JAEA-Review 2015-014 DOI:10.11484/jaea-review-2015-014



# 先行基礎工学研究に関する平成26年度研究概要報告

Brief Report of the JAEA Cooperative Research (A) on the Nuclear Fuel Cycle for 2014

(編)連携協力課

(Ed.) R&D Cooperation Section

研究連携成果展開部 Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department **KPVIPN** 

August 2015

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

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

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 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 Institutional Repository Section,

Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department, Japan Atomic Energy Agency.

2-4 Shirakata, 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, 2015

#### 先行基礎工学研究に関する平成26年度研究概要報告

日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 (編)連携協力課

#### (2015年5月28日 受理)

日本原子力研究開発機構(以下「機構」という。)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26年度で20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26年度に実施した高速増殖炉関係、放射線の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7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、7件の研究協力課題のうち、高速増殖炉関係の3件、放射線の安全 関係の1件及び地層処分・地層科学関係の2件の合計6件については平成26年度で終了した。

#### JAEA-Review 2015-014

## Brief Report of the JAEA Cooperative Research (A) on the Nuclear Fuel Cycle for 2014

(Ed.) R&D Cooperation Section

Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department Japan Atomic Energy Agency Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 28, 2015)

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 2014 was the twentieth 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 2014 on 7 research collaboration subjects for preceding basic engineering research related to fast breeder reactors, radiation safety and geological disposal/geoscience; six of which ended in 2014. Of these, four were related to fast breeder reactors, one to radiation safety, and two to geological disposal/geoscience.

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

## 目 次

1. 先行基礎工学研究に関する平成 26 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 26 年度研究概要報告	<b>5</b>
2.1 高速増殖炉関係	7
<ul> <li>2.1.1 計算科学的手法を用いた新型燃料における拡散係数の評価</li> <li>2.1.2 レーザー融解を用いた燃料融点評価法の開発</li> <li>2.1.3 イオン/電子線照射による高 Ni 化したオーステナイト鋼のスエリング特性評価と</li> </ul>	$9\\12$
モデル化による機構解明	16
2.1.4 マイクロ波を用いた広域一括探傷技術のナトリウム炉伝熱管への適用	20
2.2 放射線の安全関係	25
2.2.1 軽水炉のシビアアクシデント防止のためのアクシデントマネージメント 評価手法に関する研究	27
2.3 地層処分·地層科学関係 ·····	31
2.3.1 天然環境中の微量元素を指標とした地下深部の酸化還元環境の変遷	33
2.3.2 熱水変質鉱物を用いた熱水変質帯の年代測定と活動性評価に関する研究	38

## Contents

1.	Research	theme list by the JAEA Cooperative Research (A) on the Nuclear	
	Fuel Cyc	cle for 2014	1
2.	Brief rep	ort of the JAEA Cooperative Research (A) on the Nuclear Fuel Cycle for 2014	5
2	.1 Fast B	reeder Reactor	7
	2.1.1	Diffusion coefficient evaluation for advanced fuels using a computational method $\cdots$	9
	2.1.2	Development of fuel melting point evaluation method using laser melting	12
	2.1.3	Modeling of void swelling behavior depending on initial nickel contents in	
		high-nickel austenitic stainless steels irradiated by ions and electrons	16
	2.1.4	Application of a long-range inspection method using a microwave to the steam generator tubes in JSFR	20
2	.2 Radiat	tion Safety	25
	2.2.1	Study on the analysis methods of the preventive accident management measures	
		for LWR s	27
2	.3 Geolo	gical Disposal / Geoscience	31
	2.3.1	Reconstruction of subsurface paleo-redox conditions based on naturally occurring	
		trace elements	33
	2.3.2	Research on dating and activity evaluation of hydrothermal alteration zones using hydrothermal altered minerals	38

1. 先行基礎工学研究に関する平成 26 年度研究協力課題一覧

This is a blank page.

平成 26 年度先行基礎工学研究協力課題一覧

No.	研究協力テーマ	機構側	機構側	協力	提案者	研究
1	高速炉燃料挙動評価のための物性 <u>データ評価手法の高度化</u> 計算科学的手法を用いた新型燃料におけ る拡散係数の評価	大洗センター 福島燃材部 燃料試験課	佐藤勇	共同 研究	九州大学大学院 工学研究院 エネルギー量子工学部門 助教 有馬 立身	H24 年度 ~ H26 年度
2	<u>高燃焼度燃料の融点評価の高度化</u> レーザー融解を用いた燃料融点評価法の 開発	大洗センター 福島燃材部 燃料試験課	廣沢孝志	共同 研究	九州大学大学院 工学研究院 エネルギー量子工学部門 准教授 稲垣 八穂広	H24 年度 ~ H26 年度
3	高 Ni 化したオーステナイト鋼の耐照射 <u>性向上に関する機構論的解釈の研究</u> イオン/電子線照射による高 Ni 化した オーステナイト鋼のスエリング特性評価 とモデル化による機構解明	大洗センター 福島燃材部 材料試験課	関尾佳弘	共同 研究	北海道大学大学院 工学研究院 エネルギー・マテリアル融合 領域研究センター 准教授 坂口 紀史	H24 年度 ~ H26 年度
4	反射波の TOF に基づく伝熱管の高効率 検査技術の開発 マイクロ波を用いた広域一括探傷技術 のナトリウム炉伝熱管への適用	次世代センター 高速炉安全部 構造材料 信頼性評価 Gr	若井隆純	共同 研究	東北大学 大学院工学研究科 量子Iネルギー工学専攻 教授 橋爪 秀利	H25 年度 ~ H27 年度
【放射	村線安全関係】					
5	軽水炉のシビアアクシデント防止に 関する研究 軽水炉のシビアアクシデント防止のため のアクシデントマネージメント評価手法 に関する研究	安全研究センター 原子炉安全 U 熱水力安全 Gr	与能本 泰介	共同 研究	福井大学 附属国際原子力工学 研究所 所長·教授 安濃田 良成	H24 年度 ~ H26 年度
【地層処分・地層科学関係】						
6	地下深部における酸化還元環境の長期的 <u>な変化に関する研究</u> 天然環境中の微量元素を指標とした地下 深部の酸化還元環境の変遷	東濃センター 地科学研究部 結晶質岩地 質環境 Gr	岩月輝希	共同 研究	東京大学 理学系研究科 地球惑星科学専攻 准教授 鈴木 庸平	H24 年度 ~ H26 年度
7	精密調査段階における自然現象の活動性 <u>評価に関する研究</u> 熱水変質鉱物を用いた熱水変質帯の年代 測定と活動性評価に関する研究	東濃センター 地科学研究部 ネオテクトニクス Gr	花室孝広	共同 研究	金沢大学 環日本海域環境 研究センター 准教授 長谷部 徳子	H24 年度 ~ H26 年度

This is a blank page.

# 2. 先行基礎工学研究に関する平成 26 年度研究概要報告

This is a blank page.

# 2.1 高速增殖炉関係

This is a blank page.

2.1.1 先行基礎工学研究に関する平成 26 年度研究
------------------------------

研究協力テーマ	高速炉燃料挙動評価のための物性データ評価手法の高度化
研究協力課題	計算科学的手法を用いた新型燃料における拡散係数の評価 -Diffusion coefficient evaluation for advanced fuels using a computational method-
研究者所属、氏	名
大学側	九州大学大学院 工学研究院 エネルギー量子工学部門 助教 有馬 立身
機構側	福島研究開発部門 大洗研究開発センター 福島燃料材料試験部 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 ウエスト2号館 915-1 機構側: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24年4月~     当該年度     平成26年4月~       平成27年2月     研究期間     平成27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】	

安全で効率的な燃料サイクルの実現には、幅広い条件(温度、組成、燃焼度など)での燃料物性の評価が必要である。しかしながら、照射挙動評価に必要な酸化物燃料内の拡散係数に関しては、炉内での燃料が高温であり、マルチサイクルで想定されている燃料では放射性のアクチニド元素・FP元素を含むため、実験的な取得が困難である。本研究では、燃料挙動評価及び燃料挙動解析コード開発に資することを目的として、酸化物燃料内U、Pu及びFPの拡散係数に関して分子動力学法を用いて評価手法を確立し、系統的に整備していくことを目指す。

【研究内容(概要)】

酸化物燃料中のアクチニド元素の拡散係数を分子動力学法で評価する基本的な手法は、パラ メータ(対象元素、体系等)は十分でないものの、JAEA と九州大学の間の共同研究(H20~22 年度)にて得ている。本研究では、この基礎的知見をもとに、対象元素等を拡張し、その評価 手法を確立する。

研究内容としては、分子動力学計算で必要なポテンシャル関数のうち高温領域で適用性に 優れた関数の検討及びこのポテンシャル関数を用いた MOX 燃料中における U 及び Pu の拡散 係数の評価を実施する。また、拡散元素を核分裂生成物(以下、FP)元素 Zr、Ba、Sr 及び Nd に拡張し、UO<sub>2</sub>中における Zr、Ba、Sr 及び Nd の拡散係数を分子動力学計算で導出する。こ こで得られた FP の拡散係数を他の研究結果と比較することで本評価手法の妥当性を確認す る。

【使用主要施設】(原子力機構)

○パーソナルコンピュータ:ドスパラ製 Galleria HX-SLI ガレリア(CPU:Core i7-3770、マザ ーボード:ASRock Z77 Extream6(Z77 Express ATX マザーボード)、メモリ:DDR3-SDRAM (PC-3-12800) 8GB、グラフィック機能:【SLI 接続】GeForce GTX660、SSD:インテル 120GB(520 シリーズ)、HDD:1TB HDD (SATA3))

○MD 法シミュレーションコード MXDORTO(平尾一之ほか「パソコンによる材料設計」裳華房(1994))

【進捗状況(当該年度までの概要)】

本研究では、アクチニド酸化物中のアクチニド元素の拡散挙動及びアクチニド酸化物中の FPの拡散挙動に関して分子動力学計算(以下、MD)を用いて評価した。

平成 24 年度は、計算評価を JAEA でも行うことができるように環境の整備(PC の購入、必要なソフトの購入等)及び計算手順の確認・習熟を行った。また、文献データ等を用いて高温 領域での実験データに関して再現性の良い U-O ペアのポテンシャル関数の見直しに着手した。

平成 25 年度は、昨年度に引き続き計算環境の整備を行うとともに、高温領域での計算に適合するようなポテンシャル関数を構築した。また、UO2中における FP の燃料中での拡散係数を導出する方法を検討した。

平成 26 年度は、UO2 中における FP 元素のポテンシャル関数を検討するとともに、拡散係数を導出し、FP 元素と U の拡散係数の温度依存性における差異について検討し、他の計算評価との整合性を確認した。

【研究成果 (当該年度)】

## 1. UO2 中における Zr、Ba、Sr 及び Nd の拡散係数

照射燃料内に存在する核分裂生成物(FP)元素は、その元素に応じて燃料結晶内に固溶する元素と析出する元素に分けられる。文献[1]のように FP の燃料に対する固溶度が報告されているが、照射済燃料中の FP 元素の挙動をすべてうまく説明できるものではない。例えば、高速炉燃料で比較的燃焼度が高いときに観察される Zr-Ba-Sr 系複合酸化物に関しては、文献[2]などで報告され、析出過程に関しては文献[3]で議論されているが、データが限られていることや炉外試験などでの再現が難しいことなどの理由により、詳しい析出メカニズムは分かっていない。このメカニズムを考察する上で、燃料結晶内の Zr、Ba 及び Sr の拡散係数を評価することはその一助になると考えられる。そこで、本研究では FP 元素として Zr、Ba、Sr に Nd(典型的に燃料に固溶する元素とされる)を加えて、UO<sub>2</sub> 中におけるこれらの元素の拡散係数をMD を用いて導出した。

## 1.1 Zr-O、Ba-O、Sr-O 及び Nd-O のポテンシャル関数の検討

これらの元素の安定な酸化物形態は、 $ZrO_2$ 、BaO、SrO 及び  $Nd_2O_3$ である。 $ZrO_2$ は、高温 で  $UO_2$  と同様の蛍石型の結晶を形成する。また、Nd は燃料に高い溶解度で固溶することが知 られているため、 $UO_2$ 内に置換型で入り込む可能性が高い。一方で Ba 及び Sr は、価数、結 晶系等に関して  $UO_2$  とは大きく異なっている。しかし、燃料内で発生する FP 元素は、単独 で生成する上に多くの酸素原子の中に介在する点を考えると、ミクロ的にはそれぞれの原子は 酸素との相互作用のみに注目することで  $UO_2$  内での挙動を模擬することができると仮定し た。したがって、Zr、Ba、Sr 及び Nd のいずれの元素においても対酸素におけるポテンシャ ル関数を適切に設定すれば、 $UO_2$ 中の拡散係数を評価することができると考えた。

Zr-Oのポテンシャル関数に関しては、九州大学における評価[4]で得られたパラメータz、a、 b及びcを使用した。一方、Ba、Sr及びNdのポテンシャル関数は、Pedone[5]らが分子動力 学計算コードGULPを用いて半経験的(弾性率、格子エネルギー、等の物性値との比較)に決定 したものを用いた。しかし、Pedoneらが用いたポテンシャル関数は、

$$U(r_{ij}) = \frac{z_i z_j e^2}{r_{ij}} + D_{ij} \left[ \left\{ 1 - \exp\left(-a_{ij} \left(r - r_o\right) \right) \right\}^2 - 1 \right] - \frac{c_i c_j}{r_{ij}^{12}}$$
(1)

という関数形をとっており、本 MD 計算で使用している式([4]の式型)のパラメータを直接得る ことはできない。そこで、結合に強く関与する電子が存在する原子核中心からある一定の領域 (ポテンシャルエネルギーが負となる)で式(1)と[4]の式型の差がもっとも小さくなるパラメー タ a、b 及び c の値を試行錯誤的に取得した(z(部分価数)は、Pedone の設定を用いた)。Zr-O 以外のポテンシャルエネルギーは、[4]の式型で Pedone[5]のポテンシャルエネルギーをよく表 現できた。一方で、Zr-O に関しては、Pedone[5]のポテンシャルエネルギーを[4]の式型で表 現できなかったため、前述のとおり、[4]のパラメータを使用した。

#### 1. 2 UO<sub>2</sub>中における Zr、Ba、Sr 及び Nd の拡散係数

5×5×5セルの UO<sub>2</sub>中に 5%の FP 元素を導入するとともに、10ペアのショットキー対(ウ ラン1個の空孔と酸素 2 個の空孔の対)を導入した。Zr の場合、U と同じ4価であるため必要 ないが、Nd 及び Ba/Sr の場合電気的中性を保つため、それぞれ FP 元素 1 個につき 1.5 個及 び1 個の酸素を取り去った。このような体系で 50000 ステップ以上の緩和計算を行い、格子 定数の安定を確認した後に、100000 ステップの本計算を実施した(1 ステップ 2×10<sup>-15</sup>s)。温 度条件 1727℃、1927℃、2127℃、2327℃、2527℃及び 2727℃の 6 通りについて計算を実施 した。MD 計算結果から平均二乗変位評価を経て、それぞれの条件における拡散係数を導出し た。得られた拡散係数では、価数が小さく、ポテンシャル関数が浅い元素ほど低温領域におけ る拡散係数が大きい傾向を示し、価数の低い金属 FP は燃料結晶内で比較的速く移動すると考 えられる。一方、4 価の Zr の拡散係数は U とほぼ同じであったことから、置換型で安定的に 格子にとどまる原子は U と同様の移動挙動を示すことが予測される。

UO<sub>2</sub>中における FP の拡散係数を実験的に評価した例は多くは無いが、最近、Perriot ら[6] は、第一原理計算を用いて評価を行っている。ここで得られている Zr、Sr 及び Ba の拡散係 数は絶対値が極めて小さく、直接の比較はできないものの、2 価の Sr や Ba のほうが 4 価の Zr よりもいずれの温度でも拡散係数が大きいという本研究と同様の傾向が見られた。

#### 2.まとめ

平成 26 年度は、UO2中の Zr、Ba、Sr 及び Nd の拡散係数をいくつかの仮定のもとに評価 し、本方法での評価の可能性を示すことができ、他の研究との整合性も確認することができた。 今後は、燃料中の FP の拡散係数を導出する際に仮定した内容をより詳細に検討し、本方法 での導出の妥当性を確認する。また、得られた FP の拡散係数を用いて、照射燃料内で見られ る FP 挙動のメカニズムを検討していく。

参考文献

- H. Kleykamp, "The Chemical State of The Fission Products in Oxide Fuels" J. Nucl. Mater., 206 (1993) pp.82-86.
- K. Tanaka et al., "Thermal conductivity of BaPuO<sub>3</sub> at temperatures from 300 to 1500 K" J. Nucl. Mater., 414 (2011) pp.316-319.
- [3] I. Sato et al., "Behavior of Fission Products Zirconium and Barium in Fast Reactor Fuel Irradiated to High Burnup" J. Nucl. Sci. Technol. 36 (1999) pp.775-760.
- [4] T. Arima et al., "Evaluation of thermal conductivity of zirconia-based inert matrix fuel by molecular dynamics simulation" J. Nucl. Mater., 352 (2006) pp.309-317.
- [5] A. Pedone et al., "A New Self-Consistent Empirical Interatomic Potential Model for Oxides, Silicates, and Silica-Based Glasses" J. Phys. Chem. B 110 (2006) pp.11780-11795.
- [6] R. Perriot et al., "Diffusion of Zr, Ru, Ce, Y, La, Sr and Ba fission products in UO<sub>2</sub>"
   J. Nucl. Mater., 459 (2015) pp.90-96.

#### 【成果の反映状況】

本研究による成果は、燃料照射挙動解析コード等に反映していく予定としている。

【研究成果の公表】

なし(平成27年度、学会での報告及び論文化を実施予定)

2.1.2 先行基礎工学研究に関する平成 26 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	高燃焼度燃料の融点評価の高度化
研究協力課題 レーザー融解を用いた燃料融点評価法の開発 Development of fuel melting point evaluation method using laser	
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 准教授 稲垣 八穂広
機構側	福島研究開発部門 大洗研究開発センター 福島燃料材料試験部 燃料試験課 廣沢 孝志
研究実施場所	九州大学:伊都キャンパス ウエスト2号館 915-1 機構側: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24年4月~     当該年度     平成26年4月~       平成27年3月     研究期間     平成27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】	

照射後燃料の融点は、燃料仕様における出力制限等を決定する重要な物性である。レーザー融解を用いた融点測定では、カプセル封入法等の従来の融点測定方法における課題(例えば、加熱中の相変化、試料調製の複雑化、測定期間の長期化、廃棄物発生量)を克服した効率的な評価が期待できる。本研究は、レーザー融解を用いた融点測定の基本技術開発(レーザー加熱、放射温度測定、放射率測定等)及びその技術を実燃料(高燃焼度燃料等)に適用する技術開発の基点とする。

【研究内容(概要)】

これまでの燃料融点評価の知見を用いて、高出力パルスレーザー、高速応答放射温度計、 放射率測定装置等により構成する、レーザーを熱源とした融点測定手法の技術的成立性を評価 するとともに、照射燃料の融点評価に適用できる技術となるような検討を行う。

特に本研究では、温度測定技術として、融点と放射率を同時に測定する技術の検討を行い、 短時間で高精度の融点測定が可能となるシステムの構築を目指すとともに、高速度カメラによ り、温度測定で得られた融点と溶融現象の相関を可視化により観察する方法の適用性を確認す る。

## 【使用主要施設】

パルスレーザー加熱式融点測定システム(九州大学)

- ・Nd-YAG レーザー : 出力 10J/pulse、スポット径 ø 1mm~
- ・単色型赤外線放射温度計 : 測定径 0.3mm、応答時間 6 µ s
- ・二色型赤外線放射温度計 : 測定径 φ 0.4mm、応答時間 2ms
- ・積分球 : インフラゴールド (IG)、内径 6 インチ、5 ポート
- ・セラミックヒーター: 5×5mm、1000℃Max
- ・データ収集装置 (DAQ): 10MHz、4 チャネル同時サンプリング

#### 【進捗状況(当該年度までの概要)】

本研究では、主な研究項目として①熱停留点を評価できる測定システムの構築、②測定試料の放射率評価手法の検討、及び③熱停留点と放射率の多重測定システムの開発と実燃料への 適用性検討がある。

平成24年度は、①の熱停留点測定システムとして、パルスレーザー加熱による短時間測定の基本システムを構築し、金属試料及びセラミック試料を供試材として明瞭な熱停留点(融点) を得るための各機器の選定、調整、最適化作業等を実施した。

平成25年度は、②の放射温度計測温において正確な温度を決定するのに必要となる供試材の放射率評価手法の開発について、積分球を用いたシステムによる放射率評価手法を構築した。また、セラミックスを用いた融点測定における熱停留点の更なる明瞭化や熱衝撃による試料の破砕を抑制する手法として、試料裏面加熱手法を考案し有効性を確認した。

平成26年度は、③の研究項目として、加熱用パルスレーザー照射中(融点測定中)に試料の放射率(=1-反射率)を同時測定するシステムの検討及び性能確認試験を実施した。また、 照射後燃料等実燃料の融点評価に向け、試料加熱時の蒸発等による組成変化を抑制する高圧セル内測定の実現性の検討及び核燃料を取り扱う上での技術開発課題等の抽出を行った。

【研究成果(当該年度)】

#### 1. 熱停留点(融点)と放射率の多重測定システムの検討

融点・放射率測定装置は、積分球、パルス YAG レーザー、単色放射温度計、プローブレー ザー、光チョッパー、反射光検出器から構成される。熱停留点と温度測定波長の分光放射率の 同時測定では、積分球内に置かれた試料表面に、チョッパーを用いて変調したプローブ光と Nd:YAG レーザーを同箇所に照射する。この時、凝固時の熱停留点におけるプローブ光からだ けの反射(拡散)光強度を光検出器の出力から算出し、反射率既知の標準試料と未知試料との 反射光強度の比から反射率  $\rho$ を求める。この値から融点における放射率( $\epsilon = 1 - \rho$ )を導出し、 単色温度計の測定温度を補正することで正確な融点を得る。プローブ光は単色放射温度計の検 出波長(中心波長)に対応した波長 1.625 µm の低出力レーザー(数百 mW)を使用した。

本研究では、プローブ光をレーザーダイオードから直接集光することにより、プローブ光の出力強度を上げたこと、加えてバンドパスフィルタ(中心波長 1.625µm 半値幅:0.050µm)を用いて高温の試料からの放射光を抑えることで試料の熱停留点との同時測定(多重測定)を試みた。

(1) 測定試料

測定試料には約3mm×3mm、厚さ0.05mmのPtを用いた。当初、黒色セラミックスを 用いた試験を試みたが、試料からの熱放射の影響が大きく、プローブレーザーの矩形波を捉え ることができなかった。そこで、放射率が低く、低融点の材料を選択することにより、試料か らの放射の影響を小さくして実験を行った。試料としてPtを選択したのは、現段階では、積 分球を用いた測定手法での不活性ガス雰囲気への置換は困難なため、大気中加熱でも酸化しな い材料であるためである。

(2) 測定結果と課題

測定を実施した結果、低融点、高反射率の Pt を試料としても、熱停留点との同時測定においては、プローブレーザーの反射光(矩形波)を明確に捉えることができなかった。そこで、 プローブレーザーの高出力化の改造を実施した。高出力化後での測定の結果、熱停留点が確認 できる温度履歴曲線を得ることが可能となった。

熱停留点における光検出器の出力値について、バックグラウンドを二次曲線で近似し、プローブ光による出力増加量を算出し、これを反射率標準試料(SRS-99)の測定により検量線を引き、未知試料の反射率を求めた。その結果、Ptの融点での放射率はε=0.273となり、この値を用いて単色温度計で測定された融点を補正すると、2008 Kという結果が得られた。文献値の2041 Kと比較的良い一致を示した。

以上の結果から、積分球を用いた融点・放射率同時測定においては、セラミックスに適用 していくためには、更なるプローブ光の出力上昇が必要であり、また、受光素子側のバンドパ スフィルタについても、プローブレーザーの波長以外を受光素子に入射させないために、更な る狭帯域化が必要であることが分かった。また、同時測定時の照射位置合わせは非常に繊細な 作業が必要であることから、操作性向上策の検討等を進める必要がある。これらの改良を実施 することにより、セラミックスへの適用が可能となると考える。

2. 実燃料(照射後、未照射試料)への適用の検討

本研究で開発している融点測定システムはセラミックスに適用するには、上述したように放 射率測定を主体に課題がある。そのような中で実燃料、特に照射後燃料への適用性を検討する 段階に至っていないと考える。しかし、本測定手法は実燃料を測定するうえで、その測定の簡 便性や局所測定が可能など、多くの魅力があり、前述してきた課題を解決することにより有効 な測定システムとなり得る。

本測定システムをグローブボックスやセル内への設置を考えた場合に新たに必要な主要検討課題を以下に示す。

(1) レーザー、温度計等の汚染環境外への配置の検討

放射温度計、高速度カメラ等は非接触式センシングの機器であり、パルスレーザーも含めて 試料に対してガラス越しのレイアウトが可能である。例えば、グローブボックス(GBという。) の場合、専用の GB を製作することを前提にすれば、GB の側面に試料セルが入る大きさの箱 状の突起を設け、箱の外側(GB の外)に上述の機器をレイアウトし、箱の中(GB の中)に GB 内からアクセスできる試料セルを設置するレイアウトする。このようなレイアウトができ れば、機器のメンテナンスは非常に容易になり、GB 内へ入れる機器も非常にコンパクトにで きる。但し、本研究で使用している現状の各機器は、焦点距離は短く、このようなレイアウト を実現するには一定の焦点距離が必要となるため、専用機器としての改造が必要となってく る。

一方、遮蔽セル内ヘレイアウトする場合も、セル内に気密ボックスを置く方式(セルボック ス方式)であれば、GB方式と同様なレイアウトを構築できると考えらえる。但し、セルボッ クス外にレイアウトする高速度カメラ等を、遮蔽セルの外側に配置することは困難であること から、耐放射線性の考慮が必要であり、遮蔽や機器の分離の検討が必要となってくる。

#### (2) 高圧力試料セルの検討

照射後燃料では、Cs 等の揮発性 FP が多く存在し、これらの蒸発による装置の高線量率化 等を招き、メンテナンス性への影響や、機器の故障の原因となる。揮発性の高い、蒸気圧が高 い試料の高温での放出を抑制するために、試料セル内を高圧にすることで、これらに対応でき る可能性がある。どれだけ高圧にする必要があるかは、今後の検討課題であるが、高圧ガス保 安法に対応する構造の検討を進める必要がある。

#### 【成果の反映状況】

本研究による成果については、加熱技術、熱停留点の測定技術等見通しを得た部分が多く ある。しかし、核燃料の測定に対応するためには、現段階では放射率測定手法を主体として技 術開発の途中にあり、これらについては、今後も継続的な研究開発を進めることで、燃料の融 点測定技術としては画期的なシステムにとなり得る。

原子炉燃料の熱設計で、燃料融点は最重要な物性値の一つであり、特に照射後燃料の融点 測定においては、そのデータ数が少なく、現状でもニーズが高い。本システムによる効率的な 測定は、データ数の積み上げにより燃料熱設計に大きく貢献する。 【研究成果の公表】

<国内会議>

- 1) 「レーザー局所加熱を用いた無容器法による融点測定」,川内善晴,有馬立身,稲垣八穂広、 出光一哉、佐藤勇、廣沢孝志,日本原子力学会九州支部第 31 回研究発表講演会,平成 24 年 12 月.
- 2) 「レーザー加熱を用いた無容器法による融点測定:背景及び開発計画」,有馬立身、稲垣八 穂広、出光一哉、廣沢孝志、佐藤勇,日本原子力学会「2013 年春の年会」C20.
- 3) 「レーザー局所加熱を用いた無容器法による核燃料の融点および放射率の測定」,川内善晴、有馬立身、稲垣八穂広、出光一哉、廣沢孝志、佐藤勇,日本原子力学会「2013 年秋の 大会」L38.
- 4) 「レーザー局所加熱を用いた無容器法による核燃料の融点測定装置の開発」,川内善晴、有 馬立身、稲垣八穂広、出光一哉、廣沢孝志、佐藤勇、渡辺博道,日本原子力学会九州支部 第 32 回発表講演会,平成 25 年 12 月(ロ頭発表奨励賞受賞).
- 5) 「レーザー加熱法と無容器法の併用による高耐熱材料の融点測定手法の高度化に向けた試み」,有馬立身、稲垣八穂広、出光一哉、廣沢孝志、佐藤勇,計測自動制御学会 第139回「温度計測部会」講演会,平成26年11月14日(金).

<国際会議>

 "Measurement of surface melting temperature with high-speed pyrometers by containerless method", T. Arima, Y. Kawauchi, T. Matsumoto, Y. Inagaki, K. Idemitsu, T. Hirosawa, I. Sato, Proceedings of SICE2012 Annual Coference 2012, Aug. 20-23, Akita University, Akita, Japan.

2.1.3	先行基礎工学研究に関す	る平成 26	年度研究概要報告書
-------	-------------	--------	-----------

<ul> <li>イオン/電子線照射による高 Ni 化したオーステナイト鋼のスエリング特性評価とモデル化による機構解明</li> <li>Modeling of void swelling behavior depending on initial nickel contents in high-nickel austenitic stainless steels irradiated by ions and electrons</li> </ul>			
研究者所属、氏名			
大 学 側 北海道大学大学院工学研究院 エネルギー・マテリアル融合領域研究センタ・ 准教授 坂口 紀史			
機 構 側 福島研究開発部門 大洗研究開発センター 福島燃料材料試験部 材料試験 関尾 佳弘			
研究実施場所 機構側:照射材料試験施設			
通算研究期間 (予定)     平成 24 年 4 月 ~     当該年度 平成 27 年 3 月     平成 26 年 4 月 ~       研究期間     平成 27 年 3 月     平成 27 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】

耐スエリング性の向上が期待される高 Ni 化したオーステナイト鋼において、ヘリウムイオン照射及び電子線照射下での微細組織観察ならびに中性子照射後微細組織観察から、高 Ni 化に伴う照射下微細組織の安定性変化を系統的に捉えるとともに、照射下組織発達・組成変化過程を反応速度論に基づく数値シミュレーションにより予測することで、高 Ni 化による耐スエリング特性向上のメカニズムを解明することを目的とする。

【研究内容 (概要)】

オーステナイト鋼である PNC316 や PNC1520 は、「常陽」「もんじゅ」の燃料被覆管材料と して使用されている耐スエリング性に優れた先進材料である。更なる耐スエリング性の向上に は、オーステナイト鋼の高 Ni 化が効果的であるとの報告があるが、そのメカニズムについて は十分な解釈がされていない。

本申請課題では、Ni 成分を系統的に変化させた Fe-Cr-Ni モデル合金を作製し、マルチビー ム型超高圧電子顕微鏡システムを用いてヘリウムイオン照射及び電子線照射した試料の微細 組織観察を実施し、ボイドスエリングや照射誘起偏析挙動を詳細に解析するとともに、点欠陥 移動エネルギーを実験的に導出する。また、中性子照射された同様の組成を持つ合金の TEM 観察による評価を合わせて実施し、これらの結果を相互に比較することで高 Ni 化に伴う照射 下微細組織の安定性変化を系統的に捉え、高 Ni 化による耐スエリング特性向上に及ぼす因子 (点欠陥エネルギーや転位シンクなど)の抽出を目指す。

さらに、これら実験データを定量的に評価する目的で、反応速度論に基づく照射下組織発 達・組成変化過程をモデル化し、数値シミュレーションによりこれを予測する。さらに、実験 的に求めた点欠陥移動エネルギー等のパラメータをモデルに代入し、高 Ni 化による耐スエリ ング特性向上の要因を理論的に検討する。

以上、実験・モデリングの両面から高 Ni 化に伴う照射下微細組織の安定性を評価し、さら に高 Ni 化による耐スエリング特性向上の機構論的解釈を行うことが本申請課題の最終的な目 的である。 【使用主要施設】

北海道大学:マルチビーム超高圧電子顕微鏡(JEM-ARM-1300)、分析用透過型電子顕微鏡、 ツインジェット電解研磨装置、計算解析用コンピュータ

機構側:電界放射型分析電子顕微鏡(JEM-2010F)、400kV 透過型電子顕微鏡(JEM-4000FX)

## 【進捗状況(当該年度までの概要)】

平成 24 年度は、初期 Ni 濃度を 15~30wt%まで変化させたオーステナイト系ステンレス鋼 Fe-Cr-Ni 三元系モデル合金 (Fe-15Cr-15Ni, Fe-15Cr-20Ni, Fe-15Cr-25Ni, Fe-15Cr-30Ni)、SUS316L の商用型オーステナイト鋼、PNC316 鋼及び PNC1520 を準備し、Fe-Cr-Ni 三元系モデル合金及 び PNC316 鋼に対して、ボイドスエリングや粒界での照射誘起偏析挙動に着目した電子線照射 試験に加え、溶質元素の粒界偏析現象に係るモデル化に必要なパラメータである点欠陥移動エ ネルギーの測定のためのその場観察試験を開始した。中性子照射材(高速実験炉「常陽」にて 照射された Fe-15Cr-20Ni, Fe-15Cr-25Ni, Fe-15Cr-30Niの3 鋼種)の微細組織観察については、 ボイドスエリング量の評価に加え、溶質元素の粒界偏析現象の初期 Ni 量依存性に係る数値シ ミュレーション解析に活用する物理量(転位密度、ボイド数密度、サイズ分布、溶質元素濃度 分析等)の測定及びデータベース化を開始した。更に、溶質元素の粒界偏析現象の初期 Ni 量 依存性に係る数値シミュレーション解析に適用可能な速度論モデルの文献調査等を進め、溶質 元素の粒界偏析現象の初期 Ni 量依存性に係る数値シミュレーション解析の解析コードの作成 を開始した。

平成 25 年度は、昨年度準備した Fe-Cr-Ni 三元系モデル合金、SUS316L 及び PNC316 鋼に対 して電子線照射試験を行い、ボイドスエリング量の評価や照射誘起偏析挙動の解析を行った。 併せて、Fe-Cr-Ni 三元系モデル合金及び PNC316 鋼に対して、点欠陥移動エネルギー測定のた めのその場観察試験を実施した。また、高速実験炉「常陽」にて照射された Fe-15Cr-15Cr、 Fe-15Cr-20Ni, Fe-15Cr-25Ni, Fe-15Cr-30Ni の 4 鋼種の中性子照射材に対して微細組織観察を実 施し、各種物理量の測定及びデータベース化を行った。数値シミュレーション解析については、 昨年度に引き続き、適用可能な速度論モデルの文献調査等を進め、主に溶質元素の粒界偏析現 象の初期 Ni 量依存性に係る数値シミュレーション解析の解析コードの作成を継続して実施し た。

平成26年度は、平成25年度の再試験として、Fe-15Cr-20Ni及びFe-15Cr-25Niに対して電子 線照射試験を行い、ボイドスエリング量や照射誘起偏析挙動の解析、点欠陥移動エネルギーの 測定等を実施した。また、PNC1520鋼に対する電子線照射試験を行い、ボイドスエリング量測 定等を実施した。数値シミュレーション解析については、昨年度と同様、解析コードの作成を 進めた。 【研究成果(当該年度)】

平成25年度にFe-Cr-Ni 三元系モデル合金(Fe-15Cr-15Ni, Fe-15Cr-30Ni)に対して電子線照 射試験を実施し、ボイドスエリング、粒界での照射誘起偏析挙動に関する溶質元素濃度分析及 び点欠陥パラメータ(特に空格子移動エネルギー)に関するデータを取得したが、Fe-15Cr-20Ni 及びFe-15Cr-25Niについては未実施であったため、平成26年度はこれら2鋼種のモデル合金 に対して同様の試験を実施した。その結果、モデル合金(Fe-15Cr-15Ni, Fe-15Cr-20Ni, Fe-15Cr-25Ni, Fe-15Cr-30Ni)について、ボイドスエリングが減少する傾向が示され、溶質元素 濃度の粒界近傍の変動域(粒界シンクの影響を受ける領域)は初期Ni濃度の増加に伴って増 大する傾向が示された。また、電子線照射試験(その場観察試験)による空格子欠陥エネルギ ー測定(転位ループの成長速度の温度依存性に関わる評価)の結果、高Ni化に伴い空格子移 動エネルギーが低下する傾向が示された。

これらの実験結果から、高 Ni 化に伴い、照射欠陥の易動度が増加し、格子間原子と空格子の再結合割合が高くなったことなどによって照射欠陥濃度が低下し、結果としてボイドスエリングが低下したものと考えられる。高 Ni 化に伴う照射欠陥の易動度の低下は、照射誘起偏析の領域(幅)が増加したことからも合理的な結果と言える(結晶粒界シンクにより照射欠陥が影響を受ける領域は、照射欠陥の拡散係数に依存することが知られているため)。

高 Ni 化に伴う照射下微細組織の安定性変化に係る数値シミュレーション解析については現 在も適用可能な速度論モデルの文献調査等を行い、溶質元素の粒界偏析現象の初期 Ni 量依存 性に係る数値シミュレーション解析の解析コードの作成を進めているが、一部のデータが不足 していることから、現在もこれまでに得られた知見を考慮しながら、速度論モデルの決定及び 解析コードの作成を継続している。

これらの H26 年度に実施した研究成果及びこれまでの実験結果から抽出した課題について 以下に記す。初めに、電子線照射試験については表面シンクの影響を防ぐため、照射エリアの 厚さを 500nm 程度としたことから、モデル合金の一部(Fe-15Cr-20Ni 電子線照射材)について は、EDS 分析の前処理としてイオンミリングによる切削を行ったものの、その試料作製が困難 であったことからデータを取得できなかった。そのため、これらの鋼種についてはデータの再 取得を行う必要がある。また、空格子移動エネルギーの測定については、転位ループの成長速 度の温度依存性から評価しているが、モデル合金(Fe-15Cr-20Ni)及び PNC1520 については、 実験的困難さ(転位コントラスト及び撮影間隔時間の調製等)により、十分な量のデータを取 得することができず、信頼性のあるデータの取得ができなかったことから、データ拡充を行う 必要がある。さらに、現在、上記の得られた実験結果の理解を深めるために、ボイドスエリン グ挙動に及ぼす高 Ni 化の効果について数値シミュレーション解析による考察を進めている が、取得できなかったデータの再取得や試験数の増加により、実験データの信頼性を向上させ る必要がある。また、本試験では「常陽」で照射したモデル合金試料の最大初期 Ni 量が 30wt% であったため、電子線照射材についても初期 Ni 量を 30wt%としたが、スエリング挙動が変化 する 45wt%程度の初期 Ni 量まで系統的に照射欠陥挙動を評価していく必要がある。

本研究では、高 Ni 化による耐スエリング特性向上の要因について、定性的な検討は行った が、数値シミュレーション解析による検討は今後も継続して実施する必要がある。今後、上記 の課題を踏まえてデータの信頼性向上を図り、数値シミュレーション解析により高 Ni 鋼にお ける照射欠陥挙動の振る舞いを明らかにしていく。 【成果の反映状況】

廃棄物減容に係るプロジェクト研究の一環として、次世代型原子炉炉心材料の研究開発が進められている。本研究による成果は、その炉心材の候補材料(代替材)として開発が進められている高 Ni 鋼の材料設計や寿命予測に反映されることが期待される。

【研究成果の公表】

特になし。

本研究に関しては、データの信頼性向上のために更なる実験データ拡充を行い、H27年度以降に論文発表及びロ頭発表を予定している。

2.1.4 先行基礎工学研究に関する平成 26 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	反射波の TOF に基づく伝熱管の高効率検査技術の開発		
研究協力課題 マイクロ波を用いた広域一括探傷技術のナトリウム炉伝熱管への適用			
研究者所属、氏	· 名		
大 学 側	国立大学法人東北大学大学院工学研究科 教授 橋爪秀利 国立大学法人東北大学大学院工学研究科 准教授 遊佐訓孝 国立大学法人東北大学大学院工学研究科 博士後期課程 佐々木幸太		
機構側	次世代高速炉サイクル研究開発センター 高速炉安全技術開発部 構造・材料信頼性評価技術開発グループ 若井隆純		
研究実施場所	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量子本館 機構側: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	平成25年4月~     当該年度     平成26年4月~       平成28年3月     研究期間     平成27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】			

商業炉としてのナトリウム炉の成立性検討においてプラント運転効率は主要因子の一つであるが、既存軽水炉における経験を踏まえると、供用期間中検査の工期短縮、特に蒸気発生器の伝熱管検査の効率化が特に肝要であると考えられる。本研究はこのような状況を鑑みて実施されるものであり、マイクロ波を管内に伝播させたとき管内壁の幾何学的形状によりマイクロ波の伝播の様子が変化しうることを利用して、数百 MHz~数十 GHzのマイクロ波を用いてナトリウム炉蒸気発生器伝熱管の内壁面の広域一括探傷を行うための基幹技術を開発することを目的とする。

## 【研究内容(概要)】

マイクロ波を用いた配管内壁面広域一括検査技術の、ナトリウム炉の直管形蒸気発生器伝熱管への適用に向けた基幹技術の開発及び適用性評価を行う。より具体的には、従来長さ2m程度の小口径直管の内壁面に存在する模擬減肉を主たる対象として各種検討が行われてきた当該技術の、ナトリウム炉直管形蒸気発生器伝熱管内壁面に発生したき裂の検出及び位置評価への適用に向けて、まず、検査対象部位及び対象欠陥、及び要求検査精度を明確化した上で、伝熱管にマイクロ波を効率よく伝播させるためのマイクロ波入射部の設計と製作を行う。製作されたマイクロ波入射部の基礎特性を単管試験体を用いて検証した後、各種きずパラメータ、管長及び曲がり、そして適用周波数帯がきず信号に及ぼす影響について系統だった基礎データを収集する。収集された基礎データより、時間領域および周波数領域における信号分析に基づいてきずの位置及び性状を定量的に評価することを試みる。併せて管内を伝播するマイクロ波の伝播モードを踏まえて分散を補償し、もってきず信号を明瞭化するための信号処理手法を開発する。技術の実機適用性は合理的な範囲で実機検査部を模擬した試験体を用いて検証し、研究を通じて得られた知見を総合的に評価することで、実機条件における当該技術の適用性の評価及びさらに必要となる研究項目・課題の抽出を行う。

## 【使用主要施設】

東北大学:マイクロ波ネットワークアナライザ(Agilent Technologies 社製 E8363A) 3 次元有限要素法解析シミュレーター(Comsol 社製 Comsol Multiphysics) 【進捗状況(当該年度までの概要)】

平成25、26年度の研究実施項目及びその成果概要は以下のとおりである。

1. 検査対象部位及び要求検査精度の具体化

マイクロ波探傷法の観点から本研究にて対象とするナトリウム炉直管型蒸気発生器伝熱 管のモデル化を行うと共に、内壁面の熱疲労割れを検査対象きずと設定し、当該きずを模擬 した試験体を製作した。

入射部の設計

3次元有限要素法解析により、ナトリウム炉直管型蒸気発生器伝熱管内部にマイクロ波を 伝播させるために適切な入射部の形状について検討し、得られた結果に基づいて3種類の入 射部を製作した。

3. 基礎特性評価試験

12mの直管を用いて2.において設計・製作した入射部の基礎特性評価試験を実施し、従来 知見と整合する試験結果を得た。得られた知見に基づいて、26.5mの直管に加工した人工減 肉を対象とした詳細評価試験を実施し、入射部から20.5mまでの箇所の減肉に対して、管内 の軸方向位置を定量的に評価することが可能であることを確認した。

4. 信号処理技術開発

3.において得られた試験結果に基づき、管内を伝播するマイクロ波の減衰が管壁に誘導される渦電流によるエネルギー損失から定量的に評価され得るものであることを明らかとし、 発生位置によるきず信号強度の変化を補正することを可能ならしめた。

5. 性能評価試験

管壁面に加工した人工スリットを用いた性能評価試験を実施した。スリットが軸方向か周 方向かにより信号強度が大きく変化し、軸方向スリットは検出が困難と考えられること、ま た周方向スリットに対しては概ねマイクロ波入射位置から 12m 程度の位置であれば検出可 能であることを確認した。

## 【研究成果】

平成26年度研究における研究成果を実施項目別に以下にまとめる。

1. 検査対象部位及び要求検査精度の具体化

平成 25 年度における検討結果を踏まえた上で、検査対象として選定されたナトリウム炉 直管型蒸気発生器伝熱管内壁面に発生した熱疲労割れを模擬するための試験体について検 討を行った。加工性、加工費用などを考慮して、機械加工により管壁面に設けた貫通スリッ トの管外壁面側開口部を金属箔で覆うことで、当該熱疲労割れを模擬することとし、スリッ ト長さ、向きの異なる複数の試験体を製作した。加工を行ったスリットの具体的な形状は以 下の通りである

- 周方向スリット:開口幅 1mm、周方向角度 45,90,180 度(計3体)
- 軸方向スリット:開口幅 1mm、軸方向長さ 10, 20, 30, 40, 50 mm (計5体)



#### 3. 基礎特性評価試験

内径 11mm、全長 26.5m の直管を用いての、マイクロ波伝播距離がきず信号に及ぼす影響 の詳細評価のための試験を実施した。平成 25 年度研究における基礎特性評価試験において 得られた知見を踏まえ、入射部は心線長が 7mm であり、入射部輪郭が管軸に対して垂直で あるものを採用し、また、対象とするきずはきず信号が明瞭となるよう、全周矩形減肉とし た。なお、直管は 1, 1.5, 2m の短管をフランジで接続したものであり、減肉は深さ 1mm、軸 方向長さ 50mm とした。マイクロ波入射部から減肉までの距離は 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9.5, 11, 12.5, 14, 15.5, 17, 18.5, 20.5, 22.5, 24.5m であり、試験に用いた周波数は入射部におけるマイク ロ波の透過性が良好である 21~40GHz である。測定は周波数領域において実施し、得られ た信号に対して逆フーリエ変換を施すことで時間領域信号に変換することで、伝熱管端部で マイクロ波をパルスとして入射した場合に相当する反射波の様子を評価した。

試験の結果、きずからの信号は、きずの大きさが同一であっても、マイクロ波伝播距離、 即ちマイクロ波入射部からきずまでの距離と共に指数関数的に減弱することが明らかとなった。また、従来研究において開発したマイクロ波の分散を補償する信号処理手法に基づく きず位置評価技術を適用することで、入射部から 20.5m の箇所までの減肉位置の定量的評価 に成功した。さらに、減肉からの信号の 1/10 程度ではあるものの、上述のフランジ接続部も マイクロ波の反射源となることを明らかとした。

#### 4. 信号処理技術開発

伝播距離に伴うきず信号の指数関数的減弱の物理的背景解明のため、3.において得られた 模擬減肉信号の詳細な分析を行った。実測定された配管材料の電気的抵抗に基づく理論式は 測定された信号の減弱の度合いを定量的に説明づけるものであり、もって管壁に誘導される 渦電流に起因するエネルギーの散逸が主たる因子であることを明らかにした。また、導出さ れた理論式に基づき、伝播に伴う信号の減弱化の補正を行うことを可能とした。

#### 5. 性能評価試験

1.において製作した熱疲労割れ模擬試験体を用いた、マイクロ波を用いた配管内壁面広域 一括検査技術の、ナトリウム炉の直管形蒸気発生器伝熱管への適用性評価のための試験を実 施した。試験においては内径が11mmであり、3.における基礎特性評価試験と同様に、長さ 1, 1.5, 2mの短管をフランジ接続することで18.5mとした直管を用いた。マイクロ波入射部 からスリットまでの距離は1.5, 3.5, 5.5, 9, 12. 15.5mであり、使用入射部、周波数等のそれ以 外の測定条件は3.における基礎特性評価試験と同一である。

試験の結果、スリットが周方向を向いているか軸方向を向いているかで検出性に大きな差異があることが明らかとなった。周方向を向いたスリットに対しては、周方向長さが180度の場合であれば入射部からの距離が12mの位置に存在するものであっても信号を確認することが出来た。一方、軸方向を向いたスリットの検出は極めて困難であり、入射部からの距離が1.5mの位置に存在するものであっても、極めて不明瞭なものであった。昨年度研究において設計・製作された入射部は管内にTM<sub>01</sub>モードのマイクロ波を伝播させるものであり、TM<sub>01</sub>モードの伝播に伴って管壁に誘導される渦電流は主として管軸方向に流れるため、これは合理的でもある。しかしながら、ナトリウム炉の直管形蒸気発生器伝熱管内壁面に発生しうる熱疲労割れは周方向のみに限定されるものではないことを踏まえると、管の周方向に渦電流を誘導するモード、より具体的にはTEモードでのマイクロ波伝播技術開発の必要性を示した結果であるともいうことができる。

マイクロ波により管壁に誘導される渦電流という観点からは、スリットのフランジ接続部 の差異が著しいものとは言えないため、これはある意味合理的であるが、今後実機条件にお ける性能評価のためには、フランジ接続ではない、一体物の試験体を用いての試験が必要で あるということを強く示す結果であるとも考えられる。

なお、きず長さときず信号との相関に関しては、周方向スリットに対してはほぼ線形と言 える結果が得られたものの、軸方向スリットは信号対ノイズ比が低いため、定量的な評価を 行うことはできなかった。また、予備的に行った金属箔を除去した状態での測定の結果は、 いずれもきず信号が微弱化するというものであったが、これは加工したスリットの開口幅が 1mmと比較的大きいために管外にマイクロ波エネルギーが散逸してしまったためと考えられ る。実際の熱疲労割れは開口幅が今回加工したスリットと比べはるかに小さく、さらに内部 での折れ曲がりなども考えられるため、この結果は貫通した熱疲労割れの検出が困難という ことを示唆するものではないと推定される。

【今後の予定(翌年度以降の概要)】

研究最終年度である平成27年度は本年度及び昨年度研究において得られた知見を踏まえ、熱 疲労割れを対象とした本格的な検討と実用化に向けた技術的課題の洗い出しを行う。具体的な 実施項目及び各項目の概要を以下にまとめる。

- 入射部の設計 軸方向を向いた熱疲労割れの検出のための、数値解析を用いて TE モードでのマイクロ波 伝播を可能とする入射部を設計・製作する。
- 基礎特性評価試験 解析結果との定量的な比較に十分な信号体ノイズ比が期待できる模擬減肉試験体を用い て上記項目において製作した入射部の基礎特性評価のための試験を行う。
- 性能検証試験

本年度性能検証試験においては配管のフランジ接続部からの信号とスリットからの信号 の区別が困難であったことを鑑み、フランジ接続部を有することのない一体物の長尺試験 体を用いての検証試験を実施する。

• 適用性評価

研究を通じて得られた知見を総合的に評価し、実機条件における当該技術のきず検出及び評価能を評価する。必要に応じて実機適用に向けてさらに必要となる研究項目を具体的に抽出し、 併せて研究開始時に選定した以外の対象に対する当該技術の適用性についても評価を行う。

【研究成果の公表】

<論文>

1) Kota Sasaki, Noritaka Yusa, Takashi Wakai, Hidetoshi Hashizume, Development of Electromagnetic Non-destructive Testing Method for the Inspection of Heat Exchanger Tubes of Japan Sodium-cooled Fast Reactor – Part II Detection of Flaws on the Inner Surface Using Electromagnetic Waves, Electromagnetic Nondestructive Evaluation (XVIII), IOS Press.

<国内会議>

1) なし

<国際会議>

1) なし

<特許>

1) なし

This is a blank page.

# 2.2 放射線の安全関係

This is a blank page.

2.2.1 先	行基礎工学研究に関す	る平成 26	年度研究概要報告書
---------	------------	--------	-----------

研究協力テーマ	軽水炉のシビアアクシデント防止に関する研究	
研 究 協 力 課 題 軽水炉のシビアアクシデント防止のためのアクシデントマネージメント評 価手法に関する研究 (Study on the analysis methods of the preventive accident managemen measures for LWRs)		
研究者所属、氏	名	
大学側	福井大学 附属国際原子力工学研究所 所長・教授 安濃田 良成 教授 渡辺 正	
機構側	安全研究センター 原子炉安全研究ユニット 熱水力安全研究グループ 与能本 泰介	
研究実施場所	福井大学:附属国際原子力工学研究所 機構側:安全研究センター	
通算研究期間 (予定)	平成24年7月~     当該年度     平成26年4月~       平成27年3月     研究期間     平成27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】

福島第一原子力発電所の事故を踏まえ原子力規制委員会が策定している新規制基準において、事業者は、従来の安全評価では考慮されていない長期間の全電源喪失や最終ヒートシンク 喪失を仮定した事故対応(アクシデントマネージメント:AM)の有効性評価(事故後の長期 冷却を含む決定論的安全評価)を行うとしているが、評価に用いる解析の妥当性検証は未だ不 十分である。本研究は、ROSA 計画大型非定常実験装置(LSTF)による模擬実験結果等を改め て詳細に分析し、AMの有効性に関する最適評価(Best Estimate: BE)手法のモデル開発及 び妥当性評価を行うことを目的とする。

## 【研究内容(概要)】

PWR の全交流電源喪失(SBO)時には、タービン動補助給水系を用いて2次系に給水し、 1次系の自然循環により炉心冷却が維持できるとされている。しかしながら、福島事故のよう に、タービン動補助給水系の停止や消防車による代替給水の事態を想定して、2次系への給水 が不十分な場合も含め、1次系の自然循環や減圧挙動に影響する現象を摘出することが重要で ある。これまでの予備調査によれば、蒸気発生器(SG)伝熱管群での非一様流動、並びに SG 入口プレナムにおける高温水と逆流伝熱管からの低温水との非均一混合や、ホットレグ及び加 圧器内における温度成層・混合モデルの相違により、1次系の冷却・減圧に要する時間の評価 値に 1~10 日のバラツキが生じる可能性がある。

本研究では、①これまで原子力機構がLSTF(大規模・高圧)で実施したSBO、全給水喪失、 2次系強制減圧・冷却、自然循環等に関する関連模擬実験を対象に、実験データ等を詳細に分 析することにより重要な現象を把握、②特に3次元熱流動現象について基礎実験(小規模・大 気圧・可視化・詳細計測)を実施してLSTF実験結果を補完すると共に、③数値流体力学(CFD) 解析及び、④BEコードの解析モデルを開発して、LSTF実験結果を基にモデルを検証する。

#### 【使用主要施設】

福井大学: PWR 自然循環基礎実験装置、RELAP5/MOD3、ANSYS CFD

機構側:ROSA/LSTF 実験データ、RELAP5/MOD3

#### 【進捗状況(当該年度までの概要)】

平成 24 年度は、PWR 全交流電源喪失時の1次系自然循環冷却に影響を及ぼす蒸気発生器 (SG)内の多次元流動について、ROSA/LSTF 実験結果を基に RELAP5 コードによる SG 単 体の解析を行った。さらに、基本的な現象を把握するための基礎実験装置を製作し、RELAP5 コード及び CFD 解析コードを用いて基礎実験の予備解析を実施した。

平成 25 年度は、基礎実験装置により得られた結果を RELAP5 コードにより解析し、熱流動 現象の概要を検討し、伝熱管周辺部分について CFD 解析による詳細検討を行った。さらに、 システム解析と CFD 解析を結合することにより、3 次元流れ場の過渡変化を明らかにした。 また、伝熱管流動の安定性について理論解析を行い、逆流発生条件を明らかにした。

平成26年度は、ROSA/LSTF装置により行われた総合効果実験の解析をRELAP5コードを 用いて実施し、システム解析コードによる自然循環流動の模擬性の検討を行った。

#### 【研究成果(当該年度)】

#### ROSA/LSTF 実験の解析

(1) 目的

PWR の全交流電源喪失時には、タービン動補助給水系により SG2 次側に給水し、1 次側の 自然循環により炉心冷却が維持される。しかしながら、自然循環時には、SG 伝熱管群におい て一部逆流が生じ、1 次側から 2 次側への伝熱状況が影響を受けることが懸念されている。そ こで、本共同研究でこれまで使用してきたシステム解析コードで RELAP5 により、事故時の 自然循環状態が十分に模擬できているかどうかを確認するために、ROSA/LSTF で行われた総 合効果実験の解析を行った。

(2) 実験解析

事故時、一次冷却材ポンプが停止した後の、1次系の自然循環流動を再現できるかどうかを 検討するために、蒸気発生器伝熱管破断事故模擬実験を取り上げた。本実験では、破断による 1次冷却材の流出により1次系圧力が低下し、原子炉トリップ及び1次冷却材ポンプトリップ の後、自然循環による炉心冷却状態に至る。実験では、この状態において1次系の冷却、減圧 を促進するために、運転員操作として、破断側 SG を隔離し、健全側 SG の逃し弁を開放する ことにより2次側減圧が行われた。この操作により、健全側ループでは自然循環流量がやや増 加し、破断側ループでは大幅に低下することにより、非対称な自然循環状態となった。このよ うな、流量の異なる自然循環状態が同時に出現する実験であるため、システム解析コードの模 擬性の検討には適した実験と考えられ、まず、実験条件や結果の検討を進め、コード解析に必 要な機器作動のタイミング等を明らかにした。次に、LSTF 解析用の入力モデルを作成した。 特に、本実験では、SG 伝熱管の破断を、1次系の SG 入りロプレナムから 2次側胴部への流 路により模擬しているため、感度解析によりノーディング等を確定した。また、ECCS による 冷却水注入は、低温側配管ばかりでなく上部プレナムに対しても行われたため、注入流量の圧 力特性などの設定を行った。さらに、1次系減圧のために、加圧器補助スプレイが使用された ため、作動条件、スプレイ流量等の設定を行った。

(3) 結果・考察

まず、基本ケースとして、実験条件を忠実に模擬した解析を実施し、実験結果との比較を行った。圧力挙動については、1次系圧、健全側、破断側2次系圧、いずれも、実験結果との一致は良好であった。これは、破断流路の模擬と1次側から2次側への破断流量の計算が適切であったことと、ECCSの注入が良好に模擬されていたことによる。ただし、破断側SG2次側の圧力上昇が、実験よりわずかに早く、逃し安全弁が開設定圧力に達したのが、実験では1回であったのに対し、解析では3回であった。これは、SG2次側のモデル化とともに、蒸気の加圧による凝縮計算モデルに起因するとみられ、今後の検討課題と考えられる。破断流量は、

破断開始後のごく初期の段階で実験よりやや少なめであったが、実験期間全体にわたって、おおむね実験と一致した。これは、圧力がよく模擬されていたことと整合している。1次系ルー プ流量は、ポンプ停止後、各ループとも6kg/s程度の自然循環状態となり、健全SG2次側の 減圧操作により、健全側は7~8kg/sに増加し、破断側は1kg/s程度に低下した。いずれも、 実験との一致は、良好であり、非対称な自然循環流動状態が良好に模擬できること、また、流 量の非常に小さい自然循環状態であっても、安定に計算できること等が、確認された。冷却材 温度については、低温側配管、高温側配管、炉心、いずれにおいても、実験結果とよく一致し た。低温側配管については、実験では、配管断面内上下方向に数カ所の温度測定点を設けてお り、温度成層化が確認されているが、解析結果は、測定による最大温度と最低温度の中間の値 を示していた。RELAP5は基本的に1次元モデルなので、流体温度についても妥当な計算が 行われていることが、確認できた。

以上のように、基本ケースとしての実験解析は実験結果を良好に再現するものとなってお り、ノーディングや各種設定は問題なく行われたと考えることができた。つぎに、基本ケース をもとに、本実験で行われた上部プレナム注入の効果について、感度解析により確認した。こ こでは、上部プレナム注入を行わなかったケース、上部プレナム注入系を低温側配管に接続し たケース等を比較した。上部プレナム注入を行わないケースでは、全注入量が減少するため、 1次系圧が基本ケースより低下した。このため、注入流量の圧力特性により、低温側配管への ECCS 注入量が増加し、低温側配管内の流体温度は、基本ケースより低下する結果となった。 また、上部プレナム注入を低温側配管注入としたケースでは、全注入量は基本ケースとほぼ同 じとなり、1次系の圧力挙動も、ほぼ基本ケースと同様になった。すなわち、上部プレナムへ の注入分が低温側配管への注入流量に加算されたたことになり、このケースでも低温側配管の 流体温度は低下する結果となった。いずれのケースでも、低温側配管の流体温度は基本ケース より低下し、本伝熱管破断事故に対して、炉心の冷却という観点からは、上部プレナム注入の 効果は小さいということがわかった。

## 【成果の反映状況】

本研究による成果は、JAEA で実施している ROSA/LSTF 実験解析の参考にされ活用されている。特に、実験で観測された蒸気発生器伝熱管における非一様流動挙動の原因等に係る工学解析や RELAP5 コード解析でのノード分割の方法に反映され、挙動予測手法の改善に役立てられている。

## 【研究成果の公表】

(上記 RELAP5 コードによる実験解析に関し 27 年度に発表予定)

This is a blank page.

# 2.3 地層処分·地層科学関係

This is a blank page.

2.3.1 先行基礎工学研究に関する平成 26 年度研究概要報告書

研究協力テーマ	地下深部における酸化還元環境の長期的な変化に関する研究	
研究協力課題         天然環境中の微量元素を指標とした地下深部の酸化還元環境の変遷           Reconstruction of groundwater paleo-redox conditions based on naturally trace elements		
研究者所属、氏	名	
大学側	東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻 准教授,鈴木庸平 **東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻 大学院生,川崎弘道 **東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻 大学院生,米田友祐	
機構側	地層処分研究開発部門東濃地科学研究ユニット結晶質岩地質環境研究グループ グル ープリーダー, 笹尾英嗣 "研究主幹, 岩月輝希 "研究員, 大森一秋	
研究実施場所	東京大学理学部1号館 原子力機構 瑞浪超深地層研究所	
通算研究期間	平成 24 年 4月 ~ 当 該 年 度 平成 26 年 4月 ~ 平成 27 年 3 月 研 究 期 間 平成 27 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】

高レベル放射性廃棄物の地層処分における安全評価において,酸化還元電位は重要なパラメータ である。ただし、その長期的な変化を支配する要因については十分な知見が得られていない。本研 究では、地下深部の酸化還元環境の長期的な変遷について岐阜県東濃地域を事例とした調査研究を 行い、酸化還元環境の長期的な変化およびそれらを支配する要因を把握するための調査技術を開発 することを目的とする。

## 【研究内容(概要)】

岐阜県東濃地域に分布する瑞浪層群および基盤岩である土岐花崗岩に関する既存のデータを利 用し、瑞浪層群が堆積した約 27Ma 以降について、酸化還元状態の変遷を地球化学モデリング等に より明らかにする。また、酸化還元環境の指標となる物質を抽出し、整合性を確認する。

1) 現在の酸化還元状態の明示

地下水の主要成分と微量成分について、地表と坑道からの既存データの比較を行い、現在の地下 水環境の酸化還元状態の空間分布を明示する。

2)酸化還元とウランの長期変遷の解析

瑞浪層群が堆積した約 27Ma 以降の隆起・沈降,海進・海退,断層活動が,現在の地下環境の酸 化還元状態に与える影響について概念モデルを作成し,数値シミュレーションを行い,特にウラン の移行・濃集に関わる支配因子を抽出する。

3) コア分析による妥当性の検証

抽出した支配因子に関して,コアに残る痕跡を探索し検証する。具体的には酸化還元状態の指標 になる炭素・鉄・硫黄・ウラン含有鉱物の分析による復元を行う。

4)研究のとりまとめ・報告

1~3)の結果をとりまとめ、本研究で開発した調査技術手法の妥当性を評価し、報告を行う。

【使用主要施設】

瑞浪超深地層研究所

#### 【進捗状況(当該年度までの概要)】

平成 24 年度は,研究内容の 1)現在の酸化還元状態の明示と,2)酸化還元とウランの長期変 遷の解析を実施した。

平成 25 年度は,研究内容の 1)現在の酸化還元状態の明示と,3) コア分析による妥当性の検 証を実施した。

平成 26 年度は,研究内容の 1)現在の酸化還元状態の明示,2)酸化還元とウランの長期変遷の解析,3)コア分析による妥当性の検証および4)研究のとりまとめ・報告を行った。

## 【研究成果(当該年度)】

現在の地下水中でウランは不溶性であり、この特性が地質学的過去に遡った際にどのように変動したかを明らかにすることが、高レベル放射性廃棄物処分の安全評価や濃ウラン鉱床の成因を明らかにする上で重要である。炭酸塩鉱物は過去の地下水の淡水化や海水化の変動を記録していることが東濃地域の花崗岩で知られており(Iwatsuki et al. 2002)、07MI07 号孔の区間4相当(水平深度30.80-30.90 m)のコアから亀裂に炭酸カルシウムの脈を伴う試料を採取し、樹脂包埋した研磨面を観察した。花崗岩上の炭酸カルシウム脈は3 mm 程度の幅で、透明の結晶形態の発達した中央部を白濁色の層が挟む3層構造をしており(図1A)、それぞれの層の形成ステージが異なると考えられる。そこで、各層からマイクロドリル(Geomil326, Izumo Web corp.)を用いて炭酸カルシウムを削りだし、試料量0.2 µg で炭素安定同位体組成(δ<sup>13</sup>CPDB)と酸素安定同位体組成(δ<sup>18</sup>OSMOW)が測定可能な極微量質量分析システム(Ishimura et al. 2004)で測定を行った。



図 1.07MI07 号孔の水平深度 30.80-30.90 m のコアの表面を研磨したブロック試料の写真。(A) 全体写真,(B)炭酸カルシウム脈の高倍率像,(C) 図(B)の1の領域からマイクロドリルで粉末採取した3層の地点,(D) 図(B)の2 の領域からマイクロドリルで粉末採取した3層の地点,(E) 図(B)の3の領域からマイクロドリルで粉末採取した3層の地点。

3 地点で各層から分析を行った結果,上位の層(赤丸)はδ<sup>13</sup>Cが-7.7±0.3‰,δ<sup>18</sup>Oが21.2±0.1‰ で,中位の層(黄丸)はδ<sup>13</sup>Cが-6.1±0.5‰,δ<sup>18</sup>Oが21.8±0.3‰で,下位の層(青丸)はδ<sup>13</sup>Cが -10.0±1.1‰,δ<sup>18</sup>Oが21.3±0.3‰であった。これらの結果を,瑞浪周辺の花崗岩と堆積岩中で炭酸 カルシウムを形成した地下水の起源を代表する範囲(Iwatsuki et al. 2002)と共に図2にプロット した。どの部位も海水と淡水の領域内で、熱水ではなく地下水の混合時に形成したことは事明である。中位の結晶形が発達した炭酸カルシウムが最も海成堆積岩中の炭酸カルシウムの値に近く、海進の時期に形成したと解釈される。下位で $\delta^{18}$ Oと $\delta^{13}$ Cが有為に軽くなっており、現在の同じ区間の地下水中で炭酸イオンの $\delta^{13}$ Cが-15.8から-12.4‰のため(Suzuki et al. 2014)、混合成分として淡水が優勢な地下水から形成したと考えられる。従って、下位から中位にかけて海進により海水の混合割合が増加し、中位から上位にかけて海退により海水の混合割合が減少した地下水から炭酸カルシウムが沈殿した可能性を示唆する。また、今回得られたデータの直線関係を最小自乗法により回帰し評価したところ、R<sup>2</sup>値がほぼ1であり海水と淡水の端成分の単純な混合であることが強く示された(図 2)。



図 2. 瑞浪地域の花崗岩割れ目充填鉱物として産する炭酸カルシウムの酸素および炭素同位体組 成。星印は海成堆積岩中の炭酸カルシウムの値。 右図は左図の領域の拡大図と最小自乗法で回帰 した直線と R<sup>2</sup>値。

**δ**<sup>18</sup>**O** と**δ**<sup>13</sup>**C** の分析から、炭酸カルシウム層の形成ステージが異なることが示されたが、各層 で化学組成の違いがないか明らかにするために、JEOL 社電子線マイクロアナライザーJXA-8900L を用いた元素マッピングを行った(図 3)。Ca 濃度に下位から上位の層に向けて減少する傾向が 見られ、Mg は下位から中位の境界付近と上位の層で濃度が高かった。また Mn は、下位の層で濃 度が低いことから、各層の炭酸カルシウムの化学組成が異なることが明らかとなり、形成ステー ジの違いを反映すると結論付けられる。



図 3. 深度 200 メートルの 07MI07 号孔の水平深度 30.80-30.90 m から採取されたコア試料中の炭酸カルシウム脈の EPMA による Ca(左上), Mg(右上), Mn(下)のマッピング像。

瑞浪層群は,27から20 Maの淡水成層である土岐夾炭累層と本郷累層,16.3から14.85 Maの 海成層である明世累層と生俵累層から成る。不整合を介して瀬戸層群が形成した後は,現在に至 るまで淡水の地下水が主要である(Iwatsuki et al. 2002)。 従って,花崗岩の割れ目を充填す る炭酸カルシウムの脈中に見られた3層は,淡水成層から海成層への変遷および海成層から淡水 成層への変遷と対応する可能性が高い。すなわち,花崗岩中でウランは海進初期および海退によ る淡水化の進行時に沈殿したと推察される。炭酸カルシウム脈中の3層中で淡水が最も卓越する 下位の層でウランの濃集が見られなかったことは,現在の淡水系地下水に対してウランが不溶性 なことと整合的である。海水が主要な中位の層でもウランの濃集は見られず,淡水と海水が主の 地下水中でウランは不溶性であると考えられる。

花崗岩基盤中における深層地下水中でのウランの挙動が,近年スウェーデンの地層処分場最終 候補地に選定された Forsmark において調査された(Noseck et al., 2012)。最終氷期以降の氷河 の溶融と海進およびその後の隆起によって,淡水と海水の置換を繰り返した地下水中で溶存ウラ ン濃度が,最大で 143 µ g/L に達すると報告されている(Kärnbränslehantering 2007)。特に高濃 度のウランは,塩化物イオン濃度が約 5500 ppm 付近と高い地下水中で観測された (Laaksohar ju et al., 2008)。 これは,瑞浪地域の花崗岩中の炭酸カルシウム脈で過去に起きた地下水の淡水化ま たは海水化によるウランの易動化の参照事例になる。実際に Forsmark の高濃度のウランを伴う地 下水のウランの化学種とウラン鉱物の飽和指数を計算したところ, Ca<sub>2</sub>UO<sub>2</sub>(CO3)<sup>3</sup>, CaUO<sub>2</sub>(CO3)<sup>2</sup>お よび MgUO<sub>2</sub>(CO3)<sup>2</sup>等の三元錯体を形成し,この錯生成はウランの4価/6価の酸化還元電位を下げ る効果が知られる(Noseck et al., 2012)。また非晶質の閃ウラン鉱(UO<sub>2</sub>(a))と平衡状態であり, 溶解度の低い結晶質な閃ウラン鉱等の4価ウラン鉱物からウランが溶出する可能性が示唆され た。

淡水化と海水化に伴われる地下水の混合で,酸化還元状態がより酸化的に変化してウランを易 動化したことも要因として考えられる(Langmuir 1997)。また,ウランの酸化と還元反応がサイ クルする過程でもウランが濃集するため,地下水流動場に沿って酸化還元状態の進化について研 究を行う必要がある。今回観察されたウランの濃集部位で黄鉄鉱が共存する場合,酸化的な地下 水中で6価のウランが移動し,黄鉄鉱近傍の還元的な環境で4価に還元され沈殿濃集した可能性 がある。一方で,酸化的環境でセリウムは4価として不動であるため,酸化的な地下水中でウラ ンと移動したとは考えづらい。また,酸化還元状態に影響を受けないトリウム,イットリウムお よびジルコニウムもセリウムと濃集しているため,酸化還元状態以外の価数の高い金属を易動化 する過程も考慮を要する。候補として,錯生成能の高い有機化合物や炭酸等の濃度変化が海退後 の淡水化により生じた可能性も考えられる(Pourret et al. 2007)。

東濃ウラン鉱床の形成要因の一つとして,花崗岩中をウランが移動したプロセスが挙げられる。 従来の酸化的地下水によるウランの易動化だけでなく,海水と淡水の混合過程による易動化につ いても十分に考慮する必要がある。ウラン鉱床は10 Ma 以上前に形成したことが知られるが,こ の時期に形成した堆積岩が保存されていないため,形成当時の表層環境の復元は困難である。し かし,月吉断層が鉱体部を切断しているため,断層活動とウランの移行の関連性は低いとされて いる(Yoshida, 1994)。炭酸カルシウム脈中の上位の層が形成ステージを考慮した際に鉱体を形 成した地下水と関連すると考えられ,今後,鉱体部のウラン鉱物の放射非平衡(Nohara et al. 1992) や希土類パターン(Takahashi et al. 2002)等のデータと比較して,花崗岩中でのウラ ン移行と堆積岩中での鉱床形成のイベントを対応づける必要がある。

#### 【成果の反映状況】

本研究では、ウランを含む微量元素の固液分配が変化した長期変動の要因を加味した数値シミュレーションにより、最終的に瑞浪層群が堆積した約 27Ma 以降について酸化還元状態の復元を行い、とりまとめを行った。

これらの成果は、東濃地科学センターにおいて、これまでに行われてきた地質環境の長期変遷研 究の向上に反映している。 【研究成果の公表】

```
<論文>(各論文に対し査読の有無を明記する)
```

査読有

Suzuki, Y., U. Konno, A. Fukuda, D. D. Komatsu, A. Hirota, et al. (2014), Biogeochemical Signals from Deep Microbial Life in Terrestrial Crust, PloS one 9: e113063.

<国内会議> なし

<国際会議>

なし

<特許>

なし

2.3.2	先行基礎工学研究に関する平成26	3年度研究概要報告書
-------	------------------	------------

研究協力テーマ	マ 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			
	熱水変質鉱物を用いた熱水変質帯の年代測定と活動性評価に関する研究			
研究協力課題	Research on dating and activity evaluation of hydrothermal			
	alteration zones using hydrothermal altered minerals			
研究者所属、氏	名			
	金沢大学環日本海域環境研究センター 准教授 長谷部 徳子			
上 学 间	大学院生 小形 学**			
八 子 侧	大学院生 三浦 知督**			
	〔*客員研究員 **研究生〕			
	バックエンド研究開発部門 東濃地科学センター			
	地層科学研究部 ネオテクトニクス研究Gr 花室 孝広			
機	田村 肇			
	末岡 茂			
研究実施場所	金八人子:日公仲子听九件悚乙方明			
	磁構側:土吱地球牛代字研究所			
通算研究期間	平成 24 年 4 月 ~ 当 該 年 度 平成 26 年 4 月 ~			
(予定)	平成 27 年 3 月 研 究 期 間 平成 27 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			
「孤空日的」	L			

【研究目的】

坑道内で遭遇した熱水変質帯の年代測定は、その変質をもたらした熱水の活動履歴を推定す るうえで鍵となる技術である。本研究では、熱水変質によって生成したイライトを対象とした K-Ar 年代測定および熱水変質帯や周辺の原岩を用いたフィッション・トラック法や(U-Th)/He 法により、広域的・長期間の熱履歴解析を行い、熱水変質鉱物の生成条件やその後の加熱の影 響を推定し、得られた変質年代の妥当性を評価する手法を構築することを目的とする。

## 【研究内容(概要)】

坑道内で遭遇した熱水変質帯の年代測定は、その変質をもたらした熱水の活動履歴を推定す るうえで鍵となる技術である。いわゆる硬岩中の断層や岩体中の割れ目を水みちとしたと考え られる小規模な熱水変質帯を対象とし、近年、熱水変質により新たに生じた現地性の細粒鉱物 を用いた年代測定法の開発が行われている。本研究では、K-Ar 年代測定,(U-Th)/He 年代測定 およびフィッション・トラック法など複数の放射年代測定法を用いた熱年代学分析により、花 崗岩中の熱水変質帯を対象に広域的・長期間の熱履歴解析を行う。 【使用主要施設】

機構 土岐地球年代学研究所 質量分析室(K-Arおよび(U-Th)/He年代測定システム)
 機器分析室(ICP-MS),水質分析室(炎光光度計)
 岩石分析室(粒度分布測定装置,遠心分離器)
 金沢大学 自然科学研究科棟2号館 薄片室(試料調整)
 化学分析室(試料調整)
 自然解析実験室(FT年代測定システム)
 エクスプローラーラボ(ICP-MS)

## 【進捗状況 (当該年度までの概要)】

平成24年度は、既往研究等を参考に,共同で試料採取の検討および実際の採取を行った。 対象とした振草・粟代鉱山(愛知県)では,同鉱山を所有する三信鉱工株式会社の協力を得て 変質帯とその母岩の試料を採取した。また,採取した試料は,予察的に比重分離及びSEM 観察 を開始している。

平成 25 年度は、平成 24 年度に採取した試料について粘土鉱物を分離し、XRD、SEM 等により鉱物同定を行った。分離した母岩の長石および変質帯の粘土鉱物試料について K-Ar 年代測定を順次実施した。

平成 26 年度は、引き続き K-Ar 年代測定を実施した。

## 【研究成果(当該年度)】

平成 26 年度は、引き続き K-Ar 年代測定を実施した。当該地域に分布する大峠環状複合岩体の活動年代(Tsunakawa et al., 1983;玄武岩岩脈の K-Ar 年代で15.1±0.5 Ma)および振草鉱山のセリサイトの K-Ar 年代(宮下・三崎, 1995;14.0±0.4 Ma)に対し、今回分析した結果は、母岩(凝灰岩)中の長石の K-Ar 年代が15.0±0.3 Ma、変質帯の粘土脈から採取したセリサイトの K-Ar 年代が15.2±0.5 Ma、14.7±0.5 Ma、8.7±0.3 Ma、5.6±0.2 Ma の値であった。この結果から、当該地域におけるセリサイト鉱床の主要な成因として約15 Ma の火成活動が考えられるが、その後も数回にわたって変質作用が生じていたことが示唆される。

なお、断層粘土を対象とした年代測定においては1µm以下の粒径の粒子のみを分離し、それをさらに0.4 µm以下、0.1 µm以下の合計3段階に分離し、各段階について年代を測定しており、多くの場合で各段階の年代に差が出ているが、今回対象とした試料についてセリサイトの粒子サイズによる分離を試みたところ、構成粒子は5µm程度の粒子サイズであり、1µm 未満の細粒の粒子がほとんど見られなかったことから、粒子サイズによる年代値の違いについては検討できなかった。また、対象試料は変質が激しく、アパタイトが認められなかったことから、アパタイトを対象とした年代測定(フィッション・トラック、(U-Th)/He法)が適用できなかった。

## 【成果の反映状況】

本研究による成果は、K-Ar 年代測定を行うための粘土鉱物試料の前処理手法の確立および 分析手法の高度化に反映している。

## 【研究成果の公表】

該当なし

表 1. SI 基本単位				
甘大昌	SI 基本単位			
盔半里	名称	記号		
長さ	メートル	m		
質 量	キログラム	kg		
時 間	秒	s		
電 流	アンペア	А		
熱力学温度	ケルビン	Κ		
物質量	モル	mol		
光度	カンデラ	cd		

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例					
and SI 組立単位	1.				
和立里 名称	記号				
面 積 平方メートル	m <sup>2</sup>				
体 積 立方メートル	m <sup>3</sup>				
速 さ , 速 度 メートル毎秒	m/s				
加速 度メートル毎秒毎秒	$m/s^2$				
波 数 毎メートル	m <sup>-1</sup>				
密度, 質量密度 キログラム毎立方メート	ル kg/m <sup>3</sup>				
面 積 密 度 キログラム毎平方メート	$\nu$ kg/m <sup>2</sup>				
比体積 立方メートル毎キログラ	ム m <sup>3</sup> /kg				
電 流 密 度 アンペア毎平方メート	$\mathcal{N}$ A/m <sup>2</sup>				
磁 界 の 強 さアンペア毎メートル	A/m				
量 濃 度 <sup>(a)</sup> , 濃 度 モル毎立方メートル	mol/m <sup>8</sup>				
質量濃度 キログラム毎立方メート	ル kg/m <sup>3</sup>				
輝 度 カンデラ毎平方メート	$\nu$ cd/m <sup>2</sup>				
屈 折 率 <sup>(b)</sup> (数字の) 1	1				
比 透 磁 率 (b) (数字の) 1	1				
(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野	では物質濃度				

(substance concentration)ともよばれる。
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

#### 表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

	SI 祖立単位				
組立量	名称	記号	他のSI単位による 表し方	SI基本単位による 表し方	
平 面 1	自 ラジアン <sup>(b)</sup>	rad	1 (в)	m/m	
立体 1	自ステラジアン <sup>(b)</sup>	$sr^{(c)}$	1 <sup>(b)</sup>	$m^2/m^2$	
周 波 教	女ヘルツ <sup>(d)</sup>	Hz	-	s <sup>-1</sup>	
力	ニュートン	Ν		m kg s <sup>-2</sup>	
圧力,応2	リパスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>	$m^{-1} kg s^{-2}$	
エネルギー,仕事,熱力	± ジュール	J	N m	$m^2 kg s^2$	
仕事率, 工率, 放射]	ミワット	W	J/s	$m^2 kg s^{-3}$	
電荷,電気	量クーロン	С		s A	
電位差(電圧),起電力	ゴボルト	V	W/A	$m^2 kg s^{\cdot 3} A^{\cdot 1}$	
静電容	量 ファラド	F	C/V	$m^{-2} kg^{-1} s^4 A^2$	
電気抵打	も オーム	Ω	V/A	$m^2 kg s^{\cdot 3} A^{\cdot 2}$	
コンダクタンン	マジーメンス	s	A/V	$m^{-2} kg^{-1} s^3 A^2$	
磁 〕	ē ウエーバ	Wb	Vs	$m^2 kg s^2 A^1$	
磁束密加	まテスラ	Т	Wb/m <sup>2</sup>	$\text{kg s}^{2} \text{A}^{1}$	
インダクタンン	ペーンリー	Н	Wb/A	$m^2 kg s^{\cdot 2} A^{\cdot 2}$	
セルシウス温度	まセルシウス度 <sup>(e)</sup>	°C		K	
光 〕	ミルーメン	lm	cd sr <sup>(c)</sup>	cd	
照	モルクス	lx	$lm/m^2$	m <sup>-2</sup> cd	
放射性核種の放射能 <sup>(f</sup>	ベクレル <sup>(d)</sup>	Bq		s <sup>-1</sup>	
吸収線量,比エネルギー分与 カーマ	グレイ	Gy	J/kg	$m^{2} s^{-2}$	
線量当量,周辺線量当量, 方向性線量当量,個人線量当量	↓シーベルト <sup>(g)</sup>	Sv	J/kg	$m^2 s^{\cdot 2}$	
酸素活	主カタール	kat		s <sup>-1</sup> mol	

酸素活性(カタール) kat [s<sup>1</sup> mol
 (a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはや ュヒーレントではない。
 (b)ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。 実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明 示されない。
 (c)測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
 (d)へルツは周頻現象についてのみ、ペラレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
 (e)センシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。やレシウス度とケルビンの
 (d)ペルジは高頻現象についてのみ、ペラレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
 (e)センジス度はケルビンの特別な名称で、1、通道を表すために使用される。それシウス度とケルビンの
 (f)放射性核種の放射能(activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
 (g)単位シーベルト(PV,2002,70,205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

#### 表4.単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

	SI 組立単位			
組立量	名称	記号	SI 基本単位による 表し方	
粘度	パスカル秒	Pa s	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-1</sup>	
カのモーメント	ニュートンメートル	N m	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>	
表 面 張 力	コニュートン毎メートル	N/m	kg s <sup>-2</sup>	
角 速 度	ラジアン毎秒	rad/s	m m <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> =s <sup>-1</sup>	
角 加 速 度	ラジアン毎秒毎秒	$rad/s^2$	$m m^{-1} s^{-2} = s^{-2}$	
熱流密度,放射照度	ワット毎平方メートル	$W/m^2$	kg s <sup>-3</sup>	
熱容量、エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2 kg s^{2} K^{1}$	
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	$m^2 s^{2} K^{1}$	
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	$m^{2} s^{2}$	
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup>	
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-2</sup>	
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>	
電 荷 密 度	クーロン毎立方メートル	C/m <sup>3</sup>	m <sup>-3</sup> s A	
表 面 電 荷	「クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	$m^2 s A$	
電 束 密 度 , 電 気 変 位	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> s A	
誘 電 卒	コアラド毎メートル	F/m	$m^{-3} kg^{-1} s^4 A^2$	
透磁率	ペンリー毎メートル	H/m	m kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>	
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	$m^2 kg s^2 mol^1$	
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	$m^2 kg s^{\cdot 2} K^{\cdot 1} mol^{\cdot 1}$	
照射線量(X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg <sup>-1</sup> s A	
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	$m^{2} s^{-3}$	
放 射 強 度	ワット毎ステラジアン	W/sr	$m^4 m^{-2} kg s^{-3} = m^2 kg s^{-3}$	
放 射 輝 度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	$W/(m^2 sr)$	m <sup>2</sup> m <sup>-2</sup> kg s <sup>-3</sup> =kg s <sup>-3</sup>	
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m <sup>3</sup>	$m^{-3} s^{-1} mol$	

表 5. SI 接頭語						
乗数	名称	記号	乗数	名称	記号	
$10^{24}$	<b>э</b> 9	Y	10 <sup>-1</sup>	デシ	d	
$10^{21}$	ゼタ	Z	10 <sup>-2</sup>	センチ	с	
$10^{18}$	エクサ	Е	$10^{-3}$	ミリ	m	
$10^{15}$	ペタ	Р	$10^{-6}$	マイクロ	μ	
$10^{12}$	テラ	Т	10 <sup>-9</sup>	ナノ	n	
$10^{9}$	ギガ	G	$10^{-12}$	ピコ	р	
$10^{6}$	メガ	М	$10^{-15}$	フェムト	f	
$10^{3}$	+ 1	k	$10^{-18}$	アト	а	
$10^{2}$	ヘクト	h	$10^{-21}$	ゼプト	z	
$10^{1}$	デカ	da	$10^{-24}$	ヨクト	v	

表6.SIに属さないが、SIと併用される単位				
名称	記号	SI 単位による値		
分	min	1 min=60 s		
時	h	1 h =60 min=3600 s		
日	d	1 d=24 h=86 400 s		
度	•	1°=(π/180) rad		
分	,	1'=(1/60)°=(π/10 800) rad		
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648 000) rad		
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>		
リットル	L, 1	1 L=1 l=1 dm <sup>3</sup> =10 <sup>3</sup> cm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>		
トン	t	$1 t = 10^3 kg$		

#### 表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で

表される数値が実験的に得られるもの					
名称	記号	SI 単位で表される数値			
電子ボルー	• eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 <sup>-19</sup> J			
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 <sup>·27</sup> kg			
統一原子質量単位	ť u	1 u=1 Da			
天 文 単 位	ž ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 <sup>11</sup> m			

#### 表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100 kPa=10 <sup>5</sup> Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg≈133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 <sup>-10</sup> m
海 里	М	1 M=1852m
バーン	b	$1 \text{ b}=100 \text{ fm}^2=(10^{\cdot 12} \text{ cm})^2=10^{\cdot 28} \text{m}^2$
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	の単位しの教徒的な問題は
ベル	В	31単位との数値的な関係は、 対数量の定義に依存。
デシベル	dB -	

#### 表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値		
エルグ	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J		
ダイン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N		
ポアズ	Р	1 P=1 dyn s cm <sup>-2</sup> =0.1Pa s		
ストークス	St	$1 \text{ St} = 1 \text{ cm}^2 \text{ s}^{\cdot 1} = 10^{\cdot 4} \text{ m}^2 \text{ s}^{\cdot 1}$		
スチルブ	sb	$1 \text{ sb} = 1 \text{ cd cm}^{-2} = 10^4 \text{ cd m}^{-2}$		
フォト	ph	1 ph=1cd sr cm <sup>-2</sup> =10 <sup>4</sup> lx		
ガル	Gal	1 Gal =1cm s <sup>-2</sup> =10 <sup>-2</sup> ms <sup>-2</sup>		
マクスウエル	Mx	$1 \text{ Mx} = 1 \text{G cm}^2 = 10^{-8} \text{Wb}$		
ガウス	G	$1 \text{ G} = 1 \text{Mx cm}^{-2} = 10^{-4} \text{T}$		
エルステッド <sup>(a)</sup>	Oe	1 Oe ≙ (10 <sup>3</sup> /4 π)A m <sup>-1</sup>		
(a) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ▲ 」				

は対応関係を示すものである。

	表10. SIに属さないその他の単位の例						
名称				記号	SI 単位で表される数値		
キ	ユ		IJ	-	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq	
$\scriptstyle  u$	$\sim$	ŀ	ゲ	$\sim$	R	$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{C/kg}$	
ラ				ĸ	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy	
$\scriptstyle  u$				ム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv	
ガ		$\boldsymbol{\nu}$		7	γ	$1 \gamma = 1 \text{ nT} = 10^{-9} \text{T}$	
フ	T.		N	Ξ		1フェルミ=1 fm=10 <sup>-15</sup> m	
メー	ートル	采	カラゞ	ット		1 メートル系カラット= 0.2 g = 2×10 <sup>-4</sup> kg	
ŀ				ル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa	
標	準	大	気	圧	atm	1 atm = 101 325 Pa	
力			IJ	-	cal	1 cal=4.1858J(「15℃」カロリー), 4.1868J (「IT」カロリー), 4.184J(「熱化学」カロリー)	
Ξ	ク		D	~	ш	$1 = 1 = 10^{-6} m$	