

JAERI - M
90-013

ベリリウム中のトリチウム挙動実験(2)
——反跳放出及び拡散挙動——

1990年2月

石塚 悦男・河村 弘・須貝 宏行

棚瀬 正和・中田 宏勝

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-
mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1990

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 榎高野高速印刷

ベリリウム中のトリチウム挙動実験(2)

－反跳放出及び拡散挙動－

日本原子力研究所大洗研究所材料試験炉部

石塚 悦男・河村 弘・須貝 宏行⁺

棚瀬 正和⁺・中田 宏勝

(1990年1月18日受理)

ベリリウムは以前から各種研究炉において中性子反射材等として利用されてきたが、最近では核融合実験装置の中性子増倍材へも利用されようとしている。そこで、中性子照射によってヘリウムとトリチウムが同時に生成した原子力級ホットプレスベリリウムを用いてトリチウムの反跳放出及び拡散挙動を明らかにするための実験を行った。その結果、材料試験炉(JMTR)で1サイクル中性子照射した時、ホットプレスベリリウム中のトリチウム生成量は約10 mCi/gで、反跳放出量は約4 $\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ であった。また、ホットプレスベリリウム中のトリチウムの拡散係数 $D[\text{cm}^2/\text{s}]$ (800~1180℃)は、以下の式で得られることが明らかとなった。

$$D = 8.7 \times 10^4 \exp(-2.9 \times 10^5/R/T)$$

Experiments on Tritium Behavior in Beryllium (2)
- Tritium Released by Recoil and Diffusion -

Etsuo ISHITSUKA, Hiroshi KAWAMURA, Hiroyuki SUGAI⁺
Masakazu TANASE⁺ and Hirokatsu NAKATA

Department of JMTR Project
Oarai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received January 18, 1990)

Beryllium has been used as the neutron reflector of material testing reactor and as the neutron multiplier for the fusion reactor lately.

To study the tritium behavior in beryllium, we conducted the experiments, i.e., tritium release by recoil or diffusion by using the hot-pressed beryllium which had been produced both tritium and helium by neutron irradiation.

From our experiments, we found that (1) amount of tritium production per one cycle irradiation (lasting 22 days) of JMTR is 10 mCi/g, (2) amount of tritium per surface area of hot-pressed beryllium released by recoil is 4 $\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$, (3) diffusion coefficient of tritium in a temperature range of 800 ~ 1180 °C can be expressed with the following equation;

$$D = 8.7 \times 10^4 \exp(-2.9 \times 10^5 / R/T) \text{ cm}^2/\text{s}$$

Keywords: Hot-Pressed Beryllium, Neutron Irradiation, Tritium Release,
Japan Materials Testing Reactor (JMTR), Diffusion Coefficient,
Recoil, Radio-Gas Chromatography

+ Department of Radioisotopes, Tokai Research Establishment

目 次

1. 序論	1
2. 実験	1
2.1 試料	1
2.2 照射	2
2.3 装置	2
2.4 方法	2
3. 結果	3
3.1 アルミニウム箔の等時加熱実験	3
3.2 ベリリウム等の等時加熱実験	3
3.3 ベリリウム等の等温加熱実験	4
3.4 ベリリウムの金相観察	4
4. 考察	4
4.1 ベリリウムからのトリチウムの反跳放出	4
4.2 ベリリウムからのトリチウムの拡散放出	4
5. 結論	5
6. あとがき	6
謝辞	6
参考文献	7
付録	22
A.1 核反応	22
A.2 円柱状試料からの拡散放出	22
A.3 拡散放出率の計算	23
A.4 零次ベッセル関数の零値の計算	23
A.5 プログラムのチェック	23

Contents

1. Introduction	1
2. Experiments	1
2.1 Sample	1
2.2 Irradiation	2
2.3 Equipment	2
2.4 Measurement	2
3. Results	3
3.1 Isochronal heating experiment of aluminium foil	3
3.2 Isochronal heating experiment of beryllium	3
3.3 Isothermal heating experiment of beryllium	4
3.4 Metallography	4
4. Discussion	4
4.1 Tritium release by recoil for beryllium	4
4.2 Tritium release by diffusion from beryllium	4
5. Conclusion	5
6. Concluding Remarks	6
Acknowledgements	6
References	7
Appendix	22
A.1 Nuclear reaction of beryllium and neutron	22
A.2 Release by diffusion from cylindrical sample	22
A.3 Calculation of Release rate by diffusion	23
A.4 Calculation of Bessel function	23
A.5 Check of program	23

1. 序 論

ベリリウムは、原子力分野において、反射体、減速材、中性子発生源として既に利用されているほか、最近になって、核融合実験装置の中性子増倍材¹⁾やリミッター材²⁾、第一壁³⁾等としての応用が期待されている。実際に JMTR でもベリリウムを中性子増倍材にしたブランケットの照射実験計画が立ち上がりつつある。

ベリリウムは物理的機械的性質において、Table 1 に示す様に軟鋼やアルミニウムなどにはない特異性が見られる^{4,5)}。また、JT-60、TFTR等の大型トカマク実験装置における第一壁のアーマ材として使用されているグラファイトと比較しても、熱衝撃に強い、水素と化学反応しにくい、スパッタリング率が1桁小さい等の特徴がある。

Table 2 にベリリウムの利用例を示す^{4,5)}。これらの工業分野において、ベリリウムはホットプレスベリリウム（以後 ^{HP}Be と表記する。）の形で利用されている。一般に金属ベリリウムは硬いうえにもろく、精密加工しにくい材料である。そこで金属ベリリウムを粉末冶金法で成形することによって精密加工を可能としている。

^{HP}Be は前述の様に多くの分野に利用されているが、核融合分野で使用する時はいくつかの解決すべき問題がある。例えば中性子照射によるトリチウム及びヘリウム⁶⁾の生成（付録A.1参照）、照射脆化やスウェリング⁶⁾、人体への影響⁷⁾等である。特にトリチウム及びヘリウムの生成は、それらの放出挙動との関係で核融合実験炉の燃料リサイクリングやインベントリーに影響を及ぼす。金属ベリリウム、単結晶酸化ベリリウムやホットプレス酸化ベリリウムからのトリチウム拡散挙動については、P. M. S. Jones⁸⁾やJ. D. Fowler⁹⁾らが報告している。しかし、 ^{HP}Be に関するこれらのデータはほとんどない。そこで著者らに、JMTR で1サイクル中性子照射した ^{HP}Be を試料として、 ^{HP}Be 中のトリチウムの挙動を明らかにするため、中性子照射によるトリチウム反跳放出量の測定、 ^{HP}Be の加熱によるトリチウムの放出実験及び金相観察を行った。

2. 実 験

2.1 試料

試料としては日本碍子株式会社製の原子炉級 ^{HP}Be を使用した。 ^{HP}Be の成分はTable 3に示す様に約99wt.%のBe純度であり、主な不純物はBeOである。また、Table 3中のBeとBeOを加算すると100%を越えるのは、分析法の誤差のためである¹⁰⁾。試料は、直径10mm、厚さ1.4mmのディスク形状とした。尚、ベリリウムディスクの製造工程の詳細は、参考文献10)に示してあるので本報では省略する。ベリリウムディスクは、照射時に試料から反跳によって放出するトリチウム量を測定するためにアルミニウム箔で包んである。このアルミニウム箔の純度は99.99%であり、厚みはアルミニウム中のトリチウムの飛程が10 μ mであること

1. 序 論

ベリリウムは、原子力分野において、反射体、減速材、中性子発生源として既に利用されているほか、最近になって、核融合実験装置の中性子増倍材¹⁾やリミッター材²⁾、第一壁³⁾等としての応用が期待されている。実際に JMTR でもベリリウムを中性子増倍材にしたブランケットの照射実験計画が立ち上がりつつある。

ベリリウムは物理的機械的性質において、Table 1 に示す様に軟鋼やアルミニウムなどにはない特異性が見られる^{4,5)}。また、JT-60、TFTR等の大型トカマク実験装置における第一壁のアーマ材として使用されているグラファイトと比較しても、熱衝撃に強い、水素と化学反応しにくい、スパッタリング率が1桁小さい等の特徴がある。

Table 2 にベリリウムの利用例を示す^{4,5)}。これらの工業分野において、ベリリウムはホットプレスベリリウム（以後 ^{HP}Be と表記する。）の形で利用されている。一般に金属ベリリウムは硬いうえにもろく、精密加工しにくい材料である。そこで金属ベリリウムを粉末冶金法で成形することによって精密加工を可能としている。

^{HP}Be は前述の様に多くの分野に利用されているが、核融合分野で使用する時はいくつかの解決すべき問題がある。例えば中性子照射によるトリチウム及びヘリウムの生成（付録 A. 1 参照）、照射脆化やスウェリング⁶⁾、人体への影響⁷⁾等である。特にトリチウム及びヘリウムの生成は、それらの放出挙動との関係で核融合実験炉の燃料リサイクリングやインベントリーに影響を及ぼす。金属ベリリウム、単結晶酸化ベリリウムやホットプレス酸化ベリリウムからのトリチウム拡散挙動については、P. M. S. Jones⁸⁾や J. D. Fowler⁹⁾らが報告している。しかし、 ^{HP}Be に関するこれらのデータはほとんどない。そこで著者らに、JMTR で1サイクル中性子照射した ^{HP}Be を試料として、 ^{HP}Be 中のトリチウムの挙動を明らかにするため、中性子照射によるトリチウム反跳放出量の測定、 ^{HP}Be の加熱によるトリチウムの放出実験及び金相観察を行った。

2. 実 験

2.1 試料

試料としては日本碍子株式会社製の原子炉級 ^{HP}Be を使用した。 ^{HP}Be の成分は Table 3 に示す様に約 99 wt. % の Be 純度であり、主な不純物は BeO である。また、Table 3 中の Be と BeO を加算すると 100% を越えるのは、分析法の誤差のためである¹⁰⁾。試料は、直径 10 mm、厚さ 1.4 mm のディスク形状とした。尚、ベリリウムディスクの製造工程の詳細は、参考文献 10) に示してあるので本報では省略する。ベリリウムディスクは、照射時に試料から反跳によって放出するトリチウム量を測定するためにアルミニウム箔で包んである。このアルミニウム箔の純度は 99.99% であり、厚みはアルミニウム中のトリチウムの飛程が 10 μm であること

を考慮して、 $100\ \mu\text{m}$ にした。アルミニウム箔の成分をTable 4に示す。

2.2 照射

アルミニウム箔で包まれた ^{10}Be はアルミニウムスペーサ(A1050, 純度99%)で交互に挟み込んでFig. 1のキャプセルに収納し照射した。キャプセルには高速中性子照射量評価のためにフルエンスモニタを入れた。試料はJMTR75サイクル(1986年7月1日~同年8月2日)で中性子照射(熱中性子束: $2.5 \times 10^{14}\ \text{n/cm}^2/\text{s}$, 高速中性子束: $2 \times 10^{14}\ \text{n/cm}^2/\text{s}$)を行った。照射結果をTable 5に示す。高速中性子照射量はフルエンスモニタによる測定値, 照射温度はGENGTCコード¹¹⁾による計算値, 熱中性子照射量は核計算値^{12), 13)}である。

また, 照射後の ^{10}Be 試料1個当りの線量は1987年4月21日において, 表面で約50 mRであった。この様に線量が高かったのは, 不純物の影響と考えられる。 ^{10}Be の γ 線スペクトル測定結果(Fig. 2)から主なピークは ^{60}Co であった。

^{10}Be の照射前後における形状及び重量の変化をTable 6に示す。照射前後において, 重量の変化はほとんど見られなかったが, 試料の直径及び厚みは約3%増加した。これは, 試料内にトリチウムやヘリウムが生成されたことによるものと思われる。

2.3 装置

加熱放出実験に使用した装置¹⁴⁾の概要をFig. 3に示す。装置は試料の加熱を行う電気炉, トリチウムの水成分を捕集するためのコールドトラップ, トリチウムのガス成分を測定するためのラジオガスクロマトグラフ及びトリチウム除去装置から成っている。キャリアガスはNe(純度99.999%)で液体窒素トラップによって不純物を除去してから装置内に流した。

2.4 方法

Fig. 3の実験装置を用いて, ベリリウムからのトリチウムの反跳放出量を測定するためのアルミニウム箔の等時加熱実験, 中性子照射済ベリリウムからのトリチウム放出温度を把握するための等時加熱実験及びトリチウムの拡散係数を求めるための等温加熱実験を行った。Table 7に実験項目とその実験に使用した試料番号を示す。

^{10}Be からの反跳放出トリチウム量測定のための等時加熱実験は次の様に行った。

まず, 照射時に ^{10}Be を包んでおいたアルミニウム箔をNeガス中で加熱処理しておいた石英ボードに乗せ, 電気炉中の加熱管に挿入した。次にNeガス中で $100\ \text{C}$ から $600\ \text{C}$ まで $100\ \text{C}$ 間隔で各20分間アルミニウム箔を加熱した後, 各温度で2分間Neガスを流し, 放出したガスをラジオガスクロマトグラフで測定した。この時のNeガスの流速は $1\ \text{ml/s}$ であった。コールドトラップで捕集したトリチウム水は液体シンチレーションカウンタで測定した。測定は3個のアルミニウム箔試料(試料名A1, A2, A3)とアルミニウムスペーサ(試料名S1)について

行った。アルミニウムスペーサの測定は、アルミニウム内の不純物により生成したトリチウム量を把握するためである。

等時加熱実験では、 ^{HP}Be を 100 °C から 1180 °C まで 100 °C 毎に各 20 分間加熱し、トリチウムの放出温度と放出量との関係を求めた。尚、トリチウムの測定は反跳放出実験と同じ方法で行った。

等温加熱実験では、 ^{HP}Be を 800, 1000 及び 1180 °C で約 5000s 間加熱し、時間に対する放出量から拡散係数、活性化エネルギー等を求めた。

3. 結 果

3.1 アルミニウム箔の等時加熱実験

アルミニウム箔 (試料名 A θ) を 100 °C ごとに各々 20 分間加熱した時のトリチウム放出結果を Fig. 4 に示す。放出量は、400 °C で最大になった。試料中に含まれる全トリチウム量の推定のためにトリチウムガスの放出量は、等時加熱実験の後にアルミニウム箔を更に 600 °C でトリチウムが検出できなくなるまで加熱して求めた。この様にして求めると A θ 試料の場合 4 μCi であった。Fig. 5 に放出したトリチウムのラジオガスクロマトグラムを示す。放出されたトリチウムのガス成分はほとんど HT で T $_2$ は検出されなかった。また、コールドトラップで捕集したトリチウムの水成分を液体シンチレーションカウンタで測定した結果、4 μCi であった。他の試料 (A2, A3, S1) についても同様の測定を行い、トリチウム化学形、全トリチウム量を求めた。その結果を Table 8 に示す。試料 1 グラム当りのトリチウム量を比較すると、アルミニウム箔の方がアルミニウムスペーサより 1 桁大きいことが分かった。これは、 ^{HP}Be からのトリチウム反跳放出量がアルミニウムスペーサの不純物より生成したトリチウムより多いためと考えられる。

3.2 ベリリウム箔の等時加熱実験

^{HP}Be (試料名 B1) の等時加熱実験結果を Fig. 6 に示す。 ^{HP}Be からのトリチウムの放出は、600 °C から徐々に始まり 1100 °C で最大になった。放出量の積算値は本実験の温度範囲で飽和傾向を示した。放出されたトリチウムのガス成分 (HT, T $_2$) は 1.2 mCi, 水成分は 25 μCi であった。ラジオガスクロマトグラム (Fig. 7) によればトリチウムのガス成分は、ほとんど HT であった。

行った。アルミニウムスペーサの測定は、アルミニウム内の不純物により生成したトリチウム量を把握するためである。

等時加熱実験では、 ^{HP}Be を 100 °C から 1180 °C まで 100 °C 毎に各 20 分間加熱し、トリチウムの放出温度と放出量との関係を求めた。尚、トリチウムの測定は反跳放出実験と同じ方法で行った。

等温加熱実験では、 ^{HP}Be を 800, 1000 及び 1180 °C で約 5000s 間加熱し、時間に対する放出量から拡散係数、活性化エネルギー等を求めた。

3. 結 果

3.1 アルミニウム箔の等時加熱実験

アルミニウム箔（試料名 A \emptyset ）を 100 °C ごとに各々 20 分間加熱した時のトリチウム放出結果を Fig. 4 に示す。放出量は、400 °C で最大になった。試料中に含まれる全トリチウム量の推定のためにトリチウムガスの放出量は、等時加熱実験の後にアルミニウム箔を更に 600 °C でトリチウムが検出できなくなるまで加熱して求めた。この様にして求めると A \emptyset 試料の場合 4 μCi であった。Fig. 5 に放出したトリチウムのラジオガスクロマトグラムを示す。放出されたトリチウムのガス成分はほとんど HT で T₂ は検出されなかった。また、コールドトラップで捕集したトリチウムの水成分を液体シンチレーションカウンタで測定した結果、4 μCi であった。他の試料（A2, A3, S1）についても同様の測定を行い、トリチウム化学形、全トリチウム量を求めた。その結果を Table 8 に示す。試料 1 グラム当りのトリチウム量を比較すると、アルミニウム箔の方がアルミニウムスペーサより 1 桁大きいことが分かった。これは、 ^{HP}Be からのトリチウム反跳放出量がアルミニウムスペーサの不純物より生成したトリチウムより多いためと考えられる。

3.2 ベリリウム箔の等時加熱実験

^{HP}Be （試料名 B1）の等時加熱実験結果を Fig. 6 に示す。 ^{HP}Be からのトリチウムの放出は、600 °C から徐々に始まり 1100 °C で最大になった。放出量の積算値は本実験の温度範囲で飽和傾向を示した。放出されたトリチウムのガス成分（HT, T₂）は 1.2 mCi, 水成分は 25 μCi であった。ラジオガスクロマトグラム（Fig. 7）によればトリチウムのガス成分は、ほとんど HT であった。

3.3 ベリリウムの等温加熱実験

トリチウム放出の典型的な例として試料B 3及びB 4を用いて測定した結果をFig. 8に示す。放出曲線は飽和傾向を示し、加熱温度を高くすればするほど短時間で放出した。この時800℃の試料はB 4、1000及び1180℃の試料は、B 3を用いた。Table 9にB 1、B 3、B 4のトリチウム放出量の測定結果を示す。B 3、B 4についてはトリチウムの放出が検出できなくなるまで1180℃で加熱した後の値である。この結果からTable 5に示した照射条件で中性子照射した場合、付録A.1に示した2段核反応によって ^{HP}Be 中に約10 mCi/gのトリチウムが生成することが分かった。

3.4 ベリリウムの金相観察

未加熱試料(B 2)と加熱後の試料(B 1)の金相写真をFig. 9に示す。未加熱の試料は中性子照射によってポアが均一に生成しているが、加熱後の試料はポアが中央部に凝集している。また、加熱後の試料は全体的に膨らみ、ブリスタが観察された。

4. 考 察

4.1 ベリリウムからのトリチウムの反跳放出

Table 8中のS 1はアルミニウムスペーサ中に含まれる不純物によって生成されたトリチウム量を示しており、アルミニウム箔中の1グラム当りのトリチウム量に比べると約1/10である。アルミニウム箔の純度がアルミニウムスペーサより高いことから、加熱によって求めたアルミニウム箔中のトリチウムのほとんどが ^{HP}Be からの反跳トリチウムと考えられる。 ^{HP}Be からの反跳トリチウム量は、試料の表面積(2.01 cm²)とアルミニウム箔中のトリチウム量の平均値(8.3 μ Ci)から計算すると約4 μ Ci/cm²となる。これにより ^{HP}Be 中に生成したトリチウム量(2.0 mCi)の約0.4%が反跳によってアルミニウム箔中に移行したことが明らかである。

4.2 ベリリウムからのトリチウムの拡散放出

トリチウムの拡散係数は、等温加熱実験からFickの式で求めることができる^{15), 16)}(付録A.2)。

Fig. 10は実験値から拡散係数を求めた例である。Fig. 10の●印は1000℃の実験値であり、付録A.2の(A-3)式の拡散係数を変えて計算する(実線)と 2.8×10^{-7} cm²/sの時に実験値と計算値が最も良く一致した。同様にして800、1180℃について計算するとFig. 8の様になった。ただし、カーブフィットした実験値は、放出したトリチウムのガス成分のみを考

3.3 ベリリウムの等温加熱実験

トリチウム放出の典型的な例として試料B 3及びB 4を用いて測定した結果をFig. 8に示す。放出曲線は飽和傾向を示し、加熱温度を高くすればするほど短時間で放出した。この時800℃の試料はB 4, 1000及び1180℃の試料は、B 3を用いた。Table 9にB 1, B 3, B 4のトリチウム放出量の測定結果を示す。B 3, B 4についてはトリチウムの放出が検出できなくなるまで1180℃で加熱した後の値である。この結果からTable 5に示した照射条件で中性子照射した場合、付録A. 1に示した2段核反応によって^{HP}Be中に約10 mCi/gのトリチウムが生成することが分かった。

3.4 ベリリウムの金相観察

未加熱試料(B 2)と加熱後の試料(B 1)の金相写真をFig. 9に示す。未加熱の試料は中性子照射によってポアが均一に生成しているが、加熱後の試料はポアが中央部に凝集している。また、加熱後の試料は全体的に膨らみ、プリスタが観察された。

4. 考 察

4.1 ベリリウムからのトリチウムの反跳放出

Table 8中のS 1はアルミニウムスペーサ中に含まれる不純物によって生成されたトリチウム量を示しており、アルミニウム箱中の1グラム当りのトリチウム量に比べると約1/10である。アルミニウム箱の純度がアルミニウムスペーサより高いことから、加熱によって求めたアルミニウム箱中のトリチウムのほとんどが^{HP}Beからの反跳トリチウムと考えられる。^{HP}Beからの反跳トリチウム量は、試料の表面積(2.01 cm²)とアルミニウム箱中のトリチウム量の平均値(8.3 μCi)から計算すると約4 μCi/cm²となる。これにより^{HP}Be中に生成したトリチウム量(2.0 mCi)の約0.4%が反跳によってアルミニウム箱中に移行したことが明らかである。

4.2 ベリリウムからのトリチウムの拡散放出

トリチウムの拡散係数は、等温加熱実験からFickの式で求めることができる^{15), 16)}(付録A. 2)。

Fig. 10は実験値から拡散係数を求めた例である。Fig. 10の●印は1000℃の実験値であり、付録A. 2の(A-3)式の拡散係数を変えて計算する(実線)と 2.8×10^{-7} cm²/sの時に実験値と計算値が最も良く一致した。同様にして800, 1180℃について計算するとFig. 8のようになった。ただし、カーブフィットした実験値は、放出したトリチウムのガス成分のみを考

慮し、水成分は無視して行った。Fig. 8を見ると、800と1000℃のデータは計算値と良く一致したが、1180℃のデータは長時間が経過するに従って合わなくなった。これは、1180℃のデータが、1000℃で使用した試料を再び使用して測定したため、加熱によってFig. 9に示す様なポアの凝集等がトリチウムの拡散障壁になり、計算モデルと合わなくなったためと考えられる。

Fig. 8の拡散係数からアレニウスプロットを求めるとFig. 11となる。同図には、金属ベリリウム⁸⁾、単結晶酸化ベリリウム及びホットプレス酸化ベリリウム⁹⁾の拡散係数も併せて示してある。^{HP}Beの活性化エネルギー(傾き)は、金属ベリリウムの活性化エネルギーより酸化ベリリウムの活性化エネルギーに近いことが明らかとなった。この理由は以下の様に考えられる。^{HP}Beは粉末冶金法⁴⁾で作られているため、真空ホットプレスする際にも粒状表面は酸化し、酸化ベリリウムになっていると考えられる(Fig. 12)。一般に水素同位体の拡散には酸化物が大きく影響することから、^{HP}Be中のトリチウムの拡散においても酸化ベリリウムが影響し、その結果、^{HP}Beの活性化エネルギーが酸化ベリリウムの活性化エネルギーに近い値になったと考えられる。

Fig. 11からArrheniusの式の振動数項と活性化エネルギーを求めると各々 $8.7 \times 10^4 \text{ cm}^2/\text{s}$ 、 $2.9 \times 10^5 \text{ J/mol}$ となり拡散係数 $D \text{ [cm}^2/\text{s]}$ は次式となった。

$$D = 8.7 \times 10^4 \exp(-2.9 \times 10^5 / R / T) \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここでRは気体定数(8.314 J/K/mol)、Tは温度[K]である。

(1)式を用いてFig. 6の等時加熱実験結果の妥当性を検討した。

(1)式に等時加熱実験での加熱温度を代入して拡散係数を求め、付録A.3のプログラムを使って20分までの放出率曲線を求めるとFig. 13となった。Fig. 13から各温度における20分後の放出量を求めるとTable 10の様になる。Table 10の20分後の放出量は、各温度で独立的に加熱した時の規格化値を示しているから、600~1180℃まで続けて加熱した場合を計算するとTable 10の放出量[規格化値]となる。この放出量[規格化値]から放出量積算を求めると1180℃の加熱終了時点で0.99となる。この値とFig. 6の実験から求めたトリチウム放出積算量から試料中の全トリチウム量を推定し、放出量と放出量積算を求めるとFig. 14の点線となる。Fig. 14の実験値と計算値がほぼ一致したことから、等温加熱実験で求めた(1)式の振動数項と活性化エネルギーは、等時加熱実験の放出挙動にも適応できることが明らかになった。

5. 結 論

JMTRで1サイクル中性子照射したホットプレスベリリウムとベリリウムを包んでいたアルミニウム箔を用いて行った等時加熱実験及び等温加熱実験から得た知見を以下に示す。

- ① ^{HP}Be中には2段階核反応によって約10 mCi/gのトリチウムが生成された。
- ② 中性子照射による^{HP}Beからの反跳トリチウム放出量は約4 μCi/cm²であり、トリチウム生成量の約0.4%が反跳で放出される。

慮し、水成分は無視して行った。Fig. 8を見ると、800と1000℃のデータは計算値と良く一致したが、1180℃のデータは長時間が経過するに従って合わなくなった。これは、1180℃のデータが、1000℃で使用した試料を再び使用して測定したため、加熱によってFig. 9に示す様なボアの凝集等がトリチウムの拡散障壁になり、計算モデルと合わなくなったためと考えられる。

Fig. 8の拡散係数からアレニウスプロットを求めるとFig. 11となる。同図には、金属ベリリウム⁸⁾、単結晶酸化ベリリウム及びホットプレス酸化ベリリウム⁹⁾の拡散係数も併せて示してある。^{HP}Beの活性化エネルギー(傾き)は、金属ベリリウムの活性化エネルギーより酸化ベリリウムの活性化エネルギーに近いことが明らかとなった。この理由は以下の様に考えられる。^{HP}Beは粉末冶金法⁴⁾で作られているため、真空ホットプレスする際にも粒状表面は酸化し、酸化ベリリウムになっていると考えられる(Fig. 12)。一般に水素同位体の拡散には酸化物が大きく影響することから、^{HP}Be中のトリチウムの拡散においても酸化ベリリウムが影響し、その結果、^{HP}Beの活性化エネルギーが酸化ベリリウムの活性化エネルギーに近い値になったと考えられる。

Fig. 11からArrheniusの式の振動数項と活性化エネルギーを求めると各々 8.7×10^4 cm²/s、 2.9×10^5 J/molとなり拡散係数D [cm²/s]は次式となった。

$$D = 8.7 \times 10^4 \exp(-2.9 \times 10^5 / R / T) \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここでRは気体定数(8.314 J/K/mol)、Tは温度[K]である。

(1)式を用いてFig. 6の等時加熱実験結果の妥当性を検討した。

(1)式に等時加熱実験での加熱温度を代入して拡散係数を求め、付録A.3のプログラムを使って20分までの放出率曲線を求めるとFig. 13となった。Fig. 13から各温度における20分後の放出量を求めるとTable 10の様になる。Table 10の20分後の放出量は、各温度で独立的に加熱した時の規格化値を示しているから、600~1180℃まで続けて加熱した場合を計算するとTable 10の放出量[規格化値]となる。この放出量[規格化値]から放出量積算を求めると1180℃の加熱終了時点で0.99となる。この値とFig. 6の実験から求めたトリチウム放出積算量から試料中の全トリチウム量を推定し、放出量と放出量積算を求めるとFig. 14の点線となる。Fig. 14の実験値と計算値がほぼ一致したことから、等温加熱実験で求めた(1)式の振動数項と活性化エネルギーは、等時加熱実験の放出挙動にも適応できることが明らかになった。

5. 結 論

JMTRで1サイクル中性子照射したホットプレスベリリウムとベリリウムを包んでいたアルミニウム箔を用いて行った等時加熱実験及び等温加熱実験から得た知見を以下に示す。

- ① ^{HP}Be中には2段階核反応によって約10 mCi/gのトリチウムが生成された。
- ② 中性子照射による^{HP}Beからの反跳トリチウム放出量は約4 μCi/cm²であり、トリチウム生成量の約0.4%が反跳で放出される。

- ③ ${}^{\text{HP}}\text{Be}$ 中のトリチウムの拡散係数 D [cm^2/s] は次式で表されることが明らかになった。

$$D = 8.7 \times 10^4 \exp(-2.9 \times 10^5 / R/T)$$

6. あとがき

今後は、計算コード等を整備し、2段核反応によってベリリウム中に生成するトリチウム生成量を正確に把握し、今回得た結果と比較する予定である。また、更に ${}^{\text{HP}}\text{Be}$ の等温加熱実験を続行し、中性子照射量と放出特性の関係等を調べる予定である。

謝 辞

実験を進めるにあたり齋藤 実元計画課長（現材料試験炉次長）に有益な御助言を頂いた。また実験を行うに当り、東海研究所アイソトープ部研究開発課の加藤岑生氏及び黒沢清行氏に御助力を頂いた。更に本報告書をまとめるにあたり、トリチウム技術研究室の吉田 浩主任研究員に御助言を頂いた。以上、記して謝意を表します。

- ③ ${}^{\text{HP}}\text{Be}$ 中のトリチウムの拡散係数 D [cm^2/s] は次式で表されることが明らかになった。

$$D = 8.7 \times 10^4 \exp(-2.9 \times 10^5 / R/T)$$

6. あとがき

今後は、計算コード等を整備し、2段核反応によってベリリウム中に生成するトリチウム生成量を正確に把握し、今回得た結果と比較する予定である。また、更に ${}^{\text{HP}}\text{Be}$ の等温加熱実験を続行し、中性子照射量と放出特性の関係等を調べる予定である。

謝 辞

実験を進めるにあたり斎藤 実元計画課長（現材料試験炉次長）に有益な御助言を頂いた。また実験を行うに当り、東海研究所アイソトープ部研究開発課の加藤岑生氏及び黒沢清行氏に御助力を頂いた。更に本報告書をまとめるにあたり、トリチウム技術研究室の吉田 浩主任研究員に御助言を頂いた。以上、記して謝意を表します。

- ③ ${}^{\text{HP}}\text{Be}$ 中のトリチウムの拡散係数 D [cm^2/s] は次式で表されることが明らかになった。

$$D = 8.7 \times 10^4 \exp(-2.9 \times 10^5 / R/T)$$

6. あとがき

今後は、計算コード等を整備し、2段核反応によってベリリウム中に生成するトリチウム生成量を正確に把握し、今回得た結果と比較する予定である。また、更に ${}^{\text{HP}}\text{Be}$ の等温加熱実験を続行し、中性子照射量と放出特性の関係等を調べる予定である。

謝 辞

実験を進めるにあたり斎藤 実元計画課長（現材料試験炉次長）に有益な御助言を頂いた。また実験を行うに当り、東海研究所アイソトープ部研究開発課の加藤岑生氏及び黒沢清行氏に御助力を頂いた。更に本報告書をまとめるにあたり、トリチウム技術研究室の吉田 浩主任研究員に御助言を頂いた。以上、記して謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 東稔達三ほか, JAERI-M 87-017 (1987)
- 2) P. H. Edmonds, P. Mioduszewski, J. B. Roberto, R. D. Watson and M. F. Smith, J. Nucl. Mater., 128/129 (1984) 422
- 3) P. H. Rebut and K. J. Dietz, in Proceeding of the 12th Symposium on Fusion Technology, 1 (1983) 85
- 4) A. J. Stonehouse, J. Vac. Sci. Technol., A4 (1986) 1163
- 5) Beryllium, 日本碍子 ㈱
- 6) 武田卓士, 雨沢博男, 飛田健治, JAERI-M 86-007 (1986)
- 7) “金属ベリリウムの安全な取扱い方”, 日本碍子 ㈱, (1973)
- 8) P. M. S. Jones and R. Gibson, J. Nucl. Mater., 21 (1967) 353
- 9) J. D. Fowler, Dipankar Chandra, T. S. Elleman, A. W. Payne and Kuruvilla Verghese, J. Am. Ceram. Soc., 60 (1977) 155
- 10) 河村 弘, 石塚悦男, 松本実喜夫, 山口 昇, 稲田征二, 瀬崎勝二, 斎藤 実: JAERI-M 89-013 (1989)
- 11) GENGTC : 私信
- 12) T. B. Fowler, D. R. Vondy and G. W. Cunningham, ORNL-TM-2496, Rev. 2 (1971)
- 13) K. Tsuchihashi, Y. Ishiguro, K. Kaneko and M. Ido, JAERI 1302 (1986)
- 14) H. Sugai, K. Kushita and M. Tanase, J. Nucl. Mater., 139 (1986) 248
- 15) P. ギラルダンク: “技術者の拡散入門”, 共立出版 ㈱
- 16) T. Lagerwall and K. E. Zimen: “The Kinetics of Rare-Gas Diffusion in Solids”, HMI-B 25 (1963)

Table 1 Special features of beryllium.

項 目	特 徴
原子番号	4 (low Z)
機械的強度	引張強さは軟鋼以上
弾性係数	鉄鋼の1.5倍
核特性	中性子反射材や増倍材
熱特性	比熱は実用金属中最大級、 熱伝導率は鉄鋼の 2倍、グラファイトの4倍
融 点	軽金属中最高
音の伝播速度	アルミニウムの2倍
X線透過率	アルミニウムの20~60倍

Table 2 Application of beryllium.

応 用 分 野	応 用 例
機械材料	振動部品、高速回転部品
航空・宇宙材料	慣性誘導装置、宇宙光学機器、 空気ブレーキ、搭載機器
電子材料	音響機器、中性子発生ターゲット 電子顕微鏡部品、分光用特殊管
X線機器材料	X線管球、X線透過機器

Table 3 Components in beryllium.

成分	[wt.%]	成分	[wt.%]
Be	99.28	Li	0.0003
Al	0.0320	Mn	0.0100
B	0.00009	Mg	0.0090
Cd	0.0002	Mo	0.0019
Ca	0.0031	Ni	0.020
C	0.095	Si	0.0236
Cr	0.011	Ag	0.0004
Co	0.0007	Cl	0.0030
Cu	0.0021	N	0.0380
Fe	0.0610	BeO	1.28
Pb	0.0020		

Table 4 Components in aluminium foil.

成分	[wt.%]
Al	99.993
Fe	0.001
Si	0.001
Cu	0.005

Table 5 Neutron-irradiation conditions.

項 目	数 値
照射温度	200 [°C]
高速中性子照射量	3.8×10^{20} [n/cm ²]
熱中性子照射量	6×10^{20} [n/cm ²]

Table 6 Dimension and weight of beryllium after neutron irradiation.

試料 番号	直 径 [mm]		厚 み [mm]		重 量 [g]	
	照射前	照射後	照射前	照射後	照射前	照射後
B 1	10.04	10.37	1.435	1.466	0.2130	0.2129
B 3	10.02	10.06	1.413	1.430	0.2089	0.2090
B 4	10.03	10.05	1.421	1.440	0.2063	0.2065

試料番号は、Fig. 1 参照

Table 7 Experimental items and corresponding samples.

実 験 項 目	試 料 番 号*1)
アルミニウム箔の等時加熱実験	S 1, A 1, A 2, A 3
ベリリウムの等時加熱実験	B 1
ベリリウムの等温加熱実験	B 3, B 4
ベリリウムの金相観察	B 1, B 2

B : ホットプレスベリリウム試料

A : アルミニウム箔

S : アルミニウムスペサー

*1) : Fig. 1 参照

Table 8 Tritium released from aluminium foil and spacer.

試 料 番 号	最高 加熱 温度 [°C]	最高温度 で の 加熱時間 [min]	トリチウム放出量		1g当りの トリチ ウム量 [μCi/g]
			ガス成分 [μCi]	水成分 [μCi]	
A 1	600	40	4	4	140
A 2	650	40	7	3	190
A 3	650	40	6	1	120
S 1	600	30	8	12	16

試料番号は、Fig. 1 参照

Table 9 Tritium released from hot-pressed beryllium.

試料 番号	最高 加熱 温度 [°C]	最高温度 での 加熱時間 [min]	トリチウム放出量		1g当りの トリチ ウム量 [mCi/g]
			ガス成分 [mCi]	水成分 [μCi]	
B 1	1180	40	1.2*	25*	5.8*
B 3	1180	16	1.8	160	9.2
B 4	1180	20	1.7	240	9.1

*全トリチウム放出量未確認
試料番号は、Fig. 1 参照

Table 10 Simulation of tritium release.

温度 [°C]	拡散係数 [cm ² /s]	Fig. 13から 求めた20分 後の放出量 [規格化値]	放 出 量		放出量積算	
			[規格化値]	[mCi]	[規格化値]	[mCi]
600	3.9×10^{-10}	0.0054	0.0054	0.0064	0.0054	0.0064
700	2.3×10^{-11}	0.0077	0.0077	0.0092	0.013	0.016
800	6.6×10^{-10}	0.020	0.020	0.024	0.033	0.040
900	1.1×10^{-9}	0.074	0.072	0.086	0.10	0.13
1000	1.1×10^{-7}	0.23	0.21	0.25	0.31	0.38
1100	8.1×10^{-7}	0.57	0.40	0.48	0.71	0.86
1180	3.3×10^{-6}	0.92	0.27	0.32	0.99	1.2

加熱時間 20 [min]

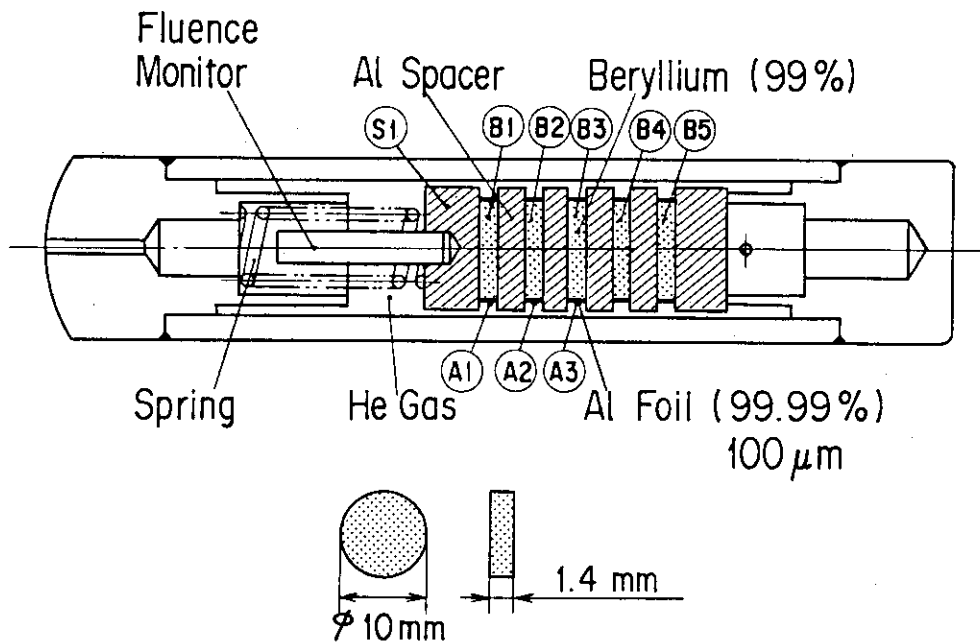


Fig. 1 Capsule for neutron irradiation.

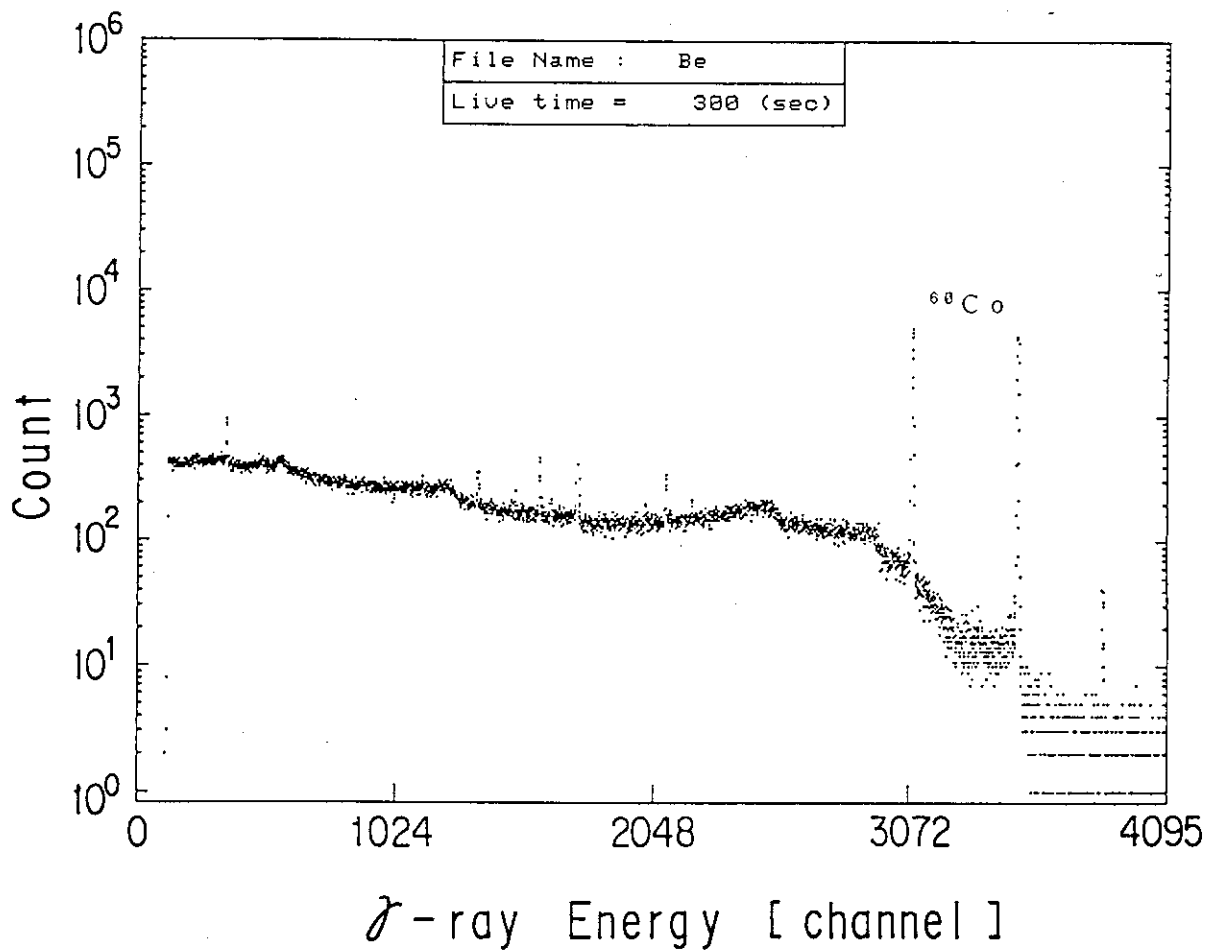


Fig. 2 γ -ray spectrum of hot-pressed beryllium.

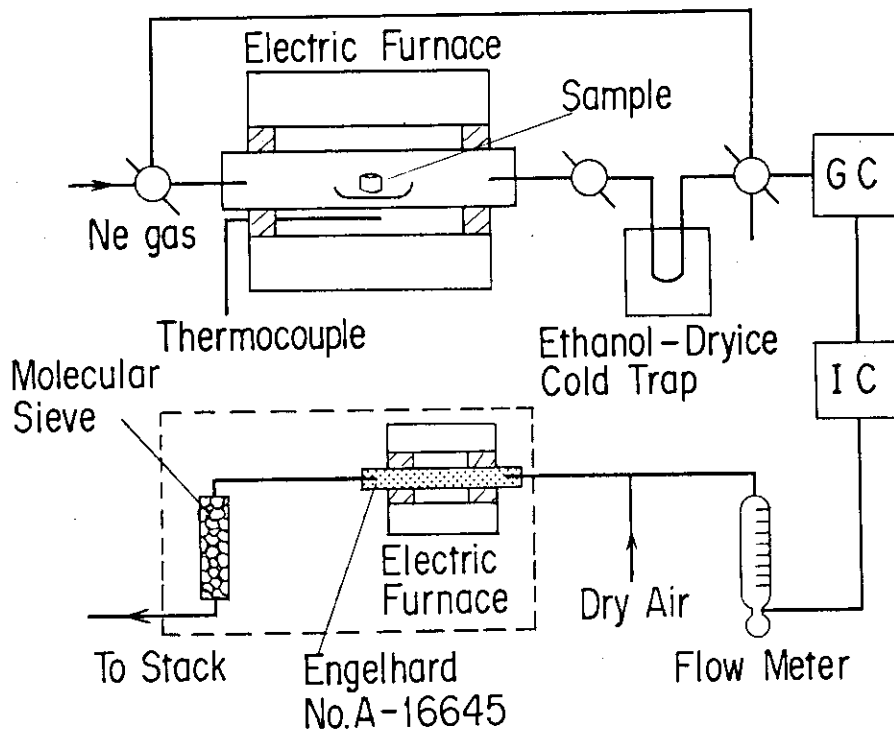


Fig. 3 Equipment for tritium measurement.

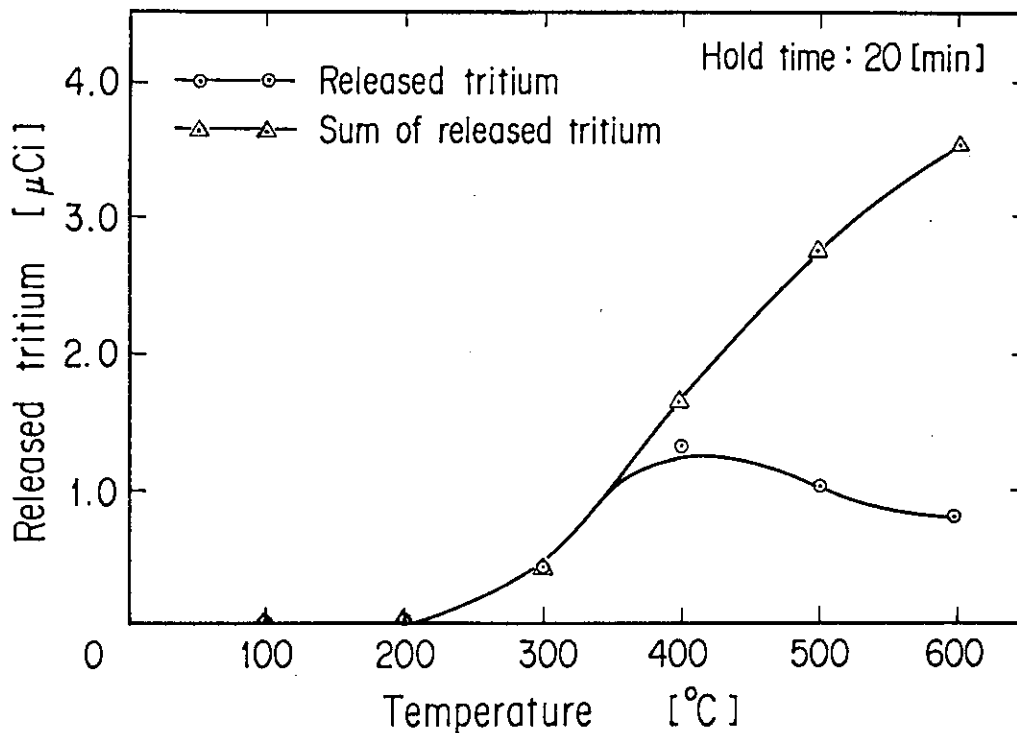


Fig. 4 Tritium released from aluminium foil.

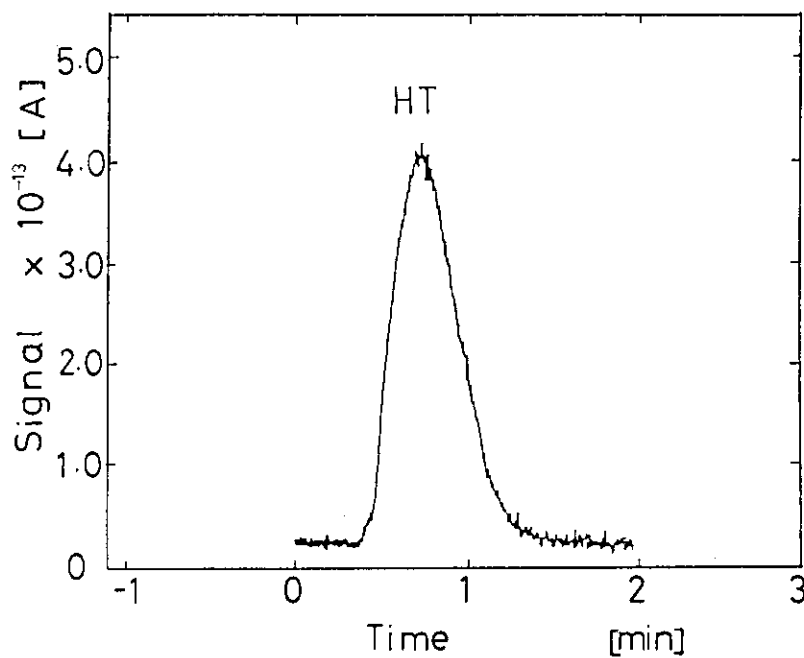


Fig. 5 Radio-gas chromatographic signal of tritium gas released from aluminium foil.

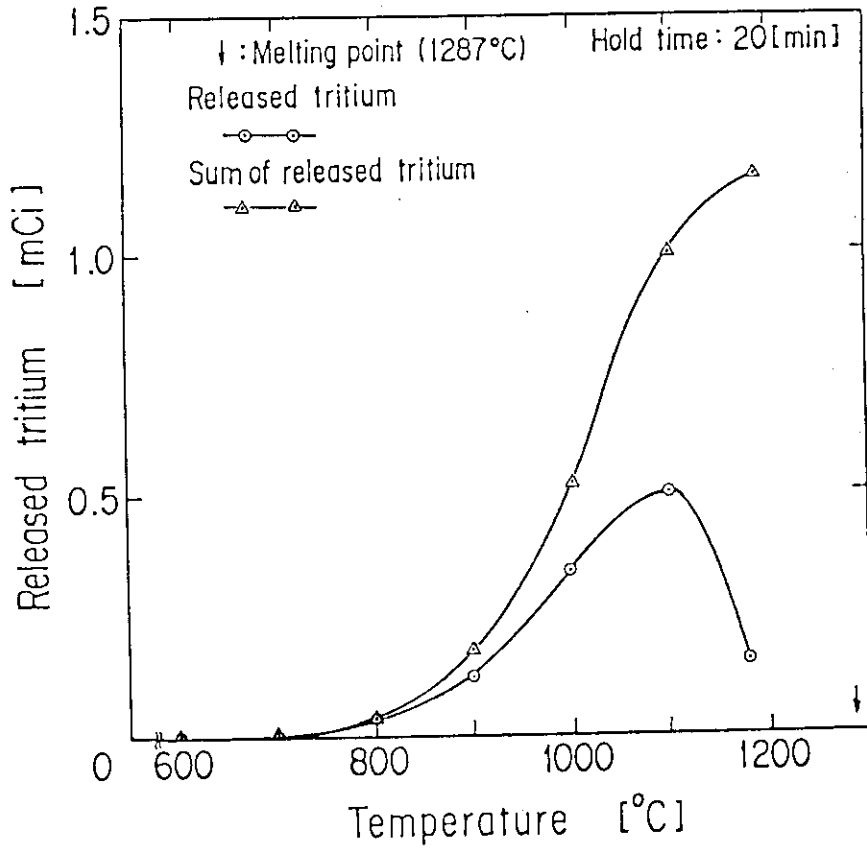


Fig. 6 Tritium released from hot-pressed beryllium.

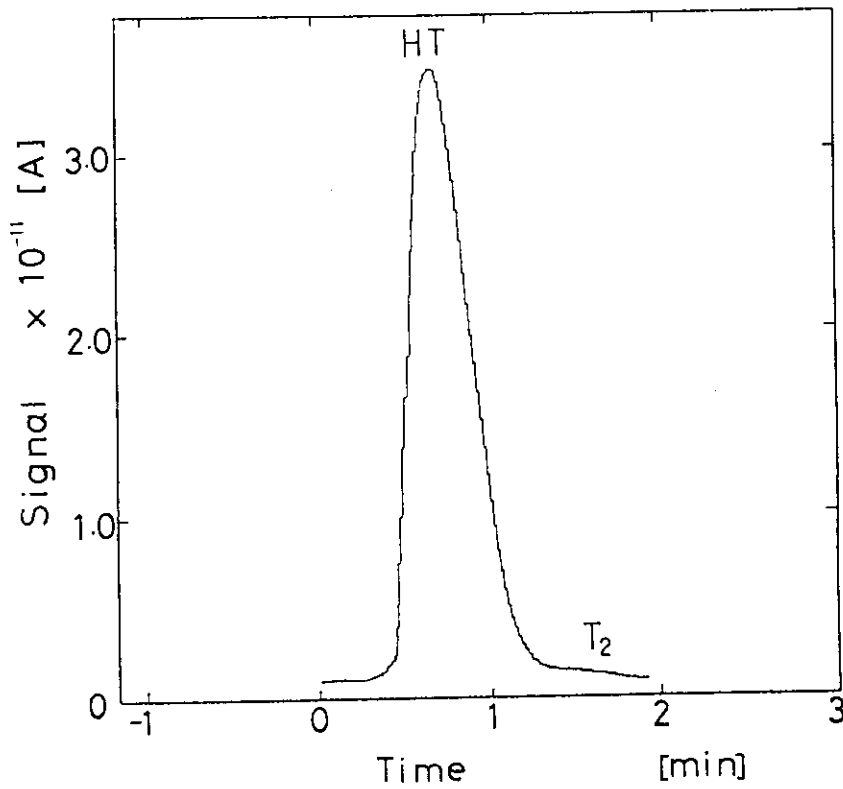


Fig. 7 Radio-gas chromatographic signal of tritium gas released from hot-pressed beryllium.

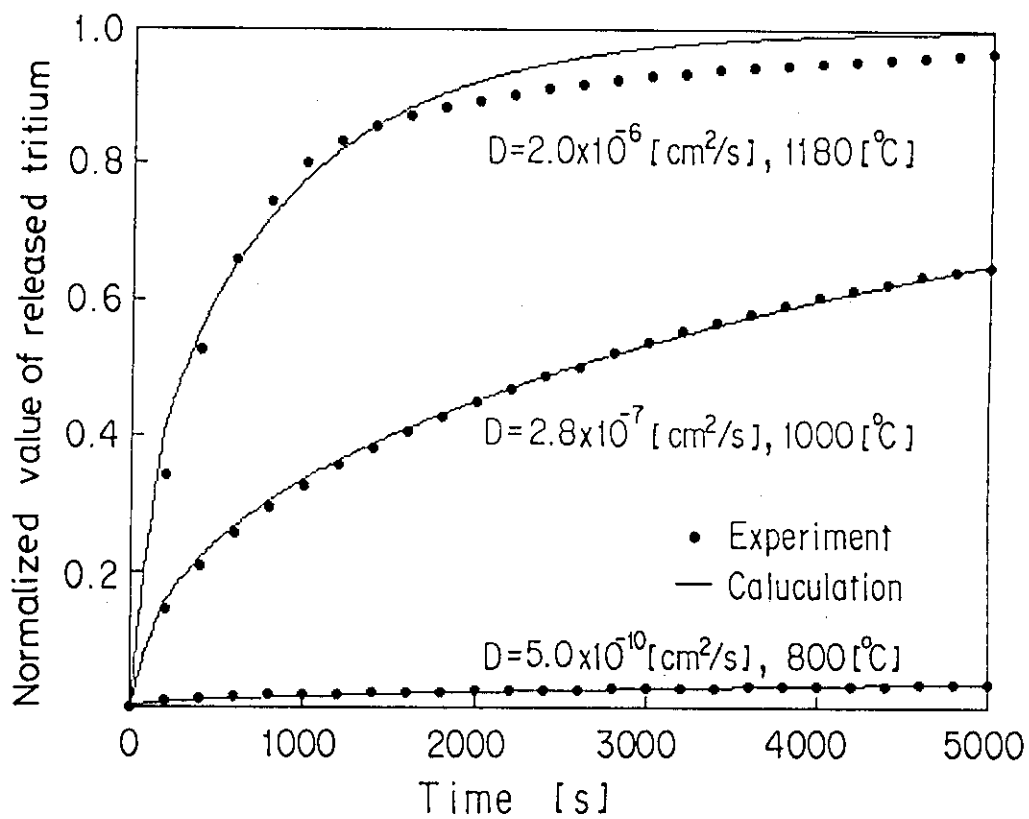
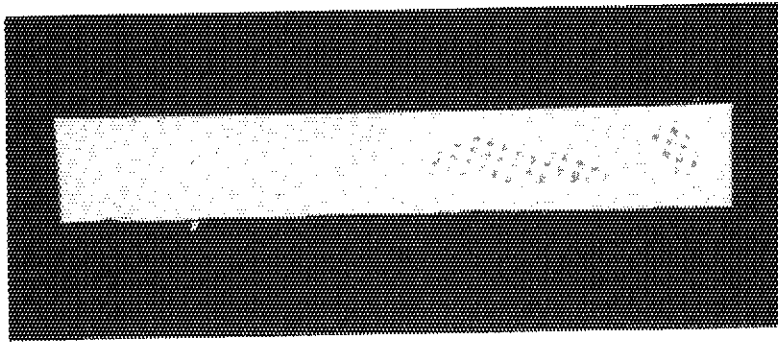
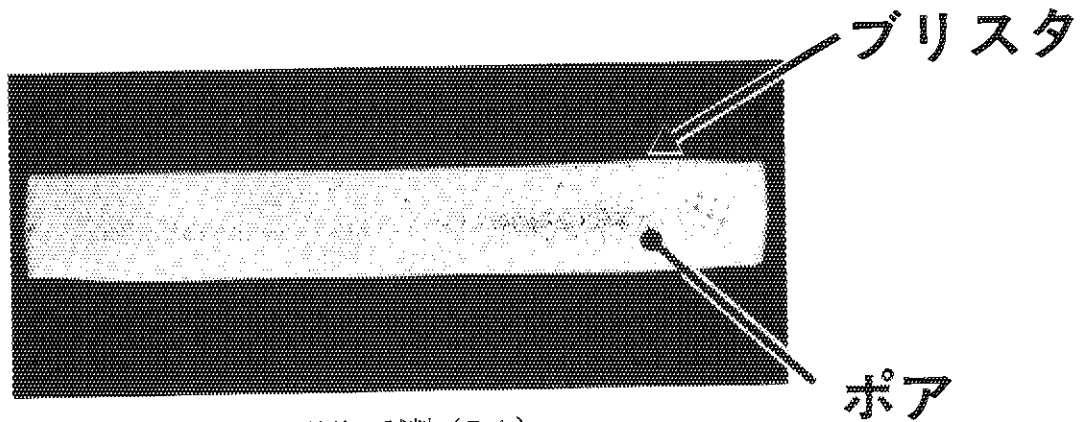


Fig. 8 Rate of tritium released.



未加熱試料 (B 2)



加熱後の試料 (B 1)

Fig. 9 Cross section of hot-pressed beryllium.

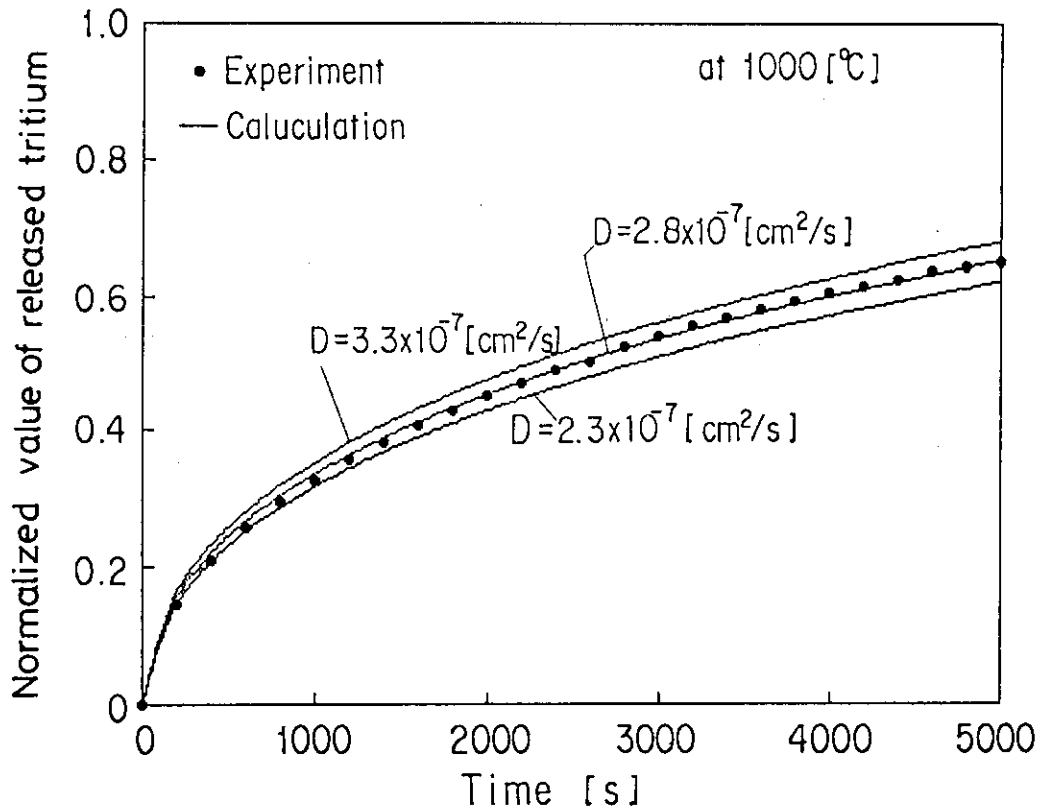


Fig. 10 Curve fitting for determination of diffusion coefficient.

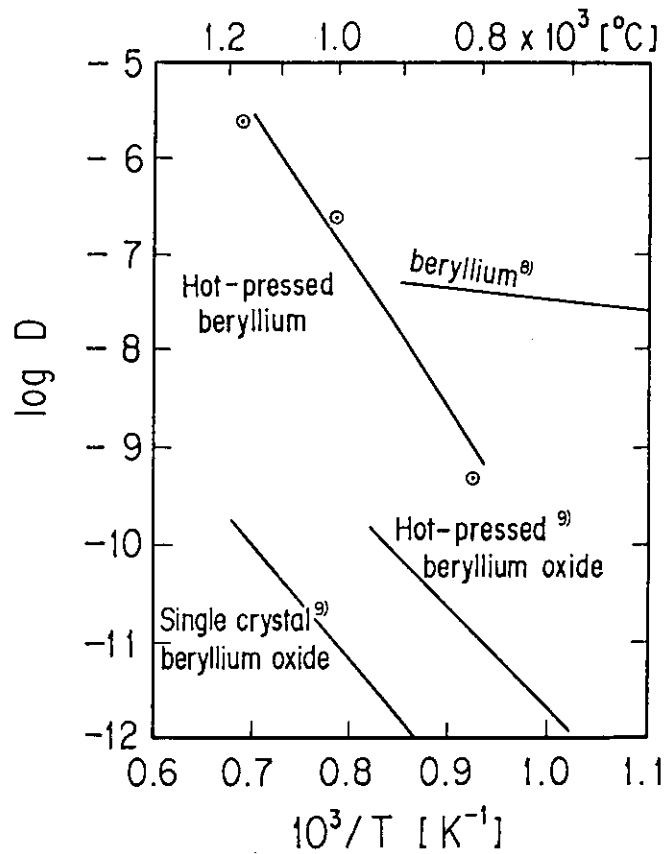


Fig. 11 Arrhenius plot.

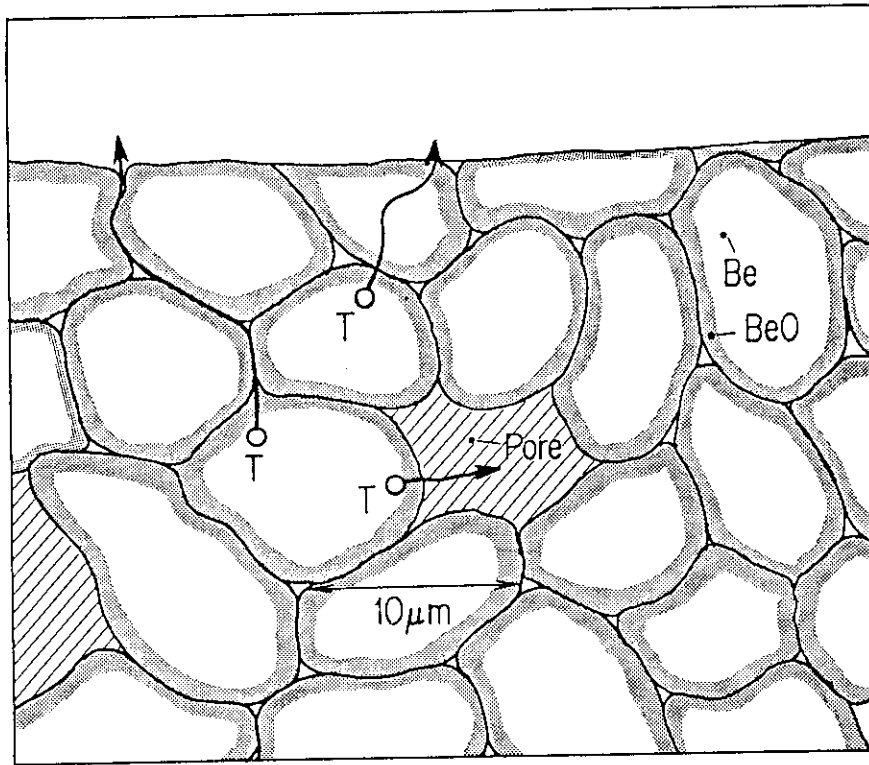


Fig. 12 A model of tritium behavior in neutron-irradiated hot-pressed beryllium.

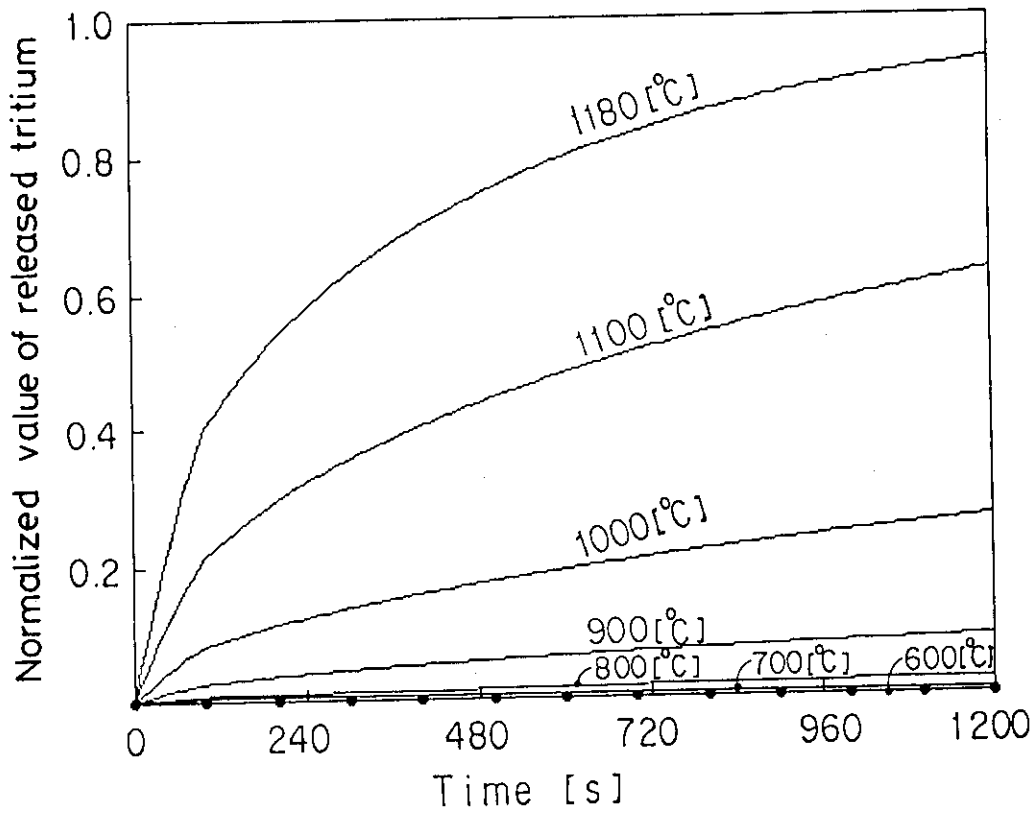


Fig. 13 Simulation of tritium released.

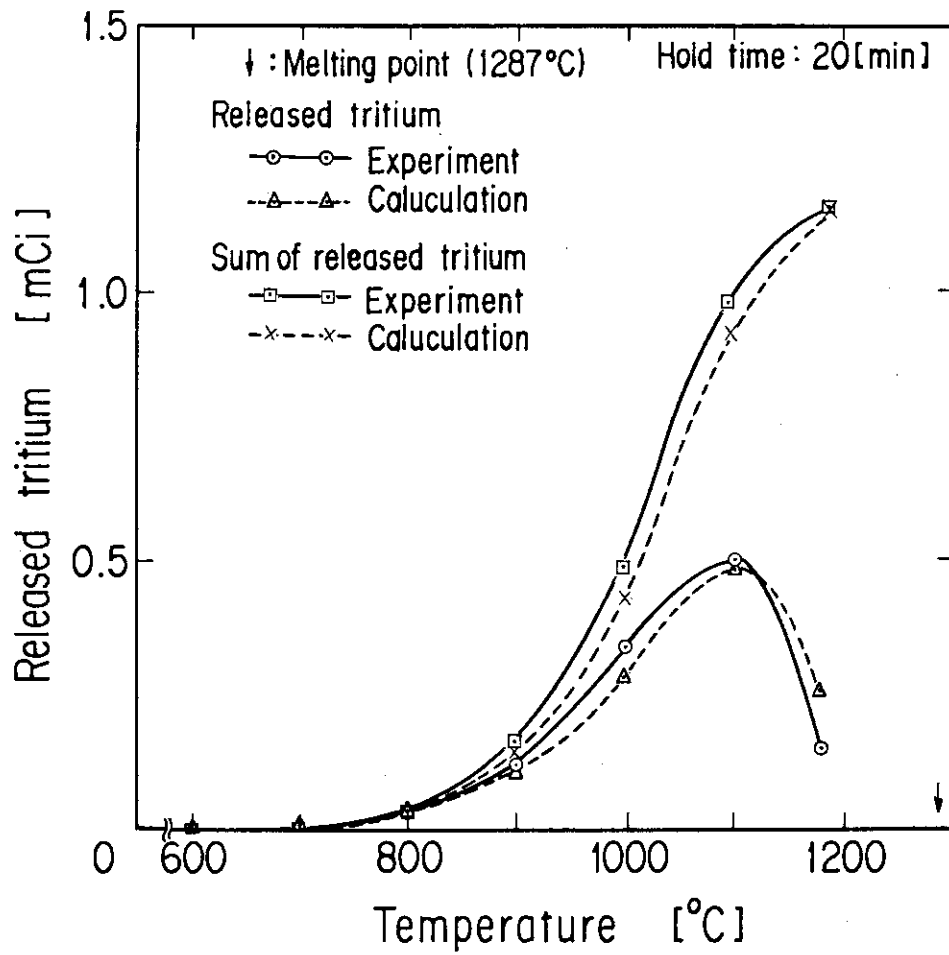
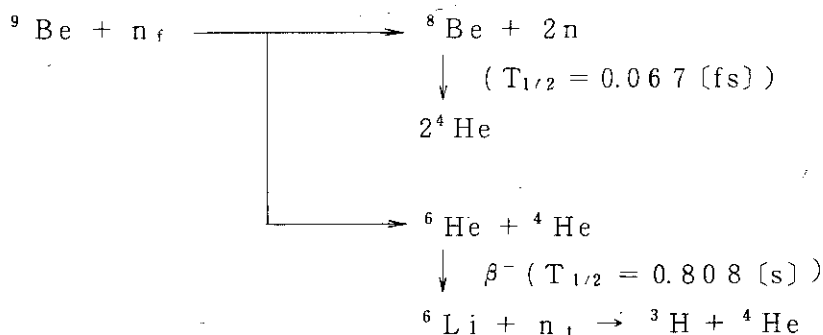


Fig. 14 Compare experiment with calculation.

付 録

A. 1 核反応

ベリリウムには、高速中性子 (n_f) と熱中性子 (n_t) の核反応によってヘリウムやトリチウムが生成する。



A. 2 円柱状試料からの拡散放出

トリチウムの拡散係数は、Fick の式¹⁵⁾を解くことによって求めることが出来る。
 次式は、円筒座標系におけるFick の式である。

$$\frac{\partial C(r, h)}{\partial t} = D \cdot \Delta C(r, h) \quad \dots\dots\dots (A-1)$$

ここでCは単位体積当りのトリチウム量[規格化値], rは^{HP}Beの半径[cm], hは^{HP}Beの高さ[cm], tは時間[s], Dは拡散係数[cm²/s]である。これを(A-2)式の境界条件と初期条件で解くと(A-3)式となる¹⁶⁾。

$$\begin{array}{l}
 \text{境界条件: } C(r, h) \text{ 境界} = 0 \quad (t > 0) \quad \dots\dots\dots (A-2) \\
 \text{初期条件: } C(r, h) \text{ 内部} = \text{一定} \quad (t = 0)
 \end{array}$$

$$F = 1 - \Sigma(r) \cdot \Sigma(h) \quad \dots\dots\dots (A-3)$$

ここでFはトリチウム放出率であり、 $\Sigma(r)$ 及び $\Sigma(h)$ は次式で与えられる。

$$\Sigma(r) = \sum_{n=1}^{\infty} 4 \frac{\exp(-j_n^2 Dt / r^2)}{j_n^2} \quad \dots\dots\dots (A-4)$$

$$\Sigma(h) = \sum_{m=1}^{\infty} 8 \frac{\exp\{- (2m+1)^2 \pi^2 Dt / h^2\}}{(2m+1)^2 \pi^2} \dots\dots\dots (A-5)$$

(A-4)式において j_n は0次ベッセル関数の n 番目のゼロの値である。

(A-3), (A-4), (A-5)のトリチウムの放出率の計算の中で未知量は拡散係数のみであり、拡散係数を可変とし実験値と計算値をカーブフィットさせることによって拡散係数を求めることができる。トリチウムの放出率の計算の詳細は付録A.3及び付録A.4に示す。また、計算が正しいことを確かめるために文献16)の13, 15ページ(Fractional release for cylindrical crystals.)のグラフと比較した(付録A.5に示す)。

A.3 拡散放出率の計算

(A-3)～(A-5)式を用いて拡散による放出率の計算プログラムを作成した。(A-4)式中のベッセル関数については付録A.4節で説明する。測定データは放出率に計算し、データ文としてプログラムの後にMergeする様になっている。(A-4)及び(A-5)式の Σ の計算は加算による変化が 1×10^{-15} [-]以下になった時に計算を終了するようにした。しかし、拡散係数が小さいときは加算による変化が 1×10^{-15} [-]以下にならないために(A-4)式の n は80まで、(A-5)の m は1000まで計算した後で計算を終了にした。この計算が正しいかどうかは付録A.5節で確かめた。Fig. A1～Fig. A5に拡散放出率の計算プログラムと800, 1000, 1180℃のデータ文及びトリチウム放出温度のシュミレーションのためのダミーデータを示す。

A.4 零次ベッセル関数の零値の計算

(A-4)式中の零次ベッセル関数の零の値は文献にほとんどない。特に10番目以降の値は見つからなかった。そのため原研大型計算機の科学計算用サブルーチン(SSL II)を使用して零次ベッセル関数の零の値を求めることにした。零次ベッセル関数の零の値は、Newton法で求めた。この時使用したプログラムとその結果をFig. A6及びFig. A7に示す。

A.5 プログラムのチェック

付録A.3節のプログラムの計算を確かめるために参考文献16)のP.13, 15のグラフと比較した。この時のプログラムは、付録A.3節のプログラムを一部修正した。この様にして求めた結果と参考文献16)のグラフを比較するとほとんど一致し、付録A.3節のプログラムの計算の正しさが確かめられた。この時のプログラムと計算結果及び参考文献16)のグラフの抜粋をFig. A8～Fig. A10に示す。

```

1000 / =====
1010 / カーブフィッティングプログラム
1020 / -----
1030 / 参考文献
1040 / -----
1050 / Report of The Hahn-Meitner-Institute   HMI-B25 jun 1963
1060 /   The Kinetics of Rare-Gass Diffusion in Solids
1070 /       2. Diffusion from Cylindrical Crystal   (p.11)
1080 / =====
1090 / DIM BJ0(80),DT(50),DF(50),CT(50),CF(50),GX(640),GY(640),DD(7)
1100 / CONSOLE 0,25,0,1:SCREEN 3,0,0,1:CLS
1110 / -----
1120 / データの読み込み
1130 / -----
1140 / FOR I=1 TO 80
1150 /   READ BJ0(I)           : ' 零次ベッセル関数の零値
1160 / NEXT I
1170 / FOR I=1 TO 50
1180 /   READ DT(I),DF(I)     : ' 測定データ, 時間, 放出率
1190 /   IF I<4 GOTO 1220
1200 /   IF DT(I)=0 AND DF(I)=0 THEN NN=I-1 :GOTO 1230
1210 /   NN=I
1220 / NEXT I
1230 / -----
1240 / 試料の形状
1250 / -----
1260 / PAI=4*ATN(1)
1270 / R= 1!/2                : ' 試料の半径           [cm]
1280 / H= .14                 : ' 試料の厚み           [cm]
1290 / T=0                    : ' 時間                 [sec]
1300 / CT(1)=0:CF(1)=0
1310 / -----
1320 / COLOR 5
1330 / LOCATE 10,2
1340 / PRINT "拡散係数を入力してカーブフィッティングを行なって下さい"
1350 / LOCATE 10,4
1360 / PRINT "測定データは5個以上 50個以内にして下さい"
1370 / LOCATE 10,6
1380 / PRINT "入力は7回行えます. 区別するため7色で入力します"
1390 / LOCATE 10,8
1400 / PRINT "試料の大きさを変える時はLine No.1270 & 1280 を変えて下さい"
1410 / COLOR 4
1420 / LOCATE 15,10
1430 / PRINT " 試料の半径           [cm]" :LOCATE 31,10:PRINT USING "#.####";R
1440 / LOCATE 15,12
1450 / PRINT " 試料の厚み           [cm]" :LOCATE 31,12:PRINT USING "#.####";H
1460 / LOCATE 15,15
1470 / COLOR 6
1480 / PRINT " 只今のデータの個数は";NN;"   個です"
1490 / LOCATE 15,19
1500 / COLOR 3
1510 / GOSUB *GO                : ' 進行                               Line No.3150
1520 / -----
1530 / メイン プログラム
1540 / -----
1550 / CON=0
1560 / CLS :COLOR 7 :CON=CON+1 :F=7-CON
1570 / LOCATE 9,23:PRINT "拡散係数を入力してください" : [cm2/s]"
1580 / LOCATE 39,23:INPUT "",DC
1590 / CLS :DD(CON)=DC
1600 / FOR I=2 TO NN
1610 /   LOCATE 50,23 :CCC=NN-I:PRINT "計算終了まであと";CCC
1620 /   LOCATE 70,23 :PRINT "回です"
1630 /   T=DT(I)
1640 /   GOSUB *RADIOUS        : ' Σ(r)の計算           Line No.1900
1650 /   GOSUB *HIGHT         : ' Σ(h)の計算           Line No.2070

```

Fig. A 1 Program for determination of rate of tritium released.

```

1660     CT(I)=T
1670     CF(I)=1-SR*SH
1680     NEXT I
1690     GOSUB *LAG           : '補間           Line No.2730
1700     GOSUB *GRAPH        : 'グラフ        Line No.2240
1710     CLS:LOCATE 11,21 :PRINT "あと";F;"回入力出来ませ"
1720     IF F=0 GOTO 1780
1730     GOSUB *GO           : '進行           Line No.3150
1740     CLS:LOCATE 10,23 :INPUT "もう一度計算しますか (Y/N)",C$
1750     IF C$="Y" GOTO 1560
1760     IF C$="N" GOTO 1780
1770     GOTO 1710
1780     CLS
1790     FOR I=0 TO 5
1800         LOCATE 0,I*4:PRINT 1-I/5
1810     NEXT I
1820     GOSUB *PR           : '表示           Line No.3250
1830     COLOR 7
1840     LOCATE 10,22:PRINT "コピーしますか (Y/N)" :LOCATE 35,22:INPUT "",D$
1850     IF D$="Y" THEN 1880
1860     IF D$="N" THEN END
1870     GOTO 1840
1880     COPY 5
1890     END
1900     -----
1910     '  $\Sigma(r)$ の計算
1920     ' -----
1930     *RADIOUS
1940     ' -----
1950     SR=0
1960     SSR=0
1970     FOR N=1 TO 80
1980         LOCATE 1,23:PRINT "  $\Sigma(r)$ の計算回数";N
1990         SR=SR+4*EXP(-BJ0(N)^2*DC*T/R^2)/BJ0(N)^2
2000         JR=ABS(SSR-SR)
2010         IF N<4 GOTO 2040
2020         IF JR<1E-15 GOTO 2050
2030         SSR=SR
2040     NEXT N
2050     RETURN
2060     END
2070     -----
2080     '  $\Sigma(h)$ の計算
2090     ' -----
2100     *HIGHT
2110     ' -----
2120     SH=0
2130     SSH=0
2140     FOR M=0 TO 1000
2150         LOCATE 23,23:PRINT "  $\Sigma(h)$ の計算回数";M
2160         SH=SH+8*EXP(-(2*M+1)^2*PAI^2*DC*T/H^2)/(2*M+1)^2/PAI^2
2170         JH=ABS(SSH-SH)
2180         IF M<4 GOTO 2210
2190         IF JH<1E-15 GOTO 2220
2200         SSH=SH
2210     NEXT M
2220     RETURN
2230     END
2240     -----
2250     ' グラフ表示
2260     ' -----
2270     *GRAPH
2280     ' -----
2290     CONSOLE 0,25,0,1
2300     SCREEN 3,0,0,1
2310     CLS

```

```

2980 LOCATE 29,23 :PRINT "回で計算を終了します"
2990 NEXT LI
3000 NEXT ZZ
3010 RETURN
3020 END
3030 *LAGIN
3040 LLP=0
3050 FOR I1=ZZ TO ZZ+2
3060   LLC=CF(I1)
3070   FOR JJ=ZZ TO ZZ+2
3080     IF JJ=I1 GOTO 3100
3090     LLC=LLC*(GX(QQ)-CT(JJ))/(CT(I1)-CT(JJ))
3100   NEXT JJ
3110   LLP=LLP+LLC
3120 NEXT I1
3130 RETURN
3140 END
3150 -----
3160 ' 進行
3170 ' -----
3180 *GO
3190 ' -----
3200 COLOR 7:LOCATE 10,23:PRINT " どれかのキーを押して下さい"
3210 A$=INKEY$:IF A$<>" " GOTO 3230
3220 GOTO 3210
3230 RETURN
3240 END
3250 -----
3260 ' 表示
3270 ' -----
3280 *PR
3290 ' -----
3300 COLOR 7
3310 LOCATE 57, 1:PRINT "横軸最大値"
3320 LOCATE 57, 2:PRINT " ";DT(NN) ;" [sec]"
3330 LOCATE 57, 4:PRINT "横軸1目盛"
3340 LOCATE 57, 5:PRINT " ";DT(NN)/5;" [sec]"
3350 COLOR CON
3360 LOCATE 57, 7:PRINT "最大放出率"
3370 LOCATE 57, 8:PRINT " ";CF(NN) ;" [-]"
3380 FOR KS=1 TO CON
3390   LOCATE 57,10:COLOR 7 :PRINT "拡散係数"
3400   LOCATE 55,11+KS:COLOR KS :PRINT "Dc=" [cm2/s]"
3410   LOCATE 59,11+KS:COLOR KS :PRINT USING "##.##^####";DD(KS)
3420 NEXT KS
3430 RETURN
3440 END
3450 -----
3460 ' 零次ベッセル関数の零値データ
3470 ' -----
3480 '
3490 DATA 0.240482E01 : ' 01 th
3500 DATA 0.552008E01 : ' 02 th
3510 DATA 0.865373E01 : ' 03 th
3520 DATA 0.117915E02 : ' 04 th
3530 DATA 0.149309E02 : ' 05 th
3540 DATA 0.180711E02 : ' 06 th
3550 DATA 0.212116E02 : ' 07 th
3560 DATA 0.243525E02 : ' 08 th
3570 DATA 0.274935E02 : ' 09 th
3580 DATA 0.306346E02 : ' 10 th
3590 DATA 0.337758E02 : ' 11 th
3600 DATA 0.369171E02 : ' 12 th
3610 DATA 0.400584E02 : ' 13 th
3620 DATA 0.431998E02 : ' 14 th
3630 DATA 0.463412E02 : ' 15 th

```

3640	DATA	0.494826E02	:	16	th
3650	DATA	0.526240E02	:	17	th
3660	DATA	0.557655E02	:	18	th
3670	DATA	0.589070E02	:	19	th
3680	DATA	0.620485E02	:	20	th
3690	DATA	0.651900E02	:	21	th
3700	DATA	0.683315E02	:	22	th
3710	DATA	0.714730E02	:	23	th
3720	DATA	0.746145E02	:	24	th
3730	DATA	0.777560E02	:	25	th
3740	DATA	0.808976E02	:	26	th
3750	DATA	0.840391E02	:	27	th
3760	DATA	0.871806E02	:	28	th
3770	DATA	0.903222E02	:	29	th
3780	DATA	0.934637E02	:	30	th
3790	DATA	0.966053E02	:	31	th
3800	DATA	0.997468E02	:	32	th
3810	DATA	0.102888E03	:	33	th
3820	DATA	0.106030E03	:	34	th
3830	DATA	0.109171E03	:	35	th
3840	DATA	0.112313E03	:	36	th
3850	DATA	0.115455E03	:	37	th
3860	DATA	0.118596E03	:	38	th
3870	DATA	0.121738E03	:	39	th
3880	DATA	0.124879E03	:	40	th
3890	DATA	0.128021E03	:	41	th
3900	DATA	0.131162E03	:	42	th
3910	DATA	0.134304E03	:	43	th
3920	DATA	0.137446E03	:	44	th
3930	DATA	0.140587E03	:	45	th
3940	DATA	0.143729E03	:	46	th
3950	DATA	0.146870E03	:	47	th
3960	DATA	0.150012E03	:	48	th
3970	DATA	0.153153E03	:	49	th
3980	DATA	0.156295E03	:	50	th
3990	DATA	0.159437E03	:	51	th
4000	DATA	0.162578E03	:	52	th
4010	DATA	0.165720E03	:	53	th
4020	DATA	0.168861E03	:	54	th
4030	DATA	0.172003E03	:	55	th
4040	DATA	0.175145E03	:	56	th
4050	DATA	0.178286E03	:	57	th
4060	DATA	0.181428E03	:	58	th
4070	DATA	0.184569E03	:	59	th
4080	DATA	0.187711E03	:	60	th
4090	DATA	0.190852E03	:	61	th
4100	DATA	0.193994E03	:	62	th
4110	DATA	0.197136E03	:	63	th
4120	DATA	0.200277E03	:	64	th
4130	DATA	0.203419E03	:	65	th
4140	DATA	0.206260E03	:	66	th
4150	DATA	0.209702E03	:	67	th
4160	DATA	0.212843E03	:	68	th
4170	DATA	0.215985E03	:	69	th
4180	DATA	0.219127E03	:	70	th
4190	DATA	0.222268E03	:	71	th
4200	DATA	0.225410E03	:	72	th
4210	DATA	0.228551E03	:	73	th
4220	DATA	0.231693E03	:	74	th
4230	DATA	0.234835E03	:	75	th
4240	DATA	0.237976E03	:	76	th
4250	DATA	0.241118E03	:	77	th
4260	DATA	0.244259E03	:	78	th
4270	DATA	0.247401E03	:	79	th
4280	DATA	0.250543E03	:	80	th
4290	END				

時間 [sec]	放出率 [-]
9000	
9010	800[°C] 等温加熱データ
9020	1987/09/02
9030	
9040	
9050	
9060 DATA	0.000
9070 DATA	0.0105
9080 DATA	0.0141
9090 DATA	0.0161
9100 DATA	0.0177
9110 DATA	0.0191
9120 DATA	0.0203
9130 DATA	0.0214
9140 DATA	0.0225
9150 DATA	0.0234
9160 DATA	0.0243
9170 DATA	0.0252
9180 DATA	0.0260
9190 DATA	0.0268
9200 DATA	0.0276
9210 DATA	0.0283
9220 DATA	0.0290
9230 DATA	0.0297
9240 DATA	0.0303
9250 DATA	0.0310
9260 DATA	0.0316
9270 DATA	0.0322
9280 DATA	0.0328
9290 DATA	0.0333
9300 DATA	0.0339
9310 DATA	0.0344
9320 DATA	0.000

Fig. A 2 Data at 800 °C

時間 [sec]	放出率 [-]
9000	
9010	1000[°C] 等温加熱データ
9020	1987/08/26
9030	
9040	
9050	
9060 DATA	0.000
9070 DATA	0.146
9080 DATA	0.208
9090 DATA	0.254
9100 DATA	0.293
9110 DATA	0.326
9120 DATA	0.355
9130 DATA	0.382
9140 DATA	0.407
9150 DATA	0.430
9160 DATA	0.451
9170 DATA	0.471
9180 DATA	0.489
9190 DATA	0.502
9200 DATA	0.523
9210 DATA	0.539
9220 DATA	0.554
9230 DATA	0.568
9240 DATA	0.581
9250 DATA	0.593
9260 DATA	0.605
9270 DATA	0.616
9280 DATA	0.626
9290 DATA	0.636
9300 DATA	0.644
9310 DATA	0.651
9320 DATA	0.000

Fig. A 3 Data at 1000 °C

1180[°C] 等温加熱データ		1987/09/03
時間	放出率	
[sec]	[-]	
9060 DATA	0,	0.000
9070 DATA	200,	0.341
9080 DATA	400,	0.526
9090 DATA	600,	0.658
9100 DATA	800,	0.746
9110 DATA	1000,	0.800
9120 DATA	1200,	0.833
9130 DATA	1400,	0.854
9140 DATA	1600,	0.870
9150 DATA	1800,	0.883
9160 DATA	2000,	0.894
9170 DATA	2200,	0.903
9180 DATA	2400,	0.911
9190 DATA	2600,	0.918
9200 DATA	2800,	0.925
9210 DATA	3000,	0.930
9220 DATA	3200,	0.935
9230 DATA	3400,	0.940
9240 DATA	3600,	0.943
9250 DATA	3800,	0.947
9260 DATA	4000,	0.950
9270 DATA	4200,	0.954
9280 DATA	4400,	0.956
9290 DATA	4600,	0.959
9300 DATA	4800,	0.962
9310 DATA	5000,	0.965
9320 DATA	0,	0.000

Fig. A 4 Data at 1180 °C

20[min] 定時加熱ダミーデータ		
時間	放出率	
[sec]	[-]	
9060 DATA	0,	0
9070 DATA	100,	0.00
9080 DATA	200,	0.00
9090 DATA	300,	0.00
9100 DATA	400,	0.00
9110 DATA	500,	0.00
9120 DATA	600,	0.00
9130 DATA	700,	0.00
9140 DATA	800,	0.00
9150 DATA	900,	0.00
9160 DATA	1000,	0.00
9170 DATA	1100,	0.00
9180 DATA	1200,	0.00
9190 DATA	0,	0.00

Fig. A 5 Dummy data for simulation.

```

***** TOP OF DATA *****VIOL 20*****
C+-----+
C+      NTH ZERO OF ZERO ORDER BESSEL FUNCTIN  (J0)      +
C+                                          1987.09.01(TUE)  +
C+                                          BY E. ISHITSUKA  +
C+-----+
C
C ***** MAIN PROGRAM *****
C
      COMMON X1,X2,Y1,Y2,DX
      N=0
      DX=0.01
      X=0
C-----
100    X=X+DX
      X1=X
      CALL BJO(X1,Y1,ICON)
      X2=X1+DX
      CALL BJO(X2,Y2,ICON)
      SG=Y1*Y2
      IF (SG.GT.0.0) GO TO 200
      CALL NEWTON(XX,YY)
      N=N+1
      WRITE(6,250) N,XX,YY
200    CONTINUE
      IF (N.LT.80) GO TO 100
250    FORMAT(1H0,10X,15,1X,4INTH,3X,2HX=,1X,E14.6,3X,2HY=,1X,E14.6)
      STOP
      END
C
C *****      NEWTON      *****
C
      SUBROUTINE NEWTON(XX,YY)
      COMMON X1,X2,Y1,Y2,DX
      Q=0
300    Q=Q+1
400    XA=X1+DX/100.0/Q
      CALL BJO(XA,YA,ICON)
      SN=Y1*YA
      IF (SN.LE.0.0) GO TO 300
      AM=(YA-Y1)/(XA-X1)
      XZ=X1-Y1/AM
      CALL BJO(XZ,YZ,ICON)
      IF (ABS(Y1).GT.ABS(YZ)) THEN
          X1=XZ
          Y1=YZ
      ELSE
          WRITE(6,*) 'NEWTON ERROR ?????'
      ENDIF
      IF (ABS(Y1).GT.1.0E-5) GO TO 400
      XX=X1
      YY=Y1
      RETURN
      END
***** BOTTOM OF DATA *****

```

Fig. A 6 Program for Bessel function.

1	NTH.	X=	0.240482E+01	Y=	0.265714E-05
2	NTH.	X=	0.552008E+01	Y=	-0.136344E-06
3	NTH.	X=	0.865373E+01	Y=	0.362494E-06
4	NTH.	X=	0.117915E+02	Y=	-0.225180E-06
5	NTH.	X=	0.149309E+02	Y=	0.190496E-06
6	NTH.	X=	0.180711E+02	Y=	-0.710992E-06
7	NTH.	X=	0.212116E+02	Y=	0.216313E-05
8	NTH.	X=	0.243525E+02	Y=	-0.141687E-05
9	NTH.	X=	0.274935E+02	Y=	0.150565E-05
10	NTH.	X=	0.306346E+02	Y=	-0.125282E-05
11	NTH.	X=	0.337758E+02	Y=	0.321619E-06
12	NTH.	X=	0.369171E+02	Y=	-0.191910E-05
13	NTH.	X=	0.400584E+02	Y=	0.190618E-05
14	NTH.	X=	0.431998E+02	Y=	-0.101829E-05
15	NTH.	X=	0.463412E+02	Y=	0.216632E-06
16	NTH.	X=	0.494826E+02	Y=	-0.557722E-06
17	NTH.	X=	0.526240E+02	Y=	0.144581E-05
18	NTH.	X=	0.557655E+02	Y=	-0.836119E-06
19	NTH.	X=	0.589070E+02	Y=	0.156375E-06
20	NTH.	X=	0.620485E+02	Y=	-0.737027E-06
21	NTH.	X=	0.651900E+02	Y=	0.803937E-06
22	NTH.	X=	0.683315E+02	Y=	-0.256275E-06
23	NTH.	X=	0.714730E+02	Y=	0.464250E-06
24	NTH.	X=	0.746145E+02	Y=	-0.128851E-05
25	NTH.	X=	0.777560E+02	Y=	0.123670E-05
26	NTH.	X=	0.808976E+02	Y=	-0.299921E-06
27	NTH.	X=	0.840391E+02	Y=	0.113306E-05
28	NTH.	X=	0.871806E+02	Y=	-0.987637E-06
29	NTH.	X=	0.903222E+02	Y=	0.116057E-05
30	NTH.	X=	0.934637E+02	Y=	-0.345175E-06
31	NTH.	X=	0.966053E+02	Y=	0.104104E-05
32	NTH.	X=	0.997468E+02	Y=	-0.714664E-06
33	NTH.	X=	0.102888E+03	Y=	0.594281E-06
34	NTH.	X=	0.106030E+03	Y=	-0.653299E-06
35	NTH.	X=	0.109171E+03	Y=	0.868091E-06
36	NTH.	X=	0.112313E+03	Y=	-0.725834E-07
37	NTH.	X=	0.115455E+03	Y=	0.560722E-06
38	NTH.	X=	0.118596E+03	Y=	-0.354169E-07
39	NTH.	X=	0.121738E+03	Y=	0.734313E-06
40	NTH.	X=	0.124879E+03	Y=	-0.423736E-06
41	NTH.	X=	0.128021E+03	Y=	0.210325E-06
42	NTH.	X=	0.131162E+03	Y=	-0.840789E-07
43	NTH.	X=	0.134304E+03	Y=	0.361464E-07
44	NTH.	X=	0.137446E+03	Y=	-0.586702E-07
45	NTH.	X=	0.140587E+03	Y=	0.144660E-06
46	NTH.	X=	0.143729E+03	Y=	-0.287885E-06
47	NTH.	X=	0.146870E+03	Y=	0.482775E-06
48	NTH.	X=	0.150012E+03	Y=	-0.724346E-06
49	NTH.	X=	0.153153E+03	Y=	0.243459E-07
50	NTH.	X=	0.156295E+03	Y=	-0.356253E-06
51	NTH.	X=	0.159437E+03	Y=	0.722437E-06
52	NTH.	X=	0.162578E+03	Y=	-0.164812E-06
53	NTH.	X=	0.165720E+03	Y=	0.599218E-06
54	NTH.	X=	0.168861E+03	Y=	-0.121908E-06
55	NTH.	X=	0.172003E+03	Y=	0.612901E-06
56	NTH.	X=	0.175145E+03	Y=	-0.204350E-06
57	NTH.	X=	0.178286E+03	Y=	0.742333E-06
58	NTH.	X=	0.181428E+03	Y=	-0.392896E-06
59	NTH.	X=	0.184569E+03	Y=	0.737570E-07
60	NTH.	X=	0.187711E+03	Y=	-0.671489E-06
61	NTH.	X=	0.190852E+03	Y=	0.399619E-06
62	NTH.	X=	0.193994E+03	Y=	-0.152551E-06
63	NTH.	X=	0.197136E+03	Y=	0.795790E-06
64	NTH.	X=	0.200277E+03	Y=	-0.586779E-06
65	NTH.	X=	0.203419E+03	Y=	0.398243E-06
66	NTH.	X=	0.206560E+03	Y=	-0.228896E-06
67	NTH.	X=	0.209702E+03	Y=	0.775461E-07
68	NTH.	X=	0.212843E+03	Y=	-0.777595E-06
69	NTH.	X=	0.215985E+03	Y=	0.652906E-06
70	NTH.	X=	0.219127E+03	Y=	-0.543253E-06
71	NTH.	X=	0.222268E+03	Y=	0.447741E-06
72	NTH.	X=	0.225410E+03	Y=	-0.365536E-06
73	NTH.	X=	0.228551E+03	Y=	0.295057E-06
74	NTH.	X=	0.231693E+03	Y=	-0.237978E-06
75	NTH.	X=	0.234835E+03	Y=	0.191220E-06
76	NTH.	X=	0.237976E+03	Y=	-0.154947E-06
77	NTH.	X=	0.241118E+03	Y=	0.128565E-06
78	NTH.	X=	0.244259E+03	Y=	-0.111518E-06
79	NTH.	X=	0.247401E+03	Y=	0.103282E-06
80	NTH.	X=	0.250543E+03	Y=	-0.103368E-06

Fig. A 7 Bessel function.

```

1000 / =====
1010 / チェックプログラム
1020 / =====
1030 DIM BJO(80),CT(100)*,CF(100),GX(640),GY(640)
1040 CONSOLE 0,25,0,1:SCREEN 3,0,0,1:CLS
1050 / -----
1060 FOR I=1 TO 80
1070   READ BJO(I)
1080 NEXT I
1090 / -----
1100 PAI=4*ATN(1)
1110 'Sample Radius R [cm]
1120 'Sample Hight H [cm]
1130 T=0           :Time           [sec]
1140 CT(1)=0:CF(1)=0
1150 / -----
1160 CLS
1170 COLOR 5
1180 LOCATE 10,4
1190 PRINT " I'm checking program "
1200 LOCATE 15,19
1210 COLOR 3
1220 PRINT " Start ----> Push any key "
1230 A$=INKEY$:IF A$<>" " GOTO 1260
1240 GOTO 1230
1250 / -----
1260 CLS
1270 LOCATE 15,23
1280 COLOR 6
1290 INPUT " Please input d/h =":DH
1300 / -----
1310 CLS :COLOR 7:NN=1
1320 FOR PX=1 TO 30
1330   X=PX^2/900*600
1340   NN=NN+1
1350   LOCATE 1,23 :PRINT "Alpha ^2*1E3 ==>           NN="
1360   LOCATE 18,23 :PRINT USING "###.##":X
1370   LOCATE 31,23 :PRINT NN
1380   GOSUB *RADIOUS
1390   GOSUB *HIGHT
1400   CT(NN)=X
1410   CF(NN)=1-SR*SH
1420 NEXT PX
1430 GOSUB *LAG
1440 GOSUB *GRAPH
1450 CLS
1460 LOCATE 10,23 :INPUT "Again (Y/N)":C$
1470 IF C$="Y" GOTO 1260
1480 IF C$="N" GOTO 1500
1490 GOTO 1460
1500 CLS:LOCATE 10,23:PRINT "Hard copy (Y/N) ?" :LOCATE 35,23:INPUT D$
1510 IF D$="Y" THEN CLS :COPY 5
1520 IF D$="N" THEN END
1530 GOTO 1500
1540 END
1550 / -----
1560 / Calculation of Sigma(r)
1570 *RADIOUS
1580 / -----
1590 SR=0
1600 SSR=0
1610 FOR N=1 TO 80
1620   LOCATE 37,23:PRINT "R Count ==> ";N
1630   SR=SR+4*EXP(-BJO(N)^2*X/1000!)/BJO(N)^2
1640   JR=ABS(SSR-SR)
1650   IF N<4 GOTO 1680

```

Fig. A 8 Program for $F(\alpha^2)$.

```

1660     IF JR<1E-15 GOTO 1690
1670     SSR=SR
1680     NEXT N
1690     RETURN
1700     END
1710
1720     -----
1720     Calculation of Sigma(h)
1730 *HIGHT
1740     -----
1750     SH=0
1760     SSH=0
1770     FOR M=0 TO 1000
1780     LOCATE 57,23 :PRINT "H Count ==> ";M
1790     SH=SH+8*EXP(-(2*M+1)^2*PAI^2*X*DH^2/4000!)/(2*M+1)^2/PAI^2
1800     JH=ABS(SSH-SH)
1810     IF M<4 GOTO 1840
1820     IF JH<1E-15 GOTO 1850
1830     SSH=SH
1840     NEXT M
1850     RETURN
1860     END
1870
1880     -----
1880     Graph Output
1890 *GRAPH
1900     -----
1910     CONSOLE 0,25,0,1
1920     SCREEN 3,0,0,1
1930     CLS
1940     MX=600:MY=350
1950     LINE(10,10)-(MX+10,MY+10),7,B
1960     FOR G=1 TO 9
1970     YGG=MY/10*G
1980     LINE(10,YGG+10)-(MX+10,YGG+10),7,,&HF0F0
1990     NEXT G
2000     FOR G=1 TO 5
2010     XGG=MX/6*G
2020     LINE(XGG+10,10)-(XGG+10,MY+10),7,,&HF0F0
2030     NEXT G
2040     GX(QQ+1)=GX(QQ):GX(1)=0
2050     GY(QQ+1)=GY(QQ):GY(1)=0
2060     LOCATE 10,23:INPUT "Color (1-7)":P
2070     FOR J=1 TO QQ
2080     X1=MX*GX(J)/CT(NN)+10
2090     X2=MX*GX(J+1)/CT(NN)+10
2100     Y1=MY-MY*GY(J)+10
2110     Y2=MY-MY*GY(J+1)+10
2120     COLOR ...,P
2130     LINE (X1,Y1)-(X2,Y2)
2140     NEXT J
2150     RETURN
2160     END
2170
2180     -----
2180     LAGRANGE INTERPOLATION
2190 *LAG
2200     -----
2210     CLS
2220     LOCATE 7,21:COLOR 4
2230     PRINT "Total graph point ====> [";NN;" * interpolation number]"
2240     LOCATE 7,22:COLOR 3
2250     INPUT "Prease input interpolation number ";LLM
2260     W=LLM*NN
2270     QQ=1
2280     FOR ZZ=1 TO NN-2
2290     IF ZZ=NN-2 THEN LLM=2*LLM
2300     LLX=CT(ZZ)
2310     FOR LI=1 TO LLM

```

```

2320     QQ=QQ+1
2330     IF ZZ=NN-2 THEN LLX=LLX+(CT(NN)-CT(NN-2))/LLM :GOTO 2350
2340     LLX=LLX+(CT(ZZ+1)-CT(ZZ))/LLM
2350     GX(QQ)=LLX
2360     GOSUB *LAGIN
2370     GY(QQ)=LLP
2380     WW=W-QQ :LOCATE 20,23 :PRINT "Graph count down ==>":WW
2390     NEXT LI
2400 NEXT ZZ
2410 RETURN
2420 END
2430 *LAGIN
2440 LLP=0
2450 FOR II=ZZ TO ZZ+2
2460     LLC=CF(II)
2470     FOR JJ=ZZ TO ZZ+2
2480         IF JJ=II GOTO 2500
2490         LLC=LLC*(GX(QQ)-CT(JJ))/(CT(II)-CT(JJ))
2500     NEXT JJ
2510     LLP=LLP+LLC
2520 NEXT II
2530 RETURN
2540 END
2550
2560     '-----
2570     '*** nth 0 of Zero Order Bssel Function ***
2580     '-----
2590 DATA 0.240482E01 : ' 01 th
2600 DATA 0.552008E01 : ' 02 th
2610 DATA 0.865373E01 : ' 03 th
2620 DATA 0.117915E02 : ' 04 th
2630 DATA 0.149309E02 : ' 05 th
2640 DATA 0.180711E02 : ' 06 th
2650 DATA 0.212116E02 : ' 07 th
2660 DATA 0.243525E02 : ' 08 th
2670 DATA 0.274935E02 : ' 09 th
2680 DATA 0.306346E02 : ' 10 th
2690 DATA 0.337758E02 : ' 11 th
2700 DATA 0.369171E02 : ' 12 th
2710 DATA 0.400584E02 : ' 13 th
2720 DATA 0.431998E02 : ' 14 th
2730 DATA 0.463412E02 : ' 15 th
2740 DATA 0.494826E02 : ' 16 th
2750 DATA 0.526240E02 : ' 17 th
2760 DATA 0.557655E02 : ' 18 th
2770 DATA 0.589070E02 : ' 19 th
2780 DATA 0.620485E02 : ' 20 th
2790 DATA 0.651900E02 : ' 21 th
2800 DATA 0.683315E02 : ' 22 th
2810 DATA 0.714730E02 : ' 23 th
2820 DATA 0.746145E02 : ' 24 th
2830 DATA 0.777560E02 : ' 25 th
2840 DATA 0.808976E02 : ' 26 th
2850 DATA 0.840391E02 : ' 27 th
2860 DATA 0.871806E02 : ' 28 th
2870 DATA 0.903222E02 : ' 29 th
2880 DATA 0.934637E02 : ' 30 th
2890 DATA 0.966053E02 : ' 31 th
2900 DATA 0.997468E02 : ' 32 th
2910 DATA 0.102888E03 : ' 33 th
2920 DATA 0.106030E03 : ' 34 th
2930 DATA 0.109171E03 : ' 35 th
2940 DATA 0.112313E03 : ' 36 th
2950 DATA 0.115455E03 : ' 37 th
2960 DATA 0.118596E03 : ' 38 th
2970 DATA 0.121738E03 : ' 39 th

```

2980	DATA	0.124879E03	:	40	th
2990	DATA	0.128021E03	:	41	th
3000	DATA	0.131162E03	:	42	th
3010	DATA	0.134304E03	:	43	th
3020	DATA	0.137446E03	:	44	th
3030	DATA	0.140587E03	:	45	th
3040	DATA	0.143729E03	:	46	th
3050	DATA	0.146870E03	:	47	th
3060	DATA	0.150012E03	:	48	th
3070	DATA	0.153153E03	:	49	th
3080	DATA	0.156295E03	:	50	th
3090	DATA	0.159437E03	:	51	th
3100	DATA	0.162578E03	:	52	th
3110	DATA	0.165720E03	:	53	th
3120	DATA	0.168861E03	:	54	th
3130	DATA	0.172003E03	:	55	th
3140	DATA	0.175145E03	:	56	th
3150	DATA	0.178286E03	:	57	th
3160	DATA	0.181428E03	:	58	th
3170	DATA	0.184569E03	:	59	th
3180	DATA	0.187711E03	:	60	th
3190	DATA	0.190852E03	:	61	th
3200	DATA	0.193994E03	:	62	th
3210	DATA	0.197136E03	:	63	th
3220	DATA	0.200277E03	:	64	th
3230	DATA	0.203419E03	:	65	th
3240	DATA	0.206260E03	:	66	th
3250	DATA	0.209702E03	:	67	th
3260	DATA	0.212843E03	:	68	th
3270	DATA	0.215985E03	:	69	th
3280	DATA	0.219127E03	:	70	th
3290	DATA	0.222268E03	:	71	th
3300	DATA	0.225410E03	:	72	th
3310	DATA	0.228551E03	:	73	th
3320	DATA	0.231693E03	:	74	th
3330	DATA	0.234835E03	:	75	th
3340	DATA	0.237976E03	:	76	th
3350	DATA	0.241118E03	:	77	th
3360	DATA	0.244259E03	:	78	th
3370	DATA	0.247401E03	:	79	th
3380	DATA	0.250543E03	:	80	th

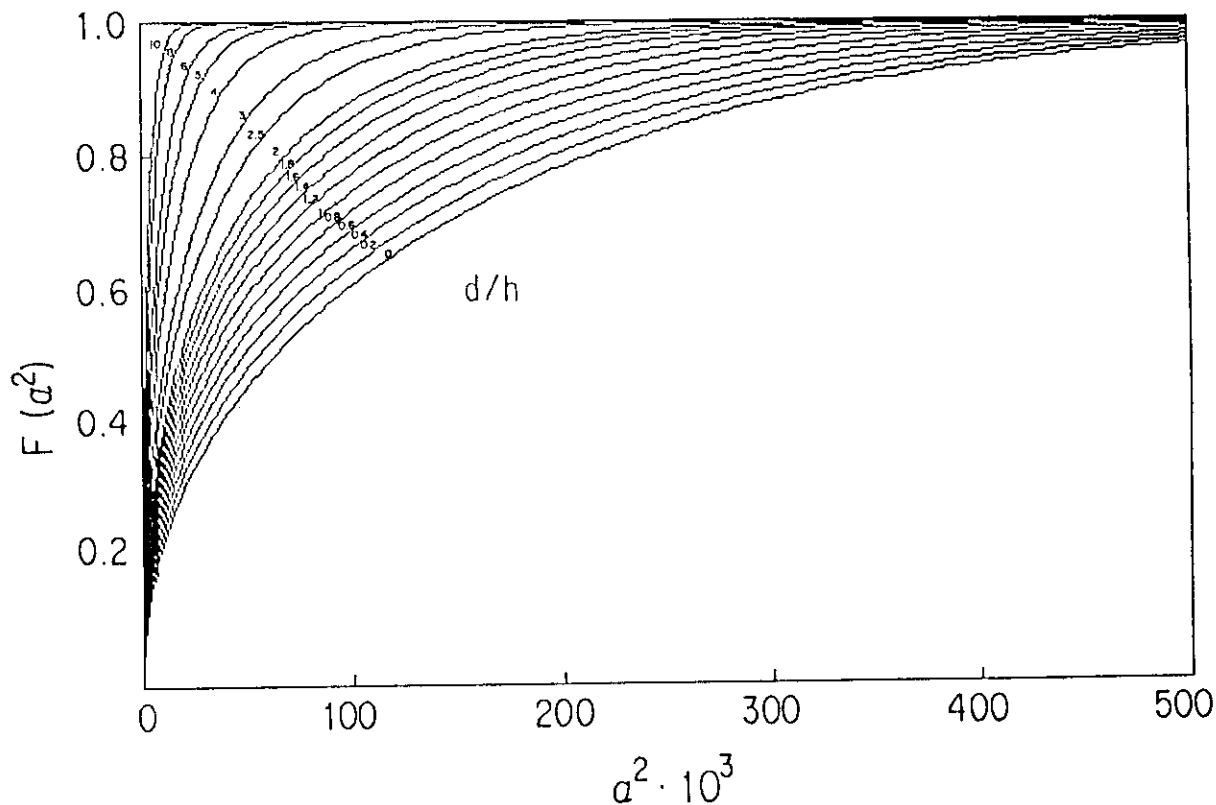
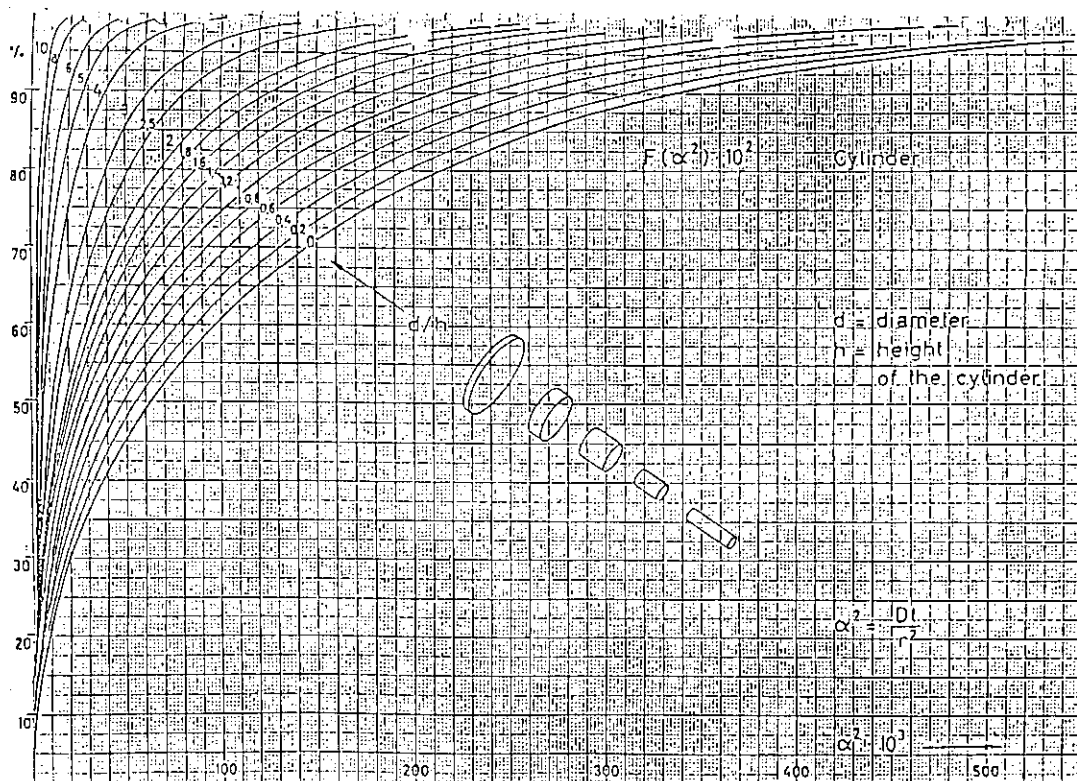


Fig. A 9 Relation of $\alpha^2 \cdot 10^3$ and $F(\alpha^2)$

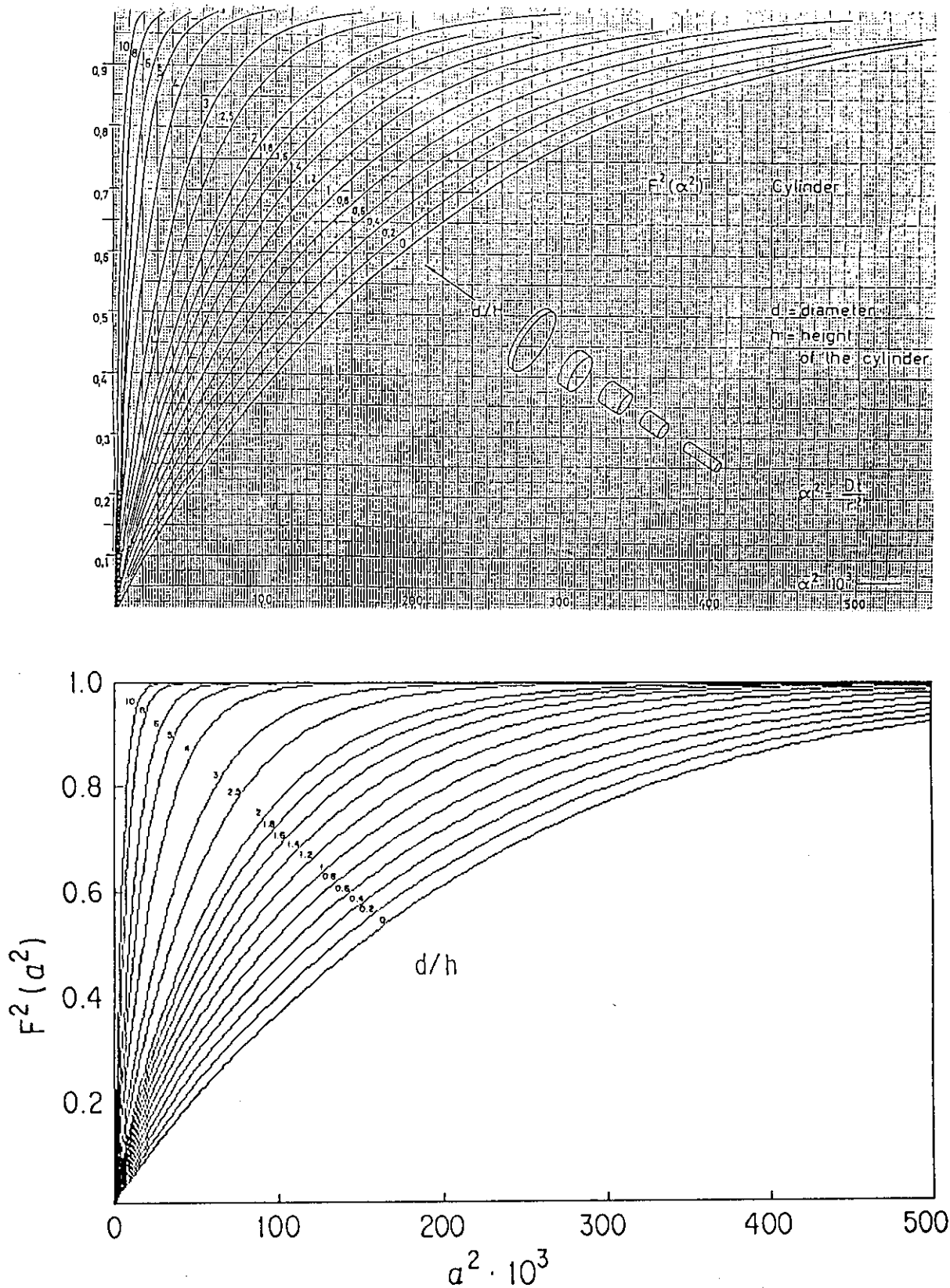


Fig. A10 Relation of $\alpha^2 \cdot 10^3$ and $F^2(\alpha^2)$