

博士研究員による平成9年度及び
平成10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 Section,

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

JNC TN1400 2000-006

2000年7月

博士研究員による平成9年度及び平成10年度研究概要報告

報 告 者 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的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、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から研究テーマを公募する。若手研究者には、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させるとともに、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9年度及び平成10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。

一 目 次 一

1. 博士研究員による平成9年度及び平成10年度研究テーマ一覧	i
2. 博士研究員による平成9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効果	7
3. 博士研究員による平成10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	10
(2) 高温下におけるキャビティ生成・成長の加速・抑制因子	13
(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効果	17
(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	26
－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	30
(6) C M P O - T B P 系における抽出のモデル化及び数値ミュレーションに関する研究	34
(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	47
(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	51
(11) 地球化学的調査に基づいた地下水流动に関する研究	56

博士研究員による平成9年度及び平成10年度研究テーマ一覧（1／2）

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 和楨	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 ナトリウム・安全工学試験部 機器・構造安全工学グループ	上野 文義 (注1) 小峰 龍司
	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 貽アリヤ 性能研究グループ	柴田 雅博
	5	土鷹 心鷹 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	CMPD-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 振戎	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 ナトリウム・安全工学試験部 機器・構造安全工学グループ	青砥 紀身
	8	千島 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	田中 健哉 原田 秀郎 中村 雅弘

(注1) 平成9年度の研究協力者

博士研究員による平成9年度及び平成10年度研究テーマ一覧（2／2）

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	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 廻避・研究開発センター 処分研究部 廻りア性能研究グループ	亀井 玄人
	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 勝茂 伊藤 雅人 阿部 雅人 渡辺 雅人

2. 博士研究員による平成9年度研究概要報告

博士研究員（H9）平成9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	核燃料技術開発部 先端技術開発室 原田 秀郎		所属長印 
研究実施場所	東海事業所 核燃料技術開発部 先端技術開発室		
通算研究期間 (予定)	平成 9年11月 ~ 平成12年10月	当該年度 研究期間	平成 9年11月 ~ 平成10年 3月
<p>【研究目的】 本研究の目的は、(1) 動燃・核開部・先端室でこの度新たに開発された、高分解能高エネルギーγ線スペクトロメータ及びレーザー光の逆コンプトン反応により生成される単色高エネルギーγ線を用いて、質量数10~100程度の原子核の巨大双極子共鳴の微細構造を探索・研究し、光核反応による核分裂生成核の消滅処理のための基礎データを蓄積すること、及び(2) 実験炉から得られる熱中性子を核分裂生成物(FP)に照射し、生成した核からのγ線を測定することにより、FP核の熱中性子吸収断面積を精度良く測定することである。</p>			
<p>【研究内容（概要）】</p> <p>[軽核の光吸収断面積の微細構造の研究] 現在原子力業界では、原子炉中で生成される核分裂生成物(FP)を光吸収反応を用いた核変換により消滅させる方法が検討されている。光吸収反応を効率的且つ経済的に行えることを見通すためには、反応断面積の大部分が集中する巨大双極子共鳴(GDR)領域(γ線エネルギー十数MeV)の断面積を精密且つ正確に知る必要がある。本研究では、高分解能高エネルギーγ線スペクトロメータ(HHS)及びγ線透過法を用い、先ず既にGDR領域に微細構造が観測されている質量数10~20前後の核のGDR構造のより高分解能の測定を行うことにより微細構造の成因を明らかにし、次いでFP近傍核の光吸収断面積の精密測定及び微細構造の探索を行う。</p> <p>[FP核の中性子吸収断面積の精密測定] FP核の消滅処理方法としては、上記の光吸収反応による核変換の他に、熱中性子の吸収による方法も検討されている。この方法でも同様に、中性子吸収の断面積値を正確に知ることが必要であるが、現在文献等で用いられている値は1960年代に得られた値であり、精度は余り良くない。そこで、近来、性能が飛躍的に向上したγ線検出器を用い、FP核による熱中性子吸収反応生成物及びその娘核から放出されるγ線を測定して元のFP核の中性子吸収断面積を求める放射化法が用いられだしている。本研究では、特に放射化法を用いた單一γ線のみの測定では精度良く測定することが出来なかった99Tc核の熱中性子吸収断面積を、同時計測法を用いることにより精密に測定する。</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)、パソコン・コンピュータ (工技院 電総研 電子線加速器・蓄積リング、レーザー発生装置、立教大学 原子炉)</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成9年度は、O 1 8核の光吸収断面積の微細構造探索実験及び、Z r 9 4, 9 6, S e 8 0, 8 1, S n 1 2 4核の中性子吸収断面積測定実験を行うとともに、ボロン核の光吸収断面積測定のための照射標的の製作、T c 9 9核の中性子吸収断面積の精密測定に必要なR u 1 0 0核の γ 線絶対強度を測定するための同時計測リストデータ取得系の開発を実施した。

【研究成果】

平成10年3月までの研究成果の概要をまとめる。

（1）軽核の光吸収断面積の微細構造の探索

これまで核変換研究グループで行ってきた γ 線透過法によるO 1 8核の1 3 M e V以下の γ 線吸収断面積測定に引き続いて、同核の1 3 - 1 6 M e Vの γ 線吸収断面積測定実験を行った。従来、光吸収断面積は、飛行陽電子の消滅による高エネルギー γ 線を用いて測定されてきたが、この方法では入射する γ 線のエネルギーを精密に決定することが困難であった。今回の透過法を用いた測定によって、これまで単独の吸収ピークとして観測されていたものが、実際は複数の細い吸収ピークにより構成されていることを明らかにした。今後は、同手法をB 1 0及びC 1 3核に応用して研究を継続していく予定であり、現在ボロン核の照射試料の製作及び、同手法をより多くの核に適用するために必要となるレーザ光強度の自動減衰装置の仕様の策定及び標的交換装置との連動化を行っている。

（2）F P核の中性子吸収断面積の精密測定

放射性廃棄物の消滅処理において重要な核種C s 1 3 7, S r 9 0, T c 9 9, I 1 2 9核の中性子吸収断面積の放射化法を用いた精密測定に引き続き、その周辺核であるZ r 9 4, 9 6, S e 8 0, 8 1, S n 1 2 4核の中性子吸収断面積の測定を行い、現在データ解析を進めている。又、以前の実験で得られたT c 9 9核の断面積を導出する際にはR u 1 0 0核の γ 線絶対強度に古い文献値を用いているが、現在この絶対強度を精密に再測定すべく準備を進めている。具体的には、これまで単一の γ 線のみの測定を行ってきたため、R u 1 0 0核からの γ 線の計数からその親核であるT c 1 0 0の放射能を算出するためにはR u 1 0 0の γ 線絶対強度値が必要となつたが、同時計測の手法を用いることにより、 γ 線絶対強度及び親核の放射能を同時に決定することが出来る。これまでに、同時計測を行うために必要となる、C A M A C規格データ収集系制御システム及びパーソナルコンピュータを用いたリストモードのデータ収集ソフトウェアをほぼ完成させた。現在は、標準線源を用いて、同システム全体の性能テストをおこなっている。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成10年度は、新型Ge検出器の性能評価、ボロン10核の照射実験、同時計測用データ収集系の試験、Ru核のγ線絶対強度測定実験を実施する予定である。

平成11年度は、ボロン11核の照射実験及びγ線絶対強度測定のまとめを実施する予定である。

平成12年度は、光吸収断面積の微細構造の研究において、FP近傍核への応用研究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】

特になし

博士研究員（H9）平成9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・成長因子		
研究者氏名	向井将一		
研究協力者 所属・氏名	安全工学部 機器構造安全工学室 小峰龍司	所属長印	(補原)
研究実施場所	大洗工学センター 安全工学部 機器構造安全工学室		
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 9年10月 ~ 平成10年 3月

【研究目的】

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。

【研究内容（概要）】

本研究では、代表的な高温構造材であるSUS304を対象として、種々の試験温度、ひずみ速度およびひずみ波形等を変化させて系統的なクリープ疲労試験を行うとともに、試験終了後に試験片組織観察を行い、キャビティの生成・成長に影響を及ぼすと考えられる以下の点について検討する。

- (1) 温度
- (2) ひずみ履歴
- (3) ひずみ波形
- (4) 結晶粒径
- (5) 応力多軸性

さらに、上述の各検討事項に関する試験のうちそれぞれ、クリープによる損傷が著しいと考えられる試験条件について、適時組織観察を行うことにより、全寿命において、これらの因子がキャビティの生成・成長過程におよぼす影響について検討する。

【使用主要施設】

- (1) 単軸・多軸疲労試験機、単軸・多軸クリープ試験機
- (2) 走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡

【進歩状況（当該年度までの概要）】

平成9年度は設備安全対策のため試験装置が使用できなかったため、主に研究テーマに関連する文献調査を行った。

【研究成果】

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。クリープ疲労の損傷メカニズムは、結晶粒界に生じた析出物やキャビティが発生・成長し、やがて微小き裂となり破損に至る。このような材料内部で生じるクリープ疲労損傷がどのようなメカニズムで進行していくのか、キャビティや析出物等の損傷機構を明らかにする必要がある。

クリープの場合、キャビティは粒界における格子欠陥や析出物を核として発生し、数ミクロンの大きさになるまでの成長は、拡散や結晶粒の変形が寄与すると考えられるのに対して、クリープ疲労においては、クリープの影響に加え、くり返し過程での非可逆的転位の増殖に伴う粒界での不均一なひずみ集中がキャビティの発生を著しく助長すると考えられる。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成10年度はクリープ疲労における組織変化とキャビティ生成成長因子との関係について検討を行う。

平成11年度はクリープにおける組織変化とキャビティ生成成長因子との関係について検討を行う。

平成12年度はこれらのにおける組織変化とキャビティ生成・成長因子との関係よりを明らかにする。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

博士研究員(H9) 平成9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、中間子交換と相対論的效果		
研究者氏名	和田 浩明		
研究協力者 所属・氏名	核燃料技術開発部 先端技術開発室 原田 秀郎		所属長印
研究実施場所	東海事業所 核燃料技術開発部 先端技術開発室		
通算研究期間 (予定)	平成 9年10月 ~ 平成12年 9月	当該年度 研究期間	平成 9年10月 ~ 平成10年 3月
<p>【研究目的】 ウラン238を燃料とした核分裂反応による原子力発電では、ストロンチウム90やセシウム137等の放射性元素が最後まで残る。これら放射性廃棄物の原子核に光子を入射して中性子を核外へ弾き跳ばすような「光核反応」を起こせば、後に残された放射性同位核の寿命を短くすることが出来る。原子核が光を吸収する断面積には「巨大双極子共鳴」という、光子の入射エネルギーが数十MeV付近で数MeV程の巾の広いピークが存在する。しかし、この程度の吸収断面積の大きさでは、入射光子のエネルギーのほとんどが電子対生成反応に使われてしまい、経済効率の点からより大きなピークが必要である。そこで、本研究では巨大双極子共鳴よりも低い入射エネルギーの領域でより大きなピーク(この巾は非常に狭いと予想される)が存在する可能性を理論的な方法で検討する。</p>			
<p>【研究内容(概要)】 光核反応の入射光子エネルギーに対する反応断面積や巾を理論的に求めるために、殻模型の方法を用いる。ただし、ストロンチウム90やセシウム137といった、多数の核子を含む原子核を殻模型で取り扱うことは非常に困難であるので、本研究では核子の数がより少ない酸素16, 17, 18を対象にする。酸素16の核は陽子と中性子を8個ずつ含んでいて非常に安定であり、閉じた殻とみなせる。酸素17の核は酸素16よりも中性子が1個多い同位体である。この原子核の状態は、(酸素16の)閉殻状態の原子核に中性子が緩やかに束縛されている。同様に、酸素18の核では閉殻の外側に2個の中性子が結合している。ところで、セシウム137の核内の中性子は閉殻状態(82個)で、ストロンチウム90の核は閉殻(50個)の外に2個の中性子が結合している。このように、酸素16とセシウム137、そして酸素18とストロンチウム90はそれぞれ閉殻の外にある中性子の数が同じだという共通点がある。</p> <p>最初に、殻模型として簡単な酸素17を標的とした光核反応を検討する。この反応の簡単なイメージとして、閉殻外の1個の中性子が外から入射してくる光子によって束縛エネルギーを超えるようなエネルギーを与えられたときに、原子核外へと弾き跳ばされると考える。このようにして、注目する中性子を束縛ボテンシャル内の1粒子状態として定式化する。次に、酸素16を標的とした場合、光子は閉殻内の中性子と相互作用し、この中性子が外に飛びだす。その結果、残された核の閉殻に中性子の空孔ができる。よって、空孔状態の記述に工夫が必要だが、基本的に上述の酸素17と同じ計算方法を応用できる。酸素18が標的の光核反応では、閉殻外の2個の中性子による互いの対相互作用も取り入れる。</p>			
<p>【使用主要施設】</p> <p>パーソナルコンピュータ</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成9年度は、閉核に中性子1個が緩やかに結合している原子核（たとえば酸素17）を標的とした光核反応を理論的に解析するため、遷移振幅の定式化を行った。また、核子1粒子の波動関数を解析的に求め、同時に数値計算プログラムの作成を実施した。

【研究成果】

平成10年3月までの研究成果の概要をまとめる。

（1）核子1粒子状態に対する光核反応の定式化

光核反応の反応断面積を独立1粒子模型によって定式化した。入射光子 γ が核内の核子N = (p, n)と直接に電磁相互作用をして励起エネルギーを与え、その大きさが束縛エネルギーを越えると核子が核外へ跳ぶと考える。反応前の状態（始状態）として核子1個と光子1個を合わせた（直積）状態 | N, γ >、反応後の状態（終状態）として核子1個のみの状態 | N, 0 >と記述すると、電磁相互作用による始状態の時間変化は、核子と入射光子 γ との電磁相互作用ハミルトニアン H_{em} によって $\exp(-iH_{em}t/(h/2\pi)) | N, \gamma \rangle$ と与えられる。このことから、反応の遷移振幅は $\langle N, 0 | H_{em} | N, \gamma \rangle$ となり、この遷移振幅から反応断面積を定式化した。

（2）核子1粒子の波動関数の数値計算プログラム作成

現実の原子核について（1）による結果を使うためには、核子の反応前と反応後での波動関数を知る必要がある。そこで、核子を核内に束縛するポテンシャルとして殻模型のポテンシャルを使用することにするが、現在は前段階として3次元球対称なウッズ・サクソン型ポテンシャル $V(r)$ だけを扱い、スピン・軌道ポテンシャルは取り入れていない。

核内核子の極座標表示による波動関数 $R_{nl}(r) Y_l^m(\theta, \phi)$ を求めるために、まづ動径 r 部分のシュレディンガー方程式 $-(h/2\pi)^2/(2m) \times d^2 u(r)/dr^2 + [V(r) + l(l+1)(h/2\pi)^2/2m/r^2] u(r) = E u(r)$

（ここで、 $u(r) = r R(r)$ とおいた）を連続法を用いて数値的に解くプログラムを作成した。

ウッズ・サクソン型ポテンシャルは球対称であるので、角度 θ, ϕ 部分の波動関数は球面調和関数 $Y_l^m(\theta, \phi)$ である。軌道角運動量量子数 l と軌道磁気量子数 m はそれぞれ、 $l=0, 1, 2, \dots$ と $m=-l, -l+1, \dots, -1, 0, 1, \dots, l-1, l$ といった値をとるが、 $m \geq 0$ のときの球面調和関数は

$$Y_l^m(\theta, \phi) = (-1)^m [(2l+1)/(4\pi) \times (1-m)!/(1+m)!]^{1/2} P_l^m(\cos\theta) \exp(im\phi)$$

と表され、 $m < 0$ の場合は

$$Y_l^{-m}(\theta, \phi) = (-1)^{-m} Y_l^m(\theta, \phi)^*$$

である。 $P_l^m(\cos\theta)$ はルジャンドル陪関数であり、これを数値的に計算して球面調和関数を得るプログラムを作成した。実際には、初めに $P_0^0(\cos\theta) = 1, P_1^0(\cos\theta) = \cos\theta$ を

用意しておき、漸化式

$$(1-m+1) P_{l+1}^m(\cos\theta) = (2l+1) \cos\theta P_l^m(\cos\theta) - (l+m) P_{l-1}^m(\cos\theta)$$

と

$$(1-\cos\theta)^{1/2} P_l^m(\cos\theta) = [(l+m-1) P_{l-1}^{m-1}(\cos\theta) \\ - (l-m+1) \cos\theta P_{l-1}^{m-1}(\cos\theta)]$$

を用いて次々に任意の量子数 l, m での $P_l^m(\cos\theta)$ を求めていく。

さらに、反応後に核から飛び出した核子の波動関数としては自由粒子の球面波解 $i^1 / (h/2\pi)$ $(2mk/\pi)^{1/2} j_1(kr) Y_l^m(\theta, \phi)$ を使う。この波動関数の数値解を得るために、球面調和関数のときと同様に球ベッセル関数 $j_1(kr)$ を漸化式

$$j_{l+2}(r) = 2(1+3/2) j_{l+1}/r - j_{l-1}(r)$$

から数値的に計算した。初めに用意する関数としては $j_0(r) = \sin(r)/r, j_1(r) = \sin(r)/r^2 - \cos(r)/r$ を用いた。

以上のように、核子の反応前と反応後の波動関数を数値的に求めるため、プログラムの基本的な部分を作成し終えた。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成10年度は、本年度で得た結果を利用して、酸素17（中性子1粒子状態）での光核反応の解析を実施する予定である。

平成11年度は、酸素16（中性子1粒子1空孔状態）での光核反応の解析を実施する予定である。

平成12年度は、酸素18（中性子2粒子状態）での光核反応の解析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】

特になし

3. 博士研究員による平成10年度研究概要報告

博士研究員（H9）平成10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 和楨		
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 10 年 10 月 ~ 平成 10 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な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%もあるものも少なくなく、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ティ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、光核反応による消滅処理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) <u>FP核の中性子吸収断面積の精密測定</u>: 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、$\gamma$線放出確率の高精度測定に通常用いられる$4\pi\beta-\gamma$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ティックシンチレータを用いた$\beta-\gamma$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線放出確率及び熱中性子吸収断面積を精密に測定する。</p> <p>(2) <u>光吸収断面積の微細構造の研究</u>: 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レーザー逆コンプトンγ線透過法のHHS(分解能約15keV)を用いた測定により、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、パソコン・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、光核反応断面積の研究においては、 ^{13}C 、 ^{10}B 、 $^{\text{nat}}\text{Si}$ 原子核の光吸収断面積の測定実験を行ない、実験データの解析を行なった。又、熱中性子吸収断面積の精密測定に関しては、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(2.2~10 分)である ^{27}Al 、 Mg 、 ^{51}Ti 、 Sc 核の γ 線放出率を算出するテスト実験を行なった。

【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。

(1) 光吸収反応断面積の微細構造の研究

これまで旧動燃核変換研究グループで行なってきた、HHS を用いた γ 線透過法による ^{18}O 核の～16MeV までの γ 線吸収断面積の精密測定に引き続き、[1] ^{13}C 核の 15.1MeV 準位吸収ピークの観測による HHS の性能の実証実験、[2] ^{10}B 核の、励起エネルギー 7.5MeV 付近の微細構造の探索、[3]Si 核の光吸収断面積の微細構造探索実験、[4]データ解析手法の精密化及び HHS 応答関数の整備を行なった。

- [1] ^{13}C の実験では、幅及び断面積が既知の 15.1MeV 準位による吸収を HHS で観測することにより、HHS の高エネルギー γ 線に対する分解能が 15MeV 付近で 12keV(0.08%) であることを実証した。
- [2] ^{10}B の実験では、[1]で高エネルギーの γ 線に対して十分に分解能が高い事が示された HHS を用い、7.5MeV 付近での高エネルギー γ 線の微細構造を確定した。
- [3] 同様の手法により Si 核の光吸収断面積の微細構造を 15～22MeV 領域で探索する実験も行ない、現在解析を行なっている。
- [4] 実験データをアンフォールディングして光吸収断面積を引き出す為に必要な、エネルギー領域 5 ～25MeV の γ 線に対する HHS の応答関数を、モンテカルロ・シミュレーション・コード EGS4 を用いて整備した。この応答関数を用いて観測スペクトルをアンフォールディングすると、得られたスペクトルの高エネルギー端に、入射 γ 線の分布には無いこぶが出来てしまうことが分かった。シングルエスケープピークを人為的に低下させた応答関数を用いてアンフォールディングを行なった場合はこぶが出来ないことから、こぶの出来る原因是シミュレーションに取り込まれていない何らかの要因でシングルエスケープ成分を実際よりも大きく見積もってしまっているためであることが分かった。

(2) FP 核の中性子吸収断面積の精密測定

放射化法を用いて单一の 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、高精度測定の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なってきた。

平成 10 年度は、[1]前年度に引き続き β - γ 及び γ - γ 同時計測用データ収集ソフトウェアの整備・改良、[2]標準線源からの γ 線の γ - γ 同時計測による同時計測システムの性能テスト、及び線源の放射能の高精度決定、[3]実験炉の中性子を用いて放射化した短寿命核の γ 線放出率の β - γ 同時計測により決定する実験を行なった。

- [1] データ収集ソフトウェアを改良し、動作の高速化を図った。又、収集中のデータをオンラインで解析・モニターする機能を付加した。
- [2] 同システムを用いて、 ^{60}Co γ 線標準線源からの γ 線の同時計測実験を行なうことにより、同システムによって線源の放射能が精密に求められることを実証し(誤差 5%)、同システムの有効性を確認した。現在、同時計測システムの有効性を更に高い精度で検証すると共に、單一 γ 線測定の際に検出器の γ 線検出効率を高精度で決定出来るようにするために、線源の放射能をカタログデータ(誤差 1.5%)よりも精密化する実験を行なっている。
- [3] 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)、 ^{27}Mg (半減期 9.458 分)、 ^{51}Ti (半減期 5.76 分)、及び、長寿命で放出確率が非常に小さい γ 線がある ^{46}Sc (半減期 83.8 日)等の核から放出される β 線・ γ 線の同時計測を行い、上記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。

行なった。現在実験データの解析中であるが、この手法によって半減期数分以下の短寿命核の放射能及び γ 線放出確率を約1.5%の精度で出来る見通しを得た。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成11年度は、高エネルギー γ 線に対するHHS検出器の応答関数の精密化、重核の光吸収断面積の微細構造の探索、及び β - γ 同時計測の手法を用いた ^{99}Tc の熱中性子吸収断面積及び ^{100}Ru 核の γ 線放出確率の精密測定実験を行なっていく予定である。

平成12年度は、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】

“ γ - γ 同時計測による線源強度の高精度測定”日本原子力学会「1998年秋の大会」

“ $^{80}\text{Se}, ^{94,96}\text{Zr}, ^{124}\text{Sn}$ の熱中性子吸収断面積と共鳴積分の測定”(同上、共著)

“Construction of a γ - γ and β - γ Coincidence Measurement System for Precise Determination of Nuclear Data”1998年核データ研究会

“Measurements of Thermal Neutron Capture Cross Sections for some FP Nuclides”(同上、共著)

“光核反応断面積微細構造の研究(II)”日本原子力学会「1999年春の大会」(共著)

“Super High Resolution Measurement of Fine Structure in the Total Photonuclear Cross Section of ^{13}C ”Journal of Nuclear Science and Technology, 35, 733 (1998) (共著)

博士研究員（H 9）平成10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10年 4月 ~ 平成11年 3月

【研究目的】

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。

【研究内容（概要）】

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1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。しかしながら、連続観察によるキャビティの成長挙動を実験的に把握することは必ずしも容易ではないため、計算機シミュレーションによる成長解析が有効な手段と考えられる。

本研究では、結晶粒界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。

【使用主要施設】

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

【進捗状況（当該年度までの概要）】

多軸応力下でのキャビティの成長をシミュレーションをおこなうにあたり、基礎的検討として、単軸応力下で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した。

【研究成果】

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。キャビティ表面の拡散による原子フラックスは J_s は、表面の曲率 κ に依存し、

$$J_s = \frac{D_s \gamma_s}{kT} \left(\frac{\partial \kappa}{\partial s} \right) \quad \dots \dots \dots (1)$$

なる関係で表される。ここで、 D_s は表面拡散係数、 δ_s は表面拡散層の厚さ、 γ_s は表面エネルギー、 k はボルツマン係数、 T は温度、 s は表面に沿った距離である。これより、表面上における法線方向の相対変位速度は

$$\nu = \frac{D_s \delta_s}{\Omega kT} \left(\frac{\partial^2 \kappa}{\partial s^2} \right) \quad \dots \dots \dots (2)$$

であらわされる。一方、粒界に沿う原子の拡散は

$$J_b = \frac{D_b}{kT} \left(\frac{\partial \sigma_n}{\partial s} \right) \quad \dots \dots \dots (3)$$

となり、質量保存式を考えると

$$\frac{D_b \delta_b \Omega}{kT} \left(\frac{\partial^2 \sigma_n}{\partial x^2} \right) + \frac{d\delta}{dt} = 0 \quad \dots \dots \dots (4)$$

となる。ここで、 $d\delta/dt$ は粒界への原子の堆積速度である。粒界とキャビティ表面での会合点では、熱力学的なエネルギーバランスが保たれるので、粒界自由エネルギーを γ_b とすると、

$$2\gamma_s \cos \psi = \gamma_b \quad \dots \dots \dots (5)$$

を満たす平衡角 ψ が保たれる。また、キャビティ先端での曲率は粒界拡散によるキャビティ先端からの原子の流出に関する関係より、以下の方程式であらわされる。

$$\kappa_{tip} \equiv \frac{\sigma_n}{1-a/W} \left[1 - \frac{2W(1-a/W)^2}{3F\sigma_n} \left(\frac{\partial \kappa}{\partial s} \right)_{tip} \right] \quad \dots \dots \dots (6)$$

ここで、 F は粒界拡散と表面拡散の割合 ($F=D_b \delta_b / D_s \delta_s$) である。

解析は図1の形状を離散化し(5)の境界条件の下で差分法により(2)を解くことにより求まる。なお、解析は $W=10$ 、 $A_0=1$ 、 $\sigma=4.5$ の条件で行い、得られた各値は適当な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。

これより、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る。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

- (1) 2 結晶粒でのモデルを 3 結晶粒に拡張し、粒界三重点に 1 つのキャビティを想定して① 3 つの粒界のなす角度② 主応力比の変化③ 主応力と粒界のなす角度、を変化させた場合についてキャビティの成長挙動を解析する。
- (2) 試験終了後の組織観察結果と解析結果を比較し解析の妥当性について検証する。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

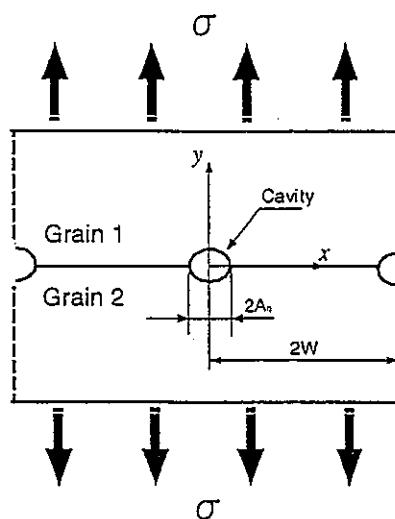


図 1 解析モデル

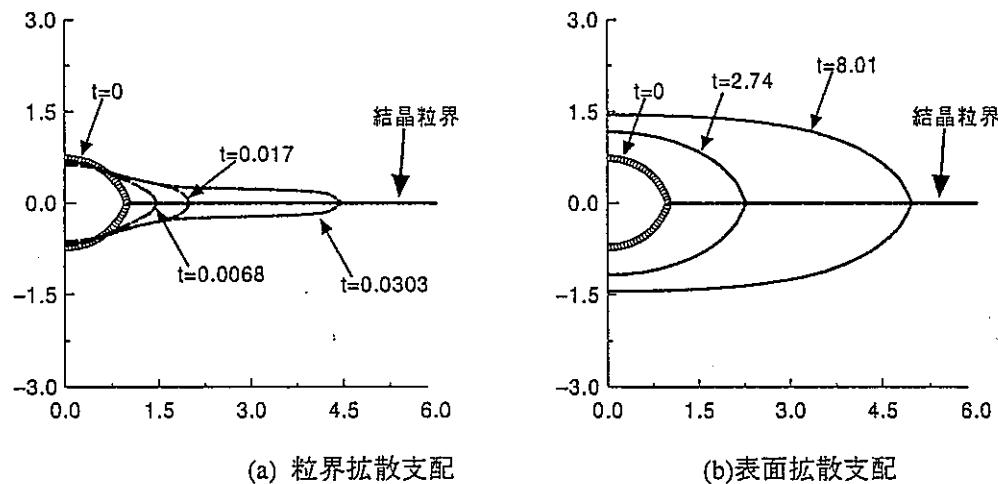


図 2 粒界拡散/表面拡散の割合の違いによるキャビティの成長挙動

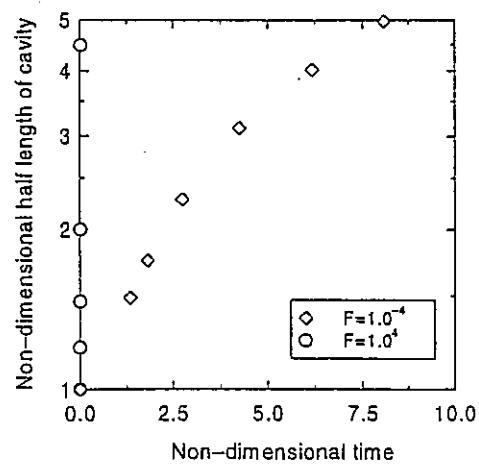


図 3 時間とキャビティ半径との関係

博士研究員（H9）平成10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、中間子交換と相対論的效果		
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 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 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 9月	当該年度 研究期間	平成10年10月 ~ 平成11年 3月
<p>【研究目的】</p> <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、長波長近似を使えない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>			
<p>【研究内容（概要）】</p> <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よ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ことがある。本研究では、原子核が光を吸収するEL遷移に注目し、独立单一粒子模型により長波長近似を使わずに解くための定式化をする。その際、電場と核子の相互作用演算子の厳密な表式が必要となる。</p> <p>電場と核子のEL遷移の（長波長近似されてない）厳密な相互作用演算子として、2種類の表式を考え、それぞれの演算子を使ってEL遷移過程の遷移率を計算する。そして、厳密に解いた遷移率が長波長近似した遷移率（Weisskopf 単位）に対して与える補正の大きさを求める。始めに、原子核の波動関数として、独立单一粒子模型によるガンマ遷移の大まかな見積もりとして広く用いられるWeisskopfによる評価方法で使われているものと同じ単純な原子核の波動関数を使う。次に、原子核の波動関数として、より実際の原子核模型に近い調和振動子の波動関数を用いて解析する。</p>			
<p>【使用主要施設】</p> <p>パーソナルコンピュータ</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成9年度は、独立単一粒子模型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、長波長近似されていない厳密なEL遷移過程の遷移率を定式化し、近似計算の結果からのずれの大きさを求めた。

【研究成果】

平成11年3月までの研究成果の実施状況をまとめます。

(1) 多重極展開された電場と核子のEL相互作用演算子として、2通りの表式 $O^{(1)}$, $O^{(2)}$ （式-1, 2）で記述されたものを用いる。この2つの演算子は数学的に同等であるが、式-1の演算子 $O^{(1)}$ の方が一般的である。ところが、実際に光吸収によるEL遷移過程の遷移率を計算すると互いに異なる結果となった。ここで、原子核の波動関数として、独立単一粒子模型によるガンマ遷移の簡単な評価方法であるWeisskopf 単位（ただし、長波長近似をしている）を導出するための波動関数（式-3）と同じものを使った。長波長近似して計算した遷移率 T_{WU} （Weisskopf 単位）（式-4）と長波長近似をせずに計算した2通りの演算子 $O^{(1)}$, $O^{(2)}$ （式-1, 2）による結果 $T^{(1)}$, $T^{(2)}$ （式-5, 6）とを比較するために、図-1～4に光の吸収エネルギー $E\gamma$ に対する $E1$, $E2$ 遷移過程の遷移率を示す。ここで、原子核の質量数は $A = 20, 250$ を考えた。光のエネルギーが低い領域ではすべての結果は一致して、高いエネルギー領域では長波長近似をしない遷移率の方が長波長近似をした遷移率よりも小さくなる。さらにもっと高い光のエネルギーでは、長波長近似した遷移率は発散し、長波長近似が高いエネルギー領域で使えないことが分かる。また、2つの演算子による結果 $T^{(1)}$, $T^{(2)}$ の間で、全く異なる振る舞いをすることが分かった。

以上の検討により、高エネルギー領域でも有効なEL遷移の定式化でしたが、2種類の厳密な相互作用演算子のうちどちらが正しいのかという疑問が生じた。

(2) (1)のように、2通りの演算子 $O^{(1)}$, $O^{(2)}$ から計算された遷移率 $T^{(1)}$, $T^{(2)}$ が異なるという問題の原因を探るために手掛かりとして、より実際の原子核の模型に近い調和振動子波動関数を用いて同様の計算を行った。ガンマ線の吸収により、1s状態（式-7）の原子核が1L ($L=1, 2, 3, \dots$) (式-8) 状態に遷移するEL遷移過程の遷移率を求めた。その結果、2通りのEL相互作用演算子 $O^{(1)}$, $O^{(2)}$ を使って計算した遷移率は解析的に一致した（式-9）。質量数 $A = 4$ のときの、 $1s \rightarrow 1L$ ($L=1, 2, \dots, 5$) 遷移の遷移率を図-5に示す。量子数Lに対するガンマ線吸収エネルギーは図-6のような値をとる。また、長波長近似したときの遷移率は式-10であり、近似をしていない遷移率との比を求めるときのようになることが分かった。

よって、調和振動子波動関数による $1s \rightarrow 1L$ 遷移では、2種類の相互作用演算子は全く同じ結果を与えることから、どちらを使ってもよいということが分かった。ただし、EL遷移過程には、これまで検討してきた $1s \rightarrow 1L$ 遷移過程の他に、 $1s \rightarrow nL$ ($n=1, 2, \dots$; $L=p, d, \dots$) 遷移も考えなければならず、このことは現在取り組み中である。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成11年度は、E1遷移過程に関する研究を進めて投稿論文にまとめる。また、セシウム137の6-同位体準位生成量の測定を行う予定である。さらに、高エネルギー γ 線の光核反応断面積の理論的計算を行う。

平成12年度は、平成11年度に引き続き、高エネルギー γ 線の光核反応断面積の計算を行う。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

1) 和田 浩明, 原田 秀郎、

Calculation of Photonuclear Process in the Region of Several Tens MeV、
1998年核データ研究会

$$\left\{ \begin{array}{l} O^{(1)}(|\vec{k}| \mu, El) \\ = \sqrt{2\pi} i^{l+1} \sqrt{2l+1} \frac{1}{|\vec{k}| \sqrt{l(l+1)}} e^{-i\omega t} \int d^3r \bar{J}(\vec{r}) \\ \left\{ -\nabla \left[\left(1 + r \frac{\partial}{\partial r} \right) j_l(|\vec{k}| r) Y_{l\mu}(\Omega) \right] - |\vec{k}|^2 \vec{r} j_l(|\vec{k}| r) Y_{l\mu}(\Omega) \right\} \\ O^{(2)}(|\vec{k}| \mu, El) \\ = \sqrt{2\pi} i^{l+1} \sqrt{2l+1} \frac{1}{|\vec{k}| \sqrt{l(l+1)}} e^{-i\omega t} \int d^3r \bar{J}(\vec{r}) \\ \left\{ (l+1) \nabla [j_l(|\vec{k}| r) Y_{l\mu}(\Omega)] + \sqrt{(l+1)(2l+1)} |\vec{k}| j_{l+1}(|\vec{k}| r) \bar{Y}_{l\mu,l+1}(\Omega) \right\} \end{array} \right. \quad \text{(式-1)}$$

ここで、 l は軌道角運動量量子数、 $|\vec{k}| = \omega/\hbar = E_\gamma/(\hbar c)$ ($\mu = \pm 1$)

は光の波数ベクトルの大きさ（偏極成分）をあらわす。また、 $\bar{J}(\vec{r})$ はカレント演算子である。

$$\left. \begin{array}{l} \psi_i(r, \theta, \phi) = u(r) Y_{00}(\theta, \phi) e^{-iE_it/\hbar} : \text{始状態} \\ \psi_f(r, \theta, \phi) = u(r) Y_{lm}(\theta, \phi) e^{-iE_ft/\hbar} : \text{終状態} \end{array} \right\} \quad \text{(式-3)}$$

ここで、動径波動関数は始状態と終状態で共通に

$$u(r) = \begin{cases} \sqrt{3/R^3}, & (0 \leq r \leq R) \\ 0, & (R < r) \end{cases}$$

とする。また、 R は原子核の半径を表す。

$$\begin{aligned} T_{wu}(l; E) &= \frac{2(l+1)}{l[(2l+1)!!]^2} \left(\frac{3}{l+3} \right)^2 \frac{e^2}{4\pi\hbar c} (|\vec{k}| R)^{2l} \frac{E_\gamma}{\hbar c} c \\ &= (4.38 \times 10^{21}) \times \frac{l+1}{l[(2l+1)!!]^2} \left(\frac{3}{l+3} \right)^2 \left(\frac{E_\gamma}{197} \right)^{2l+1} R^{2l} \quad [1/\text{sec}] \end{aligned} \quad \text{(式-4)}$$

$$\begin{aligned}
T^{(1)}(l; E) &= \frac{e^2}{4\pi\hbar c} c \frac{E_r}{\hbar c} \left(\frac{3}{R^2} \right)^2 \frac{2(l+1)}{l} \left\{ \int_0^R dr r^2 j_l(|\vec{k}|r) - \frac{1}{l+1} |\vec{k}| \int_0^R dr r^3 j_{l+1}(|\vec{k}|r) \right\}^2 \\
&= (3.94 \times 10^{22}) \times \frac{E_r}{197} \frac{1}{R^6} \frac{l+1}{l} \left\{ \int_0^R dr r^2 j_l(|\vec{k}|r) - \frac{1}{l+1} |\vec{k}| \int_0^R dr r^3 j_{l+1}(|\vec{k}|r) \right\}^2 [1/\text{sec}]
\end{aligned}$$

(式-5)

$$\begin{aligned}
T^{(2)}(l; E) &= \frac{e^2}{4\pi\hbar c} c \frac{E_r}{\hbar c} \left(\frac{3}{R^2} \right)^2 \frac{2(l+1)}{l} \left\{ \int_0^R dr r^2 j_l(|\vec{k}|r) - \frac{\hbar c}{2M_p c^2} l \int_0^R dr r j_{l+1}(|\vec{k}|r) \right\}^2 \\
&= (3.94 \times 10^{22}) \times \frac{E_r}{197} \frac{1}{R^6} \frac{l+1}{l} \left\{ \int_0^R dr r^2 j_l(|\vec{k}|r) - \frac{\hbar c}{2M_p c^2} l \int_0^R dr r j_{l+1}(|\vec{k}|r) \right\}^2 [1/\text{sec}]
\end{aligned}$$

(式-6)

$$\left\{ \begin{array}{l} \psi_i(r, \theta, \phi) = \sqrt{\frac{4\alpha^3}{\sqrt{\pi}}} e^{-\frac{\alpha^2}{2}r^2} Y_{00}(\theta, \phi) \quad : \text{始状態 (1 s)} \\ \psi_f(r, \theta, \phi) = \sqrt{\frac{2\alpha^3}{\Gamma(l+3/2)}} e^{-\frac{\alpha^2}{2}r^2} (\alpha r)^l Y_{lm}(\theta, \phi) \quad : \text{終状態 (1 l)} \end{array} \right. \quad \text{(式-7), (式-8)}$$

ここで、 $\alpha \equiv \sqrt{M_p \omega_0 / \hbar}$ である (ω_0 は調和振動子の固有角速度)。

$$T_{HO}(l; E) = \frac{e_p^2}{4\pi\hbar c} \frac{(\hbar c)^3}{(M_p c^2)^2} \frac{c}{E_r} \frac{\sqrt{\pi}}{2^{2l}} \frac{l(l+1)}{\Gamma(l+3/2)} \alpha^{2(2-l)} |\vec{k}|^{2l} e^{-\frac{|\vec{k}|^2}{2\alpha^2}} \quad \text{(式-9)}$$

$$T_{HO}^{(LWA)}(l; E) = \frac{e_p^2}{4\pi\hbar c} \frac{(\hbar c)^3}{(M_p c^2)^2} \frac{c}{E_r} \frac{\sqrt{\pi}}{2^{2l}} \frac{l(l+1)}{\Gamma(l+3/2)} \alpha^{2(2-l)} |\vec{k}|^{2l} \quad \text{(式-10)}$$

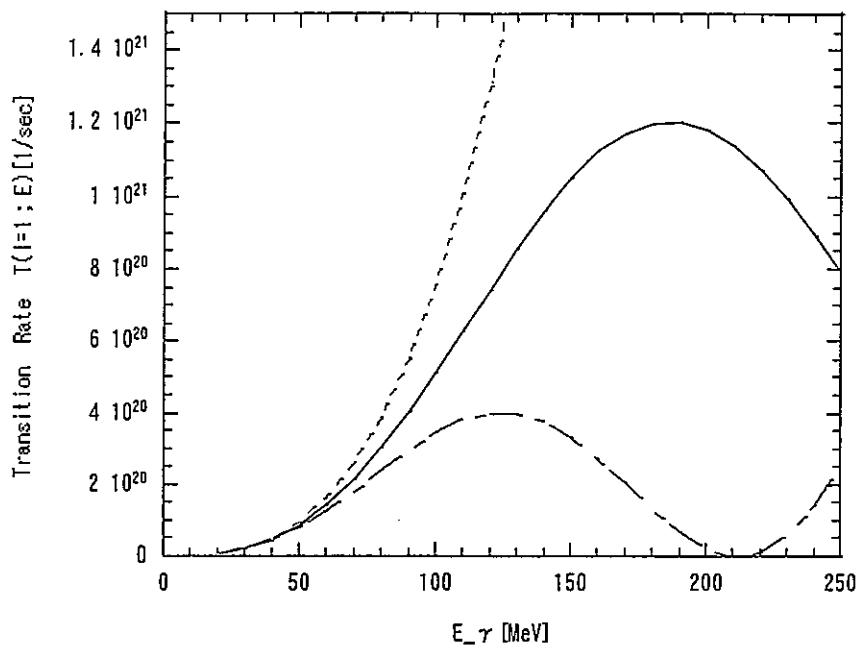


図-1. $E1$ 遷移過程 (原子核の質量数 $A = 20$)

$\left\{ \begin{array}{l} \text{--- : 長波長近似による結果 (Weisskopf unit)} \\ \text{--- - - : 演算子 } O^{(1)} (\text{式-1}) \text{ による結果} \\ \text{— : 演算子 } O^{(2)} (\text{式-2}) \text{ による結果} \end{array} \right.$

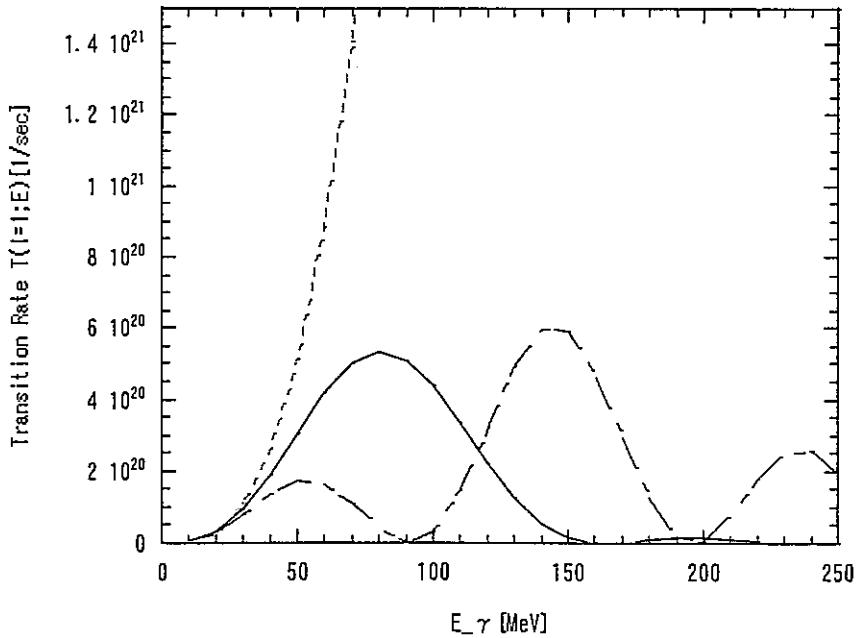


図-2. $E1$ 遷移過程 (原子核の質量数 $A = 250$)

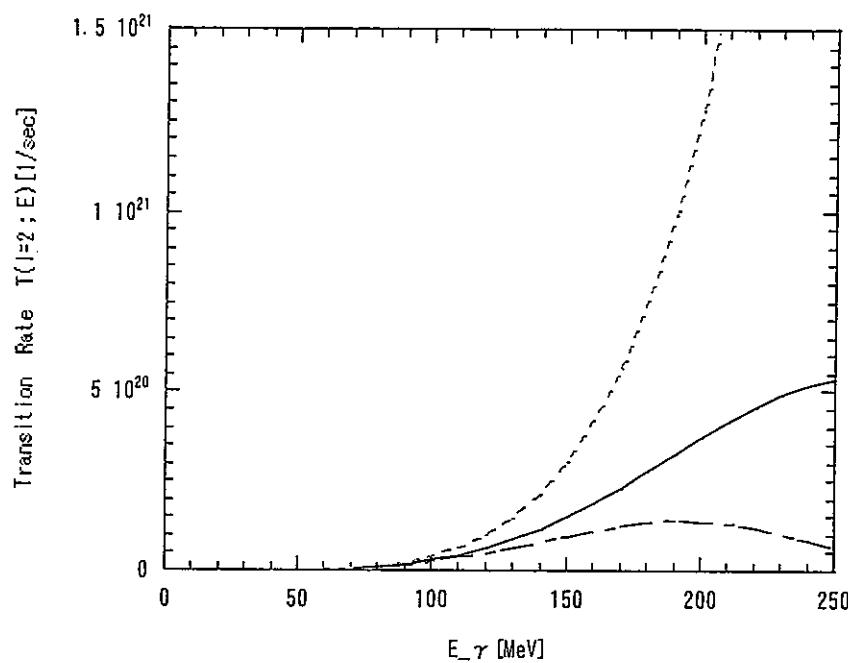


図-3. $E2$ 遷移過程 (原子核の質量数 $A = 20$)

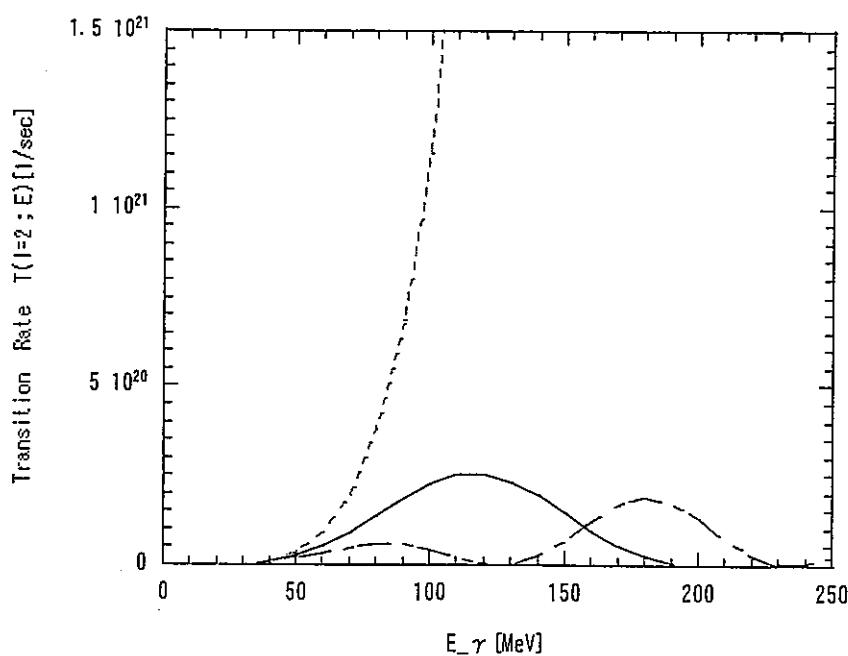


図-4. $E2$ 遷移過程 (原子核の質量数 $A = 250$)

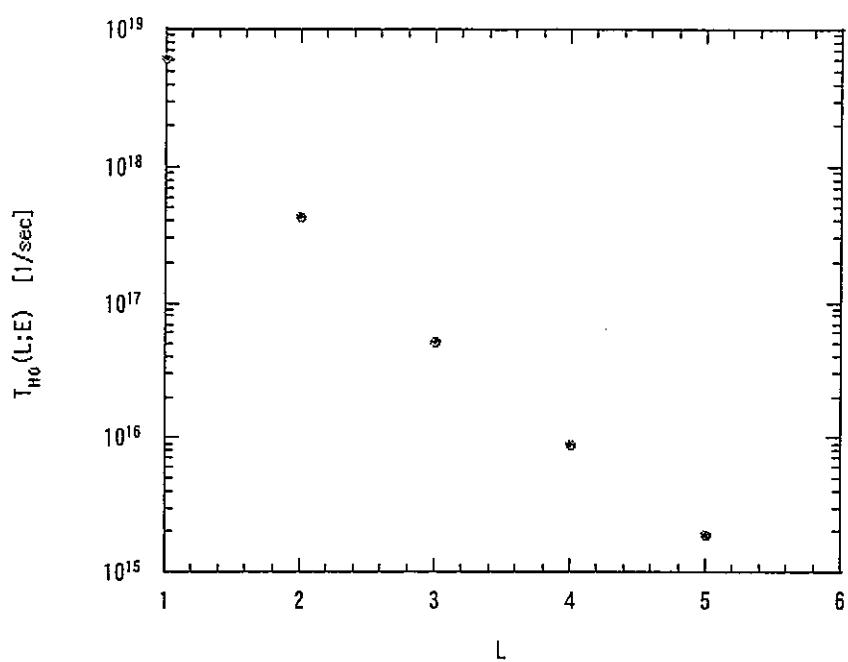


図-5. 調和振動子波動関数を使った
 $1S \rightarrow 1L$ 遷移の遷移率
(原子核の質量数 $A = 4$)

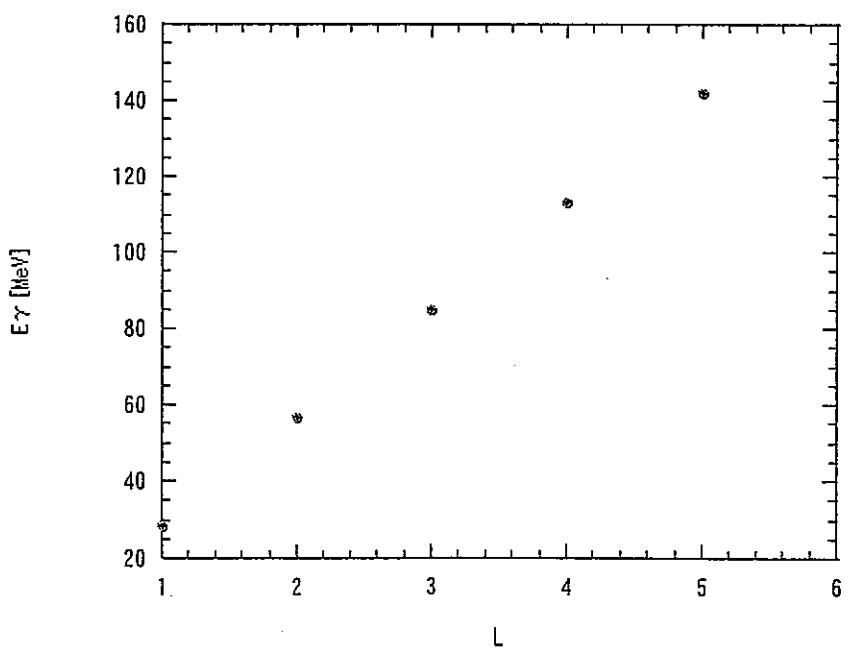


図-6. 調和振動子波動関数を使った
 $1S \rightarrow 1L$ 遷移のガンマ線吸収エネルギー
(原子核の質量数 $A = 4$)

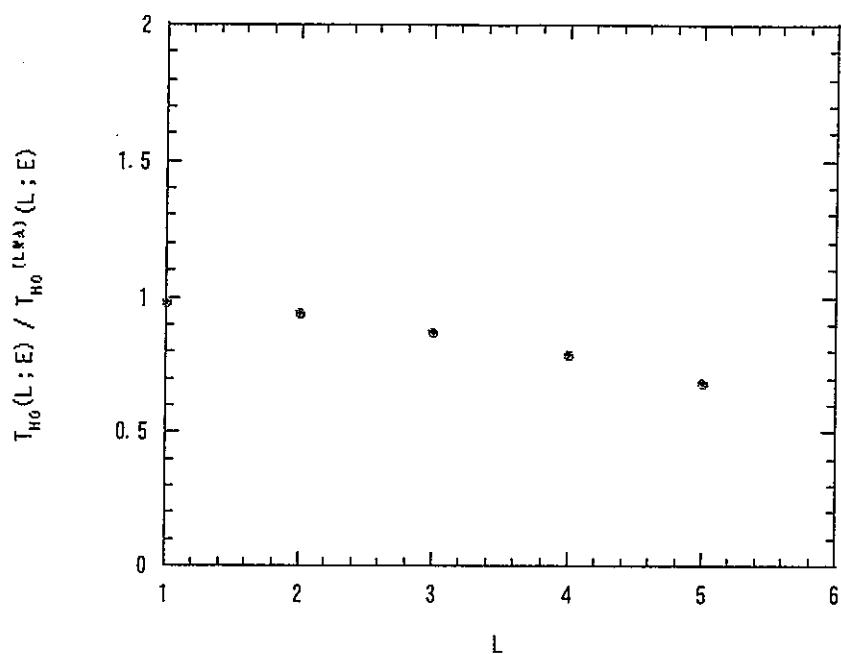


図-7. 調和振動子波動関数を使った
 $1S \rightarrow 1L$ 遷移の
 長波長近似をしていない遷移率と
 近似した遷移率との比

$$T_{HO}(L; E) / T_{HO}^{(LWA)}(L; E)$$

(原子核の質量数 $A = 4$)

博士研究員(H10) 平成10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		
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10年 4月 ~ 平成10年12月

【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（セメント材料を使用する場合pH增加、オーバパック材料の腐食による鉄イオンの流入等も含める）において構成鉱物の変質、異種鉱物の生成などによって、緩衝材の性能を低下させる可能性が考えられる。したがって、この構成鉱物間の組み合わせ（3成分系、4成分系など）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の予測材料を与えることを目的とする。

【研究内容（概要）】

緩衝材としての機能をするベントナイト（例：クニゲルV1）の主成分鉱物として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。このうち主成分鉱物であるモンモリロナイトは副成分鉱物との地下深部（処分場）のような環境においての相互反応（地下水を含む）によって、その共存関係が変化することが考えられ、それにより緩衝材性能の劣化を招く恐れがある。現在までに報告されている多くの合成実験によれば、主に端種の鉱物と水溶液反応による鉱物の共存、安定関係などは数多く明らかになっている。しかし、これらのデータを緩衝材の長期安定性評価に利用する際に、ベントナイトに含まれている構成鉱物間の相乗効果による複雑な反応が予測されるため、端的な鉱物間の反応だけでは、緩衝材全体の評価をするのに無理がある。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だけに試験を限定して、モンモリロナイトを含む3成分系、4成分系の試料をオートクレーブ内での水熱合成実験により、その変質過程や生成物に着目して安定平衡関係、反応速度を求める。主には緩衝材の劣化を想定してモンモリロナイトと副成分鉱物との組み合わせで試験を進める予定である。すべての試験は鉱物間の反応を速めるために粉末状にする。実験前半ではモンモリロナイト+副成分鉱物1種+水の3成分系で試験を実施し、後半ではこれらにもう1種類の鉱物を加えた4成分系での試験をする予定である。水溶液としては蒸留水に高pH溶液やFe溶液を想定している。

【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、第一試験棟）

分析装置：XRD、SEM、TEM、EPMA等

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成11年度3月までの研究は、オートクレーブを利用した緩衝材の変質試験で、110°Cまで60日試験が終了しており、現在150°C試験を実施中である。200日目試料の取り出しあは85°C試験が終了しており、残りの200日目試験の今後の取り出し予定は110°C試験8月、50°C試験11月である。

【研究成果】

平成11年度3月までの研究内容および成果の概要をまとめる。

50°C試験は98年9月に60日試料の取り出しまで終了しており、85°C試験は今年3月に200日試料の取り出しまですべて終了している。110°C試験は今年3月に60日試料の取り出しまで終了している。150°C試験は現在30日の取り出しが終了している。50°C試験の場合は200日試験の必要性のために今年3月から試験を開始しており11月に取り出し予定である。

試験の詳細は、ベントナイト構成鉱物中、クニピアF（Na型モンモリロナイト）、ドロマイト（炭酸塩鉱物）、長石、方沸石を対象に、これらをメノウ乳鉢で粉末にして100meshの篩を通過させたものを試料として使った。これを金チューブ（直径6mm、長さ60mm）に溶液とともに封入する（モンモリロナイト+その他の鉱物：溶液=1g:8mL）。この金チューブをオートクレーブに入れ、一定温度に設定して水蒸気圧にて水熱反応させる。試験のパラメータは以下に示す。

*溶液：蒸留水、高pH溶液；処分場において、セメント構造物で緩衝材を囲む場合を想定するための試験（Ca(OH)₂, KOH, NaOHの混合液；pH10~13），FeCl₃溶液。

pH13溶液の混合方法はCa(OH)₂飽和溶液（pH12.5）に1MのNaOHとKOH溶液を同量ずつ混ぜたものを混合させてpH13にする。

*温度：50, 85, 110, 150, 200°C。

*期間：5, 10, 30, 60日、200日。

*鉱物組合せ：モンモリロナイト単独試験、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+方沸石（モンモリロナイト単独試験を除いて、すべて3成分試験）。

〔50°C試験結果〕

全試料において、X線回折分析や走査型電子顕微鏡観察による二次鉱物の生成は認められなかった。ただし、X線回折分析においては、反応時間が長く、pHが高くなるにつれて（pH10~13）、モンモリロナイト単独試験の場合、（001）面のピーク強度が減少する傾向が認められた（60日試料の場合、pH13試料はピーク強度がpH10試料の半分以下に減少する）。これは長い反応時間とアルカリ溶液により、モンモリロナイトの変質が進行していると考えられ、二次鉱物の生成初期の段階か、あるいは二次鉱物の生成が微量であるため、上記のような分析では観察されていないと考えられる。X線回折の相対湿度制御分析（0~95%）では、特に相対湿度30%までは、反応時間が長く、溶液のpHが高くなるにつれて、著しくNa型モンモリロナイトのCa型化の傾向が認められる。

走査型電子顕微鏡観察では全試料において、モンモリロナイト以外の鉱物粒子の輪郭が溶液のpHが高くなるにつれて、丸みを帯びているのが観察され、アルカリ溶液により鉱物が溶解している過程と推測される。

〔85°C試験結果〕

60日試験までのX線回折分析結果では、モンモリロナイト単独試験の場合、pH13溶液の場合60日の試料に沸石（andalcite）の微弱なピークが認められた。これは走査型電子顕微鏡観察においても60日目、pH13溶液において0.5μm径の球状の生成物が多数観察された。このような傾向は

同様な条件において、モンモリロナイトと長石の混合試料でも観察されており、それ以外の鉱物組み合わせ試験では観察されなかった。この理由は、沸石の生成がモンモリロナイトと鉱物組み合わせにより、選択的に生成するのか、あるいはそれ以外の原因によるものなのか不明である。

従来の当機構の委託研究などによると、このようなモンモリロナイト単独の変質試験において、試料と溶液の混合比率が1 g : 1 0 0 0 mlのように、反応が極端に溶液に依存させる試験が多かったため、二次鉱物の生成は短期間に可能であったが、反面モンモリロナイトのピークが急激に減少したため、モンモリロナイト自体の具体的な変化ははっきりしていなかった。本試験では試料と溶液の比率が1 g : 8 mlであり、全体的な反応速度は上記に比べて遅いが、モンモリロナイトが完全に消失されることはないため、その具体的な変化が観察可能だった。図1はpH13溶液での反応時間によるモンモリロナイト単独試験のX線回折分析結果である。200日試料では(001)面のピークが低角度側に移動しているのが観察され、矢印のようなピークの生成が認められた。さらに(060)面のピークを調べた結果、1.53 Åであり、3-八面体粘土鉱物の可能性が示唆された。これを確認するため、図2のようにエチレングリコール処理を行った結果、これは3-八面体のサポナイトとモンモリロナイトとの混合された状態の可能性が示された。

〔110℃試験結果〕

全体的に85℃試験と同様な結果が得られた。しかし85℃試験に比べてモンモリロナイト単独試験とモンモリロナイト+長石の試料では、pH13の溶液条件で10日目試料から沸石の生成が認められた。走査型電子顕微鏡観察においても反応時間が長くなるにつれて、球状物質の量と大きさがともに増加する傾向が見られた。また、60日、pH13の溶液条件ではモンモリロナイトとドロマイドの組み合わせ試験においてのみ、方解石結晶の生成が観察された。これは、X線回折分析においてpHの増加に伴い、ドロマイドと方解石の強度比を比較した結果、方解石の相対強度が高くなることからも、方解石の生成が推測される。

〔150℃試験結果〕

X線回折分析による沸石 (analcime) のピークは、モンモリロナイト単独試験とモンモリロナイト+長石の試料において、5日目試料から確認されており、現在、走査型電子顕微鏡観察は5日試料までが終了している。pH13の溶液との反応での球状物質は0.9 μm径まで大きくなっている。図3にはpH13の溶液でのモンモリロナイト単独試験において、反応時間に対する沸石ピーク（矢印の位置）の成長が著しい傾向を示す。

現在は各組み合わせ試験において、径5ミリぐらいいの鉱物を混入しており、各試験の終了後、この粒子を洗浄して、SIMSやESCAなどを使って鉱物の深さ方向の組成変化を観察する予定である。

また、110℃、200日試験が終了しだい、85℃試験とともにその結果をまとめる計画である。なお、85℃試験のようなサポナイト化については、さらに詳しく調べて、そのメカニズムを解明する予定である。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成11年度は、150、200℃の3成分試験と50℃、85℃の4成分試験を実施予定である。平成12年度は、110、150、200℃の4成分試験を実施したのち、試験データの総合解析および評価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】

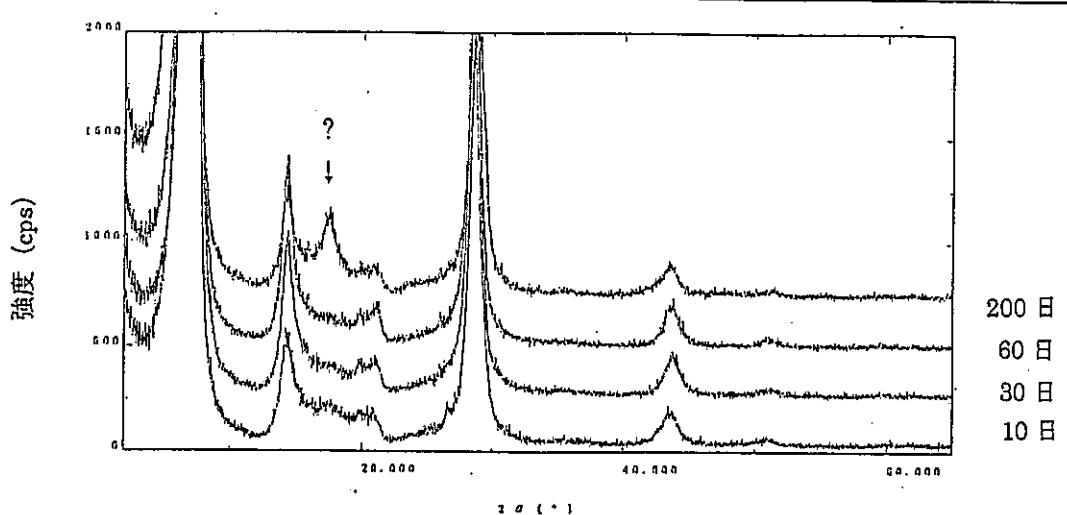


図1 モンモリロナイト試料と混合溶液 (pH13) との 85°Cにおいての反応時間に対するピーク変化。

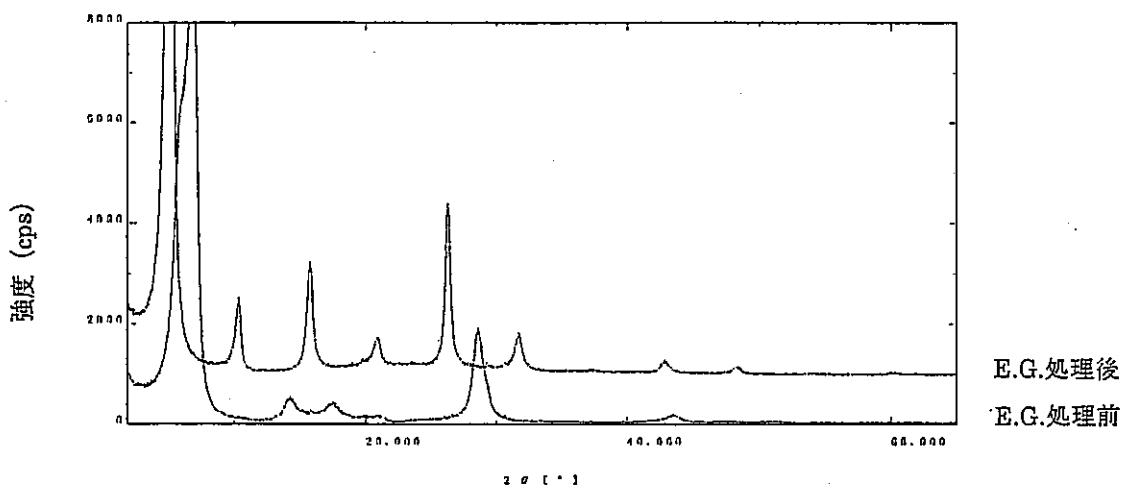


図2 図1の200日試料のエチレングリコール処理比較。

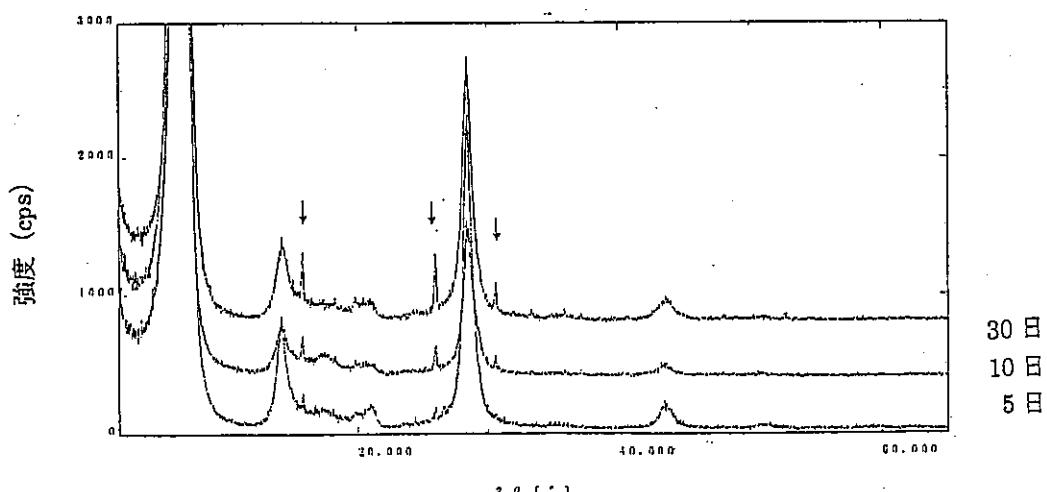


図3 モンモリロナイト試料と混合溶液 (pH13) の 150°Cにおいての反応時間に対する沸石 (analcime) ピークの成長。 (↓ : analcime)

博士研究員(H10) 平成10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	志麿 幸徳		
研究協力者 所属・氏名	時澤 孝之、佐藤 和彦、長柄 収一 人形崎環境技術センター 環境保全技術開発部 環境研究G r	所屬長印	(略)
研究実施場所	人形崎環境技術センター 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10年 4月 ~ 平成11年 3月

【研究目的】

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、安全管理の面からこれまで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は、原子力施設に起因する人工放射性核種を対象した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・ラジウム等の放射性物質に注目した植物への影響についての例はあまりない。

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及ぼすことから、植物群落における影響を把握しておくことが重要となると考えられる。

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、放射線管理の面に限らず物質循環の観点からの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周辺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。

【研究内容（概要）】

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捉えなければならない。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。

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捉えられる。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。

人形崎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、土壤立地との関係を調べる。

【使用主要施設】

人形崎環境技術センター（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10年度は、人形峠センター構内の表土堆積場・露天採掘場・鉱滓堆積場において、土壤と植物のラジウム濃度を測定した。

【研究成果】

平成10年3月までの研究成果の概要をまとめる。

人形峠環境技術センター内の表土堆積場・露天採掘場跡地・鉱滓堆積場において、土壤から野生草本へのRa-226の移行について調べた。表土堆積場や露天採掘場にはススキが優占しており、鉱滓堆積場にはアシが優占している。これら植物と土壤を採取しRa-226濃度を分析した。

（1）地区ごとの土壤と植物のRa-226濃度の違い

表1に土壤と植物のRa-226濃度の分析結果を示す。土壤のRa-226濃度は、最も高かった鉱滓堆積場と最も低かった表土堆積場で約20倍の違いがあった。植物のRa-226濃度も土壤の濃度を反映しており、地区間で約20倍の違いが見られた。鉱滓堆積場は、表土堆積場や露天採掘場跡地とは土壤特性が異なっているが、濃縮比（CR：土壤に対する植物の元素濃度の比率）に有意な違いはみられなかった。

表土堆積場の土壤のRa-226濃度は、人形峠周辺の土壤で報告されている値と同レベルであったが、植物では10倍以上高かった。この原因として、施肥による影響や、土壤の有機物の影響が考察された。今回得られた植物のRa-226濃度は周辺に比べ高いと考えられるが、植物に見られる濃度の範囲であった。また、CRの値は全地区を通して約1/20であり、文献で得られるCRの範囲の中間的な値であった。

（2）植物のラジウム吸収と各器官への分配

図1に表土堆積場のススキと鉱滓堆積場のアシの茎・葉・花穂のRa-226濃度とその季節変化を示す。両種とも植物体内の各器官のRa-226濃度には違いがみられ、葉が最も高く次に花穂、茎の順であった。また、葉では春から秋にかけてRa-226濃度が、ススキでは1.6、アシでは2.0倍となっている。枯葉のRa-226濃度が高いことからRa-226は葉齡が高くなるにつれて葉に蓄積していく性質を持っていると考えられた。この傾向は、同族元素であるCaやSrにもみられることがから、これら元素の挙動との比較が必要と考えられた。

植物によるRa-226の吸収は植物の成長と平行しており、成長の活発な8月までが吸収量が多く成長の止まる8月以降はRa-226量の増加も見られなかった。吸収されたRa-226の2/3から3/4が葉に分配されていた。花穂はRa-226濃度が葉より低く、生産量が非常に小さいことから植物の吸収量としてはほとんど無視できる値であった。これらのことから、主に葉がRa-226の分配先であり、葉の成長に伴ってRa-226が吸収されていることが明らかになった。

（3）年間Ra-226吸収量

植物の生育密度とRa-226濃度から、土地面積あたりの年間Ra-226吸収量を計算した（表2）。生育密度（土地面積あたりの植物の地上部乾重量）は鉱滓堆積場のアシが最も大きく、そのため鉱滓堆積場におけるRa-226の吸収量は表土堆積場に対して160倍と土壤の濃度差以上に大きく

なった。鉱滓堆積場は常に冠水状態に保たれることにより未分解の有機物を多く含むことや葉面積が大きいことなどから比較的富栄養であり植物の生産性が高いためと考えられた。

現在、これらの地区はススキやアシなどのイネ科の植物が優占しているが、植物群落の発達に伴って樹木の進入など種構成が変化する事が考えられる。それに伴い土壤特性や植物の生産量が変化すると予想される。今後、このような変化がCRや土壤—植物間の循環量にどのような影響を及ぼすかを、周辺の森林などとの比較や栽培実験を通して明らかにする必要がある。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成11年度は、人形峠環境技術センター周辺地域の森林や草原など種構成や生産量を調べ、複数種について植物によるRa-226の吸収量や循環量を明らかにする。また、10年度の研究において、植物のウラン濃度が定量下限以下で測定できなかつたため、分析方法などを検討する。

平成12年度は、各植物種と土壤の性質を総合し、森林群落・草本群落など植物群落単位での土壤—植物間の移行量、及び循環量についてまとめる。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

社内資料：ウラン鉱山に生育する植物群落の放射性元素の動態：Ra-226について（印刷中）

表1. 人形峰鉱山敷地内の土壌と植物の ^{226}Ra 濃度と、CR(濃縮比)

地区と植物	土壌 (mBq g^{-1} dry)	植物 (mBq g^{-1} dry)			CR
		5月	8月	11月	
表土堆積場					
スキ	$62.0^{\text{a}} \pm 10.2$	4.2 ^a	—	$3.7^{\text{a}} \pm 0.3$	$4.9^{\text{a}} \pm 0.8$
露天採掘場					
スキ	$167.1^{\text{b}} \pm 18.4$	—	—	$8.5^{\text{b}} \pm 1.2$	—
鉱滓堆積場					
アシ	$1419.6^{\text{c}} \pm 271.9$	$59.9^{\text{b}} \pm 11.6$	$72.4^{\text{c}} \pm 11.5$	$72.6^{\text{b}} \pm 16.9$	$0.051^{\text{a}} (2.6)$

CR: 土壌に対する植物の ^{226}Ra 濃度の比。CRは8月の値を示した。数値は、ラジウム濃度に対して平均土標準誤差($n=5$)、CRに対して幾何平均(幾何標準偏差)で表した。ハイフンは未測定を示す。同列にある異なる添え字(a, b, c)は、平均値が有意に異なることを示す(多重比較; $P < 0.05$)。

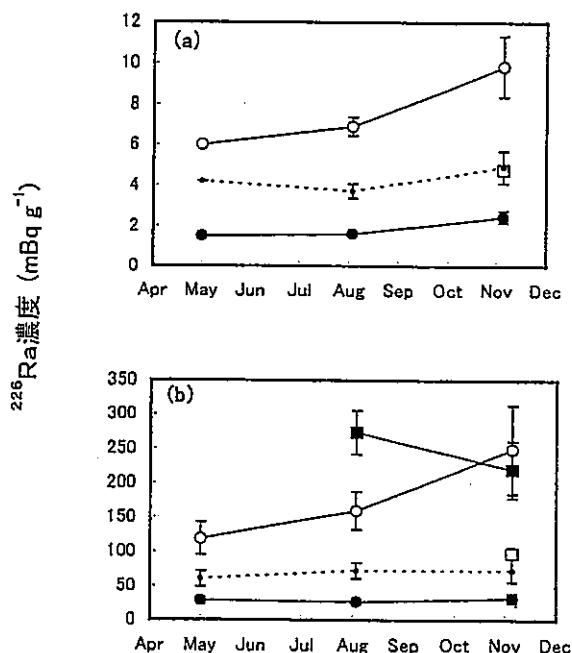


図1. 表土堆積場のスキ(a)と鉱滓堆積場のアシ(b)について植物の器官ごとの ^{226}Ra 濃度の変化(●茎、○葉、■根、□花穂、-全個体)。綫棒は標準誤差を示す。

表2. 各地域における面積あたりの植物地上部重、葉面積、 ^{226}Ra 含量。

地域と植物種	地上部重 g m^{-2}	葉面積 $\text{m}^2 \text{m}^{-2}$	^{226}Ra
			Bq m^{-2}
表土堆積場			
スキ	142 ± 43	0.6 ± 0.1	0.5 ± 0.1
露天採掘場			
スキ	134 ± 18	—	1.1 ± 0.3
鉱滓堆積場			
アシ	1189 ± 441	3.0 ± 1.2	79.3 ± 48.1

博士研究員（H10）平成10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G.r. 船坂 英之 小山 智造 駒 義和		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G.r.		
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10年 4月 ~ 平成11年 3月
<p>【研究目的】 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プロセス試験に対して、このモデルを用いて行われたRegalbuto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、抽出データ等を検討し、独自の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、以下のような検討を行い、独自の抽出・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、動特性の計算を確認していく。</p> <p>計算は、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ウェアを用いて行う。確立した数値シミュレーションの評価は、プロセス試験の結果と計算結果とを比較することにより行い、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G.r. 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、それを基にして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、CPFで行った向流多段抽出試験に対する計算を行った。

【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。

(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元素及び硝酸等のCMPO-TBP系における抽出データが必要であり、今年度は、Amに関して整理した。ただし、CMPO-TBP系におけるAmの抽出挙動は、数多く検討がなされているが、使用される希釈剤により異なるので、本研究では、対象とするプロセスを考慮して、n-ドデカンまたはそれに類する直鎖パラフィンを用いて行われた結果を取り上げた。整理した結果は、作成するシミュレーションコードに用いる抽出モデルに反映させ、計算結果の精度向上のために用いた。対象とする元素の範囲を広げ、今後も継続していく。また、数値シミュレーションの評価を行うために必要なデータとして、これまでにCPFで行ったTRUEXプロセスの向流抽出試験結果の整理を行った。

(2) 数値シミュレーションコードの作成とそれを用いた計算による検討

はじめに、既存のモデルに関して調査・検討を行い、それを基にして、数値シミュレーションコードを作成した。本研究では、抽出器をミキサセトラとした。作成したコードでは、抽出器各段において、二相（水相・有機相）間の平衡を仮定し、各成分毎に物質収支式と分配係数式を連立して解くことにより抽出器出口の濃度を算出した。ここで、物質収支式においては、有機相の流れる方向を基準にして、次の段の水相出口濃度と前の段の有機相出口濃度をその段の入口濃度とした。ただし、二相間の物質移動による各相の体積流量変化は無視した。分配係数式には、文献から得た既存のAm及びランタニドの抽出モデルを組み込み、それらにより分配係数を求めた。なお、これらのモデルによる分配係数の計算には、硝酸の活量係数及び水の活量が必要である。この硝酸の活量係数を求めるのに、既存のモデルでは、Bromleyにより整理された式を用いているが、この式は、数多くのパラメータを持つ複雑な形をしているため計算コードを複雑にする。TRUEXプロセスにおいて、塩析剤等を多量に用いていない工程であれば、硝酸に比べて他の成分は微量であり、このような系における硝酸の活量係数に大きな影響を与えるないとみなすことができる。この値を、硝酸濃度の関数として求めてよいと考えられる。同様に水の活量も硝酸のみを含む溶液中のそれとほぼ等しいと考えられ、硝酸濃度の関数として求めることができる。そこで、それぞれの算出式を硝酸濃度の関数として定式化した。これらの式により得られる硝酸の活量係数及び水の活量の計算値は、文献値を十分に表現することができ、これらを実装することにより計算コードを簡略化することができた。ただし、塩析剤等を用いた工程における計算も考慮し、Bromleyの式による活量係数の算出も行うことが可能になっている。また、この計算コードでは、物質収支計算部と分配係数計算部とをそれぞれ独立させている。さらに、分配係数計算部を各成分毎にわけることにより、新たに成分を追加する際には、その成分の分配係数式を追加すればよい構造にした。したがって、計算対象とする成分の拡張が容易になっている。この計算コードで、向流多段抽出プロセスにおける抽出挙動を計算するためには、この各段に対する計算を、プロセスを構成する全段数分行い、各段の出口濃度が定常に達するまで繰り返す。

このコードを用いて、CPFで行った向流抽出試験におけるAmの濃度プロファイルの計算を行った。この工程は、16段のミキサセトラで構成している。また、溶媒には0.2M CMPO-1.0M TBPA-nドデカンを用いている。図1にAmの濃度プロファイルの実験値と計算値の比較を示す。図からわかるように、実験値と計算値はほぼ一致した。

つづいて、CPFで行った別の向流抽出試験におけるCe及びEuの濃度プロファイルの計算を行った。この工程は、19段のミキサセトラで構成している。また、溶媒には上述した試験と同じものを用いている。ただし、この試験においては、シュウ酸が供給されているが、ここで供給されているシュウ酸濃度であれば、ラントニドの抽出に影響を及ぼさない程度に低いものであると考えられるため、この計算では、プロセスへのシュウ酸添加によるラントニド抽出に対する効果は無視した。図2にCe及びEuの濃度プロファイルの実験値と計算値の比較を示す。図からわかるように、実験値と計算値はよく一致した。なお、CPFで行ったこれ以外のTRUEX試験に関しても、同様にAm及びラントニドの濃度プロファイル計算を行っている。

さらに、計算精度を向上させるため、段効率の導入についても検討し、コードに実装した。段効率を考慮することにより、実験値により近い計算値を得ることができた。また、これまでの計算結果からは、Regalbutoらにより報告されている結果と一致する段効率E(=0.9)を設定したときに最も実験値とのフィッティングがよいことが確認できた(図3)。

以上の結果から、コードに組み込んだ抽出モデルは、TRUEXプロセスのシミュレーションを行うのに妥当なものであると考えられる。今後、他元素の計算及びプロセス内で起こることが予想される化学反応の組み込み等の改良を行っていく。

(3) シミュレーションによる試験条件の提案

旧燃料製造プロセス開発室において行ったAm分離回収試験のAm及び硝酸の濃度プロファイルの計算を行った。計算結果は、実験結果とよく一致した。そこで、このコードを用いて、いくつか提案された試験条件の変更案を基に数値シミュレーションを行い、その結果を比較検討した上で、プロセスに要求される性能を満たし、かつ適切と考えられる新たな試験条件を提案した。

【今後の予定(翌年度以降の概要)】

平成11年度は、CMPO-TBP系におけるラントニド、FP等の抽出データの収集、整理を行うとともに、動特性計算モデルの追加等、シミュレーションコードの拡張を実施する予定である。

平成12年度は、作成したシミュレーションコードを用いて、様々な向流抽出試験の計算結果と、試験結果との比較により、コードを評価・検証し、それに基づき、計算精度向上のためのコード改良を行うとともに、このコードのプロセス設計への適用の検討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) TRUEXプロセスの数値シミュレーションコード開発、日本原子力学会「1999年春の年会」L43
- 2) Numerical Simulation for Extraction Behavior of Americium in the TRUEX Process, J. Nucl. Sci. Technol., 投稿予定

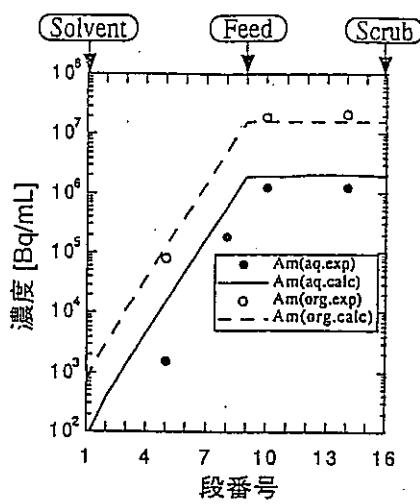


図1 Amの濃度プロファイル

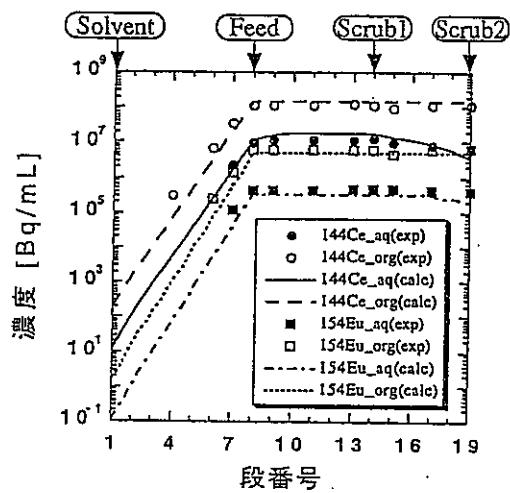


図2 ^{144}Ce 及び ^{154}Eu の濃度プロファイル

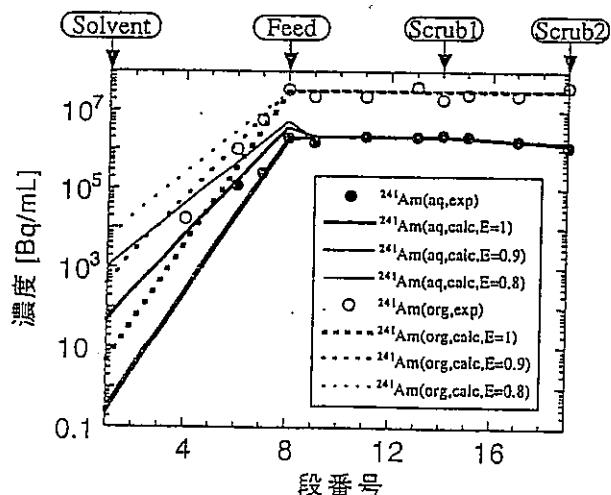


図3 段効率の違いによる ^{241}Am の濃度プロファイル変化

博士研究員(H10) 平成10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 所属・氏名	青砥 紀身 大洗工学センタ安工部機器・構造安全工学グループ		所属長印 
研究実施場所	大洗工学センタ機器・構造安全工学グループ		
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10年4月～ 平成11年3月

【研究目的】

高速増殖炉に限らず構造物の安全確保は最も重要であり、そのために供用期間中に定期的に非破壊検査を実施することは有効な手段である。特に、信頼性が高い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。この視点から従来の非破壊検査手法は検出能力・信頼性ともに十分であるとは言えない。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。

【研究内容(概要)】

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磁化の相関の解明を行う。

(1) 具体的には、申請者が開発したEDM人口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や、必要な実験を行い、その検出能力を評価する。

(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、新たな非破壊検査技術に発展すると考えられる。そこで、本研究では、塑性変形と磁化の関連性を解明する。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、その周辺の微小な磁束密度の分布を測定する。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・微小き裂等の計測から得られた情報と詳細に照合することにより、塑性と磁化の関連性を示す。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。

【使用主要施設】

大洗工学センタ (大型コンピュータ、材料試験設備、SEM・TEM装置、FINASなど)

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成10年度は自然き裂を接触のある平面き裂とし、その形状・導電率の再構成手法を開発・検証した。並びに、塑性変形（損傷）による磁化特性を考察する実験を提案し、測定システムの設計、製作及びそれを用いた予備試験を実施した。これによって測定法・測定装置の妥当性及び磁化・塑性（疲労損傷）の相関を確認した。

【研究成果】

平成11年3月までの成果をまとめる。

(1) 潜電流探傷の結果に基づいて、接触のあるき裂の再構成手法を開発し、数値シミュレーションによってその有効性を実証した。まず、自然き裂を空間的位置と導電率によってパラメータ化し、さらに導電率については2種類のき裂モデルを提案した。次に、理想化したき裂による信号及び残差関数の勾配を高速且つ高精度に計算する手法（順解析）を開発した。最後に、この順問題の高速解法及び変形した共役勾配法を用いて、空間位置と導電率を同時に逆解析することに成功した。具体的に矩形き裂を再構成した結果、2種類のき裂モデルともに理想化した接触のあるき裂の再構成に有効であることを確認した。本研究は、人工き裂の再構成手法を自然き裂の再構成手法へ発展させたものである。

図1に提案した自然き裂モデルの一つを示す。このモデルは、接触が境界部に限られ、き裂のパラメータを接触部の2つの境界線並びにその領域の導電率としたものである。図2はき裂が矩形と想定した場合の再構成結果の例を示す。逆解析には数値計算した信号に人工ノイズをいれたものを用いた。この結果から接触領域を考慮しない人工き裂に基づいた再構成はき裂を過少評価する可能性があると判った。（関連する論文など：〔1〕，〔3〕）

(2) 非磁性鉄鋼材料において疲労き裂が発生すると、その近傍に磁束漏洩が生じる現象は実験的な知見より明らかにされている。磁化と塑性の相関を調べる研究の一環として、SUS304試験片に塑性損傷を与え、試験中その場測定及び試験後2次元走査で磁化の計測を行った。具体的に、図3に示すような試験システムを構築し、試験片の平板部において6チャンネルの薄膜フランクスゲート（FG）センサーを用いた試験中その場計測、X-YテーブルとFGセンサーを用いた試験後漏洩磁束分布の2次元計測、及びモアレ法を用いたひずみ分布の計測を行う。すでに試験片、センサーの取付け金具の設計・製作から、磁場・ひずみ分布の測定システムの集成などが終了し、4本の試験片を用いた予備実験を実施した。試験結果から次のようないいえられた。

一単純引張塑性変形でも、磁化は生じるが、その大きさは次第に飽和すること、及び磁化の位置には今後も検討する余地があることが明らかとなった。

一疲労き裂が発生したSUS304試験片には磁束漏洩がはっきり検出でき、疲労損傷が磁化の測定より検出する可能性があることが確認した。

一残留ひずみ（単純引張り）より、磁化は損傷（塑性仕事）によるものとすれば得られた結果はより合理的に解釈できる可能性がある。

一構築した試験システムは、塑性損傷の導入をはじめ、その場磁束漏洩計測及び2次元スキャンともに有効であることが確認した。

図4に測定結果の例として疲労き裂が発生した試験片における磁束分布を示す。試験片の真中にあるき裂の近傍に磁化の存在がこの図からはっきりと認められる。（関連する論文など：〔5〕）

（次頁につづく）

(前頁より)

(3) 磁束密度の測定データから試験片における磁化の逆推定コードの一部を開発した。磁化の分布を2次元的なものと想定し、2次元の磁束密度走査信号から複数の手法を用いて再構成の試みを行った。その結果、共役勾配法を適用した場合、ノイズ成分の少ない信号に対して短時間でよい再構成結果が求められた。但し、数10パーセントのノイズが存在すると、収束が悪くなる。そのために、現在ウェーブレットを利用して、問題の条件数及びノイズに対するロバスト性の向上を図る努力を実施中である。

(4) 高温環境で相変態などによりFBR配管材料(SUS304)が弱磁性になるが、それを検査するECTの数値シミュレーション手法はいまだ確立されていない。平成10年度は従来非磁性導体に適用されてきた有限要素・境界要素併用法コードの弱磁性への適用性を検討した。異なる透磁率の材料を同じ解析領域に含まれないように新たなメッシュコードを開発した。導体のみ解析領域とした有限要素・境界要素併用法と全領域を考慮する有限要素法(東北大)の計算結果を比較することによって、弱磁性材料の場合得られたインピーダンス信号が若干異なると判った。FBR配管にECT検査の有効性評価には現状コードにまだ開発すべき要因があると考えられる。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

(1) 異なる試験条件（温度、歪み範囲、塑性仕事量など）の引張・疲労試験に基づき、塑性（損傷）と磁化の相関性をまとめる。

(2) 測定した磁束密度から磁化の分布を逆推定する手法を完成・検証する。更に得られた構成関係及び塑性変形の数値解析または測定結果に基づいて磁化を求め、逆推定結果との比較によって構成関係及び逆解析法の妥当性を実証する。

(3) Na付着物または組織変化したSUS304配管の検査にECTの妥当性を数値シミュレーションを用いて評価する。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文など】

- [1] Zhenmao Chen, An approach to reconstruction of a natural crack using signals of eddy current testing, I. Reconstruction of an idealized natural crack. JNC Report, JNC TN9400 99-009, December, 1998.

(次頁につづく)

(前頁より)

- [2] 陳、宮、青砥、渦電流探傷法を用いたき裂の再構成、材料学会第47期第2回高温強度部門委員会講演会試料、P16-25, 1998.
- [3] Zhenmao Chen, Kenzo Miya and Masaaki Kurokawa, An approach to reconstruction of natural cracks using signals of ECT, in Studies Appl. Electromagn. Mech., Vol.15, Electromagnetic Nondestructive Evaluation (III), eds. D.Lesseler and R.Razek, IOS Press, Ohamsa, P233-240, 1998.
- [4] Zhenmao Chen and Kenzo Miya, Fast reconstruction of crack shapes using eddy current testing, Proceedings of JBMSAEM'98, Sophia, 1998, (in press).
- [5] 陳、加藤、青砥、SUS304ステンレス鋼における塑性と磁化の相関、日本AEM 学会電磁破壊力学分科会報告書、JSAEM-R-9803, P69-82, 1999.

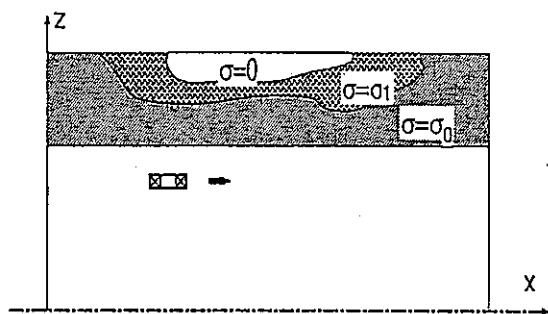


図1 接触が境界部に限られたき裂モデル

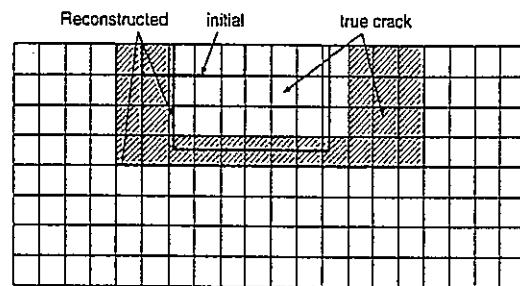


図2 矩形き裂場合の再構成結果の例

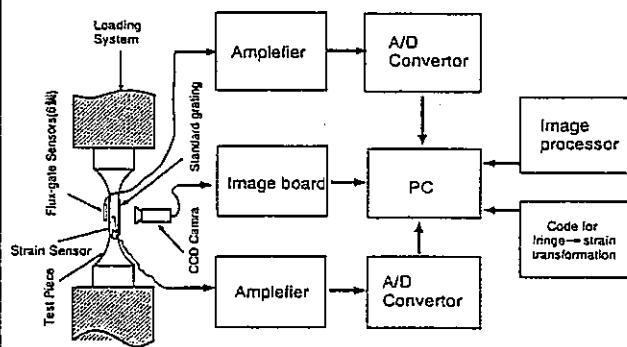


図3 試験中その場計測システムのフローチャート

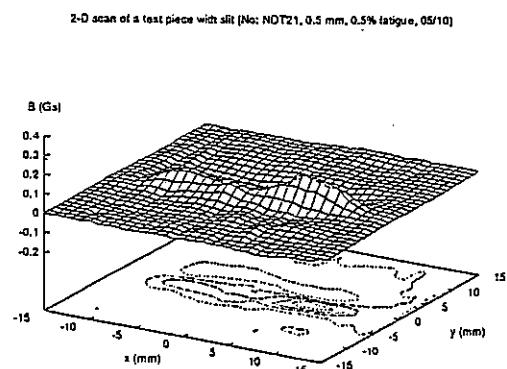


図4 疲労き裂の入った試験片における磁束漏洩

博士研究員（H10）平成10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 田中 健哉 原田 秀郎 中村 雅弘	所属長印 	監査印
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10年 4月 ~ 平成11年3月
【研究目的】	<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できるとされている。これまで5f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、5f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、圧縮率等を求め、つづいて、動的物性値とりわけ熱伝導率の研究を行う。</p>		
【研究内容（概要）】	<p>アクチニド系の原子は、原子番号が大きく、5f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>最初に磁気秩序をもつ UGe₂, UPt₃などの詳細な実験結果があり理論結果と比較ができる5f電子系化合物のバンド計算を行う。つぎにこの理論を核燃料物質である UO₂などの磁気秩序をもつ5f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一面（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、圧縮率等（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>		
【使用主要施設】	パーソナルコンピューター (VT-Alphashare)		

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成10年度は、密度汎関数法を用いてアクチニド化合物のバンド構造を得るために理論構築とプログラム開発を行い、Fe、 UGe_2 に適用することにより、これら物質のバンド構造、Fermi面を導出することができた。平成11年5月現在での各項目の実施状況の概要を以下にまとめる。

【研究成果】

平成11年5月までの研究成果の概要をまとめる。

（1）密度汎関数法の理論構築

この理論の特徴は、磁性項を第一近似で考慮したことと電子の波動関数を作る方法で Takeda and Kubler が原子核を含むある球の内部（マフィンティン球）で物質により経験的方法で与えていた適当な異なる2個のエネルギーの波動関数の線形結合を一義的に決めたことである。すなわち、1つ目の電子は結合状態をまず占領し、次の2つ目の電子は反結合状態を占領すると考え、このときのエネルギーを計算し、Takeda and Kubler の波動関数の2個のエネルギーとして採用し、波動関数の線形結合の表現を一義的に決めた。

その結果、磁気構造をもたない物質と磁気構造をもつ物質との電子密度とスピン密度の表式を導き、密度汎関数法との関係を付け計算式を一義的に作り上げることができた。

（2）プログラムの安定性

はじめに、3d磁性電子をもつFeに対して、プログラムの安定性を求めた。パラメータにマフィンティン半径（5.14、5.16[a.u]）をとり、エネルギーの格子定数依存性を得た。エネルギーが最小をとる格子の長さがFeの安定な格子定数であるが、安定な格子定数の値は便宜上設定したマフィンティン半径に依存しないことが望ましい。エネルギーの格子定数依存性の結果、安定な格子定数はマフィンティン半径によらず 5.19[a.u]であることが分かり、プログラムが安定していることがわかった。Feの実際の格子定数は理論値より大きく 5.41[a.u]であるが、ここでの方法は他の方法のバンド理論の示す精度と同程度であり、十分信頼性のあるものと分かった。

(3) UGe₂ の計算結果

次に、この理論を強磁性体 UGe₂ に適用した。UGe₂ の結晶構造は底心斜方体構造である（図 1）。空間的に広がりバンドを作る価電子としてウランの 5f, 6p, 6d と 7s 軌道（12 個の電子から成る）とゲルマニウムの 4s, 4p 軌道（4 個の電子から成る）を選んだ。図 1 を見ると、単位胞にウラン原子 4 個、ゲルマニウム原子 8 個が含まれているので単位胞当た 80 個の電子からバンドを作る。バンド構造では、80 番目のバンドの当たりがフェルミ面になると予想がつく。

図 2 は逆格子空間で、電子波のとることが許される波数の範囲と対称性の高い点と軸の名前を示してある。

波数の関数として図 2 の対称軸にそって 1 電子エネルギー値を求め、バンド図を得た。この結果、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、1 番目～78 番目までのバンドはすべて電子で占領され、79 番目～82 番目まではバンドの一部が電子で占領され、83 番目以上のバンドはすべて電子は空である。

図 3～図 6 では 79 番目～82 番目のバンドについて、特定な 1 次元軸上ではなく 3 次元全空間で 1 電子エネルギーを求め、「電子の占領されている領域」と「占領されていない領域」を分ける境界面（フェルミ面）をそれぞれ 4 枚のバンドについて描いた。79, 80 番目はホール面（この内部で電子が占領されていない）81, 82 番目が電子面（この内部で電子が占領されている）である。

以上の様にウラン化合物 UGe₂ 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。

(4) フェルミ面について

フェルミ面は比熱、電気伝導、熱伝導の原因となる電子散乱を決める非常に重要な量である。熱運動により電子が状態間を遷移する場合、パウリの排他律により 2 つの電子が 1 つの同じ状態を占めることはできないので、電子はエネルギーの高い空のバンドへ制限された遷移を行う。UGe₂ では 1 番目から 78 番目のバンドは完全に詰まっているため、このバンド上の電子が散乱して空のバンドに遷移するには大きな熱エネルギー必要である。しかし、79, 80, 81, 82 番目のバンド上の電子は、自らのバンドに電子が空の部分があるので、僅かな熱エネルギーで空のバンドに遷移することができるため容易に電子散乱をすることができる。よって、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。今後、dHvA 効果の測定結果とここで得たフェルミ面との結果を比較しフェルミ面の検証を行い、さらにフェルミ面の解析により比熱等の物性値を導き、論文にまとめる。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 11 年度は、UGe₂, UPt₃ のフェルミ面の解析、物性値の導出を実施する予定である。

平成 12 年度は、さらに理論を発展させ、核燃料物性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】

なし。

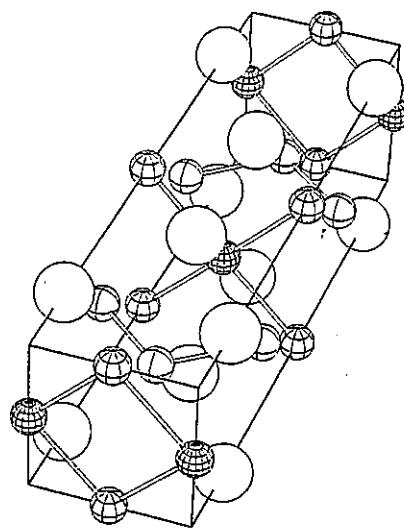


図 1: UGe 2 の結晶構造 (白丸:ウラン、網目丸 : ゲルマニウム)

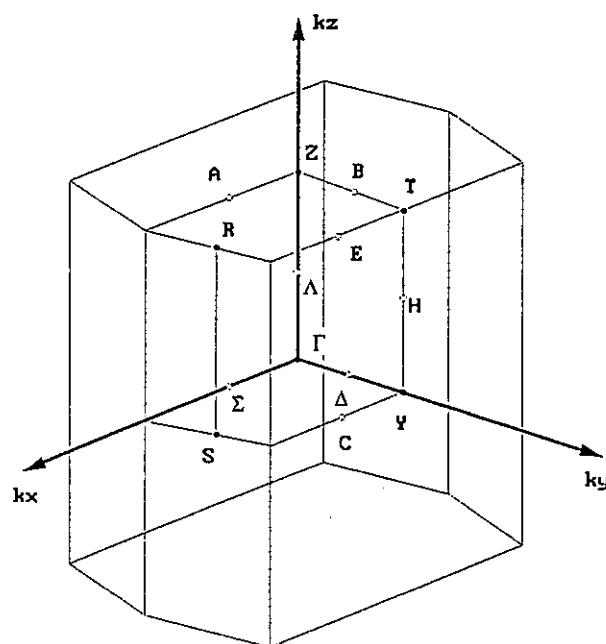


図 2: UGe 2 の逆格子構造

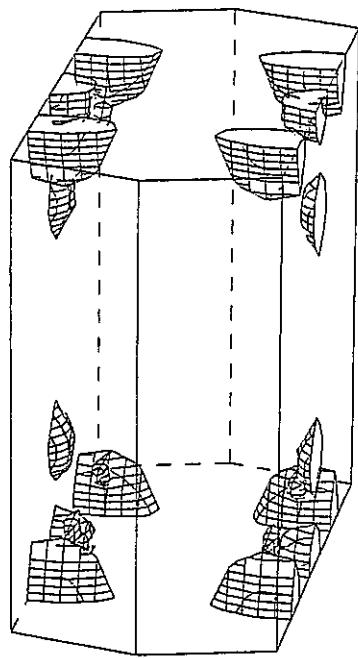


図 3: 79 バンド (ホール面)

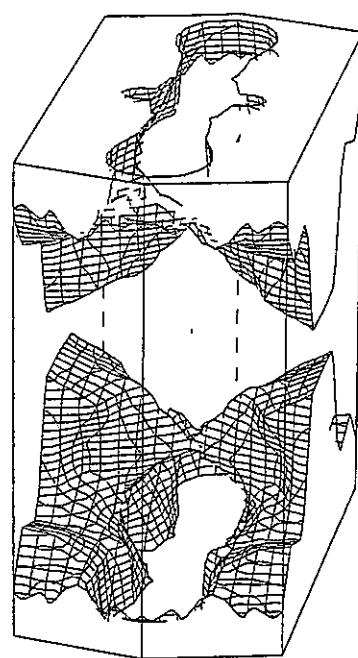


図 4: 80 バンド (ホール面)

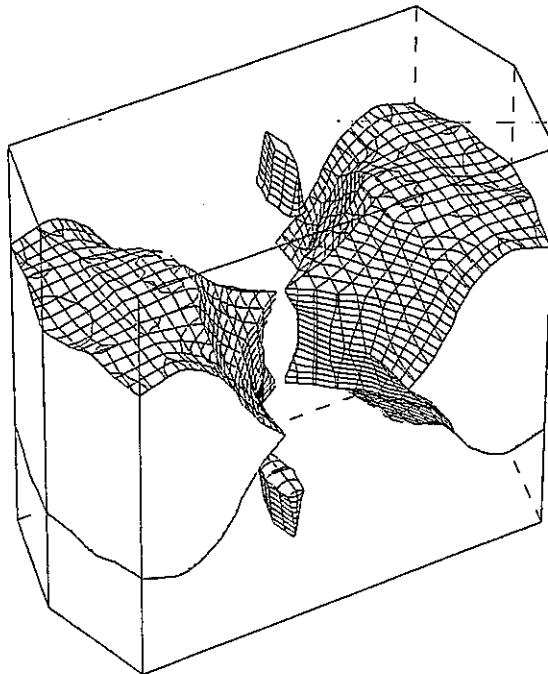


図 5: 81 バンド (電子面)

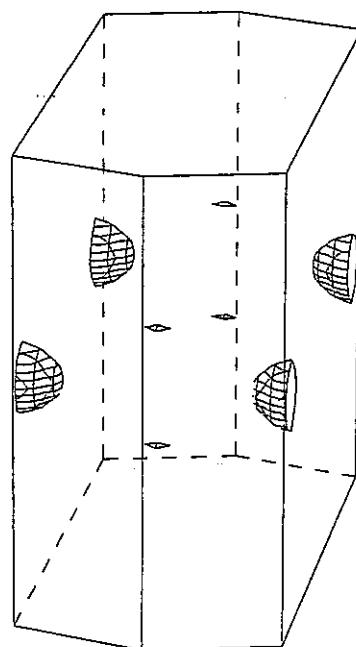


図 6: 82 バンド (電子面)

博士研究員(H10) 平成10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	亀井 玄人 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G r	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10年 4月 ~ 平成11年 3月
<p>【研究目的】 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や放射線分解による酸化剤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。しかし、これまでに求められた比較的簡単な系（純水系）で得られた黄鉄鉱の酸化データを地下処分環境下に適用することはできない。その理由のひとつに、溶液中の不純物の影響が考えられる。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反応速度則を実験的に求めることを主目的としている。処分環境下に適用可能なデータを得ることによって、ベントナイト中の黄鉄鉱の役割がモデル化される。</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、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の理解は、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である。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、その場観察をも行う。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(AES)、X線光電子分光法(XPS)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反応速度則を求め、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】 東海事業所 地層処分基盤研究施設</p> <p>分析装置：SEM、EDX、AES、XPS等 試験装置：GEOPRONT等</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

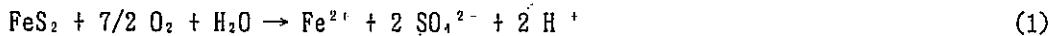
平成11年3月までに、純水系における黄鉄鉱による溶存酸素消費速度の測定、圧縮ベントナイト中の溶存酸素の実効拡散係数の測定、ベントナイト-黄鉄鉱系における黄鉄鉱による溶存酸素拡散の遅延効果を把握するための実験を実施した。

【研究成果】

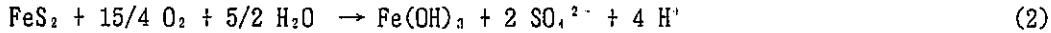
平成11年3月までの研究成果の概要をまとめる。

(1) 純水系における黄鉄鉱による溶存酸素消費速度

溶存酸素に対して閉鎖した系、かつ、純水系の条件において、黄鉄鉱の反応実験を行った。実験条件は、温度を25°Cおよび40°C、60°Cの3通り、pHを2および4、9、10、11、12の6通り、黄鉄鉱を産地の異なる5種類、反応時間を最大約60日間とした。溶存酸素濃度の測定は約3日毎に行った。黄鉄鉱は溶存酸素と次の反応をするが、その酸化還元反応は溶液組成が第二水酸化鉄に対して不飽和または飽和の状態により異なる。第二水酸化鉄に対して不飽和の条件において、



第二水酸化鉄に対して飽和した条件において、



である。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次であることが明確となった。従って、黄鉄鉱の酸化速度則はそれぞれのpHに対して(3)式のようになる。

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

k' は見かけの速度定数、SAは黄鉄鉱の全表面積(m^2)、Vは溶液の体積(m^3)、 $[\text{O}_2]$ は溶存酸素濃度(mol/m^3)である。ただし、実験中、SA/V比を一定であると仮定した。しかしながら、反応の進行により黄鉄鉱の表面積が変化することが考えられるため、黄鉄鉱の酸化速度則におけるこのパラメータの扱いは今後検討を要する。pHおよび温度に対する黄鉄鉱の酸化速度定数の関係を図1に示す。図1から速度定数はpHに対して依存することが明らかとなり、pHが2から12までの範囲における黄鉄鉱の酸化速度則は、それぞれの温度に対して(4)式のようにまとめられる。

$$\text{Rate} = -k \text{SA/V} [\text{O}_2] [\text{H}^+]^{0.07} \quad (4)$$

k は真の速度定数であり、25°Cでは $10^{-9.37}$ (m/s)、40°Cでは $10^{-8.52}$ (m/s)、60°Cでは $10^{-8.13}$ (m/s)の値をもつ。黄鉄鉱の酸化反応に対する活性化エネルギーは約69kJ/molである。さらに、25°Cから60°Cまでの温度範囲において黄鉄鉱の酸化速度則をまとめると(5)式のようになる。

$$\text{Rate} = -10^{-2.72} \text{SA/V} [\text{O}_2] [\text{H}^+]^{0.07} \exp(-8264/T) \quad (5)$$

ここで、Tは絶対温度(K)である。(5)式は、黄鉄鉱の酸化速度則に関してこれまでに求められていなかったpHおよびT、 $[\text{O}_2]$ 等の関数を統一した式である。よって、本研究の目的のひとつである純水系における黄鉄鉱の溶存酸素消費速度を求めることができた。

反応後の黄鉄鉱表面には Fe(OH)_3 等の酸化層が形成し、その酸化層の厚みが増すにつれ、未反応部の黄鉄鉱と酸素の反応が生じにくくなることが示唆される。そのため、形成する酸化層の厚さと速度則の関係も今後明らかにしていく。

(2) ベントナイト中の溶存酸素の拡散に対する黄鉄鉱による遅延効果

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となる。そこで、溶存酸素の実効拡散係数を次の方法で求めた。(i)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。(ii)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次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。

$$\frac{\partial C_{O_2}}{\partial t} = De \frac{\partial^2 C_{O_2}}{\partial x^2} \quad (6)$$

C_{O_2} 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(0.63)、 x は距離(m)である。(iii)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 $1\text{g}/\text{cm}^3$ とした。大気と平衡な 25°C のpH 9の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14回行い、ベントナイト中の溶存酸素の実効拡散係数として $7.20 \pm 0.78 \times 10^{-11}\text{m}^2/\text{s}$ を得た。この値は、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一致した。

次に、大気と平衡関係にある 25°C のpH 9の溶液を用いベントナイト(乾燥密度 $1\text{g}/\text{cm}^3$)に $1\text{mol}/\text{l}$ の硝酸で洗浄した黄鉄鉱を添加した実験を行った。添加した黄鉄鉱のサイズは $0.1\text{--}0.25\text{mm}$ である。ベントナイトに対して、0.5 および 2.4、4.8、12.5、20、25、33.3重量パーセントの黄鉄鉱を添加した。これらの実験結果(図2)から添加する黄鉄鉱の量を多くするほど電流密度の変化が小さい傾向が読み取れた。このことから、ベントナイト中の黄鉄鉱が溶存酸素の拡散を遅延することが明らかとなった。そこで、ベントナイト中の黄鉄鉱の酸化速度定数を次の方法で求めた。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、次の式に関係付けられる。

$$\frac{\partial C_{O_2}}{\partial t} = De \frac{\partial^2 C_{O_2}}{\partial x^2} - k' SA/V [O_2] \quad (7)$$

(7)式を用いて上記(ii)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 には上記ベントナイト中の溶存酸素の実効拡散係数($7.20 \times 10^{-11}\text{m}^2/\text{s}$)を用いた。その結果を図3に示す。図3には、純水(pH9)系の実験から得た速度定数と比較するために、その値を点線で示した。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9倍大きかった。ただし、このことについては、現在、検討中である。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成11年度は、複合系における黄鉄鉱の反応実験、酸化に伴う黄鉄鉱表面のその場観察、ベントナイト中の黄鉄鉱による溶存酸素の遅延効果を把握する実験を実施する予定である。

平成12年度は、上記の実験から導き出されるであろう新しい知見を支持する実験、これまでに得られる実験結果からの総合的なデータ解析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】

特になし。

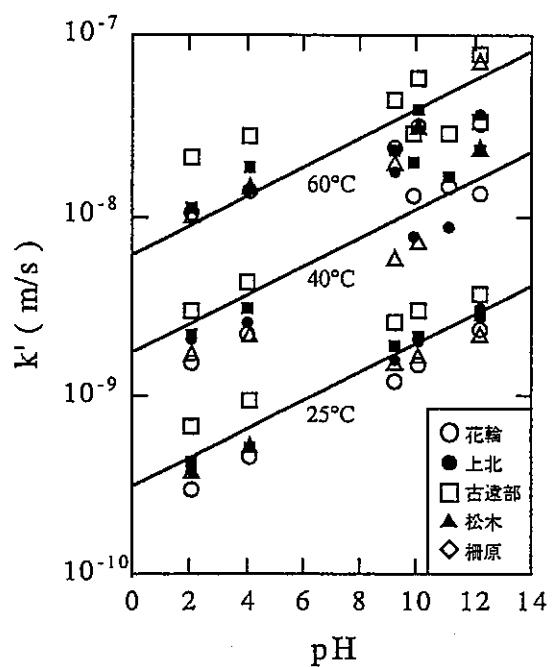


図1. 黄鉄鉱の酸化速度定数のpHおよび温度依存性

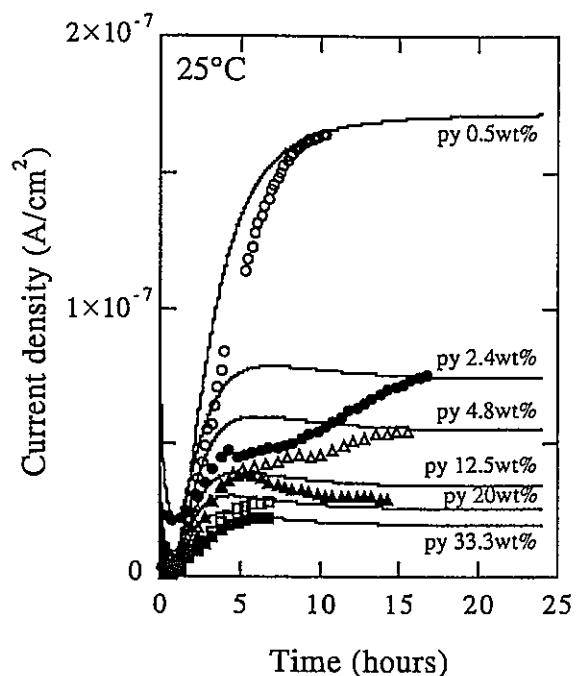


図2. ベントナイト中の黄鉄鉱の含有量の差による電流密度の経時変化

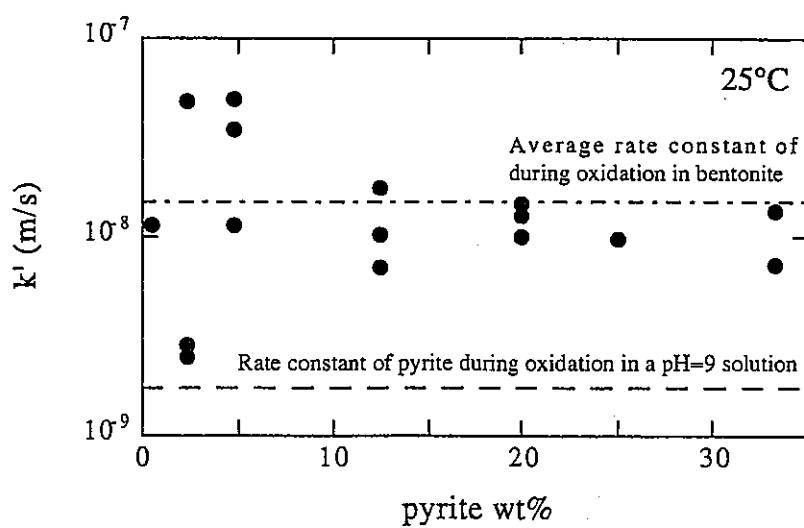


図3. ベントナイト中および純水系中の黄鉄鉱の酸化速度定数の比較

博士研究員(H10) 平成10年度研究概要報告書

《様式-4》

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 所属・氏名	大洗工学センター 炉心技術開発グループ 石川 真		所属長印 
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10年 4月 ~ 平成11年 3月

【研究目的】

資源の有効活用及び最終処分されるHLWの将来における環境への負担の軽減の観点から、高速炉において生成されるMAを自身の炉において燃焼するとともに、LLFPも含めて炉内で消滅させる為に、既存の液体金属冷却高速炉をベースに新型燃料及びNa以外の冷却材を用いた炉心の核的ポテンシャルの比較検討を行う。また、これらの新型炉心とコ・ロケーション型高速炉サイクルシステム概念との整合を探りその可能性を追求する。

【研究内容（概要）】

酸化物燃料Na冷却高速炉をベースに、金属燃料や窒化物燃料などの新型燃料、及びNa以外の液体金属冷却材を用いた中性子経済的に優れた高速炉において、自己生成したMA及びLLFPの炉内消滅を図り、その消滅特性及び炉心の核特性を比較検討する。燃料や冷却材の変更により変化する炉の中性子スペクトルがMA及びLLFPの消滅特性に与える影響を、ドップラー反応度係数やボイド反応度等の炉心特性を含めて考察し、これら反応度係数の改善を行うとともに新型炉心の核的ポテンシャルを探る。

又、燃料加工、原子炉、再処理を一体型として1つの核センター内に設置し、炉内にできた安定核種及び一部のFPのみが核センターの外へ廃棄処分され、Pu及びMA等を炉にリサイクルする一体型高速炉サイクルシステム概念と、上記新型炉心との整合を探る。これにより、新しいサイクルシステム概念の成立可能性を追求する。

【使用主要施設】 PENCIL 5.3コード 及び
CITATION、SLAROM、JOINT、PERKY、の各コード。

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成10年度は、炉心の核特性解析に必要な計算コードの習熟を経て、Na冷却型高速炉におけるMA及びLLFPの平衡量及び平衡組成を求め、それらを炉内に閉じ込めた炉心の炉心特性解析を、燃料種別を変更して実施した。

【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。

高速炉を中心とする核燃料リサイクルシステム（以下「高速炉サイクル」）において、運転期間中に自身の炉で生成されるMA及びLLFPをリサイクルし炉内で消滅をはかる、自己完結型炉の炉心概念検討に資するため、電気出力60万kW、径プランケット無しの典型的なNa冷却酸化物燃料炉心の炉心仕様で、MA及びLLFPを炉にリサイクルし原子炉内に閉じ込めた炉心（以下「平衡炉心」）の核特性解析を以下に示す基本条件のもとに行った。

<基本条件>

- ・自身の炉で生成されたMAはRE（希土類元素）と分離し、リサイクル時のロス無しに完全に回収され炉心に戻されると仮定する。ここでMAは²³⁷Np, ²⁴¹Am, ^{242m}Am, ²⁴³Am, ²⁴²Cm, ²⁴³Cm, ²⁴⁴Cm, ²⁴⁵Cmの8核種とする。
- ・自身の炉で生成されたLLFPは同位体分離によってロス無しに回収され炉心に戻されると仮定する。ここでLLFPは⁷⁵Se, ⁸³Zr, ⁹⁹Tc, ¹⁰⁷Pd, ¹²⁶Sn, ¹²⁰I, ¹³⁵Csの7核種とする。
- ・MA及びLLFPは炉心に均質に装荷する。
- ・炉にリサイクルされるPu、MA、LLFP以外のFPは、一定期間の貯蔵の後に高速炉サイクル外へ廃棄されるものとする。
- ・Puに関しては自給を目指し、Uのみ外部から供給されるものとする。

また、MAやLLFPの炉内閉じ込めを行わない炉心（「基準炉心」とする）、及びこの「基準炉心」にLWRからの取り出し組成のMAを5w/o装荷する炉心（「5w/oMA炉心」とする）の核特性を解析し、「平衡炉心」の核特性と比較検討した。

解析項目は、Puの平衡組成、MA及びLLFPの平衡量及び平衡組成、最大線出力、増殖比、燃焼欠損反応度、取り出し燃料平均燃焼度、最大高速フルエンス、ドップラー反応度係数、Naボイド反応度、及び燃料サイクルマスバランスである。

本解析の目的は、「平衡炉心」と、「基準炉心」及び「5w/oMA炉心」との核特性の比較を通して、「平衡炉心」の特異性を検討することにある。また、その特異性がゆえに、「平衡炉心」が高速炉設計概念に大きな変更を要求するのか否かの検討を、核特性の観点から行うことである。

なお、これら3核種の「炉心」に関して、MA及びLLFPの消滅に際して中性子経済の観点から魅力のある、窒化物燃料や金属燃料炉心に関する検討を行った。

表1に本解析で用いた電気出力60万kW炉心の炉心仕様を燃料種別ごとに示す。また、表2には「平衡炉心」の核特性解析結果を、表3及び表4には「基準炉心」及び「5w/oMA炉心」の解析結果をそれぞれ示す。

本検討の結果をまとめると以下のようになる。

- ・典型的な電気出力 60 万 kW、Na 冷却酸化物燃料炉心の炉心設計に変更を加えずに、平衡量の MA 及び LLFP を、MA は RE の分離を、LLFP は同位体分離をそれぞれ仮定して炉心にリサイクルして閉じ込めた場合、一部の核特性を除いて「基準炉心」から「5w/oMA 炉心」の核特性の変化範囲を大きく逸脱するものではなかった。したがって、核特性の観点からは、燃焼欠損反応度増大に対処できれば、「基準炉心」の炉心仕様に大幅な変更を加えること無しに、自身の炉心から取り出される MA 及び LLFP を炉内に閉じ込めた「平衡炉心」が成立する可能性があることがわかった。
- ・酸化物燃料「平衡炉心」は、LLFP が平衡量の 15.1w/o 装荷されるために Pu 富化度が増大したが、その増殖比は径プランケット燃料無しで 1 を上回った。また、Pu マスバランスに関して、平衡サイクルでの Pu 装荷量は 1.50t/yr、取出量は 1.46t/yr であり、Pu の装荷量と取出量の差は僅かに 0.04t/yr であった。このことから、酸化物燃料炉心においてでも、炉心仕様に大幅な変更を加えることなしに、U 以外を新たに加えずに Pu を自給自足して「平衡炉心」が成立する可能性があることがわかった。
- ・新型燃料炉心は酸化物燃料炉心に比べて、増殖比が高くなり、また中性子経済が良いため燃焼欠損反応度が小さくなるなどの特徴を有した。したがって、新型燃料炉心は設計時の自由度が高く、RE などのさらなる核種を炉内に閉じ込められる可能性を有していることが再確認された。

今後の課題としては以下のものが挙げられる。

- ・MA に関して、RE の完全分離を仮定していることから、この RE 混入の影響の評価。
- ・LLFP に関して同位体分離を仮定しているため、元素分離での炉内への装荷の検討。
- ・上記 MA、LLFP も含めて、可能な限り高速炉システム外へ廃棄される核物質を減じることを目的として、更なる核種の炉内閉じ込めの検討。
- ・各燃料種別における炉心の最適化の検討。
- ・計算に使用する核定数セットの統一化。
- ・Na 以外の液体金属冷却材を用いた炉心の検討。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 11 年度は、炉心仕様の最適化など上記検討課題の実施を行い、現時点の解析の精度を上げることを念頭におき、サイクルシステム全体との整合を踏まえたシナリオ構築により、解析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】

- ・JNC 研究報告書、
「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)」
を登録管理手続き中。
- ・日本原子力学会 1999 年秋の年会において発表予定。
(予稿タイトル：「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」)

表 1 電気出力60万kW炉心の炉心仕様

	項目	酸化物燃料	窒化物燃料	金属燃料
	ケース名	Case I-1,2-1,3-1	Case I-2,2-2,3-2	Case I-3,2-3,3-3
基 本 仕 様	炉出力	60万kWe	—	—
	運転サイクル長さ	365日	—	—
	燃料型式	均質2領域	—	—
	炉心燃料交換パターン	3バッチ	—	—
	原子炉出入口温度	550°C / 380°C	—	—
	炉心高さ	100cm	—	—
燃 料 仕 様	燃料化学形	(U,Pu)O _{1.98}	(U,Pu) ¹⁵ N	(U,Pu)10Zr
	理論密度	11.0g/cm ³	14.3g/cm ³	15.9g/cm ³
	ペレット密度	96.0%TD	—	100%TD
	ペレット径	7.09mm	—	6.53mm
	ピン径	8.50mm	—	—
	ピン配列ピッチ	9.85mm	—	—
	被覆管肉厚	0.48mm	—	—
	スマニア密度	85.0%	—	75%
	構造材材質	改良オーステナイト鋼	MA957相当鋼	—
集 合 体 仕 様	実効燃料体積比	36.8% (32.5%*)	36.8% (31.2%*)	32.5% (26.9%*)
	集合体あたりピン本数	217本	—	—
	ダクト肉厚	4.0mm	—	—
	集合体配列ピッチ	160.7mm	—	—
燃料 集合 体 仕 様	燃料集合体数 (IC/OC)	108体 / 138体	—	—

*) Case 3-1, 3-2, 3-3

表 2 「平衡炉心」解析結果

	平 衡 炉 心		
燃料型	酸化物燃料	窒化物燃料	金属燃料
ケース名	Case 3-1	Case 3-2	Case 3-3
平衡Pu同位体組成比*[w/o]	1.2/48.6/38.7/6.3/5.2	1.1/62.0/30.4/4.3/2.2	1.2/60.3/31.5/4.6/2.5
Pu富化度(内側/外側)[w/o]	23.0/28.0	14.8/18.9	15.7/20.1
平衡MA荷荷量[w/o]	1.18	0.549	0.648
平衡MA組成比**[w/o]	6.7/23.1/1.5/27.7/1.7/0.3/3 1.5/7.5	19.1/30.0/2.1/21.4/1.8/0.3/20.7/4.5	17.1/26.1/2.0/25.1/1.8/0.2/23.1/4.5
平衡LLFP荷荷量[w/o]	15.1	15.0	17.1
平衡LLFP組成比***[w/o]	0.1/28.0/6.9/2.3/26.6/3.5/32.6	0.1/25.2/7.2/2.2/24.9/3.7/36.7	0.1/21.9/7.3/2.3/23.5/3.8/41.1
最大線出力 (RZ計算値) [W/cm]	419	426	417
増殖比 (BOC/EOC)	1.04/1.05	1.21/1.19	1.15/1.15
燃焼欠損反応度[%Δk/kk']	3.16	1.08	1.84
取出燃料平均燃焼度 [MWd/t]	95900	72600	78200
最大高速フルエンス [10 ²³ n/cm ²]	2.91	2.87	3.42
ドップラー係数[10 ⁻³ Tdk/dT]	-5.74	-5.53	-4.04
Naボイド反応度[%Δk/kk']	2.80	2.80	4.30
実効燃料体積比[%]	32.5	31.2	26.9

*) 平衡Pu同位体組成比 : $^{238}\text{Pu}/239\text{Pu}/240\text{Pu}/^{241}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$ **) 荷荷平衡MA組成比 : $^{237}\text{Np}/^{241}\text{Am}/^{242}\text{Am}/^{243}\text{Am}/^{242}\text{Cm}/^{243}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}$ ***) 荷荷平衡LLFP組成比 : $^{79}\text{Se}/^{93}\text{Zn}/^{99}\text{Tc}/^{107}\text{Pd}/^{126}\text{Sn}/^{129}\text{V}/^{133}\text{Cs}$

表 3 「基準炉心」解析結果

燃料型	基 準 炉 心		
	酸化物燃料	窒化物燃料	金属燃料
ケース名	Case 1-1	Case 1-2	Case 1-3
平衡Pu同位体組成比*[w/o]	0.2/57.4/34.0/5.2/3.2	0.2/69.6/25.7/3.3/1.2	0.2/69.5/25.8/3.3/1.2
Pu富化度(内側/外側)[w/o]	17.5/22.2	10.7/14.3	10.5/14.5
MA装荷量[w/o]	0	0	0
装荷MA組成比**[w/o]	—	—	—
最大線出力(RZ計算値)[W/cm]	425	438	429
増殖比(BOC/EOC)	1.09/1.08	1.34/1.28	1.31/1.26
燃焼欠損反応度[%△k/kk']	2.21	-0.71	-0.41
取出燃料平均燃焼度[MWD/t]	84800	61500	64900
最大高速フルエンス[10 ²³ n/cm ²]	2.75	2.69	3.27
ドップラー係数[10 ⁻³ Tdk/dT]	-8.58	-8.30	-5.61
Naボイド反応度[%△k/kk']	2.32	2.43	3.89
実効燃料体積比[%]	36.8	—	32.5
集合体バンドル圧損[kg/cm ²]	3.11	—	—

*) 平衡Pu同位体組成比 : $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$

表 4 「5w/oMA炉心」解析結果

燃料型	5w/oMA 炉 心		
	酸化物燃料	窒化物燃料	金属燃料
ケース名	Case 2-1	Case 2-2	Case 2-3
平衡Pu同位体組成比*[w/o]	10.4/54.2/27.8/4.0/3.6	12.4/62.1/20.8/2.5/2.2	11.8/62.4/21.0/2.5/2.3
Pu富化度(内側/外側)[w/o]	16.6/21.5	10.8/14.5	10.6/14.7
MA装荷量[w/o]	5	5	5
装荷MA組成比**[w/o]	49.1/30.0/0.1/15.5/0.0/0.0/5.0/0.3	—	—
最大線出力(RZ計算値)[W/cm]	434	442	434
増殖比(BOC/EOC)	1.13/1.11	1.39/1.31	1.36/1.29
燃焼欠損反応度[%△k/kk']	0.25	-2.00	-1.69
取出燃料平均燃焼度[MWD/t]	85100	61800	64800
最大高速フルエンス[10 ²³ n/cm ²]	2.70	2.62	3.12
ドップラー係数[10 ⁻³ Tdk/dT]	-5.54	-4.66	-3.27
Naボイド反応度[%△k/kk']	3.01	3.28	5.09
実効燃料体積比[%]	36.8	—	32.5

*) 平衡Pu同位体組成比 : $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$ **) 装荷MA組成比 : $^{237}\text{Np}/^{241}\text{Am}/^{242m}\text{Am}/^{243}\text{Am}/^{242}\text{Cm}/^{243}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}$

博士研究員（H10）平成10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10年 4月 ~ 平成11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) 地下水中的希ガス分析法を確立する、(2) 東濃鉱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、地質学的数据と併せることにより、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。東濃鉱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内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、割れ目の分布等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 湿式実験室（安定同位体測定システム） 東濃鉱山および、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、地下水中に溶存する希ガス元素の濃度・同位体組成測定のための希ガス質量分析計の調整、地下水の原位置での正確な採取を行うための採水ボトルの開発および、水試料の精密な希ガス測定を行うための試料前処理技術の開発を実施した。また、標準試料（大気・蒸留水）および、地下水試料についての予備的な濃度・同位体組成の測定を行った。

【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。

(1) 希ガス質量分析計の調整

希ガス測定のための分析装置は、試料から希ガスを抽出し、各希ガス成分を分離・精製する試料前処理装置と、同位体組成を測定する磁場型質量分析計から構成されている。この分析装置は平成9年度に導入されたばかりであり、基本性能の確認、地下水試料に対応した試料前処理システムを設置する必要があった。

磁場型質量分析計の基本性能においては、ヘリウム測定時の分解能について200以上、その他の希ガス測定時に600以上を達成した。装置内は 2×10^{-9} Torrの高真空中を達成しており、装置内の残留ガスによる分析値の変動が無視できる程度となっている。これにより、各希ガスの精密な同位体測定を行える状態になったといえる。

地下水試料に対応した試料前処理システムにおいては、採水ボトルから溶存希ガスを効果的に取り出すとともに発生した水蒸気を除去する必要がある。採水ボトルを直に装置に連結し、超音波洗浄を施すことにより、溶存希ガスを取り出し、同時に発生した水蒸気を吸着剤（合成ゼオライト）によって除去させるシステムを構築し、試料前処理装置に付加した。

(2) 標準試料中の希ガス濃度・同位体組成の測定

(2-1) 大気試料

大気試料は、地表付近では希ガスの濃度・同位体組成がほぼ一定であることが知られており、一般的に標準試料として用いられている。実試料の測定を行う前に、測定データの誤差・再現性の見積もり、質量分析計内での質量分別効率の補正および、検出器の感度補正を行うために、大気試料の繰り返し測定を行った。試料は、東濃地科学センター屋外において採取し、試料前処理装置に導入後、同一の拡散・精製過程を施したうえで測定を行った。その測定結果を表1.1～1.5に示した。同位体組成においては、1回の測定における誤差は1%前後あるいはそれ以下、再現性もほぼ1%前後となった。希ガス濃度の算出は、各ピークの検出器における出力値(V)と検出器の感度を用いて行う。各希ガスピークの出力値の再現性は約5%である（表1）。従って、希ガス濃度定量の再現性は約5%であるといえる。これらの精度は、同タイプの質量分析装置を用いている他の研究機関における精度と同等のものである。

(2-2) 蒸留水試料

蒸留水中の希ガス濃度は、溶解度から容易に計算できる。従って、蒸留水を分析することにより、溶存希ガス脱ガスの効率および、再現性を見積もることができる。各希ガスの測定結果を表2に示した。表2は、測定値に加えて、溶解度から考えられる理論値も示している。理論値に比べて、いずれの元素も測定値のはうが高い値を取っている。これは大気成分などの混入による結果と思われる。また、各元素とも3回の測定において再現性は30～40%と大きくなってしまっており、脱ガス効率の違いも検討を要する。従って、今後、試料の採取時に大気の混入を最小限にとどめる仕様の試料ボトルおよび、水試料からの再現性のよい脱ガスを行える前処理システムを確立し、さらに蒸留水の分析を行うことによって、データの精度を上げる必要がある。

(3) 地下水試料の測定

蒸留水の分析を行うとともに、地下水試料を採取し予備的な分析を行った。試料採取は、東濃鉱山周辺のMPシステムが導入されている試錐孔の一つである、DH-3号孔の地下130mの地点（花崗岩）で行った。採水においては、従来から使用されているWestbay社のMPボトルおよび、新たに製作したボトル（New Bottle：以降NB）を使用した。その結果を図1および図2に示した。図1は各希ガスを横軸、定量値を大気中の濃度で規格化した値を縦軸にとったものである。図1より明らかのように、MPボトルのデータは大気のデータに近く、試料採取に際して大気が混入していることが分かる。NBによるデータはヘリウムを除いて、大気との平衡値（理論値）と傾向がよく似ている。天水を起源とした地下水の場合、ヘリウム以外の元素は基本的には大気との平衡値を保持しているため、このデータは矛盾するものではない。従って、NBを導入したことによって、MPボトルに比べて、より理論値に近づいたといえる。

図2は、ヘリウムの同位体およびヘリウムとネオンの濃度比によって地下水中のヘリウムの起源を明らかにしたものである。地下水中のヘリウム組成は、大気・地殻（地層中での放射性核種の壊変により生成）・マントル（マグマ活動と関連して移動）の3つの成分の混合によって決定され、この混合比によって、地下水の年代、マグマ成分の分布といった地下構造などを知ることができる。今回のNBによるヘリウム同位体のデータは、DH-3号孔の地下130mの地点では、明らかに大気成分と地殻成分の混合による結果であり、マントル成分の寄与は無視できるほど少ないといえる。

現段階では、地下水試料の測定値は、蒸留水のデータと同様に再現性に乏しく、定量値も高く出る傾向にある。この点について、さらに改良を行う必要がある。その上で今後各地点のデータを蓄積し、ヘリウム濃度・同位体組成の変化により地下水の流動方向などを解析する予定である。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成11年度は、地下水中の希ガスの分析および、地層中での希ガスの組成変化の解析を実施する予定である。

平成12年度は、地下水の地球化学的流動モデルの構築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】

なし

表 1.1 大気試料中のヘリウム測定結果

^4He (V)	error ^a	$^3\text{He}/^4\text{He}$	error ^b	^{22}Ne (V)	error ^a	$^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ error ^a	$^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ error ^a
Run 1	0.3835	0.27%	9.24×10^{-7}	1.96%	Run 1	0.001481*	1.58%
Run 2	0.4052	0.32%	9.32×10^{-7}	1.51%	Run 2	0.001426*	3.13%
Run 3	0.3776	0.25%	9.19×10^{-7}	1.56%	Run 3	0.001648*	0.46%
Run 4	0.3828	0.10%	9.38×10^{-7}	1.77%	Run 4	0.002290*	0.23%
Run 5	0.3489	0.26%	9.55×10^{-7}	1.51%	Run 5	0.002389*	0.22%
Av.	0.3796	5.31%	9.34×10^{-7}	1.51%	Av.	-----	10.52
						0.83%	0.02948
							1.14%

^a: 誤差は 1σ (%)。以下の表についても同様。

表 1.2 大気試料中のネオン測定結果

^{22}Ne (V)	error ^a	$^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ error ^a	$^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ error ^a
Run 1	0.001481*	1.58%	10.65
Run 2	0.001426*	3.13%	10.54
Run 3	0.001648*	0.46%	10.47
Run 4	0.002290*	0.23%	10.52
Run 5	0.002389*	0.22%	10.42
Av.	-----	10.52	0.83%
			0.02948
			1.14%

^a: 試料精製過程が異なるため、平均値の算出には加えていない。以下の表についても同様。

表 1.3 大気試料中のアルゴン測定結果

^{36}Ar (V)	error ^a	$^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$	error ^b	$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ error ^a
Run 1	0.001469	0.30%	0.1869	0.58%
Run 2	0.001507	0.20%	0.1863	0.50%
Run 3	0.001455	0.30%	0.1888	0.76%
Run 4	0.001181*	0.42%	0.1861	0.58%
Run 5	0.001365	0.28%	0.1867	0.54%
Av.	0.001449	4.15%	0.1870	0.57%
				422.2 1.82%

表 1.4 大気試料中のクリプトン測定結果

^{84}Kr (V)	error ^a	$^{78}\text{Kr}/^{84}\text{Kr}$	error ^b	$^{80}\text{Kr}/^{84}\text{Kr}$ error ^a	$^{82}\text{Kr}/^{84}\text{Kr}$ error ^a	$^{83}\text{Kr}/^{84}\text{Kr}$ error ^a	$^{86}\text{Kr}/^{84}\text{Kr}$ error ^a
Run 1	0.02011	0.26%	0.005811	0.32%	0.03708	0.36%	0.1924
Run 2	0.02100	0.33%	0.005763	0.45%	0.03721	0.56%	0.1933
Run 3	0.02081	0.53%	0.005749	0.79%	0.03668	0.60%	0.1897
Run 4	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----
Run 5	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----
Av.	0.02064	2.27%	0.005774	0.56%	0.03699	0.75%	0.1918
					0.98%	0.1905	0.72%
						0.2907	1.00%

表 1.5 大気試料中のゼノン測定結果

^{132}Xe (V)	error ^a	$^{124}\text{Xe}/^{130}\text{Xe}$	error ^b	$^{128}\text{Xe}/^{130}\text{Xe}$ error ^a	$^{128}\text{Xe}/^{130}\text{Xe}$ error ^b	$^{129}\text{Xe}/^{130}\text{Xe}$ error ^a	
Run 1	0.002667*	0.19%	0.02402	1.21%	0.02138	2.08%	0.4703
Run 2	0.005064	0.61%	0.02316	1.24%	0.02251	0.61%	0.4648
Run 3	0.004553	0.76%	0.02451	0.99%	0.02210	1.17%	0.4646
Run 4	0.004874	0.38%	0.02358	1.52%	0.02189	0.82%	0.4646
Run 5	0.004744	0.36%	0.02320	1.19%	0.02176	0.94%	0.4671
Av.	0.004809	4.48%	0.02369	2.42%	0.02193	1.90%	0.4663
					0.54%	6.609	0.26%
$^{131}\text{Xe}/^{130}\text{Xe}$ error ^a	$^{132}\text{Xe}/^{130}\text{Xe}$ error ^a	$^{134}\text{Xe}/^{130}\text{Xe}$ error ^a	$^{138}\text{Xe}/^{130}\text{Xe}$ error ^a	$^{132}\text{Xe}/^{130}\text{Xe}$ error ^b	$^{134}\text{Xe}/^{130}\text{Xe}$ error ^b	$^{138}\text{Xe}/^{130}\text{Xe}$ error ^b	
Run 1	5.256	0.28%	6.694	0.29%	2.558	0.51%	2.143
Run 2	5.309	0.22%	6.785	0.23%	2.577	0.28%	2.170
Run 3	5.264	0.25%	6.702	0.21%	2.562	0.29%	2.150
Run 4	5.293	0.29%	6.744	0.31%	2.569	0.30%	2.155
Run 5	5.266	0.18%	6.709	0.23%	2.573	0.48%	2.155
Av.	5.278	0.43%	6.727	0.56%	2.568	0.30%	2.155
					0.47%		

表2. 蒸留水中の希ガス測定結果

	${}^4\text{He(ccSTP)}$	${}^{22}\text{Ne(ccSTP)}$	${}^{38}\text{Ar(ccSTP)}$	${}^{84}\text{Kr(ccSTP)}$	${}^{130}\text{Xe(ccSTP)}$
Run1	1.19×10^{-6}	3.89×10^{-6}	2.59×10^{-4}	1.05×10^{-6}	3.70×10^{-7}
Run2	1.88×10^{-6}	5.76×10^{-6}	2.55×10^{-4}	7.95×10^{-6}	2.40×10^{-7}
Run3	1.05×10^{-5}	3.23×10^{-6}	1.40×10^{-4}	4.88×10^{-6}	1.71×10^{-7}
Av.	1.37×10^{-6}	4.29×10^{-6}	2.18×10^{-4}	7.77×10^{-6}	2.60×10^{-7}
Error	32%	30%	31%	37%	39%
理論値*	3.4×10^{-6}	1.3×10^{-6}	8.8×10^{-5}	3.8×10^{-6}	2.4×10^{-7}

*: 標準状態 (Standard Temperature and Pressure) における容積 (cc)

* : 15°C の大気と平行にある蒸留水中の希ガス濃度

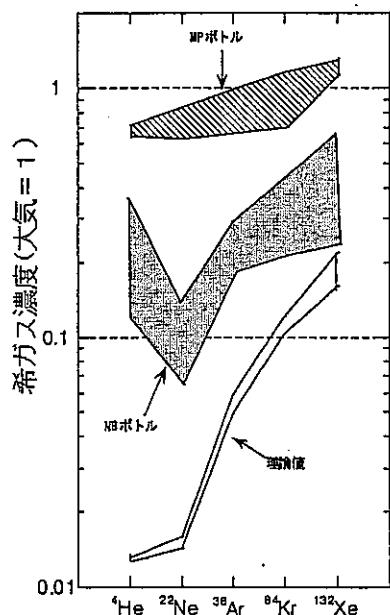


図1.DH-3号孔 130m 地点の地下水中の希ガス濃度測定値

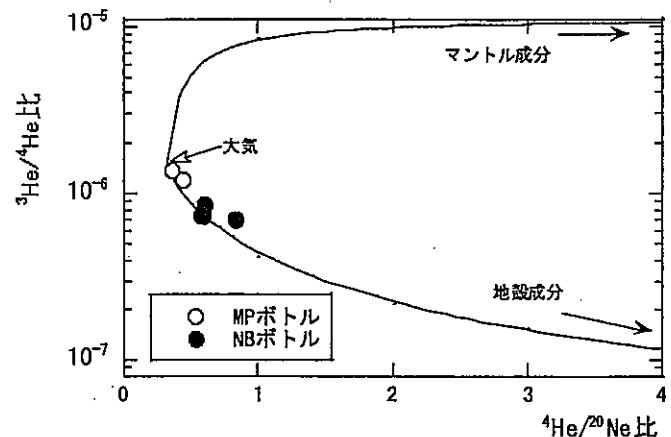


図2. DH-3号孔 130m 地点の地下水中の ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比と ${}^4\text{He}/{}^{20}\text{Ne}$ 比の関係。
実線は大気とマントルおよび、大気と地殻成分の混合ラインを示す。