



核燃料サイクル創造的工学研究制度に係る 研究成果集

Summary of Entire Research Achievements of
Creative Engineering Research Program on Nuclear Fuel Cycle

産学連携推進部

Industrial Collaboration Promotion Department

March 2008

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

核燃料サイクル創造的工学研究制度に係る研究成果集

日本原子力研究開発機構
産学連携推進部

(2008 年 2 月 18 日受理)

核燃料サイクル創造的工学研究（旧社内公募研究）制度は、旧サイクル機構が取り組むすべての研究開発分野を対象として、社内の研究者及び技術者から独創性や新規性に富んだ新概念の創出、技術のブレークスルーを目指す研究テーマを募集し、その研究の遂行を支援する制度として平成 13 年度に導入され、平成 19 年度末に終了することとなった。この間の総応募件数は 37 件で、採択され実施に移された研究テーマは 14 件であった。

研究成果としては、14 件の研究テーマの合計で、筆頭著者のものだけでも学術誌論文は 47 件、学術会議論文は 32 件、学会等口頭発表は 99 件となっている。また、学術誌解説・総説、依頼講演、特許、受賞は合計でそれぞれ 13 件、30 件、8 件、3 件となった。これらのことから、本制度による研究成果は総じて高水準のものであり、本制度導入時の“創造的な研究活動の活性化を図る”という所期の目的を達成したと評価できる。

ここでは、本制度の概要を述べるとともに、14 件の研究テーマの総まとめとしてそれらの最終報告書を記載した。

Summary of Entire Research Achievements
of
Creative Engineering Research Program on Nuclear Fuel Cycle

Industrial Collaboration Promotion Department

Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received February 18, 2008)

Creative Engineering Research Program on Nuclear Fuel Cycle (former In-house Innovative Research Encouraging Program) was implemented from FY 2001 to FY 2007 in order to support such in-house researches that create innovative new concepts and aim technical break-through. Totally 37 applications have been received and 14 research themes have been accepted and been performed in this program.

As for the research achievements of the 14 research themes, first author papers accepted by scientific journals and by science councils were 47 and 32, respectively, and oral presentations at scientific societies were 99. Furthermore, interpretive articles for scientific journals, requested lectures, patents, and prize winnings were 13, 30, 8, and 3, respectively. Consequently, it can be evaluated that the research achievements resulted from this program are generally in high level and that the expectations, at the starting point of this program, to activate the innovative research activities have been accomplished.

In this report, the final reports of the 14 research themes together with the outline of this program are included.

Keywords : Creative Engineering Research, Nuclear Fuel Cycle, Innovative New Concepts

目 次

1. 巻頭言	1
2. 核燃料サイクル創造的工学研究（社内公募研究）の概要	2
2.1 経緯	2
2.2 制度の仕組み	2
2.3 運用実績	3
2.4 本制度運用を振り返って.....	5
3. 研究成果	12
3.1 最終報告書	13
3.2 研究成果のまとめ.....	156
4. まとめ（総括）	158
添付資料	159

Contents

1. Introduction.....	1
2. Outline of creative engineering research program on nuclear fuel cycle	2
2.1 History of the program.....	2
2.2 Structure of the program	2
2.3 Implementation results.....	3
2.4 Looking back the program implementation	5
3. Results of researches	12
3.1 Final reports	13
3.2 Summary of the research achievements.....	156
4. Conclusion.....	158
Appendix.....	159

最終報告書リスト

【H13-1】 使用済み燃料の再処理における溶媒を用いない湿式分離	13
【H13-2】 放射性廃棄物処分における緩衝材及び岩石マトリクス中の核種 拡散移行過程での固液界面現象と移行モデルの高度化に関する研究	22
【H13-3】 高温環境複雑人工物の損傷検出技術の開発	38
【H13-4】 雷雲中における放射線発生機構に関する研究	47
【H14-1】 炭素系内包構造体を利用した放射性核種の処理法及びその利用技術の研究	55
【H14-2】 熔融塩電解プロセス制御に資する電気化学的要素濃度測定手法の研究	64
【H15-1】 原子力施設非破壊検査用小型高輝度電子銃の実用化研究	74
【H15-2】 原子力技術の受容に関する個人及び集団の意思決定過程分析と シミュレーション	82
【H16-1】 ミュオン誘雷手法に関する研究（延長研究）	91
【H16-2】 地質媒体微細間隙中での核種拡散移行過程における 固液界面現象に関する研究	100
【H17-1】 熔融塩を用いた乾式再処理プロセスの創造に関する研究（延長研究）	114
【H17-2】 アメリシウム含有低酸素ポテンシャルターゲットの創製及び特性評価	124
【H17-3】 地殻中の深部流体の起源と熱輸送に関する研究	134
【H18-1】 発雷機構に与える放射線の影響評価研究（継続研究）	144

1. 巻頭言

原子力研究開発、就中、核燃料サイクル技術開発においては、人的及び財政的資源の制約のもとで定められた開発日程をこなさなければならず、機関自らが基礎的研究や複数のアプローチ探索に精力を割くことには困難を伴う。しかし、プロジェクト開発と云えどもその十全な完遂のためには、実施機関が常に最新の学術研究水準や最先端の産業技術を把握すると同時に、自ら研究開発を実施し学界等に成果を発信し得る能力を涵養しておくことが望ましいことは云うを俟たない。

このような状況のもとで「核燃料サイクル創造的工学研究」制度が2001年に発足したものである。その後原子力二法人統合という予期せぬ展開もあり、不幸にして今年度を以て制度が廃される運びとなったが、この間、14件、10名の研究者がこれに関わり、多くの論文／口頭発表がなされ、複数の特許出願や学位取得が実現したことは制度の意義を示す明らかな事実である。

各研究テーマごとに一名の研究者が個人として取り組む研究形態であるため、本人が専門性を持たない分野の知見や高度の計算科学的知識が要される場面に遭遇して苦心した形跡も見られるが、各々大学との共同研究等の援用など工夫を凝らして所期の目標を達成していることは高く評価できよう。また、本制度を通じて研究活動の手法、手順、学問的厳密さ等を肌で感得した人材が育ったことは、組織として大きな利得であって、その効果が広く根付くことを期待したい。

最後に、本制度のために貴重な時間を割いて頂いた核燃料サイクル創造的工学研究評価委員会委員の諸先生方、運営に尽力された幹事諸氏及び研究実施者の研究活動を諒とせられた所属組織の方々にこの紙面を借りて衷心からのお礼を申し上げるものです。

産学連携推進部長 田島 保英

2. 核燃料サイクル創造的工学研究（社内公募研究）の概要

2.1 経緯

核燃料サイクル創造的工学研究（旧社内公募研究）制度は旧サイクル機構において、創造的な研究活動の活性化を図ることを目的に、旧サイクル機構が取り組むすべての研究開発分野を対象として、社内の研究者及び技術者から独創性や新規性に富んだ新概念の創出、技術のブレークスルーを目指す研究テーマを募集し、その研究の遂行を支援する制度として平成13年3月1日付けのサイクル機構の達（添付資料1参照）として制定され、平成13年度から実施された。導入時の推進体制は図2.1に示すように、理事長直轄で推進し、担当理事の下に設置された社内公募研究推進室が制度の運営及び研究者の研究遂行支援業務を行うものであった。

二法人統合により、本制度による創造的研究活動は旧原研が進める基礎・基盤研究と合体する中で進めていくことが可能との考え方もあり、収束する方向となった。従って、新規の研究テーマ募集は平成17年度をもって終了し、平成17年度に新規採択した研究の終了まで継続することとなった。

二法人統合後においては、名称を核燃料サイクル創造的工学研究と変え（添付資料2の原子力機構の達を参照）、統合に伴い無くなった社内公募研究推進室に代わり、産学連携推進部が制度の運営及び研究者の研究遂行支援業務を引き継いだ。平成18年度は特例として延長研究が1件採択されたものの、新規研究の募集は行われず、継続中の研究が完了する平成19年度末に制度の運用を終了することとなった。

2.2 制度の仕組み

制度導入時における制度の仕組みを下記に示す。

- ①研究予算 : 500～1,000万円/件年を基本とする。ただし、特別な理由がある場合は、最大2,000万円/件年まで認めることがある。
- ②研究期間 : 3年間を基本とする。特別に認められた場合のみ、最大2年間延長することができる。
- ③研究テーマ : サイクル機構の進める事業に関連する研究分野から、新概念の創出や技術のブレークスルーにつながる創造的・革新的な研究テーマを募集する。研究は原則として個人レベルで実施できる規模及び内容としている。
 なお、下記に該当する研究テーマは除外する。
 (a)既に予算要求中の研究
 (b)国の安全研究年次計画等、機構の既定の研究計画に含まれている研究
 (c)機構内外の各種公募型研究制度、例えば、機構の「先行基礎工学研究協力制度」や文部科学省の「革新的原子力システム

技術開発公募」等で実施中または応募中の研究あるいはその一部

- ④研究実施場所 : 研究テーマに適した研究実施環境が整備されている事業所を基本とする。
- ⑤勤務形態等 : 研究者の自由裁量を尊重したフレックスタイム制を採用している。また、研究に必要な国内外の出張、国際会議や学会への参加等についても柔軟に運用する。
- ⑥研究テーマ選定 : 研究テーマの選定は、担当理事及びサイクル機構外の学識経験者で構成する社内公募型研究評価委員会により行う。
- ⑦研究成果の評価 : 研究の進捗等についての中間評価及び全体研究終了時の最終評価は、委員会により行う。

本制度による、研究テーマの募集、選定に始まり、研究開始、中間評価、最終評価に至るまでの実施の流れは図 2.2 に示す通りである。

研究成果の評価を行う評価委員会の外部委員構成を添付資料 3 に示す。外部委員のほかに内部から担当理事または担当部長が加わって評価が行われた。

2.3 運用実績

(1) 応募実績

本制度の運用が開始された平成 13 年度以降の応募件数と採択件数をまとめたものを表 2.1 に示す。応募件数は運用開始直後の 13 年度、14 年度に比べて、その後は大きく低下している。事業所別では、応募はほぼ東海、大洗、敦賀に限られている。

応募件数の年度推移と研究分野の内訳を図 2.3 に示す。応募研究テーマは、旧サイクル機構の主要事業であった高速炉及び関連技術、核燃料サイクル、放射性廃棄物処分の分野に加えて、環境放射線や原子力の社会科学など幅広い分野から出た。

応募者の所属部門、職能資格、年齢に関する統計を表 2.2 から表 2.4 に示す。これらの表で合計が表 2.1 と合致しないのは、同一人物の応募が複数あったためである。所属部門に関しては、やはり研究開発業務からの応募者が 7 割を占め、職能資格では主務が 7 割以上、年齢では 35 歳～39 歳をピークに 30 歳～44 歳が 9 割以上を占めていた。

表 2.1 核燃料サイクル創造的工学研究（社内公募研究）のこれまでの
応募件数と採択件数

年度	東海	大洗	敦賀	東濃	合計
13年度	4 (2)	3 (1)	1 (1)	1 (0)	9 (4)
14年度	9 (2)	4 (0)	1 (0)	0	14 (2)
15年度	1 (0)	2 (2)	1 (0)	0	4 (2)
16年度	1 (0)	0	1 (0)	0	2 (0)
	1* (1*)	0	1* (1*)	0	2* (2*)
17年度	0	2 (1)	0	1 (1)	3 (2)
	1* (1*)	1* (0)	0	0	2* (1*)
18年度	0	0	0	0	0
	0	0	1** (1**)	0	1** (1**)
合計	15 (4)	11 (4)	4 (1)	2 (1)	32 (10)
	2* (2*)	1* (0)	2* (2*)	0	5* (4*)

() 内は採択件数, * 延長研究提案（欄内下段）、** 評価委員会の延長推奨

表 2.2 応募者の所属部門に関する統計

応募者の所属部門	東海	大洗	敦賀	東濃	合計
研究開発業務	6	7	1	2	16
研究開発部門の 管理業務	0	1	0	0	1
運転部門	1	1	1	0	3
管理部門	2	0	1	0	3
合計	9	9	3	2	23

表 2.3 応募者の応募時の職能資格に関する統計

応募者の職能資格	人数
(研究・技術) 主幹Ⅱ	1
(研究・技術) 主務Ⅰ	7
(研究・技術) 主務Ⅱ	10
一般職Ⅰ	5

表 2.4 応募者の年齢分布

応募者の年齢	人数
45～49歳	1
40～44歳	6
35～39歳	9
30～34歳	6
25～29歳	1

(2) 実施（採択）研究テーマ一覧

これまでに採択され、実施された研究テーマの一覧表を表 2.5 に示す。研究テーマ総数は 14 件で、そのうち 4 件は延長研究であった。従って、研究者数は 10 名で、延べの研究者数は 14 名であった。研究分野としては、高速炉&関連技術、放射性廃棄物処分、核燃料サイクル、環境放射線の各分野が約 3 件ずつと旧サイクル機構が進めた研究開発分野をバランス良くカバーする形となり、原子力社会科学分野も 1 件実施された。また、この中には評価委員会において高い評価を得、委員会から推奨される形で研究を延長した例（表 2.5 の No. 18-1）もあった。

2.4 本制度運用を振り返って

本制度は、制定以来 7 年間の運用であった。この間、第 3 章の“研究成果”でまとめているように高水準の研究成果を生み出しており、学会から高い評価を得たり、同じ分野の他の研究者の注目を集める研究成果を挙げたものもある。また、それらの成果を基に博士の学位を得た研究者も何人かいる。従って、原子力機構（旧サイクル機構）の創造的研究の活性化に対して有効な手段であったと考えられる。

表 2.5 核燃料サイクル創造的工学研究（社内公募研究）実施研究テーマ一覧

No.	研 究 テ マ	研究者名
13-1	使用済み燃料の再処理における抽出を用いない湿式分離	佐藤宗一
13-2	放射性廃棄物処分における緩衝材及び岩石マトリクス中の核種拡散移行過程での固液界面現象と移行モデルの高度化に関する研究	佐藤治夫
13-3	高温環境複雑人工物の損傷検出技術の開発	永江勇二
13-4	雷雲中における放射線発生機構に関する研究	鳥居建男
14-1	炭素系内包構造体を利用した放射性核種の処理法及びその利用技術の研究	山本和典
14-2	熔融塩電解プロセス制御に資する電気化学的要素濃度測定手法の研究	永井崇之
15-1	原子力施設非破壊検査用小型高輝度電子銃の実用化研究	山崎良雄
15-2	原子力技術の受容に関する個人及び集団の意思決定過程分析とシミュレーション	篠田佳彦
16-1	ミュオン誘雷手法に関する研究 (13-4 の延長研究)	鳥居建男
16-2	地質媒体微細間隙中での核種拡散移行過程における固液界面現象に関する研究 (13-2 の延長研究)	佐藤治夫
17-1	熔融塩を用いた新たな乾式再処理プロセスの創造に関する研究 (14-2 の延長研究)	永井崇之
17-2	アメリカウム含有低酸素ポテンシャルターゲットの創製及び特性評価	逢坂正彦
17-3	地殻中の深部流体の起源と熱輸送に関する研究	梅田浩司
18-1	発雷機構に与える放射線の影響評価研究 (16-1 の) 延長研究	鳥居建男

(1) 研究者の感想

本制度での研究を完了した研究者へのアンケートで得られた代表的な感想は以下の通りであった。

①本制度により得たもの

○効率的な研究活動の進め方を体得したこと。

本制度では自らが立てた計画や目標に従い、自分の裁量で研究に専念できる反面、研究に付随する実験準備や装置保守、予算管理なども自分で対応しなければならない。目標を期限内に達成するため、安全かつ操作し易い装置の設計、失敗が少ない実験手法や手順、精度の高いデータを得るためのノウハウなど、効率的な研究活動の進め方について、自分が意識しない間に体得していた。

○大学及び公的研究機関との交流が広がったこと。

本制度で行う研究は、従来のプロジェクト型研究とは異なり、新しい研究の芽を育てることなどを目的としている。発表成果は「基礎研究」に分類され、原子力関連企業の技術者よりも大学や公的研究機関の研究者が高い関心を示し、海外の研究者からも実験手法の問い合わせもあった。学会発表の場で意見を交わす方々のうち、大学や公的研究機関の研究者の割合が高くなり、研究会での発表や共同実験への参加等の依頼を受けた。

○研究活動に対する評価方法を理解したこと。

本制度では、計画や成果を外部委員の方々に評価頂くため、社内の評価と格段の差がある。外部委員への説明に対する質疑では、各委員の専門分野をベースとした質問があり、常識と認識していた情報が学術的に正当であることを確認しておく必要があり、評価に対する本来のあるべき姿を理解した。

②本制度で苦勞したこと

○人手が足りないこと。

本制度は「個人で気ままに研究できる」という極端な見方をする職員が多く、「人手が足らなければ、自分の予算で人手を確保すればよい」と言及した幹部職員もおられた。設備等を借用している負い目もあるため、適宜実験手法等の相談や協力をしていたので、多少の人的協力を望んでいたものの、「個人で対応」との前提を認識し、人手を要する作業は時間をかけて対応した。

③印象に残ったこと

○満足できる日々を送れたこと。

本制度への応募理由は、自らが望んで入社した機関に在職しながら、名ばかりの研究業務に時間を浪費している環境を変え、真の研究に携わりたかったためである。本制度は、応募理由を満足する環境を備えており、学生時代に培った研究の面白みを思い起こさせてくれた。計画立案、研究実施、成果発表等の一連の活動を自分の考えで自由に遂行できる反面、研究以外の面でも自己責任が常に問われるベンチャー的なイメージが強いが、充実した満足できる日々を送ることができた。

(2) 課題

すでに述べたように平成15年度以降の募集では平成13、14年度に比べて応募者が大きく減少するという大きな課題が残った。この要因として以下のことが考えられる。

①二法人統合

応募者数が大きく低下したのは、原子力二法人統合計画が閣議決定された平成13年12月以降の平成15年度募集（募集期間：平成14年7～9月）以降においてであった。研究者は、統合後の組織が見通せない状況で、現職場を離れ、個人で研究を行う本制度に応募することに不安を感じ、応募を見合せようとした可能性がある。また、統合後に本制度がどうなるのか明確になってから、と考えた研究者も少なからずいたと考えられる。

②応募しにくい制度上の問題

研究者にとって、現所属を出て単独で公募型研究に挑戦するには、リスクもあり、大きな勇気がいる。本制度の研究に応募するには、それ相当の動機付けやインセンティブが必要と考えられるが、本制度には、まだこれらが十分でなかったのかもしれない。ライン業務を行いつつ公募型研究ができるならば、応募する研究者が増える可能性は十分あったと考えられる。

③応募しにくい職場の問題

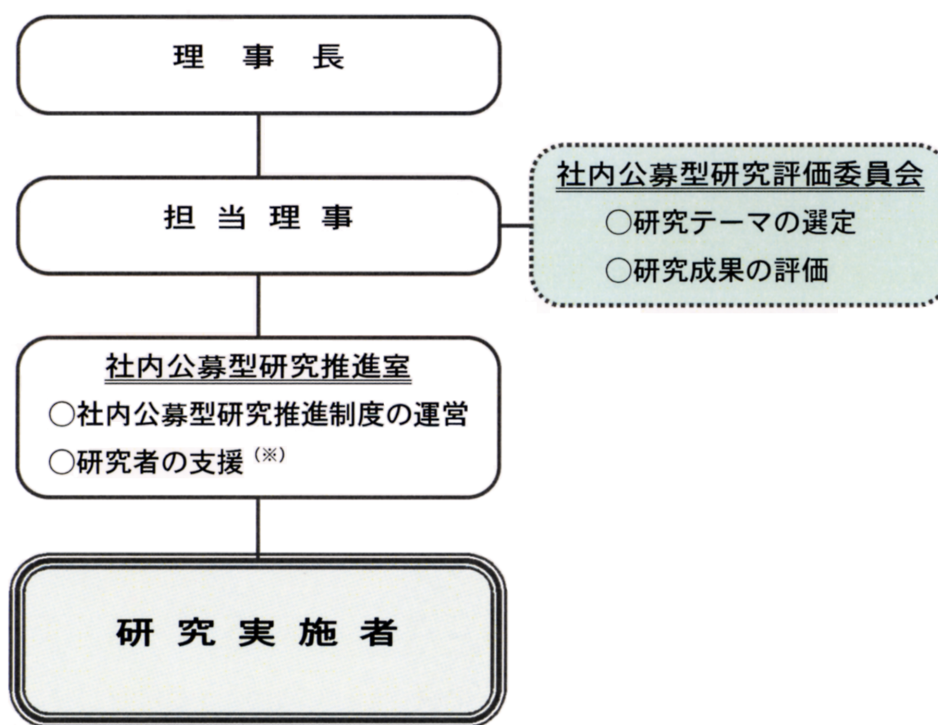
研究者は、部長や所属長の奨励や理解がない限り応募しにくかったことが予想される。所属長は、ライン業務に責任を持っているため、要員不足の現状で、部下が公募型研究に応募することを快く思わなかったことも考えられる。研究テーマが、現所属において将来の芽出し的な研究として理解され、支援されない限り、応募に踏み切りにくかったことも予想される。職場に、本制度を利用して、創造的な研究に前向きに取り組もうとする空気が必要であった。そのためには、職場にとって研究応募者を出すメリットやインセンティブがもっとある制度にする必要があった。

④応募の余裕がない問題

要員不足もあって、研究者は現在の業務に多忙で、創造的研究への応募のことを考え、想を練る余裕がなかった。また、強い責任感をもって現在の業務に没頭している研究者、あるいは現在の業務に満足してしまっている研究者も多かったと考えられる。現在の業務を止めて創造的研究に応募するには、大きな動機が必要であった。

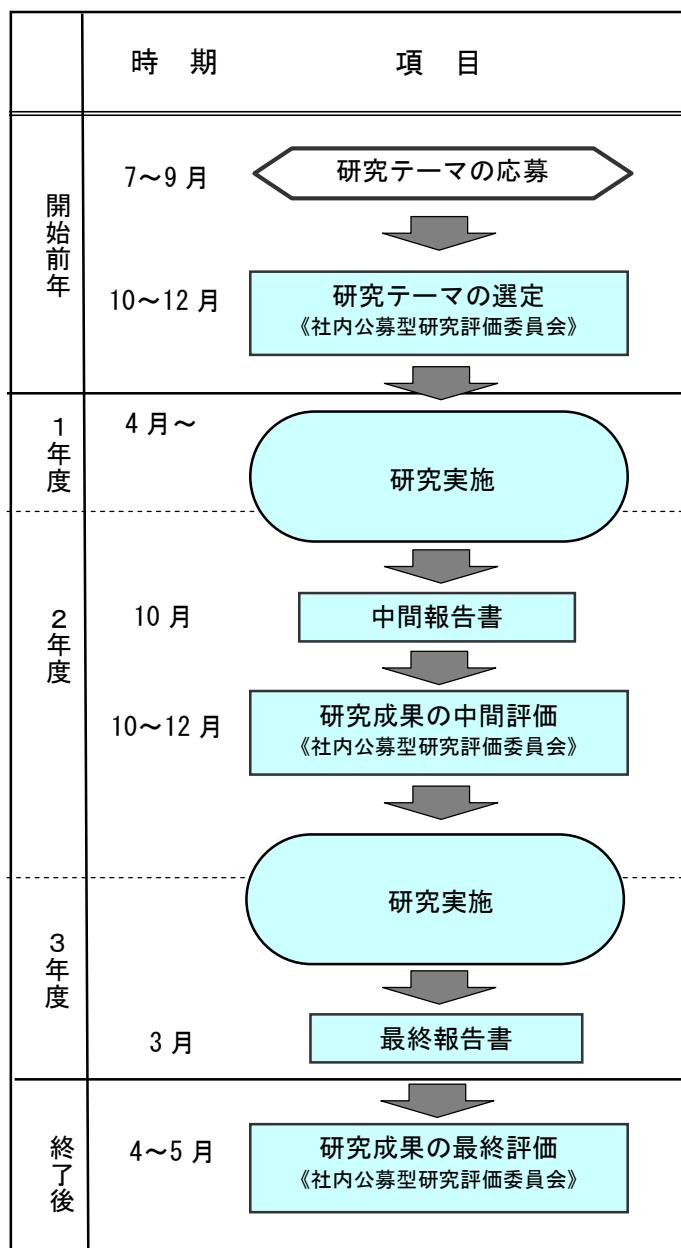
⑤研究提案能力の問題

本制度の遂行には創造的な研究提案をできる能力と意欲もった研究者が求められる。従来、旧サイクル機構では主に集団で研究開発に取り組んできたため、この種の提案に不慣れた研究者が多かったと思われるが、研究者の提案能力を伸ばす必要があった。



(※) 研究実施場所となる事業所においても、研究者に対する支援が受けられる体制とする。

図 2.1 社内公募型研究推進制度の推進体制



(注) 研究者から期間延長の申請があり、社内公募型研究評価委員会で認められた場合のみ、1～2事業年度の期間延長を認める。

図 2.2 社内公募型研究推進制度の基本的な流れ

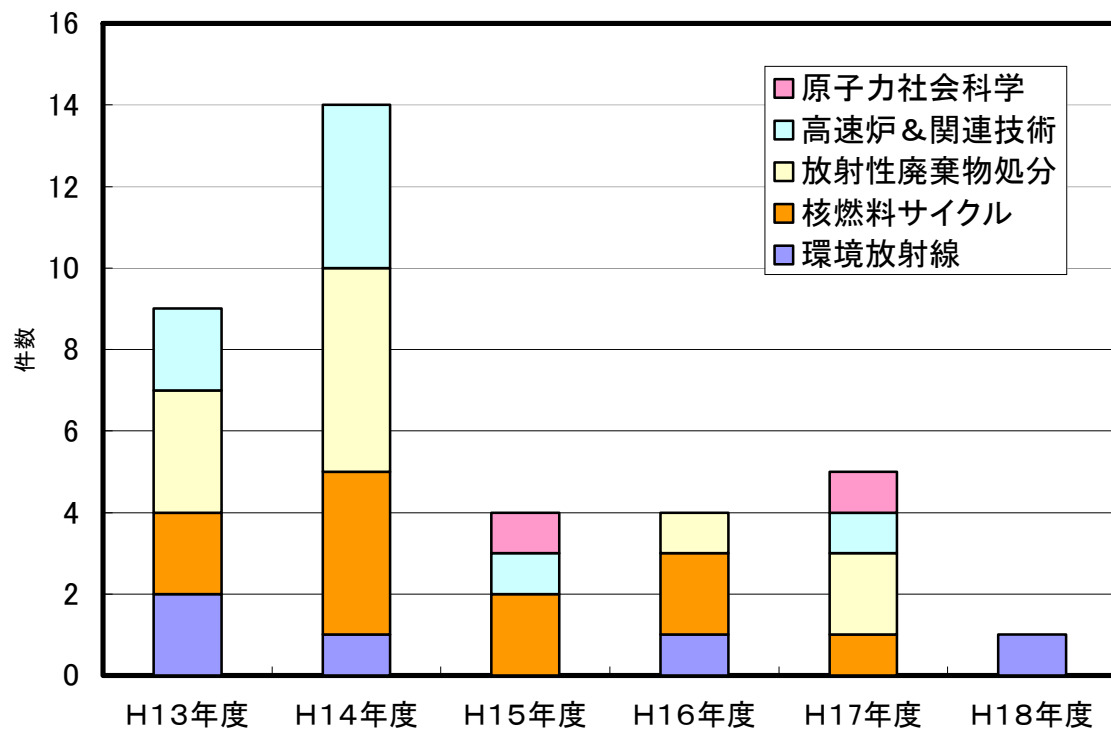


図 2.3 応募件数の年度推移と研究分野の内訳

3. 研究成果

採択され実施に移された各研究テーマの成果は、それぞれの研究成果に基づき各種論文にまとめられて学術誌等に投稿された。また、それらの論文とは別に、各研究テーマの成果は研究期間の終了時に、定められたフォーマットによる最終報告書としてもまとめられた。ここでは、核燃料サイクル創造的工学研究（旧社内公募研究）の研究成果の総まとめとして、表 2.5 にリストアップされた全 14 件の研究テーマの最終報告書を記載するとともに、14 件の研究テーマの研究成果リストをまとめる。

3.1 最終報告書

以下に表 2.5 にリストアップされた 14 件の研究テーマの最終報告書を記載する。

3.1.1 【H13-1】 使用済み燃料の再処理における溶媒を用いない湿式分離

平成 16 年 3 月 31 日

【No.】 研究テーマ名	【H13-1】 使用済み燃料の再処理における溶媒を用いない湿式分離		
研究実施者	佐藤 宗一		
研究実施場所	再処理センター分析所 1 階		
研究期間	平成 13 年 8 月 1 日 ～ 平成 16 年 3 月 31 日		
研究費用	1,130 万円	内訳	H14 (240 万円) H15 (570 万円) H16 (320 万円)
【研究目標】 現在の再処理工程においては、湿式・乾式にかかわらず、すべての燃料を溶解してから、分離を行う工程である。しかし、使用済み燃料の 95% 以上はウランであることから、溶解する前にウランと核分裂生成物（以下 FP）を大まかに分離することが出来れば、後の工程への負荷を低減することが出来る。そこで、その方法の一つとして、磁気分離技術に注目して、その再処理工程への適用性について見通しを得ることを目標とした。（中間評価後に目標を変更）			
【研究計画の概要】 使用済み燃料中のウランを溶解する前に核分裂生成物（以下 FP）を大まかに分離することが出来れば、後の工程への負荷を低減することが出来る。本研究は、溶解前に粗分離を行なう方法の一つとして、磁気分離技術に注目して、その再処理工程への適用性について見通しを得ることを目標としている。 磁気分離を使用した再処理工程は①使用済み燃料を、はじめに、ボロキシデーション（voloxidation）により粉体化する。②得られた粉体中の白金族の合金を磁気フィルターに吸着させ分離する。その後、③硫化水素（H_2S、あるいは CS_2）を用いた還元により、ウラン中に固溶している希土類元素を選択的に硫化し析出させ、④磁気フィルターにより希土類硫化物と UO_2 を分離する。（この工程ではウランは磁気フィルターに吸着せずに通過し、析出した希土類元素が吸着する。）さらに、希土類に含まれるウランを除去するために、⑤溶解した後に溶液中におけるイオンの状態での磁気分離を行う。 この工程のうち特に②磁気分離手法の分離能の向上③希土類元素の選択硫化及び④磁気フィルターによる硫化物の回収についての試験を行う。 さらに、磁気分離技術の主工程以外への応用として、プール水中のクラッドの回収試験についても実施する。			

1. 磁気分離に関する基礎試験

常磁性粒子同士の磁気分離のための高分離能を得るための条件を求める。

1.1 磁気フィルターの回収率に及ぼす各種条件の影響評価

1.1.2 物理的な条件

フィルターに懸濁液を流す時の物理的な影響（流速・磁場強度・磁化率）についての知見を得る。

1.1.3 化学的な条件

磁気フィルターへの回収率と分散媒の化学的な影響（塩濃度・イオン強度・pH）との関係についての知見を得る。

1.2 磁気フィルターの回収理論

磁気フィルターに粒子はどのように吸着するのか、どのように分離されるのかをクロマトグラムの観点から考察する。

1.3 磁気フィルターの性能向上のための方策

磁気フィルターの回収理論から、分離能を向上させるためには、吸着のみならず、脱着も重要であることが中間評価前の試験により明らかになったため、脱着についても考慮した磁気フィルターの有効性についての知見を得る。

1.3.1 電位による着脱

粒子はそれぞれ電荷を有していることから、磁性線に粒子の電位と同じ極性の電位をかけて、静電的に脱着を行わせることの可能性についての知見を得る。

1.3.2 外部磁場法

磁性線を使用しないフィルターでの試験を行うことにより、磁場を切った時により回収率を大きくする方法に関する試験を行う。

1.4 連続分離法

通常の磁気フィルターでは、吸着⇔脱着のサイクルが必要なため、時間的なロスが考えられた。そこで、二又に分岐した流路をもつ装置を用いて、連続的な磁気分離試験を行う。

1.5 イオンの磁気分離

溶解液中のイオンを超伝導磁石と磁気カラムを用いた試験を行う。

2. 再処理工程における磁気分離技術の適用性検討

2.1 粉体でのウランの分離

2.1.1 白金族合金とウランとの分離

使用済み燃料中で白金族は合金として析出している。したがって、磁気分離の可能性が高い物質である。これらの物質の分離特性についての知見を得る。

2.1.2 固溶していた元素とウランとの分離

ウラン中に固溶している物質としては希土類元素が挙げられる。希土類は比放射能の大きな物質や全体的に中性子の吸収断面積が大きいため、なるべく早い段階での分離が望まれた。そこで、希土類は硫化されウランは硫化されない条件を明らかにし、さらに、磁気分離特性についての試験を行う。

2.2 プール水中のクラッドの除去

プール中には、原子炉内で発生した酸化鉄の化合物について、磁気フィルターを用いてろ過した際の除去率についての知見を得る。

3. 再処理への適用性評価

これまでの得られた結果から、予想される工程を構築し、その工程の技術的成立性について考察する。

【研究成果の概要】

(1) 磁気分離手法の選定

中間報告の段階での磁気分離装置は一般的に磁気フィルター方式を考えており、磁性の大きな物質をフィルターに一回通過させることにより除去するという考え方であった。そのため NiO (UO_2) と Eu_2O_3 の磁気分離能はあまり大きいものではなかった。そこで物理的、化学的条件の試験により得られた結果、および粒子のフィルターへの吸着特性試験で得られた結果をもとにして、次の 3 種類の磁気分離手法を新たに考案し試験を実施した。①クロマトグラフィー分離方式 ②連続分離（二又に分かれたセルを用いた分離） ③磁気フィルターに常磁性物質を捕集し、捕集した状態でさらに分離する方法。（磁気フィルターに捕集した状態で通水、あるいは磁界の方向を連続的に変化させ、吸着させた状態で分離能を向上させる。）

工学的に必要な条件として、小型で分離能が高く、メンテナンス性の良いことを条件として、以上の 3 種類の磁気分離方法について試験した結果、③磁気フィルター内に粒子を捕集し、さらに分離する方法がもっとも適していると判断した。

(2) 希土類の選択硫化

セスキ希土類硫化物を H_2S , CS_2 により、 UO_2 が硫化されない範囲内で時間と温度条件を変化させ生成する、オキシ硫化物と硫化物の種類を確認した。さらに、それらの物質の磁化率を測定した (Nd , Eu の酸化状態を確認したところ、 Eu は還元され 2 価の状態であることがわかった。また、このとき測定した $\text{Eu}_2\text{O}_2\text{S}$ については、磁化率のデータはこれまでに報告されていなかった。)

さらに UO_2 と Nd_2O_3 , Eu_2O_3 を混合させた状態で硫化し、 UO_2 は硫化されずに、希土類のみが硫化されることを確認した。

(3) 希土類硫化物と UO_2 との分離

時間と温度条件により生成する各種の希土類硫化物と UO_2 を混合状態で磁気分離を行ったところ、硫化の進んだ物質において、 UO_2 との分離が可能であることがわかった。さらに、硫化物は希酸にも良好に溶解することから、希硝酸に混合試料を浸漬させたところ、数時間で希土類は溶解し、80%以上の UO_2 は溶解せずに残ることがわかった。

(4) 再処理工程の構築

希土類の選択的硫化と磁気分離（あるいは部分溶解）の工程を組み合わせた再処理工程を構築し、その成立性について評価し、本法が再処理法のひとつとして有効である事が分かった。

【研究目標に対する達成度】

磁気分離に関する基礎試験を行い、従来の方法とは異なる手法として、磁気フィルター内に捕集した状態で粒子をさらに分離する手法について見出すことができた。

この方法では、一般的な磁気分離手法よりもさらに高い磁気分離能を達成することができ、また、クロマト分離よりも多くの物質を処理できる。本方法を使用することにより、0.5 T の永久磁石と 5cm 程度の磁気フィルターにより、 Ni と Eu の投入時の濃度比と比べて約 8 倍に高めることができた。

また、機器としては、永久磁石と、配管内に磁性線を封入した磁気フィルターのみであり、実験の結果からは、数回の磁気分離を行うことにより UO_2 から 100 倍程度の希土類元素の除去が可能と考えられた。したがって、再処理工程への適用が可能である事が分かった。

また、希土類酸化物は、 UO_2 と混合した状態でも選択的に硫化が可能であることがわかった。これらの、生成した硫化物は酸化物よりも UO_2 との磁気分離能が高く、したがって硫化することにより、より磁気分離能の高い分離が可能である事が分かった。

これらの結果を踏まえて、選択硫化と磁気分離を組み合わせた工程を構築し、研究の目標である、再処理工程への適用性について見通しを得ることができた。

【研究成果の波及効果及び展望】

1. 現在までの波及効果

現在、サイクル機構においては実用化戦略調査研究の一環として、先進再処理技術の調査研究が進められている。本研究の成果は、先進的再処理プロセスのひとつである ORIENT サイクル新分離技術として取り上げられ、その前処理方法として使用するプロセスが WG 報告書¹⁾ 内に提案された。

また、2003 年 10 月に開催された”Korea-Japan workshop on nuclear pyroprocessing”にて報告（共研先,東北大から発表）した²⁾。その後、韓国側からの要望により情報を提供し、（原子力学会および磁気分離に関するワークショップの要旨）さらに、共同研究についても示唆されている。

2. 今後期待される波及効果と展望

PUREX 法については、国内において東海工場では廃棄物の処理について、さらに、六ヶ所工場ではプラントの規模の大きさにより、次の世代においては小型でかつ廃棄物の発生量の少ない工程が求められている。いうまでもなく、サイクル機構でもそのための方策として実用化戦略調査研究（FS）が実施されている。この中で、今後の再処理の方向として、湿式および乾式再処理が主流として取り上げられている。

本研究の目的である粗分離という工程においては、次工程への物質を送る際に、その工程で利用しやすい物質であることが重要である。本研究で構築された工程は、得られる製品は UO_2 であり、廃棄物は硝酸溶液となるため、先進再処理の一部として使用することが可能である。さらに、使用する化学物質は H_2S (CS_2) であり、いずれも大気中への放出が可能である。

また、本研究で構築された工程において、処理した燃料を再利用するに十分な DF を得ることができれば、現在の先進再処理方法に匹敵する物である。

さらに、本工程で必要となる機器としては、先進再処理で使用される機器を基本的に使用する事が出来る。具体的には湿式・乾式で使用するボロキシデーシヨンのための加熱炉、湿式再処理で使用する溶解槽、および固有な装置としては磁気分離器が主である。ただし、磁気分離器は配管の内部に磁性線を入れた磁気フィルターと永久磁石から構成され非常に単純な装置である。

したがって、これらの機器は先進再処理で使用する機器の若干の改造ですむため、非常に適応性が高い工程であると言える。

1. 社内資料、FBR サイクル開発推進部、燃料サイクルシステム Gr. 実用化戦略調査研究 エンジニアリングメモ WG 報告書 FS-FSG-03-001

2. Korea-Japan Work shop on Nuclear Pyroprocessing, NUPYRO 2003 Seoul 2003

【研究成果の説明】

1. 磁気フィルターに関する基礎試験

中間評価前までに磁気フィルターを用いた粒子の捕集に関する試験を実施し、磁化率の違いによってその捕集の割合が変化することが確認された。しかし、分離能という観点から、さらに効率的な分離条件を決定する必要がある。そこで、各種パラメータについて回収率に与える影響を定量的に評価し、分離能の向上が期待できる手法について検討した。

1.1. 磁気フィルターの回収率に及ぶ各種条件の影響評価

1.1.1. 物理的な条件³⁾

磁気フィルターを用いて物理的なパラメータ（磁気力、流速、磁化率）と回収率との関係についての試験を行った。その結果、回収率とこれらのパラメータの関係を求めることが出来た。また、フィルターの通過回数に対して粒子は指数的 ($C=C_0\exp(-\alpha n)$ n :通過回数, α :係数) に捕集されることがわかった。

1.1.2. 化学的な条件

分散媒の液性をパラメータとして試験を実施した。その結果、塩濃度および pH が捕集効率に影響を与えていることが分かった。これは、ゼータ電位との関係から説明が可能であった⁴⁾⁵⁾。図1はゼータ電位と粒子の捕集曲線の係数(α)を示した物である。特にゼータ電位がゼロに近い点において、その捕集効率が上昇することがわかった。

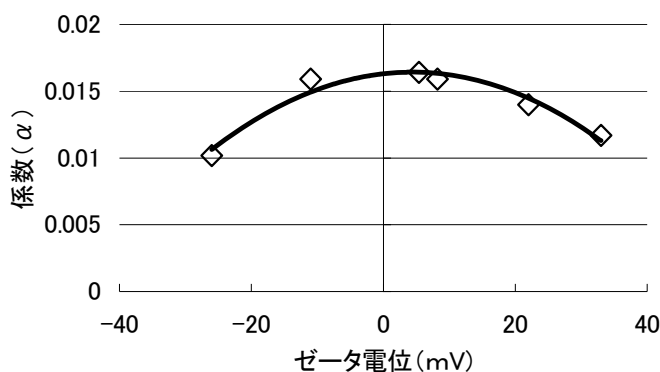


図1 ゼータ電位と磁気力による係数(α)の関係

S. SATO, K. Mitsuhashi, T. Ohara, Effect of zeta potential of particles dispersed in an aqueous solution on magnetic filtration efficiency: IEEE Trans. Applied Superconductivity, Vol. 14 No. 2 June 2004 © 2004 IEEE

また、 Eu_2O_3 と NiO の混在した試料を用いて、pH を変化させた系での、 Eu_2O_3 と NiO の分離試験を実施した。その結果、磁化率の低い物質でも等電位点付近ではフィルターにより回収され、分離能が低下することが分かった。したがって、磁化率の違いによる分離を行う際には、小さな磁化率の物質の等電位点での磁気分離は行わない様にする事が重要である事がわかった⁶⁾。

1.2. 磁気フィルターの回収理論

マクロ的な見方でのクロマトグラムの解釈から、磁気分離のピークのプロファイルのシミュレーションを行った。ここでは、フィルターの分離段において捕集量は分散媒中の粒子の濃度に、脱着量は捕集されている物質に比例するとした。計算の結果フィルター内部での粒子の分布（実験値）に関して、計算値はよく一致することが分かった。さらにこのモデルから、磁気フィルターによる分離については、吸着のみではなく、脱着も重要なファクターであることが分かった。

また、磁気フィルターを、単純に磁気フィルターとして使用するのではなく、フィルター内で粒

3. 佐藤宗一、三橋和成、小原健司：日本原子力学会「2002 年秋の大会」B41

4. 佐藤宗一、三橋和成、小原健司：日本原子力学会「2003 年春の年会」N54

5. S.Sato, K.Mitsuhashi, K.Ohara: Separation Science and Technology, 39, 2827-2838(2004)

6. S.Sato, K.Mitsuhashi, K.Ohara: IEEE Transactions on Applied Superconductivity, 14, 1554-1557 (2004)

子を捕集した状態でさらに、分離能を高める方法についても試験を実施した。フィルター内で常磁性粒子（NiO、Eu₂O₃）を吸着させた状態で純水をしばらく流し、次に磁場を切った。その際に(2/4)

流出してくる粒子と、さらに超音波洗浄器で洗浄しなければ流出しない粒子それぞれの Eu/Ni 比を測定した。磁場を切ただけで流出してくる粒子は磁化率の小さな Ni を多く含むことがわかった。さらに、超音波洗浄しなければ流出しない粒子には Eu を多く含むことがわかった。また、通水時間を変化させた時の超音波洗浄により得られた粒子の Eu と Ni の比を図 2 に示した。この結果から、通水時間を増やすことにより、磁化率の大きな Eu の比率が上昇することがわかった。

また、粒子は通水中には流出してこなかったことから、フィルター内部で、磁化率の違いにより、粒子の分離が行われているということがわかった。

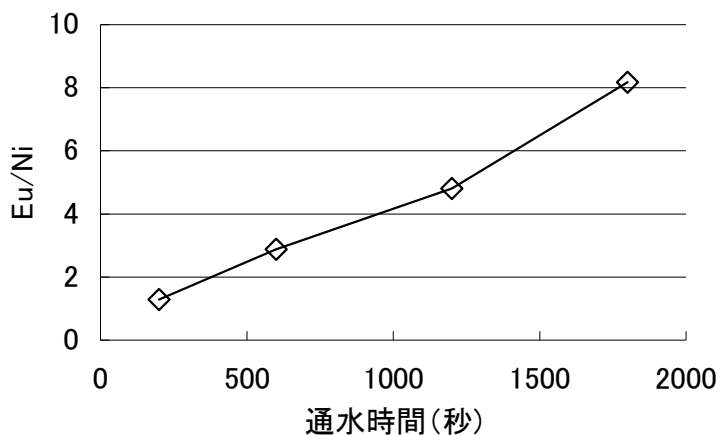


図2 通水時間とEu/Niの関係

1.3. 分離カラムの改良

1.3.1. 電位・磁場方向の変化による回収率変化

1.2の項で得られた結果により、分離能を向上させるためには、脱着も重要であることが分かった。当初は粒子の極性と同一極性の電位を磁性線に印加することを計画したが、今回は実施しなかった。

そこで、永久磁石に磁気カラムを中心にして、回転できるようにした装置を製作し、磁界の方向が分離能に与える影響について試験を実施したところ、表 1 のような結果を得た。（通水時間は 200 秒とした。）この結果から回転数(32r.p.m)を調節することにより Eu/Ni の分離能を短時間で上昇させることが可能であることが分かった。

表 1 回転数と Eu/Ni の関係

回転数 (r.p.m)	超音波 洗浄時
0	5.3
8	3.2
32	7.8
60	4.4

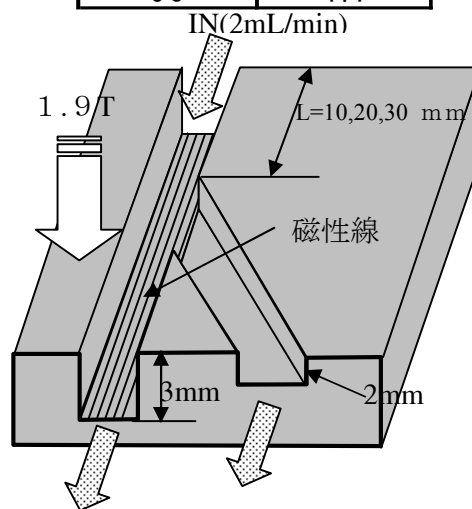


図3 分岐型磁気分離セル

1.3.2. 外部磁場法

実施せず

1.4. 連続分離法

磁気フィルターによる分離では、一度粒子をカラムに吸着させ、次に脱着させることが必要となることからバッチ処理となる。そこで、図 3 に示した分離セルを作成し連続的に分離する方法について試験し、分離性能についての結果を得た。粒子は磁性線に捕捉されるためその補正を行い、分岐点での平均の濃度と磁性線の無い側の濃度を比較した。もしも粒子が均一に存在しているのならば、その濃度は等しくなるはずであるが、表 2 に示したとおりに、分岐点では最大で 20 % 程度の粒子の濃度に差が見られ、したがって粒子が磁性線側に移行していることがわかった。

表2 分岐点での平均濃度と上部測定値

分岐点までの長さ	平均濃度 (計算値)	測定値	計算値/ 測定値
10	0.95	0.80	0.84
20	0.90	0.69	0.77
30	0.92	0.77	0.84

1.5. イオンの磁気分離⇒ 物質・材料研究機構との共同研究 実施せず。

2. 再処理工程における磁気分離技術の適用性検討

再処理工程において磁気分離の適用が可能な工程として、①プール水中のクラッドの除去②不溶解残渣の除去③ウランの除去あるいはF Pの除去④脱被覆時の被覆管の除去⑤廃液の中のアクチニドの除去の可能性が考えられる。本研究においては、①②③の可能性を評価するためのデータを得た。(②についての試験は実施せず)

2.1. 析出相とウランの分離 (項目②)

析出相には、白金族系の金属・合金と Ba や Zr の酸化物として存在する物質がある。このとき白金族系の金属・合金については磁化率が高いことが予想される。したがって、使用済み燃料をボロキシネーションした際にはウランは U_3O_8 の酸化物の状態で、磁化率も低いため、白金族を磁気フィルターにより回収し分離することが可能と考えられる。

白金族の不溶解残渣は東海再処理工場においては、高放射性廃液 (HALW) に廃棄する工程となっている。そこで HALW の磁気ろ過試験を行う計画をしていた。しかし、HALW を用いた作業は一人では不可能であったため実施しなかった。

2.2. 部分硫化と磁気分離を用いる希土類とウランの分離 (項目③)

2.2.1. 固溶体として存在する希土類の選択的な硫化⇒ 東北大学と共同研究実施

希土類元素は、ウラン中に固溶しており、ウランの酸素・水素雰囲気中での酸化、還元による手法では分離が困難であると考えられた。そこで、ウランをハロゲン化、窒化、炭化し希土類元素を析出させることを考えたが、 ΔG (自由エネルギー変化)を用いた化学平衡計算から、ウランも希土類も、ともに反応してしまい、固溶体からの析出は難しいことが分かった。

次に、硫化について計算を実施したところ、ボロキシネーションで得られた U_3O_8 については還元されて UO_2 に変化するもの、希土類は完全に硫化されるという計算結果となった。また、イオウと酸素の分圧における状態図からも、ウランは UO_2 になり、他の希土類は硫化物あるいはオキシ硫化物に変化することが予想できた。

実際に希土類については温度や硫化剤、反応時間を変化させて、 Ln_2O_2S あるいは Ln_2S_3 が生成する条件を求めた。図4に示したとおりに、 UO_2 と、 Eu_2O_3 、 Nd_2O_3 を混合させて、硫化させた試験により、希土類酸化物が選択的に硫化可能であることがわかった。また、いずれの場合にもウランは硫化されず UO_2 として存在することが分かった。

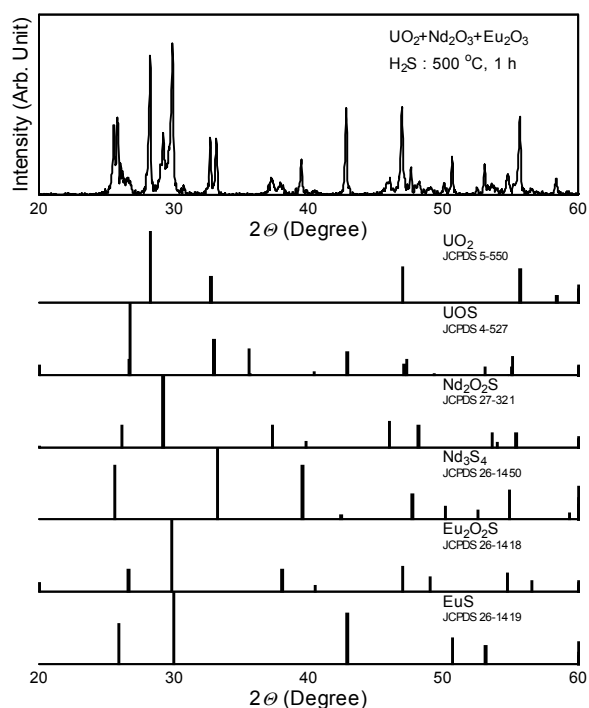


図4 H_2S を用いた混合物の XRD パターン

2.2.2. 希土類硫化物の磁化率

様々な条件で硫化した希土類硫化物について、それぞれ、磁化率の測定を実施した。磁界率の測定値から計算した、磁気モーメントで比較したところ、ほとんど変化しないことがわかった。ただし、分子量の違いや密度の変化により磁化率は若干変化した。(特に Eu は硫化により 2 価にまで還元され、その磁化率はセスキ酸化物よりも 6 倍以上も大きくなることが分かった。)

Nd については、磁化率の測定値から計算された磁気モーメントと基底状態の電子の配置から計算される磁気モーメントと良好に一致していることが分かった。Eu(III)については一致しなかったものの、Eu(II)については計算値とよく一致することが確認できた。

2.2.3. 希土類硫化物と UO_2 との磁気分離

2.2.1 で観察された硫化物とウランの組み合わせにより、磁気分離試験を実施し、最も磁気分離に適した硫化物の組み合わせについて確認した。表 3 にその結果を示した。希土類の硫化の進んだ状態である EuS , Nd_2S_3 および EuS , Nd_3S_4 の組合せが UO_2 との分離能に優れている事がわかった。

また、硫化物は薄い酸に容易に溶解する。一方、 UO_2 や PuO_2 については薄い酸に対する溶解速度はきわめて遅い。したがって、この差を利用して UO_2 と希土類とを分離することが可能となると考えた。そこで、 UO_2 と希土類の硫化物およびオキシ硫化物を混合して、0.1 および 1 M の硝酸溶液に溶解したところ、硫化物は 10 分程度で完全に溶解し、オキシ硫化物も 60 分程度で完全に溶解した。一方、 UO_2 は 24 時間後も 80% 以上粉体として存在しており、部分溶解を利用した分離も可能である事が分かった。

表 3 U に対する Eu, Nd の濃度比

		Eu/U	Nd/U
*	$\text{Eu}_2\text{O}_3, \text{Nd}_2\text{O}_3$	0.88	1.36
(a)	$\text{Eu}_2\text{O}_2\text{S}, \text{Nd}_2\text{O}_2\text{S}$	1.52	1.00
(b)	$\text{EuS}, \text{Nd}_2\text{O}_2\text{S}$	0.34	0.94
(c)	$\text{Eu}_2\text{O}_2\text{S}, \text{Nd}_3\text{S}_4$	1.17	0.39
(d)	$\text{EuS}, \text{Nd}_3\text{S}_4$	0.17	0.47
(e)	$\text{EuS}, \text{Nd}_2\text{S}_3$	0.26	0.53

初期投入時の Eu/U, Nd/U は 1

2.3. プール水中のクラッドの除去(項目①)

原子炉内部の配管と水熱反応により生成した、主に鉄の酸化物について、燃料に付着してくるクラッドが、再処理工場へのキャスクを用いた輸送の際に微量混入する。このクラッドの除去にはイオン交換樹脂を使用しているが、磁気フィルターを用いることにより、イオン交換樹脂のような使い捨てタイプの洗浄方法から、繰り返し使用の可能な除去システムを組み立てることが出来る。

表 4 通過回数における濃度変化

	Fe(ppm)	Ni(ppm)	Co(Bq/mL)
キャスク水(原液)	11.2	0.28	601
通過液(1回目)	0.9	0.02	71
通過液(2回目)	0.1	0.01	18

試験に用いた試料は混入しているクラッドの量の多い順に、キャスク水、キャスク洗浄水およびプール水を用いて、それぞれの試料中に混入しているクラッドの除去について試験を行った。その結果、キャスク水からは表 4 に示したとおりに、磁気フィルターによりほとんどの Fe, Ni, Co が除去されることがわかった。

3. 再処理への適用性評価

再処理工程における装置の概念(条件を含む)を、試験して得られた結果をもとにその可能性を含めて評価を行った。その結果、選択硫化と磁気分離(あるいは部分溶解)を用いて、技術的にも成立が可能な新たな再処理工程を構築することができた。

【研究成果等発表状況】			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
1. 学術誌論文（原著研究論文）			
1.1	S.Sato,K.Mitsubishi, K. Ohara	“Effect of chemical state of dispersed phase on magnetic filtration efficiency”, Separation Science and Technology, 39, 2827-2838(2004)	1.1.2
1.2	S.Sato,K.Mitsubishi, K. Ohara	“Effect of zeta potentials on particles dispersed in an aqueous solution on magnetic filtration efficiency”, IEEE Transactions on applied superconductivity, 14, 1554-1557 (2004)	1.1.2
2. 学術会議論文（会議論文集あり）			
2.1	G. Shinohara, N. Sato, A. Kirishima, O. Tochiyama and S. Sato	“Sulfurization of Rare-Earth Oxides in Simulated Spent Fuel”, The 16 th Iketani Conf. Masuko Symp., (2006), Tokyo, Japan, p153-160.	2.2.1
3. 学会等口頭発表（概要集程度）			
3.1	佐藤 宗一、三橋和成、小原健司	“B41 再処理工程への磁気分離適用技術に関する研究（I）” 日本原子力学会 2002 年秋の大会 いわき明星大学 2002 年 9 月 14～16 日	1.1.1
3.2	佐藤 宗一、三橋和成、小原健司	N54 再処理工程への磁気分離適用技術に関する研究（II） 日本原子力学会 2003 年春の年会 アルカス SASEBO 2003 年 3 月 27～29 日	1.1.2
3.3	佐藤 宗一、三橋和成、小原健司、佐藤修彰	I13 再処理工程への磁気分離適用技術に関する研究（III） 日本原子力学会 2003 年秋の大会 静岡大学 2003 年 9 月 24～26 日	2.2.3
3.4	N.Sato, S.Sato	“Selective sulfurization of Uranium and Rare-Earth Oxides Using H ₂ S and CS ₂ ” 韓日乾式処理ワークショップ 2003 年 10 月 24 日	2.2.1
3.5	佐藤 宗一、三橋和成、小原健司、佐藤修彰	B4 再処理工程への磁気分離適用技術に関する研究（IV） 日本原子力学会 2004 年春の年会 岡山大学 2004 年 3 月 29～31 日	2.2.3
4. 学術誌解説・総説			
4.1			
5. 依頼講演（内部は除く）			
5.1	佐藤 宗一	磁気分離の核燃料サイクルへの応用 第 3 回磁気分離開発に関するワークショップ （主催：磁気分離研究会）平成 14 年 11 月 15～16 日 都立大学	全体 （システムとして）
6. その他（サイクル機構技報等）			
6.1			
7. 社内研究報告書			
7.1			
8. 特許			
8.1		①選択硫化と部分溶解による再処理方法：特開 2 0 0 5 － 2 2 1 4 3 4	
8.2		②選択硫化と磁気分離による再処理方法：特開 2 0 0 5 － 2 2 1 4 3 9	

3.1.2 【H13-2】 放射性廃棄物処分における緩衝材及び岩石マトリクス中の核種拡散移行過程での固液界面現象と移行モデルの高度化に関する研究

平成 16 年 3 月 31 日

【No.】 研究テーマ名	【H13-2】 放射性廃棄物処分における緩衝材及び岩石マトリクス中の核種拡散移行過程での固液界面現象と移行モデルの高度化に関する研究		
研究実施者	佐藤治夫		
研究実施場所	東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部 放射化学研究グループ		
研究期間	平成 13 年 8 月 1 日 ～ 平成 16 年 3 月 31 日		
研究費用	1,823 万円	内訳	H14 (586 万円) H15 (659 万円) H16 (578 万円)
【研究目標】 1. ベントナイト中の主要粘土鉱物のスメクタイト粒子の配向性とベントナイト中のスメクタイト含有率およびスメクタイト粒子の配向方向と拡散係数(実効拡散係数 D_e および見掛けの拡散係数 D_a)との関係に基づいて、ベントナイト中の核種の拡散に及ぼすスメクタイト部分密度とスメクタイト粒子の配向性の影響について明らかにする。 2. ベントナイト中の主要粘土鉱物であるスメクタイト粒子の配向方向と D_e の活性化エネルギーとの関係に基づいて、核種の拡散に及ぼすベントナイト中の拡散移行経路(例えば、層間と外部間隙)の影響について明らかにする。 3. 圧縮ベントナイトおよび岩石マトリクス中の拡散係数(D_e および D_a)の活性化エネルギーと間隙水のイオン強度との関係から、圧縮ベントナイトおよび岩石マトリクス中の間隙水の特性、特に粘性変化とイオン強度との関係に関する知見を得る。また、間隙水のイオン強度とスメクタイトの底面間隔との関係および D_e の活性化エネルギーとの関係などから、間隙水化学の影響に伴うベントナイト中の微細間隙構造の変化を考慮した拡散移行経路と拡散係数との関係について明らかにする。 4. 圧縮ベントナイト中での複数の異なった拡散移行経路の存在の可能性について明らかにすると共に、複数存在するならば、その程度と量比(濃度比)および間隙水のイオン強度と拡散移行経路との関係について定量的に見積る。また、得られた結果および知見に基づいて、複数の拡散係数などを考慮した核種の濃度分布を再現あるいは解析するための計算コードを整備する。 5. 核種とベントナイトあるいは岩石に対する固液界面での静電的相互作用および固相表面からの粘性分布や間隙水中での拡散係数分布を計算することができ、かつ、微細間隙構造を考慮した核種拡散移行モデルを提案する。			

【研究計画の概要】

放射性廃棄物の地層処分の安全評価において、廃棄体であるガラス固化体の周囲に工学障壁材として配置されることが検討されている緩衝材(ベントナイト)中の核種の拡散係数は、人工バリアから天然バリア中への核種の放出率(フラックス)を予測評価する上で重要、かつ、不可欠なパラメータである。また、人工バリアの外側の天然バリアにおいては、花崗岩などに代表される結晶質岩のような亀裂性媒体に対しては、亀裂中の地下水の流れに対して直角方向の基質部(マトリクス部)への拡散(マトリクス拡散)が希釈や遅延効果として大きな役割を果たす。

一方、凝灰岩や砂岩などに代表される堆積岩のような多孔質媒体に対しては、結晶質岩とは異なり、三次元的に連続した間隙中での拡散係数が核種の放出率に影響を及ぼす。このように、拡散係数は、人工バリアと天然バリアの両方において、処分の安全評価を行う上で重要なパラメータであり、拡散移行過程を理解することは、長期的な予測解析の精度向上につながる。岩種や深度の多様性などに起因する深部地質環境中での物理化学的環境条件(例えば、地下水のイオン強度や温度)を始め、酸化還元条件、岩盤特性に応じた人工バリアの設計条件(ベントナイトの乾燥密度や珪砂混合率など)や長期的挙動(ベントナイトの変質や流失など)などの影響を受ける。このため、これらの物理化学的環境条件や設計条件の多様性に対応できるデータや知見を始め、予測評価するためのモデルが必要となる。さらに、直接的に安全評価においてデータ設定に反映されないまでも、技術的および科学的側面からの解釈に裏打ちされたデータや知見の蓄積は、長期に及ぶ安全評価システムの予測精度や信頼性向上につながる。特に、緩衝材および岩石中の核種やイオンの拡散移行過程は、処分場からの放出率に大きな影響を及ぼすことから重要である。

従来の研究では、Fick の法則に基づくものとして拡散移行現象が取り扱われているのが一般的であり、これまでも主要な条件に対して、見掛けの拡散係数(D_a)や実効拡散係数(D_e)などの拡散係数が取得されてきた。しかし一方で、現象理解の側面から見た場合、圧縮ベントナイトは地下水で飽和されると、主としてスメクタイトなどの粘土鉱物を多く含むため、膨潤して構造が変化するなど、乾燥状態とは異なる挙動をとるほか、スメクタイト層間が水分子数個分程度と極めて狭い間隙領域となり、取り扱いが困難であることや、飽和された条件での圧縮ベントナイト中の微細間隙構造が解明されていないこと、あるいは圧縮ベントナイト中のスメクタイトの層間を含む間隙水の物理化学特性(例えば、粘性)がよく分かっていないなど、核種拡散移行過程と密接に関係する点で未解明な部分が多く残されている。

このように、圧縮ベントナイト中の核種拡散移行問題においては多くの微視的な課題が残されているため、定量的に遅延を評価できるまでに至っておらず、このため、サイクル機構が1999年11月に公表した「第2次取りまとめ」の安全評価においても、収着分配係数(K_d)は拡散係数の実測値に基づいて設定された。

最新の研究では、拡散の活性化エネルギー(ΔE_a)が粘土粒子の配向方向などの圧縮ベントナイトの微細間隙構造の影響を受ける可能性を示唆していること、さらに、微細間隙構造が間隙水のイオン強度の影響を受けて変化すること、核種のイオン電荷によって主たる拡散移行経路が異なる可能性があること、拡散移行経路が単一ではなく、複数存在し、そこでの拡散係数も移行経路に依存して大きく異なる可能性があることなどが指摘されつつある。

岩石マトリクス中の核種拡散移行問題については、一般的には圧縮ベントナイトと比較して間隙径(細孔径)が大きいことから、バッチ法による実験条件と比較的近いとされており、収着遅延に関してもバッチ法により取得された K_d を基本として使用されている。しかしながら、土壌のように、間隙が大きく、未固結な場合は成立し得る可能性はあるものの、深部に見られる岩石のように、固結している場合に対しては、間隙水の特性も含めて系統的かつ熱力学的に研究された例がなく、よく分かっていない。

本研究は、放射性廃棄物の地層処分に関連した課題として、処分システムを構成する緩衝材および岩石マトリクス中での核種の拡散移行過程で起こる様々な相互作用のうち、特に、拡散移行経路と固液界面付近を拡散する際に受ける影響に着目し、

- ① 間隙水化学(特にイオン強度)と移行経路および微細間隙構造の変化が拡散に及ぼす影響を熱力学的側面から明らかにすること
- ② 間隙水の特性、特に粘性に関する知見を得ること
- ③ 核種との固液界面における静電的相互作用および粘性分布に関するモデルを構築し、拡散係数や拡散移行プロセスの解析に適用すること

を目的として、以下に示す研究項目に分類して研究する。

1. ベントナイト中の核種拡散移行過程に関する研究

- (1) ベントナイト中の核種の拡散に及ぼす主要粘土鉱物のスメクタイト部分密度およびスメクタイト粒子の配向方向の影響に関する研究
- (2) ベントナイト中の拡散の活性化エネルギー(ΔE_a)に及ぼすスメクタイト粒子の配向方向の影響に関する研究
- (3) ベントナイト中の微細間隙構造と拡散の ΔE_a に及ぼす間隙水化学(イオン強度)の影響に関する研究
- (4) ベントナイト中の複合拡散に対する存在の可能性に関する研究

2. 岩石マトリクス中の核種拡散移行過程に関する研究

- (1) 岩石マトリクス中の拡散の活性化エネルギーに及ぼす間隙水イオン強度およびイオン電荷の影響に関する研究

1. (1)～(3)における研究は相互に関連しており、透過拡散法(T-D法)を中心に、また、必要に応じて In-diffusion 法による拡散実験を、ベントナイト中のスメクタイト含有率、乾燥密度、ベントナイトの圧縮方向に対する拡散方向、温度、間隙水のイオン強度などをパラメータに行い、実効拡散係数(D_e)や見掛けの拡散係数(D_a)などの基礎データを取得する。並行してベントナイトの表面観察を行い、スメクタイト粒子の配向性に関する知見を得る。

得られたデータや知見に基づいて、ベントナイト中のスメクタイト部分の密度に着目したスメクタイト部分密度と拡散係数との関係、スメクタイト含有率と粘土粒子の配向性との関係、拡散係数に及ぼすスメクタイト粒子の配向方向の影響、 D_e の ΔE_a とスメクタイト粒子の配向方向との関係などから、間隙水の粘性などについて考察する。また、間隙水のイオン強度とスメクタイトの底面間隔との関係および D_e の ΔE_a との関係から、微細間隙構造変化に及ぼすイオン強度の影響や、構造変化に伴う間隙水の粘性変化などを考察する。さらに、固液界面での静電的相互作用および粘性分布のモデルを検討し、微細間隙構造の変化を考慮したモデルを構築すると共に、実測された D_e に対してモデルの適用性を検討する。

1. (4)の研究では、拡散時間および乾燥密度をパラメータに、スメクタイト層間および外部間隙の両方を拡散することができる核種を用いた比較的短期の In-diffusion 法による拡散実験を中心に行い、核種の濃度分布を精密に解析し、1. (1)～(3)の研究において得られた結果と併せて速い拡散と遅い拡散が複合した拡散(拡散移行経路)の存在の可能性について検討すると共に、それらを再現あるいは解析するモデルや計算コードを整備する。

2. (1)の研究では、岩石に対して、温度および間隙水のイオン強度などをパラメータに、T-D法による拡散実験を中心に行い、 D_e の ΔE_a に及ぼす間隙水のイオン強度や核種の電荷の影響について検討し、間隙水の粘性変化や拡散メカニズムについて熱力学的側面から考察する。

【研究成果の概要】

地層処分多重バリアシステムを構成する人工バリア(ベントナイト)および天然バリア(岩石)中のイオンの拡散移行過程について研究した。人工バリアについては、ベントナイトの主要構成粘土鉱物であるスメクタイトの配向特性やイオンがスメクタイトの表面近傍を拡散移行する際に受ける影響に着目し、拡散係数に及ぼすスメクタイト粒子の配向の影響や圧縮ベントナイト中をイオンが拡散移行する過程で受ける抵抗を微細間隙構造変化の影響と併せて熱力学的側面から研究した。また、天然バリアについては、物理化学特性や拡散移行に関する知見が限られている堆積岩に着目し、白浜砂岩を対象としてバッチ法と拡散法間での収着分配係数(Kd)の不整合要因について研究すると共に、イオンが固相表面付近を拡散移行する際に起こる静電的相互作用に着目したモデルを検討し、イオンの拡散係数や固相表面からの水の影響領域の予測解析に適用した。その成果は以下のようにまとめられる。

1. スメクタイト含有率の高いベントナイトは、圧縮成型方向に対して直角方向に粘土粒子が配向すると共に、拡散係数に異方性をもたらす
2. 拡散の活性化エネルギー(ΔE_a)から、間隙水の特性は自由水とは異なり、スメクタイト表面からの静電的な影響により表面付近の水は構造化されている可能性がある
3. スメクタイト表面からの静電的な影響により、拡散するイオンの電荷に依存して拡散移行経路(層間、外部間隙)が異なると共に、拡散移行経路に依存して拡散係数や ΔE_a が異なる可能性がある。また、イオン強度に依存して、層間距離、屈曲度、スメクタイト表面からの静電的影響が変化し、拡散係数や ΔE_a に影響を及ぼす
4. 白浜砂岩に対するバッチ法と拡散法間でのKdは、間隙水、トレーサ濃度、比表面積の各条件を一致させることで、両方法から得られるKdはほぼ整合する
5. 岩石の微細間隙構造や物理化学特性を把握することで、任意のイオン強度の間隙水に対する間隙中での粘性分布や拡散係数分布を計算できるモデルを提案し、これに幾何学因子と間隙率を考慮することで岩石マトリクスに対する拡散係数を概ね推定できる

【研究目標に対する達成度】

1. スメクタイト粒子の配向特性とスメクタイト含有率との関係およびスメクタイト粒子の配向方向と拡散係数との関係を調べると共に、圧縮ベントナイト中のスメクタイトの密度に着目したスメクタイト部分密度と拡散係数との関係を明示し、所期の目標を達成した。
2. スメクタイト粒子の配向方向とイオンの拡散係数および活性化エネルギー(ΔE_a)との関係について調べ、スメクタイト表面からの静電的な影響により、拡散するイオンの電荷に依存して拡散移行経路が異なると共に、拡散移行経路に依存して拡散係数や ΔE_a が異なることを見出すことができ、所期の目標をほぼ達成した。
3. 圧縮ベントナイト中のイオンの拡散係数と ΔE_a および微細間隙構造変化(層間、屈曲度)に及ぼすイオン強度の影響を調べ、 ΔE_a の変化から、間隙水は自由水とは異なり、スメクタイト表面付近の水は構造化される可能性があること、イオン強度に依存して層間距離や表面からの静電的影響が変化し、拡散係数や ΔE_a が変化することを見出した。岩石に対しては、拡散係数に及ぼすイオン強度の影響や界面近傍での間隙水の存在状態とその影響領域を調べ、静電的影響による粘性について議論し、所期の目標をほぼ達成した。
4. 放射能減衰を考慮した均質媒体中の拡散に対する濃度分布を最小二乗解析するための計算コードを整備し、解析に適用した。また、圧縮ベントナイトの均一性を調べると共に、拡散実験を開始した。これまでのデータと上記の結果を併せても複数の独立した拡散移行経路の存在を判断できるほど精度よいデータが得られておらず、達成度は60%程度である。
5. 任意のイオン強度の間隙水に対する間隙中のポテンシャルや粘性、拡散係数の各分布を計算できるモデルを提案し、所期の目標を達成したが、拡散実験による検証を実施中である。

【研究成果の波及効果及び展望】

1. 現在までの波及効果

(1) 工学的または学術的波及効果

- 本研究の成果のうち、スメクタイト粒子が配向することによって拡散係数に異方性をもたらすという結果は、圧縮ベントナイト中のイオンの拡散移行問題や透水問題をミクロレベル(分子レベル)からマクロレベル(メートルオーダー)までをモデルで解く手法の構築過程で適用された。これは、スメクタイトの層間や積層体(重層体)の外部間隙における水の特性(粘性)やイオンの拡散挙動について、分子動力学法(MD法)によるミクロ場(層間、外部間隙、エッジ面)での計算とベントナイトの間隙構造を考慮してマクロスケールでの拡散係数や濃度分布、透水係数などを計算する均質化法(HA法)とを組み合わせた解析法(MD-HA結合解析法)であり、ミクロレベルでの計算結果をマクロスケールに拡張する過程で物質の移行経路を表現するために構造モデルが必要となる。従来は、均質な媒体と仮定され、移行経路として層間のみを考えていたが、本研究の結果により、スメクタイト粒子が配向する場合における圧縮ベントナイトの構造モデルの設定に適用された。また、本研究でスメクタイト粒子の配向方向を制御した条件で取得したトリチウム(HTO)や重水(HDO)の拡散係数は、配向方向を揃えた場合に対する構造モデルの条件で計算された拡散係数の対比検証データとして活用された(文献1-3)。この研究は、東工大と名古屋大が中心となっており行われているもので、筆者も定期的に行われる情報交換の場で情報を提供してきた。
 - この議論の中で、筆者が提案した間隙中でのポテンシャル分布や粘性分布、拡散係数分布などを計算できるモデルの一部と、MD法によって計算されたスメクタイトの層間での拡散係数分布を結合させる検討も行われつつある。
 - スメクタイト粒子の配向の影響は、拡散の活性化エネルギー(ΔE_a)の異方性に関する研究に道を開いた。当初、この研究は、本研究の一部として予定されていたが、これに興味を見出した研究者((独)産業技術総合研究所)と共同で実施し、HDOの拡散係数の ΔE_a の異方性について議論し、自由水の自己拡散係数よりやや高目の ΔE_a であることと、MD法による界面付近の粘性分布の計算結果と突き合わせて、界面付近の水は構造化されている可能性を見出した(文献4-6)。
 - 白浜砂岩を対象としてバッチ法と拡散法間での収着分配係数(Kd)の不整合要因について行った研究では、間隙水、トレーサ濃度、比表面積の各条件を一致させることで、ほぼ両方法からのKdは整合することを示すと同時に、同一試料について、何も考慮しない場合に対するバッチ法からのKdのバリエーションを示した。このKdの不整合問題については、原子力学会に設置され、現在も検討が進められているKd取得のための標準化委員会において、特に、インタクトな条件(圧密系)に対しての成立性が重要視されており、この研究成果は、同委員会において、成立性を説明するためのエビデンスとして活用された。
- (2) 社内プロジェクト・他の研究開発・安全研究に対する波及効果
- スメクタイト粒子の配向の影響に関する研究によって、不純物が多いベントナイトや珪砂などを混合させたベントナイトには異方性が生じないことも明らかとなり、現在、地層処分の安全評価で検討されているベントナイトには異方性が生じないことを示し、現象面からサポートした。これらの知見は、廃棄物の処分技術における人工バリアの設計の側面からは、異方性が生じないための条件設定を可能にする。
 - また、TRU廃棄物処分に関連した研究の一環として、ベントナイトに珪砂を混合させた場合と、スメクタイト含有率の高いベントナイトに対して、陰イオン(I⁻)の拡散係数の取得が行われており、スメクタイト部分密度に対する拡散係数の解釈の中で、スメクタイト含有率の高いベントナイトに対する拡散係数のみが小さい理由を解釈するための知見として、拡散に及ぼすスメクタイト粒子の配向の影響に関する成果が活用された(文献7)。
 - 白浜砂岩に対するCs⁺イオンの収着分配特性について、粘土含有率の定量と粘土鉱物の同

定結果、およびイライトへの選択的収着分配に関する知見全般にわたり、堆積岩に対する Kd データの整備拡充および安全評価の信頼性向上のための研究で採用された(文献 8)。

- 堆積岩の微細間隙構造や物理化学特性調査の一環として行った幌延泥岩に対する研究成果は、幌延プロジェクトや安全評価研究全般にわたり活用された。中でも、博士研究員(平成 15 年度開始)の研究や米国サンディア国立研究所への委託研究(X 線 CT による水理物質移行経路同定)における幌延地域での試料採取深度の選定、およびそれらの結果を考察するための基礎情報として活用された(文献 9)。また、これらの知見は、性能評価の不確実性解析(処分研究プロジェクト)の一環として実施中である幌延地域での Kd の設定根拠として活用された。さらに、この研究で行った珪藻化石の走査型電子顕微鏡像が原子力学会誌の表紙(Vol. 45, No. 10, 2003)に採用された。
- これまでに社内公募型研究として取り組んだ成果全般にわたり、安全研究報告書(深部地質環境下における核種移行データの取得及びデータベースの整備)を始め、地層処分技術に関する研究開発年報や成果報告会、エントリー国際ワークショップなど(文献 10, 11)に反映された。

2. 今後期待される波及効果と展望

(1) 工学的または学術的波及効果

- 最近、北海道大学のグループにより、拡散移行プロセス解明のための研究として、密度を固定した条件で、イオン強度と珪砂混合率をパラメータとして Na^+ イオンの ΔE_a とイオン強度およびモンモリロナイト部分密度との関係について研究されている。珪砂混合条件とされていない条件では、同一のモンモリロナイト部分密度でも異なった ΔE_a が得られ、イオン強度と珪砂混合の影響による層間距離と静電的影響(電気二重層の厚さ)の変化によるものと考察している。筆者が行った研究では、拡散するイオンの電荷に依存して拡散移行経路(層間、外部間隙)が異なると共に、その拡散移行経路に依存して ΔE_a が異なる可能性を指摘しており、定性的には上記の現象を説明できる。今後、新規テーマにおいて、個別の拡散移行経路に対する ΔE_a を定量化する予定であり、この影響の解釈にも応用できると期待される。
- 粘土中の拡散の異方性については、同時期に、スイスの PSI(ポールシェラー国立研究所)が粘土鉱物を多く含有した天然のオパリナス粘土層を対象として行われた研究例があり、筆者と同様に、配向方向と直角方向では HTO の拡散係数が異なることが示されている。同様に、温度と配向方向の影響についても研究途上であり、ワークショップ(粘土の微細構造に関する専門家会議: スウェーデン(ルンド大)、2002 年 10 月)、PSI-JNC 核種移行ワークショップ(JNC、2002 年 11 月)や国際会議(ANDRA 主催の粘土の挙動に関する会議: フランス(ランス)、2002 年 12 月)などを通じて情報交換や情報提供を行っており、原位置試験(スイス(モンテリー)、幌延など)や室内試験、両国の安全評価に活用できると期待される。
- 筆者が提案した間隙中でのポテンシャル分布や濃度分布を計算できる静電的なモデルについて、低レベル放射性廃棄物処分に関連した課題として、セメントとの接触によるベントナイト中のスメクタイトの溶解・劣化・変質に関する研究が行われており、ベントナイト中の OH^- イオンの拡散移行予測解析(高 pH の伝達性)に使用したいとの相談を受けた(文献 12)。この課題に活用できると期待される。

(2) 社内プロジェクト・他の研究開発・安全研究に対する波及効果

- 「第 2 次取りまとめ」を始め、従来の安全評価では、圧縮条件に対する間隙水の特性についての知見が乏しかったため、 ΔE_a は自由水と同じと仮定されていたが、本研究から、圧縮ベントナイト中の間隙水の一部は構造化されていることや、拡散するイオンの電荷に依存して拡散移行経路が異なり、その結果、 ΔE_a が異なる可能性を指摘すると共に、イオン強度に依存して層間距離やスメクタイト表面からの静電的影響が変化し、 ΔE_a に影響を及ぼすことを指摘した。これらのことから、 ΔE_a は自由水中よりは高目であり、拡散係数の温度補正に

対する従来の考え方では必ずしも保守的とはならない。今後、特に、「地層処分の安全評価報告書(平成 17 年度レポート(仮称))」では、 ΔE_a の設定値や設定の考え方を見直すために応用できるものと期待される。

- 現状では、降水系と海水系を中心にベントナイトの膨潤特性、サクシオン、水分ポテンシャルなどの特性値は、個別の条件に対するデータ取得が中心であったが、固相表面近傍での水の熱力学特性は、水分ポテンシャル、サクシオン、膨潤圧などと理論的に結び付けて考えることができる(文献 13)ため、これまで別のものとして取り扱われてきたこれらのパラメータを、様々な溶液条件、特に、海水系や高濃度の硝酸塩などに対して理論的に予測することが可能であり、高レベルのみならず、TRU や低レベル廃棄物処分における処分技術の側面からも汎用性が高いと期待される。
- これまでに社内公募型研究で得られた成果全般については、今後作成予定の地層処分技術に関する研究開発年報や安全研究報告書、さらには、平成 17 年度に予定されている「地層処分の安全評価報告書(平成 17 年度レポート(仮称))」に反映するよう要望されており、成果の活用が期待される。

文献)

1. 鈴木寛 他：“圧縮ベントナイト中の微細構造モデルと MD-HA 結合解析法の拡散問題への適用”，粘土科学，第 41 巻，第 2 号，pp. 43-57 (2001)。
2. 鈴木寛 他：“圧縮ベントナイト中の微細構造モデルと MD-HA 結合解析法の拡散問題への適用”，日本原子力学会 2001 年秋の大会 (021)，p. 899 (2001)。
3. 河村雄行 他：“緩衝材特性評価モデルの高度化に関する基礎研究—分子動力学法による緩衝材のミクロ挙動解析および均質化法による緩衝材のミクロ・マクロ解析”，JNC TY8400 2002-015 (2002)。
4. S. SUZUKI et al.: “Study on Anisotropy of Effective Diffusion Coefficient and Activation Energy for Deuterated Water in Compacted Bentonite”，J. Contamin. Hydrology 68, pp. 23-37 (2004)。
5. 鈴木寛 他：“圧縮ベントナイトにおける重水の実効拡散係数の活性化エネルギーとその異方性”，日本原子力学会 2003 年春の年会 (P26)，p. 946 (2003)。
6. 鈴木寛 他：“圧縮ベントナイトにおける重水の実効拡散係数の活性化エネルギー：透過拡散試験と分子動力学シミュレーションの比較”，JNC TN8410 2001-031 (2002)。
7. 石寺孝充 他：“圧縮ベントナイト中の I の拡散挙動に及ぼすケイ砂混合率及び NaNO_3 の影響に関する研究”，日本原子力学会バックエンド部会主催「第 18 回バックエンド夏期セミナー資料集」，pp. 2. 21-1-2. 21-6 (2002)。
8. 北村暁 他：“堆積岩に対するセシウムの分配係数に及ぼす競合イオンの影響”，原子力学会 2004 年春の年会 (H11)，p. 817 (2004)。
9. X. XIA et al.: “Model Development on Radionuclide Sorption in a Sedimentary Rock / groundwater System (1): Effect Factor on Cesium Sorption onto a Sedimentary Rock under Saline Groundwater Condition”，原子力学会 2004 年春の年会 (H10)，p. 816 (2004)。
10. “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—平成 13 年度報告—”，JNC TN1400 2002-003 (2002)。
11. “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—平成 14 年度報告—”，JNC TN1400 2003-004 (2003)。
12. 佐藤治夫：“国際会議参加報告：MIGRATION 国際会議(MIGRATION' 03)—第 9 回地中でのアクチニドおよび核分裂生成物の化学および移行挙動に関する国際会議”，JNC TN1200 2003-005 (2003)。
13. 佐藤治夫：“堆積岩系岩石マトリクス中のイオンの拡散移行過程に関する研究：砂岩中の間隙水の熱力学特性”，JNC TN1400 2003-010 (2003)。

【研究成果の説明】

1. ベントナイト中の核種拡散移行過程に関する研究

- (1) ベントナイト中の核種の拡散に及ぼす主要粘土鉱物のスメクタイト部分密度およびスメクタイト粒子の配向方向の影響に関する研究

圧縮ベントナイト中の粘土粒子の配向が拡散移行に及ぼす影響について研究した。その 1 つとして、ベントナイトの主要構成粘土鉱物のスメクタイト粒子の配向特性について調べた。スメクタイト含有率の異なる 2 種類のベントナイト(クニピア F: 含有率 99wt%以上、クニゲル V1: 含有率 50wt%程度)を準備し、乾燥密度($1.0\text{--}2.0\text{Mg/m}^3$)をパラメータとして、ベントナイトの圧縮方向に対して同軸方向と直角方向からの試料断面に対する走査型電子顕微鏡(SEM)観察を行い、粘土粒子の配向状態を観察した。写真 1 に SEM 観察の例を示す。スメクタイト含有率の低いクニゲル V1 では、両方向とも構造に変化が見られないが、スメクタイト含有率がほぼ 100wt%のクニピア F では、圧縮方向に対して直角方向に粘土粒子が配向する様子が観察され、その程度は、乾燥密度が増加するに伴い顕著となった。

次に、この結果に基づいて、HT0 と HD0 をトレーサとした透過拡散実験を行った。HT0 については、乾燥密度 1.0 と 1.5Mg/m^3 (クニピア F、クニゲル V1)、HD0 については、乾燥密度 0.9 と 1.35Mg/m^3 (クニピア F)の試料を調製し、配向方向に対して平行方向と直角方向に拡散させた。図 1 に De の乾燥密度依存性を示す。クニゲル V1 に対する De は、両拡散方向とも同程度であり、拡散係数に異方性は見られないが、クニピア F は、配向方向への De の方が直角方向よりも明らかに大きく、拡散係数に異方性が見られた。同様な結果が HD0 に対しても得られた。この結果は、SEM 観察結果とも一致し、粘土粒子の配向方向に対して平行方向への拡散係数の方が直角方向よりも大きく、異方性のあることが明らかとなった。図 2 に De のスメクタイト部分密度依存性を示す。SEM 観察結果と併せて考察すると、De は、スメクタイト粒子の配向方向への拡散、次いでランダムに配向した方向への拡散、配向方向に対して直角方向への拡散の順で小さくなり、拡散係数に及ぼす粘土粒子の配向の影響は明らかである。

- (2) ベントナイト中の拡散の活性化エネルギー(ΔE_a)に及ぼすスメクタイト粒子の配向方向の影響に関する研究

(1)の研究で、配向することが確認されたクニピア F に対して、スメクタイト粒子を配向させた試料を調製し、配向方向と直角方向への拡散の ΔE_a を乾燥密度 0.9 と 1.35Mg/m^3 の条件で測定した。実験は(1)と同様な方法により、HD0 に対して温度 $25\text{--}60^\circ\text{C}$ の範囲で行った。

図 3 に De の Arrhenius プロットと ΔE_a の乾燥密度依存性(P: 配向方向、N: 直角方向)を示す。 ΔE_a は、乾燥密度の増加に伴い増加する傾向が見られた。一方、 ΔE_a の異方性については、配向方向への拡散の ΔE_a の方が直角方向よりもやや高目であるが、それほど顕著ではない。HD0 の自由水中の自己拡散係数の ΔE_a は 19.29kJ/mol であり、本研究で得られた ΔE_a と比較すると、乾燥密度 0.9Mg/m^3 ではほぼ自由水と同程度であるが、乾燥密度 1.35Mg/m^3 ではやや高目である。両乾燥密度における層間距離と外部間隙を考えると、乾燥密度 0.9Mg/m^3 では水分子 3 層、乾燥密度 1.35Mg/m^3 では水分子 2 層と 3 層が混在し、乾燥密度の増加に伴い間隙径と外部間隙が減少する。既存の研究で、スメクタイト表面の水の活量(a)は、水分子 2 層の条件では $a=0.8$ 程度と、一部構造化されることが示されており、この結果を考慮すると、間隙水の特性は自由水とは異なり、スメクタイト表面の水は構造化されている可能性がある。

- (3) ベントナイト中の微細間隙構造と拡散の ΔE_a に及ぼす間隙水化学(イオン強度)の影響に関する研究

粘土粒子の配向方向と間隙水化学の変化に伴う微細間隙構造変化に静電的影響を結び付けて拡散移行過程を熱力学的側面から検討することを目的として、 I^- と Cs^+ イオンに対する拡散係数と ΔE_a の異方性および両パラメータに及ぼすイオン強度の影響について調べた。実験は、In-diffusion 法により、クニピア F をさらに精製した Na スメクタイトを用い、乾燥密度 $0.9\text{--}1.4\text{Mg/m}^3$ 、イオン強度 $[\text{NaCl}]=0.01, 0.51\text{M}$ 、温度 $22\text{--}60^\circ\text{C}$ の条件で、スメクタイト粒子の配

向方向と配向方向に対して直角方向へ拡散させた。

両イオンとも拡散係数は乾燥密度の増加に伴い減少した。I⁻イオンの拡散係数は、イオン強度の低い条件では、配向方向への拡散の方が直角方向よりも大きく、イオン強度が高くなると直角方向への拡散係数がわずかに増加したが、低乾燥密度の条件では、配向方向への拡散係数は逆に減少傾向を示した。一方、乾燥密度が高くなると、イオン強度の増加に伴い拡散係数も増加する傾向を示した。この結果と、各乾燥密度における層間距離と外部間隙、およびスメクタイト表面からの静電的影響を考慮すると、I⁻イオンは主として積層体間の外部間隙中を拡散移行し、イオン強度と乾燥密度の変化による屈曲度の変化と界面付近の静電的影響の変化によって拡散係数が変化したと考えられる。Cs⁺イオンの拡散係数は、両イオン強度とも配向方向への拡散係数の方が直角方向よりも大きく、イオン強度の増加に伴いわずかに増加した。Cs⁺イオンは、層間と外部間隙の両方を拡散移行できることと、層間のNa⁺イオンとイオン交換する性質があることを考えると、乾燥密度の変化によって屈曲度が増加したことと、イオン強度の変化によって収着分配が変化したことにより拡散係数が変化したと考えられる。

図4に ΔE_a の乾燥密度依存性を示す。I⁻イオンとの比較のため、Cl⁻イオンの報告値も併せて示す。I⁻イオンの ΔE_a は、低乾燥密度の条件では、両拡散方向ともイオン強度の増加に伴って減少し、自由水中の拡散係数の ΔE_a (17.36 kJ/mol)と同程度となった。一方、乾燥密度の増加に伴い ΔE_a は増加する傾向を示した。しかしながら、これまでの報告値と比較してもかなり高く、I⁻イオンが主として外部間隙を拡散すると考えると、 ΔE_a の傾向を説明できない。乾燥密度の高い条件では、温度のバリエーションが狭く、拡散係数もばらついている。従って、 ΔE_a は増加すると考えられるが、データの不確実性が多分に含まれると考えられ、さらなる検討が必要である。一方、Cs⁺イオンの ΔE_a は、拡散方向とイオン強度が同一の条件では、乾燥密度の増加に伴い増加する傾向を示した。また、既存の報告値と比較して同一条件ではほぼ同程度の ΔE_a が得られた。低乾燥密度の条件では、イオン強度に依存せず両拡散方向とも同程度の ΔE_a であったが、高乾燥密度の条件では、両拡散方向とも ΔE_a は増加し、低イオン強度の条件では直角方向よりも配向方向への拡散の ΔE_a の方が高い値を示した。イオン強度が高くなると、両拡散方向とも同程度の ΔE_a が得られた。しかしながら、 ΔE_a は、エッジ面での影響が大きくなり限り配向方向に依存しないと考えられ、乾燥密度の高い条件については、データのばらつきも大きいことを考えると、不確実性の影響が大きく、さらなる検討が必要である。ここで得られた ΔE_a は、イオン交換エンタルピーを考慮しても全ての条件でCs⁺イオンの自由水中の拡散係数の ΔE_a (16.47 kJ/mol)よりも明らかに大きく、スメクタイト表面やエッジ面をイオンが拡散移行する際に何らかの抵抗を受けていると考えられる。

(4) ベントナイト中の複合拡散に対する存在の可能性に関する研究

半減期による減衰を考慮した均質媒体中の拡散に対する濃度分布を最小二乗解析するための計算コードを作成した。また、乾燥密度をパラメータ (0.8–1.8 Mg/m³) に圧縮ベントナイトの均一性を調べた。実験では、上述の2種類のほかにMX80を併せた3種類のベントナイトに対して、乾燥密度、含水比、含水率、間隙率、真密度の測定のほか、それらの特性値の試料中の分布を測定した。3種類とも、乾燥密度 0.8 Mg/m³ の条件では、試料中心と両サイドで約10%の密度差が生じ、両サイドで低下する。乾燥密度 1.4 Mg/m³ になるとかなり均一になり、その差は $\leq 3\%$ 、さらに、乾燥密度 1.8 Mg/m³ になるとその差は2%となり、乾燥密度と真密度ともほぼ均一な分布となる。間隙率の分布も密度分布と同様な傾向で、乾燥密度 1.4 Mg/m³ の条件ではほとんど不均一性は見られない。この結果に基づいて、In-diffusion法による拡散実験をスメクタイトに対して実施中である。これまで得られた濃度分布からは、複数の独立した拡散移行経路の存在を判断できるほど精度よいデータは得られていない。

2. 岩石マトリクス中の核種拡散移行過程に関する研究

(1) 岩石マトリクス中の拡散の活性化エネルギーに及ぼす間隙水イオン強度およびイオン電荷の影響に関する研究

岩石に対する拡散係数データベースを整備したところ、堆積岩、特に、砂質系岩石に対する

データや知見が限られることが分かった。このことを踏まえ、標本試料として市販されている白浜砂岩を対象とした研究を実施した。まず、砂岩の間隙率、乾燥密度、真密度、細孔径分布、細孔内比表面積、陽イオン交換容量のほか、X線回折法による鉱物組成、全岩分析による化学組成、さらにはレーザー共焦点顕微鏡による微細間隙構造、水分蒸発特性、 KMnO_4 による均一性などの物理化学特性を把握し、間隙率 15.6%、平均細孔径 88.8nm のほぼ均一な多孔質媒体であることが分かった。この結果に基づいて、イオンが固相表面付近を拡散移行する際に起こる静電的相互作用に着目したモデルを検討し、間隙中でのポテンシャル、粘性、拡散係数の各分布を計算できるモデルを提案すると共に、 Cs^+ と I^- イオンの拡散係数の予測解析に適用した。

図 5 に間隙水の粘性分布および Cs^+ イオンの拡散係数分布の計算例を示す。これらの分布は、表面からの静電的影響に起因することから、イオン強度が高くなると影響領域が薄くなり、結果的に影響が減少する。イオン強度が低い条件では、表面から 2nm 程度まで影響を受けると見積もられる。砂岩の物理化学特性と多孔質媒体を仮定した時の幾何学因子に基づいて、上記モデルから両イオンの De を見積もると、 De はイオン強度の影響は余り受けないと予測された。

次に、 Cs^+ と I^- イオンに対する In-diffusion 法による拡散実験を行い、拡散移行過程での遅延に及ぼすイオン強度とトレーサ濃度の影響を調べた。その結果、 Cs^+ イオンの Da と収着容量ともイオン強度の影響をほとんど受けないものの、トレーサ濃度の増加に伴い減少した。このことから、 De と K_d もイオン強度の影響を余り受けないと考えられ、この傾向は、上記モデルによる予測結果の傾向とも一致した。また、蒸気圧法により砂岩中の間隙水の熱力学特性を測定し、界面近傍での間隙水の存在状態と固相表面からの影響領域を見積もると、表面から水分子 10 層分程度の距離に相当する 3nm であると考えられ、ポテンシャル分布より求めた静電的な粘性の影響領域の解析結果とよく一致することが示された。

さらに、バッチ法と拡散法間での K_d の不整合要因について研究した。バッチ法による収着実験をトレーサ濃度 ($[\text{CsI}]=1.5\text{E}-6-1.5\text{E}-2\text{M}$) とイオン強度 ($[\text{NaCl}]=0.01-0.51\text{M}$) をパラメータに行うと共に、砂岩中の粘土含有率の測定と X 線回折法による粘土鉱物の同定を行った。

図 6 に Cs^+ イオンの収着等温線を示す。 Cs^+ イオンの K_d は、 Na^+ イオン濃度に依存しないものの、 K^+ イオン濃度に強く影響されることから考えて、イオン交換ではなく、選択的収着分配であると考えられ、主たる粘土鉱物がイライトであることも一致した。これまでの白浜砂岩に対する K_d の報告値や上記の拡散実験からの K_d と比較検討したところ、間隙水、トレーサ濃度、比表面積の各条件を一致させることで、両方法からの K_d はほぼ一致した。一方、 K_d のバリエーションのみを見ると 3 桁以上にのぼり、イオンの特性に応じた条件の整合性が重要である。

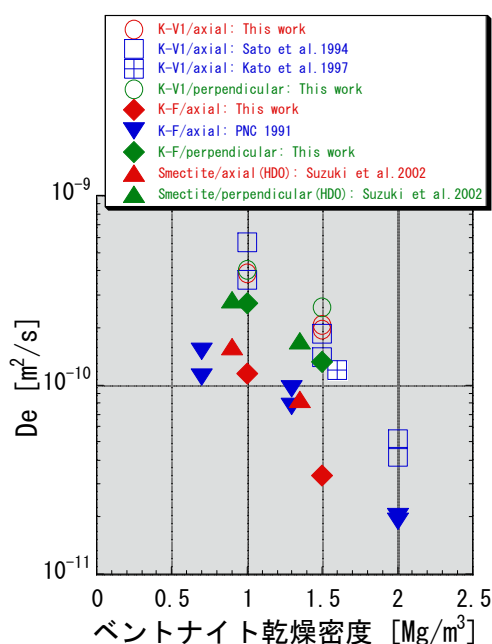


図 1 De の乾燥密度依存性

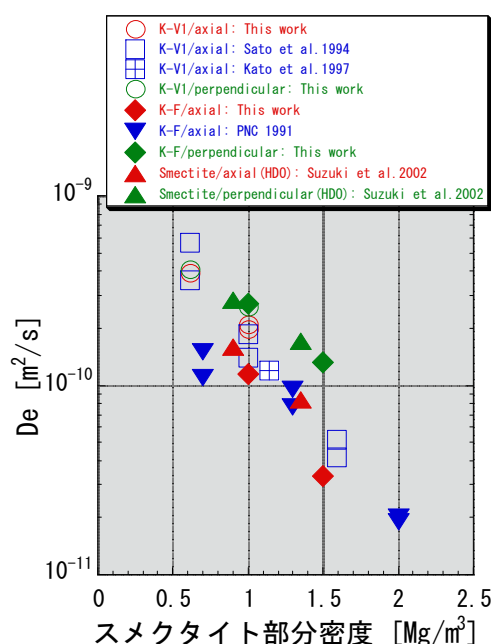
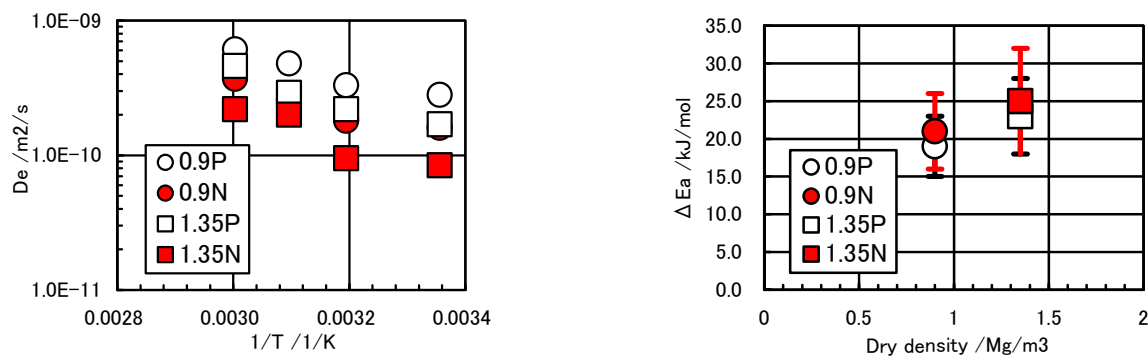
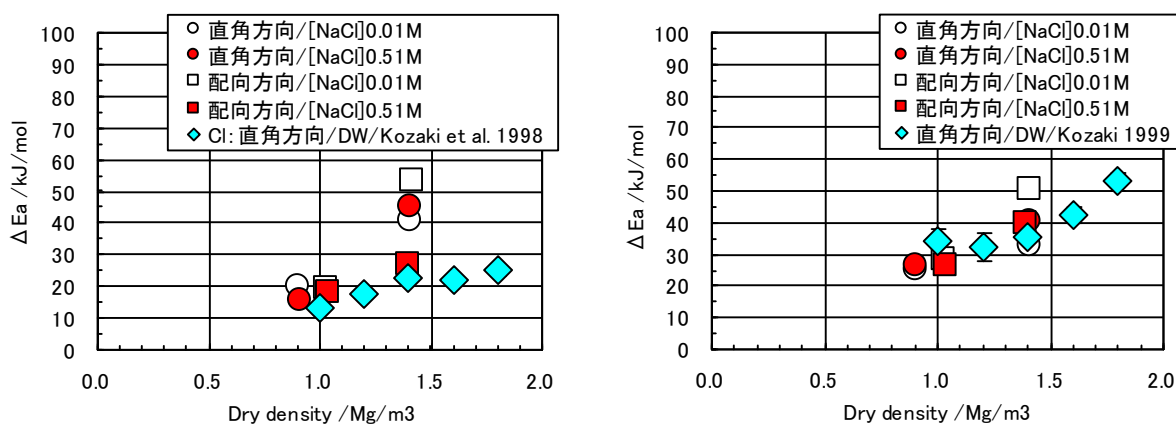
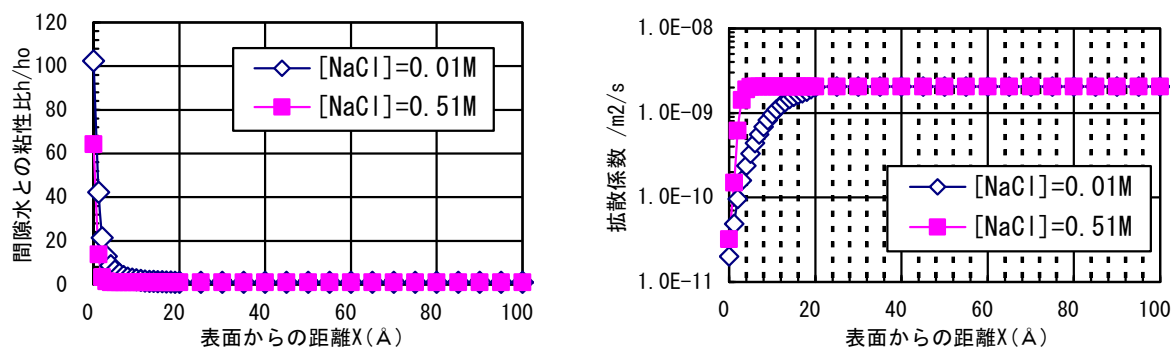
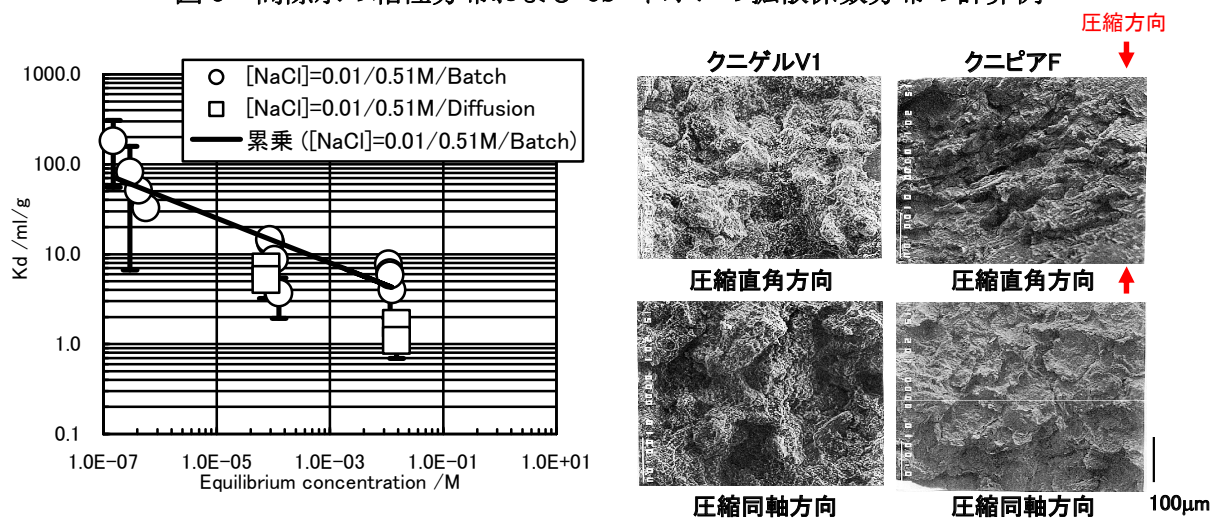


図 2 De のスメクタイト部分密度依存性

図3 HDOの D_e のArrheniusプロットと ΔE_a の乾燥密度依存性(P:配向方向、N:直角方向)図4 ΔE_a の乾燥密度依存性(左: I^- イオン、右: Cs^+ イオン)図5 間隙水の粘性分布および Cs^+ イオンの拡散係数分布の計算例図6 Cs^+ イオンの K_d に対する収着等温線 写真1 乾燥密度 1.6Mg/m^3 に対するSEM写真

【研究成果等発表状況】			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
1. 学術誌論文（原著研究論文）			
1.1	鈴木覚, 藤島敦, 上野健一, 市川康明, 河村雄行, 藤井直樹, 柴田雅博, 佐藤治夫, 北山一美	“圧縮ベントナイト中の微細構造モデルと MD-HA 結合解析法の拡散問題への適用”, 粘土科学, 第 41 巻, 第 2 号, 2001, pp.43-57	1.(1)
1.2	佐藤治夫	“圧縮ベントナイト中の粘土粒子の配向特性および核種拡散移行経路に及ぼす粘土鉱物含有率および圧縮成型方向の影響に関する基礎的研究”, 原子力バックエンド研究, 第 9 巻, 第 1 号, 2002, pp.47-58	1.(1), 2.(1)
1.3	M.Ochs, B.Lothenbach, M.Shibata, <u>H.Sato</u> and M. Yui	“Sensitivity Analysis of Radionuclide Migration in Compacted Bentonite: A Mechanistic Model Approach”, J. Contaminant Hydrology 61, 2003, pp.313-328	1.(4)
1.4	H.Sato and S.Suzuki	“Fundamental Study on the Effect of an Orientation of Clay Particles on Diffusion Pathway in Compacted Bentonite”, Applied Clay Sci. 23, 2003, pp.51-60	1.(1)
1.5	S.Suzuki and <u>H.Sato</u>	“A Technical Problem in Through-Diffusion Experiments for Compacted Bentonite”, J. Nucl. Sci. Technol., Vol.40, No.9, 2003, pp.698-701	1.(3)
1.6	H.Sato and S.Miyamoto	“Diffusion Behaviour of Selenite and Hydroselenide in Compacted Bentonite”, Applied Clay Sci. 26, 2004, pp.47-55	1.(2), (4)
1.7	S.Suzuki, <u>H.Sato</u> , T.Ishidera and N.Fujii	“Study on Anisotropy of Effective Diffusion Coefficient and Activation Energy for Deuterated Water in Compacted Sodium Bentonite”, J. Contaminant Hydrology 68, 2004, pp.23-37	1.(1), (2)
2. 学術会議論文（会議論文集あり）			
2.1	H.Sato	“A Study on the Effect of Clay Particle Orientation on Diffusion in Compacted Bentonite”, WM'02 Conference Proceedings, February 24-28, 2002, Tucson, AZ, USA, 2002, pp.1-15	1.(1)
2.2	H.Sato and S.Miyamoto	“The Effect of Silica Sand Content and Temperature on Diffusion of Selenium in Compacted Bentonite under Reducing Conditions”, Proceedings of the 3 rd International Symposium NUCEF2001 Conference on the Scientific Basis for Criticality Safety, Separation Process and Waste Disposal, JAERI-Conf 2002-004, 2002, pp.675-682	1.(2), (4)
2.3	H.Sato and S.Miyamoto	“Effect of Redox Potential on Diffusion of Redox Sensitive Elements in Compacted Bentonite –Selenium (Se)”, TrePro2002 Workshop on Modelling of Coupled Transport Reaction Processes”, March 20-21, 2002, Karlsruhe, Germany, 2002, pp.88-93	1.(2), (4)

2.4	H.Sato and S.Suzuki	“Fundamental Study on the Effect of an Orientation of Clay Particles on Diffusion Pathway in Compacted Bentonite”, Preprints for Specialist Workshop on Clay Microstructure and Its Importance to Soil Behaviour, October 15-17, 2002, Lund, Sweden, 2002, pp.101-110	1.(1)
2.5	A.Kitamura and H.Sato	“Studies on Migration Behavior of Radionuclides under Reducing Conditions in JNC”, Proceedings on the 1st Asian and Oceanic Congress for Radiation Protection (AOCRP-1), October 20-24, 2002, Seoul, Korea, 2002, pp.1-10	1.(2), (4)
2.6	H.Sato and T.Muraoka	“Diffusion and Migration of Ions in Sedimentary Rock Matrix: Behaviour of Cesium and Iodide in Micropores of Sandstone”, Materials Research Society Symposium Proceedings on the Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXVI, December 2-5, 2002, Boston, MA, USA, Vol.757, 2003, pp.541-546	2.(1)
2.7	H.Sato	“Diffusion and Migration of Ions in Sedimentary Rock Matrix: Effects of Ionic Strength and Tracer Concentration on Diffusion of Cs ⁺ in Sandstone”, Materials Research Society Symposium Proceedings on the Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXVII, June 15-18, 2003, Kalmar, Sweden, Vol.807, 2004, pp.597-602	2.(1)
2.8	H.Sato	“Effects of the Orientation of Clay Particles and Ionic Strength on Diffusion and Activation Enthalpies of I ⁻ and Cs ⁺ Ions in Compacted Bentonite”, Materials Research Society Symposium Proceedings on the Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXVIII, April 13-16, 2004, San Francisco, CA, USA, Vol.824, 2004, pp.485-490	1.(1)–(3)
3. 学会等口頭発表 (概要集程度)			
3.1	H.Sato and S.Miyamoto	“The Effects of Silica Sand Content and Temperature on Diffusion of Selenium in Compacted Bentonite under Reducing Conditions”, The 3rd International Symposium NUCEF2001 on Scientific Basis for Criticality Safety, Separation Process and Waste Disposal, October 31-November 2, 2001, JAERI, Tokai, Japan, Program and Abstracts, 2001, p.PW-10	1.(2), (4)
3.2	H.Sato	“A Study on the Effect of Clay Particle Orientation on Diffusion in Compacted Bentonite”, WM’02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, AZ, USA, 2002	1.(1)
3.3	H.Sato and S.Miyamoto	“Effect of Redox Potential on Diffusion of Redox Sensitive Elements in Compacted Bentonite”, TrePro2002 Workshop on Modelling of Coupled Transport Reaction Processes, March 20-21, 2002, Karlsruhe, Germany, Book of Abstracts, 2002, pp.88-93	1.(2), (4)
3.4	H.Sato and S.Suzuki	“Fundamental Study on the Effect of an Orientation of Clay Particles on Diffusion Pathway in Compacted Bentonite”, Preprints of Contributions to the Workshop on Clay Microstructure and Its Importance to Soil Behaviour, October 15-17, 2002, Lund Univ., Sweden, 2002, pp.87-96	1.(1)
3.5	H.Sato and S.Miyamoto	“Diffusion Behaviour of Selenite and Hydroselenide in Compacted Bentonite”, International Meeting on Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement, December 9-12, 2002, Reims, France, Abstracts, 2002, pp.299-300	1.(2), (4)
3.6	A.Kitamura and H.Sato	“Studies on Migration Behavior of Radionuclides under Reducing Conditions in JNC”, The 1st Asian and Oceanic Congress for Radiation Protection (AOCRP-1), October 20-24, 2002, Seoul, Korea, Programs & Abstracts, p.101	1.(2), (4)
3.7	H.Sato and T.Muraoka	“Diffusion and Migration of Ions in Sedimentary Rock Matrix: Behaviour of Cesium and Iodide in Micropores of Sandstone”, International Symposium on the Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXVI, Materials Research Society, December 1-5, 2002, Boston, MA, USA, Abstracts, 2002, pp.722-723	2.(1)

3.8	H.Sato	“Diffusion and Migration of Ions in Sedimentary Rock Matrix: Effects of Ionic Strength and Tracer Concentration on Diffusion of Cs and I in Sandstone”, International Symposium on the Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXVII, Materials Research Society, June 15-18, 2003, Kalmar, Sweden, Abstracts, 2003, pp.65-66	2.(1)
3.9	T.Ishidera, S.Miyamoto, <u>H.Sato</u>	“The Effects of Silica Sand Content and NaNO ₃ Concentration on Diffusion of C, Cl and I in Compacted Bentonite”, 9th International Conference on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere, MIGRATION’03, September 21-26, 2003, Gyeongju, Korea, Abstracts, 2003, p.145	1.(1), (3)
3.10	H.Sato	“Diffusion and Migration of Ions in Sedimentary Rock Matrix: Thermodynamic Properties of Porewater in Sandstone”, 9th International Conference on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere, MIGRATION’03, September 21-26, 2003, Gyeongju, Korea, Abstracts, 2003, pp.147-148	2.(1)
3.11	S.Suzuki and <u>H.Sato</u>	“Study on the Diffusion of Sr, I and Deuterated Water in a Compacted Mixture of Silica Sand and Bentonite”, 9th International Conference on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere, MIGRATION’03, September 21-26, 2003, Gyeongju, Korea, Abstracts, 2003, pp.150-151	1.(1)
3.12	H.Sato	“Effect of the Orientation of Clay Particles and Ionic Strength on Diffusion and Activation Enthalpies of I ⁻ and Cs ⁺ Ions in Compacted Bentonite”, International Symposium on the Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXVIII, Materials Research Society, April 13-16, 2004, San Francisco, CA, USA, Abstracts, 2004, pp.511-512	1.(1)–(3)
3.13	鈴木覚, 上野健一, 藤島敦, 柴田雅博, 佐藤治夫, 市川康明, 藤井直樹, 河村雄行	“圧縮ベントナイトの微細構造のモデル化と MD-HA 結合解析法の拡散問題への適用”, 日本原子力学会 2001 年秋の大会, 2001 年 9 月 19-21 日, 北海道大学 (O21), 2001, p.899	1.(1)
3.14	佐藤治夫	“JNC における拡散現象に関する研究およびデータベースの整備拡充について—当面 5 年 (2001–2005) の研究計画—”, 第 28 回核種移行調査専門委員会大洗ワークショップ, 2002 年 1 月 10-11 日, 東北大学金属材料研究所, “核種移行評価の信頼性向上に関する調査及びレビュー”, サイクル機構技術資料, JNC TJ8420 2001, 2002, pp.付-5 (100)–付-5 (108)	1.(1) – (4), 2.(1)
3.15	佐藤治夫, 鈴木覚	“圧縮ベントナイト中の拡散に及ぼす粘土粒子の配向性の影響に関する基礎的研究”, 日本原子力学会 2002 年春の年会, 2002 年 3 月 27-29 日, 神戸商船大学 (M18), 2002, p.680	1.(1)
3.16	佐藤治夫	“堆積岩系岩石マトリクス中のイオンの拡散移行挙動—砂岩の基本特性および微細間隙中のイオンの拡散移行解析—”, 日本原子力学会 2002 年秋の大会, 2002 年 9 月 14-16 日, いわき明星大学 (F75), 2002, p.675	2.(1)
3.17	佐藤治夫	“圧縮ベントナイト中の拡散移行経路の異方性に関する研究”, 第 5 回放射性廃棄物地層処分に係る情報交換会, 2003 年 2 月 27-28 日, 北海道大学, 第 5 回放射性廃棄物地層処分に係る情報交換会報告書, 2003, pp.1-10	1.(1)

3.18	菊池広人, 棚井憲治, 佐藤治夫, 上野健一	“海水系条件下における圧縮ベントナイトの透水特性”, 第 5 回放射性廃棄物地層処分にに関する情報交換会, 2003 年 2 月 27-28 日, 北海道大学, 第 5 回放射性廃棄物地層処分にに関する情報交換会報告書, 2003, pp.11-21	1.(3)
3.19	鈴木覚, 佐藤治夫, 石寺孝充	“圧縮ベントナイトにおける重水の実効拡散係数の活性化エネルギーとその異方性”, 日本原子力学会 2003 年春の年会, 2003 年 3 月 27-29 日, アルカス SASEBO, 佐世保 (P26), 2003, p.946	1.(1), (2)
3.20	佐藤治夫	“堆積岩系岩石マトリクス中のイオンの拡散移行挙動—砂岩微細間隙中のセシウム及びヨウ素の挙動—”, 日本原子力学会 2003 年春の年会, 2003 年 3 月 27-29 日, アルカス SASEBO, 佐世保 (P27), 2003, p.947	2.(1)
3.21	石寺孝充, 宮本真哉, 佐藤治夫	“圧縮ベントナイト中の I, Cl の拡散挙動に及ぼすケイ砂混合率及び NaNO ₃ の影響に関する研究”, 日本原子力学会 2003 年春の年会, 2003 年 3 月 27-29 日, アルカス SASEBO, 佐世保 (P29), 2003, p.948	1.(1), (3)
3.22	菊池広人, 棚井憲治, 佐藤治夫	“海水条件下における圧縮ベントナイトの透水性”, 土木学会平成 15 年度全国大会第 58 回年次学術講演会, 2003 年 9 月 24-26 日, 徳島大学, 2003	1.(3), 2.(1)
3.23	佐藤治夫	“放射性廃棄物処分ににおける緩衝材及び岩石マトリクス中の核種拡散移行過程での固液界面現象と移行モデルの高度化に関する研究”, 第 34 回核種移行調査専門委員会大洗ワークショップ, 2004 年 1 月 6-7 日, 東北大学金属材料研究所, “核種移行評価の信頼性向上に関する調査及びレビュー (平成 5 年度)”, サイクル機構技術資料, JNC TJ8420 2003-002, 2004, pp.付-1 (96)ー付-1 (102)	1.(1) – (4), 2.(1)
3.24	佐藤治夫	“圧縮ベントナイト中 I ⁻ および Cs ⁺ イオンの拡散および活性化エネルギーに及ぼす粘土粒子の配向およびイオン強度の影響”, 日本原子力学会 2004 年春の年会, 2004 年 3 月 29-31 日, 岡山大学 (H6), 2004, p.812	1.(1)–(3)
3.25	北村暁, 中山雅, 佐藤治夫, 戸村努	“堆積岩に対するセシウムの分配係数に及ぼす競合イオンの影響”, 日本原子力学会 2004 年春の年会, 2004 年 3 月 29-31 日, 岡山大学 (H11), 2004, p.817	2.(1)
4. 学術誌解説・総説			
4.1			
5. 依頼講演 (内部は除く)			
5.1			
6. その他 (サイクル機構技報等)			
6.1	佐藤治夫	“放射性廃棄物処分のバリア材としてのベントナイトを研究して”, SMECTITE—10 周年記念誌—, スメクタイト研究会, 2001, pp.193-203	1.(1)–(4)
6.2	佐藤治夫	“圧縮ベントナイト中の核種移行経路の異方性に関する基礎的研究” サイクル機構技報 No.16, JNC TN1304 2002-002, 2002, pp.125-136	1.(1)

7. 社内研究報告書			
7.1	鈴木寛, 佐藤治夫	“圧縮ベントナイトにおける重水の実効拡散係数の活性化エネルギー：透過拡散試験と分子動力学シミュレーションの比較”, サイクル機構技術資料, JNC TN8410 2001-031, 2002	1.(1), (2)
7.2	佐藤治夫	“放射性廃棄物処分における緩衝材及び岩石マトリクス中の核種拡散移行過程での固液界面現象と移行モデルの高度化に関する研究－平成 13 年度外部発表資料および技術資料－”, サイクル機構技術資料, JNC TN1440 2002-001, 2002	1.(1) – (4), 2.(1)
7.3	鈴木寛, 佐藤治夫	“圧縮ベントナイト中のストロンチウムイオン、ヨウ化物イオン、重水の実効拡散係数の塩濃度依存性”, サイクル機構技術資料, JNC TN8410 2002-002, 2002	1.(1), (3)
7.4	佐藤治夫	“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－平成 13 年度報告－”, サイクル機構技術資料, JNC TN400 2002-003, 2002, pp.5-5 – 5-6	2.(1)
7.5	河村雄行, 市川康明, 鈴木寛, 柴田雅博, 佐藤治夫, 上野健一	“緩衝材特性評価モデルの高度化に関する基礎研究－分子動力学法による緩衝材のミクロ挙動解析および均質化法による緩衝材のミクロ・マクロ解析”, サイクル機構技術資料, JNC TY8400 2002-015, 2002	1.(1)
7.6	佐藤治夫	“堆積岩系岩石マトリクス中のイオンの拡散移行過程に関する研究：砂岩微細間隙中での Cs 及び I の拡散移行挙動と固液界面モデル”, サイクル機構技術資料, JNC TN1400 2002-022, 2003	2.(1)
7.7	菊池広人, 棚井憲治, 松本一浩, 佐藤治夫, 上野健一, 鐵鋼志	“緩衝材の飽和透水特性－II－海水地下水が緩衝材の透水性に及ぼす影響”, サイクル機構技術資料, JNC TN8430 2003-002, 2003	1.(3)
7.8	佐藤治夫	“堆積岩系岩石マトリクス中のイオンの拡散移行過程に関する研究：幌延泥岩の物理化学特性”, サイクル機構技術資料, JNC TN1400 2003-003, 2003	2.(1)
7.9	佐藤治夫	“堆積岩系岩石マトリクス中のイオンの拡散移行過程に関する研究：砂岩中の間隙水の熱力学特性”, サイクル機構技術資料, JNC TN1400 2003-010, 2003	2.(1)
7.10	佐藤治夫	“堆積岩系岩石マトリクス中のイオンの拡散移行過程に関する研究：バッチ法による砂岩への Cs ⁺ 及び I ⁻ イオンの収着分配係数の測定”, サイクル機構技術資料, JNC TN1400 2003-012, 2003	2.(1)
7.11	佐藤治夫	“砂岩及びベントナイトに対する物理化学特性評価”, サイクル機構技術資料, JNC TN1400 2003-013, 2004	1.(1), 2.(1)
7.12	佐藤治夫	“ベントナイト中の Cs ⁺ および I ⁻ イオンの拡散および活性化エネルギーに及ぼす粘土粒子の配向およびイオン強度の影響”, サイクル機構技術資料, JNC TN1400 2003-016, 2004	1.(1)–(3)
7.13	石寺孝充, 宮本真哉, 佐藤治夫	“圧縮ベントナイト中の C, Cl, I の拡散挙動に及ぼすケイ砂混合率及び NaNO ₃ の影響”, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 2004-001, 2004	1.(1), (3)
8. 特許			
8.1			

3.1.3 【H13-3】高温環境複雑人工物の損傷検出技術の開発

平成 16 年 3 月 31 日

【No.】 研究テーマ名	【H13-3】高温環境複雑人工物の損傷検出技術の開発		
研究実施者	永江 勇二		
研究実施場所	大洗工学センター		
研究期間	平成 13 年 8 月 1 日 ～ 平成 16 年 3 月 31 日		
研究費用	2,620 万円	内訳	H14 (1010 万円) H15 (1050 万円) H16 (560 万円)
【研究目標】 従来の非破壊検査技術が目指してきた微細な部分の検出性能を追求せず、比較的広範囲の監視が可能な高信頼性の非破壊検出原理開発を行う。 本研究での到達目標は、(1)非破壊検出技術の検出原理(特性値と金属組織との関連)の確立、(2)き裂発生以前の金属組織変化を広範囲にわたって非破壊的に検出できる有望技術を提示することである。			
【研究計画の概要】 損傷と関連している金属組織変化による特性変化を非破壊的に測定することにより、損傷を把握することが可能となる。従って、損傷と関連する金属組織の検討、検出原理の確立を行う必要がある。本研究では、高速炉構造材料である非磁性材である SUS304 鋼のクリープ損傷を主対象とし、き裂発生以前の損傷と関連する金属組織因子の検討を行い、その金属組織変化と特性変化との相関を得ることとする。さらに、特性変化を広範囲にわたって非破壊的に検出できる技術を調査することとする。ここでは、き裂発生以前の損傷を把握できる可能性があると考えられる磁気特性に絞る。 (1) 検出原理の確立 化学組成の変化(Cr 濃度の変化)や、欠陥(空孔や転位)が存在する場合のエネルギー的に安定な構造や電子状態を理論的に求める。さらにこれらの結果を基に、磁性相の金属組織観察を行い、磁性相発生の要因を調査する。 (2) 損傷関連金属組織の検討 クリープ損傷と関連している金属組織因子を提示するために、損傷の進行による転位組織変化やマルテンサイト相、Cr 欠乏などに着目して金属組織観察を行う。さらに、損傷の進行による不均一性(変形・損傷の集中)が顕在化することにより、変形・損傷集中部にき裂が発生し、破損に至ることが考えられるので、金属組織の不均一性の顕在化について評価する。 (3) 広範囲非破壊検出技術の調査 既存の非破壊検出技術を、(1)損傷検出原理(金属組織変化と特性変化との関連について)、(2)広空間検知信頼性、(3)非接触機能及び(4)高温環境使用耐性の観点から調査する。これらの調査・検討結果から、き裂発生以前の金属組織変化を広範囲にわたって非破壊的に検出できる有望な技術を提示する。			

【研究成果の概要】

(1) 検出原理の確立

クリープ変形により堆積した転位の回復過程と、それと共に生ずる Cr の局所的な減少により、積層欠陥の生成や格子定数の変調を生じ磁性を示すようになる。さらにこれらの領域を起点に冷却中に結晶粒内部にまで FCC 構造から BCC 構造へ結晶構造変化し、磁性を示すようになる。また、高温環境中で析出する炭化物や σ 相は室温では常磁性である。

クリープ損傷を受ける SUS304 鋼の磁性発生と関連する金属組織変化について、Cr 濃度の変化や高温負荷に特徴的な転位組織の回復や格子欠陥挙動に着目し、磁性変化の原因と考えられる格子定数の変調や BCC 相生成のメカニズムを理論的にも実験的にも示しているのは初めてであり、独創性及び新規性があると考ええる。

(2) 損傷関連金属組織の検討

クリープ損傷の進行により磁性を示す領域が増加し、応力集中部やき裂発生部に磁性を示す領域が観察されるようになる。クリープ損傷材では結晶粒内にも広く磁性領域が観察されるが、負荷を与えない熱時効においては結晶粒界極近傍に僅かな磁性領域が観察されるのみである。従って、磁性相の生成がクリープ損傷と関連していると考ええる。

クリープ損傷を受ける SUS304 鋼におけるき裂発生以前の損傷について、クリープ損傷と磁性相生成との相関性を指摘したのは初めてであり、独創性・新規性を有していると考ええる。

(3) 広範囲非破壊検出技術の調査

これまで開発されてきた超音波法や渦電流法はマクロき裂を検出するものであり、き裂発生以前の損傷を検出することは困難であった。しかし、今回提案する漏えい磁束密度法は、き裂発生以前からの高温損傷を検出することができ、また効率的に広範囲の材料の状態を把握することできると考えられる。

き裂発生以前の損傷金属組織因子を抽出し、最適な非破壊検出技術を提案したのは初めてであり、独創性・新規性を有していると考ええる。

【研究目標に対する達成度】

(1) 検出原理の確立

高温損傷（クリープ、疲労）による磁気変化について実験的・理論的に構造変化機構を示すことができ検出原理を確立することができた。従って、当初の目標を達成していると考ええる。

(2) 損傷関連金属組織の検討

磁性相生成とクリープ損傷との関連を示すことができ、当初の目標を達成していると考ええる。

(3) 広範囲非破壊検出技術の調査

既存の非破壊検出技術を調査し、高温損傷を広範囲に効率的に検出できると考えられる漏えい磁束密度法を提案し、漏えい磁束密度の測定手法についても検討を行った。従って、当初の目標を達成していると考ええる。

【研究成果の波及効果及び展望】**1. 現在までの波及効果**

第一に、本研究により日本 AEM 学会より奨励賞を受賞することができた。日本 AEM 学会は、電磁現象に基づく非破壊検査技術に関する研究討論、知識の交換が盛んに行われている学会である。従って、本学会からの受賞は、本研究成果が専門家の中で高く評価された証である。

また、社内においては、サイクル機構と原研との統合に先駆けた融合研究として照射損傷への適用が検討されている。さらに、安全研究の報告会では、維持基準への反映を期待するコメントを頂き、実用化への発展が望まれている。

2. 今後期待される波及効果と展望

解体した Na ループ、また常陽やフェニックスからすでに採取した配管を用いて実機レベルでの調査を行い、本研究の原理を実機レベルの材料を用いて確認することにより実用化への足掛かりとする。さらに並行して、本研究で得られた原理に基づき、実機レベルで磁気変化を検出するシステムの製作し実用化へ開発を進めていく。

また、上述のように社内においては、サイクル機構と原研との統合に先駆けた融合研究として、来年度以降、照射材の磁気変化についても検討を進めていく。

【研究成果の説明】 (1/4)

(1)検出原理の確立

常磁性材料である SUS304鋼においては、クリープ変形により堆積した転位の回復過程と、それと共に生ずる Cr の局所的な減少により、積層欠陥の生成や格子定数の変調を生じ磁性を有するようになる。図1に高温長時間引張試験のカー効果顕微鏡観察結果を示す。I で示されている領域は磁性を有し、II で示されている領域は磁性を示していない。各領域の転位組織を図2に示す。I の領域では、多数の欠陥が堆積し格子定数の変調が見られたが、II の領域では通常の格子定数を有していた。さらに、クリープ損傷材の転位組織を図3に示す。析出物近傍で Cr 濃度が減少しており、この領域を起点に結晶粒内部にまで FCC 構造から BCC 構造へ結晶構造変化していることが分かる。これら検出原理を模式的にまとめると図4のようになる。

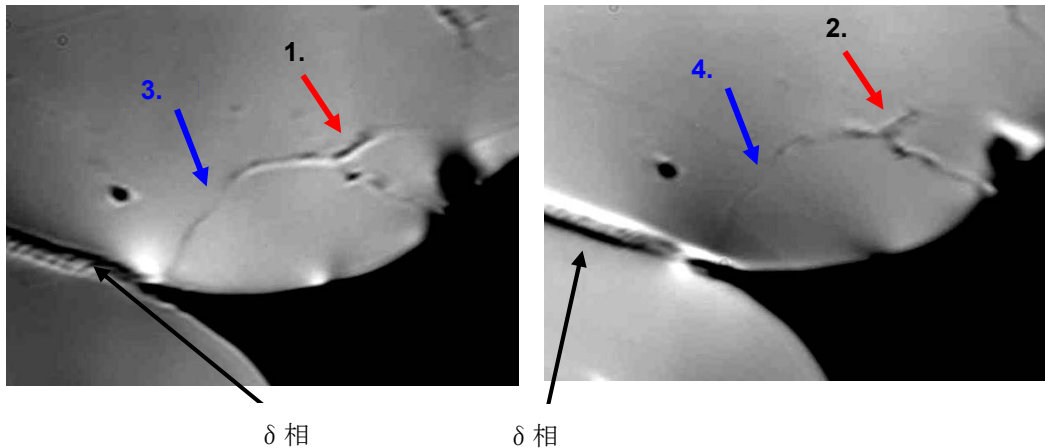


図 1 TEM 観察用薄膜試料のカー効果顕微鏡観察

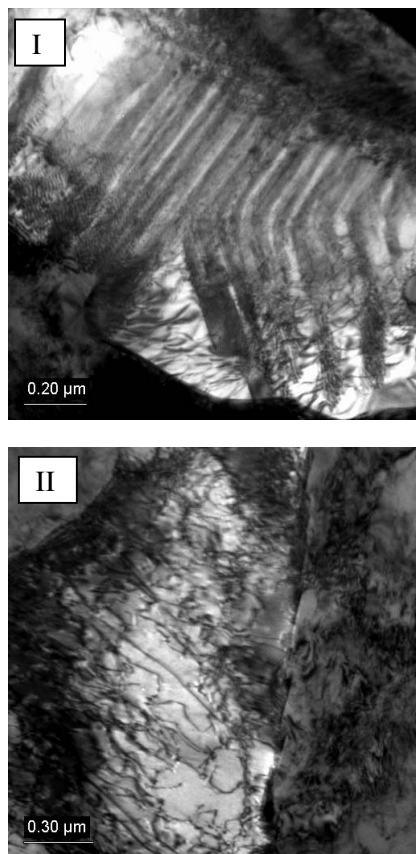


図 2 図 1 の各領域の転位組織観察結果

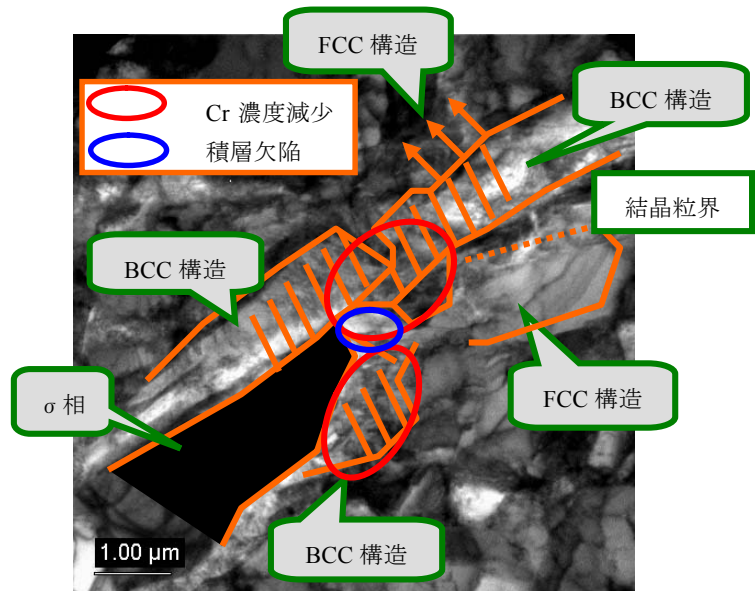


図 3 クリープ損傷材の転位組織観察結果

(2/4)

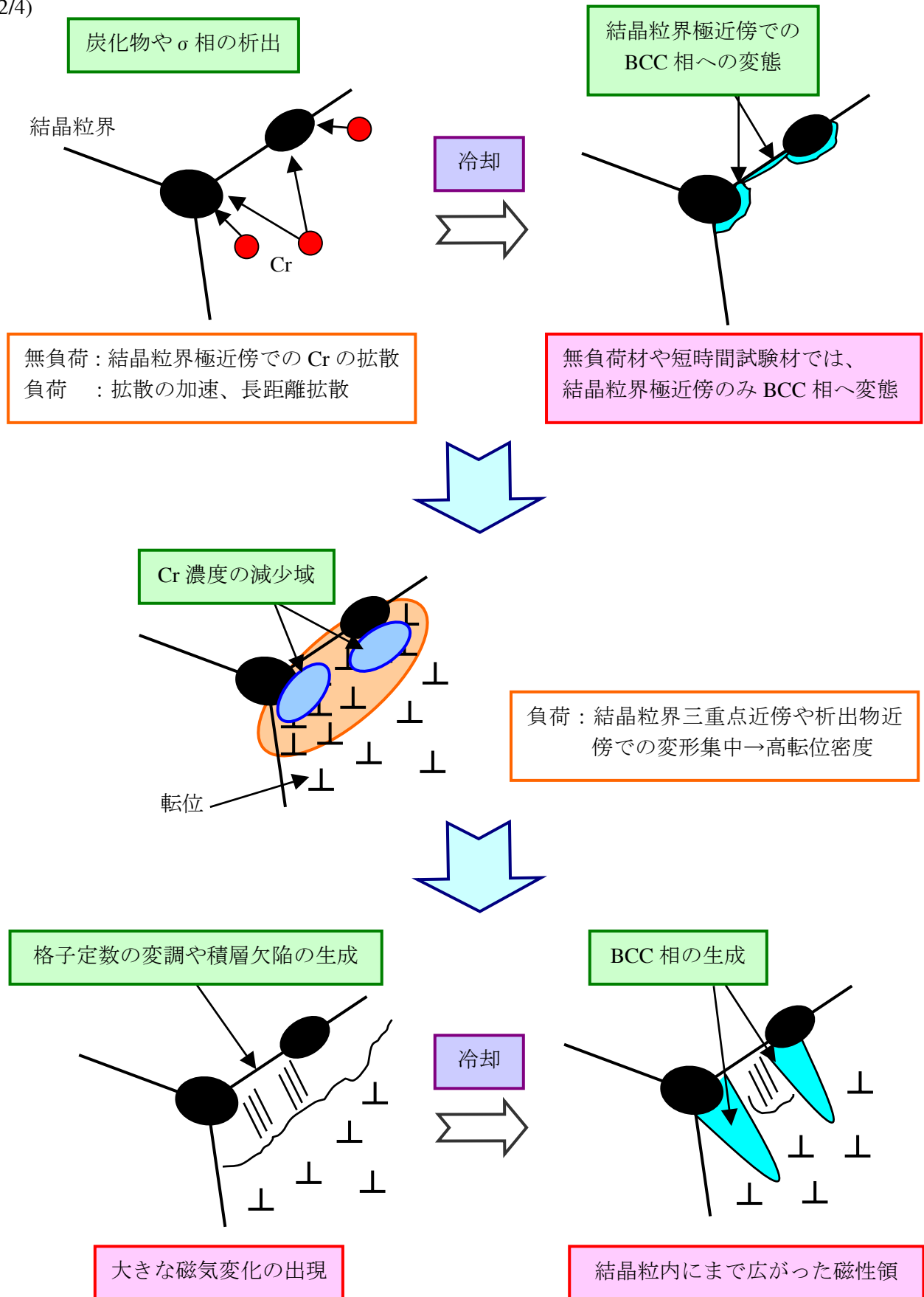


図 4 検出原理のまとめ

(3/4)

(2) 損傷関連金属組織の検討

磁性相の生成とクリープ損傷との関連を検討するために、磁性相量の変化や生成場所について調査した。クリープ損傷による磁性相の面積率の変化を調査した結果、図5に示すようにクリープ損傷の進行により磁性を示す領域が増加することが分かった。また、図6に示すように応力集中部やき裂発生部に磁性を示す領域が観察されるようになることが分かった。このように、クリープ損傷材では結晶粒内にも広く磁性領域が観察される。一方、負荷を与えない熱時効においては結晶粒界極近傍に僅かな磁性領域が観察されるのみである。図7に熱時効材の磁気力顕微鏡観察結果を示す。

これらの結果を総合して、磁性相の生成がクリープ損傷と関連していると考える。

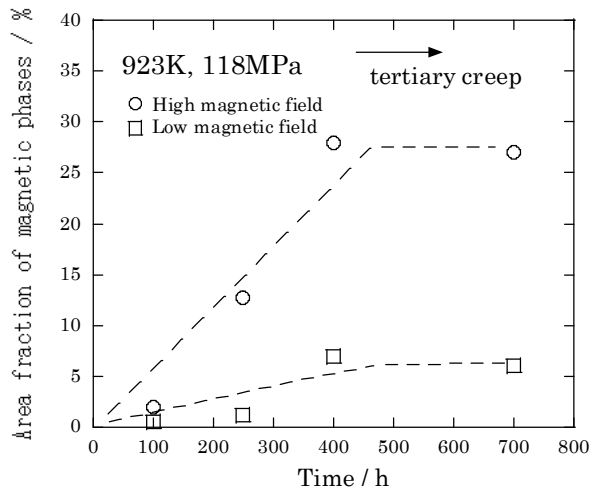


図5 クリープ損傷による磁性相面積率の変化

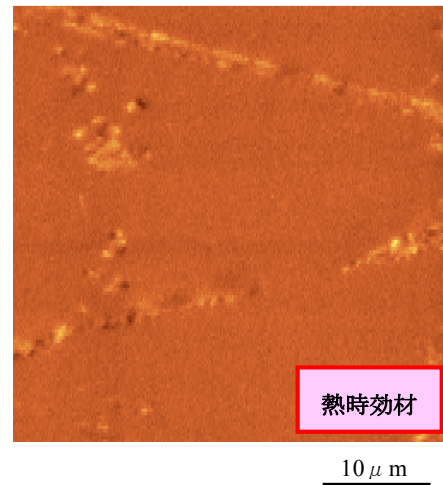


図7 熱時効材の磁性相分布

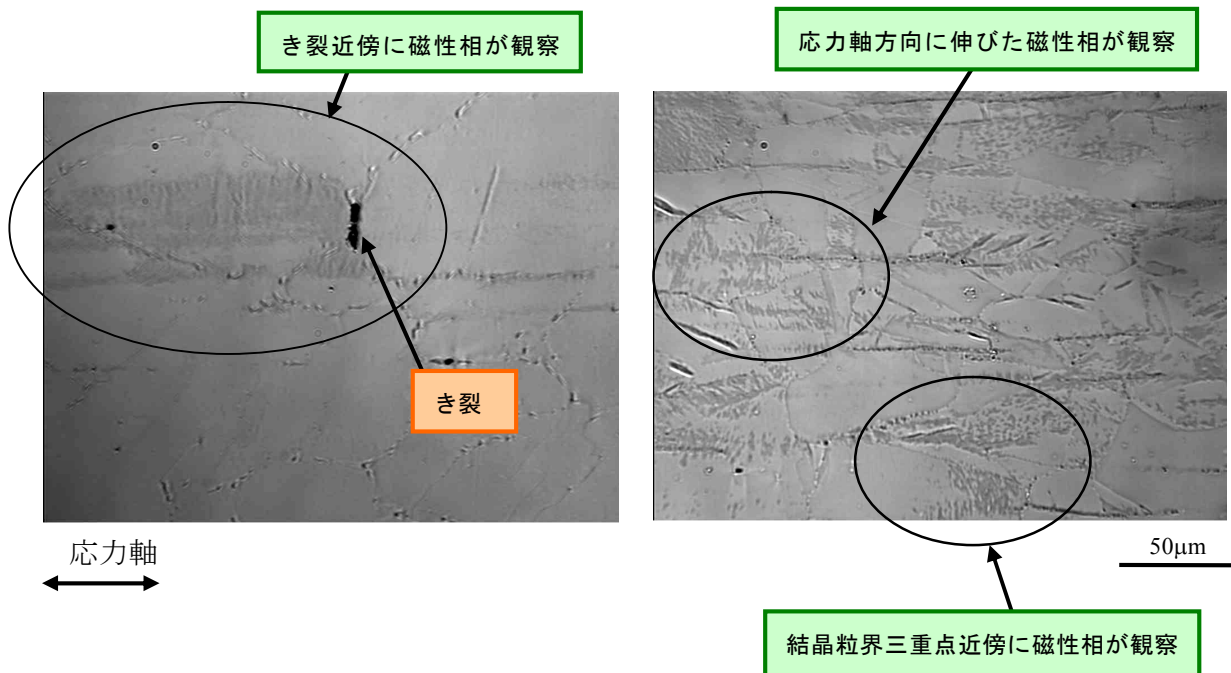


図6 クリープ損傷材の磁性相分布

(4/4)

(3)広範囲非破壊検出技術の調査

本研究の対象材料であるオーステナイト系ステンレス鋼においては、Cr の局所的な分布と多量の欠陥およびそれに伴う格子定数の変化、さらには BCC 相の生成が損傷と関連すると考えられる。つまり、これらの金属組織を非破壊的に検出すれば、損傷の進行状況を監視することができる。このためには、幾つかの非破壊検出手法が考えられる。当然のことながら、これまで開発されてきた超音波法や電気抵抗法なども候補となる。しかし、これらの方法では、Cr の局所的な分布と多量の欠陥およびそれに伴う格子定数の変化、さらには BCC 相の生成を適確に捉えることが困難である。それは、超音波特性や電気抵抗とこれらの金属組織との対応性が一義的でないと考えられるからである。しかし、これらの金属組織変化はすべて磁場の変化と対応している。つまり、その磁場の変化を捉えることのみで高温損傷を把握できると考える。

次に、広範囲を短時間に非破壊的に磁場を検出できる技術を考える。ここでは、2つのセンサーについて検討を行った。

材料自ら発する磁場を捉えるのみであるので、小型の高性能センサーを走査するだけでも短時間に広範囲のセンシングが可能となる。最近では、地磁気以下の微弱な磁場変化を捉えることのできるフラックスゲートセンサーが開発され、市販されている。本センサーは本研究でも用いており、微弱な磁場を捉えることができています。センサー自体の大きさは数 mm 角であるので、複数個のセンサーを組み合わせても、大掛かりな複雑な装置とはならないと考えられる。また、本センサーは安価であるので複数個のセンサーを組み合わせても低コストである。従って、効率良く広範囲の非破壊検出が可能であると考えられる。

また、簡易に磁場の分布を観察できる「マグネットビューアー」と呼ばれる製品も販売されている。これは、高性能の磁性流体をフィルム状のシートに封入させたものである。磁性相の生成によりその場所に磁性流体が集まり、広範囲に比較的短時間で磁気変化が分かる可能性があると考えられる。図7に受入材とクリープ損傷材の観察を行った結果を示す。受入時から強磁性相である δ 相が若干含まれているため、試験片端面に磁性流体が僅かに集まっている様子が見られる。一方、クリープ損傷材の場合は、受入材と比較して試験片端面の磁性流体の色が濃くなっており、試験片の輪郭もはっきりと分かる。従って、受入材と比較してクリープ損傷材は漏えい磁束密度が大きく、磁性流体が集まるものと考えられる。定性的ではあるが、クリープ損傷により磁気変化を生じていることが短時間で効率よく検出できている。

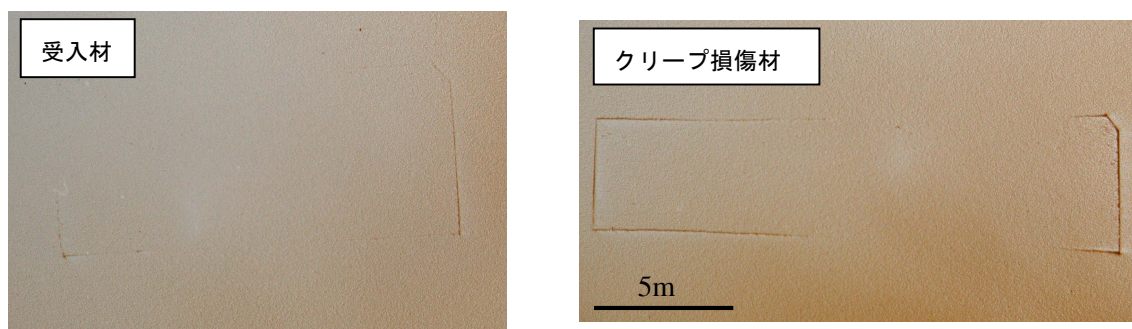


図7 マグネットビューアーによる受入およびクリープ損傷材の観察

【研究成果等発表状況】			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
1. 学術誌論文（原著研究論文）			
1.1	青砥紀身、永江勇二、U.Sudjadi、阪本善彦	「負荷および無負荷条件下高温使用ステンレス鋼の自然磁化と金属組織」, フォーラム保全学, Vol.1, No.1, (2002) 37-43.	(1)
1.2	永江勇二、青砥紀身	「クリープ損傷を受ける SUS304 鋼の磁気特性変化に及ぼす微視的組織変化」, 日本 AEM 学会誌, Vol.10, No.4, (2002) 360-365.	(1)
1.3	Y.Nagae	“A study on Detection of creep damage before crack initiation in austenitic stainless steel”, Mater.Sci.Eng., (2003.8 投稿、審査中)	(1), (2)
1.4	永江勇二	「DV-X α クラスタ法を用いた FCC 構造を有する Fe 基合金のスピン配列」, 日本金属学会誌 (2004.3、投稿)	(1)
1.5	永江勇二、青砥紀身	「SUS304 鋼の高温損傷による磁気特性変化と金属組織変化」, 材料 (2004.3、投稿)	(1)
2. 学術会議論文（会議論文集あり）			
2.1	永江勇二、青砥紀身	「クリープ損傷を受けた SUS304 鋼の金属組織変化と磁気特性変化」, 第 39 回高温強度シンポジウム, (2001) 165-169.	(1)
2.2	永江勇二	「DV-X α 法を用いた SUS304 鋼の微視的組織変化による磁気特性変化の検討」, 第 14 回電磁力関連のシンポジウム, (2002) 609-614.	(1)
2.3	Y.Nagae	“An investigation on factors of magnetic property change in type 304 stainless steel subjected to creep damage”, 8 th International Workshop on Electromagnetic Nondestructive Evaluation, (2002)	(1)
2.4	永江勇二、青砥紀身	「クリープ変形による SUS304 鋼の磁化分布変化」, 第 12 回電磁現象及び電磁力に関するコンファレンス, (2003) 119-122.	(1), (2)
2.5	永江勇二	「SUS304 鋼の長時間クリープによる磁気特性変化」, 第 41 回高温強度シンポジウム, (2003) 138-141.	(1), (2)
3. 学会等口頭発表（概要集程度）			
3.1	Y.Nagae, K.Aoto	“Creep damage evaluation in austenitic stainless steel based on magnetic property changes”, 7 th Workshop on Ultra-Steel, (2003) 514-515.	(1), (2)
3.2	永江勇二	「分子動力学法を用いた Fe-Cr-Ni 系合金の構造変化シミュレーション」, 2003 年日本金属学会秋季大会, (2003) 141.	(1)
3.3	永江勇二、青砥紀身	「SUS304 鋼の高温損傷と磁性相生成との関連」, 第 16 回計算力学講演会, (2003) 417-418.	(1), (2)
4. 学術誌解説・総説			
4.1			

5. 依頼講演（内部は除く）			
5.1			
6. その他（サイクル機構技報等）			
6.1	永江勇二、青砥紀身、陳振茂	「オーステナイト系ステンレス鋼を対象とした損傷非破壊検出技術の開発」, No.14, (2002) 125-135.	(1), (2)
7. 社内研究報告書			
7.1	永江勇二	「DV-X α 法を用いた SUS304 鋼の磁性発生に関する検討」, JNC TN1400 2002-001, (2002)	(1)
7.2	永江勇二	「Fe-Cr-Ni 三元系合金の EAM ポテンシャル関数」, JNC TN1400 2002-016, (2002)	(1)
8. 特許			
8.1			
9. 受賞			
9.1	永江勇二	日本 AEM 学会 奨励賞	

3.1.4 【H13-4】 雷雲中における放射線発生機構に関する研究

平成 16 年 3 月 31 日

【No.】 研究テーマ名	【H13-4】 雷雲中における放射線発生機構に関する研究		
研究実施者	鳥居 建男		
研究実施場所	敦賀本部、国際技術センター		
研究期間	平成 14 年 1 月 1 日 ～ 平成 16 年 3 月 31 日		
研究費用	2,515 万円	内訳	H14 3,712 (6,100) (千円) H15 12,184 (13,000) H16 9,253 (9,600)
【研究目標】 冬季雷に起因すると考えられる放射線量率の上昇のメカニズムを解明するため、以下の研究を行う。 1. 冬季雷による放射線変動等の測定調査 冬季雷活動時の放射線変動及び電界強度を測定することにより、放射線バースト発生時の放射線エネルギー分布等から放射線源及びその強度を明らかにする。 2. 放射線挙動計算コードの開発と解析評価 雷雲を模擬した強電界中での放射線挙動解析用モンテカルロ計算コードを開発し、地上付近、及び雷雲中・雷雲上部での放射線挙動の解析を行うことによって、放射線バースト発生メカニズムの解明を行う。			
【研究計画の概要】 1925 年に英国の C.T.R. Wilson が雷雲中の高電界により大気中の荷電粒子が加速され制動放射線が発生し得ることを予測して以来、様々な観測が行われてきた。近年、航空機や高層気球、 γ 線観測衛星により雷活動に起因すると考えられる放射線が観測されつつあるが、制動放射線発生の確証を得るには至っていない。 一方、ふげん・もんじゅを含む北陸地方の日本海沿岸では、冬季雷発生時に放射線測定機器が電氣的ノイズとは考えにくい異常な線量上昇を観測することがある。冬季雷は、夏季雷に比べて、雲底が非常に低く、制動放射線発生の要因となる高電界領域が 1 km 程度の低高度にある。また、制動放射線生成の“種”となる大気中の荷電粒子として 2 次宇宙線電子と R n 子孫核種が放出する β 線が考えられるが、敦賀半島周辺は花崗岩地帯であり、R n 濃度の高い地域であるという特徴を有している。 本研究では、冬季に日本海沿岸で発生する異常な線量上昇の原因と考えられる制動放射線の地上付近での発生の可能性について検証するため、もんじゅ構内等において、冬季雷発生前後における放射線及び電界強度の変動を観測し相関を調査する。また、外部電磁場の影響を取り込んだ電子・光子輸送モンテカルロ計算コード等を開発し、雷雲中での 2 次宇宙線や R n 子孫核種からの制動放射線生成過程をシミュレーションすることにより、雷雲中における放射線発生機構の解明を行う。			

【研究成果の概要】

1. 冬季雷による放射線変動等の測定調査

(1) 放射線観測システムの開発

放射線の飛来方向とその時間変動を観測するため、シンチレーション光ファイバーに飛行時間法 (TOF) を用いた放射線飛来方向測定システムを、また高速で放射線のエネルギーを測定するシステムを製作した。H14, 15 年度冬季にもんじゅ建設所、H15 年夏季に乗鞍観測所 (東大宇宙線研) で観測した。しかし明確な影響は観測されなかった。

(2) 放射線量変動測定の実施

もんじゅモニタリングポスト等で、雷による線量上昇が観測された。これまでの測定結果から、次のような線量上昇の特徴が把握できた。①線量上昇の立ち上がり時間は、数 10 秒程度、②上昇開始は場所により、10~20 秒程度ずれる③、影響範囲は数 100m がほとんど、④エネルギーは数 MeV。このことから、雷雲の高電界による準静的な過程と推定できた。

2. 放射線挙動計算コードの開発と解析評価

(1) モンテカルロ計算コード等の整備

電子・光子輸送モンテカルロ計算コード EGS4 の電界影響組み込み等の改造整備、ミュオン等の荷電粒子の挙動評価用に GEANT4 コードの整備等を行うとともに、雷雲電界を実測値をもとに有限要素法で解析し、雷雲中及び下方での放射線挙動を解析した。

(2) 解析評価

雷雲電界が一定値 ($E_{th} = \text{約 } 280 \text{ P[atm]} [\text{kV/m}]$) を超えると、雷雲中で逃走電子が生成され、多量の電子・光子 (電磁シャワー) が発生することが分かった。モデル化した雷雲電界中での計算により、雷雲の成熟期初期に見られる 3 極構造の冬季雷雷雲では、雷雲下部で E_{th} を超えることもあるため、電磁シャワーが発生し電子・光子の一部が地表付近まで達する可能性があることが分かった。2 極構造の冬季雷や夏季雷では、雷雲中で電磁シャワーが発生しても高度が高いことから減衰により地表まで達しないことが分かった。

【研究目標に対する達成度】

下記の項目に関する研究を実施完了し所期の目標を達成した。また、研究を通じて、雷雲中での放電の発生機構に関する知見も得られた。

1. 冬季雷による放射線変動等の測定調査

(1)放射線観測システムの開発：放射線飛来方向測定装置を製作し、特性試験の実施、方向解析用アンフォールディング計算コードの開発、ミュオンカウンタの製作等、全て完了した。

(2)放射線量変動測定の実施：モニタリングポスト等での測定調査を実施。放射線量上昇の特徴が把握できた。予測した結果を示したことから、解析手法の妥当性を確認できた。

2. 放射線挙動計算コードの開発と解析評価

(1)モンテカルロ計算コード等の整備：EGS4 コードへの電界効果の組み込み等、雷雲電界を模擬した体系での計算可能なようにコード類を、またミュオン挙動計算用コードも整備した。

(2)解析評価：制動放射線のバースト的な発生条件 (電界強度) を求めた。また、冬季雷雷雲での放射線バースト発生条件が分かった。さらに、ミュオン起因のノックオン電子の影響が大きいことも判明した。

【研究成果の波及効果及び展望】**1. 現在までの波及効果**

これまで環境放射線モニタリング分野で原因不明とされてきた冬季雷活動時の線量上昇の原因について、本研究の進展により明らかになりつつある。本研究の成果は、サイクル機構はもとより自治体でもこのような事象の説明に活用されている。

2. 今後期待される波及効果と展望

本研究を通じて、雷雲中の高電界領域で電子が加速され逃走電子となり、多量の2次電子が生成されて電子束が急激に上昇していることが分かった。本研究により得られた逃走電子が生成されるための電界強度は、室内実験による絶縁破壊電圧より1桁以上低く、実際に雷雲中で観測される電界強度と同程度の100～200kV/mである。室内実験で絶縁破壊が起こるほどの電界強度は雷雲中では観測されていないことから、雷放電開始機構は現在でも未解明である。これらのことから、放射線がトリガーとなって雷雲の高電界領域で逃走電子が生成され電子・光子のシャワーが発生することによって電子密度が上昇し、大気中の電気伝導度を押し上げることによって雷放電を誘発させている可能性が考えられた。本研究は雷放電の開始メカニズムの解明につながるものであり、地球物理学や大気電気学への貢献につながるものと考えられる。

また、雷雲中の電子密度を人為的に上昇させる要因を作れば、雷放電を発生しやすくなるとの考えから、ミュオン等の荷電粒子を用いた誘雷法の可能性が考えられる。高エネルギーミュオンは透過性が高く、飛行する間に多量のノックオン電子を放出し、最終的に電子とニュートリノに崩壊する。そこで、雷雲の高電界領域にミュオンビームを照射し、高電界領域の電子密度に擾乱を起こすことによって雷放電を誘発させることも可能と考えられ、将来、海上等の安全な場所への落雷、雲内部での電気エネルギーの消失等、地上施設に雷の被害を軽減、もしくは防止する新たな誘雷法の開発研究につながるものと考えられる。

【研究成果の説明】

1. 冬季雷による放射線変動等の測定調査

(1) 放射線観測システムの開発

放射線の飛来方向とその時間変動を観測するため、シンチレーション光ファイバーに飛行時間法 (TOF) を用いた放射線飛来方向測定システム (図1右) を、また高速で放射線のエネルギーを測定するシステムを製作した。RI 線源を用いた特性試験の結果、十分な方向特性が示され (図1左)、またアンフォールディング計算による飛来方向解析の結果もほぼ飛来方向を特定できること分かった (図2)。H14, 15 年度冬季にもんじゅ建設所、H15 年夏季に乘鞍観測所 (東大宇宙線研) で観測した。しかし明確な影響は観測されなかった。観測されなかった理由は、設置場所付近で線量変動をもたらすほどの大きな雷活動はなかったこと、また感度の面で難があった。

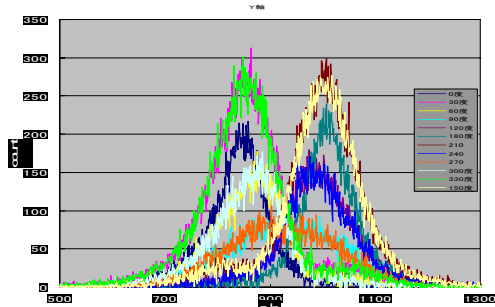


図1 放射線飛来方向測定システム検出部 (右) と RI 線源 (Cs-137) を用いた方向特性結果

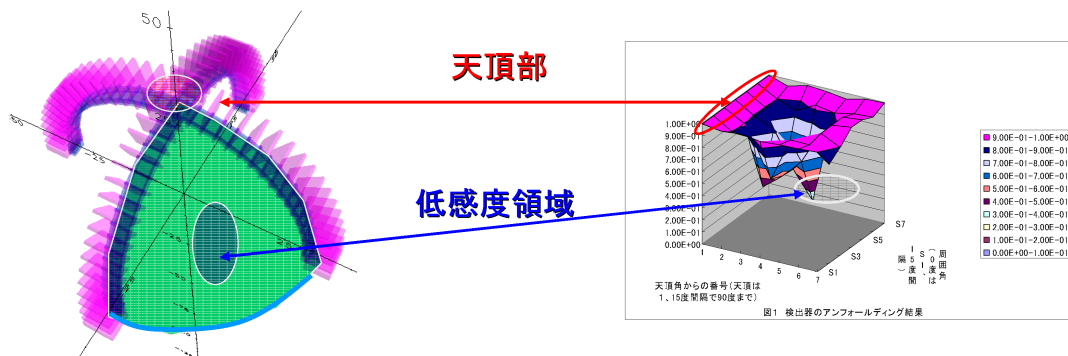


図2 検出器の計算モデルとアンフォールディングによる飛来方向特定解析 (天頂角 60° 付近のセンサー中間部の低感度領域以外はほぼ入射方向が特定できる)

(2) 放射線量変動測定の実施

もんじゅモニタリングポスト (NaI 検出器) 等で、雷による線量上昇が観測された。これまでの測定結果から、共通して以下の特徴を有することが分かった。

- ・ モニタ指示値が上昇開始から最高値に達するまでの時間は数 10 秒程度である。
- ・ 最高値に達した後、数 10 秒から 1 分程度で元の指示値に戻る。
- ・ 複数のモニタが設置されているもんじゅ建設所構内の観測では、指示値の上昇開始時間は必ずしも同時ではなく、10～20 秒程度ずれることもある。
- ・ もんじゅ建設所構内の全ての環境放射線モニタの指示値が上昇したのは 1 回だけであり、多くは 1 基、ないしは数 100 m の距離で隣接する 2, 3 基である。
- ・ 全て雷雲が周辺にあるとき発生しているが、必ずしも落雷位置標定システム (LLS) により落雷が記録されている時間と同時に発生してはいない。モニタの指示値上昇前後に落雷が記録されていない事象もある。

- ・ 通過率（エネルギー指標）は高エネルギー側にシフトし、数 MeV 程度と考えられる。このような特徴を示す代表的な今季の観測データを図 3 に示す。

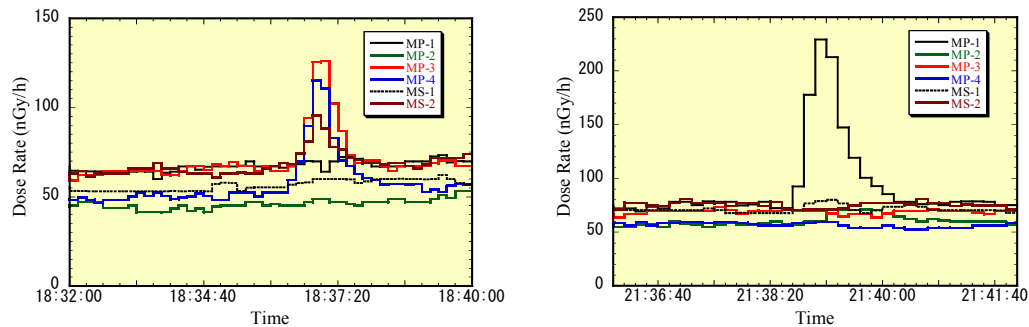


図 3 今季のもんじゅ構内での測定データ（左：2003 年 12 月 13 日、右：12 月 19 日）

以上のことから雷活動時の線量上昇は、以下に示す特徴を有する事象と判断した。

- ・ 放射線強度の上昇は、個々の雷放電に伴うものではなく、雷雲内の電界強度が上昇したときに発生する。
- ・ 放射線の発生領域は数 100 m の範囲である。
- ・ モニタの指示値は時定数で元に戻っていると考えられるため、雷放電等により高電界が消失、もしくは電界強度が低下したときに制動放射線の発生も停止する。

よって、雷雲中での放射線発生は準静的な過程と考えられ、以下の計算手法を用いて解析評価を行った。

3. 放射線挙動計算コードの開発と解析評価

(1) モンテカルロ計算コード等の整備

任意の電界分布に対して電子・光子の輸送計算を行うため外部電界効果のサブルーチン・マクロを EGS4 コード本体に組み込んだコードを作製した。また、冬季雷で想定される雷雲の電荷分布を参考に有限要素法により 2 次元電界強度分布を求め、この計算結果をもとに EGS4 コードに電界強度の高度分布を入力した。さらに、宇宙線ミュオンは大気中で多量のノックオン電子を放出することから、ミュオン等の荷電粒子の挙動評価用に GEANT4 コードの整備等を行い、雷雲中及び下方での放射線挙動を解析した。

(2) 解析評価

雷雲電界が一定値 ($E_{th} = \text{約 } 280 \text{ P[atm]} [\text{kV/m}]$) を超えると、雷雲中で逃走電子が生成され、電磁シャワーが発生することが分かった (図 4)。

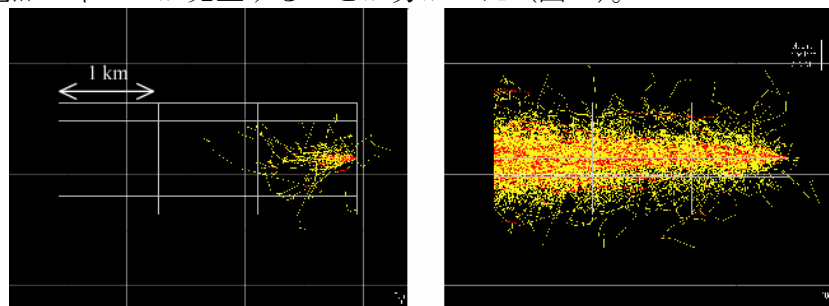


図 4 高度 2 km（大気密度：1.0066kg/m³）での逃走電子と制動放射線の発生（電界強度：左 200 kV/m、右 230 kV/m(1atm で 280kV/m に相当)、入射電子：10 MeV、25 個）

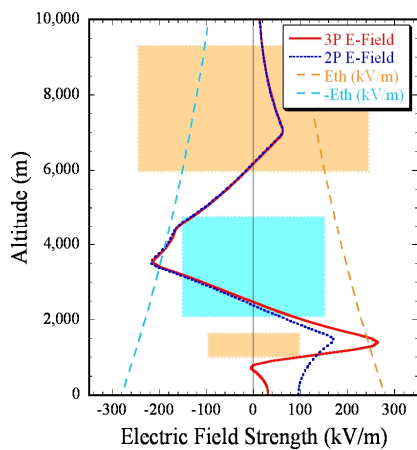


図5 有限要素解析による電界強度の高度分布と電荷領域（上部：正電荷、中央：負電荷、下部：ポケット正電荷）

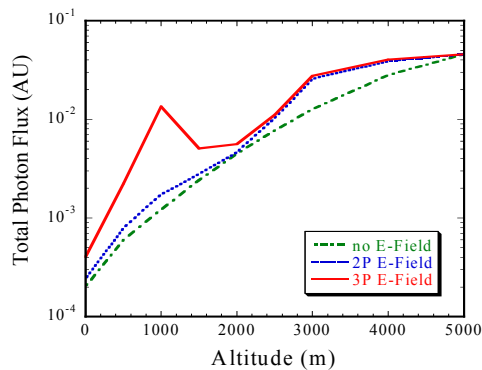


図6 光子束の高度分布

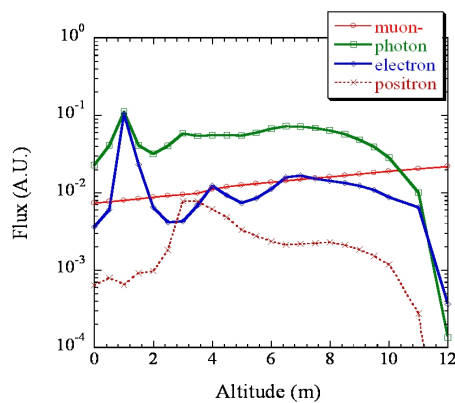


図8 宇宙線ミュオン入射時のミュオン、電子、光子束の変化

また、モデル化した雷雲電界中での計算により、雷雲の成熟期初期に見られる3極構造の冬季雷雷雲では、雷雲下部のポケット正電荷層で E_{th} を超えることもあるため（図5）、電磁シャワーが発生し電子・光子の一部が地表付近まで達する可能性があることが分かった。一方、2極構造の冬季雷や夏季雷では、雷雲中で電磁シャワーが発生しても減衰により地表まで到達しにくい。光子束の高度分布からも3極構造の冬季雷の場合、高度1 km 付近で急激な上昇を示すものの、2極構造や電界をかけない場合は有意な変動は見られない（図6）。

また、高電界領域での電磁シャワーの発生は、雷雲中の電子密度を急激に上昇させることから、大気中での電気伝導度を上昇させ雷放電のトリガーとなる可能性を示唆するものであった（図7）。

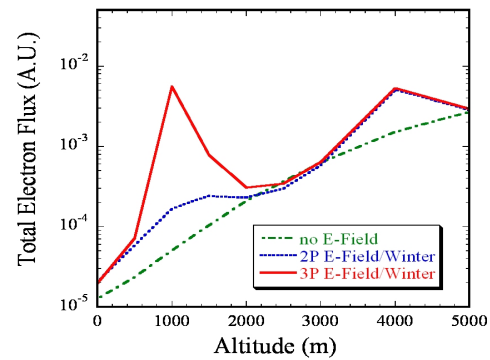


図7 電子束の高度分布

さらに、線源となる荷電粒子として、Rn 子孫核種が放出する β 線についても解析評価したが、地上での線量上昇をもたらすほどの寄与は認められなかった。

宇宙線ミュオンの影響について解析評価した結果、ミュオン自身は高電界領域で大きな変動はないものの、ミュオンの飛行に伴い生成される電子・光子束が急激に上昇することが分かった。ミュオンは電子・光子に比べて透過性が高いため、雷雲の高電界領域に直接入り込み、空気分子との衝突により多量のノックオン電子を放出する。このノックオン電子が雷雲電界により加速されて逃走電子や制動放射線の生成、さらには雷放電のトリガーとなる可能性が明らかになった。

【研究成果等発表状況】			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
1. 学術誌論文（原著研究論文）			
1.1	T. Torii, M. Takeishi, and T. Hosono	“Observation of gamma-ray dose increase associated with winter thunderstorm and lightning activity”, J. Geophys. Res. Vol. 107 (D17), 2002, pp.4324-4352	1.(2)
1.2	T. Torii, M. Takeishi, and K. Okubo	“Observation of Dose-Rate Increases During Winter Thunderstorms and Monte Carlo Simulation of Bremsstrahlung Generation”, in Elsevier’s “Radioactivity in the Environment” Book Series (in printing)	1.(2), 2.(1)
1.3	T. Torii, T. Nishijima, Z-I. Kawasaki, and T. Sugita	“Downward emission of runaway electrons and bremsstrahlung photons in the thunderstorm electric fields”, Geophys. Res. Lett., Vol. 31, L05113 (2004)	2.(1), 2.(2)
2. 学術会議論文（会議論文集あり）			
2.1	T. Torii and T. Sugita	Cosmic ray electron acceleration and bremsstrahlung generation in the strong electric field of thunderclouds, EGS4 研究会（2002 年 8 月 2 日、つくば）	2.(1)
2.2	T. Sugita and T. Torii	Transport calculation of low energy electrons under the strong electric field of thunderclouds, EGS4 研究会（2002 年 8 月 2 日、つくば）	2.(1)
2.3			
3. 学会等口頭発表（概要集程度）			
3.1	T. Torii, M. Takeishi, and K. Okubo	Observation of Dose-Rate Increases During Winter Thunderstorms and Monte Carlo Simulation of Bremsstrahlung Generation, 7 th Int’l Symposium Natural Radiation Environment (NRE-VII), 2002 年 5 月、ギリシャ	1.(2), 2.(1)
3.2	西嶋健、鳥居建男、河崎善一郎	雷雲電界による放射線変動のシミュレーション、日本大気電気学会（2003 年 7 月、福岡）	1.(2), 2.(1)
3.3	西嶋健、鳥居建男、河崎善一郎	雷雲電界に起因する制動放射線の下方放出、第 18 回大気圏シンポジウム、JAXA 宇宙科学研究本部（2004 年 2 月）	2.(1), 2.(2)
4. 学術誌解説・総説			
4.1	鳥居 建男	「雷から放射線が出る」、Isotope News, 2002 年 3 月号（日本アイソトープ協会）	1.(2)
4.2	鳥居 建男	「雷雲中における放射線発生とそのメカニズムについて」、放射線科学、Vol. 46 (7), 225-235 (2003)	1.(2), 2.(1)
4.3	鳥居 建男	「雷雲からの放射線の発生とその観測」、放電研究、Vol. 46 (3), 52-57 (2003)	1.(2), 2.

5. 依頼講演（内部は除く）			
5.1	鳥居 建男	「雷から放射線が出る」（2002 年 6 月 10 日、名古屋）、日本原子力産業会議中部原子力懇談会・放射線専門部会	1(2), 2(1)
5.2	鳥居 建男	「雷の放射線を測定する」（2003 年 7 月 24 日、箱根）、日本アイソトープ協会・理工学部会サマースクール	1, 2
5.3	鳥居 建男	「雷から放射線がでる」（2003 年 10 月 23 日、東京）、放電学会 秋のシンポジウム	1, 2
5.4	鳥居 建男	「雷と放射線について」（2004 年 1 月 27 日、敦賀）、若狭湾エネルギー研究センター・放射線従事者教育	1, 2
5.5	鳥居 建男	「雷と放射線」（2004 年 2 月 28 日、大阪）、安心科学アカデミー・勉強会	1, 2
6. その他（サイクル機構技報等）			
6.1			
6.2			
7. 社内研究報告書			
7.1	T. Torii and T. Sugita	Development of PRESTA-CG Incorporating Combinatorial Geometry in EGS4/PRESTA, JNC TN1410 2002-001 (2002)	2.(1)
7.2			
8. 特許			
8.1	鳥居 建男	放射線位置検出器 （特許出願中、2003 年 6 月）	1.(1)
8.2	鳥居 建男	放射線飛来方向検出器 （特許出願中、2003 年 10 月）	1.(1)
8.3	鳥居 建男	誘雷方法及び装置 （特許出願中、2004 年 3 月）	2.(2)

3.1.5 【H14-1】 炭素系内包構造体を利用した放射性核種の処理法及びその利用技術の研究

平成 17 年 3 月 31 日

【No.】 研究テーマ名	【H14-1】 炭素系内包構造体を利用した放射性核種の処理法及びその利用技術の研究		
研究実施者	山本 和典		
研究実施場所	大洗工学センター 社内公募型研究推進室		
研究期間	平成 14 年 4 月 1 日 ～ 平成 17 年 3 月 31 日		
研究費用	2,337 万円	内訳	H14 1,097 (1,000 万円) H15 644 (580 万円) H16 596 (790 万円)
【研究目標】 本研究では、1990 年代に入ってから急速に研究が進展してきた新しい炭素系内包構造体（フラーレン、カーボンナノ粒子、カーボンナノチューブ等）を取り上げ、その原子レベルでの物質内包性に着目して、使用済み核燃料に含まれる放射性 F P 核種の新しい処理法をコールド試験レベルで具体化し、その評価を行うことを第一の目標とする。次に、この放射性 F P 核種を内包させた処理体の特異な性質を生かした新たな利用技術を探求することを、第二の目標とする。			
【研究計画の概要】 本研究では、1990 年代に発見されその後急速に研究が進展した新しい炭素系内包構造体（フラーレン、カーボンナノ粒子、カーボンナノチューブ等）を取り上げる。これらの構造体は数～数百ナノメートルの大きさで、様々な物質を内包可能な堅固な空洞を持つという共通の特徴がある。内包された物質は原子レベルで遮蔽され、自由な拡散や移行が完全に制限されることになる。この点に着目し、使用済み核燃料に含まれる様々な放射性 F P 核種を内包させて処理することを想定して、その場合の安定性と透過性を考察してみると、この新しい内包処理の意外な利点が浮かび上がってきた。この炭素系内包構造体を用いた処理の概念は、既知の処理方法が持つ弱点を克服できる可能性を秘めている。既知の処理法と組み合わせることで互いの弱点を補うことが可能ならば、内包処理という概念は放射性 F P 核種処理の新たな選択肢となることが期待される。 本研究では、この新しい処理法の利点と欠点について、理学的及び工学的立場から検討を行うほか、内包用の試験装置を用いて模擬放射性核種（ランタニド）の内包試験を実施する（コールド試験）。またこれら炭素系内包構造体の物理・化学的性質を調べるとともに、効率的な調製方法など工学的技術情報の取得と検証を行う。最終的には、その生成メカニズムの解明と検証を行う。 ①炭素系内包構造体を利用した放射性核種の処理法の研究 ①-A：炭素系内包構造体に対する模擬放射性核種内包試験（ランタニド内包試験） - 炭素系内包構造体の効率的な調製方法など工学的技術情報の取得とその実験的検証 - 炭素系内包構造体の生成メカニズムの解明と検証 ①-B：炭素系内包構造体の安定性調査及び確認試験 - 安定性に関する文献調査等 - 炭素系内包構造体について、熱的安定性や化学的安定性等を評価			

【研究成果の概要】

①-A：炭素系内包構造体に対する模擬放射性核種内包試験

- ・ランタンカーバイド内包カーボンナノカプセルの製造法であるアーク放電法では、He 圧のほかには陰極堆積物の熱履歴が独立パラメーターで、他の試験パラメーターは熱履歴に影響を与える変数として、同カプセルの生成に影響することを解明した。
- ・副産物として少量生成するのみであった同カプセルを、陰極堆積物中に大量生成させることを達成し、そのための条件を解明した。
- ・陰極堆積物構造の特定の部位に、同カプセルが純粋な形で偏在していることを発見し、これが生成メカニズムと関連していることを解明した。
- ・同カプセルはランタンフラーレン煤の熱処理により生成することを発見した。
- ・熱処理前の同煤中に、極小のランタンカーバイド内包ナノカプセルが大量に存在していることを発見した。
- ・同カプセルが、高温で互いに合体・融合してより大きなカプセルへと成長するメカニズムが存在することを発見した。
- ・1000～2200℃の熱処理では、高温で処理するほど同カプセルのグラフェン層数が増加することを発見した。
- ・上記の結果を基に、陰極堆積物に含まれる同カプセルの起源とその2段階生成シナリオを解明した。
- ・同シナリオを基に、同カプセルの生成効率を飛躍的に高める製造方法を提案できた。

①-B：炭素系内包構造体の安定性調査及び確認試験

- ・同カプセルの空気中での酸化挙動を初めて測定し、その特異な挙動を解明した。
- ・同カプセルの遮蔽効果で、内包物が空気中 500℃まで安定保持されることを発見した。
- ・同カプセル唯一の検出法であった TEM 観察法の代替として、新たに熱重量分析法を確立するとともに、同カプセルの含有量を定量的に評価する方法を初めて提案した。

【研究目標に対する達成度】

下記の当初項目に関する研究は一部を実施したが、安定性の調査の過程で、炭素系内包構造体の耐酸化性が当初の想定より低いことが判明し、空気中や生体内など酸化環境下での利用に関する研究項目の実施を、見込みが薄いと判断して中止した。その替わり、還元環境下での利用に研究を集中し、その効率的な調製方法など工学的技術情報の取得と検証、及び生成メカニズムの解明と検証を新たな実施項目として研究を行った。それに伴い対象核種を全 FP 核種から HLW に含まれる元素へ、さらに代表的 FP 元素としてランタンへ絞り込み、コールド試験研究を行った。

残った研究項目と追加した研究項目についてはほぼ実施完了し、所期の目標を達成した。また生成メカニズムの解明と検証を通して、当初は全く予想していなかった炭素系内包構造体（内包カーボンナノカプセル）の2段階生成が判明し、同カプセルの生成効率が飛躍的に高まる工業的製法を提案できた。

①炭素系内包構造体を利用した放射性核種の処理法の研究

①-A：炭素系内包構造体に対する模擬放射性核種内包試験（ランタニド内包試験）

- ・炭素系内包構造体の効率的な調製方法など工学的技術情報の取得とその実験的検証
- ・炭素系内包構造体の生成メカニズムの解明と検証

①-B：炭素系内包構造体の安定性調査及び確認試験

- ・安定性に関する文献調査等
- ・炭素系内包構造体について、熱的安定性や化学的安定性等を評価

【研究成果の波及効果及び展望】

1. 現在までの波及効果

本研究では、ランタンカーバイド内包カーボンナノカプセルの特異な酸化挙動を詳細に解明し、それが同カプセルの新しい検出法及び評価法として利用出来ることを示した。従来は高分解能透過型電子顕微鏡（TEM）観察が、同カプセルの唯一の検出法として知られていたが、TEM 観察の定性的結果を補完するだけでなく、初めての定量的評価を可能にする新しい分析方法として、熱重量分析（TGA）が利用できる事を明らかにした。このことは、その後の研究遂行の可否に劇的な効果をもたらした。TGA に関しては、従来の内包ナノカプセルに関する研究において全く利用された例が無いので、ランタンフラーレン煤およびその熱処理煤の評価において、TEM 観察と組み合わせる事で新たに多くの事が判るようになった。

今回の研究で新たな分析手段を獲得したことの最大の波及効果は、内包カーボンナノカプセルの発見以来ずっと未確定で解明が出来なかった同カプセル生成のメカニズムを、再現実験をもとにはじめて解明出来た事である。陰極堆積物に含まれるランタンカーバイド内包ナノカプセルは、陽極が蒸発してフラーレン煤に凝縮するのが第一段階で、これが陰極堆積物の形成時に混入して、陰極堆積物ごと第二段階の熱処理を受けて生成したものと考えられる。

2. 今後期待される波及効果と展望

ランタンカーバイド内包カーボンナノカプセルの生成過程が、以上の様に二段階に分かれていることが判明したことは、工学的に極めて重要である。なぜなら各段階を最適化することにより、ランタンカーバイド内包カーボンナノカプセルの生成効率を飛躍的に増やすことが可能になるからである。したがって、陰極堆積物に頼らない内包ナノカプセルの製造工程を、新たに設計できることになる。その方法は以下の通りである：

（第1段階）ランタンを含む炭素のアーク放電により、ランタンフラーレン煤を製造する。ここで、目的に応じて金属濃度等を様々に設定できると考えられる。また次の段階での内包カーボンナノカプセルへの変換効率が、この段階の条件に影響される可能性がある。

（第2段階）ランタンフラーレン煤をヘリウム雰囲気下 1000～3000℃で処理し、ランタンカーバイド内包カーボンナノカプセルに変換する。処理温度の設定と処理時間の組み合わせにより、ナノカプセルの径とグラフェン層数を自在に制御することが出来ると考えられる。

このような製造工程は、ランタンだけでなくカーボンナノカプセルに内包される全ての金属／元素に適用が可能と考えられるので、それらの粒径およびその周りを囲むグラフェン層数を制御した様々な内包カーボンナノカプセルが、大量に得られるようになると予想される。不安定で取り扱いが難しい物質でもこのようにしてナノレベルの微粒子化が可能になる。そのような物質が出来たなら、顔料、充填剤、磁気メディアなどの原料として、広く利用されるようになると思われる。

【研究成果の説明】(1/4)

①-B：炭素系内包構造体の安定性調査及び確認試験

＜新たな内包ナノカプセル分析法としての熱重量分析法の確立＞

陰極堆積物の硬い外殻の裏面に付着している軟らかい部分を削り取った粉末サンプルについて、乾燥空気中で TGA 分析を行った結果を図 1 に示す。TEM 観察により、このサンプルは純粋な内包カーボンナノカプセル及びそのクラスターであることが確認されているので、この TGA 分析チャートは、「純粋なランタンカーバイド内包カーボンナノカプセルの乾燥空気中における酸化挙動」を示している。この種のデータが得られたのは、本研究がはじめてである。

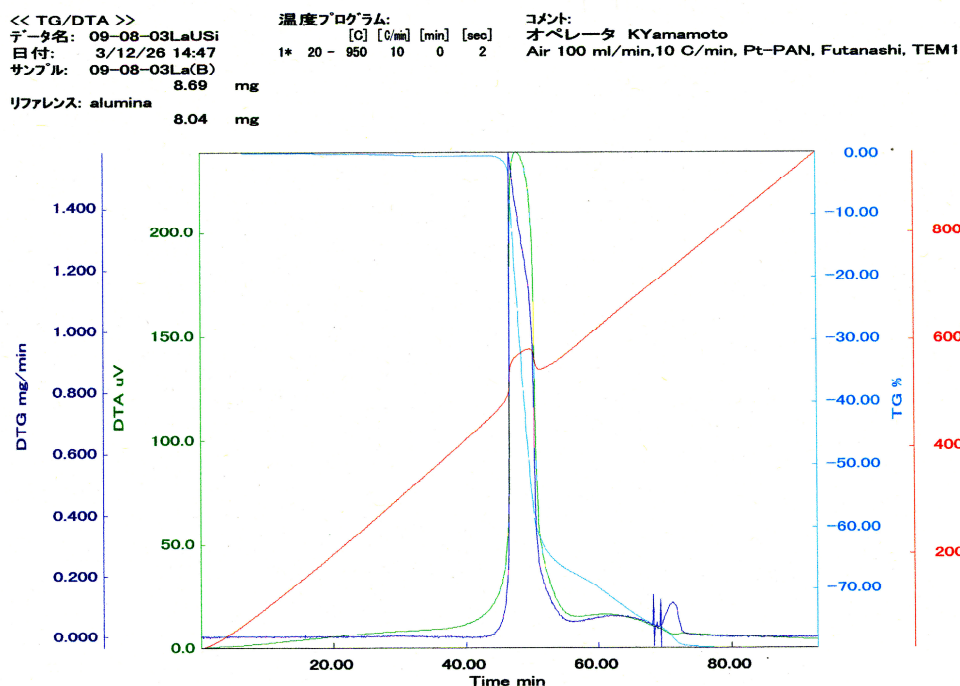


図 1 純粋なランタンカーバイド内包カーボンナノカプセルの TGA 分析チャート

このサンプルに特徴的なことは、サンプル温度約 500°C から起こった約 60 % に及ぶ極めて急激な重量減少である。さらに特異的なのはこの時の高い発熱と急激な温度変化で、昇温速度一定の設定にもかかわらず、600°C あたりまで急な温度の上昇が起こり、その後急降下して定常昇温ライン上に復帰するという“異常昇温現象”が観測された。図の TGA 分析チャートの横軸に、通常使われる温度ではなく時間を用いた理由は、この異常昇温の経緯を示すためである。なお、炭素 100% の単なるカーボンナノカプセルを含む試料について同様の TGA 分析を行っても、この種の高い発熱と異常昇温現象は全く観測されない。

この高い発熱と異常昇温現象は、ランタンカーバイドの急激な酸化反応によるものと解釈できる。つまり、カーボンナノカプセルに内包され保護されているランタンカーバイドナノ結晶は、酸素と接触出来ないために 500°C 付近まで酸化されずにそのまま生き残ってきたが、500°C を越えたある時点で酸化によってカプセルに穴が開いて、はじめて酸素と接触して急激にカーバイドの酸化が進行する、というシナリオを考えることが出来る。このシナリオを仮定して初めて、図 1 のような大きな発熱と異常昇温を説明することが可能になる。このシナリオは、酸化前・中・後のサンプルの TEM 観察により正しいことが確認された。したがって 500°C に達するまで、グラフェン多重層に内包されたランタンカーバイドナノ結晶は、酸素分子の攻撃から完璧に遮蔽され、保護されることが確認出来た。さらに TGA 分析を続けると、950°C までにサンプルの炭素成分は全て酸化してガス化し、初期重量の約 20 % にあたるランタン酸化物 La_2O_3 が固体として残る。これは全て内包され

【研究成果の説明】(2/4)

たランタンカーバイドに由来すると考えられるので、ランタンカーバイドの酸化反応(1)前後で固体成分の質量が変わらないことを考慮して計算すると、この内包ナノカプセルのサンプルは約 20 wt%のランタンカーバイドをナノカプセル空洞に内包していたと評価できる。



図1の TGA 分析チャートで観察された異常昇温現象に伴って発生した急激な重量減少は、カーバイドの酸化で局所的な温度上昇が起こり、カーボンナノカプセルを形成するグラフェン層など周囲の炭素が酸化したためであることが TEM 観察により確認された。質量減少幅の大きさは、ランタンカーバイド内包ナノカプセルの量を反映している可能性が高く、陰極堆積物中でのランタンカーバイド内包ナノカプセルの含有量を TEM 観察から見積もった結果と、よく一致した。したがってサンプル中にランタンカーバイド内包ナノカプセルが存在すれば、ほぼその量に見合った大きさの異常昇温と質量減少が観測され、TGA 測定による定性分析・定量分析が可能である事が初めて判った。この新たな武器を駆使して、以後の研究を進めた。

①-A : 炭素系内包構造体に対する模擬放射性核種内包試験

＜ランタンフラーレン煤の熱処理によるランタンカーバイド内包ナノカプセル生成＞

熱処理する前のランタンフラーレン煤について、高分解能 TEM 写真の代表例を図2に示す。純炭素フラーレン煤に通常見られるアモルファス状の炭素煤は、この写真の視野内では全く見られず、その代わり閉じたグラフェン殻またはフラーレン殻の内部にランタンカーバイドの微結晶を隙間無く閉じ込めた構造が、びっしりと積み重なっている状況が累々と観察された。これらの内包カーボンナノカプセルに似た構造の多くは、大きさは径 2~10 nm と小さく、グラフェンの層数は最低で1枚、通常は 2~6 枚程度で、内包物とグラフェン殻が密着していて空隙が全く見られないことが特徴的であった。

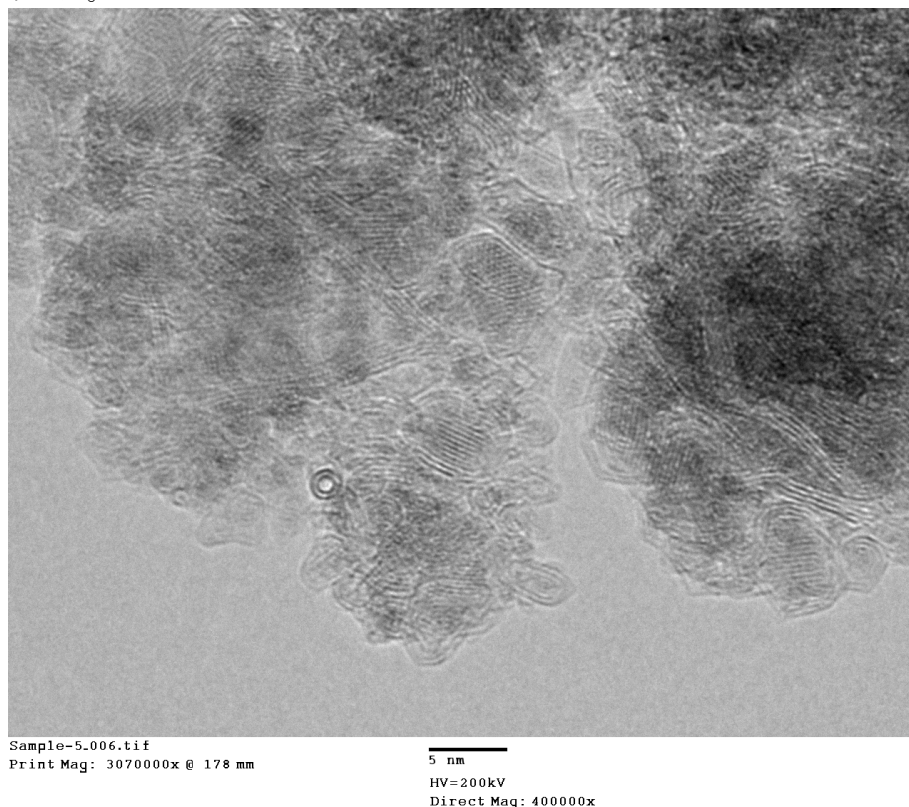


図2 熱処理前のランタンフラーレン煤の高分解能 TEM 写真

【研究成果の説明】(3/4)

このような形態を示すフラーレン煤の報告は、本研究者の知るところでは、まだ無いと思われる。低分解能 TEM では一見アモルファス状に見えるランタンフラーレン煤であっても、高分解能で観察するとこのように極めて複雑な構造をしていることがはじめて判った。この結果は、純炭素フラーレン煤に見られるアモルファス状の炭素煤とは異なり、ランタンによる触媒黒鉛化効果の現れであると解釈できることがわかった。この煤の TGA 分析結果を、図 3 に示す。この TGA 分析チャートは、ランタンカーバイド内包カーボンナノカプセルに特徴的な“異常昇温現象”とそれに伴う急激な重量減少をセットで示し、図 2 の TEM 写真で観察された構造が、ランタンカーバイド内包ナノカプセルの一員であることを明らかにした。しかし、陰極堆積物に含まれる一般的な内包カーボンナノカプセルに比べると、昇温開始はずっと低温側の 259℃で、大きな相違点がある事が判った。

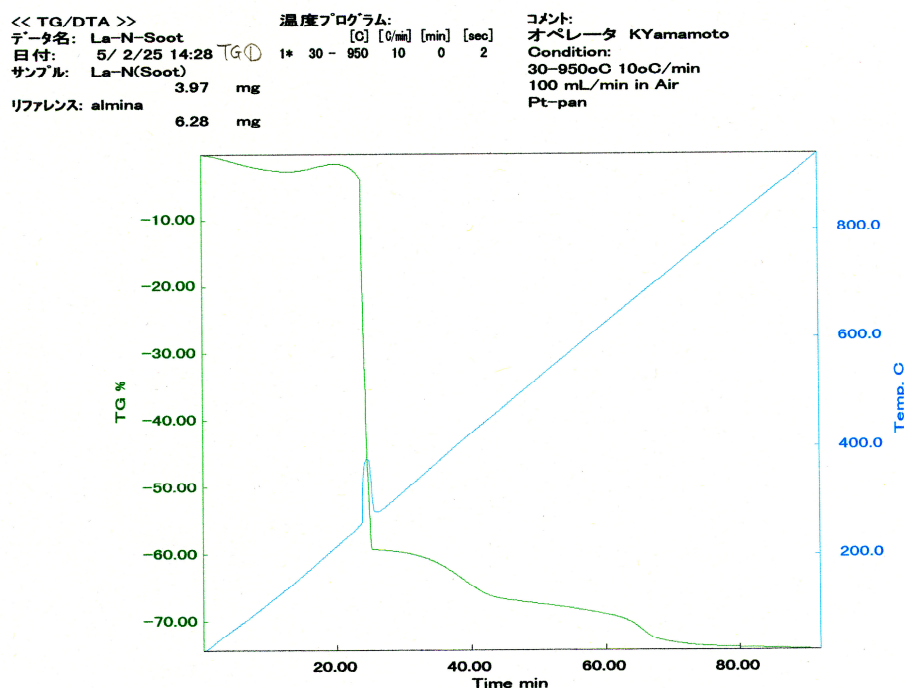


図 3 熱処理前のランタンフラーレン煤の TGA 分析チャート

図 2 の煤を 2200℃で熱処理した後のサンプルの高分解能 TEM 写真の例を、図 4 に示す。この温度で処理したランタンフラーレン煤からは、径が大きくグラフェン層の厚いランタンカーバイド内包ナノカプセルが、数多く見つかった。図 5 には同じ 2200℃熱処理煤の TGA 分析チャートの結果を示すが、異常昇温現象の開始温度は 454℃で、熱処理前の 259℃に比べ約 200℃高く、同カプセルの耐酸化性が向上していることが判った。これらの結果は、煤の熱処理によって内包カーボンナノカプセルの融合・合体が起こり、同カプセルの大型化とグラフェン層数の増大が起こっていると解釈すると、全体を矛盾無く説明することが出来る。図 4 中央に写っているナノカプセルは、まさにそのような現象の途中を写したもので、カーボンナノカプセル同士がグラフェンを外側から共通化してまとまり、合体してひとつになろうとしている中間状態を示しているように見える。このような興味深い中間状態が、2200℃熱処理煤の至る所で観察された。これらの現象は、ある意味でカーボンナノカプセルの焼結と呼べるかも知れない新しいもので、その途中の状態が観察されたのは今回が初めてではないかと思われる。

以上示した様に、ランタンフラーレン煤の熱処理により、ランタンカーバイド内包ナノカプセルが煤から生成すること、および、その成長メカニズムは同カプセル同士の合体・融合であることが、実験的に初めて明らかになった。

【研究成果の説明】 (4/4)

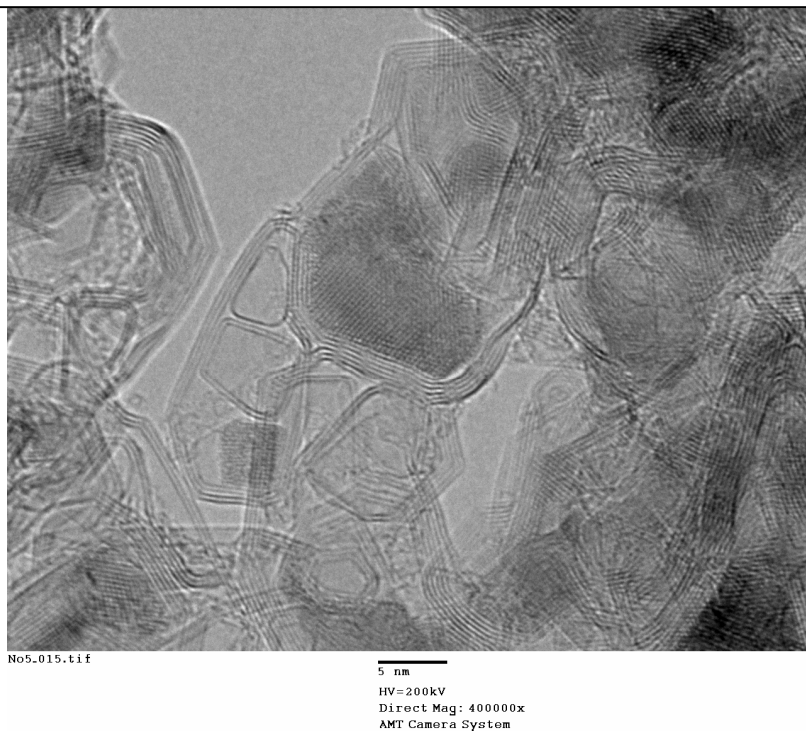


図4 2200℃熱処理後のランタンフラーレン煤の高分解能 TEM 写真

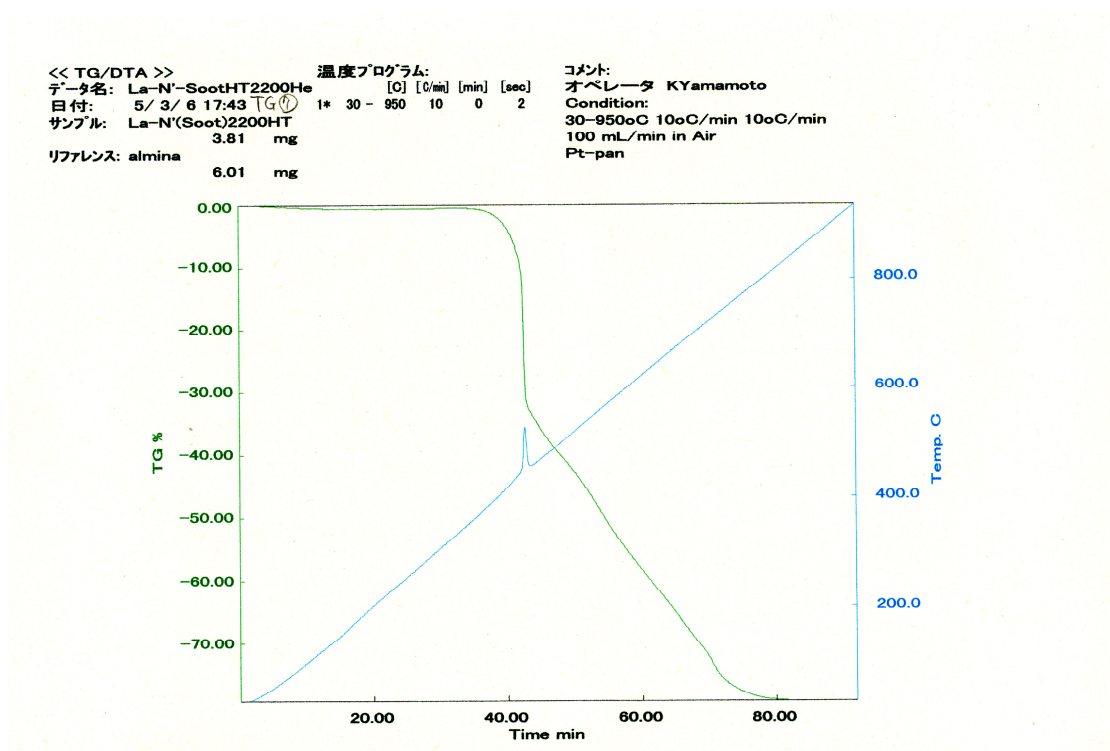


図5 2200℃熱処理後のランタンフラーレン煤の TGA 分析チャート

【研究成果等発表状況】			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
1. 学術誌論文（原著研究論文）			
1.1	Kazunori Yamamoto, Takatsugu Wakahara Takeshi Akasaka	“Encapsulation of Radioactive Metals inside Multilayered Polyhedral Shells of Carbon as a Barrier to Radionuclide Release”, Prog. Nucl. Energy, 47, (2005) 616-623.	①-A
1.2			
2. 学術会議論文（会議論文集あり）			
2.1	Kazunori Yamamoto, Takatsugu Wakahara Takeshi Akasaka	“Bulk Synthesis and Characterization of Carbon Nanocapsules Containing Lanthanum Carbide”, in Fullerenes Vol. 14, P. V. Kamat, D. M. Guldi, F. D’Souza, and S. Fukuzumi, Editors, PV 2004-12 , P110-117, The Electrochemical Society, Pennington, NJ(2004).	①-A ①-B
2.2			
2.3			
3. 学会等口頭発表（概要集程度）			
3.1	Kazunori Yamamoto, Takatsugu Wakahara Takeshi Akasaka	“Bulk Synthesis and Characterization of Carbon Nanoparticles Encaging Lanthanum Carbide (II)”, The 27 th Fullerene-Nanotube general Symposium, July 28-30, 2004, Tokyo, 2P19.	①-A
3.2	Kazunori Yamamoto, Takatsugu Wakahara Takeshi Akasaka	“Bulk Synthesis and Characterization of Carbon Nanoparticles Encaging Lanthanum Carbide”, The 26 th Fullerene-Nanotube general Symposium, January 7-9, 2004, Okazaki, 1P23.	①-A
3.3	Kazunori Yamamoto	“Study on Isolation of Highly Radioactive Waste elements inside Carbon Nanocapsules”, The 30 th Fullerene-Nanotube general Symposium, January 7-9, 2006, Nagoya, 1P18.	全項目
3.4	Kazunori Yamamoto, Takatsugu Wakahara Takeshi Akasaka	“Protective Nature of the Outer Graphitic Cages against Oxidation of the Inner LaC ₂ Crystallites in Nanocapsules”, The 31 st Fullerene-Nanotube general Symposium, June 12-14, 2006, Tsu, 2-4.	①-B
3.5	Kazunori Yamamoto, Takatsugu Wakahara Takeshi Akasaka	“Encapsulation of La in Spherical Graphitic Shells by Arc Discharge”, The 32 nd Fullerene-Nanotube general Symposium, February 13-15, 2007, Nagoya, 3P-32.	①-A
4. 学術誌解説・総説			
4.1	山本和典	内包カーボンナノカプセルの閉込め特性と原子力分野への応用、NEW DIAMOND、Vol. 21, No. 4 (2005) 23-29.	全項目
5. 依頼講演（内部は除く）			
5.1	Kazunori Yamamoto, Takatsugu Wakahara Takeshi Akasaka	“Bulk Synthesis and Characterization of Carbon Nanocapsules Containing Lanthanum Carbide”, at the M7 <i>Endofullerenes and Carbon Nanocapsules Session</i> in the Fullerene Symposium of the 205th Meeting of The Electrochemical Society, in San Antonio, Texas, USA, May 9 - May 14, 2004.	①-A ①-B

6. その他（サイクル機構技報等）			
6.1			
7. 社内研究報告書			
7.1	山本和典	炭素系内包構造体を利用した放射性核種の処理法及びその利用技術の研究, サイクル機構技術資料, TNC TN1400 2005-002 (2005) , 2005 年 3 月	全項目
8. 特許			
8.1	山本和典	内包カーボンナノカプセル前駆体の製造方法およびこの前駆体を用いた内包カーボンナノカプセルの製造方法（特願 2005-39489）	公開・審査中
8.2			

3.1.6 【H14-2】 熔融塩電解プロセス制御に資する電気化学的元素濃度測定手法の研究

平成 17 年 3 月 31 日

【No.】 研究テーマ名	【H14-2】 熔融塩電解プロセス制御に資する電気化学的元素濃度測定手法の研究		
研究実施者	永井 崇之		
研究実施場所	東海事業所 第二応用試験棟等, 京都大学 原子炉実験所		
研究期間	平成 14 年 4 月 1 日 ～ 平成 17 年 3 月 31 日		
研究費用	1,614 万円	内訳	H14 年度 5,236 (5,000) (千円) H15 年度 6,209 (6,000) H16 年度 4,695 (4,000)
【研究目標】 本研究では、安価かつ汎用性のある電気化学的手法を適用して、熔融塩中溶存元素濃度の In-Situ 測定実験を行い、迅速な測定手法を検討する。 本研究の達成目標は、プロセス制御に資する工程管理レベルの精度（10%程度の測定誤差）が担保でき、かつ迅速な（約 10 分以内の検出時間）測定手法を確立することとする。また、精度の面で高い信頼性が見込まれた場合、計量管理等への適用性も検討する。			
【研究計画の概要】 乾式再処理プロセスでは、熔融塩中のイオン濃度から U, Pu 析出の電解条件等を設定することとしており、現状のプロセス研究はサンプリングによるオフライン分析（2 時間以上）で対応している。しかし、プラントを想定した場合、電解工程処理時間の短縮が望まれ、溶存イオン濃度の迅速な測定技術が必要となる。実用化戦略調査研究では、迅速な測定技術として、光学的手法によるその場測定（In-Situ 測定）の開発を進めているが、光学的手法ではシステムの構成部品に特殊加工を要し、部品の製作性について新たな課題が生じる可能性がある。 本研究では、材料腐食等の研究分野で広く使用されている分極曲線測定等の電気化学的手法を適用し、熔融塩中溶存イオン濃度の In-Situ 測定を可能とする手法の確立を目指し、各種電気化学手法の適用可能性について検討を行う。計画では、以下の項目を実施することとし、熔融塩中のイオン形態の把握に使用されているサイクリックボルタンメトリー（CV 測定）に限定せず、各種電気化学的手法について検討する。 1) CV 測定による熔融塩中溶存元素濃度の検出可能性の検討 2) 各種測定手法による熔融塩中溶存元素濃度の検出可能性の検討 3) 熔融塩中元素濃度測定に適した測定法の検討 4) 熔融塩中元素濃度測定技術の確認試験（ウラン試験） 1)では、CV 測定による熔融塩中溶存イオン濃度の検出濃度の精度及び溶存元素の分別性を確認し、2)では、各種測定手法による溶存イオンの検出可能性の比較を行い、3)において、適切な手法の選定及び測定条件の把握を行い、4)のウラン試験により測定技術の確認を行う。			

【研究成果の概要】

1. CV 測定による熔融塩中溶存元素濃度の検出可能性の検討

酸化物電解法プロセスで用いる NaCl-2CsCl 中の FP イオン及び UO_2^{2+} を対象に CV 測定を行った。その結果、対象イオンが単独で溶存した場合、CV 測定によるイオン濃度測定は可能であるが、複数イオンが共存した場合、対象イオンの濃度測定は困難であることが分かった。

2. 各種測定手法による熔融塩中溶存元素濃度の検出可能性の検討

NaCl-2CsCl 中の FP イオン及び UO_2^{2+} を対象に、ノーマルパルスボルタンメトリー (NPV 測定)、ディファレンシャルパルスボルタンメトリー (DPV 測定) 等を行った。その結果、複数イオンが共存した場合、DPV 測定は NPV 測定よりもイオン種の区別が容易である等、イオンの種類及び濃度を検出する手法として、DPV 測定が優れていることが分かった。

3. 熔融塩中元素濃度測定に適した測定法の検討

溶存イオン濃度測定手法として DPV 測定を選定し、 SmCl_3 を添加した NaCl-2CsCl を用いて測定条件を検討するとともに、DPV 測定による Sm^{3+} 濃度の定量性を確認した。その結果、適切な測定条件として電位掃引速度 -0.1V/s 、パルス周期 0.1s 、パルス幅 10ms 、パルス電圧 50mV を選定した。酸化物電解法プロセスでの想定される Sm^{3+} 濃度 $0.01\sim 0.2\text{mol/l}$ で、測定開始から 10 分以内に、ピーク電流値から誤差 $\pm 10\%$ の精度で濃度定量が可能であることを確認した。

NaCl-2CsCl 中の UO_2^{2+} 等の基礎データが未公開のため、電解分光学的手法を用いて吸収スペクトルと自然電位から $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$ 平衡電位、 UO_2^{2+} と UO_2^+ のモル吸光係数を求めた。同様に、NaCl-2CsCl 中の $\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+}$ 平衡電位及び U^{4+} と U^{3+} のモル吸光係数を求めた。

酸化物電解法プロセスで想定される乾燥空気雰囲気下での NaCl-2CsCl 中の FP イオンの挙動評価を行った結果、 Sm^{3+} は SmOCl 、 Ce^{3+} は CeO_2 、 Nd^{3+} は NdOCl を生成することが分かった。

4. 熔融塩中元素濃度測定技術の確認試験 (ウラン試験)

選定した DPV 測定条件による NaCl-2CsCl 中の UO_2^{2+} 濃度の定量性を確認する測定を行った。酸化物電解法プロセスで UO_2^{2+} 濃度 $1\sim 2\text{mol/l}$ を想定しているが、測定の結果、 0.5mol/l 以上で測定電流値が飽和し、定量が可能な UO_2^{2+} 濃度は 0.4mol/l 以下であることが分かった。なお、測定電流の波形から UO_2^{2+} 濃度定量を算出すると、約 0.8mol/l まで定量が期待できる。

次に、 UO_2^{2+} 濃度 0.4mol/l 、 0.8mol/l の酸化物電解法プロセス模擬熔融塩を調製し、DPV 測定により溶存イオンを確認しながら、白金族 (Pd) 除去及び UO_2 析出回収を行った。その結果、DPV 測定により残留する Pd^{2+} 及び UO_2^{2+} は容易に把握でき、残留イオン濃度も測定電流値から算出できることを確認した。一方、酸化物電解法プロセスの白金族除去条件では Pd と UO_2 の共析が観察され、プロセス想定 UO_2^{2+} 濃度を 0.5mol/l 以下にする必要がある。

【研究目標に対する達成度】

本研究の目標「プロセス制御に資する工程管理レベルの精度 (10% 程度の測定誤差) が担保でき、かつ迅速な (約 10 分以内の検出時間) 測定手法を確立する」に対する達成度については、以下の理由から、ほぼ達成できたと考えている。

○溶存イオン濃度のその場測定手法として DPV 測定を選定し、約 10% の測定誤差と約 10 分以内の検出時間が担保できる測定条件を選定した。

○限られた濃度範囲であるが、酸化物電解法プロセスの溶存イオン濃度測定が可能である。

○酸化物電解法プロセスの MOX 電解共析前に除去する白金族イオンの残留を確認できる。

なお、計量管理への適用については、測定精度をさらに高める必要があることから、DPV 測定条件をさらに見直す必要がある。

【研究成果の波及効果及び展望】

1. 現在までの波及効果

本研究の成果発表によって、DPV 測定が熔融塩中の溶存イオン濃度測定手法として有効であることが、熔融塩分野の研究者に認知されつつあり、2004 年 12 月開催の「熔融塩技術と計算シミュレーションワークショップ」や原子力学会「2005 年春の年会」において、本研究と類似の条件で熔融塩中の溶存イオンを対象とした DPV 測定事例の報告があった。

また、FBR サイクル実用化戦略調査研究における乾式再処理分野の研究では、これまでロシア RIAR 側の経験を重視し、光学的手法による溶存イオン濃度測定手法の研究に重点をおいていたが、本研究の成果を参考に、電気化学的手法による溶存イオン濃度測定手法の研究開発を 2005 年度より着手することとなった。

2. 今後期待される波及効果と展望

本研究で実施した熔融塩中の溶存イオンの DPV 測定では、溶存イオンの平衡電位付近にピーク電流値が測定できることから、従来の CV 測定と同様、簡便に溶存イオンの酸化還元平衡電位を評価できる。特に、ウラニルイオンのような $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$ 酸化還元反応、 $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2$ 溶解析出反応、 $\text{UO}_2^+/\text{UO}_2$ 溶解析出反応が混在する溶存イオンを対象とした場合、本研究で採用した DPV 測定条件では、反応が速い $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$ 反応によるピーク電流値を他の反応と容易に区別できることから、従来の CV 測定では困難であった $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$ 平衡電位が測定できる（本研究で求めた $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$ 平衡電位 $-0.903 \pm 0.007\text{V}$ に対し、DPV 測定のピーク電流値の電位は $-0.90 \pm 0.01\text{V}$ となった）。同様に、複数の溶存イオンが共存した熔融塩において、測定対象の溶存イオンの電気化学的性質がどのように影響されるか等の評価に活用できる。

また、酸化物電解法プロセスを含めた熔融塩電解法を用いた乾式再処理プロセスでは、 $3\text{LiCl}-2\text{KCl}$ 及び $\text{NaCl}-2\text{CsCl}$ を熔融塩に採用しているが、これら熔融塩は融点等を重視した選定であり、溶存イオンの電気化学的性質を考慮した熔融塩の組成検討はほとんど行われていない。そこで、各種熔融塩を用いて回収対象となる溶存イオンの電気化学的性質について、本研究で得られた DPV 測定手法の成果を適用し、乾式再処理プロセスとして適切な熔融塩組成が決定することが期待できる。

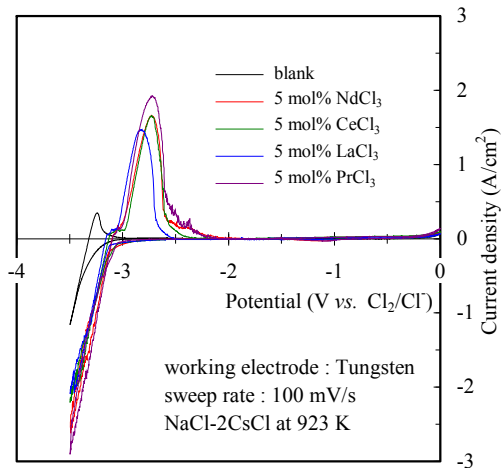
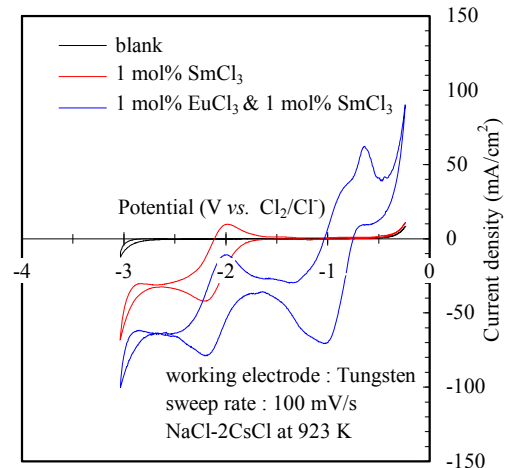
このほか、本研究で行った DPV 測定技術や溶存イオンの電解価数調整技術は、熔融塩環境に限らず、水和物熔融体中における溶存イオンの電気化学的性質の研究等に反映していくことが期待できる。

【研究成果の説明】 (1/5)

1. CV 測定による熔融塩中溶存元素濃度の検出可能性の検討

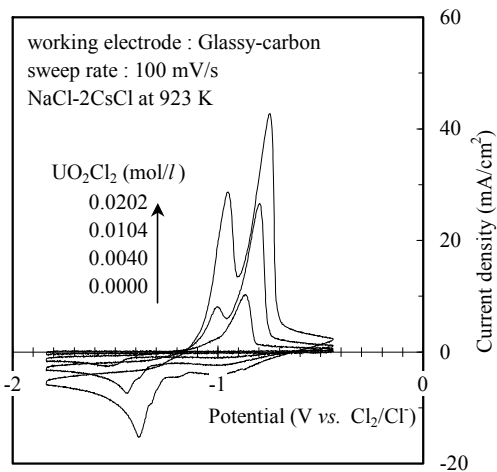
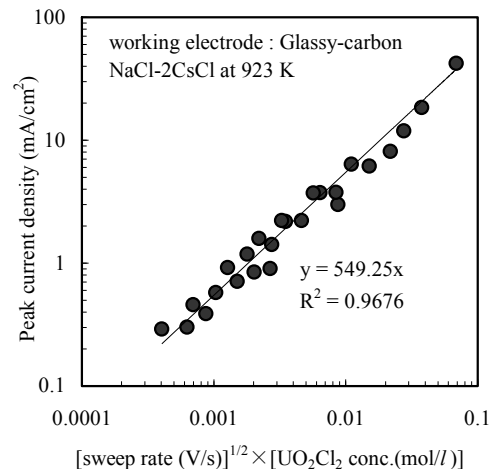
(1) NaCl-2CsCl 中の FP イオン (非 RI) の CV 測定実験

FP 塩化物 (非 RI) を添加した NaCl-2CsCl の CV 測定を行った結果, Nd^{3+} , Ce^{3+} , La^{3+} , Pr^{3+} は図 1 に示すようにアルカリ金属析出電位 (-3.0V) 付近で析出反応を示し, Sm^{3+} は -2.1V 付近に $\text{Sm}^{3+}/\text{Sm}^{2+}$ 平衡反応を示すことが確認できた。 UO_2 析出電位 (-0.65V) 付近ではこれらイオンは 3 価安定と考えられる。また, 平衡電位が異なるイオンが共存した場合, 図 2 中に示す Sm^{3+} と Eu^{3+} を含む NaCl-2CsCl の CV 測定結果から, Sm^{3+} 濃度を算出する還元電流値のベース電流値が決定しにくく, 濃度定量に大きな誤差を与えることが分かった。

図 1 Nd^{3+} , Ce^{3+} , La^{3+} , Pr^{3+} の CV 測定結果図 2 Sm^{3+} , Eu^{3+} 共存での CV 測定結果

(2) NaCl-2CsCl 中のウランイオンの CV 測定実験

UO_2Cl_2 を添加した NaCl-2CsCl の CV 測定を行った結果, グラッシーカーボン作用極を用いた場合, 図 3 に示すように還元電流が UO_2Cl_2 濃度に従って増加し, 図 4 に示すように還元電流値が, CV 理論に示される電位掃引速度 V_{sweep} の平方根と UO_2Cl_2 濃度 C との積 ($V_{\text{sweep}}^{1/2} \cdot C$) に比例することを確認した。ただし, 共存する他イオンの還元電位が UO_2 析出電位と近接した場合, UO_2 の還元電流に他イオンの還元電流が加算されるため, 他イオンの濃度が UO_2Cl_2 濃度より低い条件でのみ, この CV 測定による UO_2Cl_2 濃度測定は可能と考えられる。

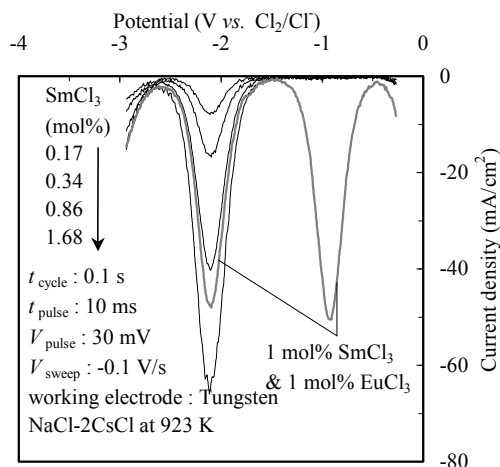
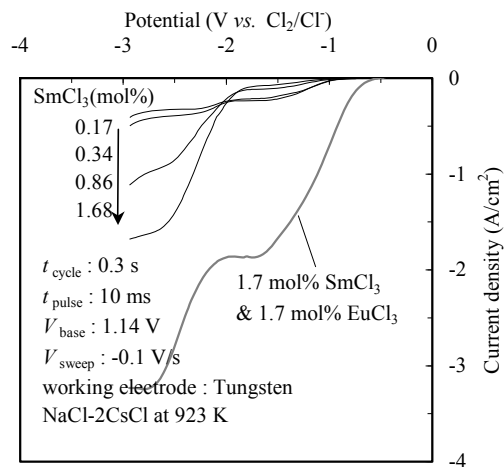
図 3 UO_2Cl_2 の CV 測定結果図 4 還元電流値と UO_2Cl_2 濃度等の相関

(2/5)

2. 各種測定手法による熔融塩中溶存元素濃度の検出可能性の検討

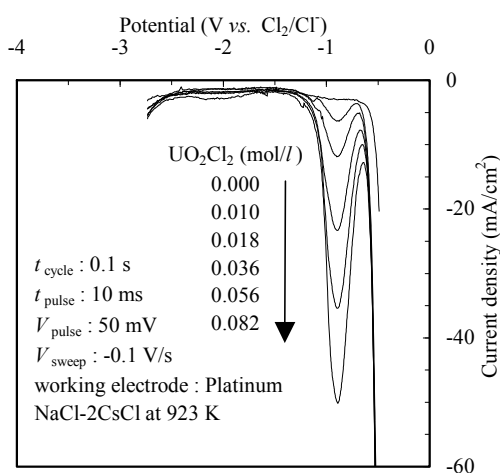
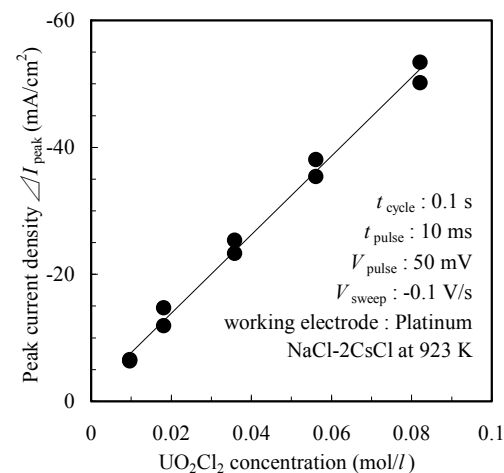
(1) NaCl-2CsCl 中の FP イオン (非 RI) の NPV, DPV 測定実験

NPV や DPV は水溶液系での測定事例はあるが、熔融塩での測定事例は少なく、NaCl-2CsCl を対象とした報告はない。そこで、溶存イオンの検出可能性を確認するため、 SmCl_3 等を添加した NaCl-2CsCl の NPV, DPV 測定を行った。その結果、溶存イオンが単独の場合、NPV, DPV 測定ともイオン濃度測定が可能なが分かった。しかし、図 5 に示す DPV 測定の方が図 6 の NPV 測定に比べてイオン種を容易に区別でき、イオン濃度測定手法として優れていた。

図 5 Sm^{3+} の DPV 測定結果図 6 Sm^{3+} の NPV 測定結果

(2) NaCl-2CsCl 中のウラニルイオンの DPV 測定実験

DPV 測定による NaCl-2CsCl 中の UO_2^{2+} 濃度の測定可能性を確認するため、 UO_2Cl_2 を添加した NaCl-2CsCl の DPV 測定を行った。その結果、 UO_2^{2+} 濃度が 0.1 mol/l 以下の条件で、白金作用極を用いることで図 7, 8 に示すように UO_2^{2+} 濃度測定が可能なが確認した。NaCl-2CsCl 中に溶存するイオン濃度の測定手法として、DPV 測定を有望な手法と判断した。

図 7 UO_2^{2+} の DPV 測定結果図 8 ピーク電流値と UO_2^{2+} 濃度との相関

(3) NaCl-2CsCl 中の FP イオン (非 RI) の交流分極測定実験

SmCl_3 を添加した NaCl-2CsCl の交流分極測定を行ったが、 SmCl_3 添加によるインピーダンス特性の変化は小さく、交流分極測定によるイオン濃度測定は困難と判断した。

(3/5)

3. 溶融塩中元素濃度測定に適した測定法の検討

(1) DPV 測定による NaCl-2CsCl 中の Sm^{3+} 濃度検出性確認実験

溶存イオン濃度測定手法に DPV 測定を適用するには、適切な測定条件を把握する必要がある。測定条件の検討は、迅速な測定を目指すために電位掃引速度 V_{sweep} を -0.1V/s とし、パルス周期 t_{cycle} $0.1\sim 0.2\text{s}$ 、パルス幅 t_{pulse} $10\sim 20\text{ms}$ 、パルス電圧 V_{pulse} $10\sim 50\text{mV}$ の条件で、 SmCl_3 等を添加した NaCl-2CsCl の DPV 測定を行った。その結果、パルス印加 1ms 前の電流値 I_{step} とパルス終端 1ms 前の電流値 I_{pulse} の差 $\Delta I (=I_{\text{pulse}} - I_{\text{step}})$ のピーク値 ΔI_{peak} は、パルス電圧 V_{pulse} 毎に、 Sm^{3+} 濃度と良好な直線関係 (図 10) を示した。また、複数の希土類イオン (Nd^{3+} , Ce^{3+} , La^{3+} , Sm^{3+} , Pr^{3+} , Eu^{3+}) が共存しても、図 11 に示すように Sm^{3+} の還元ピーク電流値 ΔI_{peak} は Sm^{3+} 単独条件と同等な値を示した。適切な測定条件として、 $V_{\text{sweep}} = -0.1\text{V/s}$, $t_{\text{cycle}} = 0.1\text{s}$, $t_{\text{pulse}} = 10\text{ms}$, $V_{\text{pulse}} = 50\text{mV}$ を選択し、酸化物電解法プロセスの想定 Sm^{3+} 濃度 $0.01\sim 0.2\text{mol/l}$ において、図 12 に示す ΔI_{peak} から誤差 $\pm 10\%$ で Sm^{3+} 濃度を定量でき、検出時間も 10 分以内で可能なことを確認した。

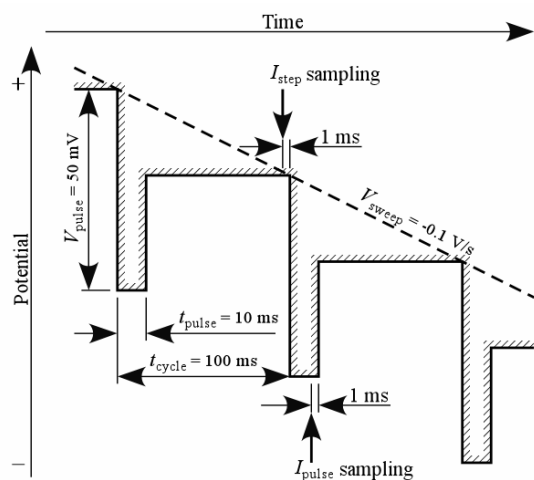


図 9 DPV 測定電位掃引パターン

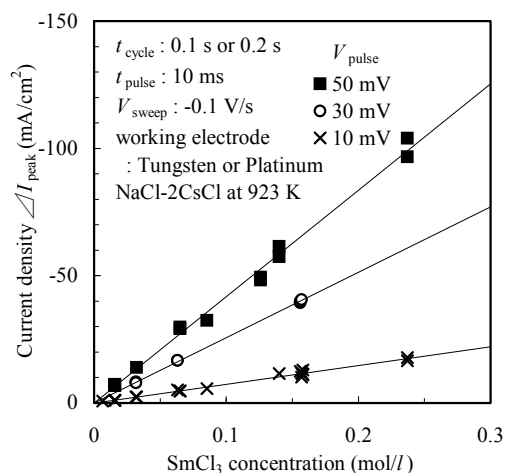


図 10 測定条件による電流値の影響

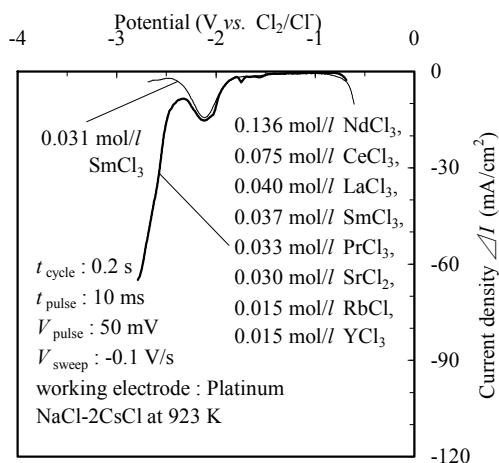
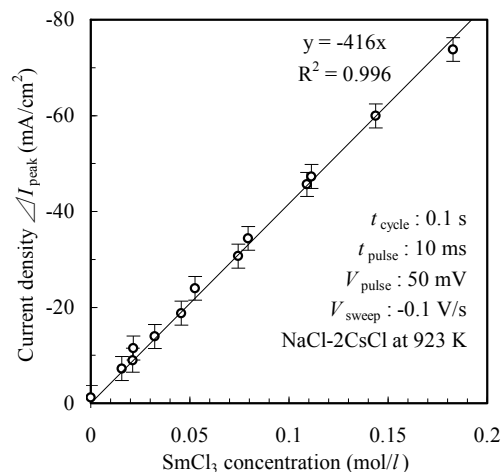


図 11 イオン共存下での DPV 測定結果

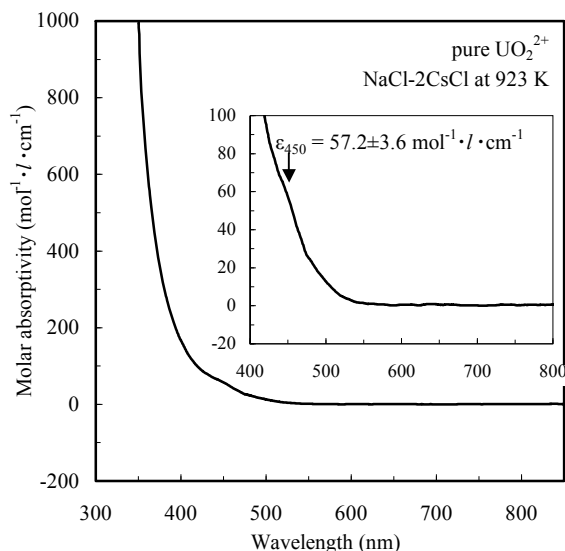
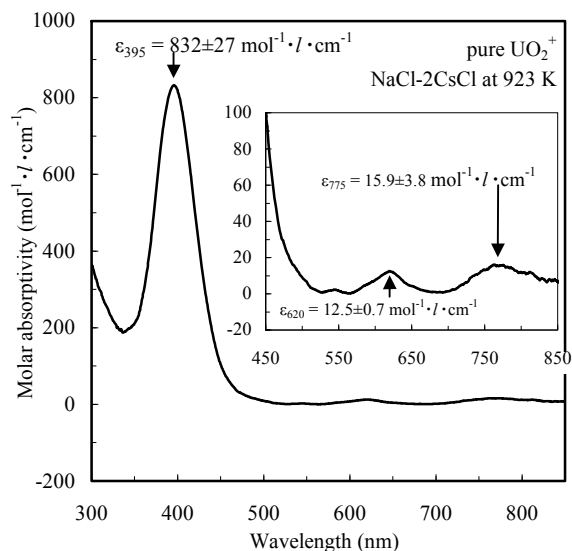
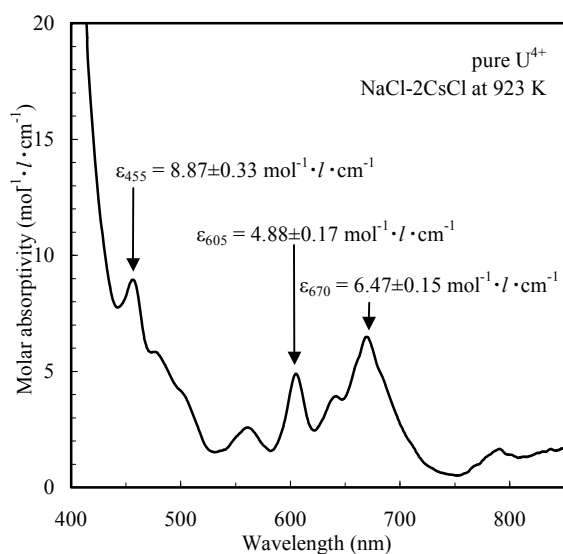
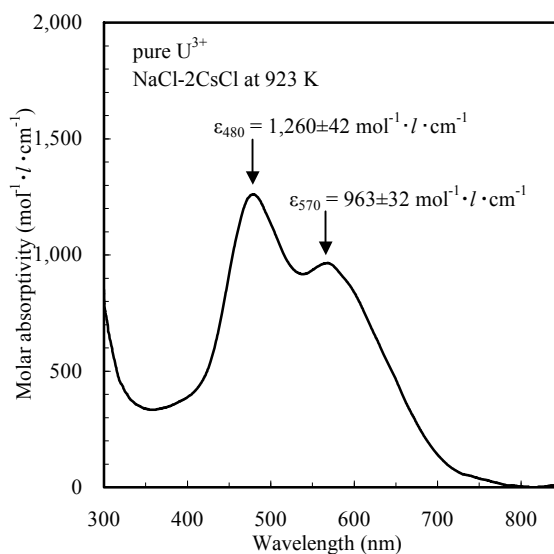
図 12 ピーク電流値と Sm^{3+} 濃度の相関(2) NaCl-2CsCl 中の $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$, $\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+}$ の酸化還元平衡電位測定実験

NaCl-2CsCl 中の $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$ 平衡電位は不明である。そこで、吸収スペクトルから UO_2^{2+} と UO_2^+ の濃度比を測定して自然電位との関係から 923K の NaCl-2CsCl 中の $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$ 標準酸化還元平衡電位 $-0.903 \pm 0.007\text{V}$ を求めた。同様に、 $\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+}$ 平衡電位 $-1.481 \pm 0.004\text{V}$ を求めた。

(4/5)

(3) NaCl-2CsCl 中の UO_2^{2+} , UO_2^+ , U^{4+} , U^{3+} の吸収スペクトル測定実験

上記(2)の UO_2^{2+} 等の濃度を吸収スペクトルから算出するため、図 13～16 に示す NaCl-2CsCl 中における UO_2^{2+} , UO_2^+ , U^{4+} , U^{3+} の吸収スペクトルを測定し、これらイオンの吸収バンドのモル吸光係数を求めた。

図 13 UO_2^{2+} の吸収スペクトル図 14 UO_2^+ の吸収スペクトル図 15 U^{4+} の吸収スペクトル図 16 U^{3+} の吸収スペクトル

(4) 酸素雰囲気下でのオキシ塩化物の沈殿平衡反応測定実験

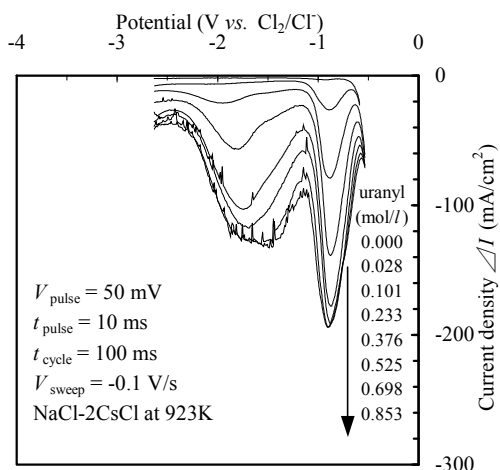
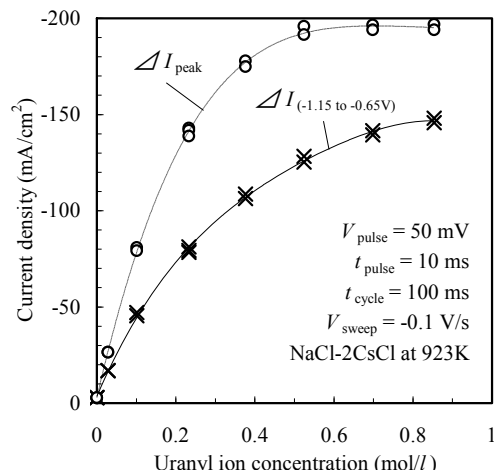
酸化物電解法プロセスでは乾燥空気雰囲気を想定しているが、酸素雰囲気下での熔融塩中の溶存イオンの挙動は明らかにされていない。そこで、酸素雰囲気下での NaCl-2CsCl 中における Sm^{3+} , Ce^{3+} , Nd^{3+} 及び U^{4+} , UO_2^{2+} の挙動を評価するため、熔融塩中に酸素ガスを供給して吸収スペクトルの変化等を調査した。その結果、供給された酸素によって、 Sm^{3+} は SmOCl , Ce^{3+} は CeO_2 , Nd^{3+} は NdOCl を生成析出し、 U^{4+} は UO_2^{2+} へ変化し、 UO_2^{2+} は変化が見られなかった。なお、溶存イオン沈殿平衡調査のために酸素イオン濃度センサーの製作を試みたが、試作センサーの測定値が不安定なため、詳細な沈殿平衡反応の測定は断念した。

(5/5)

4. 溶融塩中元素濃度測定技術の確認試験（ウラン試験）

(1) DPV 測定による NaCl-2CsCl 中の UO_2^{2+} 高濃度測定実験

酸化物電解法プロセスでは UO_2^{2+} 濃度 1~2mol/l 程度を想定しているため、 UO_2^{2+} 濃度が高い条件で DPV 測定による UO_2^{2+} 濃度測定の可能性を確認した。その結果、 UO_2^{2+} 濃度が高くなるに伴い、 $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$ 平衡電位（-0.903V）付近のピーク電流値 ΔI_{peak} が増大し（図 17）、0.5mol/l 以上で ΔI_{peak} が飽和すること（図 18 中の破線）から、 ΔI_{peak} から定量可能な UO_2^{2+} 濃度は 0.4mol/l（5wt%）以下と考えられる。次に、測定電流 ΔI の波形に着目して -1.15~-0.65V の ΔI の平均値 $\Delta I_{(-1.15 \text{ to } -0.65 \text{V})}$ を算出して UO_2^{2+} 濃度との関係をまとめた結果（図 18 中の実線）、 UO_2^{2+} 濃度が 0.5mol/l 以上の条件でも $\Delta I_{(-1.15 \text{ to } -0.65 \text{V})}$ の増加傾向が確認できることが分かった。

図 17 UO_2^{2+} 高濃度条件での DPV 測定結果図 18 UO_2^{2+} 濃度と測定電流値の相関

(2) DPV 測定による酸化物電解法プロセス模擬環境での溶存イオン濃度測定実験

UO_2^{2+} 濃度 0.4mol/l、0.8mol/l の酸化物電解法プロセス模擬溶融塩を調製し、DPV 測定により Pd^{2+} 及び UO_2^{2+} の溶存が容易に把握できることを確認した（図 19）。引き続き、DPV 測定により溶存イオン濃度を確認しながら、白金族（Pd）除去及び UO_2 析出回収を行った結果、 Pd^{2+} 及び UO_2^{2+} の残留イオン濃度を図 20 に示す DPV 測定電流値から算出できることを確認した。一方、酸化物電解法プロセスの白金族除去条件（ UO_2^{2+} 濃度 0.8mol/l 以上）では、Pd と UO_2 の共析が観察され、プロセスの UO_2^{2+} 濃度を 0.5mol/l 以下に抑える必要があると考えられる。

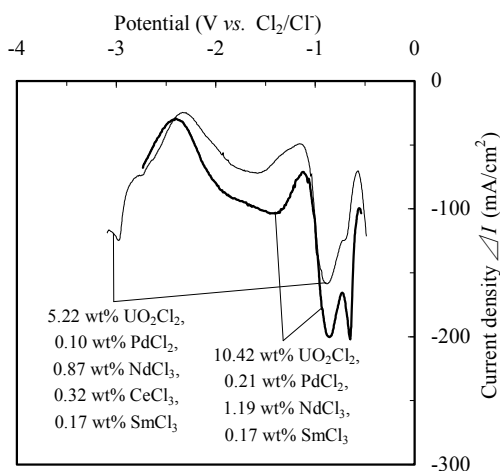


図 19 模擬溶融塩初期状態での DPV 測定結果

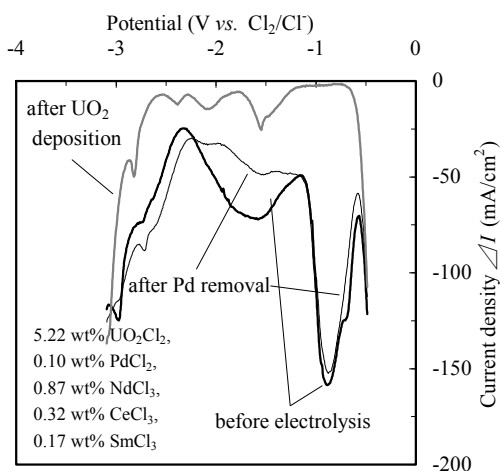


図 20 プロセス模擬条件での DPV 測定結果

【研究成果等発表状況】			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
1. 学術誌論文（原著研究論文）			
1.1	永井崇之	“ディフアレシヤルパルスボルタンメトリーによる NaCl-2CsCl 熔融塩中 Sm^{3+} 濃度のその場測定”， 日本原子力学会和文論文誌， 2 [4]，pp.580-584 (2003)	2.(1) 3.(1)
1.2	T.Nagai, T.Fujii, O.Shirai, and H.Yamana	“Study on Redox Equilibrium of $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^{+}$ in Molten NaCl-2CsCl by UV-Vis Spectrophotometry”， Journal of Nuclear Science and Technology， 41 [6]，pp.690-695 (2004)	3.(2) 3.(3)
1.3	永井崇之, 小林雄一, 田中仁	“空気吹込みによる NaCl-2CsCl 熔融塩中 Sm^{3+} の挙動”， 日本原子力学会和文論文誌， 3 [3]，pp.242-248 (2004)	3.(4)
1.4	永井崇之	“ディフアレシヤルパルスボルタンメトリーによる NaCl-2CsCl 熔融塩中 Sm^{3+} 濃度測定への Pd^{2+} 共存の影響”， 日本原子力学会和文論文誌， 4 [1]，pp.87-91 (2005)	3.(1)
1.5	T.Nagai, A.Uehara, T.Fujii, O.Shirai, and H.Yamana	“Study on Redox Equilibrium of $\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+}$ in Molten NaCl-2CsCl by UV-Vis Spectrophotometry and Cyclic voltammetry”， Journal of Nuclear Science and Technology，（投稿手続中）	3.(2) 3.(3)
2. 学会会議論文（会議論文集あり）			
3. 学会等口頭発表（概要集程度）			
3.1	永井崇之, 明珍宗孝, 藤井俊行, 山名元	“NaCl-2CsCl 熔融塩中のウランの吸光スペクトル”， 第2回「熔融塩技術と計算シミュレーション」ワークショップ，原 研東海，2002年12月3日	3.(3)
3.2	藤井俊行, 白井理, 山名元, 永井崇之, 佐藤修彰, V.V.Kolin	“塩化物熔融塩中のランタニドおよびウランの吸光スペクトル”， 第3回「熔融塩技術と計算シミュレーション」ワークショップ，原 研東海，2003年12月16日	3.(3)
3.3	藤井俊行, 永井崇之, V.V.Kolin, 佐藤修彰, 白井理, 山名元	“塩化物熔融塩中における f 元素の吸光スペクトル”， 「アクチニド元素の化学と工学」専門研究会，京都大学原子炉実験 所，2004年2月16-17日	3.(3)
3.4	永井崇之	“吸収スペクトル測定による NaCl-2CsCl 中の $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^{+}$ および $\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+}$ の平衡に関する研究”， 「アクチニド元素の化学と工学」専門研究会，京都大学原子炉実験 所，2004年2月16-17日	3.(2) 3.(3)
3.5	藤井俊行, 白井理, 永井崇之, 山名元	“熔融塩中における f 元素の紫外可視吸光分光研究(1)－塩化物熔融 塩中における Nd(III)と Pr(III)の吸収スペクトル”， 日本原子力学会「2004 年春の年会」，B51，岡山大学，2004 年 3 月 29-31 日	3.(3)
3.6	山名元, 藤井俊行, 白井理, 坂村義治, 永井崇之	“熔融塩中における f 元素の紫外可視吸光分光研究(2)－CaCl ₂ 熔融 塩中での Nd(III)の紫外可視吸光分光”， 日本原子力学会「2004 年春の年会」，B52，岡山大学，2004 年 3 月 29-31 日	3.(3)
3.7	永井崇之, 藤井俊行, 白井理, 山名元	“熔融塩中における f 元素の紫外可視吸光分光研究(3)－NaCl-2CsCl のウラン，ウランイオンの吸収スペクトル”， 日本原子力学会「2004 年春の年会」，B53，岡山大学，2004 年 3 月 29-31 日	3.(2) 3.(3)
3.8	白井理, 永井崇之, 藤井俊行, 山名元	“熔融塩中における f 元素の紫外可視吸光分光研究(4)－ランタニド の電極反応と電解分光測定”， 日本原子力学会「2004 年春の年会」，B54，岡山大学，2004 年 3 月 29-31 日	3.(2) 3.(3)

【研究成果等発表状況】(続き)			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
3.9	上原章寛, 藤井俊行, 白井理, 山名元, 永井崇之	“熔融塩中におけるf元素の紫外可視近赤外吸光分光研究(1)ー塩化物熔融塩中におけるPr(III)の吸収スペクトル”, 日本原子力学会「2004年秋の大会」, H16, 京都大学, 2004年9月15-17日	3.(3)
3.10	永井崇之, 藤井俊行, 白井理, 山名元	“熔融塩中におけるf元素の紫外可視近赤外吸光分光研究(2)ーNaCl-2CsCl, 3LiCl-2CsCl中のウラニルイオンの吸収スペクトル”, 日本原子力学会「2004年秋の大会」, H17, 京都大学, 2004年9月15-17日	3.(2) 3.(3)
3.11	白井理, 上原章寛, 藤井俊行, 山名元, 永井崇之, V.V.Kolin	“熔融塩中におけるf元素の紫外可視近赤外吸光分光研究(3)ープルトニウムの吸光スペクトル測定”, 日本原子力学会「2004年秋の大会」, H18, 京都大学, 2004年9月15-17日	3.(3)
3.12	白井理, 藤井俊行, 上原章寛, 山名元, 永井崇之, 明珍宗孝	“熔融 NaCl-2CsCl 系でのプルトニウムの吸光分光測定”, 第4回「熔融塩技術と計算シミュレーション」ワークショップ, 原研東海, 2005年12月20日	3.(3)
3.13	永井崇之	“ディファレンシャルパルスボルタンメトリーによる NaCl-2CsCl 中のサマリウムイオン濃度測定”, 第4回「熔融塩技術と計算シミュレーション」ワークショップ, 原研東海, 2005年12月20日	3.(1) 4.(2)
3.14	上原章寛, 藤井俊行, 白井理, 山名元, 永井崇之, 佐藤修彰	“水和物熔融体中におけるウランの電気化学および分光学的研究”, 日本原子力学会「2005年春の年会」, C40, 東海大学, 2005年3月29-31日	2.(2)
3.15	藤井俊行, 白井理, 上原章寛, 永井崇之, 山名元, 田山敏光, 明珍宗孝	“熔融塩中におけるf元素の紫外可視近赤外吸光分光研究(4)ープルトニウムの吸光スペクトル測定(2)”, 日本原子力学会「2005年春の年会」, N19, 東海大学, 2005年3月29-31日	3.(3)
3.16	永井崇之, 上原章寛, 藤井俊行, 白井理, 山名元	“ディファレンシャルパルスボルタンメトリーによる NaCl-2CsCl 熔融塩中のウラニルイオン濃度のその場測定”, 日本原子力学会「2005年春の年会」, N20, 東海大学, 2005年3月29-31日	4.(1) 4.(2)
4. 学術誌解説・総説			
5. 依頼講演（内部は除く）			
6. その他（サイクル機構技報等）			
7. 社内研究報告書			
7.1	永井崇之	“熔融塩電解プロセス制御に資する電気化学的要素濃度測定手法の研究”（登録手続中）	全体
8. 特許			
8.1	永井崇之, 山名元, 白井理, 藤井俊行	“塩化物熔融塩中の溶存イオンの価数調整方法およびその装置” (出願番号 2004-48271, 2004年2月24日出願)	3.(2) 3.(3)

3.1.7 【H15-1】原子力施設非破壊検査用小型高輝度電子銃の実用化研究

平成 18 年 3 月 31 日

【No.】 研究テーマ名	【H15-1】原子力施設非破壊検査用小型高輝度電子銃の実用化研究		
研究実施者	山崎 良雄		
研究実施場所	大洗工学センター, 高エネルギー加速器研究機構 加速器研究施設		
研究期間	平成 15 年 4 月 1 日 ~ 平成 18 年 3 月 31 日		
研究費用	2,365 万円	内訳	H15 年度 10,517 (7,000) (千円) H16 年度 8,818 (7,000) H17 年度 4,313 (4,500)
【研究目標】 本研究の目標は、次の 2 つである。 (1) 高量子効率・長寿命フォトカソードの作製・装着技術及びマルチバンチビーム安定生成技術を確立し、S バンド加速周波数(2856MHz)で動作するマルチバンチフォトカソード高周波 (RF : Radio Frequency) 電子銃の実用見通しを得る。 (2) 小型高輝度高周波電子銃を用いた可搬型非破壊検査装置の概念を提示する。			
【研究計画の概要】 現在、原子炉からの使用済み燃料集合体の非破壊検査を行う方法として、電子線形加速器を用いた X 線 CT の研究が進んでおり、分解能 $300\mu\text{m}$ 程度の断面形状測定が可能となっている。ここで用いられている加速器は、DC 高電圧電源を使用する静電加速型電子銃とマイクロ波加速管からなり、大型で専用の加速器施設が必要である。この装置に対し、更なる高分解能 ($10\mu\text{m}$ 以下) が達成され、小型可搬化が実現できれば、より汎用性の高い非破壊検査に応用できる。 本研究では、最近の加速器技術の進歩で開発された高周波電子銃を、原子力施設の保守・保全用の非破壊検査装置に適応させるための研究を行う。この電子銃の加速電界強度はカソード表面で 100MV/m 以上が可能であり、小型で高エネルギーの電子ビームが実現でき、高ピーク電流 (3nC/bunch)、高輝度 (数 $\pi\text{mm} \cdot \text{mrad}$) ビームが生成できる。これを電子源として用いれば、従来の装置に比べ、漏洩線量が少なく SN 比が高い X 線検出が可能となり、分解能の大幅な改善が期待できる。 本研究を実現するために、高エネルギー加速器研究機構、先端加速器施設 (以下 KEK-ATF と略す) において、新たに開発する高周波電子銃専用のテストベンチでデータを取得する。特に本高周波電子銃で問題となる高量子効率、長寿命のフォトカソードの生成および装着技術を確立し、安定した高輝度マルチバンチビームの安定発生をテストベンチで実証する。これらの結果を踏まえ、原子力応用のための可搬型非破壊検査装置に繋がる小型高輝度高周波電子銃の実用機を実現できるような詳細な設計研究を行う。			

【研究成果の概要】

1. 高輝度マルチバンチフォトカソード高周波電子銃の開発実証

① 高周波電子銃のテストベンチの開発

高輝度のマルチバンチビームを発生させ実証するために、専用の高周波電子銃のテストベンチが必要となったため、KEK-ATF のサイト内に構築し、ビームを輸送、評価するための計測制御系も整備した。

② フォトカソード作製および移送系装置の開発

本高周波電子銃には、高量子効率、長寿命のカソードが必要となるが、本装置では、本体装置の小型化のために、カソード薄膜を作製する蒸着系と電子銃への装着システムとを分離した。量子効率の低下を極力押さえ、作製したカソードの移送システムを確立した。また、カソードは、高周波電子銃内での過酷な使用条件でも量子効率が 1% 程度と高く、寿命も数ヶ月のビーム供給に耐えた。

③ 高輝度マルチバンチビームの発生実験

本カソード作製、移送系を用いて、カソードを高周波電子銃に装着し、マルチバンチビームの発生実験を行った。その結果、ビームエネルギー 5 MeV 程度で 20 バンチ以内であれば、5nC/bunch の高電荷量の発生に成功し、また、100 バンチにおいては、3nC/bunch の高電荷量の安定発生に成功した。ビームの輝度も $10\pi\text{ mm} \cdot \text{mrad}$ 程度が達成できた。これらの結果は、マルチバンチレーザーのパルス間隔 2.8nsec で発生されたものとしては、世界初の成果として評価された。

2. 小型高輝度 RF 電子銃を用いた可搬型非破壊検査装置の概念設計

① 高周波電子銃の非破壊検査装置への適応の概念設計

テストベンチで実証されたマルチバンチ高周波電子銃のビーム性能は、従来の非破壊検査装置に適応されている加速器からのビームを大幅に高性能化したもので、発生できる X 線もピーク値が格段に高くなることから、CT 像の SN 比の大幅な向上が可能となった。

② 装置の小型化のための高周波発生源の概念構築

従来の高周波発生源は大型であった。そこで、クライストロン（高周波発生のための真空管）をマルチビーム化し発生電流量を増加させることで、動作電圧を大幅に下げた。動作電圧が下がることで、パワー半導体の IGBT のスタック回路が使用可能となり、従来必要であった高電圧化のためのパルストランスが不要となり、収納する絶縁油タンクも必要なく、すべて気中での構築により高周波発生系全体の大幅な小型化が可能となり、可搬化の実現見通しを得た。

【研究目標に対する達成度】

本研究の目標「(1) 高性能高輝度マルチバンチフォトカソード高周波電子銃の実用見通しを得る。」に関しては、テストベンチにおいてビームテストで実証し、100 バンチのマルチバンチビームの安定発生と 3nC/bunch という高電荷量を発生できたことで、従来加速器のビーム性能を大幅に高性能化させるという目標を達成できたと考える。

「(2) 小型高輝度高周波電子銃を用いた可搬型非破壊検査装置の概念を提示する。」に関しては、従来大型であった高周波発生源を、クライストロンのマルチビーム化で動作性能を見直し、動作電圧を大幅に低下させることで、高電圧大電流のスイッチングにパワー半導体の IGBT のスタック回路を採用することで、本来必要であったパルストランスや絶縁油タンクなどが不要になることで、小型化可搬化の実現見通しの概念設計を構築できたと考える。よって、小型な高周波電子銃との組み合わせで、装置小型化の概念設計という目標を達成できたと考える。

【研究成果の波及効果及び展望】

1. 現在までの波及効果

本研究の成果発表によって、高周波電子銃からのマルチバンチビームの発生が、上記のような性能で達成できたことで、従来加速器で達成できないようなビーム性能が、小型装置で可能であることに対する業界関係者への反響は大きかった。また、今回使用したカソードである Cs-Te の半導体薄膜がこのような性能を可能としたことで、その作製、制御が難しいとされていたが、高周波電子銃に低量子効率の金属カソードを使用しているグループが、この半導体薄膜への大いなる興味を示し始めた。半導体薄膜の量子効率は、金属に比べ、2桁ほど高いことから、光電子励起のための紫外線レーザー出力への負担が大幅に減る。

KEK のこの高周波電子銃は、KEK での内作が可能で、そのシステムを標準化し、全国の大学や企業へ普及するプロジェクトが立ち上がった。高性能で小型な電子源として、利用研究を考慮している他研究機関からすでに数件の問い合わせが来ている。また、国内への波及に留まらず、特に中国や韓国などのアジア諸国が、高周波電子銃の共同開発を申し入れてきた。こちらの方はさらに簡略化、標準化を目指し、アジア全体への普及を考え始めている。

2. 今後期待される波及効果と展望

本研究の高周波電子銃テストベンチは、元々放射線医学総合研究所の先進小型加速器事業の一環で進められてきたもので、高周波電子銃のビームと光共振器に蓄積されたレーザーとの逆コンプトン散乱を用いて強力な単色 X 線発生を行い、心臓の冠状動脈のアンジオグラフィを目指したものであった。従来は、大腿部の動脈からカテーテルを心臓冠状動脈近くまで挿入し、造影剤を随時注入しながら X 線管からの X 線を用いていた。ちなみに、1 回の検査や処置に数 100 枚の X 線写真を撮るくらいの線量照射に匹敵する。X 線の輝度が格段に改善できれば、造影剤の量が大幅に減らせるので、上記の冠状動脈付近での造影剤導入が不要となり、静脈からの注射による造影剤導入で十分なものとなる。すでに、KEK や Spring8 の放射光施設で実証されている技術で、患者への負担や被ばく線量の大幅な改善が達成できていて大きな反響を呼んでいる。しかしながら、大型の放射光施設は数が限られているだけでなく、患者自身をその場に連れて行くことが必要で、患者の精神的な不安やプライバシーが問題となっている。そこで、高周波電子銃を用いた小型単色 X 線装置が可能となれば、病院サイトへの直接設置が可能となり、数の普及により、検査や治療の国民への機会拡大に繋がる。さらに、ガンマナイフに代表される放射線によるがん治療の分野においては、ガンマ線源として放射性同位元素を用いるが、高周波電子銃のシステムで置き換えることができれば、施設管理上の軽減がされるばかりか、ビームの高度調整が可能となり、より高性能ながん治療装置としても注目されつつある。

産業分野でも滅菌や化学生物反応のための材料照射、もちろん大型装置の非破壊検査も小型高性能な電子源は期待されている。一番の理由は、設置サイトの広さの制限で、小型化さらには可搬化ができればその適応範囲は計り知れない。

【研究成果の説明】

1. 高輝度マルチバンチフォトカソード高周波電子銃の開発実証

① 高周波電子銃のテストベンチの開発

高輝度のマルチバンチビームを発生させ実証するために、専用の高周波電子銃のテストベンチが必要となったため、KEK-ATF のサイト内に構築し、ビームを輸送、評価するための計測制御系も整備した。高周波電子銃後方には、カソードを真空雰囲気内で装着可能なロードロックシステムがある。電子銃のビームを後方に収束させて輸送するためのソレノイドコイルに電子銃そのものが装着されている。また、レーザービームがカソードに正確に垂直入射を可能にするためにシケインを設けた。その後方に、マルチバンチビームを評価するためのビームプロファイル、位置モニター、エネルギー分析電磁石等が設置されている。

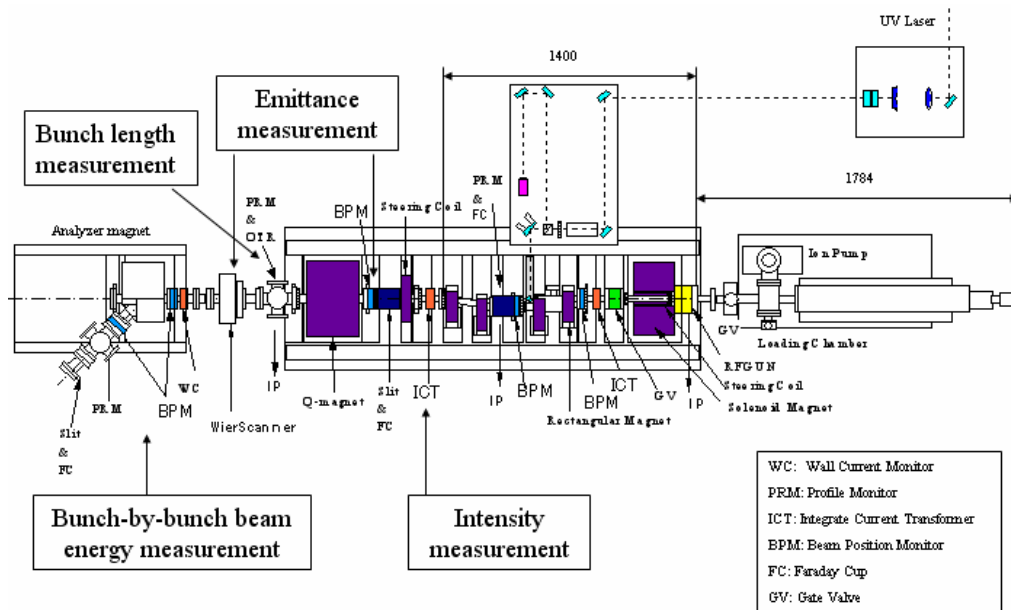


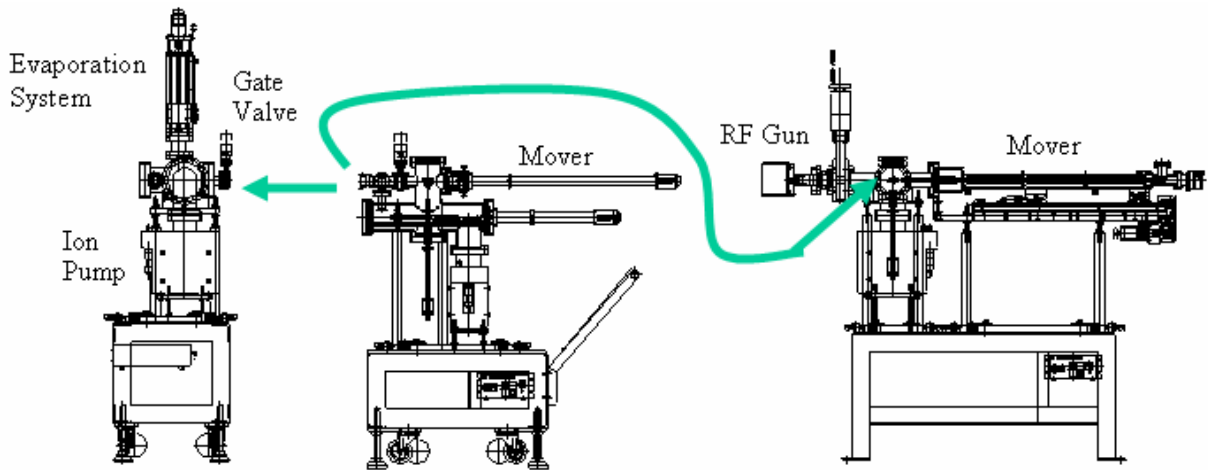
図1 高周波電子銃専用テストベンチ概要図

表1 テストベンチの主な目標パラメータ

Beam energy (max.)	7MeV
Bunch charge(max.)	5nC/bunch
Number of bunches (max.)	100/pulse
Repetition rate (max.)	12.5Hz
RF frequency	2856MHz
Bunch frequency	357MHz
Bunch separation	2.8nsec
Photo-cathode	Cs ₂ Te
QE(aim)	>3%
Laser energy (aim)	>3 μ J/bunch
Laser wavelength	266nm
Laser width (FWHM)	10psec
RF pulse width (max.)	4 μ sec
RFGUN input power (max.)	20MW
Solenoid magnetic field (max.)	3.2kGauss
Chicane magnetic field	500Gauss

② フォトカソード作製および移送系装置の開発

本高周波電子銃には、高量子効率、長寿命のカソードが必要となるが、本装置では、本体装置の小型化のために、カソード薄膜を作製する蒸着系と電子銃への装着システムとを分離した。量子効率の低下を極力押さえ、作製したカソードの移送システムを確立した。また、カソードは、高周波電子銃内での過酷な使用条件でも量子効率が1%程度と高く、寿命も数ヶ月のビーム供給に耐えた。



(ア) 高輝度マルチバンチビームの発生実験

本カソード作製、移送系を用いて、カソードを高周波電子銃に装着し、マルチバンチビームの発生実験を行った。その結果、ビームエネルギー5 MeV程度で20バンチ以内であれば、5nC/bunchの高電荷量の発生に成功し、また、100バンチにおいては、3nC/bunchの高電荷量の安定発生に成功した。ビームの輝度も $10\pi\text{ mm} \cdot \text{mrad}$ 程度が達成できた。これらの結果は、マルチバンチレーザーのパルス間隔2.8nsecで発生されたものとしては、世界初の成果として評価された。現時点では、マルチバンチレーザーのサグがあるが、ほぼ一様なマルチバンチ電子ビームが発生できた。

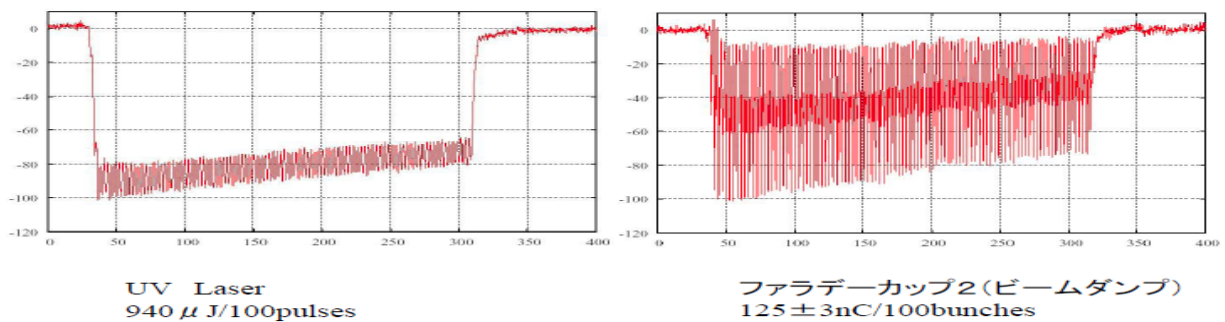


図3 100バンチのマルチバンチビームの発生例 (左図：レーザー、右図電子ビーム)

2. 小型高輝度 RF 電子銃を用いた可搬型非破壊検査装置の概念設計

① 高周波電子銃の非破壊装置への適応の概念設計

テストベンチで実証されたマルチバンチ高周波電子銃のビーム性能は、従来の非破壊装置に適応されている加速器からのビームを大幅に高性能化したもので、発生できる X 線もピーク値が格段に高くなることから、CT 像の SN 比の大幅な向上が可能となった。特に、ピーク電荷量の高さが格段に上がっていることが注目される。

表 2 従来加速器と本高周波電子銃との性能比較

	従来加速器	高周波電子銃
ビームエネルギー	12 MeV	5MeV
装置長さ	3 m	0.08 m
エミッタンス ビームの質	100 π mm $\cdot$ mrad	10 π mm $\cdot$ mrad
エネルギー幅	～10%	～1%
ピーク電荷量 (バンチあたり)	60 pC	5000 pC (20 バンチ) 3000 pC (100 バンチ)
X 線 CT としての性能	300 μ m (X 線 3～6MeV)	? SN 比の大幅な向上による 分解能改善が期待される

② 装置の小型化のための高周波発生源の概念構築

従来の高周波発生源は大型である。40MW 級のクライストロンの印加電圧は 250kV と非常に高く、気中での放電対策を取ることが困難である。1 次側の電源には、パルスフォーミングネットワークと呼ばれるコンデンサーとダイオードのスタックからなる巨大な充電部があり、その電圧は典型的には、25kV 程度である。そこで、250kV の高電圧パルスを発生させるためには、絶縁油タンクに組み込まれたパルストランスが必要とされた。さらに、1 次側のスイッチングには大電流に耐えるサイラトロンとよばれる放電ギャップ真空管スイッチング素子が必要で、その動作も不安定であることがあり、消耗品である。

そこでこの大型の高周波源を小型化するための方策を検討した。その結果、第 1 にクライストロン（高周波発生のための真空管）をマルチビーム化し発生電流量を増加させることで、動作電圧を大幅に下げた。第 2 に動作電圧が下がることで、パワー半導体の IGBT のスタック回路が使用可能となり、従来必要であった高電圧化のためのパルストランスが不要となり、収納する絶縁油タンクも必要なく、すべて気中での構築により高周波発生系全体の大幅な小型化が可能となり、可搬化の実現見通しを得た。すでに、L バンド帯（1300MHz）のマルチビームクライストロンは開発が進んでおり、一部標準化され市販品もある。ある程度のスペックの S バンド帯マルチビームクライストロンは、そのスケールダウンで開発製作可能と考える。また、パワー半導体素子の開発も目覚しく、その進歩を待てば、さらにスタック数の少ない小型の半導体スイッチング系の構築も可能となるであろう。以上 2 点を根拠に、表 3 に高周波系の小型化概念の構築案を提示し、それを元に、全体の装置概念図を図 4 に示した。X 線発生部と CT 部の検討が不十分であるが、電子ビームの性能が良いので、ビームの高速スキャンを前提にした。第 5 世代の CT にも適応可能と考える。

表 3 高周波源の小型化の概念

クライストロン 出力 40MW(4 μ s, 50pps) 高電圧 250kV, 大電流 280A 電源 パルストランス 1:10 PFN→25kV, 2800Aの1次側スイッチング サイクロン(真空管スイッチング)	小型化	マルチビームクライストロン 出力 40MW(4 μ s, 50pps) 高電圧 25kV, 大電流 2800A 電源 パルストランス 省略 油タンクなし IGBTスタック→25kV, 2800A 直列であれば2000Aまでは可能 並列であればさらに大電流 原理的に可能 電圧は50kVくらいまで可能
---	---	--

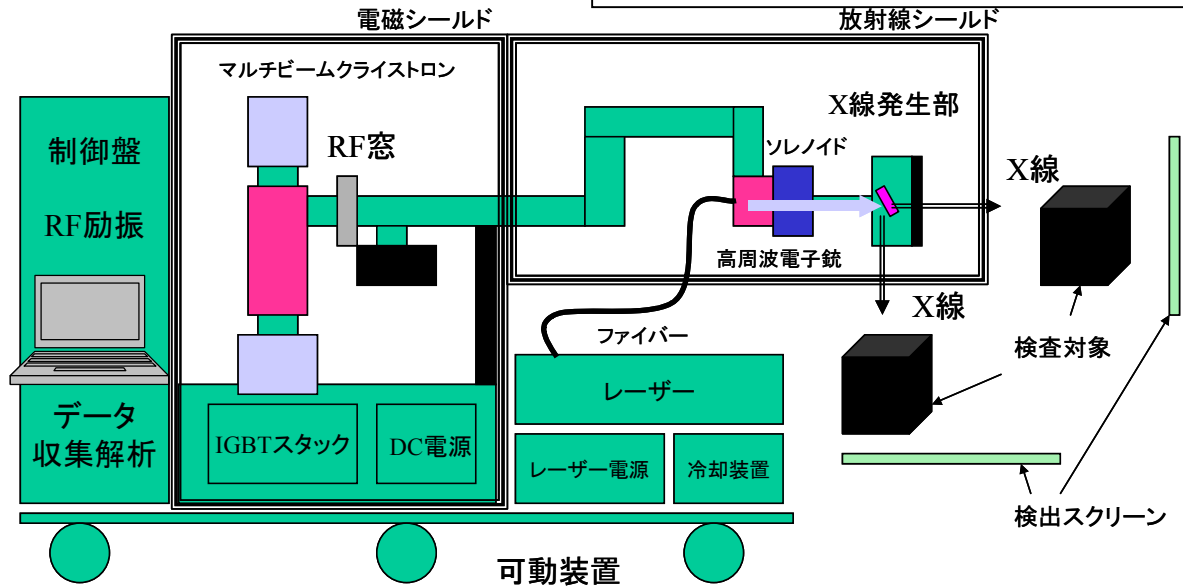


図 4 小型可搬型非破壊 X 線装置の概略図

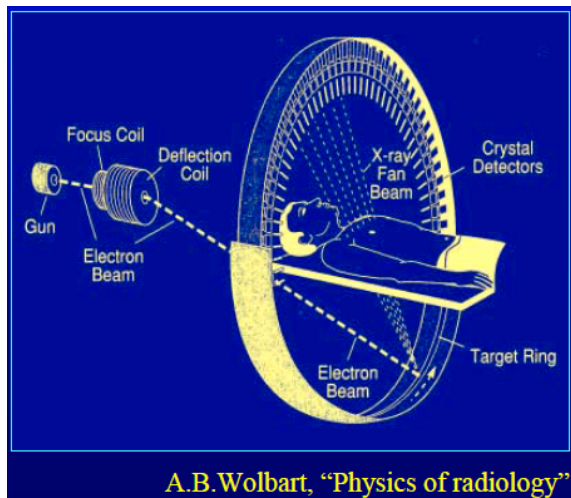


図 5 医療利用の第 5 世代の 3 次元 X 線 CT スキャンに機械的な動きを必要としない。ビームのみの高速スキャンであらゆる高速現象を捉えられる可能性がある。

【研究成果等発表状況】			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
1. 学術誌論文（原著研究論文）			
1.1	K.Hirano, Y.Yamazaki, J.Urakawa, et.al.	“High Intense Multi-bunch Beam Generation by Photo-cathode RF Gun”, Nuclear Instruments and Methods A, to be published.	1.
2. 学術会議論文（会議論文集あり）			
2.1	Y.Yamazaki, K.Hirano, J.Urakawa, et.al.	"Study of photo-cathode RF gun for a high brightness electron beam", 9th European Particle Accelerator Conference(EPAC2004) Proceeding, 2004	1
2.2	K.Hirano, Y.Yamazaki, J.Urakawa, et.al.	“Development of a Multi-bunch Photo-cathode RF Gun System” 9th European Particle Accelerator Conference(EPAC2004) Proceeding, 2004	1.
3. 学会等口頭発表（概要集程度）			
3.1	Y.Yamazaki, K.Hirano, et al.	"Future Plan for Multi-bunch beam generation", the 9th ATF Collaboration Meeting (March, 2004)	1.
3.2	山崎、平野 他	「RF 電子銃のビームトランスポート」、第 14 回加速器科学, 2003	1.
3.3	平野、山崎 他	「マルチバンチフォトカソード RF 電子銃のテストベンチ」, 第 14 回加速器科学, 2003	1
3.4	平野、山崎 他	「ATF入射部の高強度ビーム運転」, 第1回加速器学会, p368, 2004	1
3.5	山崎、平野 他	「フォトカソードRF電子銃における光電子放出特性」, 第2回加速器学会, 2005	1
3.6	平野、山崎 他	「マルチバンチフォトカソードRF電子銃のビームローディング試験」, 第2回加速器学会, 2005	1
3.7	山崎、平野 他	「KEK-ATF RF Gun のレーザーシステムの現状」、第 1 回高周波電子銃研究会、200401	1
3.8	山崎、平野 他	「KEK における Cs-Te カソードの現状」、第 2 回高周波電子銃研究会、200411	1
3.9	山崎、平野 他	「RF 電子銃のフェーズプロット (放出電荷量 vs RF 位相) の研究」、第 3 回高周波電子銃研究会、200511	
3.10	平野、山崎 他	「マルチバンチフォトカソード RF 電子銃のビームテスト」、第 3 回高周波電子銃研究会、200511	

3.1.8 【H15- 2】原子力技術の受容に関する個人及び集団の意思決定過程分析とシミュレーション

平成 18 年 3 月 31 日

【No.】 研究テーマ名	【H15- 2】 原子力技術の受容に関する個人及び集団の意思決定過程分析とシミュレーション		
研究実施者	篠田 佳彦		
研究実施場所	大洗研究開発センター		
研究期間	平成 15 年 4 月 1 日 ～ 平成 18 年 3 月 31 日		
研究費用	800 万円	内訳	H15 (300 万円) H16 (200 万円) H17 (300 万円)
【研究目標】 FBR サイクルや地層処分などのプロジェクトが直面している問題の背景には、社会に密接に関連した様々な要因が浮かび上がり、社会と技術の関わり合いを交えた評価、判断が重要となっている。本研究は、社会的な問題解決に向け、問題の本質把握、解決策の立案、効果の評価が行える社会的問題検討・評価システムを整え、原子力技術の円滑導入に向けての対策の提示を行い、機構の経営戦略や開発方針の策定に資するための情報を提示することを目標とする。			
【研究計画の概要】 ① シミュレーション・システムの構築 社会問題に対する評価ツールとして、原子力に対する賛否動向を再現・予測することを目的としたシミュレーション・システムを作成する。 ② シミュレーション・システムの検証、世論調査の分析 構築したシミュレーション・システムによる算出結果と原子力に対する世論調査結果の対比を行い、一般性・客観性・現象再現性などを評価し、有効性を確認する。 そのため、原子力に関する世論調査結果を収集・分析し、シミュレーション・システムの検証に資する賛否動向データを整理し、調査対象者、時代、地域、状況による差異を考慮して検証すると共にシミュレーション・システムの精緻化を図る。 ③ 社会的問題検討・評価システムの整備・有効性確認（機構の経営戦略、開発方針に有用な情報の提示） 検証したシミュレーション・システムを評価プロセスとして適用し、社会的問題検討・評価システムを整備する。この社会的問題検討・評価システムを用いて、 ・現在実施している PA 対策の社会的効果の評価 ・原子力政策決定過程の違いによる市民の意識変化の評価 ・安心感の向上を意識した技術改善の社会的効果の評価 などを行い、社会的問題検討・評価システムの有効性を確認する。 そこで得られる知見から、FBR サイクルの円滑導入やプルトニウム利用及び核種分離・変換処理研究などに役立つ情報及び社会的問題への対策の提示を行い、機構の経営戦略や開発方針の策定に資する。			

【研究成果の概要】

① シミュレーション・システムの構築

- ・ 各種意識調査から原子力世論形成の仕組みを簡単なモデル化によって表せる可能性を見出し、社会意識の変化から賛否動向を再現するシステムを構築した。しかし、シミュレーション自体としては、予測するためのものには十分には至らず、事実を解釈するものに留まった。

② 世論調査の分析

- ・ 数機関で実施された原子力の賛否を問う継続的な調査結果から、賛否態度の強弱とその背景を考慮した賛否動向変遷を明らかにした。賛否の背景にまで言及したものは始めてである。
- ・ 過半数以上を占める弱い賛成層の両義性とその意識背景の分析から、この層が社会全体での原子力世論形成に及ぼす大きな影響をそのメカニズムと共に明らかにした。
- ・ 原子力の是非に関する賛否を規定する主な要因として、関心（有無）と信頼度、有用性に対する認識度を抽出した。不安を信頼の下位要因ととらえるなど新たな賛否態度構造を提案した。
- ・ 社会情勢や意識の経年変化に着目した分析から「原子力をめぐる社会問題」の状況と本質を示した。世論調査結果を通じて人々の問題意識の動向から（半）定量的に導いた。
- ・ 弱い賛成層は、暗黙的な合意を形成していたが、現在の状況を暗黙的な合意の薄れによって社会の雰囲気を変えたことで推進の躊躇を求めているものと解釈した。これまで、賛成層の一部としてその動向が重要視されていなかったこの層の人々の影響を再認識させた。

③ 機構の経営戦略、開発方針に有用な情報の提示

- ・ 自然科学と人文・社会科学の融合から導かれたリスクの社会的視野での再評価とする概念を提唱し、それが社会問題への対応の中で重要な役割を行うものであることを主張した。
- ・ 社会問題と社会運動（社会的関心の励起）の関係と賛否態度及びその背景から、社会問題に対する対応策を示した。そのために必要となる意識改革を提示した。
- ・ 施設建設や運転に当たっての具体的対応についての考え方を示した。

【研究目標に対する達成度】

原子力をめぐる社会問題に対して、多側面からの視野、特に一般の方々の視野から状況を見つめた。そこで、これまでに実施された意識調査を通じて問題の本質に迫り、社会意識や情勢との関連を明らかにした。その上で問題に対する対応として、具体的な方策を提言するに至った。本研究で目指す目標である「FBR サイクルの円滑導入やプルトニウム利用などの推進に役立つ情報及び対策を提示し、機構の経営戦略や開発方針の策定に資すること」を十分に達成しえたものと判断する。

研究初年から詳細なモデルによる複雑な人工社会シミュレーションを構築した。これは、社会の仕組み、世論形成のメカニズムなどを把握するために社会科学研究の知見を網羅したモデルであった。そのため、計算に必要な初期条件（人々の特性など）が膨大であり、逆に、初期条件としての入力値の感度が高いものであった。それゆえ、算出結果は、ほぼ入力で決まってしまう。膨大な入力を正確に整備することは困難であり、かつ、計算も複雑で結果の解釈も難しいものとなった。しかし、これを作成したことで社会や世論形成のメカニズムに対する知見が集約でき、社会科学的見地の研究の基礎となる知識が集約され、社会問題の分析や提言の導出などに適用した。それを受けて構築したものは、影響の大きな要因に絞った簡素なものとした。その結果、不十分ながら提言の有効性などを評価しえるものとなり、最低限の目標は達成できた。

総合的な観点から、達成度を見る。問題の本質を把握するために実施した意識調査の分析やシミュレーションの構築過程で原子力の賛否を判断する態度構造を見出し、簡素なモデルによるシミュレーションを構築した。このモデルによるシミュレーションの完成度は検証を通じて十分に判断することができなかった。そのため、提言の有効度をシミュレーションによって定量的に示すことは十分ではなかった。予測するためのシミュレーションではなく、事実を説明するための段階に留まったが、その構築過程で得た知見に基づいて社会問題に関する対応策への反映としては十分達成し、新規概念としての対策案を提示することができた。有用な情報提示の観点では十分に達成しえたとは判断しているが、その活用については、今後の課題として大きく残してしまった。

【研究成果の波及効果及び展望】

1. 現在までの波及効果

本研究の成果は、まだ実際に反映されてはいない。説得を基調とした社会的受容性確保を目指すこれまでの対応とは大きく異なるなど対応に対する考え方の変化を強く求めるものである。現状で本研究の成果が受け入れられ、活用には至っていない。しかし、社会と原子力の共進化を志向する東京工業大学鳥井教授らと需要側の選択による原子力技術を考える社会実験に参加し、本研究の成果を反映することができる可能性を与えられた。この中で本研究の成果として見出した原子力への賛否意識と社会意識の関連に関するアンケート調査などを実施し、“仮説”の確認を行う予定である。

また、この研究を通じて多くの知見を得ることができた。この成果は、受容性向上対策や本研究で提言した対策まで広く応用することができる。敦賀において、その一部を紹介し、そこでの活動に貢献しえる結果を報告した。

2. 今後期待される波及効果と展望

本研究の成果をすぐに実社会へ適用することは難しい。本研究で主張することは、原子力関係者の意識を変えることであり、これまで培われてきた価値観の変更を迫るものである。そして、意識を変革することは、風土を変えることであり、大きな経営資源を費やすものである。技術改善とは異なり、簡単に適用されるものではない。適用されるためには、結果を広く公表し、原子力内での認知を得ねばならない。現状は、認知を得る段階には至っていない。現時点では、原子力をめぐる社会問題への対応として必要となる意思決定過程の変革やリスクなどに対する考え方を取りまとめた論文を投稿し、原子力学会論文集を通じて、その是非を見る段階である。

具体的な対応としては、リスクコミュニケーション活動を題材として、本研究での概念を適用した場合の動勢を見極めることなどから始める必要がある。東海や敦賀地区での実践的活動に貢献することを目指す。ただし、受容の手続きとしての位置づけが高いリスクコミュニケーション活動において、考え方の変革を求めるものであり、かなりの手順を踏む必要がある。粘り強く、主張し続けていかねばならないし、その過程で本提案も切磋琢磨されていかねばならない。文献や過去の調査結果から見出した見解を実際に社会（ここでは、地域）に適用した場合の相違を把握せねばならない。

しかし、本研究の成果としての提言は、当初は混乱もあり得るが、長期的な観点から、原子力円滑推進へ大きく貢献するものと期待されるであろうことを確信している。

本研究期間で原子力をめぐる社会問題について検討し、対応の方針を示すことができた。今後は、ここで得た考え方を広く公表し、そこでの議論を経て、再度検討しながら、周知すると共により完成度の高い提言を目指していく。この過程で、本提言への共感を深め、具体的な対応へ活かせるように努めていくことが最も重要である。

【研究成果の説明】(1/5)

本研究で目指す目標は、FBR サイクルの円滑導入やプルトニウム利用などの推進に役立つ情報及び対策を提示し、機構の経営戦略や開発方針の策定に資することである。それには、広く原子力技術（全般）をめぐる社会問題（以下、社会問題）について、状況を明らかにし、問題の本質を見出すことが何よりも必要である。そして、考慮すべき社会問題は、施設建設などをめぐる問題（各論的問題）と共に、その上位的問題である原子力技術の導入・推進・活用とした国民全体におよぶ問題（総論的問題）である。ここから、社会問題の本質が把握でき、抜本的対応が可能となっていく。そこで、国民全体に係わる社会問題の解明には、多側面の視野から状況をとらえる必要があり、特に社会の視点、すなわち一般の方々の視線から問題を見つめ直すことが不可欠である。そして、その上で社会問題に対する解決へ対応を示すことが必要であるとする考えに至り、それを実践した。

まず、これまでに実施された原子力の是非に関する継続的意識調査結果について結果を取りまとめた。同時に原子力や社会意識に対する調査結果から原子力の賛否態度を規定する要因とその構造を見出した。そこから人々の問題意識の変遷とその背景を抽出し、社会問題の本質に迫った。分析の結果、原子力に対する賛否において、安定的に多数を占める弱い（消極的）賛成を示す層の意識の背景が社会問題の隆起に大きく影響していることを見出した。弱い賛成層は、暗黙的な合意を形成する中心であったが、社会意識や原子力情勢の変化がこの層の意識を変え、暗黙的な合意を薄れさせた。その結果、社会全体での合意感を弱め、社会の雰囲気を変えていく。この変化が強い態度層の活動を活発化させると共に表面化させ、原子力に係わる事項を社会的関心事としていく。当該事項が社会的関心事となっていくことで懸念や不安が喚起されていく。これらが、相乗的に作用して「推進の躊躇を求めている」状態を生み出していることが社会問題の現況を的確に表現するものである。

この状態において暗黙的な合意を前提として機能していた原子力政策を決める社会的意思決定システムが、機能不全となっていく。この状況を改善するには、暗黙的な合意から明示的な合意へと変えていく必要がある。明示的な合意は、一般の方々が意思決定過程に参画して決定内容に関与すると共に決定過程や運営状況を監視、制御することで形成されていく。そこで、多くの方々が、原子力をめぐる論争に関与する必要がある。そのためには、争点とその判断尺度を明確に示さねばならない。争点は、目指そうとしている社会のあり方とそれを実現するために用いる行為の是非をめぐる価値判断である。判断尺度について、「リスクの社会的視野での再評価」とする概念を提唱する。皆が原子力について考えることができる状況を構築し、社会問題を社会全体が関わる価値判断をめぐる問題として解決していこうとすることが今後の原子力の社会への円滑展開に必要である。この姿勢を心構えとしていくことが大切である。まず、行うべきことは、協調的に問題解決を目指す姿勢を持つことである。

本研究では、社会の視野を意識して、社会問題に対する取りうるべき方策について提言をまとめた。そして、その対応の有効度についてシミュレーションなどを用いて（半）定量的に予測、評価をした。社会科学的方法論（問題解決）と自然科学的方法論（問題探求）を融合した研究アプローチによって、社会問題の克服のための効率的な方法論の構築を目指した。そこから原子力技術と社会の共存の道を探るものである。

本研究の特徴は、既存研究とは異なり、“原子力技術のため”を外すことで社会からの視野を的確にとらえるものとし、その研究姿勢によって社会問題の本質把握が可能となると見ることにある。そして、そこでの成果を正しく解釈、判断することが“原子力技術のため”につながるものと確信していることである。そのためには、結論・立場に至った過程、論理を見極める姿勢を貫き（批判的姿勢の堅持≠否定的）、“第三者”としての目を持つことを常に意識したものである。これまでとは異なる研究姿勢によって、独自の提案を導いたことが、本研究の最大の特色であり、他同様研究との違いである。

(2/5)

以下、研究目標に従って、成果を説明する。なお、説明の都合から、②と①を入れ替える。

②世論調査の分析、シミュレーション・システムの検証

社会問題は時間依存であり、意識の経年変化から問題の状況が見えてくる。手順を図1に示す。

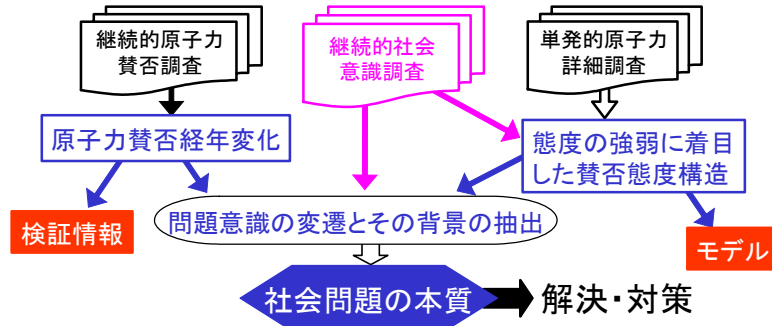


図1 分析手順—社会問題の分析と意識調査の関連—

分析の結果、賛否態度の強弱を、“強い賛成”、“弱い賛成”、“弱い反対”、“強い反対”（及び“無関心”）に分けることで社会問題の解明に有用な情報を得られることがわかった。回答形式の異なる複数の調査結果から得られた弱い賛成を示す層の意識の背景には両義的意識が介在し、賛成的な背景から反対的な背景を有する方々など多様な背景の方々の存在がわかった。図2に賛否の経年変化を示す。社会問題の動向把握からシミュレーションの構築（モデル化から検証情報）に至る全ての基礎情報である。

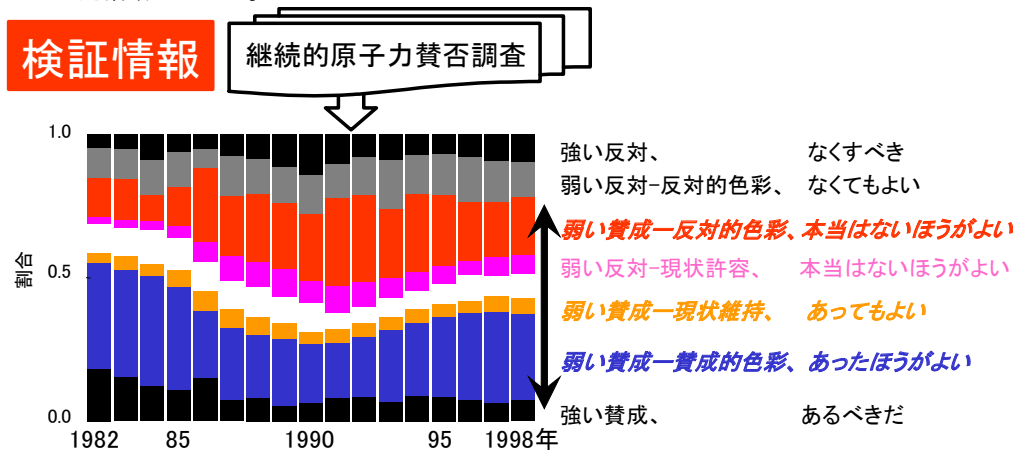


図2 賛否強度を考慮した態度の経年変化

過半数以上を占める弱い賛成層の両義性とその意識背景の分析（図3）から、この層が社会全体での原子力世論形成に及ぼす大きな影響をそのメカニズム（図4）と共に明らかにした。

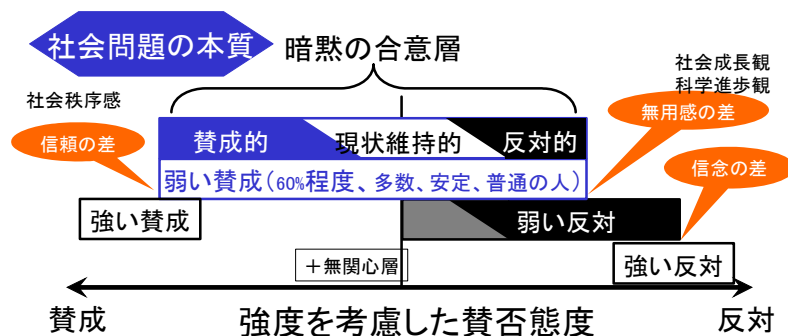


図3 賛否強度による分類とその背景

(3/5)

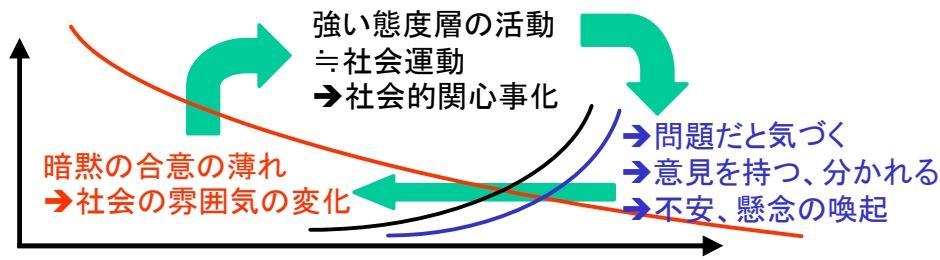


図4 弱い賛成層が原子力世論形成に及ぼすメカニズム

人々の問題意識の動向から（半）定量的に導いた。賛成層の一部として動向が重要視されていた層の影響を再認識させた。また、この分析から、原子力の是非に関する賛否を規定する主な要因として、社会的事項全般への関心の有無、行政、産業を含む社会システム全般や実施主体への信頼感、原子力の有用性認識でほぼ規定でき、同時にそれらが社会意識に直結することを見出した。不安を信頼の下位要因ととらえるなど新たな賛否態度構造（図5）を提案した。

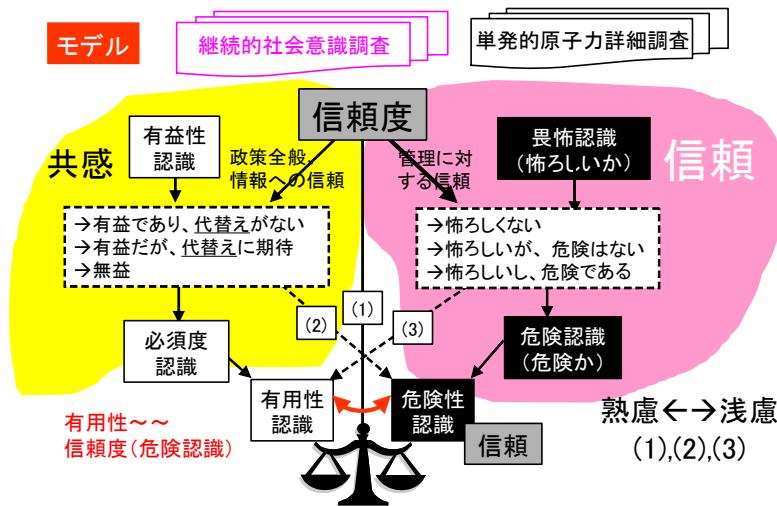


図5 賛否態度規定因（モデル化）

①シミュレーション・システムの構築

図5に示すモデルを用いる。ポイントとして、信頼度が賛否に及ぼす影響は大きいことが挙げられる。そこで、図6に示す社会システムに対する信頼度と有用性認識度を軸とした平面を定義する。賛否態度は、軸(I)で与えられる。両義性がなければ、信頼度と有用性認識度は、互いに相関して軸(I)と平行に分布することになる。

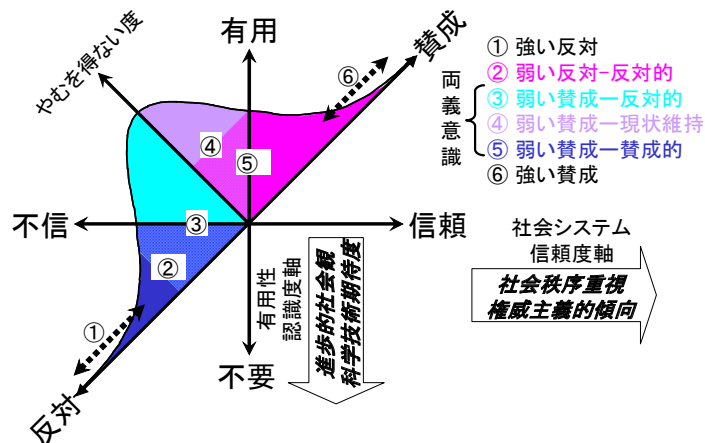


図6 信頼感と有用性認識に関する意識平面

(4/5)

図6は、①から⑥の領域に各態度層が分布することを仮定している。図2で得た情報から各領域に該当する態度層の人数割合に従って、配置する。これより、図7に示すように信頼度と有用性認識度の経年変化を見出すことができる。信頼度が大きく変動し、1980年ころに比べると明らかな低下が見られる。この差が原子力界から見ると“逆風”として映る。ここで、「度数指標」とは、全ての人が全幅の信頼を示せば1に、逆に全ての人が全くの不信を示せば-1となるように正規化された値を指す。(有用性認識も同様)

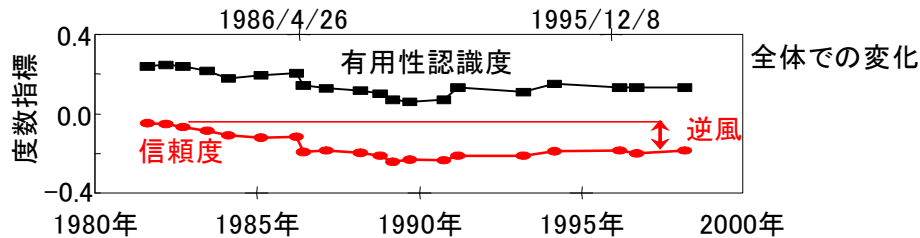


図7 賛否の意識背景（信頼、有用性認識）

信頼と有用性認識は、社会秩序、判断、社会進歩、科学技術重視志向の変化で説明できる。社会意識調査結果から図8のように読み取れる。また、信頼においては、信頼を判断する過程で「能動的信頼判断＝対象の信頼を自身の意思で判断した結果を受けての信頼度判断」と「受動的信頼判断」に分けて考える。判断重視志向自体は、判断を重視した後の判断結果を受けて、信頼度に影響を及ぼすことになる。能動的信頼判断を受けての信頼是非は、社会進歩観が影響する。

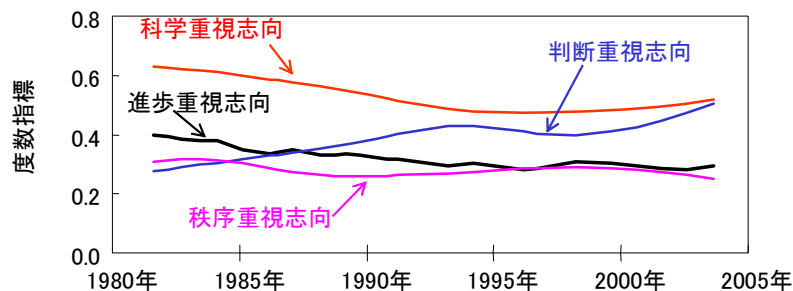


図8 原子力賛否に直結する社会意識変化傾向

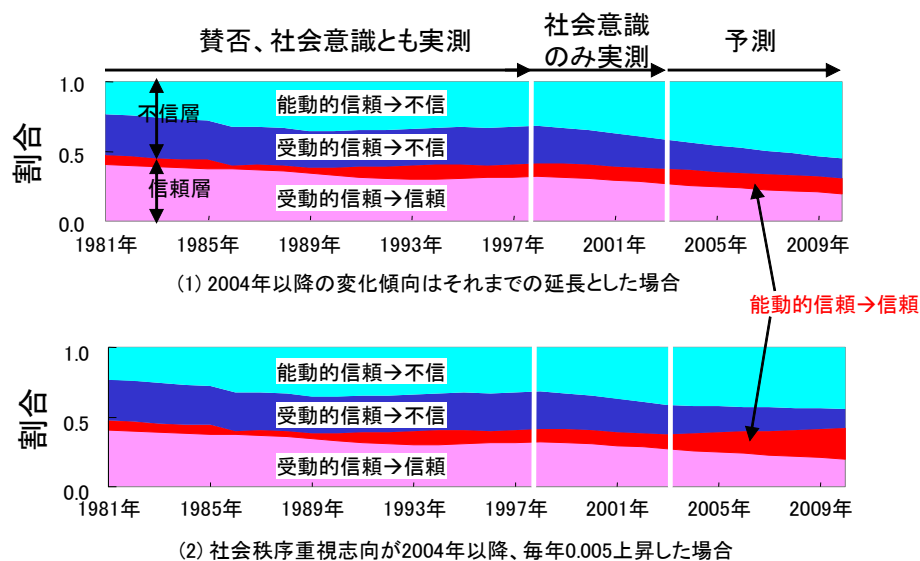


図9 信頼における判断傾向の変化

(5/5)

図7に示す信頼度の経年変化と社会意識調査から推定した判断重視層の割合変化から、信頼の判断の仕方として図9を推定することができる。社会秩序重視志向の影響が、判断や社会進歩志向に影響し、それが信頼の判断の仕方を大きく変える。そして、原子力への賛否動向にも大きな影響を与えることが示唆された。ここでの信頼度や判断重視割合の経年変化は直接的に測定されたものではなく、多くの解釈の結果として導いたものであり、確からしさを評価することはできなかった。しかし、この結果は多くの事を示唆しているものである。シミュレーション自体としては、予測するためのものには十分には至らず、事実を解釈するものに留まった。

③社会問題検討・評価システムの整備・活用、機構の経営戦略、開発方針に有用な情報提示

信頼度が賛否に及ぼす影響は大きい。信頼の中での（暗黙の合意の前提となる）受動的信頼の度合いは弱まり、その回復では限度があることがわかる。本報で主張する対応は、能動的信頼の醸成に努めることである。能動的信頼を参画することによる“新たな信頼関係”に求める。

暗黙的な合意は、意思を決定し、行為を実行する主体に対する高い信頼感とその行為をめぐる意見の分かれが少ないことが成立の前提となる。価値観などの多様化が意見の分化を促し、同時に許容されるようになってきた。また、事故などで原子力を見る目が変わって信頼感も弱まり、その前提を喪失させている。この状況を打破するためには、一般の方々が原子力を自分の問題として関わる（同時に、関われる）ことを視野に、一般の方々にとって「信じることは、任せることであり、決定内容に同意すること」とする図式による暗黙的な合意から、「加わり、見つめることを通じて信じ合い、決定を見出し同意し合うこと」とする図式による明示的な合意へと原子力政策に対する意思決定環境を見つめ直すことが必要である。そのためには、原子力界内部から意思決定環境を変えようとする意思表示が重要となる。そして、一般の方々が原子力をめぐる論争に関与できるように、争点とその判断尺度を示さねばならない。争点は、目指そうとしている社会像（社会のあり方）とそれを実現するために用いる行為（＝技術の選択）の是非をめぐる価値判断である。争点の判断尺度について、「リスクの社会的視野での再評価」とする概念を提唱する。この概念は、リスクをその源である行為とその選択に結びつけ、リスク判断はその行為を取り巻く様々な要因を含めた価値判断となること、さらに、価値を定める尺度は社会経済活動を通じたもので社会的に構成されるものであることを念頭にするものである。

まず、原子力是非をめぐる国民的論争（総論）における対応案を示す。原子力に対する世論を形成するのは、多数を占める弱い賛成層の意識だが、弱い賛成層は、強い態度層が行う活動（社会運動）によって原子力が社会的懸案事項（社会的関心事）であることを認識し、その結果、不安や懸念が喚起されていく。そこで、強い態度層への働きかけが重要となってくる。社会問題は、強い態度層が担う社会運動によって顕在化し、拡大していく。強い態度層と同じ問題を共有し、解決を目指す仲間として協調的に接することで一般の方々の関与意識を高め、そこから互いを認め合うことで明示的な合意を形成していくことが新たな観点での対応策となる。

同様に、原子力施設の建設、運転をめぐる住民間の論争（各論）では、住民の方々を対等なパートナーとし、経営・運営への参画を図り、同時に促し、住民代表（自薦・他薦を問わず）、行政、実施主体が対等な立場で熟議し、施設運転に対する今後の対応を創成する姿勢を持ち、それを表明することである。この過程で相互に誠実さを認め合い、能動的信頼感を醸成していくことが最も効果的である。参画は、納得を共有する過程であり、相互理解、尊重を分かち合い、信頼醸成と意思決定を高次元で両立させていく手段である。

本提案は、科学技術専門家と非専門家である一般の方々が相互に補い合う分業関係を確立し、新たな関係を再構築していく必要性和その方法を示すものである。多くの方々にとって、「任せる」しかない状況から「任せる」こともひとつの選択肢である状況に変え、そこから新たな“信頼関係”を築き上げることによって「任せられ方」の変革を目指していくものである。そこでは、皆が原子力について考えることができる状況を構築し、社会全体が係わる価値判断をめぐる問題として解決していこうとすることが今後の原子力技術の社会への円滑展開に必要である。何よりも協調的に問題解決を目指す姿勢を持ち、この姿勢を心構えとしていくことが大切である。

【研究成果等発表状況】			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
1. 学術誌論文（原著研究論文）			
1.1			
2. 学会会議論文（会議論文集あり）			
2.1	篠田佳彦	“リスク認知感をベースとした原子力技術に対する世論形成モデルとシミュレーション”, 2003年度 日本リスク学会 第16回 研究発表会講演論文集 2003, pp.153-158	①
3. 学会等口頭発表（概要集程度）			
3.1	篠田佳彦	原子力をめぐる社会問題に関する社会科学的考察、日本原子力学会「2006年春の年会」, E06, 日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター, 2006年3月24-26日	②、③
4. 学術誌解説・総説			
4.1	篠田佳彦	原子力をめぐる社会問題に関する社会科学的考察、日本原子力学会和文論文誌・総説（査読対応中）	②、③
4.2	篠田佳彦	原子力の円滑推進と「リスクの社会的視野での再評価」概念、日本原子力学会和文論文誌・総説（投稿済）	①、②、③
5. 依頼講演（内部は除く）			
5.1	篠田佳彦	“原子力技術に対する世論形成モデルとシミュレーション”、“原子力安全のための社会技術”に関する研究会（科学技術振興機構 社会技術研究システム RISTEX、原子力学会ヒューマンマシンシステム研究調査委員会共催）, 2004、	①
5.2	篠田佳彦	“原子力技術と社会科学”、COE-INES セミナー（社会と科学技術に関する連続セミナー、東工大, 2004、	②、③
6. その他（サイクル機構技報等）			
6.1	篠田佳彦	“原子力の社会科学 - 核種分離・変換研究を一例として-”、原子力 eye、Vol.50, No.6, 2004	②、③
7. 社内研究報告書			
7.1	篠田佳彦	原子力をめぐる社会問題に関する社会科学的考察（登録手続き中）	①、②、③
8. 特許			
8.1			

3.1.9 【H16-1】 ミュオン誘雷手法に関する研究（延長研究）

平成 18 年 3 月 17 日

【No.】 研究テーマ名	【H16-1】 ミュオン誘雷手法に関する研究（延長研究）		
研究実施者	鳥居 建男		
研究実施場所	敦賀本部高速増殖炉研究開発センター 他		
研究期間	平成 16 年 4 月 1 日 ～ 平成 18 年 3 月 31 日		
研究費用	2,030 万円	内訳	H16 (1,432 万円) H17 (598 万円)
【研究目標】 放電開始メカニズムの解明、及びミュオン照射による雷放電誘発の可能性について明らかにすることを目的として、モンテカルロ計算による雷放電発生及びミュオン誘雷のシミュレーション研究を行うとともに、雷多発地帯等での観測によるナチュラルアナログ研究、及び低エネルギーミュオン照射による放電特性の実験研究を行う。			
【研究計画の概要】 1. 雷放電開始機構への放射線寄与及び誘雷手法に関する調査・解析研究 (1)モンテカルロ計算コードを整備し、2次宇宙線（ミュオン、電子、光子）を入射させたときの雷雲高電界領域でのエネルギー沈着量を計算評価し、雷雲内での電子密度とイオン対の発生量を求める。 (2)ミュオン誘雷の成立性について、モンテカルロ計算により大気中の吸収エネルギー及び粒子束を解析し、ミュオン入射による高電界領域での電子密度擾乱の定量的解析を行う。 (3)ラドンの拡散挙動計算によりラドンの移流拡散を求め、発雷との関係を解析する。また、冬季雷発生数の変動と大陸ラドンの移流との関係を文献及び実測により調査する。 2. 宇宙線ミュオン等の観測によるナチュラルアナログ研究 (1)雷-放射線測定装置類を改造整備し、もんじゅ構内、及び乗鞍（東大宇宙線研究所）において電界強度とともに宇宙線（ミュオン・ γ 線）変動の観測を行う。また、雷雲通過時の電界強度変動の測定を行う。 (2)SAA(南大西洋磁気異常帯)域にあるブラジル宇宙科学研究所南部観測所（INPE-SSO）等においてミュオン・ γ 線変動の観測を行う。また、INPE-SSOと同磁気緯度にあり同じく雷多発地帯であるオーストラリア北部でのラドン測定とミュオン等宇宙線測定を行う。 (3)海上や陸上でのラドン濃度分布を適宜測定し、ラドン崩壊生成物の発雷への寄与を調査する。 3. 低エネルギーミュオン等を用いた放電特性実験 (1)高エネルギー加速器研究機構（KEK）ミュオン科学研究施設での放電と荷電粒子ビーム入射のタイミング調査、及び電子挙動に関する実験計画の調査検討を行う。			

【研究成果の概要】

1. 雷放電開始機構への放射線寄与及び誘雷手法に関する調査・解析研究

- (1)モンテカルロ計算により2次宇宙線（ミュオン、電子、光子）入射による雷雲高電界領域での吸収エネルギー量を計算評価した結果、雷雲内で電子密度が電界のないときと比べて2桁程度の上昇を示すことが分かった。また、上昇した主なエネルギー領域は数 MeV～数 10MeV であった。
- (2)ミュオン誘雷の成立性について大気中の吸収エネルギー等を解析した結果、5 GeV 程度のミュオン入射により高電界領域で局所的に吸収エネルギーが増大することが分かり、人為的なミュオン入射による誘雷成立の可能性があることがわかった。
- (3) モンテカルロ計算による雷雲中でのラドン子孫核種（Bi-214）が放出する β ・ γ 線の挙動計算の結果、電子密度が1桁以上上昇し、発雷に寄与している可能性があることが分かった。また、実気象に基づき1年間のラドン移流拡散挙動計算（2002.10～2003.9）を行った結果、発雷との関係は特定できなかったが、冬季に気象条件により大陸からのラドン濃度が急激に上昇することが分かった。

2. 宇宙線ミュオン等の観測によるナチュラルアナログ研究

- (1)もんじゅ構内で長尺比例計数管（長さ 2.5m）を用いた観測の結果、急激な電界変動（雷放電）の直前数 10 秒前から放射線レベルが上昇し、放電時にバーストが発生することが分かった。また、計数管の応答特性から入射放射線は高エネルギー電子と推定された。
- (2)SAA(南大西洋磁気異常帯)域にあるブラジル宇宙科研南部観測所（INPE-SSO）において宇宙線ミュオンの観測を行った結果、同磁気緯度（オーストラリア北部）に比べて2倍程度の強度であり、宇宙線起因による落雷とは特定するには到らなかった。同じく雷多発地帯であるオーストラリア北部でのラドン測定の結果、ラドン濃度は 100 Bq/m³ 超に達し、国内の平均的な濃度に比べて高濃度であることが分かった。

3. 低エネルギーミュオン等を用いた放電特性実験

- (1)高エネルギー加速器研究機構（KEK）ミュオン科学研究施設での放電と荷電粒子ビーム入射のタイミング調査、及び電子挙動に関する（予備）実験の結果、ミュオン入射と放電が同期していることが分かったが、電極間の高電界により電極への荷電粒子衝突によるものと判明した。さらに確認実験を計画したが、KEK の施設は実験場所が狭い他、大気中でのシャワー発生の実験が困難であることが分かった。

【研究目標に対する達成度】

本研究の目標「放電開始メカニズムの解明、及びミュオン照射による雷放電誘発の可能性について明らかにする」に対する達成度については、ほぼ達成できたと考えている。成果の到達状況は以下のとおり。

- 放電と放射線挙動の関係が観測により明らかになってきた。当初予想した雷雲電界中での電磁シャワー発生による雷放電発生の可能性が高まり、十分な成果が得られた。
- シミュレーションでは宇宙線ミュオンが雷雲中での電子密度上昇と地上での放射線レベルの上昇に寄与していることが判明し、当初の目的を達成した。
- SAA での雷活動多発は宇宙線起因とは特定できず、十分な成果とはいえなかった。
- ラドン起因による電磁シャワーの発生は計算により可能性を確認できたものの、移流拡散評価、及び実測によりさらに調査する必要がある。
- 放電特性実験は、ミュオン照射による実験は困難であることが判明し、異なる方法を検討する必要があった。しかし、その方法を検討するには到らなかった。

【研究成果の波及効果及び展望】

1. 現在までの波及効果

雷放電の開始機構に関する問題（雷雲中で観測される電界強度が室内実験の絶縁破壊電界強度より1桁以上低いこと）について、絶縁破壊に到る高電界は雷雲中にあるが局所的で観測されない説（Conventional Breakdown）と、宇宙線など何らかの要因により雷雲電界中で逃走電子が生成され放電を誘発する逃走絶縁破壊説（Runaway Breakdown）があり、そのメカニズムは現在でも不明である。本研究では、雷放電開始前の数10秒から放射線が発生し放電時にバーストする事象が観測され、逃走絶縁破壊説を裏付ける高エネルギー電子を検出している可能性が出てきた。同じ逃走絶縁破壊説でも米国での観測では、初期放電の先端部からX線が数10ミリ秒程度の極短時間放出されるとしており、本研究と異なる結果を示している。また、米国はNaI検出器を用い逃走電子ではなく間接的なX・ γ 線を検出しているのに対して、本研究では検出器の応答特性から直接電子を計測していると考えられ、逃走絶縁破壊のメカニズムを確認する上で重要な成果を得ている。これまでの観測結果（モニタリングポストとTLDの測定）で得られた長時間（数10秒）の放射線量率の上昇やその影響範囲、及びモンテカルロ計算による解析結果は米国でも注目され、米国研究者との共同研究について調整している。現在、米国研究者が観測に使用している検出器の構造等の情報をもらい、検出器の応答特性を解析している。

また、逃走絶縁破壊に到る電界強度について、米国、ロシア研究者とほぼ同時期に同程度の値をモンテカルロ計算により得ており発表している。さらに、絶縁破壊のトリガーとして宇宙線ミュオンの可能性について定量的に明らかにした。加えて、ミュオン誘雷の可能性についても初めて言及し、国内及び米国に特許出願した。

さらに、原子力関連では、新潟県、石川県の環境放射線測定機関が雷活動時の放射線レベルの上昇について報告しており、本研究の成果が引用されている。

2. 今後期待される波及効果と展望

昨年12月の米国地球物理学学会連合(AGU)の大会で雷関係全100件の発表の内、1/4（26件）が雷放射線に関連する発表であり、関心が高くなっている。ほとんどが宇宙での観測、解析に関するものであるが、地上での観測も含めて逃走絶縁破壊の可能性が注目されている。本研究は、この分野に一石を投じるものであり、しかも冬季雷の特徴（高電界領域が低高度にある）を活かして直接高エネルギー電子を捕捉しようとする世界的にも重要な成果を得ている。米国とも共同研究の可能性を模索しており、今後本分野の進展に寄与する可能性が高い。国内でも2大学から協力を申し入れられ、来季の観測でさらなる確証が期待されている。また、ラドンについてはあまり公表していないが、雷多発地帯であるオーストラリア北部、アフリカ中部、南東部がウラン鉱床地帯であることから高ラドン濃度地域であることが予想され（一部実測済）、今後成果を発表することにより、関連分野の研究の進展が期待される。

高エネルギーミュオンを用いた誘雷については、ミュオン加速器がまだ計画段階（International Muon Ionization Cooling Experiment (MICE) プロジェクト）であることから、近々に実現する可能性は低い。しかし、宇宙線ミュオンの影響は注目されており、国内外で雷との相関について調査されるものと思われる。

また、宇宙からの雷放射線の観測は現在のところ米国のみで実施されているが、国内でも人工衛星を用いた雷観測が計画（一部実施）されており、雷観測衛星での放射線観測についても相談を受けている。今後この分野の進展に本研究の成果が期待されている。

【研究成果の説明】 (1/4)

1. 雷放電開始機構への放射線寄与及び誘雷手法に関する調査・解析研究

(1) 前回の研究（「雷雲中における放射線発生機構に関する研究」（平成13年度開始））において、宇宙線（電子・光子）を雷雲中に入射すると、冬季雷の成熟期初期に見られる3極構造雷雲では高度1 km付近で電磁シャワーが発生し光子（制動放射線）束及び電子束の急激な上昇が見られ、その一部が地上まで達することが分かった。また、放射線が連続的に発生する最小電界強度は約 280 P(atm)(kV/m)となり、雷雲中では高いものの十分に起こりうる強度であることも確認された。これは室内実験で得られる絶縁破壊電界より1桁以上も低く、雷雲中で観測される電界強度と同程度であることから、放射線が雷放電を誘発している可能性が出てきた。そこで、冬季雷雷雲の高電界領域（1~2km）においてミュオンが電荷を持つ宇宙線の中で最も粒子束数が多いことから、モンテカルロ計算コード **Gcant4** を用い宇宙線ミュオンを線源として雷雲中での放射線挙動の解析を行った。その結果、宇宙線の電磁成分と同様に、高電界領域で電子・光子束が急激に増加し（図1）、ミュオンと空気分子との衝突により生成されるノックオン電子が電磁シャワーを引き起こしていることが分かった。また、ミュオン入射（ μ^+ 、2GeV）による大気中の吸収エネルギーも局所的に約 100MeV 超となり（図2）、ミュオン1個の入射により、100 万個以上のイオン対を生成することが分かった。

(2) 上記のことから、地上から高エネルギーミュオンを雷雲に向けて照射した場合（図3）の大気中の吸収エネルギーを **Gcant4** コードを用いて求めた。その結果、図4に示すように、雷雲中の高電界領域で局所的にエネルギーが吸収されることがわかった。このことから、人為的に高エネルギーミュオンを照射できれば、雷雲中の電子密度を擾乱させることができることが分かった。

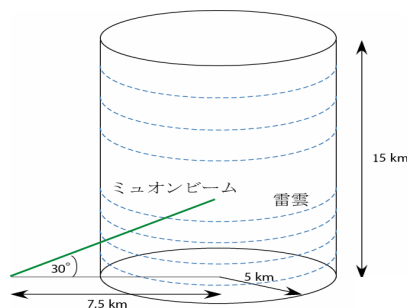


図3 ミュオン照射モデル

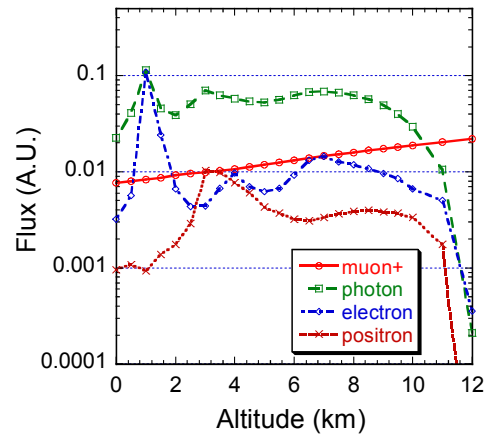


図1 宇宙線ミュオンを高度12kmから放出したときの各粒子束の高度分布

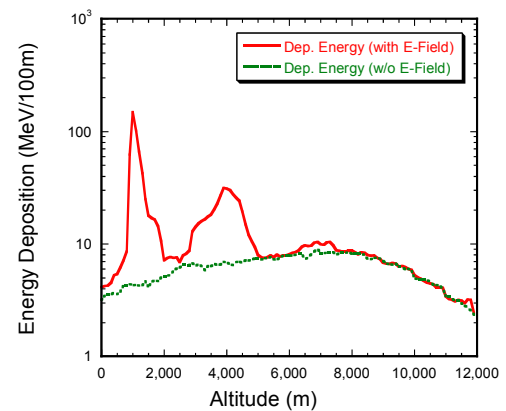


図2 雷雲電界の有無を仮定したときの宇宙線ミュオン(2GeV)入射時の大気中の吸収エネルギーの分布

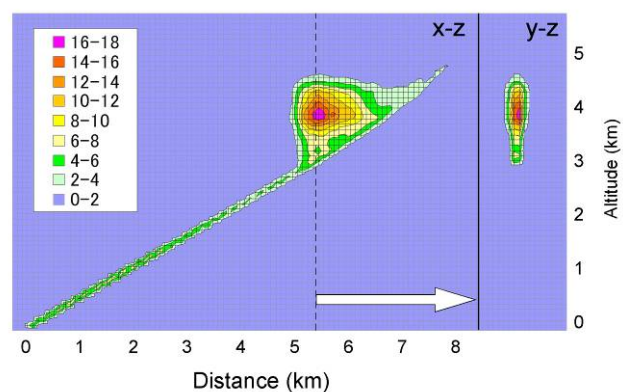


図4 ミュオン(5GeV)を仰角30°で雷雲に向けて照射したときの(ミュオン1個あたり)大気中の吸収エネルギーの分布(単位:MeV)

(2/4)

(3) 電子・光子輸送モンテカルロ計算コード EGS5 を整備し、大気中のラドン子孫核種が放出する β ・ γ 線の雷雲電界中における影響を求めた。その結果、 γ 線束は電界の有無により大きな変動は見られないものの、電子束は高電界領域において急激に増大し、高度 1km では数 10 倍の上昇があることから、ラドンの影響は無視できないことが分かった (図 5 A)。また、エネルギーも、高度 1km では数 10MeV までのエネルギー領域で顕著な増加が見られることから、大気中での吸収エネルギーの増加に十分寄与していることが分かった (図 5 B)。しかし、解析結果から、地上付近での放射線レベルの上昇には寄与していないと思われる。

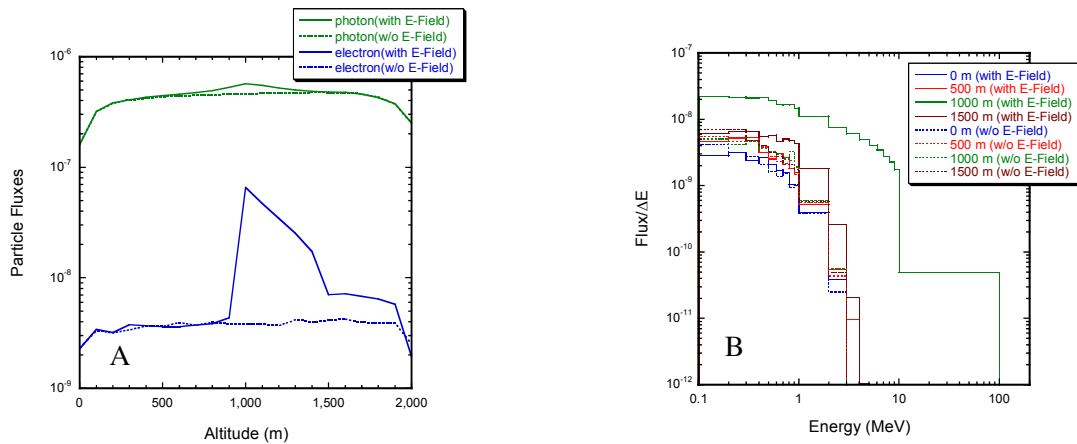


図5 電界の有無による電子・光子の全粒子束の変動 (A) と電子のエネルギースペクトルの変動 (B)

2. 宇宙線ミュオン等の観測によるナチュラルアナログ研究

(1) もんじゅ ISI 建物内に長尺比例計数管 LPRC (長さ 2.5m、直径 10cm、4 本) 2 系統を設置し、冬季雷活動時の放射線レベルの変動を観測した (図 6)。今季 (2005 年 12 月、2006 年 1 月) には、有意な変動が 4 回計測され、同時に観測した電界強度との相関が得られた。その結果を図 7 に示す。図のように雷放電に伴う急激な電界強度変動の数 10 秒前から上昇し始め、放電時に急激なバーストが観測された (12/5)。



図6 LPRC による放射線変動の観測

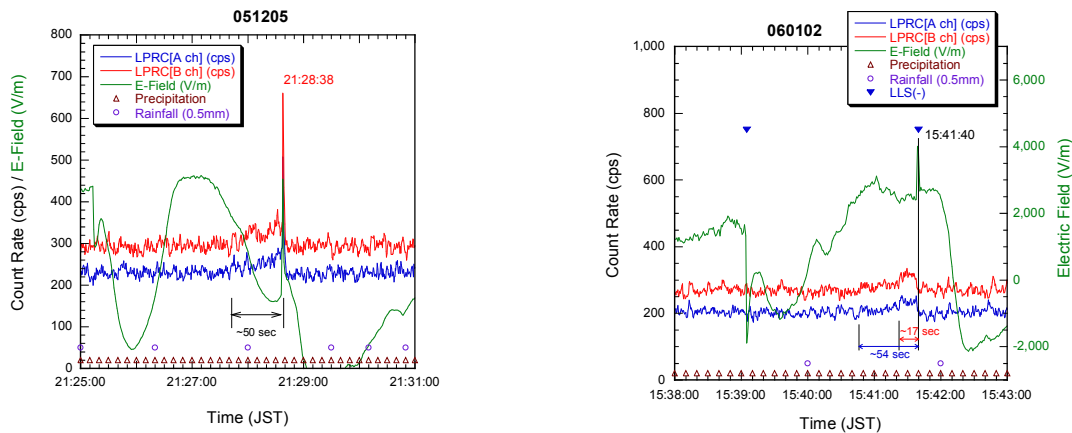


図7 冬季雷活動時の放射線レベルと電界強度の変動。(A) 12月5日と (B) 1月2日の事例 (感雨計、雨量計、及び北陸電力・雷撃位置標定システム (LLS) の時間も併記した)。

(3/4)

また、急激な電界変動時にのみ放射線バーストが観測された事例もあった（12/23、1/3）

今回得られた結果は、米国で $3''\text{NaI}$ 検出器で観測されている先駆放電（リーダー）時のミリ秒程度の X 線バーストと大きく異なる。今回、LPRC と同時に観測した $3''\text{NaI}$ 検出器、30cm 球形プラスチックシンチレーション検出器（PS）、及びモニタリングポスト（ $2''\text{NaI}$ 検出器、35cm 球形電離箱（IC））では、 NaI 検出器は変動せず、PS が 1 回（12/5）、IC が 4 回（LPRC と同じ）変動を観測している。

実験及び解析により得られた応答特性から、LPRC は 3MeV 以上の高エネルギー電子に対して γ 線より 1 桁以上感度が高いこと（IC も高エネルギー電子に高感度）、これまでの解析から高度 1km 付近では数 MeV～数 10MeV の電子束が急激に上昇することから、LPRC の計数率上昇は大面積、大容積の検出器により高エネルギー電子の増加を観測したものと考えられる。

米国の観測データとの違いは、放電時の X 線バーストを観測しているか、雷雲の高電界により発生した電磁シャワーによる高エネルギー電子を計測したかによる違いと思われる。

米国の逃走絶縁破壊説ではリーダーの先端部から X 線が放出されるとしているが、X 線の元となる逃走電子を計測していない。本研究では、リーダーではなく、高電界領域における電子の加速（逃走電子の生成）という静的な過程としてとらえてきたが、今回の観測は逃走電子の直接観測によりそれを裏付けるものであると考えている。これは雷雲の高電界領域が夏季雷に比べて大幅に低い高度にあるため観測できたものと思われる。

今回の観測では、電界及び放射線の変動を秒単位（LPRC は 0.5 秒毎）で計測したが、放電時の挙動をも把握し現象の動的な過程を解明（米国説の検証）する上で、今後ミリ秒単位の変動を観測する必要がある。

3. 低エネルギーミュオン等を用いた放電特性実験

高電界領域へのミュオン入射による荷電粒子の挙動を把握するために、KEK・ミュオン科学研究施設（MSL） μ ポートで放電と荷電粒子ビーム入射のタイミング調査、及び電子挙動に関する予備実験、及び Gcant4 コードによる挙動評価を行った。装置は、図 8 のように平行平板電極（棒－平板電極でも実施）間にミュオン、電子を照射し、ミュオン入射と放電の同期の有無を調査した。その結果、以下のことが分かった。

①ビーム照射による放電開始電界の影響調査：棒－平板、平行平板いずれの電極でも、放電開始電界は初期変動によるもののみで、ビーム照射による放電開始電界に変動は見られなかった。

②ビームと放電開始時間のタイミング調査：平行平板電極では、 μ^+ 、 e^- 照射時にビームと放電開始時に同期が見られた（図 9）。しかし、 μ^- 照射時、及び棒－平板電極での試験時には同期は認められなかった（表 1）。上記実験②でのビームと放電開始時間の同期は、Gcant4 による解析結果から、電極間距離が短い（平行平板の場合 4cm）ために放電が発生するような高電界では電極にビームが衝突し、多量の 2 次電子が生成するためであることが分かった（図 10）。 μ^- 粒子で同期しなかったのは、粒子数が少なかったこと、また棒－平板電極の場合は高電界領域が局所的であるとともに、電極間距離が平行平板より長いことから、2 次電子の発生量が少なかったことによると考えられる。高電界の大気中で電磁シャワーの発生を実験室で再現するためには、上記の

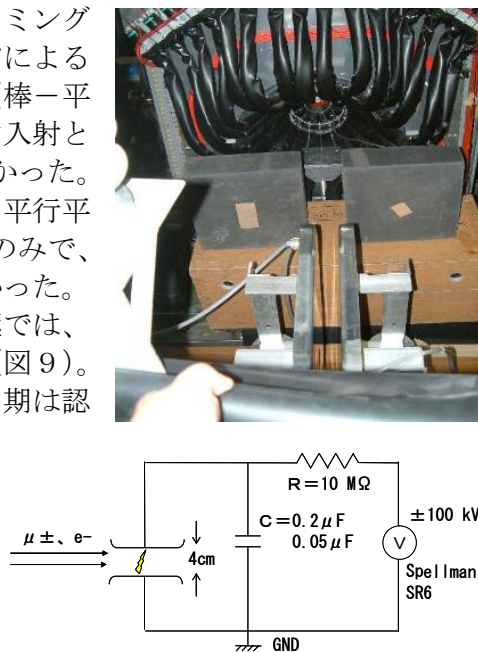


図 8 ミュオン照射実験の写真（上）と実験概念図（下）

(4/4)

ような実験体系では MSL・ μ ポートのような狭隘な場所では困難と考えられる。さらに確認実験を検討したが、KEK の施設は実験場所が狭いほか、大気中でのシャワー発生の実験が困難であることが分かった。

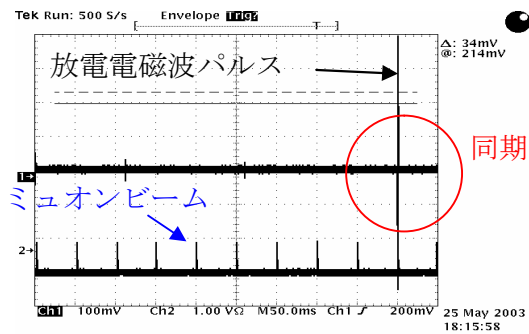


表 1 タイミング調査実験結果
(Nd : 実験回数、Ns : 同期回数)

Beam	S[mV]	Nd'	Ns	Ns/Nd'
None	--	25	3	0.12
$\mu +$	230	19	12	0.63
$\mu -$	100	7	1	0.14
e -	275	18	15	0.83

図 9 ミュオンビームのパルスと放電のノイズパルス

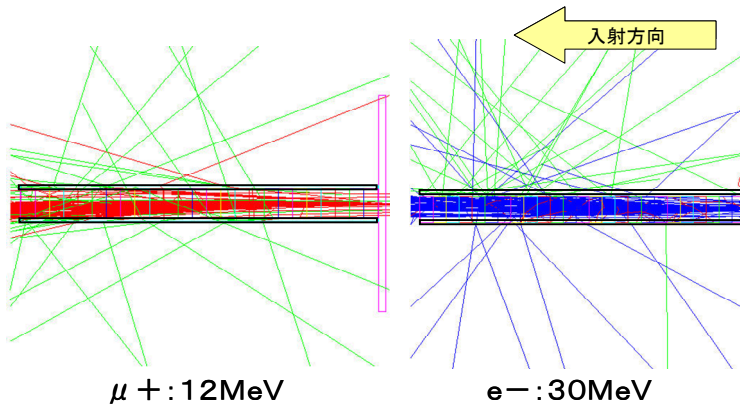


図 10 Geant4 による実験シミュレーション ($\mu +$ 、e-照射時の飛跡)

【研究成果等発表状況】			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
1. 学術誌論文（原著研究論文）			
1.1	T. Torii, T. Nishijima, Z-I. Kawasaki, and T. Sugita	“Downward emission of runaway electrons and bremsstrahlung photons in the thunderstorm electric fields”, Geophys. Res. Lett., Vol. 31, L05113 (2004)	1.(1)
1.2	T. Torii, M. Takeishi, and K. Okubo	“Observation of Dose-Rate Increases during Winter Thunderstorms and Monte Carlo Simulation of Bremsstrahlung Generation”, in “Radioactivity in the Environment”, Vol. 7, 902-908, Elsevier (2005)	1.(1), 2.(1)
1.3	T. Torii, T. Nozaki, T. Sugita, T. Nishijima, and Z-I. Kawasaki	“Generation of runaway electrons induced by radon progeny products in thunderstorm electric fields and the initiation of lightning discharges”, ICS 1276, 428-429, Elsevier (2005)	1.(3)
1.4	T. Torii, T. Sugita	“Monte Carlo simulation of cosmic-ray muons and related particles in a thundercloud electric field”,（投稿手続中）	1.(2)
2. 学術会議論文（会議論文集あり）			
2.1	西嶋健、鳥居建男、河崎善一郎	雷雲電界中における逃走電子の生成に関するモンテカルロ解析、大気電気研究、No.65, 82-83（2004）	
2.2	T. Torii, and T. Sugita	“Fluctuations of Electron and Photon Flux by a Thundercloud Electric Field and the Runaway Air Breakdown” , KEK Proceedings 2005-10, 27-32 (2005)	1.(1)
2.3	T. Sugita, T. Torii, and A. Takamura	“Incorporating Combinatorial Geometry to the EGS5 Code and Its Speed-up”, KEK Proceedings 2005-10, 7 - 21 (2005)	1.(1)
2.4	T. Torii, T. Sugita, T. Nishijima, and Z-I. Kawasaki	“Enhanced Electron and Photon Fluxes by Cosmic-Rays and Radon Progeny Products in Thunderstorm Electric Fields and the Initiation of Lightning Discharges” , Monte Carlo 2005 Topical Meeting, ANS (2005)	1.(1), (2)
2.5	T. Torii, S. Okuyama, A. Ishizuka, T. Nozaki, Y. Nawa	“Observation of the Energetic Radiation Associated with Winter Thunderstorm Activities in Japan”, Eos Trans. AGU, 86(52), Fall Meet. Suppl., AE-33A, American Geophysical Union (2005)	1.(1),(2) 2.(1)
2.6	T. Torii, T. Nishijima, T. Morimoto, and Z-I. Kawasaki	“Research on the effect of cosmic-ray muons upon atmospheric discharges” , KEK-MSL Report 2003, KEK Progress Report 2004-7 (2005)	3
2.7	西嶋健、森本健志、平田晃正、河崎善一郎、鳥居建男、牛尾知雄	ダーウィンにおける雷活動時の放射線強度変動、大気電気研究、No.66, 26-27 (2005)	2.(2)
3. 学会等口頭発表（概要集程度）			
3.1	鳥居建男、西嶋健、杉田武志、河崎善一郎	雷雲電界中における逃走絶縁破壊に関するモンテカルロシミュレーション、地球惑星科学関連学会 2004 年合同大会、E024-008	1.(1)
3.2	鳥居建男	雷雲中における放射線強度変動に関する研究、平成 16 年度共同利用研究 研究成果発表会（東大宇宙線研究所、2004）	1.(1), 2.(2)

3.3	西嶋健、鳥居建男、河崎善一郎、杉田武志	雷雲電界中での逃走絶縁破壊に関するモンテカルロ解析（電気学会全国大会、2005）	1.(1)
3.4	鳥居建男、杉田武志	冬季雷活動時の放射線量率の上昇と宇宙線ミュオンの影響評価、地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会、Z105-007	1.(1), 2.(1)
3.5	鳥居建男、奥山慎一、那波康則、野崎達夫、大久保浩一	冬季雷活動時における空間線量率上昇の観測とその特徴、地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会、Z105-P003	2.(1)
3.6	西嶋健、鳥居建男、森本健志、河崎善一郎	ダーウィンにおける夏季雷活動時の放射線強度変動、地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会、Z105-P002	2.(2)
3.7	鳥居建男、杉田武志	Fluctuation of Cosmic Radiation Associated with Winter Thunderstorm Activities and Its Simulation with EGS4/5 and Geant4、Geant4 研究会(2006)	1.(1), (2)
4. 学術誌解説・総説			
4.1	鳥居建男	「雷雲電界による荷電粒子の加速と放射線の発生」、ESI-News, Vol. 22(4), 12-19 (2004)	1, 2
4.2	鳥居建男、星野光男、西野正徳、塩川和夫	ブラジル磁気異常帯における雷雲電場に伴う宇宙線・リオメータ強度変動、拓殖大学理工学研究報告 Vol. 9, No.2, 37 - 42 (2004)	2.(2)
4.3	鳥居建男	「雷活動時に見られる放射線量率の上昇とそのメカニズム」、原子力 eye、Vol. 51, No. 12, 44 - 47 (2005)	1.(1), 2.(1)
5. 依頼講演（内部は除く）			
5.1	鳥居建男	特別講義「雷雲中における放射線発生メカニズムに関する研究」、（2005 年 10 月 13・14 日、名古屋大学大学院・工学研究科エネルギー量子工学専攻）	1, 2
5.2	鳥居建男	講演「雷雲中における放射線発生とそのメカニズム」（2006 年 4 月 21 日、大阪ニュークリアサイエンス協会）（予定）	1, 2
6. その他（サイクル機構技報等）			
6.1		な し	
6.2			
7. 社内研究報告書			
7.1		な し	
7.2			
8. 特許			
8.1		な し	
8.2			
8.3			

3.1.10 【H16-2】地質媒体微細間隙中での核種拡散移行過程における固液界面現象に関する研究

平成 18 年 3 月 31 日

【No.】 研究テーマ名	【H16-2】地質媒体微細間隙中での核種拡散移行過程における固液界面現象に関する研究		
研究実施者	佐藤 治夫		
研究実施場所	東海研究開発センター 核燃料サイクル工学研究所 地層処分基盤研究施設（エントリ）、地層処分放射化学研究施設（クオリティ）		
研究期間	平成 16 年 4 月 1 日 ～ 平成 18 年 3 月 31 日		
研究費用	727 万円	内訳	H16（423 万円） H17（304 万円）
【研究目標】 (1) 固相表面近傍に於ける間隙水の熱力学特性を定量的に把握し、固相表面からの影響領域を見積もる。 (2) 粘土鉱物層間、積層体外部間隙、エッジ間の活性化エネルギーなど、個別現象に関する基礎データや熱力学データを定量的に把握する。 (3) 微細間隙中での静電的相互作用のモデルの適用性について検討し、間隙水化学に加えて、粘土粒子の配向特性を考慮して核種拡散移行プロセスを熱力学的側面から定量化する。			
【研究計画の概要】 高レベル放射性廃棄物の地層処分に於ける安全評価では、多重バリアシステムを構成する緩衝材（ベントナイト）及び岩石（天然の地質媒体）中の放射性核種（核種）やイオンの拡散移行過程の解明は、処分場からの長期（10 万年程度）に亘る核種の放出率の予測に大きな影響を及ぼすことから重要であると同時に、長期的な予測の精度向上に繋がる。 本研究では、緩衝材や岩石などの地質媒体中の核種拡散移行過程に於ける固液界面近傍での間隙水やイオンとの相互作用に着目し、 ① 固相表面近傍での間隙水の熱力学特性を定量的に把握する事 ② 粘土鉱物層間及び積層体間外部間隙、エッジ間の拡散係数や活性化エネルギーなど、個別現象に関する基礎データや熱力学データを定量的に把握する事 ③ 微細間隙中での静電的相互作用のモデルの適用性について検討する事 により、間隙水化学とそれに伴う微細間隙構造変化やスメクタイト粒子の配向特性を考慮して、圧縮ベントナイト中の核種拡散移行プロセスを熱力学的側面から定量化する事を目指すものであり、前回の社内公募型研究で得られた知見に基づいて、以下の項目について研究する。 (1) 固相表面近傍での間隙水の熱力学特性評価 (2) 個別拡散移行経路に対する熱力学特性評価 (1)の項目では、蒸気圧法により、イオン強度と含水比をパラメータに粘土鉱物を主体とした地質媒体に対する固相表面近傍での間隙水の熱力学データを取得し、固相表面からの活量変化や熱力学諸量を求め、間隙水の存在状態や束縛状態を検討すると共に、固相表面からの影響領域を見積る。また、それらの影響領域を静電的相互作用に基づいたモデルと比較検討する。 (2)の項目では、粘土粒子を配向させた系での圧縮ベントナイト中の拡散実験を、粘土粒子（スメクタイト）の配向方向に対する拡散方向、乾燥密度、イオン強度、温度をパラメータに行う。拡散実験では、層間中でのみの拡散及びエッジ間でのみの拡散係数に着目して調べ、それぞれの拡散移行経路に対する拡散の活性化エネルギーを求める。また、(1)で求めた間隙水の力学的データと併せて、層間及びエッジ間を拡散する際の活性化エネルギーについて考察する。			

【研究成果の概要】

1. 固相表面近傍での間隙水の熱力学特性評価

- (1) 蒸気圧法により測定した白浜砂岩中の間隙水の熱力学特性について検討した。固液界面近傍での間隙水の存在状態と固相表面からの影響領域を見積ると共に、固相表面（石英鉱物主体）との水素結合による水の活量低下と表面近傍に陽イオン交換容量（CEC）分だけ存在する陽イオンの水和による水の活量低下に着目し、比表面積や CEC が全く異なる他の材料に対しても汎用性のあるモデルを提案した。また、このモデルと石英表面及び陽イオン周辺の水の分子動力学計算から、表面第 1 層の水は表面との水素結合の影響を受けるが、第 2 層からは周囲に存在する陽イオンの水和の影響を受けると考えられた。相対部分モル Gibbs の自由エネルギー（ ΔG ）や相対部分モルエンタルピー及びエントロピーなどの熱力学諸量から、砂岩表面での水は氷程構造化されていないが、熱力学的には自由水よりも化学ポテンシャルが低く安定である事が分かった。
- (2) Na^+ イオンによるイオン交換処理後、粘土分を水簸精製し、可溶性塩を除去して作製した Na スメクタイトを用いて圧縮スメクタイト（乾燥密度 $0.6 \sim 0.9 \text{Mg/m}^3$ ）を作製し、蒸気圧法により拘束条件で間隙水の熱力学特性を調べた。その結果、含水比（スメクタイト重量当りの水分重量）の減少に伴い水の活量や ΔG は低下し、固相表面に近づく程間隙水は束縛される事、同じ含水比では外圧開放系と同程度である事、上記モデルが適用出来る事が分かった。

2. 個別拡散移行経路に対する熱力学特性評価

- (1) 圧縮スメクタイト中の I^- 及び Cs^+ イオンの拡散係数と活性化エネルギー（ ΔE_a ）に及ぼす粘土粒子の配向方向に対する拡散方向（異方性）や塩濃度の影響について検討した。圧縮法により粘土粒子の配向方向を制御した圧縮スメクタイトを作製し、配向方向に対する拡散方向、乾燥密度（ $0.9 \sim 1.4 \text{Mg/m}^3$ ）、塩濃度（ $[\text{NaCl}] = 0.01, 0.51 \text{M}$ ）、温度（ $22 \sim 60^\circ\text{C}$ ）をパラメータに拡散係数を測定した。その結果、両イオンとも配向方向への拡散係数の方が直角方向よりも大きい事、 I^- イオンは主に外部間隙中を拡散し、 Cs^+ イオンは層間と外部間隙の両方を拡散する事が分かった。一方、 ΔE_a を求めたところ、 I^- イオンは低乾燥密度の条件では自由水と同程度であり、乾燥密度の増加に伴い上昇した。乾燥密度の高い条件では、密度の増加に伴う外部間隙径の減少による静電的反発力の増加と間隙水の活量低下の影響と考えられた。 Cs^+ イオンは低乾燥密度の条件でさえ自由水よりも高く、乾燥密度の増加に伴い上昇した。層間中での Cs^+ と Na^+ イオンとのイオン交換エンタルピー（ ΔH° ）を考慮する事で低乾燥密度での ΔE_a を説明出来るが、乾燥密度の高い条件では ΔH° と活量低下の影響と考えられた。間隙水の活量低下が ΔE_a に及ぼす影響について重水（ HDO ）の ΔE_a と活量の測定結果に基づいて検討した結果、乾燥密度が 0.9 から 1.35Mg/m^3 に増加する事により ΔE_a は約 5kJ/mol 上昇するのに対して、水の活量は約 0.1 低下し、活量 0.1 の低下で約 5kJ/mol の ΔE_a が上昇すると推定された。また、圧縮ベントナイト中の拡散係数の温度補正法は、一定条件の下（「第 2 次取りまとめ」に於けるレファレンスケースなど）では従来の考え方で正しい事が分かった。
- (2) 圧縮法により層間距離を水分子 2 層に制御した圧縮スメクタイト（ 1.8Mg/m^3 ）中の両イオンの拡散係数と ΔE_a を粘土粒子の配向方向に対する拡散方向、塩濃度、温度をパラメータに測定した。その結果、両イオンとも拡散係数に異方性が見られたが、塩濃度の影響は見られなかった。また、 I^- イオンの拡散係数は外部間隙と層間が共存する系より低いものの、層間中を拡散する事が分かった。一方、 ΔE_a は塩濃度が増加すると減少する傾向にある事が分かった。
- (3) 更に、層間距離や配向方向を精密に揃えるため、薄膜状の定方位試料を作製し、これらを積み重ねて水分子 2 層のみの層間距離を持つ圧縮スメクタイト（ 1.8Mg/m^3 ）を作成し、両イオンの拡散係数と ΔE_a を $[\text{NaCl}] = 0.01 \text{M}$ の条件で粘土粒子の配向方向に対して直角方向に拡散させて測定した。圧縮法で作製した試料と比較したところ、配向方向に対する拡散方向や乾燥密度が同一にも拘らず、全ての条件で低目の拡散係数が得られた。これは、膜状定方位試料の方が粘土粒子の平面的広がりが大きいため屈曲度が増加した事によると考えられた。また、 ΔE_a は、乾燥密度の増加に伴い上昇した。含水比と間隙水の活量との関係から推定した ΔE_a と比較したところ、両イオンともほぼ一致し、活量と ΔE_a との関係を定量的に把握した。

【研究目標に対する達成度】

- (1) 蒸気圧法により測定した砂岩中の間隙水の熱力学特性について詳細に検討し、熱力学諸量を求めると共に、熱力学諸量間の関係及び含水比との関係などから、固相表面からの影響領域や界面近傍での水の存在状態を概ね理解した。また、モンモリロナイトなど、比表面積やCECが全く異なる他の材料に対しても汎用性のあるCECと含水比に基づいたモデルを提案した。更に、圧縮スメクタイト中の間隙水の活量や ΔG などの熱力学データを拘束条件で測定し、熱力学特性を定量的に把握すると共に、過去に報告されている外圧開放系とほぼ同等である事を示した。よって、ほぼ所期の目標を達成したと言える。
- (2) 石英（玉髄）や長石などの他の鉱物や方解石などの可溶性塩の影響を取り除き、スメクタイト層間中の交換性陽イオンをNaに揃えた精製Naスメクタイトを作製した。この精製スメクタイトを用いて、外部間隙と水分子2及び3層の層間距離の混在系、並びに層間距離を水分子2層のみに制御した圧縮スメクタイト中の陽イオン(Cs^+ イオン)と陰イオン(I^- イオン)の拡散係数や活性化エネルギー(ΔE_a)を測定し、個別現象に関わる基礎データや熱力学データを定量的に把握した。よって、ほぼ所期の目標を達成したと言える。
- (3) スメクタイト粒子の配向方向、層間距離及び間隙水の塩濃度を制御して得られた I^- と Cs^+ イオンに対する拡散係数や ΔE_a 、並びに間隙水の活量と含水比との関係やこれ迄報告されているデータや知見を総合して、圧縮スメクタイト中の核種拡散移行プロセスを概ね理解すると共に、各イオンの移行経路や静電的影響、間隙水の活量変化、イオン交換反応に基づく収着のエンタルピーなどを考慮した拡散移行モデルのイメージを示した。また、間隙水の活量と ΔE_a は、本来、熱力学的には異なるパラメータであるものの、両者を定量的な関係として結び付ける事が出来た。よって、ほぼ所期の目標を達成したと言える。

【研究成果の波及効果及び展望】

1. 現在までの波及効果

(1) 工学的または学術的波及効果

- ① 圧縮スメクタイト中のイオンの拡散係数と活性化エネルギー (ΔE_a) の異方性及び塩濃度の影響については、原子力学会での講演後、データや内容が貴重であるとして論文化するよう学会（座長推薦）より勧誘を受けた（文献 1）。
- ② 本研究成果の内、スメクタイト粒子の配向方向と層間距離を制御した条件で得られた拡散係数や ΔE_a の結果は、圧縮ベントナイト中のイオンの拡散問題や透水問題をミクロレベル（分子レベル）からマクロレベル（m オーダー）までをモデルで解く手法の構築過程で適用された。これは、スメクタイトの層間や積層体間の外部間隙中での水の特性（粘性や密度分布）やイオンの拡散挙動について、分子動力学法によるミクロ場（層間、外部間隙、エッジ面）での計算結果とベントナイトの間隙構造を考慮してマクロスケールでの拡散係数や濃度分布、透水係数などを計算する均質化法を組み合わせた結合解析法であり、ベントナイトの主要構成粘土鉱物のスメクタイトに着目し、層間中の Cs^+ イオンの拡散係数の対比データや層間中でのイオンの分布や挙動（軌跡、イオン周辺の粘性分布など）を理解するための情報として活用された。この研究は、東工大と名古屋大並びに当機構（博士研究員）が中心となって実施しているもので、機構内での議論はもとより、定期的に行われる情報交換の場（粘土会）で得られたデータや知見を提供して来た。
- ③ 圧縮ベントナイト中の間隙水化学やイオンの拡散現象の理解と理論的モデルの開発に静電的相互作用のモデル（電気二重層モデル）が活用され、修正電気二重層モデルとして更に発展させている（文献 2）。変わった点は、誘電率分布が考慮されている事であり、これに基づいて粘性分布が計算されている。

(2) 社内プロジェクト・他の研究開発・安全研究に対する波及効果

- ① 圧縮ベントナイト中のイオンの拡散係数の温度補正について、一定条件の下（「第 2 次取りまとめ」に於けるレファレンスケースなど）では従来の補正方法（自由水中の拡散係数の ΔE_a を代用）の考え方で正しい事を、科学的根拠を持って示すと共に、地層処分の技術報告書「平成 17 年取りまとめ」（文献 3）などに反映された。
- ② 間隙水の熱力学特性の影響については、「平成 17 年取りまとめ」（文献 3）に於ける圧縮ベントナイト中の透水性（透水係数）や力学特性（膨潤特性）に及ぼす塩濃度（海水系）の影響の解釈やレビューコメント（塩濃度と間隙水の活量との関係や塩濃度が構造に及ぼす影響など）に於いて反映された。また、同様の影響に対する解釈やレビューコメントについては、TRU 廃棄物処分技術検討書「第 2 次 TRU 取りまとめ」（文献 4）に於いても反映された。更に、間隙水の熱力学特性に関する理論やモデルは、TRU 廃棄物固有の問題でもある硝酸塩の影響（高濃度の $NaNO_3$ に於ける活量低下の影響）について、岩石（凝灰岩）中のイオンや不活性な重水（HDO）の拡散に及ぼす影響の解析や解釈に於いて活用された（文献 5）。
- ③ これ迄に社内公募型研究（核燃料サイクル創造的工学研究）として取り組んだ成果全般に亘り、「安全研究報告書（深部地質環境下における核種移行データの取得及びデータベースの整備）」を始め、地層処分技術に関する研究開発年報や報告会、「平成 17 年取りまとめ」（文献 3）など、各種の報告書やデータ設定に反映された。

2. 今後期待される波及効果と展望

(1) 工学的または学術的波及効果

- ① 前回、研究実施者が行った社内公募型研究（H13.8～16.4）では、陰イオンが層間中を移行し得るか否か迄は定量的に議論する事が出来なかったが、 I^- イオンを用いて詳細に調べた本研究の結果から、水分子 2 層のみの層間距離（5.5Å 程度）に制御した圧縮スメクタイト中を陰イオンが拡散する事とその過程での ΔE_a を定量的データで示した。この層間中の陰イオンの拡散の問題については、一般には移行しないと考えられて来たものの、国際的にも議論の残る課題の 1 つであり、今後の議論が期待される。

- ② 粘土中の拡散の異方性については、スイスの PSI (ポールシェラー国立研究所) が粘土鉱物を多く含有した天然のオパリナス粘土層を対象として研究している例があり、研究実施者と同様に、層の配向方向への拡散に対するトリチウム (HTO) や Cl^- イオンなどの拡散係数の方が直角方向よりも大きい事 (拡散の異方性) が報告されている。最近では、温度と配向方向の影響 (ΔE_a) についても研究されており、国際会議 (ANDRA 主催の粘土の挙動に関する会議: フランス (ツール)、2005 年 3 月) や PSI-JNC ワークショップ (PSI、2005 年 9 月) などを通じて情報交換や情報提供を行っており、原位置試験 (スイス (モンテリー)、幌延 (特に稚内層深部では堆積構造が見られる (文献 6) など) や室内試験、媒体特性を考慮した安全評価などに活用出来ると期待される。
- ③ TRU や低レベル廃棄物処分を始め、高レベル廃棄物処分に関連した課題として、セメント材料との接触によるベントナイト中のスメクタイトの溶解・劣化・変質 (高 pH の影響) に関する問題が重要視されており、その長期的予測解析には圧縮ベントナイト中の OH^- イオン (水酸化物イオン) の移行問題 (pH の伝達速度) の取り扱いが不可欠である。現在、拡散係数は便宜的に水と同じと仮定して解析が行われているか、透過実験から得られたデータが使用されているものの、条件が限定的であり、汎用性に乏しい。従って、同種の電荷を持つ I^- イオンのデータ (個別の移行経路に対する拡散係数や ΔE_a) や知見が活用出来ると期待される。
- ④ 本研究の主たるテーマではないが、研究の必要性から、層間イオンを揃え、精製したスメクタイトを調製した。また、スメクタイトの特性を把握するため、層間イオンの種類や割合なども調べた。この精製プロセスや層間イオンの情報などは、今後、ベントナイトを利用して研究する研究者にとって貴重な情報となると期待される。

(2) 社内プロジェクト・他の研究開発・安全研究に対する波及効果

- ① 「第 2 次取りまとめ」を始め、従来の安全評価では、圧縮条件や固液界面での間隙水の特性についての知見が乏しかったため、 ΔE_a は自由水中の拡散と同じと仮定されていたが、本研究から、圧縮ベントナイト中の間隙水の一部は熱力学的には氷と同等に構造化されていると解釈される事や、間隙水の活量は低い事、拡散種の電荷に依存して主たる移行経路が異なり、その結果、移行経路に依存して拡散係数や ΔE_a が異なる事を指摘した。この事から、 ΔE_a は自由水中よりも高目になる場合があり、拡散係数の温度補正に対する従来の考え方では保守的とならないケースが出る。本研究では、経験的な関係であるものの、含水比と間隙水の活量との関係を ΔE_a に定量的に結び付ける事が出来ており、汎用性も高い。今後、任意の条件に対する ΔE_a の設定や設定の考え方などに応用出来ると期待される。
- ② 現状では、降水系と海水系地下水に対するベントナイトの膨潤圧、サクション、水分ポテンシャルなどの特性値は、個別の条件に対するデータ取得が中心であったが、固相表面近傍での水の熱力学特性は、これらのパラメータなどと理論的に結び付けて考える事が出来るため、これ迄独立的に取り扱われて来たこれらのパラメータを、様々な溶液条件、特に海水系や高濃度の硝酸塩などに対して理論的に予測する事が可能であり、高レベルのみならず、TRU や低レベル廃棄物処分に於ける処分技術の側面からも汎用性が高いと期待される。
- ③ 水の熱力学特性の知見やモデルから、酸化物を主体とした粉末 (酸化物燃料など) 中の水分量と相対湿度との関係を、比表面積や比重、表面の汚れ具合に関する情報が分かれば、見積る事が可能であり、他の一般材料 (土壌や幌延泥岩) に対しても応用出来ると期待される。

文献)

1. 佐藤治夫: “圧縮ベントナイト中の I^- 及び Cs^+ イオンの拡散及び活性化エネルギーの異方性”、原子力学会 2005 年春の年会、2005 年 3 月 29-31 日、東海大学 (M45)、p.674 (2005)。
2. T. Ohe: “Simultaneous Calculation of Diffusivity, Sorption Coefficient and Solubility in the Geochemical Speciation Code MINEQL”, Int'l Workshop on Waste Management in Sapporo (Sapporo Workshop 2005), Aug. 29-30, 2005, Hokkaido Univ., Sapporo, Japan, Abstract, pp.7-12 / Report, pp.27-32 (2005)。
3. 核燃料サイクル開発機構: “高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する知識基盤の構築

- 平成 17 年取りまとめ- 分冊 3 安全評価手法の開発”、JNC TN1400 2005-016 (2005)。
- 4. 電気事業連合会、核燃料サイクル開発機構：“TRU 廃棄物処分技術検討書 -第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ-”、JNC TY1400 2005-013/EEPC TRU-TR2-2005-02 (2005)。
- 5. 石寺孝充、佐藤治夫：“凝灰岩中の CO_3^{2-} , Cl^- , I^- の拡散挙動に及ぼす NaNO_3 の影響”、JNC TN8400 2005-018 (2005)。
- 6. 佐藤治夫：“堆積岩系岩石マトリクス中のイオンの拡散移行過程に関する研究：幌延泥岩の物理化学特性評価”、JNC TN1400 2003-003 (2003)。

【研究成果の説明】

1. 固相表面近傍での間隙水の熱力学特性評価

(1) 間隙水の熱力学特性について検討した。蒸気圧法により含水比と温度をパラメータに測定した白浜砂岩について、間隙水の活量と含水比との関係、比表面積、水の密度と分子径から固相表面からの影響領域を見積ったところ、水分子 10 層程度の距離に相当する 3nm 程度であり、特に表面から水分子 4 層程度の距離に相当する 1.1nm までは活量が低く強い影響を受けると考えられた。また、水簇による鉱物分離と XRD による鉱物同定、並びにアンモニウム置換法による陽イオン交換容量 (CEC) や Hg 圧入法による比表面積の測定などから、主たる構成鉱物は石英である事、12.9%の粘土鉱物が含まれているその大半がイライトである事や CEC は 2.2meq/100g である事などが分かった。図 1 に主要構成鉱物の石英表面での水素結合と水和による水の構造化の概念を示す。石英のような酸化物は、水と接触すると表面で M-OH (M: Si などの骨格ないし金属元素) が形成される。水分子は Si-OH (シラノール基) の -OH 基と水素結合するが、結合エネルギーが 28kJ/mol 程度と弱い事や水分子内の酸素を固相表面に向けなければならないため、氷のような構造的なネットワークを形成する事が出来ない。一方、固相表面近傍には CEC に相当する陽イオンが存在するため、含水比の減少に伴い間隙水の陽イオン濃度が増加し、陽イオンの水和により水の活量が減少すると考えられる。この事に着目し、CEC と含水比に基づいたモデルを提案した。これは、単位当量当りの水分量 (含水比/CEC) を指標としたモデルで、図 2 に種々の電解質溶液に対する水の活量の計算値と砂岩及びモンモリロナイトの実測値との比較を示す。表層沖合で計算値と実測値は良く一致しており、水分子数層以上の場所では陽イオンの水和により水の活量が低下した事が分かる。一方、表面第 1 層付近 (含水比/CEC=0.06g-water/meq) では実測値の方が低い活量となっている。これは、陽イオンの水和と固相との水素結合が複合したためと考えられる。この結果は、分子動力学計算結果とも調和している。また、砂岩とモンモリロナイトでは CEC や比表面積が異なるものの、このモデルでは両材料の活量と含水比との関係をほぼ説明出来る。相対部分モル Gibbs の自由エネルギー (ΔG) や相対部分モルエンタルピー及びエントロピーなどの熱力学諸量と含水比との関係と 0°Cでの氷 (I_h) の融解のエントロピーとの比較から、砂岩表面での水は氷程構造化されていないが、熱力学的には自由水よりも化学ポテンシャルが低い事が分かった。

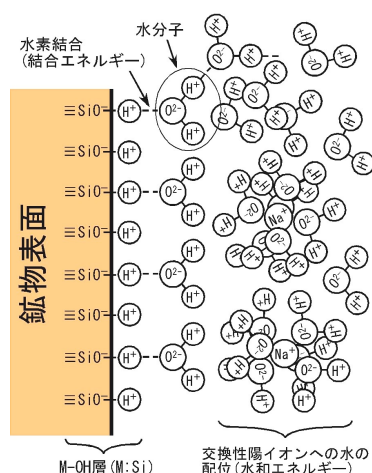


図 1 水と接触した石英表面での水素結合と水和による水の構造化の概念

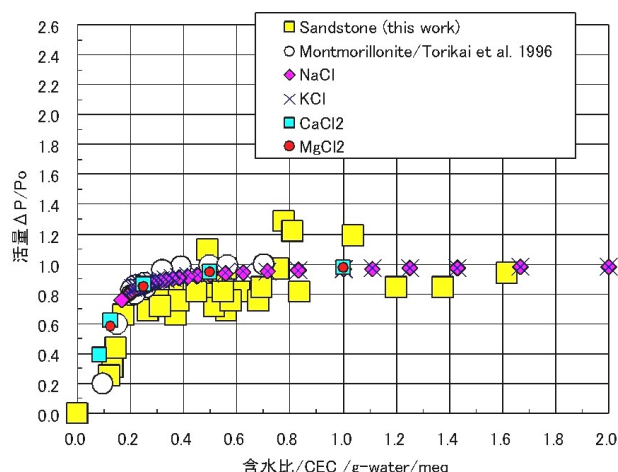


図 2 単位当量当りの水分量に対する種々の電解質溶液の水の活量の計算値と砂岩及びモンモリロナイトの実測値との比較

(2) 次に、ベントナイトの主要構成粘土鉱物のスメクタイト (モンモリロナイト) に着目し、圧縮スメクタイト中の間隙水の熱力学特性について検討した。Na 型ベントナイトのクニピア P を出発物質として、層間イオンを全て Na^+ イオンで置換処理後、水簇分級によりスメクタイトのみを捕集し、更に、可溶性塩を除去して精製 Na スメクタイトを作製した。この精製スメクタ

イトをアクリル製試料セル（試料形状： $\phi 10\text{mm} \times 5\text{mm}$ ）に乾燥密度 $0.6 \sim 0.9\text{Mg/m}^3$ となるように充填し、含水させた。この乾燥密度は、「第 2 次取りまとめ」のレファレンスケース（クニゲル V1、乾燥密度 1.6Mg/m^3 、珪砂混合率 30wt. %）に於けるスメクタイト部分密度に相当する。含水後、試料セルを解体してスメクタイトの充填された試料ホルダーのみを取り出し、水分を除去した後、再度、乾燥したパーツで試料セルを組み立て、拘束条件（圧縮条件）で蒸気圧測定を行った。この際、スメクタイト両側には、水蒸気が通過出来るように目の粗いプラスチックフィルタを配置し、更にその外側にはフィルタホルダーを配置した。測定は含水比と温度（3～5℃間隔で 15～40℃の範囲）をパラメータに行った。恒温水槽中に試料セルを入れた測定セルを沈め、測定セル内を真空状態とした後、各温度での平衡水蒸気圧をデジタルマノメータで測定した（0.1kPa 単位）。測定終了後、試料セルを取り出し、重量を測定した後、再度、測定セルに入れ、10 分程度真空引きして含水比を下げた後、次の測定を行った。この測定を異なった一連の含水比に対して行った。含水比は、各含水比に対する測定終了時の試料セル重量、最後に 110℃で乾燥後の試料重量と空状態での試料セル重量から決定した。図 3 に 25℃での圧縮スメクタイトの含水比に対する水の活量、図 4 に ΔG の実測値を示す。含水比の減少に伴い水の活量や ΔG は低下し、固相表面に近づく程間隙水は束縛される事が分かる。また、過去に外圧開放系で測定されたスメクタイト含有率がほぼ 100wt. %のクニピア F と比較したところ、同じ含水比では外圧開放系と同程度である事が分かった。この事から、含水比と CEC に基づいたモデルが適用出来る事も明らかとなった。

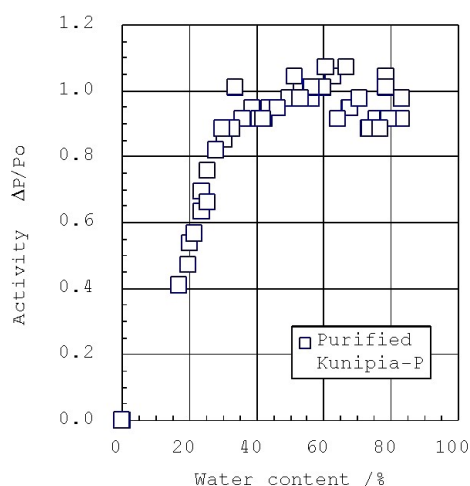
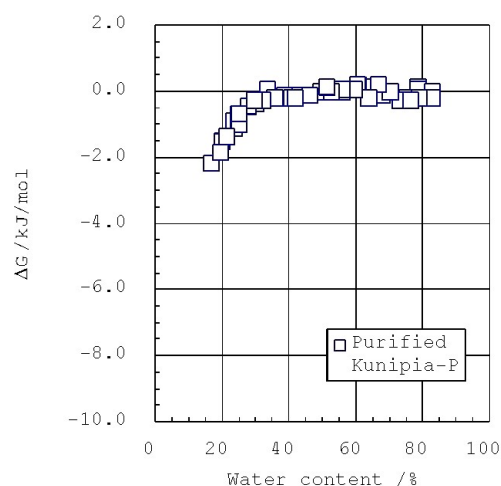


図 3 含水比に対する水の活量の実測値

図 4 含水比に対する ΔG の実測値

2. 個別拡散移行経路に対する熱力学特性評価

- (1) 圧縮スメクタイト中の I^- 及び Cs^+ イオンの拡散係数と ΔE_a に及ぼすスメクタイト粒子の配向方向に対する拡散方向や塩濃度の影響について検討した。圧縮法により配向方向を制御した圧縮スメクタイトを作製し、配向方向に対する拡散方向、乾燥密度（ $0.9 \sim 1.4\text{Mg/m}^3$ ）、塩濃度（ $[\text{NaCl}] = 0.01, 0.51\text{M}$ ）、温度（22～60℃）をパラメータとして拡散係数を測定した。Na 型ベントナイトのクニピア F をクニピア P と同様に、 Na^+ イオンによるイオン交換処理、水簸分級、可溶性塩の除去などの操作を経て精製 Na スメクタイトを作製した。乾燥状態の粉末を充填用製試料ホルダー（試料形状：13mm の立方体）に所定の乾燥密度となるように充填し、一軸方向から圧縮成型した。この操作により、スメクタイト粒子が圧縮方向に対して直角方向に配向する。圧縮成型したスメクタイトを充填用試料ホルダーより取り出し、アクリル製拡散カラムの試料ホルダー（試料形状：15mm の立方体）に移し、減圧下で含水させた。試料ホルダーに移す際、配向方向に対して直角方向に拡散させる場合、試料方向は同一方向に入れるが、配向方向へ拡散させる場合、試料を 90°回転させて入れた。1 ヶ月程度、蒸留水で含水後、所定濃度の NaCl 溶液に含水させた。含水飽和後、試料の一面に 50 μl のトレーサ溶液を塗布し、恒

温槽中で所定期間拡散させた。拡散終了後、試料を約1mmにスライスし、各スライス片からI及びCsをKCl溶液で抽出後、IはICP-AES、Csは高分解能ICP-MSにより分析し、見掛けの拡散係数(D_a)を決定した。図5に D_a の配向方向、塩濃度及び乾燥密度依存性測定例(22°C)(左:I, 右:Cs)を示す。両イオンとも配向方向への D_a の方が直角方向よりも大きく、過去に測定したトリチウム(HTO)や重水(HDO)の傾向とも一致した。配向方向に対する両イオンの D_a の乾燥密度と塩濃度に対する傾向から、I⁻イオンは主として静電的反発の小さい外部間隙中を拡散し、層間中の陽イオンとイオン交換するCs⁺イオンは層間と外部間隙の両方を拡散すると考えられた。

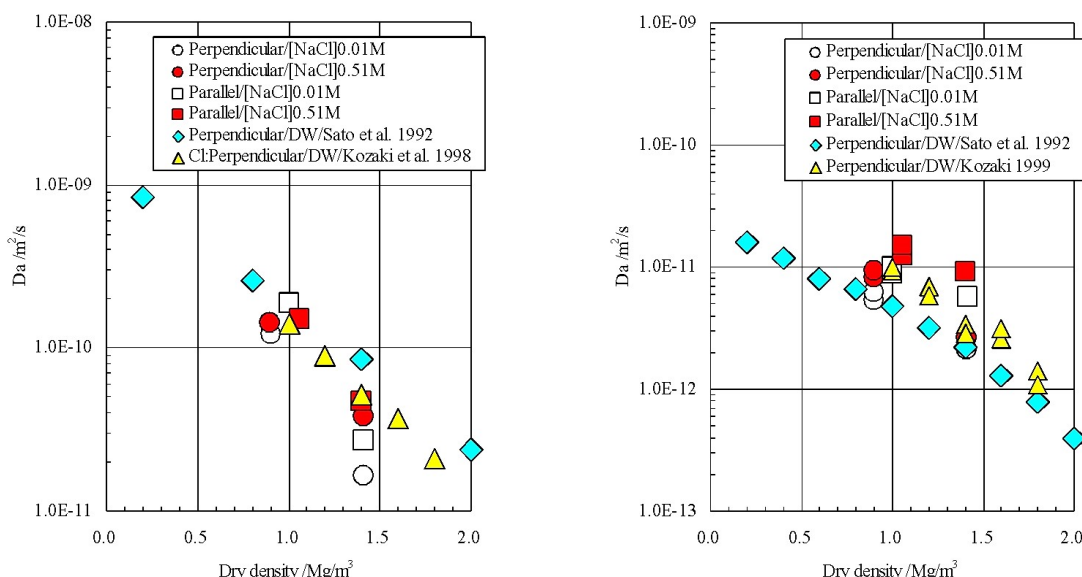


図5 圧縮スメクタイト中の D_a の配向方向、塩濃度及び乾燥密度依存性測定例(22°C)

Perpendicular:配向方向に対して直角方向、Parallel:配向方向に対して平行方向

図6に ΔE_a の配向方向、塩濃度及び乾燥密度依存性を示す。両イオンとも配向方向と塩濃度の影響は見られない。I⁻イオンは低乾燥密度の条件(1.0Mg/m³)では自由水中と同程度であり、乾燥密度の増加に伴い上昇した。I⁻イオンの主たる移行経路と間隙水の活量低下(1.4Mg/m³で約0.9)を考えると、 ΔE_a が増加した原因は乾燥密度の増加に伴う外部間隙径の減少による静電的反発力の増加と間隙水の活量低下の影響と考えられた。一方、Cs⁺イオンは低乾燥密度の条件でさえ自由水中よりも明らかに高く、乾燥密度の増加に伴い上昇した。層間中でのCs⁺とNa⁺イオンとのイオン交換エンタルピー(ΔH°)を考慮する事で低乾燥密度の条件での ΔE_a を説明出来る事から、乾燥密度の高い条件(1.4Mg/m³)では ΔH° と活量低下の影響と考えられた。HDOの ΔE_a と圧縮スメクタイト中の間隙水の活量の測定結果に基づいて活量低下が ΔE_a に及ぼす影響について見積ると、乾燥密度が0.9から1.35Mg/m³に増加すると ΔE_a は約5kJ/mol上昇するのに対して水の活量は約0.1低下し、活量0.1の低下で約5kJ/molの ΔE_a が上昇すると見込まれた。この事を考慮すると、乾燥密度1.4Mg/m³での両イオンの ΔE_a を旨く説明する事が出来た。

- (2) 次に、2層水和の層間中での D_a と ΔE_a を調べるため、乾燥密度1.8Mg/m³の試料を圧縮法で作製し、同じパラメータで拡散実験を行った。また、底面間隔をXRDで測定し、層間距離を求めた。その結果、層間距離は2層水和である事が確認された。また、これ迄と同様に、両イオンとも D_a に異方性が見られたが、塩濃度の影響は見られなかった。更に、I⁻イオンの D_a は外部間隙と層間が混在する系より低目であるものの、層間中を拡散する事が分かった。
- (3) 更に、層間距離や粘土粒子の配向方向を精密に揃えるため、上述の手順で精製したクニピアPを用いて薄膜状の定方位試料を作製し、これらを拡散カラムの試料ホルダー中に一定方向に積み重ねる事によって配向方向の揃った圧縮スメクタイトを作製した。膜状定方位試料は、精製スメクタイトを超純水中に分散させて懸濁液とし、定方位試料を作製する要領で薄膜状に

薄く延ばした後、30～40℃で低温脱水する事で作製した。最後に110℃で乾燥後、14mm角に切断して膜状試料とした。乾燥密度は、膜状試料の枚数で調整し、水分子2層の層間距離を持つ乾燥密度 1.8Mg/m^3 の圧縮スメクタイトを作製した。この試料中の両イオンの D_a と ΔE_a を $[\text{NaCl}] = 0.01\text{M}$ で含水後、配向方向に対して直角方向に拡散させて測定した。

圧縮法で作製した試料と比較したところ、配向方向に対する拡散方向や乾燥密度が同一にも拘らず、全ての条件で低目の D_a が得られた。これは、膜状定方位試料の方が粘土粒子の平面的広がりが大きいため、屈曲度が増加した事によると考えられた。図7に膜状定方位試料を用いて作製した圧縮スメクタイト中の ΔE_a の測定結果をこれ迄取得したデータ（配向方向、塩濃度及び乾燥密度依存性）と併せて示す。両イオンとも、 ΔE_a は、乾燥密度の増加に伴い上昇した。含水比と間隙水の活量との関係から ΔE_a を推定したところ、平均乾燥密度 1.79Mg/m^3 に対する含水比は約20%であり、この時の間隙水の活量は約0.6であった事から、 I^- イオンで約36kJ/mol、 Cs^+ イオンで約47kJ/molと見積られた。これらの推定値は実測値とほぼ一致し、活量と ΔE_a との関係を定量的に把握した。

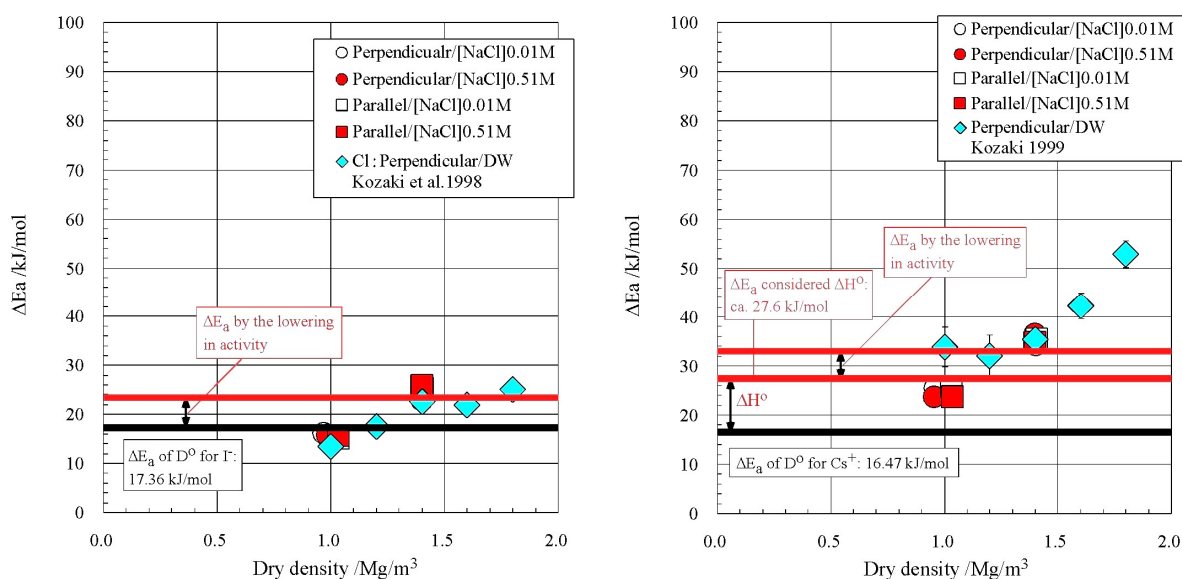


図6 圧縮法で作製した圧縮スメクタイト中の ΔE_a の配向方向、塩濃度及び乾燥密度依存性 (D^0 : 自由水中の拡散係数) (左: I^- , 右: Cs^+)

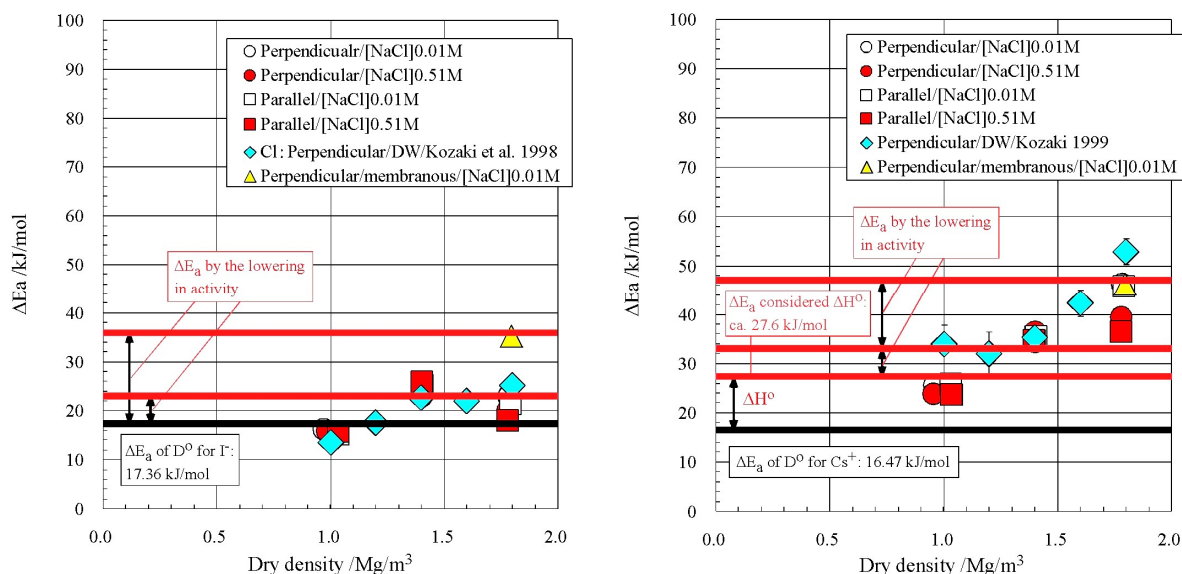


図7 膜状定方位試料を用いて作製した圧縮スメクタイト中の ΔE_a (Δ : Perpendicular/membranous) (これ迄の取得データも併記) (左: I^- , 右: Cs^+)

【研究成果等発表状況】			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
1. 学術誌論文（原著研究論文）			
1.1	H.Sato	“Measurements on the Thermodynamic Properties of Porewater in Sandstone by Vapor Pressure Method”, J. Nucl. Sci. Technol. Vol.42, No.4, 2005, pp.368-377	1.(1)
1.2	H.Sato	“Effects of the Orientation of Clay Particles and Ionic Strength on Diffusion and Activation Enthalpies of Γ^- and Cs^+ Ions in Compacted Smectite”, Appl. Clay Sci. 29, 2005, pp.267-281	2.(1)
1.3	H.Sato	“Anisotropy in Diffusion and Activation Energy of Cs^+ Ions in Compacted Smectite”, Clay Sci., Vol.12, 2006, pp.160-165	2.(1)
2. 学術会議論文（会議論文集あり）			
2.1	H.Sato	“Overview of R & D Activities on the Geological Disposal for HLW, and the Diffusion Properties of Radionuclides in the Bentonite Buffer”, Proc. for Korea-Japan Joint Workshop on Radioactive Waste Disposal 2004: The Role of Geology, Dec. 7, 2004, Daejeon, Korea, 2004, pp.49-70	2.(1)
2.2	H.Sato	“Anisotropy in Diffusion and Activation Energies of Γ^- and Cs^+ Ions in Compacted Smectite”, Proc. for 13th International Conf. on Nucl. Engineering (ICONE13), May 12-16, 2005, Beijing, China, 2005, pp.1-8	2.(1)
2.3	H.Sato	“Anisotropy and Effect of Salinity in Diffusion and Activation Energies of Cations and Anions in Compacted Bentonite”, Proc. for International Symp. NUCEF2005, JAERI-Conf 2005-007, 2005, pp.253-258	2.(1)
2.4	T.Ishidera, S.Miyamoto and H.Sato	“The Effects of Silica Sand Content on Diffusion of CO_3^{2-} , Cl^- and Γ^- Ions in Compacted Bentonite”, Proc. for International Symp. NUCEF2005, JAERI-Conf 2005-007, 2005, pp.264-269	1.(1), (2), 2.(1)
2.5	H.Sato	“Activation Energy of Diffusion for Iodine and Cesium in Compacted Smectite”, Proc. for 2nd Japan-Korea Joint Workshop on Radioactive Waste Disposal 2005: Interaction Between NBS and EBS, Oct. 6-7, 2005, Tokyo, Japan, 2005, pp.136-153	2.(1)
2.6	H.Sato	“Effects of the Orientation of Clay Particles and Ionic Strength on Diffusion and Activation Enthalpies of Γ^- and Cs^+ Ions in Compacted Bentonite (II)”, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. on Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXIX, Sep. 12-16, 2005, Ghent, Belgium, Vol.932, 2006, pp.905-912	2.(1)

3. 学会等口頭発表（概要集程度）			
3.1	H.Sato	“Overview of R & D Activities on the Geological Disposal for HLW, and the Diffusion Properties of Radionuclides in the Bentonite Buffer”, Proc. for Korea-Japan Joint Workshop on Radioactive Waste Disposal 2004: The Role of Geology, Dec. 7, 2004, Daejeon, Korea	2.(1)
3.2	H.Sato	“Anisotropy and Effect of Salinity in Diffusion and Activation Energies of Cations and Anions in Compacted Bentonite”, International Symp. NUCEF2005, Feb. 9-10, 2005, Techno Community Square RICOTTI, Tokai-mura, Japan, Program and Abstracts, p.62	2.(1)
3.3	T.Ishidera, S.Miyamoto and <u>H.Sato</u>	“The Effects of Silica Sand Content on Diffusion of CO_3^{2-} , Cl^- and I^- Ions in Compacted Bentonite”, International Symp. NUCEF2005, Feb. 9-10, 2005, Techno Community Square RICOTTI, Tokai-mura, Japan, Program and Abstracts, p.64	1.(1), (2), 2.(1)
3.4	H.Sato	“Diffusion and Activation Energies of I^- and Cs^+ Ions in Compacted Smectite”, 2nd International Meeting on Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement, Mar. 14-18, 2005, Tours, France, Abstracts, pp.509-510	2.(1)
3.5	H.Sato	“Anisotropy in Diffusion and Activation Energies of I^- and Cs^+ Ions in Compacted Smectite”, 13th International Conf. on Nucl. Engineering (ICONE13), May 12-16, 2005, Beijing, China, Abstracts, p.338	2.(1)
3.6	H.Sato	“Anisotropy in Diffusion and Activation Energy of Cs^+ Ions in Compacted Smectite” 13th International Clay Conf. (ICC 2005), Aug. 21-27, 2005, Waseda Univ., Japan, Abstracts, p.116	2.(1)
3.7	H.Sato	“Activation Energy for Diffusion of Ions in Compacted Bentonite”, International Workshop on Waste Management in Sapporo (Sapporo Workshop 2005), Aug. 29-30, 2005, Hokkaido Univ., Sapporo, Japan, Abstracts, pp.46-47 / Report, pp.171-174	2.(1)
3.8	H.Sato	“Effects of the Orientation of Clay Particles and Ionic Strength on Diffusion and Activation Enthalpies of I^- and Cs^+ Ions in Compacted Bentonite (II)”, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. on Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXIX, Sep. 12-16, 2005, Ghent, Belgium, Abstracts, p.178	2.(1)
3.9	H.Sato	“Activation Energies for Diffusion of Iodine and Cesium in Compacted Sodium Smectite”, 10th International Conf. on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere (MIGRATION'05), Sep. 18-23, 2005, Avignon, France, Abstracts, p.175	2.(1)
3.10	H.Sato	“Activation Energy of Diffusion for Iodine and Cesium in Compacted Smectite”, 2 nd Japan-Korea Joint Workshop on Radioactive Waste Disposal 2005: Interaction Between NBS and EBS, Oct. 6-7, 2005, Tokyo, Japan	2.(1)
3.11	石寺孝充, <u>佐藤治夫</u>	“凝灰岩中の C, Cl, I の拡散挙動に及ぼす NaNO_3 の影響”, 日本原子力学会 2004 年春の年会, 2004 年 3 月 29-31 日, 岡山大学 (H46), 2004, p.852	
3.12	佐藤治夫	“砂岩中の間隙水の熱力学特性”, 日本原子力学会 2004 年秋の大会, 2004 年 9 月 15-17 日, 京都大学 (I44), p.694	1.(1)

3.13	佐藤治夫	“圧縮ベントナイト中の Γ 及び Cs^+ イオンの拡散及び活性化エネルギーの異方性”, 第 37 回核種移行調査専門委員会, 2004 年 12 月 20 日, 東北大学金属材料研究所, “核種移行評価の信頼性向上に関する調査及びレビュー(平成 16 年度)”, サイクル機構技術報告書, JNC TJ8420 2004-004, 2004, pp.付-2(67)-付-2(72)	全体
3.14	佐藤治夫	“圧縮ベントナイト中の Γ 及び Cs^+ イオンの拡散及び活性化エネルギーの異方性及び塩濃度の影響”, 第 7 回高レベル放射性廃棄物に関する情報交換会 (Sapporo Conference), 2005 年 3 月 7-8 日, 北海道大学, 第 7 回高レベル放射性廃棄物に関する情報交換会 (Sapporo Conference) 報告書, pp.51-56	2.(1)
3.15	石寺孝充, 黒澤精一, <u>佐藤治夫</u>	“花崗岩中の Cs^+ 及び Γ イオンの拡散挙動に及ぼす間隙水中塩濃度の影響”, 第 7 回高レベル放射性廃棄物に関する情報交換会 (Sapporo Conference), 2005 年 3 月 7-8 日, 北海道大学, 第 7 回高レベル放射性廃棄物に関する情報交換会 (Sapporo Conference) 報告書, pp.113-117	1.(1), 2.(1)
3.16	佐藤治夫	“圧縮ベントナイト中の Γ 及び Cs^+ イオンの拡散及び活性化エネルギーの異方性”, 日本原子力学会 2005 年春の年会, 2005 年 3 月 29-31 日, 東海大学 (M45), p.674	2.(1)
3.17	石寺孝充, <u>佐藤治夫</u>	“花崗岩中の Cs^+ 及び Γ イオンの拡散挙動に及ぼす塩濃度の影響”, 日本原子力学会 2005 年秋の大会, 2005 年 9 月 13-15 日, 八戸工業大学 (L50), p.604	1.(1), 2.(1)
3.18	甲川憲隆, 向井悟, 神徳敬, <u>佐藤治夫</u> , 柴田雅博, 笹本広	“花崗岩質岩石におけるマトリクス拡散深さに関する実験的研究—長さ 5~20cm の岩石コアを用いたヨウ素の拡散試験—”, 日本原子力学会 2005 年秋の大会, 2005 年 9 月 13-15 日, 八戸工業大学 (L51), p.605	1.(1), 2.(1)
4. 学術誌解説・総説			
4.1			
5. 依頼講演 (内部は除く)			
5.1	H.Sato	“Overview of R & D Activities on the Geological Disposal for HLW, and the Diffusion Properties of Radionuclides in the Bentonite Buffer”, Proc. for Korea-Japan Joint Workshop on Radioactive Waste Disposal 2004: The Role of Geology, Dec. 7, 2004, Daejeon, Korea	2.(1)
6. その他 (サイクル機構技報等)			
6.1	佐藤治夫	“第 28 回放射性廃棄物管理の科学的基礎に関する国際シンポジウム”, 日本原子力学会誌, Vol.46, No.7, 2004, pp.482-483	2.(1)
6.2	石寺孝充, 宮本真哉, <u>佐藤治夫</u>	“圧縮ベントナイト中の CO_3^{2-} , Cl^- 及び Γ の拡散挙動に及ぼすケイ砂混合率及び NaNO_3 の影響”, サイクル機構技報 No.25, JNC TN1340 2004-004, 2004, pp.85-93	1.(1), (2), 2.(1)
6.3	佐藤治夫	“「放射性廃棄物処分 2004: 地質媒体の役割」に関する日韓共同ワークショップ”, 日本原子力学会誌, Vol.47, No.3, 2005, pp.159-161	2.(1)
6.4	佐藤治夫	“国際会議参加報告: 米国材料学会 (MRS'04) 第 28 回放射性廃棄物管理の科学的基礎に関する国際シンポジウム”, サイクル機構技術報告書, JNC TN1200 2004-001, 2004	2.(1)

6.5	佐藤治夫	“国際会議参加報告：「放射性廃棄物処分 2004：地質媒体の役割」に関する日韓共同ワークショップ”，サイクル機構技術報告書，JNC TN1200 2004-003, 2005	2.(1)
6.6	佐藤治夫	“国際会議参加報告：第 2 回放射性廃棄物の封じ込めのための天然バリア及び人工バリアに於ける粘土に関する国際会議（ANDRA 会議）”，JNC TN1200 2005-001, 2005	2.(1)
6.7	佐藤治夫	“国際会議参加報告：第 13 回原子力工学国際会議（ICONE13）”，JNC TN1200 2005-002, 2005	2.(1)
6.8	佐藤治夫	“国際会議参加報告：天然バリアと人工バリア間の相互作用に関する第 2 回日韓合同ワークショップ”，原子力機構技術報告書，JAEA-Review 2005-003, 2006	2.(1)
7. 社内研究報告書			
7.1	佐藤治夫	“放射性廃棄物処分に於ける緩衝材及び岩石マトリクス中の核種拡散移行過程での固液界面現象と移行モデルの高度化に関する研究”，サイクル機構技術報告書，JNC TN1400 2004-003, 2004	1.(1), 2.(1)
7.2	佐藤治夫	“砂岩の粘土鉱物分析”，サイクル機構技術報告書，JNC TN1400 2004-005, 2004	1.(1)
7.3	H.Sato	“Monozonitic Granite and Tonalite”，JNC Tech. Rep., JNC TN1400 2004-008, 2004	1.(1)
7.4	サイクル開発機構	“高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する知識基盤の構築－平成 17 年取りまとめ－ 分冊 3 安全評価手法の開発”，サイクル機構技術報告書，JNC TN1400 2005-016 (第 3 章執筆), 2005	1.(1), 2.(1)
7.5	佐藤治夫	“Na 型スメクタイトの精製及び拡散試験用定方位試料の作製”，原子力機構技術報告書，JAEA-Research 2005-004, 2006	2.(3)
7.6	石寺孝充, 佐藤治夫	“花崗岩中の Cs ⁺ 及び I ⁻ イオンの拡散挙動に及ぼす塩濃度の影響”，原子力機構技術報告書，JAEA-Research (2006. 1 起案, 審査中)	1.(1), 2.(1)
8. 特許			
8.1			
8.2			

3.1.11 【H17-1】 溶融塩を用いた乾式再処理プロセスの創造に関する研究（延長研究）

平成 19 年 3 月 31 日

【No.】 研究テーマ名	【H17-1】 溶融塩を用いた乾式再処理プロセスの創造に関する研究（延長研究）		
研究実施者	永井 崇之		
研究実施場所	原子力機構 核燃料サイクル工学研究所（第二応用試験棟等） 京都大学 原子炉実験所， 東北大学 多元物質科学研究所		
研究期間	平成 17 年 4 月 1 日 ～ 平成 19 年 3 月 31 日		
研究費用	8,851 千円	内訳	H17 年度 3,688 (5,000) (千円) H18 年度 5,163 (5,000)
【研究目標】 本延長研究では，アルカリ金属（アルカリ土類）塩化物溶融塩中におけるウラン・ウラニルイオン等の化学的性質を調査し，溶融塩組成によるウラン・ウラニルイオンの化学的性質への影響を定量的に評価することを第一の到達目標とする。また，溶融塩電解法による乾式再処理プロセスで用いる溶融塩の適切な組成を提示し，新たな再処理プロセス条件を提案することを最終の到達目標とする。			
【研究計画の概要】 酸化物電解法による乾式再処理プロセスでは，現在，NaCl-2CsCl 溶融塩を採用している。しかし，NaCl-2CsCl の利用は，FP である放射性 Cs を希釈し，プロセス温度が高い等の工学的な短所がある。また，酸化物電解法プロセス実験では，U・Pu を MOX 顆粒として電解共析させる制御方法が容易でないことも明らかになりつつある。 過去 3 ヶ年の社内公募型研究において，溶融塩の組成によって UO_2^+ の紫外可視近赤外域の吸光特性が変化し，$\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+}$ や $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$ の平衡電位が変化することが分かった。これは，溶融塩組成によってウラン・ウラニルの溶存状態が変わることを意味し，溶融塩組成によってプロセス条件が変更可能であることを示す。本研究では，これら成果を発展させ，積極的に溶融塩組成を変えながら，分光学的・電気化学的手法を駆使してウラン・ウラニルイオン等の溶存イオンの化学的性質を調べ，得られたデータから溶融塩を用いた新たな乾式再処理プロセスの創出が可能であると考えている。 これらの視点から，溶融塩中のウラン・ウラニルイオンの化学的性質を基に，新たなプロセスを提案することを目的に，以下の 4 項目を行う。 1) 塩化物溶融塩中のウラン・ウラニルイオンの平衡電位，吸収スペクトル測定 2) 塩化物溶融塩中のウラニルイオン錯体構造の解析 3) プロセス環境による塩化物溶融塩中のウラニルイオンへの影響の確認 4) プロセス用溶融塩組成および新規プロセス条件の検討 延長研究により，溶融塩の組成によるウラン・ウラニルイオンの化学的性質への影響調査結果は，学術的に高い評価が期待できる。また，提示する新たなプロセスは，特許等の工業所有権の取得が期待できる。			

【研究成果の概要】

1. 塩化物溶融塩中のウラン・ウラニルイオンの平衡電位, 吸収スペクトル測定

アルカリ塩化物 (LiCl, NaCl, RbCl, CsCl) および混合塩化物 (LiCl-KCl, LiCl-RbCl, LiCl-CsCl, NaCl-KCl, NaCl-CsCl) に, 塩化ウラン (UCl_4) または塩化ウラニル (UO_2Cl_2) を添加し, $\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+}$, U^{3+}/U , $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$ の平衡電位 ($E^\circ(\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+})$, $E^\circ(\text{U}^{3+}/\text{U})$, $E^\circ(\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+)$) を求めた。 $E^\circ(\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+)$ の測定は, 社内公募型研究の成果である測定技術等を活用した。 E° はいずれの塩中에서도温度上昇に従い高くなり, E° の塩組成による影響については, 平均アルカリイオン半径 (r_{Me^+}) が大きいほど $E^\circ(\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+})$ および $E^\circ(\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+)$ が低くなるが, $E^\circ(\text{U}^{3+}/\text{U})$ は混合塩の方が混合しない単体塩よりも高くなる傾向があることを明らかにした。

UCl_4 , UO_2Cl_2 を添加した塩を用いて U^{4+} , UO_2^{2+} の吸収スペクトルを測定し, その後電解還元により U^{3+} , UO_2^+ のスペクトルを測定し, U^{3+} , U^{4+} , UO_2^+ , UO_2^{2+} のモル吸光係数を求めた。 U^{3+} スペクトルに関し, 可視域に $5f^3 \rightarrow 5f^2d$ 遷移, 近赤外域に $5f^3 \rightarrow 5f^3$ 遷移の吸収が観察でき, $5f^3 \rightarrow 5f^2d$ 遷移の吸収は r_{Me^+} が小さいほど高エネルギー側へ移行すること, $5f^3 \rightarrow 5f^3$ 遷移の振動子強度から U^{3+} ($(\text{UCl}_6)^{3-}$ 構造) の対称性は r_{Me^+} が小さいほど対称性が崩れることを明らかにした。この対称性の変化は, $4f^3 \rightarrow 4f^3$ 遷移の Nd^{3+} ($(\text{NdCl}_6)^{3-}$ 構造) と類似することを見出した。

2. 塩化物溶融塩中のウラニルイオン錯体構造の解析

当初計画を変更して上記 1. の測定実験を重視し, 構造解析については MEXT 公募型研究「溶融塩電解共析法を用いた乾式再処理技術開発」の構造解析等の情報を収集し, r_{Me^+} が大きい塩組成ほど UO_2^{2+} の錯体 (UO_2Cl_4) $^{2-}$ の U-Cl 間距離が長くなることを確認した。

3. プロセス環境による塩化物溶融塩中のウラニルイオンへの影響の確認

UO_2Cl_2 を添加したアルカリ塩化物を用いて, 酸素ガス供給による影響および FP, CP イオン共存による影響を電気化学測定, 吸収スペクトル測定で評価した。その結果, 酸素ガス供給によって, 塩中の UO_2Cl_2 から別の化合物が生成することを明らかにした。また, FP, CP イオン共存による影響は小さいものの, 表面電荷密度の高い Y^{3+} が多く共存した場合, UO_2Cl_2 とは異なる化合物が生成し, $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$ 析出挙動に影響を与えることを見出した。

4. プロセス用溶融塩組成および新規プロセス条件の検討

プロセス用塩の必要条件を①融点が高いこと, ② UO_2Cl_2 溶解度が高いこと, ③既存塩中のウラン・ウラニルイオンの性質が同等, ④CsCl を含まないことに集約し, 上記成果等を基に検討を行い, 塩組成として LiCl-RbCl 共晶塩 (0.55LiCl-0.45RbCl) が有望なことを見出した。

既存プロセス条件の改良点を検討し, 酸化電解法の MOX 共析で UO_2Cl_2 以外の化合物生成を低減するため, 共析時の塩中 UO_2Cl_2 濃度を低くする必要があること, また金属電解法は UO_2Cl_2 の溶存に対応するため, LiCl-RbCl 共晶塩への変更が適当であることを明らかにした。

【研究目標に対する達成度】

研究目標「(1)溶融塩中におけるウラン・ウラニルイオン等の化学的性質を調査し, 塩組成による化学的性質への影響を定量的に評価, (2)プロセスで用いる溶融塩の適切な組成を提示し, 新たな再処理プロセス条件を提案」に対して, 本研究は以下の理由から概ね達成したと考えている。

- アルカリ塩化物中の $E^\circ(\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+})$, $E^\circ(\text{U}^{3+}/\text{U})$, $E^\circ(\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+)$ および U^{3+} , U^{4+} , UO_2^+ , UO_2^{2+} 吸収スペクトルを測定し, 塩組成による E° およびスペクトルの変化を定量的に把握できた。
- 上記の結果等から, LiCl-KCl 共晶塩, NaCl-CsCl 共晶塩, NaCl-KCl 等モル塩以外のプロセス塩として, LiCl-RbCl 共晶塩 (0.55LiCl-0.45RbCl) が有望であることを見出した。
- 溶融塩中への酸素ガス供給や FP イオン共存による $E^\circ(\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+)$ やスペクトルの変化等から, 既存プロセスの改良点を明らかにした。

【研究成果の波及効果及び展望】

1. 現在までの波及効果

本研究の実施期間中に、FBR サイクル実用化戦略調査研究 (FS) phase-2 最終評価があり、今後の再処理技術研究開発項目として晶析法を採用した先進湿式プロセス、補完概念として乾式金属電解法プロセスが選定された。この選定以降、乾式プロセス研究で対象とする塩組成は金属電解法の LiCl-KCl 共晶塩が中心となり、塩組成をパラメータとした本研究に対してプロセス研究者が興味を示すことは少ない。しかし、塩中のウラニルイオン等イルイオンの構造解析において、イルイオンが CsCl 中で安定するとの経験から CsCl 含有塩を対象としていたが、回折実験上で Cs の排除が望まれ、本研究で有望なプロセス塩として示した LiCl-RbCl 共晶塩 (0.55LiCl-0.45RbCl) に構造解析研究者らが関心を示している。現在、構造解析研究者らと LiCl-RbCl 共晶塩中のウラニルイオン構造解析実験について、協議を進めている。

また、熔融塩を用いた類似の研究は 1950 年代から行われているが、本研究も含め、最近の研究で報告されるデータが従来のデータと異なる事例が散見される。この要因として、熔融塩研究者らが指摘する最新測定装置の精度向上が主な要因であることは事実であるが、本研究を通して、塩化物熔融塩を用いた測定実験は容易でなく、測定における誤差を最小限に抑える注意力がデータの信頼性に影響することを何度となく経験した。本研究では、この経験を活かして測定器具の見直しや繰返し測定による誤差評価等を行い、精度が高い信頼性のあるデータを提示してきており、他の研究者から一定の評価を得ている。

2. 今後期待される波及効果と展望

本研究で得られた塩中の $E^\circ(\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+})$ 、 $E^\circ(\text{U}^{3+}/\text{U})$ 、 $E^\circ(\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+)$ および U^{3+} 、 U^{4+} 、 UO_2^{2+} 吸収スペクトルは、乾式プロセス研究を進める上で貴重な基礎データとなる以外に、塩化物以外の溶媒を対象としたアクチニド化学研究への活用が期待できる。特に、本研究では電位窓が広いアルカリ塩化物を対象にし、カチオン種による $E^\circ(\text{U}^{3+}/\text{U})$ の変化や、水溶液系では不安定で測定できない UO_2^{2+} 吸収スペクトルを得ており、ウラン、ウラニルイオンの各種溶媒中における化学的挙動を研究する上で有意義なデータを提供している。

また、本研究の成果として、既存塩の問題点を回避できる塩として LiCl-RbCl 共晶塩が有望なことを示した。1. で述べた FS-phase-2 最終評価において、乾式プロセスは金属電解法が補完概念として選定されるに留まったが、今後、軽水炉酸化物燃料サイクルから高速炉燃料サイクルへの移行を想定する等、日本の実情に合わせたプロセス研究が必要となる。その際、既存プロセス塩の組成に固執せずに幅広い検討を行うことが肝要であり、本研究で得られたデータを活かした研究開発を実施し、乾式再処理プロセスの確立に期待している。

この他、本研究では U^{3+} の化学的性質を比較検討として、外殻 f 電子数が同じネオジムイオン (Nd^{3+}) を対象に $E^\circ(\text{Nd}^{3+}/\text{Nd})$ 及び Nd^{3+} 吸収スペクトルの塩組成による変化を求め、塩組成による電気化学的・分光学的性質への影響が、 U^{3+} と Nd^{3+} では類似の傾向を示すことを見出した。このことは、従来から行われているアクチニドイオンの電気化学的・分光学的研究において、同じ f 電子数のランタニドイオンを代替して評価する妥当性を裏付けており、水和物溶融体を含む他の溶媒におけるアクチニド研究への適用が期待できる。

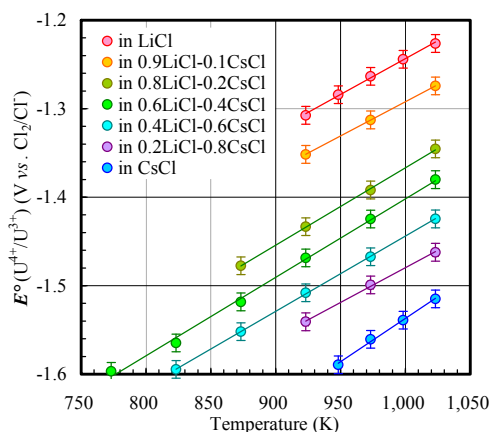
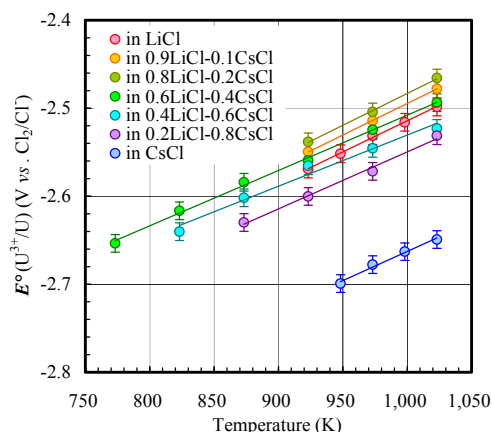
本研究の提案動機の一つに、塩組成の選定根拠が不明なまま、米国やロシアの研究成果を踏襲した現状の乾式プロセス研究の進め方に納得できなかった点があった。本研究で実施したような基礎データを積み重ねた上でメインの研究に移行していくことが、本来の研究の姿であると認識しており、今後の研究活動にこの経験を活かしていきたい。

【研究成果の説明】 (1/5)

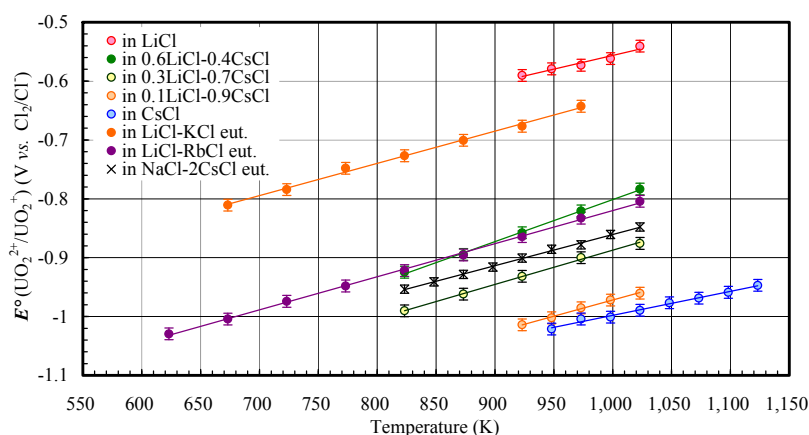
1. 塩化物溶融塩中のウラン・ウラニルイオンの平衡電位, 吸収スペクトル測定

(1) 溶融塩中の U^{4+}/U^{3+} 平衡電位, U^{3+}/U 析出電位

UCl_4 を添加したアルカリ塩化物溶融塩のサイクリックボルタンメトリー (CV) を行い, 図 1, 2 に示す U^{4+}/U^{3+} 平衡電位 ($E^\circ(U^{4+}/U^{3+})$), U^{3+}/U 析出電位 ($E^\circ(U^{3+}/U)$) を求めた。これら E° は, 従来の共晶塩中の E° 報告例と同様, いずれの溶融塩とも温度上昇に従い E° が高くなることを明らかにした。一方, 組成による影響は, 平均アルカリイオン半径 (r_{Me^+}) が小さいほど $E^\circ(U^{4+}/U^{3+})$ が上昇し, $E^\circ(U^{3+}/U)$ は混合塩の方が単体塩よりも高くなることを見出した。

図 1 LiCl-CsCl 中の $E^\circ(U^{4+}/U^{3+})$ 温度依存性図 2 LiCl-CsCl 中の $E^\circ(U^{3+}/U)$ 温度依存性(2) 溶融塩中の UO_2^{2+}/UO_2^+ 平衡電位

UO_2Cl_2 を添加したアルカリ塩化物溶融塩のディファレンシャルパルスボルタンメトリー (DPV) を行い, 図 3 に示す $E^\circ(UO_2^{2+}/UO_2^+)$ を求めた。測定は, 過去 3 カ年の社内公募型研究成果を活用し, E° の補正として電解分光測定によるスペクトルから濃度比 $[UO_2^{2+}]/[UO_2^+]$ を算出し, ネルンスト関係式から $E^\circ(UO_2^{2+}/UO_2^+)$ を求めた。 $E^\circ(UO_2^{2+}/UO_2^+)$ は, 温度上昇に従い高くなり, r_{Me^+} が小さい塩組成ほど E° が高くなる傾向を示すことを明らかにした。

図 3 アルカリ塩化物中の $E^\circ(UO_2^{2+}/UO_2^+)$ 温度依存性(3) 溶融塩中の U^{3+} , U^{4+} , UO_2^+ , UO_2^{2+} 吸収スペクトル

UCl_4 , UO_2Cl_2 を添加したアルカリ塩化物溶融塩中を用いて, U^{4+} , UO_2^{2+} の吸収スペクトルを測定した。 U^{3+} , UO_2^+ の吸収スペクトルは $U^{4+} \rightarrow U^{3+}$, $UO_2^{2+} \rightarrow UO_2^+$ の電解還元後に測定した。図 4 に示す U^{3+} スペクトルは, $15,000\text{--}25,000\text{ cm}^{-1}$ に巨大な $5f^3 \rightarrow 5f^2d$ 遷移吸収と $7,500\text{--}14,000\text{ cm}^{-1}$

(2/5)

に $5f^3 \rightarrow 5f^3$ 遷移吸収が観察でき、この $5f^3 \rightarrow 5f^2d$ 遷移吸収は r_{Me+} が小さい塩組成ほど高エネルギー側へ移行することを明らかにした。 $5f^3 \rightarrow 5f^3$ 遷移吸収については後述(4)で詳細を述べる。**図 5** に示す U^{4+} スペクトルは、 $5f^2 \rightarrow 5f^2$ 遷移吸収が $8,000\text{--}10,000\text{ cm}^{-1}$ と $14,000\text{--}17,000\text{ cm}^{-1}$ に観察され、 r_{Me+} が小さい塩組成ほどモル吸光係数が増大することを明らかにした。**図 6, 7** に示す UO_2^+ 、 UO_2^{2+} スペクトルは、各々 $21,000\text{ cm}^{-1}$ 以上、 $20,000\text{ cm}^{-1}$ 以上に電荷移動吸収が観察でき、 UO_2^+ の吸収は r_{Me+} が小さい塩組成ほど高エネルギー側へ移行することを明らかにした。

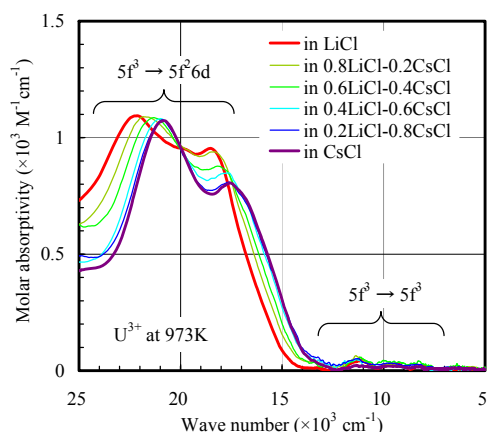


図 4 LiCl-CsCl 中の U^{3+} 吸収スペクトル

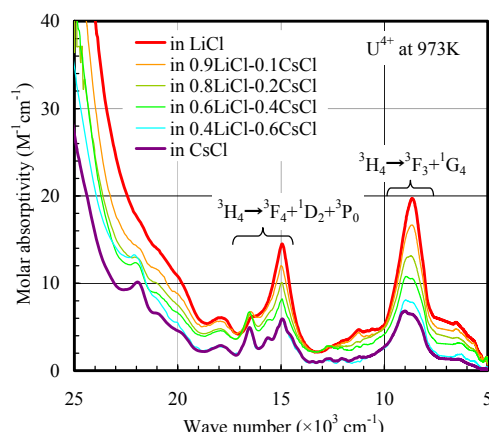


図 5 LiCl-CsCl 中の U^{4+} 吸収スペクトル

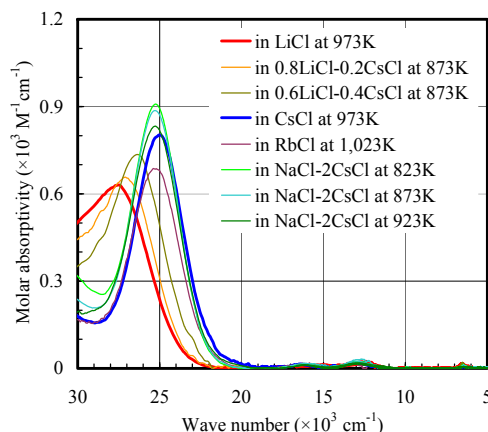


図 6 溶融塩中の UO_2^+ 吸収スペクトル

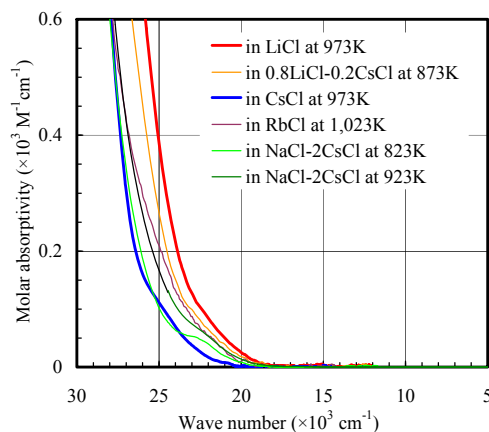


図 7 溶融塩中の UO_2^{2+} 吸収スペクトル

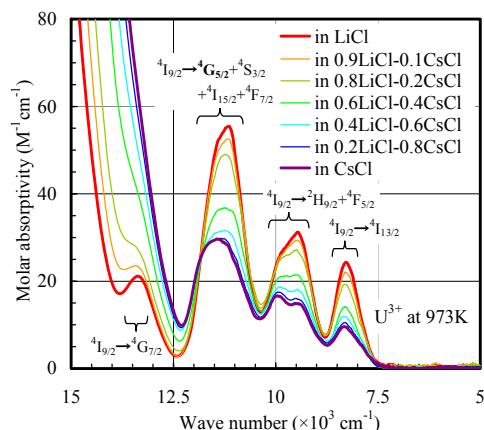
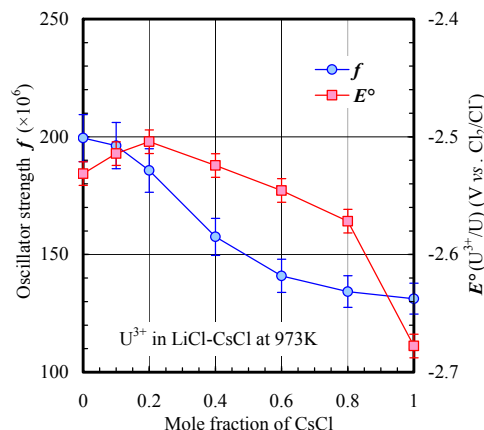
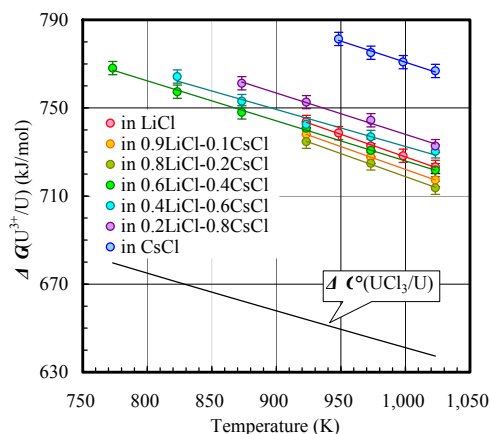
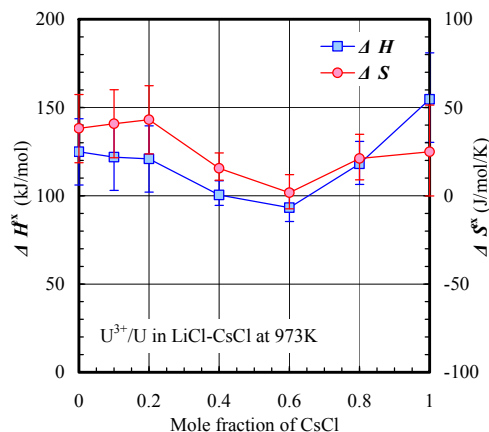
(4) LiCl-CsCl 中の U^{3+} 溶存形態と U^{3+}/U 析出挙動との関係

塩化物溶融塩中の U^{3+} は Cl が 6 配位した $(UCl_6)^{3-}$ 構造と考えられ、塩組成によって U^{3+} 溶存形態が変化し、組成による $E^\circ(U^{3+}/U)$ の変化に影響することが予想された。そこで、 U^{3+} 溶存形態の指標として U^{3+} スペクトルの $5f^3 \rightarrow 5f^3$ 遷移に着目し、**図 8** に示す U^{3+} 近赤外スペクトルを測定し、溶存イオンの対称性が崩れると振動子強度が増えるハイパーセンシティブ遷移 ($^4I_{9/2} \rightarrow ^4G_{5/2}$) と $E^\circ(U^{3+}/U)$ の関係を調べた。なお、 $^4I_{9/2} \rightarrow ^4G_{5/2}$ 遷移は他の遷移と重畳するため、波形分離計算により $10,500\text{--}12,500\text{ cm}^{-1}$ の $^4I_{9/2} \rightarrow ^4G_{5/2} + ^4S_{3/2} + ^4I_{15/2} + ^4F_{7/2}$ 遷移の振動子強度を用いた。**図 9** に CsCl モル分率に対する振動子強度と $E^\circ(U^{3+}/U)$ の関係を示す。CsCl モル分率が上がるに従い振動子強度は低下し、塩中の $(UCl_6)^{3-}$ の構造は CsCl モル分率が高いほど対称性が良くなることを見出した。一方、 $E^\circ(U^{3+}/U)$ の傾向は振動子強度の傾向とは異なり、 $(UCl_6)^{3-}$ 構造の 6 個の最近接 Cl が $E^\circ(U^{3+}/U)$ へ影響を与える可能性は低いと考えられる。比較として、 $4f^3 \rightarrow 4f^3$ 遷移を示す Nd^{3+} を解析した結果、 U^{3+} と同様、振動子強度と $E^\circ(Nd^{3+}/Nd)$ は異なる傾向を示した。

このことから、塩組成による $E^\circ(U^{3+}/U)$ の変化は塩組成自体のバルクによる影響（遠距離効

(3/5)

果)を受けていると考えられる。そこで $E^\circ(\text{U}^{3+}/\text{U})$ から 図 10 に示す生成自由エネルギー変化 $\Delta G(\text{U}^{3+}/\text{U})$ を換算し、真空中の UCl_3/U 析出反応の標準生成自由エネルギー変化 $\Delta G^\circ(\text{UCl}_3/\text{U})$ から過剰生成自由エネルギー ΔG^ex を算出し、過剰エンタルピー変化 $\Delta H^\text{ex}(\text{U}^{3+}/\text{U})$ と過剰エントロピー変化 $\Delta S^\text{ex}(\text{U}^{3+}/\text{U})$ を求めた。図 11 の CsCl モル分率に対する $\Delta H^\text{ex}(\text{U}^{3+}/\text{U})$ と $\Delta S^\text{ex}(\text{U}^{3+}/\text{U})$ から、単体塩と混合塩では $\Delta H^\text{ex}(\text{U}^{3+}/\text{U})$ と $\Delta S^\text{ex}(\text{U}^{3+}/\text{U})$ に差があることを見出した。

図 8 LiCl-CsCl 中の U^{3+} 近赤外吸収スペクトル図 9 振動子強度と $E^\circ(\text{U}^{3+}/\text{U})$ の関係図 10 LiCl-CsCl 中の $\Delta G(\text{U}^{3+}/\text{U})$ 温度依存性図 11 LiCl-CsCl 中の $\Delta H^\text{ex}(\text{U}^{3+}/\text{U})$, $\Delta S^\text{ex}(\text{U}^{3+}/\text{U})$

2. 塩化物溶融塩中のウラニルイオン錯体構造の解析

上記 1. の測定実験を重要と判断し、構造解析については、MEXT 公募型研究「溶融塩電解共析法を用いた乾式再処理技術開発」の構造解析等の情報収集に対応した。情報収集の結果、XAFS 測定によりアルカリ塩化物溶融塩中の UO_2^{2+} 錯体構造 ($\text{UO}_2\text{Cl}_4^{2-}$) の U-Cl 間距離は、平均アルカリイオン半径 (r_{Me^+}) が大きな塩組成ほど長くなる傾向にあることが分かった。

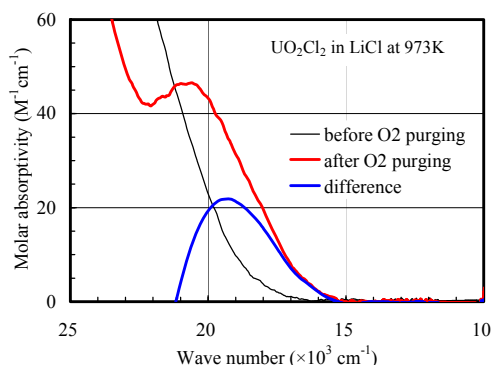
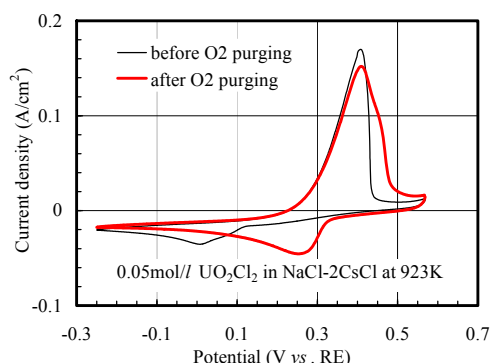
3. プロセス環境による塩化物溶融塩中のウラニルイオンへの影響の確認

(1) 酸素ガス供給環境における影響

既存の酸化物電解法 MOX 共析での雰囲気条件を想定して、 UO_2Cl_2 添加溶融塩中に酸素ガスを供給し、 UO_2^{2+} スペクトルの変化を観察した。一例として LiCl 中へ酸素ガスを供給すると、図 12 に示すように UO_2^{2+} の吸収が減少する一方、 $21,000\text{cm}^{-1}$ に新たな吸収が現れ、 UO_2Cl_2 と異なる化合物の生成が予想できた。この吸収は Ar ガスによる溶存酸素追出し後も残存し、塩素ガス供給によって UO_2^{2+} スペクトルに復帰した。 $\text{U}_3\text{O}_8\text{Cl}_2$ が塩素ガス供給により UO_2Cl_2 へ変化する易いことから、生成化合物は $\text{U}_3\text{O}_8\text{Cl}_2$ と推定される。次に、生成物の酸化還元反応を確認

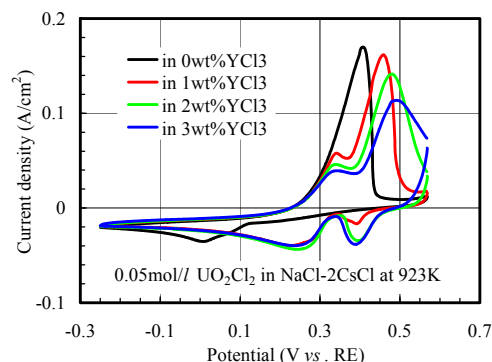
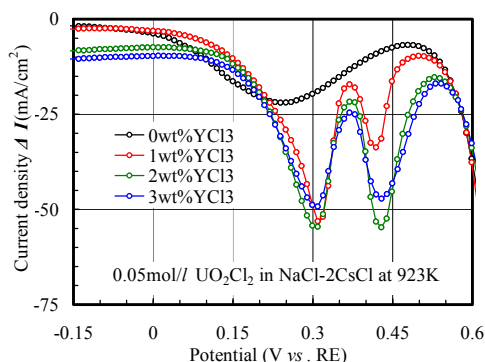
(4/5)

するため、酸素ガス供給前後の CV を行った。図 13 に示す酸素供給後の CV 結果には、供給前の UO_2 析出 (0V) が 0.25V に移行し、 UO_2 溶解 (0.4V) も 2 種類以上の反応が認められ、酸素により $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2$ 析出電位以上で析出する化合物が生成することを明らかにした。

図 12 O_2 供給による UO_2^{2+} スペクトル変化図 13 O_2 供給による CV 結果の変化

(2) 核分裂生成物イオンおよび腐食生成物イオンの共存による影響

プロセス塩には、核分裂生成物 (FP) イオンや被覆管からの腐食生成物 (CP) イオンが共存する。主な FP イオン (Nd^{3+} , Ce^{3+}), CP イオン (Fe^{2+} , Cr^{3+}) の共存状態で UO_2^{2+} の性質への影響を評価したところ、これらイオン共存の影響はあまり認められなかった。そこで、FP イオンの中で表面電荷密度が高い Y^{3+} を共存させたところ、 YCl_3 を添加した溶融塩は白濁し、図 14 に示す YCl_3 添加後の CV カソード曲線に新たな析出反応 (0.4V, 0.25V) が現れ、アノード曲線も UO_2 溶解ピークが崩れることが観察できた。また図 15 に示す YCl_3 添加後の DPV 結果も、 $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$ 還元と異なる 2 つの析出反応 (0.4V, 0.3V) が現れた。このことから YCl_3 濃度が高くなった場合、新たな化合物が生成し、 UO_2 析出に影響を与えることが判明した。

図 14 YCl_3 添加による CV 結果の変化図 15 YCl_3 添加による DPV 結果の変化

4. プロセス用溶融塩組成および新規プロセス条件の検討

(1) 適切なプロセス用溶融塩組成の検討

軽水炉酸化燃料サイクルを考慮すると UO_2 を扱うことになり、プロセス塩中に UO_2Cl_2 が溶存する。しかし、 LiCl-KCl 共晶塩は UO_2Cl_2 の溶解度が低いため、プロセス装置のコンパクト化が難しい。また、 NaCl-CsCl 共晶塩は放射性 Cs を希釈し、使用済塩の処理処分の負担が増える。よって、適切なプロセス塩の条件を絞り込むと、次の 4 項目に集約できる。

- ① 装置材料への負担軽減の観点から、融点が既存プロセス塩と比べて低いこと。
- ② UO_2Cl_2 の溶解度が既存のプロセス塩と同等であること。
- ③ 塩中の U^{3+} , U^{4+} , UO_2^+ , UO_2^{2+} の化学的性質が既存のプロセス塩と同等であること。

(5/5)

④ 放射性 Cs を希釈させないため、CsCl を含まない塩組成であること。

上記①、④を満たす塩として、LiCl-RbCl 共晶塩 (0.55LiCl-0.45RbCl) が考えられる。上記③について LiCl-RbCl 共晶塩中のウランイオン等を評価した結果、図 3 の $E^\circ(\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+)$ 、図 16 の $E^\circ(\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+})$ 、 $E^\circ(\text{U}^{3+}/\text{U})$ 、図 17 のスペクトルから、LiCl-RbCl 共晶塩が LiCl-KCl 共晶塩と NaCl-CsCl 共晶塩の中間的な性質を示すことを明らかにした。また上記②の UO_2Cl_2 溶解度も、図 18 に示すように LiCl-RbCl 共晶塩中に 20mol%- UO_2Cl_2 が溶存することを明らかにした。これらのことから、適切な乾式プロセス塩として、LiCl-RbCl 共晶塩が有望であると判断した。

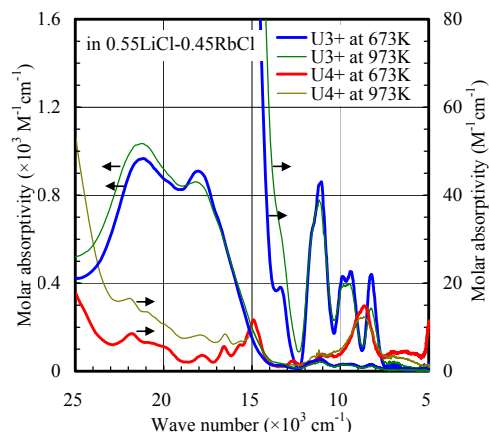
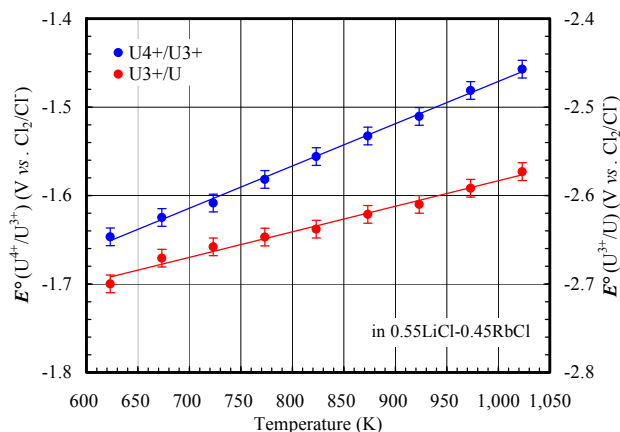


図 16 LiCl-RbCl 共晶塩中の $E^\circ(\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+})$, $E^\circ(\text{U}^{3+}/\text{U})$

図 17 LiCl-RbCl 中の U^{3+} , U^{4+} スペクトル

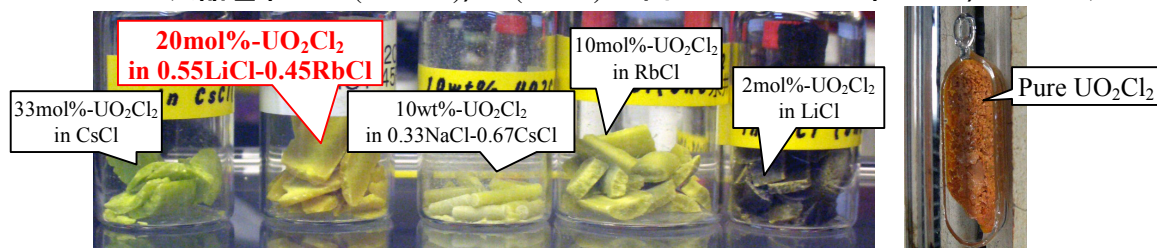


図 18 塩素化溶解により調製した UO_2Cl_2 含有塩化物 (右端は合成調製した UO_2Cl_2)

(2) 乾式プロセスの実現可能性の検討

熔融塩を用いた乾式プロセスは、炭酸塩添加により PuO_2 を沈殿回収する以外、電解による $\text{U} \cdot \text{Pu}$ の析出回収を採用している。沈殿や揮発蒸留も回収手法として有用であるが、対象となるイオンや塩化物を選択的に沈殿または揮発蒸留する条件を測定実験によって把握する必要があると考え、ここでは既存プロセスの改良すべき点を検討した。

酸化物電解法は、 $\text{U} \cdot \text{Pu}$ を酸化物 (UO_2 , MOX) で回収するため、酸化物燃料サイクルに適している。しかし、塩中の Pu^{4+} を酸素・塩素混合ガス供給により PuO_2^{2+} を生成させる MOX 共析条件で Pu イオンの挙動を評価した結果、 Pu^{4+} と生成 PuO_2^{2+} の割合がガス流量比 $[\text{Cl}_2]/[\text{O}_2] = 8/12$ で平衡となり、MOX 共析条件では酸素による UO_2Cl_2 以外の化合物生成が予想される。このことは MOX 析出物中に UO_2 以外の化合物が共析する可能性を示し、現状の酸化物電解法を活かすには、MOX 共析前に塩中の UO_2^{2+} 濃度を低くすることで、MOX 共析により回収する析出物中に UO_2 以外の酸化ウラン化合物の混入を抑制する必要がある。

また、金属電解法については、電力中央研究所が軽水炉酸化物燃料サイクルへの適用として電解による使用済燃料からの UO_2 溶解と塩中からの UO_2 析出回収を検討している。しかし、LiCl-KCl 共晶塩の UO_2Cl_2 溶解度が低いため、装置のコンパクト化を考慮し UO_2Cl_2 溶解度が高い LiCl-RbCl 共晶塩への変更が適当と考える。なお、LiCl-RbCl 共晶塩を用いて UO_2 顆粒の電解溶解、塩中からの UO_2 析出回収を実験的に確認し、適用可能なことを明らかにした。

【研究成果等発表状況】			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
1. 学術誌論文（原著研究論文）			
1.1	T.Nagai, A.Uehara, T.Fujii, O.Shirai, N.Sato, H.Yamana	“Redox Equilibrium of U^{4+}/U^{3+} in Molten NaCl-2CsCl by UV-Vis Spectrophotometry and Cyclic voltammetry,” Journal of Nuclear Science and Technology, 42 [12], pp.1025-1031 (2005)	1.(1),(3)
1.2	T.Nagai, A.Uehara, T.Fujii, O.Shirai, H.Yamana	“In-situ Measurement of UO_2^{2+} Concentration in Molten NaCl-2CsCl by Differential Pulse Voltammetry,” Journal of Nuclear Science and Technology, 43 [12], pp.1511-1516 (2006)	1.(2),(3)
1.3	T.Fujii, T.Nagai, N.Sato, O.Shirai, H.Yamana	“Electronic absorption spectra of lanthanides in a molten chloride, II. Absorption characteristics of neodymium(III) in various molten chlorides,” Journal of Alloys and Compounds, 393 , pp.L1-L5 (2005)	1.(4)
1.4	T.Fujii, T.Nagai, A.Uehara, H.Yamana	“Electronic absorption spectra of lanthanides in a molten chloride, III. Absorption characteristics of trivalent samarium, dysprosium, holmium, and erbium in various molten chlorides,” Journal of Alloys and Compounds, <i>in press, corrected proof, available online</i> , 3 Nov., 2006	1.(4)
1.5	O.Shirai, T.Nagai, A.Uehara, H.Yamana	“Electrochemical properties of the Ag^+/Ag and other reference electrodes in LiCl-KCl eutectic melts,” Journal of Alloys and Compounds, <i>in press, accepted manuscript, available online</i> , 23 Feb., 2007	1.(1),(3)
1.6	A.Uehara, O.Shirai, T.Nagai, T.Fujii, H.Yamana	“Spectroelectrochemistry and Electrochemistry of Europium Ions in Alkali Chloride Melts,” Zeitschrift fur Naturforschung A, 62a [3], 302, <i>in press</i> .	1.(1),(3)
2. 学術会議論文（会議論文集あり）			
2.1	O.Shirai, T.Nagai, A.Uehara, H.Yamana	“Electrochemical Reduction of Lanthanum from Aqueous Solution,” GLOBAL 2005, Oct. 9-13, 2005, Tsukuba, Japan	1.(1)
2.2	A.Uehara, T.Fujii, T.Nagai, O.Shirai, N.Sato, H.Yamana	“Electrochemical and Spectroscopic characteristic of Uranium Ions in Hydrate Melt,” Actinide 2005, July 4-8, 2005, Manchester, UK	1.(1)
2.3	T.Fujii, A.Uehara, T.Nagai, O.Shirai, N.Sato, H.Yamana	“Spectroscopic Study for the Oxychloride Precipitation of Neodymium and Uranium in Chloride Melts,” Actinide 2005, July 4-8, 2005, Manchester, UK	3.(1)
2.4	T.Fujii, T.Nagai, A.Uehara, H.Yamana	“Electronic Absorption Spectra of Praseodymium in Molten Chlorides,” EUCHEM conference on Molten Salts and Ionic Liquids, Sept. 16-22, 2006, Hammamet, Tunisia	1.(4)
2.5	A.Uehara, O.Shirai, T.Nagai, T.Fujii, N.Sato, H.Yamana	“Spectroelectrochemistry and electrochemistry of Europium Ion in Alkali Chloride Melts,” EUCHEM conference on Molten Salts and Ionic Liquids, Sept. 16-22, 2006, Hammamet, Tunisia	1.(1),(3)
3. 学会等口頭発表（概要集程度）			
3.1	永井崇之, 上原章寛, 藤井俊行, 白井理, 山名元, 佐藤修彰	“NaCl-2CsCl 溶融塩中における U^{4+}/U^{3+} 酸化還元平衡に関する研究,” 日本原子力学会[2005 年秋の大会], J37, 八戸工業大学, 2005 年 9 月 13-15 日	1.(1),(3)
3.2	白井理, 上原章寛, 藤井俊行, 山名元, 永井崇之	“液体 Ga 陰極を用いた水溶液からの La 金属の電解回収,” 日本原子力学会[2005 年秋の大会], J38, 八戸工業大学, 2005 年 9 月 13-15 日	1.(1)
3.3	上原章寛, 藤井俊行, 白井理, 山名元, 永井崇之, 佐藤修彰	“水和物溶融体中におけるウランイオンの電気化学および分光学的研究,” 日本原子力学会[2005 年秋の大会], K23, 八戸工業大学, 2005 年 9 月 13-15 日	1.(1)
3.4	白井理, 上原章寛, 藤井俊行, 山名元, 永井崇之	“水溶液及び溶融塩中の Ga 電極における La 金属の電極反応,” 第 51 回ポーログラフイーおよび電気分析化学討論会, 2A3, 中央大学理工学部, 2005 年 11 月 26-27 日	1.(1)
3.5	上原章寛, 藤井俊行, 永井崇之, 白井理, 山名元	“水和物溶融体中でのウランイオンの酸化還元挙動,” 第 51 回ポーログラフイーおよび電気分析化学討論会, P22, 中央大学理工学部, 2005 年 11 月 26-27 日	1.(1)

【研究成果等発表状況】(続き)			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
3.6	永井崇之, 上原章寛 藤井俊行, 白井理, 山名元, 佐藤修彰	“NaCl-2CsCl 熔融塩中における U^{4+}/U^{3+} 酸化還元平衡に関する研究,” 第 51 回ポーラログラフイーおよび電気分析化学討論会, P31, 中央 大学理工学部, 2005 年 11 月 26-27 日	1.(1),(3)
3.7	上原章寛, 垣水俊彦, 白井理, 山名元, 永井崇之	“NaCl-2CsCl 熔融塩中における Eu の酸化還元反応”, 日本原子力学 会[2006 年春の年会], I4, 原子力機構大洗, 2006 年 3 月 24-26 日	1.(1),(3)
3.8	永井崇之, 田山敏光, 明珍宗孝, 上原章寛, 垣水俊彦, 藤井俊行, 白井理, 山名元	“NaCl-2CsCl 熔融塩中における Pu^{4+}/Pu^{3+} 酸化還元平衡に関する研 究”, 日本原子力学会[2006 年春の年会], I5, 原子力機構大洗, 2006 年 3 月 24-26 日	3.(1), 4.(2)
3.9	永井崇之, 上原章寛 藤井俊行, 白井理, 佐藤修彰	“アルカリ塩化物熔融塩中の UO_2^{2+}/UO_2^{+} 酸化還元平衡に関する研 究,” 日本原子力学会[2006 年秋の大会], K67, 北海道大学, 2006 年 9 月 27-29 日	1.(2),(3)
3.10	上原章寛, 藤井俊行, 山名元, 永井崇之, 白井理	“NaCl-2CsCl 熔融塩中における Fe(II)の電気化学及び分光学的研究,” 日本原子力学会[2006 年秋の大会], K68, 北海道大学, 2006 年 9 月 27-29 日	3.(2)
3.11	A.Uehara, O.Shirai, T.Nagai, T.Fujii, H.Yamana	“Spectroelectrochemistry and electrochemistry of Europium Ion in Alkali Chloride Melts,” NUPYRO 2006, Korea-Japan Workshop on Nuclear Pyroprocessing, Nov. 2-3, 2006, Kyongju, Korea	1.(1),(3)
3.12	T.Fujii, A.Uehara, O.Shirai, T.Nagai, H.Yamana	“Electronic Absorption Spectra of Plutonium Ions in NaCl-2CsCl Melt,” NUPYRO 2006, Korea-Japan Workshop on Nuclear Pyroprocessing, Nov. 2-3, 2006, Kyongju, Korea	3.(1), 4.(2)
3.13	T.Nagai, A.Uehara, T.Fujii, O.Shirai, H.Yamana	“Measurement of UO_2^{2+}/UO_2^{+} Reduction in Molten Alkali Chloride by Differential Pulse Voltammetry,” NUPYRO 2006, Korea-Japan Workshop on Nuclear Pyroprocessing, Nov. 2-3, 2006, Kyongju, Korea	1.(2)
3.14	上原章寛, 永井崇之, 白井理, 藤井俊行, 山名元	“NaCl-2CsCl 熔融塩中におけるクロムイオンの電極反応,” 第 52 回 ポーラログラフイーおよび電気分析化学討論会, 2A5, 信州大学, 2005 年 11 月 24-25 日	3.(2)
3.15	永井崇之, 上原章寛, 藤井俊行, 白井理, 山名元, 佐藤修彰	“熔融塩中における f 元素の紫外可視近赤外吸光分光研究, (5) NaCl-2CsCl および LiCl-CsCl 中における U(III)の吸収スペクトル,” 日本原子力学会[2007 年春の年会], H26, 名古屋大学, 2007 年 3 月 27-29 日	1.(3),(4)
3.16	上原章寛, 永井崇之, 白井理, 藤井俊行, 山名元	“熔融塩中における Cr の分光電気化学的研究,” 日本原子力学会 [2007 年春の年会], H27, 名古屋大学, 2007 年 3 月 27-29 日	3.(2)
4. 学術誌解説・総説			
5. 依頼講演 (内部は除く)			
6. その他 (機構技報等)			
6.1	T.Nagai, T.Tayama, M.Myochin, A.Uehara, T.Fujii, O.Shirai, H.Yamana	“Research on Analysis of Actinides in Dry Reprocessing Process,” KURRI Progress Report 2005, 134-134 (2006).	1.(2)
7. 社内研究報告書			
8. 特許			

3.1.12 【H17-2】 アメリシウム含有低酸素ポテンシャルターゲットの創製および特性評価

平成 20 年 1 月 30 日

【No.】 研究テーマ名	【H17-2】 アメリシウム含有低酸素ポテンシャルターゲットの創製および特性評価		
研究実施者	逢坂 正彦		
研究実施場所	大洗研究開発センター 産学連携推進部内および燃料材料試験部燃料試験課 大阪大学 大学院工学研究科 環境・エネルギー工学専攻		
研究期間	平成 17 年 4 月 1 日 ～ 平成 20 年 3 月 31 日		
研究費用	1,540 万円	内訳	H17 (431 万円) H18 (800 万円) H19 (845 万円)
【研究目標】 高速炉用の高性能マイナーアクチニド (MA) 核変換燃料としての「アメリシウム含有低酸素ポテンシャルターゲット」を創製することを目的として、以下を研究目標とする。 1. 粉末冶金法によるターゲット作製の基礎特性を把握する。 2. 実験・解析の両面から、ターゲットの特性、とりわけ酸素ポテンシャルの評価を行う。 3. ターゲットを装荷した高速炉の炉心特性、MA 燃焼特性を評価する。			
【研究計画の概要】 新規な「Am 含有低酸素ポテンシャルターゲット」を創製し、その基礎特性を明らかにすることが本研究の目的である。 将来の核燃料サイクルにおいては、廃棄物低減・資源有効利用を満たすため MA リサイクルが必須であるが、核燃料が MA を含有することにより、燃料特性・挙動への種々の悪影響が発露する。とりわけ高燃焼度において致命的となる被覆管内面腐食への影響が懸念される酸素ポテンシャル上昇を抑制しつつ、尚且つ燃料挙動を最適化する可能性を秘めるものとして本ターゲットを提唱した。これは、トリウム (Th) -アメリシウム (Am) 酸化物固溶体をベースとし、使用済み燃料から回収したモリブデン (Mo) を不活性母材として組み合わせた形態からなる。 本ターゲットを高速炉燃料サイクル (製造・燃焼・再処理・リサイクル) 中で使用するために必要な技術開発に資するため、以下の 3 項目の基礎・基盤研究を行なう。 1. 作製技術の確立 ホスト相 (Th, Am 固溶体酸化物)、マトリクス相 (Mo 金属) およびその組み合わせ (コンポジット) のそれぞれに関して、粉末冶金をベースとして以下の試料の作製・調製基礎技術を確立する。 ① 模擬コンポジット : $CeO_2 - Mo$ ② 模擬燃焼 U 系ホスト相 : $(U, Pu, Am, FP)O_{2-x}$ ③ UO_2 系コンポジット : $(U, Pu, Am)O_{2-x} - Mo$ → (中間評価時に当初計画変更) 研究実施項目より削除 ④ 模擬 Th 系ホスト相 : $(Th, RE)O_{2-x}$ (RE : 希土類元素)			

⑤ UO_2/PuO_2 コンポジット : $\text{UO}_2/\text{PuO}_2 - \text{Mo}$

→ (当初計画変更) 模擬コンポジットの作製 (①) において、焼結助剤を用いた密度制御手法が有効であることが分かり、他の研究内容を変更することなく、核燃料を含有するターゲットにおける密度制御基本手法を得ることが出来る見込みを得たため、本研究項目を追加した。

2. 特性測定・評価

(1) 実験的評価

上記 1.①～⑤の試料について、相状態、熱物性（弾性率、硬さ、熱伝導度）、熱化学特性（酸素ポテンシャル）を測定、評価する。

→ (中間評価時に当初計画変更) 上記①の試料について、 $\text{CeO}_2 - \text{Mo}$ の焼結における雰囲気・温度の違いによる相状態変化、相間反応についての基礎的知見を得るための実験を実施する。

(2) 解析的評価

① 酸素ポテンシャル予測モデル

化学熱力学モデルによる酸素ポテンシャル予測評価手法を確立する。

→ (中間評価時に当初計画変更) 化学熱力学モデルに加えて、実効イオン半径に基づいた固体化学的モデルを構築する。

② 分子動力学法による欠陥構造評価→ (中間評価時に当初計画変更)

酸素不定比を持つ Th と希土類固溶体酸化物の欠陥構造を分子動力学法により評価する。

3. 核的特性解析評価

(1) 計算ツール整備・検証

Th および Mo を含む高速炉体系用の炉心特性評価ツールを整備する。

(2) 計算・評価

ターゲットを含有する高速炉の炉心特性、マスバランス評価を行う。

【研究成果の概要】

高性能で新規な MA 含有ターゲットの創製を目指して、高速炉燃料サイクルへの適合性を前提とし、多くの基礎・基盤的な実験的および解析的データ・情報を得た上で、基本的なターゲット形態と関連サイクル技術（製造、特性・照射挙動、再処理）の概念を構築した。

- ・ 現行の粉末冶金法による燃料製造技術へ完全に適合、すなわち遠隔製造に適したターゲットの基本作製技術を確立した。特に、使用済燃料からのリサイクルが望める Pd 等の金属を添加剤として使用することにより、焼結密度を制御する基礎技術を発明した（特許申請）。
- ・ $(\text{Pu}, \text{Am})\text{O}_{2-x}$, $(\text{U}, \text{Lu})\text{O}_{2-x}$, $(\text{U}, \text{Pu}, \text{Am}, \text{Nd})\text{O}_{2-x}$ 等、新規なアクチニド酸化物の酸素ポテンシャルを実験的に明らかにした。 $(\text{Pu}, \text{Am})\text{O}_{2-x}$ においては、アクチニドの原子価数を基にデータを解析することにより、Am と Pu の相互作用の可能性を示した。 $(\text{U}, \text{Lu})\text{O}_{2-x}$ においては、他の希土類含有 UO_2 より酸素ポテンシャルが高いことを明らかにするとともに、希土類の実効イオン半径との相関を見出した。 $(\text{U}, \text{Pu}, \text{Am}, \text{Nd})\text{O}_{2-x}$ においては、その実験値が化学熱力学法による計算値との良好な一致を示し、燃焼が酸素ポテンシャルへ与える効果を実験的および解析的両面から実証した。
- ・ 本研究で実測したデータを含めて、広範な Am 含有酸化物の酸素ポテンシャルデータを化学熱力学法により解析し、任意の初期組成・燃焼度の酸素ポテンシャルを高精度に予測評価する手法として確立した。また、固体化学的モデル構築に向けて実効イオン半径と酸素ポテンシャルの相関について、基本的な知見を得た。
- ・ ホスト相 $(\text{Th}, \text{MA})\text{O}_{2-x}$ の基礎的な特性評価として、分子動力学法により $(\text{Th}, \text{Gd})\text{O}_{2-x}$ の確からしい欠陥構造を評価した。また、本研究で確立した化学熱力学法による酸素ポテンシャル予測手法を活用し、燃焼期間に亘って最適な酸素ポテンシャルを維持するために少量の U の添加が効果的であることを見出した。
- ・ ターゲット中の Mo 組成比を、高速炉の内側と外側炉心で異なるものにするにより、線出力を平坦化し、出力変動を抑制した上で、ターゲットを標準的な高速炉に装荷・燃焼する方法を見出した。

【研究目標に対する達成度】

自ら提案した新規なターゲットの作製技術を確立し、基礎特性および核的特性を総合的に評価するという当初目標を達成した。

MA を含有する燃料およびターゲットの研究開発は、世界的に見ても最前線にある。研究開始当初、例えば製造技術に関しては、既存粉末冶金とは全く異なる方法を採用するなど、MA 含有燃料は、高性能であるが標準燃料とは全く異なるサイクル概念を採用するのが一般的であった。しかしながら、本研究期間のうちに、MA 含有燃料の高速炉均質サイクルへの適合性重視へとベクトルが大きく転換した。本研究においては当初よりこのサイクルへの「適合性」に重点をおいていたが、さらにこのベクトル転換を深く考慮・反映し、一部の研究項目を変更することにより、最終的に目標達成を成し遂げたものである。

- ・ 作製技術の確立

研究開始当初より、MA 含有燃料の製造技術要件である「簡素さ」「高速炉サイクルへの適合性」に重点をおきつつ、粉末冶金法によるターゲット作製技術を確立するという目標を達成した。加えて、金属添加焼結による密度制御技術を発明した。

- ・ 特性測定・評価

熱伝導率等のバルク物性の評価については一部実施できなかったものの、実験・解析の両面から、とりわけ酸素ポテンシャルの評価を行うという当初目標を完全に達成した。加えて、酸素ポテンシャルの固体化学的解析を開始し、新規なデータを多数取得した。

- ・ 核的特性解析評価

標準的な高速炉炉心への適合性を満足するターゲットの装荷方法を編み出し、当初目標である炉心特性・MA 核変換特性評価を完遂した。

【研究成果の波及効果及び展望】

1. 現在までの波及効果

Mo を MA 含有燃料の性能を向上させるために使用する概念は、Am を高濃度で含有した酸化物燃料を高速炉サイクルで用いて効果的に環境負荷を低減させる研究¹⁾に直接的に反映されている。この研究においては、低含有率の Mo を被覆管内面腐食等を抑制するための「添加剤」として使用するものであり、この概念は本ターゲットと全く同一のものである。

使用済燃料からの Mo のリサイクル利用概念については、小澤ら²⁾が提唱する使用済燃料中の有用元素回収・有効利用を実現する ORIENT サイクル概念において考慮されているが、Mo の具体的な利用方法は示されておらず、本ターゲットをその具体的な利用例として提案した³⁾。

Mo のリサイクルに向けて、使用済燃料からの Mo 分離・回収 Mo による Mo サーメット燃料作製に係わる基礎研究についての議論が、東北大と機構の間で開始された。Mo の使用済燃料からの回収は、このような有効利用のみならず、ガラス固化体への高レベル放射性廃棄物含有量制限を律する Mo を除去することによる最終処分場面積の大幅な低減にも貢献するものである⁴⁾。

Th と Mo を組み合わせて利用する概念については、燃料高性能化のための新しい概念と認識され、基礎的な核特性を評価するための研究が開始された。さらに、実験的研究を行なうため、機構大洗施設において Th の使用許可の手続きがなされた。

本研究で実験的に明らかにした酸素ポテンシャルデータおよびそれを基にした予測評価手法は、Am を含有する酸化物燃料や現状最有力候補である MA 含有低除染燃料の製造に直接的に反映できるものである。現在開発中の Am 含有 MOX 燃料／低除染燃料の製造技術開発において本データは有効に活用されている⁵⁾。

2. 今後期待される波及効果と展望

世界的に MA 含有燃料に関する研究が進展するにつれて、その技術が予想以上に困難なものを含むことが徐々に明らかになってきている。現在の主流概念は、FP を含む低除染粉末を燃料とし、低濃度の MA を添加することにより、MA を高速炉システムで均質にリサイクルする方式であるが、MA が少量であっても、それが製造性、基礎特性等に与える影響は無視できないことが分かって来た。このような中、MA リサイクルをターゲット形態で行なう方式（非均質）についても、その有効性があらためて見直されてきており、本研究成果は MA 含有酸化物燃料の研究開発に直接的に反映できるであろう。すなわち、本研究で得られた基礎特性に関する知見・情報は、MA 含有酸化物に基礎・基盤的なものであり、今後の高速炉システム開発に役立つものと期待される。特に酸素ポテンシャルの実測データは得がたいものである。

本研究で提案した粉末冶金法による簡素な MA 含有ターゲットの製造技術は、世界的にも遠隔製造に対応した簡素な製造方法が主流となる中、添加剤を使用して密度制御を行なうなど、類似研究を一步リードするものである。

ホスト相に Th を使用する概念について、Th は現状においてもその核不拡散抵抗性の高さや新たな MA 生成量が少ない利点が注目されており、核的な特性を評価する研究はいくつか存在するが、本研究は、燃料特性の面を含めたサイクルにおける使用例を示したものであり、今後関連する研究が盛んになると予想される。

1) 文部科学省原子力システム研究開発事業基盤研究開発分野革新技术創出型研究開発「効果的環境負荷低減策創出の為の高性能 Am 含有酸化物燃料の研究」、平成 17～21 年度

2) M. Ozawa, S. Koyama, T. Suzuki, et al., “Advanced orient cycle, toward realizing intensified transmutation and utilization of radioactive waste”, Proc. GLOBAL2007, pp. 452-457, Boise, Idaho, USA, Sept. 9-13, (2007).

3) 逢坂正彦, “核燃料サイクルにおけるモリブデンの有効利用について”, 日本原子力学会、第 7 回「核燃料サイクルの物質利用」研究専門委員会、7/26、東京、(2007).

4) H. Oigawa, et al., “Parametric survey on possible impact of partitioning and transmutation of high-level radioactive waste”, Proc. GLOBAL2005, paper No. 266. Tsukuba, Japan, Oct. 9-13, (2005).

5) K. Tanaka, M. Osaka, et al., “Research and development of americium-containing mixed oxide fuel for fast reactors”, Proc. GLOBAL 2007, pp. 897-902, Boise, Idaho, USA, Sep. 9-13, (2007).

【研究成果の説明】 (1/3)

1. 作製技術の確立

① 模擬コンポジット : $\text{CeO}_2 - \text{Mo}$

アクチニドの代替・模擬として非放射性的な CeO_2 を用いて、特に高密度化を目指して、模擬コンポジット $\text{CeO}_2 - \text{Mo}$ の作製基礎実験を行った。コンポジットにおいては、焼結における両相の緻密化挙動が異なり、これが高密度化を阻害する主要因となり得る。このため、ホスト相 (CeO_2) とマトリクス相 (Mo) の組成比が異なる試料について、成型圧、焼結温度、雰囲気パラメータとした焼結実験を行い、これらが焼結密度へ与える影響を観察した。その結果、数%の H_2 を含有する Ar 雰囲気中、1,600 °C 以上で焼結する等の条件を適用することにより、新たな生成相等を生じることなく、緻密な焼結体を得ることが可能であることが分かった。

② 模擬燃焼 U 系ホスト相 : $(\text{U}, \text{Pu}, \text{Am}, \text{FP})\text{O}_{2-x}$

本ターゲットのホスト相である $(\text{Th}, \text{Am})\text{O}_{2-x}$ (トリウム系) との比較対象として、将来高速炉システムの最有力候補である MA 含有 MOX 燃料 (ウラン系) について、燃焼により生じた FP (主に希土類) が種々特性へ与える影響を評価するため、3 % の Am および 5 % の Nd を含有する 30 % Pu-MOX 試料の作製を行った。多元系である $(\text{U}, \text{Pu}, \text{Am}, \text{Nd})\text{O}_{2-x}$ について良好な単相蛍石構造の固溶体を調製するため、原料粉末混合 - Ar または Ar/ H_2 雰囲気中高温固相反応 - 粉末解砕の一連の粉末冶金プロセスを 3 回繰り返した。調製した $(\text{U}, \text{Pu}, \text{Am}, \text{Nd})\text{O}_{2-x}$ 試料の X 線回折により、単相固溶体の生成を確認した。

③ 模擬 Th 系ホスト相 : $(\text{Th}, \text{RE})\text{O}_{2-x}$ (RE : 希土類元素)

Ce を希土類 FP または Am (共に原子価 3 価が安定で物理化学的特性に類似点がある) の代替と考えた $(\text{Th}_{0.8}\text{Ce}_{0.2})\text{O}_{2-x}$ を調製し、種々基礎特性の測定評価用試料とすること、ならびにターゲット作製におけるホスト相の緻密化に関する基礎的知見を得ることを目的とした。粉末混合 - 空気雰囲気中 1,600 °C における高温固相反応 - 粉末解砕の一連の粉末冶金プロセスを 3 回繰り返し、X 線回折により単相固溶体が生成していることを確認した。一方、 ThO_2 は難焼結性物質であるため、本方法では最大 80 %TD 程度にしか緻密化しないことが分かった。このため遊星ボールミルによる粉末性状改質、放電プラズマ焼結法等により密度 90 %TD 以上を達成した。

④ UO_2/PuO_2 コンポジット : $\text{UO}_2/\text{PuO}_2 - \text{Mo}$

本研究においては、アクチニド、Mo 等は再処理により使用済燃料から回収することを考えている。この際に混入する不純物が製造性へ与える影響評価と MA の蒸発ロス抑制のための低温焼結による密度制御を目指して、金属 (Pd) を添加剤として加えて焼結することにより、ターゲットの低温焼結による高密度化基本技術を確認した (図 1)。

図 1 Pd 添加 $\text{PuO}_2\text{-Mo}$ ターゲット焼結体外観

2. 特性測定・評価

(1) 実験的評価

① ホスト相 - マトリクス相の焼結における反応

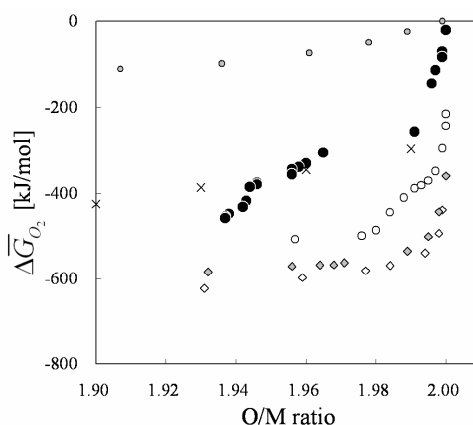
酸化物相 (CeO_2) の体積率が 70~95 % と高い模擬コンポジット $\text{CeO}_2 - \text{Mo}$ 試料を調製し、酸化物相が 50 % 以下の場合 (1.①) には見られなかった酸化物相の酸化・還元、金属相の酸化および両相間の反応の有無に着目し、金相観察、X 線回折測定および電気伝導率測定を行なった。その結果、両相の間の反応、酸化物相の還元、金属相の酸化等有意な反応は生じず、均質な試料が得られることが分かった。このことは、低 Mo 体積率、すなわち Mo が数%であるような「添加剤」として使用する概念においても、本製造法により良好な燃料ペレットが作製可能であることを意味する。

(2/3)

② 酸素ポテンシャル

・ 燃焼による酸素ポテンシャル変化についての基礎的な情報を得るため、 $\text{H}_2\text{O}/\text{H}_2$ ガス平衡を用いた熱重量分析法により、模擬燃焼 U 系ホスト相： $(\text{U},\text{Pu},\text{Am},\text{Nd})\text{O}_{2-x}$ の酸素ポテンシャル測定を行なった。実測値と化学熱力学法による予測値は良い一致を示し、FP 添加による酸素ポテンシャル上昇効果と化学熱力学法の妥当性が示された。

・ 後述する燃焼燃料の酸素ポテンシャル予測モデル構築のための基礎データとするため、 $(\text{Pu},\text{Am})\text{O}_{2-x}$ の酸素ポテンシャルを測定し（図2）、Pu, Am の固体中の原子価数の観点から、酸素ポテンシャルへ与える相互作用等の影響を考察した。



● $(\text{Pu}_{0.91}\text{Am}_{0.09})\text{O}_{2-x}$, 1273 K ○ $(\text{U}_{0.685}\text{Pu}_{0.270}\text{Am}_{0.045})\text{O}_{2-x}$, 1273 K [12]
○ AmO_{2-x} , 1286 K [10] ◆ PuO_{2-x} , 1273 K [19]
× $(\text{U}_{0.5}\text{Am}_{0.5})\text{O}_{2-x}$, 1273 K [11] ◇ $(\text{U}_{0.6}\text{Pu}_{0.4})\text{O}_{2-x}$, 1273 K [19]

図2 $(\text{Pu}_{0.91}\text{Am}_{0.01})\text{O}_{2-x}$ の酸素ポテンシャル

※出典：M. Osaka et al., J. Nucl. Mater. 357 (2006) 69.

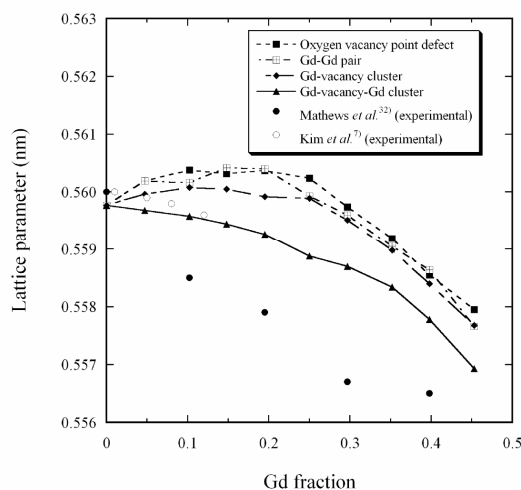
・ 後述する酸素ポテンシャルの固体化学的モデル構築の基礎データとするため、Lu を 20 % 含有した UO_2 を調製し、酸素ポテンシャルを測定した。その結果、同じ希土類である Nd, Gd または Er を含有する UO_2 より酸素ポテンシャルが高いことを明らかにした。この原因をイオン半径の観点から解釈した。

上記3件のデータは、いずれもこれまでに報告例の無い新規なものである。

(2) 解析的評価

① 分子動力学法による欠陥構造評価

ホスト相 $(\text{Th},\text{MA})\text{O}_{2-x}$ について、MA および燃焼状態を模擬した $(\text{Th},\text{Gd})\text{O}_{2-x}$ (※Gd は希土類 FP の代表として選択) を対象とし、原子拡散等のミクロ挙動および熱伝導度等のバルク物性に影響を与える欠陥構造の評価を試みた。格子熱膨張および弾性定数の実験値を解析して Th および Gd の原子間ポテンシャルを求め、Gd 濃度および温度をパラメータとして、種々の欠陥構造が格子安定性や拡散係数へ与える影響を計算した（図3）。計算結果と実測値の比較評価等を通じて、 $(\text{Th},\text{Gd})\text{O}_{2-x}$ における確からしい欠陥構造として、Gd-酸素空孔-Gd クラスターを提案した。

図3 $(\text{Th},\text{Gd})\text{O}_{2-x}$ 格子定数へ与える欠陥構造の影響

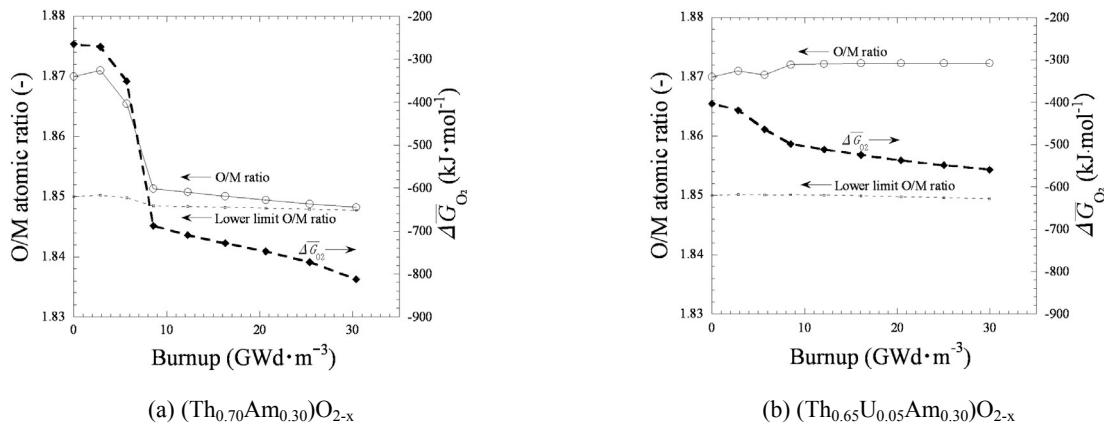
※出典：M. Osaka et al., J. Nucl. Sci. Technol. 44 (2007) 1543.

② 酸素ポテンシャル予測モデル

・ 化学熱力学法モデル

燃料照射挙動評価のためには、燃焼燃料の相状態を知る必要があり、酸化物燃料においては系の酸素ポテンシャルがこれを支配する。このため、化学熱力学法を用いて、燃焼して FP が蓄積し多元・複雑系となった燃焼燃料の酸素ポテンシャルを評価する実用的な手法を構築した。 $(\text{U},\text{Pu},\text{Am})\text{O}_{2-x}$ におけるアクチニド元素の固溶モデルに基づき、Am を含有する酸化物の酸素ポテンシャルの文献データを化学熱力学法により解析し、その熱力学データを導出した。本データを一般の化学平衡計算コードに組み込むことにより、任意の初期組成・燃焼度の Am 含有酸化物燃料の酸素ポテンシャルを予測評価できるようになった（図4）。

(3/3)

図4 化学熱力学法による $(\text{Th,U,MA})\text{O}_{2-x}$ 相の酸素ポテンシャルの燃焼変化予測

※出典：M. Osaka et al., J. Nucl. Mater. 362 (2007) 374.

・ 固体化学的モデル

本ターゲットに限らず、将来高速炉システムにおける最有力候補燃料である MA 含有低除染酸化燃料（※MOX 燃料に MA および FP を含有するもの）や高燃焼度化による FP 組成の増大・多様化等、今後酸化燃料においては、その組成が益々多様化・複雑化する。このうち、物理・化学的特性が相互に類似するものの、その添加が酸素ポテンシャルへ与える影響が異なる希土類元素を対象とし、実効イオン半径と酸素ポテンシャルへ与える影響の相関を導き出すことにより、多元系の酸素ポテンシャルをより高精度に予測するモデルの開発に着手した。本研究で実測した $(\text{U,Lu})\text{O}_{2-x}$ のデータと文献データを比較評価し、実効イオン半径と酸素ポテンシャルの間に一定の傾向が示唆されることを見出した。

3. 核的特性評価

(1) 計算ツール整備・検証

本ターゲットを装荷した高速炉の炉心計算を行なうため、既存のコードをベースとし、Th に関する燃焼チェーンを追加するとともに、高速スペクトルにおける中性子吸収断面積が大きい Mo 核種の燃焼を考慮してコードに組み込み、計算ツールとして整備した。様々な装荷パターンについての計算を効率的に行なうため均質モデルを採用し、非均質モデルとの比較を通してその妥当性を検証した。

(2) 計算・評価

整備したツールを用いて、臨界性を担保しつつ、ターゲット装荷による Pu 富化度増加が少なく、炉心出力分布が平坦であり、かつ燃焼による出力変動が少なくなるような最適なターゲットの装荷パターンを探索した。その結果、内側炉心と外側炉心でターゲットの Mo 体積率を変化させる非均質装荷法を採用することにより、炉心性能を維持しつつ、本非均質燃料を導入できる可能性を見出した（図5）。尚、このような非均質装荷のためには、Mo 体積率が異なる複数のターゲットを製造する必要があるものの、Mo とホスト相の混合率を製造段階において変化させることは容易であること、および集合体単位でターゲットとドライバー燃料を炉心に装荷するコンセプトを採用していることから、本装荷方法は燃料製造・再処理への適合性を有するものとなっている。

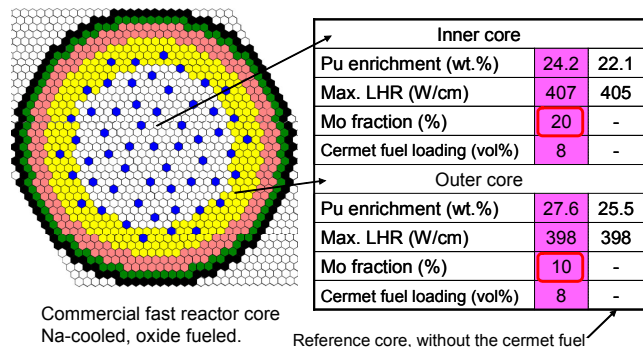


図5 ターゲットを装荷した高速炉の炉心特性

【研究成果等発表状況】			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
1. 学術誌論文（原著研究論文）			
1.1	M. Osaka, K. Kurosaki, S. Yamanaka	“Oxygen potential of $(\text{Pu}_{0.91}\text{Am}_{0.09})\text{O}_{2-x}$ ”, J. Nucl. Mater., 357, 69-76, (2006).	2. (1)
1.2	M. Osaka, M. Koi, S. Takano, T. Misawa, Y. Yamane	“A Novel Concept for Americium-containing Target for Use in Fast Reactors”, J. Nucl. Sci. Technol., 43, 367-374, (2006).	3.
1.3	M. Osaka, K. Kurosaki, S. Yamanaka	“Prediction of oxygen potential in americium thorium oxides phase of a cermet fuel”, J. Nucl. Mater., 362, 374-382, (2007).	2. (2)
1.4	M. Osaka, K. Kurosaki, S. Yamanaka	“Chemical thermodynamic analysis of americium-containing UO_2 and $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ ”, J. Alloys Compd., 428, 355-361, (2007).	2. (2)
1.5	M. Osaka, H. Serizawa, M. Kato, K. Nakajima, Y. Tachi, R. Kitamura, S. Miwa, T. Iwai, K. Tanaka, M. Inoue, Y. Arai	“Research and Development of Minor Actinide-containing Fuel and Target in a Future Integrated Closed Cycle System”, J. Nucl. Sci. Technol., 44, 309-316, (2007).	1.
1.6	M. Osaka, S. Miwa, K. Tanaka, I. Sato, T. Hirose, H. Obayashi, K. Mondo, Y. Akutsu, Y. Ishi, S. Koyama, H. Yoshimochi, K. Tanaka	“Innovative oxide fuels doped with minor actinides for use in fast reactors”, Energy and Sustainability, Transaction: Ecology and the Environment volume 105, Eds. C.A. Brebbia and V. Popov, Wessex Institute of Technology, UK, 357-366, (2007).	1. 2. 3.
1.7	M. Osaka, J. Adachi, K. Kurosaki, M. Uno, S. Yamanaka	“Molecular Dynamics Study on Defect Structure of Gadolinia-Doped Thoria”, J. Nucl. Sci. Technol., 44, 1543-1549, (2007).	2. (2)
1.8	M. Osaka, S. Takano, Y. Yamane, T. Misawa	“On a fast reactor cycle scheme that incorporates a thoria-based minor actinide-containing cermet fuel”, Progress in Nuclear Energy, in press.	1. 2. 3.
1.9	M. Osaka, K. Tanaka	“Densification of Molybdenum-cermet Fuel by Sintering with Metal Additives”, J. Nucl. Sci. Technol. (2008.1 受理)	1.
1.10	M. Osaka	“Chemical thermodynamic method for prediction of non-stoichiometry of rare earth-doped ceria”, Solid State Ionics. (2007.8 投稿、審査中)	2. (2)
1.11	M. Osaka, K. Tanaka	“Equilibrium oxygen partial pressure of non-stoichiometric Lu-doped UO_2 ”, Mater. Res. Bulletin. (投稿準備中)	2. (1)
2. 学術会議論文（会議論文集あり）			
2.1	S. Takano, Y. Yamane, A. Yamamoto, M. Osaka, T. Misawa	“Evaluation of Core Characteristics of FBR and PWR Loaded with Americium-containing Cermet Fuel”, Proc. 15th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE-15), paper No. 10450, Nagoya, Japan, Apr. 22-26, (2007).	3.

3. 学会等口頭発表（概要集程度）			
3.1	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、八戸、9/13-15, (2005).	2. (2)
3.2	逢坂正彦、門藤健司、石洋平、田中健哉、関崇行、黒崎健、宇埜正美、山中伸介	“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 E39、大洗、3/24-26, (2006).	2. (1)
3.3	M. Osaka, S. Miwa, I. Sato, K. Tanaka, K. Kurosaki, M. Uno, S. Yamanaka	“Modeling of the oxygen potential of americium-containing oxide fuels” , Materials Models and Simulations for Nuclear Fuels (MMSNF-5), Nice, France, June 1-2, (2006).	2. (2)
3.4	逢坂正彦、安達淳、黒崎健、宇埜正美、山中伸介	“トリア固溶体の分子動力学シミュレーション”、日本原子力学会 2007 年春の年会 L37、名古屋、3/27-29, (2007).	2. (2)
3.5	M. Osaka, S. Miwa, K. Tanaka	“Conceptual Study on Enhanced Minor Actinide Transmutation by Advanced Fuels in Fast Reactor Cycle” 15th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE15), Nagoya, Japan, April 22-26, (2007).	1. 2. 3.
3.6	逢坂正彦、三輪周平、田中康介、関根伸一	“金属助剤添加焼結による Mo サーマット燃料の高密度化”、日本原子力学会 2007 年秋の大会 P43、9/27-29、北九州、(2007).	1.
3.7	M. Osaka, J. Adachi, K. Kurosaki, M. Uno, S. Yamanaka	“Molecular Dynamics Study on Defect Structure of Rare Earth-doped Thoria” , Materials Models and Simulations for Nuclear Fuels (MMSNF-6), Tokyo, Japan, Dec. 13-14, (2007).	2. (2)
4. 学術誌解説・総説			
4.1	逢坂正彦	“アクチニド物性科学研究の現状 アクチニドの物性科学研究専門委員会 第二章 ”、日本原子力学会誌、47, 713-715, (2005).	1. 2.
5. 依頼講演（内部は除く）			
5.1	M. Osaka, H. Yoshimochi, K. Tanaka	“Fabrication and Characterization of Americium-containing MOX Fuel for Fast Reactor”, Japan-Korea Joint Seminar on Nuclear Fuels and Materials for Liquid Metal Cooled Reactors, Ibaraki, Japan, March 25, (2006).	1. 2.
5.2	逢坂正彦	“核燃料サイクルにおけるモリブデンの有効利用について”、日本原子力学会、第 7 回「核燃料サイクルの物質利用」研究専門委員会、東京、7/26, (2007).	1. 2. 3.
5.3	逢坂正彦、田中康介、佐藤勇、廣沢孝志、三輪周平、小山真一、吉持宏、田中健哉	“MOX・TRU 燃料に関する照射ホットラボ試験の現状”、核燃料部会企画セッション「計算科学と加速器照射は実機燃料照射試験の壁を超えられるか?」、日本原子力学会 2007 年秋の大会、北九州、9/27-29, (2007).	1. 2.

5.4	逢坂正彦	“国際会議 E-MRS および MMSN-5 報告”、日本原子力学会、第 11 回アクチニドの物性科学研究専門委員会、大阪、7/10, (2006).	1.
5.5	M. Osaka	“Research and development of minor actinide-containing oxide fuels for fast reactors”, LWV seminar, in the frame of NES Colloquium, Paul Scheller Institute, Villigen Switzerland, June 18, (2007).	1. 2. 3.
6. その他（サイクル機構技報等）			
6.1			
7. 社内研究報告書			
7.1			
8. 特許			
8.1	逢坂正彦、加藤昌宏	“核燃料ペレットの製造方法および核燃料ペレット “、特願 2007-222515、平成 19 年 8 月 29 日出願	1.

3.1.13 【H17-3】地殻中の深部流体の起源と熱輸送に関する研究

平成 20 年 3 月 31 日

【No.】 研究テーマ名	【H17-3】地殻中の深部流体の起源と熱輸送に関する研究		
研究実施者	梅田 浩司		
研究実施場所	東濃地科学センター		
研究期間	平成 17 年 4 月 1 日 ～ 平成 20 年 3 月 31 日		
研究費用	2,150 万円	内訳	H17 (550 万円) H18 (800 万円) H19 (800 万円)
【研究目標】 (1) 非火山地帯の地下に賦存する熱水（深部流体）の分布、性状等を明らかにするとともに、深部流体の起源等を解明する。 (2) 深部流体が地下深部の熱構造、地下水理等に及ぼす影響を定量的に把握する。 (3) 非火山地帯における過去の熱水活動の存在や熱履歴を解明する。			
【研究計画の概要】 これまで、高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価については、地震・断層活動、火山活動、隆起・沈降・侵食、気候・海水準変動の諸現象が処分環境やシステム性能に及ぼす影響を評価することに重点が置かれており、非火山地帯の熱水活動の影響については、十分な検討がなされていない。そのため、本研究では、非火山地帯に地下に賦存する熱水（深部流体）の分布、性状やそれらの起源に係わる基礎研究のほか、地層処分の安全評価に資するため、ここで得られた科学的知見やデータ等に基づき、非火山地帯の熱水活動が地質環境に及ぼす影響を把握することを目指していく。また、新たな熱水活動の発生の可能性を検討するための基盤情報として、過去から現在までの熱水活動の熱履歴を解明する。研究を進めるにあたっては、特に、スラブ（沈み込んだプレート）から脱水した流体が深部流体に関与している可能性に着目し、地質学、地球物理学、地球化学等の手法を駆使した総合的なアプローチにより、以下の研究課題に取り組んでいく。 1. 地殻内の熱・流体輸送とスラブ起源物質のフラックスに関する研究 わが国の非火山地帯の温泉の熱・化学組成等のデータをコンパイルするとともに、地殻内の熱・流体輸送とスラブ（沈み込んだプレート）起源物質のフラックスの解析を行い、深部流体の起源（温泉の熱源）がスラブから脱水した流体であることを示す。また、深部流体が地下数 km の地質環境に及ぼす影響（熱・地下水理）を評価するため、流体によって運ばれる熱流量（移流熱流束）を算定する。 2. 深部流体の温度・化学組成等に関するナチュラル・アナログ研究 深部流体の化石である鉱物中の流体包有物に着目し、捕獲時の流体の温度・圧力条件や化学的性状を明らかにするとともに、鉱物脈や母岩の構成鉱物の年代測定から、熱水活動の履歴等を解明する。			

【研究成果の概要】

1. 地殻内の熱・流体輸送とスラブ起源物質のフラックスに関する研究

- (1) わが国における非火山性の熱水活動の分布を把握するため、地熱・温泉ボーリングデータから流体による熱の輸送を考慮した熱流束を計算するとともに、日本列島の熱流束の分布の特徴を明らかにした。また、非火山地帯のうち紀伊半島、飯豊山地、四国西部、能登半島周辺、新潟平野等の地域では、 100mW/m^2 以上の高い熱流束が認められ、これらの地域には深部流体が存在することが示唆される。
- (2) 上記の地域のうち、紀伊半島、飯豊山地、能登半島を事例に温泉ガスのヘリウム同位体比を測定するとともに、地震波速度構造や比抵抗構造等の地球物理データを含めた総合的な解析を行った。その結果、深部流体は、①沈み込むスラブから脱水した高温流体、②（地表に噴出せず）地下に伏在しているマグマ、③堆積岩に被覆されている高 U, Th, K 含有花崗岩の放射壊変による熱の活断層帯を通じた上昇、の 3 つの熱源に由来していると考えられる。

2. 深部流体の温度・化学組成等に関するナチュラル・アナログ研究

- (1) 紀伊半島を事例に、温泉が湧出している地域に発達する熱水鉱脈を採取し、石英、黄鉄鉱等の流体包有物中の希ガスを破砕法によって抽出し、ヘリウム同位体比の測定を行った。その結果、温泉ガスのヘリウム同位体比と整合的な値を示すことから、熱水鉱脈は現在の熱水活動に関連して形成されたものと考えられる。
- (2) また、石英、方解石等の流体包有物のマイクロサーモメトリを行った結果、熱水の捕獲温度は、 $200\sim 250^\circ\text{C}$ 程度と推定され、現在生じている非火山性の熱水活動は、中期中新世に生じた火山性の熱水活動に比べて低温の活動であることが明らかになった。
- (3) 鉱脈の母岩中のジルコン、アパタイトのフィッシュン・トラック年代を測定した結果、現在生じている熱水活動の開始時期は 600 万年前頃まで遡る可能性がある。この結果は、非火山性の熱水活動が現在のネオテクトニクスの子組みで生じていることを示唆する。

【研究目標に対する達成度】

1. 地殻内の熱・流体輸送とスラブ起源物質のフラックスに関する研究

当初の目標である紀伊半島の深部流体の熱源がスラブの脱水による高温流体であることが明らかにできたほか、飯豊山地、能登半島での事例研究によって、他の形成メカニズムにも言及するまでに至った。以上のことから本研究は研究目標を十分に達成したと考えている。

2. 深部流体の温度・化学組成等に関するナチュラル・アナログ研究

紀伊半島の非火山性の熱水活動がそれ以前に生じた火山性の熱水活動より低温の活動であること、現在から少なくとも 600 万年前以前の活動であったこと等、所期の目標は概ね達成されたと考えられる。しかしながら、現地調査において十分な量（数）の地質試料が得られなかったことから、推定した温度、年代値等は、今後の研究の進展に応じて変わっていく可能性も考えられる。

【研究成果の波及効果及び展望】

1. 現在までの波及効果

非火山地帯の熱水活動（深部流体）の存在については、従来から認識されていたものの、資源開発としての地熱ポテンシャルが小さいといった経済性の観点から、大学等による基礎研究も十分に行われていなかった。一方、地層処分の分野においては、処分の安全性に影響を及ぼす外的要因として、断層活動、火山活動、隆起・侵食、気候・海水準変動等の影響についての評価が求められていたが、最近になって深部流体の影響についての検討の必要性が指摘された（総合資源エネルギー調査会原子力安全・保安部会廃棄物安全小委員会，2003）。このような背景を経緯に、深部流体という新たな研究テーマを核燃料サイクル創造的工学研究制度の下、3年間にわたって取り組んできた。その結果、深部流体が少なくとも3つの熱源に由来することを明らかにし、当該分野に学術的なインパクトを与えることができた。これは筆者の執筆した論文が国際的に著名（インパクト・ファクターが高い）な学術誌に、短期間に数多く掲載されたことに反映されている。また、火山学の分野においても、飯豊山地付近に火山が存在しないことが、東北日本の第四紀火山の配列の規則性からは謎とされていたが、本研究によって、（地表に噴出していない）地下に伏在するマグマの存在を確認することができ、このパラダイムの正当性を支持するに至った。

一方、深部流体のナチュラル・アナログ研究では、紀伊半島で現在生じている非火山性の熱水活動が地下数 km では少なくとも 200°C 以上の熱水を伴うことが明らかになった。地層処分の安全性の観点から 100°C 以上の地質環境での処分は好ましくないと考えられていることから、処分の長期的な安全性を確保する上で、深部流体は考慮すべき重要な外的要因になることがわかった。また、従来は熱水鉱脈に含まれる石英の熱・ルミネッセンス年代から、これらの熱水活動は、ごく最近から活動を始めたと考えられていた。しかしながら、本研究で行った複数の鉱物の年代測定から、活動の開始は少なくとも 600 万年前頃までに遡ることがわかった。すなわち、紀伊半島の熱水活動は、ネオテクトニクスのか組みの中で生じた長期に及ぶ現象であるといえる。そのため、現在のプレートシステムに大きな転換が生じない限り、他の地域での新たな発生は考えにくい。すなわち、火山活動と同様に現在の活動域を避けることによって、これらが地層処分システムに及ぼす影響が回避できるといった見通しが得られる。

2. 今後期待される波及効果と展望

最終処分場の選定に際しては、概要調査等によって、火山フロントより日本海側の地域や単成火山群の周辺地域では、新たな火山の発生を検討する必要があることが指摘されている（原子力安全委員会特定放射性廃棄物処分安全調査会，2002）。そのためには、概要調査等によって地下深部のマグマや高温流体等の存在を予め確認するための手法の開発が必要となる。今回の研究で用いた調査・評価の考え方や総合的なアプローチは、地下深部マグマ等の存在のみならず、熱源の構造やその種類の特定を可能にできるものであり、実施主体が行う概要調査等に十分に反映できると考えられる。特に、飯豊山地の地下に地表に噴出していないマグマが存在したといった事例は、第四紀火山から離れているにも係わらず、新たな火山が発生する可能性を有する地域が存在することを意味するが、言い換えれば、既存の手法を適切に組み合わせた調査を行うことによって、そのような地域を避けることが可能であることを示唆している（なお、本研究の成果についての概要調査等への実用性については、経済産業省資源エネルギー庁主催の「地層処分計画を支える技術基盤の継続的な強化（2007年3月5日）」、経済協力開発機構（OECD）原子力機関（NEA）主催の“Geosphere Stability” Workshop（2007年11月13～15日）の中でも報告している）。

【研究成果の説明】 (1/4)

1. 地殻内の熱・流体輸送とスラブ起源物質のフラックスに関する研究

- (1) 温泉ボーリングデータを用いて一次元熱・流体輸送モデルにより流体による熱の輸送を考慮した熱流束を計算し、日本列島の熱流束の分布を検討した。これによると、第四紀の火山地帯では、 200mW/m^2 以上の熱流束を示すのに対して、非火山地帯では、概ね 100mW/m^2 以下であった。一方、非火山地帯のうち紀伊半島、飯豊山地、能登半島周辺、四国西部、新潟平野等の地域では、 100mW/m^2 以上の高い熱流束が認められ、これらの地域には深部流体が存在することが示唆される。
- (2) 上記の地域のうち、紀伊半島、飯豊山地および能登半島を事例に、従前の研究では行われてこなかった、地球物理データ（地殻・上部マントルの地震波速度、比抵抗）および地球化学データ（ヘリウム同位体）による総合的な解析によって、深部流体の起源を明らかにすることを試みた。
- (3) このうち、地球化学データについては、上記地域の温泉において遊離ガスの採取を行い、ヘリウム同位体比（ $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比）の測定を行った。その結果、紀伊半島では $0.39\sim 7.4\text{Ra}$ ($1\text{Ra}=1.4\times 10^{-6}$)、飯豊山地では、 $0.22\sim 7.9\text{Ra}$ の値が得られた。これらの地域では、非火山地帯においてこれまで測定された温泉ガスのヘリウム同位体比（ $\sim 2.0\text{Ra}$ ）に比べて著しく高い値を示すことから、地下深部からマントル起源のヘリウムが供給されていると考えられる。一方、能登半島では半島の北縁部の一部を除き、 $0.03\sim 1.2\text{Ra}$ の低い値が得られることからマントルヘリウムの寄与は極めて小さいと考えられる。

- (4) 地震波トモグラフィーによると、紀伊半島ではマグマの存在を示すような低速度域が地殻や上部マントルには存在しない。しかしながら、比抵抗構造解析によると地下 $10\sim 15\text{km}$ 付近に顕著な低比抵抗層が存在することから、これらが当該地域の温泉に関連する熱水の可能性が示唆される。また、その下位のモホ面付近には、スラブから脱水した流体によって引き起こされると考えられる深部低周波微動が存在し、低比抵抗層との分布とも整合的である。以上のことから、紀伊半島の温泉の熱源は、地殻内にトラップされたスラブ起源の高温の流体であると考えられる（図1）。

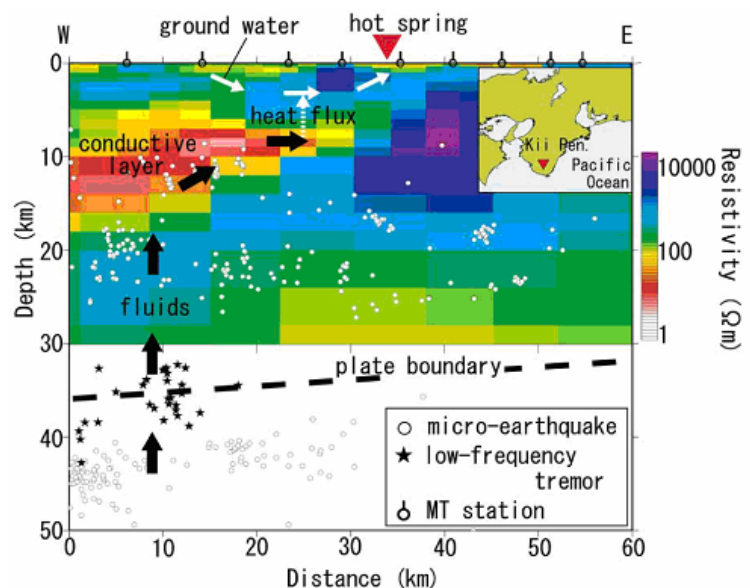


図1 紀伊半島南部の比抵抗構造（鉛直断面図）と深部流体の上昇モデル

- (4) また、紀伊半島の温泉ガスのヘリウム同位体比と温泉ボーリングの温度プロファイルから計算した移流熱流束（流体の上昇速度を反映）には相関が認められることから、これらの地域のヘリウム同位体比は、マントルヘリウムの上昇が深部流体に伴う移流に支配されていることを示唆する。これに対して、同じ西南日本前弧域の九州西部では同様な相関が認められず、マントルヘリウムは、拡散を主体として地表にもたらされたものと考えられる。この結果は、紀伊半島には、

(2/4)

深部低周波微動が発生しており（流体の上昇域が存在することを示唆する）、九州には発生していないことと調和的である。

- (5) 一方、飯豊山地の地震波トモグラフィによると、北股岳直下の地下 15km 付近には、10km 以上の大きさを有する地震波速度構造の低速度域が存在する。また、比抵抗構造解析においても、同様の地域に顕著な低比抵抗体が存在し、内陸地震の cut-off depth（約 400°C の等温面に相当）とも良い相関が認められる（図 2）。以上のことから、飯豊山地の地下 15km 以深には、新たに上昇してきたマグマあるいは新第三紀の貫入岩体（固結したマグマ）に伴う熱水活動の存在が示唆される。さらに、マントルヘリウムのソースとしての新第三紀貫入岩のヘリウム同位体比は、U、Th 濃度と年代値（14Ma）から計算した結果、3.8Ra 程度であり、温泉ガスの値よりはるかに低い。以上のことから、飯豊山地の温泉の熱源は、第四紀に上昇したマグマによるものと考えられる。

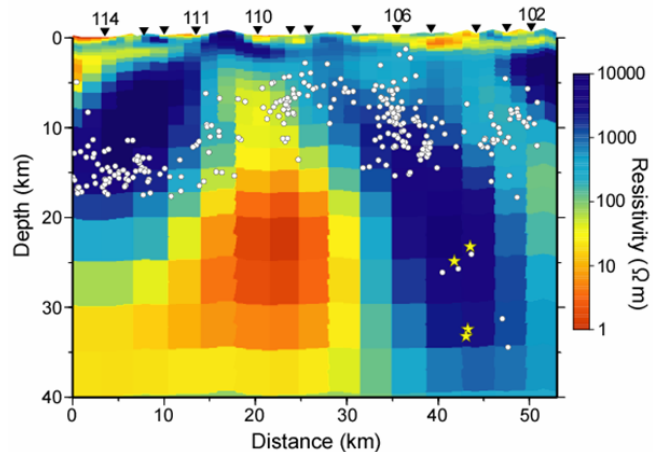


図2 飯豊山地の地下40kmまでの比抵抗構造（鉛直断面）と内陸地震の震源分布

- (6) 温泉ガスへのマントルヘリウムの寄与が小さいと考えられる能登半島において、比抵抗構造解析を行ったところ、地下 15km 付近までは高比抵抗体が存在し、これは基盤の船津花崗岩類に相当するものと考えられる（なお、地下 15km 以深についてはノイズの影響が大きく解析ができなかった）。一方、高温の温泉の多くは、北西－南東方向の活断層帯に集中して分布していること、温泉ガスに含まれる He 濃度は極めて高いこと（～0.4vol.%）、船津花崗岩類には放射性鉍物を含むペグマタイトが認められること等から、堆積岩に被覆されている高 U、Th、K 含有花崗岩の放射壊変による熱によって温められた流体が活断層帯を通じて上昇した可能性が示唆される。

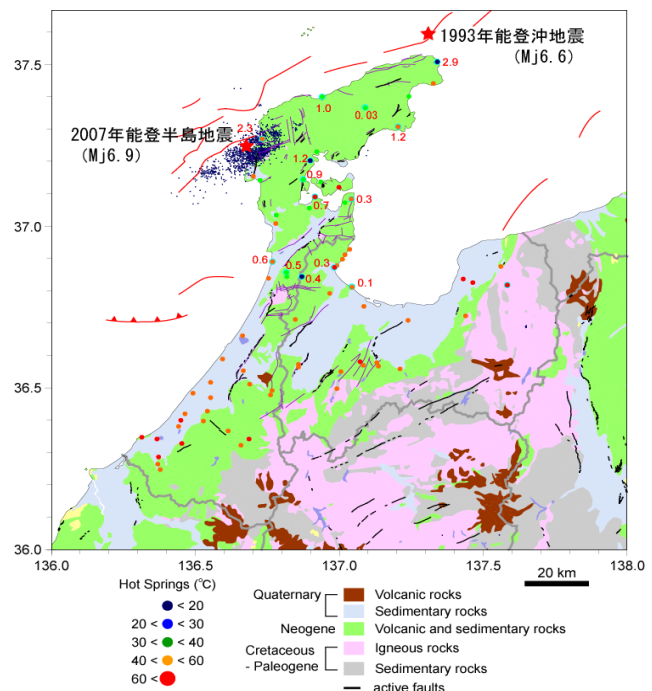


図3 能登半島の温泉ガスの He 同位体比（数値は Ra 表示）

- (7) なお、半島北縁部の門前じんのび (2.3Ra)、よしが浦 (2.9Ra) のヘリウム同位体比は、その他の温泉に比べて有意に高い値を示す。これらの温泉は北縁の活構造帯に位置しており、昨年の 3 月 35 日に発生した 2007 年能登半島地震 (Mj6.9) や 1993 年能登沖地震 (Mj6.6) の震源域に近接している（図 3）。温泉ガスのヘリウム同位体比異常と内陸地震の発生との関連性について検討していくことも、今後の重要な課題である。

(3/4)

2. 深部流体の温度・化学組成等に関するナチュラル・アナログ研究

- (1) 紀伊半島の熱水変質帯を事例に、現在も熱水活動が活発（高温の温泉が湧出）な地域（タイプ A）および熱水活動の兆候が認められない地域（タイプ B）に区分し、両者の地域に認められる熱水鉱脈に含まれる石英、方解石等の流体包有物の捕獲温度（均質化温度）と塩濃度（氷点温度）を測定した。タイプ A の熱水の捕獲温度（鉱物に取り込まれた時期の熱水の温度）は、200～380℃ と広範な温度を示すのに対して、タイプ B は、270～320℃ と比較的同一の温度となった。また、タイプ A の塩濃度（捕獲された熱水に含まれる塩濃度）も、1～10wt%とばらつくのに対して、タイプ B では 6～10wt%の範囲の値を示した。

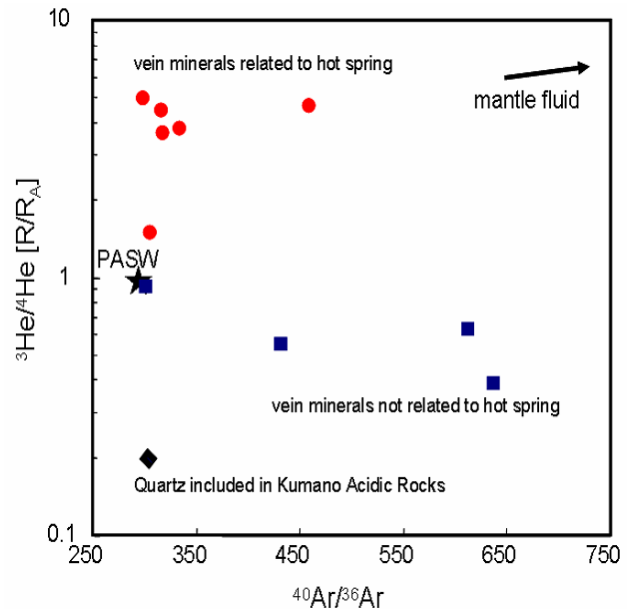


図4 タイプ A および B の石英、黄鉄鉱の流体包有物の $^3\text{He}/^4\text{He}$ — $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ の関係

- (2) この結果、タイプ B の変質帯は、中期中新世（1400 万年前頃）の火成活動によって生じたものであり、タイプ A の変質帯はさらに非火山性と考えられる現在の熱水活動がオーバーラップして生じたものと考えられる。したがって、現在生じている熱水活動は、200～250℃ 程度で低塩濃度の鉱液が関与しているものと考えられる。
- (3) 上記のタイプの石英、黄鉄鉱に含まれる流体包有物中の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比を測定した結果、タイプ A では 1.5～5.0Ra であり、タイプ A に関連する温泉ガスの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と調和的な値を示す。一方、タイプ B では 0.39～0.89Ra と極めて低く、中期中新世の熊野酸性火成岩類の石英に含まれる $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と同程度である（図 4）。このことは、タイプ B の変質帯が中期中新世に形成されたことを支持する。

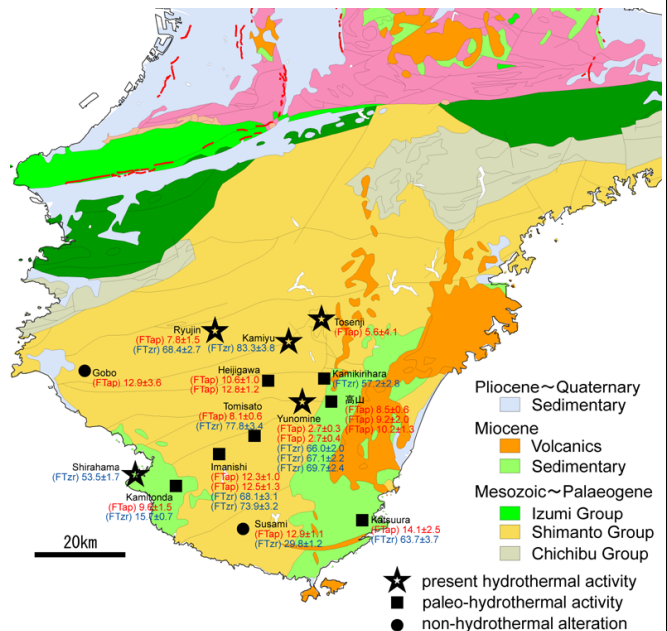


図5 タイプ A, B および未変質の岩石に含まれるジルコン、アパタイトのフィッション・トラック (FT) 年代

- (4) タイプ A, B の変質帯および未変質な岩石に含まれるジルコン、アパタイトの FT 年代を測定した（図 5）。ジルコンの年代値は、約 30～80Ma であることから原岩の形成年代の違い等を反映していると考えられる。一方、未変質の岩石に含まれるアパタイトの FT 年代は、12Ma 頃を示しており、紀伊半島南部の広域的な岩体の上昇に伴う温度の低下を反映していると考えられ

(4/4)

る。なお、アパタイトの閉鎖温度（約 130°C）から推定したこの地域の隆起速度は 400m/Ma 程度と見積もられるが、この値は第四紀の隆起速度と調和的である。

- (5) 一方、タイプ A の FT 年代は、2～6Ma 頃であり、タイプ B に比べて著しい若返りを生じており、現在生じている熱水活動の影響を受けていると考えられる。したがって、現在生じている非火山性と考えられる熱水活動の開始時期は 600 万年前頃まで遡る可能性がある。この結果は、フィリピン海プレートが沈み込みを開始した時代と調和的であり、紀伊半島の非火山性の熱水活動が、最近数万年以内に生じたものではなく、ネオテクトニクスの枠組みで生じている長期的な現象であることを示唆する。

【研究成果等発表状況】			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
1. 学術誌論文（原著研究論文）			
1.1	Umeda, K., Ogawa, Y., Asamori, K. and Oikawa, T.	Aqueous fluids derived from a subducting slab: observed high ^3He emanation and conductive anomaly in a non-volcanic region, Kii Peninsula southwest Japan : J. Volcanol. Geotherm. Res., 149, 47-61, 2006.	1
1.2	Umeda, K., Kanazawa, S., Kakuta, C., Asamori, K. and Oikawa, T.	Variations in the $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratios of hot springs on Shikoku Island, southwest Japan, Geochem. Geophys. Geosyst., 7, Q04009, doi:10.1029/2005GC001210, 2006.	1
1.3	Umeda, K., Asamori, K., Negi, T. and Ogawa, Y.	Magnetotelluric imaging of crustal magma storage beneath the Mesozoic crystalline mountains in a nonvolcanic region, northeast Japan, Geochem. Geophys. Geosyst., 7, Q08005, doi:10.1029/2006GC001247, 2006.	1
1.4	Umeda, K., Sakagawa, Y., Ninomiya, A., Asamori, K.	Relationship between helium isotopes and heat flux from hot springs in a non-volcanic region, Kii Peninsula, southwest Japan, Geophys Res. Lett., 34, L05310, doi:10.1029/2006GL028975, 2007.	1
1.5	Umeda, K., Asamori, K., Ninomiya, A., Kanazawa, S. and Oikawa, T.	Multiple lines of evidence for crustal magma storage beneath the Mesozoic crystalline Iide Mountains, northeast Japan, J. Geophys. Res., 112, B05207, doi:10.1029/2006JB004590, 2007.	1
1.6	Umeda, K., McCrack, G.F., Ninomiya, A.	Helium isotopes as geochemical indicators of a serpentinized fore-arc mantle wedge, J. Geophys. Res., 112, B10206, doi:10.1029/2007JB005031, 2007.	1
1.7	Umeda, K., Hanamuro, T., Yamada, K., Negishi, Y., Iwano, H., and Danhara, T.	Thermochronology of non-volcanic hydrothermal activity in the Kii Peninsula, Southwest Japan: evidence from fission track dating and helium isotopes in paleo-hydrothermal fluids, Radiation Measurements, 42, 1647-1654, 2007.	2
1.8	Umeda, K., Ninomiya, A., Shimada, K., and Nakajima, J.	Helium isotope variations along the Niigata-Kobe Tectonic Zone, Central Japan, The Lithosphere, (in press).	1
1.9	Umeda, K., and Ninomiya, A.	Heat source of high-temperature hot springs on the Noto Peninsula, Central Japan: variations in the $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratios of hot spring gases, Geophys Res. Lett., (submitted).	1
1.10	浅森浩一, 梅田浩司	地下深部のマグマ・高温流体等の調査技術について, 原子力バックエンド研究, 11, 147-156, 2005.	1
1.11	坂川幸洋, 梅田浩司, 浅森浩一	熱移流を考慮した日本列島の熱流束分布と雲仙火山を対象とした熱・水連成シミュレーション, 原子力バックエンド研究, 11, 157-166, 2005.	1
1.12	上原大二郎, 小川康雄, 角田地文, 工藤 健, 梅田浩司	紀伊半島南部地域の重力異常と深部比抵抗構造から推定される地熱構造, 地震第2輯, 57, 245-255, 2005.	1
1.13	Oikawa, T., Umeda, K., Kanazawa, S. and Matsuzaki, T.	Unusual cooling of Middle Miocene Ichifusayama Granodiorite in Kyushu, Japan, J. Mineral. Petrol. Sci., 101, 23-28, 2006.	2

1.14	坂川幸洋, 梅田浩司, 浅森浩一	熱移流を考慮した日本列島の熱流束分布, 日本地熱学会誌, 28, 211-221, 2006.	1
1.15	及川輝樹, 眞島英寿, 棚瀬充史, 二ノ宮 淳, 梅田浩司	岐阜県土岐川沿いに露出する高マグネシウム安山岩岩脈の K-Ar 年代, 地質学雑誌, 112, 616-619, 2006.	2
1.16	棚瀬充史, 及川輝樹, 二ノ宮 淳, 林信太郎, 梅田浩司	K-Ar 年代測定に基づく両白山地の鮮新-更新世火山活動の時空分布, 火山, 52, 39-61, 2007.	2
1.17	富山眞吾, 梅田浩司, 高島 勲, 花室孝広, 林信太郎	下北半島, むつ燧岳火山地域の変質帯と変質岩の熱ルミネッセンス年代, 岩石鉱物科学, 36, 111-121, 2007.	2
1.18	花室孝広, 梅田浩司, 高島 勲, 根岸義光	紀伊半島南部, 本宮および十津川地域の温泉活動と変質年代, 岩石鉱物科学 (投稿中).	2
2. 学術会議論文 (会議論文集あり)			
2.1	Umeda, K.	An integrated approach for detecting latent magmatic activity beneath non-volcanic regions: an example from the crystalline Iide Mountains, Northeast Japan. Proceedings of an IGSC "Geosphere Stability" Workshop, Manchester (UK), 13-15 November 2007, Nuclear Energy Agency, Organization for Economic Co-operation and Development (OECD), (in press).	1
3. 学会等口頭発表 (概要集程度)			
3.1	Umeda, K., Asamori, K., Negi, T. and Ogawa, Y.	Magnetotelluric imaging of crustal magma storage beneath the Mesozoic crystalline mountains in a non-volcanic region, Northeast Japan, Association of Geomagnetism and Aeronomy, S8-34, 2006.	1
3.2	梅田浩司, 浅森浩一, 根木健之, 小川康雄	東北日本, 飯豊山地下の深部抵抗構造: 非火山地帯におけるマグマの存在, 地球惑星科学関連学会 2006 年合同大会, G150-P004, 2006.	1
3.3	Umeda, K.	Multiple lines of evidence for crustal magma storage beneath Mesozoic crystalline mountains in a non-volcanic region: magnetotelluric imaging and variations in the $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratios of hot spring gases in the Iide Mountains, Northeast Japan, 2006 AGU fall meeting, V11B-0583, 2006.	1
3.4	梅田浩司, 浅森浩一, 二ノ宮 淳, 根木健之	非火山性温泉の熱源についてー地球物理, 地球化学データからの制約ー, 地球惑星科学関連学会 2007 年合同大会, G121-004, 2007.	1
3.5	Umeda, K.	Magnetotelluric imaging of the Miocene Kumano-Omine volcano-plutonic complex in the Kii Peninsula, southwest Japan, 2007 AGU fall meeting, AGU, V33C-1526, 2007.	1
4. 学術誌解説・総説			
4.1	梅田浩司, 大澤英昭, 野原 壯, 笹尾英嗣, 藤原 治, 浅森浩一, 中司 昇	サイクル機構における「地質環境の長期安定性に関する研究」の概要ー日本列島のネオテクトニクスと地質環境の長期安定性ー, 原子力バックエンド研究, 11, 97-112, 2005.	1, 2

5. 依頼講演（内部は除く）			
5.1	Umeda, K.	Deep structure of the Miocene igneous complex in the Kii peninsula, Southwest Japan, inferred from wide-band magnetotelluric soundings, Asia Oceania Geosciences Society's 2nd Annual Meeting, 20-24 June, 2005, Singapore.	1
5.2	梅田浩司	サイクル機構における「火山活動に関する研究」, 日本原子力学会 2005 年秋の大会, 総合講演（バックエンド部会）, 火山活動の長期予測に関わる最新の研究, 2005 年 9 月 14 日, 八戸.	1, 2
5.3	梅田浩司	天然現象の調査技術と予測モデルに係る研究開発の現状—マグマ検出技術と地形変化シミュレーション—, 研究開発報告会「地層処分計画を支える技術基盤の継続的な強化」(経済産業省資源エネルギー庁), 2007 年 3 月 5 日, 東京.	1, 2
5.4	梅田浩司	火山・地熱活動の将来予測—非火山地域の場合—日本地質学会第 114 年学術大会, 公開シンポジウム: 地質環境の将来予測と地層処分, 2007 年 9 月 11 日, 札幌.	1
6. その他（サイクル機構技報等）			
6.1	金沢 淳, 富山眞吾, 及川輝樹, 梅田浩司	地質温度計による熱履歴の調査手法について, サイクル機構技報, no.26, 1-18, 2005.	2
6.2	川村 淳, 牧野 仁史, 梅田浩司, 瀬尾俊弘, 石丸恒存, 大澤英昭	高レベル放射性廃棄物処分における天然現象影響評価技術の高度化, サイクル機構技報, no.28, 53-64, 2005.	1
6.3	梅田浩司	Ⅱ 東北日本, 5.2 青森—恐火山列, 日本の地質 (増補版), 日本の地質増補版編集委員会編, pp.68-69, ISBN4-320-04644-7, 共立出版, 2005.	2
6.4	Umeda, K.	Deep structure of the Miocene igneous complex in the Kii peninsula, Southwest Japan, inferred from wide-band magnetotelluric soundings, in Advances in Geosciences - Vol. 1: Solid Earth (SE), edited by C. Yuntai, pp. 207-213, ISBN 981-256-985-5, World Scientific, 2006.	1
7. 社内研究報告書			
な し			
8. 特許（出願中）			
8.1	根木健之, 梅田浩司, 浅森浩一	地磁気地電流法における観測データの処理方法および装置: 特願 2007-302772	1

3.1.14 【H18-1】 発雷機構に与える放射線の影響評価研究（継続研究）

平成 20 年 1 月 31 日

【No.】 研究テーマ名	【H18-1】 発雷機構に与える放射線の影響評価研究（継続研究）		
研究実施者	鳥居 建男		
研究実施場所	敦賀本部 高速増殖炉研究開発センター 他		
研究期間	平成 18 年 4 月 1 日 ～ 平成 20 年 3 月 31 日		
研究費用	1,183 万円	内訳	H18 (648 万円) H19 (535 万円)
【研究目標】 本研究では、雷放電に与える放射線の影響、特に逃走絶縁破壊のメカニズムを解明することを目的とし、(1) 雷放電と放射線変動の同時観測による実験的研究により、逃走絶縁破壊のメカニズムを解明する、(2) 東アジア域のラドンの移流拡散解析に関する研究と比較測定により雷放電発生メカニズムへのラドン子孫核種の寄与について評価する、(3) TGF (Terrestrial Gamma-ray Flash) メカニズムに関する解析的研究により、雷雲上方への放射線バースト発生のメカニズム解明とその特徴を解析する。			
【研究計画の概要】 雷雲中で観測される電界強度は室内実験で得られる絶縁破壊電界強度より 1 桁以上低いことから、なぜ雷放電が発生するかは現在でも未解明である。この問題について、絶縁破壊に到る高電界は雷雲中に存在しても局所的で観測されない説 (Conventional Breakdown) と宇宙線などの高エネルギー荷電粒子が雷雲電界中で逃走電子を生成し放電を誘発する逃走絶縁破壊説 (Runaway Breakdown) があるが、これまで行ってきた研究により雷放電開始の数 10 秒前から放射線が発生し放電時にバーストする事象が観測され、逃走絶縁破壊説を裏付ける逃走電子の一部と見られる高エネルギー電子と制動放射線を検出している可能性が出てきた。一方、同じ逃走絶縁破壊説でも、米国夏季雷での観測では、初期放電の先端部から X 線が数ミリ秒程度の短時間放出されるとし、本研究と異なる結果を示していることから、異なる現象を内包している可能性があった。 そこで本研究では、雷放電に与える放射線の影響、特に逃走絶縁破壊のメカニズムを解明することを目的に、以下の研究を行う。			
1. 雷放電と放射線変動の同時観測による実験的研究：雷放電と放射線変動の相関について調査し、逃走絶縁破壊のメカニズムを解明する。 2. 東アジア域のラドンの移流拡散解析に関する研究と比較測定：近年の冬季雷増加傾向と大陸ラドンの移流について調査し、雷放電発生メカニズムへの放射線寄与を評価する。 3. TGF メカニズムに関する解析的研究：人工衛星で観測されている雷雲上方への放射線バーストの発生メカニズムの解明とその特徴について解析する。			

【研究成果の概要】

1. 雷放電と放射線変動の同時観測による実験的研究

- (1) これまで得られた環境放射線モニタのデータ、及び遮蔽材を組み合わせた比例計数管による観測の結果、落雷前の数 10 秒間に 3MeV 以下の低エネルギー放射線(光子)による緩やかな変動が、また落雷とほぼ同時に 10MeV 超の高エネルギー放射線によるバーストが発生していることが分かった。
- (2) 雷雲電界を模擬した場でのモンテカルロ計算の結果、逃走絶縁破壊の前段階の高電界でも逃走電子と電磁シャワーが発生することから、低エネルギーの緩やかな放射線はこの前段階のものであり、高エネルギー放射線のバーストは、逃走電子の連続的な発生、すなわち逃走絶縁破壊による高エネルギーの電磁シャワーによるものと考えられた。
- (3) 米国夏季雷での短時間バースト (<250keV) は、冬季雷で見られる低エネルギー成分が距離による減衰のため、高エネルギーバーストのみが地上に達した可能性がある。
- (4) これまで、冬季雷、山岳雷、及び雷雲中で緩やかな放射線が、米国夏季雷と TGF ではバーストが観測されていたが、本測定により 2 種類の放射線が出ていることが初めて分かった。

2. 東アジア域のラドン移流拡散解析に関する研究と比較測定

- (1) 実気象に基づくラドン移流拡散計算を行った結果、冬季に大陸からのラドン濃度が急激に上昇し、冬季雷で高電界領域を形成する高度 1~3km まで 10Bq/m³ 程度の高濃度となることが分かった。また、もんじゅ構内におけるラドン濃度の測定(地上)でも裏付けられた。
- (2) モンテカルロ計算による電界内でのラドン・トロンの挙動解析の結果、320kV/m@1atm 以上で急激に大気電離量が増加し、360kV/m で 80 倍超となった（これ以上は計算不可）。
- (3) 雷雲中で 370kV/m の存在が実測により明らかになっているが、宇宙線=逃走絶縁破壊説では説明できないこの高電界領域の存在がラドン=逃走絶縁破壊説で説明可能と判断される。
- (4) チェルノブイリ事故後、プルームが通過したスウェーデン中部で落雷が多発した現象について解析し、フォールアウト核種の中から大気電離に寄与した核種を明らかにした。チェルノブイリ事故後の雷活動と放射性物質の関係を示したのは世界初である。

3. TGF メカニズムに関する解析的研究

- (1) モンテカルロ計算コード EGS5 を改造し、全球レベルの電磁場中での電子・光子の挙動を解析（地表～高度 400km）できるようにした。
- (2) 解析の結果、TGF は雷雲上部で発生した高エネルギー電子が上方へ輸送され、衛星の筐体、もしくは検出器と衝突し生成された制動放射線と推察された。球面モデルの解析は世界初。

【研究目標に対する達成度】

本研究の目標「雷放電に与える放射線の影響、特に逃走絶縁破壊のメカニズムの解明」について、ほぼ達成できた。成果の到達状況は以下のとおり。

- 当初予想した雷放電発生の前に雷雲電界中で電磁シャワーの発生による低エネルギー放射線の放出とともに高エネルギーバーストの 2 つのタイプがあることを実測した。
- しかし、低エネルギー放射線の変動と高エネルギー放射線バーストの発生源の特定、及び高エネルギーバーストと雷放電との完全な同期性を確認するには至らなかった。
- 東アジア域におけるラドンの移流拡散解析の結果、ラドンが雷雲中での電子密度上昇に寄与する濃度であることが判明し、当初の目的を達成した。
- ラドンによる大気電離量を求め、電界強度の上昇により急激に電離が増加することが分かった。ラドンが逃走電子源となることを定量的に確認でき、当初の目標を達成した。
- TGF 現象を明らかにするために、モンテカルロ計算コードを整備し、高度 400km までの電子・光子の全地球規模の電子・光子の挙動を解析できるようにした。TGF 現象との定量的な比較は今後の課題となった。

【研究成果の波及効果及び展望】

1. 現在までの波及効果

雷放電の開始機構に関する問題（雷雲中で観測される電界強度が室内実験の絶縁破壊電界強度より1桁以上低いこと）について、絶縁破壊に到る高電界は雷雲中にあるが局所的で観測されない説（Conventional Breakdown）と、宇宙線など何らかの要因により雷雲電界中で逃走電子が生成され放電を誘発する逃走絶縁破壊説（Runaway Breakdown）があり、雷活動時の放射線の観測は、後者の存在を示すものであるが、後者のみが存在するか、それとも前者と共存するのか、その詳細なメカニズムは現在でも不明である。また、雷からの放射線発生について、冬季雷や山岳雷、雷雲中での観測では緩やかな変動を、米国での夏季雷の観測では急峻な放射線バーストを検出しており、相互に違いが指摘されてきた。本研究により、学術的に以下の影響とその波及があった。

- (1) 雷からの放射線に2つの異なるタイプがあることが実測により確認され、本分野の学術的な進歩に貢献した。
- (2) 雷雲中での放射線挙動を解析できるように計算コードを整備し、高エネルギー物理、原子力分野の計算コードを地球物理分野に適用した。
- (3) 国内でも、東大・理研宇宙線研究グループ、阪大雷研究グループ、石川県保健環境センター、新潟県放射線監視センターなど、幅広く観測活動が行われるようになった。
- (4) これまでの観測結果やモンテカルロ計算による解析結果は米国でも注目され、2007年12月の米国地球物理学会連合（AGU）大会での招待発表に選ばれた。
- (5) 国内学術諸団体、中学生から一般市民までの幅広い層を対象とした講演の依頼があるなど、本研究領域への学術的、及び社会的な関心が得られた。

2. 今後期待される波及効果と展望

本研究分野では、逃走絶縁破壊のトリガーとして宇宙線説が主流であるが、今回の研究でラドンの可能性について研究し、その可能性を示した。また、人工衛星によって観測されているTGF現象の解明に関する研究により、地上から高度400kmの超高層領域までについて全球レベルで電磁場を統一的に計算できるモンテカルロ計算コードを作成した。これらの成果について、今後以下の進歩、応用が考えられる。

- (1) 大気中放射性物質による雷活動の影響について解析したが、移流拡散計算と併せて他分野への応用が期待される。
- (2) モンテカルロ計算コードEGS5に電磁場を統一的に計算できるようにした。本コードはKEKから公開要求されており、他分野での応用も期待されている。
- (3) 宇宙からの雷放射線の観測は現在のところ米国のみで実施されているが、国内でも人工衛星を用いた雷観測が計画（一部実施）されている。今後この分野の進展に本研究の成果が期待されている。

【研究成果の説明】 (1/4)

1. 雷放電と放射線変動の同時観測による実験的研究

冬季雷活動時に観測される放射線レベルの変動について測定・解析の結果、低エネルギー放射線（光子）による数 10 秒程度の緩やかな変動と短時間（～100ms）の高エネルギー放射線によるバーストの 2 種類の放射線があることが、環境放射線モニタ及び比例計数管による測定で明らかになった。

(1) 環境放射線モニタによる変動観測

環境放射線モニタ（モニタリング・ポスト、ステーション）に設置されている 2 つの検出器（電離箱、NaI 検出器）の線量率（10 秒値）、及び NaI 検出器の線量寄与を示す通過率（エネルギーの関数）から、以下の特徴が示された。①線量率の上昇開始から数 10 秒で最高値に達しその後は時定数によると考えられる曲線で元の指示値に戻る。②線量率の上昇時には通過率はいったん下がり、その後急激に上昇して元に戻る（Fig.1 の(a)参照）。③環境放射線モニタが 5 基ある「もんじゅ」構内で、観測される線量率上昇のほとんどが 1~3 基であり、しかも上昇開始時間／最高値を示す時間は必ずしも同時ではなく 10~20 秒程度ずれることがある（Fig.1 の 2002 年 1 月データでは 10 秒のずれ）。このことから、(a)線量率の上昇は個々の雷放電によるものではなく雷放電直前の雷雲内で電界強度が上昇したときに発生する。(b)雷放電によって高電界領域が消失したときに放射線の発生が停止する。もしくは高電界領域の移動によってモニタの設置位置が放射線の到達範囲外となるとときに平常値に戻る。(c)線量率の上昇時には、最初、通常的环境放射線より低エネルギーの放射線が数 10 秒程度放出され、その後エネルギーが増加して高エネルギー放射線が急激に放出される（Fig.1(a)の通過率の変動、及び(b)の低エネルギー成分と高エネルギー成分で異なる挙動から）。(d)地上での放射線の到達エリアは、数 100 m 程度と局所的であることが分かった。

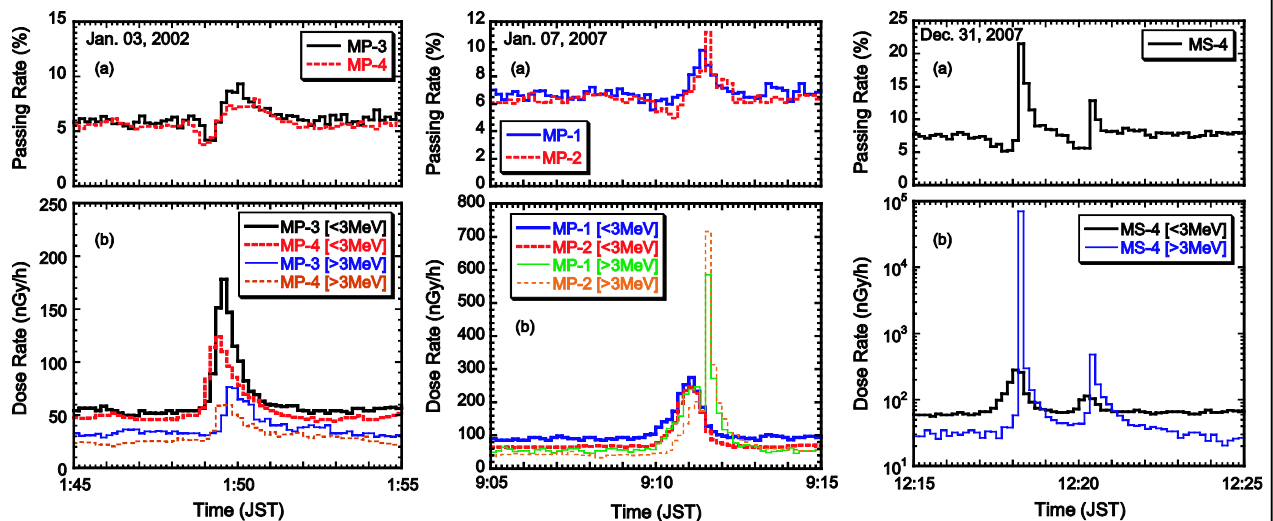


Fig.1 環境放射線モニタ指示値の変動。(a) : NaI 検出器の通過率。(b) : 線量率。ここで低エネルギー成分(<3MeV) は NaI 検出器 (50keV~3MeV) の線量率。高エネルギー成分(>3MeV) は電離箱 (50keV 以上) の線量率から NaI 検出器の線量率を引いた値。

(2) 比例計数管による放射線変動観測

長尺比例計数管（以下、LPRC という：長さ 2.5m、直径 10cm、4 本組）に種々の遮蔽体組み合わせた 4 チャンネルでの測定をもんじゅ構内（標高 150m 地点）で行った（Figs.2, 3 参照）。また、近傍に電場計（フィールドミル）を設置し、雷活動との相関を求めた。その結果、環境放射線モニタと符合する以下に示すデータが得られた（Fig.1 の中央と Fig.4 参照）。

(2/4)



Fig.2 テント内の LPRC

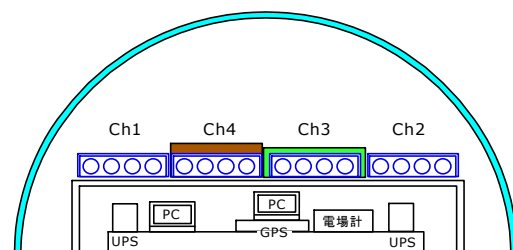


Fig.3 LPRC のレイアウト

測定結果 (Figs.4, 5) 及びモンテカルロ計算により求めた LPRC のエネルギー応答関数から、約 1 分間の緩やかな変動は 3MeV 以下の低エネルギー光子を主成分としたものであり、短時間 (~100ms) の放射線バーストは 10MeV 超の高エネルギー光子の入射によるものと考えられた。

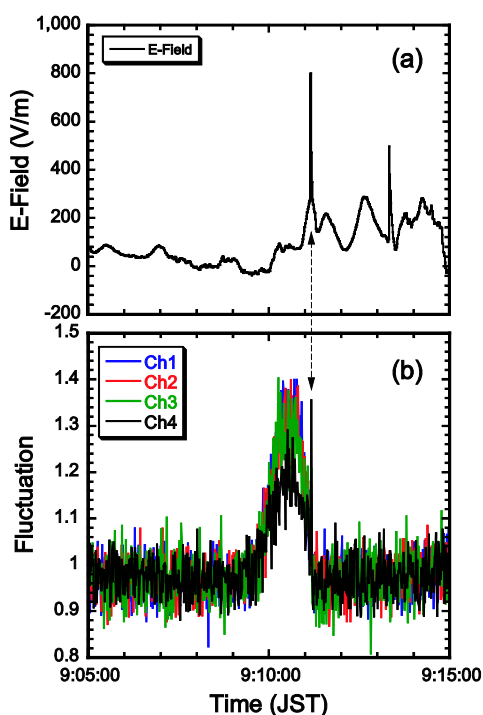


Fig.4 2007年1月7日に得られた (a)電界強度と(b)放射線計数率 (1 秒平均値) の測定結果

この結果は、環境放射線モニタの測定結果と併せて、逃走絶縁破壊発生の前段階での高電界中での逃走電子の生成による電磁シャワーによるものであり、バーストは逃走絶縁破壊段階での逃走電子の連続的な生成による高エネルギー放射線バーストと推察される。

また、米国夏季雷で観測された 250keV 以下のバーストは、雷雲との距離が長いため、低エネルギーの緩やかな成分が減弱してなくなり、バースト成分の一部が検出された可能性がある。

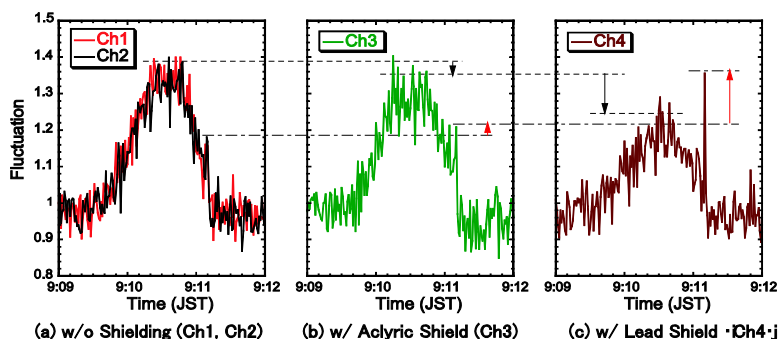


Fig.5 遮蔽別に表示した放射線計数率の変動。緩やかな変動とバーストでは異なる挙動を示す。

2. 東アジア域のラドン移流拡散解析に関する研究と比較測定

(1) 東アジア域のラドンの移流拡散解析

冬季雷活動に寄与している可能性があるラドンの影響を評価することを目的として、地域気象モデル RAMS と物質輸送モデル HYPACT を用いアジア域におけるラドン及びラドン子孫核種の輸送モデルを開発した。このモデルでラドンの散逸率は地表の温湿度、ラジウム濃度等から算出した Schery の評価値を用い、2002 年 9 月から 2003 年 10 月までの東アジア域におけるラドンの輸送解析を行った。解析の結果、冬季は季節風に伴って大陸から大量のラドンが輸送され、

(3/4)

日本海側の評価点(敦賀)においても高濃度となることが分かった (Fig.6)。特に、日本起源のラドンは高度が上昇するに伴って急激に減少するが、大陸起源のラドンは高度 3km 程度まで高濃度となることが分かった (Fig.7)。このことは、冬季雷の高電界領域でラドンが高濃度にあることを示唆しており、ラドン子孫核種が放出する $\beta \cdot \gamma$ 線に起因した電磁シャワーの発生の可能性をも示唆している。

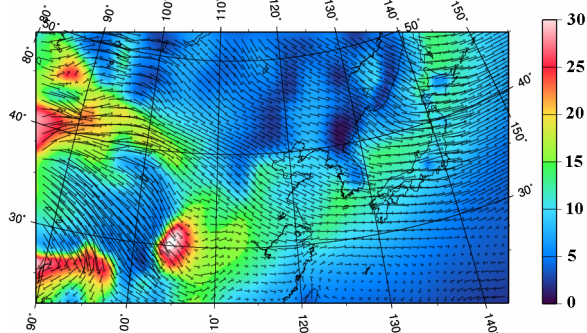


Fig.6 2003年1月17日の高度1.2kmでのラドン濃度の解析結果

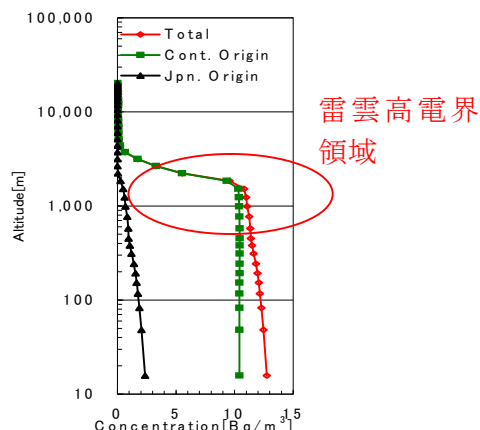


Fig.7 評価点(敦賀)での冬季のラドン濃度の高度分布

(2) ラドンによる大気の電離量解析

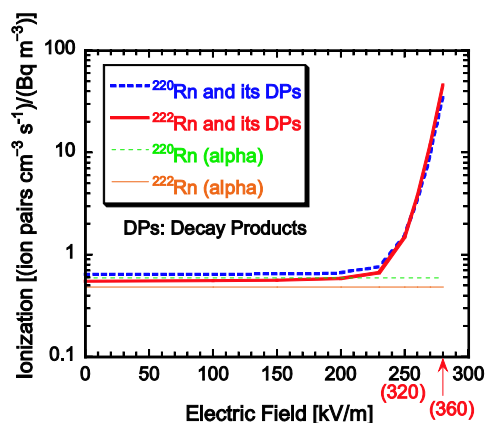


Fig.8 高度2kmでの大気の電離量の解析結果。()内は1気圧換算。

モンテカルロ計算コード EGS5 を整備し、大気中のラドン及びラドン子孫核種が放出する放射線の雷雲電界中における影響(大気の電離量)を求めた。電界強度、大気密度が一樣な場(半径1km、高さ1km円筒モデル)での解析の結果、1気圧換算で320kV/mを超えるとラドン子孫核種の $\beta \cdot \gamma$ 線による逃走電子の生成によって急激に電離量が増加し、360kV/mで80倍超の増加が得られた。これは、雷雲中で観測された最高値370kV/m (Marshall et al., 2005) に匹敵する値であった。

また、エネルギーも20MeV程度まで増加することが分かった。このことから、ラドンも逃走電子の生成源となり得ることが分かった。

(3) チェルノブイリ事故による大気電離の影響解析

チェルノブイリ事故後の1986年5,6月、プルームが通過し、多量のフォールアウトがあったスウェーデン中部において、雷活動が急激に増加したことから、大気中放射性物質が大気電離与える影響解析の一環として、スウェーデンで検出されたフォールアウト核種を対象に大気電界中での電離量の解析を行った。

その結果、 β 線エネルギーの高い ^{129m}Te (半減期 $T_{1/2}=33.6\text{d}$)、 $^{132}\text{Te}+^{132}\text{I}$ ($T_{1/2}=3.2\text{d}$)、 $^{140}\text{Ba}+^{140}\text{La}$ ($T_{1/2}=12.75\text{d}$)が大気電離に大きく寄与していることが分かった (Fig.9 参照)。また、沈着量の多い ^{134}Cs ($T_{1/2}=2.065\text{y}$)も無視できないと考えられる。

(4/4)

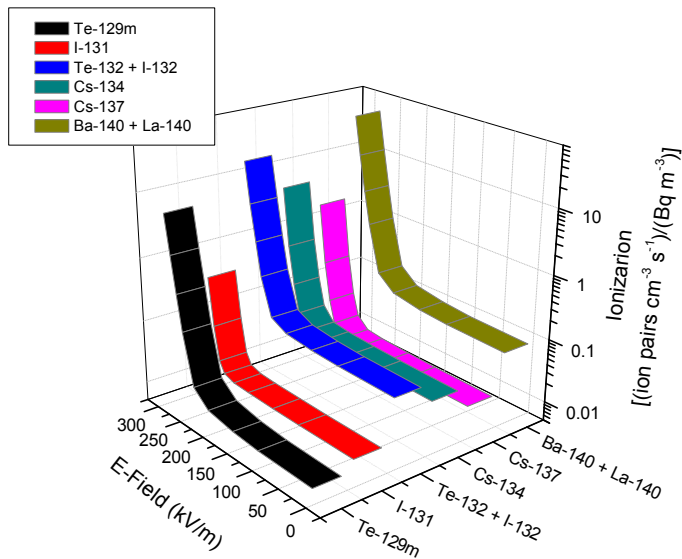


Fig. 9 チェルノブイリ事故フォールアウト核種による電界強度別の大気電離量の推移

スウェーデン中部では、このとき雷日数は例年と変わらなかったにもかかわらず、雷放電数が増加していることから、大気中に拡散したフォールアウト核種が $\beta \cdot \gamma$ 線を放出することによって逃走電子が生成され、電磁シャワーが発生することによって大気の電離が促進されたために雷放電が増加したものと考えられる。

3. TGF メカニズムに関する解析的研究

γ 線観測衛星 CGRO や RHESSI で観測されている雷雲上空での“ γ 線”事象の挙動を解析するために、モンテカルロ計算コード EGS5 を整備し、高度 400km までの電子・光子の挙動を解析できるよう全球モデルを作成した。ここで、地球磁場は国際標準地球磁場 (IGRF) モデルを用い、地球を回転楕円体とし、さらに米国標準大気を用いて超高層領域まで扱えるようにした。

解析の結果、高度 40km 以下では大気により散乱されるが、40km 以上では、電子は磁力線に沿って人工衛星が飛行する超高層領域まで同一方向に輸送されることが分かった。現在、米国では TGF は γ 線と見なしているが、発生源で広く散乱される γ 線ではなく TGF は電子が主であると推察された。現段階では、大気中での雷放電と TGF との具体的な対応がついていないため、粒子は不明であるが、電子は地球磁場により発生場所からずれるため (Fig.10)、両者の発生位置が判明した段階で明らかになると思われる。なお、2007 年 12 月の米地球物理学会 (AGU) で、米国研究者は両方を考えている旨の発表があった。

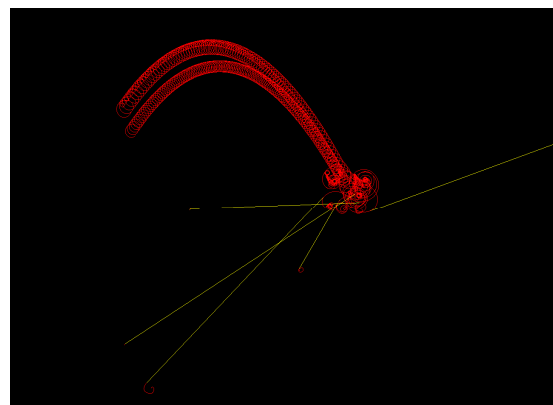
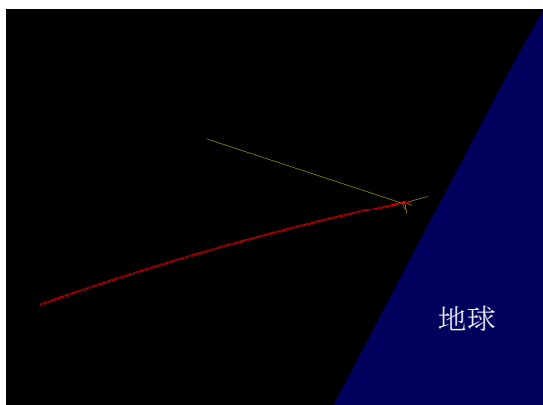


Fig.10 高度 40km から 20MeV 電子を 4π 方向に放出したときの電子 (赤色)・光子 (黄色) の挙動。下方向の電子は大気で散乱され γ 線を放出して消失。10 個中 3 個の電子は磁力線に沿って同一方向に螺旋運動しながら上方へ輸送される。 γ 線 (光子) は様々な方向に散乱される。

【研究成果等発表状況】			
No.	全著者名	タイトル・発表場所・年月・頁等の情報	研究項目
1. 学術誌論文（原著研究論文）			
1.1	T. Torii, M. Takeishi, and T. Hosono	“Observation of gamma-ray dose increase associated with winter thunderstorm and lightning activity”, J. Geophys. Res. Vol. 107 (D17) 4324-4352 (2002)	1
1.2	T. Torii, M. Takeishi, and K. Okubo	“Observation of Dose-Rate Increases During Winter Thunderstorms and Monte Carlo Simulation of Bremsstrahlung Generation”, in “Radioactivity in the Environment”, Vol. 7, pp. 902-908, Elsevier (2005)	1
1.3	T. Torii, T. Nishijima, Z. Kawasaki, and T. Sugita	“Downward emission of runaway electrons and Bremsstrahlung photons in the thunderstorm electric fields”, Geophys. Res. Lett., Vol. 31, L05113 (2004)	1
1.4	T. Torii, H. Kido, M. Kanno, and N. Kurosawa	“Advection and dispersion analysis of radon and its progenies in the East Asian region, and the relation with the winter thunderstorm activity”, J. Atmos. Elec. Vol. 27, 53-59 (2007)	2
1.5	S. Yoshida, T. Morimoto, T. Ushio, Z. Kawasaki, T. Torii, D. Wan, N. Takagi, and T. Watanabe	“High energy photon and electron bursts associated with upward lightning strokes”, Geophys. Res. Lett. (投稿中)	1
1.6	鳥居建男、杉田武志、村木 綏	“冬季雷活動時における放射線変動の観測とその特徴”、放射線（投稿中）	1
2. 学術会議論文（会議論文集あり）			
2.1	T. Torii and T. Sugita	“Cosmic ray electron acceleration and Bremsstrahlung generation in the strong electric field of thunderclouds”, KEK Proceedings 2002-18, pp. 89-94 (2003)	1
2.2	T. Sugita and T. Torii	“Transport calculation of low energy electrons under the strong electric field of thunderclouds”, KEK Proceedings 2002-18, pp. 95-99 (2003)	1
2.3	T. Torii, T. Nishijima, T. Morimoto, and Z. Kawasaki	“Research on the effect of cosmic-ray muons upon atmospheric discharges”, KEK-MSL Report 2003, KEK Progress Report 2004-7 (2005 年 3 月)	1
2.4	T. Torii, T. Nozaki, T. Sugita, T. Nishijima, and Z-I. Kawasaki	“Generation of runaway electrons induced by radon progeny products in thunderstorm electric fields and the initiation of lightning discharges”, Int’l Cong. Ser. 1276, 428, Elsevier (2005)	1
2.5	T. Torii, T. Sugita, T. Nishijima, and Z-I. Kawasaki	“Enhanced Electron and Photon Fluxes by Cosmic-Rays and Radon Progeny Products in Thunderstorm Electric Fields and the Initiation of Lightning Discharges”, Monte Carlo 2005 Topical Meeting, ANS	1
2.6	T. Torii, and T. Sugita	“Fluctuations of Electron and Photon Flux by a Thundercloud Electric Field and the Runaway Air Breakdown”, KEK Proceedings 2005-10, 27-32 (2005)	1
2.7	T. Sugita, T. Torii, and A. Takamura	“Incorporating Combinatorial Geometry to the EGS 5 Code and Its Speed-up”, KEK Proceedings 2005-10, 7-21 (2005)	1, 2
2.8	T. Torii, T. Sugita, T. Nishijima, and	“Enhanced Electron and Photon Fluxes by Cosmic-Rays and Radon Progeny Products in Thunderstorm Electric Fields and	1

	Z-I. Kawasaki	the Initiation of Lightning Discharges”, Monte Carlo 2005 Topical Meeting, ANS (2005)	
2.9	T. Torii, T. Nishijima, T. Morimoto, and Z-I. Kawasaki	“Research on the effect of cosmic-ray muons upon atmospheric discharges”, KEK-MSL Report 2003, KEK Progress Report 2004-7 (2005)	1
2.10	T. Torii, T. Sugita, and Y. Muraki	“Observation of the gradual increases and bursts of energetic radiation in association with winter thunderstorm activity”, Proc. 30 th Int’l Cosmic-Ray Conf., Mexico (2007) (印刷中)	1
2.11	T. Torii, and T. Sugita	“Incorporating the electromagnetic field in the EGS5 code”, Proc. 14 th EGS Users’ Meeting in Japan, pp. 43-49 (2007)	1, 3
2.12	鳥居建男	“放射線誘起の雷現象”, 放射線防護研究 (札幌医大, 2007)	1, 2
3. 学会等口頭発表 (概要集程度)			
3.1	T. Torii, M. Takeishi, and K. Okubo	“Observation of Dose-Rate Increases During Winter Thunderstorms and Monte Carlo Simulation of Bremsstrahlung Generation, 7 th Int’l Symposium Natural Radiation Environment (NRE-VII)”, (2002 年 5 月、ギリシャ)	1
3.2	西嶋健、鳥居建男、河崎善一郎	雷雲電界による放射線変動のシミュレーション、日本大気電気学会 (2003 年 7 月、福岡)	1
3.3	鳥居建男、西嶋健、森本健志、河崎善一郎	ミュオン照射時の放電特性に関する研究 (2003 年 9 月、KEK ミュオン科学研究施設成果報告会)	1
3.4	西嶋健、鳥居建男、河崎善一郎	雷雲電界に起因する制動放射線の下方放出、第 18 回大気圏シンポジウム、JAXA 宇宙科学研究本部 (2004 年 2 月)	1
3.5	西嶋健、鳥居建男、杉田武志、河崎善一郎	雷雲電界中における逃走絶縁破壊に関するモンテカルロシミュレーション (2004 年 5 月、地球惑星科学関連学会合同大会、幕張)	1, 2
3.6	T. Torii, T. Nishijima, T. Sugita, and Z-I. Kawasaki	“Generation of Runaway Electrons Induced by Cosmic-Ray Muons in Thunderstorm Electric Fields” (2004 年 5 月、米加地球物理学会合同大会、モントリオール)	1
3.7	西嶋健、鳥居建男、森本健志、河崎善一郎	ダーウィンにおける夏季雷活動時の放射線強度変動、地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会、Z105-P002	1
3.8	鳥居建男	雷雲中における放射線強度変動に関する研究 (2004 年 12 月、東大宇宙線研究所成果報告会、柏)	1
3.9	西嶋健、森本健志、平田晃正、河崎善一郎、鳥居建男、牛尾知雄	ダーウィンにおける雷活動時の放射線強度変動、大気電気研究、No.66, 26-27 (2005)	1, 2
3.10	西嶋健、鳥居建男、河崎善一郎、杉田武志	雷雲電界中での逃走絶縁破壊に関するモンテカルロ解析 (2005 年 3 月、電気学会全国大会、徳島)	1
3.11	奥山慎一、鳥居建男、野崎達夫、大久保浩一、那波康則、富永明宏	冬季雷活動における空間線量率上昇の観測とその特徴 (2005 年 5 月、地球惑星科学関連学会合同大会、幕張)	1
3.12	鳥居建男、杉田武志	冬季雷活動時の放射線量率の上昇と宇宙線ミュオンの影響評価 (2005 年 5 月、地球惑星科学関連学会合同大会、幕張)	1

3.13	杉田武志、鳥居建男、高村篤	EGS5 への CG の組み込みと高速化 (2005 年 8 月、第 12 回 EGS 研究会、KEK)	1, 2
3.14	鳥居建男、杉田武志	雷雲電界による電子・光子束の変動と逃走絶縁破壊の可能性 (2005 年 8 月、第 12 回 EGS 研究会、KEK)	1, 2
3.15	T. Torii, S. Okuyama, A. Ishizuka, T. Nozaki, Y. Nawa, and T. Sugita	“Observation and a Monte Carlo Analysis of the Energetic Radiation Associated Winter Thunderstorm Activities in Japan” American Geophysical Union (AGU) 2005 Fall Meeting (San Francisco)	1
3.16	鳥居建男、杉田武志	Fluctuation of Cosmic Radiation Associated with Winter Thunderstorm Activities and Its Simulation with EGS4/5 and Geant4、Geant4 研究会 (2006)	1, 2
3.17	鳥居建男、奥山慎一、石塚晃弘	“雷雲中における放射線強度変動に関する研究”、平成 17 年度共同利用研究・研究成果報告集 (2006 年 4 月、東大宇宙線研究所)	1
3.18	鳥居建男、杉田武志、村木 綏	“冬季雷活動時における放射線レベルの変動観測とその特徴”、日本地球惑星科学連合 2006 年大会 (2006 年 5 月 16 日、幕張)	1
3.19	城戸寛子、鳥居建男、黒沢直弘、菅野光大	“ラドンの大気拡散に関する解析的研究”、日本地球惑星科学連合 2006 年大会 (2006 年 5 月 16 日、幕張)	2
3.20	鳥居建男、杉田武志	“雷雲電界中でのラドン子孫核種による逃走電子の生成”、日本地球惑星科学連合 2006 年大会 (2006 年 5 月 16 日、幕張)	2
3.21	鳥居建男、城戸寛子、菅野光大、黒沢直弘	“ラドン及びその娘核種の広域拡散シミュレーション”、日本保健物理学会 2006 年研究発表会 (2006 年 6 月 8-9 日、広島)	2
3.22	鳥居建男、杉田武志、城戸寛子、菅野光大、黒沢直弘	“雷雲電界中でのラドン壊変生成物 $\beta \cdot \gamma$ 線変動シミュレーションとラドンの移流拡散”、大気電気研究 No.69, 32-33 (2006)	2
3.23	鳥居建男、杉田武志、村木 綏	“冬季雷活動時における高エネルギー放射線の観測”、大気電気研究 No.69, 30-31 (2006)	1
3.24	T. Torii, T. Sugita, and Y. Muraki	“Observation of the energetic radiation associated with winter lightning activities”, AGU 2006 Fall Meeting (San Francisco)	1
3.25	鳥居建男、杉田武志、村木 綏	“冬季雷活動時における高エネルギー放射線の観測” 日本地球惑星科学連合 2007 年大会 (2007 年 5 月 24 日、幕張)	1
3.26	吉田智、佐藤仁、森本健志、牛尾知雄、河崎善一郎、鳥居建男、他	“冬季雷から発生する放射線バースト”、大気電気学会誌 Vol.1 No.2 (No.71), 72 (2007)	1
3.27	S. Yoshida, T. Torii, M. Satoh, T. Morimoto, T. Ushio, Z. Kawasaki	“Radiation Bursts Synchronizing with Lightning Discharges in Hokuriku, Japan”, Int’l Conf. Atmos. Elec., Aug. 2007 (Beijing)	1
3.28	鳥居建男、杉田武志、村木 綏	“冬季雷活動時における高エネルギー放射線の観測”、大気電気学会誌 Vol.1 No.2 (No.71), 73-74 (2007)	1
3.29	T. Torii, T. Sugita, and Y. Muraki	“Two Types of Energetic Radiation Observed in Winter Thunderstorms”, AGU 2007 Fall Meeting (San Francisco) (Invited Talk)	1

3.30	T. Torii	“Generation of Runaway Electrons Induced by Radon Decay Products in Thundercloud Electric Fields”, AGU 2007 Fall Meeting (San Francisco)	2
3.31	鳥居建男、杉田武志	“大気中放射性物質による雷雲電界内での逃走電子の生成”、日本大気電気学会 (2008 年 1 月 11 日、千葉大)	2
4. 学術誌解説・総説			
4.1	鳥居建男	「雷から放射線が出る」、Isotope News, 2002 年 3 月号、pp.8-11 (日本アイソトープ協会)	1
4.2	鳥居建男	「雷雲中における放射線発生とそのメカニズムについて」、放射線科学、Vol. 46 (7), 225-235 (2003)	1
4.3	鳥居建男	「雷雲からの放射線の発生とその観測」、放電研究、Vol. 46 (3), 52-57 (2003)	1
4.4	鳥居建男	「雷雲電界による荷電粒子の加速と放射線の発生」、ESI-News, Vol. 22(4), 12-19 (2004)	1
4.5	巻田和夫、鳥居建男、星野光男、西野正徳、塩川和夫	ブラジル磁気異常帯における雷雲電場に伴う宇宙線・リオメータ強度変動、拓殖大学理工学研究報告 Vol. 9, No.2, pp.37-42 (2004)	1
4.6	鳥居建男	「雷活動時に見られる放射線量率の上昇とそのメカニズム」、原子力 eye、2005 年 12 月号 (Vol.51, No.12, 44-47)	1
4.7	鳥居建男	“ミュオンで雷を落とす?”、Isotope News (2006 年 9 月号)	1
4.8	鳥居建男	“雷放電発生の謎と放射線”、原子力 eye、2007 年 1 月号 (Vol.53, No.1, 68-71)	1
5. 依頼講演 (内部は除く)			
5.1	鳥居建男	「雷から放射線が出る」(2002 年 6 月、名古屋)、日本原子力産業会議中部原子力懇談会・放射線専門部会	1
5.2	鳥居建男	「雷の放射線を測定する」(2003 年 7 月、箱根)、日本アイソトープ協会・理工学部会サマースクール	1, 2
5.3	鳥居建男	「雷から放射線がでる」、放電学会 秋のシンポジウム (2003 年 10 月、東京)	1
5.4	鳥居建男	「雷と放射線について」、若狭湾エネルギー研究センター・放射線従事者教育 (2004 年 1 月、敦賀)	1
5.5	鳥居建男	「雷と放射線」、安心科学アカデミー・勉強会 (2004 年 2 月、大阪)	1, 2
5.6	鳥居建男	「現在行っている研究について」(2005 年 3 月、福井県立美方高校)	1, 2
5.7	鳥居建男	「雷からの放射線を測る」(2005 年 9 月、第 6 回オープンセミナー、福井・敦賀商工会議所)	1
5.8	鳥居建男	「雷雲中における放射線発生とそのメカニズム」(2006 年 4 月 21 日、第 29 回 放射線科学研究会・大阪ニュークリアサイエンス協会)	1, 2
5.9	鳥居建男	「雷放電の発生機構と誘雷技術の可能性～フランクリン生誕 300 年によせて～」(2006 年 9 月 12-13 日、第 9 回オープンセミナー、福井・敦賀商工会議所)	1, 2
5.10	鳥居建男	「雷の不思議とそのコントロールに向けて」(S-Cube: Super Science Seminar) (2007 年 2 月 16 日、関西研・きつづ光科学館ふおとん)	1

5.11	鳥居建男	「冬季雷活動時に観測される放射線と雷放電発生メカニズム」、放射線夏の学校（2007年8月1日、美浜町）	1, 2
5.12	鳥居建男	「雷の不思議～身の回りの放射線を通して考える～」（京都府教員研修セミナー、2007年8月29日、関西研）	1
5.13	鳥居建男	「日本海沿岸の冬季雷活動と大陸ラドンの日本列島への移流・拡散」（第6回環日本海域環境研究会、2007年9月18日、金沢大）	1, 2
5.14	鳥居建男	「放射線誘起の雷現象」（第3回放射線防護医療研究会、2007年11月14日、札幌医大）	1, 2
5.15	鳥居建男	「冬季雷活動時にみられる放射線変動」（第2回 地文台によるサイエンスシンポジウム、2007年12月8日、甲南大）	1
6. その他（サイクル機構技報等）			
6.1		なし	
7. 社内研究報告書			
7.1	T. Torii and T. Sugita	“Development of PRESTA-CG Incorporating Combinatorial Geometry in EGS4/PRESTA”, JNC TN1410 2002-001 (2002)	1, 2
8. 特許			
8.1	鳥居建男	誘雷方法及び装置（特許出願、2004年3月）	1
9. 著書			
9.1	鳥居建男	「冬季雷活動時に観測される放射線量率の変動」（「地文台によるサイエンス」（論文集）（佐藤文隆編、ユニバーサル・アカデミー・プレス、2008年3月発行予定）に収録）	1
10. 大学での講義			
10.1	鳥居建男	放射線安全学（担当分：2004年11・12月、敦賀短期大学）	
10.2	鳥居建男	特別講義（2005年10月13・14日、名古屋大学大学院工学研究科エネルギー量子工学専攻）	1
10.3	鳥居建男	大阪大学大学院工学研究科 招聘准教授（2007年8月～現在）。学生の指導、共同研究を実施	
11. 受賞			
		なし	

3.2 研究成果のまとめ

本制度により研究を実施した10名の研究者（研究テーマ件数では14件）の研究成果をまとめたものを表 3.1 に示す。この表で研究年数が5年あるいは7年の研究者は延長研究を行った研究者である。また、研究は原則として個人レベルで実施することを基本としているが、研究テーマによっては、大学等との共同研究の形で遂行され、共著の成果となっているものも一部にはある。

表 3.1 研究成果実績

研究者	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	合計
研究年数	3	5	3	7	3	5	3	3	3	3	38
1. 学術誌論文 (原著研究論文)	2	10	5	6	1	10	2	3	9	18	66
	2	6	4	5	1	6	2	3	9	9	47
2. 学術会議論文 (会議論文集あり)	2	14	5	12	1	5	2	1	1	1	44
	1	12	5	10	1	0	1	1	0	1	32
3. 学会等口頭発表 (概要集程度)	6	33	3	31	5	37	10	4	7	5	141
	6	29	3	20	5	14	6	4	7	5	99
4. 学術誌解説・ 総説	1	0	0	8	1	0	0	1	1	1	13
5. 依頼講演(内部は除く)	1	1	0	15	1	0	0	3	5	4	30
6. その他(サイクル 機構技報等)	0	10	1	0	0	6	0	2	0	4	23
7. 社内研究報告書	1	19	2	1	1	1	0	0	0	0	25
8. 特許	2	0	0	1	1	1	0	1	1	1	8
9. 著書(共著、分担執筆)	0	0	0	1	0	0	0	0	0	2	3
10. 大学での講義	0	0	0	3	0	0	0	2	0	3	8
11. 受賞	0	0	1	0	0	0	0	0	0	2	3

下段の太字 : 筆頭著者のもの

表 3.1 において研究者 A~J の合計研究実施年数は38年となり、奇しくも一人の研究者が大学卒業後から定年退職するまでの年数とほぼ同じになった。従って、表 3.1 最右欄の成果実績合計は一人の研究者が大学卒業後から定年退職するまでに生み出した成果に匹敵すると捉えることもできる。その視点で見ると、表 3.1 に整理された成果実績は旧サイクル機構の平均的な研究者の研究成果実績を大きく上回ると言えるのではなかろうか。筆頭著者のものだけでも学

術誌論文は38年合計で47件（毎年1.2件）、学術会議論文は38年合計で32件（毎年0.8件）、学会等口頭発表は38年合計で99件（毎年2.6件）となっている。入社早々から定年退職までにこれだけの成果を生み出すのは容易なことではなかろう。この点からも、本制度は高水準の成果を生み出したと評価できる。

学術誌解説・総説や依頼講演は特定の研究者に集中しているが、これは研究者の知名度や研究テーマのトピックス性に拠るところが大きいことの現れであろう。

特許と受賞が38年相当合計でそれぞれ8件、3件と、やや少な目ではあるが、それでも平均的な研究者の研究成果実績相当ではなかろうか。受賞に関しては、チームあるいは組織で実施するより大規模な研究テーマと異なり、あくまで個人で実施されたという点にも留意したい。

著書が3件のみであったことは残念であるが、研究期間が原則3年と限定された状況下では、論文を仕上げるのに忙しく、著書に割く時間的余裕が無かったのが実情と推測される。

表3.1には記載されていないが、特筆すべきは、本制度による研究成果を基に博士の学位を取得した研究者が4名いることである。従って、本制度は研究者の学位取得にも少なからぬ貢献をしたと言えよう。

延長研究者の成果が、数値の上ではあるが、単に延長年数に比例した分よりも多く出ている点も注目したい。これは、延長研究を行う研究者にはより強く明確な研究意識があると同時に、延長研究は密度が濃かったと推察される。また、本制度における原則3年という研究期間は、研究を完遂し、論文等にまとめ上げるには少々短すぎたきらいがあることを示唆しているとも解釈できる。

以上より、本制度による研究成果は総じて高水準のものであり、本制度導入時の“創造的な研究活動の活性化を図る”という所期の目的を達成したと評価できるのではなかろうか。

4. まとめ（総括）

核燃料サイクル創造的工学研究（旧社内公募研究）制度は旧サイクル機構において、創造的な研究活動の活性化を図ることを目的に、旧サイクル機構が取り組むすべての研究開発分野を対象として、社内の研究者及び技術者から独創性や新規性に富んだ新概念の創出、技術のブレークスルーを目指す研究テーマを募集し、その研究の遂行を支援する制度として平成13年度から平成19年度までの7年間実施された。この間の総応募件数は37件で、採択され実施に移された研究テーマは14件（この中には延長研究も含まれるため、研究者数としては10名）であった。

研究成果としては、14件の研究テーマの合計で、筆頭著者のものだけでも学術誌論文は47件、学術会議論文は32件、学会等口頭発表は99件となっている。10名の研究者の延べ研究年数である38年の平均で見ると上記はそれぞれ、（毎年1.2件）、（毎年0.8件）、（毎年2.6件）となる。また、学術誌解説・総説、依頼講演、特許、受賞は合計でそれぞれ13件、30件、8件、3件となった。これらのことから、本制度による研究成果は総じて高水準のものであり、本制度導入時の“創造的な研究活動の活性化を図る”という所期の目的を達成したと評価できる。

添付資料

○ 社内公募型研究推進制度について

12達第29号
平成13年3月1日

(目的)

第1条 この達は、核燃料サイクル開発機構(以下、「機構」という)における社内公募型研究推進制度について定め、新概念の創出、技術のブレークスルーをもって機構の研究開発の活性化を図ることを目的とする。

(研究テーマの公募)

第2条 研究テーマは、機構が取り組む全ての分野の研究開発を対象とし、前条の目的を達成するための創造的・革新的な研究について機構内の研究者及び技術者から広く公募するものとする。また、原則として3事業年度での一定の成果が見込めるものとする。

2 前項に基づき研究テーマを応募する者は、別に定める様式により、研究計画書を提出する。

(研究テーマの選定)

第3条 前条に定めるところにより提出された研究計画書を基に、研究の独創性・新規性及び研究計画の妥当性を総合的に判断するため、社内公募型研究評価委員会(以下、「委員会」という)を設置し、委員会において研究テーマを選定する。

2 委員会は、社内公募型研究推進担当理事及び機構外の学識経験者から理事長が委嘱した委員をもって構成する。

3 委員長は、委員の互選によってこれを定める。

4 委員の任期は2年とする。ただし、再任は妨げない。

5 委員会の庶務は、社内公募型研究推進室が行う。

(中間報告及び評価)

第4条 研究実施者は、別に定める様式により、全体研究期間の途中で研究の進捗状況及び成果等の報告書を作成し、提出しなければならない。

2 委員会は、前項に基づき提出された研究報告書に基づき、研究の進捗状況及び成果等の評価を行い、研究継続の可否を判断する。

(最終報告及び評価)

第5条 研究実施者は、別に定める様式により、全体研究期間終了時に研究成果の報告書を提出しなければならない。

2 委員会は、前項に基づき提出された研究報告書に基づき研究成果の評価を行う。

3 最終報告において、研究実施者から研究期間延長の申請があり、委員会で認められた場合のみ、最大2事業年度まで研究期間の延長を認める。

(検討状況等の報告)

第6条 委員会における審議検討の状況等については、必要に応じ理事会議等に報告する。

附 則

この達は、平成13年3月1日から施行する。

平成 17 年 12 月 22 日
17 (達) 第 22 号

(改正) 平成 18 年 9 月 1 日
18 (達) 第 32 号

○核燃料サイクル創造的工学研究推進制度について

(目的)

第 1 条 この達は、独立行政法人日本原子力研究開発機構(以下「機構」という。)における核燃料サイクル創造的工学研究推進制度(以下「本制度」という。)について定め、機構と大学及び研究機関との連携の下で、新概念の創出、技術のブレークスルーをもって機構の核燃料サイクル分野での研究開発の活性化を図ることを目的とする。

(研究テーマの募集)

第 2 条 本制度における研究テーマは、機構が取り組む核燃料サイクル分野の研究開発を対象とし、前条の目的を達成するための創造的・革新的な研究について機構内の研究者及び技術者から広く募集するものとする。ただし、原則として 3 事業年度での一定の成果が見込めるものとする。

2 前項に基づき研究テーマを応募する者は、別に定める様式により、研究計画書を提出する。

(研究テーマの選定)

第 3 条 前条に定めるところにより提出された研究計画書を基に、研究の独創性・新規性及び研究計画の妥当性を総合的に判断するため、核燃料サイクル創造的工学研究委員会(以下「委員会」という。)を設置し、委員会は研究テーマの選定を行う。

2 委員会は、役員若しくは職員及び機構外の学識経験者から理事長が任命又は委嘱した委員をもって構成する。

3 委員長は、委員の互選によってこれを定める。

4 委員会は、必要に応じて委員長が招集する。

5 委員の任期は 2 年とする。ただし、再任は妨げない。

6 委員会の庶務は、産学連携推進部業務課が行う。

(中間報告及び評価)

第 4 条 第 2 条に基づき研究テーマを応募し、前条に基づき本制度に基づく研究テーマの選定を受けた者(以下「研究実施者」という。)は、別に定める様式により、全体研究期間の途中で研究の進捗状況及び成果等の報告書を作成し、提出しなければならない。

2 委員会は、前項に基づき提出された研究報告書に基づき、研究の進捗状況及び成果等の評価を行い、研究継続の可否を判断する。

(最終報告及び評価)

第5条 研究実施者は、別に定める様式により、全体研究期間終了時に研究成果の報告書を作成し、提出しなければならない。

2 委員会は、前項に基づき提出された研究報告書に基づき、研究成果の評価を行う。

3 全体研究期間終了時の報告において、研究実施者等から研究期間延長の要請があり、委員会で認められた場合のみ、原則として2事業年度まで研究期間の延長を認める。

(検討状況等の報告)

第6条 委員会における審議検討の状況等については、必要に応じ理事会議等に報告する。

附 則

この達は、平成17年12月22日から施行し、平成17年10月1日から適用する。

附 則

この達は、平成18年9月1日から施行し、平成18年4月1日から適用する。

核燃料サイクル創造的工学研究評価委員会 外部委員構成
(平成 19 年 4 月 2 日現在)

	氏 名	所属・役職名	備 考（専門等）
1	相澤 龍彦	トロント大学 研究 教授	高信頼性材料、材料設計
2	井口 哲夫	名古屋大学大学院 工学研究科 量子工学専攻 教授	原子核計測、中性子工学
3	功刀 資彰	京都大学大学院 工学研究科 原子核工学専攻 教授	核エネルギー変換、原子炉熱流動
4	佐藤 正知	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	放射性廃棄物処分、核燃料工学
5	山本 一良	名古屋大学大学院 工学研究科 マテリアル理工学専攻 教授	同位体分離、核燃料サイクル工学

（五十音順、敬称略）

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
光の度	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）	立法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
（物質量の）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・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・kg・s ⁻²
圧力，応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ ・kg・s ⁻²
エネルギー，仕事，熱量	ジュール	J	N・m	m ² ・kg・s ⁻²
工率，放射束	ワット	W	J/s	m ² ・kg・s ⁻³
電荷，電気量	クーロン	C		s・A
電位差（電圧），起電力	ボルト	V	W/A	m ² ・kg・s ⁻³ ・A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ⁻² ・kg ⁻¹ ・s ⁴ ・A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² ・kg・s ⁻³ ・A ⁻²
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m ⁻² ・kg ⁻¹ ・s ³ ・A ²
磁束	ウェーバ	Wb	V・s	m ² ・kg・s ⁻² ・A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg・s ⁻² ・A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² ・kg・s ⁻² ・A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(d)	℃		K
光学的長さ	ルーメン	lm	cd・sr ^(c)	m ² ・m ⁻² ・cd=cd
照射（放射能種の）放射能	ルクス	lx	lm/m ²	m ² ・m ⁻⁴ ・cd=m ⁻² ・cd
吸収線量，質量エネルギー分与，カーマ線量当量，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	グレイ	Gy	J/kg	m ² ・s ⁻²
	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。組立単位を形作るとき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℃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
粘着力のモーメント	パスカル秒	Pa・s	m ⁻¹ ・kg・s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N・m	m ² ・kg・s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg・s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m・m ⁻¹ ・s ⁻¹ =s ⁻¹
流量密度，放射照度	ラジアン毎平方秒	rad/s ²	m・m ⁻¹ ・s ⁻² =s ⁻²
熱容量，エン트로ピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg・s ⁻³
質量熱容量（比熱容量），質量エン트로ピー	ジュール毎平方メートル	J/K	m ² ・kg・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	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² ・s ⁻² ・K ⁻¹
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m・K)	m・kg・s ⁻³ ・K ⁻¹
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ ・kg・s ⁻²
体積電荷	ボルト毎メートル	V/m	m・kg・s ⁻³ ・A ⁻¹
電気変位	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ ・s・A
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² ・s・A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m ⁻³ ・kg ⁻¹ ・s ⁴ ・A ²
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m・kg・s ⁻² ・A ⁻²
モルエン트로ピー	ジュール毎モル	J/mol	m ² ・kg・s ⁻² ・mol ⁻¹
モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol・K)	m ² ・kg・s ⁻² ・K ⁻¹ ・mol ⁻¹
照射線量（X線及びγ線）	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ ・s・A
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	m ² ・s ⁻³
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ ・m ⁻² ・kg・s ⁻³ =m ² ・kg・s ⁻³
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² ・sr)	m ² ・m ⁻² ・kg・s ⁻³ =kg・s ⁻³

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=60 s
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		1 海里=1852 m
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=0.1 MPa=100 kPa=1000 hPa=10 ⁵ Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1 nm=10 ⁻¹⁰ m
バール	b	1 b=100 fm 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
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ボアズ	P	1 P=1 dyn・s/cm ² =0.1 Pa・s
ストークス	St	1 St =1 cm 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 ≐ (1000/4π) A/m
マクスウェル	Mx	1 Mx ≐10 ⁻⁸ Wb
スチルプ	sb	1 sb =1 cd/cm ² =10 ⁴ cd/m ²
ホト	ph	1 ph=10 ⁴ lx
ガル	Gal	1 Gal =1 cm/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 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1 cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
X線単位		1X unit=1.002×10 ⁻⁴ 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		1 fermi=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		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
カロリ	cal	
マイクロン	μ	1 μ =1 μm=10 ⁻⁶ m

