



JAEA-Review  
2008-042

JAEA-Review

## 先行基礎工学研究に関する平成19年度研究概要報告

Brief Report of the JAEA Cooperative Research(A) on the Nuclear Fuel Cycle for 2007

(編)研究協力課

(Ed.)Research Cooperation Section

産学連携推進部

Industrial Collaboration Promotion Department

October 2008

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

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

## 先行基礎工学研究に関する平成 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 6 月 20 日 受理)

機構では、大学及び関連研究機関(以下「大学等」という。)との研究協力の推進を図るため、平成 7 年度から先行基礎工学研究協力制度を発足させ、平成 19 年度で 13 年目を迎えた。

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

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

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

本報告書は、平成 19 年度に実施した高速増殖炉関係、核燃料サイクル関係、放射線安全関係及び地層処分・地層科学関係の先行基礎工学研究に関する 32 件の研究協力課題の実施結果についてその概要をまとめたものである。なお、32 件の研究協力課題のうち、高速増殖炉関係の 6 件、核燃料サイクル関係の 2 件及び地層処分・地層科学関係の 2 件の合計 10 件については平成 19 年度で終了した。

**Brief Report of the JAEA Cooperative Research (A) on the Nuclear Fuel Cycle  
for 2007**

( Ed. ) Research Cooperation Section

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

( Received June 20 , 2008 )

The Japan Atomic Energy Agency (JAEA) started the JAEA Cooperative Research Scheme (A) on the Nuclear Fuel Cycle in 1995 in order to promote research collaboration with universities and other research institutes (referred to as “universities, etc.” below), which means that the fiscal year 2007 was the thirteenth year of the scheme.

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

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

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

This report includes a summary of the results of the research carried out in fiscal year 2007 on 32 research collaboration subjects for preceding basic engineering research related to fast breeder reactors, the nuclear fuel cycle, radiation safety and geological disposal/geoscience; twelve of which ended in 2007. Of these, six were related to fast breeder reactors, two to the nuclear fuel cycle, and two to geological disposal/geoscience.

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

## 目次

1. 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究協力課題一覧	1
2. 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告	
2.1 高速増殖炉関係	
2.1.1 シリコン系母材ターゲットの製造条件の確立と特性評価	11
2.1.2 析出核生成・成長制御による高温長時間安定な微細 MX の形成	18
2.1.3 高クロム鋼の 法によるクリープ寿命評価と組織安定性に関する研究	22
2.1.4 ナトリウムと水が混合するときの流動と熱伝達に関する基礎研究	34
2.1.5 応力再配分モデルを用いた構造不連続部クリープ疲労強度評価法に関する研究	41
2.1.6 機械構造物の破壊・破損に係わる地震エネルギー入力の影響	47
2.1.7 多軸応力下での長時間粒界損傷の予測に関する理論および実験的研究	53
2.1.8 タングステン, モリブデン固溶強化 Fe-Cr 合金の経時変化に関する研究	57
2.1.9 ひずみエネルギーを考慮した熱力学的アプローチによる相変態挙動解析	60
2.1.10 DPIV による複雑流路内 High Time Resolved 乱流熱対流データベース	67
2.1.11 気泡・溶存ガス - 冷却材の相互作用モデル開発と高速炉システムへの応用	71
2.1.12 ナノ粒子分散強化オーステナイト鋼の創成の基礎研究	77
2.1.13 高レイノルズ数領域におけるマルチエルボ内複雑流動構造の解明	80
2.1.14 場の理論的マルチスケールアプローチに基づく高クロムフェライト系耐熱鋼の 高温長時間損傷機構とその評価法に関する研究	88
2.1.15 高い核拡散抵抗性を有する Pu を生成する高速炉ブランケット燃料の研究	91
2.1.16 粒界制御法による改良型高速炉用耐照射材料の開発	97
2.1.17 蒸気発生器内部の音響伝搬シミュレーションに関する研究	100
2.1.18 海塩 ESCC 損傷機構の解明とキャビテーションによる材料強化に関する研究	103
2.2 核燃料サイクル関係	
2.2.1 クラウン化合物を包括固定したマイクロカプセルの合成と発熱元素の 精密分離技術の開発	111
2.2.2 ウラン酸化物中に存在するランタニドの選択的反応及びその分離手法に関する研究	114
2.2.3 イオン性液体中のウランの化学形態、酸化還元挙動、電解析出の解明	118
2.2.4 モリブデン酸溶融塩に関する溶質元素の熱力学データ解析及びプロセス評価に 関する研究	125
2.3 放射線安全関係	
2.3.1 LX 線検出超伝導相転移端温度計マイクロカロリメーターの開発	131

2.4 地層処分・地層科学関係	
2.4.1 アクチノイド元素の溶解度に関する熱力学データの整備と検証	141
2.4.2 塩素安定同位体比を用いた水理地質構造モデル評価技術の開発	145
2.4.3 東濃地域を対象とした亀裂分布のマルチスケールモデリング技術の開発	148
2.4.4 (U-Th)/He 年代測定システムの構築と地質試料への適用に関する研究	152
2.4.5 断層帯及び亀裂を考慮した堆積岩地盤の水理学的構造の決定と 地下水の移動解析	155
2.4.6 堆積岩の微視的性状把握と水 - 岩石反応実験による地球化学特性の解明	158
2.4.7 ガラス固化体の長期性能に係る各種反応パラメタの体系的評価	175
2.4.8 アルカリフロントにおけるコロイド状ケイ酸の動的挙動と核種移行との関係	178
2.4.9 イベント解析技術の拡張	182

Contents

1.	Research theme list by the JAEA Cooperative Research (A) on the Nuclear Fuel Cycle for 2007 .....	1
2.	Brief report of the JAEA Cooperative Research (A) on the Nuclear Fuel Cycle for 2007	
2.1	Fast Breeder Reactor	
2.1.1	Establishment of Fabrication Process and Property Evaluation of Si-Bearing Ceramics as Target for Transmutation.....	11
2.1.2	Formation of Fine MX, Stable at High Temperature for Long Time, by Controlling Nucleation and Growth Processes of Precipitation.....	18
2.1.3	Study of Creep Life Assessment Using Omega Method and Stability of Microstructure during Creep Deformation in High Cr Steels.....	22
2.1.4	Experimental study on sodium-water reaction in steam generator of sodium-cooled fast reactor: Flow and heat transfer around a heat transfer tube.....	34
2.1.5	Study on creep-fatigue evaluation method of structural discontinuities by the SRL model .....	41
2.1.6	Influence of earthquake energy input in fatigue fracture of mechanical structure .....	47
2.1.7	Theoretical and experimental study on evaluation of grain boundary damage under multi axial stress state.....	53
2.1.8	Aging effect on micro structure evolution of W and/or Mo bearing alloys .....	57
2.1.9	Analysis of the phase transformation in austenitic steels with the aid of thermodynamic approach considering strain energy.....	60
2.1.10	High time resolved database of turbulence in complicated geometries using dynamic PIV.....	67
2.1.11	Mechanistic Modeling of Bubbles and Dissolved Gas in Liquid Sodium and Its Application to Fast Reactor Systems .....	71
2.1.12	Creative Fundamental Study of Nano-particle Strengthened Austenitic Steels .....	77
2.1.13	Clarification of complex flow structure in a multi-elbow in a high Re number regime .....	80
2.1.14	Field Theory-based Multiscale Approach toward Identification of Damage Evolution Mechanism and Development of Evaluation Method for High Cr Ferritic Steel during Long-Term Creep .....	88
2.1.15	Blanket Fuel with High Proliferation Resistance in Fast Breeder Reactor.....	91
2.1.16	Research and Development of High Performance FBR Core Materials Based on Grain Boundary Engineering.....	97
2.1.17	Study on simulation of acoustic propagation within a steam generator of FBR .....	100
2.1.18	Clarification of the sea salt ESCC (external Stress Corrosion Cracking) damaging mechanism and the improvement of material strength due to cavitation.....	103
2.2	Nuclear Fuel Cycle	
2.2.1	Synthesis of microcapsules enclosing with crown compounds and development of precise separation method for heat-generating element .....	111
2.2.2	Study of selective chemical reaction and separation of lanthanide elements in uranium oxide.....	114
2.2.3	Elucidation of chemical form, redox behavior and electrolytic deposition about uranium in ionic liquid.....	118
2.2.4	Study on thermodynamics data of solute elements and evaluation of pyrochemical process using molybdenum oxide melt.....	125

2.3	Radiation Safety	
2.3.1	Development of TES microcalorimeter for high precision spectroscopy of LX-rays emitted from transuranium elements.....	131
2.4	Geological Disposal / Geoscience	
2.4.1	Measurement and review of thermodynamic data in the solubility of actinide elements .....	141
2.4.2	Development of hydrogeological modeling approach using chlorine Isotope fractionation value .....	145
2.4.3	Development of multiscale modelling techniques of fracture distribution: practical and analytical studies in the Tono area, Japan .....	148
2.4.4	Development of the (U-Th)/He dating system and application for geological samples .....	152
2.4.5	Determination of hydraulic-property structures of a sedimentary basin considering fault and fracture zones and underground fluid-flow analysis.....	155
2.4.6	Geochemical microanalysis of minerals, rocks and groundwater: modeling the elemental behavior in sedimentary rocks by microstructural and microgeochemical analysis and rock-water interaction.....	158
2.4.7	Evaluation of HLW glass performance by kinetic and parametric approach.....	175
2.4.8	Dynamic Behavior of Colloidal Silicic Acid in the Alkaline Front and its Influences on the Nuclide Migration .....	178
2.4.9	Expansion of event analysis technique.....	182

1. 産学連携協力研究員による平成 18 年度研究テーマ一覧

This is a blank page.

平成 19 年度先行基礎工学研究協力課題一覧(1/3)

□…平成 19 年度で終了した研究協力課題

No.	研究協力テーマ 研究協力課題	機構側 受入箇所	機構側 研究者名	協力 形態	提案者 所属機関・氏名	研究 期間
<b>【高速増殖炉関係】</b>						
1	高性能マイナーアクチニド含有ターゲットの基礎的特性に関する研究 シリコン系母材ターゲットの製造条件の確立と特性評価	大洗 燃材部 AGS	三輪 周平 逢坂 正彦 (MMS 館 義明)	共同 研究	東京工業大学 原子炉工学研究所 教授 矢野 豊彦	H17 年度 ～ H19 年度
2	高クロム鋼における強化機構の高温長時間安定性に関する研究 (1)析出核生成・成長制御による高温長時間安定な微細 M の形成	次世代部門 要素 U 炉構材料 Gr.	若井 隆純	共同 研究	群馬大学 大学院工学研究科 機械システム工学専攻 教授 中澤 崇徳	H17 年度 ～ H19 年度
3	(2)高クロム鋼の Ω 法によるクリープ寿命評価と組織安定性に関する研究				九州大学 大学院 総合理工学研究院 融合創造理工学部 教授 中島 英治	
4	ナトリウム水反応の影響緩和に関する研究 ナトリウムと水が混合するときの流動と熱伝達に関する基礎研究	次世代部門 システム U シミュレーション Gr.	大島 宏之 栗原 成計	共同 研究	北海道大学 大学院 工学研究科 I-ICMF-環境システム専攻 教授 杉山 憲一郎	H17 年度 ～ H19 年度
5	応用再分配モデルに基づく高温構造物強度評価法に関する研究 応用再分配モデルを用いた構造不連続部クリープ疲労強度評価法に関する研究	次世代部門 要素 U 構造 Gr.	笠原 直人 川崎 信史	共同 研究	筑波大学 大学院 システム情報工学研究科 教授 渡部 修	H17 年度 ～ H19 年度
6	配管系の動的強度評価法に関する基礎研究 機械構造物の破壊・破損に係わる地震エネルギー入力の影響	次世代部門 要素 U 構造 Gr.	北村 誠司	共同 研究	東京電機大学 工学部 機械工学科 教授 藤田 聡	H17 年度 ～ H19 年度
7	結晶粒度と長時間クリープ強度の相関評価に関する研究 多軸応力下での長時間粒界損傷の予測に関する理論および実験的研究	次世代部門 要素 U 炉構材料 Gr.	若井 隆純	共同 研究	立命館大学 理工学部 教授 坂根 政男	H18 年度 ～ H20 年度
8	固溶強化機構の長時間安定性に及ぼす微量元素の影響に関する研究 タングステン、モリブデン固溶強化 Fe-Cr 合金の経時変化に関する研究	次世代部門 要素 U 炉構材料 Gr.	若井 隆純	客員 研究 員	東北大学 金属材料研究所 ナノ金属高温材料学 客員教授 安彦 兼次	H18 年度 ～ H20 年度
9	実機使用中の鉄鋼材料における組織/材料特性の変化予測に関する研究 ひずみエネルギーを考慮した熱力学的アプローチによる相変態挙動解析	次世代部門 要素 U 炉構材料 Gr.	高屋 茂	共同 研究	名古屋大学 工学研究科 准教授 村田 純教	H18 年度 ～ H20 年度
10	変形燃料ピンバンドル内熱流動評価手法に関する研究 DPIV による複雑流路内 High Time Resolved 乱流熱対流データベース	次世代部門 システム U シミュレーション Gr.	大島 宏之 内堀 昭寛	共同 研究	東京大学 大学院 新領域創成科学研究科 准教授 染矢 聡	H18 年度 ～ H20 年度
11	原子炉系統内溶存ガス挙動評価に関する研究 気泡・溶存ガス - 冷却材の相互作用モデル開発と高速炉システムへの応用	次世代部門 システム U シミュレーション Gr.	伊藤 啓	共同 研究	大阪大学 大学院 工学研究科 環境・ICMF-工学専攻 教授 山口 彰	H18 年度 ～ H20 年度
12	ナノコンポジットスーパー_steel の創製 ナノ粒子分散強化オーステナイト鋼の創成の基礎研究	大洗 燃材部 MMS	山下 真一郎 (次世代部門 要素 U 炉構材料 Gr. 大塚 知史)	共同 研究	北海道大学 大学院 工学研究科 材料科学専攻 教授 大貫 惣明	H18 年度 ～ H20 年度
13	高速炉冷却系配管における流れの剥離現象に関する基礎研究 高レイノルズ数領域におけるマルチエルボ内複雑流動構造の解明	次世代部門 設計統括 U FBR 設計 Gr.	山野 秀将 中西 繁之	共同 研究	東北大学 大学院工学研究科 量子ICMF-工学専攻 教授 橋爪 秀利	H19 年度 ～ H21 年度

平成 19 年度先行基礎工学研究協力課題一覧(2/3)

□…平成 19 年度で終了した研究協力課題

No.	研究協力テーマ 研究協力課題	機構側 受入箇所	機構側 研究者名	協力 形態	提案者 所属機関・氏名	研究 期間
<b>【高速増殖炉関係】</b>						
14	マルチスケールアプローチによる耐熱鋼の強度低下因子の解明に関する研究 場の理論的マルチスケールアプローチに基づく高クロムフェライト系耐熱鋼の高温長時間損傷機構とその評価法に関する研究	次世代部門 要素 U 炉構材料 Gr.	鬼澤 高志	共同 研究	神戸大学 工学部 准教授 長谷部 忠司	H19 年度 ~ H21 年度
15	核拡散抵抗性を有する PU を生成する燃料概念の構築 高い核拡散抵抗性を有する PU を生成する高速炉ブランケット燃料の研究	大洗 燃材部 AGS	小山 真一	共同 研究	東京工業大学 原子炉工学研究所 助教 相楽 洋	H19 年度 ~ H21 年度
16	粒界組織制御による高性能 FBR 炉心材料の開発に関する研究 粒界制御法による改良型高速炉用耐照射材料の開発	大洗 燃材部 MMS	山下 真一郎	共同 研究	北海道大学 工研院-変換リサイクル 研究センター 教授 渡辺 精一	H19 年度 ~ H21 年度
17	音響・振動伝搬シミュレーションに関する研究 蒸気発生器内部の音響伝搬シミュレーションに関する研究	次世代部門 プラント技術 U トリウム技術 Gr	上田 雅司	共同 研究	福井大学 大学院工学研究科 原子力・工研院-安全 工学専攻 教授 飯井 俊行	H19 年度 ~ H21 年度
18	塩化物による環境助長割れ防止及び強化に関する基礎研究 海塩 ESCC 損傷機構の解明とキャビテーションによる材料強化に関する研究	次世代部門 プラント技術 U プラント信頼性 Gr	矢田 浩基	共同 研究	福井大学 大学院工学研究科 機械工学専攻 教授 服部 修次	H19 年度 ~ H21 年度
<b>【核燃料サイクル関係】</b>						
19	CHON 固定抽出剤を用いた核分裂生成物の高度元素分離技術に関する研究 クラウン化合物を包括固定したマイクロカプセルの合成と発熱元素精密分離技術の開発	東海 サイクル研 サイクル試験部 試験第 1 課	紙谷 正仁	共同 研究	東北大学 大学院 工学研究科 量子工研院-工学専攻 教授 三村 均	H17 年度 ~ H19 年度
20	選択反応による再処理工程中のランタニド分析手法に関する研究 ウラン酸化物中に存在するランタニドの選択的反応及びその分離手法に関する研究	東海 サイクル研 再処理センター 技開部 技開課	佐藤 宗一 (施設管理部 分析第 1 課 北尾 貴彦)	共同 研究	東北大学 多元物質科学研究所 准教授 佐藤 修彰	H17 年度 ~ H19 年度
21	イオン性液体を抽出媒体としたウラン回収技術に関する研究 イオン性液体中のウランの化学形態、酸化還元挙動、電解析出の解明	人形峠 環境保全技術 開発部 遠心機課	大橋 裕介	共同 研究	東京工業大学 原子炉工学研究所 准教授 池田 泰久	H18 年度 ~ H20 年度
22	モリブデン酸塩を用いた乾式再処理法の開発 モリブデン酸溶融塩に関する溶質元素の熱力学データ解析及びプロセス評価に関する研究	次世代部門 再処理システム U 乾式再処理 Gr	福嶋 峰夫	共同 研究	京都大学 工研院-科学研究科 教授 岩瀬 正則	H19 年度 ~ H21 年度
<b>【放射線安全関係】</b>						
23	プルトニウム同位体等の LX 線高精度分光分析に係る研究 LX 線検出超伝導相転移端温度計マイクロカロリメーターの開発	東海 サイクル研 放管部 放管 1 課	高崎 浩司	共同 研究	九州大学 大学院 工学研究院 准教授 前畑 京介	H18 年度 ~ H20 年度

## 平成 19 年度先行基礎工学研究協力課題一覧(3/3)

 …平成 19 年度で終了した研究協力課題

No.	研究協力テーマ 研究協力課題	機構側 受入箇所	機構側 研究者名	協力 形態	提案者 所属機関・氏名	研究 期間
<b>【地層処分・地層科学関係】</b>						
24	地下水におけるアクチニド元素の溶解度に関する基礎研究 アクチニド元素の溶解度に関する熱力学データの整備と検証	地層部門 基盤 U 核種移行 Gr	藤原 健壯	共同 研究	京都大学 大学院 工学研究科 教授 森山 裕丈	H17 年度 ～ H19 年度
25	地質環境モデルの構築と解析手法の評価 塩素安定同位体比を用いた水理地質構造モデル評価技術の開発	地層部門 幌延 U 堆積岩地質 Gr.	國丸 貴紀	共同 研究	東京大学 大学院 新領域創成科学研究科 環境システム学専攻 准教授 徳永 朋祥	H17 年度 ～ H19 年度
26	マルチスケールでの地質構造・物性の空間モデリング技術の開発 東濃地域を対象とした亀裂分布のマルチスケールモデリング技術の開発	地層部門 東濃 U 結晶質岩地質 Gr.	天野 健治	共同 研究	熊本大学 工学部 自然科学研究科 複合新領域科学専攻 教授 小池 克明	H18 年度 ～ H20 年度
27	低温領域における熱履歴解析に関する基礎研究 (U-Th)/He 年代測定システムの構築と地質試料への適用に関する研究	地層部門 東濃 U 自然事象 Gr.	花室 孝広 山田 国見	共同 研究	京都大学 大学院 理学研究科 教授 田上 高広	H18 年度 ～ H20 年度
28	断層帯の影響を考慮した地下水の流動解析 断層帯及び亀裂を考慮した堆積岩地盤の水理学的構造の決定と地下水の移動解析	地層部門 幌延 U 堆積岩地質 Gr.	舟木 泰智	共同 研究	広島大学 大学院 理学研究科 地球惑星システム学専攻 教授 嶋本 利彦	H18 年度 ～ H20 年度
29	岩石、鉱物、地下水に関する微視的領域における地球化学的研究 堆積岩の微視的性状把握と水 - 岩石反応実験による地球化学特性の解明	地層部門 幌延 U 堆積岩地質 Gr.	國丸 貴紀	共同 研究	筑波大学 生命環境科学研究科 講師 小室 光世	H18 年度 ～ H20 年度
30	ガラス固化体の長期性能評価高度化に関する研究 ガラス固化体の長期性能に係る各種反応パラメタの体系的評価	地層処分部門 基盤 U 核種移行 Gr	三ツ井 誠一郎	共同 研究	九州大学 大学院工学研究院 I-1 棟 量子工学部門 准教授 稲垣 八穂広	H19 年度 ～ H21 年度
31	地層処分の人工バリア/天然バリア境界で生成する無機コロイドの特性に関する研究 アルカリフロントにおけるコロイド状ケイ酸の動的挙動と核種移行との関係	地層処分部門 基盤 U 核種移行 Gr	飯島 和毅	共同 研究	東北大学 大学院 量子I-1 棟 工学専攻 准教授 新堀 雄一	H19 年度 ～ H21 年度
32	精密制御定常信号システムデータの解析技術の高度化 イベント解析技術の拡張	地層部門 幌延 U 堆積岩地質 Gr	浅森 浩一	共同 研究	名古屋大学 大学院 環境学研究科 准教授 渡部 俊樹	H19 年度 ～ H21 年度

This is a blank page.

## 2. 産学連携協力研究員による平成 18 年度研究概要報告

This is a blank page.

## 2.1 高速増殖炉関係

This is a blank page.

2.1.1 先行基礎工学研究に関する平成19年度研究概要報告書

研究協力テーマ	高性能マイナーアクチニド含有ターゲットの基礎的特性に関する研究		
研究協力課題	シリコン系母材ターゲットの製造条件の確立と特性評価 Establishment of Fabrication Process and Property Evaluation of Si-Bearing Ceramics as Target for Transmutation		
研究者所属、氏名			
大学側	東京工業大学 原子炉工学研究所 矢野豊彦, 今井雅三 理工学研究科原子核工学専攻 山根純一		
機構側	大洗研究開発センター 燃料材料試験部 燃料試験課 三輪周平, 逢坂正彦 材料試験課 館 義昭		
研究実施場所	東京工業大学 原子炉工学研究所ニュークリアセラミックス実験室 大洗研究開発センター 燃料材料部 照射燃料試験施設		
通算研究期間	平成17年7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
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>環境負荷低減を目的としたマイナーアクチニド(MA)の処理及び処分方法として、照射によりMAを核変換させ、MAの放射性毒性を低減させるという概念が挙げられており、種々検討が行われている。しかし、高濃度のMAを不活性母材に分散させたターゲット(照射用固化物)については最終的な形態は未だ選定されていない。本研究では、従来の研究から、耐照射性、熱的特性及び化学的特性の優れたシリコン系化合物を母材としたターゲットについて、その製造可能性と基礎的物性を実験的に評価し、照射後のスキームを含めてターゲットとしての適性を評価することを目的とする。</p>			
【研究内容(概要)】			
<p>ターゲットによるMAの核変換技術の開発は、欧州を中心としてMgOやMo、ZrO<sub>2</sub>、MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>等を母材としたターゲットについて、製造技術の開発、特性評価及び照射特性評価等の一連の研究が進められてきたが、最適な形態は未だ選定されていないというのが現状である。</p> <p>本研究では、種々の母材候補材のうち、他の候補材に比べて熱的特性、スエリング等の耐照射特性に優れ、高温における被覆管等との共存性が良好である窒化ケイ素(Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>)及び低熱膨張特性に優れ、優れた耐照射特性も期待されるポリュースイトについて着目した。ターゲットとしての総合的な適性を評価するためには、ターゲット製造方法の確立及びその基礎的物性を評価することが不可欠であるが、シリコン系化合物においては、MAを含有させたターゲット用母材としての製造方法は確立されていない。そこで本研究では、模擬MAとしてセリウム(Ce)を用いてCe含有Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>ターゲット及びポリュースイトターゲットを作製し、その基礎的物性を実験的に評価し、照射後の再処理および照射後処分のいずれかが適切であるかを含めて、最適な作製方法及び条件を確立する。また、これらの結果を基に実際に核燃料を使用したターゲットについても検討し、評価を行う。</p>			

## 【使用主要施設】

1. 東京工業大学 原子炉工学研究所  
(粉末調製機器、焼結用電気炉、熱伝導率測定装置、走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡、強度試験機、元素分析装置、熱重量分析装置、X線回折装置等)
2. 原子力研究開発機構 大洗研究開発センター 燃料材料試験部 照射燃料試験施設  
(粉末調製機器、焼成炉、X線回折装置等)

## 【進捗状況(当該年度までの概要)】

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

(1)  $\text{Si}_3\text{N}_4$ を母材とし、模擬MAとしてCeを含有したターゲット、またポリュースサイトを母材とし、セシウム(Cs)を含有したターゲットの作製試験を実施し、簡素なプロセスによる高密度焼結体の作製条件を検討した。この際、特にCe及びCsの蒸発を最小限に押さえる手法の開発に留意した。

(2) 得られたCe含有 $\text{Si}_3\text{N}_4$ 焼結体及びCs含有ポリュースサイト焼結体について、焼結密度、Ceの分布状態(微細構造)、熱的特性、熱安定性および機械的特性等の系統的な実験的測定及び評価を行い、前者についてはターゲット用母材としての適切な作製条件を見出した。後者については、Csの作製時および高温保持時に揮発があることを明らかにした。

平成18年度は、1.については東京工業大学の研究者が東京工業大学原子炉工学研究所の施設を利用して、2.については東京工業大学の分担者及び原子力機構の研究者が、日本原子力研究開発機構大洗研究開発センター燃料材料試験部照射燃料試験施設を利用して研究を行った。

1.  $\text{Si}_3\text{N}_4$ ターゲットの評価(東工大)

- (1) 焼結体中のCeの含有量を定量的に測定し、焼結体内部のCeの分布状態を明らかにした。
- (2) 作製したターゲットについて熱硝酸溶解性試験を行い、溶解挙動を明らかにした。
- (3) 焼結温度の低温化と、硝酸溶解性の向上を目的として、シリカ( $\text{SiO}_2$ )を焼結助剤として添加したターゲット、すなわち $\text{Si}_3\text{N}_4$ - $\text{CeO}_2$ - $\text{SiO}_2$ 系の焼結体を作製し、特性を評価した。

## 2. ホット試験準備(原子力機構)

- (1) 核燃料を使用したターゲット作製の粉末調製機器、焼成炉の整備を行った。
- (2) これらの設備を用いたコールド試験により、装置機器の性能確認を行った。

平成19年度は、東京工業大学の分担者が東京工業大学原子炉工学研究所の施設を利用して、また1.(3)については、東京工業大学の分担者及び原子力機構の研究者が、日本原子力研究開発機構大洗研究開発センター燃料材料試験部照射燃料試験施設を利用して研究を行った。

1.  $\text{Si}_3\text{N}_4$ ターゲットの作製実験

(1) 焼結温度の低温化を目的として焼結助剤の最適化を行い、焼結性を評価した。また、焼結体の特性評価として、熱伝導率評価、硝酸溶解性評価、高温安定性及び被覆材との共存性試験を行った。これらの結果により、低温にて高密度が得られ、Ceが均一に分散するターゲットの作製条件を見出した。

(2) ターゲットにおける模擬MAとしてのCeの高濃度化の可能性を検討した。

(3) Ceを用いたターゲットの作製条件を基に、核燃料を用いたターゲットの作製実験を行った。得られた焼結体について、収縮率、重量減量、密度等の焼結性の確認、および焼結体の組織評価を行い、基礎焼結特性を明らかにした。

## 2. 他候補の検討

他の母材候補として、窒化チタン(TiN)系、炭化ケイ素(SiC)系の焼結体作製と特性評価を行った。

## 3. 総合評価

3年間の研究成果を概観し、シリコン系化合物のターゲット母材の適性について、再処理等、全体のスキームを含めて総合的に評価した。

## 【研究成果 (当該年度)】

1.  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ターゲットの作製実験(1)  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ターゲットの焼結温度の低温化

## (a) 作製試験

$\text{Si}_3\text{N}_4$  の分解を抑え、焼結体内部の Ce 分布を均一化するために、焼結助剤として 5wt% の  $\text{MgO}$  と 3wt% の  $\text{SiO}_2$  を添加した焼結体を作製し、特性を評価した。この条件により、16wt%  $\text{CeO}_2$  含有で、常圧焼結、1500°C 未満の焼結温度により、相対密度 95% 以上の焼結体が作製可能であること、1450°C 付近で急速に緻密化して液相焼結の特徴を示すことを明らかにした。また、焼結温度が通常の窒化ケイ素焼結温度 (1750~1800°C) と比べて著しく低いために、窒化ケイ素の分解が極めて起こりにくいことを明らかにした。

(b) 低温焼結  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ターゲットの熱伝導率評価

焼結体の室温での熱伝導率は、焼結温度が高いほど高くなり、1650°C 焼結の条件により約 40 W/mK を示すことが分かった。ターゲットの微細組織観察結果より、熱伝導率に及ぼす焼結温度の影響は、焼結体中の  $\text{Si}_3\text{N}_4$  の粒成長に起因することを明らかにした。

(c) 低温焼結  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ターゲットの硝酸溶解性評価

1450°C で作製した焼結体を 3mol/l 硝酸、80°C で 200 時間浸漬させた結果、溶解量は 18 年度に評価した  $\text{Si}_3\text{N}_4$ -16wt%  $\text{CeO}_2$  (1700°C 焼結) と同等あるいは、やや多い程度であり、全粒界相の約 1/4 であった。

(d) Ce 含有  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ターゲットの高温安定性及び被覆材との共存性

低温での緻密化が可能な 16wt%  $\text{CeO}_2$ -5wt%  $\text{MgO}$ -3wt%  $\text{SiO}_2$  を添加した  $\text{Si}_3\text{N}_4$  焼結体 (1550°C、4h、常圧  $\text{N}_2$  中焼結) を窒化ホウ素 (BN) 板に乗せ、常圧にて Ar 中で 100~500 時間保持した後、取り出し、重量変化を測定した。300 時間までの重量変化は  $\pm 0.02\%$  以下であり、それ以上保持時間が長くなると若干、重量増加傾向を示した。500 時間後の重量増加は 0.03% であった。雰囲気中に混在する極微量の酸素による表面酸化が原因と考えられる。

(e) Ce 含有  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ターゲットの被覆材との共存性

(d) と同一の焼結体を用いて、高速炉用ステンレス被覆材 (PNC316 鋼) との高温での共存性を検討した。表面を鏡面研磨した PNC316 鋼の上に鏡面研磨した焼結体に乗せ、800°C、常圧静止 Ar 中で 100 時間保持した後、接触面を観察した。各試料の接合は観察されず、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  焼結体は、鏡面を維持し、微細組織および EDX 分析結果においても変化は認められなかった。重量変化は -0.002% と測定誤差程度であった。一方、PNC316 鋼は全体に黒色に変色し、接触部分では凹凸がみられ、0.06% の重量増加があった。表面では熱変性によると思われる Cr 濃度の高い析出物があった。

(2) 高濃度 Ce 含有  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ターゲットの作製条件の検討

Ce を 30wt% 添加した場合の  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ターゲットの作製試験を行った。その結果、 $\text{Si}_3\text{N}_4$ -30wt%  $\text{CeO}_2$ -5wt%  $\text{MgO}$ -3wt%  $\text{SiO}_2$  系では、1600°C、4 時間の常圧焼結で相対密度 95% の焼結体が得られた。同組成の 1650°C 焼結体の硝酸溶解性を評価した結果、低濃度 Ce 含有量焼結体に比べ、溶出量が高くなった。これは Ce 濃度を高くしたことによるターゲット粒界相の増加に起因する。

## (3) 核燃料を用いたターゲットの作製実験

$\text{Si}_3\text{N}_4$  を母材としたターゲットのコールド作製試験の結果を受けて、 $\text{UO}_2$  及び  $\text{PuO}_2$  を用いたターゲットの作製実験を行なった。作製実験については、東工大の実験担当者と共同で実施した。

$\text{UO}_2$  を用いた作製実験では、 $\text{UO}_2$  を 50wt% 含有し、5wt% の  $\text{MgO}$  と 3wt% の  $\text{SiO}_2$  を助剤として添加した焼結体 (1600°C、4h、常圧  $\text{N}_2$  中焼結) で 95% 以上の高密度の焼結体が作製可能であることを明らかにした。 $\text{PuO}_2$  を用いた作製実験では、20wt% の  $\text{PuO}_2$  を含有したターゲットについて焼結実験を行い、5wt% の  $\text{MgO}$  と 3wt% の  $\text{SiO}_2$  の添加、焼結保持時間の増加、還元雰囲気 ( $\text{H}_2$ - $\text{N}_2$  雰囲気) での焼結により、緻密化が進行する傾向であることを明らかにした。また、XRD 結果より、Ce を用いた場合よりも Pu を用いた場合の方が、液相の形成が抑制されることを明らかにした。これらの結果より、Pu 含有ターゲットの基礎焼結特性を実験的に明らかにした。

## 2. 他候補材の検討

### (1) TiN 母材の検討

TiN に 16wt%CeO<sub>2</sub> を混合して、焼結性を検討した。作製方法は、成形助剤を添加した粉末をボールミル混合して、一軸加圧成形によりペレット形状とし、Ar フロー雰囲気または N<sub>2</sub> フロー雰囲気、1700～1900℃、2 時間の常圧焼結を行った。Ar 雰囲気、1800℃では相対密度 87%、窒素雰囲気では焼結温度が高いほど密度は向上し、1900℃で 85%程度であった。いずれの条件でも 1wt%程度の重量減少が認められた。Ar 中では、TiN が少量分解すると考えられる。TiN と Ce の化合物は形成されず、Ce は粒界相として、CeO<sub>2</sub> または Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub> として存在した。この焼結体の粒界相の硝酸への溶解性は良好で粒界相の約 70%が溶出した。

### (2) SiC 母材の検討

Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> と同様に、耐照射特性、高温熱伝導度、高温強度に優れ、不活性母材として多くの魅力的な特性を持つ SiC について、14wt%CeO<sub>2</sub> を混合して焼結条件を検討した。

CeO<sub>2</sub> および Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-CaO 系助剤、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-CaO 系助剤を添加した SiC を Ar 雰囲気、1700～1800℃で焼結し、得られた焼結体の密度測定、熱伝導度測定、X 線回折分析、微細組織観察、元素分析を行った。その結果、1700℃焼結体は相対密度の低いものしか得られなかったが、熱伝導度は十分な値を持っていることがわかった。また、1800℃焼結体は、相対密度も高く、熱伝導度も高くなることがわかった。微細構造観察と元素分析の結果から、Ce は、母材中に分散して存在する粒界相に多く存在することがわかった。得られた焼結体の 80℃における 3mol/l 硝酸への溶解度（質量減少）を最長 160 時間まで検討したところ、いずれの試料でも 80 時間で全体の 20%程度の質量減少を確認できた。試料ごとの質量減少を比較すると、CeO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-CaO 系の試料に比べて、CeO<sub>2</sub>-Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-CaO 系の方が質量減少は大きかった。また、1700℃で焼結した試料に比べて、1800℃で焼結した試料の方が質量減少は大きくなった。

## 3. 総合評価

### ・ Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> ターゲット

Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> を母材とするターゲットについて、模擬 MA として Ce を用いた試験において、焼結助剤を最適化することにより、簡易なプロセスかつ 1450～1700℃と比較的低温の焼結においても、緻密で、さらに Ce (ケイ酸塩として粒界相に含まれる) が均一に分散している焼結体の作製条件を見出した。さらに Ce の高濃度化として 30wt.%まで添加しても緻密化したものが作製できることを示した。1650℃焼成体の室温における熱伝導率は約 40W/mK であり、高い値を示している。本焼結体の安定性として 800℃、不活性ガス中では 500 時間まで変化は認められず、また高速炉用ステンレス鋼との共存性は、ステンレス鋼に若干変質が認められたものの、その共存性は良好であった。Ce 含有ターゲットにおける硝酸溶液による溶出特性を明らかにした。Ce を含む粒界相が硝酸に溶出することを明らかとし、焼結体を粉碎後に溶解することで、Ce を含む粒界相を溶出、すなわち Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> と Ce を完全に分離できる可能性を示した。これより、本ターゲットが、現行の湿式再処理へ適用可能であることが示された。

UO<sub>2</sub> 及び PuO<sub>2</sub> を用いたターゲット作製実験においては、U 及び Pu 含有ターゲットを作製し、その技術的成立性を確認した。また Pu 含有ターゲットの基礎焼結特性を実験的に明らかにし、焼結時間の増加、還元雰囲気における焼結により高密度化が見込まれることが示された。

### ・ TiN ターゲット

TiN を母材とするターゲットでは、1800～1900℃の焼結で 85%程度の密度が得られたが、焼結温度の低温化は困難であった。この焼結体の粒界相は硝酸に可溶であり、粒界相の約 70%が溶出されることがわかった。

### ・ SiC ターゲット

SiC を母材としたターゲットについて、1800℃の焼結温度で、密度が約 90%、熱伝導率が 45W/mK 程度となり、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> と同等の性能を有する焼結体が作製できることがわかった。Ce は焼結助剤として加えた酸化物を含む複酸化物を形成して、粒界に存在することがわかった。この粒界相は、硝酸に可溶であり、ペレット形状のままほぼ全量を溶出することが可能である。これより本ターゲットが、現行の湿式再処理へ適用可能であることが示された。

・ ポリユーサイトターゲット

Cs 含有化合物であるポリユーサイト ( $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$ ) を  $\text{CsNO}_3$ 、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  を出発原料として、種々作製条件を検討することにより、 $900^\circ\text{C}$  で 1 時間仮焼、 $1100^\circ\text{C}$  で焼結することにより、相対密度が 95% 以上の焼結体を作製できることが分かったが、重量減少が大きく、Cs の揮発が押さえられていないことが確認された。

以上の検討結果より、シリコン系各種セラミックスの MA 核変換用ターゲット作製条件を検討した結果、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  系、 $\text{SiC}$  系について、焼結助剤を最適化することにより、簡素なプロセスで、ほぼ要求を満たすターゲット作製条件を見いだすことができた。このうち、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  については核燃料を用いた作製実験により技術的な成立性を確認している。また、これらのターゲットは、現行湿式再処理への適用性も有している。 $\text{TiN}$  系については、ターゲットの焼結温度を低下させることが望ましく、さらなる検討が必要とある。ポリユーサイトについては、合成時に Cs の一部が蒸発する問題があり、作製装置の改造等の対応が必要となる。

【成果の反映状況】

耐照射性、熱的特性及び化学的特性の優れたシリコン系化合物を母材としたターゲットについて、既存の核燃料製造技術(粉末冶金)を用いた作製の可能性、諸特性、さらには現行湿式再処理への適合性について評価を行った。この成果の中で、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  を母材としたターゲットについて、作製条件の最適化に成功し、核燃料を用いた作製実験により技術的な成立性も確認した。さらに現行の湿式再処理への適合性も確認している。現在にいたるまでシリコン系母材について総合的かつ系統的に検討された研究開発は皆無に等しく、特に  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ターゲットに係る成果は、高性能、特に耐照射性に優れたターゲットの一形態を提案できるものである。

さらに、ここで得られた知見、特に焼結助剤の最適化による高性能化(緻密化、低温焼結化等)は、簡素・低温焼結が必須の MA 含有燃料製造において、重要なオプションとして位置づけられ、FaCT P&T におけるターゲット製造・特性評価研究に反映されている。さらに、これらに関連して科研費基盤研究 (C) が採択され、Mo を用いたターゲットではあるが特許出願を行なっている。

また、系統的な作製試験並びに特性評価により、Si 系セラミックスの焼結における多くの基礎的データを取得した。 $\text{Si}_3\text{N}_4$  についてはエンジニアリングセラミックとして重要でありながらも、加圧・高温焼結が必要であった。そこで助剤添加焼結は有望なオプションであったが、本研究の成果により、有望な助剤候補、さらには最適化プロセスを見出すことに成功した。

【研究成果の公表】

<論文>

- 1) M. Osaka, H. Serizawa, M. Kato, K. Nakajima, Y. Tachi, R. Kitamura, S. Miwa, T. Iwai, K. Tanaka, M. Inoue and Y. Arai, "Development of Minor Actinide Containing Fuel/Target for the Use in a Future Integrated System of Fast Reactor and Accelerator Driven System", J. Nucl. Sci. Technol. Vol.44[3], 309-316 (2007) 査読有
- 2) J. Yamane, M. Imai and T. Yano, "Fabrication and Basic Characterization of Silicon Nitride as an Inert Matrix", Progress in Nuclear Energy, Vol.50[2-6], 621-624 (2008) 査読有
- 3) M. Osaka, S. Miwa, K. Tanaka, I. Sato, T. Hirose, H. Obayashi, K. Mondo, Y. Akutsu, Y. Ishi, S. Koyama, H. Yoshimochi, and 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 (2007) p. 357-366. 査読有
- 4) M. Akiyoshi and T. Yano, "Stability of Neutron-Irradiated Ceramics Obtained from As-Irradiated and After Annealing Measurements", Progress in Nuclear Energy, 50[2-6], 567-574 (2008) 査読有

- 5) M. Akiyoshi, T. Yano, Y. Tachi and H. Nakano, "Saturation in Degradation of Thermal Diffusivity of Neutron-Irradiated Ceramics at  $3 \times 10^{26}$  n/m<sup>2</sup>", J. Nucl. Mater., Vol. 367-370, 1023-1027 (2007) 査読有
- 6) K. Yoshida, T. Matsunaga, M. Imai and T. Yano, "Immobilization of Strontium, Cesium and Rhenium into  $\alpha$ -SiAlON Ceramics with Co-Doping of Yttrium", J. Ceram. Soc. Japan., (in press) 査読有
- 7) M. Osaka, S. Takano, Y. Yamane, T. Misawa, "On a fast reactor cycle scheme that incorporates a thorium-based minor actinide-containing cermet fuel", Progress in Nuclear Energy, 50[2-6], 212-218 (2008) 査読有
- 8) T. Yano, J. Yamane and K. Yoshida, "Low Temperature Sintering of Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> Ceramics and Its Applicability as an Inert Matrix of the Transuranium Elements for Transmutation of Minor Actinides", Key Engineering Mater., (submitted) 査読有

<国内会議>

- 1) 山根純一、今井雅三、矢野豊彦、"アメリカシウム固定化用窒化ケイ素セラミックスの作製"、日本セラミックス協会 2005 年年会講演予稿集、1D20, pp.8 (2005).
- 2) 村山雄哉、今井雅三、矢野豊彦、"放射性セシウム固定化用高密度ポリウレサイトセラミックスの作製"、日本原子力学会 2005 年春の年会要旨集、M66, pp.695 (2005).
- 3) 秋吉優史、高木郁二、矢野豊彦、赤坂尚昭、舘義昭、"中性子照射したセラミックスのアニールによる熱拡散率とスエリングの回復挙動の相関"、日本原子力学会 2005 年春の年会要旨集、I30, pp.57 (2005).
- 4) 山根純一、今井雅三、矢野豊彦、"超ウラン元素固定化用窒化ケイ素マトリックスの作製と硝酸浸出特性の評価"、日本セラミックス協会第 19 回秋季シンポジウム講演予稿集、2P53, pp.378 (2006).
- 5) 山根純一、今井雅三、矢野豊彦、"超ウラン元素変換用窒化ケイ素マトリックスの作製"、日本原子力学会 2006 年春の年会要旨集、F47, pp.221 (2006).
- 6) 山神知之、矢野豊彦、今井雅三、秋吉優史、" $\alpha$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>に導入された中性子照射欠陥の解析"、日本原子力学会 2006 年春の年会要旨集、G37, pp.261 (2006).  
山根純一、今井雅三、吉田克己、矢野豊彦、"不活性マトリックスへの応用を目的とした窒化ケイ素セラミックス作製と焼結条件の改善"、セラミックス協会第 20 回秋季シンポジウム講演予稿集、2P1-17、p.411 (2007). 名古屋工業大学、2007.9.12-14

<国際会議>

- 1) M. Osaka, M. Inoue, H. Serizawa, M. Kato, Y. Tachi, R. Kitamura, S. Ohki, S. Miwa, K. Nakajima, T. Iwai, K. Tanaka, S. Ukai, Y. Arai., Grobal 2005, No.240, Oct. 9-13, (2005)
- 2) Junichi Yamane, Masamitsu Imai and Toyohiko Yano, "Synthesis and Properties of Silicon Nitride Ceramics for an Inert Matrix of TRU Elements", Presented at Inter-COE International Symposium on Energy System, Oct. 5-7, (2006)
- 3) J. Yamane, M. Imai and T. Yano, "Fabrication and Basic Characterization of Silicon Nitride as an Inert Matrix", 2nd COE-INES International Symposium on Innovative Nuclear Energy Systems, Nov. 26-30, (2006)
- 4) M. Akiyoshi and T. Yano, "Stability of Neutron-Irradiated Ceramics Obtained from As-Irradiated and After Annealing Measurements", 2nd COE-INES International Symposium on Innovative Nuclear Energy Systems, Nov. 26-30, (2006).
- 5) M. Osaka, S. Miwa and K. Tanaka, "Conceptual Study on Enhanced Minor Actinide Transmutation by Advanced Fuels in Fast Reactor Cycle", 15th Int. Conf. Nuclear Engineering, (2007)
- 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 2007, The New Forest, UK, June 20-22, (2007)

- 7) T. Yano, J. Yamane and K. Yoshida, "Low Temperature Sintering of  $\text{Si}_3\text{N}_4$  Ceramics and Its Applicability as an Inert Matrix of the Transuranium Elements for Transmutation of Minor Actinides", 2nd International Symposium on SiAlONs and Non-oxides, Mie, Japan, Dec. 2-5, (2007)
- 8) T. Yano, "Neutron Irradiation Damage of Ceramic Materials for Fission and Fusion Reactor Applications", 2nd Tokyo Tech-MIT Symposium on Innovative Nuclear Energy Systems, Kamakura, Jul. 23-24, (2007)
- 9) J. Yamane, M. Imai, K. Yoshida and T. Yano, "Compatibility of Silicon Nitride Inert Matrix with Reprocessing Method", 2nd Tokyo Tech-MIT Symposium on Innovative Nuclear Energy Systems, Kamakura, Jul. 23-24, (2007)

2.1.2 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

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

【使用主要施設】

群馬大学： 走査型電子顕微鏡，透過型電子顕微鏡，電解抽出装置  
 原子力機構： 不活性ガス加熱炉試験装置，大気中単軸クリープ試験装置，  
 走査型電子顕微鏡，透過型電子顕微鏡

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 17 年度は、下記を実施した。

1. MX 安定化高クロム鋼の合金素材製作
2. MX 安定化高クロム鋼の熱処理特性の評価
3. 長時間材料強度試験の開始
4. 微細 MX 強化機構の安定性評価の開始

平成 18 年度は、下記を実施した。

1. 長時間材料強度試験
2. 微細 MX 強化機構の安定性評価

平成 19 年度は、下記を実施した。

1. 長時間材料強度試験
2. 微細 MX 強化機構の安定性評価
3. まとめ

【研究成果（当該年度）】

1. 長時間材料強度試験

昨年度に引き続き、長時間材料強度試験としてクリープ試験を実施した。試験温度は温度加速するため運転温度より高温側となる 650℃とした。550℃1h + 750℃1h 焼戻し材（二段処理材）については今年度、応力 200MPa, 120MPa, 100MPa の試験を実施し、それぞれ 119h, 2603h, 5535h の破断時間を計測した。一方、750℃1h 焼戻し材（一段処理材）については今年度、応力 200MPa, 120MPa の試験を終了し、それぞれ 119h, 3858h の破断時間を計測した。破断時間に及ぼす処理条件の影響は大きくないと判断される。破断伸びは 16%~21%、破断絞りは 68%~82%の範囲にとどまり、破断時間の増加にともなう低下傾向を示さず、安定している。また、破断延性に及ぼす処理条件の影響は小さい。

本鋼のクリープ破断強度は既存の火力用鋼種 T91 よりも高く、短時間側から今年度の最長時間 5000h まで約 2 倍の高い値を示す。一方、本鋼の破断伸びは短時間側では低めであるが、破断時間依存性がないため、長時間側では差が縮小する。本鋼は既存の火力用鋼種に比べ、高温における組織安定性を確保するため C, W, Mo, Nb, V 等の強化元素の添加量を低めに設定しているにもかかわらず、高い破断強度を示す点が注目される。これは、強化元素の添加量については固溶強化および析出強化にそれぞれ必要な最小限を確保したこと、および焼準処理において完全に固溶させたことに関係すると考えられる。また、このような強化元素量の低減と熱処理条件の設定はクリープ中の析出を抑制し、破断延性の長時間安定性をもたらしたと推定される。

2. 微細 MX 強化機構の安定性評価

(a) 高温時効試験

昨年度の時効時間 1000h より長時間となる 3300h 時効試験を 650℃で実施し、金属組織の高温長時間安定性を評価した。薄膜試料による電子顕微鏡観察により焼戻しマルテンサイト組織の回復挙動を調査した結果、いずれの焼戻し条件においても 3300h 時効後も転位密度は高くラスマルテンサイト組織は維持されており回復が抑制されていることが確認できた。一方、析出挙動については抽出レプリカ試料を用い電子顕微鏡により観察し、いずれの処理材においても微細な MX とやや粗大な Cr 炭化物を確認した。強化に寄与する微細 MX 粒子について画像解析によりサイズを比較し、3300h 時効後も MX 粒子の粗大化はわずかであり、安定であることを確認した。また、二段処理材の方が一段処理材よりも微細な MX が多い傾向が観察されたが、その差は小さかった。析出元素量の定量評価をするために実施した電解抽出残渣分析において

は、時効処理による析出元素量の増加傾向は認められたが、その変化量は極めて小さく焼戻し処理により析出はほぼ完了していると判断できる。なお、時効条件 650℃- 3300h は Larson-Miller 法(定数: 20) を用いると 550℃で約 2,380,000h に相当する。

(b) クリープ破断試験片の組織調査

650℃クリープ試験においては応力およびひずみによる組織変化の加速作用が考えられることから、高温における組織安定性を評価するためクリープ破断試験片の組織を調査した。焼戻しマルテンサイトの回復挙動を薄膜試料を用い電子顕微鏡により観察した。いずれの処理材においても高温時効材よりも転位密度がやや低くクリープによる加速作用が認められたが、その程度は小さくラスマルテンサイト組織は維持されていた。抽出レプリカ試料の電子顕微鏡観察においては、いずれの処理材においても高温時効材に比べ析出物はわずかながら粗大であった。すなわち、応力やひずみによる加速作用がうかがえる結果であるが、その程度は小さく析出物の安定度は高いと判断できる。電解抽出残渣分析により求めた Nb と V の析出量は高温時効材とほぼ同じ値であり、クリープの影響は認められない。このように MX の構成元素である Nb や V の析出量の変化も小さいことから析出物は安定であるといえる。なお、W と Mo の析出量は極めて少量であり、固溶強化作用は高温で長時間にわたり安定して維持されている。

既存の火力用鋼種 T92 のクリープ破断試験片の電解抽出残渣分析結果と比較すると本鋼の Mo と W の析出量は著しく少なく、また、Cr や Fe さらには V の析出量も少ないことから高温における析出物の安定性が改善された鋼種であるといえる。

3. まとめ

(a) 合金系の選定

高温における組織安定性を確保するため既存の火力用鋼種よりも強化元素量を低減した成分を設計した。すなわち、固溶強化元素となる W と Mo 量を固溶範囲内に制限し、析出強化元素 C, Nb, V の量を低減した。

(b) 熱処理条件の選定

低減した析出強化元素を 100%活用するため高温-急冷焼準処理により完全固溶した後、二段焼戻し処理により微細 MX の安定・高密度分散析出を実現した。

(c) クリープ破断特性

本鋼のクリープ破断強度は既存の火力用鋼種よりも高い。強化元素量が少ないにもかかわらずこのような高強度が得られた原因は高温-急冷焼準により完全固溶を実現したことによると考えられる。破断伸びは短時間側では既存鋼種よりも劣る。しかし、既存鋼種の破断伸びは長時間側で大幅に低下するが、本鋼は長時間側まで破断延性が低下しないため長時間側では同程度となる。これは固溶強化元素 W と Mo の添加量が固溶範囲内にとどめたこと、析出強化元素を必要最小限としたことによりクリープ中の析出が抑制されたためと考えられる。

【成果の反映状況】

本研究による成果は、高 Cr 鋼の合金成分を決定する上での方向性を示すと同時に、焼準や焼戻し熱処理の指針として高速炉用鋼の開発に反映している。

【研究成果の公表】

1) 国内会議

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

小原智史、鬼澤高志、若井隆純、青砥紀身：高クロム鋼における MX 析出挙動に及ぼす焼ならし温度の影響

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

木村健一、茂木智、中澤崇徳、宮下裕太、若井隆純：9Cr 鋼の析出挙動に及ぼす熱処理の影響

日本鉄鋼協会第 154 回秋季講演大会、「材料とプロセス」Vol.21, No.1, (2008)ps-36

宮下裕太、木村健一、中澤崇徳、松村雅夫、若井隆純、小原智史：9Cr 鋼の長時間加熱後の硬度と組織に及ぼす化学成分の影響

日本鉄鋼協会第 154 回秋季講演大会、「材料とプロセス」Vol.21, No.1, (2008)ps-45

木村健一、中澤崇徳、荘司郁夫、木内忍、若井隆純、小原智史：9Cr 鋼の靱性に及ぼす化学成分と熱処理の影響

2) 特許

特願 2006-176864 中澤崇徳、茂木智、木村健一、若井隆純：フェライト鋼の製造方法

2.1.3 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	高クロム鋼における強化機構の高温長時間安定性に関する研究		
研究協力課題	高クロム鋼のΩ法によるクリープ寿命評価と組織安定性に関する研究 Study of Creep Life Assessment Using Omega Method and Stability of Microstructure during Creep Deformation in High Cr Steels		
研究者所属、氏名			
大学側	九州大学 大学院総合理工学研究院 融合創造理工学部門 教授 中島 英治, 助教 池田 賢一 大学院総合理工学府 物質理工学専攻 大学院生 光原 昌寿		
機構側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 若井隆純		
研究実施場所	九州大学 大学院総合理工学研究院 C 棟 材料試験室、材料測定室 大洗研究開発センター ナトリウム技術開発第 1, 第 3 試験室		
通算研究期間	平成 17 年 8 月 ~ 平成 20 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 19 年 7 月 ~ 平成 20 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>経済性向上を主眼として、高速炉の長寿命化が検討されている。そのため構造材料には、これまで以上の高温長時間にわたる強度・延性・韌性の維持が要求される。一方、材料の高温強度向上を目的として添加される各種元素による強化機構の高温長時間における有効性・安定性については、十分な知見が蓄積されているとはいえない。特に、析出強化を狙って添加される元素については、一定時間以上では効力を失うばかりか反対に特性の低下を引き起こす懸念も指摘されている。そこで、本研究では、高クロム (Cr) 鋼における MX (バナジウム (V)・ニオブ (Nb) の炭窒化物) による析出強化機構の長時間安定性・有効性に着目し、析出物の有無あるいは形態・大きさおよびこれらと密接な関係があると考えられるマルテンサイト組織の崩壊が、長時間域での強度特性に及ぼす影響を明らかにし、高速炉最適高 Cr 鋼の開発に反映することを目的とする。</p>			
【研究内容 (概要)】			
<p>高 Cr マルテンサイト組織鋼の長時間クリープ破断材に対し、電子顕微鏡等を用いた組織観察・分析を実施して、微細 MX の有無あるいは形態・大きさ、およびマルテンサイト組織中の各境界 (ブロック、パケット、ラス) の存在頻度のクリープ損傷の進行に伴う変化を明らかにする。一方、クリープ試験で得られたクリープ曲線をΩ解析し、組織観察・分析で得られる組織劣化因子とΩパラメータの関係を明らかにする。また、クリープ中断試験を実施して、中断材に対する組織観察・分析を行い、クリープ損傷の進行とマルテンサイト組織の崩壊との関係を把握する。以上の観察・分析および解析の結果に基づいて、マルテンサイト組織の崩壊の進行程度に着目したクリープ余寿命評価法を提案し、以って、高温長時間クリープ変形中に組織変化を起こしにくい合金鋼の組織設計に関する提案を行う。</p>			
【使用主要施設】			
<p>九州大学：方位像顕微鏡，走査透過型電子顕微鏡，透過型電子顕微鏡， Ω法解析ソフトウェア (研究室で作成) 原子力機構：不活性ガス加熱炉試験装置，大気中単軸クリープ試験装置， 走査型電子顕微鏡，透過型電子顕微鏡</p>			

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 17 年度は、以下の研究を行った。

- 高 Cr 鋼初期材の組織解析（九州大学）  
結晶方位分布測定によるマルテンサイト初期組織の調査。
- クリープデータの $\Omega$ 法解析（九州大学）  
既取得高 Cr 鋼クリープデータの $\Omega$ 法解析。
- 長時間クリープ試験の実施（日本原子力研究開発機構）  
MX 形成元素の異なる高 Cr 鋼のクリープ試験。
- 長時間組織安定性の評価（九州大学・日本原子力研究開発機構）  
MX 形成元素とマルテンサイト組織崩壊および $\Omega$ 法パラメータの相関についての検討。

平成 18 年度は、以下の研究を行った。

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

平成 19 年度は、以下の研究を行った。

- クリープ破断材の組織観察（九州大学）  
高 Cr 鋼のクリープ破断材の OM，OIM および TEM による組織観察。
- 長時間クリープ試験の実施（日本原子力研究開発機構）  
焼きならし温度調整 V，Nb 複合添加材のクリープ破断試験の実施  
焼き戻し温度調整 V，Nb 複合添加材のクリープ中断試験の実施
- クリープデータの $\Omega$ 法解析（九州大学）  
焼きならし温度調整 V，Nb 複合添加材の $\Omega$ 法解析
- 高 Cr 鋼の 3 次元電子線トモグラフィー観察（九州大学）  
V 単独添加材と Nb 単独添加材の微細組織の 3 次元像の観察。
- まとめ（九州大学・日本原子力研究開発機構）

## 【研究成果（当該年度）】

本研究では、高クロム鋼における MX（バナジウム，ニオブの炭窒化物）による析出強化機構の長時間安定性・有効性に着目し，析出物の有無あるいは形態・大きさおよびこれらと密接に関係があると考えられるマルテンサイト組織の崩壊が，長時間域での強度特性に及ぼす影響を明らかにし，高速炉最適高クロム鋼の開発に反映させることを目的としている。

本年度は，クリープ破断材の組織変化過程について光学顕微鏡観察，方位像顕微鏡観察ならびに透過電子顕微鏡観察により調査した。また，V，Nb 複合添加材において焼きならし温度調整材のクリープ試験を行い，その結果を用いた $\Omega$ 法解析を行った。さらに，V および Nb 単独添加材の微細組織を 3 次元電子線トモグラフィー観察により，析出強化に寄与する析出物の形態を明らかにした。本年度の研究成果を以下に示す。

### ◎クリープ破断材の組織観察

平成 18 年度の研究結果より, V と Nb の添加によるクリープ強化はそれぞれ異なる種類の析出物によるものであることが明らかとなった. 本研究では, クリープ強化因子の違いが, クリープ破断の過程においてどのような組織変化の差を生み出すかについて, クリープ破断材の組織観察により調べた.

クリープ試験によって破断した V, Nb 無添加材の外観と光学顕微鏡観察の結果, 試料は破断部近傍でくびれており, 大きな破断延性を示していた. また, 破断部で脆性的な粒界破壊は起きておらず, 延性破壊に近い破断様式であることがわかった. 結晶粒は破断部近傍で負荷方向(LD: Loading Direction)に伸長しており, マルテンサイト組織が崩壊していることが分かる. 破断様式はすべての鋼種で同様であり, 破断部における断面減少率は約 90%であった.

V, Nb 無添加材のクリープ破断材におけるつかみ部から破断部にかけての結晶方位分布図と 110 極点図による解析を行った. 併せてクリープ変形前の組織も同様に解析を行った. その結果, クリープ試験前の組織はラスマルテンサイト組織であったが, クリープ破断材では結晶粒が負荷方向に沿って繊維状に細長く伸びており, 大きく塑性変形していることが分かった. また, 110 極点図の変化から, 破断部に近づくにつれて,  $\langle 110 \rangle // LD$  となるように結晶粒が方位回転していることが明らかになった. このようなマルテンサイト組織の変化はすべての鋼種で観察された.

各鋼種クリープ破断材の断面減少率と $\langle 110 \rangle // LD$ である結晶粒の面積率の関係を結晶方位解析結果より求めた. 添加元素依存性, V 添加量依存性およびクリープ試験中の負荷応力依存性について検討した結果. 全ての場合で, 断面減少率が上昇すると $\langle 110 \rangle // LD$ となる結晶粒の面積率が上昇する傾向が見られた. また, 断面減少率が 60%を超えると, 鋼種や負荷応力の違いによらず, それぞれ同様の面積率になることが分かった. 一方, 断面減少率 60%以下でのばらつきは,  $\langle 110 \rangle // LD$ となる方位回転のしやすさが, 初期材の結晶方位分布によって異なることに起因すると考えられる. このように断面減少率と $\langle 110 \rangle // LD$ となる結晶粒の面積率との関係がクリープ強度や試験時間の違いにかかわらず同様であることは, 非常に興味深いことである. すなわち, クリープ変形で生じたひずみに対するマルテンサイト組織の変化は, クリープ強度の違いにかかわらず同じであり, 高 Cr 鋼のクリープ強度はひずみ速度に強く依存する. このように, 組織観察から高 Cr 鋼の V と Nb の添加によるクリープ強化は, 破断時間と最小ひずみ速度を用いて正しく評価することができる.

負荷応力 92MPa のクリープ試験後の 0.05%Nb 単独添加材から切り出した試験片つかみ部の TEM 観察の結果, つかみ部はクリープ試験中に負荷応力を受けないため, その組織はクリープ試験温度で破断まで時効処理されたものとみなすことができ, クリープ破断後でも, 無応力部ではラス組織は崩壊していないことが分かった. 0.05%Nb 単独添加材における断面減少率 60%および 80%の部分の TEM 観察の結果, 断面減少率が 60%になるとラス組織は崩壊しており, 数 $\mu\text{m}$ 程度の結晶粒が多く観察された. 一方, 断面減少率 80%では結晶粒のほとんどが負荷方向に伸長した形状になっていた. V, Nb 複合添加材のクリープ破断材においても 0.05%Nb 単独添加材と同様に, 断面減少率 55%でラス組織が崩壊しており, 80%になると伸長した結晶粒が観察された. 0.12%V-0.03%Nb 複合添加材の断面減少率 15%の部分における BF-STEM 観察結果より, 以下のことが分かった. 断面減少率 15%程度では, クリープ破断後でも大部分でラス組織が維持されている. しかし, 局所的には, 旧オーステナイト粒界付近での優先的回復やラス境界の移動が起きている. これらの組織回復を起点として, ラス組織の崩壊が起こったものと考えられる. したがって, マルテンサイト組織における組織回復を抑制することがクリープ強度向上に極めて有効であるといえる.

### ◎焼きならし温度調整 V, Nb 複合添加材のクリープ試験および $\Omega$ 法解析

0.12%V-0.03%Nb 複合添加材において焼きならし条件を 1060°C・1hr-AC, 1100°C・1hr-AC および 1150°C・1hr-AC と変えた 3 試料で 600°C・190MPa でのクリープ試験を行った。その結果, 1150°C の条件において最もクリープ破断時間が長時間となった。これらの $\Omega$ 法解析により,  $\Omega$ 値と焼きならし温度との関係を求めた。

$\Omega$ 値は, 1060°C から 1100°C において約 80 から約 150 へと急激に上昇し, 1150°C において約 100 に低下した。 $\Omega$ 値の上昇は, MX 型析出物の増加によりクリープ強度が向上したものと考えることができる。一方, 低下については, 焼きならし温度が高くなったことで, 旧オーステナイト粒径が粗大化することにより, 生じたと考えられる。

### ◎高 Cr 鋼の 3 次元電子線トモグラフィー観察

高 Cr 鋼で代表される現在の実用耐熱鋼の大部分が析出強化型合金で占められているが, これまで多くの鋼種において, 組織中の析出物の種類, 析出箇所および高温変形時の析出物の形態変化などについて詳細な解析が行われ, 種々の析出物の強度への影響が明らかになっている。しかし, それらの報告の多くは 2 次元組織観察によるものである。析出物の生成は母相中に 3 次元的に生じるものであり, 正しい分散状態の把握には 3 次元観察が必要である。またそれらが異方性を持った生成・成長を起こす場合などには, その形状や分布などについて 2 次元観察では理解し難い。近年, コンピュータの計算速度・ソフトウェア技術・画像処理技術などの向上に伴い, 2 次元の連続断層像や連続傾斜像などから 3 次元画像に可視化する技術が急速に発展しており, 材料研究への応用が進められている。特に, TEM や STEM を用いた電子線トモグラフィー観察では, ナノスケールでの 3 次元構造解析が可能であり, 新たな組織観察技法として注目されている。本研究では, HAADF-STEM(High-Angle Annular Dark-Field STEM)法を用いた電子線トモグラフィー観察を行い, V および Nb 単独添加材の組織に対して, 3 次元可視化技術の応用を試みた。

試料は, 0.05%Nb 単独添加材と 0.18%V 単独添加材を用いた。(以下, Nb 添加鋼および V 添加鋼と表記する。)これらの試料に対して, 1060°C・1h, AC の焼きならし処理と 760°C・1h, AC の焼き戻し処理を施した。観察用試料は, 切り出し加工と湿式研磨によって, 1.5mm×1.5mm×0.05mm の形状とした後に, ツインジェット式電解研磨法により, 中央部に孔を導入したものをを用いた。また, 抽出レプリカ法を用いて作製した析出物抽出フィルムも観察に供した。使用した電子顕微鏡観察は, JEOL 製 JEM-2000EX/T および STEM 観察機能, HAADF 検出器, EDS(Energy Dispersive X-ray Spectroscopy)を装着した FEI 製 TECNAI-F20 を用い, 加速電圧は 200 kV とした。

3 次元電子線トモグラフィー観察による再構成像を得るためには, 2 次元での連続傾斜像の取得が必要である。本研究では, 電子顕微鏡内において 2° 刻みで試料を傾斜することで, 最大傾斜角±60~66° の連続傾斜像を撮影した。得られた連続傾斜像をコンピュータに取り込み, WBP(Weighted Back Projection)法と SIRT (Simultaneous Iterative Reconstruction Technique)法による 3 次元画像の再構築を行った。3 次元画像再構成ソフトウェアには FEI 社製の Inspect 3D を用いた。本研究では信頼性の高い 3 次元トモグラフ構成像を得るために, HAADF-STEM 法によって 2 次元連続傾斜像を取得した。HAADF-STEM 法では高角度散乱電子を用いて結像するため, 回折コントラストの影響が少なく, 結晶性材料の 3 次元トモグラフィー観察に適している。

図1に各試料の連続傾斜 HAADF-STEM 像を示す。Nb 添加鋼レプリカ試料における連続傾斜像の像強度は、mass-thickness コントラストと組織中の原子の原子番号  $Z$  に依存した  $Z$  コントラストによるものであり、3次元再構築に適したものである。一方、薄膜試料を用いた場合には母相に転位などの回折コントラストが見られる。しかし、析出物の像強度に対して、傾斜に伴う急激な変動がないことから、3次元再構築が十分に可能であると考えられる。また図1において、ラス境界上には粗大な析出物が、ラス組織中には微細な析出物がそれぞれ観察された。Nb 添加鋼のレプリカ試料を用いてそれぞれの析出物の電子回折図形から同定を行った結果、ラス境界上の粗大な析出物は  $M_{23}C_6$  であり、ラス組織中の微細な析出物は MX であることが分かった。

Nb 添加鋼のレプリカ試料における連続傾斜像を用いて再構築した3次元トモグラフ構成像を図2に示す。図より、粗大な  $M_{23}C_6$  が板状に生成していることが分かる。また、等軸で微細な MX が観察される。同様に Nb 添加鋼の薄膜試料における3次元トモグラフ構成像より、板状の  $M_{23}C_6$  はラス境界上に観察され、ラス境界での伸長方向に異方性は見られなかった。また、MX はラス組織中に生成しており、その形状は比較的等軸状であった。このような内部組織は、これまでの Nb 添加高 Cr フェライト系耐熱鋼での報告と一致しており、Nb 添加鋼では、ラス組織中の MX による転位運動の阻害によって、高いクリープ強度を有すると考えられる。

図3に V 添加鋼薄膜試料の連続傾斜像を用いて再構築した3次元トモグラフ構成像を示す。V 添加鋼では、ラス境界上に、板状の  $M_{23}C_6$  以外に非常に薄いフィルム状の析出物が観察された。図4に、平成18年度にも報告した EDS による  $M_{23}C_6$  とフィルム状析出物の Cr および V 濃度分析結果を示す。EDS 分析には V 添加鋼の薄膜試料を用い、Cr と V の特性 X 線強度を Fe の強度で規格化して示している。図4より、 $M_{23}C_6$  とフィルム状析出物は異なる成分元素比を有しており、このフィルム状析出物は  $M_{23}C_6$  とは異なる析出物であることが分かる。フィルム状析出物は Nb 添加鋼では観察されず、V 添加鋼でのみ観察された。また、V 添加鋼のレプリカ試料においては、このようなフィルム状析出物は観察されなかった。これはレプリカ試料作製時の母相のエッチングの際に、フィルム状析出物が蒸着膜に残らず溶け出してしまったためと考えられる。フィルム状析出物は、板状の  $M_{23}C_6$  に比べて、ラス境界に均一の厚さで生成しており、単位体積当たりのラス境界被覆率が高い。析出物に被覆されたラス境界は高温変形中にその移動を妨げられるため、変形中の組織保持力が高いと推察される。そのため、V 添加鋼では高いクリープ強度を有すると考えられる。

#### 【引用資料】

高 Cr フェライト系耐熱鋼の3次元電子線トモグラフィ観察

光原昌寿, 池田賢一, 波多聰, 中島英治, 若井隆純

日本学術振興会 耐熱金属材料 123 委員会研究報告, 48 (2007) pp. 133-137

#### ◎まとめ

本先行基礎工学研究で得られた結果を簡潔にまとめると以下のようなになる。

- 11種類の V/Nb 成分調整材の 600°Cでのクリープ破断データを解析した結果、V と Nb の複合添加により、クリープ破断時間が延びることが明らかになった。
- クリープ破断データの  $\Omega$ 法解析により、いずれの鋼種においても  $\Omega$ 値から推定される破断時間と実際のクリープ破断時間が 1:1 の関係にあり、 $\Omega$ 法が寿命推定の評価法として有効であることが明らかになった。

- V/Nb 成分調整材初期組織の SEM/EBSP 法による結晶方位解析を行った結果、いずれも典型的なマルテンサイト組織を有していることがわかった。
- V 添加量の違いによるマルテンサイト組織の変化は少ないが、Nb 添加量の増加によって、パケット粒径の微細化が起こることが明らかになった。このとき、クリープ破断データから求めた $\Omega$ 値が低下することが明らかとなった。
- V の添加により、ラス境界にフィルム状析出物が形成されることが新たに分かった。この析出物はラス境界を広く被覆しており、V 添加鋼のクリープ強化に寄与している。
- クリープ破断後には、すべての鋼種で、結晶粒が応力方向に $\langle 011 \rangle$ を配向していた。この配向率は鋼種、クリープ強度および負荷応力の違いに関わらず、変形中に生じたひずみにのみ依存していた。
- $\Omega$ 値は、鋼の焼きならし温度により変化した。この変化は、Nb 固溶量の増大に伴う MX 析出量の増加と旧オーステナイト粒径の変化に起因すると考えられる。

#### 【成果の反映状況】

V・Nb 添加高 Cr 耐熱鋼の析出強化能として新たなフィルム状析出物の存在を確認することができた。このような析出物を有効に利用した合金設計手法は、高速炉最適高 Cr 鋼開発に反映可能である。

また、本研究により、高 Cr 耐熱鋼の余寿命評価手法として $\Omega$ 法が有効であることが示されたことから、高速炉最適高 Cr 鋼開発および将来の高速炉機器構造の維持、寿命管理への同法の適用が期待できる。

## 【研究成果の公表】

## &lt;論文 (査読あり) &gt;

- 1) **Effects of Addition of V and Nb on  $\Omega$  in High Cr Ferritic Steels**  
M. Mitsuhashi, Y. Yoshida, K. Ikeda, H. Nakashima, T. Wakai  
Mater. Sci. Forum, 561-565 (2007) pp. 95-98
- 2) **Effect of Vanadium and Niobium on Creep Strength in 10% Chromium Steel Analyzed by STEM-EDS**  
M. Mitsuhashi, Y. Yoshida, K. Ikeda, H. Nakashima, T. Wakai  
Proc. of Creep8 Eighth International Conference on Creep and Fatigue at Elevated Temperatures, CD-ROM, CREEP2007-26746 (2007) pp. 1-5
- 3) **Mechanism of creep strengthening in high Cr ferritic heat resistant steel added V and Nb**  
M. Mitsuhashi, Y. Yoshida, K. Ikeda, H. Nakashima, T. Wakai  
Proc. of The 1st International Symposium on Steel Science 2007 (IS3-2007), (2007) pp. 227-230

## &lt;論文 (査読なし) &gt;

- 1) **V添加 10Cr フェライト鋼におけるラス境界析出物の 3D 電子線トモグラフィー観察**  
光原昌寿, 池田賢一, 波多聰, 中島英治, 若井隆純  
まてりあ, 46 (2007) pp. 800
- 2) **高 Cr フェライト系耐熱鋼の 3次元電子線トモグラフィー観察**  
光原昌寿, 池田賢一, 波多聰, 中島英治, 若井隆純  
日本学術振興会 耐熱金属材料 123 委員会研究報告, 48 (2007) pp. 133-137

## &lt;国内会議&gt;

- 1) **高 Cr フェライト系耐熱鋼のクリープ強度と  $\Omega$  値の関係**  
光原昌寿, 池田賢一, 波多聰, 中島英治, 若井隆純  
日本金属学会 2008 年第 142 回秋期大会, 2008 年 3 月
- 2) **V および Nb 添加高 Cr フェライト系耐熱鋼の 3次元電子線トモグラフィー観察**  
光原昌寿, 池田賢一, 波多聰, 中島英治, 若井隆純  
日本鉄鋼協会第 154 回秋季講演大会, 2007 年 9 月
- 3) **V・Nb 添加高 Cr フェライト系耐熱鋼のクリープ強化機構**  
光原昌寿, 吉田悠, 池田賢一, 波多聰, 中島英治, 若井隆純  
日本金属学会先進材料の高温強度と組織研究会「平成 19 年度夏の学校」, 2007 年 8 月
- 4) **高 Cr フェライト系耐熱鋼の 3次元電子線トモグラフィー観察**  
光原昌寿, 池田賢一, 波多聰, 中島英治, 若井隆純  
日本学術振興会 耐熱金属材料第 123 委員会: 耐熱鋼分科会, 2007 年 7 月

## &lt;国際会議&gt;

- 1) **Effects of Addition of V and Nb on  $\Omega$  in High Cr Ferritic Steels**  
M. Mitsuhashi, Y. Yoshida, K. Ikeda, H. Nakashima, T. Wakai  
The Sixth Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM6), November 2007
- 2) **Effect of Vanadium and Niobium on Creep Strength in 10% Chromium Steel Analyzed by STEM-EDS**  
M. Mitsuhashi, Y. Yoshida, K. Ikeda, H. Nakashima, T. Wakai  
Creep8 Eighth International Conference on Creep and Fatigue at Elevated Temperatures, July 2007
- 3) **Mechanism of creep strengthening in high Cr ferritic heat resistant steel added V and Nb**  
M. Mitsuhashi, Y. Yoshida, K. Ikeda, H. Nakashima, T. Wakai  
The 1st International Symposium on Steel Science 2007 (IS3-2007), May 2007

# 先行基礎工学研究 平成19年度概要報告書 添付資料

出典：  
『高Crフェライト系耐熱鋼の3次元電子線トモグラフィー観察』  
光原昌寿，池田賢一，波多聰，中島英治，若井隆純  
日本学術振興会 耐熱金属材料123委員会研究報告，  
Vol. 48 (2007) pp. 133-137

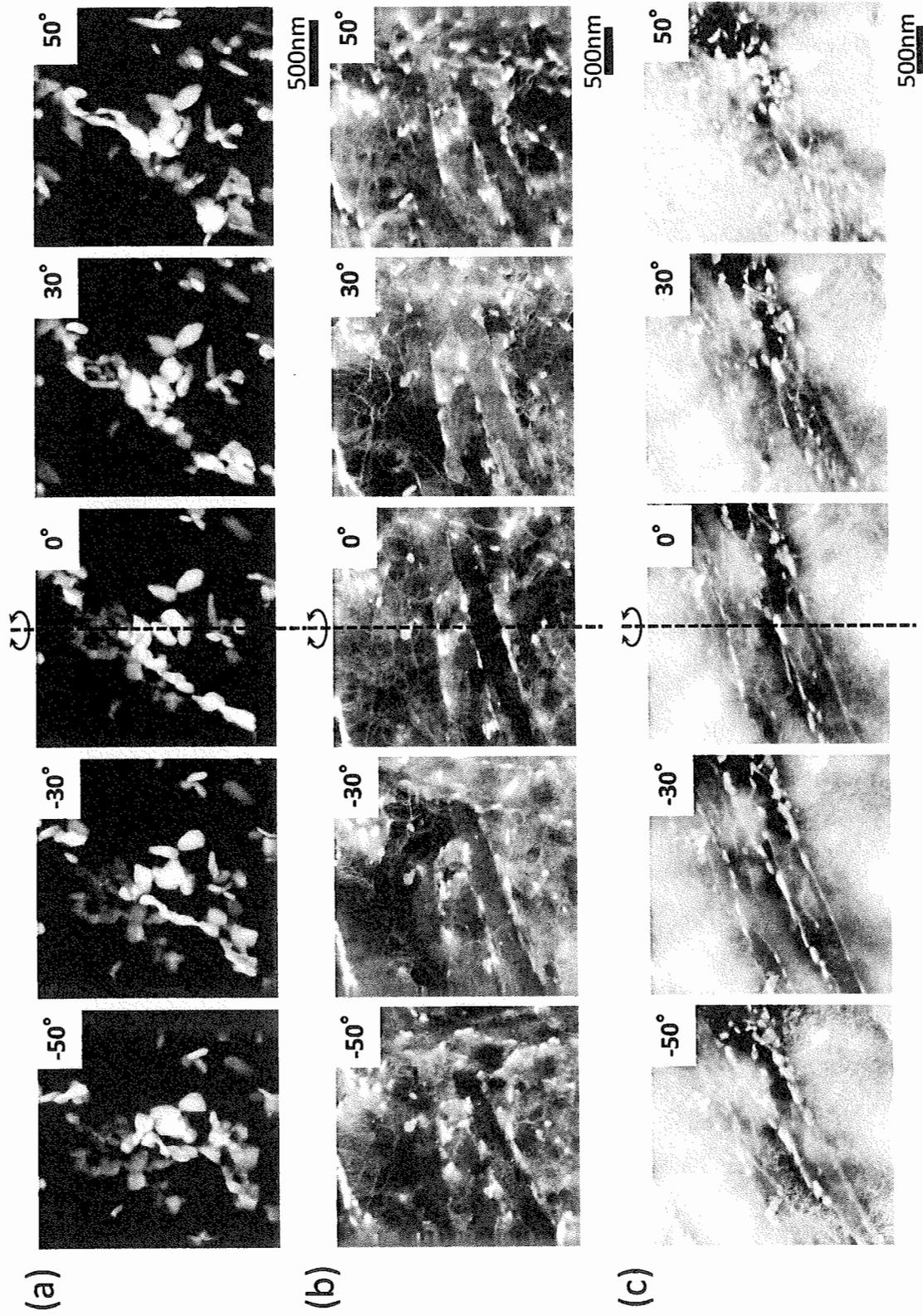


図1 HAADF-STEM法による2次元連続傾斜像  
 (a)Nb添加鋼レプリカ試料, (b)Nb添加鋼薄膜試料, (c)V添加鋼薄膜試料

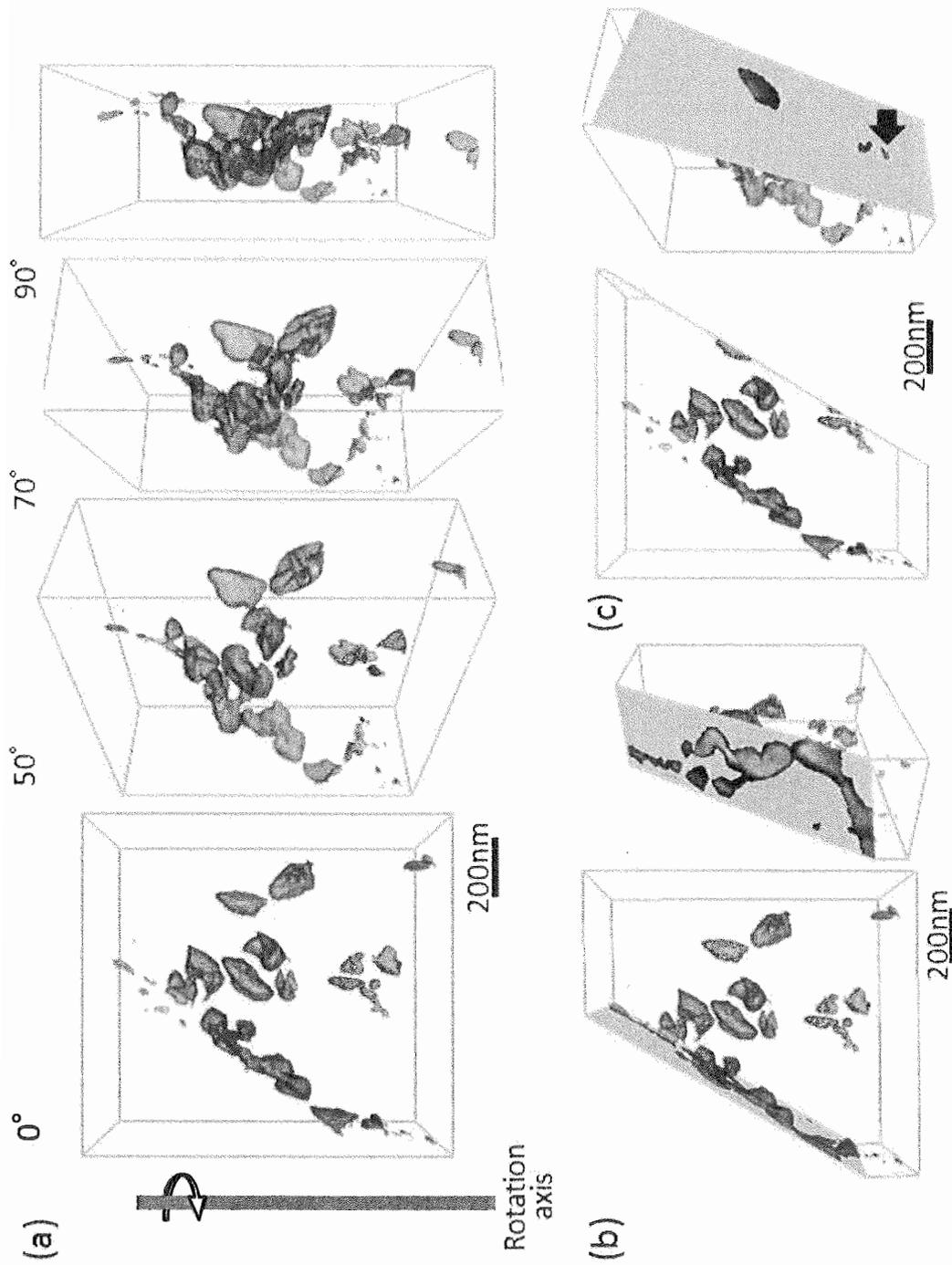


図2 Nb添加鋼レプリカ試料の3次元トモグラフィ構成像  
(a)回転像, (b) $M_{23}C_6$ の断面像, (c)MXの断面像

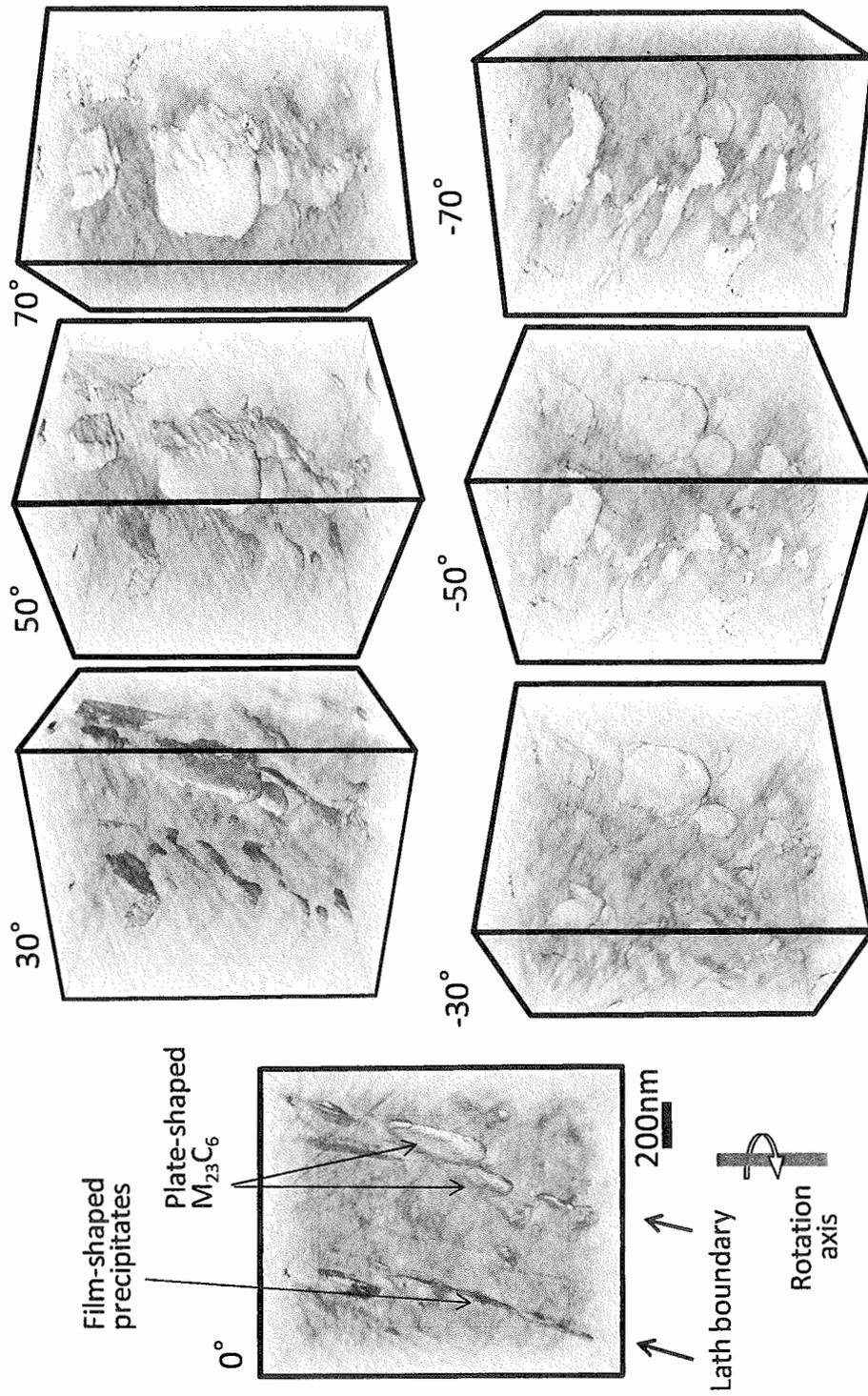


図3 V添加鋼薄膜試料の3次元トモグラフィ構成像

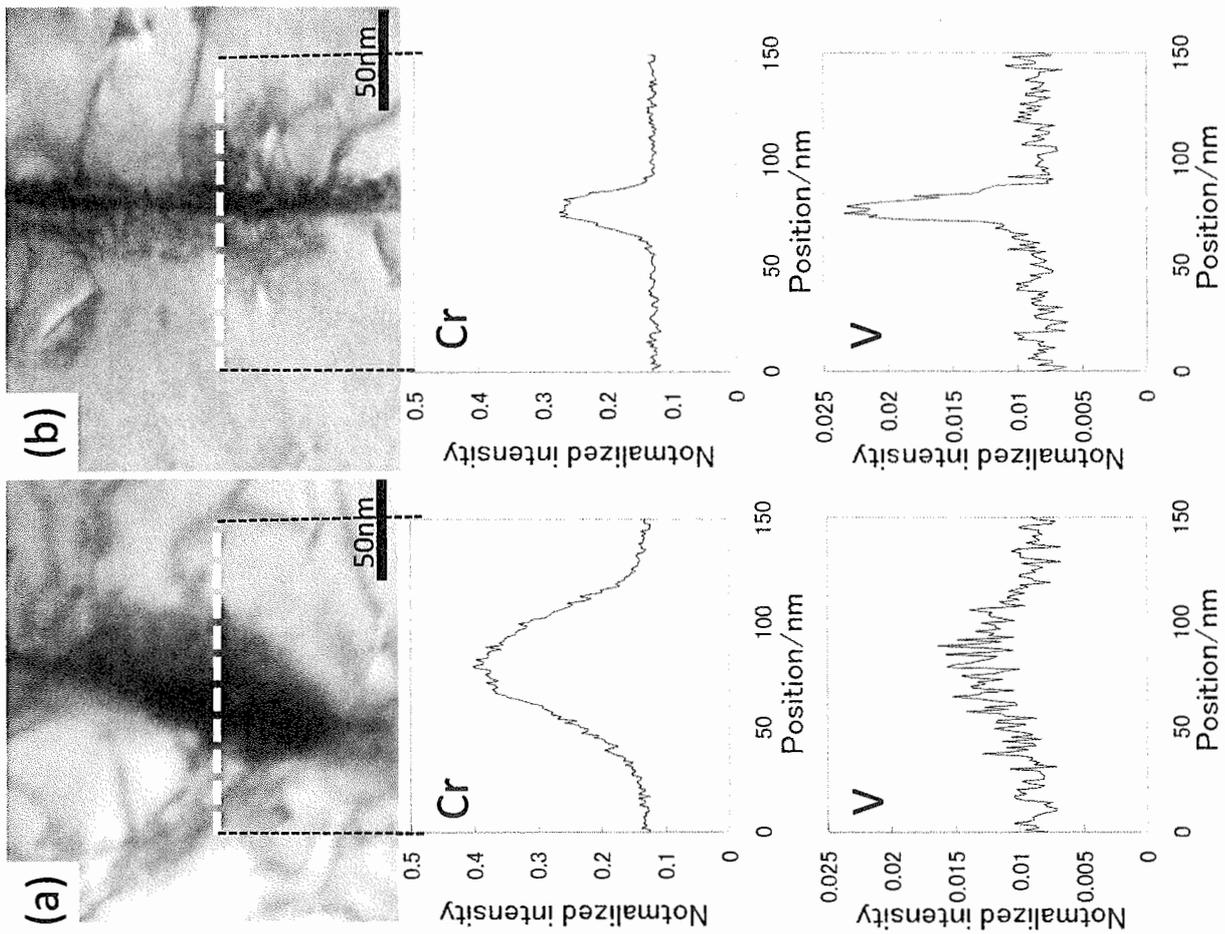


図4 EDSによる元素濃度分析結果 (a)M<sub>23</sub>C<sub>6</sub>, (b)フィルム状析出物

2.1.4 先行基礎工学研究に関する平成19年度研究概要報告書

研究協力テーマ	ナトリウム水反応の影響緩和に関する研究										
研究協力課題	ナトリウムと水が混合するときの流動と熱伝達に関する基礎研究 Experimental study on sodium-water reaction in steam generator of sodium-cooled fast reactor: Flow and heat transfer around a heat transfer tube										
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="3">北海道大学大学院工学研究科 教授 杉山 憲一郎 教授 奈良林 直 大学院生 鶴岡 北斗 西崎 雅則</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="3">次世代原子力システム研究開発部門 FBR システムユニット FBR シミュレーション・グループ - 大島 宏之</td> </tr> </table>			大 学 側	北海道大学大学院工学研究科 教授 杉山 憲一郎 教授 奈良林 直 大学院生 鶴岡 北斗 西崎 雅則			機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR システムユニット FBR シミュレーション・グループ - 大島 宏之		
大 学 側	北海道大学大学院工学研究科 教授 杉山 憲一郎 教授 奈良林 直 大学院生 鶴岡 北斗 西崎 雅則										
機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR システムユニット FBR シミュレーション・グループ - 大島 宏之										
研究実施場所	北海道大学 大学院工学研究科 原子力安全工学研究室 大洗研究開発センター FBR サイクル国際研究開発センター										
通算研究期間 (予定)	平成17年9月 ~ 平成20年3月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成19年6月 ~ 平成20年3月								
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究										
【研究目的】											
<p>ナトリウム冷却高速炉では、蒸気発生器において伝熱管が破損した場合、伝熱管内部から水又は水蒸気がナトリウム側へ噴出し、ナトリウム-水反応が生じる。この結果、反応生成分と共に熱が発生し、高温領域が形成される。この高温領域に存在する伝熱管は機械的強度が低下し、伝熱管二次破損の可能性が生じる。本研究では、伝熱管二次破損の可能性を評価する解析コードの高度化と、その検証のためのナトリウム実験データの取得を目的とする。</p>											
【研究内容（概要）】											
<p>従来、伝熱管二次破損の可能性を評価するため、実機を模擬した実験が行われてきた。しかし、これらの実験結果に基づき、異なる伝熱管配置や運転条件等に対して、現象の予測を行うことは難しい。また、ナトリウムを用いた実験は一般に費用がかかる。したがって、伝熱管二次破損の可能性を定量的に評価するため、日本原子力研究開発機構は、ナトリウム-水反応を解析対象としたSERAPHIMコードの開発を進めている。</p> <p>本研究は、SERAPHIMコードの妥当性の検証および高度化のためのデータ取得を目的とする。その第一段階として、水およびナトリウムプール中に水平に設置した単一加熱円筒へ高速ガスジェットを衝突させ、ガスジェットが熱伝達特性に及ぼす影響、ならびに液体中におけるガスジェットの挙動に関して知見を得る。この実験により実験手法を確立した後、ナトリウムプール中に水蒸気を含むガスジェットを噴出し、伝熱管局所熱流束、周辺温度分布、反応生成分の挙動を検討し、SERAPHIMコードの適用性の検証・高度化を行う。</p>											
【使用主要施設】											
北海道大学大学院工学研究科 原子力安全工学研究室ナトリウム実験室											

【進捗状況（当該年度までの概要）】

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

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

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

平成 19 年度は、ナトリウムプール中におけるガスジェットの空間ボイド率を測定した。質量分率 3%の水蒸気を Ar ガスジェットに混入し、ナトリウム-水反応による温度上昇を測定した。

【研究成果（当該年度）】

1. 実験

(1) ガスジェットの空間ボイド率測定実験

実験体系を図 1 に示す。本実験体系は内径 120.6mm、高さ 350mm の SUS316 製の円筒容器、ガスジェット噴出パイプ、ボイド検知熱電対プローブ、ミストトラップからなる。ガスジェット噴出パイプの先端は直径 3.5mm のノズルが取り付けられており、装置上部より挿入し U 字型に曲げ、上向きジェットとしている。

ボイド率及び温度測定に用いたプローブを図 2(a) に示す。プローブには外径 0.5mm のシース熱電対を用いた。絶縁被覆には昨年度より実績のあるシリコンゴムチューブ（内径 0.5mm、外径 1.0mm）および RTV シリコン接着剤を用いた。信頼性向上と測定中のトラブルを考慮し、プローブは 2 本設置した。昨年度の円筒への設置と同じプローブを用いる予定であったが、このタイプの左右から張ったプローブの設置はスペースを取ることで、左右移動が限られるためノズルの直上付近しか測定できないこともあり、水平方向、上下動が容易な L 字型を採用した。プローブは装置上部でグランドパッキンを使用することによりシールを保ちながら上下左右方向への移動を可能にしている。また、測定中プローブが振動しないように、剛性の高い SUS304 製ガイドチューブを通してプローブを設置している。

ノズル出口から Ar ガスジェットを噴出し、ノズルを上下方向に 1mm、左右方向に 3mm ずつ移動し測定した。プローブからの信号はコンパレータ回路によって 2 値化される。本測定では 5 秒間に 50000 点サンプリングし、時間平均ボイド率を求めた。反応のある条件も含め実験条件は表 1 に示す。

(2) ナトリウム-水反応予備実験

ナトリウム-水反応予備試験は、上記装置を用いて測定を行った。この際プローブの健全性を確認するため図 2 に示す (a) シリコンゴムチューブおよび RTV シリコン接着剤、(b) シリコンゴムチューブのみ、(c) アルミナセラミックチューブの 3 つの絶縁方法を用いた。RTV シリコン接着剤は純粋なナトリウムとの共存性は確認できたが、硬化するまでは絶縁性があることと、詳細な成分が分からなかったために反応生成物との共存性が不明などの理由によりシリコンゴムチューブのみのプローブも製作した。

アルゴンガスに混合する水蒸気は、温度を調節した水プール中に一度アルゴンガスをバブリングし所定量を得た。また、その量は湿度計により確認した。本実験では水蒸気の質量分率を約 3% とし、混合ジェットをナトリウム中に噴出する前に、念のため蒸気量確認ラインから 5 分間に排出された水分質量を確認する方式を取った。ノズルから水蒸気混合ジェットを噴出し、噴出孔から 25、45mm 上方、また気相空間の温度測定を行った。

2. 結果と考察

(1) ボイド率測定実験

図 3 にノズル出口ガスジェット速度 17.3、51.9、86.6m/s での水プール中およびナトリウムプール中でのノズル直上でのボイド率を示す。図中の横軸は噴出孔からの鉛直方向

の高さ、縦軸は時間平均ボイド率を示す。水プール中ではノズル出口部でボイド率がほぼ 1 を示しており、距離を大きくすると単調に低下する。またガス流速によりボイド率の減少する勾配は異なるが、単調減少している傾向は一致している。昨年度の円筒前面の設置位置はノズル出口から 25mm 直上であったが、同じ 25mm で比較すると値は大体一致し、円筒を設置した方がボイド率が高い傾向にある。これは円筒が障害物になり、前方よどみ点でボイドが停滞するため、時間平均ボイド率にすると高くなるためである。一方、ナトリウムプール中では水中のように単調に減少せず、幾分ばらつきが見られる。しかし、水と同様に鉛直方向の距離が増加するとボイド率も低下する傾向は観察された。またノズル出口部で水中とは異なり約 0.7 と低い値を示している。これはノズル出口から噴出した後、直ちに周囲のナトリウムと混合しているためだと考えられる。本実験のガスジェット速度の範囲では、ジェットはノズルから間欠的に噴出していると推定されるため、ジェットの噴出後周囲のナトリウムがノズル孔の内部に侵入している可能性も考えられる。

#### (2) ナトリウム-水反応実験

ナトリウムプール中で質量分率約 3%の Ar-水蒸気混合ジェットを噴出した際、シース式熱電対によるボイドプローブは瞬時に挙動不審になり計測不可能となった。この挙動は (a)、(b)、(c) いずれの絶縁方法でも同様である。以下にその挙動の様子を述べる。

- ・ Ar100%ガスラインから、3%水蒸気混合ラインに切り替えた瞬時に、信号は液相信号のみを示す。
- ・ 時間がある程度経過すると、少しずつ気相信号を示す。
- ・ 最終的に気相信号のみを示し、以後常に気相信号を示す。
- ・ ガスジェット空間からノズルを左右に移動させ、ナトリウム中に入ると液相を示す。

最後の項の挙動より、プローブ自身の健全性は保たれているため、断線等により信号を拾えなくなった可能性はない。つまり導電性の高い生成物がプローブ全体に付着、あるいは導電性のガス雰囲気形成され周囲のナトリウムと導通している可能性が考えられる。時間経過後に気相信号のみを示すのは、固体状の絶縁性酸化物がプローブに付着してしまったためと推定できる。プローブを左右に移動すると液相信号を示すのは、ナトリウムによって反応したガスジェットの影響を受けなくなるため、あるいは、還元性の高い周囲ナトリウムによってプローブに付着した生成物が洗浄されたためと考えられる。

このようにナトリウム-水反応下におけるボイド率測定は不可能だったが、温度計測は問題なく測定出来た。その結果を示す。図 4 にナトリウム中での温度上昇を示す。横軸は測定開始からの時刻、縦軸は温度である。水蒸気混入ガスジェットを噴出してすぐ温度上昇を確認できたのは、液面 (100mm) より 50mm 上で試験タンク壁面付近に設置している熱電対であった。水蒸気混合前の温度は 167℃であったが、蒸気を混合すると温度は上昇し始め、180℃以上まで上昇した。

プローブでの温度は変動が大きく、分かり難いが平均化すると約 10℃程度の上昇であった。ガス空間に比べて温度変化が小さいのは、液体ナトリウムの熱伝導率が非常に大きいいため、反応熱が即座に周囲のナトリウムに伝導して拡散しているためだと考えられる。

ボイドプローブの機能が失われた理由として、反応物の導電性が良好なことが最も大きな可能性として考えられるため、ガス空間内で混合ガスを噴出し測定した。ノズルは液面より 20mm 上の位置に再設置し、プローブ熱電対はノズルより 10mm 上の位置に設置して水蒸気を噴出した。この際ボイド率は常に気相信号を示したため、水蒸気自身の影響ではないことがわかった。このときの温度測定結果を図に示す。ガス空間で水蒸気を噴出させているので、上フランジに付着したナトリウムやナトリウムプール液面との反応でノズル直上の温度が上昇したと推定される。温度上昇が大きいのは、ノズル、プローブともガス空間に設置しており、ナトリウムへの熱の拡散が少ないためだと推測される。ただし図 4 (b) に比べてガス空間壁面温度上昇が小さい理由は分からない。

### 3. 結論

本研究では、蒸気発生器内においてナトリウム-水反応が発生した場合の流動様式および隣接伝熱管への熱移行量についての知見を得る基礎実験として、ナトリウムプール中で

のフリージェットボイド率測定を行い、ガスジェットが衝突するときの単一円筒周りのボイド率との比較検討をすることでナトリウム中での流動挙動を明らかにした。また同体系におけるナトリウム-水反応を伴う温度上昇を測定し以下の結論を得た。

- (1) ナトリウムプール中では、ノズル出口で既にガスジェットとナトリウムの混合が生じており、ガスジェット速度に対する依存性は水に比べて明らかに小さい。また、ノズル出口からの距離に対しても単調な変化をとる。
- (2) ナトリウムと水中では流動挙動が大きく異なる可能性が示唆された。これは水とナトリウムの表面張力の差に起因していると考えられる。
- (3) ナトリウム-水反応のある場合、開発したシース式熱電対プローブでのボイド率の測定が極めて困難である。原因は、反応物とナトリウムの相乗効果により絶縁性が保持できなくなることや、絶縁物が付着して導電性を保持できなくなる現象があるためである。

#### 4. 記号

Re = ノズル出口レイノルズ数

We<sub>a</sub> = ノズル出口周囲ウェーバー数

#### 【成果の反映状況】

本研究による成果は、水中とナトリウム中では流動挙動が大きく異なり、ナトリウム中の挙動を水中と同様に扱うことが出来ない可能性があるという新たな知見を得たことから、コードの改良、高度化に反映される。

#### 【研究成果の公表】

##### <国内会議>

- 1) 鶴岡 北斗、田村 武士、杉山 憲一郎、奈良林 直、大島 宏之 : 「単一円筒に衝突するガスジェットと周囲ナトリウムとの混合挙動Ⅱ」、日本混相流学会年会講演会 2007、平成 19 年 6 月 22～24 日、札幌
- 2) 鶴岡 北斗、田村 武士、杉山 憲一郎、奈良林 直、大島 宏之 : 「単一円筒に衝突するガスジェットと周囲ナトリウムとの混合挙動(Ⅲ)」、日本原子力学会 2007 年秋の年会、平成 19 年 9 月 27～29 日、北九州
- 3) 鶴岡 北斗、田村 武士、杉山 憲一郎、奈良林 直、大島 宏之 : 「ガスジェットが衝突する単一円筒周りの Na-水反応を伴う熱伝達特性」、日本原子力学会 2008 年春の年会、平成 20 年 3 月 26～28 日、大阪

##### <国際会議>

- 1) H. Tsuruoka et al., "Mixing Behavior of Argon Jet with Liquid Sodium Around a Single Rod - A Basic Study on Sodium-Water Reaction-", Proc. International Conference on Nuclear Engineering, Student Paper Competition (48767), Orlando, Florida, USA, May 11-15, 2008.

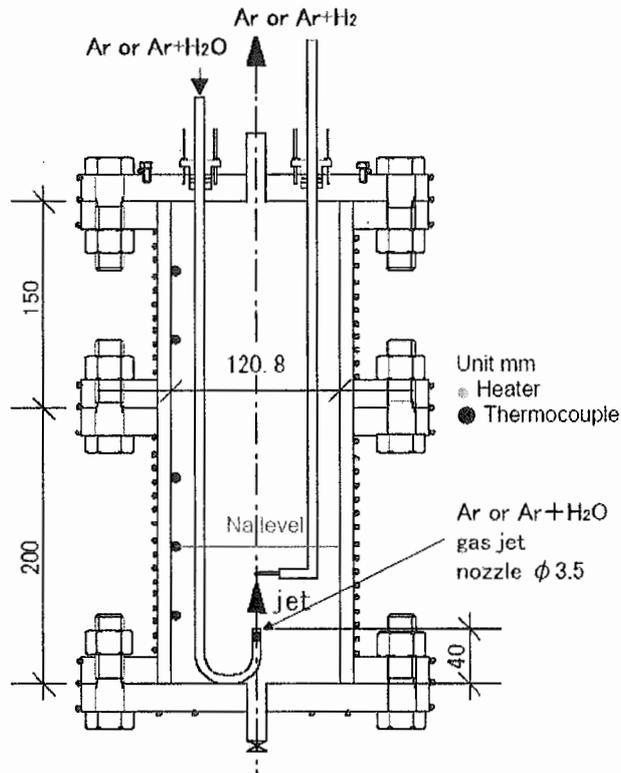


図1 実験体系

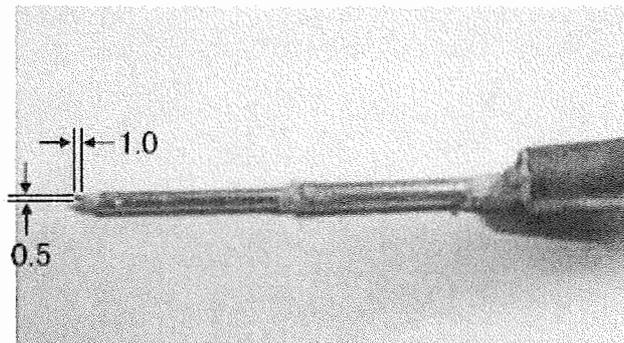


図2(a) シリコンゴムチューブ+RTVゴム絶縁プローブ

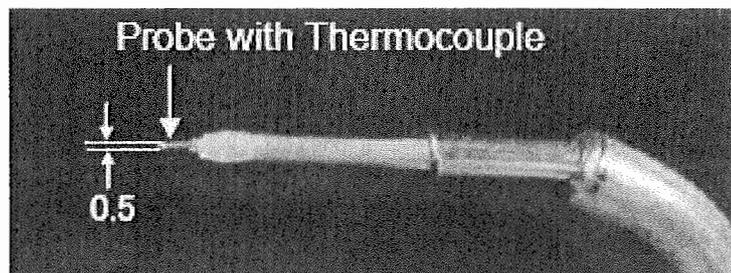


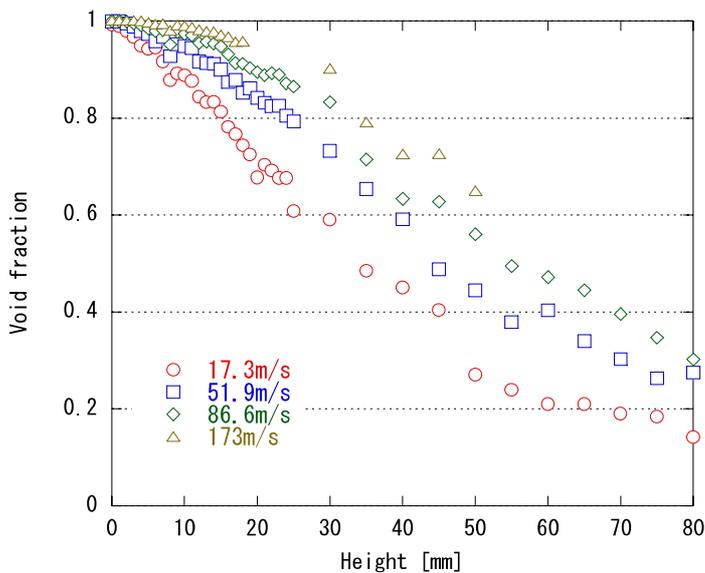
図2(b) シリコンゴムチューブ絶縁プローブ



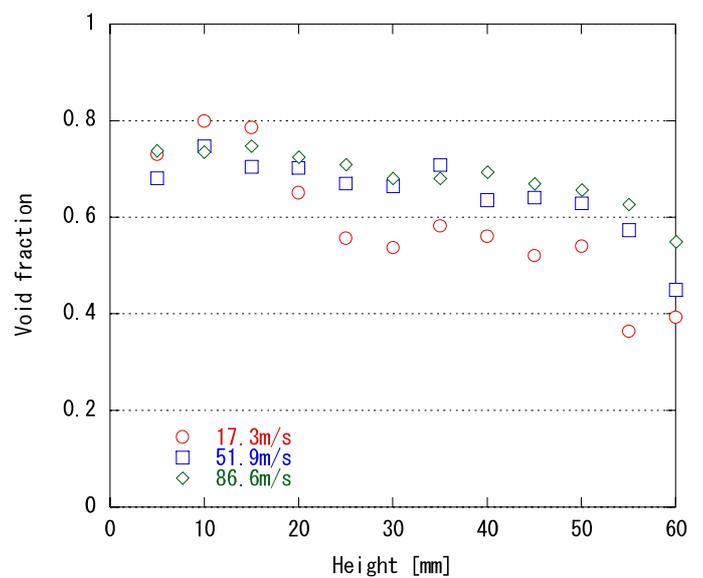
図 2(c) アルミナチューブ絶縁プローブ

表 1 実験条件

	Water-Ar	Sodium-Ar	Sodium-Ar+H <sub>2</sub> O
Ambient fluid	Water (15°C)	Sodium (170°C)	Sodium (170°C)
Gas jet	Ar	Ar	Ar+H <sub>2</sub> O mass fraction:3%
Nozzle diameter [mm]	3.5		
Fluid level [mm]	200		100
Jet velocity at nozzle exit [m/s]	17.3~173	17.3~86.6	17.3
Re number at nozzle exit	$4.51 \cdot 10^3 \sim 4.51 \cdot 10^4$	$2.18 \cdot 10^3 \sim 1.09 \cdot 10^4$	$2.18 \cdot 10^3$
We <sub>a</sub> number at nozzle exit	$1.44 \cdot 10^4 \sim 1.44 \cdot 10^6$	$5.03 \cdot 10^3 \sim 1.26 \cdot 10^5$	$5.03 \cdot 10^3$

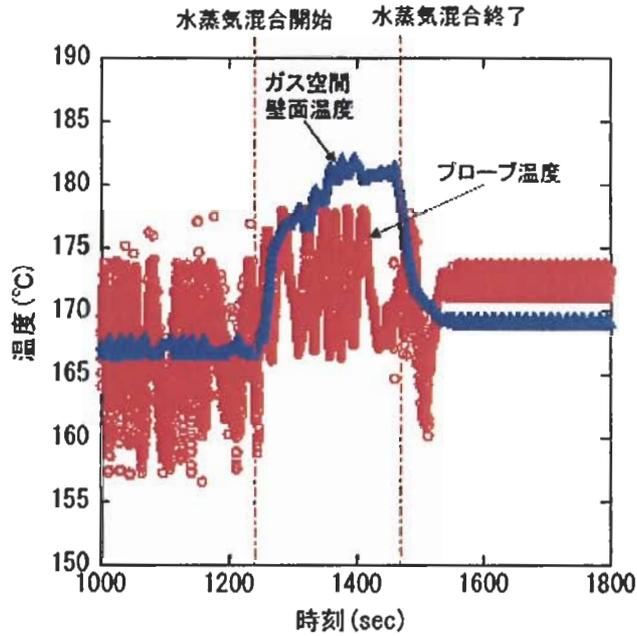


(a)水プール

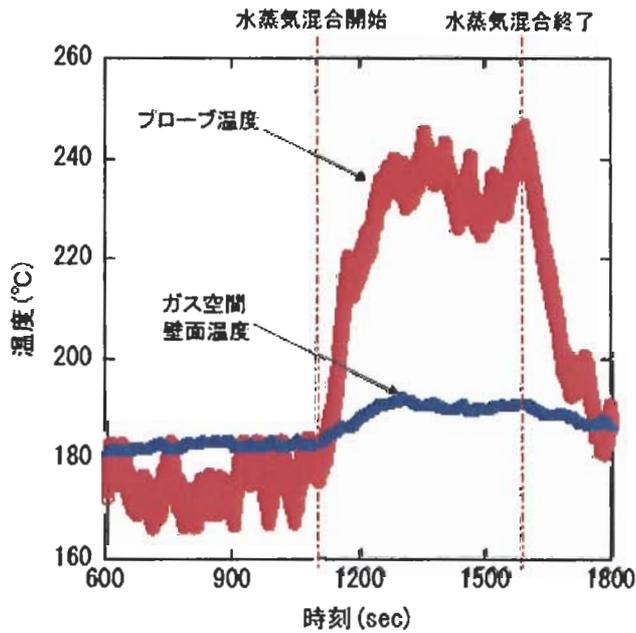


(b)ナトリウムプール

図 3 水プール中及びナトリウムプールにおけるフリージェットボイド率



(a) Naプール中での計測  
 (ノズル出口位置: 液面より60mm下)  
 (プローブ位置: ノズル出口より25mm上)



(b) ガス空間での計測  
 (ノズル出口位置: 液面より20mm上)  
 (プローブ位置: ノズル出口より10mm上)

図4 ナトリウム-水反応中の温度変化

2.1.5 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

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

## (1) 応力再配分モデルの適用範囲の把握

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

## (2) 応力再配分モデルと強度との関係解明

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

## (a) 有孔平板試験片のFEM解析

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

## (b) 試験片の設計・製作

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

## (c) 高温疲労き裂発生実験

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

## (d) 高温クリープ疲労き裂発生実験

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

高温実験では電気炉を用い、ファイバースコープでき裂発生を確認する。

## (e) 応力再配分モデルによる試評価

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

## (3) 設計手法の開発

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

## 【使用主要施設】

筑波大学：高温炉付サーボパルサ、（島津製作所製 EHF-UB50KN-10L 形、5 トン、試験機組込型二ッ割大気炉（ネムス株式会社製）700℃まで）

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 17 年度は、以下の項目を実施した。

## (1) 応力再配分モデルの適用範囲の明確化

膜応力主体となる有孔平板の FEM 弾塑性解析を実施し、応力再配分モデルによる予測結果（無次元化応力—ひずみ曲線）と比較した。その結果膜応力主体の条件においても、弾性核が存在する場合は、両者による予測は、精度良く一致することがわかった。

## (2) 応力再配分モデルと強度との関係解明

## (a) 有孔平板試験片の FEM 解析

丸棒試験片から平板に削りだした円孔を有する試験片の実験を行うため、孔の大きさや個数を設計のため、FEM 弾塑性解析を実施した。

## (b) 試験片の設計・製作

(a) で得られた解析に基づき、試験片を設計・作成した。複数個の円孔が存在する場合は、弾性核が消失しやすいため、応力再配分モデルが通常のものとは異なる可能性がある。このような場合も含むように、孔が 1 あるいは幅方向に 2 個の試験片を作成し、試験片の幅が 16mm に対して孔が 1 個のものはその直径が 2, 4, 6, 8mm、孔が 2 個のものはその直径が 2, 4, 6mm のものを製作した。

## (c) 高温疲労き裂発生実験

高温炉付サーボバルサを用いて、高温疲労き裂発生実験を行った。荷重を測定することにより最大荷重時での最大荷重を計測し、75%までに荷重が低下するまで計測した。孔の大きさと個数をパラメータとして実験を行い、荷重—変形曲線の違いを計測した。

また、き裂発生の有無を確認するため、電気炉に観察窓設置の工事を行った。また、ビデオマイクロスコープを大学で購入し、電気炉外側から観察の適用性について調査した。

## (d) 高温クリープ疲労き裂発生予備実験

繰り返し負荷において、引き張り負荷時の荷重を保持して、クリープ変形を生じさせ、これの強度に及ぼす影響を検討しているが、現段階では数本の実験結果にとどまっている。

## (e) 応力再配分モデルによる試評価

SRL 法を用いて、高温疲労強度の評価を実験結果の比較を行った。線形損傷則を適用して評価であるが、応力再配分モデルによるひずみ集中部のひずみを求め、また、試験中の荷重変化の履歴からき裂発生位置での繰り返し数を修正する。クリープの影響がある場合には、その影響を考慮してき裂発生時の評価を行い、予備実験結果と比較した。

## (3) 設計手法の開発

平成 18 年度下半期より実施予定。

平成 18 年度は、以下の項目を実施した。

## (1) 応力再配分モデルの適用範囲の把握

弾性領域（弾性核）による応力再配分のメカニズムを理論的に明らかにするとともに、解析的検討により応力再配分モデルの適用範囲を把握する。筑波大とサイクル機構が共同で実施する。平成 18 年度は、ノッチ付梁の弾塑性 FEM 解の分析により、塑性領域が一定の範囲内に限定されている場合は、ノッチの径によらず、同一の応力再配分挙動を示すことが明らかになった。これによりピーク応力が負荷された構造に対しても、応力再配分モデルを適用できる可能性があることがわかった。

## (2) 応力再配分モデルと強度との関係解明

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

## (a) 有孔平板試験片の FEM 解析

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

(b) 試験片の設計・製作

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

(c) 高温疲労き裂発生実験

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

(d) 高温クリープ疲労き裂発生実験

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

(e) 応力再配分モデルによる試評価

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

(3) 設計手法の開発

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

平成 18 年度は、これまでに実施された検証用の検討内容を調査・整理した。

平成 19 年度は、以下の項目を実施した。

(1) 応力再配分モデルの適用範囲の把握

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

(2) 応力再配分モデルと強度との関係解明

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

(a) 試験片の設計・製作

平成 19 年度は、高温クリープ疲労に必要な試験片を製作した。

(b) 高温クリープ疲労き裂発生実験

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

(c) 応力再配分モデルによる試評価

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

(3) 設計手法の開発

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

## 【研究成果（当該年度）】

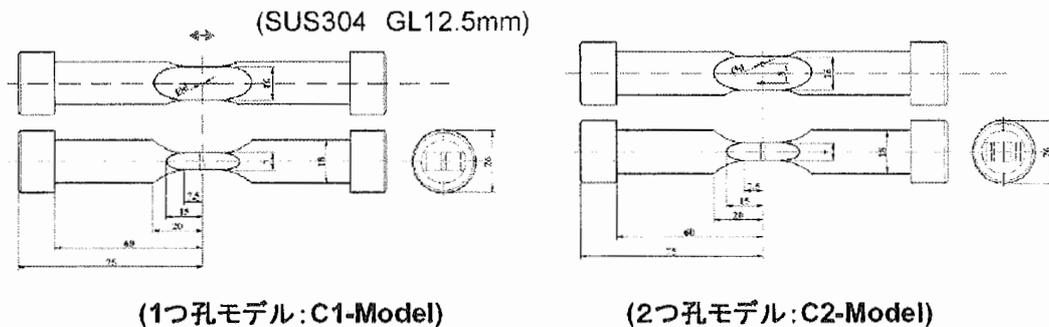
## (1) 応力再配分モデルの適用範囲の把握

弾性領域（弾性核）によるひずみ集中の制御を記述する応力再配分モデルに着目し、理論および解析的検討によりその適用範囲を把握した。理論的検討においては、剛性の異なるはりモデルを直列につなぎ、構造不連続による応力集中を模擬し、根本の板厚内応力再配分を求めることで、応力再配分軌跡を検討した。従来の設計で想定されていた形状（ $q < 3$ ）で、総体的な非弾性変形が降伏応力の2倍の範囲で制限されている領域において、実際のひずみ集中挙動を精度良く近似するマスターSRL曲線を設定できる見通しが得られた。

また、数値解析から、曲げ応力に対し、ピーク応力が重畳した場合も、基本モデル同様、非弾性変形が降伏応力の2倍の範囲で制限されている領域において、SRL曲線は、形状に鈍感であり、マスターSRL曲線が存在している。膜応力にピーク応力が重畳した場合も、基本モデル同様、非弾性変形が降伏応力の2倍の範囲で制限されている領域において、SRL曲線は、形状に鈍感であり、マスターSRL曲線が存在している。この検討は、サイクル機構が担当した。

## (2) 応力再配分モデルと強度との関係解明（SRLと強度の関係）

応力再配分モデルに基づく強度評価結果を強度試験結果と比較することにより、モデルと強度との関係を解明する。試験強度は、典型的な構造不連続部である、応力集中部を有する孔が1つあるいは複数個空いた板を用いた疲労およびクリープ疲労試験により計測する。SRLが既知の場合（マスターSRL適用範囲、解析などによりSRLを特定している場合）SRLを用い、応力集中部に発生する非弾性ひずみを、クリープによる応力再配分挙動を予測し、これらから予測される有孔平板の破損寿命と試験結果を比較し、SRLの強度評価への適用性を検討する。管板を念頭に孔あき平板を選定。孔形状をパラメータとした。



高温での疲労およびクリープ疲労強度試験を実施し、SRLから求めたひずみ範囲を用い、疲労強度を精度良く評価可能であり、SRLから求めたひずみ範囲を用い、クリープ疲労強度を精度良く評価可能であることを確認した。この検討は、主に筑波大が担当した。

## (3) 設計手法の開発

上記(1)と(2)を組み合わせ応力再配分モデルに基づく強度評価法を開発する。既存の高温構造設計方針におけるクリープ疲労強度評価法（従来法）と整合性を有する応力再配分モデルに基づく設計用強度評価法を用いて、ひずみ範囲や破損繰返し数を検討する。弾性追従係数 $q=3$ を用いて従来法、SRL、部分非弾性（FEM）似る比較から、SRL法は、非弾性解析を用いた場合と同程度まで合理化でき、従来法は試験結果（構造物の破損）を過度に保守的に評価し、SRL法は、試験結果と同等か保守的に評価することを明らかにすることができた。この検討は、サイクル機構が担当した。

## (4) き裂発生プロセスに関する検討

応力集中部を有する破損は、平滑材の破損と異なり、き裂の発生の発生が直ちに破損とはならず、徐々にき裂が進展し、最終的に破断する。このき裂の発生から進展および破損のプロセスを、半円切り欠きを有する平板を用いて検討した。CCDカメラを用いた観察から、マイクロクラックは板厚中央近傍に発生し、その後、後続きき裂と合体としながら、板厚中央から板厚表

面まで進展する。板厚表面にき裂が達したとき、正味の断面積も減少し、荷重も同時に減少し始める。また、この時点では、板厚方向からもき裂が観察できるようになる。これまでの検討で用いてきた破損発生回数は、荷重減少開始点であることを明らかにした。この検討は、主として筑波大学が担当した。

【成果の反映状況】

本研究による成果は、実用高速炉の高温設計方針におけるクリープ疲労強度評価法に反映している。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) Bopit BUBPHACHOT, 渡部 修, 川崎信史, 笠原直人  
高温疲労試験におけるき裂の発生・進展・結合と荷重への影響、日本機械学会材料力学部門講演会 (2007), 査読無.
- 2) Bopit BUBPHACHOT, 渡部 修, 川崎信史, 笠原直人  
高温での円孔板のき裂の発生と進展の観察、日本機械学会 2007 年次大会講演論文集 (1), No. 07-1, (2007), pp. 689-690.

<国際会議>

- 1) Bopit BUBPHACHOT, Osamu WATANABE, Nobuchika KAWASAKI, Naoto KASAHARA  
Crack Initiation Process for Semi-Circular Notched Plate in Fatigue Test at Elevated Temperature, to be presented at ASME PVP Conference, PVP2008-61408, (2008), 査読有.
- 2) Osamu WATANABE, Bopit BUBPHACHOT, Nobuchika KAWASAKI, Naoto KASAHARA.  
Crack Initiation Process for Semi-Circular Notched Plate in Creep-Fatigue Test at Elevated Temperature, to be presented at ASME PVP Conference, PVP2008-61409, (2008), 査読有.
- 3) Osamu WATANABE, Bopit BUBPHACHOT, Nobuchika KAWASAKI, Naoto KASAHARA  
Fatigue Strength Evaluation of Perforated Plate at Elevated Temperature using Stress Redistribution Locus Method, Proceedings of the ASME Pressure Vessels and Piping Conference, Vol.9, 8<sup>th</sup> International Conference on Creep and Fatigue at Elevated Temperatures CREEP8, (Principal Editor: Carl E. Jaske) pp.323-331, ASME CREEP2007-26698, (2007), 査読有.
- 4) Bopit BUBPHACHOT, Osamu WATANABE, Nobuchika KAWASAKI, Naoto KASAHARA  
Creep-Fatigue Strength Evaluation of Perforated Plate at Elevated Temperature using Stress Redistribution Locus Method, Proceedings of the ASME Pressure Vessels and Piping Conference, Vol.9, 8<sup>th</sup> International Conference on Creep and Fatigue at Elevated Temperatures CREEP8, (Principal Editor: Carl E. Jaske) pp.333-341, ASME CREEP2007-26702, (2007), 査読有.

2.1.6 先行基礎工学研究に関する平成19年度研究概要報告書

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

【使用主要施設】

東京電機大学 神田キャンパス 11号館

- ・小型振動試験機 鷺宮製作所製 油圧サーボ水平振動試験機 最大加速度：3G
- ・実験結果整理・数値解析用計算機 Apple社製 iMac G5 2GHz 二台
- ・実験結果整理・数値解析用アプリケーション Mathworks社製 MATLAB R2007b
- ・実験結果記録処理用計算機 Apple社製 Powerbook G4 12inch 1.5GHz
- ・実験結果記録装置 TEAC社製 es-8 (8ch ポータブルデータレコーディングシステム)

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成17年度（研究初年度）は、以下に示す三点を実施した。

(1) 文献調査

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

(2) 弾塑性域での振動挙動の把握

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

(3) エルボ配管加振試験結果のエネルギーによる整理

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

平成18年度（研究二年度）は、以下に示す四点を実施した。

(1) 単純一質点系モデルに破損を生じさせる振動実験（軽微な破損までの試験）

破損とエネルギーの関係の解明を目標とし、ランダム波による強制加振を長時間繰り返し行うことで供試体を破損させる振動実験を行った。実験では、入力加速度が小さいほど破損には多くの総エネルギー入力を必要とすることが確認された。

(2) 破損を伴う振動実験の結果に基づくエネルギーと破損の関係の検討

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

(3) 破損を伴う振動実験の破損モードの検討

振動外乱による破損実験の破損モードを検討するため、正弦波を入力波とした破損を伴う振動実験を行った。実験結果を既往の疲労試験の結果と比較したところ、それらは一致したことから、振動外乱による破損実験の破損モードは疲労破壊であると推定された。

(4) 配管要素（直管）モデルの設計

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

平成19年度（研究最終年度）は、以下に示す三点を実施した。

(1) 直管配管モデルに破損を生じさせる振動実験（軽微な破損までの試験）

平成18年度に単純一質点系モデルにより確認されたエネルギーと破損の関係を、より確証的なモデルで検討するため、同じく平成18年度に設計、製作した直管配管モデルに破損

を生じさせる振動実験を行った。実験結果を整理した結果、単一質点系モデル同様、総エネルギー入力と破損との相関を確認した。したがって、エネルギーと破損の関係は一般的に成立するものと考えられる。

(2) エネルギーへの累積損傷則の適用

様々な入力での破損時期をエネルギーにより予測するため、累積損傷則の考え方をエネルギーに適用した。単一質点系モデルを用い、様々な入力レベルのランダム波で実験モデルを疲労破損させた。その結果、累積損傷則をエネルギーにも適用可能があることがわかり、様々な入力下でエネルギーによる破損時期の予測が可能になる見込みを得た。

(3) 累積塑性ひずみエネルギーと総エネルギー入力の関係

一般に塑性エネルギーが破損に寄与するエネルギーとされていることから、本研究で評価指標としている総エネルギー入力と塑性エネルギーの関係を検討する必要がある。非線形応答解析より検討を行った結果、疲労破損に至るような塑性変形を生じる振動外乱下では、塑性エネルギーが総エネルギー入力の大部分を占め、両エネルギーは同様の振る舞いを示すことが確認された。

【研究成果（当該年度）】

(1) 直管配管モデルに破損を生じさせる振動実験（軽微な破損までの試験）

平成 18 年度に単一質点系モデルにより確認されたエネルギーと破損の関係を、より確証的なモデルで検討するため、同じく平成 18 年度に設計、製作した直管配管モデルを用い、破損を伴う振動実験を行った。

実験では、図 1（別紙、以下同様）の供試体（配管部材質 SUS304、固有振動数 21.4 [Hz]、減衰比 0.41 [%] の直管）に卓越振動数 19～22 [Hz] のランダム波を長時間入力し、配管下部にクラックを生じさせた。二種類のランダム波を様々な加速度で入力し、疲労破損に要する総エネルギー入力を算出した。

実験結果の一例として、図 2 に破損までの時間と破損に要する総エネルギー入力の関係、図 3 に最大入力加速度と破損に要するエネルギーの関係を示す。図 2 より、破損までの時間が長いほど破損には多くのエネルギーを要することが確認できる。図 3 より、最大入力加速度が大きいほど少ないエネルギーで破損に至ることが確認できる。その他、実験結果を更に整理した結果、単位時間あたりの総エネルギー入力の増加量が大きいほど、少ないエネルギーで破損に至ることが確認された。これらの傾向は平成 18 年度に行った単一質点系モデルでの実験と同様であり、エネルギーと破損の関係は一般的に成立することを確認した。

(2) エネルギーへの累積損傷則の適用

疲労破損を伴う振動実験では、平成 18 年度の単一質点系モデル、平成 19 年度の直管配管モデル共に疲労破損とエネルギーの間に関連性を確認することが出来たものの、いずれの実験も同一レベルのランダム波を入力したものであった。実際の配管系は様々なレベルの地震動を複数回経験すると考えられることから、様々な入力レベルでの破損時期を予測できることが望まれる。そこで、疲労強度学で変動荷重の疲労寿命を求める際に使用される累積損傷則の考え方をエネルギーに適用し、様々な入力レベルでの破損時期をエネルギーにより予測することが可能かを検討した。実験は単一質点系モデルを用いて行った。

適用の検討は以下の通り行った。(i)平成 18 年度の実験結果より求めた同一入力レベルでの破損とエネルギーの関係の回帰曲線を求める。(ii) 30 分間同一レベルのランダム波で加振実験を行い、その間に入力されたエネルギーを算出する。(iii)その実験条件での破損に要するエネルギーと 30 分の加振で入力されたエネルギーの比（疲労損傷）を求める。(iv)様々な入力レベルのランダム波で(i)～(iii)を繰り返し、疲労損傷の総和（累積疲労損傷値）を求める。以上の手順で検討を行ったところ、エネルギーの累積疲労損傷値が約 1 で実験モデルに疲労破損が生じた。これは、疲労強度学における累積損傷則の破損条件と同様であり、エネルギーに対しても累積損傷則が適用可能であることが確認できた。また、これにより、同一入力レベルでの破損とエネルギーの関係が把握できれば、様々な入力を

受けた場合でも、エネルギーにより破損時期の予測が可能になる見込みを得た。

(3) 累積塑性ひずみエネルギーと総エネルギー入力の関係

累積塑性ひずみエネルギーはヒステリシスループの面積と等価であり、一般に累積塑性ひずみエネルギーが破損に寄与するエネルギーと見なされている。一方で、実験により累積塑性ひずみエネルギーを算出することは極めて困難であることから、これまで本研究では、累積塑性ひずみエネルギーと減衰により吸収されるエネルギーの和である「総エネルギー入力」を破損の評価に用いてきた。そこで、破損評価指標としての総エネルギー入力の有効性を検討するため、累積塑性ひずみエネルギーと総エネルギー入力の関係を検討した。

検討は、単純一質点系モデルによる実験結果と非線形応答解析結果を統合し、破損に要する総エネルギー入力、減衰により吸収されるエネルギー、累積塑性ひずみエネルギーの関係を求めた。その他、総エネルギー入力における減衰、塑性両エネルギーの占める割合を求めた。その結果、総エネルギー入力と破損との間に見いだされた関係は、累積塑性ひずみエネルギーと破損との間にも成立することが確認された。また、塑性後は累積塑性ひずみエネルギーの総エネルギー入力に占める割合が急激に増加し、例えば単純一質点系モデルの場合、70%に及んだ。以上より、特に低サイクル疲労を生じる塑性域では、総エネルギー入力と累積塑性ひずみエネルギーは同様の振る舞いをすることから、総エネルギー入力に着目することの有効性を確認した。

まとめ

研究最終年度である平成 19 年度は、平成 18 年度までに確認されたエネルギーと破損の関係の一般成立性に関して研究を進めた。より確証的なモデルを使用した実験、既存の疲労強度学の理論の取り込み等を行った結果、エネルギーと破損の関係が一般的に成立することを確認することができた。したがって、前述の「動的挙動を考慮したエネルギーベースの限界強度評価手法を将来的に構築するための基礎的技術を開発する」という研究目的を達成したと言える。今後、本研究の成果を反映したエネルギーに基づく合理的な耐震評価手法の構築が期待される。

【成果の反映状況】

現在までに、本研究の研究成果の反映、波及は行われていない。しかしながら、2007 年の中越沖地震を機に、原子力発電所における耐震関係の研究課題がされ、また、本研究も評価を得ていることから、今後、成果の反映、波及が期待される。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 皆川佳祐, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究- (1) 弾塑性域におけるエネルギーの振る舞い-, 日本原子力学会 2006 年春の年会予稿集 CD-ROM, (2006-3), 021.pdf, 査読なし
- 2) 北村誠司, 岡村茂樹, 皆川佳祐, 藤田聡, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究- (2) エルボ配管の試験結果への適用例-, 日本原子力学会 2006 年春の年会予稿集 CD-ROM, (2006-3), 022.pdf, 査読なし
- 3) 皆川佳祐, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究- (3) 振動疲労破壊時のエネルギーの振る舞い-, 日本原子力学会 2006 年秋の年会予稿集 CD-ROM, (2006-9), J53.pdf, 査読なし
- 4) 皆川佳祐, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究- (4) 振動疲労破壊時のエネルギーと破壊の関係-, 日本原子力学会 2007 年春の年会予稿集 CD-ROM, (2007-3), C37.pdf, 査読なし
- 5) 城之内隆史, 皆川佳祐, 兵藤英一, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 機械構造物の地震時破損におけるエネルギーの影響, 日本機械学会 Dynamics & Design Conference 2007 CD-ROM 論文集, (2007-9), 114.pdf, 査読なし
- 6) 皆川佳祐, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究- (5) 直管配管モデルへのエネルギー釣合式の適用-, 日本原子力学会 2007 年秋の年会予稿集 CD-ROM, (2007-9), K05.pdf, 査読なし
- 7) 皆川佳祐, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究- (6) 直管配管モデルにおける疲労破損とエネルギーの関係-, 日本原子力学会 2008 年春の年会予稿集 CD-ROM, (2008-3), J27.pdf, 査読なし

<国際会議>

- 1) Minagawa K., Fujita S., Kitamura S., Okamura S., Study on Dynamic Strength Evaluation Method of Piping Based on Energy Balance, Proceedings of the 2007 ASME Pressure Vessels and Piping Conference CD-ROM (2007-7), PVP2007-26525.pdf
- 2) Minagawa K., Fujita S., Kitamura S., Okamura S., Fracture Prediction of Piping Using Energy Balance Method, Proceedings of the 19th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology CD-ROM (2007-8), 2843.pdf, 査読なし
- 3) Minagawa K., Fujita S., Kitamura S., Okamura S., Dynamic Strength Evaluation of Straight Pipe Using Energy Balance Method, 2008ASME Pressure Vessels and Piping Conference, (2008-7), 査読あり, 採択済み

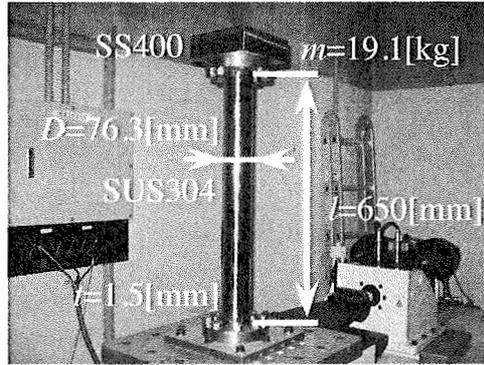


図1 直管配管モデル

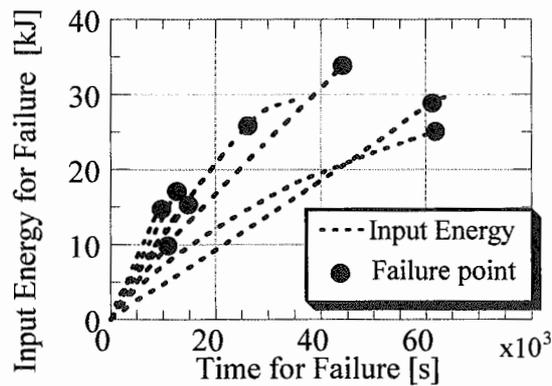


図2 破損までの時間と破損に要するエネルギー

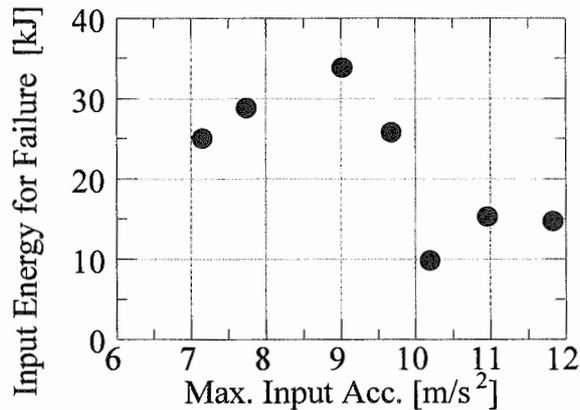


図3 最大入力加速度と破損に要するエネルギー

—出典—

- 図1 皆川佳祐, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究-(5)直管配管モデルへのエネルギー釣合式の適用-, 日本原子力学会 2007 年秋の年会予稿集 CD-ROM, (2007-9), K05.pdf, 図1
- 図2 皆川佳祐, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究-(6)直管配管モデルにおける疲労破損とエネルギーの関係-, 日本原子力学会 2008 年春の年会予稿集 CD-ROM, (2008-3), J27.pdf, 図2
- 図3 皆川佳祐, 藤田聡, 北村誠司, 岡村茂樹, 配管系の動的強度評価法に関する基礎研究-(6)直管配管モデルにおける疲労破損とエネルギーの関係-, 日本原子力学会 2008 年春の年会予稿集 CD-ROM, (2008-3), J27.pdf, 図3

2.1.7 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	結晶粒度と長時間クリープ強度の相関評価に関する研究										
研究協力課題	多軸応力下での長時間粒界損傷の予測に関する理論および実験的研究										
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大学側</td> <td colspan="3">立命館大学 理工学部 機械工学科 教授 坂根政男, 助教 張 聖徳</td> </tr> <tr> <td>機構側</td> <td colspan="3">次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 研究副主幹 若井隆純</td> </tr> </table>			大学側	立命館大学 理工学部 機械工学科 教授 坂根政男, 助教 張 聖徳			機構側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 研究副主幹 若井隆純		
大学側	立命館大学 理工学部 機械工学科 教授 坂根政男, 助教 張 聖徳										
機構側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 研究副主幹 若井隆純										
研究実施場所	立命館大学 びわこ草津キャンパス イーストウィング, エクセル3 大洗研究開発センター ナトリウム技術開発第3試験室										
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 6 月 ~ 平成 21 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 19 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月								
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究										
【研究目的】											
<p>耐熱鋼の長時間クリープでの破損形態は、結晶粒界に発生するボイドの発生および成長が大きな要因の1つである。したがって、結晶粒界に発生および成長するボイドの生成メカニズムを結晶粒径との関連で検討することは、長時間クリープ特性の優れた材料開発や長時間クリープ評価法の開発に当たってのキーテクノロジーといえる。そこで本研究では、結晶粒度と長時間クリープ強度との相関性を明らかにすることを目的として、多軸応力下での長時間粒界損傷に関する理論および実験的研究を行う。</p>											
【研究内容（概要）】											
<p>①オーステナイト系 SUS304 ステンレス鋼の溶体化処理材を主たる試験対象材として、単軸および十字型試験片を用いた多軸クリープ試験を実施し、多軸応力下での粒界損傷の加速効果を有効利用して、比較的短時間の多軸試験から単軸長時間のクリープ破断時間を推定する基礎的な手法を開発する。</p> <p>②結晶粒界に発生・成長するボイドによる粒界損傷と応力多軸性との関連を理論的に導き、クリープ破断時間に及ぼす結晶粒界数や粒界長さがボイドの発生・成長に及ぼす関係を定量化する。</p> <p>③①で得た実験結果および②で得た理論解析の結果を比較し、結晶粒が異なる材料の長時間クリープの損傷モデルを開発するとともに、単軸での長時間クリープ破断時間推定法の基礎的な手法を開発する。</p>											
【使用主要施設】											
<p>立命館大学) 大気中 2 軸クリープ試験装置, 走査型電子顕微鏡, 光学顕微鏡</p> <p>原子力機構) 大気中単軸クリープ試験装置, 走査型電子顕微鏡</p>											

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 18 年度においては、

1. 単軸クリープ中断試験
2. 多軸クリープ中断試験
3. 損傷材の観察および考察を実施した。

平成 19 年度においては、

1. 単軸および多軸クリープ試験
2. 損傷材の組織観察
3. 多軸負荷におけるポイド成長に関する損傷モデルの検討を実施した。

## 【研究成果（当該年度）】

## 1. 単軸および多軸試験片

クリープ変形および破断特性に及ぼす結晶粒の影響を考察するため、今年度は SUS304 ステンレス鋼の結晶粒度  $54.4\mu\text{m}$  の供試材を用いて単軸および多軸試験片を作成した。供試材の化学成分を表 1 に示す。また、単軸および多軸試験片形状は平成 18 年度と同じものであり、図 1 に各試験片の形状および寸法を示す。

走査電子顕微鏡を用いて結晶粒径の異なる 2 種類の供試材の組織観察を行い、JIS G 0551<sup>1)</sup>の「鋼—結晶粒度の顕微鏡試験方法」に基づいて結晶粒度を計測した結果、各供試材の平均粒径はそれぞれ  $105.1\mu\text{m}$  および  $54.4\mu\text{m}$  であった。

## 2. 単軸および多軸クリープ試験

単軸クリープ試験を、温度  $T=973\text{K}$ 、ミーゼス型相当応力  $\sigma_{\text{eq}}=80\text{MPa}$ 、 $90\text{MPa}$  および  $100\text{MPa}$  において実施し、クリープ破断時間を求めた。 $\sigma_{\text{eq}}=90\text{MPa}$  においては、クリープひずみが時間に伴って増加し、約  $2524.5\text{h}$  に破断し、破断伸びは  $54.6\%$  であった。一方、 $\sigma_{\text{eq}}=100\text{MPa}$  の破断時間および破断伸びはそれぞれ  $1170.5\text{h}$  および  $49.4\%$  であった。この結果から、応力が大きいほど、破断時間が短くなるが、破断伸びは大きな差がないことがわかる。

同様に、 $T=973\text{K}$  での二軸クリープ試験をミーゼス型相当応力が  $80\text{MPa}$ 、 $90\text{MPa}$  および  $100\text{MPa}$ 、 $\lambda=1.0$  において実施した。 $90\text{MPa}$  および  $100\text{MPa}$  における破断時間はそれぞれ  $825.3\text{h}$  および  $1522.5\text{h}$  であった。この結果と単軸の破断時間と比較すると、二軸応力下の破断時間は単軸応力下のそれよりも小さくなった。すなわち、破断時間は主応力比の増加に伴って減少した。また、 $\sigma_{\text{eq}}=100\text{MPa}$ 、 $\lambda=1.0$  での結晶粒径  $54.4\mu\text{m}$  の破断時間は結晶粒径  $105.1\mu\text{m}$  の  $444.7\text{h}$  より長寿命になった。すなわち、結晶粒径が小さいほど、クリープ破断時間が大きくなることがわかる。

一方、単軸 ( $\lambda=0.0$ ) および二軸 ( $\lambda=1.0$ ) のミーゼス型相当クリープひずみと時間との関係をみると、主応力比 ( $\lambda$ ) が  $1.0$  のミーゼス型相当クリープひずみ速度は、主応力比が  $0.0$  のそれに比べて速くなった。この点については、平成 18 年度の試験で、 $\sigma_{\text{eq}}=80\text{MPa}$  においても同様の傾向が観察された。この結果は、上述したクリープ破断時間が主応力比に伴って小さくなることと良い対応を示している。

### 3. 損傷材の組織観察および損傷モデルの検討

平成 18 年度に引続き、クリープ中断材の損傷観察を両研究機関で分担して行った。

ミーゼス型相当応力が 80MPa、ミーゼス型相当ひずみが 10% の  $\lambda=0.0$  の試験では、粒界ポイドがそれ程多く観察されなかったが、 $\lambda=0.5$  と 1.0 の試験では、孤立したポイドのみではなく、連結した粒界き裂も多く観察された。また、 $\lambda=0.0$  と 0.5 の試験では、ほとんどポイドが最大主応力軸に垂直な粒界で発生したが、 $\lambda=1.0$  では、様々な方向の粒界でポイドと粒界き裂が発生していた。すなわち、主応力比の違いによって、粒界ポイドの発生形態が大きく変わることが判明した。したがって、粒界損傷を表す A パラメータ<sup>2)</sup>を二つの主応力方向 ( $A_x$  および  $A_y$ ) について計測した。なお、x 方向の A パラメータ ( $A_x$ ) は x 方向に走査線を引き、その線と交わる粒界損傷を計測したものであり、y 方向の A パラメータ ( $A_y$ ) は y 方向に走査線を引いて求めたものである。

$\sigma_{eq}=80\text{MPa}$  での  $A_x$  および  $A_y$  の時間に伴う変化を各主応力比について考察した。 $\lambda=1.0$  では、 $A_x$  と  $A_y$  が同程度の割合で時間に伴って増加した。 $\lambda=0.5$  の場合、 $A_x$  および  $A_y$  ともに時間に伴って増加するが、同じ負荷時間の場合には  $A_x$  は  $A_y$  に比べて大きい。これらの結果は、粒界損傷を A パラメータで評価する際に、多軸応力下では走査線を引く方向によって A パラメータの値、すなわち、粒界損傷の程度が異なることを示している。

一方、各主応力比における最大主応力方向の  $A_x$  の値を比較してみると、 $\lambda=1.0$  の  $A_x$  は  $\lambda=0.5$  のそれより大きい。しかし、ミーゼス型の相当応力が一定の試験において、最大主応力 ( $\sigma_x$ ) は  $\lambda=0.5$  の方が  $\lambda=1.0$  より大きい。このことは、 $A_x$  は走査線方向の主応力  $\sigma_x$  だけでなく、走査線に垂直な方向の主応力  $\sigma_y$  の影響も受けることを示している。すなわち、応力の多軸性はクリープポイドの発生・成長を促進する傾向があるといえる。このことは、藤本らによる 2<sup>1</sup>/<sub>4</sub>Cr-1Mo 鋼の 550℃における等 2 軸および単軸クリープ A パラメータの測定結果と傾向的には同じである<sup>3)</sup>。

### 4. まとめ

SUS304 ステンレス鋼の試験片を用いて、973K における単軸および二軸のクリープ中断試験を行い、クリープ損傷材に対する A パラメータを測定した。その結果、限られたデータ点数ではあるが、二軸クリープ試験では、単軸試験に比較してクリープ破断時間が短くなった。また、多軸負荷による粒界損傷の加速効果によって、寿命の早い時期から A パラメータが大きくなっている傾向が認められた。さらに、結晶粒径が小さいほど、クリープ破断時間が大きくなることがわかった。

#### 【参考文献】

- [1] 日本規格協会, 「JIS G 0551: 鋼—結晶粒度の顕微鏡試験方法」, 2005.
- [2] 日本鉄鋼協会, 「耐熱鋼の高温クリープおよびクリープ疲労損傷材のレプリカ法による非破壊的損傷量/寿命評価」, 1991.
- [3] 藤本, 坂根, 伊達, 吉田, 「2.25Cr-1Mo 鍛鋼の多軸クリープ破断特性とクリープ損傷評価」, 材料, 第 54 巻, 第 2 号, 2005, pp.149-154.

表 1 二軸クリープ試験片素材の化学成分 (Heat 19) (wt.%)

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

1373K で 5 分間溶体化処理

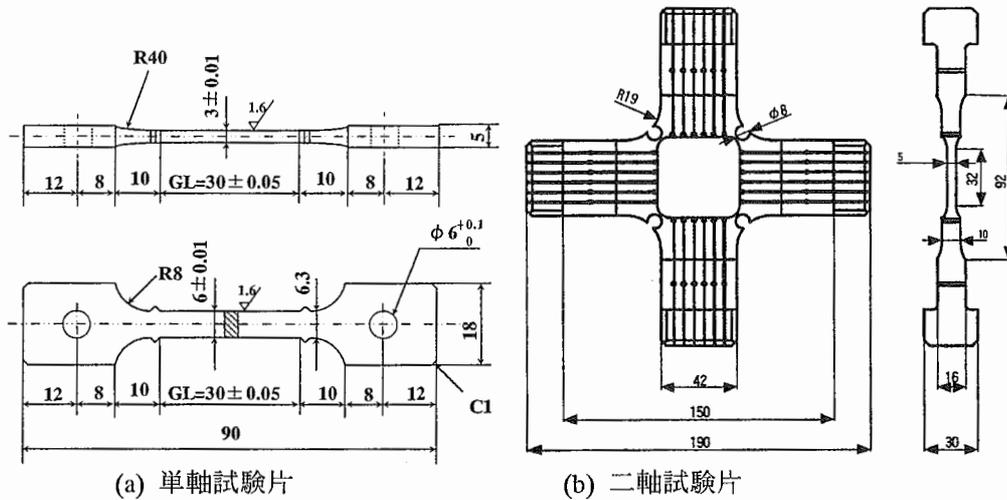


図 1 クリープ試験片の形状寸法

【今後の予定 (翌年度以降の概要)】 又は【成果の反映状況】

平成 20 年度は、次のような研究項目を実施する予定である。

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

【研究成果の公表】

<論文>

- 1) Multiaxial Creep-Fatigue Life Using Cruciform Specimen  
Zhang Shengde, Masaya Harada, Kunimasa Ozaki, Masao Sakane  
International Journal of Fatigue, Vol.29, No.5, pp.852-859, 2007-5. 査読付
- 2) Multiaxial Creep-Fatigue Life Prediction for Cruciform Specimen  
Zhang Shengde, Masao Sakane  
International Journal of Fatigue, Vol.29, No.12, pp.2191-2199, 2007-12. 査読付
- 3) 高温における組合せ応力下の環状疲労き裂伝ばに関する研究  
濱田直巳, 坂根政男, 梅田洋, 元家勝彦; 材料, Vol.56, No.2, 2007-2, pp.164-170. 査読付
- 4) SUS304 鋼の高温多軸クリープ疲労損傷評価  
張聖徳, 坂根政男; 材料, Vol.56, No.7, 2007-7, pp.660-666. 査読付

<国内会議>

- 1) SUS304 ステンレス鋼の高温多軸クリープ変形および破断特性  
張 聖徳, 若井 隆純, 坂根 政男; 日本材料学会第 45 回高温強度シンポジウム,  
pp.75-79, 2007-12

2.1.8 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	固溶強化機構の長時間安定性に及ぼす微量元素の影響に関する研究										
研究協力課題	タングステン, モリブデン固溶強化 Fe-Cr 合金の経時変化に関する研究 Aging effect on micro structure evolution of W and/or Mo bearing alloys										
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="3">                     東北大学 金属材料研究所 ナノ金属高温材料学                      客員教授 安彦兼次 *                      客員准教授 高木清一 *                      客員准教授 菱沼章道 * [*客員研究員 **研究生]                 </td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="3">                     次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット                      炉心・構造材料グループ 研究副主幹 若井隆純                 </td> </tr> </table>			大 学 側	東北大学 金属材料研究所 ナノ金属高温材料学 客員教授 安彦兼次 * 客員准教授 高木清一 * 客員准教授 菱沼章道 * [*客員研究員 **研究生]			機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 研究副主幹 若井隆純		
大 学 側	東北大学 金属材料研究所 ナノ金属高温材料学 客員教授 安彦兼次 * 客員准教授 高木清一 * 客員准教授 菱沼章道 * [*客員研究員 **研究生]										
機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 研究副主幹 若井隆純										
研究実施場所	東北大学 金属材料研究所 大洗研究開発センター ナトリウム技術開発第一・第三試験室										
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 4 月 ~ 平成 21 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 19 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月								
研究協力形態	<input checked="" type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input type="checkbox"/> 共同研究										
<p>【研究目的】</p> <p>高速炉の経済性向上のため、高温強度と熱的特性がバランスよく優れる高 Cr 鋼を、主要構造材料に採用することが検討されている。従来の高 Cr 鋼では、種々の強化元素が添加されているが、長寿命化が指向される高速炉での使用条件におけるそれらの有効性・安定性は、明らかにされておらず、高速炉に最適な成分仕様を選定するには、それらの解明が不可欠である。そこで、本研究では、W や Mo による固溶強化機構の高温長時間における有効性・安定性に及ぼす珪素、炭素、窒素などの微量元素の影響を金属組織学的アプローチにより解明することを目的として、これらの元素の含有量の異なる W, Mo で強化した高純度 Fe-Cr 合金に対するクリープ試験等を行って、損傷材を観察・分析し、固溶強化機構の高温長時間における有効性・安定性に及ぼすこれらの微量元素の影響を評価し、高速炉用高 Cr 鋼の最適成分仕様選定に反映する。</p>											
<p>【研究内容（概要）】</p> <p>大学側研究者らが長年にわたり開発してきた世界最高水準の純度（99.999mass.%以上）の超高純度鉄溶製技術を用いて、鉄-クロム-タングステン-モリブデン合金を、種々の条件で製作する（製作条件により不純物元素の量が異なる）。これらの合金に対するクリープ試験、熱時効試験などを実施し、損傷材に対する観察や分析を行って、高速炉での使用条件（温度、時間）におけるタングステン、モリブデンによる固溶強化機構の有効性・安定性に及ぼす不純物元素の影響を明らかにし、高速炉用 Fe-Cr 系耐熱材料の材料開発の方向性を示す。</p>											
<p>【使用主要施設】</p> <p>東北大学) 超高真空コールドクルーシブル炉、超高真空浮遊帯溶融炉、 走査型電子顕微鏡、光学顕微鏡 原子力機構) 引張試験装置、大気中単軸クリープ試験装置、不活性雰囲気熱時効炉、 走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡、光学顕微鏡</p>											

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 18 年度：

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

平成 19 年度：

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

【研究成果（当該年度）】

- (1) Cr 量の異なる超高純度 Fe-Cr-W 合金の製作

Cr 量の異なる 2 種類の超高純度合金，すなわち Fe-35Cr-5W 合金および Fe-35Cr-5W 合金を溶製した．溶製した合金の化学成分を表 1 に示す．

- (2) 熱時効試験の実施

平成 18 年度に溶製した不純物元素量の異なる 2 種類の超高純度合金および市販の合金に対する不活性ガス雰囲気での熱時効試験を継続した．

上記(1)で溶製した Cr 量の異なる 2 種類の超高純度合金に対する不活性ガス雰囲気での熱時効試験を開始した．

- (3) 金属組織観察および定量分析

平成 18 年度に溶製した不純物元素量の異なる 2 種類の超高純度合金および市販の合金の受入材および熱時効材（650℃×1,400 時間）に対し，走査型電子顕微鏡（SEM）による組織観察および定量分析を行った．その結果，不純物元素量が少ない合金ほど，熱時効後に粗大な Laves 相（Fe と W, Mo の金属間化合物）が数多く析出しており，従来の知見に反する結果が得られた．

つぎに，Cr 量の異なる超高純度 Fe-Cr-W 合金の熱時効材（600℃×3,300 時間）に対し，走査型電子顕微鏡（SEM）による組織観察および定量分析を，市販の高 Cr フェライト系耐熱鋼とあわせて実施した．その結果，市販の高 Cr フェライト系耐熱鋼では結晶粒界に多くの Laves 相析出しているのに対し，超高純度合金では主として結晶粒内に析出していることがわかった．前者では，Laves 相の析出が粒界近傍に固溶強化元素欠乏層を作り，脆化に寄与すると考えられるが，後者では Laves 相による析出強化が期待できる可能性がある．

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 20 年度は，次のような研究項目を実施する予定である．

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

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 新田広行, 高木清一, 安彦兼次, 475°C時効後の超高純度 30Cr-Fe-5W 合金の高温引張特性, 金属学会春季大会, 2007年3月27-29日.

<国際会議>

- 1) T.Tetsui, R.Hirota, Y.Tanaka and K.Abiko, Manufacturing and Anti-Oxidation Properties of Thin Sheet Products from High Purity 20Cr-3Mo-2W-Fe Alloy, The 11th International Conference on Ultra High Purity Base Metals, Berlin, Germany, September 11-14 (2006).
- 2) H.Nitta, T. Tetsui, S. Takaki and K. Abiko, Effect of addition of tungsten on the tensile properties of high purity 30 and 35 mass% Cr-Fe alloys after 475°C aging, In. Conf. on UHPM, Berlin, Germany, September 11-14, 2006.
- 3) Y. Kato, T. Tetsui, S. Takaki and K. Abiko, Effect of alloying elements on toughness of high purity Cr-W-Fe alloys, In. Conf. on UHPM, Berlin, Germany, September 11-14, 2006.

2.1.9 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	実機使用中の鉄鋼材料における組織/材料特性の変化予測に関する研究		
研究協力課題	ひずみエネルギーを考慮した熱力学的アプローチによる相変態挙動解析 Analysis of the phase transformation in austenitic steels with the aid of thermodynamic approach considering strain energy		
研究者所属、氏名			
大学側	名古屋大学 工学系研究科 准教授 村田 純教 白木厚寛 (大学院博士前期課程)、塚田祐貴 (大学院博士前期課程)		
機構側	次世代原子力システム研究開発部門 炉心・構造材料グループ 高屋 茂		
研究実施場所	名古屋大学工学研究科 マテリアル理工学専攻 工学部 5 号館 大洗研究開発センター Na 技術開発第 1 試験室		
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 9 月 ~ 平成 21 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 19 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>物理化学的論理に裏付けられた材料開発や損傷検知・評価技術開発に資する計算科学技術(ツール)を整備する目的で、熱力学的アプローチに基づき耐熱鋼の析出挙動および相変態挙動を予測するシミュレーション技術の開発を行う。また、これまでに実施された長時間クリープ試験材の金属組織観察および物理化学的特性評価を行い、本研究で開発したシミュレーション技術の妥当性を検討する。</p>			
【研究内容 (概要)】			
<p>原子力用構造材料である耐熱鋼を対象として、高温での使用中に生じる動的な組織変化のシミュレーション技術の開発を目指す。具体的には、これらの鋼中で析出する炭窒化物、あるいは金属間化合物相に着目し、その組織のもっている熱力学的エネルギー(組織自由エネルギー)を定量的に評価する。この組織自由エネルギーは、材料組成によって決まる「化学的自由エネルギー」および複数の相が存在するために生じる「界面エネルギー」ならびに「弾性ひずみエネルギー」の総和として求められる。材料の組織変化はその総和が時間とともに最も低くなるように生じる。また、エネルギーはスカラー量であるので、組織変化に対する外部から材料に加えられる力学エネルギーの効果についても原理的には評価可能である。次に、対象とする耐熱鋼の組織自由エネルギーの経時変化の評価結果を基に、動的シミュレーション手法の一つである Phase-field 法を適用することにより、組織や組成の変化を予測するためのシミュレーション手法の確立を目指す。そのため、以下の 4 項目を実施する。</p> <p>(i) 析出および変態挙動のデータ解析、(ii) 析出および変態挙動のシミュレーション技術の開発、(iii) シミュレーション結果の実時間への適用、および(iv) 特性評価シミュレーションの検討。これらの研究遂行事項と研究全体の概念図を別添資料の図 1 に示す。</p>			
【使用主要施設】			
名古屋大学：走査型電子顕微鏡 (EDX, EBSD 付)、透過型電子顕微鏡、示差熱分析装置、ワークステーション、熱力学計算ソフトウェア「Thermo-Calc」			

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 18 年度は研究全体で計画している 4 項目のうち (i) 及び (ii) の 2 項目に関連して、以下のことを実施した。

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

平成 19 年度は研究全体で計画している 4 項目のうち、前年度から引続いて (i) および (ii) を実施するとともに、(iii) の項目に関連する拡散実験および項目 (iv) に関連した検討を実施した。

- (1) JIS SUS304 オーステナイト鋼における析出および変態挙動のデータ解析 (研究内容 (i))
  - ・抽出残渣を用いて実測した  $M_{23}C_6$  炭化物量に基づく、析出速度式による析出量変化の算出及び地相のニッケル (Ni)、クロム (Cr) 変化量の算出
  - ・X 線回折法に基づく転位密度測定によるクリープにともなう試料中に蓄積されるひずみ量の算出
- (2) 析出および変態挙動シミュレーション技術の開発の基礎データの収集 (研究内容 (ii))
  - ・TEM 薄膜試料を用いて、 $M_{23}C_6$  炭化物周辺の局所的な転位密度の測定、およびその結果から局所的に蓄積された弾性ひずみエネルギーの算出
  - ・マイクロメカニクスに基づいた  $M_{23}C_6$  炭化物析出にともなうひずみエネルギーおよび炭化物と転位の相互作用によるひずみエネルギーの算出
- (3) シミュレーション結果の実時間への適用のための基礎データ収集 (研究内容 (iii))
  - ・鉄基の各種三元系合金における拡散実験による相互拡散係数の算出と各元素間の相互作用の評価
- (4) 特性評価シミュレーションの検討 (研究内容 (iv))
  - ・組織発展過程をシミュレートするための基本式の検討 (Phase-field 法)

## 【研究成果（当該年度）】

## (1) JIS SUS304 オーステナイト鋼における析出および変態挙動のデータ解析

SUS304 オーステナイト鋼の種々のクリープ試験材から抽出残渣を採取し、その残渣量の時間変化を定量的に求めた。昨年度の解析から今回のクリープ試験条件では  $\sigma$  相はほとんど析出しないことが明らかになっており、求めた残渣量はすべて  $M_{23}C_6$  炭化物である。そこで、抽出残渣量の時間変化から、Johnson-Mehl-Avrami の析出速度式を用いて、600℃ の析出量変化とそれにとまなう地相のニッケル (Ni)、クロム (Cr) 量の変化を算出した。その結果、今回抽出残渣量の実測に基づいて求めた地相の濃度変化は、Thermo-Calc 計算と既存の析出データを基に昨年度求めた結果とほとんど変わらないことが確認された。

次に、クリープにともなう試料中に蓄積されるひずみ量を X 線回折法に基づく転位密度測定によって算出した。破断時間 ( $t_r$ ) で規格化した時間 ( $t/t_r$ ) に対して転位密度をプロットすると、クリープ条件に係わらず破断時間まで単調に転位密度が増加することがあきらかとなった。なお、破断材では、測定された転位密度の値に試料ごとのばらつきが認められた。TEM 観察から  $0.6t_r$  以上になると高い転位密度によって、サブグレインが形成されることが明らかになっており、そのばらつきの原因は、X 線回折におけるプロファイル変化が粒径効果か転位密度増加の効果か、必ずしも明確でなくなることによるものと推察された。

## (2) 析出および変態挙動シミュレーション技術の開発の基礎データの収集

X線回折のプロファイル解析から求めた転位密度は試料全体の平均化された値であるため、TEM 薄膜試料を用いて、 $M_{23}C_6$  炭化物近傍 100 nm 領域に蓄積された転位密度の測定を行った。その結果、別添図 2 に示すように、0.2tr まで転位密度が増加したのち、0.6tr までほとんど一定であり、その後急激に増加して破断に至ることが明らかとなった。この 0.2tr は永江らの測定（参考文献（1））によって強磁性相が急激に増加し始める時間と一致することも明らかとなった。この転位密度（ $\rho$ ）から、

$$E_{s,lr} = (\mu b^2 / 4\pi) \ln(10^4 b / r_0) \times \rho$$

によりひずみエネルギー（ $E_{s,lr}$ ）を求めた。その値を図 2 の右軸に示す（【研究成果の公表】〈国内会議〉1）。ここで、 $\mu$  は剛性率で SUS304 鋼の値である 69 GPa を用いた。 $b$  はバーガースベクトルの大きさで、ここでは 0.248 nm を用いた。また、 $r_0$  は転位芯の半径であり、ここでは通常用いられている値として  $r_0 \sim 5b$  とした。図 2 から 0.2tr 以上で転位密度が一定となるエネルギー値はほぼ 10 J/mol ほどであり、これが強磁性相を誘発する閾エネルギーを与えていることを示唆している。この内容は後述の【研究成果の公表】〈国内会議〉1) に示されている。

次に、 $M_{23}C_6$  炭化物が析出した場合の炭化物周辺のひずみエネルギー、および炭化物にトラップされた転位が炭化物周辺に与えるひずみエネルギーをマイクロメカニクスに基づいて計算し評価した。その結果、前者の炭化物の析出に伴うエネルギーは 0.94 J/mol であり、外部せん断応力を 200 MPa として算出した後者のひずみエネルギーは 1.19 J/mol であった。これら両者の値は、図 2 で示した転位自身もつ欠陥エネルギーに比べて桁違いに小さく、強磁性相誘発に直接的な寄与をしていないと結論された。

ここで、図 2 では 0.2tr~0.6tr の間で転位の蓄積によるひずみエネルギーはほぼ一定であるが、参考文献(1)の永江らの報告では、0.2tr から生成され始めた強磁性相の量は 0.2tr~0.6tr の間で Johnson-Mehl-Avrami 式に従うように増えている。これについては、図 2 のように  $M_{23}C_6$  炭化物近傍のひずみエネルギーが約 10 J/mol になった 0.2tr で強磁性相が生成されはじめることから、強磁性相生成の閾エネルギー（ $E_{th}$ ）があると考えられる。その後、0.2tr~0.6tr の間でひずみエネルギー（ $E_{s,i}$ ）は一定であるが、その一定値が閾エネルギーを超えている限りは強磁性相の体積率（ $V_{ferro}$ ）は  $V_{ferro} \sim e^{-E_{s,i}/E_{th}}$  で生成され続け、その結果単調に増加するものと考えられる。

## (3) シミュレーション結果の実時間への適用のための基礎データ収集

組織シミュレーションにおいて易動度の値を現実の変化速度と対応させるために拡散係数の測定を行った。ここでは、まずステンレス鋼の基本系である Fe-Cr 系における強化元素である各種耐火金属元素の相互拡散係数を拡散対による拡散実験により求めた。その結果の一部として Mo と W の結果を別添表 1 と表 2（【研究成果の公表】〈論文〉2）に示す。三成分系では 4 つの相互拡散係数が求まり、そのうち、 $D_{ij}$  ( $i \neq j$ ) は交差相互拡散係数とよばれ、 $i$  と  $j$  の元素の相互作用が表れる項である。 $D_{ii}$  は主係数と呼ばれ、ホスト元素（ここでは鉄）と  $i$  元素の相互拡散係数に対応する。表 1 および 2 から、Mo と W 自身の主拡散係数は、原子量に対応して W の係数が小さい。興味深いことは、 $D_{CrW}$  と  $D_{CrMo}$  は符号が異なっており、W は Cr の拡散を助長する一方、Mo は抑制することがわかった。

これらの拡散データは、次項で述べるシミュレーションの結果を実時間と対応させるためのデータとして用いる。温度  $T$  において、ある元素の拡散係数 ( $D$ ) と易動度 ( $M$ ) はアインシュタインの関係式  $D = MRT$  で関係付けられる。ここで  $R$  はガス定数である。たとえば、 $M_{23}C_6$  炭化物の生成を律速する元素はその主体である Cr と考えられるので、 $M_{23}C_6$  炭化物の体積率変化のシミュレーションで用いる発展方程式中の易動度  $M_{M_{23}C_6}$  は近似的に  $D_{CrCr} / RT$  で与える。厳密に言えば、固有拡散係数を用いるべきであるが、現実の鋼では Cr や Mo といった元素を含んだ多成分系であるため、現象の時間変化を考える上では、上述の相互拡散係数の値でも大きな相違はないと考える。

(4) 特性評価シミュレーションの検討

特性評価シミュレーションを構築するために、今年度は組織形成シミュレーションのモデルを検討した。具体的に以下に示す。

まず、計算に用いる秩序変数として位置  $r$ 、時間  $t$  に依存する以下の変数を導入する。

$V_{f:bcc}(r,t)$ : bccの局所的な体積率、 $V_{f:M_{23}C_6}(r,t)$ :  $M_{23}C_6$ の局所的な体積率、

$$\phi_1(r,t): \begin{cases} = 1: bcc \\ = 0: fcc \end{cases}, \phi_2(r,t): \begin{cases} = 1: M_{23}C_6 \\ = 0: fcc \end{cases}$$

ここで  $\phi_i$  は各相を区別する変数である。これらの変数を用いて、組織エネルギーに基づいた以下の発展方程式を用いる。

$$\frac{\partial V_{f:bcc}(r,t)}{\partial t} = M_{bcc} \nabla^2 \frac{\delta G_{sys}}{\delta V_{f:bcc}(r,t)}$$

$$\frac{\partial V_{f:M_{23}C_6}(r,t)}{\partial t} = M_{M_{23}C_6} \nabla^2 \frac{\delta G_{sys}}{\delta V_{f:M_{23}C_6}(r,t)}$$

$$\frac{\partial \phi_i(r,t)}{\partial t} = -L_i \frac{\delta G_{sys}}{\delta \phi_i(r,t)}$$

ここで、 $M$  は拡散の易動度、 $L$  は緩和係数で温度のみの関数である。また、組織自由エネルギー  $G_{sys}$  は、化学的自由エネルギー  $G_{chem}$ 、勾配エネルギー  $E_{surf}$ 、弾性歪エネルギー  $E_{str}$  の和として以下のように表される。

$$G_{sys}(V_{f:bcc}, V_{f:M_{23}C_6}, \phi_i) = G_{chem}(V_{f:bcc}, V_{f:M_{23}C_6}, \phi_i) + E_{surf}(V_{f:bcc}, V_{f:M_{23}C_6}, \phi_i) + E_{str}(\rho, t)$$

$G_{sys}$  における各エネルギーを以下に示す。

$$G_{chem}(V_{f:bcc}, V_{f:M_{23}C_6}, \phi_i) = [1 - h(\phi_1) - h(\phi_2)] G_{chem:fcc}(V_{f:bcc}, V_{f:M_{23}C_6}) + h(\phi_1) G_{chem:bcc} + h(\phi_2) G_{chem:M_{23}C_6} + W_1 g(\phi_1) + W_2 g(\phi_2) + \alpha \phi_1 \phi_2$$

$$E_{surf}(V_{f:bcc}, V_{f:M_{23}C_6}, \phi_i) = \frac{1}{2} \{ \kappa_{bcc} (\nabla V_{f:bcc})^2 + \kappa_{M_{23}C_6} (\nabla V_{f:bcc})^2 \} + \frac{1}{2} \{ \kappa \phi_1 (\nabla \phi_1)^2 + \kappa \phi_2 (\nabla \phi_2)^2 \}$$

$$E_{str}(\rho, t) = \left( \frac{\mu b^2}{4\pi} \ln \frac{10^4 \times b}{r} \right) \times \rho(r, t)$$

ここで、 $W_1 g(\phi_1)$ 、 $W_2 g(\phi_2)$ 、 $\alpha$ 、 $\phi_1$  および  $\phi_2$  は各相が同じ位置  $r$  で混合しないように導入されたエネルギー障壁であり、 $\kappa$  は勾配エネルギー係数、 $\mu$  は剛性率、 $b$  はバーガースベクトルの大きさ  $r=5b$  である。 $\rho$  は転位密度である。ここで、上式に転位密度を導入したのは、(2)の項目で転位密度の増加が直接強磁性相の生成に影響しているという実験事実に基づいている。すなわち、弾性歪エネルギーが閾値を超えた時に強磁性相が析出するという条件から  $V_{f:bcc}(r, t)$  の位置、時間による変化を表している。

参考文献

(1) 永江勇二、青砥紀身: 材料、54 (2005)、pp.116-112.

## 【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 20 年度は、平成 19 年度に構築した組織形成シミュレーションモデルに基づいて、クリープで蓄積されるひずみエネルギーにより強磁性相が生成される一連の過程の Phase-field シミュレーションを実施する。このシミュレーションの過程で、昨年度に引続きし、項目 (iii) のシミュレーション結果の実時間への適用について、さらに拡散実験の結果とシミュレーションの易動度との対応を検討してゆく。以上の結果を総合して項目 (iv) の特性評価シミュレーションとして研究をまとめる予定である。

## 【研究成果の公表】

## &lt;論文&gt;

- 1) Y. Tsukada, Y. Murata, T. Koyama and M. Morinaga: "Phase-field Simulation on the formation and Collapse Processes of the Rafted Structure in Ni-Based Superalloys", Mater. Transactions, Vol.49 (2008), pp.484-488. (査読有)
- 2) K. Takeda, K. Yamashita, Y. Murata, T. Koyama and M. Morinaga: "Interdiffusion of Refractory Elements in Fe-Cr-X(X:Mo,W) and Fe-Mo-W Ternary Iron Alloys", Mater. Transactions, Vol.49 (2008), pp.479-483. (査読有)
- 3) Y. Murata, S. Sakurai, E. Mabururi, T. Koyama and M. Morinaga: "Cross Interdiffusion Coefficients in Nickel- and Iron-based Ternary Alloys", Defect and Diffusion Forum, Vol.273-276 (2008), pp.419-412. (査読有)

## &lt;国内会議&gt;

- 1) 白木、和田、村田、森永、高屋、小山：「SUS304 鋼のクリープ試験中に蓄積されたひずみと相変態」、日本鉄鋼協会第 155 回春季講演大会、(CAMP-ISIJ)、Vol.21 (2008), p.584.
- 2) 塚田、白木、村田、森永、高屋、小山：「SUS304 鋼における強磁性相生成に寄与するクリープひずみエネルギーの評価」、日本金属学会第 142 回春期講演大会、(2008), p.216.

別添1

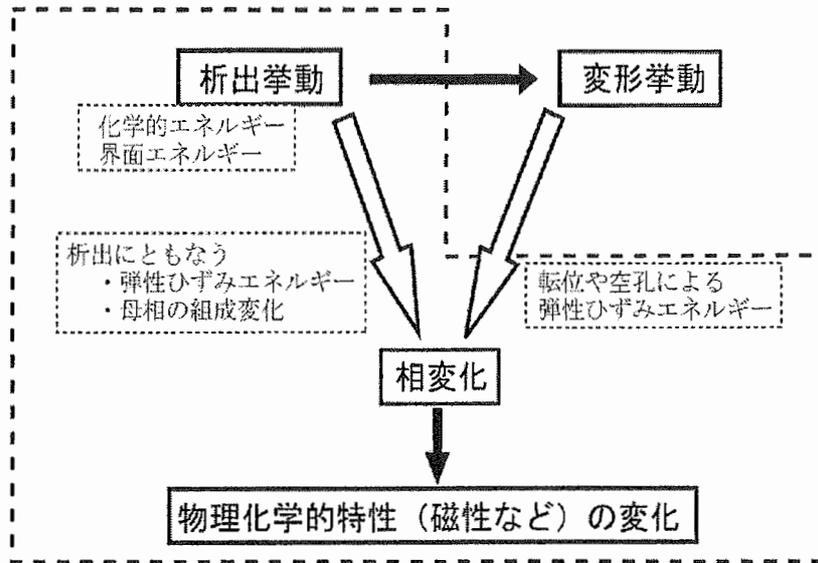


図1 研究の概念図

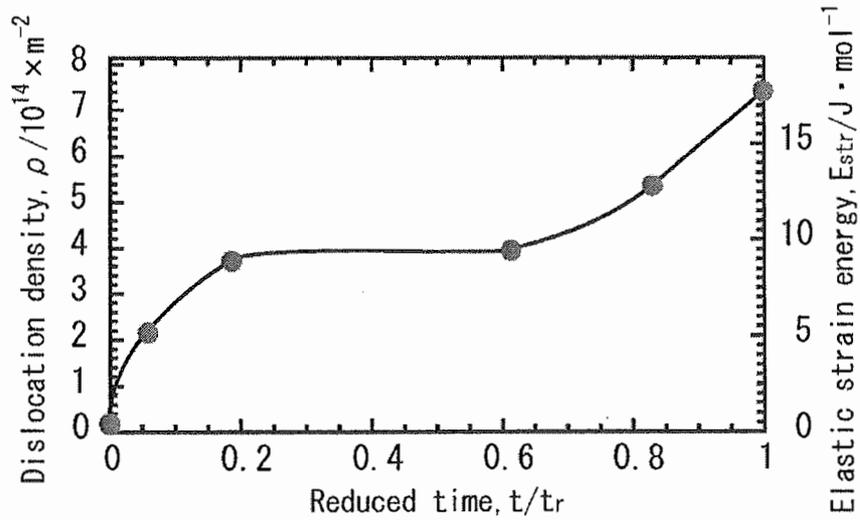


図2  $M_{23}C_6$ 炭化物周囲 100 nm 内における転位密度とそのひずみエネルギー (出典: 材料とプロセス (CAMP-ISIJ), 21 (2008), p.584.)

## 別添2

表1 Fe-Cr-W 合金から得られた相互拡散係数  
(出典: Materials Trans., 49 (2008), pp.479-483.)

Interdiffusion coefficient (m <sup>2</sup> /s)			
$\tilde{D}_{CrCr}^{Fe}$	$1.6 \times 10^{-12}$	$1.7 \times 10^{-12}$	$2.6 \times 10^{-12}$
$\tilde{D}_{CrW}^{Fe}$	$1.9 \times 10^{-13}$	$2.3 \times 10^{-13}$	$1.4 \times 10^{-12}$
$\tilde{D}_{WW}^{Fe}$	$8.6 \times 10^{-13}$	$8.8 \times 10^{-13}$	$1.0 \times 10^{-12}$
$\tilde{D}_{WCr}^{Fe}$	$3.2 \times 10^{-14}$	$3.5 \times 10^{-14}$	$5.2 \times 10^{-14}$
Composition at cross point	Fe-8.2Cr-3.4W	Fe-10.4Cr-3.4W	Fe-10.4Cr-3.4W

表2 Fe-Cr-Mo 合金から得られた相互拡散係数  
(出典: Materials Trans., 49 (2008), pp.479-483.)

Interdiffusion coefficient (m <sup>2</sup> /s)			
$\tilde{D}_{CrCr}^{Fe}$	$2.0 \times 10^{-12}$	$1.5 \times 10^{-12}$	$1.4 \times 10^{-12}$
$\tilde{D}_{CrMo}^{Fe}$	$-9.5 \times 10^{-14}$	$-5.9 \times 10^{-13}$	$-3.7 \times 10^{-14}$
$\tilde{D}_{MoMo}^{Fe}$	$2.0 \times 10^{-12}$	$2.2 \times 10^{-12}$	$1.4 \times 10^{-12}$
$\tilde{D}_{MoCr}^{Fe}$	$-3.7 \times 10^{-14}$	$9.4 \times 10^{-14}$	$-4.2 \times 10^{-14}$
Composition at cross point	Fe-4.5Cr-7.1Mo	Fe-11.8Cr-2.1Mo	Fe-13.4Cr-1.7Mo

2.1.10 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	変形燃料ピンバンドル内熱流動評価手法に関する研究										
研究協力課題	DPIV による複雑流路内 High Time Resolved 乱流熱対流データベース High time resolved database of turbulence in complicated geometries using dynamic PIV										
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="3">東京大学大学院新領域創成科学研究科 環境学研究系 人間環境学専攻 染矢 聡</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="3">次世代原子力システム研究開発部門 FBR システムユニット FBR シミュレーショングループ 大島 宏之</td> </tr> </table>			大 学 側	東京大学大学院新領域創成科学研究科 環境学研究系 人間環境学専攻 染矢 聡			機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR システムユニット FBR シミュレーショングループ 大島 宏之		
大 学 側	東京大学大学院新領域創成科学研究科 環境学研究系 人間環境学専攻 染矢 聡										
機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR システムユニット FBR シミュレーショングループ 大島 宏之										
研究実施場所	東京大学柏キャンパス環境学研究棟 201 室 大洗研究開発センター-FBR 国際研究開発センター										
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 8 月 ~ 平成 21 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 19 年 7 月 ~ 平成 20 年 3 月								
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究										
<p>【研究目的】</p> <p>複雑形状流路内における熱流動について、水と屈折率がほぼ等しい樹脂製円柱を用いた実験を行い、乱流エネルギーをはじめとした各種乱流統計量のレイノルズ数依存性、流路形状依存性、温度条件依存性を明らかにする。10kHz ほどの時間分解能かつ高い空間分解能で乱流の時系列データを取得し、数値シミュレーションの検証及び乱流モデル構築に資する。特に壁面近傍での流れについて系統立ててとりまとめる。また、流れ場の温度分布を計測する。更に、これらの膨大なデータをデータベース化する。</p>											
<p>【研究内容（概要）】</p> <p>高速増殖炉システムの高い安全性・効率を確保するには、高精度かつ実用的な熱流動場の予測手法が不可欠であり、その開発には要求される予測精度以上の精度をもつ実測データが必要である。そのため本研究ではまず、高周波レーザーと高速度カメラを利用したダイナミック PIV 法を用いて、高時間分解能で複雑形状流路内の時系列速度分布データを取得する。また、構造物壁面近傍の壁乱流はこれまでの測定技術では速度場計測が困難であったが、特殊材料の応用によりこれを実現可能とする。更に、近年開発が著しい高機能材料を駆使して温度分布の測定を実現し、流れ場と温度場の相関について調査する。</p> <p>一方、時空間分解能の高い速度分布データを数値シミュレーションの検証用に用いるには、平均速度条件や形状を変化させるなど、パラメータを系統立てて変化させた実験を行う必要があるが、時空間分解能の高い実験データの量は膨大である。そのため、本研究では取得した実験データのデータベース化も実施する。</p>											
<p>【使用主要施設】</p> <p>東京大学柏キャンパス環境学研究棟実験室</p>											

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

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

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

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

平成 19 年度は温度場計測方法を開発した。また、当初平成 20 年度に予定していた 7 本ピンワイヤバンドル体系(循環型水実験装置)を用いて、ピンバンドル内側の乱流流れ場の速度場測定を実施した。さらに、温度場の非定常計測のための予備試験を行い、同じく 7 本ピンワイヤバンドル体系で温度測定を試みた。また、これらの結果を踏まえたうえで、平成 20 年度に計画している 7 本ピンワイヤバンドル体系における熱流動計測のための改良型試験装置の設計を行った。

## 【研究成果（当該年度）】

平成 19 年度はまず温度場計測法の開発を行った。水などの透明流体の速度・温度計測では、従来、二次元 PIV 法や蛍光染料を用いた LIF 法が開発されてきたが、蛍光染料を用いた LIF 法によるスカラー(温度)計測は、測定系の不安定や、水中溶存物質などによるクエンチング現象などにより、高精度に測定することが容易ではない。本研究では一度の励起で長時間発光する燐光を、高時間分解能で測定することにより、温度の関数である燐光寿命(減衰率)を測定し、温度を評価する。本年度はまずこの燐光物質を粒子画像速度計測(PIV)にも適用できる粒子に吸着させ、温度と速度の同時計測を視野に入れた感温粒子の開発を行った。作成した感温粒子の燐光発光寿命の温度依存性は非常に高く、空気中・水中のいずれでも 20~100 °C の範囲で温度に応答して発光寿命・強度が変化した(図 1)。

PIN フォトダイオードとオシロスコープを用いて 355nm の紫外線レーザーで感温粒子を励起した場合の燐光発光強度の時間変化を測定した結果、20 °C の場合で 1~1.2msec ほどをかけて検出限界に至り、100 °C の場合は空気中で 200µsec、水中で 100µsec で検出限界に至った。また、燐光強度の減衰曲線は指数関数で近似されることが多いが、この場合は特に温度が高い条件において指数関数に必ずしも一致しないことがわかった。

この温度場計測法の開発テストとしてオイルバスの表面にワイヤーヒーターを設置し、通電加熱することで徐々に温度成層場を形成させ、その過渡的な温度変化の様子を、冷却型 CCD カメラと紫外線レーザー(355nm, 10Hz, 7mJ/pulse)で撮影した。その結果を図 2 に示す。熱電対で表面温度を測定しながら実験を行い、31~52°C の範囲で表層部の温度が変化する様子を計測することができた。冷却型 CCD を用いた撮影方法の場合、露光時間が互いに異なる 2 枚の連続する画像の強度比から温度を評価することになるため、露光時間の設定方法などにより温度測定特性が変化するが、温度一様場での検証実験を行ったところ、31~52°C の範囲における測定については一枚目の画像の露光時間を 160µsec とすれば、強度比が温度とほぼ直線的な関係にあることを確認した。

次に当初計画では 1 本のロッドにワイヤを巻いただけの「複雑形状流路内における熱流動計測」を予定していたが、予定を繰り上げて 7 本ピンワイヤバンドル体系(循環型水実験装置)を試作し(図 3)、これを用いてピンバンドルの内側・外側の速度分布を測定した。ピンバンドル及び流れは鉛直上向きであり、これに側面からレーザーライトシートを照射し、レーザー光導入方向と 90 度の角度をなす側面からカメラで粒子像をとらえた。実験ではまず非加熱条件でピンバンドル内の異なる位置における速度場計測を実施した(図 4 中断面 1,2。結果は図 5)。平均流量は 10L/min とした。装置内に速度分布が全く生じないとすると、装置断面の流路面積は 24.1cm<sup>2</sup>であるので 10L/min は 6.91cm/sec という条件である。実験の結果、今回の実験装置で

は7本ピンバンドルの外側、装置外壁との間で8cm/sec~9cm/secの非常に速い流れが存在すること(図5左図の右側)、ワイヤースペーサーが存在する部位ではワイヤースペーサーに沿う流れになっていることなどがわかった。

温度場測定に関しても「複雑形状流路内における熱流動計測」での測定を予定していたが、7本ピンワイヤバンドル体系の試作ができたため、まずは温度一様場を対象として、7本ピンワイヤバンドル体系で測定した。この装置での温度測定では、上述の冷却 CCD による露光時間が異なる2画像強度比を用いる方法では1枚目の露光時間によって温度特性が変わるうえ、流れが速く、2枚目の露光時間が長すぎるために感温粒子画像から温度と同時に速度場を求めることが難しい。そのため、高速度カメラを用いて感温粒子を1度だけ励起し、燐光が減衰する様子を複数枚の画像に捕え、これを用いて温度と速度の測定を行った。その結果(図6)、速度場については速度のみを測定した場合とほぼ同様の結果を得た。温度場測定については温度22.5℃の一様温度場で測定した結果、21℃から23℃の範囲でばらついた測定結果を得た。これはまだ精度改善の余地がある一方、少なくとも±1℃の精度は現状の測定システムで達成できたといえる。

なお、データベース構築についてはパースペクティブ View というインターフェイスについて調査し、また、FBR 原型炉との流動条件を浮力-慣性力の関係について比較し、次年度の実験条件について検討した。

【今後の予定(翌年度以降の概要)】又は【成果の反映状況】

平成20年度は現在設計製作している、改良型試験装置を用いて、7本ピンワイヤバンドル体系における熱流動実験を行い、高速増殖炉燃料ピンバンドルを模擬した複雑形状流動場における速度場計測を実施する。温度一様条件での速度分布のみではなく、一部の模擬燃料ピンをヒーターで加熱し、平成19年度までに開発した温度測定法を適用することにより、複雑形状流れ場における温度場・速度場を計測する。

これにより複雑形状流れ場の数値シミュレーション検証、乱流モデル構築に加え、複雑形状流路内の流れに与える熱対流の影響評価に資する。

項目	平成18年度		平成19年度		平成20年度	
	上半期	下半期	上半期	下半期	上半期	下半期
抽象化した形状の流路内における高分解能熱流動計測	装置製作	速度場計測	温度場計測法開発	温度場計測法開発		
複雑形状流路内における熱流動計測		実験装置設計製作、速度場計測				
7本ピンワイヤバンドル体系における熱流動計測				実験装置設計製作、温度場・速度場計測	実験装置改良、温度場・速度場計測	温度場・速度場計測
データベース構築		システム設計	システム設計	システム設計		作成

【研究成果の公表】

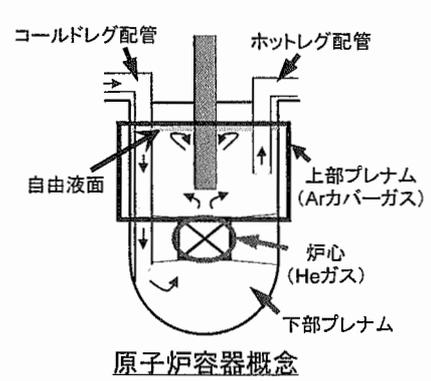
<国内会議>

- 1) 越智 大輔, 染矢聡, 岡本孝司、変形燃料ピンバンドル内熱流動評価手法に関する研究－ピンバンドル内側の速度場計測、原子力学会秋の大会(高知工科大学)発表予定
- 2) 染矢 聡, 岡本孝司、変形燃料ピンバンドル内熱流動評価手法に関する研究－水実験のための温度測定法の開発、原子力学会秋の大会(高知工科大学)発表予定

<国際会議>

- 1) Satoshi SOMEYA and Koji OKAMOTO,  
TEMPERATURE SENSITIVE PARTICLES FOR VELOCITY AND TEMPERATURE MEASUREMENT OF  
A WATER FLOW IN THE WIRE-WRAPPED 7-RODS BUNDLE SYSTEM,  
NTHAS6(6<sup>th</sup> Japan-Korea Symposium on Nuclear Thermal Hydraulics and Safety)発表予定
- 2) Daisuke OCHI, Satoshi SOMEYA, Koji OKAMOTO,  
PIV MEASUREMENT OF A FLOW FIELD IN A NARROW GAP BETWEEN WIRE-WRAPPED FUEL ROD IN FBR,  
NTHAS6(6<sup>th</sup> Japan-Korea Symposium on Nuclear Thermal Hydraulics and Safety)発表予定

2.1.11 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	原子炉系統内溶存ガス挙動評価に関する研究		
研究協力課題	気泡・溶存ガス-冷却材の相互作用モデル開発と高速炉システムへの応用 Mechanistic Modeling of Bubbles and Dissolved Gas in Liquid Sodium and Its Application to Fast Reactor Systems		
研究者所属、氏名			
大学側	大阪大学大学院工学研究科環境 エネルギー工学専攻 教授 山口 彰, 助教 高田 孝, 学生 辰巳 栄作		
機構側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR システムユニット FBR シミュレーショングループ グループリーダー 大島宏之, 研究員 伊藤 啓		
研究実施場所	大阪大学大学院工学研究科環境・エネルギー工学専攻 A1 棟		
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 4 月 ~ 平成 21 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 19 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>ナトリウム冷却高速炉 1 次系冷却材中に含まれる不活性ガスは、炉心反応度、熱伝達等への影響が懸念される。本研究では、高速炉 1 次系に含まれる不活性ガスを定量的に評価できるプラント動特性コードの開発を行う。あわせて、冷却系システムの設計、安全性評価の観点から系統内気泡の設計許容値に関する判断基準を検討する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>カバーガスをもつ原子炉冷却システムでは自由液面からのガスの巻き込みや溶け込みにより、冷却材中に気体が存在している。冷却系に溶存ガスあるいは気泡が存在すると、</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 気泡が炉心を通過するときの反応度影響</li> <li>・ 沸騰やキャビテーションの核生成</li> <li>・ 非凝縮性気体の存在による流動安定性への影響</li> <li>・ 炉心や熱交換器における熱伝達への影響</li> </ul> <p>などの設計上あるいは安全上の課題が懸念される。高速炉においては、このような気泡や溶存ガスのソースとして以下が想定される。</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 自由液面がアルゴンカバーガス系にて加圧されていることによる溶け込み</li> <li>・ 自由液面の流れ場により流力的にカバーガスが巻き込まれること</li> <li>・ 制御棒にて生成されたヘリウムが継続的に放出されること</li> <li>・ 原子炉容器の設計によっては溢流部などでガスの連行が生ずること</li> </ul> <p>上記の理由により、高速炉の冷却システム内部での気体の溶存量、気泡の存在量を評価しておくことは重要である。溶存ガス挙動に関連して主要な現象は以下の三つのカテゴリに分類される</p> <ol style="list-style-type: none"> <li>a) 気泡と溶存ガスの輸送挙動に関連する現象</li> <li>b) 気泡-溶存ガス間の質量交換に関連する現象</li> <li>c) 気泡の分裂・合体や粒度分布に関連する現象</li> </ol>			
 <p>原子炉容器概念</p> <p>The diagram illustrates a cross-section of a reactor vessel. At the top, there are two vertical pipes: 'コールドレグ配管' (Cold leg piping) on the left and 'ホットレグ配管' (Hot leg piping) on the right. Below these, a '自由液面' (Free liquid surface) is indicated. The vessel contains a '炉心 (Heガス)' (Core (He gas)) at the bottom. Above the core, there are '上部プレナム (Arカバーガス)' (Upper plenum (Ar cover gas)) and '下部プレナム' (Lower plenum). Arrows indicate the flow of gas and liquid within the vessel.</p>			

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

#### 【使用主要施設】

筑波大学の気泡の核生成実験装置（共同研究として実験に参加）

#### 【進捗状況（当該年度までの概要）】

本研究は以下の研究項目にて構成される。

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

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

#### 【研究成果（当該年度）】

本年度は以下の研究成果を挙げた。

- ① 原子炉上部プレナムにおける気泡の機構論的モデルの改良（三次元効果の定量化）
- ② 中間熱交換器における気泡の生成・離脱モデルの開発および妥当性の評価
- ③ 高速炉主冷却系内ガス挙動の挙動解析コードの開発

##### ①原子炉上部プレナムにおける気泡の機構論的モデルの改良（三次元効果の定量化）

気泡の個数密度は小さく気泡径も小さいため、気泡の存在は流動場に影響を与えないと考えられる。また、気泡が完全に溶解したとしても流体の物性にはほとんど影響を与えないと考えられるため、気泡から流動場への影響を無視し、流動場から気泡への影響のみを考慮して三次元流れ場における気泡の挙動解析を実施した。図 1 に、原子炉容器の体系図を示す。また解析体系は 3 次元 4 分の 1 セクターモデルである。炉心出口では、各燃料集合体の流量配分を考慮し、集合体ごとに流速を与えた。また、気泡については半径が対数正規分布に従うと仮定した。

上部プレナム内の流況、プレナムサイズによる気泡挙動への影響を評価するため感度解析を実施した。炉心から流入した気泡に対する、自由液面への放出率（Release fraction :  $f_{rel}$ ）、ホットレグ配管への流出率（Outflow fraction :  $f_{out}$ ）、冷却材ナトリウム中への溶解率（Dissolution fraction :  $f_{diss}$ ）を質量比で求めた。パラメータは冷却材流入速度（ $V_{in}$ ）、プレナム高さ（ $H$ ）、ホットレグ配管位置（ $L2$ ）、ホットレグ配管内径（ $D_{out}$ ）とした。

気泡挙動に影響を与える現象として、以下の 3 つの現象が考えられる。

- (1) 気泡にかかる表面張力による溶解
- (2) 気泡にかかる浮力と抗力の比
- (3) 炉心出口からホットレグ配管入口へと直接向かう直接流（Direct flow）と炉心入口か

ら自由液面へと向かいプレナム内を循環した後にホットレグ配管入口へと向かう循環流 (Circulating flow) の比

以上の分析に基づき、3次元体系に適用できる以下の相関式を導出した。溶解割合に関しては以下の式によって表すことができる。

$$f_{dis} = 1.0 - \exp(-0.0161 \times X^{-0.5059}) \quad \text{ただし、} X = Eo \times \left(\frac{H_p}{D_m}\right)^{0.5} \left(\frac{D_m}{L_p}\right)^{3.0}$$

相関係数  $R^2 = 0.9878$  である。この物理モデルではエトベス数により気泡の溶解現象を、 $H_p/D_m$  および  $D_m/L_p$  によって循環流と直接流の強さの比を表していると考えられる。また、自由液面への放出割合に関しては以下のように表すことができる。

$$f_{rel} = \exp(-0.2953 \times X^{-0.1595}) \quad \text{ただし、} X = \left(\frac{F_B}{F_D}\right) \left(\frac{D_m}{L_p}\right)^{0.5}$$

相関係数  $R^2 = 0.9853$  である。溶解割合と同様に、 $F_B/F_D$  により気泡にかかる浮力と抗力の比を表し、 $D_m/L_p$  によって循環流と直接流の比を表すことにより、放出割合が求められることが分かる。H/L 配管への流出割合  $f_{out}$  は  $f_{out} = 1 - f_{dis} - f_{rel}$  と表すことができる。

### ③ 中間熱交換器における気泡の生成・離脱モデルの開発および妥当性の評価

図2にナトリウム中でのアルゴンガスとヘリウムガスの溶解度を示す。溶解度は温度依存性が大きく、低温において小さくなる。従って、中間熱交換器では一次系ナトリウムは冷却されるため伝熱管表面で核生成により気泡が生成される。一方、炉心では温度上昇に伴いナトリウム中の気泡が溶解する。高速炉の一次主冷却系に存在する気泡量の評価において、気泡のソースを定量化することが重要である。気泡のソースとしては自由液面からのガス巻き込みと中間熱交換器における核生成がある。前者については、ガス巻き込み試験などが実施されており、その情報にもとづき定量化することが可能である。核生成については、ここでモデルの開発を実施する。

図3と図4にはそれぞれ核生成と気泡の成長モデルの考え方を示す。図3に示すように、ヘンリーの法則と溶存ガス濃度から決まる気泡の圧力と冷却材のバルク圧力が釣り合うようにキャビティサイズを決定する。生成した気泡核は溶存ガスの拡散によりさらに成長する。成長した気泡は、図5に示すように表面張力と成長力、揚力のバランスにより離脱条件を与える。これまで、抗力と表面張力の釣り合いから離脱条件を決めていたが、Situらの実験に基づくモデルに改良した。このモデルを溶存ガス挙動解析コードVIBULに導入した。

気泡の離脱モデルの実験との比較を行う。水-二酸化炭素系での実験で観測された、上昇中の気泡の写真、伝熱面に静止し成長中の気泡の写真を本研究にて取得した。両者の気泡の個数分布を比較したところ、成長中の気泡の分布の上限と上昇中の気泡の分布の下限が離脱半径に相当すると考えられ、およそ  $105\mu\text{m}$  であることがわかった。この結果と上述した気泡離脱に関する従来のモデルと改良した新モデルの比較を表1示す。この表から新しく開発したモデルは実験結果と一致していることが分かる。

### ③ 高速炉主冷却系内ガス挙動の挙動解析コードの開発

昨年度までに開発したガス挙動を考慮したプラント動特性コードでは、一点近似モデルを用いており、ガス気泡の自由液面への放出率はガス気泡の終端速度によって決定されていた。しかしながら、複雑な構造を有した上部プレナムでは既存の簡易化されたモデルにより気泡放出率を求めるのは不十分である。そこで、①で開発したモデルおよび②で開発した核生成のモデルを導入し、ガス挙動解析コードの制度を向上させた。気泡の移流と気泡-溶存ガスの質量移行に関する基礎方程式は次式である。

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

$$\frac{dN_m}{dt} = -4k_f \pi r_f^2 (N_d' - N_d) \quad (\text{質量保存})$$

ここで、 $C_D$ : 抗力係数、 $N_m$ : ガスモル数[mol]、 $N_d'$ : 単位体積当りの飽和溶解ガスモル数[mol/m<sup>3</sup>]、

$N_d$ ：単位体積当りの溶解ガスモル数[mol/m<sup>3</sup>]であり、飽和溶解濃度( $N_d'$ )についてはヘンリーの法則をもとに評価する。

上部プレナムに流入した気泡がプレナム中のナトリウムに溶存する割合を評価した。VIBLEモデルは従来の一点近似モデルであり、2Dモデルは18年度に開発した二次元解析に基づくモデルによる結果である。また、自由液面から放出される気泡の割合を求めた。気泡の挙動に関しては同じモデルを用いているので、ナトリウムの流れ場の違いにより結果に違いが現れている。このモデルは3次元解析に基づき、かつ流量やプレナム形状などの感度解析に基づきモデル化されているため、図1に示すような体系のプレナムであれば、汎用的に利用できる3次元効果を考慮したモデルである。

ここで開発したモデルを用いて上部プレナムの出入り口（炉心出口と原子炉容器出口）における気泡の半径分布を評価した。気泡の核生成・離脱モデルの改良により、70から80mmの気泡が存在すること、分布が平坦化されることが分かった。これらの結果から、高速炉一次系の気泡・溶存ガス挙動モデルが実機の評価に適用できる見通しを得た。一方、ナトリウムループあるいは実機における総合的な検証を行うことが望まれる。

#### 【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成20年度は、プラント動特性コードを用いて、実用炉として想定されている大型炉でのプラントシステム熱流動および気泡と溶存ガスの挙動を解析する。そして解析結果に基づき、高速炉における気泡・溶存ガスに関する許容量の検討を行う予定である。

#### 【研究成果の公表】

##### <国内会議>

- 1) 辰巳栄作、高田孝、山口彰、流れ場における気泡挙動に関する研究、日本原子力学会秋の大会、北海道大学、N10(2006)
- 2) 辰巳栄作、高田孝、山口彰、大島宏之、伊藤啓、上出英樹、高速炉の原子炉容器自由液面からの巻き込み気泡の許容量に関する考察、日本原子力学会年大会、大阪大学、M35(2006)

##### <国際会議>

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

表 1 気泡離脱半径に関する実験と解析モデルの比較

実験結果	気泡離脱半径 (直径) [ $\mu\text{m}$ ]	
	気泡発生位置(Lsat)	出口(高さ 300mm)
(1) 既存モデル	76.7 (153)	78.8 (158)
(2) 揚力・成長力・表面張力モデル	99.5 (199)	101.4 (203)

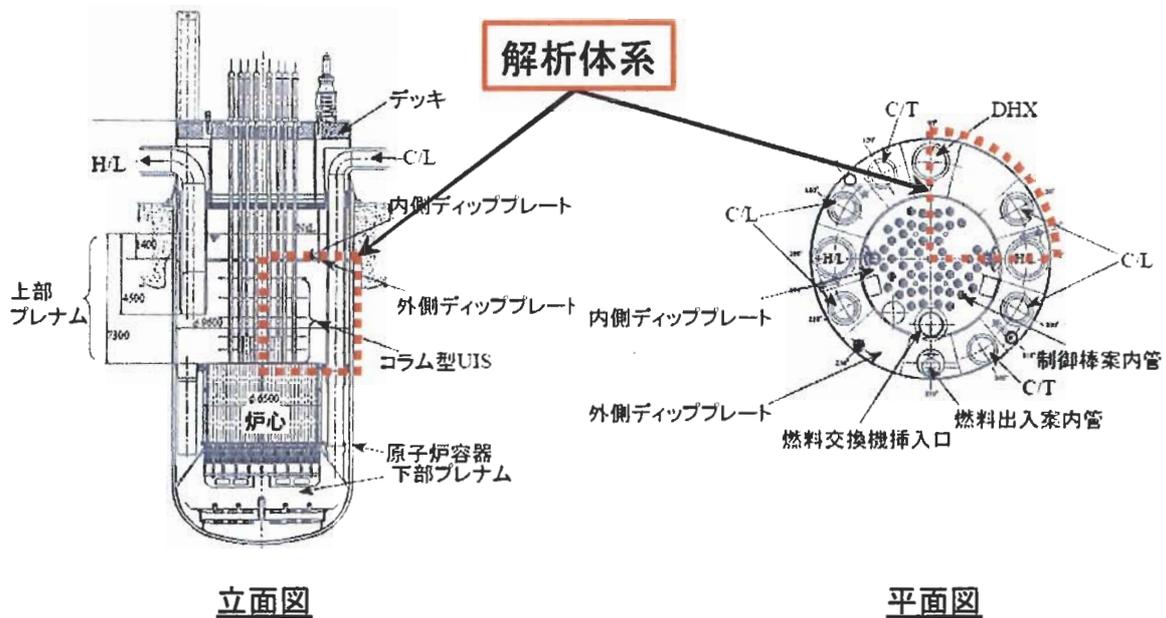


図 1 原子炉容器構造図と解析体系 (JAEA 公開資料に手を加えて作成)

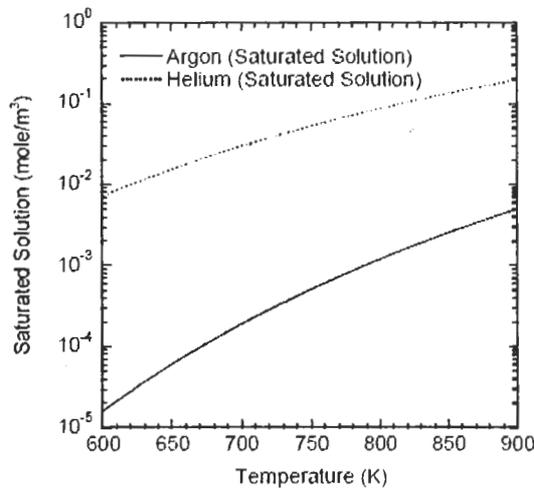


図 2 アルゴンガスとヘリウムガスのナトリウム中溶解度 (Yamaguchi, A. Hashimoto, A., NURETH-11, 2005.)

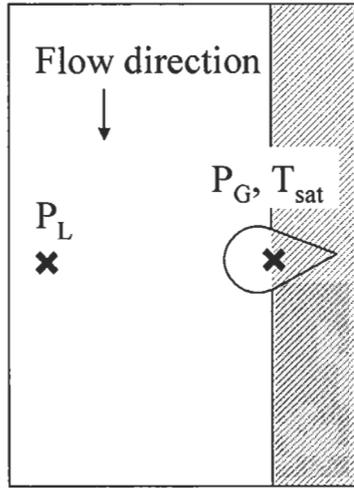


図3 冷却壁面における核生成

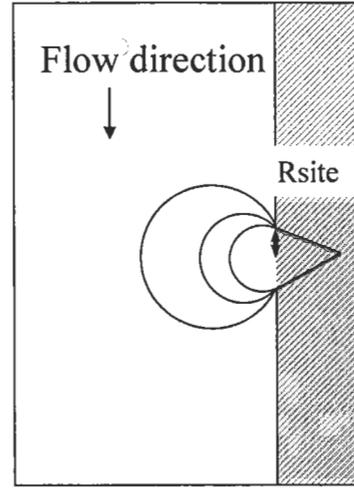


図4 冷却壁面における気泡の成長

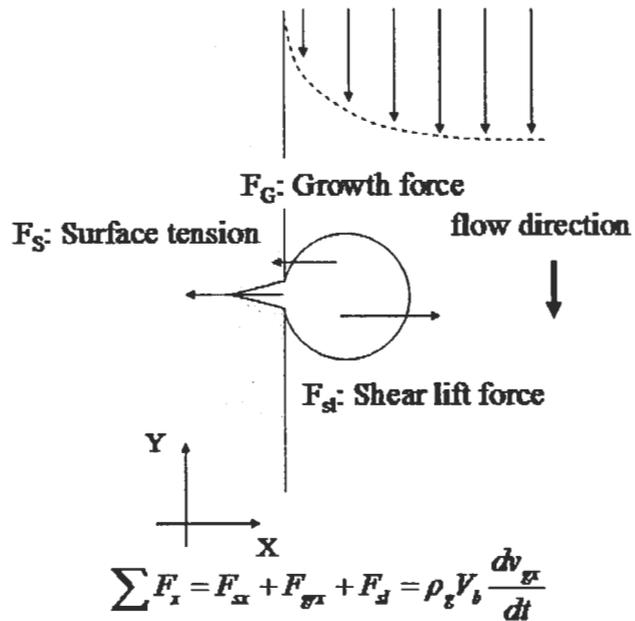


図5 気泡の離脱条件

2.1.12 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	ナノコンポジットスーパー_steelの創製										
研究協力課題	ナノ粒子分散強化オーステナイト鋼の創成の基礎研究 Creative Fundamental Study of Nano-particle Strengthened Austenitic Steels										
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="3">北海道大学大学院 工学研究科 材料科学専攻 大貫 惣明、橋本 直幸、須田 孝徳、内多 陽介、渡部 雅 北海道大学 エネルギー変換マテリアル研究センター 柴山 環樹</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="3">大洗研究開発センター 燃料材料試験部 材料試験課 山下 真一郎 次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 大塚 智史</td> </tr> </table>			大 学 側	北海道大学大学院 工学研究科 材料科学専攻 大貫 惣明、橋本 直幸、須田 孝徳、内多 陽介、渡部 雅 北海道大学 エネルギー変換マテリアル研究センター 柴山 環樹			機 構 側	大洗研究開発センター 燃料材料試験部 材料試験課 山下 真一郎 次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 大塚 智史		
大 学 側	北海道大学大学院 工学研究科 材料科学専攻 大貫 惣明、橋本 直幸、須田 孝徳、内多 陽介、渡部 雅 北海道大学 エネルギー変換マテリアル研究センター 柴山 環樹										
機 構 側	大洗研究開発センター 燃料材料試験部 材料試験課 山下 真一郎 次世代原子力システム研究開発部門 FBR 要素技術ユニット 炉心・構造材料グループ 大塚 智史										
研究実施場所	北海道大学 大学院工学研究科 材料科学専攻 大洗研究開発センター 燃料材料試験部 材料試験課										
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 11 月 ~ 平成 21 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 19 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月								
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究										
<p>【研究目的】</p> <p>日本原子力研究開発機構（以下、JAEA とする）における従来までの ODS 鋼開発研究では、粉末合金化の容易性からフェライト系がその研究対象とされてきたが、更なる高性能化を追求するためには、酸化物粒子の照射下安定性や界面構造、母相組織の照射下安定性、酸化物と転位との相互作用、機械的性質と微細構造との関係などの究明が不可避の課題である。一方、耐熱性・耐食性に優れる構造材料として、従来までは SUS304 や SUS316 などのオーステナイト系ステンレス鋼が使用されてきたが、酸化物による分散強化の成功例は皆無で、オーステナイト鋼で ODS 化が成功できれば、ODS フェライト鋼よりも高強度、高耐食性を有する材料の創製が可能となる。</p> <p>本研究では、まず初めに、①オーステナイト系ステンレス鋼にナノ粒子を分散強化する手法を確立し、幾つかの試作材を作製する。次に、これら試作材に対し、②実使用環境を模擬した条件下で耐照射性、ナノ粒子の照射下安定性を評価する。最終的には、③手法および照射下材料特性を総合評価することで、先進材料の製造指針を得る。</p> <p>以上、①②③を研究の目的として、共同研究を平成 18 年度より 3 ヶ年計画で進める。</p>											
<p>【研究内容（概要）】</p> <p>研究は 3 段階に分けて進めている。初めに、高速炉用に特殊改良したことで優れた耐照射性、耐熱性、耐食性の発現に成功した改良型オーステナイト系ステンレス鋼（PNC316 鋼）に対し、ODS フェライト鋼の製造で使用されている機械的合金（MA：Mechanical Alloying）法を適用する。一般的に、オーステナイト鋼はフェライト鋼に比較して延性・展性に富むことから、アトライター式ボールミルではなく遊星ボールミルを採用し、MA 治具に加わるエネルギー負荷を低減し MA 法を行う。この試行で作製した試作粉末に対して熱処理を施すことでナノサイズ酸化物を析出させ、酸化物の形成挙動や分散状態、熱的安定性などを評価する。評価結果の MA 条件へのフィードバックから MA 条件の最適化を図る。なお、改良型オーステナイト系ステンレス鋼に混合する酸化物構成元素は、ODS フェライト鋼での微細化が実証されている <math>Y_2O_3</math> と Ti の組合せを第一優先とする。</p>											

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

最終段階では、各種試作材のうち、良好な評価結果が得られたものに対し照射環境下での特性評価を行う。具体的には、中性子あるいは電子照射下でのナノサイズ酸化物の安定性や照射欠陥クラスター形成挙動に及ぼすナノサイズ粒子分散の効果などを評価する。研究期間および照射場の制約などから、中性子照射材については、過去に「常陽」で照射した試作材<sup>(注1)</sup>を用い、電子照射材は本研究の試作材とする。

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

#### 【使用主要施設】

北海道大学：超高分解能超高压電子顕微鏡 (JEM-ARM1300)

原子力機構：照射材料試験施設内研磨セル、および第2照射材料試験施設内化学室グローブボックス

#### 【進捗状況 (当該年度までの概要)】

18年度には、①高温強度と耐照射特性に優れたオーステナイト系ナノコンポジットスーパー\_steel を作製する基礎研究として、メカニカルアロイング(MA)による  $Y_2O_3$  分散条件を検討した。

また、②酸化物構成元素の組み合わせ条件の検討とナノキャラクタリゼーションを開始した。ナノキャラクタリゼーション法、特に熱処理と TEM 試料の作成法を見出すことができた。また、①の MA 条件とアニール条件の絞込みをしたことで、Ti の適正添加量とその他の添加元素の選択を次の課題とした。

#### 【研究成果 (当該年度)】

19年度には、①微量複合添加によるナノ分散粒子の形成状況を引き続き検討した。また、②過去に高速実験炉「常陽」で照射していた試作材<sup>\*1</sup>を用い、詳細な組織観察から中性子照射下<sup>\*2</sup>での照射欠陥クラスター形成に及ぼすナノサイズ粒子分散の効果を調査した (図1は組織観察結果の一例)。これにより、ナノ粒子/母相界面がボイドの優先的な核形成サイトとして作用することを示し、それら異相界面の分散制御条件の最適化により、既存のオーステナイト系ステンレス鋼以上のボイドスエリング抑制効果への見通しを得た。

\*1 PNC316 粉末と  $Y_2O_3$  粉末の原料粉末を 150rpm で 72 時間アトライター式ボールミルにより MA し、その後 HIP 処理、熱間押し出し加工、熱処理を加えた円柱状の試料

\*2 照射条件：照射量  $3.0 \sim 3.2 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$  ( $E > 0.1 \text{ MeV}$ )、照射温度  $451 \sim 496^\circ\text{C}$

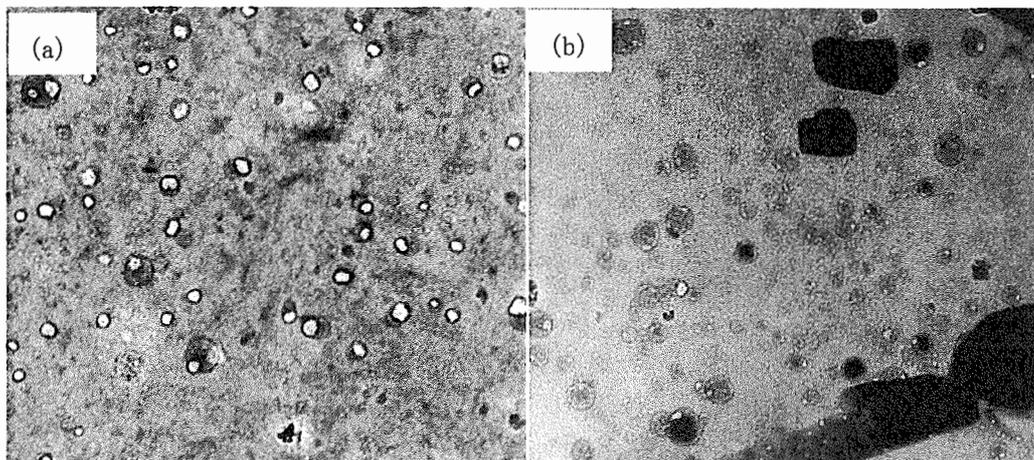


図1 ナノ粒子分散強化試作材の照射後組織 (a)  $451^\circ\text{C}$ , (b)  $496^\circ\text{C}$

【出典：日本原子力学会 2008 年春の年会予稿集講演番号 E17】

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 20 年度は、①Ti、Zr、Hf など微量元素の複合添加により、ナノサイズ粒子分散を実現するための最適値を確定し、②約 1 k g 作製した MA 粉末を高温押出し処理によりバルク材を試作する。③このバルク材に対して機械的試験を実施するとともに、一部サンプルに対して④耐照射性評価のための電子線照射試験を実施する。また、本年度は研究の最終年度となることから、これまでに取得されている研究成果およびこれから取得される研究成果について、北海道大学、原子力機構双方の関係者で議論し総合考察することで、先進材料製造指針の提案に繋げていく。

【研究成果の公表】

<論文>

- 1) K. Oka, S. Ohnuki, S. Yamashita, N. Akasaka, H. Tanigawa, Structure of nano-size oxide in ODS steels and its stability under electron irradiation, Materials transaction, 48 (2007)、査読付
- 2) M. Watanabe, S. Ohnuki, N. Hashimoto, T. Shibayama, S. Yamashita, S. Ohtsuka, N. Akasaka, Non-equilibrium desolation and precipitation of  $Y_2O_3$  in Mechanical-alloyed Austenitic Stainless Steel, J. Nucl. Mater., (submitted)、査読中

<国内会議>

- 1) 内多陽介 長井利泰 須田孝徳 橋本直幸 大貫惣明 柴山環樹 山下真一郎 赤坂尚昭, ODS 合金中の複合酸化物分散に及ぼす第三元素の効果 — 濃度依存性 —, 日本金属学会 2007 年度春期 (第 140 回) 大会、千葉工大 千葉, 2007 3/27-3/29
- 2) 渡部雅 橋本直幸 大貫惣明 柴山環樹 山下真一郎 大塚智史, ナノ粒子分散強化オーステナイト鋼創成の基礎研究 (I) 非平衡固溶・析出, 日本金属学会・日本鉄鋼協会両北海道支部合同夏季講演大会、室蘭工大 室蘭, 2007 7/19-7/20
- 3) 渡部雅 橋本直幸 大貫惣明 柴山環樹 山下真一郎 大塚智史, ナノ粒子分散強化オーステナイト鋼創成の基礎研究 (I) 非平衡固溶・析出, 日本金属学会 2007 年秋期 (第 141 回) 大会、岐阜大学 岐阜, 2007 9/19-9/21
- 4) 山下真一郎 大塚智史 渡部雅 内多陽介 須田孝徳 橋本直幸 大貫惣明 柴山環樹, ナノ粒子分散強化オーステナイト鋼の創成の基礎研究—照射欠陥クラスター形成に及ぼすナノ酸化物粒子分散の効果—, 日本原子力学会 2008 年春の年会、大阪大学 大阪, 2008 3/26-3/28

<国際会議>

- 1) Y. Uchida, T. Nagai, S. Ohnuki, N. Hashimoto, T. Suda, T. Shibayama, Effects of adding minor elements to ODS steel with dispersed complex oxides, KNS and AESJ Joint Summer School 2007 for Students and young Researchers, Seoul, 2007 8/27-8/29
- 2) M. Watanabe, N. Hashimoto, S. Ohnuki, T. Shibayama, S. Yamashita, S. Ohtsuka, N. Akasaka, "Non-equilibrium desolation and precipitation of  $Y_2O_3$  in Mechanical-alloyed Austenitic Stainless Steel", KNS and AESJ Joint Summer School 2007 for Students and young Researchers, Seoul, 2007 8/27-8/29
- 3) S. Ohnuki, Effects of adding minor elements to ODS steel with dispersed complex oxides, The 9th China-Japan Symposium, Guilin, 2007 10/23-10/26
- 4) M. Watanabe, S. Ohnuki, N. Hashimoto, T. Shibayama, S. Yamashita, S. Ohtsuka, N. Akasaka, "Non-equilibrium desolation and precipitation of  $Y_2O_3$  in Mechanical-alloyed Austenitic Stainless Steel", ICFRM13, 2007 12

## 2.1.13 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	高速炉冷却系配管における流れの剥離現象に関する基礎研究		
研究協力課題	高レイノルズ数領域におけるマルチエルボ内複雑流動構造の解明 Clarification of complex flow structure in a multi-elbow in a high Re number regime		
研究者所属、氏名			
大学側	東北大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻 橋爪 秀利, 結城 和久, 伊藤 悟		
機構側	次世代原子力システム研究開発部門 設計統括ユニット FBR 設計グループ 山野 秀将, 中西 繁之		
研究実施場所	東北大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻・熱流体実験室 大洗研究開発センター FBR サイクル国際研究開発センター		
通算研究期間 (予定)	平成 19 年 6 月 ~ 平成 22 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 19 年 6 月 ~ 平成 20 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>本研究は、ナトリウム冷却大型高速炉の 1 次系大口径配管の設計検討に資することを目的として、高レイノルズ数条件下におけるコールドレグ・マルチエルボ部での複雑流動現象を実験的に把握するものである。また、ここで得られた実験データは実機評価に用いる解析コードの検証に活用するとともに、大口径配管設計の成立性判断に反映する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>ナトリウム冷却炉は、一般的に軽水炉と比べて高温・低圧条件で設計されることから、薄肉の配管が利用される。上記大型高速炉では、このような薄肉大口径配管が高流速条件で使用されることから、配管エルボ部で生じる流れの乱れなどに起因した配管振動（流動励起振動）が発生する可能性があり、プラント設計では構造健全性確保の観点から十分な留意が必要となる。特に、エルボが複数連結される場合には、上流側エルボで形成される渦が下流側エルボへ流れ込むため流動構造は更に複雑となる。</p> <p>本研究は、直管および 3 つの 90 度エルボから構成される 1 次系コールドレグ配管を模擬した流動試験装置を用い、高レイノルズ数条件下におけるエルボ部での複雑流動現象の把握、並びに流動励起振動に影響する主要因子の抽出、を 3 年間に亘って実施するものである。研究初年度においては、実機設計の約 1/7 縮尺（内径 126.6mm）の流動試験装置の設計・製作を行うとともに、既存の 1/15 縮尺試験装置（内径 56.0mm）を活用して、単エルボおよび 2 段エルボを用いた流動試験のデータ（低 Re 数域）を取得する。研究 2 年目となる平成 20 年度では、製作された 1/7 装置を用いて高 Re 数域における単エルボおよび 2 段エルボの流動構造を評価し、スケール効果等について議論する。最終年度では、3 段エルボの流動特性について評価するとともに、得られる全てのデータを総括して、大口径配管設計の成立性判断に反映する。</p>			
【使用主要施設】			
東北大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻・熱流体実験室 (Stereo-PIV システム、2D-PIV システム)			

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 19 年度は、既存水流動試験ループを活用して実機設計の 1/15 縮尺試験体（内径 56.0mm）を設計・製作して、屈折率調合 PIV 実験を実施し、低 Re 数域の流速分布データを取得した。また、実機設計の約 1/7 縮尺（内径 126.6mm）の流動試験装置の設計・製作を行い、次年度からの試験実施に備えた。さらに、1/15 縮尺体系での数値解析を実施し、可視化実験結果との比較評価を実施した。

## 【研究成果（当該年度）】

## (1) 1/15 縮尺流動試験装置における可視化実験

平成 19 年度前半では、ヨウ化ナトリウム水溶液（以降、NaI 水溶液）を作動流体とする屈折率調合 PIV 実験を実施し、既存のロングエルボ（曲率半径比 1.5）を対象とする流れ場の可視化を予備的に実施した。平面接続構造を有する二段エルボ内（エルボ間距離 0.0D : D=56.0mm）の流れ、特に第一エルボから第二エルボの内側へ流れ込む高速流れ、の可視化に成功した。しかしながら、配管断面に形成される二次流れの可視化から、その流動構造が三次元の螺旋構造を有することを確認した。この原因として、試験部入口部における流入条件が強く影響している可能性があるため、試験部への助走距離を従来の 35D から 47D に改良し、更に、助走部の上流側に整流促進のためのハニカム整流器とレデューサを設置した。これにより、エルボへの流入条件として完全発達した乱流速度分布の取得に成功した (Re~42,000)。

以上の予備実験を踏まえ、本研究で対象とするショートエルボ（曲率半径比 1.0）に関する屈折率調合 PIV 実験を平成 19 年度後半に実施した[1]。コールドレグのマルチエルボ体系（3 段 3 次元曲がり）では、第 1 エルボ内側にて流動剥離が発生した後、第 2 エルボでは、第 1 エルボの影響により旋回流が形成されると予想される（第 1 エルボと第 2 エルボの空間距離は 0.57D）。また第 3 エルボの曲がり面が第 2 エルボの曲がり面と平行であるため、第 2 エルボで形成された旋回流はそのまま第 3 エルボでも維持されると考えられるが、第 2 エルボと第 3 エルボの空間距離が比較的長いため（6.14D）、第 3 エルボでは単一エルボの特性が強くなり、再び流動剥離が発生することも懸念される。この様に、エルボ間の相関が非常に強いコールドレグ体系での大まかな流動構造を評価するため、先ず低 Re 数条件下（Re=43,000）において、第 1 エルボと第 2 エルボ内の流動構造を可視化した。図 1 は屈折率調合 PIV 実験により得られたトレーサ粒子像とその時の流速ベクトル図であり、管路であるアクリルと同じ屈折率を有する NaI 水溶液を用いることによって、複雑幾何形状を有する曲がり管内の流動場を屈折率の影響を除外して取得できることを示している。使用したトレーサ粒子は平均粒径 20 $\mu$ m、比重 1.02 のナイロン粒子である。以降で示す可視化結果は、PIV 計測 1 ショットのデータであるため、平均化および統計データを取得するためのサンプル数が十分でないこと、更にエルボの入口・出口部ではレーザ強度が十分で無く測定精度が劣化していること、曲がり管壁に関する境界設定の後処理が十分でないことを申し添える。

先ず、第 1 エルボにおける流動状態に注目する。図 2(a), (b), (c), (d)はそれぞれ同エルボ内における瞬時流動場、平均流速場、等速度線図、面内速度変動の RMS 値を表している。流れ場は非定常に揺動しており、曲がり管固有の低周波の揺動が形成されていると考えられる。また入口内壁近傍には流れ方向の順圧勾配による高速域が形成されており、その速度（1.09m/s）は入口平均流速の 1.76 倍に達する。更に剥離領域の一部と考えられる低速域が曲がり 40°付近から発達しており（平均流速ベクトル図参照）、瞬時場の図からは剥離渦の一部と考えられる逆流構造を確認することができる。剥離域はエルボ下流方向に発達しており、これに伴い出口領域に再び高速域が形成されていることも確認できる。なお、剥離域の発生点が先行研究[2,3]よりも上流側に遷移しているのは、エルボへの流入条件の違いであり、境界層が十分に発達した乱流速度分布がエルボへ流入するためと考えられる。速度変動の RMS 値に注目すると、この曲がり面内では剥離領域と主流の境界近傍に強い速度変動が存在することがわかる。剥離渦の構造をより詳細に評価するため、剥離領域をクローズアップした瞬時流動場を図 3 に示す。これより、曲がりの中心縦断面におけるエルボ内側で

は、複雑な流動構造が存在し、特に剥離域の上流側で比較的小さな複数の渦構造、下流側には大きな流動構造を確認することができる。時間変化の様子から、下流側の流動構造は特に激しく変化しており、剥離渦の放出挙動の動特性の一端を反映している。単一エルボにおける剥離領域の大きさを考慮すると(1.0D以内)、剥離領域の下流部は第2エルボ形状の影響を受けると考えられ、先述の動特性に大きく影響すると考えられる。剥離渦の3次元構造を明らかにするため、第1エルボ下流側0.2Dの位置における二次流れを計測した(図4参照)。これより、曲がり管中央部に形成される高速領域とエルボ内壁の間に、低速スポットと双子渦が存在していることが確認できる。図3との比較により、この双子渦は剥離領域の横断面流動構造を表しており、この計測位置での平均的な剥離渦構造が周方向へ広がった2つの渦構造として存在していることが分かる。更に入口平均流速の80%を越える高速流れが管外壁近傍に存在しており、時間変化の様子から、その流れが間欠的に剥離領域へ流れ込んでいることを確認した。この影響により、剥離領域であるエルボ内壁近くの流動は非定常性が非常に強く、管外壁側からの2つの高速流れの衝突効果により流動が不安定となっている。この高速流れが主流上流側で形成されたものか、或いは剥離渦の放出に伴う流体欠損を補うために形成されているかは今後検討していくが、これが剥離渦の回転構造と渦放出に関する動特性に多大に影響することは間違いない。

続いて、第2エルボ内部の流動状態について議論する。図5(a), (b)は、それぞれ第2エルボ内における瞬時流動場と時間平均場を表している。第1エルボはベクトル図の紙面左奥側に存在している。まず、エルボ内の速度分布が第1エルボのものと全く異なることが確認できる。第2エルボでは剥離領域は形成されておらず、内壁側と外壁側に高速域が存在している。特にエルボ内壁側では、第1エルボの高速流れよりも速い流れが形成されている。また瞬時流動場の様子から、流れ場の非定常性が第1エルボよりも増大しており、第1エルボで発生した剥離渦の放出に関する動特性が主流に存在する揺動の発達に大きく寄与していると考えられる。第2エルボ内での3次元流動構造について明らかにするため、図6に第2エルボ直後0.2D下流での二次流れの流動形態(a:時間平均場、b:瞬時流動場)を示す。剥離領域を表す流動構造は存在せず、偏った旋回構造を確認することができる。平均速度の最大値は0.43m/sであり、主流平均速度の約60%に達しており非常に強い旋回流が第2エルボで形成されている。図左上からは第1エルボで形成された高速流れ、図左下からは剥離流れが流入するため、第2エルボで形成される旋回流構造が第1エルボの流動状態によって決定される。一方、高曲率半径(曲率半径1.5)を有する3次元曲がり2段エルボでは、この位置で既に管全体に一樣な旋回流が確認されていることから、第1エルボで発生する剥離が第2エルボの流動状態に影響を与え得ると言える。また、時間変化の様子から、旋回流の中心位置が変化しており、剥離が発生しない場合と同じ知見が得られている。上記の流れはエルボ間の距離に対して非常に敏感であると考えられ、特に剥離渦発達に伴う加速域での流れが第2エルボに流入するか、もしくは剥離渦が消滅する減速域の流れが流入するかで、第2エルボでの旋回流構造が劇的に変化する可能性は高い。

以上、1/15縮尺流動試験装置を用いて3次元曲がり2段エルボ内における流動構造のPIV可視化実験を実施した。第1エルボ内で剥離領域が形成されるのに対し、第2エルボでは剥離領域が形成されないことを確認した。また、第2エルボでは旋回流が形成されることを確認した。さらに、第1エルボで発生した剥離渦の放出に関する動特性に影響され、主流中に存在する揺動が第2エルボで大きく成長していることを確認した。今後の課題は、高Re数域における定量評価(速度変動特性、全圧力損失係数、壁面圧力)、および3段エルボ体系での流動を評価することである。

## (2) 1/7 縮尺流動試験装置の設計・製作

1/7縮尺サイズの流動試験装置の設計・製作を実施した。装置は主として大流量循環ポンプ、整流タンク、助走部、試験部、混合タンク(脱気・トレーサ混入等)により構成される。試験部ならびにその周囲の配管は主としてSUS304により構成されているが、PIVによる可視化の際、助走部の一部と試験部はアクリル製の配管に交換される。今後、1/7縮尺流動試験装置のシェイクダウンテストを実施して装置健全性(リーク、振動等)を確保し、次いで、助走部における流れの発達具合についてPIVにより可視化する。

**(3) 1/15 縮尺流動試験の数値解析**

1/15 縮尺流動試験の解析に先立ち、メッシュ形状・乱流モデル・境界条件等の解析条件最適化のための予備解析を実施した。予備解析は、平成 18 年度に実施された 1/3 縮尺ホットレグ配管の水流動試験[2]の試験体系にて実施し、流速分布、剥離域サイズ、圧力変動等の模擬性の観点から試験データと比較し、最も試験データの模擬性が良い解析条件を設定した。

続いて、上記にて設定した解析条件にて、2 段エルボを用いた 1/15 縮尺流動試験の数値解析を実施した。なお、エルボ入口部については、上述の 1/15 縮尺流動試験で計測した PIV データを流入条件としている。解析結果は、試験結果で見られたように、第 1 エルボの中心縦断面における流動場では、入口内壁近傍での流れ方向の順圧勾配による高速域、剥離渦の一部と考えられる逆流構造、出口領域に形成される高速域が確認できた。また、第 1 エルボ内壁近傍の中心縦断面における流動場を比較すると、剥離域の上流側での小さな複数の渦構造、下流側での大きな流動構造は確認できないものの複雑な流動構造の存在は確認できた。第 1 エルボから 0.2D 下流の管断面二次流れを見ると、管外壁近傍の高速流れ及びその内側の双子渦は試験・解析の双方で見られたが、解析では更に双子渦の間にある高速領域が見られた。これについては計測上の問題なのかを含めて今後検討していく。第 2 エルボの中心縦断面における流動場については、内壁側と外壁側（特に内壁側）の高速域及び剥離領域が形成されていないことが解析でも模擬できた。第 2 エルボ下流側 0.2D の管断面二次流れでは、試験と類似の偏った旋回流及びその旋回流の構造が確認できた。

単エルボを用いた 1/15 縮尺流動試験は実施していないが、2 段エルボの存在による 1 段エルボ部の流況への影響を調べるため、単エルボ体系の解析を実施した。エルボ出口、及びエルボ出口から 0.2D、0.4D、0.57D 下流の流速分布について、2 段エルボ体系解析と比較を行った。その結果、エルボ出口から 0.2D～0.57D 下流にいくに従って、流速分布は、単エルボ体系と 2 段エルボ体系第 1 エルボでは異なる傾向を示していく。2 段エルボ体系第 1 エルボの流速分布は単エルボ体系に比べて壁近傍で流速が高くなり、管中心で低くなっている。また、2 段エルボ体系第 2 エルボの流速分布はエルボ入口ではエルボ腹側で高流速となっており、これがエルボ下流の流速分布に大きく影響を及ぼしている。

以上、1/15 縮尺流動解析を実施し、可視化試験と流速分布の傾向は概ね一致していることを確認した。また、試験を実施していない単エルボ体系での解析を行った結果、第 1 エルボ下流の流動構造は第 2 エルボの存在により影響されることを明らかにした。

**(参考文献)**

- [1]吉田和弘、結城和久、橋爪秀利、山野秀将、小竹庄司「Na 冷却高速炉における大口径配管の流力振動評価に関する研究 (6) コールドレグ 1/15 縮尺試験におけるエルボ管内流れの PIV 計測」日本原子力学会 2008 年春の年会、大阪 (2008/3/26～28)。
- [2]白石直、佐郷ひろみ、渡壁壽人、山野秀将、小竹庄司「Na 冷却高速炉における大口径配管の流力振動評価に関する研究 (2) ホットレグ 1/3 縮尺試験における超臨界 Re 数領域での圧力変動特性と流動状況」日本原子力学会 2008 年春の年会、大阪 (2008/3/26～28)。
- [3]岩本幸治、南浦弘尚、青山善行、村上幸一、山野秀将、小竹庄司「Na 冷却高速炉における大口径配管の流力振動評価に関する研究 (5) ホットレグ 1/10 縮尺試験におけるエルボ管内流れの LDV 計測」日本原子力学会 2008 年春の年会、大阪 (2008/3/26～28)。

## 【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 20 年度では、前年度に実施された 1/15 縮尺流動試験を継続して 1 段エルボ試験および 2 段エルボ試験の定量的なデータを取得する。可視化に当たっては、流れ場全域の流動遷移構造の把握（流方向縦横断面）および剥離等の複雑流動が発生する対象部位のクローズアップ撮影を実施する。併せて SUS 製配管により配管壁面圧力分布も計測する。1 段エルボ試験および 2 段エルボ試験を比較することで複数エルボの効果を明らかにする。流速をパラメータとした試験 ( $Re=50,000$ 、 $100,000$  以上の 2 ケース程度) を行い、流速の影響を定量化する。また、平成 19 年度に製作された 1/7 縮尺水流動試験装置を用いて 1 段エルボ試験および 2 段エルボ試験を実施する。まず、1 段エルボ試験体を取り付け、エルボ部における全圧力損失係数を算出し、既存データとの比較により試験装置及び計測系の妥当性を確認する。高レイノルズ数条件 ( $Re=320,000$ 、 $1,200,000$  程度) を目標として PIV による可視化試験を行い、流速分布を計測する。可視化に当たっては、1/15 縮尺試験と同様に、流れ場全域の流動遷移構造の把握（流方向縦横断面）および剥離等の複雑流動が発生する対象部位のクローズアップ撮影を実施する。また、配管の壁面圧力変動特性を計測する。続いて、実機設計と相似のエルボ間距離（直径の 0.57 倍）にした 2 段エルボ試験体を製作して、それを 1/7 縮尺水流動試験装置に取り付ける。1 段エルボ試験と比較するため、同レイノルズ数 ( $Re=320,000$  程度) 条件で PIV による可視化試験を行い、流速分布および圧力分布の計測を開始する。これらの 2 つのスケールを有する縮尺試験装置によるデータは、配管スケール効果の検討に資するとともに、マルチエルボ内の複雑流動に関する動特性モデルの検討に資する。

また、1/15 及び 1/7 の 2 つのスケールを有する縮尺体系の試験解析を実施し、別途実施される 1/3 縮尺試験解析と比較検討を行うことにより、マルチエルボ内の複雑流動のメカニズム及び配管スケール効果について検討する。

平成 21 年度では、引き続き 2 段エルボ試験体の可視化実験・圧力計測を継続する。また、実機設計と相似の 3 段エルボ試験体を製作して、それを 1/7 縮尺流動試験装置に取り付ける。高レイノルズ数条件 ( $Re=320,000$ 、 $1,200,000$  程度) を目標とした上記と同様の可視化試験・圧力計測（全圧損および壁面圧力）を実施する。また、1/7 縮尺体系での 3 段エルボ流動解析を実施し、上記の試験結果との比較を実施するとともに、別途実施される 1/4 縮尺試験解析と比較検討を行う。得られる全てのデータを総括して、大口径配管設計の成立性判断に反映する。

## 【研究成果の公表】

## &lt;国内会議&gt;

## 1) 2008 年原子力学会「春の大会」

発表題目：コールドレグ 1/15 縮尺試験におけるエルボ管内流れの PIV 計測

著者：吉田和弘、結城和久、橋爪秀利、山野秀将、小竹庄司

## 2) 2008 年原子力学会「秋の大会」にて発表予定

発表題目：コールドレグ 1/15 縮尺試験におけるエルボ管内流れの PIV 計測(2)

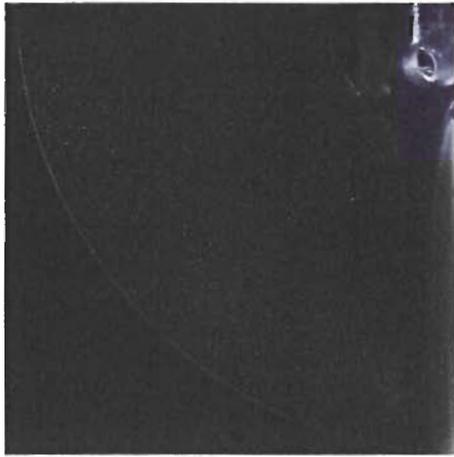
著者：吉田和弘、結城和久、佐藤司、橋爪秀利、中西繁之、山野秀将、小竹庄司

## &lt;レポート等&gt;

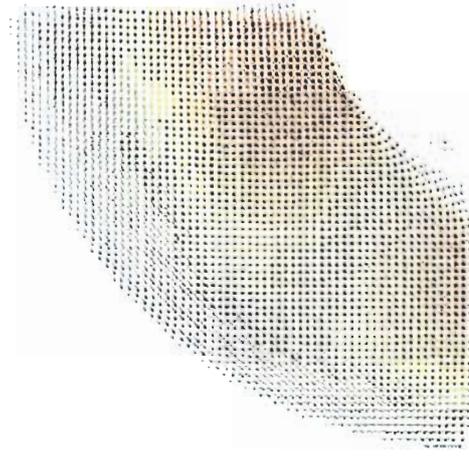
## 1) JAEA レポート作成予定

題目：高速炉冷却系配管における流れの剥離現象に関する基礎研究 —高レイノルズ数領域におけるマルチエルボ内複雑流動構造の解明—（先行基礎工学研究に関する平成 19 年度共同研究報告書）

著者：結城和久、橋爪秀利、伊藤悟、中西繁之、山野秀将

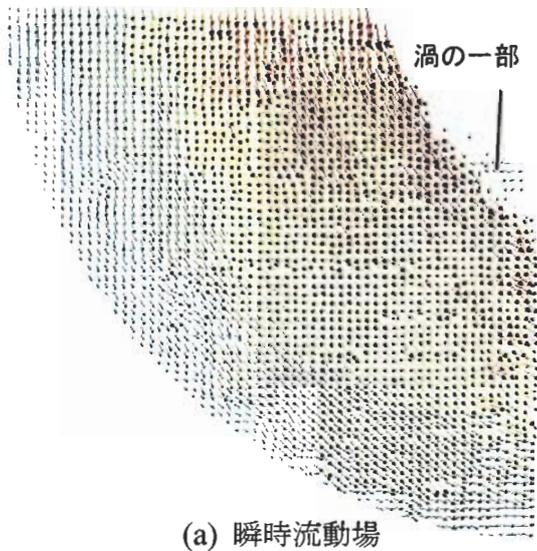


(a) トレーサ粒子像

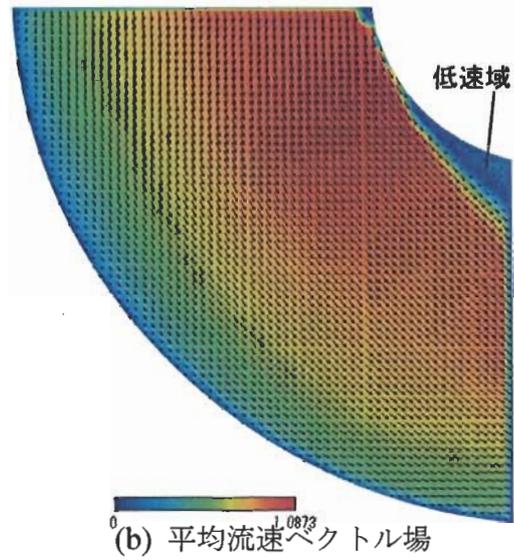


(b) 流速ベクトル図

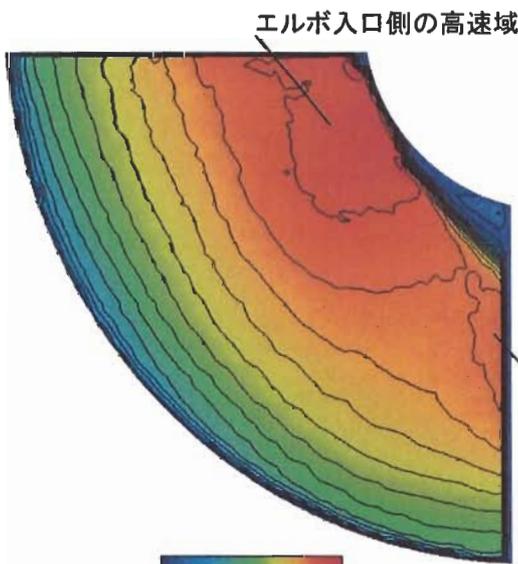
図1 屈折率調合 PIV 実験によるエルボ内流れの可視化 (吉田ら、原学会 2008 春)



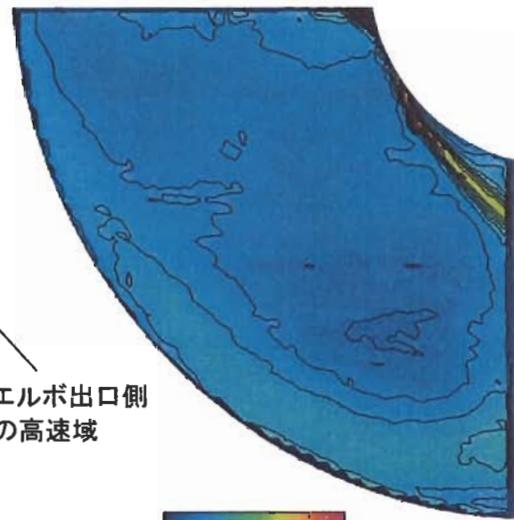
(a) 瞬時流動場



(b) 平均流速ベクトル場



(c) 等速度線図



(d) 面内速度変動の RMS

図2 第1エルボ内における流動状態 (吉田ら、原学会 2008 春)

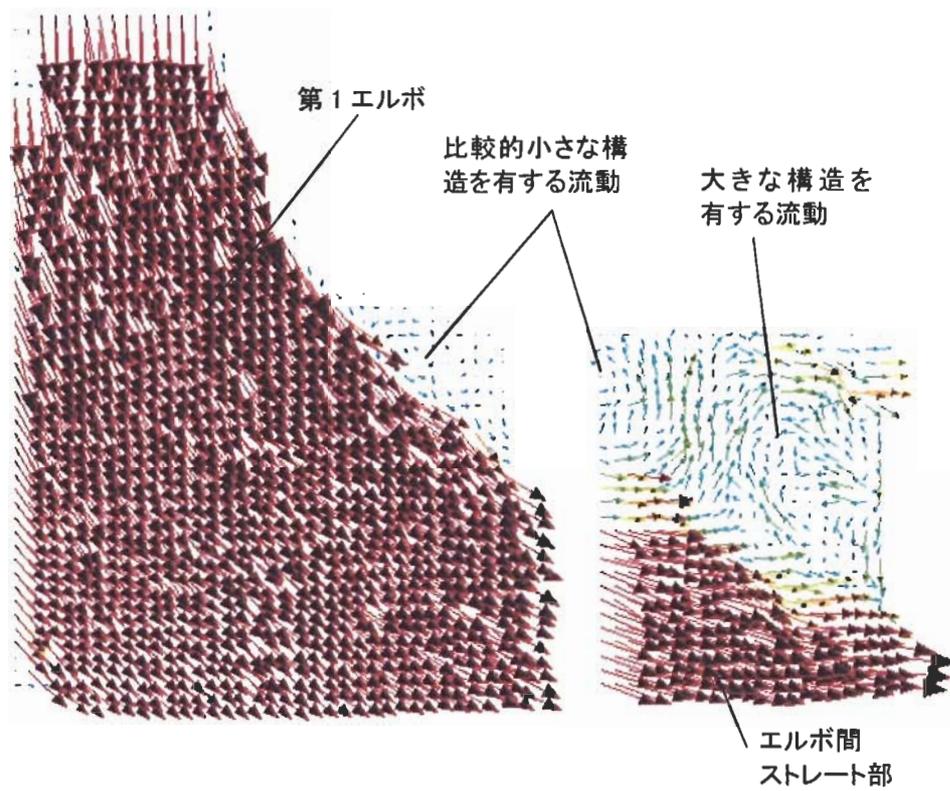
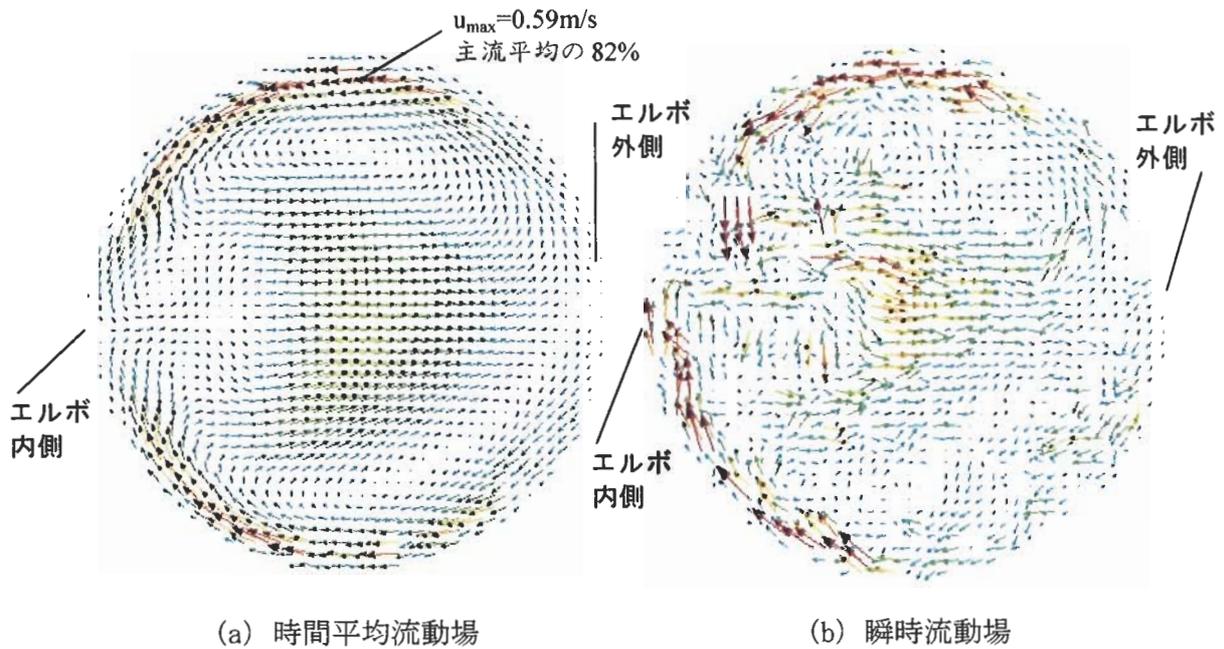


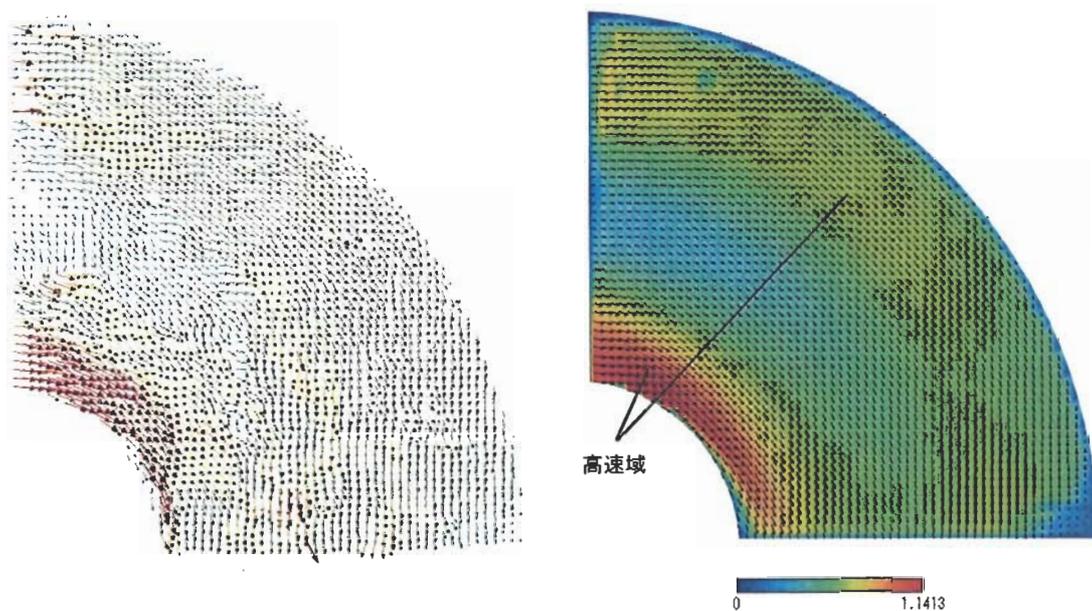
図3 剥離渦領域のクローズアップPIVデータ (吉田ら、原学会 2008 春)



(a) 時間平均流動場

(b) 瞬時流動場

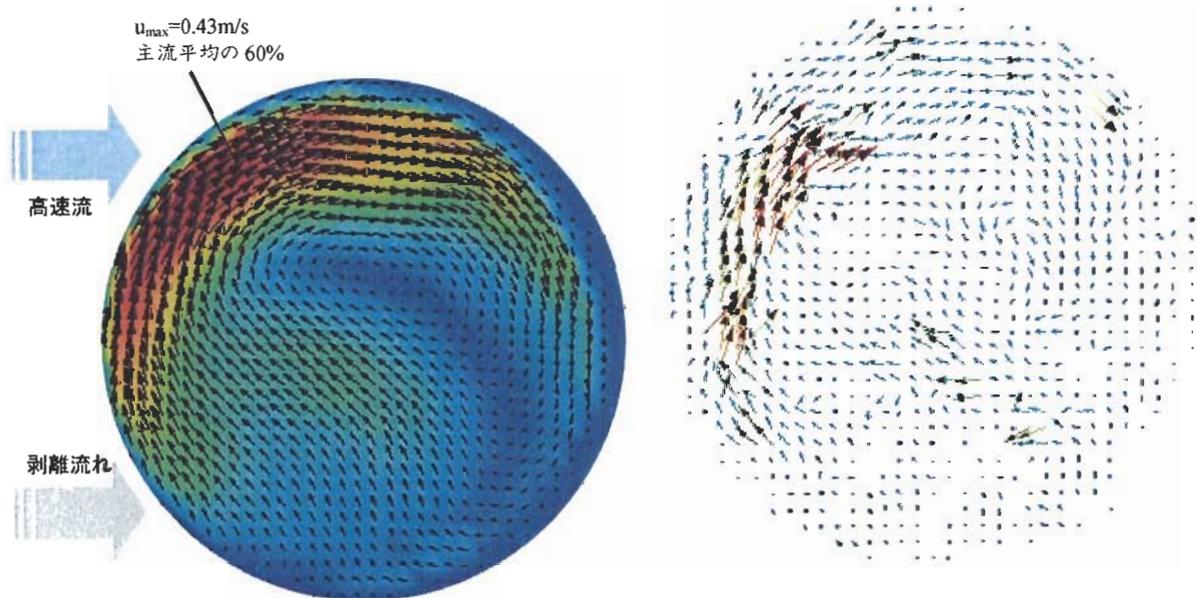
図4 第1エルボ直後の管断面二次流れ (吉田ら、原学会 2008 春)



(a) 瞬時流動場

(b) 時間平均流動場

図5 第2エルボ曲がり面における流動構造 (吉田ら、原学会 2008 春)



(a) 時間平均流動場

(b) 瞬時流動場

図6 第2エルボ直後 0.2D 下流における二次流れ構造 (吉田ら、原学会 2008 春)

## 2.1.14 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	マルチスケールアプローチによる耐熱鋼の強度低下因子の 解明に関する研究		
研究協力課題	場の理論的マルチスケールアプローチに基づく高クロムフェライト系耐熱鋼 の高温長時間損傷機構とその評価法に関する研究 Field Theory-based Multiscale Approach toward Identification of Damage Evolution Mechanism and Development of Evaluation Method for High Cr Ferritic Steel during Long-Term Creep		
研究者所属、氏名			
大 学 側	神戸大学大学院工学研究科 長谷部忠司 〔*客員研究員 **研究生〕		
機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 炉心・構造材料グループ 鬼澤高志		
研究実施場所	神戸大学大学院 自然科学総合研究等 3 号館 220 室		
通算研究期間 (予定)	平成 19 年 4 月～ 平成 22 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 19 年 4 月 ～ 平成 20 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>本研究では、高クロムフェライト系耐熱鋼の優れた高温強度を担う高転位密度ラスマルテンサイト組織に着目し、ラス内での高密度転位組織の回復からパケット境界でのき裂発生に至る主要な 3 過程に対してその力学特性および構造安定性に関するマルチスケールモデリングとシミュレーションを最新の”場の理論”に基づいて行い、高温長時間負荷下での同組織の力学的安定性と損傷(劣化)についての主機構と支配因子を明らかにすることを目的とする。</p>			
【研究内容(概要)】			
<p>高転位密度ラスマルテンサイト組織の長時間劣化損傷機構の解明とその計算機によるシミュレーション手法の確立を目指し、場の理論に基づく下記(a)～(c)に関する各種マルチスケールシミュレーションを実施し、さらに相互作用場の理論に基づいてこれらの結果を連成させた。統合シミュレーション手法、および同手法に基づく長時間クリープ損傷評価法の開発を行う。主として用いる解析手法は転位動力学(Dislocation Dynamics: DD)法および結晶塑性有限要素法(FEM)であり、前者には新たに構築する点欠陥・微細析出物統一モデル、後者には場の理論に基づく結晶塑性構成モデルをそれぞれ導入する。</p> <p>(a) ラスマルテンサイト中の高密度転位場の回復 (b) ラスブロック組織の回復 (c) パケット境界の損傷発展・き裂発生</p>			
【使用主要施設】			
<p>神戸大学) パーソナル・コンピュータ 原子力機構) 大気中単軸クリープ試験装置、走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 19 年度は、主として(a)の推進および(b)の予備解析を実施した。

- (a) 離散転位動力学法に基づく高密度転位場の回復シミュレーションと場の理論解析
- (b) 場の理論的結晶塑性有限要素法(FEM)に基づくラス集合体の回復過程シミュレーション

【研究成果（当該年度）】

下記に得られた成果の詳細を記す。

**(a) 離散転位動力学法に基づく高密度転位場の回復シミュレーションと場の理論解析**

溶質原子や微細析出物などの欠陥場を統一的に表すことのできるモデルを構築し、転位動力学(DD)コードに導入した。とくに  $M_{23}C_6$  炭化物を想定し、応力下での凝集・粗大化(オストワルド成長)を模擬するために、静水圧応力依存の粒子径の発展モデルも併せて構築した。ユニットセル内に高密度( $\sim 10^{15}/m^2$ 程度)の転位線を配置し、負荷条件での内部応力場の変化と転位の緩和挙動および力学応答との関係を DD シミュレーションに基づいて調べた。とくに、析出物(炭窒化物)によるピンニング効果等を考慮したシミュレーションを実施し、高密度転位群自身の応力場による析出物粗大化の効果が、外部応力負荷の有無で異なることを確認した(図 1 参照)。すなわち、無負荷下では転位群近傍での粗大化および他領域での消失が顕著になるという不均質性を示したが、応力負荷下では上記と比べ比較的均一に粗大化する傾向がみられた。前者のような不均一な析出物粗大化は、低応力クリープ下でのラス組織の不均質回復の主因であると考えられる。

**(b) 場の理論的結晶塑性有限要素法(FEM)に基づくラス集合体の回復過程シミュレーション**

ここでは、ラス組織を模擬することを目的とし、不適合度テンソルに基づくひずみ勾配項を申請者の提案している結晶塑性構成モデルに導入した。7 結晶粒からなるモデルにおける中央粒に幾つかの初期ひずみ分布(塑性変位勾配分布)を与えて、FEM 解析を実施し、不適合度の発展に伴う大きな応力場の変動およびミスオリエンテーションの発達を模擬できることを確認した。また、高密度転位組織のスケール((a)の結果)との連携を想定し、不適合度テンソルに対する相互作用場の概念を導入し、複数のスケール間の相互作用を考慮した、不均質場の発展モデルを構築した。

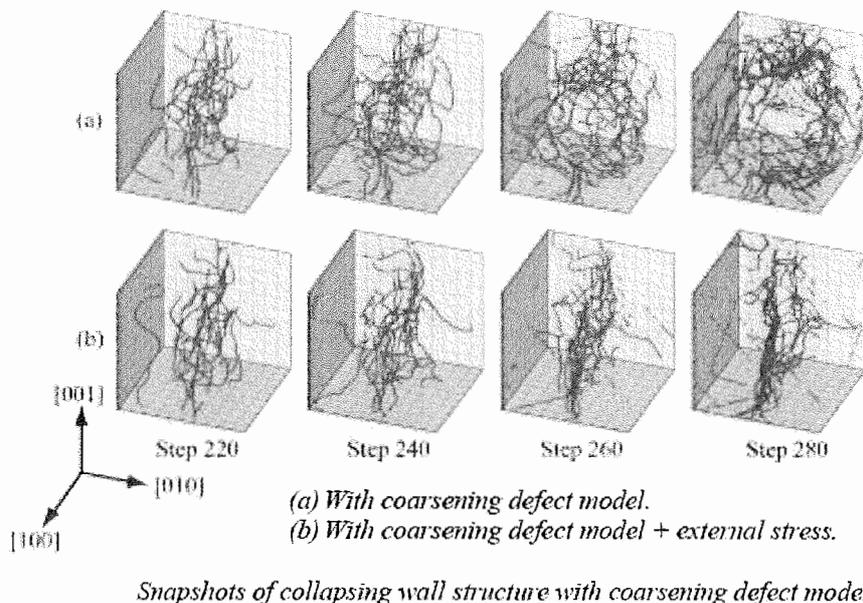


図 1 外部応力場が高密度転位密度構造の安定性に及ぼす影響  
 (析出物数 200 個の場合のシミュレーション結果)

出展: Proc. APCOM'07-EPMESC XI, CD-ROM (2007)

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】――

平成 20 年度は、ラスブロックモデルに対する回復・力学応答シミュレーションおよび連成解析・シミュレーション手法開発に向けての予備解析を行う。また、クリープ試験およびクリープ損傷材の組織観察を実施し上記モデル構築に反映させる予定である。以下にその詳細を記す。

**(1) 離散転位動力学に基づく高密度転位場の回復シミュレーションと場の理論解析((a):継続)**

(a) に関するシミュレーションをより広範な条件の下で実施し、高密度転位組織の安定・不安定遷移条件を明らかにする。とくに、上位階層(ラスブロックやパケットオーダー)からの応力場のゆらぎの影響を考慮し、上記遷移に及ぼす影響について詳細に調べる。ここでは、応力のゆらぎ(平均値からの偏差)の周期および振幅をパラメータとし、種々の組合せのもとでシミュレーションを実施して高密度転位組織の回復度(分散)を評価することで、析出物の分散を伴う高密度転位組織の安定・不安定マップを作成する。

**(2) 場の理論的結晶塑性有限要素法(FEM)に基づくラス集合体の回復過程シミュレーション((b))**

(a) で得られた知見を援用し、ラス集合体に対する結晶塑性 FEM 解析を実施する。すなわち、ラス内の高密度転位群の配置・構成の変化にともなう内部応力場の詳細情報を、不適合度テンソルに基づくひずみ勾配項を導入した結晶塑性モデルに初期条件として反映させ、各種応力条件下での FEM 解析を実施する。

ここではラス集合体として 2 本～4 本のラスから構成されるユニットセルモデル(周期境界条件を設定)を考え、内部応力場の違いが、ラス間の方位差(ミスオリエンテーション)の変化に及ぼす影響を調べる。また、この階層に関しては、原子力機構において実施予定のクリープ中断試験に伴う組織変化の SEM, TEM および EBSP 観察結果との直接的な比較を行い、その結果に基づき、(a) で想定した解析条件を含め、解析モデル・設定条件へのフィードバックを行い、より実現に近いシミュレーションが可能となるようモデルのチューニングを行う。

平成 21 年度は、上記で確立したラスブロックモデルを用いてラスパケットモデルを構成し、高 Cr 系鋼材の回復・力学応答シミュレーション手法の検討、および平成 19 年度に実施した離散転位シミュレーションとの連成解析手法の開発を行い、さらにそれらを統合したシミュレーション手法の開発を行う予定である。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 山田将臣, 長谷部忠司, 富田佳宏, 鬼澤高志  
ピンニング効果を含む高密度転位組織安定性に関する離散転位動力学シミュレーション  
第 20 回計算力学講演会, 日本機械学会, 2007.
- 2) 山田将臣, 長谷部忠司, 富田佳宏, 鬼澤高志  
ピンニング効果を含む高密度転位組織安定性に関する離散転位動力学シミュレーション  
第 20 回高温強度シンポジウム, 日本材料学会, 2007.

<国際会議>

- 1) M. Yamada, T. Hasebe, Y. Tomita, T. Onizawa  
Dislocation Dynamics Simulation on Stability of High Dense Dislocation Structure Interacting with Coarsening Defects, APCOM' 07 in conjunction with EPMESC XI, December 3-6, 2007, Kyoto, JAPAN

2.1.15 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	核拡散抵抗性を有する Pu を生成する燃料概念の構築								
研究協力課題	高い核拡散抵抗性を有する Pu を生成する高速炉ブランケット燃料の研究 Blanket Fuel with High Proliferation Resistance in Fast Breeder Reactor								
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="2">東京工業大学 原子炉工学研究所 相楽洋、齊藤正樹、Meiliza Yoshitalia*、山本哲郎*、佐合優一* [*大学院生]</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="2">大洗研究開発センター 燃料材料試験部 燃料試験課 田中健哉、小山真一、大林弘、須藤光雄、関根隆</td> </tr> </table>			大 学 側	東京工業大学 原子炉工学研究所 相楽洋、齊藤正樹、Meiliza Yoshitalia*、山本哲郎*、佐合優一* [*大学院生]		機 構 側	大洗研究開発センター 燃料材料試験部 燃料試験課 田中健哉、小山真一、大林弘、須藤光雄、関根隆	
大 学 側	東京工業大学 原子炉工学研究所 相楽洋、齊藤正樹、Meiliza Yoshitalia*、山本哲郎*、佐合優一* [*大学院生]								
機 構 側	大洗研究開発センター 燃料材料試験部 燃料試験課 田中健哉、小山真一、大林弘、須藤光雄、関根隆								
研究実施場所	東京工業大学原子炉工学研究所 大洗研究開発センター 燃料材料試験部・燃料試験課								
通算研究期間 (予定)	平成 19 年 6 月 ~ 平成 22 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 19 年 6 月 ~ 平成 20 年 3 月						
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究								
【研究目的】									
<p>高速増殖炉ブランケット燃料から生成されるプルトニウム(Pu)は <math>^{239}\text{Pu}</math> 同位体割合が非常に高く、核不拡散上の強い懸念を諸外国から招く恐れがある。Pu 増殖を狙わないブランケット無し高速炉概念が検討されているものの、ウラン資源(<math>^{235}\text{U}</math>)の枯渇と同時に原子カルネッサンスを迎える今世紀、Pu 需要に柔軟に対応できる高速「増殖」炉は重要な選択肢であることに他ならない。本研究では、利用する核物質そのものが、核拡散に対して高い固有の物理的な防護特性(核拡散抵抗性)を有する高速増殖炉ブランケット燃料開発を行うために、高速実験炉「常陽」で照射した Am 及び U サンプルについて、Pu の生成・消滅挙動を実験・計算の両面から評価する。また、U-Am 燃料を実機に適用し、ブランケット生成 Pu 核拡散抵抗性の改善方を検討する。</p>									
【研究内容(概要)】									
<p><math>^{238}\text{Pu}</math> は、半減期 87.74 年の <math>\alpha</math> 崩壊核種で、高い崩壊熱(567W/kg)を発生し、また多くの自発核分裂中性子を放出するため、熱工学の観点のみならず核反応工学の観点からも強い固有の核拡散抵抗性を有する物質であり、軍事転用は非常に困難な物質である。一方、現在高レベル廃棄物として地層処分の対象とされているマイナーアクチニド(MA)の <math>^{237}\text{Np}</math> や <math>^{241}\text{Am}</math> は熱中性子領域で大きな中性子捕獲断面積を持ち、中性子捕獲によりその多くが <math>^{238}\text{Pu}</math> に核変換し、更に <math>^{239}\text{Pu}</math> に核変換する親物質として働く特性を有している。本研究では、MA(Am 系)を高速炉ブランケット燃料(ウラン)に添加することにより、<math>^{238}\text{Pu}</math> を多く有する Pu を生成する(Protected Plutonium Production: 以下、P<sup>3</sup>)、高い核拡散抵抗性を持った高速増殖炉概念を構築するため、照射済 U サンプル中の Pu 生成量分析、Pu の核拡散抵抗性評価、及び分析データの実機への適応性評価を実施する。</p> <p>H19 年度は、照射燃料試験施設(AGF)において、「常陽」で照射した U サンプルの分析を実施する。照射挙動解析コードを用いて、U サンプルの U、Pu 同位体組成比の計算値を求め、C/E 値に基づき、生成・消滅特性を評価する。分析に用いる U サンプルは、「常陽」から AGF へ輸送する。照射サンプルの核種分析データ及び計算値から、Pu 生成量の中性子エネルギー依存性を明らかにし、さらにサンプル中 Pu の核拡散抵抗性(核物質の魅力度)を、定量的指標(臨界質量、崩壊熱、自発核分裂中性子発生率等)に基づいて評価する。また、照射 U 及び Am サンプル分析結果の、実機への適応性を評価し、ブランケット生成 Pu の核拡散抵抗性改善方を検討する。</p>									

【使用主要施設】

- (1) 東京工業大学原子炉工学研究所  
 (1-1) 解析用ワークステーション Visual Technology, VT64-HPC WS 2100 Opteron  
 (1-2) 解析用 PC① DELL, OptiPlex 745  
 (1-3) 解析用 PC② Panasonic, CF-W5MWVAJC  
 (1-4) 解析用 PC③ SONY VAIO VGC-LA52B  
 (1-5) 原子炉解析コード MCNP4C03, SLAROM, JOINT, CITATION  
 (1-6) 断面積データ FSXLIB-J33, JFS-3-J-3.2R  
 (1-7) 燃焼計算コード ORIGEN2.2
- (2) 日本原子力研究開発機構 大洗工学センター 照射燃料試験施設

【進捗状況（当該年度までの概要）】

- (1) 「常陽」照射 U サンプルの分析（原子力機構、東京工業大学（補助））  
 AGF に U サンプルを輸送し、東京工業大学大学院生の立ち会いのもと、化学分析により U 及び Pu 同位体の組成分析を実施した。分析した U サンプルは、既に分析結果があり本研究課題の中で重要な参考データに用いる  $^{237}\text{Np}$  及び  $^{241}\text{Am}$  サンプルの照射位置と同じもしくは近傍で利用可能な試料を用いた。U サンプルには 2 種類あり、 $^{235}\text{U}$  サンプルの場合、 $^{235}\text{U}(n, \gamma) \rightarrow ^{236}\text{U}(n, \gamma) \rightarrow ^{237}\text{Np}(n, \gamma) \rightarrow ^{238}\text{Np}(\beta^-) \rightarrow ^{238}\text{Pu}$  核変換経路での  $^{238}\text{Pu}$  生成を主に評価し、 $^{238}\text{U}$  サンプルの場合： $^{238}\text{U}(n, \gamma) \rightarrow ^{239}\text{U}(\beta^-) \rightarrow ^{239}\text{Pu}$  経路での  $^{239}\text{Pu}$  生成を実験値に基づき評価した。
- (2) サンプルの核変換特性解析（東京工業大学、原子力機構）  
 解析準備及び U サンプルの核変換特性解析を行った。解析する U サンプルは、(1)項で分析するものを用いた。(1)項の分析値との比較により C/E 値を導出し、生成・消滅特性を評価し、解析手法及び核データの妥当性を評価した。
- (3) 照射サンプル中 Pu の核拡散抵抗性の評価（東京工業大学）  
 (1)項で分析する 2 種類の U サンプルについて、 $^{238}\text{Pu}$  及び  $^{239}\text{Pu}$  が多く含まれる Pu の核拡散抵抗性（核物質の魅力度）を、定量的指標（臨界質量、崩壊熱、自発核分裂中性子発生率等）に基づいて評価した。
- (4) 実機への適応性評価（東京工業大学）  
 照射 U 及び Am サンプル分析結果の、実機への適応性を評価し、ブランケット生成 Pu の核拡散抵抗性改善方策を検討する。具体的には、実機のブランケットの計算モデルを構築し、予備解析を行った。

【研究成果（当該年度）】

- (1) 「常陽」照射 U サンプルの分析（原子力機構、東京工業大学（補助））  
 AGF に U サンプルを輸送し、東京工業大学大学院生の立ち会いのもと、化学分析により U 及び Pu 同位体の組成分析を実施した。分析した U サンプルは、既に分析結果があり本研究課題の中で重要な参考データに用いる  $^{237}\text{Np}$  及び  $^{241}\text{Am}$  サンプルの照射位置と同じもしくは近傍で利用可能で、基本的に軸方向中心位置で照射された試料を用いた（表 1）。U サンプルには  $^{235}\text{U}$  及び  $^{238}\text{U}$  の 2 種類があり、 $^{235}\text{U}$  サンプルの場合、 $^{235}\text{U}(n, \gamma) \rightarrow ^{236}\text{U}(n, \gamma) \rightarrow ^{237}\text{Np}(n, \gamma) \rightarrow ^{238}\text{Np}(\beta^-) \rightarrow ^{238}\text{Pu}$  核変換経路での  $^{238}\text{Pu}$  生成を主に評価し、 $^{238}\text{U}$  サンプルの場合： $^{238}\text{U}(n, \gamma) \rightarrow ^{239}\text{U}(\beta^-) \rightarrow ^{239}\text{Pu}$  経路での  $^{239}\text{Pu}$  生成を実験値に基づき評価した。

表 1 分析対象 U サンプルの仕様及び照射条件

集合体名	U 重量(mg)	$^{235}\text{U}(\%)$	$^{238}\text{U}(\%)$	中性子フルエ ンス
				$\times 10^{22}\text{n/cm}^2$ ( $E \geq 0.1\text{MeV}$ )
PFC020	9.5	0.04	99.96	8.5
PFBO70	1.2	0.174	99.821	5.4
PRM010	1.3	0.174	99.821	4.4
PFB090	0.099	99.82	0.117	7.7

表 2 照射 U サンプル中の U、Pu 同位体比分析結果

表 2 に、PFC020 及び PFB070 で照射した U サンプルの U、Pu 同位体比測定結果を示す。いずれの U サンプル中にも Pu の生成が明瞭に観察された。Pu 同位体の質量分析結果では、<sup>238</sup>U の中性子捕獲反応により <sup>239</sup>U→<sup>239</sup>Np を経由する <sup>239</sup>Pu が主要同位体であった。<sup>238</sup>Pu と <sup>239</sup>Pu の同位体比は、PFC020 でそれぞれ 0.07%、97.15%、PFB070 でそれぞれ 0.05%、98.76%であることを確認した。検出された微量の <sup>238</sup>Pu は、初期に含まれる微量の <sup>235</sup>U の中性子捕獲反応により生成したものと考えられ、<sup>236</sup>U の同位体も検出あるいはわずかに増加している。照射した U サンプル中の Pu 富化度は、PFC020、PFB070 でそれぞれ 2.5%、0.7%となった。PRM010 及び PFB090 に装荷された U サンプルの分析の結果、試料調製時に他試料からの汚染があった可能性があり、それぞれの核種で測定値にばらつきがみられた。したがって、PRM010 及び PFB090 試料については、H20 年度に再測定を試みる。

核種	PFC020 同位体比 (at%)	PFB070 同位体比 (at%)
<sup>233</sup> U	-	-
<sup>234</sup> U	0.001	0.001
<sup>235</sup> U	0.036	0.165
<sup>236</sup> U	0.002	0.007
<sup>238</sup> U	99.96	99.828
<sup>238</sup> Pu	0.074	0.054
<sup>239</sup> Pu	97.153	98.76
<sup>240</sup> Pu	2.669	1.108
<sup>241</sup> Pu	0.058	0.044
<sup>242</sup> Pu	0.046	0.034

PRM010 及び PFB090 に装荷された U サンプルの分析の結果、試料調製時に他試料からの汚染があった可能性があり、それぞれの核種で測定値にばらつきがみられた。したがって、PRM010 及び PFB090 試料については、H20 年度に再測定を試みる。

(2) サンプルの核変換特性解析 (東京工業大学、原子力機構)

核変換解析には、モンテカルロ計算コード MCNP4C03 及び「常陽」炉心管理コードシステム“MAGI”の計算より作成したサンプルの核種ごとのマクロ断面積及び中性子束を用い、燃焼計算コード ORIGEN2.2 を用いて照射解析を行い、C/E 値を導出した。炉中心での <sup>238</sup>U サンプル(PFC020)では Pu 同位体比の C/E 値が 1±4%程度と良い一致が見られた(表 3)。検出量が非常に小さく(<10<sup>-8</sup>g)測定誤差が大きい <sup>242</sup>Pu を除き、使用した解析手法及び核データの妥当性を確認した。

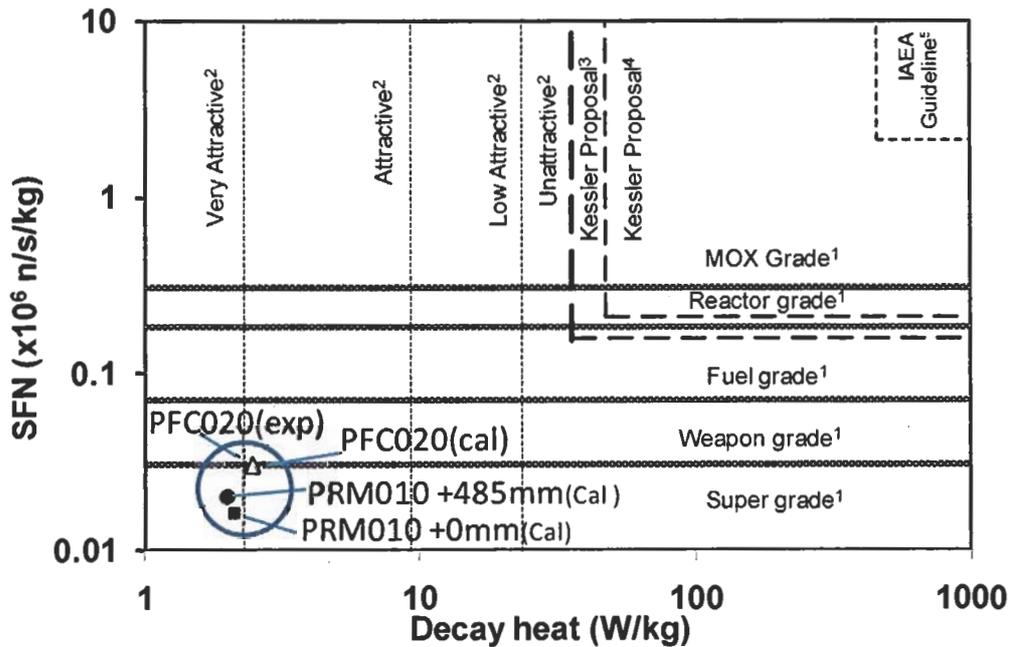
表 3 <sup>238</sup>U サンプル中(PFC020)Pu 同位体組成 [at%]<sup>1,2</sup>

Nuclide	未照射サンプル		照射サンプル		C/E
	同位体比 (at%)	同位体比 測定値 (at%)	同位体比 計算値(at%)	同位体比	
<sup>233</sup> U	-	-	-	-	
<sup>234</sup> U	-	0.0013	±0.000001		
<sup>235</sup> U	0.04	0.0355	±0.000017	0.03101	0.8735
<sup>236</sup> U	-	0.0021	±0.000001	0.002319	1.105
<sup>238</sup> U	99.96	99.9611	±0.049197	99.97	1
<sup>238</sup> Pu	-	0.0739	±0.000006	0.07504	1.015
<sup>239</sup> Pu	-	97.1532	±0.008281	97.09	0.9993
<sup>240</sup> Pu	-	2.6692	±0.000228	2.782	1.042
<sup>241</sup> Pu	-	0.0579	±0.000005	0.05666	0.9786
<sup>242</sup> Pu	-	0.0458	±0.000004	0.0008504	0.01857

(3) 照射サンプル中 Pu の核拡散抵抗性の評価 (東京工業大学)

(1)項で分析する 2 種類の U サンプルについて、<sup>238</sup>Pu 及び <sup>239</sup>Pu が多く含まれる Pu の核拡散抵抗性(核物質の魅力度)を、定量的指標(臨界質量、崩壊熱、自発核分裂中性子発生率等)に基づいて評価する。

(1)項で分析した 2 種類のサンプルからの Pu 同位体組成に基づき、Pu 核拡散抵抗性を評価した結果、<sup>238</sup>U サンプル照射結果では予測通り <sup>239</sup>Pu 割合が高く Pu の核拡散抵抗性は非常に低いことが確かめられた。しかしながら、生成される Pu 中の <sup>238</sup>Pu 同位体割合が高いと予想された <sup>235</sup>U サンプルは、実験結果では <sup>238</sup>Pu がほとんど検出されなかった。予測解析では <sup>238</sup>Pu は 40%程度と予測された。引き続き H20 年度再測定される実験結果を基に再評価を行う。



1B. Pellaud(2002), 2 A. Chebeskov(2005), 3 G. Kessler(2003), 4 G. Kessler(2007), 5 IAEA(1972)

図1 サンプル中生成Puの核拡散抵抗性評価結果 ( $^{238}\text{U}$  サンプル PFC020 及び PRM010)<sup>2</sup>

(4) 実機への適応性評価 (東京工業大学)

照射U及びAmサンプル分析結果の、実機への適応性を評価し、ブランケット生成Puの核拡散抵抗性改善方策を検討する。具体的には、実機のブランケットの計算モデルを構築し、予備解析を行う。

原型炉クラスの高速増殖炉を模擬した計算モデルを作成し、予備解析を実施した。結果として、劣化Uを装荷したブランケットで生成されるPu中 $^{239}\text{Pu}$ 同位体比は非常に高く(>96%)、ブランケット生成Puの核拡散抵抗性改善の必要性が確認された。また、Amを添加したブランケットの燃焼解析を開始し、3-5%Am添加により $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{242}\text{Pu}$ が燃焼初期から蓄積され、ブランケット中Puの核拡散抵抗性改善に大きく貢献することが確認された。H20年度はAm及びCm添加率をパラメータに取り引き続き解析を継続する。

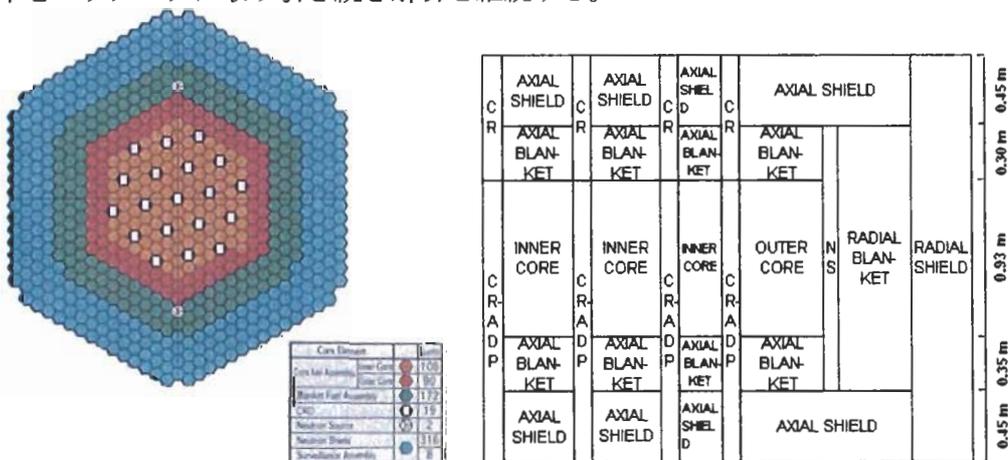


図2 高速増殖炉モデル(左 X-Y断面図、右 R-Z断面図)<sup>3</sup>

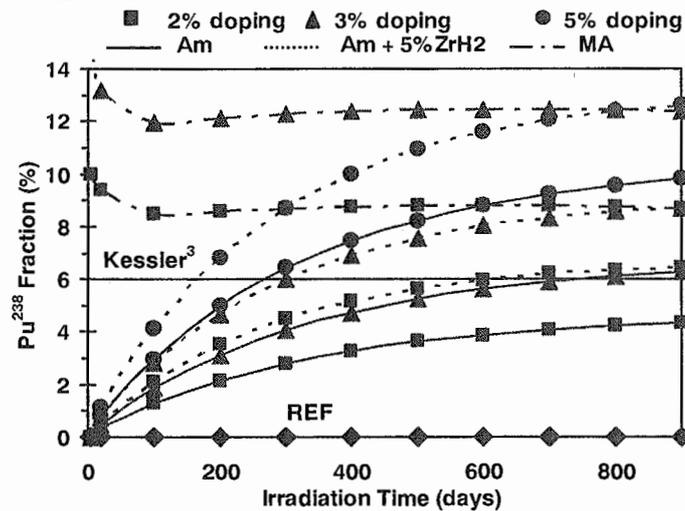


図3 Pu-238 fraction during burn-up in the blanket<sup>4</sup>

参考文献

1. 小山真一, 須藤光雄, 大林弘, Meiliza Yoshitalia, 相楽洋, 齊藤正樹, “高い核拡散抵抗性を有するPuを生成する高速炉ブランケット燃料の研究(II)「常陽」照射Uサンプルの分析(1),” 日本原子力学会 2008年春の年会 (2008)
2. 相楽洋, 山本哲郎, 齊藤正樹, 小山真一, “高い核拡散抵抗性を有するPuを生成する高速炉ブランケット燃料の研究(III)サンプルの核変換特性解析(1),” 日本原子力学会 2008年春の年会 (2008)
3. Meiliza Yoshitalia, 齊藤正樹, 相楽洋, 佐合優一, 小山真一, “高い核拡散抵抗性を有するPuを生成する高速炉ブランケット燃料の研究(IV)U-Amブランケット燃料の検討,” 日本原子力学会 2008年春の年会 (2008)
4. Yoshitalia MEILIZA, Masaki SAITO and Hiroshi SAGARA, “Effect of Am on Protected Pu Production in the Blanket of FBR,” TRANSACTION of American Nucl Soc Annual Mtg, (2008) 2008年6月発表予定

【今後の予定(翌年度以降の概要)】又は【成果の反映状況】—

- (1) 「常陽」照射Uサンプルの分析 (原子力機構、東京工業大学(補助))  
 H20年度はH19年度の評価を経て、再分析が必要なサンプル(PRM010、PRB090または同等の照射条件サンプル)のUサンプルを抽出し、AGFにサンプルを輸送し評価を実施する。  
 H21年度には必要に応じて同様の評価を実施する。また分析補助として、東工大大学院生を派遣する。
- (2) 「常陽」照射MAサンプルの分析 (原子力機構、東京工業大学(補助))  
 H20年度は、照射Amサンプル中のAm、Cm、Pu同位体組成を分析し、Cm経由の<sup>238</sup>Pu及び<sup>242</sup>Am電子捕獲崩壊による<sup>242</sup>Pu生成量を評価する。また、分析補助として、東工大大学院生を派遣する。
- (3) サンプルの核変換特性解析 (東京工業大学、原子力機構)  
 分析対象位置でのU及びPu同位体組成比の計算値を求め、C/E値に基づき、生成・消滅特性を評価する。  
 H20年度は(1)で分析するU及び(2)で分析するAmサンプルの照射挙動解析を行う。特に<sup>241</sup>Am(n, γ)→<sup>242</sup>Am(β-)→<sup>242</sup>Cm(α)→<sup>238</sup>Pu核変換経路での<sup>238</sup>Pu生成、<sup>241</sup>Am(n, γ)→<sup>242</sup>Am(EC)→<sup>242</sup>Pu核変換経路での<sup>242</sup>Pu生成に注目し、(2)の分析値との比較によりC/E値を導出し、生成・消滅特性を評価する。解析ツールとして、MCNP4C03+ORIGEN及び常陽炉心管理コードMAGIを使用する。

H21年度は必要に応じて(1)で分析するUサンプルの照射解析を行い、分析値との比較によりC/E値を導出し、生成・消滅特性を評価する。また、H19、20年度の解析結果と比較し、核変換を通じたPu同位体組成変化の中性子エネルギースペクトル依存性を評価する。

(4) 照射サンプル中Puの核拡散抵抗性の評価 (東京工業大学)

H20年度は、(2)で分析するMAサンプルについて、 $^{238}\text{Pu}$ が多く含まれるPuの核拡散抵抗性を評価する。

H21年度は必要に応じて(1)で分析するUサンプルについて、Puの核拡散抵抗性を評価する。

(5) 実機への適応性評価 (東京工業大学)

H20年度は、H19年度に引き続きU-Am及びU-Am, Cm体系で照射した場合の $\text{P}^3$ 予測解析を行い、 $\text{P}^3$ 基本特性をまとめる。また、まとめた $\text{P}^3$ 基本特性を反映し、炉心概念構築を開始する。さらに、(3)で解析した実験結果との実機高速増殖炉ブランケットの類似度を、中性子吸収反応率スペクトルによって定量評価し、実験結果の実機への適応性を評価する。

H21年度は増殖炉心概念構築をまとめ、マスパランスを評価し、核燃料サイクルにおける課題を抽出する。

【【研究成果の公表】】

<国際会議>

- 1) Yoshitalia MEILIZA, Masaki SAITO and Hiroshi SAGARA, "Effect of Am on Protected Pu Production in the Blanket of FBR," TRANSACTION of American Nucl Soc Annual Mtg, (2008) 紀要論文(査読有) 2008年6月掲載予定

<国内会議>

- 1) 相楽洋, 小山真一, "高い核拡散抵抗性を有するPuを生成する高速炉ブランケット燃料の研究(I)全体計画," 日本原子力学会 2008年春の年会 (2008)
- 2) 小山真一, 須藤光雄, 大林弘, Meiliza Yoshitalia, 相楽洋, 齊藤正樹, "高い核拡散抵抗性を有するPuを生成する高速炉ブランケット燃料の研究(II)「常陽」照射Uサンプルの分析(1)," 日本原子力学会 2008年春の年会 (2008)
- 3) 相楽洋, 山本哲郎, 齊藤正樹, 小山真一, "高い核拡散抵抗性を有するPuを生成する高速炉ブランケット燃料の研究(III)サンプルの核変換特性解析(1)," 日本原子力学会 2008年春の年会 (2008)
- 4) Meiliza Yoshitalia, 齊藤正樹, 相楽洋, 佐合優一, 小山真一, "高い核拡散抵抗性を有するPuを生成する高速炉ブランケット燃料の研究(IV)U-Amブランケット燃料の検討," 日本原子力学会 2008年春の年会 (2008)

## 2.1.16 先行基礎工学研究に関する平成19年度研究概要報告書】

研究協力テーマ	粒界組織制御による高性能FBR炉心材料の開発に関する研究		
研究協力課題	粒界制御法による改良型高速炉用耐照射材料の開発 Research and Development of High Performance FBR Core Materials Based on Grain Boundary Engineering		
研究者所属、氏名			
大 学 側	北海道大学 エネルギー変換マテリアル研究センター 渡辺精一、坂口紀史、谷川隆亮、遠藤正樹 東北大学 大学院工学研究科 材料システム工学専攻 粉川博之 宮城雅徳、横山毅士、佐藤信也		
機 構 側	大洗研究開発センター 燃料材料試験部 材料試験課 山下 真一郎		
研究実施場所	北海道大学 エネルギー変換マテリアル研究センター 東北大学 大学院工学研究科 材料システム工学専攻 大洗研究開発センター 燃料材料試験部 材料試験課		
通算研究期間 (予定)	平成19年7月 ~ 平成22年3月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成19年7月 ~ 平成20年3月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】 本研究では、高速炉炉心材料として実績のあるPNC316を主対象に、量産技術への発展に大きな期待が寄せられている“粒界制御法”を適用した高性能FBR炉心材料を創製し、機械的特性評価、耐照射性評価、耐腐食性評価を行う。これらにより、各材料特性に及ぼす粒界制御の効果や同技術の有効性（特に、耐照射特性改善に対する有効性）を検証し、高速炉実用化段階の被覆管材料開発に資することを目的としている。			
【研究内容（概要）】 耐照射特性に優れた高速炉用材料開発のため、冷間加工と熱処理という基本的な製鋼プロセスの条件を系統的に変化させて、対応粒界、双晶、小傾角粒界などの安定粒界からなる粒界組織制御オーステナイト鋼（PNC316鋼）を試作し、①室温および高温での引張強度特性の評価、②加速シミュレーション照射装置、施設群を利用した耐照射特性の評価、③用途拡大等の観点からの耐食性の評価などを行う。最終的には、これら評価結果から、材料特性に及ぼす粒界制御の効果や耐照射特性改善に対する同技術の有効性などを検証する。			
【使用主要施設】 北海道大学：高分解能透過型電子顕微鏡、超高压電子顕微鏡 東北大学：走査型電子顕微鏡／後方散乱電子回折装置、腐食試験装置 原子力機構：MMF 研磨セル、MMF-2 化学室グローブボックス、MMF-2 電顕室貯蔵箱、高分解能透過型電子顕微鏡			

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

## ①試作材の作製および機械的性質の評価

- ・高速炉用オーステナイト系ステンレス鋼（PNC316）に対して、予歪み加工条件と熱処理条件の組み合わせを系統的に変化させて、全結晶粒界における対応粒界（双晶、小角度粒界を含む）などの安定粒界密度が最も高められる条件を検討した。ここでは、東北大学に設置されている SEM/EBSP を用い、結晶方位解析なども含めて体系的に調査した。【東北大（研究協力者）と原子力機構で共同実施】
- ・比較参照用として、SUS316L や SUS304L などの商用型オーステナイト鋼（場合によっては、高炭素鋼も対象とする）においても、粒界制御法を適用した試作材を作製した。【主に東北大（研究協力者）が実施】
- ・数種類の商用型オーステナイト鋼の引張試験片を作製し、室温にて引張強度特性評価を実施した。【原子力機構が実施】

## ②試作材の照射試験および照射その場観察

- ・北海道大学に設置されているマルチビーム型超高压電子顕微鏡システム（JEM-ARM 1300）を用いてイオン照射試験ならびに電子照射試験を行い、粒界性格の異なる粒界における偏析挙動や転位・ボイドなどの 2 次格子欠陥形成挙動などを評価した。また、電子照射試験の場合は照射下のその場観察を行い、照射下での粒界近傍における動的組織変化過程についても詳細に評価を行った。【北大が実施】

## ③中性子照射材（非粒界制御材）における粒界組織の詳細評価・解析

- ・高速実験炉「常陽」で中性子照射した非粒界制御型 PNC316 に対して、粒界性格の異なる粒界を可能な限り分離して偏析挙動と 2 次格子欠陥形成挙動を評価するための準備作業および一部組織観察を行った。【原子力機構が実施】

## 【研究成果（当該年度）】

## ①試作材の作製

- ・高速炉用オーステナイト系ステンレス鋼（PNC316）に対して、粒界制御を施し新規原子力材料として粒界制御型 PNC316 鋼の開発に成功した。これに基づき、耐照射性ならびに耐食性の試験を行い、特許出願を行った。

## ②試作材の照射試験および照射その場観察

- ・北海道大学に設置されているマルチビーム型超高压電子顕微鏡システム（JEM-ARM 1300）を用いてイオン照射試験ならびに電子照射試験を行い、粒界性格の異なる粒界における偏析挙動や転位・ボイドなどの 2 次格子欠陥形成挙動などを評価した。また、電子照射試験の場合は照射下のその場観察を行い、照射下での粒界近傍における動的組織変化過程についても詳細に評価を行った。さらに、照射後の腐食試験を行い、粒界制御により粒界腐食が優れていることを明らかにした。この発見により、耐照射ならびに腐食性に優れた新規原子力材料粒界制御オーステナイト鋼の開発可能性が示唆された。

## ③中性子照射材（非粒界制御材）における粒界組織の詳細評価・解析

- ・高速実験炉「常陽」で中性子照射した非粒界制御型 PNC316 に対して、粒界性格の異なる粒界を可能な限り分離して偏析挙動と 2 次格子欠陥形成挙動を評価するための準備作業および一部組織観察を行った。これについては、引き続き最適な試験サンプル選択のために事前調査を行うことが必要であることが判明した。

また、今後の中性子照射の研究展開（中性子照射データの重要性、必要性など）を考慮し、高エネルギー加速器研究機構の川合将義先生に次年度から加わっていただき研究を推進することとした。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 20 年度以降は、まず初めに、平成 19 年度に開発した粒界制御型 PNC316 鋼の引張強度特性評価（室温、高温）とおよび比較参照用商用型オーステナイト鋼の引張強度特性評価（高温）を行う。これに加えて、粒界制御型 PNC316 鋼の耐照射性向上のために、冷間加工により加工転位を導入した試作材を作製し、その材料の耐照射性ならびに耐食性の評価を行う。さらには、高速炉のみの適用（燃料被覆管としての薄肉細管形状）に限らず、用途拡大の可能性を視野に入れたバルク化（肉厚）試料の作製、およびシミュレーション照射などによるバルク特性評価を実施する予定である。

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 谷川隆亮 坂口紀史 渡辺精一 粉川博之 川合将義 山下真一郎, 粒界制御オーステナイト系ステンレス鋼の照射特性I, 日本原子力学会2008年春の年会、大阪大学 大阪, 2008 3/26-3/28

<特許>

- 1) 「粒界制御型耐照射性 SUS316 相当鋼およびその製造法」特許出願人「独立行政法人 日本原子力研究開発機構」（発明者：山下真一郎、矢野康英、渡辺精一、坂口紀史、谷川隆亮、粉川博之、宮城雅徳、佐藤信也、出願日：平成 20 年 2 月 4 日、出願番号：特願 2008-24422

2.1.17 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	音響・振動伝搬シミュレーションに関する研究										
研究協力課題	蒸気発生器内部の音響伝搬シミュレーションに関する研究 Study on simulation of acoustic propagation within a steam generator of FBR										
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="3">福井大学大学院工学研究科原子力・エネルギー安全工学専攻 教授 飯井 俊行、研究員 柴 凌云</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="3">次世代原子力システム研究開発部門 ナトリウム技術グループ 宮原 信哉、上田 雅司、岡本 久彦</td> </tr> </table>			大 学 側	福井大学大学院工学研究科原子力・エネルギー安全工学専攻 教授 飯井 俊行、研究員 柴 凌云			機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 ナトリウム技術グループ 宮原 信哉、上田 雅司、岡本 久彦		
大 学 側	福井大学大学院工学研究科原子力・エネルギー安全工学専攻 教授 飯井 俊行、研究員 柴 凌云										
機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門 ナトリウム技術グループ 宮原 信哉、上田 雅司、岡本 久彦										
研究実施場所	福井大学文京キャンパス総合研究棟 10 階原子力・エネルギー安全工学専攻										
通算研究期間 (予定)	平成 19 年 6 月 ~ 平成 22 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 19 年 6 月 ~ 平成 20 年 3 月								
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究										
【研究目的】											
<p>本研究では、機器内部を伝播する音響・振動の様子を計算機上でシミュレートする技術を開発することにより、異常時に発生する音響・振動を予測可能とし、プラント設備機器の運転信頼性向上に資する。具体的には、ナトリウム加熱蒸気発生器の伝熱管からの水漏えい等を想定し、その漏えい音の発生源から測定点まで、蒸気発生器内における音響伝搬特性を把握できるシミュレーションソフトを開発する。</p>											
【研究内容 (概要)】											
<p>高速増殖炉 (FBR) の蒸気発生器 (SG) は、ナトリウムの熱で水を加熱し高温高圧の蒸気を発生させる熱交換器であり、伝熱管の内側を水・蒸気が、外側をナトリウムが流れる。ナトリウムは水と激しい化学反応を起こすため、万一、SG伝熱管から水漏えいが生じたとしても、大漏えいに至る前にこれを検出することが必要とされる。水漏えいが発生すると、高圧蒸気の噴出や化学反応に伴う音の発生、反応水素ガスによるSG内部の圧力変動、二次系ナトリウムおよびSGカバーガスの水素濃度上昇等が生じるため、「もんじゅ」では水素濃度や内部圧力の監視が行われるが、FBRの実用化に向けたSGの大型化に伴い、より検出時間の短い音響式水漏えい検出系 (音響計) の開発が求められている。</p> <p>音響計の開発課題は、①SG内における音響伝搬特性、②水漏えいに伴う音の特性 (大きさ・周波数など)、③周囲に存在するバックグラウンドノイズの特性の把握であり、これらに基づく音響検出器の配置及び信号処理方法等の最適化が必要とされる。これまでの研究では、主に実験データに基づき音響計の成立性が議論されてきたが、実機体系で漏えい量、漏えい箇所、SGの運転条件等をパラメータとして多くの実験を行うことは非常に困難である。</p> <p>よって、上記の開発課題に対して、①実験で採集した水漏えいに伴う音を用いて、②SG内部での音伝搬特性及び③バックグラウンドノイズ伝搬特性をシミュレートする手法を開発し、今後これまでに得られている実験データを用いて音響計の成立性を予測評価する技術の確立を目指す。</p>											

## 【使用主要施設】

計算機 Dell Precision PWS490(CPU Intel Xeon 3.00GHz,メモリ 12Gbyte)

ソフトウェア MSC Marc 2005 r2

Microsoft visual studio 2005

Intel visual Fortran 10.0

Intel MKL 10.0

Origin 7.5J

Mrcro AVS 10.0

(上記設置場所はすべて福井大学)

## 【進捗状況 (当該年度までの概要)】

平成 19 年度では、音響計の成立性を確認することを目的とした。SG 内部で音響伝搬特性を簡易的にシミュレートする手法を開発し、音響伝搬特性を評価し、以下の項目を実施した。

項目 1. 軸対称弾性波動有限要素解析プログラムを作成した。

項目 2. SG 内部の簡易音響伝搬シミュレーションを実施した。

具体的には、水漏えいを正弦波と仮定し、その周波数及び入力位置をパラメータとして伝搬解析を実施し、入力波の周波数特性がどのように保持されながら外壁面に伝わっているかを確認した。外壁面において入力波の周波数特性が確認できれば他のノイズとの区別が可能となり、周波数特性の違いから水漏えい音を検知する音響計の成立性に見通しが得られることになった。

## 【研究成果 (当該年度)】

過去の実験により必ずしも明確に確認できなかった「音響計の成立性」を確認することが火急の目標であるので、SG 内部の状況を少し単純化した軸対称の問題について検討することにした。

そして、以下の研究成果を挙げられた。

項目 1. 軸対称弾性波動有限要素解析プログラムを作成した。

項目 2. SG 内部の簡易音響伝搬シミュレーションを実施した。

SG 中の流体、固体について、

- 流体である Na を音速が等価な固体としてモデル化
- 管群については、(i)鉄で充てんされている場合(ii)水中の音速と等しい音速を有する固体、のいずれかとしてモデル化し、

解析領域内部の音源が正弦波であるとして、外壁へ伝わる音の特性を把握した。

具体的には、ナトリウム中の任意位置  $(r_1, z_1)$  に半径方向変位  $u_{r1}(t) = A_1 \sin 2\pi f_1 t$  (周波数  $f_1 = 1, 2, 3, 4, 5 \text{kHz}$  として検討した) を与えた時に、外壁面の位置  $(r_A, z_A)$  における変位  $u_{rA}(t)$  を求め、そのスペクトルを求めた。

解析領域について、以下の四つ代表的な状況を想定し、音響伝搬特性を評価した。

- Case a ー全領域 Na (一番伝搬しやすい状況)
- Case b ーCase a+鉄壁, SWAT 実験と相当の二つ観測点を設置
- Case c ー Case b+音源と観測点の間に伝熱管を挿入
- Case d ー Case b+管群

結果として、波源が狭帯域周波数特性を有すれば、管群や外壁の有無によらず、外壁面上にて変位の狭帯域周波数特性を観測できるとの結果を得た。このような周波数特性を確認できたことにより、他のノイズとの区別が可能となり周波数特性の違いから水漏えい音を検知する音響計の成立性に見通しが得られた。

また、伝熱管は鉄、水で充てんされている両極端のモデル化した解析結果を比較したところ、有意差がないとの結果が得られた。

【今後の予定 (翌年度以降の概要)】

平成 20 年度は、まず、解析と実験の対応について音響伝搬実験を行い、三次元弾性波動有限要素解析で確認する。さらに減衰を考慮できる弾性波動有限要素解析プログラムを開発することにした。また、容器のまわりこみ等の伝搬メカニズムについて、反射体、吸収体における反射、散乱の実験と解析を行うより解明する予定である。

平成 21 年度は、水漏えいに伴う音の音響特性を実験により確認、SG 内部における水漏えいに伴う音とバックグラウンドノイズの伝搬解析、解析結果と過去の実験結果を比較することにより、音響計の成立性を評価を実施する予定である。

【研究成果の公表】

該当なし

2.1.18 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	海塩物による環境助長割れ防止及び強化に関する基礎研究								
研究協力課題	海塩 ESCC 損傷機構の解明とキャビテーションによる材料強化に関する研究 Clarification of the sea salt ESCC (external Stress Corrosion Cracking) damaging mechanism and the improvement of material strength due to cavitation								
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大学側</td> <td colspan="2">福井大学大学院工学研究科 教授 服部修次, 張 杉杉, MOHAMMAD SYAFIQ BIN MOHD NOR</td> </tr> <tr> <td>機構側</td> <td colspan="2">次世代原子力システム研究開発部門 FBR プラント技術ユニット プラント信頼性 Gr グループリーダー 月森 和之, 矢田 浩基</td> </tr> </table>			大学側	福井大学大学院工学研究科 教授 服部修次, 張 杉杉, MOHAMMAD SYAFIQ BIN MOHD NOR		機構側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR プラント技術ユニット プラント信頼性 Gr グループリーダー 月森 和之, 矢田 浩基	
大学側	福井大学大学院工学研究科 教授 服部修次, 張 杉杉, MOHAMMAD SYAFIQ BIN MOHD NOR								
機構側	次世代原子力システム研究開発部門 FBR プラント技術ユニット プラント信頼性 Gr グループリーダー 月森 和之, 矢田 浩基								
研究実施場所	福井大学工学部 2 号館								
通算研究期間 (予定)	平成 19 年 6 月 ~ 平成 22 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 19 年 6 月 ~ 平成 20 年 3 月						
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究								
【研究目的】	<p>本共同研究では、ESCC に対して有効な対策を講じるために、海塩粒子による応力腐食割れを支配する諸因の影響を定量的に解明する。さらに、キャビテーションによって海塩粒子を除去し、キャビテーション気泡崩壊圧によって圧縮残留応力を付加できるノズルを開発し、表面洗浄・対 ESCC 強化を実現する技術を確認する。これより、配管の洗浄を行うことにより、塩化物の除去と ESCC の防止及び強化が効率的に行えるようになり、より安全に検査・交換が行えるようになると考えられる。こうした研究の遂行は、配管の健全を確保するために、極めて重要である。</p>								
【研究内容 (概要)】	<p>発電プラントの配管材料としては、オーステナイト系ステンレス鋼 SUS304 が多く用いられている。SUS304 鋼は優れた耐食材料であるが、塩化物を含む環境では孔食や応力腐食割れ (SCC) 等が発生しやすい欠点がある。海に囲まれた我国の原子力発電プラントは、海岸近くに建造されることが多く、海塩粒子あるいはこれを含んだ雨水等により、大気からでも腐食が発生しやすい状況にある。海塩粒子について小若らは、海岸から 2km の地点で一日当たり <math>5 \text{ mg/m}^2</math> の量が降り注ぐことを報告している。図 1 は、附着海塩量と発錆条件をしめたもので、SUS304 材の発錆条件は <math>100 \text{ mg/m}^2</math> で屋根上程度の海塩で初錆するが、屋内でも海塩が蓄積されるとこの値近くになることが予想される。近年化学プラントでは、比較的低い温度領域でも大気露出面や保温材下での配管の外面応力腐食割れ (ESCC ; External Stress-Corrosion Cracking) を生じた事例が報告されている。</p>								

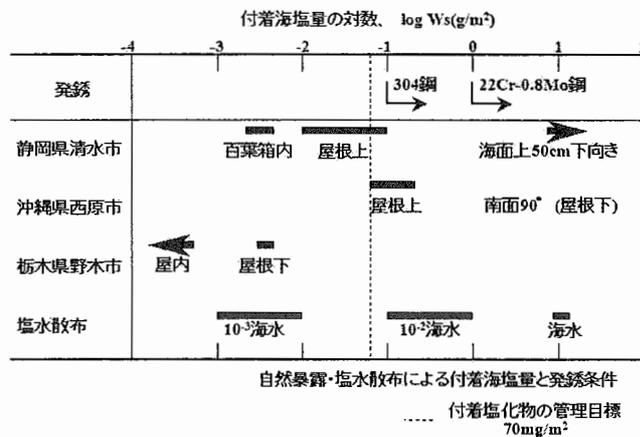


図 1 附着海塩量と発錆条件

「もんじゅ」の付着塩化物の管理目標値は、「塩害対策指針」に基づいて、SUS304材のSCCラボ再現実験結果にマージンをとって100mg/m<sup>2</sup>に設定されていた。しかし、平成14年12月20日に、「福島第一発電所3、4号機の制御棒駆動水圧系配管の不具合（ステンレス鋼配管の塩化物に起因する応力腐食割れ）」について、「もんじゅ」への水平展開結果を原子力安全・保安院に報告した際、管理目標値は70mg/m<sup>2</sup>とする方が適切である旨の指導を受け、平成15年3月以後、付着塩分濃度の管理目標値を70mg/m<sup>2</sup>としている。しかし、応力腐食割れに及ぼす付着海塩の影響は、学会レベルでは湿度について検討されているだけである。海塩濃度、材料の鋭敏化度、応力等によって応力腐食割れ発生が大きく異なることが考えられるが、学術的な解明はほとんど行われていない。

#### 【使用主要施設】

ESCC試験には-35～130℃の温度及び20～90%RHの湿度で、所定の温度、湿度に設定できる恒温恒湿槽（株式会社いすゞ製作所製）を用いた。（福井大学設置）

#### 【進捗状況（当該年度までの概要）】

##### 1) 鋭敏化処理材の試験の実施・評価(平成18～19年度)

ステンレス鋼は、配管溶接施工時の加熱により、素材の粒界にクロム炭化物が生成し、逆に結晶粒内のクロムが欠乏して腐食しやすくなる（鋭敏化）ので、海塩による応力腐食割れに大きく影響することが考えられる。本研究では、平成18～19年度にかけて鋭敏化処理材の応力腐食割れに及ぼす海塩濃度の影響についての試験を行った。試験には厚さ2mmの市販のSUS304冷間圧延板を用い、JIS G0576に記載されているU字曲げ試験に用いられる試験片の形状に一致するよう加工した。環境条件（付着海塩量、試験時間、試験温度、鋭敏化処理時間）を変化させ、応力腐食割れの発生率、平均割れ数、最大割れ長さの平均について検討を行い、以下の成果を得た。

- ・ 付着海塩量が少なくなるにつれ、割れの発生は減少する。
- ・ 試験時間が長時間になるほど、より低い海塩濃度でも割れが発生する可能性がある。
- ・ ESCCは低温では緩やかに進行し、40℃～70℃の間で腐食は急激に加速する。
- ・ 鋭敏化度が増加すると割れが発生しやすくなる。

##### 2) キャビテーションによって材料を強化するためのノズルの試作(平成19年度)

大気中でキャビテーションを発生させるノズルを製作した。

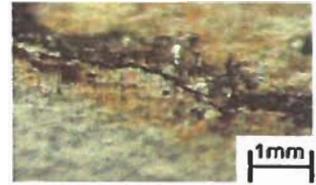
ノズルは二重管構造になっており、外側に0.5MPaの低圧力の液体（P<sub>L</sub>）を、内側に20MPaの高圧力の液体（P<sub>H</sub>）を流し、空気中で渦キャビテーションを引き起こすというものである。キャビテーション気泡が崩壊するときに、マイクロジェットにより極めて高圧な衝撃力が発生することを利用し、SUS304鋼の表面に圧縮残留応力を発生させ、応力腐食割れで発生したき裂の進展を抑制することを目的としている。

現在は、予備試験として現有の高圧ポンプを使用し、スタンドオフ距離（ノズル出口と試験片までの距離）を変化させて最適なスタンドオフ距離を検討している。今後は、このノズルを用いて試験片の洗浄を行い、海塩粒子の除去率、残留応力の発生について評価試験を行う。

【研究成果（当該年度）】

1) 鋭敏化処理材の試験の実施・評価(平成 18～19 年度)

図 2 は鋭敏化処理時間 8 時間を施した試験後の試験片の割れ拡大写真である。付着海塩量 24000mg/m<sup>2</sup>、鋭敏化処理時間 8 時間の試験片は錆がスポット全体に発生し、スポット直径を上回る 4mm 以上の大きな割れが見られる。さらに、スポット内には小さな割れも一様に発生している。付着海塩量 2400mg/m<sup>2</sup> では錆はスポットの外縁付近に発生している。割れはスポットの外縁に数個見られるだけであり、割れ長さが極端に小さくなるため、割れを肉眼で確認することは困難になる。付着海塩量 800mg/m<sup>2</sup> 以下では錆や割れは観測できなくなる。



24000mg/m<sup>2</sup>



2400mg/m<sup>2</sup>

図 2 割れ拡大写真<sup>(1)</sup>

割れの発生状況を定量的に評価するため、塩化物スポット個々について割れの発生の有無、割れの数および最大割れ長さを調べ、これらの値から下式により割れ発生率 (R<sub>crack</sub>)、平均割れ数 (N<sub>mean</sub>) および最大割れ長さの平均 (L<sub>mean</sub>) を求めた。R<sub>crack</sub>、N<sub>mean</sub> は割れの発生頻度、L<sub>mean</sub> は割れの進展速度を示す指標とし、値が大きいほど割れ感受性が高いと評価する。

$$R_{crack} (\%) = b/a \times 100$$

$$N_{mean} = c/b$$

$$L_{mean} = d/b$$

a : 試験した塩化物スポットの数

b : 割れが発生した塩化物スポットの数

c : 割れの数 の 総和

d : 各塩化物スポットにおける最大割れ長さの和

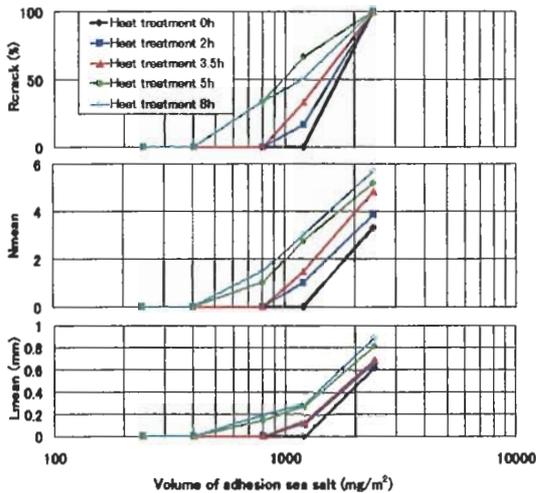


図 3 付着海塩量と各種パラメータ<sup>(1)</sup>

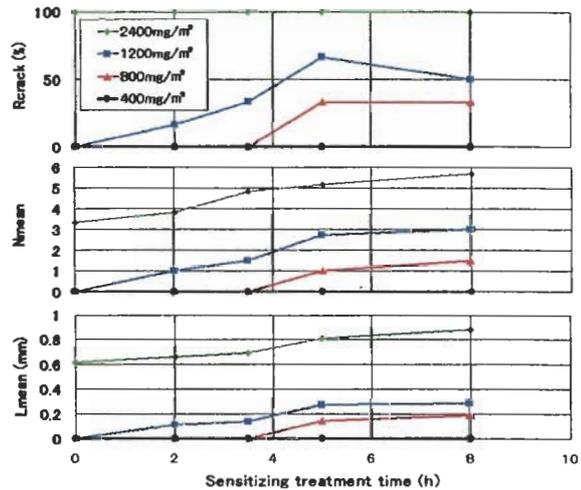


図 4 鋭敏化処理時間と各種パラメータ<sup>(1)</sup>

図 3 は鋭敏化処理を施した試験片の試験温度 90℃、湿度 30%RH、試験時間 2 週間における R<sub>crack</sub>、N<sub>mean</sub>、L<sub>mean</sub> の変化を付着海塩量によって整理したものである。R<sub>crack</sub>、N<sub>mean</sub> 及び L<sub>mean</sub> とも付着海塩量が減少するときき裂が発生しにくくなる。図 4 は試験温度 90℃、湿度 30%RH、試験時間 2 週間後の R<sub>crack</sub>、N<sub>mean</sub>、L<sub>mean</sub> の変化を鋭敏化処理時間によって整理したものである。鋭敏化処理時間が 2 時間、3.5 時間、5 時間の増加に従い R<sub>crack</sub>、N<sub>mean</sub> 及び L<sub>mean</sub> の値がほぼ大きく変化し、鋭敏化処理が応力腐食割れに大きく影響することがわかった。また、鋭敏化処理時間が 5 時間のものと 8 時間のものを比べると、R<sub>crack</sub>、N<sub>mean</sub>、L<sub>mean</sub> の変化量はほぼ同じである。これは酒井らの EPR 法

(JISG0580)で鋭敏化度を評価した結果と同様な傾向を示す。すなわち、SUS304 においては鋭敏化処理時間が5時間で鋭敏化が一定になるという傾向と同様の結果を示す。

図5は、付着海塩量  $W_s$  (g/m<sup>2</sup>)をパラメータとしたとき、細矢ら<sup>(2)</sup>により報告されている相対湿度と MgCl<sub>2</sub> 水膜中の重量モル濃度を示したものである。図より、log $W_s$  が-2~1の範囲で変化しても海塩水膜の濃度はほとんど変化しない。この log $W_s$  が-2~1の範囲は、 $W_s$  が 10mg/m<sup>2</sup>~10,000mg/m<sup>2</sup> に対応する。図3での海塩濃度が 100mg/m<sup>2</sup>~10,000mg/m<sup>2</sup>の範囲で応力腐食割れの発生が大きく異なるとの結果と相違している。また、図5において、海塩濃度が 100mg/m<sup>2</sup>~10,000mg/m<sup>2</sup>の結果に対して水膜濃度を相対湿度 30%まで外挿すると水膜中の海塩濃度は約 6 モル/kg となるが質量%で表示すると 57%となり、非常に高い値となる。

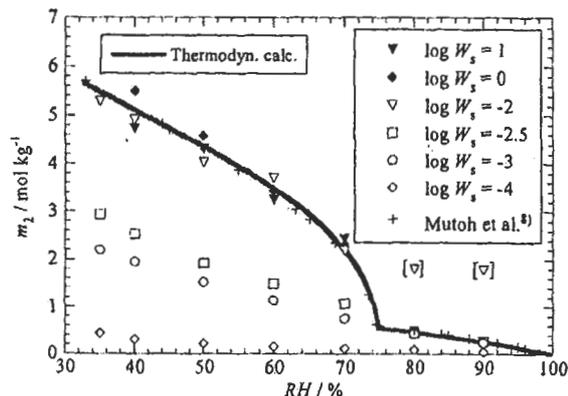


図5 湿度とモル濃度の関係<sup>(2)</sup>

水膜の海塩濃度がどの程度であることを明らかにするために、先に使用したU字形試験片を用いて水膜の海塩濃度に対応する MgCl<sub>2</sub> の塩水中で浸漬試験を行った。試験装置の構成はガラス、試験片、コンデンサー、温度計、ヒーターおよび抵抗器からなっている。試験装置の概略は図6に示す。本浸漬試験では、試験液を沸騰状態に保ち、試験を行うため、先の試験温度 90℃とは異なり、試験液の沸騰温度が試験温度となることから、試験時間は2時間とした。表1は浸漬試験結果を示す。割れは濃度に大きく依存し、濃度が低いほど割れが発生しない。本試験条件下では割れが発生しはじめる下限界濃度は 29%付近であることが明らかになった。

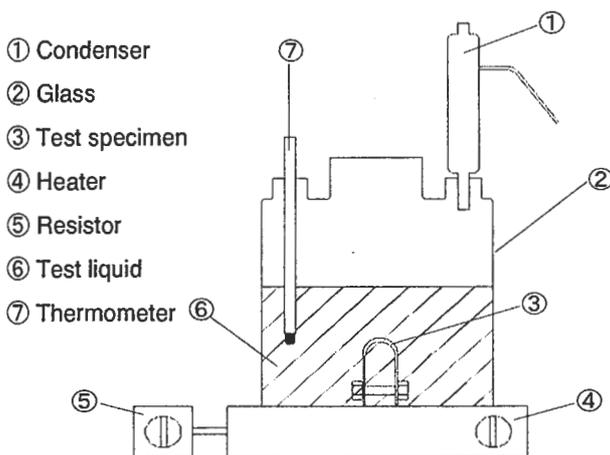


図6 試験装置

表1 浸漬試験結果<sup>(1)</sup>

濃度(%)	沸騰温度(°C)	割れ
21	112	×
26	122	×
29	125	○
32	132	○
42	142	○

## 2) キャピテーションによって材料を強化するためのノズルの試作(平成 19 年度)

## ESCC 洗浄試験の評価

ESCC 洗浄試験では、配管壁面の塩化物を除去するため、SUS304 よりも損傷を受けやすい Al を試験片として用い、様々なスタンドオフ距離 (SOD) や圧力をパラメータとして実験を行い、試験片の質量減少量と損傷部の深さを測った。

試験条件を  $P_H=20\text{MPa}$ 、 $P_L=0.05\text{MPa}$ 、試験時間 10 分とし、SOD を 5mm とした時、試験片は中心部が大きく損傷される。SOD が 7mm の場合、中心部に深い損傷を受けるが、その周囲は広い範囲にわたり浅い損傷となった。SOD が 10mm 以上になると損傷部分は中心部と外円部に分かれ、損傷中心部と外円部の間にほとんど損傷を受けない領域が発生する。SOD が 20mm になると中心部のみが狭い範囲で深く損傷される結果となった。以上の結果から、試験片に Al を使用した今回の実験では、SOD=7mm が洗浄にとって最適と考える。しかし、高圧水による壊食と思われる中心の損傷部が存在するため、この中心の損傷部がなくなるよう高圧力を調整する必要がある。そこで、 $P_H$  を 20MPa から 18MPa、16MPa と変化させ、 $P_L=0.05\text{MPa}$ 、試験時間 10 分、SOD=5mm、10mm の試験を実施した。SOD=5mm のとき、 $P_H$  を低下させると、質量減少量が少なくなり、損傷範囲をほとんど変化させずに中心の損傷部の深さを減少させることができた。SOD=10mm の場合では、中心分の損傷は軽減されるものの損傷は中心部と外円部に分かれたままであった。よって  $P_H$  を低くすることは中心部の局所的な損傷を軽減し、均一な洗浄効果を得るのに有効であると考えられる。

また、海塩粒子の洗浄効果を評価するための予備実験として、試験片をイオン交換水の中で超音波洗浄し、洗浄後の溶液の  $\text{Cl}^-$  濃度を測った。測定には、#7660 チップ形塩化物イオンメーター (堀場製作所) を用いた。人工海水を 0.2cc、Al 試験片 (直径 25mm、厚さ 5mm の円板) 表面上に付着させ、乾燥させた。使用した人工海水の  $\text{Cl}^-$  濃度は 21250ppm である。(理論上の人工海水  $\text{Cl}^-$  濃度は 19842ppm)。その後、試験片を 200cc のイオン交換水 (200cc 用のビーカーを使用) に浸漬して、30 秒間超音波洗浄して、 $\text{Cl}^-$  濃度を測定した結果、19.8ppm であった。この結果を洗浄時間 30s の結果とする。理論上の  $\text{Cl}^-$  濃度は 19.842ppm であり、ほぼ同程度の値となる。さらに同じ試験片を別の 200cc の新しいイオン交換水に浸漬して 30 秒間洗浄した結果、0.3ppm であった。この結果を洗浄時間 60s とする。洗浄時間 90s での測定結果は 0.2ppm であった。イオン交換水自体の  $\text{Cl}^-$  濃度が 0.2~0.5ppm であることから、試験片に付着した塩分は 30 秒間の超音波洗浄で十分に脱落するものと考えられる。

ちなみに水道水中の  $\text{Cl}^-$  濃度は 5.28ppm であるので、イオン交換水中の 0.2~0.5ppm の値は無視できるものと考えている。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

1) 海塩水膜中の塩化物濃度の算定

海塩水膜中の塩化物濃度は十分には解明されておらず、塩化物濃度を明らかにすることは電気化学的や熱力学的な観点から応力腐食割れ挙動を解明する上で学問的価値が非常に高い。平成 20 年度は各湿度下の海塩水膜中の塩化物濃度を測定し、各湿度の海塩水膜に対応する塩化物濃度を決定する手法を確立する。具体的には、細矢ら(2)の提案している付着海塩量  $W_s$  と付着海塩への吸着水量  $W_{ad}$  を精密天秤で計量し、熱力学的関係より無水  $MgCl_2$  と結晶水の質量分率を求めて、海塩水膜中の塩化物濃度を算定する。必要に応じて、熱力学的な理論的考察を加える。

2) キャビテーションによる塩化物除去効果と圧縮残留応力の評価

図 7 は、19 年度に製作したキャビテーションノズルを用いた試験装置の概要である。低圧力流体はポンプでくみ上げてそのまま目標物へ、高圧力流体はプランジャーポンプを介して圧力を上げて目標物へと流れる仕組みである。この試験装置を用いて試験片 (SUS304) にキャビテーション処理を施した後、応力腐食割れ試験を行い、き裂の発生状況から塩化物の除去効果と圧縮残留応力の評価を行う。なお、塩化物除去効果については、上記塩化物イオンメーター、残留応力の測定には X 線残留応力測定装置 (富山大学塩澤研究室所有) を使用する。また、評価では、配管の洗浄に適切な流速、キャビテーション数、スタンドオフ距離を決定する。

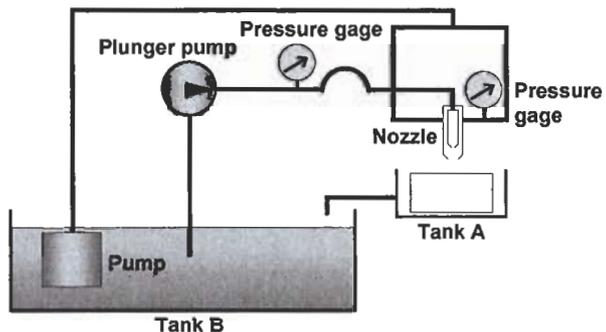


図 7. 空気中でキャビテーションを起こす試験装置の概要 (H.Soyama, CAV2006<sup>(3)</sup>)

参考文献

- (1) シャフィック, 服部修次, 月森和之, 矢田浩基, SUS304 鋼の海塩 SCC に及ぼす付着塩化物量の影響, 材料と環境 2008 講演集, p125
- (2) 細矢, 篠原, 押川, 元田, Zairyo-to-Kankyo, 54, 391-395 (2005)
- (3) Hitoshi Soyama, Mitsuhiro Mikami, Sixth International Symposium on Cavitation CAV2006, Wageningen, The Netherlands, September 2006, "EFFECT OF NOZZLE GEOMETRY ON UNSTEADY BEHAVIOR OF A CAVITATING JET IN AIR"

【研究成果の公表】

< 国内会議 >

- 1) シャフィック, 服部修次 (福井大学大学院), 月森和之, 矢田浩基 (JAEA), SUS304 鋼の海塩 SCC に及ぼす付着塩化物量の影響, 材料と環境 2008、腐食防食協会

## 2.2 核燃料サイクル関係

This is a blank page.

2.2.1 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	CHON固定抽出剤を用いた核分裂生成物の高度元素分離技術に関する研究		
研究協力課題	クラウン化合物を包括固定したマイクロカプセルの合成と発熱元素の精密分離技術の開発 Synthesis of microcapsules enclosing with crown compounds and development of precise separation method for heat-generating element		
研究者所属、氏名			
大学側	東北大学大学院工学研究科 教授 三村 均 産業技術総合研究所東北センター 主任研究員 和久井喜人		
機構側	東海研究開発センター 核燃料サイクル工学研究所 サイクル工学試験部 試験運転第1課 紙谷 正仁		
研究実施場所	東北大学大学院工学研究科 量子エネルギー工学専攻 本館1F 化学実験室 産業技術総合研究所・東北センター		
通算研究期間 (予定)	平成17年7月～ 平成20年3月	当該年度 研究期間	平成19年6月～ 平成20年3月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】 CsとSrに高選択性を有するクラウン化合物を、バイオポリマーにより包括固定化した高機能性マイクロカプセルを合成し、そのキャラクタリゼーションを行うとともに、これら核種の基礎的な吸着特性を解明する。アルカリ金属間、アルカリ土類金属間および発熱元素間での分離特性（吸着速度、分配特性および分離係数）の評価を行い、クロマトグラフィー分離法を確立する。これらの結果を基に、模擬高レベル廃液からのCsとSrの連続的で高度な分離・回収法を開発する。			
【研究内容（概要）】			
(1) 平成17年度：CsとSrに高選択性を有するクラウン化合物の選定とマイクロカプセルの設計・合成と特性評価 当該年度では研究計画書の策定を行う。CsとSrに高選択性を有するクラウン化合物の選定（Csイオン分離の候補としてDB21C7, DB24C8, Srイオン分離の候補としてD18C6）とこれらを包括固定したマイクロカプセルの設計・合成を実施するとともに、合成試料のキャラクタリゼーションおよび吸着性評価を行い、物理化学的（耐熱性、耐酸性、耐放射線性等）に安定なマイクロカプセルを選定する。			
(2) 平成18年度：マイクロカプセルへのCsとSrの吸着特性および吸着試料のキャラクタリゼーション CsとSrの吸着特性を、吸着速度および分配特性について測定評価する。また、キャラクタリゼーションとして、マイクロカプセル中に取り込まれたこれら核種の分配を機器分析により直接観察し、組成分析および吸着の均一性を調べるとともに、マイクロカプセルの耐久性を評価し、廃液処理への実用化のための基礎データを取得する。			
(3) 平成19年度：マイクロカプセル充填カラムによるCsとSrのクロマトグラフィー分離 マイクロカプセルを充填したカラムによりCsとSrの吸着特性および分離特性を調べるとともに、Cs/Rb、Cs/Sr、Sr/Ba系に対するクロマトグラフィー分離を実施する。二成分系の単純溶液および多成分系の模擬廃液を調製し、効率的な精密分離手法を確立し、先進湿式分離技術としての成立性を実証する。研究の総括を行う。			
【使用主要施設】 東北大学：微小部X線分析装置（EPMA）、粉末X線回折装置（XRD）、 走査型電子顕微鏡（SEM）、プラズマ発光分光分析（ICP-AES）、 原子吸光分光分析（AAS）、赤外吸収スペクトル分析装置（IR）			

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

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

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

## 【研究成果（当該年度）】

当該年度の成果概要を以下に示す。

1. マイクロカプセルの包括固定の評価および対イオンとマトリックス剤の選定

D18C6およびNa-LBS（ラウリルベンゼンスルホン酸）を、CaALGを支持担体としたMCに内包し、CLD(Na)-CaALGと呼称した。まず、赤外吸収スペクトルからMC内にD18C6およびNa-LBSの存在を確認することに成功し、Sr(II)を含む高濃度硝酸溶液とバッチ法による振とう実験を行った。その結果、前年度に調製したMCと比べ吸着性能が大きく向上した。CLD(Na)-CaALG中のNa-LBSをH-LBSに置換したMC、CLD(H)-CaALGも同様に調製され、Sr(II)の吸着特性を評価した。また、カルシウム以外の金属、および硝酸を用いた溶液をMCのゲル化溶液として用いることにより、NaALGをXALG(X = H, Ca, Ni, Cu, Zn)に置き換えCLD(H)-XALGを調製した。それらをバッチ法による振とう実験に用いSr(II)を吸着させた結果、硝酸で調製したMCにおいて一番高い吸着性能を得た。

2. 対イオンの組成比の評価とSrの吸着特性

有機相中の対イオンの重要性が確認されたため、D18C6とNa-LBSおよびSDSのMCへの内包量を増加することにより、吸着性能の向上を見込み、CL-CaALGとCS-CaALGを調製した。D18C6と対イオンの割合を変化させ実験を行った結果D18C6:対イオンが重量比で2:3となる場合で最も優れた結果が得られた。その内包物の構成で調製されたCS-CaALGを用い、Sr(II)と吸着実験を行った結果、分配係数 $K_d$ 値は $235 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$ となった。

3. 吸着容量と照射耐性

Sr(II)の濃度の異なる溶液と振とう実験を行い吸着等温線を確認したところ、ラングミュア型の吸着特性を示すことが確認され、その結果を基に、ラングミュアプロットから飽和吸着量 $0.20 \text{ mmol g}^{-1}$ を算出した。また、各金属イオンとの吸着実験も行い、その結果から、Sr(II)およびBa(II)に対して選択性を持つことを確認した。また、CS-CaALGは放射線照射に $2.5 \times 10^7 \text{ R}$ まで耐性を示し、照射後の実験においてもSr(II)吸着量を保つことが確認された。ただし、高濃度硝酸溶液と接触するところにより、MCから一部内包物の流出が確認された。

4. マイクロカプセルの安定性向上

流出を防ぐため、安定性向上の方策として、ALGをゲル化する際カルシウム溶液を用いていたが、これを硝酸溶液に変更することにより、より緻密な構造になるのではないかと考えた。様々な調製条件下でMCを調製し、より最適な条件を調査したが、HALGを支持担体とした場合では流出を防ぐことはできなかった。そこでALGの結合力に注目し、より結合力の強い共有結合によりMCを調製する手法を用いた。その結果、グルタルアルデヒド(GA)を用い、ALGと架橋反応により調製されたMCにおいて高い吸着性能を持ち、かつ流出を防ぐことのできるMCとして、CLD-GAALGの調製に成功した。CLD-GAALGを用い、CS-CaALGと同様に様々な溶液条件下で実験を

行った。CLD-GAALGは、吸着速度が他のMCと比べ遅かったが、どの硝酸濃度においても十分なSr吸着が確認された。また、pH 7以上においても安定にSr(II)を吸着し、飽和吸着量は $0.17 \text{ mmol g}^{-1}$ であった。

#### 5. 各金属イオンの吸着特性および模擬廃液からの分離

各金属溶液を用いて吸着実験を行った。その結果、CS-CaALGと同様にSr(II)およびBa(II)の選択性を確認した。しかし、CLD-GAALGの場合、Pd(II)に対しても若干の選択性を示した。その結果を基に、模擬高レベル放射性廃液(SHLLW)を用いCLD-GAALGとバッチ法による吸着実験を行った。Sr(II)が吸着されたが、Ba(II)、Pd(II)、およびAg(I)も同時に吸着された。また、温度を変化させ、60°CまでSr(II)吸着実験を行ったが、いずれの溶液でもほぼ一定の吸着を確認することができた。バッチ実験の結果を基に、CLD(Na)-CaALG、CS-CaALG、およびCLD-GAALGを用いたカラム実験を行った。CLD-GAALGはカラムに1.3 g充填し、 $[\text{Sr(II)}]: 2.1 \times 10^{-4} \text{ M}$ の3 M硝酸を通過して実験を行ない、破過点が $99.2 \text{ cm}^3$ を示し、破過容量は $0.016 \text{ mmol g}^{-1}$ を示した。

#### 【成果の反映状況】

D18C6内包型MCによるSr(II)選択分離の基礎データが得られた。今後、更なる吸着速度の向上、他イオンとの分離性、温度による耐性、およびSr(II)吸着量の向上などを改善することにより、更なる進展が期待できる。これらの基礎データは、機構でのクラウン化合物によるSrの分離・回収に大きく反映することが期待できる。

今後の課題としては、最終的な目的であるHLLW中から選択的にSrを吸着するためには、吸着率のさらなる向上、安定性の評価と向上、耐放射線性の評価、高レベル廃液によるSrの選択的分離について今後検討してゆく必要がある。実用的な観点からは、クラウン化合物の含有率を高めると共に、粒子径を低下させることで吸着速度の向上を図る必要があると考えられる。

#### 【研究成果の公表】

##### <論文>

- 1) Takahiro TACHIBANA, Hitoshi MIMURA, Yuichi NIIBORI, Yoshito WAKUI, and Masayoshi KAMIYA, Selective separation of strontium(II) in concentrated nitric acid solution by hybrid microcapsules enclosing crown ether(D18C6) compounds, J. Ion Exchange, 18(4), 240-245(2007). 査読有

##### <国内会議>

- 1) 遠藤 裕介、立花 孝洋、呉 艶、三村 均、新堀 雄一、和久井 喜人、小澤 正基、紙谷 正仁、ハイブリッドナノ吸着剤による発熱元素(Cs, Sr)の選択的分離・回収、日本原子力学会 第5回再処理・リサイクル部会セミナー資料(2007) (ポスター優秀賞受賞論文)。
- 2) 立花孝洋, 他, クラウンエーテルを内包したハイブリッドマイクロカプセルによるSr(II)の選択的吸着, 日本原子力学会 2007年秋の大会, N-49, 2007.
- 3) 立花 孝洋, 他, クラウンエーテル内包ハイブリッドマイクロカプセルによるSr(II)の選択的吸着, 日本原子力学会東北支部研究交流会, 2007
- 4) 立花孝洋, 他, クラウンエーテル(D18C6)内包マイクロカプセルによるSr(II)の選択的分離, 日本原子力学会 2008年春の年会, H-32, 2008.

##### <国際会議>

- 1) Takahiro TACHIBANA, Hitoshi MIMURA, Yuichi NIIBORI, Yoshito WAKUI, and Masayoshi KAMIYA, Selective separation of strontium(II) in concentrated nitric acid solution by hybrid microcapsules enclosing crown ether(D18C6) compounds, The 7<sup>th</sup> International Conference on Ion Exchange (ICIE'7), Chiba, 2007.

2.2.2 先行基礎工学研究に関する平成19年度研究概要報告書

研究協力テーマ	選択反応による再処理工程中のランタニドの分析手法に関する研究		
研究協力課題	ウラン酸化物中に存在するランタニドの選択的反応及びその分離手法に関する研究 Study of selective chemical reaction and separation of lanthanide elements in uranium oxide		
研究者所属、氏名			
大学側	東北大学 多元物質科学研究所 准教授 佐藤修彰		
機構側	東海研究開発センター核燃料サイクル工学研究所 再処理技術開発センター 技術開発課 課長代理 佐藤 宗一		
研究実施場所	東北大学多元物質科学研究所		
通算研究期間	平成17年7月 ~ 平成20年3月	当該年度 研究期間	平成19年6月 ~ 平成20年3月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>使用済燃料中のランタニドの分析は、再処理工程の臨界安全上重要な燃焼度クレジットを評価するために不可欠である。またウランあるいはプルトニウム製品中のランタニドの分析は、その中性子吸収断面積が大きいことから、燃料サイクルを評価するために不可欠である。しかし、現在のところランタニドの分析には複雑で、かつ長時間かかる分析方法しかなく、再処理工程における分析には使用できなかった。そこで、ランタニドと選択的に反応する元素（特にイオウ）を利用した簡便であり、かつ分析セル内での作業が必要であるため、遠隔で操作性の良い分析のための前処理方法を確立する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>試料の主成分であるウランとランタニド元素のイオウとの反応性の違いに注目して、ランタニドを選択的に反応させるための最適条件を求める。さらに、生成したランタニド硫化物について、簡易的な分離方法（磁気分離や部分溶解法）について検討を行う。最後に分析のための前処理方法として確立する。</p>			
【使用主要施設】			
<p>1) 熱力学データベース MALT for Windows, 科学技術社, (2004). 2) 粉末X線回折装置 Rigaku RAD-IC. (上記はすべて大学施設)</p>			

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 17 年度はウラン酸化物中に存在するランタニドの選択的な硫化反応について熱力学的検討と、気相硫化試験を行い、以下のような結果を得た。

## i) 熱力学的検討

- ・ポテンシャル状態図（自由エネルギー変化）を用いて、基礎的なパラメータ（反応温度、イオウ、酸素のポテンシャルなど）を変化させた場合、ウラン及びランタニド元素の酸化物が硫化剤（ $\text{H}_2\text{S}$ ,  $\text{CS}_2$ ）との反応により生成してくる化合物のシミュレーション計算を、東北大学にて MALT 2 を、JNC においては FACTSage を用いて行った。

ii)  $\text{UO}_2$ ,  $\text{UO}_3$ , ( $\text{U}_3\text{O}_8$ ),  $\text{R}_2\text{O}_3$  (R=Nd, Eu) の硫化反応に関する実験

- ・ウラン酸化物およびランタニド酸化物の硫化反応について、ウラン酸化物（ $\text{UO}_2$  および  $\text{UO}_3$ （あるいは  $\text{U}_3\text{O}_8$ ））およびランタニド酸化物（ $\text{R}_2\text{O}_3$ , R=Nd, Eu）の  $\text{CS}_2$  および  $\text{H}_2\text{S}$  雰囲気下での反応生成物・反応挙動を熱天秤ならびに X 線回折装置により調べ、ランタニド酸化物が選択的に硫化される条件を求めた。また、イオウ化合物を固体硫化剤として用いた場合の硫化挙動についても調べた。

iii)  $\text{UO}_3$ , ( $\text{U}_3\text{O}_8$ ) と  $\text{R}_2\text{O}_3$  の混合物の選択硫化に関する実験

- ・ウラン製品（ $\text{UO}_3$ ）を目的とした場合、ウランは  $\text{UO}_2$  とは異なり、より酸化の進んだ酸化物であるために、ランタニドの硫化反応については  $\text{UO}_2$  と混合した場合と異なった挙動を示す事が予想される。そこで、上記の単独酸化物の場合同様にして  $\text{UO}_3$ ( $\text{U}_3\text{O}_8$ ) と  $\text{R}_2\text{O}_3$  の混合物について  $\text{CS}_2$ ,  $\text{H}_2\text{S}$  あるいは固体の硫化剤を用いた硫化試験を行い、それらの硫化挙動を調べた。生成する物質について温度をパラメータとして調製し、X 線回折装置により相関係を明らかにすることにより、硫化挙動を解析し、ウランが酸化物として、また、ランタニドが硫化物として存在する条件を確定した。

平成 18 年度は、ボロキシデーションによるウラン及びランタニドの挙動を把握するための実験と、実際の使用済燃料と同様に  $\text{UO}_2$  中にランタニドを固溶させた状態での硫化試験を行い、以下のような結果を得た。

## i) ボロキシデーションにおけるウランおよびランタニドの挙動

- ・使用済  $\text{UO}_2$  燃料をボロキシデーション処理すると  $\text{U}_3\text{O}_8$  が生成するが、ランタニドが存在した場合に  $\text{U}_3\text{O}_8$  でなく、ランタニドが固溶した  $\text{UO}_2$  相が、ランタニド量に比例して存在することが分かった。

ii) ランタニドを含む  $\text{UO}_2$  固溶体の選択硫化に関する実験

- ・実際の使用済燃料中のランタニドは  $\text{UO}_2$  中に固溶している事が考えられ、Eu や Nd といったランタニド元素を  $\text{UO}_2$  に固溶させた試料を調製し、 $\text{CS}_2$  による硫化実験を行い、 $\text{U}_3\text{O}_8$  試料との反応性を比較し、選択硫化について検討した。

## 【研究成果（当該年度）】

本年度は i) 粉砕機（ミル）を用いる硫化試験、ii) 硫化された化合物の磁気分離試験および iii) ランタニド（セリウム）の選択硫化試験を行い、以下のような結果を得た。

## i) 粉砕機（ミル）を用いる硫化試験

- ・使用済燃料中のランタニドの硫化を可能な限り低温で行うため、粉砕機（ミル）を用いて、固体硫化剤共存下における粉体化による硫化反応試験を行った。固体硫化剤としては、 $\text{FeS}_2$ ,  $\text{FeS}$  および  $\text{Fe+S}$  を用いた。 $\text{U}_3\text{O}_8$  あるいは  $\text{Eu}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  はの粉末にそれぞれの硫化剤の粉末を添加し、ステンレス製容器にステンレス製ボールとともに入れ、500rpm において 2 時間メカノケミカル処理を行った。生成物について粉末 X 線回折法により相関係を調べた。その結果、いずれの場合にも X 線強度が低下し、アモルファス化がみられたものの、 $\text{U}_3\text{O}_8$  相は消失し、 $\text{UO}_2$  相が確認された。このことは  $\text{U}_3\text{O}_8$  が硫化剤により還元されたことを示している。また、希土類元素の反応性について、 $\text{FeS}_2$  の場合には希土類硫化物 ( $\text{RS}$ ,  $\text{R}_2\text{S}_3$ ,  $\text{RS}_2$ ) やオキソ硫化物 ( $\text{R}_2\text{O}_2\text{S}$ ) のような相は同定されなかったが、 $\text{FeS}$ ,  $\text{Fe+S}$  の場合にはそれぞれ  $\text{Eu}_2\text{O}_2\text{S}$ ,

Nd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S が確認された。このことは、これらの固体硫化剤を用いたメカノケミカル処理によっても、希土類酸化物の選択硫化が可能であることが示唆された。

ii) 硫化された化合物の磁気分離試験

・ 選択硫化試験で得られたウラン酸化物および希土類硫化物の混合物について、磁気分離における分離挙動についての試験を行った。試験はプラスチック製のチューブに磁性線の網を詰めたものを、磁気カラムとして用い、外部から一定の強度の磁石を用いて、磁場を与えておいた。ここに、粒子を分散させた溶媒を通過させて、磁性の強い硫化物を分離させ、溶媒中のウランおよび希土類の残量から分離性を評価した。本試験により良好な分離能を得るための分離スキームの確認を行うとともに、最適な分離条件について検討した。本試験に使用したウラン酸化物は UO<sub>2</sub> であり、希土類硫化物としては Nd<sub>2</sub>S<sub>3</sub>、および EuS を用いた。その結果、一回目の分離試験では、ウランおよび希土類の残量は差が見られなかったものの、二回、三回と分離試験を繰り返すと、溶媒中の希土類元素の減少量がウランより多くなり、両者間に差が現れることが分かった。また、磁場がない場合には、ウランおよび希土類元素について溶媒中の残量は同様に減少し、差が見られなかった。このことは、磁気分離に溶媒中の希土類硫化物が吸着して分離されており、磁場を用いることにより分離が可能であることが示唆された。

iii) ボロキシネーション後の硫化におけるウランおよびランタニド（セリウム）の挙動

・ 使用済 UO<sub>2</sub> 燃料をボロキシネーション処理すると U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> が生成するが、硫化の際にランタニドやウラン酸化物相がどのような挙動を振る舞うか、粉末 XRD 法により硫化後の相関係を調べた。特にプルトニウムの硫化挙動を調べるために、プルトニウムの代替としてセリウムを用い、温度等条件を変えて CS<sub>2</sub> と反応させて硫化試験を行った。生成物について相関係を調べ、他の希土類酸化物の場合と比較した。Table 1 には、ウラン酸化物および希土類酸化物について CS<sub>2</sub> 中で行った硫化実験の結果を示した。

Table 1 Sulfurization of UO<sub>2</sub> and R<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (R=Ce, Nd, Eu) by CS<sub>2</sub> at different temperatures.

Temp. (K)	573	673	773
U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	UO <sub>2</sub>	UO <sub>2</sub>	UO <sub>2</sub> UOS
CeO <sub>2</sub>	CeO <sub>2</sub>	CeO <sub>2</sub>	CeO <sub>2</sub> (Ce <sub>2</sub> O <sub>2</sub> S <sub>2</sub> )
Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Nd <sub>2</sub> O <sub>2</sub> S	Nd <sub>2</sub> O <sub>2</sub> S NdS <sub>2</sub>	Nd <sub>2</sub> O <sub>2</sub> S NdS <sub>2</sub>
Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Eu <sub>3</sub> S <sub>4</sub>	Eu <sub>3</sub> S <sub>4</sub>	Eu <sub>3</sub> S <sub>4</sub> EuS

出典 : N. Sato, A. Kirishima, O. Tochiyama and S. Sato, "Recovery of Nuclear Materials from Spent Fuel by Sulfide Process", The 9<sup>th</sup> Int. Symp. East Asian Res. Rec. Tech., Sendai, Oct. 30, (2007), p125-127.

・ この表を見ると、他の希土類元素の場合と異なり、CeO<sub>2</sub> の場合には、ウランと同様な硫化挙動を示すことが分かった。また、実際の使用済燃料中のランタニドは UO<sub>2</sub> 中に固溶している事が考えられたため、Eu や Nd といったランタニド元素を予め UO<sub>2</sub> に固溶させた試料を調製し、CS<sub>2</sub> による硫化実験を行い、これまでの個々の酸化物試料や、混合物を用いた硫化反応の結果とを比較した。その結果、Eu や Nd が固溶した UO<sub>2</sub> 試料の場合、500℃や 450℃において硫化実験を行った場合、UOS が生成し、希土類元素は UOS 相に存在するが、セリウムを添加した場合は、U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> の還元により生成した UO<sub>2</sub> にとともに固溶体となるが、UOS を生成せず、CeO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> 固溶体となり、硫化が抑制されることが分かった。従って、プルトニウムの場合も、PuO<sub>2</sub> として、硫化されずに酸化物として回収されることが示唆された。

## 【成果の反映状況】

本研究においては使用済燃料を溶解する前に、核分裂生成物を選択的に硫化することにより、希硝酸など（希釈された酸）に容易に溶解出来ることや、硫化された物質、特に軽希土類において、磁化率が大きいことから、分析の分野だけではなく、再処理システムとしても応用が可能であると考えられる。実際に現在の PUREX 法と比較して、強酸を使用しないこと、有機溶媒を用いないこと、U, Pu は単独で得られないこと、などから、廃棄物低減化・安全の確保・核物質不拡散の観点から優れた方法であると考えられる。

この事から、本技術は将来的には再処理システムへ反映させることが可能となるものと考えられる。なお、本研究助成により得られた成果の一部は以下のように再処理方法としての基本特許の取得へ反映された。

## (1) 特許取得

- 1) 選択硫化と磁気分離による再処理方法, 特許第 3994203 号, (2007).
- 2) 選択硫化と部分溶解による再処理方法, 特許第 4025809 号, (2007).

また、これまでの成果をもとに、以下の項目を他の公募研究へ応募する予定である。

- 1) 選択硫化—酸溶解—貫処理によるランタニドの分離方法の確立
- 2) 硫化物法によるランタニドの分離における分離効率の最適化

## 【研究成果の公表】

## ＜論文＞

- 1) Nobuaki Sato, Genki Shinohara, Akira Kirishima, Osamu Tochiyama, "Sulfurization of Rare-earth Oxides with CS<sub>2</sub>", J. Alloys Compds, (2008), 451(2008), 669-672.
- 2) 佐藤修彰、佐藤宗一, "選択硫化反応を用いる使用済核燃料再処理法", 素材研彙報, 63(2007)69-76.

## ＜国内会議＞

- 1) 佐藤修彰, 桐島 陽, 朽山修, 佐藤宗一, "選択硫化反応を用いる酸化物燃料リサイクルプロセス", 日本原子力学会再処理・リサイクル部会第 5 回再処理セミナーテキスト, 東京大学, N17, (2007.6.21), 158-159.
- 2) 佐藤修彰, 篠原元輝, 桐島陽, 朽山修, "CS<sub>2</sub>による CeO<sub>2</sub>の硫化挙動", 日本原子力学会「2007 年秋の大会」, 北九州, H50, (2007.9.27-2007.9.29).

## ＜国際会議＞

- 1) Nobuaki Sato, "Studies of Uranium Pyrochemistry Conducted at IMRAM-TOHOKU UNIV.", JSPS-KOSEF Core University Program Seminar on Advanced Fuel Cycle Initiative, Sendai, Japan, March 22-23, (2007).
- 2) T. Ozawa, M. Komura, S. Kato, N. Sato, A. Kirishima and O. Tochiyama, "Voloxidation and Sulfurization Behavior of UO<sub>2</sub> in the Presence of CeO<sub>2</sub>", KNS and AESJ Joint Summer School 2007 for Students and Young Researchers, Seoul, Korea, Aug. 27-30, (2007), p1.
- 3) T. Nihei, N. Sato, A. Kirishima and O. Tochiyama, "Voloxidation and Sulfurization of Samarium doped Uranium Oxide", KNS and AESJ Joint Summer School 2007 for Students and Young Researchers, Seoul, Korea, Aug. 27-30, (2007), p2.
- 4) N. Sato, S. Kato, A. Kirishima and O. Tochiyama, "Sulfurization Behavior of Cerium Doped Uranium Oxides by CS<sub>2</sub>", Global 2007, Boise, Idaho, Sep. 13, (2007), p1497-1499.
- 5) N. Sato, A. Kirishima, O. Tochiyama and S. Sato, "Recovery of Nuclear Materials from Spent Fuel by Sulfide Process", The 9<sup>th</sup> Int. Symp. East Asian Res. Rec. Tech., Sendai, Oct. 30, (2007), p125-127.
- 6) N. Sato, S. Sato "Study of Sulfide Reprocessing Process for Spent Oxide Fuel.", Japan-Korea Workshop on Nuclear Pyroprocessing, Jan. 18, (2008), Kyoto, p45.

2.2.3 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	イオン性液体を抽出媒体としたウラン回収技術に関する研究		
研究協力課題	イオン性液体中のウランの化学形態、酸化還元挙動、電解析出の解明 Elucidation of chemical form, redox behavior and electrolytic deposition about uranium in ionic liquid		
研究者所属、氏名			
大学側	東京工業大学原子炉工学研究所 准教授 池田泰久, 助教 原田雅幸 東海大学工学部エネルギー工学科 講師 浅沼徳子		
機構側	人形峠環境技術センター 環境保全技術開発部 遠心機処理技術課 大橋裕介		
研究実施場所	東京工業大学 原子炉工学研究所 北実験棟 5 人形峠環境技術センター 濃縮工学施設		
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 7 月 ~ 平成 21 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 19 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>核燃料サイクルにおける核燃料施設からは、ウラン廃棄物及びウラン汚染物が大量に発生する。これから進められる核燃料施設の廃止措置に当たっては資源の有効利用、放射性廃棄物発生量低減、環境負荷低減の観点から、これら廃棄物及び汚染物からウランを効率的に回収する技術の開発が急務である。しかし、従来の技術では、処理の過程で大量の二次廃棄物が発生する恐れがあり、また安全性の観点から問題があった。</p> <p>近年、燃料電池や湿式太陽電池等の電解質用あるいは各種反応媒体として開発されているイオン性液体は、通常の熔融塩と異なり、常温で液体、不揮発性、広い電位窓、高イオン伝導性等の特徴を有することからグリーンソルベントとして注目されているが、原子力分野での使用は未だなく、また本研究開発についてもほとんど実績がない。</p> <p>本提案では、このイオン性液体を反応媒体として用い、電解及び抽出によって様々なウラン汚染物からウランを効率的に分離・回収する技術を開発する。また、これらを処理するために発生する二次廃棄物を極力低減できる手法・技術を確立する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>本提案では、イオン性液体を反応媒体として用い、電解及び抽出によって様々なウラン汚染物 (NaF, CaF<sub>2</sub>, 遠心機を除く鋼材等) からウランを効率的に分離・回収する技術を開発する。</p> <p>そこで以下に示すような研究項目を実施し、イオン性液体中のウランの化学形態、ウランの酸化還元挙動、ウラン酸化物電解析出、イオン性液体へのウラン抽出挙動について検討し、イオン性液体を媒体とするウラン汚染物からのウラン回収技術に必要な基礎的なデータを取得する。更に、実用化に必要な課題を抽出する。</p>			
<ol style="list-style-type: none"> <li>1. イオン性液体中へのウラン汚染物の溶解性と化学形態の検討</li> <li>2. イオン性液体中のウランの酸化還元挙動の解明</li> <li>3. イオン性液体を用いたウラン抽出挙動の把握</li> <li>4. 実用化の可能性検討と課題の抽出</li> </ol>			

<p>【使用主要施設】</p> <p>東京工業大学：イオンマトグラフ分析装置（イオン性液体の陰イオンの分析）、NMR（イオン性液体及びイオン性液体中のウランイオンの構造解析）、レーザーラマン分析装置（ウラン錯体の溶液中での構造解析）</p> <p>東京工業大学・原子力機構： FT-IR（ウラン化合物の構造解析）、可視・紫外分光光度計（溶液中の化学種の同定等）、X線回折装置（固体状態の化合物の同定）、ICP/MS（溶液中の無機元素濃度の測定）</p> <p>原子力機構：XPS（固体状態の化合物の同定）</p>
<p>【進捗状況（当該年度までの概要）】</p> <p>○平成18年度 初年度として、以下に示す研究成果を得た。</p> <p>1) <u>イオン性液体中へのウラン汚染物の溶解性と化学形態の検討</u></p> <p>① <u>ウラン汚染物中のウランの化学形態</u> 初年度として、人形峠環境技術センターで発生すると予想されるウラン汚染物の中、特に大量に発生すると考えられるNaF吸着剤と鋼材を対象に、これらに含まれるあるいは付着しているウランの化学形態についてXRDまたはFT-IRを用いて調べた。その結果、NaF吸着剤中のウランは<math>\text{Na}_3\text{UO}_2\text{F}_5</math>であり、鋼材付着物は<math>\text{UF}_4</math>または<math>\text{UO}_2\text{F}_2</math>であることを明らかにした。</p> <p>② <u>ウラン汚染物溶解用イオン液体の検討</u> 上記の調査結果に基づき、NaF及び鋼材汚染物中のウランの溶解に適するイオン性液体を選定することを目的に、1-butyl-3-methylimidazolium(BMI)系のイオン性液体及びhydroxyethyl-trimethylammonium chloride(塩化コリン)をベースとしたイオン性液体を主に、NaF吸着剤及び<math>\text{UF}_4</math>の溶解性を検討した。その結果、BMIClを用いた場合、100℃において数時間処理することで、NaF中ウランを約80%、<math>\text{UF}_4</math>をほぼ100%溶解しうることがわかった。塩化コリン+尿素系では、同様の条件でNaF中ウランを約60%、<math>\text{UF}_4</math>を約40%溶解しうることがわかった。そこで、これら二つのイオン性液体を汚染物処理用媒体として選定した。 また、溶解液の吸収スペクトルの測定から、BMICl系では<math>[\text{UO}_2\text{Cl}_4]^{2-}</math>の形態で、塩化コリン+尿素系では<math>\text{UO}_2\text{Cl}_2(\text{L})_x</math>(L = 尿素)の形態で存在することが示唆された。</p> <p>2) <u>イオン性液体中のウランの酸化還元挙動の解明</u> BMIClと塩化コリン+尿素を媒体として、溶解したウランを電解還元してウラン酸化物として回収する条件を検討するため、参照電極としてAg/AgCl(3 mol/dm<sup>3</sup> NaCl)、作用電極としてグラッシーカーボン、対極としてPt線を用い、<math>\text{UF}_4</math>及びNaFをそれぞれ溶解したBMIClあるいは塩化コリン+尿素試料について、80℃において掃引速度50 mV/sでサイクリックボルタンメトリー測定を行った。その結果、-1.0 V付近と0 V付近に不可逆な還元波と酸化波が観測された。従来のイオン性液体中でのウランイオンの還元挙動との比較から、-1.0 V付近の還元波はU(VI)からU(IV)への還元反応に対応すると考えられる。 これより、電位を制御することで、BMIClに溶解したウランイオンをウラン化合物として回収しうるとの見通しを得た。</p> <p>○平成19年度 次年度として、以下に示す研究成果を得た。</p> <p>1) <u>イオン性液体中へのウラン汚染物の溶解性と化学形態の検討</u></p> <p>① <u>ウラン汚染物溶解用イオン液体の検討</u> <math>\text{UF}_4</math>の溶解性が高いBMIClを除染剤として用い、<math>\text{UF}_4</math>に汚染された実汚染物（汚染した鉄鋼材）の除染試験を実施した。その結果、大気中100℃、240分での除染処理後の鋼材のウラン濃度は0.08Bq/gであり、想定されるクリアランスレベル以下に除染できる見通しを得た。またBMIClは母材の<math>\text{UF}_4</math>で汚染されたフッ化鉄部分のみを主に溶解するため、二次廃棄物発生量が少なく、より効率的な除染効果が期待できることが判明した。 また、低融点イオン性液体(BMIBF<sub>4</sub>: BMICl=1:1混合物, 1-hexyl-3-methylimidazolium chloride, HMICl)での<math>\text{UF}_4</math>溶解試験の結果、50℃の低温においても<math>\text{UF}_4</math>が溶解することが判明した。</p>

## ②イオン性液体中でのウランの化学形態の検討

UF<sub>4</sub>のBMICl中での溶解における紫外・可視吸収スペクトルを測定した。その結果、溶解とともに一旦600nm付近に吸収帯が現れるが、次第に観測されなくなることから、UF<sub>4</sub>は一旦U<sup>4+</sup>としてイオン性液体中に溶解した後、UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>に酸化され、[UO<sub>2</sub>Cl<sub>4</sub>]<sup>2-</sup>として存在すると考えられる。

### 2) イオン性液体中のウランの酸化還元挙動の解明

#### ①電気化学的反応機構の検討

UF<sub>4</sub>を溶解したBMICl及び塩化コリン+尿素系のCV測定を作用電極にグラッシーカーボン(φ=1mm)、対電極に白金線、参照電極にAg/AgCl電極を用い、温度80℃、掃引速度50mV/sで行った。その結果、U(VI) + 2e = U(IV)によるものと推察される不可逆的な酸化還元波が観測された。

使用済みNaFを溶解したBMICl及び塩化コリン+尿素系のCV測定を上記と同様の条件で行った。自然電位から負の方向に電位を掃引した場合、-0.9V付近に還元波が、0~0.6V付近に複数の酸化波が観測され、正方向に掃引した場合、酸化波は観測されなかった。これより、使用済みNaFを溶解したBMIClにはU(VI)化学種のみ存在し、それがU(IV)に還元され、還元生成物が0V以上の電位で段階的に酸化されると考えられる。

これより、UF<sub>4</sub>汚染鋼材及び使用済みNaF中のウランを電解により回収しうる可能性が示唆された。

また、低融点イオン性液体として1)の①におけるUF<sub>4</sub>溶解性検討で用いたBMIBF<sub>4</sub>混合BMICl系を選定し、電解還元によるウラン析出回収を検討するための基礎データ取得を目的として、塩化ウランを溶解したBMIBF<sub>4</sub>混合BMIClのCV測定を行った。その結果、BMIClの融点(73℃)よりも低い50℃においても酸化還元波が観測され、ウランイオンが還元可能であることが明らかになった。

#### ②定電位電解試験

陽極としてグラッシーカーボン、陰極に炭素棒を用い、電解電位を-1.5V、ウラン濃度86mmol/kg、温度77℃において8時間電解を行った。その結果、エタノール洗浄後の陰極から微量のウランが検出された。電極材質や付着ILの洗浄液を再検討することで、最適なウラン析出及び回収条件を把握できると考えられる。

### 3) イオン性液体のキレート抽出挙動の把握

UF<sub>4</sub>を溶解した1~4mol/dm<sup>3</sup>(以後、Mとする)HNO<sub>3</sub>水溶液([U]=0.05M)と1.1M TBPまたは0.1M CMPOを含むBMInfo(Nfo = nonafluorobutanesulfonate, IL相)を用いてU(VI)の抽出試験を行った。その結果、4M HNO<sub>3</sub>水溶液中のU(VI)を、TBPでは約70%、CMPOでは95%以上をIL相に抽出できることがわかった。また、HNO<sub>3</sub>濃度が高い方が抽出率も上昇することが明らかになった。これより、疎水性のイオン性液体を用いことで、ウラン汚染物からウランを抽出分離しうる見通しを得た。

#### 【研究成果(当該年度)】

平成19年度の研究成果を下記に示す。

#### 1) イオン性液体中へのウラン汚染物の溶解性と化学形態の検討

##### ①ウラン汚染物溶解用イオン液体の検討

##### i) 汚染鋼材の除染試験

UF<sub>4</sub>の溶解性が高いBMIClを除染剤として用い、UF<sub>4</sub>に汚染された実汚染物(汚染した鉄鋼材)の予備的除染試験を継続して実施した。その結果、以下のことが明らかとなった。

- ・大気中100℃、240分での除染処理後の鋼材のウラン濃度は0.08Bq/gであり、想定されるクリアランスレベル以下に除染できる可能性が高い(添付資料 図-1参照)。

- ・汚染された鋼材の鉄の化学形態を XPS で分析した結果、フッ化鉄が存在することが判明した。また、BMICl 中で除染を行った結果、フッ化鉄のピークが消失した。さらに、未汚染の鋼材を 100℃の BMICl 中で処理をしてもほとんど溶解しないことから、BMICl は母材の UF<sub>4</sub> で汚染された部分のみを溶解するため、二次廃棄物発生量が少なく、より効率的な除染効果が期待できることが判明した。

## ii) 低融点イオン液体への溶解試験

平成 18 年度に引き続き、NaF 吸着剤中の Na<sub>3</sub>UO<sub>2</sub>F<sub>5</sub> 及び鋼材付着物の UF<sub>4</sub> の溶解に適したイオン性液体の選定及び最適溶解条件の選定のための試験を行った。

より融点の低いイオン液体として、以下のイオン液体を選択した。

- BMIBF<sub>4</sub> (融点-75℃) と BMICl (融点 73℃) をモル比及び体積比 1:1 で混合し、融点を室温以下とした混合イオン液体
- HMICl (融点: -75℃)

これらのイオン液体に UF<sub>4</sub> を 0.1g 投入し、50℃～60℃、大気中で溶解試験を行った。その結果以下のことが明らかとなった。

- ・BMIBF<sub>4</sub> と BMICl を体積比 1:1 で混合したイオン液体 1ml (BMIBF<sub>4</sub>:0.0027mol +BMICl:0.003mol) を媒体とした 50℃, 3 時間での溶解試験では、ウラン溶解率は 4.9%であり、60℃, 3 時間での溶解試験における溶解率 9.0%であった。
- ・HMICl 1ml (0.005mol) を媒体とした 50℃, 3 時間での溶解試験におけるウラン溶解率は、3.7%であった。

これらの結果から、低融点イオン液体を用いた場合、50～60℃の低温においても UF<sub>4</sub> を溶解しうる可能性のあることが判明した。

## ②イオン性液体中でのウランの化学形態の検討

UF<sub>4</sub> を溶解した BMICl 試料の紫外・可視吸収スペクトルを測定した。その結果、添付資料図-2 に示すように、溶解 6 時間後において 600nm 付近に吸収帯が現れるが、9 時間後それが観測されなくなることから、UF<sub>4</sub> は一旦 U<sup>4+</sup> としてイオン性液体中に溶解した後、UO<sub>2</sub><sup>2+</sup> へ酸化されると推察された。

## 2) イオン性液体中のウランの酸化還元挙動の解明

### ①電気化学的反応機構の検討

UF<sub>4</sub> を溶解した BMICl の CV 測定を、作用電極にグラッシカーボン (φ=1mm)、対電極に白金線、参照電極に Ag/AgCl 電極を用い、温度 80℃、掃引速度 50 mV/s で行った。その結果、不可逆的な酸化還元波が観測され、U(VI) + 2e = U(IV) の反応によるものと推察した。一方、自然電位から正方向へ電位を掃引した場合、掃引開始直後に酸化波が観測されたことから、U(IV) の溶存が示唆された。このことは、1)-②で検討した溶存化学形態とも一致する結果となった。同様の現象は、UF<sub>4</sub> を溶解した塩化コリン+尿素系においても観測された。

使用済み NaF を溶解した BMICl の CV 測定を上記と同様の条件で行った。自然電位から負の方向に電位を掃引した場合、-0.9 V 付近に還元波が、0～0.6 V 付近に複数の酸化波が観測された。一方、正方向に掃引した場合、酸化波は観測されなかったことから、使用済み NaF を溶解した BMICl には U(VI) 化学種のみ存在し、それが U(IV) に還元され、還元生成物が 0 V 以上の電位で段階的に酸化されると考えられる。同様の現象は、使用済み NaF を溶解した塩化コリン+尿素系においても観測された。

これより、UF<sub>4</sub> 汚染鋼材及び使用済み NaF 中のウランを電解により回収しうる可能性が示唆された。

また、低融点イオン性液体として、1)の①における UF<sub>4</sub> の溶解性を検討した BMIBF<sub>4</sub> 混合 BMICl 系を選定し、電解還元によるウラン析出回収を検討するための基礎データ取得を目的として、塩化ウランを溶解した BMIBF<sub>4</sub> 混合 BMICl 系での CV 測定を行った。その結果、ウランイオンの酸化還元反応と思われるピークが、-0.76V 付近 (還元波) と -0.66V 付近 (酸化波) に観測された。これにより、BMICl の融点 (73℃) よりも低い処理温度 (50℃) において、ウランイオ

ンが還元可能であることが明らかになった。従って、 $UF_4$ やNaF汚染物を溶解したBMIBF<sub>4</sub>混合BMIClを用いて、光透過性薄層電極（OTTLE）により還元生成物を検討することで、析出回収条件を把握できると考えられる。

### ②定電位電解試験

$UF_4$ を溶解したBMIClを用いてバルク電解還元を行い、ウラン析出回収の可能性について検討した。陽極としてグラッシーカーボン、陰極に炭素棒を用い、電解電位を-1.5V、ウラン濃度86mmol/kg、温度77°Cにおいて8時間電解を行った。エタノール洗浄により付着ILを除去した後の陰極をHNO<sub>3</sub>水溶液で洗浄した結果、HNO<sub>3</sub>洗浄液中からウランが検出された。それゆえ、電極材質及び形状、付着ILの洗浄液を再検討することで、最適なウラン析出及び回収条件を把握できると考えられる。

### 3) イオン性液体のキレート抽出挙動の把握

$UF_4$ を溶解した1~4MのHNO<sub>3</sub>水溶液([U]=0.05M)と1.1M TBPまたは0.1M CMPOを含むBMInfo(IL相)を用いてU(VI)の抽出試験を行った。その結果、HNO<sub>3</sub>濃度が高いほどU(VI)抽出率も高く、TBPを抽出剤に用いた場合、1M HNO<sub>3</sub>水溶液から約30%、4M HNO<sub>3</sub>水溶液からは約70%のU(VI)を抽出できることがわかった。また、CMPOはTBPよりも抽出率が高く、いずれのHNO<sub>3</sub>濃度においても90%以上の抽出率となり、4M HNO<sub>3</sub>水溶液では約97%のU(VI)を抽出回収できることが明らかになった。これより、疎水性のイオン性液体(BMInfo)を用いることで、ウラン汚染物を溶解したHNO<sub>3</sub>水溶液からウランを抽出分離しうる見通しを得た。

### 【今後の予定（翌年度以降の概要）】

#### 1) イオン性液体中のウランの酸化還元挙動の解明

##### ①定電位電解試験

平成18、19年度に検討したBMIClと(塩化コリン+尿素)系及びより融点の低いIL中でのウランの電気化学的反応をより詳細に検討し、還元電位を決定するとともに還元生成物を同定する。その際、右図に示すような光透過性薄層電極(OTTLE)を製作し、還元反応での生成物の同定に用いる。また、19年度に引き続き選定された還元電位において、ウランを溶解したイオン性液体を用いた定電位電解試験を行い、電解条件を把握するとともに、電極に析出した化合物あるいは沈殿物の同定を行い、ウランの回収条件を把握する。



紫外・可視吸収スペクトル測定用OTTLE

##### ②実汚染物を用いた試験

従来検討した $UF_4$ 汚染鋼材及び使用済みNaF等の実汚染物について、イオン性液体によってクリアランスレベルまで効率的に除染できる条件を把握するとともに、除染に用いたイオン性液体について定電位電解試験を行い、ウランを効率的に回収し、かつ二次廃棄物発生量を最小限にする処理条件を把握する。

#### 2) イオン性液体のキレート抽出挙動の把握

イオン性液体を抽出分離における抽出相に利用する研究を行う。TBP等の各種ウラン抽出剤を疎水性イオン性液体へ溶解し、ウラン汚染物を溶解した酸性水溶液からのウラン抽出試験を継続して実施する。また、イオン性液体へのウランの抽出形態をNMRで検討し、抽出メカニズムを考察する。これらの試験により、イオン性液体を用いた効率的なウラン回収条件を把握する。

#### 3) 総合評価

平成18、19年度の成果及び20年度の成果に基づき、ウラン汚染物のイオン性液体を用いた処理法(汚染物からのウランの溶出、溶出したウランの電解析出回収)及びウラニルイオン選択性抽出剤を含む疎水性イオン性液体によるウラン回収法の可能性を総合的に評価し、工学的課題等を抽出・整理する。

【研究成果の公表】

<国際会議>

- 1) N. Asanuma and Y. Ikeda, Dissolution Behavior of Uranium Oxides and Electrochemical Properties of Uranyl Ion in Ionic liquids, NUPYRO 2006, Korea-Japan Workshop on Nuclear Pyroprocessing, Kyongju, Korea, November, p. 31, 2006.
- 2) K. Hiroe, N. Asanuma, M. Nogami, A. Shirai, and Y. Ikeda, Electrochemical Studies of Uranyl Chloride Complexes in 1-Butyl-3-methylimidazolium Chloride, 2nd International Congress on Ionic Liquids (COIL-2), Yokohama, Japan, August 6-10, 2007.
- 3) N. Asanuma, Y. Ohashi, Y. Wada, M. Harada, and Y. Ikeda, Dissolution Behavior of  $UF_4$  in 1-Butyl-3-methylimidazolium Chloride and Choline Based Ionic Liquids, and Electrochemical Behavior of Dissolved Uranium, 2nd International Congress on Ionic Liquids (COIL-2), Yokohama, Japan, August 6-10, 2007.

<論文：査読有り>

- 1) A. Shirai and Y. Ikeda, Kinetic Studies on Complexation Reactions of Lithium Ion with Cryptand C211 in Ionic Liquids by Using  $^7Li$  NMR, *Chem. Letters*, **37**, 552 (2008).
- 2) Y. Ikeda, K. Hiroe, N. Asanuma, M. Nogami, and A. Shirai, Electrochemical Studies on Uranyl(VI) Chloride Complexes in 1-Butyl-3-methylimidazolium Chloride, *Anal. Sci.*, to be submitted.

<国内会議>

- 1) 大橋裕介, 浅沼徳子, 池田泰久, 原田雅幸, 和田幸男, イオン液体を用いたウラン汚染物からのウラン回収技術の開発 ; (1)ウラン汚染物のイオン液体への溶解性  
日本原子力学会 2007年 秋の大会
- 2) 浅沼徳子, 大橋裕介, 和田幸男, 原田雅幸, 池田泰久, イオン液体を用いたウラン汚染物からのウラン回収技術の開発 ; (2)ウランの酸化還元挙動,  
日本原子力学会 2007年 秋の大会
- 3) 池田泰久, イオン液体を媒体とした使用済み核燃料再処理及びウラン廃棄物処理に関する研究, 第2回 JCII イオン液体研究推進懇話会, 2007年11月6日
- 4) 池田泰久, イオン液体を媒体とした分離技術, 第9回「核燃料サイクルの物質利用」研究専門委員会 2007年12月20日

<特許出願>

- 1) イオン性液体を用いた固体表面放射性汚染物の除染、クリアランス化及びウラン吸着剤中のウランの回収方法 特願 2007-200772 (平成 19 年 8 月 1 日)

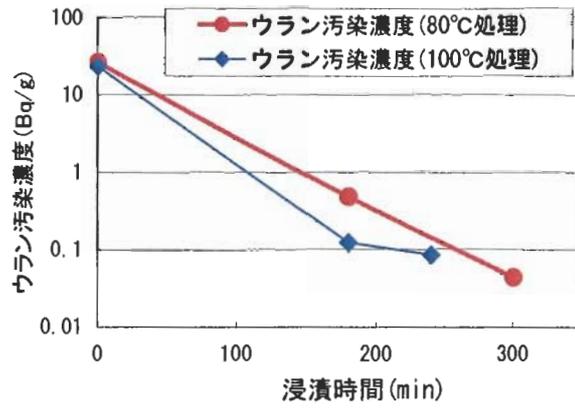


図-1 汚染鋼材の BMICl 浸漬時間とウラン汚染濃度の関係

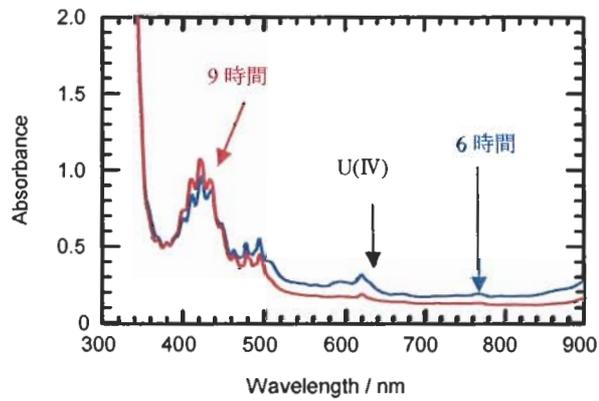


図-2 UF<sub>4</sub> 溶解 BMICl の吸収スペクトル

2.2.4 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	モリブデン酸塩を用いた乾式再処理法の開発		
研究協力課題	モリブデン酸溶融塩に関する溶質元素の熱力学データ解析及びプロセス評価に関する研究 Study on thermodynamics data of solute elements and evaluation of pyrochemical process using molybdenum oxide melt.		
研究者所属、氏名			
大 学 側	京都大学エネルギー科学研究科 教授 岩瀬 正則, 助教 長谷川 将克		
機 構 側	次世代原子力システム研究開発部門次世代再処理システムユニット 乾式再処理技術開発グループ 福嶋 峰夫		
研究実施場所	京都大学 エネルギー科学研究所 工学部 6 号館 東海研究開発センター 核燃料サイクル工学研究所 第 2 応用試験棟		
通算研究期間 (予定)	平成 19 年 7 月 ~ 平成 22 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 19 年 7 月 ~ 平成 20 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】 酸化物溶融塩であるモリブデン酸塩 ( $\text{Na}_2\text{MoO}_4$ ) の溶融塩は、酸化物 (MOX) のみを高速溶解できるユニークな特性をもつことから、これを乾式再処理の溶媒に用いることにより使用済酸化物燃料の脱被覆・溶解工程を飛躍的に高速化できる新規プロセス構築の可能性がある。これまで機構はウラン、プルトニウムを用いた基礎試験によりその基本反応を解明し、モリブデン酸溶融塩による脱被覆・溶解一体化乾式再処理プロセスを創案している。しかしながら反応解明に必要なモリブデン酸塩に関する熱力学データは極めて少ないのが現状である。モリブデン酸溶融塩 ( $\text{Na}_2\text{MoO}_4$ ) を用いる乾式再処理プロセスについて、熱力学に基づく基礎的検討を行い、研究基盤を確立させること、さらに、それを踏まえて再処理プロセスとして最適なプロセスフローの探索を行うことを目的とする。			
【研究内容 (概要)】 モリブデン酸塩を用いた乾式再処理法は、これまで U, Pu を用いた原理確認を実施しており、再処理工程としての性能評価に関する検討は未実施である。一方、モリブデン酸塩に関する熱力学データは、他の乾式溶媒 (フッ化物、塩化物) に比べ極めて少ないため、試験条件の選定や試験結果の解析にこれら熱力学データの蓄積が不可欠である。 本研究では、実験的手法及び CALPHAD 法等の解析手法により溶融モリブデン酸塩に係わる熱力学諸量を求め、これらを用いて溶解、電析、再結晶化等の各素反応について平衡論的な検討を行う。さらにその結果を活用することで、機構との共同で選定した数種の候補プロセスについて、再処理プロセスとしての性能評価を行う。また、従来より実施されている LiCl-KCl 浴を用いる金属電解法との整合性に係わる検討も合わせて実施する。 具体的には、以下の 3 項目について、機構と京都大学が連携して、調査検討を進める。 (1) 希土類元素等の挙動に関する調査 ・主として希土類元素を対象に、実験により溶解挙動及び電解挙動に関する情報を取得する。 (2) 熱力学データの調査及び体系化 ・U, Pu, 希土類元素等のモリブデン酸溶融塩中での反応挙動を解明するため、熱力学データを調査する。調査したデータは、(1) で得られた実験データを含めて、熱力学モデルに基づく体系化を行い、データベースに蓄積する。 (3) 再処理プロセス性能の評価及び最適化 ・(1)、(2) を踏まえて、候補プロセスフローを構築し、再処理システムとしての性能を評価する。			

【使用主要施設】

京都大学 電気炉設備  
 機構 電気炉付きアルゴン雰囲気グローブボックス

【進捗状況(当該年度までの概要)】

平成 19 年度は、研究計画に従い以下の研究を実施した。

1. 希土類元素の挙動に関する調査

希土類酸化物として La 酸化物の平衡溶解度を求めた。また、Ce 酸化物について電解挙動に係わる情報を取得した。

2. 熱力学データの調査及び体系化

公開文献より U、Pu、希土類元素の状態図データを取得した。Ce<sub>2</sub>(MoO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> の自由エネルギーの導出を試みた。また、Na<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>-MoO<sub>3</sub> 融体の MoO<sub>3</sub> に関する蒸発挙動を検討した。

3. 再処理プロセス性能の評価及び最適化

UO<sub>2</sub> の電解回収条件の最適化検討を行った。また、Ce が共存する条件での UO<sub>2</sub> 電解試験により除染能力の検討を行った。また、廃塩の固化技術の検討のため、鉄リン酸ガラスに関する文献調査を行った。

【研究成果(当該年度)】

1. 希土類元素の挙動に関する調査

(1)溶解挙動に関する情報の取得

Na<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>-MoO<sub>3</sub> 系融体を 800,850°C にて大気溶解し、この融体に La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を添加して、融体からサンプルを採取し、サンプル中に懸濁する可能性のある未溶解 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を分離した後、La を分析し、該融体中への La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の平衡溶解度を求めた。

(2)電解挙動に関する情報の取得

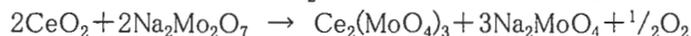
Ce 酸化物を溶解したモリブデン酸溶融塩を用いて分極測定及びクロノポテンシオメトリーを行ったが、Ce に起因するピークやプラトーは観察されなかった。後述のとおり CeO<sub>2</sub> は III 価、Ce<sub>2</sub>(MoO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>、で存在すると推測されることから電荷移動が無い場合電極反応が成立しない。

Na<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> 塩の電気化学測定により、Mo 酸塩の分解電位及び MoO<sub>2</sub> の析出電位を確認した。

2. 熱力学データの調査及び体系化

(1)熱力学データの調査

①公開文献により U、Pu、希土類元素の状態図データを取得した。セリウム元素について調査した状態図は Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MoO<sub>3</sub> 系のみであり、CeO<sub>2</sub> と MoO<sub>3</sub> に関する状態図は無かった。実験により CeO<sub>2</sub> の溶解挙動を観察したところ、CeO<sub>2</sub> は投入後、発泡し、溶融塩は透明黄色から赤褐色で濁った色に変わった。このことから、CeO<sub>2</sub> の溶解反応を以下のように推測した。



また、透明色から混濁色への変化より、Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の溶解度が低いことが推察される。

②Na<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>-MoO<sub>3</sub> 融体に熱力学モデルを適用し、状態図とモデルの整合性を検討し、もつとも整合性に優れるモデルを見出し、Na<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> と MoO<sub>3</sub> の相対部分モル自由エネルギーを理論計算により求め、該融体の蒸発挙動を検討し、MoO<sub>3</sub> の蒸発損失を抑えるに最適な組成を見出した。

(2)熱力学諸量の体系化

(1)で調査したセリウム元素とモリブデン酸塩の化合物について生成物を上記反応により Ce<sub>2</sub>(MoO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> と考えた場合、溶解し、液体状態の場合の自由エネルギーは以下の式で表される。

$$G = 4285 + 2.38 \times T + 0.495T \ln(T) \text{ kJ/mol}$$

3. 再処理プロセス性能の評価及び最適化

(1)プロセス性能の評価

①電解における MoO<sub>3</sub>/UO<sub>2</sub> 比の検討

塩中の MoO<sub>3</sub>/UO<sub>2</sub> モル比をパラメータとした分極測定を行い、UO<sub>2</sub> を電解回収できる条件を調査した。調査の結果、MoO<sub>3</sub>/UO<sub>2</sub> モル比が高い場合、MoO<sub>2</sub> の析出電流が高く、UO<sub>2</sub> 析出に使

われない可能性があること、モル比が低い場合は $UO_2$ の析出電位と $MoO_3$ の析出電位が分離できる可能性があることが判った。

②U/Ce 分離回収性能の検討

$Na_2MoO_4$ - $MoO_3$  混合熔融塩へ  $UO_2$  粉末と  $CeO_2$  を同時に溶解し酸化処理後に電解で  $UO_2$  を回収する試験をシーケンシャルに行い、回収物の分析を行い除染係数を評価した。元素濃度の分析は、サンプルした塩を希塩酸に溶解し ICP-AES により分析した。また、析出物の SEM/EDS 観察を行った。

熔融塩の分析により、U が全量溶解していることを確認した。Ce については投入量の 1/5 程度しか溶解していないことから、セリウムモリブデート化合物が溶解しにくいことが確認された。

回収した顆粒のが EDS 観察から、U と O が検出されたため、回収物は  $UO_2$  と考えられる。分析の結果、Ce の U に対する見かけの除染係数は約 33 となった。EDS 観察から、Ce は塩とともに回収物に巻き込まれたものと考えられる。

(2)プロセス最適化

廃塩の固化技術の検討のため、鉄リン酸ガラスに関する文献調査を行った。

4. まとめ

- (1) La と Ce について溶解挙動を調査し、 $La_2O_3$  については実験により平衡溶解度を得た。 $CeO_2$  については、溶解反応を推測するとともに文献調査の結果と併せて生成物の自由エネルギーを求めることができた。
- (2) III 価で溶解している Ce は、電解により析出物として回収されないと推測されこのことを実験により確認することができた。このことは、電解回収プロセスにおいて Ce 希土類元素は原理的に製品中に移行しないことを意味している。
- (3) Ce と U の分離回収試験により、見かけの除染係数は 33 となった。観察により、Ce は  $UO_2$  に同伴した塩に巻き込まれていることが判った。
- (4) 電解回収工程において塩中の  $MoO_3$  濃度が高いと、 $MoO_3$  の析出により  $UO_2$  の析出が阻害される可能性があることが判った。
- (5)  $Na_2MoO_4$ - $MoO_3$  融体に適用する整合性に優れた熱力学モデルを見だし、当該融体の蒸発挙動を券とし、 $MoO_3$  の蒸発損失を抑えるに最適な組成を発見した。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 20 年度は、以下の研究開発を実施する予定である。

1. 希土類元素の挙動に関する調査

(1)溶解挙動に関する情報の取得

$Na_2MoO_4$ - $MoO_3$  系融体中への  $CeO_2$  の平衡溶解度を求める。

(2)電解挙動に関する情報の取得

H19 年度に引き続き、希土類元素（酸化物）をモリブデン酸熔融塩に溶解し、電解回収される製品中への移行の可能性を検討する。

2. 熱力学データの調査及び体系化

(1)熱力学データの調査

$Na_2MoO_4$ - $MoO_3$  融体の蒸発挙動を検討し、 $Na_2MoO_4$  の蒸発損失を抑えるに最適な組成および酸素分圧を見出す予定である。また熱力学モデル計算をナトリウム以外のモリブデン酸へ拡張し、本プロセスにおけるモリブデン酸としてナトリウム系以外のアルカリモリブデン酸の可能性を探索する。

(2)熱力学諸量の体系化

文献調査の結果最も情報量が多かったウランと Mo 酸塩の反応について、体系化の検討を開始する。

3. 再処理プロセス性能の評価及び最適化

(1)プロセス性能の評価

H19 に実施した希土類元素の除染係数を元に、再処理プロセスとしての評価を実施する。また、別途実施した U, Pu を用いたモリブデン酸熔融塩乾式再処理試験の結果を解析し、Pu の回収メカニズムの検討を行う。

(2) プロセス最適化

H19 年度に実施した研究結果を用いて再処理プロセスフローシートの検討を開始する。廃塩の固化技術の検討のため、鉄リン酸ガラスに関する文献調査を継続する。

平成 21 年度は、19、20 年度の成果を踏まえ、以下の研究開発を実施する予定である。

1. 希土類元素の挙動に関する調査

(1) 溶解挙動に関する情報の取得

H19、20 年度の成果を踏まえて希土類元素を選定し、 $\text{Na}_2\text{MoO}_4\text{-MoO}_3$  系融体中への  $\text{REO}_2$  の平衡溶解度を求める。

(2) 電解挙動に関する情報の取得

H2019 年度に引き続き、希土類元素（酸化物）をモリブデン酸溶融塩に溶解し、電解回収される製品中への移行の可能性を検討する。

2. 熱力学データの調査及び体系化

(1) 熱力学データの調査

本プロセスにおけるモリブデン酸としてナトリウム系以外のアルカリモリブデン酸のプロセス溶媒としての適用の可能性を検討する。

(2) 熱力学諸量の体系化

文献調査の結果最も情報量が多かったウランと Mo 酸塩の反応について、体系化の検討を継続実施する。

3. 再処理プロセス性能の評価及び最適化

(1) プロセス最適化

H19、20 年度に実施した研究結果を用いて、廃棄物処理を含めた再処理プロセスフローシートの検討を行う。

【研究成果の公表】

< 国内会議 >

- 1) 福嶋峰夫、明珍宗孝、水口浩司、“モリブデン酸溶融塩を用いた乾式再処理技術の開発— (3) MOX 溶解試験結果—”、日本原子力学会 2007 秋の大会 0-11 (口頭発表)

## 2.3 放射線安全関係

This is a blank page.

2.3.1 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	プルトニウム同位体等の LX 線高精度分光分析に係る研究		
研究協力課題	LX 線検出超伝導相転移端温度計マイクロカロリメーターの開発 Development of TES microcalorimeter for high precision spectroscopy of LX-rays emitted from transuranic elements		
研究者所属、氏名			
大学側	九州大学大学院工学研究院 石橋健二, 前畑京介, 有馬秀彦, 執行信寛		
機構側	東海研究開発センター 核燃料サイクル工学研究所 放射線管理部 放射線管理第 1 課 高崎浩司		
研究実施場所	九州大学伊都キャンパスウエスト 2 号館 905-1 実験室		
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 8 月 ~ 平成 21 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 19 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>プルトニウムを取扱う施設での個人被ばく管理及び事故時における内部被ばく線量評価において、プルトニウムの測定はきわめて重要である。プルトニウムの測定では、プルトニウムからの LX 線を分析する方法があり、その分析にはプルトニウムの LX 線放射率のデータが用いられる。</p> <p>プルトニウムには多数の LX 線を放出する微細構造があり、LX 線の放射率はプルトニウムの同位体ごとに異なっている。LX 線の微細構造については、従来の半導体検出器ではエネルギー分解能が低いため、十分な実測データが得られていない。また、LX 線の放射率も理論計算と実験データとの一致が良くなく、基礎的な物性データが不足しているのが現状である。</p> <p>近年、従来の半導体検出器よりも優れたエネルギー分解能を有する超伝導相転移端温度計 (TES) 型マイクロカロリメーターが開発されているが、プルトニウムなどの超ウラン元素の LX 線を分析する目的で開発されたものはない。</p> <p>本研究では、超ウラン元素の LX 線分析を目的とした TES 型マイクロカロリメーターを開発し、LX 線の微細構造及び放射率を評価する。得られた LX 線放射率のデータは現状の半導体検出器の評価精度の向上に有用である。また、TES 型マイクロカロリメーターによる超ウラン元素測定の実証により新しい分析・測定技術の開発が期待できる。</p>			
【研究内容 (概要)】			
<p>超ウラン元素の LX 線測定を目的とした TES 型マイクロカロリメーターの設計・作製を行う。さらに、液体ヘリウムを使用することなく簡便な操作で 200mK 以下の超低温を保持し、TES 型マイクロカロリメーターの高性能動作を可能とする計測システムを構築する。</p> <p>構築した TES 型マイクロカロリメーターシステムを用いて、<sup>241</sup>Am 線源や Pu 同位体から放射される LX 線を半値幅 50eV 以下のエネルギー分解能で分光分析を行い、超ウラン元素の LX 線の微細構造及び放射率が評価できるようにする。</p>			

## 【使用主要施設】

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

## 【進捗状況 (当該年度までの概要)】

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

平成19年度は、作製した TES 型マイクロカロリメーター素子及び SQUID 増幅器を冷凍機内に実装する。液体ヘリウム不要冷凍システムを運転し、TES 型マイクロカロリメーターの動作温度を数 10  $\mu\text{K}$  以内の温度変動で保持できていることを確認するとともに、冷凍機からの信号読み出し線路上に適切なフィルター回路を取り付け、高い信号対雑音比で計測可能とした。

TES 型マイクロカロリメーターを高性能で動作するための調整が整った後、 $^{241}\text{Am}$  線源から放射される LX 線を TES 型マイクロカロリメーターで測定した。SQUID 増幅器から出力される検出信号パルスの減衰時定数から、LX 線光子を毎秒 100 カウント以上の計数率で計測可能であることを確認した。また、得られたパルス波高分布から、 $^{241}\text{Am}$  線源の LX 線エネルギースペクトルの予備的な評価を行い、TES 型マイクロカロリメーターのエネルギー分解能が半値幅で 500eV であることがわかった。

## 【研究成果 (当該年度)】

## (1) TES 型マイクロカロリメーター素子の電気抵抗-温度曲線の測定

100cps 以上の計数率を実現するために、Au/Ti の 2 層薄膜の超伝導薄膜温度計に Au 薄膜を吸収体として積層した構造の TES 型マイクロカロリメーター素子を開発した。図 1 に作製した TES 型マイクロカロリメーター素子の写真を示す。薄膜温度計の相転移温度は  $500 \times 500 \mu\text{m}^2$  の面積を有し、近接効果により 200mK 近傍になるように Au と Ti の膜厚をそれぞれ、120nm 及び 50nm とした。また、Au 吸収体の面積は  $300 \times 300 \mu\text{m}^2$  で 20keV の X 線光子を 50% の効率で吸収できるように厚さを  $5 \mu\text{m}$  とした。

作製した TES 型マイクロカロリメーター素子を無冷媒  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機で冷却して電気抵抗-温度曲線を測定した。GM クーラーの運転中はディスプレイの繰り返し上下運動が冷凍機全体の振動源となる。この振動が測定における大きな雑音を誘起する。そこで、TES 素子の電気抵抗を測定にはロッカーイン増幅器を使った 4 端子法を用いた。雑音成分を除去するために、ロッカーイン周波数を 77Hz とした。ジュール発熱の影響をなくすために、TES 素子への通電電流を 1、5、及び  $10 \mu\text{A}$  とした。測定温度は 160 から 200mK まで PID 制御により 5mK 間隔で保持した。測定で得られた電気抵抗-温度曲線を図 2 に示す。測定温度の間隔が 5mK であったために、電気抵抗の急峻な上昇は観測できなかったが、TES 素子の相転移温度は 170 から 185mK の温度領域で常伝導状態の電気抵抗値は  $50\text{m}\Omega$  であることがわかった。

## (2) TES 型マイクロカロリメーター素子の実装

TES 型マイクロカロリメーターの X 線検出信号に対する冷凍機の振動の影響を調べるために、図 3 に示すように数 keV の X 線測定用標準型 TES 素子と SQUID 増幅器チップを隣接して冷凍機の TES ホルダーに取り付け、 $^{55}\text{Fe}$  線源から放射される X 線の検出試験を行った。冷凍機で 150mK まで冷却した後、直流電源からバイアス電流を通電し、抵抗値  $7\text{m}\Omega$  のシャント抵抗で擬似定電圧バイアスにより TES 型マイクロカロリメーターを動作した。SQUID 増幅

器の出力には図4に示すような冷凍機振動に伴う周期的な雑音の中にX線検出信号パルスが観測された。図5には高速フーリエ変換解析で得られたSQUID増幅器出力信号の雑音スペクトルを示す。図中の1.2Hzとその高調波はGMクーラーの振動に起因する雑音成分である。TES素子の電流-電圧特性の詳細な測定により、 $320\mu\text{A}$ のバイアス電流を通電するときにSQUID増幅器の出力パルス波高値が最大となった。SQUID増幅器の出力信号を帯域が5Hzから10kHzのバンドパスフィルターを通過させて、図6に示すようなパルス波高分布が得られた。図には $^{56}\text{Fe}$ 線源から放射される5.9keVと6.4keVのKX線に対応するピークが得られた。エネルギー分解能は半値幅で350eVと良くないが、無冷媒冷凍機による冷却された振動環境においても、TES型マイクロカロリメーターはX線を検出することが実証された。

### (3) TES型マイクロカロリメーターによる $^{241}\text{Am}$ 線源が放射するLX線の検出

TESホルダーにLX線用TES素子を取り付け、放射能3.7MBqの $^{241}\text{Am}$ 線源から放射されるLX線の検出実験を行った。TES素子を120mKの温度に冷却して $600\mu\text{A}$ のバイアス電流を通電したところ、図7に示すようなSQUID増幅器のLX線検出信号パルスを観測した。検出信号パルスの立ち上がりと減衰時定数は、それぞれ3及び $160\mu\text{s}$ であった。減衰時定数が $160\mu\text{s}$ であることで、TES型マイクロカロリメーターは電熱フィードバック条件で動作しており、100cps程度の計数率が可能であることが示された。SQUID増幅器駆動回路の積分器時定数の調整が不十分であったために、検出信号パルスのピーク位置にリングングが発生している。さらに、検出信号パルスには、実効値で20mV程度の雑音が含まれている。そこで、SQUID増幅器の出力信号を帯域が5Hzから50kHzのバンドパスフィルターを通過させて得られたパルス波高分布を図8に示す。SQUID増幅器の信号増幅利得を考慮すると、検出信号のパルス波高値からTES型マイクロカロリメーターが発生する検出電流値は $2.5\mu\text{A}/10\text{keV}$ となる。エネルギー分解能は半値幅で約500eVと良くないのは、検出信号パルスに含まれる様々な雑音成分の除去が不十分であったためである。特に、無冷媒 $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ 希釈冷凍機の振動に起因する大きな雑音成分を極力除去する必要がある。

### 【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】――

平成20年度は、平成19年度の $^{241}\text{Am}$ 線源のLX線放射率の測定試験での結果を基に、TES型マイクロカロリメーター、測定回路、液体ヘリウム不要型冷凍システム等の改良を行う。装置の改良後、 $^{241}\text{Am}$ 線源のLX線をTES型マイクロカロリメーターで測定し、得られたパルス波高分布から $^{241}\text{Am}$ のLX線放射率の精密評価を行う。この評価結果よりプルトニウム同位体のLX線精密測定の実現性を確認する。

また、現在、装置内に線源を設置して測定する方式であるが、線源を装置外に設置して測定できるように実用化に必要なBe窓等の試作及び試験を行う。

## 【研究成果の公表】

## &lt;論文&gt;

- 1) Katsunori Ueno, Akihiro Yamaguchi, Keisuke Nakamura, Keisuke Maehata, Kenji Ishibashi, Takahiro Umeno, Keiichi Tanaka, Koji Takasaki, Development of TES Microcalorimeter for High Precision Spectroscopy of LX-rays Emitted from Transuranium Elements, Proceedings of The Fourth International Symposium on Radiation Safety and Detection Technology, J. Nucl. Sci. Technol. Suppl. で出版予定 (査読有)
- 2) Keisuke Maehata, Katsunori Ueno, Keisuke Nakamura, Takashi Yasumune, Hidehiko Arima, Kenji Ishibashi, Takahiro Umeno, Koji Takasaki, Keiichi Tanaka, Development of TES microcalorimeter for LX-ray spectroscopic analysis of transuranic elements, Radiation Detectors and Their Uses, High Energy Accelerator Research Organization KEK Proceedings 出版予定

## &lt;国内会議&gt;

- 1) 中村圭祐、上野克宜、前畑京介、石橋健二、梅野高裕、田中啓一、高崎浩司, TES 型マイクロカロリメータを用いた  $^{241}\text{Am}$  の LX 線の検出(2), 日本原子力学会 2008 年春の年会, 2008. 03.
- 2) 前畑京介、石橋健二、高崎浩司、田中啓一, 超ウラン元素の高精度分析を目指した TES 型マイクロカロリメータの開発, 平成 20 年電気学会全国大会, 2008. 03.
- 3) 前畑京介、上野克宜、中村圭祐、安宗貴志、有馬秀彦、石橋健二、梅野高裕、高崎浩司、田中啓一, 超ウラン元素 LX 線分析用 TES 型マイクロカロリメータの開発, 研究会「放射線検出器とその応用」, 2008. 02.
- 4) 前畑京介、上野克宜、中村圭祐、石橋健二、梅野高裕、田中啓一、高崎浩司、TES 型マイクロカロリメータによる超ウラン元素の LX 線分光分析、日本原子力学会九州支部第 26 回研究発表講演会, 2007. 12.
- 5) 上野克宜、中村圭祐、前畑京介、石橋健二、田中啓一、梅野高裕、高崎浩司, TES 型マイクロカロリメータを用いた  $^{241}\text{Am}$  の LX 線検出, 日本原子力学会 2007 年秋の大会, 2007. 09.
- 6) 中村圭祐、上野克宜、前畑京介、石橋健二、高崎浩司、田中啓一、梅野高裕, 無冷媒希釈冷凍機に搭載した TES 型マイクロカロリメータの動作, 2007 年秋季第 68 回応用物理学会学術講演会, 2007. 09.
- 7) 上野克宜、中村圭祐、前畑京介、石橋健二、田中啓一、梅野高裕、高崎浩司, TES 型マイクロカロリメータを用いた  $^{241}\text{Am}$  の LX 線検出, 2007 年秋季第 68 回応用物理学会学術講演会, 2007. 09.

## &lt;国際会議&gt;

- 1) Katsunori Ueno, Akihiro Yamaguchi, Keisuke Nakamura, Keisuke Maehata, Kenji Ishibashi, Takahiro Umeno, Keiichi Tanaka, Koji Takasaki, Development of TES Microcalorimeter for High Precision Spectroscopy of LX-rays Emitted from Transuranium Elements, The Fourth International Symposium on Radiation Safety and Detection Technology, 2007. 07.

別紙

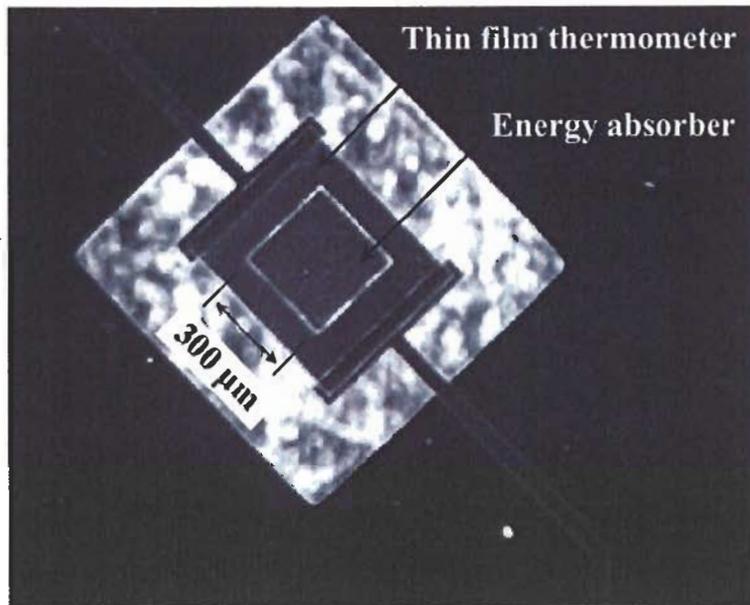


図1 作製したLX線測定用TES型マイクロカロリメーター素子の写真

(出典: Radiation Detectors and Their Uses, High Energy Accelerator Research Organization KEK Proceedings)

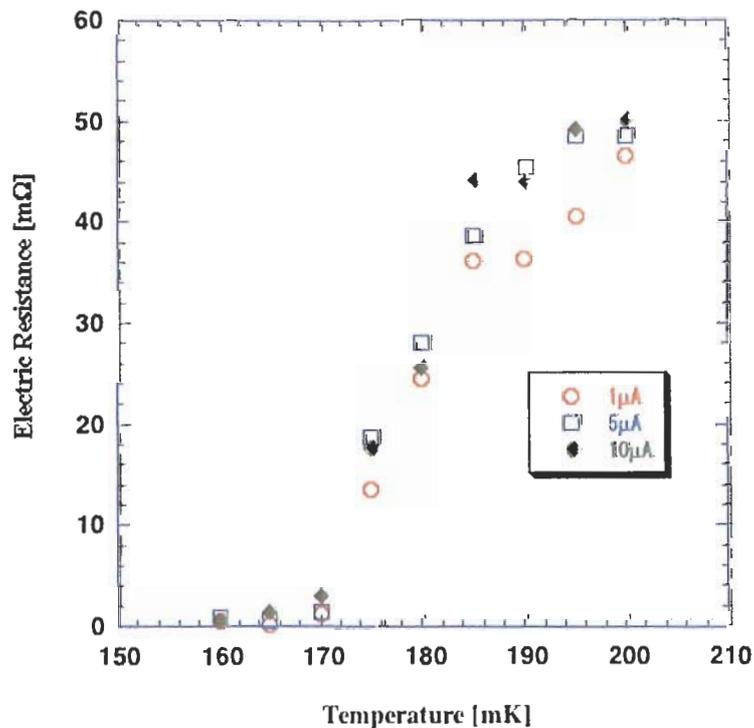


図2 LX線測定用TES型マイクロカロリメーター素子の電気対抗-温度曲線測定値

(出典: Proceedings of The Fourth International Symposium on Radiation Safety and Detection Technology, J. Nucl. Sci. Technol. Suppl.)

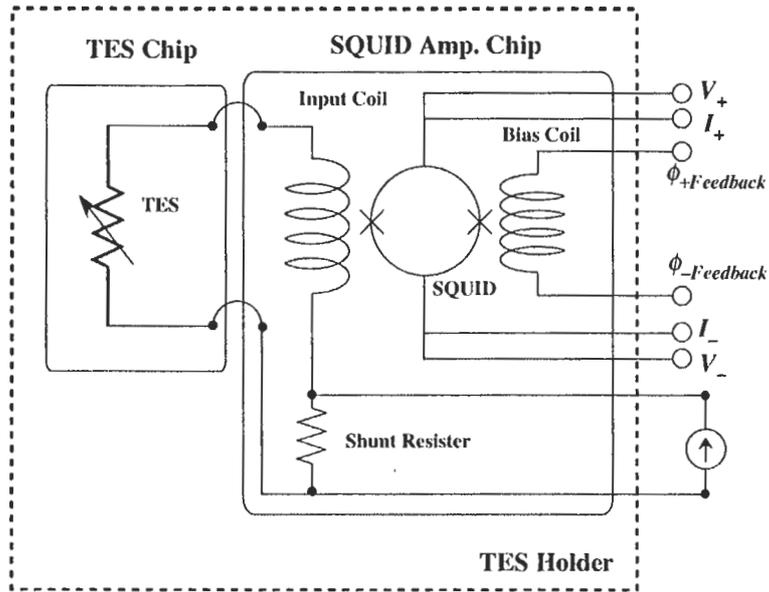


図3 TES型マイクロカロリメーター素子とSQUID増幅器チップの取り付け配線図

(出典: Proceedings of The Fourth International Symposium on Radiation Safety and Detection Technology, J. Nucl. Sci. Technol. Suppl.)

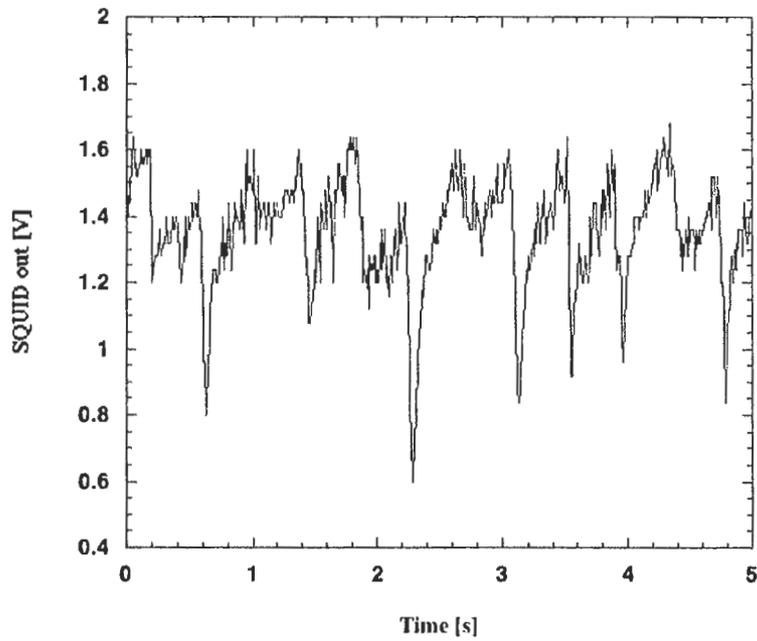


図4 標準型TESマイクロカロリメーターを動作したときのSQUID増幅器出力に含まれる周期的雑音電圧

(出典: 日本原子力学会九州支部第26回研究発表講演会予稿集)

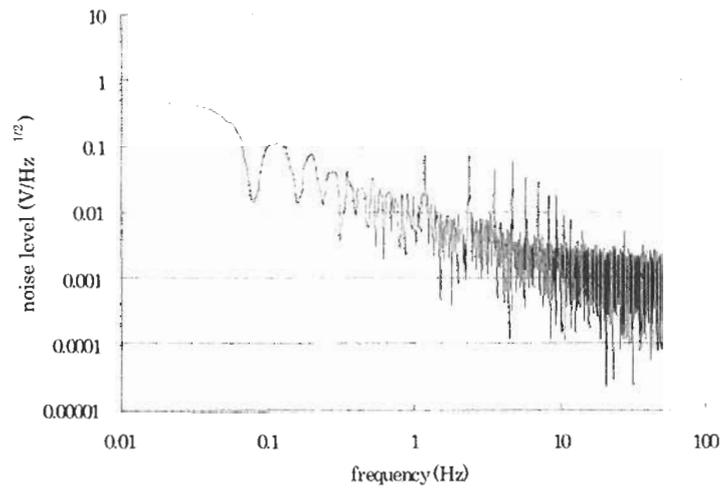


図5 SQUID増幅器出力信号の雑音スペクトル

(出典: Proceedings of The Fourth International Symposium on Radiation Safety and Detection Technology, J. Nucl. Sci. Technol. Suppl.)

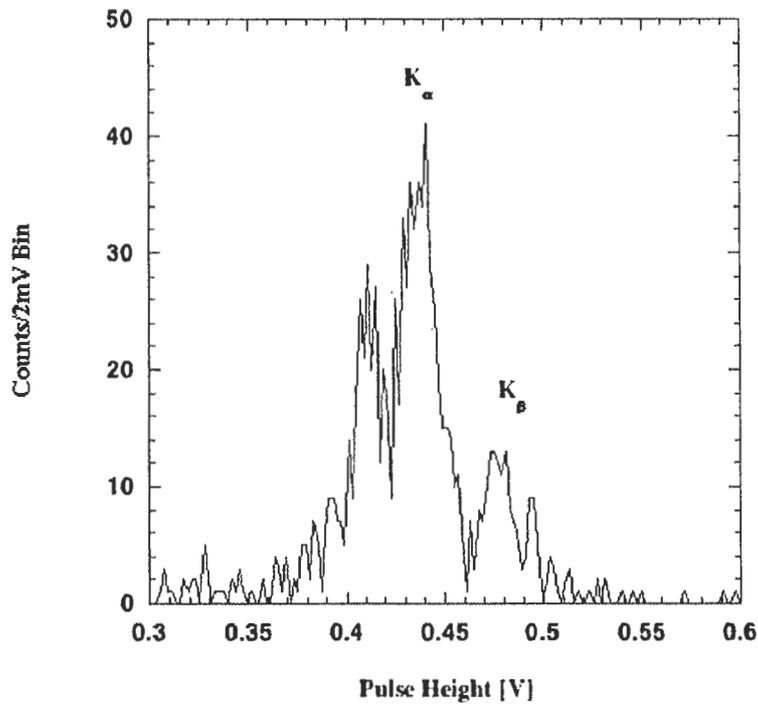


図6 標準型TES型マイクロカロリメータで<sup>56</sup>Fe線源のX線を検出したときのSQUID増幅器出力波高分布

(出典: 日本原子力学会九州支部第26回研究発表講演会予稿集)

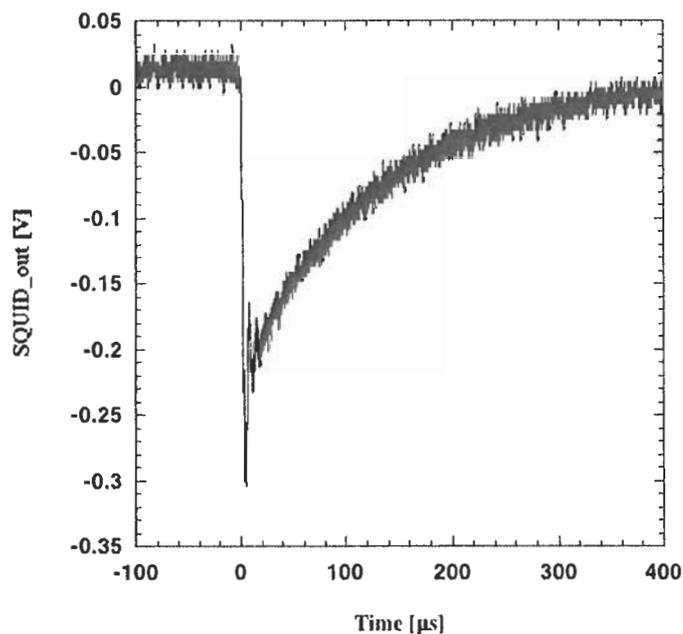


図7 LX線用TES型マイクロカロリメータで $^{241}\text{Am}$ 線源のLX線を検出したときのSQUID増幅器出力パルスの例

(出典: Proceedings of The Fourth International Symposium on Radiation Safety and Detection Technology, J. Nucl. Sci. Technol. Suppl.)

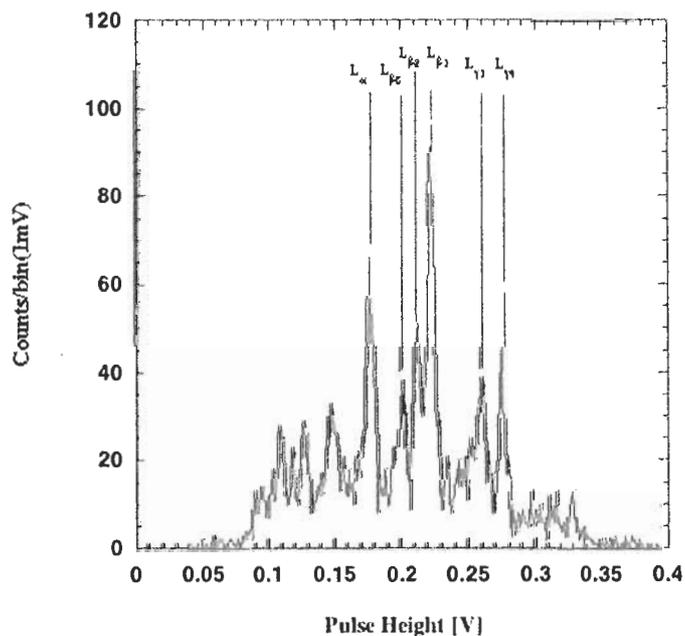


図8  $^{241}\text{Am}$ 線源のLX線をTES型マイクロカロリメータで検出したときのSQUID増幅器出力パルス波高分布

(出典: Proceedings of The Fourth International Symposium on Radiation Safety and Detection Technology, J. Nucl. Sci. Technol. Suppl.)

## 2.4 地層処分・地層科学関係

This is a blank page.

2.4.1 先行基礎工学研究に関する平成19年度研究概要報告書

研究協力テーマ	地下水におけるアクチニド元素の溶解度に関する基礎研究										
研究協力課題	アクチニド元素の溶解度に関する熱力学データの整備と検証 Measurement and review of thermodynamic data in the solubility of actinide elements										
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大学側</td> <td colspan="3">京都大学工学研究科 森山 裕丈 教授, 佐々木隆之 准教授</td> </tr> <tr> <td>機構側</td> <td colspan="3">地層処分研究開発部門 地層処分基盤研究開発ユニット 核種移行研究グループ 宮原 要, 吉川 英樹, 飯島 和毅, 藤原 健壯</td> </tr> </table>			大学側	京都大学工学研究科 森山 裕丈 教授, 佐々木隆之 准教授			機構側	地層処分研究開発部門 地層処分基盤研究開発ユニット 核種移行研究グループ 宮原 要, 吉川 英樹, 飯島 和毅, 藤原 健壯		
大学側	京都大学工学研究科 森山 裕丈 教授, 佐々木隆之 准教授										
機構側	地層処分研究開発部門 地層処分基盤研究開発ユニット 核種移行研究グループ 宮原 要, 吉川 英樹, 飯島 和毅, 藤原 健壯										
研究実施場所	京都大学原子炉実験所, 京都大学大学院工学研究科工学部1号館実験室 東海研究開発センター 地層処分基盤研究施設, 地層処分放射化学研究施設										
通算研究期間	平成17年8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								
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究										
<p>【研究目的】</p> <p>高レベル放射性廃棄物地層処分の安全性評価に際しては、アクチニド元素の溶解度に関する熱力学データが不可欠であるが、これらの元素は一般に処分環境下の水溶液中で複雑な化学挙動を示し、熱力学データの整備状況はいまなお不十分である。実際、4価のアクチニドについては、トリウム以外では酸化還元制御が容易ではないこと、弱酸性からアルカリ性水溶液における溶解度が低いこと、酸性領域においても容易に加水分解するので溶解度積の決定が困難であること、コロイドを生成することなどから、これまでに得られたデータについても信頼性に問題があり、再度の検証が必要とされている。</p> <p>本研究では、地層処分の性能評価上重要と認識されながらも、特に整備の不十分な4価のアクチニド元素の熱力学データについて、実験的測定を行うとともに、理論的検討を行う。即ち、4価のイオンの加水分解定数や溶解度積を実験的に求めるとともに、アクチニドの特性と熱力学データの系統性を明らかにし、熱力学データの整備に資する。</p>											
<p>【研究内容（概要）】</p> <p>多価金属イオン (<math>Zr^{4+}</math>, <math>Th^{4+}</math>, <math>U^{4+}</math>, <math>Np^{4+}</math>) の溶解度を測定して、溶解度積や加水分解定数などを求める。測定においては、孔径の異なるフィルター等を用いてコロイドやポリマーの存在の有無を調べ、溶解度積の測定値への影響を明らかにする。また、溶媒抽出法を利用することにより、種類の異なる加水分解種について、それぞれの加水分解定数を求める。次に測定によって得られた知見をもとに、申請者らがこれまでに開発したモノマー（単核の化学種）用のモデルをポリマー（多核の化学種）用に拡張することにより、多様なポリマーの種類と存在比を求める。次にモデル化によって得られた溶存種の種類と存在比を用いて、多価金属イオンの熱力学データを解析し、その信頼性を評価する。</p>											

## 【使用主要施設】

- ・京都大学原子炉実験所 ホットラボラトリ棟 雰囲気制御グローブボックス, ICP-MS 等
- ・京都大学大学院工学研究科 工学部1号館実験室, RI 実験棟, ICP-AES 等
- ・原子力機構 東海研究開発センター 地層処分基盤研究施設, 地層処分放射化学研究施設 表面積測定装置, 雰囲気制御グローブボックス 等

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

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

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

平成19年度は、Th, Np の加水分解定数の測定、および、U(IV)の溶解度及び溶存状態の測定と評価を実施した。得られた加水分解定数については、既報値との比較を行ない、その信頼性について検討した。また、Th の見かけの溶解度から単核錯体の溶解度曲線を求め、加水分解定数を用いて溶解度積を得た。さらに、得られたデータを用いて、多核錯体の錯生成定数の予測モデルを提案した。

## 【研究成果（当該年度）】

Uについては、過飽和法による溶解度測定を行った。実験では、 $^{238}\text{U}(\text{OH})_4(am)$  を溶解し、Th 濃度が  $1.0 \times 10^{-2}$  (M) の過塩素酸溶液 ( $pH_c = 1$ ) とした。NaOH を加えて所定の  $pH_c$  に調整した試料溶液を一定期間静置した後、上澄み液を限外ろ過 (Millipore, NMWL 3-100kDa) し、ICP-MS により U 濃度を測定した。なお、本実験では溶液の酸化還元電位の調整が必要であり、今年度は還元雰囲気を維持するために一般的に用いられる化学試薬を用いず、水素ガス気流で還元条件の維持を試みた。測定の結果、次のことが明らかとなった。

- ・ pH およびイオン強度の異なる約 30 試料の各反応容器に水素バブリングを行い、これを静置期間中維持したところ、酸性 pH では還元的な雰囲気が保たれた。その結果、静置後の溶液の吸収スペクトルには4価イオンのみが存在することが分かった。一方、弱酸性下では若干の E h の増加が見られたことから、PP 製容器の外側の環境もより高い還元雰囲気に制御する必要があると考えられる。

- ・ 得られた  $\text{U}(\text{OH})_4(am)$  の溶解度は、既報値と概ね一致したことから、本実験系の妥当性が確認できた。溶解度は  $pH_c$  1.5 付近から  $pH_c$  の増加と共に低下し、pH4 付近では ICP-MS の検出下限に近い値が得られた。

・今後、さらに静置時間の長い実験が必要であること、Thなどの溶解度と比較し、熱力学データを整備することが重要と思われる。

ThおよびNpについては、TTA-キシレンによる溶媒抽出法を用いて加水分解定数を求めた。高濃度の4価イオンの場合は加水分解によりポリマーやコロイドを生成しやすいため、トレーサー量で測定が可能な $^{234}\text{U}$ および $^{239}\text{Np}$ を使用した。 $^{238}\text{U}$ および $^{243}\text{Am}$ からのミルキングで得た $^{234}\text{U}$ および $^{239}\text{Np}$ の水溶液(Npの場合は亜鉛アマルガム法を適用)し、母液を調製した。4価イオンの純度を高めるため、母液中のM(IV)を一旦TTA-キシレンで抽出し、その有機相を新たな水相と接触させて分配比を求めた(逆抽出法)。その際、有機相のTTA濃度は、キシレンを加えることにより調整し、水相のイオン強度と水素イオン濃度(pH<sub>c</sub>)はHClO<sub>4</sub>とNaClO<sub>4</sub>で調整した(pH<sub>c</sub>範囲Thは弱酸性、Npはアルカリ性を含む。イオン強度I=0.1(Th), 0.1, 0.5, 1.0(以上Np))。分配比は、両相中の核種のγ線測定により求めた。測定の結果、次のことが明らかとなった。

・得られた分配比DとTTA濃度の相関から、Th<sup>4+</sup>、Np<sup>4+</sup>のみが抽出されること、加水分解定数は溶媒抽出法で定量的に評価できることを確認した。この結果をもとに、log Dと水素イオン濃度pH<sub>c</sub>の相関から加水分解定数を求めた。

・Thの値はNEA-TDBに記載されている値と比して特にβ<sub>1</sub>、β<sub>2</sub>が若干高めめの値であるが、概ね一致していると言える。

・Npの値はNEA-TDBに記載されている値と比してβ<sub>1</sub>、β<sub>2</sub>が低めめの値が得られ、β<sub>3</sub>についてはこれまでに報告されていない値が得られた。その値はUやPuと比較すると系統的な値が得られたといえる。

Thの溶解度および加水分解定数を用いて求めた溶解度積は対数値で-48.1となり、NEA-TDBのそれよりも1桁程度低い。算出にあたり、見かけの溶解度からポリマーモデルを用いて単核錯体の溶解度を求め、これによるフィッティングを行ったことも影響していると考えられる。

#### 【成果の反映状況】

本研究課題においては、以下の点に留意しつつ研究を進めてきた。

①4価金属イオンの溶解度測定においては、従来の手法をもとに、さらに信頼性・再現性の高いと思われる方法へと改良を進めること。

②見かけの溶解度における多核錯体の存在の影響を定量的に評価するため、溶解度の孔径依存性およびそのpH相関を明らかにし、さらに溶存種分布のモデル化を行うこと。

③加水分解定数を多核錯体の影響を無視しうる条件で行い、既報値の信頼性について確認すること。

④②および③で得た値をもとに、溶解度積を見積もり、既報値との比較検証を行うこと。これらの点から、コロイドの最も基礎的で単純な形態である真性コロイドの状態や安定性に関する知見を集積し、併せてモデルの構築を進めてきた。得られた成果は学術論文および国内外の学会にて公表し、専門家の助言や評価を受けるとともに、溶解度研究の方向性について議論を進めてきた。公表されたデータは、地層処分安全性評価において重要な熱力学パラメータであり、適宜参照されると思われる。

今後はモデルのさらなる精度の向上を目指し、必要に応じて修正の余地がある。これにより、既存の熱力学データの解析と評価を行うとともに、測定値の報告されていない熱力学データについて予測、様々な環境水中でのアクチノイド元素の振る舞いについて検討が進められるものと期待される。

【研究成果の公表】

<論文>

- 1) Systematics of polymeric hydrolysis constants of tetravalent actinide ions, H. Moriyama, T. Sasaki, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, 42 (2005) 626-635. 査読有
- 2) Systematics of polymeric hydrolysis constants of actinide ions, H. Moriyama, T. Sasaki, et al., *J. Alloys Comp.*, 408-412 (2006) 1302-1306. 査読有
- 3) Solubility Measurement of Zirconium(IV) Hydrrous Oxide, T. Sasaki, H. Moriyama et al., *Radiochim. Acta*, 94 (2006) 489-494. 査読有
- 4) Hydrolysis constants of tetravalent neptunium by using solvent extraction method, K. Fujiwara, Y. Kohara, Submitted.

<国内会議>

- 1) 原子力学会 「2005年秋の大会」 八戸：ジルコニウム(IV)およびハフニウム(IV)の溶解度に関する研究, 小林ら.
- 2) 原子力学会 「2006年春の年会」 大洗：過飽和法と不飽和法によるジルコニウム(IV)の溶解度比較, 小林ら.
- 3) 原子力学会 「2006年春の年会」 大洗：溶媒抽出法による Np(IV)加水分解定数の測定, 藤原ら.
- 4) 原子力学会 「2006年秋の大会」 札幌：トリウム(IV)水酸化物の溶解度に関する研究, 小林ら.
- 5) 原子力学会 「2006年秋の大会」 札幌：溶媒抽出法による Np(IV)加水分解定数の測定 II, 藤原ら.
- 6) 原子力学会 「2007年春の年会」 名古屋：4価金属水酸化物の溶解度に及ぼす有機酸の影響, 小林ら.
- 7) 原子力学会 「2006年秋の大会」 小倉： Th(IV)-有機酸錯体の錯生成定数の測定(加水分解定数の報告) 高岡ら.

<国際会議>

- 1) Plutonium Futures- The Science 2006 米国・Asilomar: Solubility and Solubility Product of Tetravalent Metal Hydrrous Oxides, Sasaki et al.
- 2) Migration '05 仏国・Avignon: Solubility of Zirconium(IV) Hydrrous Oxide (2005), Sasaki et al.
- 3) Migration '05 仏国・Avignon: Solubility product of tetravalent neptunium hydrrous oxide and its ionic strength dependence (2005) Fujiwara et al.
- 4) Migration '07 独国・Munich: Hydrolysis constants of tetravalent neptunium by using solvent extraction method (2007) Fujiwara et al.

2.4.2 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

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

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

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

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

平成19年度は、さらに、HDB-6、HDB-9、HDB-10の3孔について採水・分析を実施し、検討を行った。データ解析においては、平成18年度までに得られたデータのうちHDB-5、HDB-7の2孔、今年度取得したHDB-11孔を対象とした。ここでは、淡水・塩水の混合が鉛直一次的に起こっているものと仮定し、移流分散方程式を用い、概略的な地下水実流速と混合開始後の期間に関する検討を行った。その結果、HDB-5孔では、想定される実流速が大きく、水力学的な混合が起こっていると考えられた。一方、HDB-7、HDB-11孔では、塩素安定同位体の分別が認められ、解析からも拡散現象が支配していると評価された。この結果は、原位置で計測される間隙水圧と透水係数から求められる実流速分布および平成17年度に実施された数値解析から想定される実流速分布とも調和的である。このように、塩素安定同位体比の深度分布を用いる手法は、地下水の流速が十分に小さいことを直接的に示すことができるツールとなることが示された。

## 【研究成果（当該年度）】

平成19年度は、前年度までに引き続き、新たにHDB-6、HDB-9、HDB-10の3孔について採水・分析を実施し、検討を行った。ここでは、ボーリングコア試料を直径5cm、高さ10cmに成型し、最大抽出圧力60MPaにて圧搾法を用いて間隙水の抽出を実施した。抽出された間隙水を用い、塩化物イオン濃度および塩素安定同位体比（ $\delta^{37}\text{Cl}$ ）を測定した。

塩化物イオン濃度および塩素安定同位体比の深度方向へのデータ密度の高い井戸を3孔抽出し、解析的検討を行った。ここで抽出した井戸は、HDB-5、HDB-7、HDB-10である。解析においては、塩化物イオン濃度の高い間隙水で満たされていた地層中に、ある時期から淡水が鉛直下方に浸透していくと想定し、一次元の移流分散方程式(Ogata and Banks, 1961)を用いることとした。

ここで、解くべき方程式は、

$$\partial C / \partial t = D \partial^2 C / \partial x^2 - v \partial C / \partial x$$

である。ここに、 $C$ :溶質の濃度、 $D$ :水力学的分散係数、 $v$ :間隙水の実流速、である。上述のような初期条件、境界条件を設定すると、その解は無次元数を用いて以下のように記述することができる。

$$C_R(t_R, P_e) = 1 - \frac{1}{2} \left\{ \operatorname{erfc} \left[ \left( \frac{P_e}{4t_R} \right)^{1/2} (1 - t_R) \right] + \exp(P_e) \operatorname{erfc} \left[ \left( \frac{P_e}{4t_R} \right)^{1/2} (1 + t_R) \right] \right\}$$

$$t_R = vt / x, C_R = C / C_0, P_e = vx / D$$

ただし、今回得られている塩化物イオン濃度分布は、深度方向へのデータであるために、無次元時間、Peclet数の中に距離が入っていることから、これらの無次元数を用いて検討することが容易ではない。したがって、ここでは、無次元化はできないという問題点はあるが、新たに、

$$A = vt, B = v / D$$

という2つのパラメータを導入し、上記解析解を以下のように書き換えた。

$$C_R(x, A, B) = 1 - \frac{1}{2} \left\{ \operatorname{erfc} \left[ \left( \frac{B}{4A} \right)^{1/2} x \left( 1 - \frac{A}{x} \right) \right] + \exp(Bx) \operatorname{erfc} \left[ \left( \frac{B}{4A} \right)^{1/2} x \left( 1 + \frac{A}{x} \right) \right] \right\}$$

この結果、計測で求められた濃度データとそれが得られた深度情報から、 $A$ 及び $B$ をフィッ

ティングパラメータとしてデータの評価を行うことが可能となった。

また、安定同位体比に関しても、Ogata and Banks (1961)の解析解を用い、各々の同位体についてその深度分布を、

$${}^{35}C_R(x, A, v) = 1 - \frac{1}{2} \left\{ \operatorname{erfc} \left[ \left( \frac{v}{4A(D_e + \alpha_L v)} \right)^{1/2} x \left( 1 - \frac{A}{x} \right) \right] \right. \\ \left. + \exp \left( \frac{vx}{D_e + \alpha_L v} \right) \operatorname{erfc} \left[ \left( \frac{v}{4A(D_e + \alpha_L v)} \right)^{1/2} x \left( 1 + \frac{A}{x} \right) \right] \right\}$$

$${}^{37}C_R(x, A, v) = 1 - \frac{1}{2} \left\{ \operatorname{erfc} \left[ \left( \frac{v}{4A(D_e/\alpha_f + \alpha_L v)} \right)^{1/2} x \left( 1 - \frac{A}{x} \right) \right] \right. \\ \left. + \exp \left( \frac{vx}{D_e/\alpha_f + \alpha_L v} \right) \operatorname{erfc} \left[ \left( \frac{v}{4A(D_e/\alpha_f + \alpha_L v)} \right)^{1/2} x \left( 1 + \frac{A}{x} \right) \right] \right\}$$

から求めることとした。ここに、 $D_e$ : ${}^{35}\text{Cl}$ の有効拡散係数、 $\alpha_f$ :縦分散長、 $\alpha_f$ :同位体分別係数、である。このうち、 $D_e$ に関しては、すでに求められている値（声問層： $4 \times 10^{-10}$  (m<sup>2</sup>/s)、稚内層： $2 \times 10^{-11}$  (m<sup>2</sup>/s)) (JAEA, 2007)を用いることとし、 $\alpha_f$ と $v$ をフィッティングパラメータとして安定同位体比データを評価することにした。

このような検討を行うことにより、 $A$ ,  $B$ ,  $\alpha_f$ ,  $v$ の4つのパラメータを推定することが可能となる。ここからは、淡水の侵入が始まってから現在までの期間  $t$  と、その間の平均的な間隙水の実流速  $v$  を求めることができる。その結果は、以下のように整理される。

HDB-5 孔においては、塩素安定同位体比の分別が明瞭には認められなかったため、平均的な間隙水の実流速は、下向きに  $1 \times 10^{-10}$  (m/s) よりも大きいという推定がなされた。また、淡水の侵入が始まってから現在までの期間は  $1.1 \times 10^5$  (年) よりも短いと推定された。HDB-7 孔においては、平均的な間隙水の実流速が、下向きに  $(0.8 \sim 1.4) \times 10^{-10}$  (m/s) と推定され、淡水の侵入が始まってから現在までの期間が  $(5 \sim 9) \times 10^4$  (年) と推定された。さらに、HDB-11 孔においては、平均的な間隙水の実流速が、下向きに  $(1 \sim 3) \times 10^{-11}$  (m/s) と推定され、淡水の侵入が始まってから現在までの期間が  $(1 \sim 3) \times 10^5$  (年) と推定された。これらの結果は、平成 17 年度に行われた数値解析に基づく結果から得られた実流速の空間分布とも調和的であり、また、HDB-7 および HDB-11 孔において明瞭に認められる塩素安定同位体比が HDB-5 孔において認められないことを併せて考えると、塩素安定同位体比の変動は、地下水の実流速が十分に小さい拡散現象が支配的な場において起こり、移流が支配的な場においては、塩化物イオン濃度の変動がみられるものの、塩素安定同位体比の変動が認められないと理解することができる。すなわち、塩素安定同位体比は、地下水の実流速が十分に小さい環境が長い期間達成されていたことを直接的に示すことができるツールになるものと考えられる。

なお、今回の研究においては、極めて単純なモデル化を行ったのではあるが、検討を行った3つの地点において、すべて淡水の侵入が始まってから現在までの期間が10万年前後であることが示唆されている。このことと、当該地域の離水過程についての検討を行うことにより、さらに、本検討の妥当性が評価されるものと期待されるが、これは、今後の課題であろう。

【成果の反映状況】

本研究による成果の直接的な反映はまだなされていないが、今後、解析により推定される地下水流動特性の妥当性を評価するツールとして用いられることが期待される。

【研究成果の公表】

<国内会議>

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

<国際会議>

- 1) Matsumoto, S., Tokunaga, T., Shimada, J., Ijiri, Y. and Kunimaru, T., accepted, Evaluation of groundwater behavior in sedimentary formations from the stable chlorine isotopic ratios-A case study at Horonobe, Japan-. Proc. IAH2008.

2.4.3 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	マルチスケールでの地質構造・物性の空間モデリング技術の開発								
研究協力課題	東濃地域を対象とした亀裂分布のマルチスケールモデリング技術の開発 Development of multiscale modelling techniques of fracture distribution: practical and analytical studies in the Tono area, Japan								
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大学側</td> <td colspan="2">熊本大学大学院自然科学研究科複合新領域科学専攻 生命環境科学講座 小池 克明</td> </tr> <tr> <td>機構側</td> <td colspan="2">地層処分研究開発部門 東濃地科学研究ユニット 結晶質岩地質環境研究グループ 天野 健治</td> </tr> </table>			大学側	熊本大学大学院自然科学研究科複合新領域科学専攻 生命環境科学講座 小池 克明		機構側	地層処分研究開発部門 東濃地科学研究ユニット 結晶質岩地質環境研究グループ 天野 健治	
大学側	熊本大学大学院自然科学研究科複合新領域科学専攻 生命環境科学講座 小池 克明								
機構側	地層処分研究開発部門 東濃地科学研究ユニット 結晶質岩地質環境研究グループ 天野 健治								
研究実施場所	熊本大学工学部研究棟 I 9階 東濃地科学センター 瑞浪超深地層研究所								
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 11 月 ~ 平成 21 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 19 年 6 月 ~ 平成 20 年 3 月						
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究								
【研究目的】									
<p>岩盤中の地質現象（地下水流動や物質移行，水質形成プロセス）の予測は，高レベル放射性廃棄物の地層処分などにおいて，最も重要な研究課題の一つである。地層処分では，数万年というこれまでの工学的尺度では評価の難しかった超長期にわたる予測が不可欠となる。このための主な課題の一つとして，受け皿となる地質体に分布する地質・地質構造の全体像の解明があげられる。本研究課題はそのための第一ステップであり，「マルチスケールでの地質構造・物性の空間モデリング」において，特に様々な地質現象に大きな影響を与えると考えられる亀裂分布のマルチスケール推定技術の開発を目的とする。</p>									
【研究内容（概要）】									
<p>本研究ではボーリングによる地質データと検層データ，フィールドでの地質調査データ，衛星画像と数値地形データ，およびボーリングコアの分析データ，という複数のデータ種の統合により，亀裂分布の全体像の解明を目的とする。そのために，東濃地域とその周辺領域を主な研究の対象とし，次の 2 項目を検討課題とすることで，特に亀裂が持つ流体移動の役割からマルチスケール亀裂分布モデリングと亀裂の特徴付けを行う。</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>●ミクロスケールからフィールドスケールまで，いずれのスケールでも存在する亀裂の空間分布を，量が限られた測定データから高精度でモデル化する。</li> <li>●これと地質，物性，水理・水質情報（岩相，亀裂充填鉱物，亀裂開口幅，P 波伝播速度，透水（量）係数，溶存成分など）の空間分布を有機的に統合し，超長期における地質現象の予測（例えば，地下水流動など）のためのリアルな地質モデルを完成させる。</li> </ul> <p>これらの課題には地球統計学（Geostatistics）を基礎とした数理手法を開発し，地質データの空間的相関構造，および異なったスケール間を繋ぐ相似則（スケール則）を有効に取り入れる。</p>									
【使用主要施設】									
<p>大学：ワークステーション：DELL Precision 490，ラドン計数装置：Pylon・AB-5， データ解析ソフト：MATLAB，衛星画像処理ソフト：ENVI， 東濃地科学センター：物質移行解析システム</p>									

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

本研究の主な目的は、ミクروسケールからフィールドスケールまで、いずれのスケールでも存在する亀裂の空間分布を、限られた量の測定データから高精度でモデル化することである。このため、東濃地域とその周辺領域を研究対象として、データ解析、試料分析、フィールド調査を実施している。初年度の平成 18 年度は下記の 4 項目の研究を実施した。

- ①本研究の目的のために不可欠な地質データのデータベースの構築
- ②地層分布の不連続性を考慮した数理地質学的手法による地質属性の 3 次元モデリング
- ③亀裂の方位や出現頻度に関する空間的相関構造を考慮した亀裂分布の 3 次元モデリング
- ④Rn 探査と Ra 濃度測定による亀裂の動的性質の把握

平成 19 年度はこれらの研究を発展させ、下記の 4 項目に取り組んだ。

- ⑤前年度に構築した地質・亀裂分布モデリング法の改良と統合
- ⑥数値地形モデル（DEM）の多方位陰影図からの大規模スケール亀裂の抽出
- ⑦開口型マイクロクラックの抽出
- ⑧スケールの異なる亀裂データを用いたマルチスケールモデリング法の提案

## 【研究成果（当該年度）】

平成 19 年度に実施した上記の⑤、⑥、⑦、⑧の成果をそれぞれ以下のように纏める。

- ⑤空間モデリング法の改良と統合： 前年度に構築した地質・亀裂分布モデルの推定精度を向上させるとともに、亀裂の形状（開口割れ目、破碎帯など）や状態（粘土化、変質帯など）を空間モデリングに取り入れた。これによって、月吉断層・次月断層に関連すると考えられる大規模な亀裂群がモデル上に表現され、断層の深部への連続性が推定できるものと期待される。また、原データでは破碎帯の方位は特定できていないが、亀裂分布モデルとの組み合わせにより、傾斜が緩く連続性が良い亀裂が破碎帯を形成している可能性が高いと考えられる。東濃地域では P 波速度と比抵抗の急変部の位置が概ね対応しており、亀裂分布と充填鉱物の種類より、透水性の高いゾーンの検出が可能になった。
- ⑥大規模スケール亀裂の抽出： 格子間隔 10 m という分解能の高い数値地形モデル（DEM）を用い、これに研究代表者らが開発した多方位陰影法とリニアメント抽出・方位算定コードを適用した。リニアメント抽出結果に基づいて、対象地域の地形に現れる大規模亀裂群を推定し、それらの走向・傾斜を算定した。その結果、地下、地表という場が異なるにもかかわらず、ボーリングデータに基づく連続性の良いシミュレーション亀裂の方位との関連性が見出された。すなわち、地形に現れている亀裂付近には、それと方向が調和した連続性の良い亀裂が岩体中に多く、かつ密に存在していると推察できる。
- ⑦ミクروسケール亀裂の抽出： 顕微鏡下での微小亀裂として開口型マイクロクラックに注目した。この抽出には、定方位のボーリングコアから深度が異なる試料を採取し、走査型電子顕微鏡（SEM）を用いた。1 つの試料に対して、1 回 3 mm×2 mm の撮影範囲の画像を多数繋ぎ合わせてモザイク画像を作成した。開口型マイクロクラックの分布が顕著であったのは深度 478 m の試料であり、試料の両端は、変質鉱物が付着したほぼ垂直で西北西走向の亀裂であった。SEM 画像では主に石英中のマイクロクラックが明瞭であり、東北東方向と北西方向の走向の連続性が良い。予察的な段階ではあるが、土岐花崗岩体中のマイクロクラックは、割れ目充填物を有する亀裂近傍に多く発達しており、透水性構造として機能しているメソスコピックな亀裂との関連性が推測できる。

⑧亀裂のマルチスケールモデリング法： スケールの異なる3つの亀裂データ（ボーリングデータによるシミュレーション亀裂，DEM リニアメント，マイクロクラック）の関連性（相互依存性や類似性）を求め， $\cdot\text{m}\sim\text{km}$ のオーダにわたる亀裂分布の全体像をイメージングするための手法を検討した。具体的には，各スケールでの長さ，密度，方位に関する分布から，これらの空間的相関構造とスケール則を明らかにした。このスケール則を考慮して，マルチスケールで亀裂分布のモデリングを行える地球統計学的シミュレーション法を提案した。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】――

平成20年度は，平成19年度に検討したマイクロクラック抽出法を発展させ，ボーリングコア試料から十分なデータ量を取得する。また，スケール則を考慮したマルチスケール亀裂分布モデリング法を完成させ，その妥当性・有効性を検証する。これらの継続課題に加えて，次の3つの新規課題に取り組む。これにより，亀裂分布と岩相・透水性・物性・水質の空間分布を有機的に統合し，地質体の実際の不均質構造をよく反映したリアルな地質モデルを構築するとともに，モデルを浸透流解析に応用することが最終年度の目標である。

- (1) 水理モデリング： 透水係数データを整理し，その空間分布を地球統計学により推定する。この解析により，亀裂部と基質部の透水性の相違やそれらの空間的な変化を明らかにし，亀裂部における水理パラメーターや水質・年代などを考慮できる水理モデルを構築する。
- (2) 空間分布モデルの統合： 透水係数の実測値と亀裂幅，推定亀裂長さとの相関解析を行い，これをマルチスケールの亀裂分布モデルに取り入れることで，より詳細な透水係数の空間分布モデルを作成する。さらに，主要地質・物性・充填鉱物の種類の空間分布モデルを重ね，水質のクラスター分析・湧水量・年代値も考慮することで「水みち」を抽出する。
- (3) 浸透流のシミュレーション解析： 地下水流動，物質移行，水質形成という重要課題の解決に向けて，(2)で構築した透水係数の空間分布モデルを応用し，広範囲の浸透流シミュレーションを行う。これにより流れ形態のパターンと時間的変化を明らかにする。

【研究成果の公表】

<論文>

- 1) 小池克明, 劉 春学 (2007) スケール則を考慮した空間分布推定法と多孔質材料の空隙分布シミュレーションへの応用, 情報地質, vol. 18, no. 3, pp. 159-175. (査読有)
- 2) Koike, K., Liu, C., and Sanga, T.: Incorporation of fracture directions into a 3D geostatistical simulation for a rock fracture system, *Mathematical Geology* (2007年11月投稿, 査読中).
- 3) Liu, C., Koike, K., and Sanga, T. (2007) 3D simulation of rock fracture distribution by GEOFRAC with an application to granitic rocks of oil storage station, *Proceedings of IAMG' 07- Geomathematics and GIS Analysis of Resources, Environment and Hazards*, Beijing, China, pp. 583-586. (査読有)
- 4) Liu, C. Koike, K., and Amano, K. (2007) Integrated regional modeling of geologic structures and rock properties using borehole data set for the Tono granitic area, *Proceedings of 5th International Workshop on Earth Science and Technology*, Fukuoka, Japan, pp. 157-162. (査読有)

<国内会議>

- 1) 吉田博明・末次健太・吉永 徹・小池克明 (2007) 活断層表層での放射性核種濃度の空間分布, 情報地質, vol. 18, no. 2, pp. 148-149.
- 2) 小池克明・劉 春学 (2007) ボーリングデータを用いた地質構造・物性の広域的空間モデリング: 東濃地域における亀裂分布に注目したケーススタディ, 資源・素材 2007(名古屋)企画発表・一般発表(A)(B)講演資料, pp. 273-274.
- 3) 小池克明・劉 春学・天野健治・栗原 新 (2008) 透水性構造抽出のための亀裂分布モデリング, 資源・素材学会春季大会講演集(1)資源編, 企画-81~82.

<国際会議>

- 1) Koike, K., Liu, C., Amano, K., and Kurihara, A. (2008) Multi-scale modeling of rock fracture distributions for characterizing hydraulic properties, *Abstracts of 33<sup>rd</sup> International Geological Congress (IGC) - Oslo, Norway*, session MAG-05 (口頭発表として受理済み).

2.4.4 先行基礎工学研究に関する平成19年度研究概要報告書

研究協力テーマ	低温領域における熱履歴解析に関する基礎研究										
研究協力課題	(U-Th)/He年代測定システムの構築と地質試料への適用に関する研究 Development of the (U-Th)/He dating system and application for geological samples										
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="3">京都大学大学院理工学研究科 田上 高広 防災科学技術研究所 固体地球研究部門 山田 隆二</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="3">地層処分研究開発部門 東濃地科学研究ユニット 自然事象研究グループ 梅田 浩司, 花室 孝広, 山田 国見</td> </tr> </table>			大 学 側	京都大学大学院理工学研究科 田上 高広 防災科学技術研究所 固体地球研究部門 山田 隆二			機 構 側	地層処分研究開発部門 東濃地科学研究ユニット 自然事象研究グループ 梅田 浩司, 花室 孝広, 山田 国見		
大 学 側	京都大学大学院理工学研究科 田上 高広 防災科学技術研究所 固体地球研究部門 山田 隆二										
機 構 側	地層処分研究開発部門 東濃地科学研究ユニット 自然事象研究グループ 梅田 浩司, 花室 孝広, 山田 国見										
研究実施場所	東濃地科学センター質量分析室 京都大学理学部地質学鉱物学教室年代学実験室, 同鉱物分離室										
通算研究期間 (予定)	平成18年6月 ~ 平成21年3月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成19年5月 ~ 平成20年3月								
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究										
【研究目的】											
<p>(U-Th)/He年代測定システムを構築し、地質試料に対して測定手順や年代較正法等を確立することにより、第四紀の非火山地帯の熱水活動や断層活動等に伴う低温領域(100℃程度まで)での熱的イベントを対象とした熱履歴解析を行うことが可能となる。本システムの実用化により、過去の天然現象が生じた時期や地質環境に及ぼす影響の程度が精度良く把握でき、地層処分における地質環境の長期安定性を評価するうえで不可欠な情報を得ることができる。</p>											
【研究内容(概要)】											
<p>(U-Th)/He法は、1990年代後半にカリフォルニア工科大学で開発された手法であるが、特にレーザーを用いた分析については2001年に開発された新しい定量手法であることから、日本ではまだ実用化に至っていない。本共同研究では、原子力機構が保有する希ガス質量計にレーザー溶解装置を含む前処理ラインを導入した年代測定のシステムを構築して、微小なヘリウムの定量を行う。また、国際標準試料を用いて、年代値の較正法等を確立する。</p>											
【使用主要施設】											
<table border="0"> <tr> <td>原子力機構東濃地科学センター</td> <td>質量分析室 ((U-Th)/He年代測定システム)</td> </tr> <tr> <td></td> <td>機器分析室 (ICP-MS)</td> </tr> <tr> <td>京都大学理学部地質学鉱物学教室</td> <td>年代学実験室 (VG3600質量分析計)</td> </tr> <tr> <td></td> <td>鉱物分離室</td> </tr> </table>				原子力機構東濃地科学センター	質量分析室 ((U-Th)/He年代測定システム)		機器分析室 (ICP-MS)	京都大学理学部地質学鉱物学教室	年代学実験室 (VG3600質量分析計)		鉱物分離室
原子力機構東濃地科学センター	質量分析室 ((U-Th)/He年代測定システム)										
	機器分析室 (ICP-MS)										
京都大学理学部地質学鉱物学教室	年代学実験室 (VG3600質量分析計)										
	鉱物分離室										
【進捗状況(当該年度までの概要)】											
<p>平成18年度は、希ガス質量分析装置とヘリウム抽出用レーザー加熱装置等について、装置の修理や改良を進めた。また、これを用いて、抽出条件の決定と定量測定に関するパラメータの決定作業を実施した。</p> <p>平成19年度は、引き続きヘリウム定量法の改善を進め、標準試料の年代測定を行った。</p>											

【研究成果（当該年度）】

・ヘリウム抽出時の温度制御の動的自動化

18年度までの成果として、実際の試料を用いた抽出実験の結果レーザーの出力を15Aで固定した静的な温度制御を採用した。しかし、同じく18年度に導入したファイバー式赤外線温度計によれば、これはジルコンからのヘリウム抽出を行う際の一般的な条件である1300℃に及ばないことが明らかになった。このため、PID式の温度コントローラーを導入して、レーザーの出力を動的に自動制御するように装置の改良を行った。改良後の出力は、1300℃の設定時に15-20A程度で制御されている。

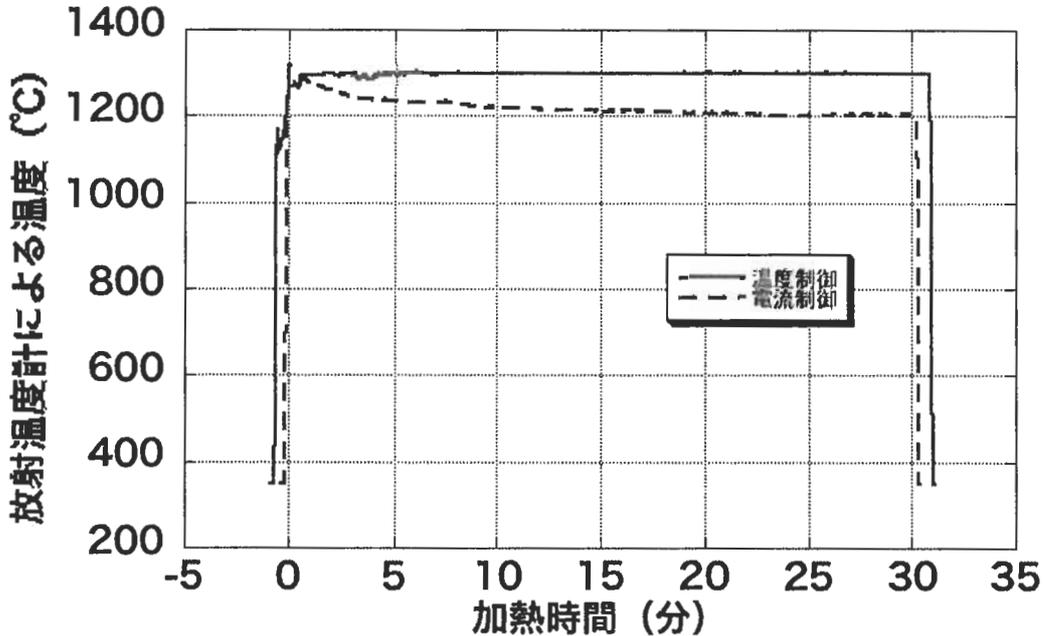


図1. 15A加熱（破線）と動的制御加熱（実線）の温度-時間曲線

・サンプルホルダーのウィンドウ改良

ヘリウム測定時のブランク低下のため、ビューポートの材質を熔融石英から人工サファイアへと変更した。サファイアは石英に比べてレーザーの透過率が低いため、ウィンドウ表面には反射防止処理を行った。これにより、ホットブランクは0.1fmolオーダー程度となった。これは、結晶の大きさにも依存するが、1Ma程度の年代を持つジルコン粒子中に含まれるヘリウムを十分に精度良く測定できることを意味する。

・ヘリウム測定手順の決定

試料の加熱によって真空系内に放出されるガスはヘリウムのみではないため、質量分析計に導く前に精製を行う必要がある。これと質量分析計のダイナミックレンジとの関係から、抽出されたガスを実際に質量分析計で測定するためのガスの希釈・精製手順を決定した。通常測定に用いる結晶の年代/ウラン濃度の範囲であれば二次電子増倍管による高感度測定であってもダイナミックレンジが振り切れるということがないようにガスの希釈率を設定し、測定手順は比較的単純で誤操作の恐れのない手順とした。

・標準試料の年代測定

以上の手法により、年代標準試料として国際的に広く用いられる Fish Canyon Tuff 試料についてヘリウム量を定量し、さらにウラン・トリウム定量と形状補正を行って年代値を得た。ウラン・トリウム測定に大きな標準誤差を含むこともあったが、年代の中心値はおおむね妥当なものであり、ヘリウム定量に関しては精度・確度とも一定の成果を得た。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】—

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

【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 山田国見、花室孝広、田上高広、山田隆二、梅田浩司(2007); 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 年大会

<国際会議>

- 1) K.Yamada, T.Hanamuro, T.Tagami R.Yamada and K.Umeda (2007); Results from the (U-Th)/He dating systems in Japan Atomic Energy Agency, 2007 AGU Fall Meeting

## 2.4.5 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	断層帯の影響を考慮した地下水の流動解析		
研究協力課題	断層帯及び亀裂を考慮した堆積岩地盤の水理学的構造の決定と地下水の移動解析 Determination of hydraulic-property structures of a sedimentary basin considering fault and fracture zones and underground fluid-flow analysis		
研究者所属, 氏名			
大学側	広島大学大学院理学研究科 嶋本 利彦 京都大学大学院工学研究科 上原 真一		
機構側	地層処分研究開発部門 堆積岩地質環境研究グループ 舟木 泰智		
研究実施場所	広島大学大学院工学研究科 地球惑星システム学専攻 京都大学大学院工学研究科 都市環境工学専攻 幌延深地層研究センター		
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 6 月 ~ 平成 21 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 19 年 7 月 ~ 平成 20 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>幌延地域をモデルとして、地下の流体移動を解析するために必要な地下の水理学的構造を決定し、当地域地下深部における長時間スケールの流体移動を解析する。全層序から採取したサンプルの水理学的性質を測定することによって、堆積岩の性質の多様性と長期的なセメンテーションの効果を経験的に評価する。また、断層帯と亀裂の影響を含めて水理学的構造を決める。</p>			
【研究内容 (概要)】			
<p>堆積岩の浸透率・間隙率・比貯留率・Skempton 定数などの水理学的性質を、地下深部条件を再現した室内測定により見積もる。全層序から採取したサンプルを測定し、堆積岩の岩質の多様性と長期的なセメンテーションによる水理学的性質への効果を、経験則に基づき評価する。また、断層帯と亀裂の影響を含めて水理学的構造を決めることは、本研究の中心的課題である。そのために、サンプルを用いた室内測定の結果とボーリング孔を用いた現位置透水試験の結果を比較して評価し、様々な深度条件下で測定した室内試験の結果とある深度における現位置試験の結果を相補的に活用する。堆積岩は圧密やセメンテーションの進行とともに固結して流体を通しにくくなるが、間隙が少なくなると、堆積岩でも断層帯や破断面沿いに流体が通りやすくなる。本研究代表者（嶋本，2004，2005）は、両者の中間、つまり圧密が十分に進行して流体が通りにくくなるとともに、断層帯や亀裂面沿いにも流体が容易には移動しにくい状態において、堆積岩が「最大シール能力」をもつことを提唱した。本研究の骨格は、この「最大シール能力」という概念を適用して多孔質堆積岩の流体移動に関わる特徴を浮き彫りにし、どのような堆積岩がいかなる条件下で最大のシール能力をもつかを決定することである。</p>			
【使用主要施設】			
広島大学：高圧三軸容器内変形透水試験機			

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

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

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

平成 19 年度は、前年度に引き続き、北海道幌延地域における新第三紀堆積岩（主に稚内層、声問層、勇知層）について、健岩部の試料および断層ガウジ・断層角礫等の試料を用いた高圧室内水理試験により、健岩部および断層帯の水理特性を検討した。また、得られた室内試験の結果と原位置試験の結果を比較し、室内試験に基づいて原位置での水理特性を評価可能か否かについて検討した。

健岩部における間隙率と浸透率の関係については、水銀ポロシメータによる空隙構造の測定データも参照しつつ検討した。

## 【研究成果（当該年度）】

本年度は、主に以下に述べる項目を実施した。

## 1. 室内試験による健岩部の水理特性の把握

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

同一の試料から採取した供試体について、浸透率測定試験と間隙率測定試験を別々に実施することによって、同様の測定条件における浸透率と間隙率の関係について検討した。浸透率の対数を間隙率の関数としてグラフ上にプロットすると、同一の堆積岩からの試料はほぼ同様の傾きを示すとともに、得られた結果は Kozeny-Carman の関係で説明できることがわかった。また、既存の水銀ポロシメータによる空隙径分布の測定データと比較することによって、試料間の違いが空隙構造（空隙径分布）で説明できる可能性が示された。

## 2. 断層破碎帯の水理特性の把握

ボーリングコア試料および地表面から採取した声問層および稚内層内の断層破碎帯の試料について、1. で述べたものと同様の浸透率測定試験を行った。試料採取の際、可能である箇所については、銅チューブを岩石につきさすことによって定方位試料を採取し、供試体を作成した。この手法が困難な場合は、不定形の試料を実験室で円柱形に成型することによって供試体を作成した。

ここで得られた結果と 1. の結果をあわせて、原位置試験の結果と比較した。今回の室内試験結果では、声問層および稚内層のいずれにおいても、断層破碎帯試料は健岩部試料に対して数桁大きな浸透率を示した。また、原位置試験の結果は、それらの間に分布した。このことは、室内試験によって、原位置における水理特性の概観が把握できる可能性を示していると考えられる。

## 【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 20 年度は、前年度に引き続き、北海道幌延地域における新第三紀堆積岩（主に稚内層、声間層、勇知層、増幌層、鬼志別層）を対象として、健岩部の試料、破断した試料、断層ガウジ・断層角礫等の試料を用いた高圧室内水理試験により、断層帯の水理特性（浸透率・間隙率など）についての検討を行う。とくに、健岩部および破碎帯部試料について、三軸応力条件下で軸変形を加えた水理特性試験を行い、変形作用とせん断帯の構造変化（局所化する・しない）に伴う水理特性の変化を重点的に調べる予定である。また、圧力変化のみならず温度の影響を評価するとともに、流体を二相流に拡張すること、および岩石の弾性波速度と水理学的性質の関連性についても検討を進める。さらに、室内試験の結果と原位置透水試験の結果を総合して地下浸透率・間隙率構造をモデル化し、それに基づく地下深部流体の挙動解析を試みる。それらの結果を総合し、報告書として取りまとめる予定である。

## 【研究成果の公表】

## ＜論文＞

- 1) Uehara, S., Shimamoto, T., Kurikami, H., Niizato, T., Funaki, H., Ohnishi, Y., Permeability/porosity structures and fluid-flow analyses of the Neogene sedimentary basin of Horonobe area, northern Hokkaido, Japan; (1) Fluid transport properties of intact rock. (*Int. J. Rock Mech. Min. Sci.* に投稿準備中)
- 2) Uehara, S., Shimamoto, T., Funaki, H., Kurikami, T., Niizato, H., Ohnishi, Y., Permeability/porosity structures and fluid-flow analyses of the Neogene sedimentary basin of Horonobe area, northern Hokkaido, Japan; (2) effects of fault and fracture zones on fluid transport properties. (*Int. J. Rock Mech. Min. Sci.* に投稿準備中)

## ＜国内会議＞

- 1) 上原真一，嶋本利彦，操上広志，舟木泰智，大西有三：北海道幌延地域における新第三紀および第四紀堆積岩のガス浸透率および間隙率の応力履歴依存性に関する実験的研究，日本地球惑星科学連合 2007 年大会，2007 年 5 月 千葉
- 2) 上原真一，嶋本利彦，操上広志，新里忠史，舟木泰智，大西有三：室内試験結果を用いた新第三紀および第四紀堆積岩の浸透率および間隙率の深度分布の推定－北海道幌延地域を例として－，平成 19 年度土木学会全国大会第 62 回年次学術講演会，2007 年 9 月 広島
- 3) 上原 真一，嶋本 利彦，舟木 泰智，松本 拓真，操上 広志，新里 忠史，大西 有三：北海道北部幌延地域の新第三紀堆積岩に関する室内試験からの透水特性と原位置試験結果の比較，日本地球惑星科学連合 2008 年大会，2008 年 5 月 千葉（予定，投稿済み）

## ＜国際会議＞

- 1) Uehara, S., Shimamoto, T., Kurikami, H., Niizato, T., Funaki, H., Ohnishi, Y., Estimation of porosity and permeability as a function of depth in Neogene and Quaternary sedimentary basin at Horonobe, Hokkaido, Japan, based on laboratory tests, EIT-JSCE Joint Seminar on Rock Engineering 2007, Bangkok, Thailand, September 17, 2007.
- 2) S. Uehara, T. Shimamoto, Y. Ohnishi, Estimation of Permeability/Porosity Structures of the Neogene Sedimentary Basin based on Laboratory Tests. The 12th International Symposium on Recent Advances in Exploration Geophysics, Kyoto, Japan, 17 January, 2008.
- 3) K. Okazaki, S. Uehara, T. Shimamoto, H. Funaki, H. Kurikami, T. Niizato, Y. Ohnishi, Hydraulic property of the Neogene sedimentary rocks of Horonobe area, northern Hokkaido, Japan, Fifth Annual Meeting of the Asia Oceania Geosciences Society, Busan, Korea, June 16-20, 2008.
- 4) S. Uehara, T. Shimamoto, H. Funaki, H. Kurikami, T. Niizato, Y. Ohnishi, Comparison of laboratory-measured permeability with in-situ measurements of hydraulic conductivity for the Neogene sedimentary rocks of Horonobe area, northern Hokkaido, Japan, Fifth Annual Meeting of the Asia Oceania Geosciences Society, Busan, Korea, June 16-20, 2008.

2.4.6 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	岩石，鉱物，地下水に関する微視的領域における地球化学的研究								
研究協力課題	堆積岩の微視的性状把握と水-岩石反応実験による地球化学特性の解明 Geochemical microanalysis of minerals, rocks and groundwater: modeling the elemental behavior in sedimentary rocks by microstructural and microgeochemical analysis and rock-water interaction								
研究者所属、氏名	<table border="1"> <tr> <td>大 学 側</td> <td colspan="2">筑波大学生命環境科学研究科講師 小室光世 生命環境科学研究科 4 年 鈴木伸哉, 2 年 矢口昌 慶応義塾大学理工学部応用化学科教授 鹿園直建 函館工業高等専門学校物質工学科教授 水上正勝, 助手 大森幸子 物質工学科 5 年 石本彩, 5 年 上田比奈子, 5 年 藤田弘人 東京学芸大学教育学部教授 中田正隆, 准教授 佐藤公法, 講師 小坂知己 三菱マテリアル資源開発(株) 富山真吾, 小泉由起子</td> </tr> <tr> <td>機 構 側</td> <td colspan="2">地層処分研究開発部門 幌延深地層研究ユニット 堆積岩地質環境研究グループ 國丸貴紀, 舟木泰智</td> </tr> </table>			大 学 側	筑波大学生命環境科学研究科講師 小室光世 生命環境科学研究科 4 年 鈴木伸哉, 2 年 矢口昌 慶応義塾大学理工学部応用化学科教授 鹿園直建 函館工業高等専門学校物質工学科教授 水上正勝, 助手 大森幸子 物質工学科 5 年 石本彩, 5 年 上田比奈子, 5 年 藤田弘人 東京学芸大学教育学部教授 中田正隆, 准教授 佐藤公法, 講師 小坂知己 三菱マテリアル資源開発(株) 富山真吾, 小泉由起子		機 構 側	地層処分研究開発部門 幌延深地層研究ユニット 堆積岩地質環境研究グループ 國丸貴紀, 舟木泰智	
大 学 側	筑波大学生命環境科学研究科講師 小室光世 生命環境科学研究科 4 年 鈴木伸哉, 2 年 矢口昌 慶応義塾大学理工学部応用化学科教授 鹿園直建 函館工業高等専門学校物質工学科教授 水上正勝, 助手 大森幸子 物質工学科 5 年 石本彩, 5 年 上田比奈子, 5 年 藤田弘人 東京学芸大学教育学部教授 中田正隆, 准教授 佐藤公法, 講師 小坂知己 三菱マテリアル資源開発(株) 富山真吾, 小泉由起子								
機 構 側	地層処分研究開発部門 幌延深地層研究ユニット 堆積岩地質環境研究グループ 國丸貴紀, 舟木泰智								
研究実施場所	筑波大学生命環境科学研究科及び分析センター, 慶応義塾大学理工学部応用化学科, 函館工業高等専門学校物質工学科, 東京学芸大学教育学部地学科各実験室								
通算研究期間 (予定)	平成 18 年 10 月 ~ 平成 21 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 19 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月						
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究								
<p><b>【研究目的】</b></p> <p>高レベル放射性廃棄物の地層処分システムの性能評価における重要な課題として、変動帯に位置する我が国で突発的な地質イベントの影響も含めた長期間の評価体系を確立することに加え、地質環境（天然バリア）における物質移行プロセスを的確にモデル化することがあげられる。しかしながら、天然の地質環境は、岩体や地層により化学組成、鉱物組成、空隙の分布様式が異なることに加え、これらが様々なスケールで不均質性を有し、さらには断層、破碎帯、節理、割れ目も様々なスケールにわたって発達するため、概念的な地質環境モデルを具体化する際、どのようなスケールの性状まで考慮するかはこれまでの知見では難しい課題であった。また、堆積岩における物質移行に関与する地下水の経路は、微小な空隙に加えて断層、破碎帯、節理、割れ目が考えられる。さらに、移行経路には、堆積岩の構成鉱物に加えて割れ目に形成された鉱物も露出するので、実際にどのような岩石-水反応が卓越し、また、関与するのは明らかではない。これらの問題を解明するには、天然における地質環境特性のデータを精度よく取得できるフィールドにおいて、地質環境、岩石、鉱物の様々なスケールにおける解析や、調査、理論解析、モデル化に加えた実験的検討を行い、どのようなスケールにおける不均質性まで考慮に入れるか検討する必要があると考えられる。</p> <p>天然の堆積岩を対象に、露頭観察のような巨視的スケールから電子顕微鏡や原子間力顕微鏡による微視的スケールに至る様々な観察、解析を行うことは、多様かつ不均質な地質環境、岩石、鉱物の界面や空隙の性状の解明が期待される。また、実際の岩石、鉱物を用いた水-岩石-微生物反応実験は、理論（平衡論、物質移動論、反応速度論）と天然調査結果の相違や、反応機構、さらにはどういった鉱物が重要な役割を果たすかの解明が期待される。</p> <p>(独)日本原子力研究開発機構（以下、原子力機構）が北海道幌延町で実施している幌延深地層研究計画で実施している地下水の地球化学特性調査では、広域的な地下水水質の 3 次元的な分布を把握してきた。本研究では、微視的領域における岩石-水反応や酸化還元境界に関する情報を正確に把握するために必要な調査、研究手法を確立することを目的とする。具体的には、堆積岩を対象に岩石・鉱物学的な調査手法を適用し、微視的領域の地球化学特性を把握し、酸化還元境界に関する検討を行う。さらに、微視的領域で生じる岩石-水反応についての検討を行う。</p>									

## 【研究内容（概要）】

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

（堆積岩の微視的観察、分析、解析）

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

## 【使用主要施設】

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

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

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

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

平成 19 年度（本年度）は、①堆積岩の岩石鉱物学的地球化学的性状把握としては、泥質岩の光学顕微鏡観察、電子顕微鏡観察、化学分析を、試料の酸化分解、変質しないよう注意しつつ継続した。②堆積岩の空隙および界面の微視的性状把握としては、空隙分析、SEM 観察、原子間力顕微鏡による観察、評価を本格的に実施した。空隙分析としては、各試料の空隙の陽電子消滅法、水銀圧入法、X 線小角散乱法による測定を終了した。陽電子消滅法は、マクロスコーピックなく空隙を測定できる wet な状態での測定も実施した。③堆積岩の長期的イオン交換能力、酸化還元保持能力の把握としては、イオン交換能の測定、淡水、海水と堆積岩の様々な系での温度 (0-300℃)、酸化還元環境を制御した反応実験を行い、反応溶液の分析を行った。ま

た、還元条件を維持するため、様々な還元剤を用いた検討もすすめた。④界面反応の地下水地球化学組成や物質移行への影響の解明としては、粉末試料とともにチップ試料など岩石の性状を変化させた様々な系での水-岩石反応実験を行い、水-岩石反応実験後の試料の空隙の分析や観察も実施した。⑤地下水化学組成の成因としては、各種実験の結果と機構で取得した地下水組成や同位体比分析結果をあわせて速度論、熱力学的計算を実施した。結果については、関係学会ならびに中間報告会で報告した。

進捗状況としては、界面の性状評価は若干遅れていること、空隙の分析や水-岩石反応実験は計画よりも若干進んでいることなど項目により差異はあるものの、基本的に当初計画通りに進んでいる。各種分析における試料の前処理や保存が天然状況と対応しているかどうか、例えば、岩石が酸化されたり、乾燥などでクラックが生じたり、真空引きによりクラックが生じたり、といった試料の保存や処理に伴う問題で苦慮している。こういった問題についてきちんと認識し、現状の手法の範囲で随時工夫しつつ実験をすすめている。

### 【研究成果（当該年度）】

主要な結果を示す。①堆積岩の岩石鉱物学的地球化学的性状把握としては、光学顕微鏡、電子顕微鏡観察、化学分析を継続した。ICP-MSによる微量元素化学分析では、ほとんどの試料において平均頁岩よりも各元素濃度が乏しい。酸化還元に鋭敏な元素群も濃度が低く、また存在状態も明確ではないので、酸化還元の指標として設定することは困難であると考えられる。また、いくつかの試料では、大気開放環境下での変化、変質が著しく、肉眼では色の変化とクラックの発生が、顕微鏡下では鉱物の変化変質とクラックの発生が認められた。主に、脱水による収縮や鉄硫化鉱物の酸化分解に起因しており、これらを防ぐ工夫を随時行う必要がある。

②堆積岩の空隙および界面の微視的性状把握としては、SEM観察、原子間力顕微鏡による観察、評価を本格的に実施し、空隙分析では各試料の空隙の陽電子消滅法、水銀圧入法、X線小角散乱法による測定を行った。SEM観察、原子間力顕微鏡による観察では、試料表面のラフネスが大きく亀裂に発展する空孔やマイクロボイドの微視的観察が出来ない等の昨年度明らかになった問題点を踏まえ、研磨した岩石表面での観察を行った。研磨することは組織を機械的に破壊するため、水-岩石界面での反応を考える上では必ずしも適切ではないが、ボイドのサイズや分布について考察することを目的として観察を実施した。図1(a)~(e)は、レーザー顕微鏡で観察した試料の高さ3D表示である。測定視野は、すべて128x96 $\mu\text{m}$ で行った。図中で黒い部分が高さの低い部分である。深度55mで観察された数十 $\mu\text{m}$ のサイズを持つ大きなボイドは、深度450m以下ではほとんど検出されないことがわかる。図1(d), (e)から深度875, 951mの試料には、数ミクロンの細孔が多数存在する。これらの細孔が透水経路として働く岩石固有の細孔であるか、研磨等で生成した凹凸であるかは、プローブの径やZ方向の測定深度の関係、水銀圧入法などの結果と総合的に判断する必要がある。図2は、AFMによる研磨面の測定結果である。図中には直線で示した表面上をプローブでスキャンした場合の凹凸のプロファイルもそれぞれ示した。このプロファイルによるとレーザー顕微鏡観察で深い細孔と推察された凹部も深さ数百nmの閉じた穴であることがわかる。表面上には傾斜角度数十度の急峻な凹部も観察された。海水やコロイドなどが共存する環境での界面反応を観察するには、化学組成や表面構造の詳細について知る必要があり、試料作製法や測定技術の空間分解能などの改善が更に必要と考えられる。

空隙分析としては、水銀圧入法、窒素ガス吸着法、X線小角散乱法といった空隙計測手法によって幌延試料中の空隙を評価し、平成18年度検出に成功した陽電子消滅寿命測定法によるマイクロ孔との比較検討を行った。図3に、サンプルHDB-11: 273mについて陽電子消滅法(赤)、X線小角散乱法(黒)、窒素ガス吸着法(青)、水銀圧入法(緑)によって得られた空孔径分布を示す。HDB-11: 273m中の空隙が、マイクロ孔領域、メソ孔領域、マクロ孔領域、マイクロクラックと広範囲な領域で分布していることがわかる。水銀圧入法と窒素ガス吸着法によって対象となる空孔の形態が表面に連結した空孔(開放型空孔)であることに対して、陽電子消滅法とX線小角散乱法による対象は閉鎖型空孔である。したがって、多種多様な形態、サイズ領域で空隙が分布していることが推測できる。陽電子消滅法によって得られた空孔径分布は0.3nmに、X線小角散乱法によるものは7nmに、窒素ガス吸着法によるものは40nmに、水銀圧入

法によるものは 160 nm に空孔径分布のピークを示した。マイクロ孔領域に分布する空孔が、陽電子消滅法によってのみ検出できていることがわかる。他の深さのサンプルについて空孔サイズ分布を得ることは次年度の課題とする。

陽電子消滅法による深さに対するナノ空孔平均検出量と平均サイズを図 4 に示す。試料をウェットな状態で測定したところ、横一線な平均ナノ空孔径と検出量が得られた(黒)。ともに深さ依存性を示さなかった。これは、陽電子が水分子と反応しているためである。陽電子にとって水分子は自由度が高く、陽電子自身が局所的に安定な場所を作り、そこで消滅することが予想される。そのため、深さに対して依存性を示さず、一律なナノ空孔径、検出量を示したものと考えられる。110度で12時間熱処理乾燥させたものについて陽電子寿命計測を行ったところ、深さに対して依存性が出てきた(赤)。ナノ空孔径は深さとともに減少し、273 m にピークを示して上昇する傾向を示した。検出量はナノ空孔径と対照な振舞いを示し、深さと共に上昇し、273 m にピークを示して減少した。273 m は淡水系と海水系の境界である。深度 273 m までの淡水系の領域では、空隙が深度と共に微細化する圧密の効果で説明できる。深度と共に微細化する空隙から水分が除去されたため、結果として実効的なナノ空孔径は減少し、検出量は増加したと思われる。深度が 273m 以深で実効的なナノ空孔サイズが増加していること及び検出量が減少していることは、微細な領域で空隙が減少していると考えたと説明することができる。次年度の課題として、高時間分解能計測を遂行することにより、空孔径分布の深さ依存性を調べ、微細領域での振舞いを詳細に考察する予定である。

③堆積岩の長期的イオン交換能力、酸化還元保持能力の把握としては、イオン交換能の測定、淡水、海水と堆積岩の様々な系での温度、酸化還元環境を制御した反応実験を行った。イオン交換能の測定としては、アンモニア抽出によりイオン交換性陽イオン ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Sr}^{2+}$ ) 濃度の測定を行った。その結果、岩石採取深度により交換性イオン濃度にかかなりの差が見られた(図 5)。常温における水—岩石比、海水—淡水比を変化させた系の実験の K, Ca 濃度の変化を図 6 に示す。天然の地下水組成の多くは、実験で得られた直線より右下の領域にプロットされる。この原因については、今後、天然の地下水流動系と実験結果を総合的に解析し明らかにしたいと考えている。幌延堆積岩類と人工海水を Barnes-type 熱水反応装置を用いて常温~300℃、水蒸気圧下で2週間反応させた実験では、幌延堆積岩は 200℃まではほとんど変化が無く、300℃、8.5MPa の条件下でもほぼ安定であることが明らかとなった。300℃の結果を図 7 に示す。さらに、圧力が水質に及ぼす影響を検討する目的で、常温・高圧(10MPa)で岩石を水と反応させたが、低圧の条件下での実験結果と大差なかった。このことから、深度 1000m 付近における水—岩石相互作用は圧力の影響をほとんど受けないことが明らかとなった。酸化還元を制御する実験は、昨年度の基本的な実験で黄鉄鉱の溶解に起因する酸性化が顕著であることを踏まえ、様々な還元剤を検討した。Ar ガス抜気、 $\text{N}_2$  ガス抜気、 $\text{H}_2$  ガス抜気、Al 添加、Fe 添加、Mg 添加を試みたが、Mg 以外全ての系で酸性化し、黄鉄鉱が酸化したことに起因すると考えられる。今後、C、フミン酸、触媒などの検討が必要であるが、錯体形成、吸着性能の問題があり、現時点でこういった実験による評価が妥当であるか、還元剤の影響も評価しつつ検討していく。なお、現時点での実験結果は、黄鉄鉱の酸化が pH の低下引き起こし、それに伴って鉱物の溶解が促進される傾向を示す(図 8)。この傾向は海水系と比較して、淡水系で顕著で、炭酸水素イオンの関与が重要な役割を果たしているものと考えられる。

④界面反応の地下水地球化学組成や物質移行への影響の解明としては、粉末試料とともにチップ試料など岩石の性状を変化させた様々な系での反応実験を行った。その結果、HDB-11,271 m の試料では岩石の形状や粒径によらず溶液の組成は大きな変化が認められないのに対し、HDB-11,624 m の試料では岩石の形状や粒径に顕著に依存する。このことは、岩石の初生的な固結状況や空隙の分布様式によって、水—岩石反応の状況が顕著に異なることを示唆する。水—岩石反応に伴う界面の状況変化としては、熱水環境の実験では顕著なスメクタイトの形成など鉱物相の変化が観察された。火成岩(昭和新山石英安山岩)、深成岩(東濃花崗岩)、堆積岩(凝灰岩)と変質の程度を比較した結果、花崗岩の変質速度は最も早く、火山岩はやや不安定であり、堆積岩(凝灰岩)は最も安定で熱水の影響を受けにくい(図 9)。

⑤地下水化学組成の成因としては、ボーリング調査で得られた地下水(19 試料)の水質データを用いて、水質型による分類、多変量解析による端成分の寄与率の定量化、地球化学計算による pH と酸化・還元電位の予測計算を行った。ヘキサダイアグラムによる水質分類では、地表面から浅部にかけて存在する水素・酸素同位体比の小さな淡水系地下水と、地下深部に存在

する同位体比の大きな海水塩水系地下水に大きく区分することができる。これら地下水は、深度に応じて溶存成分濃度と同位体比が漸移的に変化することから、地層堆積時に取り込まれた海水（化石海水）へ地表から涵養した降水が混合し、化石海水が希釈されているものと考えられる。幌延における深地層研究幌延深地層研究計画で実施したボーリング調査では、連続したモニタリングを実施しており、地下水の酸化・還元電位データが取得されている。地下水の溶存成分と鉄鋳物-水反応のそれぞれに着目した地球化学計算により pH と酸化・還元電位を推定した。地球化学計算の対象とした地下水試料は、平成 18 年度研究で取り扱った淡水系地下水（HDB-8 孔の深度 170m 付近から採取）と塩水系地下水（HDB-4 孔の深度 400m 以深から採取）に HDB-11 孔の深度 200m 付近から採取した塩水系地下水を加えた。地球化学計算による pH と酸化・還元電位の予測結果と実測値を比較したところ、淡水系地下水では鉄鋳物-水反応に着目した予測値が実測値に類似し、塩水系地下水 2 試料では溶存成分からの予測値が実測値に類似した。これからこのことから、混合の端成分である淡水系地下水の水質形成酸化・還元電位に関して、鉄鋳物-水反応が支配している可能性が考えられる。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 20 年度は、最終年次となるので、これまでの成果を踏まえ、下記の本格的な実験および成果のとりまとめを行う予定である。基本的に当初計画通りの各種の実験の継続実施を予定している。なお、当初小坂担当分の研究は佐藤が実施する。

①堆積岩の岩石鋳物学的地球化学的性状把握

泥質岩の光学顕微鏡観察、電子顕微鏡観察、化学分析を継続する。サンプリングより試料の酸化分解を注意して取り扱った試料についても観察、分析を実施する。

②堆積岩の空隙および界面の微視的性状把握

空隙分析、原子間力顕微鏡による観察、界面の反応性の分析、評価を継続する。

③堆積岩の長期的イオン交換能力、酸化還元保持能力の把握

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

④界面反応の地下水地球化学組成や物質移行への影響の解明

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

⑤地下水化学組成の成因

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

⑥総合解析

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

## 【研究成果の公表】

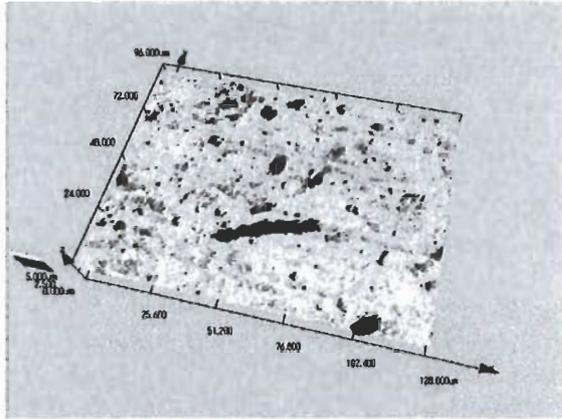
## &lt;論文&gt;

- 1) Zakir, H. M. and Shikazono, N. (2008) Zinc Pollution Level in Sediments of Old Nakagawa River, Tokyo, Japan. American Institute of Physics, 46-49. 査読あり.
- 2) Otomo, K. and Shikazono, N. (2008) Characteristic of soils and Behavior of Hexavalent Chromium in Soil-Water Interaction. American Institute of Physics, 62-65. 査読あり.
- 3) Zakir, H. M. and Shikazono, N. (2008) Assessment of Pollution in Lower Torag River in Bangladesh. American Institute of Physics, 86-90. 査読あり.
- 4) Zakir, H. M. and Shikazono, N. (2008) Metal fraction in sediments: a comparative assessment of four sequential extraction schemes. Journal of Environmental Science for Sustainable Society, 2, 1-12. 査読あり.
- 5) 鹿園直建・瀧野昌嗣・大谷晴啓 (2007) 土壌構成鉱物の化学風化, 溶解速度と元素移動度—神奈川県秦野市黒ぼく土の例—. 地質学雑誌, 113, 593-610. 査読あり.
- 6) 星野隆行・鹿園直建 (2007) 神奈川県秦野地域の土壌水、河川水の湧水水質に与える影響について. 地下水学会誌, 49, 205-233. 査読あり.
- 7) Ogawa, Y., Shikazono, N., Ishiyama, D., Sato, H., Mizuta, T. and Nakano, T. (2006) Mechanisms for anhydrite and gypsum formation in the Kuroko massive sulfide-sulfate deposits, north Japan. Mineral. Deposita, 42, 219-233. 査読あり.
- 8) Igarashi, C., Shikazono, N. and Otani, H. (2007) Geochemical behavior of rare-earth elements and other major and minor elements in sound-producing and silent beach sands in Japan. Chinese Journal of Geochemistry, 26, 35-45. 査読あり.
- 9) 富山眞吾・梅田浩司・花室孝広・高島勲・林信太郎・根岸義光・増留由起子(2007)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(4), 111-121. 査読あり.
- 10) Espi, J. O., Hayashi, K.-I., Komuro, K., Murakami, H. and Kajiwara, Y. (2008) Geology, wall-rock alteration and vein paragenesis of the Bilimoia gold deposit, Kainantu metallogenic region, Papua New Guinea. Resource Geol., 57, 249-268. 査読あり.
- 11) Okumura, T., Nishido H., Toyoda, S., Kaneko, T., Kosugi, S., Sawada, Y. and Komuro K. (2008) Evaluation of radiation-damage halos in quartz by cathodoluminescence as a geochronological tool. Quaternary Geochronology, in press. 査読あり.
- 12) 石本彩(指導教員:水上正勝, 大森幸子)(2008) 放射性廃棄物の地層処分に関する基礎研究 I—幌延堆積岩の高温熱水反応—, 函館工業高等専門学校平成 19 年度卒業論文
- 13) 上田比奈子(指導教員:水上正勝, 大森幸子)(2008) 放射性廃棄物の地層処分に関する基礎研究 II—幌延堆積岩の性状および地下水との反応—, 函館工業高等専門学校平成 19 年度卒業論文. 査読なし.
- 14) 藤田弘人(指導教員:水上正勝, 大森幸子)(2008) 堆積岩・火成岩・深成岩の高温熱水反応による安定性の比較, 函館工業高等専門学校平成 19 年度卒業論文. 査読なし.

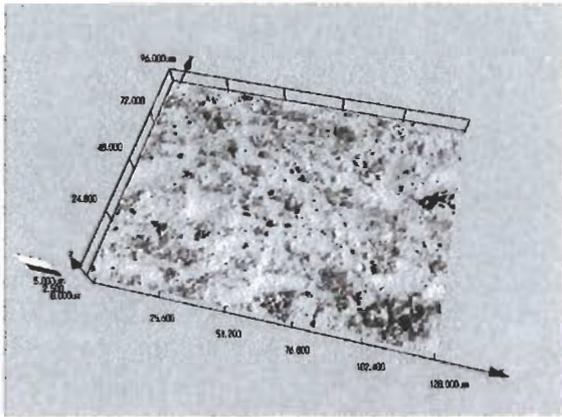
## &lt;国内会議&gt;

- 1) 齋藤京子・小室光世・林謙一郎(2007) 都市ごみ焼却灰からの元素の溶出:ボトムアッシュとフライアッシュを用いたバッチ式反応実験. 資源地質学会年会講演, P-36, 2007.6.21.
- 2) 奥村 輔・西戸裕嗣・豊田 新・小室光世・蜷川清隆(2007) CL による石英中の放射性損傷の評価. 日本地球惑星科学連合 2007 年大会, K130-022, 2007.5.19.
- 3) 矢口 昌・小室光世(2007) 新第三系層状マンガン鉱床の鉛同位体地球化学的研究. 日本地球惑星科学連合 2007 年大会, K130-P005, 2007.5.19.
- 4) 齋藤京子・小室光世・林謙一郎(2007) 都市ごみ焼却灰からの諸元素の溶出挙動:天然の水理地質環境を考慮した反応実験. 日本地球惑星科学連合 2007 年大会, Y162-P008, 2007.5.20.
- 5) 小室光世・矢口 昌・伊藤 孝(2007) 本邦第三系層状マンガン鉱床の産状, 化学組成および鉛同位体組成. 資源地質学会年会講演, O-24, 2007.6.21.
- 6) 伊藤 孝・小室光世・G. Ravizza(2007) 本邦第三系層状マンガン鉱床のオスミウム同位体組成. 資源地質学会年会講演, O-25, 2007.6.21.
- 7) 加藤泰浩・藤永公一郎・小室光世(2007) 顕生代付加体中の層状 Fe-Mn, Mn 鉱床の成因の総括的研究. 資源地質学会年会講演, O-29, 2007.6.21.
- 8) 佐藤公法・小坂知己・鹿園直建・中田正隆・小室光世(2007) 北海道幌延の堆積岩試料の陽電子を用いたマイクロ孔解析. 資源地質学会年会講演, O-31, 2007.6.21.

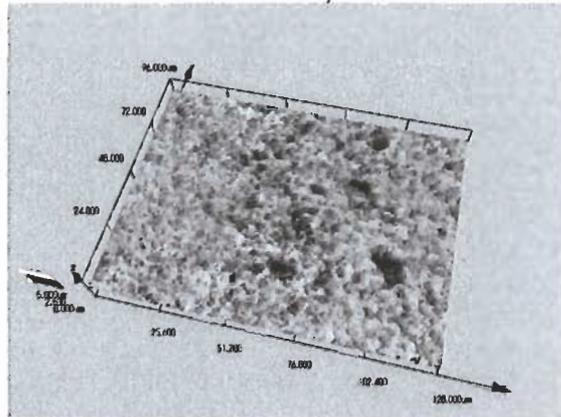
- 9) 水上正勝, 大森幸子(2007) 堆積岩の熱水反応と安定性—CO<sub>2</sub>・放射性廃棄物の地層処分観点から—. 資源地質学会年会講演, O-32, 2007.6.21.
- 10) 矢口 昌・小室光世・笹尾英嗣(2007) 東濃ウラン鉱床の鉱石と随伴する岩石の鉛同位体比. 資源地質学会年会講演, P-32, 2007.6.21.
- 11) 中田正隆・鹿園直建・吉田英樹・松田未央・田村維都江・小室光世(2007) 北海道幌延の堆積岩試料—水反応系における溶出挙動. 資源地質学会年会講演, P-33, 2007.6.21.
- 12) 小坂知己・佐藤公法・中田正隆・小室光世(2007) 北海道幌延の堆積岩試料の表面形態観察. 資源地質学会年会講演, P-34, 2007.6.21.
- 13) 鹿山雅裕・西戸裕嗣・豊田新・小室光世・蜷川清隆 (2008)カソードルミネッセンスによる長石の放射線損傷の評価. 日本地球惑星科学連合 2008 年大会, K130, 申込済.
- 14) 小室光世・伊藤孝・加藤泰浩 (2008)日本列島付加体中の層状マンガングル床形成の古海洋学的意義. 日本地球惑星科学連合 2008 年大会, C202, 申込済.
- 15) 伊藤孝・小室光世 (2008)中生代～現世におけるマンガングル床の時空分布:深層大循環との関連. 日本地球惑星科学連合 2008 年大会, C202, 申込済.
- 16) 佐藤公法・鹿園直建・中田正隆・小室光世 (2008)陽電子消滅法による北海道幌延の堆積岩試料中のナノ空孔解析. 日本地球惑星科学連合 2008 年大会, G121, 申込済.
- 17) 小室光世・矢口昌・笹尾英嗣 (2008)鉛同位体比からみた東濃ウラン鉱床の形成と核種移行. 日本地球惑星科学連合 2008 年大会, G121, 申込済.
- 18) 中田正隆・松田未央・鹿園直建・田村維都江・吉澤賢治・小室光世 (2008)北海道幌延地域堆積岩を用いた水—岩石反応実験:粒径, 水/岩石比, 酸化還元環境の影響の予察的評価. 日本地球惑星科学連合 2008 年大会, G121, 申込済.
- 19) 忽滑谷優里・久田健一郎・小室光世 (2008)白亜系手取層群石英アテナイト礫の供給源. 日本地球惑星科学連合 2008 年大会, G120, 申込済.
- 20) 矢口昌・小室光世・笹尾英嗣 (2008)放射性核種移行の鉛同位体組成への影響評価:東濃ウラン鉱床におけるモデル計算. 日本地球惑星科学連合 2008 年大会, G121, 申込済.
- 21) 加藤泰浩・藤永公一郎・野崎達生・中村謙太郎・鈴木勝彦・小室光世 (2008)日本列島付加体中の層準規制型鉱床の堆積年代分布に基づく海洋環境の酸化還元変遷史. 日本地球惑星科学連合 2008 年大会, C104, 申込済.
- 22) 加藤泰浩・藤永公一郎・中村謙太郎・小室光世 (2008)日本列島付加体中の層準規制型鉱床による過去～360 Myr のグローバル環境変動解析. 日本地球惑星科学連合 2008 年大会, C202, 申込済.
- 23) 佐藤公法・松田未央・鹿園直建・中田正隆・小室光世 (2008)北海道幌延堆積岩試料中のナノ空孔と物質の取り込み. 資源地質学会年会講演, 申込済.
- 24) 小室光世・矢口昌・笹尾英嗣 (2008)鉛同位体比からみた東濃ウラン鉱床の生成年代. 資源地質学会年会講演, 申込済.
- 25) 富山眞吾・小泉由起子 (2008)地球化学計算による北海道幌延地域の地下水水質形成機構の検討. 資源地質学会年会講演, 申込済.
- 26) 中田正隆・松田未央・鹿園直建・田村維都江・吉澤賢治・小室光世 (2008)北海道幌延地域堆積岩における水—岩石反応の実験による評価. 資源地質学会年会講演, 申込済.
- 27) 目崎兼斗・新藤和安・小室光世 (2008)いくつかの別子型鉱石中の含コバルト鉱物の鉱物化学-変成時のコバルトの分配. 資源地質学会年会講演, 申込済.
- 28) 小室光世・笹尾英嗣 (2008)砂岩型ウラン鉱床研究の新展開. 資源地質学会年会講演, 申込済.
- 29) 大上昌恵・小坂知己・中村挙子・石原正統・古賀義紀,(2007) 銀添加単層カーボンナノチューブの抗菌性、日本防菌防黴学会第 34 回年次大会講演、2007.8.31.
- 30) 小坂知己・岩上伸治・石原正統・中村挙子・古賀義紀,(2007) フッ素添加DLC 薄膜の大腸菌に対する抗菌性、日本防菌防黴学会第 34 回年次大会講演、2007.8.31.
- < 国際会議 >
- 1) Komuro, K. (2007) Paleooceanographic environmental setting of Kuroko deposits, northeast Japan. GSA annual meeting, Denver, 234-13.



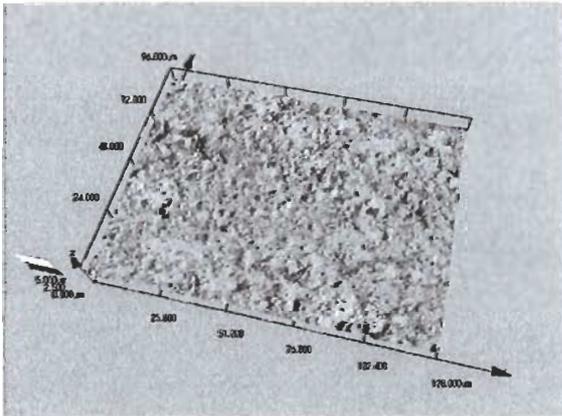
(a) 55 m



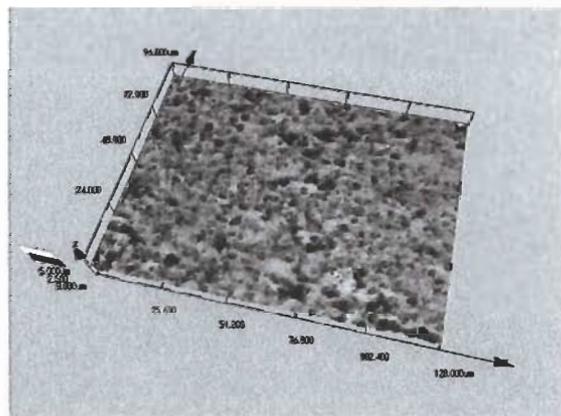
(b) 450 m



(d) 875 m

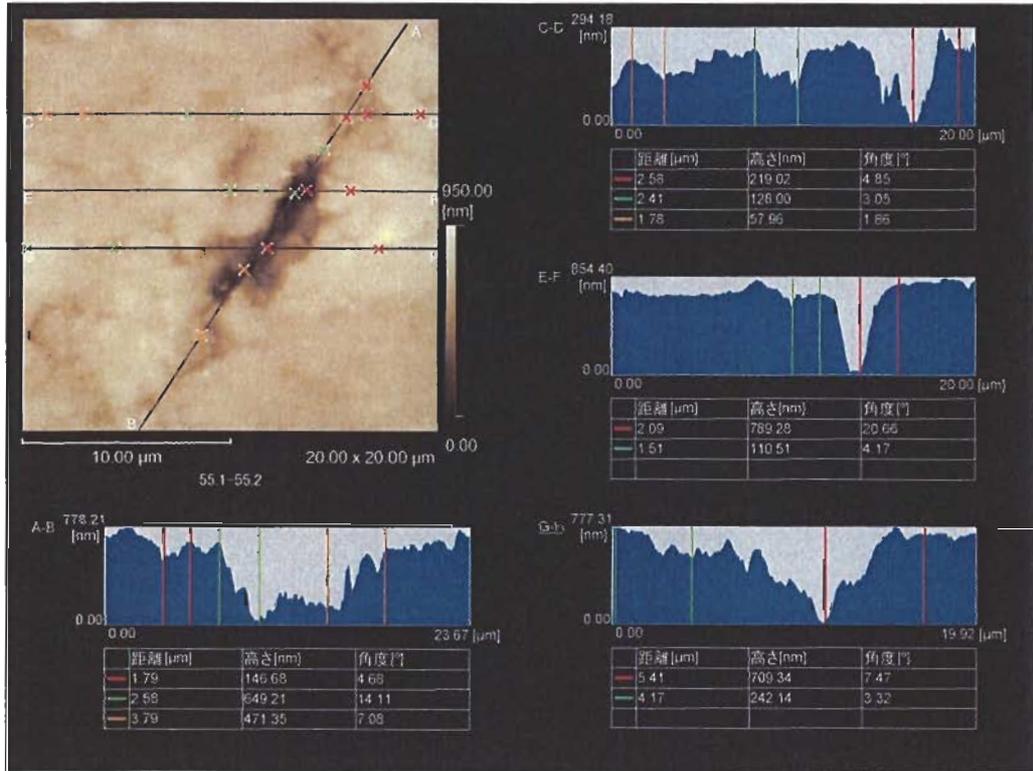


(c) 809 m

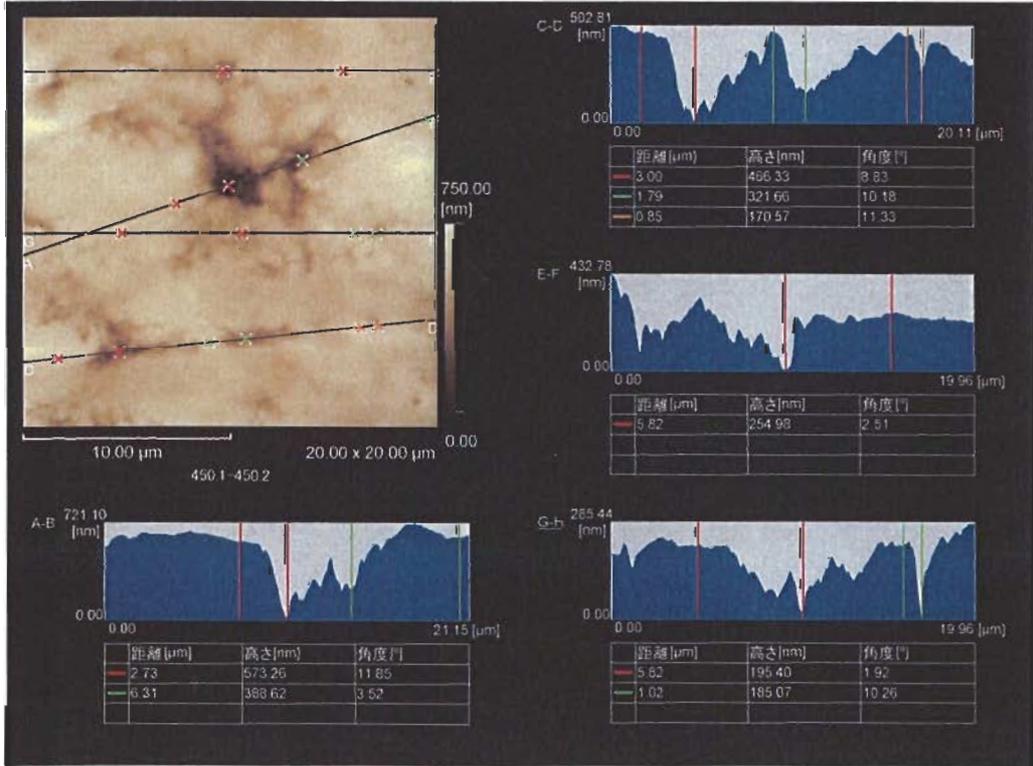


(e) 951 m

図1. レーザー顕微鏡による表面研磨面の観察結果（視野 128x96  $\mu$  m, 高さ画像）

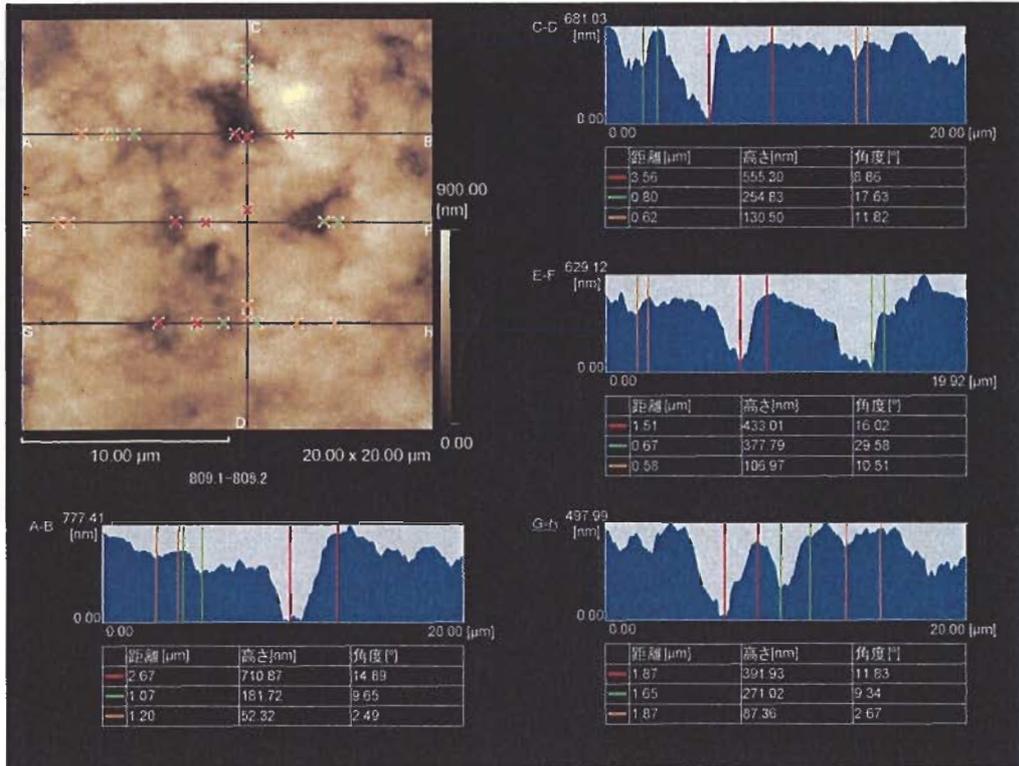


(a) 55 m

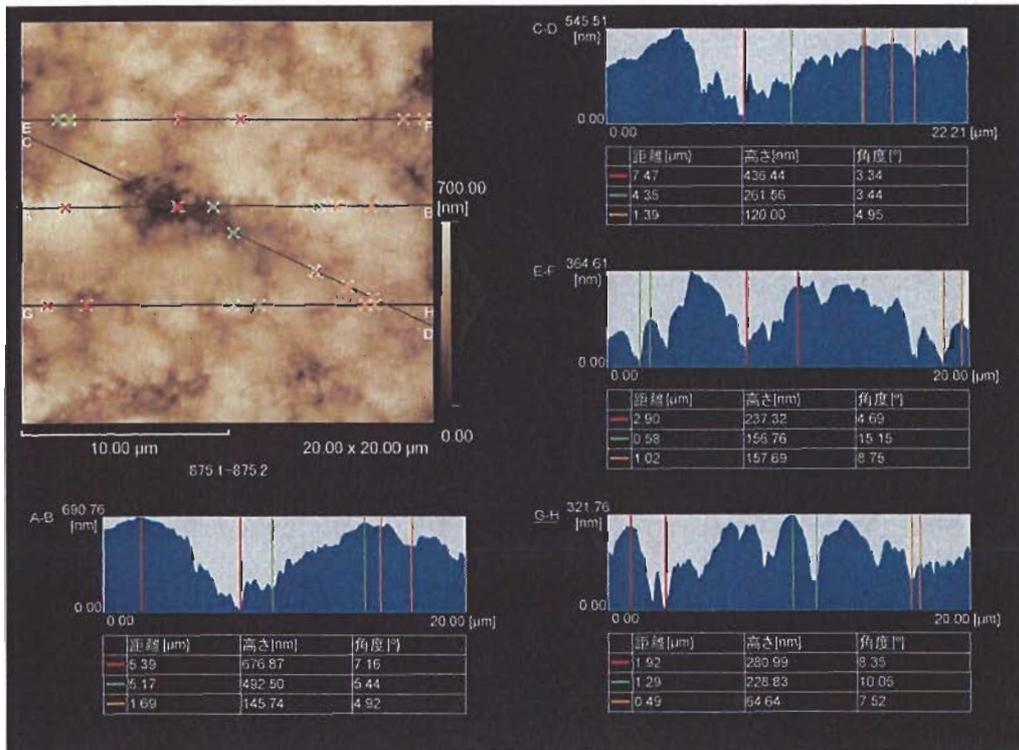


(b) 450 m

図2. AFMによる表面研磨面の観察結果  
(視野 20x20 μm)

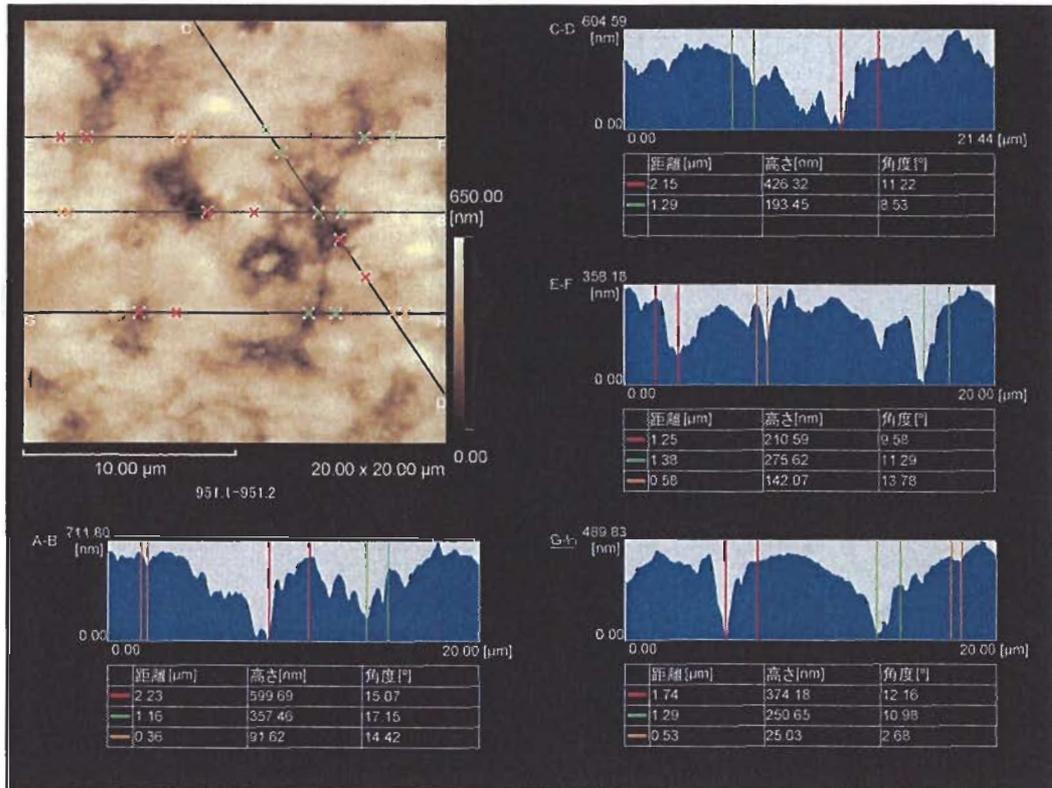


(c) 809 m



(d) 875 m

図 2. AFM による表面研磨面の観察結果(続き)  
(視野 20x20 μm)



(e) 951 m

図2. AFMによる表面研磨面の観察結果(続き)  
(視野 20x20 μ m)

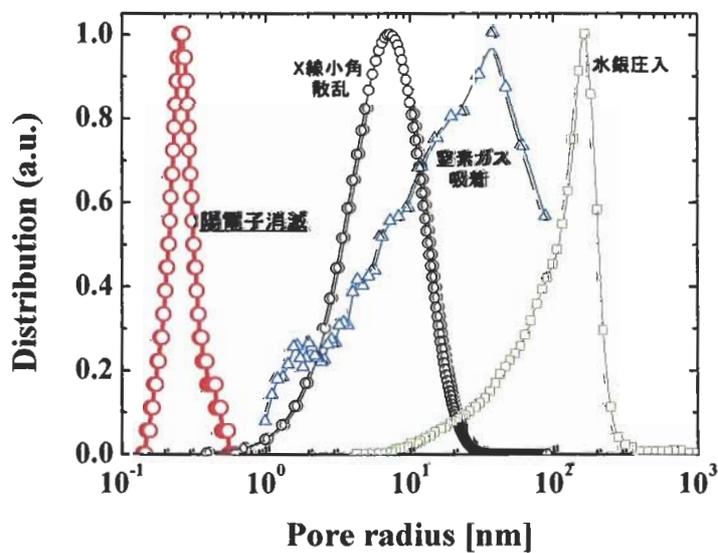


図3. 陽電子消滅寿命測定法 (赤), X線小角散乱法 (黒), 窒素ガス吸着法 (青), 水銀圧入法 (緑) によって得られた空孔径サイズ分布

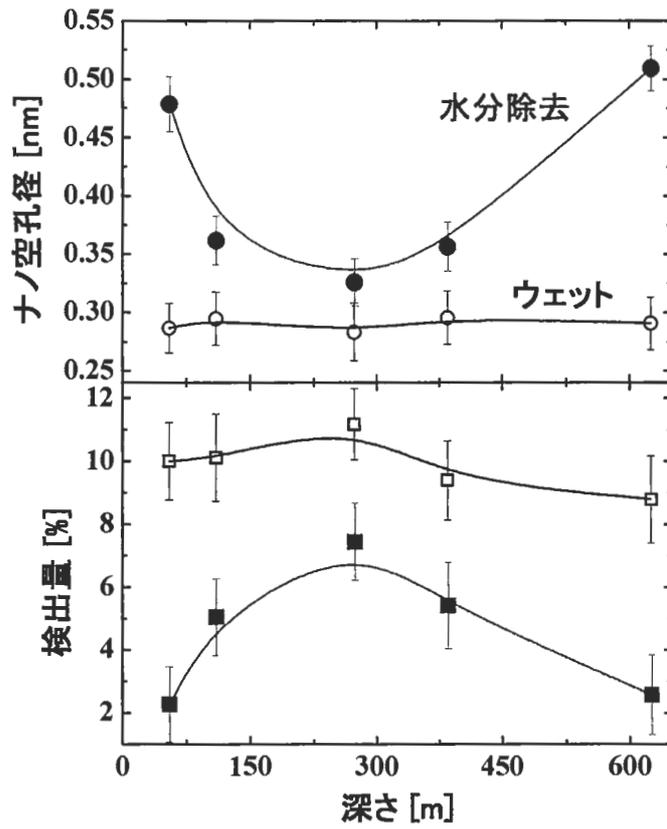


図 4. 深さに対するナノ空孔平均検出量と平均サイズ

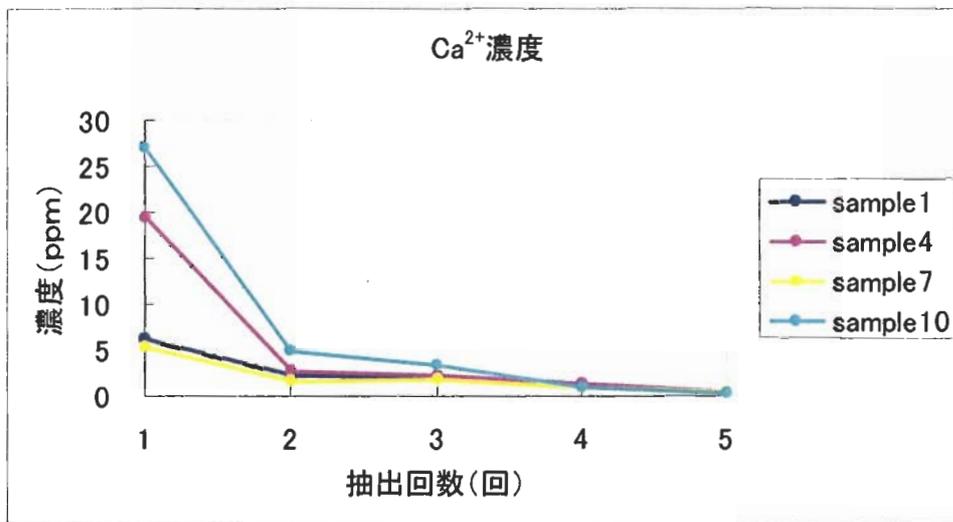
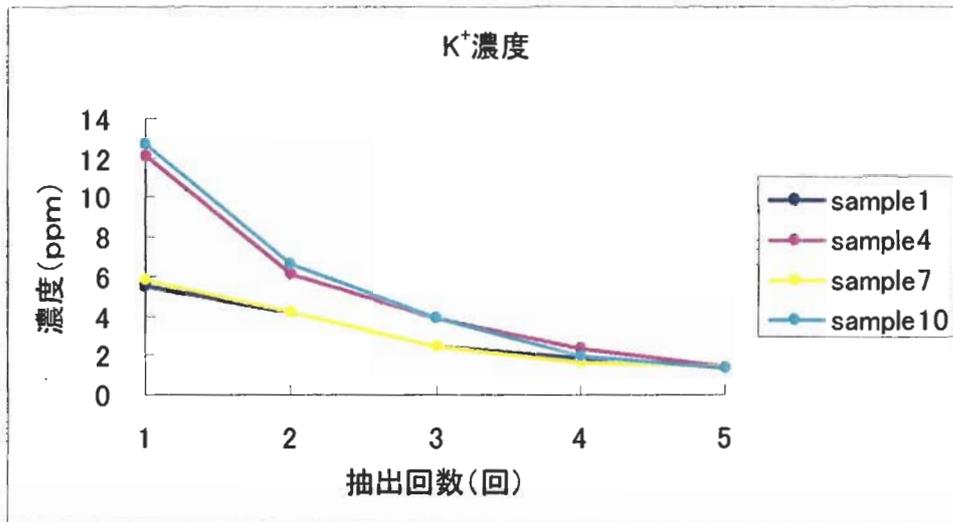


図 5. 塩化アンモニウム (NH<sub>4</sub>OH) による K<sup>+</sup> , Ca<sup>2+</sup>の抽出実験結果  
 すべて HDB-11. Sample 1: 55 m, sample 4: 386 m,  
 sample 7: 699 m, sample 10: 951 m.

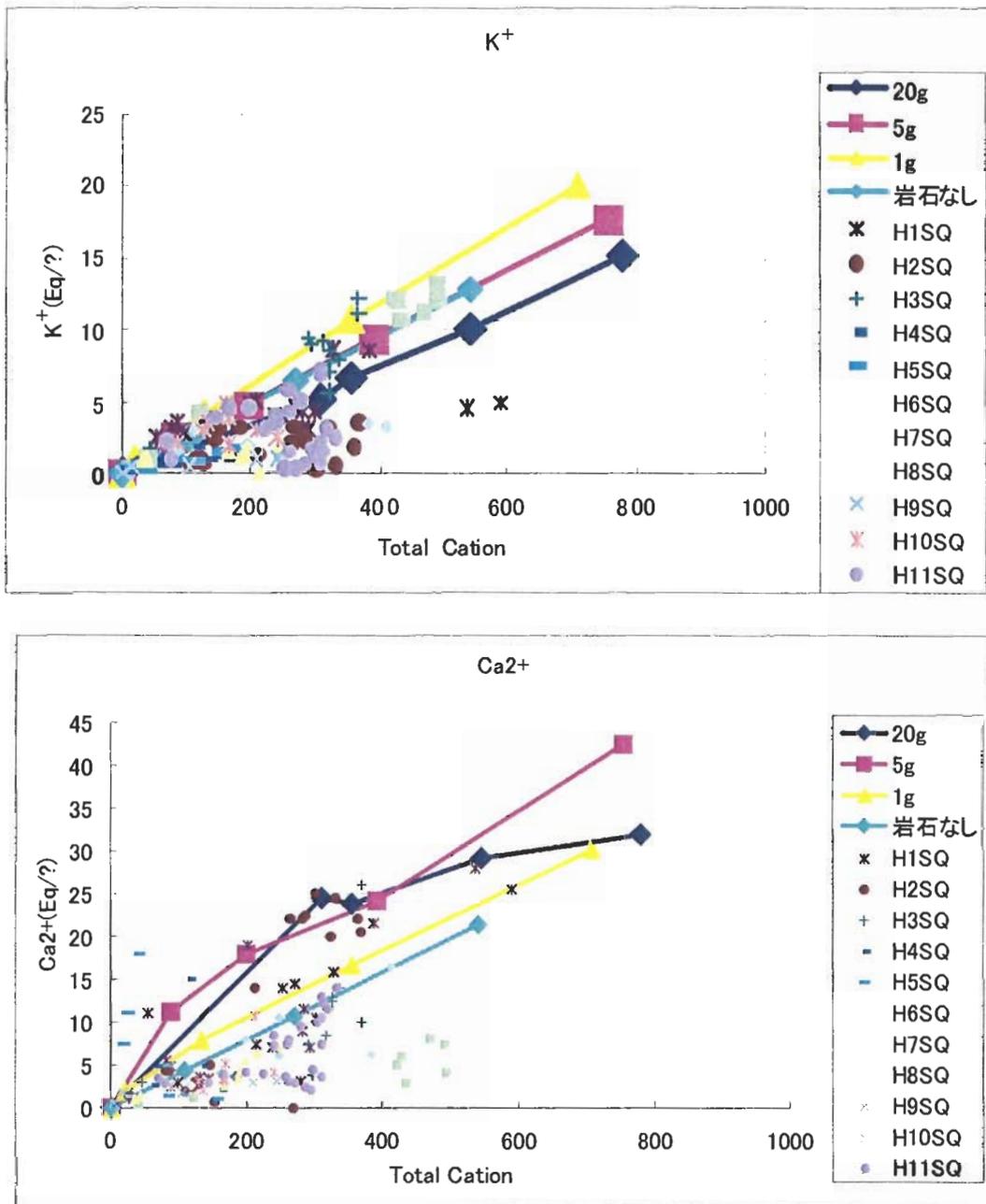


図 6. 常温における水-岩石比，海水-淡水比を変化させた系での K,Ca 濃度の変化  
(横軸 : ppm, 縦軸 eq/l).

溶液は 20ml, 岩石量は各 20,5,1g. 海水-淡水比は 10:0, 5:5, 2:8, 0:10 で, それぞれの水-岩石比ごとに線で結んである (右ほど海水に富む).  
H1SQ-H11SQ は実際の地層中の地下水のデータを示す.

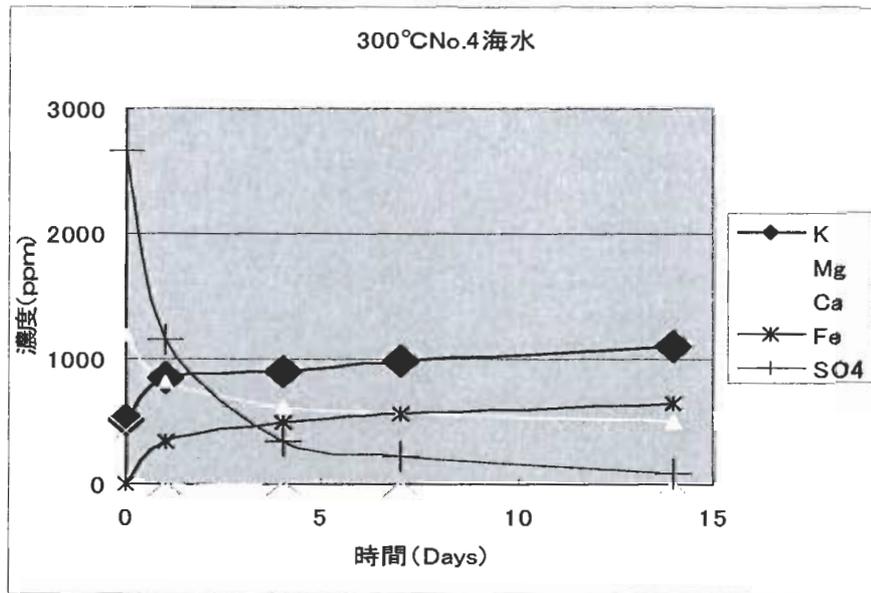


図 7. 海水と No.4 (HDB-11, 386 m) 試料の 300°C の熱水反応による水質変化

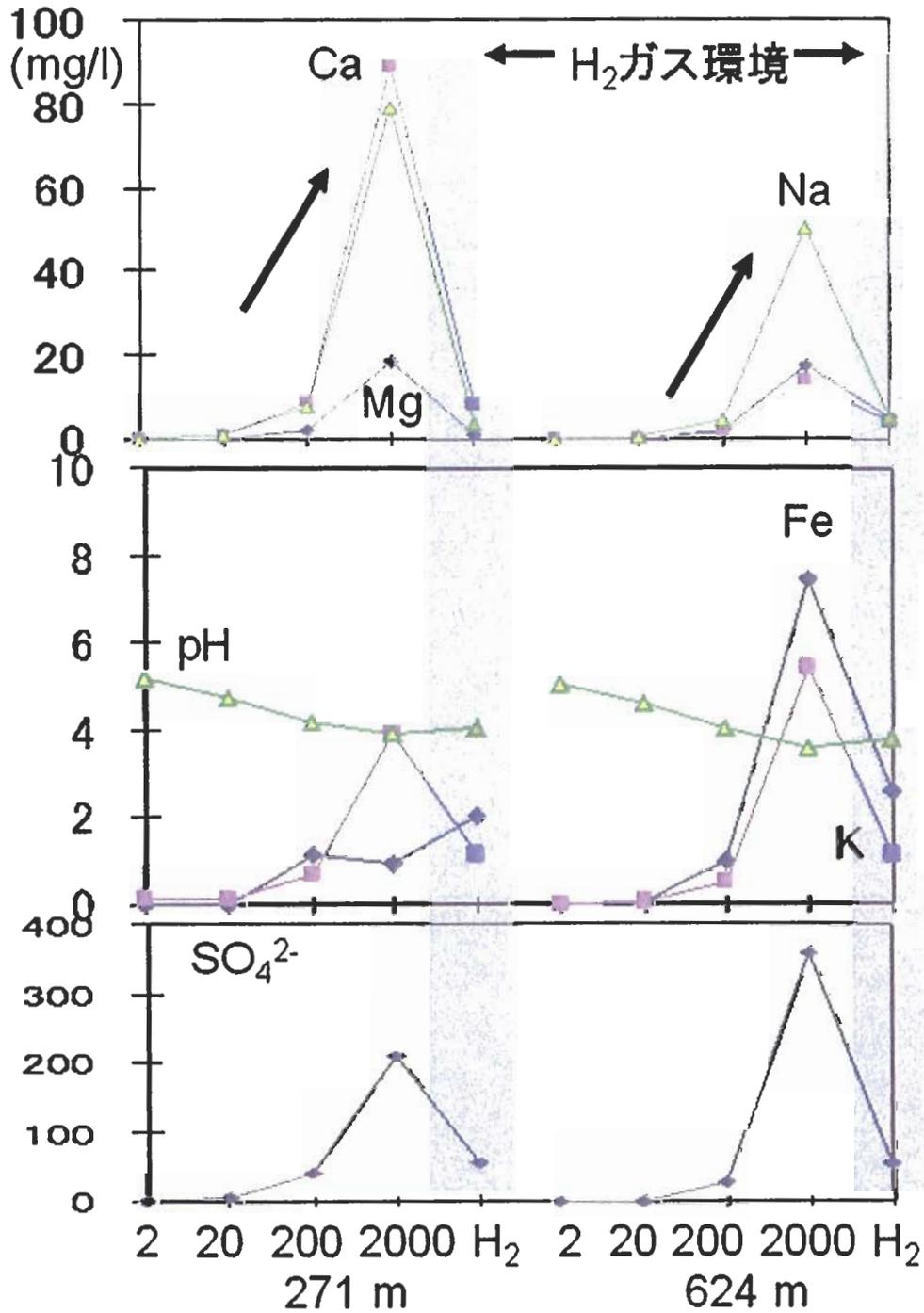
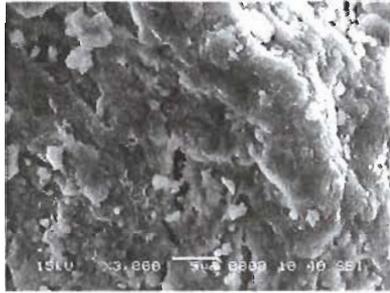
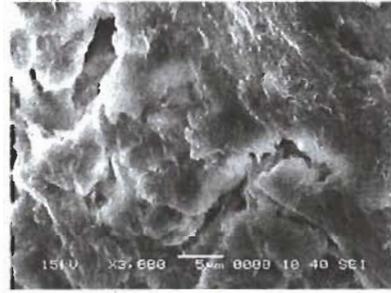


図 8. 水-岩石比 (2 mg-2000 mg の岩石と 200g の蒸留水) 変化させた系での溶液中の pH と各イオン濃度.

42 日常温の実験. H<sub>2</sub>は 2000mg 水素ガス環境下の実験結果.



凝灰岩 (反応前)



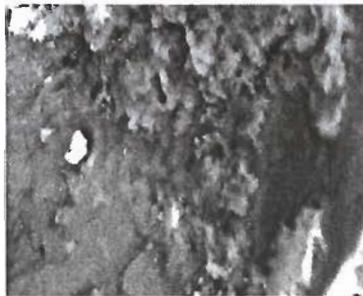
凝灰岩 (反応後)



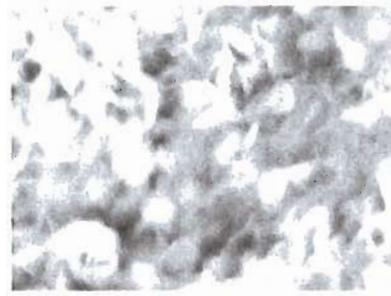
石英安山岩 (反応前)



石英安山岩 (反応後)



花崗岩 (反応前)



花崗岩 (反応前)

図9. 300°C, 8.5MPaにおける熱水反応前後の凝灰岩, 石英安山岩, 花崗岩の比較.

2.4.7 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	ガラス固化体の長期性能評価高度化に関する研究		
研究協力課題	ガラス固化体の長期性能に係る各種反応パラメタの体系的評価 Evaluation of HLW glass performance by kinetic and parametric approach		
研究者所属、氏名	九州大学 工学研究院 エネルギー量子工学部門 准教授 稲垣 八穂広, 教授 出光 一哉, 助教 有馬 立身, 大学院生 今村 聡孝		
機 構 側	地層処分研究開発部門 地層処分基盤研究開発ユニット 核種移行研究グループ 藤原 健壯, 三ツ井 誠一郎 安全研究センター 研究計画調整室 馬場 恒孝, 廃棄物・廃止措置安全評価研究グループ 武田 聖司, 藤原 武		
研究実施場所	九州大学工学研究院エネルギー量子工学部門及び中央分析センター 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		
通算研究期間 (予定)	平成 19 年 6 月 ~ 平成 22 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 19 年 6 月 ~ 平成 20 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
核種放出のソースタームであるガラス固化体の長期性能について、より現実的で信頼性の高い評価を行い、我が国における放射性廃棄物地層処分の安全性およびその信頼性の向上に資する。			
【研究内容（概要）】			
我が国における現在のガラス固化体性能評価では、ガラス溶解速度は時間によらず一定と設定され、約 7 万年でガラス全量が溶解しその核種保持性能が消失するという保守的な評価がなされている。今後、ガラス固化体の長期反応に関する現象理解をさらに深め、精度の高い各種反応パラメタを用いた評価を行えば、より現実的で信頼性の高い評価が可能になるとともに、より長期にわたるガラスの核種保持性能が期待できる。ここで、ガラス固化体の性能はガラス組成や処分環境に大きな影響を受けることから、その性能評価の高度化を進めるためには我が国のガラス固化体および処分条件に基づいた独自の性能評価を行うことが必要である。 本研究では、我が国のガラス固化体（P0798 ガラス）について新たに考案したマイクロリアクタ流水試験を用いた溶解/変質実験を行う。実際に想定される様々な処分環境条件で実験を行い、その結果を平衡論および速度論の両観点から解析して、性能評価に係る各種反応パラメタを取得する。これらの結果を体系的に整理評価してその不確実性を低減させるとともに、速度論的評価に基づいた性能評価モデルを構築し、より現実的で信頼性の高い評価を行う。			
【使用主要施設】			
大学側：マイクロリアクタ試験設備、ICP 質量分析装置、エックス線回折装置 機構側：二次イオン質量分析装置、薄膜エックス線回折装置、環境制御型走査電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡、等			

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

初年度である平成 19 年度は、各種環境条件におけるガラス溶解挙動を速度論的に評価するための試験手法の確立を目的とし、マイクロリアクタ流水試験装置の作成およびそのガラス固化体溶解／変質試験への適用を試みた。このような評価を行う為の試験法には、以下の性能が求められる。

- ・ 溶解／変質試験におけるガラス試料と反応溶液の接触前後で溶液 pH および溶液組成の変化が十分に小さいこと。
- ・ 反応溶液と接触するガラス試料の表面積を精度良く評価できること。
- ・ サンプル溶液中の元素濃度（ガラス主要構成元素である Si, B 等）を十分な精度で測定できること。
- ・ 最終的に、各種環境条件でのガラス固化体溶解速度（ガラス表面積当りの）を精度良く評価できること。

マイクロリアクタを用いた流水試験においてこれらの性能に影響を及ぼすと考えられる因子は、マイクロリアクタ流路のサイズ／形状、反応溶液流速、ガラス試料表面粗さ、サンプリング溶液量等であり、これら因子についていくつかの条件を設定、試行し、ガラス固化体溶解／変質試験に適した条件を選定した。最終的に以下のような最適試験条件を選定し、試験手法を確立した。

- ・ マイクロリアクタ流路のサイズ／形状：20mm x 2mm x 0.16mm（反応容積 6.4 $\mu$ l）
- ・ 反応溶液流速：2 - 50 ml/min
- ・ ガラス試料表面粗さ：ダイヤモンドペースト（1 $\mu$ m）研磨仕上げ
- ・ サンプル溶液量：0.1 - 1.0 ml

この試験手法を用いて、模擬ガラス固化体 P0798 ガラスの溶解速度を測定し、ガラス初期溶解速度の溶液 pH 依存性を評価した。また、各元素の浸出挙動の比較からガラス溶解の物理化学的機構について検討した。

平成 20 年度以降は、この試験手法を用いてガラス溶解の各種反応パラメタ（温度、時間、溶液組成依存性等）について測定評価を進める予定である。

## 【研究成果（当該年度）】

## 1) ガラス溶解の速度論的評価のための実験手法の確立

マイクロリアクタを用いた流水試験装置を作成し、ガラス固化体溶解／変質試験への適用を試みた。

各種環境条件におけるガラス溶解挙動を速度論的に評価するための試験法には、以下の性能が求められる。

- ・ 溶解／変質試験におけるガラス試料と反応溶液の接触前後で溶液 pH および溶液組成の変化が十分に小さいこと。
- ・ 反応溶液と接触するガラス試料の表面積を精度良く評価できること。
- ・ サンプル溶液中の元素濃度（ガラス主要構成元素である Si, B 等）を十分な精度で測定できること。
- ・ 最終的に、各種環境条件でのガラス固化体溶解速度（ガラス表面積当りの）を精度良く評価できること。

マイクロリアクタを用いた流水試験において、これらの性能に影響を及ぼすと考えられる以下の項目について、いくつかの条件を設定、試行し、ガラス固化体溶解／変質試験に適した条件を選定した。最終的に以下のような最適な試験条件を選定し、試験手法を確立した。

- ・ マイクロリアクタ流路のサイズ／形状：20mm x 2mm x 0.16mm（反応容積：6.4 $\mu$ l）
- ・ 反応溶液流速：2 - 50  $\mu$ l/min
- ・ ガラス試料表面粗さ：ダイヤモンドペースト（1 $\mu$ m）研磨仕上げ
- ・ サンプル溶液量：0.1 - 1.0 ml

## 2). マイクロリアクタを用いたガラス溶解反応パラメータ測定評価

この試験手法を用いて、模擬ガラス固化体 P0798 ガラスの溶解速度を測定し、ガラス初期溶解速度の pH 依存性を評価した。その結果、ガラス主要構成元素である Si の溶解速度を基に、ガラス初期溶解速度 (25°C) について以下の結果を得た。

- ・  $r_0 = 0.12$  [g/m<sup>2</sup>/d] at pH3.0 (HCl+NaCl 水溶液)
- ・  $r_0 = 0.035$  [g/m<sup>2</sup>/d] at pH5.6 (NaCl 水溶液)
- ・  $r_0 = 0.13$  [g/m<sup>2</sup>/d] at pH10.0 (NaOH+NaCl 水溶液)

このように、ガラス初期溶解速度は中性付近で最も小さく、酸性およびアルカリ性側のいずれでも大きくなることを確認した。

また、各元素 (Si と B) の溶解挙動の比較から、ガラス溶解の物理化学的機構について評価した。その結果、ガラスマトリクス主要構成元素である Si はガラス表面から一様に溶出するのに対し、可溶性元素である B は反応初期においてガラス表面から選択的に溶出し、その溶出速度は拡散過程に律速されることを確認した。また、B の拡散速度は溶液 pH の上昇とともに減少することを確認した。

## 【今後の予定 (翌年度以降の概要)】又は【成果の反映状況】――

平成 20 年度は、平成 19 年度に確立したマイクロリアクタ流水試験法を用いて、ガラス初期溶解速度の温度依存性 (25 – 90°C) を測定評価するとともに、各温度における溶液 pH 依存性についても測定評価する予定である。加えて、ガラス溶解速度の時間依存性 (0~100 日) も測定し、各条件でのガラス溶解速度の時間変化からガラス溶解の物理化学的機構について考察する予定である。

平成 21 年度は、ガラス溶解速度の溶液組成依存性 (Si 濃度: 0~200ppm) を測定評価する予定である。また、本実験で得られたガラス溶解に関する各種パラメータ依存性に関するデータを体系的に整理し、平衡論および速度論の両観点から評価する予定である。最終的に、ガラス溶解の反応機構および各パラメータ依存性を考慮したガラス溶解速度式を構築し、ガラス固化体の性能評価の高度化を図る予定である。

## 【研究成果の公表】

## &lt;国内会議&gt;

- 1) 稲垣八穂広、**牧垣光**、出光一哉、有馬立身(九大)、三ツ井誠一郎、馬場恒孝(JAEA)、野下健司(日立)、「マイクロリアクタ流水試験によるガラス固化体溶解速度の pH 依存性評価」日本原子力学会 2008 秋の大会 (平成 20 年 9 月) 発表予定

2.4.8 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	地層処分の人工バリア/天然バリア境界で生成する無機コロイドの特性に関する研究		
研究協力課題	アルカリフロントにおけるコロイド状ケイ酸の動的挙動と核種移行との関係: Dynamic Behavior of Colloidal Silicic Acid in the Alkaline Front and its Influences on the Nuclide Migration		
研究者所属、氏名			
大学側	東北大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻 准教授 新堀雄一 量子エネルギー工学専攻 博士課程前期 2 年の課程 2 年 國分洋志		
機構側	地層処分研究開発部門・地層処分基盤研究開発ユニット 核種移行研究グループ リーダー 宮原 要, 研究員 飯島和毅		
研究実施場所	東北大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻 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, 地層処分放射化学研究施設		
通算研究期間 (予定)	平成 19 年 6 月 ~ 平成 22 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 19 年 6 月 ~ 平成 20 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>地層処分環境下において人工バリア領域で保工あるいは廃棄体にセメントが用いられる場合、セメント/母岩境界付近のミキシング・ゾーン<sup>1)</sup>で pH の高いセメント間隙水によって母岩からケイ酸が溶出し、アルカリフロント<sup>2)</sup>近傍でコロイド状ケイ酸の析出による母岩の変質(非晶質化)が起こることにより、核種移行挙動に影響を及ぼす可能性がある。本研究では、セメント/母岩境界付近のミキシング・ゾーンで生成するコロイド状ケイ酸について、ミクロ的・マクロ的諸特性に基づき、アルカリフロント近傍における固相存在下での動的挙動及び核種移行挙動に及ぼす影響を評価するとともに、JAEA のコロイド影響評価コード COLFRAC-MRL へ導入可能な形でデータを整理し、このコードを用いて様々な地下水条件において核種移行に及ぼす影響を定量的に予測する。</p> <p><sup>1)</sup> ミキシング・ゾーン：人工バリアと天然バリアの境界付近で、地下水の化学的特性が連続的に変化する領域</p> <p><sup>2)</sup> アルカリフロント：セメント/母岩境界付近のミキシング・ゾーンのうち、セメント間隙水 (pH13 程度)が周囲地下水と混合され、pH が低下する場所</p>			
【研究内容 (概要)】			
<p>アルカリフロントにおいて生成したコロイド状ケイ酸は地下水中に存在し下流に移行するが、その過程において比較的長い時間をかけて流路表面 (固相) に析出することが近年の研究で明らかになっている。このようなコロイド状ケイ酸の析出が起こった場合、地下水流路およびその周辺を変質 (アモルファス化) させることが考えられるが、一般にアモルファスの構造は結晶性のものに比較してルーズとなり、固相表面において H<sup>+</sup>を容易に電離しなくなることから、陽イオン核種の収着性を損なう可能性がある。一方、核種の遅延効果は流路周辺のマトリックス部への拡散および収着現象に大きく左右される。したがって、地下水流路周辺においてコロイド状ケイ酸が析出すると核種の収着性能が低下し、結果として核種の移行速度が無視し得ないほどに上昇するか否かは十分な検討を要する。このようなコロイド状ケイ酸が析出する領域は、地下水の流速、マトリックス部への拡散およびコロイド状ケイ酸の析出速度とのバランスに左右されると考えられるが、現在のところそれらの知見の整理は皆無である。</p>			

そこで本研究では、アルカリフロント近傍におけるコロイド状ケイ酸の固相への析出速度を、カルシウムイオン等電解質として働く共存イオンの濃度を变化させるなど、種々の条件下において調べ、母岩への核種の収着・マトリックス拡散に及ぼすコロイド状ケイ酸共存の影響に関する基礎データを得る。そして、それらの速度論的データを JAEA コロイド影響評価コード COLFRAC-MRL へ導入するロジックを整理するとともに、ミキシング・ゾーンにより変質を受ける空間的範囲を定量化し、その核種移行への関係を整理する。

#### 【使用主要施設】

原子力機構：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内各設備（TEM, XRD 等），  
 地層処分放射化学研究施設内各設備（ICP-AES, ICP-MS, ゼータ電位測定装置, RI  
 取扱い可能な雰囲気制御 GB 等）および JAEA コロイド影響評価コード  
 COLFRAC-MRL

#### 【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 19 年度では、1) 固相存在下におけるコロイド状ケイ酸の動的挙動と固相表面の非晶質化、2)コロイド状ケイ酸の存在と核種収着との関係について明らかにするための実験を行った。本年度は、当初の実験計画に従い、1)についての実験に重点を置きつつ、2)についてもいくつかの鉱物を固相として収着実験を実施した。具体的には次の通りである。

##### 1) 固相存在下におけるコロイド状ケイ酸の動的挙動と固相表面の非晶質化

回分式によりコロイド状ケイ酸の固相への析出速度を求める。その際、(a)初期段階において水溶性ケイ酸による固相への析出がある場合と(b)初期段階において水溶性ケイ酸による固相への析出がない場合との比較を行った。

(a) 初期段階において水溶性ケイ酸による固相への析出がある場合：水溶性ケイ酸とコロイド状ケイ酸の双方の挙動を、固相存在下において調査した。実験の手順は、pH8において過飽和となる水溶性ケイ酸をpH12程度で準備し、pHを8に調整すると同時に、シリカ鉱物（アモルファスシリカ、石英、オパールCT、花崗岩）と接触させた。なお、水溶性ケイ酸は水ガラスより調整し、今年度は試みとして初期水溶性ケイ酸濃度を $4.0 \times 10^{-3}$  Mから $1.4 \times 10^{-3}$  Mの範囲に設定した。

(b) 初期段階において水溶性ケイ酸による固相への析出がない場合：本実験条件では、過飽和となった水溶性ケイ酸の濃度が溶解度近傍に達し、かつコロイド状ケイ酸が安定になった溶液に固相を導入する必要がある。そのために、まず固相の存在しない場合において、過飽和となった水溶性ケイ酸の重合挙動を追跡した。実験条件は、上述と同様にpH8において過飽和となる水溶性ケイ酸をpH12程度で準備し、pHを8に調整することにより水溶性ケイ酸の重合反応を開始させた。これらの結果を基に、あらかじめコロイド状ケイ酸を生成させ、その後、固相と接触させ、コロイド状ケイ酸の減少速度を調べた。

##### 2) コロイド状ケイ酸の存在と核種収着との関係

1)において調整した固相の一部について収着実験を行った。用いた核種は Am の化学的相似性のある Eu とした。Eu-151 を担体( $5.0 \times 10^{-5}$  M)とし、Eu-152 をトレーサーとした。そして、コロイド状ケイ酸の存在しない系とコロイド状ケイ酸の存在する系における収着分配係数  $K_d$  を求めた。

## 【研究成果（当該年度）】

(a) 初期段階において水溶性ケイ酸による固相への析出がある場合：

[1] アモルファスシリカ、石英、オパールCTおよび花崗岩の粉碎粒子(粒径  $75 \mu\text{m}$  から  $149 \mu\text{m}$ )を固相とする各々の場合において、コロイド状ケイ酸の生成を確認した。その生成量は固相表面積の増加に伴い減少する傾向を示した。また、水溶性ケイ酸の過飽和濃度がほぼ安定後に、コロイド状ケイ酸濃度が減少する傾向があり、その減少速度は、 $df_c/dt = -kf_c$  に従った。ここで、 $f_c$  はコロイド状ケイ酸を水溶性ケイ酸に換算したモル分率(-)、 $t$  時間(s)、 $k(1/s)$  は固相存在下におけるコロイド状ケイ酸のみかけの減少速度定数である。コロイド状ケイ酸のみかけの減少速度定数の値は、固相の溶液中の BET 表面積と Ca 濃度によってほぼ整理できることが分かった。

[2] 石英、オパールCTおよび花崗岩を試料とする場合、コロイド状ケイ酸の減少を所定実験時間(240 h)では確認することが出来なかった。しかし、何れの試料(石英、花崗岩、アモルファスシリカ、オパールCT)を用いても水溶性ケイ酸の準安定濃度はほぼ等しい結果となった。アモルファスシリカの水溶性ケイ酸の溶解度は、結晶性のある石英等に比較して1桁高いが、実験結果は、固相の種類に依らず固相表面における非晶質層の存在を示唆した。

[3] 一方、初期水溶性ケイ酸  $1.4 \times 10^{-2} \text{ M}$ 、固相アモルファスシリカ粒子  $0.5 \text{ g}$  (BET( $\text{N}_2$ )比表面積  $400 \text{ m}^2/\text{g}$ )において、Ca濃度が  $10^{-2} \text{ M}$  では、コロイド状ケイ酸の架橋による沈殿があるものの、Ca濃度が  $10^{-2} \text{ M}$  よりも小さいときは、コロイド状ケイ酸の減少速度が、Ca濃度が大きい場合において小さくなった。これは固相表面にCSHの生成による比表面積の減少がその理由と考えられる。ただし、CSHの生成は、SEM像および溶液中からのCaイオンの減少から示唆されるものであり、EPMAおよびEDSでは確認できなかった。

今後、過飽和濃度がより低い場合での検討、Caの影響の取り扱いについて整理する必要がある。

(b) 初期段階において水溶性ケイ酸による固相への析出がない場合：

[1] 過飽和水溶性ケイ酸の重合挙動(速度)を追跡した結果、固相非存在下では、温度の上昇に伴って水溶性ケイ酸の過飽和濃度の減少速度(重合速度)は小さくなったが、固相存在下では全く逆の温度依存性を示した。すなわち、固相の存在により水溶性ケイ酸の重合挙動は大きく異なり、固相の存在しない場合の重合速度に関する既往の研究を直ちに固相存在下の条件に適用できない。

[2] これらの結果をベースに、コロイド状ケイ酸を生成させ(3週間)、その溶液を固相と接触させた。本実験では、試料としてアモルファスシリカを用いた。その結果、水溶性ケイ酸、コロイド状ケイ酸ともに固相接触と同時に濃度がわずかに減少すること、また、その後、コロイド状ケイ酸の減少が確認された。花崗岩の場合も同様であったが、(a)にあったようにコロイド状ケイ酸の減少速度を特定することが出来なかった。

[3] アモルファスシリカ粒子を用いてコロイド状ケイ酸の減少速度を調べた結果、実験初期段階において水溶性ケイ酸による析出がある場合に比較して、コロイド状ケイ酸の減少速度定数は1桁ほど小さいことが分かった。

## 2) コロイド状ケイ酸の存在と核種収着との関係

[1] 固相(粒径  $75 \mu\text{m}$  から  $149 \mu\text{m}$ 、 $0.1 \text{ g}$ )をアモルファスシリカ粒子(BET( $\text{N}_2$ )比表面積  $350 \text{ m}^2/\text{g}$ )、オパールCT粒子(BET( $\text{N}_2$ )比表面積  $16.9 \text{ m}^2/\text{g}$ )として、pH5におけるEuの固相への収着分配係数  $K_d$  を各々求めた。オパールCTの方がアモルファスシリカより1桁以上大きいこと、コロイド状ケイ酸濃度の上昇により  $K_d$  が減少することが分かった。また、コロイド状ケイ酸が  $0.02 \text{ M}$  まで存在すると  $K_d$  の値は存在しなかった場合に比較して1桁減少した。

[2] 双方の試料の液相における固相比表面積(BET表面積)は大きく異なることから、 $K_S = K_d/a$  ( $K_d$  収着分配係数 ( $\text{m}^3/\text{kg}$ )、 $a$ : 比表面積 ( $\text{m}^2/\text{kg}$ ) (=BET( $\text{N}_2$ gas)表面積))により整理すると、結晶性を持つオパールCTの収着分配係数  $K_S$  の値はアモルファスシリカの  $10^3$  倍程になった。一方、pH6においては、特にアモルファスシリカについてEuの加水分解の効果が顕著となったが、コロイド状ケイ酸濃度の上昇による  $K_d$  の減少は、pH5の場合と同様に確認された。

[3] Euは水溶性ケイ酸と錯体を生成することが知られており、錯体が生成するとEuの  $K_d$  の値は、水溶性ケイ酸が存在しない場合より減少することが予想される。そこで、両者を比較したところ、錯生成による減少傾向が認められるものの、その差は小さく、コロイド状ケイ酸濃度の上昇による  $K_d$  の減少の方が顕著であった。

## 【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成20年度においては、19年度に引き続き、当初の予定通り以下の研究を実施する予定である。すなわち、① 固相存在下におけるコロイド状ケイ酸の動的挙動と固相表面の非晶質化および②コロイド状ケイ酸の存在と核種収着との関係について検討し、得られたコロイド状ケイ酸のデータを JAEA のコロイド影響評価コード COLFRAC-MRL へ導入することを念頭に、実験データを整理する。

## ① 固相存在下におけるコロイド状ケイ酸の動的挙動と固相表面の非晶質化

19年度に課題となったケイ酸の動的挙動に及ぼす初期過飽和濃度（水溶性ケイ酸）の影響について、さらに実験を継続する。(a) 初期段階において水溶性ケイ酸による固相への析出がある場合：前述のように、過飽和状態にある水溶性ケイ酸は固相の存在下では、固相への析出と溶液中の重合体の形成、さらにその重合体の解重合と固相への析出といった反応が考えられる。したがって、その挙動は、過飽和濃度によって複雑に変化する。そこで、水溶性ケイ酸の過飽和濃度の範囲を pH8 における水溶性ケイ酸の溶解度の数倍程度内において、初期過飽和濃度を設定し、ケイ酸の挙動を引き続き追跡する。また、コロイド状ケイ酸についてゼータ電位を測定し、過飽和度によって重合度の違いについても検討する。(b) 初期段階において水溶性ケイ酸による固相への析出がない場合：前年度の知見を基礎に、比表面積の大きいアモルファスシリカを用いて、溶液中の固相比表面積を実験パラメータとしてコロイド状ケイ酸の減少速度を整理する。19年度において、花崗岩を試料にした場合も、水溶性ケイ酸の濃度は、アモルファスシリカを固相とする溶解度（文献値）よりやや高いところで一定であったが、このことは、固相表面がわずかにでも非結晶の相が生じている可能性がある。このことは、コロイド状ケイ酸と固相との接触の瞬間において、コロイド状ケイ酸濃度がわずかに減少することにも調和的である。そこで、20年度では石英を固相試料とする同様の検討も行う。

## ②コロイド状ケイ酸の存在と核種収着との関係

固相として、石英、クリストバライト、オパール、アモルファスシリカなど(いずれも  $\text{SiO}_2$ ) およびケイ酸塩鉱物を用い、溶液側にコロイド状ケイ酸が存在する場合と、コロイド状ケイ酸が(すべてあるいは一部)固相に析出した場合の違いについて調査する。なお、核種としては Am の化学アナログとして Eu を用いる。

平成21年度は、最終年度として、① 固相存在下におけるコロイド状ケイ酸の動的挙動と固相表面の非晶質化および②コロイド状ケイ酸の存在と核種収着との関係について前年度までの検討を継続し、それらの知見を統合化することにより、③過飽和となったケイ酸（コロイド状ケイ酸等）の移行距離の算出（変質範囲の定量化）を、JAEA のコロイド影響評価コード COLFRAC-MRL へ導入し、実施する予定である。その際には、マトリックス部への拡散を考慮する。なお、②については、花崗岩等を構成するいくつかのケイ酸塩鉱物について Eu の収着挙動を検討し、主要鉱物について、前年度と同様にコロイド状ケイ酸が共存する場における Eu の収着挙動を調べ、得られた知見の適用範囲を示す。

## 【研究成果の公表】

## &lt;国内会議&gt;

- 1) 國分 洋志, 新堀 雄一, 飯島 和毅, 三村 均: 非晶質シリカ存在下におけるコロイド状ケイ酸の析出速度, 日本原子力学会 2008 年春の年会, I16 (口頭発表)

## &lt;国際会議&gt;

- 1) Hiroshi Kokubun, Yuichi Niibori, Kazuki Iijima, Hitoshi Mimura: Deposition Rates of Colloidal Silicic Acid onto the Surface of Silicate Mineral, The 16th Pacific Basin Nuclear Conference (2008) (アブスト投稿済, 口頭発表として採択) (Full paper 査読有)

2.4.9 先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	精密制御定常信号システムデータの解析技術の高度化		
研究協力課題	イベント解析技術の拡張 Expansion of event analysis technique		
研究者所属、氏名			
大学側	名古屋大学大学院環境学研究科附属地震火山・防災研究センター 准教授 渡辺俊樹, 研究機関研究員 羽佐田葉子 名古屋大学情報連携基盤センター 助教 永井亨 静岡大学理学部地球科学科 客員教授 熊澤峰夫, 客員教授 藤井直之		
機構側	地層処分研究開発部門 幌延深地層研究ユニット 堆積岩地質環境研究グループ グループリーダー 茂田直孝, 大原英史, 浅森浩一		
研究実施場所	名古屋大学大学院環境学研究科、名古屋大学情報連携基盤センター、 幌延深地層研究センター		
通算研究期間 (予定)	平成 19 年 4 月 ~ 平成 22 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 19 年 4 月 ~ 平成 20 年 3 月
研究協力形態	<input type="checkbox"/> 客員研究員 <input type="checkbox"/> 研究生の受入れ <input checked="" type="checkbox"/> 共同研究		
【研究目的】			
<p>本研究は、高レベル放射性廃棄物の地層処分における処分場の建設から埋め戻し後の地質環境モニタリングに適用可能な、非破壊かつ高精度の観測技術に係わる解析技術の高度化を目的とする。幌延深地層研究センターで開発中の遠隔監視システムで取得される高精度の精密制御定常信号システム（以下、アクロス）データを活かして、岩盤の状態や地下水の分布を高い精度で推定し、それらの時間変化を把握するためのイベント解析手法を整備し、遠隔監視システムの基盤であるアクロスの解析技術の様々な要素を、遠隔監視システムの対象に特化して最適化する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>本研究では、幌延深地層研究センターでの遠隔監視システムの開発において取得しているアクロス観測データ等に基づき、存否イベント解析を散乱体の同定、強分散性への対応、空間一波数領域間の処理対応に関して拡張し、アクロスの解析技術およびシステム設計技術を向上させる。</p> <p>様々なスケールの散乱体は一般に波動の伝播や減衰の周波数依存性すなわち分散性の要因となる。散乱体同定手法の開発では、このようなデータについて、存否イベント解析の特徴を活かした狭い周波数帯域毎の解析を基に、分散性の特徴から散乱体を同定する手法を開発する。強分散性解析手法への拡張では、低周波数領域における電磁波の伝播等での分散性が非常に強いことに対して、存否イベント解析について周波数範囲のセグメント解析等の改良を加えることによる解析手法の拡張を行う。波動場波数スペクトル解析手法の開発では、存否イベント解析を応用した波動場の波数スペクトル解析を行うことによって、地下の散乱体からの散乱波入射方向を推定し、散乱体の位置決定手法の開発を行う。また、これらの解析手法を、幌延深地層研究センターにおける遠隔監視システムによる観測データに適用し、その妥当性を評価する。</p>			

## 【使用主要施設】

原子力機構幌延深地層研究センター 弾性波/電磁アクロス送信装置および受信装置  
 名古屋大学情報連携基盤センター スーパーコンピュータ  
 ソフトウェア MATLAB

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 19 年度は、散乱体同定手法、強分散性解析手法、波動場波数スペクトル解析手法に関する理論的検討を行った。

## 【研究成果（当該年度）】

## 1. 散乱体同定手法の開発

## ・存否イベント解析のルーチンプログラム作成

アクロスの観測データである周波数領域の伝達関数から時間領域で局在しているイベントを抽出する手法である「存否イベント解析」について、MATLAB によるルーチン解析用のプログラムを作成した。また、これまでに使われていたアルゴリズムに、新たに周波数に依存するノイズに対応した改良を加えた。

## ・波動場計算コード PAN の開発

任意の異方性・分散性・不均質のある媒体中の波動場を周波数・波数領域において計算するための新しい理論（PAN 理論）に基づいて FORTRAN プログラムを作成した。1 次元等方非分散性構造中の波動場に試験的に適用し、当該理論に基づいた数値計算が可能なること、不連続境界が格子点上にない場合でも計算可能であることを検証した。計算速度や精度、多次元への拡張については今後の課題である。

## 2. 強分散性解析手法への拡張

## ・電磁拡散波に対する理論的検討

電磁拡散波に対する理論的検討を行い、周波数領域におけるイベント解析を行う存否イベント解析の開発に着手した。

## 3. 波動場波数スペクトル解析手法の開発

## ・アレイデータにおける平面波と散乱波の分離

地震計アレイで取得した伝達関数から、アレイに入射する平面波成分とそれ以外の成分を分離する手法を考案した。まず、アレイデータのセンブルンス解析によって平面波の到来方向と入射角とを推定し、スラントスタックによって入射平面波の波形を求めた。また、アレイの各点・各成分に対し、最小二乗法により入射平面波成分を得ることができた。この入射平面波と観測波形との残差をアレイ近傍の短波長不均質による散乱波と考えることにより、アレイ近傍の不均質構造による散乱波を分離し、観測対象領域で生成した散乱波の影響を評価することができる。

## ・時間変化する散乱体の検出可能性の検討

時間変化する媒質の不均質は波動からみると新たな散乱体の生成、移動、消滅を意味し、それらから発生する散乱波は連続監視により得られる伝達関数の時間変化（差分）として抽出可能である。アレイ観測によって得られた散乱波は時間逆伝播させることにより散乱源に収束する。不均質かつ複雑な速度構造においても既知の構造情報を利用することにより、この考えが成立することを計算機シミュレーションによって確認した。

## 【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成 20 年度は、散乱体同定手法、強分散性解析手法、波動場波数スペクトル解析手法に関するプログラムの作成や、遠隔監視システムによる観測データへの適用を実施する予定である。

平成 21 年度は、散乱体同定手法、強分散性解析手法、波動場波数スペクトル解析手法の遠隔監視システムによる観測データへの適用とその結果の評価、研究の取りまとめを実施する予定である。

## 【研究成果の公表】

## &lt;国内会議&gt;

- 1) 羽佐田葉子, 熊澤峰夫, 藤井直之, 渡辺俊樹, Event extraction from seismic data including frequency-dependent noise, 日本地球惑星科学連合 2007 年大会, S230-P001, 2007.
- 2) 伊藤広和, 藤井直之, 羽佐田葉子, 渡辺俊樹, 熊澤峰夫, 國友孝洋, アレイから分かるアクロス伝達関数の周波数依存性の空間変動, 日本地震学会 2007 年秋季大会, B11-04.
- 3) 古川俊之, 渡辺俊樹, 羽佐田葉子, 山岡耕春, 生田領野, Hi-net 鳳来におけるアクロス連続データに見られる波群の時間変化, 日本地震学会 2007 年秋季大会, P1-003.

## &lt;国際会議&gt;

- 1) Hasada, Y., Watanabe, T., Yamaoka, K., Itoh, H., Fujii, N., Kumazawa, M., Interpretation of Frequency Dependence in Transfer Functions Acquired by Seismic ACROSS, 米国地球物理連合大会秋季大会, NG41A-0148, 2007.
- 2) Watanabe, T., Furukawa, T., Hasada, Y., Ikuta, R., Yamaoka, K., Time-Evolution of Later Phases in the Transfer Functions Obtained by a Permanent Seismic Source and Receivers (ACROSS), 米国地球物理連合大会秋季大会, NG41A-0147, 2007.
- 3) Nakajima, T., Fujii, N., Sayanagi, K., Nagao, T., Kunitomo, T., Hasada, Y., Satomura, M., Masuda, T. and Kumazawa, M., Recent Progress in Electromagnetic (EM-) ACROSS in Tokai Region, 米国地球物理連合大会秋季大会, NG41A-0150, 2007.

# 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
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位		記号
	名称	記号	
面積	平方メートル	m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup>
体積	立方メートル	m <sup>3</sup>	m <sup>3</sup>
速度	メートル毎秒	m/s	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s <sup>2</sup>	m/s <sup>2</sup>
波数	毎メートル	m <sup>-1</sup>	m <sup>-1</sup>
密度 (質量密度)	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>	kg/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> /kg	m <sup>3</sup> /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m <sup>2</sup>	A/m <sup>2</sup>
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m	A/m
(物質質量の)濃度	モル毎立方メートル	mol/m <sup>3</sup>	mol/m <sup>3</sup>
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m <sup>2</sup>	cd/m <sup>2</sup>
屈折率	(数の) 1	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>	ヨタ	Y	10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>21</sup>	ゼタ	Z	10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>18</sup>	エクサ	E	10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>15</sup>	ペタ	P	10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>12</sup>	テトラ	T	10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>9</sup>	ギガ	G	10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>6</sup>	メガ	M	10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>3</sup>	キロ	k	10 <sup>-18</sup>	アト	a
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	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 <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>
力	ニュートン	N		m・kg・s <sup>-2</sup>
圧力, 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	C		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 <sup>-2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>4</sup> ・A <sup>2</sup>
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-2</sup>
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m <sup>-2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>3</sup> ・A <sup>2</sup>
磁束	ウェーバ	Wb	V・s	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-1</sup>
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>	kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-1</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・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
光照射 (放射性核種の)放射能	ルーメン	lm	cd・sr <sup>(c)</sup>	m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> ・cd=cd
吸収線量, 質量エネルギー当量, 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	lm/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> ・m <sup>-4</sup> ・cd=m <sup>-2</sup> ・cd
	シーベルト	Sv	J/kg	s <sup>-1</sup>
			J/kg	m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup>

- (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に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接頭語を併せて用いても良い。

表4. 単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘力のモーメント	度パスカル秒	Pa・s	m <sup>-1</sup> ・kg・s <sup>-1</sup>
表面張力	ニュートンメートル	N・m	m <sup>2</sup> ・kg・s <sup>-2</sup>
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg・s <sup>-2</sup>
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m・m <sup>-1</sup> ・s <sup>-1</sup> =s <sup>-1</sup>
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎平方秒	rad/s <sup>2</sup>	m・m <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> =s <sup>-2</sup>
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m <sup>2</sup>	kg・s <sup>-3</sup>
質量熱容量 (比熱容量), 質量エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m <sup>2</sup> ・kg・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup>
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 <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup>
熱伝導率	ジュール毎メートル毎ケルビン	J/(m・K)	m・kg・s <sup>-3</sup> ・K <sup>-1</sup>
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m <sup>-1</sup> ・kg・s <sup>-2</sup>
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-1</sup>
体積電荷	クーロン毎立方メートル	C/m <sup>3</sup>	m <sup>-3</sup> ・s・A
電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>-2</sup> ・s・A
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	m <sup>-3</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>4</sup> ・A <sup>2</sup>
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-2</sup>
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・mol <sup>-1</sup>
モルエントロピー	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol・K)	m <sup>2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup> ・mol <sup>-1</sup>
モル熱容量	ジュール毎キログラム	C/kg	kg <sup>-1</sup> ・s・A
照射線量 (X線及びγ線)	グレイ毎秒	Gy/s	m <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup>
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m <sup>4</sup> ・m <sup>-2</sup> ・kg・s <sup>-3</sup> =m <sup>2</sup> ・kg・s <sup>-3</sup>
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m <sup>2</sup> ・sr)	m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> ・kg・s <sup>-3</sup> =kg・s <sup>-3</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	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86400 s
度	°	1 °=( /180) rad
分	'	1'=(1/60) °=( /10800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=( /648000) rad
リットル	l, L	1 l=1 dm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>
トン	t	1 t=10 <sup>3</sup> 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 <sup>-19</sup> J
統一原子質量単位	u	1 u=1.6605402(10) × 10 <sup>-27</sup> kg
天文単位	ua	1 ua=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=1852m
ノット		1 ノット=1 海里毎時=(1852/3600)m/s
アール	a	1 a=1 dam <sup>2</sup> =10 <sup>2</sup> m <sup>2</sup>
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10 <sup>5</sup> Pa
オングストローム		1 Å=0.1nm=10 <sup>-10</sup> m
バール	b	1 b=100fm <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup>

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 <sup>-7</sup> J
ダイン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N
ポアズ	P	1 P=1 dyn・s/cm <sup>2</sup> =0.1Pa・s
ストークス	St	1 St=1cm <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	Oe	1 Oe ≡ (1000/4π) A/m
マクスウェル	Mx	1 Mx ≡ 10 <sup>-8</sup> Wb
スチルブ	sb	1 sb=1cd/cm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> cd/m <sup>2</sup>
ホト	ph	1 ph=10 <sup>4</sup> lx
ガリ	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 R=2.58 × 10 <sup>-4</sup> 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	X unit	1 X unit=1.002 × 10 <sup>-4</sup> nm
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T
ジャンスキー	Jy	1 Jy=10 <sup>-26</sup> W・m <sup>-2</sup> ・Hz <sup>-1</sup>
フェルミ	fm	1 fermi=1 fm=10 <sup>-15</sup> m
メートル系カラット		1 metric carat=200 mg=2 × 10 <sup>-4</sup> kg
トル	Torr	1 Torr=(101325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101325 Pa
カロリー	cal	1 cal=4.184 J
マイクロン	μ	1 μ=1 μm=10 <sup>-6</sup> m

