

平成 30 年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業  
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

成果報告書

平成 31 年 3 月

国立大学法人 東京工業大学

本報告書は、文部科学省の英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業による委託業務として、国立大学法人 東京工業大学が実施した平成 26-30 年度「廃止措置工学高度人材育成と基盤研究の深化」の成果を取りまとめたものです。

## 目次

概略	viii
1. はじめに	1
2. 業務計画	1
2.1 全体計画	1
2.2 平成30年度の成果の目標及び業務の実施方法	3
3. 業務の実施内容及び成果	6
3.1 人材育成活動	6
3.1.1 デブリ材料工学に関する人材育成	6
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	6
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	7
3.1.2 デブリ化学に関する人材育成	10
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	10
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	11
3.1.3 シビアアクシデント後の遠隔計測技術に関する人材育成	14
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	14
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	14
3.1.4 廃止措置の最新技術と基礎に関する人材育成	18
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	18
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	18
3.1.5 キャリアパス形成活動	20
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	20
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	21
3.1.6 廃止措置工学特別コースの設置・運営	23
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	23
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	23
3.2 研究活動	26
3.2.1 難分析核種用マイクロ分析システムの構築	26
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	26
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	27
3.2.2 セルロース分解性イオン液体を用いた汚染木材等の除染法の開発	30
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	30
① 酢酸系イオン液体を用いた伐採木等の表面除染	30
② ハロゲン系イオン液体を用いた伐採木等の表面除染試験の実施（再委託先：東海大学）	30
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	32
① 酢酸系イオン液体を用いた伐採木等の表面除染	32

②ハロゲン系イオン液体を用いた伐採木等の表面除染試験の実施（再委託先：東海大 学）	34
3.2.3 水熱分解法による汚染土壌・焼却灰処理技術	37
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	37
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	38
3.2.4 フェリシアン系吸着剤によるCs回収技術開発	41
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	41
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	42
3.2.5 クラウンエーテル含有ゲルと天然鉱物を利用したCs、Sr回収・固定化技術	44
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	44
①Cs、Sr回収試験	44
②ホウ酸塩ガラスによるCs、Sr等廃棄物のガラス固化試験（再委託先：芝浦工業大 学）	46
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	47
①Cs、Sr回収試験	47
②ホウ酸塩ガラスによるCs、Sr等廃棄物のガラス固化試験（再委託先：芝浦工業大 学）	51
3.2.6 シビアアクシデント後の遠隔計測技術	60
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	60
①パルスエコー法による超音波計測技術開発	60
②多関節ロボットアームによるセンサポジショニング技術開発（再委託先：東京医科歯 科大学）	60
③移動ロボットによるセンサ・アーム搬送技術開発	61
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	63
①パルスエコー法による超音波計測技術開発	63
②多関節ロボットアームによるセンサポジショニング技術開発（再委託先：東京医科歯 科大学）	66
③移動ロボットによるセンサ・アーム搬送技術開発	67
3.2.7 デブリ取出時の未臨界確保方策（再委託先：東京都市大学）	71
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	71
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	72
3.2.8 メルトダウン炉心の臨界事故解析と対策の検討	75
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	75
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	75
3.2.9 廃止措置技術・人材育成フォーラム	79
(1) 平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	79
(2) 平成30年度の実施内容及び成果	79
① 東京工業大学廃止措置技術・人材育成フォーラムの開催	79
② 次世代イニシアティブ廃炉技術カンファレンス(NDEC-4)への参画	81

3.3	研究推進	82
3.3.1	平成26年度から平成29年度の実施内容及び成果	82
3.3.2	平成30年度の実施内容及び成果	82
4.	結言	83

## 表一覧

表 2.1-1	平成 30 年度業務項目と実施日程	1
表 3.1.1(2)-1	「廃止措置・材料工学実験」実施スケジュール	8
表 3.1.1(2)-2	「廃止措置・材料工学実験」実施内容	8
表 3.1.2(2)-1	「核燃料デブリ・バックエンド工学実験」実施スケジュール	12
表 3.1.3(2)-1	「熱流動・シビアアクシデント工学実験」 「熱流動・シビアアクシデント工学 実践特論」実施内容	16
表 3.1.4(2)-1	平成 30 年度「原子炉廃止措置工学特論」	19
表 3.1.4(2)-2	平成 30 年度「原子炉廃止措置工学」	19
表 3.2.5(2)①-1	A-WPS+NC 焼成体、NKZ+NC 焼成体、TPS+NC 焼成体のかさ密度、開気孔率及び 比表面積	50
表 3.2.5(2)②-1	カラム浸出試験条件	54
表 3.2.6(2)③-1	ビジュアルオドメトリによる位置姿勢推定結果	68
表 3.2.7(2)-1	臨界解析の主な条件	73
表 3.2.8(2)-1	燃料デブリ組成及び体系	77

## 図一覧

図 3.1.1(2)-1	学生実験「放射化セラミックスの物性測定」の実施状況	9
図 3.1.1(2)-2	誘導加熱式高温熱処理装置を用いた模擬デブリの作製	9
図 3.1.2(2)-1	学生実験「溶媒抽出によるウラン分離」の実施状況	12
図 3.1.2(2)-2	学生実験「精製・転換」の実施状況	13
図 3.1.2(2)-3	学生実験「イオン交換法による廃液からのウラン分離回収法」の実施状況	13
図 3.1.3(2)-1	熱流動・シビアアクシデント工学実験「超音波を用いた流れの計測」の実施状況	16
図 3.1.3(2)-2	熱流動・シビアアクシデント工学実験「アーム・移動ロボットの制御」の実施状況	17
図 3.1.3(2)-3	檜葉遠隔技術開発センター学生実験「ロボット制御と超音波流体計測」の実施状況	17
図 3.1.4(2)-1	(株)東芝磯子エンジニアリングセンター見学及び授業の様子	20
図 3.1.5(2)-1	「東電セミナー」の様子	22
図 3.1.5(2)-2	「原電セミナー」の様子	22
図 3.1.6(2)-1	廃止措置工学奨励賞募集ポスター	24
図 3.1.6(2)-2	廃止措置工学奨励賞の顕彰	24
図 3.1.6(2)-3	連携大学学生実験の様子	25
図 3.2.1(2)-1	模擬廃液中の Zr、Mo、U イオン分析フロー	28
図 3.2.1(2)-2	励起光 ON/OFF により得られる TLM 信号	29
図 3.2.1(2)-3	Zr (IV) 抽出率の流速依存性	29
図 3.2.2(2)①-1	酢酸系イオン液体の構造式	32
図 3.2.2(2)①-2	汚染伐採木バッチ式 2 段階除染プロセス概念	33
図 3.2.2(2)①-3	模擬汚染物(松葉)に対するバッチ式 2 段階除染試験結果	33
図 3.2.2(2)②-1	使用したイオン液体の構造式と処理温度	34
図 3.2.2(2)②-2	模擬汚染木材片の除染試験の結果	35
図 3.2.3(2)-1	Mg イオン濃度と模擬焼却灰からの Cs 脱離率の関係	39
図 3.2.5(2)①-1	CE を架橋剤とした親水性高分子ゲルによる PB の固定化	48
図 3.2.5(2)①-2	得られた焼成体の表面の走査型電子顕微鏡 (SEM) 写真	50
図 3.2.5(2)①-3	各焼成体の Cs 及び Sr 吸着率と吸着時間との関係	50
図 3.2.5(2)①-4	再焼成した試料の外観	51
図 3.2.5(2)②-1	カラム浸出試験の模式図	54
図 3.2.5(2)②-2	Cs-13x_50wt% の動的浸出試験結果	55
図 3.2.5(2)②-3	Cs-13x_50wt% の動的浸出試験により得られた規格化浸出量	55
図 3.2.5(2)②-4	Cs-IE96_50wt% のガラス固化体試料における Al 及び Si の規格化浸出速度	55
図 3.2.5(2)②-5	Cs-IE96_50wt% のガラス固化体試料における動的浸出試験結果	56
図 3.2.5(2)②-6	動的浸出試験により得られた Cs-IE96 のガラス固化体試料の規格化浸出量	56
図 3.2.5(2)②-7	Cs-IE96_80wt% の動的浸出試験結果	56
図 3.2.5(2)②-8	Cs-IE96_80wt% のガラス固化体試料における各元素の規格化浸出速度	57
図 3.2.5(2)②-9	動的浸出試験前後の Cs-IE96_80wt% の XRD 分析結果	57
図 3.2.5(2)②-10	Sr-A51J_80wt% の動的浸出試験結果	57
図 3.2.5(2)②-11	Sr-A51J_80wt% の規格化浸出速度	58
図 3.2.5(2)②-12	Sr-A51J_80wt% の XRD 分析結果	58
図 3.2.5(2)②-13	各温度で熔融した Na <sub>2</sub> O-ZnO-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ガラスの XRD 分析結果	58
図 3.2.5(2)②-14	900°C で熔融した Na <sub>2</sub> O-ZnO-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ガラスの断面写真	59
図 3.2.5(2)②-15	Cs-IE96_10~80wt% の XRD 分析結果	59

図 3.2.5(2)②-16	Sr-A51J_10~80wt%の XRD 分析結果	59
図 3.2.6(2)①-1	扇型セクターアレイセンサーと計測点	64
図 3.2.6(2)①-2	実験装置の概要図	64
図 3.2.6(2)①-3	漏洩箇所特定とデブリ形状把握計測時の超音波センサと模擬デブリの配置概要	64
図 3.2.6(2)①-4	模擬漏洩箇所周囲の流れ場及び模擬デブリ形状の計測結果	65
図 3.2.6(2)②-1	開発した操作インターフェース	66
図 3.2.6(2)②-2	動作実験	66
図 3.2.6(2)③-1	2 自由度テール機構と階段踏破実験	68
図 3.2.6(2)③-2	実験の様子(a)と合成した鳥観図(ピンクが移動軌跡)(b)	68
図 3.2.6(2)③-3	実験の概略(左)と実際の実験の様子(右)	69
図 3.2.6(2)③-4	流動計測結果(赤線:低流量、青線:高流量)	70
図 3.2.7(2)-1	最近接粒子分布(NND)の例(充填率 30%)	73
図 3.2.7(2)-2	無限増倍率(kinf)の解析結果の例(充填率 30%)	74
図 3.2.8(2)-1	解析体系	78
図 3.2.8(2)-2	水位と線種別・由来別の線量の関係	78
図 3.2.9(2)-1	東工大フォーラムの様子	80

略語一覧

	略語/略称	用語/正式名称
【A】	A-51J	A型ゼオライト(ユニオン昭和株式会社製)
	AAS	原子吸光分析
	A-Mixture	A-51JにMg及びCaを飽和吸着させたもの
	AIBN	アゾビスイソブチロニトリル
	APG	アルミノシリケート含有多孔質ガラス(aluminosilicate-containing porous glass)
	A-Sr	模擬使用済みゼオライト(A型ゼオライトにSrを飽和吸着させ十分乾燥させたもの)
	A-WPS	ポーラスシリカ
【B】	BCH18C6DAA	DABCH18C6に重合性官能基を導入し、ゲル合成時の架橋剤となるもの
	BIS	N,N'-メチレンビスアクリルアミド
	BMI	1ブチル3メチルイミダゾリウム
【C】	CE	クラウンエーテル
	Cs-13x	molecular sieves 13x にCsを飽和吸着させたもの
	Cs-IE96	IE96にCsを飽和吸着させたもの
【D】	DAB18C6	ジベンゾCE誘導体
	DABCH18C6	2つのベンゼン環のうち、1つのベンゼン環に水素が添加されたもの
	DACH18C6	ジシクロCE誘導体。DAB18C6のベンゼン環に水素を添加したもの
	DB18C6	ジベンゾ-18-クラウン-6
【E】	EMI	1エチル3メチルイミダゾリウム
	EPMA	電子線マイクロアナライザー
【F】	f-9	X型ゼオライト
	f-9Sr	模擬使用済みゼオライト(X型ゼオライトにSrを飽和吸着させ十分に乾燥させたもの)
【G】	Gahnite	Al <sub>2</sub> O <sub>4</sub> Zn
	Gd	ガドリニウム
【I】	ICP-AES	誘導結合プラズマ発光分光分析装置
	ICP-MS	誘導結合プラズマ質量分析装置
	IE96	ゼオライト(ユニオン昭和株式会社製)
【N】	NC	天然粘土
	NIPA	N-イソプロピルアクリルアミド
	NKZ	ゼオライト
	NND	最近接粒子分布(Nearest Neighbor Distribution)
【O】	ODS	オクタデシルトリクロロシラン
【P】	PB	プルシアンブルー(Prussian blue)
	PCT	浸出試験(Product Consistency Test)
	PCV	原子炉格納容器(Primary Containment Vessel)
	PDMS	ポリジメチルシロキサン
	PUREX法	核燃料再処理において使用済み核燃料からプルトニウムとウランを抽出する手法
【R】	RPV	原子炉圧力容器(Reactor Pressure Vessel)
【T】	TAA	DB18C6TAA。重合性官能基を4つ有するCE誘導体
	TBP	リン酸トリブチル
	TDX	超音波センサ
	TLM	熱レンズ顕微鏡(Thermal Lens Microscope)・熱レンズ分光法
	TPS	多孔質シリカ粉末
【U】	UV-Vis	紫外-可視
【V】	VUV	真空紫外光
【X】	XRD	X線回折(X-ray diffraction)

## 概略

東京電力福島第一原子力発電所の廃止措置に必要な技術の開発には中長期的視点からの基盤的な研究を継続的に推進していくことが必要不可欠と考えられる。さらにこの廃止措置事業やその遂行に必要な技術の開発を担う人材の育成を長期にわたって継続して行っていくことは極めて重要であると考えられる。

このような状況を踏まえ、福島第一原子力発電所の廃止措置に必要な不可欠な人材を育成し、廃止措置上重要な基盤的研究を推進することを目的とし、本事業では平成 26 年度より人材育成活動及び基盤的研究活動を推進してきた。

本事業では、福島第一原子力発電所の廃止措置に必要な不可欠な廃止措置の最新技術と原子核工学の専門知識を有し、デブリ材料工学、デブリ化学及びシビアアクシデント後の遠隔操作技術を、体験を通して深く理解した人材を継続的に育成するために、東京工業大学に廃止措置工学を専門とするカリキュラムを設置し、同時に、これまでに培われてきた東京工業大学及び連携機関研究者の知見に立脚し、廃止措置上重要な課題である難分析核種の分析、汚染木材等の除染法の開発、汚染土壌・焼却灰処理技術、Cs・Sr 同時回収固化技術、シビアアクシデント後の遠隔計測技術、デブリ取出時の再臨界防止技術及びメルトダウン炉心の臨界事故解析とその対策技術に関する基盤的研究を推進し、廃止措置に反映することで福島第一原子力発電所の事故収束に貢献することを目標としている。

人材育成活動では、平成 29 年度に引き続きデブリ材料工学に関する人材育成において廃止措置・材料工学の学生実験を実施しカリキュラムを完成させ、デブリ化学に関する人材育成では核燃料・化学に関する学生実験を実施しカリキュラムを完成させた。シビアアクシデント後の遠隔計測技術に関する人材育成では大学院においてもシビアアクシデント工学に関する学生実験を実施しカリキュラムを完成させ、廃止措置の最新技術と基礎に関する人材育成においては廃止措置関連の講義を開講し、カリキュラムを完成させた。キャリアパス形成活動では学生のインターンシップ派遣を実施すると共に廃止措置に関するセミナーを開催した。実施に当たってはこれらの授業科目等が円滑に実施できるよう支援体制を整えて運営を行った。また研究活動では、難分析核種用マイクロ分析システムの構築、セルロース分解性イオン液体を用いた汚染木材等の除染法の開発、水熱分解法による汚染土壌・焼却灰処理技術、フェリシアン系吸着剤による Cs 回収技術開発、クラウンエーテル含有ゲルと天然鉱物を利用した Cs・Sr 回収固定化技術、シビアアクシデント後の遠隔計測技術、デブリ取出時の未臨界確保方策、メルトダウン炉心の臨界事故解析と対策の検討について、種々の試験・解析を昨年度に引き続き行った。また廃止措置技術・人材育成フォーラムを開催し、成果を公開すると共に情報の交換を行った。

平成 30 年度は 5 年間の本事業の最終年度となった。人材育成活動は確実に実施され各人材育成活動のカリキュラムが完成した。キャリアパス活動も確実に実施された。また研究活動ではそれぞれの研究項目は確実に実施され研究目標は達成された。5 年間実施された本事業は人材育成活動及び研究活動共大きな成果を挙げた。

## 1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所の事故により、1号機から3号機までの炉心は溶融したものと考えられておりその廃止措置事業の完遂までには30年から40年もの長い期間を要すると予想されている。廃止措置事業において溶けた燃料のデブリの除去と回収作業を確実にそして安全に行うことは必要不可欠であるが、溶けた燃料デブリからの強い放射線によりその作業には困難が予想され、多くの新しい技術の開発が必要となると考えられている。また、原子炉建屋内及び周辺の除染や汚染水からの放射性物質の回収や安定化等廃棄物処分技術の確立も廃止措置事業を遂行する上で重要な課題となっている。これらの技術の開発には中長期的な視点からの基盤的な研究を継続的に推進していくことが必要不可欠と考えられる。さらにこの廃止措置事業やその遂行に必要な技術の開発を担う人材の育成を長期にわたって継続して行っていくことは本廃止措置事業を遂行するために極めて重要であると考えられる。

このような状況を踏まえ、本事業では福島第一原子力発電所の廃止措置に必要な不可欠な人材を育成し、廃止措置上重要な基盤的研究を推進することを目的としている。

## 2. 業務計画

### 2.1 全体計画

本課題は、福島第一原子力発電所の廃止措置に必要な不可欠な廃止措置の最新技術と原子核工学の専門知識を有し、デブリ材料工学、デブリ化学及びシビアアクシデント後の遠隔操作技術を、体験を通して深く理解した人材を継続的に育成するために、東京工業大学に廃止措置工学を専門とするカリキュラムを設置する。同時に、これまでに培われてきた東京工業大学及び連携機関研究者の知見に立脚し、廃止措置上重要な課題である難分析核種の分析、汚染木材等の除染法の開発、汚染土壌・焼却灰処理技術、Cs、Sr同時回収固化技術、シビアアクシデント後の遠隔計測技術、デブリ取出時の再臨界防止技術及びメルトダウン炉心の臨界事故解析とその対策技術に関する基盤的研究を推進し、廃止措置に反映することにより福島第一原子力発電所の事故収束に貢献することを目標としている。人材育成と研究の推進に当たっては廃止措置機関、電力企業、関連企業と十分な連携を維持しながら進め、これらの企業等が学生のキャリアパスとなるように指導する。また平成30年度は、人材育成活動では、各実験科目の実施及びカリキュラムの完成、廃止措置工学関連講義の開講及びカリキュラムの完成を行い、また研究活動では実験及び解析等を推進することとした。

表 2.1-1 平成30年度業務項目と実施日程

区分	H30											
	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
(1) 人材育成活動												
①デブリ材料工学に関する人材育成	←											→
②デブリ化学に関する人材育成	←											→



## 2.2 平成 30 年度の成果の目標及び業務の実施方法

平成 30 年度は人材育成について以下のような活動を行うこととした。

- ・デブリ材料工学に関する人材育成  
廃止措置・材料工学実験を実施しカリキュラムを完成させる。
- ・デブリ化学に関する人材育成  
核燃料デブリ・化学実験を実施しカリキュラムを完成させる。
- ・シビアアクシデント後の遠隔計測技術に関する人材育成  
シビアアクシデント工学実験を実施しカリキュラムを完成させる。
- ・廃止措置の最新技術と基礎に関する人材育成  
廃止措置工学関連講義を開講しカリキュラムを完成させる。
- ・キャリアパス形成活動  
インターンシップ派遣の実施及びセミナー等の開催を行う。
- ・廃止措置工学特別コースの設置・運営  
廃止措置工学特別コースの運営を行う。

また、平成 30 年度は研究について以下の活動を行うこととした。

- ・難分析核種用マイクロ分析システムの構築  
マイクロ化学チップと熱レンズ顕微鏡から成る難分析核種用マイクロ分析システムを用いた分析フローを構築し、模擬廃液分析の実証試験を実施する。分析時間、検出感度、廃液量等の結果から、本分析システムの性能について評価すると共に、実用化へ向けた課題を抽出する。
- ・セルロース分解性イオン液体を用いた汚染木材等の除染法の開発  
イオン液体溶解法を用いた汚染木材等の除染基本プロセスを提案し、模擬汚染物に対する実証試験を実施する。
  - a. 酢酸系イオン液体を用いた伐採木等の表面除染試験の実施  
酢酸系イオン液体を用いたイオン液体溶解法による除染基本プロセスを提案し、伐採木等模擬汚染物に対する実証試験を実施する。
  - b. ハロゲン系イオン液体を用いた伐採木等の表面除染試験の実施（再委託先：東海大学）  
ハロゲン系イオン液体を用いたイオン液体溶解法による除染基本プロセスを提案し、伐採木等模擬汚染物に対する実証試験を実施する。
- ・水熱分解法による汚染土壌・焼却灰処理技術  
平成 29 年度に引き続き、水熱分解法による焼却灰からの Cs 脱離条件と脱離率の関係を調べる。また、半流通式水熱分解装置を用いて水熱処理中の亜臨界水を取り出すことにより、水熱処理中の Cs 脱離状態及び脱離機構を調べ、水熱処理水の効率の良い取り出し方法や冷却方法を検討し、水熱分解法のさらなる高効率化に必要な条件を抽出する。国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（JAEA）の廃炉国際共同研究センター（CLADS）にて、水熱分解処理による実汚染土壌からの Cs 脱離試験を行い、水熱分解処理プロセスの評価を行う。

- ・フェリシアン系吸着剤による Cs 回収技術開発  
 プルシアンブルー類似体で濃縮回収された Cs を、硼珪酸ガラスを用いて固定化を行う。また、水熱分解で水相に脱離した Cs を、平成 29 年度とは組成の異なるアルミノシリケート含有多孔質ガラスに選択吸着させ、高温処理により固定化を行い、Cs 固定化率と処理条件の関係を調べ、廃棄物の減容率を評価する。また、Cs を固定化したガラスの浸出試験を行い、ガラスの Cs 保持能力を評価する。
- ・クラウンエーテル含有ゲルと天然鉱物を利用した Cs、Sr 回収・固定化技術
  - a. Cs、Sr 回収試験  
 平成 29 年度に引き続き、プルシアンブルー類似体（粉体）をクラウンエーテル含有の親水性高分子ゲルで固定化した吸着剤を合成し、Cs、Sr 同時吸着試験を行い、最適な吸着条件を明らかにする。また、天然鉱物原料を種々の加熱条件で仮焼し、得られた多孔質仮焼体の比表面積、気孔率や微構造を評価し、Cs、Sr の吸着特性について検討する。
  - b. ホウ酸塩ガラスによる Cs、Sr 等廃棄物のガラス固化試験（再委託先：芝浦工業大学）  
 Cs、Sr 等を吸着したゼオライトを固定化したホウ酸塩ガラスの動的浸出試験を実施し、水相へのホウ酸塩ガラスマトリックス並びに Cs、Sr 等の浸出速度等を調査する。これまでの研究成果を基に最適なホウ酸ガラスマトリックスの作製条件やゼオライト充填量等を決定し、本法の有効性について検討する。
- ・シビアアクシデント後の遠隔計測技術
  - a. パルスエコー法による超音波計測技術開発  
 平成 29 年度に改良したデブリ形状把握と漏洩箇所特定のための統合計測システムの信頼性向上を図り、計測システムの総合評価を行う。
  - b. 多関節ロボットアームによるセンサポジショニング技術開発（再委託先：東京医科歯科大学）  
 改良した多関節ロボットアームの信頼性向上を図ると共に、実プラントに適用するための知見をまとめる。
  - c. 移動ロボットによるセンサ・アーム搬送技術開発  
 改良した統合システムの信頼性・運用性をさらに高めるためのセンサ搬送と超音波による流速計測を実現するロボットシステムを構築すると共に、JAEA の櫛葉遠隔技術開発センターにて模擬漏水箇所特定実験を実施し、開発したシステムの総合評価を行う。
- ・デブリ取出時の未臨界確保方策（再委託先：東京都市大学）  
 平成 29 年度までに検討した燃料デブリの臨界特性を踏まえ、提案された臨界防止方策の有効性評価を行う。さらに、臨界事故を生じさせることなく安全かつ速やかに熔融燃料デブリを回収する上で必要な中性子工学を基盤とする知見を整理する。
- ・メルトダウン炉心の臨界事故解析と対策の検討  
 メルトダウン炉心の臨界事故解析を行い、臨界事故対策を検討しその有効性を評価する。
- ・廃止措置技術・人材育成フォーラム  
 廃止措置技術・人材育成フォーラムの企画・開催を行う。また、より学生等を惹きつける取り組みや広域なネットワーク構築等、より充実した教育・人材育成の拠点とするための検討を行う。

さらに、本研究の推進に当たっては、現在、文部科学省が推進している「東京電力（株）福島第一原子力発電所の廃止措置等研究開発の加速プラン」に基づき、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の廃炉国際共同研究センター「国際共同研究棟」における研究・人材育成の実施に向けた準備・検討を引き続き行う。また、福島第一原子力発電所の廃炉に向けた基礎・基盤研究の推進協議体である「廃炉基盤研究プラットフォーム」の運営に協力することとした。

### 3. 業務の実施内容及び成果

#### 3.1 人材育成活動

##### 3.1.1 デブリ材料工学に関する人材育成

###### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

###### 平成 26 年度

廃止措置・材料工学実験カリキュラムの作成・実験の実施に必要な分析機器の整備を行った。具体的には、原子核工学専攻の科目として「廃止措置・材料工学実験」を新設し、実験に必要な分析機器等（熱伝導率測定装置、汚染検査用 GM 測定装置、個人線量計）を購入した。さらに、非密封 RI 取り扱い用グローブボックスなど既設の設備を整備した。カリキュラムを決め、テキストのドラフト版を作成した。

###### 平成 27 年度

廃止措置に必要なデブリ材料分析の技術の習得を目的とした大学院授業科目「廃止措置・材料工学実験」を新規に立ち上げ、試行版テキストに基づき、東京工業大学のホット実験施設で放射化材料を用いた実験を大学院生に行わせた（東工大大学院理工学研究科原子核工学専攻・1 単位）。履修した学生は 11 名（うち留学生 3 名）であり、実験及び講義・演習を 8 回実施した。「放射化セラミックスの物性測定」では、グローブボックスやフード環境での微細分析試料の加工技術を習得し、放射化材料は熱伝導率が低下し、結晶構造が乱れるという基本的な照射損傷に関する知識を習得した。「金属材料の引張試験」では、評価材料としてアルミニウム及びジルカロイ 4 を用い、オートクレーブ付属の引張強度試験機による室温及び沸騰水型軽水炉を模擬した高温高圧水環境下で引張強度試験を行い、使用環境が金属材料の機械的性質へ及ぼす影響を習得した。本授業科目では、原子力分野における材料の重要性を認識してもらうことを目的として行い、さらには照射材の特殊性に関しても体感することが狙いであり、これらを果たすことができた。また、学生の積極的な参加もうかがわれた。なお、実際に実験を行う前に座学を行い、理論的な面を理解してもらうのは非常に有効であった。

###### 平成 28 年度

大学院授業科目「廃止措置・材料工学実験」を実施し、東京工業大学のホット実験施設で放射化材料を用いた実験を大学院生に行わせた（東工大大学院原子核工学コース・1 単位）。履修した学生は第 3 クォーターで 21 名、第 4 クォーターで 18 名であり、実験及び講義・演習をそれぞれ 8 回実施した。平成 28 年度は、①外国人留学生への対応としてテキストの英訳、②受講者数の増加に伴う教員間の分業の徹底、等の改良を行った。①に関しては、テキスト以外の説明資料・実験の詳しいスケジュールについても英語版を用意した。②に関しては、今後の担当の交代を見越して、詳しい実験段取りを記したメモも用意した。また、それぞれのクォーターで学生を 4 班に分けて、対応を行った。学生の反応としては、初めて経験する学生も多く、大変良い反応を得た。留学生への対応に関しても資料等の準備もあったため、特に問題なかった。また、管理区域に対する教育訓練に関しては、核燃料デブリ・バックエンド工学実験と合同で行うことで効率化できた。

平成 29 年度

大学院授業科目「廃止措置・材料工学実験」を実施し、大学院生を対象に東京工業大学のホット実験施設で放射化材料を用いた実験を行った（東工大大学院原子核工学コース・1 単位）。履修した学生は第 3 クォーターで 22 名、第 4 クォーターで 20 名であり、実験及び講義・演習をそれぞれ 7 回実施した。外国人留学生への対応として平成 28 年度に作成した英訳テキストの改訂を行った。さらに、受講者数の増加に伴う教員間の分業の徹底に関連して、実験段取りの見直しを行った。各実験はそれぞれのクォーターで学生を 4 班に分けて行った。学生の反応としては、初めて経験する学生が多く、大変良い反応を得た。留学生への対応に関しては英語版資料等を準備しており、特に問題なく対応できた。また、平成 30 年度は模擬デブリの作製・評価・観察を行う実験項目を新たに追加するため、誘導加熱式高温熱処理装置を導入し、二酸化ウラン ( $UO_2$ ) の模擬物質として酸化セリウム ( $CeO_2$ ) 粉末、及び燃料被覆管に使われているジルカロイ-4 を用いた模擬デブリ作製条件の検討及び目処付けができた。

## (2) 平成 30 年度の実施内容及び成果

廃止措置に必要なデブリ材料分析の技術の習得を目的とした大学院授業科目「廃止措置・材料工学実験」を実施し、大学院生を対象に東京工業大学のホット実験施設で放射化材料を用いた実験を行った（東工大大学院原子核工学コース・1 単位）。

履修した学生は第 3 クォーターで 17 名、第 4 クォーターで 5 名であり、実験及び講義・演習をそれぞれ 8 回実施した（講義 1 回、実験 6 回、演習 1 回。第 4 クォーターは講義の後、同日に第 1 回目の実験を行った。）。表 3.1.1(2)-1 に実施スケジュール、表 3.1.1(2)-2 に実施内容を示す。「放射化セラミックスの物性測定」では、グローブボックスやフード環境での微細分析試料の加工技術を習得し、放射化材料は熱伝導率が低下し、結晶構造が乱れるという基本的な照射損傷に関する知識を習得した。図 3.1.1(2)-1 に学生実験「放射化セラミックスの物性測定」の実施状況を示す。「金属材料の引張試験」では、評価材料としてアルミニウム及びジルカロイ 4 を用い、オートクレーブ付属の引張強度試験機による室温及び沸騰水型軽水炉を模擬した高温高圧水環境下で引張強度試験を行い、使用環境が金属材料の機械的性質へ及ぼす影響を習得した。また、平成 30 年度は、二酸化ウランの代わりに酸化セリウムを用い、軽水炉燃料被覆管に使われているジルカロイと共に誘導加熱式高温熱処理装置により高温で溶解させて模擬デブリを作製し、得られた模擬デブリの組成とビッカース硬さを評価し、模擬デブリの特性を理解することを目的とし、新たに「模擬デブリの作製及び評価」に関する実験を「廃止措置・材料工学実験」に追加し、実施した。図 3.1.1(2)-2 に誘導加熱式高温熱処理装置を用いた模擬デブリの作製の概要を示す。

本授業科目では、原子力分野における材料の重要性を認識してもらうことを目的として行い、さらには照射材の特殊性に関しても体感することが狙いであり、平成 30 年度も引き続きこれらを果たすことができた。また、平成 30 年度より、燃料デブリの理解を深めることを狙いとした模擬デブリの作製及び評価の実験を新規に追加することで、廃止措置・材料工学実験のカリキュラムの高度化を図ることができた。外国人留学生への対応として英訳テキ

ストの改訂を行った。さらに実験内容の追加に関連して、実験段取りの見直しを行った。各実験は学生を第3クォーターでは4班、第4クォーターでは2班に分けて行った。学生の反応としては、初めて経験する学生が多く、大変良い反応を得た。留学生への対応に関しては英語版資料等を準備しており、特に問題なく対応できた。また、管理区域に対する教育訓練に関しては、核燃料デブリ・バックエンド工学実験と合同で行うことで効率化できた。

本事業では、当該授業科目の実験設備の整備を行い、実験内容及び指導内容を確定し、テキストを完成させることでカリキュラムを完成させることを目標としていたが、5年間の活動により実験設備の整備がなされ、実験内容及び指導内容を確定することができ、テキストも完成し、廃止措置・材料工学実験のカリキュラムを完成させることができた。

表 3.1.1(2)-1 「廃止措置・材料工学実験」実施スケジュール

	第1回	第2回	第3回	第4回	第5回	第6回	第7回	第8回
Group A	講義	実験a	実験b	実験b	実験c	実験d	実験c	実習
Group B		実験b	実験a					
Group C		実験c	実験d	実験d	実験c	実験a	実験b	
Group D						実験b	実験a	

表 3.1.1(2)-2 「廃止措置・材料工学実験」実施内容

	内 容	実施場所
教育訓練・オリエンテーション	管理区域内入退出の基本・放射性同位元素の取扱の基本 (核燃料デブリ・バックエンド工学実験と合同)	北2号館 5階 571 講義室
講義	物性評価の基礎原理、実験の事前準備	
実験a	コールドラン(X線回折、熱拡散率測定) 放射化試料の切断、研磨、粉砕、除染、スミア測定	北実験棟2B 1階 管理区域内
実験b	放射化試料の熱拡散率の測定及び解析、 X線回折、除染、スミア測定	
実験c	水熱腐食、強度実験、微構造観察、X線回折	北実験棟2B 2階
実験d	模擬デブリの作製、X線回折、硬度測定	北2号館2階271室 北実験棟2B 1階
実習	個人被ばく線量(外部被ばく・内部被ばく)の評価・まとめ	北2号館 5階 571講義室

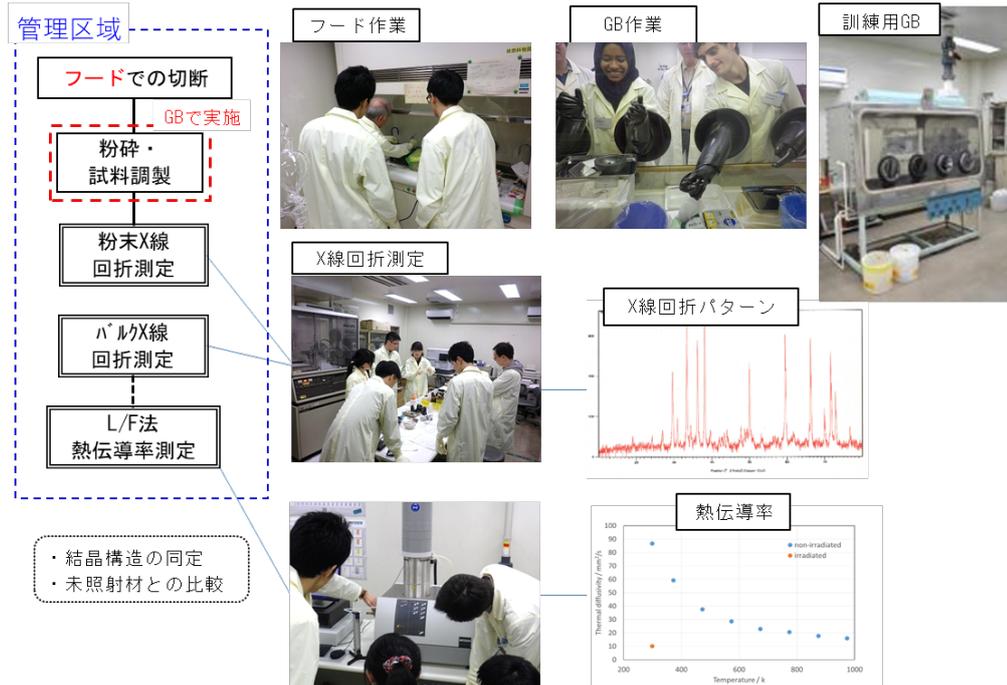


図 3.1.1(2)-1 学生実験「放射化セラミックスの物性測定」の実施状況

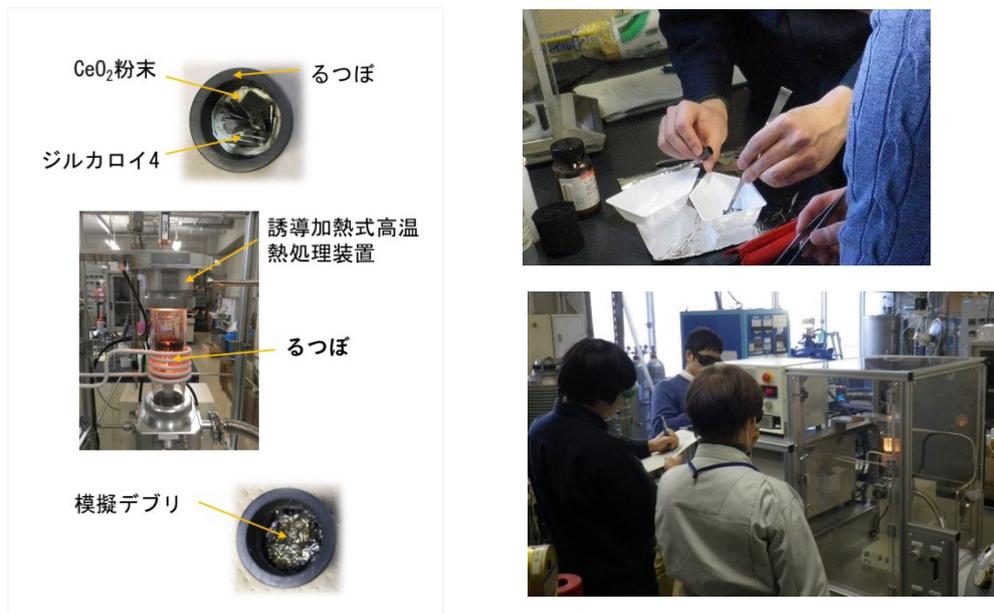


図 3.1.1(2)-2 誘導加熱式高温熱処理装置を用いた模擬デブリの作製

### 3.1.2 デブリ化学に関する人材育成

#### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

平成 26 年度

核燃料デブリ・化学実験として、「核燃料デブリ・バックエンド工学実験」という授業科目設置の準備を進め、カリキュラム作成を行った。具体的には、原子力施設の過酷事故等により発生すると想定される核燃料デブリや放射性廃棄物の処理・処分など、原子力バックエンドにおいて必須な化学分析技術を取得するため、様々な化学形態の核燃料・放射性同位元素を用いた実験操作を行うと共に、放射性物質の固体物性や溶液特性及びそれらが関与する化学反応といった基本原理について理解することを目指した。また、これら実験の実施に必要な分析機器として、ICP 発光分光装置及び卓上型 X 線回折装置を核燃料・放射性同位元素取扱施設内に設置し、実験環境の整備を行った。

平成 27 年度

デブリ化学分析・バックエンド工学技術の基礎の習得を目的とした大学院授業科目「核燃料デブリ・バックエンド工学実験」を新規に立ち上げ、東京工業大学のホット実験施設で RI 及び核燃料物質を用いた実験を大学院生に行わせた。履修した学生は 8 名（うち留学生 1 名）で、8 回実施した。ここでは、U の抽出方法に関して、種々の基本的な方法を習得すると共に、XRD、XRF、ICP-AES などの機器分析技術を原理含めて学習した。また、核燃料である U 酸化物の化学量論性比 (O/M 比) と焼成温度の関係を学んだ。

平成 28 年度

デブリ化学分析・バックエンド工学技術の基礎の習得を目的とした大学院授業科目「核燃料デブリ・バックエンド工学実験」を東京工業大学のホット実験施設で RI 及び核燃料物質を用いた実験を大学院生に行わせた（東工大大学院原子核工学コース・1 単位）。履修した学生は第 3 クォーターで 22 名、第 4 クォーターで 16 名で、実験及び講義・演習をそれぞれ 8 回実施した。ここでは、U の抽出方法に関して、種々の基本的な方法を習得すると共に、XRD、UV-vis、 $\alpha$  線スペクトロメータ、ICP-AES などの機器分析技術を原理含めて学習した。また、核燃料である U 酸化物の化学量論性比 (O/M 比) と焼成温度の関係を学んだ。

本授業科目では、ウランを用いた液・固体化学操作を取り上げることで貴重な体験とすることができ、かつその特殊性を体感させることができた。廃止措置・材料工学実験と同様、受講者が非常に多かったが、班分けにより 3 人の教員が分担して同時並行的に実験を進めたため、安全確保に努めながら全体的にスムーズに行うことができた。また、管理区域に対する教育訓練に関しては、廃止措置・材料工学実験と合同で行うことで効率化できた。

平成 29 年度

核燃料デブリ・化学実験の実施及び改良の検討を行った。大学院授業科目「核燃料デブリ・バックエンド工学実験 A・B、Experiments for Nuclear Fuel Debris and Back-end

Fuel Cycle A・B) (それぞれ1単位)を設置し、大学院生を主な対象として、東京工業大学ホット実験施設内において、非密封のRI及び核物質を用いた化学分析実験を行った。AとBはそれぞれ第3クォーター、第4クォーターに対応する。平成29年度は、第3クォーターで19名、第4クォーターで20名が受講し、うち7名が外国人留学生であった。事前講義及び実験演習をそれぞれ8回実施し、講義と実験共に全て英語で実施した。テキストは、日本語と英語をそれぞれ用意した。本実験講義では、「溶媒抽出コース」「精製・転換コース」「分離・除染コース」の3コースを用意し、全ての学生が3つのコースをローテーションで実施できるように設計した。「溶媒抽出コース」では、ウランを含む硝酸水溶液とリン酸系抽出剤を含む有機溶媒との溶媒抽出操作を行い、抽出前後のウランの濃度を紫外-可視(UV-Vis)や蛍光X線を用いて測ることで、抽出率を算出する。「精製・転換コース」では、ウランを含む硝酸水溶液にアンモニアを滴下してイエローケーキを沈殿回収させた後、所定の温度で焼成して、XRDにより結晶構造を同定する。「分離・除染コース」では、イオン交換樹脂を用いてウランを含む硝酸水溶液からウランのみを吸着回収させ、回収前後のウラン濃度をUV-Visや $\alpha$ 線スペクトロメータにより分析する。

これらにより、ウラン等の非密封核燃料物質の化学分析技術に関わる一連の流れを習得すると共に、その原理についても学習することができる。本学学生のみならず、留学生や他大学生も本実験講義を受講することが可能になっており、効率的でシステムティックな設計に改良できたと言える。

## (2) 平成30年度の実施内容及び成果

核燃料デブリ・化学実験を実施しカリキュラムを完成させた。大学院授業科目「核燃料デブリ・バックエンド工学実験A・B、Experiments for Nuclear Fuel Debris and Back-end Fuel Cycle A・B) (それぞれ1単位)において、東京工業大学ホット実験施設内において、非密封の核物質を用いた化学分析実験を行った。AとBはそれぞれ第3クォーター、第4クォーターに対応する。平成30年度は、第3クォーターで17名、第4クォーターで10名が受講し、うち3名が外国人留学生であった。事前講義及び実験演習をそれぞれ8回実施し、講義と実験共に全て英語で実施した。テキストは、日本語と英語をそれぞれ用意した。

本実験講義では、「溶媒抽出コース」「精製・転換コース」「分離・除染コース」の3コースを用意し、全ての学生が3つのコースをローテーションで実施できるように設計した。表3.1.2(2)-1に実施スケジュールを示す。「溶媒抽出コース」では、ウラン及び他金属元素を含む模擬燃料溶解液とリン酸系抽出剤を含む有機溶媒との溶媒抽出操作を行い、UV-Vis及び蛍光X線を用いて抽出前後のウラン濃度を測定し、抽出率を導出する手順を学習させた(図3.1.2(2)-1)。「精製・転換コース」では、ウラン及び他金属元素を含む模擬燃料溶解液にアンモニアを滴下し、イエローケーキ(重ウラン酸アンモニウム)として沈殿回収させた後、所定の温度で焼成することで、酸化ウランとして回収する工程を体験させた。また、得られた酸化ウランをXRD測定することで、 $UO_3$ 、 $U_3O_8$ 、 $UO_2$ 等の結晶構造の違いを学習させた(図3.1.2(2)-2)。「分離・除染コース」では、イオン交換樹脂を用いてウラン及び他金属元素を含む模擬燃料溶解液からウランのみを吸着回収させ、回収前後のウラン濃度をUV-Vis及び $\alpha$ 線スペクトロメータにより分析する手法を学ばせた(図3.1.2(2)-3)。

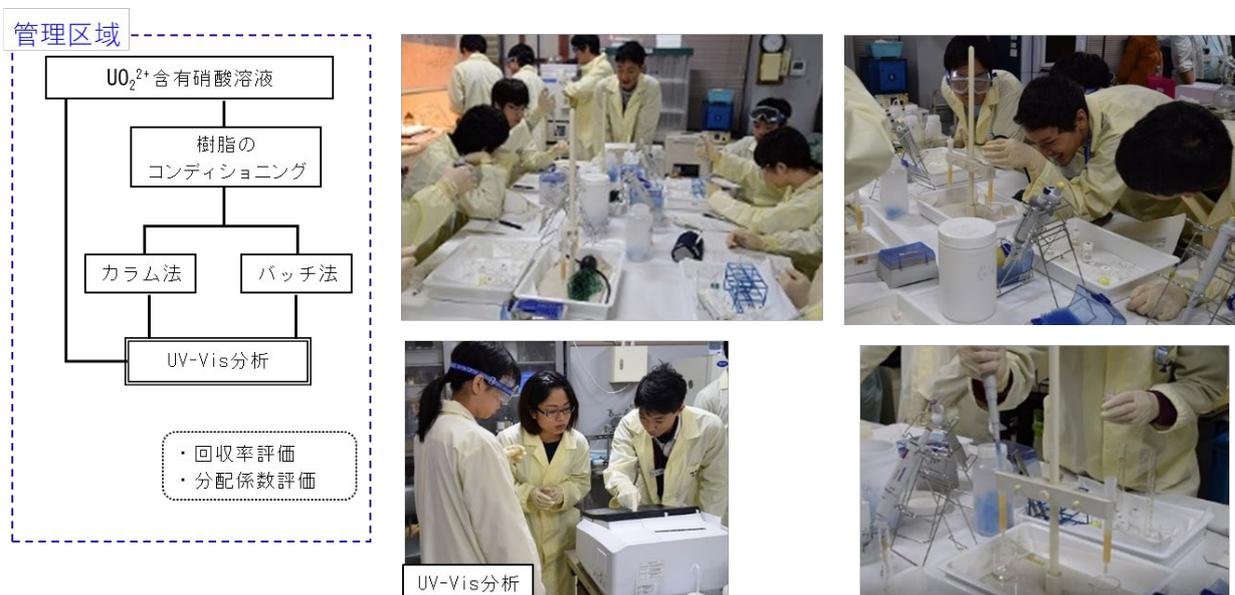
日本語・英語いずれのテキストにも課題が載せてあり、ウラン等の核燃料物質を含む廃棄物の化学分析技術について、その原理から手法まで広範に学習することが可能となっている。本学の日本人学生のみならず留学生から他大学生まで、ウラン等の核燃料物質を含む固体及び液体を非密封で取り扱い、かつ、それらの化学分析法に関わる原理から技術までを学習することができる実験設備の整備、実験内容及び指導内容の確定、テキスト作成を目標としていた。5年間の活動により実験設備の整備がなされ、実験内容及び指導内容も確定させることができ、日本語版・英語版も完成したことから、本授業科目のカリキュラムを完成させることができた。

表 3.1.2(2)-1 「核燃料デブリ・バックエンド工学実験」実施スケジュール

	第1回	第2回	第3回	第4回	第5回	第6回	第7回
Group A	合同オリエンテーション ＋ 教育訓練	1コース 抽出 Extraction	1コース 抽出 Extraction	3コース 分離 Separation	3コース 分離 Separation	2コース 精製転換 Refining	2コース 精製転換 Refining
Group B		3コース 分離 Separation	3コース 分離 Separation	2コース 精製転換 Refining	2コース 精製転換 Refining	1コース 抽出 Extraction	1コース 抽出 Extraction



図 3.1.2(2)-1 学生実験「溶媒抽出によるウラン分離」の実施状況



### 3.1.3 シビアアクシデント後の遠隔計測技術に関する人材育成

#### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

平成 26 年度

シビアアクシデント実験カリキュラムの作成を行った。具体的には、シビアアクシデント後の高放射線場での計測とロボット技術の習得を目的として大学院授業科目「シビアアクシデント工学実験」を新規に立ち上げ、東工大での実験及びモックアップ施設及び福島に建設予定のモックアップ施設での実験を大学院生に行わせることを目的とし、そのカリキュラム準備を行った。本授業科目「シビアアクシデント工学実験」は平成 27 年度の大学院後期科目として新設し、実験を含む全 10 回の授業から構成することとした。

平成 27 年度

シビアアクシデント実験科目を設置して、試行版のテキストに基づき、実験を実施した。具体的にはシビアアクシデント後の高放射線場での計測とロボット技術の習得を目的として大学院授業科目「シビアアクシデント工学実験」を新規に立ち上げ、遠隔計測技術に関する実験を大学院生に行わせた(東工大大学院理工学研究科原子核工学専攻・2 単位)。

平成 28 年度

シビアアクシデント実験科目を設置して、試行版のテキストに基づき、実験を実施した。具体的には平成 27 年度実施で得た知見を活かして、シビアアクシデント後の高放射線場での計測とロボット技術の習得を目的として大学院授業科目「シビアアクシデント工学実験」を実施し、遠隔計測技術に関する実験を大学院生に行わせた(東工大大学院原子核工学コース・2 単位)。

平成 29 年度

シビアアクシデント工学実験の実施及び改良の検討を行った。具体的には、シビアアクシデント後の高放射線場での計測とロボット技術の習得を目的として大学院授業科目「シビアアクシデント工学実験」を実施し、遠隔計測技術に関する実験を大学院生に行わせた(東工大大学院原子核工学コース・2 単位)。さらに、シビアアクシデント工学実験受講者を中心に、日本原子力研究開発機構櫛葉遠隔技術開発センターのロボット試験用水槽を使用した「ロボット制御と超音波流体計測」の実験を行った。

#### (2) 平成 30 年度の実施内容及び成果

シビアアクシデント工学に関する実験を実施しカリキュラムを完成させた。最終年度に当たり、平成 29 年度までに得られた知見を活かし、なおかつ、発展させるために、シビアアクシデント後の高放射線場での計測とロボット技術の習得を目的として大学院授業科目「シビアアクシデント工学実験」に熱流動の事故象を包括し、平成 30 年度は、大学院授業科目「熱流動・シビアアクシデント工学実験」、「熱流動・シビアアクシデント工学実践特論」

を実施した。熱流動及び遠隔計測技術に関する実験を大学院生に行わせた(東工大大学院原子核工学コース・2単位)。

「熱流動・シビアアクシデント工学実験」を履修した学生は7名、13回実施した(2単位授業であるため、1週2回(火及び木)の実施。。「熱流動・シビアアクシデント工学実験特論」を履修した学生は1名、13回実施した(2単位授業であるため、1週2回(火及び木)の実施。)。表3.1.3(2)-1に実施内容を示す。

本カリキュラムでは、本講義の目的と効果を示すシビアアクシデント後の高放射線場での計測、ロボット技術の概略の説明や熱流動現象等に関して概略を述べたのち、講義形式と実験形式の2つの形式で、超音波流速分布計測法(Ultrasonic Velocity Profiler method: UVP)に関して、配管内流れ場の計測や渦流れの基礎的な実験を通して習得してもらった。その後、ロボット技術の基礎に関する講義やロボットアームを用いた基礎実験を行った。さらには、超音波計測の応用技術についても触れ、フェイズドアレイ超音波流速分布の計測原理などを学んだ後、超音波フローマッピング計測の実験を行った。その後、シビアアクシデント後の廃止措置におけるSafety、Security、Safeguardの3Sに関する基礎を学び、関連する熱流動事故現象に関する基礎的な熱流動実験を行った。そして、現在利用されている東京電力福島第一原子力発電所事故対応ロボットに関する概論を学んだ後、クローラーロボットなどの移動ロボットの車両制御やロボットアームの順運動学・逆運動学、関節制御などを学んでもらった。最後に、現有の実験施設をロボット搬送学生実験モックアップ施設として整備し、超音波・ロボット搬送・アーム制御の総合実験を行った。図3.1.3(2)-1に熱流動・シビアアクシデント工学実験「超音波を用いた流れの計測」の実施状況、図3.1.3(2)-2に熱流動・シビアアクシデント工学実験「アーム・移動ロボットの制御」の実施状況の実施状況を示す。総合実験ののち、本カリキュラムで実施した内容に関するプレゼンテーションを学生らが行い、学生らの習熟度を確保すると共に議論を通してシビアアクシデント工学に関する知見の深化を行った。

さらに平成29年度と同様に、本カリキュラム受講者を中心に、日本原子力研究開発機構 檜葉遠隔技術開発センターのロボット試験用水槽を使用した「ロボット制御と超音波流体計測」の実験を行った。図3.1.3(2)-3に檜葉遠隔技術開発センター学生実験「ロボット制御と超音波流体計測」の実施状況を示す。本授業科目では、シビアアクシデント、とりわけ、福島第一原子力発電所の廃止措置に関わるロボット技術や計測技術の在り方を検討するところに意図がある。毎年度、最新の情報を網羅したかたちでの講義資料作成に心がけ、また、実験機材等にも改良を行った。本授業に参加した学生たちは、2つのチームにわかれ、そのチームワークを駆使して、本カリキュラムの実験課題に取り組むことができた。

このように、大学内の実験室レベルでの小規模実験から、日本原子力研究開発機構檜葉遠隔技術開発センターのロボット試験用の大型水槽を使用した実規模スケールの実験まで、基礎から実際の現場と同じスケールでの実験を含む内容となっており、かつ、本講義は全て英語での講義となっており、学生らは国を越えて英語でのコミュニケーションを通じて、チームワークで毎回の実験課題に取り組む内容となっている。本事業で完成させた本カリキュラムは学生ばかりではなく若手研究者・技術者をも含めた廃止措置工学に関わる高度人材育成にも十分に資する内容となっていると考えられる。

本事業では当該授業科目の実験設備の整備を行い、実験内容及び指導内容を確定させ、テキストを完成させることでカリキュラムを完成させることを目標としていたが、5年間の活動により実験設備が整備がなされ実験内容及び指導内容を確定させることができ、テキストも完成し本授業科目のカリキュラムを完成させることができた。

表 3.1.3(2)-1 「熱流動・シビアアクシデント工学実験」  
「熱流動・シビアアクシデント工学実践特論」実施内容

	内容
第1回	<b>Lecture:</b> Introduction ; Thermalhydraulic & Severe Accident
第2回	<b>Lecture:</b> UVP measurment, Vector UVP, Phased-Array UVP
第3回	<b>Experiment:</b> UVP measuremnt on Pipe Flow & Taylor Vortex Flow
第4回	<b>Lecture:</b> Basic of Robotics, Robot Arm; <b>Experiment:</b> Robot Arm
第5回	<b>Lecture:</b> Vector UVP & Phaysed Array UVP measuremnt
第6回	<b>Experiment:</b> Vector UVP & Phaysed Array UVP measuremnt
第7回	<b>Experiment:</b> Robot Arm
第8回	<b>Lecture:</b> Basic of Severe Accident 2
第9回	<b>Experiment:</b> Thermalhydraulic & Severe Accident
第10回	<b>Lecture:</b> Weeled mobile Robot; <b>Experiment:</b> Weeled mobile Robot
第11回	<b>Experiment:</b> Weeled mobile Robot
第12回	<b>Experiment:</b> Total Experiemnt (Vector UVP+Arm+Weeled Robot)
第13回	<b>Presentation</b>

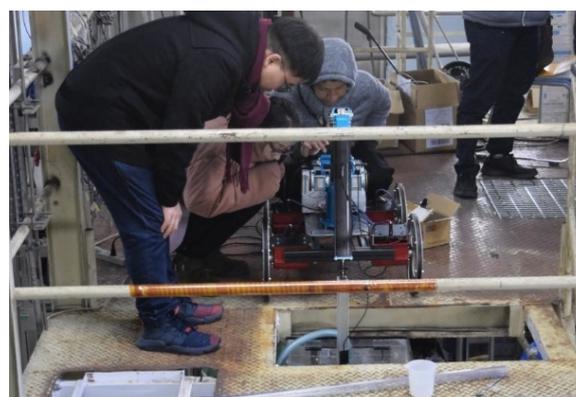


図 3.1.3(2)-1 熱流動・シビアアクシデント工学実験  
「超音波を用いた流れの計測」の実施状況



図 3.1.3(2)-2 熱流動・シビアアクシデント工学実験  
「アーム・移動ロボットの制御」の実施状況

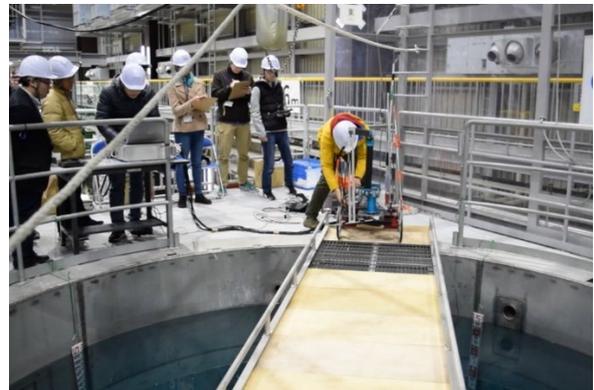


図 3.1.3(2)-3 檜葉遠隔技術開発センター学生実験  
「ロボット制御と超音波流体計測」の実施状況

### 3.1.4 廃止措置の最新技術と基礎に関する人材育成

#### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

平成 26 年度

廃止措置工学関連講義カリキュラムの作成を行った。具体的には、授業科目「原子炉廃止措置工学」及び「原子炉廃止措置工学特別講義」のカリキュラムを作成した。

平成 27 年度

大学院授業科目「原子炉廃止措置工学特別講義」を新規に立ち上げ福島における最新の廃止措置技術と本プログラムで実施している研究の成果についての教育を行った(東工大大学院理工学研究科原子核工学専攻・1 単位)。また、大学院授業科目「原子炉廃止措置工学」を新規に立ち上げ原子炉廃止措置技術の基礎についての教育を行った(東工大大学院理工学研究科原子核工学専攻・1 単位)。

平成 28 年度

大学院授業科目「原子炉廃止措置工学特別講義」で、福島における最新の廃止措置技術についての教育を行った(東工大大学院原子核工学コース・1 単位)。また、大学院授業科目「原子炉廃止措置工学」で、原子炉廃止措置技術の基礎についての教育を行った(東工大大学院原子核工学コース・1 単位)。

平成 29 年度

大学院授業科目「原子炉廃止措置工学特論」で、福島における最新の廃止措置技術についての教育を、また、大学院授業科目「原子炉廃止措置工学」で、原子炉廃止措置技術の基礎についての教育を行った。(大学院課程原子核工学コース・各 1 単位)

#### (2) 平成 30 年度の実施内容及び成果

大学院授業科目「原子炉廃止措置工学特論」で、福島における最新の廃止措置技術についての教育を、また、大学院授業科目「原子炉廃止措置工学」で、原子炉廃止措置技術の基礎についての教育を行った。(大学院課程原子核工学コース・各 1 単位)

「原子炉廃止措置工学特論」の講義数は全 8 回(加えて任意見学 1 回)、履修学生数は 27 名で、課題のレポート提出を課した。また、「原子炉廃止措置工学」の講義数は全 8 回、履修学生数は 9 名で、前科目同様に課題のレポート提出を課した。表 3.1.4(2)-1 と表

3.1.4(2)-2 にそれぞれ「原子炉廃止措置工学特論」及び「原子炉廃止措置工学」の実施内容と担当教員等を示す。ここでは、原子炉廃止措置技術の基礎、特に通常炉と事故炉の違いというテーマの下、講義を実施した。また、福島における最新の廃止措置技術(除染、デブリ取り出し、等)を習得させた。本講義のおよそ半分を(株)東芝からの外部講師が実施したことにより、現場のエンジニア色を出したものとなった上に、時々刻々と変化する現場の状況に関する情報が提供された。さらに授業最終日は総合討論の時間を設け、グループごとにまとめた意見を発表、それらについての討論を行った。「原子炉廃止措置工学特論」での総

合討論は動画を東工大 OCW (OPEN COURSE WARE) で公開した。図 3.1.4(2)-1 に(株)東芝磯子エンジニアリングセンター見学及び授業の様子を示す。

本授業科目では、他の大学に少ない分野として廃止措置工学を取り上げて、見学学習や他の情報ソースと合わせて、各学生の当該分野に対する見識を深めるところに狙いがある。昨年度と同様、狙い通り、授業中においては多くの学生からの高い関心がうかがわれた。

本事業では当該授業科目での標準的な授業内容を確定されることでカリキュラムを完成させることを目標としていたが、5年間の活動により各回の授業の標準的な内容を確定させることができ、本授業科目のカリキュラムを完成させることができた。

表 3.1.4(2)-1 平成 30 年度「原子炉廃止措置工学特論」

【第1Q】	講義項目	講義担当
第1回	過酷事故原子炉の廃炉	<東工大>先導原子力研究所 加藤教授
第2回	福島第一原子力発電所と廃炉への道筋	【東芝ESS】原子力福島復旧・サイクル技術部 参事 浦田 英浩
第3回	汚染水の浄化技術(1)	【東芝ESS】磯子エンジニアリングセンター 主務 末永 貴洋
第4回	汚染水の浄化技術(2)	【東芝ESS】原子炉化学・サイクル技術開発部 グループ長 大村 恒雄
第5回	遠隔技術	【東芝ESS】磯子エンジニアリングセンター 主務 鈴木 淳
第6回	燃料デブリ(1)	<東工大>先導原子力研究所 上塚特任教授
第7回	燃料デブリ(2)	<東工大>先導原子力研究所 上塚特任教授
第8回	総合討論	<東工大>先導原子力研究所 小原教授
※	東芝磯子エンジニアリングセンター見学会	

表 3.1.4(2)-2 平成 30 年度「原子炉廃止措置工学」

【第4Q】	講義項目	講義担当
第1回	原子炉廃止措置とは	<東工大>先導原子力研究所 竹下教授
第2回	原子力発電所の放射能、除染、汚染検査	【東芝ESS】原子力化学システム設計部 主事 洞山 祐介
第3回	原子力発電所の解体技術	【東芝ESS】原子力化学システム設計部 主事 中村 建城
第4回	原子力発電所の構成と原子炉の寿命	<東工大>先導原子力研究所 加藤教授
第5回	解体廃棄物の処理・処分技術	【東芝ESS】原子力化学システム設計部 主務 牧野 新一
第6回	世界の廃炉経緯と今後の課題	【東芝ESS】原子力化学システム設計部 主務 廣瀬 恵美子
第7回	廃炉コストと原子力発電所のライフサイクル	<東工大>先導原子力研究所 竹下教授
第8回	総合討論	<東工大>先導原子力研究所 小原教授



図 3.1.4(2)-1 (株)東芝磯子エンジニアリングセンター見学及び授業の様子

### 3.1.5 キャリアパス形成活動

#### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

平成 26 年度

インターシップ及びセミナーの企画・開催準備と、廃止措置関連機関等(東京電力(株)、日本原子力発電(株)、(株)アトックス)との調整を行った。具体的には、平成 27 年度以降のインターシップについての意見交換を行い、また平成 27 年度開催予定の原子炉廃止措置セミナーの企画・調整等を行った。年度計画として、十分な達成を見た。

平成 27 年度

福島第一原子力発電所の廃止措置活動への関心を高めることを目的として、大学院授業科目「原子炉廃止措置インターンシップ」を新規に立ち上げた(大学院理工学研究科原子核工学専攻・1単位)。また、「原子炉廃止措置セミナー」を実施し、実際の廃止措置作業を行っている現場の見学や社員から説明を受けることができる場を設けた。

「原子炉廃止措置インターンシップ」では、福島第一原子力発電所で廃止措置活動を行っている東京電力(株)及び(株)アトックスに、それぞれ 3 名(平成 28 年 2 月 15 日～26 日の 2 週間)及び 4 名(平成 28 年 2 月 22 日～3 月 4 日の 2 週間)の学生を受け入れてもらい、履修学生は廃止措置関連の各種業務を体験した。

「原子炉廃止措置セミナー」としては「原電セミナー」及び「東電セミナー」の 2 つを実施し、本事業の連携大学の学生からも参加を募った。「原電セミナー」(平成 27 年 9 月 15～16 日)の参加者は 9 名(東工大 7 名、都市大 1 名、東海大 1 名)で、日本原子力発電(株)東海発電所で廃止措置作業を見学し廃炉に関する講義を受講した。「東電セミナー」(平成 28 年 3 月 17～18 日)の参加者は 13 名(東工大 8 名、都市大 3 名、東海大 2 名)で、東京電力(株)の福島第一原子力発電所及び福島第二原子力発電所の見学学習のほか、JAEA のモックアップ施設である檜葉遠隔技術開発センターで廃止措置工学の技術・研究開発や廃止措置作業について学んだ。

本プログラムの授業項目「原子炉廃止措置工学」や「原子炉廃止措置工学特別講義」との相乗効果もあり、大学後期のプログラムでありながら本インターンシップ及びセミナーへの参加者は多かった。年度計画として、十分な達成を見た

平成 28 年度

平成 27 年度と同様に、「原子炉廃止措置インターンシップ」では、東京電力ホールディングス(株)へ 4 名(平成 29 年 2 月 20 日～3 月 1 日の 2 週間)及び(株)アトックスへ 2 名(平成 29 年 2 月 27 日～3 月 10 日の 2 週間)の学生を受け入れてもらい、履修学生は廃止措置関連の各種業務を従事体験した。

「原子炉廃止措置セミナー」としては「原電セミナー」及び「東電セミナー」の 2 つを実施した。「原電セミナー」(平成 28 年 8 月 5～6 日)には 8 名(東工大 7 名、東海大 1 名)が参加し、日本原子力発電(株)東海原子力発電所で廃止措置作業現場を見学し講義を受講した。また、「東電セミナー」(平成 28 年 8 月 17～18 日)には 12 名(東工大 10 名、東海大 2 名)が参加し、東京電力ホールディングス(株)の福島第一原子力発電所及び福島第二原子力発電所の見学学習のほか、JAEA 楡葉遠隔技術開発センターで廃止措置工学の技術・研究開発や廃止措置作業について学んだ。年度計画として、十分な達成を見た。

平成 29 年度

平成 27～28 年度と同様に、「原子炉廃止措置インターンシップ」では、東京電力ホールディングス(株)に 2 名(平成 30 年 2 月 19 日～2 月 28 日の 10 日間)及び(株)アトックスに 1 名(平成 30 年 2 月 19 日～3 月 2 日の 2 週間)の学生を受け入れてもらい、履修学生は廃止措置関連の各種業務を従事体験した。

「原子炉廃止措置セミナー」としては「原電セミナー」及び「東電セミナー」の 2 つを実施した。「原電セミナー」(平成 29 年 9 月 11～12 日)には 8 名(東工大 5 名、都市大 1 名、東海大 2 名)が参加し、日本原子力発電(株)東海原子力発電所で廃止措置講義の受講及び現場見学を行った。「東電セミナー」(平成 30 年 2 月 15～16 日)には 11 名(東工大 6 名、都市大 3 名、東海大 2 名)が参加し、東京電力ホールディングス(株)の福島第一原子力発電所及び福島第二原子力発電所で発電所の現状や廃止措置に関する説明講習を受け、現場見学を行ったほか、平成 29 年度は JAEA 廃炉国際共同研究センターに出向き、廃止措置工学の技術・研究開発を見学学習した。年度計画として、十分な達成を見た。

## (2) 平成 30 年度の実施内容及び成果

福島第一原子力発電所の廃止措置活動への関心を高めることを目的として、大学院授業科目「原子炉廃止措置インターンシップ」の開講を継続し、福島第一原子力発電所で廃止措置活動を行っている企業に、2 週間程度、学生をインターンシップ派遣した(大学院課程原子核工学コース、1 単位)。また、「原子炉廃止措置セミナー」を実施し、実際の廃止措置作業を行っている現場を見学し、社員から説明を受けることができる場を設けた。

「原子炉廃止措置インターンシップ」では、東京電力ホールディングス(株)に 1 名の学生を平成 31 年 2 月 18 日～2 月 27 日の 10 日間受け入れてもらい、履修学生は廃止措置関連の各種業務研修を体験した。

「原子炉廃止措置セミナー」としては、インターンよりも短期の 1 泊 2 日の研修セミナーとして、「東電セミナー」及び「原電セミナー」の 2 つを実施し、連携大学の学生にも参加

を呼びかけた。「東電セミナー」(平成30年8月20～21日)には11名(東工大6名、都市大2名、東海大3名)が参加し、東京電力ホールディングス(株)の福島第一原子力発電所及び福島第二原子力発電所を訪問して、発電所の現状や廃止措置に関する説明講習を受け、現場見学を行った。図3.1.5(2)-1に「東電セミナー」の様子を示す。「原電セミナー」(平成31年2月25～26日)には10名(東工大4名、都市大3名、東海大3名)が参加し、日本原子力発電(株)東海原子力発電所を訪問して、廃止措置講義の受講及び現場見学を行った。図3.1.5(2)-2に「原電セミナー」の様子を示す。

本インターンシップ及びセミナーでは、現地で本物を見てもらうこと、及び実際に廃止措置を進めている人物から説明を受けることを介して、廃止措置工学に深い関心を持ってもらうことに狙いがあり、これらの狙いは十分に達成され、かつ、各年度の年度計画は十分に達成された。



図 3.1.5(2)-1 「東電セミナー」の様子



図 3.1.5(2)-2 「原電セミナー」の様子

### 3.1.6 廃止措置工学特別コースの設置・運営

#### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

平成 26 年度

廃止措置工学特別コースの設計を行った。具体的には、廃止措置工学に関連する大学院授業科目を平成 27 年度から東京工業大学大学院理工学研究科原子核工学専攻で開講するための準備を行った。

平成 27 年度

人材育成活動に関して、授業準備・出欠管理・学外との調整等、運営に必要な事項に関しては、担当教員と共に廃止措置プログラム室が実務を行った。また、これらの授業科目及びセミナーの履修・参加を履修指導で推奨し、所定の履修・参加をして小論文を提出した学生を審査の上、専攻長が 4 名の学生を顕彰した。

平成 28 年度

人材育成活動に関して、廃止措置工学特別コースを設置し、授業準備・出欠管理・学外との調整等、運営に必要な事項に関して、担当教員と共に廃止措置プログラム室が前年と同様に実務を行った。

平成 29 年度

人材育成活動に関して、授業準備・出欠管理・学外との調整等、運営に必要な事項に関しては、担当教員と共に廃止措置プログラム室が前年と同様に実務を行った。また廃止措置工学奨励賞を設け、本プログラムで実施した授業科目の履修及びインターンシップ単位の取得やセミナーへの参加を履修指導で推奨し、所定の履修・参加をして小論文を提出した学生を審査の上、原子核工学コース主任が 5 名の学生を顕彰した。

#### (2) 平成 30 年度の実施内容及び成果

3.1.1～3.1.5 における人材育成活動に関して、廃止措置工学特別コースを設置し、授業準備・出欠管理・学外との調整等、運営に必要な事項に関して、担当教員と共に廃止措置プログラム室が平成 29 年度と同様に実務を行った。また、本プログラムで実施した授業科目の履修及びインターンシップ単位の取得やセミナーへの参加を履修指導で推奨し、所定の履修・参加をして小論文を提出した学生を審査の上、原子核工学コース主任が 4 名の学生に「廃止措置工学奨励賞」を授与し顕彰した(図 3.1.6(2)-1、図 3.1.6(2)-2)。

また、本プログラムの連携大学である東京都市大学及び東海大学の学生を募り、「3.1.1 デブリ材料工学に関する人材育成」と「3.1.2 デブリ化学に関する人材育成」の学生実験をそれぞれ 1 日で集中体験できるような連携大学学生実験を実施した(平成 31 年 2 月 21 日、22 日)。参加学生は東京都市大学より 2 名、東海大学より 3 名であった。(図 3.1.6(2)-3)

### 原子核工学コース 廃止措置工学奨励賞 応募者募集

平成 30 年度原子核工学コース廃止措置工学奨励賞の応募者を募集します。M2 学生・博士学生も応募できますので、ふるって応募してください。

- **顕彰目的**  
東京電力福島第一原子力発電所の廃炉を進めるためには、廃止措置工学の知識と廃止措置事業参画の意欲を有する人材の継続的育成が不可欠であり、本学ではプログラム「廃止措置工学高度人材育成と基礎研究の深化」を開始しています。これに鑑み原子核工学コース・専攻に在籍し廃止措置工学に関心をもち履修に励んだ学生を顕彰することで、学生の廃止措置工学と廃止措置事業への関心とモチベーションを高めることを目的としています。
- **応募資格**  
以下の 2 つの条件を満たしていること。  
1) 以下の授業科目のうち 4 科目以上を履修していること。  
「廃止措置・材料工学実験」  
「核燃料デブリ・バックエンド工学実験」  
「シビアアクシデント工学実験」  
「原子炉廃止措置工学」  
「原子炉廃止措置工学特論」  
2) 「原子炉廃止措置インターンシップ」の単位を取得しているか、先導原子力研究所が開催する「原子炉廃止措置セミナー」に参加していること。
- **応募方法**  
指定の様式で上記科目の履修状況を提出するとともに「原子炉の廃止措置事業について思うこと」という題で小論文（A4 1 枚 1000 字程度）を提出してください。様式は廃止措置プログラムのウェブサイトでダウンロードしてください。（<http://www.nr.titech.ac.jp/decomi/EncouragingPrize2018.html>）
- **応募書類提出先**  
廃止措置プログラム室 [decomi@lane.iir.titech.ac.jp](mailto:decomi@lane.iir.titech.ac.jp)
- **応募締め切り**  
3 月 6 日（水）
- **授賞**  
受賞者には 3 月 26 日（火）原子核工学コース学位授与式においてコース主任から表彰状を授与します。

問合せ先：廃止措置工学奨励賞担当 小原 [tbbara@lane.iir.titech.ac.jp](mailto:tbbara@lane.iir.titech.ac.jp)

図 3. 1. 6(2)-1 廃止措置工学奨励賞募集ポスター



図 3. 1. 6(2)-2 廃止措置工学奨励賞の顕彰



(a) デブリ化学実験の様子



(b) デブリ材料工学実験の様子

図 3.1.6(2)-3 連携大学学生実験の様子

## 3.2 研究活動

### 3.2.1 難分析核種用マイクロ分析システムの構築

#### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

平成 26 年度

Sr 及び Ln 用の環状キレート試薬として、クラウンエーテルの一種である 4-aminobenzo-18-crown-6 (amino-18C6) 及び DOTA (1, 4, 7, 10-tetra(carboxymethyl)-1, 4, 7, 10-tetraaza-cyclododecane) の一種である p-aminobenzo-DOTA-tetra-tert-butylester (p-NH<sub>2</sub>-Bn-DOTA) をそれぞれ選択し、これらに発色部位 Fluorescein isothiocyanate (FITC) を付与した新規化合物を創製した。また、深い親水性流路と浅い疎水性流路を有するマイクロ流路を加工し、油水プラグ流の分離に必要なマイクロ流体操作の予備検討を行い、流路壁面への濡れ性(親水・疎水性)と、それによって生じる圧力がキーポイントとなることが分かった。

平成 27 年度

フォトリソグラフィとウエットエッチングを用いて、Y字型のマイクロ流路及び浅いマイクロ流路と深いマイクロ流路をから成る2段階マイクロ流路を作製し、油水平行二相流、エマルジョン流、プラグ流による Zn イオンのマイクロ溶媒抽出試験を実施した。回収後の油水中の Zn 濃度を吸光光度法及び ICP-MS 法により測定した結果、最速 10 秒程度の接触時間で 100%の抽出が可能であることが分かった。また、マイクロ流路内のその場分析法として、既存の熱レンズ顕微鏡(TLM)による分析を検討した。モデルケースとして、Sm(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>・6H<sub>2</sub>O のジヘキシル-N, N-ジエチルカルバモイルメチルフォスフォネート(CMP)によるマイクロ溶媒抽出試験及び TLM 検出試験を実施した。その結果、合流部からの距離 100 mm 程、すなわち接触時間 2 秒強で、水相と油相いずれの Sm(III)濃度も一定値に収束した。Sm(III)の分配比はバルク抽出と同様の約 2.0 と見積もることができ、抽出メカニズムはバルク系と同様であることを明らかにした。

平成 28 年度

硝酸ウラニルを含む水溶液と 30%のリン酸トリブチル(TBP)を含むヘキサン溶液を用いたマイクロプラグ流抽出を実施すると共に、油相に抽出される UO<sub>2</sub>(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>・2TBP 錯体の TLM 信号を測定した。得られた信号値から抽出率を評価したところ、油水接触時間 3~5 秒でほぼ 100 %となることが分かった。流量 1 μL/min 以下、油水プラグ流、核種濃度 mM 以上が現時点での最適条件であることを見出した。さらに、重要なアクチノイドである <sup>241</sup>Am と <sup>243</sup>Cm 及び <sup>152</sup>Eu の分離に対するマイクロ化学チップの適用可能性について検討した。水相として <sup>241</sup>Am, <sup>243</sup>Cm, <sup>152</sup>Eu を含む 1M 硝酸水溶液を、油相として抽出剤 N, N, N, N' - tetraoctyl-3-oxapentane- 1, 5-diamide (TODGA)を含むドデカン溶液を導入し、流路内で油水プラグ流を形成させ、<sup>241</sup>Am, <sup>243</sup>Cm, <sup>152</sup>Eu の抽出を行った。抽出後の油水溶液を流路出口で分離回収し、Ge 半導体検出器にて測定した。その結果、<sup>241</sup>Am と <sup>243</sup>Cm の分配比は最大 100 程度あり、マイクロ溶媒抽出が十分な性能を有していることを見出した。

平成 29 年度

模擬廃液からのウランの抽出・逆抽出及び電解還元の工程を組み合わせた、連続・多段のマイクロ操作試験を実施した。Pu<sup>4+</sup>に類似した最大吸収波長（650 nm 付近）を持つ U<sup>4+</sup>を対象とした。硝酸ウラニルを含む模擬廃液（3.0 M 硝酸水溶液）と 30% のリン酸トリブチル (TBP) を含むドデカン溶液との油水平行二相流により UO<sub>2</sub>(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>・2TBP 錯体を抽出させた後、UO<sub>2</sub>(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>(TBP)<sub>2</sub> 錯体を含むドデカン相と 0.1 M 硝酸水溶液とのマイクロ二相流を形成させて、UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>の水相側への逆抽出操作を行った。回収した UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>水溶液を硝酸濃度が 5 M になるよう調整し、還元保存剤である 0.1 M のヒドラジンを添加した後、Pt マイクロ電極を組み込んだマイクロ流路に導入して、U<sup>4+</sup>へ電解還元した。電解還元後の回収試料を複数の濃度に希釈した後、マイクロ流路に導入し、ファイバー型熱レンズ（励起波長 658 nm）とオートサンプラーを組み込んだプロトタイプ機により TLM 計測を行った。その結果、U<sup>4+</sup>濃度に依存して明確な TLM 信号が得られることを確認した。プロトタイプ機を用いて、模擬廃液からのウランの連続・多段抽出及び TLM 分析に成功したと言える。

## (2) 平成 30 年度の実施内容及び成果

マイクロ化学チップと熱レンズ顕微鏡から成る難分析核種用マイクロ分析システムを用いる分析フローを提案し、模擬廃液分析に対する実証試験を実施した。

東電福島第一原発事故で発生した事故廃棄物の分析において、処分安全評価上重要であるが、分析手法が未だ定まっておらず、分析の難しい核種として <sup>93</sup>Zr、<sup>93</sup>Mo がある。<sup>93</sup>Zr と <sup>93</sup>Mo は ICP-MS のような質量分析装置では同位体干渉の問題により複雑な分画操作が不可欠であり、また、<sup>93</sup>Zr は β 核種、<sup>93</sup>Mo は EC 壊変に伴う X 線放出核種で、いずれも低エネルギーの放射線を放出するため、放射能計測も難しい。したがって、特に重要なアクチノイド核種と共に、分析法の確立が不可欠であると言える。そこで、マイクロ化学チップと熱レンズ顕微鏡から成る難分析核種用マイクロ分析システムの実廃液への適用性を評価するため、平成 29 年度と同様の成分組成から成る模擬廃液を調整し、Zr、Mo、U イオンを分析することとした。

平成 29 年度までのマイクロ加工技術を用いて、ガラス基板上にダブル Y 字型のマイクロ流路を有するマイクロ化学チップを作製した。流路の幅・深さはそれぞれ 160 μm・40 μm とした。1% のオクタデシルトリクロロシラン (ODS) を含むトルエン溶液を用いて、流路出口の一部を疎水化処理し、疎水流路表面に有機相が濡れやすい性状とした。模擬廃液中の Zr、Mo、U イオンの分析フローは図 3.2.1(2)-1 に示す通りである。

作製した Y 字型マイクロ流路内に、模擬廃液（3M 硝酸水溶液）と抽出剤として HDEHP {Bis(2 ethylhexyl) phosphate} を溶解させたドデカン溶液とを 5 μL/min の流量にてそれぞれ導入し、油水平行二相流を形成させた後、出口側で油水を分離回収した。流路の長さは 120 mm としており、油水の接触時間は約 8 秒となる。HDEHP を使用することにより、Zr(IV)-DEHP と Mo(VI)-DEHP 錯体が有機相側へ抽出され、この有機相を発色性試薬である Arsenazo III (2,7-Bis(2-arsonophenylazo)-1,8-dihydroxynaphthalene-3,6-disulfonic Acid) を含む 5M 硝酸水溶液とマイクロ流路内で接触させることで、Zr(IV)のみを選択的に

Arsenazo III 錯体として水相側に逆抽出することができた。この水相中の Zr(IV)-Arsenazo III 錯体は 660 nm 付近に最大吸収波長を有するため、平成 29 年度までに構築したファイバー型熱レンズを有するプロトタイプ TLM 装置 (励起光波長 658 nm、プローブ光波長 785 nm) を用いて、TLM 計測を行った。得られた TLM 信号強度から Zr(IV) の濃度を求めた。図 3.2.1(2)-2 は励起光を ON/OFF とした場合の TLM 信号を、図 3.2.1(2)-3 は Zr(IV) 抽出率の流速依存性を示している。固定位置での TLM 信号取得のため、励起光 ON の繰り返しに応じてほぼ同じ信号強度が得られており、濃度定量に十分な精度があることが確認できた。さらに、Mo(VI)-DEHP 錯体が残っている有機相を出口側で回収し、0.5 M の過酸化水素を含む 1M 硝酸水溶液で逆抽出した後、その水相は ICP-MS へ導入することで、Mo(VI) の濃度を評価した。その結果、Zr(IV)、Mo(VI) いずれも、接触時間 10 秒程度で、約 90% のマイクロ抽出・マイクロ逆抽出ができていたことが明らかとなった。

一方、Zr(IV) と Mo(VI) を HDEHP により有機相側へ抽出した時の水相側には  $UO_2^{2+}$  が含まれている。この  $UO_2^{2+}$  を含む硝酸水溶液は、30% のリン酸トリブチル(TBP) を含むドデカン溶液によりマイクロ溶媒抽出することで、 $UO_2(NO_3)_2 \cdot 2TBP$  錯体として高効率に有機相へ抽出される。 $UO_2^{2+}$  は 420 nm 付近に最大吸収波長を有することから、励起光 405 nm での TLM 計測を実施し、抽出率を求めたところ、接触時間 3 秒程で 100% に到達することを確認した。

以上の結果、本研究で開発してきた難分析核種用マイクロ分析システムを廃液分析として利用するには、①Zr と Mo の同時抽出、②Zr 逆抽出と Arsenazo III 比色による TLM 分析、③ Mo 逆抽出による ICP-MS 分析、④残液からの U-TBP 抽出と TLM 分析、という分析フローが提案でき、これにより、数  $\mu$ L の極微量試料で高速 (数秒) かつリアルタイムでの分析が可能になることを実証した。しかしながら、多核種分析に適用するには多段階のマイクロ溶媒過程を構築する必要があり、また、定量下限が  $\mu$ M レンジであるという課題があるため、本システムを実廃液に適用するには、標的核種に応じたマイクロ化学チップの設計や流体制御の高度化が必要であると考えられる。

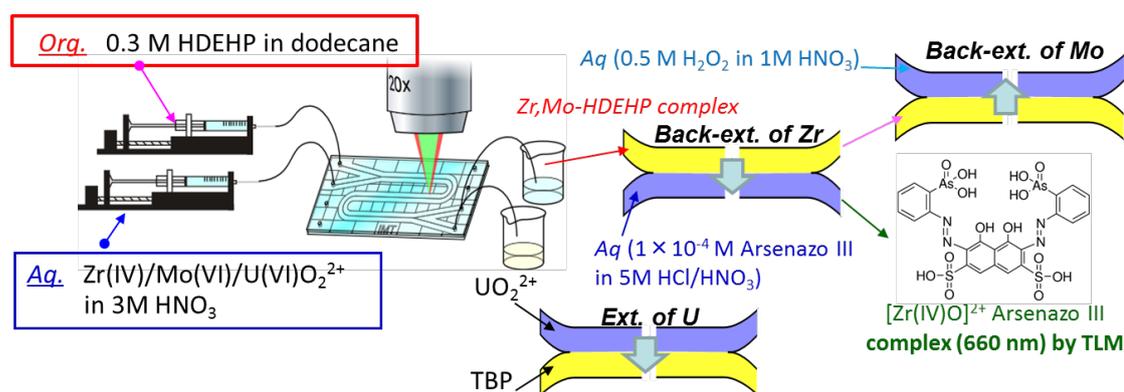


図 3.2.1(2)-1 模擬廃液中の Zr、Mo、U イオン分析フロー

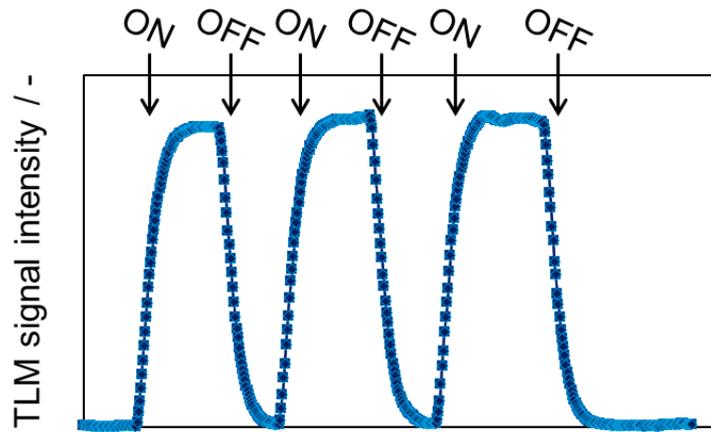


図 3. 2. 1(2)-2 励起光 ON/OFF により得られる TLM 信号

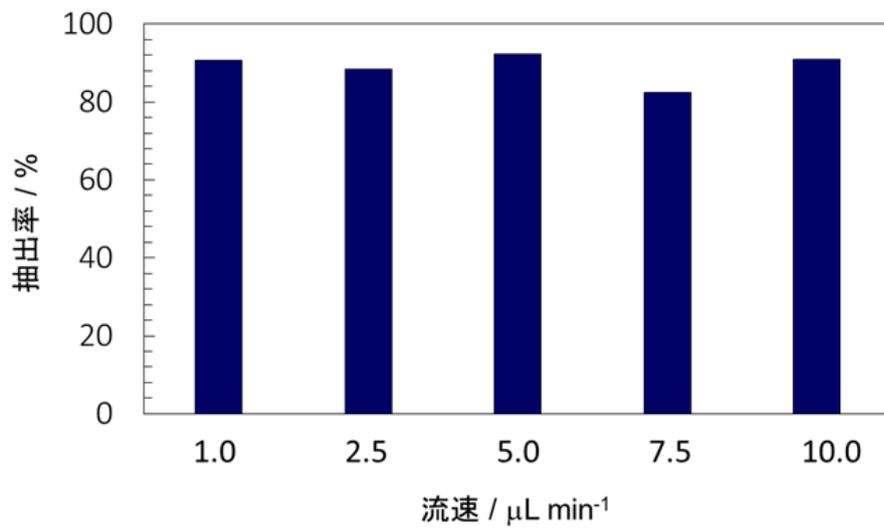


図 3. 2. 1(2)-3 Zr(IV) 抽出率の流速依存性

### 3.2.2 セルロース分解性イオン液体を用いた汚染木材等の除染法の開発

#### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

##### ① 酢酸系イオン液体を用いた伐採木等の表面除染

平成 26 年度

イオン液体を用いた伐採木等の表面除染法開発のため、酢酸系イオン液体の木材成分に対する溶解性の予備検討を行った。セルロース分解性を示すと考えられる酢酸系イオン液体の合成法について検討した。予め酢酸型とした陰イオン交換樹脂カラムにイオン液体前駆体である臭化物塩を通液させることにより所望の酢酸系イオン液体[EMI][CH<sub>3</sub>COO]及び[BMI][CH<sub>3</sub>COO]を 86-87%の収率で効率良く合成することに成功した。また、これら酢酸系イオン液体へのセルロース溶解度についても検討し、[EMI][CH<sub>3</sub>COO]では最大 1.1wt%、[BMI][CH<sub>3</sub>COO]では最大 4.8wt%のセルロースを溶解することを見出した。

平成 27 年度

平成 26 年度に確立した陰イオン交換樹脂カラムによる固相イオン交換法を用いてセルロース分解性イオン液体[EMI][CH<sub>3</sub>COO]及び[BMI][CH<sub>3</sub>COO]を合成した。また、比較的単純な木材由来成分(ティッシュペーパー、セルロース、サクラチップ)にセシウム塩を含ませた模擬汚染物を作製し、上記酢酸系イオン液体を用いた溶解及び除染試験を実施した。その結果、イオン液体への木材由来成分の溶解が確認され、また、水洗の場合と比較してイオン液体による除染効率が低いことを確認した。

平成 28 年度

平成 27 年度と同様に陰イオン交換樹脂カラムによる固相イオン交換法を用いてセルロース分解性イオン液体[BMI][CH<sub>3</sub>COO]を合成した。また、上記木材由来成分に松葉を加えた 4 種類の模擬汚染物を作製し、[BMI][CH<sub>3</sub>COO]を用いた溶解及び除染試験を実施した。その結果、処理温度の上昇に伴って除染効率が向上する傾向が確認された。

平成 29 年度

平成 28 年度と同様に陰イオン交換樹脂カラムによる固相イオン交換法を用いてセルロース分解性イオン液体[EMI][CH<sub>3</sub>COO]を合成した。また、上記 4 種類の模擬汚染物について、異なる処理温度における[EMI][CH<sub>3</sub>COO]を用いた溶解及び除染試験を実施した。その結果、平成 28 年度[BMI][CH<sub>3</sub>COO]系で確認されたのと同様に、処理温度の上昇に伴って除染効率が向上が見られた。平成 28 年度の結果も踏まえた上で、いずれのイオン液体系においても松葉の除染効率は他の模擬汚染物と比較して低くなる傾向が確認された。除染効率はイオン液体の種類とは特に相関が見られなかった。

##### ② ハロゲン系イオン液体を用いた伐採木等の表面除染試験の実施 (再委託先：東海大学)

平成 26 年度

ハロゲン化物系イオン液体の木材成分(セルロース)に対する溶解性の予備検討を行った。セルロースを分解する可能性を有するイオン液体として、1-エチルまたは 1-ブチル-

3-メチルイミダゾリウムカチオンとハロゲン化物イオン (Br<sup>-</sup>、I<sup>-</sup>) の組み合わせによるイオン液体の合成を試みた。また、これら合成したハロゲン系イオン液体とセルロース粉末をガラス容器に投入した後、アルミブロックバスを用いて 100℃に加熱し、セルロースの溶解状態を観察した。溶解試験後のイオン液体を水あるいはメタノールで希釈し、析出したセルロース成分の重量測定及び赤外分光分析を行って、その溶解性を検討した。

#### 平成 27 年度

平成 26 年度の検討によりセルロース溶解性の高いことが明らかになった、塩化 1-エチル-3-メチルイミダゾリウム ([EMI]Cl) と塩化 1-ブチル-3-メチルイミダゾリウム ([BMI]Cl) を用いて、模擬汚染物の除染実験を行った。模擬汚染物として、セルロース粉末と粉砕したサクラチップに塩化セシウム水溶液を一定量滴下し、乾燥させたものを使用した。模擬汚染物を各イオン液体に入れ、100℃で数時間加熱攪拌した。蒸留水を少量添加してイオン液体を溶解し、残留物をろ別した後のろ液中に含まれるセシウムイオン濃度を、原子吸光光度計を用いて分析した。その結果、蒸留水による洗浄では 80%台の除染率となったが、[EMI]Cl や[BMI]Cl を用いることで 90%以上の高い除染率が得られることが分かった。

#### 平成 28 年度

新たに 4 種類の塩化ピリジニウム型イオン液体を用いて、除染媒体としての適用可能性について検討した。模擬汚染物として、松を原料とする木材チップを粉砕し、塩化セシウム水溶液を滴下し乾燥させたものを使用した。塩化 1-ブチルピリジニウム ([BPy]Cl) と塩化 1-ブチル-3-メチルピリジニウム ([B3MPy]Cl) は 135℃、塩化 1-ブチル-2-メチルピリジニウム ([B2MPy]Cl) と塩化 1-ブチル-4-メチルピリジニウム ([B4MPy]Cl) は 165℃で 2 時間加熱攪拌した。ピリジニウム型イオン液体はいずれも 84~90%の高い除染率となり、温度による除染率の差はほとんど見られなかった。また、イミダゾリウム型イオン液体 ([EMI]Cl、[BMI]Cl) は温度による除染効果に差が見られ、100℃よりも 135℃の方が除染率は高くなり、135℃ではピリジニウム型イオン液体とほぼ同等の除染効果が得られることが分かった。蒸留水で洗浄した場合の除染率は 70%となり、イオン液体で処理した方が除染効果は高いことが改めて確認された。

#### 平成 29 年度

低融点のイオン液体として、塩化 1-ヘキシル-3-メチルピリジニウム ([H3MPy]Cl、処理温度 75℃) と塩化ヘキシルピリジニウム ([HPy]Cl、処理温度 100℃)、塩化 1-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウム ([HMI]Cl、処理温度 50℃)、塩化 1-オクチル-3-メチルイミダゾリウム ([OMI]Cl、処理温度 50℃) を新たに選定し、各イオン液体のセルロース溶解性を確認した。[H3MPy]Cl は 75℃で 1%のセルロースは完全に溶解するが、3%まで追加添加すると、完全には溶解しないことが分かった。[HPy]Cl は 100℃で 3%のセルロースを溶解するが、4%になると透明度の低い状態が続いた。[HMI]Cl、[OMI]Cl は 1%のセルロー

ス添加量で、5時間程攪拌を継続しても透明度の低い状態が続き、溶解性は低いことを確認した。

## (2) 平成 30 年度の実施内容及び成果

### ①酢酸系イオン液体を用いた伐採木等の表面除染

平成 26 年度から同 29 年度までに得られた成果に基づき、酢酸系イオン液体溶解法を用いた汚染木材等の除染基本プロセスについて検討を行った。まず用いるイオン液体について、これまでの検討では図 3. 2. 2(2)①-1 に示すセルロース分解性酢酸系イオン液体 [EMI][CH<sub>3</sub>COO] 及び [BMI][CH<sub>3</sub>COO] を用いた。

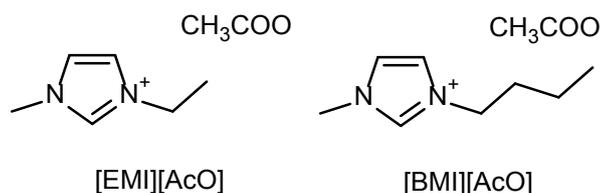


図 3. 2. 2(2)①-1 酢酸系イオン液体の構造式。

これらの選定理由は過去にセルロース溶解性を示し得ることが報告されており、また [EMI]<sup>+</sup>、[BMI]<sup>+</sup> のカチオン部が 3 位の窒素上に比較的短い側鎖を持つ点である。カチオン部側鎖が [BMI]<sup>+</sup> 以上に長くなるとイオン液体の粘性が急激に増加するためハンドリングに支障を来すことが懸念され、また同時に融点も上昇するため、そもそも「イオン液体」として利用することが困難となり得る。一方、カチオン部側鎖が [EMI]<sup>+</sup> よりも短いメチル基とすると、カチオン部の対称性が向上して結晶化しやすくなることから、やはり融点上昇により「イオン液体」として機能しなくなり得る。アニオン部については、ギ酸イオン (HCOO<sup>-</sup>) もしくはプロピオン酸イオン (CH<sub>3</sub>CH<sub>2</sub>COO<sup>-</sup>) が分子構造の観点からは次点候補となり得るが、これらから成る物質がイオン液体となるかどうか、またセルロース分解性を示すかどうか定かではない。また、環境負荷や生体毒性といった観点からも酢酸イオン (CH<sub>3</sub>COO<sup>-</sup>) が適すると考えられる。したがって、[EMI][CH<sub>3</sub>COO] 及び [BMI][CH<sub>3</sub>COO] が酢酸系イオン液体溶解法を用いた汚染木材等の除染に適すると考えられる。これまでの検討では、いずれの酢酸系イオン液体を用いた場合でも松葉に対する除染効率は最大で 66% ないし 65% とほとんど変わらないため、比較的粘性の低い [EMI][CH<sub>3</sub>COO] の方がハンドリングの容易さの観点から除染プロセスへの適合性が高いと思われる。また、[EMI][CH<sub>3</sub>COO] による 1 回の除染効率は 66% 程度であることに基づき、複数段の除染工程を組むことによりトータルの除染効率を高めることが可能である。以上の検討に基づき、図 3. 2. 2(2)①-2 に示すバッチ式 2 段階の除染プロセスを提案した。

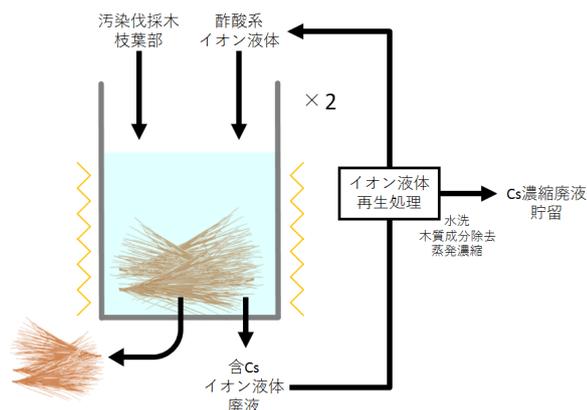


図 3. 2. 2(2)①-2 汚染伐採木バッチ式 2 段階除染プロセス概念.

このプロセス概念の成立性を確認するため、除染試験を行った。これまでの検討に基づき酢酸系イオン液体としてハンドリング性に優れる[EMI][CH<sub>3</sub>COO]及び比較として[BMI][CH<sub>3</sub>COO]を採用した。1.5 mL ガスクロバイアル中で原子吸光分析用 Cs 標準原液(関東化学, Cs 1000 ppm) 100 μL を松葉 0.03 g に染み込ませ、真空デシケーター中 2 日間乾燥させたものを模擬 Cs 汚染物とし、除染試験に供した。この模擬 Cs 汚染物に対して上記酢酸系イオン液体 500 μL を加え、80°C に設定したドライバス中で 8 時間加温した。このサイクルを 2 度繰り返し、各液相中の Cs 濃度を蛍光光度法により分析した。得られた結果を図 3. 2. 2(2)①-3 に示す。

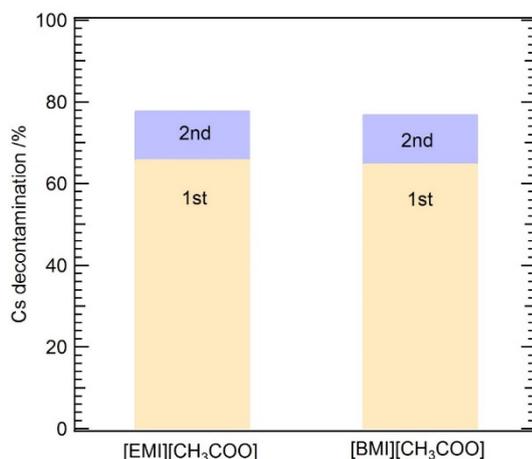


図 3. 2. 2(2)①-3 模擬汚染物(松葉)に対するバッチ式 2 段階除染試験結果.

結果として、2 回目の除染効率は[EMI][CH<sub>3</sub>COO]、 [BMI][CH<sub>3</sub>COO]についてそれぞれ 35%、 34%程度に留まり、1 回目と比較して除染効率の低下が見られた。これは、1 回目は表層部の Cs が除染対象であるため比較的容易であるのに対し、2 回目は木材組織深部に浸透した Cs が対象となるため除染のハードルが上がることに起因すると考えられる。2 工程トータルの除染効率は、[EMI][CH<sub>3</sub>COO]、 [BMI][CH<sub>3</sub>COO]についてそれぞれ 78%、

77%となった。また、イオン液体の再生処理についても検討を行い、除染試験後のイオン液体を蒸留水に溶解したところ、溶解していた木質成分の析出及び沈殿が見られた。ろ過により上澄み液を採取し、ロータリーエバポレーターによる蒸発濃縮により、本除染プロセスにおけるイオン液体のリサイクルが可能であることを確認した。別途報告されているゼオライト等適切な Cs 吸着剤を利用することにより、ろ液中に含まれる Cs 除去及びイオン液体再生の見通しも得られている。

## ②ハロゲン系イオン液体を用いた伐採木等の表面除染試験の実施（再委託先：東海大学）

比較的低融点のイオン液体を選定し、セルロース溶解性や模擬汚染物の除染性能について検討してきた。これまでに、塩化セシウム溶液を染み込ませた松粉末を模擬汚染物として、イオン液体による除染試験を実施した結果、いずれのイオン液体を用いても、蒸留水での洗浄よりも高い除染率が得られた。以上のこれまでに得られた知見に基づき、複数段の除染工程を含む図 3.2.2(2)①-2 と同様のバッチ式 2 段階除染プロセスを提案した。また、平成 30 年度は、実汚染物の除染を想定し、松粉末のかわりにブロック状に切り出した木材片（松材）を用意し、放射性セシウム ( $^{137}\text{Cs}$ ) を染み込ませた模擬汚染物による実証試験を実施した。

塩化物系イオン液体として、塩化 1-エチル-3-メチルイミダゾリウム ([EMI]Cl)、塩化 1-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウム ([HMI]Cl)、塩化 1-オクチル-3-メチルイミダゾリウム ([OMI]Cl)、塩化 1-ヘキシルピリジニウム ([HPy]Cl) の 4 種を用いた (図 3.2.2(2)②-1)。各イオン液体の融点を考慮し、処理温度は 50°C または 100°C とした。

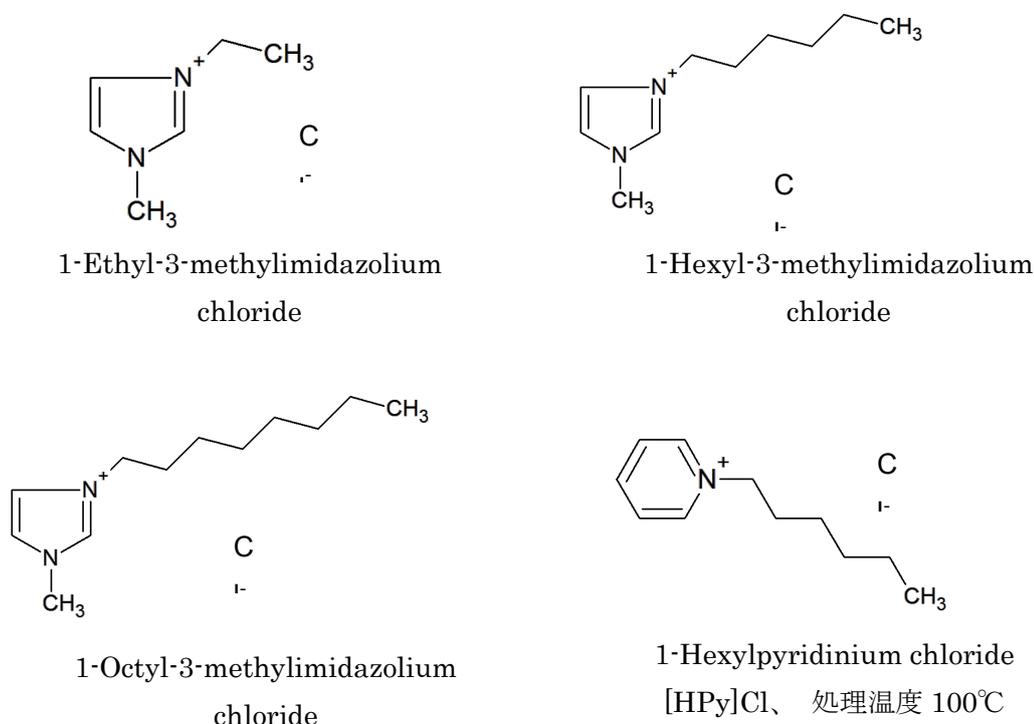


図 3.2.2(2)②-1 使用したイオン液体の構造式と処理温度

模擬汚染物として、約 0.1g に切り出した松木材片を放射性セシウム溶液 ( $^{137}\text{Cs}$  放射能濃度 10kBq/g) に 1 時間程度浸漬し、自然乾燥させたものを使用した。ガラスバイアル瓶にイオン液体を 2g ずつ計量し、ドライブロックバスを用いて処理温度まで昇温し、模擬汚染木材片を投入した後、時々攪拌しながら 2 時間加熱した。処理後、イオン液体から木材片を取り出し、付着しているイオン液体を蒸留水 1ml で洗浄した。洗浄操作は 3 回繰り返し行った。模擬汚染木材片の  $\gamma$  線計数率を、イオン液体による除染処理前後について NaI(Tl) ウェル型シンチレーション検出器 (AccuFLEX  $\gamma$  7000、日立アロカメディカル) で測定し、除染率を以下の式により求めた。

$$\text{除染率(\%)} = \frac{\text{初期の正味計数率(cpm)} - \text{処理後の正味計数率(cpm)}}{\text{初期の正味計数率(cpm)}} \times 100$$

また、各イオン液体について 3 サンプル用意し、除染率の平均値を評価に用いた。なお、[OMI]Cl を除き、1 回目の除染処理後の木材片を用いて、新たに 2g のイオン液体で 2 回目の除染処理を行った。さらに、比較のため蒸留水を用いて 50°C で同様の除染試験を実施した。試験結果を図 3.2.2(2)②-2 に示す。

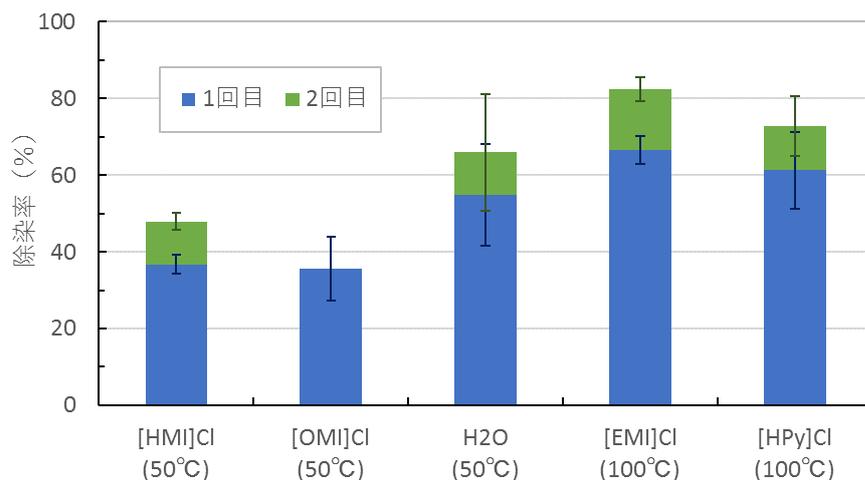


図 3.2.2(2)②-2 模擬汚染木材片の除染試験の結果

[HMI]Cl や [OMI]Cl を用いて 50°C で処理した場合、1 回目の除染率は 40% 弱となった。また、処理温度が 100°C の [EMI]Cl や [HPy]Cl の場合、1 回目の除染率は 60% を超え、高い除染効果を得た。一方、50°C の水に 2 時間浸漬すると、1 回目の除染率は 55% を超えた。比較すると、除染率の値は [HMI]Cl や [OMI]Cl よりも水による処理の方が高い結果となった。イオン液体は粘性が高いため処理温度が低い 50°C では、木材片への浸透性が低く、十分な除染効果が得られなかったものと考えられる。これに対し、水はイオン液体よりも木材片へ浸透しやすいため、より高い除染率となったものと考えられる。また、処理温度がより高い [EMI]Cl や [HPy]Cl の場合、加熱・攪拌中の粘性も低く、木材片へより浸透しやすいことから、除染率が高かったものと考えられる。

2回目の処理を行ったところ、処理温度による差はほとんど見られず、いずれのイオン液体及び水で処理しても除染率は10~15%程度の増加となった。また、[EMI]Cl や [HPy]Cl で処理した木材片は、軟化して砕ける様子が観察された。このことは、イオン液体がセルロース溶解性を有するため、木材片の成分がイオン液体中に溶け出し、徐々に砕けやすくなったものと考えられる。

結果として、[EMI]Cl を用いて100℃で2回処理を行うことで、80%を超える高い除染率を得た。イオン液体の種類による除染率の差はほとんど見られず、処理温度が大きく影響することが明らかになった。このことは、高温ではイオン液体の粘性が低下し、汚染物の内部へ浸透しやすくなることに起因するものと推察する。一方、汚染物の内部への浸透性が高い水による洗浄はある一定の効果が期待できるが、風雨にさらされた汚染伐採木は、既にある程度の表面汚染は除去されていると考えられる上、高温での処理は水の蒸発やCs飛散等の観点から、その除染効果は限定的であると考えられる。これに対し、イオン液体は100℃以上の温度での処理が可能であり、セルロース溶解性を有する点から、木材成分の溶解を伴った高い除染効果が期待できる。

以上から、汚染伐採木をイオン液体中で加熱処理した後、水でイオン液体を溶解洗浄する除染基本プロセスを提案し、本研究により高い除染効果を確認した。

### 3.2.3 水熱分解法による汚染土壌・焼却灰処理技術

#### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

平成 26 年度

有機酸が土壌からの Cs 抽出効果を持つことに着目し、水熱処理条件下で発生する落葉由来有機酸による、汚染土壌からの Cs 除去効果を評価した。水熱分解に用いる反応容器に模擬汚染バーミキュライト溶液と、サクラの落葉、もしくは濃度 0.3M の有機酸を加え密閉し、水熱処理後の Cs 脱離率を評価した。落葉を加えて水熱処理することで Cs 除去が可能であり、落葉の添加なしで水熱処理した場合よりも脱離率が向上することが明らかとなった。また、有機酸単独添加では、フマル酸による脱離率が最も高かった。

平成 27 年度

有機酸を用いた水熱法によって土壌粘土質に強く吸着している Cs の脱離試験を行い、最適な有機酸の選定と水熱条件を調べた。有機酸を添加し水熱分解処理を施すことで土壌粘土質からの Cs の脱離特性が向上した。また、土壌粘土質に対して塩化セシウム水溶液を添加する際、土壌粘土質へ Cs を吸着させる時間が長いほど Cs 吸着量が増加し、土壌粘土質中の Cs 吸着量が多い場合には Cs 脱離率が低下する傾向が見られた。

さらに、有機酸や塩類等を含有する天然あるいは人工の海水を添加した、土壌粘土質からの水熱法による Cs 脱離試験を行った。海水の添加により Cs の脱離が促進される結果を得た。海水中の含有元素とのイオン交換により Cs の脱離が促進されたと考えられる。

平成 28 年度

水熱法によって土壌粘土質に強く吸着している Cs の脱離試験を行い、高 Cs 脱離率が得られる最適な添加物の選定と水熱条件を調べた。また、粘土鉱物からの Cs 脱離機構を検討した。高 Cs 脱離率が得られる添加物及び水熱条件として、有機酸を使用する場合には添加物はクエン酸とし、クエン酸濃度は 0.05M、処理温度は 200～250℃、処理時間は 30min 程度といった条件が示唆された。また、水熱処理後の溶液中のイオン濃度を調べたところ、Al、Fe、Mg、Si など粘土鉱物の組成に起因する元素の溶出が確認され、有機酸を伴う水熱処理時の Cs の脱離は、粘土鉱物の溶解により引き起こされていることが示唆された。

平成 29 年度

水熱分解法による模擬 Cs 含有焼却灰と塩化マグネシウム水溶液を用いた Cs の脱離試験を行った。その結果、同条件での Cs 含有バーミキュライトからの Cs 脱離と比較して、模擬焼却灰からは Cs が脱離し難くなっている可能性が示唆された。

また、日本原子力研究開発機構 廃炉国際共同研究センター (CLADS) と共同で、実汚染土壌からの Cs の脱離試験及び、粘土鉱物の高温 X 線回折 (XRD) 測定、カラム型連続水熱処理装置による粘土鉱物からの Cs の脱離試験を行った。実汚染土壌からの水熱処理を用いた Cs の脱離試験の結果、0.5M 塩化マグネシウム水溶液を用いた水熱条件の場合は、脱離率が 50%であった。Mg イオン含有水溶液を用いた水熱処理による実汚染土壌からの Cs

脱離に成功した。水熱処理後の粘土鉱物を用いた高温 XRD 測定の結果、温度上昇により、Mg イオンが脱水和され、Mg が吸着されている層の層間距離が短く変化したと考えられる結果が得られた。カラム型連続水熱処理装置による Cs 脱離試験の結果、粘土鉱物からのほぼ 100% の Cs 脱離に成功し、水熱処理法が、連続化可能であることが明らかとなった。

## (2) 平成 30 年度の実施内容及び成果

平成 29 年度に引き続き、水熱分解法による焼却灰からの Cs 脱離条件と脱離率の関係を調べた。また、半流通式水熱分解装置を用いて水熱処理中の亜臨界水を取り出すことにより、水熱処理中の Cs 脱離状態及び脱離機構を調べ、水熱処理水の効率の良い取り出し方法や冷却方法を検討し、水熱分解法のさらなる高効率化に必要な条件を抽出した。日本原子力研究開発機構の CLADS にて、水熱分解処理による実汚染土壌からの Cs 脱離試験を行い、水熱分解処理プロセスの評価を行った。

水熱分解法による焼却灰からの Cs 脱離条件と脱離率の関係を調べるため、まず、模擬汚染焼却灰を作製した。平成 29 年度と同様、福島県の森林で最も多く生息する樹木である杉と、土壌において Cs が最も強く吸着する粘土鉱物であるバーミキュライトを選定した。選定後は放射性 Cs 汚染を模擬するため、塩化セシウム溶液を用いて Cs 吸着試験させた。Cs 吸着後、杉とバーミキュライトを混合し、ロータリーキルンを用いて燃焼させることにより模擬汚染焼却灰を作製した。続いて、水熱処理法を用いた模擬汚染焼却灰からの Cs 脱離試験を試みた。模擬灰 0.4 g と塩化マグネシウム溶液 40 mL (固液比 1:100)、 $Mg^{2+}$ 濃度を 0.5M、水熱処理温度を 250°C で 30 分間維持、圧力を 4.0 MPa に処理条件を設定し水熱処理試験を行った。試験後は固液分離及びろ物の洗浄を行い、誘導結合プラズマ質量分析計

(ICP-MS) を用いてろ液の Cs 濃度を測定し、Cs 脱離率を算出した。脱離試験の結果、模擬汚染焼却灰から 63% の Cs を脱離させることができた。先行研究にて行われた本実験と同条件で水熱処理を行った、未燃焼のバーミキュライトからの Cs 脱離率 (約 78%) と比較すると、Cs 脱離率の減少が確認された。よって燃焼後の粘土鉱物を含む焼却灰に固定化された Cs の場合、より強固に Cs が吸着されていることが示唆された。次に、Cs 脱離率を向上させるため、溶媒中の  $Mg^{2+}$ 濃度の影響を調べた。 $Mg^{2+}$ 濃度は 0、0.1、0.5、1.0M に割り振り、実験を行った。実験の結果、 $Mg^{2+}$ 濃度を濃くすることによる Cs 脱離率の増加を確認した。しかしながら  $Mg^{2+}$ 濃度 0.5 M から 1.0 M への増加による Cs 脱離率の上昇は少なかった (図 3.2.3(2)-1)。次に、水熱処理回数を増加させることによる Cs 脱離率の向上を試みた。繰り返し水熱処理を 5 回繰り返すことにより、模擬汚染焼却灰から最大で 80% の Cs を脱離させることができた。以上の結果より、模擬汚染焼却灰からの Cs 脱離において、 $Mg^{2+}$ 濃度 0.5 M の水溶液を用いて、水熱処理を繰り返し行うことで、約 80% まで Cs 脱離率を向上させることができることを確認した。

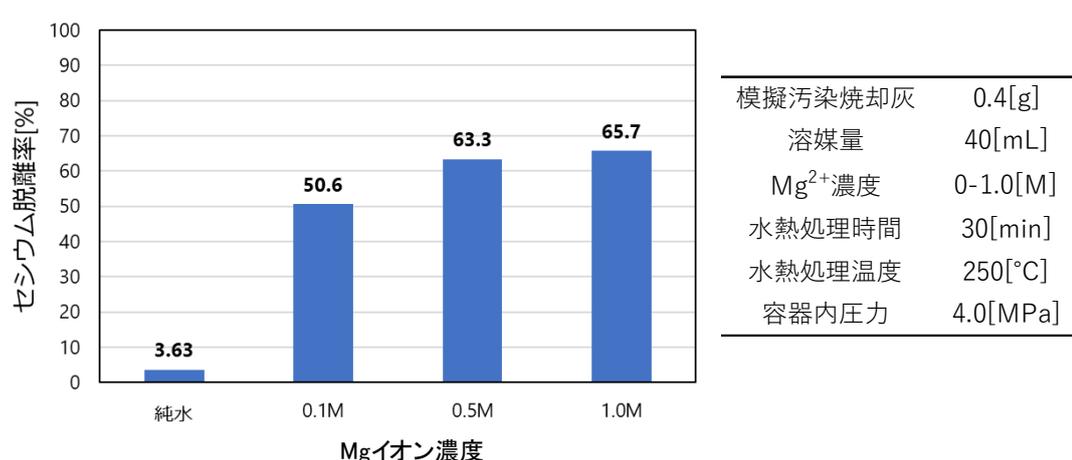


図 3.2.3(2)-1 Mg イオン濃度と模擬焼却灰からの Cs 脱離率の関係

また、半流通式水熱分解装置を用いた水熱処理中の亜臨界水の取り出しによる、水熱処理中の Cs 脱離状態及び脱離機構を調べた。Cs を吸着させたバーミキュライト (34.5 mg-Cs/g) と 0.1M 塩化マグネシウム水溶液 150 mL を半流通式水熱分解装置へ入れ、密封後、150°Cまで加熱した。装置内の温度が 150°Cに達した後に、装置のサンプリング機構により、水熱処理中の亜臨界水を 1 mL ずつ、5 個のフラクションを取り出し、4 番目と 5 番目のフラクションを合わせ、溶液中の Cs 濃度を測定し、Cs 脱離率を算出した。その結果、脱離率は約 60%であった。一方、これまでの回分式 Cs 脱離試験の条件と同様、加熱停止後、約 25°Cまで自然冷却させた後に、固液分離及びろ物の洗浄を行い、ろ液の Cs 濃度を測定し、Cs 脱離率を算出したところ、Cs 脱離率は約 50%であった。以上の結果より、水熱処理中は、粘土鉱物中に吸着されていた Cs は、約 60%脱離していることが分かり、自然冷却後に固液分離を行った場合は、亜臨界水中に脱離していた Cs が粘土鉱物に再吸着 (約 10%) されるため、脱離率が低下したと考えられる。水熱処理中の Cs 脱離機構は、水熱処理後の Cs が脱離した粘土鉱物の XRD 分析結果から推察することができる。塩化マグネシウム水溶液を用いた連続水熱処理によって得られた、Cs が脱離したバーミキュライトの粉末 XRD パターンは、Cs が吸着した層間を示すピークが消失し、水和した Mg が吸着した層間を示すピークが現れた。このことから、水熱処理中の Cs 脱離機構は、水和した Mg イオンと Cs イオンとの交換によるものであると考えられる。以上の結果より、水熱処理水の効率の良い取り出し方法と冷却方法は、亜臨界水状態のまま固液分離を行い、処理水のみを冷却し回収する方法が、Cs の再吸着が起らず、効率良く Cs を粘土鉱物から脱離させることができる。すなわち、カラム式の連続水熱処理を行うことによって、効率の良い亜臨界水の取り出しと冷却が可能であり、水熱分解法のさらなる高効率化を達成させることができる。

日本原子力研究開発機構の CLADS にて、カラム式連続水熱分解処理による実汚染土壌からの Cs 脱離試験を行った。実汚染土壌は、福島県双葉郡富岡町において採取、乾燥後、150 μm 以下に篩分けを行った試料を用いた (15,000 Bq/kg)。実汚染土壌 0.5 g を、径 4.6 mm、長さ 5 cm のステンレス製のカラムに充填し (処理後のカラム内の土壌の長さは約 3 cm)、連続水熱処理装置に取り付けた。移動相の溶液は、H<sub>2</sub>O 及び、KCl、NaCl、MgCl<sub>2</sub>、CaCl<sub>2</sub>、LaCl<sub>3</sub> 水溶液 (全て 0.1M) を用いた。温度：150°C、圧力：0-1MPa、流速：0.25 mL/min の条

件でカラムに溶液を通液させ、溶出液を 50 mL 回収し、溶液の放射線量を測定し、Cs 脱離率を算出した。溶離液の違いによる脱離率は、 $\text{H}_2\text{O}$ : 0%、 $\text{Na}^+$ : 18%、 $\text{K}^+$ : 12%、 $\text{Ca}^{2+}$ : 25%、 $\text{Mg}^{2+}$ : 23%、 $\text{La}^{3+}$ : 55%となり、 $\text{La}^{3+} > \text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{Na}^+ > \text{K}^+$ の順番で、Cs 脱離率が高く、1 価の陽イオンよりも、2 価、2 価よりも 3 価の陽イオンの方が、効率良く Cs が脱離した。以上の結果から、移動相の溶離液として、 $\text{La}^{3+}$ 等の 3 価の陽イオンを含む水溶液を用いることによって、効率の良い連続水熱処理プロセスの構築が可能であることを評価した。

### 3.2.4 フェリシアン系吸着剤による Cs 回収技術開発

#### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

平成 26 年度

金属種の異なるフェリシアン系吸着剤を合成し、Cs 吸着に適した金属種を選定することを目的とし、マンガンとニッケルと銅のフェリシアン-フェロシアン化合物を合成し、Cs 吸着性能とシアン溶出量の評価を行った。合成したフェリシアン化 Mn、フェロシアン化 Ni、フェロシアン化 Cu、及び、プルシアンブルー（PB、大日精化工業製）の Cs 吸着試験結果とシアン溶出量の結果より、フェリシアン化 Mn、フェロシアン化 Ni、フェロシアン化 Cu は、紺青よりも高い Cs 吸着性能を示した。水中へのシアンの溶出量は、フェリシアン化 Mn とフェロシアン化 Ni が少なく、この 2 つの吸着剤が、Cs 吸着剤に適していると考えられる。

平成 27 年度

フェリシアン系吸着剤を用いて Cs 吸着に適した溶液条件(温度、pH など)を調べ、Cs 高濃度回収の可能性を明らかにすることを目的とし、Co、Fe、Zn のフェロシアン化合物を新たに合成し、pH を変化させた場合の Cs 吸着性能の比較検討を行った。pH 12 において、Cs の吸着容量が高いフェロシアン化合物は、Ni、Cu、Zn であった。また、小さな温度変化(±5°C)は、フェロシアン化合物の Cs 吸着性能に大きな影響を与えないことを確認した。さらに、Cs 吸着に対する塩の影響を調べるために、土壌サンプルの水熱分解後の溶液(Cs 濃度 100ppm)を用いた Cs 吸着試験を行った。5wt%のフェロシアン化 Fe を用いることにより約 98%の Cs が吸着され、塩の影響を大きく受けず、選択的に Cs を吸着することを確認した。以上の結果より、Cs 高濃度回収の可能性が示唆された。

平成 28 年度

PB 類似体（フェリシアン系吸着剤もしくはフェロシアン系吸着剤）を多孔質体表面上に親水性高分子ゲル等を用いて担持させる方法で造粒し、その造粒体をカラム充填剤として用いたカラムクロマトグラフィーによる Cs 回収試験を行った。PB 分散溶液をシリカゲルに含浸させ乾燥させた後、高分子モノマー溶液にシリカゲルを含浸させ、重合・洗浄を行うことで、PB がゲルによってシリカゲル表面上に担持された造粒体（PB 担持シリカゲル：PBS）を作製した。PBS の動的 Cs 吸着性能を確認するため、Cs 溶液を用いてカラム吸着試験を行った結果、物質移動領域の狭い破過が確認され、PBS がカラム充填剤に適した材料であることを明らかにした。

平成 29 年度

PB 類似体で濃縮回収された Cs 及び水熱分解で水相に脱離した Cs をアルミノシリケート含有多孔質ガラス（APG）に選択吸着させ、高温処理により固定化を行い、多孔質ガラスへの Cs 固定化率と処理条件の関係を調べた。PB で濃縮回収された Cs の模擬溶液として Cs 単独イオン溶液、水熱分解で水相に脱離した Cs の模擬溶液として、Na、Mg、K、Ca、Fe、Cs の 6 種類の金属イオンを含む溶液を用いて吸着試験を行った。APG は Cs を多

孔質内部へ選択的に吸着することが明らかとなった。APG と CsCl を Cs 濃度 10wt% となるように混合後、蒸留水を加え攪拌、加熱乾燥、粉碎することにより、Cs 吸着後の APG の模擬試料を作製した。模擬試料を 1100°C、1200°C で加熱溶融することによりガラス固化体が得られ、Cs をほぼ全量固定化できることが明らかとなった。

## (2) 平成 30 年度の実施内容及び成果

PB 類似体で濃縮回収された Cs を、硼珪酸ガラスを用いて固定化を行った。また、水熱分解で水相に脱離した Cs を、平成 29 年度とは組成の異なるアルミノシリケート含有多孔質ガラス (APG) に選択吸着させ、高温処理により固定化を行い、Cs 固定化率と処理条件の関係を調べ、廃棄物の減容率を評価した。また、Cs を固定化したガラスの浸出試験を行い、ガラスの Cs 保持能力を評価した。

金属イオン含有亜臨界水による Cs 含有粘土鉱物の水熱処理によって得られた Cs 含有水熱処理水と、PB を容器に入れ、室温にて 1 時間振とうし、Cs を PB へ選択的に吸着させた。その後、混合液をフィルター (孔径 0.20 $\mu$ m) で吸引濾過し、Cs 吸着後の PB を回収した。PB による Cs 吸着量を把握するため、濾液中の Cs 濃度を原子吸光分光光度計 (AAS) にて測定した。その後、Cs 吸着後の PB を管状炉により空気雰囲気下で熱分解させた。熱分解後の PB と水を混合後、80°C にて 6 時間振とうし、Cs を溶出させた。混合液をフィルターで吸引濾過し、Cs 溶出後の残渣に対してさらに 80°C の水を残渣に添加して水洗浄を 3 回繰り返して行うことで、100% の Cs を溶出させることに成功した。この溶出液を想定した模擬塩を作製し、ガラス固化試験を行った。Cs 濃縮後の溶出液 (Cs 濃縮体) を模擬した模擬塩 (CsNO<sub>3</sub> と微量の NaNO<sub>3</sub>、Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> の混合物) と、硼珪酸ガラス、融剤 (Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>、Na<sub>2</sub>O 濃度換算で 10wt%) を混合し、小型ガラス溶融装置を用いて窒素雰囲気下で加熱した。ガラス固化体作製時の加熱前のガラスへの Cs 混合割合は 10wt% とした。加熱時の保持温度は 850、900、950°C、保持時間は 2h とした。自然冷却で冷却し、ガラス固化体を作製した。得られたガラス固化体を粉碎後、蛍光 X 線 (XRF) 分析により Cs 量を定量し、Cs 固定化率を算出した。850°C、900°C の Cs 固定化率は約 100%、950°C では 93% となり、1000°C 以下の比較的低い温度で、Cs をガラス中にはほぼ全量、固定化させることに成功した。

平成 29 年度に引き続き、Cs 含有水溶液から APG (株式会社環境レジリエンス製) に Cs を選択吸着させ、高温処理によりガラス固化体を作製する実験を行った。APG は、平成 29 年度に使用した APG4 に加え、APG4 とは Al 含有率が異なる APG3 と APG6 を用いた。XRF 分析により、それぞれの APG の Al 含有率は、APG3: 3.1%、APG4: 3.3%、APG6: 5.3% であった。この 3 種類の APG を用いて Cs 吸着試験を行い、吸着等温線データを取得した。APG3、APG4、APG6 共に、Langmuir 吸着等温線に属することを確認し、Langmuir 等温式を用いて各最大 Cs 吸着量を算出した。APG4 が最も大きな飽和吸着量 (109 mg-Cs/g-glass) を示し、APG4 が Cs を最大で約 10wt% 吸着可能であることが明らかとなった。次に、APG4 の Cs 吸着選択性を確認した。MgCl 水溶液を用いた、汚染土壌に対する水熱処理により得られる Cs 含有廃液から Cs を回収することを想定し、11 成分の陽イオン (Na<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Al<sup>3+</sup>、K<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Mn<sup>2+</sup>、Fe<sup>3+</sup>、Cu<sup>2+</sup>、Zn<sup>2+</sup>、Cs<sup>+</sup>、Ba<sup>2+</sup>、各金属イオン濃度 2 mmol/L) を含む模擬水熱処理廃液を作製した。模擬溶液 10 mL に対し、APG4 を 20、40、80、100 mg の 4 条件で、室温で 6

時間振とう後、溶液中の金属イオンの濃度を ICP-AES、ICP-MS を用いて分析した。その結果、APG4 は Cs を選択的に吸着し、Na の溶出が見られた。Na の溶出は、FPG 中の Na<sup>+</sup> と Cs<sup>+</sup> によるイオン交換であると考えられる。

ガラス固化試験：APG4 と CsCl 固体を Cs 濃度 10wt% となるように混合後、蒸留水を加え攪拌、乾燥、粉碎することにより、Cs 吸着後の APG の模擬試料 (Na 非含有試料) を作製した。また、APG4 と異なるガラス組成の模擬試料として、Na (融剤) 含有の影響を見るため、同様の方法で Cs と Na の濃度がそれぞれ 10wt% になるように、CsCl と Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> (融剤) を混合した試料 (Na 含有試料) も作製した。粉末試料を白金容器に入れ、小型ガラス溶融装置を用いて、保持温度 800~1350°C、保持時間 2h にて加熱後、自然冷却し、得られたガラス固化体の Cs 固定化率を、蛍光 X 線測定により算出した。ガラス固化試験の結果、Na 非含有試料では、900、1000、1100、1200、1350°C で加熱した場合、冷却後に固化体が得られ、それぞれの Cs 固定化率は、100、100、100、100、88% であった。900~1200°C で加熱することにより、Cs を全量、固定化できることが確認され、1350°C では、12% の Cs の揮発が見られた。APG は SiO<sub>2</sub> 含有率が高い石英ガラスであるため、融点が高く、900~1200°C での加熱では、ガラス粉末表面の一部のみが溶融し、細孔が塞がれた状態となるため、通常 800~900°C 以上の高温で揮発が見られる Cs がガラス内部に閉じ込められ、揮発が抑制されたと考えられる。1350°C での加熱では、加熱時の溶融状態が進みガラスが液化したために、Cs に対する保持能力が低下し、Cs の揮発が進行したと考えられる。Na 含有試料では、800、900、1000、1100、1200°C で加熱した場合、それぞれの Cs 固定化率は、94、82、69、75、55% となり、900°C 以上での Cs 固定化率の低下が見られた。Na 添加の影響でガラスの融点が降下し、Na 非添加の時と比べて 900°C 以上での溶融がさらに進み、ガラスの液化により、Cs の揮発が進んだと考えられる。

ガラス固化試験の結果より、Na 非添加試料では 900~1200°C、Na 添加試料では 800°C の加熱により、APG は吸着した Cs をほぼ全量、固定化できることが明らかとなった。この結果を基に、最終廃棄体を Cs10wt% 含有ガラス固化体と設定し、汚染土壤からの減容率の評価を行った。分級後汚染土壤 (<0.075 mm) の量を 1 万 m<sup>3</sup> (1.20x10<sup>7</sup> kg、土壤密度 1.2 g/cm<sup>3</sup>、1.00x10<sup>5</sup> Bq/kg)、汚染土壤の水熱処理による Cs 回収率を 98% と仮定すると、水熱処理後の浄化土壤の量は 1.20x10<sup>7</sup> kg (1 万 m<sup>3</sup>、2.00x10<sup>3</sup> Bq/kg)、ガラス固化体の量は 1.18x10<sup>3</sup> kg (0.535 m<sup>3</sup>、1.00 GBq/kg) となり、廃棄物減容率は約 1/20000 となった。浄化土壤の放射能濃度は 2.00x10<sup>3</sup> Bq/kg となり、指定廃棄物の基準 8.00x10<sup>3</sup> Bq/kg 以下であるため、再利用が可能である。

浸出試験：Cs 吸着後 APG4 模擬試料である Na 非含有試料と Na 含有試料を、それぞれ 1100°C で加熱することによって得られたガラス固化試料 2 種類と、APG4 に Cs を約 10wt% 吸着させた試料 (非加熱試料)、計 3 種類の試料について、浸出試験を行った。粉末状に粉碎した試料 20 mg を、PP 容器中の蒸留水 10 mL に浸漬後、50°C の恒温槽中に静置した。12 日後に上澄中の Cs 濃度を分析し、Cs 浸出率を算出した。非加熱試料の Cs 浸出率が 14.6%、加熱した Na 非含有試料では 2.0%、Na 含有試料では 2.2% であった。非加熱試料に比べて、加熱試料の耐水性が大幅に向上しているため、FPG のガラス固化による Cs 固定化の有

用性が示された。Na の非添加、添加の違いによる耐水性の大きな違いは見られず、両試料共に高い耐水性を示し、ガラス固化体は高い Cs 保持能力を有することが明らかとなった。

### 3.2.5 クラウンエーテル含有ゲルと天然鉱物を利用した Cs、Sr 回収・固定化技術

#### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

##### ①Cs、Sr 回収試験

平成 26 年度

クラウンエーテル (CE) 系抽出剤を固定した感温性高分子ゲルを合成し、機能性ゲルによる Sr 抽出試験を行った。感温性高分子ゲルは、合成した重合性官能基を有する 18-クラウン-6 (クラウンエーテル、CE) と、モノマーである N-イソプロピルアクリルアミド (NIPA) をラジカル共重合することによって得た。合成した CE-NIPA ゲルの Sr 吸着能を調べた。水相は Sr を 5.0 mM 含む 2.6 M 硝酸水溶液を用いた。吸着試験の結果、振とう後 3 時間で分配係数は最大の 3.23 [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]となり、水相中の Sr を抽出できることが分かった。

天然鉱物を利用した Cs、Sr 回収・固定化技術について、国内産ポーラスシリカ (珪藻土)、ゼオライト、粘土の天然鉱物混合物を成形後に、異なる温度で仮焼して、多孔質セラミックスを準備した。電子顕微鏡観察、X 線分析により、原料及び仮焼体を評価した。仮焼後も多孔質構造を維持していることを確認した。

平成 27 年度

CE 系抽出剤を固定した感温性高分子ゲルを合成し、機能性ゲルによる Sr 抽出試験を行った。感温性高分子ゲルの合成は、平成 26 年度と同様、CE に重合性官能基を 2 つ導入し、高分子モノマーである NIPA とラジカル共重合させることにより、CE を架橋剤とした CE-NIPA ゲルを得た。CE-NIPA ゲルを用いた硝酸水溶液からの Sr ゲル液抽出試験を行い、Sr 抽出能を有することを確認した。また、ゲル液抽出に対する高分子モノマーの影響を調べるため、ジメチルアクリルアミド (DMAA) 等を用いた新規 CE 含有ゲルの合成を行った。Sr 抽出試験の結果、DMAA を用いた新規 CE 含有ゲルよりも、既存の NIPA を用いた CE 含有ゲルの方が Sr 抽出能に優れていることが明らかとなった。

天然鉱物を利用した Cs、Sr 回収・固定化技術について、天然鉱物を用いた多孔質セラミック吸着材の作製プロセスの検討及び得られた多孔質セラミック吸着材の非放射性 Cs 及び Sr の吸着特性を単独吸着試験及び同時吸着試験により評価した。原料として天然多孔質シリカ (A-WPS)、ゼオライト粉末 (NKZ)、天然粘土 (NC) を用い、A-WPS、NKZ 単独またはこれらの粉末に NC を加えたものについて焼成体を作製した。純水中に非放射性 Cs 及び Sr を溶解した模擬汚染水を用いて、A-WPS、NKZ、NC の未焼成粉末の Cs 及び Sr 吸着率を評価したところ、単独吸着試験では A-WPS、NKZ どちらの未焼成粉末においても初期濃度によらず 90%以上の高い吸着率を示した。同時吸着試験では、A-WPS と NC については吸着率が Cs の吸着率は高いものの Sr では 20%以下となったのに対して、NKZ では両元素共に 90%以上の吸着率が得られた。次に NC 無添加で作製した A-WPS 及び NKZ 焼成体の Cs 及び Sr の同時吸着試験による吸着率を評価したところ、A-WPS 焼成体及び NKZ 焼成体の

どちらの試料においても吸着時間 10 時間以上で極めて高い Cs 及び Sr 吸着率を示した。また、A-WPS+NC 及び NKZ+NC 焼成体による Cs 吸着率を評価したところ、いずれの焼成体においても焼成温度が低い方が高い吸着率を示した。以上の結果から、天然鉱物を利用した Cs、Sr 回収・固定化技術について、天然多孔質シリカ及びゼオライトを用いた高性能多孔質セラミック吸着材の合成に見通しが得られた。

#### 平成 28 年度

CE 系抽出剤を固定した親水性高分子ゲルを多孔質体表面上に薄膜塗布した吸着剤を合成し、Sr 抽出試験を行った。CE 系抽出剤は、重合性官能基であるアリルアミド基を 4 つ有する CE 誘導体、TAA を新規合成した。TAA を NIPA と共重合させ、高分子ゲル TAA+BIS-NIPA を合成し、 $\text{Sr}^{2+}$  を 0.5 mM 含む硝酸水溶液（硝酸濃度 1~5 M）、10℃、48 時間振とう条件下でゲルの Sr 抽出能を評価した。TAA+BIS-NIPA は、3~5 M 硝酸下において高い Sr 抽出能を持ち、昨年度合成した CE-NIPA ゲルよりも Sr 抽出能が優れていることが明らかとなった。また、親水性高分子ゲル中に CE 系抽出剤及びプルシアンブルー類似体を固定した吸着剤を合成し、Cs、Sr の同時吸着試験を行った。Cs の吸着は見られたが Sr の吸着が見られなかった。この理由としては、ゲル中の CE 含有量が少なかったためであると考えられる。

天然鉱物を利用した Cs、Sr 回収・固定化技術について、天然鉱物を用いた多孔質セラミック吸着材の模擬海中における非放射性 Cs 及び Sr の吸着特性を同時吸着試験により評価した。十分に乾燥させた A-WPS 及び NKZ 粉末及び 500、700、900℃で焼成した A-WPS+NC 及び NKZ+NC 焼成体を非放射性 Cs 及び Sr を含む模擬海中に入れ、吸着バッチ試験を行った。Cs 吸着率を評価したところ、吸着時間 4 時間で A-WPS 粉末ではおよそ 60%、NKZ 粉末ではおよそ 80%の Cs 吸着率となった。また、A-WPS+NC 焼成体では、Sr については焼成温度が高いほど吸着率は高く、Cs については焼成温度が低いほど吸着率は増加した。NKZ+NC 焼成体では、焼成温度 700℃と比較して 500℃及び 900℃の場合に Sr 吸着率が高くなった。Cs に関しては 500℃及び 700℃の焼成温度の場合におよそ 80%の吸着率が得られたが、900℃では吸着率は 40%程度となった。

#### 平成 29 年度

PB の粉体を CE 含有の親水性高分子ゲルで固定化した吸着剤を合成し、Cs、Sr 同時吸着試験を行い、最適な吸着条件の検討を行った。合成した TAA と N,N'-メチレンビスアクリルアミド (BIS) を架橋剤とし、NIPA と共重合させる際に PB を添加することにより、PB 含有 TAA+BIS-NIPA ゲル吸着剤を作製した。合成したゲル吸着剤は、ゲルの強度が弱かったため、遠心分離やろ過による固液分離が困難で、ゲル-ゾル混合状態のまま吸着試験を行った。ろ過によって固体成分を減少させた溶液の定量分析を行ったところ、Cs、Sr の吸着が見られた。しかしながら、ゾル成分がろ過後の溶液にも混在していたため、Cs、Sr の濃度を正確に定量することが困難であった。以上のことから、ゲル吸着剤を用いた Cs、Sr 同時吸着の最適吸着条件には、ゲルの強度を上昇させる必要があることが明らかとなった。

天然鉱物を利用した Cs、Sr 回収・固定化技術について、天然鉱物を用いた多孔質セラミック吸着材の非放射性 Cs 及び Sr の吸着特性を単独吸着試験及び同時吸着試験により評価した。原料として珪藻土由来の多孔質シリカ粉末 (TPS) 及び天然粘土 (NC) を用い、TPS+NC 焼成体を作製した。純水中に非放射性 Cs 及び Sr を溶解した模擬汚染水を用いて、TPS 粉末及び TPS+NC 焼成体の Cs 及び Sr 吸着特性を評価した。TPS 粉末の Cs 及び Sr の単独吸着試験及び同時吸着試験の結果から、TPS 粉末は Cs 及び Sr に対して高い吸着特性を示すことが明らかとなった。次に TPS+NC 焼成体の Cs 及び Sr の単独吸着試験及び同時吸着試験による吸着率を評価した。Cs の単独吸着試験では、吸着時間 2 時間で 70% 以上の吸着率を示し、吸着時間 5 時間でおおよそ 85% の吸着率であった。一方、Sr については、吸着時間 1 時間以上で 95% 以上の高い吸着率を示した。また、TPS+NC 焼成体の Cs 及び Sr の同時吸着試験では、吸着時間が 5 時間ではそれぞれ 98.5% 及び 98.1% であり、高い吸着率を示した。焼成温度 700°C については、Cs 及び Sr のどちらについても吸着時間 30 分で 98% 以上の高い吸着率を示した。以上の結果から、天然鉱物を利用した Cs、Sr 回収・固定化技術について、珪藻土由来の多孔質シリカ粉末を原料として用いた高性能多孔質セラミック吸着材の合成に見通しが得られた。

## ②ホウ酸塩ガラスによる Cs、Sr 等廃棄物のガラス固化試験（再委託先：芝浦工業大学）

平成 26 年度

ホウ酸塩ガラスに Zn 等の金属イオンを添加したガラス試料を作製し、X 線回折や SEM-EDX 等により金属イオン添加に伴うホウ酸塩ガラスの性能・性状について調査した。その結果、ZnO の添加がホウ酸塩ガラスの Na 保持性能の向上に極めて効果的であることが示された。また、本研究において B-Na-Zn ガラスは、B:Na:Zn=1:0.5:0.6 (mol 比) が最も優れた Na 保持性能を保有していることが示された。

平成 27 年度

ホウ酸塩ガラスに添加する酸化物について調査し、Cs を吸着した無機吸着材のガラス固化について検討を加えた。本研究では、 $\text{Bi}_2\text{O}_3$ 、 $\text{MnO}_2$ 、 $\text{PbO}$  を添加したホウ酸塩ガラスを作製し、それぞれの諸物性について評価した。これらの試験結果からホウ酸塩ガラスの耐性向上には、網目形成酸化物の添加が効果的であり、環境対応性等の観点から最適な酸化物は ZnO であることが示された。ZnO を添加したホウ酸塩ガラスを用いて Cs (I) を飽和吸着した X 型ゼオライト 13x (Cs-13x) のガラス固化試験を行った。ガラス固化試料の結晶構造解析結果から、非晶質特有のハローパターンを示したことからアモルファス化が確認された。また、ガラス固化体作製における Cs-13x の Cs は 60% 保持できると推定された。これらのことから Cs-13x のガラス固化体は、ガラス構造中に Cs が固定化されており、Cs はポルサイト ( $\text{Cs}(\text{AlSi}_2\text{O}_6)$ ) として固定化されていると考えられた。

平成 28 年度

熔融温度がガラス固化体形成に及ぼす影響について検討した。Cs-13x とホウ酸塩ガラスの重量比が 1:1 で作製したガラス固化試料は、900°C 以上でポルサイトのみの結晶ピー

クが確認され、1200℃ではポルサイトの結晶ピークが小さくなった。これらの試験結果からガラス固化試料ではアモルファス構造を呈さずにポルサイトを形成し、比較的低温でポルサイトが形成することが示された。また、Cs-13x の熱安定性の検討を行った結果、ガラス固化体にする事で900℃近傍におけるCsの揮発の抑制が確認された。一方、1000℃近傍でホウ酸塩ガラスのB等に由来する重量減少が確認された。さらに、ガラス固化体試料に用いるガラス相及びゼオライトに吸着させた核種によるガラス固化体試料中のゼオライトの溶解挙動について検討した。Sr(II)を飽和吸着させたX型ゼオライト13x(Sr-13x)を用いて作製したガラス固化体試料は、Cs-13xを用いたガラス固化試料と比較すると、溶解が顕著であることが確認された。

## 平成 29 年度

汚染水に含まれることが想定される元素を吸着したゼオライトのホウ酸塩ガラスによる固化について検討を行った。Sr(II)を飽和吸着したA型ゼオライトA-51J(A-Sr)のガラス固化試料を調査した結果、40wt%までの添加でガラス化することが確認された。また、A-Sr\_80wt%におけるSrの固定化率は96%以上であり、Srは揮発していないことが示された。さらに、A-Srのガラス固化試料は優れた化学的耐久性を有し、Srを固化体試料中に保持できることが示された。また、汚染水に含まれるMg及びCaを飽和吸着させたA-51J(A-Mixture)のガラス固化試験では、ホウ酸塩ガラスに対して30wt%までA-Mixtureを添加してもガラス形成が可能であることが明らかとなった。さらに、A-Mixture\_30wt%の恒温浸漬試験の結果から、規格化浸出量は $Na > B > Al > Ca > Si > Mg > Zn$ の順に高い値を示した。その中でもB、Al、Ca、Si、Mg、Znは、基準値2.0を下回ることが確認された。

## (2) 平成 30 年度の実施内容及び成果

### ①Cs、Sr 回収試験

平成 29 年度に引き続き、プルシアンブルー (PB) をクラウンエーテル (CE) 含有の親水性高分子ゲルで固定化した吸着剤を合成し、Cs、Sr 同時吸着試験を行い、最適な吸着条件を明らかにした。

平成 29 年度と同様、重合性官能基を 4 つ有する CE 誘導体である DB18C6TAA (TAA) の再合成を行った。合成した TAA と *N,N'*-メチレンビスアクリルアミド (BIS) を架橋剤とし、*N*-イソプロピルアクリルアミド (NIPA) と共重合させる際に PB を添加することにより、平成 29 年度と同様の方法で PB 含有 TAA+BIS-NIPA ゲル吸着剤の合成を試みた (図 3.2.5(2)①-1)。TAA 171 mg (0.31 mM、4M%)、BIS 48 mg (0.31 mM、4M%)、NIPA 800 mg (7.07 mM、91M%)、PB 67 mg (0.08 mM、1M%) をジメチルホルムアミド (DMF) 1.4 mL に溶解し、アゾビスイソブチロニトリル (AIBN) 13 mg (0.08 mM) を添加後、75℃で加熱した。24 時間後、青色ゲルが得られた。遠心分離を行うと、ゲルが沈降し固形物が得られた。得られたゲルは、エタノールと蒸留水によって洗浄し、蒸留水中に保管した。

平成 29 年度の PB 含有 TAA+BIS-NIPA ゲル吸着剤の合成では、遠心分離を行うと、ゲルが沈降し固形物が得られたが、上澄みにゾルが多く残り、ゲルを固液分離することが困難であった。また、ゲルは水中に保存しておくくと徐々に分散し、一部がゾル状態となり、強

固なゲルを得ることができなかつた。合成したゲル吸着剤は、ゲルの強度が弱かつたため、遠心分離やろ過による固液分離が困難で、ゲル-ゾルの分離を行えず、ゲル-ゾル混合状態のまま吸着試験を行った。一方、今年度のゲル吸着剤の合成では、強固なゲルを得ることができた。平成 29 年度の合成との違いは、今年度は新たに購入した AIBN を用いた点である。平成 29 年度の合成で用いた AIBN は、購入後、長期間保管していたため、AIBN が分解し、ラジカル開始剤としての性能が低下していたために、重合反応の進行が不十分となり、強固なゲルが得られなかつたと考えられる。

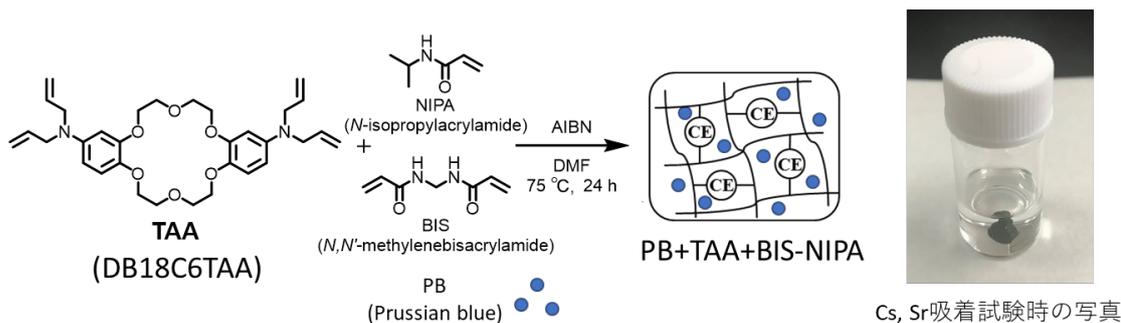


図 3. 2. 5(2)①-1 CE を架橋剤とした親水性高分子ゲルによる PB の固定化

合成した PB 含有 TAA+BIS-NIPA ゲル吸着剤 33 mg (湿潤状態) を用いて、Sr と Cs をそれぞれ 0.5 mM 含む 5 M 硝酸水溶液 1.5 mL からの Sr、Cs 同時吸着試験を行った。また、吸着に対する硝酸の影響を調べるために、ゲル吸着剤 22 mg を用いて、Sr と Cs をそれぞれ 0.5 mM 含む水溶液 1.5 mL からの吸着試験も同時に行った。5°C で 48 時間振とう後、上澄みの Sr と Cs 濃度を ICP-MS を用いて測定し、吸着率を算出した。Sr、Cs 0.5 mM 含有 5 M 硝酸水溶液を用いた試験では、Sr と Cs の吸着率は、それぞれ約 5% であり、Sr と Cs の同時吸着が確認された。一方、Sr、Cs 0.5 mM 含有水溶液を用いた試験では、Sr と Cs の吸着は見られなかつた。この結果より、PB 含有 TAA+BIS-NIPA ゲル吸着剤を用いて Cs、Sr を同時吸着させるには、溶液の硝酸濃度がある程度濃い条件 (5 M) が必要であることが分かつた。平成 28 年度に行った、TAA+BIS-NIPA ゲルによる Sr 吸着試験においても、3~5 M 硝酸下において高い Sr 抽出能を示したため、Cs、Sr 同時吸着の最適な吸着条件は、3~5 M 硝酸下であることが明らかとなつた。しかしながら、5 M 硝酸下での Sr と Cs の吸着率は、それぞれ約 5% と低い値を示した。PB は通常、Cs に対して高い吸着性能を有しているが、本吸着試験では、Cs 吸着性能の低下が見られた。これは、PB がある程度の大きさの固形状のゲルに固定化されているために、ゲル内部の PB が、水溶液と十分に接触することができないことで引き起こされた現象であると考えられる。CE の Sr に対する低い吸着率も、同様の原因によるものであると考えられる。この問題を解決するためには、ゲルを小さな粒状に成形して水溶液との接触面積を増やし、カラム充填剤として使用することで Cs と Sr に対する吸着性能が向上すると考えられる。

天然鉱物を利用した Cs、Sr 回収・固定化技術について、天然鉱物原料を種々の加熱条件で仮焼し、得られた多孔質仮焼体の比表面積、気孔率や微構造を評価し、Cs、Sr の吸着特性について検討した。

原料として、ポーラスシリカ (A-WPS)、ゼオライト (NKZ) 及び珪藻土由来の多孔質シリカ (TPS) 及び天然粘土 (NC) を用いた。A-WPS、NKZ または TPS 粉末に NC を 10 wt% 加えたものについて一軸加圧成形により成形体を作製した。得られた成形体を高温大気炉により 500°C または 700°C で仮焼成し、A-WPS+NC 焼成体、NKZ+NC 焼成体及び TPS+NC 焼成体を作製した。表 3.2.5(2)①-1 に得られた焼成体のかさ密度、開気孔率及び比表面積を示す。また、図 3.2.5(2)①-2 に得られた焼成体の表面の走査型電子顕微鏡 (SEM) 写真を示す。

得られた焼成体について、純水中に非放射性 Cs 及び Sr を溶解した模擬汚染水を用いて、固液比 20、pH=7.0 の条件の下で 5 時間、Cs 及び Sr の同時吸着試験を行った。一時間ごとにサンプリングを行い、径が 0.22  $\mu\text{m}$  のフィルター付シリンジを用いて上澄み液を濾過した上で採取し、200ppb 以下となるように超純水により希釈した後、誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS) により Cs 及び Sr の濃度を定量評価した。図 3.2.5(2)①-3 に各焼成体の Cs 及び Sr 吸着率と吸着時間との関係を示す。純水中における Sr 及び Cs 吸着試験の結果、いずれの試料においても、Sr に対して 98% を超える非常に高い吸着率を示した。一方、Cs について、A-WPS+NC 焼成体と NKZ+NC 焼成体については焼成温度による吸着量に大きな差は見られず、A-WPS+NC 焼成体については Cs 吸着率は 80% 以上、NKZ+NC 焼成体については、Cs 吸着率は 85% 以上であったが、TPS+NC 焼成体については 500°C 焼成体では 85% 以上の高い Cs 吸着率を示したが、700°C 焼成体では 70% 程度の Cs 吸着率となった。

次に、Cs 及び Sr 吸着した焼成体を高温で再焼成し、細孔を閉塞することにより吸着した Cs 及び Sr を焼成体内部に閉じ込め、固定化する方法を検討した。まず、固定化に最適な再焼成の条件を検討するために、Cs 及び Sr 吸着した焼成体を 1100°C と 1200°C で再焼成した。再焼成した試料の外観を図 3.2.5(2)①-4 に示す。再焼成体の SEM 観察の結果から、1100°C の再焼成で焼成体のマクロ孔はほぼ閉塞していることが分かった。

焼成体に吸着した Cs 及び Sr が固定化されたかどうかを評価するために、1000ppm の Cs 及び Sr を含んだ模擬汚染水で 24 時間吸着を行った焼成体を再焼成した後、再焼成体を高温下でアルカリ溶融することで内部に固定化された Cs 及び Sr を ICP-MS により定量評価した。その結果、いずれの試料についても模擬汚染水で吸着した Cs 及び Sr の量と再焼成体中に含まれていた Cs 及び Sr の量は近い値を示した。以上の結果から、吸着した Cs 及び Sr を再焼成により固定化できていると判断した。また、1100°C で再焼成し固定化した試料と処理を施さなかった試料 (吸着後、再焼成していない試料) について、それぞれ純水中に浸漬し、溶出試験を行った。その結果、未処理の試料からは Cs 及び Sr の溶出が見られたのに対し、再焼成をした試料では溶出はほとんど見られなかったことから、天然鉱物を用いたセラミック多孔体について、再焼成により吸着した Cs 及び Sr の固定化が可能であることを明らかにした。

以上の結果から、天然鉱物を利用した Cs、Sr 回収・固定化技術について、Cs 及び Sr の回収及び固定化が可能な、天然鉱物を用いた高機能セラミック多孔体の合成の見通しが得られた。

表 3. 2. 5(2)①-1 A-WPS+NC 焼成体、NKZ+NC 焼成体、TPS+NC 焼成体のかさ密度、開気孔率及び比表面積

試料	かさ密度 (g/cm <sup>3</sup> )		開気孔率 (%)		比表面積 (m <sup>2</sup> /g)	
	500 °C	700 °C	500 °C	700 °C	500 °C	700 °C
A-WPS+NC	1.13	1.11	51.8	54.4	113	106
NKZ+NC	1.42	1.35	34.9	42.5	28	20
TPS+NC	1.06	1.01	49.6	54.3	40	34

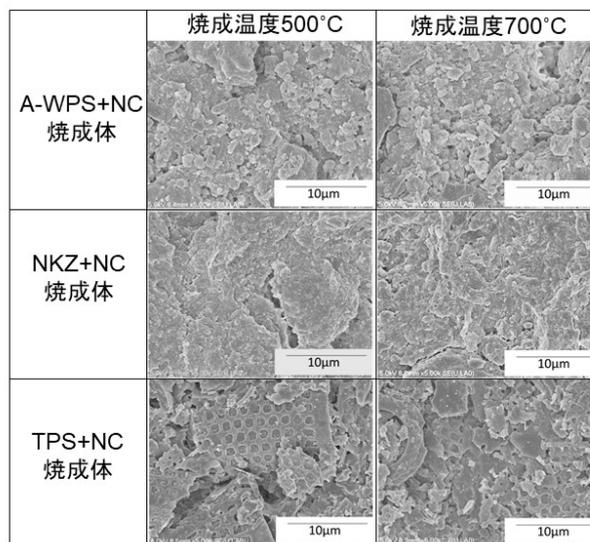


図 3. 2. 5(2)①-2 得られた焼成体の表面の走査型電子顕微鏡 (SEM) 写真

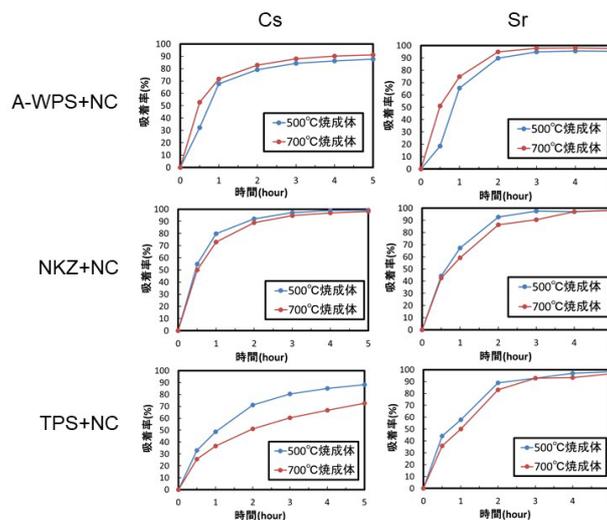


図 3. 2. 5(2)①-3 各焼成体の Cs 及び Sr 吸着率と吸着時間との関係



図 3.2.5(2)①-4 再焼成した試料の外観

## ②ホウ酸塩ガラスによる Cs、Sr 等廃棄物のガラス固化試験（再委託先：芝浦工業大学）

### 1) ガラス固化体試料からの Cs、Sr 等の動的浸出挙動及び浸出速度の検討

これまでの研究成果より Cs を吸着させたゼオライトをホウ酸塩ガラスであるホウ酸塩ガラス ( $\text{Na}_2\text{O}-\text{ZnO}-\text{B}_2\text{O}_3$ ) で固定化が可能であることが示された。これらのことから、本研究においては X 型ゼオライト (13x) に加え、福島第一原子力発電所の SURRY で用いられている CHA 型ゼオライト (IE-96) 及び多核種除去設備等で用いられている A 型ゼオライト (A-51J) のガラス固化体試料を作製し、浸出性の評価を行った。浸出性の評価としてはカラムを用いた動的浸出試験を行い、流水環境下での浸出挙動について検討した。本実験ではカラムを用いて動的浸出試験を行った。図 3.2.5(2)②-1 に動的浸出試験の模式図、表 3.2.5(2)②-1 に動的浸出試験条件を示す。動的浸出試験には、前述のガラス固化体試料を粉砕後、分級を行い粒径  $75\sim 150\ \mu\text{m}$  に調整したものを用いた。粒径  $75\sim 150\ \mu\text{m}$  に調整したガラス固化体試料を  $90^\circ\text{C}$  に保持したガラスカラムに充填し、蒸留水を下端から通液した。流出液は上端から  $10\text{cm}^3$  ごとに分画採取し、採取した浸出溶液の B、Zn、Al、Si 及び Sr を ICP 発光分光法、Na 及び Cs は原子吸光法により定量分析を行い、ガラス固化体試料からの各元素の浸出挙動の検討を行った。図 3.2.5(2)②-2 に Cs-13x<sub>50wt%</sub> の動的浸出試験結果を示す。また、図 3.2.5(2)②-2 に示す点線部分 (8 時間付近) までは浸出溶液中に白色沈殿が確認された。この白色沈殿は浸出溶液の分取した 1 本目で最も多く確認され、次第に減少していることが観察された。図 3.2.5(2)②-2 より、可溶性元素である B、Na 及び Cs が類似した浸出挙動であり、初期に浸出のピークが確認された。さらに、Al 及び Si も類似の浸出挙動を示しており、沈殿物の消滅した 8 時間付近で浸出量の増大を示した。Zn においては動的浸出試験を経ても検出下限以下の浸出量であった。浸出溶液は約  $\text{pH}=9$  のアルカリ性溶液であり、浸出時間の経過に伴わずかに pH が低下していることが確認された。

次に、図 3.2.5(2)②-3 に得られた結果から算出した規格化浸出量を示す。また、図 3.2.5(2)②-4 に動的浸出試験で得られた規格化浸出量から算出した B、Al 及び Si の浸出速度を示す。なお、y 軸に関しては Al 及び Si は左軸、B は右軸の値を示している。図 3.2.5(2)②-4 より、Al 及び Si においては沈殿が消滅すると同時に浸出速度に変化が確認された。このことからガラス固化体試料表面の水和層が溶解することで浸出が促進されたことが明らかとなった。加えて、Si においては浸出速度の増大後、浸出時間経過によりほぼ一定の値を示しているのに対し、Al においては浸出速度の低下が確認された。

図 3.2.5(2)②-5 に Cs-IE96\_50wt% のガラス固化体試料における動的浸出試験結果を示す。図 3.2.5(2)②-5 より、いずれの元素も初期浸出以降は 5ppm 以下の浸出溶液濃度であった。図 3.2.5(2)②-5 より、Cs-IE96 のガラス固化体試料は Cs-13x のガラス固化体試料の浸出挙動と異なることが明らかとなった。浸出溶液は pH=7 付近の中性を示しており、このことから Si-O-Si 結合が切断されずにガラス固化体試料中に維持されていると推測される。このことから、Cs-IE96 においては Na の浸出が抑制されたことで浸出溶液の pH が上昇せず Si-O-Si 結合が維持され、それに伴い他の元素の浸出も小さくなったと考えられる。図 3.2.5(2)②-6 に動的浸出試験により得られた Cs-IE96 のガラス固化体試料の規格化浸出量を示す。図 3.2.5(2)②-6 より、浸出序列は B>Na>Si>Cs>Zn>Al であることが明らかとなった。また、Na<sub>2</sub>O-ZnO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ガラスの浸出挙動にも差異が確認され、Cs-13x のガラス固化体試料では B が Na を上回った浸出量であったのに対し、Cs-IE96 においては B と Na の浸出量がほぼ同等であった。このことから表面に形成された B の水和層が残存していると推察される。また、化学的安定性に富む Pollucite の性質を積極的に有効利用するため、できるだけガラス相への溶出を抑制するために Cs-IE96 の充填率を 80wt% まで高めたガラス固化体試料を作製し動的浸出挙動を検討した。図 3.2.5(2)②-7 に Cs-IE96\_80wt% の規格化浸出量を示す。図 3.2.5(2)②-7 より、Cs-IE96\_80wt% の構成元素の規格化浸出量はいずれも基準値よりも低い値を示した<sup>1)</sup>。また規格化浸出量は Si>Na>Al>B の順に高い値を示し、これらの元素においては時間経過に伴い増加することが確認された。しかし、Zn に関しては検出限界以下の値を示した。加えて Na は 12 時間から固化体からの溶出が促進されることが確認された。図 3.2.5(2)②-8 に動的浸出試験で得られた規格化浸出量から算出した B、Na、Zn、Si、Al 及び Cs の浸出速度を示す。図 3.2.5(2)②-8 より、いずれの元素においても浸出速度は緩やかに減少する傾向が確認されなかった。また、Cs-IE96 の充填率を 80wt% まで高めることでガラス固化体中に Pollucite の存在比が上がるため、浸出速度は Cs-IE96\_50wt% と比較して顕著に遅くなることが明らかとなった。図 3.2.5(2)②-9 に動的浸出試験前後の Cs-IE96\_80wt% の XRD 分析結果を示す。図 3.2.5(2)②-9 より試験前後の Cs-IE96\_80wt% において結晶ピークが検出され、いずれも Pollucite であることが確認された。試験前後において結晶ピークに変化が見られなかったことから結晶構造を維持し、安定な状態であると考えられる。

次いで、図 3.2.5(2)②-10 に Sr-A51J\_80wt% の動的浸出試験結果を示す。図 3.2.5(2)②-10 より、Sr-A51J\_80wt% の構成元素の規格化浸出量はいずれも基準値よりも低い値を示した。また、規格化浸出量は B>Sr>Si>Na>Al の順に高い値を示し、いずれの元素においても時間経過に伴い増加することが確認された。さらに B 及び Sr は、規格化浸出量の傾

きが時間経過に伴い緩やかになっていることが確認された。これらのことから、Sr-A51J\_80wt%は優れた化学的耐久性を有し、Sr を固化体試料中に保持できることが示唆された。図 3.2.5(2)②-11 に Sr-A51J\_80wt%の規格化浸出速度を示す。図 3.2.5(2)②-11 より、B、Sr、Na においては初期に浸出速度のピークを迎え、その後低下することが確認された。これは初期の水和反応あるいは Sr-A51J\_80wt%の表面からの溶出によるものだと考えられる。また、Si においては時間経過と共にほぼ一定の値を示しているのに対し、Al においては浸出速度が微量ながらも増加することが確認された。これは Si 等の保護膜によって浸出が抑制されていたが、保護膜の溶解により浸出が始まったものだと推察される。しかし、いずれの元素においても浸出速度は遅いため、化学的耐久性に優れていると考えられる。図 3.2.5(2)②-12 に Sr-A51J\_80wt%の XRD 分析結果を示す。図 3.2.5(2)②-12 より、動的浸出試験前後の Sr-A51J\_80wt%ではいずれも結晶ピークが検出され、Feldspar-s ( $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ ) 及び Gahnite ( $\text{Al}_2\text{O}_4\text{Zn}$ ) であることが確認された。試験前後において結晶ピークに変化が見られなかったことから結晶構造を維持し、安定な状態であると考えられる。

## 2) ホウ酸塩ガラスの作製条件、ゼオライト充填量等の最適化検討

図 3.2.5(2)②-13 に 900、1000、1100°C で溶融した  $\text{Na}_2\text{O-ZnO-B}_2\text{O}_3$  ガラスのカレットの XRD 分析結果、図 3.2.5(2)②-14 に 900°C で溶融した  $\text{Na}_2\text{O-ZnO-B}_2\text{O}_3$  ガラスの断面写真を示す。図 3.2.5(2)②-13 より、900°C で溶融した際には  $\text{Na}_2\text{O-ZnO-B}_2\text{O}_3$  ガラスに ZnO の結晶ピークが確認され、1000、1100°C で作製した場合はハローパターンであった。このことから、 $\text{Na}_2\text{O-ZnO-B}_2\text{O}_3$  ガラスは 1000~1100°C で溶融する必要があることが示された。なお、高レベル放射性廃棄物のガラス固化体(硼珪酸ガラス)の溶融温度は、1100~1250°C であるため、 $\text{Na}_2\text{O-ZnO-B}_2\text{O}_3$  ガラスは硼珪酸ガラスよりも低い温度で溶融できることが示された。また、図 3.2.5(2)②-14 では  $\text{Na}_2\text{O-ZnO-B}_2\text{O}_3$  ガラスの底部に ZnO であると考えられる白色沈殿が確認された。これらの結果から、溶融温度が低くなると ZnO が析出することを示しており、ZnO の析出は  $\text{Na}_2\text{O-ZnO-B}_2\text{O}_3$  ガラス中に含まれる ZnO の量が減ることから化学的耐久性の低下が懸念される。そのため、 $\text{Na}_2\text{O-ZnO-B}_2\text{O}_3$  ガラスは 1000°C 以上で溶融し、ZnO をガラス相に取り込むことが重要であると考えられる。これまでの研究成果を基に  $\text{Na}_2\text{O-ZnO-B}_2\text{O}_3$  ガラスの最適な作製条件は、 $\text{Na}_2\text{O-ZnO-B}_2\text{O}_3$  ガラスの組成比は物質質量比で B : Na : Zn = 1 : 0.5 : 0.5、大気圧中で昇温速度  $5^\circ\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 、溶融温度 1000°C が最適であると考えられた。

次いでゼオライト充填量の最適化の検討を行った。本試験では、最適化条件で作製した  $\text{Na}_2\text{O-ZnO-B}_2\text{O}_3$  ガラスを用い、Cs-IE96 及び Sr-A51J の充填率を変化させたガラス固化体を作製し、各々の XRD 分析を行った。図 3.2.5(2)②-15 に Cs-IE96\_10~80wt%の XRD 分析結果を示す。図 3.2.5(2)②-15 より、IE96-Cs\_10~40wt%では非晶質特有のブロードな波形が確認されたが、Cs-IE96\_50~80wt%では Pollucite の結晶ピークが確認された。図 3.2.5(2)②-16 に Sr-A51J\_10~80wt%の XRD 分析結果を示す。図 3.2.5(2)②-16 より、Sr-A51J\_10~40wt%では非晶質特有のブロードな波形が確認された。しかし、Sr-A51J\_50~80wt%では結晶ピークが検出された。検出された結晶ピークの同定を行ったところ、

Sr-A51J\_50~70wt%ではGahnite ( $\text{Al}_2\text{O}_3\text{Zn}$ )が確認され、Sr-A51J\_80wt%ではGahnite 及び Feldspar-s ( $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ )が確認された。また、 $\text{ZnAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ が安定な  $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$  と  $\text{SiO}_2$  に分解することから、Sr-A51J が完全に溶解せず残存した Zn 及び Al が安定な  $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$  を形成し、 $\text{SiO}_2$  はガラスの網目構造を形成することで Sr-A51J\_50~80wt%において Gahnite が確認されたと考えられる。加えて、 $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  よりも  $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$  の方が安定で結晶化に必要なエネルギーが小さいためだと考えられる。この結果より、固化体試料は Sr-A51J を 40wt%までの添加でガラス化することが確認された。

これらの試験結果より Cs-IE96 においては、ガラス相を形成する充填率は 40wt%であったが、これまでの研究成果より耐水性に優れるのは Pollucite の形成が重要であることが明らかとなった。このことを鑑みるとガラス固化体としては 40wt%であるが、安定的な固化体としては 80wt%程度まで充填率を上げて積極的に Pollucite を形成させた方が良く考えられる。また、Sr-A51J においてもガラス相を形成する充填率は 40wt%であった。Sr-A51J においても安定な結晶骨格の形成が重要であり、ストロンチウム長石が形成される 80wt%程度が適切であると考えられる。

#### 参考文献

- 1) G.H.Beall, Anhedral crystallization in phase separated glasses, Glass Technology, Vol. 45, pp. 54-58(2004)

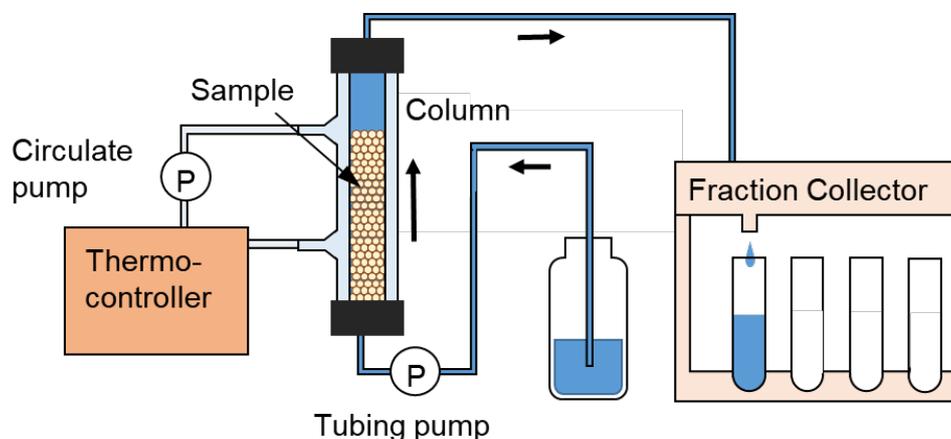


図 3. 2. 5(2)②-1 カラム浸出試験の模式図

表 3. 2. 5(2)②-1 カラム浸出試験条件

Column [mm]	$\phi 10 \times h 100$
Sample capacity [g]	3.0
Leaching solution	Pure Water
Flow rate [ $\text{cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ ]	0.5
Temperature [ $^{\circ}\text{C}$ ]	90

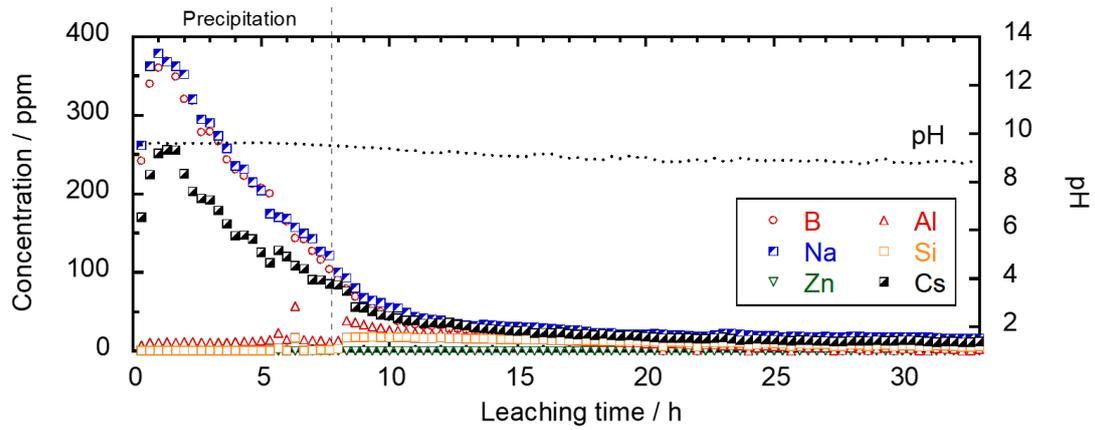
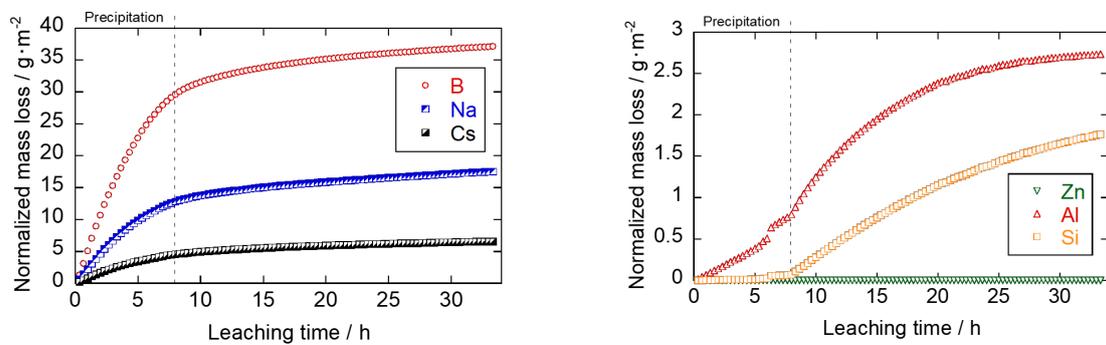


図 3.2.5(2)②-2 Cs-13x\_50wt%の動的浸出試験結果



(a) B、Na 及び Cs

(b) Zn、Al 及び Si

図 3.2.5(2)②-3 Cs-13x\_50wt%の動的浸出試験により得られた規格化浸出量

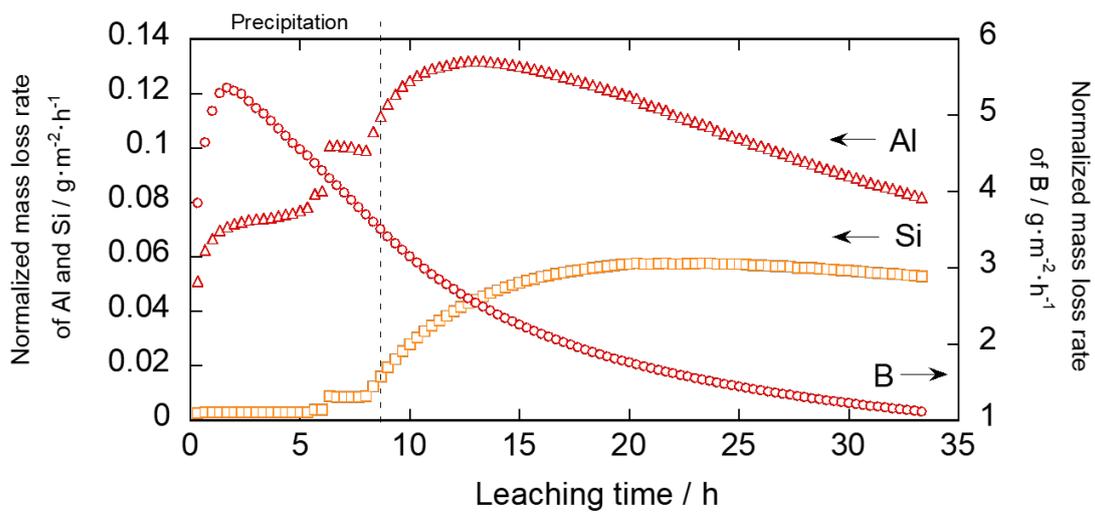


図 3.2.5(2)②-4 Cs-IE96\_50wt%のガラス固化体試料における Al 及び Si の規格化浸出速度

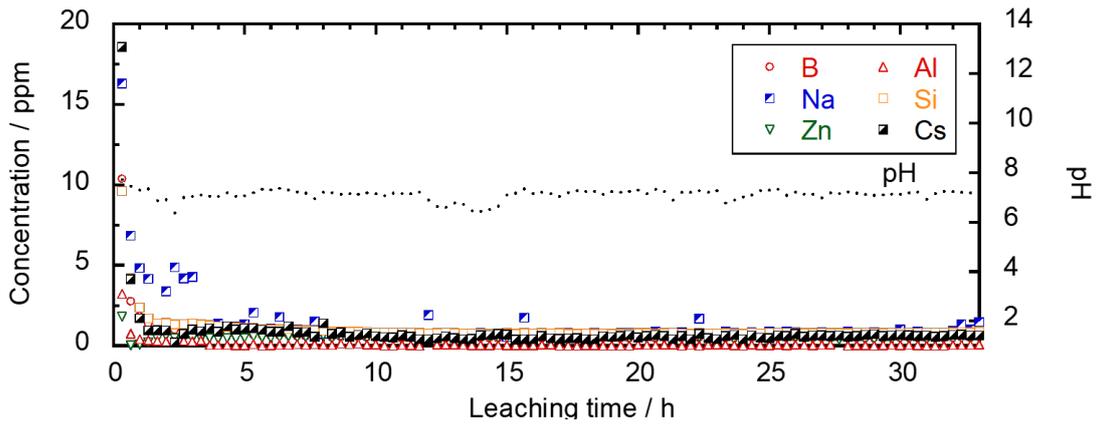


図 3.2.5(2)②-5 Cs-IE96\_50wt%のガラス固化体試料における動的浸出試験結果

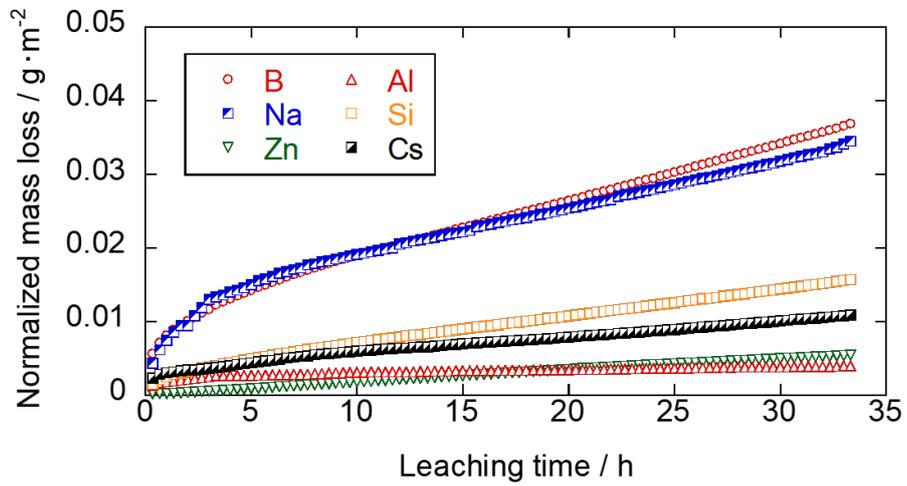


図 3.2.5(2)②-6 動的浸出試験により得られたCs-IE96のガラス固化体試料の規格化浸出量

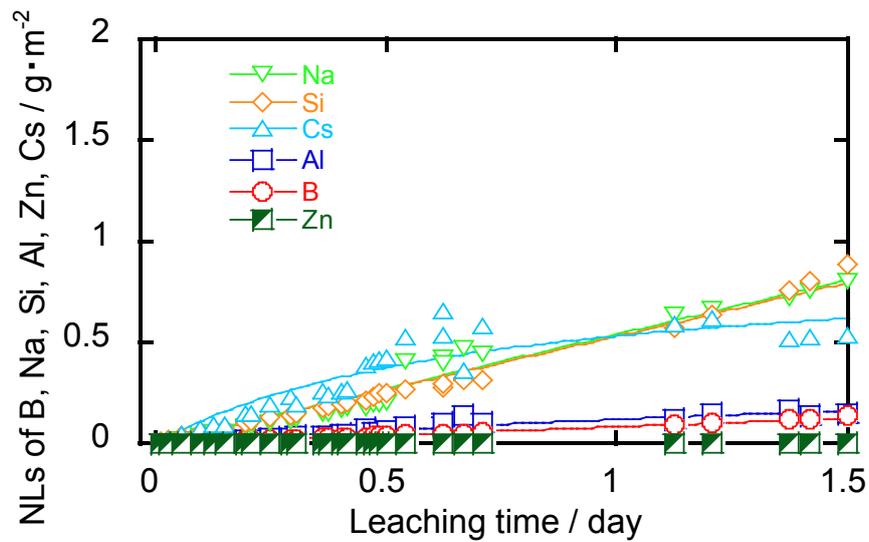


図 3.2.5(2)②-7 Cs-IE96\_80wt%の動的浸出試験結果

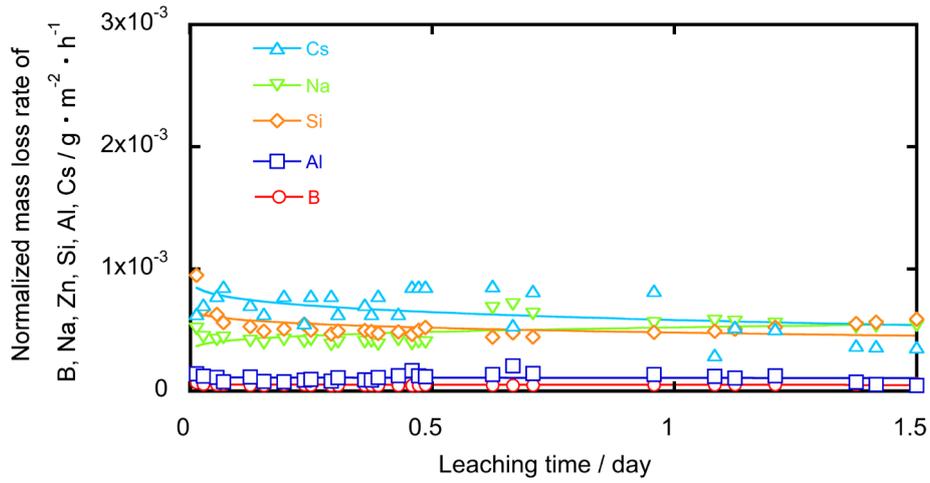


図 3. 2. 5 (2) ②-8 Cs-IE96\_80wt%のガラス固化体試料における各元素の規格化浸出速度

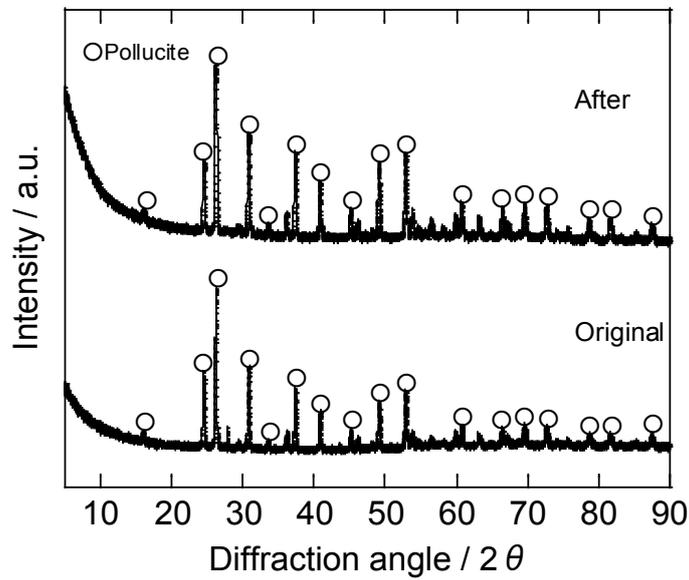


図 3. 2. 5 (2) ②-9 動的浸出試験前後の Cs-IE96\_80wt%の XRD 分析結果

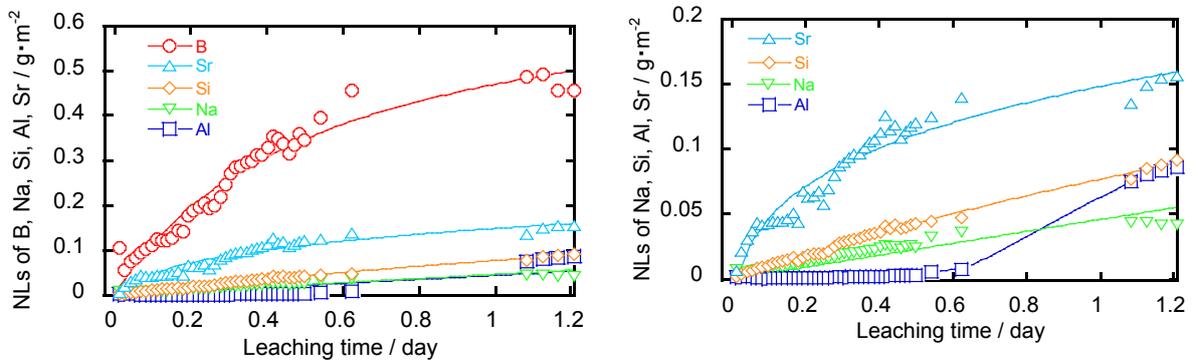


図 3. 2. 5 (2) ②-10 Sr-A51J\_80wt%の動的浸出試験結果

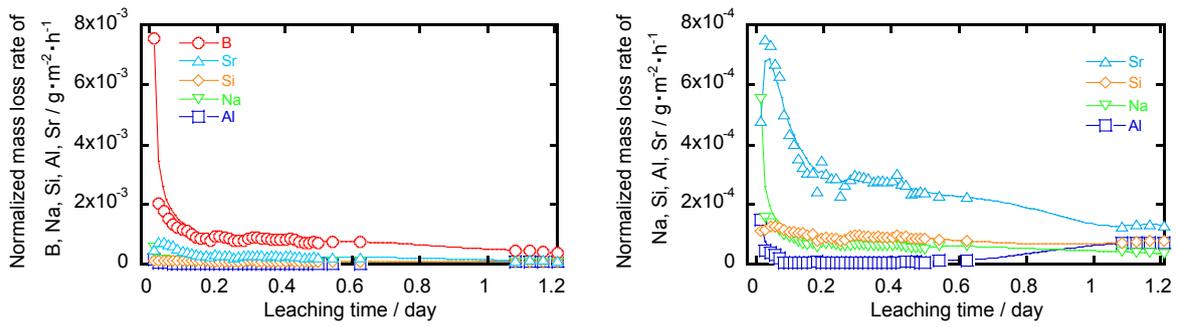


図 3. 2. 5 (2) ②-11 Sr-A51J\_80wt%の規格化浸出速度

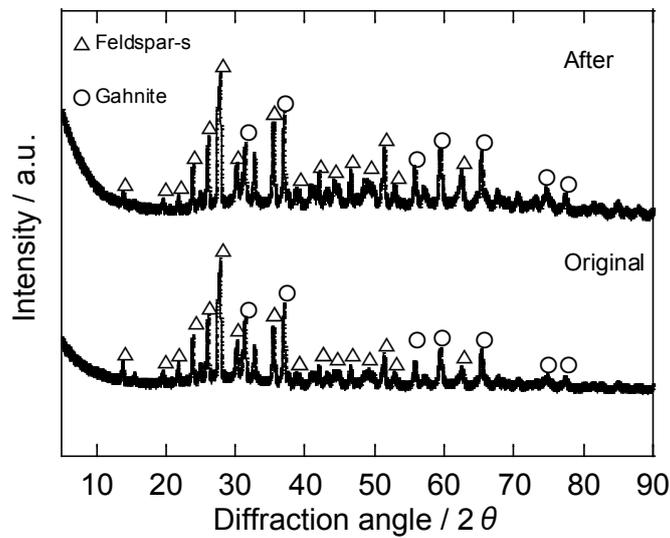


図 3. 2. 5 (2) ②-12 Sr-A51J\_80wt%の XRD 分析結果

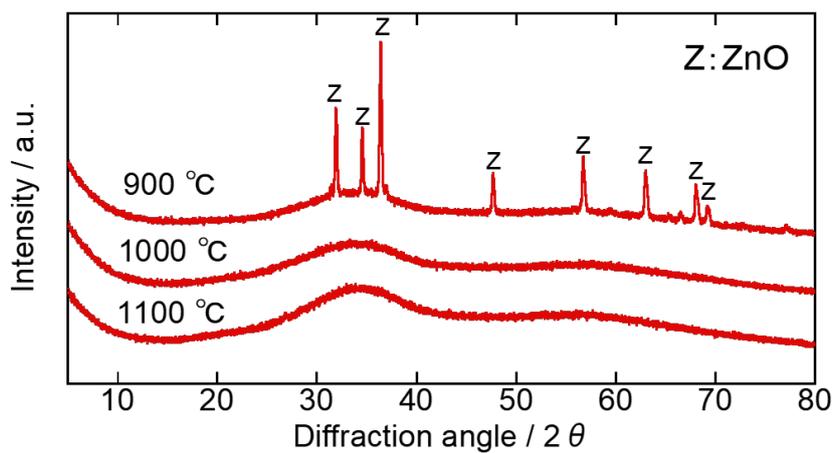


図 3. 2. 5 (2) ②-13 各温度で溶融した  $\text{Na}_2\text{O-ZnO-B}_2\text{O}_3$  ガラスの XRD 分析結果



図 3. 2. 5(2)②-14 900°Cで熔融した  $\text{Na}_2\text{O-ZnO-B}_2\text{O}_3$  ガラスの断面写真

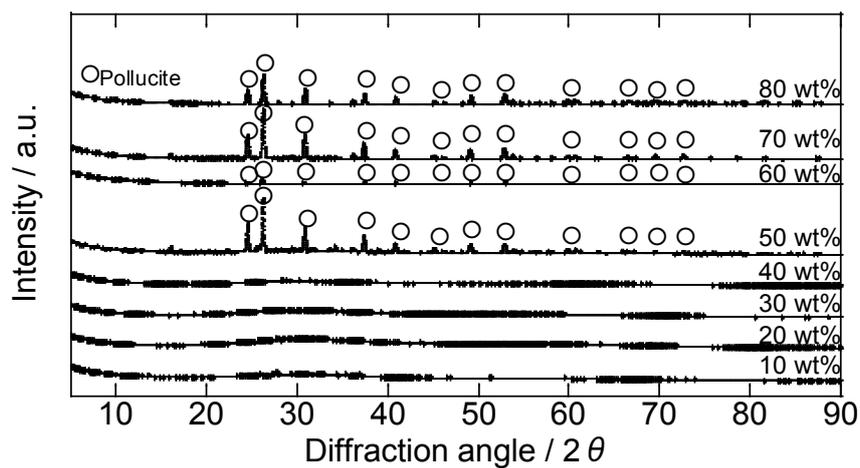


図 3. 2. 5(2)②-15 Cs-IE96\_10~80wt%の XRD 分析結果

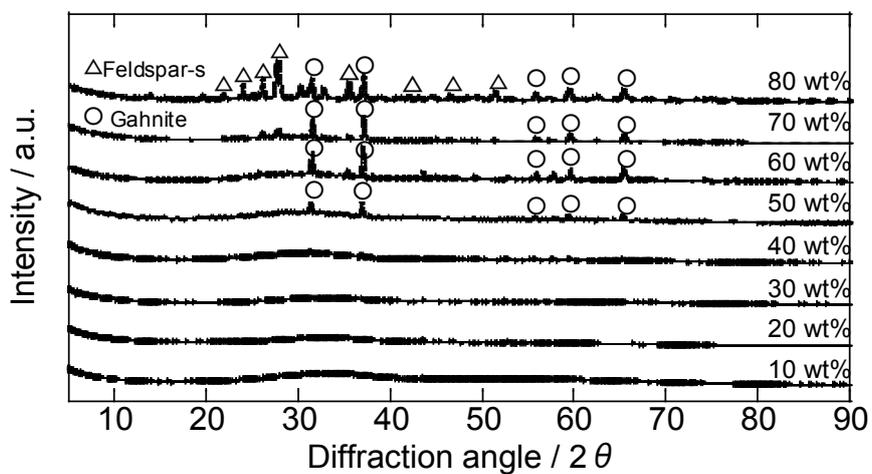


図 3. 2. 5(2)②-16 Sr-A51J\_10~80wt%の XRD 分析結果

### 3.2.6 シビアアクシデント後の遠隔計測技術

#### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

##### ①パルスエコー法による超音波計測技術開発

平成 26 年度

デブリ形状把握と漏洩箇所特定のための技術開発を行った。具体的にはデブリ形状把握と漏洩箇所特定のための超音波基礎技術開発を行った。1 年目は、垂直円管実験装置を用いて、超音波流速分布計測法（UVP 法）による速度分布計測法の最適化を行った。また、フェイズドアレイ流速分布計測法に関する信号処理について信号処理系を確認した。

平成 27 年度

デブリ形状把握と漏洩箇所特定のための計測システムの基礎構築・確認を行った。具体的には超音波計測システムの基礎構築と既存のセンサを利用したシステム確認を行った。

平成 28 年度

平成 27 年度に構築したデブリ形状把握と漏洩箇所特定のための計測システムの統合構築を行った。具体的にはリニアアレイセンサーを用いて、平成 27 年度に構築した開口合成システムの検証と、デブリ形状把握と漏洩箇所特定のための計測システムの統合構築を行った。

平成 29 年度

平成 28 年度に構築したデブリ形状把握と漏洩箇所特定のための統合計測システムを改良した。具体的には従来のリニアアレイセンサーによる計測システムを改良して、扇型セクターアレイセンサーを 2 個利用した計測システムのソフトウェア開発を行い、漏洩箇所特定とデブリ形状把握のための計測システムの改良を行った。

##### ②多関節ロボットアームによるセンサポジショニング技術開発（再委託先：東京医科歯科大学）

平成 26 年度

多関節ロボットアーム試作機の開発と超音波センサ位置決め精度検証試験を行った。具体的には多関節ロボットアーム試作機の開発、センサポジショニング実験、さらに、学内モックアップ施設において漏えい個所の検査を模擬した動作実験を行った。

平成 27 年度

多関節ロボットアーム試作機の制御法の改良を行った。具体的には、ワイヤ干渉駆動型多関節アームの制御法を従来のフィードバックのみの制御から改良し、アーム目標位置姿勢及び動作に基づき、動力学演算を行い、フィードフォワードによる張力制御を行う手法を開発し、シミュレーションにより動作を確認した。また実機に提案する制御法を実装するために必要な張力センサを設計開発し実装した。さらに、フィードフォワードによる張

力制御の事前検証として、ワイヤに対して常に一定以上の張力を印加する制御法を実装した。

平成 28 年度

多関節ロボットアーム試作機の制御法を改良し、3次元レーザスキャナにより、手先位置決め精度を定量的に評価し、ハード・ソフトによる改良を行った。具体的には アーム先端位置の精度を向上するため、複数回の繰り返し位置決めを行い、その誤差を最小化するように予め較正值を導入するソフトウェアの改良を行った。また、ハードウェアの改良、3次元レーザスキャナにより手先位置の計測を行った。

平成 29 年度

多関節ロボットアーム試作機の制御法を改良し、操縦者に対して視覚・力覚などのフィードバックが可能な統合的操縦系を構築した。具体的には、ロボットの操作系をマスター・スレーブ方式とし、位置 2 軸と姿勢 3 軸の検出が可能なマスターアームを試作した。

### ③移動ロボットによるセンサ・アーム搬送技術開発

平成 26 年度

センサ・アームを搬送するための遠隔操縦可能な移動ロボット機構を開発した。具体的には、四輪駆動で同側の前後輪は同じ速度で回転し、複雑なステアリング機構は採用せず、左右輪の速度差で旋回を行うスキッドステア方式とする車輪型移動ロボットを開発した。

平成 27 年度

センサ・アームを搬送するための遠隔操縦可能な新多関節アームの設計開発を行った。具体的には、シビアアクシデント工学実験にも用いている、作業移動マニピュレータをさらに改良し、センサ・アームを搬送するための遠隔操縦可能な作業移動型新多関節アームの設計開発を行った。新規に防塵・防水性を備える四輪駆動車両を設計開発し、センサを搬送するアームについては、シビアアクシデント工学実験で用いている軽量 3 自由度アームを基に 1) 2 自由度の手首自由度追加、2) 肘関節の可動範囲拡大、3) 防塵防水性能の付加を行ったワイヤ駆動型軽量 5 自由度アームを新規に設計開発した。さらに長尺化が可能な新たな形態として、水平に展開する 2 自由度多関節アームの新規設計開発を行った。

平成 28 年度

センサ・アームを装備し遠隔操縦可能な新移動体ロボットシステムを統合開発した。具体的には、平成 27 年度に開発したワイヤ駆動型軽量 5 自由度アームを装備した移動ロボットシステムの制御ソフトを開発し、左右の車輪を速度制御することによる移動と、アームの順運動学・逆運動学による手先位置制御を、1 つの PC 上で実行可能で、なおかつ無線により操作可能なソフトウェアの開発を行い、これを用いた統合的な運動制御を実現した。また、より実環境において提案するロボットシステムが運用できるかを検証するため、JAEA 櫛葉遠隔技術開発センターにおいて、実証試験を実施した。

平成 29 年度

平成 28 年度までに構築した統合システムを、より実際的な環境で運用可能なよう改良した。具体的には、JAEA 檜葉遠隔技術開発センターの実験水槽上の設備準備、3 次元レーザスキャナによるセンサ搬送ロボットの位置・姿勢計測手法の確立、センサ搬送用アームの改良、水平多関節型アームの改良を行った。

## (2) 平成 30 年度の実施内容及び成果

### ①パルスエコー法による超音波計測技術開発

平成 29 年度に改良したデブリ形状把握と漏洩箇所特定のための統合計測システムの信頼性向上を図り、計測システムの総合評価を行った。具体的には、平成 29 年度まで実施してきた扇型セクターアレイセンサーを 2 個利用した計測システムに関して、速度ベクトルのマップ作成による漏洩箇所特定手法に加えて、開口合成法を適用させることで、漏洩箇所特定だけでなくデブリの形状把握を目指した計測システムへと改良しその総合評価を行った。本実験で超音波センサー(TDX)として用いた扇型セクターアレイセンサーによるベクトル計測では、図 3.2.6(2)①-1 のように左右の TDX から放射状に超音波パルスを発生させる。図中のパルスの進行方向の任意の線上の交点で作動流体中の粒子の速度計測を行うことができる(詳細については平成 29 年度報告書を参照されたい)。これを各交点上で行い、流れのベクトルを算出し、座標平面上にプロット、TDX を移動させて再び計測を行う。また、併せて、デブリや壁面からの反射信号を開口合成法により合成しその形状把握を行う。この計測装置をロボット搬送技術と組み合わせることで広範囲の計測を行うことが可能となる。

実験装置の概要図を図 3.2.6(2)①-2 に示す。パルスレシーバ(P/R)、AD コンバータ(A/D)、PC、扇型セクターアレイセンサーから成る計測システムとなっている。デブリを単純模擬してアクリル樹脂の直方体(50 mm x 50 mm x 150 mm)を模擬デブリとした。3 次元自動ステージの設置された縦 1100 mm、横 700 mm の水槽に、模擬漏洩箇所となる直径 20 mm の穴を壁面中心下部に設置した。水を水深約 60 mm となるように満たし、前述の穴を流出口として水を循環させ、計測を行いながら 3 次元自動ステージによって計測装置を動かした。速度計測に当たっては 80  $\mu$ m のナイロン粒子を超音波の反射体として水中に懸濁させてこれを用いた。模擬漏洩箇所周囲において、計測装置を 3 次元自動ステージにより 5mm ピッチで X 方向に動かして得られた速度ベクトル及びデブリ形状計測データを 1 つの画像に合成した。漏洩箇所特定とデブリ形状把握計測時の超音波センサーと模擬デブリの配置の概要を図 3.2.6(2)①-3 に示す。漏洩箇所周囲の流れ場及び模擬デブリ形状の計測結果を図 3.2.6(2)①-4 に示す。白い正方形部が模擬デブリ、赤い直線部が模擬漏洩箇所を示している。矢印が水の流れの速度ベクトル、コンターが形状検出信号の強度を表しており、本計測結果から、模擬漏洩箇所へと流れる水の流れ、そして、模擬デブリ前面部及び水槽壁面の概形を把握することができた。以上より、平成 29 年度まで実施してきた扇型セクターアレイセンサーを 2 個利用した計測システムの改良を行い、平成 30 年度は、漏洩箇所特定に加えて、デブリ形状の把握が可能となるシステムを構築し、計測システムの総合評価を行い、システムの信頼性が向上したことを確認した。

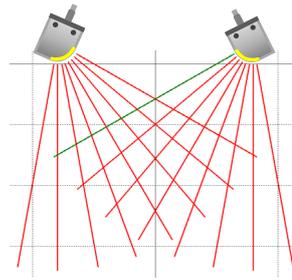


図 3.2.6(2)①-1 扇型セクターアレイセンサーと計測点

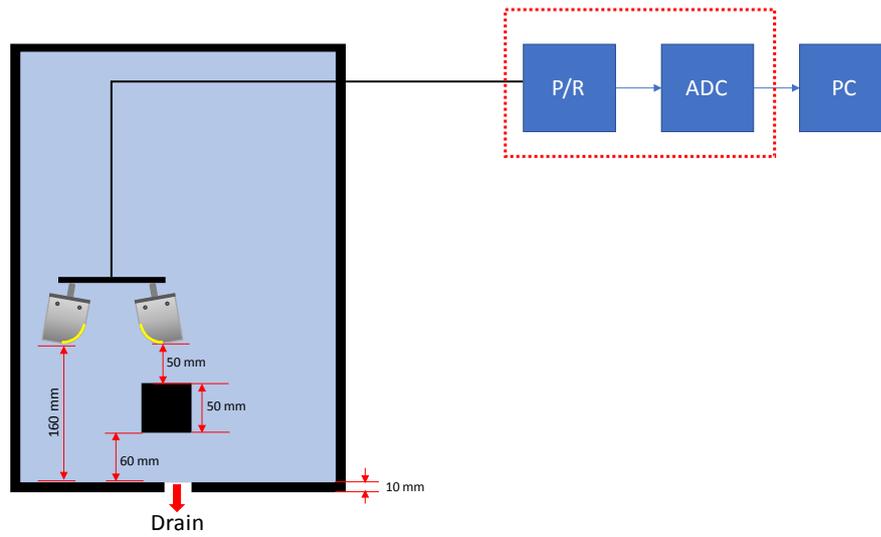
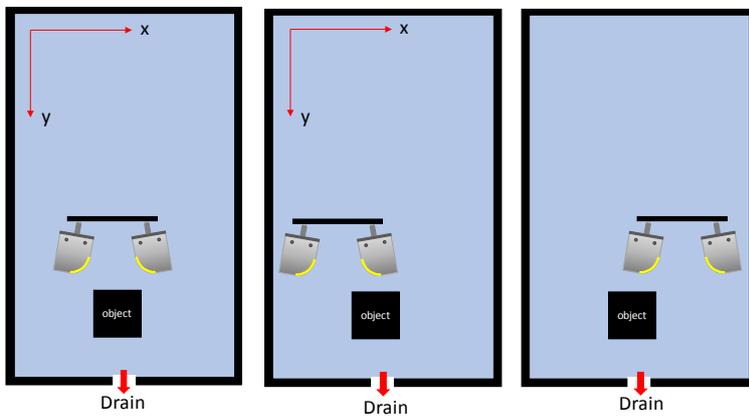


図 3.2.6(2)①-2 実験装置の概要図



(a) 概要図



(b) 写真

図 3.2.6(2)①-3 漏洩箇所特定とデブリ形状把握計測時の超音波センサーと模擬デブリの配置概要

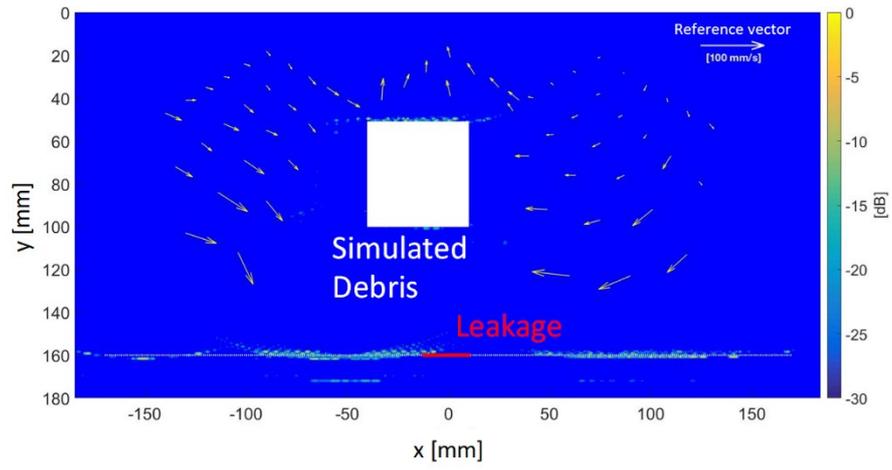


図 3.2.6(2)①-4 模擬漏洩箇所周囲の流れ場及び模擬デブリ形状の計測結果

## ②多関節ロボットアームによるセンサポジショニング技術開発（再委託先：東京医科歯科大学）

改良した多関節ロボットアームの信頼性向上を図ると共に、実プラントに適用するための知見をまとめた。具体的には、平成 29 年度に構築した多関節ロボットアームの操作インタフェース信頼性を向上させるために、センサの多重化に向けた非接触姿勢センシングシステムの実装を行った。開発したシステムを図 3.2.6(2)②-1 に示す。

一般的な操作インタフェースはリンク機構で構成されており、リンクの関節角度を角度センサにより計測する。一方で、提案するシステムは従来の角度センサによる計測に加えて、赤外線カメラの映像情報から操作者の腕の姿勢を計測する。腕の計測には Leap Motion を用いた。本センサでは腕、手首及び指関節のセンサの中心部を原点として XYZ 座標系で取得可能である。また、腕、手首及び指関節の姿勢をクォータニオンで取得可能である。

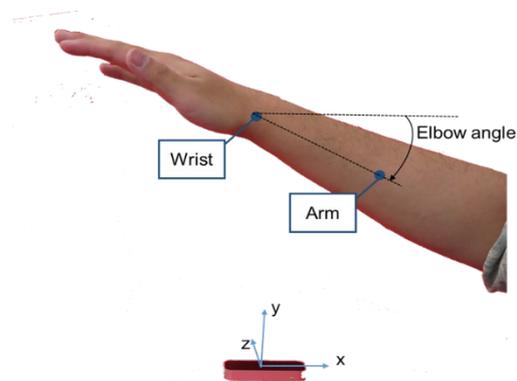


図 3.2.6(2)②-1  
開発した操作インタフェース

Leap Motion により取得した手先の位置と姿勢をロボットに送信する。これにより、従来型の操作インタフェースにおいてセンサが故障した場合でもロボットの遠隔操作を継続することができる。また、一般的な操作インタフェースは 6 自由度であるが、画像情報を用いると操作者の腕の 7 自由度全ての関節角度を取得できるため、ロボットの冗長自由度を操作することも原理上は可能である。

本操作システムの動作検証を行った。その様子を図 3.2.6(2)②-2 に示す。本実験で使用した手術ロボットは、肘部と手首部がそれぞれ 2 自由度の柔軟関節であり、また手首先端に回転関節が搭載された合計 5 自由度のマニピュレータである。実験により、操作者とロボットの肘と手首の関節角度を同期できていることを確認し、多間接ロボットアームの信頼性が向上したことを確認した。

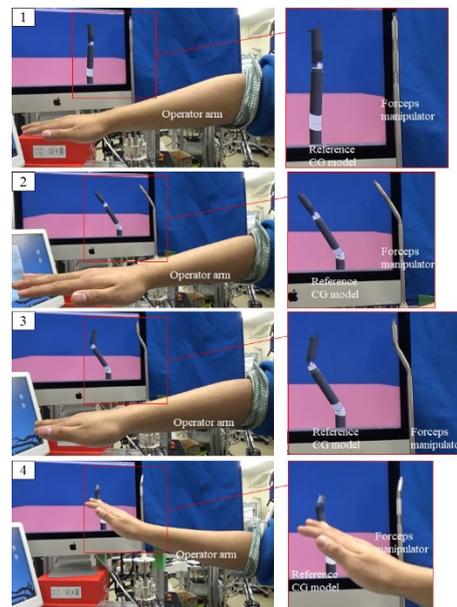


図 3.2.6(2)②-2 動作実験

今までの開発を通して実プラントに適用するための知見を以下にまとめる。

- a) ワイヤ干渉駆動型の冗長多関節ロボットアームを実現できることを実験的に明らかにした。制御法、関節角度の較正法を改良することで手先の位置決め精度は全長 2.4m に対して 0.01m 程度であることを実験により明らかにした。これはアーム全長に比して 0.4% の誤差である。実際の格納容器調査では 10m のアーム長が想定されるが仮に誤差が線形であるとする と 0.042m と見積もられる。移動ロボットを用いた 1 号機の目標位置同定誤差は 0.1m であることから、十分な精度と考えられる。
- b) 冗長多関節ロボットを直観的に操作可能なインタフェースを開発し、5 自由度手術ロボットの操作実験により有効性を確認した。リンクによる関節角度計測に加えて、赤外線カメラによる非接触計測も行い冗長とすることで信頼性を高めた。多関節ロボットの操作は遠隔地で有線により行うことを想定しているため、通信の遅延は本研究では考慮していない。また有線での長距離の信号伝送を行う場合、アナログ信号はノイズの影響を受けやすくなる。10m 程度の引き回しであれば現在の制御系でも問題がないが、それ以上となる場合、詳細な対策が必要であると思われる。
- c) 全システムの移設性については本研究では検討していない。実プラントに適用する際は、移設性は 1 つの重要な機能である。操作インタフェースについては移設性の高い形式も過去に筆者らの研究グループで開発されているため、この知見を活かして改良を予定している。
- d) 多関節ロボットアームが故障した場合を想定することも実プラント適用では重要である。この点、ワイヤ駆動型の多関節ロボットアームでは、制御不能となった場合に根元部分のワイヤを全て切断すれば関節は受動関節となることから容易に引き出すことが可能であると考えられる。通常が多関節ロボットアームのように各関節に高減速比のアクチュエータを搭載した場合、故障した場合に受動的に動かすことは極めて困難である。よってこの特性はワイヤ駆動型の大きな利点であると考えている。

### ③移動ロボットによるセンサ・アーム搬送技術開発

改良した統合システムの信頼性・運用性をさらに高めるためのセンサ搬送と超音波による流速計測を実現するロボットシステムを構築すると共に、JAEA の檜葉遠隔技術開発センターにて模擬漏水箇所特定実験を実施し、開発したシステムの総合評価を行った。

具体的には、平成 29 年度までに構築した統合システムを信頼性・運用性を高めるために改良し、JAEA の檜葉遠隔技術開発センターにて模擬漏水箇所特定実験を実施した。平成 30 年度は以下の 3 項目を実施した。

#### 1) 不整地踏破性向上のための 2 自由度テールメカニズムの開発

平成 29 年度までに開発した 4 輪駆動の車輪型ロボットは階段の踏破はできなかった。へび型ロボット”ACM-R8”は階段踏破に成功したが、センサ系などの付加的な機構を搭載することが困難であった。そこで既存の移動体の後部に付加することで移動性能を飛躍的に高め運用性を向上することのできる 2 自由度テールメカニズムを開発した。クローラ型ロボットに付加することで、単独では踏破できない階段を、この機構を付加することにより

踏破可能になることを檜葉遠隔技術開発センターでの実験で確認した（図 3.2.6(2)③-1）。なお本機構は車輪型ロボットにも付加可能である。

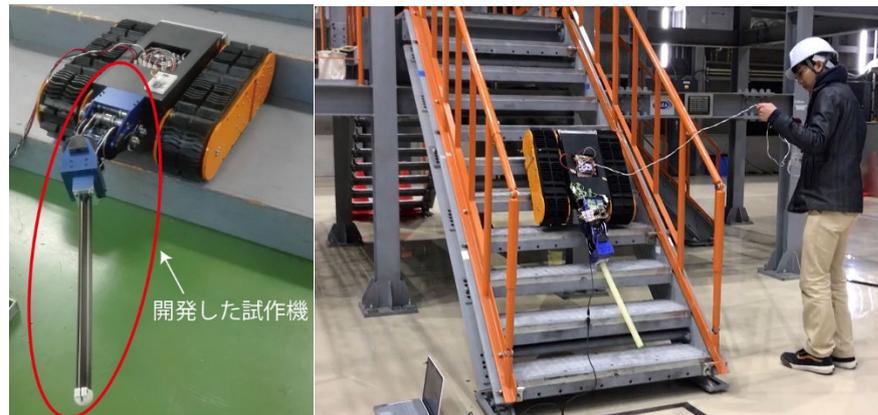


図 3.2.6(2)③-1 2自由度テール機構と階段踏破実験

## 2) 単眼カメラによるビジュアルオドメトリ手法の確立

移動ロボットの位置・姿勢を特定するためには、車輪の回転数を積算するオドメトリ手法が最も単純であるが、車輪が床面に対し滑る場合は精度が低下する。そこで信頼性を向上するために、単眼カメラ画像によるビジュアルオドメトリ手法を確立した。4輪型移動ロボットに既存のカメラを設置し、床面を高フレームレートで撮影しつつ移動することで、床面の特徴点のフレームごとの移動量を積算する手法である。檜葉遠隔技術開発センターの試験水槽上で実験を行い、昨年度までに開発した3次元スキャナによる移動ロボットの位置測定法を真値として性能を比較した。測定結果の一例を表 3.2.6(2)③-1 に、実験の様子と移動ロボットの軌跡を図 3.2.6(2)③-2(a)、(b)に示す。

表 3.2.6(2)③-1 ビジュアルオドメトリによる位置姿勢推定結果

	X [m]	Y [m]	$\theta$ [deg]	位置誤差[m]	角度誤差[deg]
3Dスキャナ	2.883	3.528	-128.087	0.080956779	9.909
Visual Odometry	2.908	3.451	-118.178		

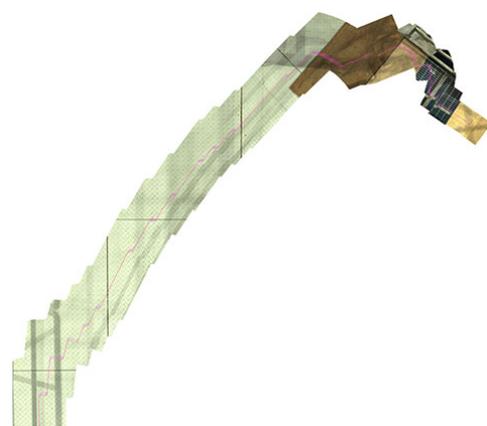
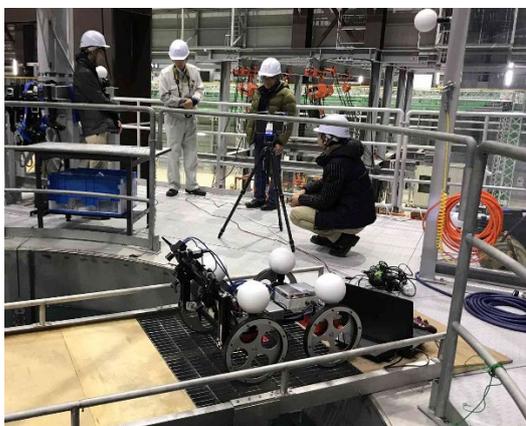


図 3.2.6(2)③-2 実験の様子(a)と合成した鳥観図（ピンクが移動軌跡）(b)

総移動距離 4.55m、総角度変化-128deg に対して、本実験では位置誤差 0.081m、角度誤差 9.9deg であるので、全移動量に対して誤差は位置が 1.8%、角度が-7.7%であった。なお水槽上の橋げたは昨年度までに本研究と JAEA が共同で設計し設置したものを利用している。

### 3) 模擬漏水箇所特定実験

楡葉遠隔技術開発センターの試験水槽を用いて模擬漏水箇所特定実験を行った。実験の概略図と実機を図 3.2.6(2)③-3 に示す。搬送用ロボットを用いてセンサの位置決めを行い、流動計測用の扇型アレイセンサ 1 組を使用し超音波流速分布計測 (UVP) 法により流動計測実験を行った。扇型アレイセンサの間隔は 135mm とした。水槽上部と下部に配管が取り付けられており、実験では上部配管を流出口、下部の配管を流入口としてポンプで水を循環させた。トレーサ粒子としてカオリナイト (乾燥状態での平均粒径  $2 \mu\text{m}$ ) を用いた。模擬漏洩口からセンサまでの距離はおよそ 0.2m である。

実験結果を図 3.2.6(2)③-4 に示す。流れの 2 次元ベクトル場が捉えられていることが分かる。流出口の位置も 0.01m 程度の誤差で特定可能であることが分かる。また流出速度を変化させて高流量とした場合にベクトルが大きくなっていることから、流速の変化も捉えることができることが分かる。

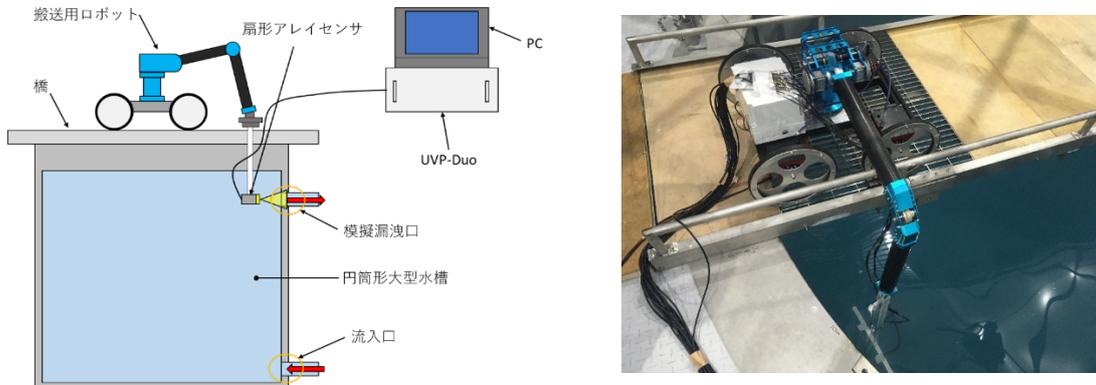
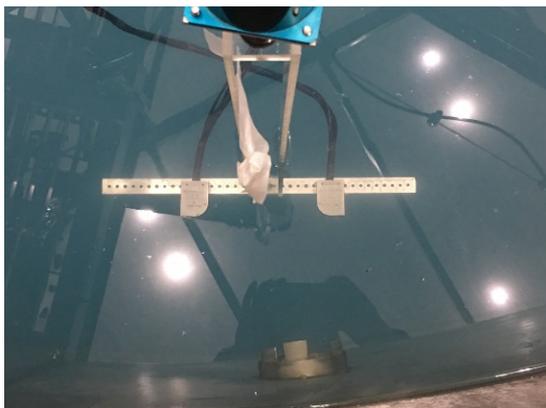
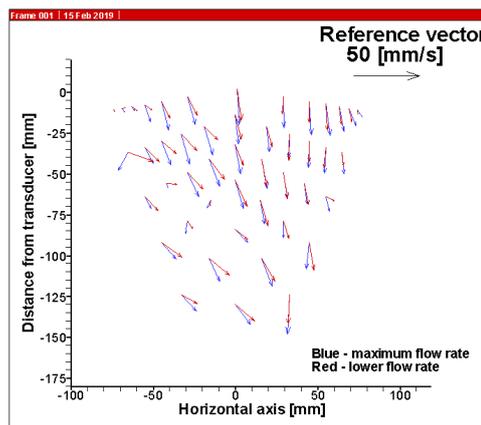


図 3.2.6(2)③-3 実験の概略 (左) と実際の実験の様子 (右)



(a) アレイセンサと流出口の位置関係



(b) 計測結果

図 3.2.6(2)③-4 流動計測結果 (赤線：低流量、青線：高流量)

本実験の結果と、前述のビジュアルオドメトリによる位置同定結果を合わせて、総合的な位置決め精度を評価すると、まず、移動体の同定精度は移動量の 1.8%程度であり、本実験の条件では 4.5m の移動に対して 0.08m 程度の誤差がある。次にアームの位置決め精度であるが、これは機構のガタなども含めて 2mm 程度であると見積もられるため、十分に小さい。さらに、UVP による漏水箇所特定の精度は 0.01m 程度と、こちらも移動ロボットの位置同定精度に比べて十分に小さい。以上から、本ロボットシステムを用いた場合、4.5m の移動距離に対して 0.1m の精度で漏水箇所の特定ができるものと考えられる。ロボットの位置誤差は移動距離に線形に比例するため、例えば格納容器内を 15m 移動した場合、漏水口の位置推定誤差は 0.33m であると見積もることができる。

本実験では、カオリナイトをトレーサ粒子として用いたが、これを用いない場合、計測結果から流出口を特定することができなかった。したがって実際の運用では十分な濁水である必要がある。また超音波センサの計測装置は外付けで多くのケーブルにより有線で計測を行っている。移動ロボットも有線で給電されており自由に動き回ることが現状できていない。長距離のアナログ信号の引き回しはノイズの影響を受けやすいことから、ケーブル数の削減は実装上の今後の課題である。さらにビジュアルオドメトリによるロボットの位置推定は 2 次元平面での移動を仮定しているため、路面が極端に凹凸であると精度が著しく低下する。3 次元での位置推定アルゴリズムを導入することも今後の課題である。

### 3.2.7 デブリ取出時の未臨界確保方策（再委託先：東京都市大学）

#### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

平成 26 年度

デブリには様々な化学形態、形状があると予想されているため、燃料デブリ臨界評価を行うに当たり必要なデブリ組成・形状・サイズ、燃焼後燃料組成等の条件について調査・検討を行った。燃料組成の検討として、様々な燃焼度を持つ燃料集合体の混合物溶融組成、可燃性毒物残存量、燃料デブリ組成、ポロシティ、水/デブリ体積比、制御棒材と燃料の混合/分離状況、MCCI 組成、様々な構造材物質を含む燃料デブリ組成の調査を実施した。また次年度以降の解析に備え、燃料物質が集中した場合の予備的臨界解析を実施した。燃料デブリの形状・寸法の検討として、残存燃料集合体の形状・配置・寸法、落下ペレット堆積状況、燃料デブリ堆積状況、形状、寸法、粉末状デブリの寸法や冷却材中挙動の調査と、予備的臨界解析を実施した。

平成 27 年度

燃料デブリ臨界性評価に特有な課題として、多数のデブリ粒子の空間位置を確率的に定めた場合（確率論的幾何形状モデル）と、規則的に配置した場合では、臨界解析の結果に違いが生じることが分かっている。燃料デブリ特有の問題を踏まえ、臨界解析の妥当性や予測精度を調べると共に、より高い精度で臨界解析を行うための解析手法を検討した。その結果、特に水霧囲気中の燃料デブリ粒子体系に対して、確率論的幾何形状モデルに統計的一様分布を仮定した場合、軽水のように全断面積の大きな減速材では、デブリ粒子半径  $>0.5\text{cm}$  となると無限増倍率を過大評価するという課題を抽出することができた。燃料デブリ体積割合が小さいほどその差異は大きくなる相関も特定した。したがって、全断面積の大きな減速材を用いた計算では、燃料デブリ臨界性評価の精度を改善するため、デブリ粒子の空間配置をモンテ・カルロ法で最近接粒子分布として評価し、これを用いて臨界解析を行う必要があると考えられる。

平成 28 年度

平成 28 年度時点では、燃料デブリ取り出しは冠水後に行う方式が主概念とされている。デブリ取り出し作業時においては、臨界性に大きな影響を与える水/燃料体積比が変化することが考えられるほか、燃料系の形状、寸法も変わり得る。すなわちデブリ取り出し方法やそのプロセスとデブリ臨界性には強い関係性があるため、考え得る種々状況下での臨界性を把握しておく必要がある。このため、①燃料取り出し作業に伴う、水体積や燃料デブリ組成・形状変化時の臨界性影響、②燃料デブリ落下時の臨界性影響、③作業時の振動や地震による燃料デブリ形状、寸法変化時の臨界性影響、④冷却材流れや作業に伴う粉末状デブリ巻き上げ時の臨界性評価、⑤炉心外へ流出した燃料デブリの臨界性、⑥気中取り出し法での臨界性評価を行い、種々状況下での臨界性を把握した。

平成 29 年度

様々な組成、形態のデブリ取り出し作業に当たっての必要十分な未臨界度を設定し、それを確保するための方策を検討した。デブリ状況に応じた中性子吸収材仕様やその必要量の評価、取り出し工法上の工夫等について検討した。具体的には、溶解性中性子吸収材が使用できない場合を想定して、中空カプセルを用いた再臨界防止策に着目し、その仕様・必要量・効果・工法上の工夫を検討した。デブリ取り出し作業に当たっての未臨界度は保守的な条件として実効増倍率 0.95 に設定した。現実的な条件として直径 20cm の中空カプセルをギャップ 10cm で設置した場合、必要となる中空カプセルの数密度は約 37 個/m<sup>3</sup>であった。この時、デブリ掘削体積の増加比は約 1.7、同条件で Gd コーティング付き中空カプセルを設置した場合は約 2.6 であった。Gd コーティングの厚みは浮力を考慮して設定したが、中空カプセルの使用方法を定置型に限定すれば、さらに厚みを増して再臨界防止効果を高めることが可能である。

## (2) 平成 30 年度の実施内容及び成果

平成 29 年度までに検討した燃料デブリの臨界特性を踏まえ、提案された臨界防止方策の有効性評価を行った。さらに、臨界事故を生じさせることなく安全かつ速やかに熔融燃料デブリを回収する上で必要な中性子工学を基盤とする知見を整理した。これまでに検討してきた全ての臨界防止方策の有効性を左右する重要な要因は、燃料取り出し作業に伴って水体積や燃料デブリ組成・形状が変化することによる臨界性の変化である。このため、平成 29 年度までの検討成果を発展させて、水環境下での燃料デブリ粒子体系の臨界性評価の精度を改善するため（文献 1、2）、3 次元剛体球空間分布計算コード MCRDF（文献 3）を参考としてデブリ粒子の空間配置をモンテ・カルロ法で最近接粒子分布（ある場所に発生した中性子が飛行距離  $x$  までに（初めて）他の粒子に入射する累積確率。NND : Nearest Neighbor Distribution）として評価した。また、これを用いた臨界解析を通じて臨界防止方策の有効性を評価した。

まず初めに、燃料デブリ粒子が水中に 3 次元ランダム配置されたモデルを模擬するためのプログラムを開発した。このプログラムには、①任意のサイズの箱に一様乱数を用いて同一の粒子（球）をランダムに配置する機能、②粒子同士の重なりを除外する機能、③箱からはみ出した粒子を除外する機能を持たせた。続いて、最近接粒子分布を解析するためのプログラムを開発した。このプログラムには、燃料デブリ粒子が水中に 3 次元ランダム配置されたモデルに対して、中性子の飛行開始点を①粒子表面（NND1）、②媒質（水）（NND2）に分けて最近接粒子分布を解析する機能を持たせた。本検討では、これらのプログラムを用いて最近接粒子分布を解析した上で、これを用いて臨界解析を行った。表 3.2.7(2)-1 は主な解析条件を示す。燃料デブリ粒子の配置モデルとして単純立方格子、3 次元ランダム粒子配置、統計的一様分布を設定し、それぞれのモデルに対して無限増倍率を解析し比較した。統計的一様分布は、臨界解析コード MVP2.0 に内蔵されているランダム粒子配置の近似モデルである（文献 4）。

表 3.2.7(2)-1 臨界解析の主な条件

燃料デブリ粒子の充填率 %	10	30
燃料デブリ粒子組成 (濃縮度)	UO <sub>2</sub> (5wt%)	
燃料デブリ粒子の配置モデル	単純立方格子	
	3次元ランダム	
	統計的一様分布	
臨界解析コード	MVP2.0	
核データライブラリ	JENDL-4.0	
ヒストリー/バッチ、バッチ (スキップ)	10000、300(100)	

図 3.2.7(2)-1 に最近接粒子分布と統計的一様分布を比較した例を示す。これらを用いた臨界解析の結果を図 3.2.7(2)-2 に示す。水環境下の燃料デブリ粒子の 3次元ランダム配置には、粒子間の距離を適切に考慮した最近接粒子分布 (NND1、NND2) が反映されているため、その臨界性は統計的一様分布よりも小さい。言い換えれば、平成 29 年度までの燃料デブリ粒子体系の臨界性は保守的に評価されていることが確認できたため、提案された臨界防止方策は有効であると言える。また、安全かつ速やかに熔融燃料デブリを回収するためには、燃料デブリ組成・形状・分布などの調査を行った上で、燃料デブリ粒子と水の体積比、燃料デブリ粒子体系の形状、一回の作業で取り出される燃料デブリ量 (収納容器からの落下を考慮)、中性子吸収材の仕様を適切に考慮する必要がある。

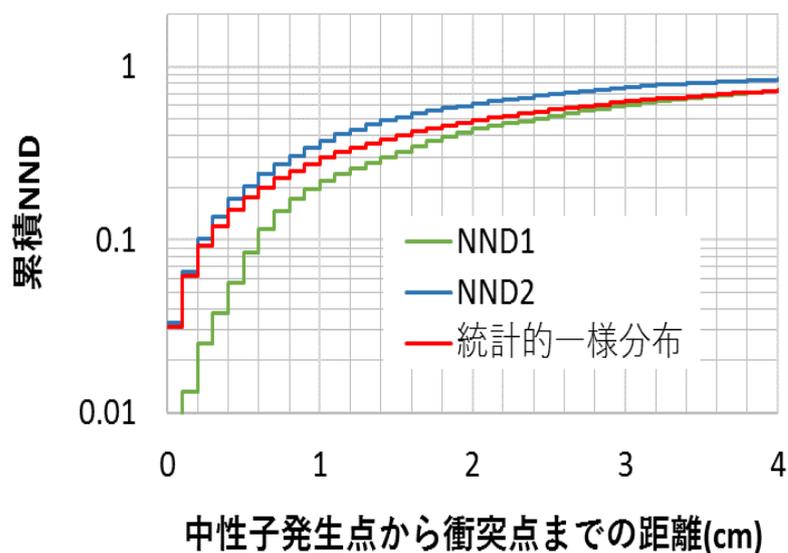


図 3.2.7(2)-1 最近接粒子分布 (NND) の例 (充填率 30%)

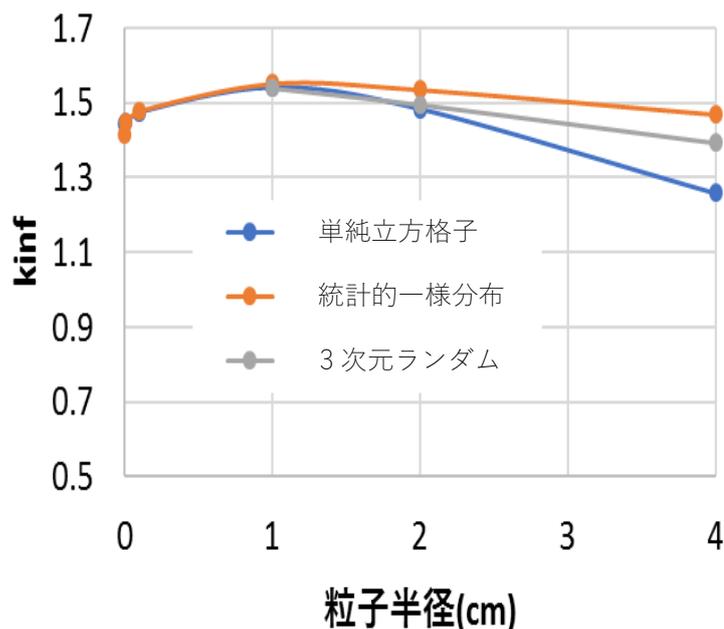


図 3. 2. 7(2)-2 無限増倍率 ( $k_{inf}$ ) の解析結果の例 (充填率 30%)

#### 参考文献

- 1) 佐藤 et al., 「燃料デブリ取り出し時の臨界性評価とその精度に関する研究」 日本原子力学会 2016 年秋の大会
- 2) 小出 et al., 「確率論的幾何形状モデルの最近接粒子分布が各特性に与える影響」 日本原子力学会 2014 年春の大会
- 3) 村田 et al., 「モンテ・カルロ法を用いた充填模擬法による 3 次元剛体球空間分布計算コード MCRDF」 JAERI-Data/Code96-106
- 4) Murata et al., “Continues energy monte carlo calculations of randomly distributed spherical fuels in high-temperature gas-cooled reactors based on a statistical geometry model”, NUCLEAR SCIENCE AND ENGINEERING:123, 96-109(1996)

### 3.2.8 メルトダウン炉心の臨界事故解析と対策の検討

#### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

平成 26 年度

メルトダウン炉心の臨界事故解析についての予備的な調査を行った。具体的には、臨界事故解析に関する既往研究として、日本原子力研究開発機構の過渡臨界実験装置 TRACY で行われてきた実験の概要と結果、燃料粒子が入ったドラムを回転させた場合の粒子の動きと実効増倍率の変化のシミュレーション等について調査を実施した。

平成 27 年度

メルトダウン炉心の臨界事故解析についての予備的な調査を行った。具体的には、臨界事故解析に必要なメルトダウン炉心の組成・形状を検討するためスリーマイル島原子力発電所事故でメルトダウンした炉心及びデブリその取出時の臨界性についての評価結果及び日本原子力研究開発機構で行われている燃料デブリの臨界性についての研究の状況等について調査を実施した。さらに東京工業大学でかねてより研究が進められてきていた積分型動特性解析モデルによる弱結合体系の動特性解析の研究の成果を精査し本事故解析への適用可能性を検討した。

平成 28 年度

炉心の状況を想定してメルトダウン炉心の臨界事故解析を行い事故時に予想される影響についての評価を実施した。燃料デブリ取り出し作業時に再臨界事象が発生する状況の想定としては、作業中に何らかの原因によって粒子状の燃料デブリが水中で舞うような状況が考えられる。このような状況を想定して、臨界事故時の影響評価を核分裂によって発生するエネルギーを評価することで行った。解析により、水中に粒子状の複数の燃料デブリ領域が存在することによって超臨界となった場合には、それぞれの領域の位置関係が、それぞれの領域の放出エネルギーの割合と全放出エネルギーに大きな影響を与えることが明らかになった。

平成 29 年度

水中に存在する燃料デブリが超臨界となった場合のある点における空間線量と水位の関係の予備的な評価を行った。予備的な解析の結果、解析対象とした条件では、粒子状臨界デブリが水中で堆積している場合の臨界事故の線量は、燃料デブリ粒子がちょうど水面まで堆積している場合に最も高くなることが予想され、また水深が深い場合は線量は低くなることが予想され、作業を行う場合もこの点に留意することで臨界事故時の直接線による被ばくを低減できる可能性がある。

#### (2) 平成 30 年度の実施内容及び成果

福島第一原子力発電所において燃料デブリの取り出し作業に臨むに当たり、起き得る再臨界事故についての解析を行うことで事故時の空間線量を予め評価し、それを低減するための有効な対策を明らかにすることは作業員の安全確保の方策を検討する上で重要である。この

ような評価を行うためには、超臨界状態になった燃料デブリについての空間依存の動特性解析を行った上で放射線輸送計算を行う必要がある。本研究では水中に存在する燃料デブリの臨界事故時の空間線量の解析を行い、臨界事故対策の検討とその有効性の評価を行った。

平成 29 年度の解析は予備的解析として粒子状の燃料デブリが球形を成しているとの仮想的な体系を考え、仮想燃料デブリ粒子球が部分的に水中にある場合を行った。予備解析の結果から、燃料デブリが一部水に浸っているあるいは水没した状態で臨界事故が発生した場合、水位が低いと臨界事故による気中での線量は小さく、また燃料デブリが完全に水没し水位が十分高い場合も水による遮蔽効果により気中の線量が低減されることが示されていた。このため、臨界事故時の対策として極めて低い水位での作業あるいは燃料デブリが完全に水没し十分水深が深い状態での作業が気中での線量低減に有効であると期待され、この対策の有効性をより現実的な体系についての解析の結果を基に検討した。

解析では、燃料デブリは多数の粒子状になっているものとし、それが水中または一部気中、一部水中の状態で堆積しているものとした。燃料デブリは、濃縮度 3% の二酸化ウランとした。また、堆積している燃料デブリの形状は円柱形状として現実的な状態に近い体系とした。また燃料デブリ粒子の体積充填率は 60% とし、この円柱状の燃料デブリの一部が気中に露出しているような体系や完全に水没しているような体系を想定した。燃料デブリで気中に露出している部分については、燃料デブリ粒子間に空気があるものとし、水中に入っている部分については、燃料デブリ粒子間は水で満たされているとした。燃料デブリ組成及び体系についてのパラメータを表 3.2.8(2)-1 に示す。また解析体系を図 3.2.8(2)-1 に示す。燃料デブリは、円柱の半分の高さまで水に浸っていてちょうど臨界状態になっており、急に水位が上昇した場合を想定してステップ状に水位を上昇させて即発超臨界として、この場合に予想される総核分裂数を評価し、発生する中性子線と $\gamma$ 線による線量の評価を行った。解析では、連続エネルギーモンテカルロコード MVP-2.0 による中性子輸送計算で得られた結果を用いて、さらに東京工業大学で開発された積分型空間依存動特性解析コード MIK[1, 2, 3] による動特性解析を行い領域ごとの核分裂数を評価した。さらに粒子・重イオン輸送計算コード PHITS を用いて中性子線及び $\gamma$ 線による線量評価を行った。

図 3.2.8(2)-2 に解析の結果得られた燃料デブリ球中心の水深と球中心から 300 cm 上部の点における線量の関係を線種別及び由来別に示す。図 3.2.8(2)-2 において、水位 86.1cm はちょうど円柱状面と水位が一致している状態を示している。この結果から分かるように、現実的な燃料デブリの体系の場合において、気中の線量は燃料デブリ円柱の上面が水面に一致している。すなわち燃料デブリ全てが水に浸っている状態の際に最大となり、水位が高くなる。すなわち燃料デブリ円柱が深く水中に没する状態になると線量が下がることが分かる。特に中性子線の線量は水位の上昇と共に急激に下がっている。一方 $\gamma$ 線の線量は、水位が上昇してもしばらく上昇しその後下降する結果となっている。これは、ちょうど燃料デブリ円柱が水に浸っている状態から少し水位が上昇すると投入される反応度が大きくなり、総核分裂数が増え、発生する $\gamma$ 線が増えるためと考えられる。一方中性子線の場合は、総核分裂数が増えることによる効果よりも水による中性子遮蔽効果が大きいため急激に減少していると考えられる。また線量の由来を見ると気中にある燃料デブリ由来の線量は小さく、線量への寄与は水中にある燃料デブリ由来のものが主であることが分かる。このため、燃料デブリの

大部分が気中にあり一部だけが水中にある場合は、気中にある燃料デブリによる寄与が小さく同時に反応度も小さいため線量が小さくなることが分かる。

このように、臨界事故時の対策として、燃料デブリの粒子が堆積し一部が水中にある場合、燃料デブリ作業環境の水位をできるだけ低くし燃料デブリの大半が気中にあるような状況で作業を行う、あるいは燃料デブリを水没させかつ十分な水深のある状態で作業をすることで、臨界事故時の気中での線量を大幅に低減できることが示され、この臨界事故対策の有効性が確認された。

## 参考文献

- 1) Delgersaikhan Tuya, Toru Obara, “Supercritical transient analysis in hypothetical fuel-debris systems by multi-region approach based on integral kinetic model”, *Annals of Nuclear Energy*, Vol. 120, pp. 169-177 (2018).  
DOI: 10.1016/j.anucene.2018.05.033
- 2) Delgersaikhan Tuya, Toru Obara, “Development of Monte Carlo Neutron Transport Method-Based Supercritical Transient Code with Time-Dependent Feedback Capability”, *Nuclear Science and Engineering*, published on line (2018).  
DOI:10.1080/00295639.2018.1540209
- 3) Delgersaikhan Tuya, Hiroki Takezawa, Toru Obara, “MIK - Multi-region Integral Kinetic code, Version 1.0”, December, 2018, Tokyo Institute of Technology.  
日本全国書誌番号: 23143960, 国立国会図書館書誌 ID: 029324223

表 3.2.8(2)-1 燃料デブリ組成及び体系

燃料組成	UO <sub>2</sub>
密度	10.97 g/cm <sup>3</sup>
濃縮度	3 wt%
粒子半径	0.1 cm
充填率	60 %
燃料ユニット寸法	
底面半径	43.05 cm
高さ	86.1 cm
水反射体厚さ	30 cm
水位	50 cm ~ 120 cm
コンクリート厚さ	30 cm

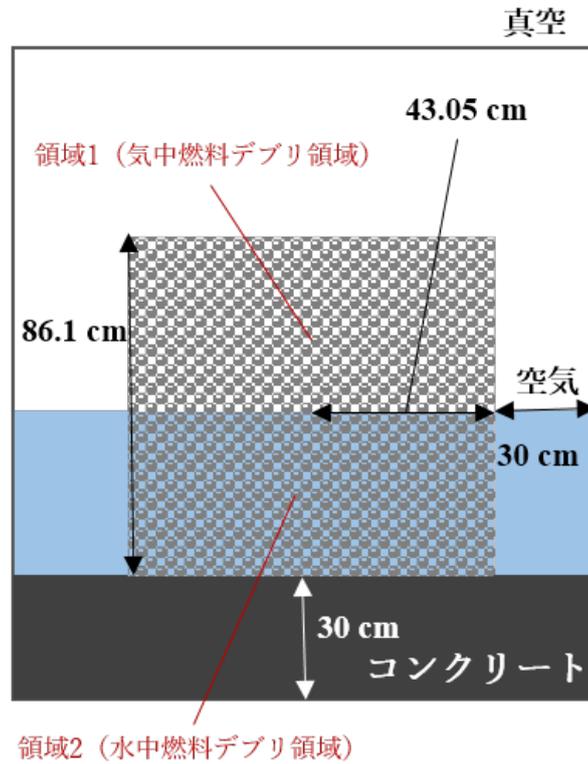


図 3.2.8(2)-1 解析体系

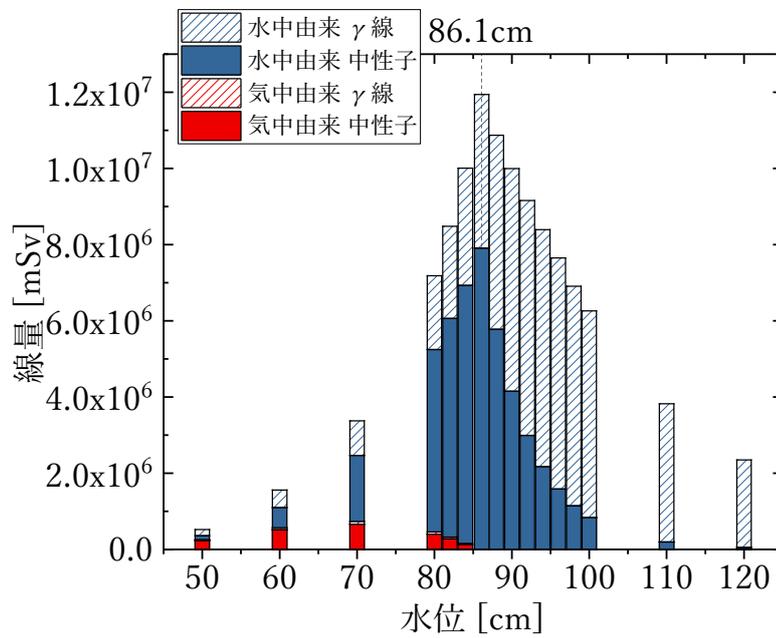


図 3.2.8(2)-2 水位と線種別・由来別の線量の関係

### 3.2.9 廃止措置技術・人材育成フォーラム

#### (1) 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

平成 26 年度

廃止措置技術・人材育成フォーラムの企画・開催を行った。また、より学生等を惹きつける取り組みや広域なネットワーク構築等、より充実した教育・人材育成の拠点とするための検討を行った。

平成 27 年度

廃止措置技術・人材育成フォーラムの企画・開催を行った。また、より学生等を惹きつける取り組みや広域なネットワーク構築等、より充実した教育・人材育成の拠点とするための検討を行った。企画・開催に当たっては、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構等が行う、他採択拠点等を含む、廃炉基盤研究プラットフォーム等の場において、関係機関との連携を密にして実施した。

平成 28 年度

平成 27 年度に引き続き、廃止措置技術・人材育成フォーラムの企画・開催を行った。また、より学生等を惹きつける取り組みや広域なネットワーク構築等、より充実した教育・人材育成の拠点とするための検討を行った。企画・開催に当たっては、日本原子力研究開発機構等が行う、他採択拠点等を含む、廃炉基盤研究プラットフォーム等の場において、関係機関との連携を密にして実施した。

平成 29 年度

平成 28 年度に引き続き、廃止措置技術・人材育成フォーラムの企画・開催を行った。また、より学生等を惹きつける取り組みや広域なネットワーク構築等、より充実した教育・人材育成の拠点とするための検討を行った。

#### (2) 平成 30 年度の実施内容及び成果

##### ① 東京工業大学廃止措置技術・人材育成フォーラムの開催

平成 30 年 12 月 26 日（水）、東工大・大岡山キャンパス西 8 号館 10 階大会議室にて、「東京工業大学廃止措置技術・人材育成フォーラム」を実施した。フォーラムの実施によって、より学生等を惹きつける取り組みや広域なネットワーク構築等、より充実した教育・人材育成の拠点とするための検討を行った。

第 1 部に東工大における人材育成活動及び基盤研究について各研究者の発表、第 2 部は IRID ミニワークショップとして、IRID における研究開発についての講演が行われ、産と学の間での情報交換が行われた。

以下にフォーラムのプログラムを示す。

主催：東京工業大学 科学技術創成研究院 先導原子力研究所

日時：平成 30 年 12 月 26 日（水） 13：00～18：45

場所：東京工業大学 大岡山キャンパス 大岡山西 8 号館 10 階大会議室

プログラム：

13：00～13：05 開会挨拶 竹下健二（東工大先導原子力研究所所長）

13：05～13：10 ご挨拶 池田一郎（文科省研究開発局原子力課放射性廃棄物企画室長）

【第 1 部 東工大における人材育成活動及び基盤研究】

13：10～13：30 シビアアクシデント後の遠隔計測技術 木倉宏成（東工大）

13：30～13：50 難分析核種分析 塚原剛彦（東工大）

13：50～14：10 材木の除染技術 鷹尾康一郎（東工大）

14：10～14：25 天然鉱物を利用した Cs、Sr 回収・固定化技術 吉田克己（東工大）

14：35～15：05 土壌の汚染除去と回収・固化技術 竹下健二（東工大）

15：05～15：20 デブリ取出時の未臨界確保方策 高木直行（都市大）

15：20～15：35 デブリ取り出し時の再臨界事故解析 小原 徹（東工大）

15：35～15：55 東工大における廃止措置工学人材育成活動 赤塚 洋（東工大）

【第 2 部 IRID における研究開発】

16：05～16：35 IRID における 1 F 廃炉の技術開発の状況 奥住直明（IRID）

16：35～17：05 1 F - 1 の P C V 内部詳細調査 - 潜水機能付ボートの開発状況 -  
木下博文（IRID/日立 GE）

【第 3 部 総合討論】

17：05～17：25 総合討論・意見交換・今後の展望

17：25～17：30 閉会挨拶 小原 徹（東工大）

フォーラムは 63 名の聴講者の参加があり盛会であった。フォーラムでの会場の様子を図 3.2.9(2)-1 に示す。本フォーラムの開催により本プログラムでの研究成果・人材育成活動の成果を広く周知することができた。また質疑応答、IRID から講演により今後の廃止措置活動に向けた研究開発等のニーズについての意見交換が行われ、重要な機会となった。



図 3.2.9(2)-1 東工大フォーラムの様子

## ② 次世代イニシアティブ廃炉技術カンファレンス (NDEC-4) への参画

文部科学省の委託事業である「廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」採択7機関(東京工業大学、東京大学、東北大学、福島大学、福島高専、福井大学、地盤工学会)、文部科学省、原子力安全研究協会及び福島県富岡町が共催し、日本原子力学会、原子力損害賠償・廃炉等支援機構、日本原子力研究開発機構、国際廃炉研究開発機構及び福島県教育委員会の後援の下、第4回次世代イニシアティブ廃炉技術カンファレンス(Conference for R&D Initiative on Nuclear Decommissioning Technology by the Next Generation : NDEC-3)が平成31年3月23日(土)、福島県富岡町文化交流センター学びの森にて開催された。本カンファレンスの主旨は、原子炉廃止措置に関わる研究を進めている学生を集め、その研究を紹介し、奨励していくことにある。また、廃止措置関連研究を進めている学生同士の交流や学生と産業界との交流を狙ったものでもある。

平成30年度は東京工業大学からは2名が発表を行った。

東京工業大学としては、プログラム代表の小原教授がカンファレンスの企画段階から実行委員として参画し本カンファレンスの運営に携わった。

### 3.3 研究推進

#### 3.3.1 平成 26 年度から平成 29 年度の実施内容及び成果

平成 26 年度

廃止措置技術・人材育成フォーラムにおいて廃止措置実施機関との情報交換を行った。

平成 27 年度

活動を日本原子力研究開発機構（JAEA）等が行う、他採択拠点等を含む、廃炉基盤研究プラットフォーム等の場において、関係機関との連携を密にして実施した。

平成 28 年度

JAEA 廃炉国際共同研究センター（CLADS）の運営会議に参加し「廃炉基盤研究プラットフォーム」の運営に取り組んだ。また、CLADS が福島県富岡町に整備を行っている「国際共同研究棟」での研究・人材育成の実施に向け、JAEA と情報交換及び協議を行い、同施設での JAEA との具体的な共同研究等の実施についての検討を進めた。

平成 29 年度

原子力損害賠償・廃炉等支援機構（NDF）が設置した廃炉研究開発連携会議に参画し、廃炉国際共同研究センター（CLADS）と採択 7 機関をコアメンバーとした廃炉基盤研究プラットフォームへ参画した。

#### 3.3.2 平成 30 年度の実施内容及び成果

研究の推進に当たっては、現在、文部科学省が推進している「東京電力（株）福島第一原子力発電所の廃止措置等研究開発の加速プラン」に基づき、日本原子力研究開発機構の廃炉国際共同研究センター「国際共同研究棟」における研究・人材育成の実施に向けた準備・検討を引き続き行った。また、福島第一原子力発電所の廃炉に向けた基礎・基盤研究の推進協議体である「廃炉基盤研究プラットフォーム」の第 9 回運営会議（平成 30 年 7 月 3 日）に参加し、その運営に協力した。

#### 4. 結言

人材育成活動では、平成 29 年度に引き続きデブリ材料工学に関する人材育成において廃止措置・材料工学の学生実験を実施しカリキュラムを完成させ、デブリ化学に関する人材育成では核燃料・化学に関する学生実験を実施しカリキュラムを完成させた。シビアアクシデント後の遠隔計測技術に関する人材育成では熱流動とシビアアクシデント工学に関する学生実験を実施しカリキュラムを完成させた。廃止措置の最新技術と基礎に関する人材育成においては廃止措置関連の講義を開講しカリキュラムを完成させた。キャリアパス形成活動では学生のインターンシップ派遣を実施すると共に廃止措置に関するセミナーを開催した。実施に当たってはこれらの授業科目等が円滑に実施できるよう支援体制を整えて運営を行った。また研究活動では、難分析核種用マイクロ分析システムの構築、セルロース分解性イオン液体を用いた汚染木材等の除染法の開発、水熱分解法による汚染土壌・焼却灰処理技術、フェリシアン系吸着剤による Cs 回収技術開発、クラウンエーテル含有ゲルと天然鉱物を利用した Cs・Sr 回収固定化技術、シビアアクシデント後の遠隔計測技術、デブリ取出時の未臨界確保方策、メルトダウン炉心の臨界事故解析と対策の検討について、種々の試験・解析を実施し目標を達成した。また廃止措置技術・人材育成フォーラムを開催し、成果を公開すると共に情報の交換を行った。

平成 30 年度人材育成活動は確実に実施されカリキュラムの完成等がなされ、キャリアパス活動についても確実に実施された。また研究活動ではそれぞれの研究項目を確実に実施し研究目標が達成された。

平成 30 年度で 5 年間の本事業は終了し、人材育成活動及び研究活動において大きな成果を挙げることができた。