JAEA-Review
2010-035

JAEA-Review

先行基礎工学研究に関する平成21年度研究概要報告

Brief Report of the JAEA Cooperative Research(A) on the Nuclear Fuel Cycle for 2009

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

産学連携推進部
Industrial Collaboration Promotion Department

August 2010
Japan Atomic Energy Agency
日本原子力研究開発機構

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ（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, 2010

JAEA-Review 2010-035

先行基礎工学研究に関する平成21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

（2010年6月10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21年度で15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、アイディ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（修士課程も含む。）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21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3件の合計11件については平成21年度で終了した。

原子力科学研究所(駐在)：〒319-1195　茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

JAEA-Review 2010-035

Brief Report of the JAEA Cooperative Research (A) on the Nuclear Fuel Cycle for 2009

（Ed.）Research Cooperation Section

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

（Received June 10,2010）

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 2009 was the fifteenth 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 2009 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; eleven of which ended in 2009. Of these, six were related to fast breeder reactors, two to the nuclear fuel cycle, and three 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 21 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 21 年度研究概要報告

2.1 高速増殖炉関係
2.1.1 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 …… 11
2.1.2 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 …… 23
2.1.3 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 …… 26
2.1.4 粒界制御法による改良型高速炉用耐照射材料の開発 …… 39
2.1.5 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 …… 45
2.1.6 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度化に関する研究 …… 49
2.1.7 酸化物分散強化型フェライト鋼の強度特性に及ぼすナノメゾスケール微細組織構造に関する研究 …… 55
2.1.8 非構造格子系における高精度・高効率気液二相流数値解析手法の開発と実規模ガス巻込み現象への適用 …… 63
2.1.9 イオン交換による使用済燃料中モリブデンの分離抽出 …… 69
2.1.10 抽出剤内包マイクロカプセルによるモリブデンの選択的分離・回収法の開発 …… 72
2.1.11 アクチニド元素含有酸化物析出相の挙動と物性 …… 76
2.1.12 分子動力学法を用いた MOX 燃料中における Am 拡散挙動の解明 …… 80
2.1.13 長寿命核分裂生成物（LLFP）の核変換に関する基礎的研究 …… 84
2.1.14 中性子照射鉄鋼材料における析出物／マトリックス界面近傍の原子レベル偏析機構の研究 …… 88
2.1.15 電子線・イオン照射による炉心材料の組織と強度のミクロ・マクロ相関の研究 …… 92
2.1.16 超臨界水を用いた金属イオンの酸化物ナノ粒子化プロセスの検討 …… 95
2.1.17 超高純度オーステナイト系合金を用いた微量添加元素が長時間強度に及ぼす影響に関する研究 …… 98
2.1.18 組織エネルギー論に基づく材料組織の経時変化の定量化と材料強度予測手法の開発 …… 104
2.1.19 高速型プログラマブル FADC による炉雑音解析 …… 109

2.2 核燃料サイクル関係
2.2.1 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 …… 121
2.2.2 ゼオライトの収着特性を利用した廃塩処理に関する基礎的研究 …… 127
2.2.3 塩化物溶融塩中でのアクチニドオキソイオンの還元反応に関する基礎研究 …… 134
2.2.4 電磁波加熱による過渡沸騰挙動に関する研究 …… 138

2.3 放射線安全関係

2.3.1 GPS 高エネルギー分解能シンチレータによる高信頼性α線波高弁別検出器の開発 …… 147

2.4 地層処分・地層科学関係

2.4.1 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 …… 153
2.4.2 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 …… 157
2.4.3 イベント解析技術の拡張 …… 161
2.4.4 結晶質岩における断層中の選択的物質移動経路の同定とその長期的挙動解析技術の開発 …… 165
2.4.5 土壌水分観測手法としての光ファイバー計測技術の開発 …… 168
2.4.6 天然鉱物中のナノ空孔解析と物質移行 …… 173
2.4.7 熱年代学による温度履歴解析を用いた断層運動と熱水変質現象の活動性評価に関する研究 …… 177
2.4.8 地層中でのヨウ素やセレンのスペシエーションに基づく移行挙動解析 …… 180

Contents

1. Research theme list by the JAEA Cooperative Research (A) on the Nuclear Fuel Cycle for 2009 1

2. Brief report of the JAEA Cooperative Research (A) on the Nuclear Fuel Cycle for 2009

2.1 Fast Breeder Reactor

2.1.1 Clarification of complex flow structure in a multi-elbow in a high Re number regime 11
2.1.2 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 23
2.1.3 Blanket Fuel with High Proliferation Resistance in Fast Breeder Reactor 26
2.1.4 Research and Development of high performance FBR core materials due to grain boundary engineering 39
2.1.5 Study on simulation of acoustic propagation with in a steam generator of FBR 45
2.1.6 Clarification of the sea salt ESCC damaging mechanism and the improvement of material strength due to cavitation 49
2.1.7 Study of Microstructure affecting the Mechanical Properties in Oxide Dispersion Strengthened Ferritic Steel 55
2.1.8 Development of High-precision Numerical Simulation Algorithm for Gas-liquid Two-phase flows on Unstructured meshes and its Application to Gas Entrainment Phenomena 63
2.1.9 Molybdenum extraction from spent nuclear fuel by ion exchange technique 69
2.1.10 Development of selective separation and recovery method for molybdenum by microcapsules enclosing extractant 72
2.1.11 Physical properties of actinide-containing fission product oxides 76
2.1.12 Study on Am diffusion in MOX fuels using a molecular dynamics simulation 80
2.1.13 Basic Study on Transmutation of Long-life Fission Products(LLFP) 84
2.1.14 Neutron irradiation-induced segregation at steel matrix/precipitate interface 88
2.1.15 Micro-macro correlation between structure and strength of core component materials by means of electron and ion irradiation 92
2.1.16 Investigation of process for producing nanoparticles of metal oxides using supercritical water 95
2.1.17 Effect of a small amount of additive elements on long-term strength of austenitic stainless steels using ultra-high purity alloying systems 98
2.1.18 Quantitative evaluation of microstructural evolution in metallic materials with the aid of system free energy concept and the development of a method for prediction of the materials strength 104
2.1.19 Reactor noise analysis using fast programmable FADC board 109

2.2 Nuclear Fuel Cycle

2.2.1 Study on molybdenum oxide melt from a viewpoint of thermodynamic evaluation and applicability for pyrochemical reprocessing 121
2.2.2 Fundamental Study on Waste Salt Purification by Zeorite Sorption 127
2.2.3 Fundamental study on reductive reaction of actinide oxo ion in molten chloride 134
2.2.4 Study on transient boiling behavior by microwave heating 138

2.3 Radiation Safety

2.3.1 Development of a highly-reliable energy separation type alpah monitor based on a GPS high-energy resolution scintillator 147

2.4 Geological Disposal / Geoscience

2.4.1 Evaluation of HLW glass performance by kinetic and parametric approach 153
2.4.2 Dynamic Behavior of Colloidal Silicic Acid in the Alkaline Front and its Influences on the Nuclide Migration 157
2.4.3 Expansion of event analysis technique 161
2.4.4 Characterization of flow-path in fault and its methodology development for crystalline rock 165
2.4.5 Developing the moisture sensor using optical fiber technique 168
2.4.6 Nanopore analysis for elemental migration in natural minerals 173
2.4.7 Thermochronologic research for activity evaluation of fault motion and hydrothermal alteration 177
2.4.8 A study on the migration of iodine and selenium in sedimentary rocks based on the speciation analyses of the elements 180

1. 先行基礎工学研究に関する平成 21 年度研究協力課題一覧

This is a blank page.

平成 21 度先行基礎工学研究協力課題一覧

□・・・平成 21 年度で終了した研究協力課題

No.	研究協力テーマ 研究協力課題	機構側 受入箇所	機構側 研究者名	協力 形態	提案者 所属機関・氏名	研究 期間
【高速増殖炉関係】						
1	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 炉開発 U 設計･計画 Gr	山野 秀将 相澤 康介	共同 研究	東北大学大学院 工学研究科 量子ｴﾈﾙｷﾞｰ工学専攻 教授 橋爪 秀利	H19 年度 ～ H21 年度
2	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 要素技術 U 炉心構造材料 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
3	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 研究生	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
4	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 矢野 康英	共同 研究 研究生	北海道大学 ｴﾈﾙｷﾞｰ変換ﾏﾃﾘｱﾙ 研究ｾﾝﾀｰ 教授 渡辺 精一	H19 年度 ～ H21 年度
5	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	FBR ﾌﾟﾗﾝﾄ 工学ｾﾝﾀｰ 保全技術 Gr	上田 雅司	共同 研究	福井大学 大学院工学研究科 原子力･ｴﾈﾙｷﾞｰ安全 工学専攻 教授 飯井 俊行	H19 年度 ～ H21 年度
6	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度化に関する研究	FBR ﾌﾟﾗﾝﾄ 工学ｾﾝﾀｰ 保全技術 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
7	酸化物分散強化型フェライト鋼の組織制御に基づく強度特性向上に関する研究 酸化物分散強化型フェライト鋼の強度特性に及ぼすナノメゾスケール微細組織構造に関する研究	次世代部門 要素技術 U 炉心構造材料 Gr	大塚 智史	共同 研究	九州大学大学院 総合理工学研究院 融合創造理工学部門 教授 中島 英治	H20 年度 ～ H22 年度
8	高速炉ガス巻き込み現象を直接評価できる数値解析手法の開発 非構造格子系における高精度・高効率気液二相流数値解析手法の開発と実規模ガス巻込み現象への適用	次世代部門 FBR ｼｽﾃﾑ U ｼﾐｭﾚｰｼｮﾝ Gr	伊藤 啓	共同 研究	京都大学 大学院工学研究科 原子核工学専攻 教授 功刀 資彰	H20 年度 ～ H22 年度
9	使用済燃料中のモリブデンを母材として用いた高性能燃料の創製 (1)イオン交換による使用済燃料中モリブデンの分離抽出	大洗 燃材部 AGS	逢坂 正彦	共同 研究	東京工業大学 原子炉工学研究所 助教 鈴木 達也	H20 年度 ～ H22 年度
10	使用済燃料中のモリブデンを母材として用いた高性能燃料の創製 (2)抽出剤内包マイクロカプセルによるモリブデンの選択的分離・回収法の開発	大洗 燃材部 AGS	逢坂 正彦	共同 研究	東北大学 大学院工学研究科 量子ｴﾈﾙｷﾞｰ工学専攻 教授 三村 均	H20 年度 ～ H22 年度
11	高燃焼度 MA 含有 MOX 燃料における FP 酸化物相の物性に関する基礎研究 アクチニド元素含有酸化物析出相の挙動と物性	大洗 燃材部 AGS	田中 康介	共同 研究	大阪大学 大学院工学研究科 教授 山中 伸介	H20 年度 ～ H22 年度

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
12	Am の MOX 燃料中における拡散挙動に関する研究 分子動力学法を用いた MOX 燃料中における Am 拡散挙動の解明	大洗 燃材部 AGS	佐藤 勇	共同 研究	九州大学 大学院工学研究院 ｴﾈﾙｷﾞｰ量子工学部門 助教　有馬　立身	H20 年度 ～ H22 年度
13	長寿命核分裂生成物（LLFP）の効率的核変換に関する基礎的研究 長寿命核分裂生成物（LLFP）の核変換に関する基礎的研究	大洗 燃材部 MMS	舘 義昭	共同 研究	東北大学 大学院工学研究科 量子ｴﾈﾙｷﾞｰ工学専攻 教授　若林　利男	H20 年度 ～ H22 年度
14	原子炉照射した高速炉炉心材料の組織変化機構に関する研究 中性子照射鉄鋼材料における析出物／マトリックス界面近傍の原子レベル偏析機構の研究	大洗 燃材部 MMS	山県 一郎	共同 研究	東北大学 金属材料研究所 量子ｴﾈﾙｷﾞｰ材料科学国際研究ｾﾝﾀｰ 助教　畠山　賢彦	H21 年度 ～ H23 年度
15	高速炉炉心材料の照射下強度特性と微細構造変化の相関関係モデリングに関する研究 電子線・イオン照射による炉心材料の組織と強度のミクロ･マクロ相関の研究	大洗 燃材部 MMS	山下真一郎	共同 研究 研究生	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	H21 年度 ～ H23 年度
16	超臨界流体による水熱合成プロセスを用いた高性能核燃料粉末調製技術の開発 超臨界水を用いた金属イオンの酸化物ナノ粒子化プロセスの検討	大洗 燃材部 AGS	逢坂 正彦	共同 研究 研究生	東京工業大学 原子炉工学研究所 教授　池田　泰久	H21 年度 ～ H23 年度
17	高速炉構造用ステンレス鋼における微量元素添加量の最適化に関する研究 超高純度オーステナイト系合金を用いた微量添加元素が長時間強度に及ぼす影響に関する研究	次世代部門 要素技術 U 炉心構造材料 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	H21 年度 ～ H23 年度
18	溶接部を含む構造材料の金属組織－材料強度長時間経時変化予測に関する研究 組織エネルギー論に基づく材料組織の経時変化の定量化と材料強度予測手法の開発	次世代部門 要素技術 U 炉心構造材料 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	H21 年度 ～ H23 年度
19	高速炉における炉雑音測定法の高度化に関する研究 高速型プログラマブル FADC による炉雑音解析	FBR ﾌﾟﾗﾝﾄ 工学ｾﾝﾀｰ 保全技術 Gr	鈴木 隆之 北野 彰洋	共同 研究	福井大学 大学院工学研究科 原子力･ｴﾈﾙｷﾞｰ安全工学専攻 准教授　玉川　洋一	H21 年度 ～ H23 年度
【核燃料サイクル関係】						
20	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 ｴﾈﾙｷﾞｰ科学研究科 教授　岩瀬　正則	H19 年度 ～ H21 年度
21	ゼオライト収着法を用いた廃塩処理に関する基礎研究 ゼオライトの収着特性を利用した廃塩処理に関する基礎的研究	次世代部門 再処理ｼｽﾃﾑ U 乾式再処理 Gr	天本 一平	共同 研究	秋田大学 工学資源学部附属 環境資源学研究ｾﾝﾀｰ 教授　林　滋生	H20 年度 ～ H21 年度 1 年繰上 終了

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
22	塩化物溶融塩を用いた乾式再処理プロセスの改良に関する研究 塩化物溶融塩中でのアクチニドオキソイオンの還元反応に関する基礎研究	東海 工学試験部 試験第3課	永井 崇之	共同 研究	京都大学 原子炉実験所 量子ﾘｻｲｸﾙ工学 研究分野 教授　山名　元	H21年度 ～ H23年度
23	電磁波加熱下の気液混相過渡現象に関する基礎研究 電磁波加熱による過渡沸騰挙動に関する研究	次世代部門 燃料製造U 燃料製造技術 開発Gr	鈴木 政浩	共同 研究	筑波大学 ｼｽﾃﾑ情報工学研究科 教授　阿部　豊	H21年度 ～ H23年度
【放射線安全関係】						
24	高信頼性α線波高弁別検出器の開発 GPS 高エネルギー分解能シンチレータによる高信頼性α線波高弁別検出器の開発	東海 放管部 放管1課	井﨑 賢二	共同 研究	北海道大学 大学院工学研究科 准教授　金子　純一	H21年度 ～ H23年度
【地層処分・地層科学関係】						
25	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	地層部門 基盤研究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 ｴﾈﾙｷﾞｰ量子工学部門 准教授 稲垣 八穂広	H19年度 ～ H21年度
26	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	地層部門 基盤研究U 核種移行Gr	飯島 和毅	共同 研究	東北大学 大学院工学研究科 量子ｴﾈﾙｷﾞｰ工学専攻 准教授　新堀　雄一	H19年度 ～ H21年度
27	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	藪内 聡	共同 研究	名古屋大学　大学院 環境学研究科 准教授 渡辺　俊樹	H19年度 ～ H21年度
28	地下深部における断層中の物質移動特性に関する研究 結晶質岩における断層中の選択的物質移動経路の同定とその長期的挙動解析技術の開発	地層部門 東濃U 結晶質岩 地質Gr	鶴田 忠彦	共同 研究	名古屋大学 博物館資料分析系 准教授　吉田　英一	H20年度 ～ H22年度
29	表層部における地下水流動解析に必要なデータの取得技術の開発 土壌水分観測手法としての光ファイバー計測技術の開発	地層部門 幌延U 堆積岩地質Gr	前川 恵輔	共同 研究	岡山大学 大学院環境学研究科 助教　小松　満	H20年度 ～ H22年度
30	核種移行に関連する鉱物中の微細空孔の基礎研究 天然鉱物中のナノ空孔解析と物質移行	地層部門 基盤研究U 核種移行Gr	吉川 英樹	共同 研究	東京学芸大学 広域自然科学講座 環境科学分野 准教授　佐藤　公法	H21年度 ～ H23年度
31	精密調査段階における自然現象の活動性評価に関する研究 熱年代学による温度履歴解析を用いた断層運動と熱水変質現象の活動性評価に関する研究	地層部門 東濃U 自然事象Gr	花室 孝広	共同 研究	京都大学 大学院理学研究科 地球惑星科学専攻 教授　田上　高広	H21年度 ～ H23年度
32	地層中での化学種解析及び移行挙動解析手法の構築 地層中でのヨウ素やセレンのスペシエーションに基づく移行挙動解析	地層部門 幌延U 堆積岩地質Gr	岩月 輝希	共同 研究	広島大学 大学院理学研究科 教授　高橋　嘉夫	H21年度 ～ H23年度

This is a blank page.

2. 先行基礎工学研究に関する平成 21 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21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, 江原 真司		
機構側	次世代原子力システム研究開発部門 山野 秀将, 相澤 康介		
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 Fセルボ4階		
通算研究期間	平成19年6月 ～ 平成22年2月	当該年度研究期間	平成21年7月 ～ 平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員 □研究生の受入れ ■共同研究		

【研究目的】

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マルチエルボ部での流動剥離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。

【研究内容（概要）】

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の低圧域に急激に流れ込むため流動構造は更に複雑となる。

本研究は、直管、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流動剥離現象の把握を3年間に亘って実施するものである。この実験では、マルチエルボ内の複雑流動構造を明らかにするため、最新の計測手法であるPIV (Particle Image Velocimetry)を活用する。本年度は、上記研究のうち、1/7 縮尺水流動試験装置（内径 125mm 程度）を用いて流速をパラメータにして主として1～2段エルボ試験を実施する。また、必要に応じて、前年度に実施された 1/15 縮尺水流動試験（内径 56mm）を継続して配管スケール効果の検討に資する。得られた試験データより、複数エルボ効果および配管スケール効果の検討を行う。さらに、これらの試験の数値解析を行う。

【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 年度では、既存の 1/15 縮尺流動試験装置（配管内径 56.0mm）を使用した予備試験を実施し、エルボ入口条件としてほぼ発達した乱流速度分布の取得に成功した（Re=43,000）。更に対象とする曲率半径比 1.0 の立体接続 2 段エルボに関する屈折率調合 PIV 試験を同 Re 数条件において実施した。また、1/7 縮尺（配管内径 126.6mm）の流動試験装置の設計・製作を実施した。さらに、FLUENT コードを用いて 1/15 縮尺体系での数値解析を実施し、可視化実験との比較を実施した。

平成 20 年度では、先ず 1/15 縮尺流動試験装置において Re 数が 50,000 と 100,000 に対する 2 段エルボ内の可視化実験を実施した。また、1/7 縮尺流動試験装置に 1 段ショートエルボを設置して装置の健全性（固有振動数、入口条件、全圧力損失係数）を確認し、Re=320,000 に対する可視化実験に着手した。さらに、1/15 縮尺と 1/7 縮尺実験の数値解析を STAR-CD コードで実施した。

平成 21 年度では、1/7 縮尺流動試験装置を用いて 1 段エルボおよび 2 段立体接続エルボに関する PIV 試験を実施し、Re 数を最大 1,000,000 まで変化させた時の詳細な流れ場を観測した。その際エルボ入口の流入条件を詳細に検討し、ほぼ発達した乱流速度分布を与えた。これらの試験データから、エルボ内流れの複数エルボ効果の検討を行った。加えて 1/15 および 1/7 縮尺試験装置を用いて 1 段エルボに関する圧力変動計測試験を実施し、1/15 縮尺試験では Re 数を最大 400,000 まで、1/7 縮尺試験では Re 数を最大 1,000,000 まで変化させた時の、圧力変動特性を計測した。これらの配管スケールの異なる試験データより、圧力変動特性へのスケール効果に対する検討を行った。さらに、1/7 縮尺実験の数値解析を STAR-CD コードで実施した。

【研究成果（当該年度）】

(1)試験概要

平成 21 年度は、1/7 縮尺流動試験装置を使用した 1 段エルボおよび 2 段立体接続エルボに関する PIV 可視化実験を行うとともに、1/15 および 1/7 縮尺流動試験装置を用いた 1 段エルボに関する圧力変動計測実験を行った。実験は実機条件（Re 数が 10^7 オーダー）には届かない Re 数（最大で 10^6）での実施となるが、実機と同じ超臨界域[1]と呼ばれる Re 数領域（約 320,000 以上）で実験を行うことで、本実験結果を実機へ外挿可能と考えている。超臨界域では 1 段エルボに対する全圧力損失係数がほぼ一定となることが示されている。本実験で使用する 1/15 および 1/7 縮尺試験装置の妥当性、つまり想定通りに超臨界域での実験が行われているかどうかを検証するために、1 段エルボに対し全圧力損失係数を計測し既存の結果[1, 2]と比較を行った。1/15 縮尺装置では Re 数を 100,000～400,000 の範囲で、1/7 縮尺装置では 320,000～1,000,0000 の範囲で試験を行い、1/15 縮尺では Re 数が 320,000 より上で、1/7 縮尺では全ての Re 数の範囲で、既存のデータ（全圧力損失係数～1.4）とほぼ一致する結果となり、本試験装置の妥当性が確認された。1/15 縮尺では Re 数が 320,000 より小さい時は全圧力損失係数が超臨界域での値よりも大きくなり、これは Idelchik[1]の結果とも一致する傾向で、この領域は超臨界域ではなく遷移域と呼ばれている[1]。

(2)1 段エルボ体系 1/7 縮尺流動試験装置における可視化実験

次に 1 段エルボに関する可視化試験結果について述べる。1 段エルボでは Re=320,000、600,000、1,000,000 で計測した。主にエルボ腹側で生じる流れの剥離に着目しその Re 数による変化を評価するとともに、後述する 2 段エルボとの比較を行うことで流れ場への複数エルボ効果の検証を行った。PIV 計測では流れ場のトレーサとして直径 20 μm のナイロン粒子を使用し、シートレーザー光のパルス間隔を可視化領域や Re 数により 200～800 μs で変化させ、2048 枚（1024 ペア）の画像をカメラのフレームレート 60 fps（30 fps/1 ペア）で取得し流れ場の解析を行った。

流れ場としてまずエルボ入口における速度分布の検証を行った。エルボ内の流れにおいて、その入口速度分布は多大な影響を与えるため、その把握は非常に重要となる。実機では旋回や

偏流を含む非常に複雑な入口条件となることが予想されているが、本実験では数値解析との比較を行うことを念頭に置いているという点および基本的なエルボ流れを解明するという観点から、比較的単純な入口速度条件、発達乱流を用いることにしている。エルボの入口速度条件をエルボ上流 5D（D=円管直径=126.6 mm）で評価したところ、全ての Re 数で完全ではないがほぼ発達した乱流を得ることができた。図 1 に PIV 計測した円管流れ方向断面における Re=1,000,000 のときの入口における時間平均速度分布を示す。図 1(a)は横軸に円管半径で無次元化した管中心からの距離を、縦軸に平均流速で無次元化した円管右側および左側の時間平均速度をとっており、この図から管内が偏流のない中心軸対称流れになっていることが分かる。図 1(b)は横軸を Blasius 則から算出した摩擦速度と流体の動粘度で無次元した壁からの距離、縦軸を摩擦速度で無次元化した時間平均速度とし、入口速度分布を壁法則と比較したものである。この図から、実験の入口速度分布はほぼ壁法則と一致していることが分かる。完全に発達した乱流と比べ管中心で平坦な速度分布となっているが、実験でもほぼ発達した乱流をエルボ入口で得ることができたと言える。他の Re 数に関しても同様な入口速度分布を得ており、また平均速度だけでなく速度変動の rms 値も評価し、主流方向 rms 分布では壁近傍で急峻なピークを持つ分布を、壁方向においても壁近傍でなだらかなピークを持つ分布を得た。これらは発達乱流特有の分布と同様の傾向を示し、速度変動 rms 分布からも、本実験ではほぼ発達した乱流をエルボ入口で得ることができたと推察される。

1 段エルボ流れのエルボ内およびエルボ下流の可視化試験はエルボの曲率半径を含む平面（曲がり面）内のみで行い、平均流れ場におけるエルボ腹側の剥離現象や速度変動分布などを解析した。図 2 に Re=1,000,000 のときのエルボ内平均速度ベクトル図を示す。流れ場はエルボ入口では既にエルボ背側の高圧領域の影響を受け、腹側で高速領域、背側で低速領域が形成されていることが図から分かる。また腹側では高速で流れる流体がエルボの曲率に追随することができずに剥離が生じ、遠心力により腹側から配管中央へ向かい流れていることも見て取れる。剥離点下流では主流方向流れの向きが主流と逆向きになっている剥離領域が存在し、その下流に低速領域が続く。剥離領域が配管壁面と接している上流側を剥離開始点、下流側を速度回復点と呼び、剥離現象の特徴的な量として着目した。Re=320,000、600,000 および 1,000,000 における剥離開始点はそれぞれエルボ入口から 62°、64° および 62°、速度回復点は 0.14D、0.29D、および 0.29D となっている。Re 数による剥離開始点の違いはほとんどないが、速度回復点に関しては 320,000 のときが他と比べ上流に位置し、つまり剥離領域が 320,000 のときだけ他と比べ小さくなっており、Re 数によって異なる結果となった。Re=320,000 は超臨界域の開始に相当し、遷移域に近い領域であるため、超臨界域の結果とは多少異なったのかもしれない。一方、可視化平面内のみの速度成分だけを考慮した疑似的な乱流エネルギー分布に関しては Re 数による顕著な変化は観測されず、どの Re 数に関しても剥離領域の境界付近および剥離領域下流の低速域で乱れが大きい分布となっており、流れの乱れの大小からは Re 数による剥離領域の大きさの変化を説明することはできない。昨年度までの結果より、剥離領域付近における流れ方向垂直断面内では、管中心付近では遠心力によるエルボ腹側から背側への流れ（二次流れ）が存在し、管壁付近では背側から腹側へ向かう流れが形成されることが分かっている。エルボ背側では主流方向の高速領域が、腹側では低速領域が存在するため、この管壁付近の背側から腹側への流れは背側から腹側への運動量の輸送を担っており、剥離領域およびその下流の速度回復を引き起こしている。このことから、剥離領域の大きさやその Re 数依存は速度変動ではなく二次流れが重要であり、実験により二次流れを計測し評価する必要があると言える。

(3)2 段エルボ体系 1/7 縮尺流動試験装置における可視化実験

続いて 2 段エルボに関する可視化試験結果について述べる。2 段エルボでの観察面は、1 段目および 2 段目エルボの曲がり面、両エルボ中間における流れ方向垂直断面、2 段目エルボ下流 0.2D の位置での流れ方向垂直断面で、Re 数は 1 段エルボと同じ 320,000、600,000、1,000,000 である。エルボ間の距離は 0.57D で 1 段目と 2 段目エルボは立体的に接続されており、それぞれの曲がり面は同一平面上にはなくお互い直交している。これらの計測を行う前に、1 段エルボ試験のときと同様、まずエルボの入口条件の確認を行った。1 段目エルボの上流 5D

で計測を行った結果、1 段エルボのときと同様ほぼ発達した乱流を確認した。2 段エルボ流れの全体の流況は、1 段目エルボでは剥離を生じるが 2 段目エルボでは剥離は生じず、立体接続となっているため旋回流成分が発生し、2 段目エルボ通過後には全体的に旋回流となっている。

1 段目エルボにおける剥離開始点は Re=320,000、600,000、1,000,000 に対しそれぞれエルボ入口から 81°、74°、76° となっており、Re=320,000 のときだけが異なり、剥離開始が他と比べ下流にずれている結果となった。また速度回復点はそれぞれの Re 数に対し、それぞれエルボ下流 0.11D、0.24D、0.24D となり、これも Re=320,000 のときだけが異なり、より上流で速度回復が生じる結果となった。Re 数が 320,000 のときだけ速度回復が早いのは上述の通りである。エルボ中間の流れ垂直断面における可視化結果から、主流平均速度に対する二次流れの速度の大きさは、最大値のみを示すと Re=320,000 のときは 67%、600,000、1,000,000 のときはともに 58%となり、320,000 のときは他と比べ強い二次流れが形成されていることが分かった。

1 段エルボの結果と比べると 2 段エルボの場合はいずれの Re 数に対しても剥離領域が縮小されて計測されているが、これは可視化面内だけでそうなっているのか、つまり剥離領域の大きさ自体はあまり変化していないが 2 段目エルボの影響を受けて曲がり面に対して移動した結果小さく観測されたのか、それとも現象として剥離領域の縮小が生じているのかは今回の結果からは判断できない。しかし後述するエルボ間の流れ垂直断面の可視化結果から、二次流れの流況は 1 段目エルボ曲がり面に対して大きく対称性を崩していないため、剥離領域が 2 段目エルボの影響で曲がり面に対して大きく移動しているとは考えにくい。これらのことから、断言はできないが、2 段エルボ流れの 1 段目エルボにおける剥離領域は、1 段エルボ流れの場合と比較し縮小していると考えるのが妥当であると言える。2 段エルボ流れの 1 段目エルボで剥離領域が縮小した原因は、二次流れが 1 段エルボ流れのときと比べ強くなったからではないかと考えられる。上述のように 1 段目と 2 段目の二つのエルボは比較的近い距離（0.57D）を隔てて立体的に接続されており、2 段目エルボ下流における流れ方向は 1 段目エルボ下流の二次流れ面と平行になっている。管内の二次流れは、直管であれば流動抵抗となる管壁に囲まれた状態で形成されるが、2 段エルボ流れにおいては 1 段目エルボの少し下流では抵抗となる管壁がなくなり 2 段目エルボの入口となっているため、二次流れが強くなることが可能ではないか、と推測できる。

可視化面内の速度分布に関する 1 段エルボ流れのエルボ下流と 2 段エルボ流れの 1 段目エルボ下流との違いとしては、剥離領域の縮小に加え剥離領域下流の低速領域も 2 段エルボ流れでは 1 段エルボ流れよりも縮小していること、また 1 段エルボ流れではエルボ背側高速領域中の壁近傍に存在した速度ピークが 2 段エルボ流れの方では観察されなかったことが挙げられる。この二つに関しても、2 段エルボ流れでは二次流れが 1 段エルボ流れよりも強くなっていると考えると説明することができる。エルボ背側の高速領域の持つ大きな運動量を腹側の低速領域へ輸送するのは二次流れの中の管壁付近の流れである。この流れが速くなればなるほど低速側へ輸送される運動量が大きくなり、つまりエルボ腹側下流の低速域での速度が速くなるはずである。また 1 段エルボ流れで見られたエルボ背側の高速領域中の速度ピークは、上述した管壁付近の二次流れにより持ち去られた残りの運動量によるものと考えることができ、従ってこの二次流れが速くなれば背側の運動量がより持ち去られることになり、速度ピークが形成されづらくなると考えられる。実際、エルボ背側の高速領域は、1 段エルボ流れのときは 2 段エルボ流れのときよりも若干速度が大きくなっており、このことも 2 段エルボ流れでは 1 段目エルボ下流の二次流れが 1 段エルボ流れよりも大きくなっていることを示唆していると言える。

エルボ中間の流れ垂直断面における二次流れについては、1 段エルボ流れでは管中心を通る線に対し対称な双子渦状の流れ場になることが分かっているが[3]、今回の 2 段エルボ流れにおいては対称な流れ場ではなく、2 段目エルボの腹側に位置する渦が大きく速度も速くなっていることが分かった。これは上述したように 2 段目エルボの腹に近い側では二次流れを抑制する管壁の抵抗が相対的に小さくなるため、二次流れが発達し易く速度も大きくなるためと考えられる。またこの断面では 1 段目エルボの腹側に互いに逆回りする小さな二つの渦が観測された。平成 20 年度までの 1/15 縮尺の可視化実験でも同様の渦が観測され、これはエルボ腹側で

形成される 2 つの縦渦が垂直断面では 2 つの互いに逆回りする渦として観測されたものである。去年度までの実験は Re 数の範囲としては亜臨界域[1]での実験となるが、今年度実施した超臨界域においても亜臨界域と同様、剥離領域から渦放出は二つの縦渦の形で現れると考えられる。

2 段目エルボの可視化結果を以下に述べる。曲がり面の可視化から、2 段目エルボの腹側では剥離を観測することはできず、2 段目エルボ下流 0.2D の位置での流れ方向垂直断面における可視化から、流れが旋回流になることが分かった。1 段目エルボ下流で生じた管中心から背側の高速領域は 2 段目エルボの側壁に向かって進み、側壁の円周方向に曲げられながら 2 段目エルボ内を通過し下流に流れていくと考えられ、この過程で旋回流が形成されると推測される。エルボ内ではこの旋回成分による遠心力で流体が管壁側に押しつけられるため、エルボ腹側では剥離が生じないものと考えられる。また 2 段目エルボの曲がり面における 2 段目エルボの入口速度分布は、入口に近づくに従い 2 段目エルボ腹側の速度が大きくなる。この速度分布は Re 数による変化はほとんど見られない。また同じ曲がり面における 2 段目エルボ下流の速度分布はエルボ背側が速度が大きい分布となり、これに関しては Re 数、0D～0.62D までの位置による違いはほとんどない結果となった。

(4)1 段エルボ体系 1/15 および 1/7 縮尺流動試験装置における圧力変動測定実験

続いて圧力変動測定実験について以下に述べる。圧力変動測定実験は 1/15 および 1/7 縮尺流動試験装置で行い、圧力変動特性への Re 数の影響および配管縮尺の影響を調べた。過去の知見[2]からエルボ流れにおける流動起因の圧力変動は剥離領域の境界付近で大きいことが分かっているため、圧力センサはエルボ腹側およびその下流に集中的に設置し、合計 34 箇所で圧力計測を行った。センサは直径 10mm 程度のものを使用しており、配管直径と比較しそれほど小さくはないためセンサが集中している場所では直接配管に設置することができないため外径 6mm の円管を介して取り付けている。圧力変動計測では圧力のサンプリング周波数を 500Hz とし、65,536 データ（約 130 秒間）の時系列データを測定、この時系列データを FFT 処理することで周波数解析を行い、パワースペクトル密度（PSD）分布中の卓越した周波数の有無を検証する。

図 3 に 1/7 縮尺装置を使用し Re=320,000 のときの圧力変動の時系列データを場所ごとに示す。流れの剥離の影響がないと考えられるエルボ入口外側やエルボ下流 0D 外側の圧力は、流れの剥離の影響がある剥離領域やその下流に比べ変動の幅が小さいことが分かる。またエルボ下流 0D や 0.4D などの内側 0° の圧力変動からは特徴的な負のスパイク[4]が観測された。エルボ下流 30° は剥離領域から放出される縦渦が位置する場所と推測され、この場所では速度変動やそれに起因する圧力変動も大きいと考えられる。実際そのような結果が得られていることが図から分かる。これらの圧力変動時系列データを FFT 処理したものを図 4 に示す。測定すべきは流動起因の圧力変動特性であるが、測定データには流動起因ではない実験装置固有の振動の混入が避けらず、得られた PSD には多数のピークが見られる。装置の固有振動と流動起因の振動の峻別は困難で、図からどのピークが流動起因のものか特定することはできない。そのため、以下の操作を圧力データに行い、剥離などの特徴的な流動に起因する圧力変動の周波数ピークを抽出することを試みた。センサからの圧力信号には乱流によるランダムな信号、剥離等の特徴的な流れ起因の信号および実験装置の固有振動による信号が含まれていると考えられる。装置の固有振動は音速で配管内を伝わると考えられ、今回の圧力データのサンプリング周波数と音速を考慮すると、各センサでほぼ同時に計測されると考えられる。図 5 は 1/7 縮尺装置を用い Re=320,000 での各センサにおける信号の時系列データである。図からセンサの場所が異なっても得られる信号はよく似ていることが分かる。この似ている部分が固有振動によるものと推測でき、この成分を取り除くことができれば流動起因の信号を抽出することができると考えられる。そこで、剥離等の特徴的な流れからの信号を含まないセンサの圧力信号をその計測におけるバックグラウンドとみなし、このバックグラウンドを各センサの時系列データから差し引き、その後で FFT 処理をすることで装置の固有振動を含まない PSD が得られるものと期待される。図 6 はバックグラウンド処理をした結果で（1/7 縮尺、Re=320,000）、流れの剥離が影響しない場所では特にピークはなく、影響する場所では特徴的なピークを一つ

だけ見ることができる。このピーク周波数（f）を、平均流速（U）および配管直径（D）で無次元化することで得られる Strouhal（St=fD/U）数は Re 数によらずほぼ 0.5 で一定となった。エルボ流れではエルボでの剥離による圧力変動の卓越周波数は St=0.5 になるという報告があり[5]、このことから今回の実験により得られた卓越周波数はエルボでの剥離によるものであると言える。

1/15 縮尺装置に対しても同様に圧力変動測定実験を行い、バックグラウンドデータとの差分を取った後に FFT 処理を施し解析を行った結果、剥離領域およびその下流で 1/7 縮尺実験により得られたものと同様の卓越ピークが見られた。ただし 1/15 縮尺装置の場合は、センサが細パイプを介して配管に設置されている影響と考えられるピークも存在するが、剥離渦によるものと考えられる周波数を無次元化し St 数で表すと、こちらも Re 数によらずほぼ 0.5 の値となった。図 7 に 1/7 および 1/15 縮尺実験より得られた PSD 分布を無次元化し、剥離渦によるピークが分かり易いエルボ下流 0D、0.4D、0.75D の腹側 30° の場所ごとに示す。図より Re 数および縮尺に関わらずピークの位置と大きさは一致していることが分かる。加えて、1/15 縮尺の結果は高周波領域での減衰が早いが、分布の形もほぼ同じである。このことからエルボ流れの圧力変動特性は St 数および無次元 PSD で整理でき、卓越周波数に対する St 数は配管の縮尺や Re 数によらず一定になると言える。これは、流動場において特徴的な周波数は、その流動場の平均速度と代表長さ（＝管径）から計算される時定数（D/U）で決定される、ということを意味し、即ち流れの周波数は局所的速度スケールや局所的長さスケールのような局所量ではなくマクロな量が重要な因子である、ということになる。また、St 数は平均速度、管径に基づく Re 数には依存しないが、上記のように平均速度、管径には依存するということなので、St 数は動粘性係数（ν）には依存しない、ということにもなる。例えば U、D を一定のままでνを変化させて Re 数を変化させても周波数は変化しない。これらのことから、試験装置の縮尺の違いは圧力変動には影響を与えない、つまり今回の実験結果からスケール効果はないということが言え、実機配管サイズにおいても St 数が 0.5 程度になる周波数が卓越して現れることが予想される。

(5)数値解析

平成 20 年度と同様に、STAR-CD コードを用いて数値解析を実施した。解析条件（メッシュ形状・乱流モデル・境界条件等）については、1/3 縮尺ホットレグ配管の水流動実験[2]を対象として実施した解析条件最適化検討[6]により選定された解析条件を採用した。

Re=320,000 における 1/7 縮尺 1 段エルボ水試験を対象として、入口流速分布及び乱流強度をパラメータとした解析を実施した。入口流速分布として発達乱流とフラット、入口乱流強度分布として実験値とフラットを与えた。各々の解析は、エルボ出口下流の管断面二次流れを見ると、実験で確認された管外壁近傍の高速流れ及びその内側の双子渦を捉えており、実験結果を概ね再現する結果を得た。また、本解析では入口条件の影響が流動場に与える影響は小さかった。

続いて、Re=320,000 における 1/7 縮尺 2 段エルボ水試験を対象とした解析を実施した。解析条件は 1/7 縮尺 1 段エルボ水試験と同様である。1 段エルボ体系と比較して、2 段エルボ体系の第 1 エルボの剥離領域は縮小した。第 2 エルボでは平均流の約 50%の上流側から見て反時計回りの旋回流が生じ、剥離は生じなかった。このような特性は試験と同様である。また、第 1 エルボと第 2 エルボが近接しているため、相互の流動場に影響を与え、圧力変動の卓越周波数及び流動場が 1 段エルボ体系と異なることがわかった。さらに、2 段エルボ体系は、1 段エルボ体系と流動場が大きく異なっているが、圧力変動レベルは同等であることがわかった。試験により 2 段エルボ体系の圧力計測データが得られ次第、比較検討する予定である。

さらに試験に先立ち、Re=320,000 における 1/7 縮尺 3 段エルボ水試験を対象とした解析を実施した。第 1 エルボ下流及び第 2 エルボ下流の流動場は、2 段エルボ体系と同様となった。また、2 段エルボ体系で発生した反時計回りの旋回流は第 3 エルボ内まで維持されるが、この旋回流は第 2 エルボ内のものより弱く、第 3 エルボでは剥離が生じる結果となった。これは、第 2 エルボと第 3 エルボのエルボ間距離は 6.4D 離れており、第 3 エルボが上流側の流動場に与える影響が小さいからと推測できる。

＜参考文献＞
[1] I.E. Idelchik, Handbook of Hydraulic Resistance, 2nd ed., Hemisphere, New York (1986).
[2] T. Shiraishi, H. Wakatabe, H. Sago, M. Konomura, A. Yamaguchi, T. Fujii, Resistance and Fluctuationg Pressures of a Large Elbow in High Reynolds Numbers", Journal of Fluids Engineering, vol. 128, pp. 1063-1073 (2006).
[3] 結城和久、熊野孝保、戸田三朗、橋爪秀利、村松壽晴「90°ベンドで発生する二次流れの非定常減衰挙動」日本機械学会論文集（B 編）70 巻 693 号、pp.1163-1169 (2004-5).
[4] 藤井正、近澤佳隆、此村守、山口彰「大口径・高流速配管の流動励起振動試験」サイクル機構技報、No.26 (2005).
[5] 河村勉、中尾俊次、高橋正典「エルボ下流の乱れに及ぼすレイノルズ数の影響」日本機械学会論文集（B 編）68 巻 667 号、pp.645-651 (2002-3).
[6] M. Tanaka, H. Ohshima, H. Yamano, K. Aizawa, T. Fujisaki, "Application of U-RANS to Elbow Pipe Flow with Small Curvature Radius under High Reynolds Number Condition," Proc. 2009 International Congress on Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP'09), Tokyo, Japan (May 10-14, 2009) No.9285.

【成果の反映状況】

本研究による成果は、高速増殖炉サイクル実用化研究開発（FaCT)で設計研究が進められているナトリウム冷却大型炉（JSFR）の 1 次系配管の健全性確認に必要な流力振動評価手法開発において重要な配管スケールの効果を明らかにしたものであり、レイノルズ数依存性がないという実機外挿性の論拠に活かされている。また、本研究で得られた流況観察は、現在機構内で作成している流力振動評価指針（案）の中の「流動メカニズム解明」という記載部分に反映されている。

【研究成果の公表】

＜国内会議＞
1) 佐藤司、江原真司、橋爪秀利、結城和久、山野秀将、相澤康介「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；(18) コールドレグ 1/7 縮尺実験装置を用いた Re=10^6 におけるシングルエルボ管内流れの PIV 計測」日本原子力学会 2009 年秋の大会、宮城（2009 年 9 月 16 日～18 日）C25.
2) 青谷雄太、佐藤司、江原真司、橋爪秀利、結城和久、相澤康介、山野秀将「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；(21) 1/7 および 1/15 スケールシングルエルボの圧力変動計測」日本原子力学会 2010 年春の年会、茨城（2010 年 3 月 26 日～28 日）E44.

＜国際会議＞
1) Tsukasa Sato, Shinji Ebara, Hidetoshi Hashizume, Kazuhisa Yuki, Hidemasa Yamano, Kosuke Aizawa, "Single Elbow Flow Test with an Experimental Loop Simulating Cold-Leg Piping in JSFR", The 17th International Conference On Nuclear Engineering (ICONE-17) Brussels, Belgium July 16-16, 2009).（口頭発表のみ）[査読無]
2) Kazuhisa Yuki, Shunsuke Hasegawa, Tsukasa Sato, Hidetoshi Hashizume, Kosuke Aizawa, Hidemasa Yamano, "Unsteady Hydraulic Characteristics in Large-Diameter Pipings with Elbow for JSFR (3) Flow Structure in a 3-Dimentionally Connected Dual Elbow Simulating Cold-Leg Piping in JSFR", The 13th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-13) Kanazawa, Japan (Sep. 27 - Oct. 2, 2009). [査読有]

3) H. Yamano, M. Tanaka, N. Kimura, H. Ohshima, H. Kamide, O. Watanabe, "Unsteady Hydraulic Characteristics in Large-Diameter Pipings with Elbow for JSFR (1) Current Status of Flow-Induced Vibration Evaluation Methodology Development for the JSFR Pipings," Proc. The 13th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-13) Kanazawa, Japan (Sep. 27 - Oct. 2, 2009) N13P1186. [査読有]

4) H. Yamano, M. Tanaka A. Ono, T. Murakami, Y. Iwamoto, K. Yuki, H. Sago, S. Hayakawa, "Unsteady elbow pipe flow to develop a flow-induced vibration evaluation methodology for JSFR," Proc. International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles (FR09), Kyoto, Japan (Dec. 7-11, 2009) IAEA-CN-176-08-09. [査読無]

＜JAEA 研究開発報告書＞

1) 江原真司、橋爪秀利、結城和久、相澤康介、山野秀将「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 20 年度・21 年度共同研究報告書）」（発行予定）

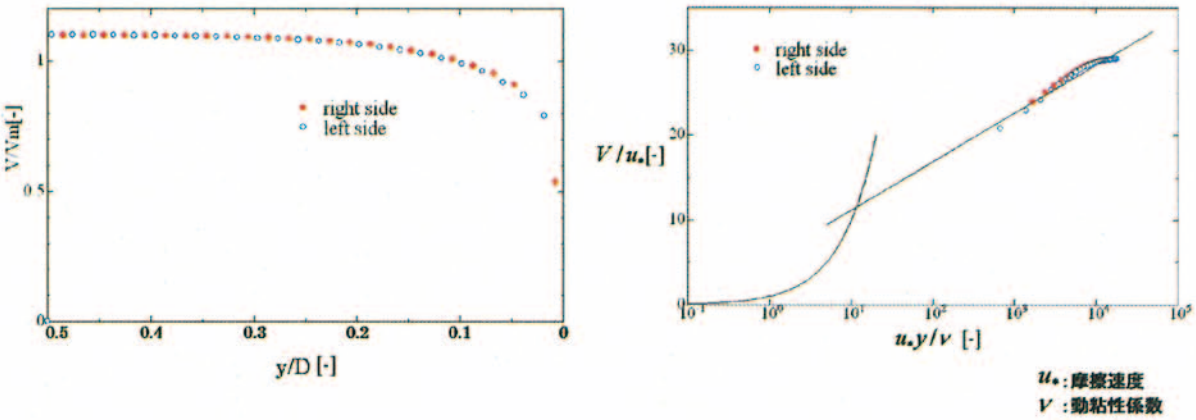


図 1　Re=1,000,000 でのエルボ上流における速度分布

（左図(a)：上流から見て円管中心右側および左側の速度分布、

右図(b)：実験値と対数速度分布の比較）

[Sato et al、ICONE-17]

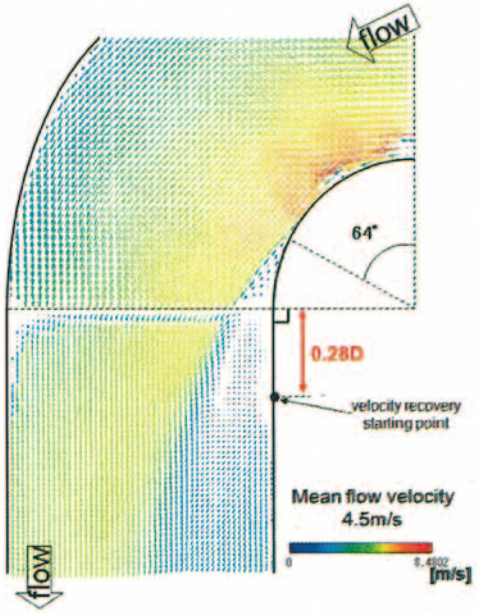


図 2　Re=1,000,000 での平均速度ベクトル図

[Sato et al、ICONE-17]

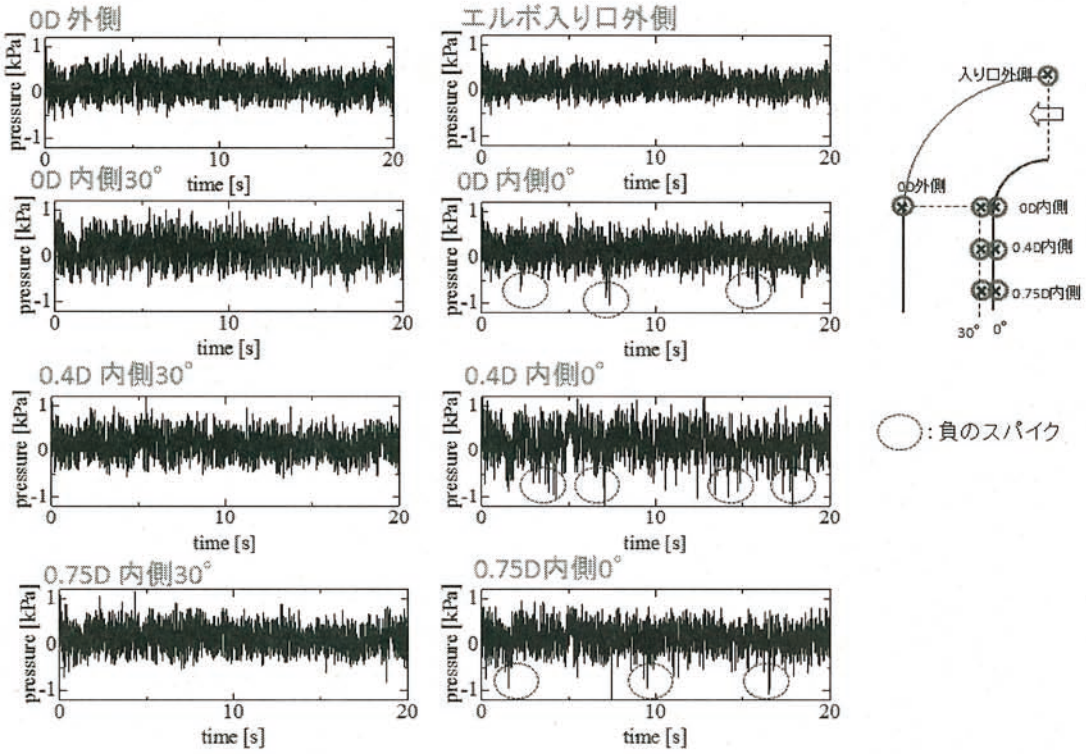


図 3　圧力変動の時系列データ　（1/7 縮尺装置、Re=320,000）

[青谷ら、原子力学会 2010 春]

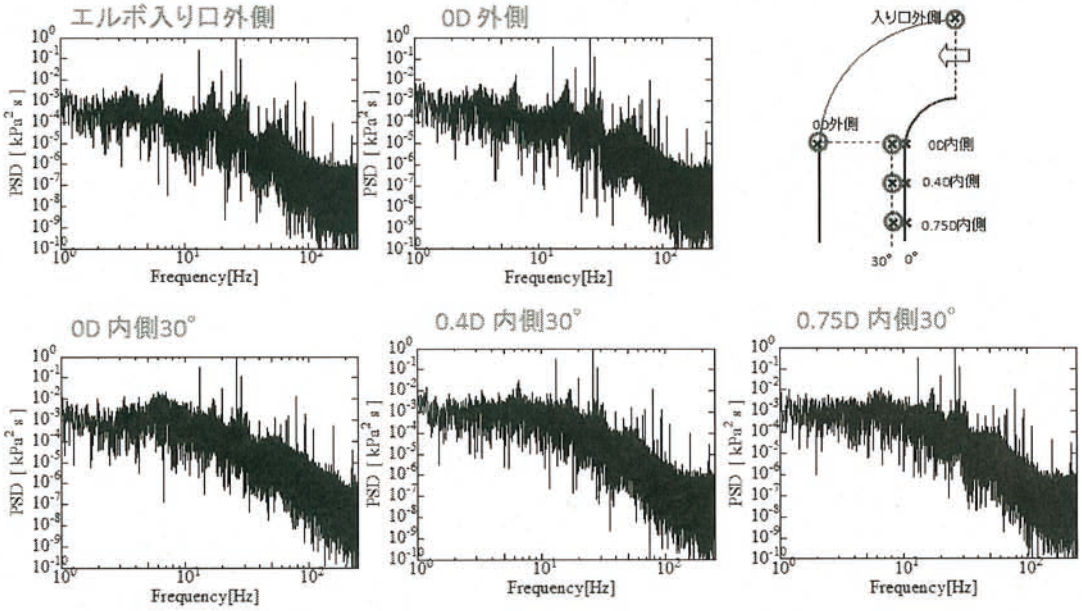


図 4　圧力変動の PSD 分布　（1/7 縮尺装置、Re=320,000）

[青谷ら、原子力学会 2010 春]

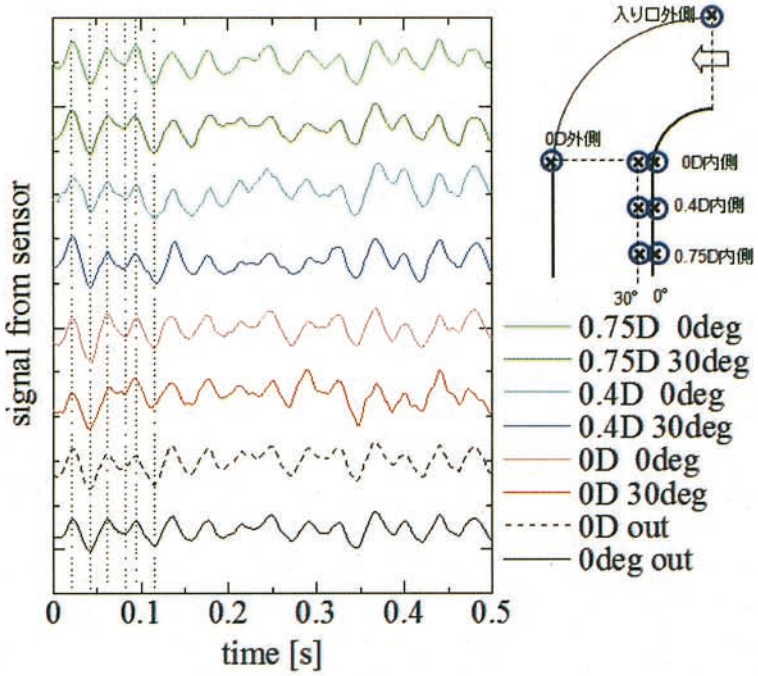


図 5　各センサにおける圧力変動の時系列データの比較　（1/7 縮尺装置、Re=320,000）

[青谷ら、原子力学会 2010 春]

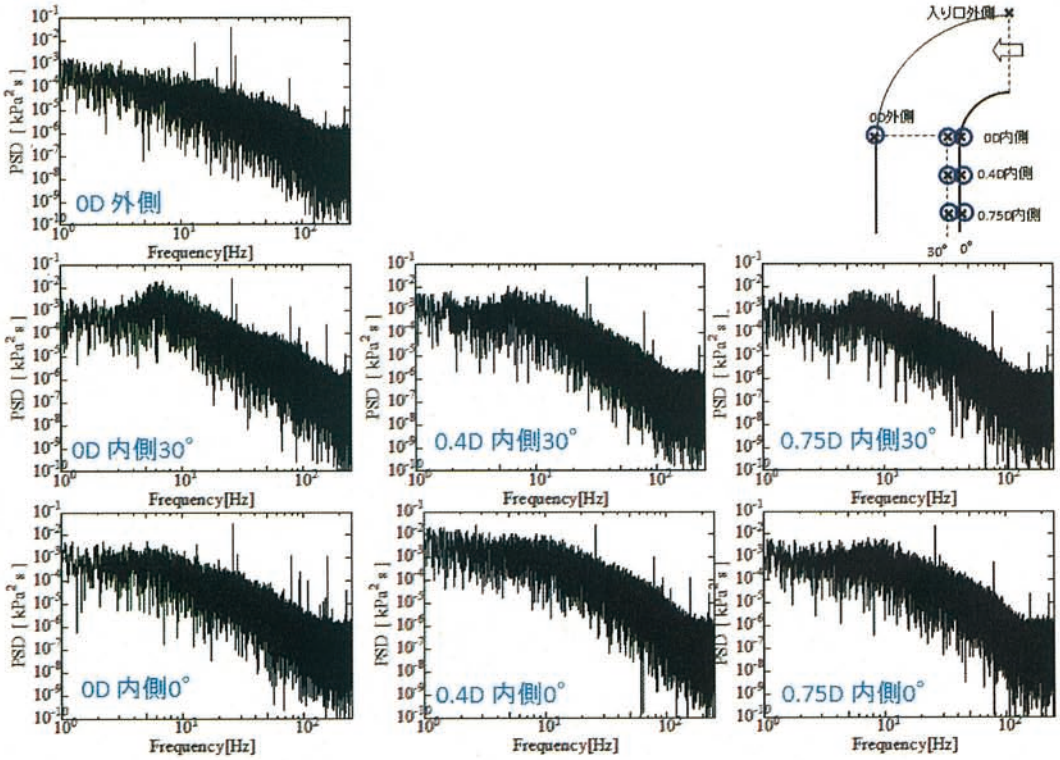


図 6　バックグラウンド処理をした後の圧力変動の PSD 分布　（1/7 縮尺装置、Re=320,000）

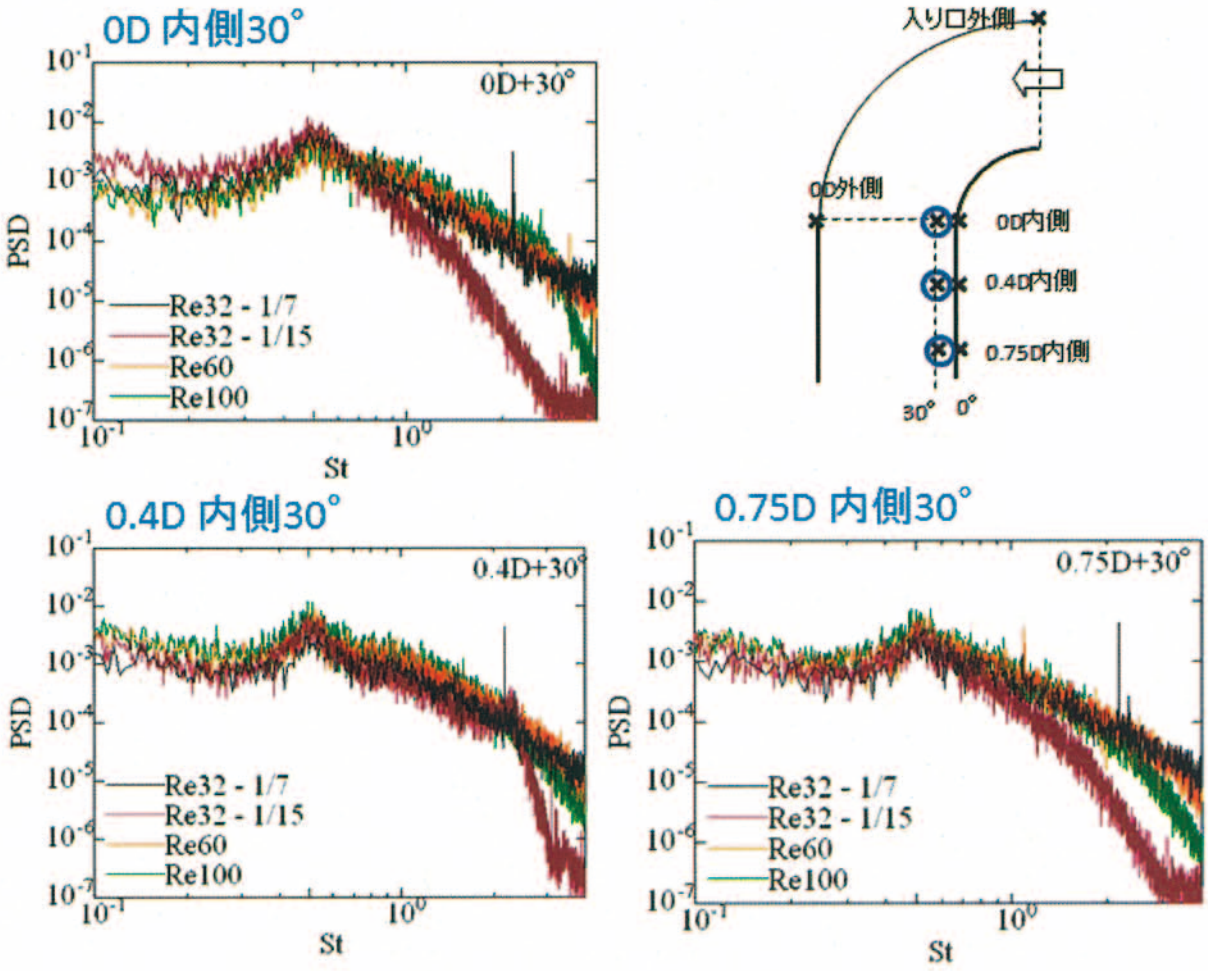


図 7　無次元 PSD 分布の比較

[青谷ら、原子力学会 2010 春]

2.1.2 先行基礎工学研究に関する平成21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		
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 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19年4月　～　平成22年2月	当該年度研究期間	平成21年5月～　平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員　□研究生の受入れ　■共同研究		

【研究目的】

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．

【研究内容（概要）】

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．

(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)ラスパケット組織のモデル化と損傷発展

【使用主要施設】

神戸大学：
電子計算機 (4台：いずれも本研究費によるリース)
Fujitsu CELCIUS，OS: WindowsXPPro(64 edition)
CPU: AMD Opteron 2220×2，メモリ：16GB(2GB×8)

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

【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．
平成 20 年度は，主として(a)の継続推進および(b)の解析を実施した．
平成 21 年度は，主として(a)，(b)の継続推進および(c)の解析および統合シミュレーションを実施した．

(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モデル化と変形解析
(c)場の理論的結晶塑性有限要素法(FEM)に基づくラスパケットのモデル化と変形解析

【研究成果（当該年度）】

前年度までに開発したラス・ブロックモデルをパケット組織に適用し，バルクレベルでのクリープ変形解析を行い，ラス組織の回復過程をシミュレートできる統合手法の開発を行った(図 1 参照)．評価基準として，バルクとしてのクリープひずみ速度の時間変化を用いた．

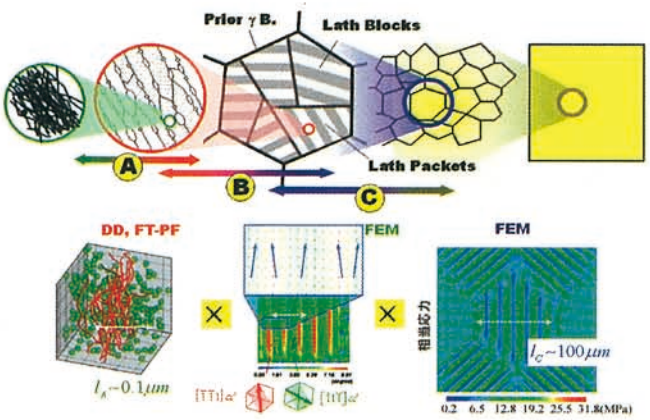


図 1 場の理論に基づく 3 スケールモデルの概要
(Hasebe, et al., *Proc. KSME-JSME Joint Symp. 2010* より抜粋)

(1)場の理論的結晶塑性有限要素法(FEM)に基づくラスパケットのクリープ変形および回復過程シミュレーション

前年度に開発したラス・ブロックモデルを用いて，ラス・パケット組織を模擬した疑多結晶モデルを構築し，定応力クリープ条件下にて結晶塑性有限要素解析を行った．構成式中の不適合度項を介して，ラス組織の特徴であるミスオリエンテーションと内部応力場のゆらぎを与えることで，同組織に伴うクリープ強度の上昇が表現できること，それらの方位依存性と関連して不均質回復が模擬し得ることなどを明らかにした．また，機構において実施予定の中断材での EBSD 解析結果に基づく不適合度テンソル場の実測結果との比較・検討を試み，より定量的な評価への指針を得た(図 2 参照)．

(2)統合解析手法の開発と 3 スケール簡易解析の実施

上記(1)における解析モデルに対し，不適合度テンソルを通じて定式化された相互作用場の理論(時空間スケールに対する)に基づく A スケールモデルとの統合解析を行った．その結果，同相互作用を考慮しない(1)の場合よりもさらに小さなクリープひずみ速度，すなわち高いクリープ強度が再現できることが示された．これは，V や Nb などの添加元素を加えることで同スケールの転位組織を安定化することに対応する．不均質回復の影響を人工的に導入することでの強度変化についても調べた．さらに，C スケールをも考慮した 3 スケール解析を簡

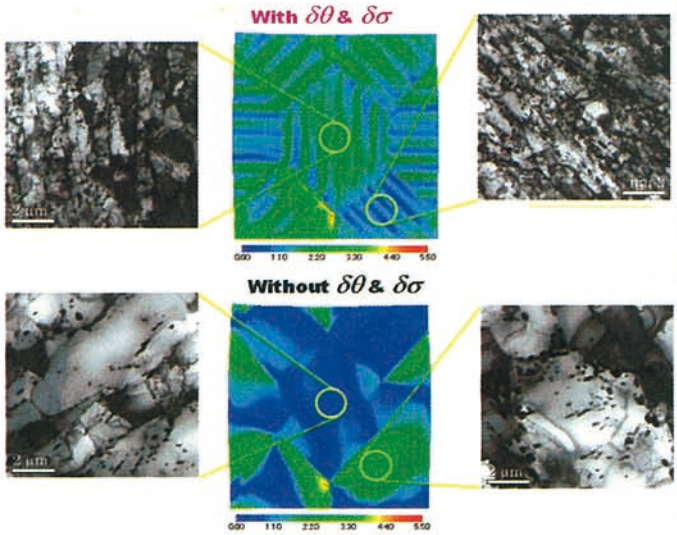


図 2 シミュレーション結果と実験観察結果
(Hasebe, et al., *Proc. KSME-JSME Joint Symp. 2010* より抜粋)

簡易1次元モデルに対して行い，系全体の安定性に及ぼす各階層および階層間相互作用の影響を調べる方法の提案をすると同時に，その適用例についても示し，詳細な検討を加えた．

【成果の反映状況】

本研究を通じて，主要3(A, B, C)スケールそれぞれに対するシミュレーション技術が確立し，とくにクリープ強度の向上およびその長時間安定性にはAスケール(ラス内の高密度転位組織)の影響が大きいことが明らかとなった．現在，炉心・構造材料Grでは，FBR用高クロム鋼の開発として，析出強化元素に着目した研究を実施中であり，析出強化機構により高転位密度組織の長時間安定性を向上させることを目指している．したがって，本シミュレーション結果より，材料開発の方向性が正しいことが確認できた．同時に，ラス組織の状態やその変化についても，定性的ではあるが具体的にモデル化およびシミュレートすることが可能となったため，今後材料試験・分析を実施する試作鋼の数を絞り込み研究をより効率化することができる．

【研究成果の公表】

＜論文＞

1) T. Hasebe
Field Theory-based Description of Interaction Field for Multiple Scales: Part I-Theory-
Interaction and Multiscale Mechanics: an International Journal (IMMIJ)
(2009), Vol.2, Issue 1, pp.1-14 (査読あり)

2) T. Hasebe
Field Theory-based Description of Interaction Field for Multiple Scales: Part II -Application-
Interaction and Multiscale Mechanics: an International Journal (IMMIJ)
(2009), Vol.2, Issue 1, pp.15-30 (査読あり)

3) T. Hasebe, K. Kishimoto and T. Onizawa
Field Theory-based Evaluation of Long-Term Creep Damage for High Cr Steel with Complex Microstructures
Proc. KSME-JSME Joint Symposium 2010 on Comp. Mech. & Comp.-Aided Eng., (2010), pp.17-18 (査読なし)

＜国内会議＞

1) 平山敬史，長谷部忠司，鬼澤高志
転位下部組織との相互作用を考慮した不均質場の発展に関する場の理論的結晶塑性シミュレーション
日本機械学会 第22回計算力学講演会（CMD2009）

2) 岸本和也，長谷部忠司，鬼澤高志
不適合度テンソルを用いたラス組織のモデリングとクリープ強度に関するシミュレーション
日本機械学会 第22回計算力学講演会（CMD2009）

＜国際会議＞

1) T. Hasebe and T. Onizawa
Multiscale Modeling and Simulations of Long-Term Creep Strength on High Cr Steel for Fast Breeder Reactor
Plasticity'2010 (Keynote Lecture), St.Kitts, Jan. 2010.

2) T. Hasebe, K. Kishimoto and T. Onizawa
Field Theory-based Evaluation of Long-Term Creep Damage for High Cr Steel with Complex Microstructures
KSME-JSME Joint Symposium, Korea, Mar. 2010.

2.1.3 先行基礎工学研究に関する平成21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			
大学側	東京工業大学　原子炉工学研究所 相楽洋，齊藤正樹，芝知宙＊＊　〔＊＊研究生〕		
機構側	大洗研究開発センター　燃料材料試験部　燃料試験課 田中健哉，小山真一，大林弘，須藤光雄，大川内靖		
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　照射燃料試験施設（AGF）		
通算研究期間	平成19年6月　～ 平成22年2月	当該年度研究期間	平成21年5月　～ 平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員　■研究生の受入れ　■共同研究		

【研究目的】

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^{239}Pu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(^{235}U)の枯渇と同時に原子力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策を検討する。

【研究内容（概要）】

^{238}Puは、半減期87.74年のα崩壊核種で、高い崩壊熱(567W/kg)を発し、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^{237}Npや^{241}Am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^{238}Puに核変換し、更に^{239}Pu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、^{238}Puを多く有するPuを生成する(Protected Plutonium Production: 以下、P^3)、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。

平成21年度は、U核変換の中性子エネルギースペクトル依存性のデータを拡充するため、平成20年度にAGFに輸送したUサンプルの分析を実施する。また分析補助として、東工大大学院生を派遣する。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、核変換特性を評価し、解析手法及び核データの妥当性を評価する。これまでの分析したサンプル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し、サンプル中Pu核拡散抵抗性を評価する。また、原型炉クラス高速増殖炉ブランケットにU-Am燃料を装荷したブランケットPuの核拡散抵抗性を評価し、ブランケット

生成 Pu の核拡散抵抗性改善方策、及び重金属のマルチサイクルを想定し物質収支を検討する。さらに、「常陽」での照射解析モデルを用い、U-Am 体系での P^3 予測解析を行い、実機ブランケット燃料ピンとの類似度を、U, Am の自己遮蔽や中性子吸収反応スペクトルの比較により評価し、サンプル分析結果のブランケット燃焼解析への適応性を検討する。

【使用主要施設】

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①	Visual Technology, VT64-HPC WS 2100 Opteron
(1-2) 解析用ワークステーション②	RC Viento 200WD
(1-3) 解析用 PC①	DELL, OptiPlex 745
(1-4) 解析用 PC②	Panasonic, CF-W5MWVAJC
(1-5) 解析用 PC③	SONY　VAIO　VGC-LA52B
(1-6) 原子炉解析コード	MCNP4C03, SLAROM, JOINT, CITATION
(1-7) 断面積データ	FSXLIB-J33, FSXJ32, JFS-3-J-3.2R
(1-8) 燃焼計算コード	ORIGEN2.2
(1-9) 断面積共分散処理コード	ERRORJ

原子力機構：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 及び Am サンプルの分析　(原子力機構、東京工業大学(補助))

平成 19 年度は、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}Np 及び ^{241}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}U サンプルの場合、^{235}U(n,γ)→^{236}U(n,γ)→ ^{237}Np(n,γ)→ ^{238}Np(β-)→ ^{238}Pu 核変換経路での ^{238}Pu 生成を主に評価し、^{238}U サンプルの場合:　^{238}U(n,γ)→^{239}U(β-)→^{239}Pu 経路での ^{239}Pu 生成を実験値に基づき評価した。また、分析補助として、東工大大学院生を派遣した。

平成 20 年度は、U 核変換のスペクトル依存性データを拡充するために新たに分析対象となる U サンプルを特定し、AGF へ輸送した。うち 2 サンプルについて先行して分析し、^{238}U(n,γ)→^{239}U(β-)→^{239}Pu 経路での ^{239}Pu 生成を実験値に基づき評価した。また、平成 19 年度の評価を経て、測定値にばらつきが見られたサンプルについて再分析を行った。また、分析補助として、東工大大学院生を派遣した。

また、AGF に保管されている、「常陽」で照射した Am サンプルについて、Am、Cm、Pu 同位体組成を分析し、Cm 経由の ^{238}Pu 生成量を評価した。また、分析補助として、東工大大学院生を派遣した。

平成 21 年度は、U 核変換の中性子エネルギースペクトル依存性のデータを拡充するため、平成 20 年度に AGF に輸送した U サンプルの分析を実施した。また分析補助として、東工大大学院生を派遣した。

(2)サンプルの核変換特性解析　(東京工業大学、原子力機構)

平成 19 年度は、解析準備及び平成 19 年度化学分析対象の U サンプルの核変換特性解析を行った。分析値との比較により C/E 値を導出し、核変換特性を評価した。解析には、モンテカルロ計算コード MCNP4C03 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った。炉中心での ^{238}U サンプルでは Pu 同位体比の C/E 値で良い一致が見られ、計算手法の妥当性を確認した。しかしながら、いくつかのサンプル(^{235}U、^{238}U)については C/E 値に大きなばらつきがみられ、平成 20 年度に再度化学分析・解析を試みることとした。

平成20年度は、Uサンプルおよび既に分析実施済のAmサンプル2試料について核変換特性解析を行った。平成20年度新規に実施したUサンプル2試料の分析について、異なる中性子スペクトル環境においても主要なPu同位体比のC/E値で良い一致が見られたが、Pu生成量について、軸方向反射材近傍のサンプルについて、実験を過小評価した。軟化されたスペクトル環境での測定データの拡充が必要となり、平成21年度に実施することとした。また、平成平成19年度に分析したUサンプルのうち測定値にばらつきの見られたサンプルについて再度化学分析を行い、解析結果と比較したところ、前年度同様の差異が確認された。これらについてはサンプルの初期仕様も含め、照射試験工程での汚染の可能性があった。Amサンプル解析では、照射初期は ^{241}Am(n,γ)→^{242}Am(EC)→^{242}Pu での ^{242}Pu 生成が主要だが、照射後100日程度で ^{241}Am(n,γ)→^{242}Am(β-)→^{242}Cm(α)→^{238}Pu での ^{238}Pu 生成が主要になる核変換挙動を確認した。分析値との比較により主要Pu同位体である ^{238}Pu、^{239}Pu 及び ^{242}Pu については、C/E値の良い一致が見られた。

平成21年度は(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、核変換特性を評価し、解析手法及び核データの妥当性を評価した。また、これまでの分析したサンプル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し、まとめた。

(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)

平成19年度は、(1)項で分析したU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、^{238}Uサンプル照射結果では予測通り ^{239}Pu 割合が高く、生成量は極微小だが、同位体組成の点からPuの核拡散抵抗性は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 ^{238}Pu 同位体割合が高いと予想された ^{235}Uサンプルは、実験結果では ^{238}Pu がほとんど検出されなかった。(1)、(2)の再分析を元に再評価を行うこととした。

平成20年度は、(1)項で分析したAmサンプル及びU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。Amサンプルでは、照射初期には ^{242}Pu の生成により自発核分裂中性子発生が多く、照射後100日程度からは ^{238}Pu 生成が主要となり、中性子・崩壊熱双方により、Puの核拡散抵抗性が高められるといった ^{241}Am の特性を確認した。また、^{238}Uサンプル照射結果では、中性子軟化とともに若干Pu高次化が進むものの、^{239}Pu 割合が高くPuの核拡散抵抗性は低いことが確かめられた。再評価を行った ^{235}Uサンプルは、やはり ^{238}Pu がほとんど検出されなかったため、データの信憑性が乏しく、本研究において総合評価対象から除外することとした。

平成21年度は、(1)項で分析した異なる中性子エネルギースペクトル環境での ^{238}Uサンプルを拡充し、Pu同位体組成に基づき、Pu核拡散抵抗性を評価した結果、^{238}Uサンプル照射結果では予測通り ^{239}Pu 割合が高く、生成量及び ^{240}Pu 同位体組成比は照射位置・中性子エネルギースペクトル、更に ^{238}Uの中性子捕獲反応の強い自己遮蔽効果によるサンプル重量・形状に強い依存性が確認された。本解析手法により、これらの依存性が評価され、計算・解析の比較よりPu同位体比は0.5%以内で一致した。

(4) 実機への適応性評価　(東京工業大学)

平成19年度は、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}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。

平成20年度は、Amを添加したブランケットの燃焼解析を行い、3-5%Am添加により ^{238}Pu 及び ^{242}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。また、Amと共にCm添加率をパラメータに取った解析を開始した。

平成21年度は、原型炉クラス高速増殖炉ブランケットにU-Am燃料を装荷したブランケットPuの核拡散抵抗性を評価し、ブランケット生成Puの核拡散抵抗性改善方策を検討した。また、

重金属のマルチサイクルを想定し物質収支を検討した。また、(3)の「常陽」での照射解析モデルを用い、U-Am 体系での P^3 予測解析を行う。実機ブランケット燃料ピンとの類似度を、U, Am の自己遮蔽や中性子吸収反応スペクトルの比較により評価し、サンプル分析結果のブランケット燃焼解析への適応性を検討した。

（5）総合評価

3 年間の研究を総括しまとめた。

【研究成果（当該年度）】

(1)「常陽」で照射した U 及び Am サンプルの分析

平成 21 年度は、U 核変換のスペクトル依存性データを拡充するために新たに分析対象となる U サンプル 5 試料を分析した。分析対象の U サンプルは、SVIR-1 の 5 試料で、既に分析済の試料とともにその主要緒元を表 1 に示す。照射したサンプルを 8 M 硝酸で溶解し、イオン交換法にて元素分離を行い、U サンプルは U、Pu 同位体比および Pu 含有率の定量分析を実施した。既に分析済の試料とともに SVIR-1 全試料の PIE 結果を表 2 に示す。

表 1 「常陽」照射サンプルの主要諸元

集合体名	試料番号	軸方向装荷位置 [mm]	径方向装荷位置 (中心からの距離)[列]	重量 (mg)	重量 error ±[μg]	物理・化学形態	同位体組成比(w/o) U-233	U-234	U-235	U-236	U-238
PFC20(C2M)*	39D	0	3	9.531	NA	金属	0.000	0.000	0.040	0.000	99.960
PFC20(C2M)*	40D	-275	3	10.112	NA	金属	0.000	0.000	0.040	0.000	99.960
PSV010(SVIR-1)	60-09	+942	0	10.177	NA	金属	0.000	0.000	0.040	0.000	99.960
PSV010(SVIR-1)	60-08	+627	0	10.091	NA	金属	0.000	0.000	0.040	0.000	99.960
PSV010(SVIR-1)	61-29	+258	0	1.06	NA	金属	0.000	0.000	0.174	0.000	99.826
PSV010(SVIR-1)*	61-28	0	0	1.06	NA	金属	0.000	0.000	0.174	0.000	99.826
PSV010(SVIR-1)	61-27	-258	0	1.16	NA	金属	0.000	0.000	0.174	0.000	99.826
PSV010(SVIR-1)	60-07	-627	0	10.243	NA	金属	0.000	0.000	0.040	0.000	99.960
PFB070(B7)*	7	0	3	1.159	2	金属	0.0001	0.0006	0.174	0.004	99.821
							Am-241	Am-242m	Am-243		
PFB090*	70	0	3	0.100	0.01	酸化物	99.958	0.001	0.042		
PFB090*	69	350	3	0.100	0.01	酸化物	99.958	0.001	0.042		
PRS260(SMIR-26)*	72	0	5	0.103	0.01	酸化物	99.958	0.001	0.042		
PRS260(SMIR-26)*	80	0	5	0.097	0.01	酸化物	12.207	0.013	87.780		

*平成 18,19,20 年度分析サンプル

表 2「常陽」照射 U サンプル分析結果

集合体名	SVIR-1					
試料番号	60-07	61-27	61-28	61-29	60-08	60-09
軸方向位置（炉中心より） /mm	-627	-258	±0	+258	+627	+942
Pu 同位体比 / atom %						
Pu-238	0.01	0.06	0.05	0.05	0.01	0.01
Pu-239	98.43	98.58	99.13	98.89	99.47	99.62
Pu-240	1.50	1.28	0.80	0.99	0.49	0.29
Pu-241	0.05	0.03	0.02	0.02	0.03	0.08
Pu-242	<0.01	0.05	<0.01	0.05	<0.01	<0.01
Pu 含有率 /	1.36	0.56	1.03	0.61	0.42	0.22
燃焼率 /	0.04	0.18	0.35	0.15	0.01	<0.01

(2)サンプルの核変換特性解析

核変換特性解析には、モンテカルロ計算コード MCNP4C03 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った。また、計算を起因とする誤差評価として、断面積データ起因分を中性子核反応断面積共分散処理コード ERRORJ を用いて算出し、モンテカルロ法の統計精度起因分を MCNP4C03 による反応率の標準偏差の双方を考慮した。^{238}U は、eV~keV 中性子に対し大きな共鳴吸収断面積を有し、その温度依存ドップラー広がりの模擬が特に重要である。最新ライブラリである JENDL3.3 に基づく MCNP 用ライブラリ FSXLIB-J33(300K)を基準とし、温度依存性を JENDLE3.2 温度依存ライブラリ FSXJ32 を用いて、370℃（入口温度：-627mm サンプル)及び 509℃（出口温度：627mm、942mm サンプル）を用いて評価した。また、^{238}U の強い自己遮蔽効果により Pu 生成量はサンプル形状に大きく依存する。ドシメータに用いられたバナジウムキャプセル内の金属 U の形状情報は得られなかったため、図 1 のように金属 U(密度:19.6g/cc)が円筒状に底面から充填されていると仮定し、解析を行った。

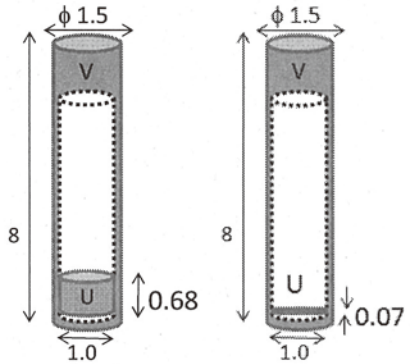
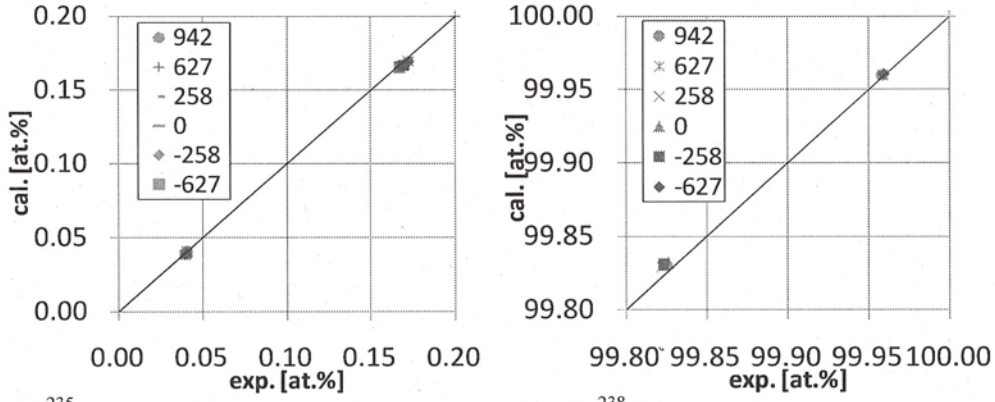
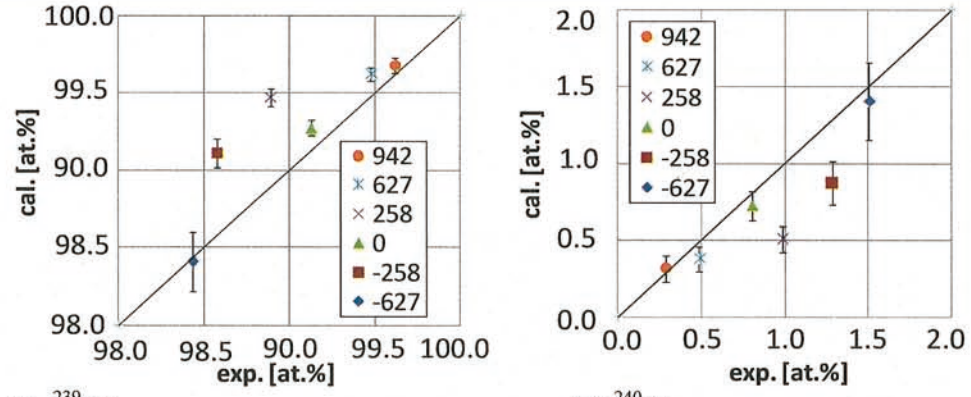


図 1　U サンプルの封入されたバナジウムキャプセルの解析モデル
(左:試料 60-7,60-8,60-9(約 10mg)、右:試料 61-27,61-28,61-29(約 1mg))

SVIR-1 の U サンプル 6 試料について、生成 U 及び Pu の同位体組成の計算結果を図 2 に示す。劣化 U からはほぼ純粋な ^{239}Pu の生成が確認され、主要同位体である ^{239}Pu 及び 2 次生成の ^{240}Pu については、誤差(0.5%)の範囲で一致した。また、照射後サンプル中 Pu 含有率について図 3 に示した。共鳴吸収が支配的である反射材について、^{238}U サンプルの形状による強い自己遮蔽効果があるため、図 1 で示したサンプル形状モデルによる結果と共に、SVIR-1 集合体における均質化希釈断面積を使用した場合の結果も合わせて示した。図 3 より、炉心においては実験・解析共に良い一致が見られるが、反射材領域(上下共)において、サンプル形状に強い依存性があり、希釈断面積を用いると実験値を過大評価し、本解析モデルを用いると、実験値に近い評価結果となるものの全体的に過小評価となっている。バナジウムキャプセル中金属 U の形状情報が不足しているため、本解析においては、Pu 含有率に大きな不確実性がある。ただし、同位体組成比は、形状に大きな依存性が見られなかったため、本解析結果により実験の模擬性が十分にある。



(a) ^{235}U　　(b) ^{238}U



(c) ^{239}Pu　　(d) ^{240}Pu

図 2　^{238}U サンプルからの生成 U、Pu 同位体組成結果の計算・実験値比較

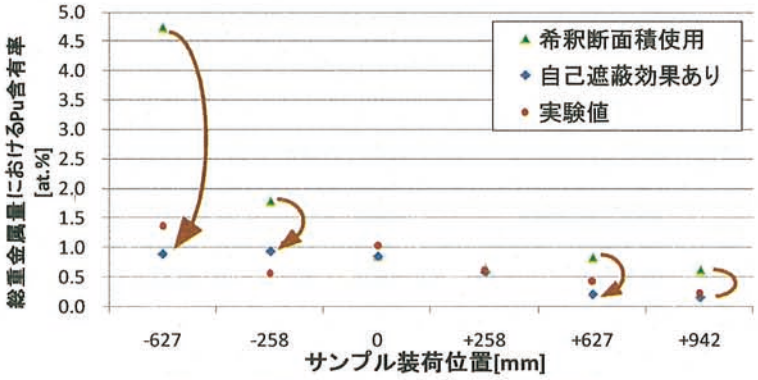
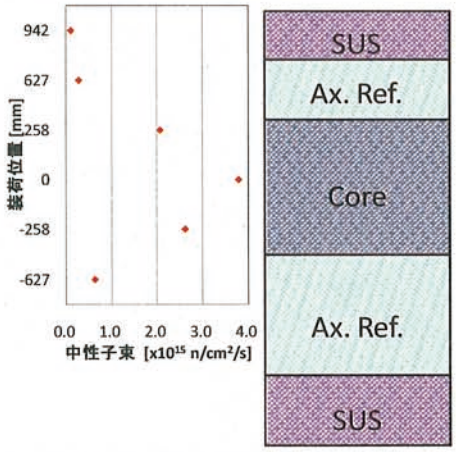
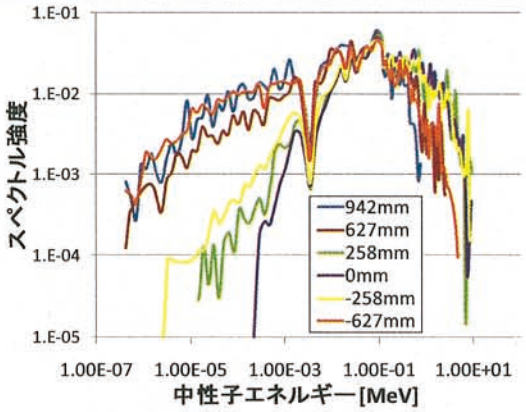


図 3　照射後サンプル中 Pu 含有率

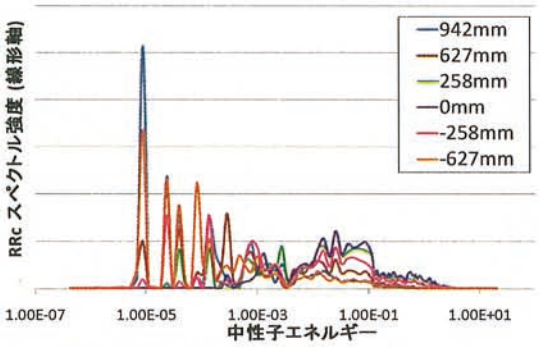
中性子束と中性子スペクトル及び ^{238}U 中性子捕獲反応率スペクトルの解析結果を図 4 に示す。+258mm、0mm、-258mm の位置では、高速中性子割合が高く、硬いスペクトルであり、+942mm、+627mm、-627mm のサンプルは反射体近傍に装荷されているサンプルのため、中性子の減速が進み、柔らかいスペクトルであり、+942mm と-627mm でスペクトルの類似性が見られた。制御棒が炉心上部から挿入されており、また下部反射体領域が上部と比べて大きいため、中性子束は下部方向に偏りがあった。中性子捕獲反応の反応率を見ると、単位フルエンス当りの Pu 含有率の高い+942mm、-627mm のサンプルにおいて、共鳴領域の中性子(eV~10keV)と良く反応していることが分かる。Pu 同位体組成比も、^{239}Pu、^{240}Pu の共鳴吸収中性子スペクトル(eV-10keV)に大きく依存し、「常陽」では、炉心中心、外側炉心、反射材領域においてスペクトルの類似性があり、各領域での Pu 同位体高次化の系統性が確認された



(a) SVIR-1 における装荷位置と全中性子束



(b) 中性子スペクトル



(c) ^{238}U 中性子捕獲反応率スペクトル
($\sigma_{cU238}(E)$・$\phi(E)$)

図 4　SVIR-1 における ^{238}U サンプル装荷位置と中性子束・中性子スペクトル・^{238}U 中性子捕獲反応率スペクトル(サイクル 34 燃焼初期)

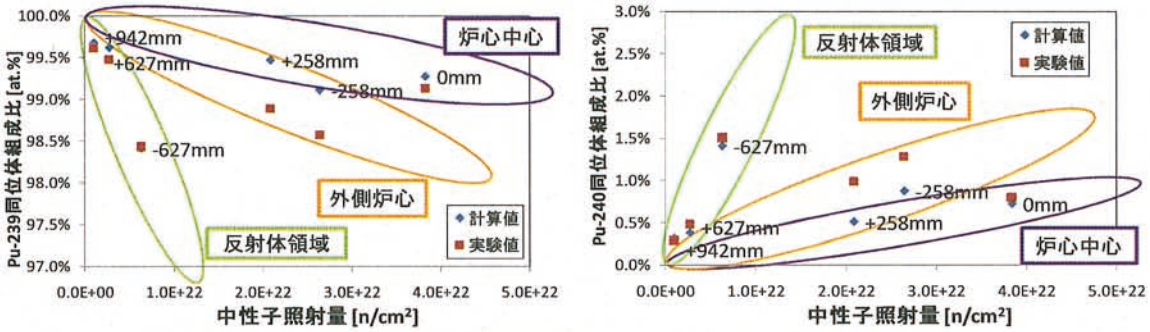


図 5　Pu 同位体組成比の中性子スペクトル及び照射量依存性

(3)照射サンプル中 Pu の核拡散抵抗性の評価

本年度及び過去に実施した U 及び Am サンプルから生成された Pu の計算値と実験値について、崩壊熱と自発核分裂中性子発生率に基づいた核拡散抵抗性評価を図 6 にまとめる。

^{238}U サンプル照射結果では、いずれの試料でも予測通り ^{239}Pu 割合が高く、崩壊熱および自発核分裂中性子発生も非常に微小である。照射量及び中性子スペクトルに依存し Pu 高次化すなわち ^{240}Pu 同位体組成比にばらつきがあり、自発核分裂中性子発生率は照射位置に依存している。しかしいずれの U 試料についても、生成された Pu はいずれも、B Pellaud(^{240}Pu)及び G Kessler の核拡散抵抗性評価基準(7-9%^{238}Pu)と比較すると、崩壊熱、自発核分裂中性子発生共に非常に低く、生成量は極微小ながら同位体比に基づいた核拡散抵抗性は低い。

次に、Am サンプルから生成された Pu は高い崩壊熱を持つ ^{238}Pu 同位体組成比が高く、IAEA Guideline では、査察対象外とされる ^{238}Pu＞80%を満たす。また、高い自発核分裂中性子発生率の高い ^{238}Pu、^{242}Pu を多く含むため、B Pellaud による評価では Mox grade(Practically Unusable)である。また、^{243}Am サンプルから生成される Pu は、燃焼初期においては、約 12%含まれる ^{241}Am 核変換により ^{238}Pu 及び ^{242}Pu が生成されるが、照射が進み PIE までの時間経過と共に ^{243}Am(n,g)->^{244}Am(beta-)->^{244}Cm(alpha)->^{240}Pu の反応が進み、^{240}Pu が同位体中で支配的になる。いずれの Am サンプルから生成された Pu も崩壊熱、自発核分裂中性子発生率共に U サンプルから生成された Pu と比較して高い値であり、高い核拡散抵抗性を有する Pu であることを確認した。

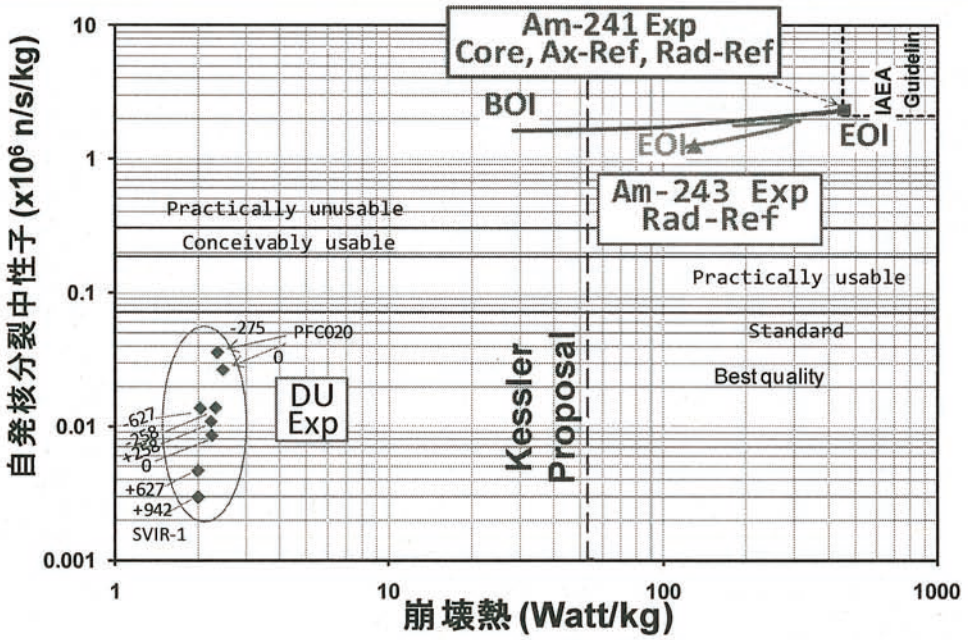


図 6　サンプル中生成 Pu の核拡散抵抗性評価結果

(4)　実機への適応性評価

(3)の「常陽」での照射解析モデルを用い、U-Am 体系での仮想的な P^3 予測解析を行った。ブランケット燃料ピンとして、表 3 に示す劣化 U(DU)-^{241}Am 酸化物燃料ピンを想定した。高速増殖炉もんじゅ径・軸ブランケットピンサイズを参照し、ピン径大・小をパラメータに取った。照射期間として 600 日、冷却期間を 300 日と想定した場合のペレット内燃焼計算を、図 7 に示すようにペレット内を細分化して解析し、自己遮蔽による RIM 効果を評価した。まず、サンプルとペレットでの反応スペクトル類似性比較より、外側炉心及び反射材では、DU の強い自己遮蔽により、ペレット表面で類似したことを確認した。^{241}Am の捕獲反応スペクトルはペレット内ほぼ一様であった。次に、ブランケット燃料ピン内生成 Pu 同位体の解析結果について、ペレット径（太径・細径）をパラメータとして図 8 に示す(DU-3%^{241}Am の場合)。図より、「常陽」炉心中心ではどの Pu 同位体もペレット径によれずピン内に一様に生成されている。一方、外側炉心及び反射材内部での燃料ピン照射では、中性子が反射材により減速され共鳴中性子割合が増えるため、^{238}U 中性子捕獲反応の強い自己遮蔽のために、主に ^{239}Pu 生成が燃料ピン表面で起こりやすい RIM 効果を確認した。この時、^{241}Am 中性子捕獲反応の自己遮蔽は大きくなかった。また、細い燃料ピンの方が表面積の体積に対する比が大きいため、太い燃料ピンに比べ ^{239}Pu が生成されやすく、平均 ^{239}Pu 同位体比も大きくなる傾向が見られた。図 9 に高速中性子割合と ^{238}Pu 同位体比についてまとめる。誤差棒で表示したのは、燃料ピン内の ^{238}Pu 同位体比のばらつきであり、中塗・中抜のプロットはそれぞれピン径の大・小での結果を示している。結果として、ペレット内での Pu 同位体比に最大 10%程度のばらつきが見られた。同様に、図 9 より、より減速された中性子割合の高い環境が P^3 に望ましく、大きなピン径のブランケット燃料ピンデザインが効果的であることが分かった。すなわち大きな径のブランケット燃料デザイン・非均質減速材のブランケットへの導入が、P^3 に効果的であり、今回の評価では、最大 4 割程度の Am 節約をもたらす見込みを得、3%程度 ^{241}Am 添加率で P^3 基準を満足した。今後の検討課題として、燃焼末期において一部のブランケットではある程度線出力を持つため、今回は検討しなかった Am 揮発・元素再分布影響や、初期添加 MA の均一性の考慮など、材料工学的検討が重要である。

表 3　U-Am 酸化物ブランケット燃料ピン仕様

ピンサイズ				小	大
化学形態				DU-Am Oxide	
Am 同位体				Am-241	
Am 添加率%				0 - 5	
被覆管外径 D [mm]				5.5	12
被覆管肉厚 T [mm]				0.35	0.5
被覆管内径 [mm]				4.8	11
燃料ペレット外径[mm]				4.63	10.4
燃料ペレット密度[%T.D]				94	
ペレット断面積を 5 分割する r[mm]					
r1	r2	r3	r4	r5	
1.035	1.464	1.793	2.071	2.315	
2.326	3.289	4.028	4.651	5.200	

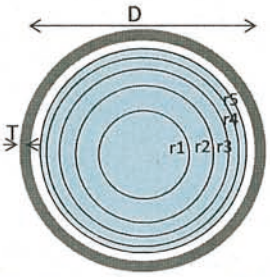


図 7　U-Am ペレット断面

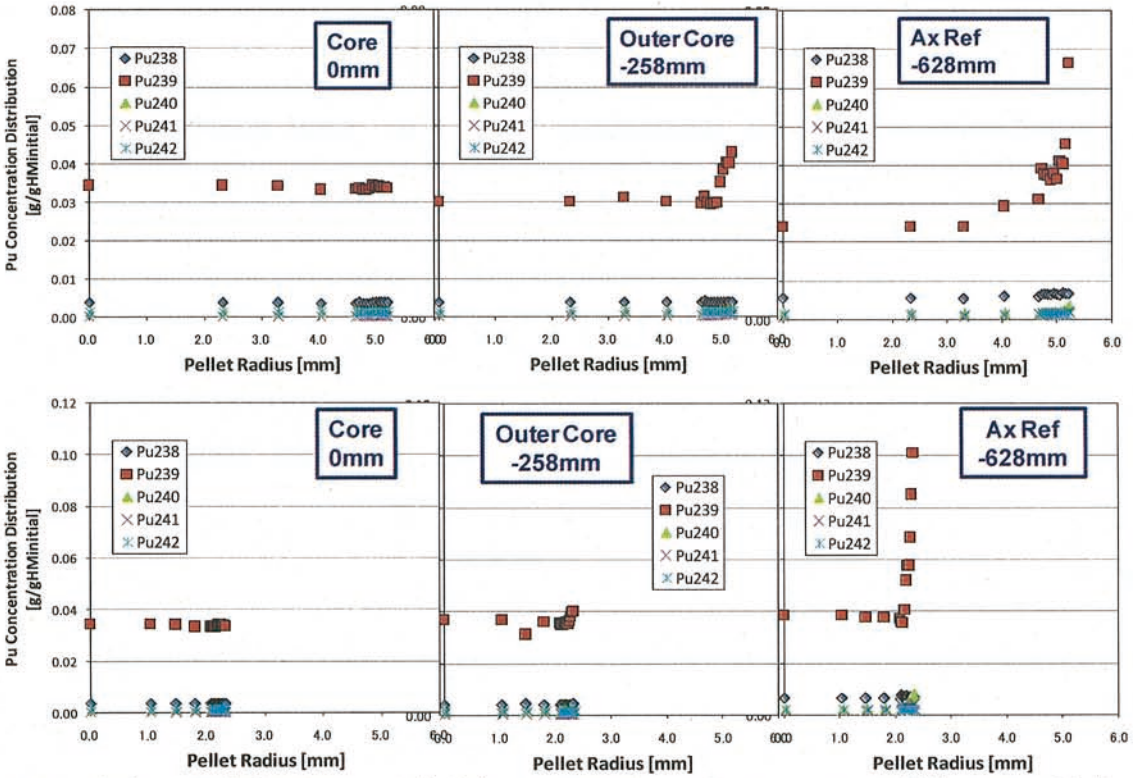


図 8　生成 Pu 同位体のペレット内分布(U-Am3%ペレット、600EFPD s 照射、300 日冷却)
(上:　ペレット径大、下:ペレット径小)

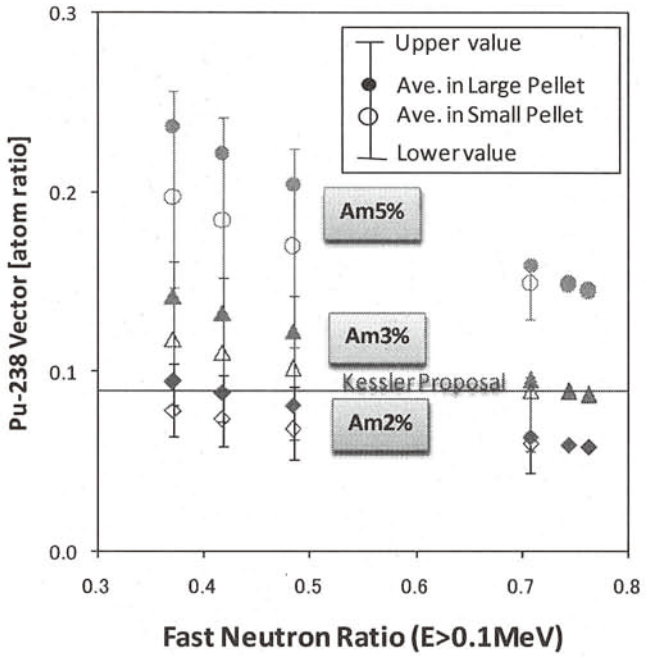


図 9　高速中性子割合と ^{238}Pu 同位体比

次に、原型炉クラス高速増殖炉ブランケットに U-Am 燃料を装荷したブランケット Pu の核拡散抵抗性を評価し、ブランケット生成 Pu の核拡散抵抗性改善方策を検討した。原型炉クラス高速増殖炉の仕様を表 4 に、計算モデルを図 10 に示す。ここでは重金属のマルチサイクルを想定し物質収支を検討した。結果として、図 11 に示すように、少量(3-5%)の Am 添加によりブランケット Pu の核拡散抵抗性の大幅向上が確認された。5%Am 添加の場合、日本における LWRSF 中の蓄積 Am(約 20t)を用いれば、原型炉クラスで 30 機程度の初期装荷をサポートする。

表 4　原型炉クラス高速炉の仕様

Item	Unit	Specification	Notes
a. Plant Parameters			
1. Reactor thermal power	MW*th*	714	
2.Coolant temperature (inlet/outlet)	°C	380/530	
3.Subassembly pitch	mm	115.6	
b. Core Fuel Parameter			
1.Fuel material		PuO_2.UO_2	
2.Pu fissile enrichment (inner/outer)	wt%	15.0/20.0	(^{239}Pu+^{241}Pu)/(Pu+U)
3. ^{238}Pu/^{239}Pu /^{240}Pu /^{241}Pu /^{242}Pu	wt%	1.46/54.73/26.22/11.51/6.08	
4.U isotope ratio (^{235}U/^{238}U)	wt%	0.3/99.7	
5.Refueling pattern		one-batch	
6.Core diameter/core height	m	1.80/0.93	
c. Blanket Parameter			
1.Blanket Composition		UO_2	
2.U isotope ratio (^{235}U/^{238}U)	wt%	0.3/99.7	
3.Pattern of fuel exchange		one-batch	
4. Thickness of ax. blanket (upper/lower)	m	0.30/0.35	

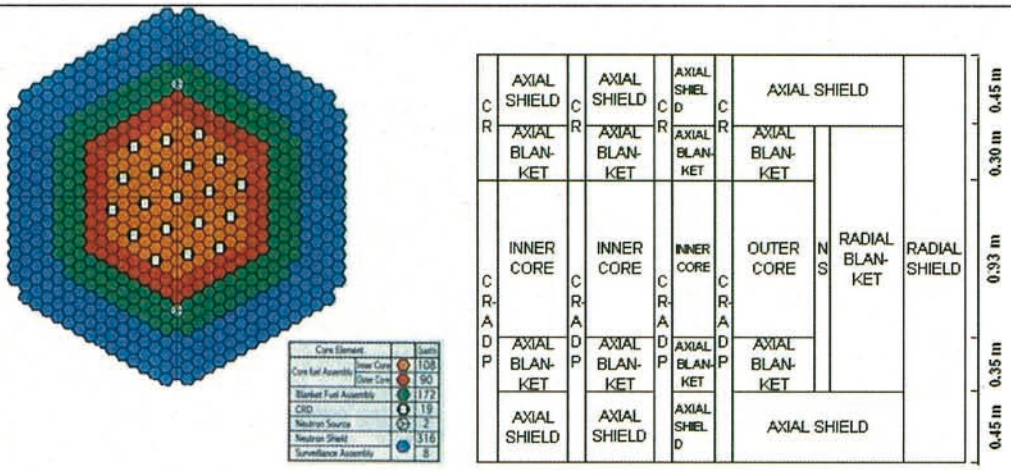
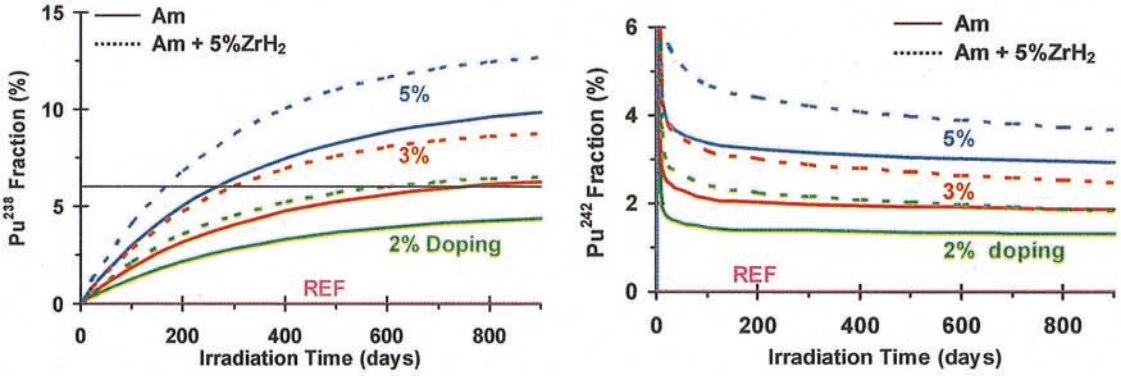


図 10　高速増殖炉モデル（左　X-Y 断面図、右　R-Z 断面図）



(a) ^{238}Pu　　(b) ^{242}Pu

図 11　Am をブランケット燃料に添加した場合の偶数番号 Pu 同位体比の燃焼変化

(5) 総合評価

「常陽」照射ドシメータの ^{238}U からの ^{239}Pu 生成、^{241}Am からの ^{238}Pu, ^{242}Pu 生成、^{243}Am からの ^{240}Pu 生成を実験・解析で確認した。3 次元炉心解析にて、断面積共分散の 1σ レベルで同位体比、生成量の C/E は一致することを確認した。データが極めて不足している核データの ^{242g}Am 異性体生成分岐比を新たに導出(85.2±1.6%@炉心、85.0±2.5%@軸・径方向反射材)し、最新の核データライブラリである JENDL/AC-2008、ENDFB/VII を支持する結果となった。同位体比に基づき、Pu 核拡散抵抗性を崩壊熱、自発核分裂中性子発生率から評価し、原型炉クラス高速炉ブランケットへの適用を検討した結果、^{241}Am>3%程度で P^3 要件を満足し、ブランケット生成 Pu の核拡散抵抗性を大いに向上することができる事を確認した。燃料ピン内詳細計算により、大きな径のブランケット燃料デザイン・非均質減速材のブランケットへの導入が、P^3 に効果的であった。今回の評価では、最大 4 割程度の Am 節約をもたらす見込みを得た。一部のブランケットでは、燃焼末期においてある程度線出力を持つため、今回は検討しなかった Am 揮発・元素再分布影響や、初期添加 MA の均一性の考慮など、材料工学的検討が今後重要となる。

【成果の反映状況】

高速増殖炉ブランケットに MA を添加して、Pu の核物質としての魅力度を低下させ核拡散抵抗性を向上させるコンセプトは、原子力機構核不拡散センターの研究活動にも反映され、JST「原子力システム研究開発事業革新技術創出発展型研究開発」に共同で研究提案を行った。また、本研究に参加した Dr. Yoshitalia Meiliza は 2009 年に学位を取得し、現在原子力機構大洗研究開発センター次世代研究部門にて博士研究員として更なる研究を進めている。

また、本研究では U 及び Am のサンプル照射後試験を行ったが、燃料ピン照射試験では、実証の意味のみならず P^3 の観点から更なる多くの知見が得られる見通しが立った。原子力機構の燃料材料試験部及び JMTR 研究グループと打合せを重ねており、今後の U-Am 燃料ピンの JMTR での照射・照射後試験計画を立案している。

また、本研究では、データが極めて不足している核データの ^{242g}Am 異性体生成分岐比を新たに導出した。核データの観点からも非常に有益であるため、「炉物理部会・核データ部会合同企画セッション」から招待講演の依頼を受け、日本原子力学会 2010 年秋の大会にて講演する予定である。

【研究成果の公表】

＜論文＞

1)Shin-ichi KOYAMA, Toshiaki MITSUGASHIRA, “Chemical Analysis of Americium Samples Irradiated under Fast Neutron Spectra,” J. of Nuclear Science and Technology, Supplement 6, pp.55-64, September 2008

2)Hiroshi Sagara, Tetsuro Yamamoto, Shin-ichi Koyama, Shigetaka Maeda, Tomo-oki Shiba and Masaki Saito, "Numerical Analysis of Irradiated Am Samples in Experimental Fast Reactor Joyo," accepted and to be published in Materials Science and Engineering

3)Shin-ichi Koyama, Takashi Ohnishi, Mitsuo Suto, Tetsuro Yamamoto,Yoshitalia Meiliza, Hiroshi Sagara and Toshiaki Mitsugashira、” Difference in accumulation of curium isotopes formed in 241Am target irradiated in the Japan Material Testing Reactor (JMTR) and an experimental fast reactor (JOYO)” J. of Nuclear Science and Technology, to be submitted.

4)Takashi Ohnishi, Mitsuo Suto, Tomooki Siba, Yoshitalia Meiliza, Shin-ichi Koyama, Hiroshi Sagara、” Blanket Fuel with High Proliferation Resistance in Fast Breeder Reactor -Experimental Analysis of Irradiated U Sample in JOYO-” J. of Nuclear Science and Technology, to be submitted.

5)Hiroshi Sagara, Tetsuro Yamamoto, Shin-ichi Koyama, Shigetaka Maeda, Tomo-oki Shiba and Masaki Saito, "Numerical Analysis of Irradiated Am-241 and Am-243 Samples in Experimental Fast Reactor Joyo," accepted and to be submitted in J. Nucl. Sci. Technol

＜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)

2)Hiroshi Sagara, Masaki Saito, Tetsuro Yamamoto, et. al, “Protected Plutonium Production (P3) and Utilization-Theoretical & Experimental Results for P3- (1)Experiments and Theoretical Analysis to Demonstrate P^3 Mechanism (C)Theoretical Analysis of Irradiation Tests in ATR and JOYO,” Int Sci Technol Forum on Protected Plutonium Utilization for Peace and Sustainable Prosperity, Sep16-18, Tokyo (2008)

3)Yoshitalia Meiliza, Masaki Saito and Hiroshi Sagara, “Protected Plutonium Production (P3) and Utilization-Theoretical & Experimental Results for P3- (3)Protected Plutonium Breeding in FBR,” Int Sci Technol Forum on Protected Plutonium Utilization for Peace and Sustainable Prosperity, Sep16-18, Tokyo (2008)

4)Hiroshi Sagara, Tetsuro Yamamoto, Tomo-oki Shiba, Shigetaka Maeda, Shin-ichi Koyama, and Masaki Saito, "Am-241 Irradiation Analysis in Experimental Fast Reactor Joyo," Trans. Ame. Nucl. Soc., Vol 101, P. 765, (2009).

5)Hiroshi Sagara, Shin-ichi Koyama and Masaki Saito, " Irradiation Analysis of U, Am Samples Irradiated in Experimental Fast Reactor “Joyo” for Protected Plutonium Production in Fast Breeder Reactor Blanket," INES-3, Nov. 1-3, 2010, Tokyo(2010), submitted and to be presented.

＜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 L52 (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 L53 (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 L54 (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 L55 (2008)
5)山本哲郎, 相楽洋、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(v)サンプルの核変換特性解析(2),” 日本原子力学会 2008 年秋の大会 O54 (2008)
6)大西貴士、須藤光雄、大林弘、小山真一、田中健哉、Yoshitalia MEILIZA、山本哲郎、相楽洋、齋藤正樹、“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（VI）「常陽」照射 U サンプルの分析(2)”、日本原子力学会春の年会、I19、2009
7)山本哲郎、相楽洋、齋藤正樹、小山真一、大西貴、大川内靖、“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（VII）「サンプルの核変換特性解析(3)”、日本原子力学会春の年会、I20、2009
8)大西貴士、須藤光雄、小山真一、田中健哉、関岡健、芝知宙、相楽洋、齋藤正樹、”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(Ⅷ) 「常陽」照射 Am サンプルの分析（1）”日本原子力学会秋の大会、F33、2009
9)大西 貴士, 須藤 光雄, 小山 真一, 関岡 健,芝 知宙 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(IX)-「常陽」照射 U サンプルの分析(3)-,”日本原子力学会 2010 年春の年会, (2010).
10)相楽 洋,芝 知宙, 齊藤 正樹, 前田茂貴, 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-(XI) U-Am ペレット照射予測解析 -,”日本原子力学会 2010 年春の年会, (2010).
11)芝 知宙,相楽 洋,前田茂貴,小山 真一,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-(X)サンプルの核変換特性解析（4）-,”日本原子力学会 2010 年春の年会, (2010).
12)相楽 洋, “強い核拡散抵抗性を有する Pu 生成の実証試験と MA 核データの確認,” 日本原子力学会 2010 年秋の大会「炉物理部会・核データ部会合同企画セッション」, 札幌(2010) (招待講演)

2.1.4 先行基礎工学研究に関する平成21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 due to 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 教授　渡辺精一，准教授　坂口紀史，遠藤正樹（M2），関根恵（M1）＊＊ 東北大学大学院　工学研究科　材料システム工学専攻 教授　粉川博之，准教授　佐藤裕，小山田哲哉（M2） 高エネルギー加速器研究機構　名誉教授　川合將義　〔＊＊研究生〕		
機構側	大洗研究開発センター　燃料材料試験部　材料試験課 研究員　山下真一郎，研究員　矢野康英		
研究実施場所	北海道大学 ｴﾈﾙｷﾞｰ変換ﾏﾃﾘｱﾙ研究ｾﾝﾀｰ ﾏﾙﾁｽｹｰﾙ機能集積分野研究室 東北大学 大学院工学研究科 材料システム工学専攻　粉川研究室 大洗研究開発センター 燃料材料試験部 照射材料試験室建屋		
通算研究期間	平成19年9月　～ 平成22年2月	当該年度研究期間	平成21年4月　～ 平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員　■研究生の受入れ　■共同研究		

【研究目的】

PNC316やPNC1520などの高速炉用オーステナイト系ステンレス鋼は、耐照射性と高温特性を兼備した先進材料として、「常陽」や「もんじゅ」の燃料被覆管で使用されているが、更なる高性能化のためには、ミクロ組織挙動に着目した耐照射メカニズムの解明とそれらの知見を踏まえた材料開発・評価プロセスが必要不可欠である。本研究では、高速炉炉心材料として最も実績のあるPNC316やPNC1520を対象に、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、組織安定化への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ことで、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）】

冷間（圧延）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、小角度粒界を含む）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を試作し、走査型電子顕微鏡／後方散乱電子回折装置（SEM/EBSP）で各結晶粒の方位情報、粒界性格分布を評価する。また、SUS304LやSUS316L（場合によっては、高炭素材も対象とする）との比較のために、これら商用材についても粒界制御材作製のための条件出しと粒界性格分布評価を行う。

各種粒界制御型オーステナイト鋼試作材は、加速器を用いたイオン照射ならびに超高圧電子顕微鏡を用いた電子照射などの加速シミュレーション照射実験により、粒界性格の異なる粒界における偏析挙動や転位・ボイドなどの二次格子欠陥形成挙動などを評価する。併せて、中性子照射済みの非粒界制御型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二次格子欠陥形成挙動を詳細に評価し、シミュレーション照射と実機照射における挙動の差異を比較する。バルク材の特性評価として各種試作材の引張試験を実施し、引張強度特性も評価する。最終的に、これら個々の評価結果から、オーステナイト鋼組織安定化への粒界制御の効果や耐照射特性改善に対する粒界制御技術の有効性などを総合的に考察する。

【使用主要施設】

北海道大学 エネルギー変換マテリアル研究センター
透過型電子顕微鏡、超高圧電子顕微鏡、イオン加速器

東北大学 大学院工学研究科マテリアル・開発系 材料システム工学専攻 接合界面制御学講座
圧延機、電気炉、走査型電子顕微鏡／後方散乱電子回折装置

原子力機構 大洗研究開発センター 燃料材料試験部 材料試験課
MMF研磨セル、MMF試験セル、MMF-2化学室グローブボックス、透過型電子顕微鏡、
引張試験機

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成19年度は、まず初めに、高速炉用オーステナイト系ステンレス鋼（PNC316）に対して、予歪み加工と熱処理の条件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）密度を最も高められる条件を実験的に見出した。また、比較参照用のSUS316系、SUS304系商用オーステナイト鋼についても粒界制御法を適用した試作材を作製した。次いで、これら試作した材料のうち、PNC316とSUS316Lに対してイオン照射試験を行い、①粒界性格の異なる粒界における偏析挙動、②転位やボイドなどの二次格子欠陥形成挙動、および③粒界性格の異なる粒界における照射前後の腐食挙動変化、等を明らかにした。一方、中性子照射特性評価においては、高速実験炉「常陽」で中性子照射した非粒界制御型PNC316を用い、粒界性格の異なる粒界を分離して偏析挙動を評価し始めた。上記の材料試作、照射特性評価、腐食特性評価に加え、強度特性評価として一部の試作材（試験片作製の関係で、SUS316とSUS316Lを先行）に対し室温条件での引張試験を実施した。

平成20年度は、平成19年度に実験で見出した予歪み加工と熱処理の最適条件範囲で対応粒界（双晶、小角度粒界を含む）密度を高めた粒界制御型PNC316を出発材料に、スエリング抑制に有効と考えられる加工転位の導入方法、導入条件を検討した。この検討により、冷間圧延での最適な加工転位の導入方法と加工度などに関する条件範囲を特定し、粒界制御型PNC316に冷間加工を加えた試作材の作製に着手し始めた。一方、照射特性と強度特性の評価については、平成19年度から実施していた項目内容を継続実施した。特に、強度特性評価においては、平成19年度実施した鋼種、引張試験条件に加えて、新たにPNC316での室温と高温（500℃）の試験を、SUS316とSUS316Lでは高温（500℃）の試験を行いデータ拡充した。これらの他、粒界制御型PNC316に冷間加工を加えた試作材の熱的安定性評価のための高温熱時効試験を開始した。

平成21年度は、平成20年度に試作した粒界制御型PNC316の冷間圧延条件を最適化し、粒界制御前と同等の加工度（20%）・転位密度を有する材料を試作した。同試料に対し高温熱時効試験を実施し、高温使用時における組織安定性を確認した。さらに、Fe/Heイオンによるシミュレーション照射試験を実施し、粒界制御処理後に冷間加工を加えることで粒界制御型PNC316のスエリング特性が飛躍的に改善されることが明らかとなった。また、イオン照射後の偏析挙動評価と腐食特性評価により、冷間加工後も粒界制御型PNC316は優れた粒界腐食特性を有していることが分かった。以上の結果より、粒界制御処理はオーステナイト鋼組織安定化に大きく寄与するのみならず、耐粒界腐食特性等の機能付与、さらには耐照射特性も改善可能な手法であることが示され、高速炉用オーステナイト系ステンレス鋼に対する粒界制御技術の有効性が実証された。

【研究成果（当該年度）】

①試作材の作製

・平成 20 年度に試作した対応粒界（双晶、小角度粒界を含む）密度を高めた粒界制御型 PNC316 を出発材料に、冷間圧延により加工度の異なる試作材を数種類（CW7%、CW12%、CW16%、CW20%）作製し、東北大学に設置されている走査型電子顕微鏡／後方散乱電子回折装置（SEM/EBSP）による結晶方位解析により、マクロスケールの組織状態と粒界ネットワークを評価した（図 1）。さらに、材料試験課保有の透過型電子顕微鏡（TEM）による微細組織観察により、ミクロスケールにおける組織状態を系統的に調査し、加工に対する対応粒界の耐久性や加工歪み・転位組織の分布状況に関する情報を取得した。これより、冷間加工に伴い粒界制御型 PNC316 には高密度転位と変形双晶が導入されるが、これらは粒界ネットワークには大きな影響を及ぼさず、冷間加工後もランダム粒界ネットワークの分断化が維持されていることを確認した。

粒界制御まま　　粒界制御＋20%冷間加工

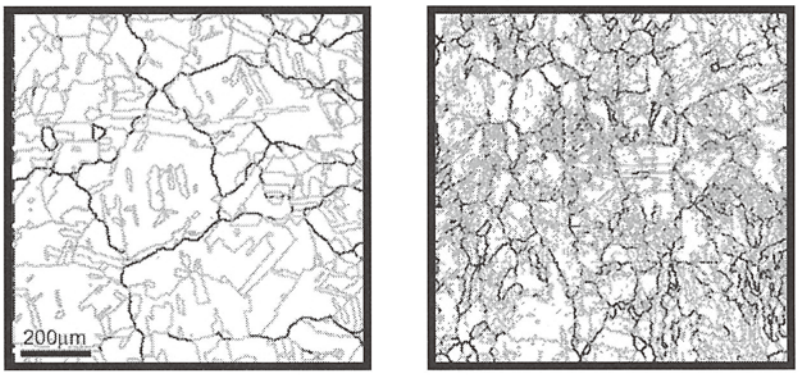


図1.　粒界制御型 PNC316 の粒界性格分布。黒線はランダム粒界、灰色の線は対応粒界を表す。
（坂口紀史、日本原子力学会 2010 年春の年会発表資料より抜粋）

②試作材の熱時効試験

・粒界制御型 PNC316 およびそれに冷間圧延を施した試料に対し高温（700℃）熱時効試験を実施し、TEM による微細組織観察より、高温使用時における転位組織・粒界ネットワーク安定性を評価すると同時に、炭化物の析出挙動を調査した。未加工の粒界制御型 PNC316 では、熱時効後においてランダム粒界に粗大な Cr リッチ炭化物が形成されるが、粒内における炭化物数密度はそれほど高くない。一方、冷間加工材については、高密度転位線上に極めて微細な炭化物が高密度に析出していた。一方、未加工材で見られたような粗大な粒界炭化物は形成されづらいことが分かった（図 2）。これら微細炭化物による転位のピン止めにより、高温時効時においても内部組織は極めて安定であることが示されたとともに、回復や再結晶、粒成長などは全く見られず、これによりランダム粒界ネットワークの分断化もそのまま維持されることが明らかとなった。さらに、対応粒界の密度を高める粒界制御処理は、連続的な粒界炭化物の析出しにくい組織形成に有効であることも示された。

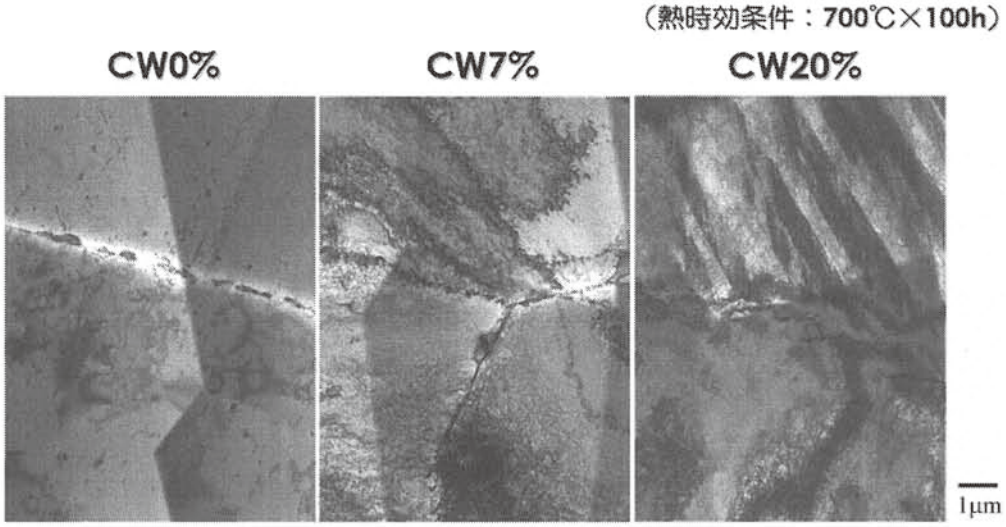


図 2.　冷間加工した粒界制御型 PNC316 の熱時効試験（700℃-100h）後の内部組織。
（山下真一郎、燃料材料試験部試験実施報告書 2009（MMS）11 より抜粋、2009 年）

③試作材の Fe/He イオンシミュレーション照射試験

・①で評価済みの粒界制御型 PNC316 とその加工材（CW20%）に対し、Fe/He イオンによるシミュレーション照射試験を実施し、ボイド形成挙動を調査するとともにボイドスエリング量を評価した。イオンによる弾き出し損傷のピーク位置付近に大きさ十数 nm 程度のボイドが形成されていることを、FIB による断面試料切り出しと断面 TEM 観察により確認した。各試料のボイド組織を比較したところ、未加工の粒界制御型 PNC316 では比較的大きなボイドが粒内に均一に形成されているが、その加工材では比較的小さなボイドが多数見られており、加工材の組織は未制御 PNC316 のそれと極めて類似していた。観察結果よりボイドスエリング量を見積もった結果、粒界制御型 PNC316 に冷間加工を加えることでボイドスエリング量は減少することが定量的に示された。さらに、粒界制御後に 20%冷間加工を施した PNC316 のスエリング特性は、未制御 PNC316 に匹敵するまで改善されることが明らかとなり、粒界制御処理後に適度な冷間加工を加えることで、耐スエリング特性を維持したまま粒界制御による機能付与が可能であることが示された（図 3）。

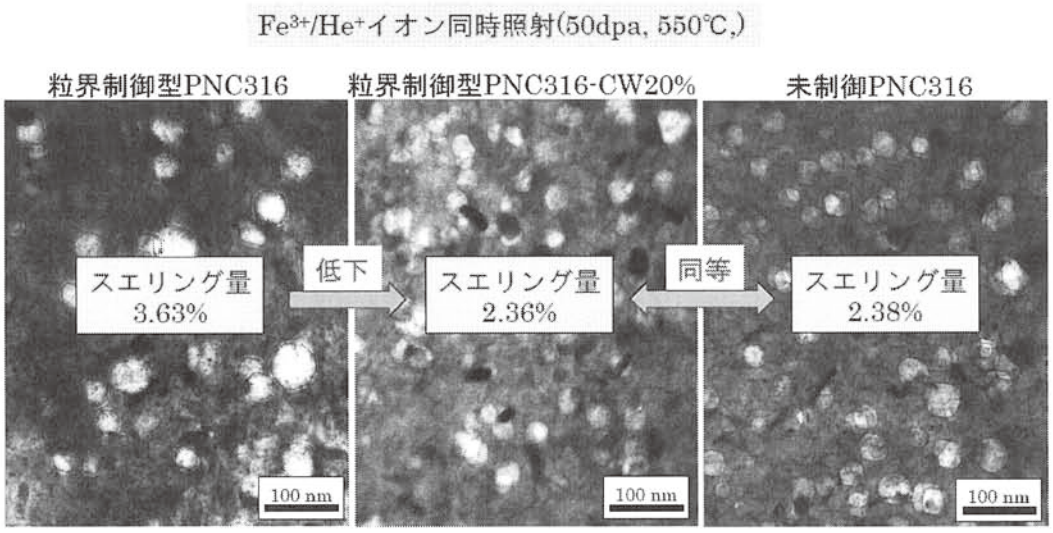


図 3.　粒界制御型 PNC316 とその冷間加工材、および未処理 PNC316 のボイドスエリング挙動。
（関根恵、先行基礎工学研究報告書、2010 年）

④試作材の照射後腐食試験

・③で評価済みの粒界制御型 PNC316 とその加工材（CW20%）に対し、He イオンによるシミュレーション照射試験を実施し、さらに 10%シュウ酸溶液中で電解エッチングを行い、照射下粒界腐食挙動を評価した。エッチングに先立ち、He イオン照射後の試料を TEM 観察し、各種粒界近傍における溶質濃度を EDS 組成分析したところ、ランダム粒界や非対称対応粒界では照射誘起偏析に伴う顕著な Cr の枯渇が認められ、特に粒界のごく近傍では耐食性維持に必要な Cr 量である 12%を大きく下回ることが分かった。一方、双晶などの対称対応粒界では Cr 濃度の低下はほとんど見られなかった。同試料を電解エッチングし、その後再度 TEM 観察したところ、Cr 濃度変化を反映した組織変化が見られた。Cr 濃度低下が著しいランダム粒界では、粒界腐食により試料厚みが大きく減少していることがエネルギーフィルターTEM により明らかとなった。一方、双晶粒界ではそのような膜厚変化はほとんど見られなかったが、加工材では双晶の一部がエッチングされている様子も確認された（図 4）。電子回折図形の解析より、腐食が生じた双晶の周囲では加工転位の蓄積、あるいは変形双晶の発生に起因した対応関係からのずれが生じていた。これにより、局所的な対応関係の消失により、双晶においても部分的に腐食が発生するがその領域は断続的であり、照射下において粒界腐食ネットワークの分断化が維持されていることが示された。

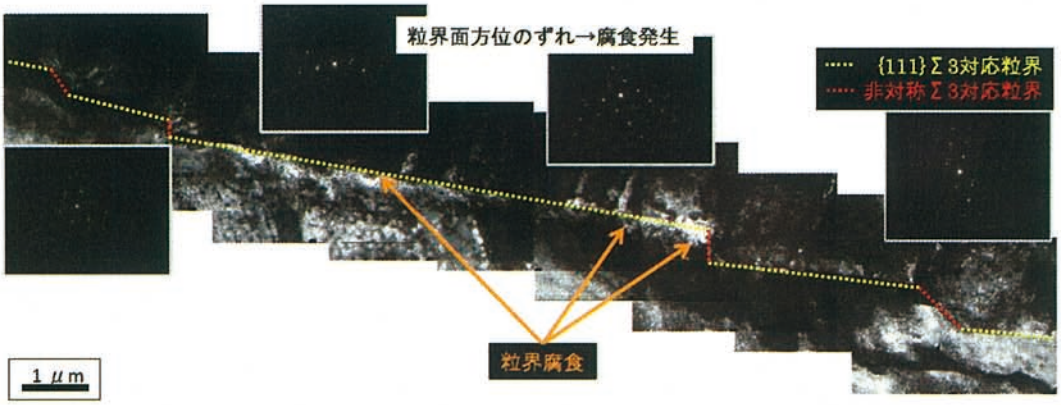


図 4.　粒界制御型 PNC316＋CW20%材の照射後粒界腐食挙動。双晶ステップ部や転位堆積部において局所的な腐食が見られる。

（遠藤正樹、修士論文、北海道大学、2010 年）

⑤耐照射特性改善に対する粒界制御技術の有効性評価

・PNC316 に対し粒界制御処理を適用すれば、良好な照射下耐粒界腐食特性を付与することができる。しかし、粒界制御処理中の焼きなまし過程により、材料中に導入された高密度の加工転位はすべて消失されるため、耐ボイドスエリング性能は低下することが示唆された。そこで、未制御材と同等の 20%の冷間加工を粒界制御型 PNC316 に加え、その耐ボイドスエリング特性を未加工粒界制御型 PNC316 および未制御 PNC316 と比較した。結果として、冷間加工粒界制御材は未制御材と同等の耐ボイドスエリング特性を示した。さらに、冷間加工が粒界ネットワークに及ぼす影響を調査する目的で、20%冷間加工粒界制御材に対し He イオンを照射し、その後腐食試験を行った。強加工の導入により、双晶粒界などの対称対応粒界においても局所的な腐食は認められるものの、全体としては良好な耐食性を示すことが明らかとなった。以上、既存原子力材料である PNC316 に対し粒界制御処理を適用することで、優れた耐スエリング特性に加えて、照射下耐粒界腐食特性という新たな機能を付加することに成功し、粒界制御技術の新規原子力材料開発への有効性が示された。

【成果の反映状況】

本研究により得られた学術的知見等は、現在機構が進めるプロジェクト研究の材料開発に関する部分で直接あるいは間接的に有効活用されており、これら知見をベースにしたオーステナイト系合金全般への粒界性格制御技術の応用と耐照射特性の改善に向けた更なる検討も継続実施している。

現在は小規模なグループでの基礎研究開発段階ではあるが、今後の成果の蓄積により大規模プロジェクト研究へと展開していく予定である。

【研究成果の公表】

＜論文＞

1) Shinichiro Yamashita, Yasuhide Yano, Ryusuke Tanikawa, Norihito Sakaguchi, Seiichi Watanabe, Masanori Miyagi, Shinya Sato, Hiroyuki Kokawa,"Thermal Stability of Microstructure in Grain Boundary Character Distribution-Optimized and Cold-Worked Austenitic Stainless Steel Developed for Nuclear Reactor Application", Proceedings of 2009 MRS fall meeting, Boston, US, (査読有り、投稿中).

＜国内会議＞

1) 坂口紀史、谷川隆亮、渡辺精一、山下真一郎、粉川博之、川合將義、「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 年 3 月.
2) 山下真一郎、矢野康英、遠藤正樹、坂口紀史、渡辺精一、宮城雅徳、佐藤信也、佐藤裕、粉川博之、川合將義、「粒界工学による高性能 FBR 炉心材料の創製 －1.材料試作－」、日本原子力学会、2008 年秋の年会、高知工科大学、高知、2008 年 9 月.
3) 矢野康英、山下真一郎、遠藤正樹、坂口紀史、渡辺精一、宮城雅徳、小山田哲也、佐藤信也、佐藤裕、粉川博之、川合將義、「粒界工学による高性能 FBR 炉心材料の創製 －2.強度特性評価－」、日本原子力学会、2008 年秋の年会、高知工科大学、高知、2008 年 9 月.
4) 遠藤正樹、坂口紀史、木下博嗣、渡辺精一、粉川博之、山下真一郎 矢野康英、川合將義、「オーステナイト系ステンレス鋼における照射効果ならびに腐食挙動に及ぼす粒界性質依存性」、日本金属学会第 144 回春期講演大会、東京、2009 年 3 月.
5) 遠藤正樹、坂口紀史、渡辺精一、木下博嗣、粉川博之、山下真一郎、矢野康英、川合蔣義、「オーステナイト系ステンレス鋼の照射後腐食特性に及ぼす粒界性質依存性」、日本金属学会第 145 回講演大会、京都、2009 年 9 月.
6) 坂口紀史、遠藤正樹、木下博嗣、渡辺精一、粉川博之、山下真一郎、矢野康英、川合蔣義、「高エネルギー量子場の材料損傷機構研究と高性能材料の開発：(4)粒界制御材料のイオン・HVEM 照射とその特性」、日本原子力学会 2010 年春の年会、茨城、2010 年 3 月.

＜国際会議＞

1) Shinichiro Yamashita, Yasuhide Yano, Ryusuke Tanikawa, Norihito Sakaguchi, Seiichi Watanabe, Masanori Miyagi, Shinya Sato, Hiroyuki Kokawa, " Thermal Stability of Microstructure in Grain Boundary Character Distribution-Optimized and Cold-Worked Austenitic Stainless Steel Developed for Nuclear Reactor Application", 2009 MRS fall meeting, 2009.12, Boston ,US.

＜特許＞

1) 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：「粒界制御型耐照射性 SUS316 相当鋼およびその製造方法」、(特願 2008－24422、出願日 平成 20 年 7 月 2 日)

2.1.5 先行基礎工学研究に関する平成21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 with in a steam generator of FBR)		
研究者所属、氏名			
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		
機構側	ＦＢＲプラント工学研究センター 運転・保全技術開発グループ　上田　雅司		
研究実施場所	福井大学文京キャンパス総合研究棟10階 国際原子力情報・研修センター　研究棟		
通算研究期間	平成19年6月　～ 平成22年2月	当該年度研究期間	平成21年5月　～ 平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員　□研究生の受入れ　■共同研究		

【研究目的】

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手法を開発する．

【研究内容（概要）】

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計（音響計）の開発が求められている．

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．

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れば，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しうる手法を開発し，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可能とする技術の確立を目指した．

【使用主要施設】

福井大学：

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, Micro AVS 10.0

【進捗状況（当該年度までの概要）】

H19 年度　H19 年度は，液体，気体を音速が等価となるような固体としてモデル化（ヤング率に反映）する多媒質間音響伝播簡易シミュレーション手法（以下，簡易手法：図 1）を提案し，これに対応する軸対称音響伝播解析コードを開発した．そして，このコードを用いて蒸気発生器内部で発生する狭帯域音が外壁にどのように伝わるかを解析した．これは，媒質界面での反射や吸収を主眼として，音の伝播シミュレーションを行ったと言える．その結果，蒸気発生器外壁において計測される音の強さは予想より小さいものの，音源の周波数はそのまま外壁に伝わることが確認でき，これにより音響計は原理的に成立する可能性があることを確認した．

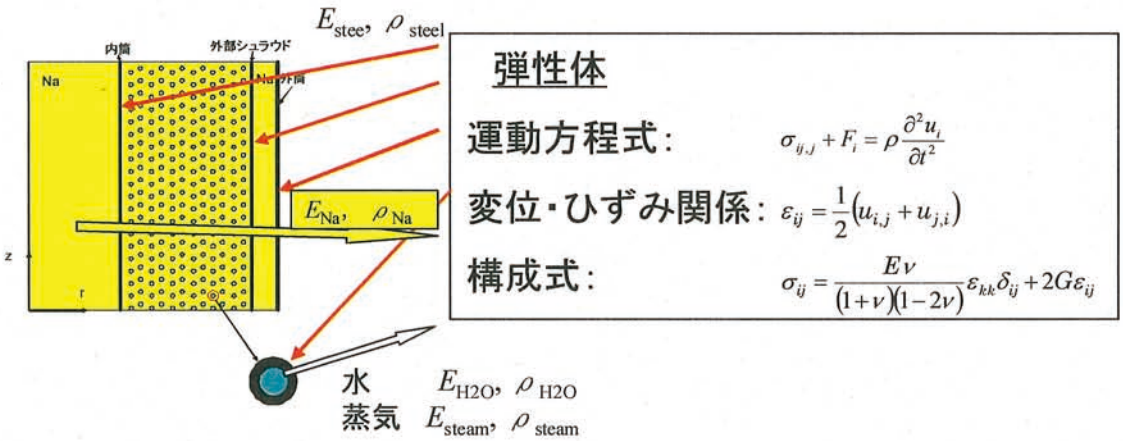


図１．多媒質間音響伝播簡易シミュレーション手法（文献 3）

H20 年度　H20 年度は，手法を軸対称から三次元に対応できるように拡張すると同時に，材料減衰を考慮できるように改良し，その後簡易手法を図 2 に示す手順で実験的に検証することにした．

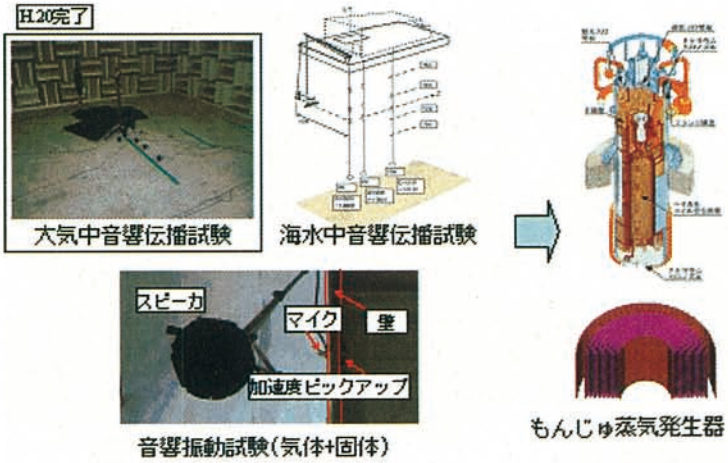


図２．多媒質間音響伝播簡易シミュレーション手法の検証手順（文献 3）

（文献 3）：日本機械学会北陸信越支部第 47 期総会・講演会講演論文集

H20 年度は，まずは空気に対する簡易手法の適用可能性を無響室内の実験と解析を対比させることにより検討した．この際，障害物に対する音の反射，吸収，まわりこみを考慮した実験を行った．その結果，(i)簡易手法が音の周波数特性を適切に再現できる，(ii) 音圧の $1/r$ 減衰特性が観察され，またこの特性を簡易手法により的確に再現しうる，との知見を得た．

【研究成果（当該年度)】

H21 年度は，第二段階として，液体，気体+固体の検証を行い，そして最終的にもんじゅ蒸気発生器内の音響伝播シミュレーションを行った（図 2)．その結果，

- 液体に対しても気体同様，基本的に音圧の $1/r$ 減衰特性が観察され，またこの特性を簡易手法により的確に再現しうることを確認した（図 3)．
- 気体の音圧を，固体壁裏側の表面加速度として計測する実験を行い，簡易手法が周波数特性，音圧の減衰特性ともに的確に再現しうることを確認した．なお，簡易手法では音圧，加速度ともに小さく評価する傾向が観察された．

簡易手法の検証が終わったことを受け，H21 年度は一例ではあるが，もんじゅの SG を念頭に置いた音響伝播シミュレーションを行った(図 4)．その結果，SG 内で発生する可聴音程度の強さの音を SG 外壁上の加速度として計測することは加速度センサーの感度次第では可能であり，加速度センサーを開発する場合の感度に対する目標値の目安を得た．

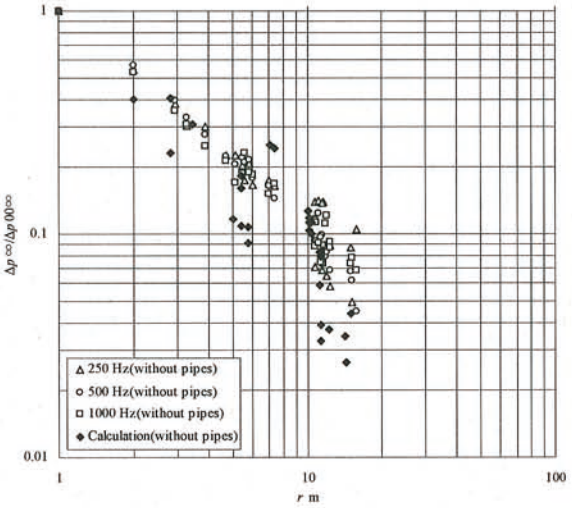


図 3．海水中の音圧減衰特性（文献 3)

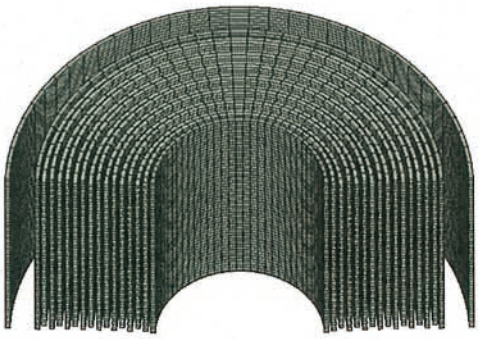


図 4．もんじゅ SG の解析モデル（文献 3)

【成果の反映状況】

「もんじゅ」の性能試験の１項目として、各運転段階における蒸気発生器のバックグラウンドノイズ測定が計画されており、ここで取得したデータと過去に大洗研究開発センターで取得したNa-水反応音データを入力として、本研究で構築したシミュレーション手法に適用し、音響計の成立性を検討する計画である。

また、将来的には本研究で構築したシミュレーション手法を高精度化し、音源位置から音響センサまでの伝播特性（減衰特性及び伝播時間）を推定可能とすることにより、音源からの物理的距離のみを考慮していた従来の信号処理手法（開口合成法）を改良し、音響法による検出性の向上を検討していく。

【研究成果の公表】

＜論文＞

1） 多媒質間音響伝播簡易シミュレーション手法の開発
飯井俊行，上田雅司
日本原子力学会論文集へ投稿準備中（査読あり）

＜国内会議＞

1） 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
柴　凌云，飯井俊行，宮原信哉，上田雅司，岡本久彦
日本原子力学会 2008 年秋の大会予稿集（CD-Rom），769（2008.9），講演番号 N23.

2） 多媒質間音響伝播簡易シミュレーション手法の開発
飯井俊行，宮原信哉，上田雅司，岡本久彦
日本原子力学会 2009 年秋の大会予稿集（CD-Rom），321（2009.9），講演番号 G39.

3） 多媒質間音響伝播簡易シミュレーション手法の開発；水中実験による検証
熊木貴之，飯井俊行，上田雅司
日本機械学会北陸信越支部第 47 期総会・講演会講演論文集，107-1，241-242（2010. 3），講演番号 705.

2.1.6 先行基礎工学研究に関する平成 21 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度化に関する研究 (Clarification of the sea salt ESCC damaging mechanism and the improvement of material strength due to cavitation)		
研究者所属、氏名			
大学側	福井大学大学院工学研究科 教授　服部修次，MOHAMMAD SYAFIQ BIN MOHD NOR		
機構側	FBR プラント工学研究センター　保全技術 Gr グループリーダー　月森 和之，矢田 浩基		
研究実施場所	福井大学工学部実験棟 高速増殖炉研究開発センター研究棟，国際原子力情報研修センター保守研修棟		
通算研究期間	平成 19 年 6 月　～ 平成 22 年 2 月	当該年度研究期間	平成 21 年 6 月　～ 平成 22 年 2 月
研究協力形態	□客員研究員　□研究生の受入れ　■共同研究		

【研究目的】

本共同研究では，外面応力腐食割れ（ESCC； External Stress-Corrosion Cracking）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立する．

【研究内容（概要）】

原子力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．海に囲まれた我が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[1]は，海岸から 2km の地点で一日当たり 5 mg/m² の量が降り注ぐことを報告している．図 1[2]は，付着海塩量と発錆条件を示したもので，SUS304 材の発錆条件は 100 mg/m² 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

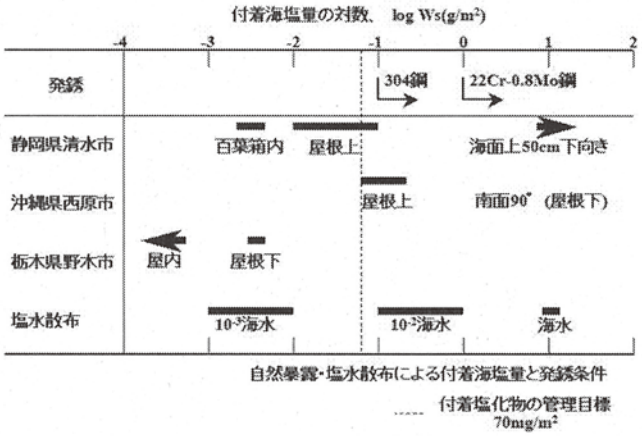


Fig.1 Relation between volume of adhesion sea salt and rust development[2]

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．

「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/m² 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 70 mg/m² 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 70 mg/m² 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．

参考文献

（1）小若正倫，金属の腐食損傷と防食技術（1983）
（2）ステンレス鋼の発銹，腐食センターニュース No.009，腐食防食協会

【使用主要施設】

福井大学：
恒温恒湿槽（株式会社いすゞ製作所製），高圧力ポンプ（スズキマシン製 JCS-122WLE）
X-Y ステージ

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 19 年度は、以下の項目を実施した．

1．付着塩化物量、鋭敏化（熱処理時間）、試験温度をパラメータとした海塩 ESCC の試験の実施・評価

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、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

ESCC を引き起こす要因の一つに配管の引張残留応力が挙げられるので，ESCC 対策としては圧縮残留応力の導入が有効であると考えられる．本研究では，大気中でキャビテーションを発生させるノズルを開発した．ノズルの構造は外側に低圧力の液体を，内側に高圧力の液体を流し，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．

3．ノズル性能の評価とキャビテーションによる塩化物除去効果の検討

製作したノズルを用いて様々な条件でキャビテーション噴流試験を実施し，洗浄対するスタンドオフ距離（ノズル先端から試験片までの距離）や噴射圧力の影響を検討した．また，本研究で使用した試験片に対して，大気中のキャビテーション噴流を利用して，試験片の洗浄を行い，海塩粒子の除去率について評価した．その結果，以下のことが明らかになった．

・特定な構造を持つノズルを使用して，大気中でキャビテーションの発生が可能になる．
・適切なスタンドオフ距離（SOD）と噴射圧力で，幅 3mm 程度の範囲に対し，比較的均一な洗浄効果を得ることができる．本研究で行った試験条件の範囲では，SOD=7mm，pH=16MP，pL=0.15MP が洗浄に対して最適な条件となる．
・き裂のない試験片に対しては，低圧水噴流のみで，塩化物を十分洗浄することができる．
・き裂の存在する試験片に対しては，高圧水と低圧水の両方を流したキャビテーション洗浄の方が，低圧水のみの流水洗浄より，洗浄効果が高い．

平成 20 年度は，以下の項目を実施した．

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観点から応力腐食割れを解明する上で学問的価値が非常に高いと考えられる．平成 20 年度に水膜中の海塩濃度がどの程度であるかを明らかにするために，U 字形試験片を用いて水膜の海塩濃度に対応する $MgCl_2$ の塩水中で浸漬試験を行った．具体的には濃度 21%，26%，29%，32%，42%の水溶液の沸騰温度（112℃～142℃）中で実験を行い，濃度が低くなるほど割れが発生しにくくなり，本試験条件下で割れが発生しはじめる下限界濃度は 29%付近であることを見出した．しかし，2008 年 5 月にさいたま市で開催された「材料と環境 2008 講演会」で発表を行ったところ，海塩水の滴下試験と浸漬試験では，酸素の供給量が異なるために同一条件ではないとの指摘を受けた．その後，石川島播磨重工株式会社 中山氏との研究打合せにて飽和濃度程度であることを指摘された．

2．キャビテーションによる圧縮残留応力の評価

キャビテーションによる未処理試験片①，上流圧 20.1MPa；下流圧 0.15MPa，SOD=5mm のキャビテーション処理試験片②（処理速度 0.05mm/s），上流圧 16.1MPa；下流圧 0.15MPa，SOD=7mm のキャビテーション試験片③（処理速度 0.05mm/s）の合計 3 枚の試験片について，富山大学院理工学研究部塩沢研究室所有の X 線残留応力測定装置を用いて残留応力を測定した．サンプル①の残留応力は-55MPa，サンプル②は-583MPa，サンプル③は-480MPa の結果が得られた．このように，キャビテーション処理は大きな圧縮残留応力を発生させることがわかった．特にサンプル③では，幅 3mm の処理が得られたので非常に有効であることを見出した．

3．キャビテーションによる洗浄条件・手法の検討

キャビテーションを利用した実機配管の洗浄手法の検討として，キャビテーションノズルより噴射された水を周囲に漏らす事なく全て吸引する装置の試作品を製作し，性能を確認した．この試作品はキャビテーションノズルの代わりに水道水を噴射するもので，中央にその噴射口，その廻りを吸水用のノズル，その廻りをナイロン製のブラシで囲んだ構造で，このブラシの毛足を長い物と短いものの二重構造にして配管に押し当てた場合に隙間が出来ない様にした．試験はこのノズルをステンレス板や配管(360 φ)に押し当てた状態で横移動させて行い，噴射した水が周囲に漏れる事なく吸水機に吸水される事を確認した．実際のキャビテーションノズルから噴射される水量は約 21.3ℓ ／min，それに対して水道水の噴射流量は約 17.14ℓ ／min と，少し少ないが，吸水機の能力は約 32ℓ ／min と，十分である事から問題ないと考えられる．

平成 21 年度は，以下の項目を実施した．

1．長時間の応力腐食割れ試験特性の検討
2．海塩水膜中の電気化学的挙動の検討
3．種々な応力レベルの応力腐食割れの検討
4．キャビテーションの圧縮残留応力によるき裂発生抑制効果の検討
5．海塩 ESCC 損傷機構の解明とキャビテーションによる洗浄条件・手法の確立

【研究成果（当該年度）】

1. 長時間の応力腐食割れ試験特性の検討

一般に，応力腐食割れ試験は約 500 時間の試験時間で評価されることから，本研究では 2 週間（336 時間）を基本ケースとして，海塩 ESCC 発生挙動を評価してきた．しかし，実環境では海塩が付着した状態が長期間維持されることも十分考えられる．そこで，試験時間を 12 週間，24 週間とした試験を実施し，割れの発生と時間の関係について検討した．試験には JIS G 0576[(1)]に記載されている U 字曲げ試験片を用い，2 週間の試験と同様の湿度 30%RH，温度 90℃の条件で試験を行った．

試験の結果，長期間の試験では 2 週間での試験よりも，より少ない付着塩化物量でも割れが発生する．湿度 30%RH，温度 90℃の条件では，24 週間までの試験であれば，割れ発生のしきい値は鋭敏化の有無によらず 100mg/m^2 となる．

2. 海塩水膜中の電気化学的挙動の検討

U 字曲げ試験片を用いた腐食電位測定法について，測定実績のある石川島播磨重工株式会社中山氏を訪問し、打合せを行った．U 字曲げ試験片の R 部頂点に僅かな窪みを作ることで試験液を留め，白金電極を挿入することで安定した電位を測定可能である．腐食電位は不働態が破られ，き裂が発生または進展することにより低下するが，再不働態化することにより電位は再び上昇する．試験液に苦汁を用いた場合，SUS304 の腐食電位は 0.67(V vs. Pt)程度であり，水素電極基準の電位に換算すると 0.42(V vs. SHE)となる．[(2)]

3. 種々な応力レベルの応力腐食割れの検討

JIS G 0576[(1)]に記載されている U 字型試験片では試験片に作用している引張応力を変化させることが困難なため，U 字型試験片を平板状に戻した平板試験片を用いて試験を行った．

U 字型に変形させる際の曲げ角度を変化させることで種々の引張応力を付与した試験片を作製した．平板試験片に作用する応力は，FEM 解析と X 線残留応力測定により評価し，U 字曲げの際の曲げ角度 180°（JIS G 0576 の U 字曲げ試験片と同様）の試験片では約 570MPa となる．この他，90°曲げ，30°曲げ試験片を作製した．応力はそれぞれ 490MPa，400MPa となる．

U 字曲げ試験片での試験と同様に，人工海水を 6 スポット滴下し，自然乾燥させた後，海塩 ESCC 試験を行った．試験期間は 1 週間，湿度 30%RH，温度 90℃の条件で試験を行った．割れの発生頻度，割れの個数は，付着塩化物量 800mg/m^2 の条件で応力の傾向と一致するが，割れの長さは応力の順になっていない．これは，試験片に残留応力を付与するために折り曲げ・曲げ戻し加工をしたとき，試験片表面に凹凸が生じてやや不均一な応力場が形成されたものと考えられる．付着塩化物量が 800mg/m^2 よりも多い場合，割れの発生状況は応力の大小との関連性は見られなくなる．

4. キャビテーションの圧縮残留応力によるき裂発生抑制効果

キャビテーション処理による海塩 ESCC 抑制効果を検討するため，「3.種々な応力レベルの応力腐食割れの検討」で使用した平板試験片（180 度曲げ戻しを行った試験片）にキャビテーション処理を施した後，海塩を滴下し海塩 ESCC 試験を行った．試験期間 1 週間，湿度 30%RH，温度 90℃の条件で，付着塩化物量を変化させた．付着塩化物量 24000mg/m^2 の試験において，キャビテーション処理材と未処理材を比較するとキャビテーション未処理材ではスポットあたりの割れの数が約 9 本，長さは 4mm 以上のものも発生するのに対し，キャビテーション処理材では割れの数は 6 本となり，長さも 2mm 程度と抑制された．また，キャビテーション処理材では付着塩化物量 1200mg/m^2 以下で割れが観察されなくなるのに対し，キャビテーション未処理材では 800mg/m^2 の試験でも割れが発生した．

5. 海塩 ESCC 損傷機構の解明とキャビテーションによる洗浄条件・手法の確立

SUS304 鋼を対象に海塩により誘発される応力腐食割れについて，付着塩化物量，鋭敏化，試験時間，応力の各影響について実験的に検討を行い，以下の点が明らかとなった．

・海塩 ESCC の発生量は，付着塩化物量に比例する．

・SUS304 鋼の海塩 ESCC に及ぼす鋭敏化の影響について，650℃の熱処理で，熱処理時間と割れ発生量の関係は熱処理時間約 5 時間までは比例関係にあるが，鋭敏化処理時間 5～8 時間で割れ発生のピークが現れる．

・試験時間を長くすることにより，少ない付着塩化物量でも割れが発生する．湿度 30%RH，温度 90℃の条件において，24 週間までの試験であれば，付着塩化物量 100mg/m^2 以上で割れが発生するが，70mg/m^2 では割れは発生しない．

・引張応力 400MPa～570MPa の範囲において，付着塩化物量 800mg/m^2 の条件で割れの発生数は応力の傾向と一致する．付着塩化物量が 800mg/m^2 よりも多い場合は応力の傾向と一致しない．

また，キャビテーションを利用して，付着塩化物の除去効果およびピーニングによる海塩 ESCC 抑制効果について検討した結果，以下の点が明らかとなった．

・キャビテーションによる付着塩化物除去およびピーニングに最適な条件は，本研究で用いた気中キャビテーションノズルでは，SOD=7mm，高圧水圧力=16MPa，低圧水圧力=0.15MPa である．

・キャビテーション洗浄は，き裂発生材に対して，流水のみの場合と比べ，高い除去効果がある．

・キャビテーションピーニングにより，400MPa 以上の高い圧縮残留応力を加えることができる．また，海塩 ESCC 試験においても，キャビテーション処理材は海塩 ESCC の発生が抑制されるという結果が得られた．

・以上の結果より，キャビテーションを利用した付着塩化物洗浄，ピーニングによる材料強化は海塩 ESCC に対して有効な防止，抑制手法であると言える．

参考文献

(1)ステンレス鋼の応力腐食割れ試験方法, JIS G 0576

(2)中山元，湿潤海洋性大気環境下における応力腐食割れ生起監視技術への ENA 適用性の検討，Zairyo-to-Kankyo, 52, 477-482(2003)

【成果の反映状況】

「もんじゅ」では，平成 15 年 3 月以後，プラント機器への付着塩化物量の管理目標値を 70 mg/m^2 としている．本研究は，海塩 ESCC の発生し易い条件として，湿度 30%RH，温度 90℃の一定条件の下で 6 ヶ月間の試験を行い付着塩化物量 70 mg/m^2 で海塩 ESCC が発生しないことを実験的に確認した．本研究の成果により，「もんじゅ」の付着塩化物濃度管理基準値 70mg/m^2 の妥当性を裏付けることができた．

【研究成果の公表】

＜論文＞

1) SUS304 鋼の海塩 SCC に及ぼす付着塩化物量の影響，材料学会投稿予定
2) キャビテーションを利用した SUS304 鋼への付着海塩の洗浄と ESCC 防止法の提案，材料学会投稿予定

＜国内会議＞

1) 服部，シャフィック，月森，矢田，SUS304 鋼の海塩 SCC に及ばす付着塩化物の影響，材料と環境 2008
2) 矢田，Syafiq，月森，服部，SUS304 鋼の海塩 ESCC に及ぼす付着塩化物濃度の影響，日本材料学会第 59 期学術講演会，2010 年 5 月
3) Syafiq，矢田，張，月森，服部，キャビテーションを利用した SUS304 鋼への付着海塩の洗浄と ESCC 防止法の提案，日本材料学会第 59 期学術講演会，2010 年 5 月

＜国際会議＞

1) Shuji Hattori，Shanshan Zhang，Hiroki Yada，Kazuyuki Tsukimori，Removal of Sea Salt from Specimen Surface Using a Cavitation Jet in Air, 2008 International Symposium on Advanced Mechanical and Power Engineering，October，2008

2.1.7 先行基礎工学研究に関する平成21年度研究概要報告書

研究協力テーマ	酸化物分散強化型フェライト鋼の組織制御に基づく強度特性向上に関する研究		
研究協力課題	酸化物分散強化型フェライト鋼の強度特性に及ぼすナノメゾスケール微細組織構造に関する研究 (Study of Microstructure affecting the Mechanical Properties in Oxide Dispersion Strengthened Ferritic Steel)		
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，准教授　波多聰，助教　池田賢一， 特任助教　光原昌寿，大学院生　鴛渕孝太		
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Gr. グループリーダー　浅山泰，サブグループリーダー　井上賢紀 副主任研究員　皆藤威二，副主任研究員　大塚智史，博士研究員　金思雄		
研究実施場所	九州大学 大学院総合理工学研究院 C棟　117号室、119号室、308号室 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（Fセルボ）		
通算研究期間	平成20年4月　～ 平成23年3月	当該年度研究期間	平成21年6月　～ 平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員　□研究生の受入れ　■共同研究		

【研究目的】

高速炉燃料要素の高燃焼度化と冷却材温度の高温化を同時に達成可能な高性能燃料被覆管材料として、耐照射性に優れた酸化物分散強化型フェライト鋼が開発されている。組織制御による材料性能改善のためには、指針とする微細構造（ナノスケール酸化物粒子の構造/分散状態、マトリックス構造）の正確な評価が重要となるが、この酸化物分散強化型フェライト鋼は高転位密度のマルテンサイト相を母相とし、ナノメートルサイズの酸化物粒子が微細分散しているために組織観察が難しく、その微細構造の把握は十分ではない。しかし、近年、透過型電子顕微鏡による電子線トモグラフィー観察により酸化物の析出形態を 3 次元的に明らかにすることができるようになってきた。本研究では、電子顕微鏡技術に基づく微細構造観察手法を酸化物分散強化型フェライト鋼の組織観察に適用し、強度特性に及ぼす合金成分と加工熱処理条件の影響、さらには組織制御技術を確立することを目的とする。さらに、実用的に最も重要な長時間のクリープ強度特性をコイルバネクリープ試験によって調べ、強度特性に及ぼす微細構造の影響を実験的に明らかにし、酸化物分散強化型フェライト鋼の高強度化のための組織制御の確立を目指す。

【研究内容（概要）】

本研究は、ODS フェライト鋼のナノ/ミクロスケール微細構造および長時間側のクリープ特性を最新の分析・試験技術を用いて評価するものである。具体的には、電子線トモグラフィー法と電子線後方散乱回折（EBSD：Electron Back-Scatter Diffraction pattern）法を用いて、製造条件や高温強度の異なるODSフェライト鋼の3次元のナノスケール構造（酸化物粒子の分散状態・構造）からミクロスケール構造（粒界構造）に渡る組織構造を系統的に評価し、強度特性および微細組織構造に及ぼす合金成分と加工熱処理条件の影響を明らかにする。さらに、コイルバネクリープ試験法を用いて、従来手法では評価に複数年を要した長時間側のクリープ変形特性を明らかにする。以上の結果を総合的に評価して、燃料被覆管用ODSフェライト鋼の最適なナノ/ミクロスケール微細構造およびその制御指針について検討する。

【使用主要施設】

九州大学：方位像顕微鏡・HITACHI S-3000H, S-4300SE＋TSL OIM D.C. & Analysis
走査透過型電子顕微鏡・FEI TECNAI F20
透過型電子顕微鏡・JEOL JEM-2000EX/T
コイルバネクリープ試験機・研究室で独自に設計開発
原子力機構：高温クリープ試験機

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 20 年度は、以下の研究を行った。
○ナノ・ミクロスケール微細構造評価（九州大学）
SEM/EBSD 法による初期組織の結晶方位解析
走査透過電子顕微鏡による初期組織に存在する析出粒子の分布状態の観察
○コイルバネクリープ試験（九州大学）
650℃で種々の応力を負荷したコイルバネクリープ試験の実施

平成 21 年度は、以下の研究を行った。
○コイルバネクリープ試験（九州大学）
600℃、650℃および 700℃で種々の応力を負荷したコイルバネクリープ試験の実施
○ナノ・ミクロスケール微細構造評価（九州大学）
SEM/EBSD 法による結晶方位解析
FIB マイクロサンプリング法による微細構造観察用試料作製手法の検討
電子線トモグラフィー法による酸化物分散粒子の分布状態の評価

【研究成果（当該年度）】

平成 21 年度は、『コイルバネクリープ試験』ならびに『ナノ・ミクロスケール微細構造評価』について平成 20 年度に引き続き研究を進めた。本研究では、高温内圧クリープ強度、高温リング引張試験において強度の違いが確認されている 4 鋼種を用いた。以下に各項目について、研究成果を示す。

試料

本研究で用いた試料は、9Cr 系 ODS フェライト鋼（9Cr-ODS 鋼）である。これまでの研究で高温内圧クリープ強度が 700℃で 1000h クリープ破断強度 150MPa を達成している M11 と M16 ならびにこれらよりも低強度材となる Mm13 と Mm14 を対象とした。これらの鋼種の違いは、熱間押出温度と過剰酸素量である。コイルバネクリープ試験には、全 4 鋼種の被覆管を用い、長方形断面となるコイルバネクリープ試験片を作製した。ナノ・ミクロスケール微細構造評価には、おもに M11 と Mm13 を用いた。特に、電子線トモグラフィー法による 3 次元構造解析には、酸化物分散粒子の分散状態をより明瞭に把握するために、焼きならし後に炉冷を施した炉冷材 M11FC と Mm13FC を用いた。

進捗状況

(1) コイルバネクリープ試験

図 1 は本研究で用いた長方形断面を有するコイルバネクリープ試験片である。各鋼種の被覆管よりコイルバネ形状の試験片に加工し、図 2 に示すコイルバネクリープ試験機によって試験を行った。

被覆管から作製したコイルバネクリープ試験片の場合、クリープ試験時には長方形断面にねじり変形が加わる。本研究では、長方形断面の最大応力点にかかるせん断応力とせん断ひ

ずみから相当応力と相当ひずみを換算した。換算式は下記のとおりである。

$$\text{せん断応力：}\tau = \frac{PD}{2k_0 a^2 b}$$

$$\text{せん断ひずみ：}\gamma = \frac{2k_1 \delta a}{\pi D^2}$$

$$\text{相当応力：}\sigma = \sqrt{3}\tau$$

$$\text{相当ひずみ：}\varepsilon = \frac{\gamma}{\sqrt{3}}$$

ここで、P: 荷重、D: コイル半径、a: 断面短辺の長さ、b: 断面長辺の長さ、・: ピッチ間隔の増加量、k_0, k_1 : a と b の比から求められる係数である。

本研究で用いたコイルバネクリープ試験片形状は、外径が M11 と M16 が約 8.5 mm、Mm13 と Mm14 は約 6.9 mm であり、肉厚は共に M11 と M16 が 0.5 mm、Mm13 と Mm14 は 0.4 mm である。管材側面を加工し、2.0 mm×0.5 mm と 2.0 mm×0.4 mm の長方形断面コイルバネクリープ試験片を作製した。クリープ試験は、全鋼種において 650℃と 700℃で行い、M11 と M16 についてのみ 600℃においても試験を行った。負荷応力は 18 MPa～600 MPa の間で行った。得られたクリープ曲線から、ひずみ速度の時間依存性を考慮して定式化された時間 t におけるひずみ ε の次式を用いて定常ひずみ速度を算出した。

$$\varepsilon = \frac{\dot{\varepsilon}_s}{\sqrt{3}} \ln\left[1 + \frac{\dot{\varepsilon}_1 - \dot{\varepsilon}_s}{\dot{\varepsilon}_s}\left\{1 - \exp(-kt)\right\}\right] + \dot{\varepsilon}_s t$$

ここで $\dot{\varepsilon}_s$ は定常ひずみ速度、$\dot{\varepsilon}_1$ は初期ひずみ速度、k は転位の増殖速度定数である。

図 3 は M11 の 650℃におけるクリープ曲線である。いずれの応力においても明瞭なクリープ曲線を得ることができた。これらのデータをもとに 650℃と 700℃において上式を用いた定常ひずみ速度と負荷応力の両対数プロットを図 4 に示す。図中には機構側で行った単軸クリープ試験結果も併せて示す。本研究で行ったコイルバネクリープ試験により、単軸クリープ試験では測定が困難な $\dot{\varepsilon}_s$=10^{-8}～10^{-9} s^{-1} の領域において定常ひずみ速度の応力依存性が異なることが明らかになった。図 4 の直線の傾きによって得られる応力指数 n 値は 650℃において n=8 から n=1 へ、700℃においては、n=9.4 から n=1.3 へ変化した。同様に他の 3 鋼種においても各温度で明瞭なクリープ曲線を得ることができ、定常ひずみ速度の応力依存性ならびに変形機構の遷移を捉える事ができた。この n 値の変化は、クリープ変形機構の遷移を示している。M11 において 600℃～700℃におけるコイルバネクリープ試験結果より、n 値が変化する前後の活性化エネルギーを求めたところ、高応力側では 329kJ/mol、低応力側では 98kJ/mol となった。これらの値と n 値が示す変形機構を考えると、高応力側では転位クリープにより変形が進行し、低応力側では拡散クリープによる変形が進行することが示唆された。

ところで、分散強化型合金の変形において、酸化物分散粒子によるしきい応力が発現することが広く知られている。本研究で得られた変形機構の遷移について、しきい応力との対応を考える必要がある。そこで、次項で分散粒子に着目した微細構造評価を行った結果を示し、これらの関係について述べる。

(2) ナノ・ミクロスケール微細構造評価

高強度材である M11 と低強度材である Mm13 において、SEM/EBSD 法による結晶方位解析を行った結果、両者の結晶粒径ならびにマルテンサイトに特有の粒界性格分布に大きな違いは

得られなかった。そこで、強度の違いは内部の酸化物分散粒子の存在状態に起因すると考え、TEM/STEM による観察を行った。本研究では、初期転位密度の高いマルテンサイト母相中の酸化物分散粒子を高精度に判別し、その 3 次元分布状態を把握するのは困難であると考え、焼きならし後に炉冷を行った M11FC と Mm13FC について評価を行った。炉冷処理によって、分散粒子の分布状態は変化しないと考えられる。また、本試料は磁性体であることから、観察試料サイズが大きくなると、TEM/STEM 観察に支障があるため、FIB マイクロサンプリング法と低加速電圧によるイオンミリングを用いて観察試料作製を行った。その結果、磁性の影響をかなり低減することができ、高分解能観察を行えるほどの試料作製に成功した。

STEM 観察の結果、M11FC と Mm13FC において明瞭に酸化物分散粒子を判別することができた。また、両試料において酸化物粒子が密に存在する領域と疎に存在する領域があることが明らかになった。これらがなぜ形成されたのかについては、今後検討すべき点である。図 5 は M11FC の結晶粒内に密に存在する酸化物分散粒子の 3 次元再構築像である。同様に M11FC の疎な領域と Mm13FC についても 3 次元再構築像を得た。これらの酸化物分散粒子の分布状態を把握するために、分散粒子の直径、数密度および表面間距離を求めた。M11FC と Mm13FC において酸化物分散粒子の直径はほぼ同等の 4～5nm であったが、数密度が M11FC の方が密な領域で約 2 倍、疎な領域で約 4 倍大きいことが分かった。これらが強度の違いを引き起こしていることが 3 次元構造解析により明らかにできた。また、これらの酸化物分散粒子の分散パラメータより得られるオローワン応力を求めた。その結果、M11FC では、密な領域において 329MPa、疎な領域において 258MPa であった。一方、Mm13FC では、密な領域において 251MPa、疎な領域において 157MPa となった。これらのオローワン応力は、分散強化型合金のしきい応力と一致することが報告されているため、図 4 に示すような定常ひずみ速度の応力依存性の図との比較を行った。M11 では、変形機構の遷移が約 250MPa で生じていることが分かる。これは、M11FC の疎な領域から得られたオローワン応力に対応する。一方、Mm13 においても変形機構が遷移する応力が疎な領域のオローワン応力に近いことが明らかになった。以上の結果より、M11 と Mm13 には酸化物分散粒子の疎密な領域が存在し、酸化物分散粒子が変形抵抗となるしきい応力は疎な領域の分布状態に起因することが示唆された。

【引用資料（図）】

ODS-9Cr フェライト鋼の微細組織と低ひずみ速度クリープ変形挙動
九大総理工　　鴛渕孝太、光原昌寿、池田賢一、波多聰、中島英治
原子力機構　　大塚智史、皆藤威二、井上賢紀
日本学術振興会　耐熱金属材料 123 委員会研究報告，Vol. 51，No. 1（2010）pp. 39-45

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 22 年度は、以下の項目について行う予定である。

1．ナノ・ミクロスケール微細構造評価

平成 21 年度に実施した酸化物分散粒子の 3 次元構造解析を中心に行う。コイルバネクリープ試験を実施した Mm14 と M16 についても炉冷材を作製し、電子線トモグラフィー法による酸化物分散粒子の分布状態の調査を行う。また、大型プロセスで製造された M19L についても同様に観察を行う。さらに、観察の進捗状況によるが、再結晶フェライト組織を有する 12Cr-ODS 鋼の観察についても検討する。

2．コイルバネクリープ試験

平成 21 年度までに M11、M16、Mm13 および Mm14 のコイルバネクリープ試験を実施した。平成 22 年度は、炉冷熱処理により結晶粒径が粗大化した Mm13FC および炉冷熱処理を施しても Mm13FC よりも結晶粒径が微細な M11FC と M16FC についてコイルバネクリープ試験を実施する。さらに、M19L についてもコイルバネクリープ試験を実施する。

３．強度特性と微細組織構造の相関評価

ナノ・ミクロスケール微細構造評価で得られる分散粒子の分布状態や結晶粒径の違いによってコイルバネクリープ試験で得られる高温強度特性との相関を明らかにし、どのような組織因子が強度に影響を与えるのかを明らかにし、今後の材料設計指針につながるまとめを行う。

【研究成果の公表】

＜論文（査読なし）＞

1) ODS-9Cr フェライト鋼の微細組織と低ひずみ速度クリープ変形挙動
鴛渕孝太、光原昌寿、池田賢一、波多聰、中島英治
大塚智史、皆藤威二、井上賢紀
日本学術振興会　耐熱金属材料 123 委員会研究報告, Vol. 51, No. 1 (2010) pp. 39-45

＜国内会議＞

1) コイルばねクリープ試験法を用いた ODS フェライト鋼の低応力クリープ変形挙動
鴛渕孝太、光原昌寿、池田賢一、波多聰、中島英治、大塚智史
日本金属学会九州支部・日本鉄鋼協会九州支部・軽金属学会九州支部共催
平成 21 年度合同学術講演大会、2009 年 6 月

2) ODS-9Cr フェライト鋼のクリープ変形における応力指数変化としきい応力の相関
鴛渕孝太、光原昌寿、池田賢一、波多聰、中島英治、大塚智史
日本金属学会・先進材料の高温強度と組織研究会「平成 21 年度夏の学校」
2009 年 8 月

3) ODS-9Cr フェライト鋼の三次元構造観察の可能性
鴛渕孝太、光原昌寿、池田賢一、波多聰、中島英治、大塚智史
第 51 回日本顕微鏡学会九州支部総会・学術講演会、2009 年 12 月

4) ODS-9Cr フェライト鋼の微細組織と低ひずみ速度クリープ変形挙動
鴛渕孝太、光原昌寿、池田賢一、波多聰、中島英治、大塚智史、皆藤威二、井上賢紀
日本学術振興会　耐熱金属材料第 123 委員会：耐熱鋼分科会, 2010 年 3 月

＜国際会議＞

1) Creep Behavior of Oxide Dispersion Strengthened-9Cr Ferritic Steels under High-Temperature and Low-Stresses Conditions
K. Oshibuchi, M. Mitsuhara, K. Ikeda, S. Hata, H. Nakashima, S. Ohtsuka
The 11th Cross Straits Symposium on Materials, Energy, and Environmental Sciences (CSS-11), November 2009

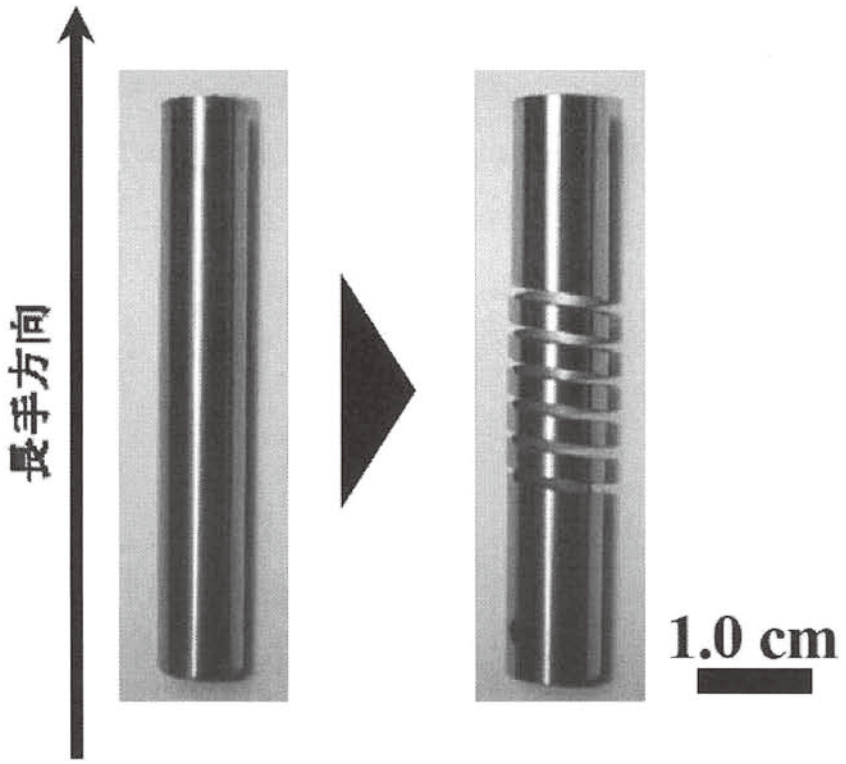


図1 コイルバネクリープ試験片

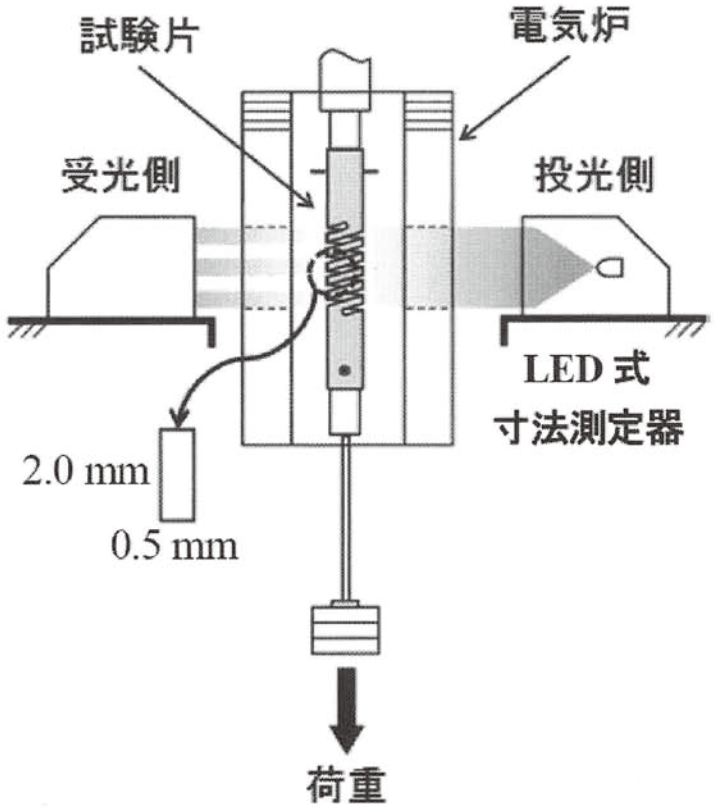


図2 コイルバネクリープ試験機

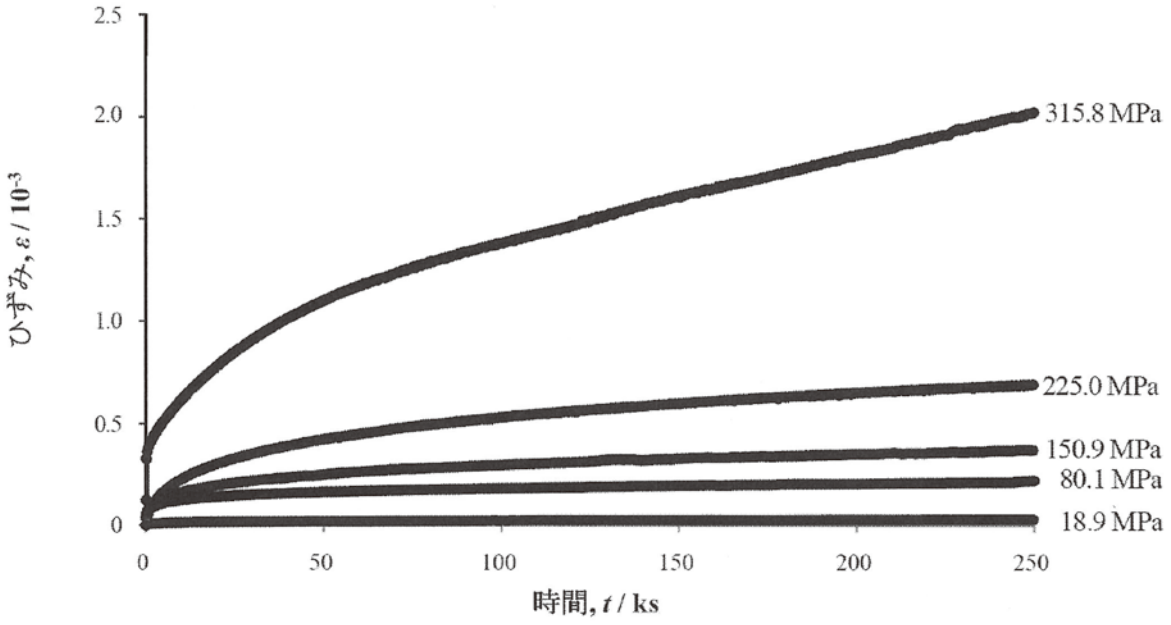


図3 M11の650℃におけるコイルバネクリープ曲線

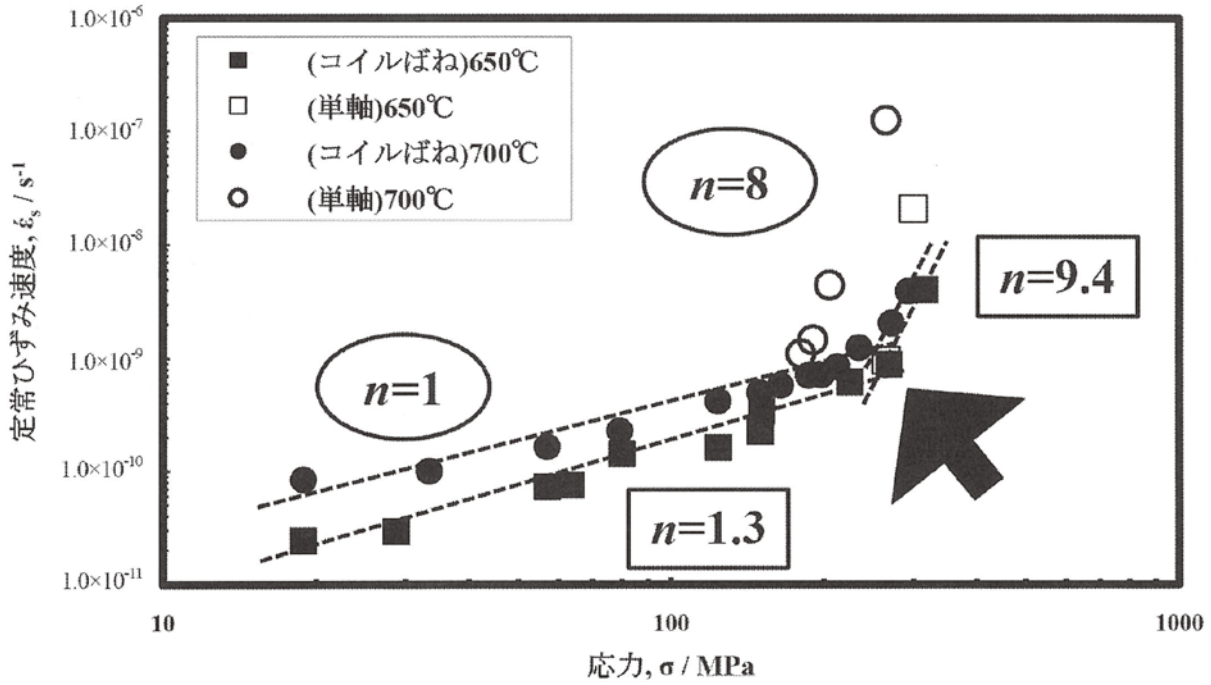


図4 M11のコイルバネクリープ試験より得られた
定常ひずみ速度の応力依存性

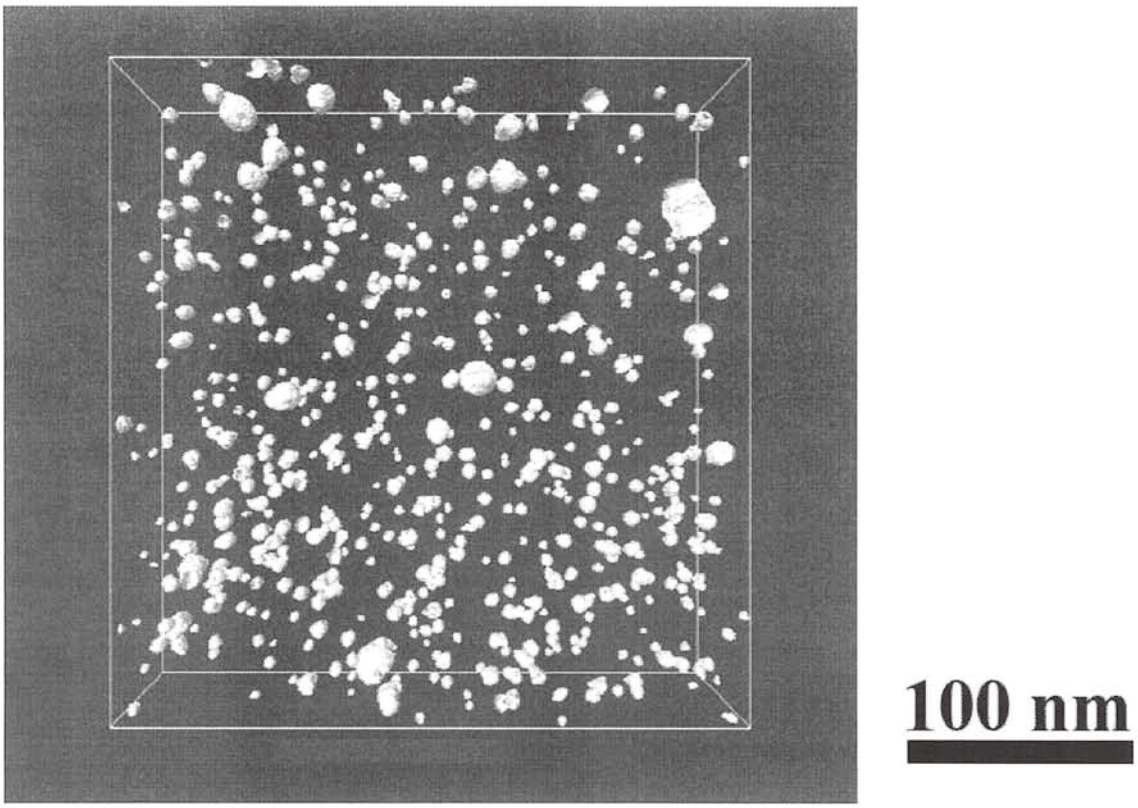


図5 M11の酸化物分散粒子の3次元再構築像

2.1.8 先行基礎工学研究に関する平成21年度研究概要報告書

研究協力テーマ	高速炉ガス巻込み現象を直接評価できる数値解析手法の開発		
研究協力課題	非構造格子系における高精度・高効率気液二相流数値解析手法の開発と実規模ガス巻込み現象への適用 (Development of High-precision Numerical Simulation Algorithm for Gas-liquid Two-phase flows on Unstructured meshes and its Application to Gas Entrainment Phenomena)		
研究者所属、氏名			
大学側	京都大学大学院工学研究科　原子核工学専攻　教授　功刀　資彰 学生　永武　拓，学生　小瀬　裕男，学生　植木　祥高		
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	京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻　工学部1号館 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20年6月　～　平成23年3月	当該年度研究期間	平成21年5月　～　平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員　□研究生の受入れ　■共同研究		

【研究目的】

現在設計中のナトリウム冷却高速炉では、原子炉容器径に対する炉出力の増加を検討しているが、炉出力の増加に伴い炉内冷却材流速が高速化するため、炉上部プレナム部自由液面からのガス巻込みの発生が懸念されている。ガス巻込み現象は局所流速分布や局所体系形状への依存性が強いため、現象を確実に評価する手法として現状では実規模試験が用いられているが、実規模試験を行うためには多大な時間と費用が必要であることから、数値解析によってガス巻込み現象を評価する手法の確立が望まれている。

本研究では、数値解析を用いたガス巻込み評価手法の確立を目的とし、高精度・高効率気液二相流数値解析手法の開発を実施する。

【研究内容（概要）】

本研究は以下の研究項目から構成される。

① 非構造格子体系における高精度気液二相流数値解析手法の開発

ガス巻込み現象は局所体系形状への依存性が大きいことが知られており、原子炉上部プレナムのような複雑体系内におけるガス巻込み現象を再現するためには、体系形状を正確に模擬した解析体系を構築する必要がある。本研究では任意の体系形状に対応できる非構造格子を用いることとし、非構造格子系における高精度気液二相流数値解析手法の開発を行う。

② 非構造解適合格子を用いた局所詳細格子配置手法の開発と検証

高精度気液二相流数値解析手法を高速炉実機に適用するためには解析手法の高効率化が必須である。本研究では、非構造解適合格子を用いて局所的に詳細な格子を配置する手法の開発と検証を行う。

③ 並列化等による解析手法の高速化

高精度気液二相流数値解析手法を実規模ガス巻込み現象に適用可能とするために、大規模並列化技術の実装やソルバー改良による解析手法の高速化を実施する。

④ 実規模ガス巻込み現象への適用性確認

開発した手法の適用性（解析精度・解析効率）を検証するため、原子力機構において実施した実規模ガス巻込み実験を対象とした解析を行う。本検証解析結果に基づき、実機ガス巻込み現象を行う際の解析負荷に関する指針を定める。

【使用主要施設】

原子力機構　大洗研究開発センター　PRIME POWER 2500
(CPU: 6.2GFlops/CPU x 384 CPU, Memory: 512GB/Node x 3)

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 20 年度は、①非構造格子体系における高精度気液二相流数値解析手法の開発、及び②非構造解適合格子を用いた局所詳細格子配置手法の開発と検証に関して2次元非構造解適合格子の開発と検証を実施した。

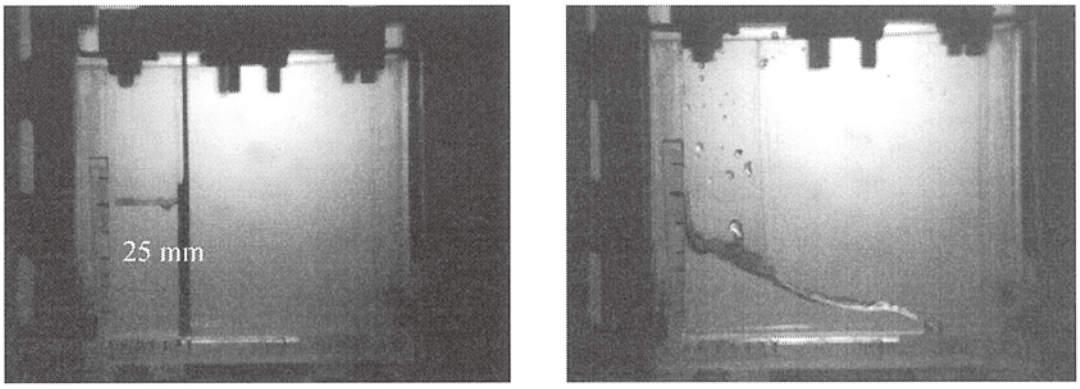
平成 21 年度は、②非構造解適合格子を用いた局所詳細格子配置手法の開発と検証における高精度気液二相流数値解析への拡張と検証、③並列化等による解析手法の高速化における大規模並列化やソルバー改良、及び④実規模ガス巻込み現象への適用性確認における予備解析を実施した。

【研究成果（当該年度）】

② 非構造解適合格子を用いた局所詳細耕地配置手法の開発と検証

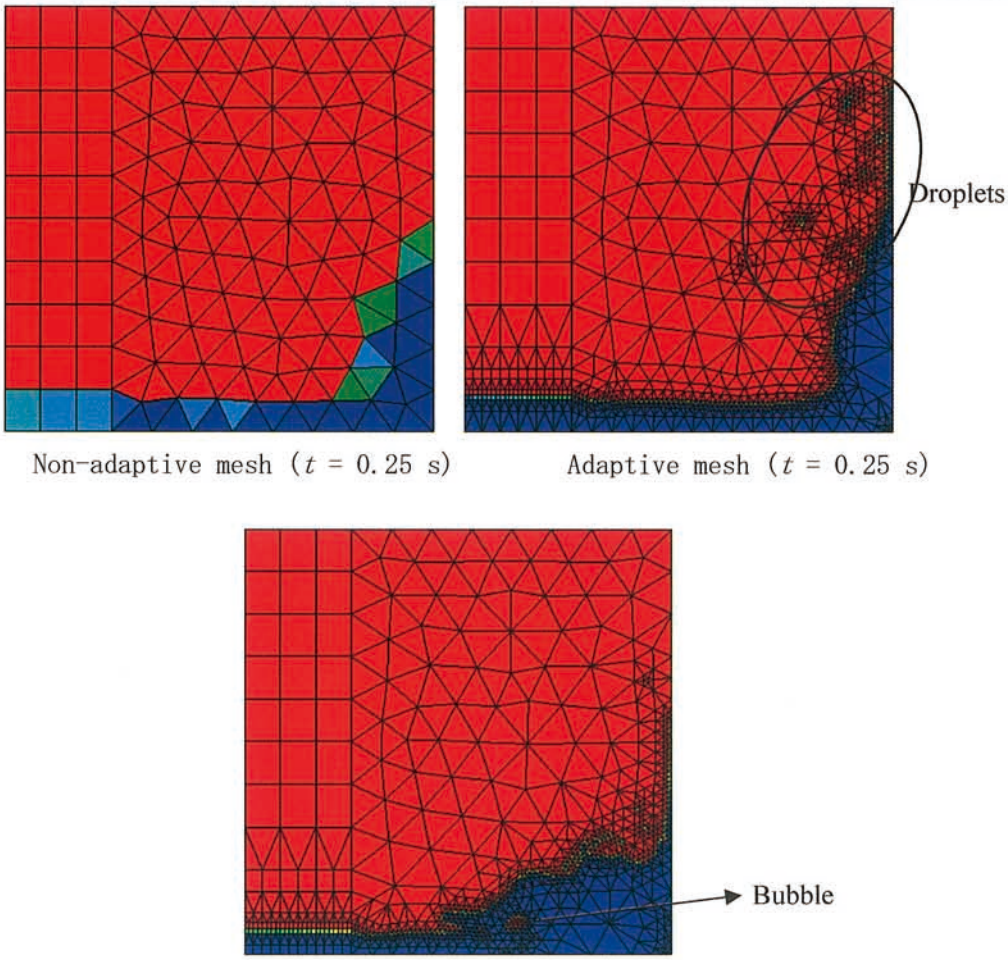
ガス巻込み現象は局所的に発生し、ガス巻き込みを生ずる渦のスケールは 10^{-2} m 程度である。一方、高速炉実機体系のスケールは数 m となるため、高速炉実機体系におけるガス巻込み現象を解析するためには、非常に大きな体系に対して解析格子を配置して全体の流況を捉えつつ、局所的に（ガス巻込みが発生する領域に）詳細な（mm スケールの）解析格子を配置してガス巻込み現象を的確に捕らえる必要がある。そのため、解析格子数が非常に多くなることが予想され、開発した高精度気液二相流数値解析手法をそのまま用いて高速炉実機の評価を行うためには、非現実的な解析時間が必要になると考えられる。従って、高精度気液二相流数値解析手法を高速炉実機に適用するためには解析手法の高効率化が必須である。本研究では、非構造解適合格子を用いて局所的に詳細な格子を配置することによって格子数を増やさずに渦近傍の解像度を向上する手法の検討を行う。

平成 21 年度は、平成 20 年度に開発した 2 次元非構造解適合格子に基づいて 3 次元非構造解適合格子の開発を行った。また、高精度気液二相流数値解析手法を非構造解適合格子に拡張した。その際、詳細化したセルにおける物理量再配分手法に関して検討を行い、気液界面の形状（勾配および位置）及び気液各相の運動量を保存する手法を構築した。また、検証データ取得のためにダム崩壊実験を行い、図 1 に示すようにカセグレン光学系と高速度ビデオカメラを用いて詳細データを取得した。実験結果と解析結果を比較した結果、図 2 に示す通り非構造解適合格子を用いることで，砕波や気泡巻込みを解析できることを確認した.



Initial state　　Advancing interface

図 1　ダム崩壊現象の実験結果



Non-adaptive mesh (t = 0.25 s)　　Adaptive mesh (t = 0.25 s)

Adaptive mesh (t = 0.33 s)

図 2　ダム崩壊問題における砕波および気泡巻込み現象（流体率分布）

③ 並列化等を用いた解析手法の高速化

高精度気液二相流数値解析手法を実規模ガス巻込み現象に適用可能とするため、大規模並列化やソルバー改良による解析手法の高速化を実施する。

平成 21 年度は、圧力反復法ソルバーの改良を行うとともに、MPI 法を用いた大規模並列化を行った。その結果、64 並列の計算を実施した場合においても、60%程度の高い効率が得られることを確認した。その結果、高速炉実機体系に適用した場合に、現実的な（数週間以内の）計算時間で高精度な解が得られる見通しを得た。また、GPU に対応したプログラミングの検討を実施し、CPU と比較して数倍～数十倍程度の計算速度を実現可能であることを示した（表 1 参照）。

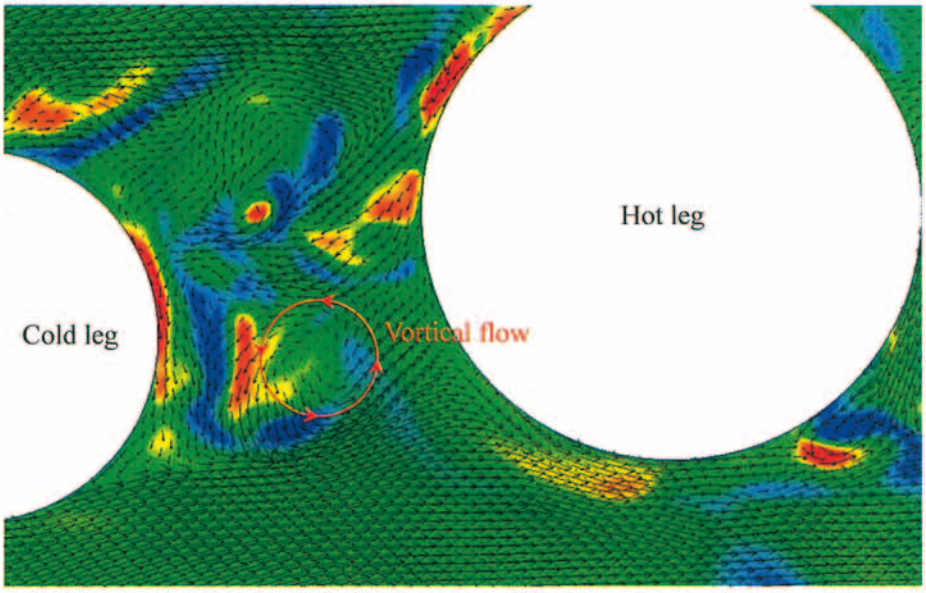
表 1 CPU と GPU の計算速度比較

	Single precision			Double precision		
	CPU(Xeon)	CPU(C2Q)	GPU	CPU(Xeon)	CPU(C2Q)	GPU
case1	66.00 s	50.99 s	10.12 s	87.48 s	81.61 s	31.11 s
case2	1516.26 s		236.47 s	2807.71 s		948.83 s

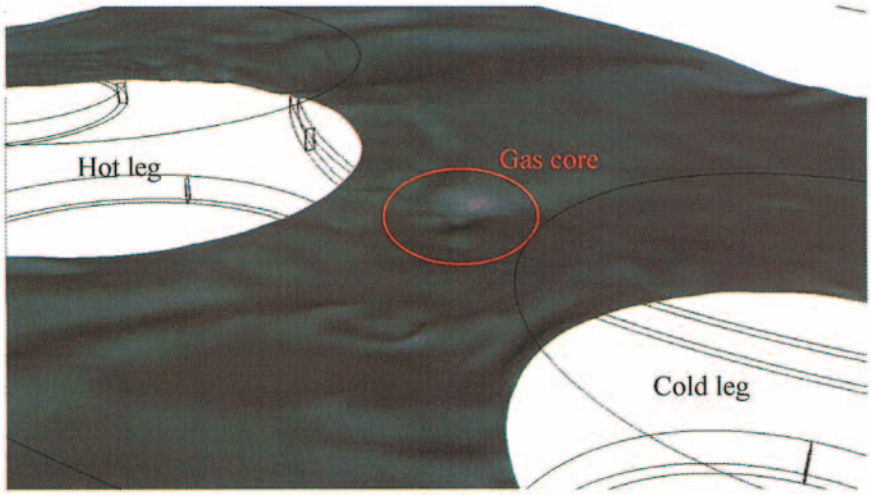
④ 実規模ガス巻込み現象への適用性確認

開発した手法の実機解析適用性（解析精度・解析効率）を検証するため、原子力機構において実施した実規模ガス巻込み試験（1/1.8 高速炉上部プレナム部分モデル試験）を対象とした数値解析を実施する.

平成 21 年度は、来年度に実施する予定の本解析における解析条件（解析格子、境界条件等）の指針を得るため、試解析を実施した。本試解析では比較的粗い格子を用いたため、実規模ガス巻込み現象を再現することはできなかったが、配管後流における渦発生とそれに伴う液面窪みの発生を正しく解析することに成功した（図 3 参照）。この結果、平成 22 年度に実施する本解析において実規模ガス巻込み現象を再現できる見通しを得た。



Velocity distribution



Interfacial shape

図 3　実規模ガス巻込み現象の試解析結果

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

③ 並列化等による解析手法の高速化

平成22年度は、実規模ガス巻込み現象を高精度・高効率に解析できる手法の構築を目指して、平成21年度までに開発した非構造解適合格子を用いた解析手法の並列化を実施する。その際、動的格子再分割に伴って変化する各CPUのロードバランスの不均一化に注意し、並列化効率の低下を防止するようなアルゴリズムを構築する。

④ 実規模ガス巻込み現象への適用性確認

平成22年度は、上記③で高速化した高精度・高効率気液二相流数値解析手法を用いて、実規模ガス巻込み試験を対象とした解析を実施し、実機ガス巻込み現象の解析が可能であることを検証する。その際、平成21年度に実施した試解析に基づいて解析条件を設定する。また、大規模並列計算機における解析効率を計測し、実機体系を解析する場合の解析時間・必要メモリサイズ等の指針を得る。併せて、本研究でこれまでに取得した検証用基礎実験データベースの整理・拡充を図る。

【研究成果の公表】

＜論文＞

1) K. Ito, T. Kunugi, H. Ohshima, T. Kawamura, "Formulations and Validations of a High-precision Volume-of-fluid Algorithm on Non-orthogonal Meshes for Numerical Simulations of Gas Entrainment Phenomena", Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 46, No. 4, pp. 366-373, 2009. (査読有)

2) 伊藤 啓, 功刀 資彰, "コロケート型変数配置における気液界面近傍領域の適切な速度・圧力勾配計算手法の定式化", 日本機械学会論文集B編, Vol. 74, No. 743, pp. 1512-1521, 2008. (査読有)

3) 伊藤 啓, 功刀 資彰, 大島 宏之, "気液界面において圧力と表面張力の力学的釣合い条件を完全に満足する高精度数値解析手法の非構造格子系における定式化", 混相流, Vol. 23, No. 1, pp. 77-84, 2009. (査読有)

4) 伊藤 啓, 功刀 資彰, 大島 宏之, 河村 拓己, "圧力-表面張力の適切なバランスを考慮した高精度VOF法の開発と高速炉ガス巻込み現象への適用", 日本機械学会論文集B編, Vol. 75, No. 751, pp. 466-467, 2009. (査読有)

5) K. Ito, T. Kunugi, "Appropriate Formulations for Velocity and Pressure Calculations at Gas-liquid Interface with Collocated Variable Arrangement", Journal of Fluid Science and Technology, Vol. 4, No. 3, pp. 711-721, 2009. (査読有)

6) 伊藤 啓, 功刀 資彰, 大島 宏之, "高精度気液二相流数値解析における非構造解適合格子法の開発(第1報, 2次元非構造解適合格子法の開発と検証)", 日本機械学会論文集B編, Vol. 75, No. 759, pp. 2190-2198, 2009. (査読有)

7) 伊藤 啓, 功刀 資彰, 大島 宏之, "高精度気液二相流数値解析における非構造解適合格子法の開発（第2報, 2次元非構造解適合格子系における気液二相流解析）", 日本機械学会論文集B編, Vol. 75, No. 760, pp. 2403-2412, 2009. (査読有)

8) K. Ito, T. Kunugi, H. Ohshima, "Development and Verification of Unstructured Adaptive Mesh Technique with Edge Compatibility", Journal of Power and Energy System, Vol. 4, No. 1, pp. 72-83, 2010. (査読有)

＜国内会議＞

1) 伊藤 啓，功刀 資彰，“非構造格子系における気液界面での力学的釣合い条件の適切な定式化”，日本混相流学会年会講演会 2008 講演論文集，p. 150，2008.
2) 永武 拓，河原 全作，功刀 資彰，“ダム崩壊問題によるコロケート格子系 MARS の検証”，原子力学会 2008 年秋の年会 予稿集，p. 172，2008.
3) 永武 拓，功刀 資彰，“ダム崩壊問題による MARS に基づく混相流数値解析手法の検証”，日本混相流学会年会講演会 2008 講演論文集，p. 150，2008.
4) 伊藤 啓，功刀 資彰，大島 宏之，“高精度 Volume-of-fluid 法に対応した非構造解適合格子の研究”，第 22 回数値流体力学シンポジウム，2008.
5) 伊藤 啓，山本 義暢，功刀 資彰，“ガス巻込み現象の直接数値解析に向けた手法の開発(3) - 2 次元非構造解適合格子の開発と検証-”，原子力学会 2009 年春の年会 予稿集，p. 432，2009.
6) 伊藤 啓，功刀 資彰，大島 宏之，“非構造解適合格子を用いた気液二相流現象の数値解析”，日本混相流学会年会講演会 2009，2009.
7) 永武 拓，功刀 資彰，“MARS の GPU による高速化”，第 22 回計算力学講演会，2009.
8) 伊藤 啓，功刀 資彰，大島 宏之，“非構造格子系における気液界面の高精度再構築法の開発”，第 22 回数値流体力学シンポジウム，2009.
9) 永武 拓，功刀 資彰，“GPU で動作する MARS の開発”，第 23 回数値流体力学シンポジウム，2009.

＜国際会議＞

1) K. Ito, T. Kunugi and H. Ohshima, “Development and Validation of High-Precision CFD Method with Volume-Tracking Algorithm for Gas-Liquid Two-Phase Flow Simulation on Unstructured Mesh”, Experiments and CFD Code Applications to Nuclear Reactor Safety (XCFD4NRS), No. AR-02, Grenoble, France, Sep. 10-12, 2008.
2) K. Ito, T. Kunugi and H. Ohshima, “Improvement of Gas-Liquid Two-Phase Flow Simulation Methodology on Unstructured Grid”, The 16th Pacific Basin Nuclear Conference (16PBNC), No. P16P1245, Aomori, Japan, Oct. 13-18, 2008.
3) T. Nagatake, Z. Kawara and T. Kunugi, “Establishment of Experimental Database on Dam-Breaking Problem for Validating Interface Tracking Methods”, Sixth Japan-Korea Symposium on Nuclear Thermal Hydraulics and Safety (NTHAS6), N6P1143, Okinawa, Japan, Nov. 24-27, 2008.
4) K. Ito, T. Kunugi and H. Ohshima, “Development and Verification of Unstructured Adaptive Mesh Technique with Edge Compatibility”, Seventeenth International Conference on Nuclear Engineering (ICONE-17), ICONE17-75536, Brussels, Belgium, Jul. 12-16, 2009.
5) K. Ito, T. Kunugi and H. Ohshima, “Development and Validation of Unstructured Adaptive Mesh Technique for Gas-Liquid Two-Phase Flows”, NURETH-13, Kanazawa, Japan, Sep. 27 - Oct. 2, 2009.

2.1.9 先行基礎工学研究に関する平成21年度研究概要報告書

研究協力テーマ	使用済燃料中のモリブデンを母材として用いた高性能燃料の創製		
研究協力課題	イオン交換による使用済燃料中モリブデンの分離抽出 (Molybdenum extraction from spent nuclear fuel by ion exchange technique)		
研究者所属、氏名			
大学側	東京工業大学　原子炉工学研究所　鈴木達也		
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　逢坂　正彦		
研究実施場所	東京工業大学原子炉工学研究所　北2号館，北実験棟2A及び北実験棟6 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		
通算研究期間	平成20年6月　～　平成23年3月	当該年度研究期間	平成21年6月　～　平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員　□研究生の受入れ　■共同研究		

【研究目的】

使用済燃料中には、核分裂により生成した非放射性のモリブデン（Mo）が多量に含まれている。Mo はガラス固化体への高レベル廃棄物の含有における量的制限因子であることから、これを回収して有効利用できれば、コスト、資源、環境負荷の観点からメリットは大きい。

本研究においては、使用済燃料から Mo を分離し、高性能核燃料のための添加剤として利用する技術を確立することを目指して、Mo の湿式法による基礎分離特性および Mo 添加核燃料の基礎特性を評価することを目的とする。

【研究内容（概要）】

使用済燃料中に含まれるモリブデンをイオン交換を用いた湿式分離法で分離する。本提案では、高レベル放射性廃棄物からのモリブデン分離と使用済燃料の溶解溶液から直接モリブデンを分離する方法について研究を行なう。イオン交換は特定の元素の分離抽出能は溶媒抽出と比べてそれほど大きくないが、多段化が極めて容易で理論段高さも 1mm を下回る大きさになり得るため、結果としてコンパクトで効率的な分離が可能となる。硝酸溶液ではモリブデンと同様の振る舞いをする元素は無く、容易に他の元素から分離できる可能性が高い。一方、塩酸溶液ではモリブデンと比較的似た振る舞いをする元素もあり、詳細な検討が必要ではあるが、モリブデンの分配係数は硝酸よりも1桁大きく、処理量の点から魅力的である。本件では、イオン交換樹脂として、耐放射線性に優れた3級ピリジン樹脂を用いる。この樹脂は 3MGy まで照射してもほとんど劣化が無く、塩酸溶液では 10MGy まで照射しても 10%ほどしか劣化することがなく、強い放射線耐性を持つものである。また、3級ピリジン樹脂は一般的な強塩基性陰イオン交換樹脂である4級アンモニウム樹脂とは若干異なる特徴を持ち、分配係数も全く同じではない。そこで、本研究提案では、3級ピリジン樹脂を用いたカラム試験により、硝酸及び塩酸溶液でモリブデンおよび使用済燃料中に含まれる元素を用いた吸着・分離試験を行い、使用済燃料からのモリブデン分離法について最適な条件を探る。

機構においては、分離した Mo の金属粉末転換および転換粉末を用いた核燃料（Mo サーメット燃料）作製実験を行い、回収 Mo 粉末の基礎的性状と粉末冶金への適合性を評価する。

【使用主要施設】

東京工業大学：ICP-MS(四重極型)
原子力機構：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 コールド実験室、化学室、実験室

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 20 年度は、使用済燃料からのモリブデンの抽出分離を行うために、硝酸溶液系及び塩酸溶液系でバッチ試験での樹脂への基礎的な吸着特性を把握した後、共存イオンの影響を評価するため高レベル廃液模擬溶液を用いてクロマトグラフィ試験により Mo の分離試験を実施した。

機構においては、燃料製造に必要な Mo の精製条件を決定するため、分離時に混入する可能性のある元素を評価した。ピリジン樹脂による Mo 分離において最も混入可能性が大きいと考えられる Zr に着目し、Zr 添加量をパラメータとした模擬 Mo サーメット燃料の焼結試験を実施した。また、マイクロ波加熱法により分離した Mo 含有溶液を粉末に転換するための基礎特性を評価するため、マイクロ波加熱装置を整備した。

平成 21 年度は、塩酸溶液中での Mo の分離について U(VI)の吸着試験の結果を踏まえ、U(VI)が吸着しない条件である 0.5M 塩酸で吸着試験を実施した。また、硝酸溶液を用いた試験では、模擬高レベル廃液にピリジン樹脂を漬け込む操作により Mo を回収する方法を考案して実施した。

機構においては、小型マイクロ波加熱装置の改造を行った。また溶液からの Mo 合成手法に関して、常圧系、マイルドな条件かつ廃棄物量が少ないプロセスを検討し、液性（pH、温度等）をコントロールすることにより溶解している Mo/Zr を酸化物として沈殿させるプロセスの概念を策定した。さらに、Mo サーメットの再処理における基礎特性として、Zr 含有 Mo の硝酸溶解試験を実施した。

【研究成果（当該年度）】

1. 塩酸溶液での吸着・分離挙動データ収集試験

塩酸溶液系での模擬高レベル廃液を用いたモリブデンのピリジン樹脂への吸着挙動と他の核分裂生成物の吸着挙動に関する試験を実施した。実験条件は後述のウランのピリジン樹脂への吸着挙動を踏まえて 0.5M 塩酸で Mo の吸着・分離試験を行った。つまり、塩酸溶液系では 0.5M の塩酸溶液ではウランは全く吸着しないという特性があり、逆に、その条件では平成 20 年度に行ったバッチ試験による吸着特性評価では Mo は十分な吸着を示すと予想されるために設定した条件である。試験は、ムロマック L カラムにピリジン樹脂を 8ml 充填して、樹脂高 10cm としたものをあらかじめ十分な量の 0.5M 塩酸を流してコンディショニングを行い、0.5M の塩酸溶液に調整した Mo を含む模擬高レベル廃液をカラムに 1ml 着点し、0.5M 塩酸で溶離展開を行った。その結果、Mo は溶離液量約 10ml のところでピークを持つクロマトグラムが得られた。Zr はこの条件ではピリジン樹脂にほとんど吸着せずに若干の Zr のテールが重なるが、Mo と分離できる。Mo に混合する恐れがある元素としては、白金族元素(Ru, Rh, Pd)があり、これらはそれら元素の 10%前後がピリジン樹脂に吸着が弱く、カラムから漏れ出し、Mo の溶出位置に重なることを確認した。

また、平成 20 年度は 0.5, 2,6M 硝酸溶液で分離試験を行い、Mo と Zr の分離が困難であったことを確認し、それらの結果は Mo と Zr の分配係数を個別に求めたものに基づいて行ったものであった。本年度は Mo と Zr を混合させた系で用いた分配係数に基づき、4M 硝酸と 13M 硝酸を用いて分離試験を行ってみたが、結果としてより良い分離結果を得ることは出来なかった。続いて、模擬高レベル廃液にピリジン樹脂を漬け込む操作により Mo を回収する方法を考案して、実施した。本法では、模擬高レベル廃液(2M 硝酸溶液)にピリジン樹脂を加えて 24 時間樹脂と溶液を接触させた。この結果では、クロマトグラフィの結果と異なり、Zr と Mo の吸着量が大きく異なっていた。このことは Mo の吸着反応の遅いことが予想される。また、この方法により確認した結果では、吸着において Ru, Pd, Re(Tc 代替物質), Cd も吸着することが確認された。今までに得られた吸着挙動等から、Ru, Pd, Re, Cd はピリジン樹脂に強く吸着し、樹脂を酸で Mo を洗い出すときに樹脂中に留まると考えられるので、この方法で一度吸着させた元素を溶離する過程で Mo を分離できる可能性がある。

2. ウランのピリジン樹脂への吸着挙動

硝酸溶液系および塩酸溶液系でのウランのピリジン樹脂への吸着挙動を把握するための試験を実施した。ウラン溶液は6価の硝酸ウラニルもしくは塩酸ウラニルを濃度を調整した硝酸もしくは塩酸に溶解することにより作成し、その50mlの溶液にピリジン樹脂を4g入れて、1時間撹拌した。樹脂を入れる前の濃度と入れた後の濃度を比較することにより、分配係数を評価している。結果は、硝酸溶液系では、硝酸濃度の増加と共に分配係数は増加するが、濃度の変化に関して鈍感で、前濃度溶液にわたり、5乃至10程度であり、わずかに吸着するというものであった。塩酸溶液系では、濃度の変化に敏感で1Mで分配係数が1つまり、樹脂と溶液の間に1：1で存在する状態であり、以後塩酸濃度と共に急激に増加して6Mで分配係数が100を超える。したがって、塩酸溶液では1Mより十分に薄いところではピリジン樹脂に吸着しないので0.5Mの濃度はウランを吸着させずにMoを吸着させることが出来ると考えられる。この結果を反映させて上記1.の試験を実施している。

3. Mo含有溶液の金属粉末転換および模擬核燃料焼結体作製

機構において、小型マイクロ波加熱装置の改造を行って、調整・性能試験を実施した。その後、溶液からのMo合成手法に関してはMoにZrが混入することを見越して研究を行い、常圧系、マイルドな条件かつ廃棄物量が少ないプロセスを検討し、液性（pH、温度等）をコントロールすることにより溶解しているMo/Zrを酸化物として沈殿させるプロセスの概念を策定した。さらに、Moサーメットの再処理における基礎特性として、Zr含有Moの硝酸溶解試験を実施した。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成22年度は、ウランを含む模擬使用済燃料を用いたモリブデンの回収試験を行うと共に実際に原子炉で照射した燃料の溶解溶液を用いてモリブデンの回収試験を実施する予定である。燃料作製においては、マイクロ波加熱により得られた転換粉末を用いてサーメット燃料の製造実験を行い、製造特性を評価する予定である。

【研究成果の公表】

＜国内会議＞

1) 鈴木達也、本多雅典、浅沼徳子、逢坂正彦「ピリジン樹脂を用いた使用済燃料からのモリブデン回収　－　モリブデンとジルコニウムの分配係数　－」2009年日本原子力学会春の年会 E22 p.535

2.1.10 先行基礎工学研究に関する平成21年度研究概要報告書

研究協力テーマ	使用済燃料中のモリブデンを母材として用いた高性能燃料の創製		
研究協力課題	抽出剤内包マイクロカプセルによるモリブデンの選択的分離・回収法の開発 (Development of selective separation and recovery method for molybdenum by microcapsules enclosing extractant)		
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, 工学研究科 博士前期課程1年　池田　芳, 博士後期課程2年　呉　艶 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	大洗研究開発センター　燃料材料試験部　燃料試験課 研究副主幹　逢坂正彦, 研究副主幹　小山真一		
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　本館化学実験室, 産業技術総合研究所東北センター 大洗研究開発センターAGF　実験室, 化学室, コールド実験室		
通算研究期間	平成20年6月　～ 平成23年3月	当該年度研究期間	平成21年6月　～ 平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員　□研究生の受入れ　■共同研究		

【研究目的】

使用済燃料中に核分裂生成物として多量に存在するモリブデン（Mo）は、非放射性であるにも係わらずガラス固化体への高レベル廃棄物の含有における量的制限因子であることから、これを分離・回収して有効利用できれば、コスト、資源、環境負荷の観点からメリットは大きい。この有効利用の一方策として、Mo を添加剤または母材として使用し、マイナーアクチニドを含有する高性能かつ高速炉サイクルへの適合性を有する新型燃料の概念が研究されている。しかしながら、このような有効利用の基本となる使用済燃料からの Mo の分離・回収技術は存在しない。本研究においては、使用済燃料から Mo を選択的に分離・回収し、Mo サーメット燃料等の高性能核燃料のための母材・添加剤として利用する技術を確立することを目指して、Mo の抽出剤内包マイクロカプセルによる基礎分離特性評価および分離した Mo の金属粉末転換・Mo 添加核燃料作製における基礎特性を評価することを目的とする。

【研究内容（概要）】

東北大学では、モリブデンに高選択性を有する抽出剤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なうとともに、Mo 吸着特性を解明する。二価、三価金属イオンおよびオキソニウムイオン間での分離特性（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、模擬および実高レベル廃液（燃焼度約 140 GWd/t の高速炉照射 MOX 燃料から調製したもの）からの Mo の連続的で高度な分離・回収法を開発する。

機構においては、分離した Mo の金属粉末転換および転換粉末を用いた核燃料（Mo サーメット燃料）作製実験を行い、回収 Mo 粉末の基礎的性状と粉末冶金への適合性を評価する。

本研究は、現在課題とされている使用済燃料中の Mo の選択的分離・高純度回収および有効利用の基礎的な実証となり、その成果は、回収 Mo の核燃料への利用のみならず、一般的な有効利用の展開に大きく寄与すると考えられる。特に本研究により先進湿式分離技術の高度化を図ることができる。

【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）

原子力機構：マイクロ波加熱装置、光学顕微鏡、X線回折装置、走査型電子顕微鏡（ＳＥＭ）

【進捗状況（当該年度までの概要）】

[平成２０年度]

東北大学においては、キレート抽出剤である 5,8-Dietyl-7-hydroxy-6-dodecanone Oxime(LIX63)を、アルギン酸ゲルポリマーで内包したハイブリッドマイクロカプセル(LIX63-MC)を調製し、バッチ法とカラム法によりMoのMCへの吸着特性を評価した。LIX63-MCのキャラクタリゼーションは、走査型電子顕微鏡、フーリエ変換赤外分光光度計、電子線プローブマイクロアナライザーにて実施した。調製したLIX63-MCは、SEM観察により、粒径が約１ｍｍの楕円状カプセルであり、アルギネートゲルポリマー内部にLIX63油滴が均一に分散固定化されていることが分かった。LIX63-MCにおけるMo吸着率の硝酸濃度依存性は、硝酸濃度が0.001～3Mの領域で高い吸着性が認められた。Langmuir型吸着等温式により求めた飽和吸着量は0.27 mmol/gであった。カラム実験で得られた破過曲線から、カラム温度を25℃とし、流量を0.18～0.30 cm^3/minまで変化させたところ、５％破過容量は0.18 cm^3/minの場合で最大となり、0.11 mmol/gであった。LIX63-MCは、高い硝酸濃度(3M)共存下においてもMoに対して高い分配特性を示すことから、高レベル放射性廃液(硝酸濃度2.5 M)からのMoの選択的分離に有効と考えられる。

機構においては、分離したMoの金属粉末転換に係る基礎実験を行うため、転換法としてマイクロ波加熱法を選択し、必要な装置の設計・製作を行なった。種々の条件における実験を行うため、既存のマイクロ波加熱装置（電子レンジ）を改造した小型のマイクロ波加熱装置を設計・製作した。装置には電流制御機構を付加し、転換における諸条件を制御できる機能を持たせた。

[平成21年度]

東北大においては，マトリックスをCaアルギネートからアルギン酸（水素型）マトリックスに変換した場合の分配特性の評価，マイクロカプセル（MC）内部でのMoの選択的吸着分布の確認および他のオキソ酸イオンとの分配特性・選択性の比較を実施した。水素型に変換した場合，1 M硝酸共存下までK_dは10^4 cm^3/g以上の高い値を保持した。またMC内部へのMoの均一な吸着分布が確認された。他のオキソ酸イオンとの比較は，1M硝酸共存下でのKdの序列として，Mo(VI) >> W(VI) > Cr(VI) > Re(VII) >> Se(IV)となり，Moの高い選択性が実証された。カラムに吸着したMoは5 M HNO_3により99%以上の効率的な溶離が達成できた。常陽の使用済み燃料溶解液を用いた実廃液からの金属イオンの吸着特性について検討し，Moは98.9%の高い吸着率を示した。他のランタノイド，Ag，SnおよびZrの吸着も確認されたが，これらはCaアルギネートへの吸着と考えられる。

機構においては、炉心性能、製造特性等、諸特性の面で有利な低Mo含有（～10%）サーメットについて、模擬粉末を用いた作製試験・キャラクタリゼーションを行った。その結果、焼結ペレットの相状態、微細構造について通常のMo含有サーメットとの違いは見られず、低Mo含有サーメットの製造において特段の課題が無いことを確認した。また溶液からのMo合成手法に関して、常圧系、マイルドな条件かつ廃棄物量が少ないプロセスを検討し、液性（pH、温度等）をコントロールすることにより溶解しているMoを酸化物として沈殿させるプロセスの概念を策定した。さらに、Moサーメットの再処理における基礎特性として模擬サーメットの硝酸溶解試験を実施した。

【研究成果（当該年度）】

東北大学では以下の研究成果を得た。LIX63 を NaALG 溶液と混練し、硝酸を用いてゲル化させた LIX63HALG と、硝酸カルシウムを用いてゲル化させた後、硝酸溶液中で振とうし、カルシウムを取り除いた LIX63Ca-HALG の 2 種類を調製した。まず SEM と FT-IR から MC 内に LIX63 が内包されていることを確認した。次に MC が Mo(VI)を吸着する速度を評価するために、Mo(VI)の吸着率の時間変化を調べた。振とう開始から 1 h で 99 %以上の Mo(VI)を吸着した。分配係数の硝酸濃度依存性を調べたところ、どちらの MC も硝酸濃度 1 M まで 10^4 cm^3 g^{-1} の高い値を示した。吸着等温線を作成し、最小二乗法から求めた Langmuir プロットの直線の傾きから算出した飽和吸着量 Q_{max} を評価したところ、LIX63HALG においては 0.54 mmol g^{-1}、LIX63Ca-HALG においては 0.73 mmol g^{-1} を示した。Mo(VI)以外のオキソ酸イオンの MC に対する分配特性を評価するため、5 種類のオキソ酸イオンを混合した混合イオン溶液を用いてバッチ実験を行った。混合イオン中では Mo(VI)が最も分配係数が高く、MC が Mo(VI)に対して選択性を持つことがわかる（図 1）。

LIX63Ca-HALG と模擬高レベル放射性廃液を用いたバッチ実験を行った。ICP-AES による溶液濃度測定の結果、計算値では Mo(VI)吸着率は 81.8%であった。また、Zr(IV)の吸着率も 74.2%と高い値を示した。MC の表面、断面、沈殿物の EDS スペクトルを測定した結果、いずれのスペクトルにもジルコニウムのピークが見られた。アルギネート相への Zr(IV)の吸着と沈殿が確認された。また、Ru(III)も同様にアルギネート相に吸着していると考えられる。

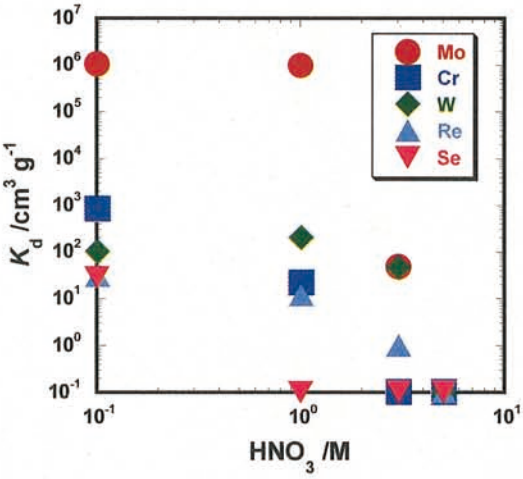


図 1　各種オキソアニオンの分配の比較

バッチ実験の結果を基にして、カラム実験を行った。LIX63HALG をカラムに 5.0×10^{-1} g 充填し、[Mo(VI)]: 200 M の 3.0 M 硝酸を通液して実験を行ったが、流量を変化させた際 5 %破過容量は、流量 0.18 cm^3/min において 0.11 mmol/g、流量 0.22 cm^3/min において 0.10 mmol/g、そして流量 0.3 cm^3/min において 0.08 mmol/g となった。LIX63Ca-HALG をカラムに 5.0×10^{-1} g 充填し、[Mo(VI)]: 200 M の 1.0 M 硝酸を流量 0.20 cm^3 min^{-1} で通液して実験を行った結果、5%破過点が 41 cm^3、5%破過容量が 0.20 mmol g^{-1} となったが、360 cm^3 通液したものの全交換にはいたらなかった。カラム上部に少量の Mo(VI)を吸着させ、5.0 M 硝酸で溶離したところ、どちらの MC も吸着した Mo(VI)を 99%溶離することができた。

機構においては、炉心性能、製造特性等、諸特性の面で有利な低 Mo 含有（～10%）サーメットについて、模擬粉末を用いた作製試験・キャラクタリゼーションを行った。その結果、焼結ペレットの相状態、微細構造について通常の Mo 含有サーメットとの違いは見られず、低 Mo 含有サーメットの製造において特段の課題が無いことを確認した。また溶液からの Mo 合成手法に関して、常圧系、マイルドな条件かつ廃棄物量が少ないプロセスを検討し、液性（pH、温度等）をコントロールすることにより溶解している Mo を酸化物として沈殿させるプロセスの概念を策定した。さらに、Mo サーメットの再処理における基礎特性として模擬サーメットの硝酸溶解試験を実施した。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成22年度は、東北大学では，マイクロカプセルを充填したカラムによりMoの吸着特性および溶離特性を調べるとともに、二価、三価金属イオン（Ni，Fe 等）およびオキソ金属イオン（Tc,Cr,W,Re 等）に対するクロマトグラフィー分離を実施する。多成分系の模擬廃液および実廃液を用いて、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。機構においては硝酸系溶液からのMo合成試験を行い、基本プロセスを確立する。本プロセスをMCにより分離したMo分離溶液に適用して金属Moを得る。さらに、得られた金属Moを用いてMoサーメットの製造試験を実施し、製造性を評価するとともに、焼結サーメットペレットのキャラクタリゼーションを行う。

【研究成果の公表】

＜論文＞

1）三村　均，原子力バックエンドにおけるイオン交換法を主体とした核種の高度分離・回収法の開発，日本イオン交換学会誌，21，(2010)（学会賞受賞論文）.査読有

＜国内会議＞

1）三村　均，原子力バックエンドにおけるイオン交換法を主体とした核種の高度分離・回収法の開発，第25回日本イオン交換研究発表会，秋田大学（2009）（学会賞受賞講演）

＜国際会議＞

1）Kaoru Ikeda, Yan Wu, Hitoshi Mimura, Yuichi Niibori, Yoshito Wakui, Masahiko Osaka, Shinichi Koyama and Takashi Ohnishi, Selective separation and recovery of Mo(VI) by hybrid microcapsules containing organic extractants, WM2010 Conference, March 7-11, 2010 Phoenix, AZ.査読有

2.1.11　先行基礎工学研究に関する平成21年度研究概要報告書

研究協力テーマ	高燃焼度MA含有MOX燃料におけるFP酸化物相の物性に関する基礎研究		
研究協力課題	アクチニド元素含有酸化物析出相の挙動と物性 (Physical properties of actinide-containing fission product oxides)		
研究者所属、氏名			
大学側	大阪大学　大学院工学研究科 教授　山中伸介，准教授　黒崎　健，助教　牟田浩明		
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 副主任研究員　田中康介		
研究実施場所	大阪大学　大学院工学研究科　環境・エネルギー工学専攻（A1棟） 大洗研究開発センター　燃料材料試験部　燃料試験課（照射燃料試験施設）		
通算研究期間（予定）	平成20年5月　～　平成23年3月	当該年度研究期間	平成21年7月　～　平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員　□研究生の受入れ　■共同研究		

【研究目的】

高燃焼度MOX燃料ではCs-Mo-O，Cs-(U,Pu)-O等のFP酸化物相の生成が知られている。マイナーアクチニド（MA）含有MOX燃料ではAm含有に伴う酸素ポテンシャルの増加に起因してFP酸化物相の化学形が変化し，ギャップ熱伝達，FCMI，FCCI等の挙動に影響を及ぼす可能性が高い。しかし，上記照射挙動評価に必要な基礎物性データは圧倒的に不足しているため，高速炉サイクルの確立に向けたMA含有MOX燃料の開発にはFP酸化物相の物性データの拡充が急務となっている。

本研究は，実証照射試験の困難な高燃焼度領域のMA含有MOX燃料において生成・析出するFP酸化物相を予測評価し，その存在形態と物性を実験と理論の両面から明らかにすることで，実用化燃料の健全性評価に必要不可欠である基礎物性データの拡充を目的とする。

【研究内容（概要）】

高燃焼度MA含有MOX燃料において想定されるFP酸化物相を調製し、各種物性を測定することで、熱的・機械的特性を評価する。

(1) PuやAmを含有しない酸化物析出相の作製と特性評価（大阪大学）

Cs-(U, Mo)-O系複合酸化物、Ba-(U, Mo, Zr)-O系複合酸化物を調整し、熱伝導率、熱膨張率、比熱、弾性定数、硬度等を測定する。得られた物性データをとりまとめ、温度や組成をパラメータとする物性評価式の構築を試みる。

(2) PuやAmを含有する酸化物析出相の作製と特性評価（原子力機構）

Cs-(U, Pu, Am)-O系複合酸化物、Ba-(U, Pu, Am)-O系複合酸化物の相状態を評価する。先行研究が皆無の系なので、まずは様々な組成で試料を調合し、得られた生成物の相状態をX線回折等により分析する。また、熱伝導率等の物性データ取得も試みる。

【使用主要施設】

・不活性雰囲気グローブボックスおよびバルク試料作製装置（大阪大学）
・MA含有物質取扱用グローブボックスおよびバルク試料作製装置（原子力機構）
・X線回折装置，電子顕微鏡等相状態評価装置（大阪大学、原子力機構）
・熱伝導測定，弾性率等物性測定装置（大阪大学、原子力機構）

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成20年度は、大阪大学、原子力機構の双方において、アクチニド元素非含有FP酸化物相（セシウムモリブデート等）及びアクチニド元素含有FP酸化物相（セシウムウラネート等）に関連する従来の研究成果、文献等を調査・整理し、試料調製及び物性測定方法の検討を行った。この検討結果を踏まえて実験器具等の整備を進めるとともに、大阪大学、原子力機構両機関の設備機器の特徴を活かした試料調製技術をそれぞれ確立した。

具体的には、

①大阪大学では、アクチニド元素非含有酸化物相の作製と特性評価として、セシウムモリブデート（Cs_2MoO_4）を調製し、熱伝導率を測定した。また、アクチニド元素含有酸化物相としては、セシウムウラネート（Cs_2UO_4）を合成し、熱伝導率を評価した。

②原子力機構では、PuやAmを含有するFP酸化物相の試料調製に先立ち、PuやAmを取り扱えるグローブボックスにおいて、大阪大学での実績を参照した粉末冶金法に基づく試料調製技術によりセシウムウラネート（Cs_2UO_4）を合成した。また、セシウムプルトネートの合成を試みた。

③また、熱力学計算ソフトFactSageを導入し、高燃焼度領域で生成・析出するFP酸化物相の平衡計算に必要なツールを整備した。

平成21年度は、バリウム系及びストロンチウム系のアクチニド元素含有酸化物相に着目し、試料の合成を実施した。

①大阪大学では、バリウム系アクチニド元素含有酸化物相としてバリウムウラネート（$BaUO_4$）の調製試験を原子力機構の研究者と共同で実施し、単相試料の合成と焼結に成功した。また、この条件をもとに、ストロンチウムウラネート（$SrUO_4$など）の調製を進めた。

②原子力機構では、炭酸バリウム（$BaCO_3$）と二酸化プルトニウム（PuO_2）を出発物質として、バリウムプルトネート（$BaPuO_3$）の単相試料の合成・焼結に成功した。また、ストロンチウム系の試料（$SrPuO_3$）も合成・焼結を開始した。

③また、計算機シミュレーションとして、ORIGEN2コードを用いた燃焼度250GWd/tに至るまでのFP存在量の計算、平衡計算のための熱力学データの整備、化学熱力学法を用いた燃焼に伴う酸素ポテンシャルの変化の計算を実施した。

【研究成果（当該年度）】

①大阪大学では、バリウム系アクチニド元素含有酸化物相としてバリウムウラネート（$BaUO_4$）の調製試験を原子力機構の研究者と共同で実施した。

UO_2の酸化処理により得たU_3O_8粉末と炭酸バリウム（$BaCO_3$）粉末を出発物質として、以下の反応式に従い$BaUO_4$の調製に成功した。

$$U_3O_8 + 3BaCO_3 + 0.5O_2 \rightarrow 3BaUO_4 + 3CO_2$$

合成条件は、1273 K×10時間（空気中）であり、焼結条件は、1673 K×48時間である。黒色のU_3O_8粉末と白色の$BaCO_3$から合成した$BaUO_4$は鮮やかなオレンジ色を示した。なお、合成後及び焼結後試料のXRD測定結果から単相試料であることを確認しており、格子定数は従来の報告結果と同等である。また、密度は85%TDを達成している。

同様に、ストロンチウム系アクチニド元素含有酸化物としてストロンチウムウラネート（$SrUO_4$）の調製を実施した。U_3O_8粉末と炭酸ストロンチウム（$SrCO_3$）粉末を出発物質として、以下の反応式に従い、$SrUO_4$を調製した。

$$U_3O_8 + 3SrCO_3 + 0.5O_2 \rightarrow 3SrUO_4 + 3CO_2$$

合成、焼結条件は、$BaUO_4$と同等条件とした。寸法重量測定及びXRD測定結果から、約80%TDの単相試料であることを確認している。

②原子力機構では、炭酸バリウム（$BaCO_3$）と二酸化プルトニウム（PuO_2）を出発物質として、以下の反応式によりバリウムプルトネート（$BaPuO_3$）の単相試料の合成・焼結に成功した。

$$PuO_2 + BaCO_3 \rightarrow BaPuO_3 + CO_2$$

合成条件、焼結条件とも、1600 K×5 時間（乾燥空気フロー中）である。85%TD の単相試料であることを確認している。

また、ストロンチウム系の試料（SrPuO3）も合成・焼結にも着手した。

③計算機シミュレーションとして、燃焼計算による FP 生成量、化学熱力学的手法を用いた燃焼に伴う酸素ポテンシャル変化及びこれらを用いた予備的な化学平衡計算を実施した。

まず、Am を 0, 1, 3, 5%含有する MOX 燃料（Pu 富化度：20%）の 4 種類を初期組成とした。各燃料組成において ORIGEN2 による燃焼計算を実施し、250GWd/t に至るまでの燃料組成の変化を求めた。この燃焼計算の結果得られた組成を元に、化学熱力学法を用いた Am 含有酸化物燃料の酸素ポテンシャル計算ツールを用いて燃焼に伴う酸素ポテンシャルの変化を求めた。この際、初期 O/M 比と温度をパラメータとした計算を実施した。また、Mo によるバッファー効果を考慮した。さらに、化学平衡計算により、燃焼度に応じた FP の化学形を予測評価した。

その結果、初期 O/M 比が高いほど酸素ポテンシャルが高い照射初期の傾向は燃焼の進行においても変わらず、250GWd/t に至るまで維持されることがわかった（図 1）。また、各組成とも燃焼度の進展に伴い酸素ポテンシャルは増加し、Am 濃度の増加とともに酸素ポテンシャルは増加するが、その差は燃焼とともに小さくなる傾向にあることが見出された（図 2）。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 22 年度は、バリウム及びストロンチウム系化合物について研究を継続して実施する。具体的には、これまでに物性データ等の報告例の少ない $BaUO_4$ と $SrUO_4$ の各種熱物性、機械的特性評価の研究を実施する。また、U 以外のアクチニド元素を含む系として、$Ba(Pu,Am)O_3$ 等の調製を試みる。Pu や Am を含む系については、原子力機構において実験を実施し、試料調製とともに、弾性率や熱伝導率といった燃料の照射挙動評価に重要な物性データの取得にチャレンジする。一方で、これらの系の炉内での存在状態を把握するために、燃焼計算や化学平衡計算を実施するとともに、継続して燃焼に伴う FP 生成量や酸素ポテンシャルの変化、燃料の温度分布等を計算により評価していく。最終年となる平成 22 年度は、3 ヵ年の成果をまとめ、実用化燃料の健全性評価に必要不可欠である基礎物性データの拡充を図る予定である。

【研究成果の公表】

＜論文＞

1）「アルカリ金属またはアルカリ土類金属とモリブデンからなる複合酸化物の熱伝導率解析」
日本原子力学会和文論文誌　Vol.9, No.1, pp21-28, 2010

＜国内会議＞

1）「Cs-M-O(M=Mo or U)三元系化合物の熱伝導率評価」
日本原子力学会　2009 年　秋の大会　O54

2）「高燃焼度 MA 含有 MOX 燃料における核分裂生成物化学形の予測評価」
日本原子力学会　2010 年　春の年会　L34

＜国際会議＞

1）「Thermal conductivities of Cs-M-O (M=Mo or U) ternary compounds」
2009 MRS fall meeting, Boston, Nov.30-Dec.4, 2009

【別添図】

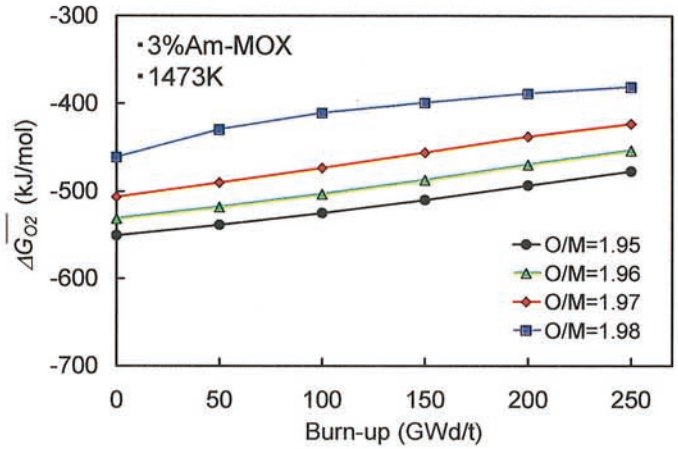


図 1　酸素ポテンシャル変化の初期 O/M 比依存性
（出典：日本原子力学会　2010 年　春の年会　L34）

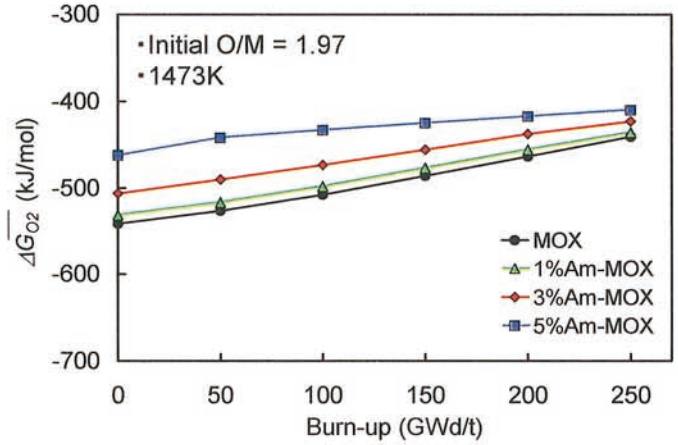


図 2　酸素ポテンシャル変化の Am 濃度依存性
（出典：日本原子力学会　2010 年　春の年会　L34）

2.1.12　先行基礎工学研究に関する平成21年度研究概要報告書

研究協力テーマ	Am の MOX 燃料中における拡散挙動に関する研究		
研究協力課題	分子動力学法を用いた MOX 燃料中における Am 拡散挙動の解明 (Study on Am diffusion in MOX fuels using a molecular dynamics simulation)		
研究者所属、氏名			
大　学　側	九州大学　大学院　エネルギー量子工学部門 有馬　立身		
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 佐藤　勇		
研究実施場所	九州大学　伊都キャンパス　ウェスト2号館 大洗研究開発センター　照射燃料試験施設		
通算研究期間	平成20年4月　～　平成23年3月	当該年度研究期間	平成21年5月　～　平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員　□研究生の受入れ　■共同研究		

【研究目的】

MOX 燃料中での Am の移動挙動を伴う現象（拡散、蒸発、再分布など）の理解は、より安全な燃料設計・管理において必要不可欠である。本研究では、実験的及び計算科学的手法を用いて、MOX 及び UO_2 燃料中における Am、Pu の拡散挙動を、燃料組成、温度、酸素分圧等をパラメータとし、解析・評価することを目的とする。合わせて、燃料挙動評価モデル・コードへの反映の検討を行う。

【研究内容（概要）】

MOX 燃料中に存在する Am が拡散及び蒸発するメカニズムは、これまで十分に解明されていない。Am 酸化物は UO_2 や PuO_2 に比べ、融点は低く、還元されやすいといった特徴を有することから、その拡散挙動は、燃料設計における燃料融点に大きく影響する因子になるとともに、その解明は照射挙動解析の際に重要なデータを提供する。また、将来の燃料サイクルを確立する上で、高速炉で使用されるマイナーアクチニド含有燃料の開発のためには、Am をはじめとする Np、Cm 等の拡散挙動を解析することは、極めて重要であると考える。

そこで本研究では、Am の拡散挙動を燃料組成、温度、酸素分圧等をパラメータとして、機構側にて、燃料拡散対を使った加熱試験を実施し、EPMA を用いて Am 及び Pu 等の濃度分布から、それらの拡散係数を解析・評価する。大学側においては、分子動力学シミュレーション法を用いて、それらの拡散係数を解析・評価する。また模擬燃料物質を使った拡散加熱試験も実施する。試験データ及び計算結果をもとに、Am の拡散メカニズムを考察すると共に、燃料評価モデル・コードへの反映の検討を行う。

【使用主要施設】

原子力機構：大洗研究開発センター　照射燃料試験施設　実験室、操作室
九州大学：コールド実験施設、分子動力学シミュレーションコード MXDORTO

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成20年度は、大学側にて、MD法を用いてUO_2、PuO_2及びAmO_2のアクチニド及び酸素イオンの粒内拡散挙動を評価した。計算精度の検証の一部として、UO_2の原子間ポテンシャル関数の拡散係数への影響を調査した。また、粒界拡散を評価するための計算環境を整備し、UO_2に関する粒界拡散の評価を試みた。機構側にて、UO_2とAm-MOXからなる拡散対を用い、酸素分圧パラメータとした拡散試験を実施した。

平成21年度は、大学側にて、UO_2-PuO_2、UO_2-AmO_2、UO_2-PuO_2-AmO_2固溶体について、O/M=1.9、2.0に対する粒内拡散挙動を評価した。粒界拡散について、UO_2及びAmO_2について、Σ41、Σ13、Σ5、Σ29粒界構造に対する拡散係数を評価した。また、ランタニド酸化物を模擬試料とする拡散試験の準備を行った。機構側にて、平成20年度に実施した加熱試験後の試料について、光学顕微鏡を用いた粒界状態の観察を行った。

【研究成果（当該年度）】

＜大学側＞

昨年度得られたUO_2に対する拡散の知見をもとに、UO_2-PuO_2、UO_2-AmO_2、UO_2-PuO_2-AmO_2固溶体について拡散シミュレーションを実施した。また、粒界についてもUO_2及びAmO_2のΣ41（回転角=12.7°）、Σ13（22.6°）、Σ5（36.9°）、Σ29（46.4°）構造に対して拡散挙動の評価を行った。

（1）UO_2、PuO_2及びAmO_2については、酸素及びアクチニドイオンの拡散挙動について大きな違いは見られなかった。酸素イオンでは温度上昇に伴なった空孔拡散→格子拡散→超イオン拡散への拡散挙動の変化、アクチニドイオンでは空孔拡散のみ観察された。

（2）O/M=2.0の場合、固溶体であってもアクチニドイオン（全て4価）の拡散係数に大きな違いは見られなかった。一方O/M=1.9の場合、UO_2に対してPu(III)またはAm(III)を20mol%添加したところ、O/M=2.0の場合よりも、U(IV)及びPu(III)、Am(III)の拡散係数は増加した。

（3）O/M=2.0且つU(V)とAm(III)を20mol%添加した固溶体については、O/M=2.0であるにも関わらず、U(IV)及びAm(III)の拡散係数は増加した。

（4）O/M=1.9及びU(V)とAm(III)が同時に添加された固溶体のU(IV)とAm(III)イオンの拡散係数が増加したのは、3価のイオンを添加したことによるO-O間の拡がり、5価のイオンを添加したことによる局所的な酸素副格子の歪みが原因と考えた。

（5）粒界拡散係数は、粒界構造を特徴付ける回転角の拡がりと共に、酸素及びアクチニドイオンともおおよそ増加した。また、拡散の活性化エネルギーは、回転角の増加と共に小さくなった。

（6）回転角の小さなΣ41、Σ13粒界では、アクチニドイオンの拡散は粒界面での二次元的なものではなく、刃状転位の転位線に沿った拡散、つまり一次元的な拡散であることが明らかとなった。

（7）Σ5構造に対する拡散係数には、UO_2とAmO_2で矛盾する結果が得られた。前者では拡散が促進され、後者ではその逆が起こった。従って、この構造に関しては、初期緩和を始めとする詳細な計算方法の検討・見直しが必要であると考えている。

（8）ランタニド酸化物：CeO_2、CeO_2-Gd_2O_3、CeO2-Lu_2O_3の焼結ペレットを作製した。

＜機構側＞

昨年度実施した加熱試験及びEPMA観察で使用した拡散対試料の粒界状態を観察するため、イオンエッチングし、光学顕微鏡で観察した。その結果、AmやPuの拡散は粒界で著しく生じており、本試験では粒界拡散が支配的な拡散機構であることがわかった。また、拡散の酸素分圧依存性で酸素分圧が低いほうが著しい拡散を示していたが、これは両試験で用いた試料表面近くの粒径分布の差に起因する可能性があることを示した。

広い範囲での酸素分圧依存性を評価するために、昨年度より低い酸素分圧下の試験を実施する予定としていたが、前述のように、粒界拡散の影響のためここで採用している実験方法では、酸素分圧の影響による微妙な差異を示すことができない見通しを得た。したがって、本年度は酸素分圧をパラメータにした試験を断念した。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 22 年度は、大学側では、(1) 拡散係数の粒界構造依存性の系統的評価: (i)スーパーセルの大きさ依存性、(ii)組成依存性（固溶体）、(iii)O/M 比依存性、 (2) CeO_2 に Gd 又は Lu を添加したものを Am-MOX の模擬燃料とした金属イオンの拡散試験、以上の項目を実施する予定である。機構側では、(3) 拡散係数の温度依存性を評価するために、1600℃以上まで加熱することができる装置を用いて、より高温での UO_2 中の Am 及び Pu の拡散試験を実施し、拡散係数を評価する予定である。

【研究成果の公表】

＜論文＞（各論文に対し査読の有無を明記する）

1) "Molecular Dynamics Analysis of Diffusion of uranium and oxygen ions in uranium dioxide", **Tatsumi Arima**, Keita Yoshida, Kazuya Idemitsu, Yaohiro Inagaki, **Isamu Sato**, IOP Conference Series: Materials Science and Engineering (to be published). (査読有)
2) "Diffusion Behaviors of Plutonium and Americium in Polycrystalline Urania", **Isamu Sato**, Kosuke Tanaka and **Tatsumi Arima**, IOP Conference Series: Materials Science and Engineering (to be published). (査読有)
3) "Evaluation of Melting Point of UO_2 by Molecular Dynamics Simulation", **Tatsumi Arima**, Kazuya Idemitsu, Yaohiro Inagaki, Yuichi Tsujita, Motoyasu Kinoshita, Eugene Yakub, J. Nucl. Mater. 389 (2009) 149. (査読有)

＜国内会議＞

1) 「分子動力学法によるアクチニド酸化物の拡散挙動解析」, 九大院工　吉田圭太, 仁科匡弘, **有馬立身**, 稲垣八穂広, 出光一哉, 日本原子力学会九州支部　第 27 回研究発表講演会.
2) 「分子動力学法を用いた UO_2 中における U 及び O イオンの拡散挙動解析」, 九大院工 **有馬立身**, 吉田圭太, 出光一哉, 稲垣八穂広, 原子力機構　**佐藤勇**, 日本原子力学会, 九州支部　第 27 回研究発表講演会.
3) 「酸化物燃料中における Pu 及び Am の拡散挙動」, 原子力機構　**佐藤勇**, 田中康介, 田中健哉, 九大院工　**有馬立身**, 出光一哉、日本原子力学会「2008 年秋の大会」.
4) 「UO_2 中における U 及び O イオンの拡散挙動: 分子動力学計算」, 九大院工　**有馬立身**, 出光一哉, 稲垣八穂広, 原子力機構　**佐藤勇**, 日本原子力学会　「2009 年春の大会」.
5) 「MOX 燃料中におけるアクチニドの拡散挙動に関する研究(1)　MD 法を用いたアクチニド及び酸素イオンの粒内拡散挙動評価」, 九大院工　吉田圭太, **有馬立身**, 稲垣八穂広, 出光一哉, 原子力機構　**佐藤勇**, 日本原子力学会　「2009 年春の大会」.
6) 「MOX 燃料中におけるアクチニドの拡散挙動に関する研究(2)　酸化物燃料中における Pu 及び Am の拡散挙動 II」, 原子力機構　**佐藤勇**, 田中康介, 田中健哉, 九大院工　**有馬立身**, 出光一哉, 日本原子力学会　「2009 年秋の大会」.
7) 「燃料・材料の課題に対する計算科学」　九大院工　**有馬立身**　「2010 年春の大会」「先進的原子力システムにおける燃料材料」研究専門委員会報告（燃料部会・材料部会共催）」
8) 「MD 法を用いたアクチニド酸化物のイオン拡散挙動評価」, 九大院工　仁科匡弘, 吉田圭太, **有馬立身**, 稲垣八穂広, 出光一哉, 原子力機構　**佐藤勇**, 日本原子力学会　「2010 年春の大会」.

<国際会議>

1) "Evaluation of melting point of UO_2 by molecular dynamics simulation", **T. Arima**, K. Idemitsu, Y. Inagaki, Y. Tsujita, M. Kinoshita, E. Yakub, 12th Symposium on Thermochemistry and Thermophysics of Nuclear Materials, August 30 – September 3, 2008, Portschach, Austria.
2) "Molecular Dynamics Analysis of Diffusion of uranium and oxygen ions in uranium dioxide", **Tatsumi Arima**, Keita Yoshida, Kazuya Idemitsu, Yaohiro Inagaki, **Isamu Sato**, Actinides 2009, July 12-15, 2009, San Francisco, USA.
3) "Diffusion Behaviors of Plutonium and Americium in Polycrystalline Urania", **Isamu Sato**, Kosuke Tanaka and **Tatsumi Arima**, Actinides 2009, July 12-15, 2009, San Francisco, USA.
4) "Diffusion Behaviors of Plutonium and Americium in Polycrystalline Urania", K. Yoshida, **T. Arima**, Y. Inagaki, K. Idemitsu, **I. Sato**, International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles, December 7 - 11, 2009, Kyoto, Japan.

<JAEA 研究開発報告書>

1) 「燃料における Pu 及び Am の拡散挙動」, **佐藤　勇**, 田中　康介, 田中　健哉, JAEA-Research 2008-061.

2.1.13 先行基礎工学研究に関する平成21年度研究概要報告書

研究協力テーマ	長寿命核分裂生成物（LLFP）の効率的核変換に関する基礎的研究		
研究協力課題	長寿命核分裂生成物（LLFP）の核変換に関する基礎的研究 (Basic Study on Transmutation of Long-life Fission Products(LLFP))		
研究者所属、氏名			
大　学　側	東北大学　大学院工学研究科　教授　若林利男		
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　舘　義昭		
研究実施場所	東北大学大学院　工学研究科 大洗研究開発センター　照射材料試験施設		
通算研究期間	平成20年6月　～ 平成23年3月	当該年度研究期間	平成21年7月　～ 平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員　□研究生の受入れ　■共同研究		

【研究目的】

高レベル廃棄物の地層処分における環境負荷の軽減と安全性の向上のため、長期間の放射能毒性及び放射性被曝リスクの高いTc-99やI-129の長寿命核分裂生成物（LLFP）を高速炉によって効率的に核変換する技術を確立するため、核変換率の高い装荷要素形態を探求する。また、核変換要素の設計検討に必要な工学的データの整備を行う。

【研究内容（概要）】

長寿命核分裂生成物（LLFP：Tc-99, I-129等）を高速炉により効率的に核変換するため、従来の研究よりも変換効率の高い核変換要素の開発を行う。高効率の核変換要素の開発においては核特性、炉内安全性について設計検討するとともに、基礎的特性、製造性について試験評価し、工学的成立性の高い高性能のLLFP核変換要素を探求する。そのため、以下の研究を実施する。

(1)核特性・安全性評価に基づく高効率LLFP核変換要素の検討・設計

核変換要素としてLLFPと減速材の混合複合体を想定し、計算技術を用いて構成成分の混合比率や被覆管内への装荷形態に関するパラメータサーベイを行い、核変換効率と装荷形態因子の相関を明らかにする。この結果より、高核変換率の装荷形態を選定し、炉内装荷時の安全性について評価する。

(2)高核変換要素の製造性評価・物性測定

(1)で設計検討したLLFP核変換要素のうち、特に開発課題の多いI-129に対して、安定同位元素を用いた製造法の調査、試作を通じた製造性の評価、製造条件の最適化を行う。また、製造性に優れるLLFP核変換要素について、熱的特性や硬度など基礎的物性を測定する。これらの物性値は必要に応じて(1)の安全性評価に反映する。

【使用主要施設】

東北大学：核特性・安全性評価に基づく高効率 LLFP 核変換要素の検討・設計
計算コード：3 次元連続モンテカルロコード MVP 及び MVP-burn
核データライブラリー：JENDL-3.3

原子力機構：高核変換要素の製造性評価・物性測定
プレス機　：（最大プレス能力）20kN
マッフル炉　：（消費電力）1.2kW,（最高温度）1100℃
アクリル製グローブボックス　：　不活性ガス置換　570φ×645H mm

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 20 年度は、核特性・安全性評価に基づく高効率 LLFP 核変換要素の検討・設計においては、高速炉炉心に新しい LLFP 要素形態（均質型）を装荷した場合について、対象 LLFP（Tc-99, I-129）、対象 LLFP の材質（金属、化合物等）、装荷形態の構成（本数、混合割合）等をパラメータに核変換特性解析を実施した。高速炉は、電気出力６００MW の 2 領域炉心で、LLFP 集合体は径ブランケットの第 1 層に 60 体装荷した。核変換特性の解析は、炉心の構造を正確に模擬した 3 次元連続エネルギーモンテカルロコード MVP を用いた。核データライブラリーは、JENDL-3.3 を用いた。集合体内の LLFP ピン本数を 127 とした場合、LLFP と減速材（ZrH）の混合比を、0.1/0.9、0.05/0.95、0.03/0.97、0.02/0.98 と変化させることによって、核変換率（%/年）は 6.2%、8.3%、10.2%、11.8%と増加することがわかった。これは、Tc-99 の中性子吸収による自己遮蔽効果が低減したためである。集合体内の LLFP ピン本数を 127 とし LLFP の材質 BaI_2 とした場合、LLFP と減速材（ZrH_2）の混合比を、0.25/0.75、0.1/0.9 と変化させることによって、核変換率（%/年）は、6.2%、6.7%と増加することがわかった。

核変換対象となる Tc-99 及び I-129 の物理化学的性質を考慮し、従来よりも高い核変換率の実現が可能な炉内装荷体形態について予備検討を行った。その結果 Tc-ZrH_2 複合化方法は粒子（粉末）混合よりもバルク分散混合の方が製造性に優れ、有望候補として選択した。直径 12mm、厚さ 5～10mm の Zr に超硬ドリルによって微細孔加工が可能であることを明らかにし、既存の金属加工技術による Tc-ZrH_2 バルク分散複合体製作の見通しを得た。一方、I-129 と ZrH_2 の混合複合体については、混合粉末の焼結体製造を目標として、BaI_2 と ZrH_2 の混合比と焼結性の関係を調べた。その結果、BaI_2 と ZrH_2 の比率が 1:1, 3:7, 1:9 の混合粉末は加圧成型と 500℃での加熱によって成型体は形成されるものの、十分な焼結には至らなかった。また、混合比が 1:9 のように ZrH_2 の含有率が多いものほど成型性も劣っていた。

【研究成果（当該年度）】

平成 21 年度は、以下の 2 項目を実施した。

(1) 核特性・安全性評価に基づく高効率 LLFP 核変換要素の検討・設計

a) 核特性評価

LLFP の新しい要素形態として図 1 に示す「バルク分散混合型 LLFP 要素形態」を検討した。本要素形態の概念は、安定した金属物質であり、かつ比較的加工しやすい Zr 金属を軸方向に細孔加工し、放射状に配列した空洞部分に均質混合型でも用いた LLFP と減速材の混合粉末を充填する方法である。すなわち、非常に脆い均質混合粉末部を Zr 金属で保持することにより、要素形態の健全性を大きく向上させることが目的である。また本要素形態の利点として、ヨウ素の場合 ^{129}I の核変換により生じる ^{130}Xe の流れ方向をある程度ガイドし、安定してプレナム領域へ逃がすことや、安定性向上による焼結プロセスの省略が期待できることなどが挙げられる。本バルク分散混合型 LLFP 要素形態について核変換特性を解析した。その結果、核変

換率の最大値は約7［%/ cycle］となり、均質型LLFPとほぼ同等の値を達成した。製造性、核変換特性の観点から本要素形態が最適に近いものと考えられる。

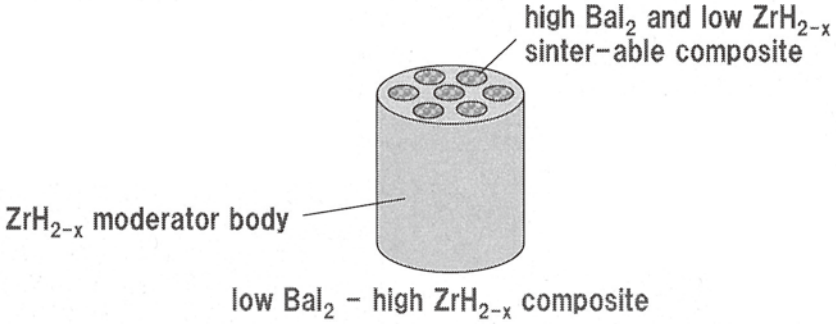


図1　バルク分散混合型LLFP要素形態（<国際会議> 1）からの抜粋）

b)炉心特性

高速炉炉心にLLFP要素形態を装荷した場合の炉心特性（安全評価に必要な反応度係数等）の詳細な解析を行い、高速炉の炉心特性の観点から装荷要素形態の成立性を検討した。

LLFP要素形態を径ブランケットの第1層に装荷した場合、ナトリウムボイド反応度は、装荷しない場合に比べて15%程度低下することが分かった。これは安全の観点からは良い傾向となる。この原因としては、LLFP要素形態を装荷したために炉心周囲での中性子束の漏れが大きくなったためと考えられる。制御棒反応度については、十分に、制限条件を満足できることが分かった。

また、出力分布については、LLFP要素形態を径ブランケットの第1層に装荷した場合、外側炉心でLLFP集合体に隣接する炉心燃料集合体で出力ピークが生じたが、このピーク位置での出力密度は炉心中心での出力密度程度であるため、流量配分を調整するなどして対処可能であると考えられる。本研究で提案したLLFP要素形態をブランケット領域に装荷した場合、炉心特性の観点からは、成立性があると判断できる。

(2)高核変換要素の製造性評価・物性測定

a)製造性評価

平成20年度の研究の結果、焼結性に課題のあったBaI_2とZrH_2の混合複合体について、①BaI_2含有量を多くして焼結性を改善した混合粉末または焼結体をZrH_2に設けた複数の細孔に配置したバルク複合体として装荷する形態と、②焼結性に劣る高ZrH_2含有比の混合粉末をZrH_2容器に圧縮充填して圧粉充填体として装荷する形態の2案を考案し、それぞれの製造性について検討、試験評価を行った。

ZrH_2母材にバルク複合させる形態について、混合粉末の焼結性を改善するためにBaI_2含有比を高めた結果、50%以上の含有率では200～500Nの圧縮強度を持った焼結体が製造できることが明らかとなった。ZrH_2母材に設けた複数の細孔への粉末充填方法については、混合粉末の飛散防止が可能な専用ジグを考案し、機能することを確認した。これにより焼結可能な高BaI_2含有比率の混合粉末焼結体をZrH_2母相にバルク分散させた、安定性の高い複合体の製造が可能な見通しが得られた。一方、ZrH_2製容器へ混合粉末を圧縮充填させた圧粉充填体については、混合粉末をZrH_2製容器に効率的に充填する手法を検討し、500Nの荷重負荷で55%程度の充填率をもつ圧縮充填体の製造が可能なことを明らかにした。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成22年度は、^{99}Tcおよび^{129}IとZrH_2との混合複合体装荷要素の最終設計案について装荷した炉心の安定性、過渡期安全性などの炉心安全性に関する概略解析を実施する予定である。また、最終設計された混合複合体装荷要素の熱的特性などの物性測定や硬度などの機械的特性を測定し、炉内照射下での材料挙動、特に被覆材との機械的相互作用(PCMI)の評価に資し、炉内健全性への影響を検討する。

【研究成果の公表】

＜国内会議＞

1) 古川 大、若林 利男、横山 次男、舘 義昭、「高速炉を用いた長半減期ＦＰの核変換に関する研究」、原子力学会「2009年秋の大会」、Ｆ01

＜国際会議＞

1) Yoshiaki Tachi, Toshio Wakabayashi, Tsugio Yokoyama, "Study on Target Fabrication for LLFP Transmutation by Fast Reactors", Proceedings of International Conference on the Nuclear Fuel Cycle, Paris, September 6-11 (2009)
2) Yoshiaki Tachi, Toshio Wakabayashi, "Compatibility of Iodides with Stainless Steels of Cladding for LLFP Transmutation", Proceedings of International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles, Kyoto, December 7-11 (2009)

＜特許＞

1) 「長寿命核分裂生成物の核変換方法」、特願2010-39633、平成22年2月25日

2.1.14 先行基礎工学研究に関する平成21年度研究概要報告書

研究協力テーマ	原子炉照射した高速炉炉心材料の組織変化機構に関する研究		
研究協力課題	中性子照射鉄鋼材料における析出物/マトリックス界面近傍の原子レベル偏析機構の研究 (Neutron irradiation-induced segregation at steel matrix/precipitate interface)		
研究者所属、氏名			
大学側	東北大学金属材料研究所附属量子エネルギー材料科学国際研究センター 畠山 賢彦		
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 山県 一郎		
研究実施場所	東北大学金研大洗センター研究棟第二化学実験室 大洗研究開発センター 燃料材料試験部 照射材料試験施設		
通算研究期間	平成21年7月 ～ 平成24年3月	当該年度研究期間	平成21年7月 ～ 平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員 □研究生の受入れ ■共同研究		

【研究目的】

実機で重照射された炉心材料の組織変化には、様々な析出物形成とその点欠陥シンクとしての効果が大きな影響を及ぼすことが明らかになっているが、これまでの研究の多くは現象論的な理解に留まり、どのような微視的過程が関与しているか等の機構論的な解釈を得るまでには至っていない。そこで、本研究では、高速炉炉心材料として用いられているオーステナイト系鋼を中心に、サブナノからナノスケールの析出物と照射欠陥との相互作用について、析出物界面近傍における原子レベルでの偏析状況に着目して調査し、析出物の生成・消滅機構を検討することで、実機照射下における微細組織変化機構の解明に供することを目的としている。

【研究内容（概要）】

析出核（ナノクラスター）形成や原子の空間分布の測定に有効な3次元アトムプローブ等を利用し、実機照射材及びその非照射材のナノ析出相の界面近傍偏析挙動等を調査する。一方で、それらナノ析出相と母相との高分解能電子顕微鏡観察を実施し、界面の整合性等から照射欠陥に対するシンク強度等を評価する。これらを総合し、照射下における析出物形成機構を検討する。

【使用主要施設】

東北大学：
3次元アトムプローブIMAGO社製，LEAP3000（視野～約80×80nm、印加電圧～12kV）
収束イオンビーム装置SII社製，SMI-2050（加速電圧30kV、W，Cデポジション、マイクロサンプリング機能附属）

原子力機構：
JEOL社製，JEM-2010F（加速電圧200kV）

【進捗状況（当該年度までの概要）】

整合界面を持つ照射誘起析出物の 3 次元アトムプローブを用いた界面構造と偏析の評価を行う予備的実験として、V-4Cr-4Ti 中の Ti(O,N,C)析出物についての測定を行った。この析出物は、固溶 Ti が照射促進の空孔機構により析出し、侵入型不純物である O,N,C をトラップしながら成長する。結晶構造は NaCl 型で侵入型原子のサイトの一部を空孔が占める。この化学組成や、析出物/マトリックス界面近傍の各原子の偏析を詳細に分析した。

オーステナイト系ステンレス鋼より照射脆化が大きく、微細な絶縁体の析出物について偏析の方位関係や析出物の化学組成について明らかにした。

【研究成果（当該年度）】

1. 非照射オーステナイト鋼の界面近傍偏析挙動の把握

機構所有のオーステナイト鋼モデル合金について、高分解能電子顕微鏡観察を実施し、母相と析出物の結晶方位を確認するとともに界面における高分解能像の撮影を行った。また、同種合金について 3 次元アトムプローブ測定を実施し、析出物界面近傍の原子分布が測定できることを確認した。

また、本測定を通じて今後照射材を扱うための試料調製方法の確認を行った。

2. 析出物／マトリックス界面の 3DAP 観察

主な対象である PNC316 等のリン添加オーステナイトステンレス鋼は照射誘起の M_2P 析出物を形成する。本年度は未照射試料を用いた類似の析出物／マトリックス界面整合性を有する析出物の 3 次元アトムプローブにより観察し、偏析や微量元素の解析についての予備的実験を行った。

照射誘起 M_2P 析出物は六方晶構造の Fe_2P 型であり、面心立方格子構造の母相に対して $(021)_P//(111)_\gamma$ の関係にある。析出物は$[100]_\gamma$ 方向に伸びた針状の形状であり、針の側面部分は整合性を持つが、両端部分は非整合と思われる。

このような照射誘起または促進による半整合界面を有する析出物として V-4Cr-4Ti 合金中の Ti(O,N,C)析出物を用いた。Ti(O,N,C)は NaCl 型の立方晶であり、$(100)_{bcc}$ を晶癖面とする板状の析出物であり、bcc マトリックスとは Baker-Nutting の関係 $(100)_{bcc}//(100)_p$, $[110]_{bcc}//[100]_p$ にある。溶体化処理後、973K, 40h, 1×10^{-6} Pa で焼鈍後、FIB リフトアウト法により表面から深さ 1μm の領域で 2μm 角の試料を作製し、W 針状試料に W デポジションで接合後、その先端部分を r=50nm の針状に FIB 加工したものを局所電極型レーザー補助 3 次元アトムプローブにより観察した。数回の測定の結果、直径 50nm 程度に粗大化した Ti(O,N,C)析出物とその周辺のマトリックスの観察に成功し、析出物の化学組成はほぼ TiO であることが明らかになった。図 1．に 973K, 40h 焼鈍後の V-4Cr-4Ti 合金中の Ti (O,N,C) 析出物 3 次元アトムマップを示す。C は析出物にほとんど含まれておらず、界面での濃化が認められた。N は厚さ 10nm の析出物の中心部分 4nm 程度に分布し、濃度が 0.3at%程度であった。マトリックスに固溶する Ti の大半は TiO の質量／電荷で検出されたことから、試料に雰囲気から拡散した O の多くは固溶 Ti にトラップされ、それが拡散し、析出することが示唆される。TiO は $(100)_{bcc}$ プレーンに乗った板状析出物の平行方向で濃化しており、$(100)_{bcc}$ に平行に拡散して析出物に到達していることも示唆される。

本年度の測定により、O, N, C といった軽元素の微量偏析の測定、半整合界面近傍での観察技術を確立した。また、従来困難であった電導性の低い析出物を 50×50×10nm 程度の寸法まで測定可能であることを実証した。

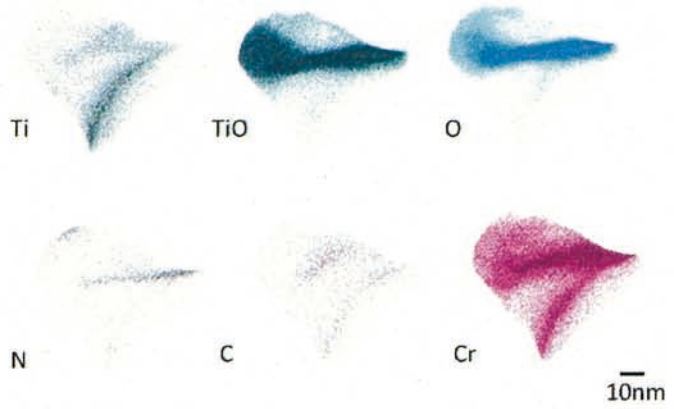


図１．　973K, 40h 焼鈍後の V-4Cr-4Ti 合金中の Ti (O,N,C) 析出物 3 次元アトムマップ。$(100)_{bcc}$ 晶癖面を持つ板状析出物を $(100)_{bcc}$ に平行方向より観察した視野。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 22 年度は、非照射および中性子照射オーステナイト鋼の析出物界面近傍偏析挙動の把握と界面近傍の偏析機構の検討を実施する予定である。

平成 23 年度は、中性子照射オーステナイト鋼の析出物界面近傍偏析挙動の把握と界面近傍の偏析機構の検討を実施する予定である。

1. 非照射オーステナイト鋼の界面近傍偏析挙動の把握

平成 21 年度に引き続き、高分解能電子顕微鏡観察と 3 次元アトムプローブ測定を利用して下記項目を実施することで、界面近傍の偏析挙動を把握するとともに、評価手法の確立を行う。

(1) 非照射オーステナイト鋼の界面整合性評価

オーステナイト鋼モデル合金について、平成 21 年度に引き続き電子顕微鏡試料の調整及び観察を実施し、母相と析出物の結晶方位を確認するとともに界面における高分解能像の撮影を行い、母相と析出物の面間隔のずれや傾角など界面の整合性を評価する。

【実施主担当：原子力機構】

(2) 非照射オーステナイト鋼の界面近傍の原子分布状況測定

オーステナイト鋼モデル合金について、析出物近傍の 3 次元アトムプローブ測定用試料の調製及び測定を行い、析出物界面近傍の合金原子分布状況を把握する。

【実施主担当：東北大学】

(3) 界面近傍偏析機構の検討

上記(1)、(2)の結果を併せて、界面の整合性が界面近傍における合金原子分布状況に及ぼす影響を評価する。

【実施主担当：東北大学、原子力機構】

(4) 酸化物粒子における測定可能粒子サイズの確認

3 次元アトムプローブ測定を酸化物分散強化合金へ適用するための基礎データとして、銅ベースの酸化物分散強化モデル合金を用いて、測定粒子が酸化物のような絶縁物である場合の測定可能粒子サイズと測定範囲を調査する。【実施主担当：東北大学】

2. 中性子照射材の界面近傍偏析挙動の把握

高速実験炉「常陽」にて中性子照射したオーステナイト系合金を用いて、上記 4. 1. で確立した手法を適用することで、析出物界面の整合性が界面近傍の原子分布に及ぼす影響を評価する。なお、中性子照射材の 3 次元アトムプローブ測定に先立ち、原子力機構から東北大学への試料輸送を実施する。

【実施主担当：東北大学、原子力機構】

3. 界面近傍偏析機構の検討

析出物と母相との界面を含む領域について、反応速度論による拡散モデルを定義し、本研究における測定データを適用して定量的に評価するとともにモデルの修正を行い、界面近傍の偏析機構モデルの導出を図る。

【主担当機関：東北大学、原子力機構】

研究スケジュール

年度 / 項目	H21		H22		H23	
	上半期	下半期	上半期	下半期	上半期	下半期
非照射オーステナイト鋼の界面近傍偏析挙動の把握	←→	←→	←→			
中性子照射材の界面近傍偏析挙動の把握			←→	←→	←→	
界面近傍偏析機構の検討		←→	←→	←→	←→	←→
研究成果取りまとめ（概要報告書、研究報告書）		←→		←→		←→

【研究成果の公表】

＜国際会議＞

1)14th International Conference on Fusion Reactor Materials

“Nanostructural evolution of Ti (O, N, C) Precipitates in V-4Cr-4Ti Alloys Studied by 3 Dimensional Atom Probe”

M. Hatakeyama, T. Muroga, S. Tamura and I. Yamagata

2.1.15 先行基礎工学研究に関する平成21年度研究概要報告書

研究協力テーマ	高速炉炉心材料の照射下強度特性と微細構造変化の相関関係モデリングに関する研究		
研究協力課題	電子線・イオン照射による炉心材料の組織と強度のミクロ・マクロ相関の研究(Micro-macro correlation between structure and strength of core component materials by means of electron and ion irradiation)		
研究者所属、氏名			
大学側	北海道大学大学院 工学研究科 材料科学専攻 大貫 惣明，橋本 直幸，木下 博嗣，瀬戸 仁史，西 剛邦，岡 弘** 〔＊＊研究生〕		
機構側	大洗研究開発センター 燃料材料試験部 材料試験課 山下 真一郎		
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 機能材料学研究室等 大洗研究開発センター 燃料材料試験部 材料試験室建屋		
通算研究期間	平成21年10月 ～ 平成24年3月	当該年度研究期間	平成21年10月 ～ 平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員 ■研究生の受入れ ■共同研究		

【研究目的】

本研究では、高速炉炉心材料の照射下強度特性変化と微細組織変化の相関関係を中性子照射データベースと電子・イオン照射による実験からモデル化することを目的にする。研究対象材料は、中性子照射データが豊富なオーステナイト系ステンレス鋼（PNC316 など）とする。この組織・強度相関は低温照射モデルと高温照射モデルに分けて妥当性を検討し、特に高温モデルの中では析出物の界面構造、応力付加時の析出物粒子の安定性、転位・析出物の相互作用などに着目した検討内容とする。

【研究内容（概要）】

①電子照射試験、組織発達挙動評価・解析

高速炉用オーステナイト系ステンレス鋼（主としてPNC316）およびその歪み除去熱処理材等を用いて、電子照射試験とその場組織発達挙動の観察を行う。この動的な観察では、照射欠陥形成・発達挙動評価に供する組織データを取得し、試験後の詳細な解析から欠陥の移動エネルギー等の物性値を導出する。

②イオン照射試験、硬度測定、組織変化挙動評価

北海道大学のイオン加速器や原子力機構のイオン照射施設（TIARA）を用いて、系統的なテストマトリックスでのイオン照射試験を行い、照射による硬度変化を評価する。主要な照射条件および硬度に有為な変化が認められた照射条件の試料に対しては、透過型電子顕微鏡で微細組織観察を行い、硬度変化と組織変化の関係付けを図る。

③中性子照射後試験データの整理・拡張、データベース化

既得の中性子照射データの照射条件マトリックスの整理および関連性の高い個々のデータの分別を行い、データベース化を図る。強度試験済み残材からの試験片採取（硬度や組織）の可否を検討し、可の場合は硬度や組織観察の試験データを取得する。

④組織と強度／硬度の関係に関する検討

データベースから組織と硬度／強度に関する中性子照射後試験データを抽出することに加えて、新たに中性子照射材のダイナミック硬度測定試験を行いデータ取得し、組織と強度／硬度の関係に関する経験式構築に向けた総合的な検討を行う。

⑤総合考察および強度・組織相関モデルの提示

高速炉用オーステナイト系ステンレス鋼の電子照射試験と組織発達挙動評価・解析結果、イオン照射試験と照射後の硬度測定／組織変化挙動評価結果、および中性子照射後試験データを中心とする組織と強度／硬度の関係に関する検討結果などを総合的に踏まえ、照射下における高速炉用オーステナイト系ステンレス鋼の強度変化と組織変化の相関モデルの妥当性を繰り返し検討し、最終的に本共同研究成果物としてモデルを提示する。

【使用主要施設】

北海道大学：超高分解能超高圧電子顕微鏡（JEM-ARM1300）、分析電子顕微鏡（JEM-2010）
原子力機構：照射材料試験施設研磨ｾﾙ、および第２照射材料試験施設化学室ｸﾞﾛｰﾌﾞﾎﾞｯｸｽ

【進捗状況（当該年度までの概要）】

①電子照射試験、組織発達挙動評価・解析、②イオン照射試験、硬度測定、組織変化挙動評価、③中性子照射後試験データの整理・拡張、データベース化の検討を開始した。特に、北海道大学のイオン加速器や原子力機構のイオン照射施設 TIARA を用いて、系統的なテストマトリックスでのイオン照射試験を開始した。主要な照射条件および硬度に有意な変化が認められた。

【研究成果（当該年度）】

① 電子照射試験、組織発達挙動評価・解析

いわゆるマルチスケールモデリングのためにはその基本パラメータの取得が重要となる。本研究では超高圧電子顕微鏡による電子線照射から、点欠陥の移動エネルギーに及ぼす内部組織、合金元素や不純物の影響をまず検討した。
純鉄および実用鋼に対し電子線照射を行い、観察された転位ループの成長速度の測定から原子空孔の移動の活性化エネルギーを求めた。原子空孔の見かけの移動エネルギーは0.1eVから1eV程度であり、実用鋼のほうが大きかった。これは、合金元素や不純物濃度に依存すると考えられる。一方、格子間原子の移動エネルギーは鉄で0.2-0.3eV、実用鋼で0.9eV程度になる。ただし、転位ループの形状やバーガースベクトルの区別が重要である。
付帯研究として、PNC316 および ODS316 に対して He を予注入後に電子線照射して損傷組織をその場観察した。ODS 化によってキャビティのサイズは減少し、数密度は増加した。また ODS316 では母相 / 酸化物粒子界面にキャビティの核生成が起こり成長する様子が見られた。He 予注入した ODS316 においても、酸化物と母相との界面にキャビティ形成がみられた。また予注入によりキャビティのサイズ・数密度ともに増大した。これらの結果から、母相/酸化物粒子の界面は空孔や Vacancy-He 結合体に対してシンクとして働くと考えられる。

② イオン照射試験、硬度測定、組織変化挙動評価

TIARA での高エネルギーFe イオン照射と北海道大学での Fe イオン照射を実施した。一部については組織観察とナノ硬度測定を行った結果、イオン照射による欠陥の形成と硬度の上昇が測定できた。これにより組織と硬度の相関を得られる見通しが出てきた。

③ 中性子照射後試験データの整理・拡張、データベース化
中性子照射後試験の確立のため、ナノ硬度のダイナミック測定法の確認を行った。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 22 年度は、電子照射試験、組織発達挙動評価・解析、イオン照射試験、硬度測定、組織変化挙動評価、中性子照射後試験データの整理・拡張、データベース化、組織と強度／硬度の関係に関する検討を実施する予定である。

平成 23 年度は、②イオン照射試験、硬度測定、組織変化挙動評価、③中性子照射後試験データの整理・拡張、データベース化、④組織と強度／硬度の関係に関する検討、⑤総合考察および強度・組織相関モデル化、を実施する予定である。

【研究成果の公表】

＜国内会議＞

1) 岡　弘 橋本直幸 木下博嗣 大貫惣明 山下真一郎，オーステナイト系 ODS 鋼の微細組織と機械的特性，日本金属学会 2010 年春期(第 146 回)講演大会，筑波大学，2010, 3/28-3/31
2) 山口憲仁 瀬戸仁史 橋本直幸 木下博嗣 大貫惣明：山下真一郎，電子線照射下での低放射化フェライト鋼の転位ループの成長過程，日本金属学会 2010 年春期(第 146 回)講演大会，筑波大学，2010, 3/28-3/30

＜国際会議＞

1) H. Oka, M. Watanabe, N. Hashimoto, S. Ohnuki, H. Kinoshita, S. Yamashita, Electron irradiation properties of ODS austenitic stainless steel modified by third element addition, ICFRM-14, Sapporo, 2009, 9/6-9/12

2.1.16 先行基礎工学研究に関する平成21年度研究概要報告書

研究協力テーマ	超臨界流体による水熱合成プロセスを用いた高性能核燃料粉末調製技術の開発		
研究協力課題	超臨界水を用いた金属イオンの酸化物ナノ粒子化プロセスの検討 (Investigation of process for producing nanoparticles of metal oxides using supercritical water)		
研究者所属、氏名			
大学側	東京工業大学　原子炉工学研究所 教授　池田泰久，助教　塚原剛彦		
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 逢坂正彦，田中康介		
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　照射燃料試験施設		
通算研究期間	平成21年7月　～ 平成24年3月	当該年度研究期間	平成21年7月　～ 平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員　■研究生の受入れ　■共同研究		

【研究目的】

高速炉燃料サイクルシステムにおいて、簡便にかつ廃棄物発生量を抑えて低除染酸化物燃料を製造しうる技術の確立が重要な課題となっている。特に、燃料の性能は原料粉末の状態に大きく影響されるため、性状・組成が均質で焼結性の良い粉末の作製が欠かせない。

本研究では、このような条件を満たすポテンシャリティーを有する方法として、グリーンソルベントである超臨界水を用いた水熱合成法に着目し、U, Pu含有硝酸水溶液(U/Pu群, U/Pu/Np群，マイナーアクチノイド(MA)/FP群）へ適用することにより、組成，性状が制御された酸化物燃料粉末をワンススルーで作製しうる技術を創成することを目的とする。

【研究内容（概要）】

東京工業大学において、バッチ式の水熱合成システムを用いて、単酸化物および複合酸化物ナノ粒子の合成とキャラクタリゼーションを行う。Uを含む硝酸水溶液，PuおよびNpの模擬としてのCeを含む硝酸水溶液，マイナーアクチノイドの模擬としてのNdを含む硝酸水溶液を試料として用いる。得られた粒子のSEM，TEMおよびXRD等によるキャラクタリゼーションにより、粒子の性状，粒径，組成を解析し、温度，圧力，反応時間，濃度依存性について検討し、均質なUO_2, CeO_2蛍石型立方晶構造およびNd_2O_3六方晶構造などの単酸化物ナノ粒子合成条件の最適化を図る。これら単酸化物合成条件に基づき、U/Ce/Ndを含有する模擬燃料硝酸水溶液から単一（$UO_{2\pm x}$, CeO_{2-x}, Nd_2O_3）あるいは複合酸化物（$(U, Ce)O_{2\pm x}$, $(U, Ce, Nd)O_{2\pm x}$, $(Ce, Nd)O_{2\pm x}$）への転換水熱合成試験を行い、その生成条件等を検討する。

機構においては、水熱合成により得られた種々の粉末の焼結試験を行い、合成条件・キャラクタリゼーション結果と合わせて、次工程（造粒プロセス）を見据えた上での粉末性状の評価およびPuとAmを含む試料の合成試験（実燃料試験）に向けた課題抽出・実験準備を行う。

【使用主要施設】

東京工業大学　原子炉工学研究所（放射性同位元素実験室）
原子力機構　　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
（コールド実験室、実験室および化学室）

【進捗状況（当該年度までの概要）】

本研究は、亜臨界・超臨界水場での反応を U,Pu 含有硝酸溶液（U/Pu 群，U/Pu/Np 群，マイナーアクチノイド(MA)/FP 群）に適用し、組成，性状，形状が制御された酸化物燃料粉末をワンスルーで作製しうる技術を創成することを目的とする。本年度は、初年度として、以下の 2 テーマを中心に研究を行った。

①単酸化物ナノ粒子の合成とキャラクタリゼーション

亜・超臨界場を利用した単酸化物ナノ粒子の合成法の予備試験として、既存のバッチ式の水熱合成システムを利用し、硝酸ウラニルを水及びエタノールに溶解した試料によるウラン酸化物合成について検討した。また、迅速な温度制御を可能にする新型セルを試作し、Ce，Nd 含有硝酸水溶液についても試験を行い、粉体の性状について検討した。

②複合酸化物ナノ粒子の合成とキャラクタリゼーション

新型セルを用い、Ce/Nd を含有硝酸水溶液について、水熱合成試験を行い、得られる粒子の形状，粒径，組成に及ぼす温度，圧力，反応時間，濃度の影響について予備的な検討を行った。

【研究成果（当該年度）】

①単酸化物ナノ粒子の合成とキャラクタリゼーション

亜・超臨界場を利用した単酸化物ナノ粒子の合成法の予備試験として、既存のバッチ式の水熱合成システム（図 1）を利用し、硝酸ウラニルを水及びエタノールに溶解した試料によるウラン酸化物合成について検討した。超臨界セル内に試料を導入して密封した後、セル自体を温調装置にて超臨界状態まで連続的に昇温した。この際の昇温速度は 20℃/分、保持時間を 60 分とした。セル内部の圧力は、セルに接続した圧力センサーにて計測した。種々の条件にて亜・超臨界処理した後、冷却・減圧処理を行って、試料を回収した。

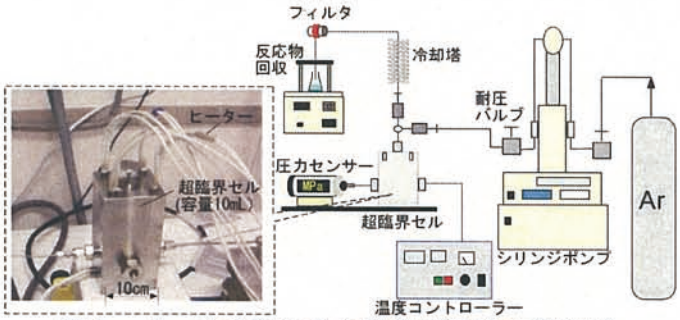


図 1　バッチ式超臨界水熱合成装置の概要図

その結果、図 2 に示すように、黄色，黒褐色等、処理条件に応じて異なる色の沈殿物が得られた。その沈殿物の XRD 測定を行ったところ、390℃，45 MPa の超臨界水処理では、U_3O_8 のみが生成されることが分かった。一方、250℃，45MPa の超臨界エタノール処理を行うと、U_3O_8 と UO_2 の混合物が、300℃，40MPa のエタノール系からは UO_2 のみが選択的に生成されることが明らかとなった。

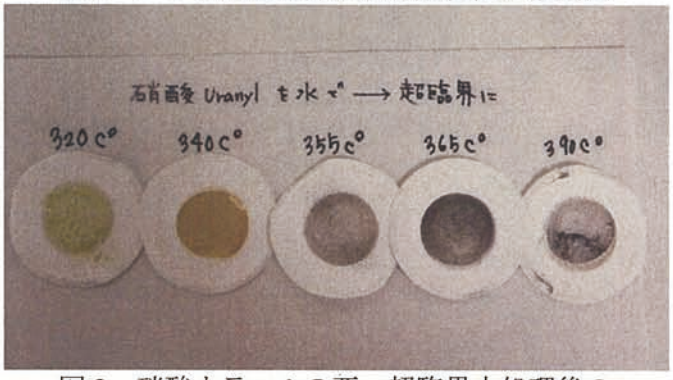


図 2　硝酸ウラニルの亜・超臨界水処理後の沈殿物写真

既存の超臨界セルでは、昇温・冷却速度の制御が困難で、沈殿物形成に影響を及ぼす懸念があるため、迅速な温度制御（最速 40℃/分）を可能にする新型セルを試作した。試作したセルを用いて、Ce および Nd 含有硝酸水溶液について試験を行った。これらをそれぞれ亜臨界(275℃，30MPa)，超臨界(400℃，30MPa)条件にて処理したところ、Ce 溶液では肌色あるいは黒褐色の沈殿物が得られた。沈殿物の XRD 分析の結果、亜臨界・超臨界処理のいずれにおいても、CeO_2 の立方晶が生成され、生成率は超臨界処理の方が高いことを確認した。一方、Nd 溶液では沈殿物が得られず、Ce の場合と全く異なることを見出した。

②複合酸化物ナノ粒子の合成とキャラクタリゼーション

上記と同条件にて、Ce/Nd 混合硝酸水溶液の水熱合成試験を行い、得られる沈殿物の XRD 測定を行った。その結果、亜臨界，超臨界いずれの処理を行っても、Ce の薄褐色沈殿物は得られるが、Nd の沈殿物は生成しなかった。反応時間（5～30 分）に関わらず Ce の沈殿物は CeO_2 の立方晶であり、その生成率は超臨界の方が亜臨界処理よりも高いことが分かった。一方、温度を 500℃まで上げると、Nd_2O_3 と思われる沈殿物が観測され始め、Ce と Cd の酸化物生成条件は全く異なることを示唆する結果を得た。

以上より、ソフト超臨界処理（400℃以下）とハード超臨界処理（500℃以上）を多段階で行うことで、CeO_2 粒子と Nd_2O_3 粒子を個別かつ迅速に合成することが可能となることが明らかになった。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

22 年度は、U, Ce, Nd 含有硝酸水溶液の超臨界条件での処理を行った後、得られた沈殿物を SEM, XRD 等で計測し、均質な UO_2, CeO_2 及び Nd_2O_3 単酸化物ナノ粒子を合成できる最適条件を見出し、これら単酸化物合成条件に基づき、U/Ce/Nd 等の複数の金属イオンが混在した硝酸水溶液について水熱合成試験を行い、単一あるいは複合酸化物へ転換しうる反応条件等について検討する予定である。さらに、合成した単酸化物あるいは複合酸化物粉末を機構へ持ち込み、ペレット作製試験を実施し、焼結ペレットのキャラクタリゼーションを行うことで、粉末合成条件と焼結性の関係を評価し、かつ本手法における原料粉末合成における推奨条件を評価する予定である。

これらの基礎試験結果に基づき、実燃料試験に向けた工学的課題の抽出とフロー型水熱合成システムを用いた試験に向けた準備を行う予定である。

23 年度は、22 年度までの成果に基づき、U, Ce, Nd, 模擬 FP 核種（Cs, Sr, Mo 等）を含む模擬燃料溶解液を用い、水熱反応により単独核種あるいは任意の核種群として酸化物に転換・回収し得る反応条件に関する検討、得られた粉体を用いたペレット調製試験から原料粉末合成の推奨条件の検討及び実燃料試験に向けての工学的課題の抽出、フロー式反応装置による酸化物への転換・連続回収を行いうる得る最適条件の検討を行う予定である。

また、材料腐食性の評価結果と合わせて、開発課題を抽出する予定である。

【研究成果の公表】

＜国内会議＞

1) 2010 年　日本原子力学会春の年会　塚原剛彦、池田泰久、北森武彦「静電力制御によるナノ流体核種分離システムの開発」

2) 2010 年　日本原子力学会秋の大会　「超臨界水を反応場とした核燃料用ナノ粒子の調製法に関する研究」（発表予定）

＜国際会議＞

1) T. Tsukahara and Y. Ikeda, “A STUDY on BEHAVIOR of METAL IONS in NANOSPACE for SEPARATION of RADIONUCLIDES BASED on NANOFLUIDICS,” The Third International Symposium on Innovative Nuclear Energy Systems, Oct. 31-Nov. 3, Tokyo Tech, Tokyo, Japan.（発表予定）

2) N. Miyamoto, T. Tsukahara, Y. Kachi, M. Harada, K. Yoshino, and Y,. Ikeda, “INTERACTIONS BETWEEN OXO GROUPS of BIS(DECAFLUOROHEPTANEDIONATE)- (DIMETHYL SULFOXIDE) DIOXOURANIUM (VI) and $B(C_6F_5)_3$ in SUPERCRITICAL CARBON DIOXIDE,” he Third International Symposium on Innovative Nuclear Energy Systems, Oct. 31-Nov. 3, Tokyo Tech, Tokyo, Japan.（発表予定）

3) T. Tsukahara and Y. Ikeda, NANOFLUIDIC-BASED SEPARATION SYSTEM OF RADIONUCLIDE IONS BY CONTROLLING ELECTROSTATIC FORCES, 11th Information Exchange Meeting, Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Nov. 1-5, San Francisco, USA.（発表予定）

4) T. Tsukahara, D.L. Hwang, N. Miyamoto, and Y. Ikeda, “Preparation of Nanoparticles for Nuclear Fuels Using Supercritical Water,” 2nd International Conference on Asian Nuclear Prospects 2010, Oct. 11-13, Chennai, India.（発表予定）

2.1.17　先行基礎工学研究に関する平成21年度研究概要報告書

研究協力テーマ	高速炉構造用ステンレス鋼における微量元素添加量の最適化に関する研究		
研究協力課題	超高純度オーステナイト系合金を用いた微量添加元素が長時間強度に及ぼす影響に関する研究 (Effect of a small amount of additive elements on long-term strength of austenitic stainless steels using ultra-high purity alloying systems)		
研究者所属、氏名			
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　菱沼章道　＊〔＊客員研究員〕		
機構側	次世代原子力システム研究開発部門　FBR規格・基準ユニット 構造材料評価グループ　副主任研究員　若井隆純		
研究実施場所	東北大学　金属材料研究所 大洗研究開発センター　ナトリウム技術開発第一・第三試験室		
通算研究期間（予定）	平成21年4月　～　平成24年3月	当該年度研究期間	平成21年4月　～　平成22年3月
研究協力形態	■客員研究員　□研究生の受入れ　□共同研究		

【研究目的】

高速炉用構造材料に特化して開発された高速炉構造用316鋼（316FR）では，炭素を低減し，代わりに窒素を適量添加することによって，優れたクリープ強度を達成している．しかし，この優れた特性は，これらの元素の添加量に対して非常に厳しい制限を課すことにより達成されており，逆に言うとこれらの要求化学成分仕様がわずかでも変化すると，意図した強度が得られないことが懸念される．微量元素添加量の高水準で制御するには，厳しい工程管理が求められ，場合によっては高額の設備投資を伴うことがあることから，要求に対して必要十分な性能を付与された合金を設計することが合理的である．そこで，本研究では，東北大学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，超高純度ステンレス合金を製作し，これに対する大気中あるいはナトリウム中における材料特性確認試験を実施し，損傷材に対する観察や分析等を行って，窒素や炭素添加量の異なる複数のステンレス合金に対する試験，観察・分析結果と比較することにより，材料特性等に及ぼす微量元素添加量の影響を明らかにする．以って，高速炉構造用ステンレス合金における微量元素添加量制御水準の方向性を示す．

【研究内容（概要）】

上記目的のため，以下の試験・観察・分析を実施して，材料特性等に及ぼす微量元素添加量の影響を明らかにし，高速炉構造用ステンレス合金において目指すべき微量元素添加量制御水準について検討を行う．

(1) 超高純度ステンレス合金の製作
(2) 材料特性試験の実施
(3) 金属組織観察および定量分析
(4) 微量元素量の強度および組織安定性への影響評価

【使用主要施設】

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

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 21 年度は，

(1) 超高純度ステンレス合金の製作

(2) 材料特性試験の実施

(3) 金属組織観察および定量分析

を実施した．

【研究成果（当該年度）】

(1) 超高純度ステンレス合金の製作

不純物元素量を変化させた第一次試作合金 1 種類の仕様を決定し，溶製した．溶製した高純度 SUS316（同表の“1”）の化学成分を，比較材として準備した市販 SUS316L，市販 SUS316 および高速炉構造用 316 鋼（呼称＝316FR）の化学成分とあわせて，表 1 に示す．また，これらの供試材の熱処理条件を表 2 に示す．

表 1　供試材化学成分（mass%）

		C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Sol.Al	Insol.Al	O	N	Mo
1	高純度SUS316L	0.003	<0.01	<0.01	<0.001	0.0011	14.80	16.23	0.017	0.002	0.0033	0.0017	2.01
2	市販SUS316L	0.012	<0.01	<0.01	0.039	0.0030	14.80	16.34	0.014	0.002	0.0040	0.0124	2.02
3	市販SUS316	0.060	0.58	0.86	0.025	0.0020	12.40	16.60	—	—	—	—	2.22
4	高速炉構造用316鋼	0.010	0.59	0.84	0.026	0.0030	11.19	16.87	0.007	—	0.0037	0.0800	2.23

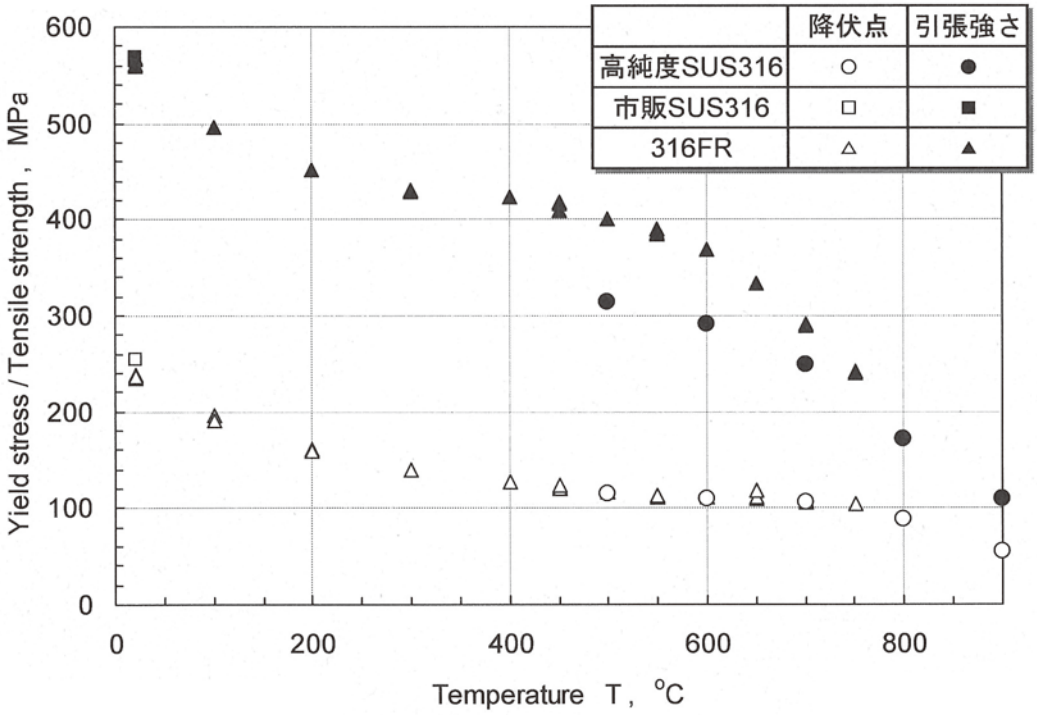
表 2　　供試材熱処理条件

1	高純度SUS316L	950℃×10min.水冷
2	市販SUS316L	1000℃×10min.水冷
3	市販SUS316	1100℃×30min.水冷
4	高速炉構造用316鋼	1050℃×30min.水冷

(2)　材料特性試験の実施

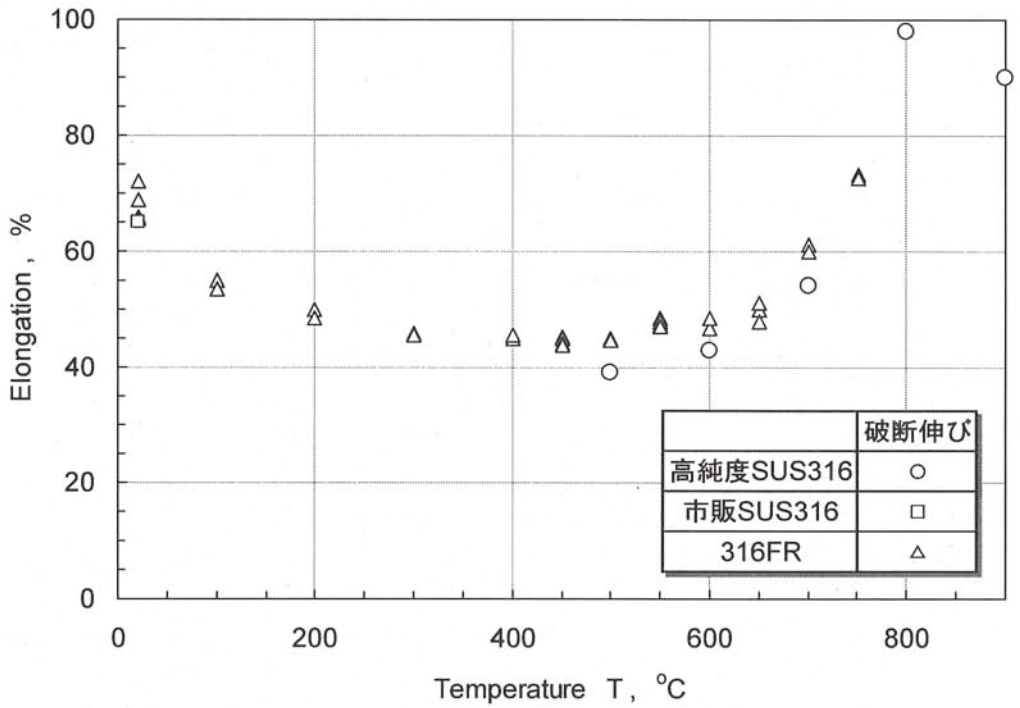
上記(1)で溶製した高純度 SUS316 に対する引張試験を実施し，市販 SUS316 および 316FR の引張試験結果と比較した．その結果を図 1 に示す．高純度 SUS316L の引張強さは 316FR のそれらに比べてやや小さいが，降伏点と破断伸びにはほとんど差が無いことがわかる．

また，第一次試作合金 1 種類および比較材 3 種類の計 4 種類の合金について，長時間熱時効試験を開始した．試験の計画を表 3 に示す．



(a) 降伏点と引張強さ

図 1　各材料の引張特性の比較



(b) 破断伸び

図 1（続き） 各材料の引張特性の比較

表 3 熱時効試験条件と高速炉条件での換算時間

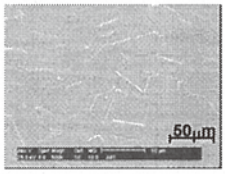
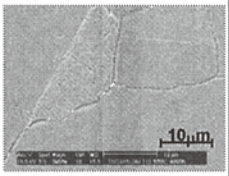
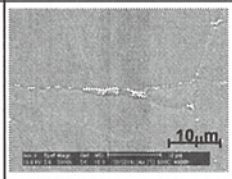
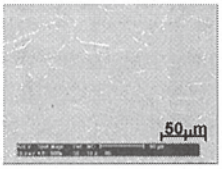
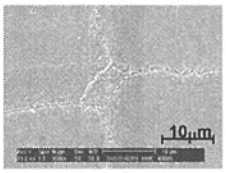
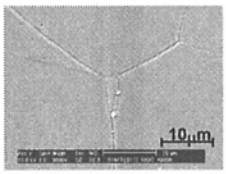
熱時効試験条件		サンプル採取時期	高速炉条件相当時間（LMP換算)※
①	600℃×4,000h	H21年末ごろ	≒550℃×108,000h
②	600℃×11,000h	H22年末ごろ	≒550℃×317,000h
③	600℃×18,000h	H23年末ごろ	≒550℃×534,000h

※LMP=T_k×{C+log(t)}, T_k：絶対温度(K), t：時間(h), C：定数. ここでは20を適用.

(3) 金属組織観察および定量分析

上記(1)で溶製した第一次試作合金 1 種類および比較材 3 種類の計 4 種類の合金について，熱時効前の金属組織観察を，走査型電子顕微鏡（SEM）を用いて実施した．観察結果を図2に示す.高速炉構造用316鋼のオーステナイト粒径がやや粗大であることを除けば，これら 4 種類の合金の間に有意な差はないといえる．また，熱時効前においては，いずれの合金においても，結晶粒界に目立った析出物は観察されなかった.

4 種類の合金を不活性ガス雰囲気中で 600℃×4,000 時間熱時効した後，SEM による金属組織観察を行った．結果を同様に図 3 に示す．いずれの合金においても，結晶粒界に $M_{23}C_6$ と推定される析出物が観察されたが，その数量は，高純度 SUS316L＜高速炉構造用 316 鋼＜市販 SUS316L＜市販 SUS316 の順に多くなり，含有炭素量に対応する結果となった．

符号	成分概要	時効前	600℃×4,000h時効後	EDX分析結果
A81	高純度SUS316L			
A82	市販純度SUS316L			
B5	市販SUS316			
B11	高速炉構造用316鋼			

	Mo	Cr	Fe	Ni
母相	2.7	17.1	65.6	14.6
析出物	9.8	27.9	54.5	7.7

	Mo	Cr	Fe	Ni
母相	2.2	16.2	67.4	14.2
析出物	3.7	21.4	61.9	13.0

	Mo	Cr	Fe	Ni
母相	2.8	17.1	66.2	11.8
析出物	4.4	27.9	56.5	9.6

	Mo	Cr	Fe	Ni
母相	2.6	17.4	68.5	9.8
析出物	4.4	26.4	58.8	8.7

図 3　各材料の熱時効前・後の金属組織観察と熱時効後の成分分析結果

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 22 年度は,

(1) 超高純度ステンレス合金の製作

・第二次試作合金の仕様決定，溶製.

(2) 材料特性試験の実施

・第一次試作合金に対する長時間試験の継続.

・第二次試作合金に対する機械的試験の実施.

(3) 金属組織観察および定量分析

第一次試作合金の熱時効後組織の電子顕微鏡等による組織観察・定量分析

実用鋼との比較を含めた高温保持後の金属組織に及ぼす微量添加元素量の影響評価

第二次試作合金の初期組織の電子顕微鏡等による組織観察・定量分析

(4) 微量元素量が組織安定性に及ぼす影響評価

第一次試作合金に対する試験，観察・分析結果に基づく微量元素量が組織安定性へ及ぼす影響考察.

【研究成果の公表】

＜国際会議＞

1) Wakai, T., Hishinuma, A. and Abiko, K., “Development of high-Cr steel for FBR structure having both high temperature strength and long-term stability -Possibility of alloys with ultra high purity-”, The 15th International Conference on Ultra High-Purity Metals (UHPM-2009), Dec/13-15/2009, Sendai Japan.

2) Hishinuma, A, Takaki, S. and Abiko, K., “Development Study of High-Purity Stainless Alloys”, The 15th International Conference on Ultra High-Purity Metals (UHPM-2009), Dec/13-15/2009, Sendai Japan.

2.1.18 先行基礎工学研究に関する平成21年度研究概要報告書

研究協力テーマ	溶接部を含む構造材料の金属組織－材料強度長時間経時変化予測に関する研究		
研究協力課題	組織エネルギー論に基づく材料組織の経時変化の定量化と材料強度予測手法の開発（Quantitative evaluation of microstructural evolution in metallic materials with the aid of system free energy concept and the development of a method for prediction of the materials strength）		
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, 大学院博士後期課程　塚田祐貴，大学院博士前期課程　杉山雄一		
機構側	次世代原子力システム研究開発部門　FBR規格・基準ユニット 構造材料評価グループ　　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	平成21年7月　～ 平成24年3月	当該年度研究期間	平成21年7月　～ 平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員　　□研究生の受入れ　　■共同研究		

【研究目的】

高速増殖炉用構造材料では、信頼性の高い寿命評価により、溶接部を含めてその健全性を保証することが大変重要な課題となっている。特に、9Cr系の高Crフェライト系耐熱鋼では、溶接熱影響部（以下、「HAZ」）の長時間クリープ強度の予測や、現在行われている温度加速試験の妥当性の検討が必要である。これらの解決・検討を行うためには、多くの組織変化要因がある中で、特定の偏った要因にとらわれることなく、材料組織の変化と材料特性を定量的に関連付けることが重要である。そこで本研究では、9Cr系フェライト系耐熱鋼のHAZを対象に、まず、熱力学に裏付けられた「組織自由エネルギー」に基づき、クリープ損傷の進行に伴うミクロ組織変化を定量的に評価する。次に、組織自由エネルギーとき裂発生しきい応力の関係を明らかにする。以上で得られた結果を基に、組織変化予測シミュレーション技術の開発を実施し、HAZ部に対する材料強度予測手法へ展開することを目指す。

【研究内容（概要）】

9Cr系フェライト系耐熱鋼HAZを対象にして、以下の研究を実施する。

(i) 実験によるHAZ組織の定量的評価とHAZ組織の変化に及ぼす負荷応力の影響評価

組織自由エネルギーを用いてHAZ組織の定量的評価を行い、さらに組織自由エネルギーの変化に及ぼす負荷応力の影響を明らかにする。

(ii) 局所的に不均一な組織自由エネルギー状態におけるき裂発生しきい応力の実験による評価

応力の多軸度を試験片内で変化させられる形状の試験片を用いてクリープ試験を実施し、局所的に不均一な組織自由エネルギー状態におけるき裂発生しきい応力を示す。

(iii) HAZにおける長時間後の材料組織予測シミュレーションと強度予測手法の開発
(i)、(ii)で得られた結果に基づき、フェーズフィールド法を用いて、クリープ損傷に伴う組織自由エネルギー変化及びき裂発生をシミュレートする手法を開発し、その妥当性を検証する。

【使用主要施設】

名古屋大学：
走査型電子顕微鏡（EDX, EBSD付）、X線回折装置、透過型電子顕微鏡、示差熱分析装置、ワークステーション、状態図計算ソフト「Thermo-Calc」

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成21年度は、上述の【研究内容】に記した全体計画の３項目のうち、(i)および(ii)の２項目に関連して、以下のことを実施した。
（１）ひずみエネルギー変化に及ぼす負荷応力の影響評価
（２）析出物の生成による化学自由エネルギーの変化に及ぼす負荷応力の影響評価
（３）界面エネルギーの評価
（４）溶接模擬熱処理材を用いたクリープ試験
このクリープ試験は平成22年度以降も継続する。

【研究成果（当該年度）】

本研究協力課題では、9Cr系フェライト系耐熱鋼HAZを対象として、以下の3項目の研究を実施する。
(i)実験によるHAZ組織の定量的評価とHAZ組織の変化に及ぼす負荷応力の影響評価
(ii) 局所的に不均一な組織自由エネルギー状態におけるき裂発生しきい応力の実験による評価
(iii) HAZにおける長時間後の材料組織予測シミュレーションと強度予測手法の開発
これらのうち、初年度である今年度は(i)および(ii)に取り組んだ。結果を以下に述べる。

（１）ひずみエネルギー変化に及ぼす負荷応力の影響評価（【研究内容】項目(i)に関連）：

フェライト系耐熱鋼では、クリープ前の焼戻しマルテンサイト相（調質組織）で既に極めて多数の転位が存在する。この調査では、クリープ中のひずみエネルギー変化（転位密度の回復）に対する負荷応力の影響を調べるために、Mod.9Cr-1Mo鋼の一種であるGr.91鋼のクリープ材のグリップ部とゲージ部について、X線回折（XRD）のスペクトル解析による転位密度測定を実施した。その結果、転位密度の回復速度が負荷応力の増加とともに増加することが明らかになった。さらに、転位密度変化をひずみエネルギー変化に変換し、その度合いを定量的に表わすために、緩和時間τ_{str}を導入し、ひずみエネルギーE_{str}を以下のように定式化した（参考文献[1]）。

$$E_{str} = C_{str} \exp\left[-\left(\frac{t}{\tau}\right)^n\right] + E_{str}^e$$

ここで、C_{str}およびnは定数、tは時間、E_{str}^eは多くのデータを回帰することによって求めた平衡値である。なお、緩和時間τ_{str}は応力の関数である。

（2）析出物の生成による化学自由エネルギーの変化に及ぼす負荷応力の影響評価（【研究内容】項目(i)に関連）：

析出相の生成による化学自由エネルギーの変化に対する負荷応力の影響を調べるために、Gr.91 鋼のクリープ材のグリップ部とゲージ部で抽出残渣定量分析を行い、$M_{23}C_6$ 炭化物および MX 炭窒化物の時間変化を評価した。その結果、ひずみエネルギーの変化に比べて、析出量に対する負荷応力の影響は小さいことがわかった。この結果を基に、化学的自由エネルギーの時間変化についても緩和時間 τ_{chem} によって次式のように定量的に表現することができた（参考文献[1]）。

$$G_0 = C_{chem} \exp\left[-\left(\frac{t}{\tau_{chem}}\right)^n\right] + G_0^e$$

ここで、C_{chem} および n は定数、t は時間、G_0^e は Thermo-Calc の熱力学計算から求められる Z 相以外の析出相がすべて析出したときの化学的自由エネルギー値である。この場合も緩和時間 τ_{chem} は応力の関数であるが、ひずみエネルギーに比べて応力依存性が小さいことが明らかとなった。

（3）界面エネルギーの評価（【研究内容】項目(i)に関連）：

母相であるマルテンサイト相のラス、ブロック、パケットおよび旧オーステナイト相粒界に起因する界面エネルギー値は 1～2J/mol と極めて小さいことから（参考文献[2]）、析出物による界面エネルギーが重要であることがわかった。そこで、析出物による界面エネルギーを評価するために、溶接 HAZ 部から切出した薄片について、抽出レプリカを作製し、TEM/EDX 測定を行った。その結果、HAZ 部でも粗粒域、細粒域あるいは二相域で析出炭化物のサイズ分布が異なっていることがわかった。今後これらのデータから粒界面積を算出して HAZ 各部の界面エネルギーを評価してゆく。

以上の各エネルギーを総合して、HAZ の各部における組織自由エネルギーを算出してゆく。

（4）溶接模擬熱処理材を用いたクリープ試験（【研究内容】項目(ii)に関連）：

き裂発生シミュレーションを行うための基本的な部品として、溶接各部の組織に対応したき裂発生応力データが必要である。そのため、溶接模擬熱処理材を用いてクリープ試験を行う必要がある。平成 21 年度は、まず試験計画を立案した。限られた時間で組織自由エネルギーの変化やき裂発生を評価でき、かつ過度な温度加速条件とならないようにするために、試験温度として、575℃と 600℃の 2 温度を選択した。負荷応力については、各温度について 3 条件で変化させることとした。また、クリープ中の組織自由エネルギーの変化を評価するために、破断に至る前に止める中断試験を複数実施することとし、クリープ試験を開始した。

（参考文献）

[1] 齋藤良裕、北拓也、村田純教、森永正彦、小山敏幸、長谷川泰士、五十嵐正晃：日本材料学会第４７回高温強度シンポジウム、前刷集、2009 年 12 月（別府）、pp.81-85.

[2] T.Kunieda, M.Nakai, Y.Murata, M.Morinaga and T.Koyama: Estimation of the System Free Energy of Martensite Phase in an Fe-Cr-C Ternary Alloy, Iron and Steel Inst. of Japan International, 45(2005), pp. 1909-1914.

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成22年度は、前年度に引続き【研究内容】に記した(i) 実験によるHAZ組織の定量的評価とHAZ組織の変化に及ぼす負荷応力の影響評価、および(ii) 局所的に不均一な組織自由エネルギー状態におけるき裂発生しきい応力の実験による評価を主に実施する予定である。

(i) 実験によるHAZ組織の定量的評価とHAZ組織の変化に及ぼす負荷応力の影響評価

平成21年度に引き続き、XRDによる転位密度測定、TEMを用いた組織観察および電解抽出残渣分析を実施し、組織変化に関する実験データを拡充する。特に、平成22年度では、溶接模擬熱処理材および実溶接継手を用いてHAZ部の組織自由エネルギーを評価し、前年度に評価したように組織変化に対する負荷応力の影響を、緩和時間（τ）により表現する。この緩和時間を応力の関数として表現することにより、組織変化に関するマスターカーブに応力効果を定量的に取り込む。これらを、HAZ組織の解析、および温度加速試験の妥当性の評価を行う上での基礎データとする。

(ii) 局所的に不均一な組織自由エネルギー状態におけるき裂発生しきい応力の実験による評価

平成21年度に開始したクリープ試験のうち、一部が終了するので、それらの破断試験片を用いて組織解析を行い、き裂発生シミュレーションのための基本的な部品として、溶接各部の組織に対応したき裂発生応力データを得る。

また、多軸応力状態を発生させるために、通常のクリープ試験片のようにゲージ部を平行とした試験片ではなく、断面形状を変化させた試験片を用いてき裂発生状態を調べる実験を開始する。これと併行して、この試験片における応力分布状態を有限要素法により求める。

これにより、これまで定量的な関係がほとんど得られていない組織情報とHAZ強度情報との定量的な関係を求め、次項のシミュレーションに対する部品とする予定である。

平成23年度は、主として【研究内容】に記した(iii) HAZにおける長時間後の材料組織予測シミュレーションと強度予測手法の開発を実施するが、(ii) 局所的に不均一な組織自由エネルギー状態におけるき裂発生しきい応力の実験による評価についても平成22年度に引続いて行う予定である。

(iii) HAZにおける長時間後の材料組織予測シミュレーションと強度予測手法の開発

平成22年度後半には、上述の(i)～(ii)の結果がある程度そろってくると考えられるので、次の手順で材料組織予測シミュレーションに着手する。

まず、項目(i)で求めた組織変化に対する負荷応力の効果から、組織エネルギー低下に対する応力の効果を求め、局所的に応力状態が異なる領域の組織自由エネルギー状態を決定する（①）。次に、項目(ii)の結果から、ある組織エネルギー状態におけるき裂発生のしきい応力を求める（②）。①と②の手順により、き裂発生は、局所的に不均一な組織エネルギー状態にある組織の中で負荷応力がそのしきい応力を超えた時とする（③）。

以上、①～③の手順に従って、時間と応力の関数として表現された組織自由エネルギー値を基に、フェーズフィールド法によりクリープ損傷に伴う組織変化及びき裂発生をシミュレートし、強度予測手法への開発へ結びつける予定である。

【研究成果の公表】

＜論文＞

1) Y. Tsukada, A. Shiraki, Y. Murata, S. Takaya, T. Koyama, M. Morinaga: Precipitation of ferromagnetic phase induced by defect energies during creep deformation in Type 304 austenitic steel: J. of Nuclear Materials, (2010), in press. (査読有)
2) Y. Tsukada, A. Shiraki, Y. Murata, S. Takaya, T. Koyama, M. Morinaga: Phase-field simulation of nucleation and growth of $\dot{M}_{23}C_6$ carbide and ferromagnetic phases during creep deformation in Type 304 steel: J. of Nuclear Materials, (2010), in press. (査読有)

＜国内会議＞

1) 塚田祐貴、白木厚寛、村田純教、森永正彦、高屋茂、小山敏幸：「SUS304 鋼のクリープ変形における強磁性相生成の Phase-field シミュレーション」日本保全学会学術講演要旨集、2009 年 8 月（札幌）、pp. 386-390.（この発表に対して保全学会から**「奨励賞」および「発表賞」**が授与された。）
2) 新谷剛志、塚田祐貴、白木厚寛、村田純教、森永正彦、高屋茂、小山敏幸：「原子力用オーステナイト鋼における強磁性相の生成と組織自由エネルギーに基づく解析」、日本金属学会講演概要集、2009 年 9 月（京都）、p. 211.
3) 齋藤良裕、北拓也、村田純教、森永正彦、長谷川泰士、五十嵐正晃：「エネルギー論に基づく G. 91 鋼のミクロ組織の定量評価」日本金属学会講演概要集、2009 年 9 月（京都）、p. 212.
4) 「高 Cr フェライト系耐熱鋼の溶接継手 HAZ 部における転位密度」日本金属学会講演概要集、2009 年 9 月（京都）、p. 213.
5) 齋藤良裕、北拓也、村田純教、森永正彦、小山敏幸、長谷川泰士、五十嵐正晃：「高 Cr フェライト系耐熱鋼の組織自由エネルギー評価」、日本材料学会第４７回高温強度シンポジウム、前刷集、2009 年 12 月（別府）、pp. 81-85.
6) 新谷剛志、齋藤良裕、村田純教、寺田芳弘、森永正彦：「高温クリープ材における転位密度解析」、日本材料学会第４７回高温強度シンポジウム前刷集、2009 年 12 月（別府）、pp. 86-90.

2.1.19 先行基礎工学研究に関する平成21年度研究概要報告書

研究協力テーマ	高速炉における炉雑音測定法の高度化に関する研究		
研究協力課題	高速型プログラマブルFADCによる炉雑音解析 (Reactor noise analysis using fast programmable FADC board)		
研究者所属、氏名			
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　玉川　洋一 大阪大学　大学院理学研究科　物理学専攻 教授　能町　正治		
機構側	FBRﾌﾟﾗﾝﾄ工学研究ｾﾝﾀｰ　炉心・燃料技術Gr.　鈴木隆之　北野　彰洋		
研究実施場所	福井大学大学院工学研究科　総合研究棟 大阪大学大学院理学研究科　附属原子核実験施設		
通算研究期間	平成21年7月　～ 平成24年3月	当該年度研究期間	平成21年7月　～ 平成22年2月
研究協力形態	□客員研究員　□研究生の受入れ　■共同研究		

【研究目的】

未臨界領域での反応度測定法の一つにパルス型中性子検出器信号を用いた中性子相関炉雑音測定法がある。本研究においては、近年革新的な技術開発が進む放射線パルス解析機器の一つであるプログラマブルFADCを改良し、高速に時間情報を取得できる炉雑音解析専用の中性子信号時間解析ボードを新規に作製することで5ns以下の高時間分解に対応した測定技術開発を行い、高速炉の未臨界炉雑音解析を可能とすることを目指す。

【研究内容（概要）】

炉雑音解析においてはパルスとパルスの時間間隔を正確に測定することが至上命題であり、パルスの記録に抜け落ちがある場合にはこの時間間隔を誤って算出してしまうことになるため、測定に際してはパルスの数え落としを極力なくすことが求められる。このために、測定器の不感時間を発生させないための画期的な技術として複数バッファー（波形記憶メモリー領域）を駆使した高速なデータ取得方法を採用し、パルス到着時間を5ns以下の精度で抜け落ちなく測定することを目標とする。

炉雑音解析向けに新たに開発を行うプログラマブルFADCでは、中性子検出器からのパルス到着時刻を正確に記述する機能と波形をモニターできる機能を同時に持たせる。また、高時間分解能での定期的な波形データサンプリングも併せて行い、リアルタイムで採られたデータの事後検証も行えるシステムを開発する。

さらに、炉雑音解析の測定精度・統計精度向上のために、連続動作により10万イベント以上の時間情報を一度に取得可能とすることで、炉雑音解析に必要な中性子検出器信号の時間情報を取得し解析を行う。

これらの目標性能を実現するためには、現在の放射線パルス解析機器技術では不十分であり、これをさらに発展させた，パルス処理に関する新規の技術を開発する必要がある。そのため、現在の最も進んだ機器である500MHzFADCを用いての様々な実験・問題点の洗い出し・解決策の検討を繰り返した上で、必要な技術要素を特定し、高速炉における炉雑音解析を可能にするための専用機器（FADCボード）および動作プログラムの開発を行い、高速炉における炉雑音解析のへの適用研究を進める。

本年度はデータ処理プログラム概念を検討、プログラマブルFADCの仕様検討、性能確認予備試験を行った。

【使用主要施設】

福井大学：大学院工学研究科総合研究棟
500MHzFADC 装置（福井大学）
ファンクションジェネレーター（テクトロニクス社製）240MHz 2Gs/s 1ch
ATCA シャーシ（シュロフ）19” 5U 5slot
SpaceCube（シマフジ電機社製）SEMC5701BL
4 連 CF ﾃﾞｨｽｸﾘﾐﾈｰﾀｰ（富士ﾀﾞｲﾔﾓﾝﾄﾞｲﾝﾀｰﾅｼｮﾅﾙ社製）RIS-0330
デジタルオシロスコープ（Recloy 社製）WaveRunner 204MXi 2GHz 10GS/s

大阪大学：大学院理学研究科附属原子核実験施設
500MHzFADC 装置（大阪大学）

原子力機構：高速増殖原型炉もんじゅ
中性子計装 炉雑音解析用比例計数管

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 21 年度は，①高速炉炉雑音解析の高度化に際して必要な高精度中性子飛来時間記録のための FADC の動作プログラムの開発及び②中性子測定用 BF_3 比例計数管の出力信号観測実験（FADC 試作に向けた検討）を行った．

【研究成果（当該年度）】

平成 21 年度の研究成果

本年度は、専用 FADC の試作を進める上で重要な FADC の動作プログラムに関する概念設計の検討を行った．そのために，現在福井大学が所有している FADC（8Ch，500MHz）を使って，時間記録のためのソフトウェアーを開発するため、以下の項目についての検討を行い，専用 FADC の仕様について検討した．

（1）FADC 動作プログラムの開発（プログラム概念の検討）

現在，福井大学内にある FADC システムの動作プログラムは希崩壊波形観測用である．現有のプログラムまたはそのプログラムを変更して時間情報のみの受け渡しを行うものを作製し，FADC プログラムの動作確認試験（FADC の時間分解能他）を目的に試験的なデータ取得を行った．

検討①　FADC の時間特性試験

FADC 自体が大きな時間的揺らぎを持っていると，記録されるパルス到着時間の不確かさの原因と成る．実験では，まず，FADC 自体の記録時間の揺らぎの程度を調べた．実験システムを図 1 に示す．テクトロニクス社製ﾌｧﾝｸｼｮﾝｼﾞｪﾈﾚｰﾀｰ（パルサー）からの矩形出力パルスをデバイダーで 3 つに分け，それぞれを FADC の異なるチャンネル（ch#1, ch#2）とトリガーに入力し，２つのパルス到着時間の差（τ：図 2，図 3）を求め，その時間の揺らぎを検討した（図 4）．この場合の FADC での立ち上がり時間として，ノイズを排除可能なスレッシュホールド電圧を横切る時間を採った．この結果より，実験に用いた 500MHzFADC の時間的不確定性は 160ps 程度であり，求められる時間分解能（5ns）と比較して充分小さいことが確認された．

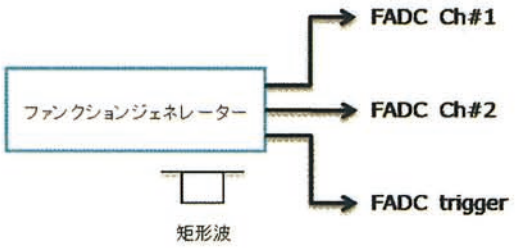


図 1　FADC へのパルス入

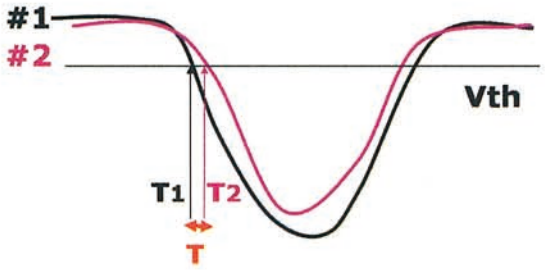


図 2　FADC の時間的揺らぎ T の模式図

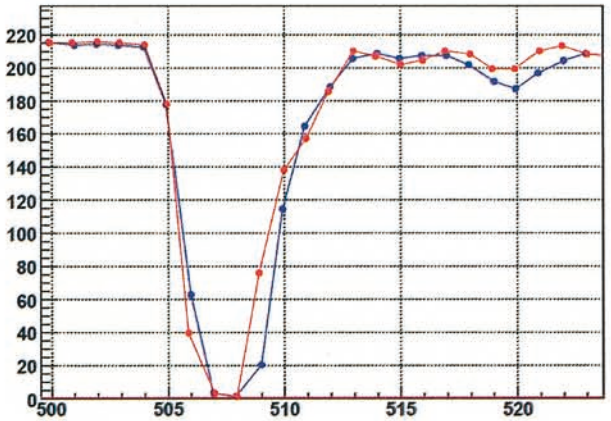


図 3　FADC に記録された 2 つの信号波形の例（同一イベント）

横軸：時間ステップ数（1 が 2ns に対応），縦軸：信号の大きさ（256 が 1V に対応）

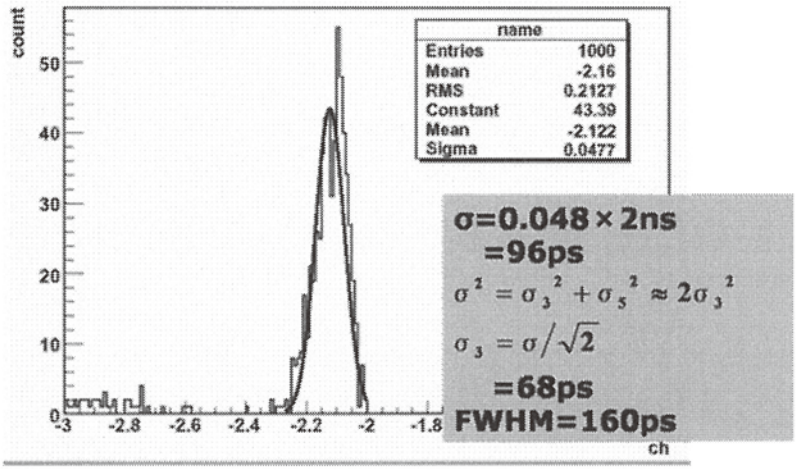


図 4　FADC の時間的揺らぎ T のヒストグラム（パルサー信号）

横軸：時間ステップ数（1 が 2ns に対応），縦軸：カウント数

検討②　タイムスタンプ記録テスト

現有の 500MHzFADC システムは波形の記録ばかりでなく，パルスの到着時刻（トリガー時刻）を各々のパルスについて記録することが可能な使用となっている．このパルス毎の到着時刻（タイムスタンプ）として，外部からのトリガー信号のタイミングを記録するようにプログラムし，各イベントの時刻としてのタイムスタンプをデータ転送 PC（スペースキューブ）に転送し記録するように変更した後に実験によって結果を確認した（表 1）．

表 1　記録されたタイムスタンプの値の例（500Hz 入力時）

event No.	TimeStamp
1	1468715
2	1718707
3	1968702
4	2218697
5	2468692
6	2718687
7	2968682
8	3218677
9	3468670
10	3718665
11	3968660
12	4218655

検討③　トリガーの時間（現在のタイムスタンプ）精度計測

現在使用している FADC は，高エネルギー物理実験希崩壊事象記録用に設計されているため，一つの外部トリガーで全ての入力チャンネル（8ch）を同時にコントロールされる(図 5)．すなわち，1 つのトリガー信号で 8ch の全ての FADC 入力を停止し，次の動作（バッハ-切り替えやデータ書き出し等）を行う．現状では，このトリガーのタイミングがタイムスタンプとして記録されるが，このトリガーのタイミングの精度は 2 つの入力信号の差を測定する実験ではキャンセルされて知ることができないため，一つの信号のみを入力したときのスレッシュホールドを横切る時間を解析してトリガー時刻の不確定性をピックアップする必要がある．このトリガー時刻の不確定性をプラスチックシンチレーター信号を使って計測した．結果を図 6 に示す．1σ の幅として約 3ch 程度（6ns 程度）の幅広い分布となった．

現在のトリガーシステムでは波形の 4 点をひとかたまりとして扱い，その 4 点の中のどれかがスレッシュホールド電圧を超えたときにトリガーを作動させる仕組みとなっているため，この広がり（不確定性）は 4×2ns＝8ns 程度と考えられ，実験結果を説明するものとなった．

この結果により，現在の FADC システムでのタイムスタンプの時間精度は 8ns であると考えられるため，5ns 以下の時間精度を実現する方策を検討した。その結果、次の 2 つのうちのいづれかの方法をとることで改善させることとする．

1．新しいトリガーシステムの導入
　4 点一括処理ではなく 2 点または 1 点でのトリガータイミング処理とする方式への改善（時間精度＝4ns または 2ns）
2．新タイムスタンプ＝トリガー時刻＋パルスの立ち上がり時間の補正
　トリガー時刻（現在のタイムスタンプ時刻）に波形データから得られる立ち上がり時間の補正を加えた時刻を改めてタイムスタンプとして定義する．（図 7）

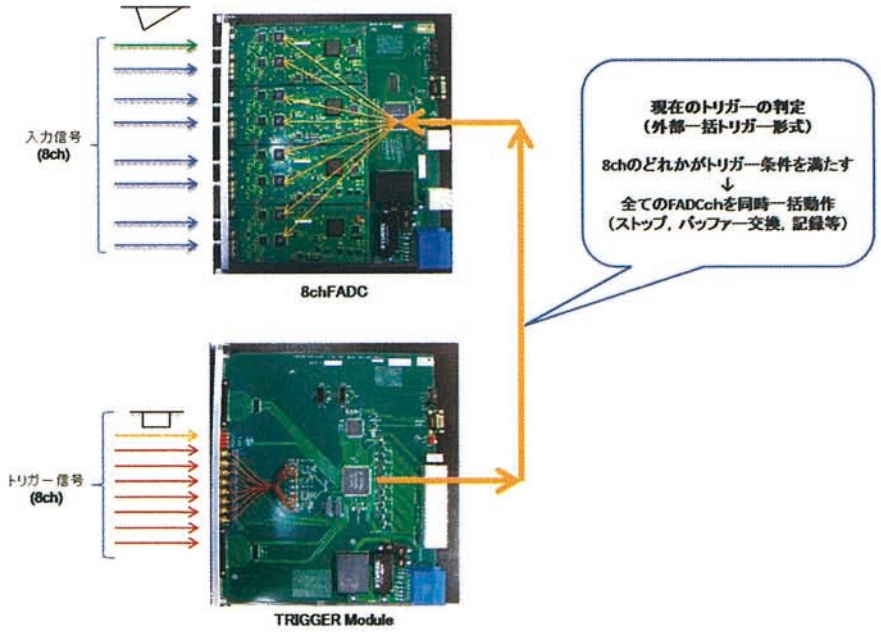


図 5　現在のトリガーの動作システム

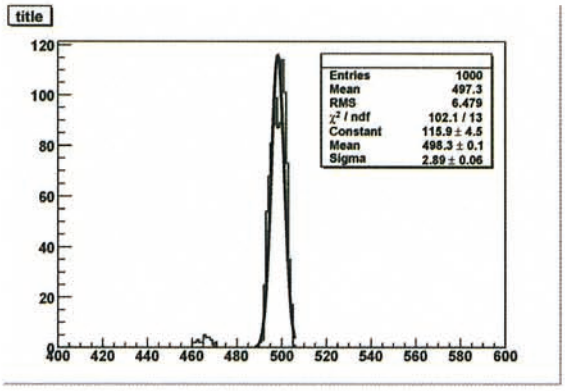


図 6　トリガー時刻の不確定性

横軸：時間ステップ数（1 が 2ns に対応），縦軸：信号の大きさ（256 が 1V に対応）

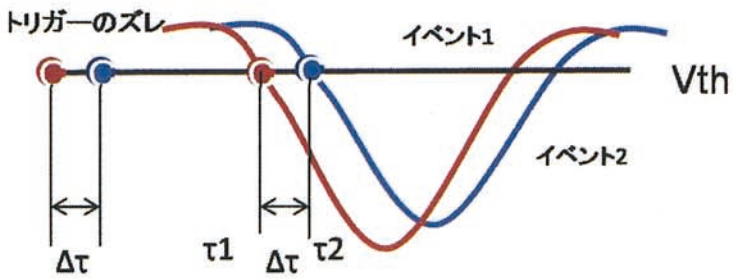


図 7　トリガー時刻の不確定性の補正方法□

イベント毎に立ち上がり時刻 τ を求め補正する．

検討④　入力パルスの頻度と FADC の応答性試験

高速炉未臨界炉雑音測定を行うには，比例計数管からの中性子信号を漏れなく捉え，それぞれの信号発生時刻を精度良く記録しなければならない．本研究に用いる FADC は各チャンネルに対して 3 つの波形記録用バッファーが搭載されているため，希崩壊事象観測用としては 15Hz までの入力信号であればデッドタイムレスで波形記録が可能となっている．しかしながら，今回の実験に使用するタイムロガーとしての仕様として 1 kHz での記録を求められているため，波形記録の一部を合理化し記録速度を上げる必要がある．

希崩壊波形記録用の仕様では 15Hz が上限であったが，FADC の情報読み出し PC（スペースキューブ）内のデータ読み出しプログラムを改良し，さらなる高速読み出しを試みた．実験にはファンクションジェネレーターからの矩形波を用いた．

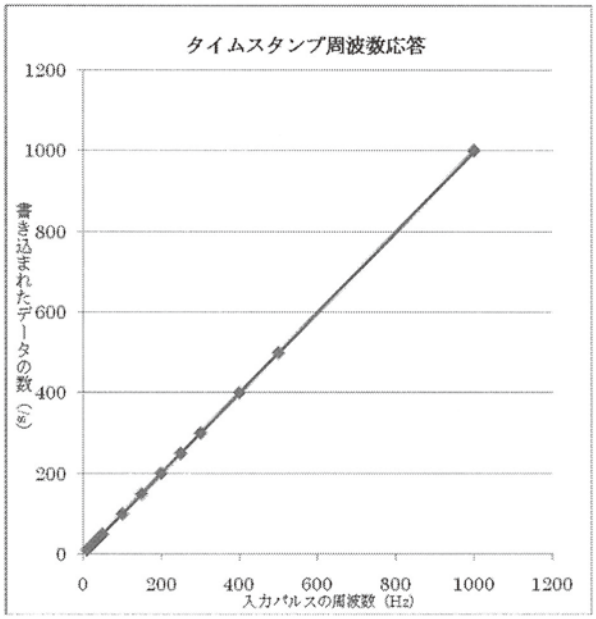


図８　タイムスタンプ記録の周波数応答性

今回，タイムスタンプの書き込み速度を向上させるために，改善点は次の通り．

１．FADC データ読み出しプログラムの合理化（サブルーチンの回避）

２．スペースキューブから記録用 PC への書き込みの合理化
（毎イベント転送から 4096 個の配列要素への書き込み後まとめて転送）

この２つの改善を行ったところ，FADC―PC のタイムスタンプデータ転送速度として、1kHz での動作が可能となった（図 8）．
しかしながら，タイムスタンプの時間分解能 5ns を達成させるための時間補正をリアルタイムにイベント毎に行った上で，1kHz でのデータ書き込みを満足させるためには，さらなる実験的検討が必要であり，トリガー形式の見直しと併せて今後の検討課題とした．

（２）専用 FADC の試作に向けた検討

未臨界測定に使用可能な FADC を新たに設計し製作するために，FADC に求める仕様を検討し，その結果，

・１ｋHz の頻度の比例計数管の出力パルスの時間を記録できること．
・極力数え落としのないシステムを構築すること．
・記録する時間の時間分解能は 5ns 以下とすること．
・最低２つの比例計数管の信号を独立に記録できるようにすること．

とすることを確認した．

また、「もんじゅ」性能試験にて取得される比例計数管の出力波形に特化した炉雑音測定専用 FADC の基本仕様を定める必要があるため、専用 FADC の設計・試作にあたり、以下の検討を行った．

①比例計数管の信号について

上に記述してきたように．検出器内の放射線イベント発生時刻の正確な特定には，検出器からの信号パルスを良く観察し，必要に応じた適切な増幅，微分・積分処理と適切なスレッシュホールド電圧の設定等が必要となる．「もんじゅ」性能試験用に設置され本研究に使用する中性子検出器は，セントロニック社製 B-10 被覆型比例計数管であるが，本器は既にもんじゅ格納容器内に保管されているため，その出力信号を直接測定す

ることは難しい．したがって，パルス特性が類似であり、福井大学所有の BF_3 比例計数管の信号を観測し，そのパルス形状を観察することで，中性子比例計数管を使った時間計測に必要な検討事項を抽出することにした．

使用した検出器は，BF_3 比例計数管（直径 2 インチ，長さ 10 インチ）で印可電圧 2kV とし，プリアンプからの出力波形を，オシロスコープ（テクトロニクス TDS3054B）を用いて観察した．代表的な検出器出力信号を図 9(a)(b)に示す．

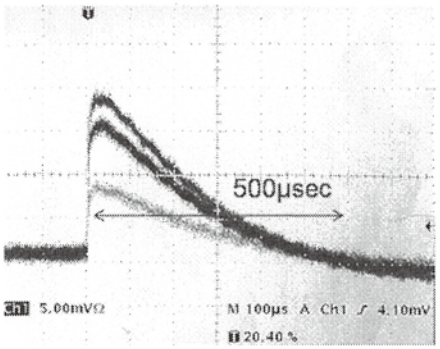


図 9(a)　BF_3 比例計数管の出力信号

3 イベント分を示す．

（横軸は 100μs/DIV，縦軸は 5mV/DIV）

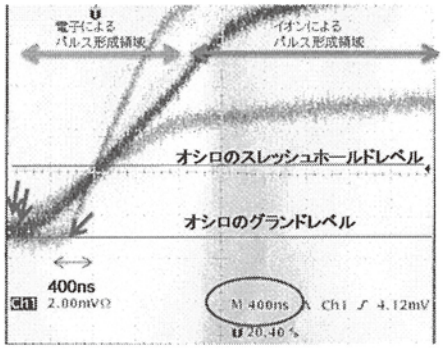


図 9(b)　BF_3 比例計数管の出力信号

立ち上がり部分を拡大したもの．

3 イベント分を示す．立ち上がり部は赤↓

（横軸は 400ns/DIV，縦軸は 2mV/DIV）

図 9(a)により，正の放電パルスで減衰時間が約 500μs のパルスであることがわかる．立ち上がり部分を拡大したものを図 9(b)に示すが，代表的な 3 つのイベントの信号パルスは，赤矢印で示すパルスの立ち上がり部からオシロスコープのスレッシュホールド部分までの時間がイベント毎にそれぞれ大きく異なっていることがわかる．

したがって，イベントの発生時刻を精度良く同定し記録するためには，信号パルスのごく初期の部分を捉えることが必要で，そのためには，できるだけノイズの少ない検出器信号を得ることが重要となることが明らかとなった．

この結果は，BF_3 比例計数管によるものであり，実際の測定用のものではないが，「もんじゅ」炉心近傍に設置されている B-10 被覆型比例計数管の仕様では，立ち上がり時間は 500ns 以内となっているため，今回のこの結果に比べ速いパルスであると考えられるが，なるべく早い時期に実際の信号を観察し，時間計測のための詳しい検討を行う必要がある．

（3） 平成 21 年度のまとめ

1．FADC 動作プログラムの開発（プログラム概念の検討）

FADC の時間記録性能に関する検討を行い，下記の事柄が確認された．

① FADC 自体の時間的揺らぎは 160ps 程度であり，無視できる大きさである．

② 従来の FADC データ処理を改良することにより、1kHz の頻度でのタイムスタンプ取得の見通しを得た。
ただし、最終的には、5ns 以下時間分解能でのタイムスタンプとの組合せによってこの処理速度を達成する必要があるため，タイムスタンプの高精度化・高速処理化と併せてさらなる実験的検討が必要である。

③ タイムスタンプ（時間情報）は取得できたが，現在のタイムスタンプの時間精度は 8ns であり，今後 5ns 以下の時間分解能に向けた改善を行う必要があることを確認した．

2．専用 FADC の試作に向けた検討

中性子測定用 BF_3 比例計数管の出力信号を観測し，下記の知見を得た．

① 中性子飛来時間としては，検出器出力信号の立ち上がりのできるだけ速い部分を取り上げる必要がある．

② 比例計数管の信号の立ち上がり時間は比較的遅いので，実際の測定用 B-10 被覆型比例計数管の信号を観測し検討を行った上で，測定に際してはノイズを低減させた環境で良質な信号を得る必要がある．

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

今後の研究予定を下に示す．

＜平成 22 年度＞

タイムスタンプの高精度化と炉雑音解析用新型多 chFADC の製作

① 現在の 8ns 精度のタイムスタンプを 5ns 以下とするため，タイムスタンプの取得方法を改善する．この際，トリガー方法を刷新して 2ns 精度でのトリガー手法に改めるか，補正によってタイムスタンプ精度を上げるかについて協議し，タイムスタンプ取得方法に関する詳細な仕様を決定する．

② 現在の多チャンネル同時トリガーシステムから多チャンネル独立トリガーシステムに FPGA システムを変更・改善し，そのためのプログラムを構築し，動作確認を行う．

③ 原子炉建屋内での測定に考慮した，小型な炉雑音解析用新型 FADC を設計し製作を行う．

④ 製作した機器の動作プログラムを開発し動作確認テストを実施する．

⑤ 実験室内で平均計数率 1kHz の環境を作り，新型 FADC システムの連続動作試験を行う．

B10 コーティング比例計数管信号の波形観察

① もんじゅデータ取得用 B10 コーティング比例計数管の実信号を観測し，信号パルスの時間構造について検討を行い，適正な時間情報取得方法について検討する．

② 必要に応じて実験室で利用できる B10 コーティング比例計数管を準備し，FADC システム等を適用してデータ収集をテストする．

＜平成 23 年度＞

炉雑音測定用 FADC を用いた炉雑音測定実験

もんじゅに設置された炉雑音測定用比例計数管からの信号を，炉雑音測定用 FADC にて測定し，データ収集プログラムおよび解析方法等に関する検討を行う．
収集されたデータを用いてもんじゅの炉雑音解析を実施する．

【研究成果の公表】

＜国内会議＞

1) 平成 21 年度日本物理学会北陸支部会（平成 21 年 12 月 5 日　金沢大学）E-p2.
シンチレーション検出器信号処理用ＦＡＤＣの時間分解能と処理速度の向上
福井大工，大阪大理A，　藤原直生，水谷大希，玉川洋一，能町正治A，味村周平A

＜国際会議＞

1) NEMO and SuperNEMO collaboration meeting paris, 26-29 October 2009
“ Status of Fukui University - Time resolution of 500MHzFADC - “
Yoichi Tamagawa
http://nemo.web.lal.in2p3.fr/meetings/paris2009/index.html