

博士研究員による平成11年度研究概要報告

2000年7月

核燃料サイクル開発機構

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4-49

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technical Cooperation Sections,

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49, Muramatsu, Tokai-Mura, Naka-Gun, Ibaraki, 319-1184,

Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2000

博士研究員による平成11年度研究概要報告

報告者課 Gr テーマ一覧参照
編集 技術展開部 技術協力課

要 旨

機構は、博士の学位をもった若手研究者の人材育成を図るため、平成9年度から博士研究員制度を導入した。同制度は、平成11年度で3年目を迎え、当初の目的を達成し、研究を終了した博士研究員も出始めている。

同制度は、機構の先導的、基礎・基盤的な研究業務に関連して、独創性に富んだ若手研究者が1～3年間の期間に機構の承認した自らの研究テーマを自主的に遂行し、研究者としての業績を得るとともに、機構の研究業務を効率的に推進することを目的としている。

本報告書は、平成11年度に実施した博士研究員による研究テーマの実施結果についてその概要をまとめたものである。なお、17件の研究テーマのうち、5件の研究テーマが平成11年度で終了した。

— 目 次 —

1. 博士研究員による平成11年度研究テーマ一覧	i
2. 博士研究員による平成11年度研究概要報告	
(1) 高分解能光核反応断面積の測定による巨大共鳴構造の研究	1
(2) 高温下におけるキャビティ生成・成長の加速・抑制因子	4
(3) 核変換のための光核反応における、中間子交換と相対論的效果	9
(4) 緩衝材としてのベントナイト構成鉱物の安定条件と長期安定性に関する研究	20
－緩衝材構成鉱物の高アルカリ溶液による変質研究－	
(5) ウラン鉱山に生息する植物群落の放射性元素の動態	24
(6) CMPO-TBP系における抽出のモデル化及び数値シミュレーションに関する研究	27
(7) 磁性及び非磁性材料構造物における非破壊検査技術の向上	38
(8) バンド理論を用いたウラン酸化物の物性に関する研究	42
(9) 高レベル廃棄物処分環境下における黄鉄鉱の還元能力に関する研究	45
(10) 高速炉におけるアクチニド及び核分裂生成物の原子炉内消滅特性の研究	49
(11) 地球化学的調査に基づいた地下水流動に関する研究	54
(12) オーステナイト系ステンレス鋼におけるスリット挙動に及ぼす照射誘起偏析並びに温度変更効果に 関する研究	65
(13) 比抵抗映像法等を用いた岩盤空洞掘削前後の空洞周辺の地下水流動の変化の把握に 変化の把握に関する研究	70
(14) 人工・天然バリアにおける核種拡散過程に関する研究	76
(15) 熔融炉心物質の多相流挙動に関する研究	79
(16) 多相多成分流体解析コードを用いた高温熔融燃料と冷却材の相互作用に関する研究	85
(17) レーザー法による微量希ガス検出技術の「常陽」への適用	90

博士研究員による平成11年度研究テーマ一覧(1/2)

---平成11年度で終了した博士研究員

採用年度	No.	博士研究員氏名	研究テーマ 【研究予定期間】	研究実施場所	研究協力者
平成9年度	1	古高 和禎	高分解能光核反応断面積の測定による巨大共鳴構造の研究 【平成9年11月～平成12年10月】	東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル 研究開発部 先進リサイクル 解析評価グループ	原田 秀郎
	2	向井 将一	高温下におけるキャビティ生成・成長の加速・抑制因子 【平成9年10月～平成12年3月】	大洗工学センター トリウム・核工学試験機器・構造安全工学グループ	上野 文義
	3	和田 浩明	核変換のための光核反応における中間子交換と相対論的效果 【平成9年10月～平成12年3月】	東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル 研究開発部 先進リサイクル 解析評価グループ	原田 秀郎
平成10年度	4	金 善永	緩衝材としてのベントナイト構成鉱物の安定条件と長期安定性に関する研究 —緩衝材構成鉱物の高アルカリ溶液による変質研究— 【平成10年4月～平成13年3月】	東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部 処分バリア 性能研究グループ	柴田 雅博
	5	志鷹 幸徳	ウラン鉱山に生息する植物群落の放射性元素の動態 【平成10年4月～平成13年3月】	人形峠環境技術センター 環境保全技術開発部 環境研究グループ	時澤 孝之 佐藤 和彦 長柄 収一
	6	高梨 光博	CMPO-TBP系における抽出のモデル化及び数値シミュレーションに関する研究 【平成10年4月～平成13年3月】	東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル 研究開発部 先進再処理 技術開発グループ	船坂 英之 小山 智造 駒 義和
	7	陳 振茂	磁性及び非磁性材料構造物における非破壊検査技術の向上 【平成10年4月～平成12年3月】	大洗工学センター トリウム・核工学試験機器・構造安全工学グループ	青砥 紀身
	8	手島 正吾	バンド理論を用いたウラン酸化物の物性に関する研究 【平成10年4月～平成13年3月】	東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル 研究開発部 先進リサイクル 解析評価グループ	馬場 務 原田 秀郎 中村 雅弘
9	間中 光雄	高レベル廃棄物処分環境下における黄鉄鉱の還元能力に関する研究 【平成10年4月～平成12年3月】	東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部 処分バリア 性能研究グループ	亀井 玄人	


博士研究員による平成11年度研究テーマ一覧(2/2)

.....平成11年度で終了した博士研究員

採用年度	No.	博士研究員 氏名	研究テーマ 【研究予定期間】	研究実施場所	研究協力者
平成 10 年度	10	水谷 昭彦	高速炉におけるアクチニド及び核 分裂生成物の原子炉内消滅特性の研 究 【平成10年4月～平成12年3月】	大洗工学セン ターシステム技術開発部 炉心技術開発グループ	石川 真
	11	森川 徳敏	地球化学的調査に基づいた地下水 流動に関する研究 【平成10年4月～平成13年3月】	東濃地科学セン ター地質環境情報グループ 地層科学施設グループ	岩月 輝希 徐 勝 伊藤 茂 阿部 雅人 渡辺 雅人
平 成 11 年 度	12	神田 北斗	オーステナイト系ステンレス鋼におけるスエリ ング挙動に及ぼす照射誘起偏析並び に温度変更効果に関する研究 【平成11年4月～平成14年3月】	大洗工学セン ター照射施設管理セン ター燃料材料試験部 照射材料試験室	赤坂 尚昭 山 一郎 堂野前貴子
	13	周 啓友	比抵抗映像法等を用いた岩盤空洞 掘削前後の空洞周辺の地下水流動の 変化の把握に関する研究 【平成11年4月～平成14年3月】	東濃地科学セン ター地層科学研究グループ	松井 裕哉
	14	鈴木 覚	人工・天然バリアにおける核種拡 散過程に関する研究 【平成11年4月～平成14年3月】	東海事業所 環境安全・研究開発セン ター処分研究部 放射化学グループ	佐藤 治夫 館 幸男
	15	鈴木 徹	熔融炉心物質の多相流挙動に関す る研究 【平成11年4月～平成14年3月】	大洗工学セン タートリウム・铀工学試験部 高速炉安全工学 グループ	近藤 悟 小西 賢介 飛田 吉春
	16	曹 学武	多相多成分流体解析コードを用い た高温熔融燃料と冷却材の相互作用 に関する研究 【平成11年4月～平成14年3月】	大洗工学セン ターシステム技術開発部 リスク評価技術開発 グループ	飛田 吉春
	17	原野 英樹	レーザー法による微量希ガスを検出技 術の「常陽」への適用 【平成11年4月～平成14年3月】	大洗工学セン ター照射施設運転管理セン ター実験炉部・技術課	伊藤 和寛 野瀬 正一

2. 博士研究員による平成11年度研究概要報告

博士研究員 (H9) 平成 11 年度研究概要報告書

研究テーマ	高分解能光核反応断面積の測定による巨大共鳴構造の研究		
研究者氏名	古高 和禎		
研究協力者 所属・氏名	環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 先進リサイクル解析評価グループ 原田秀郎	所属長印 	
研究実施場所	環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 先進リサイクル解析評価グループ		
通算研究期間 (予定)	平成 9 年 10 月 ~ 平成 13 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 11 年 4 月 ~ 平成 12 年 3 月
<p>【研究目的】本研究の目的は、核データの高精度測定技術を開発することにより、先進的核燃料サイクルの研究で重要となる核データの高精度化をはかることである。具体的には：</p> <p>(1) 現在核燃料サイクルの評価に用いられている熱中性子吸収断面積等の文献値は 1960 年代に測定されたもので、誤差が 10~30%もあるものも多く、値自体が正しくないと思われるものも少なくない。そこで、特に短寿命核(半減期 10 秒~2 分)への適用を主目的とし、β検出器としてプラスチックシンチレータを用いたβ・γ同時計測システムを開発し、熱中性子吸収断面積及びγ線放出確率の精密測定を行なう。</p> <p>(2) 高分解能高エネルギーγ線スペクトロメータ(HHS)及びレーザー光の逆コンプトン反応により生成される高エネルギーγ線を用いて、γ線透過法により質量数 10~100 程度の原子核の光吸収断面積を高分解能で測定し、巨大共鳴領域の光吸収断面積の微細構造を探索することにより、光核反応による核変換技術を検討するための基礎データを蓄積する。</p>			
<p>【研究内容 (概要)】</p> <p>(1)FP 核の中性子吸収断面積の精密測定: 放射化法による FP 近傍核の中性子吸収断面積の精密測定では、高精度のγ線放出確率値が必要となるが、反応生成物の半減期が短い核(例えば $^{99}\text{Tc}+n\rightarrow^{100}\text{Tc}$(15 秒)等)は、γ線放出確率の高精度測定に通常用いられる 4π β・γ同時計測法は適用が難しいため、精密な値が求まっていない。そこで本研究では、最近の高速電子回路を用いた同時計測用データ収集システムを構築して短寿命核からのγ線測定の効率化を図るとともに、短時間でデータ計測が開始出来るプラスチックシンチレータを用いたβ・γ同時計測システムを開発し、反応生成物の寿命が短い核のγ線放出率を測定し、熱中性子吸収断面積の精密化に反映する。</p> <p>(2)光吸収断面積の微細構造の研究: 従来用いられている陽電子消滅γ線や制動輻射γ線による原子核の光吸収断面積の測定(分解能約 1MeV)に対して、飛躍的に分解能を高めることが出来る HHS(分解能約 15keV)を用いたレーザー逆コンプトンγ線透過法の測定により、先ず既に微細構造が報告されている質量数 10~20 前後の軽核の光吸収断面積をより精密に測定し、HHS の性能評価及び解析手法の改良を図ると共に、環境負荷低減の観点で重要な核種とされる ^{14}C の処理評価に反映させる。次いで、FP 核やより重い核の光吸収断面積の微細構造探索を行なっていく。</p>			
<p>【使用主要施設】</p> <p>高分解能高エネルギーγ線スペクトロメータ(HHS)、レーザー発生装置、パーソナル・コンピュータ (工技院 電総研 電子線加速器・蓄積リング、立教大学 原子炉、京都大学 原子炉)</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】平成10年度は、熱中性子吸収によって生成される核の放射能及び γ 線放出率を精密に測定するための β - γ 同時計測システムの開発を継続するとともに、立教大学原子炉からの中性子を使った実際の照射実験に同システムを用いて、 γ 線放出率が既知で且つ比較的短寿命(2.2分)である ^{27}Al 核の γ 線放出率を測定し、本システムの性能検証を行なった。同核の γ 線放出率を精度1.5%で決定することができ、開発した同時計測システムの基本性能が十分高いことを確認することができた。又、京都大学原子炉において、本システムを用いた ^{100}Tc の γ 線放出率を測定する実験を遂行し、データ解析を行なっている。

【研究成果】平成11年3月までの研究成果の概要をまとめる。

放射化法を用いて単一の γ 線を測定し試料の放射能及び熱中性子吸収断面積を決定する際、高精度測定妨げになるものは主に〔1〕検出器の γ 線検出効率の誤差、及び〔2〕測定する γ 線の放出確率値の誤差である。そこでこれまで、これらの要因によらず試料放射能の高精度決定を可能にする同時計測システムの整備を行ってきた。

平成11年度は、〔1〕 γ - γ 同時計測による γ 線標準線源の放射能の高精度測定、〔2〕 β - γ 同時計測法による半減期2.2分の短寿命核 ^{28}Al の γ 線放出率値の検証、〔3〕 β - γ 同時計測法による ^{100}Tc (半減期15秒)の γ 線放出率の測定実験を行なった。

〔1〕開発したシステムを用い ^{60}Co γ 線標準線源からの γ 線の同時計測を継続し、線源放射能の高精度化をはかった。モンテカルロ法を用いた γ - γ 角相関及びサム同時計数の補正を行なうことにより、二台の検出器間の距離及び検出器-線源-検出器間の角度によらずに放射能を決定することができた。この測定により、同線源の放射能の精度を1.9%から0.48%に精密化することができた。
(論文出版準備中)

〔2〕立教大学原子炉において、 γ 線放出確率が精度良く分かっており且つ比較的短寿命の ^{28}Al (半減期2.24分)からの β 線・ γ 線の同時計測を行い、開発した同時計測システムを用いて短寿命核の放射能及び γ 線放出確率の高精度測定が可能であることを実証する実験を行なった。 ^{28}Al の放出する唯一の1779 keV γ 線は、100%の放出率を持つことが知られているが、実験データの解析の結果同 γ 線の放出率が $99.5 \pm 1.4\%$ と求まった。これより、開発した同時計測システムが、短寿命核の γ 線放出率の高精度測定に有効であることが立証できた。
(日本原子力学会欧文誌に論文投稿済み)

〔3〕京都大学原子炉において、既存の核データでは γ 線放出率が10%の精度でしか求まっていない ^{100}Tc (半減期15秒)核の γ 線放出率を、 β - γ 同時計測法を用いて精密測定する実験を行なった。現在データ解析を行なっている。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】


平成 12 年度は、 ^{100}Tc 核の γ 線放出率測定実験のデータ解析を終了させて論文出版を行なうとともに、 γ - γ 同時計測法を用いた即発 γ 線分光法による FP 核の崩壊熱測定法の開発ならびに実験を行なっていく予定である。

また、質量数 90~130 領域の FP 近傍核に対して光吸収断面積の微細構造の探索実験を行なっていく予定である。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- ①“プラスチックシンチレータを用いた β - γ 同時計測システムによる γ 線放出率の精密測定” 日本原子力学会「1999 年秋の大会」A18、古高、中村他(新潟工大)
- ②“ γ - γ 同時計測による線源強度の高精度測定(II)” 日本原子力学会「1999 年秋の大会」A17、中村、古高他(新潟工大)
- ③“FP 核種の γ 線放出率精密測定のための β - γ 同時計測システム” 1999 年核データ研究会、古高、中村他
- ④“光核反応断面積の高分解能測定” 1999 年核データ研究会、原田、古高他
- ⑤“プラスチックシンチレータを用いた β - γ 同時計測システムによる γ 線放出率の精密測定(II)” 日本原子力学会「2000 年春の大会」L39、古高、中村他(愛媛大)
- ⑥“光核反応断面積微細構造の研究(III)” 日本原子力学会「2000 年春の大会」P1、原田、古高他(愛媛大)
- ⑦“ $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)$ 反応における $^{138\text{m}}\text{Cs}$ アイソマー準位生成量の測定” 日本原子力学会「2000 年春の大会」P20、和田、中村、古高他(愛媛大)
- ⑧“Evaluation of β - γ coincidence measurement system using plastic scintillation β -ray detector developed for the determination of γ -ray emission probabilities of short-lived nuclides” 古高、中村他(日本原子力学会欧文誌に投稿)
- ⑨“Production of the isomeric state of ^{138}Cs in the thermal neutron capture reaction $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ ” 和田、原田、中村、古高他(日本原子力学会欧文誌に投稿)

博士研究員（H9）平成11年度研究概要報告書

研究テーマ	高温下におけるキャビティ生成・成長の加速・抑制因子		
研究者氏名	向井将一		
研究協力者 所属・氏名	大洗工学センター ナトリウム安全工学試験部 機器構造安全工学 Gr. 上野文義	所属長印 	
研究実施場所	大洗工学センター ナトリウム安全工学試験部 機器構造安全工学 Gr.		
通算研究期間 (予定)	平成 9年 10月 ~ 平成 12年 3月	当該年度 研究期間	平成11年 4月 ~ 平成12年 3月
<p>【研究目的】</p> <p>原子力プラントを初めとする高温機器の構造部材は、プラントの起動・停止により熱応力とクリープが重畳するクリープ疲労損傷を受ける。このため、プラントの設備運営の合理化および設計寿命の精度向上を図るため、クリープ疲労損傷過程を明らかにすることは重要である。本研究では、高温下の材料劣化の主因の1つであるキャビティの生成・成長の加速・抑制因子を明らかにする。</p>			
<p>【研究内容（概要）】</p> <p>高温低応力条件下のクリープにおける材料の破壊は、材料内部の結晶粒界上に1ミクロン程度以下のキャビティが発生し、その成長・合体により結晶粒界長さ程度のき裂が発生する。そして、これらのき裂が連結し最終破断に至るという経過をたどる。このため、クリープによる材料の初期損傷を明らかにするためには、ミクロンオーダーのキャビティの経時的な成長挙動を理解する必要がある。</p> <p>本研究では、結晶粒界上に発生したキャビティの成長挙動について拡散方程式を用いた数値シミュレーションを行い、表面拡散/粒界拡散、応力等の因子がキャビティの成長におよぼす影響について検討する。加えて、試験終了後の試験片を用いて金属組織観察により結晶粒変形とキャビティ生成との関連性を調べ、どのような条件でキャビティの生成・成長の加速・抑制が起こるか検討する。</p>			
<p>【使用主要施設】</p> <p>単軸疲労試験機、単軸・多軸クリープ試験機、走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

10 年度は垂直応力が負荷された粒界上に等間隔に並んだキャビティの成長挙動について数値シミュレーションを行い、粒界拡散と表面拡散の割合がキャビティ成長に及ぼす影響について検討を試みた。

11 年度は、試験終了後の試験片を用いて金属組織観察により、キャビティの生成・成長の加速・抑制の因子としての結晶粒変形の拘束の影響について検討した。

【研究成果】

1. 数値シミュレーション

図 1 のような垂直応力が負荷された粒界上に隣接した半径 A_0 のキャビティが $2W$ で等間隔に並んでいる場合について解析を行う。解析は図 1 の形状を離散化し差分法により行った。なお、解析は $W=10$, $A_0=1$, $\sigma=4.5$ の条件で行い、得られた各値は無次元化を施して表示している。

解析により得られた成長過程におけるキャビティの形状変化の様子を図 2 に示す。なお、図は全体の形状の縦半分について示した。粒界拡散が支配的な $F=10^{-4}$ の場合には、キャビティの厚みはほとんど変化せず、幅のみが変化してき裂形状になる(図 2-a)。一方、表面拡散が支配的な $F=10^{-4}$ の場合には、初期形状をほぼ保って成長する(図 2-b)。

図 3 にキャビティの半径と時間の関係を示す。 F が 10^{-4} の場合、 F が 10^{-4} の場合に比べキャビティの成長は著しく速いことがわかる。また、 F が 10^{-4} の場合、図中の曲線の勾配が時間の経過と共に減少している傾向が見られ、キャビティの成長速度は時間の経過とともに低下することがわかる。粒界拡散が支配的な $F=10^{-4}$ の場合には、キャビティ先端からの流出する原子の量に比べてキャビティ表面からのキャビティ先端へ供給される原子の量が追いつかないため図 2-a のようなき裂形状になると考えられる。逆に、表面拡散が支配的な $F=10^{-4}$ の場合には、キャビティ表面からのキャビティ先端へ供給される原子の量がキャビティ先端からの流出する原子の量に比べ十分多いため、原子がキャビティ先端に堆積して図 2-b の形状になると考えられた。

2. 金属組織観察による検討

2.1 結晶粒変形への応力多軸性の影響

クリープによる結晶粒内および結晶粒界での損傷度合いが微視的な不均一変形により異なることが予想されることから結晶粒変形と破断時間との関連性について検討した。結晶粒変形の指標としてアスペクト比を用いた。ここで、アスペクト比は結晶粒に外接する荷重方向と平行な辺を持つ長方形の縦横の 2 辺の比である。

単軸及び等 2 軸条件でのアスペクト比の平均値 A_m と破断時間との関係は、破断時間が長くなるにつれて負荷方向(xy 面)と無負荷方向(xz 面)での結晶粒の変形に差が無くなることが予想された。これに対して、等 2 軸条件の xy 面では、変形が等方的に生じるため、 A_m は破断時間によらずほとんど変化しないが、xy 面では破断時間が長くなるにつれて受け入れ材の値に近づき、結晶粒の負荷方向への変形が小さくなる。この原因として、応力多軸性の影響により巨視的変形が単軸条件の場合に比べ抑制されていることと対応して、結晶粒の変形も抑制されていることが考えられた。また、等 2 軸条件でも、破断時間が長くなるにつれて A_m の値の変化は程度が少な

いものの単軸条件と同様の傾向がみられることが予想され、単軸条件では、破断時間が長くなるに従い負荷方向と負荷方向に対して直交方向の結晶粒の変形に差が無くなることを示唆している(図4)。

2.2 キャビティ発生分布への応力多軸性の影響

単位面積におけるキャビティの個数(面積密度)と破断時間、及び単位面積に占めるキャビティの面積の割合(面積率)は面積密度は応力条件によらず、破断寿命が長くなるにつれて増加する傾向が見られた。また、単軸・等2軸条件ともに xy と zx 面での面積密度の違いはほとんど見られなかった。一方、面積率は、いずれの応力条件・観察面(負荷方向)においても破断寿命が長くなるにつれて増加し、等2軸条件でのものは単軸条件のものに比べ大きい値をとる。単位面積に生じるキャビティの数は応力状態によらず、ほとんど同じであるが、面積密度は単軸条件に比べ等2軸条件でのものの方が大きいことから等2軸条件下ではキャビティの成長が加速されることが示唆された(図5)。

【今後の予定(翌年度以降の概要)】

当初計画どおり本年度で終了する。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

第37回高温強度シンポジウム(1999)

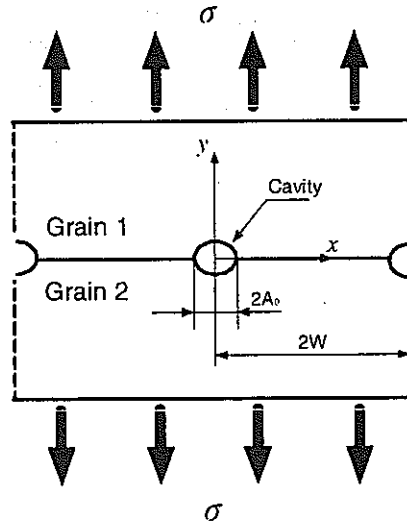


図1 解析モデル

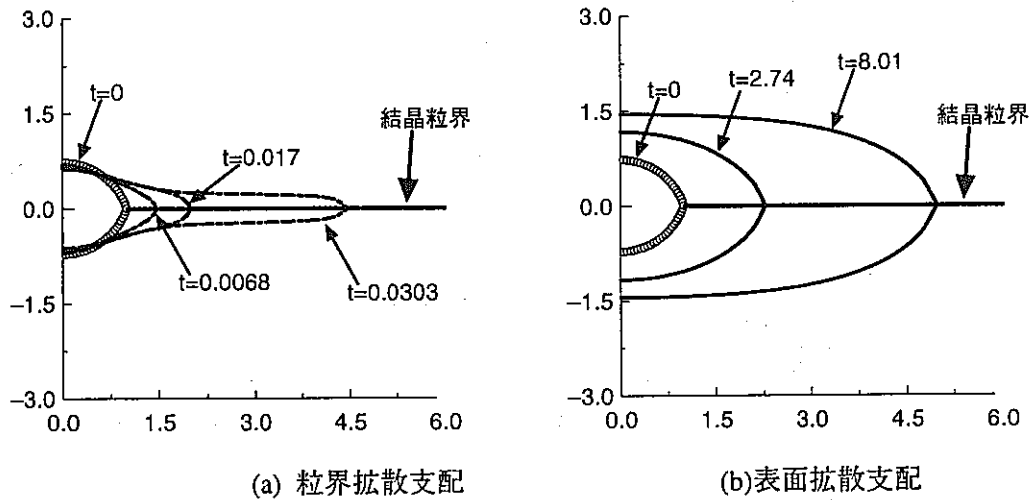


図2 粒界拡散/表面拡散の割合の違いによるキャビティの成長挙動

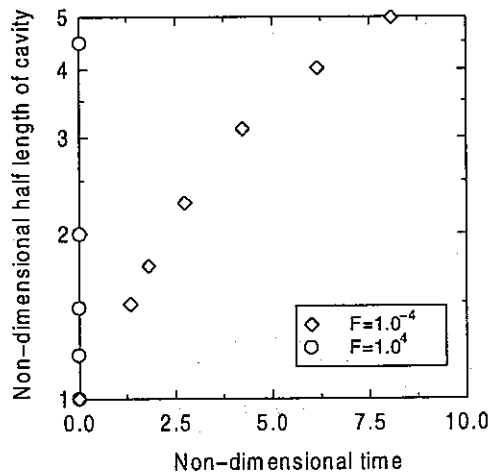


図3 時間とキャビティ半径との関係

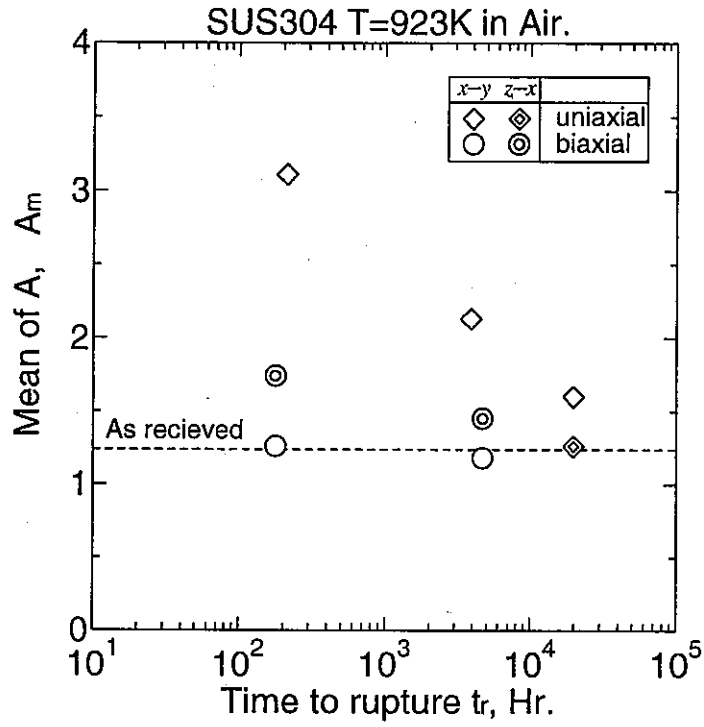


図4 破断時間と結晶粒変形の関係

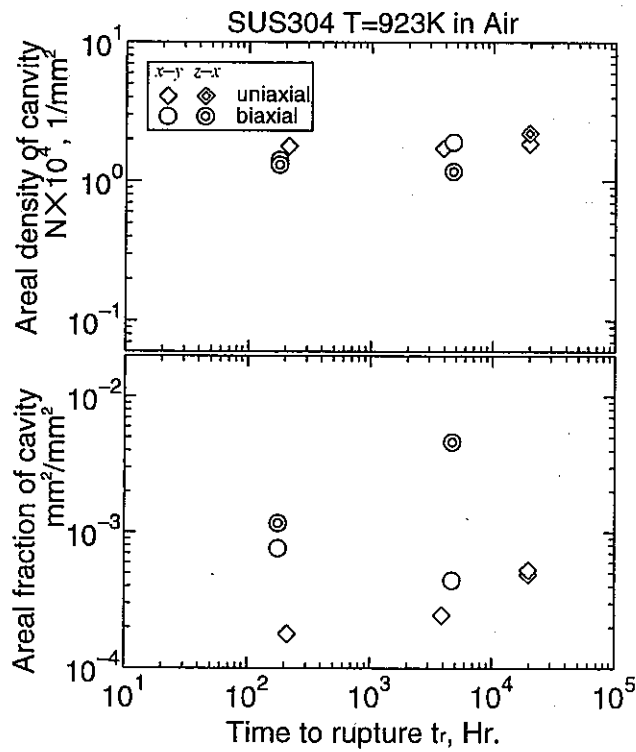



図5 破断時間とキャビティ面積密度および面積率との関係

博士研究員 (H9) 平成 11 年度研究概要報告書

研究テーマ	核変換のための光核反応における、中間子と相対論的効果		
研究者氏名	和田 浩明		
研究協力者 所属・氏名	東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 先進リサイクル解析評価グループ 原田 秀郎	所属長印 	
研究実施場所	東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 先進リサイクル解析評価グループ		
通算研究期間 (予定)	平成 9 年 10 月 ~ 平成 12 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 11 年 4 月 ~ 平成 12 年 3 月
【研究目的】			
<p>核データの高精度な理論的予測は、先進的核燃料サイクルの開発を進めるうえで重要である。とくに最近、ビーム技術が急速な発展を遂げており、これを先進的核燃料サイクルに効率よく取り入れることが期待される。そのためには、広範囲のエネルギー領域での量子ビームと物質との相互作用を核反応理論によって正確に予測することが必要である。本研究では、広いエネルギー範囲のガンマ遷移過程を研究することにより、高エネルギー領域での光核反応の反応断面積に対する理論的予測の高精度化を図ることを目的とする。</p>			
【研究内容 (概要)】			
<p>高い入射エネルギーのガンマ線による、重い原子核の光核反応断面積を精度良く理論的に予測することは非常に困難である。その原因の一つには、計算の簡単化のために広く用いられている長波長近似の精度が悪いためである。本研究では、原子核が光を吸収する電氣的遷移過程に注目し、その遷移率 (単位時間当りの遷移確率) を長波長近似せずに解く。電氣的遷移過程の遷移率を計算する際、電場と核子の相互作用演算子は厳密な表式のまま近似をせずに取り扱われる。また、調和振動子型の波動関数を原子核の波動関数として使い、調和振動子のエネルギー固有状態の間での光吸収による遷移過程を計算する。そして、さまざまな光のエネルギーと原子核の質量数に対する、遷移率を求める。</p> <p>以上の研究の他に、放射性核種セシウム ^{137}Cs の熱中性子吸収断面積を高精度化するため、$^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ 反応で生成される ^{138}Cs のアイソマー ($^{138\text{m}}\text{Cs}$) の生成確率を測定した。実験は、平成 11 年 9 月より京都大学原子炉実験所において行なった。この研究により、$^{138\text{m}}\text{Cs}$ 生成による寄与を含んだ熱中性子吸収反応断面積が得られる。</p>			
【使用主要施設】			
<p>パーソナルコンピュータ, γ線検出器と測定装置一式 京都大学原子炉実験所</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成9年度は、独立単一粒子モデルによる光核反応断面積の計算手法の開発を行った。
 平成10年度は、電気的(EI)遷移過程の遷移率を、長波長近似を使わずに厳密な定式化を行った。
 平成11年度は、10年度の電気的(EI)遷移過程の研究を継続した。また、京都大学原子炉実験所において、 ^{137}Cs の熱中性子吸収反応 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ で、 ^{138}Cs のアイソマーが生成される確率を求めた。

【研究成果】

平成11年4月から平成12年3月までの研究成果の実施状況をまとめる。

1. 電気的(EI)遷移過程の厳密解

1-1. $1s \rightarrow nL$ 電気的遷移の厳密解

平成11年3月までの段階で、調和振動子型波動関数のエネルギー固有状態間の遷移 $1s \rightarrow 1L$ ($L = p, d, \dots$)での電気的遷移率が得られている。今回はさらに、 $1s \rightarrow nL$ ($n = 1, 2, \dots; L = p, d, \dots$)遷移の電気的遷移率を定式化した。

電気的多重極場は球ベッセル関数 j_l 、球面調和関数 $Y_{l\mu}$ を使って、

$$\vec{A}_{l\mu}(\vec{r}; E) = \frac{-i}{\hbar|\vec{k}|\sqrt{l(l+1)}} \nabla \times [\hat{L} j_l(|\vec{k}|r) Y_{l\mu}(\Omega)] \quad (1)$$

と書ける。 $\hat{L} (= -i\hbar\vec{r} \times \nabla)$ は軌道角運動量演算子である。 \vec{k} と $\mu (= \pm 1)$ はそれぞれ光の波数ベクトルと偏極成分を表す。一般的な波動関数(ψ_i :遷移前状態, ψ_f :遷移後状態)に対する、光吸収による電気的(EI)遷移過程の行列要素は

$$\begin{aligned} M_{fi}(|\vec{k}| \mu; EI) &= \frac{\sqrt{2\pi i^l} \sqrt{2l+1}}{\sqrt{l(l+1)}} \left\{ \right. \\ &= \frac{E_f - E_i}{\hbar|\vec{k}|} e_p \int d^3r \psi_f^*(\vec{r}, t) \psi_i(\vec{r}, t) \left(1 + r \frac{\partial}{\partial r}\right) j_l(|\vec{k}|r) Y_{l\mu}(\Omega) \\ &\quad - i|\vec{k}| \frac{e_p \hbar}{2M_p} \int d^3r \vec{r} \cdot \left[\psi_f^*(\vec{r}, t) \nabla \psi_i(\vec{r}, t) - (\nabla \psi_f^*(\vec{r}, t)) \psi_i(\vec{r}, t) \right] \\ &\quad \left. j_l(|\vec{k}|r) Y_{l\mu}(\Omega) \right\} e^{-i\omega t} \end{aligned} \quad (2)$$

である。 M_p と e_p は陽子の質量と電荷を表す。 E_i と E_f はそれぞれ遷移前と遷移後の波動関数のエネルギー固有値である。原子核の波動関数として調和振動子型波動関数をとって、光吸収による $1s$ から nl 状態への電気的(EI)遷移過程を考える。 EI 遷移前($1s$)と遷移後(nl)の調和振動子型波動関数の表式は

$$\psi_i(\vec{r}, t) = \sqrt{\frac{4\alpha^3}{\sqrt{\pi}}} e^{-\frac{\alpha^2 r^2}{2}} Y_{00}(\theta, \phi) e^{-i\frac{E_i t}{\hbar}} \quad (3)$$

$$\psi_f(\vec{r}, t) = \sqrt{\frac{2\alpha^3 n!}{(\Gamma(n+l+\frac{3}{2}))^3}} e^{-\frac{\alpha^2 r^2}{2}} (\alpha r)^l L_n^{l+\frac{1}{2}}(\alpha^2 r^2) Y_{lm}(\theta, \phi) e^{-i\frac{E_f t}{\hbar}} \quad (4)$$

であり、エネルギー固有値はそれぞれ、 $E_i = 3\hbar\omega_0/2$, $E_f = \frac{\hbar\omega_0}{2}(4n+2l+3)$ である。定数 α は

$\sqrt{M_p \omega_0 / \hbar}$ で定義した (ω_0 は調和振動子の角速度) である。添え字 m は遷移後状態の軌道角運動量の z 成分を表し、 $m=0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm l$ の値をとる。

式(3),(4)を(2)に代入して計算すると、光吸収による $1s$ から nl 状態への電氣的(EI)遷移過程の行列要素は

$$\begin{aligned}
 M_{fi}^{(H,O)}(|\bar{k}| \mu; EI) &= i^l \delta_{m\mu} 2\alpha^{l+5} \sqrt{\frac{n!(2l+1)}{\sqrt{\pi} [\Gamma(n+l+3/2)]^3 l(l+1)}} (2n+l) \frac{1}{|\bar{k}|} e_p \frac{\hbar}{M_p} \{ \\
 & (l+1) \int_0^\infty dr r^{l+2} e^{-\alpha^2 r^2} L_n^{(l+1/2)}(\alpha^2 r^2) j_l(|\bar{k}|r) \\
 & - \frac{\hbar \alpha^2}{M_p c} (2n+l) \int_0^\infty dr r^{l+3} e^{-\alpha^2 r^2} L_n^{(l+1/2)}(\alpha^2 r^2) j_{l+1}(|\bar{k}|r) \\
 & + \frac{\hbar^2 \alpha^2}{2M_p^2 c^2} (2n+l) l \int_0^\infty dr r^{l+2} e^{-\alpha^2 r^2} j_l(|\bar{k}|r) \\
 & + \frac{\hbar^2 \alpha^2}{2M_p^2 c^2} (2n+l) \int_0^\infty dr r^{l+3} e^{-\alpha^2 r^2} \frac{d L_n^{(l+1/2)}(\alpha^2 r^2)}{dr} j_l(|\bar{k}|r) \} \quad (5)
 \end{aligned}$$

となる。(5)の行列要素から遷移率(単位時間あたりの遷移確率)を求めるには、さらに

$$T(l; E) = \frac{1}{2l+1} \frac{|\bar{k}|}{2\pi \hbar c^2} \sum_{\mu=\pm 1} \sum_{m=-l}^l |M_{fi}^{(H,O)}(|\bar{k}| \mu; EI)|^2 \quad (6)$$

を計算する。E1, E2 遷移の遷移率の計算結果を図 1,2 に示す。ここで、原子核の質量数は $A=20, 50, 130, 220$ の 4 通りを考えた。得られた遷移率が連続的でなく離散的なのは、調和振動子のエネルギー準位が離散的であるためである。図 1,2 から分かることは、光の入射エネルギーが大きいかほど遷移率は小さくなり、また原子核の質量数が大きくなるほど遷移率が小さくなるということである。図 1,2 の実線は、ワイスコップが評価した遷移率を示している(1951年)。この結果は原子核の内部で一定な単純化された波動関数を使って、長波長近似をして計算したものである(ただし、ここで使われている波動関数は平成 11 年 3 月までの研究によって、高エネルギー領域で使えないことが分かっている)。本研究で得られた結果はワイスコップによる評価値よりもかなり小さいが、これは長波長近似による差というよりも、波動関数のとり方の違いによるものである。

1-2. 入射光エネルギーが束縛エネルギーよりも高い場合の計算

つぎに、原子核に入射する光のエネルギーが、核子が原子核内に束縛されているエネルギーよりも高い場合を考えた。このような高いエネルギー領域では、原子核内の核子が入射光からエネルギーを得て、原子核外へと飛び出す。そこで、この過程の遷移率を簡単に見積もるため、原子核から飛び出した核子を自由粒子とみなして計算した。具体的には、調和振動子型波動関数の $1s$ 状態を核子の始状態として、球面波展開された自由粒子の波動関数

$$\psi_f(\vec{r}, t) = \frac{i^l}{\hbar} \sqrt{\frac{2M_p |\bar{k}|}{\pi}} j_l(|\bar{k}|r) Y_{lm}(\theta, \phi) e^{-iEt/\hbar} \quad (7)$$

を核子の終状態として、電氣的遷移過程の遷移率を計算した。図 3 に、E1 過程での、質量数 $A=20$ の原子核の遷移率を示す。点は遷移後の核子が原子核内にとどまる場合の遷移率を表し、実線は遷移後の核子が原子核外へ飛び出す過程の遷移率を表す。図 3 から、光の入射エネルギーが約 35MeV よりも大きい場合、核子が原子核の外へ飛び出す遷移確率が大きくなることが分かった。

2. 熱中性子吸収反応 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ における、 ^{138}Cs アイソマーの生成確率

2-1. 目的

核分裂生成物の一つであるセシウム ^{137}Cs に対して、中性子吸収による核変換技術の発展に必要な基礎データを整備するという目的から、平成 11 年 9 月より京都大学原子炉実験所において ^{138}Cs のアイソマーの生成確率を求める実験を行った。原子炉中で ^{137}Cs に中性子を照射すると、熱中性子吸収反応 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ によって ^{138}Cs が生成される。生成された ^{138}Cs のなかには基底状態 ^{138g}Cs (寿命約 30 分間) と、アイソマー ^{138m}Cs (寿命約 3 分間) がある(図 4 参照)。これまで、熱中性子 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ 反応で生成される ^{138m}Cs の生成確率を求める実験が存在せず、既存の熱中性子吸収断面積の実験値には ^{138m}Cs 生成による寄与が含まれていなかった。本研究では、熱中性子 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ 反応で ^{138m}Cs が生成される確率を測定し、 ^{138m}Cs 生成による寄与を含む熱中性子吸収反応断面積を求める。

2-2. 照射試料の作製と照射実験

^{137}Cs は塩化セシウム溶液($^{137}\text{CsCl}$)の形態で購入した。そのまま $^{137}\text{CsCl}$ を照射試料として使うと、 $^{37}\text{Cl}(n, \gamma)^{38}\text{Cl}$ 反応で生成される ^{38}Cl が 1643keV の γ 線を放出して測定対象の 1436keV の γ 線に対して大きいバックグランドとなる。そのため、 $^{137}\text{CsCl}$ 標準溶液から Cl を取り除くために、 $^{137}\text{CsCl}$ 標準溶液に硝酸を加え、強熱乾固させて硝酸セシウム($^{137}\text{CsNO}_3$)にした。約 $10\mu\text{Ci}$ の $^{137}\text{CsNO}_3$ をポリエチレン管容器(容量 1ml)に入れて封入したものを照射試料とした。 ^{137}Cs 試料の放射化は、京都大学原子炉実験所の圧気輸送管 No.3 を使い、中性子を 3 分間照射した。ポリエチレン管に含まれている微量な ^{38}Cl からの 1643keV の γ 線を取り除くために、照射後すぐにポリエチレン管容器を開封して硝酸を加えて Cs 試料を融解した。そして、融解した Cs 試料を別の新しい(放射化されていない)ポリエチレン容器に移して測定に取り掛かった。

2-3. 解析

Cs 試料に中性子を 3 分間照射した後、測定を始めるまでに約 2 分程かかった。放射化された Cs 試料から放出される γ 線は高純度 Ge 検出器で測定した。得られた γ 線スペクトルの例を図 5,6 で示す(10 回目に行なった実験)。

^{138g}Cs と ^{138m}Cs の半減期がそれぞれ 33.41 分と 2.91 分と異なることを利用して、 ^{138g}Cs と ^{138m}Cs の両方の崩壊から放射される 1436keV の γ 線の時間変化から(図 7 を参照)、 ^{138g}Cs と ^{138m}Cs が熱中性子吸収反応で生成される割合を求めた。その結果、 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ 反応で生成される ^{138}Cs のうち、 ^{138m}Cs が生成される確率は 0.75 ± 0.18 となった。この場合、 ^{138m}Cs 生成が熱中性子吸収断面積に与える寄与はこれまでの実験値を $9 \pm 2\%$ 上方修正させ、 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ 反応の熱中性子吸収断面積として $\sigma_0 = 0.27 \pm 0.03$ b (実効断面積は $\sigma = 0.29 \pm 0.02$ b) が得られた。

【今後の予定 (翌年度以降の概要)】

平成 12 年 3 月で終了。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

【投稿論文】

平成 12 年 3 月 “Production of the isomeric state of ^{138}Cs in the thermal neutron capture reaction $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ ”
(*Journal of Nuclear Science and Technology* に投稿済み)

[口頭発表]

- 平成 11 年 9 月 日本物理学会 1999 年秋の分科会 (岩手大学)
“高エネルギー光に対する電磁遷移過程の厳密解”
- 平成 11 年 12 月 『ガンマ線核分光と短寿命核のフロンティア』研究会 (日本原子力研究所 東海研究所)
“ガンマ線分光による核変換研究用中性子断面積の測定
— $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ 熱中性子吸収反応における $^{138\text{m}}\text{Cs}$ アイソマーの生成率 —”
(および、研究会報告提出済み)
- 平成 12 年 3 月 日本原子力学会 2000 年春の年会 (愛媛大学)
“ $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)$ 反応における Cs-138m アイソマー準位生成量の測定”

以上

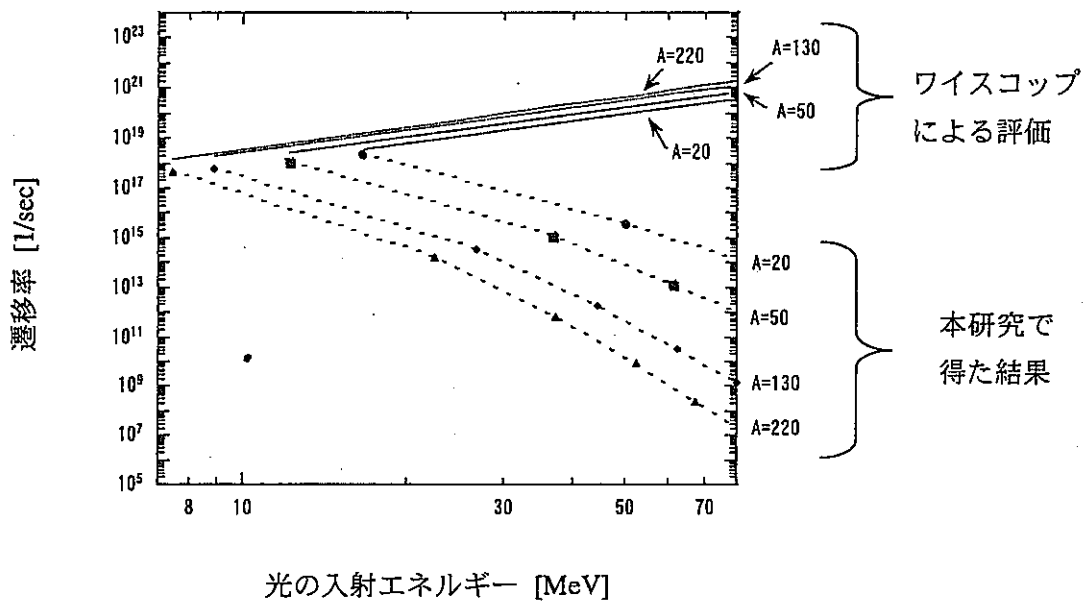


図 1. $E1$ 遷移過程の遷移率

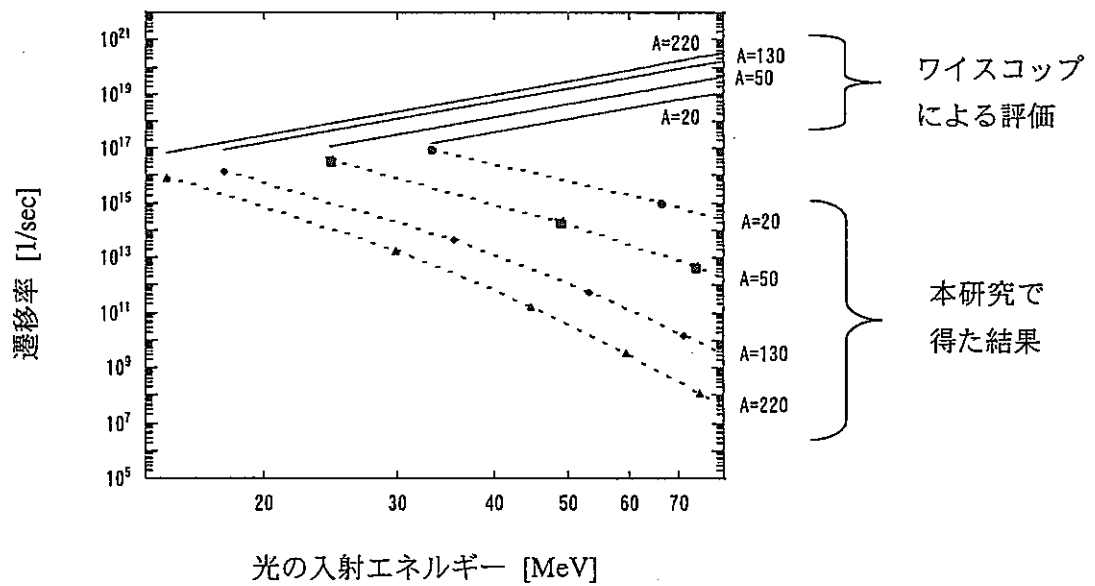


図 2. $E2$ 遷移過程の遷移率

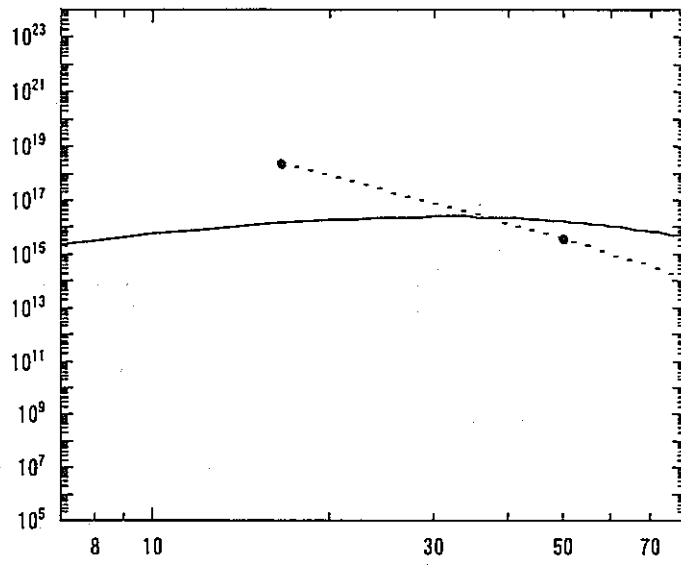


図 3. $E1$ 遷移過程の遷移率
 (質量数 $A = 20$ の原子核)
 黒点 $\cdots 1s \rightarrow np$
 実線 $\cdots 1s \rightarrow$ 自由粒子

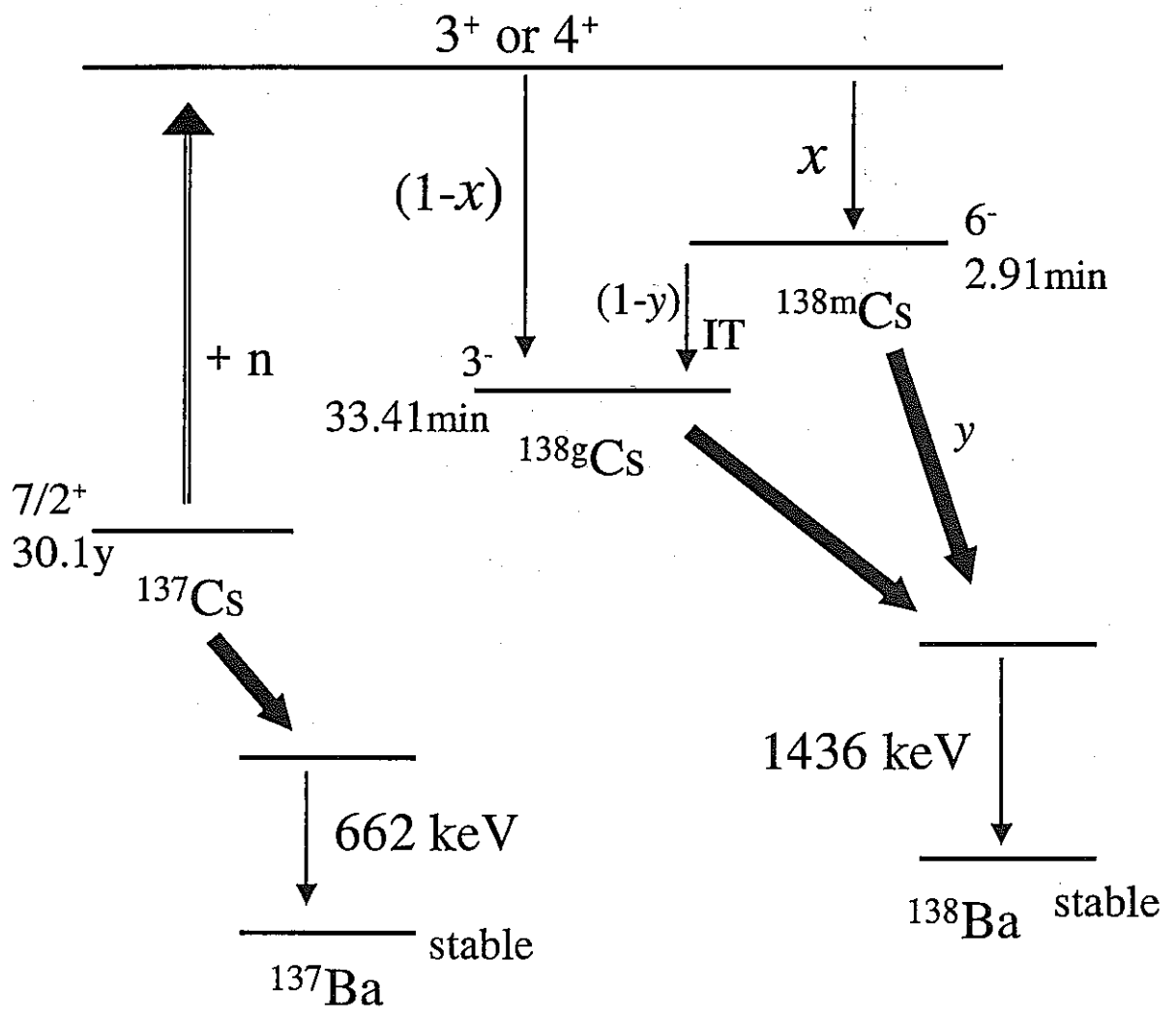


図 4. $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ 反応と
 ^{137}Cs , ^{138}gCs , ^{138}mCs の崩壊図

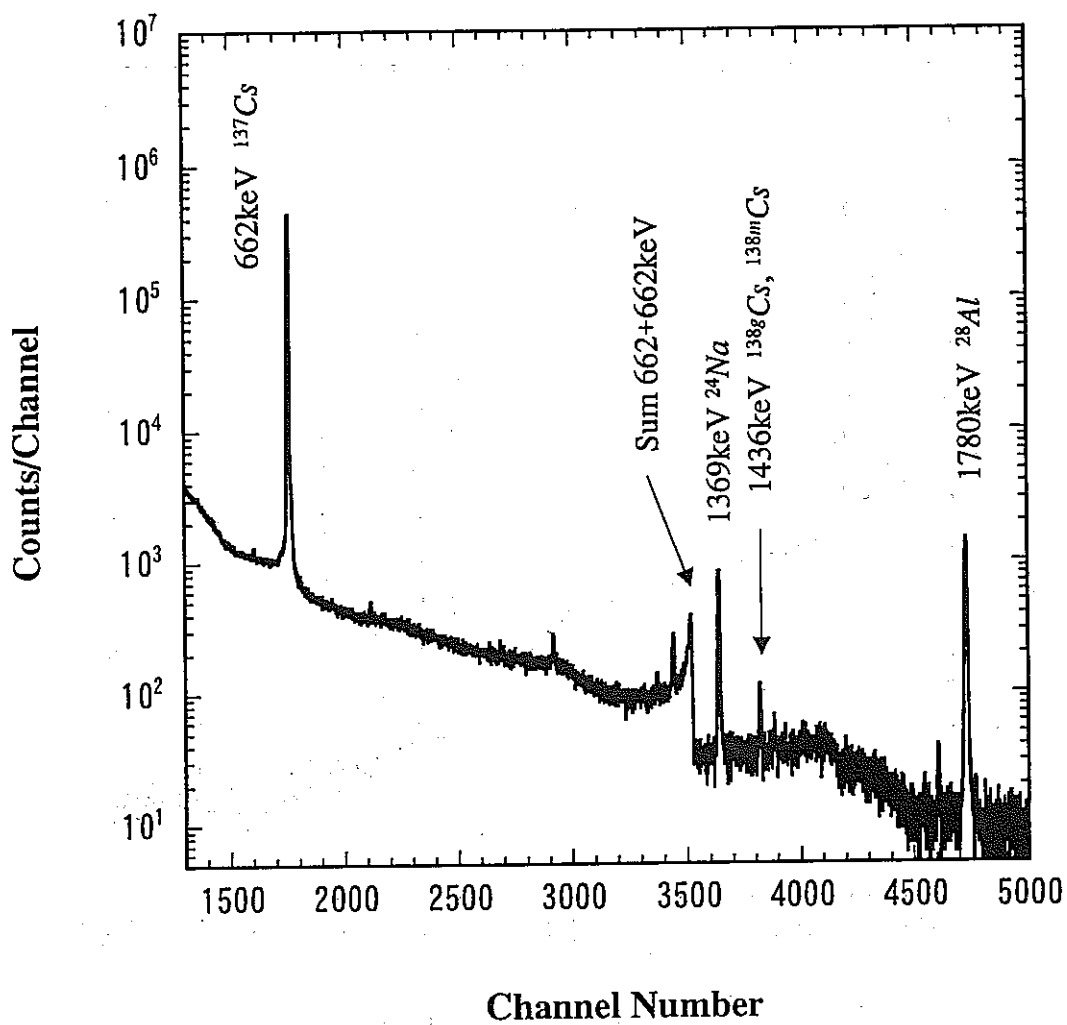


図5 中性子照射終了2.07分後から15分間の測定で
得られた γ 線スペクトル(10回目の実験)

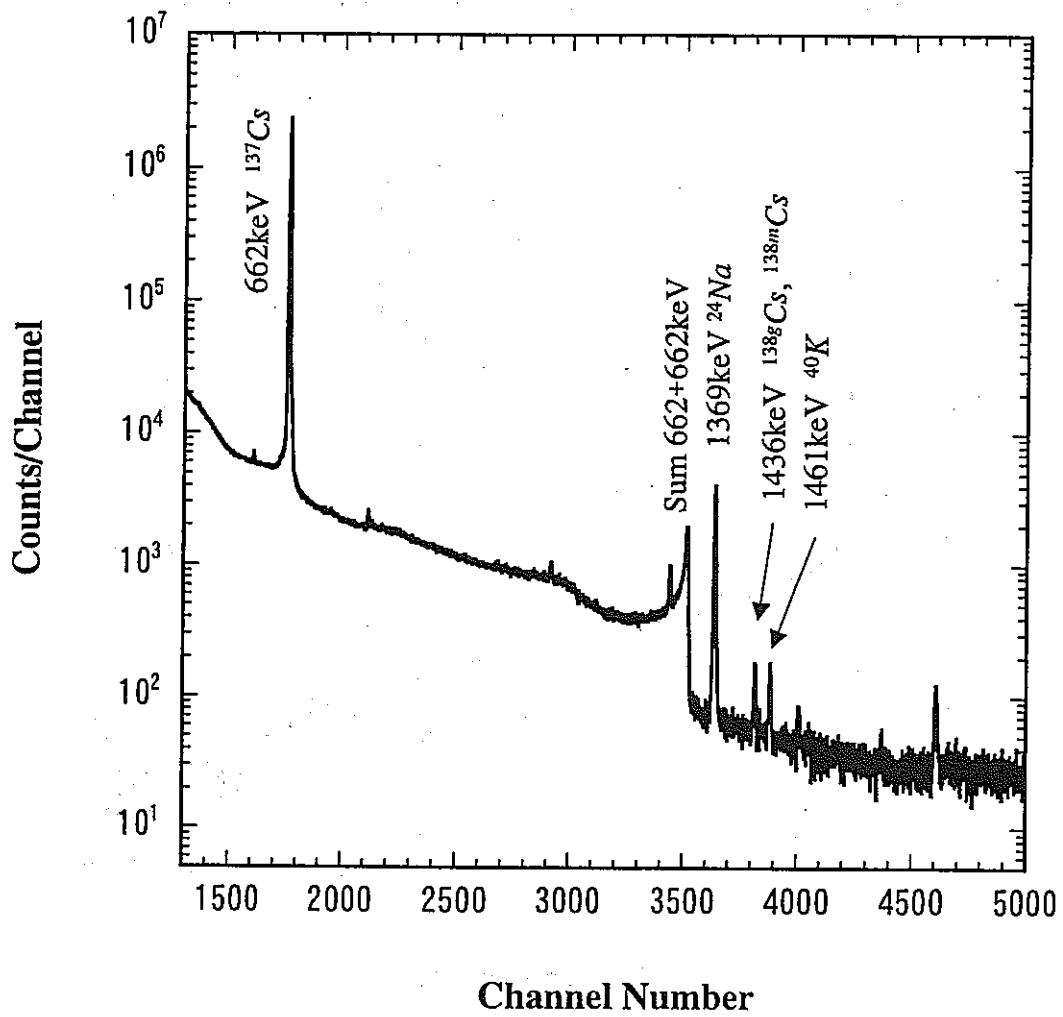


図6 中性子照射終了17.8分後から80分間の測定で
得られた γ 線スペクトル(10回目の実験)

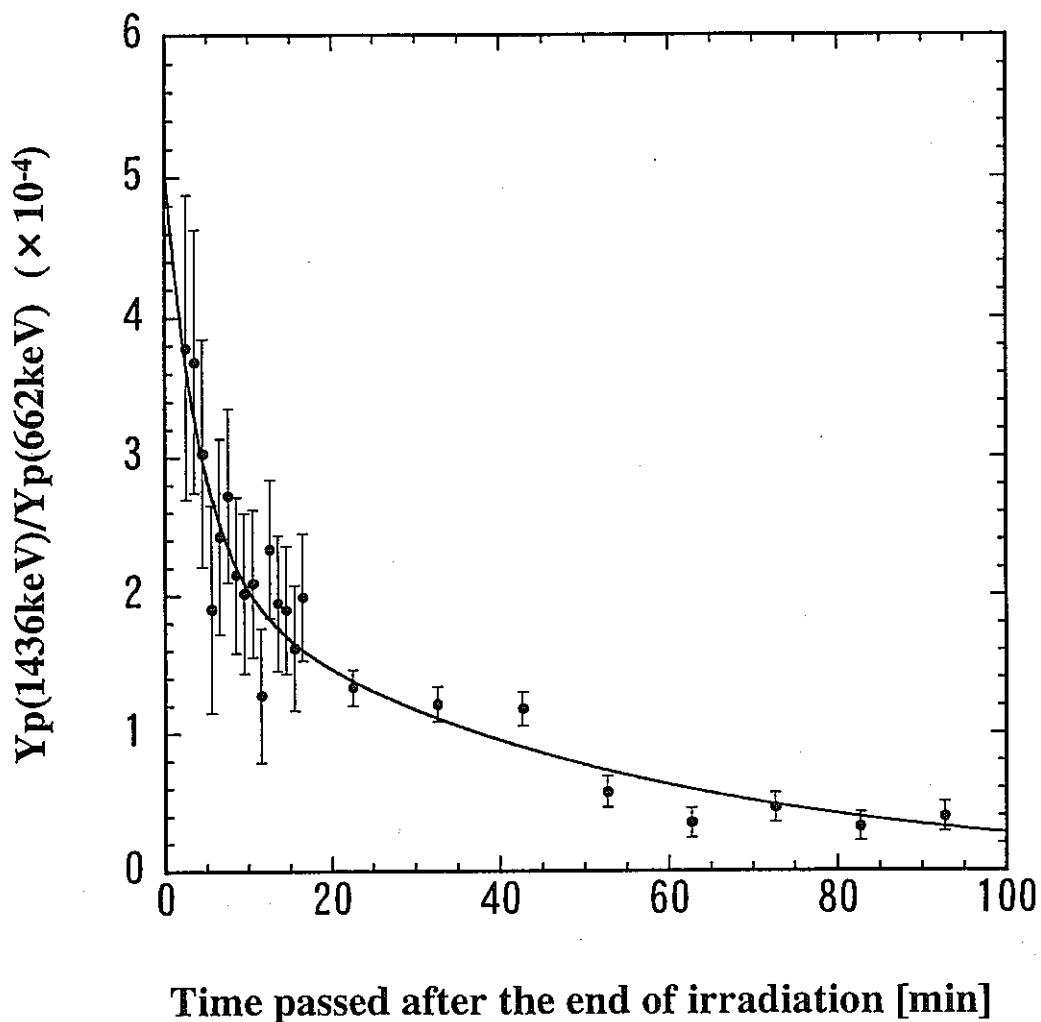



図7 1436keV γ 線のピークカウント数 $Y_p(1436\text{keV})$ の時間変化
(10回目の実験)

(ここで、試料に含まれている ^{137}Cs の含有量に依存しない解析をするため、 ^{137}Cs からの 662keV γ 線のピークカウント数 $Y_p(662\text{keV})$ で割ってデータの規格化をした。)

博士研究員（H10）平成 11 年度研究概要報告書

研究テーマ	緩衝材としてのベントナイト構成鉱物の安定条件と長期安定性に関する研究 — 緩衝材構成鉱物の高アルカリ溶液による変質研究 —		
研究者氏名	金 善永		
研究協力者 所属・氏名	柴田雅博 東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部		所属長印 
研究実施 場所	東海事業所 地層処分基盤研究施設		
通算研究期間 (予定)	平成10年 4月 ~ 平成13年 3月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成11年 4月 ~ 平成12年 3月
<p>【研究目的】 緩衝材として利用されるベントナイトの構成鉱物には、山形県の月布産（クニゲル V1）を例としてモンモリロナイト、石英、斜長石、方解石、方沸石などが含まれている。これらの鉱物は地下処分場での長期間の地質環境（例えば、セメント系材料を使用する場合の高アルカリ環境形成）において構成鉱物の変質や2次鉱物の生成などによって緩衝材の性能が低下する可能性が考えられる。したがって、ベントナイト構成鉱物間の組み合わせ（3成分系）による鉱物の安定、反応速度、平衡関係を水熱合成実験（鉱物+溶液）によって解明し、緩衝材の長期安定性を予測する。</p>			
<p>【研究内容（概要）】 緩衝材として利用するベントナイト（例：クニゲル V1）の主な構成鉱物には、モンモリロナイト（約 50%）があり、この他に副成分鉱物として石英（約 39%）、長石（3~4%）、方解石（2~3%）、沸石（2~3%）などが含まれている。このうち主な構成鉱物であるモンモリロナイトは副成分鉱物との地下処分場での環境において、地下水や熱を含む相互反応により各鉱物に変化することが予測され、その結果、緩衝材の性能が劣化することが考えられる。現在までに報告されている多くの合成実験によれば、単一鉱物の水溶液反応による鉱物の変質や安定関係などは数多く明らかになっている。しかし、これらのデータを利用して緩衝材の長期安定性を評価する際に、ベントナイトに含まれる構成鉱物間の複雑な反応プロセスは解明されていない部分が多いため、単一鉱物の反応だけでは緩衝材全体の詳細な変質評価を行うのに無理がある。そこで緩衝材として利用されるベントナイトの構成鉱物を3成分系の試料（モンモリロナイトを含む）として、オートクレーブを利用した水熱合成実験により、その変質過程や生成物に重点をおいて鉱物の安定関係や反応速度を求める。試料は反応を促進させるためにすべて粉末にし、水溶液は蒸留水、pH 10~13 溶液（Ca(OH)₂, KOH, NaOH の混合溶液）を使用する。</p>			
<p>【使用主要施設】 東海事業所 地層処分基盤研究施設内の実験室（試料調整室、表面分析室、第一試験棟） 分析装置：XRD, SEM, TEM, EPMA, ESCA 等</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 11 年 4 月から平成 12 年 3 月まで実施した研究内容は主に 110、150、200℃試験であった。200℃試験において、30 日試験までは無事終えたが、60 日と 200 日目の試料は金チューブの試料漏れがあったため失敗に終わった。これは停電などによる圧力変化が主な原因と推測される。

【研究成果】

試験に使った試料は、クニピア F (Na 型モンモリロナイト；110℃にて吸着水除去)、ドロマイト (炭酸塩鉱物)、長石 (Albite)、方沸石 (analcime) を対象に、これらの試料をメノウ乳鉢で粉末にして 100mesh の篩を通過させたものを使った。これを溶液とともに金チューブ (直径 6 mm, 長さ 60 mm) に封入してオートクレーブに入れる。モンモリロナイトと鉱物は 1 : 1 の比率 (重さ) で混合する。試料 (固体) と溶液の比率は 1 : 8 である。

* 試験温度 (℃) : 110、150、200. (50℃、200 日試料が含まれる)

* 試験期間 (日) : 5、10、30、60、200.

* 溶液 : 蒸留水、高 pH 溶液 (Ca(OH)₂, KOH, NaOH を混合させた溶液 ; pH 10~13)

* 鉱物組み合わせ : (モンモリロナイト+ドロマイト)、(モンモリロナイト+長石)、
(モンモリロナイト+analcime)、(モンモリロナイト単独試験)。

以下に試験結果を示す (表 1、2)。

- ・ 2 次鉱物として生成する analcime の出現は、モンモリロナイト単独試験において、50℃-200 日 -pH13 以上の試料から認められ (粒径 0.25 μm)、110℃のモンモリロナイト単独試験からは蒸留水や pH10~13 溶液を使ったすべての試料から 2 次 analcime の生成が認められた。
- ・ Analcime の生成はすべての温度において、pH13 溶液から粒径、量ともに著しく増加する。
- ・ 高アルカリ溶液中でのモンモリロナイトの膨潤性および層間陽イオンの変化は、X 線回折の湿度制御分析により、50℃試験では溶液の pH が高く反応時間が長いほど Na 型から Ca や K 型への傾向が観察されるが、温度が高くなれば (110℃以上) 明瞭な傾向はみられない。
- ・ 2 次 analcime 結晶の粒径や量は、pH13、110℃以上の温度からモンモリロナイト単独試験よりもモンモリロナイト+長石試験で著しく増加する。
- ・ モンモリロナイト+ドロマイト試験では、すべての温度や溶液において analcime の生成は認められず、溶液の pH が高くなるとともに方解石の 2 次結晶が著しく増加するのが観察される。また、これにともないドロマイトは溶解され、その量は方解石にくらべて著しく減少する。

以上の結果から、従来のモンモリロナイトと高アルカリ溶液 (pH 13) との変質試験 (例えば、大林組との委託研究 ; 1997、TRU チームでの室内試験など ; 1996) からは analcime の生成は 100℃を境にそれ以下の温度からは生成しにくいと考えられた。これは analcime の存在を主に X 線回折分析に依存した結果と考えられる。X 線回折でのピーク強度はその鉱物の存在量や結晶度に左右されるため、含有量が少なければ (または結晶度が低ければ) その存在が確認されにくいと考えられる。しかし、走査型電子顕微鏡観察からは上記のように 50℃においても粒径 0.25 μm 程度の analcime が観察されており、85℃試験では明瞭なピークも確認されている。したがって従来の高温 (TRU チームの 200℃試験) でのモンモリロナイトの変質試験結果は、このような低温環境にも適用可能と考えられる。

110℃以上の試験結果 (pH 13) からは、モンモリロナイト単独試験よりもモンモリロナイトと長石混合試料のほうに analcime 生成量が多いことから、緩衝材に含まれる長石が多ければこのような温度 (長石の変質が加速される) においては analcime の生成が促進されると予想される。

現在までの試験結果からは analcime の生成は既存の試験結果と同様に、pH 13 の高アルカリ環境から急激に増加する。(pH 10≒pH 11<pH 12<<<pH 13)

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 12 年からはイオンクロマトや ICP などを利用して、主に溶液の分析を行う予定である。現在までの analcime 生成速度は X 線回折による定量値（固相）でも求めることができるが、溶液（液相）中での各元素の挙動（元素の増減による平衡関係など）を詳細に調べるために溶液の分析を行う必要がある。分析予定の成分は Na, K, Ca, Mg, Al, Si の陽イオン種である。このために金チューブのサイズを変更して試験を行っている。また、処分場では緩衝材に珪砂を混合することが予想されるが、これを想定して石英 + モンモリロナイト試験を実施する。これは、Si と Al の比率により生成する沸石種に差が生じると考えられるため、その確認も含める。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

現在までの試験結果を学会誌に投稿準備中である。

「Applied Geochemistry」または「Nuclear Technology」に投稿計画中。

表 1 X線回折によるモンモリロナイト試料中に生成した analcime 量(wt %)


温度	反応時間	蒸留水	pH 10	pH 11	pH 12	pH 13
50℃	200 日	—	—	—	—	0.5
	30 日	—	—	—	—	0.5
85℃	60 日	—	—	—	—	0.6
	200 日	—	—	—	—	0.7
110℃	5 日	—	—	—	—	0.6
	10 日	—	—	—	—	0.6
	30 日	0.2	0.2	0.2	0.2	0.7
	60 日	0.1	0.1	0.2	0.2	0.9
	200 日	0.2	0.1	0.2	0.2	0.9
150℃	5 日	0.1	0.2	0.2	0.4	0.6
	10 日	0.2	0.2	0.2	0.5	1.8
	30 日	0.2	0.2	0.2	0.6	2.9
	60 日	0.3	0.3	0.5	0.6	2.9
	200 日	0.2	0.5	0.5	0.6	5.8
200℃	5 日	0.7	0.7	0.7	1.0	6.0
	10 日	0.7	0.8	0.8	1.3	8.2
	30 日	0.7	0.6	0.6	1.0	8.1

表 2 X線回折によるモンモリロナイト + 長石の混合試料中に生成した analcime 量(wt %)

温度	反応時間	蒸留水	pH 10	pH 11	pH 12	pH 13
85℃	30 日	—	—	—	—	0.4
	60 日	—	—	—	—	0.6
	200 日	—	—	—	—	0.8
110℃	5 日	—	—	—	—	0.3
	10 日	—	—	—	—	1.0
	30 日	—	—	—	—	1.2
	60 日	—	—	—	—	3.6
	200 日	—	—	—	0.5	3.6
150℃	5 日	—	—	0.1	0.3	1.2
	10 日	—	—	0.2	0.3	2.8
	30 日	0.1	0.1	0.3	0.4	4.2
	60 日	0.1	0.2	0.3	0.3	6.5
	200 日	0.3	0.3	0.6	0.6	13.7
200℃	5 日	0.3	0.3	0.5	1.2	13.1
	10 日	0.3	0.3	0.5	1.0	12.9
	30 日	0.3	0.3	0.5	0.9	22.3

※ (—) は検出不可または無し。

博士研究員 (H10) 平成11年度研究概要報告書

研究テーマ	ウラン鉱山に生息する植物群落の放射性元素の動態		
研究者氏名	志鷹 幸徳		
研究協力者	時澤 孝之, 佐藤 和彦, 長柄 収一		所属長印
所属・氏名	人形峠環境技術センター 環境保全技術開発部 環境研究Gr		
研究実施場所	人形峠環境技術センター 開発試験棟		
通算研究期間 (予定)	平成 10年 4月 ~ 平成 13年 3月	当該年度 研究期間	平成11年4月 ~ 平成12年3月
【研究目的】			
<p>放射性物質の環境から植物への移行は、食物連鎖による生物濃縮や生活環境への影響に関して、これまでも多くの研究がなされており、データが蓄積しモデル化が試みられてきている。しかし、近年の生態系の研究については、原子力施設に起因するものはいくつかあるが、ウラン鉱床付近やその鉱山跡地でのウラン・ラジウムに注目した植物への影響についての例はあまりない。</p> <p>生態系における物質循環を調べるには、個体レベルよりもある程度の大きさのマスとして捉えられる個体群を扱う方が理解しやすい。また、生物の中で植物は生産者であり物質循環に最も大きな影響を持つ。よって、植物群落における物質循環を把握しておくことが重要となると考えられる。</p> <p>植物群落がどれだけこれら放射性物質を吸収しているかは、物質循環の観点から生態学的な面においても興味深いことである。そこで、本研究では鉱山跡地やその付近をフィールドとした植物群落の放射性物質に着目し、その分布や動態を把握することを目的とした。</p>			
【研究内容 (概要)】			
<p>放射性物質の植物群落における動態を調べるには、植物体内への蓄積の他に、吸収と放出といった物質の循環を考慮しなければならない。また、これらは生育環境や植物種によっても影響を受けると予想される。そこで、生育環境と種間比較の二点から循環量を解析することとした。</p> <p>日本のような温帯では、典型的な植物の場合、春から夏にかけて成長し、秋には種子を生産し、葉を枯らすというサイクルが繰り返される。元素の動態という観点からは、植物は成長に伴って元素を吸収し、種子生産や枯葉として放出していると考えられる。そこで、植物群落における元素の蓄積量と年間循環量の推定のために、これら各器官の生産量や放射性元素含有量を測定する。また、植物を定期的に採取し成長過程を追跡することによって、植物体内における元素の各器官への移動を調べる。</p> <p>人形峠環境技術センター内にはウランやラジウム濃度が高いと思われる環境・条件（捨石堆積場、鉱滓堆積場等）があり、そこにも草本群落が存在している。また、周辺には森林が発達している。調査地点にはこれら地域を選定する。それぞれ代表となる種を選び、ウランをはじめとする放射性元素やその他の金属の含有量を測定する。植物群落における核種毎の蓄積量や循環の違い、土壌立地との関係を調べる。</p>			
【使用主要施設】			
人形峠環境技術センター (鉱滓堆積場・露天採掘場跡地・表土堆積場・開発試験棟・他センター構内)			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成11年度はラジウムの土壌植物の挙動について他の元素との比較を行った。また、森林における放射性元素の分布を調べた。

【研究成果（当該年度）】

平成12年3月までの研究成果の概要をまとめる。

1. ラジウムとアルカリ土類金属との挙動の比較

昨年度に実施した植物内のRa-226の分布解析により、Raの植物内での挙動がこれまでに知られているCaの挙動と類似した特徴を持つことが示唆された。生理機能を持たないRaは植物による吸収・分配過程において他の化学的性質の類似した元素と挙動を共にしていることが考えられる。そこで、今年度はRaの植物への移行、植物内での分配過程におけるメカニズムを解析する目的から、Raと同族元素であるMg, Ca, Sr, Baの挙動を比較した。人形峠環境技術センター構内において土壌由来の異なる鉱滓堆積場、露天採掘場跡地、表土堆積場を対象とした。分析には昨年度にRa分析を行った土壌・植物サンプルを用いた。植物はそれら地域に生育するアシヤススキである。植物試料は茎、葉、枯葉、花穂にわけそれぞれの器官ごとに分析した。

(1) 土壌から植物への移行

土壌から植物への元素の移行は、土壌から水への溶出と植物による水からの吸収という2つの過程がある。Raの溶出率（土壌溶液中の元素濃度/土壌中の元素濃度）や吸収率（植物中の元素濃度/土壌溶液中の元素濃度）は土壌間で異なっており、それぞれ0.009-0.037, 209-604の値が得られた。Raの溶出率が高い土壌では吸収率が低い傾向が見られたため、それらの積で表される濃縮比（植物中の元素濃度/土壌中の元素濃度）には違いが見られなかった（0.05-0.07）。濃縮比は元素毎に異なり、RaやBaが他の元素に比べて低い傾向が見られた。

Raの溶出率が高い土壌では他のアルカリ土類元素の溶出率も高かった。植物のMgやCa濃度は、土壌やその溶出液中の濃度が土壌間で大きく異なるにもかかわらず、変化が小さかった。これは、植物がこれら栄養塩の濃度を保つように吸収を能動的に制御したためと思われる。土壌溶出液中のMgやCaの濃度が高い土壌では、MgやCaと同様に他の元素についても吸収率が低いことが観察された。このことは、RaやBa, Srの吸収率が、土壌中に共存する栄養塩の濃度と植物による栄養塩の濃度調節機構に左右されていることを示唆する。よって、Raの溶出率と吸収率の間に拮抗的な関係が見られたと理解できる。このように、Raの濃縮比は必ずしも溶出率を反映しないことが示された。

(2) 植物内の分布

植物内のRa濃度は、高い順に並べると葉、花穂、茎であった。同様な傾向はMgを除く各元素でも観察された。また、Mgを除き、葉の元素濃度が春から秋にかけて増加するのが観察された。MgとCaは生理的に異なった働きを持っており、これら2元素の植物内での挙動は異なっている。ラジウムは植物の分配過程において、Caとより近い挙動を示すことが明らかになった。

2. 森林における放射性元素の循環

植物は土壌との物質循環を通して、植物由来の有機物の堆積により土壌表層の環境を変化させる。人形峠環境技術センター周辺の自然林は各堆積場、露天採掘場跡地の将来的な植生を表していると考えられ、将来的な放射性元素の動態アナロジーとして活用できる。そこで、人形峠環境技術センター構内の保安林を対象に、土壌及び植物のRa濃度を分析した。土壌は表層の腐植層とその下層に分け採取し土壌層間の元素濃度を比較した。植物については枝や葉に加え、腐植層の元となるリター（落ち葉など）を採取し分析を行った。

土壌の表層では、R a 濃度の絶対的な濃度が下層よりも低いのに加え、C a に対する相対的な量も低いという結果が得られた。また、上述の研究においてR a がM g やC a、S r といった同族元素に比べ植物へ移行しにくいことが観察されている。これらのことから、相対的に低い濃度のR a が植物の働きにより地表へ堆積したことで、地表のR a が希釈したことが考察される。今後、植物のR a 濃度や元素の土壌からの溶出を分析することにより、森林におけるR a の動態を明らかにする。


【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成12年度は、土壌の違いと植物へのラジウムの移行の関係について、栽培実験により解析する。また、各植物種と土壌の性質を総合し森林群落・草本群落などで土壌—植物間の移行についてのまとめを実施する。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

なし・現在投稿準備中

博士研究員 (H10) 平成 11 年度研究概要報告書

研究テーマ	CMPO-TBP 系における抽出のモデル化及び数値シミュレーションに関する研究		
研究者氏名	高梨 光博		
研究協力者 所属・氏名	東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 先進再処理技術開発グループ	先進	所属長印 
研究実施場所	東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 先進再処理技術開発グループ		
通算研究期間 (予定)	平成 10 年 4 月 ~ 平成 13 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 11 年 4 月 ~ 平成 12 年 3 月
<p>【研究目的】</p> <p>TRUEX プロセス内の挙動を数値シミュレーションにより把握することは、MA 核種の抽出分離を検討する上で非常に有効である。このプロセスの数値シミュレーションモデルとして、Generic TRUEX Model(GTM)が、ANL で開発された。しかしながら、サイクル機構の TRUEX 試験に対して、このモデルを用いて行われた Regalbuto らによる数値シミュレーションの結果は、プロセス内の挙動を十分に評価できているとは言えない。したがって、適切なプロセス設計や運転管理を可能にするためには、抽出データを整理し、プロセスに適應したシミュレーションモデルを構築する必要がある。そこで、本研究では、1) CMPO-TBP 系の抽出データの整理、2) 数学モデルの構築、3) 数値シミュレーションシステムの確立を目的とする。</p>			
<p>【研究内容 (概要)】</p> <p>シミュレーションモデルは、既存のモデルを基本とするが、本研究では、以下のような検討に基づき、抽出・分配モデルを作成して、それを用いた数値シミュレーションを確立する。</p> <p>CMPO-TBP 系の抽出データの整理においては、既存の分配データを整理し、抽出・分配モデルを構築する。ここでは、既存のコードに用いられている分配係数を評価するとともに、サイクル機構が蓄積してきたデータも加えたデータベースを作成する。また、必要に応じて、実験によるデータの取得も行う。これらのデータを基にして、シミュレーションに必要な分配係数推算式を算出する。算出した式は、文献値との比較及びシミュレーションへの適用を通して、その信頼性の評価を行う。</p> <p>数学モデルの構築においては、プロセス内で起こることが予想されている化学反応や動特性の計算を考慮したモデルの作成を行う。構築したモデルは、はじめに、定常状態における挙動をシミュレーションして評価し、その後、動特性の計算に應用していく。</p> <p>計算は、表計算ソフトを用いて行う。また、複雑な挙動の計算に対応するため、化学プロセスにおける動的挙動の解析を容易に行うことが可能なオブジェクト指向型ソフトの使用も検討する。確立したシミュレーションシステムを評価し、それに基づいてモデルの改良や機能の追加を行っていく。また、この数値シミュレーションのプロセス設計・制御への適用を検討する。</p>			
<p>【使用主要施設】</p> <p>東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 先進再処理技術開発グループ A 棟</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成10年度は、CMPO-TBP系におけるAmの抽出データを収集し、整理した。また、既存のコードに関する解析・検討を行い、それをもとにしてTRUEXプロセスの数値シミュレーションコードを作成した。作成したコードを用いて、高レベル放射性物質研究施設(CPF)で行った向流抽出試験に対する計算を行った。

平成11年度は、CMPO-TBP系におけるランタニド、FP等の抽出データ収集と整理、および数値シミュレーションのデータ入出力部の改良に着手した。また、MOX燃料スクラップからのAm分離試験におけるAmの抽出挙動に対する計算を行った。

【研究成果】

平成12年3月までの研究成果の概要をまとめる。

(1) TRUEXプロセスに関するデータの整理

TRUEXプロセスの数値シミュレーションには、プロセス中に存在するアクチニド、ランタニド、その他のFP元素および硝酸等のCMPO-TBP (TRUEX溶媒)系における抽出データが必要である。これらのデータは、各成分の分配比を算出するために用いられ、これをもとに、プロセス内における濃度を計算により決定するため、重要な基礎データとなる。したがって、より広い条件範囲にわたるデータを収集し、整理することにより、シミュレーションの適用範囲の拡大、および計算精度の向上を図ることが可能になる。

これに対応して、昨年度はAmの抽出データに関する整理を行った。Amの抽出に関しては、数多くの実験がなされており、その結果が報告されている。そこで今年度も引き続き、Amについてのデータ整理を継続している。これは、抽出試験に使用した溶媒の組成、硝酸濃度、試験温度など異なった条件下で行われたものをそれぞれの条件を軸に整理している。特に、実際に計算への適用を考慮して、溶媒には、n-ドデカン、またはそれに類する直鎖パラフィン希釈剤として用いているものを中心にまとめている。また、これと並行して、他のアクチニド(U, Pu, Np)、ランタニド、FP元素(Fe, Zr, Tc等)の抽出データについても整理を開始した。これらの結果は、データ集としてまとめていく予定である。

また、向流試験での各元素の濃度プロファイル等の結果やシミュレーションに必要な活量や密度等の物性値、既存の計算コードに用いられているモデルなどについてもまとめている。活量は、分配比の算出に、密度は溶液の体積流量の算出に用いる。ただし、現段階では、溶液の体積流量の変化は考慮していない。向流試験の結果は、計算結果との比較に使用している。

収集したデータは、シミュレーションモデルの構築に応用している。今年度は、収集したAmの抽出データを利用して、CMPO/TBP/n-ドデカン混合溶媒系におけるAm分配比推算式のパラメータを、最小二乗法により決定した。このパラメータは、CMPOによるAmの抽出機構として提案されている4つの抽出平衡式の平衡定数である。これらの平衡式からAmの分配比推算式を導出し、その式に、収集したAm抽出データから、分配比とその値が得られた硝酸濃度を活量に換算して代入し、最小二乗法により、各パラメータのフィッティングを行って、それらを決定した。これにより得られた式によるAm分配比の計算値と

文献値との比較を図1に示す。この式により、任意の硝酸濃度（0.01～6M）における Am の分配比を計算によりもとめることが可能である。n-ドデカンを用いた系での Am 分配比推算式は、これまでに報告例がなかったため、これを溶媒として用いている機構の抽出試験に対するシミュレーションには有用であり、より正確なシミュレーション結果を得ることが期待できる。

なお、通常の TRUEX プロセス運転条件においては、Am は III 価で存在するため、TBP にはほとんど抽出されない。したがって、本研究では、TBP による抽出のモデルは考慮していない。ここで得た Am 分配比推算式は、計算コード内に組み込まれ、以下に示すプロセスの数値シミュレーションに適用している。また、ランタニドおよび他の FP 元素の分配比に関しても、収集したデータをもとに、プロセス内における分配比を推算するための検討を行っている。

（2）Am 分離試験における Am の抽出挙動に対する計算

先進リサイクル研究開発部プルトニウム燃料開発グループにおいて、MOX 燃料スクラップからの Am 分離回収試験が行われた。この試験では、Am の回収に CMPO-TBP 混合溶媒を用いる TRUEX 法を用いている。本研究では、昨年度、当該の分離回収試験に対して、作成した計算コードを用いた Am および硝酸の抽出挙動のシミュレーションを行い、計算コードを評価・検証している。このときの計算結果は、試験結果とほぼ一致し、十分なシミュレーションを行うことができることを確認した。また、その計算結果をもとに、プロセス内の Am 蓄積の回避、廃液量低減等、プロセスの性能を向上させるために、供給試薬濃度、および流量に関して、試験条件の変更点をいくつか提案している。

今年度には、昨年度とは異なった条件で Am 回収試験が行われた。そこで、昨年度と同様に、この試験における Am と硝酸の濃度プロファイルを計算し、報告された試験結果と比較することにより、コードの計算精度を確認した。

図2にこの試験のフローシートを示す。本研究では、図2に示した22段（抽出部、洗浄部、逆抽出部）を計算の対象とした。この試験では、抽出器にミキサセトラが用いられ、抽出溶媒には、0.2MCMPO-1.0MTBP/n-ドデカンを使用している。抽出器、溶媒の組成に関しては、CPF で行われた FBR 再処理高レベル廃液試験と同じである。一方、この試験では、供給液中の Am 濃度が 1.1g/L と非常に高濃度の溶液を処理しているのが特徴である。このような高濃度条件での試験例は少ないため、計算対象として興味深いものである。なお、洗浄液には、0.3M 硝酸が、Am 逆抽出液には、0.01M 硝酸がそれぞれ用いられており、シュウ酸等の FP 除染用の試薬は特に用いられていない。このような点は、現段階の計算コードの計算対象として非常に適している。

本計算コードでは、各段に対する計算を必要な段数分行い、各段の出口濃度が定常に達するまで計算を繰り返すことにより、向流抽出試験の定常濃度を得る。各段の計算では、はじめに、水相出口濃度の初期値を与える。これを用いて、その段での分配比をもとめる。ここで得られた分配比を物質収支式に代入し、これを解くことによって、水相出口濃度をあらためて計算により得る。ここで得られた計算値と、初期値

とを比較し、これら二つの値の変化の割合が0.1%以内になっていれば、このときの計算値を解とする。変化の割合が0.1%以内に収まっていなければ、得られた計算値を新たに初期値と設定し直し、出口濃度が収束するまで、これらの手順を繰り返す。得られた解と、分配比から有機相の出口濃度をもとめることができる。

この各段の濃度に関する計算は、有機相の流れる方向を基準にして、水相計算値を前の段の入力初期値に、有機相計算値を次の段の入力初期値として、必要な段数分の計算に順次利用していく。各段の出口濃度が定常に達したかどうかの判定は、各段における収束判定と同様に、はじめに入力値として設定されていた値と各段の計算により得られた値との変化量が0.1%以内であれば収束として、その時の計算値を解に、そうでなければ、計算値を新たに初期値と置き換え、各段の計算を繰り返すことになる。なお、通常は、はじめに各段の入力値の初期値はすべて0と設定しておく。

また、分配比の推算には、硝酸および水の活量が必要となる。これらは硝酸濃度の関数として定式化し、コードに組み込んだ。これらの定式化には、上述のデータ収集で得られた値を利用している。なお、現在対象としているプロセスでは、硝酸以外の成分は硝酸に比べ微量であり、硝酸単独の溶液中の値と見なしでも影響ないと考えられるため、それぞれを硝酸濃度の関数として整理している。

計算結果と試験結果との比較を図3に示す。この図からわかるように、抽出・洗浄工程（1～14段）では、計算結果と試験結果はほぼ一致し、実際の試験における測定上の誤差等を考慮すれば、試験結果をほぼ再現できていると考えられる。一方、逆抽出工程（15～22段）において、計算値と実験値にやや誤差が生じていた。これは図1からもわかるように、低硝酸濃度領域で、モデルによる A_m の分配比の計算値は、硝酸濃度の減少にともない、直線的に減少しているのに対して、実験値の減少割合は緩やかになっていることから生じた誤差に起因していると考えられる。この違いには、実験値に含まれる誤差による影響もあると思われるが、現在使用しているモデルでは、実験値のような変化に対する正確な計算は困難である。本計算コードでは、その段での硝酸濃度に応じた分配比を計算し、それをもとにして水相、有機相の各溶液中の濃度をもとめている。したがって、低硝酸濃度領域での A_m の分配比については、異なったモデルの構築あるいは、補正係数の適用など、さらに検討を続けていく必要がある。ただし、実験誤差等の影響も考慮すれば、全体の傾向に関しても推測することはできているものと考えられる。

なお、試験および計算のいずれの結果からも、18段目付近で、 A_m が蓄積するようなプロファイルが観察されている。これは昨年度の計算結果から予測されたように、洗浄液中の酸濃度を低くすることによりある程度回避できるのではないかと考えられる。また、実験の結果、 A_m の回収率は約84%であったため、回収率をより向上させる必要があると考えられる。分離条件を改良するためには、シミュレーションが一つの有効な手段となると考えられる。

(3) ランタニド抽出に対する段効率の影響

本研究では、向流抽出試験に対する計算精度向上のため、段効率(E)を考慮してきた。昨年度は、 A_m の

濃度プロファイルに対する段効率の影響を評価した。CPF で行われた FBR 再処理高レベル廃液試験においては、 $E=0.9$ としたときに最も試験結果に近い計算値を得ることができた。

今年度は、この検討を、ランタニド(Ce, Eu)に関して行った。対象とした向流試験は、Am の計算と同じく CPF で行われたものである。この試験のフローシートを図 4 に示す。使用された抽出器はミキサセトラで、ここでは、抽出・洗浄部 19 段を計算の対象とした。溶媒には、0.2MCMPO/1.0MTBP/n-ドデカンを用いている。使用した抽出器、溶媒に関しては、上述の Am 分離回収試験と同じである。また、この試験では、FP 元素の除染を高めるために、シュウ酸が用いられている。シュウ酸は、ランタニドとも錯体を形成し、その形成された錯体は、この試験に用いられている混合溶媒には抽出されないことが知られている。この試験で用いられているシュウ酸濃度であれば、ランタニドの抽出挙動に対する影響は小さいと考えられるので、現段階では、計算コードの中にこの影響を考慮に入れていない。また、スクラブ液も異なる硝酸濃度 (7.7M と 0.3M) の溶液を異なる段 (14 段と 19 段) から供給する、いわゆるダブルスクラブ法を採用している。これもまた、FP 元素の除染を高めるために導入されたものである。

計算では、 E を 0.8、0.9、および 1 とし、それぞれに対する濃度プロファイルを計算し、試験結果と比較した。図 5 には、Eu の濃度プロファイルについてそれらを比較した結果を示した。図からわかるように、 $E=0.9$ のとき、最も計算値と実験値が一致している。これは、Am に対して得られた結果と同じである。なお、この値は、前項の計算にも適用しており、結果はすでに示したように、試験結果をよく表現できていた。これらの試験は、いずれも抽出器に小型のミキサセトラを用いているため、このタイプの抽出器には、段効率 $E=0.9$ を適用することにより、試験結果に近い計算値を得られることが確認できた。この結果は、Regalbuto らがミキサセトラ型の抽出器に対して得た結果と一致している。

(4) シミュレーションデータ入出力部の改良

本研究で作成した計算コードには、計算対象となるプロセスの条件 (段数、供給濃度、成分数等)、使用する溶媒の CMPO および TBP の濃度、各段からの供給流量および濃度を入力値として準備する必要がある。本計算コードでは、表計算ソフトのワークシートを入出力のインターフェイスとしていた。そのため、これまででは、これらの入力データを、使用者がワークシート上に直接記述する形式をとっていた。しかしながら、この形式では、計算を行うために、まず入力値に対応したデータシートを作成する必要があった。これには、対象とするフローシートの条件に合わせて、使用者がシート上に各値を正確に記述していかなければならない。また、段数の多い計算や複数の工程を扱う計算に対しては、同様の設定を繰り返す必要が生じるため、計算準備に負担がかかる。そこで、この計算設定に関する負担を軽減するために、コードのデータ入力部を改良し、入力用インターフェイスを追加した。

今回の改良では、工程に関するデータ (段数、段効率等)、供給液に関するデータ (濃度、流量、供給段等) 等は、それらを入力するウィンドウを順次表示し、対話形式で条件を与えていくようにした。計算シートは、これらのウィンドウに与えられたデータを反映して、自動的に作成されるようにした。なお、今

後、FP 元素への対応も検討しているため、それにあわせて、扱える成分数の変更等の改良を予定している。

出力部に関しては、シート上に結果を表示するだけでなく、必要に応じて計算結果を自動的にグラフに出力できるようにした。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成12年度は、抽出データ等の整理を継続するとともに、計算のFP 元素への拡張を行う。また、向流試験に対する計算を通じて、計算精度の向上をはかる。計算システムを利用しやすくするためのインターフェイス開発も継続する予定である。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- 1) Numerical Simulation of Extraction Behavior of Americium and Nitric Acid in the TRUEX Process, J. Nucl. Sci. Technol., 投稿中
- 2) Numerical Simulation for Concentration Profiles of Americium and Lanthanides in the CMPO-TBP Solvent Extraction System, China-Japan Workshop on Nuclear Waste Management and Reprocessing, April 5-7, 2000

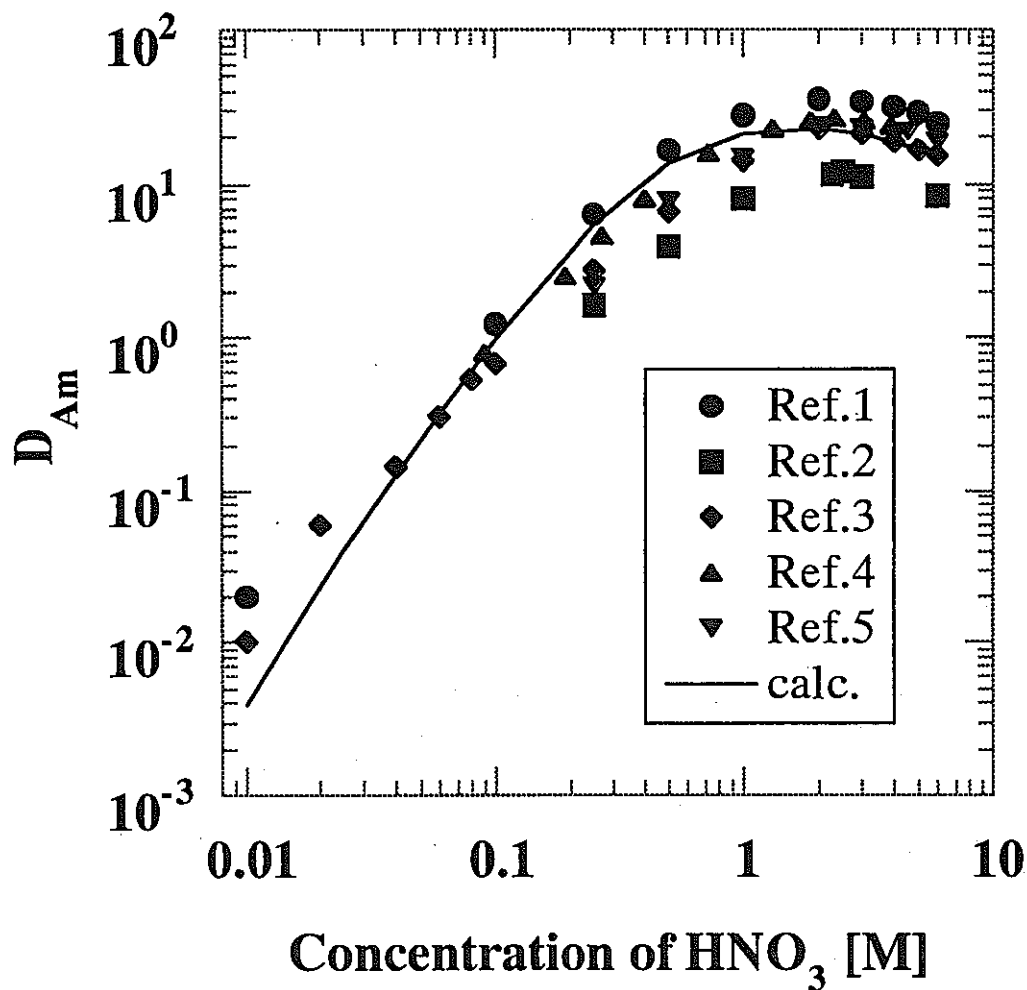


図1 Am 分配比の比較

References

1. Horwitz, E. P. et al. : Solvent Extr. Ion Exch., 3(1&2), 75(1985)
2. Facchini, A. et al. : Sep. Sci. Technol., 31(16), 2245(1996)
3. Schulz, W. W. et al. : Sep. Sci. Technol., 23(12&13), 1191(1988)
4. Kolarik, Z. et al. : Actinides Processing, 359(1994)
5. Mathur, J. N. et al. : Talanta, 39(5), 493(1992)

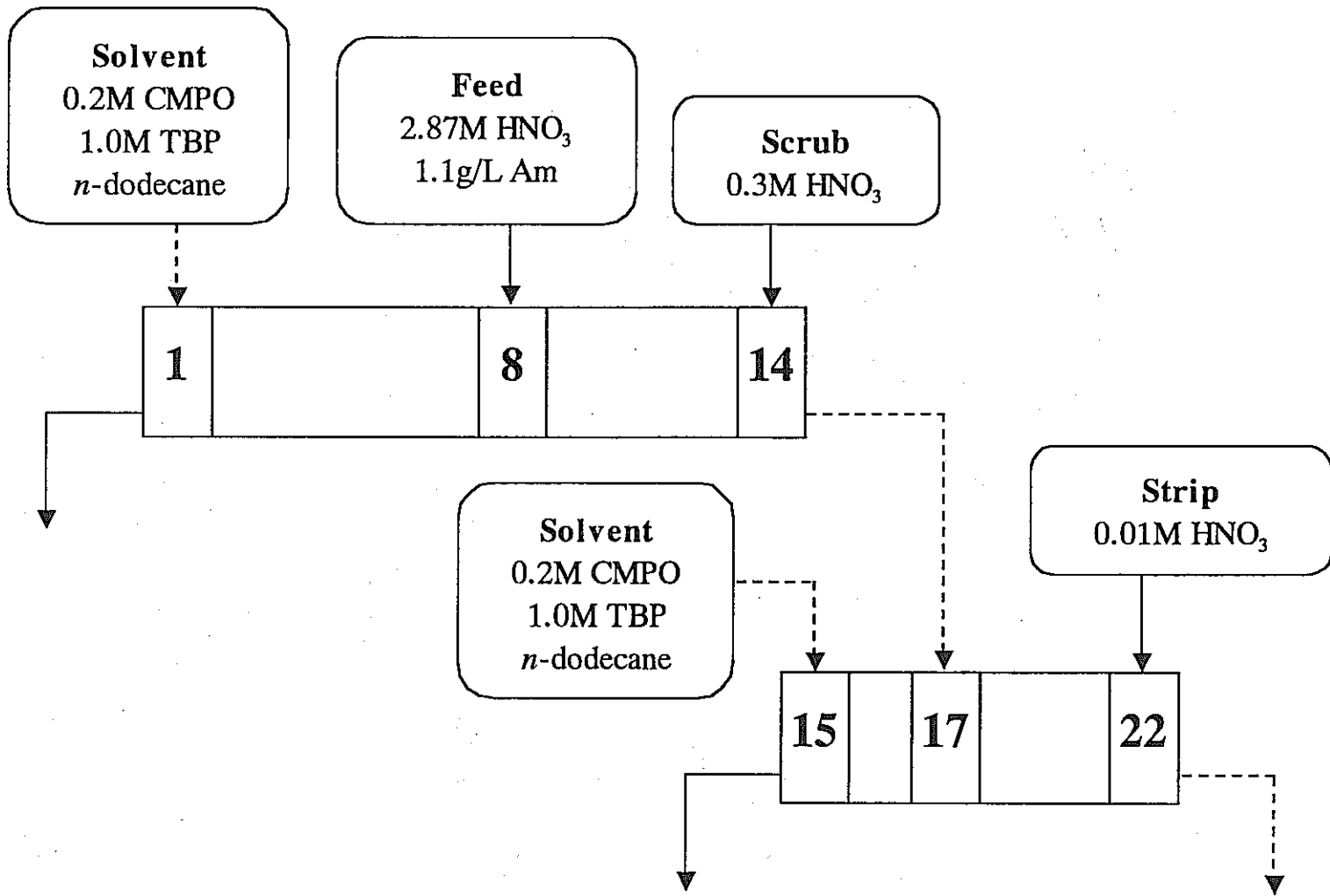


図2 Am 分離回収試験フローシート

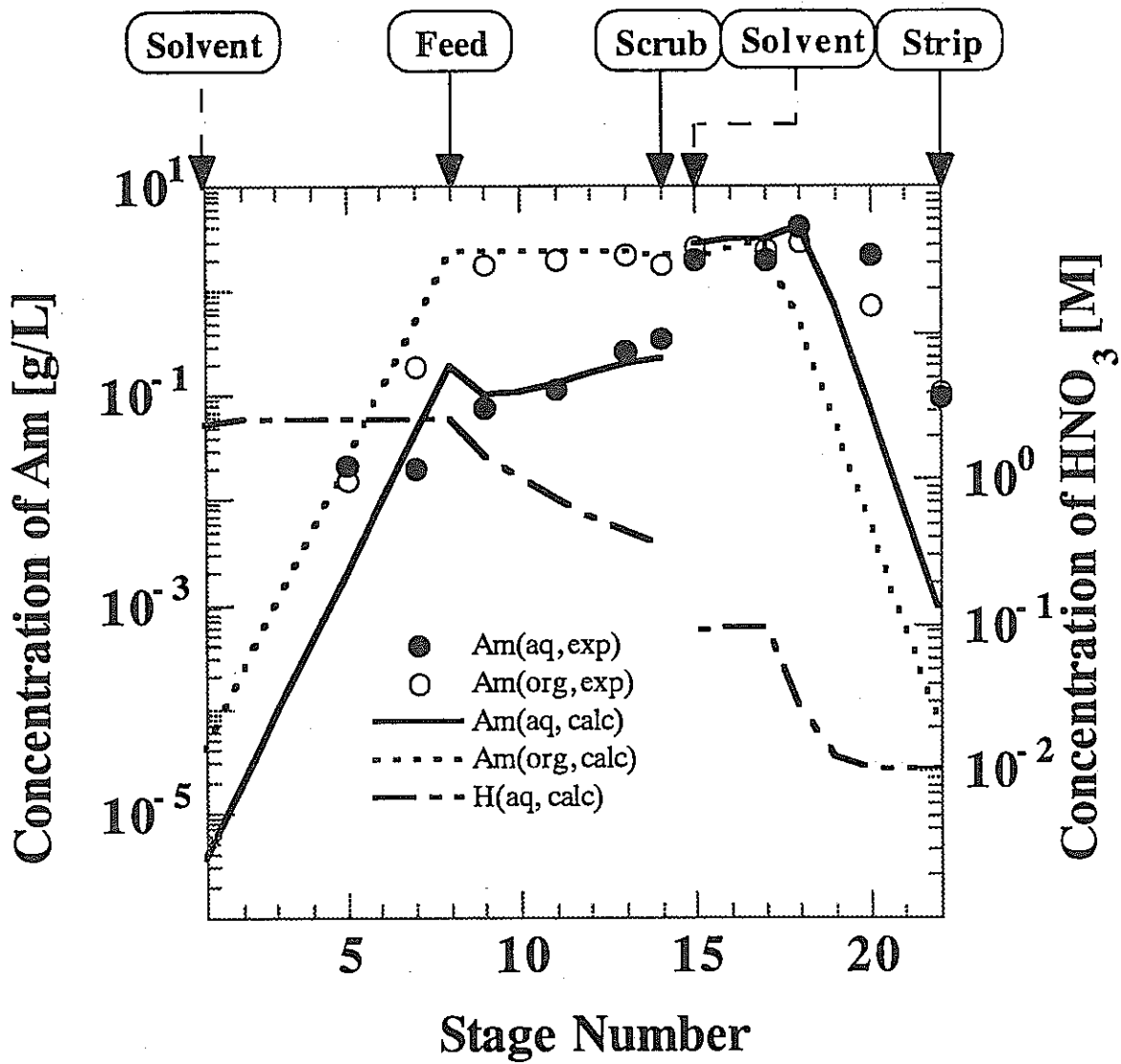


図3 Am および硝酸の濃度プロファイル

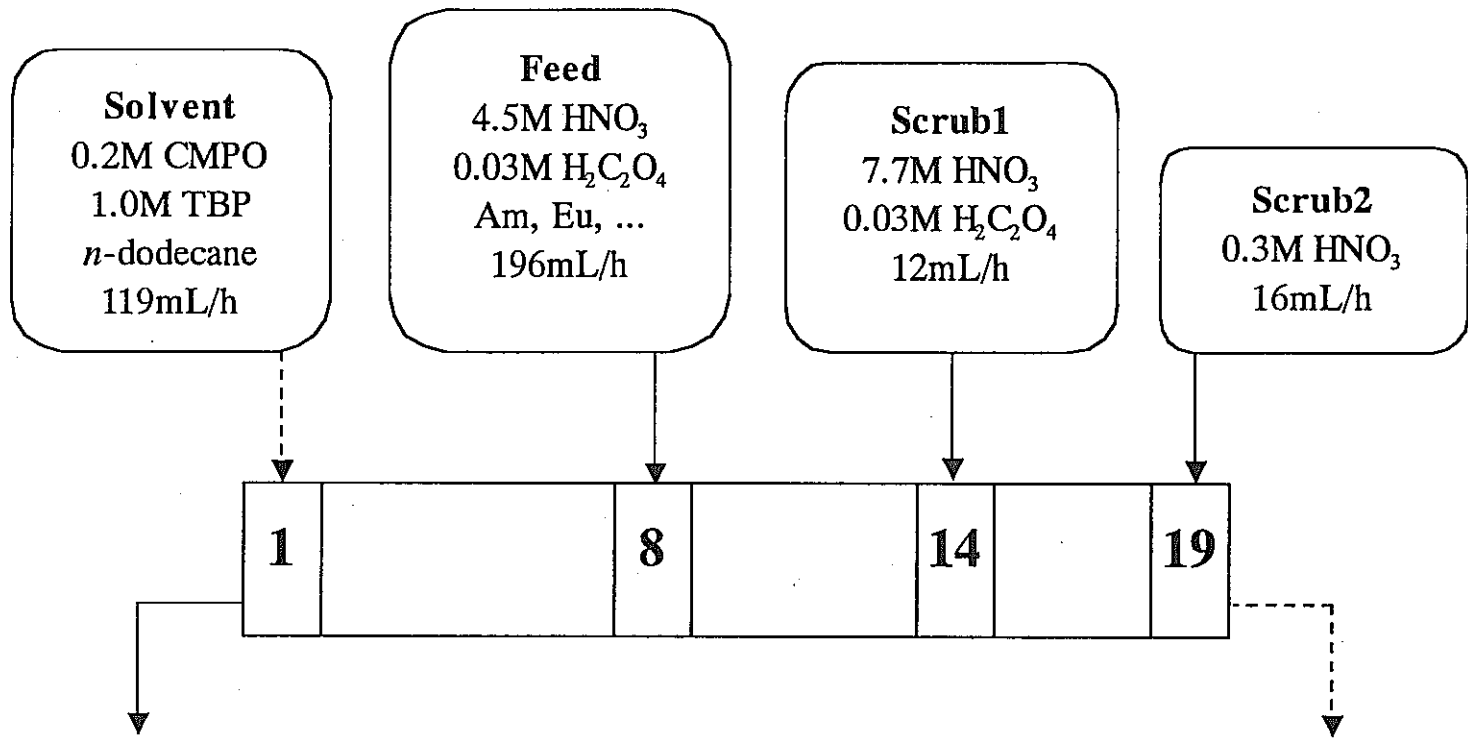


図 4 FBR 再処理高レベル廃液試験フローシート

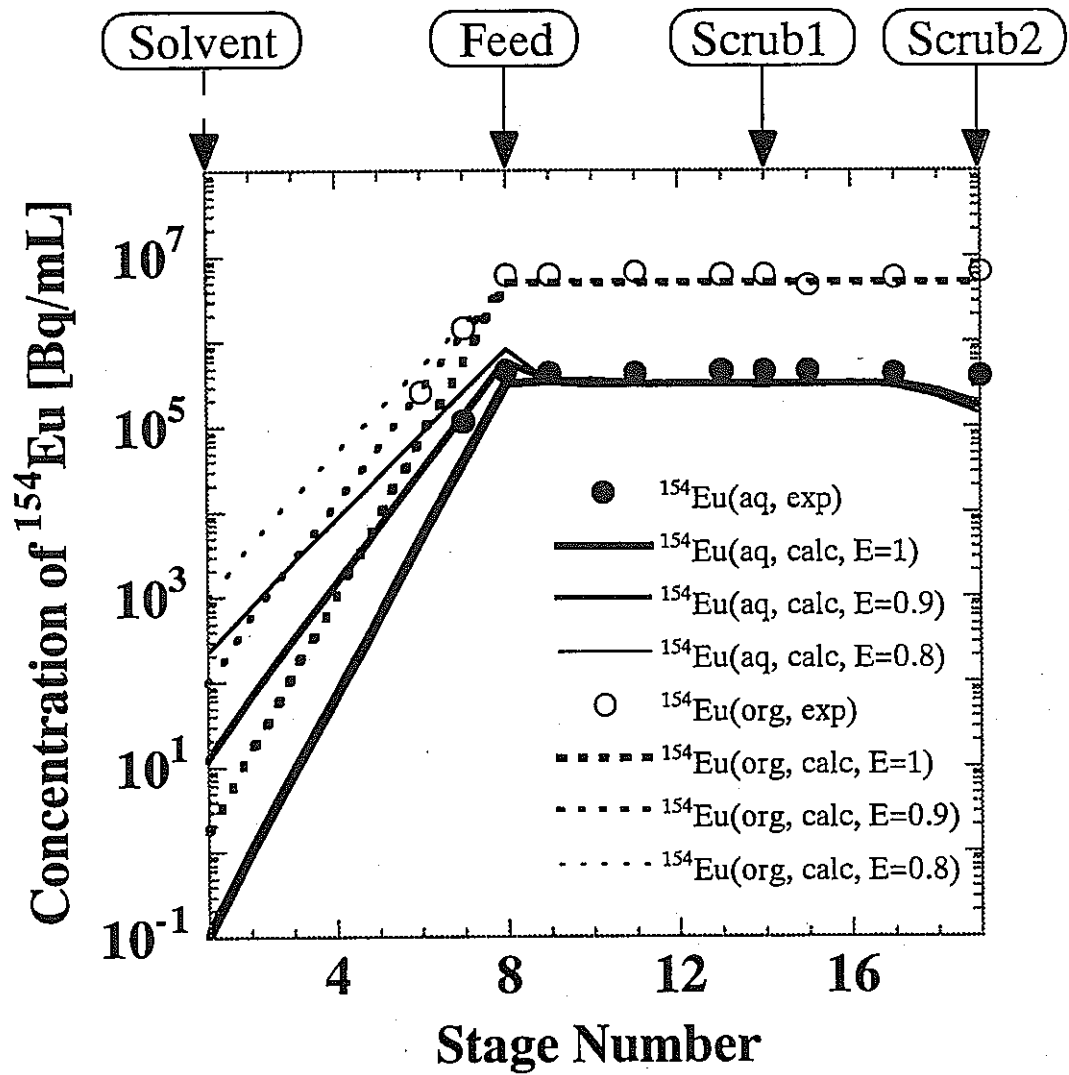



図5 Euの濃度プロファイル

博士研究員 (H10) 平成11年度研究概要報告書

研究テーマ	磁性及び非磁性材料構造物における非破壊検査技術の向上		
研究者氏名	陳 振茂		
研究協力者	青砥 紀身	所属長印	
所属・氏名	Na安全試験部 機器・構造安全工学 Gr.		
研究実施場所	大洗工学センター		
通算研究期間 (予定)	平成 10 年 4 月 ~ 平成 12 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 11 年 4 月 ~ 平成 12 年 3 月
【研究目的】			
<p>高速増殖炉に限らずあらゆる構造物の安全確保はもっとも重要であり、そのために供用期間中に定期的な非破壊検査を実施することは有効な手段である。特に、適当な非破壊検査を実施することでき裂の発生と成長の監視、き裂形状の推測などが精度よくできれば構造物の信頼性を飛躍的に高めることが可能となる。この視点からは従来の非破壊検査手法は、検出能力、信頼性とも十分であることは言えない。そこで本研究では、(1) 従来の渦電流探傷法 (ECT) 技術の高度化、及び (2) 塑性と磁化の関連性を利用する非破壊検査法を新規に開発し、非破壊検査技術の向上に資する。</p>			
【研究内容 (概要)】			
<p>本研究では、渦電流探傷法の向上を目的とした自然き裂の再構成手法の確立、及びき裂先端の塑性変形と変形誘起磁化 (自然磁化) の相関の解明を行う。</p> <p>(1) 具体的には、申請者が開発した EDM人工き裂の逆解析手法を改良して、自然き裂をモデル化し、渦電流探傷法を用いた自然き裂形状の再構成を実現する。き裂の形状を把握することで、定量的な安全監視を可能とし、更に構造物の寿命評価に必要な情報を取得する。その上で、高速増殖炉 (FBR) の構造物に対する ECT の適用妥当性を検討する。そのために、Na環境にある配管におけるき裂または疲労損傷を検出する渦電流探傷試験の数値シミュレーションを行い、その検出能力を評価する。</p> <p>(2) 申請者らの実験的知見では、塑性変形により鉄鋼材料中に磁化が発生する。この新しい知見はき裂の検査及びき裂形状の逆解析に適用できる可能性が高く、新たな非破壊技術に発展すると考えられる。そこで本研究では、塑性変形と磁化の相関性を解明する。具体的には、異なる塑性変形を有する多数の試験片を製作し、その周辺の微弱な磁場の分布を測定する。これらの磁場を逆解析の手法で磁化に置換し、応力解析及び転位・微小子裂などの計測から得られた損傷情報と詳細に照合することにより塑性と磁化の相関性を示す。最終的には得られた構成関係に基づいてき裂の発生及び成長を監視する非破壊検査法を提案し、実機き裂形状同定への有効性を検証する。</p>			
【使用主要施設】			
大洗工学センター (大型コンピュータ、SEM、TEM装置、FINAS、材料試験装置など)			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

今年度は主に磁化・損傷に関する試験研究及び測定磁場から磁化分布の再構成手法の開発を実施した。試験研究においては、モアレ法によるひずみ分布の計測装置を新規設計・導入し、多数の試験片に対して引張試験または疲労試験を行い、試験中及び試験後の自然磁束漏洩を計測した。また、永久磁石による着磁を利用して残留磁化に及ぼす損傷の影響を調べた。磁化の逆解析には、最適化法とウェーブレットに基づいた手法を提案し、数値シミュレーションデータを用いてその妥当性を確認した。更に、自然磁束漏洩信号から再構成した磁化分布はコロイド法により測定したものと定性的に合致しており、提案手法の実機環境への有用性を示した。

【研究成果】

本年度は主に試験研究と磁化の逆解析を行い、次の成果が得られた：

(1) 塑性・磁化の相関に関する試験

多数の SUS304 ステンレス鋼試験片に対して、単純引張試験及び両振疲労試験を用いて機械損傷を与え、フラクスゲートセンサーで試験中及び除荷後の磁化特性を測定した。その結果外部磁場かけなくても塑性変形及び疲労損傷により自然磁化が発生し、損傷の増加に伴い飽和することが明らかにした。モアレ法で計測した結果から、平滑試験片のひずみ分布がほぼ均一であり、局所的な変形が認められなかった。しかしこの場合測定した自然磁化の分布にも特異な位置がなく、局所すべりによって大きな磁化信号が発生することは否定できない。また、昨年度予備試験において3回に分けて9%まで引張った試験片の微視構造を顕微鏡、SEM、TEMで観察し、その試験片の下部に粒内すべりが多発し、マルテンサイト変態も生じたことが明らかになった。この結果により、局所すべりとマルテンサイト変態は自然磁化の発生に繋がるということが考えられる。なお、切欠試験片に疲労き裂を入れた試験から、自然磁化は疲労き裂の検査に特に有効であることが判った。更に疲労試験中計測した磁場信号の処理により、疲労損傷の検出に適用可能な信号の特徴量（磁場・ひずみヒステリシスループの面積）を提案した。最後に異なる塑性変形を与えた試験片に対して永久磁石着磁による残留磁化の分布を測定し、残留磁化は損傷が十分大きくなると増加する傾向があると分かった。上記内容から、損傷誘起自然磁化は絶対値が小さいものの、特徴量の抽出やセンサーの工夫によって損傷状態の監視に十分適用可能であると考えられる。一方、自然磁化を走査検査への適用はまだまだ努力する必要があるが、これに対して残留磁化に基づいた手法は有効である可能性が高い。但し、提案手法を実機環境への応用に至るまでは、異なる試験条件下の挙動や実環境ノイズの影響の確認などに更なる研究を重ねる必要性がある。

例として図1に9%まで引張った試験片に対して透過電子顕微鏡の観察結果を示す。滑り線の交差箇所にマルテンサイト相が発生していることがはっきり判る。図2には磁場・ひずみヒステリシスループの面積と荷重の繰り返す回数の相関を示す。この特徴量は疲労損傷と密接に相関し、損傷の検査に適用可能性が高いことが判る。

2) 磁化の逆解析に関する研究

自然磁束漏洩から損傷を非破壊的に検査する研究の一環として、測定した磁束漏洩信号より材料における損傷誘起磁化分布の逆解析手法を提案し、シミュレーションまたは測定した自然磁束漏洩信号から磁化の分布を再構成した。この代表的な非適切問題に最小二乗に基づいた手法を適用した。初期値や反復計算の回数などを問題を適切化する手法とした上反復計算のアルゴリズムを利用して最小自乗法より得られた線形方程式の解を求めることに成功した。数値試験の結果、本手法はノイズの少ない磁場信号に対して有効であることが分かった。また、ノイズに対するロバスト性を向上するために、ウェーブレットに基づいたガラーキン法を積分方程式の離散化にも用いられた。最小二乗法の結果と比べることにより、ウェーブレットを用いた手法はS/N比の低い信号に対しても有効であることを明らかにした。更に、反復計算の回数や重み係数の選び方について検討した。実際に最小二乗法は1次元及び2次元問題、ウェーブレットを用いた手法は1次元問題の磁化分布の再構成に適用し、提案手法の妥当性を確認した。特に自然磁化試験から得られた信号に対して、最小自乗法を用いて磁荷の分布を再構成し、コロイド法で測定した結果とよく一致した。

図3は数値シミュレーションデータを用いた再構成の例であり、よい再構成結果が得られたと考えられる。図4には測定信号の再構成結果を示す。図5のコロイド法で測定した試験片表面の磁化分布と定性的によく一致することが判る。

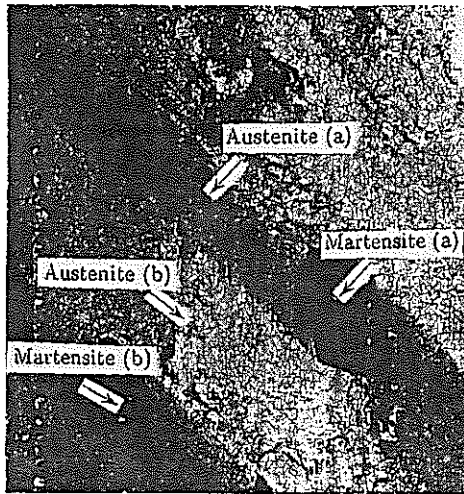


図1 TEMの観察結果

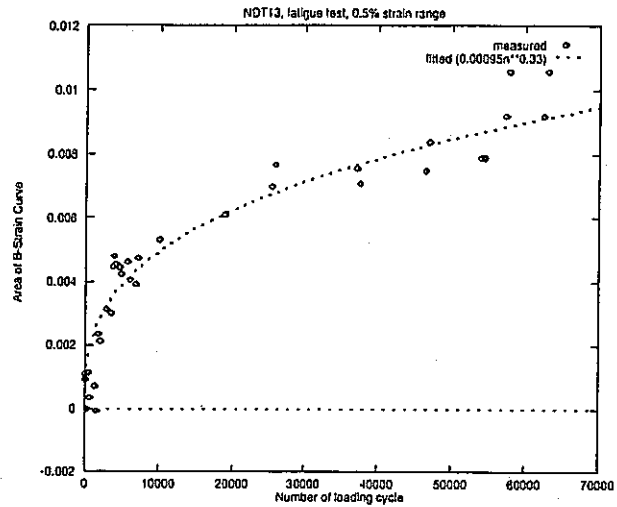
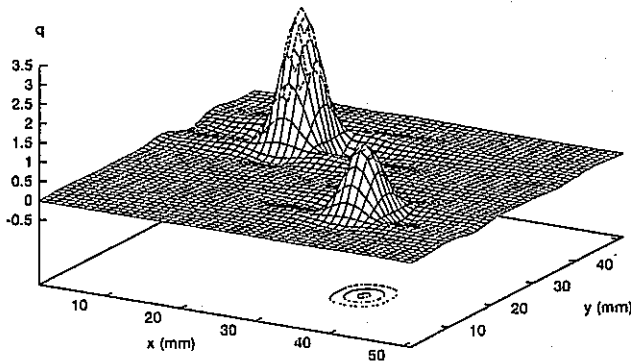
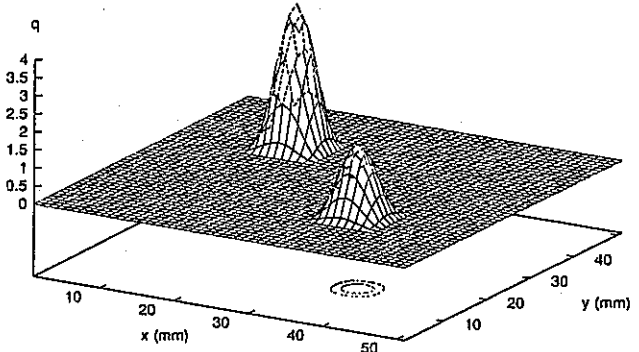


図2 ヒステリシスループ面積と繰返回数との相関



a). Reconstructed magnetic charges



b). True distribution of magnetic charges

図3 数値シミュレーションデータを用いた再構成結果

【今後の予定 (翌年度以降の概要)】

今年度で研究を終了することにしました。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- [1] Zhenmao Chen, Kazumi Aoto, and Shoichi Kato, Passive Electromagnetic NDE for mechanical damage inspection by detecting leakage magnetic flux, I. Reconstruction of magnetic charges from detected field signals, JNC Report, JNC TN9400 99-061, 1999.
- [2] Zhenmao Chen, Kazumi Aoto, Shoichi Kato and Yuji Nagae, Passive Electromagnetic NDE for mechanical damage inspection by detecting leakage magnetic flux, II. An experimental study on the correlation of natural magnetization and mechanical damages in the SUS304 stainless steel, JNC Report, 2000, (登録中).
- [3] Zhenmao Chen, Kazumi Aoto, and Kenzo Miya, Reconstruction of cracks with physical

Closure from signals of eddy current testing, IEEE Trans., Mag., July 2000 (accepted for publication).

- [4] Zhenmao Chen, Kazumi Aoto, and Shoichi Kato, Reconstruction of magnetic charges using an optimization method and wavelet, Trans. JSAEM, 2000, (in review).
- [5] 陳、宮、高松、電磁非破壊検査の最近の進展(I)、(I I)、日本AEM学会誌、Vol.7, No.3 278-282, No.4 382-392, 1999.
- [6] Zhenmao Chen, Kazumi Aoto, and Shoichi Kato, A study on the correlation of the magnetization and damages in SUS304 stainless steel, Proc. MAGDA'Brissbane, 2000.
- [7] Zhenmao Chen, Kazumi Aoto, and Kenzo Miya, Reconstruction of cracks with physical clouser from signals of eddy current testing, Proc. COMPUMAG'Sapporo, 298-299,1999.
- [8] Zhenmao Chen, Kazumi Aoto, and Shoichi Kata, Reconstruction of magnetic charges using a gradient method and wavelet, Proc. 11th SEAD, 590-593, 1999.

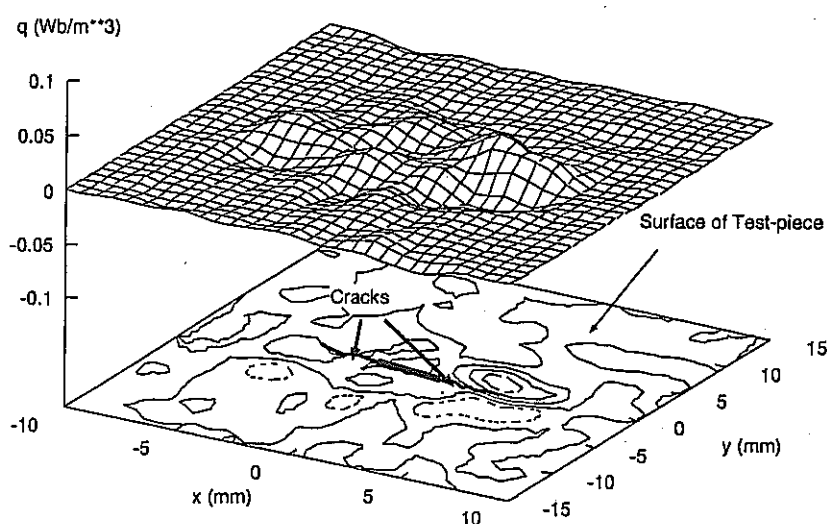


図4 測定データを用いた再構成結果

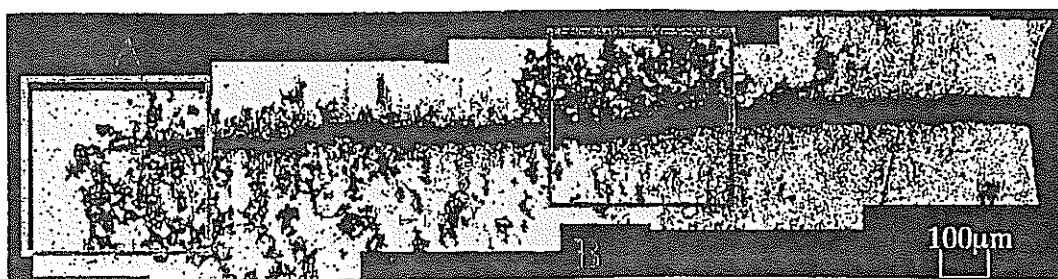



図5 コロイド法で計測した試験片表面の磁化分布

博士研究員（H10）平成 11 年度研究概要報告書

研究テーマ	バンド理論を用いたウラン酸化物の物性に関する研究		
研究者氏名	手島 正吾		
研究協力者 所属・氏名	東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 先進リサイクル解析評価グループ 馬場 務 原田 秀郎 中村 雅弘	所属長印 	
研究実施場所	東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 先進リサイクル解析評価グループ		
通算研究期間 (予定)	平成 10年 4月 ~ 平成 13年 3月	当該年度 研究期間	平成 11年 4月 ~ 平成 12年 3月
<p>【研究目的】</p> <p>先進的核燃料サイクルの研究開発においては、アクチニド核種に対する物性データの整備が重要である。しかしながら、アクチニド元素に係る実験研究は実験設備の制約より制限されたものとなる。そこで、積極的に計算科学的手法を取り入れ、物性研究を合理的に進めることが望まれている。これまで 5 f 電子の多様性のためにアクチニド物性の挙動を計算の俎上に載せることは困難とされてきたが、近年、コンピュータの発達と電子状態理論の改良により、5 f 電子の状態まで解析計算が可能となりつつある。</p> <p>そこで本研究においては、固体物性を量子科学的に計算する手法であるバンド理論をアクチニド化合物に適用することにより、その電子構造を解明し、将来の核燃料の物性予測に役立てようとするものである。まず、基底状態の電子構造を導き、物質の比熱を求め、つづいて、動的物性値とりわけ熱伝導率の研究を行う。</p>			
<p>【研究内容（概要）】</p> <p>アクチニド系の原子は、原子番号が大きく、5 f 磁性電子が価電子となっている。そのため、これらの化合物は、電子間に強い相互作用が働き、単純金属とは異なる特異な性質（重い電子系、超伝導、磁気秩序など）を示すことが分かっている。そのため、本研究では、電子間の相関効果を取り入れた、相対論的局所密度汎関数法を用いてアクチニド系化合物のバンド計算を行うことにより、核燃料物質の物性を評価する。</p> <p>最初に、詳細な測定結果がある 5 f 電子系磁性体 UGe_2 に対しバンド計算を行い、実験結果と比較し、計算精度の改良を行う。つぎにこの理論を核燃料物質である UO_2 などの磁気秩序をもつ 5 f 電子系化合物に適用する。これらの物質の計算では、磁性の効果を無視すると間違った結果を導き、磁気効果が非常に重要なことが分かっている。そこで、局所密度汎関数に磁性によるエネルギー項を含めるが、この項により角運動量が保存されなくなるため、異なる角運動量をもつ状態が無限に結合してしまう。そのため結合係数の主要項のみを残す近似を行い、閉じた方程式を作る。以上の手順で物質の電子状態と、電子状態の中でエネルギー最大をもつ電子エネルギー面（フェルミ面）の構造を導出し、実験値と比較する。フェルミ面の構造を解析することにより、比熱（静的物性値）を求め、つづいて電子のもつエネルギーの速度分布の関係を輸送理論により調べ、熱伝導率（動的物性値）を検討する。</p>			
<p>【使用主要施設】</p> <p>パーソナルコンピューター（VT-Alpha 533）</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成10年度は、相対論的スピン分極密度汎関数法と局所密度近似法に基づいたプログラム開発により、アクチニド化合物 UGe_2 のバンド構造、Fermi 面を導出することができた。平成11年度は、更に UGe_2 のバンド構造の解析を進め、電子比熱、磁気モーメント、状態密度などの基礎物性値を導出することができた。現在、反強磁性絶縁体 UO_2 に対して理論構築とプログラム開発を行っている。12年度5月での各項目の実施状況の概要を以下にまとめる。

(1) UGe_2 の計算結果

相対論的スピン分極密度汎関数法をウラン化合物である強磁性体 UGe_2 に適用した。価電子にウランの 5f,6p,6d,7s 軌道とゲルマニウムの 4s,4p 軌道を選び計算を実行した。

(a) フェルミ面について

電子エネルギーバンド解析の結果、フェルミエネルギーを横切るバンドは4本あり、フェルミ面は79, 80, 81, 82番目のバンドから作られていることが分かった。すなわち、78番目以下のバンドはすべて電子で占領されていて、83番目以上はすべて電子が空の状態であった。僅かな熱エネルギーで、79, 80, 81, 82番目のバンド上の電子は、自らのバンドの電子の空の部分に容易に遷移して電子散乱の原因になる。比熱、電気伝導、熱伝導はこの4枚のフェルミ面の構造により決定される。以上の様にウラン化合物 UGe_2 に対し、物質の物性を決定するフェルミ面を得ることができた。フェルミ面に関する実験結果との比較を行った。計算では a 軸と b 軸方向にフェルミ面が開いているが、これは高磁場磁気抵抗測定の実験結果と一致した。ド・ハース-ファン・アルフェン振動数 (dHvA 振動数) の角度依存性の実験結果と比較したところ、高振動部分は良い一致を示したが、実験結果を全て説明することはできなかった。高振動部分の電子の有効質量は実験結果と良い一致を示した。

(b) 状態密度と比熱について

電子が散乱して比熱、電気伝導、熱伝導に寄与することができるのは、フェルミ面近傍の電子だけであり、どの電子がこのエネルギー近傍を占めているかが重要となる。よって、各軌道ごとに、エネルギー E の関数で電子の占める個数 (状態密度 $D(E)$) を計算した。解析の結果、ウランの 5f 軌道がまさにフェルミエネルギーで極大の状態密度をもち、フェルミ面は 5f 電子が作っていることが分かった。フェルミエネルギーの状態密度の計算から電子比熱係数は、実験値は $35[\text{mJ}/\text{K}^2\text{mol}]$ に対し、計算値は $22.725[\text{mJ}/\text{K}^2\text{mol}]$ であった。重い電子系の特徴は通常、数 $[\text{mJ}/\text{K}^2\text{mol}]$ の電子比熱係数が数十倍から数百倍になることであり、計算結果は重い電子系であることを示している。

(c) 磁気モーメントについて

ここで用いた相対論的スピン分極密度汎関数法は、相対論を扱っているためスピン自由度が自然に理論の中に現れるため、スピン演算子の期待値の計算から、上向きスピンと下向きスピンのそれぞれの電子の状態密度を得ることができる。その結果、ウランの 5f 軌道の電子が、スピン軌道相互作用により、上向きスピンと下向きスピンのエネルギー準位が大きくずれ、磁気モーメントの原因であることが分かった。ボーア磁気モーメントを単位として、互いに逆向きで軌道モーメント=2.14、スピンモーメント=-1.746 が得られた。それぞれ大きな磁気モーメントが逆向きであることは 5f 軌道の重要な特徴である。全磁気モーメントは 0.419 が得られた。しかし、実験値は 1.43 であり理論値はこれの 1/3 倍にとどまった。

(d) 考察

フェルミ面の詳細な構造と磁気モーメントの結果は、実験と良い一致を示さなかった。その理由の一つには、局所密度近似法を用いたことにある。電子は物質中を広がり、核による束縛が小さいと仮定しているので、束縛をあらわす軌道角運動量が過小評価されていると考えられる。これらの改善策として、軌道の修正をする軌道分極相互作用、LDA+U 近似の導入を検討中である。

このように、相対論的効果を適切に考慮すればバンド計算により、アクチニド化合物のバンド構造、フェルミ面、エネルギー密度等を導出することができた。

現在 UGe_2 の論文を投稿中である。

(2) UC の計算結果

UC は非磁性体であるので、磁性体に適用したプログラムでスピン相互作用をゼロとして、計算を実行することができる。実験結果により、UC は2つのフェルミ面（ホール面と電子面）からできていることが知られている。計算の結果、現段階では1つのフェルミ面（ホール面）のみ得られている。この構造は実験と完全に一致している。もう1つのフェルミ面（電子面）は調査中である。調査の結果、UC の電子バンド構造は、基底関数のもつエネルギーの範囲に強く影響を受けていることが分かった。このエネルギー範囲を適切に決める方法を現在検討中である。

(3) UO_2 の結果

UO_2 は反強磁性絶縁体で、スピンの方向が量子化軸を向いていないノンコリニアー系である。そのため、 UGe_2 で適用したバンド理論では不十分で、ノンコリニアー系相対論的バンド理論に拡張した理論を構築した。

はじめに、各原子の位置で、実験で得られた磁気モーメントの方向をスピンの量子化軸にする局所座標系を導入した。よって、スピンの量子化軸は核原子位置で異なるが、スピンの期待値はスカラーなので一致する。物質全体を記述する大域的座標系での電子波動関数は、各原子の位置での局所座標系の電子波動関数に、スピン回転演算子と軌道回転演算子を作用させて得ることができる。よって、ノンコリニアー系のエネルギー固有値には、スピンと軌道の回転演算子が作用した行列成分があらわれる。現在この変換式の計算を行っている。


【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成12年度は、 UO_2 のバンド計算を実行して物性値の導出を実施する予定である。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- 1) 手島、山上、浜田、 相対論的 LAPW 法による強磁性 UGe_2 の電子状態とフェルミ面、日本物理学会「1999秋の分科会」 岩手大学 26pR-14.
- 2) Tejima, Yamagami, Hamada, Electronic Structure and fermi Surface of Ferromagnetic UGe_2 by Relativistic Spin-Polarized Linearized APW method, Journal of the Physical Society of Japan.

博士研究員 (H10) 平成 11 年度研究概要報告書

研究テーマ	高レベル廃棄物処分環境下における黄鉄鉱の還元能力に関する研究		
研究者氏名	間中 光雄		
研究協力者 所属・氏名	東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部 処分バリア性能研究 Gr 亀井 玄人	所属長印 	
研究実施場所	東海事業所 地層処分基盤研究施設		
通算研究期間 (予定)	平成 10年 4月 ~ 平成 13年 3月	当該年度 研究期間	平成 11年 4月 ~ 平成 12年 3月
<p>【研究目的】</p> <p>黄鉄鉱は高レベル廃棄物の緩衝材の候補であるベントナイトに含まれ、高レベル廃棄物の地層処分システムの安全評価の観点から、埋め戻し後に浸入する地下水中の溶存酸素を消費する還元剤としての役割を果たすことが期待されている。そこで、処分環境下における黄鉄鉱による酸素の消費速度を知ることは重要となる。不純物の寄与が考えられるため、これまでに求められた比較的簡単な系で得られた黄鉄鉱の酸化データを天然系に適用することはできない。本研究では、そのような条件における黄鉄鉱の酸化及び溶解反応のメカニズム及び速度則を実験的に求めることを主目的としている。そのためには、より天然現象に近い実験系において、溶液側からの情報(pH 等)と黄鉄鉱表面の情報を結び付けることが必須となる。処分環境下に適用可能なデータおよびモデルを得ることによって、ベントナイト中の黄鉄鉱の役割が明確にされる。</p>			
<p>【研究内容 (概要)】</p> <p>地下に埋め戻されたベントナイト中の黄鉄鉱は浸入した地下水と反応する。それらの反応は地下水の組成に大きく支配される。地下水は降水、海水、マグマ水またはそれらの混合水を起源とする。地下水の組成を類似させた溶液中で、かつ、ベントナイトが存在する系における黄鉄鉱の酸化及び溶解反応を理解することで上記の目的が達成される。黄鉄鉱の酸化及び溶解反応を理解するには、溶液側からの情報 (pH 等) と黄鉄鉱表面の情報を結び付けることが必須となる。そのために次の手法を用いて研究を行う。</p> <p>黄鉄鉱の酸化及び溶解反応のメカニズムを求めるには、反応時及び反応前後の黄鉄鉱結晶の表面が重要な鍵となる。そのため、酸化によって変化する黄鉄鉱結晶表面の観察を重点的に行い、その場観察も行う。その場観察では、ラマン分光法を用いて溶液と反応している黄鉄鉱結晶の表面変化を追跡し、腐食生成物の析出や表面錯体形成に関する情報を得る。反応前後の観察においては、オージェ電子分光法、X線光電子分光法等の表面分析機器を用いて酸化前後の黄鉄鉱表面の化学組成及び結合状態を明らかにし、また、結晶内部の化学組成変化を知る。黄鉄鉱表面変化の情報に黄鉄鉱の酸化溶解に伴う環境変化の情報を併せて黄鉄鉱の酸化及び溶解反応のメカニズムを提案する。さらに、反応溶液中の溶液種の濃度変化から黄鉄鉱の酸化速度則を求め、反応メカニズムとの関係を明らかにする。</p>			
<p>【使用主要施設】</p> <p>東海事業所 地層処分基盤研究施設 分析装置：SEM、XRD、EDX、LR 等</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 12 年 3 月 までに、純水系における溶存酸素による反応後の黄鉄鉱表面の分析、複合系における黄鉄鉱による溶存酸素消費速度の測定、圧縮 Na 型ベントナイト中の溶存酸素の実効拡散係数の測定、黄鉄鉱—ベントナイト系における黄鉄鉱による溶存酸素拡散の遅延効果を把握するための実験を実施した。

【研究成果】

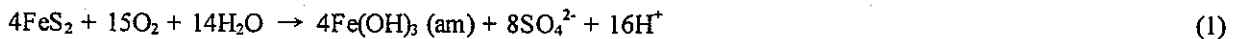
平成 12 年 3 月 までの研究成果の概要をまとめる。

(1)純水系における溶存酸素による反応後の黄鉄鉱表面

酸化によって黄鉄鉱表面に生成した物質を知るために、レーザーラマン分光法を用いた。反応前後の黄鉄鉱表面のラマンスペクトルを得た(図 1)。25℃および 60℃のもと溶存酸素に対して閉鎖した系で純水系(pH 9)で約 30 日間黄鉄鉱を反応させた。図から明らかなように、反応後の黄鉄鉱表面の生成物は Fe(OH)₃ (am) および赤鉄鉱のラマンスペクトルに類似している。

(2)複合系における黄鉄鉱による溶存酸素消費速度

溶存酸素に対して閉鎖の系、かつ、複合系の条件において黄鉄鉱の反応実験を行った。実験条件は 25℃、pH を 9、イオン強度を 0.03 および 0.13、0.43、0.73、1.03 mol dm⁻³ の 5 通り、反応時間を約 3 日間とした。(1)から黄鉄鉱と溶存酸素の反応による初期の生成物として Fe(OH)₃ (am)が示唆されるため、これらの反応はつぎのようになる。



赤鉄鉱の生成反応はつぎの Fe(OH)₃ (am)の脱水反応であると考えられる。



実測した溶存酸素濃度の対数値が時間に対して直線関係にあることから、黄鉄鉱の酸化速度は溶存酸素濃度に対して 1 次である。従って、黄鉄鉱の酸化速度則は(3)式のようになる。

$$R = -k' \frac{SA}{V} [\text{O}_2] \quad (3)$$

k'は任意の pH 値における速度定数、SA は黄鉄鉱の全表面積(m²)、V は溶液の体積(m³)、[O₂]は溶存酸素濃度(mol m⁻³)である。ただし、実験中 SA/V 比は一定であると仮定した。イオン強度と黄鉄鉱の酸化速度定数 k'の関係を図 2 に示す。図 2 から、イオン強度が 0.03~0.73 mol dm⁻³の間では速度定数はイオン強度に対して直線的に増加し、イオン強度が 0.73 mol dm⁻³の場合の k'値はイオン強度が 0.03mol dm⁻³のそれの約 1.7 倍大きかった。しかしながら、イオン強度が 0.73 mol dm⁻³以上では速度定数はほぼ一定値になった。

(3)圧縮 Na 型ベントナイト中の溶存酸素の実効拡散係数

ベントナイト中の黄鉄鉱による溶存酸素拡散の遅延効果を議論するためには、黄鉄鉱がない条件でのベントナイト中の溶存酸素の実効拡散係数が必要なる。そこで、昨年度と同様に溶存酸素の実効拡散係数をつぎの方法で求めた。①電気化学的手法を用いて非定常状態における溶存酸素の拡散による電流密度の経時変化を得る。②コンピュータを用いてパラメータに任意の値を設定したつぎの式の拡散方程式を解き、酸素の拡散によって生じる電流密度変化を得る。

$$\frac{\partial C_{\text{O}_2}}{\partial t} = \frac{De}{\phi} \frac{\partial^2 C_{\text{O}_2}}{\partial x^2} \quad (4)$$

C_{O₂}は溶存酸素濃度(mol m⁻³)、tは時間(s)、Deはベントナイト中の溶存酸素の実効拡散係数、φはベントナイト中の間隙率、xは距離(m)である。③実験結果によく近似した解析解から溶存酸素の実効拡散係数を決定する。使用したベントナイトは精製 Na 型ベントナイト(クニピア F)で乾燥密度を 0.5 および 0.8、0.9、

1.0、1.1、 $1.2 \times 10^3 \text{ kgm}^{-3}$ とした。大気中の酸素を飽和させた pH 9 の炭酸溶液を用いて実験を行った。ベントナイトのみの実験を計 24 回行った。ベントナイト中の溶存酸素の実効拡散係数と乾燥密度の関係を図 3 に示す。図中の●印はこれまで JNC によって得られたデータであり、○印は本研究によって得られたデータである。乾燥密度 $0.5 \times 10^3 \text{ kgm}^{-3}$ のベントナイト中の溶存酸素の実効拡散係数は、これまで本機構で行われた他の手法によって求められた実測値と異なった。それ以外のデータはこれまでの実測値と一致した。

(4)黄鉄鉱—ベントナイト系における黄鉄鉱による溶存酸素拡散の遅延効果

大気中の酸素を飽和させた pH 9 の炭酸溶液を用い精製 Na 型ベントナイト(乾燥密度 $0.8 \sim 1.2 \times 10^3 \text{ kgm}^{-3}$)に洗浄した黄鉄鉱を添加した実験を行った。添加した黄鉄鉱の粒子サイズは $106 \sim 125 \mu\text{m}$ である。ベントナイトに対して 5wt%~20wt%の黄鉄鉱を添加した。これらの結果から、黄鉄鉱の添加量が増すほど、観測される電流密度が減少することが読み取れた。これはベントナイト中の黄鉄鉱が溶存酸素の拡散を遅延する証拠である。そこで、ベントナイト中の黄鉄鉱の酸化速度定数をつぎの方法で求めた。黄鉄鉱を含むベントナイト中の溶存酸素の拡散によって生じる電流密度の時間変化はつぎの式に関係付けられる。

$$\frac{\partial C_{O_2}}{\partial t} = \frac{De}{\phi} \frac{\partial^2 C_{O_2}}{\partial x^2} - k' \frac{SA}{V} [O_2] \quad (5)$$

(5)式を用いて上記②を実行し、実験結果によく類似した解析解からベントナイト中の黄鉄鉱の酸化速度定数(k')を決定した。ただし、 De および ϕ はそれぞれの乾燥密度に対応した値を用いた。黄鉄鉱—ベントナイト系の実験を計 61 回行った。各乾燥密度における黄鉄鉱の酸化速度定数の平均値を乾燥密度に対してプロットしたものが図 4 である。この図から明らかなように、ベントナイト中の黄鉄鉱の酸化速度定数の方が純水系での黄鉄鉱の酸化速度定数よりも約 5.1~9.5 倍大きかった。しかしながら、この原因については現在不明である。また、ベントナイト中の黄鉄鉱の酸化速度定数は乾燥密度に依存することが分かった。

【今後の予定 (翌年度以降の概要)】

終了のため予定なし。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

Nuclear Technology (American Nuclear Society)の 2000 年 5 月号に掲載決定

タイトル : Measurements of effective diffusion coefficient of dissolved oxygen and oxidation rate of pyrite by dissolved oxygen in compacted sodium bentonite

著者 : Mitsuo Manaka, Manabu Kawasaki and Akira Honda

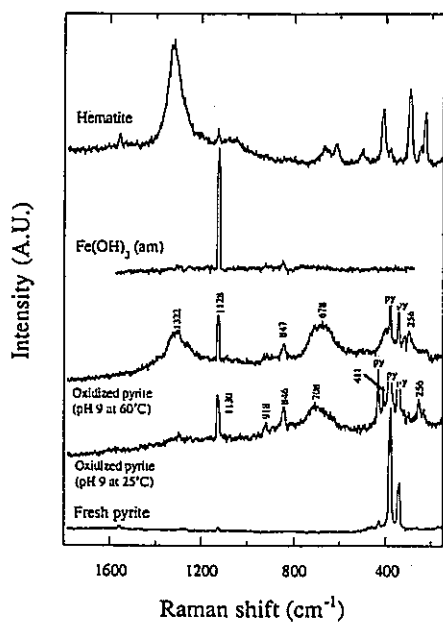


図 1. 酸化前後の黄鉄鉱のラマンスペクトル

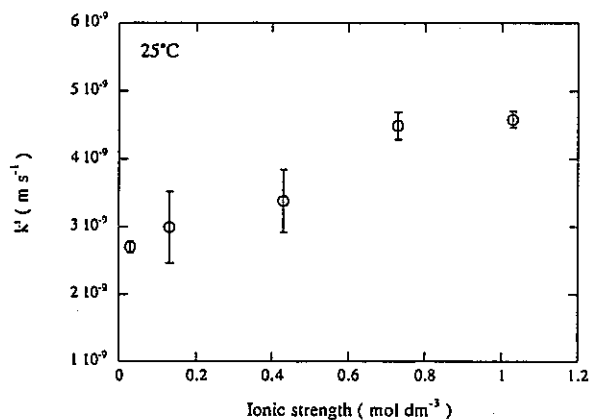


図 2. 黄鉄鉱の酸化速度定数とイオン強度の関係

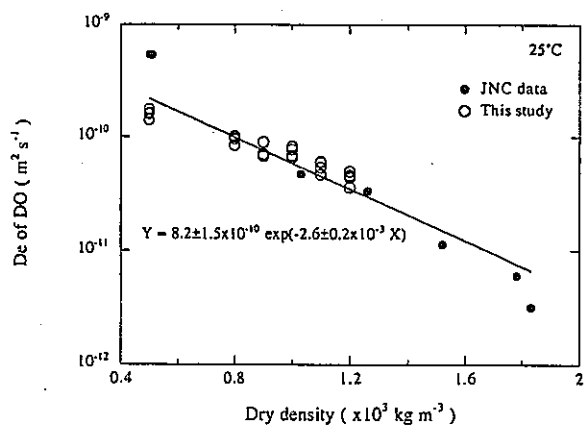


図 3. ベントナイト中の溶存酸素の実効拡散係数と乾燥密度の関係

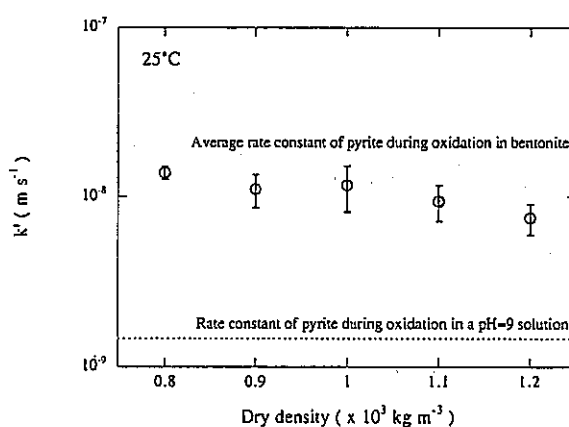



図 4. ベントナイト中の黄鉄鉱の酸化速度定数と乾燥密度の関係

博士研究員 (H10) 平成11年度研究概要報告書

研究テーマ	高速炉におけるアクチニド及び核分裂生成物の原子炉内消滅特性の研究		
研究者氏名	水谷 昭彦		
研究協力者	大洗工学センター 炉心技術開発グループ		所属長印
所属・氏名	石川 眞		
研究実施場所	大洗工学センター 炉心技術開発グループ		
通算研究期間 (予定)	平成 10年 4月 ~ 平成 12年 3月	当該年度 研究期間	平成 11年 4月 ~ 平成 12年 3月
【研究目的】			
<p>資源の有効利用、及び環境負荷軽減の観点から、高速炉を中核とする核燃料サイクルシステムにおいて、自身の炉で生成される MA を炉内に閉じ込めて燃焼させるとともに、LLFP も炉内に閉じ込めて核変換を図る「平衡炉心」を考え、既存の Na 冷却 MOX 燃料高速炉をベースにその核特性を検討する。また、窒化物燃料や金属燃料を用いた「平衡炉心」の核的ポテンシャルを検討し、さらには元素分離による LLFP のリサイクル「平衡炉心」を検討する。これらにより、高速炉を中核とするコ・ロケーション型サイクルシステム概念と整合のとれた、自己完結型「平衡炉心」の可能性を核的な面から追求する。</p>			
【研究内容 (概要)】			
<p>高速炉を中核とする核燃料サイクルシステムにおいて、自身の炉で生成される MA 及び LLFP を炉心にリサイクルし閉じ込める「平衡炉心」の核特性を、既存の Na 冷却 MOX 燃料高速炉の炉心仕様を用いて検討する。まず、MA や LLFP の炉内閉じ込めを行わない従来の「基準炉心」に対して、及び LWR からの取り出し燃料組成の MA を 5w/o 炉内に装荷した「5w/oMA 炉心」に対して、「平衡炉心」のもつ核特性の違いを明らかにし、既存の炉心仕様での「平衡炉心」の成立性を確かめる。また、窒化物燃料や金属燃料を用いた「平衡炉心」の核特性を酸化物燃料炉心と比較検討することにより、それら新型燃料炉心の核的ポテンシャルを明確にする。さらに、各燃料種別に対して、同位体分離ではなく元素分離による LLFP のリサイクルを仮定した「平衡炉心」の核特性を検討することにより、燃料加工・原子炉・再処理を1つの核センター内に設置し一部の FP のみを核センター外へ廃棄処分する、自己完結型「平衡炉心」の可能性を核的に探る。</p>			
【使用主要施設】			
PENCILS.3, PENCILS.4, CITATION, SLAROM, JOINT, PERKY 及び ORIGEN2 の各コード。			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成11年度は、平成10年度に行った「平衡炉心」の核特性解析において得られた種々の結果に対して、そのメカニズム考察のため更なる解析検討を加えた。また、酸化物、窒化物及び金属燃料炉心に対して、同位体分離ではなく元素分離による LLFP のリサイクルを仮定した「平衡炉心」の核特性を検討し、「平衡炉心」の可能性を核的に探った。

【研究成果】

平成11年度上半期は、日本原子力学会 1999 年秋の年会における口頭発表及び米国原子力学会 1999 Winter Meeting における口頭発表を念頭に置き、前年度から継続している「平衡炉心」の核特性解析に関して、さらなるサーベイを行った。ドップラー反応度係数及び Na ボイド反応度に関してその寄与核種や寄与因子の分析、「平衡炉心」の増殖比が高い理由を探る為の Pu 組成比変化によるパラメータサーベイ、平衡サイクルでの Pu 同位体収支の調査、などである。これらに関しては、「平成11年度上半期研究実施報告書」に既述してあり、ここでは割愛する。

平成11年度下半期は、第3回国際シンポジウム GENES-3 における口頭発表を念頭に置き、酸化物、窒化物及び金属の各燃料種別に対して、同位体分離ではなく元素分離による LLFP のリサイクルを仮定して「平衡炉心」の核特性を検討した。以下その概要を示す。

これまで行ってきた「平衡炉心」の検討において、LLFP に関しては同位体分離を仮定することによって炉心にリサイクルしてきた。同位体分離を仮定することによって LLFP を炉心にリサイクルすることは、同位体分離自身の技術的困難さもさることながら、同位体分離技術の開発コストなどを含めた核燃料サイクルシステム全般の経済性という観点からは、現実的な検討になっているとは言いづらい。また、LLFP を同位体分離ではなく元素分離によって炉に戻すことによって、一部の FP のみがサイクル外へ廃棄される先進的高速炉サイクル概念の実現へ向けて一歩前進をみることになる。

本解析では、典型的な MOX 燃料高速炉 (600MWe、Na 冷却) を「平衡炉心」共通の炉心仕様とし、酸化物、窒化物、及び金属燃料に対して、LLFP の分離をこれまで仮定していた同位体分離から元素分離に変更して、「平衡炉心」概念の実現可能性を評価する。すなわち、これまで同位体分離を仮定して炉内に閉じ込めていた ^{79}Se 、 ^{93}Zr 、 ^{99}Tc 、 ^{107}Pd 、 ^{126}Sn 、 ^{129}I 及び ^{135}Cs の7核種の LLFP のうち、どれだけの核種を元素分離により炉内に閉じ込めて「平衡炉心」を成立させることが可能であるか、核特性の観点よりパラメトリックに検討を行うものである。ここでは、地層処分リスク及び LLFP の炉内閉じ込め許容量、という2つの観点から、同位体分離及び元素分離を核種毎に組み合わせたさまざまな LLFP 消滅の組み合わせに対して、「平衡炉心」の核特性に関する評価を行う。

表1に核特性検討ケースとして、同位体分離及び元素分離を核種毎に組み合わせたさまざまな LLFP 消滅の組み合わせを示す。また、これら検討ケースごとに得られた核特性解析結果の内、燃焼欠損反応度と増殖比に関してその結果を図1及び図2に示す。これら2つの図を含めた各核特性の結果から、地層処分のリスク低減の観点からは CASE10 を、他方 LLFP の炉内閉じ込め許容量の観点からは CASE15 を選択する事が妥当であり、したがって表2に CASE10 及び CASE15 の炉心特性解析結果を CASE1 (7核種の LLFP 全てを同位体分離を仮定して炉に閉じ込めた炉心) の解析結果と合わせて示す。

本解析の検討結果から以下のことが言える。

まず、抵抗係数の大きさから見積もられた地層処分リスクの観点から、そのリスクを負っている順に Tc、I 及び Se の 3 核種であれば元素分離によって、燃焼欠損反応度や Pu 自給に関して僅かな改善が施されれば、酸化物燃料でも「平衡炉心」に閉じ込めることが可能である。これら 3 核種を元素分離によって「平衡炉心」へ閉じ込めることで、地層処分のリスクは十分に減じられると考えられる。

他方、LLFP を可能な限り炉内に閉じ込めるという考え方に立つと、Pd 及び Zr を除く 5 核種の LLFP (Tc, I, Se, Sn 及び Cs) であれば窒化物燃料炉心を用いた場合において、ドップラーが効きづらい点を除けば、核特性を損なわずに元素分離によって炉心に閉じ込めた「平衡炉心」成立の可能性がある。

なお、Zr に関しては、その平衡量の多さ及び閉じ込めに必要な体積の大きさから、また Pd に関しては、Pd のもつ核的性質の悪さ及び平衡量の多さから、窒化物や金属燃料を用いても元素分離による Zr 及び Pd の炉内閉じ込めは、少なくともここで選択した炉心仕様下では無理である。

【今後の予定 (翌年度以降の概要)】

任期満了につき、今後の予定は無い。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

JNC 研究報告書作成 (TN9400 99-043)

「MA 及び LLFP のリサイクルによる高速炉サイクルでの平衡炉心の検討 (I)」

日本原子力学会 1999 年秋の年会における口頭発表 (1999/9/12 於新潟工科大学)

「MA 及び LLFP のリサイクルによる高速炉サイクルでの平衡炉心の検討」

米国原子力学会 1999 Winter Meeting における口頭発表 (1999/11/16 於 Long Beach California USA)

「Investigation on Equilibrium Core Recycling MAs and LLFPs in Fast Reactor Cycle」

第 3 回国際シンポジウム GENES-3 における口頭発表 (1999/12/15 於東京工業大学)

「Potential for Realization of Equilibrium Fast Reactor Recycling LLFPs with Element Separation」

JNC 研究報告書作成 (TN9400 2000-013)

「MA 及び LLFP のリサイクルによる高速炉サイクルでの平衡炉心の検討 (II)

-LLFP の元素分離による炉内閉じ込めの検討-

日本原子力学会欧文誌への論文投稿 (登録管理手続き中)

「Potential in Nuclear Properties for Realization of Equilibrium Fast Core」

表 1 核特性検討ケース

CASE	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
Tc-99	X	O	X	X	X	X	X	X	O	O	O	O	O	O	O
I-129	X	X	O	X	X	X	X	X	O	O	O	O	O	O	O
Se-79	X	X	X	O	X	X	X	X	X	O	O	O	O	O	O
Pd-107	X	X	X	X	O	X	X	X	X	X	O	O	O	O	X
Sn-126	X	X	X	X	X	O	X	X	X	X	X	O	O	O	O
Cs-135	X	X	X	X	X	X	O	X	X	X	X	X	O	O	O
Zr-93	X	X	X	X	X	X	X	O	X	X	X	X	X	O	X

O : Incineration of Element

X : Incineration of Isotope

表 2 炉心特性解析結果 (CASE1,CASE10及びCASE15)

		CASE 1			CASE 10			CASE 15		
		<i>Oxide</i>	<i>Nitride</i>	<i>Metal</i>	<i>Oxide</i>	<i>Nitride</i>	<i>Metal</i>	<i>Oxide</i>	<i>Nitride</i>	<i>Metal</i>
Pu Enrichment [wt%]	Inner Core	22.96	14.80	15.65	23.97	15.64	16.57	29.01	19.03	20.63
	Outer Core	27.96	18.87	20.07	28.93	19.68	21.00	33.64	23.08	24.76
Breeding Ratio	Beginning of Cycle	1.038	1.210	1.151	1.004	1.162	1.101	0.891	1.030	0.968
	End of Cycle	1.045	1.190	1.147	1.018	1.154	1.109	0.928	1.052	1.003
Burnup Reactivity Loss [% Δ k/kk']		3.16	1.08	1.84	3.46	1.54	2.31	4.91	3.12	3.96
Maximum Linear Heat Rate [W/cm]		419	426	417	419	424	414	436	413	422
Maximum Fast Neutron Fluence [10 ²³ n/cm ²]		2.91	2.87	3.42	2.87	2.83	3.36	2.99	2.96	3.48
Average Fuel Burnup [MWd/ton]		95900	72600	78200	96700	73400	79200	108900	83100	90300
Doppler Coefficient [10 ⁻³ Tdk/dT]		-4.46	-4.62	-3.26	-3.95	-4.04	-2.87	-2.97	-3.17	-2.31
Sodium Void Reactivity [% Δ k/kk']		2.54	2.66	3.94	2.60	2.71	4.02	2.63	2.72	3.95

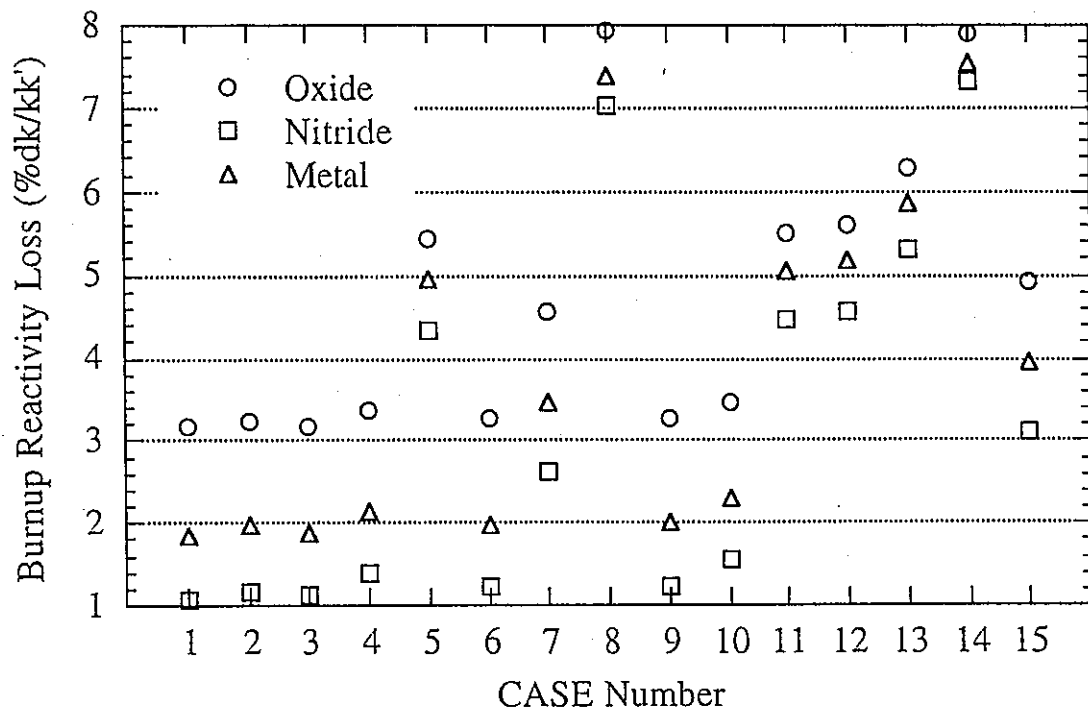


図1 燃焼欠損反応度

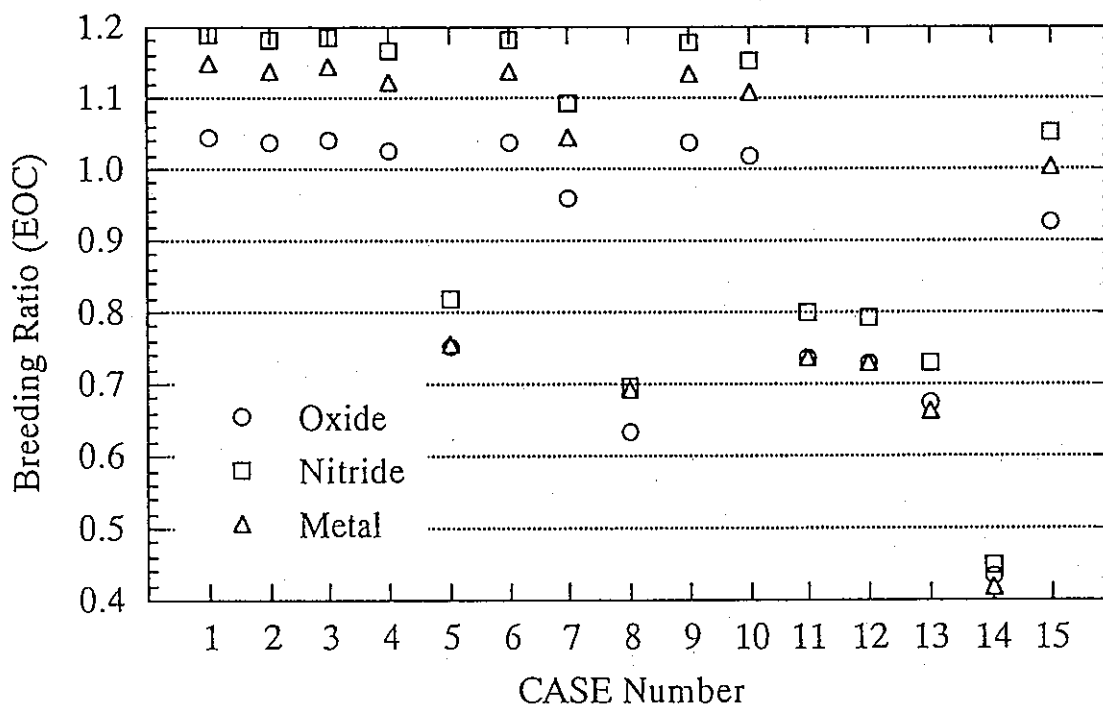



図2 増殖比 (EOC)

博士研究員 (H10) 平成 11 年度研究概要報告書

研究テーマ	地球化学的調査に基づいた地下水流動に関する研究		
研究者氏名	森川徳敏		
研究協力者 所属・氏名	東濃地科学センター 地質環境情報グループ・岩月輝希、地層科学施設グループ・徐勝、伊藤茂、阿部雅人、渡辺雅人	所属長印 	
研究実施場所	東濃地科学センター		
通算研究期間 (予定)	平成 10 年 4 月 ~ 平成 13 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 11 年 4 月 ~ 平成 12 年 3 月
<p>【研究目的】</p> <p>地層中における物質の移動を解析する上で、地下水の流動状態は不可欠の情報の一つである。現在地下水の流動状態解析は、原位置での透水試験で得られたデータに基づいて行われている。本研究では、地下水中の希ガスを用いた地球化学的な地下水流動解析手法の開発を目的としている。希ガスは、化学的に不活性であるため、水-岩石間の反応による濃度、同位体組成の変化はない。従って、比較的単純な成分の混合により理解できることが予想できる。本研究では、(1) 地下水中の希ガス分析法を確立する、(2) 東濃鉦山周辺の地下水の希ガス濃度、同位体組成を明らかにする、(3) 希ガスデータと他の地球化学的、水理学的、地質学的データとを併せることにより、地球化学的見地から地下水の流動状態を詳細に把握する。</p>			
<p>【研究内容 (概要)】</p> <p>希ガス分析法の開発においては、試錐孔より地下水試料を採取する採水容器の改良および、地下水試料より希ガスを抽出する脱ガスラインと希ガス精製用の試料前処理ラインを連結したシステムを開発する。</p> <p>地層中において得られる希ガスの特徴は地下水と接する岩石種により異なる可能性があり、地下水の流動経路を反映していることが予想される。東濃鉦山周辺の地下水の希ガス調査では、堆積岩、花崗岩を含む、10Km 四方×深さ 1Km の領域を対象とする。この地域の表層水および、地下水を試錐孔から深度毎に採取し、希ガスデータを詳細に把握する。そして、岩相や深度と希ガス濃度、同位体組成、異なる希ガス間の濃度比との相関について考察し、地下水の流動過程で地下水に加わった希ガスの特徴を明らかにする。</p> <p>地下水の流動状態の解析では、希ガスデータにより地下水流動モデルを構築するとともに、水質データ、水理データ割れ目の分布などの地質構造データ等を組み入れて、モデルの妥当性の検討、希ガスを用いた調査手法の適用性評価を行う。</p>			
<p>【使用主要施設】</p> <p>東濃地科学センター 質量分析室 (安定同位体測定システム) 東濃鉦山および、その周辺領域 (試錐孔、MP システムなど)</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成10年度は、希ガス質量分析装置の調整を行い、主に、大気を標準試料として質量分析装置の精度確認を行った。

平成11年度は、蒸留水を標準試料として用いた地下水試料分析時の精度評価を行った。その後、東濃鉾山調査試験地域・広域地下水流動調査地域における地下水試料分析及び、データ解析に必要な岩石試料のデータ取得を行った。

【研究成果（当該年度）】

平成11年度の研究成果の概要をまとめる。

（1）希ガス質量分析装置による地下水試料分析精度評価

地下水中に溶存するヘリウムの同位体組成測定は、英Micromass社製MM-5400磁場型単収束質量分析計と試料前処理ラインを連結した装置を用いる。この分析装置は、平成10年度に当センターに設置されたばかりであり、実試料を分析するに先立ち、装置の調整・標準試料を用いた精度評価を行う必要があった。

ここでは、蒸留水を標準試料として用い、繰り返し分析を行った。その目的は、1)測定値の再現性を評価する、2)同位体比・濃度の規格化のための感度係数を出すことである。

蒸留水中のヘリウム、ネオンの濃度は周囲の気温に依存するのみである。従って、ある一定の温度条件下で蒸留水を保管しておけば、一定量のヘリウム、ネオンを含む標準試料として利用できる。また、ヘリウム同位体比も既知である。今回は、22℃の温度条件下で数日放置した蒸留水を標準試料とした。試料容器には、溶存希ガス抽出ライン、MPシステムで使用するサンプラープローブに連結可能であり、かつ、高真空を維持できることを考慮に入れ、市販のステンレス製のSwagelok®試料採取ポンペにチューブ継手を用いてプラグバルブを装着したものを使用した。質量分析計によるヘリウム分析に必要な試料量を考え、試料採取ポンペは内容量25ccのものを使用した（継手部分の容量をあわせると約27cc）。

標準試料の10回の繰り返し測定結果を表1に示した。ヘリウム同位体比、 ^4He 濃度及び、 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比の再現性は1 σ の信頼限界でそれぞれ3%、6%、6%である。これらはいずれも個々の測定で生じる分析上の誤差よりも大きいため、各試料の誤差はこの再現性を考慮する必要がある。また、標準試料分析の初期の段階においては、ヘリウムの抽出率が悪く、良い再現性を得るのが困難であった。しかし、抽出率の悪化によるヘリウム同位体分析値の系統的な変化は見られなかった（図1）。

（2）東濃鉾山調査試験地域における成果

（2-1）地下水試料分析

東濃鉾山調査試験地域における調査では、TH-3、-4、-6、AN-6号孔において14地点より地下水を採取した（図2）。これらの試錐孔では、MPシステムが導入してあるので、すべて原位置での地下水試料採取を行っている。試料容器内の残留大気を可能な限り軽減するため、試料容器をあらかじめ実験室内でターボ分子ポンプにより排気した。また、採水現場においてサンプラープローブ内もロータリーポンプにより排気し、可能な限り大気の混入を防いだ。溶存ヘリウム分析の場合、大気の混入以外に試料を汚染する要素はないので、採水は通常の採水方法と同じ方法をとった。地下水試料採取用の試料容器は、標準試料分析時と同じ容器を使用した。試料容器の構造上、試料の採取は1回の作業で1試料である。従って、1日の採取作業で採取できる試料数は、3~4ポイントである。

試料容器からの溶存ガスの大気中への散逸を防ぐために、地下水試料の分析は、採取後直ちに実験室内で行っている。しかし、1試料の試料前処理・分析に約5時間、分析終了前後の排気作業に数時間を要するため、基本的には1日につき1試料のみ分析を行っている。また、地下水試料分析の前後には、標準試料の分析を行い、その分析値をもとに地下水試料の同位体比・濃度を算出している。

分析結果を表2に示した。地下水中の ^{20}Ne の濃度はヘリウムとは異なり大気成分を溶解するのみ

で、その濃度はどの地下水においても一定であろうと考えられる。涵養時の年平均気温の変化を仮に5°Cとし、溶解度の変化を考慮しても、約5%程度である。表2の測定結果は明らかに²⁰Ne濃度が低いものが多く、今回の分析では溶存ネオンの抽出が効果的ではなかったと思われる。ヘリウムについても同様のことが予想され、得られた定量値をもとに議論することは出来ない。しかし、前述のように、抽出率の悪化による同位体分析値の系統的な変化は見られていないため、ヘリウム同位体による議論は可能である。

東濃鉦山周辺の地下水のヘリウム同位体比の特徴は、すべての試料において、³He/⁴He比は大気平衡成分(1.4 x 10⁻⁶)よりも低く、大まかに見て標高が低くなるとともに、³He/⁴He比が低くなる傾向にある(図3)。また、標高130m付近の2点はいずれも土岐花崗岩からのものであり、堆積岩の傾向から外れている。

(2-2) 岩石試料分析

岩石中から単位時間あたりに発生するヘリウム原子数・同位体比を把握するために、岩石試料の主要・微量元素組成の分析を行った。分析試料には、TH-6号孔の岩芯試料より、104.9m(明世累層)、132.5m(土岐夾炭累層上部層)、153.4m(土岐夾炭累層下部層)、177.0m(土岐花崗岩)を用いた。なお、地質調査所より配給されている岩石標準試料JG-1aを同時に分析し、推奨値と比べることによって、分析値の信頼性を評価した。

TH-6号孔の岩芯試料の分析結果を岩石標準試料の分析結果とともに表3に示した。JG-1aの主成分元素の分析結果は、K₂O・Cr₂O₃を除いて2%以内の範囲で推奨値と一致している。K₂O・微量元素については、15~30%程度の違いがあるものもある。また、Clについては、推奨値として信頼できる値がないため、精度の評価は出来ない。しかし、今回の岩石試料の分析は、岩石中から単位時間あたりに発生するヘリウム原子数・同位体比を計算するために行ったものであるため、これらの計算結果の誤差を見積もった。

単位重量あたりの岩石から単位時間あたりに発生する⁴He原子数(P₄)は、Andrews(1985)により、

$$P_4 = 3.211 \times 10^6 [U] + 7.763 \times 10^5 [Th] \quad (\text{atoms} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}) \quad (1)$$

で計算できることが示されている。ここで、[U]及び、[Th]はそれぞれ岩石中のU、Thの濃度(ppm)である。

岩石中で³Heは、地殻中のリチウムの(n, α)反応とそれに続くβ壊変:



によって生成される。従って、岩石中で発生する中性子数及び、発生した中性子が⁶Liと反応する確率が分かれば、単位重量あたりの岩石から単位時間あたりに発生する³He原子数(P₃)が計算できる。つまり、

$$P_3 = n \times F_{\text{Li}} \quad (3)$$

岩石中において、単位時間中に発生する中性子数(n)は、Andrews(1985)より以下の式で計算できる。

$$\begin{aligned} n = & [U]/100 \times \{ 13.8 [\text{Na}] + 5.4 [\text{Mg}] + 5.0 [\text{Al}] + 1.31 [\text{Si}] + 0.6 [\text{Ca}] \} \\ & + [\text{Th}]/100 \times \{ 6.0 [\text{Na}] + 2.45 [\text{Mg}] + 2.55 [\text{Al}] + 0.56 [\text{Si}] + 0.25 [\text{Ca}] \} \\ & + 0.4764 [U] \quad (\text{g}^{-1} \text{y}^{-1}) \end{aligned} \quad (4)$$

発生した中性子が⁶Liと反応する確率(F_{Li})は、以下の式で計算できる。

$$F_{\text{Li}} = 1.023 \times 10^{-5} \times [\text{Li}] / (1.023 \times 10^{-5} \times [\text{Li}] + \sum \sigma_i N_i) \quad (5)$$

ここで、[Na]・[Mg]・[Al]・[Si]・[Ca]はそれぞれ、岩石中のNa・Mg・Al・Si・Caの元素濃度(%)を示す。また、σ_i・N_iはそれぞれ、元素iの中性子捕獲断面積(barns)・岩石中の存在度(mol)である。

(4)・(5)式を(3)式に代入すれば³Heの生成原子数(P₃)が求まる。これを(1)式で除することにより、原位置で発生するヘリウムの同位体比が計算できる。

岩石中から単位時間あたりに発生するヘリウム原子数・同位体比を(1)・(2)・(5)式を用いて計算した。その結果を表4に示す。発生する ${}^4\text{He}$ 原子数は明世累層と土岐夾炭累層下部層では、6倍以上の違いがある。(1)式からわかるように、 ${}^4\text{He}$ 発生数はおもに岩石中のU濃度に依存する。土岐夾炭累層中にはウラン鉱床が形成されているため、局所的にU濃度が高く、その部分での ${}^4\text{He}$ 発生数は更に多いものと予想できる。従って、東濃鉱山周辺では、各地層ごとあるいは、同地層中でも場所によって ${}^4\text{He}$ 発生数はかなりの違いが見られると思われる。 ${}^4\text{He}$ 発生数に比べて、発生するヘリウムの同位体比は比較的一定である。堆積岩においては $1.3\sim 1.9 \times 10^{-8}$ と一般的に見積もられている放射壊変起源成分と一致している。TH-6号孔周辺の土岐花崗岩から発生するヘリウム同位体比もこれに近い。

JG-1aの実測値と推奨値から計算したヘリウム原子数・同位体比の違いから考えられる誤差は、それぞれ約10%・約2%といえる。

(2-3) 考察

(2-3-1) 溶存ヘリウム起源推定

溶存ヘリウムの起源としては、以下の特徴を持つ3成分

- ①大気成分： ${}^3\text{He}/{}^4\text{He} = 1.4 \times 10^{-6}$ 、 $\text{He}/\text{Ne} = 0.24$
- ②マントル成分： ${}^3\text{He}/{}^4\text{He} = 1.1 \times 10^{-5}$ 、 $\text{He}/\text{Ne} \geq 1,000$
- ③放射壊変成分： ${}^3\text{He}/{}^4\text{He} = 10^{-8}$ 、 $\text{He}/\text{Ne} \geq 1,000$

が挙げられる(Sano and Wakita, 1985)。大気成分は地下水涵養時に溶けていた成分で、地下水流動中の出入りがない。マントル成分、放射壊変成分は、地下水の流動する場所や地層によって、加わる比率は異なる。これに対応して、地下水の ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比、 He/Ne 比やヘリウム濃度は変動する。

各成分の ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比、 ${}^4\text{He}/{}^{20}\text{Ne}$ 比の違いを利用し、東濃鉱山周辺の地下水中のヘリウムの起源を推定した。図4は東濃鉱山周辺の地下水における ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比と ${}^4\text{He}/{}^{20}\text{Ne}$ 比の関係を見たものである。図中、実線は大気成分とマントル成分及び、大気成分と放射壊変成分の混合ラインを示す。いずれの地下水も、 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比が大気成分よりも低く、大気成分付近かあるいは大気成分と放射壊変成分の混合ライン付近に位置する。つまり、東濃鉱山周辺の地下水は、涵養時に含んでいた大気成分の希ガスに加え、流動中に放射壊変成分を溶解することにより上記の結果が得られたといえる。

(2-3-2) 地下水年代推定への適用

(1)式を変形すると、t時間(y)中に発生するヘリウムの体積は、

$$[{}^4\text{He}] = t \times \{1.19 \times 10^{-13} [\text{U}] + 2.88 \times 10^{-14} [\text{Th}]\} \quad (\text{ccSTP} \cdot \text{g}^{-1}) \quad (6)$$

この岩石の空隙に地下水が浸透し、発生したヘリウムがすべて地下水中に溶解すると仮定すると、地下水に溶存する放射壊変起源の ${}^4\text{He}$ 量($[{}^4\text{He}]_{\text{ex}}$)は単位重量あたりの地下水に溶存するヘリウムの標準状態における体積を単位にとると(ccSTP/g H_2O)、

$$[{}^4\text{He}]_{\text{ex}} = t \times \{1.19 \times 10^{-13} [\text{U}] + 2.88 \times 10^{-14} [\text{Th}]\} \times (1 - p) \times \rho_R / (p \times \rho_w) \quad (7)$$

となる(Andrews, 1991を変形)。ここでpは岩石の空隙率、 $\rho_R \cdot \rho_w$ はそれぞれ水および岩石の密度($\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$)である。この式より、岩石の物性データおよび、地下水ヘリウム濃度が得られれば、地下水の滞留時間が得られる。地下水が、岩石のウラン・トリウム濃度、空隙率に関してほぼ均質とみなすことによって、このモデルは、地下水年代ととらえることが出来る。

今回の分析では、定量に関しては成功していないため、地下水年代を推定するために必要な溶存ヘリウムの濃度を推定した。ここでは、大気成分と放射壊変成分を端成分とし、それぞれの ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比と大気成分中のヘリウム濃度を用いマスバランスより放射壊変成分の濃度を算出することによって、濃度推定を行った。

計算の結果、溶存ヘリウム濃度は、東濃鉱山周辺において $4 \times 10^{-8} \sim 6 \times 10^{-7}$ ccSTP/g H_2O 、DH-3号

孔においては $5 \times 10^{-8} \sim 4 \times 10^{-7}$ ccSTP/gH₂O の範囲にあることが分かった (表5)。表5のヘリウム濃度推定値から、大気平衡成分を差し引いた値、つまり、地層中で得られた放射壊変起源のヘリウム濃度を (7) 式に代入し地下水年代を算出した (表5)。

計算の結果と ¹⁴C 法による地下水年代とを比較すると、いくつかの地点で整合性が得られていない。TH-3、-4号孔の土岐夾炭累層下部層においては、¹⁴C 濃度からは、比較的若い地下水である可能性が指摘されているのに対し、⁴He 濃度からは、最も古い値 (62,000年) が得られている。また、TH-4号孔の低透水層より上側の地下水の ⁴He による年代は、いずれも ¹⁴C 年代よりも一桁低く、TH-6号孔においては逆に一桁高くなっている。TH-4号孔とTH-6号孔より得られた地下水中の放射壊変起源の ⁴He 濃度は、約2桁の違いがある。岩石から発生する ⁴He 量は、ウラン・トリウム濃度に依存するため、同一地層からなるTH-4号孔とTH-6号孔では大きな違いはないものと予想される。この違いが生じた可能性の一つとして、化学的性質の違いに起因する、地下水中のヘリウムと炭素の挙動の違いが考えられる。ヘリウムの場合、減圧による溶存ヘリウムの脱ガスによる濃度低下や調査坑道・調査立坑などの地下空間からの大気の供給などによるヘリウム供給源の多様化・局所化が考えられる。(7)式で定義した地下水滞留年代の原理は、ヘリウムの散逸やウラン・トリウムからの壊変以外のヘリウム供給を定義していない。東濃鉱山周辺においては、調査坑道・調査立坑の存在や調査坑道付近の湧水の強制排水による地下水圧の減少が観測されている。AN-6号孔が第二立坑から546m離れているのに対し、TH-3・-4・-6号孔がそれぞれ、50m・94m・152mと比較的近い位置にあるうえ、TH-3・-4号孔は、調査坑道の大部分がある月吉断層上盤にあるため、調査坑道付近でピエゾ水頭の低下が見られている。堆積岩上部においては、顕著な低下は見られていないが、地下水中の揮発性元素は水圧の変動による影響を受けやすいためTH-3・-4号孔で採取した地下水はヘリウム濃度が低下し、その結果年代が若く出ている可能性がある。

(3) 広域地下水流動調査地域における成果

(3-1) 地下水試料分析

平成11年度は、広域地下水流動調査地域においては、DH-3号孔より深度840mまでの8ポイントにおいて採水を行った。DH-3号孔には、MPシステムが導入されているため、溶存希ガス分析用の地下水試料の採取は、東濃鉱山周辺での採水と同様の操作を施した。分析操作についても全く同じである。広域地下水流動調査地域では、深度が深く1試料採取に要する時間が長いため、1日の採取作業で採取できる試料数は、2~3ポイントである。DH-3号孔における調査では、深度840mまでの8地点より地下水を採取し、分析を行った。その結果を表2に示した。東濃鉱山周辺における調査と同様に、明らかに ²⁰Ne 濃度が低いものが多く、溶存ガスの抽出が効果的ではなかったと思われる。DH-3号孔より採取された地下水の ³He/⁴He 比は、東濃鉱山周辺の地下水と同様に、すべての試料において、³He/⁴He 比は大気平衡成分 (1.4×10^{-6}) よりも低くなっている。また、深度とともに、³He/⁴He 比が低くなる傾向にある (図5)。

(3-2) 岩石試料分析

DH-3号孔の健岩部である843.1m地点の岩芯試料の主要・微量元素組成の分析を行った (表3)。分析は、TH-6号孔の岩芯試料・JG-1aとともに行ったので、誤差は同程度であると予想される。

DH-3号孔の岩芯試料を用いて計算した土岐花崗岩の ⁴He 発生量は、TH-6号孔試料を用いて計算した値と良く一致している。また、DH-8号孔の岩芯試料の U・Th 濃度ともほぼ一致している。従って、土岐花崗岩から発生する ⁴He 量は空間的にほぼ一様であると思われる。土岐花崗岩から発生するヘリウムの同位体比は、堆積岩のそれと比べてやや高いが、Parker (1967) の平均的な花崗岩のデータを使って Andrews (1985) が計算したヘリウムの同位体比と良く一致している。

(3-3) 考察

(3-3-1) 溶存ヘリウム起源推定

2-3-1章に記した東濃鉦山周辺の地下水における、ヘリウム起源推定と同様の方法で、DH-3号孔の地下水中のヘリウムの起源を推定した。図6は東濃鉦山周辺の地下水における $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比の関係を見たものである。DH-3号孔のいずれの地下水も、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が大気成分よりも低く、大気成分付近かあるいは大気成分と放射壊変成分の混合ライン付近に位置する。つまり、涵養時に含んでいた大気成分の希ガスに加え、流動中に放射壊変成分を溶解することにより上記の結果が得られたといえる。

(3-3-2) 地下水年代推定への適用

DH-3号孔の地下水の分析では、東濃鉦山周辺の地下水の分析と同様に定量に関しては成功していないため、地下水年代を推定するために必要な溶存ヘリウムの濃度を推定した。ここでは、大気成分と放射壊変成分を端成分とし、それぞれの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と大気成分中のヘリウム濃度を用いマスバランスより放射壊変成分の濃度を算出することによって、濃度推定を行った。

計算の結果、溶存ヘリウム濃度は、 $5 \times 10^{-8} \sim 4 \times 10^{-7}$ ccSTP/gH₂Oの範囲にあることが分かった(表6)。表6のヘリウム濃度推定値から、大気平衡成分を差し引いた値、つまり、地層中で得られた放射壊変起源のヘリウム濃度を(7)式に代入し地下水年代を算出した(表6)。DH-3号孔では、最深部843m地点で約770年という年代が得られた。

この値は、DH-8号孔・872m地点の地下水を用いて得られた ^{14}C 法による地下水年代(12,500年)と比べて約1桁低くなっている。また、東濃鉦山周辺における地下水の年代と比べても若い。広域地下水流動調査領域において花崗岩から得られる地下水の流動状態は、水理地質構造モデルからは、東濃地域地下水の大局的な流動方向は、地形の影響を受けており、土岐川或いは木曾川を流出域としていることがいわれている。従って、地下水年代の深度分布とともに、涵養域一流出域間の水平分布を調べたうえで、ヘリウムによる地下水年代推定の妥当性について評価する必要がある。

【今後の予定(翌年度以降の概要)】

今年度は、引き続き、広域地下水流動調査地域の1000m級の試錐孔より地下水を採取・分析し、得られたデータおよび、その他のデータに基づき、地下水流動解析を行う。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

森川徳敏・徐勝・岩月輝希：深部地下水中のヘリウム同位体比測定を試み、1999年度 日本地球化学会 年会 講演要旨集、pp.176

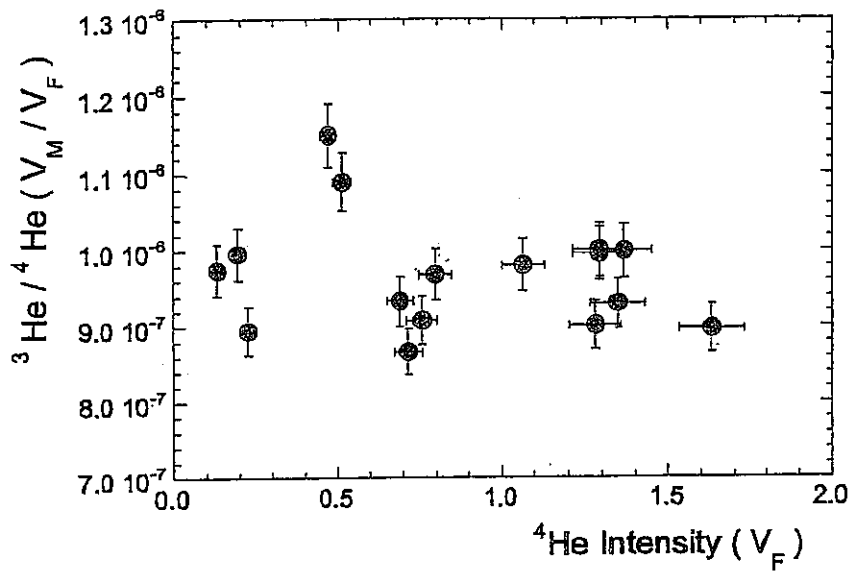


図1 溶存ヘリウム抽出率の変化とヘリウム同位体比測定値の関係

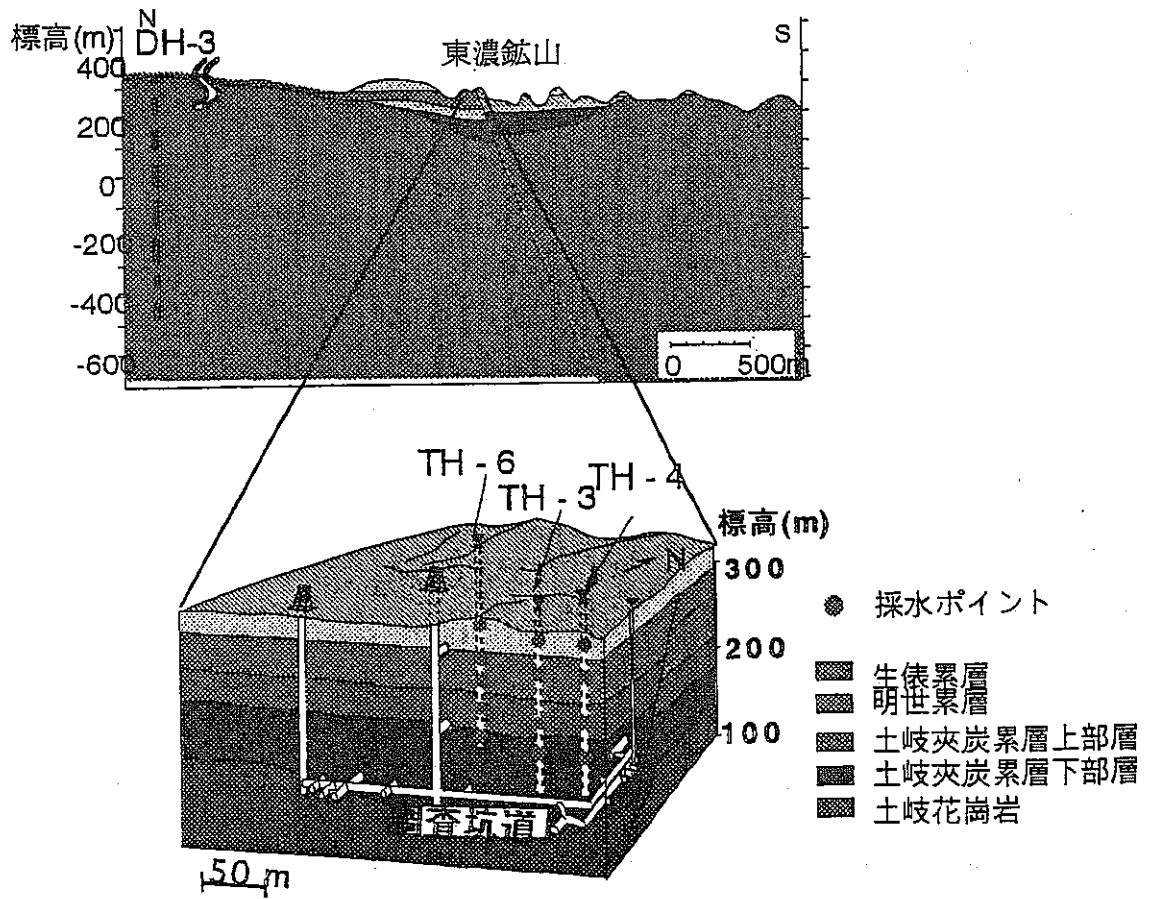


図2 調査試験領域概要図

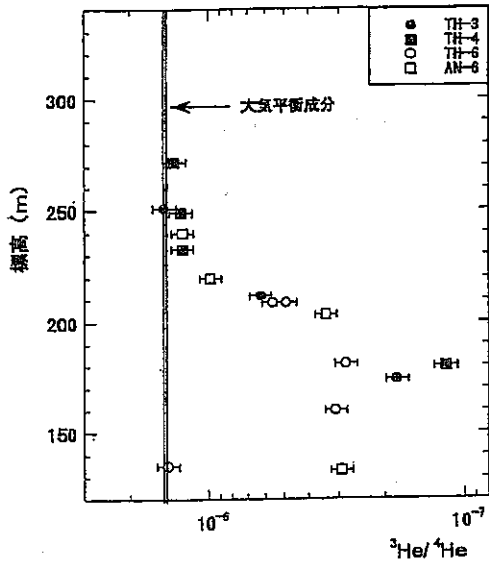


図3：東濃鉱山周辺の地下水試料の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の深度プロファイル

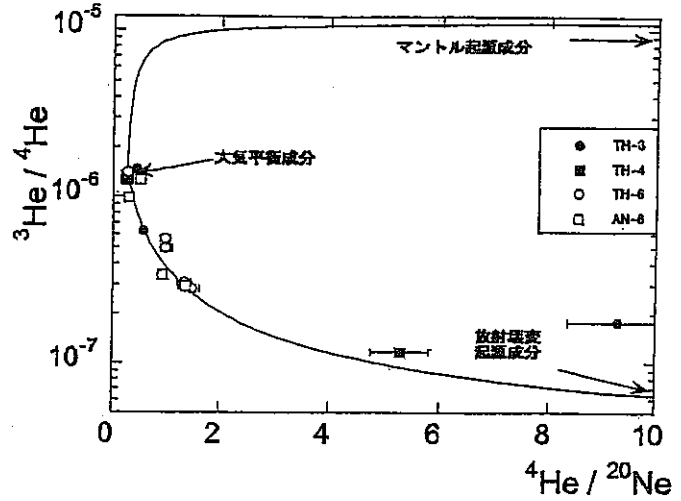


図4 東濃鉱山周辺における地下水試料の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比の関係

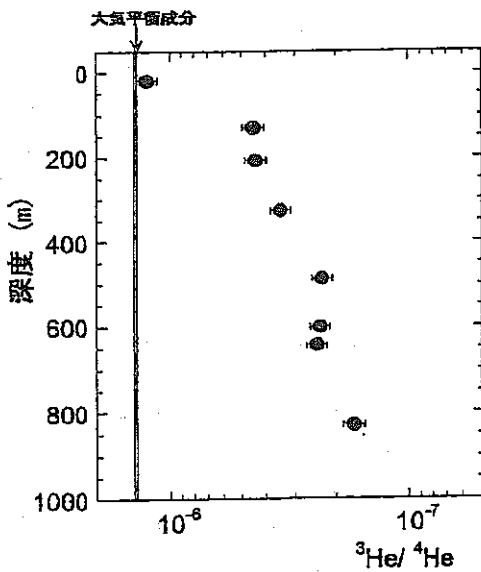


図5：花崗岩中(DH-3号孔)より採取された地下水試料の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の深度プロファイル

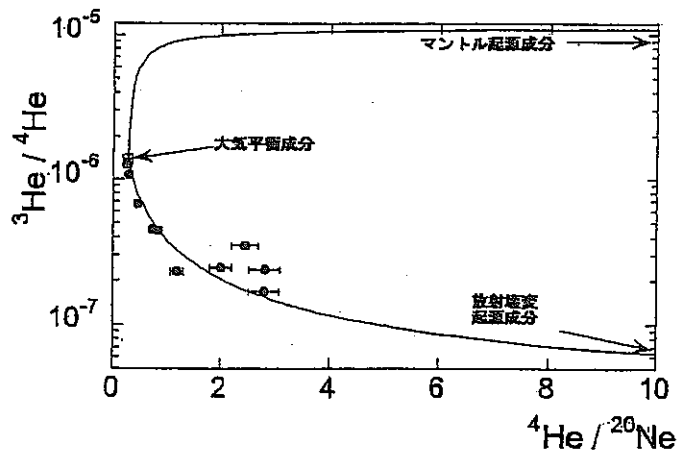


図6 DH-3号孔における地下水試料の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比の関係

表1 蒸留水中の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 、 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比および、ヘリウム出力値。蒸留水は気温 22°C の大気と状態にあるものを使用。

No.	Date	$^3\text{He}/^4\text{He}$ ($\times 10^{-7}$)	^4He (V)	$^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$
1	1999/7/28	8.96 ± 0.06	2.40	159
2	1999/7/28	8.69 ± 0.08	2.19	161
3	1999/7/29	8.64 ± 0.07	2.55	167
4	1999/7/29	8.52 ± 0.07	2.19	161
5	1999/7/30	9.10 ± 0.07	2.44	186
6	1999/8/3	8.46 ± 0.06	2.28	166
7	1999/8/5	8.51 ± 0.07	2.31	153
8	1999/8/5	8.53 ± 0.09	2.56	182
9	1999/8/6	8.11 ± 0.09	2.63	169
10	1999/8/9	8.32 ± 0.08	2.36	169
Average		8.58 ± 0.29	2.39 ± 0.16	167 ± 10

表2 東濃鉦山周辺および、DH-3号孔における地下水試料中の溶存希ガスデータ

孔名	深度 (m)	標高 (m)	地層* 名	試料採取日	$^3\text{He}/^4\text{He}$ ($\times 10^{-7}$)	^4He (ccSTP/g H ₂ O)	^{20}Ne (ccSTP/g H ₂ O)	$^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$
AN6	14	240	A	1999/11/2	1.26 ± 0.01	1.02 × 10 ⁻⁶	1.99 × 10 ⁻⁸	0.513
:	34	220	TU	1999/11/2	0.982 ± 0.014	2.75 × 10 ⁻⁸	9.03 × 10 ⁻⁸	0.304
:	50	204	TU	1999/11/2	0.341 ± 0.002	2.59 × 10 ⁻⁷	2.80 × 10 ⁻⁷	0.926
:	122	133	G	1999/11/2	0.293 ± 0.003	4.38 × 10 ⁻⁷	3.24 × 10 ⁻⁷	1.35
TH3	46	251	A	1999/11/5	1.48 ± 0.02	1.28 × 10 ⁻⁷	2.89 × 10 ⁻⁷	0.443
:	86	212	TU	1999/11/5	0.626 ± 0.012	4.96 × 10 ⁻⁸	8.81 × 10 ⁻⁸	0.562
:	124	174	TL	1999/11/5	0.179 ± 0.002	5.97 × 10 ⁻⁸	6.43 × 10 ⁻⁷	9.28
TH-4(2)	61	272	A	1999/8/27	1.36 ± 0.02	8.29 × 10 ⁻⁸	3.56 × 10 ⁻⁷	0.233
TH-4(1)	83	249	TU	1999/8/27	1.28 ± 0.01	3.27 × 10 ⁻⁸	1.22 × 10 ⁻⁷	0.268
:	99	233	TU	1999/8/27	1.26 ± 0.02	2.92 × 10 ⁻⁸	1.31 × 10 ⁻⁷	0.223
:	152	180	TL	1999/9/3	0.117 ± 0.002	1.07 × 10 ⁻⁸	2.02 × 10 ⁻⁷	5.28
TH-6	104	209	A	1999/9/3	0.561 ± 0.007	2.47 × 10 ⁻⁸	2.53 × 10 ⁻⁸	0.977
:	104	209	A	1999/9/8	0.493 ± 0.003	1.86 × 10 ⁻⁷	1.88 × 10 ⁻⁷	0.987
:	132	181	TU	1999/9/3	0.282 ± 0.007	1.91 × 10 ⁻⁷	1.30 × 10 ⁻⁷	1.47
:	153	160	TL	1999/9/8	0.309 ± 0.003	1.74 × 10 ⁻⁷	1.32 × 10 ⁻⁷	1.32
DH-3	19		G	1999/8/10	1.25 ± 0.01	2.03 × 10 ⁻⁸	8.04 × 10 ⁻⁸	0.252
:	130		G	1999/9/13	0.451 ± 0.007	2.02 × 10 ⁻⁷	2.78 × 10 ⁻⁷	0.727
:	208		G	1999/8/10	0.441 ± 0.009	2.73 × 10 ⁻⁸	3.89 × 10 ⁻⁸	0.832
:	325		G	1999/8/17	0.347 ± 0.010	7.74 × 10 ⁻⁹	3.17 × 10 ⁻⁹	2.44
:	487		G	1999/8/17	0.230 ± 0.002	2.98 × 10 ⁻⁷	2.50 × 10 ⁻⁷	1.19
:	601		G	1999/8/19	0.236 ± 0.005	3.30 × 10 ⁻⁷	1.18 × 10 ⁻⁷	2.80
:	644		G	1999/9/13	0.244 ± 0.004	6.48 × 10 ⁻⁸	3.24 × 10 ⁻⁸	2.00
:	840		G	1999/9/13	0.167 ± 0.003	3.14 × 10 ⁻⁷	1.13 × 10 ⁻⁷	2.79

*A: 明世累層、G: 土岐花崗岩、TU: 土岐夾炭累層上部層、TL: 土岐夾炭累層下部層

表3 岩石試料分析結果

孔名	深度	岩相	SiO ₂ (%)	TiO ₂ (%)	Al ₂ O ₃ (%)	Fe ₂ O ₃ (%)	MnO (%)	MgO (%)	CaO (%)	Na ₂ O (%)	K ₂ O (%)	Cr ₂ O ₃ (%)	Li (ppm)	B (ppm)	Cl (ppm)	Co (ppm)	Ni (ppm)	Sm (ppm)	Gd (ppm)	U (ppm)	Th (ppm)	
(1)東濃鉢山周辺調査領域																						
TH-6	104.9m	明世累層	61.74	0.73	16.15	5.22	0.07	1.22	3.65	2.44	1.86	0.015	24	74	<1	109.8	3	7.1	5.8	2.3	7.2	
TH-6	132.5m	土岐夾炭累層上部層	68.68	0.50	17.57	1.54	0.02	0.61	1.34	2.22	3.08	0.011	37	70	<	114.1	9	5.3	4.9	19.8	17.2	
TH-6	153.4m	土岐夾炭累層下部層	51.17	0.95	15.70	5.17	0.08	3.36	4.18	1.79	1.89	0.02	35	53	<1	25.1	13	4.9	4.9	23.8	6.8	
TH-6	177.0m	土岐花崗岩	74.77	0.20	13.40	1.95	0.05	0.25	0.99	3.24	4.27	0.001	42	10	2	266.2	<1	4.3	3.9	9.7	24.4	
(2)広域地下水流動調査領域																						
DH-3	843.1m	土岐花崗岩	76.23	0.13	12.94	1.53	0.06	0.27	1.31	3.40	3.33	0.005	68	4	2	74.6	<1	5.6	6.5	7.9	24.6	
標準試料(JG1-a)			72.46	0.24	14.58	1.99	0.06	0.71	2.15	3.39	3.40	0.02	80	3	<1	5.1	6	4.4	4.2	5.9	11.4	
(推奨値)			(72.30)	(0.25)	(14.30)	(2.02)	(0.06)	(0.69)	(2.13)	(3.39)	(3.96)	(0.003)	(79.5)	(3.95)	(65*)	(5.9)	(6.91)	(4.53)	(4.08)	(4.69)	(12.8)	

表4 岩石中から単位時間あたりに発生する⁴He量・ヘリウム同位体比

岩相	試料	P_4 (atoms·g ⁻¹ ·y ⁻¹)	³ He/ ⁴ He
明世累層	TH-6,104.9m	1.30×10^7	1.29×10^{-8}
土岐夾炭累層上部層	TH-6,132.5m	7.69×10^7	1.86×10^{-8}
土岐夾炭累層下部層	TH-6,153.4m	8.17×10^7	1.59×10^{-8}
土岐花崗岩	TH-6,177.0m	5.01×10^7	2.25×10^{-8}
土岐花崗岩	DH-3,843.1m	4.45×10^7	3.78×10^{-8}
JG-1a (推奨値)		2.78×10^7 (2.50×10^7)	4.39×10^{-8} (4.48×10^{-8})

表5 東濃鉱山周辺地域の地下水試料中の⁴He濃度(推定値)及び、地下水年代

採水地点	深度(m)	⁴ He濃度(ccSTP/g H ₂ O)	地下水年代(year)	¹⁴ C年代 [#] (year)
AN-6	14	5.0×10^{-8}	3,000	5,700
AN-6	34	6.4×10^{-8}	2,200	12,000
AN-6	50	1.9×10^{-7}	17,000	14,100
AN-6	122	2.2×10^{-7}	290	8,000
TH-3	46	4.3×10^{-8}	— [§]	5,700
TH-3	86	4.6×10^{-8}	6,600	14,000
TH-3	124	3.8×10^{-7}	37,000	—
TH-4(2)	61	4.6×10^{-8}	360	4,300
TH-4(1)	83	4.9×10^{-8}	410	5,300
TH-4(1)	99	5.0×10^{-8}	510	8,800
TH-4(1)	152	6.1×10^{-7}	62,000	—
TH-6	104	1.1×10^{-7}	47,000	1,400
TH-6	104	1.3×10^{-7}	58,000	1,400
TH-6	132	2.3×10^{-7}	22,000	4,200
TH-6	153	2.1×10^{-7}	18,000	9,400


[#]: 岩月ら(1999)より引用

[§]: 放射壊変成分が0のため年代は計算していない

表6 DH-3号孔地下水試料中の⁴He濃度(推定値)及び、地下水年代

採水地点	深度(m)	⁴ He濃度(ccSTP/g H ₂ O)	地下水滞留時間(year)
DH-3	19	5.0×10^{-8}	9
DH-3	130	1.4×10^{-7}	180
DH-3	208	1.5×10^{-7}	190
DH-3	325	1.9×10^{-7}	270
DH-3	487	2.9×10^{-7}	490
DH-3	601	2.8×10^{-7}	470
DH-3	644	2.7×10^{-7}	450
DH-3	833	4.1×10^{-7}	770

博士研究員 (H11) 平成 11 年度研究概要報告書

研究テーマ	オーステナイト系ステンレス鋼におけるスエリング挙動に及ぼす照射誘起偏析並びに温度変動効果に関する研究		
研究者氏名	神田北斗		
研究協力者 所属・氏名	燃材部 MMS 赤坂尚昭、燃材部 MMS 山県一郎、燃材部 MMS 堂野前貴子	所属長印 	
研究実施場所	大洗工学センター照射施設運転管理センター燃料材料試験部照射材料試験室		
通算研究期間 (予定)	平成 11年 4月 ~ 平成 14年 3月	当該年度 研究期間	平成 11年 4月 ~ 平成 12年 3月
<p>【研究目的】</p> <p>高速炉炉心材料として用いられているオーステナイト系ステンレス鋼は、中性子高照射環境下での高速炉運転温度において長期間運転された場合、スエリングを起こすことにより燃料集合体に組み込まれた燃料ピンなどの寸法が変化し、冷却材である液体 Na の流れが抑制される等の影響を引き起こすことが知られている。さらに炉の起動や停止時に生じる温度変動、もしくは炉運転中における照射温度漸減が、スエリング挙動に大きく影響を及ぼすことが推測されている。また、現在開発が進められているフェライト系ステンレス鋼のスエリング挙動についても、これらの影響を受ける可能性がある。これらのスエリング挙動は照射により誘起された析出物に密接にかかわると報告されているが、詳細は明らかにされていない。そこで本研究では、中性子照射したオーステナイト系ステンレス鋼について、スエリングの基になるポイド形成と照射誘起偏析から生じる析出物等の関係を、各照射条件・試料条件における微視的な組織、組成、構造の変化から考察することを目的とする。</p>			
<p>【研究内容 (概要)】</p> <p>高速炉炉心用ステンレス鋼におけるスエリング挙動の照射温度変動による影響及び、スエリング試験片として照射した試料 (材料照射材) と燃料集合体の状態で照射した試料 (燃料集合体照射材) におけるスエリング挙動の相違と照射誘起析出物の状態との相関性を検討することを目的とする。第一に中性子照射を行った高純度の Fe-Cr-Ni 系合金に添加元素を制御したモデル合金に対して、照射誘起された析出物及びポイドを中心とした微細組織、構造および組成分析を行うことにより、純粋な析出物効果を考察する。次に実用鋼である改良 316 鋼、改良オーステナイト鋼を用いて、未照射材、材料照射材、燃料集合体照射材における各種照射条件の違い、前述のモデル合金との比較による不純物効果に着目し、析出物とポイドスエリングの観点から前述のモデル合金と同様の実験を行う。さらに、重・軽イオンや電子線等の荷電粒子を用いたシミュレーション照射試験で得られた結果と比較を行い、これらの現象を損傷形態の相違の点から検討する。加えて今までの文献及び、上記の各実験結果を用い、或いは参考にすることにより、照射損傷あるいは偏析機構論に基づく計算コードを構築し、解析を行うことによって、高速炉における実用鋼の照射条件変動と照射誘起偏析・析出及びスエリング挙動との関係を明らかにする。</p>			
<p>【使用主要施設】</p> <p>JEM-4000FX 型透過型電子顕微鏡 (加速電圧 400kV) 及び、附属するエネルギー分散型 X線分光分析装置(EDS)</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 11 年度は、高純度 Fe-15Cr-20Ni 系モデル合金における微細組織観察並びに、結晶粒界およびポイド近傍などの局所的な濃度分析を行った。上半期は同合金の非照射材を用いて試験を行い（中間報告で報告済み）、下半期は照射材を用いて試験を行った。照射条件は 476℃、 $3.5 \times 10^{26} \text{n/m}^2$ （476℃材）と 621℃、 $4.1 \times 10^{26} \text{n/m}^2$ （621℃材）の照射材について試験を行った。476℃材については組織観察および分析、621℃材については組織観察まで行った。

【研究成果】

平成 12 年 4 月までの研究成果の概要をまとめる。

(1) 試料の放射化による EDS 分析への影響

照射誘起偏析挙動を調べるために懸念されたことは、放射化した試料による EDS 分析への影響であった。しかし、測定中の dead time 値は通常よりやや高めであったが、測定自体は可能であった。またバックグラウンドスペクトルの測定を行った結果、主に ^{55}Fe から発生したものと考えられる Mn の K- α 線が検出された。これらを考慮した補正を行うことにより、試料の放射化による影響は無視できるといえる。

(2) 結晶粒界、ポイドなどにおける照射誘起偏析挙動の比較

Fig.1 は粒界から片側方向に直線上に分析したグラフである。結晶粒界において Table.1 のようなサイズ効果に起因すると思われる濃度変化の傾向が見られた。一方、結晶粒界と同じく点欠陥シンクであるポイドへの偏析は結晶粒界と同様の傾向を示したため、両者とも同一の機構による偏析と解釈できる。

ここで偏析の割合を評価するために、溶質濃度を偏析している距離で積分することにより、Table.2 に示すような形式的な偏析率 (nm x wt.%) を算出した。ただ、この算出ではポイド欠乏帯による影響は考慮せず、結晶粒界を挟んだ濃度変化は対称であると考えている。Ni は粒界において最も偏析を起こしたが、粒界から離れた Void-2 についてもほぼ同様な偏析を示していた。しかし結晶粒界に近い Void-1 は偏析率が他の約半分であった。一方 Cr については Void-1 では Ni と同じく最も偏析が小さいが、結晶粒界よりも Void-2 の方が明らかに大きな偏析挙動を示した。一般に格子間原子は原子空孔よりも明らかに低温から高温に拡散するため、格子間原子と共に拡散する Ni の方がより顕著な偏析挙動を示したと考えられる。またこの場合、結晶粒界と Void-1 の間の距離はあまり離れていないが、Void-1 と Void-2 の間はかなり離れている。そのために Cr においては、Void-2 のほうが結晶粒界よりも顕著に偏析を生じた原因であると考えられる。以上のことからシンクとしての強さはポイド及び結晶粒界はほぼ同程度か、やや結晶粒界の方が強いと考えられる。

さらに、粒界析出物近傍について分析を行った。析出物は回折図形により析出物は M_{23}C_6 型炭化物である Cr_{23}C_6 の結晶格子と同定された。析出物中では Fe は 10% 以下と極端に減少する一方、Cr (22→54%)、Ni (10→25%)、Si (<1→12%) と増加した。Ni、Si の濃化は、析出物相がシンクサイトとなり、照射誘起偏析が生じているためと考えられる。この様に析出物との結晶粒界面でマトリックス同士の粒界に比べ undersize 原子が極端に偏析している理由としては、この析出物とマトリックス間の格子定数が大きく異なるため界面付近への歪み場が大きくなり、シンク強度がマトリックス同士の粒界よりも大きいと考えられる。また、この析出物付近の溶質濃度は、 M_{23}C_6 よりも M_6C に近い値を示した。これらのことから、 M_{23}C_6 の表面に溶質原子が析出した結果、表面上で M_6C が析出していると推測される。

(3) 照射誘起偏析挙動に及ぼす添加元素のサイズ効果および MC 析出物の影響

Fig.1 の通り、結晶粒界においてサイズ効果による照射誘起偏析が見られたが、Fe-15Cr-20Ni 三元合金にサイズの異なる溶質元素を添加した材料における偏析ピーク部の濃度を Table.3 に示す。oversize 元素である Mo の添加により三元合金に比べて僅かに偏析は抑制されている。一方、undersize 元素である Si 添加により Cr の枯渇は僅かに抑制されたが、Ni の濃化は Si 添加により促進される傾向を示した。Fe-15Cr-20Ni-0.25Ti-0.06C 材のポイドはポイドのみの場合と、ポイドと同じくらいの大きさの析出物に隣接して生じたポイドが存在した。双方のポイド付近を分析を行った結果を Table.3 に示す。析出物における Ti 濃度はマトリックスの数百倍の濃度であることから、析出物は Ti を主とした MC 炭化物と考えられる。また析出物に近接したポイドは単独のポイドに比べて Cr や Ni の偏析量が約 2 倍であった。これは

析出物によって偏析が促進されたためであると考えられる。

(4)結晶粒界におけるボイド欠乏帯の結晶粒方位依存性

一部の試料を除いて照射組織にはボイドが観察されたが、結晶粒界から約 100~250nm 程度の範囲で、ボイドがほとんど存在しないボイド欠乏帯が見られた。ボイド欠乏帯では転位線はみられたが、転位ループはほとんど観察されなかった。ボイド欠乏帯は結晶粒界の一部で存在しており、その形態は、主に結晶粒界の片側のみに生じていた。ボイド欠乏帯の生じた理由については一般に、結晶粒界が点欠陥のシンクとして働くことにより転位ループやボイドなどが成長しないことが考えられる。しかし観察結果から、ボイド欠乏帯が結晶粒界の片側で生じていることや、粒界の一部がボイド等に引っかかるように湾曲していることが認められ、これらのことから結晶粒界が移動したときにボイドなどの組織によりピン止めされたと推測できる。したがって、ボイド欠乏帯の主な原因は粒界移動であると考えられる。

Table.5 はボイド欠乏帯と結晶粒界方位の関係について示す。ボイド欠乏帯がある結晶粒界面の組み合わせは、結晶粒界を挟んだ両方の面の方位が大きく異なる場合であり、面間隔比が約 1.5 以上の大きな値で粒界移動が生じている。逆に面間隔比が 1.0 に近いような場合は結晶粒界にボイド欠乏帯は存在しない。またボイド欠乏帯を持つ結晶粒の面の方位は持たない結晶粒に比べて低指数面である。この傾向は、電子線照射における粒界移動現象の傾向とよく似ている。

(5)ボイド径に及ぼすボイド欠乏帯および添加溶質元素依存性

スエリング挙動にはボイドの数密度とサイズが重要な因子となる。そこで、ボイド径の分布に及ぼす添加元素のサイズ効果について検討した。Fig.2 は三元合金と Si 及び Mo 添加材による影響を示したグラフである。Si 添加材はボイド平均径も小さく、また特にボイド数が少ない。また Mo 添加材はボイド数密度は高いが、平均径は三元合金よりも小さい傾向を示した。これら溶質原子添加材のボイド平均径が小さいのは、固溶している溶質原子がボイドの核形成サイトとして働くためと考えられる。

また Fig.3 はボイド径に及ぼすボイド欠乏帯の影響を示したグラフである。ボイド欠乏帯がある結晶粒では無い方に比べてボイド平均径が小さい傾向を示したが、さらにボイド径の分布が約 30nm と約 60nm の2つのピークを持っている。これは結晶粒界の移動により、シンクへの距離が局所的に変化し、その結果ボイド形成挙動が局所的に変化したと考えられる。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 12 年度は、621℃材の分析及び 576℃材の組織観察・分析を行う予定である。さらに実用鋼として PNC316 および PNC1520 の溶体化処理材についても同条件の試験を行いデータを蓄積していく予定である。

平成 13 年度は、平成 12 年度の続きを行う他、燃料集合体照射材及び温度変動照射材についても観察及び分析を行い、照射誘起偏析挙動に及ぼす因子をまとめていきたいと考えている。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

技術資料登録後、学会発表（日本金属学会 2000 年秋期大会他）および学会誌（JIM、J.Nucl.Mater.誌等）に投稿予定。

Table 1. 供試材における合金溶質原子のサイズの関係⁽¹⁾

原子サイズの大小	シンクにおける偏析	元素	Feに対する原子サイズ(%)
oversize (大)	枯渇	Cr	4.36
		Mo	27.51
undersize (小)	濃化	Ni	-7.06
		Si	-7.88

Table 2. Fig.1 中の各シンクサイトにおける偏析率 (Fe-15Cr-20Ni 三元合金)

	G.B.	Void-1	Void-2
Ni(nm x wt.%)	1754	840.4	1410
Cr(nm x wt.%)	-296.0	-91.23	-590.4

Table 3. Ti, C 添加材におけるボイドの状態と溶質原子の偏析

		Cr(%)	Ni(%)	Ti(倍)
ボイドのみ	ボイド	-7.8	23.3	-
ボイドと析出物	ボイド	-14.7	60.2	23.8
	析出物	-13.2	59.8	790

Table 4. 各合金におけるボイド欠乏帯の有無

合金	476°C材		621°C材	
	ボイドの多寡	欠乏帯の有無	ボイドの多寡	欠乏帯の有無
Fe-15Cr-20Ni	多	有	少	不明瞭
Fe-15Cr-20Ni-0.5Si	少	不明瞭	無	無
Fe-15Cr-20Ni-2.5Mo	多	有	多	有
Fe-15Cr-20Ni-0.025P	多	有	無	無
Fe-15Cr-20Ni-0.25Ti-0.06C	少	不明瞭	無	無

Table 5. ボイド欠乏帯と粒界面の方位の関係

結晶粒の入射方位	欠乏帯の有無	粒界面方位				各々の面間隔比
		欠乏帯を持つ面		欠乏帯を持たない面		
		方位	面間隔(nm)	方位	面間隔(nm)	
{110}/{110}	○	{111}	0.2073	{311}	0.1083	1.914
{110}/{111}	○	{112}	0.1466	{133}	0.0824	1.779
{111}/{110}	○	{110}	0.2539	{311}	0.1083	2.344
{110}/{111}	×	{110}	0.2539	{110}	0.2539	1.000
{122}/{123}	×	{210}	0.1606	{121}	0.1466	1.095

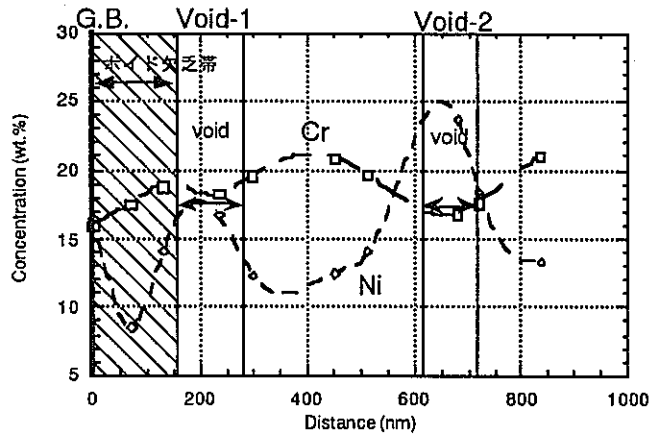


Fig. 1 Fe-15Cr-20Ni材の粒界及びボイド近傍のEDS分析結果

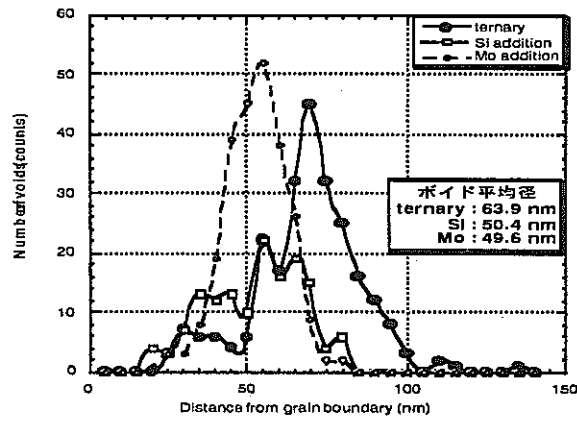


Fig. 2 ボイド径分布に及ぼす添加元素の影響

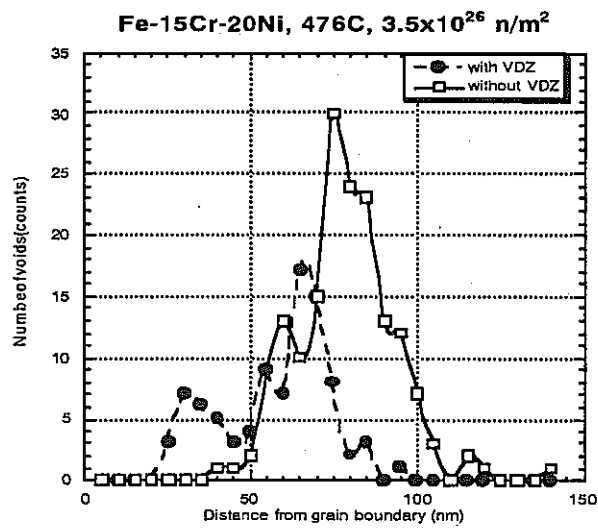



Fig. 3 ボイド径分布に及ぼすボイド欠乏帯の影響

博士研究員 (H11) 平成 11 年度研究概要報告書

研究テーマ	比抵抗映像法を用いた岩盤空洞掘削前後の空洞周辺の地下水流動の変化の把握に関する研究		
研究者氏名	周 啓 友		
研究協力者	松 井 裕哉	東濃地科学センター地層科学研究グループ	所属長印
所属・氏名			
研究実施場所	東濃地科学センター、東濃鉦山		
通算研究期間 (予定)	平成 11 年 4 月 ~ 平成 14 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 11 年 4 月 ~ 平成 12 年 3 月
<p>【研究目的】 本研究は高密度電極の配置による比抵抗映像法を岩盤の不飽和特性の把握に応用して、比抵抗映像法の有効性と問題点を検討した上で、空洞掘削に伴う空洞周辺岩盤の地下水の変動プロセスを明らかにすることを目的とする。</p>			
<p>【研究内容 (概要)】</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. 岩盤の不飽和特性の把握に対する比抵抗映像法の有効性 (技術の開発) 岩盤の不飽和特性の把握に対する比抵抗映像法の有効性を検討する。具体的には、体積含水率が低い岩盤中の地下水の動きに対して比抵抗映像法がどの程度有効であるか、原位置と実験室レベルの測定で確認する。岩盤の不飽和特性 (特に水の動き) を把握するためのパラメータは、基本的には岩盤比抵抗分布で、必要があれば、体積含水率等のパラメータも考慮する。 2. 岩盤空洞掘削前後における空洞周辺岩盤の地下水変動の把握 (現象の把握) 比抵抗映像法の有効性を確認した上で、空洞掘削前から掘削後まで同一地点で岩盤比抵抗を測定し、得られた岩盤比抵抗分布の時間的な変化から岩盤中の水分移動に伴う不飽和帯の形成プロセスを解明する。 			
<p>【使用主要施設】 東濃地科学センター、東濃鉦山</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成11年度は、主に岩盤の不飽和特性把握に対する比抵抗映像法の適用性の検討及び原位置測定に予測される問題の解決等を目的とした室内実験と数値実験を実施した。

【研究成果】

平成12年3月までの研究成果の概要を纏める。

1. 岩盤比抵抗測定用電極に関する検討

岩盤比抵抗測定用電極の製作は、比抵抗映像法を岩盤の不飽和特性把握に応用する際の最初の課題である。平成11年度は二種類のステンレスのアンカーと11種類の接着剤を変えて同測定に最適な組み合わせを室内実験で検討した。その結果、SCTステンレス製の内部コーン打ち込み式のシーティーアンカーと瓦止メしっくいモルタル接着剤で製作された電極が岩盤比抵抗の測定に最適であると判断された。

2. 比抵抗の測定範囲の改善

岩盤は土に比べ、高比抵抗な物質であるため、幅広い比抵抗の測定に対応できるように、測定機械の測定レンジを最大10,000Ωまで広げると共に、室内実験により電極、測定機械、プログラムなどで構成された自動測定システムの安定性を確認した。また、10,000Ω以上の高抵抗測定の場合はインターフェースを通じて手動測定できることを室内実験で確認した。

3. 花崗岩ブロック（20 cm x 40 cm x 20 cm）での室内実験

本実験は結晶質岩に代表される不連続性岩盤における岩盤中の水分移動に対する比抵抗映像法の適用性を把握するために実施したものである。具体的には、花崗岩ブロック表面に44個の電極を埋設し、花崗岩ブロックに亀裂（幅4 mm）を造る前後及び水で亀裂を飽和する前後に各電極組み合わせにより花崗岩ブロックの抵抗変化をインターフェースを通じて測定した。以下に主な成果を記する。

(1). 岩石ブロックの抵抗は、亀裂の有無に応じて激しく変動した（図1）。これは、亀裂の有無により岩石ブロック中の電流の流れが変化するためであり、岩盤抵抗の変化を引き起こす要因に他にない場合は測定した岩盤抵抗値の変化によって亀裂の形成プロセスなどを検討できる可能性がある。

(2). 単一亀裂がある場合、花崗岩ブロック上面にある電極で測定した抵抗は、亀裂への水の注水と共に次第に減少し、亀裂からの排水が始まると再び上昇した。これは、亀裂中の水の含有程度（亀裂中の水位深度）と岩石の抵抗が緊密な関係を有することを示している（図2）。また、抵抗は亀裂内の水の移動も比較的感度よく捉えられる可能性があることが分かった（図3）。二本の亀裂がある場合も同様の傾向が認められた。しかし、測定した抵抗値の亀裂中水位の変動に対する反応は測定電極の配置と亀裂との位置関係によって差が大きく、亀裂中の水分移動を捉えるためには、電極配置が重要であることが分かった。

4. 凝灰岩ブロック（20 cm x 40 cm x 20 cm）での室内実験

花崗岩に比べ相対的に比抵抗が小さい凝灰岩ブロックで花崗岩ブロックと同様な実験を行い、花崗岩と類似した結果を得た（図4と図5）。この結果は比抵抗が低い堆積岩地域にも比抵抗映像法によって亀裂中水の移動を監視することが可能であることを示す。ただし、測定した抵抗値と亀裂中の水位深度との関係では、凝灰岩のヒステリシス現象が花崗岩より大きいことが分かった。

5. 凝灰岩ブロック（40 cm x 40 cm x 20 cm）での室内実験

堆積岩マトリックス中の水分移動に対する比抵抗映像法の有効性を確認するため、40 cm x 40 cm x 20 cmの凝灰岩ブロックに低比抵抗の蒸留水を浸透させると共に、比抵抗映像法によって速度が非常に小さい水の浸透状況をイメージすることができた（図6）。この結果から、岩盤マトリックス中水の移動の把握に比抵抗映像法が有効であることが分かった。

6. 亀裂中の水分移動に対する比抵抗映像法の感度に関する数値実験

半無限均質岩盤媒質の表面に電極を設置して、平行板亀裂中の水の移動を仮定して、異なる条件下

での比抵抗映像法の三次元数値実験を行った。なお、現場での測定は二極法であると仮定し、三次元有限要素法を利用して現場で測定した電位を模擬計算した。本数値実験では、主として亀裂の開口幅、岩盤と水との比抵抗差、亀裂の方向、密度を変化させた場合の比抵抗映像法の亀裂中の水の移動に対する感度を検討した。以下に結果の概要を示す。

(1). 亀裂の開口幅及び岩盤と水との比抵抗差による測定感度への影響

比抵抗映像法を用いた場合の亀裂中の水の移動に対する感度は亀裂開口幅及び岩盤と水との比抵抗差の変化によって変わり、亀裂の開口幅と電極間隔との比率及び岩盤と水との比抵抗差がある値より大きい場合だけ、比抵抗映像法で亀裂中水の移動を検出することが可能であることが数値実験により明らかになった (図7)。この成果に基づき、ある電極間隔に対する検出できる亀裂の開口幅の下限と可能な比抵抗の範囲をダイアグラムとして表示した。この成果は、原位置電極配置と測定結果の解析に重要である。

(2). 亀裂の方向による感度への影響

ある電極配置に対して亀裂の方向を変えた場合測定した抵抗の感度は当然変化するが、比抵抗映像法では高密度の電極配置と多数の測定データを用いて解析するため、比抵抗映像法の感度に対する亀裂の方向の影響は相対的に小さい。

(3). 亀裂の密度による感度への影響

亀裂の密度は、電極の密度より大きな場合だけ感度へ影響を与える。亀裂の比抵抗が岩盤の比抵抗より低い場合は、亀裂の密度の増加と共に測定した比抵抗値が最初は急に下がり、その後は徐々に安定していく。これらの結果から、原位置で亀裂が多い所での測定は亀裂の密度の変化による測定値への影響が小さいと推定される。

以上平成11年度の研究にして、岩盤の不飽和特性の把握に対し、比抵抗映像法が有効であることを室内と数値実験で確認した。

【今後の予定 (翌年度以降の概要)】

今後は原位置で比抵抗映像法の有効性をさらに確認した上で、比抵抗映像法を岩盤空洞掘削前後における空洞周辺岩盤の地下水変動の把握に応用していく予定である。

1. 不飽和過程の把握を目的とする室内実験
2. 原位置の測定及び関連問題の解決
3. 原位置で測定した結果の解析及び解析結果の確認
4. 岩盤不飽和特性に関する現象の検討

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

投稿審査中の論文

- (1) Zhou, Q. Y., J. Shimada, A. Sato, and H. Matsui, Relationship between soil resistivity and soil water tension, Journal of hydrology.
- (2) Zhou, Q. Y., J. Shimada, A. Sato, and H. Matsui, Three-dimensional spatial and temporal monitoring of soil water content using Electrical Resistivity Tomography, Water resources research.

国際会議への発表予定論文

- (1) Zhou, Q. Y., J. Shimada, H. Matsui, and A. Sato, Numerical analysis of the sensitivity of electrical resistivity tomography to the water movement in fractured rocks, 2000 Western Pacific Geophysics Meeting, Tokyo, 2000.6.
- (2) Zhou, Q. Y., J. Shimada, A. Sato, and H. Matsui, Three-dimensional rainfall infiltration process in heterogeneous soil, 2nd international symposium on preferential flow, Hawaii, 2001.1.

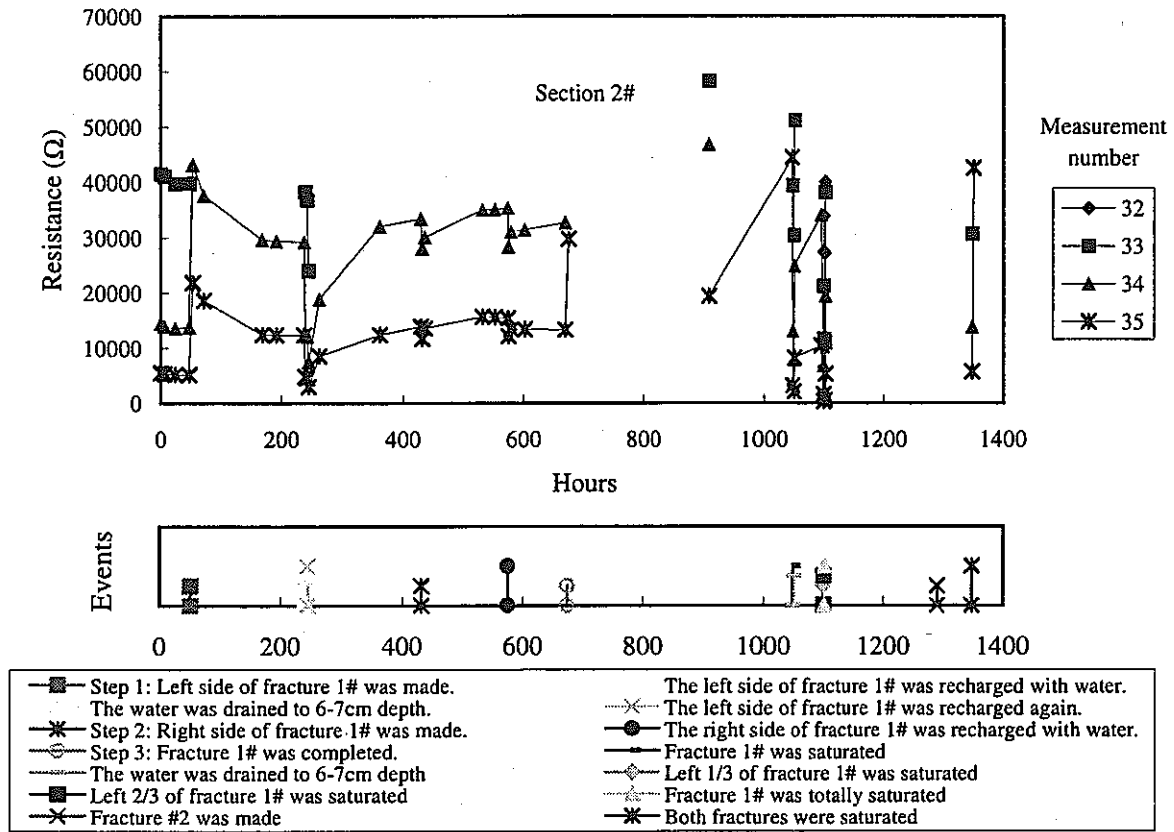


Figure 1. Temporal variations of electrical resistances measured at the 20 cm x 40 cm x 20 cm granite block in the laboratory.

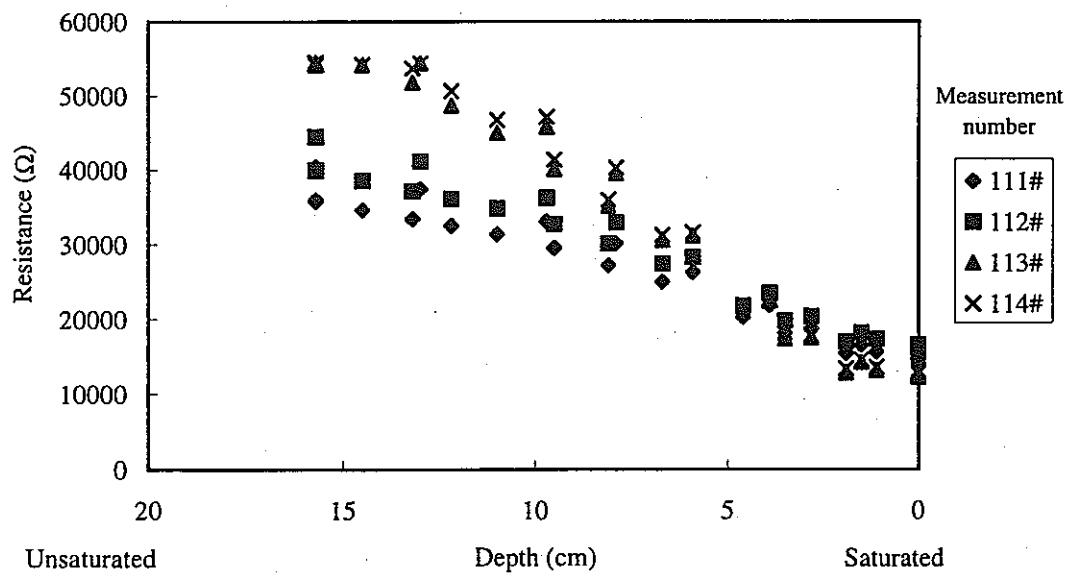


Figure 2. Relationship of electrical resistances measured at the surface of granite block with the water level depth in fracture 1#.

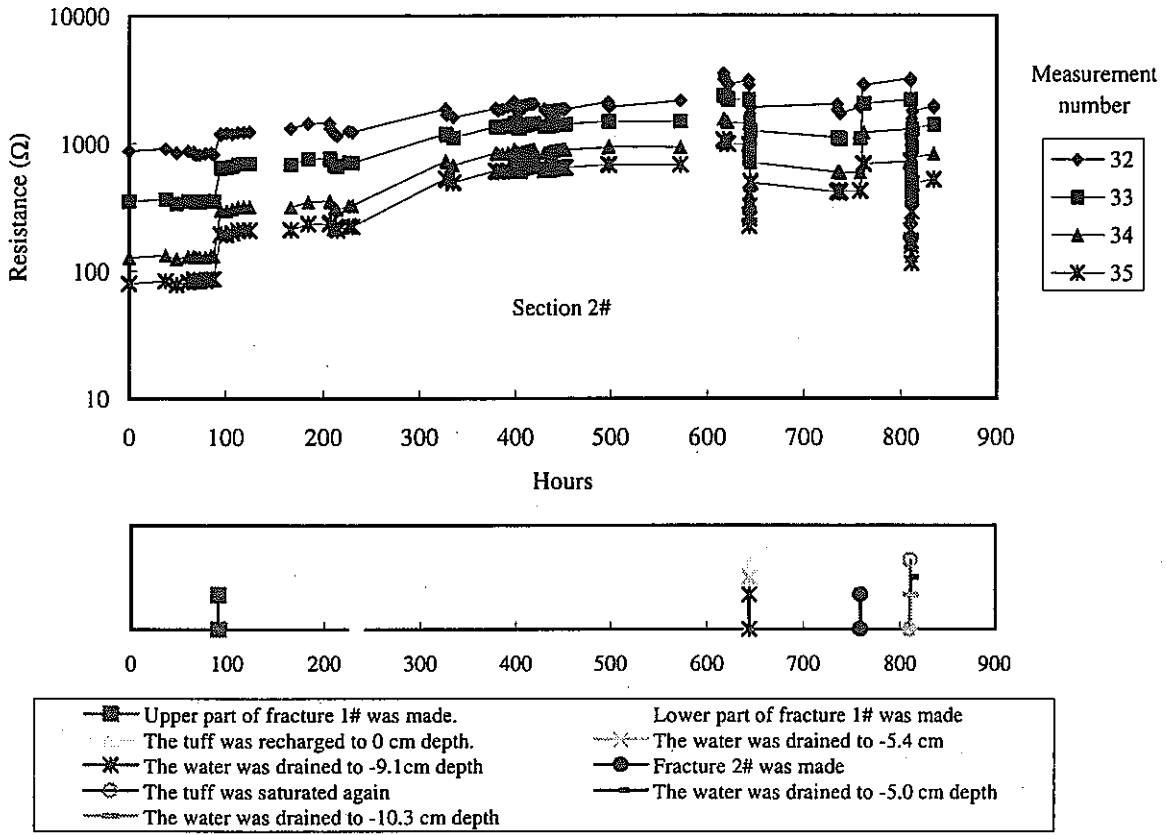


Figure 4. Temporal variations of electrical resistances measured at the 20 cm x 40 cm x 20 cm tuff block in the laboratory.

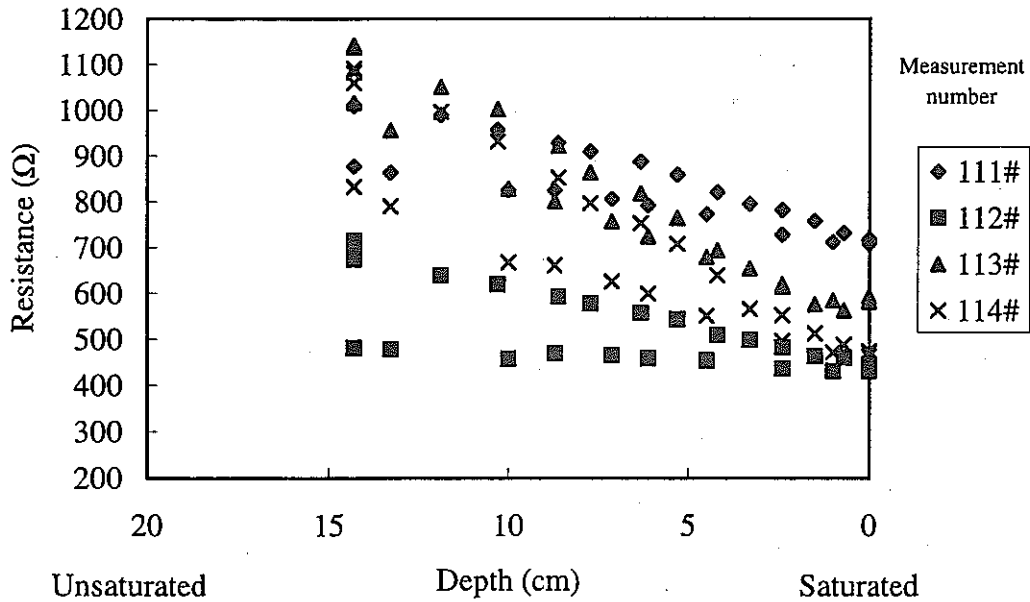


Figure 5. Relationship of electrical resistances measured at the surface of tuff block with the water level depth in fracture 1#.

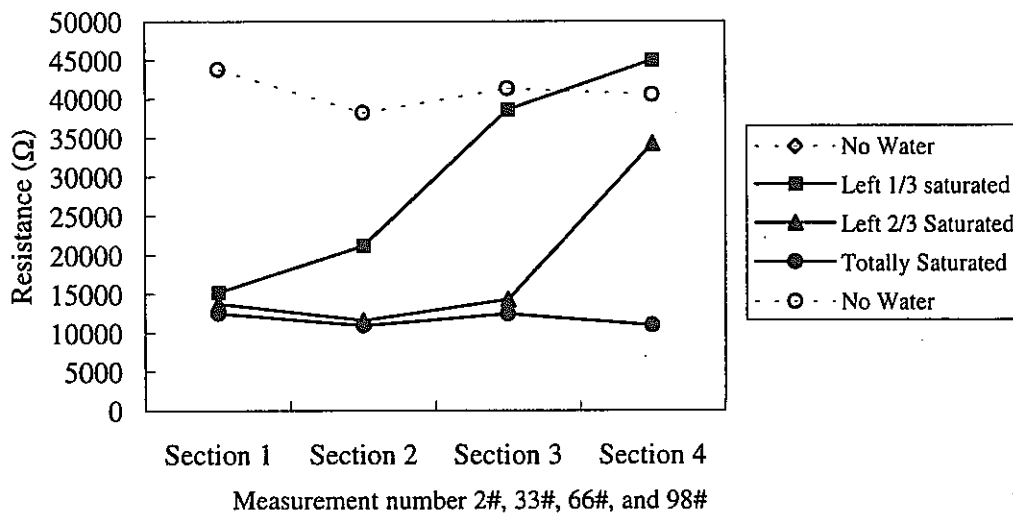


Figure 3. Variations of the measured resistances in the longitudinal direction of the granite block.

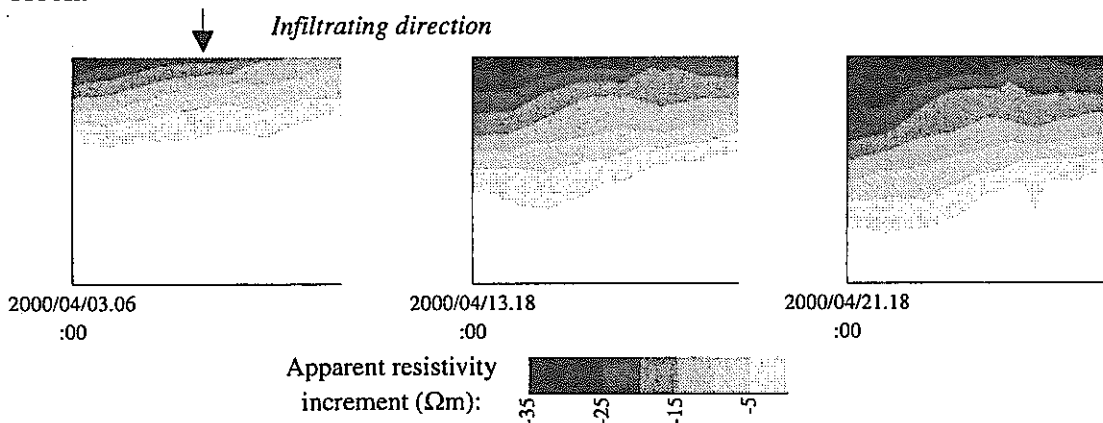


Figure 6. Temporal variations of the apparent resistivity increments in the 40 cm x 40 cm x 20 cm tuff block. The electrical conductivity of the infiltrating water is 317-333 $\mu\text{s}/\text{cm}$. (Static, Pole-pole array, Y direction, and 0.05 m electrode interval).

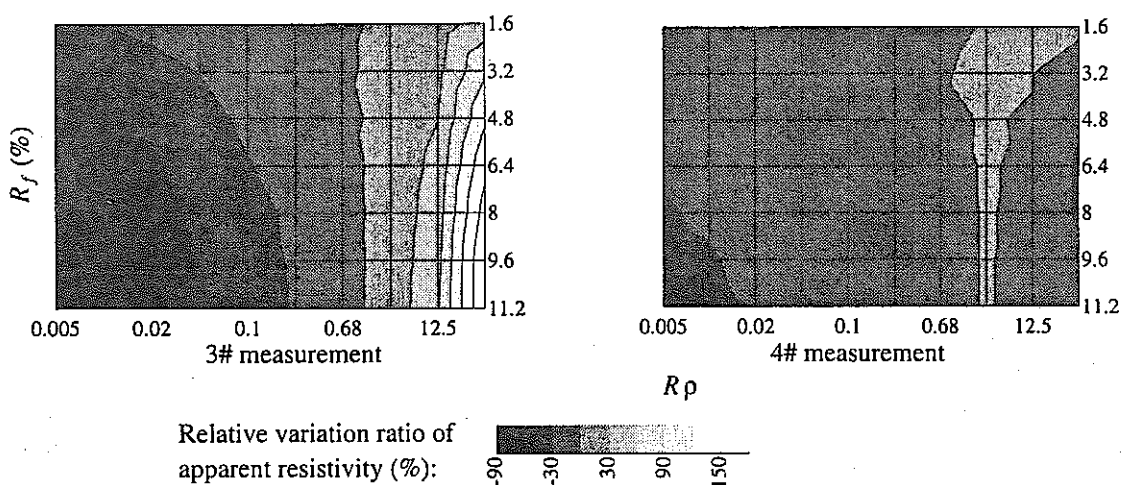



Figure 7. The relationships of relative variation ratio of apparent resistivity with R_f and R_p . R_p is defined as the ratio of water resistivity in the fracture to the background rock resistivity. R_f is the ratio of the fracture aperture to the electrode interval.

博士研究員(H11)平成 11 年度研究概要報告書

研究テーマ	人工バリアにおける核種拡散過程に関する研究		
研究者氏名	鈴木 覚		
研究協力者	処分研究部 放射化学研究グループ・佐藤 治夫, 舘 幸男		所属長印
所属・氏名			
研究実施場所	核燃料サイクル開発機構 東海事業所 地層処分基盤研究施設(ENTRY)		
通算研究期間 (予定)	平成 11 年 4 月 ~ 平成 14 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 11 年 4 月 ~ 平成 12 年 3 月
<p>【研究目的】 高レベル放射性廃棄物の地層処分において、多重バリアシステムの一部である緩衝材には、放射性核種の遅延効果が期待されている。最近では、海水のようにイオン強度が高い地下水や高温条件下での物質移行に注目が高まっている。しかし、これまでの緩衝材中の物質移行評価はイオン交換水を用いた拡散試験によるものがほとんどであり、また拡散の活性化エネルギーについてもデータが少ない。この研究では、イオンの実効拡散係数のイオン強度依存性および温度依存性を明らかにするとともに、特に、それらの原因の1つと考えられるベントナイト間隙水の構造、物性について分光学的な考察を行なう。</p> <p>緩衝材中の物質移行は実効拡散係数により評価されており、放射性核種のイオン価、溶存状態や間隙水のイオン強度、温度によって変化する。圧縮ベントナイト中のイオンの実効拡散係数は、イオン強度の増加(0.02->0.2)に伴い、陽イオン(Sr^{2+})では1桁程度小さくなるが、陰イオン(I^-)では逆に2~3桁程度大きくなることが報告されている。地下水のイオン強度は処分場の地質環境により異なるため、より広い範囲でイオン強度に対する依存性を明らかにする必要がある。第2次取りまとめにおいては、地層処分場周辺の温度(60°C程度)の実効拡散係数は、室温で得られた実効拡散係数を自由水中でのイオン拡散の活性化エネルギー 15kJ/mol を用いて、外挿して設定されている。ところが、圧縮ベントナイト中の Cs^+ の見かけの拡散係数の活性化エネルギーについて約 30~50kJ/mol(圧縮密度 1.0~1.8 Mg/m³)という報告があり、上記の外挿が適切でない可能性がある。しかし、実効拡散係数の活性化エネルギーについては報告例がなく、また活性化エネルギーのイオン強度依存性についても報告はないことから、現状においては知見が乏しく、新たにデータを取得する必要がある。</p> <p>実効拡散係数のイオン強度や温度依存性は間隙水の構造や物性と関連がある。間隙水の構造や物性の変化は粘土-水間の相互作用によるものであると考えられるが、その相互作用はイオン強度によって変化する。また Cs^+ で見られた大きな拡散の活性化エネルギーは間隙水の水素結合が自由水に比べて強く、そこでの拡散の活性化エネルギーが大きくなるためであると考えられている。しかし、圧縮ベントナイト中の水の構造や物性に関する研究はほとんど行なわれておらず、移行メカニズムを解明する上で課題となっている。</p>			
<p>【研究内容(概要)】</p> <p>(1) 間隙水の構造と物性および核種拡散係数の見積もり 自由水と間隙水の構造や物性の違いをラマン分光測定により明らかにし、自由水と間隙水の構造や物性およびイオン等の自由水中拡散係数と間隙水拡散係数の関係について考察する。また、間隙水のラマンスペクトルのイオン強度、圧縮密度や温度への依存性から間隙水の構造・粘性について考察する。さらに、水素結合の割合より間隙水の粘性を見積もり、圧縮ベントナイト中のイオンの間隙水拡散係数とその活性化エネルギーについて検討する。</p> <p>(2) 圧縮スメクタイト中のストロンチウム、ヨウ素の実効拡散係数の取得 圧縮スメクタイト中のストロンチウム、ヨウ素の拡散試験を行ない、イオンの実効拡散係数のイオン強度依存性や拡散の活性化エネルギーについて研究を行なう。イオンの価数やイオン強度により実効拡散係数は大きく異なり、このことはイオン種による拡散経路や間隙水拡散係数の違いを示しているものと考えられる。各イオンに対して拡散経路を特定するために、XRD, SEM を利用して圧縮スメクタイトの間隙構造のモデル化を行なう。間隙水拡散係数については(1)の分光学的実験より算出された値により評価する。</p>			
<p>【使用主要施設】 核燃料サイクル開発機構 東海事業所 地層処分基盤研究施設(ENTRY)</p>			

【進捗状況(当該年度までの概要)】

研究計画に基づき、各種測定装置の確保、立ち上げを行ない、予備的試験を行なった。

(1) 間隙水の構造と物性および核種拡散係数の見積もり

赤外分光法、核磁気共鳴分光法を用いてベントナイトの間隙水の予備的測定を行なった。また、計画にラマン分光法による測定も加え研究を行なった。

(2) 圧縮スメクタイト中のストロンチウム、ヨウ素の実効拡散係数の取得

圧縮スメクタイト中の拡散実験を行なうために、スメクタイト精製、拡散セル試料ホルダーの試作を行なった。また、圧縮スメクタイト中の拡散試験後の実効拡散係数を補正するため、セラミックフィルターの拡散試験を行ない、フィルターの実効拡散係数のイオン強度依存性を得た。

上記の予備的試験を受けて、一部の試験については、継続が困難もしくは他研究手法への変更が妥当と判断されたので、研究計画を一部変更した(変更後の研究計画書は提出済み)。

【研究成果】

(1) 間隙水の構造と物性および核種拡散係数の見積もり

これまで、赤外分光法、ラマン分光法、核磁気共鳴分光法(NMR)により間隙水のスペクトルを取得した。特に、ラマン分光法において、ベントナイト間隙水の水の構造・粘性が変化していることを示唆する結果が得られている。ベントナイト試料としてクニピア F および精製スメクタイトを使用した。赤外分光法では、自由水のスペクトルと間隙水のスペクトルで違いはほとんど見られなかったが、NMR 法およびラマン分光法では特徴的な変化が観測された。高含水率のベントナイト(75wt%~98wt%)のプロトン NMR スペクトルは、含水率が低くなるほど、自由水に比べ高化学シフトを示し、スペクトルの線幅は著しく増大した。含水率75wt%の試料では、2種類以上の化学結合環境にあるプロトンの存在が確認された(図 1)。このことは、間隙水の構造や粘性が自由水と異なることを示唆している。一般に、高化学シフトは水素結合力の増大を示し、線幅の増大は自己拡散係数の低下すなわち粘性の増加を示すので、上記の結果は間隙水の水素結合は自由水のそれよりも強く、粘性もより高いことを示していると考えられる。一方、高含水率のベントナイト(75~98wt%)の間隙水のラマン測定により、含水率が低くなるほど 3250cm^{-1} 周辺の散乱強度が強く、水素結合が強い水分子が多いことがわかった(図 2)。このことは、間隙水の粘性が自由水に比べ高いことを示唆すると考えられ、NMR による研究と調和的な結果である。この傾向は、圧縮密度 1.8 g/cm^3 のベントナイト(飽和含水率 30wt%相当)でも同様であり、圧縮状態の間隙水の構造は自由水と異なることが分かった。

(2) 圧縮スメクタイト中のストロンチウム、ヨウ素の実効拡散係数の取得

圧縮スメクタイト中の陽イオン、陰イオンの実効拡散係数のイオン強度依存性や活性化エネルギーの取得を目的とした実験を開始した。これまで、Na 型スメクタイトの精製およびセラミックフィルターの実効拡散係数を取得した。また、粘土鉱物の形状の SEM(走査型電子顕微鏡)観察等を行なった。

セラミックフィルターの実効拡散係数(25°C)を取得し、イオン強度依存性を得た(図 3)。使用したセラミックフィルターの構造因子は一定と考えられるので、この結果は間隙水拡散係数のイオン強度依存性を示していると考えられる。フィルターの実効拡散係数の変化は最大でも 2 倍程度で、これまでの研究で得られているようなベントナイト中の実効拡散係数の桁での変化はなかった。

クニピア F(スメクタイト含有量 99%)より精製された Na 型スメクタイトの走査型電子顕微鏡による観察を行なった。観察は粒子形状、サイズと鉱物粒子の配列構造について行った。粘土粒子の形状は板状で、底面の大きさは数 μm ~数十 μm 程度であった。1つの粒子は $0.1\mu\text{m}$ 程度の鱗片状粘土粒子の集合体であることが分かった。また、ベントナイト(スメクタイト含有率 98~99 重量%)を圧縮成形した試料断面の走査型電子顕微鏡観察を行ない、鉱物の配向性を評価した(図 4)。供試体の圧縮時のスメクタイト乾燥密度(*)が 1.8g/cm^3 の時、粘土鉱物はほぼ圧縮方向に垂直な方向に配列していた。スメクタイト乾燥密度が 0.9g/cm^3 の試料についても確認をしているところである。

*:第 2 次取りまとめにおいて緩衝材の参考資料として設定された、ケイ砂混合ベントナイト(ケイ砂混合率 30 重量%, 圧縮密度 1.6g/cm^3 , クニゲル V1 使用)のスメクタイト含有率を考慮し、スメクタイト集合体部分の乾燥密度で表現した。

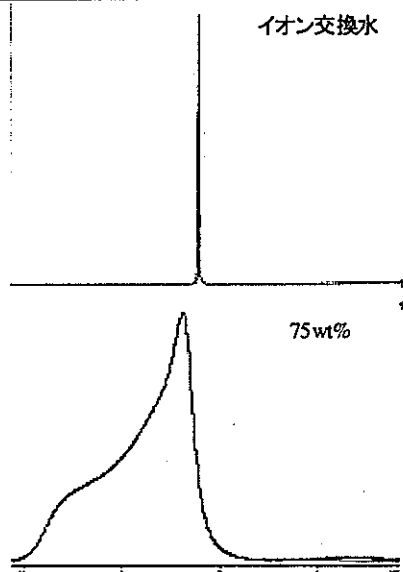


図 1.イオン交換水(上段)とベントナイト間隙水(下段)のNMR スペクトル。

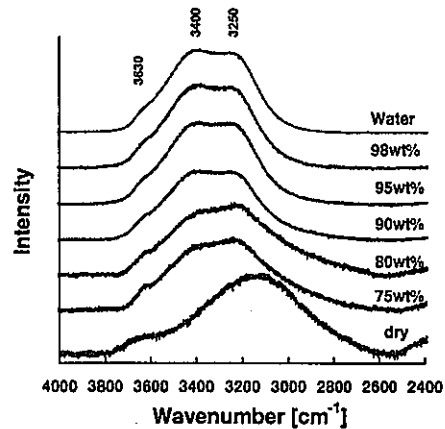


図2. ベントナイト間隙水のラマンスペクトルに対する変化。ピーク強度は 3250cm⁻¹ のピーク強度で規格化されている。右側の数字は試料の含水率(重量%)を示す。dry は乾燥状態の試料を water はイオン交換水のスペクトルを示す。

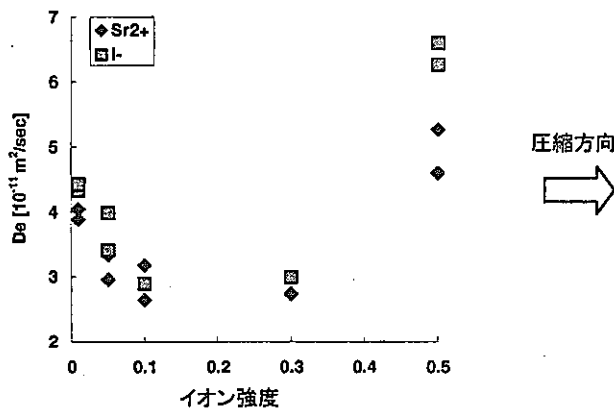


図 3. セラミックフィルターの実効拡散係数のイオン強度依存性



図 4. 圧縮スメクタイトの SEM 写真。紙面水平方向より圧縮

【今後の予定(翌年度以降の概要)】

(1) 間隙水の構造と物性および核種拡散係数の見積もり

ラマン分光法による圧縮ベントナイトの間隙水の構造の研究を継続する。間隙水のラマンスペクトルと圧縮密度の関係について研究を行なう予定である。イオン強度および温度を変えて同様の実験を行ない、間隙水の構造変化について考察する。

(2) 圧縮スメクタイト中のストロンチウムイオン、ヨウ素イオンの実効拡散係数の取得

圧縮スメクタイト中でのストロンチウムおよびヨウ素の透過拡散試験を行なう。条件はイオン強度(0.01~0.5)および温度(25~60°C)である。スメクタイト乾燥密度は、0.9 g/cm³ (乾燥密度 1.6 g/cm³, ケイ砂混合率 30 wt%のバリア材中のスメクタイト圧縮密度に相当)を予定している。イオン種による実効拡散係数の違いを、間隙水のイオン強度による間隙構造、拡散経路の変化などと対比させて検討を行なう。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】


(1) レポート等

- ・鈴木 寛, ラマン分光法による粘土間隙水の構造, 物性の研究, 月刊地球, 海洋出版株式会社, (2000年7月号印刷中)
- ・鈴木 寛, 間中光雄, 森田光男, ベントナイト間隙水のラマン測定, 核燃料サイクル機構 技術資料 (審査中)
- ・Fujishima, A., Suzuki, S., Ueno, K., Tachi, Y. and Shibutani, T., EXAFS analysis of Sm adsorbed on montmorillonite. (高輝度放射光施設 Spring-8 への研究報告書)

(2) 学会等での発表予定

- ・鈴木寛, ラマン分光法によるベントナイトの間隙水の構造の研究, 地球惑星科学関連合同大会, 2000年6月発表予定
- ・鈴木寛, ベントナイトの間隙水のラマン分光測定, 原子力学会, 秋の大会, 2000年9月発表予定

博士研究員 (H11) 平成 11 年度研究概要報告書

研究テーマ	溶融炉心物質の多相流挙動に関する研究		
研究者氏名	鈴木 徹		
研究協力者 所属・氏名	大洗工学センター ナトリウム・安全工学試験部 高速炉安全工学グループ 近藤 悟・小西賢介・飛田吉春	所属長印 	
研究実施場所	大洗工学センター ナトリウム・安全工学試験部 高速炉安全工学グループ		
通算研究期間 (予定)	平成 11 年 4 月 ~ 平成 14 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 11 年 4 月 ~ 平成 12 年 3 月
<p>【研究目的】 高速炉を実用化するためには、炉心損傷事故の事象推移を精密に予測し、外部環境に対して事故の影響がないことを証明しなければならない。損傷炉心内では、燃料、冷却材およびスティールなどの溶融や沸騰によって複雑な多成分系多相流が形成されるが、その挙動を適切に予測するためにサイクル機構では安全解析コード SIMMER-III の開発が進められている。 これらの多相流の特徴として、液相の密度が大きいため空気-水系などの通常の気液流と流動特性が異なる可能性があること、燃料固化や固体粒子の混在によって混相流の実効粘度が変化することなどが挙げられる。また、多成分系の蒸発/凝縮挙動を詳細に把握することも重要な課題である。 本研究では、基礎実験を通して SIMMER-III で用いられている運動量交換モデル、粒子混合粘性モデルおよび蒸発/凝縮モデルなどの検証および改良を行い、損傷炉心内の多相流挙動をより精確に把握することを目的とする。</p>			
<p>【研究内容 (概要)】 損傷炉心内で生ずるような高密度の液体を含む気液二相流の流動特性に関する基礎実験として、溶融金属を満たしたプール内の気泡の挙動を可視化し、画像解析によってボイド率、気泡形状および気液間の相対運動を定量化する。その結果をもとに SIMMER-III の運動量交換モデルで用いるドリフト速度式の検討や気泡の形状変化の影響を考慮してモデルの改良を行う。通常の気液二相流との比較から液密度の影響を一般化し、SIMMER-III の汎用性を拡張する。 また、固液二相流や固気液三相流において、各相の体積率や流束などの諸条件が混相流の実効粘度に与える影響を実験結果から検討し、実効粘度を評価する相関式を求める。流動様式の境界分けや、固体粒子による流路閉塞の条件も明らかにする。上記の知見から SIMMER-III の粒子混合粘性モデルの検証と改良を行う。 さらに、非凝縮性ガスが含まれる場合のプール内の気泡凝縮実験を行い、可視化画像を解析することによって気泡径の変化やボイド率を定量化する。現在の SIMMER-III では、非凝縮性ガスが混在する場合の凝縮過程を適切に再現できないため、相変化モデルを伝熱律速型から拡散律速型に改良することが検討されているが、この実験から得られる結果を用いて拡散律速型の蒸発/凝縮モデルの検証を行う。</p>			
<p>【使用主要施設】 京都大学原子炉実験所 九州大学附属環境システム科学研究センター 大洗工学センター高速炉安全性第 2 試験室</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 11 年度は、実際の溶融炉心で現れるような高密度の液体（溶融金属）を含む二相流に対して SIMMER-III コードの運動量交換モデルの適用性を検証し、解析精度を向上させるための新たなモデルを提案した。さらに、コードの検証に利用した京都大学との共同実験にも参加した。

また、多相流実験の画像解析に用いる機材を購入し、システムを構築中である。このシステムは当面の間、SIMMER-III への導入が検討されている拡散律速型の多成分系蒸発/凝縮モデルの検証実験（九州大学との共同研究）で使用する予定である。

【研究成果（当該年度）】

高速増殖炉における炉心損傷事故を適切に評価するために開発された SIMMER-III コードでは、流体力学部の運動量交換モデルに空気-水系のなどの通常の気液二相流の相関を用いている。本コードが通常の二相流の実験結果を再現できることは既に確認されているが、実際の溶融炉心プールで現れるような高密度の液体を含む二相流の挙動についても再現できることをさらに検証する必要がある。また、液相が連続相を形成し気泡が分散相として存在するような、いわゆる気泡流においては、気泡形状の変化によって気泡に働く抵抗が変化することが知られており、この効果を適切にモデル改良に反映して SIMMER-III の解析精度を向上させる必要がある。

本研究では、これまで実験データや気泡形状に関する知見が乏しかった高密度の液体を含む二相流について、京都大学との共同研究の成果を活用することにより、気泡流領域における SIMMER-III の運動量交換モデルの検証を行った。その結果、気相流束が比較的小さく、楕円状気泡が現れる場合の気泡流の挙動は従来の SIMMER-III で適切に再現されることがわかった。さらに、気相流束が比較的大きく、キャップ状気泡が現れる場合の気泡流では、運動量交換モデルにおける気泡の抵抗係数を Kataoka-Ishii の式を用いて評価すれば、SIMMER-III の予測精度は格段に向上することが明らかになった。これらの知見から気泡形状の変化に応じて気泡の抵抗係数を評価する新たなモデルを提案した。

現在までの具体的な研究内容について以下に述べる。

1. SIMMER-III の検証に用いた実験の概略

実験装置の概略を Fig. 1 に示す。実験に用いた矩形容器の大きさは幅 100mm、高さ 530mm および奥行き 20mm である。高密度の液体として溶融した鉛ビスマス（融点 397K）を用い、容器の底面から窒素ガスを吹き込んで気泡流を形成させた。ガスを吹き込む前の液高さ H_0 は 90、140 および 290mm の 3 通りに変化させ、ガス流束 j_g は 0~300mm/s の範囲で変化させた。溶融金属とガスの温度は 473K で一定である。矩形容器および溶融金属は不透明であるため、流動状態と気泡形状は中性子ラジオグラフィで可視化した。気泡形状は毎秒 500 コマの高速度カメラで確認し、ボイド率は毎秒 30 コマの SIT カメラで撮影した画像をコンピュータ処理して求めた。高速度カメラで撮影した画像からガス流束が比較的小さい場合には楕円状の気泡が確認され、大きい場合にはキャップ状の気泡が確認された。

2. 解析手法と解析体系

サイクル機構で開発中の SIMMER-III コードでは次の運動量方程式が用いられている。

$$\frac{\partial (\bar{\rho}_m V_q)}{\partial t} + \sum_{meq} \nabla \cdot (\bar{\rho}_m V_q V_q) + \alpha_q \nabla \cdot p - \bar{\rho}_q g = -K_{qs} V_q + \sum_{q'} K_{qq'} (V_{q'} - V_q) + VM_q - \sum_{q'} \Gamma_{qq'} [H(\Gamma_{qq'}) V_q + H(-\Gamma_{qq'}) V_{q'}] \quad (1)$$

この式の右辺に含まれる流体-流体間の運動量交換関数 $K_{qq'}$ は本研究で取り上げた気泡流の場合、

$$K_{qq'} = A_{qq'} + B_{qq'} (V_{q'} - V_q), \quad \text{where } A_{qq'} = \frac{3}{2} \alpha_{int} \frac{\mu_f}{r_b} \quad \text{and} \quad B_{qq'} = \frac{1}{8} \alpha_{int} \rho_f C_D \quad (2)$$

で記述される。ここで、 C_D は気泡の抵抗係数であり、オリジナルの SIMMER-III では次式で表される楕円状気泡の抵抗係数 $C_{D(E)}$ が用いられている。

$$C_{D(E)} = \frac{4}{3} r_b \sqrt{\frac{g \Delta \rho}{\sigma}} \left[\frac{1 + 17.67 \{f(\alpha)\}^{6/7}}{18.67 f(\alpha)} \right]^2, \quad \text{where } f(\alpha) = \sqrt{1 - \alpha} \left(\frac{\mu_c}{\mu_m} \right) \quad (3)$$

しかし、前述のように熔融金属を用いた実験ではキャップ状の気泡が観察されている。気泡に働く抵抗は気泡形状によって変化することが知られており、この効果を適切にモデル改良に反映して SIMMER-III の解析精度を向上させる必要がある。そこでキャップ状気泡の抵抗係数 $C_{D(C)}$ を次の式を用いて評価し、窒素-鉛ビスマス系気液二相プールの流動解析を行った。

$$C_{D(C)} = \frac{8 r_b g \Delta \rho (1-\alpha)}{3 \rho_f v_{gr}^2}, \quad \text{where } v_{gr} = \frac{V_{gj}}{1-C_0 \alpha} \quad (4)$$

ただし、 V_{gj} は Kataoka-Ishii がキャップ状気泡に対して与えたドリフト速度であり、

$$V_{gj} = \begin{cases} 0.0019 D_H^{*0.809} \left(\frac{\rho_g}{\rho_f}\right)^{-0.157} N_{\mu f}^{-0.562} \left(\frac{\sigma g \Delta \rho}{\rho_f^2}\right)^{0.25} & \text{for } D_H^* \leq 30 \text{ and } N_{\mu f} \leq 2.2 \times 10^{-3} \\ 0.030 \left(\frac{\rho_g}{\rho_f}\right)^{-0.157} N_{\mu f}^{-0.562} \left(\frac{\sigma g \Delta \rho}{\rho_f^2}\right)^{0.25} & \text{for } D_H^* \geq 30 \text{ and } N_{\mu f} \leq 2.2 \times 10^{-3} \end{cases} \quad (5)$$

で表される。(解析の対象とした実験ではプールの無次元水力径 D_H^* は 18.0 である。)

SIMMER-III による解析は Fig.2 に示したような高さ 50mm、幅 10mm の直交座標 2 次元体系で行った。ガスを吹き込む前の液高さ H_0 は実験と同じ値を与えた。ガスは実験と同じガス流束 j_g で体系底面の中央 80mm の領域から一様に吹込むことを想定した。温度条件は実験と同じである。体系上部および下部の圧力境界はそれぞれ大気圧および水頭圧と大気圧との和に等しくした。

なお、オリジナルの SIMMER-III の解析結果を Case 0、楕円状気泡の抵抗係数を式(5)および式(5)'を用いて評価した解析結果をそれぞれ Case 1 および Case 1' と呼ぶことにする。

3. 解析結果と考察

計算は熔融金属のみの単相状態から開始した。計算開始から 3~4 秒後で吹き込んだガスはプール全体に広がり、それ以降、ボイド分布は左右に揺動する。Fig. 3 はプール内のボイド分布の時間変化の様子を示したものであり、上段および下段はそれぞれ SIT カメラで可視化した実験結果および Case 1 の解析結果である。両者を比較すると Case 1 の解析結果はボイド分布の揺動の様子を定性的に再現できていることがわかる。

Case 0 および Case 1 の解析結果がプール内の平均ボイド率 $\langle \alpha \rangle_p$ をどの程度再現しているかを検討した結果が Fig. 4 である。この図から楕円状気泡が現れるような比較的小さいガス流束では Case 0 の解析結果は実験結果と比べて妥当であり、Case 1 は過少評価している。一方、キャップ状気泡が現れるような比較的大きいガス流束では Case 0 の解析結果は実験結果を 2 倍近くに過大評価しているのに対し、Case 1 は実験結果を良く再現していることがわかる。これはキャップ状気泡の抵抗が Case 0 では過大評価され Case 1 では適切に評価されているからである。

また、ガスを吹き込む前の熔融金属の液高さ H_0 は $\langle \alpha \rangle_p$ に殆ど影響を与えないことが実験と解析の双方で確認された。Fig. 5 は実験結果と Case 1 の結果を比較したものである。これは本研究の範囲では気液間の運動量交換の機構が高さ方向に変化しないためと考えられる。一方、図中の曲線は

$$\langle \alpha \rangle_p = \frac{\langle j_g^+ \rangle}{C_0 \langle j_g^+ \rangle + V_{gj}^+}, \quad \text{where } V_{gj}^+ = V_{gj} / \left(\frac{\sigma g \Delta \rho}{\rho_f^2}\right)^{0.25} \quad (6)$$

で表されるドリフト相関に Kataoka-Ishii の式(5)を代入して求めたものである。式(5)は空気-水系などの通常の気液流でキャップ状気泡が現れる場合の相関式なので、Case 1 の解析結果は高密度の液体を伴う気液流の実験結果と通常の気液流に対するドリフト相関の両方を再現できることがわかる。

上記の知見からプールの水力径 D_H^* の影響を検討する場合、通常の空気-水系の実験データを用いることができる。Fig. 6 はキャップ状気泡が現れる空気-水系で無次元ドリフト速度 V_{gj}^+ と無次元水力径 D_H^* の関係を検討した結果である。Case 0 の解析では V_{gj}^+ は全範囲にわたって D_H^* の影響をほとんど受けず、実験結果が再現できていない。これは、オリジナルの SIMMER-III では気液間の運動量交換に水力径の影響が考慮されていないためである。これに対して Case 1 および Case 1' の解析結果は水力径の広い範囲にわたって実験結果を適切に再現していることがわかる。

4. SIMMER-III の解析精度を向上させる新しいモデル

前述のように液体が高密度の場合の気液二相プールにおいて気泡流領域を SIMMER-III で解析する場合、キャップ状気泡および楕円状気泡に対して異なる抵抗係数を用いる必要があった。現在の SIMMER-III では、Fig. 7(a)に示したように、プール流の流動様式 (Flow Regime) は気泡流領域 (液体が連続相を形成する領域; $0 < \alpha < \alpha_B$)、遷移流領域 ($\alpha_B < \alpha < \alpha_D$) および液滴流領域 (気体が連続相を形成する領域; $\alpha_D < \alpha < 1$) がモデル化されている。遷移流領域 (チャーレン乱流と呼ばれる領域) は、チャーレン乱流の工学的な相関式を用いずに、気泡流と液滴流の混合流として定義されている。これによって、全ボイド率範囲にわたって数値的な連続性が保たれている。

これらの各流動様式の内、液体の密度が高い場合の気泡流領域では、ボイド率が増加すると気泡形状が楕円状からキャップ状に変化するため、気泡形状に応じて抵抗係数を使い分ける必要がある。

そこで、Fig. 7 (b)に示したように、気泡流領域において気泡形状の変化する領域は、キャップ状気泡を含む気泡流と楕円状気泡を含む気泡流の混合流とみなし、流動様式モデルの遷移流領域はキャップ状気泡を含む気泡流と液滴流の混合流として定義する。また、気泡流領域において、抵抗係数 C_D はキャップ状気泡と楕円状気泡の抵抗係数 $C_{D(C)}$ と $C_{D(E)}$ を用いて次の式で定義されると仮定する。

$$C_D = \{1 - \exp(A\alpha)\}C_{D(C)} + \exp(A\alpha) \cdot C_{D(E)} \quad (7)$$

Fig. 8 はこの新しいモデルを組み込んで解析した結果を実験結果と比較したものであり、Case 0 および Case 1 の解析結果も併記した。また、参考のためにドリフト相関から得られた結果も示した。新しいモデルを組み込んだ SIMMER-III の解析結果はボイド率やガス流束の増加とともに楕円状気泡の解析結果からキャップ状気泡の解析結果へと滑らかに移行し、気泡形状が変化する領域で実験結果と比較的良好に一致していることがわかる。

5. まとめ

実際の溶融炉心で現れるような溶融金属とガスからなるプール流に対して SIMMER-III の運動量交換モデルの適用性を検討し、予測精度を向上させるための新たなモデルを提案した。それらの内容を以下にまとめる。

- (1) 運動量交換モデルの検討…気相流束が小さい場合には楕円状気泡が現れ、大きい場合にはキャップ状気泡が現れる。楕円状気泡を含む気液二相プールの挙動は従来の SIMMER-III のモデルで再現できるが、キャップ状気泡を含む場合には気泡の抵抗係数を Kataoka-Ishii のドリフト速度式を用いて評価することで SIMMER-III の解析精度は格段に向上する。
- (2) 新たなモデルの提案…数値的な連続性を保ちながら従来のモデルと Kataoka-Ishii の式を用いたモデルとを気泡形状に応じて使い分けるには、キャップ状気泡と楕円状気泡の抵抗係数を式(7)で内挿した値を運動量交換関数で用いることが適切である。式(7)で記述される抵抗係数を用いた新たなモデルでは解析結果は実験結果を良好に再現できる。

【今後の予定 (翌年度以降の概要)】

高密度の液体を含む気液二相流に対する運動量交換モデルの検討に関しては、ダウンカマーによって循環流の効果を除いた場合の実験結果の解析を行い、液相の速度場についてさらに詳細な検討を進める。また、ボイド率および気液密度比が広範囲で変化する場合にも対処できるようにコードの改良を行う予定である。

拡散律速型の蒸発/凝縮モデルの検討および検証実験に関しては、気泡径やボイド率を精度良く計測するための画像処理システムを構築し、実験データの画像解析をすすめるとともに、このモデルを組み込んだ SIMMER-III の解析結果との比較を行う予定である。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- (1) Suzuki, T. and Tobita, Y., "Two-Phase Flows with Large Liquid Density," Summary Report of the Phase 2 SIMMER-III Code Assessment (1999).
- (2) 鈴木, 飛田, "SIMMER-III による高密度比気液二相プールの流動解析," JNC TN9400 2000-019 (2000).
- (3) Suzuki, T. and Tobita, Y., "Two-Phase Flows with High Liquid/Gas Density Ratio," 9th SIMMER Review Meeting (2000).
- (4) Suzuki, T. and Tobita, Y., "SIMMER-III Analysis of Gas-Liquid Flow with Large Liquid Density," Proc. 2nd Japan-Korea Symposium on Nuclear Thermal Hydraulics and Safety, to be submitted (2000).

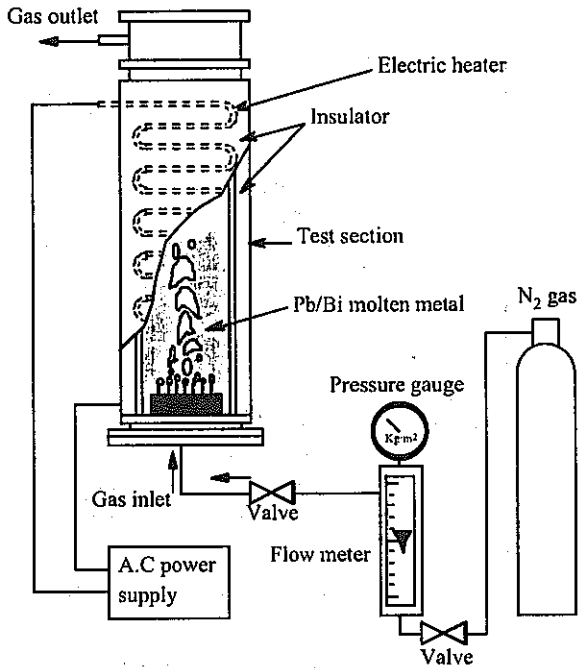


Fig. 1. Schematic drawing of experimental apparatus.

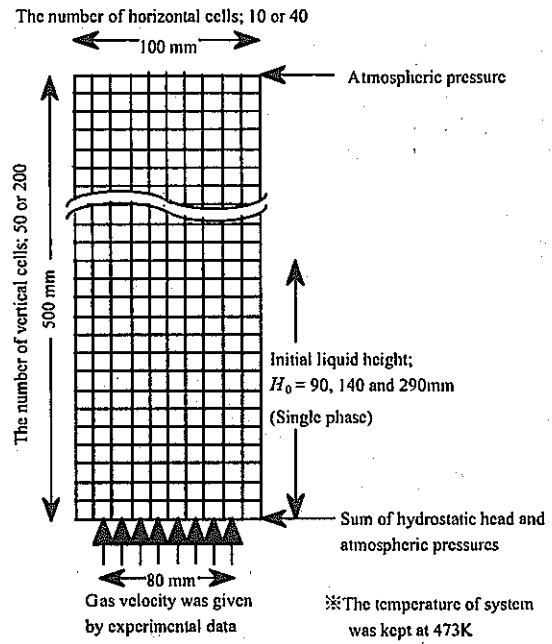


Fig. 2. Geometric model for analysis.

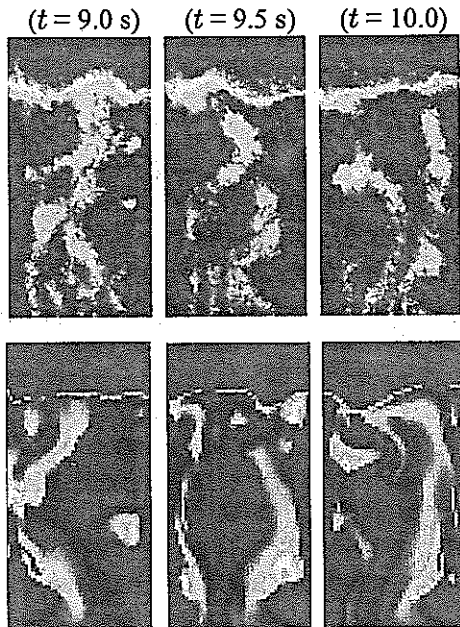


Fig. 3. Transition of void distribution for cap bubbly flow.

(upper: measured void, lower: calculated void.)

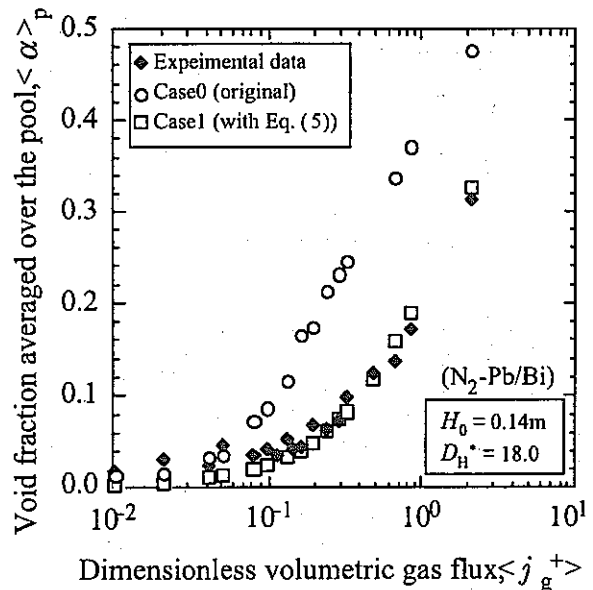


Fig. 4. Comparison of the averaged void fractions.

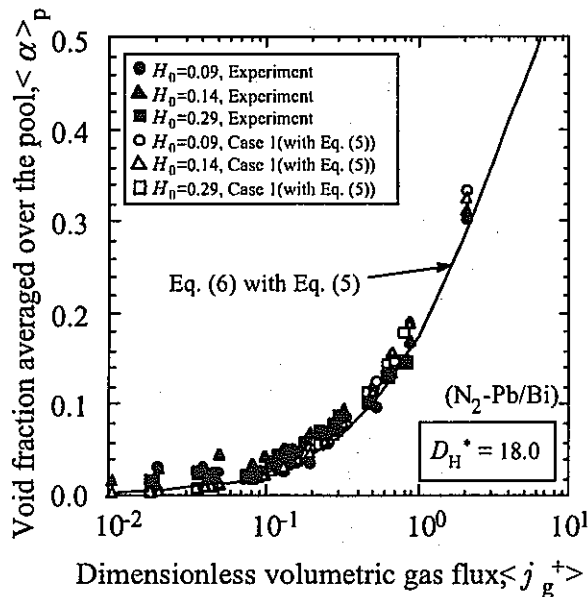


Fig. 5. Effect of initial liquid height.

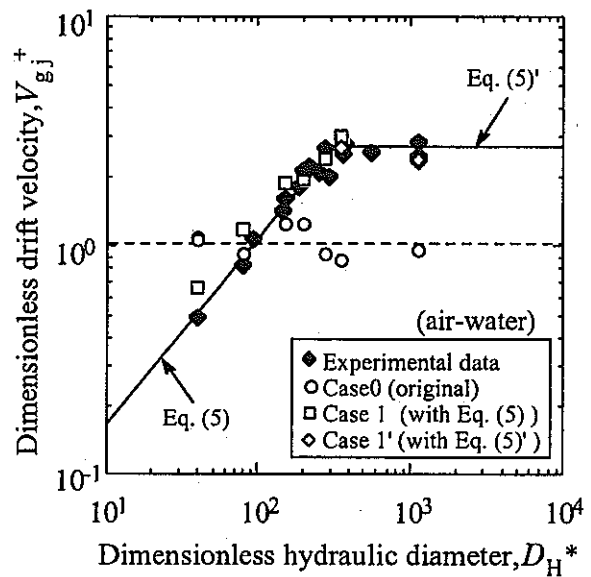


Fig. 6. Effect of hydraulic diameter.

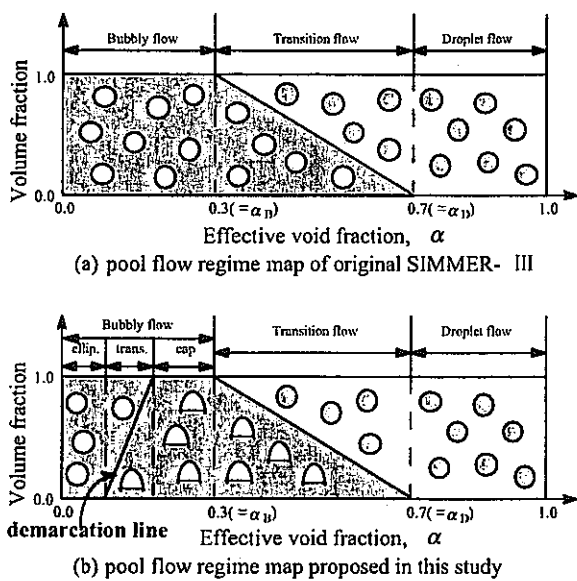


Fig. 7. Pool flow regime map.

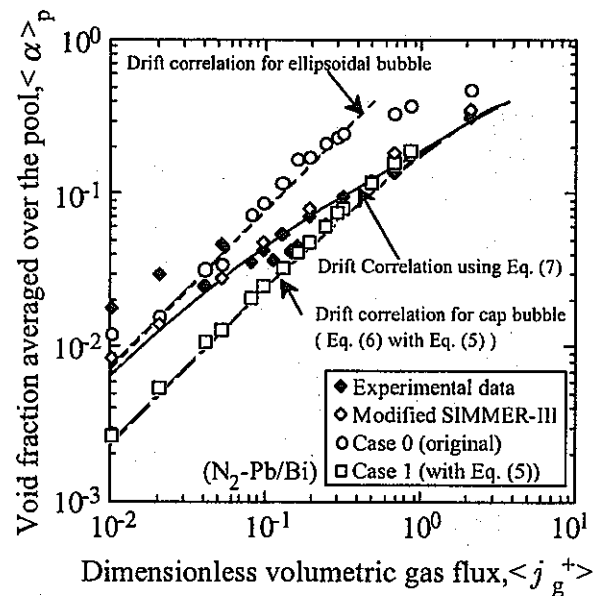



Fig. 8. Modification of simulated results.

博士研究員 (H 11) 平成 11 年度研究概要報告書

研究テーマ	多相多成分流体解析コードを用いた高温熔融燃料と冷却材の相互作用に関する研究		
研究者氏名	曹 学武		
研究協力者	飛田 吉春	所属長印	
所属・氏名	システム技術開発部 リスク評価技術開発グループ		
研究実施場所	大洗工学センター		
通算研究期間 (予定)	平成 11 年 4 月 ~ 平成 14 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 11 年 4 月 ~ 平成 12 年 3 月
<p>【研究目的】</p> <p>The FCIs, which may occur in the sequence of severe accidents in LMFBRs or in LWRs, have been one of the major issues in reactor safety analysis. A multi-phase multi-component numerical simulation tool, such as SIMMER-III, is an effective mean to study the interaction of high temperature molten materials with coolant. But, to some extent, the current models are not enough to analyze the phenomena. Due to the complexity of the physical phenomena in the process, detailed models of them, especially the jet breakup, fragmentation and propagation, are required to analyze the FCI processes and the consequences. The objective of this study is to develop and validate these models and introduce them into SIMMER-III code. This study will improve the capability of SIMMER-III model to analyze FCI process and provides the better understanding of the mechanism of mechanical energy generation in FCI process.</p>			
<p>【研究内容 (概要)】</p> <p>The physical phenomena of premixing, fragmentation escalation, propagation and jet breakup in FCIs will be modeled, included and validated in the SIMMER-III code through the simulation of experiments performed for the FCI's processes as stated in the following.</p> <p>(1) The models related to the premixing process will be developed and validated through the simulation of experiments, selected from PREMIX, the out-of-pile experiment series. The small drop of molten material surrounded by a vapor film in quasi-steady state is mainly featured in this process.</p> <p>(2) The models related to the fragmentation, and propagation process will be validated/developed through the simulation of experiments selected from KROTOS experiment series. This process features the rapid fragmentation of small molten material drops. The models will be developed, included in the code and validated.</p> <p>(3) The jet breakup model will be developed and validated through the simulation of the experiments selected from a series of JET and FARO experiments. During the reactor severe accidents, the molten material may flow into coolant as a jet and it is broken up into small droplets in-vessel or ex-vessel. Based on the observation and analysis of experiments, the model to describe the jet breakup process will be developed and included in the code. Then it will be validated through the simulation of the selected experiments.</p>			
<p>【使用主要施設】</p> <p>大洗工学センター (大型計算機、Workstation、SIMMER-III code 等)</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

The structure, algorithm and physical models of SIMMER-III were studied through the simulation of THINA 564 experiment. The FARO L-14 experiment was simulated, which suggested that the jet breakup model, the melt droplet fragmentation model and drag correlation should be verified separately. The drag correlation employed in SIMMER-III was verified through the analysis of QUEOS experiment. A drag coefficient correlation, expressed as a function of Reynolds number and Ev number, was proposed, in which the dimensionless number Ev number is newly defined. And the droplet fragmentation model on mixing region was verified through the simulation of MIXA06 experiment.

【研究成果（当該年度）】

The main research results obtained in this year are summarized in the following.

(1) Study of The Structure, Algorithm And Physical Models of SIMMER-III

The structure, algorithm and physical models of SIMMER-III were studied through the simulation of THINA 564. The large and integral FCI experiment FARO L-14 with 125 kg melt released into water was simulated by using SIMMER-III code. The simulated results suggested the jet breakup model, the melt droplet fragmentation model and constitutive laws should be verified separately through simple experiments.

(2) Analysis of QUEOS Experiment

The drag coefficient correlations developed by Ishii for ordinary two phase flow, which is employed in multi-phase, three-velocity-field fluid dynamics code, SIMMER-III, was verified through the simulation of QUEOS experiments, Q8, Q11 and Q12, in which large amount of solid spheres with low and high temperature were released into water. The calculated results show that SIMMER-III code could predict the general tendency of the behavior of sphere cloud penetration, pressure and vapor generation transient. The calculated results suggest: in the case of the cold sphere experiment Q08, the front advancement of the leading edge of the sphere cloud, given by SIMMER-III, has no much difference with the experimental data. In the case of the hot sphere experiment Q12, on the other hand, the discrepancy is seen between the calculation and the experiment, as shown in Fig. 1. The multipliers of the drag coefficient between dispersed and continuous components are employed to make the calculated results in agreement with the experimental results. The higher the temperature of the solid spheres, the lower the multipliers are employed. Since the development of the currently used correlations of drag coefficient in SIMMER-III does not consider the configuration of the hot particle surrounded with vapor film, the drag force is overestimated. By considering the results, a new drag correlation for a particle/drop with a vapor film is required for simulating the premixing of FCI. [1,2,4]

(3) Development of A Drag Correlation of A Particle/Drop With A Vapor Film

In FCI study, the configuration that the hot particles surrounded with a vapor film move in coolant liquid (continuous flow) is featured. In the current multi-phase multi-component mathematical model, the drag correlations for two-phase flow have been commonly employed. The simulation of QUEOS experiments showed that there was a big difference between the simulated and experimental results in the front advancement of the hot particle cloud moving in coolant liquid (Q11 and Q12), as shown in Fig. 1. Based on the configuration that a hot particle/drop immersed in coolant liquid is surrounded by a vapor film, a theoretical formulation of the drag coefficient between the particle/drop and coolant liquid is derived from conservative equations with the assumptions of the uniform thickness of the vapor film and the constant evaporation rate along the coolant liquid/vapor interface. Since the theoretical formulation is very complicated, which could not be employed in the multi-phase and multi-component mathematical model, a simplified drag coefficient correlation was proposed and fitted to the theoretical formulation. The developed drag coefficient correlation is expressed as a function of Reynolds number and Ev number as the following.

$$C_{D-fb} = A Re^B Ev^C$$

Where the Re is Reynolds number; the Ev is a newly defined dimensionless number to describe dynamic force given by that vapor generates from the coolant liquid/vapor interface and flows around the particle/drop in the vapor film and viscous force of the vapor, which is

$$Ev = \frac{\Gamma D^2}{\delta \mu}$$

where Γ is the evaporation rate on the coolant liquid/vapor interface; δ is the thickness of the vapor film; D is the diameter of the particle/drop; μ is the viscosity of vapor. The developed drag coefficient correlation was verified by experimental data, which is obtained from single and multi droplet/particles FCI experiments, Nelson and QUEOS. The constant A , B and C are 120.0, -2.0 and 2.1 respectively.

Finally the developed drag coefficient correlation was implemented into SIMMER-III, which was applied to simulate QUEOS experiment Q11 and Q12. The front advancement of the sphere cloud in water is shown in Fig. 2. Comparing with the previous simulated results, the developed drag coefficient correlation improves the agreement of the front advancement of the sphere cloud with the experimental data. Since the drag correlation was verified by Nelson and QUEOS experiments with the Ev and Re numbers less than 2000 and 80000 respectively, more experimental data are required to verify the developed drag correlation for the cases out of the range. [3,5,7]

(4) Simulation of MIXA-06 Experiment by SIMMER-III

MIXA06 experiment performed at Winfrith Technology Centre in which 3 kg of molten fuel simulant (81% uranium dioxide and 19% molybdenum metal at a temperature of 3600 K) were released into water is selected to validate SIMMER-III code on coarse mixing including fragmentation model. Generally SIMMER-III could predict the behavior of the pressure transient and the penetration of the melt droplets into water. Since the drag correlation is verified by using QUEOS experiment, the results of the simulation of MIXA06 suggest that the current hydrodynamic fragmentation rate model underestimates the fragmentation rate of the melt droplets, as shown in Fig. 3. In high temperature UO2 fuel coolant interaction, the thermal fragmentation mechanism caused by solidification of the melt droplets should be considered in the numerical study of the coarse mixing in company with the hydrodynamic fragmentation mechanism. The applicable fragmentation rate models are required to numerically study the premixing of FCI. Temporally a simple model is proposed for considering thermal fragmentation mechanism. Further study on the thermal fragmentation mechanisms and their fragmentation rate model is required. [6]

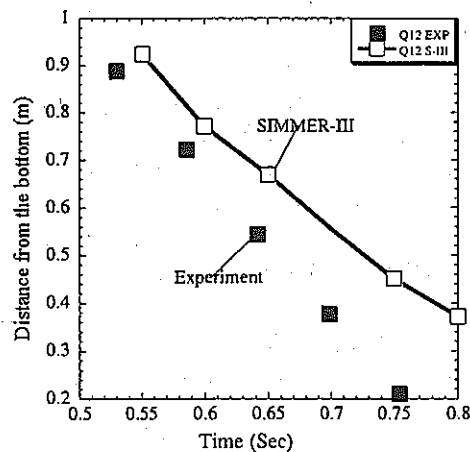


Fig. 1 Front advancement of sphere cloud in Q12 by SIMMER-III

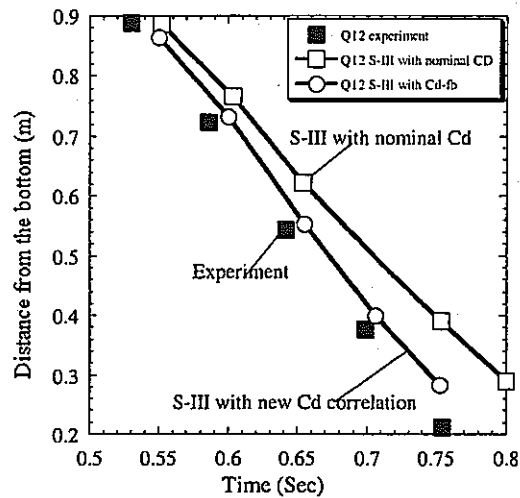


Fig. 2 Front advancement of sphere cloud in Q12 by S-III with newly developed drag correlation

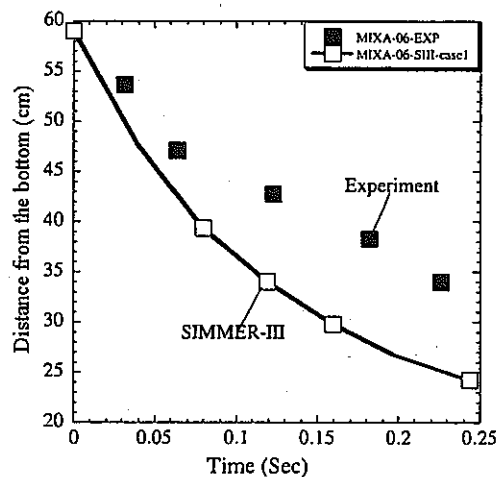


Fig. 3 Front advancement of melt droplets in MIXA-06

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

In the next two years, The research works, which are planed to do, include that the thermal fragmentation model of the melt droplets influencing on premixing region of FCI will be studied and verified through the MIXA and PREMIX experiments; The fragmentation model of melt droplets on propagation process of FCI will be validated or developed through the simulation of KROTOS experiments; The jet breakup model for simulating the jet injection into coolant, will be developed; Then the jet breakup model will be implemented into SIMMER-III and verified through the simulation of the JET and FARO experiments.


【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- [1] Xuewu Cao, Yoshiharu Tobita, Werner Mascheck and P Teyssier, Analysis of QUEOS Experiments Q08 and Q12, Summary Report on a SIMMER-III Application in the Phase 2 Assessment Program, JNC TN9401 2000-xxx (in submission).
- [2] Xuewu Cao and Yoshiharu Tobita, Simulation of Premixing Experiment QUEOS by SIMMER-III, JNC TN9401 2000-xxx (in submission).
- [3] Xuewu Cao and Yoshiharu Tobita, Study on Drag Coefficient For the Particle/Drop Under FCI

Condition, JNC TN9401 2000-xxx (in submission).

- [4] Xuewu Cao and Yoshiharu Tobita, Verification of SIMMER-III Modeling on FCI Through Simulation of QUEOS experiments, 日本原子力学会「2000年春の年会」N41.
- [5] Xuewu Cao and Yoshiharu Tobita, A Drag Correlation For Hot Particle/Drop, Journal of Nuclear Science and Technology, (in submission).
- [6] Xuewu Cao and Yoshiharu Tobita, Simulation of MIXA-06 Experiment by SIMMER-III, JNC report, JNC TN9401 2000-xxx (in submission).
- [7] Xuewu Cao and Yoshiharu Tobita, A Drag Correlation For A Hot Particle/Drop With A Vapor Film, 日本原子力学会「2000年秋の大会」(in submission).

博士研究員 (H11) 平成11年度研究概要報告書

研究テーマ	レーザー法による微量希ガス検出技術の「常陽」への適用		
研究者氏名	原野 英樹		
研究協力者	伊藤 和寛、野瀬 正一 (サイクル機構技術課) 井口 哲夫 (名古屋大学工学部教授) 中沢 正治 (東京大学工学部教授)		所属長印 
所属・氏名			
研究実施場所	大洗工学センター 照射施設運転管理センター 実験炉部 技術課		
通算研究期間 (予定)	平成11年4月 ~ 平成14年 3月	当該年度 研究期間	平成11年4月 ~ 平成12年 3月
<p>【研究目的】</p> <p>高速炉における微量希ガス検出による破損燃料検出(FFD)及び破損燃料位置同定(FFDL)技術はプラントの安全性、信頼性向上を図る上で非常に重要であるだけでなく、タグガス封入タイプの照射試料の破断検出にも適用可能であり照射技術の観点からも有望視されている。これら FFD/FFDL 技術の高度化のために超高感度微量元素分析手法であるレーザー共鳴イオン化質量分析(RIMS)法のカバーガス中の希ガス検出系への適用が提案されている。希ガス試料の分析は RIMS の得意とするところであり、原理実証等の基礎的検討を通して本手法の優れた特性が示されているが、実機を対象とした定量的かつ具体的な計測系の成立性に関する議論は未だ不十分である。そこで本研究では RIMS 装置を高速実験炉「常陽」に導入し、実機における RIMS 法の FFD/FFDL システムとしての性能実証を行なうことを目標に、詳細かつ統括的な検討を行なう。</p>			
<p>【研究内容 (概要)】</p> <p>レーザー共鳴イオン化質量分析(Resonance Ionization Mass Spectrometry:RIMS)法は波長可変のレーザー光にて共鳴イオン化した試料を更に質量分析にかける手法であり、近年、超高感度の微量元素分析や効率的な同位体分離等の先端技術として脚光を浴びている他、レーザーの性能向上と相まってさらに広範な工学分野への展開が見込まれている。この RIMS 法を高速炉に適用し、カバーガス中の希ガス分析系に応用することで、破損燃料検出(Failed Fuel Detection:FFD)法及び破損燃料位置同定(Failed Fuel Detection and Location:FFDL)法の高度化を図る試みがなされている。本研究では RIMS を高速実験炉「常陽」に導入し、実機における RIMS 法の FFD/FFDL システムとしての性能実証を行なうことを目標にする。まず「常陽」に現存する他の計測系(オンラインガンマ線モニタープレシピテータなど)との整合性を念頭に置いた上で、要求性能、設計条件、サイト固有の問題点等の抽出を行なう。次に RIMS の各構成要素毎に従来の実験室レベルにおける研究にて達成された性能との比較検討を行い、必要であれば最先端技術の導入、新開発等により更なる高性能化を図る。併せて実験室レベルでの試作や「常陽」より採取したカバーガス等を用いた評価試験を行ない、プロトタイプ設計の為に基礎データを取得する。以上の検討を基に最終設計を行ない、プロトタイプを構築、各種性能確認試験の後、高速実験炉「常陽」へ導入する。その際データ処理系を含めて現存の FFD/FFDL 系に組み込み、システム全体として信頼性の高いシステムを構築する。なお本研究は RIMS 適用について現実の高速炉実機をターゲットにする世界初の試みであり、高速炉の安全計装系の高度化のみならずタグガス封入タイプ照射試料の破断検出にも適用できることから照射技術の高度化についても貢献度が大きく、多大な波及効果が期待できると考えている。</p>			
<p>【使用主要施設】</p> <p>高速実験炉「常陽」、ナトリウム分析棟 (サイクル機構 大洗) レーザー共鳴イオン化質量分析システム、高速中性子源炉「弥生」(東大院・工・原施)</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 11 年度は RIMS 法について従来の原理実証等の基礎研究のフェーズから高速炉 FFD/FFDL への実用化のフェーズへと移行する為の第一歩として、各種設計条件の抽出作業を行なった後、関連技術の技術動向調査及びそれを基に高速実験炉「常陽」用レーザ法 FFDL システムの基本設計を行なった。

【研究成果】

平成 12 年度 3 月までの研究成果の概要を以下にまとめる。

1. 設計条件抽出

「常陽」における FFD/FFDL 系全体の要求性能や RIMS 装置の設置環境、サイト固有の問題点等を明確化していく中で、現在稼働中の計測系との整合性を考慮しつつ RIMS システムの設計条件の抽出を行なった。また平成 8 年度よりサイクル機構と名大(井口教授)、東大(中沢教授)との間で「先行基礎工学分野に関する研究協力」として主に東大院工原施の装置を用いて進行中の RIMS 法に関する基礎的検討の現状について詳細なるサーベイを行なった。現状では「常陽」にてタグガス放出実験の際に採取したカバーガス中の希ガスの同位体比の測定には 1 万から 10 万個の質量スペクトルの積算が必要であることが判った。積算回数が多いほど時間分解能が大幅に制限されるだけでなく、同位体比の測定精度にも悪影響を齎すことから、レーザ大出力化等による検出感度の向上が必要である。なお名大側が中心となって東大院工原施にて行なった実験に参加し、報告書等には現れにくい現場のノウハウや問題点等、RIMS 導入に対し有益な知見を得た。

2. システム設計

RIMS 装置は、共鳴イオン化用レーザ部と質量分析部、並びに両者をつなぐイオン化チェンバーにより構成される。各要素毎にメーカーや専門家等とのディスカッションを通して最新技術動向調査を行ない、高速実験炉「常陽」用レーザ法 FFDL システムの基本設計を行なった。基本構成を図 1 に示し以下にそれぞれの要素について概要を示す。

東大院工原施の RIMS 装置では Nd:YAG レーザ励起の色素レーザ出力の第二高調波を発生させることで、Xe に対しては 256nm、Kr に対しては 216nm により共鳴イオン化を行なっている。ただレーザ強度が弱く必ずしも効率的な共鳴イオン化が行われているとは言えないのが実状である。レーザの大強度化の為、大型の Nd:YAG レーザ、或いは Nd:YAG レーザの代わりにエキシマレーザを使用した場合、色素の劣化が促進されレーザの出力が不安定となるといった問題がある。ここでは近年進歩の著しい非線型光学素子を用いた光パラメトリック発振器(OPO)をベースにシステム設計を行なった。図 2 に構成図を示す。励起用の Nd:YAG レーザからの第三高調波(355nm)を OPO に入射することでパラメトリック発振により 445nm~1750nm までを発生する。OPO は全固体レーザシステムであるので出力等の動作特性が長期に渡って非常に安定であるという特長がある。Xe 用の 256nm 発生には OPO 出力(512nm)の第二高調波発生を用い、Kr 用の 216nm 発生には OPO 出力(552nm)と Nd:YAG レーザの第三高調波(355nm)との和周波発生を用いる。それぞれ東大院工原施の RIMS 装置の場合の 20 倍、40 倍程度のレーザ出力の向上が図れるので大幅な検出感度の向上が期待できる。

質量分析部は東大院工原施の場合と同じく反射型飛行時間方式(TOFMS)を採用した。図 3 に構成図を示す。共鳴イオン化用のレーザパルス入射に同期して試料ガス(カバーガス)を超音速分子線バルブ(PSV)によりパルス的に注入し、超高速イオン検出器(MCP: Micro Channel Plate)からの出力波形を高速サンプリングすることでイオンの飛行時間を測定し、質量スペクトルを求める。データは専用のデジタル信号処理装置(DSP: Digital Signal Processor)により積算、圧縮等の処理をリアルタイムで行ない、コンピュータに転送する。PSV による試料ガス導入に関しては、本年度東大院工原施の RIMS 装置を用いて行なった基礎実験により従来より一桁近く検出感度が向上することを確

認した。真空排気系については東大院工原施の場合と同じくターボ分子ポンプと粗引系の二段構成により質量分析部、イオン化チェンバーのそれぞれについて差動排気を行ない、更に実機に設置する場合を想定し、排気系をオイルで汚染しない為、粗引系としてはスクロールポンプを採用した。

以上説明した RIMS 装置を Xe, Kr 検出用に計二台(図 1 参照)導入する。レーザパワーの増強、PSV の導入等の工夫により、検出限界については、東大院工原施の RIMS 装置に比べ 2~3 桁向上し、数十秒から数十分のオーダーでカバーガス中のタグガスの同位体比測定が可能であると予測される。更に RIMS 法は同重体(クラスター)干渉の影響を原理的に受けないという特長により、得られる同位体比の信頼性は著しく高いことが知られており、このことは東大院工原施において実験的に実証されている。一方レーザの持つ不安定性(エネルギー、位置、各種モードなど)とレーザ共鳴イオン化の効率がエネルギー密度に対し極めて非線型に応答することから、絶対検出感度については装置性能の安定性と信頼性が特に厳しく要求される高速炉の計測系として不十分であり、何らかの補正措置が不可欠である。ここでは図 1 中央に示したように大気圧イオン化質量分析(APIMS)を用いた実時間絶対感度補正法を採用した。APIMS とは高感度ガス分析法であり、かつその絶対感度が非常に安定していることで知られている。カバーガスを模擬した予備実験評価を行ない、100ppt 以下の検出限界を有することを確認した。また半導体プロセスやガスプラント等において豊富な稼働実績を有している。一方、コロナ放電をイオン源に使うため、同重体干渉の影響は不可避であるが、その影響を受けない同位体のみをモニターすることで RIMS の絶対感度のリアルタイム補正が可能である。今後、各コンポーネント毎に導入、各種調整、試験を実施する。更にそれらを統合し高速実験炉「常陽」用レーザ法 FFDL システムを組み上げ、実機への適用性評価を含む性能実証試験を実施する。

【今後の予定 (翌年度以降の概要)】

平成 12 年度は、導入された各コンポーネント毎に各種調整、試験を実施する。

平成 13 年度は、それらを統合し高速実験炉「常陽」用レーザ法 FFDL システムを組み上げ、実機への適用性評価を含む性能実証試験を実施する。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

「共鳴イオン化質量分析法を用いた破損燃料検出システムの開発 (4)」

名大・工 ○渡辺賢一、荻田利幸、渡邊武志、河原林順、瓜谷章、井口哲夫

サイクル機構・大洗 原野英樹、野瀬正一

日本原子力学会 2000 年春の年会(2000 年 3 月 愛媛大学) L3

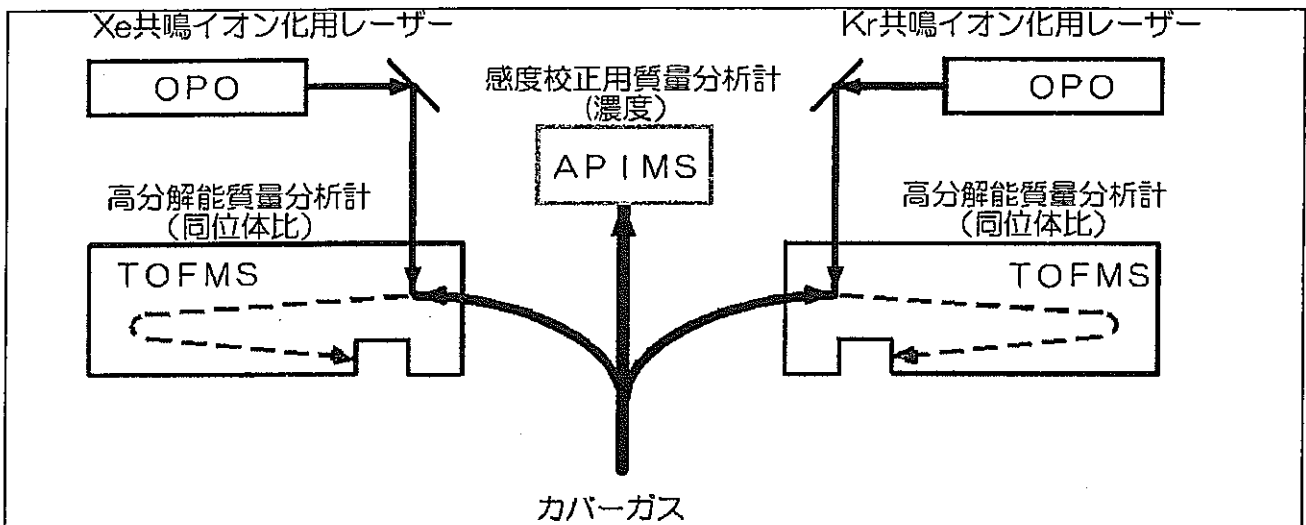


図1 「常陽」用レーザー法FFDLシステム

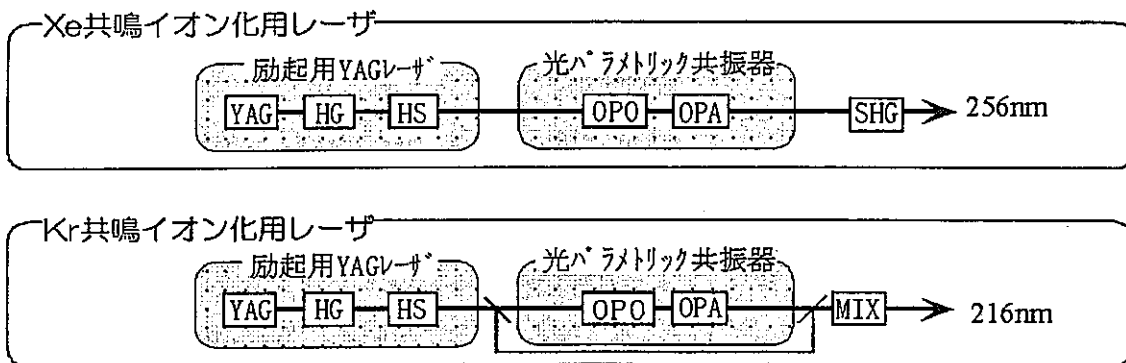


図2 共鳴イオン化用OPOレーザー

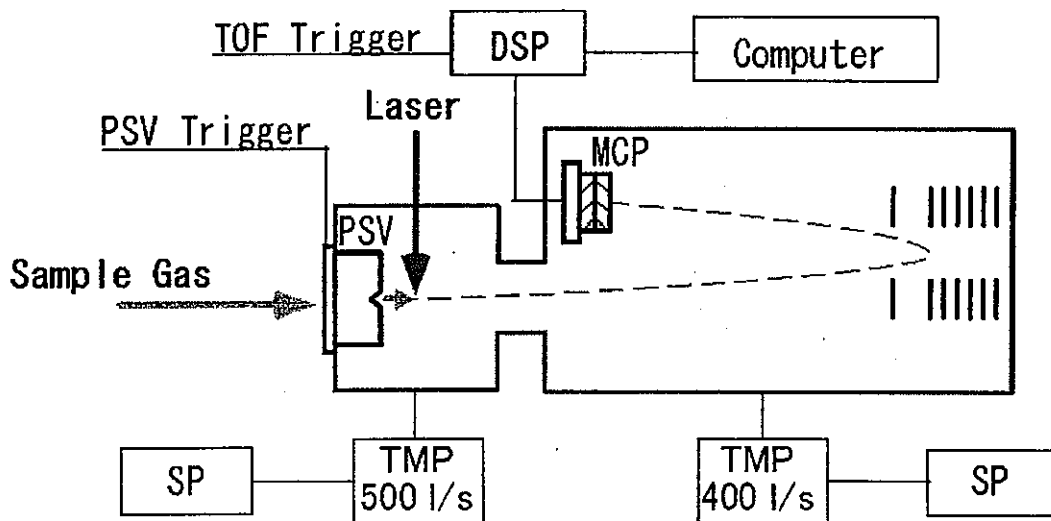


図3 反射型飛行時間型質量分析システム