



JAEA-Review
2007-028

JAEA-Review

先行基礎工学研究に関する平成18年度研究概要報告

Brief Report of the JAEA Cooperative Research (A) on the Nuclear Fuel Cycle
for 2006

(編)研究協力課
(Eds.) Research Cooperation Section

産学連携推進部
Industrial Collaboration Promotion Department

September 2007

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは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 (<http://www.jaea.go.jp/index.shtml>)
より発信されています。このほか財団法人原子力弘済会資料センター*では実費による複写頒布を行っ
ております。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4
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
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920

* 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4 日本原子力研究開発機構内

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

© Japan Atomic Energy Agency, 2007

先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告

日本原子力研究開発機構 産学連携推進部
(編) 研究協力課

(2007 年 6 月 11 日 受理)

機構では、大学及び関連研究機関（以下「大学等」という。）との研究協力の推進を図るため、平成 7 年度から先行基礎工学研究協力制度を発足させ、平成 18 年度で 12 年目を迎えた。

同制度は、機構の施設及び設備を主に利用し、核燃料サイクル技術の確立に係わる研究開発プロジェクトに先行した基礎・基盤的研究を大学等との研究協力により推進することを目的とする。

同制度では、機構が設定した研究協力テーマに対して、大学等から研究目的を達成する上で必要な手法、アイデア等を研究協力課題として提案して頂き、外部の専門家を中心とする選考委員会で研究協力課題を選考している。

研究協力形態としては、大学等との共同研究の実施または客員研究員として受け入れる形態を採用している。なお、共同研究または客員研究員に大学院博士課程の学生を研究生として加えることも可能としている。

本報告書は、平成 18 年度に実施した高速増殖炉関係、核燃料サイクル関係、放射線安全関係及び地層処分・地層科学関係の先行基礎工学研究に関する 34 件の研究協力課題の実施結果についてその概要をまとめたものである。なお、34 件の研究協力課題のうち、高速増殖炉関係の 5 件、核燃料サイクル関係の 1 件、放射線安全関係の 2 件及び地層処分・地層科学関係の 4 件の合計 12 件については平成 17 年度で終了した。

**Brief Report of the JAEA Cooperative Research (A) on the Nuclear Fuel Cycle
for 2006**

(Eds.) Research Cooperation Section

Industrial Collaboration Promotion Department
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received June 11, 2007)

The Japan Atomic Energy Agency (JAEA) started the JAEA Cooperative Research Scheme (A) on the Nuclear Fuel Cycle in 1995 in order to promote research collaboration with universities and other research institutes (referred to as “universities, etc.” below), which means that the fiscal year 2006 was the twelfth year of the scheme.

The purpose of this scheme is to promote the basic and fundamental research that precedes the research and development projects in relation to the establishment of nuclear fuel cycle technology through collaboration with universities, etc. by using mainly JAEA’s facilities and equipment.

Under the scheme, universities, etc. propose methods and ideas, etc. to lead to the achievement of the goals of research collaboration themes which are set by JAEA as research collaboration subjects. Then a screening committee consisting mainly of experts independent of JAEA screens the research collaboration subjects.

Research collaboration is performed by carrying out cooperative research with universities, etc. or by accepting researchers from universities, etc. as Visiting Research Fellows at JAEA. The scheme allows students studying for doctorates at postgraduate schools either to participate in the cooperative research or to be accepted as trainee researchers.

This report includes a summary of the results of the research carried out in fiscal year 2006 on 34 research collaboration subjects for preceding basic engineering research related to fast breeder reactors, the nuclear fuel cycle, radiation safety and geological disposal/geoscience; twelve of which ended in 2006. Of these, five were related to fast breeder reactors, one to the nuclear fuel cycle, two to radiation safety, and four to geological disposal/geoscience.

Keywords : Fast Breeder Reactor, Nuclear Fuel Cycle, Radiation Safety,
Geological Disposal / Geoscience

目次

1	先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究協力課題一覧	1
2	先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告	
2.1	高速増殖炉関係	
2.1.1	不規則信号統計量を用いた疲労損傷評価量の推定	11
2.1.2	低除染燃料の相状態と物性に関する基礎研究	15
2.1.3	直接乱流シミュレーション手法の応用と乱流モデルの改良	20
2.1.4	「もんじゅ」性能試験における反応率分布・増殖比解析手法の高度化研究 －3次元化と核種の共鳴の取り扱いの高度化－	25
2.1.5	ヘリカルコイル管内沸騰二相流の DNB 発生機構と流動構造	27
2.1.6	シリコン系母材ターゲットの製造条件の確立と特性評価	30
2.1.7	析出核生成・成長制御による高温長時間安定な微細 MX の形成	34
2.1.8	高クロム鋼の Ω 法によるクリープ寿命評価と組織安定性に関する研究	37
2.1.9	ナトリウムと水が混合するときの流動と熱伝達に関する基礎研究	52
2.1.10	応力再配分モデルを用いた構造不連続部クリープ疲労強度評価法に関する研究	59
2.1.11	機械構造物の破壊・破損に係わる地震エネルギー入力の影響	64
2.1.12	多軸応力下での長時間粒界損傷の予測に関する理論および実験的研究	69
2.1.13	タングステン, モリブデン固溶強化 Fe-Cr 合金の経時変化に関する研究	74
2.1.14	ひずみエネルギーを考慮した熱力学的アプローチによる相変態挙動解析	79
2.1.15	DPIV による複雑流路内 High Time Resolved 乱流熱対流データベース	84
2.1.16	気泡・溶存ガス・冷却材の相互作用モデル開発と高速炉システムへの応用	89
2.1.17	ナノ粒子分散強化オーステナイト鋼の創成の基礎研究	96

2.2	核燃料サイクル関係	
2.2.1	ガス爆発の数値的再現による構造物に対する安全評価手法の確立	103
2.2.2	クラウン化合物を包括固定したマイクロカプセルの合成と発熱元素の精密分離技術の開発	108
2.2.3	ウラン酸化物中に存在するランタニドの選択的反応及びその分離手法に関する研究	115
2.2.4	イオン性液体中のウランの化学形態、酸化還元挙動、電解析出の解明	120
2.3	放射線安全関係	
2.3.1	天然鉱物を用いたルミネッセンス法による被ばく線量測定方法の開発	129
2.3.2	γ 線位置検出装置による放射線空間分布の実時間測定	132
2.3.3	LX線検出超伝導相転移端温度計型マイクロカロリメータの開発	135
2.4	地層処分・地層科学関係	
2.4.1	X線CTによる亀裂性岩盤内の移流・分散現象の分析	141
2.4.2	深部地下水組成推定のための花崗岩起源流体化学組成に関する研究	146
2.4.3	ボーリングコアを用いた堆積軟岩のAE特性の分析および原位置測定手法に関する研究	150
2.4.4	溶存メタンセンサーによる原位置メタン量測定法に関する研究	154
2.4.5	アクチニド元素の溶解度に関する熱力学データの整備と検証	160
2.4.6	塩素安定同位体比を用いた水理地質構造モデル評価技術の開発	163
2.4.7	東濃地域を対象とした亀裂分布のマルチスケールモデリング技術の開発	169
2.4.8	(U-Th)/He年代測定システムの構築と地質試料への適用に関する研究	172
2.4.9	断層帯及び亀裂を考慮した堆積岩地盤の水理学的構造の決定と地下水の移動解析	175
2.4.10	堆積岩の微視的性状把握と水-岩石反応実験による地球化学特性の解明	178

Contents

1. Research theme list by the JAEA Cooperative Research (A) on the Nuclear Fuel Cycle for 2006	
2. Brief report of the JAEA Cooperative Research (A) on the Nuclear Fuel Cycle for 2006	
2.1 Fast Breeder Reactor	
2.1.1 Estimation of fatigue damage factors by statistical parameters of random signal	1
2.1.2 Fundamental properties of low-decontaminated fuels	5
2.1.3 Direct numerical simulation of turbulent flow in complicated geometries for constructing turbulence database	10
2.1.4 An upgrading study on the reaction rate and breeding ratio analysis method for the Monju system start-up tests -Three-dimensional modeling and detailed resonance cross section-	15
2.1.5 DNB occurrence mechanism and interface structure of boiling flow in helically coiled tube	17
2.1.6 Fabrication and Characterization of Target-type Fuels with Si-compound Inert Matrix	20
2.1.7 Development of the fine MX particles stable at high temperature by controlling nucleation and growth process of precipitation	24
2.1.8 Study on creep strength assessment and micro structure stability of high Cr steel by means of O method	27
2.1.9 Experimental study on sodium-water reaction in steam generator of sodium-cooled fast reactor: Flow and heat transfer around a heat transfer tube	42
2.1.10 Study on creep-fatigue evaluation method of structural discontinuities by the SRL model	49
2.1.11 Influence of earthquake energy input in fatigue fracture of mechanical structure	54
2.1.12 Theoretical and experimental study on evaluation of grain boundary damage under multi axial stress state	59
2.1.13 Study on long-term stability of Fe-Cr alloys strengthened by W and/or Mo	64
2.1.14 Analysis of the phase transformation in austenitic steels with the aid of thermodynamic approach considering strain energy	69
2.1.15 High time resolved database of turbulence in complicated geometries using dynamic PIV	74
2.1.16 Mechanistic Modeling of Bubbles and Dissolved Gas in Liquid Sodium and Its Application to Fast Reactor Systems	79
2.1.17 Creative Fundamental Study of Nano-particle Strengthened Austenitic Steels	86

2.2	Nuclear Fuel Cycle	
2.2.1	Establishment of safety analysis method for structures adopting numerically predicted gas explosion	90
2.2.2	Synthesis of microcapsules enclosing crown compounds and development of precise separation technique for heat-generating nuclides	95
2.2.3	Study of selective chemical reaction and separation of lanthanide elements in uranium oxide	102
2.2.4	Elucidation of chemical form, redox behavior and electrolytic deposition about uranium in ionic liquid	107
2.3	Radiation Safety	
2.3.1	Retrospective dosimetry using luminescence phenomena from natural materials	114
2.3.2	Real Time Measurements of Spatial Distribution of gamma-rays by a Position-Sensitive Detecor	117
2.3.3	Development of TES microcalorimeter for high precision spectroscopy of LX-rays emitted from transuranium elements	120
2.4	Geological Disposal / Geoscience	
2.4.1	Visualization and analysis of advection-dispersion process in the fractured rock by means of X-ray CT	124
2.4.2	Radionuclide Migration Research Group Geological Isolation Research and Development Directorate	129
2.4.3	Analysis of the characteristics of AE wave using boring core of sedimentary soft rock and study on the field measurement of AE for the evaluation of EDZ	133
2.4.4	Study on In-situ Measurement of Dissolved Methane by Methane Sensor	137
2.4.5	Systematics of thermodynamic data for the solubility of actinide elements	143
2.4.6	Development of hydrogeological modeling approach using chlorine Isotope fractionation value	146
2.4.7	Development of multiscale modelling techniques of fracture distribution: practical and analytical studies in the Tono area, Japan	152
2.4.8	Development of the (U-Th)/He dating system and application for geological samples	155
2.4.9	Determination of hydrological structures of basement sedimentary rocks with faults and fractures, and analysis of underground fluid flow ...	158
2.4.10	Geochemical microanalysis of minerals, rocks and groundwater: modeling the elemental behavior in sedimentary rocks by microstructural and microgeochemical analysis and rock-water interaction	161

1. 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究協力課題一覧

This is a blank page.

平成 18 年度先行基礎工学研究協力課題一覧(1/4)

■■■■平成 18 年度で終了した研究協力課題

No.	研究協力テーマ 研究協力課題	機構側 受入箇所	機構側 研究者名	協力 形態	提案者 所属機関・氏名	研究期間
【 高速増殖炉関係 】						
1	不規則温度ゆらぎに対する熱疲労損傷評価法に関する基礎研究 不規則信号統計量を用いた疲労損傷評価量の推定	次世代部門 要素ユニット 構造 Gr.	笠原 直人	共同 研究	東京大学 大学院工業系研究科 機械工学専攻 教授 酒井 信介	H16 年度 ～ H18 年度
2	低除染燃料の相状態及び物性評価に関する研究 低除染燃料の相状態と物性に関する基礎研究	大洗 燃材部 AGS	逢坂 正彦 東海 サイクル研 ブル燃センタ 燃技部 燃料課 加藤 正人	共同 研究	大阪大学 大学院工学研究科 環境・エネルギー工学専攻 教授 山中 伸介	H16 年度 ～ H18 年度
3	複雑形状内高精度熱流動シミュレーション手法に関する研究 直接乱流シミュレーション手法の応用と乱流モデルの改良	次世代部門 システムユニット シミュレーション Gr.	大島 宏之	共同 研究	東京工業大学 学術国際情報センター 教授 青木 尊之	H16 年度 ～ H18 年度
4	「もんじゅ」性能試験における反応率分布・増殖比解析手法の高度化研究 同上 -3次元化と核種の共鳴の取り扱いの高度化-	次世代部門 プラントユニット 炉燃技術 Gr.	高野 和也 西 裕士 宇佐美 晋 石橋 淳一	共同 研究	大阪大学 大学院工学研究科 環境・エネルギー工学専攻 教授 竹田 敏一	H16 年度 ～ H18 年度
5	ヘリカルコイル管内沸騰二相流の DNB 現象に関する研究 ヘリカルコイル管内沸騰二相流の DNB 発生機構と流動構造	次世代部門 プラントユニット 多様化 Gr.	吉川 信治	共同 研究	近畿大学 生物理工学部 生体機械工学科 教授 松井 剛一	H16 年度 ～ H18 年度
6	高性能マイナーアクチニド含有ターゲットの基礎的特性に関する研究 シリコン系母材ターゲットの製造条件の確立と特性評価	大洗 燃材部 AGS	三輪 周平 燃材部 MMS 館 義明	共同 研究	東京工業大学 原子炉工学研究所 教授 矢野 豊彦	H17 年度 ～ H19 年度
7	高クロム鋼における強化機構の高温長時間安定性に関する研究 (1) 析出核生成・成長制御による高温長時間安定な微細 MX の形成	次世代部門 要素ユニット 炉構材料 Gr.	若井 隆純	共同 研究	群馬大学 工学部 機械システム工学科 教授 中澤 崇徳	H17 年度 ～ H19 年度
8	(2) 高クロム鋼の Ω 法によるクリープ寿命評価と組織安定性に関する研究				九州大学大学院 総合理工学研究院 融合創造理工学部門 教授 中島 英治	H17 年度 ～ H19 年度
9	ナトリウム水反応の影響緩和に関する研究 ナトリウムと水が混合するときの流動と熱伝達に関する基礎研究	次世代部門 システムユニット シミュレーション Gr.	大島 宏之 須田 一則	共同 研究	北海道大学大学院 工学研究科 エネルギー・環境システム専攻 教授 杉山 憲一郎	H17 年度 ～ H19 年度
10	応力再配分モデルに基づく高温構造物強度評価法に関する基礎研究 応力再配分モデルを用いた構造不連続部クリープ疲労強度評価法に関する研究	次世代部門 要素ユニット 構造 Gr.	笠原 直人 川崎 信史	共同 研究	筑波大学大学院 システム情報工学研究科 教授 渡部 修	H17 年度 ～ H19 年度

平成 18 年度先行基礎工学研究協力課題一覧(2/4)

■・・・平成 18 年度で終了した研究協力課題


No.	研究協力テーマ 研究協力課題	機構側 受入箇所	機構側 研究者名	協力 形態	提案者 所属機関・氏名	研究期間
11	配管系の動的強度評価法に関する基礎研究 機械構造物の破壊・破損に係わる地震エネルギー入力の影響	次世代部門 要素ユニット 構造 Gr.	岡村 茂樹 北村 誠司	共同 研究	東京電機大学 工学部機械工学科 教授 藤田 聡	H17 年度 ～ H19 年度
12	結晶粒度と長時間クリープ強度との相関評価に関する研究 多軸応力下での長時間粒界損傷の予測に関する理論および実験的研究	次世代部門 要素ユニット 炉構材料 Gr	若井 隆純	共同 研究	立命館大学 理工学部 教授 坂根 政男	H18 年度 ～ H20 年度
13	固溶強化機構の長時間安定性に及ぼす微量元素の影響に関する研究 タングステン, モリブデン固溶強化 Fe-Cr 合金の経時変化に関する研究	次世代部門 要素ユニット 炉構材料 Gr	若井 隆純	客員 研究員	東北大学 金属材料研究所 ナノ金属高温材料学 客員教授 安彦 兼次	H18 年度 ～ H20 年度
14	実機使用中の鉄鋼材料における組織/材料特性の変化予測に関する研究 ひずみエネルギーを考慮した熱力学的アプローチによる相変態挙動解析	次世代部門 要素ユニット 炉構材料 Gr	高屋 茂	共同 研究	名古屋大学 工学研究科 助教授 村田純教	H18 年度 ～ H20 年度
15	変形燃料ピンバンドル内熱流動評価手法に関する研究 DPIV による複雑流路内 High Time Resolved 乱流熱対流データベース	次世代部門 システムユニット シミュレーション Gr	大島 宏之	共同 研究	東京大学 大学院 新領域創成科学研究科 助教授 染矢 聡	H18 年度 ～ H20 年度
16	原子炉系統内容存ガス挙動評価に関する研究 気泡・溶存ガスー冷却材の相互作用モデル開発と高速炉システムへの応用	次世代部門 システムユニット シミュレーション Gr	伊藤 啓	共同 研究	大阪大学 大学院工学研究科 環境・エネルギー工学専攻 教授 山口 彰	H18 年度 ～ H20 年度
17	ナノコンポジットスーパースチールの創製 ナノ粒子分散強化オーステナイト鋼の創成の基礎研究	大洗 燃材部 MMS	山下 真一郎 次世代部門 要素ユニット 炉構材料 Gr 大塚 知史	共同 研究	北海道大学 大学院工学研究科 材料科学専攻 教授 大貫 惣明	H18 年度 ～ H20 年度
【 核燃料サイクル関係 】						
18	急激な燃焼化学反応に対する施設の健全性に関する研究 ガス爆発の数値的再現による構造物に対する安全評価手法の確立	東海 サイクル研 再処理センタ- 技開部 技開課	高谷 暁和	共同 研究	慶應義塾大学 理工学部 機械工学科 助教授 松尾亜紀子	H16 年度 ～ H18 年度
19	CHON 固定抽出剤を用いた核分裂生成物の高度元素分離技術に関する研究 クラウン化合物を包括固定したマイクロカプセルの合成と発熱元素の精密分離技術の開発	東海 サイクル研 サイクル試験部 試験 1 課	紙谷 正仁	共同 研究	東北大学 大学院工学研究科 量子エネルギー工学専攻 教授 三村 均	H17 年度 ～ H19 年度
20	選択反応による再処理工程中のランタニドの分析手法に関する研究 ウラン酸化物中に存在するランタニドの選択的反応及びその分離手法に関する研究	東海 サイクル研 再処理センタ- 技開部 技開課	佐藤 宗一 〔施設管理部〕 分析第 1 課 北尾 貴彦	共同 研究	東北大学 多元物質科学研究所 助教授 佐藤 修彰	H17 年度 ～ H19 年度
21	イオン性液体を抽出媒体としたウラン回収技術に関する研究 イオン性液体中のウランの化学形態、酸化還元挙動、電解析出の解明	人形峠 環境保全 技術開発部 遠心機課	大橋 裕介 和田 幸男	共同 研究	東京工業大学 原子炉工学研究所 助教授 池田 泰久	H18 年度 ～ H20 年度

平成 18 年度先行基礎工学研究協力課題一覧(3/4)

●…平成 18 年度で終了した研究協力課題

No.	研究協力テーマ 研究協力課題	機構側 受入箇所	機構側 研究者名	協力 形態	提案者 所属機関・氏名	研究期間
【 放射線安全関係 】						
22	緊急時被ばく線量評価手法に関する研究 天然鉱物を用いたルミネッセンス法による被ばく線量測定方法の開発	東海 サイクル研 放管部 環監課	藤田 博喜	客員 研究員	新潟大学 理学部化学科 教授 橋本 哲夫	H16年度 ～ H18年度
23	放射線空間分布の実時間測定 γ線位置検出装置による使用施設内の放射線空間分布の実時間測定	敦賀 安品推進部 環監課	石塚 晃弘	共同 研究	早稲田大学 理工学総合研究所 教授 長谷部 信行	H16年度 ～ H18年度
24	プルトニウム同位体等の LX 線高精度分光分析に係る研究 LX 線検出超伝導相転移温度計型マイクロカロリメーターの開発	東海 サイクル研 放管部 放射線 1 課	高崎 浩司	共同 研究	九州大学 大学院工学研究院 助教授 前畑 京介	H18年度 ～ H20年度
【 地層処分・地層科学関係 】						
25	亀裂性岩盤中の微細な構造や不均質性が地下水移流・分散に与える影響評価 X線 CT による亀裂性岩盤内の移流・分散現象の分析	地層処分部門 基盤ユニット システム性能 Gr.	澤田 淳	共同 研究	熊本大学 大学院自然科学研究科 助教授 佐藤 晃	H16年度 ～ H18年度
26	加速器微量分析システムを用いた地球化学研究 深部地下水組成推定のための花崗岩起源流体化学組成に関する研究	地層処分部門 基盤ユニット 核種移行 Gr.	上野 健一	共同 研究	筑波大学 大学院生命環境科学 研究科 地球進化科学専攻 講師 黒澤 正紀	H16年度 ～ H18年度
27	堆積軟岩における掘削影響評価のための原位置 AE 測定手法に関する基礎的研究 ボーリングコアを用いた堆積軟岩の AE 特性の分析および原位置測定手法に関する研究	地層処分部門 幌延ユニット 堆積岩工学 Gr.	松井 裕哉	共同 研究	京都大学 大学院工学研究科 都市環境工学専攻 教授 青木 謙治	H16年度 ～ H18年度
28	地層中のメタン量の原位置測定法に関する研究 溶存メタンセンサーによる原位置メタン量測定法に関する研究	地層処分部門 幌延ユニット 堆積岩地質 Gr.	國丸 貴紀	共同 研究	山口大学 工学部社会建設工学科 教授 兵動 正幸	H16年度 ～ H18年度
29	地下水におけるアクチノイド元素の溶解度に関する基礎研究 アクチノイド元素の溶解度に関する熱力学データの整備と検証	地層処分部門 基盤ユニット 核種移行 Gr.	藤原 健壯	共同 研究	京都大学大学院 工学研究科 教授 森山 裕丈	H17年度 ～ H19年度
30	地質環境モデルの構築と解析手法の評価 塩素安定同位体比を用いた水理地質構造モデル評価技術の開発	地層処分部門 幌延ユニット 堆積岩地質 Gr.	國丸 貴紀	共同 研究	東京大学大学院 新領域創成科学研究科 環境システム学専攻 助教授 徳永 朋祥	H17年度 ～ H19年度
31	マルチスケールでの地質構造・物性の空間モデリング技術の開発 東濃地域を対象とした亀裂分布のマルチスケールモデリング技術の開発	地層処分部門 東濃ユニット 結晶質岩地質 Gr	天野 健治	共同 研究	熊本大学 大学院自然科学研究科 複合新領域科学専攻 教授 小池 克明	H18年度 ～ H20年度

平成 18 年度先行基礎工学研究協力課題一覧(4/4)

 …平成 18 年度で終了した研究協力課題

No.	研究協力テーマ 研究協力課題	機構側 受入箇所	機構側 研究者名	協力 形態	提案者 所属機関・氏名	研究期間
32	低温領域における熱履歴解析に関する基礎研究 (U-Th)/He 年代測定システムの構築と地質試料への 適用に関する研究	地層処分部門 東濃ユニット 自然事象 Gr	梅田 浩司 花室 孝広 山田 国見	共同 研究	京都大学 理学研究科 教授 田上 高広	H18 年度 ～ H20 年度
33	断層帯の影響を考慮した地下水の流動解析 断層帯及び亀裂を考慮した堆積岩地盤の水理学的 構造の決定と地下水の移動解析	地層処分部門 幌延ユニット 堆積岩地質 Gr	操上 広志	共同 研究	京都大学 大学院理学研究科 地球惑星科学専攻 教授 嶋本 利彦	H18 年度 ～ H20 年度
34	岩石、鉱物、地下水に関する微視的領域における 地球化学的研究 堆積岩の微視的性状把握と水-岩石反応実験に よる地球化学特性の解明	地層処分部門 幌延ユニット 堆積岩地質 Gr	國丸 貴紀	共同 研究	筑波大学 生命環境科学研究科 講師 小室 光世	H18 年度 ～ H20 年度

2. 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告

This is a blank page.

2.1 高速増殖炉関係

This is a blank page.

2.1.1 先行基礎工学研究に関する平成18年度研究概要報告書

研究協力テーマ	不規則温度ゆらぎに対する熱疲労損傷評価手法に関する基礎研究								
研究協力課題	不規則信号統計量を用いた疲労損傷評価量の推定								
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="2">東京大学 教授 酒井 信介, 助教授 泉 聡志 〔*客員研究員 **研究生〕</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="2">次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 構造信頼性研究グループ GL 笠原 直人</td> </tr> </table>			大 学 側	東京大学 教授 酒井 信介, 助教授 泉 聡志 〔*客員研究員 **研究生〕		機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 構造信頼性研究グループ GL 笠原 直人	
大 学 側	東京大学 教授 酒井 信介, 助教授 泉 聡志 〔*客員研究員 **研究生〕								
機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 構造信頼性研究グループ GL 笠原 直人								
研究実施場所	東京大学工学部二号館								
通算研究期間	平成16年10月～ 平成19年3月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成18年9月～ 平成19年3月						
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究								
【研究目的】									
<p>原子力プラントの機器、配管において温度が異なる冷却材が合流する領域では、流体混合による不規則な温度ゆらぎが生じ、この結果として繰り返し熱応力による構造材の高サイクル疲労損傷が累積することが知られている。従って、今後、高速炉の開発設計や事故時の評価を行う上においては、この事象に対する対策を明確にしておくことは急務である。不規則温度ゆらぎに対する疲労損傷に関しては、時刻暦データに基づく評価法が実用的でないことから、設計評価に適用可能な方法として周波数領域で簡便に評価する方法を開発する。</p>									
【研究内容（概要）】									
<p>不規則温度ゆらぎに対する熱疲労損傷を、その発生機構に基づき合理的に評価するには不規則温度ゆらぎに対する熱応力の応答を予測した上で、疲労損傷係数を評価する必要がある。上記を時間領域で実施する方法は手順の複雑さと一般化の難しさから設計用に実用化することは困難である。また、問題条件ごとにシミュレーションを行って評価するような手法は汎用性に欠け、なおかつ全体的な展望を得ることも困難である。このため、不規則温度ゆらぎによる熱応力の周波数領域での表現方式を開発し、さらに周波数領域表現と疲労被害評価を結びつけるモデルを確立する。</p> <p>具体的には、不規則温度ゆらぎによって生じる熱応力の変動を周波数領域で表現する方法を、主としてサイクル機構が開発する。さらに、熱応力の周波数領域の特徴から不規則ゆらぎに伴う疲労損傷を評価する方法を、主として東京大学が開発する。周波数領域の特徴量から、不規則信号にともなう疲労評価を行う方法については東大側で実績がある。これらを組み合わせることにより、不規則温度ゆらぎから疲労損傷を評価するモデルを構築し、サイクル機構の試験データで検証する。それに基づき設計に用いるための簡易手法を開発する。</p>									
【使用主要施設】									
計算機（PC）ネットワーク									

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 16 年度は、文献調査、特に、スペクトルからの寿命予測を行う手法に着目して調査を進めた。また、サイクル機構側の有限要素法計算結果の不規則波データに対して高速フーリエ変換を実施し、パワースペクトル密度を算出した。さらに、シミュレーション技術の調査をし、調査の結果、余弦級数和法を用いることが適当と判断した。そして、逆フーリエ変換を用いた合理的な手法を用い、システムを構築した。このシステムを用いて、サイクル機構提供の不規則波のスペクトル解析結果から不規則波をシミュレートすることを行った。レインフローレンジ分布が原波形のものにほぼ対応していることを確認し、その有効性を検証した。

平成 17 年度は、配管内に発生する可能性のある熱応力不規則波形のスペクトルを調査し、これに対応する不規則波をシミュレーションにより発生させ、レインフローレンジ確率密度の評価を行った。また、スペクトルから抽出される特徴量を用いてレインフロー振幅分布・疲労損傷量を直接評価する方法として、Tovo の手法に注目し、サーマルストライピング現象で想定される各スペクトルに対して、これらの手法を適用して疲労損傷量を求めた。

平成 18 年度は、サーマルストライピングによる熱疲労損傷を評価するためのガイドライン策定のために下記を実施した。

- ・ スペクトルから安全裕度を見込んだ疲労損傷評価を推定する方法としてレベルクロス法を採用し、スペクトルの特徴量から評価する手順を確立した。
- ・ 実験で得られた 3 種類のフローパターンに対する温度スペクトルを周波数方向に拡幅することにより、安全裕度を見込んだ設計用スペクトルを策定した。
- ・ パワースペクトルのパワーと不規則度指数とから、レインフロー法による疲労被害を評価するためのテーブルを策定した。材料は SUS 316FR 鋼とし、3 種類のフローパターンに対して作成した。
- ・ サーマルストライピングの温度スペクトルから、構造内に累積するレインフロー計数による熱疲労損傷の安全裕度を見込んで評価する手順を確立した。

【研究成果（当該年度）】

本研究の課題の一つは、構造体内で不規則に変動する熱応力による累積疲労を、レインフロー法のような複雑なアルゴリズムを用いることなく、なおかつ安全側の評価を与える手順を考えることである。本年度は、過去の検討結果も踏まえた上で、スペクトルの特徴量から評価でき、なおかつ上記の要求を満足する方法としてレベルクロス法が適当であるものと結論付けた。レベルクロス法の場合、スペクトルの 0 次モーメント λ_0 、2 次モーメント λ_2 さえ与えられれば、振幅分布が与えられ、これに SN 曲線とマイナー則を適用することにより疲労被害の評価が可能である。

まず、レベルクロス法のアルゴリズムについて検討し、レインフロー法よりは過大の疲労評価を与えることを示した。念のため、シミュレートした熱疲労応力について両アルゴリズムによる計数処理を行った後、振幅と疲労損傷の両者について調査して、間違いなく安全側の裕度を与えていることを確認した。従って、笠原らが開発した応力スペクトル以後の評価手順として、不規則応力をシミュレートした後にレインフロー法を適用するという複雑な手順を経なくとも、応力スペクトルから λ_0 、 λ_2 のみ評価すれば直ちに疲労損傷に結びつけることが可能となった。

汎用の設計手順とするためには、入力となる三種類のフローパターンの温度スペクトルの不確実性に対しても裕度を見込む必要がある。このため、原子力発電所耐震設計技術指針で採用されている設計用床応答スペクトルの策定手順を参考にして、原スペクトルを周波数方向に10%拡幅する手順で、設計用スペクトルを策定した。

レベルクロス法によって、レインフロー法と比較して安全側の評価を与えることは示されたものの、過度の安全裕度を与えることは避けなければならない。そこで、SUS316FR材を対象として、3種類のフローパターンに対して、多くの熱伝達条件に対して熱過渡応力をシミュレートした上で、レベルクロス法評価による安全裕度の程度を調査した。その結果、安全裕度の大きさはパワー λ_0 と不規則度指数 α_2 に依存することが示されたので、種々の条件下で λ_0 と α_2 に対する安全裕度の等高線図を作成した。この等高線図を用いれば、レベルクロス法による評価を補正してレインフロー評価の値を概算で見積もることが可能となる。

最後に、開発した設計手順のフローチャートを作成した。一般化した手順は次のように記述することができる。

1. 対象とするフローパターンの設計用スペクトルを特定する
2. 熱伝達特性を考慮して、熱応力スペクトルを算定する
3. スペクトルから λ_0 、 λ_2 を評価した後に、レベルクロス法による疲労評価を解析式により算定して設計基準と照合し妥当性を判定する
4. さらに詳細な検討が求められれば、不規則度指数 α_2 を評価し、 λ_0 と α_2 上の等高線図より安全裕度を読み取り設計基準との照合を行う
5. なおかつ妥当性が示されない場合には、応力スペクトルから不規則波をシミュレートした後にレインフロー計数し、マイナー則により疲労被害評価した上で、判定する

開発した設計フローを図1に示す。以上により、設計技術指針に記載可能な形で手順をまとめることが完了した。なお、本研究で対象とした材料はSUS316FR鋼とSUS304材であるが、手順は一般化したものであるので材料のSN曲線さえ与えられれば、事前に等高線図を策定しておくことができる。

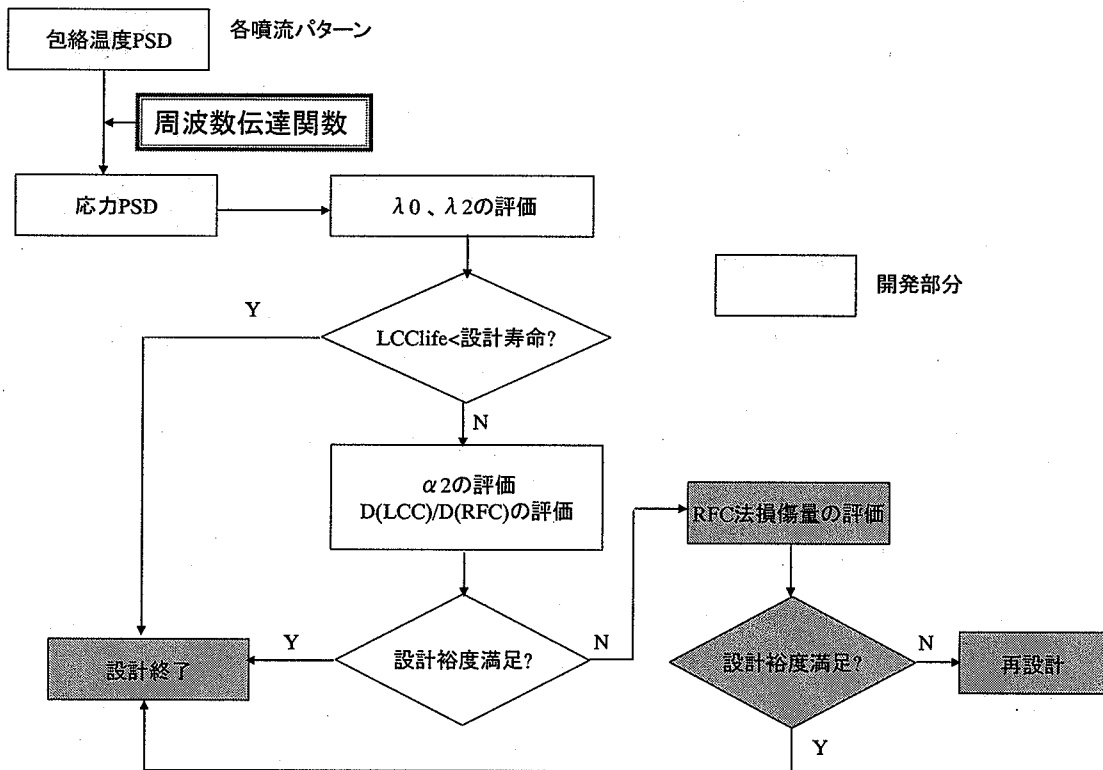


図1 開発した設計手順

【成果の反映状況】

本研究成果は、熱荷重設定に関するガイドラインの中に組み込まれることが見込まれるが、このガイドラインは最終的には実用高速炉高温構造設計方針の中から呼び込まれることになっており、高速炉設計に対して貢献があるものと期待される。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 岡島智史, 酒井信介, 泉聡志, 岩崎篤, 笠原直人, “不規則流体温度ゆらぎに対する熱疲労損傷の直接評価手法”, 日本機械学会 2005年度年次大会, 2005年9月
- 2) 岡島智史, 酒井信介, 泉聡志, 笠原直人, “不規則流体温度ゆらぎに対する熱疲労損傷の直接評価手法—Tovo の手法の安全側損傷評価への適用限界調査—”, M&M 2005 材料力学カンファレンス, 2005年11月
- 3) 岡島智史, 酒井信介, 泉聡志, 笠原直人, “不規則流体温度ゆらぎ現象に対する疲労損傷直接評価手法の適用性”, 第21回材料・構造信頼性シンポジウム, 2005年12月
- 4) 岡島智史, 酒井信介, 泉聡志, 笠原直人
“サーマルストライピング現象に対する不規則疲労損傷簡易評価手法の適用性”, 日本原子力学会 2006年春の年会 (2006年3月)

<国際会議>

- 1) S.Okajima, S.Sakai, S.Izumi, A.Iwasaki, N.Kasahara, “FATIGUE DAMAGE EVALUATION FOR THERMAL STRIPING PHENOMENA USING ANALYTICAL SPECTRUM METHOD”, PVP2005-71682, jul. 2005
- 2) S.Sakai, K. Honda, S. Okajima, S. Izumi and N. Kasahara
” DIRECT DAMAGE EVALUATION METHOD FOR THERMAL FATIGUE BASED ON POWER SPECTRUM DENSITY FUNCTIONS”, ASME PVP2007 発表予定

2.1.2 先行基礎工学研究に関する平成18年度研究概要報告書

研究協力テーマ	低除染燃料の相状態及び物性評価に関する研究		
研究協力課題	低除染燃料の相状態と物性に関する基礎研究		
研究者所属、氏名			
大 学 側	大阪大学 大学院工学研究科 環境・エネルギー工学専攻 山中伸介、宇埜正美、黒崎健、牟田浩明 産業技術短期大学 廣田正行		
機 構 側	大洗研究開発センター 燃料材料試験部 燃料試験課 田中健哉、逢坂正彦 核燃料サイクル工学研究所 プルトニウム燃料技術開発センター-燃料技術部燃料技術開発課 鹿志村元明、加藤正人		
研究実施場所	大阪大学 大学院工学研究科 環境・エネルギー工学専攻 (A1棟) 大洗研究開発センター 燃料材料試験部燃料試験課 (照射燃料試験施設) 核燃料サイクル工学研究所 燃料技術部燃料技術開発課 (Pu燃料第一開発室)		
通算研究期間 (予定)	平成16年7月 ~ 平成19年3月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成18年4月 ~ 平成19年3月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>マイナーアクチニド（以下 MA）及び FP を含有する低除染 MOX 燃料の開発をすすめているが、模擬試料を用いた製造試験において、MA/Pu/希土類系化合物の偏析が確認された。このような化合物の析出はこれまでに報告されていないが、燃料製造や照射挙動を評価するうえで、この化合物の析出条件や相安定性評価、ならびに熱伝導率等の各種物性評価を実施することは、必要不可欠である。しかしながら、原料の制約や試料取扱等の観点から、実験的なアプローチには限界がある。</p> <p>本研究では、MA/Pu/希土類/酸素の四元系化合物の相状態および物性を、実験及び理論の双方からのアプローチにより明らかにすることを最終目的とする。また、実験結果を用いて、計算科学手法の妥当性を検証する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>低除染燃料の相状態と物性に関する研究を実施する。主に機構において実施される各種試験の結果と、主に大阪大学において実施する計算機シミュレーションの結果を比較検討することで、効率的な燃料特性評価手法を確立する。</p>			
<p>① 低除染燃料の相状態・物性評価（大阪大学）</p> <p>② MA-Pu-希土類系化合物の特性評価（大阪大学）</p> <p>MA や FP を含む低除染燃料について、化学平衡計算による計算機シミュレーションを実施し、種々の条件下での相状態を評価する。加えて、分子動力学法による燃料の物性評価を試みる。</p> <p>③ MA-Pu-希土類系化合物の調製・物性測定（原子力機構）</p> <p>U/Pu/Am/Np/希土類を含む酸化物化合物を調製し、X線回折・金相観察・元素分析による相状態評価、酸素ポテンシャル測定、弾性定数等の物性測定を行う。</p>			

【使用主要施設】

- ・ MA 物質取り扱い用グローブボックス（原子力機構・簡易遮蔽付き）
- ・ 酸素ポテンシャル測定装置（原子力機構・リガク製 TG-DTA 装置）
- ・ X 線回折装置（原子力機構・遠隔操作式遮蔽型）

【進捗状況（当該年度までの概要）】

低除染燃料の相状態や物性を明らかにすることを目的として、以下の 3 つのテーマに沿って研究をすすめた。

- ① 低除染燃料の相状態・物性評価（大阪大学）
- ② MA-Pu-希土類系化合物の特性評価（大阪大学）
- ③ MA-Pu-希土類系化合物の調製・物性測定（原子力機構）

平成 16 年度は、化学平衡計算による計算機シミュレーションを実施することで、燃料を構成する U-Pu-Np-O 系について、各金属元素と酸素の二元系状態図の作成に成功した。また、Np-MOX の酸素ポテンシャルを評価することにも成功した。MA/Pu/希土類系化合物について、その相状態と熱化学的特性の評価を試みるための基礎データとして、希土類元素を含む系の熱力学データを整備した。実験研究として、(Pu,Am)O₂、(U,Pu,Am)O₂、(Pu,Am,Nd)O₂ および (U,Pu,Am,Np,Nd)O₂ 試料を調製し、一部の試料については、X 線回折、金相観察等により相状態を評価した。

平成 17 年度は、(U_{1-x}Pu_x)O₂ (x=0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9, 1) の 11 種類の組成について、その熱物性や機械的特性を分子動力学計算により評価することに成功した。化学平衡計算については、Np-MOX 系に引き続き、Am-MOX 系の計算評価を実施した。

(U,Pu,Am) O_{2-x} 相の熱力学データを整備するとともに酸素ポテンシャルを評価した。実験研究としては、(Pu_{0.91}Am_{0.09})O_{2-x} 化合物を調製し、X 線回折および熱分析による相状態確認、酸素ポテンシャル測定を行った。

【研究成果（当該年度）】

平成 18 年度に得られた主な成果は以下のとおりである。

① (U,Pu,MA)O₂ の物性評価（大阪大学）

MA や FP を含む低除染燃料の基本組成となる (U,Pu,MA)O₂ について、分子動力学法による計算機シミュレーションを実施し、種々の条件下での燃料物性を評価した。MA として Np あるいは Am を含有した MOX 燃料について、その格子定数、線熱膨張係数、圧縮率、比熱、熱伝導率の温度依存性と、MA の添加が各種物性に与える影響を評価した。一例として、Am 含有 MOX 燃料の格子定数の温度依存性を、図 1 に示す。格子定数は温度上昇とともに増加していること、また、Am 量の増加にともない減少していることが確認できる。次に、各温度における Am 含有 MOX 燃料の熱伝導率の Am 量依存性を、図 2 に示す。いずれの温度においても、Am を添加しても熱伝導率の値はほぼ一定であることが確認できる。本研究により、(U,Pu,MA)O₂ の各種物性におよぼす MA 添加の影響を、総合的かつ系統的に評価することに成功した。

② Am 添加 MOX 燃料の熱化学的特性の評価（産業技術短期大学）

低除染燃料の基本組成となる (U,Pu,Am)O_{2-x} について、熱力学データを整備した。平成 18 年度は、AmO_{2-x} 相に関して熱力学データの最適化を試みた。最適化した熱力学データを用いての酸素ポテンシャルの評価に成功した。

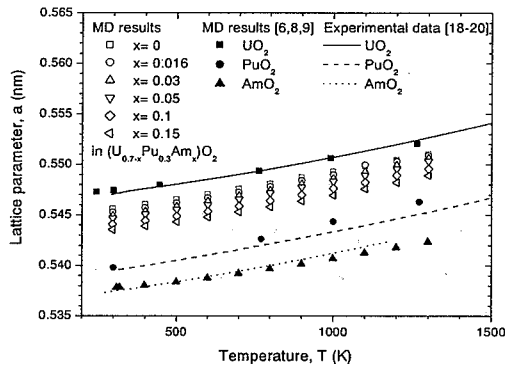


図 1 Am 含有 MOX 燃料の格子定数の温度依存性

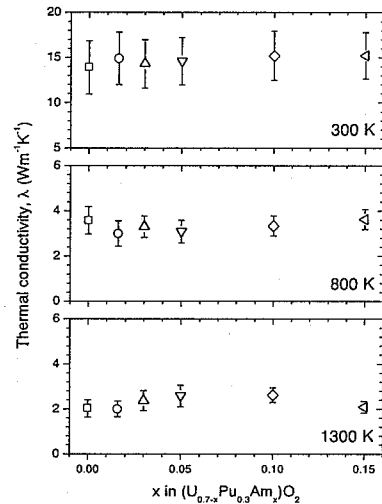


図 2 各温度における Am 含有 MOX 燃料の熱伝導率の Am 量依存性

図 1 および図 2 の出典 : K. Kurosaki, et al., "Molecular Dynamics Studies of Americium Containing Mixed Oxide Fuels", J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 43[10] (2006) 1224-1227.

③ MA-Pu-希土類系化合物の調製・物性測定 (原子力機構)

(Pu_{0.91}Am_{0.09})O_{2-x} 化合物の X 線回折・金相観察・元素分析・熱分析による相状態評価を実施した。単相蛍石構造から相分離が起こる温度・O/M 比を特定するとともに、O/M 比と格子定数の関係を測定し、擬二元系とした場合の相状態図を提案した。

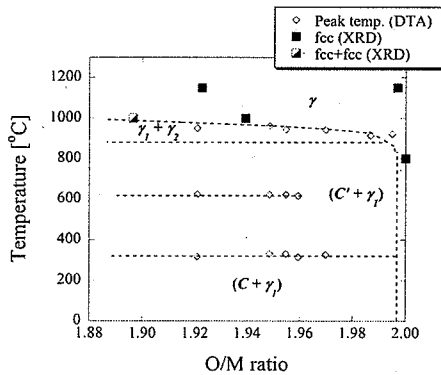


図 3 (Pu_{0.91}Am_{0.09})O_{2-x} の擬二元系状態図

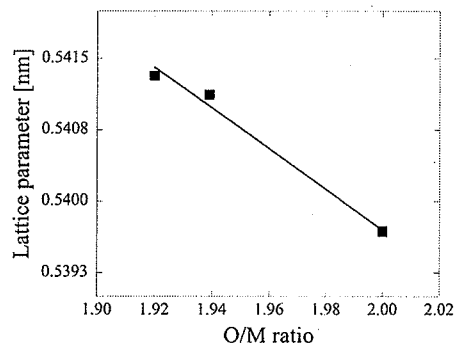


図 4 O/M 比と格子定数の関係

図 3 および図 4 の出典 : S. Miwa, et al., "Phase behavior of PuO_{2-x} with addition of 9% of Am", J. Alloys Compd., in press, Copyright Elsevier (2007).

【成果の反映状況】

MA や FP を含む低除染燃料の基本組成となる(U,Pu,MA)O₂ について、その各種物性におよぼす MA 添加の影響を、総合的かつ系統的に評価することに成功した。また低除染燃料を構成する主要な系である U-Pu-MA 三元系について、その熱力学データを整備するとともに、燃料の基本組成となる(U,Pu,MA)O₂ fcc 相の酸素ポテンシャルを評価した。ここで得られた成果は、現状ほとんどデータが無い低除染燃料の実用化にあたり、重要で貴重な情報源となりうる。

さらに実験研究においては、実際に Am や Np を含有する酸化物や MOX 燃料試料を調製し、相状態評価、物性測定等の基礎実験を行い、世界初となるデータを数多く取得した。これらのデータは、MA を含有する燃料の設計における貴重な知見となっている。

低除染燃料の開発においては、再処理条件、MA マネジメント戦略、炉内燃焼等による組成の変動に対応する物性評価手法を確立する必要がある。

本研究においては、実験研究による基礎データと分子動力学法・化学平衡計算による物性予測評価手法を有機的に組み合わせることにより、種々の組成の燃料物性を予測する実践的な手法を確立した。本手法は、今後本格的に開始する MA 含有酸化物燃料の設計・照射挙動評価のために基礎的な知見を提供可能なツールとなることが期待される。

【研究成果の公表】

＜論文＞（査読あり）

- 1) M. Osaka, I. Sato, T. Namekawa, K. Kurosaki, S. Yamanaka, "Oxygen potentials of (U_{0.685}Pu_{0.270}Am_{0.045})O_{2-x} solid solution", J. Alloys Compd., 397 (2005) 110-114.
- 2) M. Osaka, T. Namekawa, K. Kurosaki, S. Yamanaka, "Chemical thermodynamic representation of (U,Pu,Am)O_{2-x}", J. Nucl. Mater., 344 (2005) 230-234.
- 3) M. Hirota, K. Kurosaki, D. Setoyama, M. Kato, M. Osaka, T. Namekawa, M. Uno, S. Yamanaka, "Thermodynamic Modelling of Actinides-Oxygen System", J. Nucl. Mater., 344 (2005) 84-88.
- 4) M. Osaka, S. Miwa, H. Yoshimochi, K. Tanaka, K. Kurosaki, S. Yamanaka, "An experimental investigation of effects of americium addition to (U, Pu)O_{2-x} on phase relation", in: Recent advances in actinide science, RSC publishing, p. 406-408, (2006).
K. Kurosaki, M. Imamura, I. Sato, M. Osaka, T. Namekawa, M. Uno, S. Yamanaka, "Molecular dynamics studies of uranium-plutonium mixed oxide fuels", in: Recent advances in actinide science, RSC publishing, p. 409-411, (2006).
- 5) K. Kurosaki, J. Adachi, M. Katayama, M. Osaka, K. Tanaka, M. Uno, S. Yamanaka, "Molecular Dynamics Studies of Americium Containing Mixed Oxide Fuels", J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 43[10] (2006) 1224-1227.
- 6) M. Osaka, K. Kurosaki, S. Yamanaka, "Chemical thermodynamic analysis of americium-containing UO₂ and (U,Pu)O₂", J. Alloys Compd., 428 (2007) 355-361.
- 7) M. Osaka, K. Kurosaki, S. Yamanaka, "Oxygen potential of (Pu_{0.91}Am_{0.09})O_{2-x}", J. Nucl. Mater., 357 (2007) 69-76.
- 8) S. Miwa, M. Osaka, H. Yoshimochi, K. Tanaka, K. Kurosaki, M. Uno, S. Yamanaka, "Phase behavior of PuO_{2-x} with addition of 9% of Am", J. Alloys Compd., in press.

＜国内会議＞

- 1) 小笠原誠洋、宇野弘樹、加藤正人、木原義之、"MA 含有低除染 MOX の相安定性"、日本原子力学会 2004 年秋の年会 G30、2004 年 9 月 15-17 日、京都大学
- 2) 宇野弘樹、小笠原誠洋、加藤正人、木原義之、"(Pu,Am,Nd)O_{2-x} の相状態"、日本原子力学会 2004 年秋の年会 G31、2004 年 9 月 15-17 日、京都大学
- 3) 逢坂正彦、田中健哉、黒崎健、山中伸介、"遠隔操作による Am 含有 MOX 燃料製造技術の開発 (V) - Am 含有 MOX 燃料の酸素ポテンシャル測定および解析 -"、日本原子力学会 2004 年秋の年会 G33、2004 年 9 月 15-17 日、京都大学
- 4) 逢坂正彦、石洋平、吉持宏、田中健哉、関根伸一、石田貴志、関崇行、黒崎健、山中伸介、"遠隔操作による Am 含有 MOX 燃料製造技術の開発 (VIII) - Am 含有 MOX の相状態 -"、日本原子力学会 2005 年春の年会 C16、2005 年 3 月 29-31 日、東海大学

- 5) 逢坂正彦、田中健哉、黒崎健、山中伸介、“低除染燃料の相状態と物性に関する基礎研究 (1) - 化学熱力学法による酸素ポテンシャルの解析 -”、日本原子力学会 2005 年秋の大会 I26、平成 17 年 9 月 13~15 日、八戸工業大学。
- 6) 廣田正行ら、“低除染燃料の相状態と物性に関する基礎研究 (2) - MA 含有 MOX 燃料の熱化学的性質に関する基礎研究 -”、日本原子力学会 2005 年秋の大会 I27、平成 17 年 9 月 13~15 日、八戸工業大学。
- 7) 黒崎健ら、“低除染燃料の相状態と物性に関する基礎研究 (3) - 分子動力学法による (U,Pu)O₂ の物性評価 -”、日本原子力学会 2005 年秋の大会 I28、平成 17 年 9 月 13~15 日、八戸工業大学。
- 8) 片山将仁ら、“低除染燃料の相状態と物性に関する基礎研究 (4) - 分子動力学法による (U,Pu,Np,Am)O₂ の物性評価 -”、日本原子力学会 2006 年春の年会、平成 18 年 3 月、日本原子力研究開発機構。
- 9) 逢坂正彦ら、“低除染燃料の相状態と物性に関する基礎研究 (5) - (Pu_{0.91}Am_{0.09})O_{2-x} の酸素ポテンシャル -”、日本原子力学会 2006 年春の年会、平成 18 年 3 月、日本原子力研究開発機構。
- 10) 片山将仁ら、“低除染燃料の相状態と物性に関する基礎研究 (6) - 分子動力学法による MA 含有 MOX 燃料の物性評価 -”、日本原子力学会 2006 年秋の大会、平成 18 年 9 月 27 日~29 日、北海道大学。
- 11) 廣田正行ら、“低除染燃料の相状態と物性に関する基礎研究 (7) - マイナーアクチニド酸化物の熱力学的性質 -”、日本原子力学会 2006 年秋の大会、平成 18 年 9 月 27 日~29 日、北海道大学。
- 12) 三輪周平ら、“低除染燃料の相状態と物性に関する基礎研究 (8) - (Pu_{0.91}Am_{0.09})O_{2-x} 相状態の実験的評価 -”、日本原子力学会 2006 年秋の大会 H17、平成 18 年 9 月 27 日~29 日、北海道大学。

<国際会議>

- 1) M. Osaka, T. Namekawa, K. Kurosaki, S. Yamanaka, “Chemical thermodynamic representation of (U,Pu,Am)O_{2-x}”, 11th Symposium on Thermodynamics of Nuclear Materials, September 6-9, Karlsruhe, Germany.
- 2) M. Hirota, K. Kurosaki, M. Kato, M. Osaka, T. Namekawa, M. Uno, S. Yamanaka, “Thermodynamic Modeling of Actinides-Oxygen System”, 11th Symposium on Thermodynamics of Nuclear Materials, September 6-9, Karlsruhe, Germany.
- 3) M. Osaka, S. Miwa, H. Yoshimochi, K. Tanaka, K. Kurosaki, S. Yamanaka, “An experimental investigation of effects of americium addition to (U, Pu)O_{2-x}”, Actinides 2005, Manchester, United Kingdom: 4th - 8th July 2005.
- 4) K. Kurosaki, M. Imamura, I. Sato, M. Osaka, T. Namekawa, M. Uno, S. Yamanaka, “Molecular dynamics studies of uranium-plutonium mixed oxide fuels”, Actinides 2005, Manchester, United Kingdom: 4th - 8th July 2005.
- 5) S. Miwa, M. Osaka, H. Yoshimochi, K. Tanaka, K. Kurosaki, S. Yamanaka, “Development of MOX fuel containing americium - fabrication and characterization of MOX fuel containing americium -”, 5th JAERI-KAERI Joint Seminar on Advanced Irradiation and PIE Technologies, Oarai, Japan: 16th - 18th Nov. 2005.
- 6) S. Miwa, M. Osaka, H. Yoshimochi, K. Tanaka, K. Kurosaki, M. Uno, S. Yamanaka, “Phase behavior of PuO_{2-x} with addition of 9% of Am”, Plutonium Futures, Pacific Grove, USA, July 9-13, 2006

<旧 JNC レポート等>

- 1) 逢坂正彦、佐藤勇、滑川卓志、田中健哉、石田貴志、“(U, Pu, Am)O_{2-x} の酸素ポテンシャル - 測定及び解析モデルの構築 -”、JNC 報告書 (研究報告)、JNC TN9400 2004-076, (2004)。
- 2) 逢坂正彦、三輪周平、門藤健司、小崎葉子、石洋平、吉持宏、関崇行、関根伸一、石田貴志、田中健哉、“(U, Pu, Am)O_{2-x} の相状態”、JNC 報告書 (研究報告)、JNC TN9400 2005-002, (2004)。

2.1.3 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	複雑形状内高精度熱流動シミュレーション手法に関する研究		
研究協力課題	直接乱流シミュレーション手法の応用と乱流モデルの改良		
研究者所属、氏名			
大学側	東工大学術国際情報センター 青木 尊之 東工大大学院原子核工学専攻 Elia Merzari, ニノ方 寿		
機構側	大洗工学センター・次世代原子力システム研究開発部門 FBR シミュレーショングループ 大島 宏之		
研究実施場所	東工大原子炉工学研究所北 1 号館 大洗工学センター・Fセルボ		
通算研究期間	平成 16 年 9 月 ~ 平成 19 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 18 年 4 月 ~ 平成 19 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>高速炉システムの成立性評価の一環として、様々なコンポーネントにおける熱流動解析評価が行なわれる。システムの経済性向上のためには、過度な保守性を排除した合理的な安全裕度の確認が必要であり、そのために要求される十分な解析精度を保証する。本研究では、各種コンポーネントに見られる複雑形状内の熱流挙動について、実験で得られない詳細な情報を提供し且つ精度良くシミュレーションする手法を整備することを目的とする。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>複雑形状内の冷却材乱流流速および温度の詳細分布に関する情報は、壁せん断応力（壁面摩擦）や熱伝達の評価にとって必要不可欠である。これらの詳細情報は、実験的に得ることが困難で、原理的には N-S 式とエネルギー式を正確に解くことによつてのみ得られる。現在の数値解析技術と計算機能力では、これらの式を時間・空間平均した近似式を解く分布定数系アプローチが最も有効であるが、壁の影響を強く受けた場合の乱流構成方程式の場合に応じて与える必要がある。サイクル機構ではこのアプローチに則り SPIRAL コードの開発を実施している。一方、N-S 式とエネルギー式を近似なしに直接解く直接乱流シミュレーション(DNS)は構成方程式を必要としない代わりに、要求される計算機資源（計算速度、記憶容量）が非現実的に高い。したがって、これらの手法を適切に組み合わせることが、複雑形状流路内乱流の実用的な数値シミュレーションを可能とする。本研究では、SPIRAL コードに組み込まれている乱流構成方程式を、複雑形状流路内乱流を模擬できる境界適合型 DNS で得られる任意形状流路内詳細情報に基づいて構築する手法を開発し、SPIRAL コードによる複雑形状流路大規模体系の一括計算を高精度で実現することを目標とする。複雑形状の代表的な例は燃料集合体内熱流動であり、特に高燃焼に伴う流路変形や稠密燃料格子におけるサブチャンネル毎の情報への要求が強いことから、ここでは適用対象を燃料集合体とする。</p>			

【使用主要施設】

東京工業大学国際学術情報センター並列計算システム TSUBAME
大洗工学センター 並列計算機 HPC2500
地球シミュレータ

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 16 年度は、単一 CPU ベクトル計算機向けの境界適合型 DNS プロトタイプコードのコードストラクチャの最適化を実施し、境界適合型座標系上で高速炉燃料集合体内乱流 DNS を 2 ノード 16CPU 上で実施して、同コードの基本的な乱流解析機能の検証を実施するとともに、P/D（格子間隔対燃料ピン直径比）および Re 数への乱流特性依存性データを取得した。とくに、低 Re 乱流 ($Re_\tau=400$) 条件下で稠密格子 ($P/D<1.1$) における燃料ピン間狭隙ギャップでの局所的層流遷移の発現、および低 Re_τ における各種統計量空間分布形状の Re 依存性が高 $Re_\tau(1,000\sim1,400)$ の領域では低下するなど、燃料格子配列内の実験的に取得が困難な乱流特性に関する知見が得られた。

平成 17 年度は、平成 16 年度に整備したプログラムに基づき、変形燃料集合体等の熱流動解析で対象とする典型的な流路形状を抽象化した基礎的形状として偏心二重円管アニュラス流路および非対称な 2 サブチャンネル流路をとり上げ、乱流ベンチマーク解析を実施した。

平成 18 年度は、稠密燃料格子集合体内冷却材流れに発現するグローバルパルセーションのメカニズムの考察を行うとともに、平成 17 年度に引き続き偏心二重円環内乱流について、より詳細な格子かつより長い軸方向距離をとり DNS を継続して完全な定常解を求めた。二次流れ、局所層流化現象を捉えるとともに、乱流エネルギー、消散率、渦度、二次以上の乱流テンソル成分を分析し乱流データベースを構築した。これらの DNS 計算結果を分析して大渦シミュレーションにおけるサブグリッドスケールモデルの改良に資するとともに、サイクル機構の SPIRAL コードによる解析結果とを比較・検討し、SPIRAL コードの乱流レイノルズ応力構方程式各線形項、非線形項にかかる最適な係数の選定を東京工業大学とサイクル機構が協力して実施した。

【研究成果（当該年度）】

§1. 稠密燃料格子集合体サブチャンネル内乱流挙動

稠密格子燃料集合体内サブチャンネル内の乱流は、燃料要素間隔が狭いために壁の影響を強く受け、非等方性が強い。そのため、等方性乱流を仮定した $k-\epsilon$ モデルや、壁関数を用いたモデルでは説明できない現象が多い。一般的に、燃料配列ピッチ対直径の比 P/D が小さい（稠密格子）体系では Re 数が低下すると、燃料間隙部近傍で乱流の非均質性が増すとともに、局所的な乱流-層流遷移領域を含み、流れそのものが不安定となる。集合体内の主流方向に十分な長さをとると、グローバルパルセーション（狭隙部をクロスする周期的な横流れ）が発現するが、この現象は典型的な例である。このような現象を解析するためには、軸方向にとるべき長さを十分にとる必要があり、当該研究期間内で利用可能な計算機資源では DNS あるいは LES の計算を実施することは不可能であったため、本研究では既存の商用コード STAR-CD の URANS 版を利用して、低 Re 数型非等方 $k-\epsilon$ モデルを DNS による局部乱流計算結果に基づきチューニングすることにより現象を再現することを試みた。

検討した体系と流れの条件は、 $P/D=1.06$ 、水力等価直径=33.5mm、 $Re=38,754$ で、作動流体は水である(Krauss and Meyer)。流れ方向の体系の長さ L は、これまでの実験的な知見から十分に大きい 600mm とした。なお、この L は、モード i の波数 k_i に対し $L=2\pi/lcm\{k_i\}$ で予測したもので、計算される振動モードはこの両端を節とする波動になる。時間項はオイラー陰

解法、対流項は QUICK 差分で、壁際の第一メッシュのサイズは $y^+=1$ とするとともに壁近傍においては十分微細な直交格子を用い、比較的粗い乱流コア部分の格子と合わせて合計約 600,000 格子で離散化した。また、CFL 条件は常に 0.2 以下となるように設定した。本研究においては、チャンネル流($Re_\tau=642$)に対する DNS 結果を用い、厳密に Realizability 条件を満足するようにレイノルズ応力各成分の非線形項に関わる係数を最適化[1]して計算を行った。

その結果、計算初期条件として与えた一様な定常乱流から次第に 3 次元的な流れの振動が卓越することが示された。流れ方向集合体全体でグローバルパルセーションが発生し、Krasuss-Meyer による実験結果を周期、振幅などに関し定性的に説明できることが確認された。ただし、振幅は実験値より小さく、ストローハル数は実験が 0.9 に対し解析が 0.6 で、振動の模擬という観点では十分とはいえないが、本研究によってグローバルパルセーション現象が複雑な乱流構造そのものに依存して発生することが確認されたことは大きな成果である。しかしながら、同現象を異なる現象でモデル化した非等方 $k-\epsilon$ モデルで解析することは矛盾を呈することになる。グローバルパルセーション現象の解析を行うにおいては、モデル化を必要とするいかなる乱流モデルを用いた解析結果と実験結果との一致を求めるべき性格のものではなく、あくまで DNS という正攻法で攻める必要があることに留意すべきである。本研究による成果は、2007 年 9 月に開催される国際会議 NURETH12 において発表する予定である[13,14]。

参考文献:

- 1) Krauss, T. and Meyer, L., Experimental investigation of turbulent transport of momentum and energy in a heated rod bundle, *Nuclear Engineering and design*, **180**, pp. 185-206 (1998)
- 2) Baglietto, E. and Ninokata, H., A turbulence model study for simulating tight lattice rod bundles, *Nuclear Engineering and Design*, Vol. 235 Issue 7, pp. 773-784, 2005

§ 2. 偏心二重円環流路内 DNS および LES 計算

本研究においては、東工大で開発した SPARKLE-DNS [3,7]を用い、燃料集合体より簡略な流路形状である偏心二重円環流路内における十分に発達した乱流を対象として、境界適合型座標系上の DNS および LES を実施した。解析した二重円環流路形状は次の通りである。

Geo-1 偏心率 $e=0.5$ 、水力等価直径=1。ただし $e = d / (D_{out} - D_{in})$ 、 D_{out} 、 D_{in} はそれぞれ外管、内管の直径、 d は内外円管中心間距離である。

Geo-2 偏心率 $e=0.95$ 、水力等価直径=1。

Geo-3 同心二重円環 ($e=0$)、内径対外径比 $\alpha = D_{in} / D_{out} = 0.1$

計算格子は、壁際第一メッシュのサイズを $y^+=1$ 以下とするとともに、壁に垂直な方向の最大格子サイズは DNS の場合 4 以下、LES の場合は 10 以下、周方向については DNS の場合最大 8 以下、LES の場合 20 以下、流れ方向については DNS の場合最大 10 以下、LES の場合 30 以下とした。時間ステップは CFL が常に 0.1 以下となるように刻んだ。LES においては、Dynamic Eddy Viscosity モデル(Meneveau et al)を用い、地球シミュレーター用に並列化した。Table 1 に実施した計算ケースおよび収束に要した Run time を示す。

Table 1. DNS and LES cases

Case	Reynolds number	Grid ($N_x \times N_y \times N_z$)	Nodes	Geometry, e	Run time	DNS/LES
A	8000	256x100x336	1	Geo-2, 0.95	3 months	DNS
B	26600	768x300x768	16	Geo-1, 0.5	6 months	DNS
C	8900	128x64x128	1	Geo-3, 0	1 month	LES
D	13300	256x80x128	1	Geo-1, 0.5	1 month	LES

Case B は平成 17 年度に実施した高レイノルズ数 ($Re=13,000$) 計算よりもさらに Re を高くして実験と一致させたもので ($Re=26,600$)、トータル格子数は約 1 億 8 千万、収束 (時間平均が定常に達した状態) に要した計算時間は地球シミュレータ 16 ノードで約 6 ヶ月であった。

Case A, Case B, Case D の結果から狭隘ギャップでの局所的層流遷移の発現、および関連した低 Re における各種統計量などに関する知見を得た。例えば狭隘部の近接壁近傍においては、平板流路の場合に示される直線状のせん断応力分布からのずれが大きくなりレイノルズせん断応力が支配的となることなど、実験的には取得が困難なデータが得られている。とくに、特性長さを、内管外側表面法線方向の外管内側表面までの距離、平均流速を当該法線上で定義して得られる局所 Re 数は、最狭隘ギャップにおいて乱流から層流へ遷移する領域に入っていることを示唆しており、実際、壁際における流速分布は Couette-Poiseuille's 流れそのものであることが示された。

DNS による偏心二重円環流路内乱流 Case B (計算上 $Re=26,600$) については、乱流実験データ (Nouri, Umur and Whitelaw) と比較し、主流方向流速分布、壁せん断応力分布、 r, θ, z 方向の揺らぎ成分の rms 分布、 Re 応力分布について十分な精度で一致することが確認できた。平成 17 年度に報告した $Re=13,000$ の結果では、 Re 数が異なる Nouri らの実験と比較すると、最も狭隘なギャップにおいて時間平均流速分布のピーク値および統計値に大きな不一致が見られ、その原因が低 Re 数によるシミュレーションであったことに起因したとしたが、今回の DNS によって各種乱流統計量の計算が正しく行われていたことが推測された。

一方、偏心率が大きい Case A の場合明確な時間平均場での二次流れの存在が計算で示されたのに対し、Case B, C, D の場合、瞬時の二次流れの分布は存在し、予想されるとおりその分布はランダムであるが、十分に長い時間で時間平均をとると二次流れの分布が消滅することが判明した。このことは予想外の結果であり、時間平均場での二次流れは偏心率と流れの Re 数に厳密に依存して発生することが予想される。この第二種二次流れの発生クライテリアを求めるとともに、実験的な確認が今後の課題として提起される。

今回の LES による解析 (Case C, Case D) は SPARKLE-DNS コードの機能確認が主目的であったが、Case C と DNS による Case B と比較して解析結果に本質的な差異は認められなかった。このことより、適切な SGS モデルを採用することにより、大幅に計算資源が節約できる LES によって DNS の解析結果とほぼ同等な結果が求められることが示されたことは大きな成果であると考えられる。詳細は 2007 年 5 月に開催される ICAPP2007 によって発表する予定である [12]。

参考文献

- 1) Meneveau, C., Lund, T.S. and Cabot, W.H., A Lagrangian dynamic subgrid-scale model of turbulence, *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 319, pp. 353-385, 1996
- 2) Nouri, J.M., Umur, H. and Whitelaw, J.H., "Flow of Newtonian and non-Newtonian fluids in concentric and eccentric annuli", *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 253, pp. 617-64, 1993.

【成果の反映状況】

本研究による成果は、JAEAにおける大渦シミュレーションにおけるサブグリッドスケールモデルの改良に資するとともに、SPIRALコードによる解析結果とを比較・検討し、SPIRALコードの乱流レイノルズ応力構方程式各線形項、非線形項にかかる最適な係数の選定に反映している。

【研究成果の公表】

<論文：査読あり>

- 1) A turbulence model study for simulating tight lattice rod bundles, E. Baglietto, H. Ninokata, *Nuclear Engineering and Design*, Vol. 235 Issue 7, pp. 773-784, 2005.
- 2) An overview of the microscopic approaches to thermal hydraulics computations of fluid transport phenomena in energy exchanges, Hisashi Ninokata, *Int J Transport Phenomena*, vol.7 pp.219-240, (2005).
- 3) CFD and DNS Methodologies Development for Fuel Bundle Simulations, E. Baglietto, H. Ninokata, T. Misawa, *Nuclear Engineering and Design*, 236 (2006) 1503-1510

<国内会議：査読なし>

- 1) 直接乱流シミュレーションによる稠密格子燃料集合体内の乱流特性評価、阿竹規男他、日本原子力学会 2005年春の年会要旨集 II H-30
- 2) 高速炉燃料集合体内低 Re 数乱流の局所層流化について、二ノ方寿、奥村剛征、阿竹規男、2637、S-57 日本機械学会 2006 年度年次大会、熊本大学、2006 年 9 月 18～22 日

<国際会議：査読あり>

- 1) Simulation of turbulent flow inside tight lattice bundles with an improved non-linear eddy viscosity model, E. Baglietto et al, Proc 4th Japan-Korea Symposium on Nuclear Thermal Hydraulics and Safety, NTHAS-059, Sapporo, Japan November 28-December 1, 2004
- 2) Calculation of detailed velocity distributions in an infinite triangular array configuration of a fuel rod bundle using direct numerical simulation, T. Misawa, et al, N6P377, Proc. NUTHOS-6, Nara, October 4-8, 2004
- 3) CFD and CMFD applications for subchannel analysis of fuel rod bundles, H. Ninokata, NUTHOS-6, KN-12, October 4-8, 2004, Nara, Japan
- 4) CFD modeling of secondary flows in rod bundles, E. Baglietto, et al, N6P343, Proc. NUTHOS-6, Nara, October 4-8, 2004
- 5) Direct Numerical Simulation of Turbulent Flows in an Eccentric Annulus Channel, Tsunayuki Okumura, Elia Merzari and Hisashi Ninokata, Proceedings of ANS Winter Meeting, Albuquerque, USA, Korea, November, 2006
- 6) LES simulation of the vortex street between rectangular channels, E. Merzari, H. Ninokata, Proceedings of NTHAS2006, Jeju, Korea, November, 2006
- 7) Test of LES SGS models for the flow in annular channels (to be presented), E. Merzari, H. Ninokata, Proceedings of ICAPP 2007, Nice, France, May 2007
- 8) Toward a dynamical systems approach for the understanding of turbulent flow pulsations between subchannels (to be presented), E. Merzari, H. Ninokata, Proceedings of NURETH12, Pittsburgh, USA, September 2007.
- 9) Unsteady Reynolds averaged Navier-Stokes simulation for an accurate prediction of the flow inside tight rod bundles (to be presented), E. Merzari, H. Ninokata, Proceedings of NURETH12, Pittsburgh, USA, September 2007.

2.1.4 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	「もんじゅ」性能試験における反応率分布・増殖比解析手法の高度化研究		
研究協力課題	「もんじゅ」性能試験における反応率分布・増殖比解析手法の高度化研究 —3次元化と核種の共鳴の取り扱いの高度化—		
研究者所属、氏名			
大 学 側	大阪大学大学院工学研究科 教授 竹田敏一、同助手 北田孝典、同 M2 高谷紘史 [*客員研究員 **研究生]		
機 構 側	敦賀本部 次世代部門 プラントユニット 炉心・燃料技術 Gr 宇佐美 晋、西 裕士、北野 彰洋、石橋 淳一		
研究実施場所	大阪大学大学院工学研究科 環境・エネルギー工学専攻		
通算研究期間	平成 16 年 10 月 ~ 平成 19 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 18 年 8 月 ~ 平成 19 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>「もんじゅ」性能試験の解析を詳細に実施できるよう開発した BACH コードを改良する。ブランケット部の増殖比について従来の計算方法による結果と BACH コードによる結果を比較し、より正確で厳密な「もんじゅ」の反応率分布、増殖比を求め、今後の高速炉核特性計算の高度化を図る。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>「もんじゅ」性能試験の解析を含め、高速炉の核特性を正確に解析するには集合体内の非均質性、特に照射用の特殊集合体内の非均質性を取り扱う必要がある。このため旧サイクル機構（現原子力機構）の公募型研究「『もんじゅ』性能試験データに基づく増殖比・反応率評価と評価手法の高度化—ドシメータ周辺部の中性子束分布詳細解析に関する研究—」で平成 13~15 年度の 3 年間にわたって燃料ピン、ドシメータ等の非均質性を直接取り扱える 3 次元輸送コード BACH を作成した。</p> <p>本研究では作成したプロトタイプコード BACH を「もんじゅ」詳細解析に適用できるよう計算法の高度化を図り、さらに新しい核データライブラリー JENDL-3.3 とこれまで用いられてきた JENDL-3.2 の核特性に対する感度を評価し、核データライブラリーの精度に起因する増殖比評価への影響を検討する。この結果を基にして「もんじゅ」性能試験の解析を実施することを目的とする。特に、微小な中性子検出箔の反応率分布を解析し、従来手法によるブランケット領域や中性子遮蔽体領域での計算値と測定値の大きな食い違いを解明する。</p>			
【使用主要施設】			
大洗工学センター 情報センター			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 16 年度は、非均質 1 集合体（真空境界）体系における極角方向の分割数、及び極角の角度変化による中性子エネルギースペクトルと固有値に与える影響を調べた。結果、極角による中性子カレントへの影響は大きく、極角角度は慎重に選ぶ必要があり、また極角分割数に関しては 10 以上の分割を取ることが必要であると言える。さらに、2 次元 MOC 計算と 3 次元輸送ノード法計算のつなぎとなる均質化断面積作成法として反応率保存法の導入を行った。従来の中性子束重み法と比較して、反応率保存法による均質化断面積の使用により、反応率が非均質計算の値に近づき、また固有値も非均質計算の値に近づき、結果として非均質計算で求めた反応率を持つような均質化断面積の作成をすることができた。

平成 17 年度は、もんじゅ炉心計算（Pin by Pin 全炉心非均質計算）を実用的な計算時間で行うため、計算コードに MPI を利用した並列計算機能を組み込んだ。7 台での並列計算を行うことで、約 6 分の 1 の計算時間で計算が実行可能となった。

平成 18 年度は、中性子源の取り入れ方を改良した。さらに、軸方向漏れの取扱方法として、軸方向漏れの集合体内の場所依存性を考慮した計算方法を開発し、場所依存性の影響が小さいことを確認した。また、断面積の感度解析を行った。核データセットを JENDL-3.2 から JENDL-3.3 に変更しても、増殖比は 0.55% 低下する程度であった。

【研究成果（当該年度）】

2 次元六角体系 characteristics 法に基づく 3 次元六角体系計算コードの開発として、輸送ノード法から得られる軸方向漏れを取り入れることにより高速炉炉心体系を 3 次元で扱うことができるようにし、コードの検証及び増殖比とそれに伴う反応率の評価を行った。この結果として次の 3 つのことが分かった。2 次元体系で計算を行った結果、炉心燃料ではナトリウム領域やラッパー管などでも中性子束空間分布、中性子スペクトルはモンテカルロ計算と比較して、統計誤差 3 σ 以内でほぼ一致することが分かった。また、炉心体系などで、中性子束のレベルが低い領域においては、モンテカルロ計算では膨大な計算時間をかけなければ統計誤差が大きくなってしまいうため、本コードは優位性を持つと言える。そして、3 次元全炉心体系での計算が可能であり、正確に増殖比を計算できることが分かった。

断面積の感度解析を行った。核データセットを JENDL-3.2 から JENDL-3.3 に変更しても、増殖比は 0.55% 低下する程度であった。共鳴領域での実効断面積の扱いがより厳密な 175 群炉定数を適用し、70 群炉定数での径方向反応率分布とほぼ一致することを確認した。また JENDL-3.3 に基づく 70 群炉定数を適用しても径方向反応率分布はほぼ一致した。

【成果の反映状況】

本研究による成果より、「もんじゅ」性能試験における反応率分布の従来手法による解析結果において、長年の課題となっていた炉心領域に比べてプランケット領域や中性子遮蔽体領域での計算値と測定値の食い違いが拡大する傾向の改善が期待できるだけでなく、従来手法では正確に評価することが困難であった「もんじゅ」性能試験解析における微小な中性子検出箱の反応率分布を解析を通じて、従来手法によるプランケット領域や中性子遮蔽体領域での計算値と測定値の大きな食い違いの原因を解明することが可能となり今後の炉心解析計算に大きな効果が期待できる。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) MOC とノード法による 3 次元六角詳細輸送計算コードの高度化研究
(日本原子力学会 2005 年春の年会、東海大学 2002/3/29~31)

<国際会議>

- 1) Development of 3-DDetailed FRB Core Calculation Method Based on Method of Characteristics (M&C2005 Palais des Papes, Avignon, France, 2005/9/12~15)

2.1.5 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	ヘリカルコイル管内沸騰二相流の DNB 現象に関する研究								
研究協力課題	ヘリカルコイル管内沸騰二相流の DNB 発生機構と流動構造								
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="2">近畿大学生物理工学部 生体機械工学科 松井剛一、加治増夫、澤井 徹、鈴木雅富 [*客員研究員 **研究生]</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="2">次世代部門 プラントユニット 多様化 Gr. 吉川 信治</td> </tr> </table>			大 学 側	近畿大学生物理工学部 生体機械工学科 松井剛一、加治増夫、澤井 徹、鈴木雅富 [*客員研究員 **研究生]		機 構 側	次世代部門 プラントユニット 多様化 Gr. 吉川 信治	
大 学 側	近畿大学生物理工学部 生体機械工学科 松井剛一、加治増夫、澤井 徹、鈴木雅富 [*客員研究員 **研究生]								
機 構 側	次世代部門 プラントユニット 多様化 Gr. 吉川 信治								
研究実施場所	近畿大学生物理工学部 生体機械工学科 次世代部門 プラントユニット								
通算研究期間	平成 16 年 10 月 ~ 平成 19 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 18 年 8 月 ~ 平成 19 年 3 月						
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究								
【研究目的】	<p>もんじゅ蒸発器の伝熱管は、ナトリウム加熱による高熱流束とヘリカルコイル形状による大きな遠心力を特有の条件として有する。今後予想される様々な局面における運転安定性の向上を図るために、この条件下で発生する沸騰現象、とくに DNB(departure from nucleate boiling) 発生条件を詳細に把握する。あわせてヘリカルコイル管内沸騰二相流の流動構造との関連を明確にするためのモデル実験も行う。さらに、得られた実験データを実機運転安定性向上、伝熱管構造健全性評価の向上に役立つデータベース拡充に資する。</p>								
【研究内容 (概要)】	<p>水および水-窒素ガス二相流体を作動流体として用いる加熱モデル実験を行い、ヘリカルコイル管内における遠心力場での加熱・模擬沸騰二相流の伝熱特性、とくに DNB の発生条件下における実験データを取得する。また、これと並行して窒素ガス-水二相流による非加熱実験も補助的に行い、ヘリカルコイル管内の流動様式及びその流動構造を明らかにすることによって、ヘリカルコイル管内の伝熱流動特性、及び DNB 発生機構を検討する。以上の実験データを基礎として多次元解析コードを用いて試験解析を行い、ヘリカルコイル管内沸騰流の熱水力特性、とくに DNB 発生条件に対するモデル化や解析コードの適用性について検討し、もんじゅ蒸気発生器の解析評価システムの確立に資するものである。</p>								
【使用主要施設】	<p>ヘリカルコイル管沸騰模擬試験装置 (仕様: 管径 10mm, コイル曲率半径 100mm, 大気圧下恒温 (200℃) 加熱方式、作動流体: 水または水-N₂ ガス二相流体) ヘリカルコイル管非加熱試験装置 (仕様: 管径 10mm, コイル曲率半径 100mm, 常温大気圧、作動流体: 水-N₂ ガス二相流体)、 可視化画像計測装置、画像処理ソフト</p>								

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 16 年度は、数回にわたり研究実施計画について打合せを行うとともに流動可視化のための実験計測装置を製作し非加熱流動実験（特に、液層状部流動構造計測）を実施した。

平成 17 年度は、オイル槽利用による恒温加熱方式の加熱実験装置の製作および DNB 現象の流動構造との関連を探るための非加熱流動実験（特に、管横断面内流動構造および液膜厚さ計測）を実施した。

平成 18 年度は、加熱実験装置（恒温加熱方式ヘリカルコイル沸騰模擬ループ）を用いて低流量、低クオリティ領域における水単相沸騰流実験および高ボイド率を模擬した水-窒素ガス二相沸騰流実験（管外壁温度計測）を実施した。

【研究成果（当該年度）】

低クオリティ領域におけるヘリカルコイル管内沸騰二相流、および高ボイド率領域における模擬沸騰二相流に関する、水単相流および水-N₂ガス二相流を作動流体とする実験を行った。また、これと並行して、ヘリカルコイル管内の流動様式及びその流動構造についての知見を得るために、水-N₂ガス二相流の非加熱実験（試験部構造は加熱実験と同じ）を補助的に行った。加熱実験装置のヘリカルコイル管は材料 SUS304 管、管径 10mm、コイル直径 200mm、肉厚 1mm、傾斜 5°で巻数は 2.5 巻きとした。加熱方法は、工業用潤滑油による恒温加熱方式で、オイルタンク浴槽内温度は 200℃とした。計測方法は、K 型熱電対を用い、管横断面で上下内外の 4 箇所、管主流方向に 10 断面、計 40 測定点で管外壁温度計測を行った。その他に、オイルタンク浴槽内の 7 箇所で温度を、また、ヘリカルコイル管の入口および出口の温度と圧力を測定した。実験は、体積流束 $j_L = 0.02 \sim 1.06$ [m/s]、 $j_G = 0 \sim 2.27$ [m/s] の範囲で行い、入口からの計測横断面 3 番～10 番の外壁温度を 50Hz でサンプリングした。

実験の結果、管横断面内と流れ周方向で温度分布と変動が観測され、その分布は管内の流動に強く影響されることが分かった。特に、水流量が小さい場合、局所における短時間の管外壁温度上昇（上部温度が最も高く百数十℃を示す）と急激な減少のノコギリ波的繰返し現象を観測した。これは、管内部における沸騰発生により横断面内管上部では局部的かつ短時間のドライアウト状態が発生し、液プラグの到達により壁面が濡れ飽和温度程度に下がる現象で、流れは間欠流様式と推測される。このような温度変化の繰返し現象が観測されることから、いわゆる DNB が繰返し発生していると考えられる。この温度変動の周期は、出口に近づくにつれて長くなり、温度変動幅も大きくなっていく傾向があった。このような現象は、ヘリカルコイル伝熱管内ドライアウトクオリティに関する PNC 報告（PNC SN941 83-98, 1983）にも見られ、本実験結果は、現象の再現性を裏付けるものであると考えられる。また、この現象は、低クオリティ領域での特性とも考えられる。なお、管底部を流れる流体が飽和温度（推測）に達すると、管断面での温度分布はさほど見られず飽和温度と推測される温度で一定の値（外壁温度で 115℃程度）を示した。

水流量を減少させる実験を行ったところ、外壁温度が 115℃程度になると高温へのノコギリ状温度変動を示し、さらに流量が低下すると変動振幅が大きくなり、流れが停止した後ある時点で 200℃に上昇する傾向を示した。これは、DNB の繰返し現象の後、ドライアウト状態になったものと考えられる。また、沸騰の発生がない流れで、管内壁平均温度が 100℃のとき外壁平均温度が 120℃を示すのを確認したが、沸騰状態での計測はできなかった。

一方、窒素ガスを混合させた高ボイド率状態では、水流量の小さい場合には DNB の繰り返し現象が見られ、ガス流量が大きくなるにつれ変動周期は長くなり、温度変動幅も大きくなる傾向が見られた。

なお、遠心力の影響は、機構論的に検討した結果、DNB 現象に本質的な影響を与えないことを確認した。

これらの結果は、低流量条件の低クオリティ領域では、管路内で DNB が繰り返し発生し、それによる大きな温度変化が現れることを示唆している。したがって、管路断面および流れ方向の温度分布と変動の発生を機構論的に把握し、さらに熱流束、圧力、流速などの物理条件に関する実機との差を埋めることのできる外挿手段が揃えば、「もんじゅ」の蒸発器の安全性の定量的な把握に貢献すると考えられる。

【成果の反映状況】

本研究による成果は、実機との物理条件の差のためそのまま反映できないと思われるが、現象の基本的な知見は有益であり、物理条件の差を埋めることができれば成果の反映は期待できる。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 松井剛一、加治増夫、澤井徹。ヘリカルコイル管内気液二相流の可視化画像計測。
日本原子力学会 2005 年秋の大会、2005.
- 2) 松井剛一、原由香理、鈴木雅富、ヘリカルコイル管内気液二相流の流動特性、
日本混相流学会年会講演会 2006 講演論文集、310-311、2006.
- 3) 松井剛一、鈴木雅富、加治増夫、澤井徹、吉川信治、低クオリティ領域における
ヘリカルコイル伝熱管内沸騰二相流の DNB 現象、日本機械学会 2007 年度年次大会、2007.
- 4) 松井剛一、鈴木雅富、低クオリティ領域における DNB の繰り返し現象、
日本実験力学学会 2007 年度年次講演会、2007.

<国際会議>

- 1) G. Matsui and M. Suzuki, Characteristics of boiling flow in helically coiled heat-transfer tube, 2nd International Symposium on Advanced Fluid/Solid Science and Technology in Experimental Mechanics '07-Osaka, 2007.

2.1.6 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	高性能マイナーアクチニド含有ターゲットの基礎的特性に関する研究										
研究協力課題	シリコン系母材ターゲットの製造条件の確立と特性評価										
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="3">東京工業大学 原子炉工学研究所 矢野豊彦 今井雅三 〔*客員研究員 **研究生〕</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="3">大洗研究開発センター 燃料材料試験部 燃料試験課 田中健哉 三輪周平 材料試験課 館 義昭</td> </tr> </table>			大 学 側	東京工業大学 原子炉工学研究所 矢野豊彦 今井雅三 〔*客員研究員 **研究生〕			機 構 側	大洗研究開発センター 燃料材料試験部 燃料試験課 田中健哉 三輪周平 材料試験課 館 義昭		
大 学 側	東京工業大学 原子炉工学研究所 矢野豊彦 今井雅三 〔*客員研究員 **研究生〕										
機 構 側	大洗研究開発センター 燃料材料試験部 燃料試験課 田中健哉 三輪周平 材料試験課 館 義昭										
研究実施場所	東京工業大学 原子炉工学研究所ニュークリアセラミックス実験室 日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター 燃料材料試験部 燃料試験課(照射燃料試験施設)										
通算研究期間 (予定)	平成 17 年 7 月 ~ 平成 20 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 18 年 4 月 ~ 平成 19 年 3 月								
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究										
<p>【研究目的】</p> <p>環境負荷低減を目的としたマイナーアクチニド(MA)の処理及び処分方法として、照射により MA を核変換させ、MA の放射性毒性を低減させるという概念が挙げられている。この概念については、種々検討が行われているが、高濃度の MA を不活性母材に分散させたターゲットの最終的な形態は未だ選定されていない。本研究では、従来の研究から、耐照射性、熱的特性及び化学的特性の優れたシリコン系化合物を母材としたターゲットについて、その製造可能性と基礎的物性を実験的に評価し、照射後のスキームを含めてターゲットとしての適性を評価することを目的とする。</p>											
<p>【研究内容(概要)】</p> <p>ターゲットによる MA の核変換技術の開発は、欧州を中心として MgO や ZrO₂、MgAl₂O₄等を母材としたターゲットについて、製造技術の開発、特性評価及び照射特性評価等の一連の研究が進められてきたが、最適な形態は未だ選定されていないというのが現状である。</p> <p>本研究では、種々の母材候補材のうち、他の候補材に比べて熱的特性、スエリング等の耐照射特性に優れ、高温における被覆管等との共存性が良好である窒化ケイ素及び低熱膨張特性に優れ、優れた耐照射特性も期待されるポリュースイトについて着目した。ターゲットとしての総合的な適性を評価する為には、ターゲット製造方法の確立及びその基礎的物性を評価することが不可欠であるが、シリコン系化合物においては、MA を含有させたターゲット用母材としての製造方法は確立されていない。そこで本研究では、模擬 MA としてセリウム(Ce)を用いて Ce 含有窒化ケイ素及びポリュースイトターゲットを作製し、その基礎的物性を実験的に評価し、照射後の再処理および照射後処分のいずれかが適切であるかを含めて、最適な製造方法及び条件を確立する。また実際にホット試料を使用した系についても検討し、評価を行う。</p>											
<p>【使用主要施設】</p> <ol style="list-style-type: none"> 東京工業大学 原子力工学研究所 (粉末成形装置、焼結用電気炉、熱伝導率測定装置、走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡、強度試験機、元素分析装置、熱重量分析装置、X線回折装置等) 日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター 燃料材料試験部 燃料試験課(照射燃料試験施設) (粉末調製装置、成形装置、焼成炉) 											

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 17 年度は、主として東京工業大学の分担者が東京工業大学原子炉工学研究所の施設を利用して、以下の研究を行った。

- (1) 窒化ケイ素及びポリュースサイトを母材とし、Am を含有したターゲットを想定して模擬 MA としてセリウム(Ce)を使用したターゲットの作製試験を実施し、高密度焼結体を作製する条件を検討した。この際、特に Ce の蒸発を最小限に押さえる手法の開発に留意した。
- (2) 得られた Ce 含有窒化ケイ素焼結体及び Cs 含有ポリュースサイト焼結体について、焼結密度、模擬 MA の分布状態(微細構造)、熱的特性、熱安定性および機械的特性等の系統的な実験的測定及び評価を行い、前者についてはターゲット用母材としての適切な作製条件を見いだした。後者については、Cs の製造時および高温保持時に揮発があることを明らかにした。

平成 18 年度は、主として東京工業大学の分担者が東京工業大学原子炉工学研究所の施設を利用して、以下の研究を行った。また、平成 19 年度のホット試験に先立ち、主として原子力機構の分担者が照射燃料試験施設にて以下の準備を行った。

1. 窒化ケイ素マトリックスの評価の継続（東工大）
 - (1) 作製した焼結体中のセリウムの含有量を定量的に測定し、焼結体の内部のセリウムの分布状態を明らかにした。また、焼結のメカニズムについて検討を行った。
 - (2) 焼結体中のホスト相の分布を均質化させることを目的として、焼結助剤としてシリカを用いた焼結体を作製試験、特性評価を行い、高密度かつホスト相が均質に分散する焼結体の作製条件について検討した。
 - (3) 焼結体の熱硝酸溶解性試験を実施し、現行再処理への適応性について検討した。
2. ホット試験に向けての準備（原子力機構）
 - (1) ホット試料を用いたターゲットの作製用機器の整備を行うと共に、東工大分担者がホット試験を実施するための制度および体制の調整を行った。
 - (2) コールド試料を用いたモックアップ試験により、ホット試験用装置の確認を行った。

【研究成果（当該年度）】

1. 平成 17 年度に確立した手法により、窒化ケイ素を母材とし、Am を含有したターゲットを想定して模擬 MA としてセリウム(Ce)を使用したターゲットの高密度焼結体を作製し、その特性評価を行った。

本研究に関して、以下の研究成果を得た。

(1) セリウムの含有量の定量

作製した焼結体中のセリウムの含有量を定量的に測定し、焼結体の内部のセリウムの分布状態を調べた。その結果、17 年度に作製した焼結体は、高密度であるが、焼結体表面近傍にてセリウム濃度が部分的に減少していることが観察された。このセリウム濃度の不均質性は、窒化ケイ素の酸化による分解に起因しているものと考えられる。

また、焼結のメカニズムとして、焼結温度及び時間による重量変化の関係より、焼結中の重量減少は主として、窒化ケイ素の酸化、二酸化セリウムの還元によるものであることを明らかにし、減量予測式を求めた。

(2) 焼結体中のホスト相分布の均質化

(1)で示した焼結体中でのセリウム濃度の不均質分布を改善する手法として、窒化ケイ素の分解を均一化するために、焼結助剤として SiO₂ 添加した焼結体を作製し、特性を評価した。この手法による焼結体のセリウム分布を計測したところ、SiO₂ を添加しない場合に比べ、5 wt.% 添加した焼結体においてセリウム濃度の不均一が解消されることが明らかとなった。

(3) 焼結体の熱硝酸溶解性の測定

平成 17 年度に作製した、1700℃で窒素中常圧焼結の 16wt%CeO₂ 焼結体、及び比較のために 1700℃で窒素中 40MPa にてホットプレス焼結した 16wt%CeO₂ 焼結体の熱硝酸溶解試験を行った。前者は、相対密度が 90～95% で表面に 150μm 程度の気孔を含有する層があるが、後者はほぼ理論密度で、組織の不均一性は少ない。試験温度は 70、80、90、100℃、硝酸濃度は 1、3、8 mol/l、時間は 200 時間（一部 400 時間）まで、バッチ式静置条件である。

その結果、70～80℃では、硝酸濃度が低い方が、重量減少が大きく、1 mol/l の時の溶出が顕著であった。また、このときは、20 時間以内の短時間で溶解速度が高く、その後は、やや速度の低下が見られた。ホットプレス焼結体の場合、20 時間以降、溶解速度が著しく低下した。溶解温度 90～100℃では、3 mol/l の条件で溶出速度が最も早かった。溶解試験後の断面観察から、常圧焼結体では、表面気孔層とその直下までに存在した粒界層が、ほぼ全量溶出していることが明らかとなり、粒界相の選択的な溶解が起こっていることが明らかとなった。なお、致密質であるホットプレス焼結体は、同温度での常圧焼結体に比べ、表面の反応層の厚さは 1/10 程度であり、溶出量 1/4 程度であったことから、焼結体の粒界層の厚さや分布状態、さらに気孔の存在が、溶出速度に影響していることが明らかとなった。

この結果を基に、焼結体ペレットを粉砕した粉末について、硝酸溶解性試験を実施した。粉末は、45μm のふるいを通したものである。その結果、粉末試料を用いた溶解試験後試料の XRD 測定より、Ce を含む粒界相は、ほぼ全て溶解することが明らかになった。これより再処理を考慮した場合、硝酸に対して難溶解性を示す窒化ケイ素を用いたターゲットにおいても、硝酸溶解工程の前処理としてペレットを粉砕することにより、現行の再処理へ適用可能性が示唆された。

2. ホット試験に向けての準備

平成 19 年度に予定のホット試料を用いた作製試験に向けての準備として、原子力機構において、以下の準備を行った。

- (1) Am 含有ターゲット作製用機器として、粉末調製機器（ミル、真空乾燥器、成型用プレス）、焼成用電気炉（最高使用温度 1600℃、雰囲気調整型）の整備と、合成に必要な試薬の準備を行った。
- (2) 東工大から担当者を派遣し、原子力機構職員とともに、コールド試料を用いたモックアップ試験により作製手順の確認を行った。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 19 年度は、東京工業大学の分担者がサイクル機構の研究協力者の支援を得て、日本原子力研究開発機構大洗研究開発センター燃料材料試験部燃料試験課の施設を利用して研究を行う。

- (1) 模擬 MA としてセリウムを使用した製造条件が確立された候補材のうち、窒化ケイ素に対して、ホット試料を用いたターゲットの作製試験を行い、得られた焼結体について、収縮率、重量減量、密度、などの焼結性の確認、および焼結体の各種特性評価を行う。

東京工業大学では、当初予定の内、平成 18 年度までに行えなかった以下の評価について、研究を行う。

- (1) 窒化ケイ素マトリックス材に対しては、高温までの熱伝導率測定、被覆材との両立性試験を行う。
- (2) TiN 及び SiC を母材とした焼結体の作製試験を行う。
- (3) Cs を含有したポリュースイト焼結体について、高温までの熱伝導率測定、安定性試験、被覆材との両立性試験を行う。

また、3 年間の研究成果を纏め、シリコン系化合物のターゲット母材の適性について、再処理あるいは照射後処分等、全体のスキームを含めて総合的に評価する。

【研究成果の公表】

<論文>

- 1) Masahiko OSAKA, Hiroyuki SERIZAWA, Masato KATO, Masaki INOUE, Kunihisa NAKAJIMA, Yoshiaki TACHI, Ryoichi KITAMURA, Shigeo OHKI, Shuhei MIWA, Takashi IWAI, Kenya TANAKA, Shigeharu UKAI, Yasuo ARAI, "Development of Minor Actinide Containing Fuel/Target for the Use in a Future Integrated System of Fast Reactor and Accelerator Driven System", J. Nucl. Sci. Technol. Vol.44[3], 309-316 (2007) 査読有
- 2) Junichi Yamane, Masamitsu Imai and Toyohiko Yano, "Fabrication and Basic Characterization of Silicon Nitride as an Inert Matrix", Progress in Nuclear Energy (in press) 査読有
- 3) Masafumi Akiyoshi and Toyohiko Yano, "Stability of Neutron-Irradiated Ceramics Obtained from As-Irradiated and After Annealing Measurements", Progress in Nuclear Energy (in press) 査読有

<国内会議>

- 1) 山根純一、今井雅三、矢野豊彦、"アメリカウム固定化用窒化ケイ素セラミックスの作製"、日本セラミックス協会 2005 年年会講演予稿集、1D20, pp. 8 (2005).
- 2) 村山雄哉、今井雅三、矢野豊彦、"放射性セシウム固定化用高密度ポリュースイトセラミックスの作製"、日本原子力学会 2005 年春の年会要旨集、M66, pp. 695 (2005).
- 3) 秋吉優史、高木郁二、矢野豊彦、赤坂尚昭、館義昭、"中性子照射したセラミックスのアニールによる熱拡散率とスエリングの回復挙動の相関"、日本原子力学会 2005 年春の年会要旨集、I30, pp. 57 (2005).
- 4) 山根純一、今井雅三、矢野豊彦、"超ウラン元素固定化用窒化ケイ素マトリックスの作製と硝酸浸出特性の評価"、日本セラミックス協会第 19 回秋季シンポジウム講演予稿集、2P53, pp. 378 (2006).
- 5) 山根純一、今井雅三、矢野豊彦、"超ウラン元素変換用窒化ケイ素マトリックスの作製"、日本原子力学会 2006 年春の年会要旨集、F47, pp. 221 (2006).
- 6) 山神知之、矢野豊彦、今井雅三、秋吉優史、" β - Si_3N_4 に導入された中性子照射欠陥の解析"、日本原子力学会 2006 年春の年会要旨集、G37, pp. 261 (2006).

<国際会議>

- 1) M. Osaka, M. Inoue, H. Serizawa, M. Kato, Y. Tachi, R. Kitamura, S. Ohki, S. Miwa, K. Nakajima, T. Iwai, K. Tanaka, S. Ukai, Y. Arai., Grobal 2005, No.240.
- 2) Junichi Yamane, Masamitsu Imai and Toyohiko Yano, "Synthesis and Properties of Silicon Nitride Ceramics for an Inert Matrix of TRU Elements", Presented at Inter-COE International Symposium on Energy System, Oct. 5-7, 2006.
- 3) Junichi Yamane, Masamitsu Imai and Toyohiko Yano, "Fabrication and Basic Characterization of Silicon Nitride as an Inert Matrix", Will be present at 2nd COE-INES International Symposium on Innovative Nuclear Energy Systems, Nov. 26-30, 2006.
- 4) Masafumi Akiyoshi and Toyohiko Yano, "Stability of Neutron-Irradiated Ceramics Obtained from As-Irradiated and After Annealing Measurements", Abst. 2nd COE-INES International Symposium on Innovative Nuclear Energy Systems, 2C3#129, pp.74 (2006).
- 5) M. Osaka, S. Miwa and K. Tanaka, "Conceptual Study on Enhanced Minor Actinide Transmutation by Advanced Fuels in Fast Reactor Cycle", 15th Int. Conf. Nuclear Engineering, (2007)

2.1.7 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	高クロム鋼における強化機構の高温長時間安定性に関する研究								
研究協力課題	析出核生成・成長制御による高温長時間安定な微細 MX の形成								
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="2">群馬大学 大学院 工学研究科 機械システム工学専攻 教授 中澤崇徳 助教授 荘司郁夫 〔*客員研究員 **研究生〕</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="2">次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 副主任研究員 若井隆純</td> </tr> </table>			大 学 側	群馬大学 大学院 工学研究科 機械システム工学専攻 教授 中澤崇徳 助教授 荘司郁夫 〔*客員研究員 **研究生〕		機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 副主任研究員 若井隆純	
大 学 側	群馬大学 大学院 工学研究科 機械システム工学専攻 教授 中澤崇徳 助教授 荘司郁夫 〔*客員研究員 **研究生〕								
機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 副主任研究員 若井隆純								
研究実施場所	群馬大学 工学部 3 号館 機械システム工学科 大洗研究開発センター ナトリウム技術開発第一・第三試験室								
通算研究期間 (予定)	平成 17 年 6 月 ~ 平成 20 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 18 年 6 月 ~ 平成 19 年 3 月						
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究								
【研究目的】	<p>経済性向上のため、高速炉の長寿命化が指向されるなか、高速炉構造材料には、これまで以上の高温長時間にわたる特性維持が要求される。一方、鉄鋼材料には、通常、特性強化を目的に複数の添加元素が加えられるが、これまでの鉄鋼製造技術では一定時間以上では効力を失うばかりか反対に特性の低下を引き起こす懸念も指摘されている。特に、高クロム鋼で期待される MX (V・Nb の炭窒化物) による析出強化に関しては、高温長時間における安定化は困難だと考えられている。本研究では、群馬大学が考案した析出物を微細、一様に分布させる技術を高クロム鋼における MX に適用し、高速炉使用条件においても実用鋼の MX 強化機構が安定に維持されることを示し、高速炉最適高クロム鋼の開発に反映する。</p>								
【研究内容 (概要)】	<p>高速炉での使用条件において安定性を維持できる MX 強化機構を実現する技術開発を、以下の手順で実施する：</p> <p>(1) MX 安定化高クロム鋼の製作：低温焼戻しにより微細 MX の析出核を高密度に分布させた後、高温焼戻しにより安定な微細 MX を高密度に析出させた MX 安定化高クロム鋼を製作し、意図した組織が達成されていることを観察により確認し、その製作プロセスの妥当性を検証する。さらに、MX 粒子の純粋な成長挙動を明らかにすることを目的として、転位を消滅させた組織における MX の安定性についても検討する。なお、炭化物や Laves 相などの影響を極力排除するため、合金元素の添加を必要最小限にとどめた成分系とする。</p> <p>(2) 高温短中時間クリープにおける延性低下回避の確認：現状火力プラント等で使用されている高クロム鋼は、強度の低下が顕在化する以前に組織安定性が維持できないことに起因するクリープ延性の低下が認められる。延性低下が顕著な温度域における中・短時間クリープ試験を実施し、懸念される延性の急激な低下が生じないこと、組織中の MX が安定であることを示す。</p>								

<p>(3) さらに高速炉での使用条件における MX による強化機構の安定性を実証するため、熱力学的理論に基づいて設定した適切な加速条件における長時間クリープ試験等を実施し、MX の密度、大きさ、析出物間距離などを定量的指標として用い、既存高クロム鋼との比較によって、MX 強化機構の安定性維持技術の妥当性を評価する。</p>
<p>【使用主要施設】</p> <p>群馬大学) 走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡、 電解抽出装置 原子力機構) 不活性ガス加熱炉試験装置、大気中単軸クリープ試験装置、走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡</p>
<p>【進捗状況（当該年度までの概要）】</p> <p>平成 17 年度は、下記を実施した。</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. MX 安定化高クロム鋼の合金素材製作 2. MX 安定化高クロム鋼の熱処理特性の評価 3. 長時間材料強度試験の開始 4. 微細 MX 強化機構の安定性評価の開始 <p>平成 18 年度は、下記を実施した。</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. 長時間材料強度試験 2. 微細 MX 強化機構の安定性評価
<p>【研究成果（当該年度）】</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. 長時間材料強度試験 <p>長時間材料強度試験としてクリープ試験を実施した。なお、試験温度は温度加速するため運転温度より高温側となる 650℃とした。550℃1h + 750℃1h 焼戻し材（二段処理材）は応力 133MPa、750℃1h 焼戻し材（一段処理材）は 140MPa で試験し、前者は 2443h そして後者は 1893h の破断時間であった。破断時間に及ぼす処理条件の影響は、試験応力が異なることを考慮すると小さいと判断される。一方、破断伸びは二段処理材が 17%、一段処理材が 16%、破断絞りはそれぞれ 73%、68%と破断延性についても両者の差は小さい。これらのクリープ試験結果は 2000h 前後と比較的短時間のものであるが、これらの結果を既存の火力用鋼種 T91 および T92 と比較すると、破断強度はかなり高めであるが、破断延性はやや低めである。本研究材は火力用の既存鋼種に比べ、高温における組織安定性の観点から C, W, Mo, Nb, V などの強化元素の添加量を低めに設定しているにもかかわらず、高い破断強度を示す点が注目される。これは、強化元素の添加量については固溶強化および析出強化にそれぞれ必要な最小限を確保したこと、および焼準処理において完全に固溶させたことに関係すると考えられる。</p> 2. 微細 MX 強化機構の安定性評価 <ol style="list-style-type: none"> (a) 高温時効試験 <p>温度加速するため運転温度より高温側となる 650℃で 1000h の時効処理を行い、組織を調査した。抽出レプリカ試料による電子顕微鏡観察により析出物を観察した結果、</p>

時効により析出物はやや粗大化するが、一段処理材と二段処理材の差は小さいことを確認した。析出元素量の定量評価をするため実施した電解抽出残渣分析においては、時効処理による析出元素量の増加傾向が認められたが、その変化量は極めて小さく焼戻し処理により析出はほぼ完了していると言える。時効処理後の析出元素量は一段処理材と二段処理材ともほぼ同じ値であった。MX 構成元素である Nb は合金添加量の約 90%、V は約 40%がそれぞれ析出している。今回実施した高温時効処理に対して析出物は安定であると判断される。なお、時効処理条件 650°C・1000h は Larson-Miller 法 (定数: 20) を用いると 550°C で約 620,000h に相当する。

(b) クリープ破断試験片の組織調査

先に示した 650°C クリープ破断試験は破断時間が 2000h 前後と上述の高温時効処理 1000h より長いことや、応力およびひずみによる加速効果も考えられることから、高温における組織安定性を評価するためクリープ破断試験片の組織を調査した。一段処理材および二段処理材ともに高温時効に比べクリープ破断材は析出物がわずかながら粗大である。その粗大化傾向は一段処理材の方がやや大きいためクリープ破断材の析出物は二段処理材の方が微細な析出物の占める比率がわずかながら多い。クリープ破断材の電解抽出残渣分析による析出元素量は、Nb は時効材と同じであるが、V はわずかながら増加している。上述の時効処理に比べクリープ破断試験片は長時間かつ応力やひずみによる加速作用のある高温履歴であるが、このような条件下でも析出物の粗大化傾向は小さく、MX の構成元素である Nb や V の析出量の変化も小さいことから析出物は安定であると言える。なお、既存火力用鋼種 T92 のクリープ破断試験片の電解抽出残渣分析結果と比較すると本鋼の Mo と W の析出量は著しく少なく、また、Cr や Fe さらには V の析出量も少ないことから高温における析出物の安定性が改善された鋼種であると言える。なお、Nb については両鋼種とも添加量のほぼ全量が析出している。

【今後の予定 (翌年度以降の概要)】又は【成果の反映状況】

平成 19 年度は、下記を実施する予定である。

1. 長時間材料強度試験

長時間熱時効試験およびクリープ試験の終了 (上半期)

2. 微細 MX 強化機構の安定性評価

既存鋼との比較による長時間組織安定性の達成度評価 (下半期)

3. まとめ

高温長時間安定性を維持できる MX 強化機構を実現可能なプロセスの提示 (下半期)

【研究成果の公表】

1) 国内会議

日本鉄鋼協会第 152 回秋季講演大会、「材料とプロセス」 Vol. 19, No. 6, (2006) p. 1242

日本鉄鋼協会第 152 回秋季講演大会、「材料とプロセス」 Vol. 19, No. 6, (2006) p. 1171

2) 特許

特願 2006-176864

2.1.8 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	高クロム鋼における強化機構の高温長時間安定性に関する研究		
研究協力課題	高クロム鋼の Ω 法によるクリープ寿命評価と組織安定性に関する研究		
研究者所属、氏名			
大 学 側	九州大学 大学院総合理工学研究院 融合創造理工学部門 教授 中島 英治, 助手 池田 賢一 九州大学 大学院総合理工学府 物質理工学専攻 大学院生 光原 昌寿, 吉田 悠		
機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 若井隆純		
研究実施場所	九州大学 大学院総合理工学研究院 C 棟 材料試験室、材料測定室 日本原子力研究開発機構 ナトリウム技術開発第 1, 第 3 試験室		
通算研究期間 (予定)	平成 17 年 8 月 ~ 平成 20 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 18 年 6 月 ~ 平成 19 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】 経済性向上を主眼として、高速炉の長寿命化が検討されている。そのため構造材料には、これまで以上の高温長時間にわたる強度・延性・靱性の維持が要求される。一方、材料の高温強度向上を目的として添加される各種元素による強化機構の高温長時間における有効性・安定性については、十分な知見が蓄積されているとはいえない。特に、析出強化を狙って添加される元素については、一定時間以上では効力を失うばかりか反対に特性の低下を引き起こす懸念も指摘されている。そこで、本研究では、高クロム (Cr) 鋼における MX (バナジウム (V)・ニオブ (Nb) の炭窒化物) による析出強化機構の長時間安定性・有効性に着目し、析出物の有無あるいは形態・大きさおよびこれらと密接な関係があると考えられるマルテンサイト組織の崩壊が、長時間域での強度特性に及ぼす影響を明らかにし、高速炉最適高 Cr 鋼の開発に反映することを目的とする。			
【研究内容 (概要)】 高 Cr マルテンサイト組織鋼の長時間クリープ破断材に対し、電子顕微鏡等を用いた組織観察・分析を実施して、微細 MX の有無あるいは形態・大きさ、およびマルテンサイト組織中の各境界 (ブロック、ポケット、ラス) の存在頻度のクリープ損傷の進行に伴う変化を明らかにする。一方、クリープ試験で得られたクリープ曲線を Ω 解析し、組織観察・分析で得られる組織劣化因子と Ω パラメータの関係を明らかにする。また、クリープ中断試験を実施して、中断材に対する組織観察・分析を行い、クリープ損傷の進行とマルテンサイト組織の崩壊との関係を把握する。以上の観察・分析および解析の結果に基づいて、マルテンサイト組織の崩壊の進行程度に着目したクリープ余寿命評価法を提案し、以って、高温長時間クリープ変形中に組織変化を起こしにくい合金鋼の組織設計に関する提案を行う。			
【使用主要施設】 九州大学：方位像顕微鏡、走査透過型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡、 Ω 法解析ソフトウェア (研究室で作成) 日本原子力研究開発機構：不活性ガス加熱炉試験装置、大気中単軸クリープ試験装置、 走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 17 年度は、以下の研究を行った。

1. 高 Cr 鋼初期材の組織解析（九州大学）
結晶方位分布測定によるマルテンサイト初期組織の調査
2. クリープデータの Ω 法解析（九州大学）
既取得高 Cr 鋼クリープデータの Ω 法解析
3. 長時間クリープ試験の実施（日本原子力研究開発機構）
MX 形成元素の異なる高 Cr 鋼のクリープ試験
4. 長時間組織安定性の評価（九州大学・日本原子力研究開発機構）
既取得高 Cr 鋼クリープ試験材の組織観察と Ω 法解析の結果から、MX 形成元素とマルテンサイト組織崩壊および Ω 法パラメータの相関関係について検討する。

平成 18 年度は、以下の研究を行った。

1. 初期材・損傷材の組織観察・分析（九州大学）
高 Cr 鋼初期材、クリープ破断材の OIM、TEM および STEM による組織観察を行い、MX 形成元素の同定や分布状態やマルテンサイト崩壊過程を明らかにする。
2. クリープデータの Ω 法解析（九州大学）
各鋼種のクリープデータの Ω 法解析による Ω 値の温度依存性、応力依存性の評価
3. 長時間クリープ試験の実施（日本原子力研究開発機構）
MX 形成元素の異なる高 Cr 鋼のクリープ試験・クリープ中断試験
温度依存性、応力依存性解明のためのクリープ試験条件の検討・試験
4. 長時間組織安定性の評価（九州大学・日本原子力研究開発機構）
高 Cr 鋼クリープ中断試験材の組織観察と Ω 法解析の結果から、寿命評価法の検証

【研究成果（当該年度）】

本研究では、高クロム鋼における MX（バナジウム、ニオブの炭窒化物）による析出強化機構の長時間安定性・有効性に着目し、析出物の有無あるいは形態・大きさおよびこれらと密接に関係があると考えられるマルテンサイト組織の崩壊が、長時間域での強度特性に及ぼす影響を明らかにし、高速炉最適高クロム鋼の開発に反映させることを目的としている。平成 18 年度の研究成果を以下に示す。本年度は、MX 型析出物の構成元素である V と Nb の添加量を調整した高 Cr フェライト系耐熱鋼において、V と Nb の添加量による組織の微細構造変化を調査した。その後、微細構造に対応した Ω 値の遷移から、添加元素によるクリープ強化が Ω 値に及ぼす影響について考察した。試料は、Fe-0.1%C-0.05%N-10.0%Cr-1.2%Mo-0.7%Mn を基本組成とし、V 添加量を 0.06、0.12 および 0.18%、Nb 添加量を 0.01、0.03 および 0.05% と変化させたそれぞれの単独添加材を 6 鋼種、ならびにそれらを複合添加した 4 鋼種を用いた（すべて wt%）。

◎組織の微細構造とクリープ強化機構

クリープ寿命に対する添加元素の影響

図 1 にそれぞれの鋼種において、クリープ試験から得られた応力と破断時間の関係を示す。本年度は、昨年度の成果に加えて、今年度終了したクリープ試験結果を追加記載している。図 1 に示すように、V および Nb を添加することで、クリープ強度が向上していることがわかる。しかし、クリープ破断時間の延びに対するそれぞれの元素の添加量の影響は異なる。V 添加材では V の添加量が増加するとともに破断時間が延びるのに対して、Nb 添加材では 0.01% 添加のみ破断時間が延びるが、それ以降の添加量の増加に対しては破断時間の延びは認められず、逆にわずかな破断時間の減少が確認された。

また、V と Nb それぞれの単独添加材での結果を比較すると、V 添加の効果はより低応力側で、Nb 添加の効果はより高応力側で有効である。このように、V と Nb はそれぞれクリープ強度に対して異なる影響を及ぼすことが考えられ、それぞれの強化機構を明確にすることが重要である。

V 添加によるクリープ強度の強化機構

一般に、べき乗則クリープ領域では、クリープひずみ速度は

$$\dot{\epsilon} = A\sigma^n \quad (1)$$

で表すことができる。ここで、 A は応力に依存しない定数であり、 n は応力指数である。組織内部に生じる変形の非熱的な抵抗をしきい応力として考えると、実際に母相の変形に寄与する応力は負荷応力からしきい応力を差し引いたものであるから、式(1)は

$$\dot{\epsilon} = A(\sigma - \sigma_m)^n \quad (2)$$

で表される。したがって、クリープ試験中の最小クリープひずみ速度を使って、V および Nb 添加による見かけのしきい応力の上昇を算出することが可能である。式(2)を用いて算出した V、Nb 無添加材からのしきい応力の上昇値と V の添加量の関係を図 2 に示す。ただし、しきい応力は、応力と最小ひずみ速度の関係を直線近似することで算出した。図 2 より、V の添加量が増加すると、しきい応力が線形的に増加していることがわかる。抽出レプリカ法を用いた析出物の観察結果から添加量 0.06% の試料では V (C,N) は析出していないことがわかった。したがって、V、Nb 無添加材から 0.06%V 添加材におけるクリープ強度の上昇は MX 型析出物による析出強化であるとは考え難い。また、0.06%以上の添加材においてしきい応力が線形的に増加することから、V 添加材では MX 型析出物による析出強化以外の強化機構が作用しており、その強化能は V 添加量に比例して増加していくものと考えられる。

図 3 に V、Nb 無添加材と 0.18%V 単独添加材における内部組織の BF-STEM 像を示す。また、図 3(a)と(b)に四角で示した部分の EDS 面分析結果を併せて示す。V、Nb 無添加材ではラス境界上に Cr 析出物が存在しており、ラス組織中に析出物は無いことがわかる。一方、0.18%V 単独添加材では、ラス組織中に V(C,N)の析出が確認できるが、添加された V の多くはラス境界上に Cr とともに検出された。また、ラス境界上の(Cr,V)析出物には塊状のもの以外に、矢印に示すようなフィルム状の薄い析出物が存在することがわかる。図 4 にそれぞれの析出物における BF-STEM 像と BF-STEM 像中に破線で示した部分における EDS 線分析結果を示す。それぞれの元素に対応した特性 X 線の強度は Fe から得られた特性 X 線の強度を用いて規格化している。塊状の(Cr,V)析出物とフィルム状の(Cr,V)析出物で Cr と V の規格化特性 X 線強度に変化が見られ、それぞれの析出物は異なる化学組成比で構成されていることがわかる。ところで、前述したように V 単独添加材におけるクリープ強化は MX 型析出物の析出強化以外であることが推察される。一般に、クリープ変形中のマルテンサイト組織の劣化は回復したラス組織が粗大化することによって始まることが知られている。そのため、クリープ強度の向上にはラス組織中の転位運動の阻害とラス境界の移動の抑制が効果的である。V 添加材のラス組織中には転位運動を効果的に阻害するような析出物はほとんど観察されなかった。したがって、V 添加材におけるクリープ強度向上はラス境界上に析出した(Cr,V)析出物によってラス境界の移動が抑制されることによるものであると考えられる。特にフィルム状の(Cr,V)析出物はその体積が少なくても大面積のラス境界を被覆することができるため、塊状析出物よりも効果的に強化に寄与すると推察される。

Nb 添加によるクリープ強度の強化機構

図 5 に、Nb 単独添加材において、式(2)を用いて算出した Nb 添加によるしきい応力の上昇と Nb 添加量の関係を示す。Nb 添加量の増加に対してしきい応力の上昇は無く、逆にわずかながら低下する傾向がある。図 6 に 0.05%Nb 添加材における内部組織の BF-STEM 像と同領域における EDS 面分析結果を示す。Nb 添加材ではラス組織中に多くの微細析出物が観察される。また、その微細な析出物の中には、Nb(C,N)のみではなく、Cr を主成分とする析出物も多く存在している。これらの微細析出物はクリープ変形中に転位運動を阻害すると考えられ、有効なクリープ強度強化因子となると推測される。図 6 より得られた析出物の粒子径と分

散状態から、Orowan 機構を用いてしきい応力を算出した。Orowan 機構にさらに転位同士の相互作用を考慮した精度の高いしきい応力の導出式は

$$\tau_{or} = A_{or} \frac{Gb}{2\pi\lambda} \left[\ln \left(\frac{\tilde{D}}{r_0} \right) + B_0 \right] \quad (3)$$

で表される。ここで、 m は転位芯半径、 \tilde{D} は粒子表面間距離と粒子径の調和平均であり、係数 A_{or} と B_0 はらせん転位と刃状転位に対して

$$\begin{aligned} \text{刃状転位: } A_{or} &= 1 & B_0 &= 0.7 \\ \text{らせん転位: } A_{or} &= \frac{1}{1-\nu} & B_0 &= 0.6 \end{aligned} \quad (4)$$

で与えられる。本研究では転位の同定を行っていないため、すべての転位が刃状成分のみであった場合とらせん成分のみであった場合のそれぞれのしきい応力を算出し、その幾何平均を求めた。また、粒子表面間距離の導出には、観察視野における試料厚さが必要である。本研究では、STEM 内で試料を傾斜させ、ラス幅の変化を観察することによって、観察視野におけるおおよその試料厚さを算出した。式(3)を用いて、Nb(C,N)のみによるしきい応力を算出した結果、28MPaであった。これは図5に示した0.05%Nb単独添加材における見かけのしきい応力よりも低い。一方、Nb(C,N)とCr析出物がともにラス内の転位運動を阻害すると考えた場合のしきい応力は59MPaであった。これは0.05%Nb単独添加材の見かけのしきい応力よりも高いが、0.01%Nb単独添加材における見かけのしきい応力と非常に近い。本研究における焼きならし温度では、オーステナイト域でのNbの固溶限が0.01-0.02%程度であることから、0.03%Nb添加材以降でのNb(C,N)析出量の増加はないと考えられる。したがって、0.05%Nb単独添加材の観察結果からOrowan機構を用いて算出したしきい応力が0.01%Nb単独添加材のしきい応力に近かったのは、Nb添加材においてラス組織中の微細析出物によるしきい応力がNb添加量に依らず、約60MPaであることを示している。一方、最小ひずみ速度より算出した見かけのしきい応力はNb添加量の増加とともにわずかに低下している。Orowan機構によるしきい応力は転位運動に対するものであり、0.03%Nb単独添加材と0.05%Nb単独添加材で見掛けのしきい応力が低下したのは、クリープ変形中に転位の運動以外の変形機構が並列して働いたためと考えられる。図7にOIM観察より得られた各Nb添加量における初期組織の結晶方位像を示す。すべての試料で、組織は全面がマルテンサイト組織であるが、旧オーステナイト粒径とパケットの大きさに変化が観察される。すなわち、Nb添加量の増加とともに旧オーステナイト粒とパケットが微細化している。これは、0.03%Nb単独添加材と0.05%Nb単独添加材では、焼きならしの際に未固溶のまま残っているNbCによって、オーステナイト粒の成長が阻害されるためであると考えられる。図8にパケットの大きさとNb添加量の関係を示す。図8の縦軸は、観察面におけるパケット境界とブロック境界の長さの比を示している。TEMによる観察から、Nbの添加量が増加してもラス組織やブロックの微細化は起こっていないことが確認された。したがって、Nb添加量が増加するにしたがってパケット境界とブロック境界の長さの比が増加することは、パケットの微細化が起きていることに対応している。パケット境界や旧オーステナイト粒界の多くはランダム粒界であり、それらが微細化すると、クリープ変形中に拡散クリープ変形の寄与が大きくなる。本研究では、クリープ試験を1鋼種につき負荷応力を80MPaから190MPaの間で数回行っており、その結果得られた応力と最小ひずみ速度の関係について応力指数 n を一定として直線近似し、見かけのしきい応力を算出した。0.03%、0.05%Nb単独添加材では、旧オーステナイト粒界とパケットの微細化により、拡散クリープ変形の寄与が低応力側で大きくなり、図5に示したような見かけのしきい応力の低下が起こったと推察される。

V、Nb 複合添加による各強化能の加算

図9に0.06%V単独添加材、0.01%Nb単独添加材および0.06%V・0.01%Nb複合添加材における負荷応力と最小クリープひずみ速度の関係を示す。それぞれの添加元素によるしきい応力の上昇は20MPa、59MPaおよび85MPaであり、V添加による強化とNb添加による強化は、複合して添加した場合、加算されることがわかる。前述したように、V添加による強化機構は

ラス境界の移動の抑制であり、Nb 添加の場合はラス組織中の転位運動の阻害であると考えられる。これらの強化機構はそれぞれ独立して、ラス組織の回復を遅らせる効果を持つ。したがって、複合添加した場合、単純な強化の加算則が成り立ったものと考えられる。

◎クリープ曲線の Ω 法解析

クリープ曲線の再現とクリープ寿命評価

図 10 に 0.06%V-0.01%Nb 複合添加材の 600°C、133MPa でのクリープ試験におけるクリープ曲線と Ω 法を用いて予測したクリープ曲線を併せて示す。ただし、本研究では Ω 法によるクリープ曲線解析を破断時間の 90%までの範囲で行っているため、予測クリープ曲線は破断時間の 90%の部分までのみを表記している。 Ω 法によって予測されたクリープ曲線と実測されたクリープ曲線は非常に良く一致している。したがって、 Ω 法は V、Nb 添加高 Cr フェライト系耐熱鋼に対して有用なクリープ曲線解析法であり、またこの結果は、 Ω 法解析から得られた各係数についての評価の正当性を裏付けるものである。また、図 11 にクリープ試験での破断時間と Ω 法から見積もった予測寿命の比較を示す。図 11 中の対角に引いた線は、クリープ試験中の破断時間と Ω 法による予測寿命が 1:1 となる部分を示している。図 11 中の点はすべてこの直線付近に存在しており、 Ω 法による寿命予測が信頼できるものであることが明らかとなった。

添加元素による Ω 値の変化

図 12 に各単独添加材における Ω 値と添加量の関係を示す。ただし単独添加材では Ω 値は大きな応力依存性を持たなかったため、負荷応力の異なるクリープ試験結果から得られたそれぞれの Ω 値の平均値を用いた。図 12 より、それぞれの添加元素の添加量に対する Ω 値の変化は逆の傾向にあることがわかる。これは、図 2 と図 5 で示した各添加元素と見かけのしきい応力との傾向と同様である。したがって、 Ω 値は添加元素自体ではなく、添加元素によるクリープ強化能に依存すると考えられる。図 13 に Ω 値と見かけのしきい応力の関係について示す。これらの間には良好な線形関係があり、クリープ強化能の定量的な評価によって、 Ω 値の推定が可能であることを示している。

Ω 値の応力依存性

図 14 に各鋼種における Ω 値の応力依存性を示す。それぞれの添加元素を単独で添加した場合、 Ω 値に大きな応力依存性は見られない。しかしながら、複合添加した場合には、 Ω 値は大きな応力依存性を持つことがわかった。前述したように、添加元素によるクリープ強化能と Ω 値には良好な線形関係がある。複合添加した場合、そのクリープ強化能はそれぞれの単独添加における強化能の加算となる。したがって、複合添加材では単独添加材よりも大きな Ω 値になると考えられる。しかし、これだけでは複合添加材における Ω 値の応力依存性を説明できない。

Ω 法の基本式と式(2)を用いると次式を得る。

$$\Omega = \frac{\partial \ln \dot{\epsilon}}{\partial \epsilon} = n \frac{\sigma - \frac{\partial \sigma_{th}}{\partial \epsilon}}{\sigma - \sigma_{th}} \quad (5)$$

式(5)中の偏微分項はクリープ変形中の組織変化によるしきい応力の変化を示すものであり、例えば、クリープ変形中の析出物の粗大化による Orowan 応力の低下などを表すものである。仮にこの項を 0 とすると式(5)は

$$\Omega = n \frac{\sigma}{\sigma - \sigma_{th}} \quad (6)$$

で示される。したがって、 Ω 値は、同じクリープ変形機構で変形が進行する応力範囲において、組織変化によるクリープ変形抵抗の変動が無い限り、応力によって一義的に決まる値である。図 15 にしきい応力 100MPa としきい応力 50MPa の場合の Ω 値の応力依存性について式(6)を用いて推定した結果を示す。ただし、応力指数 n の値は 10 と仮定した。負荷応力がしきい応力に対して十分に大きな値である場合、 Ω 値は応力に依らずほぼ一定である。この応力域では、 Ω 値はしきい応力と良好な線形関係を持つ。一方、負荷応力としきい応力の差が小さくなると、 Ω 値は強い応力依存性を持つようになり、負荷応力としきい応力が等しくなる部分で、

無限大に発散する。つまり、単独添加材において Ω 値が応力依存性を持たなかったのは、負荷応力がしきい応力に対して十分に大きな値であったからであると考えられる。一方、複合添加材では、しきい応力が負荷応力に近くなり、低応力側で Ω 値の急激な上昇が起こったと推察される。また、0.06%V-0.03%Nb 複合添加材と 0.12%V-0.03%Nb 複合添加材では、さらに低応力域で Ω 値が再び低下する。これは負荷応力がそれまでの変形機構におけるしきい応力を下回った結果、別の変形機構に遷移したことを示している。ラス組織中の微細析出物による転位運動の障害がクリープ強度向上に有効であったことから、高応力域では転位クリープによる変形が支配的であったと考えるのが妥当である。また、低応力域では粒界すべりや拡散クリープの影響が強くなると考えられる。式(6)からわかるように、 Ω 値は変形機構にも依存する値であり、0.06%V-0.03%Nb 複合添加材と 0.12%V-0.03%Nb 複合添加材の低応力域で Ω 値が低下したことは、粒界すべりもしくは拡散クリープが変形を担うようになったことを示している。前述したように Nb を 0.03%添加すると、焼きならしの際のオーステナイト粒成長が抑制され、マルテンサイト組織における旧オーステナイト粒径とパケットが微細化する。このような組織では、拡散クリープ領域が高応力側に張り出す。これが 0.06%V-0.03%Nb 複合添加材と 0.12%V-0.03%Nb 複合添加材のみで低応力域での Ω 値の低下が生じた原因であると考えられる。

◎焼きならし温度調整材および焼き戻し温度調整材の初期材の組織観察とクリープ中断試験の実施（文章のみ）

0.12%V-0.03%Nb 複合添加材を用いて、焼きならし条件を 1060℃、1100℃および 1150℃1 時間保持後水冷（一部空冷）と変化させ、焼き戻し温度を 760℃1 時間と固定した試料（焼きならし温度調整材）と、焼きならし条件を 1060℃1 時間と固定して、焼き戻し条件を 760℃、780℃、800℃および 820℃1 時間（一部 2 時間）と変化させた試料（焼き戻し温度調整材）を作製した。これらの初期組織を OIM による観察ならびにピッカース硬さ測定を行った。その結果、焼きならし温度調整材では、焼きならし温度が上昇するにつれて旧オーステナイト粒径が大きくなり、硬さは上昇した。一般に結晶粒径が大きくなると強度は低下するが、析出物の形態や分散状態により強度が上昇したと考えられる。一方、焼き戻し温度調整材では、焼き戻し温度が変化してもマルテンサイト組織に変化は見られなかったが、硬さは温度上昇に伴い、一旦低下した後を上昇した。焼き戻し温度調整材についても析出物の種類や分散状態が影響を及ぼしていると考えられる。

焼きならし温度を調整した 4 種類の 0.12%V-0.03%Nb 複合添加材に対し、600℃において破断時間が 3,000h 程度となるような応力（190MPa）でのクリープ試験を実施し、2 種類の条件においてクリープ試験を完了した。また、焼き戻し温度を調整した 0.12%V-0.03%Nb 複合添加材に対し、600℃において、破断時間が 5,000h 程度となるような応力（116MPa）で、その 15%・60%・90%を目標にしたクリープ中断試験を実施し、15%中断試験を完了した。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 19 年度は以下のことを実施する予定である。

(1) 初期材・損傷材の組織観察・分析

焼きならし温度調整 V、Nb 複合添加材と焼き戻し温度調整 V、Nb 複合添加材の初期内部組織の観察（TEM、STEM）

同試験材の結晶方位分布測定によるマルテンサイト崩壊過程の調査（SEM/EBSP）

(2) 長時間クリープ試験の実施

焼きならし温度調整 V、Nb 複合添加材と焼き戻し温度調整 V、Nb 複合添加材のクリープ試験・クリープ中断試験

(3) クリープデータの Ω 法解析

焼きならし温度調整 V、Nb 複合添加材の Ω 法解析

(4) 長時間組織安定性の評価

焼きならし温度調整 V、Nb 複合添加材と焼き戻し温度調整 V、Nb 複合添加材の組織観察と Ω 法解析の結果から、寿命評価法の検証

(5) まとめ

マクロなパラメータである Ω 値の物理的な意味を提示

高クロム鋼のクリープ寿命評価法の提案

高温長時間クリープ変形中に組織変化を起こしにくい合金鋼の組織設計に関する提案

【研究成果の公表】

<論文 (査読なし) >

1) V および Nb 添加高 Cr フェライト系耐熱鋼の強化機構と Ω 値の相関

吉田悠、光原昌寿、池田賢一、中島英治、若井隆純

日本学術振興会 耐熱金属材料 123 委員会研究報告, 48 (2007) pp. 49-56

2) 高 Cr フェライト系耐熱鋼の Ω 法によるクリープ寿命評価とそのパラメータに及ぼす V・Nb 添加量の効果

吉田悠、光原昌寿、池田賢一、中島英治、若井隆純

日本学術振興会 耐熱金属材料 123 委員会研究報告, 47 (2006) pp. 109-113

<国内会議>

1) フェライト系耐熱鋼の Ω 値におよぼす微細構造の影響

光原昌寿、吉田悠、池田賢一、中島英治、若井隆純

日本鉄鋼協会「耐熱鋼および耐熱合金の組織安定性と寿命推定」フォーラム
シンポジウム「耐熱鋼・耐熱合金の組織安定性とクリープ変形挙動」2007年3月

2) V・Nb 添加高 Cr フェライト系耐熱鋼のクリープ変形にともなうマルテンサイト組織変化

吉田悠、光原昌寿、池田賢一、中島英治、若井隆純

日本鉄鋼協会第 153 回春季講演大会、2007年3月

3) V および Nb 添加高 Cr フェライト系耐熱鋼の強化機構と Ω 値の相関

吉田悠、光原昌寿、池田賢一、中島英治、若井隆純

日本学術振興会 耐熱金属材料第 123 委員会：耐熱鋼分科会、2007年3月

4) 高 Cr フェライト系耐熱鋼のクリープ変形にともなうマルテンサイト組織変化に及ぼす V・Nb 添加量の効果

吉田悠、光原昌寿、池田賢一、中島英治、若井隆純

日本鉄鋼協会第 152 回秋季講演大会、2006年9月

5) MX 強化元素の最適化による高速炉用高 Cr 鋼開発-2-高クロム鋼における MX 粒子の長時間熱時効に対する安定性評価

鬼澤高志、若井隆純、青砥紀身

日本鉄鋼協会第 152 回秋季講演大会、2006年9月

6) 高 Cr フェライト系耐熱鋼の Ω 法によるクリープ寿命評価とそのパラメータに及ぼす V・Nb 添加量の効果

吉田悠、光原昌寿、池田賢一、中島英治、若井隆純

日本学術振興会 耐熱金属材料第 123 委員会：耐熱鋼分科会、2006年7月

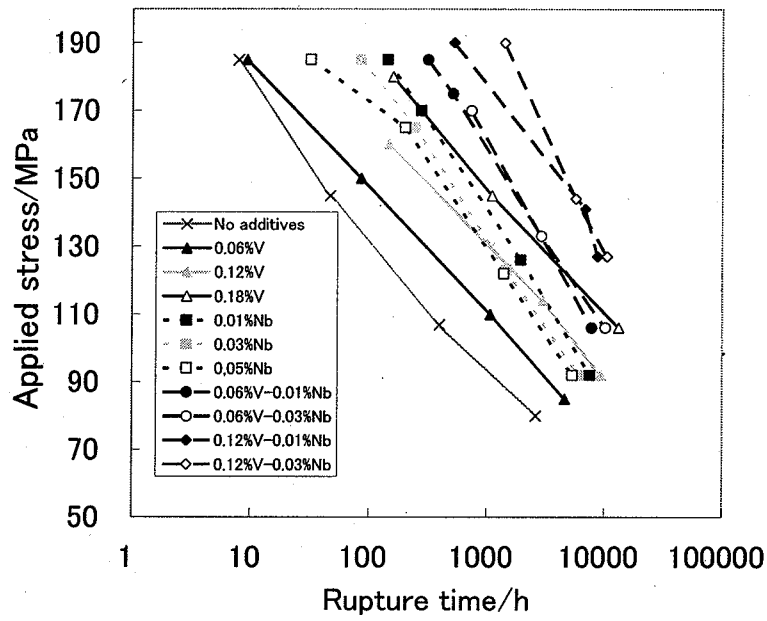


図1 各鋼種のクリープ破断時間と負荷応力の関係

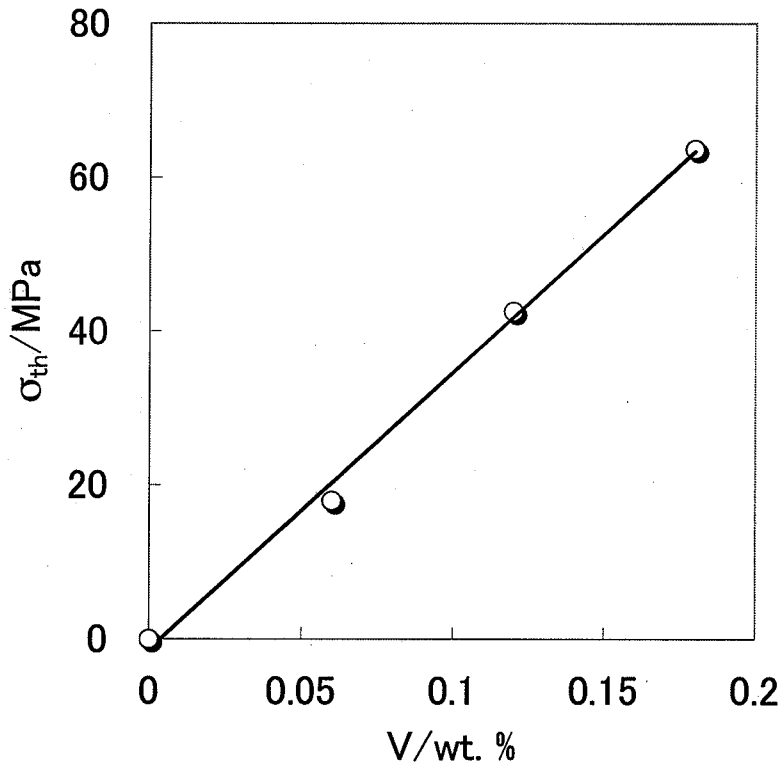


図2 V, Nb 無添加材からのしきい応力の上昇値とV添加量の関係

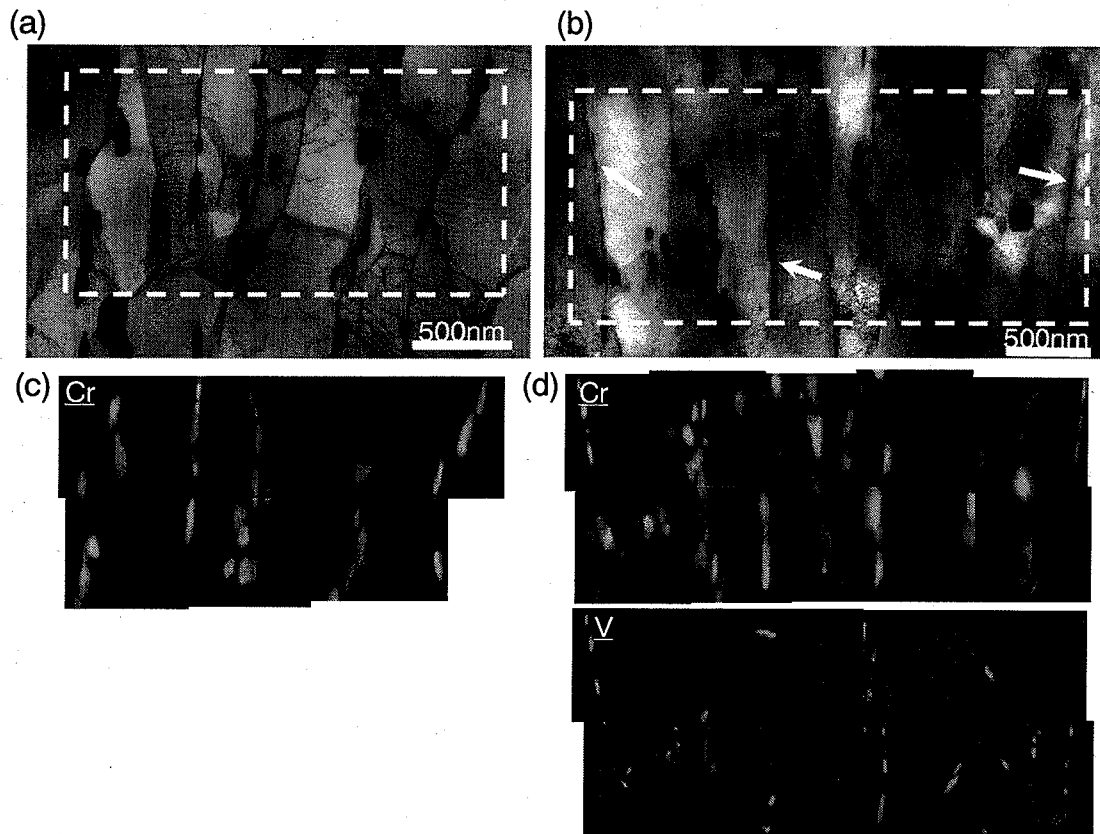


図3 V, Nb 無添加材と0.18%V 添加材のBF-STEM 像と点線領域のSTEM-EDS 面分析結果
(a), (c) V, Nb 無添加材, (b), (d) 0.18%V 添加材

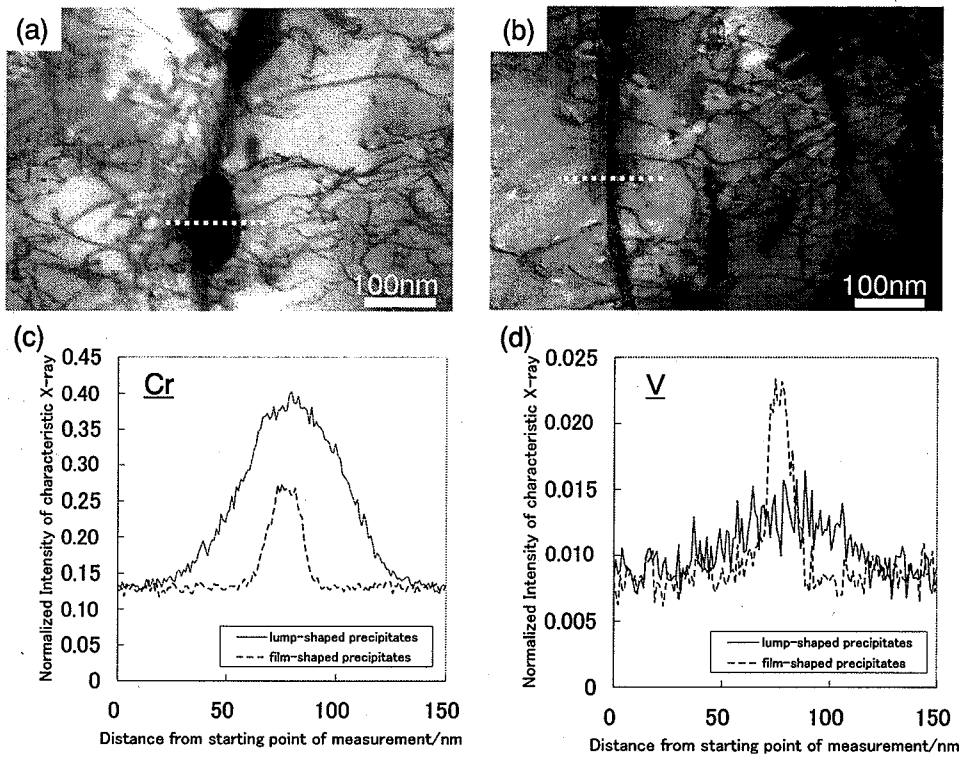


図4 0.18%V 添加材中に存在する析出物のBF-STEM 像と点線領域のSTEM-EDS 線分析結果
(a), (c) 塊状析出物, (b), (d) フィルム状析出物

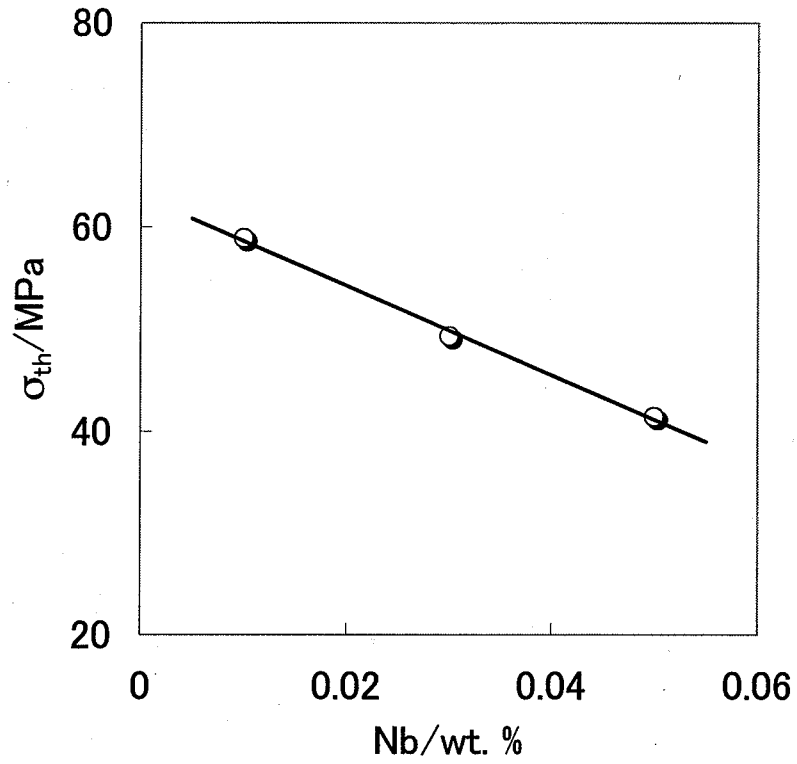


図5 V, Nb 無添加材からのしきい応力の上昇値と Nb 添加量の関係

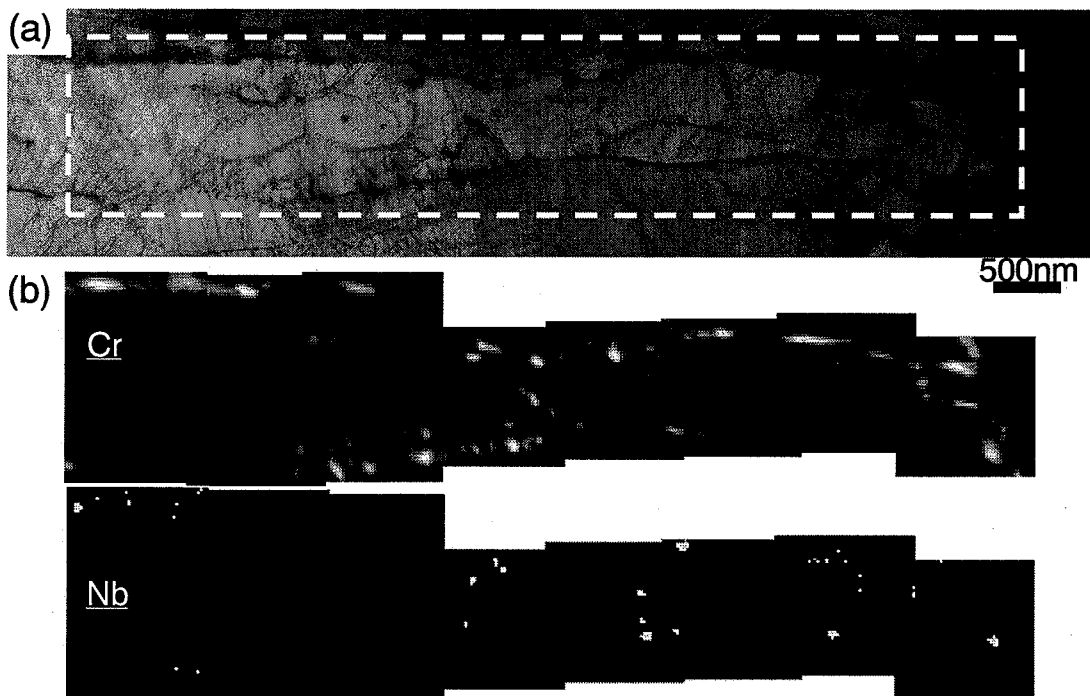


図6 0.05%Nb 添加材の(a)BF-STEM 像と(b)STEM-EDS 面分析結果

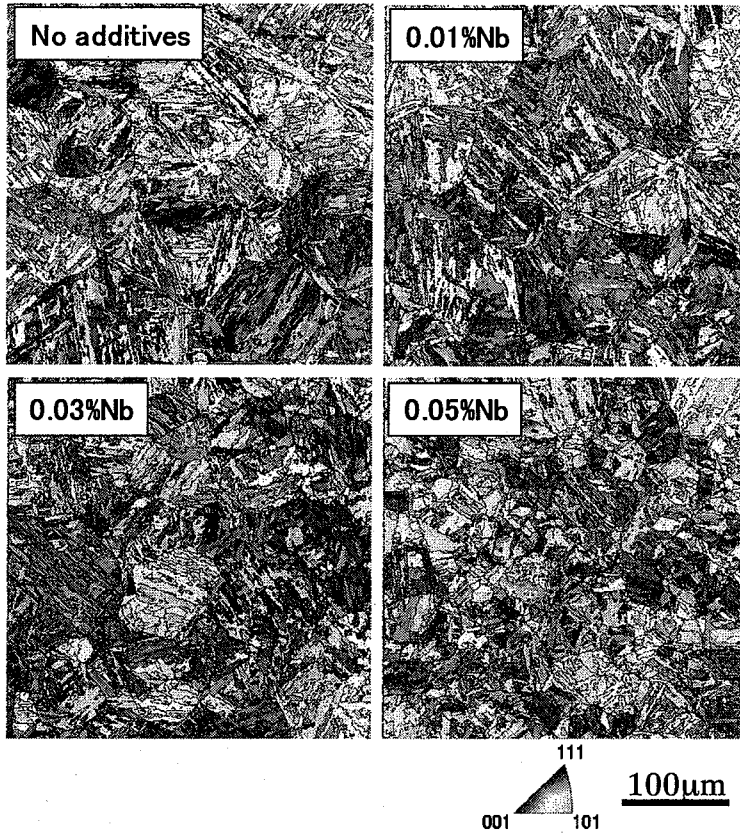


図7 Nb 添加材の結晶方位分布像

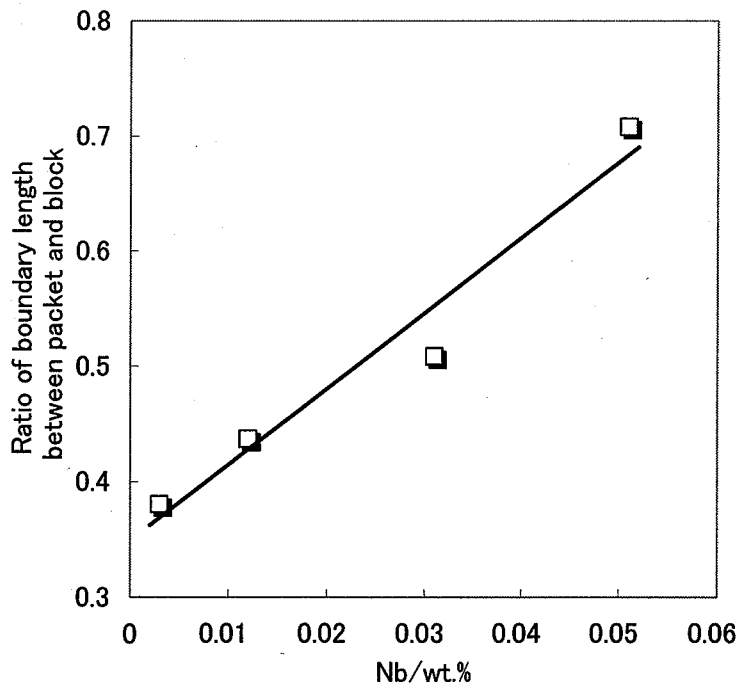


図8 Nb 添加材のパケット境界長さとはブロック境界長さの比と Nb 添加量の関係

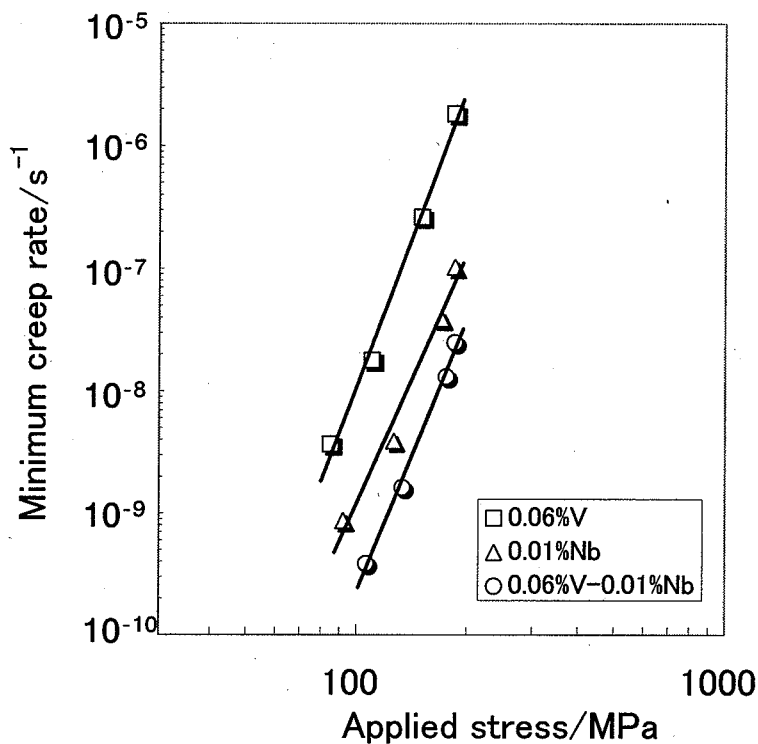


図9 0.06%V 添加材, 0.01%Nb 添加材および 0.06%V-0.01%Nb 複合添加材の
 負荷応力と最小クリープ速度の関係

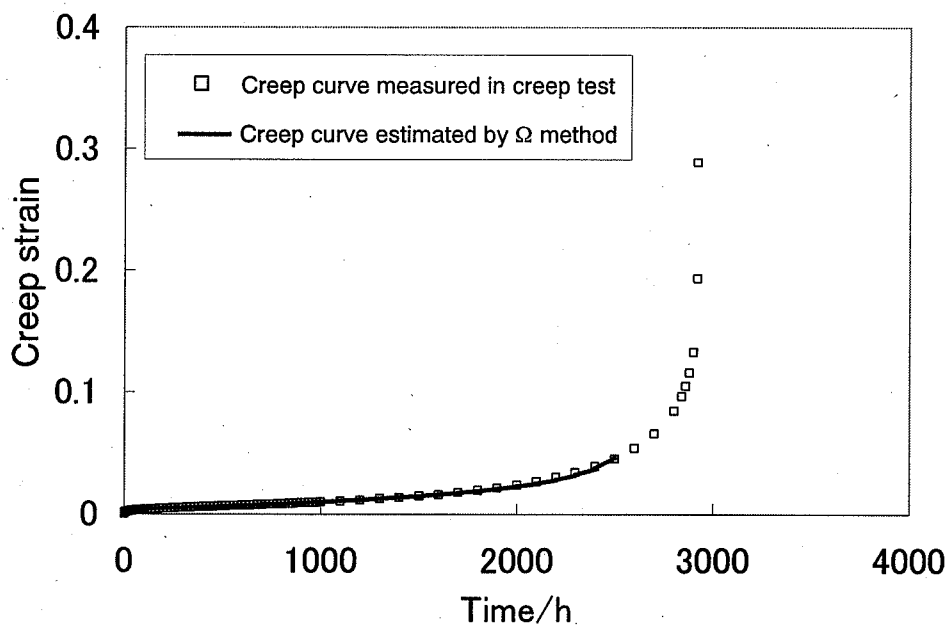


図10 クリープ曲線と Ω 法を用いたクリープ曲線の推定の比較

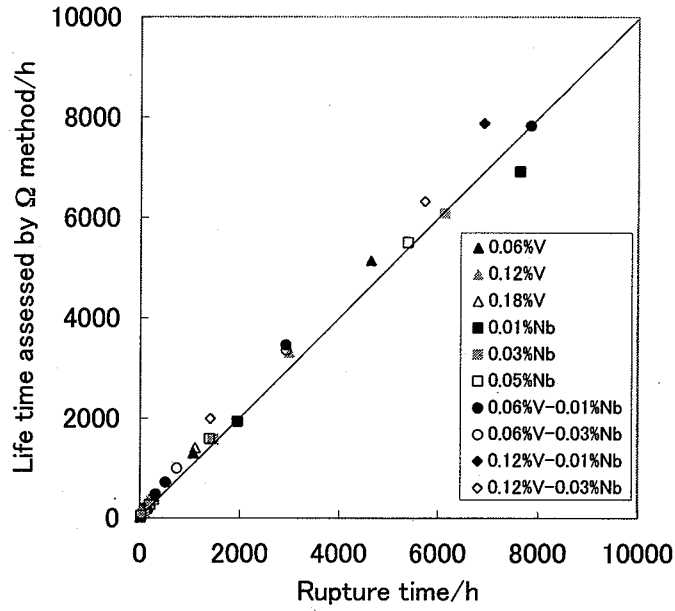


図 11 クリープ試験での破断時間とΩ法により予測した寿命の比較

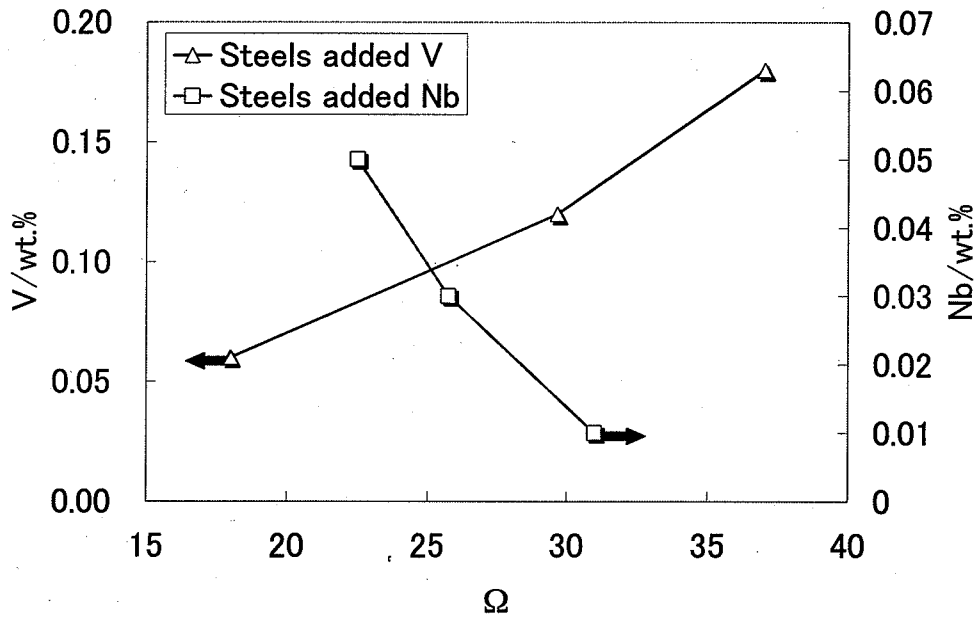


図 12 Ω値とVとNb添加量の関係

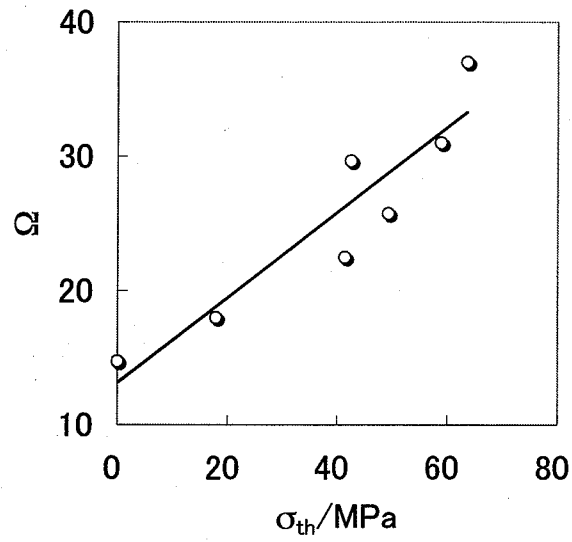


図 13 しきい応力と Ω 値の関係

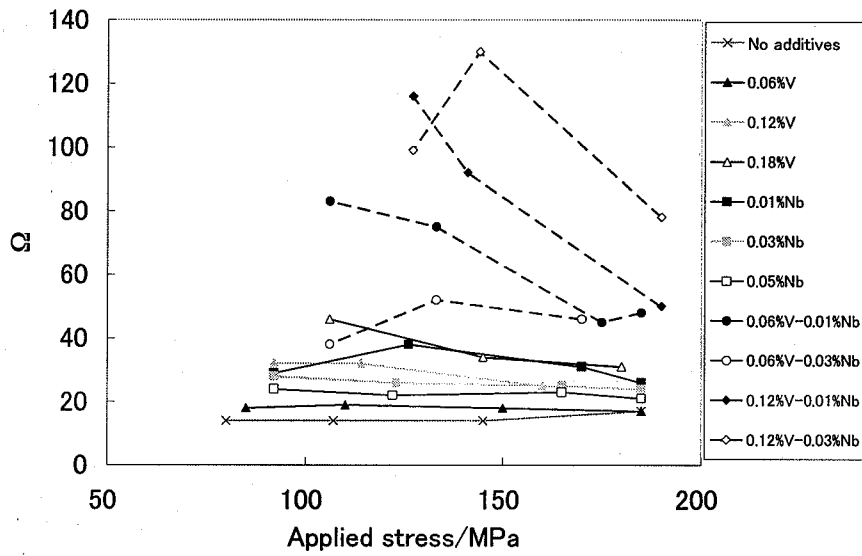


図 14 各鋼種の Ω 値の応力依存性

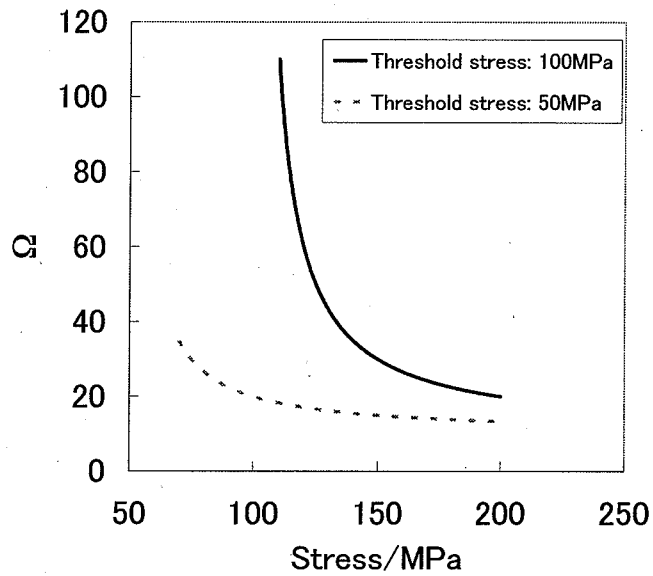


図 15 しきい応力の大小が Q 値の応力依存性の関係

【出展】

光原昌寿、吉田悠、池田賢一、中島英治、若井隆純、「フェライト系耐熱鋼の Q 値におよぼす微細構造の影響」, (社) 日本鉄鋼協会 耐熱鋼・耐熱合金の組織安定性とクリープ変形挙動シンポジウム, pp.45-52, 2007年3月発行

2.1.9 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	ナトリウム水反応の影響緩和に関する研究		
研究協力課題	ナトリウムと水が混合するときの流動と熱伝達に関する基礎研究		
研究者所属、氏名			
大学側	北海道大学大学院工学研究科 教授 杉山 憲一郎 助教授 奈良林 直 大学院生 田村 武士 鶴岡 北斗		
機構側	日本原子力研究開発機構 次世代原子力システム研究開発部門 FBR システムユニット FBR シミュレーショングループ GL 大島 宏之		
研究実施場所	北海道大学 大学院工学研究科 原子力安全工学研究室 原子力機構 大洗研究開発センター FBR サイクル国際研究開発センター		
通算研究期間 (予定)	平成 17 年 9 月 ~ 平成 20 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 18 年 11 月 ~ 平成 19 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】	<p>ナトリウム冷却高速炉では、蒸気発生器において伝熱管が破損した場合、伝熱管内部から水又は水蒸気がナトリウム側へ噴出し、ナトリウム-水反応が生じる。この結果、反応生成成分と共に熱が発生し、高温領域が形成される。この高温領域に存在する伝熱管は機械的強度が低下し、伝熱管二次破損の可能性が生じる。本研究では、伝熱管二次破損の可能性を評価する解析コードの高度化と、その検証のためのナトリウム実験データの取得を目的とする。</p>		
【研究内容（概要）】	<p>従来、伝熱管二次破損の可能性を評価するため、実機を模擬した実験が行われてきた。しかし、これらの実験結果に基づき、異なる伝熱管配置や運転条件等に対して、現象の予測を行うことは難しい。また、ナトリウムを用いた実験は一般に費用がかかる。したがって、伝熱管二次破損の可能性を定量的に評価するため、日本原子力研究開発機構は、ナトリウム-水反応を解析対象とした SERAPHIM コードの開発を進めている。</p> <p>本研究は、SERAPHIM コードの妥当性の検証および高度化のためのデータ取得を目的とする。その第一段階として、水およびナトリウムプール中に水平に設置した単一加熱円筒へ高速ガスジェットを衝突させ、ガスジェットが熱伝達特性に及ぼす影響、ならびに液体中におけるガスジェットの挙動に関して知見を得る。この実験により実験手法を確立した後、ナトリウムプール中に水蒸気を含むガスジェットを噴出し、伝熱管局所熱流束、周辺温度分布、反応生成成分の挙動を検討し、SERAPHIM コードの適用性の検証・高度化を行う。</p>		
【使用主要施設】	北海道大学大学院工学研究科 原子力安全工学研究室ナトリウム実験室		

【進捗状況（当該年度までの概要）】

ナトリウム - 水反応現象における水蒸気ジェットの挙動を理解する基礎研究として、以下の実験を行った。

平成 17 年度は、水プール中におけるガスジェット衝突時の単一円筒周りのボイド率および熱伝達率を測定し、相互関係を明らかにした。また、可視化実験を行いガスジェットの挙動観察も行った。

平成 18 年度は、ナトリウムプール中におけるガスジェット衝突時の単一円筒周りのボイド率を測定した。熱伝達率測定については、既存の加熱円筒で実験データを得て、熱伝達率とボイド率の相互関係を明らかにした。

【研究成果（当該年度）】

1. 実験

(1)ボイド率測定実験

実験体系を図 1 に示す。本実験体系は $\phi 80\text{mm}$ 、高さ 1000mm の円筒容器、循環パイプ、ボイド検知プローブ一体型水平単一円筒、ガスジェット噴出パイプからなる。ガスジェット噴出パイプの先端は直径 3.5mm のノズルが取り付けられており、ノズル出口 - 円筒下端の距離は 25mm とした。ガス噴出ノズル径とノズル出口 - 円筒の前方よどみ点間距離の比は 7.1 であり、ガス - ガスジェット系で最大熱伝達率が得られることが報告されている⁽¹⁾ため、本研究では、一応の目安として、この比に固定して全実験を行った。

ボイド率測定に用いたプローブの拡大図を図 2 に示す。プローブの材料を選定する際には、ナトリウムとの共存性（濡れ性を含む）と耐久温度が重要であるため、素線は $\phi 0.5\text{mm}$ の SUS304 線、絶縁被覆には、予備実験結果から選定したシリコンゴムチューブ（内径 0.5mm 、外径 1.0mm ）を使用した。図 3 にプローブ一体型円筒の断面図を示す。本実験は耐久性の観点から高速で円筒周辺のボイド率を測定する必要があったため、ボイド率を同時に測定できるようにプローブを円筒表面から 1mm 、 2mm 、 3mm 、 4mm 離れた位置に設置した。図 4 に試験タンクにセットしたプローブ一体型円筒を示す。ノズル出口から Ar ガスジェットを噴出し、円筒を 10 度ごとに回転しながら測定した。プローブからの信号は、コンパレータ回路によって 2 値化される。得られたプローブ信号のうち高電圧が気相との接触を示しており、本測定では最大出力電圧の約 50% を閾電圧に設定し、それ以上を気相信号、それ以下を液と接触した信号とみなした。本測定では、5 秒間に 50000 点サンプリングし、時間平均ボイド率を求めた。実験条件は表 1 に示す。

(2)熱伝達率測定実験

予算の関係上、既存の加熱円筒を改良し実験を試みたが、測定データの挙動が不自然であった。原因は、加熱円筒に歪みが生じたためと判断し、過去に別途開発した加熱円筒を用いてデータを得た。図 5 に加熱円筒の断面図を示す。加熱円筒は $\phi 15\text{mm}$ 、発熱部長は試験部タンクの内径と同じ 80mm であり、水平に設置されている。発熱部は厚さ 2mm の銅シースであり、そのシース内に外径 0.65mm のシース式熱電対が埋め込まれている。加熱円筒への入力、適正な温度差となるように、 550W に固定した。測定は同様に加熱円筒を回転しながら温度分布を測定した。実験条件は表 1 に示す。

2. 結果と考察

図 6 にノズル出口ガスジェット速度 52m/s と 346m/s での水プール中の円筒周辺のボイド率を示す。図中の θ は円筒下端からの回転角度を示し、以後のグラフも同様である。水プール中のボイド率は前方よどみ点において最も高く、後方よどみ点付近で 0 あるいは小さな値となる。

$Re=8.68 \times 10^4$ の条件では、表面から 1mm も 3mm も前方よどみ点付近でボイド率は 1 であり、ジェットの慣性力が強く周囲水の巻き込みがないことがわかる。 3mm のデータでは 60° 付近で極小値を示した。昨年度報告した 60 度付近での周囲水の巻き込みの影響と推定される。 1mm のデータではそのようなボイド率低下が見られなかった。 $100^\circ \sim 110^\circ$ 付

近ではガスジェットが剥離するため、ボイド率は急激に減少している。

$Re=1.30 \times 10^4$ の条件では、3mm の前方よどみ点の値は約 0.9 であり、ジェットの慣性力が弱く周囲水の巻き込みがすでに生じていることがわかる。30°~120°まで周囲水の巻き込みの影響によりほぼ一定で、120°付近から後方よどみ点にかけて急激に減少している。一方、1mm のデータは 3mm よりも前方よどみ点付近および 60°以降でかなり低い値を示している。ジェットの慣性力が弱く、円筒表面に水が停滞する傾向が伺える。

図 7 に $Re=2.97 \times 10^3$ と $Re=1.49 \times 10^4$ でのナトリウムプール中の円筒周辺のボイド率を示す。ナトリウムプール中のボイド率は水プール中に比べると前方よどみ点から後方よどみ点まで比較的単調な変化を示している。1mm のデータではガスジェット速度の増加でボイド率も上昇しているが、3mm のデータではガスジェット速度の増加に対してボイド率の上昇が明瞭に観測されない。 $Re=1.30 \times 10^4$ の水データの周囲 We 数は $Re=1.49 \times 10^4$ のナトリウムデータの周囲 We 数とほぼ一致している。水の 3mm の 40°~120°のデータはナトリウムのデータと比較的近い値を示しているが、これ以外の領域では差が大きく、ナトリウムプール中におけるガスジェットの流動挙動は、水プール中に比べると大きく異なると言える。

これらの違いは水とナトリウムの表面張力に起因していると考えられる。ナトリウムは水の約 3 倍の表面張力を持つため、ナトリウムプール中ではガスジェットは分断され易い。そのため巻き込みが生じやすく、ボイド率の変化が単調となっていると推定される。また、ナトリウムと試験円筒の濡れ性が悪く、濡れ性の良い水と異なる挙動が観察された可能性もある。一方、ナトリウム実験では時間経過により試験円筒およびプローブとナトリウムの濡れ性が変化することも予想され、今後はこれらの現象を検討することも必要である。

図 8 にナトリウムプール中で加熱円筒へ Ar ガスジェットを衝突させた場合の局所 Nu 数を示した。縦軸は局所 Nu 数、横軸は円筒下端からの角度 θ を示している。 $\theta=0^\circ$ の時に局所 Nu 数が最大であり、 θ が増大するにつれて局所 Nu 数が減少している。Ar ガスジェットが噴出されると局所 Nu 数は増大するものの、Re 数が増加してもそれには依存せず、ほぼ一定の値になることが示されている。また、昨年度報告した水プール中のデータでは自然対流状態と比べ Ar ガスジェット噴出時の局所 Nu 数は約 4 倍の値となっているのに対し、本報でのナトリウムプール中では約 1.4 倍程度の増加率にとどまっている。

このようなガスジェットの特性は、ナトリウムプール中における円筒周りのボイド率特性によく反映されており、水プール中に比べナトリウムプール中では Re 数の増加には依存せず、円筒下端側と円筒上端側における変化率が小さい点で一致している。ナトリウムプール中でのガスジェットの挙動を可視化することは困難なため、円筒周囲の様子を観察することはできないが、ナトリウムプール中でのガスジェットの分断によるエントレインの生じやすい環境が単一加熱円筒周りの熱伝達特性を支配する要因の一つになっていると考えられる。

3. 結論

本研究では、蒸気発生器内においてナトリウム-水反応が発生した場合の流動様式および隣接伝熱管への熱移行量についての知見を得る基礎実験として、ナトリウムプール中に水平に設置した(加熱)円筒へ Ar ガスジェットを衝突させる実験を行い、ガスジェットが衝突する時の単一(加熱)円筒周りの熱伝達率およびボイド率を測定することで化学反応が無い体系における単一円筒周りの伝熱・流動場に関して明らかにした。一連の実験の結果、得られた知見を以下にまとめる。

- (1) 同時に異なる位置でボイド率が測定できる高速測定法を考案し、ナトリウムプール中におけるボイド率の測定に成功した。
- (2) ナトリウムプール中での円周方向のボイド率の変化は、水プール中の結果よりも相対的に小さい。これは、ナトリウムの表面張力が水より大きいため、ジェットの分断が容易に生じ周囲ナトリウムとの混合が進行することに起因しているためと推定している。

(3) 円筒周辺のポイド率分布と局所 Nu 数分布の間には相関があり、ナトリウムプール中では、周囲ナトリウムのエントレインが常に生じているため、ポイド率と同様に熱伝達特性も単調な変化をする。

4. 記号

- Re = ノズル出口レイノルズ数
- We = ノズル出口周囲ウェーバー数
- Q = 加熱円筒への入力
- Nu = 局所ヌッセルト数
- θ = 円筒下端からの角度

5. 参考文献

- (1) R. Gardon and J.C. Akifrat, "The Role of Turbulence in Determining the Heat-Transfer Characteristics of Impinging Jets", Int. J. Heat Mass Transfer. Vol.8, pp.1261-1272, 1965.

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 19 年度は、ナトリウムプール中に高速水蒸気を噴出する実験を行う。この際、安全を確保するためにアルゴンガス或いはヘリウムガスに水蒸気を混合した希釈水蒸気を用いることとし、不活性ガスに対する水蒸気の濃度もパラメータの一つとして扱う。また、本実験ではナトリウム-水反応による発熱と反応生成物の発生があるため、耐食性を含めた実験装置の安全性維持について十分な配慮が必要である。実機条件に近い実験の結果により、初期破損伝熱管から噴出される高速水蒸気ジェットの流れ様式や、発熱が伴う場合の隣接伝熱管周辺の温度分布、熱伝達率及び熱移行量等を明らかにする。これらの実験結果と比較して、SERAPHIM コードの妥当性を検証し、ナトリウム-水反応時の隣接伝熱管の定量的な評価コードの高度化を進める。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 田村 武士、曾我 和生、杉山 憲一郎、大島 宏之 : 「単一円筒に衝突するガスジェットと周囲液体との混合挙動」、日本原子力学会 2006 年秋の大会、平成 18 年 9 月 27~29 日、札幌
- 2) 田村 武士、曾我 和生、杉山 憲一郎、大島 宏之 : 「単一円筒に衝突するガスジェットと周囲液体との混合挙動」、日本原子力学会北海道支部発表会、平成 18 年 12 月 8 日、札幌
- 3) 田村 武士、曾我 和生、杉山 憲一郎、奈良林 直、大島 宏之、須田 一則 : 「単一円筒に衝突するガスジェットと周囲ナトリウムとの混合挙動」、日本原子力学会 2007 年春の年会、平成 19 年 3 月 27~29 日、名古屋

<国際会議>

- 1) K. Soga et al., "Entrainment of Water around a Single Rod Immersed in Water Pool with Gas Jet Impingement", Proc. International Conference on Nuclear Engineering, Thermal Hydraulics (89716), Miami, Florida, USA, July 17-20, 2006.
- 2) T. Tamura et al., "Entrainment of Water around a Single Rod Immersed in Water Pool with Gas Jet Impingement (II)", Proc. International Conference on Nuclear Engineering, Thermal Hydraulics (10682), Nagoya, Japan, April 22-26, 2007.

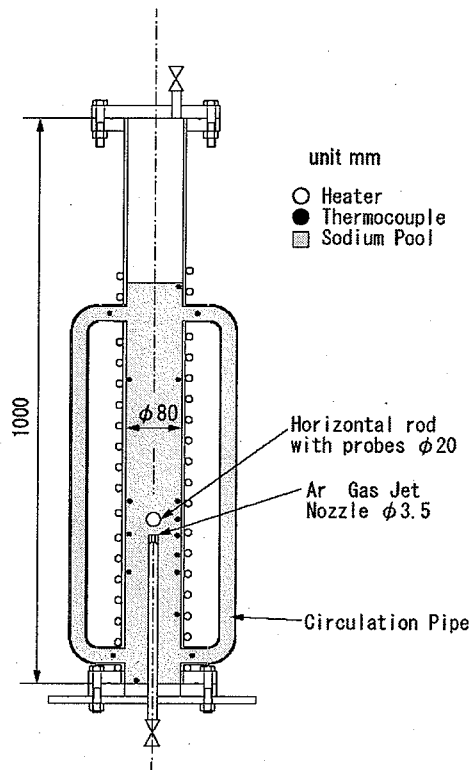


図1 実験体系概略図(出典1)

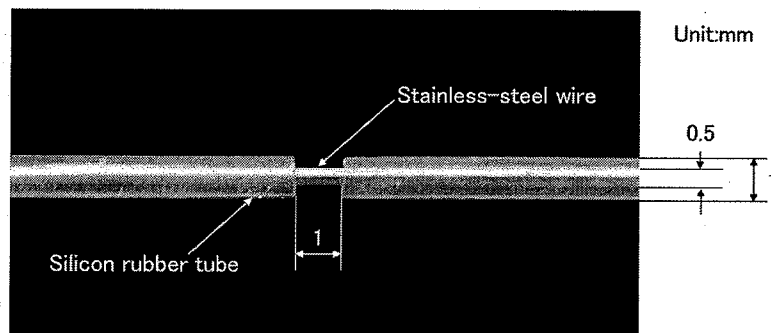


図2 シリコンゴム絶縁プローブ拡大図(出典2)

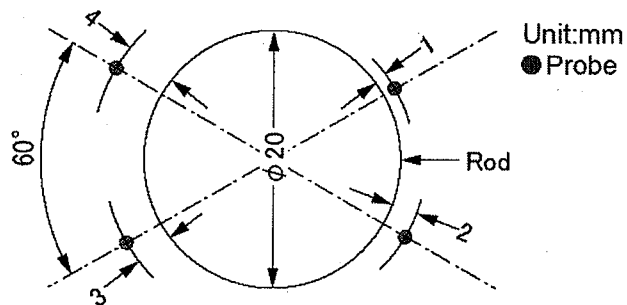


図3 プローブの位置関係

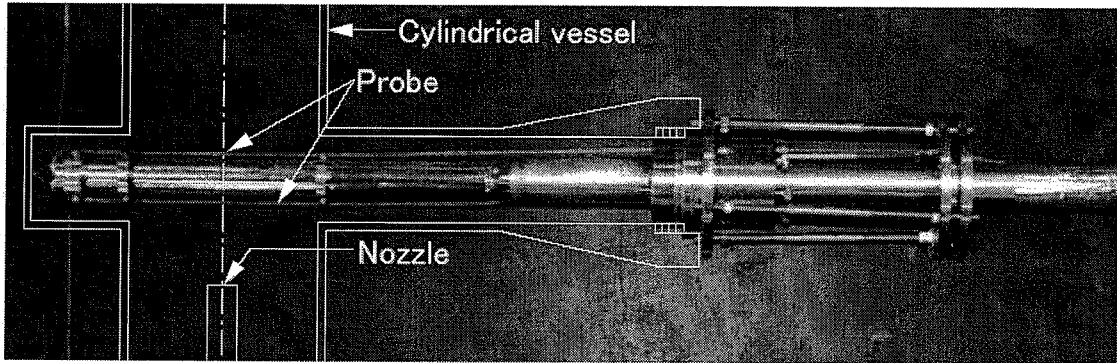


図4 ナトリウム用加熱円筒およびプローブ取付法(出典2)

表1 実験条件

	Heat transfer experiment		Void fraction experiment	
	Water	Sodium	Water	Sodium
Ambient fluid	Water	Sodium	Water	Sodium
Impingement jet	Ar		Ar	
Rod diameter [mm]	15		20	
Nozzle diameter [mm]	3.5		3.5	
Minimum distance between rod and nozzle [mm]	25		25	
Heat input [W]	134~300	550	0	0
Jet velocity at nozzle exit [m/s]	8.66~78.0		17.3~346	17.3~87
Re number at nozzle exit	1.81×10 ³ ~ 1.74×10 ⁴	8.71×10 ² ~ 7.95×10 ³	4.34×10 ³ ~ 8.68×10 ⁴	2.97×10 ³ ~ 1.49×10 ⁴

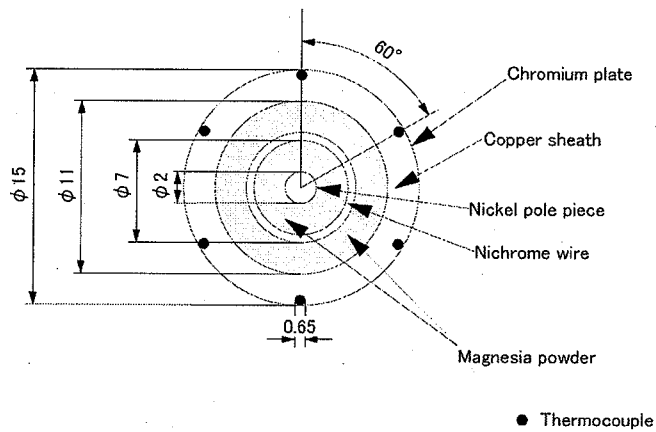


図5 加熱円筒の断面図(出典1)

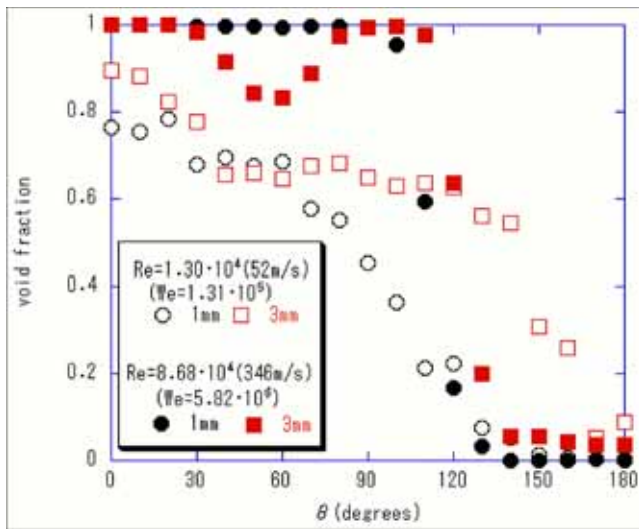


図 6 水プール中における円筒周辺のボイド率(出典2)

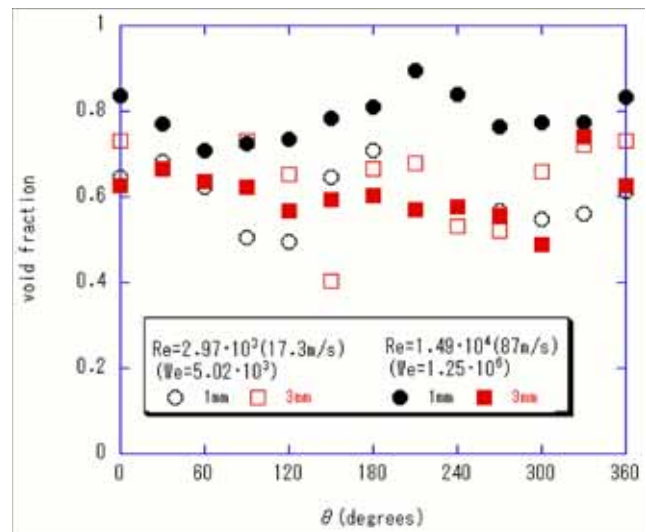


図 7 ナトリウムプール中における円筒周辺のボイド率

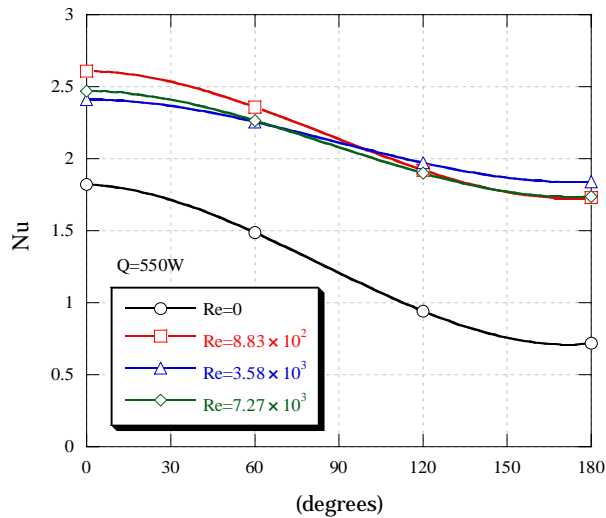


図 8 ナトリウムプール中における局所ヌセルト数

出典1 : H. Niikura et al., "Heat Transfer Characteristics around A Single Heated Rod Immersed in Sodium Pool with Gas Jet Injection", Proc. 13th International Conference on Nuclear Engineering, Thermal Hydraulics (50653), Beijing, China, May 16-20, 2005.

出典2 : T. Tamura et al., "Entrainment of Water around a Single Rod Immersed in Water Pool with Gas Jet Impingement ()", Proc. 15th International Conference on Nuclear Engineering, Thermal Hydraulics (10682), Nagoya, Japan, April 22-26, 2007.

2.1.10 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	応力再配分モデルに基づく高温構造物強度評価法に関する基礎研究		
研究協力課題	応力再配分モデルを用いた構造不連続部クリープ疲労強度評価法に関する研究		
研究者所属、氏名			
大 学 側	筑波大学大学院 システム情報工学研究科・教授、渡部 修 〔*客員研究員 **研究生〕		
機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 信頼性技術ユニット 構造信頼性工学グループ 笠原直人, 川崎信史		
研究実施場所	筑波大学 理科系修士棟 C302		
通算研究期間 (予定)	平成 17 年 8 月 ~ 平成 20 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 18 年 10 月 ~ 平成 19 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>実用高速炉で想定される主要な破損モードは繰り返し熱荷重によるクリープ疲労き裂の発生である。ループ数削減による蒸気発生器の大型化や、2重直管採用による伝熱管本数の増大など熱効率の高度化に伴い、3次元形状をした大型球形管板やその他の複雑形状が多数使用される。これらの構造物のクリープ疲労評価には、不連続部のひずみ集中を適切に評価することが必要である。応力を膜・曲げ・ピークの成分に分類してひずみの集中を評価する従来法（応力分類法）は 1960 年代にシェル・ビーム解析を想定して開発された簡易なものであることから、FEM 解析と整合する精緻な方法が内外で要望されている。応力分類を複雑構造に適用すると、応力分類自体が困難であることから、無理な分類による精度の低下と、それを補うための過度の保守性を招く。構造物の代表的な応力集中箇所は、弾性解で無次元化した応力-ひずみ曲線上にプロットすると、構成則や荷重の大きさにあまり依存しない一本の応力再配分軌跡曲線で表されることが示されている。即ち、構造物には構成式や荷重の大きさに依存しない、応力再配分特性が存在することが予測されている。高温構造物の強度支配因子の一つである応力集中部のひずみ集中機構は、膜・曲げ・ピーク成分が重畳した一般的応力分布下のひずみ集中を統一的に評価する応力分類不要の応力再配分軌跡曲線を用いた「応力再配分モデル」によって応力およびひずみ振幅が評価できることが分かってきている。本研究は、FEM 解析で得られた応力を基礎に、関連する応力ひずみ挙動からクリープ疲労破損強度評価を、高精度に予測できる手法の開発を目標として、応力再配分モデルに基づく強度評価法を策定し、手法の有効性を検証する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>応力再配分モデルに基づく高温構造物のクリープ疲労強度評価法について、応力再配分モデルが適用できる範囲を明確にするとともに、典型的な構造不連続部である、応力集中部を有する比較的簡単な構造についてクリープ疲労強度を計測し、応力再配分モデルを用いた計算結果と比較することにより、強度との関係を明らかにする。これらを組み合わせることにより、応力再配分モデルに基づく強度評価法を策定し、機構の保有する構造物試験データを解析することにより、手法の有効性を検証する。具体的実施内容を以下に示す。</p>			

(1) 応力再配分モデルの適用範囲の把握

弾性領域（弾性核）による応力再配分のメカニズムを理論的に明らかにするとともに、解析的検討により応力再配分モデルの適用範囲を把握する。高速炉だけでなく、火力や化学プラントなどの一般の高温機器設計法にも適用可能なよう、汎用性を明示することも念頭においた検討を行うこととする。また、従来手法との比較も行う。筑波大と機構と共同で実施する。

(2) 応力再配分モデルと強度との関係解明

応力集中を有する構造物実験として、応力配分を意図的に制御し易く実機にも存在する形状である、平板に孔がある構造物を選定する。この構造物は応力集中部を有しその応力集中率や塑性域が進展したときの弾性核の度合いを、幾何形状を変化させることにより調整することが可能である。また、材料試験機を用いてクリープ疲労実験することも容易である。ここでは、孔が1つあるいは複数個空いた板を用いて、クリープ疲労強度を計測する。応力再配分モデルを用いたモデルによる計算結果と比較すること、より、モデルと強度との関係を解明する。主として、筑波大学が分担し、機構が必要に応じて支援する。

(a) 有孔平板試験片の FEM 解析

丸棒試験片から平板に削りだした孔を有する試験片の実験を行うため、孔の大きさや個数を設計する必要がある。応力再配分モデルは類似の軌跡を有するが、弾性核の存在の有無により、一部の構造物では異なる特性を有する可能性がある。このため、あらかじめ、FEM 解析を実施することにより、応力再配分の軌跡を求める。

(b) 試験片の設計・製作

(a)で得られた解析に基づき、試験片を設計・作成する。複数個の孔が存在する場合は、弾性核が消失しやすいため、応力再配分モデルが通常のものとは異なる可能性がある。このような場合も含むように、孔の大きさと個数を各種変えた試験片を設計・製作する。

(c) 高温疲労き裂発生実験

SUS304 鋼を用いた孔付試験片を作成し、高温炉付サーボパルサを用いて、高温疲労き裂発生実験を行う。荷重を測定することにより最大荷重時での、また最大荷重時から 5%毎に低下し、75%までに荷重が低下したとき、き裂発生の有無を確認し、き裂発生時の荷重を求める。孔の大きさと個数をパラメータとして実験を行う。特に孔が複数個ある場合は応力再配分軌跡が通常の場合と多少異なることが予想されるが、実験においても、このことによる変形と強度への影響を計測から確認する。

(d) 高温クリープ疲労き裂発生実験

繰り返し負荷において、引き張り負荷時の荷重を保持して、クリープ変形を生じさせ、これの強度に及ぼす影響を検討する。(c)の高温疲労実験と同様に、荷重の低下による亀裂発生の有無を確認する。

高温実験では電気炉を用い、ファイバースコープでき裂発生を確認する。

(e) 応力再配分モデルによる試評価

線形損傷則を適用して評価する。応力再配分モデルによるひずみ集中部のひずみを求め、また、試験中の荷重変化の履歴からき裂発生位置での繰り返し数を修正する。クリープの影響がある場合には、その影響を考慮してき裂発生時の評価を行い、実験結果と比較する。

(3) 設計手法の開発

上記(1)と(2)を組み合わせ、応力再配分モデルに基づく強度評価法を開発する。応力再配分モデルに基づく設計方法をひずみ集中部に適用し、提案手法の有効性を検証する。検証には機構の構造物試験データを用いる。

【使用主要施設】

高温炉付サーボパルサ、(島津製作所製 EHF-UB50KN-10L 形、5 トン、試験機組込型ニッ割大気炉 (ネムス株式会社製) 700℃まで)

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 17 年度は、以下の項目を実施した。

(1) 応力再配分モデルの適用範囲の把握

弾性領域（弾性核）による応力再配分のメカニズムを理論的に明らかにするとともに、解析的検討により応力再配分モデルの適用範囲を把握する。筑波大と機構が共同で実施する。

平成 17 年度には、有孔平板の弾塑性 FEM 解の分析により、安定した弾性核が存在する場合は、孔の数（リガメント幅）によらず、同一の応力再配分挙動を示すことが明らかになった。これにより膜応力が負荷された構造に対しても、応力再配分モデルを適用できる可能性があることがわかった。

(2) 応力再配分モデルと強度との関係解明

応力集中を有する構造物実験として、平板に孔がある構造が適当であると考えられる。この構造は応力集中部を有しその応力集中率や塑性域が進展したときの弾性核の度合いを、幾何形状を変化させることにより調整することが可能である。また、材料試験機を用いてクリープ疲労実験することも容易である。ここでは、孔が 1 つあるいは複数個空いた板を用いて、クリープ疲労強度を計測する。応力再配分モデルを用いたモデルによる計算結果と比較することにより、モデルと強度との関係を解明する。主として、筑波大学が分担し、機構が必要に応じて支援する。

(a) 有孔平板試験片の FEM 解析

平成 17 年度に、FEM 解析を実施し、応力再配分軌跡を求めた。計算結果に基づき、試験条件が決定されている。

(b) 試験片の設計・製作

平成 17 年度に、(a) で得られた解析に基づき、試験片を設計・作成した。複数個の孔が存在する場合は、弾性核が消失しやすいため、応力再配分モデルが通常のものとは異なる可能性がある。このような場合も含むように、これから、孔が 1 あるいは幅方向に 2 個で、その直径が 2,4,6,8mm のものを製作した。

(c) 高温疲労き裂発生実験

平成 17 年度には、高温炉付サーボバルサを用いて、高温疲労き裂発生実験を行った。荷重を測定することにより最大荷重時での、また最大荷重時から 5% 毎に低下し、75% までに荷重が低下したとき、最大荷重を計測した。孔の大きさと個数をパラメータとして実験を行い、荷重-変形曲線の違いを計測した。

同時に、き裂発生の有無を確認するため、電気炉の観察窓設置工事を行った。また、電気炉外側からき裂発生等が観察できるように、ビデオマイクロスコープを設置した。

(d) 高温クリープ疲労き裂発生実験

平成 17 年度は、予備的な高温クリープ疲労試験を実施した。

(e) 応力再配分モデルによる試評価

平成 17 年度は、実験結果に対する試評価を実施した。応力再配分モデルを用い、ひずみ集中部のひずみを予測することにより、良好な予測ができる見通しを得た。

【研究成果（当該年度）】

平成 18 年度は、以下の項目を実施した。

(1) 応力再配分モデルの適用範囲の把握

弾性領域（弾性核）による応力再配分のメカニズムを理論的に明らかにするとともに、解析的検討により応力再配分モデルの適用範囲を把握する。筑波大と機構が共同で実施する。

平成 18 年度は、ノッチ付梁の弾塑性 FEM 解の分析により、塑性領域が一定の範囲内に限定されている場合は、ノッチの径によらず、同一の応力再配分挙動を示すことが明らかになった。これによりピーク応力が負荷された構造に対しても、応力再配分モデルを適用できる可能性があることがわかった。

(2) 応力再配分モデルと強度との関係解明

応力集中を有する構造物実験として、平板に孔がある構造が適当であると考えられる。この構造は応力集中部を有しその応力集中率や塑性域が進展したときの弾性核の度合いを、幾何形状を変化させることにより調整することが可能である。また、材料試験機を用いてクリープ疲労実験することも容易である。ここでは、孔が1つあるいは複数個空いた板を用いて、クリープ疲労強度を計測する。応力再配分モデルを用いたモデルによる計算結果と比較することにより、モデルと強度との関係を解明する。主として、筑波大学が分担し、機構が必要に応じて支援する。

(a) 有孔平板試験片の FEM 解析

平成 18 年度は、試験片の設計変更に応じた FEM 解析を実施し、再配分軌跡を求めた。

(b) 試験片の設計・製作

平成 18 年度は、試験装置の変更（き裂発生観察）を踏まえ、試験片形状を改良し、試験片を製作した。

(c) 高温疲労き裂発生実験

平成 18 年度は、高温炉付サーボパルサを用いて、高温疲労き裂発生実験を実施した。荷重を測定することにより最大荷重時での、また最大荷重時から 5%毎に低下し、75%までに荷重が低下したとき、き裂発生の有無をビデオマイクロスコープで観察・記録した。荷重とき裂発生との関係を明らかにした。

(d) 高温クリープ疲労き裂発生実験

平成 18 年度は、静的荷重試験機等を用いて、高温クリープ疲労試験を開始した。繰り返し負荷において、引張負荷時の荷重を保持して、クリープ変形を生じさせ、この強度に及ぼす影響に着手した。

(e) 応力再配分モデルによる試評価

平成 18 年度は、線形損傷則を適用した試評価を実施した。応力再配分モデルによるひずみ集中部のひずみを求め、また、試験中の荷重変化の実験履歴からき裂発生時での繰り返し数を求めた。この結果、Factor of 2 の範囲内で評価できることが明らかになった。

(3) 設計手法の開発

上記(1)と(2)を組み合わせ、応力再配分モデルに基づく強度評価法を開発する。応力再配分モデルに基づく設計方法をひずみ集中部に適用し、提案手法の有効性を検証する。検証には機構の構造物試験データを用いる。

平成 18 年度は、これまでに実施された検証用の検討内容を調査・整理した。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 19 年度は、以下のように実施する予定である。

(1) 応力再配分モデルの適用範囲の把握

弾性領域（弾性核）による応力再配分のメカニズムを理論的に明らかにするとともに、解析的検討により応力再配分モデルの適用範囲を把握する。筑波大と機構が共同で実施する。平成 19 年度は、適用範囲の検討を総括し、設計手法の開発に反映する。

(2) 応力再配分モデルと強度との関係解明

応力集中を有する構造物実験として、平板に孔がある構造が適当であると考えられる。この構造は応力集中部を有しその応力集中率や塑性域が進展したときの弾性核の度合いを、幾何形状を変化させることにより調整することが可能である。また、材料試験機を用いてクリープ疲労実験することも容易である。ここでは、孔が1つあるいは複数個空いた板を用いて、クリープ疲労強度を計測する。応力再配分モデルを用いたモデルによる計算結果と比較することにより、モデルと強度との関係を解明する。主として、筑波大学が分担し、機構が必要に応じて支援する。

(a) 有孔平板試験片の FEM 解析

平成 19 年度は、本項目に関しては、追加解析が必要にならない限り、実施を予定していない。

(b) 試験片の設計・製作

平成 19 年度は、高温クリープ疲労に必要となる試験片の製作のみ実施する。

(c) 高温疲労き裂発生実験

平成 19 年度は、追加試験が必要にならない限り、本項目の実施は予定していない。

(d) 高温クリープ疲労き裂発生実験

平成 19 年度はクリープ疲労試験を継続実施する。繰り返し負荷において、引き張り負荷時の荷重を保持して、クリープ変形を生じさせ、これの強度に及ぼす影響を検討する。疲労実験の場合と同様に、孔の個数や大きさを変えたり、クリープ保持時間を変えたときの、荷重減少とき裂の発生についての関係を明らかにする。

(e) 応力再配分モデルによる試評価

平成 19 年度は、線形損傷則を適用した評価を継続する。応力再配分モデルによるひずみ集中部のひずみを求め、また、試験中の荷重変化の実験履歴からき裂発生位置での繰り返し数を修正する。クリープの影響がある場合には、その影響を考慮してき裂発生時の評価を行い、実験結果と比較する。

(3) 設計手法の開発

上記(1)と(2)を組み合わせ、応力再配分モデルに基づく強度評価法を開発する。応力再配分モデルに基づく設計方法をひずみ集中部に適用し、提案手法の有効性を検証する。検証には機構の構造物試験データを用いる。平成 19 年度は、設計手法の素案を開発する。

【研究成果の公表】

<論文>

- 1) 山尾彩子, 孔のある平板の高温疲労強度の計測, 筑波大学 工学システム学類, 卒業論文, (2006) 査読無。
- 2) 蔵 憲之, 孔のある平板の高温クリープ疲労強度の計測, 筑波大学工学システム学類, 卒業論文, (2006)、査読無。
- 3) Watanabe, O., Koike, T., Creep-Fatigue Life Evaluation Method for Perforated Plates at Elevated Temperature, Trans. ASME, Journal of Pressure Vessel Technology, Vol.128, pp.17-24, (2006) 査読有。

<国内会議>

- 1) 渡部修, Bubphachot, B., 笠原直人, 中村協正, 有孔板の幾何形状が及ぼす高温疲労強度とクリープ疲労強度, 日本機械学会第 18 回計算力学講演会講演論文集, No.05-2, (2005) pp. 835-836, 査読無。
- 2) 渡部修, Bubphachot, B., 笠原直人, 川崎信史, 応力再配分モデルに基づく有孔板の高温疲労強度, 日本機械学会講演論文集(1), pp.117-118. (2006)、査読無。
- 3) Bubphachot, B., 渡部修, 川崎信史, 笠原直人, 高温での円孔板のき裂の発生と進展の観察, 日本機械学会 2007 年年次大会, 発表予定。

<国際会議>

- 1) Watanabe, O., Bubphachot, B., Kawasaki, N., Kasahara, N., Fatigue Strength Evaluation of Perforated Plate at Elevated Temperature Using Stress Redistribution Locus Method, Proceedings of CREEP8, Eighth International Conference on Creep and Fatigue at Elevated Temperatures, July 22-26, 2007, San Antonio, Texas, PVP2007-26698. 発表予定、査読有。
- 2) Bubphachot, B., Watanabe, O., Kawasaki, N., Kasahara, N., Creep-Fatigue Strength Evaluation of Perforated Plate at Elevated Temperature Using Stress Redistribution Locus Method, Proceedings of CREEP8, Eighth International Conference on Creep and Fatigue at Elevated Temperatures, July 22-26, 2007, San Antonio, Texas, PVP2007-26702. 発表予定、査読有。

2.1.11 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	配管系の動的強度評価法に関する基礎研究										
研究協力課題	機械構造物の破壊・破損に係わる地震エネルギー入力の影響										
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="3">東京電機大学 工学部 機械工学科 教授 藤田 聡 [*客員研究員 **研究生]</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="3">次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 構造信頼性グループ 研究副主幹 北村誠司, 研究員 岡村茂樹</td> </tr> </table>			大 学 側	東京電機大学 工学部 機械工学科 教授 藤田 聡 [*客員研究員 **研究生]			機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 構造信頼性グループ 研究副主幹 北村誠司, 研究員 岡村茂樹		
大 学 側	東京電機大学 工学部 機械工学科 教授 藤田 聡 [*客員研究員 **研究生]										
機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 構造信頼性グループ 研究副主幹 北村誠司, 研究員 岡村茂樹										
研究実施場所	東京電機大学神田キャンパス 11 号館振動制御研究室, 機械工学科共同実験室										
通算研究期間 (予定)	平成 17 年 7 月 ~ 平成 20 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 18 年 6 月 ~ 平成 19 年 3 月								
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究										
<p>【研究目的】</p> <p>原子力プラントの機器・配管の動的荷重に対する強度は、静的荷重により定められた強度限界によってその発生応力を評価している。静的設計は構造物の振動特性を無視しているため、過度に保守的な設計となっていることが知られている。近年の研究によれば、地震による配管系等の破壊現象は、累積的な疲労破壊が支配的であるとの知見もある。</p> <p>原子力施設の機器・配管の合理的な耐震設計、動的荷重に対する強度評価を行うためには、地震時に塑性／破壊に至る条件を明確にする必要がある。そこで本研究では、弾塑性領域でのエネルギーの授受関係に着目し、地震入力エネルギーと破壊・破損に至るまでの振動エネルギーの関係を明確にすることで、動的挙動を考慮したエネルギーベースの限界強度評価手法を将来的に構築するための基礎的技術を開発することを目的とする。</p>											
<p>【研究内容（概要）】</p> <p>合理的な耐震設計、動的荷重に対する強度評価を行うためには、FBR 等原子力施設における機器・配管が、地震時に塑性／破壊に至る条件を明確にする必要がある。本研究においては、構造物の固有振動数と入力波の卓越振動数成分に着目し、地震時に構造物に入力される地震エネルギーと、破壊・破損に用いられるエネルギーの関係を解明し、塑性／破壊に至る条件を明確にする。最終的に FBR 配管等を対象にした、エネルギーベースの限界強度評価手法を開発する。</p> <p>サイクル機構側は、過去に薄肉配管要素を対象に動的破壊実験を実施した実績があり、その結果得られた知見と高加速度による加振実験施設を有している。弾塑性領域における地震エネルギー授受関係に関する検討は、電機大側に実績がある。双方が協力することによって、最終的にエネルギーベースの限界強度評価手法を将来的に構築するための基礎的技術を開発することが可能になる。</p>											

【使用主要施設】

東京電機大学 神田キャンパス 11号館

- ・小型振動試験機 鷺宮製作所製 油圧サーボ水平振動試験機 最大加速度：3G
- ・実験結果・解析装置 Apple社製 iMac G5 2GHz 二台
- ・実験結果・解析用アプリケーション Mathworks社製 MATLAB 7.1
- ・実験結果記録処理装置 Apple社製 Powerbook G4 12inch 1.5GHz
- ・実験結果記録装置 TEAC社製 es-8 (8ch ポータブルデータレコーディングシステム)

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成17年度（研究初年度）は、以下に示す三点を実施した。

(1)文献調査

学会論文等を中心に文献調査を行った。その結果、本研究の位置付け・対象とすべき範囲が明確になったとともに、本研究の独創性、必要性、有用性を確認した。

(2)弾塑性域での振動挙動の把握

エネルギー評価手法の確立を目指し、東京電機大学所有の小型振動試験機を用い、単純な一質点系モデルの振動実験を行った。その結果、実験結果のエネルギーによる整理は良好な結果を示した。また、実験モデルの塑性変形開始時期も応答加速度や応答変位による推定と同時であり、エネルギーの算出により塑性変形開始時期の推定が可能であることを確認した。

(3)エルゴ配管加振試験結果のエネルギーによる整理

次年度以降の実配管系への適用を見据え、過去にサイクル機構（当時）で行われたエルゴ配管加振破壊試験の結果をエネルギー評価手法に基づき整理した。その結果、過去の試験、また、破壊に至る試験結果に対してもエネルギー評価手法が適用可能であり、今後、破壊の評価指標としてエネルギーが適用出来る見込みを得た。

平成18年度（研究二年度）は、以下に示す四点を実施した。

(1)振動疲労破壊実験（軽微な破壊・破損までの試験）

破壊とエネルギーの関係の解明を目標とし、ランダム波による強制加振を長時間繰り返すことで供試体を疲労破壊させる「振動疲労破壊実験」を行った。実験では、入力加速度が小さいほど破壊には多くの総エネルギー入力を必要とすることが確認された。

(2)振動疲労破壊実験結果に基づくエネルギーと疲労破壊の関係の検討（破壊・破損に用いられたエネルギーの検討）

エネルギーと疲労破壊の関係を解明し、エネルギーにより破壊時期を推定することを目標として、(1)で得られた実験結果を更に整理、評価した。その結果、総エネルギー入力と破壊の間には相関関係があることが確認され、これにより供試体の破壊時期の推定が可能になった。また、それらの材料依存性も確認した。

(3)振動疲労破壊実験の破損モードの検討

振動疲労破壊実験の破損モードを検討するため、正弦波入力による振動疲労破壊実験を行った。実験結果を既往の疲労試験の結果と比較したところ、それらは一致したことから、振動疲労破壊実験の破損モードは疲労破壊であると推定された。

(4)配管要素（直管）モデルの設計

研究最終年度（平成19年度）に実施予定の配管要素モデルの供試体を設計、製作した。

【研究成果（当該年度）】

(1) 振動疲労破壊実験（軽微な破壊・破損までの試験）

破壊とエネルギー関係を検討するためのデータ収集の一環として、ランダム波による強制加振を長時間繰り返すことで供試体を疲労破壊させる「振動疲労破壊実験」を行った。供試体は昨年度と同様別添図1に示したものを、実験装置は東京電機大学所有の小型水平振動試験機を用いた。

実験結果の一例として、別添図2に SUS304 及び SS400、長さ 0.220[m]、固有振動数 7.35～7.60 [Hz] の供試体に、6～8[Hz] に卓越振動数を持つランダム波を入力し疲労破壊させた際の、総エネルギー入力（線）と破壊までに入力されたエネルギー（プロット）を示す。実験では、供試体は長時間にわたり安定した応答を示した後、突然疲労破壊した。また、入力加速度が大きいほど短時間で破壊する傾向が確認され、従来の疲労試験と同様の傾向を示した。別添図2よりエネルギーの観点から実験結果を検討すると、入力加速度（入力変位）が小さいほど、つまり応答加速度が小さいほど破壊に要するエネルギーは大きくなる傾向が確認できる。さらに、同一入力波において SUS304 は SS400 に比べ半分の時間、半分の総エネルギー入力で破壊しており、破壊とエネルギーの定量的な関係の支配要因の一つとして供試体の材質が確認された。

(2) 振動疲労破壊実験結果に基づくエネルギーと疲労破壊の関係の検討（破壊・破損に用いられたエネルギーの検討）

エネルギーと疲労破壊の関係を解明し、エネルギーにより破壊時期を推定することを目標として、(1)で得られた実験結果を様々なパラメータに着目し整理した。ここでは、応答に着目した場合として「破壊に要した時間」、「単位時間当たりの総エネルギー入力増加量」、入力に着目した場合として「最大入力加速度」で実験結果を整理し、それぞれ破壊に要した総エネルギー入力との相関を検討した。

その結果、別添図3に示す関係が確認された。すなわち、「破壊に要する時間が長いほど、より多くの総エネルギー入力を必要とする」、「単位時間に入力される総エネルギー入力が少ないほど、破壊にはより多くの総エネルギー入力を必要とする」、「同一形状の入力波の場合、最大入力加速度が大きいほど小さい総エネルギー入力で破壊する」という関係であり、材質により定量的な違いはあるものの、SUS304、SS400の両者でその関係が確認された。中でも「単位時間当たりの総エネルギー入力増加量」は、「破壊に要した時間」が実験終了後でないとも明らかにならない量であるのに対し、リアルタイムに把握できる量であることから、今後の研究において重要なパラメータになると考えられる。

以上より、機械構造物に入力される総エネルギー入力と破壊の間には相関関係があることが確認され、これにより供試体の破壊時期の推定が可能になった。

(3) 振動疲労破壊実験の破損モードの検討

振動疲労破壊実験の破損モードを検討するため、(1)ではランダム波により行った振動疲労破壊実験を正弦波にて行った。実験結果を供試体最下端部に働くひずみに変換し、既往の疲労試験の結果と比較したところ、それらは一致したことから、振動疲労破壊実験の破損モードは疲労破壊であると推定された。

(4) 配管要素（直管）モデルの設計

研究最終年度（平成19年度）に実施予定の配管要素モデルの供試体を設計、製作した。寸法は長さ 650[mm]、直径 76.3[mm]、肉厚 1.5[mm] ($D/t=50.9$) で、現在、原子力発電所内の機器・配管系によく用いられる SUS304 製とした。配管要素による実験では、これまでの研究において単純一質点系モデルを用いた実験により確認されている破壊と総エネルギー入力の間関係を、より実際的な条件下で確認することにある。また、FBRでの活用を視野に入れ、薄肉配管による供試体製作を目指したが、入手性を考慮し $D/t=50.9$ となった。

まとめ

平成18年度（研究二年度）は、(1)振動疲労破壊実験、(2)振動疲労破壊実験結果に基づくエネルギーと疲労破壊の関係の検討、(3)振動疲労破壊実験時の破損モードの検討を行った。その結果、エ

エネルギーと疲労破壊の間には相関関係があり、エネルギーに着目することで破壊時期の推定が可能になる見込みを得た。また、振動疲労破壊実験の結果は、従来の疲労破壊と一致することから、今後は疲労強度学の観点を踏まえ検討を進めることで、有益な知見を得られると期待出来る。

以上より、破壊・破損に係わるエネルギーの影響を総合的に評価するという本研究の到達目標を見据えると、これまでの研究成果は有意義な成果を上げたと言え、また、研究申請時に掲げた計画通りに研究を履行できていることから、本研究の更なる発展が期待される。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】——

平成 19 年度は、以下の点を実施する予定である。

(1)高クロム鋼を用いた振動疲労破壊実験

平成 18 年度には SS400（炭素鋼）、SUS304（ステンレス鋼）で行われた振動疲労破壊実験を、今後 FBR 等での使用が期待される高クロム鋼に対して行う。実験はこれまで同様、東京電機大学所有の小型水平振動試験機にて行う。また、供試体の寸法は平成 18 年度に使用した供試体と同じにすることで、エネルギーの観点から炭素鋼、ステンレス鋼との終局強度の違いを調査すると共に、破壊に必要なエネルギーが材料のどのような要素に支配されるかを検討する。

(2)配管要素モデルによる振動疲労破壊実験

平成 18 年度には単純一質点系モデルに対し行われた振動疲労破壊実験を配管要素に対して行い、配管要素においてもこれまでに確認されているエネルギーと破壊の関係が成立するか否かを検討する。東京電機大学所有の小型水平振動試験機にて行う、供試体は直管要素モデル（SUS304、 $D/t=50.9$ 、平成 18 年度に設計済み）を用いる。実験結果よりエネルギーと破壊の関係を検討すると共に、平成 18 年度に行った単純一質点系モデル（SUS304）での振動疲労破壊実験と比較することで、形状依存性や質量部の質量が破壊に要するエネルギーに与える影響などを検討する。

(3)本研究の総括及び報告書の作成

本研究の研究期間は平成 19 年度をもって終了する。そのため、全研究年度を通して得られた結果、知見を総合的に整理、評価し、今後の課題を洗い出す。また、それらを報告書としてまとめる。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 皆川佳祐, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究- (1)弾塑性域におけるエネルギーの振る舞い-, 日本原子力学会 2006 年春の年会予稿集 CD-ROM, (2006-3), O21.pdf, 査読なし
- 2) 北村誠司, 岡村茂樹, 皆川佳祐, 藤田聡, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究- (2)エルボ配管の試験結果への適用例-, 日本原子力学会 2006 年春の年会予稿集 CD-ROM, (2006-3), O22.pdf, 査読なし
- 3) 皆川佳祐, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究- (3)振動疲労破壊時のエネルギーの振る舞い-, 日本原子力学会 2006 年秋の年会予稿集 CD-ROM, (2006-9), J53.pdf, 査読なし
- 4) 皆川佳祐, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究- (4)振動疲労破壊時のエネルギーと破壊の関係-, 日本原子力学会 2007 年春の年会予稿集 CD-ROM, (2007-3), C37.pdf, 査読なし

<国際会議>

- 1) Minagawa K., Fujita S., Kitamura S., Okamura S., Study on Dynamic Strength Evaluation Method of Piping Based on Energy Balance, ASME PVP2007, (2007-7), 査読あり, 採択済み
- 2) Minagawa K., Fujita S., Kitamura S., Okamura S., Study on Dynamic Fracture Prediction of Piping Using Energy Balance Method, 19th SMIRT, (2007-8), 査読なし, 採択済み

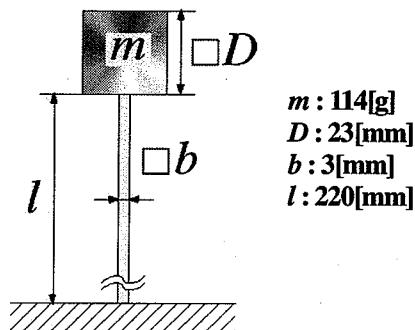


図1 実験モデル

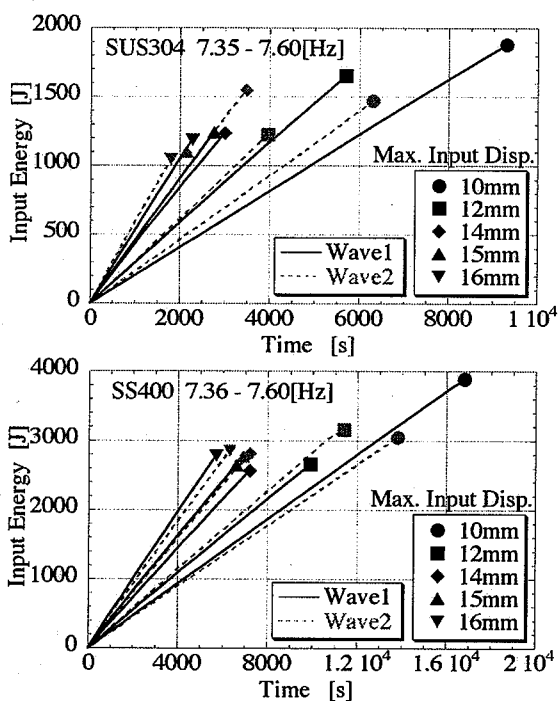


図2 総エネルギー入力と破壊

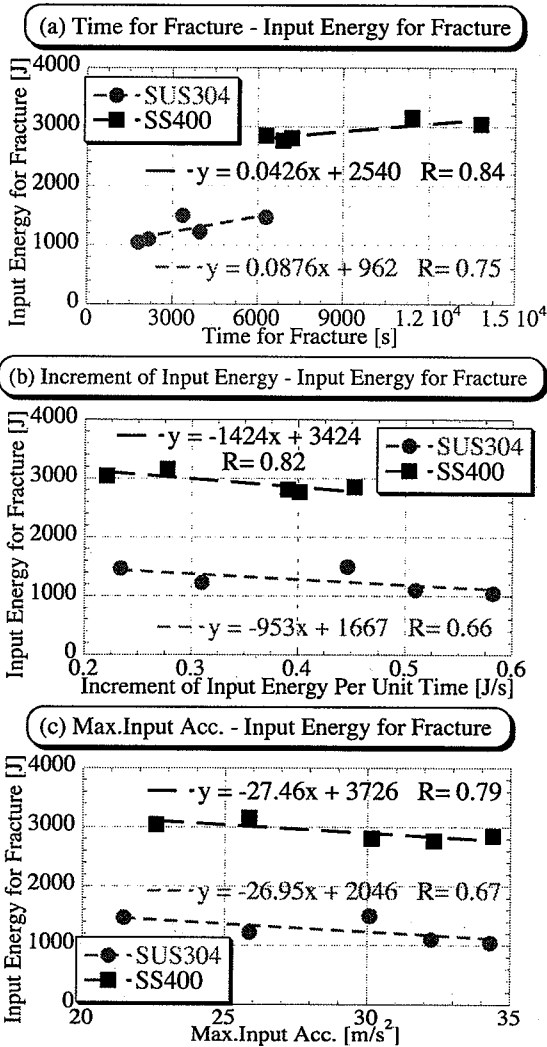


図3 疲労破壊時の総エネルギー入力

—出典—

- 図1 皆川佳祐, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究- (3)振動疲労破壊時のエネルギーの振る舞い-, 日本原子力学会 2006 年秋の年会予稿集 CD-ROM, (2006-9), J53.pdf, 図1
- 図2 皆川佳祐, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究- (3)振動疲労破壊時のエネルギーの振る舞い-, 日本原子力学会 2006 年秋の年会予稿集 CD-ROM, (2006-9), J53.pdf, 図2
- 図3 皆川佳祐, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究- (4)振動疲労破壊時のエネルギーと破壊の関係-, 日本原子力学会 2007 年春の年会予稿集 CD-ROM, (2007-3), C37.pdf, 図1

2.1.12 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	結晶粒度と長時間クリープ強度の相関評価に関する研究								
研究協力課題	多軸応力下での長時間粒界損傷の予測に関する理論および実験的研究								
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="2">立命館大学 理工学部 機械工学科 教授 坂根政男 助手 張 聖徳 〔*客員研究員 **研究生〕</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="2">次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 副主任研究員 若井隆純</td> </tr> </table>			大 学 側	立命館大学 理工学部 機械工学科 教授 坂根政男 助手 張 聖徳 〔*客員研究員 **研究生〕		機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 副主任研究員 若井隆純	
大 学 側	立命館大学 理工学部 機械工学科 教授 坂根政男 助手 張 聖徳 〔*客員研究員 **研究生〕								
機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 副主任研究員 若井隆純								
研究実施場所	立命館大学 びわこ草津キャンパス イーストウィング、エクセル3 大洗研究開発センター ナトリウム技術開発第一・第三試験室								
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 6 月 ~ 平成 21 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 18 年 6 月 ~ 平成 19 年 3 月						
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究								
【研究目的】	<p>耐熱鋼の長時間クリープでの破損形態は、結晶粒界に発生するボイドの発生および成長が大きな要因の 1 つである。したがって、結晶粒界に発生および成長するボイドの生成メカニズムを結晶粒径との関連で検討することは、長時間クリープ特性の優れた材料開発や長時間クリープ評価法の開発に当たってのキーテクノロジーといえる。そこで本研究では、結晶粒度と長時間クリープ強度との相関性を明らかにすることを目的として、多軸応力下での長時間粒界損傷に関する理論および実験的研究を行う。</p>								
【研究内容 (概要)】	<p>①オーステナイト系 SUS304 ステンレス鋼の溶体化処理材を主たる試験対象材として、単軸および十字型試験片を用いた多軸クリープ試験を実施し、多軸応力下での粒界損傷の加速効果を有効利用して、比較的短時間の多軸試験から単軸長時間のクリープ破断時間を推定する基礎的な手法を開発する。</p> <p>②結晶粒界に発生・成長するボイドによる粒界損傷と応力多軸性との関連を理論的に導き、クリープ破断時間に及ぼす結晶粒界数や粒界長さがボイドの発生・成長に及ぼす関係を定量化する。</p> <p>③①で得た実験結果および②で得た理論解析の結果を比較し、結晶粒が異なる材料の長時間クリープの損傷モデルを開発するとともに、単軸での長時間クリープ破断時間推定法の基礎的な手法を開発する。</p>								
【使用主要施設】	<p>立命館大学) 大気中 2 軸クリープ試験装置、走査型電子顕微鏡、光学顕微鏡 原子力機構) 大気中単軸クリープ試験装置、走査型電子顕微鏡</p>								
【進捗状況 (当該年度までの概要)】	<ol style="list-style-type: none"> 1. 単軸クリープ中断試験の実施 2. 多軸クリープ中断試験の実施 3. 損傷材の観察および考察 								

【研究成果（当該年度）】

1. 単軸クリープ中断試験の実施

単軸クリープ試験を、温度 $T=700^{\circ}\text{C}$ 、ミーゼス型相当応力 $\sigma_{\text{eq}}=80\text{MPa}$ において実施した。試験片形状は、図 1 に示す単軸用平板試験片であり、供試材は、表 1 に示す化学成分を有するオーステナイト系 SUS304 ステンレス鋼溶態化処理材である。試験片軸方向のクリープひずみ (ϵ) が約 5%、10% および 15% の 3 回、試験を中断し、3 に述べるクリープポイドの観察を行った。単軸試験においては、クリープひずみが時間に伴って単調に増加し、約 93.3h、182.2h および 279.9h の負荷時間に対してクリープひずみがそれぞれ 5%、10% および 15% 生じた。

2. 多軸クリープ中断試験の実施

図 2(b) に示す 2 軸クリープ試験装置を用いて、ミーゼス型相当応力 $\sigma_{\text{eq}}=80\text{MPa}$ 、主応力比 $\lambda(=\sigma_2/\sigma_1)=0.5$ および 1.0 の 2 軸クリープ試験を、温度 $T=700^{\circ}\text{C}$ 大気中において実施した。試験片形状は、図 2(a) に示す十字型クリープ試験片であり、供試材は、表 2 に示す化学成分を有するオーステナイト系 SUS304 ステンレス鋼溶態化処理材である。これらの試験において、ミーゼス型相当クリープひずみ (ϵ_{eq}) が約 5%、10%、15% および 20% で試験を中断し、3 に述べるクリープポイドを観察した。

$\lambda=1.0$ の $\sigma_{\text{eq}}=80\text{MPa}$ 試験は破断まで行い、破断時間およびクリープ破断延性はそれぞれ 1845.9h および 57.8% であった。一方、 $\lambda=0.5$ の試験においては、 ϵ_2 が時間に伴ってほとんど生じず、 ϵ_1 のみが生じているのに対して、 $\lambda=1.0$ の場合、 ϵ_1 と ϵ_2 が同程度の割合で時間に伴って増加した。このことは、x および y の両方向の荷重が試験片に精度良く負荷されていることを示している。

ミーゼス型相当クリープひずみがそれぞれ 5%、10%、15% および 20% に達した時間を $\lambda=0.5$ と $\lambda=1.0$ の試験で比較すると、 $\lambda=0.5$ の試験においては、約 979h、1341.5h、1615h および 1741h、 $\lambda=1.0$ の試験においては、約 510h、895h、1202.5h および 1501.6h であった。すなわち、主応力比が 0.5 のミーゼス型相当ひずみ速度は、1.0 のそれに比べて遅く、主応力比が小さいほど、クリープひずみ速度が遅いことを示している。

同様に、 $T=700^{\circ}\text{C}$ での $\lambda=1.0$ の試験を、ミーゼス型相当応力が 90MPa および 100MPa においても実施した。90MPa の試験においては、 ϵ_{eq} が約 5%、10% および 15% の 3 回、100MPa の試験では、約 5%、10%、15% および 20%、さらに破断までクリープ試験を行って、3 に述べるクリープポイドの観察を行った。

3. 損傷材の観察および考察

上記 1 および 2 の試験から得られたクリープ損傷材に対し、クリープ損傷指標としてクリープポイドの観察を両研究機関で分担して行った。一部の損傷材に関しては、両研究機関においてそれぞれ観察を行った。

3.1 観察方法

立命館大学では、中断試験片標点部を鏡面に研磨した後、ピレラ液による化学エッチングを行い、光学顕微鏡を用いてクリープポイドを観察した。

原子力機構では、中断試験片標点部を鏡面に研磨した後、王水による化学エッチングを行い、アセチルセルロースフィルムを用いたレプリカを採取し、金を蒸着した後、走査型電子顕微鏡を用いてクリープポイドを観察した。

3.2 A パラメータ測定方法

本研究では、クリープ損傷の指標として A パラメータを採用した。単軸クリープ試験での A パラメータの測定には、応力軸に平行な走査線を横切る粒界を計数するが、2 軸クリープ試験の場合には、A パラメータの多軸応力による異方性を考察するために x および y 方向に走査線を引き、これらの走査線を横切る粒界数から両方向の A パラメータを評価した。

3.3 クリープ損傷評価結果

ミーゼス型相当応力が 80MPa、ミーゼス型相当ひずみが 10%の $\lambda=0.0$ の試験では、粒界ポイドがそれ程多く観察されなかったが、 $\lambda=0.5$ と 1.0 の試験では、孤立したポイドのみではなく、連結した粒界き裂も多く観察された。また、 $\lambda=0.0$ と 0.5 の試験では、ほとんどポイドが最大主応力軸に垂直な粒界で発生したが、 $\lambda=1.0$ では、様々な方向の粒界でポイドと粒界き裂が発生していた。すなわち、主応力比の違いによって、粒界ポイドの発生形態が大きく変わることが判明した。

$\sigma_{eq}=80\text{MPa}$ 、 700°C における $\lambda=0.5$ および 1.0 でのクリープ中断試験から、限られたデータ点数ではあるが、主応力比が大きい方が早い時期から A パラメータが増加する傾向が認められた。すなわち、多軸応力はクリープポイドの発生・成長を促進する傾向があることが判明した。このことは、藤本らによる $2\frac{1}{4}\text{Cr-1Mo}$ 鋼の 550°C における等 2 軸および単軸クリープ A パラメータの測定結果と傾向的には同じである⁴⁾。

4. まとめ

SUS304 の 700°C における単軸および 2 軸のクリープ中断試験を行い、クリープ損傷材に対する A パラメータを測定した。その結果、限られたデータ点数ではあるが、二軸クリープ試験では、単軸試験に比較して寿命の早い時期から A パラメータが大きくなっている傾向が認められた。

【参考文献】

- [1] 藤本、坂根、伊達、吉田、「 2.25Cr-1Mo 鍛鋼の多軸クリープ破断特性とクリープ損傷評価」、材料、第 54 巻、第 2 号、2005、pp.149-154.

表 1 単軸クリープ試験片素材の化学成分 (wt.%)

C	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	Fe
0.05	0.59	1.02	0.28	0.08	18.35	9.11	bal.

表 2 二軸クリープ試験片素材の化学成分 (wt.%)

C	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	Fe
0.05	0.52	1.31	0.28	0.02	18.31	8.44	bal.

1373Kで5分間溶体化処理

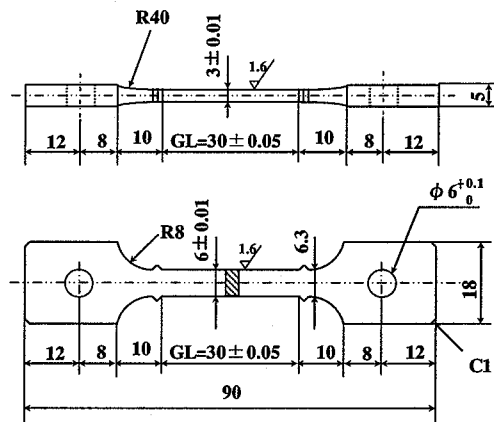
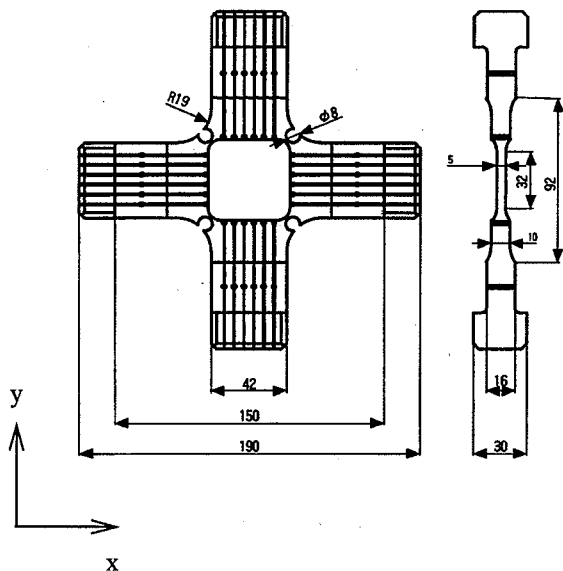
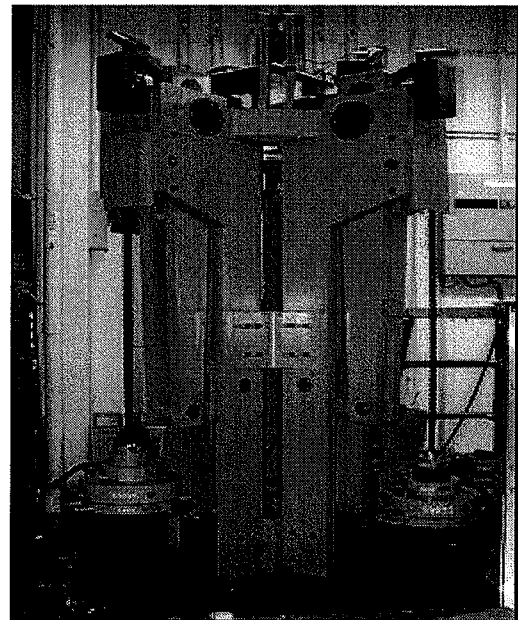


図 1 単軸クリープ試験片の形状寸法



(a) 2軸クリープ試験片



(b) 2軸クリープ試験装置

図 2 2軸クリープ試験片および試験装置

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 19 年度は、次のような研究項目を実施する予定である。

- (1) 単軸クリープ試験／(2) 多軸クリープ試験
試験の継続、中時間クリープ中断材の作成（上半期・下半期）
- (3) 損傷材の組織観察
中時間クリープ中断材のポイド観察（上半期・下半期）
- (4) 損傷モデルの開発
多軸負荷による粒界損傷加速効果の考察、固体の力学状態方程式に関する検討（下半期）

平成 20 年度は、次のような研究項目を実施する予定である。

- (1) 単軸クリープ試験／(2) 多軸クリープ試験
試験の継続、長時間クリープ中断材の作成（上半期・下半期）
- (3) 損傷材の組織観察
長時間クリープ中断材のポイド観察（上半期・下半期）
- (4) 損傷モデルの開発
ポイドの成長を結晶粒界数および応力多軸度の関数として表示する手法の提案（下半期）
- (5) 長時間クリープ破断時間推定モデルの開発
ポイドの発生および成長速度に及ぼす応力多軸度の影響の把握、長時間クリープ破断時間推定モデルの提案（下半期）

【研究成果の公表】

- 1) **Multiaxial Creep-Fatigue Life Using Cruciform Specimen**
Zhang Shengde, Masaya Harada, Kunimasa Ozaki, Masao Sakane
International Journal of Fatigue, Vol.29, No.5, pp.852-859, 2007-5.
- 2) **Multiaxial Creep-Fatigue Life Prediction for Cruciform Specimen**
Zhang Shengde, Masao Sakane
International Journal of Fatigue, 掲載決定
- 3) 高温における組合せ応力下の環状疲労き裂伝ばに関する研究
濱田直巳、坂根政男、梅田洋、元家勝彦
材料、Vol.56、No.2、2007-2、pp.164-170.
- 4) **SUS304 鋼の高温多軸クリープ疲労損傷評価**
張聖徳、坂根政男
材料、Vol.56、No.7、2007-7、pp. (未定)

2.1.13 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	固溶強化機構の長時間安定性に及ぼす微量元素の影響に関する研究								
研究協力課題	タングステン、モリブデン固溶強化 Fe-Cr 合金の経時変化に関する研究								
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="2">東北大学 金属材料研究所 ナノ金属高温材料学 客員教授 安彦兼次*, 客員助教授 高木清一*, 客員助教授 菱沼章道* [*客員研究員 **研究生]</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="2">次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 副主任研究員 若井隆純</td> </tr> </table>			大 学 側	東北大学 金属材料研究所 ナノ金属高温材料学 客員教授 安彦兼次*, 客員助教授 高木清一*, 客員助教授 菱沼章道* [*客員研究員 **研究生]		機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 副主任研究員 若井隆純	
大 学 側	東北大学 金属材料研究所 ナノ金属高温材料学 客員教授 安彦兼次*, 客員助教授 高木清一*, 客員助教授 菱沼章道* [*客員研究員 **研究生]								
機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 副主任研究員 若井隆純								
研究実施場所	東北大学 金属材料研究所 大洗研究開発センター ナトリウム技術開発第一・第三試験室								
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 4 月 ~ 平成 21 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 18 年 4 月 ~ 平成 19 年 3 月						
研究協力形態	<input checked="" type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input type="checkbox"/> 共同研究								
<p>【研究目的】</p> <p>高速炉の経済性向上のため、高温強度と熱的特性がバランスよく優れる高 Cr 鋼を、主要構造材料に採用することが検討されている。従来の高 Cr 鋼では、種々の強化元素が添加されているが、長寿命化が指向される高速炉での使用条件におけるそれらの有効性・安定性は、明らかにされておらず、高速炉に最適な成分仕様を選定するには、それらの解明が不可欠である。そこで、本研究では、W や Mo による固溶強化機構の高温長時間における有効性・安定性に及ぼす珪素、炭素、窒素などの微量元素の影響を金属組織学的アプローチにより解明することを目的として、これらの元素の含有量の異なる W、Mo で強化した高純度 Fe-Cr 合金に対するクリープ試験等を行って、損傷材を観察・分析し、固溶強化機構の高温長時間における有効性・安定性に及ぼすこれらの微量元素の影響を評価し、高速炉用高 Cr 鋼の最適成分仕様選定に反映する。</p>									
<p>【研究内容（概要）】</p> <p>大学側研究者らが長年にわたり開発してきた世界最高水準の純度（99.999mass.%以上）の超高純度鉄溶製技術を用いて、鉄-クロム-タングステン-モリブデン合金を、種々の条件で製作する（製作条件により不純物元素の量が異なる）。これらの合金に対するクリープ試験、熱時効試験などを実施し、損傷材に対する観察や分析を行って、高速炉での使用条件（温度、時間）におけるタングステン、モリブデンによる固溶強化機構の有効性・安定性に及ぼす不純物元素の影響を明らかにし、高速炉用 Fe-Cr 系耐熱材料の材料開発の方向性を示す。</p>									
<p>【使用主要施設】</p> <p>東北大学) 超高真空コールドクルーシブル炉、超高真空浮遊帯熔融炉、走査型電子顕微鏡、光学顕微鏡</p> <p>原子力機構) 引張試験装置、大気中単軸クリープ試験装置、不活性雰囲気熱時効炉、走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡、光学顕微鏡</p>									

【進捗状況（当該年度までの概要）】

- (1) 超高純度鉄-クロム-タングステン-モリブデン合金の製作2。
- (2) 材料特性試験の実施
- (3) 金属組織観察および定量分析

【研究成果（当該年度）】

(1) 超高純度鉄-クロム-タングステン-モリブデン合金の製作

不純物元素量の異なる 2 種類の超高純度合金を溶製した。溶製した合金の化学成分を、市販材とあわせて表 1 に示す。

(2) 材料特性試験の実施

2tonHP 材と市販材に対して、引張試験を行った。その結果を図 1 に示す。市販材は高強度である反面、伸び・絞りが小さい。これに対し、2tonHP 材は室温～600℃までは、十分な伸び・絞りを有している。市販材では 400℃において顕著な伸び・絞りならびに強度の低下が認められるが、原因は不明である。

さらに 2tonHP 材と市販材に対して、シャルピー衝撃試験を行った。その結果を図 2 に示す。市販材の延性-脆性遷移温度は 40℃程度であるが、2tonHP 材のそれは-35℃程度であり、高純度化により靱性が著しく向上することが示された。

(3) 金属組織観察および定量分析

溶製した合金に対し、走査型電子顕微鏡による金属組織観察を行った。撮影した 2 次電子像と反射電子像を図 3 に示す。反射電子像では、重金属元素が高輝度で映るので、W あるいは Mo と Fe との金属間化合物である Laves 相が析出した場合には、白く見えることとなる。受入れままの状態を観察した図 3 の写真においては、輝度の高い析出物は認められないことから、Laves 相は析出していないと推測される。

次に、これらの合金の結晶粒内および結晶粒界に対し、SEM-EDX 分析を行った。その結果を表 2 に示す。粒内の化学組成は、表 1 に示す材料の化学成分とほぼ一致している。他方、粒界の化学成分は、とくに 2tonHP 材において表 1 の値とは大きく異なっており、粒界に Mo と W が偏析していることが明らかになった。

表 1 溶製した高純度合金と市販材の化学成分

	C	N	O	S	P	Cr	Mo	W
2tonHP材	12	8	24	6	<0.003	19.8	2.94	1.90
600kg溶解材	39	63	23	3	<0.003	19.9	3.10	1.97
市販材	120	53	29	90	0.013	19.8	3.01	2.00

※単位：P, Cr, Mo, W は mass %。その他は ppm。

表 2 溶製した合金の SEM-EDX 分析結果 (単位: mass%)

分析位置	2tonHP材		市販材		600kg材	
	粒界	粒内	粒界	粒内	粒界	粒内
	(a) A	(a) B	(b) A	(b) B	(c) A	(c) B
Mo	12.48	3.16	4.15	3.50	9.07	3.57
Cr	19.79	19.60	29.20	20.34	26.83	20.11
Fe	55.22	75.35	63.58	73.78	57.64	73.91
W	12.51	1.89	3.08	2.38	6.46	2.41
total	100.00	100.00	100.01	100.00	100.00	100.00

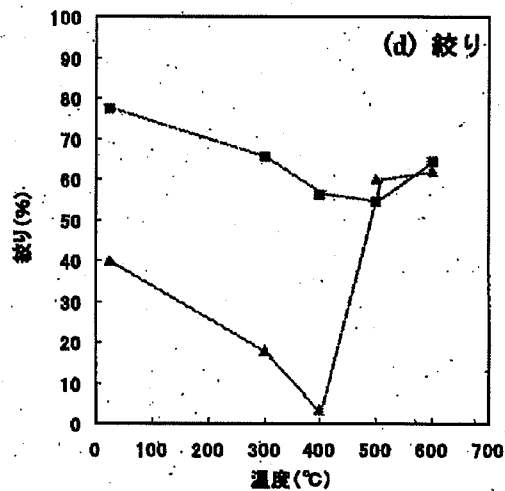
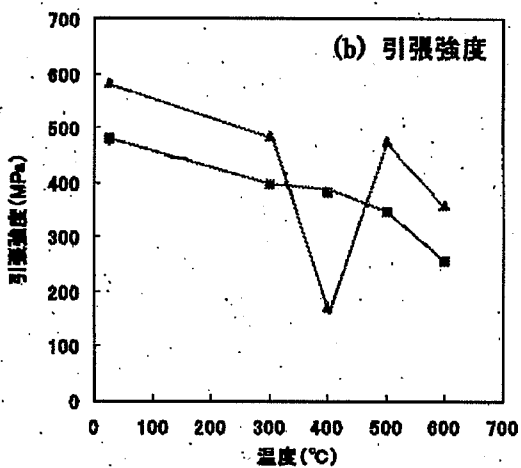
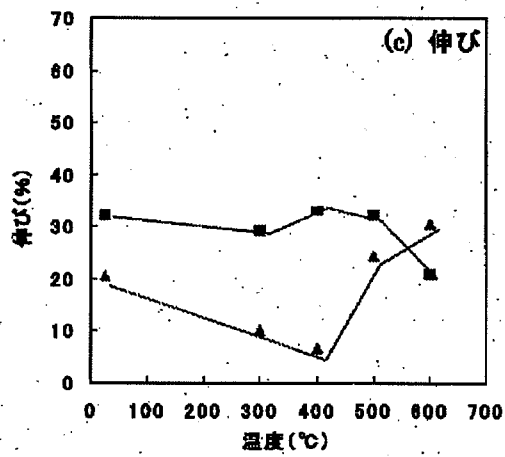
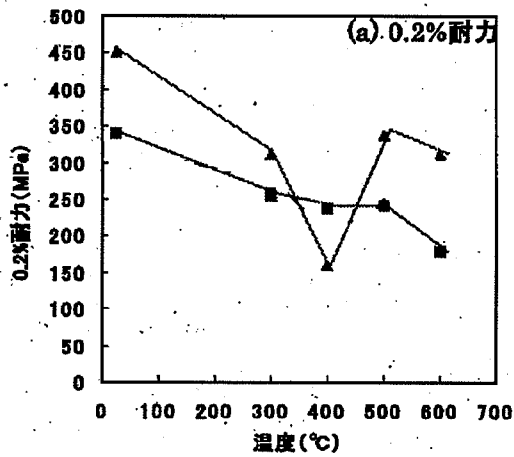
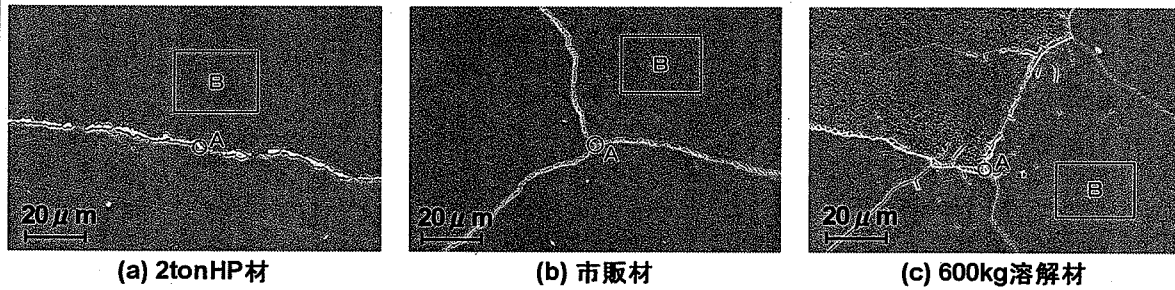


図 1 Fe-20Cr-3Mo-2W 合金の引張特性に及ぼす純度の影響 (■: 2tonHP 材、▲: 市販材)

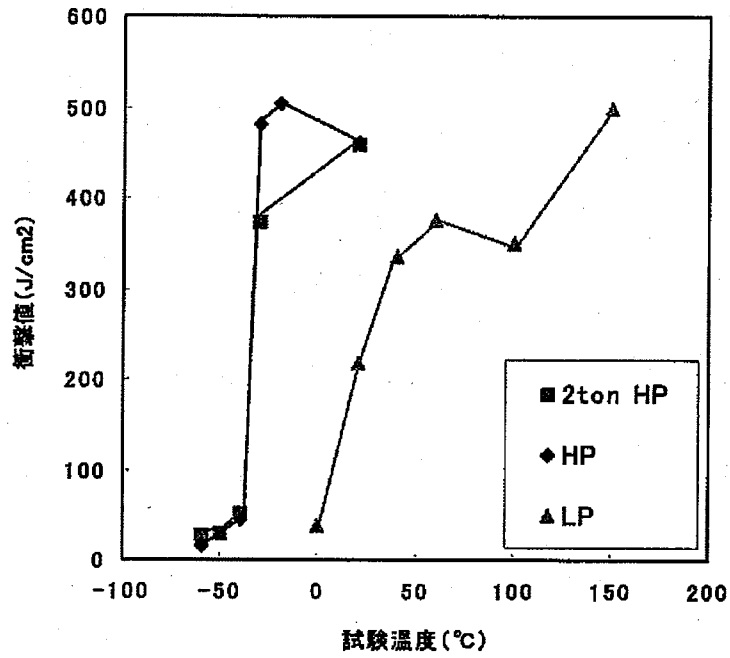


図2 Fe-20Cr-3Mo-2W合金の衝撃特性に及ぼす純度の影響 (■: 2tonHP材、▲: 市販材)

	2tonHP材	600kg溶解材	市販材
二次電子像			
反射電子像			

図3 溶製した合金の走査型電子顕微鏡による観察結果

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 19 年度は、次のような研究項目を実施する予定である。

- (1) 超高純度鉄-クロム-タングステン-モリブデン合金の製作
クロム量を変化させた合金の仕様決定および追加溶製。
- (2) 材料特性試験の実施
試験片の作製、引張試験の実施、クリープ試験および熱時効試験の継続。
- (3) 金属組織観察および定量分析
 - ・平成 18 年度に溶製した合金の損傷組織の電子顕微鏡等による組織観察・定量分析。
 - ・平成 19 年度に溶製する合金の組織の電子顕微鏡等による組織観察・定量分析。

平成 20 年度は、次のような研究項目を実施する予定である。

- (1) 超高純度鉄-クロム-タングステン-モリブデン合金の製作
タングステン/モリブデン比率を変化させた合金の仕様決定および追加溶製（上半期）
- (2) 材料特性試験の実施
試験片の作製、引張試験の実施、クリープ試験および熱時効試験の継続（上・下半期）
- (3) 金属組織観察および定量分析
 - ・平成 20 年度に溶製した合金の組織の電子顕微鏡等による組織観察・定量分析（下半期）
 - ・平成 19 年度に溶製した合金の損傷組織の電子顕微鏡等による組織観察・定量分析（下半期）

【研究成果の公表】

- 1) T.Tetsui, R.Hirota, Y.Tanaka and K.Abiko, Manufacturing and Anti-Oxidation Properties of Thin Sheet Products from High Purity 20Cr-3Mo-2W-Fe Alloy, The 11th International Conference on Ultra High Purity Base Metals, Berlin, Germany, September 11-14(2006).
- 2) 新田広行, 高木清一, 安彦兼次, 475℃時効後の超高純度 30Cr-Fe-5W 合金の高温引張特性, 金属学会春季大会, 2007 年 3 月 27-29 日.
- 3) H.Nitta, T. Tetsui, S. Takaki and K. Abiko, Effect of addition of tungsten on the tensile properties of high purity 30 and 35 mass% Cr-Fe alloys after 475℃ aging, In. Conf. on UHPM, Berlin, Germany, September 11-14, 2006.
- 4) Y. Kato, T. Tetsui, S. Takaki and K. Abiko, Effect of alloying elements on toughness of high purity Cr-W-Fe alloys, In. Conf. on UHPM, Berlin, Germany, September 11-14, 2006.

2.1.14 先行基礎工学研究に関する平成18年度研究概要報告書

研究協力テーマ	実機使用中の鉄鋼材料における組織/材料特性の変化予測に関する研究										
研究協力課題	ひずみエネルギーを考慮した熱力学的アプローチによる相変態挙動解析										
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大学側</td> <td colspan="3">名古屋大学 工学系研究科 村田 純教 (助教授) 國枝 知徳 (大学院博士後期課程)、中矢 一平 (大学院博士前期課程)</td> </tr> <tr> <td>機構側</td> <td colspan="3">次世代原子力システム研究開発部門 炉心・構造材料グループ 高屋 茂</td> </tr> </table>			大学側	名古屋大学 工学系研究科 村田 純教 (助教授) 國枝 知徳 (大学院博士後期課程)、中矢 一平 (大学院博士前期課程)			機構側	次世代原子力システム研究開発部門 炉心・構造材料グループ 高屋 茂		
大学側	名古屋大学 工学系研究科 村田 純教 (助教授) 國枝 知徳 (大学院博士後期課程)、中矢 一平 (大学院博士前期課程)										
機構側	次世代原子力システム研究開発部門 炉心・構造材料グループ 高屋 茂										
研究実施場所	<ul style="list-style-type: none"> 名古屋大学工学研究科 マテリアル理工学専攻 工学部5号館 原子力機構 大洗研究開発センター Na 技術開発第1試験室 										
通算研究期間 (予定)	平成18年9月 ~ 平成21年3月	当該年度 研究期間	平成18年9月 ~ 平成19年3月								
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究										
<p>【研究目的】</p> <p>物理化学的論理に裏付けられた材料開発や損傷検知・評価技術開発に資する計算科学技術(ツール)を整備する目的で、熱力学的アプローチに基づき耐熱鋼の析出挙動および相変態挙動を予測するシミュレーション技術の開発を行う。また、これまでに実施された長時間クリープ試験材の金属組織観察および物理化学的特性評価を行い、本研究で開発したシミュレーション技術の妥当性を検討する。</p>											
<p>【研究内容(概要)】</p> <p>原子力用構造材料である耐熱鋼を対象として、高温での使用中に生じる動的な組織変化のシミュレーション技術の開発を目指す。具体的には、これらの鋼中で析出する炭窒化物、あるいは金属間化合物相に着目し、その組織のもっている熱力学的エネルギー(組織自由エネルギー)を定量的に評価する。この組織自由エネルギーは、材料組成によって決まる「化学的自由エネルギー」および複数の相が存在するために生じる「界面エネルギー」ならびに「弾性ひずみエネルギー」の総和として求められる。材料の組織変化はその総和が時間とともに最も低くなるように生じる。また、エネルギーはスカラー量であるので、組織変化に対する外部から材料に加えられる力学エネルギーの効果についても原理的には評価可能である。次に、対象とする耐熱鋼の組織自由エネルギーの経時変化の評価結果を基に、動的シミュレーション手法の一つである Phase-field 法を適用することにより、組織や組成の変化を予測するためのシミュレーション手法の確立を目指す。そのため、以下の4項目を実施する。</p> <p>(i)析出および変態挙動のデータ解析、(ii)析出および変態挙動のシミュレーション技術の開発、(iii)シミュレーション結果の実時間への適用、および(iv)特性評価シミュレーションの検討。</p> <p>これらの研究遂行事項と研究全体の概念図を別添資料の図1に示す。</p>											
<p>【使用主要施設】</p> <p>走査型電子顕微鏡 (EDX, EBSD 付)、透過型電子顕微鏡、示差熱分析装置、ワークステーション、状態図計算ソフト「Thermo-Calc」</p>											

【進捗状況（当該年度までの概要）】

今年度は研究全体で計画している4項目のうち(i)及び(ii)の2項目に関連して、以下のことを実施した。

- (1) JIS SUS304 オーステナイト鋼における析出挙動の検討(研究内容(i))
 - ・熱力学計算ソフトを用いた JIS SUS304 オーステナイト鋼における $M_{23}C_6$ 炭化物と σ 相の析出量の算出
 - ・ $M_{23}C_6$ 炭化物と σ 相の平衡析出量と析出速度式に基づいた析出量変化の算出
 - ・地相のニッケル(Ni)、クロム(Cr)量変化の算出
- (2) オーステナイト鋼の組織自由エネルギー評価のためのひずみ量測定(研究内容(i))
 - ・既存クリープ試験片のX線回折法に基づく転位密度測定によるひずみ量評価
- (3) 析出および変態挙動シミュレーション技術の開発の基礎データの収集(研究内容(ii))
 - ・「化学的自由エネルギー」ならびに「界面エネルギー」の算出に必要な析出相のモル分率の算出
 - ・BCC相の形成およびクリープ破断を生じる境界値としてのひずみエネルギーの概算

なお、(3)については、H19年度も継続する予定である。

【研究成果（当該年度）】

本研究では、原子力材料として用いられるオーステナイト系耐熱鋼を対象とし、実機使用中に変化する炭化物、金属間化合物などの析出挙動の経時変化の実験結果を踏まえ、それら耐熱鋼の相変態挙動を予測するためのシミュレーション手法を、報告者らがこれまで行ってきた組織自由エネルギーに基づいて開発することを目的としている。平成18年度に得られた結果を以下に示す。

(1) JIS SUS304 オーステナイト鋼における析出挙動の検討

JIS SUS304 鋼 (Fe-0.05C-0.57Si-0.86Mn-0.027P-0.002S-8.92Ni-18.43Cr:mass%) について、まず 600°C のシミュレーションに必要な析出および変態挙動データの検討を以下の手順で行った。

(手順1) 平衡相の解析を熱力学ソフト CALPHAD により計算した。FCC相、BCC相、 $M_{23}C_6$ 炭化物相、 M_3P 相、MnS相および σ 相の安定性を400~900°Cの間で計算した結果、BCC相は約650°C以上では不安定となることがわかった。一方、 σ 相は平衡状態では650°Cまで約10%のモル分率の量となるが、その温度以上ではその量は減少し、およそ750°C以上では不安定となることがわかった。また、リン化合物(M_3P)と硫化マンガン(MnS)の存在量はごくわずかであり、 $M_{23}C_6$ 炭化物は800°C以上まで1~2%のモル分率で存在することが示唆された。

(手順2) CALPHAD計算により求められた600°Cにおける $M_{23}C_6$ 炭化物および σ 相の平衡モル分率を基に、これらの析出相の析出量変化をJohnson-Mehl-Avramiの式、

$$V_f = A[1 - \exp(-kt^n)]$$

に従うと仮定し求めた。ここで、 V_f はある時間のモル分率、 A はCALPHAD計算から得られた平衡モル分率、 k および n は材料定数、 t は時間である。なお、 $M_{23}C_6$ 炭化物の析出速度定数 k については、これまで報告者がフェライト系耐熱鋼で実験的に求めた値を用い、 σ 相のそれについては、物質・材料研究機構から発行されている報告書[1]の結果を参照した。

(手順3) $M_{23}C_6$ 炭化物および σ 相の析出量の経時変化を基に、JIS SUS304鋼の地相のNiとCr量の変化を求めた。

以上の手順により解析された各相のモル分率の時間変化は以下の特徴を示した。すなわち、 $M_{23}C_6$ 炭化物は600°C保持の初期から急激に増加し1000時間程度でほぼ平衡モル分率に達するが、 σ 相は1万時間程度までほとんど析出せず、1万時間を超えてわずかに析出することが示唆された。一方、Crに富む $M_{23}C_6$

炭化物の析出のため、鋼地相の Cr 濃度が時間とともに減少し、それとともに相対的に Ni 量が増加することがわかった。一般に Fe-Cr 二元系では Cr 量が減少するとキュリー温度が上昇する。一方、Fe-Ni 二元系では 8%Ni 以上でキュリー点はほぼ 400℃であることが知られている。これらの組成変化は、今後組成変化と磁気変態温度の関連づけを行って、ひずみによるマルテンサイト変態（加工誘起変態）を助長するか否かを検討するために必要な情報となる。

(2) オーステナイト鋼の組織自由エネルギー評価のためのひずみ量測定

JIS SUS304 鋼および SUS316 鋼の組織自由エネルギーを評価するための基本データとして、本年度は 550～650℃のクリープ試験中に両鋼に蓄積されるひずみ量を X 線回折測定に基づいた転位密度測定により評価した。試料は別添の表 1 に示す 6 試料である。このうち FMF0B2 のみ SUS316 鋼であり、他の 5 試料はすべて SUS304 鋼である。また、EB238, EB239 および EB242 はクリープ中断材であり、EB237, FB135 および FMF02B はクリープ破断材である。それらの結果をまとめて別添の表 1 に示す。なお測定には、局部くびれを生じた破断部分からなるべく離れた平行形状を保ったゲージ部（以後、平行ゲージ部とよぶ）を用いた。

X 線回折による転位密度測定では、(111), (200), (220), (311), (222) および (400) の 6 つの回折線を用い、Williamson-Hall プロットおよび Warren-Averbach プロットにより、回折線に対する結晶粒サイズの効果と転位密度による寄与を分離して [2]、転位密度を求めた。その結果を別添の表 1 [3] に示す。得られた転位密度 (ρ) を基に、

$$E_{\text{str}} = (\mu b^2 / 4\pi) \ln(Rc/r_0) \times \rho$$

によりひずみエネルギー (E_{str}) を求めた。ここで、 μ は剛性率で SUS304 鋼の値である 69GPa を用いた。 b はバーガースベクトルの大きさで、ここでは 0.248nm を用いた。 Rc はカットオフ距離であり、これは上述のプロットから実験的に求められる。また、 r_0 は転位芯の半径であり、ここでは通常用いられている値として $r_0 \sim 5b$ とした。

表 1 の結果から、EB237～EB242 では、ひずみ量がほぼ 1.0J/mol 程度となっていることがわかる。一方、FB135 および FMF0B2 では、いずれもその値がほぼ 1.7～1.8J/mol 程度と大きくなっていることは興味深い。これらの結果は EB237 を例外として、鋼の種類やクリープ試験温度に依らず、クリープ中断材ではほぼ同じひずみ量の 1.0J/mol 程度であり、一方、クリープ破断材では中断材の 2 倍ほどのひずみ量となることを示唆している。今後、測定数を増やして、これらの検証を行う必要があるが、定常クリープ中に試料に蓄えられるひずみエネルギーはほぼ同じ 1.0J/mol 程度であり、その蓄積ひずみ量が漸増して 2J/mol 程度に近くなると、ポイド等が発生し破断に至るものと推察される。今回測定に用いた試料は破断部から離れた平行ゲージ部であり、局部くびれのないゲージ部では蓄積されたひずみがほぼ一様と考えられ、その意味では寿命と蓄積ひずみ量との関係づけができる可能性がある。SUS304 鋼では、クリープ試験時間の進行とともに強磁性相の出現が報告されているが [4]、その強磁性相の量の増加は定常クリープ域までであり、その後の加速クリープ域ではほぼ一定となることが報告されている。このことは、クリープ試験におけるひずみ量の漸増と強磁性相の出現が対応していることを示唆している。

さらに、転位密度測定の際の X 線回折により明らかになったことであるが、SUS304 鋼である EB237～EB242 では BCC 相に相当する回折線が認められた。これに対し、破断時間が 3884h と測定試料中最も長い FB135 では BCC 相に相当する回折線がほとんど認められなかった。このことは、FB135 のクリープ試験温度が 650℃であり、他の 4 鋼種に比べて高いことによると考えられる。すなわち、上記の (1) で述べたように、SUS304 鋼では BCC 相が安定温度は 650℃までであり、650℃のクリープ試験はその意味で微妙な温

度であることを示唆している。したがって、今後の実験では、より BCC 相が出現しやすいと考えられる 600°C以下のクリープ試験材を用いて行う必要があると考えられるが、クリープ温度が低すぎる場合、材料のクリープ破断寿命が長時間となるため、ひずみの蓄積に要する時間も長くなると考えられることから、最適な試験温度を選択する必要がある。

なお、クリープ中に生成された BCC 相中のひずみ量を評価するために、BCC 相のみの転位密度測定を試みたが、その回折線強度が弱かったことから解析に必要な回折線の数が得られず、BCC 相のみの転位密度を求めることは今回はできなかった。しかしながら、600°Cでより長時間のクリープ試験片を用いることにより BCC 相の生成量がより増えれば、原理的には可能と考えられる。

(3) 析出および変態挙動シミュレーション技術の開発の基礎データの収集

シミュレーション技術については、今年度はそれを実行する上で必要となる基礎データを収集することが出来た。すなわち、組織自由エネルギーの中の「化学的自由エネルギー」の時間変化を表現するための、鋼中の析出相の経時変化とそれに伴う地相の温度変化に関するデータ、ならびに「界面エネルギー」を算出する場合に必要な析出相のモル分率を得た。さらに、BCC 相の形成およびクリープ破断のひずみエネルギーの境界値として 2J/mol を考慮すべきことが示唆された。

参考文献

- [1] 物質・材料研究機構「長時間クリープ試験材の微細組織写真集」、No-M1, (1999)、p. 56.
- [2] T. Kunieda, M. Nakai, Y. Murata, T. Koyama and M. Morinaga: ISIJ International, 45(2005), pp. 1909-1914.
- [3] 村田、中矢、國枝、森永、高屋：日本鉄鋼協会第 1 5 3 回春季講演大会、(CAMP-ISIJ)、20(2007)、p. 553.
- [4] 永江勇二、青砥紀身：材料、54 (2005)、pp. 116-112.

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 19 年度は、前年度に引き続きオーステナイト鋼の組織自由エネルギー評価のためのひずみ量測定を行うとともに、析出および変態挙動のシミュレーション技術の開発を中心に研究を実施する予定である。具体的には、平成 18 年度で得られた析出物量に関する実験データを基に、析出物と母相の格子整合の有無を考慮して弾性ひずみエネルギーの評価を行う。それを基に、熱力学的化学計算による化学的自由エネルギーおよび界面エネルギーの総和として組織自由エネルギーを算出し、その結果に基づいて、Phase-field 法も導入し、オーステナイト鋼における炭窒化物および金属間化合物相も含めた析出物相の析出形態変化に関するシミュレーションを実施する予定である。その際、シミュレーションにおける時間を実時間へ変換するために必要な原子拡散実験および短時間の組織変化実験も開始する予定である。

平成 20 年度は、特性評価シミュレーションの検討を中心に実施する予定である。具体的には、オーステナイト鋼から $M_{23}C_6$ 炭化物が析出した場合、鋼の母相から Cr が減少する結果、母相のマルテンサイト変態温度が上昇する可能性がある。その結果、金属間化合物などの析出に伴う弾性ひずみエネルギーの蓄積により、変態が生じる可能性がある。その現象を利用すれば、析出組織変化に起因して生じる材料特性の変化（たとえば磁気変態点など）を材質劣化診断や損傷検知に利用できる可能性がある。この可能性の検討を行う予定である。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 村田、中矢、國枝、森永、高屋：「オーステナイト鋼のクリープ試験材におけるひずみエネルギー評価」、日本鉄鋼協会第 1 5 3 回春季講演大会、(CAMP-ISIJ)、Vol.20(2007)、p.553.

表1 転位密度測定結果とひずみエネルギーの算出結果 [3]

試料	温度(°C)	応力(MPa)/ 応力(kg/mm ²)	時間(h)	ゲージ部転位 密度(m ⁻²)	ゲージ部歪エ ネルギー (J/mol)
EB237	600	172/17.5	780	6.28E+13	0.86
EB238	600	172/17.5	648	7.88E+13	1.04
EB239	600	172/17.5	480	7.28E+13	0.96
EB242	600	172/17.5	146	8.13E+13	1.09
FB135	650	98/10.0	3884	1.30E+14	1.69
FMF0B2	550	277/28.3	20146	1.42E+14	1.83

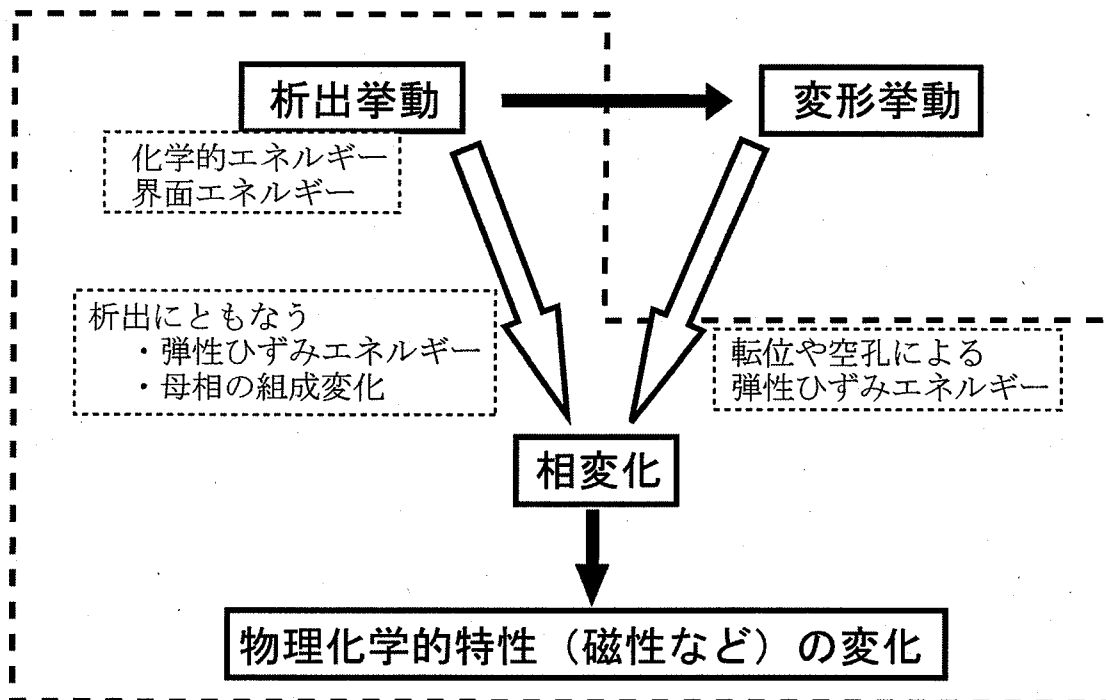


図1 研究内容の概念図

2.1.15 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	変形燃料ピンバンドル内熱流動評価手法に関する研究		
研究協力課題	DPIV による複雑流路内 High Time Resolved 乱流熱対流データベース		
研究者所属、氏名			
大 学 側	東京大学大学院新領域創成科学研究科 環境学研究系 人間環境学専攻 染矢 聡 〔*客員研究員 **研究生〕		
機 構 側	独)日本原子力研究開発機構 次世代原子力システム研究開発部門 FBR システムユニット FBR シミュレーショングループ 大島 宏之		
研究実施場所	東京大学柏キャンパス環境学研究棟 201 室 大洗研究開発センターFBR 国際研究開発センター		
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 8 月 ~ 平成 21 年 3 月	当該年度研究期間	平成 18 年 8 月 ~ 平成 19 年 3 月
協 力 形 態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>複雑形状流路内における熱流動について、水と屈折率がほぼ等しい樹脂製円柱を用いた実験を行い、乱流エネルギーをはじめとした各種乱流統計量のレイノルズ数依存性、流路形状依存性、温度条件依存性を明らかにする。10kHz ほどの時間分解能かつ高い空間分解能で乱流の時系列データを取得し、数値シミュレーションの検証及び乱流モデル構築に資する。特に壁面近傍での流れについて系統立ててとりまとめる。また、流れ場の温度分布を計測する。更に、これらの膨大なデータをデータベース化する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>高速増殖炉システムの高い安全性・効率を確保するには、高精度かつ実用的な熱流動場の予測手法が不可欠であり、その開発には要求される予測精度以上の精度をもつ実測データが必要である。そのため本研究ではまず、高周波レーザーと高速度カメラを利用したダイナミック PIV 法を用いて、高時間分解能で複雑形状流路内の時系列速度分布データを取得する。また、構造物壁面近傍の壁乱流はこれまでの測定技術では速度場計測が困難であったが、特殊材料の応用によりこれを実現可能とする。更に、近年開発が著しい高機能材料を駆使して温度分布の測定を実現し、流れ場と温度場の相関について調査する。</p> <p>一方、時空間分解能の高い速度分布データを数値シミュレーションの検証用に用いるには、平均速度条件や形状を変化させるなど、パラメータを系統立てて変化させた実験を行う必要があるが、時空間分解能の高い実験データの量は膨大である。そのため、本研究では取得した実験データのデータベース化も実施する。</p>			
【使用主要施設】			
なし			

【進捗状況(当該年度までの概要)】

本研究では平成18年度からの3年間の研究期間において、下記4項目を実施する。

- i) 抽象化した形状の流路内における高分解能熱流動計測
- ii) 複雑形状流路内における熱流動計測
- iii) 7本ピンワイヤバンドル体系における熱流動計測
- iv) データベース構築

平成18年度は屈折率を調整した特殊材料を用い、ワイヤバンドル型燃料集合体の形状の一部を抽象化した実験装置を作成し、詳細な速度場の計測を行った。高レイノルズ数流れの時系列速度分布データは、ダイナミックレンジや光学的な問題により、測定が困難であった。本研究では高周波レーザーと高速度カメラを利用したダイナミックPIV法を用い、高時間分解能で複雑形状流路内の時系列速度分布データを取得する。

乱流計測における時空間分解能の制約をダイナミックPIVによって解決する一方、非常にシンプルな体系での計測さえも困難な流れとして、構造物壁面近傍の流れがある。これは世界的にみてもまだまだ測定が非常に困難な流れであり、円柱壁面近傍での壁乱流速度分布を詳細測定した例はない。本研究では水と同じ屈折率を持つ最新の高機能性物質を材料とした実験装置を開発し、壁面乱流のPIV測定(光学的測定)を実施する際に障壁となる壁面での光の反射や屈折をなくすことによって、この壁乱流の高精度計測を実現する。

水の屈折率1.333に非常に近い屈折率を持つ材料の代表的なものとして、屈折率1.338のFEP樹脂がよく知られているが、FEPは材質の制約からパイプ加工しかできず、これを用いた管群の場合、管の曲面側から見た際の屈折率マッチングが難しい。しかし新材料のメックスフロンでは管壁がわからないほどまで屈折率が一致する。そこでメックスフロンを用いてPIV測定を行った。蛍光粒子と光学フィルタを用いて光源の構造物エッジによる反射をカットすると、構造物壁面での反射成分が除去され、壁面近傍でのPIV測定のS/N比が向上する。

平成18年度はこれら最新のシステムを用いて、抽象化した形状の流路内における速度分布計測を行った。具体的には直径10mmおよび14mmのメックスフロンのロッドを一樣流中に設置し、これを横切る流れを測定した後、直径10mmのメックスフロンロッドに直径3mmのメックスフロンワイヤを巻きつけ、一樣流動場においた場合の流れの測定を実施した。また、直径14mmのメックスフロンのロッドを流れに対して様々な角度で壁に設置することにより、いろいろな角度からの流れがワイヤーに衝突する際の流れを模擬した。その結果、いずれの場合も壁近傍の流れや構造物後流の流況を詳細に計測することができた。

平成18年度に抽象化形状内流れの速度分布を測定した後、平成19年度は温度測定法の開発に取り掛かる。同時に、複雑形状流路内での熱流動計測に発展させるため、18年度後半に装置設計を開始し、平成19年度には複雑形状流路内での速度場、温度場計測を実施する。更に平成19年度には、よりシミュレーション体系に近い、7本ピンワイヤバンドル体系を模擬する水実験装置を設計、製作し、これを用いた熱流動計測を平成20年に実施する。これらの計測に並行して、乱流モデルの高度化および検証を実施する。

【研究成果(当該年度)】

本研究は平成18年7月から開始している。特殊屈折率樹脂(メックスフロン)の製作にやや時間を要したが、これまでに①直径10mmのメックスフロンロッドと②直径14mmのメックスフロンロッドを一樣流動場中に固定した場合の、壁面での剥離の様子や後流の様子を測定した。また、③直径10mmのメックスフロンロッドに直径3mmのメックスフロンワイヤを巻きつけ、一樣流動場においた場合の流れの測定を実施した。更に、④直径14mmのメックスフロン

ンのロッドを、流れに対して様々な角度で床に設置することにより、いろいろな角度からの流れが燃料棒にバンドルされたワイヤーに衝突する際の流れを模擬した。

実験では 5cm X 5cm の断面を持つ矩形流路内に、最大 400L/min で水を循環させ、流路内に設置したサンプル樹脂周りの流れを粒子画像流速測定法(PIV)によって測定した。この流速条件(最大約 2.6m/s)は直径 10mm のロッド径を代表長さとした場合にレイノルズ数約 26000 が上限であることを意味する。なお、構造物が存在しない条件において、作成した流路内における平均的な流れ場を測定し、今年度利用したポンプや流動システムに周期的なノイズや偏流が存在しないことを確認した。

PIV 計測に最適な撮影条件を実現するため、いくつかの予備試験を実施した。まず、蛍光染料で染色した粒子と光学フィルタを組み合わせる撮影した画像と、光学フィルタを使わずに染色していない粒子を利用して撮影した画像とを比較したところ、露光時間を短くすれば得られる画像のノイズは十分小さくなることが確認できた。一方、蛍光染色粒子の平均粒子径は $75\mu\text{m}\pm 25\mu\text{m}$ とばらつきが大きい、非蛍光染色粒子の平均粒子径は $20\mu\text{m}\pm 2\mu\text{m}$ とばらつきが小さい、そのため、両画像から得られる PIV 計測結果を比較した結果、むしろ小さくて粒子径が一樣な非蛍光粒子を用いたほうが得られる速度ベクトルのノイズが少ないことがわかった。

そこで平均粒子径とそのばらつきが小さい非蛍光染色粒子を利用し、パルスレーザーの出力タイミングとカメラの露光タイミングを、パルスジェネレーターを用いて制御して計測を実施した。前述の①～④の実験において、それぞれ詳細なタイミング調整を行った。実験条件及び撮影条件は以下のとおりとした。

①5cm 四方の矩形流路中央に直径 10mm のメックスフロンロッドを固定。メックスフロンロッドの軸方向は流れに垂直とし、軸方向から流れを観察。Flame Rate: 10000fps(flame per second), Image Size: 512x512pixel², Exposure Time: 4 μ sec, Field of View: 26x26mm², Rod Size: 10mm, Re Number: 15000, 20000, 25000

②5cm 四方の矩形流路中央に直径 14mm のメックスフロンロッドを固定。メックスフロンロッドの軸方向は流れに垂直とし、軸方向から流れを観察。Flame Rate: 5000fps(flame per second), Image Size: 512x512pixel², Exposure Time: 4 μ sec, Field of View: 36x36mm², Rod Size: 14mm, Re Number: 15000, 20000, 25000

③直径 3mm のワイヤーを上記①にバンドル。その他の条件は①と同じ。

④5cm 四方の矩形流路底面に直径 10mm のメックスフロンロッドを固定。メックスフロンロッドの軸方向と流れの成す角度を系統的に変化させる。ロッドの軸が流れに垂直になる場合を角度 0 度とする。0 度の場合のロッド軸方向から、ロッドを乗り越える流れを観察。Flame Rate: 5000fps(flame per second), Image Size: 768x768pixel², Exposure Time: 2 μ sec, Field of View: 74x74mm², Rod Size: 14mm, Re Number: 25000, 設置角度 0, 15, 30, 45, 60 度

上記 4 種類 14 ケースのそれぞれについて、速度場の時系列変化、平均速度場、渦度分布の時系列変化、乱れ強さ分布を求めた。

測定の結果、まずケース①②では、通常の円柱後流同様に後流に双子渦を形成していた。なお、レイノルズ数が 30000 あるいはそれ以上の条件では、特に円柱のすぐ後ろの低速領域で流れの三次元性が強くなり、流速が遅いにも関わらず、精度良く粒子を追跡することが難しかった。しかしそれ以外のケースでは新材料の効果によって、円柱全周方向に渡って、壁面の極近傍を含むあらゆる領域で詳細に速度分布を計測することができた。レイノルズ数が 25000 の条件では円柱のすぐ後ろに渦の中心があることやその速度分布まで詳細に計測できた。これらの

データは数値シミュレーションとの比較検討に際して、最も基本的な条件における検証用データと見なすことができる。

ケース③の場合、ワイヤーバンドルを巻いた状態のメックスフロンは測定面の奥行き方向に3次元的な構造物形状をしており、測定断面の形状は非常に局所的なものである。燃料集合体周囲の流れを検討する場合、主流方向は燃料棒の軸方向、今回の測定面の奥行き方向であるが、今回は、模擬燃料棒を横切る方向の流れによるワイヤー及び燃料棒の後流を測定した。測定の結果、ワイヤーがバンドルされている場合、細いワイヤーの後流ですぐに渦が発達するため、円柱の後流渦はワイヤーがない場合と比べて大きく異なる流れとなった。これについても高い時間分解能で2次元的な計測は実現でき、レイノルズ数 25000 までのデータを取得した。ただし、レイノルズ数が 30000 以上になると、ケース①②の単純円柱の場合同様、円柱後部の低速領域における流れの3次元性が強くなり、低速領域内の流れの計測精度が低下した。

ケース④は十分に曲率が小さい燃料棒壁面に曲率が大きく細いワイヤーが巻き付けられた状態を模擬している。さまざまな角度からワイヤーを乗り越える流れを想定した基礎データを取得することが目的である。角度が0度のときは単なる円柱を乗り越える流れであるが、流れ方向の特定断面をレーザーシートで切り出すと、角度が大きくなるにつれて、扁平率の大きな楕円柱を乗り越える流れを測定することになる。ただしこの場合もケース③同様、奥行き方向に一様ではなく3次元的な構造となる。

ケース④における測定の結果、0度、15度と角度が大きくなるにつれて、楕円柱後流の渦中心位置が構造物に近く、かつ、壁面に近い位置にシフトした、30度の条件では楕円柱と底面に囲まれた領域で大きな渦が成長し、45度の条件でこの渦はもっとも楕円柱と壁に近い場所に形成され

た。また、45度の時には楕円柱を乗り越えた流れが底面に再付着する位置も、最も楕円柱に近い位置となった。更に角度が大きくなり、60度に達すると、楕円の扁平率が大きくなり、楕円柱広報の渦が小さくなり、楕円柱のすぐ後ろで流れが底壁面に再付着した。なお、ケース④の場合もその他のケース同様、固体壁面極近傍を含み、詳細な流れの測定に成功した。

これらのデータは数値シミュレーションのコード及び乱流モデル検証において、有効に利用できるものと考えられる。

【今後の予定(翌年度以降の概要)】

平成18年度に、屈折率を調整した特殊材料を用いてワイヤースペーサ型燃料集合体の形状の一部を抽象化した実験装置を製作し、詳細な速度場計測に成功した。

平成19年度は同じ実験装置を利用し、温度場測定法の開発を実施する。また、開発した速度場・温度場計測手法を複雑形状流路内での熱流動計測に発展させるため、昨年度後半に設計検討した複雑形状実験装置を製作し計測手法を適用して高度化する。さらに、よりシミュレーション体系に近い、ワイヤースペーサを有する7本ピンバンドル体系を模擬する水実験装置を設計・製作する。一方、膨大となる実験データのデータベース化とその共有化のため、データをWEB上で表示する方法について検討しシステムの試作を実施する。

平成20年度は平成19年度に作成する7本ピンバンドル体系を模擬した水実験装置を用いて、複雑形状流路内の熱流動について、温度場と速度場の計測を実施する。また、平成18年度からの研究で得た流動場の温度速度データをデータベース化する。

【研究成果の公表】

なし



図 1. メックスフロン(左から $\phi 10\text{mm}$, $\phi 10\text{mm}+\phi 3\text{mm}$ ワイヤ , $\phi 14\text{mm}$)

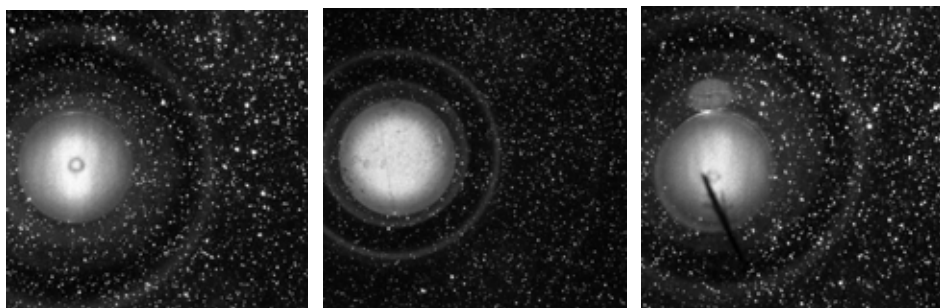


図 2. サンプル画像(左からケース)

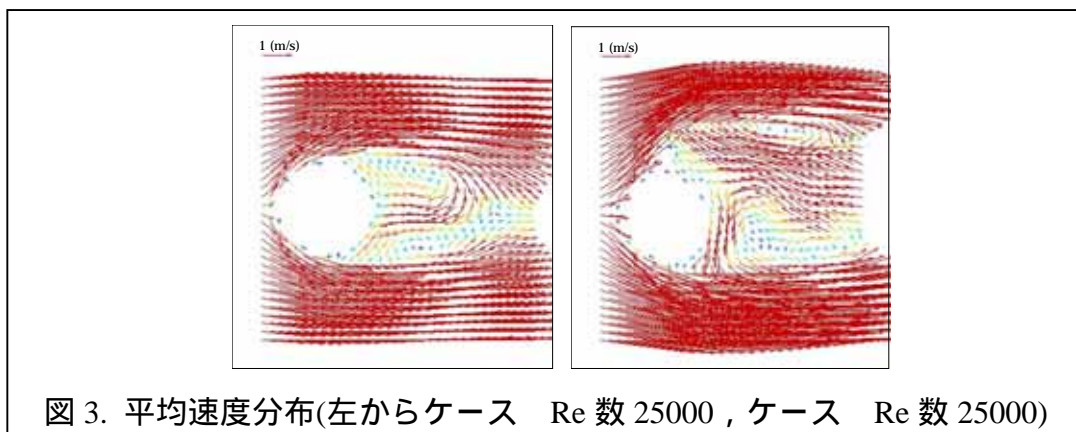


図 3. 平均速度分布(左からケース Re 数 25000 , ケース Re 数 25000)

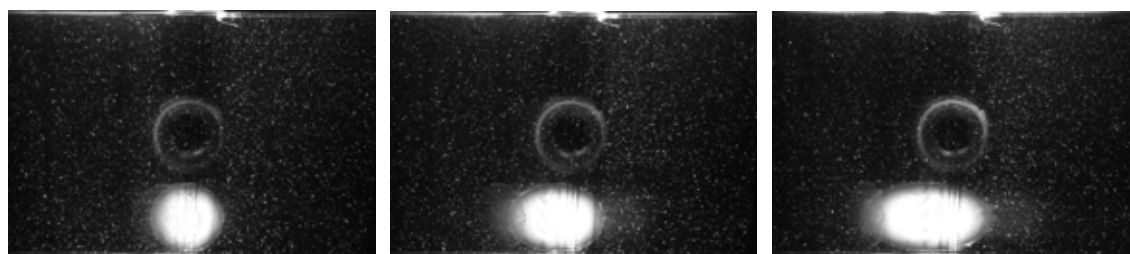


図 4. サンプル画像(ケース 左から設置角度 15, 45, 60 度)

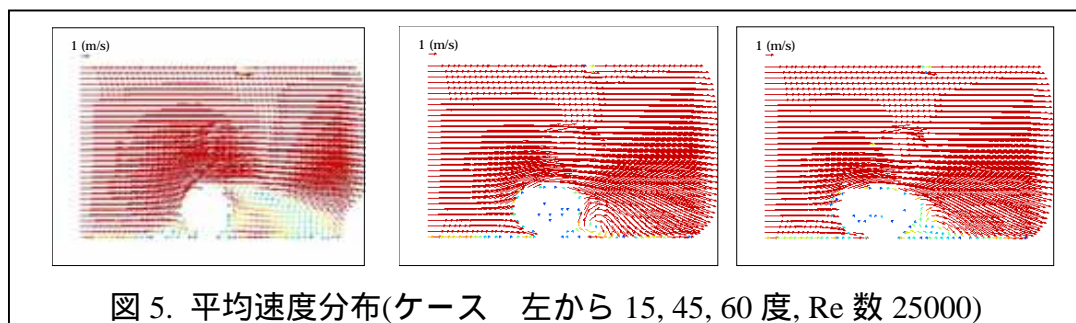
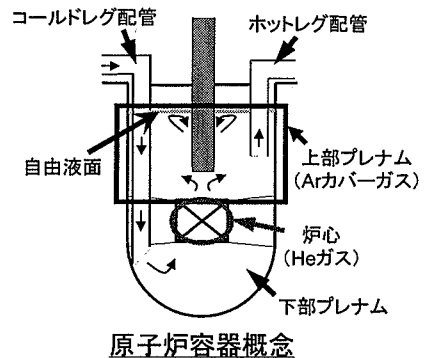


図 5. 平均速度分布(ケース 左から 15, 45, 60 度, Re 数 25000)

2.1.16 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	原子炉系統内容存ガス挙動評価に関する研究										
研究協力課題	気泡・溶存ガス-冷却材の相互作用モデル開発と高速炉システムへの応用										
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="3">大阪大学大学院工学研究科環境・エネルギー工学専攻 教授 山口 彰, 助手 高田 孝, 学生 辰巳 栄作 [*客員研究員 **研究生]</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="3">次世代原子力システム研究開発部門 FBR システムユニット FBR シミュレーショングループ グループリーダー 大島宏之, 研究員 伊藤 啓</td> </tr> </table>			大 学 側	大阪大学大学院工学研究科環境・エネルギー工学専攻 教授 山口 彰, 助手 高田 孝, 学生 辰巳 栄作 [*客員研究員 **研究生]			機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR システムユニット FBR シミュレーショングループ グループリーダー 大島宏之, 研究員 伊藤 啓		
大 学 側	大阪大学大学院工学研究科環境・エネルギー工学専攻 教授 山口 彰, 助手 高田 孝, 学生 辰巳 栄作 [*客員研究員 **研究生]										
機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR システムユニット FBR シミュレーショングループ グループリーダー 大島宏之, 研究員 伊藤 啓										
研究実施場所	大阪大学大学院工学研究科環境・エネルギー工学専攻 A1 棟										
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 4 月 ~ 平成 21 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 18 年 4 月 ~ 平成 19 年 3 月								
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究										
【研究目的】	<p>ナトリウム冷却高速炉 1 次系冷却材中に含まれる不活性ガスは、炉心反応度、熱伝達等への影響が懸念される。本研究では、高速炉 1 次系に含まれる不活性ガスを定量的に評価できるプラント動特性コードの開発を行う。あわせて、冷却系システムの設計、安全性評価の観点から系統内気泡の設計許容値に関する判断基準を検討する。</p>										
【研究内容 (概要)】	<p>カバーガスをもつ原子炉冷却システムでは自由液面からのガスの巻込みや溶け込みにより、冷却材中に気体が存在している。冷却系に溶存ガスあるいは気泡が存在すると、</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 気泡が炉心を通過するときの反応度影響 ・ 沸騰やキャピテーションの核生成 ・ 非凝縮性気体の存在による流動安定性への影響 ・ 炉心や熱交換器における熱伝達への影響 <p>などの設計上あるいは安全上の課題が懸念される。高速炉においては、このような気泡や溶存ガスのソースとして以下が想定される。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 自由液面がアルゴンカバーガス系にて加圧されていることによる溶け込み ・ 自由液面の流れ場により流力的にカバーガスが巻込まれること ・ 制御棒にて生成されたヘリウムが継続的に放出されること ・ 原子炉容器の設計によっては溢流部などでガスの連行が生ずること <p>上記の理由により、高速炉の冷却システム内部での気体の溶存量、気泡の存在量を評価しておくことは重要である。溶存ガス挙動に関連して主要な現象は以下の三つのカテゴリに分類される</p> <ol style="list-style-type: none"> a) 気泡と溶存ガスの輸送挙動に関連する現象 b) 気泡-溶存ガス間の質量交換に関連する現象 c) 気泡の分裂・合体や粒度分布に関連する現象 										



本研究提案では、これらに着目し、それぞれに対してメカニスティックに解析モデルを構築する。さらに、これらモデルをプラント動特性解析コードに導入し、モデルプラントに対して適用評価を実施することにより、その有用性と実用性を評価する。あわせて、冷却系システムの設計、安全性評価の観点から系統内気泡の設計許容値に関する判断基準を検討する。

【使用主要施設】

特になし

【進捗状況（当該年度までの概要）】

本研究は以下の研究項目にて構成される。

- ① 原子炉系統内容存ガス挙動評価に関連する重要な現象の抽出
- ② 溶存ガスならびに気泡の挙動に関する物理モデルの構築と妥当性の確認
- ③ ガス挙動を考慮したプラント動特性コードの開発
- ④ 実機での影響定量評価

平成 18 年度は、原子炉容器上部プレナムにおける自由液面でのガス空間への気泡放出率に関する物理モデルを提案した。既存の新型炉溶存ガス挙動を評価するプラント動特性コードにおいて、液面近傍では気泡の輸送時間と浮力と抗力のバランスから評価される気泡の終端速度との対比により液面からの気泡離脱が計算される。既存のモデルを複雑な構造を含む上部プレナムに適用するには不十分であると考えられる。そのため、原子炉上部プレナムにおける流体解析と気泡挙動解析をカップリングし、炉心から流入した気泡のカバーガス中への放出率、ホットレグ配管への流出率、および冷却材中への溶存率を求め、新たな物理モデルを無次元数による相関式の形で構築した。

構築された相関式をプラント動特性コードに適用し、既存の簡易モデルと比較、考察を実施した。

【研究成果（当該年度）】

本年度は以下の研究成果を挙げた。

- ① 流れ場におけるガス気泡挙動解析コードの開発
- ② 原子炉上部プレナムにおけるガス気泡の機構論的物理モデルの構築（無次元関数）
- ③ 物理モデルのプラント動特性コードへの導入、妥当性の評価

① 流れ場におけるガス気泡挙動解析コードの開発

既存のガス挙動を考慮したプラント動特性コードでは、一点近似型を用いており、ガス気泡の自由液面への放出率はガス気泡の終端速度によって決定されていた。しかしながら、複雑な構造を有した上部プレナムでは既存の簡易化されたモデルにより気泡放出率を求めるのは不十分である。そこで、本研究では上部プレナムにおける詳細な気泡挙動解析を実施できるツールの開発を行った。

解析体系は図 1 に示す二次元領域とした。解析領域における定常流動場解析を実施し、さらにガス気泡に関する浮力、抗力を考慮した運動方程式、および気泡-流体間における質量輸送方程式を解き、上部プレナムにおける気泡挙動解析を行った。個々の気泡の基礎方程式を以下に示す。

$$\frac{dV_G}{dt} = g \left(\frac{\rho_L - \rho_G}{\rho_G} \right) + \frac{3}{8r} C_D \frac{\rho_L}{\rho_G} |V_L - V_G| (V_L - V_G) \quad (\text{運動方程式})$$

$$\frac{dN_{mi}}{dt} = -4k_i \pi r_i^2 (N_d' - N_d) \quad (\text{質量保存})$$

ここで、 C_D : 抗力係数、 N_m : ガスモル数[mol]、 N_d' : 単位体積当りの飽和溶解ガスモル数[mol/m³]、 N_d : 単位体積当りの溶解ガスモル数[mol/m³]であり、飽和溶解濃度(N_d')についてはヘンリーの法則をもとに評価する。

また、流体に対する気泡の体積率が小さいため、気泡挙動による流体側への影響は無視できるので、One-way-coupling法を用い、流れ場をEular系で、気泡をLagrange系で評価する。対象とする気泡の半径は1 μmから300 μm程度と非常に小さく、表面張力が高いため、冷却材中に含まれる気泡はすべて球であると仮定した。

システム内にはアルゴンガス、ヘリウムガスが自由気泡として存在する可能性があるが、ヘリウムガスの溶解度が非常に高いため冷却材中に即座に溶解してしまう。そのため解析対象としてアルゴンガス気泡を選び、気泡挙動解析コードの開発を実施した。

② 原子炉上部プレナムにおけるガス気泡の機構論的物理モデルの構築（無次元関数）

開発されたコードを用いて原子炉上部プレナムでの気泡挙動解析を実施した。解析体系は図1に示した上部プレナム構造を簡略化した2次元体系である。Δx=6.25×10⁻² m, Δy=7.0×10⁻²のメッシュを用い、図2のように配置した。また、図1における斜線部に到達した気泡はすべてカパーガス中へ放出されると仮定した。上部プレナム入口における気泡分布を均一とし、気泡半径を50群（半径1~300μm）に分割した。炉心から流入した気泡に対する、自由液面への放出率（Release fraction : f_{rel} ）、ホットレグ配管への流出率（Outflow fraction : f_{out} ）、冷却材ナトリウム中への溶解率（Dissolution fraction : f_{dis} ）を質量比で求めた。

上部プレナム内の流況、プレナムサイズによる気泡挙動への影響を評価するため感度解析を実施した。パラメータは冷却材流入速度 (V_{in})、プレナム高さ (H)、ホットレグ配管位置 (L_2)、ホットレグ配管内径 (D_{out}) とした (表1)。感度解析の結果を図3、4に示す。それぞれ気泡径に対する冷却材への溶解率、ホットレグ配管への流出率である。その結果を流動特性、あるいはガス気泡特性を表す無次元数を用いて整理し、相関式を導出した。流速に基づくフルード数 (Fr)、気泡終端速度に基づくフルード数 (Fr')、およびエトベス数 (EO) による関数 ($Fr Fr' EO^{-0.5}$) によって感度解析の結果を整理することにより、上部プレナム内における気泡挙動を相関式の形で表すことができることが判明した (図5、6)。個々の無次元数の定義式を以下に示す。

$$Fr = \frac{V_{in}}{\sqrt{gH}}, \quad Fr' = \frac{v_t}{\sqrt{gL'}}, \quad EO = \frac{g(\rho_L - \rho_G)d^2}{\sigma}$$

ここで、 g : 重力加速度、 v_t : 気泡の終端速度、 σ : 表面張力、 d : 気泡直径、 $L' = (L_A + L_B)/2$ (図2参照) とした。また、導出を行った溶解率 f_{dis} 、流出率 f_{out} に関する無次元関数 (図5、6における近似曲線) は以下ようになった。

$$f_{dis} = 3.261 \times 10^{-5} (Fr Fr'^{1.5} EO^{-0.5})^{-0.8489},$$

$$R^2 = 0.9933,$$

$$f_{out} = (D_{out}/H)^{0.2} \{1 - \exp(-0.1682X^2 - 4.661X - 31.92)\},$$

$$R^2 = 0.9929,$$

ただし、 $X = \log(Fr Fr'^{1.5} EO^{-0.5})$ 、 R^2 : 相関係数である。また、 $Fr Fr'^{1.5}$ は、

$$Fr Fr'^{1.5} = \left(\frac{4}{3C_D}\right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{d}{L'}\right)^{\frac{5}{4}} \frac{Fr}{Fr'}$$

のように表されるため、溶解率、流出率モデルにおいて、気泡直径 d と代表長さ L' の比、また流速、気泡終端速度に基づくフルード数の比が支配的であることが示された。このように無次元関数を用いることにより、実機の流動場などの条件が適切に反映でき、さらに現実的な計算時間でかつ高い精度で計算することができる。本研究では図5、6のように気泡の冷却材中への溶解率、ホットレグ配管への流出率を無次元関数で整理し相関式を得たが、自由液面への放出率 f_{rel} は、 $f_{rel} = 1 - f_{dis} - f_{out}$ の関係式から求めた。

③ 物理モデルのプラント動特性コードへの導入

原子炉上部プレナムにおける二次元気泡挙動解析から導出された自由液面への放出率、冷却材中への溶解率に関する相関式を既存のプラント動特性コードへ導入した。

既存の一点近似型モデルと無次元関数モデルをそれぞれ用いた場合の高速炉定格条件

下でのプラント動特性解析を実施し、上部プレナム前後での気泡径個数密度を得た。その結果を図 7 に示す。無次元関数モデルを用いると、半径 40~60 μm において気泡個数密度が既存モデルより大きな値を示した。無次元関数モデルにおける放出率モデル、溶解率モデルによる気泡個数密度への影響を調べるため、それぞれのモデルのみを用いた場合の結果も示す。図 8 は放出率モデルのみ、図 9 は溶解率モデルのみを用いた場合の結果である。放出率モデルは溶解率モデルに比べ、気泡個数密度にあまり影響しないことがわかる。溶解率モデルに関しては、一点近似型との差が大きい。一点近似型モデルの場合、プレナム内に流入した気泡は瞬時に均一に混合されるが、本研究で実施した詳細解析では流入した気泡は炉心出口からホットレグ配管へと短時間で流れ出ることが分かった。このため、気泡のプレナム内滞在時間が短くなり、気泡があまり溶解しなかったため、気泡個数密度が大きくなったと考えられる。これらの結果から、構築した無次元関数モデルによって上部プレナムでの多次元効果を評価することができる見通しを得た。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 19 年度は、構築した物理モデルに対する三次元効果の考慮とともに、水-空気により上部プレナムを模擬した体系での実験を実施し、物理モデルの妥当性、精度を評価する予定である。さらに、熱交換器における核生成、気泡の分裂・合体といった重要な現象に対するモデルを構築し、プラント動特性コードの精度を高めていく予定である。

平成 20 年度は、プラント動特性コードを用いて、実用炉として想定されている大型炉でのプラントシステム熱流動および気泡と溶存ガスの挙動を解析する。そして高速炉におけるガスの安全設計へと応用する予定である。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 辰巳栄作、高田孝、山口彰、流れ場における気泡挙動に関する研究、日本原子力学会秋の大会、北海道大学、N10(2006)

<国際会議>

- 1) Eisaku T., Takashi T., Akira Y., 'Numerical Study on Dissolved Gas and Bubble Behavior in Fluid', Fifth Korea-Japan Symposium on Nuclear Thermal Hydraulics and Safety, F005, 26th ~ 29th Nov. 2006
- 2) Eisaku T., Takashi T., Akira Y., 'Modeling and Quantification of Nucleation, Dissolution and Transportation of Bubbles in Primary Coolant System of Sodium Fast Reactor', ICONE15-10545, 15th International Conference on Nuclear Engineering, Nagoya, Japan, 22nd ~ 26th Apr. 2007

Table.1 Parameters value for sensitivity analysis*

Parameter			Reference Case		
H [m]	2.10	2.45	2.80	3.15	3.50
$L2$ [m]		2.50	3.00	3.50	
D_{out} [m]		0.75	1.25	1.75	
V_{in} [m/s]	2.0	3.0	3.3	4.0	

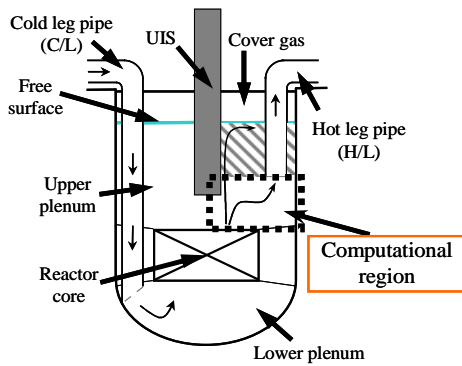


Fig.1 Computational region geometry (Cross section of reactor vessel) arrangement*

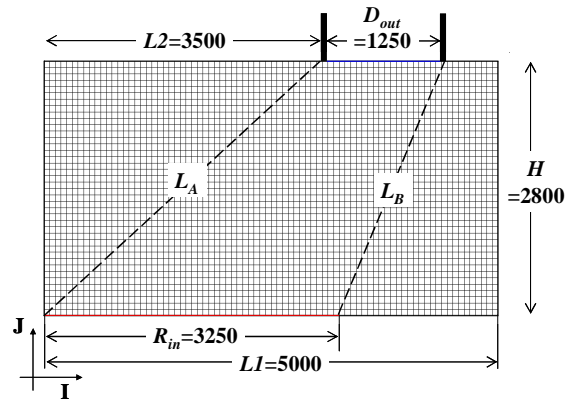


Fig.2 Computational and mesh arrangement

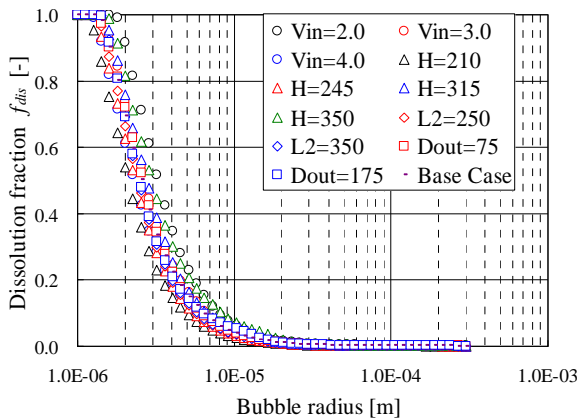


Fig.3 Dissolution fraction in parametric study*

Fig.4 Outflow fraction in parametric study*

* : Tatsumi. E., Takata. T. and Yamaguchi. A, "Modeling and Quantification of Nucleation, Dissolution and Transportation of Bubbles in Primary Coolant System of Sodium Fast Reactor", Proceedings of ICONE15, ICONE15-10545, 15th International Conference on Nuclear Engineering, Nagoya, Japan, April 22-26, 2007.

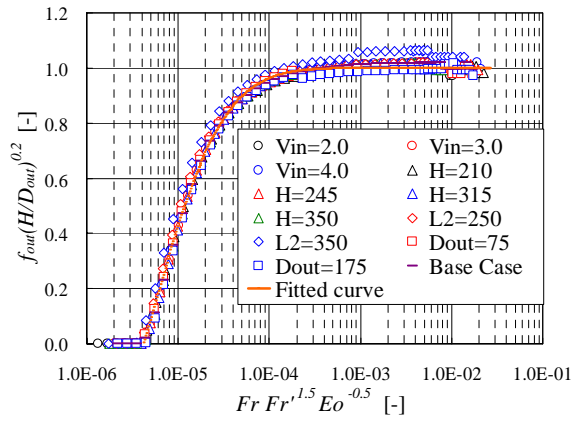
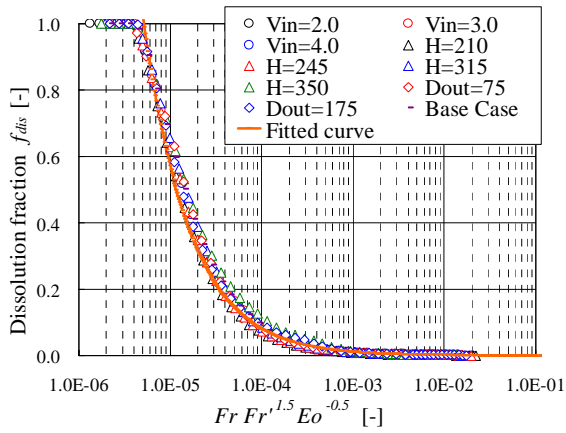


Fig.5 Non-dimensional correlation for dissolution
outflow fraction*

Fig.6 Non-dimensional
fraction*

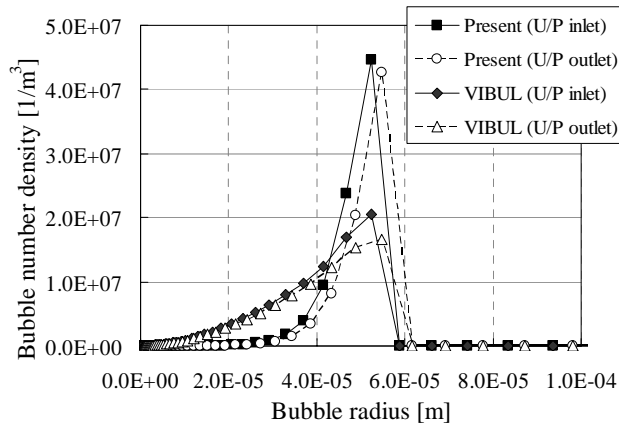


Fig.7 Number density of gas bubbles with present model (non-dimensional) and VIBUL model (one point)*

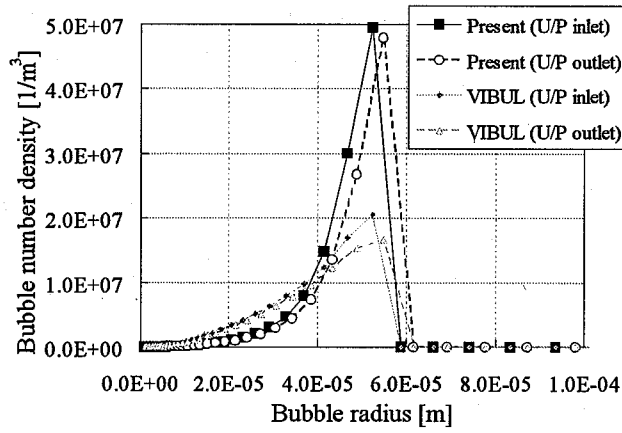


Fig.9 Number density of gas bubbles with present dissolution model*

* : Tatsumi. E., Takata. T. and Yamaguchi. A, "Modeling and Quantification of Nucleation, Dissolution and Transportation of Bubbles in Primary Coolant System of Sodium Fast Reactor", Proceedings of ICONE15, ICONE15-10545, 15th International Conference on Nuclear Engineering, Nagoya, Japan, April 22-26, 2007.

2.1.17 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	ナノコンポジットスーパースチールの創製		
研究協力課題	ナノ粒子分散強化オーステナイト鋼の創成の基礎研究		
研究者所属、氏名			
大 学 側	北海道大学大学院 工学研究科 材料科学専攻 大貫 惣明、須田 孝徳、長井 利泰、内多 陽介 〔*客員研究員 **研究生〕		
機 構 側	大洗研究開発センター 燃料材料試験部 材料試験課 山下 真一郎 次世代原子力システム研究開発部門 FBR システムエリート核燃料工学グループ 大塚 智史		
研究実施場所	北海道大学大学院 工学研究科 材料科学専攻 日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター 燃料材料試験部 材料試験課		
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 11 月 ~ 平成 21 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 18 年 11 月 ~ 平成 19 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>日本原子力研究開発機構（以下、JAEA とする）における従来までの ODS 鋼開発研究では、粉末合金化の容易性からフェライト系がその研究対象とされてきたが、更なる高性能化を追求するためには、酸化物粒子の照射下安定性や界面構造、母相組織の照射下安定性、酸化物と転位との相互作用、機械的性質と微細構造との関係などの究明が不可避の課題である。一方、耐熱性・耐食性に優れる構造材料として、従来までは SUS304 や SUS316 などのオーステナイト系ステンレス鋼が使用されてきたが、酸化物による分散強化の成功例は皆無で、オーステナイト鋼で ODS 化が成功できれば、ODS フェライト鋼よりも高強度、高耐食性を有する材料の創製が可能となる。</p> <p>本研究では、まず初めに、①オーステナイト系ステンレス鋼にナノ粒子を分散強化する手法を確立し、幾つかの試作材を作製する。次に、これら試作材に対し、②実使用環境を模擬した条件下で耐照射性、ナノ粒子の照射下安定性を評価する。最終的には、③手法および照射下材料特性を総合評価することで、先進材料の製造指針を得る。</p> <p>以上、①②③を研究の目的として、共同研究を平成 18 年度より 3 ヶ年計画で進める。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>研究を 3 段階に分ける。初めに、高速炉用に特殊改良したことで優れた耐照射性、耐熱性、耐食性の発現に成功した改良型オーステナイト系ステンレス鋼（PNC316 鋼など）に対し、ODS フェライト鋼の製造で使用されている機械的合金（MA：Mechanical Alloying）法を適用する。一般的に、オーステナイト鋼はフェライト鋼に比較して延性・展性に富むことから、アトライター式ボールミルではなく遊星ボールミルを採用し、MA 治具に加わるエネルギー負荷を低減し MA 法を行う。この試行で試作粉末に対して熱処理を施すことでナノサイズ酸化物を析出させ、酸化物の形成挙動や分散状態、熱的安定性などを評価する。評価結果の MA 条件へのフィードバックから MA 条件の最適化を図る。なお、改良型オーステナイト系ステンレス鋼に混合する酸化物構成元素は、ODS フェライト鋼での微細化が実証されている Y_2O_3 と Ti の組合せを第一優先とする。</p>			

次に、第1段階で確立した最適 MA 条件下での試作プロセスに準じ、酸化物構成元素の組み合わせを系統的に調査し、ナノレベルまでの微細化に適した条件を明らかにする。この時の合金粉末組成は、複雑な材料学的因子を包含する PNC316 鋼を基本とする。

最終段階では、各種試作材のうち、良好な評価結果が得られたものに対し照射環境下での特性評価を行う。具体的には、中性子あるいは電子照射下でのナノサイズ酸化物の安定性を評価する。研究期間および照射場の制約などから、中性子照射材については、過去に「常陽」で照射した試作材^(注1)を用い、電子照射材は本研究の試作材とする。

以上、3段階に分けて進め研究成果を総合的に考察し、材料学的因子と照射下の諸特性の関係などから先進材料の製造指針に繋げる。

*注1 「常陽」照射試作材とは、PNC316 組成の合金粉末をアトライターボールミル法で MA したもののだが、高延性から MA 治具が破損し混合状態が不十分になってしまったもので、試験的に焼結し、照射に供した材料である。

【使用主要施設】

北海道大学：超高压電子顕微鏡(JEM-ARM-1300)、汎用電子顕微鏡(JEM-2010F)、雰囲気制御型グローブボックス

原子力機構：MMF 研磨セル

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 18 年度は、①MA 条件の最適化と試作プロセスの確立を実施した。また、②酸化物構成元素の組み合わせ条件の検討とナノキャラクタリゼーションを開始し、③中性子照射材の特性評価を開始した。予定通りの進捗状況である。

【研究成果（当該年度）】

(1) 高温強度と耐照射特性の優れたオーステナイト系ナノコンポジットスーパースチールを作製する基礎研究として、メカニカルアロイング(MA)による Y_2O_3 分散条件を検討した。

- ① ラメラ構造の発達と X 線回折の結果から、MA の最適条件は 24~72 時間と判明した。
- ② X 線回折と内部組織観察の結果から、酸化物は強制固溶したと判断した。
- ③ その後の熱処理により、 Y_2O_3 酸化物粒子は 800℃で再結晶粒に出現し、1000℃で全体に分散し、1200℃で成長と微細粒子が出現した。すなわち、1000℃から 1200℃で微細分散が可能であることが判明した。〈図 1 および図 2〉
- ④ 硬度測定の結果、MA 粉末は 600℃で最大硬度を示し、それ以上の温度で軟化するが、Ti などの複合添加により微細分散を行えば、適切な強度になる可能性がある。〈図 3〉

(2) 酸化物構成元素の組み合わせ条件の検討とナノキャラクタリゼーションを開始した。ナノキャラクタリゼーション法、特に熱処理と TEM 試料の作成法を見出すことができた。また、①の MA 条件とアニール条件の判明から、Ti の適正添加量とその他の添加元素の選択を次の課題とすることができるようになった。

(3) 中性子照射材の特性評価を開始した。これは従前よりバルク材として試作した材料の中性子照射材済み試料であり、この評価法を決定することができた。

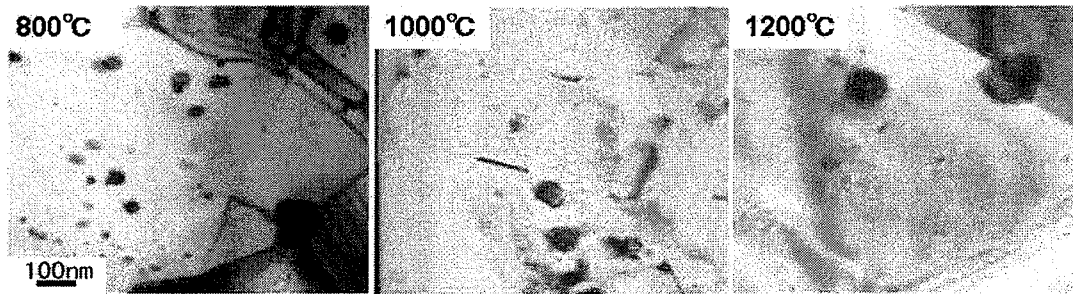


図1 アニールによる酸化物粒子の変化。800°C:一部の再結晶粒で酸化物が出現、1000°C:全ての結晶粒に酸化物が分散、1200°C:結晶粒の粗大化と微細粒子の出現

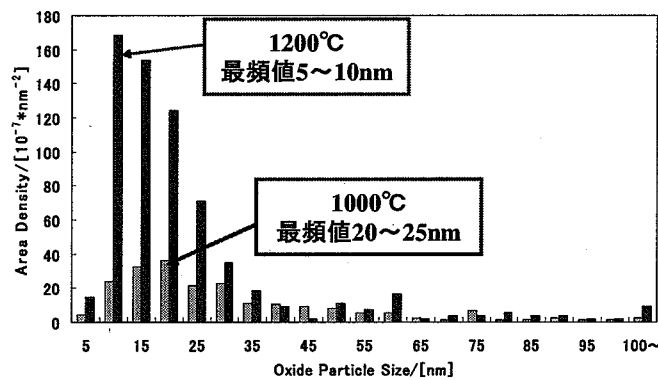


図2 アニールによる酸化物粒子の変化。800から1000°Cで現れた粒子は1200°Cで粗大化するが、新たに微細粒子が出現し、微細分散が得られる。

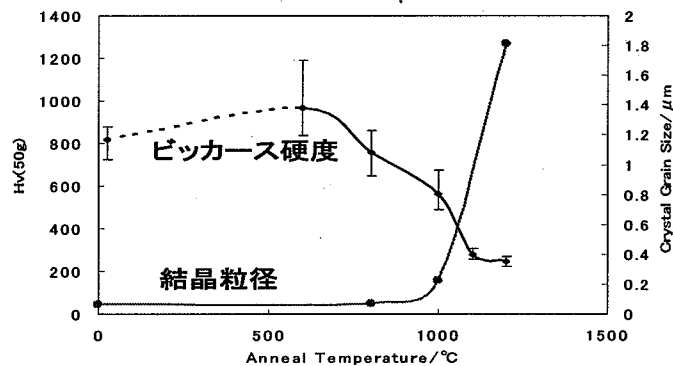


図3 アニールによる硬度と結晶粒径の変化。再結晶と均一分散は1000°Cで期待できる。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成19年度は、①微量複合添加によるナノ分散粒子を実現する。Ti、Zr、Hfをこの候補とする。②電子線照射実験を行う。③中性子照射材の硬度と組織観察を実施する予定である。

平成20年度は、ナノ分散試料の作成と電子線照射、また中性子照射効果の検証を行うとともに、その後の試作材の提言を行う予定である。

【研究成果の公表】

<論文>

- 1) Effect of Minor Alloying Element on Dispersing Nano-particles in ODS Steel: S. Ohnuki, T. Nagai, T. Shibayama, T. Suda, S. Yamashita, N. Akasaka, S. Ohtsuka, T. Yoshitake, J. Nucl. Mater. に投稿予定、査読付
- 2) Nano-micro Characterization and Electron-irradiation Properties in Mechanical -alloyed Austenitic Stainless Steel including Y_2O_3 :M. Watanabe, S. Ohnuki, N. Hashimoto, T. Shibayama, S. Yamashita, S. Ohtsuka, N. Akasaka, Nucl. Mater. に投稿準備中、査読付

<国内会議>

- 1) ODS 合金中の複合酸化物分散に及ぼす第三元素の効果 —濃度依存性—:内多陽介,長井利泰,須田孝徳,橋本直幸,大貫惣明,柴山環樹,山下真一郎,赤坂尚昭

<国際会議>

- 1) Effect of Minor Alloying Element on Dispersing Nano-particles in ODS Steel: S. Ohnuki, T. Nagai, T. Shibayama, T. Suda, S. Yamashita, N. Akasaka, S. Ohtsuka, T. Yoshitake, MRS fall meeting, Boston, Dec. 2006.
- 2) Nano-micro Characterization and Electron-irradiation Properties in Mechanical -alloyed Austenitic Stainless Steel including Y_2O_3 :M. Watanabe, S. Ohnuki, N. Hashimoto, T. Shibayama, S. Yamashita, S. Ohtsuka, N. Akasaka, International Conference on Fusion Reactor Materials, Nice, Dec. 2007.

This is a blank page.

2.2 燃料サイクル関係

This is a blank page.

2.2.1 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	急激な燃焼化学反応に対する施設の健全性に関する研究		
研究協力課題	ガス爆発の数値的再現による構造物に対する安全評価手法の確立		
研究者所属、氏名			
大学側	慶應義塾大学 理工学部 機械工学科 助教授 松尾亜紀子 〔*客員研究員 **研究生〕		
機構側	核燃料サイクル工学研究所 再処理技術開発センター 技術開発部 技術開発課 高谷 暁和		
研究実施場所	慶應義塾大学理工学部機械工学科松尾研究室 再処理技術開発センター 技術開発部 技術開発課		
通算研究期間	平成 16 年 6 月 ~ 平成 19 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 18 年 7 月 ~ 平成 19 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>空間内において可燃性ガスが充満し燃焼した場合、その建物が堅牢であればあるほど建物内壁全体に掛かる負荷が増す。その際に、脆弱部から放出される既燃あるいは未燃ガスの振る舞いは、点源爆発物から放出される爆風の伝播とは大きく異なる。また、建物内部において開始した可燃性ガスの燃焼は、時間と共にその領域を拡大することで被害は広範囲に及ぶことが考えられる。さらに、高温高圧の既燃ガスは、そのエネルギーを用いて建物など関連施設を破壊することが考えられる。以上のような事故の他に、昨今の情勢を踏まえると故意に危害を加えられる状況も想定され、その対策を練ることも必要とされている。爆薬等を用いた点源爆発の実験は比較的簡単であるが、可燃性ガスの爆発は実験における取扱が困難である。よって、気体が充填されている建物やその周辺建物への被害状況を実験として再現、あるいは予測することは危険を伴うことから、数値的な支援が期待されている。</p> <p>以上を踏まえ本研究課題では、閉鎖空間内部において発生する燃焼や高エネルギー放出をコンピュータ上において再現し、被害予測など関連施設に対する安全性評価を可能とすることを目的とする。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>閉鎖空間内部において発生する燃焼や高エネルギー放出をコンピュータ上において再現し、被害予測など関連施設に対する安全性評価を可能とすることを目的とし研究を行う。その中で、以下に示す点について特に注目する。</p> <ul style="list-style-type: none"> 閉鎖空間内部における燃焼のモデリング 燃焼による圧力・温度上昇の時間的な変化を取り入れることで、起こりうる事故に即した状況を再現し、爆発被害を最小に止める施設について検討を行うことが可能となる。 高エネルギー放出による構造物破壊過程のシミュレーション 構造物壁面に掛かる圧力負荷を高精度で再現することで、構造物破壊過程を含めたシミュレーションが可能となる。 			

【使用主要施設】

本研究課題の遂行に際しては、慶應義塾大学理工学部インフォメーションテクノロジーセンター所有の

- SGI社 Altix3700 並列計算サーバ (最大32並列・192GByte)

を計算資源として主に利用した。

ただし、計算コード開発ならびに可視化処理装置として、共同研究予算範囲でPC Linuxを購入した。また、解析対象格子生成ソフトウェア (Gridgen) をレンタル契約した。

【進捗状況 (当該年度までの概要)】

本課題では、閉鎖空間内部において発生する燃焼や高エネルギー放出をコンピュータ上において再現し、被害予測など関連施設に対する安全性評価を可能とすることを目的とし研究を行っている。以下、年度毎に概要を説明する。

平成 16 年度は、「再現のためのモデル検討」を中心として、以下の内容を実施した。

1. 実寸法の建物内部におけるガス爆発解析のための、化学反応モデルの検討

実問題への適応を考え、爆燃と爆轟の2種類の化学反応の再現を目指し、2つのアプローチにより反応モデルの検討を行った。

- 爆燃 (火炎によるガス爆発再現) : スカラー輸送モデルに基づいた火炎面伝播を再現する方程式と不均一濃度場への対応を考慮した混合分率を再現する方程式、の2つの方程式を予混合場に適用し、ガス爆発の再現可能性について検討した。その際の乱流成分の検討は、RANS と LES の両方について検討を進めた。
- 爆轟 (デトネーション再現) : 素反応モデルから成る爆轟波の再現は、実用的ではないことから、現実的なモデルとして1段階反応モデルを新たに開発した。これは、簡易的でありながら現実的な用途に利用できる。

2. 流体構造連成問題を目指した解析手法の検討

本問題に適した連成解析手法としてSPH法を選定し、流体・構造体の連成問題解析への取り組みを、2次元問題を対象として行った。TNTを想定した爆発気体とそれを取り囲む水、水の周りに配置した鉄壁との間での爆発現象解析が可能となり、気体・液体・固体間における爆発現象による衝撃波の伝播が再現された。

平成 17 年度は、「閉空間内部のガス爆発再現」を目指し、初年度で開発した手法を実用解析のために3次元コードへ移植し、解析を実施した。

1. 再現されたガス爆発発生・伝播・減衰挙動の定量的・定性的な検討

初年度において開発された2種類の化学反応モデル (爆燃用および爆轟用) を含んだ解析コードを3次元化し、公刊論文等において報告されているガス爆発実験データあるいは可視化現象再現について解析を行った。様々な解析対象や条件における解析を通じて、モデルの妥当性について検討を行った。

2. 流体構造連成問題のための解析コード開発及び解析実施

初年度は、2次元解析コードであったことから、3次元化を行った。また、粒子法による流体連成解析における問題点である、相境界面における振動の回避に関しても、精度向上の観点から検討を行った。実験データとして、水中における爆発実験を取り上げ、実験において計測された時間履歴を持つ構造物の変形量再現を目指す解析を行った。これらから、本手法の適用範囲と可能性について検討した。

平成 18 年度は、「ガス爆発発生時の構造物に対する安全評価」を目指し、過去2年において開発された2つの解析コードを用いて、想定される様々な事故について数多くの条件を設定し

解析を実施した。

1. 化学反応（燃焼）モデルの妥当性に関する検討
2. 開発・検討された解析コードを用いて、原子力施設関連において過去に発生した事故事例の解析を行い、実問題への適応可能性を明らかにした。
3. 構造物破壊の妥当性に関する検討
個別要素法を用いて、爆風による構造物（コンクリート・金属）の破壊状況の再現を試みた。
4. 開発された2つの解析コード（燃焼解析コードと構造物破壊解析コード）による連成解析を行った。解析対象としては、アスファルト固化処理施設における爆発時に観察された、コンクリート壁面崩落現象を扱った。

【研究成果（当該年度）】

平成18年度の研究成果として、「ガス爆発発生時の構造物に対する安全評価」を目指し、過去2年において開発された2つの解析コードを用いて、想定される様々な事故について数多くの条件を設定し解析を実施した。以下、実施計画に沿って述べる。

(1) 化学反応（燃焼）モデルの妥当性に関する検討

旧動燃事業団東海事業所アスファルト固化処理施設におけるガス爆発事故解析を目指した、複数部屋からなる閉鎖的建物内部におけるガス爆発解析：

ここではガス爆発事故の被害を数値解析により予測することを目的とし、爆発圧力放散口、連結口を有する2部屋を対象としたガス爆発の数値解析を行い、各パラメータが圧力挙動に与える影響を検討した。さらに、1997年に発生したアスファルト固化処理施設火災爆発事故の被害解析を行い、大きな被害が報告された部屋をダクトで連結した2部屋、体積比の異なる3部屋に分割して、それぞれ検討を行った。以下に結論を示す。

i. 爆発圧力放散口の性能に対する各パラメータの影響

放散面積を分割しても放散性能はほぼ変化しない。したがって、放散性能は総放散面積、放散開始圧力により決定される。しかし、構造物縦横比の増加は着火位置と関連して、最大圧力を上昇させる可能性がある。

ii. 連結口を有する2部屋のガス爆発の再現性と各パラメータの影響

体積比の増加により第2室に圧力ピークが発生する。数値解析結果はこの圧力ピークを過大評価するため、ピーク以降の圧力履歴に差違が生じたが、ピーク到達以前の圧力履歴は実験結果とよい一致を示した。

連結口面積と連結口から着火位置までの距離は第2室の圧力挙動に大きく影響を与える。これらの影響はそれぞれ放散係数、PIL (Piling number) を用いて整理できる。放散係数が小さく、PILが大きな場合、高い予圧縮圧力が発生し、圧力パイリングが発生した。

iii. アスファルト固化処理施設ガス爆発事故の数値的被害予測

アスファルト固化処理施設におけるダクトで連結した2部屋(R151, R152)で、解析より算出された仕切壁に作用する圧力は着火部屋方向に約283kPaとなり、事故調査による推定圧力と類似した値となった。これより、事故と同様に仕切壁が着火部屋に飛散する可能性が示された。また、体積比の異なる3部屋(図1: R152, A234, A235)についての解析では、事故で大きく破壊した壁面に高い圧力が作用した(図2)。しかし、算出された圧力では壁面は破壊に至らないと考えられる。

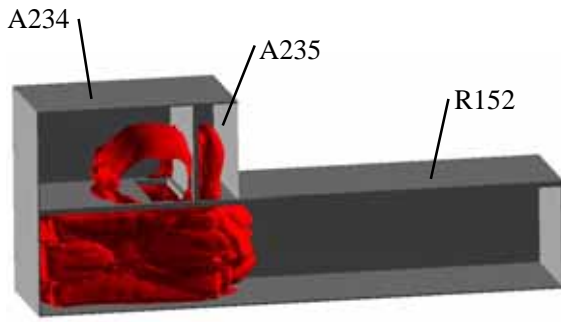


図1 起爆0.1773秒後の火炎伝播挙動

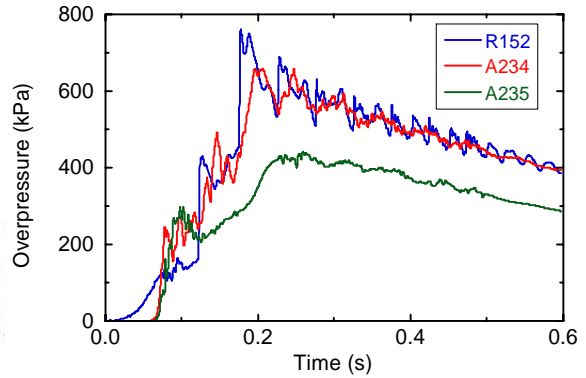


図2 各部屋の圧力履歴
(A235は事故時に大きく破壊された壁面有)

(2) 構造物破壊の妥当性に関する検討

個別要素法 (DEM 法) を用いた、爆風による構造物 (コンクリート・金属) の破壊状況の再現解析:

流体と構造固体との連成問題の取扱いとしては、様々な方法が考えられる。本解析では爆発や飛散といった固体の大変形の扱いに適している粒子法を用いた。その中でも、特に固体破片の形成のような不連続的挙動を再現するのに適した DEM 法に着目した。弾塑性理論による構成則を導入し、一次元および二次元解析手法を開発した。また、固体媒体内の衝撃波伝播挙動を解析することによって連続体解析の再現性に関して検討を行った。

用いた DEM の手法は、以下の通りである。支配方程式は並進運動方程式のみを用いる。また、降伏モデルには von Mises の式を適用する。要素間に作用させる擬似粘性には Wilkins が提案した式を用いる。なお、擬似粘性項は衝撃波面における不連続面にのみ適用される。以下に結論を示す。

- Wilkins の擬似粘性により、応力振動を抑制できた。
- 一次元弾塑性解析により、先行弾性波と塑性波による二波構造が再現された。
- Taylor anvil test を模擬した二次元弾塑性解析を行い、鉄材の変形機構を再現した。(図3)

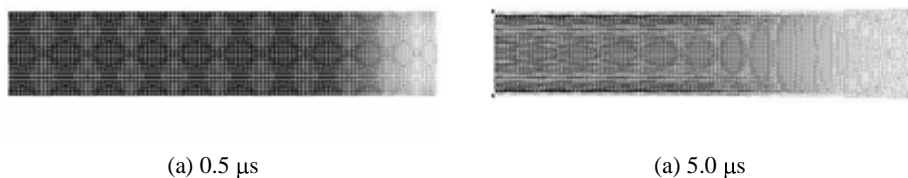


図3 Taylor anvil test を模擬した二次元弾塑性解析による運動エネルギー分布

(3) 開発された2つの解析コードによる連成解析

解析対象としては、アスファルト固化処理施設における爆発時に観察された、コンクリート壁面崩落現象:

ガス爆発解析により得られた、アスファルト固化処理施設内部の圧力履歴を DEM 解析の時間依存する境界条件として与えることで、連成解析を行った。解析結果からは、壁面の被害は僅かであることが示された。よって、当該事故における壁面崩落現象は、ガス爆発の二次的被害である飛散物の衝突によることが示唆された。

【成果の反映状況】

本研究により開発した成果は、実際の原子力施設で過去に起こったガス爆発事故の現象解析に適用し、被害状況の現象的な解釈を可能としている。今後、爆発時の施設影響評価に係る研究を実施していく際に、本評価手法により有益な技術的知見を得ることが期待できる。

【研究成果の公表】

＜論文＞（査読有）

- 1) Kobashi, W. and Matsuo, A., "Numerical Study on Underwater Explosion Simulation Surrounded by an Iron Wall Using Smoothed Particle Hydrodynamics", Science and Technology of Energetic Materials, Vol.66, No. 6, pp.421-424, 2005
- 2) Hashimoto, A. and Matsuo, A., "Numerical Analysis of Gas Explosion inside Two Rooms Connected by Ducts," Journal of Loss Prevention in the Process Industries. (accepted)

＜国内学会＞（査読無）

- 1) 日本機械学会第17回計算力学講演会, 仙台, 2004年11月18-20日, 爆風による構造物破壊問題のSPH法を用いた数値解析, 小橋航, 松尾亜紀子
- 2) 日本機械学会第18回計算力学講演会, 筑波, 2005年11月19-21日, SS400円筒内での水中爆発に対するSPH法を用いた数値解析, 小橋航, 松尾亜紀子, 野口裕久, 村田健司
- 3) 第43回燃焼シンポジウム, 東京, 2005年12月5-7日, 広域空間ガス爆発の数値解析, 橋本明典, 松尾亜紀子
- 4) 第43回燃焼シンポジウム, 東京, 2005年12月5-7日, 圧力放散を考慮した建物内ガス爆発の数値解析, 片倉祐一, 松尾亜紀子
- 5) 安全工学シンポジウム2006, 東京, 2006年7月, 爆発圧力上昇に及ぼす爆発放散口の効果に関する数値解析, 橋本明典, 松尾亜紀子
- 6) 第19回計算力学講演会, 名古屋, 2006年11月, FDM-DEMを用いた爆風によるコンクリート破壊に関する数値解析, 塚原陽子, 松尾亜紀子
- 7) 第44回燃焼シンポジウム, 広島, 2006年12月, 建物内部で発生したガス爆発事故の被害予測シミュレーション, 橋本明典, 松尾亜紀子
- 8) 平成18年度衝撃波シンポジウム, 福岡, 2007年3月, 個別要素法 (DEM) による複数固相媒体中の衝撃波の解析, 塚原陽子, 松尾亜紀子, 田中克己

＜国際学会＞（査読無）

- 1) International Conference on Computational Methods 2004, Singapore, 15-17, Dec, 2004, SPH Simulation of Structural Destruction Problem caused by Explosion, KOBASHI Wataru and MATSUO Akiko
- 2) 2nd International Conference "Fire Bridge: Northern Ireland - Japan", 9-11 May 2005, Computational Fluid Dynamics for Explosion Simulations, MATSUO Akiko
- 3) The 25th International Symposium on Shock, Bangalore, India, 17-22 July, 2005, Numerical study on underwater explosion simulation surrounded by iron wall using smoothed particle hydrodynamics, KOBASHI Wataru and MATSUO Akiko
- 4) 43rd AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit, Reno, USA, Jan. 9-12, 2005, Explosion Simulation Including a Coupled Fluid-Structure Interaction Problem Using Smoothed Particle Hydrodynamics, AIAA Paper 2006-0190, KOBASHI Wataru, MATSUO Akiko, NOGUCHI Hirohisa, MURATA Kenji
- 5) 43rd AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit, Reno, USA, Jan. 9-12, 2005, Numerical Simulation of Pulse Detonation Engine with an Improved One-Step Chemical Reaction Model, AIAA Paper 2006-0556, WATANABE Katsuya and MATSUO Akiko
- 6) Sixth International Symposium on Hazards, Prevention, and Mitigation of Industrial Explosions, Halifax, Canada, Aug. 27-Sept. 10, 2006, "Numerical Analysis of Gas Explosion Inside Two Rooms Connected by Ducts", Hashimoto, A., and Matsuo, A.

2.2.2 先行基礎工学研究に関する平成18年度研究概要報告書

研究協力テーマ	CHON固定抽出剤を用いた核分裂生成物の高度元素分離技術に関する研究		
研究協力課題	クラウン化合物を包括固定したマイクロカプセルの合成と発熱元素の精密分離技術の開発		
研究者所属、氏名			
大学側	東北大学大学院工学研究科 教授 三村 均 産業技術総合研究所東北センター・主任研究員 和久井喜人 (財)産業創造研究所 原子力化学工学センター・研究員 星 陽崇		
機構側	日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター 核燃料サイクル工学研究所 紙谷 正仁		
研究実施場所	東北大学大学院工学研究科 量子エネルギー工学専攻 本館1F 化学実験室 産業技術総合研究所・東北センター		
通算研究期間 (予定)	平成17年7月～ 平成20年3月	当該年度 研究期間	平成18年7月～ 平成19年3月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
CsとSrに高選択性を有するクラウン化合物を、バイオポリマーにより包括固定化した高機能性マイクロカプセルを合成し、そのキャラクタリゼーションを行うとともに、これら核種の基礎的な吸着特性を解明する。アルカリ金属間、アルカリ土類金属間および発熱元素間での分離特性(吸着速度、分配特性および分離係数)の評価を行い、クロマトグラフィー分離法を確立する。これらの結果を基に、模擬高レベル廃液からのCsとSrの連続的で高度な分離・回収法を開発する。			
【研究内容(概要)】			
(1) 平成17年度: CsとSrに高選択性を有するクラウン化合物の選定とマイクロカプセルの設計・合成と特性評価 当該年度では研究計画書の策定を行う。CsとSrに高選択性を有するクラウン化合物の選定(Csイオン分離の候補としてDB21C7, DB24C8, Srイオン分離の候補としてD18C6)とこれらを包括固定したマイクロカプセルの設計・合成を実施するとともに、合成試料のキャラクタリゼーションおよび吸着性評価を行い、物理化学的(耐熱性、耐酸性、耐放射線性等)に安定なマイクロカプセルを選定する。			
(2) 平成18年度: マイクロカプセルへのCsとSrの吸着特性および吸着試料のキャラクタリゼーション CsとSrの吸着特性を、吸着速度および分配特性について測定評価する。また、キャラクタリゼーションとして、マイクロカプセル中に取り込まれたこれら核種の分配を機器分析により直接観察し、組成分析および吸着の均一性を調べるとともに、マイクロカプセルの耐久性を評価し、廃液処理への実用化のための基礎データを取得する。			
(3) 平成19年度: マイクロカプセル充填カラムによるCsとSrのクロマトグラフィー分離 マイクロカプセルを充填したカラムによりCsとSrの吸着特性および溶離特性を調べるとともに、Cs/Rb、Cs/Sr、Sr/Ba系に対するクロマトグラフィー分離を実施する。二成分系の単純溶液および多成分系の模擬廃液を調製し、効率的な精密分離手法を確立し、先進湿式分離技術としての成立性を実証する。研究の総括を行う。			

【使用主要施設】

微小部 X 線分析装置 (EPMA)、粉末 X 線回折装置 (XRD)、
走査型電子顕微鏡 (SEM)、プラズマ発光分光分析 (ICP-AES)、
原子吸光分光分析 (AAS)、赤外吸収スペクトル分析装置 (IR)

【進捗状況 (当該年度までの概要)】

平成 17 年度は、Sr に高選択性を有するクラウン化合物の選定 (Sr イオン分離の候補として D18C6) と、これらを包括固定したマイクロカプセル (MC) の設計・合成を実施するとともに、合成試料のキャラクタリゼーションおよび吸着特性の評価を行った。吸着特性としては、Sr イオンの吸着速度、吸着に及ぼす硝酸濃度、Na イオン濃度およびピクリン酸濃度の影響、吸着機構、飽和吸着量について、バッチ法により検討した。キャラクタリゼーションは、MC の表面観察、クラウン化合物の包括固定化の確認および内部への Sr イオン吸着の確認を行った。

平成 18 年度は、クラウン化合物内包 MC の Sr 吸着特性を、溶媒抽出化学の観点からより詳細に基礎的に検討すると共に、ピクリン酸に変わる陰イオン候補剤としてラウリルベンゼンスルホン酸を内包した新規 MC を調製し、その Sr 吸着特性、キャラクタリゼーションおよびカラム吸着特性について検討した。

【研究成果 (当該年度)】

当該年度の成果概要を以下に示す。

1. クラウン化合物の Sr の溶媒抽出特性の評価

抽出試薬である D18C6 およびラウリルベンゼンスルホン酸 (H および Na 形) とこれらを共存させて Sr の分配特性を評価した (Fig. 1)。D18C6 単独では硝酸濃度 (>1 M) の上昇と共に Sr 抽出が高まる。一方ラウリルベンゼンスルホン酸陰イオン (LBS⁻) は、0.1-1 M で Sr 吸着性を有する。これら単独で使用した場合に比べて、有機相として D18C6 と LBS⁻ を共存させた場合には、全ての領域で高い分配比を示すことがわかる。LBS⁻ は Sr²⁺ 抽出の対陰イオンとして有効に働くことが分かった。

2. MC の調製とキャラクタリゼーション

クラウン化合物/オクタノール系 (CO-MC)、クラウン化合物/オクタノール/LBS 系 (CLD-MC) の種々の MC を調製した。Table 1 は調製した MC の仕様を示し、Fig. 2 はこれら MC の SEM 像を示す。CaALG と比べ、CO-MC および CLD-MC は表面構造の変化を確認することができ、内包されたクラウン化合物などの有機試薬の液滴により表面に凹凸が顕著に観察された。また、IR により、CO-MC および CLD-MC 内部に D18C6 が存在していることを確認し (Fig. 3)、EPMA により、Sr²⁺ と振盪後の MC 内に Sr²⁺ が吸着していることも確認した。

3. MC の吸着速度と分配平衡

調製した MC (CLD-MC) を用いて、Sr²⁺ のバッチ吸着速度実験を行った。Fig. 4 に示すように、3 M 硝酸共存下では、約 2 時間でほぼ 80%、2 日で平衡に達することが分かる。

種々の MC の硝酸共存下での Sr²⁺ の分配平衡を、Fig. 5 に示す。CaALG への吸着と比べ、D18C6 を加えた MC では Sr²⁺ が吸着していることを確認できた。また、CLD-MC および CLD'-MC は、硝

酸濃度が低い領域において高い K_d 値を示す傾向がある。また、廃液の硝酸濃度に近い 2~3 M においても K_d 値は、40 以上に向上し、CO-MC より高い吸着性能を示した。LBS が対イオンとしての役割を果たし、MC の吸着性能の向上に寄与していることが分かる。

Fig. 6 は、CLD-XALG で、ゲル化イオンを H^+ , Ca^{2+} , Ni^{2+} , Cu^{2+} および Zn^{2+} と変化させた場合の K_d 値の比較を示す。HALG とした場合で $100 \text{ cm}^3/\text{g}$ を越す高い K_d 値を示す。このことは、HALG ではゲル構造が変化すること（すなわちイオン架橋から水素結合架橋に変化する）、見かけ上クラウン化合物の含有量が増加することが原因と考えられる。

Fig. 7 は、CLD-MC を充填したカラムに、高濃度硝酸が共存した Sr(II) 溶液を通液した場合の破過特性を示す。破過点が小さく、粒子径の低下や吸着速度の改善およびクラウン化合物の含有率の増加を図る必要がある。

5. 今後の課題

最終的な目的である HLLW 中から選択的に Sr を吸着するためには、吸着率のさらなる向上、安定性の評価と向上、耐放射線性の評価、模擬高レベル廃液による Sr の選択的分離などを検討してゆく必要がある。そのためには、クラウン化合物の含有率を高めると共に、粒子径を低下させることで吸着速度の向上を図る必要がある。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成19年度は、マイクロカプセルを充填したカラムにより Cs と Sr の吸着特性および分離特性を調べるとともに、Sr / Ba 系に対するクロマトグラフィー分離を実施する。二成分系の単純溶液および多成分系の模擬廃液を調製し、効率的な精密分離手法を確立し、先進湿式分離技術としての成立性を実証する。研究の総括を行う。

【研究成果の公表】

- 1) H. Mimura, *et al.*, Selective transport of Sr through a liquid membrane with hydrophobic crown compound, PBNC 2006, Sydney, Australia, 2006.
- 2) T. Tachibana, *et al.*, Selective uptake of strontium in nitric acid by microcapsules enclosed with crown ether compounds, PBNC 2006, Sydney, Australia, 2006.
- 3) Takahiro Tachibana, *et al.*, Selective separation of strontium(II) in concentrated nitric acid solution by hybrid microcapsules enclosing crown ether(D18C6) compounds, J. Ion Exchange, 2007, submitted.
- 4) 立花孝洋, 他, クラウン化合物内包マイクロカプセルを用いた高濃度硝酸溶液からの Sr 分離, 日本原子力学会秋の大会, 2006.
- 5) 立花 孝洋, 他, クラウン化合物内包マイクロカプセルを用いた Sr の選択的分離, 日本原子力学会東北支部研究交流会, 2007

別紙1

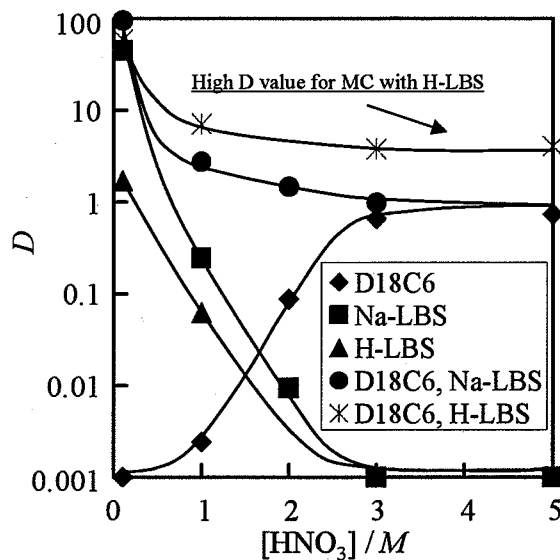


Fig. 1 Effect of nitric acid concentration on distribution ratio (D) of Sr(II). Organic phase; [D18C6]: 0.01 M, [Na-LBS]: 0.5 M or [H-LBS]: 0.5 M, 1-octanol 10 cm³. Aqueous phase; [Sr²⁺]: 10⁻⁴ M, [HNO₃]: 3 M 10cm³. Shaking time: 2 h, temperature: room temperature.

Table 1 Components of the prepared MCs.

	Organic solvent	[D18C6] / M	[Na-LBS] / M	[H-LBS] / M
CaALG	-	-	-	-
CO-MC	1-octanol	0.2	-	-
CLD-MC	1-decanol	0.2	0.5	-
CLD'-MC	1-decanol	0.2	-	0.5
CLD-XALG*	1-decanol	0.6	-	0.64

* X = H, Ca, Ni, Cu, and Zn,

HALG: hydrogen bond crosslinking,

CaALG, NiALG, CuALG and ZnALG: Divalent cation crosslinking

別紙2

Fine shrinkage was observed on the surface of CO-MC and CLD-MC

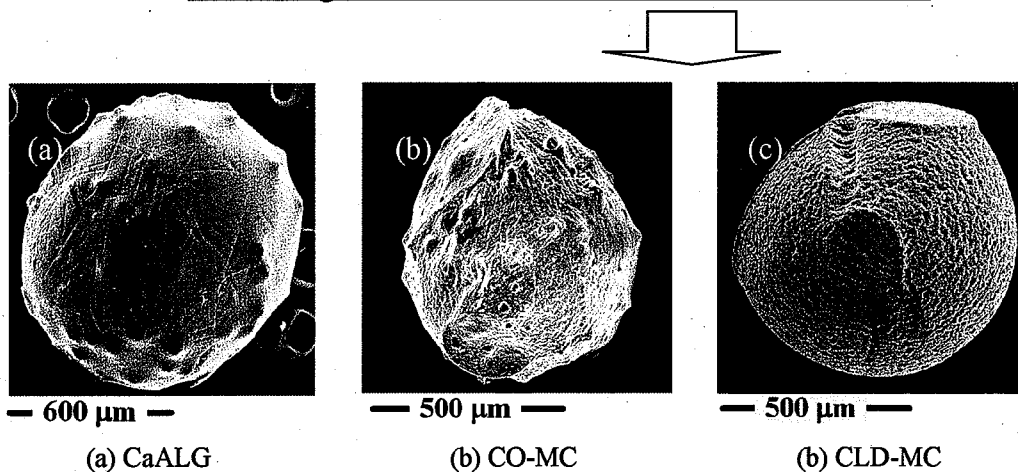


Fig. 2 SEM image of MCs.

D18C6 and NaLBS were detected in the spectrum of CO-MC and CLD-MC.

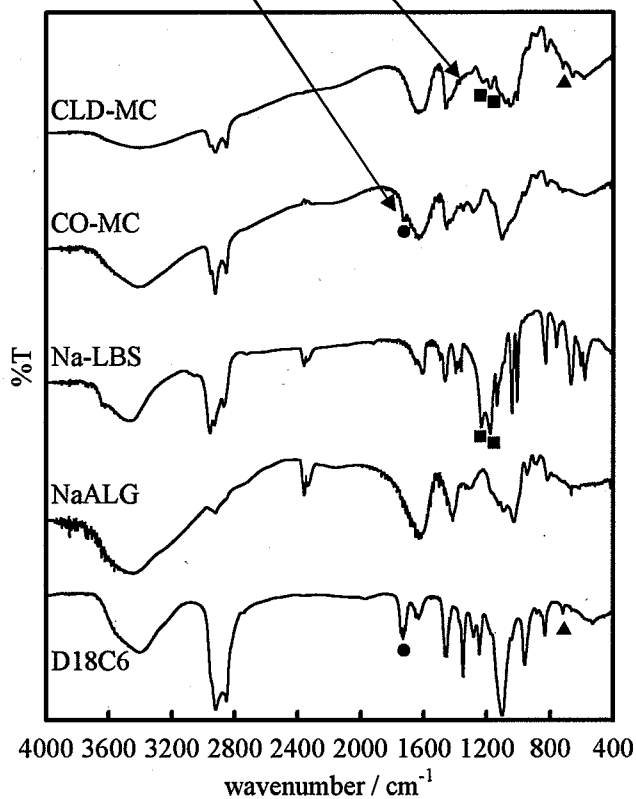


Fig. 3 IR spectra of different types of MCs.

●: 1720 cm⁻¹ (D18C6), ■: 1170, 1230 cm⁻¹ (Na-LBS), ▲: 710 cm⁻¹ (D18C6).

別紙3

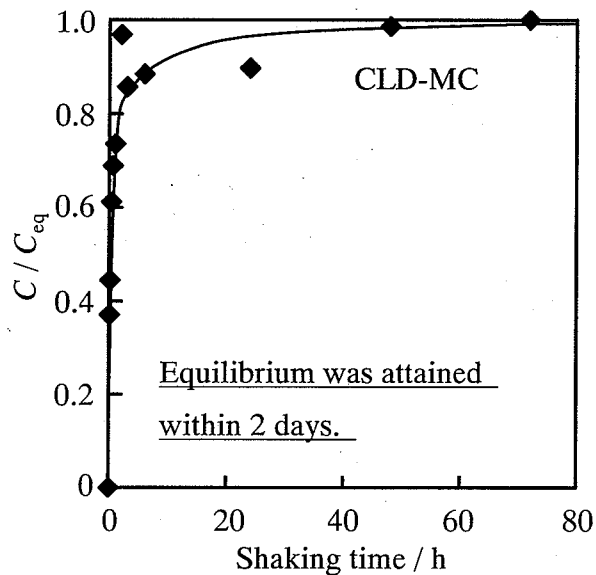


Fig. 4 Effect of equilibrium time on uptake of Sr(II) by CLD-MC.

V/m : $200 \text{ cm}^3/\text{g}$, $[\text{Sr}^{2+}]$: 10^{-4} M , $[\text{HNO}_3]$: 3 M , shaking time: 0 - 72 h, temperature: room temperature.

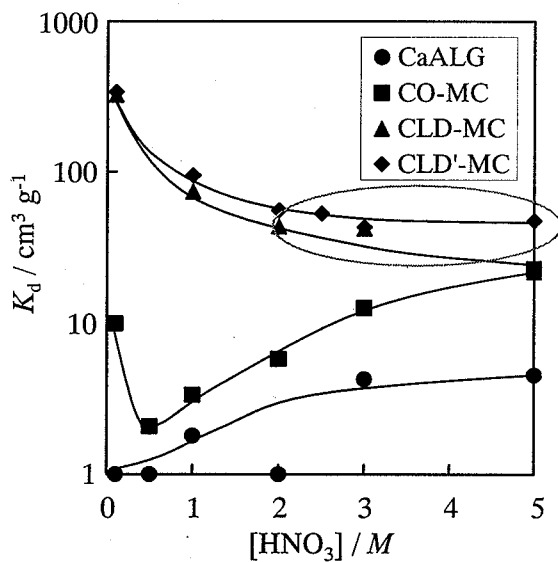


Fig. 5 Effects of concentration of HNO_3 on K_d of Sr(II).

V/m : $200 \text{ cm}^3/\text{g}$, $[\text{Sr}^{2+}]$: 10^{-4} M , $[\text{HNO}_3]$: 0.1 - 5 M, shaking time: 2 h, temperature: room temperature.

別紙4

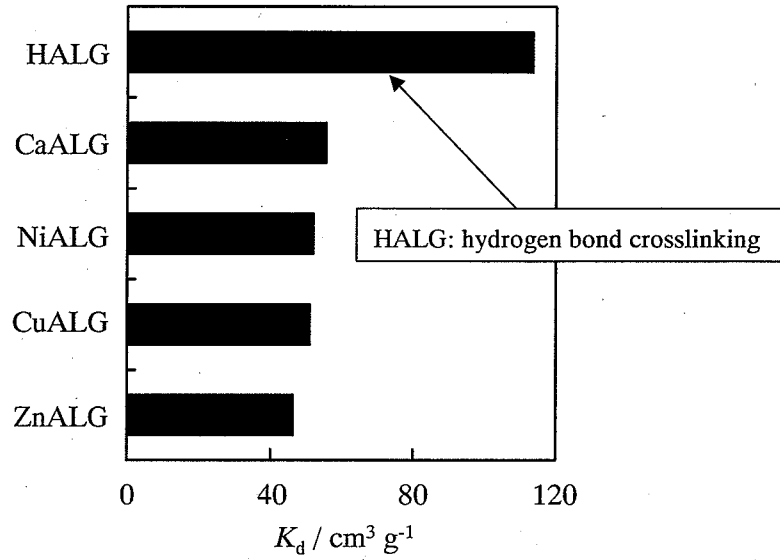


Fig. 6 Comparison of K_d of Sr(II) for MCs prepared by different gelling cations (CLD-XALG). V/m : $200 \text{ cm}^3/\text{g}$, $[\text{Sr}^{2+}]$: 10^{-4} M , $[\text{HNO}_3]$: 3 M , shaking time: 2 h, temperature: room temperature.

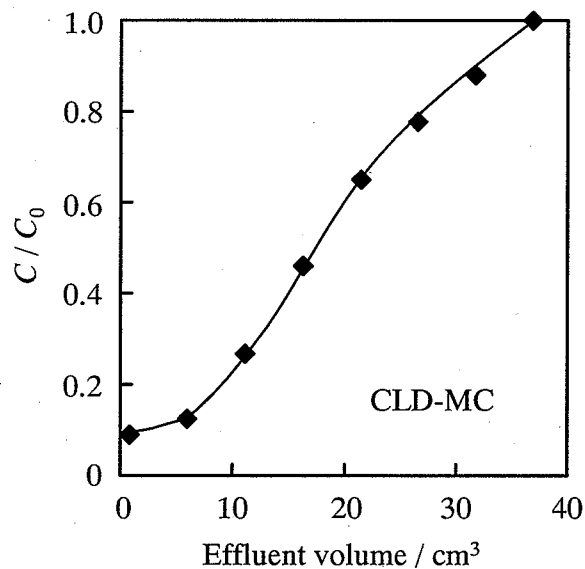


Fig. 7 Breakthrough curve of Sr(II) through the column packed with CLD-MC. CLD-MC: 0.5 g, $[\text{Sr}^{2+}]$: 10^{-4} M , $[\text{HNO}_3]$: 3 M , flow rate: $0.039 \text{ cm}^3/\text{min}$, temperature: room temperature.

2.2.3 先行基礎工学研究に関する平成18年度研究概要報告書

研究協力テーマ	選択反応による再処理工程中のランタニドの分析手法に関する研究		
研究協力課題	ウラン酸化物中に存在するランタニドの選択的反応及びその分離手法に関する研究		
研究者所属、氏名			
大 学 側	東北大学 多元物質科学研究所 助教授 佐藤修彰 〔*客員研究員 **研究生〕		
機 構 側	核燃料サイクル工学研究所 再処理技術開発センター 技術開発課 課長代理 佐藤 宗一		
研究実施場所	東北大学 多元物質科学研究所		
通算研究期間 (予定)	平成17年7月 ~ 平成20年3月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成18年7月 ~ 平成19年3月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>使用済燃料中のランタニドの分析は、再処理工程の臨界安全上重要な燃焼度クレジットを評価するために不可欠である。またウランあるいはプルトニウム製品中のランタニドの分析は、その中性子吸収断面積が大きいことから、燃料サイクルを評価するために不可欠である。しかし、現在のところランタニドの分析には複雑で、かつ長時間かかる分析方法しかなく、再処理工程における分析には使用できなかった。そこで、ランタニドと選択的に反応する元素（特にイオウ）を利用した簡便であり、かつ分析セル内での作業が必要であるため、遠隔で操作性の良い分析のための前処理方法を確立する。</p> <p>試料の主成分であるウランとランタニド元素のイオウとの反応性の違いに注目して、ランタニドを選択的に反応させるための最適条件を求める。さらに、生成したランタニド硫化物について、簡易的な分離方法（磁気分離や部分溶解法）について検討を行う。最後に分析のための前処理方法として確立する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>使用済燃料中のランタニドの分析は、再処理工程の臨界安全上重要な燃焼度クレジットを評価するために不可欠である。またウランあるいはプルトニウム製品中のランタニドの分析は、その中性子吸収断面積が大きいことから、燃料サイクルを評価するために不可欠である。しかし、現在のところランタニドの分析には複雑で、かつ長時間かかる分析方法しかなく、再処理工程における分析には使用できなかった。そこで、ランタニドと選択的に反応する元素（特にイオウ）を利用した簡便であり、かつ分析セル内での作業が必要であるため、遠隔で操作性の良い分析のための前処理方法を確立する。</p>			

試料の主成分であるウランとランタニド元素のイオウとの反応性の違いに注目して、ランタニドを選択的に反応させるための最適条件を求める。さらに、生成したランタニド硫化物について、簡易的な分離方法（磁気分離や部分溶解法）について検討を行う。最後に分析のための前処理方法として確立する。

【使用主要施設】

東北大学 多元物質科学研究所：粉末 X 線回折装置 理学社製 RINT

【進捗状況（当該年度までの概要）】

本年度はウラン酸化物中に存在するランタニドの選択的な硫化反応について熱力学的検討と、気相硫化試験を行い、以下のような結果を得た。

i) 硫化におけるウランおよびランタニドの挙動

使用済 UO_2 燃料を硫化処理すると UO_2 が生成するが、ランタニドが存在した場合にウラン酸化物相がどのような挙動を振る舞うかを調べるために、ランタニド酸化物を用いて、温度、反応時間を変えて熱重量分析を行い、反応挙動を調べた。その結果、ランタニド酸化物は比較的低温から反応するとともに、高温においては生成した硫化物が熱分解することが分かった。また、ネオジムやユーロピウムでは、反応挙動に差が有ることが分かった。

ii) ランタニドを含む UO_2 固溶体の選択硫化に関する実験

実際の使用済燃料中のランタニドは UO_2 中に固溶している事が考えられたため、Eu や Nd といったランタニド元素を予め UO_2 に固溶させた試料を調製し、 CS_2 による硫化実験を行い、昨年度実施した UO_2 , UO_3 , (U_3O_8) , $R_2O_3(R=Nd, Eu)$ を用いた試験や、これらの混合物を用いた硫化反応の結果とを比較した。その結果、Eu や Nd が固溶した UO_2 試料の場合、 $500^\circ C$ においては UOS 相の生成が見られ、また、 $400^\circ C$ の場合には見られず、単独あるいは混合物の場合と同様の結果が得られた。しかしながら、 $450^\circ C$ において硫化実験を行った場合、 U_3O_8 試料では UO_2 に還元されるのみであったが、固溶体試料の場合には少量ながら UOS 相の生成が見られ、ランタニド含有 UO_2 固溶体試料の方が、反応性が高いことが分かった。

【研究成果（当該年度）】

本年度はウラン酸化物中に存在するランタニドの選択的な硫化反応について熱力学的検討と、気相硫化試験を行い、以下のような結果を得た。

i) ボロキシデーショ後の硫化におけるウランおよびランタニドの挙動

使用済 UO_2 燃料をボロキシデーション処理すると U_3O_8 が生成するが、硫化の際にランタニドやウラン酸化物相がどのような挙動を振る舞うか、熱重量分析法により調べた。Figure 1 には、 Eu_2O_3 を CS_2 中で行った熱重量分析の結果を示した。

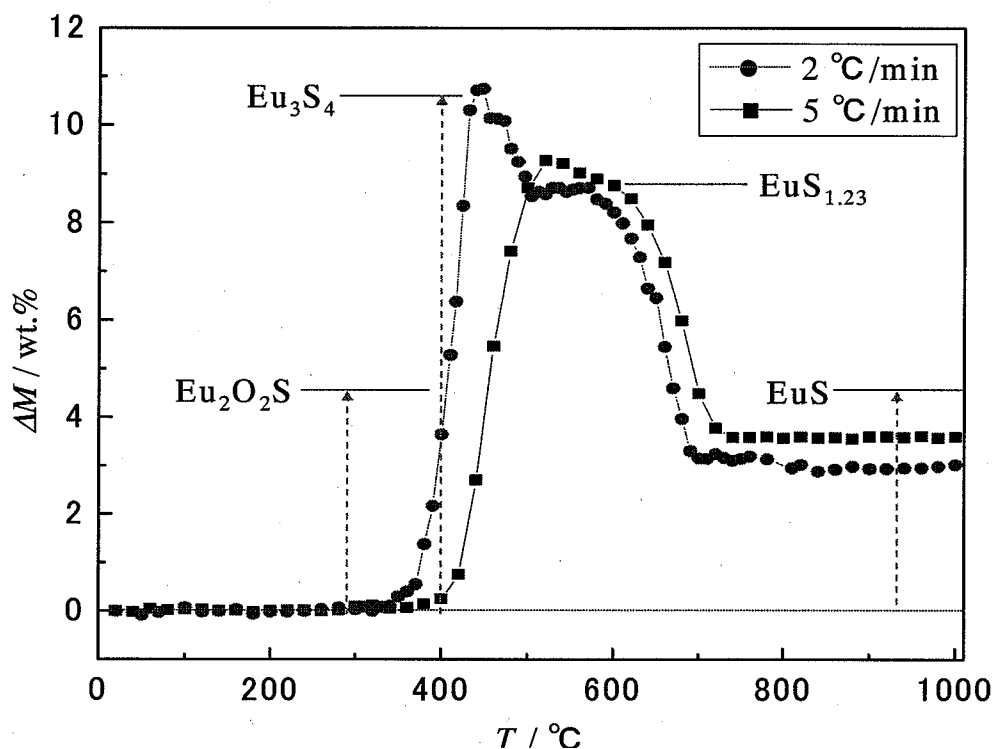


Figure 1 Thermogravimetry of Eu_2O_3 by CS_2 .

出典; N. Sato, G. Shinohara, A. Kirishima, O. Tochiyama, J. Alloys Compds, (2007), in press.

この結果をみると、昇温速度が $5\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ の場合、 $400\text{ }^\circ\text{C}$ 以降において硫化による急激な重量増加が見られる。この変化は、セスキ硫化物(Eu_2S_3)の生成まで増加した後、 $650\text{ }^\circ\text{C}$ 付近より重量減少となるが、最終的には EuS を生成する。従って、ここでは、 Eu_2S_3 が EuS へ熱分解しているものと考えられる。昇温速度が $2\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ の場合には、 $400\text{ }^\circ\text{C}$ 付近より急激な重量増加が見られるものの、この場合には、 Eu_3S_4 の生成まで達している。その後、 Eu_3S_4 の熱分解による Eu_2S_3 の生成を経て、 EuS を生成することが分かった。

他のランタニド酸化物、たとえば Nd_2O_3 の場合についても、熱重量分析を行い、同様な硫化挙動をとることが分かった。

ii) ランタニドを含む UO_2 固溶体の選択硫化に関する実験

実際の使用済燃料中のランタニドは UO_2 中に固溶している事が考えられ、 Eu や Nd といったランタニド元素を UO_2 に固溶させた試料を調製し、 CS_2 による硫化実験を行い、 U_3O_8 試料との反応性を比較し、選択硫化について検討した。

まず、 U_3O_8 と Nd_2O_3 が共存する場合の加熱処理による相関係の変化について調べたところ、 $600\text{ }^\circ\text{C}$ の場合は、出発物質である Nd_2O_3 および U_3O_8 のピークが見られ、これらの混合物のままであるが、 $800\text{ }^\circ\text{C}$ になると、これらの酸化物のピークとともに、 UO_2 相に相当するピークが見られた。さらに加熱温度が $1000\text{ }^\circ\text{C}$ になると、 Nd_2O_3 および U_3O_8 に相当するピークは観察されなくなり、 UO_2 相のピークのみとなった。このことは、空気中での加熱により、希土類酸化物が U_3O_8 相と反応して、 UO_2 相を生成し、固溶しているものと考えられる。反応時間を

長くすると、より低温にても固溶体の生成が見られた。ネオジウムよりもユーロピウムの方が多く固溶することが分かった。また、添加するランタニド酸化物の添加量が多いほど、固溶量も多くなった。従って、使用済 UO_2 燃料のボロキシデーション時には大部分は U_3O_8 相となるが、ランタニドの生成量に対応してランタニド含有 UO_2 相が一部生成することとなる。

さらに、ランタニド元素を 50mole% 固溶させた UO_2 試料を用いて 500°C 以下の選択硫化条件、 450°C において CS_2 による硫化実験を行った結果を Figure 2 に示す。 U_3O_8 の場合には UO_2 相のみが現れ、硫化されないものの、固溶体試料を用いた場合には、 UO_2 相の他に、 UOS' 相の生成がみられ、固溶体がより硫化されやすいことが分かった。この時、 UO_2 相の格子定数は、 UO_2 のみの場合の格子定数になるとともに、 UOS 相の格子定数が UOS のみに場合と異なっていた。このことは、始め UO_2 相に固溶していたランタニド元素が、硫化により生成した UOS 相へ移動したものと考えられる。従って、ランタニド元素含有 UO_2 固溶体の硫化の場合には、希土類元素は UO_2 相から出て、希土類の固溶した UOS 相を形成し、また、固溶限を越える場合には、それぞれの硫化物を生成するものと考えられる。

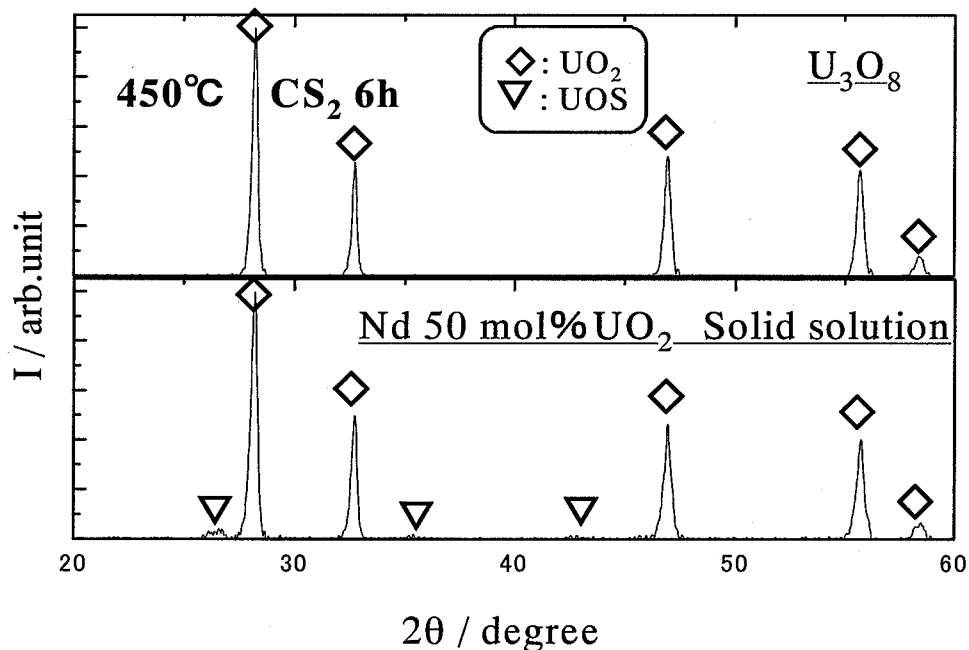


Figure 2 XRD pattern of sulfurized reactant

出典; S. Sato, T. Ozawa, N. Sato, A. Kirishima and O. Tochiyama, Proc. 3rd RRTD Int. Workshop on Development of Spent Fuel Management for Increasing Nuclear Power Plants Rapidly, (2006), Hakata, Japan, pp60.

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 19 年度は、以下の項目を実施する予定である。

i) 粉砕機（ミル）を用いる硫化試験

- ・使用済燃料中のランタニドの硫化を可能な限り低温で行うため、粉砕機（ミル）を用いて、硫化剤共存下における粉体化による硫化反応試験を行う。

ii) 硫化された化合物の磁気分離試験

- ・選択硫化試験で得られた化合物の組合せにおける分離挙動についての試験を行う。試験はプラスチック製のチューブに磁性線の網を詰めたものを、磁気カラムとして用い、ここに、粒子を分散させた溶媒を通過させて、磁性の強い硫化物を分離する。この際、外部からは、一定の強度の磁石を用いて、磁場を与える。良好な分離能を得るための分離スキームの確認を行うとともに、磁場強度、流速並びに洗浄手法についての最適化条件を確立する。

【研究成果の公表】

<論文>

- 1) Nobuaki Sato, Genki Shinohara, Akira Kirishima, Osamu Tochiyama, "Sulfurization of Rare-earth Oxides with CS₂", J. Alloys Compds, (2007), in press.

<国内会議>

- 1) 佐藤修彰, 篠原元輝, 桐島陽, 朽山修, "CS₂による希土類含有 UO₂ 固溶体の硫化", 日本原子力学会「2006 年秋の大会」, 札幌, K48, (2006.9.27-2006.9.29)
- 2) 佐藤修彰, 篠原元輝, 桐島陽, 朽山修, "ウランおよび希土類酸化物の選択硫化", 資源・素材学会秋季大会, 福岡, D2-1, (2006.9.11-2006.9.13)

<国際会議>

- 1) N. Sato, G. Shinohara, Akira Kirishima and O. Tochiyama, "Sulfurization of Rare-earth Oxides with CS₂", 6th Int. Conf. f- elements, (2006), Wroclaw, Poland, GP25.
- 2) N. Sato, G. Shinohara, Akira Kirishima, O. Tochiyama and S. Sato "Voloxidation and Sulfurization of Rare-Earth Containing Simulated Fuel", NUPYRO2006, (2006), Kyongju, Korea.
- 3) G. Shinohara, N. Sato, Akira Kirishima, O. Tochiyama and S. Sato "Sulfurization of Rare-Earth Oxides in Simulated Spent Fuel", The 16th Iketani Conf. Masuko Symp., (2006), Tokyo, Japan, p153-160.
- 4) S. Sato, T. Ozawa, N. Sato, A. Kirishima and O. Tochiyama, "Innovative process for spent oxide fuel reprocessing by selective sulfurization", Proc. 3rd RRTD Int. Workshop on Development of Spent Fuel Management for Increasing Nuclear Power Plants Rapidly, (2006), Hakata, Japan, pp60.
- 5) Nobuaki Sato, "Novel process for spent oxide fuel processing by the use of sulfides", Cup Subgroup Meeting CR-06-4-4, (2006.12.19), Sendai.

2.2.4 先行基礎工学研究に関する平成18年度研究概要報告書

研究協力テーマ	イオン性液体を抽出媒体としたウラン回収技術に関する研究		
研究協力課題	イオン性液体中のウランの化学形態、酸化還元挙動、電解析出の解明		
研究者所属、氏名			
大学側	東京工業大学原子炉工学研究所 助教授 池田泰久, 助手 原田雅幸, 修士2年 広江勝行 東海大学工学部エネルギー工学科 講師 浅沼徳子		
機構側	人形峠環境技術センター 環境保全技術開発部 遠心機処理技術課 大橋裕介 人形峠環境技術センター 嘱託 和田幸男		
研究実施場所	東京工業大学 原子炉工学研究所 北実験棟5 日本原子力研究開発機構 人形峠環境技術センター 濃縮工学施設		
通算研究期間 (予定)	平成18年7月 ~ 平成21年3月	当該年度 研究期間	平成18年7月 ~ 平成19年3月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>核燃料サイクルにおける核燃料施設からは、ウラン廃棄物及びウラン汚染物が大量に発生する。これから進められる核燃料施設の廃止措置に当たっては資源の有効利用、放射性廃棄物発生量低減、環境負荷低減の観点から、これら廃棄物及び汚染物からウランを効率的に回収する技術の開発が急務である。しかし、従来の技術では、処理の過程で大量の二次廃棄物が発生する恐れがあり、また安全性の観点から問題があった。</p> <p>近年、燃料電池や湿式太陽電池等の電解質用あるいは各種反応媒体として開発されているイオン性液体は、通常の熔融塩と異なり、常温で液体、不揮発性、広い電位窓、高イオン伝導性等の特徴を有することからグリーンソルベントとして注目されているが、原子力分野での使用は未だなく、また本研究開発についてもほとんど実績がない。</p> <p>本提案では、このイオン性液体を反応媒体として用い、電解及び抽出によって様々なウラン汚染物からウランを効率的に分離・回収する技術を開発する。また、これらを処理するために発生する二次廃棄物を極力低減できる手法・技術を確立する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>本提案では、イオン性液体を反応媒体として用い、電解及び抽出によって様々なウラン汚染物（NaF, CaF₂, 遠心機を除く鋼材等）からウランを効率的に分離・回収する技術を開発する。</p> <p>そこで以下に示すような研究項目を実施し、イオン性液体中のウランの化学形態、ウランの酸化還元挙動、ウラン酸化物電解析出、イオン性液体へのウラン抽出挙動について検討し、イオン性液体を媒体とするウラン汚染物からのウラン回収技術に必要な基礎的なデータを取得する。更に、実用化に必要な課題を抽出する。</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. イオン性液体中へのウラン汚染物の溶解性と化学形態の検討 2. イオン性液体中のウランの酸化還元挙動の解明 3. イオン性液体を用いたウラン抽出挙動の把握 4. 実用化の可能性検討と課題の抽出 			
【使用主要施設】			
<p>イオン液体分析装置（イオン性液体の陰イオンの分析）、NMR（イオン性液体及びイオン性液体中のウランの構造解析）、FT-IR（ウラン化合物の構造解析）、可視・紫外分光光度計（溶液中の化学種の同定等）、レーザーラマン分析装置（ウラン錯体の溶液中での構造解析）、X線回折装置（固体状態の化合物の同定）、ICP/MS（溶液中の無機元素濃度の測定）、XPS（固体状態の化合物の同定）</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

1. イオン性液体中へのウラン汚染物の溶解性と化学形態の検討

平成 18 年度は、初年度として、人形峠環境技術センターで発生すると予想されるウラン汚染物の中、特に大量に発生すると考えられる NaF 吸着剤と鋼材を対象に、これらに含まれるあるいは付着しているウランの化学形態を調査するとともに、ウラン回収に適したイオン性液体の選定及び溶解条件を検討するため、各種イオン性液体を用いて、ウランを含むフッ化ナトリウム、フッ化カルシウム、ウランフッ化物等の溶解性について検討した。

また、ウラン化合物の溶解性とイオン性液体の構造との関係を考察するため、イオン性液体中のウランの化学形態について検討した。

2. イオン性液体中のウランの酸化還元挙動の解明

平成 18 年度は、イオン液体中のウランの酸化還元挙動を把握するため、1. で選定されたイオン性液体におけるウラニル錯体のサイクリックボルタモグラムを測定した。また、ウランの効率的な電解回収条件を把握するため、サイクリックボルタモグラム測定の結果に基づき、定電位電解試験の予備的検討を行った。

【研究成果（当該年度）】

1. イオン性液体中へのウラン汚染物の溶解性と化学形態の検討

①ウラン汚染物中のウランの化学形態

UF₆ ガスを吸着した NaF 及び汚染鋼材、廃液処理等で発生した Ca 系殿物に含まれるあるいは付着したウランの化学形態を X 線構造解析装置によって調べた。その結果、NaF 吸着剤中のウランの構造は Na₃UO₂F₅ であり、ウラン含有率は 23wt% であることが判明した。また、鋼材に付着したウランの化学形態は UF₄ であること、Ca 系殿物の主成分は硫酸カルシウム及び水酸化カルシウムであり、ウラン含有率は 0.46wt% であることが判明した。

②ウラン汚染物溶解用イオン性液体の検討

上記の調査結果に基づき、NaF 吸着剤、汚染鋼材、Ca 系殿物の溶解に適するイオン性液体を選定することを目的に、1-butyl-3-methylimidazolium (BMI) 系のイオン性液体及び hydroxyethyl-trimethylammonium chloride (塩化コリン) をベースとしたイオン性液体を主に、NaF 吸着剤、UF₄、Ca 系殿物の溶解性を検討した。BMI 系では、BMICl (m.p.: 73°C) 及び BMIBF₄ (m.p.: -71°C) を、また塩化コリン系では、塩化コリン+尿素 (1:2 の共融混合物, m.p.12°C)、塩化コリン+マロン酸 (1:1 の共融混合物, m.p.: 10°C)、塩化コリン+フェニルプロピオン酸 (1:2 の共融混合物, m.p.: 20°C) を対象に検討した (添付資料 1, 図 1 参照)。その結果、以下のことが明らかとなった (添付資料 2, 表 1~3 参照)。

- ・ BMICl を用いた場合、100°C において数時間処理することで、NaF 中ウランを約 80%、UF₄ をほぼ 100% 溶解しうる。
- ・ 塩化コリン+尿素系では、同様の条件で NaF 中ウランを約 60%、UF₄ を約 40% 溶解しうる。
- ・ Ca 系殿物中のウランの BMICl への溶解率は 2.9%、塩化コリン+尿素への溶解率は 11% である。

以上の結果から、BMICl、塩化コリン+尿素の二つのイオン性液体を汚染物処理用媒体として選定した。ただし、より溶解性が高くかつ融点の低いイオン性液体の選定のための更なる試験が必要であることも判明した。

また、溶解後のウランの化学形態を検討するため、溶解液の紫外・可視吸収スペクトルを測定した。その結果、BMICl 系では UO₂Cl₄²⁻ の形態で存在することが確認でき、塩化コリン+尿素系ではウラニルクロロ錯体に尿素が配位した構造を有するであろうと推測された。これより、溶解性の観点からは、ウランをイオン種として溶解させうるイオン性液体を検討することが適切であると考えられる。

③汚染鋼材の除染試験

UF₄ の溶解性が高い BMICl を除染剤として用い、UF₄ に汚染された実汚染物 (汚染した鉄

鋼材)の予備的除染試験を実施した。その結果、以下のことが明らかとなった。

- ・ 大気中 80℃, 180 分の浸漬処理により、除染率 99.0 %を達成し、放射能表面密度は、管理区域からの持ち出し基準の 1/10 の値 ($a: \leq 0.04 \text{ Bq/cm}^2$ $\beta: \leq 0.4 \text{ Bq/cm}^2$) を下回った。
- ・ 除染後の鋼材のウラン濃度は 0.47Bq/g であり、クリアランスレベル以下に除染できる可能性が高く、かつ母剤である鉄のイオン性液体への溶解量は全重量の約 0.01%であった。
- ・ 同様の条件において、未汚染の鉄鋼材表面を BMICI に溶解する試験を行ったところ、全く溶解しなかった。よって BMICI は、 UF_4 と反応した鉄のみを溶解することが判った。
- ・ 無機酸が鉄鋼材の未汚染の部分も同時に溶解してしまうことと比較すると、BMICI は UF_4 で汚染された部分のみを選択的に溶解するため、2次廃棄物発生量が少なく、より効率的な除染効果が期待できる。

2. イオン性液体中のウランの酸化還元挙動の解明

①イオン性液体中のウランイオンのサイクリックボルタンメトリー

1.の②におけるイオン性液体中へのウラン汚染物の溶解性と化学形態の検討において、 UF_4 及び NaF 中ウランの溶解性が比較的高い BMICI と塩化コリン+尿素 (共有混合物) を、汚染物処理用媒体として選定した。ここでは、選定したイオン性液体中のウランの電気化学的挙動を検討するため、サイクリックボルタンメトリー (CV) 法による電気化学測定を行った。BMICI 及び塩化コリン+尿素に UF_4 及び NaF をそれぞれ溶解し、残渣をろ過したものを電気化学測定用のウラン溶解試料として用いた。ウラン溶解試料を加熱減圧下で十分に脱水した後、Ar ガス雰囲気グローブボックス内で Ar ガスを 1 時間以上通気してから測定を行った。作用電極と対電極はそれぞれグラッシカーボン電極 (直径 1mm) と白金線を使用した。また、参照電極には Ag/AgCl 電極 ($3 \text{ mol/dm}^3 \text{ NaCl}$) を使用し、参照電極の内部液がウラン溶解試料へ混入するのを避けるために液絡を使用した。測定では、自然電位から負の方向へ走引を開始し、走引速度を 50mV/s とした。その結果、以下の現象が観測された。

- ・ NaF 溶解 BMICI (温度 80℃)
非可逆系で、-0.97V に還元波、-0.2~0.6V の領域に複数の酸化波が観測された。
- ・ UF_4 溶解 BMICI (温度 80℃) (添付資料 3, 図 1)
非可逆系で、-0.87V に還元波、0.02V に酸化波が観測された。
- ・ NaF 溶解塩化コリン+尿素 (温度 50℃)
非可逆系で、-0.96V に還元波、0.2~1.0V の領域に複数の酸化波が観測された。
- ・ UF_4 溶解塩化コリン+尿素 (温度 50℃)
非可逆系で、-0.81V に還元波、0.1~1.0V の領域に複数の酸化波が観測された。

以上のように、いずれの場合においても非可逆的な酸化還元波が観測され、各イオン性液体中のウランは、電位を制御することにより電極表面でウランを還元析出しうる可能性があることが明らかになった。

更に、各ウラン溶解試料において、自然電位から正の方向へ走引を開始した場合、 UF_4 を溶解した試料には酸化波が観測されたが、NaF を溶解した試料では酸化波は現れなかった。これは、NaF 吸着剤中のウランの原子価が 6 価であるため、溶存化学種も UO_2^{2+} であると考えられることから、NaF 溶解試料中には酸化されるウラン化学種は存在しないことに起因すると言える。

一方、 UF_4 の溶解機構については検討中であるが、溶解試料の紫外・可視吸収スペクトルの 600nm 付近に吸収帯が現れるケースもあり、 UF_4 は一旦 U^{4+} としてイオン性液体中に溶解した後、 UO_2^{2+} へ酸化される可能性も示唆している。従って、 UF_4 溶解試料中に還元体 (U^{4+}) が存在する可能性があることから、正方向に走引を開始した場合に酸化波が現れたものと考えられる。

②ウラン電解回収のための予備的検討（添付資料3, 図2）

先に検討したウラン溶解試料の CV 測定結果から、各イオン性液体中で溶存ウランが還元されることが明らかになった。この結果に基づき、ウラン電解回収の可能性について検討するため、UF₄ の溶解性が比較的高い BMICI を用いて定電位電解還元の予備試験を実施した。

陰極に炭素棒、陽極にグラッシーカーボン、参照電極に Ag/AgCl (3mol/dm³ NaCl) 電極を用いた。陽極での酸化生成物が陰極の還元生成物を再酸化する可能性があることから、陰極と陽極を隔離する目的で、バイコールガラスを装着したガラス管を陽極室に用いた。BMICI と BMINfO (NfO:nonafluorobutanesulfonate: 常温で液体) を混合して陽極液とした。

CV 測定の結果から、電解電位を -1.5V vs. Ag/AgCl とし、約 5 時間の定電位電解を実施した。電解終了後、陰極に付着したイオン性液体をエタノールで洗浄し自然乾燥させた後、1mol/dm³ HNO₃ 水溶液に浸した。この HNO₃ 洗浄液を ICP 発行分光分析により分析した結果、ウランが検出された。これにより、ウラン汚染物を溶解したイオン性液体中のウランを電解還元により回収できる可能性が示唆された。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 19 年度の予定

1) イオン性液体中へのウラン汚染物の溶解性と化学形態の検討

①ウラン汚染物溶解用イオン液体の検討

平成 18 年度に引き続き、NaF 吸着剤中の Na₃UO₂F₅ 及び鋼材付着物の UF₄ を溶解するのに適したイオン性液体の選定及び最適溶解条件の選定のための試験を行う。BMICI と(塩化コリン+尿素)系での溶解反応をより詳細に検討し、溶解機構を明らかにし、より融点が低くかつ容易な溶解を可能とするイオン性液体及び条件を選定する。

②イオン性液体中でのウランの化学形態の検討

各種分光法を用いて、イオン性液体中でのウランの化学形態を検討し、溶解性と構造の関係について考察する。

2) イオン性液体中のウランの酸化還元挙動の解明

①電気化学的反応機構の検討

平成 18 年度に検討した BMICI と(塩化コリン+尿素)系での溶解したウランの電気化学的反応を詳細に検討し、還元電位を決定するとともに還元生成物を同定する。その際、光透過性薄層電極(OTTE)を製作し、還元反応での生成物の同定に用いる。また、1) の①で選定されたイオン性液体系での溶解ウランの電気化学的反応について考察し、還元条件及び生成物を把握する。

②定電位電解試験

①で選定された還元電位において、ウランを溶解したイオン性液体を用いた定電位電解試験を行い、電解条件について検討する。また、電極に析出した化合物あるいは沈殿物の同定を行う。これにより、ウランの回収条件を把握する。

3) イオン性液体のキレート抽出挙動の把握

イオン性液体を抽出分離における抽出相に利用する研究を行う。TBP 等の各種ウラン抽出剤を疎水性イオン性液体へ溶解し、ウラン汚染物を溶解した酸性水溶液からのウラン抽出試験を実施する。

平成 20 年度の予定

1) イオン性液体中のウランの酸化還元挙動の解明

平成 19 年度の成果に基づき、実汚染物を用いた電解回収試験を行い、イオン性液体を用いたウラン回収法の基本的成立性を確認するとともに、課題を抽出する。

2) イオン性液体のキレート抽出挙動の把握

平成 19 年度の成果に基づく、より詳細に抽出機構を検討するとともに、効率的なウラン回収条件を把握するための試験を行う。

3) 総合評価

3 年間の成果に基づき、イオン性液体を媒体としたウラン回収法について検討・評価し、開発課題を抽出する。

【研究成果の公表】

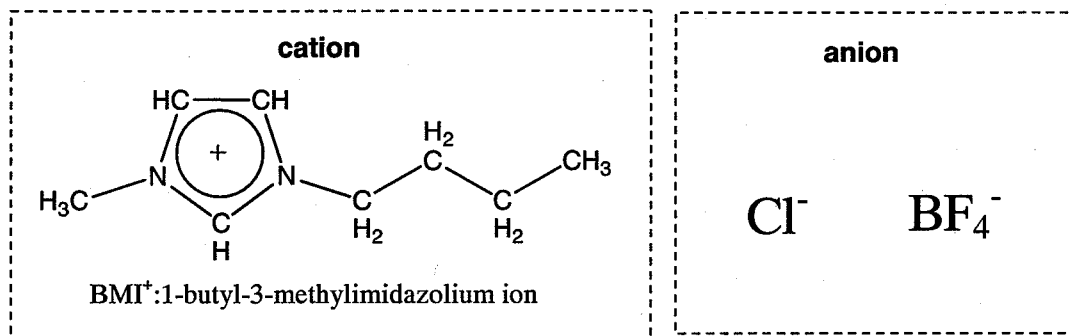
<論文>

- 1) K. Hiroe, M. Harada, and N. Asanuma, and Y. Ikeda, "Structural and Electrochemical Studies on Uranyl Complexes in 1-butyl-3-methyimidazolium Chloride Dissolving UO_2Cl_2 and $\text{Cs}_2\text{UO}_2\text{Cl}_4$," *Inorg. Chim. Acta*, to be submitted.

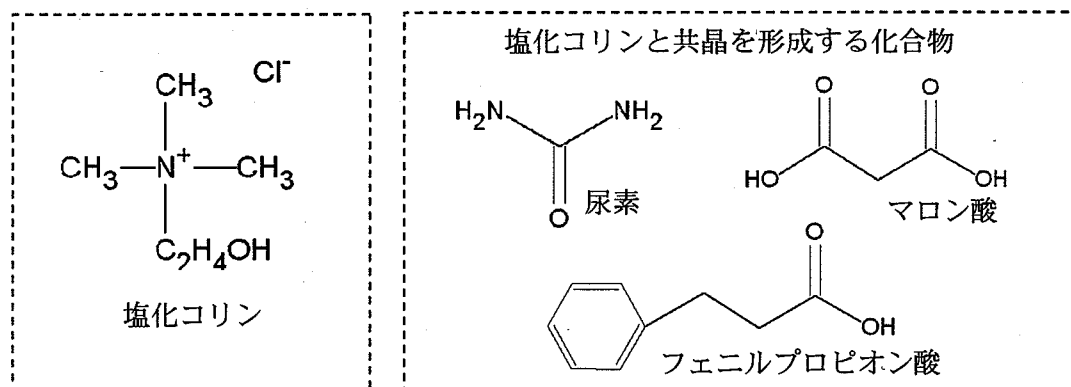
<国際会議>

- 1) N. Asanuma and Y. Ikeda, "Dissolution Behavior of Uranium Oxides and Electrochemical Properties of Uranyl Ion in Ionic liquids," NUPYRO 2006, Korea-Japan Workshop on Nuclear Pyroprocessing, Kyongju, Korea, November, p.31, 2006.
- 2) N. Asanuma, Y. Ohashi, M. Harada, Y. Wada, and Y. Ikeda, "Dissolution Behavior of UF_4 in 1-butyl-3-methyimidazolium Chloride," 2nd International Congress on Ionic Liquids (COIL-2), August 6-10, 2007, Yokohama, Japan. (発表予定)

添付資料 1



(a) BMI系 (イオン性液体)



(b) 塩化コリン系(共融混合物)

図1 本研究で検討したイオン性液体

表 1. イオン性液体による使用済 NaF 中のウランの溶解

	溶解条件				溶解結果			
	NaF 量 (g)	IL 量(g)	IL 温度 (°C)	時間 (h)	IL 中の U 濃度 (g/kg)	IL 中の Na 濃度 (g/kg)	U 溶解率 (%)	Na 溶解率 (%)
BMICl	0.1	4.2	100	3	4.7	0.31	86	5.6
BMICl	0.5	1.1	100	24	62	0.36	65	0.32
BMICl	0.3	5.0	100	7	10	—	82	—
尿素・塩化 コリン	0.1	4.8	100	3	3.1	0.22	64	4.6
尿素・塩化 コリン	0.5	1.2	100	24	15	2.6	16	2.7
尿素・塩化 コリン	0.3	6.1	100	~5	6.8	—	60	—
マロン酸・ 塩化コリン	0.3	5.6	70	~5	5.5	—	48	—
フェニルプロ ピオン酸・塩化コ リン	0.2	3.8	100	~5	0.79	—	6	—

表 2. イオン性液体による UF₄ の溶解

	溶解条件				溶解結果	
	UF ₄ 量(g)	IL 量(g)	IL 温度 (°C)	時間(h)	IL 中の U 濃度 (g/kg)	U 溶解率(%)
BMICl	0.1	5.0	100	9	16	100
BMICl	0.1	1.1	100	24	71	100
尿素・塩化コリ ン	0.1	1.2	100	24	17	26
尿素・塩化コリ ン	0.1	6.5	100	~5	4.3	37
マロン酸・塩化 コリン	0.1	5.0	50~80	6	1.0	7
フェニルプロ ピオン酸・塩化 コリン	0.1	3.4	80	2	0.86	6

表 3. イオン性液体による Ca 系廃物中のウランの溶解

	溶解条件				溶解結果			
	Ca 系廃 物量(g)	IL 量(g)	IL 温度 (°C)	時間(h)	IL 中の U 濃度 (g/kg)	IL 中の Ca 濃度 (g/kg)	U 溶解率 (%)	Ca 溶解率 (%)
BMICl	0.1	1.1	100	3	0.012	9.4	2.9	24
尿素・塩化 コリン	0.1	1.2	100	3	0.050	0.47	12	1.2

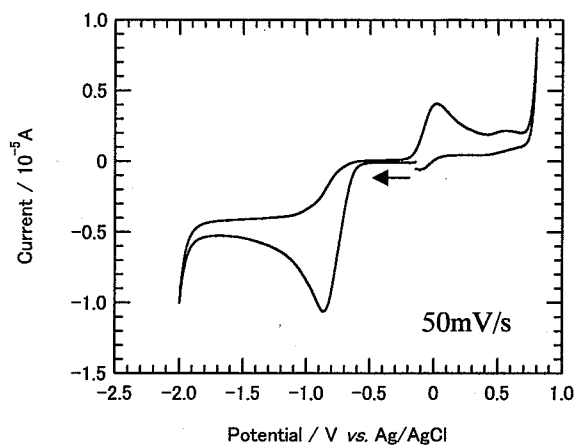


図1 UF₄溶解 BMICl のサイクリックボルタモグラム (80°C)
WE : グラッシーカーボン, CE : Pt 線, RE : Ag/AgCl

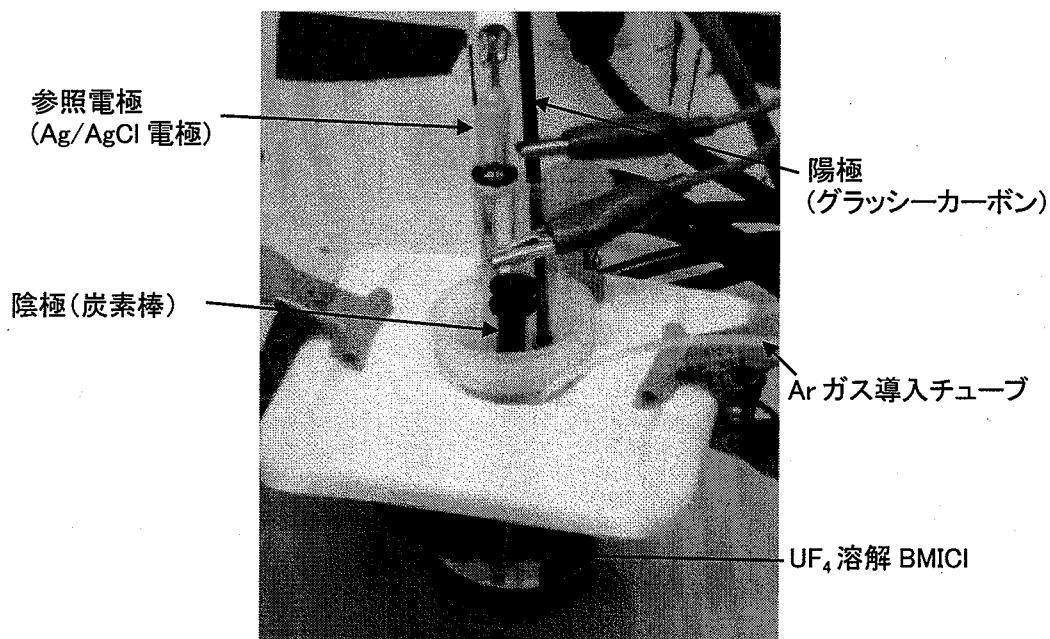


図2 定電位電解 (予備的検討) の装置図

2.3 放射線安全關係

This is a blank page.

2.3.1 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	緊急時被ばく線量評価手法に関する研究		
研究協力課題	天然鉱物を用いたルミネッセンス法による被ばく線量測定方法の開発		
研究者所属、氏名			
大学側	新潟大学理学部化学科 橋本 哲夫* [*客員研究員 **研究生]		
機構側	東海研究開発センター 核燃料サイクル工学研究所 放射線管理部環境監視課 藤田 博喜		
研究実施場所	(大学側) 新潟大学理学部無機化学研究室 (機構側) 安全管理棟		
通算研究期間 (予定)	平成 16 年 4 月 ~ 平成 19 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 18 年 4 月 ~ 平成 19 年 3 月
研究協力形態	<input checked="" type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
天然鉱物からのルミネッセンス現象を利用して、線量測定素子を設置していない場所での高感度線量測定方法を開発する。			
【研究内容 (概要)】			
<p>砂利や石材等に普遍的に含まれる石英や長石等の天然鉱物は、電離放射線との相互作用の結果により様々なルミネッセンス現象を引き起こす。このうち、天然鉱物は放射線照射後、光照射や加熱により光を発する熱・光励起ルミネッセンス現象が報告されている。観察される発光量は、測定前までに被ばくしてきた線量に比例することから、これを積算線量測定に適用する技術開発を行う。これまでに明らかにされていない天然鉱物からのルミネッセンス発光機構の解明、蓄積したルミネッセンス量を減少させる要因である太陽光や地熱等の影響の定量的な把握、最終的には緊急時及び平常時の環境モニタリングへ適用可能な天然鉱物によるルミネッセンス線量測定手法の開発を行う。ここで開発した線量測定手法を適用して、東海村周辺の天然鉱物からのバックグラウンドとしての蓄積ルミネッセンス量 (積算線量) の把握を行う。</p>			
【使用主要施設】			
<ul style="list-style-type: none"> ・大学側：ルミネッセンス自動測定装置、γ線照射線源、ESR 測定装置、IR 測定装置 ・機構側：ルミネッセンス自動測定装置 (改良型) 			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 16 年度は、熱ルミネッセンス発光機構の解明に関する実験及びルミネッセンス発光量に対する太陽光及び地熱等の影響調査を行った。

- (1) 熱ルミネッセンス (TL) 発光機構の解明に関する実験的検討
- (2) 光励起ルミネッセンス (OSL) 測定による積算線量の深度プロファイルを作成

平成 17 年度は、施設周辺のバックグラウンド調査及びルミネッセンス法による緊急時被ばく線量評価手法に関する検討を実施した。

- (1) 赤色 TL に関連する電子トラップセンターの熱力学的パラメータの見積もり
- (2) 紫色 TL に関する基礎実験
- (3) OSL 測定における線量率効果とその原因に関する研究

平成 18 年度は、平成 17 年度に見出した紫色 TL の基礎と線量測定への応用に関する研究を実施した。

- (1) 紫色 TL の繰り返し加熱に対する感度変化の調査
- (2) 紫色 TL 線量測定法の複数試料への適用実験

【研究成果（当該年度）】

平成 18 年度は、施設周辺のバックグラウンド調査及びルミネッセンス法による緊急時被ばく線量評価手法に関する検討を行った。最終年度であるため、本先行基礎工学研究において開発した VTL 線量評価手法の妥当性について検討を行なった。これについては、当初予定していなかった項目である。平成 17 年度において、紫色 TL は、1) 天然バックグラウンドがない、2) 線量応答性がある、3) 平均寿命が短い、4) 発光感度が高いという特徴を有していることを明らかにし、紫色 TL による緊急時被ばく線量評価の可能性を見出した。さらに、紫色 TL による線量評価手法の検出下限値を見積もった結果、数十 mGy 程度であることが分かった。このように紫色 TL の緊急時線量評価手法としての可能性を見出したが、繰り返し加熱に対する感度変化の検討を行なっていなかったため、これについて実験を行なった。実験方法としては、ルミネッセンス自動測定装置により、同一の石英粒子に X 線照射と紫色 TL 測定を複数回繰り返し、紫色 TL の感度変化を調査するというものである。この結果、Figure 1 に示すように、80℃、110℃及び 130℃のピークでは感度変化が見られたが、200℃及び 270℃のピークでは感度変化がないことが分かった。このことから、80℃から 130℃のピークを線量測定に使用する場合には、繰り返し測定による感度変化の補正が必要であるが、200℃及び 270℃のピークを線量測定に使用する場合には、補正等の必要がないことを確認した。これは、紫色 TL 線量測定方法における基礎データとなる。ただし、本線量評価手法の対象が天然鉱物であるため、その鉱物の生成起源によって、性質の異なることが予想されるため、これについては、各線量測定前に確認する必要がある。

さらに紫色 TL 線量評価手法の妥当性を検討するため、独立行政法人 農業生物資源研究所 放射線育種場の所有するガンマフィールドにおいて、石英粒子への照射実験を行なった。実験方法としては、実際の緊急時線量評価手法を模擬するため、サイクル工研周辺で採取した土壌を容器に詰め、それをガンマフィールド内の土壌中に埋設し、Co-60 線源による照射を行なう。そして、8 時間の照射後に

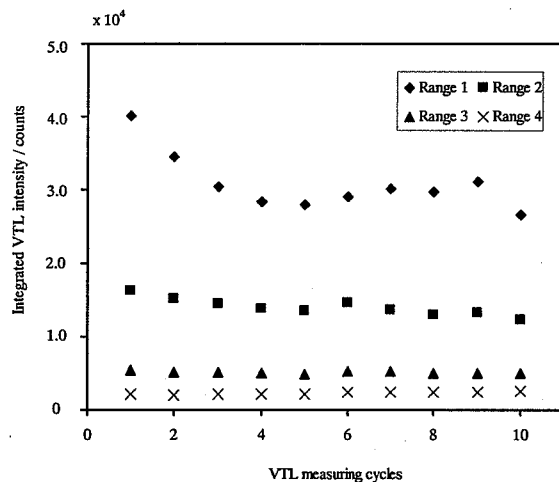


Figure 1
Sensitivity changes of the quartz grains when applying VTL-measurements cycles.
The quartz grains were irradiated with X-ray of 20 Gy.
Range 1: Peak at 110 °C, Range 2: Peak at 130 °C
Range 3: Peak at 200 °C, Range 4: Peak at 270 °C
(出展; Oxford University Press: "Radiation Protection Dosimetry"(2006 年)doi:10.1093/rpd/ncl108)

容器を回収し、土壌中から石英粒子を抽出して紫色 TL 線量測定法による線量測定を実施するというものである。この容器の設置時には、ポケット線量計も合わせて設置し、そのポケット線量計の指示値と紫色 TL 線量測定法による測定結果を比較する。本実験には、2種類の土壌を使用した。線量測定の結果、それぞれ 0.86 ± 0.26 、 0.84 ± 0.12 Gy という結果が得られ、ポケット線量計の指示値である 0.79 Gy とほぼ一致した。これらのことから、本先行基礎工学研究において開発した紫色 TL 線量測定手法の妥当性を確認することができた。ここで得られた結果については、更なる検討を行い、平成 19 年度に論文として投稿する予定である。

(参考)

ガンマフィールドとは、半径 100m の円形圃場で、中央に 88.8TBq (テラベクレル) の Co-60 線源を装備した照射塔があり、周囲を高さ 8m の防護用の土堤で囲まれた野外緩照射用施設である。

【成果の反映状況】

本研究により整備した自動ルミネッセンス測定装置を使用した関連研究が、原子力機構の平成 18 年度の萌芽研究で採択された。また、本研究をさらに発展させるためにここで得られた実験結果を基に科研費にも応募した。

本研究期間で開発した紫色 TL 線量評価手法については、今後も研究を継続して行い、汎用性を確認した後に、緊急時線量測定手法として世の中に普及させていきたいと考える。

【研究成果の公表】

<論文>

- 1) Influence of Radioluminescence on Optically Stimulated Luminescence from Natural Quartz Grains, 藤田博喜, 橋本哲夫, *Radioisotopes*, 55, 117-123 (2006) (査読有) 論文奨励賞受賞
- 2) Comparison of accumulated doses in quartz and feldspar extracts from atomic bomb-exposed roof tiles using several luminescence methods, 橋本哲夫, 藤田博喜, 坂上央存, 中田裕子, 野村幸子, *Radiat. Meas.*, 41, 1015-1019 (2006) (査読有)
- 3) Effects of annealing temperatures on some radiation-induced phenomena in natural quartz, 藤田博喜, 橋本哲夫, *Radiat. Meas.*, doi:10.1016/j.radmeas.2007.02.053 (in press) (査読有)
- 4) Usability of VTL from natural quartz grains for retrospective dosimetry, 藤田博喜, 橋本哲夫, *Radiat. Prot. Dosim.*, doi:10.1093/rpd/ncl108 (in press) (査読有)

<国内会議>

- 1) 天然石英粒子を用いた放射線線量測定に向けての基礎的研究, 藤田博喜, 橋本哲夫, 日本保健物理学会第 38 回研究発表会, 4 月 22 日 (2004)
- 2) 天然石英からのルミネッセンス特性, 藤田博喜, 橋本哲夫, 第 48 回放射化学討論会, 10 月 27 日 - 29 日 (2004)
- 3) 天然石英におけるラジオルミネッセンスの線量測定に及ぼす影響についての研究, 藤田博喜, 橋本哲夫, 日本保健物理学会第 39 回研究発表会, 6 月 29 日 ~ 7 月 1 日 (2005)

<国際会議>

- 1) Radioluminescence from some Natural Quartz Samples, 藤田博喜, 橋本哲夫, The 3rd New World Luminescence Dating Workshop, 7 月 4 日 ~ 7 日 (2004)
- 2) Effects of Al-OH and other impurities on thermoluminescence property of natural quartz slice, 橋本哲夫, 藤田博喜, 田近靖博, 山口貴弘, The 3rd New World Luminescence Dating Workshop, 7 月 4 日 ~ 7 日 (2004) (ポスター発表)
- 3) Self-Bleaching Effects by Radioluminescence on OSL-Responses of Natural Quartz Samples, 藤田博喜, 橋本哲夫, 11th International Conference on Luminescence and Electron Spin Resonance Dating (LED2005), 7 月 24 日 ~ 29 日 (2005)
- 4) A portable system installed with a mini X-ray generator for red/blue TL and OSL measurements, 橋本哲夫, 竹内友之, 藤田博喜, UK Luminescence and ESR Meeting, 9 月 6 日 ~ 8 日 (2006)

2.3.2 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	放射線空間分布の実時間測定		
研究協力課題	γ線位置検出装置による放射線空間分布の実時間測定		
研究者所属、氏名			
大学側	早稲田大学 理工学総合研究センター 教授 長谷部信行、宮島光弘 [*客員研究員 **研究生]		
機構側	敦賀本部 安全品質推進部 環境監視課 石塚晃弘		
研究実施場所	早稲田大学 理工学総合研究センター 原子力機構 高速増殖炉研究開発センター 環境管理棟		
通算研究期間	平成 16 年 6 月 ~ 平成 19 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 18 年 4 月 ~ 平成 19 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>原子力緊急時において放射線強度の空間分布及び時間変動を高精度かつ迅速に計測することは大変重要であり、これら一連の計測作業において放射線強度の 3 次元分布を一挙に計測できることの意義は多大である。</p> <p>研究では、低エネルギーγ線及び高エネルギーγ線の位置検出器の試作・測定を行い、そこから得られた結果を解析し、放射線量をダイレクト且つリアルタイムで計測すると共に、エネルギーを識別したγ線像を視覚的に確認可能なシステムの構築を行う。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>常圧付近のキセノンガスにより低エネルギーγ線ピンホールカメラを実現し、高圧キセノンによりγ線コンプトン型撮像装置を実現する。さらに、これらと光学撮像装置を利用して放射能分布、線量分布とそれらの時間変動の実時間測定を可能にするためのハード及びソフト開発の基礎研究を行う。</p> <p>ピンホールカメラ、コンプトン型撮像装置は、γ線によるキセノンの発光現象（シンチレーション）及び電離現象を利用し、ピンホールカメラでは更に比例蛍光を利用する。γ線のエネルギーは、電離現象による電離電子数を測定（コンプトン型撮像装置）するか、或いは比例蛍光光子数を測定（ピンホールカメラ）して求めることで波高分析及び線量計測が可能になる。撮像に関しては、シンチレーション検出時を時間の基点とした電離電子群の移動時間を測定し、且つ二次元位置読出電極を用いて三次元的に位置を決定する。また、γ線による反跳電子の飛跡を再構成することでγ線の入射方向が決定できる（コンプトン型撮像装置）。一方、ピンホールカメラでは、ピンホールの位置と相互作用点の情報からγ線の入射方向を決定する。</p>			
【使用主要施設】			
早稲田大学 理工学総合研究センター内 研究室 (オシロスコープ、Xe純化装置、波高分析器)			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 16 年度は以下の項目を実施した。

- 1) 原子力緊急時における放射線状況の検討・調査
- 2) 高純度キセノンガス純化システムの検討・装置設計・製作
- 3) 光ダイオードのテスト、シンチレーション発光強度の測定
- 4) Xe ガス中での電子の拡散係数の測定
- 5) コンプトンカメラの角度分解能シミュレーション
- 6) ピンホールカメラの設計、図面作成、製作

平成 17 年度は以下の項目を実施した。

- 1) 高純度キセノンガス純化システムの動作試験
- 2) ピンホールカメラの角度分解能及び検出効率に関する評価
- 3) Si-PIN 光ダイオードによる比例蛍光の観測
- 4) Xe ガス中での電子輸送過程
- 5) コンプトンカメラ試作器の設計、図面作成、製作

平成 18 年度は以下の項目を実施した。

- 1) コンプトンカメラのモンテカルロシミュレータの構築
- 2) コンプトンカメラ試作機によるアルファ線軌跡再構築
- 3) ピンホールカメラの線量計測システム・視覚化システムの開発

【研究成果（当該年度）】

1. コンプトンカメラのモンテカルロシミュレータの構築

これまでに取得した電子輸送係数及びシンチレーション発光量を考慮し、MeV 領域ガンマ線コンプトン型撮像装置の主な挙動を再現することができるシミュレーターをモンテカルロ法に基づいて構築した。充填ガスをキセノン、密度を 0.06g/cc とすると、分布線源に対して従来の三つの γ 線光子を用いるコンプトン望遠鏡方式ではイメージを取得できない一方で、MeV 領域ガンマ線コンプトン型撮像装置では、1-5MeV のガンマ線に対して角度分解能にして約 10 度という優れた結果が得られた。また、点状線源に対しては、2MeV のガンマ線に対する典型的な角度分解能として 2 度を下まわる極めて良い結果が得られた。

2. コンプトンカメラ試作機によるアルファ線軌跡再構築

33 系統の信号増幅回路及び波高弁別器を用いて、ガンマ線のエネルギー及び荷電粒子の軌跡の測定を行うことができる計測システムを構築した。平成 17 年度までに試作機として製作したワイヤー間隔 3mm のグリッド付マルチワイヤー比例計数管にキセノン 1 気圧を充填し、 α 線源として Am を陰極部に設置することでエネルギースペクトルの取得を行った。陰極・グリッド間及びグリッド・陽極間の最適な電場比は 1:4 であり、現時点でのエネルギー分解能は半値幅で約 3% である。また、ワイヤーに印可する電圧を高め増倍率の測定を行った。コンプトン型撮像装置では、コンプトン散乱による反跳電子の軌跡を取得する必要があるが、実環境下で測定対象とする γ 線は α 線と比較して比電離密度が小さいため、一本のワイヤー当たり 50 から 200 倍程度の増倍率が必要である。現在、グリッド・陽極間にかかる最大電場 2.4kV/cm では必要な増倍率が得られていないため、今後さらに印可可能な電圧を高めなければならない。

上記の計測システムを用いて α 線の軌跡の再構築を行った結果、構築したシステムが想定通りに動作することを確認した。トリガーには比例増倍による発光を利用し、アバランシェ光ダイオードの印可電圧 1850V で 90% 以上の効率を得ることが出来た。

3. ピンホールカメラの線量計測システム・視覚化システムの開発

線量計測については、エネルギー決定用の比例蛍光検出器を keV 単位に校正し、次々に検出される信号波高の単位時間当たりの総和を線量率とする。また、視覚化に関するソフトウェアは現在開発段階にあるが、X 方向の平均値を横軸に Y 方向の平均値を縦軸に、その交点に最大線量率を最濃色として色分けし、線量率をプロットすることで視覚化は実現可能である。

【成果の反映状況】

ピンホールカメラの撮像試験が未完でありその波及効果はないが、比例蛍光の観測法、観測結果は、他の γ 線撮像装置としての高圧キセノン TPC 開発に反映されている。また、線量計測法は、今後の空間線量モニタリングにも取り入れ可能である。

【研究成果の公表】

<論文>

- 1) S. Kobayashi, N. Hasebe, T. Hosojima, T. Ishizaki, K. Iwamatsu, M. Mimura, T. Miyachi, M. Miyajima, K. Pushkin, C. Tezuka, T. Doke, M. -N. Kobayashi, E. Shibamura; "Ratio of Transverse Diffusion Coefficient to Mobility of Electrons in High-Pressure Xenon and Xenon Doped with Hydrogen", Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 45, No. 10A, 2006, pp. 7894-7900. (査読有)
- 2) K. N. Pushkin, N. Hasebe, C. Tezuka, S. Kobayashi, M. Mimura, T. Hosojima, T. Doke, M. Miyajima, T. Miyachi, E. Shibamura, V. V. Dmitrenko, S. E. Ulin: "A scintillation response and an ionizing yield in pure xenon and mixtures of it with methane" Instruments and Experimental Techniques (Russia), Vol. 49, No. 4, pp. 489-493., 2006. (査読有)

<国内会議>

- 1) S. Kobayashi, C. Tezuka, T. Doke, N. Hasebe, T. Hosojima, M. Mimura, M. Miyajima, T. Miyachi, E. Shibamura, M.-N. Kobayashi: "ELECTRON TRANSPORT PROPERTY IN XENON: DRIFT VELOCITY, CHARACTERISTIC ENERGY AND LONGITUDINAL DIFFUSION COEFFICIENT", Proc. of the 20th Workshop on Radiation Detectors and Their Uses, 2006-2 pp. 197-205. (査読有)
- 2) M. Mimura, T. Hosojima, O. Okudaira, S. Kobayashi, C. Tezuka, N. Hasebe, M. Miyajima, T. Miyachi, N. Yamashita: "Development of A Low Energy Gamma-ray Pinhole Camera", Proc. of the 20th Workshop on Radiation Detectors and Their Uses, 2006-2, pp. 112-120. (査読有)
- 3) 三村光輝, 小林進悟, 手塚千幹, 道家忠義, 長谷部信行, 宮島光弘, 宮地孝, 柴村英道, 石塚晃弘: "高圧キセノンタイムプロジェクションチェンバーの角度分解能", 2006 年秋季第 67 回応用物理学学会学術講演会, 2006 年 8 月 29 日~9 月 1 日, 立命館大学
- 4) 三村光輝, 長谷部信行, 宮島光弘, 道家忠義, 宮地孝, 小林進悟, 手塚千幹, 柴村英道, 石塚晃弘: "惑星遠隔探査に向けた高圧キセノンタイムプロジェクションチェンバーの開発", ガスカウンター及びシンチレーションカウンターの基礎と応用に関するシンポジウム, 2007 年 3 月 2 日, 早稲田大学
- 5) 小林進悟, 手塚千幹, 道家忠義, 長谷部信行, 三村光輝, 宮島光弘, 宮地孝, 柴村英道: "キセノンガス中の電子輸送過程のガス密度の及ぼす影響", ガスカウンター及びシンチレーションカウンターの基礎と応用に関するシンポジウム, 2007 年 3 月 2 日, 早稲田大学
- 6) 宮島光弘, 三村光輝, 長崎昂, 小林進悟, 手塚千幹, 長谷部信行, 宮地孝, 柴村英道, 石塚晃弘: "キセノン・ピンホール X 線カメラの開発", ガスカウンター及びシンチレーションカウンターの基礎と応用に関するシンポジウム, 2007 年 3 月 2 日, 早稲田大学

<国際会議>

- 1) M. Mimura, N. Hasebe, M. Hareyama, T. Hosojima, T. Ishizaki, S. Kobayashi, T. Miyachi, M. Miyajima, O. Okudaira, K. Sakurai, C. Tezuka, N. Yamashita, T. Doke, M. -N. Kobayashi, A. Ishizuka, E. Shibamura; "Simulation toward Development of A New Gamma-ray Imaging Spectrometer", Proc. of the 25th Inter. Symp. on Space Tech. and Sci. (Selected Papers), June 4-11, 2006, pp. 1009-1013. (査読有)

2.3.3 先行基礎工学研究に関する平成18年度研究概要報告書

研究協力テーマ	プルトニウム同位体等の LX 線高精度分光分析に係る研究		
研究協力課題	LX 線検出超伝導相転移端温度計マイクロカロリメーターの開発		
研究者所属、氏名	九州大学大学院工学研究院 石橋健二、前畑京介、有馬秀彦、執行信寛 〔*客員研究員 **研究生〕		
大学側	九州大学大学院工学研究院 石橋健二、前畑京介、有馬秀彦、執行信寛 〔*客員研究員 **研究生〕		
機構側	核燃料サイクル工学研究所 放射線管理部 高崎浩司		
研究実施場所	九州大学伊都キャンパスウエスト2号館905-1実験室		
通算研究期間 (予定)	平成18年8月～ 平成21年3月	当該年度 研究期間	平成18年8月～ 平成19年3月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】	<p>プルトニウムを取扱う施設での個人被ばく管理及び事故時における内部被ばく線量評価において、プルトニウムの測定はきわめて重要である。プルトニウムの測定では、プルトニウムからの LX 線を分析する方法があり、その分析にはプルトニウムの LX 線放射率のデータが用いられる。</p> <p>プルトニウムには多数の LX 線を放出する微細構造があり、LX 線の放射率はプルトニウムの同位体ごとに異なっている。LX 線の微細構造については、従来の半導体検出器ではエネルギー分解能が低いため、十分な実測データが得られていない。また、LX 線の放射率も理論計算と実験データとの一致が良くなく、基礎的な物性データが不足しているのが現状である。</p> <p>近年、従来の半導体検出器よりも優れたエネルギー分解能を有する超伝導相転移端温度計(TES)型マイクロカロリメーターが開発されているが、プルトニウムなどの超ウラン元素の LX 線を分析する目的で開発されたものはない。</p> <p>本研究では、超ウラン元素の LX 線分析を目的とした TES 型マイクロカロリメーターを開発し、LX 線の微細構造及び放射率を評価する。得られた LX 線放射率のデータは現状の半導体検出器の評価精度の向上に有用である。また、TES 型マイクロカロリメーターによる超ウラン元素測定の実証により新しい分析・測定技術の開発が期待できる。</p>		
【研究内容(概要)】	<p>超ウラン元素の LX 線測定を目的とした TES 型マイクロカロリメーターの設計・作製を行う。さらに、液体ヘリウムを使用することなく簡便な操作で 200mK 以下の超低温を保持し、TES 型マイクロカロリメーターの高性能動作を可能とする計測システムを構築する。</p> <p>構築した TES 型マイクロカロリメーターシステムを用いて、^{241}Am線源や Pu 同位体から放射される LX 線を半値幅 50eV 以下のエネルギー分解能で分光分析を行い、超ウラン元素の LX 線の微細構造及び放射率を評価する。</p>		

【使用主要施設】

- ・超伝導相転移端温度計 (TES) 型マイクロカロリメーター (開発を含む)
測定エネルギー範囲：10keV～20keV, 半値幅：50eV以下, 計数率：毎秒100カウント以上
- ・液体ヘリウム不要冷凍システム
ギフォード・マクマホン(GM)型クーラー搭載³He-⁴He希釈冷凍機 冷却保持温度：約150mK

【進捗状況 (当該年度までの概要)】

平成18年度は、プルトニウム同位体の LX 線を実測して放射率データを得るために、10keV から 20keV の LX 線光子を毎秒 100 カウント以上の計数率および半値幅 50eV 以下のエネルギー分解能で検出できる TES 型マイクロカロリメーター素子の設計・作製を行った。また、液体ヘリウムを利用する超低温実験環境の整備が十分ではない核燃料施設等において、液体ヘリウムを供給することなく簡便な操作で、TES 型マイクロカロリメーターを安定に動作させるシステム整備を行った。

【研究成果 (当該年度)】

○ 超伝導相転移端温度計(TES)マイクロカロリメーター素子の設計・作製

プルトニウム同位体が放射するエネルギーが 10keV から 20keV の LX 線光子を、半値幅 50eV 以下のエネルギー分解能で検出する TES 型マイクロカロリメーター素子を設計した。TES 素子は超伝導薄膜温度計に、入射 X 線のエネルギーを温度上昇に変換する吸収体が積層された構造である。温度計として機能する超伝導薄膜は、常伝導相から超伝導相への転移温度を 100mK とするために、厚さ 40nm の Ti 薄膜上に厚さ 120nm の Au 薄膜を積層した 2 層構造とした。この Au/Ti 薄膜温度計の動作温度と電気抵抗の値をそれぞれ T 及び R とすると、感度は $\alpha = (T/R)dR/dT > 100$ である。エネルギー 20keV の X 線を 50% の効率で検出するために、エネルギー吸収体として厚さ 5 μm の Au を Au/Ti 薄膜温度計上に積層した。Au/Ti 薄膜温度計及び Au 吸収体の面積は、最大 30keV の X 線光子を半値幅 10eV 以下のエネルギー分解能で検出できるように、それぞれ 600X600 μm^2 及び 300X300 μm^2 とした。この TES 素子の検出パルス減衰時定数を簡単な素子動作モデルを使って評価すると 150ps 程度であり、計数率 100cps 以上の動作が可能であると期待される。

○ 無冷媒希釈冷凍機を用いた TES 型マイクロカロリメーター動作システム整備

TES 型マイクロカロリメーターを動作するには、³He-⁴He 希釈冷凍機などを用いて 100mK 以下の超低温まで冷却する必要がある。通常、核燃料物質等を取り扱う施設においては液体ヘリウムを利用する超低温実験環境の整備が十分ではない。そこで、本研究では、液体ヘリウムを供給することなく簡便な操作で、TES 型マイクロカロリメーターを安定に動作させるために、ギフォード・マクマホン(GM)型クーラーを搭載した無冷媒 ³He-⁴He 希釈冷凍機を使用して TES 型マイクロカロリメーター動作システムを構築した。構築した TES 型マイクロカロリメーター動作システムを別紙図 1 の写真に示す。TES 型マイクロカロリメーターをこのようなコンパクトな無冷媒 ³He-⁴He 冷凍機で冷却して動作させた例はない。そこで、軽元素特性 X 線分析用に試作された相転移温度 200mK の TES 型マイクロカロリメーター素子と検出信号を読み出すための超伝導量子干渉素子(SQUID)増幅器を無冷媒 ³He-⁴He 冷凍機に取り付け、²⁴¹Am 線源の LX 線検出動作特性を調べるための予備実験を行った。予備実験では、GM クーラーが発生する振動に伴う厳しい雑音環境においても、SQUID 増幅器の動作を確認した。また、TES 素子の電流-電圧測定を行い、TES 型マイクロカロリメーターの検出動作に必要な電熱負帰還機構を確認した。しかしながら、X 線入射窓を付けた状態における熱負荷を検討したところ、今回設計した相転移温度 100mK の TES 素子を動作するには、冷凍能力が不十分であることがわかった。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成19年度

(1) TES型マイクロカロリメーター素子及びSQUID増幅器の冷凍機への実装

作製したLX線測定用TES型マイクロカロリメーター素子及びSQUID増幅器を冷凍機内に実装する。磁界があるとTES素子及びSQUID素子は磁束を捕獲して動作が著しく劣化する。磁気遮蔽のために最適な磁性材料により素子近傍を覆う。

(2) 無冷媒 ^3He - ^4He 希釈冷凍機を用いた計測システムの構築

無冷媒 ^3He - ^4He 希釈冷凍機用 ^3He 混合ガスハンドリングシステムの ^3He 混合ガス循環ポンプを高性能のものと交換し、無冷媒 ^3He - ^4He 希釈冷凍機の100mK領域における冷凍能力を增強する。無冷媒 ^3He - ^4He 希釈冷凍機を運転し、TES型マイクロカロリメーターの動作温度を数10 μK 以内の温度変動で保持できていることを確認する。また、冷凍機内の信号線路上に適当なフィルター回路を取り付け、高い信号対雑音比で計測可能な状況にする。さらに、冷凍機外部の試料から放射されるX線計測を可能とするX線入射窓の製作を行う。

(3) ^{241}Am 線源から放射されるLX線測定

無冷媒 ^3He - ^4He 希釈冷凍システムに取り付けたTES型マイクロカロリメーターを動作するための調整が整った後、 ^{241}Am 線源から放射されるLX線のエネルギースペクトルをTES型マイクロカロリメーターで測定する。

平成20年度

(1) TES型マイクロカロリメーター計測システムの改良

^{241}Am 線源のLX線放射率の測定試験での結果を基に、TES型マイクロカロリメーター、測定回路、液体ヘリウム不要型冷凍システム等の改良を行う。

(2) プルトニウムから放射されるLX線の測定

日本原子力研究開発機構の核燃料サイクル工学研究所施設において、プルトニウム試料を用いて、プルトニウム同位体から放射されるLX線をTES型マイクロカロリメーターにより測定する。測定で得られたLX線の精密なエネルギースペクトルを解析し、プルトニウム同位体のLX線放射率を評価する。

なお、試験の利便性から環境試料のプルトニウムの測定の可能性についても検討する。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 無冷媒小型希釈冷凍機に取り付けた SQUID 増幅器の動作特性、上野克宜、石橋健二、前畑京介、山口晃広、梅野高祐、高崎浩司、日本原子力学会 2006 年秋の大会
- 2) LX 線測定用 TES 型マイクロカロリメーターの開発、山口晃広、石橋健二、前畑京介、上野克宜、木村圭蔵、梅野高祐、高崎浩司、日本原子力学会 2006 年秋の大会
- 3) TES 型マイクロカロリメーターを用いたプルトニウム LX 線計測システムの開発、上野克宜、山口晃広、中村圭佑、前畑京介、石橋健二、高崎浩司、田中啓一、梅野高裕、日本原子力学会九州支部第 25 回研究講演発表会
- 4) 無冷媒希釈冷凍機に搭載した TES の動作特性、上野克宜、山口晃広、中村圭佑、前畑京介、石橋健二、高崎浩司、田中啓一、梅野高裕、日本原子力学会 2007 年春の年会

別紙

図 1

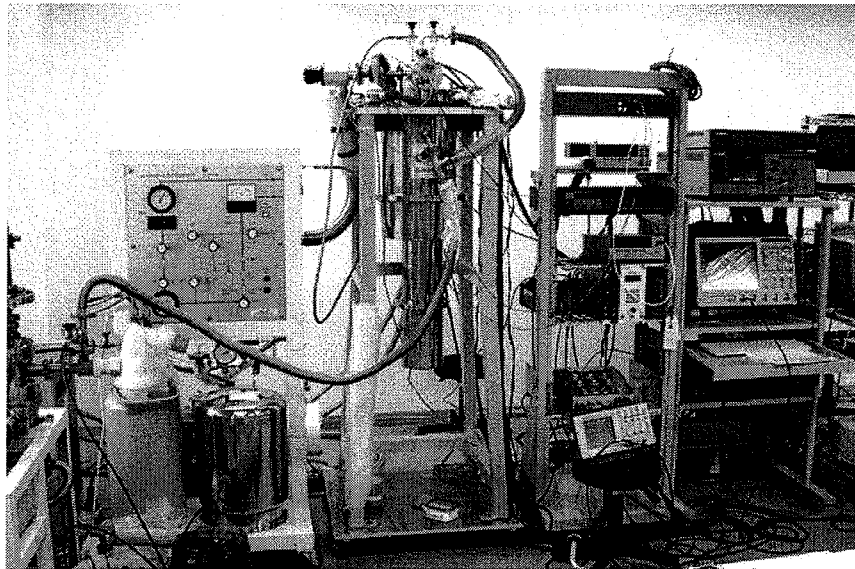


図 1 無冷媒 ^3He - ^4He 希釈冷凍計測システム

2.4 地層処分・地層科学関係

This is a blank page.

2.4.1 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	亀裂性岩盤中の微細な構造や不均質性が地下水移流・分散に与える影響評価		
研究協力課題	X線 CT による亀裂性岩盤内の移流・分散現象の分析		
研究者所属、氏名			
大学側	熊本大学大学院自然科学研究科 菅原勝彦, 佐藤 晃 〔*客員研究員 **研究生〕		
機構側	日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門 システム性能研究グループ 宮原要, 澤田淳		
研究実施場所	熊本大学工学部岩石試験室 熊本大学自然科学研究科 CT スキャナー室 日本原子力研究開発機構 核燃料サイクル工学研究所 地層処分基盤研究施設		
通算研究期間	平成 16 年 7 月 ~ 平成 19 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 18 年 7 月 ~ 平成 19 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】 高レベル放射性廃棄物の性能評価の信頼性を向上させるためには、亀裂中の微細な構造や不均質性が地下水の流れや物質移行に及ぼす影響を理解する必要がある。そのためには、亀裂中の開口幅分布を測定する技術を確立することが重要な課題となる。本研究の目的は、X線 CT による非破壊の亀裂開口幅評価技術の確立、また亀裂内部の溶質の移流・分散現象ならびに岩石マトリクス部への拡散現象の経時的な可視化技術の確立および定量的評価である。特に、岩盤をはじめとした地盤材料は異方性や不連続面を有することが多いことから、個々の場所で透水経路と考えられる空隙構造ならびに不連続面など密度構造の変化を評価し、不均質構造中の局所的、微視的な移流・分散現象のメカニズムの分析を行う。			
【研究内容 (概要)】 本研究では 10cm 規模の岩石試料を対象とし、画像間差分法を用いた X線 CT による亀裂開口幅の評価技術の確立を図るとともに、①亀裂内流体の移流・分散現象、②多孔質媒体中の溶質の拡散現象、③亀裂周辺の岩石マトリクス部への拡散現象について、溶質の濃度分布の経時変化を可視化し、透水・分散・拡散に関する諸定数の評価といった物質移行現象の詳細について検討する。また、高密度造影剤を利用することにより、溶質の移流・分散に伴う亀裂性岩盤の密度構造の変化を、X線 CT を用いて時系列的に可視化分析する。高密度の造影剤を用いた場合、溶液の粘性の影響が大きく、実際の汚染で問題となるような低密度での移流・分散現象の分析には、汚染物質の輸送に影響を及ぼさない新たな造影剤の開発が必要不可欠である。そこで本研究では、X線 CT で分析可能であり、かつ、輸送媒体となる水と同じ挙動を示す造影剤の開発も合わせて実施する。			
【使用主要施設】 東芝製 X線 CT スキャナー TOSCANRT-23000 (X線管電圧 300kV、X線管電流 2mA、最小分解能 0.293mm) 三次元座標測定装置 MITUTOYO 製「BRT710」			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 16 年度は、非破壊検査法の 1 つである X 線 CT 法により得られた画像データを基に、岩石試料内部に存在する亀裂の開口幅を評価する方法の確立を目指した。本研究では、スタッキング法・移動平均法などを基礎とした新たなノイズ処理技術を活用し、不均質な密度分布の岩石材料に対しても有効であると考えられる画像間差分法を用いた高精度の亀裂開口幅評価技術を開発し、その有効性を検証した。

平成 17 年度は、亀裂内および亀裂内に充填した流体から岩石マトリクス内部への物質の移行を可視化・分析するための実験方法の確立を目標とした。まず、岩石試料内部に物質が移行した際の見かけの密度変化を、現有の X 線 CT スキャナーで可視化でき、なおかつ、物質移行現象に影響を及ぼさないトレーサーとして、高密度かつ非吸着性のヨウ化カリウム溶液 (KI) を基本として、医療用の造影剤を添加した新たな造影剤を開発した。この造影剤を用いて、亀裂内部の流体の流速が非常に小さい場合を想定し、平板亀裂を有する岩石試料を用いた亀裂内における溶質の拡散と亀裂からマトリクス部への拡散の様子の可視化を試みた。その結果、これらの物質移行現象を X 線 CT 法により可視化できることを確認した。さらに、数値計算を用いてこれら可視化結果との比較検証を行った。

平成 18 年度は、平成 17 年度までに開発したトレーサーと画像処理技術を基に、亀裂内におけるトレーサーの移流・分散現象の可視化と分析を実施した。中央に割裂亀裂を有する花崗岩試料を岩石試料として用い、亀裂内に高密度トレーサーを流入させ、X 線 CT スキャナーにより亀裂内でのトレーサー移行の可視化を試みた。その結果、本研究で使用した X 線 CT スキャナーにより亀裂内を流れるトレーサーの可視化が十分可能であることを示した。また、X 線 CT から得られるデータから亀裂内部でのトレーサー移行を評価するための指標として、トレーサー密度増分係数を提案し、亀裂開口幅とトレーサーの移行プロセスとの関係を論じるとともに、流速の違いがトレーサー移行プロセスへ与える影響について検討した。その結果、亀裂開口幅とトレーサーの分散との関係を明らかにした。さらに、撮影断面ごとのトレーサー密度増分係数の経時変化を求めることで、亀裂内部でのトレーサーの移流速度を評価することができた。

【研究成果（当該年度）】

本年度は平成 17 年度までに開発したトレーサーと画像処理技術を基に、亀裂内におけるトレーサーの移流・分散現象の可視化と分析を実施した。具体的には、割裂により岩石試料内部に作成した亀裂を対象にトレーサー試験を実施し、亀裂内部をトレーサーが移行する様子を X 線 CT 法により可視化した。さらに、平成 16 年度に開発した X 線 CT による亀裂開口幅測定手法により求めた亀裂開口幅とトレーサー移行プロセスとの関係について検討した。

本研究では 100mm×100mm×100mm の花崗岩試料を用いた。岩石試料の中央に端面とほぼ平行に割裂亀裂を作成した。X 線 CT による撮影には熊本大学で運用している産業用 X 線 CT スキャナー（東芝製 TOSCANER-20000RE）を用いた。亀裂に対して垂直な断面の X 線 CT 画像の例を図 1 に示す。この図に示すように、X 線 CT 画像からは破断面を形成する主亀裂 (main crack) と共に、岩石マトリクス内部に進展している副亀裂 (sub-crack) を確認することができる。X 線 CT 法により評価した亀裂の開口幅の分布の例を図 2 に示す。この結果は y 軸方向に 41 画素の移動平均を実施して得られた結果である。本岩石試料の亀裂表面形状は接触式の三次元座標測定器を用いて 1mm 間隔で計測しており、その結果から亀裂の開口幅を評価している。X 線 CT 法による亀裂開口幅評価結果との比較のため、図 2 中にはこの結果を併せて示す。なお、平均亀裂開口幅は 0.23mm であった。このような亀裂を含む花崗岩試料を図 3 に示すように亀裂が鉛直方向になるように配置した。本研究では以下に示すトレーサー試験を実施した。まず、亀裂内部を予め水で飽和させた。この亀裂に対し、流量一定条件の下で H17 年度に開発した高密度のトレーサーを試料の下端から亀裂内部

に流入させた。トレーサーの流入により、亀裂内部を鉛直上向きにトレーサーが移行する。このとき、水とトレーサーでは密度が異なるので、トレーサーの流入した部分は見かけの密度が上昇することになる。ここでは、図3に示す試料の水平断面をX線CTスキャナーで撮影しトレーサーの移行を分析する。ある撮影断面において、トレーサーの流入により増加したCT値の分布を 図4 に示す。縦軸は亀裂に平行な方向の位置であり、横軸はトレーサーの流入による亀裂内のCT値の増分である。また、ここでは経過時間時間 $t=25、39、192$ 分における結果を同時に示す。このように、時間の経過とともにCT値が徐々に増加していく様子が分かる。

図4 はCT値の亀裂開口幅方向へ投影した値の増分であり、亀裂の開口幅に関する情報を含んでいる。したがって、トレーサーの移行にともなうトレーサー濃度変化を表す指標として溶液の密度増分によるCT値の増分に着目した係数を求める。いま、亀裂の開口幅を w 、亀裂内のトレーサー溶液と水とのCT値の差を ΔC_1 、水と空気のCT値の差を ΔC_w とすると亀裂部分のCT値の投影 p は次式で表される。

$$p = \Delta C_1 \cdot w = \alpha \cdot \Delta C_w \cdot w \quad (1)$$

ここで、 α は亀裂内トレーサーの密度により決定される量で、本研究ではトレーサー密度増分係数と称する。一方、式(1) の左辺は、トレーサーの移行過程で増加した亀裂内のCT値を示している。したがって、式 (1) より

$$\alpha = \frac{\Delta C_1}{\Delta C_w} \quad (2)$$

として得られる係数 α はトレーサーの流入により増加した流体の密度の増分の、水のCT値に対する比を表している。

図4 で示したCT値の分布から式 (2) の関係を用いて α の分布を求めた。その結果、位置により α の値が大きくばらついていることが分かった。 α の値が大きいということはその部分のトレーサーの濃度が高いことを示している。つまり、その箇所は水がトレーサーへ入れ替わった結果であり、その位置でより多くのトレーサーが流れたことを意味すると考えられる。したがって、この α の分布は解析対象断面内での流れやすさの分布を表していると考えることができる。ここで、 α の値がばらつく原因として亀裂の開口幅の分布が考えられる。そこで、 α 値の分布と亀裂開口幅の評価結果とを比較すると、亀裂開口幅が小さい部分で α は大きい値をとる傾向が読み取れた。本実験は流量一定条件でトレーサーを注入しているが、亀裂開口幅の大きい部分はトレーサーが充填されるまでの時間を要し、一方開口幅の小さい部分では、より早く亀裂内がトレーサーで置換されていることを示している。

撮影断面におけるトレーサー密度増分係数の平均値 $\bar{\alpha}$ と時間の関係を 図5 に示す。この図から、撮影断面にトレーサーが到達した時間は、実験開始から約 20 分程度であることが読み取れる。本岩石試料の平均開口幅から平板亀裂を仮定した場合のトレーサーの到達時間は約 23 分であり、両者の値はほぼ一致している。しかし、図5 から $\bar{\alpha}$ がほぼ一定の値に収束するのは150分以上であることが分かる。流れ方向に対して亀裂内部をトレーサーが一様に流れる1次元流れである場合、トレーサーの到達後は急激に $\bar{\alpha}$ の値が上昇し収束するはずである。したがって、この $\bar{\alpha}$ 値収束の遅延は、亀裂内部でトレーサーの流れが不均質であることを示唆している。すなわち、亀裂内部で選択的にトレーサーが流れる流路が存在するとともに、流れが相対的に遅い部分についてはトレーサーで満たされるまでにはより長い時間が必要であったことを示している。

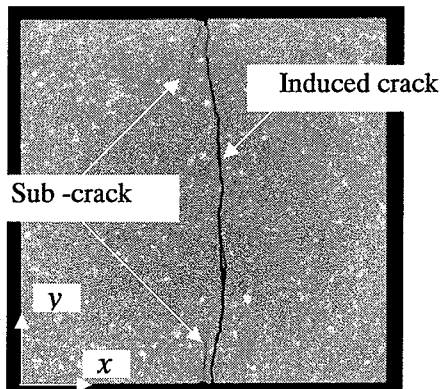


図1 花崗岩岩石試料のX線CT画像

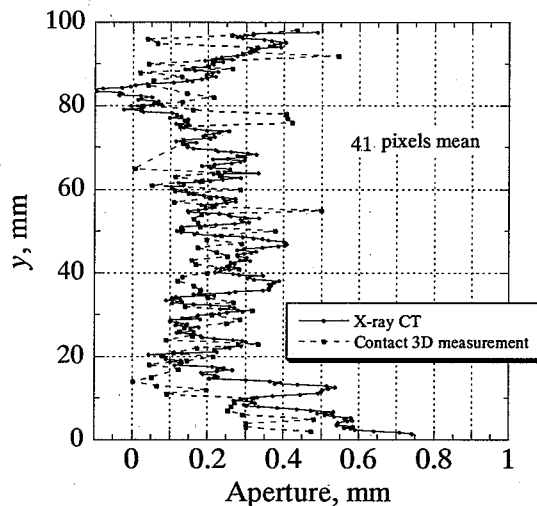


図2 亀裂開口幅評価結果

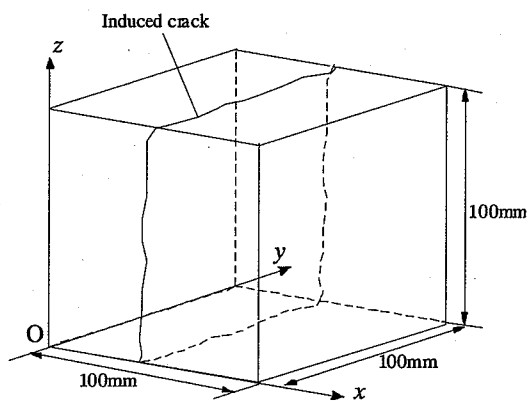


図3 岩石試料及び座標

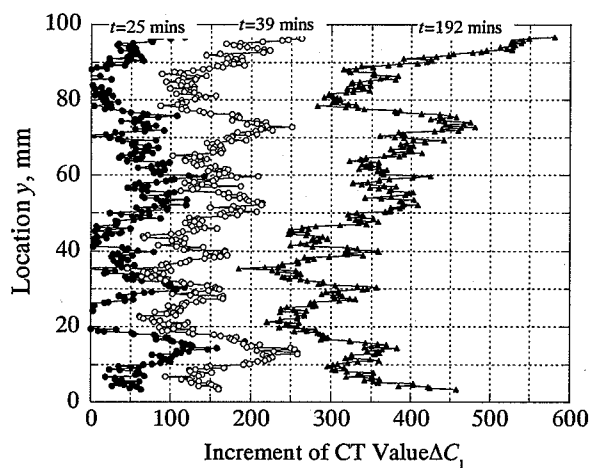


図4 トレーサー移行により生じたCT値の増分

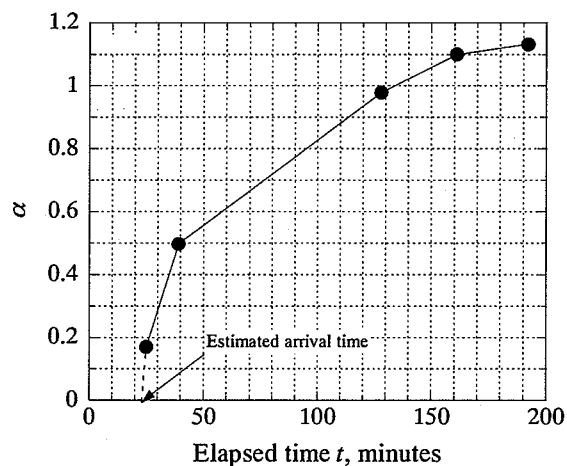


図5 トレーサー密度係数の平均値の経時変化

【出展】

- 図1 米村拓峰, 佐藤晃, 菅原勝彦, 澤田淳, X線CTによるトレーサー移行プロセス分析方法の開発, 資源・素材学会平成19年度春季大会講演集(I)資源編, p.121~122
- 図2 米村拓峰, 佐藤晃, 菅原勝彦, 澤田淳, X線CTによるトレーサー移行プロセス分析方法の開発, 資源・素材学会平成19年度春季大会講演集(I)資源編, p.121~122
- 図3 佐藤晃, 深堀大介, 菅原勝彦, 澤田淳, 武部篤司, X線CTによる亀裂開口幅の評価, 資源・素材学会平成18年度春季大会講演集(I)資源編, p.67~68
- 図4 米村拓峰, 佐藤晃, 菅原勝彦, 澤田淳, X線CTによるトレーサー移行プロセス分析方法の開発, 資源・素材学会平成19年度春季大会講演集(I)資源編, p.121~122
- 図5 米村拓峰, 佐藤晃, 菅原勝彦, 澤田淳, X線CTによるトレーサー移行プロセス分析方法の開発, 資源・素材学会平成19年度春季大会講演集(I)資源編, p.121~122

【成果の反映状況】

本研究では、X線CTを用いた非破壊計測による岩石中の亀裂開口幅評価手法を開発するとともに亀裂内部のトレーサー移行や岩石マトリクス中への拡散の定量的評価手法を開発した。これにより、亀裂内の不均質な構造の計測とともにそれらが亀裂内の物質移行に与える影響を直接計測することが可能となり、岩石中の亀裂を対象としたトレーサー試験のデータを取得するとともに、試料内部での透水経路と移流・分散の関係について検討した。

本研究で開発した技術は、10cm程度の比較的小さな岩石試料を対象としたものであることや、検査技術に関する時間分解能、空間分解能のさらなる向上など今後解決すべき課題があるものの、これにより得られる計測データは亀裂中の微細な構造や不均質性が地下水の流れや物質移行に及ぼす影響を理解するうえで重要なデータであり、高レベル放射性廃棄物地層処分安全評価などで用いられる平行平板モデルなどの亀裂を対象とした核種移行モデルの信頼性の検討に有効である。

【研究成果の公表】

＜論文＞

- 1) 佐藤晃, 深堀大介, 澤田淳, 菅原勝彦, X線CTによる不均質材料中の亀裂開口量評価, 資源と素材, 120巻, 6,7号, 365-371. (査読有り)

＜国内会議＞

- 1) 佐藤晃, 深堀大介, 文村賢一, 下茂道人, 武部篤治, 澤田淳, X線CTによる花崗岩内単一亀裂の開口幅評価, 土木学会第59回年次学術講演会講演概要集, 3-407, 2004.9 (査読無し)
- 2) 佐藤晃, 深堀大介, 菅原勝彦, 澤田淳, 武部篤治, X線CT法による亀裂開口幅の評価, 資源・素材学会平成18年度春季大会, (I) 資源編, pp.67-68, 2006. (査読無し)
- 3) 米村拓峰, 佐藤晃, 菅原勝彦, 澤田淳, X線CTによるトレーサー移行プロセス分析方法の開発, 資源・素材学会平成19年度春季大会, (I) 資源編, pp.121-122, 2007. (査読無し)

＜国際会議＞

- 1) A. Sato, D. Fukahori, A. Takebe, A. Sawada, and K. Sugawara, Analysis of Open Crack in Rock by X-ray CT, Proceedins of "GEO Congress", Atlanta, USA, 2006. (査読有り)
- 2) A. Sato, D. Fukahori, K. Sugawara, A. Sawada, A. Takebe, Visualization of 2D diffusion phenomena in rock by means of X-ray CT, Advances in X-ray Tomography for Geomaterials, ISTE, p.315-321, 2006. (査読有り)
- 3) A. Sato, A Sawada, Analysis of tracer migration process in the crack by means of X-ray CT, Proceedings of ISRM 2007, 2007.(in press) (査読有り)

2.4.2 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	加速器微量分析システムを用いた地球化学研究		
研究協力課題	深部地下水組成推定のための花崗岩起源流体化学組成に関する研究		
研究者所属、氏名			
大 学 側	筑波大大学院生命環境科学研究科 講師 黒澤 正紀 国立環境研究所 主任研究員 久米 博		
機 構 側	地層処分研究開発部門 地層処分基盤研究開発ユニット 処分バリア性能研究グループ 吉川 英樹, 上野 健一		
研究実施場所	筑波大学 理科系修士棟 B224 および加速器センター 筑波大学 研究基盤総合センター 応用加速器部門 原子力機構 核燃料サイクル工学研究所 地層処分基盤研修施設		
通算研究期間	平成 16 年 11 月 ~ 平成 19 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 18 年 4 月 ~ 平成 19 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>花崗岩起源流体は、花崗岩体の固結により放出される流体で、その一部は流体包有物として鉱物内部に捕獲される。この捕獲流体は、岩体の変形・破壊に伴って長期間にわたり再放出されることがあるため、地表水との混合により岩体付近の地下水組成を支配している可能性が高い。そこで、本研究では、花崗岩体に含まれる流体包有物の組成分析によって、花崗岩起源流体の組成とその岩体内部及び周辺部での組成変化を明らかにする。また、地質学的に異なるタイプの花崗岩体について同様の分析を試み、花崗岩起源流体の観点から深部地下水組成に与える影響について検討する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>本研究では、(1) 花崗岩体の調査と試料の採取、(2) 花崗岩の石英中の流体包有物の記載、(3) 粒子線励起 X 線分析法 (PIXE) による流体包有物の組成分析、(4) タイプの異なる複数の花崗岩体での比較と深部地下水組成に与える影響検討、の 4 つの内容について実施する。</p> <p>試料は日本列島の複数タイプの花崗岩体で、岩体の各部分で調査と岩石試料の採取を行う。流体包有物の記載では、形成温度・塩濃度の推定を行う。PIXE では主に遷移金属元素の分析を試みる。最終的に、複数花崗岩体の流体包有物組成と分布の比較を行い、鉱泉・温泉水等の組成との比較から、花崗岩起源流体が深部地下水に与える影響について考察する。</p>			
【使用主要施設】			
<p>マイクロインジェクタ付き実態顕微鏡 (筑波大学) 流体包有物顕微撮影システム (筑波大学) PIXE ビームライン (筑波大学) マイクロイオンビーム表面分析装置 (東海事業所)</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 16 年度は、(1) 山梨県甲府花崗岩体の調査と試料の採取、(2) 石英中の流体包有物の記載とマイクロサーモメトリーによる測定、(3) PIXE による流体包有物の予察的分析を実施した。

平成 17 年度は、当初の計画通り、(1) 長崎県内山花崗岩体の調査と試料採取、(2) 石英中の流体包有物の記載とマイクロサーモメトリー測定、(3) PIXE による流体包有物の予察的分析を実施した。

平成 18 年度は、(1) PIXE による甲府花崗岩体と内山花崗岩体の流体包有物の分析を実施し、その結果に基づいて (2) 花崗岩体の流体包有物分布の把握、(3) 深部地下水（鉱泉水）組成と流体包有物組成との関係を検討した。

【研究成果（当該年度）】

本研究の対象とした花崗岩岩体は、山梨県甲府花崗岩体と長崎県対馬の内山花崗岩体で、それぞれの流体包有物の特徴をまとめる。

【甲府花崗岩体】

山梨県甲府花崗岩体は、約 1400 万年前に固結した黒雲母花崗岩で、主要な流体包有物は塩濃度約 10wt.% NaCl の 2 相包有物である。花崗岩中の包有物の均質化温度は約 250~400℃で、石英脈の包有物の均質化温度は約 150~500℃である。標高 1200~1900m の花崗岩や石英脈には、岩塩を含む塩濃度約 30wt.% NaCl の多相包有物が認められる。花崗岩の鉍物量比および周辺花崗閃緑岩の角閃石組成から推定した甲府岩体の最終固結条件は、圧力約 1.2~1.5 kbar（深さ 5~6 km）、650~750℃で、晶洞中の流体包有物の均質化温度から推定した花崗岩起源流体の発生条件は約 625℃である。この温度圧力条件で流体は沸騰しないが、岩体の冷却亀裂にそって流体が断熱的に上昇すると、深さ約 3.3 km よりも浅い場所で減圧沸騰して水蒸気と高塩濃度流体に 2 相分離する。この高塩濃度流体が岩石に捕獲されることで、岩塩を含む多相包有物が形成されたと考えられる。PIXE による流体包有物の分析では、塩濃度約 10wt.% NaCl の 2 相包有物には、1~2 万 wt.ppm の K, Ca、数百 ppm の Mn, Fe, Cu, Zn, Ge, Br, Ba, Pb、数十 ppm の Rb、数 ppm の Sr が検出され、塩濃度約 30wt.% NaCl の多相包有物には、1~2 万 ppm の K, Ca、数千 ppm の Mn, Fe, Zn、数百 ppm の Cu, Br, Rb, Sr, Ba, Pb、数十 ppm の Ge が検出された。多相包有物中の高濃度の金属元素の存在は、沸騰での 2 相分離の際に高塩濃度流体中に金属元素が濃集するという実験結果と調和的である。

【内山花崗岩体】

長崎県対馬の内山花崗岩体は、約 1600 万年前に固結した、黒雲母花崗岩と花崗閃緑岩が混合した組織を示す岩体で、低塩濃度流体包有物以外に、岩塩を含む多相包有物が多量に含むことが特徴である。花崗岩の最終固結条件は圧力約 0.8~1.2 kbar（深さ 3~5 km）、700~820℃が推定され、甲府岩体よりも浅所に高温で貫入したことを示唆する。この条件は塩水の沸騰条件のため、固結直後に放出された流体は全て沸騰し、2 相分離したと考えられる。花崗岩の流体包有物の塩濃度は約 20~65wt.%、均質化温度も約 230~650℃と多様で、流体の沸騰だけでなく、地表水の流入による希釈も活発であったことを示す。PIXE による岩塩を含む多相包有物の分析では、2~3 万 ppm の Fe, K, Ca、数千 ppm の Mn, Zn、数百 ppm の Cu, Br, Rb, Ba,

Pb、数十 ppm の Sr が検出された。甲府岩体の多相包有物と比較すると、遷移金属の濃度が数倍高い。これは、沸騰がより低圧で生じたために高塩濃度流体に金属がさらに濃集した結果と考えられる。

【流体包有物の地下水組成に与える影響】

2つの岩体の研究結果から、深さ 5km 以浅で固結した花崗岩体では沸騰による高塩濃度流体が発生しやすく、岩体全体に岩塩を含む多相包有物が分布することが分かった。従って、応力による岩体の変形・破壊で流体包有物が破壊し、中身の流体が漏れると、この種の岩体では高濃度の塩水および遷移金属を含む深部地下水が発生する可能性がある。そこで、流体包有物による深部地下水への影響を把握するため、岩体中の流体包有物組成と鉱泉水の組成の関係を検討した。多相包有物を多量に含む内山岩体の方が、この検討に適しているが、内山岩体には温泉・鉱泉・湧水が認められないので甲府岩体について検討した。

【甲府岩体の地下水組成に対する流体包有物の影響】

甲府岩体には、多相包有物が分布する標高に食塩泉の鉱泉があり、岩体周囲の海成堆積物中にも多数の温泉が湧出している。この鉱泉・温泉および甲府岩体の流体包有物の Br/Cl 比を比較すると、食塩泉の鉱泉は古海水起源と推定される海成堆積物中の温泉とは大きく異なる Br/Cl 比を示し、その値は流体包有物の値と一致する。また、鉱泉の Br と Cl の値は、流体包有物と天水の希釈線上に並ぶ。このことから、鉱泉水は流体包有物の影響を強く受けていることが考えられる。今、仮に、黒雲母花崗岩の分布域全体の体積 ($4.20 \times 10^{11} \text{ m}^3$) と岩石中の石英の含有率 (40%) を考え、石英中に直径 30 μm の流体包有物が 1 cm^3 当たり 6.4×10^8 個存在し、流体包有物の 2 相包有物と多相包有物の塩濃度をそれぞれ 10wt.%NaCl と 30wt.%NaCl としてその岩体中での分布量、および流体包有物の最大破壊頻度を年平均百万個に 1 個と仮定すると、岩体全体の流体包有物から放出される塩素量は最大で約 70t (年間) と計算される。この最大放出量は、鉱泉の湧出量 (年間 34000t) と平均塩素濃度 (3000 ppm) から計算される鉱泉の年間塩素放出量 (約 100t) の約 7 割に相当する。また、塩素と同様に他の元素についても検討すると、現在の鉱泉水の K, Ca, Mn, Fe, Br, Sr, Pb 濃度は、岩体中の流体包有物中の元素を天水で希釈したとしてほぼ説明できる。

【まとめ】

以上のことから、甲府岩体では、流体包有物が深部地下水組成に影響を与えている可能性を示唆する結果が得られた。

今後の課題として、この種の計算に用いるパラメータとモデルの妥当性、様々な花崗岩体での流体包有物と鉱泉水 (深部地下水) との関係の普遍性について、更なる検討とデータの蓄積が必要なが明らかとなった。

【成果の反映状況】

本研究による成果は、花崗岩体の特徴を把握するための流体包有物分析に反映しており、今後の花崗岩体深部地下水組成の起源を探る手法への展開が期待される。

【研究成果の公表】

＜論文＞

- 1) Kurosawa, M., Shima, K., Ishii, S. and Sasa, K. (2006) Trace-element analysis of fused whole-rock glasses by LAM-ICP-MS and PIXE. *Geostand. Geoanal. Res.*, 30, 17-30. (査読有)
- 2) Nakajima, T. and Kurosawa, M. (2006) Rare-Element Mineralogy of the Uzumine Granitic Pegmatite, Abukuma Mountains, Northeastern Japan. *Can. Mineral.*, 44, 257-270. (査読有)
- 3) Komatsubara, K., Sasa, K., Okumoto, K., Ishii, S., Yamato, Y., Satou, K., Furuno, K. and Kurosawa, M. (2006) Development of ERCS hydrogen analysis for melt inclusion in erupted magmatic samples. *Nucl. Instr. and Meth. B251*, 237-245. (査読有)
- 4) Komatsubara, K., Sasa, K., Kurosawa, M., Ishii, S., Yamato, Y., Kawamata, T., Iwamura, K., Okaguchi, H. and Furukawa, M. (2006) New detection system of ERCS hydrogen analysis, Annual Report of Tandem Accelerator Center, Univ. Tsukuba, UTTAC-75,51-53. (査読無)

＜国内会議＞

- 1) 黒澤正紀 (2006) 筑波大学における放射性廃棄物安全研究, 原子力安全委員会 第5回安全研究成果報告会講演録集, P91-99.
- 2) 笹公和・石井聡・大和良広・黒澤正紀 (2006) 筑波大学タンデトロン加速器における地球科学試料用マイクロ PIXE 分析システム, 第19回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会報告集, P.11
- 3) 小松原哲郎・笹公和・石井聡・大和良広・黒澤正紀 (2006) 陽子弾性散乱同時計数法による鉱物サンプルの水素分析, 第19回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会報告集, P.31
- 4) 黒澤正紀 (2007) PIXE による花崗岩起源流体の研究, UTTAC セミナー「マルチタンデム静電加速器による重イオンビーム学際利用への新展開」

＜国際会議＞

- 1) Kurosawa, M., Shimano, S., Ishii, S. and Sasa, K. (2006) Fluid inclusion compositions of the Kofu granite body, central Japan: significance for chemistries of deep groundwater in the granite body. Abstract for the 19th General Meeting of the International Mineralogical Association.
- 2) Tominaga, A., Kato, T., Kubo, T. and Kurosawa, M. (2006) Chemical heterogeneity by the mobility difference of elements during peridotite-basalt interaction. Abstracts of the 2006 American Geophysical Union Fall Meeting.

2.4.3 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	堆積軟岩における掘削影響評価のための原位置 AE 測定手法に関する基礎的研究		
研究協力課題	ボーリングコアを用いた堆積軟岩の AE 特性の分析および原位置測定手法に関する研究		
研究者所属、氏名			
大 学 側	京都大学大学院工学研究科 教授 青木 謙治, 助手 水戸 義忠 東京電力株式会社 建設部 主任 南 将行 〔*客員研究員 **研究生〕		
機 構 側	機構 幌延深地層研究センター深地層研究 Gr グループリーダー 福島 龍朗, 副主任研究員 松井 裕哉		
研究実施場所	京都大学大学院工学研究科 (実験室) 機構 幌延深地層研究センター		
通算研究期間	平成 16 年 7 月 ~ 平成 19 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 18 年 7 月 ~ 平成 19 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>一般に高地圧下で空洞を掘削した場合、周辺岩盤においては応力再配分の過程で新規亀裂の発生や既存の微小亀裂の開口・進展によって、掘削影響領域(EDZ)が形成される。この EDZ の進展状況を精度良く評価することは、地層処分安全性評価における地質環境モデルの構築および処分施設の設計・計測管理上の重要な課題の一つとなっている。</p> <p>このような観点から岩盤微小破壊音(AE:Acoustic Emission)を直接計測し、EDZ を評価する試みが国内外でなされ、結晶質岩に関してはその有用性が報告されているが、堆積軟岩では原位置測定の高難度 (AE 発生数が少ない、エネルギーが小さく到達距離が短いなど) から、これまで本手法を適用した事例は見当たらない。</p> <p>このため、本研究では、幌延の堆積軟岩を対象として、結晶質岩において EDZ 評価に有効である AE 測定を堆積軟岩に適用するための基礎的研究を実施するものである。研究の成果は、幌延深地層研究計画第 2 段階以降の原位置試験 (掘削影響試験など) 計画策定に直接反映される。</p>			
【研究内容 (概要)】			
(1) 平成 16 年度			
<p>堆積軟岩を対象に AE 測定を実施した事例を広範囲にわたって調査・分析し、研究の方向性を整理するとともに、幌延の試錐調査で取得したボーリングコアを利用し高剛性三軸圧縮試験時の AE 測定を行い、新第三紀堆積軟岩の AE 特性 (発生数、周波数特性など) を結晶質岩系のデータと対比しながら分析する。この結果に基づき、新第三紀堆積軟岩において AE 計測で取得される EDZ 評価に有効なパラメータを抽出する。岩石コアは声問層、稚内層それぞれから採取する。</p>			

(2) 平成 17 年度

前年度得られたデータに基づき、新第三紀堆積軟岩を対象とした場合の原位置計測手法（センサー配置方法やデータ処理システム）の検討を実施する。また、並行して EDZ の主要な発生メカニズムである岩盤内の亀裂の発生・進展状況を的確に予測可能な解析モデルの構築を行うため、前年度までに実施した室内試験結果に対し、粒状体個別要素法を適用し、岩盤の破壊現象を解析的にシミュレーションするとともにその結果と AE パラメータの特性の関係を整理する。

(3) 平成 18 年度

前年度に室内試験のシミュレーションを通じ構築した幌延の新第三紀堆積軟岩の結合粒状体モデルを用いて、幌延 HDB-11 孔で観察されたボアホールブレイクアウトの詳細なシミュレーションを実施し、解析手法の適用性を検証する。また、堆積軟岩の異方性と応力軸との関係に基づく破壊過程について検討する。さらに、地下深部に空洞を掘削した場合の EDZ の検討を行い、その結果に基づき幌延深地層研究計画第 2 段階以降で計画されている掘削影響試験などでの AE 計測計画の概念および必要な計測システムの概念を構築する。

以上の(1)~(3)の結果を踏まえ、第三紀堆積軟岩の空洞掘削における AE による EDZ 計測の適切な計測システム並びに粒状体個別要素法解析の適用性を総合的に評価する。

【使用主要施設】

幌延深地層研究センター コア倉庫

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 16 年度は、堆積軟岩中に掘削された空洞周辺の EDZ 計測において AE 計測を実施した事例がないことから、堆積軟岩を対象に AE 測定を実施した事例を広範囲にわたって調査・分析し、研究の方向性を整理した。次に、幌延の試錐調査で取得したボーリングコアを利用し高剛性三軸圧縮試験時の AE 測定を行い、新第三紀堆積軟岩の AE 特性（AE 発生率、卓越周波数および m 値）を結晶質岩系のデータと対比しながら分析した。この結果に基づき、新第三紀堆積軟岩において AE 計測で取得される EDZ 評価に有効なパラメータを抽出した。岩石コアは声問層、稚内層それぞれから採取した。

平成 17 年度は、粒状体個別剛体要素法により昨年度実施した幌延の堆積軟岩供試体に対する高剛性三軸圧縮試験のシミュレーションを行うことで、堆積軟岩の破壊過程における応力変化と破壊現象の関連性を検討した。このシミュレーションにおいては、葉理の影響を反映したモデルを作成し、幌延の堆積軟岩供試体の巨視的挙動を最適に表現することができる微視的パラメータを同定した。次に、昨年度実施した高剛性三軸圧縮試験において観測された AE パラメータと、シミュレーションにおいて発生した微小亀裂との関係を総合的に検討することで、堆積軟岩における AE と応力変化および破壊現象の関連性を検討した。

平成 18 年度は、前年度室内試験のシミュレーションを通じ構築した幌延の新第三紀堆積軟岩の結合粒状体モデルを対象として、幌延 HDB-11 孔で観察されたボアホールブレイクアウトの詳細なシミュレーションを実施し、解析手法の適用性を検討した。

さらに、地下深部に空洞を掘削した場合の EDZ の検討を行い、その結果に基づき幌延深地

層研究計画第2段階以降で計画されている掘削影響試験などでの AE 計測計画の概念および必要な計測システムの概念を構築した。

これまでの結果を踏まえ、第三紀堆積軟岩の空洞掘削における AE による EDZ 計測の適切な計測システム並びに粒状体 DEM 解析の適用性を総合的に評価した。

【研究成果（当該年度）】

本年度は、前年度までに把握した堆積軟岩における応力変化と破壊現象の関連性が実現象に即したものであることの確認、および本研究で構築した幌延の新第三紀堆積軟岩の結合粒状体モデルが原位置での破壊現象の評価に有効であることの検討の2つを目的として、結合粒状体モデルに原位置応力を作用させた個別要素法のシミュレーションを行った。今回のシミュレーションの対象は、深度 400-500m 付近および深度 800-900m 付近でボアホールブレイクアウトが観察された HDB-11 孔である。

最初に、HDB-11 孔の各深度で、原位置応力を境界条件とする掘削解析を実施し、破壊状況を比較した。なお、各深度における岩盤の結合粒状体モデルの微視的パラメータについては、ボーリングコアを用いた岩石試験結果を基に決定した。

まず、ボーリング孔周辺の応力分布については、深度 400m および深度 900m 付近で坑道壁面の北側および南側に顕著な応力低下域が認められた。この領域は差応力分布にも同様に認められた。また、亀裂発生分布を検討すると、この応力低下域には亀裂の発生が集中し、特に規模の大きい亀裂が多数発生していることがわかった。この部分では間隙率の増分も大きな値を示している。ここで、顕著なボアホールブレイクアウト現象が発生したのは深度 400-500m 付近および深度 800-900m 付近であるが、シミュレーションの結果はこの事実と整合した。すなわち、他の箇所と比較して孔壁周辺に顕著な応力の低下や亀裂発生の集中が認められた。

次に、深度 800m～900m の区間に生じたボアホールブレイクアウト現象と深度 850m のシミュレーション結果をより詳細に検討するために、ボーリング孔周辺の各位置における応力履歴を検討した。その結果、観測されたボアホールブレイクアウトにより岩盤が欠損している部分（岩盤欠損部）の応力履歴曲線と岩盤欠損部以外の部分の応力履歴曲線とが、基本的に互いに異なる領域に存在していることがわかった。また、壁面極近傍の深度 10mm 付近の応力履歴曲線を見ると、掘削直後の段階で最小主応力が著しく低下していることがわかった。

また、これらの応力履歴曲線から本箇所における岩盤の破壊規準曲線を検討したところ、壁面極近傍については、掘削直後の段階で最小主応力の低下が著しいため、通常の破壊基準を適用するよりは、スポーリング破壊を仮定してスポーリング限界を規定するのが合理的であることがわかった。事実、シミュレーションの結果得られた亀裂分布を見ると、壁面近傍では壁面に平行な方向の引張亀裂が集中して分布しており、掘削直後のスポーリング破壊が生じている可能性が高いことがわかった。

以上、結合粒状体モデルに原位置応力を作用させた個別要素法のシミュレーションを行ったところ、原位置で観測されたボアホールブレイクアウト現象の深度や形状とよく整合するシミュレーション結果が得られた。また、シミュレーションで得られた応力履歴曲線を検討することにより、ボアホールブレイクアウトが発生する規準を合理的に決定することができた。このことから、粒状体個別要素法を用いたシミュレーションによって、実際の応力条件下における

破壊現象を評価しうることが示され、本研究で構築してきた掘削影響領域の評価システムの有効性を確認することができた。

最後に、本研究の検討結果を基に、幌延深地層研究計画第2段階以降で計画されている掘削影響試験でのAE計測計画について検討を行い、立坑掘削影響試験および水平坑道掘削影響試験の試験計画にAE/マイクロサイズミック波と応力変化の計測を追加することによって、さらに詳細なEDZの力学的・水理学的評価が可能となる試験計画を検討した。

【成果の反映状況】

本研究による成果は、幌延深地層研究計画第2段階以降の原位置試験（掘削影響試験など）計画策定に直接反映される。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 丹生屋純夫・水戸義忠・青木謙治・松井裕哉：新第三紀珪質岩における原位置 AE 計測の適用性に関する基礎的検討、第 15 回トンネル工学研究発表会講演論文集、2005.
- 2) AE 計測と DEM 解析に基づく堆積軟岩の破壊過程に関する研究：青木謙治・水戸義忠・黒川進・松井裕哉・丹生屋純夫・南将行、第 36 回岩盤力学シンポジウム講演論文集、pp235-238、2007

<国際会議>

- 1) Y. Mito, K. Aoki, C.S. Chang, H. Matsui, S. Niunoya, M. Minami : Evaluation of fracturing process of soft rocks at great depth by AE measurement and DEM simulation, ISRM Congress, 2007.(in press)

<関連研究>

- 1) K. Aoki, Y. Mito, T. Mori, T. Maejima: Evaluation of behavior of EDZ around rock cavern by AE measurements and PFC simulation, Numerical Modeling in Micromechanics via Particle Methods, pp.73-83, 2004. (査読有)
- 2) K. Aoki, Y. Mito, T. Mori, T. Maejima: Evaluation of behavior of EDZ around rock cavern by AE measurements and DEM simulation using bonded particle model, ISRM international Symposium, ARMS 2004, pp., 2004. (査読有)
- 3) 青木謙治・水戸義忠・森孝之・前島俊雄・岡村武：岩盤大空洞周辺の掘削影響領域内の応力およびAEの挙動に関する研究、第34回岩盤力学シンポジウム講演論文集、pp.381-386、2005.
- 4) 青木謙治・水戸義忠・森孝之・前島俊雄・山本健太：岩石の破壊過程における微小破壊音の挙動に関する研究、第34回岩盤力学シンポジウム講演論文集、pp.387-392、2005.

2.4.4 先行基礎工学研究に関する平成18年度研究概要報告書

研究協力テーマ	地層中のメタン量の原位置測定法に関する研究		
研究協力課題	溶存メタンセンサーによる原位置メタン量測定法に関する研究		
研究者所属、氏名			
大学側	山口大学大学院 兵動正幸, 北海道大学大学院 大賀光太郎, 三井住友建設株式会社 山本陽一, サンコーコンサルタント株式会社 佐々木勝司, 株式会社 CT&T Michel Masson (*客員研究員 **研究生)		
機構側	幌延深地層研究ユニット 國丸貴紀		
研究実施場所	(1)山口大学大学院理工学研究科 地盤研究室実験室 (2)北海道大学大学院 工学研究科 地殻資源工学講座実験室 (3)機構 幌延深地層研究センター		
通算研究期間	平成16年9月 ~ 平成19年3月	当該年度 研究期間	平成18年7月 ~ 平成19年3月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>一般に、堆積岩地域はメタンガスを包蔵していることが多い。特に、天然ガス田が分布している地域の地下利用においては、爆発災害を未然に防止する目的で、事前調査段階において地層中のメタン量を定量的に把握することが重要である。</p> <p>地層内においてガスは地下水に溶解した状態で存在している。このため、ガス量やガス組成を正確に求めるためには、ガスの溶解が圧力と温度に依存することから圧力を保持した状態で採取した試料に対して分析を行う必要がある。しかしながらこの方法では、分析にいくつかの工程を経て時間を要することや、採水器の昇降過程で孔内水の乱れを生じさせる恐れがあり、連続的な測定には限界がある。また、地層中に存在するメタンガスのモニタリングに関しては、これに必要なセンサー開発が進んでいないこともあり実現していない。さらに、深度数百メートル以上の高圧下で高濃度にメタンガスが溶解する地下水を対象とした場合には、測定可能なセンサーは存在しないのが実情である。</p> <p>本研究を実施する北海道幌延町では、日本原子力研究開発機構により高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究・開発の一環として、深地層科学に関する各種調査・研究の他、地下研究施設の建設が計画・実施されている。また、これまでに実施された機構による試錐調査からメタンを主成分とするガスを胚胎する堆積岩の存在が明らかとなっている。このため、地下施設建設の安全管理や地下掘削に伴う周辺環境の変化、さらには地下水・物質移行特性等の深地層研究に対してメタンガスの存在による影響が懸念されており、地下水中のメタンガスを正確に測定してこれらの懸念に反映させることが求められていた。</p> <p>そこで、本研究では水中で高濃度に溶解しているメタンガスの測定が可能なセンサーを開発し、地表から地下深部に至るメタンガス濃度を原位置で直接測定する調査・モニタリング手法について検討するとともに、幌延試錐孔のメタンプロファイルの取得を目的とする。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>本研究では、溶存メタンセンサーに対する室内性能試験と幌延深地層施設研究センターの試錐孔を用いた原位置試験を実施する。室内性能試験では、様々な条件の下で実験を行いセンサーの基本特性を明らかにする。試錐孔を用いた試験では原位置測定法としての課題の抽出を図り、室内性能試験結果との比較検討から問題点を特定する。また、必要に応じてセンサーの改良・改善を図り、メタンプロファイルの作成を目的とする孔内検層試験への適用、溶存メタンガス監視測定を目的とするメタンガスモニタリングシステムへの展開を目指す。</p>			

【使用主要施設】

- (1) 山口大学大学院理工学研究科 地盤研究室実験室
使用設備 ガス溶解槽
- (2) 北海道大学大学院 工学研究科 地殻資源工学講座実験室
使用設備 フーリエ変換赤外分光光度計、ガスクロマトグラフィー
- (3) 機構 幌延深地層研究センター
使用設備 試錐孔 (HDB-5)、封圧採水器

【進捗状況（当該年度までの概要）】

① 平成 16 年度：

既存の溶存メタンセンサーをベースにして、高濃度ガス対応の検出器を有する溶存メタンセンサーを試作した。さらに、研究初年度となることから、溶存メタンセンサーの基本特性を明らかにすることを目的とするセンサー性能試験装置を製作し、試験装置の調整・改良および試験方法確立のための各種予備実験から実施した。性能試験の過程で、センサー内部に大気圧より大きな内圧が残存するセンサー構造の問題点が明らかになり、それが測定値に対しても大きな影響を与えていることが判明した。そこで、センサー構造を含めた問題点を抽出し、センサー改良に向けた具体的な改善策を検討した。

② 平成 17 年度：

前年度に明らかになったセンサー構造の問題点を抜本的に改良したセンサーを新たに製作した。平成 17 年度は、室内性能試験の他、幌延町にて機構所有の試錐孔 (HDB-5) において、2 回の現地試験を実施した。

室内性能試験において、新たに開発したセンサーは安定した測定が可能で、応答性や測定精度に関する基本性能の他、供給水量依存特性、メタンガス以外のガス混入による影響が明らかにされた。また、モニタリング機器としての溶存メタンセンサーの性能を検証する目的とする室内試験を実施し、モニタリングに必要な応答追従性等に関して十分な性能を有していることが明らかにされ、センサー開発の目処がついた。

現地試験では、室内試験等から溶存メタンセンサーによる安定した効率的な測定には測定時にセンサーへの水流の供給が必要であることが明らかになったので、孔内用の水流装置を開発して、これとセンサーを組み合わせて測定を実施した。また、センサー測定値と比較する目的で、試錐孔内の採水をあわせて実施した。実施した試験から、孔内地下水中の溶存ガスはメタンガスが主体でその濃度は飽和に対して 60%～80%と高濃度の状態にあること、センサーの測定値と採水試料の分析結果は整合していることが明らかにされた。また、試験を通して、溶存メタンセンサーや関連する機器について、高濃度にガスが溶解している地下水中における測定のためには、性能向上を目指した更なる改良が必要であることが分かった。

③ 平成 18 年度：

溶存メタンセンサーおよび水流装置等について、更なる性能向上を目指した改良・開発を進めた。室内性能試験の結果、新たに開発したセンサーは、H17 年度製作のセンサーに対して測定時間は 1/4 に短縮された。また、ボーリング孔を利用した検層型のガス調査としての溶存メタンセンサーの適用性確認と測定手法の確立を目的とした HDB-5 孔における原位置試験を実施した結果、センサーの測定は安定した測定が可能で、現地のメタンプロファイルの取得も行われた。一連の試験により、溶存メタンセンサーによる孔内測定手法が確立された。

地下水中の溶存メタンガスを対象としたモニタリング機器としてのセンサーの適用性および耐久性を確認する目的で、試錐孔内において最終改良型のセンサーによる長期モニタリング試験を実施した。測定期間中、測定位置のメタン濃度は比較的安定しているが、変化量としては大きくはないものの、メタン濃度、温度ともに特徴的な変動を認めることができた。溶存メタンを対象としたモニタリング機器としての耐久性に関して、水流装置等の機器も含め溶存メタンセンサーに故障等不具合の発生は生じず、モニタリングに必要な耐久性能を有していることが明らかにされた。

これらのセンサー開発および各種試験により当初目標の成果を得ることができた。

【研究成果（当該年度）】

1. センサー開発

平成 18 年度は、反応性（測定時間）の向上を目指した実用タイプのセンサー（TS4）を製作した。センサーの概観と構造概要をそれぞれ写真-1、図-1 に示す。具体的には平成 17 年度型のセンサー（TS3）をベースに、メンブレンの有効断面を拡げてガス透過量を増加させることとした。外見上はプロトタイプに似ているが、その構造的な特徴や性能は大きく異なる。また、耐圧試験を実施して 10MPa までの耐圧性能を確認した。



写真-1 溶存メタンセンサー概観

2. 室内性能試験

(1) 基本性能の比較

いくつかの濃度で実施した TS3 および TS4 センサーに対する試験結果として比濃度と測定時間の関係をそれぞれ図-2、図-3 に示す。図中の凡例は平衡状態に至った時のセンサー計測濃度を表示しており、比濃度は計測濃度を平衡状態に至った時の計測濃度で正規化して求めている。試験は、あらかじめ溶解槽において所定の圧力条件で飽和状態までメタンガスを溶解させた水を、ポンプ供給水流量 90ml/min の条件で循環させて行っている。

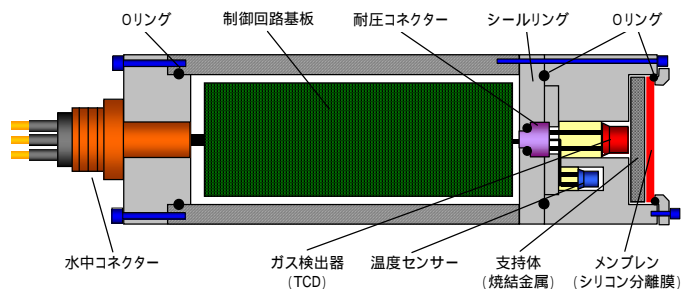


図-1 センサー構造の概略図 (TS4 センサー)

測定開始時点の溶存メタンセンサー検知部のセンサーヘッド内圧力は大気圧状態にある。測定開始から徐々にセンサー内部にガスが透過されてセンサー内のガス分圧が高まり、センサーで計測される溶存メタン濃度は上昇していくことになる。測定原理から、分離膜を境にしてセンサーの内と外の溶存メタン濃度が等しくなった時点で平衡状態となりそれ以降は定常な挙動を示すことを試験結果は示している。

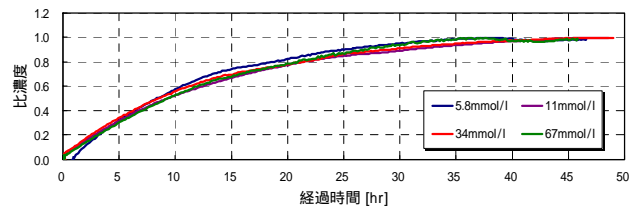


図-2 比濃度と時間の関係 (TS3 センサー)

比濃度に対する比較から、いずれのセンサーについても試験に供した溶液中の溶存メタン濃度に係らず、比濃度と測定時間の間には一義的な関係が存在しており、センサーで計測される濃度変化がガス濃度またはガス分圧に比例していることを表している。このような現象は分離膜の気体透過性と密接に関係しており、高分子膜の気体の透過が濃度勾配を駆動力として行われ、その移動速度は物質の拡散に関するフィックの法則に従い濃度勾配と比例関係にあるとして説明されることから理解することができる。このことは、実際に行うガス測定の調査の効率化という意味において重要な知見を与えている。溶存メタンセンサーの応答には後述する水流依存性があるのでメンブレンに供給する水流の条件を同一とす

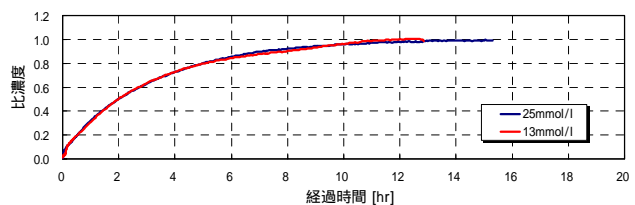


図-3 比濃度と時間の関係 (TS4 センサー)

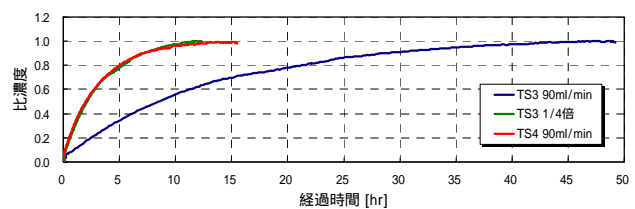


図-4 センサー測定時間の比較

る必要があるが、一度平衡状態まで測定されたデータがあれば比濃度に対して計測データのフィッティングを行うことにより、平衡に至る測定途中段階で濃度推定を行うことが可能であり、調査の効率化を図ることができる。

図-4 に比濃度と時間関係において TS3 センサーと TS4 センサーの測定時間の比較を行った。ここで示した試験結果は使用した試験装置ポンプ水量 90ml/min の条件での測定時間になる。平衡状態に達するまでの測定時間は TS3 センサーで 45 時間程度、TS4 センサーで 13 時間程度となっている。図中には、TS3 センサーの測定時間を単純に 1/4 倍に短縮した曲線を示しているが TS4 センサーの試験結果と一致しており、TS3 から TS4 のセンサー改良に伴い 1/4 に測定時間短縮の改良効果が現れていることが分かる。また、同種の分離膜を使用した場合には比濃度と測定時間の関係は、センサーの型に関係なく相似形になることも図の結果は示している。

(2) 水流の影響

図-5 に、メタンガス飽和溶存状態の水を所定のポンプ供給水流量で循環させて TS4 センサーに対する水流の影響を調べた結果を示す。図から明らかなように、供給水流量が増加するほど測定時間は短くなる傾向を示す。溶液中の希薄な成分が膜を透過する場合、液層側の膜表面近傍に存在する境膜物質移動抵抗と呼ばれる抵抗が無視できなくなり、実際の透過速度は膜本来の透過速度より小さくなることが知られている。図-5 の結果については、供給水流量 90ml/min の測定時間は水流を与えない場合に比べて 1/17 倍と大幅に短縮されている。したがって、溶存メタンセンサーによる測定を効率的に行うためには膜表面に水流を与える必要のあることが理解される。

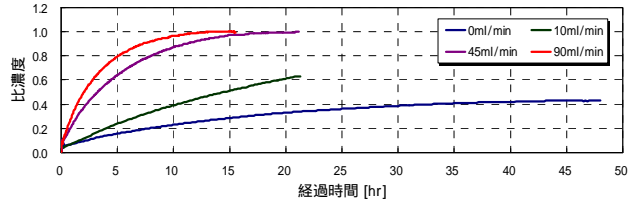


図-5 応答に及ぼす水流の影響 (TS4 センサー)

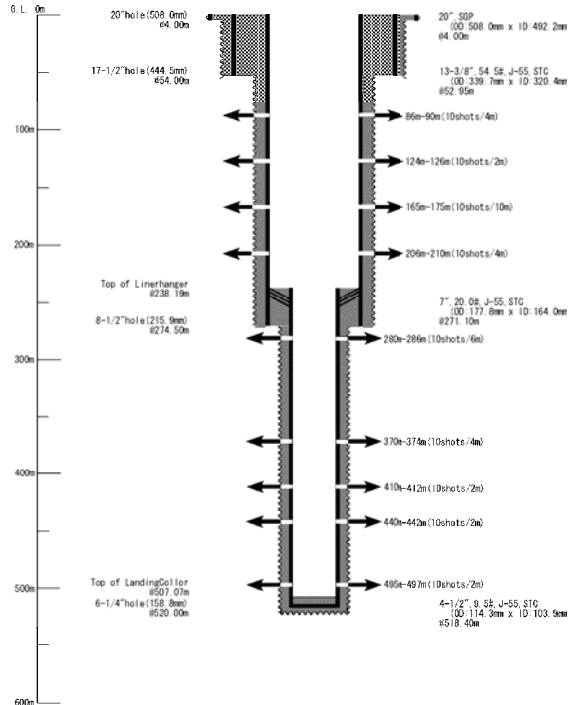


図-6 試錐孔のケーシングプログラム

3. 孔内測定試験

試験は北海道幌延町の日本原子力研究開発機構が所有する試錐孔において実施した。試錐孔のケーシングプログラムを図-6 に示す。試錐孔の最大深度は GL-520m で溶存メタンセンサーによる測定は、GL-88m、-208m、-283m、-372m、-440m、-490m の 6 深度で行った。また、溶存メタンセンサー測定値と比較する目的で、試錐孔内の採水もあわせて実施した。採水は原位置の圧力を保持した状態でサンプリング可能な採水器を用いて行った。また、溶存メタンセンサーの安定した測定のためにはメンブレン表面に水流を与える必要があること等の膜透過特性の水流依存性が明らかになっていることから、孔内用に開発した水流装置と溶存メタンセンサーを組み合わせたプローブを孔内に投入して測定を行った。

図-7 に TS4 センサーにより実施した深度 GL-88m における測定結果として溶存メタン濃度と測定時間の関係を示した。図の測定結果は約 10 時間で平衡状態に達しており、この深度の溶存メタン濃度が 16mmol/l であることを示している。

図-8 は、TS4 センサーで測定した溶存メタン濃度と採水分析結果とを孔内の溶存メタン濃

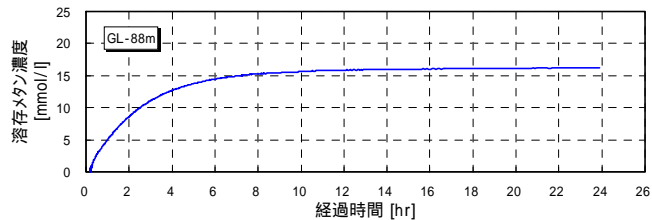


図-7 GL-88m における溶存メタン濃度測定

度分布として比較している。図中の実線は、各深度に対して溶解可能な理論上の飽和溶存メタン濃度を示している。センサーで測定された溶存メタン濃度は採水分析結果に対して全体に高めの値を示しているが、その分布性状は一致しており良い対応を示していると考えられる。また、孔内の地下水中の溶存メタン濃度は、ほぼ飽和状態にあることが分かる。これまでに実施しているセンサーの室内性能試験結果等から明らかになった諸性能から、センサーによる測定結果は原位置で直接測定されたものであり、その信頼性は高いものと考えられる。

4. 長期モニタリング

地下水中の溶存メタンガスを対象としたモニタリング機器としてのセンサーの適用性および耐久性を確認する目的で、試錐孔内において最終改良型の TS4 センサーによる長期モニタリング試験を実施した。以下にその概要を示す。

試験位置：試錐孔 HDB-5 孔
(北海道天塩郡幌延町北進)

測定深度：GL-208m

測定期間：2006 年 9 月 7 日～2007 年 6 月
(予定)

※ 2006 年 12 月 5 日 (水位計、温度計追加投入)

使用センサー：TS4 センサー

※ 水流装置使用、ノズル先端口径φ4.0mm

観測現場の状況を写真 2 に示す。冬季の積雪に対する試錐孔の孔口保護を目的として、観測孔には櫓を設置した。また、観測ハウス内には観測機器の他に、ウィッチを設置した。この他、現地に無線 LAN 通信を利用した観測システムを構築・導入し、観測データの通信や測定機器の遠隔操作を可能とした。

測定は平成 19 年 6 月まで継続する予定で、施設撤去までの約 9 ヶ月間の実施を予定している。観測孔内には、溶存メタンセンサーと水流装置を組み合わせたプローブを投入し、深度 GL-208m 位置での溶存メタン濃度の測定を行っている。センサー投入後 12 月に水位計と温度計を追加投入して測定を継続した。

平成 19 年 3 月までの測定期間中、測定位置のメタン濃度は比較的安定しているが、変化量としては大きくはないものの、メタン濃度、温度ともに特徴的な変動を認めることができた。溶存メタンを対象としたモニタリング機器としての耐久性に関して、水流装置等の機器も含め溶存メタンセンサーに故障等不具合の発生は生じず、モニタリングに必要な耐久性能を有していることが明らかにされた。

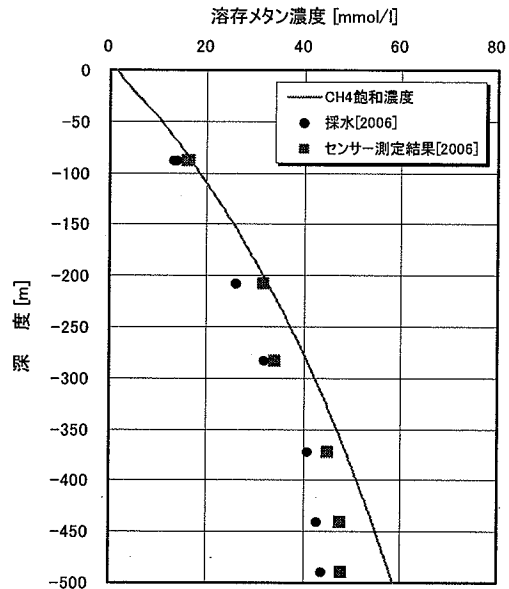


図-8 溶存メタン濃度孔内深度分布の比較

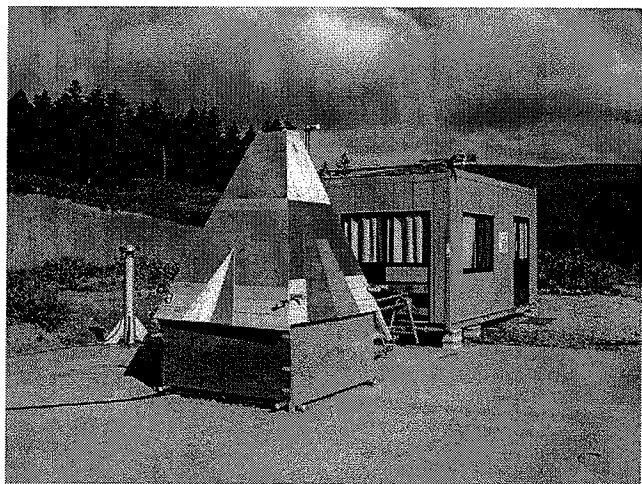


写真-2 観測現場の状況

【成果の反映状況】

本研究による成果は、メタンハイドレート等の資源エネルギー分野の調査・研究に反映している。その他、潜在的なガス層の存在が疑われる地域のシールド等地下掘削工事における安全性確保のための調査・施工管理技術への応用が検討されている。

【研究成果の公表】

＜国内会議＞

(口頭発表)

- 1) 兵動正幸, 大賀光太郎, 國丸貴紀, 佐々木勝司, 山本陽一: 溶存メタンセンサーによる原位置メタン量測定法に関する研究—センサー基本性能確認のための室内試験—, 日本応用地質学会平成17年度研究発表会講演論文集, pp.405-406, 2005.

(査読なし)

- 2) 兵動正幸, 大賀光太郎, 國丸貴紀, 山本陽一, 佐々木勝司, Michel Masson: 地層内溶存メタン測定のためのセンサー開発とその諸特性について, 第41回地盤工学研究発表会講演集, pp.59-60, 2006. (査読なし)

- 3) 兵動正幸, 大賀光太郎, 國丸貴紀, 山本陽一, 佐々木勝司, Michel Masson: 溶存メタンセンサーによる地層内メタン濃度測定 その1 測定値に及ぼすガス種水流の影響, 第61回土木学会年次学術講演会概要集, 3-339, pp.673-674, 2006. (査読なし)

- 4) 兵動正幸, 大賀光太郎, 國丸貴紀, 佐々木勝司, 山本陽一, Michel Masson: 溶存メタンセンサーによる地層内メタン濃度測定 その2 幌延における孔内測定試験, 第61回土木学会年次学術講演会概要集, 3-338, pp.671-672, 2006. (査読なし)

- 5) 兵動正幸, 大賀光太郎, 國丸貴紀, 山本陽一, 佐々木勝司, Michel Masson: 溶存メタンセンサーによる原位置メタン量測定法に関する研究—センサー諸特性と孔内測定試験について—, 日本応用地質学会平成18年度研究発表会講演論文集, pp.299-302, 2006. (査読なし)

- 6) 兵動正幸, 國丸貴紀, 山本陽一, 佐々木勝司, Michel Masson: メタンセンサーによる幌延試験孔内の溶存メタン濃度測定, 地球惑星科学関連学会2007年合同大会講演予稿集, 2007. (投稿中、査読なし)

- 7) 兵動正幸, 大賀光太郎, 國丸貴紀, 山本陽一, 佐々木勝司, Michel Masson: 地層内溶存メタン測定のためのセンサー開発とその諸特性について その2 センサー改良とその性能, 第42回地盤工学研究発表会講演集, 2007. (投稿中、査読なし)

- 8) 兵動正幸, 大賀光太郎, 國丸貴紀, 山本陽一, 佐々木勝司, 萩原育夫, Michel Masson: 溶存メタンセンサーによる地層内メタン濃度測定 その3 センサー改良と孔内測定試験について, 第62回土木学会年次学術講演会概要集, 2007. (投稿中、査読なし)

＜特許＞

- 1) 溶存ガス濃度測定方法および装置

2.4.5 先行基礎工学研究に関する平成18年度研究概要報告書

研究協力テーマ	地下水中におけるアクチニド元素の溶解度に関する基礎研究								
研究協力課題	アクチニド元素の溶解度に関する熱力学データの整備と検証								
研究者所属, 氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="2">京都大学工学研究科 森山 裕丈 教授, 佐々木隆之 助教授</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="2">日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター 地層処分研究開発部門 宮原 要, 吉川 英樹, 飯島 和毅, 藤原 健壮</td> </tr> </table>			大 学 側	京都大学工学研究科 森山 裕丈 教授, 佐々木隆之 助教授		機 構 側	日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター 地層処分研究開発部門 宮原 要, 吉川 英樹, 飯島 和毅, 藤原 健壮	
大 学 側	京都大学工学研究科 森山 裕丈 教授, 佐々木隆之 助教授								
機 構 側	日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター 地層処分研究開発部門 宮原 要, 吉川 英樹, 飯島 和毅, 藤原 健壮								
研究実施場所	京都大学原子炉実験所, 京都大学大学院工学研究科工学部1号館実験室, 機構 東海研究開発センター 地層処分基盤研究施設, 地層処分放射化学研究施設								
通算研究期間 (予定)	平成17年8月～ 平成20年3月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成18年6月～ 平成19年3月						
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究								
<p>【研究目的】</p> <p>高レベル放射性廃棄物地層処分の安全性評価に際しては、アクチニド元素の溶解度に関する熱力学データが不可欠であるが、これらの元素は一般に処分環境下の水溶液中で複雑な化学挙動を示し、熱力学データの整備状況はいまなお不十分である。実際、4価のアクチニドについては、トリウム以外では酸化還元制御が容易ではないこと、弱酸性からアルカリ性水溶液における溶解度が低いこと、酸性領域においても容易に加水分解するので溶解度積の決定が困難であること、コロイドを生成することなどから、これまでに得られたデータについても信頼性に問題があり、再度の検証が必要とされている。</p> <p>本研究では、地層処分の性能評価上重要と認識されながらも、特に整備の不十分な4価のアクチニド元素の熱力学データについて、実験的測定を行うとともに、理論的検討を行う。即ち、4価のイオンの加水分解定数や溶解度積を実験的に求めるとともに、アクチニドの特性と熱力学データの系統性を明らかにし、熱力学データの整備に資する。</p>									
<p>【研究内容(概要)】</p> <p>多価金属イオン (Zr^{4+}, Th^{4+}, U^{4+}, Np^{4+}) の溶解度を測定して、溶解度積や加水分解定数などを求める。測定においては、孔径の異なるフィルター等を用いてコロイドやポリマーの存在の有無を調べ、溶解度積の測定値への影響を明らかにする。また、溶媒抽出法を利用することにより、種類の異なる加水分解種について、それぞれの加水分解定数を求める。次に測定によって得られた知見をもとに、申請者らがこれまでに開発したモノマー(単核の化学種)用のモデルをポリマー(多核の化学種)用に拡張することにより、多様なポリマーの種類と存在比を求める。次にモデル化によって得られた溶存種の種類と存在比を用いて、多価金属イオンの熱力学データを解析し、その信頼性を評価する。</p>									
<p>【使用主要施設】</p> <ul style="list-style-type: none"> ・京都大学原子炉実験所 ホットラボラトリ棟 雰囲気制御グローブボックス, ICP-MS 等 ・京都大学大学院工学研究科 工学部1号館実験室, RI 実験棟, ICP-AES 等 ・日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター 地層処分基盤研究施設, 地層処分放射化学研究施設 表面積測定装置, 雰囲気制御グローブボックス 等 									

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成17年度は、4価アクチニド元素の検討に先立ち Zr, Hf の溶解度及び溶存状態の測定と評価を実施し、次の成果を得た。即ち、過飽和法および不飽和法による実験において、限外ろ過法を用いて固相を分別ろ過し Zr の見かけの溶解度を測定した。その結果、酸性側では pHc の増加とともに低下し、中性およびアルカリ域においては検出限界(約 $10^{-8} \text{mol} \cdot \text{dm}^{-3}$)以下となること、また Zr とイオン半径の類似した Hf についてもその見かけの溶解度は、Zr のそれとほぼ一致することを確認した。ただし、過飽和法で得られた溶解度については、限外ろ過フィルターの孔径依存性が見られたことから、測定された溶解度は単核錯体のみならず粒径分布を有する多核錯体やコロイド種の総和によるものであることが示唆された。このため、過去に Pu 単核錯体の安定性を予測したモデルを改良して、正方ねじれプリズム (square antiprismatic) 型構造の多核錯体に対応したモデルとした。その結果、測定が困難であった中性 pH 付近での溶解度の予測が可能となった。

平成18年度は、Th, Np の溶解度及び溶存状態の測定と評価を実施した。即ち、前年度の Zr に関する検討で得られた成果（実験手法およびモデル化手法）をもとに、Th および Np の4価元素に関する測定を行うとともに、得られたデータを用いて、ポリマー化のモデル計算を行った。また、熱力学データの系統性を評価するために、文献を調査し、熱力学データを収集した。

【研究成果（当該年度）】

Th については、過飽和法と不飽和法による溶解度測定を行った。Th の過飽和法実験では、 $^{232}\text{Th}(\text{OH})_4(am)$ を溶解し、Th 濃度が 1.0×10^{-2} または $1.0 \times 10^{-3} \text{mol/dm}^3 (M)$ の過塩素酸溶液 (pHc=1) とした。一方、不飽和法実験では、Th 濃度が最大で $1.0 \times 10^{-2} M$ となるように ThO_2 を添加した。NaOH を加えて所定の pHc に調整した試料溶液を一定期間静置した後、上澄み液を限外ろ過 (Millipore, NMWL 3-100kDa) し、ICP-MS により Th 濃度を測定した。測定の結果、次のことが明らかとなった。

- ・ 過飽和法による $\text{Th}(\text{OH})_4(am)$ の溶解度は、2.5kDa でろ過した文献値と概ね一致した。溶解度は pHc 4 付近から pHc の増加と共に低下し、中性からアルカリ性域では ICP-MS の検出下限に近い値が得られた。酸性領域においては、溶解度のろ過フィルター孔径依存性が観察されたため、溶存種の粒径分布を Flory のポリマーモデルにより解析した。その結果から予測される単核種の溶解度を用いて溶解度積を算出した。
- ・ 一方、不飽和法実験では、酸性域の見かけの溶解度から、単核種の溶解度を算出した。得られた溶解度積を NEA-TDB の推奨値と比較したところ、過飽和法の値は概ね一致するが、不飽和法のそれは1桁以上低いことを確認した。これらの結果は、溶解度を制限する固相の状態が重要であることを示唆するものと考えられる。

Np については、TTA-キシレンによる溶媒抽出法を用いて加水分解定数を求めた。高濃度の Np(IV) の場合はポリマーやコロイドが生成しやすいため、試験ではトレーサー量で測定可能な ^{239}Np を使用した。 ^{243}Am からのミルキングで得た ^{239}Np の水溶液に亜鉛アマルガム法を適用し、Np(IV) の含まれる原液 (0.5M HNO_3) を調製した。Np(IV) の純度を高めるため、あらかじめ原液中の Np(IV) を 0.2M あるいは 0.02M の TTA-キシレンで抽出し、その有機相を新たな水相と接触させて分配比を求めた。その際に有機相の TTA 濃度は、キシレンを加えることにより 0.1 M - 0.0001M に調整し、水相のイオン強度と水素イオン濃度 (pH) は HClO_4 と NaClO_4 で調整した (pHc 範囲 0-5, イオン強度 $I=0.1, 0.5, 1.0$)。分配比は、両相中の ^{239}Np の γ 線を測定することにより求めた。測定の結果、次のことが明らかとなった。

- ・ 得られた分配比 D と TTA 濃度の相関から、 Np^{4+} のみが抽出されること、加水分解定数は溶

媒抽出法で定量的に評価できることを確認した。この結果をもとに、 $\log D$ と水素イオン濃度 pH_c の相関から Np(IV)の加水分解定数を求めた。

- 今回得られた $NpOH^{3+}$, $Np(OH)_2^{2+}$ の加水分解定数の値を、NEA-TDB の推奨値と比較して、今回の値の方が小さいことを確認した。推奨値の場合も同様の溶媒抽出法によるものであるが、試験中に Np が酸化されて分配比が小さくなった可能性がある。今回の試験では分配比の時間依存を確認しており、酸化の影響は小さいと考えられる。 $Np(OH)_4$ の加水分解定数についても NEA-TDB の推奨値と比較すると今回の値の方が小さいことを確認した。この場合の推奨値は溶解度試験から得られたものであり、Np 濃度の高い溶解度試験では溶液中の Np(IV)重合体のために加水分解定数の値が大きくなった可能性があると考えられる。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 19 年度は、18 年度に引き続き、次の 3 つの項目について研究を進める。①多価金属イオンの溶解度及び溶存状態の測定と評価においては、前年度の手法を用いて U^{4+} および高 pH 域での Np^{4+} に関する測定を行う。②多価金属イオンの溶存種のモデル化では、ポリマー生成モデルを平成 17 年度から検討した全ての核種を対象にその適用可能性を検証する。なお、加水分解定数等の不足のデータについては、追加実験を行なう。③多価金属イオンの熱力学データの解析と評価においては、拡張したモデルのさらなる精度の向上を目指し、必要に応じて修正されたモデルを用いて熱力学データの解析と評価を行うとともに、測定値の報告されていない熱力学データについて予測を行う。

なお、得られた成果は昨年度に引き続き学術論文および国内外の学会にて公表し、評価を受けるとともに、今後の溶解度研究の方向性について議論する予定である。

【研究成果の公表】

<論文>

- 1) Systematics of polymeric hydrolysis constants of tetravalent actinide ions, H. Moriyama, T. Sasaki, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, 42 (2005) 626-635. 査読有
- 2) Systematics of polymeric hydrolysis constants of actinide ions, H. Moriyama, T. Sasaki, et al., *J. Alloys Comp.*, 408-412 (2006) 1302-1306. 査読有
- 3) Solubility Measurement of Zirconium(IV) Hydrrous Oxide, T. Sasaki, H. Moriyama et al., *Radiochim. Acta*, 94 (2006) 489-494. 査読有

<国内会議>

- 1) 原子力学会 「2005 年 秋の大会」 八戸：ジルコニウム(IV)およびハフニウム(IV)の溶解度に関する研究, 小林ら.
- 2) 原子力学会 「2006 年 春の年会」 大洗：過飽和法と不飽和法によるジルコニウム(IV)の溶解度比較, 小林ら.
- 3) 原子力学会 「2006 年 春の年会」 大洗：溶媒抽出法による Np(IV)加水分解定数の測定, 藤原ら.
- 4) 原子力学会 「2006 年 秋の大会」 札幌：トリウム(IV)水酸化物の溶解度に関する研究, 小林ら.
- 5) 原子力学会 「2006 年 秋の大会」 札幌：溶媒抽出法による Np(IV)加水分解定数の測定 II, 藤原ら.

<国際会議>

- 1) Plutonium Futures—The Science 2006 米国・Asilomar: Solubility and Solubility Product of Tetravalent Metal Hydrrous Oxides, Sasaki et al.
- 2) Migration '05 仏国・Avignon: Solubility of Zirconium(IV) Hydrrous Oxide (2005), Sasaki et al.
- 3) Migration '05 仏国・Avignon: Solubility product of tetravalent neptunium hydrrous oxide and its ionic strength dependence (2005) Fujiwara et al.

2.4.6 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	地質環境モデルの構築と解析手法の評価		
研究協力課題	塩素安定同位体比を用いた水理地質構造モデル評価技術の開発		
研究者所属、氏名			
大 学 側	東京大学大学院 新領域創成科学研究科 環境システム学専攻 徳永朋祥 熊本大学理学部 理学科 嶋田 純 大成建設株式会社 原子力本部 原燃サイクル部 井尻裕二, 本島貴之 [*客員研究員 **研究生]		
機 構 側	地層処分研究開発部門幌延深地層研究ユニット 堆積岩地質環境研究グループ 國丸貴紀		
研究実施場所	東京大学大学院 新領域創成科学研究科 環境システム学専攻		
通算研究期間 (予定)	平成 17 年 8 月 ~ 平成 20 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 18 年 10 月 ~ 平成 19 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
幌延深地層研究所周辺のボーリング孔内で地下水中の塩素安定同位体比を測定し、深度方向の安定同位体比 $\delta^{37}\text{Cl}$ の変化から各深度の地下水流動場が移流支配か、拡散支配かを推定する技術を開発するとともに、密度流を考慮した地下水流動解析結果との比較から水理地質構造モデルの妥当性を評価する技術を開発する。			
【研究内容（概要）】			
幌延深地層研究所周辺のボーリング孔内で地下水中の塩素安定同位体比および地下水水質を測定するとともに、密度流を考慮した地下水流動解析を実施する。具体的には、下記研究を実施する予定である。平成 17 年度は、幌延深地層研究所周辺で掘削中のボーリング孔 HDB-11 内で複数の深度から地下水を採水して塩素濃度および塩素安定同位体比を測定し、各深度が移流支配の場合、拡散支配の場合について検討を行う。また、機構が取得しているデータを基に水理地質構造モデルを構築して、塩水と淡水の密度差に起因した密度流を考慮した地下水流動解析を実施し、解析結果に基づいて移流支配か拡散支配かについて検討を行う。平成 18 年度は、初年度の測定結果に基づいて、さらにデータが必要となる地点および深度からボーリング孔内からのサンプリングもしくは保管採水試料・保管コアから採水した地下水を用いて測定データを追加するとともに、測定結果と解析結果の比較により地下水流動場の評価を実施する。平成 19 年度は、2 年間の測定結果と解析結果に基づいて幌延深地層研究所周辺の水理地質構造モデルの妥当性を評価するとともに、塩素安定同位体比測定データに基づいて水理地質構造モデルを改善していく手法について検討を行う。			
【使用主要施設】			
東京大学大学院 新領域創成科学研究科 環境システム学専攻 研究室 コンピュータ 熊本大学 理学部 水文学研究室 水質分析機器 大成建設株式会社 原子力本部 原燃サイクル部 コンピュータ 原子力開発機構幌延深地層研究センター 試錐孔			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成17年度は、HDB-5孔及びHDB-11孔のコア試料からの間隙水抽出を実施し、塩化物イオン濃度および塩素安定同位体比を測定した。また、塩化物イオン濃度および塩素安定同位体比の測定結果と対比するために、幌延地域東部の山地尾根から幌延深地層研究所近傍を通り大陸棚に至るまでの広域を対象とした鉛直2次元の水理地質構造断面モデルを構築し、地下深部の古海水と現海水を考慮した密度流解析を実施した。

平成18年度は、平成17年度に引き続き、幌延深地層研究所周辺のボーリング孔（HDB-5, HDB-7, HDB-11）から採取されたボーリングコア試料からの採水を実施し、抽出水中の塩化物イオン濃度および塩素安定同位体比の測定を行い、各深度が移流支配の場合、拡散支配の場合について検討を行った。また、機構が取得しているデータを基に水理地質構造モデルを構築して、塩水と淡水の密度差に起因した密度流を考慮した地下水流動解析を実施し、解析結果に基づいて移流支配か拡散支配かについて検討を行った。

【研究成果（当該年度）】

本年度は、昨年度に引き続き、HDB-5、7、11の3孔を対象とした。図1からわかるように、HDB-5孔は、塩化物イオン濃度が最大でも5,000mg/L程度と低く、塩化物イオン濃度が増加し始める深度が深いという特徴がある。一方、HDB-7、11の両孔は、深部の塩化物イオン濃度が10,000mg/Lに達しており、塩化物イオン濃度が増加し始める深度も相対的に浅い。このような違いに応じて、塩素安定同位体比の深度プロファイルがどのように変化するかを検討することとした。特に、拡散による塩素安定同位体比分別は、塩化物イオン濃度が変化する領域において顕著に認められると想定されることから、各孔の塩化物イオン濃度の遷移部分から試料を重点的に選定した。分析に用いたコア試料は、直径5cm、高さ10cmの円柱形に成形し、圧搾法（最大抽出圧力60MPa）により間隙水を抽出した。

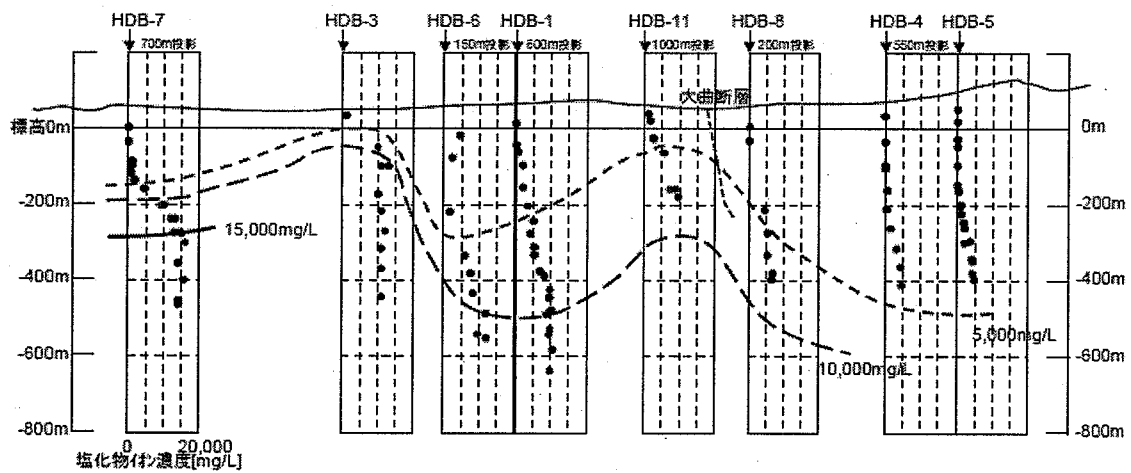


図1 ボーリング孔位置における塩化物イオン濃度分布図

3つのボーリング孔における測定結果を図2に示す。HDB-5孔では、塩化物イオン濃度の変化が認められる深度200mから400mの区間において、塩素安定同位体比の変化が認められない。このことは、HDB-5孔においては、塩化物イオン濃度の変化は、拡散現象ではなく、地下水の流れに伴う移流・分散現象に支配されているものと考えられる。実際、間隙水圧測定結果によると、HDB-5孔の全水頭は、深度方向に向かって小さくなっており、下向きの地下水流動が起きていることが示唆されている。

一方、HDB-7孔では、塩化物イオン濃度がほぼ一定の値になっている深度200m以深では塩素安定同位体比がほぼ0となっているが、その上の深度100~200m区間では塩化物イオン濃度が減少するにしたがって安定同位体比の値がマイナスにシフトしている。塩化物イオンの

拡散においては、質量数の小さいイオンの方が相対的に早く移動するために、 $\delta^{37}\text{Cl}$ 値は拡散の進行に伴ってマイナスにシフトすることになる。このことから、HDB-7 孔においては、塩化物イオン濃度の変化は、主に拡散現象に支配されていると考えることができる。

HDB-11 孔では、深度 100m 程度のあたりでデータがばらついているために、この部分の詳細な検討を行う必要があるが、やはり、塩化物イオン濃度が変化しているところおよびその上位において塩素安定同位体比がマイナスにシフトしていることから、塩化物イオン濃度の変化は主に拡散現象に支配されていると判断される。この孔に関しては、さらに深い深度における塩素安定同位体比を計測し、その値がほぼ 0 となっていることを確認することが必要と考えている。

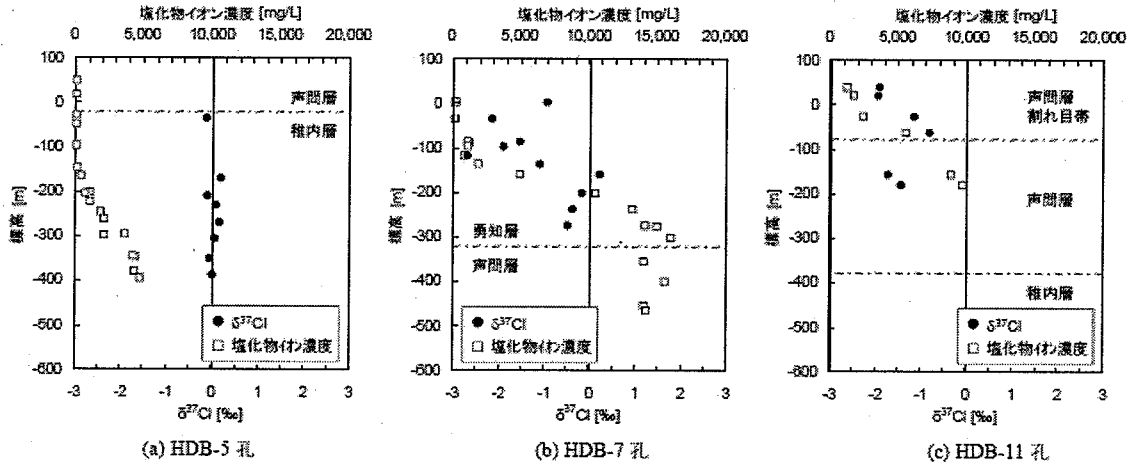


図2 塩素安定同位体比および塩化物イオン濃度のプロファイル

一方、解析に用いる水理地質構造モデルは、幌延深地層研究センター周辺のボーリング HDB-3、5、6 孔の近傍を通り海岸線にほぼ直交する 2 次元の鉛直断面を対象とした。モデル化対象領域は、陸側は海岸線から標高約 210m の尾根線までの約 29km を、海側は海岸線から海深 100m までの 8km を、下方は標高-5,000m までとし、ボーリング調査に基づいて図 3 に示すようにモデル化した。

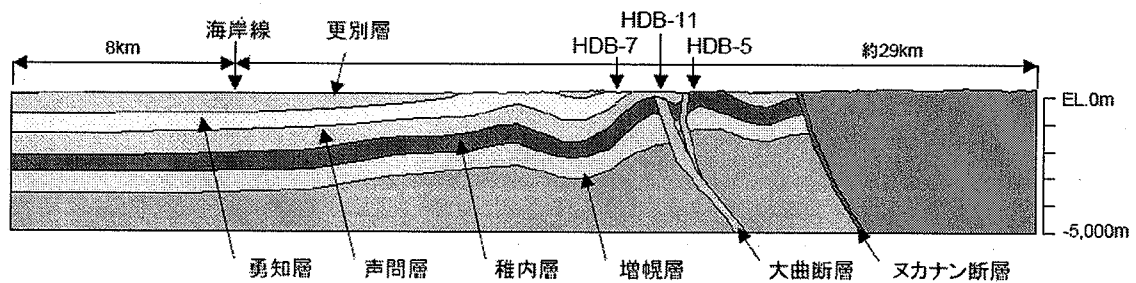


図3 2次元鉛直水理地質構造モデル

各地層の透水係数および実流速の算定に用いた有効間隙率は、ボーリング調査で得られた値に基づいて表 1 のように設定した。ただし、更別層以浅、増幌層、又カナン断層および以東は、データがないため、推定値を用いた。また、地層に係わらず比貯留係数は $1.0 \times 10^{-5}/\text{m}$ 、縦方向分散長は 100m、横方向分散長は 10m、塩水密度は $1,030\text{kg}/\text{m}^3$ (海水濃度 $19,000\text{mg}/\text{L}$ 相当) と設定した。

また、海成の堆積層であることから初期は海水で飽和とし、淡水と塩水の密度差を考慮した地下水流動解析により内陸部地表面からの降雨涵養による塩水の洗い出しを行った。水理および濃度の境界条件は、内陸部地表面は水位固定の濃度 0 固定、海側側方境界は塩水圧固定の

濃度 1 固定，陸側側方境界および下方境界は不透水で濃度は固定しない条件とした。なお，海水準変動に伴う境界条件の変化は考慮していない。

表 1 解析に用いた透水係数および有効間隙率

地層名	透水係数[m/s]	有効間隙率[-]	透水係数設定根拠
更別層以浅	1.0×10^{-6}	0.3	推定値 ⁷⁾
更別層	1.0×10^{-6}	0.45	D-1 孔 ⁷⁾
勇知層	1.0×10^{-9}	0.45	HDB-1~8 孔 ($\log_{10}K=-0.0034z-8.3665$) ⁷⁾ ただし、深度 z は HDB-7 孔内の勇知層の平均深度約 189m 相当とした。
声間層	9.07×10^{-9}	0.5	HDB-1~8 孔 ⁷⁾
稚内層	1.0×10^{-8}	0.4	HDB-1~8 孔 ($\log_{10}K=-0.0105z-3.9118$) ⁷⁾ ただし、深度 z は HDB-5 孔での塩素安定同位体比測定最下深度約 400m 相当とした。
増幌層	5.0×10^{-10}	0.1	推定値 ⁷⁾
増幌層以深	1.0×10^{-11}	0.1	推定値
ヌカナン断層以东	1.0×10^{-11}	0.1	推定値
大曲断層	1.0×10^{-7}	0.3	HDB-4 孔 ⁷⁾
ヌカナン断層	1.0×10^{-7}	0.3	推定値

解析領域全体の 50 万年後の塩化物イオン濃度分布を図 4 に，深地層研究センター周辺の 1 万年後，5 万年後および 10 万年後の塩化物イオン濃度分布および実流速分布を図 5 に示す。これらの図から，時間とともに地形地質構造の影響を受けて降水による塩水の洗い出しが進むことがわかる。

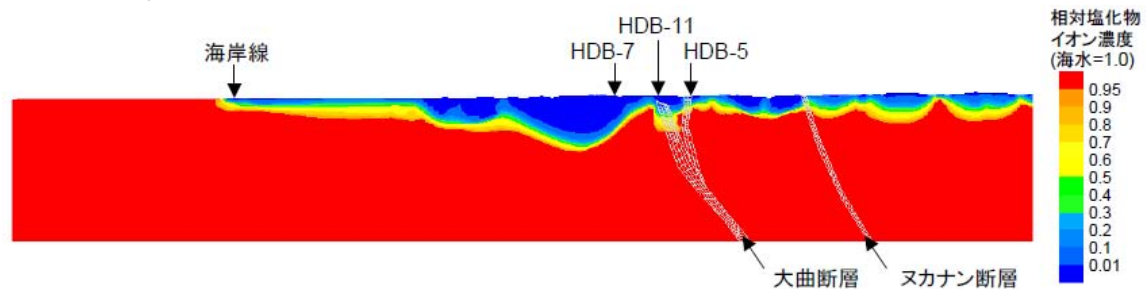


図 4 解析領域全体の塩化物イオン濃度分布

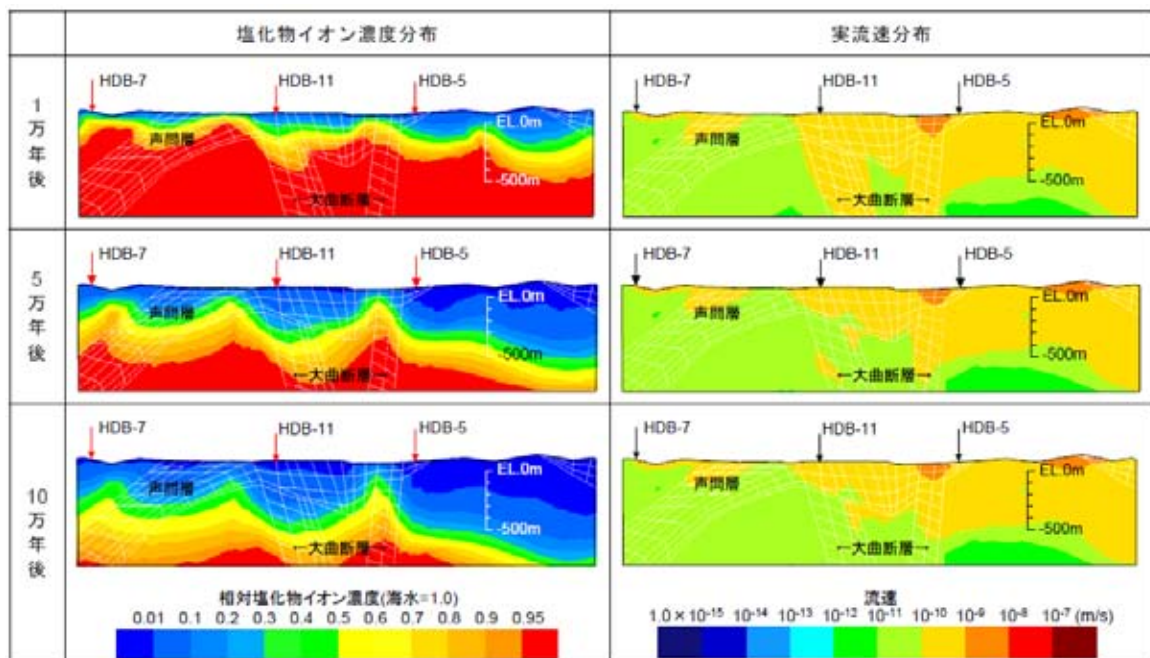


図 5 深地層研究センター周辺の塩化物イオン濃度分布および実流速分布

解析断面への HDB-5、7、11 孔の投影位置での深度方向の塩化物イオン濃度の解析結果を実測値とともに図 6 に、深度方向の実流速の解析結果を図 7 に示す。各孔とも解析より得られた流速分布は深さ方向に顕著な変化はなく、塩化物イオン濃度は降水による洗い出しにより時間とともに低下する傾向を示している。各孔で測定された塩化物イオン濃度の実測値は、HDB-5 孔および 7 孔では 5 万年から 10 万年後の解析結果の間に一致するのに対して、HDB-11 孔では 1 万年後の解析結果とほぼ一致している。

これは、声問層内に位置している HDB-11 孔の解析断面への投影位置が声問層よりも透水係数が約 1 桁大きい大曲断層にあたるため、解析結果は透水係数の大きい大曲断層内での塩化物イオン濃度を反映しているためである。

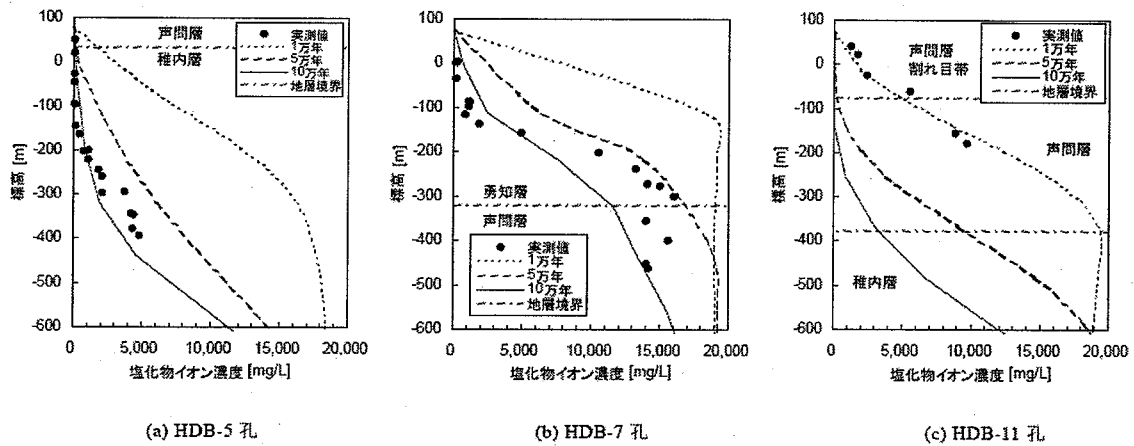


図 6 深度方向の塩化物イオン濃度分布

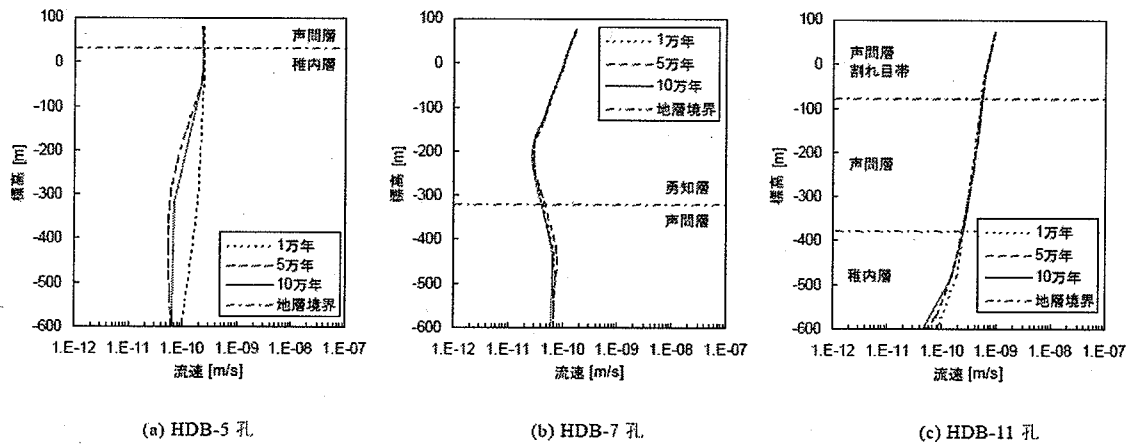


図 7 深度方向の実流速分布

ここでは、塩素安定同位体比測定結果との実流速解析結果の比較を行う。HDB-5 孔では、実流速は $1.0 \times 10^{-10} \text{m/s}$ 前後と比較的小さいものの、前述したように塩素安定同位体比測定結果からは移流・分散現象に支配されている場と考えられる。HDB-7 孔では、上位の勇知層の透水係数が小さいため実流速が $1.0 \times 10^{-10} \text{m/s}$ 以下と小さく、勇知層内の塩化物イオン濃度に変化が見られる標高-200m 前後で塩素安定同位体比にも変化が見られることから、拡散現象が支配的な場と考えられる。ただし、地下深部を含めた流れ場全体を確認するために、勇知層よりも透水性の高い下位の声問層内での塩素安定同位体比も測定しておく必要がある。

HDB-11 孔では、前述したように投影位置が大曲断層にあたるため、実流速は地表面から深さ方向に $1.0 \times 10^{-9} \text{m/s}$ から $1.0 \times 10^{-10} \text{m/s}$ と比較的高い値を示すものの、声問層内での実流速はさらに小さい値を示すと考えられる。実際、声問層表層部で塩素安定同位体比の変化が見られることから、拡散現象が支配的な場と考えられる。ただし、ボーリング調査結果によると声問層上部の割れ目帯とその下部の境界には、割れ目のない低透水性の区間が存在することから、上部と下部で流動場が異なる可能性があるため、標高・100m 前後の境界部や標高・200m 以深で塩素安定同位体比を測定しておく必要がある。

以上、本年度の研究結果は以下のようにまとめられる。

塩素安定同位体比を測定した結果、深度方向に値の変化が見られ、その変化が見られる深度は地表面から涵養した降水の影響が小さい塩化物イオン濃度の変化する深度とも一致することから、塩素安定同位体比により移流が支配的な場と拡散が支配的な場を評価することが可能であると考えられる。塩素安定同位体比から推定された移流場および拡散場の評価結果と地下水流動解析から得られた流速場が必ずしも一致しなかったのは、解析には同一地層内での透水係数の深度依存性を反映していないこと、3次元的地形地質構造の影響を考慮していないこと等が理由と考えられる。今後は、塩素安定同位体比の測定箇所を増やすとともに、より詳細な水理地質構造を反映した地下水流動解析を実施して、塩素安定同位体比による流速場の評価手法を確立していく予定である。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 19 年度は、さらに、塩化物イオン濃度・塩素安定同位体比を計測する地点を増やし、二次元的な分布を明らかにしていくとともに、その結果に基づき、少なくとも半定量的に、数値解析結果を解釈することを試みる。最終的には、計測して得られたデータと数値解析結果を統合し、両者の結果を整合的に理解するための方法を提示するための研究を実施する予定である。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 徳永朋祥・木村ゆき・井尻裕二・本島貴之・國丸貴紀・高本尚彦・嶋田純・細野賢一, 2006, 幌延地域における塩素安定同位体比を用いた塩水淡水挙動評価. 日本地下水学会 2006 年秋季講演会講演論文集,

2.4.7 先行基礎工学研究に関する平成18年度研究概要報告書

研究協力テーマ	マルチスケールでの地質構造・物性の空間モデリング技術の開発										
研究協力課題	東濃地域を対象とした亀裂分布のマルチスケールモデリング技術の開発										
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="3">熊本大学 大学院自然科学研究科 複合新領域科学専攻 生命環境科学講座 小池 克明</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="3">日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門 東濃地科学研究ユニット 結晶質岩地質環境研究グループ 天野 健治</td> </tr> </table>			大 学 側	熊本大学 大学院自然科学研究科 複合新領域科学専攻 生命環境科学講座 小池 克明			機 構 側	日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門 東濃地科学研究ユニット 結晶質岩地質環境研究グループ 天野 健治		
大 学 側	熊本大学 大学院自然科学研究科 複合新領域科学専攻 生命環境科学講座 小池 克明										
機 構 側	日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門 東濃地科学研究ユニット 結晶質岩地質環境研究グループ 天野 健治										
研究実施場所	大学側： 熊本大学工学部研究棟 I 9階 機構側： 瑞浪超深地層研究所 東濃地科学センター										
通算研究期間 (予定)	平成18年11月～ 平成21年3月	当該年度 研究期間	平成18年11月～ 平成19年3月								
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究										
【研究目的】	<p>岩盤中の地質現象（地下水流動や物質移行，水質形成プロセス）の予測は，高レベル放射性廃棄物の地層処分などにおいて，最も重要な研究課題の一つである。地層処分では，数万年というこれまでの工学的尺度では評価の難しかった超長期にわたっての予測が不可欠となる。このための主な課題の一つとして，受け皿となる地質体に分布する地質・地質構造の全体像の解明があげられる。本研究課題はそのための第一ステップであり，「マルチスケールでの地質構造・物性の空間モデリング」において，特に様々な地質現象に大きな影響を与えると考えられる亀裂分布のマルチスケール推定技術の開発を目的とする。</p>										
【研究内容（概要）】	<p>本研究ではボーリングによる地質データと検層データ，フィールドでの地質調査データ，衛星画像と数値地形データ，およびボーリングコアの分析データ，という複数のデータ種の統合により，亀裂分布の全体像の解明を目的とする。そのために，東濃地域とその周辺領域を主な研究の対象とし，次の2項目を検討課題とすることで，特に亀裂が持つ流体移動の役割からマルチスケール亀裂分布モデリングと亀裂の特徴付けを行う。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ミクروسケールからフィールドスケールまで，いずれのスケールでも存在する亀裂の空間分布を，量が限られた測定データから高精度でモデル化する。 ・これと地質，物性，水理・水質情報（岩相，亀裂充填鉱物，亀裂開口幅，P波伝播速度，透水(量)係数，溶存成分など）の空間分布を有機的に統合し，超長期における地質現象の予測（例えば，地下水流動など）のためのリアルな地質モデルを完成させる。 <p>これらの課題には地球統計学（Geostatistics）を基礎とした数理手法を開発し，地質データの空間的相関構造，および異なったスケール間を繋ぐ相似則（スケール則）を有効に取り入れる。</p>										
【使用主要施設】	ワークステーション：DELL Precision 490，ラドン計数装置：Pylon・AB-5，データ解析ソフト：MATLAB，衛星画像処理ソフト：ENVI，物質移行解析システム（東濃地科学センター）										

【進捗状況（当該年度までの概要）】

本研究の主な目的は、ミクロスケールからフィールドスケールまで、いずれのスケールでも存在する亀裂の空間分布を、量が限られた測定データから高精度でモデル化することである。このため、東濃地域とその周辺領域を主な対象として、データ解析、試料分析、フィールド調査を実施した。

具体的には下記の4項目について検討を行った。

- ①本研究の目的のために不可欠な地質データのデータベースの構築
- ②地質名などの非数値型データに適用できるとともに、断層などによって連続性が途切れる状態を表現できる数理地質学的手法を用いた地質属性の3次元モデリング
- ③亀裂の方位や出現頻度に関する空間的相関構造を考慮し、測定データがない領域でも精度良く推定できる確率的手法による亀裂分布の3次元モデリング
- ④Rn 探査と Ra 濃度測定による亀裂の動的性質の把握

【研究成果（当該年度）】

平成18年度の成果は以下の4点に纏められる。

- ①データベースの構築： 原子力機構が所有する広域地下水流動研究や超深地層研究所計画等のボーリングデータをデータベース化し、岩相・物性・透水性に関する高精度の空間モデル作成用のデータを整備できた。

- ②地質属性の3次元モデリング：

ボーリング地質データと確率的空間分布モデリング法を用いて、対象領域での主要地質と物（P波伝播速度、比抵抗）の3次元分布を明らかにできた。これにより花崗岩体と上位の被覆層（堆積岩）の構造や堆積環境の推定、風化度が大きいゾーンの特定、および比抵抗が小さく透水性が高い可能性があるゾーンの検出などが可能になった。

- ③亀裂分布の3次元モデリング：

地球統計学での従来の対象データの殆どはスカラー型であり、ベクトル型の方位要素データに対しては有効ではない。そこで、ベクトルデータの代表である亀裂の空間分布シミュレーションに適用できる地球統計学的手法を開発した。これは下記のステップから構成される。

まず、正規分布に変換された亀裂密度のセミバリオグラムを求め、ガウス型シミュレーションにより亀裂密度の空間分布を推定する。密度分布に基づき、亀裂の中心点をランダムに与える。次に、亀裂の走向をEW, NW, NS, NEの4方向、傾斜を北側・南側の2方向に大別し、各方位範囲に0, 1のインディケータを与える。これを亀裂データの位置におき、主成分分析を適用し、各主成分値のセミバリオグラムを求める。各中心点に対し、主成分値をクリギングにより補間する。これを主成分変換前の座標系に戻し、最も値が高い方位の範囲を選ぶ。さらに、この範囲における亀裂走向・傾斜角の積算確率分布とモンテカルロ法により、注目する中心点での亀裂に方位を与える。シミュレートされた2本の亀裂の方位の相違と距離を条件として、許容範囲内であれば連結させる。

本手法の適用によって、連続性の良い亀裂ゾーンが見出されるとともに、全く観測データがない領域でも連続亀裂が現れるなどの有効性が確認できた。また、亀裂の形状（開口割れ目、破碎帯など）や状態（粘土化、変質帯など）も空間モデリングに取り入れ、亀裂の幾何学的性質のみでなく、花崗岩体での流体移動履歴や亀裂の成因も推定できる基礎資料が得られた。

- ④亀裂の動的性質の把握：

亀裂の動的特徴、すなわち、いずれの亀裂が繰り返し活動した履歴を持つか？について予備的な検討を行った。繰り返し動いた亀裂であれば透水性が高くなり、降雨起源流体の良いパスになると推測できるからである。そのために、放射性核種で唯一のガス体である（Rn）とその親核種であるラジウム（Ra）に注目し、微小地震の多発地帯と空白域で表土を対象とした

予察的な Rn 探査と Ra 濃度測定を行った。これから数千年以内で繰り返し動きのある亀裂であれば、その周辺で Rn ガスが非平衡状態となり、Ra 濃度も増加するという傾向が明らかになった。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 19 年度は、平成 18 年度に引き続いて東濃地域とその周辺領域における種々の亀裂に関連するデータを用い、特に亀裂が持つ流体移動の役割からマルチスケール亀裂分布モデリングと亀裂の特徴付けを行う。そのために以下の 3 つのスケールの亀裂群を解析する予定である。

①大規模スケール亀裂： 数値地形モデルや衛星画像などを用いて、地形に現れる大規模亀裂群を抽出するとともに、それらの走向・傾斜を推定する。

②ミクروسケール亀裂： ボーリングコアを用いて、マイクロクラックを抽出する。

これらと、ボーリング調査データに基づき、平成 18 年度に対象とした③マクروسケール亀裂を用い、 μm ~ km のオーダにわたる亀裂データを統合する。各スケールでの長さ、密度、方位、幅に関する分布から、これらの空間的相関構造とスケール則を明らかにする。このスケール則を考慮してマルチスケールで亀裂分布のモデリングを行える地球統計学的シミュレーション法を開発する。

平成 20 年度は、亀裂部と基質部の透水性の相違とそれらの空間的な変化などに関する水理モデリング、および空間分布モデルの統合に関する研究を実施する予定である。

【研究成果の公表】

<論文>

- 1) Koike, K. (2006) How can we model correctly invisible geologic structures and properties from small pieces of geological information?, *Proceedings of 9th International Symposium on Mineral Exploration (ISME-IX): Toward New Frontiers for Resources Exploration and Sustainable Development*, Bandung, Indonesia, Sep, 19-21, pp. 1-8. (査読有)
- 2) Koike, K., Suetsugu, K., Yoshinaga, T., and Liu, C. (2006) Spatial heterogeneity of radon concentrations in top soils along an active fault zone, *Proceedings of XIth International Congress for Mathematical Geology (IAMG'06): Quantitative Geology from Multiple Sources*, Liège, Belgium, Sept. 3-8, S02-04 (pp. 1-5), CD-Rom press. (査読有)
- 3) Liu, C., Koike, K., and Sanga, T. (2006) Geostatistical simulation of rock fractures distribution by considering directional elements, *Proceedings of XIth International Congress for Mathematical Geology (IAMG'06): Quantitative Geology from Multiple Sources*, Liège, Belgium, Sept. 3-8, S06-15 (pp. 1-4), CD-Rom press. (査読有)
- 4) Liu, C., Koike, K., and Sanga, T. (2006) Three dimensional simulation of rock fractures by geostatistical method with consideration of directional elements, *Proceedings of 4th International Workshop on Earth Science and Technology*, Fukuoka, Japan, Dec. 4-5, p. 29-36. (査読有)
- 5) Teng, Y. and Koike, K. (2006) Permeability estimation in geothermal area by inversion analysis of 3D temperature distribution using well-logging data, *Proceedings of 4th International Workshop on Earth Science and Technology*, Fukuoka, Japan, Dec. 4-5, p. 187-192. (査読有)

<国内会議>

- 1) Liu, C., Koike, K., and Sanga, T. (2006) Geostatistical simulation considering directional elements with application to rock fracture distribution, *情報地質*, vol. 17, no. 2, pp. 110-111.
- 2) 小池克明・藤 云・Masoud, A. (2007) 地質情報の統合による断層の広域的透水性の推定, *資源・素材学会春季大会講演集(I)資源編*, 企画-1-2.
- 3) Liu, C., Koike, K., and Sanga, T. (2007) Three dimensional simulation method of rock fractures using geostatistics with a case study of granitic area, *資源・素材学会春季大会講演集(I)資源編*, 企画-3-4.

<資料>

- 1) 小池克明 (2006) 地圏環境インフォマティクスに必要な空間モデリング法, *資源・素材 2006 (福岡) 企画発表・一般発表 (C)(D) 講演資料*, p. 81-84.

2.4.8 先行基礎工学研究に関する平成18年度研究概要報告書

研究協力テーマ	低温領域における熱履歴解析に関する基礎研究		
研究協力課題	(U-Th)/He 年代測定システムの構築と地質試料への適用に関する研究		
研究者所属、氏名			
大 学 側	田上 高広 (京都大学) 山田 隆二 (防災科学技術研究所) 〔*客員研究員 **研究生〕		
機 構 側	梅田 浩司・花室 孝広・山田 国見 (地層処分研究開発部門東濃地科学研究ユニット自然事象研究グループ)		
研究実施場所	東濃地科学センター質量分析室 京都大学理学部地質学鉱物学教室年代学実験室、同鉱物分離室		
通算研究期間 (予定)	平成18年6月～ 平成21年3月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成18年6月～ 平成19年3月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>(U-Th)/He 年代測定システムを構築し、地質試料に対して測定手順や年代較正法等を確立することにより、第四紀の非火山地帯の熱水活動や断層活動等に伴う低温領域(100℃程度まで)での熱的イベントを対象とした熱履歴解析を行うことが可能となる。本システムの実用化により、過去の天然現象が生じた時期や地質環境に及ぼす影響の程度が精度良く把握でき、地層処分における地質環境の長期安定性を評価するうえで不可欠な情報を得ることができる。</p>			
【研究内容(概要)】			
<p>(U-Th)/He 法は、1990年代後半にカリフォルニア工科大学で開発された手法であるが、特にレーザーを用いた分析については2001年に開発された新しい定量手法であることから、日本ではまだ実用化に至っていない。本共同研究では、原子力機構が保有する希ガス質量計にレーザー溶解装置を含む前処理ラインを導入した年代測定のシステムを構築して、微小なヘリウムの定量を行う。また、国際標準試料を用いて、年代値の較正法等を確立する。</p>			
【使用主要施設】			
<p>日本原子力研究開発機構東濃地科学センター 質量分析室 ((U-Th)/He 年代測定システム) 機器分析室 (ICP-MS)</p> <p>京都大学理学部地質学鉱物学教室 年代学実験室 (VG3600 質量分析計) 鉱物分離室</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 18 年度は、希ガス質量分析装置とヘリウム抽出用レーザー加熱装置等について、装置の修理や改良を進めた。また、これを用いて、抽出条件の決定と定量測定に関するパラメータの決定作業を実施した。

【研究成果（当該年度）】

- ・ ヘリウム抽出用レーザー加熱装置等によるヘリウム抽出条件の決定

年代既知のジルコンを対象に加熱条件を変化させてヘリウムの抽出を行った。ジルコンは丹沢トータル岩複合岩体のうち、ステージ2の貫入とされるユージン岩体から採集・分離したもので、平均的にはウラン濃度約 30~250ppm、トリウム濃度 10~50ppm 程度であり、ヘリウム量は約 1nmol/g、ウラン・トリウム・ヘリウム年代は約 3Ma である。これをテストサンプルとした理由は、年代既知であることの他に分離済みの試料が潤沢にあること、結晶が大きくハンドピックにかかる労力を低減できること、ウラン濃度が低いためガス量は少ないものの、むしろ目的とする冷却年代（少なくとも 5Ma 以下）を考慮すると定量の目標にするには適当であること、などによる。抽出実験の結果、15A で 30 分照射すれば完全にヘリウムが抽出されることが確認できた。しかしながら、試料によっては見かけ上いったん完全にヘリウムが抽出されたあとで特異的に更なるヘリウム放出が観察されることがことから、今後、他の試料を用いた検討を引き続き進めていく予定である。

- ・ 質量分析装置の真空真空度の改善

希ガス質量分析装置については、当初、真空度が正常値の 10 倍程度以下に下がらなかったため、通常の手順でヘリウムリークテストを行ったが、真空漏れの箇所を特定することができなかった。しかしながら、真空装置を各部位ごとにビニールフードで完全に独立させ、ひとつひとつ時間をかけてリークテストを繰り返すことでリークしている箇所を特定することができた。さらに、問題のある配管を排気系から切り離すことで高真空（ $1E-7$ Pa 以下）を達成した。リークの原因はクイックカップリングガスケットのOリングで、しかもターボ分子ポンプの背圧側に存在しているものであるが、これは非常にまれな事例であり、真空系の維持にあたっての貴重な知見を得ることができた。

- ・ ヘリウム定量測定に関するパラメータの決定

体積既知の精製ラインと絶対量既知の標準大気を用いて、レーザー抽出ラインの体積測定（1434cc）ならびに絶対感度を測定するための手順について検討を行った。現在までに、標準偏差にして 10%程度の精度で定量が可能であることを確認できた。これまで東濃地科学センターの希ガス質量分析計は同位体比の測定を主に行ってきたが、本研究に際しては、抽出ラインを含めた装置全体の感度を決定し、サンプルから抽出したヘリウムの定量を精度良く（当面は 1~数%程度）行う必要がある。

・ レーザー抽出装置の改良

加熱中の試料の温度を直接に監視するため、ファイバー式赤外線温度計を新たに導入した。また、既存の試料皿の試料設置孔が深いことやチャンバーに設置する際に保持する場所がないことなどの不具合については、孔の浅い試料皿を作成し（レーザーの合焦点について配慮した結果、皿の厚みを増すことで試料設置孔底面の空間的な位置は従来通りとした）、ピンセットで容易に保持できるように試料孔とは別に保持孔を空ける等してこれを改良した。さらに、ターボ分子ポンプ接続部のコンダクタンスを向上させるため、ポンプ直上の配管を内径16mm から 60mm とする改良を行った。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 19 年度は、引き続き、装置の改良とヘリウム定量法の確立を実施する予定である。

平成 20 年度は、年代標準試料を用いた各測定手順の最終的な較正、マニュアルの作成を実施する予定である。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 東濃地科学センターにおける VG5400 および固体ガス抽出ラインの現状、山田国見・花室孝広、日本質量分析学会 2006 年度同位体比部会研究会、11 月 8 日。
- 2) 東濃地科学センターにおける(U-Th)/He 年代測定システムの現状、山田国見、日本フィッシュントラック研究会、12 月 8 日。

<国際会議>

- 1) (U-Th)/He thermochronology of the Tanzawa Tonalite complex, Japan., Yamada, K. and T. Tagami, International Workshop on Tectonics of Plate Convergence Zones, Sep. 28.
- 2) (U-Th)/He and fission-track thermochronology of the Tanzawa Tonalite complex, Japan. Yamada, K. and T. Tagami, AGU Fall meeting, Dec. 11.

2.4.9 先行基礎工学研究に関する平成18年度研究概要報告書

研究協力テーマ	断層帯の影響を考慮した地下水の流動解析		
研究協力課題	断層帯及び亀裂を考慮した堆積岩地盤の水理学的構造の決定と地下水の移動解析		
研究者所属, 氏名			
大学側	京都大学大学院工学研究科 嶋本 利彦, 上原 真一 〔*客員研究員 **研究生〕		
機構側	地層処分研究開発部門 堆積岩地質環境研究グループ 茂田 直孝, 操上 広志, 新里 忠史, 舟木 泰智		
研究実施場所	<ul style="list-style-type: none"> ・ 広島大学大学院理学研究科 地球惑星システム学専攻 ・ 京都大学大学院工学研究科 都市環境工学専攻 ・ 機構 幌延深地層研究センター 		
通算研究期間 (予定)	平成18年6月 ~ 平成21年3月	当該年度 研究期間	平成18年6月 ~ 平成19年3月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>幌延地域をモデルとして、地下の流体移動を解析するために必要な地下の水理学的構造を決定し、当地域地下深部における長時間スケールの流体移動を解析する。全層序から採取したサンプルの水理学的性質を測定することによって、堆積岩の性質の多様性と長期的なセメンテーションの効果を経験的に評価する。また、断層帯と亀裂の影響を含めて水理学的構造を決める。</p>			
【研究内容 (概要)】			
<p>地下の水理学的性質は、堆積岩の浸透率・間隙率・比貯留率・Skempton 定数などの水理学的性質を深部条件下で測定して見積もる。全層序から採取したサンプルを測定することによって、堆積岩の性質の多様性と長期的なセメンテーションの効果を経験的に評価する。また、断層帯と亀裂の影響を含めて水理学的構造を決めることも本研究の柱である。そのために、サンプルを用いた室内での測定結果をボーリング孔を用いた現位置透水試験結果と比較して評価し、ある深度の現位置試験と様々な深度条件下で測定した室内実験の結果を相補的に活用する。堆積岩は圧密・セメンテーションの進行とともに固結して流体を通しにくくなるが、隙間が少なくなると、堆積岩でも断層帯・破断面沿いに流体は通りやすくなる。本研究代表者(嶋本, 2004, 2005)は、両者の中間、つまり圧密が十分に進行して流体が通りにくくなっているけれども、断層帯・亀裂面沿いに流体が容易には動けない状態で、堆積岩は「最大シール能力」をもつことを提唱した。本研究の骨格となるのは、この「最大シール能力」という概念を使って多孔質堆積岩の特徴を浮き彫りし、どのような堆積岩がいかなる条件下で最大のシール能力をもつかを決めることである。</p>			

【使用主要施設】

高圧三軸容器内変形透水試験機
ガス圧式高圧三軸変形透水試験機

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 18 年度は、北海道北部、幌延地域西部に分布する新第三紀から第四紀にかけての堆積岩類（主に稚内層、声問層、勇知層）を対象として、亀裂等の発達しない健岩部の試料を用いた高圧室内水理試験により、その水理特性（浸透率、間隙率）の圧力依存性（深度や固結度依存性）を調べた。また、亀裂の透水特性の圧力依存性を調べる第一歩として、人工的に切断面を与えた供試体による試験を行った。

また、それら堆積岩類中に発達する断層破碎帯（断層、亀裂）の水理構造特性の理解を目的として、ボーリングコア試料および地表露頭を対象とした断層帯内部構造の観察・記載を行った。

【研究成果（当該年度）】

本年度は、主に以下に述べる項目を実施した。

1. 室内試験による健岩部および単一亀裂の水理特性の把握

幌延地域西部に分布する新第三紀から第四紀にかけての堆積岩類である稚内層（陶器岩）、声問層（珪藻質泥岩）、勇知層（砂岩）について、ボーリングコア試料および地表面から採取した試料を対象に、静水圧条件下でのガス浸透率、間隙率といった水理特性を測定する実験を行い、水理特性の応力依存性を調べた。実験は、研究代表者研究室の既存の実験システムにて行い、封圧 120 MPa～80MPa 付近までの拘束圧条件下において測定を行った。

拘束圧の対数とガス浸透率、間隙率の関係を見ると、拘束圧の昇圧過程においては、低圧部では緩やかな変化を示していたものが、ある拘束圧から急激な変化を示す傾向が見られる。また、最高圧からの減圧過程での変化は、昇圧過程の低圧部と類似している。この結果には、土質力学で知られている正規圧密・過圧密の概念を適用できると考えられる。しかしながら、実験で観察される変曲点から推定された最大埋没深度は、地質学的知見やシリカ鉱物相が変化する温度条件に基づき推測された値に比べて大きい。

ボーリングコアから採取した試料と地表面から採取した試料の結果を比較してみると、上述の「正規圧密」時および「過圧密」時の応力依存性の勾配は非常によく似通っているが、変曲点の拘束圧は食い違っている。以上の「最大埋没深度」についての疑問点は、今後測定数を増やしながら検討を進めていく。

また本年度は、室内試験結果より得られた水理特性の応力状態および応力履歴依存性を元に、透水係数および間隙率の深さ分布を推定した。推定した透水係数分布とボーリング孔で実施した水理試験から得られた透水係数を比較すると深さに伴う値の勾配は類似しているが、絶対値には違いがみられた。これは、室内試験では対象としていない大きなスケールの亀裂などの影響が一因と考えられる。

岩石中の単一亀裂の影響を評価するための試みとして、勇知層および声問層の岩石にカッターで切れ目を入れ、その切れ目沿いに間隙流体が流れるようにして上述と同様の試験を行った。その結果、勇知層では拘束圧が 5MPa 付近、声問層では拘束圧が 30MPa 付近で、亀裂無しの結果とほぼ同様の値を示した。

2. 断層破碎帯の水理特性の把握

大曲断層付近の稚内層中に見られる小断層群について、調査を行った。これらの断層は、中心部に厚さ 2, 3cm 程度の破碎帯が見られた。この破碎帯は粘土質と思われる粘着性が若干観察されるが、礫を多く含みその浸透率は高いことが予想される。将来的にその破碎帯から採取した試料について浸透実験を行い、その浸透特性を検討する予定である。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 19 年度は、前年度に引き続き、北海道幌延地域およびその周辺部における新第三紀堆積岩（主に稚内層、声間層、勇知層、増幌層、鬼志別層）について、健岩部の試料および単一亀裂の入った試料、断層ガウジ・断層角礫等の試料を用いた高圧室内水理試験により、断層帯の水理特性についての検討を行う予定である。また、健岩部および破碎帯部試料について三軸応力条件下で軸変形に伴う水理特性試験を行い、せん断帯の構造（局所化する・しない）や変形に伴う水理特性変化について、圧力履歴・間隙率・変形時の封圧の依存性を調べる予定である。

平成 20 年度は、引き続き三軸変形時の水理特性の変化に関する研究を行い、また前年度までに得た結果及び本地域で推定されている地質構造モデルを踏まえて、本研究地域における水理地質構造モデルを構築する予定である。そのモデルを用いた数値解析結果と原位置で行われている水理試験や水質分析結果等と比較することによって、水理地質構造モデルの定量的評価を行う予定である。

【研究成果の公表】

＜論文＞

- 1) 嶋本利彦, 堤 昭人, 廣瀬丈洋, 相澤泰隆, 曾根大貴, 上原真一, 谷川 亘, 野田博之, 溝口一生: 京都大学の摩擦・変形・透水試験機, 構造地質, Vol. 49, pp. 49-71, 2006 (査読なし)

＜国内会議＞

- 1) 上原真一, 嶋本利彦, 操上広志, 舟木泰智, 大西有三: 北海道幌延地域における新第三紀および第四紀堆積岩のガス浸透率および間隙率の応力履歴依存性に関する実験的研究, 日本地球惑星科学連合 2007 年大会, 2007 年 5 月 千葉 (予定, 投稿済み)
- 2) 上原真一, 嶋本利彦, 操上広志, 新里忠史, 舟木泰智, 大西有三: 室内試験結果を用いた新第三紀および第四紀堆積岩の浸透率および間隙率の深度分布の推定 - 北海道幌延地域を例として -, 平成 19 年度土木学会全国大会第 62 回年次学術講演会, 2007 年 9 月 広島 (予定, 投稿済み)

2.4.10 先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	岩石、鉱物、地下水に関する微視的領域における地球化学的研究		
研究協力課題	堆積岩の微視的性状把握と水-岩石反応実験による地球化学特性の解明		
研究者所属、氏名			
大学側	筑波大学生命環境科学研究科 講師 小室光世, 自然学類 4年 斎藤京子 慶応義塾大学理工学部応用化学科 教授 鹿園直建, 理工学部 4年 吉田英樹 函館工業高等専門学校物質工学科 教授 水上正勝, 助手 大森幸子 物質工学科 5年 市井 了 東京学芸大学教育学部 教授 中田正隆, 講師 小坂知己, 助教授 佐藤公法 大学院修士課程教育研究科 研究生 田村維都江, 教育学部 4年 松田未央 三菱マテリアル資源開発(株) 富山真吾, 増留由起子		
機構側	機構 幌延深地層研究ユニット 堆積岩地質環境研究グループ 國丸貴紀, 舟木泰智		
研究実施場所	筑波大学生命環境科学研究科及び分析センター, 慶応義塾大学理工学部応用化学科, 函館工業高等専門学校物質工学科, 東京学芸大学教育学部地学科各実験室		
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 10 月 ~ 平成 21 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 18 年 10 月 ~ 平成 19 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>高レベル放射性廃棄物の地層処分システムの性能評価における重要な課題として、変動帯に位置する我が国で突発的な地質イベントの影響も含めた長期間の評価体系を確立することに加え、地質環境（天然バリア）における物質移行プロセスを的確にモデル化することがあげられる。しかしながら、天然の地質環境は、岩体や地層により化学組成、鉱物組成、空隙の分布様式が異なることに加え、これらが様々なスケールで不均質性を有し、さらには断層、破碎帯、節理、割れ目も様々なスケールにわたって発達するため、概念的な地質環境モデルを具体化する際、どのようなスケールの性状まで考慮するかはこれまでの知見では難しい課題であった。</p> <p>また、堆積岩における物質移行に関与する地下水の経路は、微小な空隙に加えて断層、破碎帯、節理、割れ目が考えられる。さらに、移行経路には、堆積岩の構成鉱物に加えて割れ目に形成された鉱物も露出するので、実際にどのような岩石-水反応が卓越し、また、関与するかは明らかではない。これらの問題を解明するには、天然における地質環境特性のデータを精度よく取得できるフィールドにおいて、地質環境、岩石、鉱物の様々なスケールにおける解析や、調査、理論解析、モデル化に加えた実験的検討を行い、どのようなスケールにおける不均質性まで考慮に入れるか検討する必要があると考えられる。</p> <p>天然の堆積岩を対象に、露頭観察のような巨視的スケールから電子顕微鏡や原子間力顕微鏡による微視的スケールに至る様々な観察、解析を行うことは、多様かつ不均質な地質環境、岩石、鉱物の界面や空隙の性状の解明が期待される。また、実際の岩石、鉱物を用いた水-岩石-微生物反応実験は、理論（平衡論、物質移動論、反応速度論）と天然調査結果の相違や、反応機構、さらにはどういった鉱物が重要な役割を果たすかの解明が期待される。</p> <p>(独)日本原子力研究開発機構（以下、原子力機構）が北海道幌延町で実施している幌延深地層研究計画で実施している地下水の地球化学特性調査では、広域的な地下水水質の 3 次元的な分布を把握してきた。本研究では、微視的領域における岩石-水反応や酸化還元境界に関する情報を正確に把握するために必要な調査、研究手法を確立することを目的とする。具体的には、堆積岩を対象に岩石・鉱物学的な調査手法を適用し、微視的領域の地球化学特性を把握し、酸化還元境界に関する検討を行う。さらに、微視的な領域で生じる岩石-水反応についての検討を行う。</p>			

【研究内容 (概要)】

本研究では、我が国の堆積岩類、特に幌延地域に分布する泥質岩を対象に、堆積岩の微視的性状把握と水-岩石反応実験を行い、様々なスケールで不均質な岩石、鉱物、空隙の性状の解明、界面における反応機構の解明、界面反応やコロイドを含めた水-岩石の解明を目的とする。幌延深地層研究センターにおける天然の地質環境におけるデータ取得や解析評価と連携し、不均質な堆積岩における物質移行プロセスのモデル構築および入力パラメータ取得に資する。具体的な研究課題を以下に示す。

(堆積岩の微視的観察、分析、解析)

- ①堆積岩の岩石鉱物学、地球化学的性状把握
- ②堆積岩の空隙および界面の微視的性状把握
(水-岩石-微生物反応実験)
- ③堆積岩の長期的イオン交換能力、酸化還元保持能力の把握
- ④界面反応の地下水地球化学組成や物質移行への影響の解明
- ⑤地下水化学組成の成因

【使用主要施設】

- (1)筑波大学：実験室，SEM-EDS，ICP，ICP-MS，EPMA，各種顕微鏡
- (2)慶応義塾大学：実験室，XRF，XRD，粒度分布測定装置
- (3)函館工業高等専門学校：実験室，XRF，XRD，水岩石反応実験装置，SEM-EDS
- (4)東京学芸大学：実験室，XRD，SEM，ICP，STM
- (5)機構 幌延深地層研究センター：試錐孔，試錐調査により得られた岩芯や地下水試料
- (6)ソフトウェア：①多変量解析：ジーエルサイエンス社，多変量解析ソフトウェア Pirouette LE 2710-35110，②地化学解析：地球化学平衡計算コード PHREEQC 2.8 & GWB，熱力学データベース JNC公開データ (990900c1.tdb)

【進捗状況 (当該年度までの概要)】

平成18年度は、初年度にあたり、これまでの現地調査で得られたデータのレビュー、解析を行い、室内実験で用いる試料および比較参照用の堆積岩を選定し、主にその基本的な性状把握を行った。①岩石鉱物学、地球化学的性状把握、②空隙および界面の微視的性状把握、③長期的イオン交換能力、酸化還元保持能力の把握、④界面反応の地下水地球化学組成や物質移行への影響の解明、⑤地下水化学組成の成因に関する下記の研究を実施した。

①岩石鉱物学、地球化学的性状把握としては、通常の大気開放環境下で、XRDによる主要鉱物の同定、光学顕微鏡観察、電子顕微鏡観察、EPMAマッピング分析による元素分布の分析を行い、これらの結果から、地層の岩石・鉱物学的特徴の検討、検討手法の評価を行った。②空隙および界面の微視的性状把握としては、比表面積の測定、空隙の分析と分析技術開発、ナノサーチ顕微鏡(島津製作所製)製作、光学顕微鏡、レーザー顕微鏡、プローブ顕微鏡を組み合わせた顕微鏡による表面の形態観察を実施した。③長期的イオン交換能力、酸化還元保持能力の把握として、Ca-smectiteの Sr^{2+} と Ca^{2+} の分配係数測定基礎実験、常温淡水の水-岩石反応実験、常温～高温における人工海水反応実験を行った。④界面反応の地下水地球化学組成や物質移行への影響の解明としては、固体を用いた水-岩石反応実験を行った。⑤地下水化学組成の成因としては、現場データの理論解析を行った。

進捗状況は、原子間力顕微鏡観察は若干遅れていること、海水との反応実験は計画よりも進んでいることなど項目により差異はあるものの、基本的に当初計画通りに進んでいるものと判断される。各種分析における試料の前処理や保存が天然状況と対応しているかどうか、例えば、岩石が酸化されたり、乾燥などでクラックが生じたり、真空引きによりクラックが生じたり、といった試料の保存や処理に伴う問題で苦慮している。こういった問題についてきちんと認識し、こういった技術開発が優先順位が高いか検討し、随時工夫しつつ実験を進めている。

【研究成果（当該年度）】

- ① 岩石鉱物学、地球化学的性状把握として、通常の大気開放環境下で、XRDによる主要鉱物の同定、光学顕微鏡観察、電子顕微鏡観察、EPMA マッピング分析による元素分布の分析を行った。XRDの結果、全ての試料で、石英、長石類、雲母粘土鉱物、黄鉄鉱、マグネサイトが、また、声間層相当の試料ではオパール-Aが、稚内層相当の試料ではクリストバライトが同定された(図 1,2)。光学顕微鏡観察の結果、粘土質珪質岩であった。電子顕微鏡観察では、声間層相当の試料は珪藻化石が保存されている(図 3(A))のに対し、稚内層相当の試料は珪藻化石が深度に伴って減少すること(図 3(B,C))は、珪藻に富む岩石の埋没続成による珪質鉱物の相変化に対応する。珪藻化石には多くの微細な空隙が認められた。また、クラックが認められたが、初生的なものか、試料の前処理に起因するのか判定できなかった。軟弱な試料のSEM観察の前処理において、クラックの発生や粘土鉱物の形状変化が知られており、本地域のどの深度の試料までこういった前処理による変化を考慮する必要があるのか検討する必要がある。いくつかの試料では、大気開放環境下での変化、変質が著しく、主に、鉄硫化鉱物の酸化分解に起因しており、酸化分解を防ぐ工夫を随所で随時行う必要がある。
- ② 空隙および界面の微視的性状把握としては、比表面積の測定、空隙の分析と分析技術開発、ナノサーチ顕微鏡(島津製作所㈱製作、光学顕微鏡、レーザー顕微鏡、プローブ顕微鏡を組み合わせた顕微鏡)による表面の形態観察を実施した。比表面積を解析—散乱式粒度分布測定装置(LA-920)で求めた結果、 $3.5\sim 5.5\text{ cm}^2/\text{cm}^3$ となった(図 4)。

空隙の分析と分析技術開発として、陽電子を用いた電子消滅実験を行った。サンプル③ HDB-11: 273m、⑥HDB-11: 625mを焼き入れして乾燥させたものについて、陽電子消滅実験を行った。電子寿命スペクトル(生データ)の結果を、比較のための Quartz、Chert、高ケイ酸高ホウ酸ガラス、火山ガラス、ソーダ石灰ガラス、熔融石英とともに、図 5 に示す。サンプル 271、624 とともに種々のガラスと類似なスペクトルの形状をしており、陽電子が検出している局所的なナノ構造は基本的にはこれらと同様であることがわかる。計測した寿命スペクトルを汎用プログラム POSITRONFIT で解析した結果、1~2 ナノ秒の陽電子寿命が得られた。これらの寿命値は、平均空隙サイズにしてサブナノメートルに対応する。しかも、寿命値から判断して表面に連結していない閉じた空間(閉鎖型空孔)であると推測できる。このような領域の空隙はマイクロ空孔として認識されており、水銀圧入法やガス吸着法では検出できない微視的次元の空隙である。図 6 に得られた陽電子寿命相対強度(空隙の量に対応する)を示す。良質な結晶性を持つ Quartz では、当然のことながら空隙は検出されないため、相対強度は 0 である。空隙量は Chert で数%検出され始め、火山ガラス、ソーダ石灰ガラス、高ケイ酸高ホウ酸ガラスと上昇し、熔融石英では 50%以上に達する。サンプル③ 271 と⑥624 については、それぞれ 13%と 4%の空隙が検出され、サンプル③271 の空隙量が⑥624 と比較して大きい。

同様な実験をサンプル③271 と⑥624 をウェットな状態にして行った(図 6 の黒■、wet)。

- ③ 271 と⑥624 について、それぞれ 6%、3%の上昇が見られる。この上昇は、クラックなどのマクロスコピックな空隙に取り込まれた水分子と陽電子が反応しポジトロニウムという反水素様結合状態を形成した結果である。水分子導入によって上昇する割合は、サンプル③ 271 のほうが⑥624 よりも高い。これはサンプル③271 について、密度が高い、面積が広いなどの理由により、マクロスコピックな空隙サイトが多量であることを示す。

サンプル③271 について、さらにウェットな状態(wetter)にして実験を行った(図 6 の黒▲、wetter)。wet と比較して変化は見られなかった。水分子と反応する陽電子がすでに飽和しており、微量な水分でも陽電子が反応可能であることを示している。言い換えると、

真つ先に水に影響されるところは、マクロスコピックな空隙であることを示す。

陽電子を用いた実験により、マイクロおよびマクロスコピックな空隙の情報を得ることができた。マイクロ空隙はグレイン内にある閉鎖型空隙であると推測されるため、他の手法では検出不可能である。同一試料の他の方法との比較を図 7 に示す。水銀圧入法、X 線小角散乱法のいずれも、異なったオーダーの空隙データを取得していることがわかる。今後は、空隙のデータ取得において、これらの方法の総合的体系化、天然状態と対応する試料の前処理方法の技術開発が必要と考えられる。

ナノサーチ顕微鏡で特に表面研磨を施すことなく測定を行った結果では、ラフネスが大きすぎてプローブ顕微鏡レベルの測定は実行することが出来なかった。レーザー顕微鏡で観察した採取したコアの反射輝度像と高さ 3 次元像(図 8)では、試料表面の凹凸は大きく $96 \mu\text{m} \times 128 \mu\text{m}$ の範囲での高低差は最大 $63 \mu\text{m}$ にも達し、数十 μm オーダーの亀裂が認められる。クラックが、初生的なものか、試料の前処理に起因するのか判定できず、プローブ顕微鏡での観察を含め、前処理の技術開発が必要と考えられる。また、測定に高真空環境を必要とする X 線光電子法やオージェ電子分光法などの手法の適用には、どういった試料の保存、前処理が最適であるか、方法の技術開発を含めて検討する必要がある。

- ④ 長期的イオン交換能力、酸化還元保持能力の把握として、Ca-smectite の Sr^{2+} と Ca^{2+} の分配係数測定基礎実験、常温淡水の水-岩石反応実験、常温～高温における人工海水反応実験を行った。Ca-smectite の Sr^{2+} と Ca^{2+} の分配係数測定基礎実験では、 Sr^{2+} と Ca^{2+} の分配係数 K は温度上昇とともに変化したが、 200°C まではスメクタイトのイオン交換性が保たれることが明らかとなった(表 1)。

常温淡水の水-岩石反応実験として、2 種類の堆積岩試料(声間層、堆内層)と水溶液の反応実験(pH 3 種類、反応回数 5 種類、 25°C)を行った結果、pH の低下と SO_4^{2-} の増加が認められ(図 9、10)、黄鉄鉱の酸化反応に起因することがわかった。用いた水溶液をアルゴンガスで抜気するなど注意したにもかかわらず、酸化反応が確認できたことは、試料採取時から保管時の酸化に起因するものと考えられるが、現時点でこれを回避することは不可能と考えられる。還元剤を加えた実験で地下深部の状況を再現する必要があると考えられるが、還元剤の種類や量の選定をどのようにするか天然観察を踏まえて選定する必要がある。

常温～高温における人工海水反応実験として、ボーリングコア(深度 55m (sample No.1)、624m (No.7)、951m (No.10))を 60mesh 以下に粉碎し、Barnes-type 熱水反応装置を用いて人工海水と 25°C ～ 300°C で 3 日間反応させ溶液の組成と反応後の固体を分析した。 25 ～ 150°C の温度範囲では pH はほぼ中性領域に保たれ CaCO_3 と CaSO_4 の析出による Ca^{2+} の減少が主たる反応であるが、温度上昇にしたがって $\text{Mg}_{1+x}(\text{OH})_2(\text{SO}_4)_x$ の形成とともに pH が低下し、 250°C 以上では溶液の急激な酸性化とともに K^+ 、 Al^{3+} の濃度増加が起こることが明らかになった(図 11)。また、珪藻が溶解し粘土鉱物が形成されたことが確認できた(図 12)。これらの結果を他の岩石実験と比較した場合、堆積岩は 200°C 程度までの温度範囲でかなり安定でスメクタイトのイオン交換性もこの温度範囲で有効であること、さらに火成岩や花崗岩に比較してより安定な傾向にあることが明らかとなった。しかしながら、本実験においても、酸化反応が確認できたことは、還元剤を加えた実験で地下深部の状況を再現する必要があると考えられる。

- ⑤ 界面反応の地下水地球化学組成や物質移行への影響の解明としては、固体を用いた水岩石反応実験を行った。試料の形状を $100 \mu\text{m}$ [A 系]、 1mm [B 系]、 $20 \times 30 \times 10\text{mm}$ の塊 [C 系] に揃え、それぞれ 2.0g ($\pm 0.1\text{g}$) を、pH7.07 の蒸留水 200g とスチロール棒ビンに封入し、 25.0°C ($\pm 0.2^\circ\text{C}$) に制御された恒温槽中で 2 週間反応させた。その結果、A、B、C 系で溶出した元素濃度に大きな違いはなく、溶出率と粒度の相関性は認められない(表 2)。

このことは、今回用いた珪質岩では、比表面積が非常に大きいため水-岩石反応への粒度の影響は認められず、簡便な岩石を粉砕した実験でも天然の岩盤中での水-岩石反応を再現できることを示す。しかしながら、どういった空隙率や比表面積から、粉体が固体であることが重要であるのかについては今後検討する必要がある。

- ⑥ 地下水化学組成の成因としては、ボーリング調査で得られた地下水（19 試料）の水質データを用いて、水質型による分類、多変量解析による端成分の寄与率の定量化、地球化学計算による pH と酸化・還元電位の予測計算を試みた。

ヘキサダイアグラムによる水質分類では、地表面から浅部にかけて存在する水素・酸素同位体比の小さな淡水系地下水と、地下深部に存在する同位体比の大きな海水塩水系地下水に大きく区分することができる。これら地下水は、深度に応じて溶存成分濃度と同位体比が漸移的に変化することから、地層堆積時に取り込まれた海水（化石海水）へ地表から涵養した降水が混合し、化石海水が希釈されているものと考えられる。

そこで、全ボーリング孔について共通的にデータが取得されている溶存 6 成分 (Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-}) と水素・酸素同位体比を用いて、主成分分析による水質分類を行なった。主成分分析の結果を表 3、表 4 に示す。主要な主成分は第一主成分～第三主成分の 3 つであり、合計の寄与率は 98% になる。第一主成分は、 SO_4^{2-} 以外の溶存成分及び同位体比と弱い正の相関を示し、淡水と化石海水の混合といったメカニズムを反映することが考えられる。第一主成分の全分散への寄与率は 0.80 に及び、水質形成の大部分を規制していることが示される。第二主成分の寄与率は 0.10 であり、 SO_4^{2-} とのみ強い正の相関を示すことから、還元作用等の反映が考えられる。

幌延における深地層研究幌延深地層研究計画で実施したボーリング調査では、連続したモニタリングを実施しており、地下水の酸化・還元電位データが取得されている。地下水の溶存成分と鉄鉱物-水反応のそれぞれに着目した地球化学計算により pH と酸化・還元電位を予測推定した。地球化学計算の対象とした地下水試料は、淡水系地下水（HDB-8 孔の深度 170m 付近から採取）と塩水系地下水（HDB-4 孔の深度 400m 以深から採取）である。このうち淡水系地下水の採取深度付近は、層理面と高角に交わる割れ目および引張割れ目の発達区間であり、現位置透水試験においても幌延深地層研究計画で取得された透水性データの中では高い部類に入る 10^{-5} ～ 10^{-6} m/s オーダーの透水係数が得られている。地球化学計算による pH と酸化・還元電位の予測結果を図 13 および図 14 に示す。予測結果と実測値を比較したところ、淡水系地下水では鉄鉱物-水反応に着目した予測値が実測値に類似し、塩水系地下水では溶存成分からの予測値が実測値に類似した。これからこのことから、混合の端成分である淡水系地下水の水質形成酸化・還元電位に関して、鉄鉱物-水反応が重要な役割を果たしている可能性が考えられる。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 19 年度は、2 年次となるので、初年次の成果を踏まえ、下記の本格的な実験を行う予定である。基本的に当初計画通りの実施を予定している。

- ① 堆積岩の岩石鉱物学的地球化学的性状把握

泥質岩の光学顕微鏡観察、電子顕微鏡観察、化学分析を、試料が酸化分解、変化、変質しないよう注意、工夫しつつ、継続する。

- ② 堆積岩の空隙および界面の微視的性状把握

空隙分析、原子間力顕微鏡による観察、界面の反応性の分析、評価を本格的に実施する。

これらの観察、分析は、天然環境での試料の状況をなるべく乱さない方法を模索しつつデータを取得する。

③ 堆積岩の長期的イオン交換能力、酸化還元保持能力の把握

イオン交換能の測定を行う。また、淡水、海水と堆積岩の様々な系での温度 (0-300℃)、酸化還元環境を制御した反応実験を行い、反応溶液を ICP-MS 等で、反応後の鉱物組成を SEM-XRD 等で分析し、鉱物と地下水の反応性を検討し、具体的なイオン交換能力、酸化還元保持能力、水-岩石反応機構を解明する。

④ 界面反応の地下水地球化学組成や物質移行への影響の解明

粉末試料とともにチップ試料など岩石の性状を変化させた様々な系での水-岩石反応実験を行う。また、実験で見出されたコロイドについて分析を行う。界面性状の地下水地球化学組成や物質移行への影響を解明する。

⑤ 地下水化学組成の成因

各種実験の結果と機構で取得した地下水組成や同位体比分析結果をあわせて速度論、熱力学的計算など理論的に解析し、地下水化学組成の成因を解明する。また、物質移行についてモデル化を試みる。

⑥ 総合解析

これらの結果をもとに、界面の影響なども踏まえた、天然環境下での水-岩石反応メカニズム、地下水化学組成の形成メカニズムを解明する。また、地下水水質が地下処分場・廃棄物体に与える影響、天然バリアにおける物質移行メカニズムに与える影響についての考察を行い、中間評価に備える。

【研究成果の公表】

<論文>

- 1)市井了 (指導教員、水上正勝), (2007) 放射性廃棄物の深地層処理に伴う水-岩石相互作用の基礎研究, 平成 18 年度函館工業高等専門学校物質工学科卒業論文. 査読なし
- 2)石堂昭夫・富山真吾(2006)立地調査におけるデータ整備の一環としての簡易的地下水流動解析. 日本原子力学会バックエンド夏季セミナー資料集. 査読なし
- 3)Ishihara, M., Kosaka, T., Nakamura, T., Tsugawa, K., Hasegawa, M., Kokai, F., Koga, Y. (2006) Antibacterial activity of Fluorine incorporated DLC Films. *Diamond & Related Materials* 15, 1011-1014. 査読有り
- 4)Ito, T. and Komuro, K. (2006) Paleooceanographic setting and preservation of buried manganese deposits in DSDP/ODP cores. *Resource Geol.*, 56, 457-470. 査読有り
- 5)Kashiwagi, H., Shikazono, N., Ogawa, Y., Higuchi, Y., Takahashi, M. and Tanaka, Y. (2006) Mineralogical and biological influences on groundwater chemistry of the Boso Peninsula, Chiba, central Japan: Implications for the origin of groundwater in sedimentary basins. *Geochemical Journal*, 40, 345-361. 査読有り
- 6)Komuro, K., Agematsu, S. and Sashida, K. (2006) Chemistry of the late Early Triassic siliceous claystone ("Toishi" shale) from the Oritate area, Sambosan belt, Kyushu, southwest Japan. *Resource Geol.*, 56, 447-455. 査読有り
- 7)Komuro, K., Yoshida, M. and Kajiwara, Y. (2006) Chemistry and sulfur isotopes in a chert-clastic sequence around the Kajika massive sulfide ores of the Ashio Copper mine, Ashio Terrane, central Japan. *Resource Geol.*, 56, 433-445. 査読有り
- 8)Ogawa, Y., Shikazono, N., Ishiyama, D., Sato, H., Mizuta, T. and Nakano, T. (2006) Mechanisms for anhydrite and gypsum formation in the Kuroko massive sulfide-sulfate deposits, north Japan. *Mineral. Deposita*, accepted. 査読有り

- 9)鹿園直建・小川泰正(2006) 熱水変質に伴う希土類元素の地球化学的挙動：熱水系における Am, Cm の移行遅延に対する示唆. 原子力バックエンド研究, 13, 1-9.査読有り
- 10)鹿園直建・小川泰正(2006) 高レベル放射性廃棄物からの核種移行に対する固溶体鉱物-水溶液間の元素分配の役割. 原子力バックエンド研究, 12, 3-9.査読有り
- 11)鹿園直建・小川泰正・大谷晴啓 (2006) 高レベル放射性廃棄物地層処分における地下水・熱水-岩石相互作用の重要性. 資源地質, 56(2), 115-124.査読有り
- 12)吉田英樹(指導教員, 鹿園直建)(2007) 北海道幌延地域のボーリングコアを用いた水-岩石反応に関する実験的研究. 慶応義塾大学理工学部卒業論文. 査読なし

<国内会議>

- 1)小坂知己・佐藤公法・中田正隆・小室光世(2007)北海道幌延の堆積岩試料の表面形態観察. 資源地質学会講演, P-034, 発表予定, 2007-6.
- 2)水上正勝・大森幸子・市井了(2007)堆積岩の熱水反応と安定性-CO₂-放射性廃棄物の地層処分の観点から-. 資源地質学会講演, O-031, 発表予定, 2007-6.
- 3)笹尾英嗣・小室光世(2006) 堆積学的に見た東濃ウラン鉱床の鉱床生成機構. 資源地質学会講演, 2006.6.
- 4)中田正隆・鹿園直建・吉田英樹・松田未央・田村維都江・小室光世(2007)北海道幌延の堆積岩試料-水反応系における溶出挙動. 資源地質学会講演, P-033, 発表予定, 2007-6.
- 5)齋藤京子・小室光世・林謙一郎(2007)都市ごみ焼却灰からの元素の溶出:ボトムアッシュとフライアッシュを用いたバッチ式反応実験. 資源地質学会講演, P-036, 発表予定, 2007-6.
- 6)佐藤公法・小坂知己・鹿園直建・中田正隆・小室光世(2007) 北海道幌延の堆積岩試料の陽電子を用いたミクロ孔解析. 資源地質学会講演, O-030, 発表予定, 2007-6.
- 7)鈴木伸哉・小室光世(2006) 酸化環境下における硫化物鉱石からの重金属溶出:過酸化水素を用いた実験的アプローチ. 合日本地球惑星科学連合 2006 大会予稿集, Y153-P013.
- 8)富山眞吾(2006) 処分場に影響を及ぼす天然現象を対象とした安全評価のためのデータ収集.地球惑星科学関連学会 2006 年合同大会予稿集.
- 9)富山眞吾・増留由起子・目次英哉・佐々木雄一(2006)宮崎県富高鉱山における降水浸透と坑内水流出モデル.日本地下水学会 2006 年秋季講演会講演要旨集, 2006.
- 10)豊田新・小室光世(2006)ウラン鉱床及び花崗岩の石英中の酸素空孔の生成過程. 日本地球惑星科学連合 2006 大会予稿集, K105-P01.
- 11)矢口 昌・小室光世・笹尾英嗣(2007) 東濃ウラン鉱床の鉱石と随伴する岩石の鉛同位体比. 資源地質学会講演, P-032, 発表予定, 2007-6.

<国際会議>

- 1)Mizukami, M. and Ohmori, S. (2006) Precipitation of heavy metals in seawater mediated by a Mn-oxidizing microbe collected at the Seikan Undersea Tunnel, Japan. 16th Annual Goldschmidt Conference, Melbourne, Australia.
- 2)Nishido, H., Okumura, T., Komuro, K., Toyoda, S. and Ninagawa, K. (2006) Cathodoluminescent characterization of radiation-damage halos in quartz after He⁺ ion implantation, 16th Goldschmidt Conference 2006 (Melbourne), Abstract S1-02.
- 3)Suzuki, S. and Komuro, K.: The oxidization leaching experiment from the sulfide ore using H₂O₂. 16th Goldschmidt Conference 2006 (Melbourne), (2006).
- 4)Toyoda, S., Komuro, K., Nishido, H., and Okumura, T.(2006) Dating of uranium ore by cathodoluminescence: experimental basis by He ion implantation in relation to the radiation effects detected by ESR. 19th General Meetings of International Mineralogical Association, Kobe, 2006.7

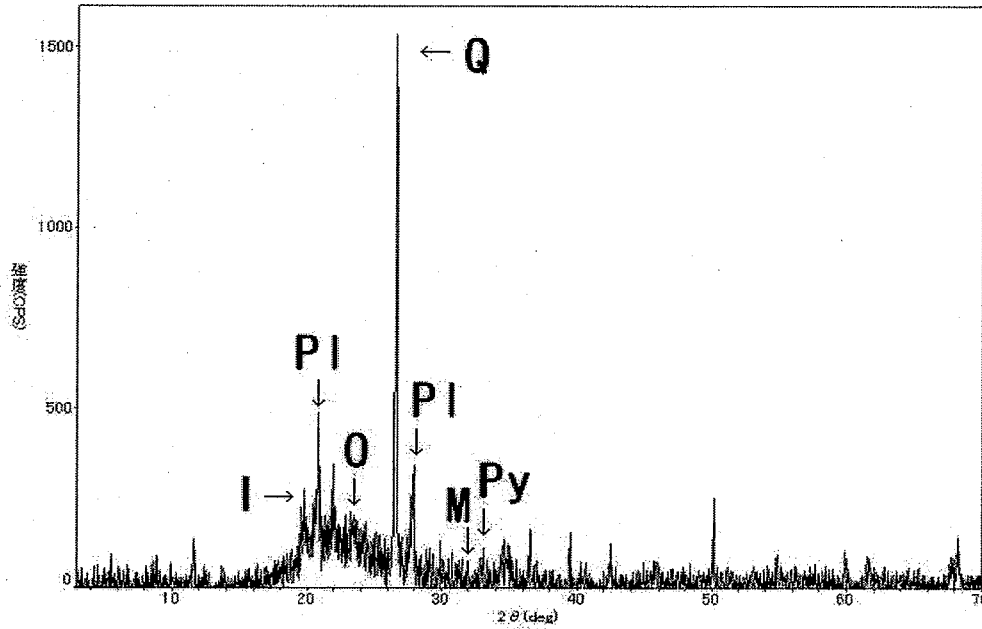


図 1. XRD 結果 (HDB-11:273m). quartz(Q), plagioclase(Pl), opal-A(O), pyrite(Py), illite(I), magnesite(M)が同定された。

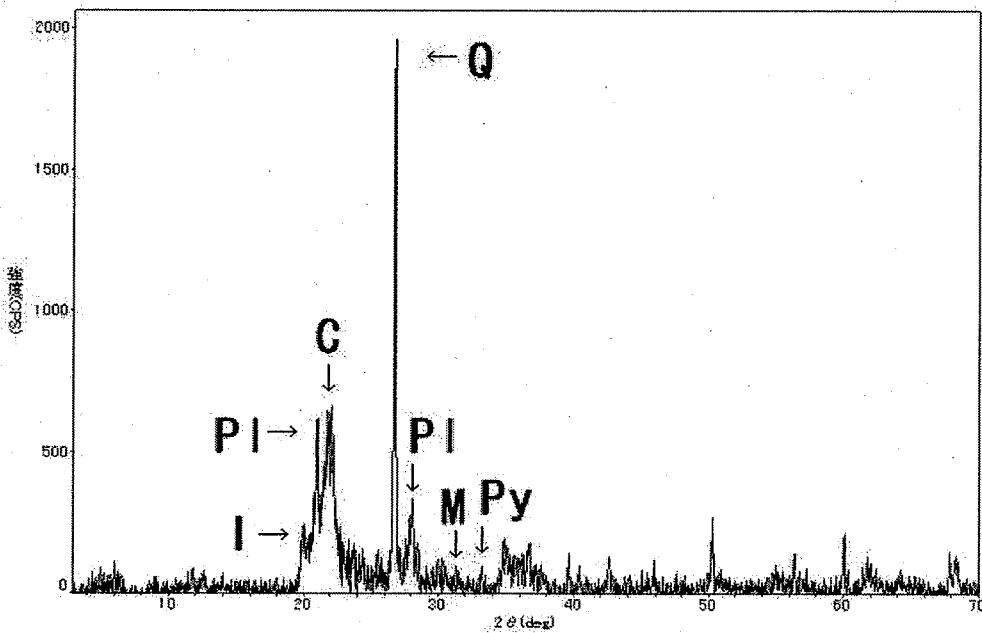


図 2. XRD 結果 (HDB-11:625m). quartz(Q), plagioclase(Pl), cristobalite(C), pyrite(Py), illite(I), magnesite(M)が同定された。

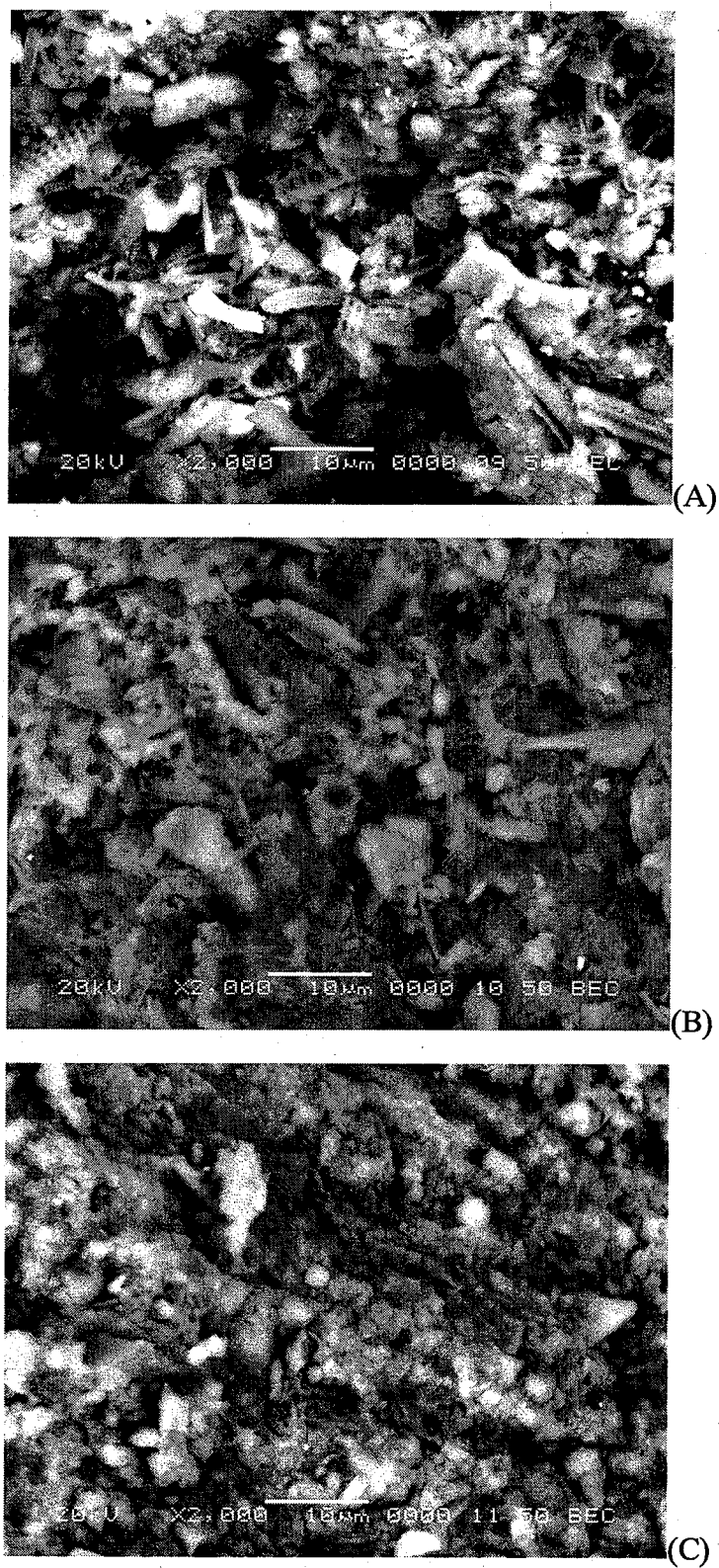


図 3. SEM 観察結果(A)HDB-11, 55m, (B)HDB-11, 385m, (C)HDB-11, 875m. (A)では珪藻化石の保存が顕著に認められ, (B), (C)と深度が深くなるにつれ、保存が悪くなる。

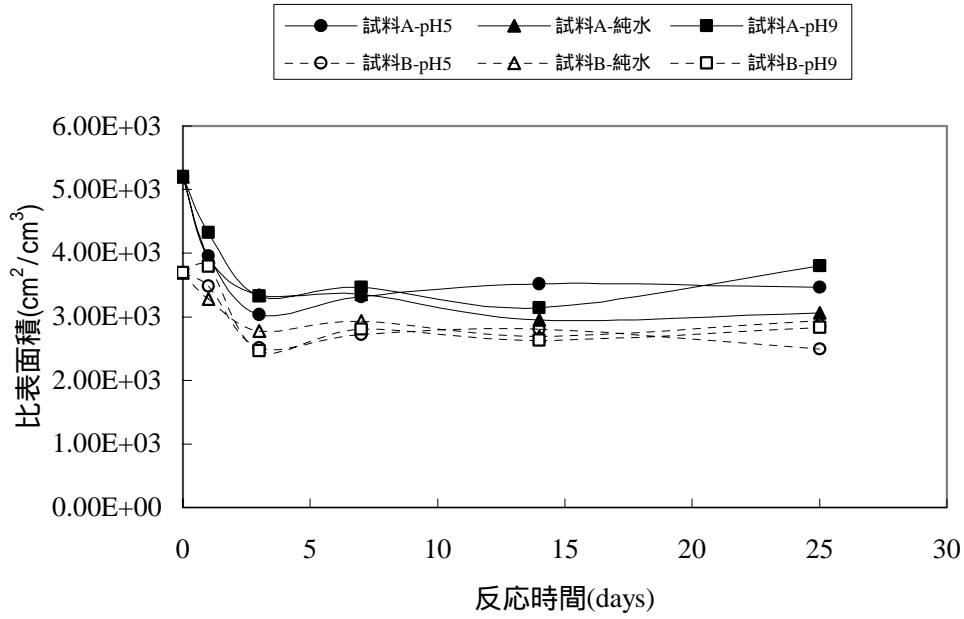


図4. 粒度分布測定装置で求めた比表面積 水 - 岩石反応後の値も併せて示す。

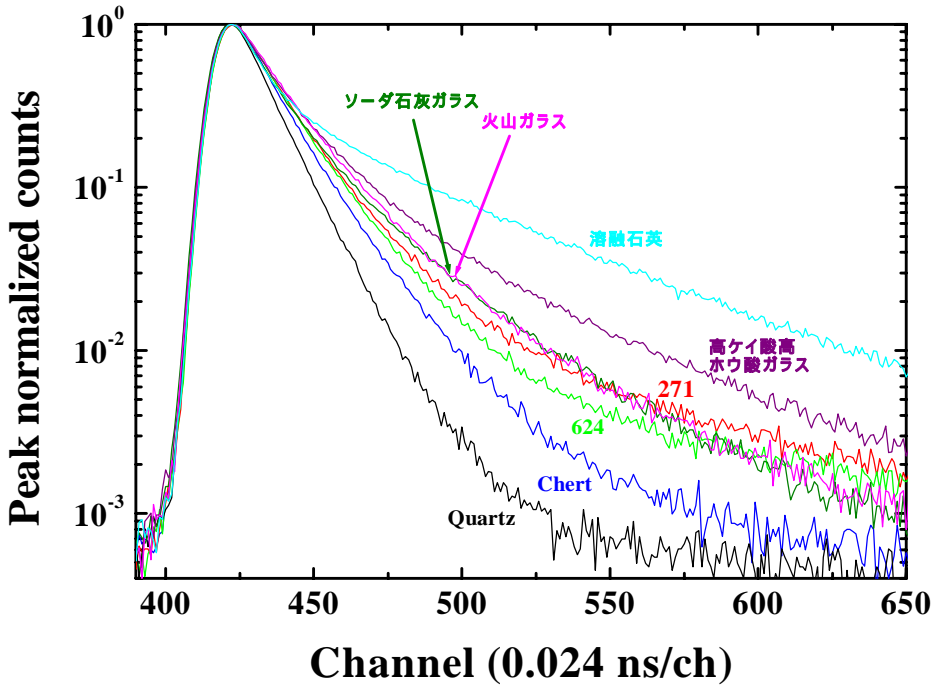


図5. 陽電子寿命スペクトル

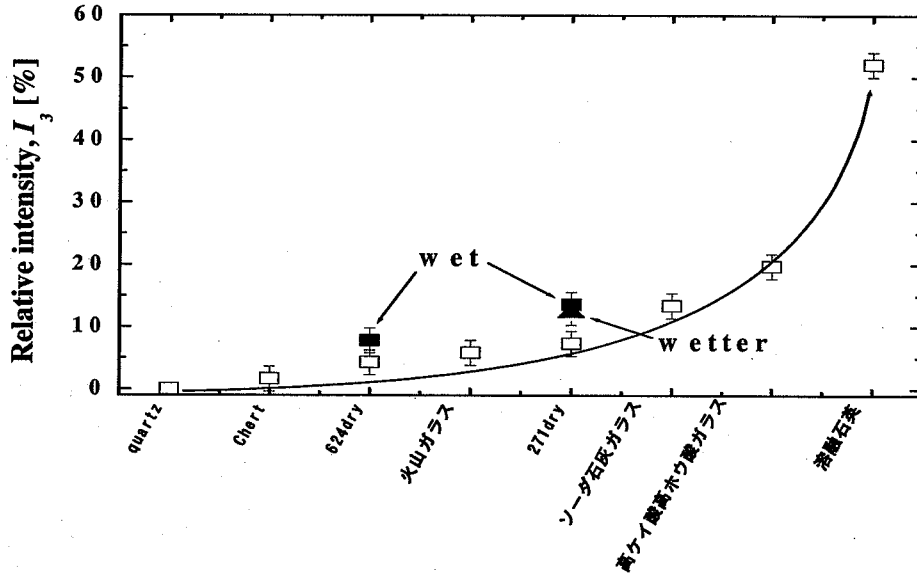


図 6. 陽電子寿命値

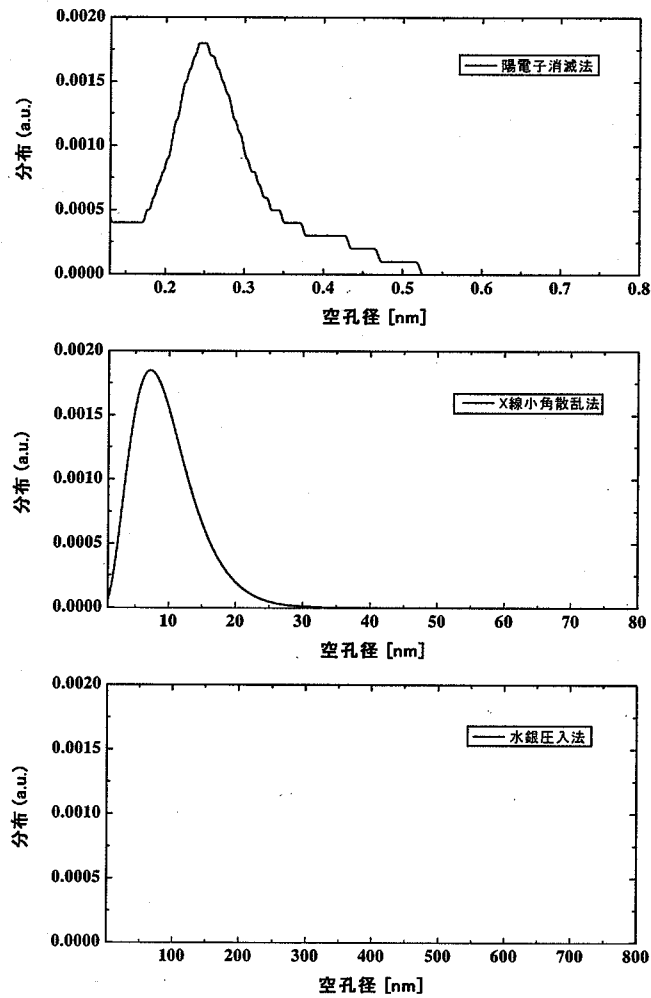
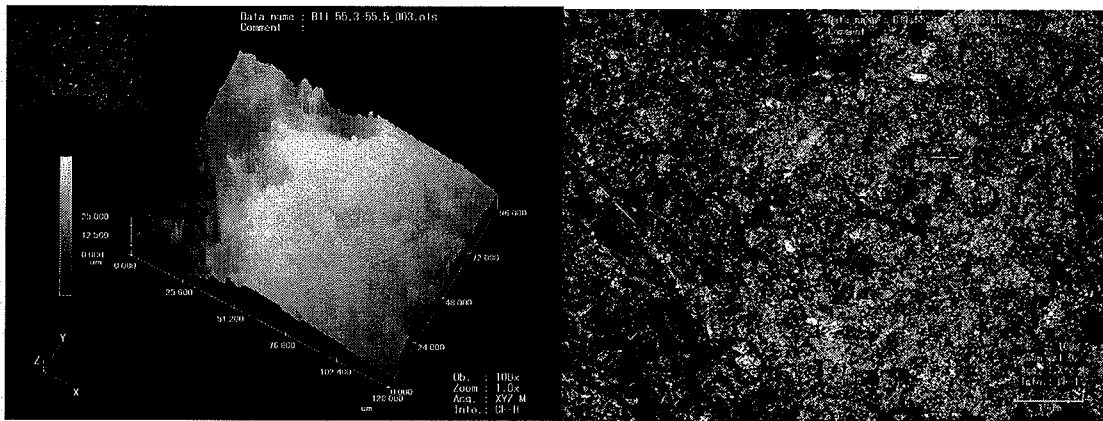
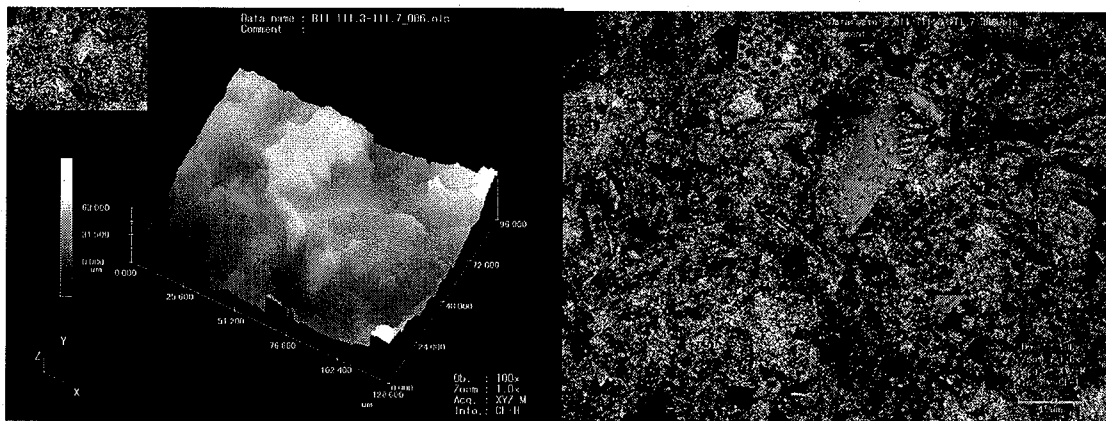


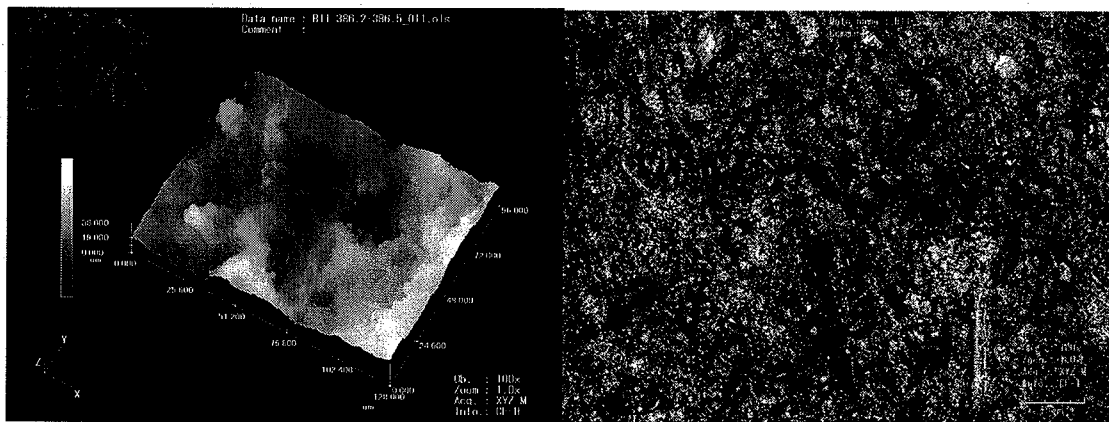
図 7. 各空隙測定法による測定結果(HDB11, 271m)



(A)高さ3次元像(HDB-11:55.3m)X2000 (B)反射輝度像(HDB-11:55.3m)X2000



(C)高さ3次元像(HDB-11:111.3m)X2000 (D)反射輝度像(HDB-11:111.3m)X2000



(E)高さ3次元像(HDB-11:386.2m)X2000 (F)反射輝度像(HDB-11:386.2m)X2000

図8. ナノサーチ顕微鏡(レーザー顕微鏡)観察結果。

凹凸が激しく、クラックも存在する。

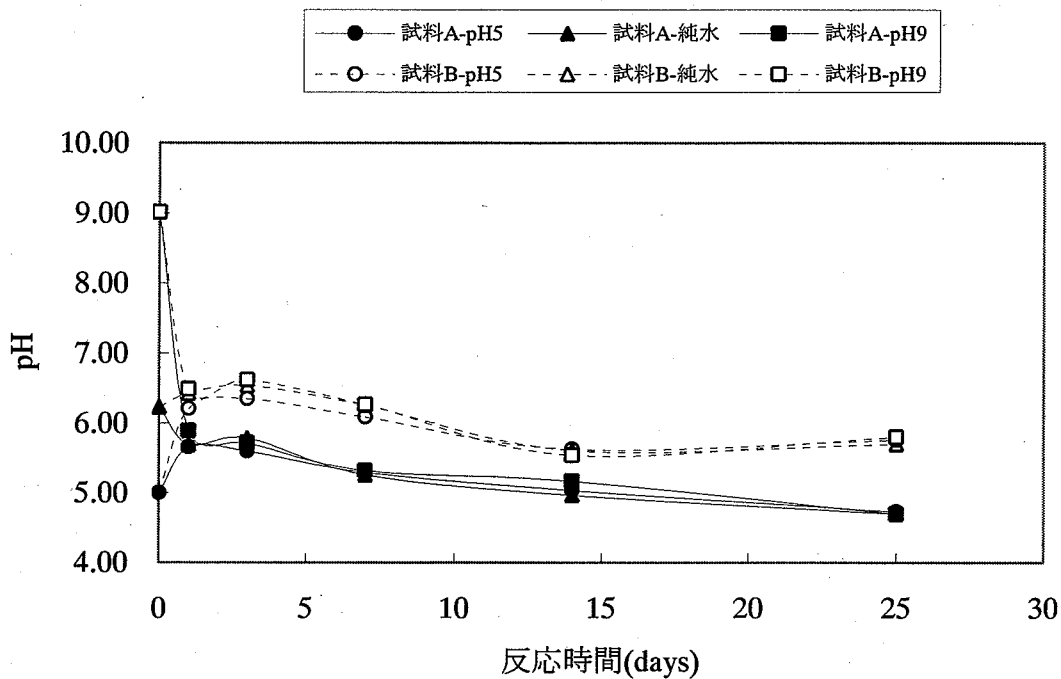


図 9. 常温淡水の水-岩石反応実験における pH の経時変化.

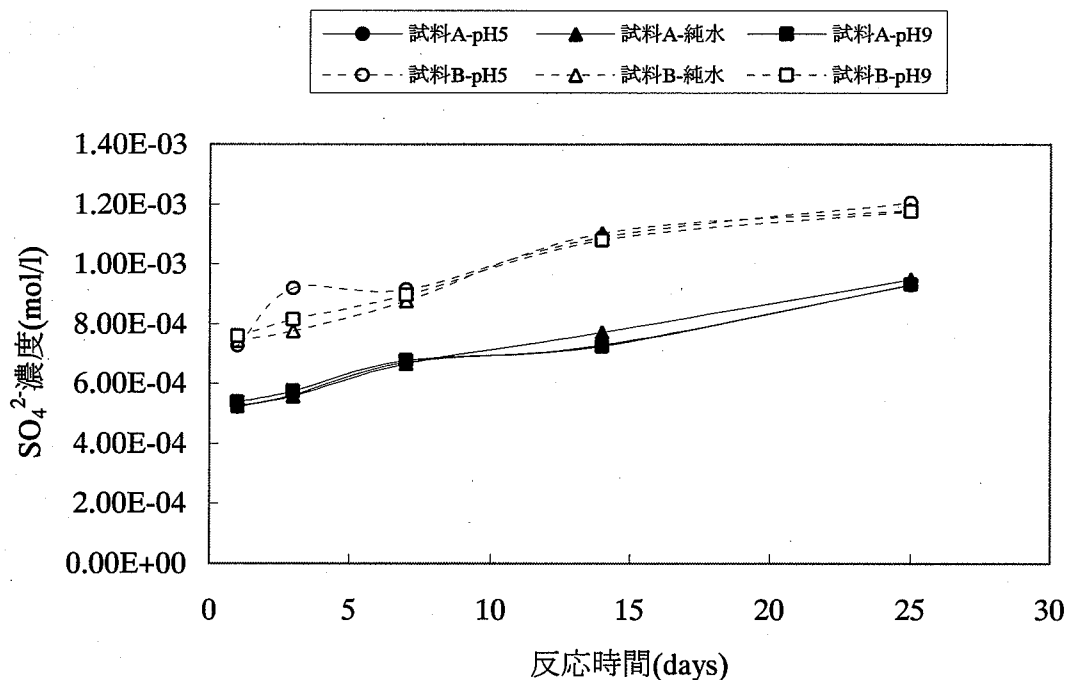


図 10. 常温淡水の水-岩石反応実験における SO_4^{2-} 濃度の経時変化.

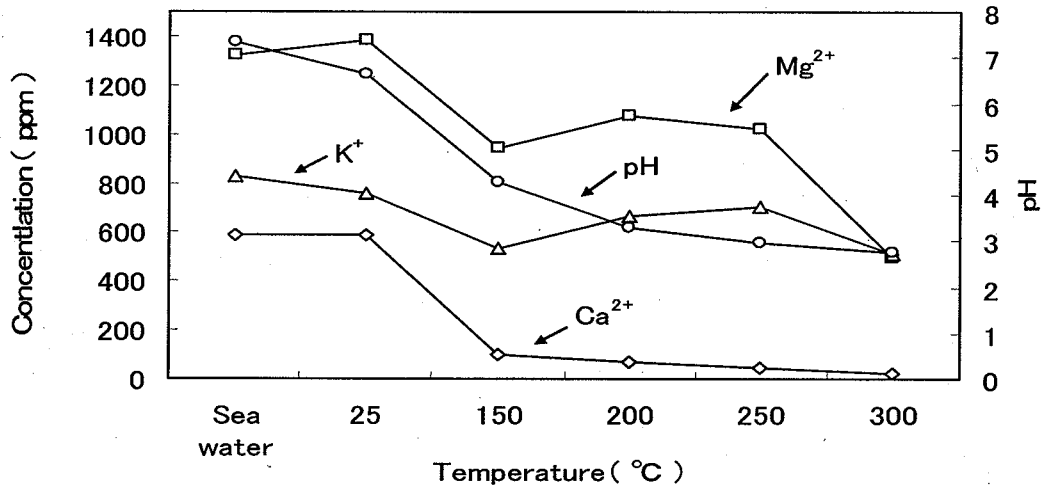


図 11. 海水反応実験結果 (HDB-11, 700m の例)。高温ほど、pH, Ca 濃度が低下する。

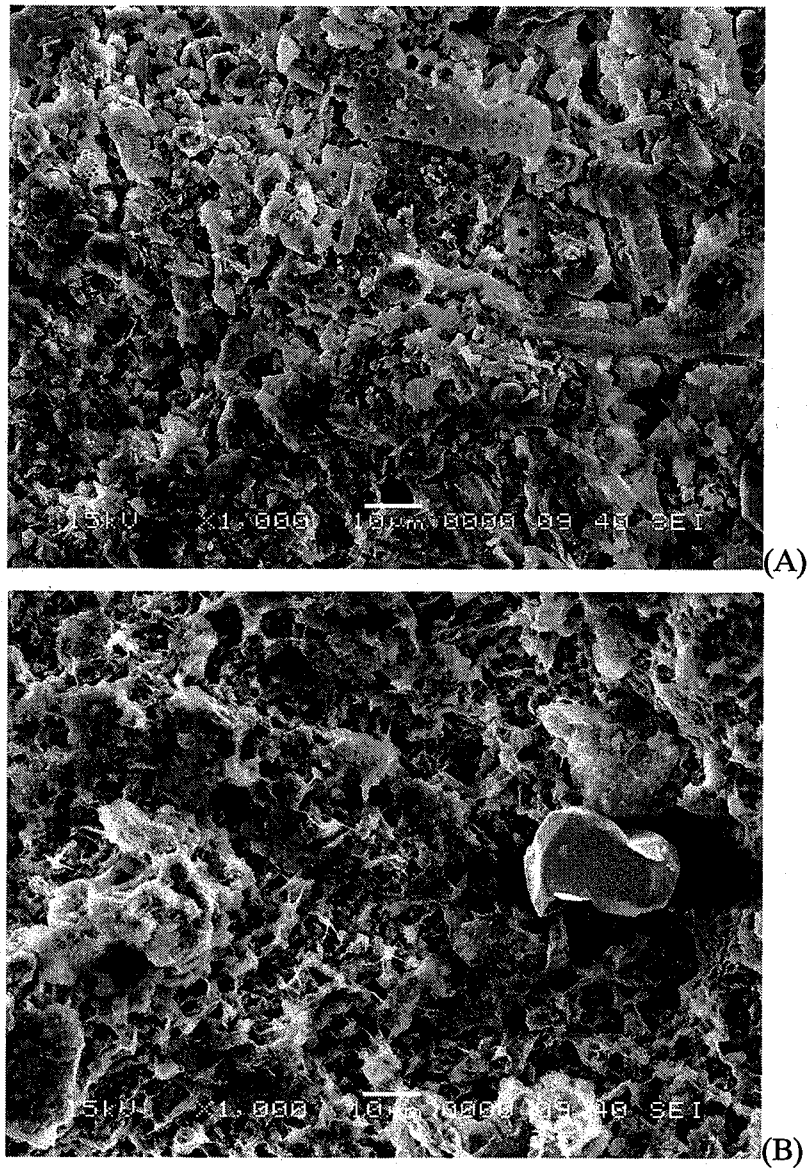


図 12. 海水反応実験での組織変化 (HDB-11, 700m の例)。(A)反応前, (B)反応後。

ボーリング孔：HDB-8
試料番号：GW2

②固相との平衡反応を考慮した場合の検討結果
平衡を想定した鉱物
○：シデライト、ヘマタイト
△：シデライト、ヘマタイト、パイライト
▽：パイライト、シデライト
×：シデライト、パイライト

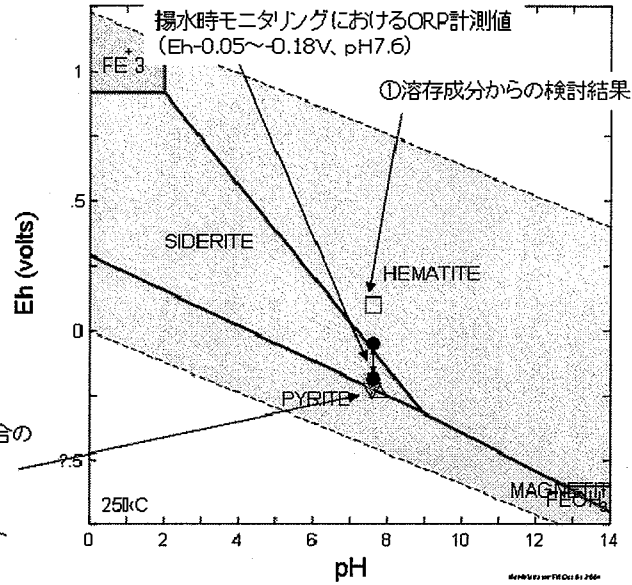


図 13. 地球化学計算による水質予測結果(淡水系地下水)

ボーリング孔：HDB-4
試料番号：GW3

②固相との平衡反応を考慮した場合の検討結果
平衡を想定した鉱物
○：シデライト、ヘマタイト
△：シデライト、ヘマタイト、パイライト
▽：パイライト、シデライト
×：シデライト、パイライト

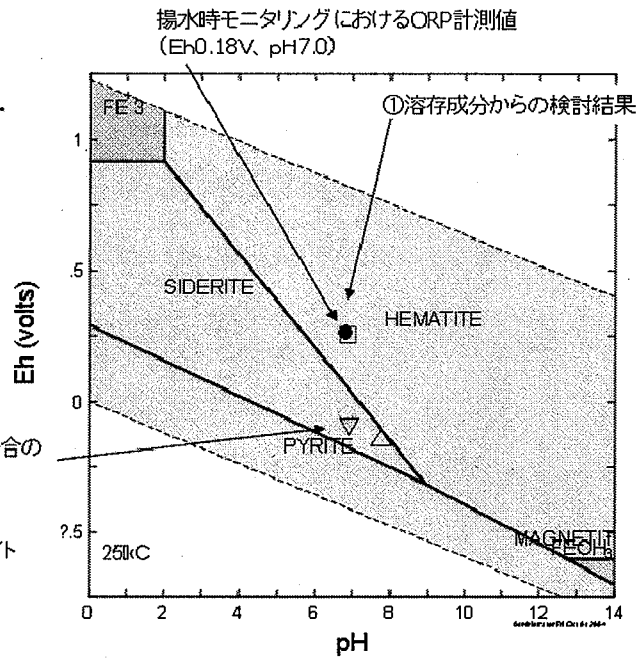


図 14. 地球化学計算による水質予測結果(塩水系地下水)

表 1. Sr-Smectite 系における分配係数の経時変化

温度(°C)	1day	4day	8day	14day
25	0.185	0.318	0.235	0.260
100	0.740	1.354	1.902	3.686
200	0.240	0.291	0.401	0.436

表 2. 固体を用いた水岩石反応実験結果 (単位:ppm)

	pH	原子吸光		比色法 (DR-2000)					滴定法	ICP	
		Na	K	SiO ₂	SO ₄ ²⁻	Fe	Mn	Al	CO ₂	Ca	Mg
271-A	4.71	48.14	6.40	11	160	0.3	1	0.1	85	5.76	6.76
271-B	4.35	31.97	5.76	8	100	0.5	1	0	157	3.26	3.81
271-C	4.28	48.89	6.38	3	110	0.7	1	0	386	4.94	5.44
624-A	5.47	26.24	3.18	6	90	0.1	0	0	434	2.63	2.35
624-B	5.94	24.60	2.25	5	100	0.1	0	0	444	0.77	1.02
624-C	6.51	21.07	2.08	4	50	0.1	2	0	567	0.06	0.48

表 3. 主成分分析による各第一～第三主成分の寄与率

	第一主成分	第二主成分	第三主成分
寄与率	0.80	0.10	0.08

表 4. 主成分分析による主要6成分と水素・酸素同位体比の固有ベクトル

固有ベクトル	第一主成分	第二主成分	第三主成分
Na	0.39	-0.15	-0.02
K	0.35	0.13	-0.51
Ca	0.37	0.13	-0.03
Mg	0.37	0.01	-0.38
Cl	0.39	-0.10	-0.16
SO ₄ ²⁻	0.22	0.88	0.34
δ ¹⁸ O	0.36	-0.31	0.41
δD	0.35	-0.23	0.54

This is a blank page.

国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	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	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質の量	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

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
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
質量体積 (比体積)	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
(物質の)濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率	(数の) 1	1

表5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ⁻¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ⁻²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ⁻³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ⁻¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

表3. 固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	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
平面角	ラジアン ^(a)	rad		m ² ・m ⁻¹ =1 ^(b)
立体角	ステラジアン ^(a)	sr ^(c)		m ² ・m ⁻² =1 ^(b)
周波数	ヘルツ	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m ² ・kg ² ・s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ ・kg ² ・s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N・m	m ² ・kg ² ・s ⁻²
工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² ・kg ² ・s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s ² ・A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² ・kg ² ・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 ² ・s ⁻³ ・A ⁻²
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m ⁻² ・kg ⁻¹ ・s ³ ・A ²
磁束密度	ウェーバ	Wb	V・s	m ² ・kg ² ・s ⁻² ・A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg ² ・s ⁻² ・A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² ・kg ² ・s ⁻² ・A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(d)	°C		K
光照射度	ルーメン	lm	cd・sr ^(c)	m ² ・m ⁻² ・cd=cd
放射能	ベクレル	Bq	lm/m ²	m ² ・m ⁻¹ ・cd=m ² ・cd
(放射性核種の)放射能	ベクレル	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 質量エネルギー当量	グレイ	Gy	J/kg	m ² ・s ⁻²
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量, 組織線量当量	シーベルト	Sv	J/kg	m ² ・s ⁻²

- (a) ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なった性質をもった量を区別するときの組立単位の表し方として利点がある。組立単位を形作る際のいくつかの用例は表4に示されている。
 (b) 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“1”は明示されない。
 (c) 測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。
 (d) この単位は、例としてミリセルシウス度m°CのようにSI接頭語を伴って用いても良い。

表4. 単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa・s	m ⁻¹ ・kg ² ・s ⁻¹
表面張力	ニュートン毎メートル	N・m	m ² ・kg ² ・s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg ² ・s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m ² ・m ⁻¹ ・s ⁻¹ =s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎平方秒	rad/s ²	m ² ・m ⁻¹ ・s ⁻² =s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg ² ・s ⁻³
質量熱容量 (比熱容量), 質量エントロピー	ジュール毎キログラム	J/K	m ² ・kg ² ・s ⁻² ・K ⁻¹
質量エネルギー (比エネルギー)	ジュール毎キログラム	J/(kg・K)	m ² ・s ⁻² ・K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎メートル毎ケルビン	W/(m・K)	m ² ・kg ² ・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 ² ・s ⁻²
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m ² ・kg ² ・s ⁻³ ・A ⁻¹
体積電荷	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ ・s ² ・A
電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² ・s ² ・A
誘電率	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 ² ・kg ² ・s ⁻² ・A ⁻²
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m ² ・kg ² ・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 ² ・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 ・s ² ・A
吸収線量	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 ² ・s ⁻³ =m ² ・kg ² ・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 ² ・s ⁻³ =kg ² ・s ⁻³

表6. 国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648000) rad
リットル	l, L	1 l=1 dm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ kg
ネーパ	Np	1 Np=1
ベル	B	1 B=(1/2) ln10 (Np)

表7. 国際単位系と併用されこれに属さない単位でSI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.60217733(49)×10 ⁻¹⁹ J
統一原子質量単位	u	1 u=1.6605402(10)×10 ⁻²⁷ kg
天文単位	ua	1 ua=1.49597870691(30)×10 ¹¹ m

表8. 国際単位系に属さないが国際単位系と併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
海里	海里	1 海里=1852m
ノット	ノット	1 ノット=1 海里毎時=(1852/3600)m/s
アール	a	1 a=1 dam ² =10 ² m ²
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10 ⁵ Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=10 ⁻¹⁰ m
バール	b	1 b=100fm ² =10 ⁻²⁸ m ²

表9. 固有の名称を含むCGS組立単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
エル	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn・s/cm ² =0.1Pa・s
ストークス	St	1 St=1cm ² /s=10 ⁻⁴ m ² /s
ガウス	G	1 G=10 ⁴ T
エルステッド	Oe	1 Oe=10 ⁴ (1000/4π)A/m
マクスウェル	Mx	1 Mx=10 ⁻⁸ Wb
スチル	sb	1 sb=1cd/cm ² =10 ⁴ cd/m ²
ホト	ph	1 ph=10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm/s ² =10 ⁻² m/s ²

表10. 国際単位に属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ¹⁹ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
X線単位	X unit	1 X unit=1.002×10 ⁻¹¹ nm
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
ジャンスキー	Jy	1 Jy=10 ⁻²⁶ W・m ⁻² ・Hz ⁻¹
フェルミ	fem	1 fermi=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット	carat	1 metric carat = 200 mg = 2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カリ	cal	
マイクロン	μ	1 μ = 1μm=10 ⁻⁶ m

