**JAEA-Review** 2008-032



# 産学連携協力研究員による平成19年度研究概要報告

Brief Report on the Research by JAEA Postdoctoral Fellows for 2007

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

C

産学連携推進部 Industrial Collaboration Promotion Department

July 2008

日本原子力研究開発機構

Japan Atomic Energy Agency

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

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

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

© Japan Atomic Energy Agency, 2008

#### 産学連携協力研究員による平成19年度研究概要報告

# 日本原子力研究開発機構 産学連携推進部 (編)研究協力課

#### (2008年5月15日 受理)

機構では、博士号の学位をもった若手研究者に研究環境を提供し、人材育成を図るため、平 成9年度から博士研究員(現産学連携協力研究員)制度を導入し、平成19年度で11年目を迎 えた。

同制度は、機構の先導的、基礎・基盤的な研究業務に関連して、独創性に富んだ若手研究者 が、2~3年間の期間に機構の承認する自ら応募した研究テーマを自主的に遂行し、研究者とし ての業務を得るとともに、機構の研究業務を効率的に推進することを目的としている。

本報告書は、平成 19 年度に実施した産学連携協力研究員による 5 件の研究テーマの実施結 果についてその概要をまとめたものである。なお、5 件の研究テーマのうち、4 件の研究テー マが平成 19 年度で終了した。

#### Brief Report on the Research by JAEA Postdoctoral Fellows for 2007

(Ed.) Research Cooperation Section

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

(Received May 15, 2008)

The Japan Atomic Energy Agency (JAEA) commenced a JAEA Postdoctoral Fellowship Program in 1997 in order to raise capable researchers by providing an appropriate research environment to young postdoctoral researchers, which means that fiscal year 2007was the 11th year of the program.

The purpose of this program is to provide young researchers full of originality with opportunities to perform research independently on themes related to leading research, and basic and fundamental research of JAEA, selected by the researchers themselves and approved by JAEA, for a period of two or three years and also to promote the efficiency of JAEA's research.

This report includes a summary of the results of the research on five themes performed by JAEA Postdoctoral Fellows in the fiscal year 2007. Of these, research into four themes ended in 2007.

Keywords : Post-Doctoral Fellow

# 目 次

1.	産	学連携協力研究員による平成 19 年度研究テーマー覧	1
2.	産	学連携協力研究員による平成 19 年度研究概要報告	5
	2.1	ガス冷却高速炉炉心構造材の設計用物性値高度化に関する研究	7
	2.2	高性能三酸化イオウ電気分解セルの開発	15
	2.3	活断層帯の地質構造発達史と断層ガスに関する研究	20
2	2.4	岩盤亀裂へ侵入したベントナイトの核種遅延性能の評価	26
2	2.5	地層環境の長期安定性の評価を目指したウラン・トリウム・ヘリウム年代測定	
		システムの構築	30

# Contents

1.	Re	esearch theme list by JAEA Postdoctoral Fellows for 2007	1
2.	Br	rief report on the research by JAEA Postdoctoral Fellows for 2007	5
2	2.1	Study on improvement of material property correlations for Gas cooled	
		Fast Reactor fuel structural material	7
2	2.2	Development of the high-performance electrolysis cell	
		for sulfur trioxide decomposition	15
2	2.3	Fault gas and architectural evolution of active fault zones	20
2	2.4	Assessment of nuclide migration based on intrusion of buffer material	
		into fracture	26
2	2.5	Development of the (U-Th)/He dating system for trying to estimate the	
		long-term stability of the geological environment	30

This is a blank page.

# 1. 産学連携協力研究員による平成 19 年度研究テーマー覧

This is a blank page.

# 産学連携協力研究員による平成19年度研究テーマー覧

採用年度	No.	産学連携 協力研究員 氏 名	研究テーマ	機 構 側 受入箇所		研究期間
平	1	イ ジェグァン 李 在光 (韓国)	ガス冷却高速炉炉心構造材の設計 用物性値高度化に関する研究	次世代原子力システム研究開 発部門 設計統括エット 炉心・燃料設計 Gr.	永沼 正行	平成 17 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月
成	2	スズキ チカシ 鈴木 知史	高性能三酸化イオウ電気分解セル の開発	次世代原子力システム研究開 発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料 Gr.	中桐俊男	平成 17 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月
年	3	シマダ コウジ 島田 耕史	活断層帯の地質構造発達史と断層 ガスに関する研究	地層処分研究開発部門東 濃地科学研究エット 自然事象研究Gr.	野原壯	平成 17 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月
度	4	オオクボ タカヒロ 大窪 貴洋	岩盤亀裂へ侵入したベントナイト の核種遅延性能の評価	地層処分研究開発部門 地層処分基盤研究開発 エット ニアフィールト、研究 Gr.	棚井 憲治	平成 17 年 4 月 ~ 平成 19 年 9 月
平成18年度	5	ヤマダ ケニミ 山田 国見	地層環境の長期安定性の評価を目 指したウラン・トリウム・ヘリウム 年代測定システムの構築	地層処分研究開発部門 東濃地科学研究エニット 自然事象研究 Gr.	花室隆広	平成 18 年 9 月 ~ 平成 21 年 3 月

This is a blank page.

2. 産学連携協力研究員による平成 19 年度研究概要報告

This is a blank page.

# 2.1 産学連携協力研究員(H17)平成19年度研究概要報告書

研究テーマ	ガス冷却高速炉炉心構造材の設計用物性値高度化に関する研究 Study on improvement of material property correlations for Gas cooled Fast Reactor fuel structural material						
研究者氏名	李 在光 (イー ジェグァン)						
研究協力者 所属・氏名	次世代原子力システム研究開発部門 炉心・燃料設計 Gr. 永沼正行					所属長 役職・氏名	炉燃グルプリーダ ・水野朋保
研究実施場所	大洗研究開発センター、Fセルボ						
通算研究期間 (予定)	平成17年4月 ~ 当該年度 平成20年3月 研究期間				平成	19 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月	
【研究目的】							

原子炉の形式は、用途、燃料、減速材あるいは冷却材の種類など、様々な観点から分類することが できる。そのなかで高温ガス冷却高速炉は、プルトニウムをリサイクルできること、高いタービン入 口温度で熱効率が高いこと、水素製造をはじめとする核熱利用範囲を拡大できることなどの様々な長 所から各国で数多く研究が行われ、実用化が要求されている。しかし、ガス冷却高速炉の炉心構成要 素は燃料と材料の使用温度が高いこと、燃料の燃焼度が高いこと、冷却材として高圧のヘリウムガス を使用すること等、軽水炉のものよりも遥かに厳しい環境におかれる。このために現在、優れた熱的・ 機械的特性を持つ炭化ケイ素繊維強化炭化ケイ素複合材料-(以下、SiC/SiC)による炉心構造体システ ムの開発研究が行われている。その高温ガス冷却高速炉の実用化に向けた研究開発においては、使用 環境に耐えうる高性能な燃料・材料の開発と同時に炉心構成要素の設計が不可欠なものとなってい る。そこで本研究は各構成要素へSiC/SiC 複合材料を採用する場合、設計上要求される機械的、熱的 特性を考慮して各作製プロセスや接合方法の特徴を検討した上、それに関連して高速中性子環境下で の特徴的な現象を想定した設計要素関係式を確立する。さらに、得られた設計用物性式、機械特性関 係式を、ガス冷却高速炉以外の分野(例:核融合炉設計研究)などにも応用することを目標とする。

【研究内容(概要)】

燃料被覆管候補材としてSiC/SiC複合材料を想定し、各構成要素に適したプロセスを調査、評価す る。SiC/SiC複合材料の作製と接合法に関して機械的な特性を検討してそれぞれのプロセスの特徴に よる適用可能性を検討する。実現可能な熱的・機械的特性に基づき、設計評価に用いる種々の関係式 を導出する。また、その関係式を用いた設計評価を行い、高速炉燃料の設計用関係式として機構論的 な根拠と設計評価の適用性が両立する関係式への改良を行う。また、高い中性子照射量までの物性と 機械特性について、長期の試験期間を要する照射特性研究の課題を整理する。さらに、既往の原子炉 用燃料集合体に関する技術を分析して、ガス冷却高速炉の高性能燃料と構造材設計に追加すべき候補 概念を整理する。そこで、高温ガス冷却高速炉独自の構造材や燃料集合体の設計仕様を提示する。こ れらの作業を通してさらなる研究開発課題を明らかにして、効率的な研究開発の推進に資する。

#### 【使用主要施設】

パソコン:Dell, 3GHz CPU, 2GB RAM, 有限要素プログラム:FINAS, Ver. 17 プリポストプロセッサ:GiD, Ver. 7 【進捗状況(当該年度までの概要)】

平成17年度はガス冷却高速炉(以下、GFR)とSiC/SiC複合材料に関する調査等を行い、研究に対する有力概念を選定した。そこで上半期は社内研修や文献調査等でGFRの炉心及び燃料設計に関するより専門的な知識を習得した。下半期ではSiC/SiC複合材料の作製上の特徴を踏まえた検討結果を国際会議にて外部発表等を実施した。

平成 18 年度は燃料ピン型炉を有望概念として現時点で達成可能と見込まれる SiC/SiC 複合材料の物性値を定め、上半期においては GFR の熱と中性子照射環境に対する SiC/SiC 複合材料の熱伝導度変化を検討した。さらに下半期は既往の GFR 設計研究を参考にして定常状態での物性挙動による応力変化の検討を実施した。

平成 19 年度は広い範囲での温度と照射条件においての適用可能性を高めるように研究結果を総合 した。上半期で過渡状態の炉心環境(主に 1273K 以上)での物性挙動に関する検討を行った。下半期 では本研究の検討結果の一部を核融合炉用材料研究分野の国際会議において発表すると共に研究の まとめを実施した。

【研究成果(当該年度)】

1273Kを超える熱と中性子照射環境における炭化ケイ素(以下、SiC)系材料の熱的物性の挙動を予 測する作業を行った。去年までは主に1273K以下でのSiC系材料の照射試験に関する報告を基に熱的 物性変化の考察を行い、定常状態のGFRの炉心環境での熱伝導度変化が炉心材料にもたらす応力変化 を検討した。そこで、今年度は過渡状態の炉心環境(1273K以上を予想)での物性挙動に関する研究 を行った。

#### 1. 非照射材の温度上昇による物性変化

1.1 フォノン輸送による熱伝導度評価モデル

SiC系材料の熱的物性に関する最新の報告 [1-6]を調査して熱的挙動や温度依存性を把握した。セラミックスの熱伝導はフォノン輸送 (phonon transport) によるものであり、介在している不純物や 欠陥や温度上昇など様々な影響によってフォノン散乱 (phonon scattering) が起こり、相応する熱 伝導度低下が生じることであった。特に L. L. Snead [6] らの報告は SiC 材料を被覆粒子型燃料の被 覆材料として利用することを目標にし、最新の研究結果を含めて理論的に整理して示している。それ によると SiC のフォノン熱伝導度は定数 A, B を用いる「(A+BT)<sup>-1</sup>」の関数として表現でき、SiC 単結 晶の熱伝導度の場合は式(1)のように近似できると報告している。

式 (1)  $k_p = [-0.0003 + 1.05 \times 10^{-5}T]^{-1}$ ここで、  $T: 絶対温度、 k_n: 定圧熱伝導度$ 

そこで、300K以上の温度でフォノン輸送による熱伝導度 k,を Fig. 1 で他の評価結果と比較した。

1.2 高純度 SiC の熱的物性による熱伝導度評価モデル

熱伝導度以外の熱拡散率 ( $\alpha_d$ ) や定圧比熱 ( $C_p$ ) や密度 ( $\rho$ ) などの温度依存性に関する研究報告 を用いて熱伝導度 ( $k_c$ ) を計算し、上記のフォノン輸送による熱伝導度評価モデルの計算結果と比較 してみた。対象になる材料は実験による各物性値が多数報告されている「Rohm and Haas CVD (Chemical Vapor Deposition) SiC (以下、CVD SiC)」を想定した。報告[6]によると Rohm and Haas CVD SiC は 小さい粒子 ( $\sim 5 \mu$  m) の多結晶であり、理論密度に近い密度 ( $\sim 3.21$ g/cm<sup>3</sup>) と高い熱伝導度をもって いて多様な実験の試料として使われているものである。そこで、CVD SiC の熱伝導度は各物性値の温 度依存性を取り入れて式 (2) を用いて計算した。 式 (2)  $k_c = \alpha_d C_p \rho$ ここで、 k: 熱伝導度、  $\alpha_d$ :熱拡散率  $C_p$ :定圧比熱、  $\rho$ :密度

ここで、熱拡散度の温度依存性は式(3)[7]を用いて計算した。

式 (3)  $\alpha_d = (48800/T^{1.8}) + 0.07$  T:絶対温度

定圧比熱の温度依存性は式(4)[6]を用いて計算した。

式 (4)  $C_p = 925.65 + 0.3772T - 7.9259 \times 10^{-5}T^2 - (3.1946 \times 10^7 / T^2)$ 

CVD SiC の定圧比熱と熱拡散率は比較的低温では急激な物性変化を示すが、高温領域へ移動するにつれ変動が少なくなるというセラミックスの典型的な傾向 [11]であった。また、非照射材の密度は 3210 kg/m<sup>3</sup> [6] を用いて熱伝導度を導いた。

1.3 炭化ケイ素系材料の熱伝導度評価結果

Fig. 1をみると式(1)と式(2)による熱伝導度の計算結果はCVD SiC の熱伝導度(298 K =  $^{<350}$  W/m K) [10]と比較しても比較的小さい差異を示した。さらに温度上昇による熱伝導度の変化は同じ傾向の低下を示し、このような方法で非照射材の温度依存性が予測可能であることが分かった。

そこで、式(1)による評価結果が測定値[10]との差がより少なかった為、式(1)の方法を適用して 1773K までの SiC/SiC 複合材料の熱伝導度の温度依存性を評価した。検討は前年度から研究した Nano-Infiltration and Transient Eutectic phase process [8]で作製した SiC/SiC 複合材料(以下、NITE 材)を対象にした。そこで、非照射 NITE 材の二つの熱伝導度 17-29W/m-K (20°C), 15-20W/m-K (1000°C)を用いて「(A+BT)<sup>-1</sup>」の関数のA(=0.04)とB(=0.000013)の値を求め、式(5)で1273K 以上の熱伝導度( $k_x$ )を求めた。

式 (5)  $k_N = [0.04 + 1.3 \times 10^{-5} T]^{-1}$ ここで、 T:絶対温度、 $k_N$ : NITE 材の定圧熱伝導度

Fig. 1 で式(5)による計算結果と前年度の研究[9]で1273K以下の領域に関する評価の結果「モデル1」を比較した。「モデル1」はNITE材と同じ構成要素と現在のSiC/SiC複合材料作製技術で達成可能と見込まれる物性を想定したものであり、Markworth model[12]を用いて1273K以下の温度領域で熱伝導度を評価した結果である。このようなSiC/SiC複合材料に対する熱伝導度評価の結果はSiC以外の不純物や気孔の影響などによってCVDSiCに比べて明確に低下するが同様の減少挙動を示した。そこで、式(5)を用いた各温度におけるNITE材の熱伝導度は1273K以下においてもモデル1と類似した傾向と範囲で減少する結果を示してその有効性が確認された。さらに、式(1)は約1773Kまでの研究結果に基ついたものであるため[6]、1773Kまでの領域へ外挿することもできると判断した。

#### 2. 照射材の温度上昇による物性変化

炭化ケイ素系材料の照射特性を研究した報告によると照射材の熱伝導度低下はスウェリングによるフォノン散乱 (phonon scattering) への影響が重要である [1<sup>~</sup>8]。スウェリングのような組織変 化は照射された温度と線量に深く関係している。約 423K 以下の温度領域での照射の場合はイオンや 中性子の照射によって欠陥が発生して生じる変形が蓄積され、境界水準を越えると結晶が非結晶質に 変わる [6]。さらに、約 423K 以上の温度領域からは照射の温度と線量によって材料内部に発生する 欠陥が異なり、低い温度と線量では点欠陥が発生して温度と線量の増加によってループに発達し、や がて大きなループ、転位、空孔などに変化していく[13]。つまり、温度上昇と共に照射によって発生 する欠陥の蓄積がスウェリングの原因になり、フォノン散乱を起こして熱伝導度の低下をもたらすこ とである。 そこで、約 423K 以上、1273K 以下の温度領域では点欠陥などによる空孔スウェリング(Void Swelling)が支配的であり、照射線量(irradiation dose)によってスウェリングは増加するが、数 dpa の高速中性子線量でスウェリングは飽和水準に達する[1, 13]。しかし、1273K 以上の温度では 空孔などに発達した欠陥による体積スウェリング(Volumetric Swelling)が起こり、スウェリング は飽和しない挙動を示す[1<sup>~</sup>8, 13]。その故に、SiC のスウェリングは 1273K 以下の温度領域では線量より温度依存性が強いが、1273K 以上の温度では線量によって飽和されないと同時に、温度依存性 も一定ではない。このように、現在までの研究では SiC の熱的物性の照射挙動が 1273K 付近を境界に 大きな違いを示すことまでは把握できている。しかし、特定の欠陥がフォノン散乱に及ぼす影響に対 する定量的な評価は照射を専門にしている研究分野でもまだ明らかにされておらず、1273K 以上の照射による影響に関しては Fig. 2 に示した範囲以外への予想はまだ難しいことが分かった[6]。そこで 本研究は照射材 CVD SiC の熱伝導度に関する温度依存性の検討するために、Fig. 2 に表した 1.75, 5, 8.5dpa の線量に対する熱伝導度変化を指数近似して式(6)を求めた。

CVD SiC の非照射材と照射材の熱伝導度を式(1)と式(6)で計算した結果をFig.3示して温度依存性を考察した。1273K以下での温度依存性は非照射材に比べて照射材の熱伝導度が300K付近で約98%、1000K付近で75%減少し、前年度の研究[9]と同様の傾向を示している。しかし1000K以上では照射量によっては1500K付近から照射材の値が非照射材の熱伝導度を上回るという結果を示した。報告によってはこのような結果も見られるが[6]、材料組織内部に損傷を受けている照射材の方が非照射材の熱伝導度の値より高くなるのは理解し難い結果である。照射を専門に研究している分野において将来的に研究が進めば熱伝導度の回復は飽和する結果が予想される。しかし、現段階で実際に観測される熱伝導度の回復は高温アニリング効果であると判断した。照射材のSiCは照射された温度以上に加熱されると欠陥の移動などにより組織が回復され、熱伝導度が回復する挙動を示す特徴がある[1-6]。そこで、本研究ではFig.4に示すように式(6)の方法を使い、約1500K以下の温度領域までのSiC/SiC複合材料の照射線量による熱伝導度変化に対する評価が有効であると判断した。さらに、それ以上の温度領域に関する評価に関しては線量依存性と共に輻射の影響なども考慮する必要がある。文献[11]によると気孔が多く存在するセラミックス焼結体においては1773K以上の温度から輻射によるエネルギーの転送も重要であり、アニリング効果の線量依存性と輻射の影響などを取り入れて厳密に評価すればより正確な熱伝導度が評価できる可能性が考えらる。

# 参考文献

- Hanchen Huang, Nasr Ghoniem, "A swelling model for stoichiometric SiC at temperatures below 1000° C under neutron irradiation", Journal of Nuclear Materials, Vol. 250, 1997, pp. 192-199
- [2] G.W. Hollenberg, et al., "The effect of irradiation on the stability and properties of monolithic silicon carbide and SiCf/SiC composites up to 25dpa", Journal of Nuclear Materials, Vol. 219, 1995, pp. 70-86
- [3] Tadashi Maruyama, Masaaki Harayama, "Relationship between dimensional changes and the thermal conductivity of neutron-irradiated SiC", Journal of Nuclear Materials, Vol. 329-333, 2004, pp. 1022-1028
- [4] A.R. Raffray, et al., "Design and material issues for high performance SiCf/SiC-based fusion power cores", Fusion Engineering and Design, Vol. 55, 2001, pp. 55-95

- [5] L.L. Snead, "Limits on irradiation-induced thermal conductivity and electrical resistivity in silicon carbide materials", Journal of Nuclear Materials, Vol. 329-333, 2004, pp. 524-529
- [6] Lance L. Snead et al., "Handbook of SiC properties for fuel performance modelling", Journal of Nuclear Materials 371 (2007) 329- 377
- [7] Laifei Cheng et al., "Thermal diffusivity of 3D C/SiC composites from room temperature to 1400 ℃", Carbon 41 (2003) pp.707-711
- [8] Y. Katoh, et al., "SiC/SiC composites through transient eutectic-phase route for fusion applications", Journal of Nuclear Materials, Vol. 329-333, Part 1, 2004, pp. 587-591
- [9] JAEA-Review 2007-027, "産学連携協力研究員による平成 18 年度研究概要報告", August 2007, pp. 58-66
- [10] Material Properties from Company: http://www.cvdmaterials.com/CVD\_Sil\_Carbide/TempDpdt\_Prop.html & http://www.cvdmaterials.com/CVD\_Sil\_Carbide/Prop\_TypValue.html
- [11] W. D. Kingery, H. K. Bowen, D. R. Uhlmann, Introduction to Ceramics, A Wiley-Interscience Publication, New York, 1975, pp. 583-645
- [12] Markworth, A. J., "Transverse thermal conductivity of a unidirectional fibre composite with fibre-matrix debonding: a calculation based on effective-medium theory", *Journal* of Materials Science Letters, Vol. 12, Iss. 19, 1993, pp. 1487-1489
- [13] Y. Katoh and et al., "Microstructural development in cubic silicon carbide during irradiation at elevated temperatures", Journal of Nuclear Materials 351 (2006) 228-240
- [14] Jae-Kwang Lee, Masayuki Naganuma, "Preliminary calculation of stress change of fuel pin using SiC/SiC composites for GFR with changing of thermal conductivity degradation by irradiation", 15<sup>th</sup> Pacific Basin Nuclear Conference 2006 Proceedings CD (2006)

# 【成果の反映状況】

本研究で得られた研究成果は、高温ガス冷却高速炉だけではなく核融合炉用材料開発に関する研究分野の国際会議(ICFRM-13)においても発表された。そこで原子力分野だけではなく、将来的には超高温耐熱材料の採用が予想される宇宙航空用材料開発等にも反映されることを期待している。

# 【研究成果の公表】

<論文>

- 1) <u>Jae-Kwang Lee</u>, Masayuki Naganuma, "Tentative estimation for alteration in thermal properties of SiC/SiC composites by defect production at high temperature irradiation", Pre-print record of 13<sup>th</sup> International Conference on Fusion Reactor Material (USB memory stick), (2007) pp. 534-540, 査読なし
- 2) <u>Jae-Kwang Lee</u>, Masayuki Naganuma, "Design factor using a SiC/SiC composites for core component of Gas Cooled Fast Reactor. 2: Thermal stress", Ceramic Engineering and Science Proceedings, The American Ceramics Society, Volume 28 (2007), Issue 2 pp. 199-206 [ISBN: 978-0-470-19633-5] Proceedings CD - [ISBN 978-0-470-24679-5]、査読あり
- 3) <u>Jae-Kwang Lee</u>, Masayuki Naganuma, "Design factor using a SiC/SiC composites for core component of Gas Cooled Fast Reactor. I: hoop stress", Ceramic Engineering and Science Proceedings, The American Ceramics Society, Volume 27 (2007), Issue 5, pp. 55-63 [ISBN 0-470-08055-8] Proceedings CD [ISBN 0-470-11702-8]、査読あり

- 4) <u>Jae-Kwang Lee</u>, Masayuki Naganuma, "Preliminary calculation of stress change of fuel pin using SiC/SiC composites for GFR with changing of thermal conductivity degradation by irradiation", 15<sup>th</sup> Pacific Basin Nuclear Conference 2006 Proceedings CD [ISBN 1877040 58 4] (2006)、査読あり
- 5) <u>Jae-Kwang Lee</u>, Masayuki Naganuma, Joon-Soo Park and Akira Kohyama, "Investigation on Fabrication of SiC/SiC Composite as a Candidate Material of Fuel Sub-Assembly", Proceedings of GLOBAL 2005, CD [ISBN 4-89047-133-2], Paper No. 568, 査読なし

<国内会議>

李 在光、平成18年度第1回「大学との研究協力実施委員会」分科会、平成18年10月25日、東京、にて口頭発表

<国際会議>

- 1) <u>Jae-Kwang Lee</u>, Masayuki Naganuma, 13<sup>th</sup> International Conference on Fusion Reactor Material (ICFRM-13), Nice (France) 10-14 Dec. 2007 にてポスター発表
- 2) <u>Jae-Kwang Lee</u>, Masayuki Naganuma, 31<sup>th</sup> International Cocoa Beach Conference & Exposition on Advanced Ceramics & Composites (ICACC 2007)", Jan. 21-26, 2007, Daytona Beach, America にて口頭発表
- 3) <u>Jae-Kwang Lee</u>, Masayuki Naganuma, 15<sup>th</sup> Pacific Basin Nuclear Conference 2006, 15-20 Oct. 2006, Sydney, Australia にて口頭発表
- 4) <u>Jae-Kwang Lee</u>, Masayuki Naganuma, The 30<sup>th</sup> International Conference on Advanced Ceramics and Composites (ICACC 2006), Jan. 22-27, 2006, Cocoa Beach, America にてポスター発表
- 5) <u>Jae-Kwang Lee</u>, Masayuki Naganuma, Joon-Soo Park and Akira Kohyama, Nuclear Energy System for Future Generation and Global Sustainability (GLOBAL 2005), Oct. 9-13, 2005, Tsukuba, Japan にてポスター発表
- 6) A.Kohyama, T. Hinoki, S.J. Son, Y.S. Lee, <u>J.K. Lee</u> and J.S. Park, EUROMAT-2005 Plague, Szech Republic 5-8 Sep. 2005

<JAEA レポート>

1) JAEA-Review 2007-027, "産学連携協力研究員による平成 18 年度研究概要報告", (2007)、 pp. 58-66



Fig. 1 Thermal conductivity of unirradiated SiC based materials [出展:J.K. Lee, M. Naganuma, Pre-print of 13<sup>th</sup> ICFRM, (2007) pp. 534-540]



Fig. 2 Thermal conductivity of irradiated CVD SiC [出展:J.K. Lee, M. Naganuma, Pre-print of 13<sup>th</sup> ICFRM, (2007) pp. 534-540]



Fig. 3 Thermal conductivity reduction rate of CVD SiC [出展:J.K. Lee, M. Naganuma, Pre-print of 13<sup>th</sup> ICFRM, (2007) pp. 534-540]



Fig. 4 Thermal conductivity of irradiated SiC/SiC composites [出展:J.K. Lee, M. Naganuma, Pre-print of 13<sup>th</sup> ICFRM, (2007) pp. 534-540]

# 2.2 産学連携協力研究員(H17)平成19年度研究概要報告書

研究テーマ	高性能三酸化イオウ電気分解セルの開発 Development of the high-performance electrolysis cell for sulfur trioxide decomposition					
研究者氏名	鈴木 知史					
研究協力者 所属・氏名	中桐 俊男 次世代部門要素技術 U 炉心・構造材:	所属長 役職・氏名	浅山泰 GL			
研究実施場所	大洗研究開発センター ナトリウム技術開発第一実験室					
通算研究期間 (予定)	平成 17 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成	19 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月		

### 【研究目的】

高速炉への適用を目的に開発が進められているハイブリッド熱化学法による水素製造サイクルの うち、約500℃で行われる三酸化イオウ電解プロセスは、水素製造効率を決定する重要なプロセスで ある。このプロセスで使用される電解セルは、近年国内外で急速に開発が進められている低温作動型 の固体酸化物型燃料電池(SOFC)と同様なセル構造である。このセルは、SOFCと同様な電解質材料や 電極材料より構成される。三酸化イオウの電気分解としては、三酸化イオウ分子の気相拡散律速や酸 素原子の電極上の表面拡散律速等が考えられているが、十分明らかにされていない。したがって、第 一原理計算を用いて原子レベルの視点から、三酸化イオウの律速過程や支配反応の解明を行う。また、 解明した律速過程や支配反応に立脚して、固体電解質および電極材料の最適化を行う。さらに、最適 化の結果に立脚してセルの設計を行うとともに、簡易セルを作製して SO3 電解実験と計算結果との整 合性を確認する。

【研究内容(概要)】

(1) 電極上の原子・分子の挙動の解明

現状で最も有力な電極材料であるプラチナや Pt-Ru 合金の SO<sub>3</sub> 電解時の電極表面上の SO<sub>3</sub>、O<sub>2</sub>分子と 解離・生成した酸素原子の挙動を明らかにする。これまでに行われていた表面反応や界面に関する実 験結果を調査・分析するとともに、電極表面上の SO<sub>3</sub>、O<sub>2</sub>分子と解離・生成した酸素原子の挙動の解 明のため、化学結合的な評価のために相対論効果を加味した DV-X α 分子軌道法を用い、また、エネ ルギーの評価のために PHASE を用いて、計算を実施する。

(2) 三相界面近傍における原子・分子の挙動の解明

電解質(YSZ やセリア)、電極(プラチナや Pt-Ru 合金)、気相で構成される三相界面近傍について、 相対論効果を加味した DV-X a 分子軌道法による化学結合的な評価を行い、また、PHASE を用いてエネ ルギーの評価を行い、SO<sub>3</sub>、O<sub>2</sub>分子の挙動を解明する。さらに、解離・生成した酸素原子の挙動を解明 して、拡散領域やイオン電導領域に関する知見を得る。

(3) SO3電解メカニズムの解明と電極材料の最適化

電極上の SO<sub>3</sub>、O<sub>2</sub>分子と酸素原子の挙動の計算結果、三相界面近傍の SO<sub>3</sub>、O<sub>2</sub>分子と酸素原子の挙動 の計算結果、および、電気化学的な実験結果と表面分析の結果によって、SO<sub>3</sub>の電気分解の支配反応 や律速過程を解明する。さらに、解明した律速過程や支配反応に立脚して、プラチナや Pt-Ru 合金の 電極材料、および、YSZ やセリアの電解質材料を最適化する。

(4) 電解セルの設計と計算結果の確認

最適化した材料を用いた電解セルの設計を行う。また、簡易セルを作製して SO<sub>3</sub>電解実験と計算結果との整合性を確認する。

【使用主要施設】

- 1. 大型計算機(科学技術計算機 HPC2500)
- 2. DV-X α 分子軌道法プログラム
- 3. 並列計算機 (Altix3700)
- 4. PHASE (Advance Soft 社)

【進捗状況 (当該年度までの概要)】

平成 17 年度は、電極反応や触媒反応に関する文献調査・これまでに行われた実験の解析・電極表 面上の原子・分子の挙動に関する計算を行った。

平成 18 年度は、電極上の原子・分子の挙動の解明・三相界面近傍における原子・分子の挙動の解明・S0<sub>3</sub>電解メカニズムの解明に関する計算を行った。

平成 19 年度は、SO3電解メカニズムの解明と電極材料の最適化に関する計算を行った。

【研究成果 (当該年度)】

1. 三相界面近傍における原子・分子の挙動の解明

1. 1 三相界面近傍における分子の挙動の理論計算

この三相界面近傍における SO<sub>3</sub>分子等の挙動を、PHASE や相対論効果を加味した DV-X  $\alpha$  分子軌道法 により計算を進めた。しかしながら、計算にかかる負荷が極めて大きいため、最終的に収束した結果 は得られなかった。

1. 2 三相界面近傍の酸素原子の挙動の理論計算

 $SO_3$ 、 $O_2$ 分子が解離・生成した酸素原子の挙動を PHASE や相対論効果を加味した DV-X  $\alpha$  分子軌道法 により計算を進めた。しかしながら、計算にかかる負荷が極めて大きいため、最終的に収束した結果 は得られなかった。

2. SO3電解メカニズムの解明と電極材料の最適化

2.1 SO3 電解メカニズムの解明

(1) 吸着配置とエネルギーの計算

これまで、電極表面上に吸着した SO<sub>3</sub>分子の吸着配置を明らかにした。この吸着配置において、電 極上に吸着した SO<sub>3</sub>分子が SO<sub>2</sub>と吸着酸素原子に解離する過程を評価する。このために、相対論を考 慮した全エネルギーの計算が可能な第一原理計算として、PHASE を用いた。計算はスラブモデルによ り行った。これまで、Pt 表面の緩和と SO<sub>3</sub>の Pt 吸着に関する計算を行った。さらに、SO<sub>3</sub>分子の Pt (111) 面における最安定配置からの解離過程と解離反応のエネルギー障壁を計算した。

(2) SO3の吸着配置

これまで明らかにしたように、PHASE による計算結果として、Pt 表面上の SO<sub>3</sub>の吸着配置は 2 種類の安定な配置が存在する。一つの配置では、S 原子と 2 個の 0 原子が表面の Pt 原子と結合して、1 個の 0 原子は結合していない A 配置と、3 個の 0 原子が表面の Pt 原子と結合して、S 原子は結合していない B 配置である。SO<sub>3</sub>の吸着エネルギーは、A 配置と B 配置でそれぞれ 1.88 eV と 2.30 eV である。したがって、B 配置が最安定構造であった。

(3) 化学結合状態

S0<sub>3</sub>-Pt 表面系の化学結合状態を評価するために、PHASE の計算結果を基に、クラスターモデルを用いて、相対論効果を考慮した DV-X  $\alpha$  分子軌道法により計算を実施した。ここで、A 配置において表面の Pt 原子と結合している 0 原子を 0(1)、結合していない原子を 0(2)とする。計算結果より、A 配置において表面の Pt 原子と 0(1)との結合次数は 0.17 であり、0(1)と S 原子との結合次数は 0.33 であった。また、B 配置では、0 原子とこの原子に結合している表面の Pt 原子との結合次数は 0.17 であり、0 原子と S 原子との結合次数は 0.35 であった。したがって、A 配置と B 配置の両方において、Pt-0 結合よりも S-0 結合が強くなっている。

さらに、A 配置では、Pt 原子と結合している 0 と Pt 表面との結合次数が一0.08 であり、この 0 原 子と SO<sub>3</sub>中の残りの SO<sub>2</sub>の部分との結合次数が 0.04 である。同様に、B 配置では、0 原子と Pt 表面と の結合次数が一0.06 であり、SO<sub>3</sub>中の残りの SO<sub>2</sub>の部分との結合次数が 0.05 である。したがって、A 配置と B 配置の両方において、0 原子は SO<sub>3</sub>中の残りの SO<sub>2</sub>の部分から離れるよりも、Pt 表面から離 れる方が容易であると考えられる。

以上のことから、S-O 結合が切断されて O 原子が Pt 表面に残って、SO<sub>2</sub>が SO<sub>3</sub>から直接脱離することはないと考えられる。

#### (4) SO<sub>3</sub>の解離過程

 $SO_2$ が  $SO_3$ から直接脱離することはないと考えられる。したがって、 $SO_3$ は Pt 表面上で吸着状態の  $SO_2$ と0原子に解離すると想定される。この想定に基づいて、最安定構造である B 配置について、 $SO_3$ の解離過程の計算を実施した。 $SO_3$ の解離過程より、B 配置からの解離エネルギーは 1.41 eV であった。 また、 $SO_3$ が吸着状態の  $SO_2$ と0原子に解離することにより、エネルギーは 0.34 eV 低下する。さらに、 吸着状態の  $SO_2$ の脱離エネルギーは 1.46 eV であった。

さらに、詳しく解離過程を検討するため、B 配置から吸着状態の S0<sub>2</sub>と0 原子に解離する過程の中間配置の計算を行った。計算結果より、S0<sub>3</sub>の解離の初期段階では、S0<sub>3</sub>の吸着配置は維持される。S-0 結合が Pt 表面の atop site と交差すると、S-0 結合は切断される。このとき、解離過程で最も高いエネルギー状態となる。さらに、S0<sub>2</sub>はほぼ安定な吸着配置となる。そして、0 原子も安定配置となる。このように、S0<sub>3</sub>の解離過程において、中間配置は大きく変化する。

(5) その他の計算結果

他の配置からの SO<sub>3</sub>の解離過程の計算を行った結果、エネルギー障壁の値は 1.07 eV という値が得られた。ただし、解離後の経路は現在、計算中である。

また、より正確にエネルギー障壁を計算するために、ナレッジ・エラスティック・バンド法(NEB 法)を用いたプログラム改良を行い、最安定配置からの解離のエネルギー障壁と解離経路の計算を行 った。その結果、エネルギー障壁は、2.96 eV という値が得られ、複雑な解離経路を取るとの結果が 得られた。このプログラムによる計算については、解離経路の大まかな選択と、計算のための効率的 手順が確立していない。より正しい結果を得るため、適切な解離経路の選択と、計算のための効率的 手順が確立していく必要がある。

(6) まとめ

 $SO_3$ の電気分解における電極反応機構を検討するため、 $SO_3$ の電極表献上の挙動について、PHASE と DV-X  $\alpha$  分子軌道法による計算を実施して、以下の結論が得られた。

- (a) S0<sub>3</sub>は Pt 表面上で 2 種類の安定構造をとり、最安定構造は、3 個の 0 原子が Pt 原子と結合して、 S 原子は結合していない。また、吸着エネルギーは 2.30 eV であった。
- (b) Pt 表面上の安定配置では、S-0 結合の方が Pt-0 結合よりも強い。さらに、0 原子は SO<sub>3</sub>中の SO<sub>2</sub> よりも Pt 表面からの方が、離れやすい。
- (c) S0<sub>2</sub>は S0<sub>3</sub>から直接脱離しないと考えられるため、S0<sub>3</sub>は Pt 表面上で吸着状態の S0<sub>2</sub>と 0 原子に解離すると考えられる。
- (d) 最安定配置の SO<sub>3</sub>から吸着状態の SO<sub>2</sub>と0原子への解離のエネルギー障壁は、1.41 eV である。
- (e) S-0 結合は Pt 表面の atop site で切断されて、SO<sub>3</sub>の解離過程で中間配置は大きく変化する。
- (f) 他の配置からの SO3 から吸着状態の SO2 と 0 原子への解離のエネルギー障壁は、1.07 eV である。

(7) その他

SO3の吸着・解離反応の反応速度定数 kaは、遷移状態理論より、

$$k_a = \frac{k_{\rm B}T}{h} \frac{q_{\rm TS}}{q_{\rm SO_3}} \exp\left(-\frac{E_a}{k_{\rm B}T}\right)$$

と表すことができる。ただし、 $k_{\rm B}$ はボルツマン定数、 $E_a$ は SO<sub>3</sub>の吸着・解離反応の活性化エネルギー、  $q_{\rm TS} \geq q_{\rm SO3}$ は、吸着解離の遷移状態と初期状態の SO<sub>3</sub>の分配関数である。分配関数についてはさらに検 討が必要であるが、 $E_a$ については上項で計算したエネルギー障壁の値を用いることが可能であり、 $k_a$ の値も評価可能となることが考えられる。

2.2 電極材料の最適化

(1) Au の吸着状態の計算

Pt の場合と同様に、耐硫酸性の期待できる電極材料として、Cu や Au や Ir や Ru がある。このうち、Cu について吸着配置と吸着エネルギーの計算を行った。この結果、6 種類の安定な吸着構造が存在した。また、吸着エネルギーは 0.5~1.5 eV であり、Pt 表面上への吸着よりも小さい吸着エネルギーであった。最安定構造は、Pt の場合と同じく、0-S-0 の角度が、正四面体に近い角度で、3 個の 0 原子が表面の Au 原子と結合して、S が表面と結合せず、fcc サイトの吸着した構造であり、また、これよりわずかに吸着エネルギーが小さく、同様に hcp サイトに吸着した構造が存在した。これらの構造の吸着エネルギーは、1.5 eV 程度であった。また、S 原子と 2 個の 0 原子が表面の Pt 原子と結合して、 1 個の 0 原子は結合していない吸着構造が存在して、fcc サイトおよび hcp サイトに吸着した構造の 或着エネルギーは 0.9 eV 程度であった。さらに、Pt とは異なる吸着構造として、S が Pt 表面の atop site に位置して、0 が fcc または hcp hallow site に位置する吸着構造が存在した。この吸着エネル ギーは 0.6 eV 程度であった。

#### (2) Cu の吸着状態の計算

Cu について吸着配置と吸着エネルギーの計算を行った。この結果、8 種類の安定な吸着構造が存在 した。また、吸着エネルギーは2.5~3.0 eV であり、Pt 表面上への吸着よりも大きな吸着エネルギー であった。最安定構造は、Pt の場合と同じく、0-S-0 の角度が、正四面体に近い角度で、3 個の0原 子が表面の Cu 原子と結合して、S が表面と結合せず、fcc サイトの吸着した構造である。また、2 個 の酸素が fcc サイトまたは hcp サイトでそれぞれ 3 個の表面の Pt 原子と結合して、残りの0原子とS 原子は結合していない、特異な吸着構造が、吸着エネルギー2.8 eV 程度と比較的安定に存在していた。 また、Pt 表面上では存在しないが、Au 表面上で存在した S 原子が atop site で 0 原子が hallow site で表面の Cu 原子と結合した吸着構造が存在した。この吸着エネルギーは2.7 eV であった。さらに、 Pt と同様に、S 原子と 2 個の 0 原子が表面の Cu 原子と結合して、1 個の 0 原子は結合していない吸着 構造が存在して、吸着エネルギーは2.5~2.6 eV であった。

3. 電解セルの設計と計算結果の確認

ハイブリッド熱化学法研究の一環として、SO<sub>3</sub>の電気分解実験が行われた。その結果、Ru および Au 電極で優れた特性が得られた。本実験結果と2.2項の吸着配置・吸着エネルギーの計算結果を比較・ 評価することで、電極材料選定の考え方を示すことが可能であると考えられる。

# 【成果の反映状況】

本研究で得られた研究成果は、今後、ハイブリッド熱化学法研究の一環として SO<sub>3</sub> 電気分解用の電 解セルの電極材料の選択と SO<sub>3</sub> 電気分解実験の解析に活用した。

# 【研究成果の公表】

<論文(査読付き)>

- C. Suzuki, T. Nakagiri, and K. Aoto, "The refinement of the rate determining process in sulfur trioxide electrolysis using the electrolysis cell", International Journal of Hydrogen Energy 32, pp.1771-1781 (2007).
- 2) C. Suzuki *et al.*, "Calculation of X-ray absorption near edge structure of CeO<sub>2</sub> using a model cluster", Chemical Physics, in press.
- 3) C. Suzuki and T. Nakagiri: "Clarification of the mechanism of sulfur trioxide electrolysis Evaluation of SO<sub>3</sub> and O Atom Adsorbed on Pt Surface —", Journal of Nuclear Science and. Technology 45, pp. 1-9 (2008).
- 4) C. Suzuki and T. Nakagiri, "Sulfur trioxide adsorption on Pt surface", Advances in Quantum Chemistry, in press.
- 5) C. Suzuki and T. Nakagiri, "Investigation of SO3 adsorption and dissociation on Pt electrode", Solid State Ionics, in press.

<論文(査読無し)>

1) 鈴木知史, 中桐俊男: "三酸化イオウの電極表面上の挙動", (DV-X a 研究協会会報, 掲載予定).

<国内会議>

- 1) 鈴木知史, 中桐俊男: "三酸化イオウの電極表面上の挙動, 第20回 DV-Xα研究会, 加東 (2007). <国際会議>
- C. Suzuki and T. Nakagiri, "Investigation of SO<sub>3</sub> adsorption and dissociation on Pt electrode", The 16<sup>th</sup> International Conference on Solid State Ionics, Shanghai, China (2007).
- 2) C. Suzuki and T. Nakagiri, "SO3 adsorption and dissociation on the electrode in the electrolysis", 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Tokyo (2007).

2.3 産学連携協力研究員(H17)平成19年度研究概要報告書

研究テーマ	活断層帯の地質構造発達史と断層ガスに関する研究 Fault gas and architectural evolution of active fault zones					
研究者氏名	島田耕史					
研究協力者	地層処分研究開発部門 東濃地科学 自然事象研究グループ 野原 サ	学研究ユニット 壯	所属長 役職・氏名	自然事象研究 Gr. グループリーダー		
川馮・口名				甲可 升		
研究実施場所	東濃地科学センター					
译在空間	平成 17 年 4 月 ~	当該年度	平成	19年4月 ~		
· 迪昇研究期间 (予定)	平成 20 年 3 月	研究期間		平成 20 年 3 月		

【研究目的】

近年、室内実験によって、水素ガスが破砕によって生成する鉱物新生表面での熱力学的反応によっ て発生し、その新生表面積と発生ガス量には比例関係があることが明らかになった(Kameda et al., 2003 など)。つまり、活断層直上の水素ガス濃度の上昇は(たとえば Wakita et al., 1980)、断層活 動に伴い、破砕による鉱物新生表面が形成されていることを示すとも考えられる。この作業仮説が正 しければ、活断層帯の水素ガス連続観測によって、断層活動をモニタリングできる可能性が生じる。 本研究では、この可能性の検討に必要な情報を得るために、どのような測定方法をどこに展開するか、 という手法を確立することを目指す。

断層直上の水素ガスの研究によると、活断層では、明らかに高濃度の水素ガスが観測される場合が ある(0.5ppm 程度の大気中水素ガス濃度の数10倍から数10万倍以上)。水素ガス濃度観測値は低濃 度から高濃度まで大きくばらつき、たとえば跡津川断層では1.5 ppm から2.5%の範囲である (Sugisaki et al., 1983)。各断層から得られた最高濃度は、地震活動が歴史に記録されている活断 層では高く(たとえば跡津川断層;1857年飛越地震;M6.9)、地震活動が歴史に記録されている活断 断層では低い、という関係が認められている(Sugisaki et al., 1983)。一方、水素ガス濃度が一つ の断層帯内部でばらつく原因は、水素ガス形成場や移行経路が偏在する影響が考えられる。したがっ て、水素ガス濃度の変化の原因を特定するためには、移行経路の偏在やそれらの変化についての検討 が必要となる。

これらの問題の検討には、従来の断層ガス測定研究や地震学的情報に加えて、移行経路を構成する 断層破砕帯、周辺岩盤中の主な割れ目の3次元構造などの構造地質学的、岩石学的情報が不可欠とな る。断層は平面ではなく、複数の断層によって構成され、断層破砕帯分布の粗密や折れ曲がりなどの 不規則な構造が、フラクタル的に、数 10km規模までにわたって形成されている(Tchalenko, 1970 など)。横ずれ断層のステップ構造部分では、断層活動に伴う温泉水の上昇が観測された例が知られ ており(Hill, 1977 など)、地下深部の流体を地表にもたらす重要な移行経路のひとつと考えられる。 また、断層破砕帯は、しばしば断層沿いの高透水帯として振る舞うが、それらは、地質学的変遷の中 で、過去に形成された構造に規制されて、新しい構造が形成されていることが、野島断層の詳細なコ ア観察により明らかにされている(Tanaka et al., 投稿中)。したがって、移行経路の偏在に関する 情報を得るためには、広域的な活断層帯の構造を、その発達史を踏まえて推定する必要があると考え る。

中部地方北部の跡津川断層は、我国で最も活動性の高い活断層の一つである。これまでの活断層研究によって、跡津川断層の活断層トレースが明らかになっている。また、跡津川断層周辺には地震観 測網が整備され、高精度で震源位置が決められている。さらに、平成16年度には、断層ガス観測ボ ーリング孔が掘削された。こうした利点から、本研究では跡津川断層を主要な研究地域に想定してい る。 以上の背景にもとづき、本研究の目的は次の3点とする。

1. 適切な断層ガス観測地点を設定するために、跡津川断層帯の地質構造発達史を解明し、 断層ガスの主要な移行経路の偏在性に関する情報を得る。

2. 水素ガス等の断層ガスの、既存ボーリング孔と地表における個別の測定方法を確立する。 3. 個別の測定方法を、適切な観測地点に展開し、移行経路の偏在性と断層ガス濃度の地域性の 関係を検討する。

【研究内容(概要)】

本研究では、中部地方の跡津川断層帯を主な研究対象として、どこに(場所)、どのような(測定 方法)断層ガス観測を展開するか、という手法の確立を目指す。場所については、構造地質学的、岩 石学的研究により、①-1 地質構造発達史の解明、①-2 断層ガスの主要な移行経路の推定を行う。測 定方法については、②既存孔と地表とにおける断層ガス測定方法を確立する。これらを統合し、③断 層ガス測定方法を、ガス移行経路を踏まえた観測点に展開し、断層ガス移行経路の偏在性とガス濃度 の地域変化を検討する。比較のための情報を、他の断層帯で補足的に得ることも、状況に応じて考慮 する。

断層の構造地質学的および岩石学的情報は、①-1地下深部から地表までの断層構造とその形成順序 に関する情報、①-2活断層帯の中で、断層構造に関連した主要な移行経路の形態および偏在性を推定 するための情報、として利用する。

一方、東濃地科学センター所有の測定機器を活用して、②断層ガスの採取方法と測定方法を、既存 孔の地下水溶存ガス、地表の異なる破砕帯構成岩類からなる試行測定地点で得られるガスのそれぞれ について確立する。

続いて、③これらを統合するかたちで、地震学的情報も踏まえながら、①で推定された適切なガス移 行経路に②で確立された測定方法を展開し、①の推定を検証するとともに、微小地震活動、ガス移行 経路の偏在性、得られるガス濃度の地域性の関係について検討する。

【使用主要施設】

ガスクロマトグラフ(島津製 GC-17、熱伝導検出器仕様) 四重極型質量分析計2台 (ULVAC 社製 STANDAM, HORIBA STEC 社製 Micropole および両者に付属の解析ソフト)、 データロガー (Keyence 製およびデータ表示ソフト) 水素ガス検知器 (Finch 製、Crowcon 製および付属の解析ソフト) 水質連続観測装置 (In-Situ inc. 製および付属の解析ソフト) X線回折装置 (Rigaku 製) 電子顕微鏡 (SEM) (JEOL 製) 薄片作成用機器類 偏光顕微鏡装置 (Nikon 製) Microsoft Office 2003 Adobe Illustrator CS Adobe Photoshop CS Kaleida Graph

#### 【進捗状況(当該年度までの概要)】

平成 17 年度は、断層露頭水素ガス測定手法を確立するため、使用機器の検討、測定装置の試作、 野外測定テストを実施した。その結果、携帯式水素ガス測定装置を利用し、露頭への掘削孔を従来の 手法に比べ大幅に縮小することで、小型で迅速な測定を可能とする見通しを得た。また、跡津川断層 掘削孔における地下水遊離ガス測定装置の試作検討を進めた。

平成 18 年度は、断層露頭水素ガス測定手法を提案する論文を投稿予定であったが、いくつかの課題を解決するため、再検討を進めることとした。その結果、跡津川断層の各地の露頭における野外測定と非活断層との比較をおこない、水素放出の時間変化が活断層と非活断層とで異なる傾向を確認した。また、地下水遊離ガス測定装置の試作検討を進め、約2ヶ月の連続観測を達成した。

平成 19 年度は、断層露頭水素ガス測定手法を提案する論文の査読対応を実施し、受理された。水 素ガスが岩石破壊で生じる従来の室内実験結果を、MIU 立孔掘削時の発破の際に発生する水素を、発 破直後に捉えることによって検証した。断層露頭ガス測定を、跡津川断層で展開し、活断層の可能性 のある露頭を発見した。この結果は、変動地形学的根拠に乏しい低活動性の活断層の調査技術として、 水素ガス測定手法の有効性を示す。跡津川断層のほか、阿寺断層、跡倉ナップ基底断層、山崎断層、 仏像構造線で水素ガス測定を実施した。水素ガスの放出は、地下での発生量と、地下から地表への通 路の状態に支配されており、現世歪場と地質構造発達史を反映した断層帯の構造が通路の開閉に大き く影響を及ぼす見通しを得た。この検討の結果、既存掘削孔が断層の圧縮性屈曲に位置し、地下深部 からの流体の通路となりやすく、地下情報を得るための適切な観測地点であることが確認された。跡 津川断層において、地下水溶存断層ガスの観測と装置の改良を進め、能登半島地震の際に初めて認め られた、遠地大地震に対応する地下水遊離ガス濃度比異常の検討を進め、異常の発見とその発現モデ ルを学会報告した。

【研究成果(当該年度)】

平成 19 年度は、断層活動と断層ガスの地下水中および地表へのガス放出の関係のモデル化を目指 して

- (1) 跡津川断層帯の地質構造発達史の検討
- (2) 跡津川断層帯における地下水溶存ガス観測

(3) 跡津川断層帯および各地の活断層・非活断層における露頭での断層ガス測定

(4) 断層活動-ガス放出モデルの検討

を計画した。

(1) 跡津川断層帯の地質構造発達史の検討

断層帯の幅は一様ではなく、直線的で明瞭な活断層トレースを持つストランド部と、活断層トレー スが不明瞭となるジョグ部があり、後者の方が剪断変形をまかなう領域の分散によって幅が広がる。 地下水溶存ガスの連続観測地点は、活断層トレースが不明瞭となるジョグ部に位置する。このことを、 断層岩分布から確認するために、地質調査ルートマップを検討した。この結果、ストランド部の断層 岩類の走向は活断層トレースと平行な物が多く、断層ガウジの分布幅は約 100m であるのに対し、ジ ョグ部の断層岩類の走向は活断層トレースと大きく斜交する物が多く、断層ガウジの分布幅は約 700m に及ぶ。連続観測地点はジョグ部に位置することが、断層岩分布の観点からも確認された。

これらの値は 0tsuki and Dilov (2005)、0tsuki (2007)のジョグの幅と断層長の実験式 (Log (ジョグ幅 (km)) = 0.6Log (断層長さ (km))-1.3)から、断層長さ 81km を与え、微小地震分布から見た跡津川断層の長さ 85km (白山直下から立山直下)と調和的であり、この実験式からは、断層長さが延びない場合には、破砕帯の幅がこれ以上拡がらないと考えられる。なお、緒方・本庄 (1981)の断層破砕帯の幅と断層長さの関係から、ストランド部の幅 100m として算出すると、ストランド部のデータでは断層長 30km~7km の値を与え、過小評価となる。

ストランド部とジョグ部とで、断層形成年代に有意の差があるかを、断層ガウジの年代測定によっ て検討した。断層ガウジに形成されるイライトの K-Ar 年代(粒径 0.5 ミクロン未満)は、ジョグ部 では 71.8±1.6Ma、ストランド部では 69.5±1.5Ma で有意の差はない。また、すでに報告されている 跡津川断層南西端のデータは 68.5±1.5Ma であり、殆ど差がない。これらは、少なくとも後期白亜紀 に、断層ガウジの形成が、跡津川断層帯全域にあったことを示している。それゆえ、右ずれ活断層と しての第四紀の活動は、以前にすでに断層帯として存在していた弱線が、東西圧縮場の広域応力場の 発生に伴って再活動したことが示唆される。このことは、活断層として知られていなくても、断層ガ ウジが存在していれば、広域応力場と断層の姿勢に応じて将来活動しうる可能性があることを示唆し ている。特に、最新活動面に形成されている断層ガウジに記録された剪断変形方向が、現世の広域応 力場や歪場と調和的な場合、慎重な調査が必要である。なお、大橋・小林(2007)は、跡津川断層系 北部の牛首断層の構造解析から、跡津川断層系が過去に左ずれ断層として活動したことを明らかにし た。

跡津川断層帯の地質構造発達史の年代論の詳細は、断層ガウジ形成以前のカタクレーサイト化のス テージで後期白亜紀以前に遡ることから、現状の年代測定手法の年代誤差が数百万年におよぶために 困難であることが明らかとなった。現在、東濃地科学センターで展開されている低温度の閉鎖温度を 利用する U-Th-He 年代測定法等の開発が急務である。

(2) 跡津川断層帯における地下水溶存ガス観測

地下水溶存ガスの連続観測地点は、掘削工程の制約を受けつつも、ジョグ部に位置し、断層ガスの 地下からの通路に位置することから、地下の情報を少ない掘削長で効率的に観測する地点として最適 であった。地下水中のHe/Ar 比は、地殻の短縮歪が大きいと高くなることが知られている。断層破砕 帯は周囲の岩盤と比較して歪みやすいので、適切な掘削地点を選定することによって、広域的地殻変 動による歪観測装置として利用することが可能である。このような観点を考慮しつつ、適切な掘削調 査・観測地点の選定を行うためには、今回の一連の経験は他地域の調査研究の参考となる。

平成19年3月10日より、装置の調整を経て再開された地下水溶存ガスの連続観測中に、3月25日 9:42に能登半島地震(Mw=6.7)が発生し、観測地点付近では震度4から3を経験した。この地震の 震源は深さ10km 前後で、地殻内地震である。連続観測地点は、震源から約100km 離れている。大地 震に先行する地殻変動の半径を半経験的に示した式(Dobrovolsky et al. (1979)の Earthquake preparation zones)からは、5.2×10<sup>-6</sup>の理論歪が得られる。この地震に応じた地下水中のガス濃度 変動が認められた。これは、広域的な地殻変動(遠地大地震)に伴う注目断層帯周辺の、ガス通路の 変化の結果である。このガス濃度変動範囲の検討は、離れた場所の地殻変動が注目地域の長期安定性 に与える影響の観点から重要である。

地下水圧の相対的上昇は、揚水量の増加として現れる。実際の揚水量は、3月10日は17cc/分であ り、3月22日は16cc/分まで減少したが、3月30日に17cc/分まで上昇した後、4月2日に17.5cc/ 分のピーク値を示し、4月15日まで約17cc/分を維持し、それ以降6月3日の14cc/分まで減少する。 図1に、3月10日から4月15日までの揚水量を示した。3月22日から4月2日にかけて、チューブ の劣化で説明のつかない揚水量の上昇が認められる。時系列解析ソフトBAYTAP-Gによって、He/Ar比 のデータを、長期変動トレンドと短期変動成分に分離した。He/Ar比の長期変動トレンドと揚水量と は同様な変動傾向を示す。すなわち、地殻短縮歪の増減と地下水圧の増減が同期して長期変動トレン ドを生じている。一方、短期変動成分では、3月25日の能登半島地震の際にHe/Ar比が増加するとと もに、揚水量も増加している。短期変動成分は正規分布を示すが、3月25日の9:00と11:00の測定 データは、正規分布の標準偏差の3倍を超えて高い。これらのデータが得られた地下水は、3月25日 の3:30から7:30に、地下で採取されたものであることから、能登半島地震の本震発生(9:42)に先 行した地殻短縮歪増加を捉えた可能性が高い。この時のHe/Ar比の変動幅は、約13%である。なお、 跡津川断層帯の割石温泉では、湧水量が能登半島地震を境にして2倍になっていることが報告されて いる。すなわち、湧水量(地下水圧)や He/Ar 比の変化幅は、理論歪量が 5.2×10<sup>6</sup>程度の場合、桁 違いに大きく変わることはないという結果が得られた。

一方、7月17日に発生した中越沖地震に対応したガス濃度比変化は検出できなかった。震源と観測 点との距離が遠く(約190km)、理論歪量は5.1×10<sup>-7</sup>で一桁小さいことと、測定データの分解能が、 異常を感知できない原因として考えられる。データ分解能の向上もしくは、観測地点の増加が課題と して挙げられる。

(3) 跡津川断層帯および各地の活断層・非活断層における露頭での断層ガス測定 昨年度までに検討を進めた断層露頭での水素ガス測定法についての論文が印刷中である。 従来、実験室スケールで知られていた鉱物粉砕による水素ガス発生(Kameda et al.(2003)など) を検証するために、瑞浪超深地層研究所の立坑掘削現場において、発破の際の水素測定を試みた。そ の結果、発破直後の水素ガス発生を確認し、水素ガス測定によって岩石破壊(断層活動)を検討することが原理的に可能であることを確認した。

跡津川断層帯においては、主要トレースから約10km南方に、高濃度水素放出点の並びが認められた。この並びの延長において、地質調査と露頭水素ガス測定を同時に展開する手法を用い、第四系に変位を与える活断層である可能性のある断層露頭を発見した。現在、年代測定が東濃地科学センター保有のペレトロン年代測定装置で行われている。地質調査と露頭水素ガス測定の併用は、本研究による小型の測定装置開発によって、初めて極少人数かつ短期間で実行できるようになった手法であり、変動地形学的根拠に乏しい低活動性の活断層調査手法として、自然事象研究グループの研究課題として反映されている。

露頭での水素ガス放出は、活断層の主要トレースに斜交する、主断層の活動の際に隙間が開くよう な姿勢を持つ断層ガウジで多いことが跡津川断層でわかっており、主要トレースに斜交する断層ガウ ジはジョグ部に多いことが明らかとなった。これらのことを踏まえ、活断層である阿寺断層、山崎断 層断層で水素ガス測定を展開した。その結果、山崎断層では跡津川断層と同様な傾向が認められたが、 阿寺断層では、主要な断層トレースと平行な部分で特に高濃度の水素ガス放出が認められた。GPS 観 測から得られる現世応力場を反映した歪場と、阿寺断層の姿勢を比較したところ、阿寺断層付近では、 阿寺断層と平行方向の短縮、直交方向の伸長が認められ、阿寺断層が開口割れ目に相当する姿勢を持 っていることが明らかとなった。従来から(Sugisaki et al. (1983)など)、阿寺断層において、中部 日本で最高濃度の水素ガス放出が認められていた。本研究結果は、現世歪場において、阿寺断層が水 素ガス通路となる開口割れ目に相当する姿勢を持つために、高濃度水素放出が認められたことを示 す。

非活断層の例として、仏像構造線、跡倉ナップ基底断層で露頭水素ガス測定を展開したところ、水 素の発生が認められたが、その放出の時間変化は、最初の放出の後、次第に減少する傾向を示すこと が多い。これは、水素放出の有無だけでは、活断層と非活断層の区別はつかないことを示しており、 放出の時間変化や閾値の有無を検討する必要性を示している。一方で、非活断層の水素ガスが地表付 近で発生したのではないならば、非活断層・活断層の区別を問わず、断層帯のガス移行経路の分布が 把握できる。非活断層の水素の起源を明確にするために、ヘリウムの現地測定を検討したが、装置の 入手が不可能であった。代替策として、地表付近のバクテリアの影響等を検討するために、メタン、 二酸化炭素、水素の同時測定が挙げられ、今後、自然事象研究グループの低活動性の活断層の調査技 術としての検討課題となった。なお、ヘリウムの野外測定は、近い将来、小型質量分析計の発展と低 価格化で可能になる見通しである。

(4) 断層活動-ガス放出モデルの検討

能登半島地震の発生とその後の揚水量・ガス濃度比変動の解析から、能登半島地震の時期に増加した短縮歪増加が、He/Ar 比増加だけでなく揚水量(地下水圧)増加としても現れることが明らかとなった。短縮歪増加を説明するモデルとして、新潟神戸構造帯(新潟神戸歪集中帯)に位置する跡津川 断層と、能登半島地震の震源断層付近とが、剛体的な地震発生層の両側に位置し、片方の現象が片方 に影響を及ぼす、という作業仮説を学会で提示した。能登半島地震の震源域で前駆すべりが発生する と、震源域では差応力が減少するとともに、ダイラタンシーが発生し、体積増加による垂直応力が増 加する。さらに地震性すべりが生じるためには、増加した垂直応力を乗り越えて前駆すべり面が成長 するための差応力が増加する必要がある。これらの応力増加が新潟神戸構造帯にも波及して、短期間 の地殻短縮歪増加が生じた可能性がある。震源では地震後に応力降下が生じるため、新潟神戸構造帯 における地殻短縮歪増加は短期間で終了する。観測された He/Ar 比と揚水量の、増加後の長期変動ト レンドへの収束は、このモデルと調和的である。地震学会では、1 例だけではよく解らない旨のコメ ントがあり、数少ない大地震時のデータを遠地からでも取得可能にするための分解能の向上、または 各地への観測点の設置が課題となった。

露頭水素ガスの放出と現世歪場、断層の運動像、断層構造の発達過程の関係は、次のようにモデル 化することができる。断層は、発生以降の長い構造発達史を経て、固有の断層構造を作っており、現 世応力場(歪場)と運動像に応じて既存の弱面が開閉し、ガス通路の消長が生じ、これに応じて水素 が放出されている。そのため、ある地域の地下からの移行経路を把握する際には、現世歪場を GPS に より把握し、地形地質調査によって断層帯の構造発達過程を把握し、断層帯の構造と歪場とを比較し て通路となりやすい場所を特定するとともに、ガス調査によってそれを検証するという方法が提示で きる。本研究によって、ガス調査は、地形地質調査と同時に展開できるようになり、期間が限られる 実際の調査においても効率的な移行経路把握が可能となった。

# 【成果の反映状況】

本研究で得られた研究成果は、自然事象研究グループが実施する地質環境の長期安定性に関する 研究のうち、地震・断層活動に関する研究のなかで、低活動性の活断層の調査技術の確立を目指し た研究として、露頭水素ガス測定手法が適用されている。

また、瑞浪超深地層研究所計画においては、立坑掘削時の発破に伴う岩石破壊により生じるガス を、立坑内に発達する様々な割れ目で観測することにより、地下水移行経路を特定できる可能性が あり、水素ガス測定手法の検討が進められている。

【研究成果の公表】

<論文>(各論文に対し**査読の有無**を明記する)

1) Koji SHIMADA, Hidemi TANAKA, Tomohiko SAITO, 2008, Rapid and Simple Measurement of H<sub>2</sub> Emission from Active Faults Using Compact Sampling Equipments, Resource Geology, in press(査読有)

<国内会議>

- 1) 島田耕史・丹羽正和・野原 壯、2007、活断層の水素ガス放出の破砕帯構造依存性:跡津川断層 西部の例、日本地球惑星科学連合 2007 年大会、幕張
- 2) 島田耕史・丹羽正和・黒澤英樹・野原 壯、2007、断層露頭での水素ガス測定法の基礎的検討と 測定例、日本地質学会第114年学術大会、札幌
- 3) 齊藤友比古・田中秀実・廣川智隆・角森史昭・水落幸広・島田耕史、2007、跡津川断層破砕帯深度 173m 採水地下水中の遊離ガスの能登半島地震の時期のガス濃度比上昇、日本地震学会 2007 年 秋期大会、仙台

2.4 産学連携協力研究員(H17)平成19年度研究概要報告書

研究テーマ	岩盤亀裂へ侵入したベントナイトの核種遅延性能の評価 Assessment of nuclide migration based on intrusion of buffer material into fracture					
研究者氏名	大窪 貴洋					
研究協力者 所属・氏名	地層処分研究開発部門 地層処分 ニット ニアフィールド研究グルー 棚井 憲治	所属長 役職・氏名	グループリーダー 内藤守正			
研究実施場所	地層処分基盤研究施設					
通算研究期間 (予定)	平成 17 年 4月 ~ 平成 20 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	王 平成 19 年 平成	4月 ~ 载19年 9月		

【研究目的】

高レベル放射性廃棄物の地層処分において、人工バリアを構成する緩衝材は、核種移行の遅延性能、 岩盤亀裂や隙間のシール性能、オーバーパックの支持性等が期待されている。緩衝材に用いられる材 料としてベントナイトが有力と考えられ、圧縮ベントナイト(1.6 Mg/m<sup>3</sup>)中での核種の拡散挙動につ いて、多くの実験データが報告され、精力的な議論がなされてきた。しかし、緩衝材と地下水が接触 することにより膨潤し、岩盤亀裂を充填すると考えられている過飽和状態(平均乾燥密度 0.4 Mg/m<sup>3</sup>)のベントナイトゲル中での核種の拡散挙動については、十分な評価がなされていない。

また、従来、核種の拡散計測を取得するにあたり、定常または非定常の拡散試験から拡散係数を算 出する手法が一般的であるが、これらの試験は、①長い拡散時間を必要とするため実験環境を保持す ることが困難であること、②試料のスライス、元素分析等の拡散係数を算出するために必要な作業が 膨大であること、③拡散試験後に材料を破壊するため、同一サンプルで拡散試験以外の実験ができな い等の問題点がある。特に流動性のあるベントナイトゲルを拡散媒体とした拡散試験の場合、高精度 な拡散係数を評価できない可能性がある。

そこで、本研究では、非破壊で簡便かつ迅速に拡散係数の計測が可能と考えられる X 線 CT 及び核 磁気共鳴(NMR)による手法に着目し、ベントナイトゲルへの適用性を検討する。また、ベントナイトゲルの密度、塩濃度、共存イオンが拡散現象の影響因子として考えられることから、これら因子と 拡散係数の関係を整理し、拡散機構の解明及び影響因子の定量的な評価を行う。これらの知見により、 従来の亀裂状媒体における移流・分散での移行モデルと、ベントナイトの亀裂充填による拡散モデル を比較し、安全評価上の保守性や妥当性を検討する。

【研究内容(概要)】

水の浸潤により膨潤したベントナイトゲル中での物質移行は,移流ではなく拡散現象により核種移 行が起こる。よって、ベントナイトゲル中の物質移行を定量的に論じる場合,拡散係数の計測が必須 である。また,拡散係数に影響を及ぼす因子としては、物理的な核種の移行経路の形状,吸着現象, 拡散核種の化学形態が挙げられる。拡散現象を理解するためには、これらの因子を個別に議論する必 要がある。

そこで、ベントナイトゲル中で吸着の影響を考慮する必要がなく単純なイオンで存在する I.及び 水分子をモデル核種として拡散係数を計測し、核種が移行する物理的な形状(構造因子)を検討する。 また、ベントナイトゲルは、塩濃度及び密度に強く依存して、粘性、膨潤性などの物理的性質が大き くなることが知られている。これは、ベントナイトの主成分であるモンモリロナイト粒子の凝集状態 が溶液中の共存イオンや濃度に強く依存するためで、結果として移行経路の物理的な形状にも影響を 及ぼすと考えられる。そこで、これらパラメータと構造因子(屈曲度、収斂度)の関係を整理し、移 行経路の塩濃度及び密度依存性を把握する。

次に吸着性核種の Cs<sup>+</sup>及び他核種を対象とした実験から拡散係数を算出し,吸着現象と合わせて移 行経路の形状を議論する。

なお、これらの研究においては、新たな拡散係数の計測手法として、非破壊計測法の一つである X 線 CT 及び NMR の適用を試みる。これらの方法は、簡便かつ迅速に拡散係数の計測が可能であること

から,拡散係数に影響を与える膨大な因子を評価する際に,非常に有効であると考えられる。また, 非破壊法であることから,試料のスライスが必要ないため,流動性のあるベントナイトゲルに対して も高精度な拡散係数の計測が可能であると考えられる。

X線 CT による画像化の原理は、対象物質に X線を入射させ、透過した X線強度(CT 値)から画像 を再構成する方法である。X線の透過強度は、透過する物質の線吸収係数に依存することから、X線 CT により得られる画像は、対象物質中での線吸収係数の分布を反映する。そこで、ベントナイトゲル と比較して、線吸収係数が大きい核種を浸透・拡散させ、CT 値の分布から得られる核種の濃度プロフ ァイルを拡散式でフィッティングすることにより拡散係数を算出する。また、この測定原理から理解 できるように、ベントナイトゲルと比較して線吸収係数が小さい核種を対象とする場合、明確な濃度 プロファイルを観測できない可能性があることから、これら測定上の検出限界・精度を把握するとと もに、検出器の補正及び CT 値と濃度の相関直線を求める。

一方,線吸収係数の小さいH(水分子)の拡散係数をX線CTにより計測することは不可能であるため,水分子の拡散係数の計測に関しては,Hを対象とした磁場勾配NMRにより計測を行う。H以外の核種を対象とした他核種の磁場勾配NMRによる拡散係数の計測は,共鳴周波数や緩和時間等の測定対象核の特有の問題から,非常に制限されることが予想される。しかしながら,拡散係数の測定原理である,核スピンの位相変調を引き起こす手法(パルスシーケンス)を改良することにより,安全評価を行う上で重要となるCs等の測定も十分可能であると考えられる。そこで,NMRプローブの製作及びNMRパルスシーケンスの改良を行い,ベントナイトゲル中での他核種の拡散係数を計測する。

【使用主要施設】 0.54 T マグネット (東京工業大学) 23 MHz MARAN Ultra spectrometer (東京工業大学) 科学技術計算機 HPC2500 (大洗工学センター) ABAQUS6.7 Dtransu-3D・EL CONTIN

#### 【進捗状況(当該年度までの概要)】

平成 18 年度の研究実施状況として、昨年度に構築した NMR による自己拡散係数測定システムにより、含水率および塩濃度をパラメータとした粘土ゲル中の水の自己拡散係数を計測し、拡散データの 拡充を行った。<sup>133</sup>Cs NMR 測定のためのプロープを製作し、NMR 信号を確認した。計算機実験として、 粘土粒子の配向性を考慮した媒体中での2次元モンテカルロ計算を行い、粘土粒子のアスペクト比と 屈曲度および拡散異方性ついて、NMR による実験結果と比較した。また、緩和法による空隙構造の解 析法を構築し、飽和圧密ベントナイトに適用した。

【研究成果(当該年度)】

平成19年度の研究実施内容として(A)ベントナイト亀裂充填モデルでの核種移行解析および(B)緩和法による飽和圧密ベントナイトの空隙構造の評価を行った。以下にそれぞれの項目の研究概要について述べる。

(A) ベントナイト 亀裂充填モデルでの 核種移行解析

ベントナイトの亀裂充填を考慮した核種移行評価を行うにあたり, 亀裂中への緩衝材の流出および その中での核種移行を弱連成させて解析した。解析は, 緩衝流出に関しては有限要素法の汎用ソフト ウェア ABAQUS6.7, 核種移行解析については,地下水中の溶存物質の挙動予測に広く用いられている 解析コード Dtransu-3D・EL を用いた。解析モデルとしては,第2次とりまとめにおいて用いられた 一次元平行平板亀裂モデルに基づき,ベントナイトが密度勾配を持って時間変化しながら亀裂中に存 在した場合と流出を考慮せずに亀裂中が地下水で満たされている場合での核種移行解析をそれぞれ 行い比較した。

亀裂中への緩衝材流出は、ベントナイトの流出試験により得られたベントナイトの固相拡散係数 (密度依存)に基づいた拡散モデルにより解析を行い、時間ステップ毎の緩衝材領域(コア部)および亀 裂領域(亀裂部)でのベントナイト密度を計算した。核種移行解析は、オーバーパックの性能が保証さ れている1000年後から開始し、ガラス固化体表面からコア部および亀裂部(20m長さ)への核種移行 を50000年後まで評価した。亀裂の頻度と開口幅は、釜石鉱山にて観測されている亀裂を参考に2本 /m、1.0本/m、0.5本/mの亀裂頻度にて0.5mm、1.0mm、3.0mmの亀裂開口幅を設定(合計9ケース) して解析を行った。対象とする核種については、ベントナイトへの収着を考慮しない水分子を想定し た。解析条件として岩石基質部拡散係数3×10<sup>-12</sup> m<sup>2</sup>/s、初期緩衝材乾燥密度1.6g/cm<sup>3</sup>、緩衝材厚さ 70 cm、地下水中の実効拡散係数2.54×10<sup>-9</sup> m<sup>2</sup>/s、核種の初期濃度は緩衝材端面を一定として解析を 行った。また亀裂を充填したベントナイト中の水の拡散係数は、昨年度までにNMRで取得した拡散係 数(密度依存)に基づいて設定した。

解析結果として,緩衝材の流出により引き起こされるコア部でのベントナイト密度の低下は,もっとも厳しい亀裂条件(亀裂開口幅 3mm, 亀裂頻度 2 本/m)において,10%程度であり、流出によるコア部での核種遅延性能に与える影響は,小さかった。流出を考慮しない場合の亀裂部での核種移行の影響は,亀裂部へのベントナイト充填により、流出を考慮しない場合と比較して大きな遅延効果が確認された。おおよその亀裂部への緩衝材流出による遅延性能の向上としては,20m地点に核種が到達する時間で,流出を考慮しない場合と比較して 3~20 倍の時間を要することがわかった。

(B)緩和法による飽和圧密ベントナイトの空隙構造の評価

圧密ベントナイトは、人工バリアの設計および安全性評価のために、様々な条件下で透水および拡 散試験が行われている。これら試験から得られる拡散係数や透水係数は、間隙率、ベントナイト乾燥 密度およびケイ砂混合率等のパラメータに影響され、飽和圧縮ベントナイト中の空隙構造と密接に関 係することが知られている。これらバリア性能に影響を与えるパラメータを系統的に把握するため、 核種の移行経路となる空隙構造を理解することは、性能評価の高度化に資する。従来、これら空隙構 造の評価を行うために、XRD や電子顕微鏡が用いられてきたが、飽和状態でのnm~mm オーダーの空 隙を評価することが困難であり、空隙構造に関する定量的な知見が得られていない。そこで、飽和状 態そのままで空隙構造の計測が可能なNMR 緩和法に着目し、飽和圧縮ベントナイトへ適用した.多孔 質媒体中を充填した流体(水)の出 NMR 測定から得られる緩和時間  $T_1$  は、空隙の面積/体積比( $S/N_{pore}$ と材料特有の緩和率  $\epsilon_1$  により、次のように関係付けられる.

$$\frac{1}{T_1} = \varepsilon_1 \left(\frac{S}{V}\right)_p$$

サイズの異なる空隙が複数存在する場合,緩和時間は上式の足し合わせとなり,磁化の減衰から CONTINにより $T_1$ 分布を求め(S/V)<sub>pore</sub>分布を評価することができる。<sup>1</sup>H NMR 測定は, Maran Ultra (Resonance Instrument, UK) にて反転回復法により行った. 圧縮ベントナイトは、クニゲルV1(ク ニミネ工業製)を飽和状態にて、それぞれ2層および3層水和になると予想される乾燥密度・。=1.8 お よび1.3 Mg/m<sup>3</sup> に圧縮成形(直径14mm,高さ10mm)し、作製した。これら圧縮ベントナイトを2ヶ月間、 体積拘束下にて蒸留水に浸漬し、飽和試料を得た。

最初に、含水により自由膨潤したベントナイトゲルの緩和時間測定を行いベントナイトの・<sub>1</sub>を求めた。ベントナイト粒子が水中に分散したゲルにおいて、(*S*/*N*)<sub>pore</sub>は、固液比C、比表面積S<sub>0</sub>および水の密度・<sub>\*</sub>により(*S*/*N*) pore = S<sub>0</sub>C・・<sub>\*</sub>と表すことができる。ここで、S<sub>0</sub>は、EGME 法により700 m<sup>2</sup>/g と求められている。Cの異なる13 試料の緩和測定を行い、1/*T*<sub>1</sub>に対するCの直線回帰から、・<sub>1</sub> = 0.212 nm/ms を得た。・。=1.3 および1.8 Mg/m<sup>3</sup> の飽和試料および含水率6.7%の粉末クニピアF(クニミネ工 業製)の緩和時間分布は、0.1-1.0 ms(領域A)、1.0-10 ms(領域B) および10 ms 以上(領域C) に観測され、明らかな・。依存性を示した。領域A でのピークは、粉末クニピアF で観測され、0.55 ms であった。このピークは、ベントナイト粒子表面の1 層水和に対応する水分子に相当すると考えられる。領域 B でのピークは、1.7 ms (・。= 1.8 Mg/m<sup>3</sup>) および 3.7 ms (・。= 1.3 Mg/m<sup>3</sup>) であった。水で 飽和した Na 型モンモリロナイトの XRD 測定から、2 層および 3 層水和の底面間隔は、1.5 nm および 1.8 nm を示すことが知られている。これらの結果から、層の厚み(~1nm)を差し引くことにより、空隙の(*S*/*N*)<sub>pore</sub>を容易に推定することができる。層間空隙を仮定した場合、底面間隔から予想される 2 層および 3 層水和の *T*<sub>1</sub> は、2.6 ms および 4.1 ms であり、NMR で観測された緩和時間分布と調和 的であった。また、領域 C のピークに関しては外部間隙に相当すると推定される。これら結果から飽和ベントナイトの空隙サイズを NMR 緩和法により評価可能であることが示された。

【成果の反映状況】

本研究で得られた研究成果は,高レベル放射性廃棄物の地層処分において人工バリアを構成する緩 衝材に係る安全評価の精度向上に反映されている。

【研究成果の公表】

<論文>

1) Evaluation of pore structure in compacted saturated bentonite using NMR relaxometry, T. Ohkubo and M. Yamaguchi, Magnetic Resonance in Porous Media 8 (査読有)

<国内会議>

1) 原子力学会秋の大会2007年秋の大会,NMR緩和法による飽和圧縮ベントナイトの空隙構造の解析、 大窪貴洋、菊池広人、山口真(査読無)

<国際会議>

 Evaluation of pore structure in compacted saturated bentonite using NMR relaxometry., "Clay in natural and engineered barriers for radioactive waste confinement" T. Ohkubo, H. Kikuchi, M. Yamaguchi, (査読無)

# 2.5 産学連携協力研究員(H18)平成19年度研究概要報告書

研究テーマ	地層環境の長期安定性の評価を目指したウラン・トリウム・ヘリウム年代測定システムの構築 Development of the (U-Th)/He dating system for trying to estimate the long-term stability of the geological environment					
研究者氏名	山田 国見					
研究協力者 所属・氏名	地層処分研究開発部門 東濃地科学ユニット自然事象研究 Gr. 花室 孝広 の品 中司 昇			GL 中司 昇		
研究実施場所	東濃地科学センター研究棟					
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 9 月 ~ 平成 21 年 3 月	当 討研 穷	亥 年 己 期	度間	平成	19 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月
【研究目的】						

本研究の目的は、地質環境の長期安定性を評価する手法の確立に資するため、東濃地科学センター が所有する希ガス質量分析装置や誘導結合プラズマ質量分析計を活用しつつ、信頼性の高い(U-Th)/He 年代測定システムを確立することである。すなわち、ハードウェアの改良だけではなく、測定手順や 試料選定に関するノウハウの構築を含む。特に結晶単位でのウラン・トリウムの定量について、東濃 地科学センターが所有するハードウェアにおける特性を明らかにすることにより、ノウハウを構築す る。

# 【研究内容(概要)】

1. ウラン、トリウム定量法の開発

測定は東濃ユニットの所有する四重極型誘導結合プラズマ質量分析装置を用いる。極少量(結晶-粒単位)での定量を行うため湿式操作中に試料が何らかの汚染を被る余地が大きいため、標準試料を 用いた繰り返し実験を通じて誤差を最小限におさえる操作手順を開発する。

2. 年代標準試料を用いた年代の較正と年代測定法の確立

ウラン、トリウム、ヘリウムの元素定量により見かけの年代を計算することができるが、これを地 質学的に意味のあるものとするために、既に何らかの方法で地質学的な意味付けをされた年代を持つ 試料を用いて較正する必要がある。これによって年代測定法としての適用範囲や測定精度を明らかに する。また、この際の測定結晶ひとつひとつについての記載から、試料選定に関するノウハウを確立 する。

【使用主要施設】

希ガス質量分析装置 VG5400(分解能 600)、レーザ抽出ライン(レーザ出力 25W、波長 1 /m、合焦径 0.1mm) ICP 四重極質量分析装置 SPQ9000(分解能 M/dM>2M)、X線顕微鏡 XGT5000、XRF ビードサンプ ラ、電子線プローブ分析装置

【進捗状況(当該年度までの概要)】

平成18年度は、四重極型誘導結合プラズマ質量分析装置を用いたウラン・トリウム定量法に関して、 XRF ビードサンプラを用いたガラス溶融法の実験を行った。また、ジルコン結晶の記載に関して、X 線顕微鏡と顕微ラマン分光法による観察を行った。

平成19年度は、標準溶液と天然ジルコンの溶解液を用いて、ウラン・トリウム定量法の開発を実施した。

【研究成果(当該年度)】

・ジルコンを測定溶液とするための手順決定

前年度の研究成果によりジルコンをガラス化することが可能になった。これをテフロン製の密閉 容器とホットプレートを用いて熱フッ酸で分解し、最終的に希硝酸溶液とする手順とその際の温 度・時間・液量などの条件を決定した。

用意するもの: 3cc ねじこみ蓋付きテフロン容器2つ、シリンジ、15cc 遠沈管、

- 1) テフロン容器に LiBO<sub>2</sub> ガラス入り小型るつぼとフッ酸 1cc を入れ、蓋をして約 110℃で 30 分加 熱する。
- 2) 超音波洗浄器で 30 分撹拌し、試料を確実に分解する。
- 3) 溶液をシリンジで2つめのテフロン容器に移す。元の容器に1ccの純水を加えて容器とるつぼ を洗浄し、これも2つめの容器に移す。
- 4) 元の容器に 1cc の塩酸を加えて超音波洗浄器で 30 分撹拌し、1cc の純水を加えて容器とるつ ぼを洗浄する。このときるつぼを取り出すが、できるだけ液体はテフロン容器に戻す。同時に 2つめの容器は約 160℃でフッ酸を蒸散させる。
- 5) 2つめの容器の蒸散が終わり、白〜薄黄色のリチウム塩が軽く乾燥したら 50・1 の塩酸を加え てもう一度蒸散させる。このときは約 110℃とする。
- 6) 元の容器の溶液を2つめの容器に移し、超音波洗浄器で30分撹拌する。
- 7) 15cc 遠沈管の重量を秤量する。
- 8) 溶液を 15cc 遠沈管に移す。各容器を希硝酸で洗浄してこれも遠沈管に移す。最終的に 10-15cc 程度の溶液とし、遠沈管の重量を秤量して溶液重量を求める。



使用機材(前列左より)3cc と7cc のねじこみ蓋付きテフロン容器、 (後列)エッペンドルフ製精密シリ ンジとチップ、15cc 遠沈管。

・アパタイトを測定溶液とするための手順決定

アパタイトは冷フッ酸で分解される。その後の手順は上記 2)以下と同様とした。

# ・定量法について

ICP 質量分析装置における測定手順を決定した。また、ジルコン溶液に対する標準添加法による 濃度測定の信頼性向上を目指して、電子天秤による秤量をもとに標準溶液の添加量を補正する測定 法を開発した。ただし、当初は標準添加法により濃度を決定するとしていたが、測定件数が膨大な ものになり、今後のルーチン化に支障を来す恐れがでてきた。このため、濃度既知の標準溶液に対 してマトリックスマッチングを行った検量線法による濃度測定のテストを行い、良い結果を得た。 今後はこの方法で年代測定を行っていく予定である。アパタイト溶液は融剤を用いないので標準添 加法/マトリックスマッチングの必要はない。検量線を引くための標準溶液をジルコンと共用する ことは、標準溶液調製の手間を省略できる一方でアパタイトとジルコンのウラン・トリウム含有量 の違いからあまり現実的ではないので、それぞれ別個に行う予定である。

### 【今後の予定(翌年度以降の概要)】

平成20年度は、年代標準試料を用いて結晶の物理的な特徴と年代の信頼性の関係を明らかにし、 これを用いて実際の試料へ応用する。また、第三者の利用することを念頭に置いた年代測定システ ムのマニュアル化を実施する予定である。

# 【研究成果の公表】

<論文>

- 1) K. Yamada and T. Tagami, 2008; Post-collisional exhumation history of the Tanzawa Tonalite Complex, inferred from (U-Th)/He thermochronology and fission-track analysis. JGR Solid Earth, 113, doi:10.1029/2007JB005368. (査読あり)
- 2) 山田国見; 東濃地科学センターにおける(U-Th)/He 年代測定システムの現状、FTNL20, pp. 61-62. (査読なし)
- 3) 山田国見; (U-Th)/He 熱年代学から見た丹沢トーナル複合岩体削剥史、月刊地球号外 No.57, pp. 26-33. (査読なし)

<国内会議>

1) 山田国見、花室孝広、田上高広、山田隆二、梅田浩司;日本原子力研究開発機構東濃地科学センターにおける(U-Th)/He 年代測定システムの現状報告、日本地球惑星科学連合 2007 大会 G123-P008.

<国際会議>

1) K.Yamada, T.Hanamuro, T.Tagami R.Yamada and K.Umeda; Results from the (U-Th)/He dating systems in Japan Atomic Energy Agency. AGU Fall meeting, V23B-1426.

表1.SI 基本単位						
甘木昌	SI 基本单	単位				
至十里	名称	記号				
長さ	ミメートル	m				
質 量	<b>計ログラム</b>	kg				
時 間	<b>影</b> 秒	S				
電況	紀アンペア	A				
熱力学温度	夏ケル ビン	Κ				
物質量	して ル	mol				
光愿	ミカン デ ラ	cd				

表2.基本単位を用いて表されるSI組立	単位の例
---------------------	------

细六号	SI 基本単位					
組立車	名称	記号				
面 積	平方メートル	m²				
体積	立法メートル	m <sup>3</sup>				
速さ,速度	メートル毎秒	m/s				
加速度	メートル毎秒毎秒	$m/s^2$				
波 数	毎 メ ー ト ル	m-1				
密度(質量密度)	キログラム毎立法メートル	ka/m <sup>3</sup>				
質量体積(比体積)	立法メートル毎キログラム	m <sup>3</sup> /ka				
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 <sup>3</sup>				
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 <sup>24</sup>	<b>з</b> 9	Y	10 <sup>-1</sup>	デシ	d		
10 <sup>21</sup>	ゼタ	Z	10 <sup>-2</sup>	センチ	С		
10 <sup>18</sup>	エクサ	E	10 <sup>-3</sup>	ミリ	m		
10 <sup>15</sup>	ペタ	Р	10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ		
10 <sup>12</sup>	テラ	Т	10 <sup>-9</sup>	ナノ	n		
10 <sup>9</sup>	ギ ガ	G	10 <sup>-12</sup>	ピコ	р		
10 <sup>6</sup>	メガ	М	10 <sup>-15</sup>	フェムト	f		
10 <sup>3</sup>	キ ロ	k	10 <sup>-18</sup>	アト	а		
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h	10 <sup>-21</sup>	ゼプト	z		
10 <sup>1</sup>	デ カ	da	10 <sup>-24</sup>	ヨクト	у		

#### 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

	31 組立单位						
組立量	名称	記문	他のSI単位による	SI基本単位による			
	L10 <sup>-</sup>		表し方	表し方			
平 面 角	ラジアン <sup>(a)</sup>	rad		m • m <sup>-1</sup> =1 <sup>(b)</sup>			
立 体 角	ステラジアン <sup>(a)</sup>	sr <sup>(c)</sup>		m <sup>2</sup> • m <sup>-2</sup> =1 <sup>(b)</sup>			
周 波 数	ヘルツ	Hz		s <sup>-1</sup>			
カ	ニュートン	Ν		m ∙kg •s⁻²			
压力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>	m <sup>−1</sup> • kg • s <sup>−2</sup>			
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N•m	m <sup>2</sup> ⋅ kg ⋅ s <sup>-2</sup>			
工率,放射束	ワット	W	J/s	m <sup>2</sup> ⋅ kg ⋅ s <sup>-3</sup>			
電荷,電気量	クーロン	С		s·A			
電位差(電圧),起電力	ボルト	V	W/A	m <sup>2</sup> ⋅ kg ⋅ s <sup>-3</sup> ⋅ A <sup>-1</sup>			
静電容量	ファラド	F	C/V	$m^2 \cdot kg^1 \cdot s^4 \cdot A^2$			
電 気 抵 抗	オーム		V/A	m <sup>2</sup> ⋅ kg ⋅ s <sup>-3</sup> ⋅ A <sup>-2</sup>			
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	m <sup>2</sup> • kg <sup>-1</sup> • s <sup>3</sup> • A <sup>2</sup>			
磁束	ウエーバ	Wb	٧·s	m <sup>2</sup> • kg • s <sup>-2</sup> • A <sup>-1</sup>			
磁束密度	テスラ	Т	Wb/m <sup>2</sup>	$kg \cdot s^2 \cdot A^1$			
インダクタンス	ヘンリー	Н	Wb/A	m <sup>2</sup> • kg • s <sup>-2</sup> • A <sup>-2</sup>			
セ ル シ ウ ス 温 度	セルシウス度 <sup>(d)</sup>			K			
光東	ルーメン	Im	cd • sr <sup>(c)</sup>	$m^2 \cdot m^2 \cdot cd=cd$			
照度	ルクス	١x	lm/m <sup>2</sup>	$m^2 \cdot m^{-4} \cdot cd = m^{-2} \cdot cd$			
(放射性核種の)放射能	ベクレル	Bq		<b>s</b> <sup>-1</sup>			
吸収線量、質量エネル	グレイ	Gv	J/ka	m <sup>2</sup> • s <sup>-2</sup>			
モー分与、カーマ		- )	2. 1.9				
禄重当重,周辺緑重当 旱 七向州组旱业旱 府		<u>e</u> .,	1/kg	22			
里,刀凹注絲重日重,他 人始星出星 知然始星出	- ~ <i>w</i> r	3V	J/Kg	m⁻•s⁻			
八称里当里, 組織跡里当	1			l			

(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のいくつかの用例は表4に示されている。
(b)実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号"1"は明示されない。
(c)測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。
(d)この単位は、例としてミリセルシウス度m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

组立를			SI 組立単位											
記立里					名称				記号	SI	基本単位による表し方			
粘				度	パ	~	ス	D	J	レ利	少	Pa·s	m <sup>-1</sup> ·	∙kg•s <sup>-1</sup>
力の	- F	・メ	ン	۲	=	<u>-</u> -	- ト	シ	メ-	- トル	И	N•m	m²•	kg • s <sup>-2</sup>
表	面	張		力	=	<u>-</u> -	• Þ:	ン毎	メ-	ートル	И	N/m	kg۰	s <sup>-2</sup>
角	迓	2		度	ラ	ジ	· 7	7 2	ン:	毎 利	Ŀ	rad/s	۳・۱	$n^{-1} \cdot s^{-1} = s^{-1}$
角	加	速		度	ラ	ジ	アこ	ン毎	₹Ŧ	方利	少	rad/s <sup>2</sup>	m۰ı	n <sup>-1</sup> • s <sup>-2</sup> =s <sup>-2</sup>
熱流	密度,	放り	射 照	度	ヮ	ット	·毎	平方	メ-	-トル		W/m <sup>2</sup>	kg۰	s <sup>-3</sup>
熱容量	1, I	ント	ロピ	-	ジ	<u>-</u> ב	- Jl	·毎·	ケル	レビン	4	J/K	۳²۰	$kg \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
質量熱	容量(	比熱	容量)	),	ジ	ı –	·ル	毎キ	ログ	ブラム		$1/(ka \cdot k)$	2	
質 量	エン	F [	コピ	-	毎	ケル	<i>、</i> ビ:	ン				J/ (Ky * K)	m•	S • K
質量	エネ	、ル	ギ	-	= 2		. 11.4	亩土	<b>п</b> ⁄	ブニ ハ		l/ka	m <sup>2</sup> .	o <sup>-2</sup> . V <sup>-1</sup>
(比	エネ	ルキ	- <sup>-</sup>	)	1	-	101	<b>4</b> 7	ц,	, , , ,	۱.	J/Kg		5 · N
埶	伝	道		굻	יס	ット	毎.	メー	トJ	レ毎ケ	1	W/(m•K)		ka • c <sup>-3</sup> • K <sup>-1</sup>
711	14			-	JΓI	ビン	'					117 (111 IX)		ky s s k
休積	エネ	: IL	ギ	_	ジ	ı –	·ル	軍立	方>	ヘート	·	1/m <sup>3</sup>	m <sup>-1</sup>	ka • e <sup>-2</sup>
- 18					ル							<b>J</b> / III		ry S
電	界の	) -	強	さ	ボ	ル	ト 4	毎メ		トЛ	И	V/m	m۰l	kg • s <sup>-3</sup> • A <sup>-1</sup>
体	積	雷		荷	ク・	- 🗆	レギ	軍立	方>	<b>イート</b>	·	C/m <sup>3</sup>	m <sup>-3</sup>	· s · A
	14			1.3	ル							0711		<b>3</b> A
雷	気	変		位	ク・	- 🗆	レギ	軍平	方)	<b>イート</b>	·	$C/m^2$	m <sup>-2</sup>	· s · A
	~ -	. ^		-	Jν	_		-				<b>0</b> 7 m		
誘	電	[		率	7	アラ	ラド	毎.	メ-	- ト J	4	F/m	m <sup>-s</sup>	• kg ¯' • s <sup>‡</sup> • A²
透	饭	£		举		יע	) —	÷⊞;	~-	- F J	Ч	H/m	m۰l	kg • s <sup>-2</sup> • A <sup>-2</sup>
モル	エネ	5 11	+	-	シ	ב	_	JV.	毎	ŧл	Ч	J/mol	m٤٠	kg•s <sup>-2</sup> •mol <sup>-1</sup>
モルモ	エン   ル	- D 1 1	ビ - 容	,量	ジェ	ュー ン	いれ	毎モ	ルも	身ケル	ĺ	J/(mol⋅K)	m²•	kg • s <sup>-2</sup> • K <sup>-1</sup> • mol <sup>-1</sup>
昭射線	量 ( X :	、 線 及 7	「線	5		- r	יעו	毎キ	П/	ブラノ		C/ka	ka <sup>-1</sup>	• <b>s</b> • <b>A</b>
吸	12、編		, 量	率	ゲ	Ē	/	1		王利	Ŀ	Gv/s	m <sup>2</sup> .	s <sup>-3</sup>
放	射	強	_	度	5	ット	毎	ステ	5	ジアン		W/sr	m4 •	$m^{-2} \cdot ka \cdot s^{-3} = m^2 \cdot ka \cdot s^{-3}$
11				-	, רי	ット	毎	平方	×-	- トル		2	2	
灰	射	輝		皮	毎	えテ	÷Ē	ジア	5			W/(m⁺・sr)	m٤٠	m <sup>-</sup> • kg • s <sup>-</sup> = kg • s <sup>-</sup>

表6.国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h =60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86400 s
度	۰	1°=( /180) rad
分		1 =(1/60) ° =( /10800) rad
秒	**	1 "=(1/60) =( /648000) rad
リットル	I, L	$1I=1 \text{ dm}^3=10^{-3}\text{m}^3$
トン	t	1t=10 <sup>3</sup> kg
ネーパ	Np	1Np=1
ベル	В	1B=(1/2)In10(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	1eV=1.60217733(49) × 10 <sup>-19</sup> J				
統一原子質量単位	u	1u=1.6605402(10) × 10 <sup>-27</sup> kg				
天文単位	ua	1ua=1.49597870691(30) × 10 <sup>11</sup> m				

表8.国際単位系に属さないが国際単位系と

	研用されるての他の単位						
	名称		記号	SI 単位であらわされる数値			
海		里		1 海里=1852m			
)	ッ	۲		1 ノット=1海里毎時=(1852/3600)m/s			
ア	-	ル	а	1 a=1 dam <sup>2</sup> =10 <sup>2</sup> m <sup>2</sup>			
$\land$	クタ	- JV	ha	1 ha=1 hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>			
バ	-	ル	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10 <sup>5</sup> Pa			
オン	グスト	ローム		1 =0.1nm=10 <sup>-10</sup> m			
バ	-	ン	b	1 b=100 fm <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup>			

素 9 因右の夕称を今む℃℃9組立単位

衣 9. 固有の石标を古る005組立手位							
名称	記号	SI 単位であらわされる数値					
エルグ	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J					
ダイン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N					
ポ ア ズ	Р	1 P=1 dyn⋅s/cm²=0 1Pa⋅s					
ストークス	St	1 St =1 cm <sup>2</sup> /s=10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> /s					
ガ ウ ス	G	1 G ≙10 <sup>-4</sup> T					
エルステッド	0e	1 Oe ≙(1000/4 )A/m					
マクスウェル	Mx	1 Mx ≙ 0 <sup>-8</sup> Wb					
スチルブ	sb	$1 \text{ sb} = 1 \text{ cd/cm}^2 = 10^4 \text{ cd/m}^2$					
ホート ト	ph	1 ph=10 <sup>4</sup> 1x					
ガ ル	Gal	1 Gal =1cm/s <sup>2</sup> =10 <sup>-2</sup> m/s <sup>2</sup>					

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 <sup>10</sup> Bq					
レントゲン	R	$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{C/kg}$					
ラ ド	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy					
レ ム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv					
X 線 単 位		1X unit=1.002×10 <sup>-4</sup> nm					
ガンマ		1 =1 nT=10 <sup>-9</sup> T					
ジャンスキー	Jy	1 Jy=10 <sup>-26</sup> ₩ • m <sup>-2</sup> · Hz <sup>-1</sup>					
フェルミ		1 fermi=1 fm=10 <sup>-15</sup> m					
メートル系カラット		1 metric carat = 200 mg = $2 \times 10^{-4}$ kg					
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa					
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa					
カロリー	cal						
ミクロン	μ	1 u = 1 un = 10 <sup>-6</sup> m					