 化学吸着生成物の化学形態を示す。Cs 化学吸着実験の結果、873~973 K では Cs-Fe-O 系、973～1273 K では Cs-Fe-Si-O 系、1073~1273 K では Cs-Si-O 系化合物が生成することが分かった。熱力学平衡計算の結果においても、約 1023 K 以下では $CsFeO_2$ が、約 1053K 以上では $CsFeSiO_4$ が安定な化合物であることが分かった。これらの結果から、1F 原子炉内で想定される温度条件において化学吸着した Cs は、原子炉内の温度条件及び酸化層内の位置によって異なる化学形態を持つ可能性があることが示された。

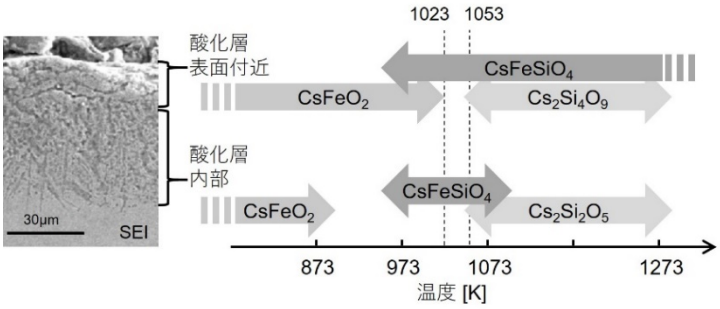


図 1　各温度条件における Cs 化学吸着生成物の化学形態

参考文献

[1] R. M. Elrick et al., NUREG/CR-3197 vol.1, SAND83-0395 (1984). [2] M. Kobata, et al., J. Nucl. Mater., 498, 387-394 (2018). [3] S. Nishioka, et al., J. Nucl. Sci. Technol., 56, 988-995 (2019). [4] F. Miradji, et al., Proc. of ERMSAR2019, 047 (2019).

*Eriko Suzuki[1,2], Kunihisa Nakajima[1], Shuhei Miwa[1], Masahiko Osaka[1], Naoyuki Hashimoto[2], Shigehito Isobe[2] and Hiroshi Oka[2]
[1]JAEA., [2]Hokkaido Univ.

シビアアクシデント時の原子炉内におけるセシウム分布・性状の予測

(4) Cs 化学吸着生成物の水への溶解性

Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor under severe accident
(4) Dissolution properties of Cs-chemisorbed compounds in water

*井元　純平[1]，中島　邦久[1]，三輪　周平[1]
[1]日本原子力研究開発機構

原子炉内での Cs の溶出挙動に資する Cs 化学吸着生成物の水への溶解度データの拡充を目的に、これまでに化学吸着再現実験で生成が確認されている Cs 化合物の溶解度測定を行った。その結果、Cs の溶解性の大きさは $Cs_2Si_2O_5$ / $CsFeO_2$ > $Cs_2Si_4O_9$ > $CsFeSiO_4$ の順となることが分かった。

キーワード：化学吸着、セシウム、溶解度

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所（1F）の廃炉において Cs の炉内分布を把握することは重要である。1F では廃炉が長期間に渡ることから、炉内に存在する Cs 化合物は水相を介した移行が起こり、Cs の再分布が起こる可能性がある。Cs 再分布を評価するためには、Cs 化合物の水への溶出挙動に関する知見が必要であり、これは除染の観点からも重要である。Cs の一部は炉内構造材であるステンレス鋼との化学吸着により Cs-Fe-Si-O、Cs-Si-O、Cs-Fe-O のような化合物を形成し、安定に存在している可能性がある[1-2]。しかし、Cs 化学吸着生成物の水への溶出挙動に関するデータは非常に限られている。そこで本研究では Cs の溶出挙動に資する Cs 化学吸着生成物の水への溶解度データの拡充を目的に、これまでに化学吸着再現実験[1-2]で生成が確認された $CsFeSiO_4$、$Cs_2Si_2O_5$、$Cs_2Si_4O_9$、$CsFeO_2$ の標準試料を作製し、OECD テストガイドライン[3]に準ずる方法で溶解度測定を行った。

2. 実験方法

標準試料合成用の出発物質として $CsFeO_2$ は CsOH・H_2O と α-FeOOH の元素比が Cs:Fe=1:1、また $Cs_2Si_2O_5$、$Cs_2Si_4O_9$、$CsFeSiO_4$ は $CsCO_3$、SiO_2、Fe_2O_3 を Cs:Si=1:1、Cs:Si=1:2、Cs:Fe:Si=1.4:1:1 となるように不活性雰囲気のグローブボックス内で混合した。これらの混合粉末を「成形→加熱（673 K～1273 K）→粉砕・混合」の工程を単相の試料が得られるまで繰り返すことで標準試料を作製した。

密栓可能な 3 つの容器に予想される溶解度の約 5 倍の試料を純水にそれぞれ量り入れ、303 K 一定で振とうを開始した。4 日間の振とうの後、容器のうちの 1 つを 293 K で 24 時間平衡化を行った。24 時間平衡化後、この容器を 293 K で遠心分離した上澄み液を採取し、ICP-MS または ICP-AES にて元素分析を行った。他の 2 つの容器は、303 K でそれぞれ 5 日間および 6 日間振とうを行った後に、293 K で同様の操作を行った。

3. 結果及び考察

表 1 に各 Cs 化合物から水へ溶出した元素濃度を分析した結果を示す。$Cs_2Si_2O_5$ 以外の Cs 化合物は Cs が他の元素よりも優先的に溶出しており、$CsFeSiO_4$、$Cs_2Si_4O_9$ は溶出の数日間オーダーでの時間依存性があることも分かった。$Cs_2Si_2O_5$ 及び $CsFeO_2$ は時間依存性がない結果となっているが、今回の試験では Cs が全溶解したため、未飽和の値を示している。今回の試験では正確な溶解度の決定には至らなかったが、Cs の溶解性の大きさは $Cs_2Si_2O_5$ / $CsFeO_2$ > $Cs_2Si_4O_9$ > $CsFeSiO_4$ の順となることが分かった。一方、炉内における主要な Cs 化合物と考えられている CsOH、CsI、Cs_2MoO_4 の溶解度（g/100 g 水）はそれぞれ 386（288 K）[4]、78.6（293 K）[5]、204（291 K）[5]であり、今回の測定とは単位が異なるため単純には比較できないが $CsFeSiO_4$、$Cs_2Si_4O_9$ の Cs の水への溶解性は、これら主要な Cs 化合物と比較して大幅に低くなることが分かった。

表 1　各 Cs 化合物から溶出した元素濃度

試料	元素	濃度（mg/L）		
		4日	5日	6日
$Cs_2Si_2O_5$	Cs	230603	231471	229566
	Si	47393	46626	46946
$CsFeSiO_4$	Cs	96.4	110	121
	Fe	1.63	2.85	1.50
	Si	7.17	8.78	8.74
$Cs_2Si_4O_9$	Cs	688	708	788
	Si	123	133	147
$CsFeO_2$	Cs	2601	2415	2491
	Fe	5.97	6.09	7.43

参考文献

[1] M. Kobata et al., J. Nucl. Mater., 498, 387-394 (2018) [2] E. Suzuki et al., Proceedings of FDR2019, FDR2019-1068. [3] OECD, OECD Guideline for the Testing of Chemicals - Water Solubility, 1-8 (1995). [4] J. A. Dean, Lange's Handbook of Chemistry, Fifteenth Edition (1999). [5]日本化学会、化学便覧（基礎編）改訂 4 版、丸善 (1993).

*Jumpei Imoto[1], Kunihisa Nakajima[1] and Shuhei Miwa[1]
[1]Japan Atomic Energy Agency

シビアアクシデント時の原子炉内におけるセシウム分布・性状の予測 (5) 総括

Estimation of Cs distribution and characteristics in the reactor under severe accident (5) Summary

*三輪 周平[1]、唐澤 英年[1]、木野 千晶[2]、中島 邦久[1]、鈴木 恵理子[1]、井元 純平[1]
[1]JAEA、[2]エネ総研

東京電力福島第一原子力発電所（1F）各号機の圧力容器内において、水溶性が低く安定と考えられるセシウム（Cs）化学吸着生成物の生成量は既往モデルによる予測値に比べて低くなる可能性があることが分かった。
キーワード：セシウム、化学吸着、ステンレス鋼、水溶性、ECUME、SAMPSON

1. 緒言

1F 炉内における Cs 分布及び性状の評価精度向上に資するため、炉内移行挙動に大きな影響を与える化学挙動データを取得し、SA 解析コードにより化学挙動を評価可能とするデータベース ECUME の構築・改良を進めている[1]。将来的なデブリ取出し規模拡大に向けたアクセス方法検討等において、未だアクセスできていない圧力容器内の Cs 分布及び性状を予測することが必要になると考えられる。特に、高温となった圧力容器内では鋼材への化学吸着により安定な Cs 化合物が生成するため[1]、Cs 化学吸着挙動は二次汚染等を評価する上で重要となる。そこで、本シリーズ発表では、改良した化学吸着モデルを SA 解析コード SAMPSON に適用して事故時の化学吸着量に係るデータを取得し、長期間の挙動を予測するために必要な化学形態や水溶性等の特性を調べた。本発表では、1F 圧力容器内における Cs 分布及び性状に係る知見を得ることを目的に、化学吸着量、化学形態、水溶性に係るデータを取り纏めた。

2.安定な Cs 化学吸着生成物の分布及び性状・結言

図 1 に各号機の条件と化学吸着モデルで「water-insoluble」（水への 1 時間の浸漬で溶け残ったもの）として生成したと考えられる Cs 化学吸着生成物の化学形態と水溶性の関係を示す[2-5]。

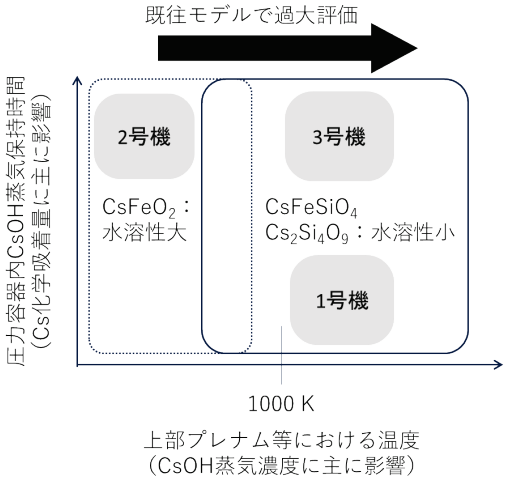


図 1　1F 各号機の条件と Cs 化学吸着生成物の性状等の関係[2-5]

1 号機、3 号機は上部プレナム等の温度が 1000 K を超えており、吸着生成物は水溶性の低い $CsFeSiO_4$ や $Cs_2Si_4O_9$ となる。SAMPSON による解析結果より、CsOH 蒸気の気中濃度が高くなり、「water-insoluble」の化学吸着量が既往モデルでの予測値よりも低くなるため（1 号機：約 58 倍、3 号機：約 2 倍[2]）、$CsFeSiO_4$ や $Cs_2Si_4O_9$ の生成量も低くなると考えられる。

2 号機は上部プレナム等の温度が 1000 K を超えておらず、吸着生成物には比較的水溶性の高い $CsFeO_2$ が含まれる。SAMPSON による解析結果より、比較的低い温度で CsOH 蒸気の気中濃度は低くなるため、モデル間の差異は小さくなる（約 0.7 倍[2]）。一方、既往モデルで想定されている生成物とは異なり、この温度領域では、比較的水溶性の高い $CsFeO_2$ が生成されているため、水溶性の低い $CsFeSiO_4$ や $Cs_2Si_4O_9$ の生成量は既往モデルでの予測値よりも低くなるものと考えらえる。

以上より、1F 圧力容器内の上部プレナム、気水分離器、蒸気乾燥器等において、水溶性が低く安定と考えられる $CsFeSiO_4$、$Cs_2Si_4O_9$ の化学吸着生成物の生成量は、既往モデルによる予測値に比べて低くなる可能性があることが分かった。

参考文献　[1] 例えば、S. Miwa, et al., Mech. Eng. J. 7(3) (2020) 19-00537. [2] 唐澤ら, 原子力学会 2021 春の年会 [3] 中島ら, 原子力学会 2021 春の年会 [4] 鈴木（恵）ら, 原子力学会 2021 春の年会 [5] 井元ら, 原子力学会 2021 春の年会

*Shuhei Miwa[1], Hidetoshi Karasawa[1], Chiaki Kino[2], Kunihisa Nakajima[1], Eriko Suzuki[1], Junpei Imoto[1],　[1]JAEA [2]IAE

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 503-1 Reactor Chemistry, Radiation Chemistry, Corrosion, Water Chemistry,Water Quality Control

[3G06-08] Behavior of Radioactive Nuclides &Fuel Debris 2

Chair: Hidetoshi Karasawa (JAEA)

Fri. Mar 19, 2021 11:00 AM - 12:00 PM Room G (Zoom room 7)

[3G06] Study on revaporization of deposited CsI from stainless steel 304 surface in high-temperature steam atmosphere

*Muhammad Rizaal[1], Shuhei Miwa[1], Eriko Suzuki[1], Jumpei Imoto[1], Masahiko Osaka[1], Mélany Gouë llo[2] (1. Japan Atomic Energy Agency, 2. VTT Technical Research Centre of Finland)

11:00 AM - 11:15 AM

[3G07] Assembling Analysis System for Behavior of Water-Containing Fuel Debris - (III)

*Toru Ogawa[1] (1. JAEA)

11:15 AM - 11:30 AM

[3G08] Evaluation of Short and Long-Term Behavior of Radioactive Nuclides Distributed in Fukushima Daiichi NPP

*Shunsuke Uchida[1], Hidetoshi Karasawa[1], Chiaki Kino[2], Masahiko Ohsaka[1] (1. JAEA, 2. IAE)

11:30 AM - 11:45 AM

©Atomic Energy Society of Japan

Study on revaporization of deposited CsI from stainless steel 304 surface in high-temperature steam atmosphere

*Muhammad Rizaal[1], Shuhei Miwa[1], Eriko Suzuki[1], Jumpei Imoto[1], Masahiko Osaka[1], Mélany Gouëllo[2]
[1]Japan Atomic Energy Agency, [2]VTT Technical Research Centre of Finland

We experimentally investigated the revaporization behavior of deposited CsI on the surface of structural material such as stainless steel in a subsequent high-temperature steam flow (i.e., reflood of the reactor at severe accident). The experimental results showed that the deposited CsI at 850K could be vaporized, leaving the formation of Cs_2CrO_4 on that once-deposited surface and consequently giving an increase of iodine release observed below 400K.

Keywords: Cesium iodide, revaporization, high-temperature steam, Cs_2CrO_4

1. Introduction

The volatile radioactive fission products (FP) such as iodine and cesium are released from degraded fuel in the event of nuclear severe accident (SA) to which they are transported to the reactor coolant system (RCS) and the containment building, as had been demonstrated in the Phebus-FP experiments [1]. During the transport, Cs and I can react and significantly deposit in the RCS as CsI [1]. In the case of reactor reflood where excess steam can be generated, the stability of deposit is likely to be affected such as revaporization. Therefore, we performed an experimental study using a thermal gradient tube (1000-400K) to investigate the possible mechanism of gaseous I formation due to CsI revaporization from the surface of RCS material, stainless steel 304, in a high-temperature steam atmosphere.

2. Experimental method

The experimental setup called TeRRa was set the same as the previous study [2] where CsI powder (Wako, 99.9 wt%) in alumina crucible was vaporized in a resistance furnace at the axial location having 1050K (max. 1273K). Before the vaporization started, Ar-20%H_2O had been fed to the thermal gradient tube (TGT) made of stainless steel 304 (SUS304) with temperature 1000-400K to achieve pre-oxidized condition. In the TGT, 33 sampling coupons SUS304 were placed at specific axial locations to represent the temperature of interest. After 2-hour vaporization under Ar-20%H_2O and followed by the cooling process, the crucible was removed and the filter placed at the TGT outlet was exchanged. Next, the heating process was repeated under the same mixed gas flow and sustained for 1.25 hours. After which, each part of TGT, and the filter were taken and dissolved into NaOH solution for the measurement of Cs and I deposit amount by ICP-MS. Separately, the sampling coupons were analyzed using SEM/EDS, XRD, and Raman spectrometer.

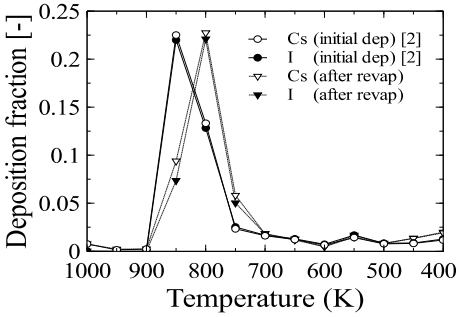


Figure 1. Deposition fraction of Cs and I in TGT at initial deposition [2] and after revaporization test

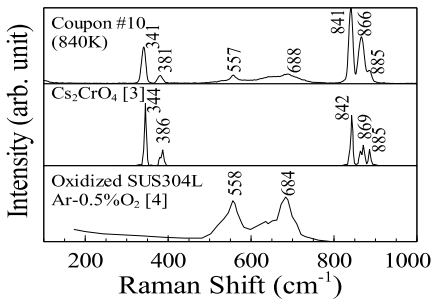


Figure 2. Raman spectrum of deposit on sampling coupon No. 10

3. Results and discussion

The Cs and I distribution in the TGT are presented in Figure 1. Previous results [2] showed the initial deposition has a peak deposition at 850K. This initial deposition was further confirmed to be unstable and tend to vaporize, in which it decreased significantly (46% of Cs and 51% of I deposit). Following the revaporization, another deposition occurred at 800-750K where consisted of mainly CsI. Additionally, we measured a fractional increase of gaseous I downstream (<400K). This was resulted after the revaporization at 850K (dashed line) where a part of CsI was decomposed and had a reaction that producing gaseous I so that a lesser amount of I deposit remained (i.e. Cs/I >1). The Raman spectroscopy result on coupon No. 10 (Figure 2) where such Cs/I >1 observed (Figure 1, 850K), XRD, and element mapping (not shown here) confirmed the formation of cesium chromate (Cs_2CrO_4). Therefore, the gain of gaseous I which is obtained by the following possible reaction: $8CsI(c) + 2Cr_2O_3(s) + 5O_2(g) = 4Cs_2CrO_4(s) + 4I_2(g)$, can prevail during the revaporization by subsequent high-temperature steam flow.

References

[1] N. Girault et al., Ann Nucl Energy, 2013, 61, 143–156. [2] N. Miyahara et al., J Nucl Sci Technol, 2020, 57(12), 1287–1296.
[3] John Wiley & Sons, Inc. SpectraBase; SpectraBase Compound Cs_2CrO_4. [4] Y. Matsuda et al., Tetsu-to-Hagane, 1993, 79(1), 48–54.

含水燃料デブリの挙動評価システムの構成
(III) 照射済燃料挙動文献データの解析

Assembling Analysis System for Behavior of Water-Containing Fuel Debris
(III) Analysis of literature data on irradiated fuels

* 小川徹
原子力機構

含水燃料デブリ挙動予測のためのプログラム・パッケージは放射線分解反応解析と燃料物質表面の電気化学解析とを組み合わせた解析を可能とする。照射済み試料片の水溶液浸漬試験文献データを解析し、過酸化水素の均一系での分解や酸化物表面での触媒分解反応などの個々のパラメータの影響を検討した。

キーワード: 燃料デブリ、個別要素法、放射線輸送、モンテカルロ、放射線分解、水素、電気化学

1. 緒言

燃料デブリは、事故進展過程に依存した多様な性状を有し、また、その物理・化学状態も廃炉工程とともに変化する。その挙動予測手法は今後得られるデータに基づき、適時修正、増補が容易なものであることが望ましい。解析のためのプログラム・パッケージを構成し、照射済み燃料試片を用いた実験室系の文献データについて解析を試みた。

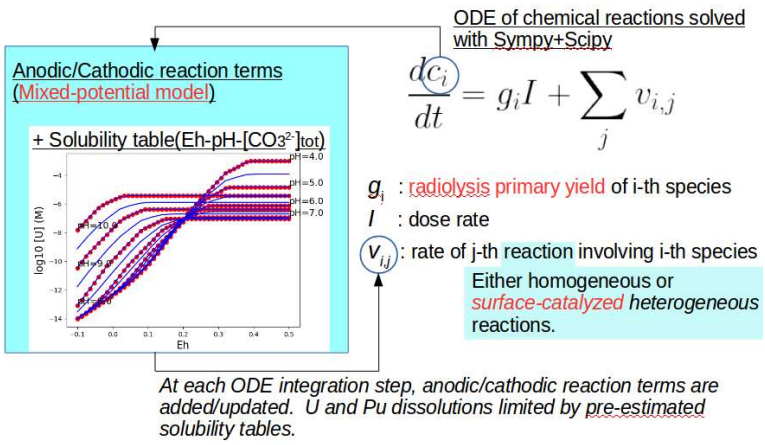


図1　解析モデル構成と解法の概要

2. 解析システム

図 1 に、放射線分解反応解析とデブリ表面反応とを組合わせ、水素、酸素放出と燃料溶出を同時に評価するためのモデル構成と解法の概略を示す。気液界面、固液界面電気化学的反応に加えて、照射済み燃料物質表面での触媒分解反応を組込んだ。また、U,Puの溶解度制限を扱えるようにした。

様々なパラメータをそれぞれ独立した複数の文献データに基づいて評価・設定したうえで、 照射済み　PWR 燃料試片を用いた1,000日間の実験室系文献データ[1]について解析した。データとの比較から、水素、過酸化水素の表面分解反応、酸化ウラン表面変質の進展について考察を加える。

参考文献

[1] Esther Cera et al., 'Experimental determination and chemical modelling of radiolytic processes at the spent fuel/water interface. Long contact time experiments', SKB TR-06-07, 2006, Svensk Kärnbränslehantering AB.

[2] Mayuri Razdan and David W. Shoesmith, "The influence of hydrogen peroxide and hydrogen on the corrosion of simulated spent nuclear fuel", Faraday Discuss., 2015, 180, 283 - 299.

*Toru Ogawa
Japan Atomic Energy Agency

福島第一原子力発電所での放射性核種の短/長期挙動の評価

8. CAMS データからの逆解析による D/W 下部のセシウム量の評価

Evaluation of Short and Long-Term Behavior of Radioactive Nuclides Distributed in Fukushima Daiichi NPP

8. Evaluation of cesium amounts in the D/W bottom region based on backward evaluation from CAMS data

*内田 俊介[1]，唐澤 英年[1]、木野 千晶[2]、逢坂 正彦[1]
[1]原子力機構、[2] エネ総研

概要：線量率変換係数を用いて線量率測定値から逆解析により、D/W 下部の Cs 量を求めた。1 号機では D/W 下部、S/C の Cs 量共に両解析でよく一致したが、2, 3 号機では順解析の結果が逆解析の 1/10 となった。
キーワード：福島第一原子力発電所、シビアアクシデント、セシウム、CAMS

1．緒言

D/W 及び S/C 主要部位の主要核種から CAMS 位置での線量率を計算のための線量率変換係数を求めた[1]。この変換係数を用いた逆解析により、原子炉停止後十分な時間経過し（9,000 時間）、^{134}Cs および ^{137}Cs 以外に核種の線量率への寄与が無視できる状態で、各号機の D/W 下部の Cs 量を求めた。

2．長期 FP 挙動の順解析と逆解析

図 1 に、順解析（SA 解析コード SAMPSON で PCV 各部の FP 分布を求め、主要 FP 核種の分布に基づいて CAMS 位置での線量率を求め、実測値と比較）と逆解析（線量率から Cs を中心とする FP 核種分布を予測）を比較して図示する。

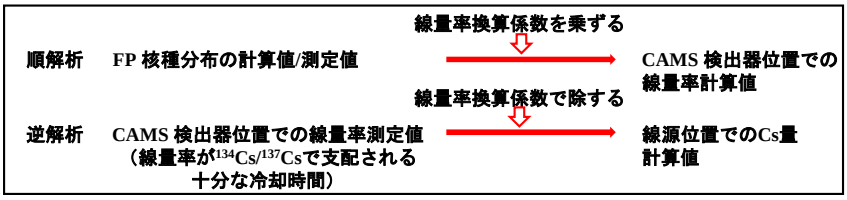


図1　CAMS線量率の順解析と逆解析

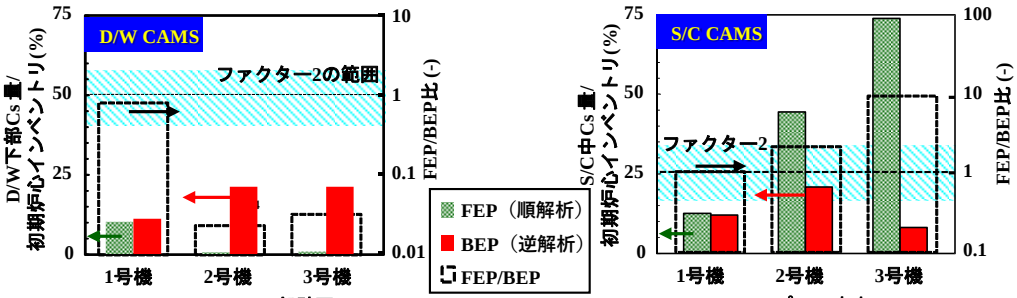


図2 順解析（SAMPSON）と逆向解析の比較

3．逆解析による長期 FP 挙動評価

1F の原子炉停止後約 9,000 時間での各号機の D/W 及び S/C CAMS 線量率より逆解析で求めた D/W フラスコ部壁面及び S/C プール水中のセシウム量を図 2 に示す。本逆解析の結果と SAMPSON コードを用いた順解析の結果を比較した、以下の点が明らかになった。

①1 号機では A, B 両系統で D/W CAMS の線量率測定値に差異が見られたが、washing-out 効果の偏在化を仮定することにより、すべての号機で逆解析ができた。
②1 号機では D/W 下部および S/C の Cs 量の逆解析と順解析の結果に差異は見られない。
③2, 3 号機では逆解析による D/W 下部の Cs 量が順解析での値よりも 1 桁以上上回った。
④燃料デブリ取出し等の際に PCV 内の FP 分布評価への SA 解析コードの適用には十分な配慮が必要と考える。

4．まとめ

1F 廃炉作業時の FP 分布評価のための SA 解析コードを用いた順解析、逆解析など、可能な限りの手段を用いて、プラント主要部での FP 残存量、分布の経時変化を定量化し、プラント全体での FP のマスバランスを把握することを目指す。一連の評価を通して、廃炉作業のリスク評価を念頭に、従事者の被ばく、環境への放射性物質の放出と汚染水発生の抑制を鼎立可能な廃炉作業の提言に資する予定である。

［参考文献］(1) 内田ほか、CAMS データからの逆解析による S/C 水中のセシウム量の評価，AESJ2020 年秋の大会 2F04

*Shunsuke Uchida[1], Hidetoshi Karasawa[1], Chiaki Kino[2] and Masahiko Ohsaka[1]
[1]Japan Atomic Energy Agency, [2]Institute of Applied Energy.

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 503-1 Reactor Chemistry, Radiation Chemistry, Corrosion, Water Chemistry,Water Quality Control

[3G09-11] Corrosion &Electrochemistry at High Temperature 1

Chair: Hiroshi Abe (Tohoku Univ.)

Fri. Mar 19, 2021 2:45 PM - 3:45 PM Room G (Zoom room 7)

[3G09] Effect of Catalysts Deposition on Carbon Steel Corrosion

*Koji Negishi[1], Takahiro Hara[1], Yusuke Horayama[1], Junichi Takagi[1] (1. TOSHIBA ESS)

2:45 PM - 3:00 PM

[3G10] Development of suppression method for deposition of radioactivity and mitigation of corrosive environment

*Tsuyoshi Ito[1], Hideyuki Hosokawa[1], Mayu Sasaki[2], Makoto Nagase[2] (1. Hitachi Ltd., 2. Hitachi-GE Nuclear Energy, Ltd.)

3:00 PM - 3:15 PM

[3G11] High Temperature Electrochemical Reaction Parameters for Electrochemical Corrosion Potential Model

*Yoichi Wada[1], Kazushige Ishida[1], Makoto Nagase[2] (1. Hitachi, 2. HGNE)

3:15 PM - 3:30 PM

©Atomic Energy Society of Japan

炭素鋼腐食に及ぼす触媒付着の影響評価

Effect of Catalysis Deposition on Carbon Steel Corrosion

*根岸 孝次[1]，原 宇広[1]，洞山 祐介[1]，高木 純一[1]

[1]東芝エネルギーシステムズ

白金（Pt）および酸化チタン（TiO_2）の付着が炭素鋼の腐食に及ぼす影響を評価した。その結果、Pt が付着した場合は、酸素と水素の再結合反応により溶存酸素濃度が低下することで腐食が加速する可能性が示唆された。一方、TiO_2 の付着は腐食挙動に特段の影響を与えないことを確認した。

キーワード：白金、酸化チタン、付着、炭素鋼、減肉速度

1. 緒言　沸騰水型軽水炉では、ステンレス鋼等の粒界型応力腐食割れ(IGSCC)の予防保全対策として、炉水中へ貴金属(Pt)や酸化チタン(TiO_2)を注入する技術がある。本技術について、注入された薬剤が原子炉冷却材浄化(CUW)系の熱交換器下流の炭素鋼配管に付着した場合の炭素鋼腐食挙動に及ぼす影響を評価した。

2. 試験手順（試験 1）　触媒(Pt および TiO_2)を内面に付着させたステンレス鋼配管に溶存酸素濃度(DO)と溶存水素濃度(DH)を調整した高温水を通水させ、酸素と水素の再結合反応の反応速度定数を評価した。評価した反応速度定数を用いて CUW 系熱交換器の出口 DO を算出した。

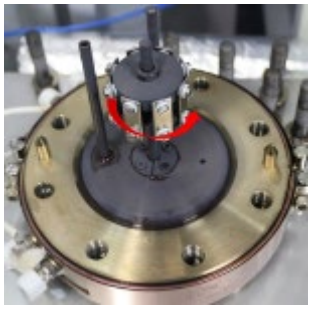


図 1 回転腐食試験装置

3. 試験手順（試験 2）　TiO_2 および Pt を塗布した炭素鋼試験片を高温回転腐食試験装置(図 1)に取付け CUW 配管流速相当(2m/s)で腐食試験を実施し、試験前後の重量変化から減肉速度を評価した。その際、試験水の DO は試験 1 の反応速度定数から評価した CUW 系熱交換器の出口 DO とし、試験温度は炭素鋼の減肉速度が最も大きいと予想する 2 段目の熱交換器出口温度である 170℃[1]とした。

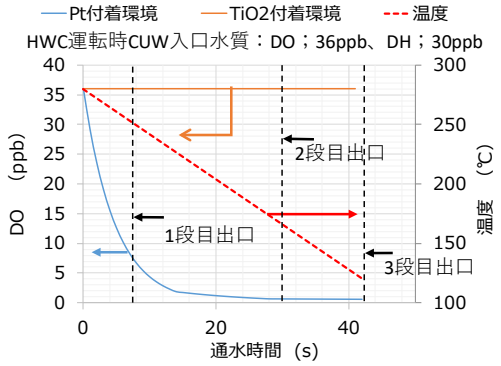


図 2 CUW 系熱交換器の DO 変化

4. 結論　試験 1 の結果、Pt 付着環境では、再結合反応により通水後の DO が低下した。一方、TiO_2 付着環境では、通水前後の DO は変化しなかった。本結果から一次反応として反応速度定数を評価した。BWR 水素注入時水質(HWC)条件における CUW 系熱交換器の入口水質(DO ; 36ppb、DH ; 30ppb)から評価結果に基づき CUW 系熱交換器通過時の DO を算出した結果、熱交換器の 2 段目(170℃)出口以降において Pt 付着時は 1ppb 以下、TiO_2 付着時は 36ppb となり(図 2)、これらの条件において試験 2 を実施した。減肉速度の評価結果(図 3)から、Pt 付着時は、DO 低下により流れ加速型腐食(FAC)の発生が懸念される結果となった。一方、TiO_2 付着時は、DO が低下しないため触媒注入なしの条件と同等の減肉速度となり、炭素鋼配管の腐食挙動に影響を及ぼさないことを確認した。

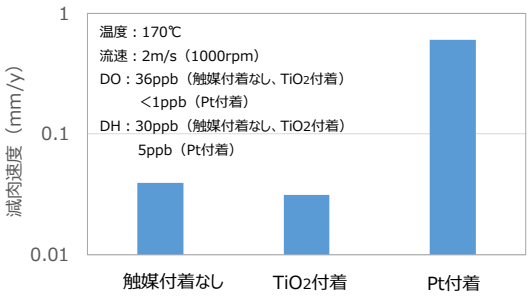


図 3 各触媒付着時の炭素鋼の減肉速度

参考文献　[1] 藤原和俊, ”水化学条件と流動状態が配管減肉挙動へ及ぼす影響に関する研究(その 1)” ,電力中央研究所研究報告 Q08016 (平成 21 年度)

*Koji Negishi[1], Takahiro Hara[1], Yusuke Horayama[1], Junichi Takagi[1]

[1]Toshiba Energy Systems & Solutions Corporation

原子炉起動時の腐食環境緩和及び放射性核種付着抑制技術の開発
－(11) 炭素鋼への Pt 粒子付き Ni 皮膜形成による Co 付着抑制メカニズムの検討－

Development of suppression method for deposition of radioactivity and mitigation of corrosive environment

-(11)- Suppression mechanism of Co deposition by Ni coat with Pt particles on carbon steel

*伊藤剛[1]，細川秀幸[1]，佐々木麻由[2]，長瀬誠[2]

[1] 日立・研開，[2] 日立 GE

貴金属注入水質に対応した化学除染後の炭素鋼の Co-60 再取込抑制技術を開発している。炭素鋼（CS）表面に Ni 金属皮膜を形成し、その上に貴金属注入を模擬して Pt 粒子を付着させた試験片を作製して Co-60 付着試験を実施し、Pt 付き Ni 金属皮膜による Co-60 付着抑制効果とそのメカニズムを検討した。

キーワード：コバルト、化学除染、ニッケル、貴金属、白金

1. 緒言

貴金属注入を適用した BWR プラントでは、化学除染した場合 Co-60 を含む酸化皮膜の溶解除去と共に付着した Pt が除去される。このため次サイクル運転開始から貴金属注入施工までの間、除染対象部において腐食環境緩和が不十分な期間が生じると共に、Co-60 の再付着が増加する。そこで、化学除染後のステンレス鋼表面に Pt 粒子を形成する Pt コートを開発し、Co-60 付着を抑制できることを確認した[1]。さらに、CS への Co-60 抑制対策として CS 表面に Ni 金属皮膜を形成する Ni コートを新たに検討した。これは貴金属注入水質では環境水中の Ni が酸化皮膜への Co 取込抑制に有効と確認されたことに基づいている。本研究では、予め Pt 粒子が付着した Ni 金属皮膜を CS 表面に形成した試験片を作製し Co-60 付着抑制効果を確認し、浸漬後のラマンスペクトルの結果から付着抑制メカニズムを検討した。

2. 実験

耐水研磨紙(#600)で研磨した CS 試験片を 1 L ビーカーに浸漬し、90℃に加熱後、Ni 濃度 200ppm(ギ酸 Ni)、ヒドラジン濃度 400ppm の水溶液に浸漬した。試験片は同時に 2 枚ずつ適宜取り出し、一方を Ni 金属皮膜量測定用に、他方を Co-60 付着試験用に用いた。Co-60 付着量への影響を調べるため、Ni 金属皮膜量が 0～420μg/cm^2 の試験片を作製した。この試験片を Pt 濃度 1ppm($Na_2[Pt(OH)_6]$)、ヒドラジン濃度 20ppm の 60℃の水溶液に 4h 浸漬して Pt コートした。試験片に形成された Ni 金属皮膜量及び Pt コート量は試験片を王水で溶解し、ICP-MS で Ni 及び Pt を定量して求めた。続いて、Ni と Pt をコートした試験片を、Co-60 を含む 280 ℃高温水(溶存酸素: 100ppb, 溶存水素: 40ppb, H_2O_2:160ppb, Zn: 5ppb)に 500h 浸漬した。試験片への Co-60 付着量は Ge 半導体γ線検出器、皮膜組成はラマンスペクトルで分析した。

3. 結論

Ni 付着処理後の試験片について、X 線回折で形態分析し、Ni 金属の形成を確認した。試験片の Ni 金属皮膜量は 0, 30, 100, 130, 210, 250, 290, 340 及び 420 μg/cm^2、0.5～1.9μg/cm^2 の Pt を付着させた。その結果、130μg/cm^2 以上の Ni 金属皮膜量では Co-60 付着量が直線的に低下し、420 μg/cm^2 では未処理試験片に対して約 1/6 に Co-60 付着量が低下した。図 1 に試験片のラマンスペクトルの結果を示す。Ni 金属の量の増加と共に試験片表面に $NiFe_2O_4$ の形成量の増加が確認された。つまり、CS 表面に $NiFe_2O_4$ が形成されることで Co-60 の付着が抑制されたと考える。

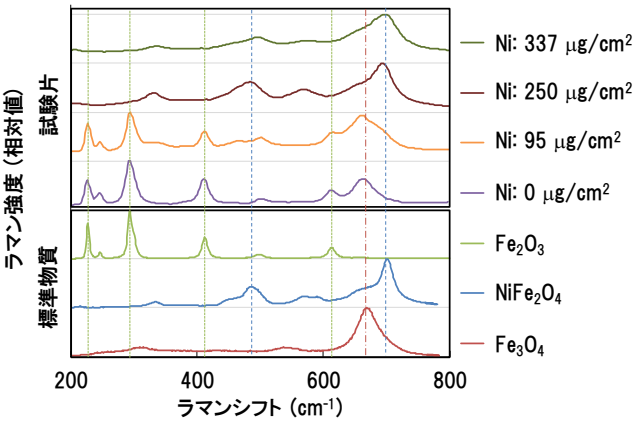


図 1　CS 表面のラマンスペクトル

参考文献　[1] 伊藤他 4 名、 原子力学会 2016 春の年会 1N07, [2] 細川他 3 名、原子力学会 2018 春の年会 2M07

---

* Tsuyoshi Ito [1], Hideyuki Hosokawa[1], Mayu Sasaki[2], Makoto Nagase[2]

[1]Hitachi, Ltd., [2]Hitachi-GE Nuclear Energy, Ltd.

腐食電位解析モデルの高温電気化学パラメーター

High Temperature Electrochemical Reaction Parameters for Electrochemical Corrosion Potential Model

*和田陽一[1]，石田一成[1]，長瀬誠[2]
[1]日立・研開，[2]日立 GE

高温純水中の SUS316L 上での酸素の電気化学反応と関連するパラメーターを検討した。低濃度の酸素のカソード反応には水のカソード反応が重畳しており、それぞれの反応を考慮した計算モデルを検討した。SUS316L の腐食電位の実測値を広い酸素濃度範囲において再現できた。

キーワード：腐食電位 1，電気化学 2，高温純水 3，BWR4

1. 緒言　沸騰水型原子炉（BWR）の炉水環境である高温純水中での 316L ステンレス鋼（SUS316L）の腐食電位（ECP）を解析モデルを用いて計算することは応力腐食割れ(SCC)の管理上重要である。しかし、高温純水中での電気化学反応と各反応に関わる電気化学パラメーターについては未だ不確かさが残っていた。そこで本研究では、SUS316L 上での酸素の電気化学パラメーターを、高温純水中で測定した SUS316L 上の酸素の分極曲線[1,2]に基づいて検討した。

2. 解析方法　高温純水中で測定された酸素のカソード分極曲線を Butler-Volmer 式を用いて表現し、各パラメーターを実験結果に基づいて決定した。SUS316L のアノード分極曲線は実測値を使用した。Tachibana は酸素のカソード分極曲線の酸素濃度依存性をカソード反応の変化として Tafel パラメーターの酸素濃度依存性の実験式を示した[2]。本研究では酸素のカソード反応（$O_2 + 4H^+ + 4e^- \rightarrow 2H_2O$）に水のカソード反応（$2H^+ + 2e^- \rightarrow H_2$）が重畳していると考え、実測の酸素のカソード分極曲線を 2 つのカソード反応の電流密度に分けて電気化学パラメーターを検討した。次に酸素と水のカソード反応と SUS316L のアノード分極曲線を基に ECP を全カソード電流密度と全アノード電流密度の均衡する電位として計算した。

3. 結論　酸素濃度 1000ppb での酸素のカソード分極曲線の傾きを酸素のカソード反応、酸素濃度 10ppb での傾きを水のカソード反応とみなし、それぞれの Tafel 勾配 b_c(V)を 0.5（酸素）および 0.04（水）、交換電流密度 i_0（A/cm^2）を 1.6×10^{-5}（酸素）および 1.5×10^{-7}（水）と決めた。その結果、図 1 に示すように、種々の濃度で測定した酸素のカソード分極曲線を再現することができた。したがって、低電位領域で酸素のカソード電流密度に水のカソード電流密度が重畳すると考えることは妥当と考える。また、決定した電気化学パラメーターを用いて SUS316L の ECP を計算したところ、広範な酸素濃度領域で実測値を再現できた。

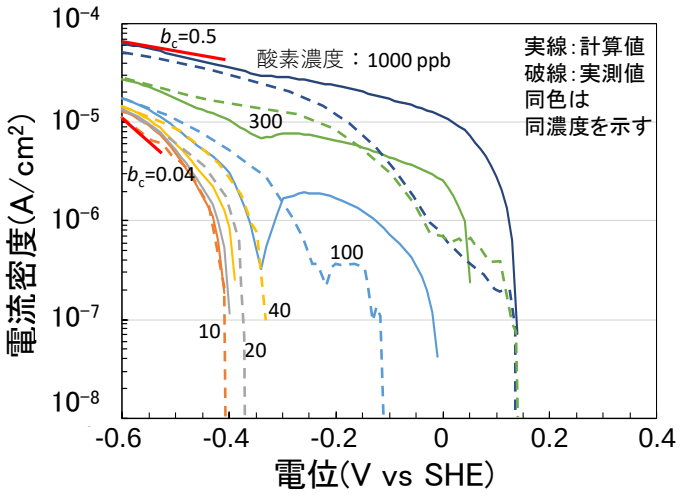


図 1　酸素のカソード分極曲線の実測値と解析値の比較

参考文献　[1] Tachibana M. et al., J Nucl Sci Technol. 2012;49(2): 253–262. [2] Tachibana M. et al., J Nucl Sci Technol. 2012;49(5): 551–561.

*Yoichi Wada[1], Kazushige Ishida[1] and Makoto Nagase[2]
[1]Hitachi, [2]Hitachi-GE.

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 503-1 Reactor Chemistry, Radiation Chemistry, Corrosion, Water Chemistry,Water Quality Control

[3G12-14] Corrosion &Electrochemistry at High Temperature 2

Chair: Koji Negishi (TOSHIBA ESS)

Fri. Mar 19, 2021 3:45 PM - 4:45 PM Room G (Zoom room 7)

[3G12] The effects of hydrogen addition on the corrosive conditions of PWR primary coolant under irradiation

*Kuniki Hata[1], Satoshi Hanawa[1], Yasuhiro Chimi[1], Shunsuke Uchida[1] (1. JAEA)

3:45 PM - 4:00 PM

[3G13] The effects of hydrogen addition on the corrosive conditions of PWR primary coolant under irradiation

*Satoshi Hanawa[1], Kuniki Hata[1], Yasuhiro Chimi[1], Shunsuke Uchida[1] (1. JAEA)

4:00 PM - 4:15 PM

[3G14] Corrosion test of T91 and SUS316L in liquid lead bismuth at 500 deg C

*Atsushi Komatsu[1], Chiaki Kato[1] (1. JAEA)

4:15 PM - 4:30 PM

©Atomic Energy Society of Japan

PWR 条件の照射下での水素注入効果の評価
(1) ラジオリシスに及ぼす照射線質と pH の影響

The effects of hydrogen addition on the corrosive conditions of PWR primary coolant under irradiation
(1) Effects radiation quality and pH on water radiolysis

*端　邦樹[1]，塙　悟史[1]，知見　康弘[1]，内田　俊介[1]
[1]原子力機構

加圧水型軽水炉（PWR）条件での照射下の腐食電位（ECP）測定結果を評価するため、B(n,α)Li 由来のα線によるラジオリシス等、PWR の特徴を考慮したラジオリシス計算を行い、ECP への影響が大きい過酸化水素（H_2O_2）の発生量への水素（H_2）添加の影響を調べた。

キーワード：加圧水型軽水炉（PWR）、ラジオリシス、水素、水化学、腐食電位

1. 緒言

国内 PWR では、PWSCC の抑制や更なる被ばくの低減を目指して一次冷却系の溶存 H_2 濃度の最適化が検討されている。本研究では、PWR 一次系環境を模擬した化学制御を照射下で実施可能な Studsvik AB の INCA ループで取得した ECP 測定結果[1]を用いて、ECP への H_2 添加量の影響を精度良く評価するための ECP 解析モデルの改良を検討した。本稿では ECP 解析の前段として実施したラジオリシス解析の結果を報告する。

2. ラジオリシス解析

ラジオリシス解析コードを使用し[2]、表 1 に示すプライマリ収率を用いて各放射線がラジオリシスに与える影響を評価した。本試験における線量率を表 1 の最下段に示す。温度等の試験条件は INCA ループにおける試験データに基づき設定した[1]。

表 1 各放射線による化学種のプライマリ収率（個/100eV）及び線量率

Species	γ	Neutron	α
e_{aq}^-	3.50	0.60	0.13
$H^•$	0.90	0.50	0.12
H^+	3.50	0.60	0.13
H_2	0.60	1.50	1.65
H_2O_2	0.55	1.14	1.55
HO_2	0.00	0.04	0.00
$^•OH$	4.50	1.70	0.45
Dose rate (Gy/s)	4.00×10^3	4.30×10^3	2.85×10^3

3. 結果と考察

290°C、pH7.1 のときの H_2 添加量と H_2O_2 発生量の関係を図 1 に示す。α線は単位長さ当たりのエネルギー付与量が多い（水分解が密に生じる）ため、初期のラジカル反応が促進され、H_2O_2 等の分子生成物の収率が高くなる。そのため、α線の線量率はガンマ線や中性子より低いが、H_2O_2 濃度への影響はこれらの放射線に対して大きくなった。これらすべての放射線を考慮した時の H_2O_2 濃度（実線）が個別の放射線による H_2O_2 濃度に比べて小さくなっているのは、ガンマ線により発生したラジカルが分子生成物の分解を促進しているためであると推察される。また、H_2 添加量が 10ppb 以下では H_2O_2 発生量への H_2 の影響がほとんど見られないこと、H_2 添加量が 10ppb から 100ppb の間で H_2O_2 発生量が急激に低下し、100ppb 程度で H_2O_2 発生量が十分に抑制されることが示された。次稿では本結果を用いて ECP 解析を実施し、INCA ループのデータと比較した結果を報告する。

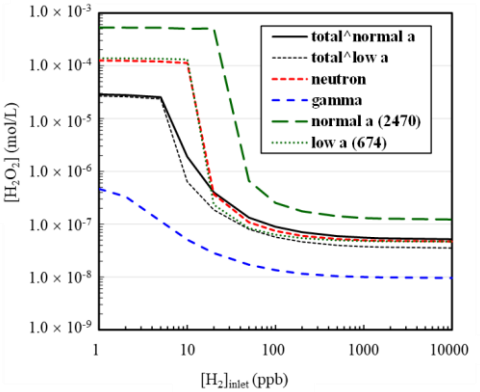


図 1 各放射線による H_2O_2 発生量の H_2 添加量依存性

参考文献

[1] H. Takiguchi, et al., Journal of Nuclear Science and Technology, 41, pp.601-609 (2004)
[2] S. Hanawa, et al., , Journal of Power Energy System, 1, pp.124-133 (2007)

*Kunik Hata[1], Satoshi Hanawa[1], Yasuhiro Chimi[1], Shunsuke Uchida[1]
[1] JAEA

PWR 条件の照射下での水素注入効果の評価
(2) ECP に及ぼす酸化被膜と水素の影響

The effects of hydrogen addition on the corrosive conditions of PWR primary coolant under irradiation
(2) Effects of oxide film and hydrogen on ECP

*塙　悟史[1]，端　邦樹[1]，知見　康弘[1]，内田　俊介[1]
[1]原子力機構

加圧水型軽水炉（PWR）条件での照射下の腐食電位（ECP）測定結果をラジオリシスコードと ECP 解析コードにより評価した。その結果、水素原子（H）の ECP への影響を考慮することで実験結果に対する再現性が大きく向上し、水素分子（H_2）とともに H が ECP 低下に大きな影響を及ぼす可能性が示唆された。

キーワード：PWR, 水の放射線分解，ラジオリシス解析, 腐食電位解析, INCA ループ

1. 緒言

国内 PWR では、PWSCC の抑制や更なる被ばくの低減を目指して 1 次冷却系の溶存水素濃度の最適化が検討されている。溶存水素濃度を現在の運用範囲から低下させた場合、ステンレス鋼に対する水の放射線分解の影響を評価する必要が生じる。本稿では、Studsvik AB の INCA ループで取得された照射下での ECP 測定結果[1]をラジオリシスコードと ECP 解析コードで評価し、ECP に及ぼす酸化皮膜及び水素の影響を検討した。

2. ECP 解析

INCA ループにおけるラジオリシス解析は本シリーズ報告における(1)の通りであり、ラジオリシス解析で求めた化学種濃度に基づき、ECP 解析コード[2]により ECP を計算した。本解析コードでは、ECP に基づく酸化被膜の成長と被膜厚さに基づく ECP の変化を考慮することにより、時々刻々変化する酸化皮膜の性状とそれに伴うアノード電流密度の変化を取り扱うことが可能である。

2. 結果と考察

酸素または過酸化水素が一定濃度存在する条件での酸化皮膜の性状と ECP の関係を調べた結果、浸漬時間の経過とともに酸化皮膜は厚くなり ECP は上昇すること、過酸化水素が存在する環境では浸漬初期はマグネタイトが主体となるが時間の経過とともにヘマタイトが主体となることが示された。INCA ループを模擬した解析結果を測定結果とともに図 1 に示す。測定では H_2 添加量の増加に応じて ECP が低下したが、解析結果は、1000ppb 程度の H_2 添加量でも ECP の低下はわずかであり、実測との乖離が大きくなった。そこで、H の還元力に着目し、アノード反応に H の反応（$H \rightarrow H^+ + e^-$）を考慮し、ラジオリシス環境下で存在する H および H_2 を実効的水素[H_{eff}]として以下の通り扱い評価した。

$H_{eff} = H + 2 \times \beta \times H_2$　β：重み係数

図 1 に示すように、βの値を変化させることで測定結果に対する再現性が大きく向上したことから、ECP に対して H の考慮が重要であることが示された。ECP への H の影響について、その詳細メカニズムを含め検討を進める予定である。

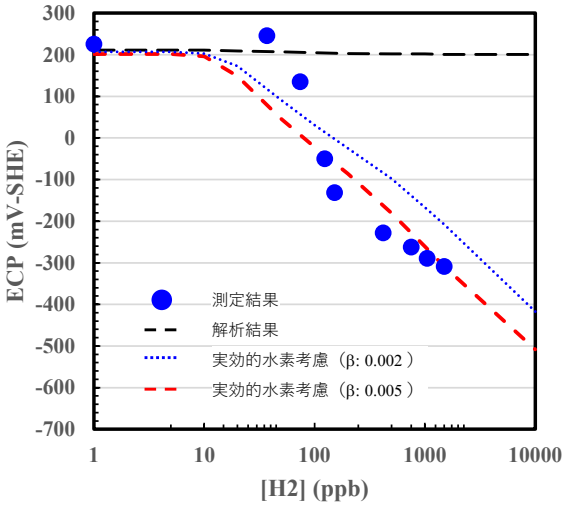


図 1　INCA ループにおける ECP 測定結果と解析結果の比較

参考文献

[1] H. Takiguchi, et al., Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, 41, 5, pp.601-609 (2004)

[2] S. Uchida, et al., Nuclear Technology, 183, pp.119-135

*Satoshi Hanawa[1], Kuniki Hatai[1], Shunsuke Uchida[1] and Yasuhiro Chimi[1]
[1]JAEA

500℃の溶融鉛ビスマス中における T91 および SUS316L の腐食試験

Corrosion test of T91 and SUS316L in liquid lead bismuth at 500 deg C

*小松　篤史，加藤　千明
日本原子力研究開発機構

酸素濃度約 10^{-7}、10^{-5}wt%の溶融鉛ビスマス共晶合金中で腐食試験を行った。SUS316L は、平均腐食量は小さいが、酸素濃度が低下すると局部腐食が激しくなった。T91 は、平均腐食量は SUS316L に比べて大きいが、局部腐食を起こした形跡はなく、酸素濃度が増加するにつれて若干腐食量が増加した。

キーワード：ADS，鉛ビスマス，腐食，酸化，T91，SUS316L

1. 緒言

ADS 用ターゲット材として溶融鉛ビスマス共晶合金(LBE)が検討されているが、LBE 中における材料腐食が懸念される。材料腐食を低減するには LBE 中の酸素濃度を適切に調整することが重要であり、従来研究から、約 10^{-7}～10^{-5}wt%が適切であるとされている。しかし、試験開始直後の LBE は酸素が飽和しており、酸素濃度が目的の値まで低下するには数十～数百時間を要するため、試験開始直後の高酸素濃度時に生成した初期酸化被膜がその後の腐食に影響している可能性がある。本研究では、試験温度より 100℃低い温度で酸素濃度を調整した後に本試験を開始することで、初期酸化被膜の影響を低減した腐食試験を実施した。

2. 実験

T91 および SUS316L 試験片を LBE 中に浸漬し、約 400℃で酸素濃度を 10^{-7}、10^{-5}wt%に調整した後、500℃に昇温し約 1000 時間保持した。試験後試料の半分は酸化被膜を除去した後、重量減測定により平均腐食量を求め、表面凹凸測定を実施した。残りの半分は樹脂埋めして断面観察を行った。

3. 結果・考察

図 1 に酸素濃度 10^{-7}wt%、500℃の LBE 中に 1034 時間浸漬した SUS316L および T91 試験片の除錆後表面凹凸測定結果を示す。SUS316L は局所的に数十μm 腐食していたが、T91 は全面的に腐食していた。酸素濃度が 10^{-5}wt%の条件では、表面凹凸測定からは SUS316L、T91 ともに局所的な腐食は確認できなかった。重量減測定から求めた平均腐食量はいずれの鋼種でも酸素濃度の増加とともに増加し、酸素濃度 10^{-7}wt%と 10^{-5}wt%の条件で、SUS316L は約 1μm および約 2μm、T91 は約 4μm および約 6μm であった。断面観察を行った結果、明確な酸化物が確認できたのは酸素濃度 10^{-5}wt%の場合だけであり、初期酸化被膜が少ない場合は、酸素濃度 10^{-7}wt%では酸化被膜による保護が得られない可能性がある。

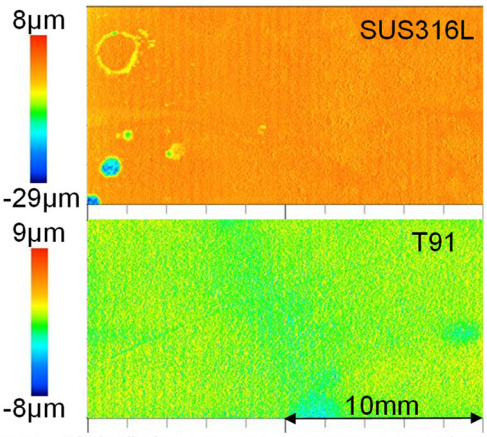


図1　酸素濃度10^{-7} wt%のLBEに1034時間浸漬した試験片の除錆後表面凹凸測定結果

3. 結論

適切とされる 10^{-7}～10^{-5}wt%の酸素濃度範囲でも酸素濃度により腐食形態に違いが生じた。T91 は比較的均一腐食に近い腐食形態であるのに対し、SUS316L は低酸素濃度において局所的に腐食していた。

---

*Atsushi Komatsu, Chiaki Kato

Japan Atomic Energy Agency

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 504-3 Fuel Reprocessing

[3H01-04] MA recovery 1

Chair: Koichi Uozumi (CRIEPI)

Fri. Mar 19, 2021 9:30 AM - 10:45 AM Room H (Zoom room 8)

[3H01] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

*Yuichi Sano[1], Tsuyoshi Arai[2], Kiyoharu Nakatani[3], Haruaki Matsuura[4], Shigeru Kunii[5] (1. JAEA, 2. Shibaura Inst. of Tech., 3. Univ. of Tsukuba, 4. TCU, 5. Chemicrea Inc.)

9:30 AM - 9:45 AM

[3H02] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

*Tatsuya Emori[1], Keisuke Morita[1], Yasutoshi Ban[1], Hiromori Sato[2], Fukuka Kida[2], Tsuyoshi Arai[2], Yuichi Sano[1] (1. JAEA, 2. Shibaura Inst. of Tech.)

9:45 AM - 10:00 AM

[3H03] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

*Yuka Kusano[1], Akihisa Miyagawa[1], Shigenori Nagatomo[1], Kiyoharu Nakatani[1], Yuichi Sano[2] (1. Univ. of Tsukuba, 2. JAEA)

10:00 AM - 10:15 AM

[3H04] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

*Atsushi Sakamoto[1], Yuichi Sano[1], Masayuki Takeuchi[1], Nobuo Okamura[1], Masayuki Watanabe[1] (1. JAEA)

10:15 AM - 10:30 AM

©Atomic Energy Society of Japan

合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発 （1）全体構想

Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery
(1) Overview of R&D Program

*佐野 雄一[1]，新井 剛[2]，中谷 清治[3]，松浦 治明[4]，国井 茂[5]
[1]JAEA，[2]芝浦工大，[3]筑波大，[4]東京都市大，[5]（株）ケミクレア

溶媒抽出と抽出クロマトグラフィを組み合わせた、廃棄物発生量が少なく、安全性・経済性に優れた実用性に富む 3 価マイナーアクチニド（MA(III)：Am, Cm）の分離回収技術の開発を進めている。開発の全体概要とこれまで得られている成果概要を中心に報告する。

キーワード：マイナーアクチニド，溶媒抽出，抽出クロマトグラフィ，TBP，NTA アミド

1. 緒言

高レベル放射性廃液（HLLW）中に含まれる長半減期核種や発熱性核種から成る MA(III)を対象に、新抽出剤を利用した溶媒抽出及び抽出クロマトグラフィによる種々の分離方法の開発が進行しているが、未だ実用的な方法が提示されるには至っていない。本研究では、より経済性・安全性に優れた実用性に富む MA(III)回収方法の提示を目的に、①劣化物も含め PUREX プロセスにおいて取り扱いが確立されている安価な TBP 抽出剤と水相／有機相間の相分離性に優れる遠心抽出器を用いて MA(III)と 3 価ランタニド（Ln(III)）の共回収を行う溶媒抽出工程、及び②圧力損失を低減させた吸着材を用いた抽出クロマトグラフィによる MA(III)／Ln(III)分離工程を組み合わせたハイブリッド型の MA(III)回収プロセスを構築する（図 1 参照）。

2. 全体計画

2-1. 高濃度 TBP 溶媒を用いた遠心抽出器による MA(III)＋Ln(III)共回収工程

TBP を高濃度で使用するとともに有機相／水相比が高い条件下においても運転が可能な遠心抽出器を適用することで各元素に対する抽出性能を高める。本研究では、高濃度 TBP 条件を中心に MA(III)、Ln(III)及びその他の核分裂生成物（FP）の抽出・逆抽出挙動や速度を調査するとともに、遠心抽出器の構造や運転条件の改良・最適化を進め、これらをもとに MA(III)＋Ln(III)共回収フローシートの設計・実証を行う。

2-2. NTA アミド含侵吸着材を用いた低圧損抽出クロマトグラフィによる MA(III)／Ln(III)分離工程

コンパクトなシステムにより高い分離性能を達成するため、抽出クロマトグラフィを採用し、同技術の課題である圧損を抑えるとともに速やかな吸着溶離の達成を図った均一径･大細孔径を有するニトリロトリアセトアミド（NTA アミド）吸着材を適用することにより､運転条件の緩和や廃液発生量の抑制を図る。本研究では、吸着材担体として用いる多孔質シリカ粒子の造粒条件を検討するとともに、分離性能の向上に向けて､担体に含浸させる NTA アミド抽出剤構造の最適化を図る。また、同吸着材を用いて MA(III)、Ln(III)及びその他 FP の吸着・溶離挙動や速度、錯形成状態を調査するとともに、劣化挙動や熱的安定性に係る安全性評価を進め､これらをもとに低圧損抽出クロマトグラフィによる MA(III)／Ln(III)分離フローシートの設計・実証を行う。

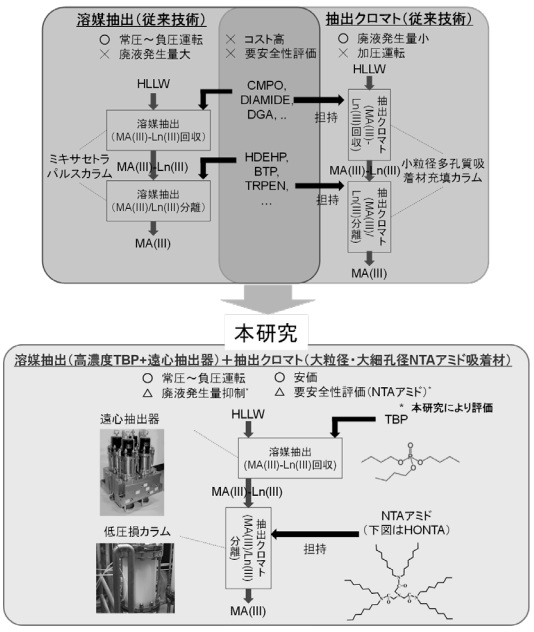


図 1　従来技術と本研究が構築を目指すプロセスの概要

当日はこれまでに得られている研究成果について概要を紹介するとともに、詳細をシリーズ発表により報告する。

本研究成果は平成 30 年度～令和 2 年度文科省 国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」による成果である。

*Yuichi Sano[1], Tsuyoshi Arai[2], Kiyoharu Nakatani[3], Haruaki Matsuura[4] and Shigeru Kunii[5]
[1]JAEA, [2]Shibaura Inst. of Tech., [3] Univ. of Tsukuba, [4]TUC, [5]Chemicrea Inc.

合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発
(2) 高 TBP 濃度条件における FP 及び MA(III)の抽出挙動評価

Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery
(2) Extraction behavior of FPs and MA(III) at high concentration of TBP

*江森 達也[1]，森田 圭介[1]，伴 康俊[1]，佐藤 広盛[2]，木田 福香[2]，新井 剛[2]，佐野雄一[1]
[1]JAEA，[2]芝浦工大

TBP 濃度、硝酸濃度、硝酸イオン濃度等をパラメータとして、核分裂生成物（FP）及び３価のマイナーアクチニド（MA(III)）に対する一段のバッチ抽出試験を行い、これらの元素の分配比を評価した。フリーTBP 濃度及び硝酸イオン濃度が FP 及び MA(III)の抽出挙動に与える影響を報告する。

キーワード：マイナーアクチニド，溶媒抽出，TBP

1. 緒言

本研究の工程の一つである高濃度 TBP 溶媒を用いた遠心抽出器による MA(III)+Ln(III)共回収工程の設計及び実証の一環として、FP 及び MA(III)に対する一段のバッチ抽出試験を行い、抽出挙動の評価を行った。評価にあたっては、従来 TBP 濃度が 30 %として開発が行われてきた遠心抽出器に対してより高濃度な TBP 溶媒を適用するために、高 TBP 濃度条件下(50～100 %)における分配比の変化に着目した。

2. 実験

トレーサー量の Am-241、Cm-244、Eu-152 及びその他の金属イオン含む硝酸溶液(水相)と TBP が溶解した *n*-ドデカン溶液(有機相)を体積比が 1:1 となるよう混合し、20 分間振とうを行った後に遠心分離を行った。水相には、100 μg/L の金属イオンのみを含む系と 10 mmol/L の金属イオンと 0-6 mol/L の硝酸ナトリウムを含む系を用いた。水相及び有機相を分取した後に放射能測定装置を用いてα線、γ線を測定し、Am-241、Cm-244 及び Eu-152 の分配比(D)を算出した。その他の金属イオンは、ICP-MS または ICP-AES を用いて水相中濃度を測定し、分配比を算出した。

3. 結果考察

図 1、2 に各金属の分配比とフリーTBP 濃度(Tf)及び硝酸イオン濃度($C_{NO_3^-}$)の関係を示す。水相中の金属イオン濃度に関わらず MA(III)及び Ln(III)の抽出挙動に大きな違いは見られず、MA(III)の分配比は Ce を上回り、Nd、Eu を下回った。また水相中の金属イオン濃度が高い系においても同様の抽出挙動を示した。TBP による MA(III)及び Ln(III)の抽出機構は MA(Ln):TBP:NO_3=1:3:3[1] と報告されており、$\log(D/Tf^3)-\log C_{NO_3^-}$プロットは傾き 3 の直線になると推測されるが、硝酸イオン濃度の増加に伴い傾きが増大した。このことから、硝酸イオン濃度が高い領域では複数の抽出機構の存在または Tf の算出における課題が示唆される。発表では、検討した FP 元素の抽出挙動についても報告する。

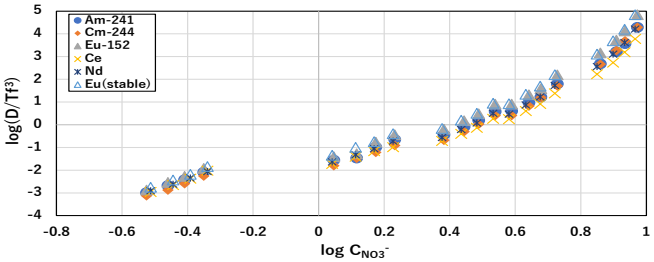


図 1. 希薄金属溶液を含む場合での分配比とフリーTBP 濃度及び硝酸イオン濃度の関係

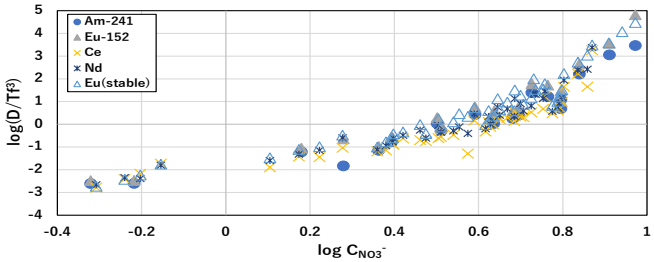


図 2. 金属溶液及び硝酸ナトリウムを含む場合での分配比とフリーTBP 濃度及び硝酸イオン濃度の関係

<参考文献>

[1] I. Svantesson, et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **41**, 383(1979).

本研究成果は平成 30 年度～令和 2 年度文科省 国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」による成果である。

*Tatsuya Emori[1], Keisuke Morita[1], Ban Yasutoshi[1], Hiromori Sato[2], Fukuka Kida[2], Tsuyoshi Arai[2], Yuichi Sano[1]
[1]JAEA, [2]Shibaura Inst. of Tech.

合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発

(3) 高TBP 濃度条件を対象とした顕微分光法による抽出・逆抽出速度評価

Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

(3) Kinetic analysis of extraction/back extraction at high concentration of TBP by microspectroscopy

*草野 祐香[1]，宮川 晃尚[1]，長友 重紀[1]，中谷 清治[1]，佐野 雄一[2]

[1]筑波大, [2]JAEA

TBP 濃度、硝酸濃度、硝酸イオン濃度等をパラメータとした顕微分光測定より得られた FP(Eu(III))抽出、逆抽出速度（物質移動係数）を紹介する。各濃度が物質移動係数に及ぼす影響に関する評価結果を報告する。

キーワード：マイナーアクチノイド，溶媒抽出，TBP

1. 緒言

高濃度 TBP 溶媒を用いた遠心抽出器による MA(III)＋Ln(III)共回収工程開発の一環として、顕微分光測定により Eu(III)の抽出・逆抽出過程の速度論的検討を行った。単一微小液滴系を応用し、円柱状微小油滴の TBP 濃度、硝酸濃度、硝酸イオン濃度等の条件を変え、Eu(III)の溶媒抽出・逆抽出物質移動係数依存性を考察した。

2. 実験

抽出系の水相は硝酸ユウロピウム(3.5 mM,10 mM)を含んだ硝酸溶液(0.4-10 M)、油相は TBP、逆抽出系の水相は硝酸溶液、油相は Eu(III)を抽出させた TBP を使用した。先端が屈曲した微小金ディスク電極に深さ 50 μm の円柱状空洞を形成し、この空洞内に油相を充填した。これを空洞最奥部の中心にレーザー光(532 nm)が照射されるように水相に浸漬し、倒立型顕微分光系で単一油滴の発光強度の経時変化を追跡した。

3. 結果・考察

抽出速度は油相中の $Eu(NO_3)_3$・3TBP の極大ピーク波長 616 nm の発光強度変化 $I(t)$から追跡した。得られた結果に対し単一指数関数 $I(t)=I_e\{1-\exp(-k_{obs}t)\}$を用いてフィッティングを行い、算出した物質移動速度定数 $k_{obs}(s^{-1})$について考察を行った。その結果、k_{obs} は硝酸濃度に依存した（0.05-0.13 s^{-1}）ことから、律速過程は油相・水相内の拡散ではなく、油/水界面での Eu(III)の錯形成抽出反応であると予想した。さらに、k_{obs} より単位界面積当たりの速度定数 k_{MT}(m s^{-1})(物質移動係数)を算出すると、この k_{MT} が硝酸濃度の二乗に依存した(硝酸濃度 0.4 M で 4.3×10^{-7}m s^{-1}、10 M で 26×10^{-7}m s^{-1})ことから、界面において硝酸イオン二つ程度を伴う抽出過程が律速であると予想できる。逆抽出についても同様の解析を行い、物質移動係数 k_{-MT}(m s^{-1})を算出した。この結果と、k_{MT} から求められる $k_{-MT}=k_{MT}/D$ (D:分配比)は一致し、同様の硝酸濃度依存性が見られた。TBP 濃度依存性では、硝酸濃度 0.1 M、硝酸カリウム濃度 1 M の水相で、70%TBP、100%TBP のデータのみ得ることができ(70% TBP で k_{obs}= 0.14 s^{-1}、100%TBP で 0.09 s^{-1})、TBP が律速過程に影響を及ぼす可能性が示唆された。

本研究成果は平成 30 年度～令和 2 年度文科省国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」による成果である。

---

*Yuka Kusano[1], Akihisa Miyagawa[1], Shigenori Nagatomo[1], Kiyoharu Nakatani[1], Yuichi Sano[2]

[1]Univ. of Tsukuba, [2]JAEA

合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発
(4)遠心抽出器を用いた MA-Ln 回収フローシート検討

Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery
(4)Flowsheet construction for MA&Ln recovery by the centrifugal contactor

*坂本 淳志，佐野 雄一，竹内 正行，岡村 信生，渡部 雅之
JAEA

ハイブリッド型プロセスにおける MA(III)-Ln(III)共回収フローシートへの適用を念頭とした際の遠心抽出器の運転性能を評価し、所定の有機相／水相比条件下での運転が可能であることを確認した。また、模擬廃液を用いた向流多段抽出試験を行い、一定の抽出性能及び除染性能が得られることを確認した。

キーワード：溶媒抽出，遠心抽出器，相分離性能，向流多段抽出試験

1. 緒言

リン酸トリブチル（TBP）溶媒を用いて MA(III)と 3 価ランタニド（Ln(III)）の共回収を効率的に行うためには、PUREX 法での U,Pu の回収時よりも高い TBP 濃度や高い有機相／水相流量比（O/A 比）が必要となることが予想される。本研究では、TBP 濃度の高い条件における遠心抽出器での処理可能流量範囲を調査するとともに、想定される MA(III)-Ln(III)共回収フローシート条件に基づく向流多段抽出試験を実施し、その適用性を検討した。

2. 試験方法

ロータ内径φ25 mm の単段型遠心抽出器（図 1）を 3,500 min^{-1} にて回転し、有機相：50%TBP-ノルマルドデカン（MA(III)-Ln(III)共回収用の TBP 溶媒として想定）、水相：3M 硝酸をそれぞれ供給した。供給流量を変更することで相分離異常（エントレインメント）が発生する流量条件を調査し、処理可能流量範囲を求めるとともに、共回収で必要と想定する最大 O/A 比＝20 までの相分離可否を判定した。加えて、同規模の遠心抽出器を 16 段組み合わせた多段型遠心抽出器を用いて、想定される MA(III)-Ln(III)共回収フローシート条件をもとにした向流多段抽出試験を実施し、送液性能や相分離性能を評価した。本試験ではフィード液として Ln(III)に Gd(III)等、FP 元素に Cs(I), Zr(IV), Pd(II)等を含む模擬高レベル廃液（HLLW）を用い、各元素の抽出性能及び除染性能も併せて評価した。

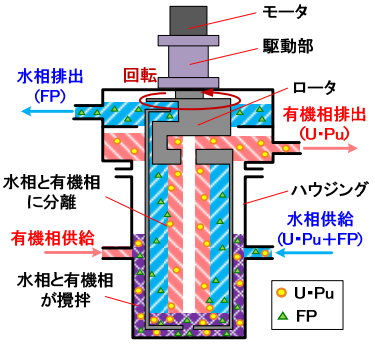


図 1　遠心抽出器の概略

3. 結果と考察

50%TBP-ノルマルドデカンを用いた際のエントレインメント発生条件は、PUREX 法相当の 30%TBP-ノルマルドデカンを用いた際と同等であるとともに、処理可能流量範囲内において想定最大 O/A 比＝20 程度までの運転が可能であった。このことから、遠心抽出器が、想定される MA(III)-Ln(III)共回収フローシートに対する運転性能を有することが示された（図 2）。

また、向流多段抽出試験においても送液性や相分離性に異常は認められず、Pd(II)等の一部同伴はあるものの Ln(III)のほぼ全量が有機相へ移行した。以上から遠心抽出器の MA(III)-Ln(III)共回収フローシートへの基本的な適用性に問題はないことを確認した。今後は除染性能の向上を目指したフローシート最適化を進め、MA(III)を用いた評価試験での実証を行う予定である。

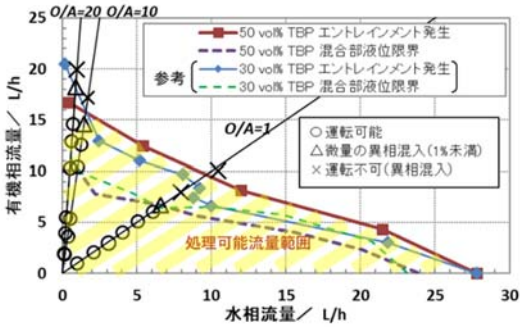


図 2　遠心抽出器の処理可能流量範囲

本研究成果は平成 30 年度～令和 2 年度文科省 国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」による成果である。

*Atsushi Sakamoto, Yuichi Sano, Masayuki Takeuchi, Nobuo Okamura and Masayuki Watanabe
JAEA

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 504-3 Fuel Reprocessing

[3H05-08] MA recovery 2

Chair: Hirokazu Hayashi (JAEA)

Fri. Mar 19, 2021 10:45 AM - 12:00 PM Room H (Zoom room 8)

[3H05] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

*Kenta Hasegawa[1], Yasunori Miyazaki[1], Hiromu Ambai[1], Yuichi Sano[1], Nobuo Okamura[1], Masayuki Watanabe[1] (1. JAEA)

10:45 AM - 11:00 AM

[3H06] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

*Masaaki Yoshida[1], Shuhei Nemoto[1], Midori Nagase[1], Tsuyoshi Arai[1], Tatsuya Emori[2], Keisuke Morita[2], Yasutoshi Ban[2], Sou Watanabe[2], Yuichi Sano[2], Shigeru Kunii[3] (1. Shibaura Inst. of Tech., 2. JAEA, 3. Chemicrea Inc.)

11:00 AM - 11:15 AM

[3H07] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

Tatsumi Tsuchiya[1], Makoto Okada[1], *Sou Watanabe[2], Yuichi Sano[2], Tsuyoshi Arai[3], Haruaki Matsuura[1] (1. TCU, 2. JAEA, 3. Shibaura Inst. of Tech.)

11:15 AM - 11:30 AM

[3H08] Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

*Yoshiaki Kuzure[1], Akihisa Miyagawa[1], Shigenori Nagatomo[1], Kiyoharu Nakatani[1], Masaaki Yoshida[2], Shuhei Nemoto[2], Tsuyoshi Arai[2], Hiromu Ambai[3], Kenta Hasegawa[3], Yuichi Sano[3] (1. Univ. of Tsukuba, 2. Shibaura Inst. of Tech., 3. JAEA)

11:30 AM - 11:45 AM

©Atomic Energy Society of Japan

合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発
（5）凍結乾燥法による吸着材担体シリカ粒子の造粒

Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery
(5) Granulation of Porous Silica Particle for Extraction Chromatography Adsorbent by Freeze Drying

*長谷川 健太[1]，宮﨑 康典[1]，安倍 弘[1]，佐野 雄一[1]，岡村 信生[1]，渡部 雅之[1]
[1]JAEA

原料液組成、運転条件等をパラメータとした凍結乾燥法による多孔質シリカ粒子の造粒試験を行い、ゾルゲル法により造粒した従来粒子に対し、機械的強度や比表面積の低下を抑えつつ圧損をほぼゼロとしたシリカ粒子が得られることを確認した。

キーワード：マイナーアクチニド，抽出クロマトグラフィ，造粒，シリカ粒子

1. 緒言

従来の MA(III)分離のための抽出クロマトグラフィでは、平均粒子径約 50 μm、平均細孔径約 0.05 μm の多孔質シリカ粒子を担体とした吸着材を利用してきた。この吸着材は十分な理論段数を有し、緻密なクロマト分離を可能とする一方で、充填層への送液は加圧によらなければならず、特別な安全対策等を必要とした。本研究では、液柱切断を用いた凍結乾燥による造粒法を採用し、従来よりも大きい粒子径、細孔径を有し、重力流によるクロマト分離が可能となる程度まで圧力損失を低下させた吸着材の造粒条件について検討した。

2. 実験

造粒に供する原料液は、粒子の骨格となるナノサイズのシリカ粒子の弱塩基性水溶液（以下、ST と略す。）及びモリブデン酸アンモニウム等の気孔形成剤（以下、PF と略す。）を混合して調製した。原料液を送液したノズルを振動させることで、液柱切断を起こし液滴を生成させ、液体窒素バスに液滴を滴下することによりシリカ粒子を造粒した。その後、最高温度 690 ℃で 1 h の焼成を行い、1mol/L 硝酸を用いた洗浄により気孔形成剤を除去することで多孔質シリカ粒子とした。ノズル径、ST の種類、PF の組成・添加量、装置条件等をパラメータとして造粒を行い、得られた多孔質シリカ粒子に対して、粒度分布測定、SEM 観察、細孔分布・細孔比表面積測定、圧縮破壊強度測定及び圧力損失の測定を行い、造粒条件による影響を評価した。

3. 結果

液柱切断を用いた凍結乾燥法によってシリカ粒子を造粒することで、平均粒子径が 2500μm 程度、平均細孔径が 1.8μm 程度の大粒子径の多孔質シリカ粒子が得られた。一方、従来粒子に比べ大粒径化されたことで、細孔比表面積や圧縮破壊強度の低下が見られた。PF の組成を制御することで、上記の大粒子径の多孔質シリカ粒子（細孔比表面積：約 7.8 m^2/g、圧縮破壊強度：0.63MPa）に比して、細孔比表面積は約 10m^2/g まで向上したが、圧縮破壊強度は約 0.21MPa まで低下した。そこで、多孔質シリカ粒子の骨格となるシリカの濃度を 30wt%から 40wt%の ST に変えることで、圧縮破壊強度を向上させた。さらに、ノズル径を 0.4mm から 0.2mm へ小さくするなど、装置条件を改良することで、平均粒子径が 1000μm 程度で、細孔比表面積が約 11m^2/g、圧縮破壊強度が約 2.2MPa と、細孔比表面積を確保したまま圧縮破壊強度の低下を抑えられる条件を見出した。さらに、圧力損失は平均粒子径約 50μm の従来粒子に比べて無視できるほど小さく、カラムに粒子を充填しない場合と同等とみなせることが確認された（図 1）。

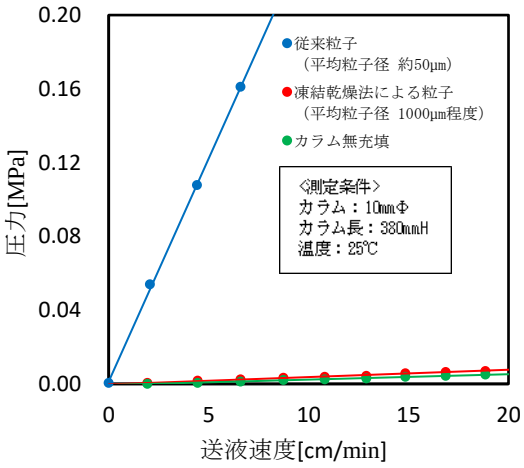


図 1　各種多孔質シリカ粒子の圧力損失

本研究成果は、平成 30 年度～令和 2 年度文科省 国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」による成果である。

*Kenta Hasegawa[1], Yasunori Miyazaki[1], Hiromu Ambai[1], Yuichi Sano[1], Nobuo Okamura[1], Masayuki Watanabe[1]
[1]JAEA

合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発
（6）MA／Ln 分離用吸着材の吸着･溶離性能評価

Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

(6) Performance evaluation of adsorption and elution of adsorbent for MA and Ln separation

*吉田 正明[1]，根本 脩平[1]，永瀬 緑[1]，新井剛[1]，江森 達也[2]，森田 圭介[2]，伴 康俊[2]，渡部 創[2]
佐野 雄一[2]，国井 茂[3]
[1]芝浦工大，[2]JAEA，[3]（株）ケミクレア

各種 NTA アミド抽出剤を担持させた吸着材の模擬核種の吸着・溶離特性を検討した。HONTA 含浸吸着材は硝酸濃度 10^{-3}-10^{-2}M において Ln(III)に対し高い吸着分配係数を示し、速やかに吸着平衡に達した。また、吸着材からの抽出剤溶出試験の結果から抽出剤及び Sty/DVB の溶出は確認されなかった。

キーワード：マイナーアクチニド，抽出クロマトグラフィ，NTA アミド

1. 緒言

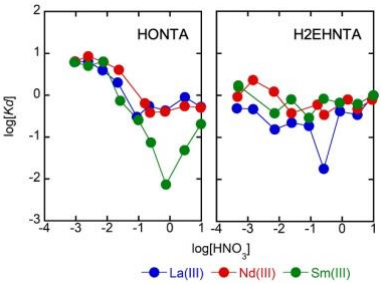
NTA アミド含浸吸着材を用いた低圧損抽出クロマトグラフィによる MA(III)／Ln(III)分離工程開発の一環として、凍結乾燥により造粒した多孔質シリカ粒子にスチレン-ジビニルベンゼン(Sty/DVB)共重合体を被覆し、各 NTA アミド抽出剤(HONTA 及び H2EHNTA)を含浸させた吸着材を対象に、MA(III)及び Ln(III)の吸着･溶離性能を評価した。

2. 実験方法

HONTA 含浸吸着材及び H2EHNTA 含浸吸着材の吸着性能評価は、バッチ式吸着試験で行った。バッチ式吸着試験は、各吸着材と所定濃度の各 Ln(III)を含む硝酸溶液を固液比 1:10 となるようにスクリュー管瓶に封入し 298 K に設定した振とう恒温槽で 180 分間振とうさせた。また、MA(III)吸着試験もバッチ式吸着試験で実施し、HONTA 含浸吸着材と Am-241、Cm-244 及び Eu-152 を所定濃度含む硝酸溶液を固液比 1:10 となるようにスクリュー管瓶に封入し 298 K に設定した振とう恒温槽で 120 分間振とうさせた。試験前後の水相中の各金属イオン濃度から吸着分配係数を算出した。

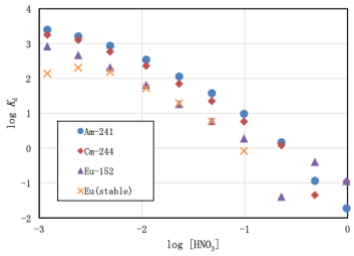
3. 実験結果及び考察

図 1 に HONTA 吸着材及び H2EHNTA 吸着材の Ln(III)の分配係数の硝酸濃度依存性を示す。HONTA 吸着材は、10^{-3}-10^{0} M の硝酸濃度において硝酸濃の低下に伴い Ln(III)の吸着分配係数の増大が確認された。H2EHNTA 吸着材は、何れの硝酸濃度においても Ln(III)の吸着分配係数に大きな差異が確認されず、HONTA 吸着材よりも低い値を示すことが明らかとなった。また、図 2 に HONTA 含浸吸着材の MA(III)及び Eu(III)の分配係数の硝酸濃度依存性を示す。本試験で用いた HONTA 吸着材は Sty/DVB の被覆率を 1.5wt%、HONTA 含浸率を 5wt%に調製したものを用いた。図 2 より、吸着の序列は、硝酸濃度 0.2 M 以下の範囲において Am(III) > Cm(III) > Eu(III)であり、MA(III)と Ln(III)との分配係数に有意な差が得られることが確認された。図 3 に HONTA 含浸吸着材に対する Nd(III)の分配係数の経時変化を示す。多孔質シリカ粒子への Sty/DVB 被覆量並びに抽出剤含浸量が大きい吸着材（条件 1）では吸着平衡までに長時間を要するものの、これらを低減させることで吸着速度を十分に改善できることが示された。また、これらの含浸吸着材からの抽出剤及び Sty/DVB の溶出は確認されなかった。



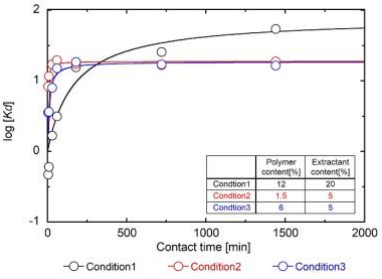
Sty/DVB 被覆率:12wt%，抽出剤含浸率:20wt%

図 1　各 NTA 含浸吸着材の Ln(III)の分配係数の硝酸濃度依存性



Sty/DVB 被覆率:1.5wt%，抽出剤含浸率:5wt%

図 2　HONTA 含浸吸着材の MA(III)及び Eu(III)の分配係数の硝酸濃度依存性



[Nd(III)] : 1 mM, [HNO_3] : 0.01M, Temp. : 298 K

図 3　HONTA 含浸吸着材に対する Nd(III)の分配係数の経時変化

本研究成果は平成 30 年度～令和 2 年度文科省 国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」による成果である。

*Masaaki Yoshida[1], Shuhei Nemoto[1], Midori Nagase[1], Tsuyoshi Arai[1], Tatsuya Emori[2], Keisuke Morita[2], Yasutoshi Ban[2], Sou Watanabe[2], Yuichi Sano[2] and Shigeru Kunii[3]
[1] Shibaura Inst. of Tech., [2] JAEA, [3] Chemicrea Inc.

合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発
(7) MA/Ln 分離用吸着材中における吸着種の構造解析

Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

(7) Structural Analyses of Adsorbed Species in the Adsorbents for MA/Ln Separation

土屋 巽[1]，岡田 諒[1]，*渡部 創[2]，佐野 雄一[2]，新井 剛[3]，松浦 治明[1]

[1]東京都市大，[2]JAEA，[3]芝浦工大

各種 NTA アミド抽出剤を含浸させた吸着材に、Ln(III)を吸着させた試料等を対象に IBIL 及び EXAFS 測定による構造解析を行った。吸着種は溶媒抽出系とほぼ同様な構造をもち、硝酸濃度とともに変化する配位構造が吸着率の硝酸濃度依存性と相関性を持つことを明らかにした。

キーワード：抽出クロマトグラフィ，高レベル放射性廃液，NTA アミド，マイナーアクチニド，希土類元素

1. 緒言

NTA アミド含浸吸着材を用いた低圧損抽出クロマトグラフィによる MA(III)／Ln(Ⅲ)分離工程開発の一環として、溶媒抽出による抽出率と錯体構造の相関関係情報を参考に、NTA アミド系吸着材を用い抽出剤の側鎖の違いや粒径による吸着率の変化、また効率的な分離を可能とする抽出剤構造の性能評価を行った。

2. 実験

ゾルゲル法および凍結乾燥法で調製した多孔質シリカ粒子をそれぞれ担体として、スチレンジビニルベンゼンポリマーを架橋度 15 %の条件にて被覆し NTA アミド抽出剤を 20wt%となるように含浸させたものを吸着材とした。吸着材と各種 Ln（III）を 25 mM 含有する吸着溶液を重量比 1：10 の割合で 3 時間振とうした後に、固液分離し乾燥させた。形成された錯体構造評価を IBIL は量研機構 TIARA、EXAFS は KEK-BL27B、あいちシンクロトロン光センターBL5S1 にて実施した。

3. 結果と考察

図 1 に HONTA 抽出剤の溶媒抽出系と吸着材系（ゾルゲル法より調製した担体を使用）での Eu(Ⅲ)の動径構造関数を硝酸濃度に対してプロットしたものを示す。吸着材においても溶媒抽出系に似た希土類近傍構造をとっていることが分かった。NTA 抽出剤の枝分かれ構造の如何に関わらず局所的な構造に酸濃度の依存性は見られなかった。溶媒抽出系で、Ln(III)に対して、NTA アミドは低硝酸濃度では 2 個、高硝酸濃度では 1 個しか配位しないことが報告されている[1]にもかかわらず硝酸濃度によって局所的な構造には大きな違いが見られなかった理由は、低い硝酸濃度では NTA アミド由来の酸素により希土類が強く束縛される一方、高い硝酸濃度では NTA アミド由来の酸素の代わりに硝酸イオン由来の酸素が配位していることにより、希土類は弱く束縛された状態にあり、脱離しやすくなっていると考える。吸着率が硝酸濃度の増加に伴って減少するのはこのためであると考える。発表では IBIL の結果、凍結乾燥法により調製した担体を使用した吸着材を用いた構造解析結果についても述べ、吸着材の性能評価に活かした一例を紹介する。

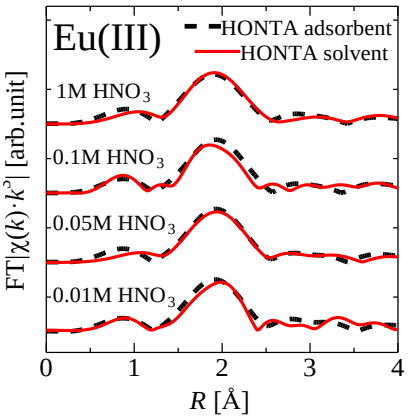


図 1 溶媒中および吸着材中の EXAFS 構造関数

本研究成果は平成 30 年度～令和 2 年度文科を省国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセス開発」による成果である。

参考文献

[1] 鈴木英哉 他、2018 年日本原子力学会秋の大会、岡山 2J15.

Tatsumi Tsuchiya[1], Makoto Okada[1], * Sou Watanabe[2], Yuichi Sano[2], Tsuyoshi Arai[3] and Haruaki Matsuura[1]

[1]TCU, [2]JAEA, [3]Shibaura Inst. of Tech.

合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発
（8）MA/Ln 分離用吸着材を対象とした顕微分光測定による吸着溶離速度評価

Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

(8) Evaluation of adsorption and elution rates using adsorbent for MA/Ln separation by microspectroscopy

*崩 愛昌[1], 宮川 晃尚[1], 長友 重紀[1], 中谷 清治[1], 吉田 正明[2], 根本 脩平[2], 新井 剛[2], 安倍 弘[3], 長谷川 健太[3], 佐野 雄一[3]
[1]筑波大, [2]芝浦工大, [3]JAEA

各種 NTA アミド抽出剤を担持させた吸着材を対象に実施した硝酸濃度、硝酸イオン濃度等をパラメーターとした顕微分光測定より得られた FP（Eu(III)）の吸着・溶離速度（物質移動係数）を紹介する。凍結乾燥法により造粒したシリカ担体を使用した吸着材についてポリマー被覆条件の変更により吸着・溶離速度が改善されることや、硝酸濃度や硝酸イオン濃度が物質移動係数に及ぼす影響に関する評価・考察結果を報告する。

キーワード：マイナーアクチニド，抽出クロマトグラフィ，NTA アミド

1. 緒言

迅速かつ安全な抽出クロマトグラフィの達成のため圧力損失を低減させた吸着材の開発が進められている。多孔質シリカにポリマー(スチレン-ジビニルベンゼン共重合体)を被覆した担体(SiO_2-P)に、抽出剤である nitrilotriacetamide (NTA アミド)を含浸させた吸着材が開発されている。顕微分光測定法は吸着材一粒子からの蛍光を取得することができるため、粒子に吸着する物質の物質移動を追跡することができる。本発表では NTA アミド含浸吸着材を用いた低圧損抽出クロマトグラフィによる MA(III)/Ln(III)分離工程開発の一環として、Eu(III)の吸着・溶離過程における物質移動係数を顕微分光測定により算出し、吸着材の調製方法や供給液組成(酸および硝酸イオン濃度)が与える影響を調査した。

2. 実験

吸着材は、SiO_2 粒子の造粒法(ゾルゲル法、凍結乾燥法(液柱振動切断法))、ポリマー被覆率-NTA アミド含浸率（1.5wt%-5wt%、12wt%-20wt%）を変更し比較した。吸着材に含浸した NTA アミドに *N*, *N*, *N* ', *N* ', *N* ", *N* "-hexaoctylnitrilotriacetamide (HONTA)または *N*, *N*, *N* ', *N* ', *N* ", *N* "-tetraoctyl di 2-ethylhexylnitrilotriacetamide (TAMIA-4Octr)を使用した。5wt% HONTA および 5wt% TAMIA-4Octr 含浸吸着材に関して硝酸、硝酸イオン濃度を各 1-100 mM とし濃度依存性を調べた。金属イオンは硝酸ユウロピウム (Eu(III))1 mM を用いた。

単一粒子の測定はセルに各 NTA アミド含浸吸着材と硝酸を封入し Eu(III)溶液をフローさせた。光学顕微鏡下で 532 nm 励起レーザー光を各 NTA アミド含浸吸着材に照射し 616 nm からの蛍光の経時変化を取得した。

3. 結果

吸着過程の物質移動係数k(m s^{-1})は$k = v_0(1-\varepsilon_p)/(a_V C_w)$($v_0$: 初速度(M s^{-1})、$\varepsilon_p$: 多孔率、$a_V$:比表面積(m^{-1})、$C_w$: 水相の Eu(III)濃度(M))として算出した。顕微分光測定の経時変化は平衡時の蛍光強度を粒子相の Eu(III)平衡濃度に換算し粒子中の濃度変化とした。算出したkについて従来のゾルゲル法により作製した小粒子(20wt%HONTA、ポリマー被覆率 12wt%、粒径 50 μm)と改良型である凍結乾燥法により作製した 2 種類の大粒子(5 および 20wt% HONTA、ポリマー被覆率 1.5wt%および 12wt%、粒径 2 mm)を比較した。硝酸 1 mM、小粒子の吸着過程では粒子相の Eu(III)濃度は、典型的には数 100 秒で増加し、2000 s 程度で平衡に達した。大粒径では 12wt%ポリマー被覆後、小粒径はポリマー被覆前の吸着材の多孔率を用いて、おおよそのkを求めると、粒子の大粒化によりkは小粒子の 2 倍になり、ポリマー被覆率を 12wt%から 1.5wt%にすることで 14 倍になった。5wt%HONTA 含浸吸着材および 5wt%TAMIA-4Octr 含浸吸着材について吸着、溶離過程ともに 1-100 mM の範囲で硝酸濃度が増加すると物質移動係数が小さくなる傾向があった。また HONTA が TAMIA-4Octr に対してkは低硝酸濃度では 4 倍大きくなったが、高硝酸濃度では同程度となった。

本研究成果は平成 30 年度～令和 2 年度文科省国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」による成果である。

---

*Yoshiaki Kuzure[1], Akihisa Miyagawa[1], Shigenori Nagatomo[1], Kiyoharu Nakatani[1], Masaaki Yoshida[2], Shuhei Nemoto[2], Tsuyoshi Arai[2], Hiromu Ambai[3], Kenta Hasegawa[3] and Yuichi Sano[3]
[1]Univ. of Tsukuba, [2]Shibaura Inst. of Tech., [3]JAEA

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 504-3 Fuel Reprocessing

[3H09-10] Hydrogen explosion accident at reprocessing plant

Chair: Daisuke Fujiwara (TEPSYS)

Fri. Mar 19, 2021 2:45 PM - 3:30 PM Room H (Zoom room 8)

[3H09] Experiment on airborne release fraction in hydrogen explosion accident at Reprocessing plant

*Naoya SATOU[1], Yoshikazu TAMAUCHI[1], Hiroshi KINUHATA[1], Takashi KODAMA[1], Keita SAITO[2], Takahiro CHIKAZAWA[2] （1. JFNL, 2. MMC）

2:45 PM - 3:00 PM

[3H10] Experiment on airborne release fraction in hydrogen explosion accident at Reprocessing plant

*KEITA SAITO[1], Takahiro CHIKAZAWA[1], Yoshikazu TAMAUCHI[2], Takashi KODAMA[2] （1. MMC, 2. JFNL ）

3:00 PM - 3:15 PM

©Atomic Energy Society of Japan

再処理工場水素爆発事故時における放射性物質移行率の調査
（10）これまでに得た結果と課題について

Experiment on airborne release fraction in hydrogen explosion accident at Reprocessing plant
(10) The results and subjects obtained from the former experiments

*佐藤 直弥[1]，玉内 義一[1]，衣旗 広志[1]，小玉 貴司[1]，斎藤 慧太[2]，近沢 孝弘[2]
[1]日本原燃，[2]三菱マテリアル

我々は、再処理施設における水素爆発事故時の安全評価に用いる放射性溶液貯槽から排気系への放射性核種の移行率（ARF）の設定精度向上のために試験を実施している。本報告では、これまでに得た結果の整理と課題について報告する。

キーワード：放射性分解、水素、爆発事故、気相への移行率、再処理工場

1. 緒言

これまで NUREG[1]と類似の加圧試験や水素爆発試験にて生じる気相へのミスト移行率のパラメータ依存性等を報告してきた。本報告では、これまでに実施してきた環状容器での水素爆発試験、小型容器での加圧試験および小型容器での水素爆発試験から得た結果について整理し、今後の課題について報告する。

2. これまでに実施した試験から得た結果

2-1. 環状容器での水素爆発試験

Pu 濃縮液貯槽の気相部を模擬した装置で実験することにより実機に近い条件でのパラメータを取得することを目的として実施した。図 1 に環状容器での水素爆発試験の ARF と圧力の関係を示す。この実験では ARF と圧力に明確な関係性は見られなかった。

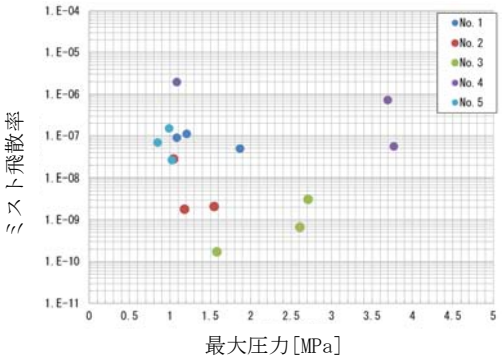


図 1 環状容器での水素爆発試験の ARF と圧力の関係

2-2. 小型容器での加圧試験

NUREG の再現実験により ARF へ影響を与えるパラメータの調査と、NUREG の結果を再処理施設の水素爆発の評価に適用することへの課題の確認を目的として実施した。図 2 に小型容器での加圧試験の ARF と圧力の関係を示す。この実験により、圧力が大きくなるにつれて ARF は増加することを確認した。また、加圧試験特有の結果として、圧力保持時間が長くなるほど ARF が増加することも確認した。

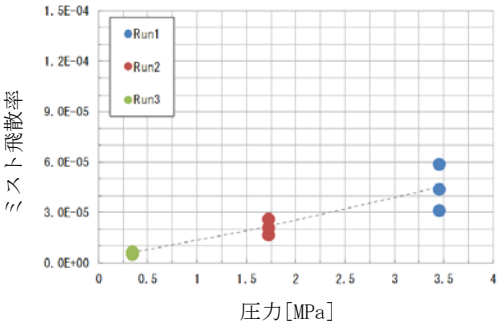


図 2 小型容器での加圧試験の ARF と圧力の関係

2-3. 小型容器での水素爆発試験

試験容器形状の影響を取り除いた上で、加圧と爆発の液飛散メカニズムを比較することを目的として実施した。図 3 に小型容器での水素爆発試験の ARF と圧力の関係を示す。この実験でも圧力が大きくなるにつれて ARF は増加することを確認したが、加圧試験ほど顕著な増加は見られなかった。

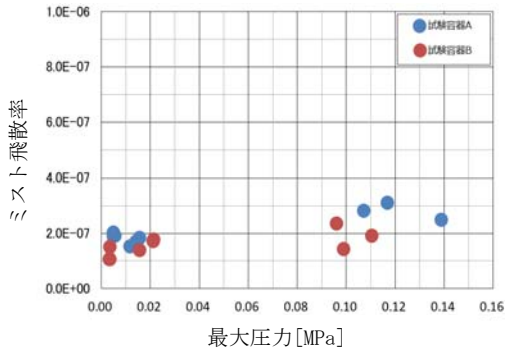


図 3 小型容器での水素爆発試験の ARF と圧力の関係

3. 今後の課題

これまでに「圧力」、「保持時間」、「溶液高さ」等をパラメータとした実験結果を取得し、加圧試験については、一瞬で進行する水素爆発に適用するには保持時間に関するパラメータを追加取得し、検討することが課題であることを確認した。また、環状容器での水素爆発試験と加圧試験との比較により、加圧と爆発では液飛散メカニズムが異なる可能性が示唆されたが、環状容器と小型容器は装置形状が大きく異なるため、装置形状の依存性の確認が課題となった。このため、小型容器での水素爆発試験を実施したが、飛散メカニズムの解明には飛散液滴の粒径も計測する必要が生じたため、追加の小型容器での水素爆発試験を計画し、実施しており、その結果については次報（11）に示す。

参考文献

[1] U. S. Nuclear Regulatory Commission, “Aerosols Generated by Releases of Pressurized Powders and Solutions in Static Air”NUREG/CR-3093, PNL4566 (1983)

*Naoya SATOU[1], Yoshikazu TAMAUCHI[1], Hiroshi KINUHATA[1], Takashi KODAMA[1], Keita SAITO [2] and Takahiro CHIKAZAWA [2]
[1]Japan Nuclear Fuel Limited., [2]Mitsubishi Materials Corporation.

再処理工場水素爆発事故時における放射性物質移行率の調査
（11）小型容器を用いた水素爆発試験 その２

Experiment on airborne release fraction in hydrogen explosion at Reprocessing plant
(11) Hydrogen explosion experiment in small vessel part2

*斎藤 慧太[1]，近沢 孝弘[1]，玉内 義一[2]，小玉 貴司[2]
[1]三菱マテリアル，[2]日本原燃

我々は、再処理施設における水素爆発事故時の安全評価に用いる放射性溶液貯槽から排気系への放射性核種の移行率（ARF）の設定精度向上のために試験を実施している。本報告では、小型容器を用いた水素爆発時の ARF 取得試験において、液高さ等をパラメータとした新たな試験結果を示し、これまでの結果も含めて ARF の爆発圧力依存性等を整理する。

キーワード：放射線分解，水素，爆発事故，気相への移行率，再処理工場

1. 緒言

これまで文献[1]と類似の加圧試験や水素爆発試験にて生じる気相への飛沫（ミスト）移行率（放出されるミスト量／初期溶液量）のパラメータ依存性等を報告してきた[2]。本報告では、加圧と爆発による溶液の飛散メカニズムの違いを評価するため、液高さ等をパラメータとした新たな水素爆発試験を実施した。

2. 試験

試験方法は既報[2]と同様であり、溶液を仕込んだ容器内の気相部で水素爆発を生起させ、その際の飛散液量から移行率、圧力経時変化から積算圧力を評価した。なお、試験容器は高さの異なる 3 種類（8，100，200cm）を用いて、液高さ、水素濃度等をパラメータとし、精度向上のため 3 回の繰返し試験を行った。

3. 結果・考察

試験容器内の初期溶液高さを変化させても飛散液量は一定であり、飛散液量は液高さに依存しないことを改めて確認した（図 1）。すなわち、初期溶液量を分母とする移行率で表すと、液高さに反比例する傾向となる（図 1）。また、水素濃度または液面-着火位置間距離を大きくすると、共に移行率は増加傾向となり、これらは飛散液量が液面に到達する爆発圧力に依存した結果と既報[2]からも推定される。

以上の爆発試験および加圧試験[2]ともに、積算圧力の増加に伴って移行率も増す傾向となり、増加の傾きは両試験において同等であった（図 2）。加えて両試験のミスト粒径を観察したところ顕著な差異がないことも確認された。これら結果から加圧と爆発の溶液飛散メカニズムは同様である可能性が示唆された。

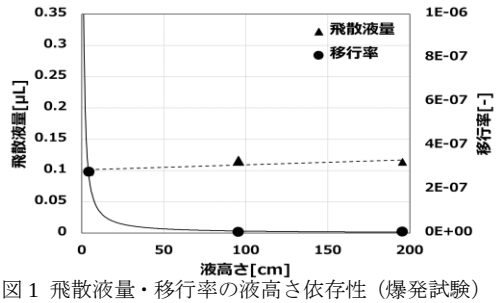


図 1 飛散液量・移行率の液高さ依存性（爆発試験）

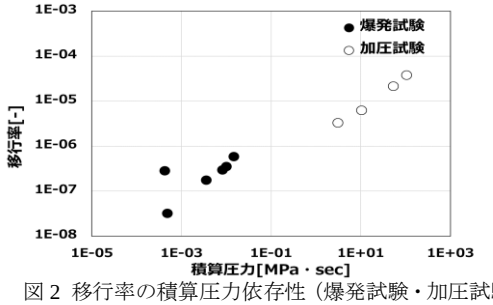


図 2 移行率の積算圧力依存性（爆発試験・加圧試験）

参考文献

[1] U. S. Nuclear Regulatory Commission, “Aerosols Generated by Releases of Pressurized Powders and Solutions in Static Air” NUREG/CR-3093, PNL4566 (1983)
[2] 小林　他，日本原子力学会　2018 年春の大会予稿集，2K04（2018）

---

*Keita SAITO[1], Takahiro CHIKAZAWA[1], Yoshikazu TAMAUCHI, and Takashi KODAMA[2]
[1]Mitsubishi Materials Corporation, [2]Japan Nuclear Fuel Limited

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 504-3 Fuel Reprocessing

[3H11-15] Reprocessing technology

Chair: Yuichi Sano (JAEA)

Fri. Mar 19, 2021 3:30 PM - 5:00 PM Room H (Zoom room 8)

[3H11] Development of co-decontamination section on co-processing process

*Shimpei Ohno[1], Yoshiaki Ichige[1], atsuhiro Shibata[1], Takehiko Sato[1], Masayuki Takeuchi[1] (1. JAEA)

3:30 PM - 3:45 PM

[3H12] Extraction of Ce(IV) in HNO_3 with imidazolium-type ionic liquids and fluorous solvent

*Masaru Yokouchi[1], Ryoma Sunakawa[1], Takaya Yamaguchi[1], Toshiyuki Inazu[1], Noriko Asanuma[1] (1. Tokai University)

3:45 PM - 4:00 PM

[3H13] R&D on Nitride Fuel Cycle for MA Transmutation to Enhance Safety and Economy

*Hirokazu Hayashi[1], Hiroki Shibata[1], Haruyoshi Otobe[1] (1. JAEA)

4:00 PM - 4:15 PM

[3H14] Development of spent salt treatment technology using zeolite

*Koichi Uozumi[1], Kazuto Takayama[2], Kenta Inagaki[1] (1. CRIEPI, 2. UTokyo)

4:15 PM - 4:30 PM

[3H15] Pyro-reprocessing of Molten Salt Reactor Fuel

*Taizo Shibuya[1], Ritsuo Yoshioka[2], Uhlir Jan[3], Masaaki Furukawa[1] (1. Thorium Tech Solution Inc., 2. International Thorium Molten-Salt Forum, 3. Centrum Výzkumu Řež)

4:30 PM - 4:45 PM

©Atomic Energy Society of Japan

コプロセッシング法共除染部の開発
除染性能向上に向けた Zr 共存下における Tc 抽出挙動研究

Development of co-decontamination section on co-processing process
Study on extraction behavior of Tc coexistent with Zr to improve decontamination performance

*大野 真平[1]，市毛 良明[1]，柴田 淳広[1]，佐藤 武彦[1]，竹内 正行[1]
[1] 日本原子力研究開発機構

コプロセッシング法共除染部において、Tc を除染可能なフローシート構築のため、U、Pu、Zr 共存下における Tc のバッチ式抽出試験を実施し、分配比を評価指標とし Tc の抽出挙動を評価した。

キーワード：コプロセッシング法，テクネチウム，分配比，ジルコニウム

1. 緒言

U 及び Pu を共回収するコプロセッシング法プロセスにおいて、回収製品中の核分裂生成物(FP)除染が十分であれば、従来の再処理プロセスを大幅に簡略化することが可能である。共除染部において除染係数が低く特に注意すべき FP として Tc が存在する。Tc は硝酸溶液中で多様な化学形態をとり、他イオンと錯体を形成する等、溶媒への抽出挙動は複雑である[1]。これまでに、本プロセスフローシート評価の一環として、U、Pu 共存下におけるリン酸トリブチル(TBP)への Tc 抽出挙動について検討され、共存 Pu 濃度増加に伴い Tc 分配比の増加が報告されている[2]。Tc 除染に適切なフローシートを構築するためには、様々なイオンとの共存下における Tc 抽出挙動を調査する必要がある。本研究では、報告のある U、Pu に加え、FP の中で存在量が多く TBP への抽出性を有する Zr が共存する系における Tc の抽出挙動を評価した。

2. 試験方法

Tc 濃度に対する Zr 濃度比(Zr/Tc 比)をパラメータとし調製した試験溶液を対象に、抽出溶媒として 30%TBP-ノルマルドデカンを用いたバッチ式抽出試験を実施した。表 1 に試験溶液組成を示す。試験溶液と抽出溶媒を各 10 mL 採取してバイアル瓶に入れ、室温にて 1 分間手振りにより振とうした。抽出前後の試験溶液水相を分取し、分析試料とした。U、Tc、Zr は ICP 発光分光分析法、Pu は吸光光度法により定量分析を実施した。

表 1 試験溶液組成

H+ [mol/L]	U [g/L]	Pu [g/L]	Tc [mg/L]	Zr [mg/L]
3	80	10	27	27
				54
				81
4.5			40	40
				80
				120
6			53	53
				106
				159

3. 試験結果

図 1 に各硝酸濃度における Zr/Tc 比に対する Tc の分配比を示す。図 1 より、硝酸濃度 3M では Tc 分配比の変化は確認されなかった。一方で、硝酸濃度 4.5M、6M では Zr 濃度増加に伴い Tc 分配比が増加する傾向が確認された。これは Tc が U との混合錯体 $UO_2(TcO_4)(NO_3)(TBP)_2$ に加えて、Zr との混合錯体 $Zr(TcO_4)(NO_3)_3(TBP)_2$ の形成により抽出されているためと考えられる。また、この錯体は TBP へ抽出された $Zr(NO_3)_4(TBP)_2$ の NO_3^- が TcO_4^- と交換され生成するため、TBP へ Zr が抽出される硝酸濃度 4.5M、6M で Tc 分配比の変化が確認されたと考えられる[3]。

以上より、Tc の TBP への抽出挙動は、硝酸濃度 4.5M、6M では溶液中の Zr 濃度に影響されることが明らかとなった。

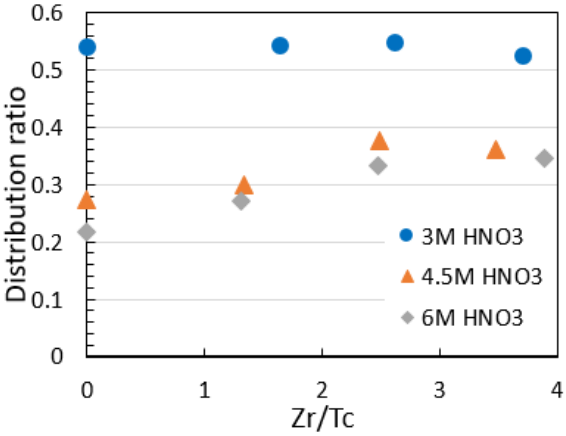


図 1 各硝酸濃度における Zr/Tc 比に対する Tc の分配比

参考文献

[1] 再処理プロセス・化学ハンドブック検討委員会，再処理プロセス・化学ハンドブック　第 3 版，(2015)
[2] 佐藤 武彦ら，原子力学会 2018 年秋の大会 2J17, (2018)
[3] Zdenek Kolarik, Paul Dresler, “EXTRACTION AND COEXTRACTION OF Tc(VII), Zr(IV), Np(IV.VI), Pa(V) AND Nb(V) WITH TRIBUTYL PHOSPHATE FROM NITRIC ACID SOLUTIONS”, Solvent Extraction and Ion Exchange (1989)

※本報告は、経済産業省からの受託事業として日本原子力研究開発機構が実施した「平成 31 年度高速炉の国際協力等に関する技術開発」の成果の一部である。

*Shimpei Ohno[1], Yoshiaki Ichige[1], Atsuhiro Shibata[1], Takehiko Sato and Masayuki Takeuchi[1]
[1]Japan Atomic Energy Agency

イミダゾリウム型イオン液体とフルオラス溶媒による硝酸中 Ce(IV)の抽出

Extraction of Ce(IV) in HNO_3 with imidazolium-type ionic liquids and fluorous solvent

*横内　優[1]，砂川凌摩[2]，山口恭弥[2]，稲津敏行[2]，浅沼徳子[2]
[1]東海大・院，[2]東海大

金属錯体の溶解性に優れたイオン液体と、化学的安定性が高いフルオラス溶媒をアクチノイド元素の抽出溶媒として使用することを検討している。本研究では、アクチノイド元素の模擬として Ce(IV)を用い、硝酸溶液中の Ce(IV)の分配挙動を検討し、Th(IV)回収のための基礎データを取得するとともに、再処理への適用性について議論した。

キーワード：イミダゾリウム型イオン液体, フルオラス溶媒, 溶媒抽出, Ce(IV)

1. 緒言

イオン液体は、塩でありながら常温常圧にて液体で存在する。また、電解質のためイオンの溶解性に優れていることから、疎水性のものは抽出溶媒への適用が期待できる。一方フルオラス溶媒は、高度にフッ素化された化合物であり、王水のような反応性をもつ薬品に耐久性を有する。我々は、アルキル基の異なるイミダゾリウム型イオン液体 1-alkyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethanesulfonyl)imide (図 1)を数種類用意し、Ce(IV)の分配実験を行った。 また、抽出剤として第四級アンモニウム塩の Methyltrioctylammonium chloride (TOMAC)や、リン酸トリブチル(TBP)の抽出効果を比較した。フルオラス抽出系では、TBP をフルオラス化したホスフェート型フルオラス抽出剤(TBP-C_4F_9)(図 2)を導入し、イミダゾリウム型イオン液体による分配挙動と比較検討を行った。

2. 実験方法

初期溶液は、Ce(IV)濃度が 10mM(M=mol/dm^3)になるように $Ce(NH_4)_2(NO_3)_6$ を分取し、各濃度の硝酸水溶液で溶解したものを使用した。C_nMITf_2N(n=5, $PMITf_2N$)は、合成したものを使用し、TOMAC または TBP を溶解して抽出相に用いた。フルオラス溶媒は、TBP-C_4F_9 を Fluorinert^{TM}FC-72 で希釈したものを用意した。初期溶液とイオン液体、またはフルオラス溶媒が等体積になるように遠沈管に入れ、30 分間振とうした。その後、水相を分取し ICP 発光分光分析装置にて Ce イオン濃度を測定し、分配比を求めた。

3. 実験結果

硝酸濃度に対する Ce(IV)の分配比を図 3 に示す。0.5M TBP/$PMITf_2N$ と 0.1M TOMAC/ $PMITf_2N$ の分配比は、硝酸濃度とともに上昇し、3M 以上ではほぼ一定の分配比となった。また、TBP 濃度 0.5M と TOMAC 濃度 0.1M では、同等の抽出挙動を示していることから、$PMITf_2N$ 中における TOMAC の Ce(IV)抽出能が高いことが分かった。フルオラス溶媒は、1M 以上の硝酸濃度で $PMITf_2N$ より分配比が下回ったものの、硝酸濃度による分配比の変化は比較的少なく、安定した抽出能を有することが分かった。以上より、高い Ce(IV)抽出能を有するイミダゾリウム型イオン液体と、安定的な抽出能を有するフルオラス溶媒を併用し、トリウム燃料の再処理への適用を提案する。

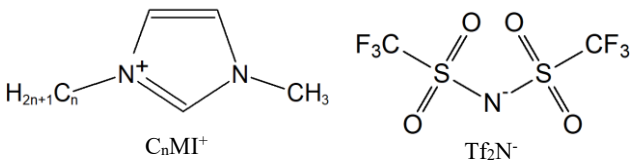


図 1. 1-alkyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethanesulfonyl)imide

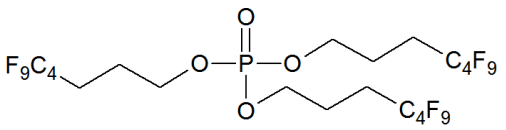


図 2. ホスフェート型フルオラス抽出剤(TBP-C_4F_9)

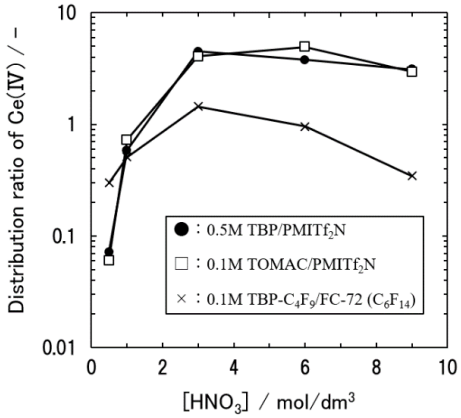


図 3. 硝酸濃度に対する Ce(IV)分配比
$[Ce(IV)]_0$=10mM

*Masaru Yokouchi[1], Ryoma Sunakawa[2], Takaya Yamaguchi[2], Toshiyuki Inazu[2], Noriko Asanuma[2]
[1]Graduate school, Tokai Univ., [2]Tokai Univ.

安全性・経済性向上を目指したMA核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発 (20) Np-Pd合金の調製及び塩化反応試験

R&D on Nitride Fuel Cycle for MA Transmutation to Enhance Safety and Economy

(20) Preparation of Np-Pd alloy and the reaction of Np-Pd alloy with $CdCl_2$

*林　博和，柴田裕樹，音部治幹

原子力機構

核変換によってMA窒化物燃料中に生成するFP元素のうちPdを含有する物質の化学形及びその安定性に関するデータを取得するため、MA窒化物模擬物質であるGdN及びNpNを用いた反応試験を実施した。

キーワード：窒化物燃料，加速器駆動システム，核変換，乾式再処理，溶融塩，白金族元素

1. 緒言　使用済マイナーアクチノイド(MA)核変換用燃料中に残存するMAを高い回収率で分離回収し、回収したMAを原料として燃料を製造して核変換を繰り返すMA核変換燃料サイクル技術の研究開発が実施されている。MA核変換用窒化物燃料の処理方法を検討するためには、燃料中に生成する核分裂生成物(FP)を含む化合物の化学形とその安定性に関するデータが欠かせない。塩化物溶融塩を溶媒として用いる乾式処理技術の検討では、FP含有化合物中のMAの塩化反応に関する知見が重要である。本研究では、MA窒化物模擬物質であるGdN及びNpNを用いて、FP元素であるPdと窒化物の反応によって生成する物質の化学形、及び生成したPd含有物質の塩化カドミウム($CdCl_2$)による塩化反応挙動に関するデータを取得した。

2. 実験　Np系反応試験はアルゴン雰囲気のホットセル・グローブボックス設備であるTRU高温化学モジュール(TRU-HITEC)において実施した。まず、$^{237}NpO_2$を原料として炭素熱還元法で調製したNpNと還元処理したPd金属粉末(高純度化学製、99.9%、1μm)を混合(モル比1：3.0)・成型してAr気流中1323Kで6時間加熱した。次に、得られたNp-Pd合金試料と$CdCl_2$(APL製、99.9%)を混合(モル比1:2.5)・成型して真空中673Kで6時間加熱した。それぞれの反応生成物の化学形を同定するために、粉末X線回折(XRD)測定を行った。これに先立ち、Gd金属棒(NewMet製、99.9%)を原料として、Ar-H_2気流中加熱、窒素気流中加熱によって調製したGdNを用いて同様の実験を行った。

3. 結果と考察　図1にNp系反応試験における各生成物のXRD測定結果を示す。GdN及びNpNとPdとの反応では、金属間化合物$GdPd_3$単相及び$NpPd_3$を主成分とする生成物がそれぞれ得られた。これらの結果はUNとPdの反応によるUPd_3の生成反応[1,2]と同様であり、希土類元素窒化物及びMA窒化物とPdの反応においてもMPd_3型の金属間化合物が生成することが示された。また、MPd_3 (M=Gd,Np)と$CdCl_2$との反応試験では、MCl_3 (M=Gd,Np)及びPd相の生成が確認された。以上の結果は、MA窒化物燃料中にMAPd_3相が生成した場合、$CdCl_2$との反応によってMAを塩化物にし、Pdと分離して溶融塩中に溶解することが可能であることを示唆するものである。

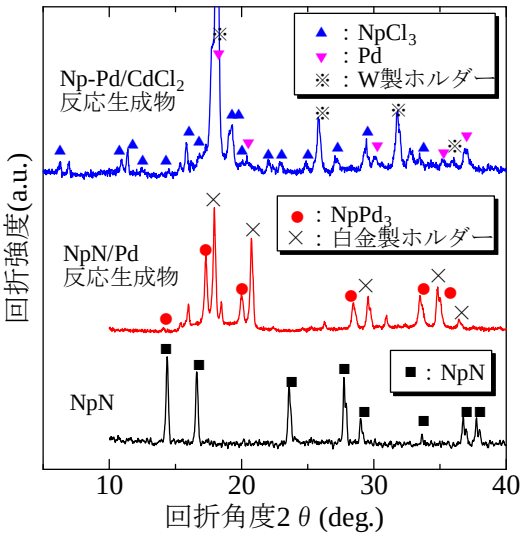


図1 Np系反応試験における粉末X線回折測定(Mo Kα線)結果

参考文献[1] R. Burriel, et al., J. Chem. Thermodyn., 20 (1988) 815-823.
[2] Hj. Matzke, “Science of Advanced LMFBR Fuels,” pp.428-461 (1986).

本報告は、原子力機構が委託先機関として実施した平成30年度及び令和元年度文部科学省原子力システム研究開発事業「安全性・経済性向上を目指したMA核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発」の成果の一部です。

*Hirokazu Hayashi, Hiroki Shibata, Haruyoshi Otobe, JAEA

乾式再処理使用済塩のゼオライトによる処理技術の開発
（7）複数種の FP 元素を含む模擬使用済塩を用いたゼオライトカラム試験

Development of spent salt treatment technology using zeolite

(7) Zeolite column experiments using simulating spent salt containing various kinds of FP elements

*魚住 浩一[1]，高山 和人[2]，稲垣 健太[1]

[1]電力中央研究所，[2]東京大学

乾式再処理使用済塩のゼオライトカラムによる処理技術開発の一環として、模擬 FP として Cs、Sr、あるいは Cs、Sr、Ce を含む模擬使用済塩を用いたカラム試験を実施すると共に、LiCl-KCl-$CeCl_3$ 塩にゼオライトを浸漬した際の Ce 吸着量の時間変化より求めた吸着速度定数に基づき計算した Ce 吸着挙動と比較した。

キーワード：乾式再処理, 使用済塩処理, ゼオライトカラム, セシウム, ストロンチウム, セリウム, FP 移行モデル, 速度定数

1. 緒言　使用済燃料の乾式再処理で生ずる使用済塩は、A 型ゼオライトを充填したカラムを通過させることで FP を吸着除去することが想定されており、これまでに模擬 FP として Cs あるいは Sr を含む模擬使用済塩を用いたカラム試験を実施した[1,2]。そこで、これらの模擬 FP が共存する模擬使用済塩、およびこれに Ce を加えた模擬使用済塩を用いたカラム試験を実施した。また、Ce については別途行った Ce 単独の浸漬試験により求めた吸着速度定数に基づいてカラムでの Ce 吸着挙動を計算し、カラム試験結果との比較を試みた。

2. カラム試験の実施　従来の試験[1,2]と同様に、粒径 2.2mm の A 型ゼオライト粒を充填した内径 11.1mm、長さ 300mm のカラム 2 本を直列に配置し、使用済塩の想定組成[3]に基づいて濃度を定めた上記 2～3 種の模擬 FP を含む LiCl-KCl 共晶溶融塩（約 3kg）を Ar ガス圧により駆動した。

3. Ce 吸着に関する速度定数の取得　上記と同様のゼオライト粒を装荷した SUS メッシュ製のバスケットを LiCl-KCl-$CeCl_3$ 塩に浸漬し、一定時間の回転後に引き上げることでゼオライトへの Ce 吸着量の時間依存性を求めた。次に、ゼオライト粒への FP 吸着挙動を 5 つの素過程に分けた移行モデルに基づくカラム挙動評価コード[4]を用いたフィッティングにより、吸着速度定数等の不明なパラメータの値を推定した。

4. カラム試験結果および浸漬試験結果との比較　3 種の模擬 FP を含む塩を用いた試験でのカラム出口での塩中組成変化を、推定したパラメータを用いた Ce の計算結果と共に右図に示す。計算では滴下開始直後の塩中 Ce 濃度が 1.5wt.%程度と予測されたのに対し、分析値は 4.0wt.%と既に定常値に近い値となっており、Ce が期待通りに吸着されていないことが示唆された。このため、各速度定数の妥当性や混合系での吸着挙動の変化を精査する必要があると思われる。

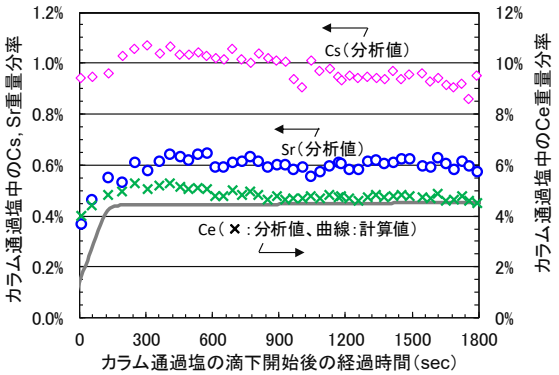


図　カラム通過塩中の模擬 FP 濃度変化

参考文献　[1] K. Uozumi *et al.*, *Nucl. Technol.*, **188**, 83 (2014).　[2] 魚住 他、日本原子力学会 2019 年秋の大会、2I16.　[3] 木下 他、電力中央研究所 研究報告、L11009 (2012).　[4] K. Inagaki *et al.*, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **51**, 906 (2014).

*Koichi Uozumi[1], Kazuto Takayama[2], and Kenta Inagaki[1]

[1]Central Research Institute of Electric Power Industry, [2]The University of Tokyo

熔融塩炉燃料の乾式再処理について

Pyro-reprocessing of Molten Salt Reactor Fuel

*澁谷 泰蔵[1]，吉岡 律夫[2]，Jan Uhlíř[3]，古川 雅章[1]

[1]トリウムテックソリューション，[2]トリウム熔融塩国際フォーラム，[3]チェコ・原子力研究所

フッ化物（FLiBe）熔融塩炉での Th-U 燃料のオフライン再処理に関する検討結果について報告する。発表では、軽水炉の使用済み燃料処理や福島事故の燃料デブリ処理の可能性についても触れる。

キーワード：熔融塩炉，使用済み燃料，フッ化物，再処理

1. 緒言

近年、熔融塩炉が見直され世界各国で開発が進められている。これに伴い使用済み熔融塩燃料の再処理技術の必要性が高まっている。フッ化物熔融塩燃料は、1960-70 代に米国オークリッジ国立研究所（ORNL）で盛んに研究されていた。当時は効率的な燃料増殖を目的として連続再処理システムが提案されたが、実証には至らなかった。その後、再処理設備を原子炉から切り離したオフライン再処理のアイデアが古川和男らによって提案された。筆者らはこのアイデアを基に、フッ化物再処理分野で長年研究を続けるチェコの原子力研究所との共同研究を進めている。

2. 再処理フロー

図 1 に検討中のフロー図を示す。ORNL では Bi から希土類元素（RE）を除去する目的で LiCl の利用を提案していたが[1]、塩化物イオンはニッケル基合金の腐食が無視できない。燃料サイクルでの塩化物イオンの混入を避けるため、本処理では塩化物は利用しないこととした。その代わり、チェコで開発中の $LiF\text{-}CaF_2$ をキャリア塩とした電気化学処理[2]を利用する。FLiBe をキャリア塩に選ぶと RE と Th の分離ができないが、$LiF\text{-}CaF_2$ をキャリア塩に選べばこの問題が解決できる。

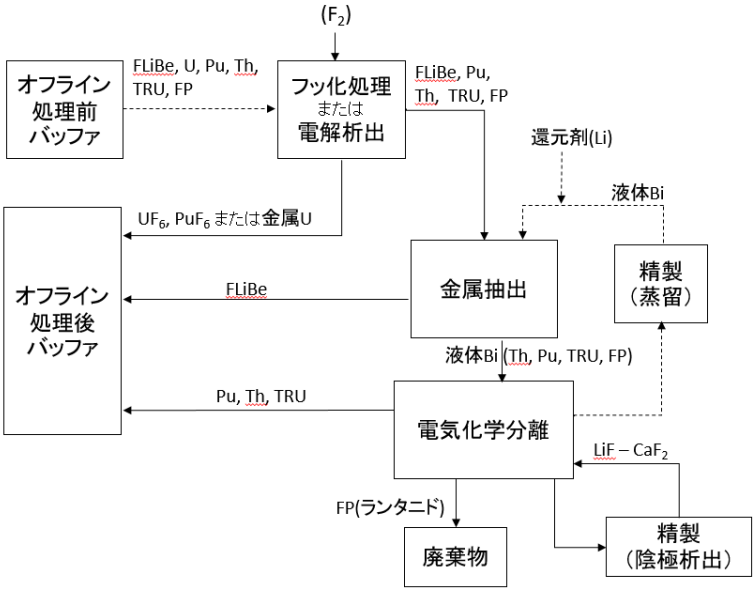


図 1　オフライン再処理のフロー図

本件は、経済産業省の「社会的要請に応える革新的原子力技術開発支援事業」で実施したものである。

参考文献

[1] G. Fredrickson *et al.*, “Molten salt reactor salt processing technology status”, INL/EXT-18-51033 (2018).

[2] M. Straka *et al.*, “Electrochemical and Microscopic Study of Thorium in a Molten Fluoride System", Journal of The Electrochemical Society, **162**, D449 (2015).

---

*Taizo Shibuya[1], Ritsuo Yoshioka[2], Jan Uhlíř[3] and Masaaki Furukawa[1]

[1]Thorium Tech Solution Inc., [2]International Thorium Molten-Salt Forum, [3]Centrum Výzkumu Řež

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-1 Radioactive Waste Management

[3I01-04] Nuclide Adsorption &Separation 5

Chair: Takayuki Sasaki (Kyoto Univ.)

Fri. Mar 19, 2021 9:30 AM - 10:45 AM Room I (Zoom room 9)

[3I01] Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of Soil contaminated by Radioactive Cesium

*Kenji Takeshita[1], Xiangbiao Yin[1], Shinta Watanabe[1], Tatsuya Fukuda[1], Masahiko Nakase[1] (1. Tokyo Institute of Technology)

9:30 AM - 9:45 AM

[3I02] Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of Soil contaminated by Radioactive Cesium

*TaTsuya Fukuda[1], Ryo Takahashi[1], Takuhi Hara[1], Shinta Watanabe[1], Xiangbiao Yin[1], Koji Ohara[2], Kazuo Kato[2], Daiju Matsumura[3], Masahiko Nakase[1], Kenji Takeshita[1] (1. Tokyo Tech, 2. JASRI, 3. JAEA)

9:45 AM - 10:00 AM

[3I03] Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of Soil contaminated by Radioactive Cesium

*Shinta Watanabe[1], Tatsuya Fukuda[1], Xiangbiao Yin[1], Miki Harigai[1], Masahiko Nakase[1], Kenji Takeshita[1] (1. Tokyo Tech)

10:00 AM - 10:15 AM

[3I04] Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of Soil contaminated by Radioactive Cesium

*Xiangbiao Yin[1], Shinta Watanabe[1], Tatsuya Fukuda[1], Masahiko Nakase[1], Kenji Takeshita[1] (1. Tokyo Tech)

10:15 AM - 10:30 AM

©Atomic Energy Society of Japan

放射性セシウムで汚染された土壌浄化のための亜臨界水イオン交換システムの開発
(1) 亜臨界水中の土壌からの Cs^+のイオン交換脱離

Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of Soil contaminated by Radioactive Cesium
(1) Ion-exchange Desorption of Cs^+ from Soil in Subcritical Water

*竹下健二、殷　祥標、渡邊真太、福田達弥、中瀬正彦
東京工業大学 科学技術創成研究院 先導原子力研究所

高度汚染土壌の処理を目的として福島汚染土壌に含まれる粘土鉱物（バーミキュライト）からの亜臨界水イオン交換による Cs 脱離について基礎理論（速度論・平衡論）の確立を目指している。本報告では交換イオンの違いによる Cs 脱離への影響を調べ、亜臨界水イオン交換挙動の速度論、平衡論について検討する。
キーワード：放射性セシウム、汚染土壌、粘土鉱物、イオン交換、亜臨界水、脱離速度

【緒言】東京電力福島第一原子力発電所事故により、放射性 Cs（^{134}Cs、^{137}Cs）が環境へと放出され、大量（1,300 万 m^3）の汚染土壌が発生した。大部分の汚染土壌は環境省が決定した基準（8,000 Bq/kg）以下に放射能が減衰するのを待って再利用されるが、62,000Bq/kg 以上の高度汚染土壌（70 万 m^3）は減容固化が検討されている。放射性 Cs は主に土壌中の粘土鉱物（主にバーミキュライト）に選択吸着されており、演者らは高度汚染土壌の処理を目的としてバーミキュライトからの亜臨界水イオン交換による Cs 脱離について検討している。本報告では回分式耐圧装置を用いて各種交換イオンによるバーミキュライトからの Cs 脱離挙動を調べ、その結果から Cs 脱離の速度論、平衡論について検討する。

【バーミキュライトからの Cs 脱離試験】耐圧容器内で Cs^+を飽和吸着させたバーミキュライト（Cs 吸着量 33mg-Cs/g-verm）2.0g に 0.01M の交換イオン（KCl、$MgCl_2$、$CaCl_2$、$AlCl_3$、$FeCl_3$、$LaCl_3$）を含む水溶液 200mL を加え、150℃及び 250℃で Cs 脱離試験を行った。試験開始から 0.5、1、2，6、12 の各時間で液サンプルを採取し、 サンプル溶液中の Cs 濃度を原子吸光法で求め、Cs 脱離率を算出した。

【試験結果と考察】図 1 には 250℃の亜臨界水中におけるイオン交換平衡時の Cs 脱離率と交換イオンの水和イオン半径の関係を示す。交換イオンの価数の増加に伴って水和イオン半径は増加するが、多数の水和水を伴って交換イオンが粘土鉱物の層間に入ることにより、Cs 脱離が促進されることが分かる。

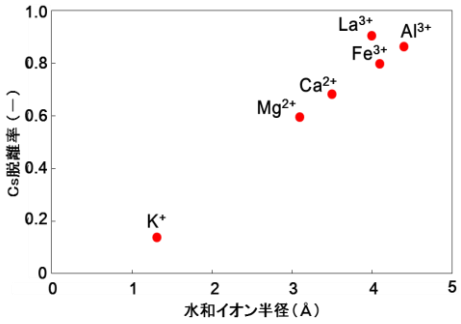


図 1．水和イオン半径と脱離率との関係

図 2 には交換イオンに 2 価イオン（$MgCl_2$）と 3 価イオン（$AlCl_3$、$LaCl_3$）を用いた場合の 150℃における Cs 脱離率の時間変化を示す。いずれの場合もイオン交換時間の増加に伴って Cs 脱離率は増加し、6 時間程度で平衡状態に至った。交換イオンとして 2 価イオン（Mg^{2+}）を用いた場合に比べて 3 価イオン（Al^{3+}や La^{3+}）を用いた方が効率的に Cs^+を脱離できた。この結果からバーミキュライトへの Cs 吸着量 q に対する物質移動速度式

$$\frac{dq_A}{dt} = k_S a(q_A^* - q_A) \quad (1)$$

を解いて計算結果と実験結果を一致させ、物質移動容量係数 *ksa* を決定した。*ksa* は 2 価イオン（Mg^{2+}: 8.0×10^{-5} s^{-1}）に比べて 3 価イオン（Al^{3+}: 1.5×10^{-4} s^{-1}、La^{3+}: 2.0×10^{-4} s^{-1}）の方が大きく、交換イオンの価数が大きいほどイオン交換速度が速いことを分かる。Cs は層状化合物であるバーミキュライトの層間に強く吸着されているが、XRD 分析によると Cs を飽和吸着したバーミキュライトの層間距離は 10.7A であったが、2 価イオン（Mg^{2+}）でイオン交換すると層間距離は 14.3A、3 価イオン（La^{3+}）で交換すると 15.2A に増加した。多価イオンは水和水を伴って層間に入り込むためにバーミキュライトの層間が広げられ、イオン交換速度が増加すると考えられる。

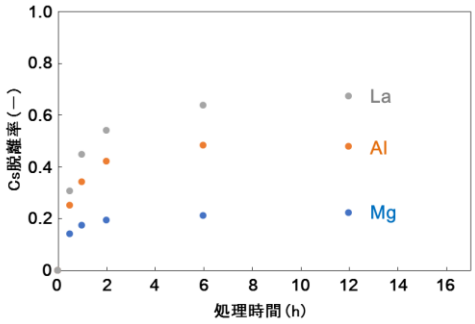


図 2. 150 °C における経時的 Cs 脱離率

【付記】本研究は、科学研究費補助金基盤研究（B）（一般）「金属イオンを含有した亜臨界水による土壌粘土鉱物からの Cs 脱離に関する研究（課題番号 18H03398）」及び環境省環境研究総合推進費「汚染土壌浄化・再利用と廃棄物高減容化を目指した亜臨界水処理システムの開発」の成果の一部である。

*Kenji Takeshita, Xiangbiao Yin, Shinta Watanabe, Tatsuya Fukuda and Masahiko Nakase
Laboratory for Advanced Nuclear Energy, Institute of Innovative Research, Tokyo Institute of Technology

放射性セシウムで汚染された土壌浄化のための亜臨界水イオン交換システムの開発 (2) 放射光 XRD，EXAFS による亜臨界水環境中のバーミキュライト，層間イオンのその場観察

Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of Soil contaminated by Radioactive Cesium
(2) In-situ Observation of Vermiculite and Interlayer Ions in Subcritical Water Environment by Synchrotron XRD and EXAF

*福田達弥[1]　高橋亮[1]　原卓飛[1]　渡邊真太[1]　殷 祥標[1]　尾原幸治[2]
加藤和男[2]　松村大樹[3]　中瀬正彦[1]　竹下健二[1]
[1]東京工業大学　[2]高輝度光科学研究センター　[3]日本原子力研究開発機構

粘土鉱物（バーミキュライト）中に取り込まれた Cs イオンは亜臨界水環境下では容易に多価のイオンと交換される。本現象のメカニズム解明に資する研究として、Spring-8 の高エネルギー放射光による X 線回折測定，XASF 測定等を用いた。亜臨界水中の粘土鉱物および層間イオンのその場観察を実施した。

キーワード：除染，高エネルギーX 線回折，XAFS，粘土鉱物

1. 緒言 土壌に含まれる粘土鉱物の層間に安定的に吸着された Cs は、亜臨界水環境では Mg をはじめとした多価の金属イオンと容易にイオン交換される。本研究では高エネルギー放射光を用いて亜臨界環境中の模擬汚染土壌の In-situ 測定を実施することで、①イオン交換に伴うバーミキュライトの構造変化、②イオン交換時の層間イオンの変化 を調査し、脱離メカニズムの推察を試みた。

2. 実験 バーミキュライトに Cs を吸着させることにより模擬汚染土壌を作成した。模擬汚染土壌をガラス観察窓付きカラムに詰め水および脱離液（$MgCl_2$ 水溶液）を加圧・通液した。処理温度を室温から 200℃まで，圧力を最大で 2MPa に変化させた。高エネルギーの放射光は観察口から試料を透過するため、in-situ での XRD 及び XAFS 測定を行うことが出来る。61 keV の X 線を用いた X 線回折実験と PDF 解析を SPring-8 の BL04B2 で実施し、Cs-K 吸収端を用いた透過法による EXAFS 測定を同施設 BL01B1 にて実施した。

3. 結果・考察 まず XRD 測定の結果から、亜臨界状態の Mg 水溶液環境でバーミキュライトの層間距離を示すピークが徐々に低角側に移動することが観察できた（Fig.1）。また、PDF 解析の結果から、亜臨界状態の Mg 水溶液環境でバーミキュライトの層間内の水の存在を示すピークが大きくなっていることが観察できた。XRD 測定の結果は層間 Cs が Mg とイオン交換をするのに伴い層間距離が広くなっていることを示している。Mg イオンは Cs イオンよりもイオン半径が小さいが水和状態となると Mg イオンの方が大きくなることから、Mg イオンは水和水を伴い層間に入っていることが示唆される。PDF 解析の結果より亜臨界状態の Mg 水溶液環境では層間内の水が増加していることが分かり、本示唆と整合している。

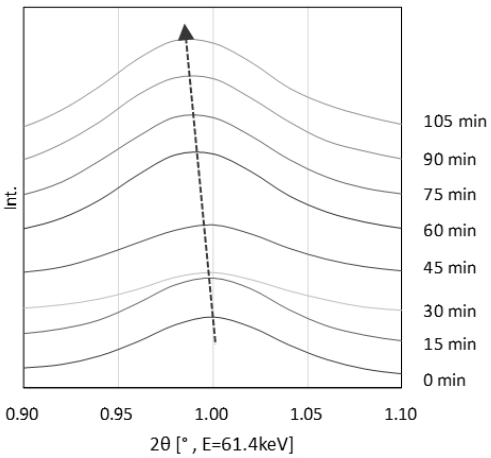


Fig. 1 亜臨界水環境における層間距離の時間変化

4. 謝辞 放射光実験は SPring-8 大学院生提案型課題 No. 2019A1682, 2019A1683, 2019B1767 で実施された。本研究は科学研究費補助金基盤研究（B）（一般）（課題番号 18H03398）の一部である。

*Tatsuya Fukuda[1], Ryou Takahashi[1], Takuhi Hara[1], Shinta Watanabe[1], Xiangbiao Yin[1], Koji Ohara[2], Kazuo Kato[2], Daiju Matsumura[3], Masahiko Nakase[1] and Kenji Takeshita[1]　[1]Tokyo Institute of Technology, [2]Japan Synchrotron Radiation Research Institute, [3]Japan Atomic Energy Agency

放射性セシウムで汚染された土壌浄化のための亜臨界水イオン交換システムの開発

(3) 分子動力学計算と第一原理計算によるバーミキュライトからの Cs 脱離機構の解析

Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of Soil contaminated by Radioactive Cesium

(3) Analysis of Desorption Mechanism of Cs from Vermiculite by Molecular Dynamics and First-principles Calculations

*渡邊真太，福田達弥，殷 祥標，針貝美樹，中瀬正彦，竹下健二
東京工業大学 科学技術創成研究院 先導原子力研究所

汚染土壌処理とその効率化のために、亜臨界水イオン交換を用いた粘土鉱物からの Cs 脱離過程における Cs イオンの高速交換反応挙動を解明する必要がある。これに資する目的から、本研究では、分子動力学計算と第一原理計算を用いて、代表的な粘土鉱物であるバーミキュライト中での Cs イオンの挙動を原子・分子スケールで評価・解析した。

キーワード：放射性セシウム，汚染土壌，粘土鉱物，亜臨界水，イオン交換，分子動力学計算，第一原理計算

【緒言】福島第一原子力発電所事故により発生した放射性 Cs は、土壌の分級細粒物に含まれる粘土鉱物層間に高選択吸着されている。我々のグループでは、亜臨界水を用いて、高選択吸着された Cs イオンを高速かつ高効率に取り除く研究を行っている。一方で、粘土鉱物に取り込まれた Cs イオンと亜臨界水中のイオンとの原子・分子スケール高速交換反応機構については明確に解明されていない。したがって、実際の土壌処理、廃棄物減容システムへの適用に向けて、Cs イオンの高速交換反応挙動を明確に解明する必要がある。これに資する目的から、本研究では、分子動力学(MD)計算と第一原理計算を用いて、代表的な粘土鉱物であるバーミキュライト中および固液界面での Cs イオンの挙動を原子・分子スケールで評価・解析した。

【計算】MD 計算は、力場パラメータとして clayff を用い、等温定圧アンサンブル(NPT アンサンブル)にて 100 ps のタイムスケールで行った。その際の温度および圧力は、常温常圧下モデルとして、300 K, 0.1 MPa、亜臨界水下モデルとして、523 K, 4 MPa とした。各 MD 計算において、Cs の平均 2 乗変位(Mean Square Displacement: MSD)を計算し、拡散係数を算出した。さらに、密度汎関数理論(DFT)に基づく第一原理計算により、電子状態および構造特性解析を行った。単位格子の層間にアルカリ金属および $Mg(H_2O)_6^{2+}$を挿入したモデルで計算を行い、Cs の層間への固定化を解析した。DFT 計算は、QUANTUM-ESPRESSO コードを用いて、Projector augumented-wave 法により実施した。

【結果・考察】MD 計算により得られた 100 ps 後のスナップショットを Fig. 1 に示す。常温常圧下を想定したモデル 1-3 において、Cs イオンが取り込まれた層は、10.5 - 11.5 Å 程度まで収縮し、安定的に固定化されることが分かった。亜臨界水下を想定したモデル 4 では、層間の H_2O 分子、$Mg(H_2O)_6^{2+}$錯体が、層間を広げることで、Cs イオンは層内をランダムウォークによって拡散することが可能となることが示唆された。拡散係数について、常温常圧下モデル 1-3 と亜臨界水下モデル 4 とを比較すると、後者の方が 5-10 倍程度大きくなり、層間吸着して固定化している Cs がランダムウォークによって拡散しやすくなることが分かった。さらに、第一原理計算により電子密度を解析し、層間に固定化される Cs および $Mg(H_2O)_6^{2+}$錯体の構造特性についても評価・解析したので報告する。

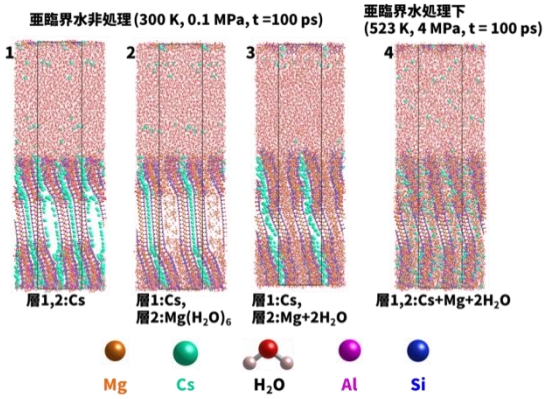


Fig. 1. MD 計算結果
100 ps 後のスナップショット
モデル 1. 層 1 : Cs イオン, 層 2 : Cs イオン
モデル 2. 層 1 : Cs イオン, 層 2 : $Mg(H_2O)_6^{2+}$錯体
モデル 3. 層 1 : Cs イオン, 層 2 : Mg イオン ＋H_2O
モデル 4. 層 1 : Cs イオン ＋Mg イオン ＋H_2O,
層 2 : Cs イオン ＋Mg イオン ＋H_2O

【付記】本研究は、科学研究費補助金基盤研究（B）（一般）「金属イオンを含有した亜臨界水による土壌粘土鉱物からの Cs 脱離に関する研究（課題番号 18H03398）」及び環境省環境研究総合推進費「汚染土壌浄化・再利用と廃棄物高減容化を目指した亜臨界水処理システムの開発」の成果の一部である。

* Shinta Watanabe, Tatsuya Fukuda, Xiangbiao Yin, Miki Harigai, Masahiko Nakase and Kenji Takeshita
[1] Laboratory for Advanced Nuclear Energy, Institute of Innovative Research, Tokyo Institute of Technology

放射性セシウムで汚染された土壌浄化のための亜臨界水イオン交換システムの開発
(4) 福島実汚染土壌からの Cs 高速脱離-カラムの動的挙動の解析

Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of Soil contaminated by Radioactive Cesium
(4) Rapid Desorption of Cs from Actually Contaminated Soil from Fukushima – Dynamic Analysis of the Column Treatment

*Xiangbiao Yin, Shinta Watanabe, Tatsuya Fukuda, Masahiko Nakase and Kenji Takeshita
Laboratory for Advanced Nuclear Energy, Institute of Innovative Research, Tokyo Institute of Technology

In the present work, the authors studied continuous desorption of radiocerium (Cs) from actual contaminated soil from Fukushima by the hydrothermal column treatment, coupling with its dynamic analysis of the Cs removal process.
Keywords: Cesium desorption, Column treatment, Dynamic analysis, Subcritical water, Ion exchange

1. Introduction

Widespread soil contamination following the Fukushima nuclear power plant accident in 2011 has motivated research on removing radionuclides, especially Cs, from soil. In this study, we detailly studied continuous Cs desorption from Fukushima actual contaminated soil by highspeed ion exchange through leaching with various cationic solutions in a column reactor, allowing the dynamic analysis of the Cs removal process.

2. Experimental

Continuous extraction of soil for Cs desorption was performed in a column-based reactor system as shown in Fig. 1. For the experiment, actual contaminated soil (~15,000 Bq/kg) sampled near about 9 km from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant was used. For the desorption test, 0.5g of radioactive soil was loaded into the column reactor and then flowed with same volume of various solutions (50 ml of 0.1M KCl, NaCl, $MgCl_2$, $CaCl_2$, $AlCl_3$, $LaCl_3$, $CeCl_3$) in rate of 0.25 mL/min at 150°C. The Cs desorption ratio for each solution was compared basing on the radioactivity reduction of the treated soils. To further study the desorption kinetics of column treatment, soil particles (10 g) were dispersed in CsCl solution (1L) with Cs^+ concentration of 1000 mg L^{-1} for 36 days, achieving a saturated Cs adsorption capacity of 7.6 mg-Cs/g-soil after three times of rinsing with water. Subsequently, as-prepared Cs-soil was loaded into the column reactor and leached with water or 0.01M $MgCl_2$ at 25 or 200°C. The Cs concentration in the effluent was measured with the time.

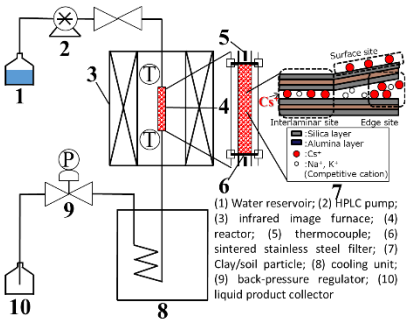


Fig. 1 Schematic diagram of continuous column system.

3. Results･Conclusion

Fig. 2 shows the radioactivity reduction of contaminated soil following column treatment with different solutions. It shows an order of Cs extraction ability as M^+ (K^+, Na^+) < M^{2+} (Mg^{2+}, Ca^{2+}) < M^{3+} (Al^{3+}, La^{3+}, Ce^{3+}), which is fully consistent with the order of their ability to exchange with Cs from collapsed interlayers of vermiculite in our previous studies, suggesting Cs in Fukushima soil would have been mainly trapped by micaceous clays onto interlayer-sites. Fig. 3 shows the continuous Cs desorption by column treatment with Mg^{2+} at different temperatures. It reveals slow and poor Cs desorption by only H_2O, with a desorption ratio lower than 30% and 60% in sum at 25 and 200°C, respectively. By contrast, the Cs desorption kinetic is improved significantly by Mg^{2+}-leaching even at 25°C, reaching a total desorption ratio over 80%. At 200°C, 100% summed desorption ratio was readily achieved within less volume of eluted Mg^{2+} solution. With the dynamic analysis of all these column treatment results, it allows for providing theoretical guidance for Cs removal from actual contaminated soil, thus inspiring new insights for treatment of post-accident soils in Fukushima.

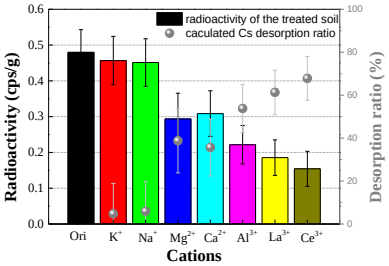


Fig. 2 Comparison of Cs removal by different cations.

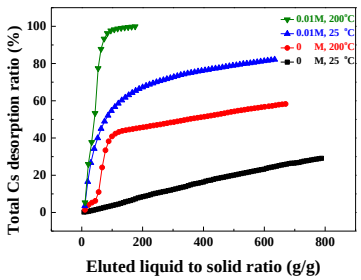


Fig. 3 Continuous Cs desorption from Cs saturated soil.

4. Acknowledgement

This work was financially supported by a Grant-in-Aid for Scientific Research from Ministry of Education, Science, Sports and Culture (18H03398) and Ministry of the Environment, Japan (1-1805).

*殷　祥標、渡邊真太、福田達弥、中瀬正彦、竹下健二
東京工業大学 科学技術創成研究院 先導原子力研究所

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-1 Radioactive Waste Management

[3I05-08] Waste Management 3

Chair: Kazuyoshi Uruga (CRIEPI)

Fri. Mar 19, 2021 10:45 AM - 12:00 PM Room I (Zoom room 9)

[3I05] Realization Development of the Flexible Waste Management System for MA P&T Technology

*Akihiro Suzuki[1], Yoichi Endo[1], Tetsuo Fukasawa[1], Yaohiro Inagaki[2], Tatsumi Arima[2], Yusa Muroya[3], Keita Endo[4], Daisuke Watanabe[4], Tatsuro Matsumura[5], Katsunori Ishii[5] (1. NFD, 2. Kyushu Univ., 3. Osaka Univ., 4. Hitachi-GE, 5. JAEA)

10:45 AM - 11:00 AM

[3I06] Realization Development of the Flexible Waste Management System for MA P&T Technology

*Yoichi Endo[1], Akihiro Suzuki[1] (1. NFD)

11:00 AM - 11:15 AM

[3I07] Realization Development of the Flexible Waste Management System for MA P&T Technology

*Koichi Kawaguchi[1], Katsunori Ishii[1], Yoichi Endo[2], Akihiro Suzuki[2] (1. JAEA, 2. NFD)

11:15 AM - 11:30 AM

[3I08] Realization Development of the Flexible Waste Management System for MA P&T Technology

*Tetsuo Fukasawa[1], Keita Endo[2], Daisuke Watanabe[2], Yusa Muroya[3], Tatsumi Arima[4], Yaohiro Inagaki[4], Yoichi Endo[1], Akihiro Suzuki[1] (1. NFD, 2. HGNE, 3. Osaka Univ., 4. Kyushu Univ.)

11:30 AM - 11:45 AM

©Atomic Energy Society of Japan

MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発
(33) 柔軟な廃棄物管理法の概念仕様

Realization Development of the Flexible Waste Management System for MA P&T Technology
(33) Conceptual specification of the Flexible Waste Management System

*鈴木晶大[1]，遠藤洋一[1]，深澤哲生[1]，稲垣八穂広[2]，有馬立身[2]，室屋裕佐[3]，遠藤慶太[4]，渡邉大輔[4]，
松村達郎[5]，石井克典[5]，川口浩一[5]
[1]NFD，[2]九大，[3]阪大，[4]日立 GE，[5]JAEA

現行再処理廃液をか焼・顆粒化して MA 分離変換技術が確立するまで貯蔵して大幅な環境負荷低減を図る柔軟な廃棄物管理システムの実用化開発では、再処理後段に顆粒体製造設備を配置し、ガラス固化体貯蔵設備への共用貯蔵を行い、将来建設される MA 分離設備内に再廃液化設備を導入する概念仕様を設定した。
キーワード：柔軟な廃棄物管理、高レベル廃棄物顆粒体、顆粒体製造、顆粒体貯蔵、顆粒体再溶解

1. 緒言　現在開発が行われている MA 分離変換技術を現行再処理廃液に対しても適用することができれば MA 分離変換技術の有効性を大幅に向上させることができる。このため、現行再処理後の高レベル廃棄物をか焼・顆粒化し、MA 分離変換技術が確立するまで貯蔵する柔軟な廃棄物管理法の実用化開発を進めている。現在までに、実用的な顆粒体製造技術であるロータリーキルンを用いた模擬顆粒体試作試験、顆粒体貯蔵時の化学安定性評価や熱除去設計、貯蔵後の顆粒体を MA 分離技術に繋げるための再廃液化試験のほかシステムの定量的な有効性評価を行い、これらの成果を基に、柔軟な廃棄物管理実用システムの概念仕様化（図１）、システムを構成する各要素技術の基本仕様、装置仕様、運転条件や操作要領を検討してきている。本報告では、柔軟な廃棄物管理実用システムの概念仕様の設定、及びシステムを構成する各要素技術への要求事項（基本仕様）についてまとめる。

2. システム概念仕様及び要素技術の基本仕様　顆粒体製造設備は現行再処理施設内に設置し、ガラス溶融炉に供される直前の廃液から顆粒体を製造しキャニスタへの封入を行う。顆粒体は 70 L/h の再処理廃液から連続的に製造し、適切な酸化物/硝酸塩比を得るために最高温度を 600 ℃とするほか、ロータリーキルンにより発熱元素の凝集を防ぎつつ顆粒化によって浮遊しやすい微細粉を減少させ、また、貯蔵時の放射線分解ガスの影響を防ぐためキャニスタ封入までの吸湿を 0.3wt%以下とする。また、顆粒体製造設備は遠隔保守性を持ちセル内にコンパクトに設置できるものとする。顆粒体貯蔵は、本システムが導入されるまでの期間に製造されたガラス固化体とともに現行貯蔵設備に共用貯蔵する。ガラス固化体よりも高充填貯蔵であることによる貯蔵面積低減メリットを保持したまま、現行建屋の自然空冷下で顆粒体中の低融点硝酸塩成分を融解させないよう効果的に除熱するため、細径キャニスタを通風管内に複数本配置する。なお、保管期間は 50 年間を想定し、その間の腐食による減肉及び放射線分解による内圧上昇に十分耐えられる厚さの SUS304L をキャニスタ材として用いる。貯蔵後の顆粒体再廃液化設備は、将来設計される MA 分離施設内の上流側に設置し、硝酸溶解工程で得られた溶液部分のみを別途 JAEA にて開発の進められている MA 分離技術に導入することとする。現行再処理廃液に対する柔軟な廃棄物管理システムの効果として、現行再処理において本システムが導入されるまでに製造される MA 入りガラス固化体分を含めたトータルとして、高レベル廃棄物貯蔵容積を 25 %以上低減させ、1000 年後の総合潜在的有害度を 75 %以上低減させ、高レベル廃棄物処分場面積を 20 %以上低減させるものとする。

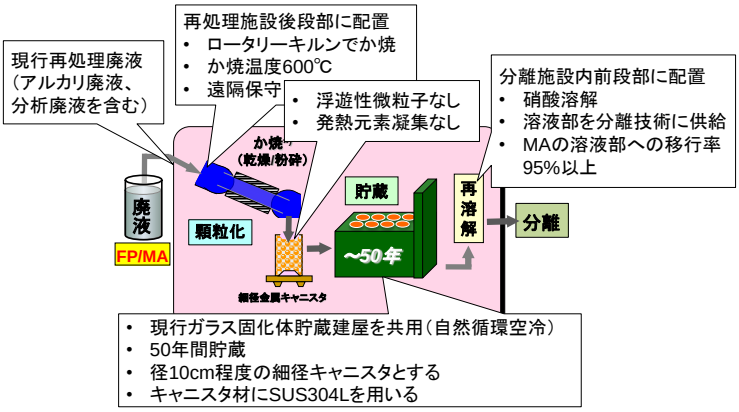


図１　柔軟な廃棄物管理システムの概念仕様化

本報告は、特別会計に関する法律（エネルギー対策特別会計）に基づく文部科学省からの受託事業として、日本核燃料開発株式会社が実施した 2018 年度及び 2019 年度「MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発」の成果です。

*Akihiro Suzuki[1], Yoichi Endo[1], Tetsuo Fukasawa[1], Yaohiro Inagaki[2], Tatsumi Arima[2], Yusa Muroya[3], Keita Endo[4], Daisuke Watanabe[4], Tatsuro Matsumura[5], Katsunori Ishii[5], Koichi Kawaguchi[5] ([1]NFD, [2]Kyushu Univ., [3]Osaka Univ., [4]Hitachi-GE, [5]JAEA)

MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発
(34) HLW 顆粒体製造ロータリーキルンの概念仕様

Realization Development of the Flexible Waste Management System for MA P&T Technology

(34) Conceptual Specification of the Rotary Kiln for the HLW Granule Production

*遠藤 洋一[1]，鈴木 晶大[1]

[1]NFD

ロータリーキルン試験装置による模擬顆粒体製造試験の知見から、70L/h の廃液を連続的に顆粒化するための顆粒体製造用ロータリーキルンの概念仕様及び運転条件を策定した。

キーワード：柔軟な廃棄物管理、ロータリーキルン法、高レベル廃棄物顆粒体、高レベル廃液

1. 緒言

現行再処理廃液に MA 分離変換技術を将来適用することを目指し、高レベル廃液を顆粒化し貯蔵する柔軟な廃棄物管理法の実用化開発[1]を MEXT 公募事業で行った。高レベル廃液の顆粒化技術として、傾斜を持ち、回転する管状炉を用いるロータリーキルン法を検討した。これまで実験室規模のロータリーキルン試験装置を製作し、高レベル廃液を模擬した非放射性硝酸溶液（以下、模擬廃液）を使って、乾燥温度[2]、か焼温度[3]、顆粒化温度[4]、雰囲気[5]、傾斜角度、回転速度、廃液注入速度[6]をパラメータとし、粒径 10μm 以上で一様な組成分布の顆粒体を作製する条件を見出した。実験室規模のロータリーキルン試験装置の廃液処理量は 1.8L/h であるが、実規模では廃液処理量を 70L/h へスケールアップする必要がある。また、高レベル廃液は線量が高いため、ロータリーキルンはセル内に設置する必要があり、セル内に配置可能なコンパクトサイズとする要請もある。本研究では、実験室規模のロータリーキルン試験装置を用いて得られた試験結果から、スケールアップとコンパクト化を両立した実規模ロータリーキルンの概念仕様及び運転条件を策定した。

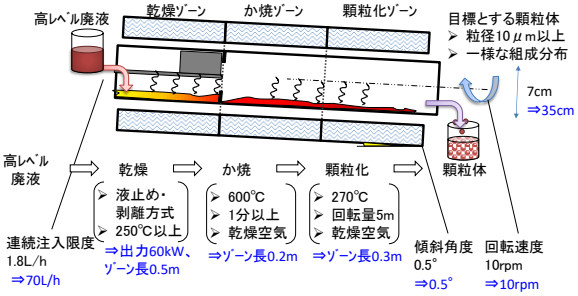


図 ロータリーキルンの概念仕様

（青字がスケールアップ後）

2. 概念仕様の策定

模擬廃液を 1.8L/h で処理するロータリーキルン試験装置では乾燥ゾーンのヒータ出力が 1.4kW の時に定常的にそれを乾燥可能なので、70L/h を処理する実規模ロータリーキルンの乾燥ゾーンのヒータ容量は、比例計算によると 54kW が必要となる。ここでは約 10%の裕度をもたせ 60kW と設定した。この容量のヒータを乾燥ゾーンに設置するためには一定のヒータ設置面積が必要となるため、国内ロータリーキルンメーカの実績から管径を 0.35m、乾燥ゾーン長を 0.5m とした。炉心管の回転は、遅いと乾燥ゾーンで廃液と接さない上部での温度上昇が大きくなるため速い方が良い。このことから実規模管径で実績ある最高の 10rpm と定めた。次に、ここで決定した回転速度 10rpm、管径 0.35m を前提とし、ロータリーキルン試験装置で判明したか焼に必要な時間約 1 分と顆粒化に必要な壁面移動量約 5m を確保するための条件を求めた。廃液は乾燥した後、粉体となって炉心管を移動していくが、粉体の移動速度は回転速度と傾斜角度の正接に比例[6]し、管径にも比例する[7]ことから、傾斜角度は 0.5° 、か焼ゾーン長は 0.2m、顆粒化ゾーン長は 0.3m と算出した。このことから乾燥ゾーンを含め、炉心管の長さはおよそ 1m に収められ、処理量のスケールアップを図りつつも 3m×3m 程度のセル内に配置可能なコンパクトなロータリーキルンとすることができることがわかった。

参考文献

[1] 鈴木ら、2017 年春の年会 1L01、[2] 遠藤ら、2019 年春の年会 1B04、 [3] 鈴木ら、2020 年秋の大会、[4] 遠藤ら、2018 年春の年会 2O14、 [5] 室屋ら、2019 年秋の大会 3B12 [6] 遠藤ら、2020 年春の年会 3B02、[7] 荒川ら、鉄と鋼 Vol.49, No.13, 1861-1868 (1963)

本報告は、特別会計に関する法律（エネルギー対策特別会計）に基づく文部科学省からの受託事業として、日本核燃料開発株式会社が実施した 2016~2019 年度「MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発」の成果を含みます。

*Yoichi Endo[1], Akihiro Suzuki[1]

[1]NFD

MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発
(35) 実機ロータリーキルンシステム設計および仕様

Realization Development of the Flexible Waste Management System for MA P&T Technology

(35) System Design and Specification of the Rotary Kiln for the HLW Granule Production

*川口浩一[1]，石井克典[1]，遠藤洋一[2]，鈴木晶大[2]

[1]JAEA，[2]NFD

小型キルンを用いた模擬顆粒体の試作試験から得られた知見を踏まえ、70L/h の連続処理が可能な実規模ロータリーキルンの設計を行い、遠隔保守に対応しコンパクトな配置とした顆粒体製造システムの概念設計を行った。

キーワード：柔軟な廃棄物管理、HLW 顆粒体、顆粒体製造設備、ロータリーキルン法

1. 緒言

現行再処理廃液をか焼・顆粒化して将来 MA 分離変換技術が確立するまで貯蔵する柔軟な廃棄物管理法の実用化開発を進めている。顆粒体製造技術としては発熱元素の凝集を防ぐため回転する焼成炉であるロータリーキルンを用いることとし、NFD における小型キルンを用いた模擬顆粒体の試作試験により、キルンの内部構造や運転条件の知見が得られてきた[1]。これを現行再処理廃液の顆粒化に適用する場合、仏国のガラス固化設備の前段で実用化されているキルンに近い処理能力である 70L/h の連続処理が必要であり、セル内のコンパクトなスペースに補機類と共に遠隔保守が可能な形で配置する必要がある。JAEA ではモジュール化により遠隔保守が可能な実規模キルンの設計を行った[2]が、キルンの軸方向に長い配置となった。今回、軸方向に短尺化したキルンの仕様が示された[3]が、さらに遠隔保守方法及び補機類配置の工夫により顆粒体製造システムのコンパクト化を図った。

2. 検討方針

炉心管および各ゾーンの寸法および運転条件については、コールド試験から得られた知見をもとに、必要な伝熱面積を確保しつつ、全長ができるだけ短くなるように設定した。保守手順の見直しとして、炉心管内に挿入されている破砕棒は保守エリアで炉心管から抜き出すこととした。

3. 結論

設備概念図を Fig.1 に示す。炉心管は、コールド試験で得られた知見に基づき、必要な伝熱面積や顆粒体の送り速度を考慮して寸法や回転速度を設定した。設備設置位置ではモジュールの引抜きをしないため、炉心管と破砕棒に加えて原料供給フードおよび排出フードも接続した状態でメンテナンスエリアに搬送することとした。これらの検討の結果、処理速度 70L/h の実機ロータリーキルンとキャニスタ蓋溶接装置を 3m×3mの設置ベース上にコンパクトに配置できる見通しを得た。

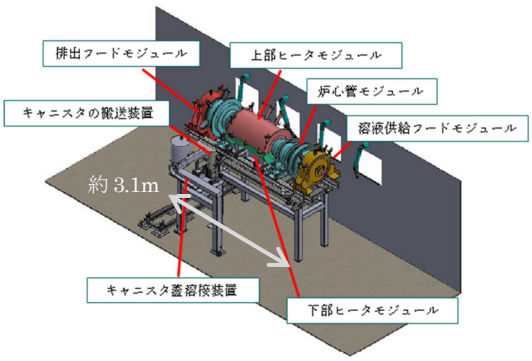


Fig.1　ロータリーキルン概念図

参考文献

[1]遠藤ら、2019 秋の大会 3B10

[2]川口ら、2019 秋の大会 3B11

[3]遠藤ら、2021 春の年会（前発表）

本報告は、特別会計に関する法律（エネルギー対策特別会計）に基づく文部科学省からの受託事業として、日本核燃料開発株式会社が実施した 2018～2019 年度「MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発」の成果です。

*Koichi Kawaguchi[1], Katsunori Ishii[1], Yoichi Endo[2] and Akihiro Suzuki[2]

[1]Japan Atomic Energy Agency., [2]Nippon Nuclear Fuel Development Co., LTD.

MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発
(36) HLW 顆粒体貯蔵設備の概念仕様

Realization Development of the Flexible Waste Management System for MA P&T Technology

(36) Conceptual Specification of the HLW Granule Storage Facility

*深澤 哲生[1]，遠藤 慶太[2]，渡邉 大輔[2]，室屋 裕佐[3]，有馬 立身[4]，稲垣 八穂広[4]，
遠藤 洋一[1]，鈴木 晶大[1]
[1]ＮＦＤ，[2]日立ＧＥ，[3]阪大，[4]九大

高レベル廃棄物(HLW)顆粒体は、SUS 製キャニスタに封入し、ガラス固化体貯蔵設備を共用して貯蔵する。顆粒体貯蔵時は、顆粒体及び冷却空気の温度制限値、放射線分解ガスによる内圧上昇、顆粒体による内壁面腐食を考慮する必要があり、これらを定量的に評価して設備仕様を決定した。

キーワード：柔軟な廃棄物管理、HLW 顆粒体貯蔵、除熱性能、放射線分解ガス、キャニスタ腐食

1. 緒言

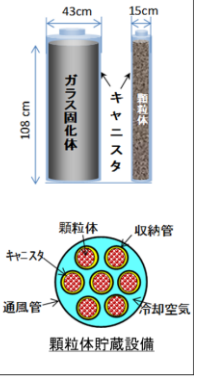
現行再処理施設の高レベル廃液(HLLW)に柔軟な廃棄物管理法を適用した場合、マイナーアクチニド(MA)の分離変換技術が実用化するまで、HLLW を HLW 顆粒体にして貯蔵することになる[1, 2]。高熱量・高線量顆粒体の貯蔵設備仕様を、要求される除熱性能、放射線分解で発生するガスによるキャニスタの内圧上昇、水分や硝酸塩を含む顆粒体によるキャニスタ内壁面腐食の観点より評価した。

2. HLW 顆粒体貯蔵設備に要求される性能

貯蔵設備には顆粒体の除熱性能と化学的安定性が要求される。すなわち、熱的には顆粒体の溶融温度 260℃を超過しないこと、冷却空気(建屋コンクリート)の温度が 65℃以下であることが要求され、化学的にはキャニスタの許容内圧を超えるガスが発生しないこと、顆粒体による壁面腐食が十分小さいことが要求される。今回、模擬顆粒体を用いた試験により、得られた物性値で顆粒体と冷却空気の温度、ガス発生量と腐食量を評価し、貯蔵設備仕様を決定した。

表 1　HLW 顆粒体貯蔵設備仕様

No.	項　目	単位	ガラス固化体貯蔵設備	顆粒体貯蔵設備(案)	備　考
1	廃棄物充填率	%	25	44	
2	キャニスタ本数	本	1	7	
3	キャニスタ内径	cm	42.0	14.6	
4	キャニスタ肉厚	cm	0.5	0.2	
5	キャニスタ外径	cm	43.0	15.0	
6	キャニスタ内高	cm	123	123	
7	充填高さ	cm	108.3	108.3	
8	充填物比重	g/cm³	2.67	3.5	
9	収納管内径	cm	46.0	15.4	
10	収納管肉厚	cm	1.0	0.3	
11	通風管内径	cm	58.0	58.0	
12	冷却空気温度	℃	＜65	64.9	
13	顆粒体最高温度	℃	＜500	225.5	
14	通風管当たりの廃棄物重量	kg	901	1759	
15	同上相対値	―	1.0	1.95	



3. 結論

HLW 顆粒体貯蔵設備の仕様を表 1 に示す。HLW 顆粒体はガラス化固化体より発熱密度が高いため、細径キャニスタを採用し、1 本の通風管にキャニスタを 7 本配置している。熱伝導解析でキャニスタ内径を求め、放射線分解試験及び腐食試験でキャニスタ肉厚を決定した。

参考文献

[1] 鈴木ら，日本原子力学会 2017 年春の年会 1L01、　[2] 深澤ら，日本原子力学会 2017 年秋の大会 3A08

本報告は、特別会計に関する法律（エネルギー対策特別会計）に基づく文部科学省からの受託事業として、日本核燃料開発株式会社が実施した令和元年度「MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発」の成果です。

*Tetsuo Fukasawa[1], Keita Endo[2], Daisuke Watanabe[2], Yusa Muroya[3], Tatsumi Arima[4], Yaohiro Inagaki[4], Yoichi Endo[1], Akihiro Suzuki[1]
([1]NFD, [2]Hitachi-GE, [3]Osaka Univ., [4]Kyushu Univ.)

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-1 Radioactive Waste Management

[3I09-12] Debris 1

Chair: Masahiko Nakase (Tokyo Tech)

Fri. Mar 19, 2021 2:45 PM - 4:00 PM Room I (Zoom room 9)

[3I09] Research on the stability of fuel debris consisting of oxides and alloys

*Akira Kirishima[1], Daisuke Akiyama[1], Nobuaki Sato[1], Takayuki Sasaki[2], Masayuki Watanabe[3], Yuta Kumagai[3], Ryoji Kusaka[3] (1. Tohoku Univ., 2. Kyoto Univ., 3. JAEA)

2:45 PM - 3:00 PM

[3I10] Research on the stability of fuel debris consisting of oxides and alloys

*Yuta Kumagai[1], Masayuki Watanabe[1], Ryoji Kusaka[1], Daisuke Akiyama[2], Akira Kirishima[2], Nobuaki Sato[2], Takayuki Sasaki[3] (1. JAEA, 2. Tohoku Univ., 3. Kyoto Univ.)

3:00 PM - 3:15 PM

[3I11] Research on the stability of fuel debris consisting of oxides and alloys

*Ryoji Kusaka[1], Yuta Kumagai[1], Masayuki Watanabe[1], Daisuke Akiyama[2], Akira Kirishima[2], Nobuaki Sato[2], Takayuki Sasaki[3] (1. JAEA, 2. Tohoku Univ., 3. Kyoto Univ.)

3:15 PM - 3:30 PM

[3I12] Research on the stability of fuel debris consisting of oxides and alloys

*Takayuki SASAKI[1], Ryutaro Tonna[1], Taishi Kobayashi[1], Daisuke Akiyama[2], Akira Kirishima[2], Nobuaki Sato[2], Masayuki Watanabe[3], Yuta Kumagai[3], Ryoji Kusaka[3] (1. Kyoto Univ., 2. Tohoku Univ., 3. JAEA)

3:30 PM - 3:45 PM

©Atomic Energy Society of Japan

合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究
（7）ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬デブリの安定性評価

Research on the stability of fuel debris consisting of oxides and alloys
(7) Stability of simulated fuel debris in the UO_2-Zr-SS system

*桐島 陽[1]，秋山大輔[1]，佐藤修彰[1]，佐々木隆之[2]，渡邉雅之[3]，熊谷友多[3]，日下良二[3]

[1]東北大，[2]京大，[3]JAEA

福島第一原発事故では、構造材と溶融した燃料が高温で反応し合金相を含む燃料デブリが形成されたとみられる。本発表では、ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼から成る模擬デブリの合成と、これを純水や海水に一定期間浸漬した試験結果について報告する。

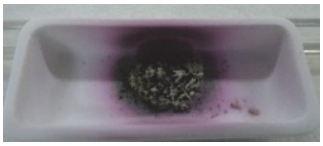
キーワード：燃料デブリ，福島第一原子力発電所事故，合金デブリ，アクチノイド

1. 緒言

福島第一原発炉内では、SUS 配管や圧力容器等の構造材と溶融した燃料や被覆管成分が高温で反応し、合金相を含む燃料デブリが形成されたとみられる。本研究プロジェクトでは、UO_2-SUS 系や UO_2-Zr(ZrO_2)-SUS 系の模擬デブリを高温熱処理により合成し、構造解析や状態分析を行い、構造的および化学的安定性を評価している。本報告では UO_2-Zr-SUS 模擬デブリ合成と、経年変化処理としての純水や海水への浸漬試験の結果を報告する。この試験では浸漬による模擬デブリの構造の変化の有無や、模擬デブリに含まれる U, Np, Am の溶出率を測定し、ここから安定性評価を行った。

2. 実験

^{237}Np および ^{241}Am の MA トレーサーを添加した UO_2 と SUS304 粉末および Zr 金属粉末をモル比(U : Fe+Cr+Ni : Zr) が 1:1:1 となるように秤量し、摩砕混合した。これを管状電気炉に入れて、Ar 雰囲気または 2% O_2 雰囲気で、1200℃, 1600℃, および 1700℃で 1 時間加熱し模擬デブリを合成した。この模擬デブリを純水および海水に一定期間浸漬し、^{238}U, ^{237}Np, ^{241}Am の溶出率をαスペクトロメトリで評価した。また、浸漬前後の模擬デブリの結晶構造を粉末 X 線回折(XRD)により評価した。



（写真）UO_2-Zr-SUS 模擬デブリ（1600℃, Ar 雰囲気）

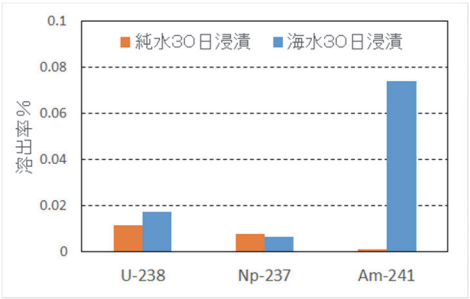


図 1：UO_2-Zr-SUS 模擬デブリからの核種溶出率

3. 結果と考察

合成した模擬デブリの結晶構造を XRD で調べたところ、Ar 雰囲気加熱試料では UO_2 が UO_{2+x} へ、Zr が ZrO_2 へ酸化されていた。一方、2% O_2 雰囲気加熱試料では、UO_2 が 1200℃で U_3O_8 に酸化され一部は $UFe(Cr)O_4$ となっていた。1600-1700℃では Zr との固溶体相 $U(Zr)O_{2+x}$ が形成された。また正方晶 ZrO_2 に U の固溶した t-Zr(U)O_2 相も確認された。2% O_2 雰囲気 1600℃加熱で合成した模擬デブリを海水と純水にそれぞれ 30 日間浸漬したところ、浸漬前後の XRD パターンに有意な差は観察されず、主要相である $U(Zr)O_{2+x}$ および t-Zr(U)O_2 は水中浸漬に対して安定であることが分かった。この浸漬試験でのアクチノイド核種の溶出率は、いずれの核種も 0.08%以下と低い値であった（図 1）。また、U, Np については海水浸漬と純水浸漬の間で溶出率に顕著な差は見られなかった。

【謝辞】本研究は、日本原子力研究開発機構・廃炉国際共同研究センターの「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」の一部として実施した。

*Akira Kirishima[1], Daisuke Akiyama[1], Nobuaki Sato[1], Takayuki Sasaki[2], Masayuki Watanabe[3], Yuta Kumagai[3], Ryoji Kusaka[3]
[1]Tohoku Univ., [2]Kyoto Univ., [3]JAEA,

合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究 （8）ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬デブリからの ウラン溶出と変質相形成

Research on the stability of fuel debris consisting of oxides and alloys
(8) Dissolution of uranium from simulated fuel debris in the UO_2-Zr-SS system and formation of alteration layer

*熊谷 友多[1]，渡邉 雅之[1]，日下 良二[1]，秋山 大輔[2]，桐島 陽[2]，佐藤 修彰[2]，佐々木 隆之[3]
[1]JAEA，[2]東北大学，[3]京都大学

1F 事故で形成された燃料デブリは炉内環境において経年変化を起こす可能性がある。本研究では、ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬デブリの安定性を調べるため、放射線分解影響を模擬した過酸化水素水溶液への浸漬試験を行い、浸漬による金属元素の溶出挙動を調べ、変質相の形成について考察した。

キーワード：燃料デブリ，過酸化水素，変質相

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所（1F）事故で生じた燃料デブリは水と接触した状況にあり、使用済燃料等に関する知見に基づけば[1]、取り出し完了までの期間を考慮すると燃料デブリが経年変化を起こす可能性が考えられる。この経年変化の要因の一つとして、水の放射線分解で生じる過酸化水素（H_2O_2）による酸化反応が挙げられる。そこで、模擬燃料デブリを用いて H_2O_2 水溶液中での反応を調べた。

2. 実験

二酸化ウラン（UO_2）粉末とステンレス鋼（SUS304）粉末、及び金属ジルコニウム（Zr）もしくは酸化ジルコニウム（ZrO_2）粉末の混合物から表 1 の条件で模擬デブリを調製した。この模擬デブリ試料 0.2g を 7mmφ のディスク状に圧縮成形、樹脂上に固定し、H_2O_2 水溶液に 30 日間浸漬した。

表 1：UO_2-SUS-Zr 模擬デブリ調製条件

ID	Starting materials (U:Fe+Ni+Cr:Zr = 1:1:1)	Temp. (°C)	Atmosphere
USZr1200-O	UO_2, SS304, Zr	1200	Ar + 2% O_2
USZr1600-O		1600	Ar + 2% O_2
USZr1600-A		1600	Ar
USZrO$_2$1600-O	UO_2, SS304, ZrO_2	1600	Ar + 2% O_2

3. 結果と考察

浸漬液の分析結果を図 1 に示す。模擬デブリ試料からの U 溶出は 5μmol･dm^{-3} 以下と、H_2O_2 消費量よりも一桁低い濃度であった。また、UO_2 試料では U 濃度の低下が観測され、模擬デブリ試料の結果にも浸漬日数の経過によって U 濃度が増加する傾向は見られなかった。この U 溶出挙動から、溶液中の U が析出したことが示唆される。UO_2 の H_2O_2 水溶液への浸漬では、ウラニル過酸化物が変質相として形成されることが知られており[2]、同様の反応が模擬デブリ試料でも進行したことが示唆される。

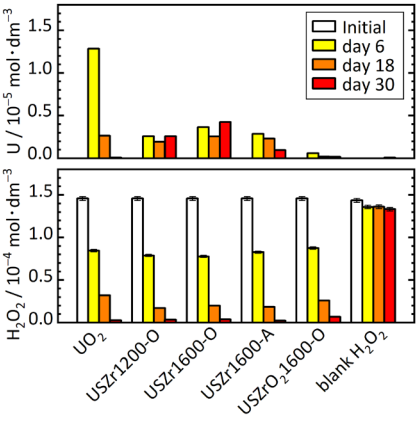


図 1：UO_2-Zr-SUS 模擬デブリからの U 溶出（上）と残存 H_2O_2 濃度（下）

【謝辞】本研究は日本原子力研究開発機構・廃炉国際共同研究センターの「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」の一部として実施した。

参考文献：[1] T.E. Eriksen, et al., *J. Nucl. Mater.*, 420 (2012) 409. [2] C. Corbel, et al. *J. Nucl. Mater.* 348 (2006) 1.

*Yuta Kumagai[1], Masayuki Watanabe[1], Ryoji Kusaka[1], Daisuke Akiyama[2], Akira Kirishima[2], Nobuaki Sato[2], Takayuki Sasaki[3]
[1]JAEA, [2]Tohoku Univ., [3]Kyoto Univ.

合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究 （9）ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬デブリの 顕微ラマン分光分析

Research on the stability of fuel debris consisting of oxides and alloys
(9) Raman microscopic analysis of simulated fuel debris in the UO_2-Zr-SS system

*日下 良二[1]，熊谷 友多[1]，渡邉 雅之[1]，秋山 大輔[2]，桐島 陽[2]，佐藤 修彰[2]，佐々木 隆之[3]
[1]JAEA，[2]東北大学，[3]京都大学

ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬デブリの過酸化水素水への浸漬試験の結果、ウランの溶出挙動から模擬デブリ表面の変質が示唆された。本研究では、顕微ラマン分光法によりその変質相成分の特定を行うと共に、変質相成分の空間分布状況を調べた。

キーワード：燃料デブリ、表面反応変化、顕微ラマン分光

1. 緒言　燃料デブリは 1F 炉内で水との接触により経年変化すると考えられる。経年変化した燃料デブリの化学状態は燃料デブリの安定性と関わっており、燃料デブリの取り出しや保管、さらには、処理・処分をするための重要な情報になると考えられる。最近我々は、ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬デブリと水の放射線分解で生成した過酸化水素(H_2O_2)との反応を調べるため、模擬デブリの過酸化水素水への浸漬試験を行った。その結果、ウランの溶出挙動から模擬デブリ表面の変質が示唆された。本研究では、浸漬によるデブリ表面の化学的な状態変化を顕微ラマン分光法を用いて特定した。また、模擬デブリ変質相の表面付近に於ける存在分布を調べた。

2. 実験　ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬デブリは、二酸化ウラン（UO_2）粉末とステンレス鋼（SUS304）粉末、及び金属ジルコニウム（Zr）粉末を管状電気炉に入れて Ar または 2% O_2 雰囲気で 1200℃または 1600℃で 1 時間加熱して合成した。模擬デブリ粉末 0.2 g を 7 mmφ のペレット状に圧縮成形し、過酸化水素水(150 μM)に 25℃で 30 日間浸漬した。浸漬した試料を室温で乾燥させた後、顕微ラマン分光測定（レーザー波長:532nm, 0.5 mW, JASCO, NRS-4500）した。

3. 結果と考察　過酸化水素水への浸漬を行った模擬デブリペレットの表面を顕微ラマン測定した結果、~820 cm^{-1} と~865 cm^{-1} に強い信号強度を持つ鋭いバンドが観測された（図 1）。これらは過酸化ウラニル[$(UO_2)(O_2)(H_2O)_n$]が示す特徴的なラマン信号であり [1]、浸漬によって模擬デブリの表面に過酸化ウラニルが変質相として生成したと結論づけた。この過酸化ウラニルは、模擬デブリペレットの表面全体を覆っており、その層の厚さは μm オーダーであった。また、模擬デブリペレット深部においては、ペレット表面では観測されていない、アモルファス状の過酸化ウラニルと考えられる変質相が観測された。

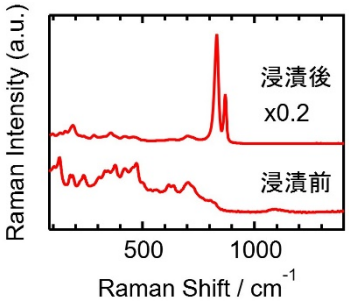


図 1：UO_2-Zr-SUS 模擬デブリ(2% O_2 雰囲気、1200℃加熱で合成)の浸漬前後のラマンスペクトル

【謝辞】本研究は日本原子力研究開発機構・廃炉国際共同研究センターの「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」の一部として実施した。

参考文献：[1] R. Kusaka, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, in print (2021).

* Ryoji Kusaka[1], Yuta Kumagai[1], Masayuki Watanabe[1], Daisuke Akiyama[2], Akira Kirishima[2], Nobuaki Sato[2], Takayuki Sasaki[3]
[1]JAEA, [2]Tohoku Univ., [3]Kyoto Univ.

合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究 （10）ウラン-ジルコニウム-ステンレス鋼系模擬燃料デブリからの 核種溶出挙動評価－照射法と添加法

Research on the stability of fuel debris consisting of oxides and alloys

(10) Leaching behavior of nuclies from simulated fuel debris in the UO_2-Zr-SS system - Irradiation or addition method

*佐々木隆之[1]，頓名龍太郎[1]，小林大志[1]，秋山大輔[2]，桐島 陽[2]，佐藤修彰[2]，
渡邉雅之[3]，熊谷友多[3]，日下良二[3]
[1]京大，[2]東北大，[3]JAEA

ステンレスおよびZrを含む模擬燃料デブリを調製した。試料中のFPは、熱中性子照射によるU核分裂または非放射性元素の添加により導入し、人工海水や純水等に浸漬した。両法により導入したFPの溶解挙動、その解釈について報告する。

キーワード：合金デブリ，核分裂生成物，溶出挙動，照射法，添加法

1. 緒言　SA における燃料溶融時に、ジルカロイ被覆管およびステンレス構造材と高温で反応する場合、合金相を含む燃料デブリの形成が想定されるが、水との接触による経年劣化評価のために、ウラン固相の安定性ならびに核種の溶出挙動を検討した事例はほとんど無い。本プロジェクトを含む過去の検討では、模擬燃料デブリに熱中性子照射して FP を導入し、試験を行ってきた。しかし照射法では対象元素に制限があり、また半減期により長期浸漬試験が困難であることから、非放射性元素を模擬デブリ調製時に添加する方法を試みてきた[1]。本研究では、合金相を含む模擬燃料デブリ（U-Zr-SUS）に両手法を適用し、溶出した核種の溶出率を評価するとともに、固相状態との関係について考察した。

2. 実験　UO_2、SUS304 ステンレス鋼（SUS）および金属 Zr の粉末をモル比（U : Fe+Cr+Ni : Zr）が 1:1:1 となるように秤量し、摩砕混合した。なお添加法ではさらに非放射性の Cs, Sr, Eu 化合物を少量加えた。これを管状電気炉に入れて、Ar または 2% O_2 雰囲気で、1200℃および 1600℃で所定時間加熱し、模擬デブリを合成し、結晶構造を粉末 X 線回折（XRD）により評価した。添加法では、加熱調製時に Cold FP の一部が揮発するため、試料の一部を酸溶解し、インベントリを補正した。照射法では京大原子炉で熱中性子照射し、FP を生成させた。これらを純水、0.1M $NaClO_4$、海水に浸漬し、浸漬前後の FP 核種 M の濃度をγ線スペクトロメトリ、U を ICP-MS で定量し、初期インベントリに対する溶出量比（ウランの溶出割合で規格化した溶出率 R_M）を評価した。

3. 結果と考察　図 1 に添加法試料の浸漬結果の一例（R_{Cs}）を示す。U-Zr-SUS（図中 CA）の相状態は 8h 加熱において、UO_2 と SUS による $UFe(Cr)O_4$ (=X)を生成したが、金属 Zr は ZrO_2 となり混合物となった。24 時間の短期浸漬による logR_{Cs} は液性によらず 2～3 の範囲で顕著な差は観察されず、Cs が X 固相から優先的に溶出した。海水の R_{Cs} は他よりやや低く、海水成分と U の錯生成により、U 溶出が促進されたためと推察される。一方、より短時間の加熱および Zr を含まない系（図中 CS）では、様々な U 酸化物が生成したが、R_{Cs} に大きな差は見られなかった。

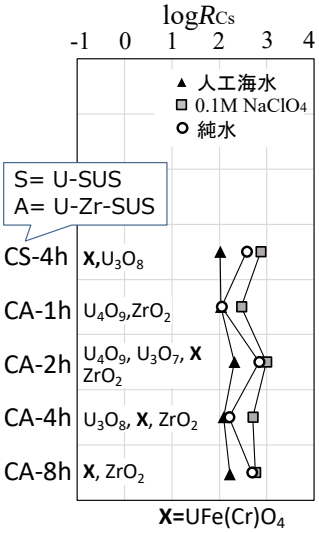


図 1：UO_2 に Zr, SUS 添加して調製した（2%O_2, 1200℃, 1～8 時間加熱）の R_{Cs}（浸漬液 3 種）

【謝辞】本研究は、JAEA-CLADS の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」の一部として実施した。

References：[1] 佐々木ら，2B14, 原子力学会 2020 年春の年会.

*Takayuki Sasaki[1], Ryutaro Tonna[1], Taishi Kobayashi[1], Daisuke Akiyama[2], Akira Kirishima[1], Nobuaki Sato[2], Masayuki Watanabe[3], Yuta Kumagai[3], Ryoji Kusaka[3]
[1]Kyoto Univ., [2]Tohoku Univ., [3]JAEA

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-1 Radioactive Waste Management

[3I13-15] Debris 2

Chair: Yuta Kumagai (JAEA)

Fri. Mar 19, 2021 4:00 PM - 5:00 PM Room I (Zoom room 9)

[3I13] Thermodynamic study on dissolution behavior of $UFeO_4$

*Ryutaro Tonna[1], Taishi Kobayashi[1], Daisuke Akiyama[2], Akira Kirishima[2], Nobuaki Sato[2], Takayuki Sasaki[1] (1. KYOTO UNIVERSITY, 2. Tohoku University)

4:00 PM - 4:15 PM

[3I14] Fuel debris renewal concept

*Naoyuki Takaki[1], Ayumu Obata[1], Kota Kawamoto[1], Yuto Sasaki[1] (1. Tokyo City University)

4:15 PM - 4:30 PM

[3I15] Fuel debris renewal concept

*Ayumu Obata[1], Kota Kawamoto[1], Yuto Sasaki[1], Naoyuki Takaki[1] (1. Tokyo city university)

4:30 PM - 4:45 PM

©Atomic Energy Society of Japan

$UFeO_4$ 固相溶解に関する熱力学的考察

Thermodynamic study on dissolution behavior of $UFeO_4$

*頓名龍太郎[1]，小林大志[1]，秋山大輔[2]，桐島 陽[2]，佐藤修彰[2]，佐々木隆之[1]
[1]京大，[2]東北大

マグネタイトと U_3O_8 の反応により $UFeO_4$ を調製し、XRD により固相状態を評価した。同固相を大気雰囲気下で水に浸漬し、U 等の溶解挙動をもとに、見かけの溶解度の熱力学的解釈を試みた。

キーワード：ウラン-鉄系酸化物，溶解挙動，有機酸

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所では、燃料デブリの取出し、分析の準備が進んでいる。燃料とジルカロイ被覆管および原子炉構造材が高温で反応・生成したと想定される合金系デブリ等は地層処分対象となる可能性がある。地下水シナリオに基づく安全評価を行う上で、種々のデブリ固相の安定性、地下水中に含まれる有機物等の錯体の影響を考慮したデブリの溶解挙動の理解は重要となる。既往の合金系デブリ溶融模擬試験[1]では、酸化雰囲気において U,Zr,Fe の各酸化物相, $(U,Zr)O_2$ 固溶体相の他に $UFeO_4$ 相が確認され、XPS 測定により $UFeO_4$ 中の U は V 価であることが確認されている[2]。これまで各酸化物相および固溶体相の水への溶解挙動が検討されてきた[3,4]が、$UFeO_4$ 相単独での評価例はなく、合金系デブリの溶解反応の十分な理解には至っていない。そこで本研究では $UFeO_4$ を主固相とする U－Fe 酸化物試料を調製し、同固相の水への溶解挙動を観察し、その結果を熱力学的に解釈することを試みた。また有機物の影響を予察的に検討するため、フミン酸の単純なモデル配位子としてマロン酸（以下、C21）を含む系での浸漬実験を併せて行った。

2. 実験

U_3O_8 と Fe_3O_4 をモル比（U : Fe）が 1:1 となるように秤量し、摩砕混合した。これを石英管に真空封入したのち管状電気炉で 975℃、160 時間加熱した。生成物に希硝酸を加えて加温し、未反応物を選択的に溶解する酸処理（処理時間は長短 2 通り）を行うことで U-Fe 酸化物試料を調製した。試料の固相状態を粉末 X 線回折(XRD)および SEM-EDX により評価した。両試料を $NaClO_4$ (I=0.5M)、pH 2~11、[C21]=0~0.1M の液に室温、大気雰囲気下で浸漬した。所定期間後、浸漬液を分取して 3kDa の限外ろ過フィルタでろ過したのち、U および Fe の濃度を ICP-MS で定量した。

3. 結果と考察

XRD スペクトルのリートベルト解析結果を表 1 に示す。1 時間の酸処理ではウラン固相として $UFeO_4$ の他に U_3O_8 が確認されたが、4 時間では U_3O_8 は検出限界量以下となり、$UFeO_4$ と鉄化合物の α-Fe_2O_3 のみが検出された。 [C21] = 0 M での浸漬で得られた U 溶解濃度の pH 依存性は U_3O_8 の存在量に依らずほぼ一致した。$UFeO_4$ および U_3O_8 の溶解度積の報告値がないため、溶解度制限固相を酸性 pH 域では大気平衡にある溶存炭酸との反応によって生成する UO_2CO_3(s)、中性から塩基性 pH では $Na_2U_2O_7$ と仮定し、これに既報の U(VI)の加水分解定数や炭酸錯体の錯生成定数等を用いて熱力学計算を行ったところ、実測濃度がほぼ再現された。すなわち、$UFeO_4$ 相を主成分とする試料の U の溶解性は、上記 6 価 U 固相からの溶解性（見かけの溶解度）を有している。$UFeO_4$ 相の制限固相としての寄与については Fe 濃度等と併せた更なる考察が必要である。

表 1 精製後得られた固相試料のリートベルト解析結果［wt%］

酸処理(h)	$UFeO_4$	U_3O_8	α -Fe_2O_3
1	84	10	6
4	85	ND	15

【謝辞】本研究は JSPS 科研費 20H02665 の助成を受けたものです。

References：[1] V. Almjashev ら, Radiochem. **53**, 13 (2011), [2] X. Guo ら, Dalton Transactions **45**, 4622 (2016), [3] H. Ikeuchi ら, J. Nucl. Sci. Technol. **51**, 996 (2014), [4] B. Sailaja ら, Physical Sciences **74**, 399 (2004).

*Ryutaro Tonna[1], Taishi Kobayashi[1], Daisuke Akiyama[2], Akira Kirishima[1], Nobuaki Sato[2], Takayuki Sasaki[1]
[1]Kyoto Univ., [2]Tohoku Univ.

燃料デブリ資源化構想
（1）燃料デブリを原料とする RI や有用資源活用の基本概念

Fuel Debris Renewal Concept

(1) Basic concept on practical use of radioisotopes and valuable resources recovered from fuel debris

*高木 直行、小幡 歩夢、川本 航大、佐々木 悠人

東京都市大学

燃料デブリを原料とし、直接もしくは核変換を経て、医用・工業用の放射性同位元素(RI)や有用資源として活用する「燃料デブリ資源化構想」を提案した。

キーワード： 燃料デブリ、資源化、α内用療法、医療用放射性同位元素、工業用放射性同位元素

1. 緒言

福島第一原子力発電所 1～3 号機格納容器内部にある燃料デブリ取り出しについては、2021 年内に 2 号機から試験的に着手し、その後段階的に取り出し規模を拡大していくことが計画されている[1]。デブリ回収後は、「固体廃棄物の性状分析等を進め廃棄体の仕様や製造方法を今後確定し、発電所内に処理設備を設置し処分の見通しを得た上で廃棄体の製造を開始し搬出する」とされているが、デブリにはウランから派生した重元素の他、核分裂や構造材の放射化で生成された RI や自然界に存在しない人工元素が含まれており、これらは分離/変換処理後に医用・工業等の分野で有効に活用できる可能性がある。

2. 燃料デブリに含まれる物質の量と特徴

各号機の燃料デブリには、重元素が 67～92ton、核分裂生成物(FP)が 1.8～2.3ton、放射化生成物が 23～32ton（3 基合計 340ton）含まれる。事故から 10 年経過現在の総放射能は 750～950PBq（3 基合計 2,600PBq）であり、その約 8 割を FP、約 2 割を重元素が占めている[2]。

デブリ中には自然界に存在しない RI の他、自然界の元素に比べて同位体組成が重核側にシフトした元素が多く存在する。核分裂起源の FP は、中性子過剰核として生まれた後の崩壊でβ安定曲線の底部で安定化し、中性子欠乏核を生成しにくいため、この傾向はほぼ全ての FP に共通である。

例として、診断用 RI として最も需要の多い Tc-99m の原料元素である Mo（1F2 デブリに 221kg 存在）の同位体組成を図 1 に示す。天然 Mo には 7 種の安定同位体があるのに対し、デブリ Mo は質量数 95 以上の同位体に偏っている。Tc-99m は原子炉の Mo-98(n,γ)法や加速器の Mo-100（γ,n）法から生成されるため、デブリ Mo は Tc-99m を生成する原料元素として有利な組成となっている。

また、α内用療法の一つであるα-DaRT（腫瘍内拡散型α放出核療法）に用いられる Ra-224（半減期 3.7 日）は、各号機毎に 40～50GBq 存在している。Pu-236 を先頭とする U-232→Th-228→Ra-224 の崩壊チェーンの存在により、Ra-224 は現在も増加の途中にあり、親核回収後のミルキングによって、数万件/月以上の治療数に相当する数 100GBq/月の供給を 100 年以上に亘って継続できる可能性がある。

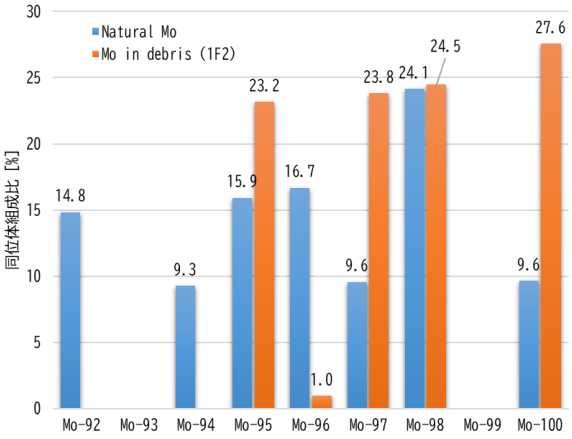


図 1 天然 Mo とデブリ Mo の同位体組成比較

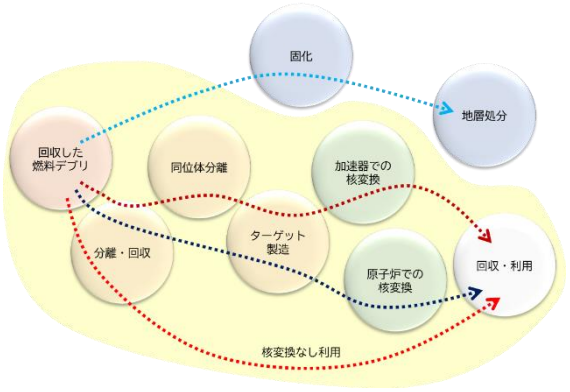


図 2 デブリ資源化方策（核変換有と回収のみ）

3. 結言

燃料デブリには、核変換無しに医用目的に利用できる RI や、核変換原料として好適な組成の元素が含まれている。多種元素が混在するデブリから目的の元素を分離回収できれば、燃料デブリは資源（人工鉱山）となる可能性がある。尚、本概念はデブリに特有でなく、あらゆる原子炉の使用済み燃料にも適用可能である。

参考文献： [1] 東京電力ホールディングス(株), 福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ(2019)
[2] 西原他, 福島第一原子力発電所の燃料組成評価, JAEA-Data-Code-2012-018 (2012)

*Naoyuki Takaki, Ayumu Obata, Kota Kawamoto, Yuto Sasaki

Tokyo City University

燃料デブリ資源化構想
（2）燃料デブリを原料とする医用RI・工業用 RI 供給のポテンシャル評価

Fuel debris renewal concept
(2) Potential evaluation on supply of medical and/or industrial radioisotopes made from fuel debris

*小幡　歩夢，川本　航大，佐々木　悠人，高木　直行
東京都市大学

燃料デブリに含まれる放射性核種もしくは安定核種の分離回収（および核変換）により生成可能な、医用・工業用 RI の種類を特定するとともに、その生成量の概略評価を行った。

キーワード：燃料デブリ、資源化、α線内用療法、医療用放射性同位体元素、生成量

1. 緒言

本検討では、デブリ中に存在する元素の分離/変換処理による医用 RI 生成の可能性について検討した。医用 RI の一つである I-131（半減期:8 日）は、安定な Te-130 の(n,ɤ)反応から生成される。1F2 号機のデブリ中には Te が約 31kg 存在し、Te-130 の同位体比は天然 Te 中で 34.1%に対し、デブリ Te では 77.8%と大きくなっている。そこで本検討では、デブリ Te を高速実験炉「常陽」にて照射することを想定し、I-131 の生成量評価を行った。また同デブリ中にはα内用療法に用いられる Ra-224（半減期:3.7 日）が約 48GBq 存在する。Ra-224 は親核の存在により過渡平衡状態にあるため、抽出間隔/頻度と年間生成量の関係を調べた。1F 事故時から 10 年経過時のデブリ組成[1]を初期値として ORIGEN による燃焼/崩壊計算を行った。

2. デブリ Te の(n,ɤ)法による I-131 の生成

天然 Te およびデブリ Te を常陽（MK-IV炉心）で 60 日照射した際の解析結果を図 1 に示す。照射位置は、最も中性子束の高い第 0 列と、Te-130 の共鳴吸収反応を積極的に利用するために Be 減速材集合体で Te ターゲットを囲んだ反射体領域の第 7 列とした。

結果として、第 0 列での高速中性子照射は第 7 列での減速中性子照射より優れること、デブリ Te 照射による I-131 生成量は天然 Te の約 2.3 倍大きくなることが分かった。この生成量の比は、各ターゲット Te 中の Te-130 同位体比の比率にほぼ等しい。第 0 列照射での生成量 148GBq/g・デブリ Te は約 40 回分の投与量に相当する[2]。1F2 デブリ中には Te-130 が約 24kg 存在することから、長期的に I-131 を供給できる可能性がある。

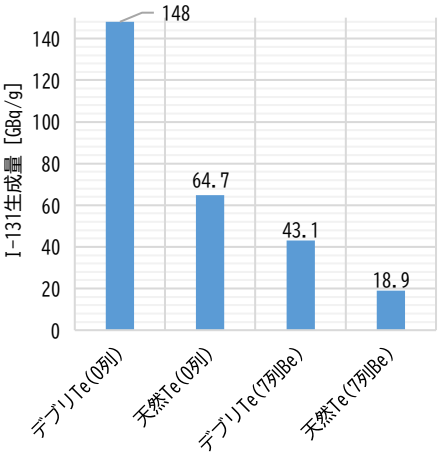


図1 常陽での60日照射による I-131生成量

3. α内用療法向け Ra-224 の回収利用

デブリ中には Pu-236（半減期:2.9 年）が微量に存在するため、Pu-236→U-232(69 年)→Th-228(1.9 年)→Ra-224 のα崩壊チェーンにより、Ra-224 は事故から 10 年を経過した現在も増加の途中にある。ここでは、デブリから単離した Th からのミルキングによる Ra-224 生成量を評価した。

Th のα崩壊で生成される Ra-224 は、3 半減期分の 10 日強で平衡量の 9 割まで蓄積するため、例えば 10 日間隔（36 回/年）でミルキングを行うとすると、年間生成量は約 1,100GBq となる。Pu-236 の枯渇により、Ra-224 の生成速度は今後 10 年程度で減少に転じるものの、親核 U-232 の長い半減期のため、今後 100 年以上は同等の生成量を維持可能である。但し 92ton のデブリ中に存在する Th 量は 123mg（2021 年 3 月現在）と微量であり、その回収技術開発が大きな課題である。

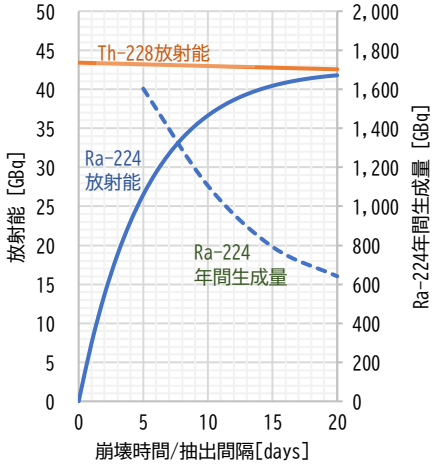


図2 Thから生成されるRa-224の 放射能と年間生成量

4. 結言

燃料デブリを原料として生成可能な医用 RI を特定するとともに、I-131 および Ra-224 の生成可能量を概略評価した。いずれも長期供給が見込めるが、Ra-224 については微量 Th の回収が課題である。

参考文献

[1] 西原他、福島第一原子力発電所の燃料組成評価、JAEA-Data-Code-2012-018 (2012)
[2] 日本核医学会分科会腫瘍・免疫核医学会甲状腺 RI 治療委員会、甲状腺癌の放射性ヨウ素内用療法における RI 治療病室稼働状況の実態調査報告（第 5 報）

*Ayumu Obata, Kota Kawamoto,Yuto Sasaki and Naoyuki Takaki
Tokyo City Univ.

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-2 Waste Disposal and Its Environmental Aspects

[3J01-05] Waste

Chair: Taiji Chida (Tohoku Univ.)
Fri. Mar 19, 2021 9:55 AM - 11:20 AM Room J (Zoom room 10)

[3J01] Study on advanced nuclear energy system based on the environmental impact of radioactive waste disposal

*Hidekazu Asano[1], Tomofumi Sakuragi[1], Ryo Hamada[1], Chi Young Han[2], Masahiko Nakase[2], Tatsuro Matsumura[3], Go Chiba[4], Hiroshi Sagara[2], Kenji Takeshita[2] (1. RWMC, 2. Tokyo Tech, 3. JAEA, 4. Hokkaido Univ)

9:55 AM - 10:10 AM

[3J02] Study on advanced nuclear energy system based on the environmental impact of radioactive waste disposal

*Ryo Hamada[1], Tomofumi Sakuragi[1], Hidekazu Asano[1] (1. RWMC)

10:10 AM - 10:25 AM

[3J03] Study on Advanced Nuclear Energy System Based on the Environmental Impact of Radioactive Waste Disposal

*Chi Young HAN[1], Hiroshi SAGARA[1], Hidekazu ASANO[2] (1. Tokyo Tech, 2. RWMC)

10:25 AM - 10:40 AM

[3J04] Study on advanced nuclear energy system based on the environmental impact of radioactive waste disposal

*Tatsuro Matsumura[1], Yasuhiro Tsubata[1], Hidekazu Asano[2] (1. Japan Atomic Energy Agency, 2. RWMC)

10:40 AM - 10:55 AM

[3J05] Technical options of radioactive waste management for the second half of the 21st Century, in consideration of Pu utilization and less environmentally impacted geological disposal

*Eriko Minari[1], Tomohiro Okamura[1], Masahiko Nakase[1], Tomofumi Sakuragi[2], Ryo Hamada[2], Hidekazu Asano[1,2], Kenji Takeshita[1] (1. Tokyo Tech, 2. RWMC)

10:55 AM - 11:10 AM

©Atomic Energy Society of Japan

廃棄物処分の環境影響を基点とした原子力システム研究
（1）廃棄物処分における環境負荷と核燃料サイクル条件

Study on advanced nuclear energy system based on the environmental impact of radioactive waste Disposal, (1) Environmental load and nuclear fuel cycle conditions in waste disposal

*朝野 英一[1]，桜木 智史[1]，浜田 涼[1]，韓 治暎[2]，中瀬 正彦[2]，松村 達郎[3]，千葉 豪[4]，相樂 洋[2]，竹下 健二[2]
[1]原環セ，[2]東工大，[3]JAEA，[4]北大

高レベル放射性廃棄物の処理処分に関して，炉，燃料，再処理，ガラス固化，廃棄物処分を含む核燃料サイクル全体を俯瞰した分野横断的な原子力システム研究を開始した．多様な核燃料サイクル条件と廃棄物処分における負荷を定量的に結び付ける評価により，合理的で実現性の高い減容・有害度低減のための技術オプション提示を目指している．

キーワード：原子力システム，核燃料サイクル，放射性廃棄物管理，廃棄物処分，環境負荷

1. 緒言

高レベル放射性廃棄物の地層処分は，隔離と閉じ込めの概念に基づき，核種移行を前提として長期の放射線安全を評価，確保する．一方、廃棄物に含まれる放射性核種の量に基づく放射線影響である潜在的有害度を分離・変換技術により低減する研究開発が進められている．放射性廃棄物の根本的な特性は核燃料の燃焼に依存し，その後の多様なプロセス条件に基づいて処分対象の廃棄物特性が決定される．従って，放射性廃棄物の効果的で合理的な減容と有害度低減の方策を提示するには，原子力利用の最終地点である廃棄物処分から上流側のプロセスを俯瞰した分野横断的な検討を行う必要がある．その際，地層処分の長期安全評価手法に基軸を置いた廃棄物の減容・有害度低減効果の定量的な評価，放射性廃棄物の特性に留意した核燃料サイクル全体の諸量評価，潜在的有害度への寄与が大きいマイナーアクチノイド(MA)，特にアメリシウム(Am)の分離について核燃料サイクルへの組込みを意識した分離プロセスの評価と選択，MA あるいは Am を含む分離回収した核種の原子炉での燃焼特性の評価，を行うことが，実現性の高い原子力システムの提示につながるものと考えた．主題の原子力システム研究では、研究代表者らが先行して実施した研究成果[1]に基づき、発熱と潜在的有害度の点から Am に着目し，MA70～90%分離を前提として，(1)廃棄物処分における環境影響評価研究：A.評価及び評価指標の導出，B.諸量の評価，(2)Am 分離プロセスの工学的設計研究：A.分離メカニズムの検証，B.諸量評価に基づく分離度に対応した分離プロセスの構築，および(3)多様な前提条件に対応する高速炉燃焼モデルの高度化，の 5 項目に取り組んでいる．

2. 環境負荷と核燃料サイクル条件について

本研究での廃棄物処分における環境影響評価の基本構成を表１に示す．環境負荷は廃棄物量と放射線影響の２つとした．前者は廃棄体の発熱量を介して処分場の面積で評価するものとした．後者は、核種移行による被ばく線量を動的影響，廃棄体が有する潜在的有害度によるものを静的影響とした．一方，貢献度はエネルギー供給である発電量とした．そして，環境負荷と貢献度の比を取って，環境影響を比較，評価するものとした．上記の発熱量，被ばく線量，潜在的有害度はいずれも廃棄物のインベントリーに由来する．そしてこのインベントリーは，核燃料の燃焼，再処理，ガラス固化の各プロセスの条件やパラメータに基づいて算出される．本稿では，環境負荷と核燃料サイクル条件の関係に着目して，分野横断的な原子力システム研究の方法論を解説する．

表１　環境影響評価の基本構成

評価対象			現象	評価方法	単位
環境負荷	廃棄物量		発熱	廃棄体専有面積、あるいは単位面積当たりの廃棄物量	m^2 kg/m^2
	放射線影響	動的	核種移行	被ばく線量	Sv/y
		静的	核種存在量	潜在的有害度	Sv
貢献度	発電量		ガラス固化体発生に対応する発電量		TWh
環境影響			環境負荷/貢献度		−

謝辞 本報告は，文部科学省原子力システム研究開発事業 JPMXD02 19209423 の助成を受けたものです．

参考文献[1] 佐藤正知他，日本原子力学会 2018 年春の年会，予稿 3O11-16

*Hidekazu Asano[1], Tomofumi Sakuragi[1], Ryo Hamada[1], Chi Young Han[2], Masahiko Nakase[2], Tatsuro Matsumura[3], Go Chiba[4], Hiroshi Sagara[2] and Kenji Takeshita[2]　[1]RWMC, [2]Tokyo Tech, [3]JAEA, [4]Hokkaido Univ

廃棄物処分の環境影響を基点とした原子力システム研究
（2）環境影響評価指標導出に向けた地層処分における放射線影響評価

Study on advanced nuclear energy system based on the environmental impact of radioactive waste disposal
(2) Exposure dose evaluation in geological disposal for the derivation of environmental impact index

*浜田涼[1]，桜木智史[1]，朝野英一[1]

[1]原環セ

分野横断的原子力システムの評価を目的として放射線影響の評価方法について検討した．特に地下水シナリオ及び人間侵入シナリオにおいて，多様な燃料サイクル諸条件（使用済燃料冷却期間，核種分離割合，ガラス固化体廃棄物含有率等）を考慮してそれぞれの被ばく線量を評価した．

キーワード：原子力システム，核燃料サイクル，地層処分，核種移行，人間侵入，被ばく線量

1. 緒言

核燃料サイクル全体を俯瞰した分野横断的研究手法の構築は，CO_2 排出量削減の下で再生可能エネルギーと共存，協働する未来型原子力システムの全体合理化やオプション研究の基盤となる．廃棄物処分の視点を含めた上記の合理化には，原子力発電への貢献度（発電量）と地層処分による環境負荷を定量的に評価する必要がある．本研究では，環境負荷を廃棄物量（処分場面積）と放射線影響（被ばく線量）の 2 つで定義した．先行研究[1]では多様な燃料サイクル条件（使用済燃料冷却期間，核種分離割合，ガラス固化体廃棄物含有率等）を考慮し，Cs/Sr，MA（マイナーアクチニド）等の分離によるガラス固化体の発熱と処分場面積（廃棄体専有面積）の削減効果について検討した．そこで，本稿では先行研究[2]と同様の条件に対してもう一つの環境負荷である被ばく線量を評価した．地層処分後の被ばく線量は，基本シナリオである地下水シナリオと潜在的有害度の影響が最も大きいと考えられる人間侵入シナリオの2つで評価した．

2. 解析方法

使用済 PWR 燃料を想定し，核種インベントリは ORIGEN 2.2-UPJ 及び実効断面積ライブラリ ORLIBJ40 を用いて計算した．核種移行（地下水シナリオ）による被ばく線量は地層処分第 2 次取りまとめの標準条件[3]と同様とし，GoldSim を用いた核種移行計算により評価した．人間侵入シナリオでは，ボーリング孔がガラス固化体を貫通した場合を想定し，文献[4]を参考にコア観察による被ばく線量を評価した．

3. 結果と考察

処分場面積削減効果を検討した 7 条件[2]に対する被ばく線量を表 1 に示す．使用済燃料冷却期間の短い条件 1~3 では，Cs/Sr 分離によるガラス固化体の初期発熱の除去により廃棄体専有面積が低減され，一方冷却期間の長い条件 6，7 では，主な発熱源が Am となるため MA 分離により廃棄体専有面積が低減される．核種移行による被ばく線量は，条件 1~3 において低減される．これは支配核種が ^{135}Cs であるため，発熱低減の Cs/Sr 分離が被ばく線量の低減にも影響している．人間侵入による被ばく線量は支配核種が ^{241}Am であり，冷却期間及び廃棄物含有率に依存してガラス固化体中の含有量は増加する．条件 6 の被ばく線量は 1.18 倍であるが，仮に MA 分離無しとすると 10.8 倍となるため，MA 分離による被ばく線量低減効果は大きいと考えられる．一方で，条件 1~3 では廃棄体専有面積及び核種移行による被ばく線量は低減されるが，人間侵入による被ばく線量は増加する．このように評価項目によってはメリットだけではなくデメリットもあるため，今後は原子力システムの全体合理化に向けて環境負荷を組み合わせた評価指標の導出を検討する必要がある．

表 1　計算条件および被ばく線量評価結果

条件	計算インプット					結果(標準条件に対する比率)		
	冷却期間 [y]	Cs/Sr 分離 [%]	MA 分離 [%]	Mo/PGM 分離 [%]	廃棄物含有率 [wt%]	廃棄体専有面積[2] [-]	核種移行最大被ばく線量 [-]	人間侵入被ばく線量 (300 年後) [-]
標準	4	0	0	0	20.8	1.00	1.00	1.00
1	4	90	0	70	35	0.43	0.10	3.13
2	15	70	0	70	25	0.72	0.31	4.37
3	20	70	0	70	25	0.87	0.31	5.09
4	30	0	0	0	20.8	1.00	1.04	3.44
5	40	0	0	0	20.8	1.00	1.04	3.75
6	50	0	90	70	35	0.43	1.04	1.18
7	100	0	70	70	35	0.43	1.04	3.41

謝辞　本報告は，文部科学省原子力システム研究開発事業 JPMXD02 19209423 の助成を受けたものです．

参考文献　[1]佐藤正知他，日本原子力学会 2018 年春の年会，予稿 3O11-16 . [2]朝野英一, Vol.25 No.2，原子力バックエンド研究(2018). [3]核燃料サイクル開発機構，地層処分研究開発第 2 次取りまとめ(1999). [4]武田聖司他, JAEA-Data/Code 2010-019(2010).

*Ryo Hamada[1], Tomofumi Sakuragi[1], Hidekazu Asano[1]　[1]RWMC

廃棄物処分の環境影響を基点とした原子力システム研究
（3）核燃料サイクルの諸量評価のための NFCSS コードの適用可能性

Study on Advanced Nuclear Energy System Based on the Environmental Impact of Radioactive Waste Disposal

(3) Applicability of NFCSS to Material Balance Evaluation of Nuclear Fuel Cycle

*韓 治暎[1]，相樂 洋[1]，朝野 英一[2]

[1]東工大，[2]原環セ

高レベル放射性廃棄物の処理処分における核燃料サイクルの諸量評価のために，IAEA の NFCSS (Nuclear Fuel Cycle Simulation System) コードの最新機能を確認し，再処理・核種分離及び地層処分の多様な条件において NFCSS コードを用いた諸量評価について検討した．

キーワード：核燃料サイクル，放射性廃棄物管理，NFCSS，諸量評価

1. 緒言

高レベル放射性廃棄物処理処分の環境影響を評価するためには，多様な処理処分条件において核燃料サイクル全体の諸量評価が必要である．本研究では，核燃料サイクルの諸量計算コードとして公開され，広く知られている IAEA の NFCSS コード[1]を用いて，再処理・核種分離及び地層処分を導入する核燃料サイクルの諸量評価について検討した．

2. NFCSS コードによる諸量計算の調査

NFCSS コードは 1995 ~ 1997 年に開催された核燃料サイクル戦略に関する国際シンポジウムに端を発し，多様な炉型や核燃料サイクル戦略を簡便に評価できるシナリオコードとして開発が始まった．NFCSS コードの前身となる Web ベースの VISTA コード[2]が 2005 年公開された．その後 NFCSS への名称変更，トリウム燃料サイクルを扱えるよう機能拡張される等，これまでのアップデートがまとめられた技術報告書・マニュアルが 2019 年に発行された[1].

現在の NFCSS コードは，図 1 のように採鉱・製錬，転換，濃縮，再転換・加工，原子炉内燃焼，使用済燃料の中間貯蔵，再処理，回収 U・Pu 等の蓄積の各プロセスの諸量計算を IAEA の Web サイトで行う．燃焼計算として Bateman 方程式の解析的手法による簡易燃焼計算モジュール (CAIN) を使用するため，アクチノイド (U，Pu，MA 等) の核種諸量計算は可能であるが，使用済燃料や再処理プロセスの FP (核分裂生成物) は Lumped FP として計算される．燃焼計算に必要な 1 群核反応断面積データはユーザ入力も可能である．放射性廃棄物地層処分の環境影響評価に重要な崩壊熱と放射性毒性については，別途に提供される Excel ファイルで，既に ORIGEN2 コードで計算された 3 つの燃料 (UO_2, MOX, ThO_2) の燃焼計算結果 (45 GWd/t 燃焼度) を基に使用済燃料の燃焼度と冷却期間による崩壊熱と放射性毒性の内挿計算が可能となっているが，再処理，核種分離，地層処分等の多様な処理処分条件による計算はできない．

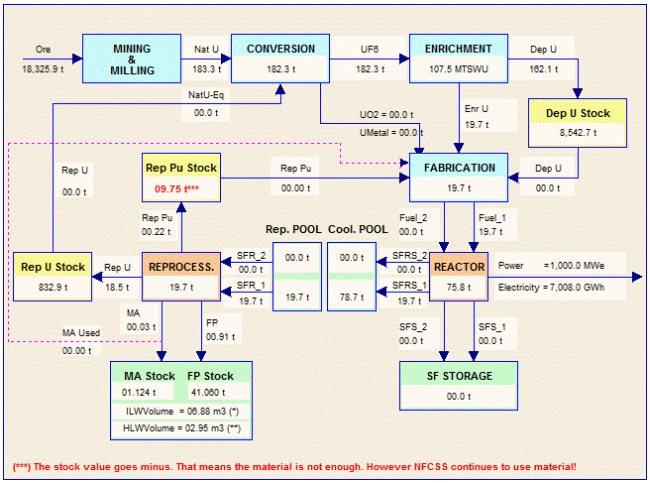


図 1 NFCSS コードの諸量計算例;
1000 MWe PWR, UO_2 燃料, 45 GWd/t 燃焼度
(ORLIBJ40 使用), 4 年冷却, 99.5% 再処理, 50 年運転

3. NFCSS コードの機能拡張

再処理における MA，Cs/Sr，Mo，PGM (白金族元素) 等の核種分離と地層処分を考慮した高レベル放射性廃棄物の崩壊熱と放射性毒性の評価のためのデータと Excel ファイルの整備を開始した．

謝辞 本報告は，文部科学省原子力システム研究開発事業 JPMXD02 19209423 の助成を受けたものです．

参考文献

[1] IAEA, “Nuclear Fuel Cycle Simulation System: Improvements and Applications,” IAEA-TECDOC-1864, 2019.

[2] IAEA, “Nuclear Fuel Cycle Simulation System (VISTA),” IAEA-TECDOC-1535, 2007.

*Chi Young Han[1], Hiroshi Sagara[1] and Hidekazu Asano[2]

[1]Tokyo Tech, [2]RWMC

廃棄物処分の環境影響を基点とした原子力システム研究
（4）環境負荷評価を基にした MA 分離プロセスの簡素化

Study on advanced nuclear energy system based on the environmental impact of radioactive waste Disposal, (4) Simplification of MA separation process based on environmental load in waste disposal

*松村 達郎[1]，津幡 靖宏[1]，朝野 英一[2]
[1]JAEA，[2]原環セ

高レベル放射性廃棄物の環境影響を基点とした分野横断的な原子力システム研究を開始した．本研究では，廃棄物処分における環境負荷評価を基点として MA 分離プロセス簡素化の可能性を検討する．

キーワード：原子力システム，核燃料サイクル，放射性廃棄物管理，廃棄物処分，環境負荷

1. 緒言

高レベル廃液の放射性毒性低減化と減容化のため，分離変換技術の研究が進められている．特にマイナーアクチノイド(MA)は，長期的な放射性毒性が高く発熱性の核種が存在することから，その対応の優先度が高い．原子力機構では，高レベル廃液から MA を分離し，加速器駆動システム(ADS)あるいは高速炉によって核変換する「分離変換技術」の研究を進めている．これまでの研究では，ガラス固化体の長期間の放射性毒性に注目して分離回収の目標値を設定してきた．一方，地層処分場の面積低減効果及びガラス固化体の本数低減効果などの評価により得られる新たな分離目標値は，従来の放射性毒性を基にした分離目標値とは異なり，分離プロセスの構成の観点から，より合理的な値となることが予想される．本研究では，この目標値を基に MA 分離プロセスを再構成することによってプロセスの簡素化を目指し，環境負荷を低減可能でより低コストで導入可能な核燃料サイクル技術の可能性を示す．

2. MA 分離プロセスの簡素化の考え方

原子力機構ではガラス固化体の長期の放射性毒性の低減化を主たる目的とし，MA の回収率を 99.9%，回収 MA は核変換システムの燃料として十分な純度であることを目標としてきた．現在開発している再処理・MA 分離プロセス「SELECT プロセス」[1,2] (図 1) は，すべての分離ステップにおいて固体廃棄物となる抽出剤及び試薬の利用を排除し現実的な構成となっているが，分離ステップの数が多く，特に MA/RE 相互分離における抽出段数が多くなることから，分離プラントの規模が大きくなる欠点がある．

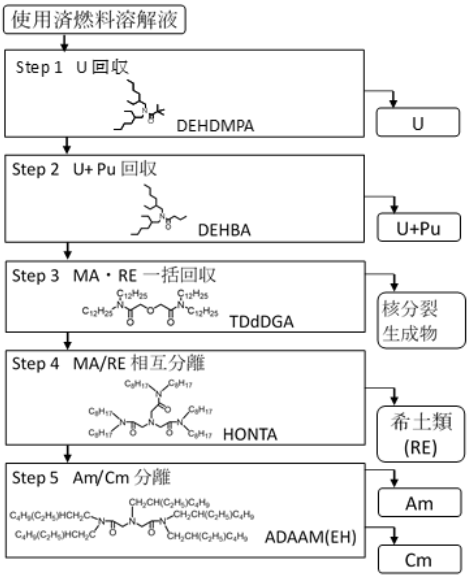


図 1　SELECT プロセスの概念図と各段階で採用したアミド系抽出剤

廃棄物処分の環境負荷低減に基づく評価により必要十分な分離目標値を設定し，特に分離段数が多くなる MA/RE 相互分離の合理化，「SELECT プロセス」を構成する分離ステップの合理化，並びに HONTA 抽出剤及び ADAAM(EH)抽出剤 [3]の特異な抽出性能を応用した新たな分離プロセスの構成を，分離プロセス解析コード PARC-MA によって検討を進めている．本稿では，MA/RE 相互分離の抽出段数の合理化に関する検討の現状と HONTA 抽出剤と ADAAM 抽出剤による新たな分離プロセスの概念について解説する．

謝辞 本報告は，文部科学省原子力システム研究開発事業 JPMXD02 19209423 の助成を受けたものです．

参考文献

[1] Y. Ban, et. al., Solv. Extr. Ion Exch., Vol. 37(1), p.27–37 (2019)，[2] Y. Ban, et. al., Solv. Extr. Ion Exch., Vol. 37(7), p.489–499 (2019)，[3] H. Suzuki, et. al., Anal. Sci., Vol. 32, p. 477−479 (2016)

---

*Tatsuro Matsumura[1], Yasuhiro Tsubata[1] and Hidekazu Asano[2]　[1]JAEA, [2]RWMC

21 世紀後半に向けた廃棄物管理の選択肢：Pu 利用推進と環境負荷低減型地層処分に関する研究
(18) UO_2-MOX 混合ガラス固化体による処分負荷低減に関する研究

Technical options of radioactive waste management for the second half of the 21st Century, in consideration of Pu utilization and less environmentally impacted geological disposal
(18) Effects of UO_2-MOX blended vitrified waste disposal on reduction of environmental impact

*三成映理子[1]　岡村知拓[1]　中瀬正彦[1]　桜木智史[2]　浜田涼[2]　朝野英一[1,2]　竹下健二[1]
1 東京工業大学，2 原子力環境整備促進・資金管理センター

使用済 UO_2 燃料によって使用済 MOX 燃料を希釈して処理（ガラス固化）した場合を想定し，UO_2-MOX 混合ガラス固化体の地層処分における，①再処理前の使用済燃料冷却期間，②UO_2-MOX 混合割合，③廃棄物含有率といったガラス固化体の発熱量および処分場の設計に及ぼす影響が大きい因子と処分場面積への影響を評価した．その結果，使用済 MOX 燃料の処理処分においては，使用済 UO_2 燃料を混合させることは，効果的にガラス固化体の発熱量を低減させることができることから，処分システム最適化における技術オプションの一つとなり得ることが明らかとなった．
キーワード：プルサーマル発電，放射性廃棄物管理，核燃料サイクル，ガラス固化，地層処分

1．緒言　プルサーマル発電によって発生した使用済 MOX 燃料は，発生量を鑑みれば放射性廃棄物量全体に与える影響は僅かだと考えられているが ^{241}Am による発熱の影響が大きいため，成立性が十分に見込める処理・処分方法を検討し，処分場面積や環境への影響評価を実施する必要がある．フランスにおいては，使用済 UO_2 燃料と混合させて使用済 MOX 燃料を再処理した実績があることを踏まえ[1]，本報告では使用済 MOX 燃料の再処理シナリオを想定し，MOX 燃料単独処理ではなく，UO_2 廃液によって MOX 廃液を希釈して処理した場合における UO_2-MOX 混合ガラス固化体の処分場負荷評価を実施した．

2．計算条件　使用済 UO_2 燃料，使用済 MOX 燃料中の核種生成，崩壊計算，再処理計算に ORIGEN2.2-UPJ[2] を用い，実効断面積ライブラリには ORLIBJ40[3]を用いた，いずれの燃料も燃焼度は 45 GWd/THM，再処理前の使用済燃料冷却期間は UO_2 燃料が 15 年，MOX 燃料は 4～50 年とした．ガラス固化体の廃棄物含有率は 20wt%，ガラス固化体初期発熱量 2.3 kW/本以下となるよう混合割合を設定し，ガラス固化後 50 年の貯蔵後に処分するものとした．熱計算には，COMSOL Multiphysics code[4]を用い，計算モデルは第 2 次取りまとめ[5]の硬岩系岩盤（深度 1,000 m）の竪置き方式とし，緩衝材最高温度と処分後の経過時間の関係を求めた．

3．結果および考察　使用済 MOX 燃料冷却期間 4 年，UO_2:MOX 混合割合を 60:40 から 95:5 に変化させた場合におけるガラス固化体の貯蔵期間中の発熱量変化を図 1 に示す．UO_2 燃料の混合割合増加に伴って，ガラス固化体 1 本あたりのマイナーアクチノイドが減少するため，ガラス固化体の発熱量が減少していくことが分かった．これまでのシリーズ報告中[6]で述べたように，UO_2，MOX いずれの使用済燃料であっても，冷却期間の長期化によって，使用済燃料中の ^{241}Am（$T_{1/2}$＝432.2 年）が ^{241}Pu（$T_{1/2}$＝14.29 年）のβ崩壊により増加し，処分場の設計に影響を及ぼすことが分かっている．そこで次に，使用済 MOX 燃料冷却期間 50 年，廃棄体専有面積 44.4～200m^2 と変化させた場合における処分場の緩衝材最高温度の時間推移を評価した．評価結果（図 2）が示す通り，最小専有面積 44.4m^2 [5]に着目すると，混合割合を 95:5 で処理することにより緩衝材制限温度の 100℃を下回った．一方，60:40～90:10 の条件においては，緩衝材最高温度を緩和するために，廃棄体専有面積を広げる必要がある．以上の結果より，使用済 MOX 燃料の処理・処分においては，使用済 UO_2 燃料と混合させることで効果的に発熱量を低減させることが出来，UO_2-MOX 混合ガラス固化体が処分システム最適化における技術オプションの一つとなり得ることが明らかとなった．

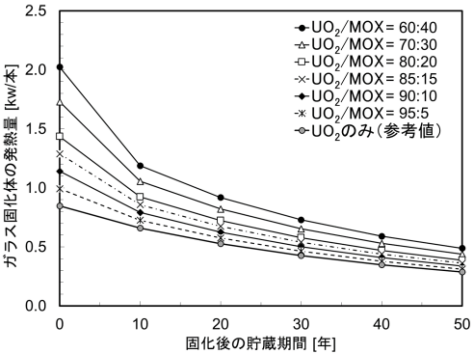


図 1　UO_2/MOX 混合割合がガラス固化体の発熱量に及ぼす影響

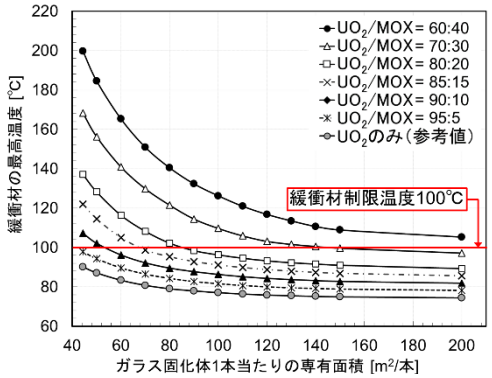


図 2　UO_2/MOX 混合割合が緩衝材最高温度に及ぼす影響

参考文献

[1] JL. Emin, et al., “AREVA NC Experience of Industrial Scale MOX Treatment in UP2-800”, Global2009, p.9024 (2009) [2] Transmittal memo of CCC-371/17, 2002, [3] JAEA-Data/Code 2012-032, [4] COMSOL, COMSOL Multiphysics 5.5, 2019, [5] JNC, TN1400 99-022 [6] 三成他, AESJ 2019 春の年会 1C19（茨城大学）

*Eriko Minari[1], Tomohiro Okamura[1], Masahiko Nakase[1], Tomofumi Sakuragi[2], Ryo Hamada[2], Hidekazu Asano[1,2], Kenji Takeshita[1]　[1]Tokyo Tech., [2]RWMC

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-2 Waste Disposal and Its Environmental Aspects

[3J06-07] Material

Chair: Tatsuro Matsumura (JAEA)

Fri. Mar 19, 2021 11:20 AM - 12:00 PM Room J (Zoom room 10)

[3J06] Development of stable solidification process of radioactive Cesium from contaminated soil by functional porous silica glass and struvite

*Yuan Zhuofei[1], Nakase masahiko[1], Watanabe shinta[1], Harigai miki[1], Inaba yusuke[1], Takeshita kenji[1] （1. Tokyo Institute of Technology）

11:20 AM - 11:35 AM

[3J07] Effect of Dehydration Time on Pore Distribution of Metakaolin-based Geopolymer

*Yaru Yang[1], Thi Chau Duyen Le[1], Thi Mai Dung Do[1], Tadachika Nakayama[1], Suematsu Hisayuki[1] （1. Nagaoka University of Technology ）

11:35 AM - 11:50 AM

©Atomic Energy Society of Japan

土壌廃棄物の減容化を目指した放射性セシウムの回収及び機能性多孔質ガラス、ストルバイトを用いた安定固定プロセスの構築

Development of stable solidification process of radioactive Cesium from contaminated soil by functional porous silica glass and struvite

*原 卓飛、中瀬 正彦、渡邊 真太、針貝 美樹、稲葉 優介、竹下 健二
東京工業大学

汚染土壌から分離した放射性 Cs は安定固化する必要がある。機能性多孔質ガラス(FPG)を用いて吸着回収し、そのままガラス固定化するシステムとイオン交換能を有するリン酸塩化合物であるストルバイトを用いてCsの回収及び固化安定化するシステムの適用性を研究している。FPG並びにストルバイトのCs除去性能、固化体の Cs 保持性能や健全性に関する基礎検討の結果を報告する。

キーワード：汚染土壌除染、セシウム、機能性多孔質ガラス、ストルバイト、安定固化

1. 緒言：福島原子力発電所事故で発生した汚染土壌や汚染水、飛灰等からの Cs の分離、種々の固化体による Cs の安定な固定化と廃棄物減容化に資する技術開発を行っている。本研究では、1. 機能性多孔質ガラス（FPG）を用いて汚染水から Cs を吸着し、そのまま FPG を加熱溶融するガラス固化、2. 常温で沈殿法によって迅速かつ簡便にマグネシウムを含有するリン酸系化合物であるストルバイトを用いた固化に注目した。

2. 実験

①FPG を用いた Cs 吸着試験； Cs 汚染土壌の水熱処理水(Cs 含有)を想定し、Na 、Mg 、Al、K、Ca、Mn、Fe、Cu、Zn、Cs、Ba、各 2 mmol/L を含む模擬廃液を作製した。模擬溶液 10 mL に対し、FPG(環境レジリエンス製)を 20, 40, 80, 100 mg、室温で 6 時間振盪後、溶液中の金属イオンの濃度を ICP-MS で分析した。

②FPG の固化試験: FPG と CsCl 固体を Cs 濃度 10wt%となるように調整し白金容器を用いて 800～1350℃で 2 時間加熱後に自然冷却し、得られたガラス固化体の Cs 固定化率を、XRF により算出した。

③Cs ストルバイト合成実験: 合成試料として、CsCl, KCl, NaH_2PO_4, $MgCl_2$ を攪拌しながら順次に添加し、～24 時間攪拌した後に pH を 7～12 に調整して沈殿を系佐瀬、1 時間攪拌して沈殿物を回収、乾燥させて XRD 測定を行った。上澄み液中の Cs を ICP-MS で分析し、他の元素は ICP-AES で分析し、Cs の沈殿率を求めた。

④Cs ストルバイトの耐熱性実験: pH=9 で 1 時間攪拌して合成した Cs-ストルバイトについて、TG-DTA 分析及び～1000℃の各温度で保持した後の Cs-ストルバイト中の Cs 含有量を ICP-AES で求めた。

3. 結論: FPG は Cs と Fe を選択的に吸着し、Na の溶出が見られた。これは FPG 中の固体酸由来の Na と Cs のイオン交換によるものと考えられる。ガラス固化試験の結果、900~1200℃で加熱することで、Cs を全量固定できることが確認された。用いた FPG のマトリクス主成分は SiO_2 であるが、Cs の昇華温度を超える 1200℃程度での加熱でもガラス表面が溶融して Cs が吸着した固体酸が含まれる細孔が溶融してふさがれた状態で処理されるために、Cs の揮発が抑制されながら固化できたと考えられる。常温という大変簡易な条件で合成可能なストルバイト固化については、今回の試験範囲では Cs 沈殿除去率は概ね 60～87%であり、XRD により Cs-ストルバイト骨格(CsMgPO4・6H2O)が確認された。TG-DTA を取得したところ高温でも Cs-ストルバイト骨格が保たれ高い耐熱性を有する一方で、酸には弱いことが確認された。

4. 謝辞 本報告は、環境省「環境研究総合推進費」(平成 30 年度採択)、文部科学省 英知を結集した原子力科学技 術・人材育成推進事業「廃止措置工学高度人材育成と基盤研究の深化」(平成 26-30 年度)の成果を含む。

---

*Yuan Zhuofei, Nakase Masahiko, Watanabe Shinta, Harigai Miki, Inaba Yusuke, Takeshita Kenji
Tokyo Institute of Technology

Effect of Dehydration Time on Pore Distribution of Metakaolin-based Geopolymer

*Yang Yaru[1], Thi-Chau-Duyen Le[1], Isamu Kudo[2.3], Thi-Mai-Dung Do[1],
Koichi Niihara[1], and Hisayuki Suematsu[1]
[1]Extreme Energy-Density Research Institute, Nagaoka University of Technology
[2]Technology Development Center, Nagaoka University of Technology
[3]ADVAN ENG. Co., ltd.

1. Introduction Abstract

As catalyst supports in the nuclear waste containers in Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, geopolymer is required to show high strength, high porosity, and durability [1]. Previous study showed that pore size distribution of potassium metakaolin based geopolymer cured at the same temperature for 4 days and was not affected by the following curing conditions. It was expected that the pore formation took place at the same viscosity. Porosity and pore size distribution were tailored by simple synthesis condition change [2]. Therefore, the timing of pore formation in geopolymer is important for understanding its influence on durability. In this research we will study the effect of dehydration time on pore distribution of potassium metakaolin based geopolymer.

2. Experimental

Geopolymer samples were made of AFACO silica, metakaolin powder, potassium hydroxide and potassium silicate solution with molar ratios of Al: Si: K: H_2O =1: 2.1: 0.8: 8. Eight samples were synthesized in mold with the lid and divided into four groups (Groups a, b, c and d), and each group consisted of two samples. In each group, one sample was with lid cured and the other one without the lid. Groups a, b, c and d were cured at 60°C for 1 to 4 days, respectively, then all the samples were taken out from the mold and placed at room temperature until the 14th day. From recording the weight changed of the sample without the lid during 14 days, the water reduced almost the same around 25% was not affected by the length of curing time.

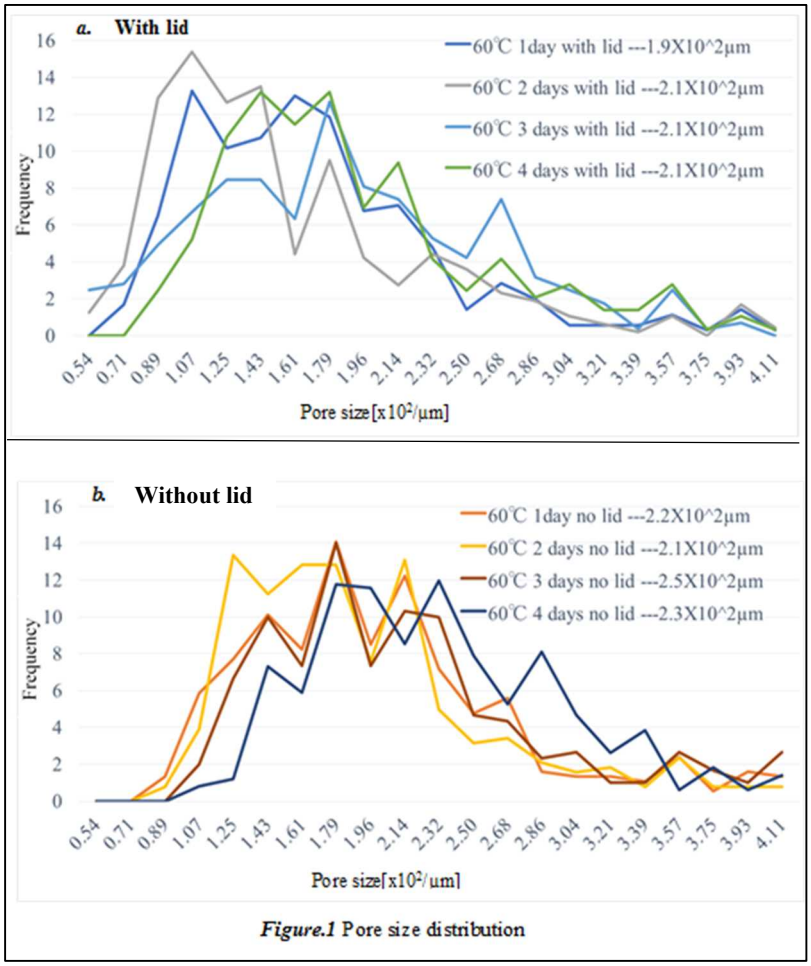


Figure.1 Pore size distribution

3. Results and discussion

The pore size distributions are shown in Fig. 1. The average pore size of the samples cured without the lid were larger than those of samples were cured with the lid. When samples were cured at 60°C for the same length of time, the average pore size of the samples with the lid were smaller than or the same as the samples without lid.

The XRD pattern showed that the sample cured with lid appeared more peaks than the sample cured without lid after 14 days

4. Conclusions

Synthesis and dehydration of potassium metakaolin based geopolymer were carried out. The pore size distribution and average pore size are affected by whether the sample was with the lid during curing. In the sample with the lid, the moisture remained in the air inside the container after it was released from the sample, it will increase the pressure inside the container, which may prevent the formation of pores.

Key words: geopolymer; metakaolin; dehydration

Reference

[1] Utsumi T, Terasawa T, Kudo I, Suzuki T, Nakayama T, Suematsu H, et al. Preparation of potassium and metakaolin based geopolymer foam with millimeter sized open pores for hydrogen recombining catalyst supports. J. Ceram. Soc. Jpn. 2020;128(2):96-100.
[2] Duxson P, Provis JL, Lukey GC, Mallicoat SW, Kriven WM, van Deventer JSJ. Understanding the relationship between geopolymer composition, microstructure and mechanical properties. Colloi1ds and Surfaces A: Colloid Surf. A Physicochem. Eng. Asp. 2005;269(1):47-58.

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-2 Waste Disposal and Its Environmental Aspects

[3J08-10] Natural Barrier

Chair: Taishi Kobayashi (Kyoto Univ.)

Fri. Mar 19, 2021 2:45 PM - 3:35 PM Room J (Zoom room 10)

[3J08] Intrusion ratio of modern meteoric water into groundwater at Mizunami granite area deduced by I-129

*TOMOKO OHTA[1,2,3], Takuma Hasegawa[1], Shunichi Okamoto[1], Yusuke Watanbe[4] （1. CRIEPI, 2. Nagaoka Univ. of Tech., 3. UTokyo, 4. JAEA）

2:45 PM - 3:00 PM

[3J09] Some experimental trials on changes of mass transfer and hydraulic conductivity porosity in porous media , considering a drying process before the closure of repository

*Koichi Hayashi[1], Yuichi Niibori[1], Taiji Chida[1] （1. Tohoku University）

3:00 PM - 3:15 PM

[3J10] New backbone definition for radionuclide transport simulation using discrete fracture network and prediction of breakthrough curves by machine learning

*Shunya Hattori[1], Takumi Saito[1] （1. UTokyo）

3:15 PM - 3:30 PM

©Atomic Energy Society of Japan

I-129 をトレーサーとした瑞浪花崗岩地帯における深部地下水への天水流入率の推定

Intrusion ratio of modern meteoric water into groundwater at Mizunami granite area deduced by I-129

*太田 朋子[1,2,3]，長谷川 琢磨[1]，岡本 駿一[1]，渡辺 勇輔[4]
[1]電力中央研究所，[2]長岡技術科学大学，[3]東京大学，[4]日本原子力研究開発機構

大深度地下坑道の掘削に伴う地下深部への浅層地下水の流入率を推測する手法の検討を行ったところ、花崗岩地帯の瑞浪超深地層研究所坑道内では、modern ^{129}I を指標とした手法が適用できる可能性が高いと考えられた。

キーワード：^{129}I，^{3}H，深部地下水，花崗岩、天水

1. 緒言

HLW の地層処分では、地下深部の地下水流動評価は安全評価に欠かせない。大深度地下坑道の掘削に伴う深部地下水への浅層地下水の流入率の評価には、SF_6 等が活用されているが、これらは適用可能な条件には制限があるため、新しい手法の開発が望まれる。^{129}I は核実験以後の原子力発電や再処理工場の稼働・運転により、近年は天水・表層海水中の濃度が高くなっている[1]。ここでは、結晶質岩中に建設された瑞浪超深地層研究所の地下深部への浅層地下水の流入率の指標として、modern I-129 をトレーサーとした流入率の推定手法の提案を行う。

2. 試験および結果

2-1. 室内収着試験

酸化雰囲気(不飽和層)から還元雰囲気の場に応じた地下水中のヨウ素同位体の収着挙動を推測するために、酸化雰囲気と還元雰囲気下で、岩石粉末(土岐花崗岩)に水と ^{127}I を添加し、バッチ試験を行った。土岐花崗岩に対するヨウ素の分配係数(Kd)は、0mV 以下の酸化還元電位では、ほぼ 0 になることが示された。

2-2. ^{129}I を指標とした坑道内への若い水の流入率の推定（フィールド実証試験)

瑞浪超深地層研究所の研究坑道内(200-500m)で採取した地下水試料中の $^{129}I/^{127}I$ と ^{127}I をそれぞれ AMS と ICP-MS で計測を行った。地下水中の ^{129}I 濃度と天水起源の ^{3}H 濃度と高い相関が得られた。2-1 の結果も加味すると、土岐花崗岩地帯の地下深部では、岩石の割れ目に賦存する間隙水中のヨウ素同位体は地下水の流れとともに移動できると考えられた。^{129}I を指標とした若い地下水の侵入率は、研究坑道の主立坑付近で 5-21% であると推定された。

3. 結論

室内試験およびフィールド実証試験から、modern ^{129}I を、研究坑道建設による天水起源の浅層地下水の流入指標とすることができる可能性が高いと考えられた。

参考文献 [1] Ohta et al., Nuclear Instrument and Method of Physics Research B, **294**, 559-562, 2013.

本研究は、H30-R1 年度 経済産業省受託研究「高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業（岩盤中地下水流動評価技術高度化開発）」で実施を行った。

---

*Tomoko Ohta[1,2,3], Takuma Hasegawa[1], Shunichi Okamoto[1] and Yusuke Watanabe[4]
[1]CRIEPI, [2] Nagaoka Univ. Technology, [3]Tokyo Univ., [4]JAEA (* present: 2 and 3)

処分場閉鎖前の乾燥過程を考慮した多孔質体における物質移動と透水性の変化に関するいくつかの実験的な試み

Some experimental trials on changes of mass transfer and hydraulic conductivity in porous media, considering a drying process before the closure of repository

*林 光一[1], 新堀 雄一[1], 千田 太詩[1]

[1] 東北大学

本研究では、処分環境における乾燥過程を伴う物質移動、および処分場周辺の止水性の向上に関する基礎研究として、高塩濃度の溶液で湿潤したケイ砂充填層を乾燥させ、透水性の変化を追跡した。

キーワード: 地層処分、多孔質体、乾燥、透水性、X 線 CT

1. 緒言

地層処分では、操業から閉鎖までの 50 年間程度において処分場内のアクセス坑道等は換気され、坑道周囲から坑道に向かって乾燥が生じる可能性がある[1]。一般に、多孔質体の乾燥過程においても、溶存成分が水の蒸発や毛管力によって溶媒とともに乾燥面近傍へ集積する現象が確認されている。地層処分の周辺環境で考えると、セメント系材料由来の成分溶出に伴い、地下水の高アルカリ化によって岩石等から溶出するケイ酸が高濃度になった後、不飽和層における乾燥過程に従って溶存成分が坑道周辺へと移動し、再び析出する[2, 3]。本研究では、湿潤した多孔質体充填層の減圧乾燥による物質移動について、X 線 CT と流動実験によって透水性を定量化し、処分場周辺のバリア機能に関する基礎的知見を得ることを目的とした。

2. 実験

本実験では、乾燥過程にて析出する溶質として、X 線吸収能の高い塩化セシウム(CsCl)と、高アルカリ条件下で溶出するケイ酸を模擬するケイ酸ナトリウム（水ガラス）を用い、前者については 1.0 M、後者については 0、0.5 および 1.0 M の溶液を多孔質体充填カラム(ケイ砂の平均粒径 300 μm、カラム充填長さ 10 mm、カラム管内径 10 mm)を湿潤させ、シリカゲルを置いてあるデシケーター内で真空引き乾燥させた。乾燥後、前者については X 線 CT を撮影し、後者については、オーバーフロー系（透水勾配を一定にした流動系）のカラム流動実験によって浸透率の定量化を行った。

3. 結果および考察

図 1 の左に、1.0 M CsCl 溶液を用いた場合の CT 断面画像（黒色部は間隙が大きく、白色になるにつれて間隙が減少）、および図1の右に水ガラスの充填層の浸透率の変化を示す。CT 断面画像から、乾燥面近傍の間隙が減少しており、表面集積の例が観察された。また、水ガラスの充填層の浸透率変化から、乾燥による浸透率の低下が観察された。今後は水ガラスの充填層についても X 線 CT を用いた検討が必要であるが、これらの結果は処分場周辺の地下水移流の低減に寄与する可能性を示す。

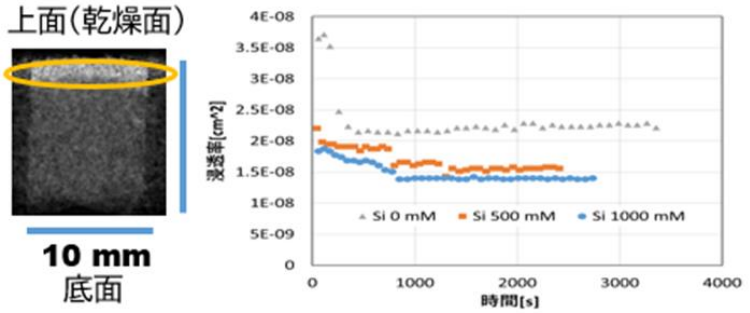


図1 1.0 M CsCl溶液におけるCT断面画像と水ガラス充填層の浸透率

引用文献

[1] 原子力発電環境整備機構：高レベル放射性廃棄物地層処分の技術と安全性, NUMO-TR-04-01 (2004).

[2] 原子力発電環境整備機構: 低アルカリ性セメントの処分場における長期適用性に関する検討, NUMO-TR-08-02(2008).

[3] 鹿野悟史, 新堀雄一, 千田太詩：処分場閉鎖前の乾燥過程を考慮した多孔質体における物質移動と間隙分布の変化, 日本原子力学会 2020 年春の年会 1D05 (2020).

謝辞：本研究の一部は、科学研究費補助金 挑戦的研究（萌芽）20K21159 によった。ここに記して謝意を表す。

*Koichi Hayashi[1], Yuichi Niibori[1] and Taiji Chida[1]

[1]Tohoku Univ.

離散的亀裂ネットワークモデルを用いた核種移行シミュレーションのための新たな主要経路の定義と機械学習を用いた破過曲線の予測

New backbone definition for radionuclide transport simulation using discrete fracture network and prediction of breakthrough curves by machine learning

*服部 隼也[1]，斉藤 拓巳[1]
[1]東京大学

離散的亀裂ネットワークモデル（DFN）を用いた核種移行シミュレーションの計算負荷低減のために用いられる主要経路を新しく定義し，その評価を行なった．また，これによって得られた破過曲線に機械学習を適用し，完全な DFN から得られた破過曲線を予測させた．

キーワード：DFN，主要経路，破過曲線，機械学習

1. 緒言

地層処分の安全評価において，DFN を用いた核種移行シミュレーションは計算負荷が大きく，処分場近傍に対してのみ用いられている[1]．この計算負荷低減のために主要経路を抽出し，粒子追跡解析を行うことが提案されているが，既存の主要経路では得られる破過曲線の後半部が過小評価される，またその抽出に時間がかかるという問題がある[2]．そのため，本研究では新しい主要経路を定義し，主要経路から得られた破過曲線に機械学習を適用することで抽出前の DFN から得られた破過曲線の結果を予測させることを行った．

2. 手法

DFN を用いた非吸着性トレーサーの移行シミュレーションには，dfnWorks を用いた[3]．まず初めに，DFN 中で粒子の通る経路と移行時間の分析を行なった．次に，得られた知見から新しい主要経路を考案し，その評価のために既存の主要経路と新しい主要経路に含まれる亀裂群を抽出した DFN をそれぞれ作成し，元の DFN とともに粒子追跡解析を行い，破過曲線の比較をした．最後に新しい主要経路から得られた破過曲線に機械学習を適用し，完全な DFN から得られた破過曲線を予測させた．

3. 結果と考察

粒子の経路と移行時間の分析から，粒子の移行時間が最初に侵入した亀裂に依存することが確認された．また，既存の主要経路の定義によって亀裂群を抽出した際に，粒子の流入面に接続している亀裂が一部除去されていた．よって，粒子の流入面に接続している亀裂が除去されないよう，新しく主要経路を定義した．この主要経路に対する粒子追跡解析から得られた破過曲線は，既存の主要経路に比べ，完全な DFN から得られた破過曲線と良い一致を示した．最後にランダムフォレストによる機械学習を適用し，上述した主要経路に係る情報を含む学習を行い，破過曲線を予測させることで，より良い破過曲線の一致が実現できた．

参考文献

[1] 原子力発電環境整備機構，“包括的技術報告：わが国における安全な地層処分の実現－適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築－（レビュー版）”，2018

[2] Srinivasan, S., Cawi, E., Hyman, J., Osthus, D., Hagberg, A., Viswanathan, H., & Srinivasan, G. (2020). Physics-informed machine learning for backbone identification in discrete fracture networks. Computational Geosciences, 1-16.

[3] Hyman, J. D., Karra, S., Makedonska, N., Gable, C. W., Painter, S. L., & Viswanathan, H. S. (2015). dfnWorks: A discrete fracture network framework for modeling subsurface flow and transport. Computers & Geosciences, 84, 10-19.

---

*Shunya Hattori[1] and Takumi Saito[1]
[1]Tokyo Univ.

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 505-2 Waste Disposal and Its Environmental Aspects

[3J11-15] Migration/Sorption

Chair: Hajime Takao (JGC)

Fri. Mar 19, 2021 3:35 PM - 5:00 PM Room J (Zoom room 10)

[3J11] Characterization of the solubility controlling solid phases of mixed lanthanide oxides $(L_1,L_2,L_3)_2O_3$ (L_1,L_2,L_3= La,Nd,Eu,Tm)

*Mohammad Moniruzzaman[1], Taishi Kobayashi[1], Takayuki Sasaki[1] (1. Kyoto Univ.)

3:35 PM - 3:50 PM

[3J12] Determination of the sorption mechanism of Cs^+ and Eu^{3+} to sodium activated metakaolin-based geopolymers

*ANIL CAN YILDIRIM[1], TAKUMI SAITO[1], NOBORU AOYAGI[2] (1. UTokyo, 2. JAEA)

3:50 PM - 4:05 PM

[3J13] Gamma-irradiation-induced molecular-weight-dependent distribution of humic acid complexed with metal ions

*Qi Zhao[1], Taishi Kobayashi[1], Takayuki Sasaki[1], Takeshi Saito[2] (1. Kyoto Univ., 2. KURNS)

4:05 PM - 4:20 PM

[3J14] Estimation of the interaction of Europium and Ca-Al-Si Hydrates in the co-presence condition of Cesium and Barium

*Jinsei Amakawa[1], Taiji Chida[1], Yuichi Niibori[1] (1. Tohoku University)

4:20 PM - 4:35 PM

[3J15] Evaluation of the interaction between deep groundwater natural organic matter and metal ions using fluorescence spectroscopy and multivariate analysis

*Shusaku Nishi[1], Takumi Saito[1] (1. The University of Tokyo)

4:35 PM - 4:50 PM

©Atomic Energy Society of Japan

Characterization of the solubility controlling solid phases of mixed lanthanide oxides $(L_1,L_2,L_3)_2O_3$ (L_1,L_2,L_3= La,Nd,Eu,Tm)

*Md. Moniruzzaman [1], Taishi Kobayashi[1] and Takayuki Sasaki[1]

[1] Kyoto Univ.

Ternary lanthanide oxide $(L_1,L_2,L_3)_2O_3$ (L_1,L_2,L_3= La,Nd,Eu,Tm) solid solutions were synthesized and used for the solubility experiment. Alteration of the lanthanide oxides to hydroxides and the thermodynamic properties were discussed to predict their migration behavior in repository conditions.

Keywords: Solubility, solid phase, lanthanide oxide, solid solution, thermodynamic analysis

1. Introduction In the context of possible direct disposal of spent nuclear fuel, it is important to understand the solubility behavior of mixed oxide, as the spent nuclear fuel consists of 96% uranium along with stable fission products and actinides. Among the mixed oxides with various components, we recently have investigated solid phases and solubility of pure and binary component of lanthanide oxides and hydroxides as analogous of trivalent actinides [1,2]. This study focused on the ternary and multicomponent lanthanide oxides and hydroxides as solubility controlling solid phases along with their thermodynamic analysis.

2. Experimental Ternary component of mixed lanthanide oxides of $(L_1,L_2,L_3)_2O_3$ (L_1, L_2,L_3 = La,Nd,Eu,Tm) were synthesized from La, Nd, Eu, and Tm nitrate stock solutions. Aliquots of the nitrate stock solutions ([La], [Nd], or [Eu] = 0.3 M) were mixed at certain molar ratios i.e. (4.75:4.75:0.5), (4.5:4.5:1) and (3.5:3.5:3) for La-Nd-Eu system. 5% PVA (polyvinyl alcohol) solution was added to the mixed solutions and synthesized at 1000 °C for 4 hours to obtain the mixed oxides. Similarly, 4 kinds of mixed La-Eu-Tm oxides and a mixed oxide containing a series of lanthanide elements were synthesized. These synthesized powder oxides were used as initial materials for the solubility experiment aged at 60°C in pHc ranging from 6 to 10 at ionic strength (I) = 0.1 M by $NaClO_4$. The structures of the solid phases were investigated before and after the solubility experiment by powder XRD method and their solubilities were measured by ICP-MS after the ultrafiltration through 3k Da membranes.

3. Results and discussion The XRD patterns of synthesized $(La,Nd,Eu)_2O_3$ and mixture of pure oxides without any treatment along with La_2O_3 and Nd_2O_3 are shown in Fig.1. In our previous study, La_2O_3 and Nd_2O_3 form a complete solid solution, $(La,Nd)_2O_3$, at any mixing ratios [2]. It was observed that when the molar ratio of Eu is 5-10%, Eu seems dissolved in the $(La,Nd)_2O_3$ solid solution. On the other hand, an increase amount of Eu above 30% resulted in the appearance of separated diffraction patterns of Eu_2O_3. The solubility behavior combined with the XRD patterns after the solubility experiments will be discussed and presented along with their thermodynamic analyses.

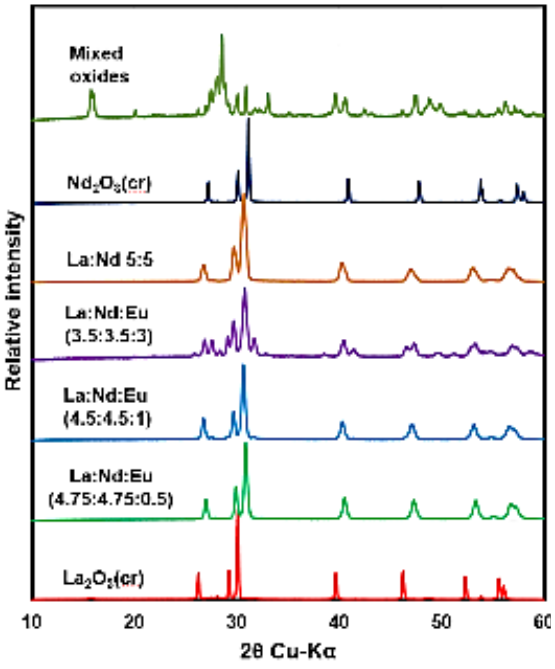


Fig.1 XRD patterns of $(La,Nd,Eu)_2O_3$ and the mixture of La_2O_3, Nd_2O_3, and Eu_2O_3, together with those of each oxide.

[1] Zaman et al., JNRS, 20, 32-42 (2020). [2] Zaman et al., AESJ 2020 Fall meeting, 2D01 (2020).

Acknowledgement We are also grateful for the financial support partly from KAKENHI [20H02665].

Determination Of The Sorption Mechanism Of Cs^+ And Eu^{3+} To Sodium Activated Metakaolin-Based Geopolymers

*Anil Can YILDIRIM[1], Takumi SAITO[2] and Noboru AOYAGI[3]

[1,2]Tokyo Univ., [3]Japan Atomic Energy Agency.

Geopolymer is a group of newly derived barrier materials for the stabilization of radioactive wastes. In this study, sodium activated and metakaolin-based geopolymer (Na-MKGP) was investigated to understand its sorption mechanisms for cesium (Cs^+) and europium (Eu^{3+}). The sorption of these ions was studied as a function of pH and different background salt concentrations. Furthermore, the sorption of Eu^{3+} was studied by time-resolved laser fluorescence spectroscopy (TRLFS) to reveal the speciation of Eu^{3+} with Na-MKGP.

Keywords: Geopolymer, Sorption, Cesium, Europium, TRLFS

1. Introduction

Geopolymers are defined as chains or networks of inorganic molecules linked with covalent bonds where their physical and chemical properties like thermal resistance, sorption properties, and structural strength have received great attention [1]. Among those properties, ion sorption is significantly important for environmental applications such as retention of heavy metals or radionuclides and studied widely [2]. However, apart from the sorption capacities, there is no significant study in literatures regarding the sorption mechanisms of Na-MKGP. In this study, the sorption mechanisms of Na-MKGP are investigated with a fixed Na-MKGP concentration as a function of pH and background salt concentrations for Cs^+ and Eu^{3+} ions. Furthermore, the surface speciation information of Eu^{3+} is pursued by TRLFS through multivariate data analysis.

2. Experimental

About 50 grams of Na-MKGP were used in its powdery form by crushing and grounding until ≤1 μm [3]. The sorption samples were prepared with a fixed 1g/L concentration of Na-MKGP as a function of pH (pH 4 to 10) at 0.1 or 1 mM Cs^+ and Eu^{3+} and 0.1 or 0.01 M $NaClO_4$. The concentration of these ions remaining in the solution after centrifugation were measured with an inductively coupled plasma mass spectrometer (ICP-MS, Agilent 7500cx). TRLFS measurements were performed for the solid pastes of the sorption samples with a Nd:YAG laser (Spectraphysics, Quanta-Ray) coupled with SHG and OPO units, operating at 394 nm and 10 Hz. The time-resolved fluorescence spectra form the samples was obtained by a polychromator (Acton, Spectra Pro 2300i) and an ICCD camera (Roper, PI-MAX).

3. Results and Discussion

According to the adsorption studies, it was revealed that the sorption of Eu^{3+} on Na-MKGP was dependent on pH; meanwhile the sorption of Cs^+ depended on the salt concentration. This situation can be explained by the inner-sphere surface complexation of Eu^{3+} and ion exchange or outer-sphere complexation of Cs^+, respectively. In addition, TRLFS spectra of sorbed Eu^{3+} at 0.1mM Eu^{3+}showed no changes, while at 1mM Eu^{3+} the results showed a considerable increase of the $^5D_0 \rightarrow {}^7F_2$ transition peak with pH. This was interpreted by the presence of multiple species involved for the sorption of Eu^{3+} to Na-MKGP and the constant speciation at the lower Eu^{3+} concentration. In the conference, we will present more detailed speciation of Eu^{3+} with the help of multivariate analysis of the TRLFS data.

References

[1] Davidovits, J. (2015). *Geopolymer: chemistry & applications*. Saint-Quentin: Institut Géopolymère.

[2] El-Naggar, M., & Amin, M. *J. Hazard. Mater.*, **344**, 913–924 (2008).

[3]Cantarel, V.; Morooka,T; Yamagishi,I., *Geopolymers and their potential applications in the nuclear waste management field; A Bibliographical study*, JAEA-Review 2017-014 (2017).

Gamma-irradiation-induced molecular-weight-dependent distribution of humic acid complexed with metal ions

*Qi Zhao[1], Taishi Kobayashi[1], Takeshi Saito[2] and Takayuki Sasaki[1]

[1]Kyoto Univ., [2]KURNS

Abstract: Aldrich humic acid (HA) solution was irradiated with gamma-rays from a Co-60 source. The molecular weight and the complexing ability of metal-HA complexes in the molecular-weight-dependent fractions were studied by sequential ultrafiltration, TOC and ICP-MS.

Keywords: Gamma irradiation, Molecular weight, Humic acid, Complexation affinity

1. Introduction

After long-term corrosion of high-level waste (HLW) package in the deep geological repository, the radionuclides would be leached out and released to the biosphere through underground water media. Naturally occurring humic acid (HA) in natural water systems can react with radionuclides to form metal-HA complex colloids, which significantly contribute to the apparent mobility of radionuclides, depending on the molecular weight of metal-HA compounds. Since the HA in the near-field of repository is exposed to gamma-ray from HLW [1-2], this study aims to assess the effect of gamma irradiation on the molecular weight and complexing ability of Cs/Sr/Eu-HA by a sequential ultrafiltration technology.

2. Experimental

Gamma-ray irradiation of Aldrich HA solution (I = 0.05 (NaCl), pH 8) was performed at Co-60 gamma-ray irradiation facility in KURNS. The applied doses at 0.7 kGy/h were 0 (non-irradiation), 1, 5, 10, 50, and 100 kGy. After irradiation, the solution was separated into four fractions of <10, 10–50, 50–100, and >100 kDa by sequential ultrafiltration. Emphasis was placed on the identification of gamma-irradiation-induced changes in the total organic carbon (TOC) and number of functional groups (–COOH and phenolic –OH) in each HA fraction. In addition, the individual metal stock solution (Cs, Sr or Eu) was spiked in irradiated HA solutions then aging for 7 days at room temperature. The distributions of metal ions and organic carbon in the molecular weight fractions were investigated by TOC and ICP-MS, respectively.

3. Results and discussion

Gamma irradiation significantly degraded HA molecules to small ones, and the phenolic –OH was predominant in smaller molecular weight fraction of HA. Cs^+, Sr^{2+}, and Eu^{3+} were mainly distributed in small molecular-weight fractions as dose increased (**Fig. 1**). Molecular-weight distribution of TOC content was not affected by the addition of Cs^+, while it was shifted toward larger fractions in the presence of Sr^{2+} and Eu^{3+}. The complexation affinity of HA with metal ions, defined as the ratio of metal ions concentration and TOC content, decreased for Cs^+ and Sr^{2+} systems as dose increased. In contrast, the affinity increased in the 10–50 kDa fraction for Eu^{3+}. One possible explanation might be the chelating effect induced by gamma irradiation stabilized Eu–HA complexation.

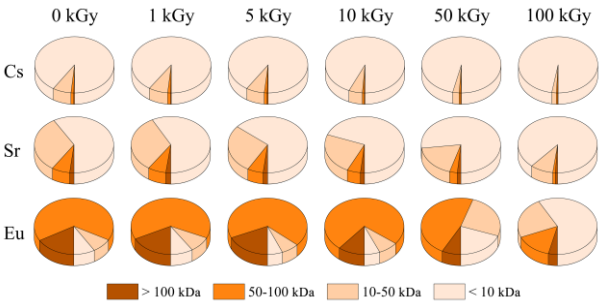


Fig. 1 Normalized fractional distributions (%) of the metal loading of Cs^+, Sr^{2+}, and Eu^{3+} in the presence of HA

Acknowledgement: We are grateful for the financial support partly from KAKENHI [20H02665] and CSC [201806080015].

References: [1] Q. Zhao et al., Chemosphere, 256, 127021 (2020); [2] T. Sasaki et al., J. Nucl. Sci. Technol., 55, 1299 (2018)

セシウム及びバリウム共存条件における Ca-Al-Si 系水和物とユウロピウムの相互作用の評価

Estimation of the interaction of Europium and Ca-Al-Si Hydrates in the co-presence condition of Cesium and Barium

*天川 仁誠[1]，千田 太詩[1]，新堀 雄一[1]
[1]東北大学

冠水条件を考慮した乾燥過程を経ない Ca-Al-Si 系水和物を用い、セシウム共存条件およびバリウム共存条件でのユウロピウムの収着実験を行った。測定した蛍光発光スペクトルおよび蛍光の減衰挙動はこれらのイオンが共存する場合にもユウロピウムが Ca-Al-Si 系水和物と相互作用する可能性を示した。

キーワード：Ca-Al-Si 系水和物，ユウロピウム，セシウム，バリウム，放射性廃棄物

1. 緒言　Ca-Al-Si 系水和物はセメント系材料の主要な水和物であるとともに、放射性廃棄物処分場周辺の地下水流路に二次鉱物として生成すると考えられる。既往研究では、3 価の陽イオンであるユウロピウム(Eu)と Ca-Al-Si 系水和物との相互作用について、温度上昇および収着期間の延長によって Eu がより安定に取り込まれる可能性が示唆されている[1]。本研究ではさらに、複数種のイオンが存在する場合を想定し、セシウム(Cs)およびバリウム(Ba)共存下における Eu と Ca-Al-Si 系水和物の相互作用の評価を行った。

2. 実験　Ca-Al-Si 系水和物の Ca/Si モル比を 0.8、1.2、1.6、および Al/Si モル比を 0、0.125、0.250 として酸化カルシウム、ヒュームドシリカ、硝酸アルミニウム九水和物を所定量分取し、Eu および Cs あるいは Ba 溶液を 1 mM になるように加え収着実験を開始した。そして、液固比 20 ml/g(液相 30 ml、固相 1.5 g)、養生温度 25℃にて 7 日、14 日、21 日振とうした。振とう後、遠心分離(7500 rpm、10 min)により固液分離し、液相は 0.20 μm のメンブレンフィルターでろ過後 ICP-AES により Eu および Ba の、AAS により Cs の収着量を評価し、Eu はほとんど溶存しないことを確認した。固相は乾燥過程を経ずにゲル状のまま蛍光分析を行った。

3. 結果と考察　図 1 は養生期間 14 日、Al/Si モル比 0.125 の固相試料における Cs 共存条件での Eu の蛍光発光スペクトルである。高 Ca/Si モル比において、Eu が結晶場の影響により周囲の原子とクーロン相互作用した場合にみられるシュタルク分裂(618 nm 付近のピークの分裂)[2]が確認された。図 2 は同試料の 592 nm における Eu の蛍光の減衰挙動である。実験時の pH にて生成が予想される加水分解種 $Eu(OH)_3$ と比較して、Ca/Si 比によらず蛍光減衰が緩やかになった。このような挙動は Ba 共存条件においても同様に確認された。これらの結果から、Cs や Ba が共存する条件においても、Eu が Ca-Al-Si 系水和物と相互作用すると考えられる。

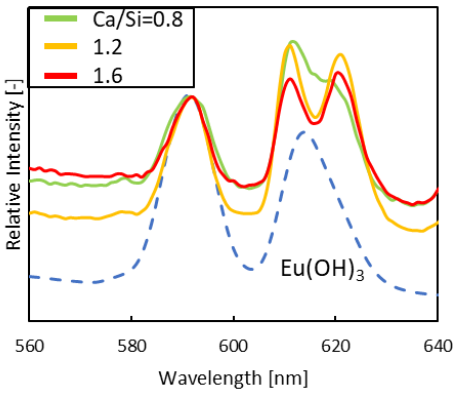


図 1 Eu の蛍光発光スペクトル

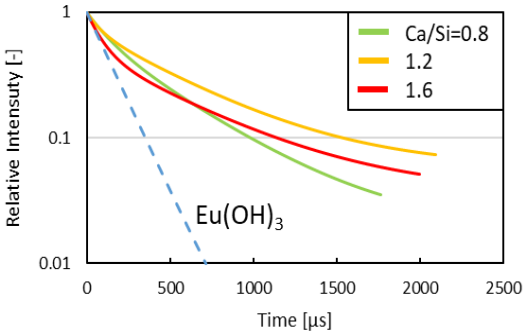


図 2 Eu の蛍光減衰挙動

引用文献

[1]種市ら：日本原子力学会 2019 年春の年会講演要旨集，2C01(2019).

[2] Y. Haas et al., *The Journal of Physical Chemistry*, **75**, 3668-3677 (1971).

謝辞：本研究の一部は科学研究費補助金 基盤研究(B)18H01910，挑戦的研究(萌芽)20K21159 の成果である。ここに記して謝意を表す。

*Jinsei Amakawa[1], Taiji Chida[1] and Yuichi Niibori[1]
[1]Tohoku Univ.

蛍光分光測定と多変量解析を用いた深部地下水天然有機物と金属イオンの相互作用評価

Evaluation of the interaction between deep groundwater natural organic matter and metal ions using fluorescence spectroscopy and multivariate analysis

*西 柊作[1]，斉藤 拓巳[1]
[1]東京大学

深部地下環境中に存在する天然有機物を対象にユーロピウムを添加する消光実験を，励起蛍光マトリクスを多変量解析法の一つである Parallel Factor Analysis を用いて整理・類型化することで，結合反応に寄与する蛍光成分を抽出し，その物理的・化学的性質や起源を考察した．

キーワード：地層処分，天然有機物，蛍光分光測定，PARAFAC，消光

1. 緒言

天然有機物 (NOM) は，核種の移行挙動を大きく変えることが知られており，その結合量を多様な環境条件下で表すことのできるモデルが表層の NOM については提案されている．そのような結合モデルを地層処分の安全評価で使用するためには，深部地下環境の NOM を類型化し，表層環境の NOM と比較することで，両者の類似点や相違点を理解することが必要である．本発表では，NOM の蛍光が一般に金属イオンと結合することで消光されることに着目し，NOM を含む堆積岩系の深部地下水に，Eu^{3+}を添加する消光実験を行い，多変量解析法の一つである Parallel Factor Analysis（PARAFAC）を用いて，結合反応に寄与する NOM の蛍光成分を特定した．

2. 実験方法

実験には，JAEA の幌延深地層研究センターの異なる深度で採取した地下水を用いた．この地下水は全無機炭素濃度が高いことから，有機物と Eu^{3+}の錯生成のみを評価するために，予め脱炭酸を行った．脱炭酸後の地下水試料を 10 倍に希釈し，Eu^{3+}を 0 から 0.08 mM の範囲で添加したものを測定試料とした．励起蛍光マトリクス（EEM）測定には，日本分光製の分光蛍光光度計 FP-8000 を使用した．また，紫外可視吸光光度計 UV-2700（島津製作所製）を用いて，内部フィルタ効果補正のための吸収スペクトル測定を行った．また，PARAFAC 解析には drEEM ツールボックスを用いた[1]．PARAFAC は 3 変量以上で定義される多重線形なデータに適用可能な多変量解析手法の一種であり，複数試料の EEM をデータセットに含まれる蛍光成分の濃度，励起スペクトル，蛍光スペクトルに一意に分離できる利点がある．

3. 結果・考察

消光実験の結果，図 1 に示すように，深部地下水中の NOM 成分が Eu^{3+}と結合し，EEM の特定の箇所で蛍光の消光が生じているのが複数試料間で確認できた．また，PARAFAC の適用から，大部分のデータを 4 個の共通する蛍光成分で説明できることが分かった．発表では，これらの消光成分を地下水試料間および表層環境 NOM の EEM データベースと比較することで，それらの物理的・化学的性質や起源を議論する．

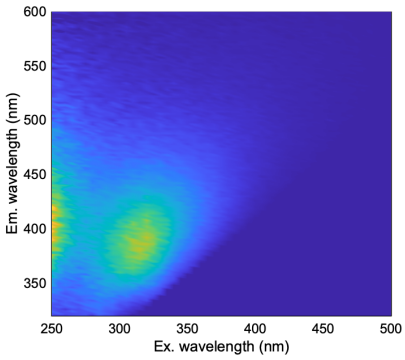


図 1. Eu 有無による幌延地下水の差 EEM（Eu^{3+}濃度 0.05 mM）

参考文献

[1] Murphy, K. R., *et al.*, *Anal. Methods*,,**5**, 6557-6566 (2013).

*Shusaku Nishi[1], Takumi Saito[1]
[1]The University of Tokyo.

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 501-2 Nuclear Fuel and the Irradiation Behavior

[3K01-06] Fast Reactor Recycling

Chair: Ken Kurosaki (Kyoto Univ.)

Fri. Mar 19, 2021 10:15 AM - 12:00 PM Room K (Zoom room 11)

[3K01] Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels

*Masato Kato[1], Masami Uno[2], Tatsumi Arima[3] (1. JAEA, 2. Fukui Univ., 3. Kyushu Univ.)

10:15 AM - 10:30 AM

[3K02] Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels

*Yuta Horii[1], Masato Kato[1], Shun Hirooka[1], Hiroki Uno[2], Tetsuya Tamura[2], Takeo Sunaoshi[2] (1. JAEA, 2. Inspection Development)

10:30 AM - 10:45 AM

[3K03] Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels

*Keisuke Yokoyama[1], Masashi Watanabe[1], Masato Kato[1], daishiro tokoro[2], Masatoshi sugimoto[2] (1. JAEA, 2. Inspection Development)

10:45 AM - 11:00 AM

[3K04] Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels

*Haruka Okazaki[1], Takashi Onitsuka[1], Masayoshi Uno[1] (1. Univ. of Fukui)

11:00 AM - 11:15 AM

[3K05] Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels

*Tatsumi Arima[1], Masato Kato[2] (1. Kyushu Univ., 2. JAEA)

11:15 AM - 11:30 AM

[3K06] Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels

*Takayuki Ozawa[1], Shun Hirooka[1], Masato Kato[1], Trevor J. Smuin[2], Colby B. Jensen[2], Nicolas E. Woolstenhulme[2], Daniel M. Wachs[2] (1. JAEA, 2. INL)

11:30 AM - 11:45 AM

©Atomic Energy Society of Japan

マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究
(1) 研究計画

Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels
(1) Research program

*加藤正人[1]，宇埜正美[2]，有馬 立身[3]
[1]日本原子力研究開発機構、[2]福井大、[3]九州大

放射性廃棄物の減容化・有害度低減を目指した高速炉リサイクルを達成するために、マイナーアクチニド含有低除染燃料に関する研究開発を進めている。本研究の目的は、マイクロ波脱硝転換、燃料製造技術、物性測定及び燃料設計、分析技術、照射後試験技術及び過渡時の燃料挙動評価に関する燃料技術について、フィードストック燃料を用いた実証をすることである。

キーワード：廃棄物減容・有害度低減、低除染燃料、高速炉リサイクル

1. 緒言

マイナーアクチニド(MA)含有低除染燃料を用いた高速炉リサイクル技術を実証することによって放射性廃棄物の減容化・有害度低減を達成することを目指し、燃料技術の開発を行う。高速炉燃料の再処理・MA 回収によって得られたフィードストック原料を用いた燃料として、Np、Am、Cm 及び FP を含む多元系燃料を研究対象とする。燃料の通常時の健全性及び過渡時の安全性を評価し、燃料性能を検証するために必要な 6 つの研究課題について、高速炉 MA リサイクル概念の燃料技術を開発する。本研究には、フィードストック原料を実際に用いた研究や照射済 MOX 燃料の過渡試験を含んでおり、原料調製から照射試験に関する燃料技術について実燃料を用いた研究開発を実施する。

2. 研究計画

以下の 6 つの課題を通して、MA 含有低除染燃料に関する燃料技術の実証研究を進める。

① フィードストック原料を用いた原料粉末の調製：常陽で照射された MOX 燃料から分離・回収された Pu、MA などの硝酸溶液を用いて、燃料の金属組成比に調整し、マイクロ波脱硝による粉末調整試験を行う。

② 遠隔燃料製造技術：模擬 FP を添加した MOX ペレットの焼結特性を調べ、焼結条件を評価する。この結果をもとに、セル内の遠隔技術によるＭＡ含有 MOX 燃料ペレットの調製試験を行う。

③ MA 含有 MOX 燃料の基礎物性データベースと燃料設計：MA 及び模擬 FP を含有した MOX 燃料の物性データ取得を行い、常陽での定常照射を目標とした燃料設計を行う。

④ 分析技術開発と MA の核変換評価：燃料中の MA 分析技術を確立するとともに、MA 燃焼特性の評価を行うための高精度な MA 分析技術の開発を行う。

⑤ PIE 技術開発：照射済み MOX 燃料の熱物性を評価するために、非定常平面熱源法による熱伝導率測定技術、及びレーザ法による融点測定技術の開発を実施する。

⑥ TREAT による過渡照射試験：EBR-II で照射された高燃焼度 MOX 中空燃料(燃焼度:約 100GWd/t)について、TREAT において、Na 環境下で過渡試験を実施し、破損限界線出力を評価する。

3. まとめ

ＭＡ含有低除燃料の開発として、燃料技術の各要素技術を実証し、定常照射試験及び過渡試験を通して燃料の成立性評価を行うことを目標とする。定常照射試験は、本事業の次の研究ステップにおいて、常陽の再稼働後に実施する計画であり、本研究ではそのための基盤技術を得る。

本研究は文部科学省原子力システム研究開発事業 JPMXD0219214921 の助成を受けたものです。

---

*Masato Kato[1], Masami Uno[2], Tatsumi Arima[3]
[1]Japan Atomic Energy Agency, [2]Fukui Univ., [3]Kyushu Univ.

マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究
(2) 模擬 FP(Nd_2O_3,Sm_2O_3)含有 MOX の焼結試験

Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels

(2) Sintering test of MOX with simulated FP (Nd_2O_3, Sm_2O_3)

*堀井雄太[1]、加藤正人[1]、廣岡瞬[1]、宇野弘樹[2]、田村哲也[2]、砂押剛雄[2]

[1]日本原子力研究開発機構、[2]検査開発株式会社

MOX に対して模擬 FP として Nd_2O_3、Sm_2O_3 を添加し、それらが焼結特性に及ぼす影響を熱膨張計により評価した。焼結による収縮はいずれも 1000℃付近から見られ、収縮速度のピークは添加量の増加に伴い高温側にシフトした。一方、焼結後の到達密度については影響が表れず、いずれも同様の値を示した。

キーワード：MOX、模擬 FP、焼結、収縮速度

1. 緒言

MA 含有 MOX には、その再処理工程で原料粉に FP である希土類元素がわずかに混入する。それらは不純物として MOX の物性値や焼結挙動に影響を及ぼすと考えられる。そこで本件では、燃料製造における基礎データのうち焼結特性について、不純物量の変化による影響を評価することを目的とした。添加する不純物は、模擬 FP として価数が安定な Nd_2O_3、Sm_2O_3 を用いた。

2. 試験方法

20%Pu-MOX 粉末に対して Nd_2O_3 または Sm_2O_3 をそれぞれ 0.5、1.5、3.0 mol%ずつ添加し、模擬 FP を添加していないもの(0 mol%)と合わせて計 7 水準の試料を作製した。焼結試験は熱膨張計を用い、8℃/min で 1650℃まで昇温、温度保持なしの条件（1650℃で ΔG_{O2}=-396.7 kJ/mol、O/M=1.99）で収縮曲線を得た。その後再焼結を 20℃/min で 1650℃まで昇温、3 時間保持した。焼結後の到達密度は熱膨張の影響を除去し、幾何学計算により算出した。

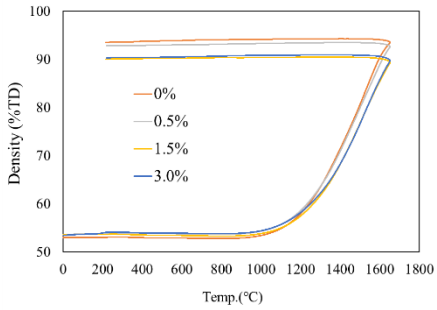


図 1 焼結密度（Sm_2O_3 添加 MOX）

3. 結果

図 1 に Sm_2O_3 を添加した MOX の 1 回目の焼結による密度変化を示す。焼結は 1000℃付近から顕著に起こり、不純物を添加したいずれの MOX についても同様であった。また、不純物を添加した MOX は 0mol%と比較して到達密度がやや低下する傾向が見られた。

図 2 に Sm_2O_3 を添加した MOX の 1 回目の焼結時の収縮速度を示す。不純物量が増加するにつれてピーク位置が高温側にシフトする傾向が見られた。これは、不純物が MOX の拡散を抑制することにより昇温中の焼結が遅れたためであると考えられる。再焼結後の到達密度はいずれも 93~95%TD と大きな差は見られなかった。以上の結果は Nd_2O_3 の添加でも同様の傾向を示した。

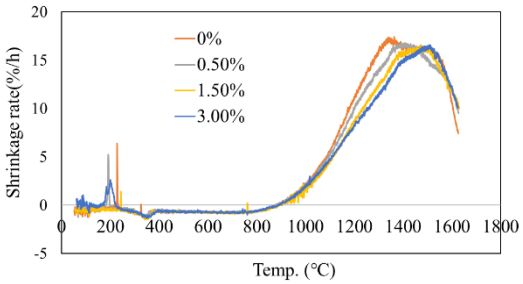


図 2 収縮速度（Sm_2O_3 添加 MOX）

4. 結論

ペレットの製造において Nd_2O_3 または Sm_2O_3 が 0.5~3%含まれる場合については焼結特性への影響は問題点とはならないと考えられる。今後は Nd や Sm 以外の不純物元素を添加し、MOX に及ぼす影響を評価する。

本研究は文部科学省原子力システム研究開発事業 JPMXD0219214921 の助成を受けたものです。

*Yuta Horii[1], Masato Kato[1], Shun Hirooka[1], Hiroki Uno[2], Tetsuya Tamura[2], Takeo Sunaoshi[2]

[1]Japan Atomic Energy Agency, [2]Inspection Development Company Ltd.

マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究
（3）10%Am 含有 MOX の熱伝導率

Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels
(3) The thermal conductivity of 10% Am bearing MOX fuels

*横山　佳祐[1]，渡部　雅[1]，加藤　正人[1]，所　大志郎[2]，杉本　理峻[2]
[1] 日本原子力研究開発機構
[2] 検査開発株式会社

10%の Am を含有した混合酸化物（MOX）燃料の熱伝導率を測定し、古典的フォノン伝導モデルに基づいて評価を行った。その結果、10%Am-MOX 燃料の熱伝導率は先行研究での 2%Am-MOX の値よりも低くなった。Am-MOX 燃料の熱伝導率は Am 含有量の増加に伴い低下する傾向が明らかとなった。

キーワード：熱伝導率、Am 含有 MOX 燃料

1. 緒言

現在の高速炉リサイクルにおいて、高レベル放射性廃棄物の減容化・有害度低減に向けてマイナーアクチニド（MAs）を含有した MOX 燃料の研究開発が進められている。MAs の中でも、アメリシウム（Am）は MOX 燃料の物性値に大きな影響を与える元素として知られており[1]、特に燃料設計上重要な物性値である熱伝導率への影響を明らかにすることが必要である。そこで本研究では、MOX 燃料の熱伝導率に及ぼす Am の影響を明らかにすることを目的として、10%Am 含有 MOX（10%Am-MOX）燃料の熱拡散率を測定して熱伝導率を算出し、先行研究のデータとの比較により Am の影響を評価した。

2. 測定手法

本試験で用いた 10%Am-MOX 試料は粉末冶金法で作製し、XRD 及び EPMA により試料の均質性と固溶状態を確認した。熱拡散率の測定に先立ち、保管中の自己照射によって生じた格子欠陥の回復及び O/M 比＝2.00 への調整を目的として、試料を加湿した H_2/Ar 混合ガスフロー下で 1473 K の熱処理を行った。熱拡散率の測定はレーザーフラッシュ法を採用し、測定中に試料の O/M 比が変化することを防止するため、加湿した H_2/Ar 混合ガスフロー下で実施した。熱拡散率から試料の密度及び比熱を用いて熱伝導率を導出した。

3. 結果と考察

測定した 10%Am-MOX 燃料の熱伝導率を 2%Am-MOX 燃料[1]及び UO_2 燃料[2]の文献値とともに図 1 に示す。10%Am-MOX 燃料の熱伝導率は 2%Am-MOX 燃料よりも低いことがわかった。10%Am-MOX 燃料の熱伝導率を 0.7~3%Am-MOX 燃料の熱伝導率[1]とともに古典的フォノン伝導モデル（$\lambda=1/(A+BT)$）に当てはめて評価した結果、従来の評価と同様に、係数 A は Am 含有量に応じて直線的に増加し、係数 B は Am 含有量に依存しないことが明らかとなった。10%Am-MOX 燃料の係数 A 及び B は以下の値であった。

$$A = 12.9 \times 10^{-2}(mK/W) \quad B = 2.4 \times 10^{-4}(m/W)$$

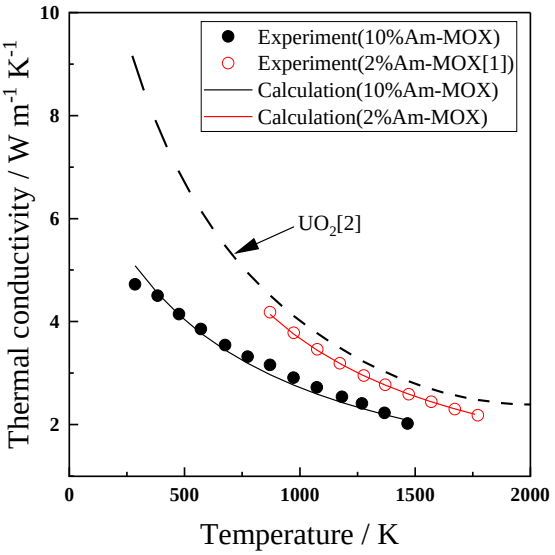


図 1　10%Am-MOX 燃料の熱伝導率測定結果

参考文献

[1] Morimoto, K., et al., *J. Alloys Compd.* **452**, 54-60 (2008).
[2] Carbajo, J., *J. Nucl. Mater.* **299**, 181 (2001)

本研究の一部は文部科学省原子力システム研究開発事業 JPMXD0219214921 の助成を受けたものです。

*Keisuke Yokoyama[1], Masashi Watanabe[1], Masato Kato[1], Daishiro Tokoro[2], Masatoshi Sugimoto[2]
[1] Japan Atomic Energy Agency
[2] Inspection Development Company Ltd.

マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (4) 非定常平面熱源法におけるペレット半径方向の熱伝導率測定技術の開発

Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels (4)Development of measurement technology for thermal conductivity in the radial direction of pellet using transient plane heat source method

*岡﨑　陽香[1]，鬼塚　貴志[1]，宇埜　正美[1]
[1]福井大学

抄録

TiO_2の単結晶および多結晶試料を用いて、ペレットの軸方向の熱伝導度を C-Therm Technologies 熱伝導率測定装置、TCi®(TCi 法)で、等方的な熱伝導率をホットディスク法熱物性測定装置® (HD 法)で測定し、ペレット半径方向の熱伝導率を評価した。

キーワード　高速炉燃料、熱伝導度、照射済みペレット、高燃焼度

1. 緒言

高速炉の照射済燃料ペレットは高燃焼度になると、中心から等距離の同心円状に FP 複合化合物が生成され、熱伝導率が低下するだけではなく、ペレット軸方向と半径方向で熱伝導率が異なる可能性がある。本研究では、非定常平面熱源法に基づく熱伝導度測定装置である HD 法および TCi 法を用いて、ホットセル内でペレットの半径方向の熱伝導率を評価する技術を確立することを目的とする。今年度は軸方向と半径方向で熱伝導度が異なるTiO_2の単結晶ペレットを用いて半径方向の熱伝導率の測定を試みた。

2. 実験方法

図 1 に示す様にまず、ペレット軸方向に〔001〕軸を持つTiO_2(001)試料で、TCi 法を用いて軸方向の熱伝導率 (λa:λ[001])を測定し、HD 法で等方的な熱伝導率(λ)を測定した。それらの測定値を用いて、下記の式から半径方向の熱伝導率(λr: λ[100])を計算し、TCi 法によるTiO_2(100)の実測値(λa:λ[100])と比較した。また、TCi 法による測定値の妥当性を評価するため、従来用いられている Laser Flash 法(LF 法)と比較を行った。TiO_2(100)試料についても同様の測定を行った。

3. 結論･考察

半径方向の熱伝導率を計算したところ、表 1 のような結果になった。計算結果と TCi 法での実測値と比較するとλ(001)は誤差は 5%以下となる結果となったが、λ(100)は実測値と大きく異なる結果となった。これは HD 法による等方的な熱伝導率の結果が影響すると考えられる。当日は単結晶ごとの HD 法のデータ、TCi 法と LF 法との比較データ等についても報告する。

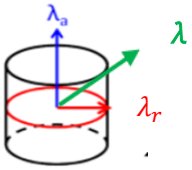


図 1　測定による計算方法

$$\lambda^3 = \lambda_r^2 * \lambda_a \quad (1)$$

$$\lambda^3 = \lambda_{[100]}^2 * \lambda_{[001]}$$

表 1　　半径方向の熱伝導率の計算結果

試料	λr[W/(mK)]	
	計算値(HD法+TCi法)	実測値(TCi法)
λ(100)	6.70	5.48
λ(001)	9.05	8.70

謝辞

本研究は、本研究は文部科学省原子力システム研究開発事業 JPMXD0219214921 の助成を受けたものである。

参考文献

[1]T. Ohmura, et al., Netsu Bussei, 15 63-67 (2001)

*Haruka Okazaki[1], Takashi Onitsuka[1], Masayoshi Uno[1]
[1]University of Fukui

マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 （5）レーザ加熱を利用した局所融点測定技術の開発

Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA- bearing MOX fuels
(5) Development of measurement technique for local melting point of fuel pellet with laser heating

*有馬 立身[1]，加藤 正人[2]
[1]九州大学，[2]日本原子力研究開発機構

照射後 MOX 燃料にはアクチニド元素の濃度分布が生じている。従来、平均的にしか測定されなかったペレットの融点の高速度カメラを用いた局所（面）分析可能な測定法を PIE 試験技術の一つとして提案する。

キーワード：融点、高速炉、混合酸化物燃料、アクチニド

1. 緒言

高速炉 MOX 燃料は照射によりペレット径方向に元素分布の偏りが生じることが知られている。しかしながら、燃料の健全性にとって重量な融点は、1 つのペレットにつき 1 つの融点、すなわち平均的な値しか評価されてこなかった。本プロジェクトでは、特にアクチニド元素濃度に偏りのある燃料ペレットの局所的な融点評価を可能にする測定技術の開発を目的として研究を進めている。

2. 研究内容

2-1. 高速度カメラによる融点測定

従来のタングステンカプセル（粉砕試料を内包）と高周波加熱炉による測定法に替わるものとして、①レーザ局所加熱と高速放射温度計・分光器を使った無容器測定システムを開発中である。この測定法では、溶融径はφ1－2 程度、放射温度計や分光器の分析スポット径はφ0.3 mm 程度である。加えて、より測定の位置分解能を向上させる方法として、②高速度カメラと 2 色法を併用した方法を提案している（図 1）。この方法では、カメラに使用されている CMOS センサとマクロレンズにより、約 15μm×15μm 程度の位置分解能で 5×5 mm^2 程度の温度測定が可能である（図 1）。本年度は①と②の測定手法の確立を目標としている。

2-2. 濃度差ペレットの作製

ここでは試料内に組成分布を有するものを濃度差ペレットと呼び、径方向中心部で特定の元素濃度が高く、外側で低くなるような試料の作製を試みた。これは、使用済み燃料のアクチニドの濃度分布を模擬する目的で実施した。具体的には、①金型ダイの内側に薄肉細管を置き、②細管内外に同時に組成の異なる粉末を充てん、③細管を抜いた後、所定の圧力でパンチを押し込み（圧粉体形成）、④加熱炉で焼成した（図 2）。

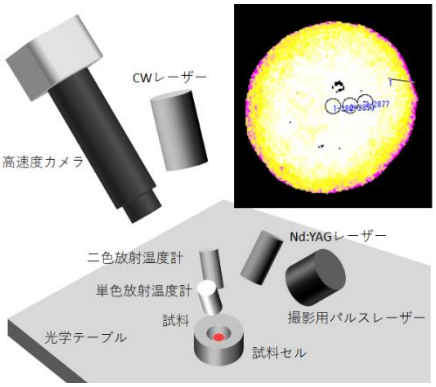


図 1　高速度カメラによる融点測定システムと温度分布

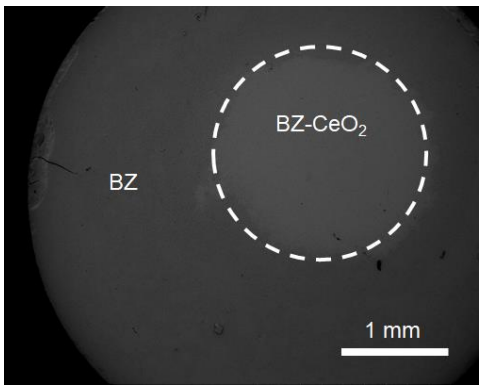


図 2　濃度差ペレット（BZ: Black Zirconia）

本研究は文部科学省原子力システム研究開発事業 JPMXD0219214921 の助成を受けたものです。

*Tatsumi Arima[1], Masato Kato[2]
[1]Kyushu Univ., [2]JAEA

マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究
(6) 照射済 MOX 燃料を用いた TREAT での ARES-MOX 過渡照射試験計画

Demonstration research on fast reactor recycling using low decontaminated MA-bearing MOX fuels

(6) ARES-MOX Transient Program for Irradiated MOX fuels in TREAT

*小澤　隆之[1]，廣岡　瞬[1]，加藤　正人[1]，
Trevor J. Smuin[2]，Colby B. Jensen[2], Nicolas E. Woolstenhulme[2], Daniel M. Wachs[2]
[1]日本原子力研究開発機構，[2]アイダホ国立研究所

日米協力の下、1989 年から 1994 年まで EBR-II で行った SPA-2 照射試験の試験燃料のうち、最高燃焼度が約 130GWd/t に達した中空燃料で、現在の INL で保管してある照射済 MOX 燃料を用いた TREAT での ARES-MOX 過渡照射試験を計画している。ここでは試験の概要やスケジュール、試験燃料とする照射済 MOX 燃料の挙動解析結果から期待される成果等、ARES-MOX 試験計画について述べる。

キーワード：照射済 MOX 燃料，FCMI 破損限界，過渡照射試験，TREAT

1. 緒言

高速炉燃料の健全性を確保する上で FCMI 破損限界を把握することは重要である。本計画では、高燃焼度中空 MOX 燃料の FCMI 破損限界に係る貴重なデータだけでなく、過渡時における FP 挙動に係る知見を得ることを目的としている。2022 年夏の過渡照射試験に向け、THOR カプセル設計、試験条件検討等を行っている。

2. 試験燃料

EBR-II の SPA-2 照射試験で照射した試験燃料のうち TREAT での過渡照射試験に供する照射済 MOX 燃料の主な製造時データ及び照射条件を下表に示す。過渡照射用に選定した試験燃料は最大線出力約 45kW/m、最高燃焼度約 130GWd/t の高燃焼度中空燃料であり、過渡照射用 2 本(UW02009, UW02011)の被覆管材 PNC1520 鋼である。過渡照射用と同様の燃料仕様及び照射条件の 1 本(UW06024)の過渡前破壊試験も実施する。試験燃料の EBR-II での照射挙動解析から過渡照射時燃料挙動に重要なプレナムガス組成や照射後燃料の中空径等の結果が得られ、過渡照射条件の検討に反映した。

表 TREAT での過渡照射試験に供する照射済 MOX 燃料の製造時データ及び照射条件

Pin ID	As-fabricated data								Irradiation conditions					
	Cladding OD (mm)	Cladding ID (mm)	Cladding material	Type	Smear density (%T.D.)	Pu content (wt%)	O/M ratio	Fuel column length (mm)	Peak linear heat rating (kW/m)		Max. cladding temperatyre (℃) (Mid-wall)		Peak burnup (GWd/t)	Peak fluence ($\times10^{26}$n/m^2)
									BOL	EOL	BOL	EOL		
UW02009	7.501	6.695	PNC1520	Annular	80.16	24.9	1.992	340.6	44.6	36.7	627	593	128.8	10.86
UW02011	7.501	6.695	PNC1520	Annular	80.16	24.9	1.992	344.9	43.3	36.1	603	573	126.1	10.51
UW06024	7.503	6.698	PNC-FMS	Annular	79.97	24.9	1.992	344.7	44.0	36.4	590	561	127.1	10.66

3. 過渡照射条件

右図に照射試験条件(計画案)と CEPTAR での非定常解析で得られた燃料中心温度計算結果を示す。解析結果では、FCMI により発生する被覆管周方向応力が被覆管の引張強さを十分下回っており、過渡照射時において FCMI 破損は生じないことが予想されることから、中空燃料の優れた FCMI 耐性を示すデータの取得が期待される。また、FP を約 10wt.%含む MOX 燃料の破損限界を定める燃料設計基準への適用が可能となることが考えられる。

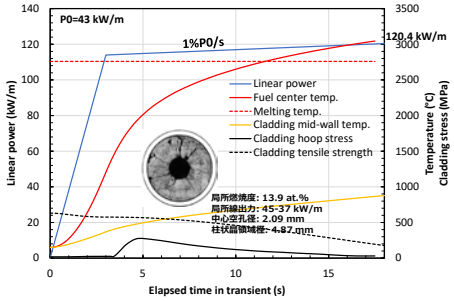


図 TREAT 過渡照射試験条件(計画案)

4. 今後の試験計画

2021 年 3 月末までに過渡照射試験に用いる試験燃料を保管施設から取出し、THOR カプセル設計を完了するとともに過渡照射試験条件を策定する。その後、過渡照射前検査、破壊試験、THOR カプセル製作・組立等を行い、過渡照射試験は 2022 年夏に実施する計画である。

本研究は文部科学省原子力システム研究開発事業 JPMXD0219214921 の助成を受けたものです。

*Takayuki Ozawa[1], Shun Hirooka[1], Masato Kato[1],
Trevor J. Smuin[2], Colby B. Jensen[2], Nicolas E. Woolstenhulme[2], Daniel M. Wachs[2]
[1]Japan Atomic Energy Agency, [2]Idaho National Lab.

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 501-2 Nuclear Fuel and the Irradiation Behavior

[3K07-10] Development for Fast Reactor Fuel

Chair: Tatsumi Arima (Kyushu Univ.)

Fri. Mar 19, 2021 2:45 PM - 3:55 PM Room K (Zoom room 11)

[3K07] X-Ray Computed Tomography Image Analysis of an Irradiated Joyo Fuel Assembly: Visualization of the Structural Changes in the Irradiated Fuels

*Tien-Hsiu Tsai[1], Shinji Sasaki[1], Kozo Katsuyama[1], Koji Maeda[1] (1. JAEA)

2:45 PM - 3:00 PM

[3K08] Granulation characteristics confirmation test of additive-free dry granulation technology for fast reactor fuel fabrication

*Tomoomi Segawa[1], Koichi Kawaguchi[1], Katsunori Ishii[1], Masahiro Nishina[1], Takayoshi Makino[1], Yuri Natori[2], Norihiro Ikemoto[2], Kazuo Yonehara[2], Katsuyoshi Tatenuma[2] (1. JAEA, 2. KAKEN)

3:00 PM - 3:15 PM

[3K09] Development of Light Water Cooled Fast Reactor

*kyoichi morimoto[1], Masashi Watanabe[1], Masato Kato[1], Tetsushi Hino[2] (1. JAEA, 2. HGNE)

3:15 PM - 3:30 PM

[3K10] Development of metal nanoparticle dispersion technique for liquid sodium

*Keiichi Nagai[1], Masahiko Ohtaka[1], Chikai Tei[1] (1. JAEA)

3:30 PM - 3:45 PM

©Atomic Energy Society of Japan

「常陽」照射済燃料集合体の X 線 CT 画像解析—燃料組織変化状況の可視化—

X-Ray Computed Tomography Image Analysis of an Irradiated Joyo Fuel Assembly:
Visualization of the Structural Changes in the Irradiated Fuels

*蔡 典修、佐々木 新治、勝山 幸三、前田 宏治
日本原子力研究開発機構

燃料集合体照射挙動の非破壊評価手法の高度化を目的とし、X 線 CT 画像を用いて、照射による燃料組織変化状況を可視化した。本発表では、高速実験炉「常陽」の照射済燃料集合体の結果について報告する。

キーワード：照射後試験，X 線 CT，高速炉，「常陽」

1. 緒言

照射後試験において、燃料集合体を解体せずに多数の燃料ピン断面画像を取得できる X 線コンピュータ断層撮影（X 線 CT）は有用かつ効率的な非破壊試験手法である[1–3]。一方、大量の燃料ピン断面画像の観察及び解析は時間を要し、また燃料ピンに個体差があるため全体傾向の把握は容易ではなかった。X 線 CT 画像から直感的で観察し易い情報を提供するために、本研究では、画像処理により燃料集合体の全体的な組織変化状況を可視化した。

2. 方法

高速実験炉「常陽」照射済燃料集合体 1 体の X 線 CT 画像（燃料ピン 127 本、19 横断面）[1–3] 内の各燃料ピン領域に対し、ピン中心からの径方向 CT 値（密度と正の相関）空間分布を 1°毎に取得し、クラック等の局所変化の影響を軽減するために平均処理した。さらに各横断面内 127 本の燃料ピンの結果を平均してその横断面を代表する径方向 CT 値分布とし、垂直位置に沿って配列することで、燃料ピンの縦断面に相当する CT 値分布図を作成した。また、線出力の影響を観察するために、各燃料ピン断面の推定線出力に基づき配列して平滑化処理を行い、線出力と径方向 CT 値分布の関係図を作成した。

3. 結果

図 1(a)は燃料ピンの縦断面相当図であり、燃料ピン内の中心空孔、高密度領域（赤）及び低密度領域（緑～黄）の空間的な変化が確認できる。図 1(b)は線出力と径方向 CT 値分布の関係図である。300 W/cm 以上では、線出力の上昇と共に中心空孔径が大きくなり、同時に中心空孔外周の高密度領域が拡大し、低密度領域が外側へ変化する現象が見られた。200–300 W/cm では、中心付近に密度の低下があったが、線出力の差に伴う顕著な変化は見られなかった。本成果により、燃料組織変化状況の可視化が可能となり、集合体内の全体的な傾向の把握が容易になった。

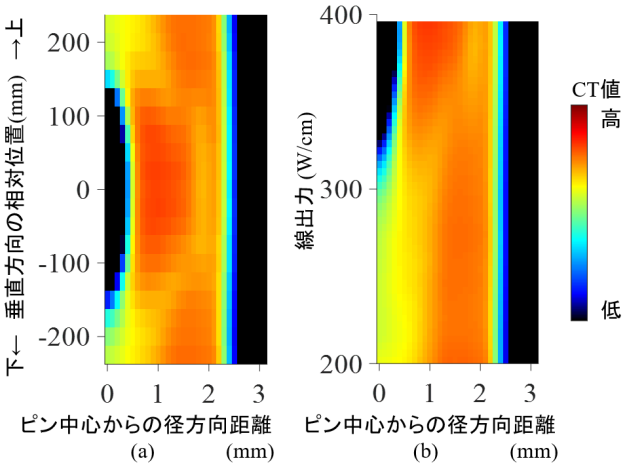


図 1. 燃料ピンの径方向 CT 値分布の可視化結果。(a)垂直位置との関係図（燃料ピン 127 本平均の縦断面相当図）、横と縦の縮尺の違いに注意。(b) 線出力との関係図。

参考文献

[1] Ishimi A, et al., J. Nucl. Sci. Technol. 2012;49(12):1144–1155.
[2] Ishimi A, et al., Nucl. Technol. 2015; 189(3):312-317.
[3] Ishimi A, et al., J. Nucl. Sci. Technol. 2019;56(11):981-987.

---

*Tien-Hsiu Tsai, Shinji Sasaki, Kozo Katsuyama, Koji Maeda
Japan Atomic Energy Agency

高速炉燃料製造のための添加剤フリー乾式造粒法に係る造粒性確認試験

Granulation characteristics confirmation test of additive-free dry granulation technology for fast reactor fuel fabrication

*瀬川 智臣[1]，川口 浩一[1]，石井 克典[1]，仁科 匡弘[1]，牧野 崇義[1]，名取 ゆり[2]，池本 憲弘[2]
米原 和男[2]，蓼沼 克嘉[2]
[1]日本原子力研究開発機構，[2]株式会社 化 研

高速炉燃料製造のための添加剤フリー乾式造粒法の開発を目的とし，本研究では，乾式造粒プロセスの機械化に向け，湿度調整したグローブボックス内で外力付加が造粒性に及ぼす影響の確認・評価を行った．

キーワード：高速炉燃料製造，乾式造粒，湿度，振動，グローブボックス

1. 緒言

原子力機構では簡素化ペレット法の研究開発を進めている．本プロセスでは，成型金型への粉末充填性を向上するため，水をバインダに用いた転動造粒法により MOX 粉末の流動性の改良を行っている．しかしながら，転動造粒法では，湿式臨界管理下における製造能力の向上が課題となる．近年，核融合炉のトリチウム増殖 Li_2O ブランケット球を効率的に量産するための新規の造粒法として，添加剤フリー乾式造粒法が提案されている[1]．また，湿度を 10～90%の範囲でパラメータとした手動での振とうによる CeO_2 粉末の乾式造粒試験において，粒子径数百 μm の球形状の造粒粉を作製でき，さらに湿度 30%で造粒粉の粒子径が最大となることを確認している[2]．本研究では，MOX 燃料製造工程への本手法の適用性を確認するため，機械化に向けた基礎試験として，外力付加が造粒性に及ぼす影響について報告する．

2. 試験方法

造粒試験に使用した湿度調整装置および試験装置を Fig. 1 に示す．グローブボックス内が湿度 30%となるよう乾燥空気と湿潤空気の流量を調整した．MOX 粉末の模擬物質として CeO_2 粉末（メジアン径: 0.6 μm，高純度化学製）を使用した．外力として振動装置（PET-05-05AM，IMV 製）により，垂直方向に振動数 50 Hz を 60 秒間付与した条件で造粒を行った．また，SEM（VHX-D510, KEYENCE 製）により，CeO_2 粉末およびその造粒粉の外観観察を行った．

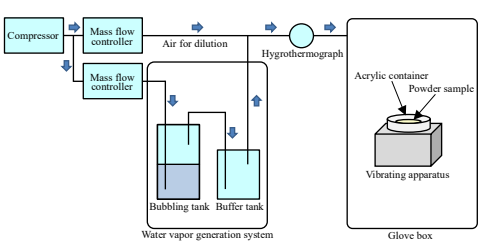


Fig. 1 湿度調整装置および試験装置

3. 測定結果および考察

CeO_2 粉末および造粒粉の外観写真を Fig. 2 および Fig. 3 に示す．CeO_2 粉末は，メジアン径約 2 μm 以下の微粉である一方，造粒粉は，メジアン径約 300 μm であり，球形状の顆粒となることを確認した．本試験の結果，機械振動による外力付加によって良好な造粒性が得られることが明らかになった．

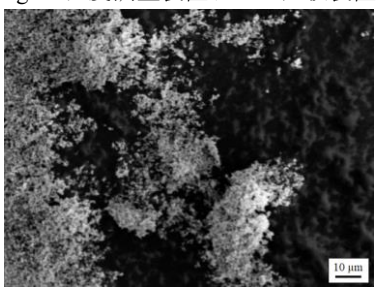


Fig. 2 CeO_2 粉末の外観写真

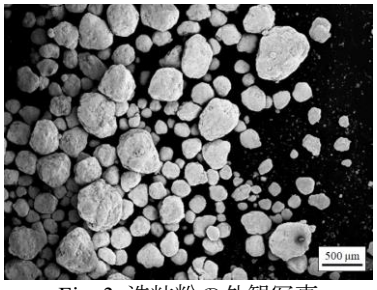


Fig. 3 造粒粉の外観写真

4. 結論

本研究により，乾式造粒プロセスの機械化の見通しを得ることができた．今後は，外力付加による造粒メカニズムの解明や最適な外力付加方法・造粒条件の検討，UO_2 粉末や MOX 粉末を用いたホット試験により本手法の適用性を確認する必要がある．

参考文献

[1] 名取ゆり，他，日本原子力学会 2019 年秋の大会, 2L10，[2] K. Ishii, et al., Nuclear Materials Conference 2020 (NuMAT2020).

*Tomoomi Segawa[1], Koichi Kawaguchi[1], Katsunori Ishii[1], Masahiro Nishina[1], Takayoshi Makino[1], Yuri Natori[2], Norihiro Ikemoto[2], Kazuo Yonehara[2], and Katsuyoshi Tatenuma[2]
[1]Japan Atomic Energy Agency, [2]Kaken Inc.

軽水冷却高速炉の開発

(5) 高富化度燃料ペレットの焼結試験-1

Development of Light Water Cooled Fast Reactor
(5) Sintering test of MOX fuel pellets containing high Pu -1

*森本 恭一[1]，渡部 雅[1]，加藤 正人[1]，日野 哲士[2]
[1]JAEA，[2]日立 GE

Pu の利用促進、Pu・MA の多重リサイクルを目的とした軽水による高速炉の開発が進められている[1]。本研究では、この開発の一環として Pu 含有量が 40%を超える高富化度燃料ペレットの焼結試験を実施した。

キーワード：軽水冷却高速炉，多重リサイクル，高富化度燃料，焼結

１．緒言

軽水冷却高速炉開発の一環として高富化度燃料ペレットの焼結試験を開始した。今回は高富化度燃料の焼結挙動の概要を把握することを目的として、Pu 含有率が 30、50、70%となるように調整した混合粉末を準備し、酸素分圧を制御した雰囲気において試料の焼結に関する試験を実施した。

２．実験

2-1. 試料調製

試料は O/M を 2.00 に調整した UO_2 と PuO_2 の原料粉末を粉末冶金法によって調製した。雰囲気の差による焼結時の試料変化を観察するために 2 種の雰囲気（高酸素分圧および低酸素分圧）にて焼結を行った。Pu 含有率が 30、50、70%の試料はそれぞれ 30%Pu-MOX、50%Pu-MOX、70%Pu-MOX と称する。

2-2. 物性測定・分析

焼結後の試料は外観観察、密度測定、O/M 分析、光学顕微鏡観察等を行い、試料状態を確認した。また、焼結挙動を比較するために焼結時の試料の収縮特性をディラトメータ（Bruker AXS, TD5000SA）にて観測した。

３．結論・考察

外観観察では特に異常は見られなかったが、顕微鏡観察の結果、30%Pu 及び 50%Pu-MOX の一部にはクラックが観察された。これは原料粉末の O/M をそれぞれ 2.00 に調整したことから、試料調製過程における原料粉末の収縮等の挙動に差が生じたためと推定した。また、高酸素分圧下で焼結した試料は比較的 O/M が高く、密度が低い結果となった。これは、高酸素分圧下で焼結した試料は焼結時の結晶粒界の移動が速く、結晶粒界の移動に同伴できなかった気孔の残留が原因と推定した。焼結時の収縮特性は密度変化に換算して比較した（Fig.1）。30%Pu および 50%Pu-MOX は同様の挙動を示し、70%Pu-MOX のみ他の試料より密度が上昇する結果となった。これは、同じ雰囲気中の焼結でも Pu 含有率の高い試料のほうが O/M が低くなる傾向があり、結晶粒界の移動速度が比較的に遅かったことから密度が上昇したと推定される。

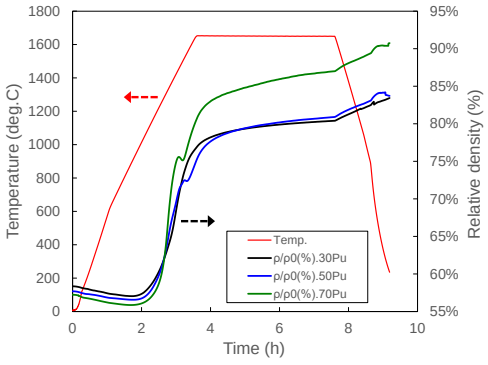


Fig.1 Density changes of pellets with time

４．まとめ

高富化度燃料ペレットの焼結試験において、得られた試料の一部にはクラックが発生した。また、密度や焼結挙動は Pu 含有率毎に異なる結果となった。今後、さらなるデータを取得し、Pu 含有率によらず健全なペレットが作製できる条件について検討する。

参考文献

[1] 日野他、日本原子力学会 2020 年秋の大会 1L06「軽水冷却高速炉の開発 (2)全体概要」

* Kyoichi Morimoto[1], Masashi Watanabe[1], Masato Kato[1] and Tetsushi Hino[2]
[1]Japan Atomic Energy Agency, [2]Hitachi-GE Nuclear Energy, Ltd.

液体金属ナトリウムへの金属ナノ粒子分散技術の開発
実験的分散要件の検討

Development of metal nanoparticle dispersion technique for liquid sodium
Experimental study of the requisites for dispersing technique

*永井 桂一[1]，大高 雅彦[1]，鄭 智海[1]
[1]原子力機構

液体金属ナトリウム中での金属ナノ粒子の分散性向上を目的とした物理的分散手法によるナトリウムへの適用課題把握とナノ粒子分散要件について検討した。

キーワード：液体ナトリウム、ナノ粒子、ナノ流体、分散

1. はじめに

高速炉の冷却材ナトリウムの化学的活性度を抑制し得る新概念として、金属ナノ粒子分散によるナトリウムとナノ粒子表面で生じる原子間相互作用を応用した技術（ナノ流体）開発を進めている。化学的活性度抑制に作用すると考える原子間相互作用は、ナノ粒子の比表面積増大すなわち粒子径の微細化（10nm 級）による効果増大が想定される一方、ナノ粒子の微細化と共に粒子の凝集が著しくなるためナトリウム中への分散性向上の検討を進める必要がある。本報は、ナトリウム中での分散性向上の一手法として、水分散媒等液相中でのナノ粒子分散に多く用いられている物理的分散手法をナトリウムに適用するための課題把握とその対策に向けたナノ粒子分散要件の実験的検討結果について述べる。

2. ナトリウム中へのナノ粒子分散処理における課題

ナノ粒子凝集体を液相中へ分散するための一手法として、ビーズを円筒容器内に充填し、回転軸にピン等の攪拌部材を回転させビーズを攪拌し、ビーズに作用する衝撃力やビーズ間の速度差により液相に生じるせん断力などで凝集体を解砕する物理的分散手法（ビーズミル）が用いられている。これを液体金属ナトリウムに適用した例は無く、また、その他の分散手法においてもナトリウムへの適用実績や技術知見等は得られていない。ナトリウムへ適用するため次の三つの視点から考え得る課題を整理した。**(1)分散処理プロセス（装置）の視点** 分散媒となるナトリウムの取扱い上の耐熱化機械要素の制約による分散媒のバッジ処理流動に伴う液面ガス巻き込みによる影響。**(2)ナノ粒子の視点** 上述の通り粒子径の微細化に伴う粒子凝集に加え、表面酸化が抑制された金属ナノ粒子を生成するための製造法として用いている気相生成法による粒子生成過程で発生する粒子表層や凝集体空隙におけるナノ粒子周囲の気相の存在、一次粒子同士の融着、などによる影響。**(3)物性の視点** ナトリウムの高い表面張力に伴う濡れ性や低粘性などによる影響。

3. 現象把握実験と結果の評価

上述課題に対し実験的な現象解明による検討結果を以下に示す。**(1)分散媒へのガス巻込み影響** ビーズ及び分散媒として水を用いた可視化結果から機器の回転軸を中心とするくぼみ渦が成長し、分散に寄与するビーズ流動領域まで気相が侵入する状態を確認した。この対策として無液面化によるくぼみ渦の抑制効果を確認した。**(2)ナノ粒子周囲の気相影響** 現象確認用として粒子凝集による空隙を形成し難い鎖状構造を持つナノ粒子凝集体を試作し、これをナトリウム中の分散処理に供したところ解砕効果の向上を示唆する兆候が示された。**(3)ナトリウムとビーズの濡れ性** ビーズ界面とナトリウムとの濡れ性の違いに着目し、意図的に水とビーズが濡れない状態（ビーズ表面にガス層が存在）を再現した場合とナトリウム中で解砕処理した場合を比較すると、両者共にビーズ表面にナノ粒子が固着しビーズ同士の衝突を示唆する現象を確認した。

これらの現象からナノ粒子の分散を阻害する主要因の一つは(1)(2)(3)に関係する気相の存在と推測され、その影響は物理的分散手法の効果に寄与するせん断・衝突力の支配領域に影響を及ぼしその最適化がナノ粒子の分散要件となることが推定された。

4. まとめと今後の予定

物理的分散手法のナトリウムへの適用課題を把握し、現象把握に基づく分散阻害要因を特定することができナノ粒子分散要件を明らかにした。今後は対応策の具体化とナノ粒子の解砕効果を評価する計画である。

---

*Keiichi Nagai[1], Masahiko Ohtaka[1] and Chikai Tei[1]
[1]Japan Atomic Energy Agency

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials | 501-1 Basic Properties

[3K11-13] Cs behavior evaluation / Effective utilization of FP

Chair: kyoichi morimoto (JAEA)

Fri. Mar 19, 2021 3:55 PM - 4:50 PM Room K (Zoom room 11)

[3K11] High-temperature Oxidation Behavior of Stainless Steel 304 in Argon Gas Containing Cesium Molybdate

*Thi Mai Dung Do[1], Tadachika Nakayama[1], Hisayuki Suematsu[1] (1. Nagaoka University of Technology)

3:55 PM - 4:10 PM

[3K12] The Caesium Retention Phenomena Related to Oxidation of the Reactor Coolant Boundaries Materials

*I Wayan - Ngarayana[1], Kenta Murakami[1], Thi Mai Dung Do[1] (1. Nagaoka University of Technology)

4:10 PM - 4:25 PM

[3K13] Study on Effective Utilization of Fission Products

*Asahi Nitta[1], Ryohei Hattori[1], Isamu Sato[1], Haruaki Matsuura[1] (1. TCU)

4:25 PM - 4:40 PM

©Atomic Energy Society of Japan

High-temperature Oxidation Behavior of 304 Stainless Steel in Argon Gas Containing Cesium Molybdate.

*Thi-Mai-Dung Do[1], Tadachika Nakayama[1] and Hisayuki Suematsu[1]
[1] Nagaoka University of Technology

Abstract. The oxidation behavior of 304 stainless steel (304 SS) in argon gas containing cesium molybdate is examined over the range 270 to 1230°C from 1 to 9 hours. The surface and cross-section of SS304 is analyzed by X-ray diffraction, micro-Raman and electron probe micro analyzer.

Keywords: cesium molybdate, stainless steel, oxidation, severe accident

The oxidation of SUS has been investigated in detail by many investigators. The SUS exhibit good oxidation resistance at high temperature because of the formation of Cr_2O_3 scale protective layer. However, the resistance will be reduced in the steam atmosphere since the Cr_2O_3 layer will be reacted with water vapor, forming a volatile species $CrO_2(OH)_2$. The evaporation of the protective chromium oxide layer caused the exposed iron oxide, which means the oxidation rate will be increased.

After the Three Mile Island and Fukushima Nuclear Daiichi nuclear severe accidents, the reaction between SUS with Cs compounds have been received big attention due to the deposit of fission product on the structure surface, cause the increasing the surface dose rate [1, 2, 3]. It was found that Cs has been diffused into the SUS and probably has reacted with Cr to form Cs_2CrO_4 or $Cs_2Cr_2O_7$ [2]. Besides, cesium may also react with silicon (Si) formed $Cs_2Si_4O_9$ or $Cs_2Si_2O_5$ [3]. These reaction products indicated the loss of the Cr_2O_3 protective layer, lead the oxidation rate increase. However, the oxidation depth change was not to be mentioned.

The present study compares the corrosion rates of stainless steels 304 in argon (Ar) gas and in Ar gas containing Cs_2MoO_4 vapor at different temperatures at various times. The study aims to understand the dry oxidation of SUS304, which is used as a typical material for reactor structures in the Cs_2MoO_4 vapor environment.

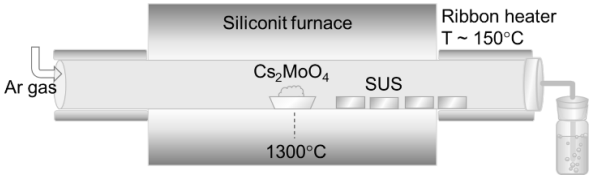


Figure 1 Schematic diagram of experiment setup

SUS304 species with dimensions of 15×10×1 mm were polished by emery paper and buffing before the oxidation. Figure 1 shows the heating furnace used in this experiment. Cs_2MoO_4 was placed at 1300 °C in a platinum (Pt) boat. Ar gas was injected from one side of the tube, flowed passing through the center of the tube where Cs_2MoO_4 vapor was generated at high temperature. On the other side of the tube, SUS304 specimens were placed at different positions to be oxidized at various temperatures from 270 to 1230°C. The oxidation time of interest were 1, 3 and 9 hr. After heating, the surface of the specimens was analyzed by X-ray diffraction and micro-Raman. The elemental distribution was performed by electron probe microanalyzer. The thickness of the oxide layer was estimated by the observation of cross-sections. Figure 2 shows the mass gain and oxidation rate of SUS304 increase with temperature.

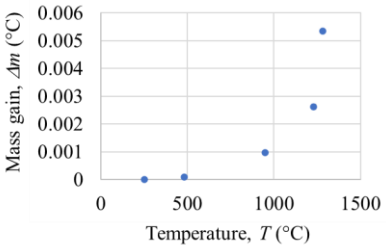


Figure 2 Oxidation curve of SUS304 at various temperature for 1 hour in Ar

References

[1] Shiun Jyh Chang, Hirotaka Furuya, Tokaki Fujii, Kazuya Idenmitsu, Corrosion of austenitic stainless steel in steam containing cesium hydroxide, Journal of Nuclear Science and Technology, 29 (1992) 753-761.
[2] Koei Sasaki, Takanori Tanigaki , Tomohiro Oshima, Ken-ich Fukumoto, Uno Masayoshi, Microstructure analysis for chemical interaction between cesium and SUS316 steel in fast breeder reactor application, Journal of Energy and Power Engineering, 7 (2013) 716-725.
[3] Fidelma Giulia Di Lemma, Kunihisa Nakajima, Shinichiro Yamashita, Masahiko Osaka, Surface analyses of cesium hydroxide chemisorbed onto type 304 stainless steel, Nuclear Engineering and Design, 305(2016), 411-420.

The Caesium Retention Phenomena Related to Oxidation of the Reactor Coolant Boundaries Materials

*I Wayan Ngarayana, Kenta Murakami, Thi Mai Dung Do
Nagaoka University of Technology

Abstract: Cs retention/chemisorption mechanism onto Stainless Steel (SS) & Ni-based alloys on the various temperature are being identified. Besides the importance of Si solute element that is already known, Ti is also detected playing an important role, especially at temperatures below 1050°C.

Keywords: caesium, retention, chemisorption, coolant boundaries materials, solute elements, titanium

1. Introduction

Cs chemisorption behaviour is important for understanding severe accidents. Previous studies show that the minor elements, such as Mo, Si and B, have significant influence on the amount of absorbed Cs and their stability onto stainless steels (SS). Ni-based alloys are expected to show similar tendency to SS because they have similar oxide films on surface. However, solute Ti may change the Cs chemisorption behaviour forming different type of oxide film. This study intends to identify the effect of Ti for the Cs retention phenomena onto both SS and Ni-based alloys.

2. Experiment

The experiment is being conducted using fine polished SS 304, Inconel 600 & X-750 specimens those having different solute elements and pure Ti as the control material within CsOH as the precursor. Unoxidized and oxidized specimens were prepared. Oxide films have been growth under ambient air environment for 3 days at 300, 450, 600, 750, 900 & 1050°C. CsOH has been put on the surface of both oxide and unoxidized specimens then heated at CsOH melting point (272°C) for 1 hour to make sure the entire surface of the specimens is well-covered. Then the temperatures were increased at the respective values for 6 hours for oxidized specimens and 3 days for unoxidized specimens. Hereinafter, those specimens have been soaked on water and ethanol to remove the unstable structures on surface. Characterization has been done for each step using an optical microscope, XRD, SEM/EDX for surface and cross-section observation.

3. Results

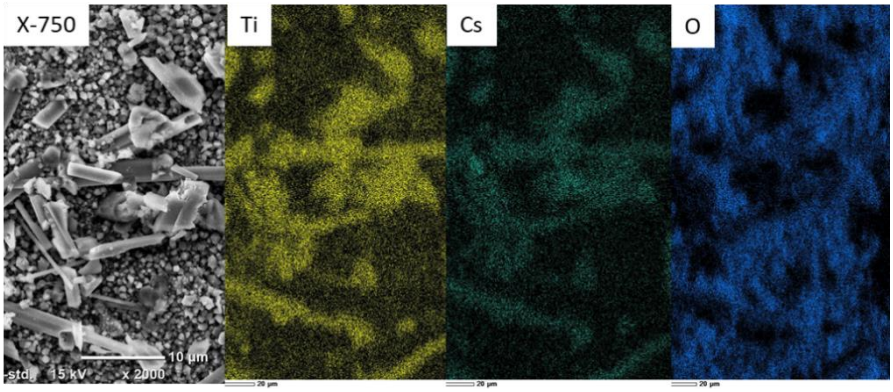


Fig. 1 – Oxidized X-750 + CsOH at 900°C after soaked by water

All samples surface at 300 & 450°C are hydrophilic indicating a large amount of CsOH are remain caused by slow reaction and evaporation rates. Interestingly, even if at 600°C SS 304 is still easy absorbing humidity, but in the opposite, both Inconel 600 & X-750 are dry, indicating CsOH is well reacted by forming more stable compounds such as Cs-Cr-O & Cs-Fe-O compounds. The small amount of Cs-Al-Si-O, and/or Cs-(Fe)-Si-O compounds are remaining after soaking within the higher amount on all oxidized specimens. Similar to the previous studies, Cs diffuse deeply onto SS304 at 750°C and higher temperature along the grain-boundary. Cs-Ti-O compounds was observed trapped by crack/explosive fracture on Inconel 600. In contrast, Cs-Ti-Si-O was found on the surface of X-750 at all temperature bellow 1050°C as shown in the Fig. 1.

FP の有効利用に関する研究
-照射済燃料中における白金族合金の模擬体作製及び冶金学的観察-

Study on Effective Utilization of Fission Products
-Preparation of simulated noble metal alloy in irradiated fuel and metallurgical observation-

*新田　旭[1]　服部　亮平[1]　佐藤　勇[1]　松浦　治明[1]
[1]東京都市大学

核分裂生成物の有効利用にかかる研究では、照射済燃料中における白金族合金の水素吸蔵能力や触媒としての有用性を明らかにする前段階として、白金族合金模擬体を作製し、水素吸蔵性能に大きく関わると考えられる結晶構造等の知見を得るために冶金学的観察を行った。

キーワード：白金族合金、FP、直接利用

1. 緒言

東京都市大学重点推進研究では、核分裂生成物の有効利用に関する研究を行う事で、核燃料サイクルにおける放射性廃棄物マネジメントに資する事を目的としている。核分裂生成物中には再処理後不溶解残渣として析出する白金族合金(Mo、Ru、Rh、Pd 及び Tc で構成される)が存在する。そのうち Ru、Rh 及び Pd という元素は酸素と水素の再反応のための触媒や、水素吸蔵合金として利用されている。一方で、福島第一原子力発電所の燃料デブリは、再臨界や放射性物質の飛散等から危険性を持つため、取り出し収納容器に密封する必要があるとされるが、内在する水分の放射線分解によって水素が発生するため対策が必要である。一つの方法として白金族合金を水素吸蔵・触媒材料として直接利用することがあげられる。そこで、本研究では、白金族合金の水素吸蔵・触媒材料としての機能を調べることを目的とし、模擬体の作製を行い、詳しく冶金学的な観察を行った。また、より詳しい白金族合金の知見を得るための、第一原理計算を用いて結晶構造変化による水素吸蔵・触媒機能の影響を評価手法の構築を開始した。

2. 実験方法

Mo、Ru、Rh 及び Pd の純度 99.9%、約φ5μm の粉末を防湿容器にて、実際の照射済燃料中に存在する FP の割合を考慮した 4 元系、水素吸蔵能力を持つとされる Ru、Rh、Pd に限定した 3 元系、アニーリングの効果を確かめるための Mo-Pd の 2 元系で混合させ、ダイス（Φ6.9mm）を用いてプレス成型にて 200MPa で圧粉体を作製した。次に、東工大との協力のもとアーク溶解装置を用いた試料溶融を行い、試料をエポキシ樹脂埋め固め、研磨を行った。作製した合金試料に対し、冶金学的な観察として、SEM-EDS を用いた元素分析や X 線回折による結晶構造観察を行った。

3. 結果と考察

作製した合金試料(a)(Mo20, Ru60, Rh10, Pd10(wt%、以下同様))に対する、SEM-EDS による元素マッピングを図 1 に示す。マッピングの結果から試料表面における構成元素の偏在が確認されなかったため、試料準備の段階で合金の作製方法に問題はなく、4 元系の単相が得られたと判断した。

次に、作製した合金試料(a)(b)(Mo15, Ru55, Rh15, Pd15)(c)(Mo40, Ru45, Rh7.5, Pd7.5)に対する、XRD による測定結果を図 2 に示す。参考文献*[1]と組成の近い試料(c)とを比較するとピークの一致を確認し、格子定数は、Ref a=2.744Å c=4.391Å (c) a=2.723Å c=4.327Å となり六方最密構造であると判断した。また、試料(a)及び(b)は、ピークが文献データより低角側へシフトしていることが確認された。これは文献データの Mo の割合が高く Mo の結晶構造である体心立法構造の影響を受けたことで格子定数が増加したのではないかと考えた。また、固溶体の形成過程において、Ru を主成分とする六方最密構造に対して、Mo の体心立方構造が置換するような形で入り込み、格子面間距離が大きくなり、結晶全体が広がったと考えられる。

今後は、水素吸蔵が起きやすいとされる(001)結晶面が合金試料の表面においてどの程度存在するかを評価するために EBSD を用いた結晶方位分布を行う予定である。また、白金族合金の結晶構造や水素吸蔵した際の格子欠陥といた結晶構造学的メカニズムを、第一原理計算を用いて解明していく。

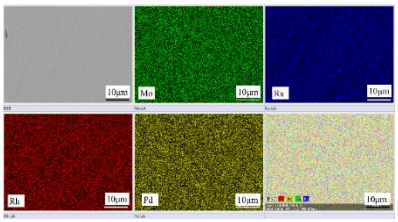


図 1 四元系合金に対する SEM+EDS マッピング

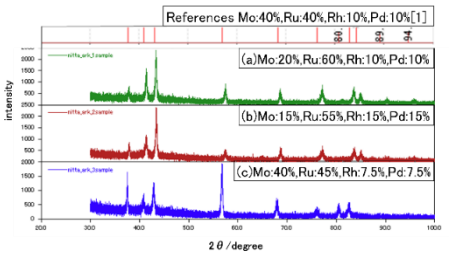


図 2 四元系合金に対する XRD の測定結果

参考文献(Reference)
[1] Z. Metallkd.,1983,74,,652-664,Paschoal J.O.A., Kleykamp H., Thümmler F.,

*Asahi Nitta[1], Ryohei Hattori[1], Isamu Sato[1], Haruaki Matsuura[1]
[1]Tokyo City University

Oral presentation | VI. Fusion Energy Engineering | 601-2 Fusion Reactor Material Science (Reactor and Blanket Materials, Irradiation Behavior)

[3L01-04] Chemical Compatibility of Materials 1

Chair: Teruya Tanaka (NIFS)

Fri. Mar 19, 2021 9:30 AM - 10:35 AM Room L (Zoom room 12)

[3L01] Corrosion Issues of Cu-alloy toward DEMO Divertor

*Motoki Nakajima[1], Yen-jui Huang[1], Naofumi Nakazato[2], Taisei Nemoto[2], Yu Seiriki[2], Takashi Nozawa[1], Hirotatsu Kishimoto[2] (1. QST, 2. Muroran IT)

9:30 AM - 9:45 AM

[3L02] Corrosion Issues of Cu-alloy toward DEMO Divertor

*Naofumi Nakazato[1], Taisei Nemoto[1], Yu Seiriki[1], Motoki Nakajima[2], Yen-Jui Huang[2], Takashi Nozawa[2], Hirotatsu Kishimoto[1] (1. Muroran IT, 2. QST)

9:45 AM - 10:00 AM

[3L03] Corrosion Issues of Cu-alloy toward DEMO Divertor

*Yen-Jui Huang[1], Motoki Nakajima[1], Naofumi Nakazato[2], Taisei Nemoto[2], Yu Seiriki[2], Takashi Nozawa[1], Hirotatsu Kishimoto[2] (1. QST, 2. Muroran IT)

10:00 AM - 10:15 AM

[3L04] Compatibility test of tritium permeation barrier coatings with pressurized water

*Takumi Chikada[1], Motoki Nakajima[2], Akiyoshi Suzuki[1], Teppei Otsuka[3], Masanori Hara[4], Takashi Nozawa[2] (1. Shizuoka Univ., 2. QST, 3. Kindai Univ., 4. Univ. of Toyama)

10:15 AM - 10:30 AM

©Atomic Energy Society of Japan

原型炉に向けたダイバータ用銅合金の腐食課題
（1）　国内外研究活動の概要並びに量研の装置整備状況について

Corrosion Issues of Cu-alloy toward DEMO Divertor

(1) An Overview of Domestic and International Research Activities and the Status of Instrumentation at QST

*中島　基樹[1]，黄 彦瑞[1]，中里 直史[2]，根本 泰成[2]，勢力 優[2]，野澤 貴史[1]，岸本 弘立[2]

[1]QST，[2]室蘭工大

本シリーズ講演では、原型炉に向け国内外の協力の下で進めている銅合金の腐食課題についてまとめたものであり、本発表では国内で進めている共同研究の概要、幅広いアプローチ活動で取り扱う腐食課題、量研で整備を進めている腐食試験装置の概要について紹介する。

キーワード：ダイバータ、腐食、銅合金、高温高圧水

1. 緒言

ITER 並びに日本の原型炉ダイバータではその優れた熱伝導特性などの理由により冷却管として銅合金の使用が予定されている。いずれのダイバータでも高温高圧水を冷却材に用いるものの、高温高圧水と銅合金の共存性への理解は必ずしも十分とは言えない。そこで、日本国内では原型炉開発に向けたアクションプランに基づき共同研究を中心とした研究体制を構築、国外では幅広いアプローチ活動フェーズ II に基づき協力体制を構築している。特に、核融合炉環境で特に腐食に影響を及ぼす事象として核融合中性子による材料照射損傷および水の放射線分解などが挙げられることから、重点課題として検討に着手した。

2. 国内活動の概要

日本国内での活動については原型炉開発に向けたアクションプランに基づき進められる。ダイバータ材料の腐食についての直接的な言及は無いものの、材料そのものの劣化（腐食減肉）や運転中に発生する放射性腐食生成物の観点から、耐照射性ダイバータ材料の開発だけでなく原型炉設計や安全性の項目にも関わる重要な研究課題となっている。また、ダイバータ水質条件の最終化に向けて、過去の知見を参考にしつつも系統的にデータ蓄積を進め、ダイバータに適した運転条件を見出す必要がある。そのため、室蘭工業大学との共同研究により核融合環境における銅合金の腐食試験データベースの構築を加速して進めている。

3. 幅広いアプローチ活動の概要

日本国外での協力体制については今年度より開始した幅広いアプローチ活動フェーズ II に基づいて進めている。腐食に関わる活動では大きく 2 つのタスクがあり、核融合特有環境（磁場や中性子照射）、流動、水化学、環境強度特性をキーワードに腐食材料特性ハンドブックの作成を目標としたタスクと放射性腐食生成物評価モデル構築を目標としたタスクに分けられる。今年度は基礎的なデータ取得を中心に 2024 年度までの計画立案および欧州との合意を進めた。また、それらの活動を進める上で、銅合金のみならず低放射化鉄鋼材料の核融合特有の環境での腐食特性評価を進めるため核融合炉環境に対応するための装置開発を進めた。具体的には、水の放射線分解を模擬した環境で実施するため、水素ならびに過酸化水素を添加できる流動腐食試験装置の開発や磁場環境流動腐食試験装置の設計を進めている。

---

*Motoki Nakajima[1], Yen-jui Huang[1], Naofumi Nakazato[2], Taisei Nemoto[2], Yu Seiriki[2], Takashi Nozawa[1],and Hirotatsu Kishimoto[2]

[1]QST, [2]Muroran-IT

原型炉に向けたダイバータ用銅合金の腐食課題
（2）脱気高温高水中における CuCrZr 合金の共存性評価

Corrosion Issues of Cu-alloy toward DEMO Divertor

(2) Compatibility evaluation of CuCrZr alloy in deaerated high temperature/pressurized water

*中里 直史[1]，根本 泰成[2]，勢力 優[1]，中島 基樹[2]，黄 彦瑞[2]，野澤 貴史[2]，岸本 弘立[1]

[1]室蘭工業大学，[2]量子科学技術研究開発機

室蘭工業大学は量子科学技術研究開発機構と核融合炉構造材料の高温高圧水腐食に関する共同研究を実施している。本発表では溶存酸素量が低い脱気環境下における高温高圧水中でのダイバータ用銅合金の腐食挙動及び、浸漬後の表面性状を評価する。

キーワード：ダイバータ 1，CuCrZr 合金 2，腐食挙動 3，高温高圧水 4

1. 緒言

銅合金の 1 つである CuCrZr 合金は核融合炉ダイバータ構造材料の候補の一つである。原型炉では水冷却方式の概念が採用されおり、CuCrZr 合金は冷却管として使用される。水冷却システム全体の健全性を確保するためには、多様な水化学条件での CuCrZr 合金と高温高圧水との共存性の理解が必要となる。さらに CuCrZr 合金の高温高圧水腐食特性は放射線により影響されると考えられるため、その基礎的知見の蓄積は重要である。本研究では溶存酸素量が低い脱気環境下における高温高圧水中での CuCrZr 合金の浸漬試験を実施し、本環境下における CuCrZr 合金の腐食挙動及び、浸漬後の表面性状を評価する。

2. 実験方法

供試材はクーポン形状（$10^{L}\times10^{W}\times1.5^{T}$ mm）の CuCrZr 合金、ITER グレード材である。試料表面はアルミナ研磨剤（0.05 μm）を用いたバフ研磨により、鏡面仕上げとした。浸漬試験は高温高圧水腐食装置を用い、温度 230 ℃、圧力 5 MPa、溶存酸素量 5 ppb にて実施し、浸漬時間は最大 1000 時間とした。浸漬試験後の評価として、重量測定、走査型電子顕微鏡(SEM)観察(日本電子 JSM-6700F)、X 線回折(XRD)測定(Rigaku Ultima Ⅳ)、X 線光電子分光(XPS)測定(日本電子 JPS-9010MX)を用いて評価した。

3. 結果

本条件下において CuCrZr 合金は浸漬試験後、重量減少を示し、浸漬時間の増加に伴い重量減少量が増加する傾向が見られた。図 1 に浸漬試験後の CuCrZr 合金表面の SEM 観察結果を示す。浸漬初期から試料表面に腐食層の形成が見られた。また浸漬時間の増加により、試料表面の複数個所にクラックの存在も観察された。一方、XRD 測定結果では母材由来のピークのみが同定され、酸化物等のピークは観察されなかったため、腐食層は非常に薄い厚さであることが示唆される。発表当日は、XPS による表面腐食層の解析結果についても報告する。

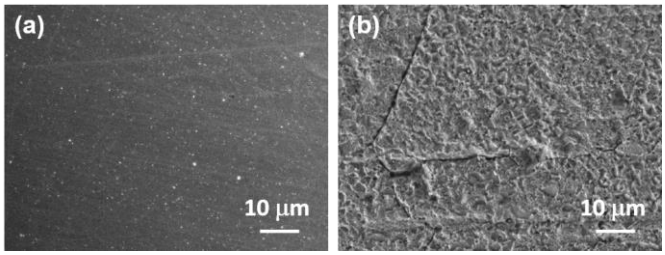


図 1　浸漬試験後の CuCrZr 合金表面の SEM 観察結果：（a）浸漬前、（b）浸漬後（浸漬時間 1000 時間）

*Naofumi Nakazato[1], Taisei Nemoto[1], Yu Seiriki[1], Motoki Nakajima[2], Yen-Jui Huang[2], Takashi Nozawa[2] and Hirotatsu Kishimoto[1]

[1]Muroran Institute of Technology, [2] National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology

Corrosion Issues of Cu-alloy toward DEMO Divertor
（3）Corrosion behavior of CuCrZr alloy in hydrogen-dissolved high temperature high pressure water environment

*Yen-Jui Huang[1], Motoki Nakajima[1], Naofumi Nakazato[2], Taisei Nemoto[2], Yu Seiriki[2], Takashi Nozawa[1], Hirotatsu Kishimoto[2]

[1]QST [2]Muroran IT

Abstract

The compatibility of Cu-alloy (CuCrZr) with high-temperature high-pressure water, and its corrosion behavior was evaluated. Static corrosion tests in hydrogen-dissolved water were conducted up to 500hr. Weight change of specimens was smaller than those in deaerated water. Specimen surface was sponge-like with crystals on surface.

Keywords: Diverter, Corrosion, Cu-alloy, High temperature pressurized water

1. Introduction

CuCrZr alloy is the major candidate material of cooling pipe of water-cooling divertors in ITER and DEMO fusion reactors [1,2]. To ensure the integrity of water-cooling system, it is necessary not only to understand the compatibility of CuCrZr alloy with high-temperature and high-pressure water but also to evaluate corrosion behavior [3]. On the other hand, as those in-service LWRs, hydrogen injection technique may be applied to mitigate corrosion. Hydrogen isotope permeation from high density plasma to coolants may also increase dissolved hydrogen (DH) content. This study focused on the static corrosion behavior of CuCrZr alloy in high-temperature high-pressure water with DH. After tests, the weight change was measured; specimen surface and depth profile were analyzed by SEM and TEM.

2.Experimenatls

The solution-annealing and aged (SAA) heat-treated CuCrZr coupon was prepared and polished up to 0.05 μm before tests. Tests were conducted in a supercritical water circulation loop with pressure at 15MPa, temperature at 200 and 230°C, respectively. The flow rate was ~0.7 L/h so as to replace whole water in autoclave every hour. Testing time was 500 hours. After tests, the weight change was measured; specimen surface was analyzed by SEM.

3.Results and discussion

Fig. 1 shows the weight change of Cu alloy by the static corrosion experiments. The weight loss of specimens in deaerated water condition was around -0.3 mg/cm^2, showing sponge-like surface morphology. Contrarily, with DH addition, weight loss was quite smaller. The surface morphology of the specimen in hydrogen-dissolved water was also sponge-like but with additional crystals on the surface. STEM-EDX depth profile suggested that crystals were not copper oxides but a recrystallized crystal.

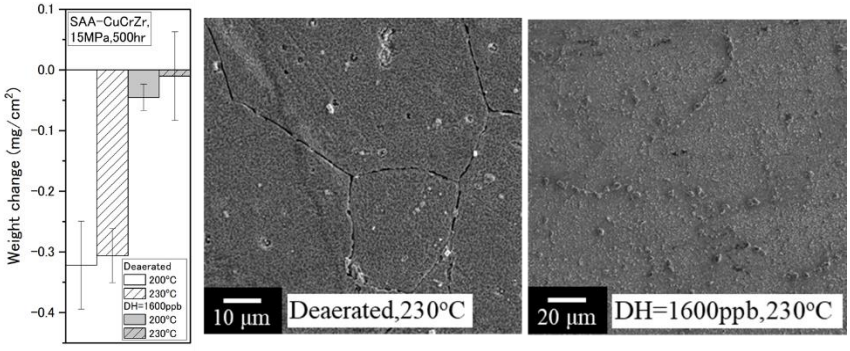


Fig. 1 The weight change and SEM photos of CuCrZr alloy after 500-hour test in high-pressure high-temperature water with deaerated and DH=1600ppb.

References

[1] N. Asakura et al 2017 Nucl. Fusion 57 (2017) 126050 [2] Linke J., 2005 Fusion Sci. Tech 47 678-685

[3] V. Belous et al. JNM 258-263 (1998) 351-356

トリチウム透過低減被覆の高圧水共存性試験

Compatibility test of tritium permeation barrier coatings with pressurized water

*近田 拓未[1]，中島 基樹[2]，鈴木 亮権[1]，大塚 哲平[3]，原 正憲[4]，野澤 貴史[2]
[1]静岡大学，[2]QST，[3]近畿大学，[4]富山大学

トリチウム透過低減被覆の固体増殖水冷却ブランケット環境下における安定性を検討するために、低放射化フェライト鋼基板および被覆試料の高圧水曝露試験を行った。

キーワード：トリチウム，透過，被覆，高圧水，腐食

1. 緒言

核融合炉ブランケットにおける構造材料からのトリチウムの透過漏洩は、多くのブランケット概念で考慮すべき重要課題であり、これまで被覆によるトリチウム透過低減技術が研究開発されてきた。一方、日本の核融合原型炉では、リチウムセラミックスペブルをトリチウム増殖材、高圧水を冷却材として用いることが検討されているため、これらの材料と共存し機能を発揮することが求められる。そこで本研究では、低放射化フェライト鋼および種々のトリチウム透過低減被覆の高圧水への曝露試験を行い、固体増殖水冷却ブランケットにおける冷却系側に被覆を施した場合の共存性について調べた。

2. 実験

低放射化フェライト鋼 F82H 平板を基板として、表面熱処理で生成させた酸化クロム（Cr_2O_3）層、また過去に高い水素同位体透過低減性能を示した有機金属分解法で成膜した酸化エルビウム（Er_2O_3）被覆および酸化ジルコニウム（ZrO_2）被覆[1]を用い、溶存酸素（< 5 ppb）、溶存水素（< 1.6 ppm）、pH（7～9）、電気伝導度（< 1 μS/cm）を制御した 300 °C、15 MPa の高圧水に静置場で 500 時間曝露した。曝露前後の試料表面の走査型電子顕微鏡（SEM）による観察および X 線回折（XRD）による結晶構造解析を行った。

3. 結論

図に高圧水曝露後の Er_2O_3 被覆の表面 SEM 像を示す。曝露前は平滑だった表面が細長い粒状に変化し、一部で被覆の隆起や剥離が見られた。XRD スペクトルから、ErOOH や $Er(OH)_3$ の生成が確認されたことから、Er_2O_3 被覆は高圧水と反応し劣化したと考えられる。一方、Cr_2O_3 生成試料や ZrO_2 被覆試料では、表面組織の変化は小さく、XRD の結果からも高圧水とほとんど反応しなかったと考えられる。発表では、高圧水曝露後試料の重水素透過試験結果についてもあわせて報告する。

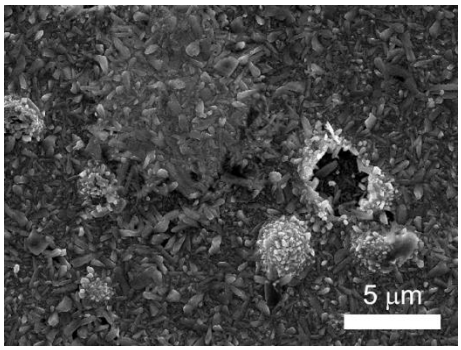


図　高圧水曝露後の Er_2O_3 被覆の表面 SEM 像

参考文献

[1] T. Chikada et al., Fusion Engineering and Design 138 (2018) 215–218.

---

*Takumi Chikada[1], Motoki Nakajima[2], Akiyoshi Suzuki[1], Teppei Otsuka[3], Masanori Hara[4], and Takashi Nozawa[2]
[1]Shizuoka Univ., [2]QST, [3]Kindai Univ., [4]Univ. Toyama

Oral presentation | VI. Fusion Energy Engineering | 601-2 Fusion Reactor Material Science (Reactor and Blanket Materials, Irradiation Behavior)

[3L05-09] Chemical Compatibility of Materials 2

Chair: Naoko Oono-Hori (Hokkaido Univ.)

Fri. Mar 19, 2021 10:35 AM - 12:00 PM Room L (Zoom room 12)

[3L05] Material compatibility of cement and concrete materials with various liquid metals

*Katsuya Murakami[1], Yukihiro Miyakawa[1], Yuki Kano[1], Nobuhiro Chijiwa[1], Minho O[1], Teruya Tanaka[2], Masatoshi Kondo[1] (1. Tokyo Tech, 2. NIFS)

10:35 AM - 10:50 AM

[3L06] Fundamental study on fretting corrosion of various materials in solid breeder blanket

*Naoki Takahashi[1], Jae-Hwan Kim[2], Masaru Nakamichi[2], Masatoshi Kondo[1] (1. Tokyo Tech, 2. QST)

10:50 AM - 11:05 AM

[3L07] Detection of mass transfer in liquid metals by quartz crystal microbalance

*Leo Iizuka[1], Masatoshi Kondo[1], Satoshi Satou[2] (1. Tokyo Tech, 2. QST)

11:05 AM - 11:20 AM

[3L08] In-situ electrochemical impedance spectroscopy on self-healing behavior of oxide layer in liquid lead

*Atsushi Kawarai[1], Masatoshi Kondo[1] (1. Tokyo Tech)

11:20 AM - 11:35 AM

[3L09] Chemical compatibility of various steels for liquid Sn divertor concepts

*Yukihiro Miyakawa[1], masatoshi KONDO[1] (1. Tokyo Tech)

11:35 AM - 11:50 AM

©Atomic Energy Society of Japan

様々な液体金属とセメント及びコンクリートの材料共存性に関する研究

Material compatibility of cement and concrete materials with various liquid metals

*村上 勝也[1]，宮川 幸大[1]，嘉納 悠生[1]，千々和 伸浩[1]，オ ミンホ[1]，田中 照也[2]，近藤 正聡[1]
[1]東京工業大学，[2]核融合科学研究所

様々な液体金属(Pb, Pb-16Li, Pb-Bi, Sn)環境下におけるコンクリート材料の化学的共存性を調べた。セメント硬化体やコンクリートの短冊状試験片を500℃の液体金属に浸漬し、250時間保持し共存性試験を実施した。セメント硬化体及びコンクリート試験片と液体金属の接液界面の状態を電子顕微鏡等で観察した。液体Pb中では、Siが Pb 中に溶出する現象が見られ、骨材を使用したコンクリートとセメント硬化体では Si の溶出量に差があることがわかった。

キーワード:液体ブランケット，液体ダイバータ，液体金属，化学的共存性，コンクリート，セメント

1. 緒言 核融合炉の液体ブランケットや液体ダイバータを開発する上で、液体燃料増殖材や液体金属冷却材の漏洩事故時における建屋コンクリートとの化学的共存性を考慮する必要がある。本研究の目的は、液体金属とコンクリート材料の高温時の化学的共存性を調べ、コンクリート内に含まれる骨材が共存性へ与える影響やセメントと骨材の界面の液体金属感受性をセメントやコンクリートを使用した共存性試験により明らかにすることである。

2. 実験方法 セメント硬化体及びコンクリートの短冊状試験片(10×15×4mm)を 316L(Fe-18Cr-12Ni-2Mo)製の坩堝に入れ、3cc の液体金属(鉛(Pb), 鉛リチウム合金(Pb-16Li), 鉛ビスマス合金(Pb-Bi), 錫(Sn))に浸漬して試験キャプセルとした。セメントの主成分は CaO, SiO_2、骨材の主成分は SiO_2 である。セメント硬化体試験片の水セメント比(W/C)は 20%, 35%, 55%(Sn のみ), 70% [1]、コンクリート試験片は 50%である。また、コンクリート試験片内の骨材の容積は全体の 66.7%、骨材中における細骨材の割合は 42.7%である。この坩堝を Ar 雰囲気下において 500℃で 250 時間浸漬し、試験後に固化した液体金属と試験片との接液界面の断面を SEM/EDX により分析した。

3. 実験結果・考察 液体 Pb に浸漬したセメント硬化体試験片及びコンクリート試験片の接液界面の断面 SEM 像及び EDX マッピング分析結果を Fig.1 と Fig.2 に示す。セメントとコンクリートの両方の試験において、直径 20μm 以下程度の Si の析出物が検出された。これは液体 Pb 中へ溶出した Si が析出したものと推定される。また、その溶出量は Si 濃度が高い骨材を含むコンクリート試験片の方が多くなっていた。Fig.2 は、コンクリート試験片のセメントと骨材の境界部分を観察したものである。画像右上部がセメント，右下部が骨材であると推定される。コンクリート試験片ではセメントと骨材の境界面に Pb が約 80μm 程度の深さで入り込んでいる様子が見られた。

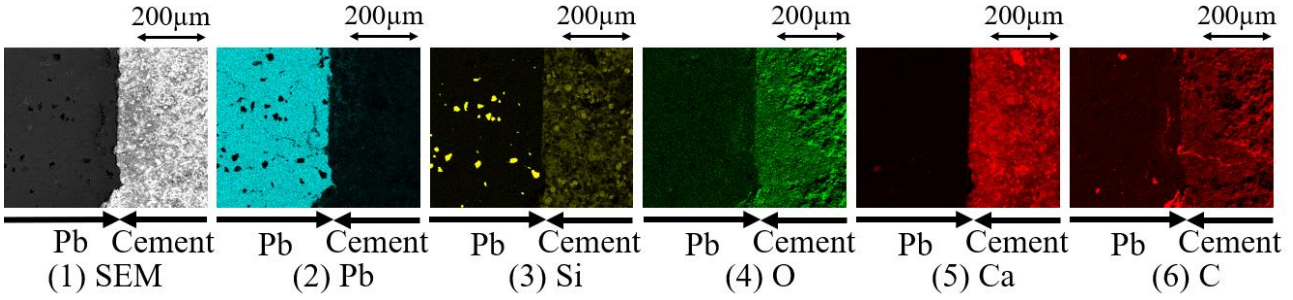


Fig.1 液体 Pb 浸漬後のセメント試験片の SEM/EDX 分析結果

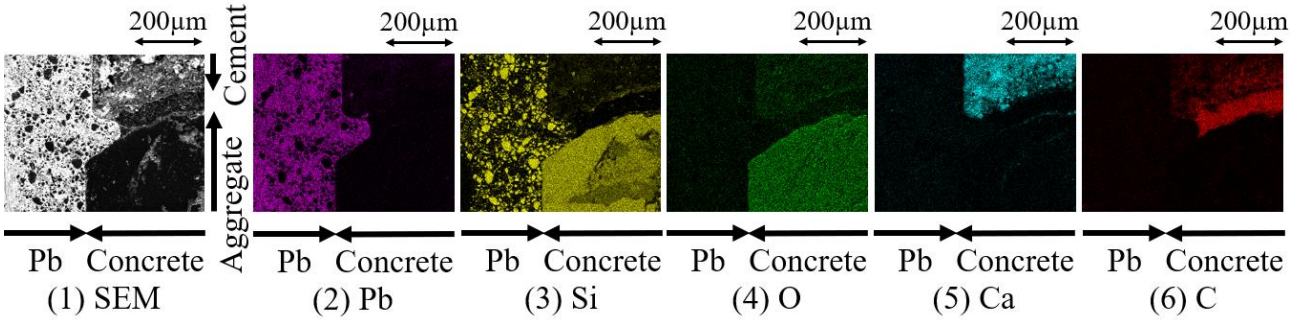


Fig.2 液体 Pb 浸漬後のコンクリート試験片の SEM/EDX 分析結果

参考文献 [1] 嘉納，近藤，千々和 et al.，液体金属とコンクリート材料の共存性に関する研究, AESJ 春の年会, 1L10, 2020.

*Katsuya Murakami[1], Yukihiro Miyakawa[1], Yuki Kano[1], Nobuhiro Chijiwa[1], Minho O[1], Teruya Tanaka[2] and Masatoshi Kondo[1]
[1]Tokyo Institute of Technology, [2]National Institute of Fusion Science

核融合炉の固体増殖ブランケットにおける フレッチングコロージョンに関する基礎的研究

Fundamental study on fretting corrosion of various materials in solid breeder blanket

*髙橋 尚希[1]，近藤 正聡[2]，金 宰煥[3]，中道 勝[3]
[1]東京工業大学工学院機械系，[2]東京工業大学科学技術創成研究院，
[3]量子科学技術研究開発機構核融合エネルギー部門

核融合 DEMO 炉の固体燃料増殖ブランケット内では，冷却材の流動により振動する配管がトリチウム増殖材(Li_2TiO_3 微小球)と接触しながら連続的に振動する事でフレッチングコロージョンが生じる可能性がある．Li_2TiO_3 や候補構造材である F82H 等を用いてフレッチング試験を実施し，基礎的挙動を機構論的に調べた．

キーワード： 核融合，フレッチングコロージョン，固体増殖ブランケット，低放射化フェライト鋼

1. 緒言 核融合 DEMO 炉の燃料増殖ブランケットでは，F82H を構造材料とするブランケット筐体中にトリチウム増殖材である Li_2TiO_3 が微小球の形で充填される．ブランケット内において冷却配管が流力振動すると，微小球と配管壁の間にフレッチングコロージョンが発生する恐れがある．本研究では，新たに製作したフレッチング腐食試験装置を用いて Li_2TiO_3 や F82H を含む様々な材料を対象とした予備的試験を室温・大気環境下で実施した．本研究の目的は，基礎的なフレッチングコロージョン挙動を調べることである．

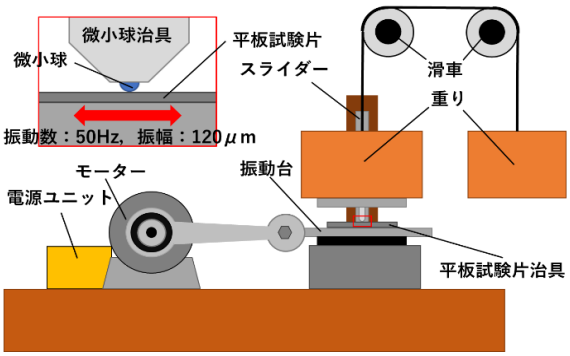


図 1. フレッチング腐食試験装置

2. 実験方法 図 1 に，本研究で新たに製作したフレッチング腐食試験装置の構造を示す．室温の大気環境下において，振幅 120μm，振動数 50Hz で振動する平板試験片上に微小球を 4.9N 及び 2.0N の荷重を与えて点接触させた．試験時間は 1 分，10 分，300 分である．微小球材料には Li_2TiO_3(φ1.2mm)，Al_2O_3(φ1.0mm)，304(Fe-18Cr)(φ1.0mm)，平板試験片材料には 430(Fe-18Cr)，F82H(Fe-7.7Cr-1.94W)，Fe を用いた．試験後，微小球および平板試験片上の擦過や酸化の状態を SEM/EDX により，平板試験片表面の擦過痕の深さ等を分析した．

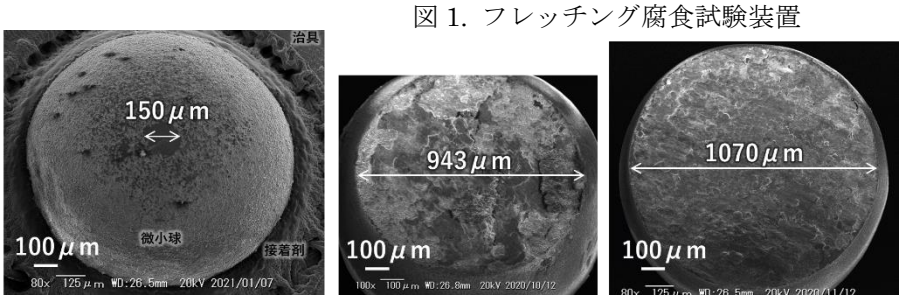


図 2. Li_2TiO_3 球/F82H(常温大気下，荷重 4.9N)試験後の Li_2TiO 球
(a)1 分試験後 (b)10 分試験後 (c)300 試験後

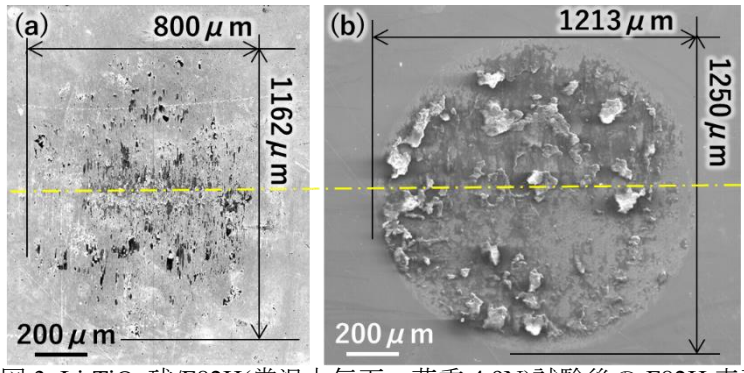


図 3. Li_2TiO_3 球/F82H(常温大気下，荷重 4.9N)試験後の F82H 表面
(a)10 分試験後 (b)300 試験後

3. 実験結果 図 2 は常温大気環境下において，4.9N の荷重を加えながら水平方向に振動する F82H に接触させた Li_2TiO_3 球を SEM により撮影したものである． Li_2TiO_3 球に大きな損傷が見られた． 1 分試験後の Li_2TiO_3 微小球の接所部には，直径約 150μm ほどの擦過痕が観察されたが，化学組成の変化は見られなかった．図 3 は F82H 表面に形成された擦過痕を SEM によって観察した結果である．300 分試験の F82H 試験片上には最大深さ約 40μm の擦過跡に加え，平板試験片材料の酸化，破損した Li_2TiO_3 片の付着が確認された．EDX による化学組成の分析から，Li_2TiO_3 球を用いた試験で発生したフレッチングデブリは Ti と O を主成分としており，破損した Li_2TiO_3 である事が示唆された．304 微小球を用いた試験では，F82H 試験片上に深さ 30μm の擦過跡が見られ，フレッチングデブリは Fe や Cr の酸化物である事が分かった．

*Naoki Takahashi[1], Masatoshi Kondo[2], Kim Jae-Hwan[3], Nakamichi Masaru[3] 1 Tokyo Institute of Technology, School of Engineering, Department of Mechanical Engineering, Graduate Major in Nuclear Engineering, 2 Tokyo Institute of Technology, Institute of Innovative Research, Laboratory for Advanced Nuclear Energy, 3 Quantum and Radiological Science and Technology

水晶振動子マイクロバランス法による液体金属環境下物質輸送現象に関する研究

Detection of small mass transfer in liquid metals by quartz crystal microbalance

*飯塚 玲雄[1], 近藤 正聡[2], 佐藤 聡[3]

[1] 東京工業大学工学院機械系, [2] 東京工業大学科学技術創成研究院, [3] 量子科学技術研究開発機構

液体金属リチウムやナトリウム中において溶出しやすい鋼材構成元素であるニッケル(Ni)の 473 K 及び 523 K における物質輸送挙動を水晶振動子マイクロバランス法(QCM)により明らかにした。液体金属中の Ni 溶解度のモデル評価により、これらの液体金属中における拡散係数を求めた。

キーワード： 水晶振動子マイクロバランス法、液体金属、物質輸送現象、腐食、拡散係数

1. 緒言 液体リチウム(Li)やナトリウム(Na)は、核融合炉の燃料増殖材や核融合中性子源のターゲット材、高速増殖炉の冷却材として期待されている。しかし、候補構造材料であるオーステナイト鋼は液体 Li や Na に対して大きな溶解度を示すニッケル(Ni)を含み、化学的共存性に課題がある。高温条件における共存性データに比べ、低温条件における共存性データは圧倒的に少ない。水晶振動子マイクロバランス法(QCM)は、その電極材料の微小な質量増減を共振周波数の変化として取り出すことができる。本研究では、水晶振動子の Ni 電極を液体 Li や液体 Na と接触させ、その共振周波数の変化から QCM を用いて、液体金属中に溶解した Ni の質量を測定した。モデル評価から拡散係数等のパラメータを算出し物質輸送現象を明らかにした。

2. 実験方法 直径 5 mm の電極として厚さ約 300 nm のニッケル(Ni)がコーティングされた水晶振動子を用いた。水晶振動子の基本振動数は約 9 MHz である。Ar ガスで満たされたグローブボックス内で、Fig.1 に示すように Ni コーティング上に同径の筒を配置し、切断した Li もしくは Na(約 0.05 cc)を入れた。加熱温度を 473 K、523 K にして、加熱時間を 600 s と 1200 s とした。実験後、水晶振動子に付着した Li と Na を水とエタノールで除去した。その後、水晶振動子の共振周波数を測定し、実験前後の振動数の変化を Saurbrey の式(Eq.(1))により Ni の溶解量として評価した。

$$\Delta f = -\frac{2f_0^2}{A\sqrt{C_q\rho_q}}\Delta m \qquad (1)$$

ここで、Δf は振動数変化[Hz]、f_0 は固有振動数[Hz]、A は電極面積[cm^2]、C_q は剛性率[g/cm/s^2] 、ρ_q は密度[g/cm^3] 、Δm は質量変化[g]である。

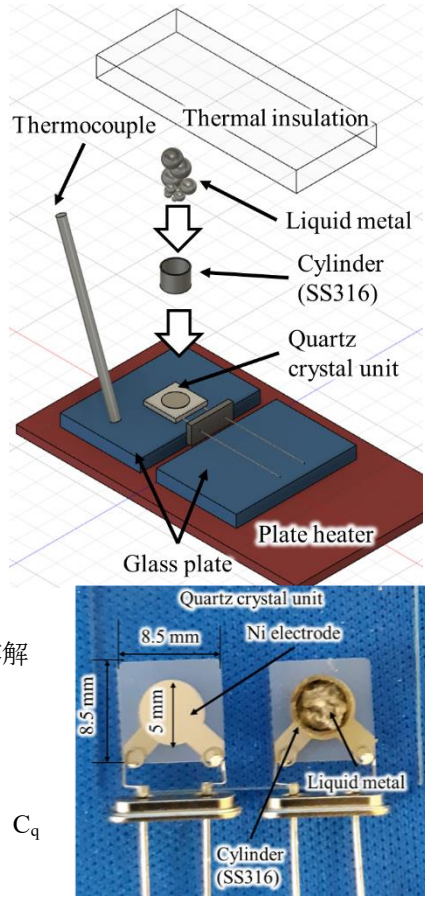


Fig.1 Experimental apparatus of QCM test

3. 実験結果・考察 液体金属中への Ni の溶出質量を Fig. 2 に示す。473K と 523 K の Ni 電極の液体 Li 中への溶解量の平均値は、それぞれ 6.69×10^{-3} g/m^2 と 1.29×10^{-2} g/m^2 であった。473 K で 600 s および 1200 s 加熱した時の Ni の液体 Na 中への溶解量は、それぞれ 3.43×10^{-3} g/m^2 と 6.67×10^{-3} g/m^2 であった。既往研究におけるオーステナイト鋼の腐食の温度依存性と良く合致する事が分かった。フィックの第二法則により液体金属静止場の拡散係数を求めた結果、473K における Ni の液体 Li への拡散係数は 1.17×10^{-10} m^2/s であり 523 K では 1.95×10^{-10} m^2/s と求められた。473 K における Ni の液体 Na 中への拡散係数は 1.16×10^{-12} m^2/s と求められた。

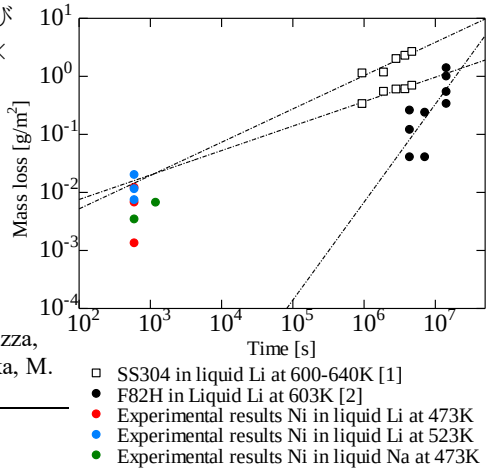


Fig.2 Results of mass loss of Ni in liquid Li and Na at 473K and 523K

参考文献

[1] X. Meng, G. Zuo, W. Xu et al, Fusion Eng. Des. **128** (2018) 75–81 [2] P. Favuzza, A. Aiello, A. Antonelli et al, Fusion Eng. Des. **136** (2018) 1417-1421 [3] L. Iizuka, M. Kondo, ITC29 Poster-1-F4-8

*Reo Iizuka[1], Masatoshi Kondo[2], Satoshi Sato[3]

1 Tokyo Institute of Technology, School of Engineering, Department of Mechanical Engineering, Graduate Major in Nuclear Engineering, 2 Tokyo Institute of Technology, Institute of Innovative Research, Laboratory for Advanced Nuclear Energy, 3 Quantum and Radiological Science and Technology

電気化学インピーダンス法を用いた
液体金属環境下酸化被膜形成挙動の In-situ 観測

In-situ electrochemical impedance spectroscopy on self-healing behavior of oxide layer in liquid lead

*瓦井　篤志[1]，近藤　正聡[1,2]

[1] 東京工業大学工学院機械系，[2] 東京工業大学科学技術創成研究院先導原子力研究所

液体金属鉛(Pb)中における酸化被膜の自己修復挙動を，電気化学インピーダンス法を用いた In-situ 計測により明らかにした．溶存酸素濃度が飽和条件に近い液体 Pb に金属ジルコニウム(Zr)を浸漬し酸化被膜を形成させた．この酸化被膜の一部を旋盤を用いて人工的に破壊し，液体 Pb に再度浸漬した．電気化学インピーダンス計測，レーザー顕微鏡(LSM)，電子顕微鏡(SEM/EDX)による分析により，被膜の自己修復挙動を捉えた．

キーワード：液体金属，鉛，ジルコニウム，酸化被膜，鉛冷却炉

1. 緒言　液体金属鉛(Pb)は，高速炉の冷却材として期待されている．しかし，構造材料との化学的共存性が課題である．材料共存性は，保護性のある酸化被膜の形成により改善される事が分かっている．本研究の目的は、液体 Pb 中における酸化被膜の自己形成/修復挙動を，電気化学インピーダンス法を用いて明らかにする事である．

2. 実験装置・実験方法　Fig. 1 に実験装置を示す. Ar 置換した加熱容器内に鉛を充填した坩堝を設置した．容器上部より電極に接続した Zr 試験片(基準極)，作用極，固体電解質酸素センサー，熱電対を挿入し，直接浸漬した．試験温度は 773K である．浸漬直後より，試験片，作用極間に交流電圧を印加し，100mHz~1MHz での，インピーダンスの周波数特性を測定し続けた．途中で，酸化被膜を形成した Zr ロッドを取り出し，その酸化被膜の一部を旋盤により人工的に破壊した．この Zr ロッドを液体 Pb 中に再度浸漬して被膜を自己修復させた．浸漬終了後，試験片の表面及び断面を電子顕微鏡(SEM/EDX)やレーザー顕微鏡(LSM)により観察した．

3. 結果　酸素センサーの出力から，液体 Pb 中の溶存酸素濃度が飽和条件に近い事がわかった．Fig. 2 に各試験前後の試験片の写真及び，再浸漬後の断面 SEM 像を示す．Fig. 3 に示すように，Zr ロッドの浸漬開始から 46 時間経過後に，酸化被膜の電気的特性を模擬した RC 並列回路に特有のナイキストプロットが得られた．一部の酸化被膜を破壊した後に，浸漬を再開した後，同様のナイキストプロットが得られた． Fig. 4 は， LSM による酸化膜除去部の浸漬前後の分析の結果を示す．切削による破損部が回復しており，液体 Pb 中において破損した酸化膜が自己修復した為と考えられる．こうした結果は，酸化膜の形成，自己修復の過程を in-situ で観察する事に成功したことを示唆する．

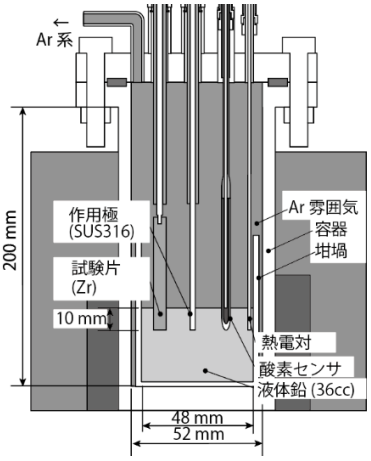


Fig. 1 試験装置の概略図

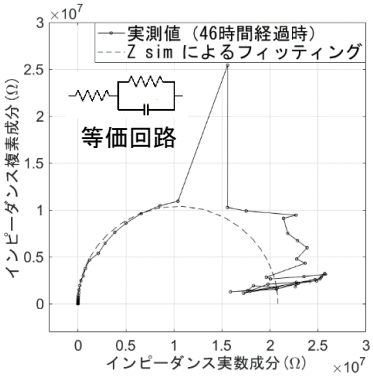


Fig. 3 インピーダンスのナイキストプロット

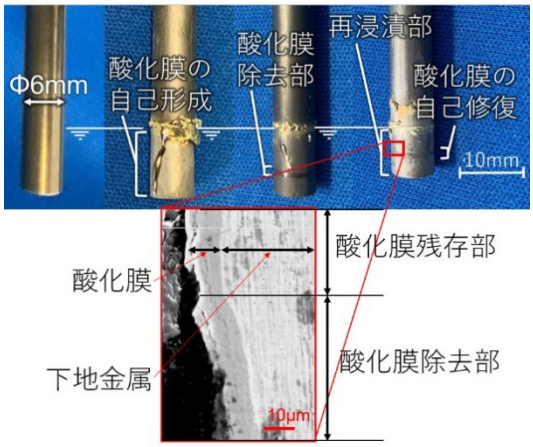


Fig. 2 各試験前後の試験片及び再浸漬後の酸化膜除去部/残存部境界の SEM 像

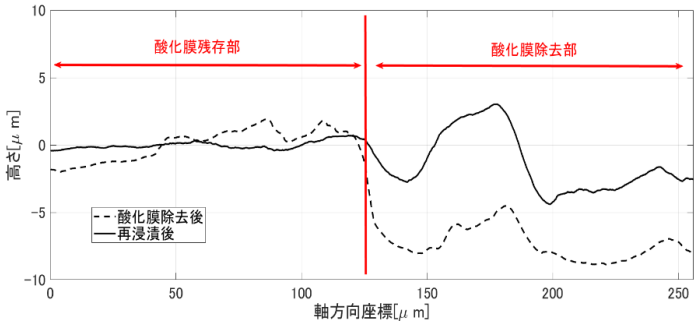


Fig. 4 酸化膜残存部/除去部における再浸漬前後の表面形状

*Atsushi Kawarai[1], Masatoshi Kondo[1,2]

[1]Tokyo Institute of Technology, [2] Laboratory for Nuclear Reactors.

核融合炉液体 Sn ダイバータにおける鉄鋼材料の化学的共存性に関する研究

Chemical compatibility of various steels for liquid Sn divertor concepts

*宮川幸大[1]，近藤正聡[2]
[1] 東京工業大学大学院工学院機械系原子核工学コース，[2] 東京工業大学科学技術創成研究院

液体金属錫(Sn)中における Fe、Fe-5Cr、JLF-1、410、430、316L、Mo の材料共存性を 500℃、250 時間の静止場腐食試験により調べた。試験後に試験片の表層断面の SEM/EDX 分析を実施した結果、鉄鋼材料試験片の表面に Fe と Sn の金属間化合物による複数の層が形成されている事が分かった。試験片の腐食に伴う重量損失を測定した結果、Fe 含有率と重量損失に正の相関関係があることが分かった。

キーワード：核融合炉，液体ダイバータ，錫，腐食，材料共存性．鉄鋼材料

1. 緒言 液体金属錫(Sn)は、核融合炉の液体ダイバータの冷却材として期待されている。候補構造材料との化学的共存性が課題とされているが、共存性の改善に繋がる情報は未だ限定的である。本研究の目的は、液体金属 Sn 中における様々な鉄鋼系材料の材料共存性を明らかにし、腐食の原因と改善策を明らかにする事である。

2. 実験方法 Fe、Fe-5Cr、JLF-1(Fe-9Cr-2W-0.1C)、410(Fe-12Cr)、430(Fe-18Cr)、316L(Fe-18Cr-12Ni-2Mo)、Mo の短冊状試験片 15mm×10(~15)mm×0.7(~1.35)mm を、液体金属 Sn(約 3cc)を充填した 316L 製の坩堝内に設置し、500℃の温度条件 250 時間保持した。試験後、坩堝から取り出した試験片の中央部を切断し、表層断面の SEM/EDS 分析を実施した。一部の試験片は液体リチウムを用いて試験片に付着した Sn を除去し、腐食に伴う重量損失を測定した。

3. 実験結果・考察 Fig.1 に、Sn が付着した状態の試験後試験片の鋼材表層断面の SEM/EDX 分析の結果を示す。Fe、Fe-5Cr、430 と Sn との境界に、Fe と Sn の金属間化合物の層が形成されており、母相側では FeSn が形成されている事が分かった。鋼材中に拡散した Sn との合金化反応によるものであると考えられる。一方で、Sn 側では $FeSn_2$ の層が形成されている事が分かった。母材から Fe が Sn 中に溶け出し、Sn 境界に向かうにしたがい Fe の拡散する割合が減少したためだと考えられる。Fig.2 に試験片の重量損失と Fe 含有率の相関を示す。Fe 試験片は、洗浄により FeSn 層を完全に除去できなかった。その際の重量損失は点線丸で示す。Fe 試験片の健全部の体積と重量を概算する事により求めた重量損失を緑四角で示した。Fe を全く含まない Mo 試験片の重量損失は非常に小さく、Fe 含有率が高い試験片の重量損失が大きい事が分かる。その傾向を Mo 試験片のデータを考慮した場合としない場合で示した。Fig.3 に未洗浄試験片に形成された FeSn と $FeSn_2$ の層の厚さを示す。Cr 含有量が増加するにしたがって、合金層の厚さが薄くなる事が示唆されていた。しかし、Fig.2 のようにして Cr 含有量と重量損失の相関を調べたところ明らかな傾向は得られなかった。腐食に影響する材料中 Fe 濃度を下げる事により腐食を抑制できると考えらえる。

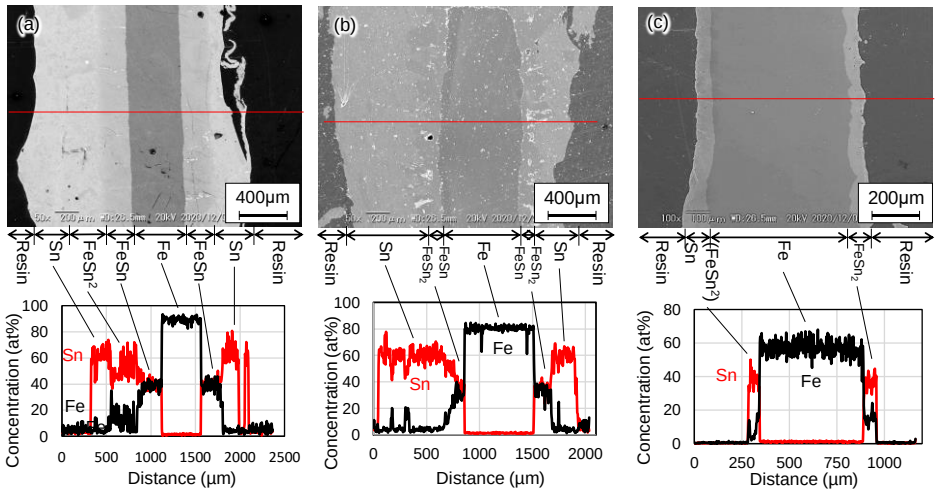


Fig.1 Fe,Fe-5Cr,430(Fe-18Cr)の未洗浄試験片の断面 SEM 分析結果

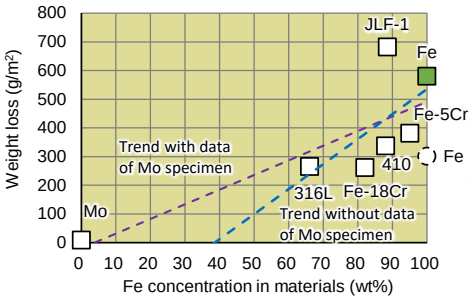


Fig.2 試験材料中の Fe 含有率と重量損失の関係

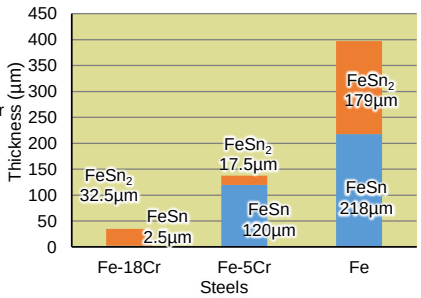


Fig.3 Fe,Fe-5Cr,430(Fe-18Cr),の Fe-Sn 含有層の厚さ

*Yukihiro Miyakawa[1], Masatoshi Kondo[2],
1 Tokyo Institute of Technology, School of Engineering, Department of Mechanical Engineering, Graduate Major in Nuclear Engineering, 2 Tokyo Institute of Technology, Institute of Innovative Research, Laboratory for Advanced Nuclear Energy

Oral presentation | VI. Fusion Energy Engineering | 601-3 Tritium Science and Technology (Fuel Recovery and Refining, Measurement, Isotope Effect, Safe Handling)

[3L10-15] Tritium Engineering

Chair: Hirofumi Nakamura (QST)

Fri. Mar 19, 2021 2:45 PM - 4:30 PM Room L (Zoom room 12)

[3L10] Monte Carlo simulation of beta-ray induced X-ray spectrum of tritium in solid

*masanori hara[1], Kenjio Aoki[1], Tsukasa Aso[2] (1. University of Toyama, 2. National Institute of Technology, Toyama College)

2:45 PM - 3:00 PM

[3L11] Study on T-production Li rod for HTGR

*Yuki Koga[1], Hideaki Matsuura[1], Kazunari Katayama[1], Teppei Otsuka[2], Minoru Goto[3], Shimpei Hamamoto[3], Etsuo Ishitsuka[3], Shigeaki Nakagawa[3], Kenji Tobita[4], Ryoji Hiwatari[5] (1. Kyushu Univ., 2. Kinki Univ., 3. JAEA, 4. Tohoku Univ., 5. QST)

3:00 PM - 3:15 PM

[3L12] Study of WDS for DEMO applied with heavy water cooled blanket (2)

*Takahiko Sugiyama[1] (1. Nagoya Univ.)

3:15 PM - 3:30 PM

[3L13] Study on the Tritium Release Behavior from Neutron Irradiated Li_2TiO_3

*Akito Ipponsugi[1], Kazunari Katayama[1], Tsuyoshi Hoshino[2] (1. kyushu university, 2. QST)

3:30 PM - 3:45 PM

[3L14] Computer simulation of tritium recovery from neutron-irradiated tungsten

*Yuji Hatano[1], Azusa Matsumoto[1] (1. Univ. of Toyama)

3:45 PM - 4:00 PM

[3L15] Study on tritium transfer behavior from soil to plants

*kazunari Katayama katayama[1], Takahiro Matano[1], Yutaro Wada[1] (1. Kyushu University)

4:00 PM - 4:15 PM

©Atomic Energy Society of Japan

モンテカルロシミュレーションによる固体中トリチウムのベータ線誘起X線スペクトル

Change in beta ray induced X-ray spectrum of tritium in solid by Monte Carlo simulation

*原　正憲[1]，青木　賢二郎[1]，阿蘇　司[2]
[1]富山大学，[2]富山高専

固体中にあるトリチウムのβ線により誘起されたX線を固体の外側で測定した際のスペクトルをモンテカルロシミュレーションにより計算した。この際、固体中のトリチウムの分布によりどのように変化するかも併せて計算した。

キーワード：トリチウム，β線誘起X線スペクトル，モンテカルロシミュレーション，固体中トリチウム分布

1. 緒言　トリチウムから放出されるβ線のエネルギーは小さいため、固体中のトリチウムをβ線の測定により定量する方法はない。しかし、β線と固体の構成元素との相互作用により発生するX線を検出することで固体中のトリチウムを間接的に測定できる。β線誘起のX線スペクトル（BIXスペクトル）の形状は、固体中のトリチウム量が同じでも固体中のトリチウム分布により変化する。この変化をシミュレーションにより求めることができれば、固体中のトリチウムの定量へつながると期待できる。そこで、モンテカルロシミュレーションにより固体中のトリチウムからのBIXスペクトルを計算した。併せて、トリチウム分布の変化によるBIXスペクトルの形状と強度の変化も計算した。

2. シミュレーション　モンテカルロシミュレーションにはGeant4ツールキットで構築されたスケルトンテンプレートであるGalet[1]を利用した。シミュレーションは、①固体中のトリチウムからβ線が発生、②β線が固体中で相互作用しX線（特性X線、制動X線）を発生、③Ge半導体検出器でX線の検出の流れで行われる。この際の相互作用の物理過程はPenelopeモデルを選択した。計算に用いた幾何構造として、試料は直径10 mm厚さ1 mmの円板とし、この円板の同軸上にベリリウム窓とゲルマニウムを配置した。このゲルマニウムに入射したX線のエネルギーをヒストグラムとして記録し、BIXスペクトルのシミュレーションスペクトルを得た。この際、実際の検出器のエネルギー分解能を考慮して入射エネルギーをガウス分布（σ=150eV）で分散させた。

3. 結果と考察　図1にBIXスペクトルの一例を示す。計算条件は試料としてタングステン、雰囲気はアルゴンとして、表面から20 nmの深さでトリチウムを2億回壊変させた。スペクトルはタングステンとアルゴンの特性X線と幅の広い制動X線により構成されていた。トリチウムの分布を変えながらスペクトルを計算し、その変化を検討した。

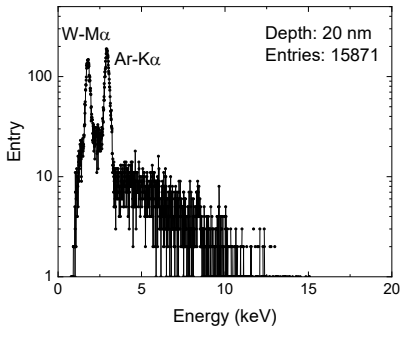


図1　BIXスペクトルの計算結果

[1] T. Aso, W. Takse, T. Sasaki, “Galet-Geant4 based application templet for primers”, Transactions on GIGAKU press, Nagaoka Univ., 6(2019)1-12.

*Masanori HARA[1], Kenjiro Aoki[1] and Tsukasa Aso[2]
[1]University of Toyama, [2]NIT. Toyama college

高温ガス炉における T 製造用 Li ロッドの検討
～炉心非均質性を考慮した Li ロッド構造と装荷法～

Study on T-production Li rod for HTGR
~ Li rod Structure and Loading Method Considering Reactor Core Heterogeneity~

*古賀友稀 [1], 松浦秀明 [1], 片山一成 [2],大塚哲平 [3], 後藤実 [4], 濱本真平 [4],
石塚悦男 [4], 中川繁昭 [4], 飛田健次 [5], 日渡良爾 [6], 坂本宜照 [6], 小西哲之 [7], 染谷洋二 [6]
[1] 九大院工, [2] 九大総理工, [3] 近大, [4]JAEA, [5] 東北大, [6]QST, [7] 京大

従来、高温ガス炉に装荷するトリチウム(T)製造 Li ロッドを全て同一の構造とした仮定で、T 製造性能の評価を行ってきた。炉心には中性子束等の空間分布が存在するため、装荷領域に応じて異なる構造の Li ロッドを装荷することで T 製造量を高められる可能性がある。これにより T 製造量は約 1 割向上した。

キーワード：核融合炉、トリチウム製造、高温ガス炉、Li ロッド、炉心非均質性

1. 緒言

核融合原型炉の起動には初期装荷トリチウム(T)が必要であるが、その調達方法は未解決の課題である。T の調達方法の一つとして、Li ロッドを高温ガス炉に装荷することによる T 製造法を提案している[1]。現在想定されている Li ロッドの構造を Fig.1 に示す。Li ロッドの円筒状 Al_2O_3 内部には $LiAlO_2$ 層があり、高温運転における T 閉じ込め性能を維持するため、T 吸収体として酸化防止用 Ni 被覆を施した Zr 層と粒状 Zr を封入することを想定している[2]。従来、高温ガス炉に装荷する Li ロッドは全て同一の構造と仮定していた。しかし、実際の炉心の組成は非均質であり、温度や中性子束等に空間分布が存在する。中性子束等の空間分布に応じて異なる構造の Li ロッドを装荷することで T 製造量を最適化し、T 流出量を低下できる可能性がある。本研究では HTTR(高温工学試験研究炉)を対象とし、燃料領域に応じて構造の異なる Li ロッドを装荷することによる T 製造及び閉じ込め性能の向上を評価した。

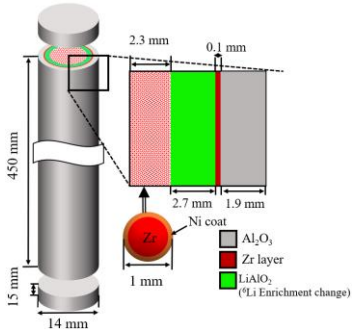


Fig.1. Li ロッドの構造

2. 評価方法

本研究では Fig.2 に示す HTTR 炉心を想定し、MVP-BURN[3]を用いた中性子輸送計算及び核燃焼計算により T 製造量及び実効増倍率(k_{eff})を評価した。計算では、制御棒は運転期間に渡り全引抜状態を仮定した。この体系で 5 段の炉心にわたる燃料領域 1~4 に装荷する Li ロッドの構造や ^{6}Li 濃縮度を Fig.1 の構造から変更し計算した。T 流出量は Zr の水素吸収時間[2]を用いて、拡散方程式を解いて求めた。

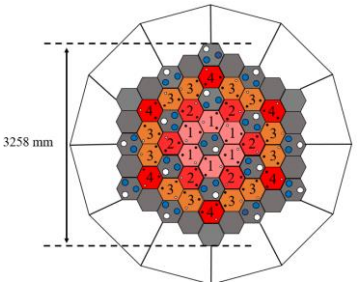


Fig.2. HTTR 炉心
(N:燃料領域番号)

3. 結果及び考察

Fig.3 に ^{6}Li 装荷量に対する 360 日運転後における通常の Li ロッドと ^{6}Li 濃縮度 90 %の Li ロッドの T 製造量と k_{eff} 示す。^{6}Li 濃縮度 90 %の Li ロッドの評価では、炉心外側[燃料領域 3,4(Fig.2)]での ^{6}Li 装荷量を通常の Li ロッドより 40 %増やした。ただし、炉心内側[燃料領域 1,2(Fig.2)]での ^{6}Li 装荷量を減らし、全体の ^{6}Li 量を通常の Li ロッドを用いた場合と一致させた。どちらの結果においても、^{6}Li 装荷量が増加するにつれて T 製造量が増加し、k_{eff} は低下した。原子炉の運転が可能な運転終了時の k_{eff} は 1.02 以上と想定したため、通常の Li ロッドの最大 T 製造量は 32 g となった。一方、^{6}Li 濃縮度 90 %の Li ロッドを使用した場合、より多くの ^{6}Li を装荷することが可能になり、最大 T 製造量は 35 g になった。この要因は以下のように考えられる。炉心内側では Li ロッド 1 本当たりの T 製造量は多いが、反応度価値が高いため ^{6}Li 装荷量を増やすことで大きく k_{eff} は低下する。一方、炉心外側で ^{6}Li 装荷量を増加しても反応度価値は小さいため k_{eff} への影響は小さいが、ロッド本数が多いため T 製造量は増加する。また、^{6}Li 濃縮度 90 %の Li ロッドは $LiAlO_2$ 体積低下分の Zr が追加されることにより T 流出量は 40 %低下した。発表では、燃料領域に応じて Li ロッド構造を変更することで生じる炉心の温度分布等の変化について報告する。

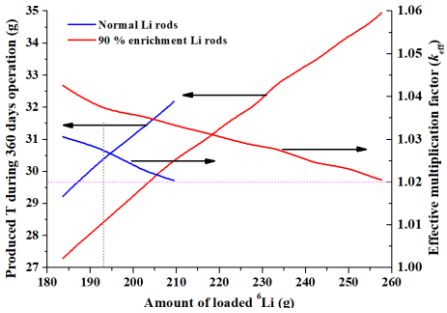


Fig.3. ^{6}Li 装荷量に対する 360 日運転後の T 製造量及び k_{eff} の変化

参考文献

[1] H. Matsuura, et al.: Nucl. Eng. Des., 243 (2012) 95-101.　[2] H. Matsuura, et al., Fusion Eng. Des. 146(2019) 1077-1081.
[3] K. Okumura, et al., J. Nucl. Sci. Tech., 37 (2000), 128-138.

*Yuki Koga[1], Hideaki Matsuura[1], Kazunari Katayama[2], Teppei Otsuka[3], Minoru Goto[4], Shimpei Hamamoto[4], Etsuo Ishitsuka[4], Shigeaki Nakagawa[4], Kenji, Tobita[5], Ryoji Hiwatari[6], Yoshiteru Sakamoto[6], Satoshi Konishi[7], Youji Someya[6]
[1,2]Kyushu Univ., [3]Kindai Univ., [4]JAEA, [5]Tohoku Univ., [6]QST, [7]Kyoto Univ.

重水冷却ブランケットを採用した原型炉の水処理システムに関する研究（２）

Study of WDS for DEMO applied with heavy water cooled blanket (2)

*杉山　貴彦[1]
[1]名古屋大学

原型炉燃料サイクルに対応する目的で，重水冷却ブランケットの適用を提案し，水処理システムを検討した．減圧水蒸留法と気相化学交換法を組み合わせたシステムにより，電気分解槽および冷却系への D_2O の供給を不要とすることができた．

キーワード：原型炉，水処理システム，重水冷却ブランケット，減圧水蒸留法，トリチウム

1. 緒言　原型炉の燃料サイクルにおいては，トリチウムと重水素の精密な分離は必ずしも必要ではないが，軽水素の除去は重要な課題である．燃料サイクルへの軽水素の混入経路の一つは，ブランケット冷却水からのトリチウム除去である．軽水素の混入を極力低減するため，本研究では，ブランケットの冷却材に重水を用いた場合について，その水処理システムの概要を考察した．減圧水蒸留塔（WD）と電気分解槽（EC）または，WD と気相化学交換塔（VPCE）を組み合わせたシステムを比較した．

2. 方法　ITER 水処理システムおよび新型転換炉「ふげん」のデータを基に，重水の処理量Fとトリチウムのモル分率x_F，トリチウムの除去速度Px_pを 83 mol/s (6 t/h)，6.85×10^{-6} (370 GBq/kg)，5.0×10^{-4} mol/s (130 g/day)とした．WD の高さHは，トリチウム濃縮流の割合θに依存するため，これを主パラメータとして理論段モデルにより計算した．VPCE は 3 段とし，各段に均等に D_2 ガスを供給した．

3. 結果と考察　結果を表 1 に示す．H は WD および VPCE の高さ，D は同じく直径である．図 1(a)のシステムや，液相化学交換法では，③の流量の電気分解が避けられない上に，冷却系に⑤の流量で D_2O を供給せねばならない．この流れ⑤は，外部から供給するか，同位体分離システムからの D_2 ガスを再結合して得なければならず，不利である．一方，図 1(b)のシステムでは，θ が 1.0×10^{-3} の場合には，VPCE に必要な D_2 ガス（④）が 2000 mol/h と非現実的に大きいが，θ を 1.0×10^{-5} とすれば，その値は 20 mol/h と実用的な値となった．また，VPCE はいずれの場合もコンパクトである．図 1(b)のシステムでは，冷却系に新たに D_2O を供給する必要が無く，この点で実現可能性がある．

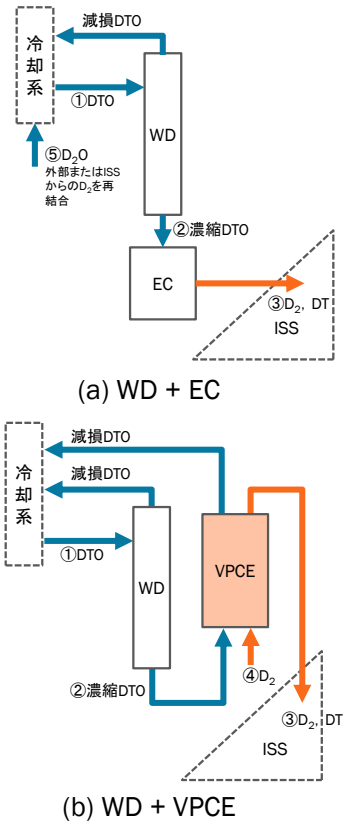


図 1　WD システムフロー図

表 1

		WD+EC			WD+VPCE		
θ		1.0E-03	1.0E-04	1.0E-05	1.0E-03	1.0E-04	1.0E-05
①	mol/h	3.00E+05					
②		3.00E+02	3.00E+01	3.00E+00	3.00E+02	3.00E+01	3.00E+00
③					2.04E+03	2.04E+02	2.04E+01
④		-	-	-			
⑤		3.00E+02	3.00E+01	3.00E+00	-	-	-
H_{WD}	m	105	133	160	114	141	169
D_{WD}	m	17					
H_{VPCE}	cm	-	-	-	30		
D_{VPCE}	cm	-	-	-	18	5.7	1.8

*Takahiko Sugiyama[1]
[1]Nagoya University

中性子照射した Li_2TiO_3 からのトリチウム放出挙動に関する研究

Study on the Tritium Release Behavior from Neutron-Irradiated Li_2TiO_3

*一本杉　旭人[1]，片山　一成[1]，星野　毅[2]

[1]九州大学，[2]量子科学技術研究開発機構

本研究では、H_2雰囲気下にて900ºCで最大720時間事前加熱後、中性子照射試験を実施したLi_2TiO_3 (Li/Ti=2.00)微小球 (QST製) からのトリチウム放出挙動の観測を行った。また、酸溶解法を応用することで、微小球内の残留トリチウム量の定量を行った。これらから、長期間加熱が与えるトリチウム放出挙動の変化を確認した。

キーワード：核変換トリチウム放出挙動、Li_2TiO_3、長期間事前加熱、Li 蒸発、酸溶解法

1. 緒言

核融合炉燃料サイクルの確立に向けて、トリチウム放出挙動の理解とブランケットトリチウムインベントリ評価が必要である。過去これまでに様々なトリチウム増殖材に対するトリチウム放出挙動の観測とそのモデル化が進められてきた[1-3]。更に高い信頼性を得るには、原型炉で想定される様な高温長時間加熱環境でのトリチウム放出特性の理解が必須である。

2. 実験

本研究では、QST製のLi_2TiO_3（Li/Ti = 2.00）微小球を用いた。試料を1000Pa H_2/Ar流通下において、0, 72, 240, 720時間900ºC加熱保持した。この際、加熱に伴うLi蒸発量の定量と構造変化の有無を確認した。続いて、京都大学研究用原子炉にて、熱中性子フルエンス約1.65×10^{15} cm^{-2}で照射した。その後、試料を九州大学アイソトープ総合センター伊都地区実験室にて、1000Pa H_2/Arガスを流通させながら1000ºCまで5ºC/minで等速昇温し、化学形を分けてトリチウム放出挙動を電離箱で観測した。最後に、加熱試料を酸性溶液（硝酸とフッ酸の混酸）に浸し、200ºCでマイクロ波加熱することで、試料を酸溶解させてトリチウム残留量を定量した。

3. 結果・考察

全ての試料において、化学吸着水由来のトリチウム放出ピークが300ºC付近に現れた。H_2添加Arガスによるパージを行っているにもかかわらず、非加熱及び72時間加熱試料についてのみ、1000ºC付近でHTOのピークが現れた。240及び720時間加熱試料からは、加熱継続時間内には同様のHTOピークは確認されず、加熱時間に伴いトリチウム放出量が減少する傾向がみられた。非加熱試料のトリチウム放出量で規格化した値を表1に示す。これは、長期間高温加熱によるLi蒸発と微小球内部の構造変化により引き起こされたと考えられる。また、全て加熱試料から残留トリチウムが検出され、特に240及び720時間加熱試料からは多く検出された。

表1.　1000ºC加熱と酸分解による各加熱試料からのトリチウム放出量

MBq/g	HTO peak		HTO total	HT peak		HT total	residual T total	T total	T recovery rate [%]
	1st	2nd		1st	2nd				
as received	0.272	1.593	1.865	0.142	0.392	0.534	0.004	2.403	100%
72 hours	0.608	0.782	1.390	0.225	0.223	0.448	0.009	1.847	77%
240 hours	0.343		0.343	0.130		0.130	0.071	0.544	23%
720 hours	0.302		0.302	0.172		0.172	0.184	0.658	27%

参考文献

[1]　M. Nishikawa et al., J. Nucl. Mater., 325 (2004) 87-93.

[2]　T. Kinjyo et al., Fusion Eng. Des., 82 (2008) 580-587.

[3]　T. Hoshino et al., Fusion Sci, Technol., 67 (2015) 386-389.

*Akito Ipponsugi[1], Katayama Kazunari[1] and Tsuyoshi Hoshino[2]

[1]Kyushu Univ., [2]QST

中性子照射タングステンに吸蔵されたトリチウムの回収に関する計算機シミュレーション

Computer Simulation of Tritium Recovery from Neutron-Irradiated Tungsten

*波多野雄治，松本あずさ
富山大学

これまでに報告されている中性子照射タングステン中の水素同位体捕捉サイト密度と脱捕捉の活性化エネルギーの値から、300～500℃での加熱処理によるトリチウム回収の可能性を拡散解析コード TMAP で評価した。500℃に 30 日間加熱すると、大部分の T を回収できることがわかった。

キーワード，プラズマ対向材料，タングステン，中性子照射，トリチウム回収，除染，原型炉

1. 緒言　核融合炉プラズマ対向材料であるタングステン（W）が中性子照射を受けると、格子欠陥による捕捉効果によって高濃度にトリチウム（T）が吸蔵される可能性がある。中性子照射 W から T を回収することは、T の有効利用の面からも、使用済み材料の除染の観点からも重要である。これまでに中性子照射 W を重水素（D）プラズマに曝露し、 300℃に 30 時間保持した場合の D 放出を調べたが、吸蔵 D の大部分を回収するには至らなかった [1]。本研究では、これまでに報告されている中性子照射 W 中の捕捉サイト密度と脱捕捉の活性化エネルギーの値から[2]、300～500℃での加熱処理による T 回収の可能性を拡散解析コード TMAP [3]で評価した。

2. シミュレーションの概要　原型炉第一壁のアーマー材としての利用を想定し、W 層の厚さは 0.5 mm とした。[2]に報告されている D の昇温脱離スペクトルの解析結果をもとに、中性子照射により脱捕捉の活性化エネルギーが 1.36 eV の格子欠陥が 0.16 at%、1.63 eV のものが 0.044 at%均一に形成されており、これらの欠陥 1 つあたりに 1 個の T 原子が捕捉されていると仮定した。T の拡散係数には、Frauenfelder [4]による軽水素についての報告値を用いた。W 表面における再結合反応速度は拡散過程と比べ十分に速いとの仮定のもとで、1 次元の拡散を TMAP により計算し、300℃、400℃、500℃に 30 日間に保持した場合の T 放出を評価した。

3. 結果および考察

図 1 に W 中の T 量の経時変化を示す。300℃では 30 時間加熱しても W 中の T 量はほとんど変化していない。捕捉サイトがなければこの温度でも数時間でほぼ全量の T が放出されるはずであり、捕捉効果が放出挙動に強く影響していることがわかる。400℃では初期には T 量の顕著な減少が見られるが、10 日以降はほとんど変化していない。これは、400℃では強い捕捉サイトからの脱離が進行しないためである。一方、500℃では想定した期間内に大部分の T が回収できることがわかった。

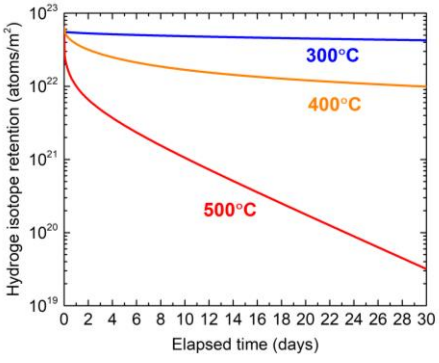


図 1　W 中に T 量の経時変化

参考文献

[1] V. Kh. Alimov, Y. Hatano, T. Kuwabara, T. Toyama, Y. Someya, A. V. Spitsyn, Nucl. Fusion 60 (2020) 096025.
[2] T. Toyama, M. Yajima, N. Ohno, T. Kuwabara, V. Kh. Alimov, Y. Hatano, Plasma Fusion Res. 15 (2020) 1505081.
[3] G. R. Longhurst, TMAP7 User Manual, https://inldigitallibrary.inl.gov/sites/STI/STI/4215154.pdf.
[4] R. Frauenfelder, J. Vac. Sci. Technol. 6 (1969) 288.

*Yuji Hatano and Azusa Matsumoto
University of Toyama

土壌から植物へのトリチウム移行挙動に関する研究

Study on tritium transfer behavior from soil to plants

*片山 一成[1]，俣野 貴宏[1]，和田 優太郎[1]
[1]九大

トリチウム雰囲気にて植物を育成できる実験装置を作製し、トリチウムを滴下した土壌にてシロイヌナズナを育成した。植物を採取し、水への浸漬法と燃焼法でトリチウム量を測定したところ、捕捉されたトリチウムの多くは、水との同位体交換反応で放出されるものの、一部は燃焼法により放出された。

キーワード：トリチウム、土壌、植物、同位体交換

1. 緒言

核融合炉発電プラントでは、大量のトリチウム水が取り扱われるため、万が一のトリチウム水漏えい事故を想定して、周辺環境におけるトリチウム挙動を把握しておくことが必要である。本研究グループでは、これまでに土壌におけるトリチウム移行挙動に関する研究を進め、トリチウム水との接触により土壌中に捕捉されたトリチウムの一部は、水との同位体交換や加熱のみでは回収できないことが明らかとなった。今後は、土壌に漏洩したトリチウム水が植物に移行する過程にも注目し、土壌から植物、植物から大気への一連のトリチウム移行挙動のモデル化を検討する。植物中におけるトリチウム移行挙動については、古くから環境トリチウム研究が行われており、組織自由水としての比較的速やかな移行や、有機結合型トリチウムとしての植物中への固定化などが知られている。しかしながら、自然環境中でのトリチウムレベルは低く、環境変動による影響を受けるため、移行速度や蓄積率の定量的評価が難しい。そこで本研究では、まずトリチウム雰囲気において植物を育成するための環境整備を行い、トリチウム含有土壌において植物の育成を実施した。採取した植物を試料として、水浸漬法および燃焼法により、土壌から植物へのトリチウム移行量を評価した。

2. 実験内容

図 1 に植物育成装置の概略図を示す。植物は恒温槽内に設置された気密性アクリルボックス内にて育成した。空気はポンプにより供給し、排気ポンプにより排出する。供給流量よりも排気流量を大きく設定することで、ボックス内を若干負圧維持し、トリチウムを含む内部空気が外部に流出しないようにした。排気ポンプで排出された空気は、2 連の水バブラーに通過させることでトリチウム水蒸気を回収した。光は上部の蛍光灯から供給し、自動注水装置により水分を供給した。ボックス内にセンサーを設置し、内部の温度、湿度、照度、気圧を計測する。本実験では試料植物としてシロナズナを用いた。人口気象器内にて 70 日程度成長させたシロイヌナズナを 4 株用意し、約 200kBq/cc のトリチウム水を各株に 5cc ずつ滴下した。12 日後に各株から 1 本ずつ採取し、植物表面や根に付着した土壌の表面トリチウムを回収するため、短期間水に浸した。次に、植物を別途用意した水に浸し密封して保管した。不定期に水を採取し、液体シンチレーションカウンターにてトリチウム濃度を測定した。その後、植物を石英管に移し、室温にて Ar ガスパージ、湿潤ガスパージを行い、最後に 800℃まで昇温し燃焼した。出口ガス中のトリチウム水蒸気は水バブラーで捕集した。

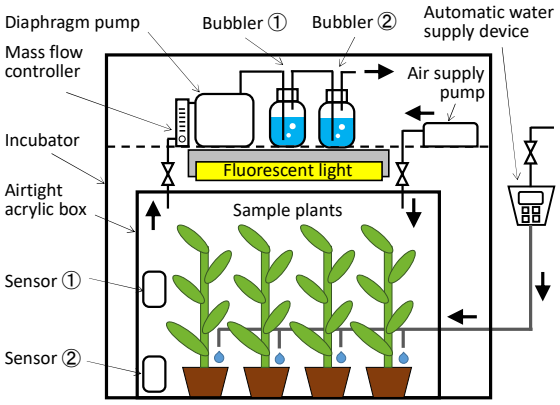


図 1 植物育成装置の概略図

3. 結果及び考察

採取した植物の根に付着したトリチウム含有土壌を取り除くことが困難であったため、根を取り除いた茎と葉を試料とした。1 つの試料についての単位質量あたりのトリチウム放出量の測定結果を以下に示す。

水浸漬:6530Bq/g (48%)、**Ar パージ**:1970Bq/g (15%)、**湿潤パージ**:3870Bq/g (29%)、**燃焼**:1210Bq/g (9%)

初めに短期間水につけることで表面吸着トリチウム水は回収されていることから、水浸漬で放出されたトリチウムは、植物内に含まれる組織自由水中に取り込まれたトリチウムであると言える。その後の Ar ガスパージで放出されたトリチウムは、水分の脱離に伴って放出されたトリチウムである。湿潤ガスパージでは、構造的に安定して存在する植物中の水あるいは軽水素に取り込まれ、同位体交換によって放出されたトリチウムである。燃焼により放出されたトリチウムは、水蒸気との同位体交換でも放出されない固定化されたトリチウムと言える。根から取り込まれたトリチウムのうち 9%が固定化されたことがわかった。

謝辞 植物の種子、腐葉土及び人口気象器は、九州大学大学院総合理工学研究院 林信哉教授により提供されたものである。ここに感謝の意を表する。本研究は、科研費 19H01877 の助成を受けたものである。

*Kazunari Katayama[1], Takahiro Matano[1], Yutaro Wada[1], [1]Kyushu Univ.

Oral presentation | VII. Health Physics and Environmental Science | Health Physics and Environmental Science

[3M01-04] Environmental Restoration

Chair: Michio Aoyama (Univ. of Tsukuba)

Fri. Mar 19, 2021 9:30 AM - 10:45 AM Room M (Zoom room 13)

[3M01] Application of CDE(Calculation system for Decontamination Effect) to decontamination work in the Interim Storage Facility site

*Takashi Jintoku[1], Naoe Kadota[1], Shoko Yashio[1], Hiroyuki Toyoshima[1], Masanobu Kato[1], Kazuya IKEDA[2] (1. OBAYASHI, 2. Ministry of the Environment)

9:30 AM - 9:45 AM

[3M02] Assembly and Operation Results of In-vehicle System of Laser Decontamination Machine

*Eisuke John Minehara[1], Takahiro Hirayama[2] (1. LDD, 2. NSG)

9:45 AM - 10:00 AM

[3M03] The preliminary methodology of Cs separation and collection from 2:1 clay minerals using Argon plasmall

*YUTAKA NISHIMURA[1], Glenn Harvel[2], Fumihito Mishima[1], Naoki Nomura[1], Shigehiro Nishijima[1], Takeyoshi Sunagawa[1] (1. FUT., 2. Ontario Tech. Univ.)

10:00 AM - 10:15 AM

[3M04] Radioactvity reduction study on removed soil after rating under 75μ m

*tadashi MURAKAMI murakami[1], sumito takahashi[1] (1. nuclear safety technology center)

10:15 AM - 10:30 AM

©Atomic Energy Society of Japan

中間貯蔵施設区域内線量低減措置工事への除染効果評価システムの適用

Application of CDE(Calculation system for Decontamination Effect) to decontamination work in the Interim Storage Facility site

*神徳 敬[1]，門田 直恵[1]，八塩 晶子[1]，豊嶋 宏幸[1]，加藤 雅史[1]，池田 和也[2]
[1]大林組，[2]環境省

事前線量測定結果を入力することで除染前後の空間線量率マップを出力する解析ツール CDE を用いて、地図上に 5m メッシュで線量率を描写させ、線量低減効果および除染後施設で働く作業員の被ばく線量を確認した。高線量が残る箇所について追加の除染メニューの効果も CDE で確認し、工事計画に反映した。工事後の事後線量測定では、解析の通り線量が下がってることを確認し、計画通り工事は完了した。

キーワード：中間貯蔵施設区域、線量低減措置工事、除染効果評価システム、空間線量率マップ

1. 緒言

工事開始前に、工事前後の精密な線量分布図が得られると、作業内容の効果が確認でき、費用対効果の観点から作業実施の要否や実施範囲を決定するうえで、非常に有効な情報となる。そこで、工法ごとの除染効果のデータを取り込める解析ツール CDE を用いた被ばくシミュレーションを本工事に適用した。

2. 空間線量率マップの利用方法

図 1 左は、事前測定結果を反映させた工事前の空間線量率マップで、敷地内の高線量箇所が把握できるため、作業時の装備や高線量箇所の作業員への周知などに用いた。図の作成に用いた事前測定結果は 30m メッシュを基本に取得したもので、ホットエリア（線量の高い 5m 四方程度）が見つかった場合は、その情報も解析の入力に追加している。

図 1 右は、工事後予想される空間線量率マップで、造成工事、堆積有機物の除去、舗装面の高圧洗浄、ホットエリアの土壌剥取などの効果が反映された結果で、工事内容を決定する資料として用いた。中央の埋立地は、深部まで浸透が確認されたため、草刈りのみとなった箇所である。

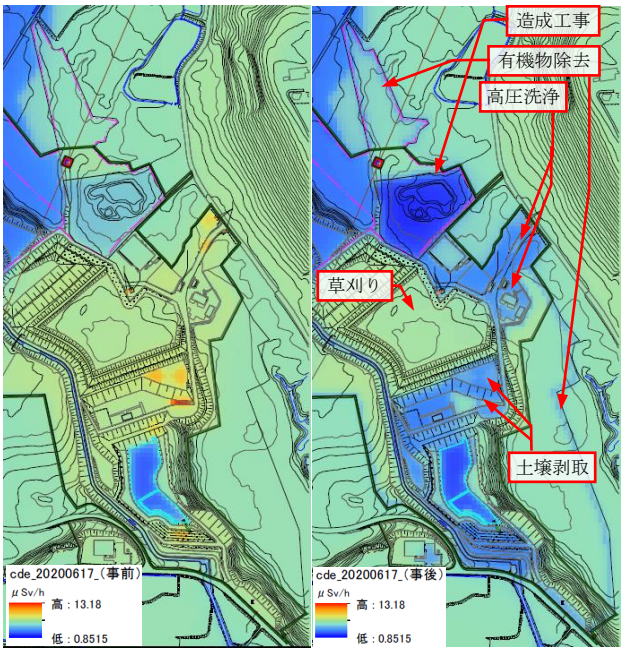


図 1　工事前後の空間線量率解析結果

3.結論

解析ツールは、5m メッシュで線量分布を表現できるため、施設内で働く人の担当場所ごとに被ばく線量の積算が可能で、きめ細やかな評価が行えた。工事完了後 10m メッシュで行ったドローン事後測定結果は全般的に解析結果より線量が低かった。夏の雨の合間を縫っての測定で、地面が湿っていたたことも原因のひとつと考えられた。条件をそろえた比較が行える解析評価は重要で、より正しい判断が行える場合もある。

---

*Takashi Jintoku[1], Naoe Kadota[1], Shoko Yashio[1], Hiroyuki Toyoshima[1], Masanobu Kato, and Kazuya Ikeda[2]
[1]Obayashi Corp., [2]Ministry of the Environment.

レーザー除染機の車載システムの整備と運用

Assembly and Operation Results of In-vehicle System of Laser Decontamination Machine

*峰原　英介[1]、平山　貴浩[2]
[1]LDD、[2]日本遮蔽技研

Abstracts: The decontamination machine using air-cooled 250W high-brightness single-mode fiber laser, 15m long optical fiber, air compressor, cyclone separator, water scrubber, dust collector with HEPA filter has been assembled in the dedicated vehicle. The in-vehicle system of the decontamination machine can be easily moved anywhere and operated properly. The results of the trial operation in Fukushima Prefecture will be reported in the presentation.

Keywords: Keywords：Laser Decontamination Machine, Particle Collector and Vacuum Cleaner, Assembly of In-vehicle System, Operation Results of In-vehicle System.

1. 緒言

空冷 CW250W 高輝度シングルモードファイバーレーザーを用いた除染機、１５m長の光ファイバー、空気圧縮機、サイクロン分離器、水スクラバー、HEPA フィルター付き集塵機を、どこにでも容易に移動して適切に運用できるように専用車にシステムとして試作積載して、整備した。福島県において行った試験的なシステムの整備と運用等を報告する。

2. 車載レーザー除染機システム

2-1. 試作したシステムの構成

写真１の車載レーザー除染機システムは、左から空冷式連続波（CW）平均出力 250W 高輝度シングルモードファイバーレーザー除染機、１５m長の光ファイバー、タッチパネル制御盤、ガルバノスキャナー、空気圧縮機、サイクロン分離器、水スクラバー、HEPA フィルター付き集塵機等から構成される。

写真１、車載レーザー除染システムの展示。

2-2. レーザー収納筐体除震台、除湿防塵防振保管箱、クリーンボックス等

写真 2 は、空気ばねを用いたレーザー収納筐体除震台で、レーザー本体の荷重に対して 1/16 程度に移動中の衝撃や振動を抑えるように設計した。特に振動や衝撃に弱い、ガルバノミラーやオフラインシステムは専用の IP67 の除湿防塵防振保管箱に入れて、周りをｴｱｷｬｯﾌﾟで 2 重に保護して段ボール箱に入れて運送する。現場での組み立てに必要なクリーンボックス等周辺治具機器も対応する保管運送用通函などを整備する予定である。

写真 2、空気ばね除振台。

3. 車載レーザー除染システムの整備運用

システムを車載する車両は、車載荷重 1000kg のハイエースバンで、重量物の積降積込を容易に行うためにパワーゲートを整備した。福島事故で汚染した空調機器などの除染を試験的に行い、この車載レーザー除染システムの有用性を確認した。今後、コンプトンカメラと組み合わせて効果的な除染運用を行う。

参考文献

[1] E. J. Minehara, Laser Review, March, 2012, Vol.40, No.3, pp.165-170、E. J. Minehara and K. Tamura, Journal of the RANDEC, No.48, Mar. 2013, pp.47-55.　[2] E. J. Minehara, “Laser decontamination device”, Japanese Patent No.5610356, Oct. 2014, US Patent No. US9174304B2, Nov. 3, 2015., EU Patent No.2772922, Oct. 11, 2017.

*Eisuke J. Minehara[1], [1]LDD Corporation, Takahiro Hirayama[2], [2] NSG .

アルゴンプラズマを用いた 2:1 型粘土鉱物からの Cs 脱離・捕集の研究開発

The preliminary methodology of Cs separation and collection from 2:1 clay minerals using Argon plasma

*西村 豊[1],ハーベル グレン[2],三島 史人[1],野村 直希[1],西嶋 茂宏[1],砂川 武義[1]

[1]福井工大,[2]オンタリオ工科大

現在、^{137}Cs を含んだ濃度の高い汚染土壌に対する減容化技術が求められている。^{137}Cs は土壌中の 2:1 型粘土鉱物に強固に吸着することが知られており、既存技術として熱処理や化学処理などがあるが、環境面で問題がある。そこで本研究では、2:1 型粘土鉱物に Cs を吸着させ S-band 高気圧マイクロ波放電法により生成した Ar プラズマを用いて、2:1 型粘土鉱物からの分離捕集を試みた。

キーワード：アルゴンプラズマ・セシウム・除染・マイクロ波・減容化

1. 緒言

現在、特定復興再生拠点区域内の除染に伴い、^{137}Csを高濃度に含んだ線量の高い汚染土壌が出現している。汚染土壌を減容化する処理方法として熱処理や化学処理が挙げられる。しかし、熱処理や化学処理では化学薬品や反応促進剤が必要であり、土壌そのものの化学的汚染が考えられる。我々は、大気圧下でプラズマ生成可能なマイクロ波放電法によりArプラズマを生成し、Cs化合物を分離捕集する方法を確立している。プラズマ処理では化学薬品等を使用しないためクリーンな減容化が可能である。Arプラズマ処理時に試料溶解が起こり、反応管内におけるArガスの流路閉鎖が課題であった[1)]。そのため本研究では、プラズマ反応菅内において試料とトリガーをわけてArプラズマを生成し、流路閉鎖を防ぐために、比較的エネルギーの低いArプラズマの先端部に固定し、2:1型粘土鉱物からのCs脱離の検討を行った。

2. 実験

バーミキュライト 1g を 75μm 以下(試料)に分級し、100ppm の $CsNO_3$ 水溶液に添加する。その後、約 72 時間振とうさせ、試料へ Cs を吸着させる(A)。フレイドエッジサイト(FES)内の Cs に着目するため、粒子表面に存在する容易に脱離可能な Cs を CH_3COONH_4 [1M,50mL]水溶液による化学処理で取り除く(B)。その後、試料を乾燥させ、Ar プラズマ処理[Ar 流量 1.5L/min,発振電力 0.1kW-0.7kW,処理時間 10min]を行う。トリガーとしてカーボンファイバーを用いてプラズマを生成し、プラズマ上部の比較的エネルギーが低い位置に試料を固定した。Ar プラズマ処理後、試料を 0.1M の硝酸と共に耐圧容器に封入し、オートクレーブ[TOMY 製,123℃,30min]で加熱し、硝酸中に Cs を溶出させた(C)。すべての処理過程において、原子吸光光度計[AAS, iCE3000, Thermo Fisher Scientific 製]を用いて濾液中の Cs 含有量を求め、濃度から FES 内に吸着していたと考えられる Cs の Ar プラズマ処理による分離量を算出した。

3. 結果と考察

Table1：AAS による試料中 Cs 量の変化

	Cs量(mg)
(A)試料に吸着したCs量	6.71
(B)化学処理後 試料中の残存Cs量	0.84
(C)Arプラズマ処理後 試料中の残存Cs量	0.04

Table1 に AAS による(A)~(C)の各実験手順における試料中の Cs 量の変化を示す。酢酸アンモニウムによる水溶性やイオン交換性の形態の Cs を、除去工程である化学処理(B)により Cs が 0.84mg 脱離し、Cs が減少していることを確認することができた。そのため、添加した Cs のほとんどが非交換性の吸着サイトに吸着したことが確認された。また、土壌への Cs 吸着量と Ar プラズマ処理後の残存 Cs 量より 99.3%の Cs が減少した。つまり、FES など鉱物層間に残存していたと考えられる Cs の大部分が Ar プラズマ処理により分離された。これらより、Ar プラズマを用いた 2:1 型粘土鉱物内の FES からの Cs 脱離の有効性を示すことができた。詳細は講演時に報告する。

参考文献

[1] 西村ら, “アルゴンプラズマを用いたセシウム化合物の分離研究Ⅱ”,日本原子力学会 2020 年秋の大会, 3B08 (2020)

*Y.Nishimura[1], G.Harvel[2] ,F. Mishima[1] ,N.Nomura[1] ,S.Nishijima[1] ,T.Sunagawa[1] [1]FUT., [2]Ontario Tech Univ.

除去土壌高度分級(75μm未満)後の放射能濃度低減方法

Radioactivity reduction study on removed soil after rating under 75μm

*村上 督[1]，高橋 澄人[1]
公益財団法人 原子力安全技術センター

キーワード：除去土壌、分級、放射能、セシウム、化学処理、分離、除染、再生資材、濃縮、固化処理

1.緒言　福島事故により発生した汚染土壌は可能な限り分級して放射能濃度を下げ、再生利用する方向で検討が進められている。この汚染土壌は分級処理により大粒径で放射能濃度の低いもの(8000Bq/kg 以下)から、小粒径で放射能濃度の高いもの(62000Bq/kg 超)まで 4 種類に分類されており、最も小粒径の 75μm 未満の土壌はさらに高度処理(化学処理、熱処理、新技術)が想定されているが具体的な処理方法は見出されていない。ここではこの 75μm 未満の土壌を対象にして、放射能濃度の低減方法について検討した。

2.実施内容　(1)試験土壌の調整：宅地土壌を分級して 75μm 未満の土壌を準備し、セシウム 137 を添加して約 25000Bq/kg 乾土の土壌を作成　(2)除染処理：土壌をシュウ酸水溶液(2 モル)に浸漬(固液比 1:5)して、140℃、2 時間で処理(3)除染後土壌の洗浄：除染後土壌中の残留シュウ酸を水に浸漬(固液比 1:2)して 1 分間振とう後遠心分離(4)廃シュウ酸の処理：セシウム 137 を含む廃シュウ酸は濃縮後にセメント固化することを想定して蒸発濃縮処理

3.試験結果　(1)除染処理：図 1 に示すとおり約 25000Bq/kg 乾土をシュウ酸で除染した結果、5 回の除染で約 80%の除去率、10 回の除染で約 90%の除去率となり、約 300Bq/kg 乾土まで除染できた。(2)除染後土壌の洗浄：図 2 に示すとおり水洗浄操作をすることにより 9 回洗浄で 88mg シュウ酸/kg 乾土まで低減できた。(3)廃シュウ酸の処理：廃シュウ酸は除染後の濃度に対して約 4 倍(約 6 モル)程度まで濃縮でき、溶解しているセシウム 137 と共に固化処理が可能である。

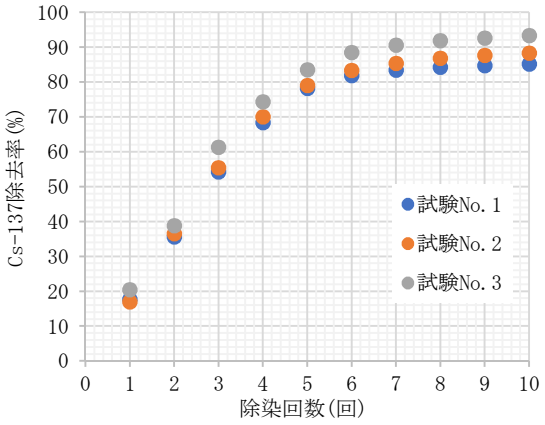


図 1 除染性能

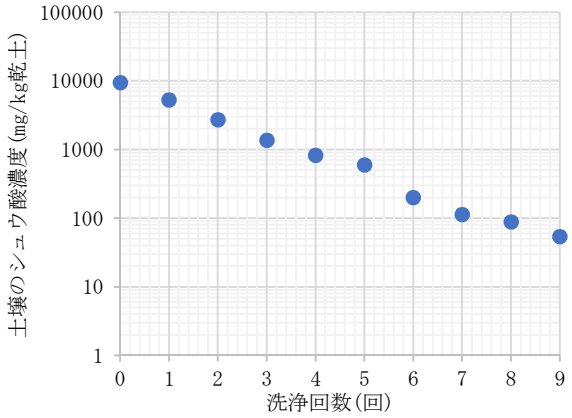


図2 土壌洗浄性能

4.まとめ　高度分級(75μm 未満)後の土壌(約 25000Bq/kg 乾土)を除染処理して約 300Bq/kg 乾土まで約 80 分の 1 の濃度に低減できることを確認した。この結果、これまで再生利用が困難と考えられていた高度処理後の土壌も、再生資材として利用が可能と考えられる大粒径の土壌と混合処理することで、再生利用が可能になる。また、汚染土壌から分離後の廃シュウ酸に含まれるセシウム 137 は原子力施設の廃液処理と同様に濃縮後にセメント固化処理をすることが考えられる。

*Murakami Tadashi[1], Takahashi Sumito[1].

[1]Nuclear Safety Technology Center

Oral presentation | VII. Health Physics and Environmental Science | Health Physics and Environmental Science

[3M05-08] Environmental Radioactivity &Radiation

Chair: Masahiko Machida (JAEA)

Fri. Mar 19, 2021 10:45 AM - 12:00 PM Room M (Zoom room 13)

[3M05] High efficient gamma and neutron shielding using Gd_2O_2S

*Kohichi Nakayama[1], Koichi Nittoh[2], Yukihiro Fukuta[3], Haruo Miyadera[1], Yukio Sonoda[2] （1. TOSHIBA ESS, 2. TTSI, 3. TMAT）

10:45 AM - 11:00 AM

[3M06] Evaluation of labile 137Cs in Fukushima rivers by diffusive gradients in thin films (DGT)

*Takuro Tanaka[1], Takumi Saito[1], Kenso Fujiwara[2], Motoki Terashima[2], Takahiro Nakanishi[2], Natsuko Kobayashi[1] （1. UTokyo, 2. JAEA）

11:00 AM - 11:15 AM

[3M07] Temporal changes in remaining radioactive Caesium in residential houses within former evacuation areas

*Hiroko Yoshida[1], Naohide Shinohara[2] （1. Tohoku Univ., 2. AIST）

11:15 AM - 11:30 AM

[3M08] Simplifying the Method of Measuring Radioactive Particles with Imaging Plate

*NAOKI NOMURA[1] （1. Fukui University of Tecnology）

11:30 AM - 11:45 AM

©Atomic Energy Society of Japan

γ線・中性子を効率的に遮蔽できる放射線遮蔽体の開発検討

High efficient gamma and neutron shielding using Gd_2O_2S

*中山 幸一[1]，日塔 光一[2]，福田 幸洋[3]，宮寺 晴夫[1]，園田 幸夫[2]
[1]東芝エネルギーシステムズ，[2]東芝テクニカルサービスインターナショナル，[3]東芝マテリアル

γ線・中性子の両方を従来よりも効率良く遮蔽できる遮蔽体の開発検討を行った。一般的なγ線遮蔽用の重量コンクリートよりも高い密度で、かつ熱中性子吸収断面積が全元素で最も大きいガドリニウムの化合物を用いた遮蔽体を試作した。

キーワード：放射線、γ線、中性子、遮蔽体、ガドリニウム化合物、GOS、シンチレータ

1. 緒言

原子力関連施設や加速器、ラジオアイソトープ線源、放射性廃棄物等から発生する放射線の遮蔽は、それらを利用する際の安心・安全を確保する上で重要な項目である。γ線・中性子は、それぞれ遮蔽が必要となる放射線であるが、元素や同位体毎に遮蔽特性が異なっている。このため従来は、γ線・中性子に対し、それぞれ異なる材料で遮蔽を行っており、大きな容積を必要としていた。そこで我々は、γ線・中性子の両方に高い遮蔽効果を持つガドリニウム化合物を材料に用いた遮蔽体の検討を行った。本報告では、遮蔽体の試作結果を中心に紹介する。

2. 遮蔽体材料の検討

まず初めに、熱中性子に対する吸収断面積が全元素で最も大きいガドリニウムを遮蔽体材料に用いることを検討する。ガドリニウムの原子番号は 64 であり、重量コンクリートの材料で用いられる鉄の原子番号 26 よりも大きく、原子番号のべき乗に比例して反応するγ線に対する遮蔽効果も大きい。今回使用するガドリニウム化合物は、シンチレータとしても用いられる Gd_2O_2S（略称 GOS）であり、加工時にＨＩＰ処理した密度は 7.33g/cm^3 で鉄の 7.85g/cm^3 に近い。この GOS を材料に用いた遮蔽体を検討し、コンクリートタイプおよび樹脂タイプ、２種類の遮蔽体を試作した。

3. 試作結果と今後の計画

図１が試作したコンクリートタイプの遮蔽体と紫外光による発光例である。放射線に反応し発光する特性を有している。ポルトランドセメント、GOS 粉末、水をよく混ぜ合わせた上で、粗骨材としての GOS 片を加えてよく混ぜ合わせ、型に詰めて固めたものである。サイズは 6.7cm×6.7cm×4.3cm、GOS の割合は 67.6%、比重は 4.81～4.96 であり、一般のコンクリート骨材に用いられる砂や砂利、鉱物の代わりに GOS セラミックを用いることで比重を高く製作できる。これに加え、アルカリシリカ反応による劣化が起こらないという特性も有している。図２はセメントの代わりにエポキシ樹脂で試作した樹脂タイプの遮蔽体であり、放射線透過試験用にステップウェッジとしている。今後は、試作した遮蔽体の基礎特性試験として、中性子照射試験、発光特性試験、および材料特性試験等を実施予定である。

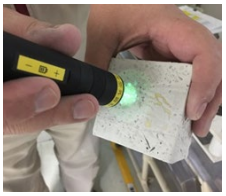


図１ コンクリートタイプ遮蔽体の試作例

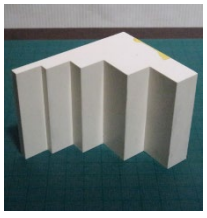


図２ 樹脂タイプ遮蔽体の試作例

*Kohichi Nakayama[1], Koichi Nittoh[2], Yukihiro Fukuta[3], Haruo Miyadera[1] and Yukio Sonoda[2]
[1]Toshiba Energy Systems & Solutions Corp., [2]Toshiba Technical Services International Corp. and [3]Toshiba Materials Corp.

DGT を用いた福島県河川における 137Cs 置換活性成分の評価

Evaluation of labile 137Cs in Fukushima rivers by diffusive gradients in thin films (DGT)

*田中 琢朗[1]，斉藤 拓巳[1]，藤原 健壮[2]，寺島 元基[2]，中西 貴宏[2]，小林 奈通子[1]

[1]東京大学，[2]JAEA

水中の懸濁物に固定されている ^{137}Cs の中には，容易に脱離する置換活性成分が存在する．本研究では，DGT と呼ばれるパッシブサンプラーを用いて，福島県の河川で，^{137}Cs の置換活性成分をその場サンプリングし，置換活性成分濃度と懸濁態及び溶存態 ^{137}Cs 濃度の関係や河川流域との関係を報告する．

キーワード：DGT，パッシブサンプラー，Cs 置換活性成分，懸濁物質

1. 緒言

2011 年 3 月の福島第一原子力発電所事故により放出され今なお森林環境中に残存する ^{137}Cs が，河川水系を通じて生活圏に移動することが懸念されている[1]．この水環境中の ^{137}Cs の大部分は，水中に浮遊する雲母鉱物などの懸濁粒子に吸着しており，端面の風化した領域には，置換活性な比較的容易に脱離する ^{137}Cs が存在する．置換活性成分が懸濁態 ^{137}Cs 濃度と関係する可能性が示唆されている[2]．本研究では，福島県河川の複数箇所において置換活性成分濃度を測定することで，^{137}Cs の置換活性成分と溶存態，懸濁態 ^{137}Cs 濃度の関係を明らかにすることを目的とする．

2. 実験

DGTとは環境中の微量金属イオンをその場サンプリングするために，1992年にW. Davisonら[3]によって開発されたパッシブサンプラーの一種である．本研究で用いたCs用のDGTデバイスは，吸着ゲル，拡散ゲルを重ねた上に，メンブレンフィルターを設置した構造を持ち，吸着ゲルには，Csに対して選択性の高い吸着剤であるフェロシアン化銅が担持されている．

福島県の河川の複数箇所に対して作製した DGT を適用した．デバイスの数は合計 11 個，設置期間は 2020 年 11 月 9 日から 16 日までの 7 日間とした．サンプリングした DGT の吸着ゲルに取り込まれた ^{137}Cs を，Ge 半導体検出器を用いて放射能測定し，設置期間中の ^{137}Cs 置換活性成分濃度を算出した．また，DGT を設置した地点において懸濁態及び溶存態 ^{137}Cs 濃度，懸濁物質濃度を測定した．

3. 結果・考察

DGT に保持された ^{137}Cs 置換活性成分濃度は，2019 年夏に同じ河川を対象に行われた研究と比較して 1 桁ほど低い値であった．主な理由として，設置期間中の平均水温が 10℃近く低かった事による拡散係数の変化の寄与等が考えられる．発表では，DGT で得られる置換活性成分に対する温度影響をより詳細に議論すると共に，別途測定した溶存態，懸濁態 ^{137}Cs 濃度との関係を報告する．

参考文献

[1] A. Kitamura, M. Yamaguchi and H. Kurikami, et, al., *Anthropocene*, vol. 5, pp. 22–31, 2014.

[2] 福岡将史, “福島環境を対象としたDGTを用いた^{137}Cs置換活性成分の評価,” 東京大学修士論文, 2020.2.

[3] H. Zhang and W. Davison, *Anal. Chem.*, vol. 67, no. 19, pp. 3391–3400, 1995.

---

*Takuro Tanaka[1], Takumi Saito[1], Kenso Fujiwara[2]. Motoki Terashima[2], Takahiro Nakanishi[2] and Natsuko Kobayashi[1]

[1]Univ. Tokyo, [2]JAEA.

旧避難指示区域の住家内における残存放射性セシウムの経時変化

Temporal changes in remaining radioactive Caesium in residential houses within former evacuation areas

*吉田　浩子[1], 篠原　直秀[2]
[1]東北大, [2]産総研

2012 年から継続して旧・現避難指示区域の住家において住家内の放射性物質の分布状況を調査してきた。2019 年及び 2020 年に調査を行った飯舘村及び南相馬市小高区の旧避難指示区域住家において、屋内残留放射性 Cs の放射能が経時的に減っていること及び居住住家において値が下がっていることが示された。

キーワード：福島第一原子力発電所事故、屋内放射性物質、経時変化、旧避難指示区域

1.緒言

避難指示区域の解除及び特定復興再生拠点区域の今後の解除を控え、帰還・ あらたに居住する住民の増加が予想されるなか、住民がもっとも長い時間を過ごす自宅内の身近にある屋内汚染の状況を把握することは重要である。これまでの調査により屋内残留放射性 Cs の表面汚染密度は福島第一原発からの距離と逆相関関係にあり、ハウスダストの摂取や掃除中に再飛散したエアロゾル吸入によって生じる預託実効線量は表面汚染密度とゆるやかな比例関係にあることを示してきた[1)]。2019 年及び 2020 年の調査では、屋内残留放射性 Cs の経時変化及び居住の有無による差について調査を行っており、本発表では、その結果を報告する。

2.方法

2012～2014 年に室内汚染の状況を調べた飯舘村及び南相馬市小高区の住家を中心として 70 軒（飯舘村 38 軒、南相馬市小高区 32 軒）について 2019 年及び 2020 年に調査を行った。前回と同様、乾式スミア法による間接測定で原則全室の主に家具などの木の表面について JIS Z 4504(2008)に準じ試料（30～60 個/1 軒）を採取した。プラスチックシンチレーション検出器で試料からのベータ線を 10 分間測定した。放射性セシウムの値付けはゲルマニウム半導体検出器で行い、遊離性放射性 Cs の表面汚染密度（Bq/cm^2）を評価した。

3.結果・考察

表面汚染密度の経時変化について、飯舘村の住家について表面汚染密度（Bq/cm^2）の中央値と四分位範囲,Q1-Q3 は 2012～2014 年で 0.0322(0.0317-0.0323)、2019 年及び 2020 年で 0.0308(0.0295-0.0330)（各々 n=575,1361)、南相馬市小高区の住家について 2012～2014 年で 0.0393(0.0368-0.0741)、2019 年及び 2020 年で 0.0304(0.0291-0.0327)(各々n=733,1294）であった。これらの分布が同じことは仮定せず、両群から一つずつ値を取り出したとき、どちらが大きい確率も等しいという帰無仮説を検定する Brunner-Munzel 検定を行った結果、飯舘村及び南相馬市小高区双方で、2012～2014 年と 2019 年及び 2020 年の間に有意な差が認められ、年数経過により値が下がっていることが示された。ただし、この差は物理的減衰を含むものである。次に、2019 年及び 2020 年の調査住家において居住の有無による差があるかどうかを調べた。飯舘村の住家について表面汚染密度（Bq/cm^2）の中央値と四分位範囲,Q1-Q3 は居住住家で 0.0303(0.0292-0.0316)、居住していない住家で 0.0316(0.0300-0.0348)（各々n=965,396)、南相馬市小高区の住家について居住住家で 0.0279(0.0256-0.0301)、居住していない住家で 0.0320(0.0277-0.0429)(各々n=858,436) であった。Brunner-Munzel 検定を行った結果、飯舘村及び南相馬市小高区双方で、居住住家と居住していない住家の間に有意な差が認められ、居住住家において値が下がっていることが示された。

参考文献　[1] Hiroko Yoshida-Ohuchi & Naohide Shinohara *Sci. Rep.* 10 :17212 (2020)

*Hiroko Yoshida[1], Naohide Shinohara[2]
[1]Tohoku Univ., [2]AIST

IP による放射性微粒子測定方法の簡易化

Simplifying the Method of Measuring Radioactive Particles with Imaging Plate

*野村 直希
福井工業大学

福島事故時に放出されたの高濃度に放射性セシウムを含む微粒子の分析が進められている。本研究では、イメージングプレート(IP)を用いて前処理を必要としない分析方法について検討した。具体的には、IP 測定に影響を及ぼすパラメータの一つである試料-IP 間距離を得られた IP 測定により得られた PSL 値の分布から求める手法を明らかにし、前処理を要さない新たな分析方法の実現可能性を示した。

キーワード：imaging plate, radioactive cesium, radiation measurement, hot particle

1. 背景

東京電力福島第一原子力発電所事故によって、放出された放射性 Cs は大きく分けて水溶性と不溶性の二つの形態であったとされており、不溶性 Cs の重量当たりの放射能は数十 MBq/kg 程度と、土壌粒子と比較して高いことが明らかになっている。放射性物質の物理化学性状は，事故時の放出過程や体内に取り込まれた際の放射線影響の理解向上、廃棄物の減容処理方法等の検討を行う際にも重要なものとなるが，両形態の比率は明らかになっていない。本研究では，不溶性 Cs の簡易な分析方法を確立するため、不溶性 Cs を単離せず，イメージングプレート(以下 IP とする)から取得した画像から、検量線法によって直接不溶性 Cs の放射能を求める簡易な分析方法の開発を目指す。

2. 方法

2-1. 幾何学的条件が IP 測定に与える影響

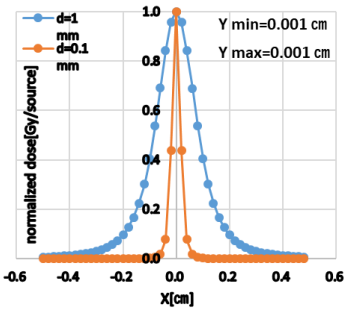
IP 測定より得られる PSL 値から測定対象粒子中の放射能を導出するためには、放射能既知の線源を用いて事前に検量線を作成する必要がある。しかし、検量線の傾きは、温度、IP-測定対象粒子間の媒質および距離、感光時間などの影響を受ける。IP-測定対象粒子間距離以外の条件は予め設定することができるが、不溶性 Cs と IP との距離は一定ではない。そこで、IP-測定対象粒子間距離を測定結果から逆推定する必要がある。

2-2. IP-測定対象粒子間距離と IP における吸収線量の関係

IP-測定対象粒子間距離と IP における吸収線量の関係を明らかにするため、まずはシミュレーションによる評価を行った。具体的には、媒質を空気とし，IP-測定対象粒子間距離を 0.001 cm ~0.1 cm の範囲で変化させ、線源が有する放射能あたりの IP における吸収線量を評価した。なお、IP の吸収線量は実際の測定を想定し、200 μm 四方を一つのセルとして評価した。

3. 結果

計算結果の一例として IP-測定対象粒子間距離が 0.001cm および 0.01cm の条件での、吸収線量分布を示す。ここで、縦軸は線源から鉛直直線上にあり最も吸収線量が高くなるセルにおける吸収線量によって規格化した値である。この結果から、IP-測定対象粒子間距離が近くなるにしたがって、吸収線量の変化率が大きいことが示された。これは、線源から放出される放射線の入射角および立体角が変化するためである。今後は、実験データの取得も含めて、検討を進める。



---

*Naoki Nomura
Fukui University of Tecnology

Oral presentation | VII. Health Physics and Environmental Science | Health Physics and Environmental Science

[3M09-15] Environmental Dynamics

Chair: Hiroko Yoshida (Tohoku Univ.)

Fri. Mar 19, 2021 2:45 PM - 4:45 PM Room M (Zoom room 13)

[3M09] Analysis of oceanic dispersal of ^{137}Cs derived from Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant using the Short-Term Emergency Assessment system of Marine Environmental Radioactivity

*Tsubasa Ikenoue[1], Hideyuki Kawamura[1], Yuki Kamidaira[1] (1. JAEA)

2:45 PM - 3:00 PM

[3M10] Dynamics of radiocesium in Lake Pnuma on Mt.Akagi

*YUKIKO OKADA[1], Naoto Kumagai[1], Haruaki Matsuura[1], Shun Watanabe[2], Seiichi Nohara[3], Yoshikazu Kikawada[4], Masanobu Mori[5], Yoshitaka Minai[6], Seiya Nagao[7] (1. Tokyo City University, 2. Gunma Prefectural Fisheries Experiment Station, 3. National Institute for Environmental Studies, 4. Sophia University, 5. Kochi University, 6. Musashi University, 7. Kanazawa University)

3:00 PM - 3:15 PM

[3M11] Dynamics of radiocesium in Lake Onuma on Mt. Akagi

*Haruaki Matsuura[1], Takamasa Nagahashi[1], Koki Sakashita[1], Naoto Kumagai[1], Seiichi Nohara[2], Yukiko Okada[1] (1. TCU, 2. NIES)

3:15 PM - 3:30 PM

[3M12] Dynamics of radiocesium in Lake Onuma on Mt. Akagi

*Naoto Kumagai[1], Haruaki Matsuura[1], Takahumi Uchiyama[1], Shun Watanabe[2], Seiichi Nohara[3], Yukiko Okada[1] (1. TCU, 2. Gunma Prefectural Fisheries Experiment Station, 3. NIES)

3:30 PM - 3:45 PM

[3M13] Tritium activity concentration and behavior at coastal region of Fukushima

*Michio AOYAMA[1,2], Sabine Charmasson[3], Yasunori Hamajima[4], Celine Duffa[3], Daisuke Tsumune[5], Yutaka Tateda[5] (1. Univ. of Tsukuba, 2. Fukushima Univ., 3. Institute de Radioprotection et de Sûreté nucléaire (IRSN), 4. Kanazawa Univ., 5. Central Research Institute of Electric Power Industry)

3:45 PM - 4:00 PM

[3M14] Relationships between dissolved form and sediment in radiocesium concentrations in the riverwaters in Hamadori, Fukushima

*Yukio Takeuchi[1], Hirotsugu Arai[1], Kazuki Fujita[1], Kazumi Katsuno[1], Kouki Nasu[1], Keisuke Taniguchi[2], Yuichi Onda[2] (1. FPCEC, 2. Univ. of Tsukuba, Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics)

4:00 PM - 4:15 PM

[3M15] Environmental Dynamics of Tritium in Fukushima Coastal Area and Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Port: Analysis of Monitoring Data

*Masahiko Machida[1], Ayako Iwata[1], Susumu Yamada[1] (1. JAEA)

4:15 PM - 4:30 PM

©Atomic Energy Society of Japan

緊急時海洋環境放射能評価システムを用いた福島第一原発起源 ^{137}Cs の海洋拡散の解析

Analysis of oceanic dispersal of ^{137}Cs derived from Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant using the Short-Term Emergency Assessment system of Marine Environmental Radioactivity

*池之上 翼[1]，川村 英之[1]，上平 雄基[1]

[1]原子力機構

原子力機構は、原子力施設等から海洋へ放出される放射性核種の海洋拡散を予測する緊急時海洋環境放射能評価システム STEAMER を開発した。本研究では、STEAMER で受信された過去の海流データを使用した海洋拡散シミュレーションを実行し、^{137}Cs の海洋拡散における特徴や傾向について解析した。

キーワード：緊急時海洋環境放射能評価システム，海洋拡散，海洋中放射性核種濃度，^{137}Cs，福島第一原発

1. 緒言

原子力機構では、日本及び東アジア諸国の原子力施設等の事故により海洋へ放出される放射性核種の海洋拡散を予測する緊急時海洋環境放射能評価システム STEAMER を開発した。STEAMER は、気象庁による海流予報データを受信し、北太平洋及び北西太平洋を対象とした 30 日間の海洋拡散を将来予測できる。また、将来予測だけではなく、過去に受信した海流データを用いることで事後解析が可能である。本研究の目的は、過去の海流データを使用して海洋拡散シミュレーションを実行し、^{137}Cs の海洋拡散の特徴や傾向について解析することである。

2. 計算条件

本研究では、STEAMER の海洋拡散モデル SEA-GEARN を使用した。SEA-GEARN に入力する海流データは、気象庁により計算された北西太平洋を対象とした水平解像度約 10km のデータである。東京電力福島第一原子力発電所 (福島第一原発) からの仮想的な放出を対象として、2015 年 1 月 1 日から 2018 年 12 月 31 日まで毎日 9 時を計算開始時刻として設定し、計算期間が 60 日の海洋拡散シミュレーションを計 1461 ケース実行した。放出条件は、計算開始から 1 日間のみ ^{137}Cs を 1 Bq h^{-1} の放出率で放出した。

3. 結論

全ケースの計算結果に対して、各計算格子における計算開始日から 30 日間で最大となる濃度 (最大濃度分布) を算出し年平均と月平均を求めた。海洋表層においては、年変動はあまり見られなかったが季節変動は年変動より大きく、特に冬における ^{137}Cs の拡散範囲が小さい傾向がみられた。全計算ケースにおける最大濃度分布の平均は、福島沿岸から沖合 (140° E-145° E) と黒潮続流付近で大きくなった。本研究で得られた平均的な海洋拡散結果と福島第一原発事故時に得られたモニタリングデータとの比較を行った。その結果、沖合ではモニタリングデータの時系列変化の傾向を概ね捕捉することができた。一方、沿岸ではモニタリングデータを過小評価する傾向がみられた。これは本研究で実行した海洋拡散シミュレーションには大気から海洋に沈着する ^{137}Cs を考慮していないことや沿岸では水平解像度が不十分であることが原因であると考えられる。今後は沿岸を対象とした高分解能の海洋拡散シミュレーションにより精度を向上させる予定である。

参考文献

[1] Kobayashi et al.: J. Nucl. Sci. Technol., 54:5, 609-616, 2017

---

*Tsubasa Ikenoue[1], Hideyuki Kawamura[1] and Yuki Kamidaira[1].

[1]JAEA

赤城大沼における放射性セシウムの動態解明
(1) 湖水中放射性セシウムの溶存態と懸濁態の季節変動

Dynamics of radio-cesium in Lake Onuma on Mt. Akagi
(1) Seasonal variation on dissolved and particulate radio-cesium in lake water

*岡田 往子[1], 熊谷 尚人[1], 松浦 治明[1], 渡辺 峻[2], 野原 精一[3], 木川田喜一[4], 森勝伸[5], 薬袋佳孝[6], 長尾誠也[7]
[1]東京都市大学, [2]群馬県水産試験場, [3]国立環境研究所, [4]上智大学, [5]高知大学, [6]武蔵大学, [7]金沢大学

赤城大沼の 0m、8m、15m湖水中の溶存態、懸濁態に含まれている放射性 Cs（^{137}Cs）の季節変動を 2012 年から 2016 年のデータをもとに分析した．表層 0m では ^{137}Cs 濃度が溶存態に比べ懸濁態に多く存在し，15 m では全循環期前の 8 月から 10 月に溶存態 ^{137}Cs 濃度の増加が観察され，底質からの再溶出を示唆された．

キーワード：赤城大沼，湖水，放射性 Cs（^{137}Cs ），溶存態と懸濁態，再溶出

1. 緒言

群馬県赤城大沼では、東京電力㈱福島第一原子力発電所事故により，ワカサギから当時の食品規制値 500 Bq/kg を超える 640 Bq/kg の個体が検出された．現在は，ワカサギの放射性 Cs 濃度は基準値を下回っているが，2015 年以降、減衰が下げ止まっている[1]．湖水の ^{137}Cs も同様の下げ止まり，その原因究明が課題となっている．本発表では表層 0m，8m，15m湖水中の溶存態および懸濁態中の ^{137}Cs 濃度の経年変化を 2012 年から 2016 年のデータをもとに分析した．

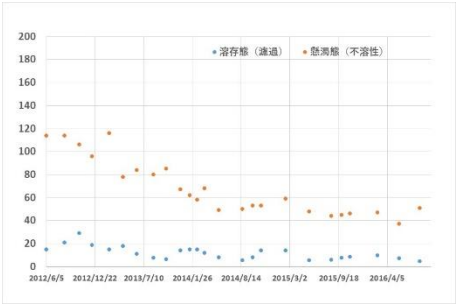


図 1　水深 0mの溶存態と懸濁態中の ^{137}C s 濃度の経年変化

2. 実験

湖水は 20 L を 2 本採取し，0.45 μ m フイルターでろ過処理した溶存態と未処理のバルク試料を AMP 法で処理した．その後，Ge 検出器で注目核種 ^{137}Cs の 662keV の γ 線エネルギーを測定した．懸濁態 ^{137}Cs 濃度はバルクの値から溶存態の値を差し引いたものである．

3. 結論

図 1 と 2 に水深 0m と水深 15m の溶存態及び懸濁態中の ^{137}Cs 濃度の経年変化を示す. 0m では季節に関係なく懸濁態 ^{137}Cs 濃度が溶存態 ^{137}Cs 濃度を上回っていた. 0m では沈降しない軽い粒子態の存在が ^{137}Cs の保持体となって水中を漂っていると考えられる．また、15m では 10 月，8 月で溶存態 ^{137}Cs が懸濁態 ^{137}Cs 濃度を上回っていた．このことから、底質に吸着した放射性 Cs が何らかの要因で再溶出している可能性が示唆された．これらの結果から、下げ止まりの要因解明には，^{137}Cs を保持体と深層部で起こっている再溶出の可能性を解明する必要がある．

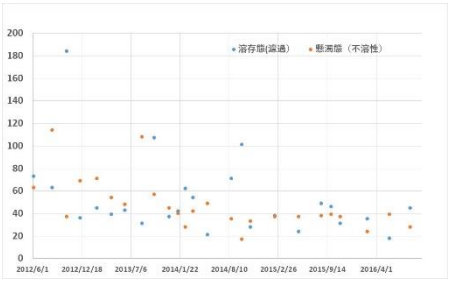


図 2　水深 15mの溶存態と懸濁態中の ^{137}C s 濃度の経年変化

参考文献

[1] K. Suzuki et al, Science of the Total Environment, 622-623, 1153-1164（2018）

*Yukiko Okada[1], Naoto Kumagai[1], Haruaki Matsuura[1], Shun Watanabe[2], Seiichi Nohara[3] , Yoshikazu Kikawada[4], Masanobu Mori[5], Yoshitaka Minai[6] and Seiya Nagao[7]
[1] Tokyo City University, [2]Gunma Prefectural Fisheries Experiment Station, [3]National Institute for Environmental Studies, [4]Sopha University, [5]Kochi University, [6]Musashi University, [7] Kanazawa University

赤城大沼における放射性セシウムの動態解明
(2) 底質におけるセシウムの存在状態解析

Dynamics of radiocesium in Lake Onuma on Mt. Akagi

(2) Speciation of cesium on the sediments

*松浦 治明[1]、長橋 孝将[1]、坂下 航輝[1]、熊谷 尚人[1]，野原 精一[2]，岡田 往子[1]

[1]東京都市大学，[2]国立環境研究所

2011 年 3 月 11 日の東日本大震災による東電福島第一原発事故は,赤城大沼の湖内環境にも影響を及ぼした．現在放射能濃度の減衰が緩やかであることは,半減期の長い ^{137}Cs が湖底質から溶出していると考え,その機構解明のため，湖底質に種々の条件下で意図的に吸着させたセシウムの EXAFS 局所構造解析を行った．

キーワード：赤城大沼、放射性セシウム、湖底質、広域 X 線吸収微細構造、X 線回折

1. 緒言

群馬県赤城大沼における放射能の減衰が緩やかになった原因が，東電福島第一原発事故後一旦沈着した放射性セシウムが再溶出している可能性が考えられるため，本研究では広域 X 線吸収微細構造によりセシウムが底質中でどのような局所構造を取っているかを調査し，湖底質とセシウムの吸着形態の機構解明を試みた．

2. 実験

湖底質は 2014，2015 年に赤城大沼湖心にてコアサンプラーに採取したものを使用した．1M の CsCl 溶液内に底質を添加し，攪拌させながら充分に吸着させた．溶媒には蒸留水もしくは湖水を使い，24 時間静置後，0.45 μm のフィルターで固液分離したものを測定試料とした．試料は，高エネルギー加速器研究機構(PF, BL27B)にて，測定には透過法を用い，吸収端エネルギーは Cs-L_3 吸収端，底質の深度ごとの試料について測定を行なった．

3. 結果と考察

図 1 に固液分離後の分析試料を乾燥させずに，濡れている試料のまま封入し測定を行なった，深さごとの EXAFS 構造関数を示す．第一配位に現れるピークは，水和水中の酸素との相関であり，外圏錯体を形成する顕著なピークである．第二配位のピークが，粘土鉱物中の酸素との相関距離[1]に近く，粘土鉱物中での内圏錯体と同様、湖底質構造物質との相関を表すと仮定し，第一配位を第二配位の配位数で除した値（錯体比）を比較することによって，その Cs の物質との相互作用の強さを表す指標[2]とした．図 1 の深さ分布では，錯体比の値は概ね 1 以上の値であったが，これは周辺山岳土壌試料の場合の値と比較して同程度で，湖底質もそれなりの吸着能を有していることがわかる．一方，一旦セシウムを吸着させた湖底質を，蒸留水，湖水，アンモニア水で振とう後の試料の錯体比の値はその順番で増加し，第二配位の Cs が減少した．セシウムイオンとほぼ同じイオン半径をもつアンモニウムイオンの共存により内圏錯体の割合が低下したことは，赤城大沼湖底質に吸着された Cs は溶脱しやすい状態にあることを示唆する．別途実施した X 線回折によると，群馬県の他の湖沼と比較しても赤城大沼湖底質には粘土鉱物に相当するピークが確認できず，放射能下げ止まりの要因には，赤城大沼湖底質の特異的な構造によることが分かった．

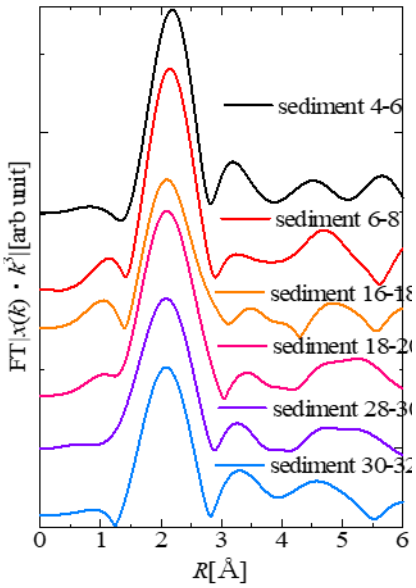


図 1 セシウムを吸着させた湖底質の EXAFS 構造関数の深度分布

参考文献

[1] 岡本芳浩，日本原子力学会和文論文誌 Vol.13, No.3, p.113-118，2014

[2] 高橋嘉夫，Geochemical Journal Vol.46，p.297-302，2012

*Haruaki Matsuura[1], Takamasa Nagahashi[1], Koki Sakashita[1], Naoto Kumagai[1], Seiichi Nohara[2], and Yukiko Okada[1]

[1] Tokyo City University, [2] National Institute for Environmental Studies,

赤城大沼における放射性セシウムの動態解明
(3) 底質からの再溶出機構解明のための放射性セシウム吸脱着試験

Dynamics of radiocesium in Lake Onuma on Mt. Akagi

(3) Adsorption and desorption experiment on sediment using radiocesium for elucidation of re-elution mechanism

*熊谷 尚人[1]，松浦 治明[1]，内山 孝文[1]，渡辺 峻[2]，野原 精一[3]，岡田 往子[1]

[1]東京都市大学，[2]群馬水産試験場，[3]国立環境研究所

群馬県にある赤城大沼では福島原発事故の影響による放射性セシウム汚染が長期化している．本実験では底質の放射性セシウムの吸着特性が低いことが長期化の一因であると考え，底質と放射性セシウム吸脱着試験を行った．放射性セシウムの吸着率や脱離率を算出し，吸着特性を評価した．

キーワード：赤城大沼，放射性セシウム，EXAFS，吸着特性

1. 緒言

群馬県にある赤城大沼では，魚類や湖水中の放射性セシウムの減衰が下げ止まっており[1]，要因の解明が課題となっている．現在までの赤城大沼の調査により，湖底付近の湖水中の放射能は溶存セシウムが支配的であることが判明しており，湖底から湖水へ放射性セシウムが再溶出することが下げ止まりの一因となっていることが推測される．本実験では，底質の放射性セシウムの吸着特性が低いことが再溶出の一因であると考え，底質と放射性セシウムの吸脱着試験を行った．群馬県の複数の湖沼の底質を用いて同様の実験を行い，吸着特性を比較検討した．また，広域 X 線吸収微細構造(EXAFS)を用いて底質中のセシウムの錯体構造解析を行った．逐次抽出法[2]により，各湖沼の底質における放射性セシウムの化学形態別分析を行った．

2. 実験

試料には各湖沼の湖心部にてコアサンプラーを用いて採取された底質の深度 0～4 cm のものを用いた．放射性セシウムを用いた吸着試験では，10～20 Bq 程度の ^{137}Cs 溶液を固液比 1:50 の割合で底質に添加して 1 時間攪拌し，1 日及び 3 日間静置した後，濾過を行った．脱離試験では，放射性セシウムを吸着させた底質に蒸留水を固液比 1:50 の割合で底質に添加して 1 時間攪拌し，濾過を行った．吸着・脱離試験ともに濾過後の溶液と底質を Ge 半導体検出器で測定し，吸着率及び脱離率を算出した．EXAFS 測定は高エネルギー加速器研究機構，PF の BL-27B において行い，透過法で CsL_{III} 吸収端に着目した．

3. 結果・考察

放射性セシウムの吸脱着試験により，赤城大沼と榛名湖の吸着率は 94%程度で，赤谷湖と近藤沼の吸着率が 98～99%程度であり，赤城大沼の底質は他の湖沼の底質よりも放射性セシウムの吸着率が低いことが分かった．化学形態別分析では，赤城大沼の底質では容易に溶出する形態で存在している放射性セシウムの割合が他の湖沼よりも多いことが分かった．EXAFS 解析の結果からも，赤城大沼の底質中のセシウムは他の湖沼よりも溶出しやすい状態で存在していることが分かり，これらのことから赤城大沼の底質は放射性セシウムの吸着特性が低く，このことが放射性セシウムの再溶出に影響している可能性が示唆された．

参考文献

[1] K. Suzuki, et al, Science of the Total Environment 622, 1153-1164 (2018)

[2] A. Tessier, et al., *Anal. Chem.*, 51 (1979) 844-851

---

*Naoto Kumagai[1], Haruaki matsuura[1], Takafumi Uchiyama[1], Shun Watanabe[2], Seiichi Nohara[3] and Yukiko Okada[1]

[1]Tokyo City University., [2] Gunma Prefectural Fisheries Experiment Station.,[3] National Institute for Environmental Studies.

福島県沖でのトリチウム放射能濃度およびその挙動

Tritium activity concentration and behavior at coastal region of Fukushima

*青山　道夫[12]、S. Charmasson[3], 浜島　靖典[4], C. Duffa[3] 津旨　大輔[5], 立田　穣[5]

[1]筑波大学、[2]福島大学、[3]IRSN、[4]金沢大学、[5]電力中央研究所

2014 年に福島第一原発（FNPP1）近傍を除く福島沿岸でのトリチウム放射能濃度は 90 Bq m-3 から 175 Bq m-3 の範囲であり、FNPP1 事故以前の福島沿岸でのトリチウム放射能濃度より低かった。トリチウム放射能濃度は、FNPP1 近傍で最大でありその北と南側では類似していたが、137Cs 放射能濃度は FNPP1 の北の観測点で低く、FNPP1 の南の観測点で高かった。これは、トリチウムのソースは福島第一原発およびその南北の河川であることを示唆している。

キーワード：福島第一原子力発電所事故、トリチウム、河川、セシウム 137

1. 緒言

トリチウム（3H）は、半減期が 12.4 年の水素の放射性同位体であり、その主な発生源は、宇宙線生成、核実験、軍事生産、原子炉運転（特に重水炉運転）および核燃料再処理工場である。これらのトリチウムは地球上の水循環に入り、最終的には水の最大の貯留場所である海洋に到達している。局所的には、福島第一原発（FNPP1）事故以前の福島沿岸では海水中のトリチウムのソースは１）宇宙線生成起源および核実験起源で降水を経由して最終的に河川水として海洋に流れ込むものと、２）沿岸に立地する原子力発電所の原子炉の運転に伴って生成され、海洋に管理放出されていたトリチウム、および３）外洋の海水に含まれるトリチウム（その起源はすでにのべたように様々である）の 3 つであった。この 3 つのソースの混合の結果、福島沿岸での海水中のトリチウム放射能濃度が規定されていた。FNPP1 事故後は、沿岸での原子炉の運転がすべて止まり海洋へのトリチウムの管理放出は行われていないが、その代わり管理できない状態での FNPP1 からのトリチウムの漏洩が起きていて、事故前のトリチウム放射能濃度よりも一桁以上大きいトリチウム放射能濃度が FNPP1 の極近傍では観測されている。本報告では、福島事故起源と宇宙線生成のトリチウムの福島沿岸での挙動を、2014 年の福島県沿岸での集中観測および富岡と波崎で得られたトリチウムと放射性セシウムの観測結果を用いて解析した結果をもとに報告する。本報告は EGU の Biogeosciences 誌に投稿予定の Aoyama et al., Tritium activity concentration and behavior at coastal region of Fukushima の内容に基づいている。

2. 使用するデータと解析方法

2014 年 10 月に、真野川から請戸川にかけて汽水域で 4 つ、海岸から 1 km 以内で 4 つ、海岸から 12〜15 km 離れたステーションで 3 つ、合計 11 のサンプルが収集された。2014 年から 2018 年にかけて富岡漁港で 4 つ、波崎で 4 つの海水試料を採取した。2014 年に FNPP1 近傍で 8 つの魚試料を採取した。これら試料のトリチウム放射能濃度を測定した。一部の試料は 137Cs 放射能濃度も測定した。さらに日本政府、東京電力および福島県が行っている福島沿岸と河川のトリチウムと 137Cs 放射能濃度のモニタリング結果も用いた。さらに河川および FNPP1 からのトリチウムの flux も計算し議論した。

3. 結論

2014 年から 2015 年にかけて、真野川から請戸川沖のトリチウム放射能濃度は 90 Bq m-3 から 175 Bq m-3 の範囲であり、沿岸から 12-16km では 67 Bq m-3 から 83 Bq m-3 に減少した。これらは FNPP1 事故以前の福島沿岸でのトリチウム放射能濃度より低かった。FNPP1 の 56 北放水口でのトリチウム放射能濃度は大きく変動し、2013 年から 2019 年の期間に全般的に減少傾向を示したが、請戸港および福島第 2 原発の港では、変動の範囲内に収まっていた。トリチウム放射能濃度は、FNPP1 近傍で最大でありその北と南側では類似していたが、^{137}Cs 放射能濃度は FNPP1 の北の観測点で低く、FNPP1 の南の観測点で高かった。これは、トリチウムのソースは ^{137}Cs のソースとは異なり、福島第一原発およびその南北の河川であることを示唆している。沿岸の試料の分析結果から推定された FNPP1 事故由来以外のトリチウム放射能濃度はおよそ 70 Bq m-3 であり、黒潮海域の 50 Bq m-3 よりも少し大きく、河川由来分のトリチウム寄与がそれなりにあることを示している。研究対象地域のトリチウムフラックスに関しては、FNPP1 の北からの外洋の海水由来分は 52 GBq day-1 の大きなフラックスを表しており、FNPP1 の北側に位置する河川によるフラックスは 3-5 GBq day-1 でした。FNPP1 の港からのトリチウムフラックスは 1.9〜4.5 GBq day-1 に達しました。これは、FNPP1 の北側に位置する河川からのフラックスに匹敵します。

---

*Michio AOYAMA[1,2], Sabine Charmasson[3], Yasunori Hamajima[4], Celine Duffa[3], Daisuke Tsumune[5],and Yutaka Tateda[5]

[1]Univ. of Tsukuba, [2]Fukushima Univ. [2]IRSN, France, [4]Kanazawa Univ. [5]Central Res. Inst. of Electric Power Industry

福島県浜通りの河川水中における溶存態と河床土の放射性セシウム濃度の関係

Relationships between dissolved form and sediment in radiocesium concentrations in the riverwater in Hamadori, Fukushima

*竹内幸生[1]，新井宏受[1]，藤田一輝[1]，勝野和美[1]，那須康輝[1]，谷口圭輔[2]，恩田裕一[2]
[1]福島県環境創造センター，[2]筑波大学アイソトープ環境動態研究センター

本研究では、帰還困難区域とその周辺に位置する 6 河川で河川水の採水と河床土の採取を行い、溶存態と河床土及び溶存態と懸濁態の間における ^{137}Cs の分配係数を算出した。河床土の ^{137}Cs 濃度から溶存態 ^{137}Cs 濃度の推定を試みた。

キーワード：河川，放射性セシウム，溶存態放射性セシウム，河床土

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所事故から約 10 年が経過し、避難指示解除地域における河川水の利用が進むものとみられる。このため、住民が利用する河川水の放射性セシウム（^{137}Cs）濃度を継続的に把握することは重要である。しかし、河川水の ^{137}Cs 濃度は極めて低いうえに、時間の経過とともに低下する傾向を示していることから、定量が困難となる場合がある。

環境省のモニタリングでは、河川水の ^{137}Cs 濃度は、定量下限値よりも低く、実測値が示されないことが多い。一方、河床土の ^{137}Cs 濃度は実測値が示されている。

そこで本研究では、河川水と河床土の ^{137}Cs についての調査を行い、河床土の ^{137}Cs 濃度から河川水の ^{137}Cs 濃度の推定を試みた。

2. 方法

調査は、福島県浜通りの 6 河川（木戸川、富岡川、熊川、前田川、高瀬川、小出谷川）において行った。河川水は 2017 年から 2020 年までに年 1～4 回採水したものを、河床土は 2019 年と 2020 年に年 1 回、100 mL の採土器を用いて採取した。河川水をろ過し、メンブレンフィルター（孔径 0.45 μm）で捕集されたものを懸濁態、ろ液に含まれ陽イオン交換樹脂に吸着されたものを溶存態とした。河床土を篩別し、粒径 2mm 以下のものを供試料とした。それぞれについて、Ge 半導体検出器により ^{137}Cs 濃度の測定を行った。測定結果を用いて、溶存態と河床土の間での ^{137}Cs の分配係数（K_d 値）と、溶存態と懸濁態の間での ^{137}Cs の K_d 値の算出を行った。河床土については、レーザ回折/散乱式粒子径分布測定装置により粒度分析を行い、K_d 値との関係を調べた。

3. 結果・考察

6 河川における、2017 年～2019 年の溶存態と懸濁態との間での ^{137}Cs の K_d 値は 2.1×10^5 ～ 1.1×10^6 で、先行研究[1][2]の K_d 値の範囲に含まれていた。一方、2019 年の溶存態と河床土の間での ^{137}Cs の K_d 値は 2.8 ～ 9.7×10^4 であった。それぞれの液相－固相の間での K_d 値が一定の範囲内であったことから、河床土の ^{137}Cs 濃度の実測値と K_d 値により、溶存態 ^{137}Cs 濃度を推定できる可能性があることが示唆された。発表では、2020 年の河床土と河川水の測定結果と粒度分析結果との解析結果を併せて紹介する。

参考文献

[1] Taniguchi et al, 2019, Environ. Sci. Technol. 2019, 53, 21, 12339–12347. [2] IAEA, IAEA-TECDOC-1927, 2020.

* Yukio Takeuchi[1], Hirotsugu Arai[1], Kazuki Fujita[1], Kazumi Katsuno[1], Kouki Nasu[1], Keisuke Taniguchi[2], and Yuichi Onda[2].
[1]Fukushima Prefectural Centre for Environmental Creation. [2]Univ. of Tsukuba, CRiED.

福島原発港湾及び沿岸におけるトリチウムの環境動態：モニタリング結果の分析

Environmental Dynamics of Tritium in Fukushima Coastal Area and Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Port: Analysis of Monitoring Data

*町田 昌彦[1]，岩田亜矢子[1]，山田 進[1]

[1]日本原子力研究開発機構

発表者らは、これまでの学会や論文 1)において、各機関及び東電が公開してきた１F 港湾内外のモニタリングデータから Cs-137 の１F 港湾から福島沿岸での環境動態について議論してきた。本発表ではこの解析対象をトリチウムとし、Cs-137 と同様に１F 港湾内外でのトリチウムのモニタリングデータを分析し、その経時変化傾向等から推定される環境動態について報告する。

キーワード：トリチウム，海水流動，沿岸環境, 1F 港湾, 放射性物質環境動態

1. 緒言

トリチウムを微視的レベルで見ると、水素の同位体（^{3}H：略記号 T）であるため、主にトリチウム水（HTO）と呼ばれる化学形態をとり、巨視的レベルでは、水分子(H_2O)と凡そ同様の振る舞いをすると考えられている。しかし、実際には、水分子との水素結合の強さが異なる等、微視的レベルの違いもあり、様々な知見が蓄積され、その環境動態についての一層の理解が求められてきた。著者らは、これまで、Cs-137 に着目し、１F 港湾内外のモニタリング結果の分析を通して、福島沿岸の環境動態について分析結果を報告してきた。その結果、Cs-137 の懸濁態との相互作用による、特異な振る舞いが分かってきたが、その特異性をより良く理解するには、他の放射性物質との比較が効果的であると考えられる。そこで、今般、重要な核種として、様々な観点から注目を受けているトリチウムに焦点を当て、それ自身の環境動態という観点と Cs-137 との比較という観点から、研究を行うこととした。

2. トリチウムのモニタリングとそのデータ解析

本発表では、トリチウムの福島沿岸環境での動態解明、そして Cs-137 との比較という目的に対し、１F 港湾内を中心に、トリチウムのモニタリングデータの解析結果について報告する。先ず、トリチウムの１F 港湾内でのモニタリング体制について報告する他、港湾外の海水モニタリング体制についても言及する。また、Cs-137 とのモニタリング体制との違いについても報告する。其の後、１F 港湾内での凡その濃度レベルや分布、そしてその経時変化傾向等について議論し、Cs-137 との比較を行う。特に、発表にて着目するのは、降雨時の分布やその後の経時変化の違いである。其の理由は、降雨時、Cs-137 の多くは、懸濁態として環境中を移行する一方、トリチウムの場合は水分子の同位体として移行することから、其の化学形態の違いが如実に反映されると考えられるからである。発表では、１F 港湾内を中心とするが、港湾外に対しても、一部、同様の分析を行った結果を報告する。

3. 結論

トリチウムの環境動態についての知見を分析し、その知見を深めることは急務な課題である。得られる知見は、環境動態のシミュレーションモデリングに反映され、環境シミュレーションの高度化に繋がると考えられる。

参考文献

[1] 町田昌彦他、福島第一原発港湾からの放射性セシウム 137 の推定流出量の変遷―2011 年 4 月～2018 年 6 月までの 7 年間に渡る月間流出量の推定―、2019 年 18 巻 4 号 p. 226-236

---

*Masahiko Machida[1], Ayako Iwata[1] and Susumu Yamada[1]

[1]Japan Atomic Energy Agency