JAEA-Research 2010-032



数値解析手法による乾式除染性能評価に関する研究 - 第2報-

(共同研究)

Study on Efficiency of Dry Decontamination Technique by Numerical Method -The 2nd Part - (Joint Research)

百武 徹 武藤 明徳 笹倉 万里子 箕輪 弘嗣鈴木 和彦 横山 薫 高橋 信雄 秦 はるひ杉杖 典岳

Toru HYAKUTAKE, Akinori MUTO, Mariko SASAKURA, Hirotsugu MINOWA Kazuhiko SUZUKI, Kaoru YOKOYAMA, Nobuo TAKAHASHI Haruhi HATA and Noritake SUGITSUE

> 人形峠環境技術センター 環境保全技術開発部

Environmental Research and Development Department Ningyo-toge Environmental Engineering Center

October 2010

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。 本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。 なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ(<u>http://www.jaea.go.jp</u>) より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department, Japan Atomic Energy Agency 2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2010

数値解析手法による乾式除染性能評価に関する研究-第2報-(共同研究)

日本原子力研究開発機構 人形峠環境技術センター 環境保全技術開発部

百武 徹*², 武藤 明徳*¹, 笹倉 万里子*¹, 箕輪 弘嗣*¹, 鈴木 和彦*¹
 横山 薫^{*1}, 高橋 信雄, 秦 はるひ, 杉杖 典岳

(2010年7月26日 受理)

核燃料施設の廃止措置では、放射性廃棄物の発生量を極力少なくすることや、解体作業時の被 ばく線量を低減することを目的として、一般的に、系統での除染や解体後の除染が行われている。 人形峠環境技術センターでは、主に、ウラン化合物により金属表面が汚染した機器を対象とした 系統除染として「七フッ化ヨウ素(以下、IF7という。)を用いた乾式除染」を適用している。「IF7 を用いた乾式除染」は、金属表面に付着したウラン化合物と IF7 の化学反応により除染を行う技 術であるが、このような、除染ガスを用いた乾式除染技術に関しては、除染の進展メカニズムや 除染レベル等の除染性能に関する基礎研究は、必ずしも十分に行われておらず、これらの研究を 実施し、乾式除染技術として一般化することが求められている。また、除染の進展メカニズムの 解析を行うためには、先ず、金属面と六フッ化ウラン(以下、UF6という。)の反応メカニズムを 知る必要がある。このため、本研究では、人形峠環境技術センターで実施している、IF7ガスを用 いた乾式除染データを活用し、最終的には乾式除染の基礎的メカニズムのモデル化を行うことを 目的とし、これらの研究の基礎的知見として、数値解析手法により UF6 の付着現象に関する解析 を実施した。

本研究は日本原子力研究開発機構と岡山大学大学院との共同研究に基づいて実施したものである。 人形峠環境技術センター:〒708-0698 岡山県苫田郡鏡野町上齋原 1550

※1 技術開発協力員

*1 岡山大学

*2 横浜国立大学

Study on Efficiency of Dry Decontamination Technique by Numerical Method -The 2nd Part - (Joint Research)

Toru HYAKUTAKE^{*2}, Akinori MUTO^{*1}, Mariko SASAKURA^{*1}, Hirotsugu MINOWA^{*1}, Kazuhiko SUZUKI^{*1}, Kaoru YOKOYAMA^{**1}, Nobuo TAKAHASHI, Haruhi HATA and Noritake SUGITSUE

> Environmental Research and Development Department Ningyo-toge Environmental Engineering Center, Japan Atomic Energy Agency Kagamino-cho, Tomata-gun, Okayama-ken

> > (Received July 26, 2010)

System decontamination has been generally carried out with the aim of reducing the amount of radioactive waste generated and minimizing human exposure to radiation released from nuclear fuel facilities. At the Ningyo-Toge Environmental Engineering Center, metal surfaces that are contaminated by uranium are dry decontaminated by using iodine heptafluoride (IF7) as a system decontaminator. In this dry decontamination technique, a chemical reaction occurs between the uranium compound attached to the metal surface and IF7. Only a few studies have been carried out on the decontamination efficiency, mechanism, level, etc. of dry decontamination techniques that use a decontamination gas. Therefore, the generalization of dry decontamination techniques is required. And, clarifying a depositing mechanism of Uranium Hexafluoride becomes assumption to clarify the decontamination mechanism. In the present study, the efficiency of a dry decontamination technique was assessed by a numerical method using decontamination data obtained at the Ningyo-Toge Environmental Engineering Center. A concrete analytical content is a depositing of Uranium Hexafluoride.

Keywords: Dry Decontamination, Radioactive Waste, Numerical Simulation

This work has been performed in JAEA as a joint research with Okayama university.

X1 Collaborating Engineer

^{* 1} Okayama University

^{* 2} Yokohama National University

目次

1. 緒言・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	1
1.1 背景・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	1
1.2 研究の方針・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	1
2. ポテンシャルモデルの構築・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2
2.1 解析方法(Gaussian03 について)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2
2.2 UF6- UF6 間ポテンシャルモデル解析結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4
2.3 UF6- Fe 間ポテンシャルモデル解析結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5
3. ウラン化合物付着現象モデルの構築・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	6
3.1 固体壁モデル・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	6
3.2 MD 法について・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	6
3.2.1 基礎方程式・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	6
3.2.2 分子間ポテンシャル・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	$\overline{7}$
3.2.3 数値積分と無次元化・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	8
3.2.4 固体壁の平衡状態・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	10
3.3 Fe 壁面の場合・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	10
3.3.1 解析条件(Fe 壁面)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	10
3.3.2 解析結果(Fe 壁面)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	11
3.4 Fe 壁面に UF4 層が形成された場合・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	11
3.4.1 解析条件 (UF ₄ 層)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	11
3.4.2 解析結果(UF4層)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	12
3.5 化学吸着を模擬した場合・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	12
3.5.1 解析条件(化学吸着)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	12
3.5.2 解析結果(化学吸着)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	13
4. 結言・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	14
参考文献・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	15

JAEA-Research 2010-032

Contents

1. Introduction • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
1.1 Backgrounds • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
1.2 Course of research · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
2. Formulate of Potential Model • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
2.1 Analytical method(about the Gaussian03) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
2.2 Analytical results on a Potential Model between UF ₆ - UF ₆ · · · · · · · · · · · · · · · 4
2.3 Analytical results on a Potential Model between UF ₆ - Fe · · · · · · · · · · · · · 5
3. Formulate of Uranium compound depositing Model • • • • • • • • • • • • • • • • • 6
3.1 Solid – Gaseous state Model • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
3.2 About the MD method • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
3.2.1 Basic Equation • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
3.2.2 Intermolecular potential • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
3.2.3 Numerically-integrated and dimensionless • • • • • • • • • • • • • • • • • •
3.2.4 Equilibrium state of Solid layer • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
3.3 Iron crystal state case • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
3.3.1 Analytical condition (Iron) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
$3.3.2$ Analytical results (Iron) $\cdot \cdot \cdot$
3.4 Molecular layer of UF ₄ case $\cdot \cdot \cdot$
3.4.1 Analytical condition (layer of UF ₄) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
3.4.2 Analytical results (layer of UF ₄) $\cdot \cdot \cdot$
3.5 Allow for chemical adsorptive activity case • • • • • • • • • • • • • • • • • • 12
3.5.1 Analytical condition (Chemical absorptive) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
3.5.2 Analytical results (Chemical absorptive) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
4. Conclusions • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
References · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·

表リスト

Table 2.2-1	各位相における平衡結合間距離および結合エネルギー(UF6-UF6)・・・・・・・ 1	16
Table 2.3-1	各位相における平衡結合間距離および結合エネルギー (UF ₆ -Fe)・・・・・・ 1	16
Table 3.2.2-1	各分子のパラメータ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1	16
Table 3.2.3-1	無次元化における基準値・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1	16

図リスト

Fig. 1.2-1	分子レベルでの汚染・除染メカニズム・・・・・・・・・・・・・・・・・ 17
Fig. 2.1-1	二分子の BSSE を求めるエネルギー計算パターン・・・・・・・・・・・ 18
Fig. 2.2-1	UF ₆ 分子の位相 (頂点 (V)、辺 (E)、面 (F))・・・・・・・・・・・ 19
Fig. 2.2-2	ポテンシャルエネルギーの比較(V-V、E-E、F-F)・・・・・・・・・・・・・・ 19
Fig. 2.2-3	7通りの位相・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 19
Fig. 2.2-4	ポテンシャルエネルギーの比較(7位相をランダムに変化させた場合)・・・・・ 20
Fig. 2.3-1	ポテンシャルエネルギーの比較 (V,E,F)・・・・・・・・・・・・・・・・・ 20
Fig. 2.3-2	ポテンシャルエネルギーの比較 (10 位相をランダムに変化させた場合)・・・・・ 21
Fig. 3.1-1	Fe 固体壁面 smooth モデル・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 21
Fig. 3.3.1-1	解析条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 22
Fig. 3.3.1-2	ランダムな位相、V-V、E-E、F-F のポテンシャル平均値・・・・・・・・・ 22
Fig. 3.3.1-3	Lennard-Jones ポテンシャルによるフィッティング・・・・・・・・・・ 23
Fig. 3.3.1-4	Lennard-Jones ポテンシャル曲線・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 24
Fig. 3.3.2-1	UF6分子の物理吸着モデル (Fe壁面)・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 25
Fig. 3.3.2-2	反応経路とその際の中間生成物・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 25
Fig. 3.3.2-3	UF ₆ 分子が Fe 壁面へ付着する様子 (273-397step)・・・・・・・・・・ 26
Fig. 3.3.2-4	UF ₆ 分子が Fe 壁面で反射する様子 (1807-1828step)・・・・・・・・・・ 26
Fig. 3.4.2-1	UF_6 分子の物理吸着モデル (UF_4 層)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 27
Fig. 3.4.2-2	UF ₆ 分子が UF ₄ 表面で反射する様子 (1300-1324step)・・・・・・・・・ 27
Fig. 3.5.2-1	UF ₆ 分子が UF ₄ 壁面に吸着する様子(1487-1529step)・・・・・・・・・ 28
Fig. 3.5.2-2	UF ₆ 分子が UF ₄ 壁面で反射する様子(1687-1723step)・・・・・・・・・ 28
Fig. 3.5.2-3	吸着した場合の入射速度分布・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 29
Fig. 3.5.2-4	反射した場合の入射速度分布・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 29
Fig. 3.5.2-5	吸着した場合の入射エネルギー分布・・・・・・・・・・・・・・・・・ 30
Fig. 3.5.2-6	反射した場合の入射エネルギー分布・・・・・・・・・・・・・・・・・ 30
Fig. 3.5.2-7	吸着した場合の入射角分布・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 31
Fig. 3.5.2-8	反射した場合の入射角分布・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 31
Fig. 3.5.2-9	衝突位置の比較(上から見た図)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 32

This is a blank page.

1. 緒言

1.1 背景

核燃料施設の廃止措置では、一般的に、放射性廃棄物の発生量を極力少なくすることや、解体 作業時の被ばく線量を低減することを目的とした系統での除染や解体後の除染が行われている。 日本原子力研究機構(以下、JAEAという。)人形峠環境技術センターでは、主に、UF6に代表さ れるウランフッ化物により、金属表面が汚染した機器を対象とし、系統除染として「IF7を用いた 乾式除染」、解体後除染として「希硫酸を用いた湿式除染」を適用している。このうち、「希硫酸 を用いた湿式除染」は、金属表面を溶解することで除染を行う技術であり、除染原理や除染レベ ル等の除染性能に関する評価は広く行われており、一般的な技術として体系化されている。一方、 「IF7を用いた乾式除染」は、金属表面に付着したウラン化合物と IF7の化学反応により除染を行 う技術であるが、このような、除染ガスを用いた乾式除染技術に関しては、除染の進展メカニズ ムや除染レベル等の除染性能に関する研究が未だ不十分であり、これらの研究を実施し、乾式除 染技術として一般化することが求められている。

1.2 研究の方針

本研究では、人形峠環境技術センターで実施している IF7 ガスを用いた乾式除染データに基づき、数値解析手法による乾式除染性能評価に関する研究を行うことを目的とする。これまでの実験より、UF6 ガスが鉄等の金属壁面に付着した後、金属壁面と化学反応を起こし、中間フッ化物を経て四フッ化ウラン(以下、UF4という。)へと変化していることが推定されている。しかしながら、依然として詳細な付着・化学反応・除染メカニズムは明らかとなっていないのが実情である。このような背景のもとで、最終的な目標である除染のメカニズムを解明するためには、それ以前の付着のメカニズムを解明する必要がある(Fig.1.2-1)。

したがって、本研究では、まず UF6 ガスの鉄等の金属壁面への付着、汚染のメカニズムについ て数値解析による調査を行う。数値解析手法としては、UF6 ガスの付着により、UF4 層が生成さ れている分子レベルの事象であることから、分子動力学法(以下、MD 法という。)を用いて、金 属固体表面にウラン化合物(最終的な形態は UF4)が付着する系における物理モデルの構築を行 う。この際、MD 法を用いて金属固体表面への UF6 ガスの吸着と化学形態の変化を解析するため には、分子間ポテンシャルなどの物性値が必要である。一般によく用いられる原子・分子に対し ては、既存の実験データや経験式があるため、それらの値を用いて計算することが可能である。 しかしながら、本研究で対象としているウラン化合物に関しては、正確なデータが不足している ため、第一原理に基づく非経験的な方法による物性値の取得が必要不可欠となる。このため、本 研究は分子軌道法解析プログラム GaussianO3 を用いて、UF6 に対して分子間ポテンシャルの計 算を行い、これらの結果を MD 法に適用し、UF6 ガスが金属固体表面に付着し、ウラン化合物(UF4) が蓄積していく系の物理モデルを構築する。

2. ポテンシャルモデルの構築

2.1 解析方法(Gaussian03 について)

MD 法で金属表面にウラン化合物が付着する系における物理モデルの構築を行うためには、金属-分子間における分子間ポテンシャルの構築が必須である。この分子間ポテンシャルを求めるために Gaussian03 を用いた。Gaussian03⁽¹⁾について以下に述べる。

世の中の全ての物質は膨大な数の原子核と電子から成っており、物質の多様な性質は、それを 構成する原子核と電子の状態によって決まる。逆にその状態、特に電子の状態を正しく知ること ができれば、評価対象とする物質の性質を知ることができる。

電子のような極微の粒子は量子力学の法則に従って運動しているので、対象となる電子系のシ ュレディンガー(Schrödinger)方程式を解いて波動関数を求めることができればその状態を知る ことができる。Gaussianシリーズは主として分子から成る系を対象とし、その波動関数を近似的 に求めて物質の様々な性質を計算できる汎用量子化学計算プログラムである。その歴史、機能の 豊富さ、使い勝手の良さなどからこの分野のプログラムの中では、化学に関係した様々な領域の 研究者に最も広く利用されているスタンダードなソフトウェアである。

計算できる物性は全エネルギーのほか分子の安定構造、基準振動数、熱力学関数、結合・反応 エネルギー、原子電荷、双極子モーメント、分極率、赤外吸収強度、NMR 化学シフト、静電ポ テンシャル等々、非常に多岐にわたり、しかも安定な化学種だけでなく、実験的には観測が難し い反応の中間体や遷移状態までも対象とすることができる。このように Gaussian03 は物質を扱 う全ての分野の研究に役立つソフトウェアである。

本研究では、この Gaussian03 を用いて、分子間にかかるポテンシャルの算出を行った。 Gaussian03 では、分子間ポテンシャルを求める際、Super molecule 法を採用している。これは 2 つの分子が同時に系に存在する場合と、1 つの分子が孤立して系に存在する場合のエネルギー差 から分子間ポテンシャルを求める手法である。分子間相互作用エネルギーを求める際、互いに作 用した相手の基底関数によるエネルギー安定化効果を見積もり、この分を Basis Set Superposition Error (BSSE)として取り除く必要がある。本来はエラーを見積もるためにはいく つかのパターンの計算を行いそれらのエネルギー結果より計算し、求めることが必要であり、複 数の計算を行わなければならなかったが、Gaussian03 では、Counterpoise キーワードにより、 1 つの入力から、それらの計算が全て行われるようにまとめられている。以下に、これらの入出 力に関して解説する。

はじめに、Gaussian03を用いた Counterpoise 法⁽²⁾による BSSE 計算の全体の流れを単純なケースとして相互作用した A、B 二分子のケースについて概説する。二分子のケースでは、Fig.2.1-1のように5つのパターンのエネルギー計算が行われる。実際に①~⑤の順に計算され、最後にこれらの補正がなされたエネルギー値が出力される形式となっている。

前頁のエネルギー計算①~⑤のそれぞれのエネルギーを①~⑤とすると BSSE は(2.1-1)のよう に求められる。

$$BSSE = (4 + 5) \cdot (2 + 3) \tag{2.1-1}$$

これにより、BSSE 補正された相互作用した状態のエネルギーは(2.1-2)のようになる。

BSSE Corrected energy=
$$(1 + BSSE$$
 (2.1-2)

ここで相互作用エネルギーを求める方法には二種類考えられる。すなわち、(ケース 1)相互作用 している分子 A、B が相互作用していない状態での構造と同じものを用いている場合および、(ケ ース 2)相互作用している分子 A、B と相互作用していない状態での構造とは異なる構造を用いて いる場合である。(ケース 1)の時、相互作用エネルギーは(2.1-1)、(2.1-2)より非常に簡単化される。

Interaction energy =
$$(4+5)$$
-BSSE Corrected energy= $2+3-1$ (2.1-2)

分散力のみで相互作用している弱い相互作用による場合は構造変化が殆ど無く、上記仮定は良い近似となる場合も多い。

(ケース 2)の時、個別分子 A、B のエネルギーを⑥、⑦とすると相互作用エネルギーは(2.1-3)のように表される。

最後に一般化し、n個の分子の相互作用系の場合の(2.1-1)、(2.1-2)に相当するエネルギー計算 は下記①'~③'の計算を二分子の場合と同様に行う。

①'全系(1、2、…n)のエネルギーを計算

②'分子 1~n の計算の際、左記の分子以外の分子上に基底関数のみを置いた計算

③'分子 1~n のみの計算の 2n+1 パターンの計算を実行

BSSE Corrected energy = $(1)' + BSSE = (1)' + ((\Sigma (3)') - (\Sigma (2)'))$ (2.1-4)

BSSE energy = $((\Sigma ③') \cdot (\Sigma @'))$ (2.1-5)

一般的には(2.1-5)が用いられる。

$$E_{MN} = E_{MN}(\varphi_{MN}) - \left\{ E_N(\varphi_M) + \Delta E_M(\varphi_{MN}) \right\} - \left\{ E_N(\varphi_N) + \Delta E_N(\varphi_{MN}) \right\}$$
(2.1-5)

ここで、 $E_{MN}(\varphi_{MN})$ は分子系 M、 Nの波動関数を用いて得られる分子系 M、 Nにおける全エ ネルギーである。 $\Delta E_{MN}(\varphi_{MN})$ は分子系 M、Nの波動関数を用いて得られる分子 Mの単体としての エネルギーであり、BSSE の補正項である。ここで M、 Nは前述の場合の A、B に相当する。本 解析で用いた Gaussian03 では、分子 N の全原子核を偽原子として取り扱うことによって $\Delta E_{MN}(\varphi_{MN})$ を計算している。オプションとしては、Counterpoise = Nを追加し、番号 Nを偽原子 に対応させる。

2.2 UF6- UF6 間ポテンシャルモデル解析結果

構造最適化された UF6をもとに、Fig.2.2-1 に示す頂点(V)、辺(E)、面(F)を基準として、 UF6-UF6間の位相 V-V、E-E、F-F で分子軌道計算を実施した。分子軌道計算には、分子基底関 数として核近傍の電子を有効内殻ポテンシャル(ECP)で表現した LANL2DZ(4)-(6)、電子相関 近似のレベルには MP2を採用した。2分子間距離r は、いずれも 4.0[Å]-8.0[Å]の範囲で 0.2[Å] 間隔に変化させた。

以下のモデル化により、あらゆる位相、距離に対して、UF6-UF6間の Morse ポテンシャルモデルの構築に必要な各種パラメータを算出した。

Fig.2.2・2に3種類の位置関係におけるポテンシャルエネルギーの比較を示す。それぞれの位置 関係における平衡結合間距離 *Re* および結合エネルギー*De* を Table.2.2・1 に示す。

また、UF6-UF6間分子間ポテンシャルに対して、二体間の斥力と引力の和で表わされる Morse ポテンシャルを用いてモデルの構築を行う。Morse ポテンシャルは以下の式で表わされる。

$$\phi(r) = De[\exp\{-2\beta(r - \text{Re})\} - 2\exp\{-\beta(r - \text{Re})\}]$$
(2.2.2-1)

ここで、*De* は解離エネルギー、*Re* は平衡原子間距離、 β はポテンシャルパラメータである。 分子軌道計算によって得られた V-V、E-E、F-F の結果に Morse ポテンシャルをフィッティング させると、ポテンシャルパラメータ β =1.4 のとき、計算結果と最もよく一致した。以後、他の位 相に対する UF₆- UF₆間の Morse ポテンシャルモデルには β = 1.4 を用いることにする。

次に、UF6の位相をランダムに変化させ、Fig.2.2-3 に示した 7 通りに位相を変化させた場合の 位相におけるポテンシャルエネルギーを求めた。ポテンシャルエネルギーを Fig.2.2-4 に示す。

分子間ポテンシャルの平衡原子間距離 Re が UF6 分子 m内のフッ素原子 mi と UF6 分子 n内の フッ素原子 mj との最近接原子間距離 Rmnのみ依存するとの仮定のもと、位相を変化させた場合の 最近接原子間距離 Rmn と平衡原子間距離 Re との相関関係を求めた。最小二乗法により Rmn と Re との間に以下のような関係式が得られた。

$$Re = -0.958R_{mn} + 7.89 \tag{2.2.2-3}$$

これにより、UF₆⁻ UF₆間の Morse ポテンシャルモデルに必要な平衡原子間距離 Re は、UF₆ 分子 m 内のフッ素原子 m_i と UF₆分子 n 内のフッ素原子 m_j の最近接原子間距離 R_{mn} から近似的 に求めることが可能となった。

最後に、平衡原子間距離 Reから結合エネルギーDeを求める。Re と De は指数的な変化をして いると考えられ、最小二乗法により Re と De との間に以下のような関係式が得られた。

$$De = 4.37 \exp(-0.951 \text{Re})$$
 (2.2.2-4)

これにより、UF6-UF6間の Morse ポテンシャルモデルに必要な結合エネルギー*De* は平衡原子 間距離 *Re* から近似的に求めることが可能となった。

2.3 UF6- Fe 間ポテンシャルモデル解析結果

構造最適化された UF₆をもとに、代表的な位相として、頂点(V)、辺(E)、面(F)を基準と して、Fe に対する UF₆の位相 V、E、F を考えた。分子軌道計算には、分子基底関数として核近 傍の電子を有効内殻ポテンシャル(ECP)で表現した LANL2DZ⁽³⁾⁻⁽⁵⁾、電子相関近似のレベルに は MP2 を採用した。2 分子間距離 rは、いずれも 4.0 [Å]÷8.0 [Å]の範囲で 0.2 [Å]間隔に変化さ せた。また、スピン多重度については、5、7、9 の場合を考えた。

以下のモデル化により、あらゆる位相、距離に対して、UF6-Fe 間の Morse ポテンシャルモデ ルの構築に必要な各種パラメータを算出することができた。

UF₆の位相V、E、Fにおけるポテンシャルエネルギーは、スピン状態によってエネルギーに若干ばら つきがみられた。そこで本研究では、最安定の基底配置をもつスピン多重度5を以後のポテンシャルモ デルの構築に採用した。Fig.2.3-1に3種類の位置関係におけるポテンシャルエネルギーの比較を示 す。また、それぞれの位置関係における平衡結合間距離*Re*および結合エネルギー*De*をTable.2.3-1に 併せて示す。

次に、UF6- UF6間ポテンシャルモデルの場合と同様に、UF6-Fe 間ポテンシャルに対して、式 (2.2.2-1)の Morse ポテンシャルを用いたモデルの構築を行う。分子軌道計算によって得られた V、 E、F の結果に Morse ポテンシャルをフィッティングさせると、ポテンシャルパラメータ β =0.8 のとき、計算結果と最もよく一致した。以後、他の位相に対する UF6-Fe 間の Morse ポテンシャ ルモデルには β =0.8 を用いることにする。

次に、UF6の位相をランダムに変化させ、それぞれの場合におけるポテンシャルエネルギーを 求めた。Fig.2.3-2 に 10 通りに位相を変化させた場合のポテンシャルエネルギーの比較を示す。 この図より、平衡原子間距離が大きくなるにつれて、結合エネルギーが 0 に近づく傾向がみられ る。

ここで、UF6-UF6間ポテンシャルの場合と同様に、分子間ポテンシャルの平衡原子間距離 *Re* が最近接原子間距離 *Rmn*にのみ依存するとの仮定のもと、位相を変化させた場合の最近接原子間距離 *Rmn*と平衡原子間距離 Re との相関関係を求めた。最小二乗法により *Rmn*と *Re* との間に以下のような関係式が得られた。

$Re = -0.6998R_{mn} + 4.1678 \tag{2.3.2-1}$

これにより、UF₆-Fe 間の Morse ポテンシャルモデルに必要な平衡原子間距離 Re は、UF₆分子 m内のフッ素原子 m_i と UF₆分子 n内のフッ素原子 n_j の最近接原子間距離 R_{mn} から近似的に求めることが可能となった。

最後に、平衡原子間距離 Re から結合エネルギーDe を求める。De は Re にかかわらずほぼ一定となった。したがって、UF6-Fe 間の Morse ポテンシャルモデルでは、結合エネルギーDe=7.5とした。

3. ウラン化合物付着現象モデルの構築

3.1 固体壁モデル(6)、(7)

気体分子と固体表面との干渉を MD 法で解析するためには分子構造をもった固体壁面を構築す る必要がある。本研究では、固体壁面として鉄の固体結晶分子を考える。実際の鉄の結晶構造に 従い、体心立法格子(Body-Centered Cubic、BCC)状に鉄原子を並べる。ここで、鉄の格子定 数 a は 2.87 [Å]である。なお、固体表面においては、様々なミラー指数の面が考えられるが、ここ では鉄原子が密に分布している(111)面のみを取り上げる。このとき、最近接分子間距離 ao は 2.49 [Å]となる.そして本研究では清浄な固体壁面モデルを考える。Fig.3.1-1の滑らかな面は表面 内の X方向に 10 原子、Y方向に 10 原子並べ、10×10の結晶分子配列を Z方向に 4 分子層とっ たものである。この結晶分子配列を持つ面をそれぞれ壁面モデルの一区画とし、通常の MD 法に おいて用いられるように周期境界条件を面に沿う方向に課すことによって無限に広がった鉄壁面 を作成し、これを固体壁面モデルとする。

3.2 MD 法について

MD 法とは、系を構成する原子や分子の運動に対して、その分子に働く力を分子間ポテンシャルの形で与えて、Newton の運動方程式を解くことにより、時間的に追跡する方法である。極めて単純であるが、実在の気体では系の粒子数が非常に多く、また分子干渉の時間スケールが極めて小さいことから、広範囲の空間に渡る全粒子の運動の追跡には、現在の高性能計算機をもってしても多大なる困難さを伴う。しかしながら、現実の分子数を対象としなくても現象が記述できる場合があり、限界をわきまえて取り扱いを行えば、これまで得られなかった現象の解析が行え、非常に有効であることから MD 法を採用している。

3.2.1 基礎方程式

MD 法では、全ての粒子が古典的な Newton 力学に基づいて運転していると仮定していること から、*N*個の同一粒子からなる系の分子 *i*の運動方程式は(3.2.1-1) となる。

$$\frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2} = \frac{\mathbf{F}_i}{m} \tag{3.2.1-1}$$

ここで、*m*は分子の質量、 \mathbf{r}_i は分子 *i*の位置ベクトル、 \mathbf{F}_i は分子 *i*に働く力のベクトル、tは時間 である.分子 *i*に働く力 \mathbf{F}_i は(3.2.1-2) で与えられる。

$$\mathbf{F}_{i} = \sum_{j=1(j\neq i)}^{N} \mathbf{F}_{i}$$
(3.2.1-2)

 \mathbf{F}_{ij} は分子 *i*が分子 *j*から受ける力であり、したがって分子間力、あるいは分子間ポテンシャル ϕ が必要となる.分子 *i*と分子 *j*との距離 *r*を *r*= | **r**_i-**r**_j | とすると \mathbf{F}_{ij} は以下のように表される。

$$\mathbf{F}_{ij} = -\nabla_i \phi(\mathbf{r}) \tag{3.2.1-3}$$

$$\nabla_{i} = \mathbf{i} \frac{\partial}{\partial x_{i}} + \mathbf{j} \frac{\partial}{\partial y_{i}} + \mathbf{k} \frac{\partial}{\partial z_{i}}$$
(3.2.1-4)

ただし $\mathbf{r}_i = (x_i, y_i, z_i), \mathbf{r}_j = (x_j, y_j, z_j)$ である. また \mathbf{F}_{ij} のx成分 F_{ij} は以下のようになる。

$$F_{ij_{x}} = -\frac{d\phi(r)}{dr} \frac{x_{i} - x_{j}}{r}$$
(3.2.1-5)

y、z成分についても同様の式が成り立つ。

3.2.2 分子間ポテンシャル

簡単な場合のポテンシャルとして、二分子間の距離 r の関数で与えられる二体間ポテンシャル のみを考える。二個の分子間に働く相互作用には、次の形の Lennard-Jones ポテンシャルがよく 用いられる。

$$\phi_{ij}(r) = 4\varepsilon \left\{ \left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r}\right)^{6} \right\}$$
(3.2.2-1)

ここで、 ϕ_{ij} はi、j二分子間のポテンシャル、rはi、j分子間距離、 ε はポテンシャル井戸の深 さ、 σ は最大直径である。

本解析では、固体表面と干渉を行う気体分子として UF₆をひとつの球体として考えた (united atom model)。この気体同士 (UF₆- UF₆)の分子間ポテンシャルには式 (3.2.2-1)の Lennard-Jones ポテンシャルを使用し、固体表面を構成する鉄の固体結晶分子同士 (Fe- Fe)のポテンシャルに ついても式 (3.2.2-1)の Lennard-Jones ポテンシャルを採用する。式中に含まれる定数としては Table3.2.2-1 で与えられる値を用いる。表の *m* は原子の質量、*k* は Boltzmann 定数である。異種分子同士のような混合系 α 、 β に対しては、経験的に用いられている次式の Lorentz-Berthelot 則を Lennard-Jones ポテンシャルに使用する。

$$\sigma_{\alpha\beta} = \frac{1}{2} \left(\sigma_{\alpha} + \sigma_{\beta} \right) \tag{3.2.2-2}$$

$$\varepsilon_{\alpha\beta} = \sqrt{\varepsilon_{\alpha}\varepsilon_{\beta}} \tag{3.2.2-3}$$

気体分子同士に対する式(3.2.2-1)の定数は、第二ビリアル係数を用いて決定されたものであ るが、気体分子間のポテンシャルを表す一つのモデルである。本研究では、気体分子が固体表面 に吸着された状態にある場合に対しても上記の定数が当てはまるものとして使用する。

鉄固体鏡面に衝突し、散乱される気体分子の挙動を調べるには、気体・固体分子間ポテンシャル を設定する必要がある。固体結晶分子と気体分子間のポテンシャルにおいても式(3.2.2-1)の Lennard-Jones ポテンシャルを用いた。

3.2.3 数値積分と無次元化

MD 法では式(3.2.1-1)を数値積分することにより、分子 i の各時刻での位置 **r***i*を計算する。数値 積分のアルゴリズムには、差分解法の一つであり、よく用いられるベルレ(Verlet)の方法⁽⁸⁾を使 用する。以下にその方法を示す。

$$\mathbf{r}_{i}(t+\Delta t) = 2\mathbf{r}_{i}(t) - \mathbf{r}_{i}(t-\Delta t) + (\Delta t)^{2} \frac{\mathbf{F}_{i}(t)}{m}$$
(3.2.3-1)

$$\mathbf{v}_{i}(t) = \frac{1}{2\Delta t} \left\{ \mathbf{r}_{i}(t + \Delta t) - \mathbf{r}_{i}(t - \Delta t) \right\}$$
(3.2.3-2)

ここで、 Δt は微小時間ステップ、 \mathbf{v}_i は分子 iの速度ベクトルである。 $t + \Delta t$ での座標を用いて、tでの速度を計算するので、座標と速度とは Δt だけ時間のずれを伴う。初期状態(t=0)での $\mathbf{r}_i(0)$ 、 $\mathbf{v}_i(0)$ を与えると(3.2.3-3)が求まり、式(3.2.3-1)、式(3.2.3-2)によりとびとびの離散時刻 $n\Delta t$ ($n=1, 2, 3, \cdots$)における分子の位置と速度の値が得られる。

$$\mathbf{r}_{i}(t+\Delta t) = \mathbf{r}_{i}(0) + \mathbf{v}_{i}(0)\Delta t + \frac{\mathbf{F}_{i}(0)}{m}\frac{(\Delta t)^{2}}{2}$$
(3.2.3-3)

ここで、式(3.2.3-1)をそのまま計算すると桁落ち誤差が発生するため、式(3.2.3-1)を以下の 3 式に分けて計算を実行する。

$$\mathbf{r}_{i}(t) = \mathbf{r}_{i}(t) - \mathbf{r}_{i}(t - \Delta t)$$
(3.2.3-4)

$$\Delta \mathbf{r}_{i}(t + \Delta t) = \Delta \mathbf{r}_{i}(t) + (\Delta t)^{2} \frac{\mathbf{F}_{i}(t)}{m}$$
(3.2.3-5)

$$\mathbf{r}_{i}(t + \Delta t) = \mathbf{r}_{i}(t) + \Delta \mathbf{r}_{i}(t + \Delta t)$$
(3.2.3-6)

以上の操作により桁落ち誤差を小さくすることができる。

次に、解析結果の一般化および方程式の単純化のために運動方程式(3.2.1-1)の無次元化を行う。 分子間に働く力として、式(3.2.2-1)のような Lennard-Jones ポテンシャルを考えると、式(3.2.1-5) から \mathbf{F}_{ij} の x成分 F_{ij_x} は(3.2.3-7) となる。

$$F_{ij_x} = \frac{48\varepsilon}{r} \left\{ \left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \frac{1}{2} \left(\frac{\sigma}{r}\right)^6 \right\} \frac{x_i - x_j}{r}$$
(3.2.3-7)

いま長さの基準として σ 、時間の基準に τ をとり、無次元距離 $x_i' = x_i / \sigma$ 、 $r'_i = r / \sigma$ 、無次元時間 $t' = t / \tau$ を用いると、運動方程式(3.2.1-1)の x成分は次式のようになる。

$$\frac{m\sigma^2}{48\varepsilon\tau^2} \frac{d^2 x'_i}{dt'^2} = \sum_{j=1}^{N-1} \left\{ \left(\frac{1}{r'}\right)^{12} - \frac{1}{2} \left(\frac{1}{r'}\right)^6 \right\} \frac{x'_i - x'_j}{r'}$$
(3.2.3-8)

ここで(3.2.3-9)のように変換すると、無次元化された運動方程式は(3.2.3-10)となる。

$$\tau = \sqrt{\frac{m\sigma^2}{48\varepsilon}} \tag{3.2.3-9}$$

$$\frac{d^2 x'_i}{dt'^2} = \sum_{j=1}^{N-1} \left\{ \left(\frac{1}{r'}\right)^{12} - \frac{1}{2} \left(\frac{1}{r'}\right)^6 \right\} \frac{x'_i - x'_j}{r'}$$
(3.2.3-10)

本数値積分では、各変数を鉄の質量 m_{Fe} 、および Fe-Fe 間の Lennard-Jones ポテンシャルのパ ラメータ σ_{Fe} 、 ε_{Fe} を用いて無次元化を行う。Table.3.2.3-1 に無次元化する際の基準値を示す。 ここで、kは Boltzmann 定数 $k = 1.380658 \times 10^{-14}$ [J/K]、 N_A はアボガドロ定数 $N_A = 6.0221367 \times 10^{23}$ [1/mol]である。したがって、時間 τ 、速度 vの無次元化に対しては次式を用いる。

$$\tau = \sqrt{\frac{m_{Fe}\sigma_{Fe}^2}{48\varepsilon_{Fe}}} \tag{3.2.3-11}$$

$$v = \sqrt{\frac{48\varepsilon_{Fe}}{m_{Fe}}} \tag{3.2.3-12}$$

なお、ベルレの方法を用いて(3.2.3·10)式を数値積分する際、本研究では無次元時間ステップ $\Delta t'(\Delta t / \tau)$ を 1/60 (0.809×10⁻¹⁵[sec])として計算を行っている。

本研究では、固体結晶分子の多数の相互作用において、力の計算時間を短縮化するために粒子 登録法⁽⁸⁾を使用している。短距離力での力の切断距離(カットオフ半径) r_e を設けても、全ての粒子 対について距離 rを計算し、 r_e との大小を比較しなければならず、粒子数の二乗に比例した膨大 な計算時間が必要になる。したがって、粒子登録法では、あらかじめ、ある粒子 iに対してカッ トオフ半径 r_e よりも大きい半径 R_e を設定し、この R_e 以内の粒子のみをリストアップしてから相 互作用を考慮する。本研究で用いた短距離力のカットオフ半径は固体結晶分子間および、固体-気 体分子間で r_e =3 σ_{Fe} 、気体分子同士では4 σ_{Fe} としている。また、粒子登録法で用いられる R_e に 関しては、本研究では固体結晶分子が自由に大きな距離を動くことができないことを考慮して、 R_e =3.2 σ_{Fe} に設定している。

3.2.4 固体壁の平衡状態

固体壁面の温度を設定温度 T_s の平衡状態に保つために、壁面分子の外側に Boltzmann 分布に 従う Phantom 分子を配置し、Phonon の伝播速度での熱の授受を行い、かつ一定温度に保たれた 熱浴を擬似的に実現する Langevin 法による温度制御⁽⁹⁾などがあるが、本研究では、気体分子の壁 面での散乱に及ぼすこれらの影響は小さいと考え、MD 法で広く用いられているスケーリングに よる温度制御法⁽⁸⁾を使用する。すなわち、壁面を構成している固体結晶分子の平均エネルギー $\langle E_k \rangle$ と瞬間温度 T_t との関係は(3.2.4-1) と(3.2.4-2) で与えられる。

$$\langle E_k \rangle = \frac{1}{2N} m_{pt} \sum_{i=1}^N v_i^2$$
 (3.2.4-1)

$$T_t = \frac{2}{3k} \langle E_k \rangle \tag{3.2.4-2}$$

ここで Nは固体分子の数、vは固体分子の速度、kは Boltzmann 定数である。これにより、 各ステップにおける固体壁の瞬間温度が T_t 算出できる。この瞬間温度 T_t と設定温度 T_s に保つ. 本研究では壁温 T_w =300[K]の固体壁面を考えているため、 T_s =300[K]と設定している。

3.3 Fe 壁面の場合

3.3.1 解析条件(Fe壁面)

本研究の解析では平衡状態を仮定しており、Fig.3.3.1-1 に示すように固体壁面に沿う方向(自 矢印)に周期境界条件を課しており、これにより無限遠に広がる壁面を想定している。具体的に は x方向に 22.09[Å]、y方向に 22.09[Å]である。また、シミュレーションの際、UF₆分子をひと つの球体分子として近似する United atom model を採用している。また、UF₆分子は 24.30[Å] の高さから入射し、この入射してくる UF₆分子は 300[K]における平衡分布関数によりランダムに 速度を設定している。入射時間間隔は 40 [fs] に一つ入射する。 分子間ポテンシャルの演算は、式(3.2.2-1 から 3.2.2-3)に示す Lennard-Jones ポテンシャルに よりモデル計算を行った。これに 2 章で求めたランダムな位相においてのポテンシャルと V-V、 E-E、F-F のポテンシャルの平均を取り、平均値のカーブ (Fig.3.3.1-2) を求め、これに Lennard-Jones ポテンシャルをフィッティングさせることでモデル化を行った。(Fig.3.3.1-3) ま た、各パラメータが σ =6.15 [Å]、 ε =0.01039858 [eV] のとき最もよく平均値のカーブに一致し た。これを UF6-UF6 ポテンシャルモデルとし、MD 解析に用いる。

その他の Fe-Fe⁽¹⁰⁾, UF₄-UF₄, Fe-UF₆, Fe-UF₄, UF₆- UF₄に関する σ , ε を Table3.2.2-1 に示す。 ここで、UF₄-UF₄はデータがないため、同じ固体として物性値の有する UF₅- UF₅⁽¹¹⁾における σ , ε を代用した。Fe - UF₆, Fe - UF₄, UF₆- UF₄は式 (3.2.2-3) の Lorentz-Berthelot 則を用いて値を 定め、これらの値を Table.3.2.2-1 に示す。Table.3.2.2-1 の σ , ε を用いて Lennard-Jones ポテン シャル曲線を描いたものを Fig.3.3.1-4 に示す。

3.3.2 解析結果(Fe壁面)

Fig.3.3.2-1 に UF₆分子が Fe 固体壁面に付着する様子を示す。ここで step とはコマ数を表しており、1step は実時間で 0.809 [fs]である。

ここで、UF6が壁面に衝突し、付着する際、UF4への化学変化とそれに伴うフッ素の固体壁面 内への拡散が考えられる。その際の化学変化の反応経路は、前述の 1.2 節より、Fig.3.3.2-2 のよ うに推測されているが、本解析では、今回中間生成物として考えられる U₂F9や U₄F17においては 考慮せず、簡単な化学反応モデル(後述)に基づく Fe 壁面への UF6分子吸着の系を考えた。

解析の結果、UF6 分子が入射し、鉄壁面と物理吸着を繰り返す結果を得られた。しかし吸着に より形成された層が 1 層できると、それ以降は吸着せず反射する挙動を示した。これにより物理 吸着だけでは層は形成されないことがわかり、化学吸着を考慮した化学反応に対応したモデルを 作成する必要があることが示唆される結果となった。さらに、UF6 が鉄壁面へ付着する様子を詳 しく見てみる。Fig.3.3.2-3 は 273step から 397step までを 3step ごとに示した図である。これは 鉄表面へ UF6分子が吸着する様子を表しており、UF6分子の層が形成されていないときは物理吸 着することがわかる。一方、Fig.3.3.2-4 は 1807step から 1828step までを 3step ごとに記した図 であるが、UF6が一層形成されると、その後、UF6分子は吸着せず反射していることがわかる。

3.4 Fe 壁面に UF4 層が形成された場合

次に Fe 壁面に UF₄層が形成されたときの UF₆分子の物理吸着挙動について解析を行った。各 種パラメータは Table.3.2.2-1 を用い、3.1 同様 MD 法によりシミュレーションを行った。

3.4.1 解析条件(UF4層)

本解析の条件は 3.3.1 章同様、平衡状態を仮定しており、Fig.3.3.1-1 に示すように固体壁面に 沿う方向(白矢印)に周期境界条件を課しており、これにより無限遠に広がる壁面を想定してい る。具体的には x方向に 22.09[Å]、y方向に 22.09[Å]であり、シミュレーションの際、United atom model を採用している。また、UF₆分子は 24.30[Å]の高さから入射し、この入射してくる UF₆分 子は 300[K]における平衡分布関数によりランダムに速度を設定している。入射時間間隔は 40[fs] である。これらに加え、あらかじめ Fe 壁面に UF4 層を形成している。分子間ポテンシャルの演 算は、3.2.2 章に示す Lennard-Jones ポテンシャルによりモデル計算を行い、Table.3.3.1-1 に示 す各分子のパラメータを用いた。

3.4.2 解析結果(UF4層)

Fig.3.4.2-1に解析結果を示す。ここでstepとはコマ数を表しており、1stepは実時間で0.809[fs] である。

Fig.3.4.2-1 のように 0step から 1000step まで UF6分子は吸着せず、反射する挙動を示し、以降も同様 UF4- UF6間において物理吸着は無かった。これらの結果より、UF4表面に対しては、UF6は物理吸着することはなく、なんらかの化学反応による化学吸着が起こり、U2F9や U4F17などの中間生成物を経て、最終的には安定な化学形態のウラン化合物である UF4となっているのではないかと考えられる。したがって、UF6の UF4表面への付着現象を正確に再現するためには、化学吸着を考慮した化学反応モデルを構築する必要があることが示唆される。

ー例として、ある UF₆分子の反射する挙動について Fig.3.4.2-2 に 1300step から 1324step を 3step ごとに記す。この Fig.3.4.2-2 からも UF₄層が付着している場合、物理吸着せず反射してい ることがわかる。

3.5 化学吸着を模擬した場合

UF6分子の物理吸着のみを考えた計算では UF6分子は1層目のみ吸着し、蓄積はしなかった。 このことから物理吸着だけでなく、化学吸着を模擬したモデルの構築を行った。

一般的に分子が衝突すると、(1)表面で反射する場合(反射)、(2)分子状態で表面に吸着する 場合(分子吸着)、(3)いくつかの原子に解離して表面に吸着する場合(解離吸着)、(4)表面に 物理的に吸着する場合、の四つの場合⁽¹¹⁾が生じる。物理吸着に関しては先ほどの章でも述べてお り、解離吸着は、本研究は United atom model を採用しているので対象とはしない。したがって 今回は分子吸着のみについて考慮した。

3.5.1 解析条件(化学吸着)

本解析の条件は 3.3.1 章同様、平衡状態を仮定しており、Fig.3.3.1-1 に示すように固体壁面に 沿う方向(白矢印)に周期境界条件を課しており、これにより無限遠に広がる壁面を想定してい る。具体的には x方向に 22.09[Å]、y方向に 22.09[Å]であり、シミュレーションの際、United atom model を採用している。また、UF6分子は 24.30[Å]の高さから入射し、この入射してくる UF6分 子は 300[K]における平衡分布関数によりランダムに速度を設定している。入射時間間隔は 40[fs] である。これらに加え、あらかじめ Fe 壁面に UF4層を形成している。分子間ポテンシャルの演 算は、3.2.2 章に示す Lennard-Jones ポテンシャルによりモデル計算を行い、Table.3.2.2-1 に示 す各分子のパラメータを用いた。

また、この現象を数値的に判定するため、以下のような判定条件⁽⁹⁾を用いて数値的に分類した。 まず、UF6分子が衝突してから 1.681[ps] (=2000× Δt) 経過しても、UF6分子重心の振動回数 が表面法線方向に2回以下の場合を反射とみなした。これは、金属原子の振動周期から判断して 表面上に吸着している場合には2[ps]の間に少なくとも3回以上は振動するためである。以上の反 射の条件を満たさない場合を分子吸着状態であると判断した。

3.5.2 解析結果(化学吸着)

Fig.3.5.2-1、Fig.3.5.2-2 に、化学反応モデルの判定によって吸着する場合の例と、反射する場合の例を示す。Fig.3.5.2-1 は 1487step から 6step ごとの図であり、Fig.3.5.2-2 は 1687step から 6step ごとの図である。ここで step とはコマ数を表しており、1step は実時間で 0.809 [fs]である. Fig.3.5.2-1 より、入射してきた UF6分子が吸着していることがわかる。これは、上述の化学反応 モデルの判定条件により、UF6分子が UF4表面に衝突してから 1.681[ps]経過した際に、UF6分子 重心の振動回数が表面法線方向に 2 回以上であることから、吸着と判断され、UF4分子へと変 化したことを表している。ここで、吸着した分子の数は、入射された分子全体の約 10%であった。

次に、吸着する分子と反射する分子の入射時の特性の比較を行った。Fig.3.5.2-3、Fig.3.5.2-4 にそれぞれ、吸着する場合と、反射する場合における入射時の入射速度分布の比較を示す。ここ で、横軸は入射エネルギー、縦軸は該当する入射速度をもつ分子数の割合を示している。これら の図より、入射速度の低い分子がより多く壁面へ吸着する傾向を示すことがわかる。また、 Fig.3.5.2-5、Fig.3.5.2-6 にそれぞれ、吸着する場合と、反射する場合における入射時の入射エネ ルギー分布の比較を示す。図より、入射速度と同様に、入射エネルギーの低い分子がより多く壁 面へ吸着する傾向を示すことがわかる。これらの結果より、今回の化学反応モデルにおいて、入 射時の特性が判定条件に大きな影響を及ぼしていることが明らかとなった。

次に、入射角、衝突時の位置についても調査を行った. Fig.3.5.2-7、Fig.3.5.2-8 にそれぞれ、 吸着する場合と、反射する場合における入射時の入射角分布の比較を示す。両者を比較すると、 若干ではあるが、吸着する場合、70°付近で、反射する場合に比べ、分子数が多くなっているが、 それ以外はほとんど違いは見られなかった。つまり、今回の化学反応モデルにおける判定条件に 対する入射角依存性は低いと考えられる。最後に、Fig.3.5.2-9 に、衝突時の位置の比較を示す。 これは上から見た図であり、*xy*平面を表している。図より、衝突位置に関して、ともに偏りは見 られず、今回の化学反応モデルにおいて、付着している UF4分子の配置の影響は低いと考えられ る。

4. 結言

本研究では、除染の際のガス流動解析に必要なウラン化合物が付着した壁面状態を明らかにす るために、第一段階として、分子軌道法解析プログラム Gaussian03 を用いたウラン化合物に対 するポテンシャル関数の構築、および、MD 法を用いた金属壁面付着解析を行った。

まず、Gaussian03を用い、UF6-UF6間、UF6-Fe間の分子間ポテンシャルを求め、新しいポ テンシャルモデルを構築した。Gaussian解析の結果、UF6同士、およびUF6と鉄原子との間の 分子間ポテンシャルはお互いの配置角度によって大きく異なることが明らかとなった。

次に、Gaussian03を用いて求められたUF6⁻UF6間の分子間ポテンシャルエネルギーをもとに、 MD 法を用いて金属壁面(鉄)に対するUF6分子の吸着現象を物理モデルとして構築した。その結 果、鉄表面へのUF6の物理吸着現象を再現することができた。物理吸着のみを考えた場合、UF6 は鉄表面に分子1層の吸着膜を形成したが、それ以降は吸着することなく反射を繰り返した。つ まり、既報⁽¹²⁾に示したウラン化合物の付着状況を再現するためには、鉄表面に対するUF6の物理 吸着だけでは不十分で、化学吸着を考慮する必要があることを示唆する結果となった。また、UF4 が壁面に付着した状態でUF6を入射させると、全く吸着することなく反射を繰り返す挙動を示し た。つまり、UF4表面に対して、UF6は物理吸着することなく、化学吸着のみを行うことが示唆 された。これらの結果に基づき、UF4表面に対して UF6が吸着するモデルを模擬した解析では、 付着確率は分子の入射エネルギーに大きく依存していることが明らかとなった。これらの結果は、 今後、除染のメカニズムを解明するにあたって重要なデータとなり得る。

これらの知見を踏まえ今 IF7による除染メカニズムを解明するためには、先ず、量子 MD 法に 基づいた金属壁面化学反応モデルを構築する必要がある。そのためには、ウラン化合物の物理的 特性についてさらに詳細な解析を行っていくことが必要で。具体的には、UF6が UF4として表面 に付着する際に、中間化合物として生成されると考えられる U2F9 やU4F17について、Gaussian03 を用いて化学反応としてどのような反応経路をたどるのかを追跡し、その際の活性化エネルギー などを求める必要がある。これらの化学反応特性を MD 法に組み込むことにより、より正確なウ ラン化合物付着現象解析が可能となる。また、フッ素-鉄原子、および、フッ素-ウラン化合物 間の詳細な分子間ポテンシャルを求めることで、壁面での化学反応によって生じたフッ素の壁面 内拡散現象を再現することができる。これらのシミュレーションを系統的に行うことによって、 最終的には、除染の際に必要となる金属壁面状態の理解、さらには除染を阻害する因子の把握が 可能となる。

参考文献

- (1) 岩手大学高速計算サーバ ALTX アプリケーション用チュートリアル, "汎用量子化学計算プ ログラム Gaussian 03 入門"http://kilkhor.cc.iwate-u.ac.jp/altix/Gaussian03.pdf
- (2) 旭硝子(株) 中央研究所 入澤潤, "Gaussian03 による Counterpoise 法を用いた分子相互 作用エネルギー計算" http://www.aspronc.org/pdf/jisedai_3-ippan/CCWS3_2-01-01.pdf
- (3) Hay, P. J. and Wadt, W. R., "Ab initio Effective Core Potentials for Molecular Calculation. Potentials for the Transition Metal Atoms Sc to Hg", J. Chem. Phys., 82 (1985) pp. 270-283.
- (4) Wadt, W. R. and Hay, P. J., "Ab intio Effective Core Potentials for Molecular Calculations. Potentials for Main Group Elements Na to Bi", J. Chem. Phys., 82 (1985) pp. 284-298.
- (5) Hay, P. J. and Wadt, W. R., "Ab initio Effective Core Potentials for Molecular Calculations. Potentials for H to Au Including the Outermost Core Orbitals", J. Chem. Phys., 82 (1985) pp. 299-310.
- (6) 山本恭二,武内秀樹,百武徹,"固体壁面における気体分子反射特性の MD 法による解明,(第 1報,流れ問題の場合)",日本機械学会論文集,70-691,B(2004),pp.602-609.
- (7) 武内秀樹, "希薄気体流れにおける固体壁面での気体分子干渉に関する分子動力学的研究", 岡山大学大学院自然科学研究科,博士論文 (2006).
- (8) 上田顕, コンピュータシミュレーション, (1990) 朝倉書店.
- (9) 芝原正彦,高見英治,香月正司,"酸素分子の銀表面衝突過程における反応確立と表面エネ ルギ伝達に関する研究(表面付着分子と酸素分子の内部運動の影響)",日本機械学会論文 集,68-670,B(2002), pp.1760-1761.
- (10) 芝原正彦, 功刀資彰, 香月正司, "ナノスケールの構造物が界面エネルギ伝達へ与える影響 (分子動力学析)", 日本機械学会論文集, 70-693, B (2004), pp. 1273-1275.
- (11) 大野雄二郎, 岡本毅, "固体壁面へのウラン化合物の付着シミュレーション実験", 2008 年度 核物理管理学会日本支部年次大会論文集(in CD-ROM)
- (12)百武徹,武藤明徳,笹倉万里子,箕輪弘嗣,鈴木和彦,横山薫,高橋信雄,綱嶋康倫、江 間晃,杉杖典岳,"数値解析手法による乾式除染性能評価に関する研究",JAEA-Research 2009-047, (2010)日本原子力研究開発機構.

	Re [Å]	$De [\mathrm{eV}]$
V-V	7.8	$2.89 imes 10^{-3}$
E-E	6.8	$3.60 imes 10^{-3}$
F-F	5.8	$1.04 imes 10^{-2}$

Table2.2-1 各位相における平衡結合間距離および結合エネルギー(UF6-UF6)

Table2.3-1 各位相における平衡結合間距離および結合エネルギー(UF₆-Fe)

	<i>Re</i> [Å]	$De [\mathrm{eV}]$
V	4.0	7.299
Ε	3.0	7.502
F	2.8	7.631

Atom pairs	$\sigma[\text{\AA}]$	ɛ[eV]
UF ₆ - UF ₆	6.15	0.01039858
Fe- Fe	2.209	0.24969
UF ₄ - UF ₄	4.92	0.091136
UF6- UF4	5.535	0.050955
Fe - UF ₆	4.179	0.15085
Fe - UF ₄	3.565	0.030784

Table3.2.2-1 各分子のパラメータ

Table3.2.3-1 無次元化における基準値

145100.2) @ 出十 l E
Length	σ_{Fe}	2.209[Å]
Mass	$m_{Fe}N_A$	55.847[g]
Temperature	ε_{Fe}/k	2897.169[K]
Time	τ	$0.809 \times 10^{-15} [s]$
Velocity	v	$4.55 \times 10^{3} [m/s]$



Fig.1.2-1 分子レベルでの汚染・除染メカニズム



Fig.2.1-1 二分子の BSSE を求めるエネルギー計算パターン



Fig.2.2-1 UF6分子の位相(頂点(V)、辺(E)、面(F))



Fig.2.2-2 ポテンシャルエネルギーの比較(V-V、E-E、F-F)





Fig.2.2-3 7 通りの位相



Fig.2.2-4 ポテンシャルエネルギーの比較(7位相をランダムに変化させた場合)



Fig.2.3-1 ポテンシャルエネルギーの比較 (V、 E、 F)



Fig.2.3-2 ポテンシャルエネルギーの比較(10位相をランダムに変化させた場合)



Fig.3.1-1 Fe 固体壁面 smooth モデル



Fig.3.3.1-1 解析条件



Fig.3.3.1-2 ランダムな位相、V-V、E-E、F-Fのポテンシャル平均値



Fig.3.3.1-3 Lennard-Jones ポテンシャルによるフィッティング



Fig.3.3.1-4 Lennard-Jones ポテンシャル曲線



Fig.3.3.2-1 UF6分子の物理吸着モデル(Fe 壁面)







Fig.3.3.2-3 UF₆分子が Fe 壁面へ付着する様子(273-397step)



Fig.3.3.2-4 UF6分子が Fe 壁面で反射する様子(1807-1828step)

JAEA-Research 2010-032



(a) 0 step

(b)500 step

(c)1000 step





Fig.3.4.2-2 UF6分子が UF4表面で反射する様子(1300-1324step)

JAEA-Research 2010-032



Fig.3.5.2-1 UF₆分子が UF₄壁面に吸着する様子(1487-1529 step)





Fig.3.5.2-2 UF₆分子が UF₄壁面で反射する様子(1687-1723 step)











Fig.3.5.2-5 吸着した場合の入射エネルギー分布



Fig.3.5.2-6 反射した場合の入射エネルギー分布

Fig.3.5.2-7 吸着した場合の入射角分布

Fig.3.5.2-8 反射した場合の入射角分布

Fig.3.5.2-9 衝突位置の比較(上から見た図)

表 1. SI 基本単位				
II 基本単位				
巫平里	名称	記号		
長さ	メートル	m		
質 量	キログラム	kg		
時 間	秒	s		
電 流	アンペア	А		
熱力学温度	ケルビン	Κ		
物質量	モル	mol		
光 度	カンデラ	cd		

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例			
_{知力是} SI 基本	5単位		
和立重 名称	記号		
面 積平方メートル	m ²		
体 積 立法メートル	m ³		
速 さ , 速 度 メートル毎秒	m/s		
加速 度メートル毎秒毎秒	m/s^2		
波 数 毎メートル	m ^{·1}		
密度, 質量密度キログラム毎立方メ	ートル kg/m ³		
面 積 密 度キログラム毎平方メ	$- \vdash \nu = kg/m^2$		
比体積 立方メートル毎キロ	グラム m ³ /kg		
電 流 密 度 アンペア毎平方メ・	$- h \mu A/m^2$		
磁界の強さアンペア毎メート	ル A/m		
量濃度(a),濃度モル毎立方メート	$\nu mol/m^3$		
質量濃度 キログラム毎立法メ	ートル kg/m ³		
輝 度 カンデラ毎平方メ・	ートル cd/m ²		
屈 折 率 ^(b) (数字の) 1	1		
比 透 磁 率 (b) (数字の) 1	1		

(a) 量濃度(amount concentration)は臨床化学の分野では物質濃度(substance concentration)ともよばれる。
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

	SI 組立単位			
組立量	名称	記号	他のSI単位による 表し方	SI基本単位による 表し方
亚 面 催	ラジア、(b)	rad	1 ^(b)	m/m
· 监	マテラジア、(b)	cm ^(c)	1 (b)	m^{2/m^2}
	(d)	H ₇	1	
л Ц »	ニュートン	N		m lra o ⁻²
	パフカル	Do	N1/2	111 Kg S
		га	N/m	m kg s
エネルキー、仕事、烈量	シュール	1	N m	m² kg s²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電荷,電気量	クーロン	C		s A
電位差(電圧),起電力	ボルト	V	W/A	$m^2 kg s^{-3} A^{-1}$
静電容量	ファラド	F	C/V	$m^{-2} kg^{-1} s^4 A^2$
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	$m^2 kg s^{-3} A^{-2}$
コンダクタンス	ジーメンス	s	A/V	$m^{-2} kg^{-1} s^3 A^2$
磁東	ウエーバ	Wb	Vs	$m^2 kg s^2 A^1$
磁束密度	テスラ	Т	Wb/m ²	$\text{kg s}^{-2} \text{A}^{-1}$
インダクタンス	ヘンリー	Н	Wb/A	$m^2 kg s^2 A^2$
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光 束	ルーメン	lm	cd sr ^(c)	cd
照度	ルクス	lx	lm/m^2	m ⁻² cd
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量、比エネルギー分与、	12. 1		7.0	9 -9
カーマ	2 2 1	Gy	J/kg	mĩsĩ
線量当量,周辺線量当量,方向	(a)	~		9.9
性線量当量,個人線量当量	シーベルト(g)	Sv	J/kg	m ² s ²
酸素活性	カタール	kat		s ^{'1} mol

(a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはや

(a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはや コヒーレントではない。
 (b)ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。 実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。
 (c)測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
 (d)ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性抜種の統計的過程についてのみ使用される。
 (e)セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。
 (e)セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度で表すために使用される。
 (f)数単位を種の大きさは同一である。したがって、温度差や温度問隔を表す数値はとちらの単位で表しても同じである。
 (f)数単性核種の放射能(activity referred to a radionuclide)は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
 (g)単位シーベルト(PV,2002,70,205)についてはCIPM勧告2(CI-2002)を参照。

表4.単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

	SI 組立単位		
組立量	名称	記号	SI 基本単位による 表し方
粘质	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
カのモーメント	ニュートンメートル	N m	$m^2 kg s^2$
表 面 張 九	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角 速 度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
角 加 速 度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s^2	$m m^{-1} s^{-2} = s^{-2}$
熱流密度,放射照度	ワット毎平方メートル	W/m^2	kg s ⁻³
熱容量、エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2 kg s^{2} K^{1}$
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	$m^2 s^{-2} K^{-1}$
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	$m^{2} s^{-2}$
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電 荷 密 度	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ sA
表 面 電 荷	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² sA
電 束 密 度 , 電 気 変 位	クーロン毎平方メートル	C/m^2	m ⁻² sA
誘 電 卒	ファラド毎メートル	F/m	$m^{-3} kg^{-1} s^4 A^2$
透 磁 率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	$m^2 kg s^2 mol^1$
モルエントロピー,モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	$m^{2} kg s^{2} K^{1} mol^{1}$
照射線量(X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ sA
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	$m^{2} s^{-3}$
放射 強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	$m^4 m^{-2} kg s^{-3} = m^2 kg s^{-3}$
放射輝 度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	$W/(m^2 sr)$	m ² m ⁻² kg s ⁻³ =kg s ⁻³
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ⁻³ s ⁻¹ mol

表 5. SI 接頭語					
乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10^{24}	э 9	Y	10^{-1}	デシ	d
10^{21}	ゼタ	Z	10^{-2}	センチ	с
10^{18}	エクサ	Е	10^{-3}	ミリ	m
10^{15}	ペタ	Р	10^{-6}	マイクロ	μ
10^{12}	テラ	Т	10^{-9}	ナーノ	n
10^{9}	ギガ	G	10^{-12}	ピョ	р
10^{6}	メガ	М	10^{-15}	フェムト	f
10^{3}	キロ	k	10^{-18}	アト	а
10^{2}	ヘクト	h	10^{-21}	ゼプト	z
10^{1}	デ カ	da	10^{-24}	ヨクト	У

表 6. SIに属さないが、SIと併用される単位					
名称	記号	SI 単位による値			
分	min	1 min=60s			
時	h	1h =60 min=3600 s			
日	d	1 d=24 h=86 400 s			
度	۰	1°=(п/180) rad			
分	,	1'=(1/60)°=(п/10800) rad			
秒	"	1"=(1/60)'=(п/648000) rad			
ヘクタール	ha	1ha=1hm ² =10 ⁴ m ²			
リットル	L, 1	1L=11=1dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³			
トン	t	$1t=10^{3}$ kg			

_

表7.	SIに属さないが、	SIと併用される単位で、	SI単位で
	まとわて粉は	ぶ 中 瞬時 ほう や て そ の	

衣される数値が美敏的に待られるもの					
名称	記号	SI 単位で表される数値			
電子ボルト	eV	1eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J			
ダルトン	Da	1Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg			
統一原子質量単位	u	1u=1 Da			
天 文 単 位	ua	1ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m			

表8.SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位					
	名称記一			SI 単位で表される数値	
バ	1	ル	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=10 ⁵ Pa	
水銀柱ミリメートルmmHg				1mmHg=133.322Pa	
オン	グストロー	- 4	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m	
海		里	М	1 M=1852m	
バ	-	\sim	b	1 b=100fm ² =(10 ⁻¹² cm)2=10 ⁻²⁸ m ²	
1	ツ	ŀ	kn	1 kn=(1852/3600)m/s	
ネ	-	パ	Np	ar送佐1	
ベ		ル	В	▶ 51 単位との 叙 値的 な 阕徐 は 、 対 数 量の 定 義 に 依 存.	
デ	ジベ	N	dB -		

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位					
名称	記号	SI 単位で表される数値			
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J			
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N			
ポアズ	Р	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s			
ストークス	St	$1 \text{ St} = 1 \text{ cm}^2 \text{ s}^{\cdot 1} = 10^{\cdot 4} \text{m}^2 \text{ s}^{\cdot 1}$			
スチルブ	$^{\mathrm{sb}}$	$1 \text{ sb} = 1 \text{ cd} \text{ cm}^{-2} = 10^4 \text{ cd} \text{ m}^{-2}$			
フォト	ph	1 ph=1cd sr cm ^{-2} 10 ⁴ lx			
ガル	Gal	$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm s}^{-2} = 10^{-2} \text{ ms}^{-2}$			
マクスウェル	Mx	$1 \text{ Mx} = 1 \text{ G cm}^2 = 10^{-8} \text{Wb}$			
ガウス	G	$1 \text{ G} = 1 \text{Mx cm}^{-2} = 10^{-4} \text{T}$			
エルステッド ^(c)	Oe	1 Oe ≙ (10 ³ /4π)A m ⁻¹			

(c) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ▲ 」 は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例						
名称 記号				記号	SI 単位で表される数値	
+	ユ		IJ	ĺ	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
ν	ン	ŀ	ゲ	\sim	R	$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{C/kg}$
ラ				ド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
ν				L	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガ		$\boldsymbol{\mathcal{V}}$		7	γ	1 γ =1 nT=10-9T
フ	I.		ル	11		1フェルミ=1 fm=10-15m
メ	ートル	/系	カラ:	ット		1メートル系カラット = 200 mg = 2×10-4kg
ŀ				N	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標	準	大	気	圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カ			IJ	ļ	cal	1cal=4.1858J(「15℃」カロリー), 4.1868J (「IT」カロリー)4.184J(「熱化学」カロリー)
Ξ	ク		П	ン	μ	$1 \text{ u} = 1 \text{ um} = 10^{-6} \text{ m}$

この印刷物は再生紙を使用しています