

# 博士研究員による平成12年度研究概要報告

2001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村松4番地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)

2001

JNC TN1400 2001-011  
2001年7月

## 博士研究員による平成12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に研究環境を提供し、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、平成12年度で4年目を迎えた。

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が2～3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12年度に実施した博士研究員による16件の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、16件の研究テーマのうち、6件の研究テーマが平成12年度で終了した。

## 一 目 次 一

1. 博士研究員による平成12年度研究テーマ一覧	i
2. 博士研究員による平成12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) 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 （高アルカリ溶液による変質）	6
(3) ウラン鉱山に生息する植物群落の放射性元素の動態	10
(4) CMP O-TBP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	14
(5) バンド理論を用いたウラン酸化物の物性に関する研究	23
(6) 地球化学的調査に基づいた地下水流动に関する研究	33
(7) オーステナイト系ステンレス鋼におけるスリップ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	45
(8) 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动の変化の把握に関する研究	51
(9) 人工バリアにおける核種拡散過程に関する研究	64
(10) 熔融炉心物質の多相流挙動に関する研究	75
(11) 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	81
(12) レーザー法による微量希ガス検出技術の「常陽」への適用	88
(13) ナトリウム燃焼の化学熱力学に関する研究	96
(14) 月吉断層を例とした断層発展過程における空隙構造の形成メカニズムに関する研究	102
(15) セグメント構造を考慮した割れ目系の三次元形態の推定法および水理モデルの構築手法に関する研究	111
(16) 海水準変動と海岸地形発達の将来予測に関する基礎研究： 化石、堆積相そして堆積年代からの高精度地層形成メカニズムの解明	118

## 1. 博士研究員による平成 12 年度研究テーマ一覧

## 博士研究員による平成12年度研究テーマ一覧（1／2）

…平成12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】	受入箇所	研究協力者
平成9年度	1	古高 和祐	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・研究開発センター 先駆サイクル研究開発部 先駆サイクル解説講師グループ	原田 秀郎
平成10年度	2	金 善永	緩衝材としてのペ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 (高アルカリ溶液による変質) 【平成10年4月～平成13年3月】	東海事業所 環境・研究開発センター 処分研究部 粉川アセメント研究グループ	柴田 雅博
	3	志鷹 卓徳	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
	4	高梨 光博	CMPQ-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・研究開発センター 先駆サイクル研究開発部 先駆処理技術開発グループ	青嶋 駒 厚義和
	5	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・研究開発センター 先駆サイクル研究開発部 先駆サイクル解説講師グループ	馬場 秀郎 原田 中村 雅弘
	6	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 環境長期予測グループ 施設技術グループ	岩月 輝希 徐 伊藤 阿部 渡辺 勝茂 雅人 雅人
	7	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動効果に関する研究 【平成11年4月～平成14年3月】	大洗工学センター 燃料燃焼管理センター 燃料材料試験部 照射材料試験室	赤坂 尚昭 山県 一郎 堂野前貴子
平成11年度	8	周 啓友	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 【平成11年4月～平成14年3月】	東濃地科学センター 環境特性研究グループ	松井 裕哉

## 博士研究員による平成12年度研究テーマ一覧（2／2）

■■■■■ 平成12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】	受入箇所	研究協力者
平成11年度	9	鈴木 覚	人工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 競合・競開発センター 処分研究部 放射化学研究グループ	佐藤 治夫
	10	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 要素技術開発部 高速炉安全工学 グループ	近藤 悟 飛田 吉春 小西 賢介
	11	曹 學武	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
	12	原野 英樹	レーザー法による微量希ガス検出技術の「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 廃設施管理センター 実験炉部 技術課	伊藤 和寛 野瀬 正一
平成12年度	13	黄 錦涛	ナトリウム燃焼の化学熱力学に関する研究 【平成12年4月～平成15年3月】	大洗工学センター 要素技術開発部 機器・構造安全工 学グループ	古川 智弘
	14	大西智恵美 セリア	月吉断層を例とした断層発展過程における空隙構造の形成メカニズムに関する研究 【平成12年4月～平成15年3月】	東濃地科学センター 環境特性研究グループ	濱 克宏
	15	崔 紅坤	セグメント構造を考慮した割れ目系の三次元形態の推定法および水理モデルの構築手法に関する研究 【平成12年4月～平成15年3月】	東海事業所 競合・競開発センター 処分研究部 システム解析グループ	内田 雅大
	16	鎌滝 孝信	海水準変動と海岸地形発達の将来予測に関する基礎研究：化石、堆積相そして堆積年代からの高精度地層形成メカニズムの解明 【平成12年4月～平成15年3月】	東濃地科学センター 環境長期予測グループ	藤原 治

## 2. 博士研究員による平成 12 年度研究概要報告

## 博士研究員（H 9）平成 12 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 役職・氏名	解析評価 GL 馬場務
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 11 月 ~ 平成 12 年 10 月	当該年度 研究期間	平成 12 年 4 月 ~ 平成 12 年 10 月

### 【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：

- (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%もあるものが多く、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。
- (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。

### 【研究内容（概要）】

- (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。しかし、反応生成物の半減期が短い核(例えは  $^{98}\text{Tc}+n \rightarrow ^{100}\text{Tc}$ (15 秒) 等)は、γ 線放出確率の高精度測定に通常用いられる  $4\pi\beta-\gamma$  同時計測法は適用が難しいため、精密な値が求まっている。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。
- (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 2~3%)に対して、飛躍的に分解能を高めがが出来る HHS(分解能 0.1%)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、放射性核種  $^{14}\text{C}$  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。

### 【使用主要施設】

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)

### 【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 9 年度は、 $^{16}\text{O}$  核の光吸収断面積の微細構造探索、 $^{94,95}\text{Zr}$ ,  $^{80,81}\text{Se}$ ,  $^{124}\text{Sn}$  の熱中性子吸収断面積の測定実験を実施した。

平成 10 年度は、プラスチックシンチレータを用いた  $\beta$ - $\gamma$  同時計測システムの開発とそれを用いた  $^{28}\text{Al}$  の  $\gamma$  線放出率の測定実験、 $^{13}\text{C}$ ,  $^{10}\text{B}$ ,  $^{nat}\text{Si}$  核の光吸収断面積の測定実験を実施した。

平成 11 年度は、 $^{60}\text{Co}$  標準  $\gamma$  線源の放射能の精密測定、 $^{28}\text{Al}$  の  $\gamma$  線放出率測定実験のデータ解析とまとめ、 $^{137}\text{Cs}$  の核異性体生成率の測定、及び  $^{100}\text{Tc}$  の  $\gamma$  線放出率の測定実験を実施した。

### 【研究成果】

平成 12 年度は、昨年までに開発を終了した  $\beta$ - $\gamma$  同時計測システムを用いて、 $^{99}\text{Tc}$  の熱中性子吸収断面積の決定に必要な  $^{100}\text{Tc}$  の  $\gamma$  線放出率を測定すると共に、解析手法の開発を行った。以下に概要を記す。

#### (1) 最適化した条件下での再実験:

バックグラウンドとなる他核種からの  $\gamma$  線を減少させ  $^{100}\text{Tc}$  からの  $\gamma$  線を効率よく測定するために、 $^{99}\text{Tc}$  試料の量を減らすと共に、中性子照射時間を短縮して照射実験を行った。

実験は京都大学原子炉実験所で行った。約 4.9 Bq の  $\text{NH}_4^{99}\text{TcO}_4$  を含む  $\text{NH}_4\text{OH}$  をアクリル板上に滴下して乾燥させ、圧気輸送管  $\text{Pn}\cdot3$  を用いて中性子を照射した。照射後のサンプルから放出される  $\beta$  及び  $\gamma$  線を、プラスチックシンチレータを用いた  $\beta$ - $\gamma$  同時計測システムを用いて測定した。15 秒間の中性子照射を 99 回行った。

図 1 に、観測された  $\gamma$  線のエネルギースペクトルを示す。 $^{100}\text{Tc}$  から放出された  $\gamma$  線によるピークが  $^{19}\text{O}$ ,  $^{41}\text{Ar}$ ,  $^{28}\text{Al}$ ,  $^{38}\text{Cl}$ ,  $^{24}\text{Na}$  等による  $\gamma$  線ピークと分離して、明確に観測された。

#### (2) データ解析:

##### (2.1) $^{100}\text{Tc}$ の半減期の決定

放出率の大きな 540 及び 591 keV  $\gamma$  線の収量の時間変化を追跡することにより、 $^{100}\text{Tc}$  の半減期を決定した。両  $\gamma$  線の半減期の荷重平均を取ることにより、 $^{100}\text{Tc}$  の半減期を  $15.27 \pm 0.02$  (s) と従来より良い精度で決定することが出来た。図 2 に、540 keV  $\gamma$  線計数率の時間変化を示す。

##### (2.2) $n_c/n_\beta$ の決定

$\gamma$  線放出率の指標となる比  $n_c/n_\beta$  を、放出率の大きな二本の  $\gamma$  線に対して決定した。ここで、 $n_\beta$  は  $\beta$  線のシングルス計数率、 $n_c$  は注目する  $\gamma$  線と同時計測した  $\beta$  線の計数率である。この際、他核種の寄与を除去するため、 $n_c$  及び  $n_\beta$  の時間変化から半減期 15.27 秒の成分のみを抽出した。また、偶然同時計数による事象を除去するために、 $\beta$  及び  $\gamma$  線事象間の時間差データを用いた。これより、放出率の大きな二本の  $\gamma$  線(540, 591 keV)に対して、比  $n_c/n_\beta$  が以下のように求まった。

$\gamma$ 線エネルギー (keV)	$n_c/n_\beta$
540	$0.000168 \pm 0.00001$
591	$0.000128 \pm 0.00001$

##### (2.3) $\gamma$ 線放出率の決定

原子核が  $\beta$  崩壊する際に娘核の複数の準位への分岐がある場合、 $\gamma$  線放出率の表式は、各分岐の  $\beta$  線の検出効率を含んだ複雑な表式となる。各  $\beta$  分岐に対する検出効率を実験的に決定することは困難である。そこで、 $\beta$ ,  $\gamma$  線と物質との相互作用のシミュレーションコードを用いて、実験体系を精密に模したシミュレーションを行い、実験より得られた比  $n_c/n_\beta$  とシミュレーションによる結果を比較することにより、 $\gamma$  線放出率を精密に決定する手法を開発した。

シミュレーションでは、基底状態への  $\beta$  崩壊分岐比( $b_0$ )を変化させる。そして、 $n_c/n_\beta$  の実験値を再現することにより  $\gamma$  線放出率を決定する。ここで、それぞれの準位からの  $\gamma$  崩壊の分岐比  $a_i$  及び、励起状態への  $\beta$  崩壊の分岐比( $b_i$ )の比は、シングルス測定で得られた  $\gamma$  線のエネルギースペクトル中の各遷移に対応するピーク計数より精密に決定することが出来る。 $^{100}\text{Tc} \rightarrow ^{100}\text{Ru}$  の  $\beta$  崩壊では、比較的少数の準位への崩壊に分岐比が集中しているので、今回の解析では図 3 に示した  $\beta$  分岐の集中した準位のみ考慮した。考慮に入れていない準位への分岐比は全体で 0.24% 以下である。

図 4 は、540 keV  $\gamma$  線に対して、実験で得られた  $n_c/n_\beta$  をシミュレーション結果と比較したものである。図中の点線は、プラスチック  $\beta$  線検出器の  $\beta$  線検出閾値を 0 から 350 keV の範囲で 50 keV ずつ変化させた場合のシミュレーション結果である。図の点線が実験値を示す範囲と交わる点から

$b_0$ を求めることが出来る。例えば、540 keV  $\gamma$ 線の放出率  $I_\gamma(540 \text{ keV})$ は、得られた  $b_0$ から次式を用いて求まる:

$$I_\gamma(540 \text{ keV}) = b_4(a_{41} + a_{43}a_{31}) + b_3a_{31} + b_2 + b_1$$

課題として、 $\beta$ 線検出閾値の精密な決定手法の開発、 $^{100}\text{Tc}$  の  $\gamma$ 線放出率の  $^{99}\text{Tc}$  の熱中性子吸収断面積の高精度化への反映があげられる。

博士研究員任期中の成果をまとめると、

(1) HHS 検出器を用いた光吸収断面積の超高分解能測定技術の開発を行うと共に、 $^{18}\text{O}$ ,  $^{10}\text{B}$ ,  $^{13}\text{C}$ , Si 核による光吸収断面積の微細構造同定を目指して実験を行った。更に、 $^{13}\text{C}$  による光吸収断面積の超高分解能測定実験により、HHS 検出器の分解能が 15MeV 付近で 12keV(0.08%)と高分解能であることを実証した。

(2)  $\gamma$ - $\gamma$ 及び $\beta$ - $\gamma$ 同時計測システムを開発し、熱中性子吸収断面積の新しい高精度測定技術の開発を行った。

$\gamma$ - $\gamma$ 同時計測システムを用い、市販の標準 $\gamma$ 線源の放射能決定精度を向上させることにより、 $\gamma$ 線検出効率を約0.5%の精度で校正することを可能とした。

$\beta$ 線検出器にプラスチ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、半減期数分~十数秒程度の短寿命核の  $\gamma$ 線放出率測定法の高度化を行った。単一  $\gamma$ 線放出核である  $^{28}\text{Al}$  の  $\gamma$ 線放出率測定実験により、開発した同時計測システムの性能を実証した。また、同システムを用いた多重  $\gamma$ 線放出核の  $\gamma$ 線放出率精密測定法の開発を行い、 $^{99}\text{Tc}$  の熱中性子吸収断面積の高精度測定に必要となる  $^{100}\text{Tc}$  の  $\gamma$ 線放出率の精密測定実験を行い可能性を示した。

#### 【今後の予定（翌年度以降の概要）】

当初計画の通り、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】

- ①“ $^{109}\text{Ag}(n,\gamma)^{110m}\text{Ag}$  反応の熱中性子吸収断面積及び共鳴積分値の測定” 日本原子力学会「2000 年秋の大会」 D6、中村、和田、古高、原田、加藤(青森大)
- ②“ $^{166m}\text{Ho}(n,g)^{167}\text{Ho}$  反応の実効熱中性子吸収断面積の測定” 日本原子力学会「2000 年秋の大会」 D7、原田、和田、中村、古高、加藤(青森大)
- ③“ $^{100}\text{Tc}$  の  $\gamma$ 線放出率の精密測定” 日本原子力学会「2000 年秋の大会」 D7、古高、中村、原田、加藤、藤井、山名(青森大)
- ④“Evaluation of  $\beta$ - $\gamma$  coincidence measurement system using plastic scintillation  $\beta$ -ray detector developed for the determination of  $\gamma$ -ray emission probabilities of short-lived nuclides”, K.Furutaka, S.Nakamura, H.Harada, T.Katoh (Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 37, No. 10 (2000))
- ⑤ “Production of the isomeric state of  $^{138}\text{Cs}$  in the thermal neutron capture reaction  $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ ”, H.Wada, S.Nakamura, K.Furutaka, T.Katoh, H.Yamana, T.Fujii, H.Harada (Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 37, No. 10 (2000))
- ⑥ “Measurement of Effective Neutron Capture Cross Section of  $^{166m}\text{Ho}$  using Two Step Irradiation Technique”, H.Harada, H.Wada, S.Nakamura, K.Furutaka, T.Katoh, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 37, No. 9 (2000)

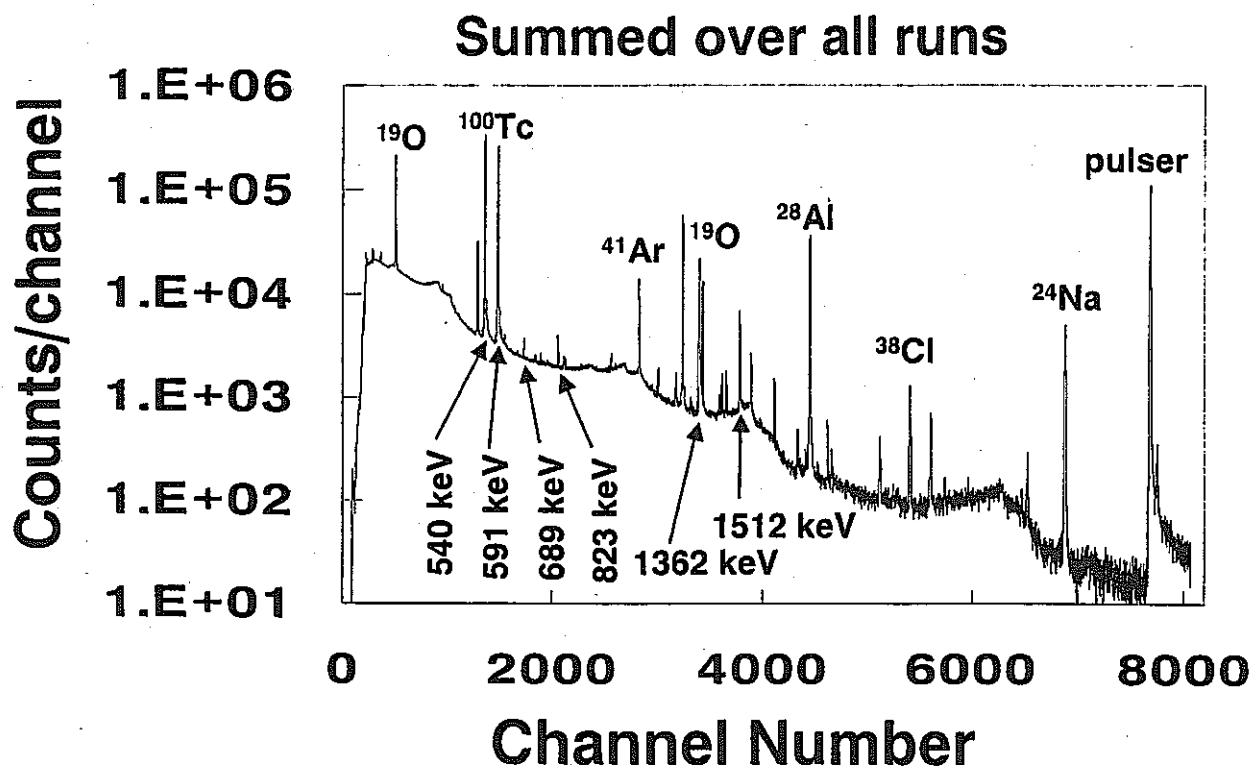


図 1: 観測した $\gamma$ 線のシングルススペクトル。全 99 測定ランの和。矢印をつけた $\gamma$ 線ピークは、解析の際に考慮に入れた遷移のものである。

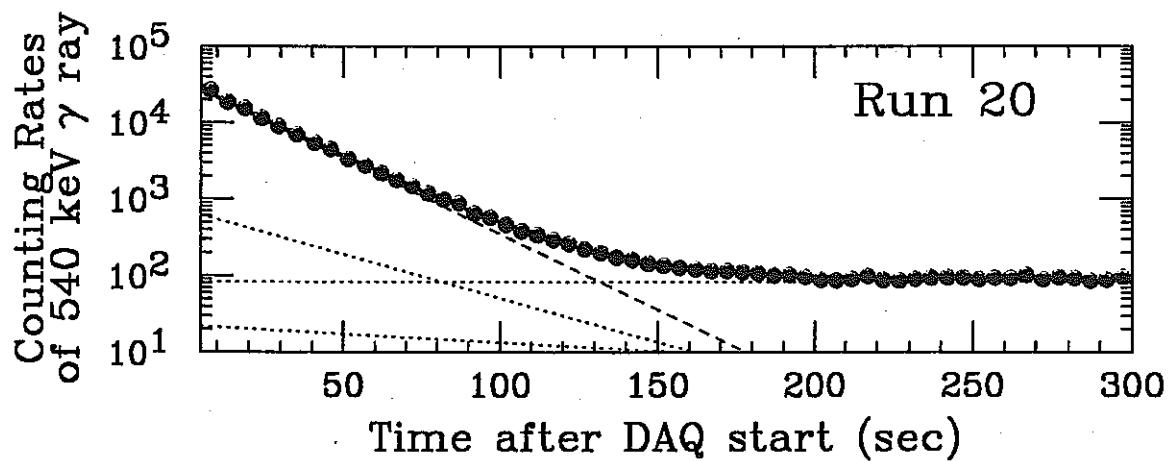


図 2: 典型的な測定ランにおける 540keV  $\gamma$  線ピーク計数率の時間変化。●は測定値。誤差はシンボルの大きさよりも小さい。破線は半減期 15 秒を持つ  $^{100}\text{Tc}$  からの寄与、点線は  $^{19}\text{O}$ (半減期 27 秒)、 $^{28}\text{Al}$ (半減期 2.2 分)及び時間に依存しないバックグラウンドからの寄与を示す。

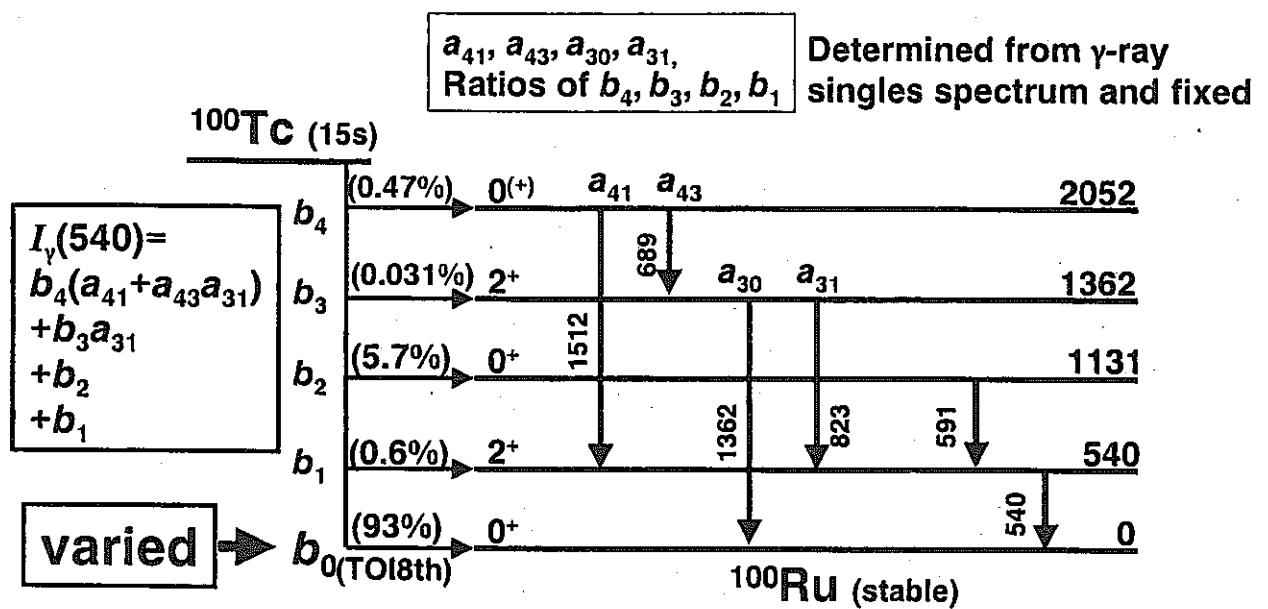


図3：シミュレーションを用いた解析の際に考慮に入れた準位及び $\gamma$ 線。各準位への $\beta$ 遷移の分岐比は、"Table of Isotopes (8<sup>th</sup> ed.)"に掲載されている文献値。

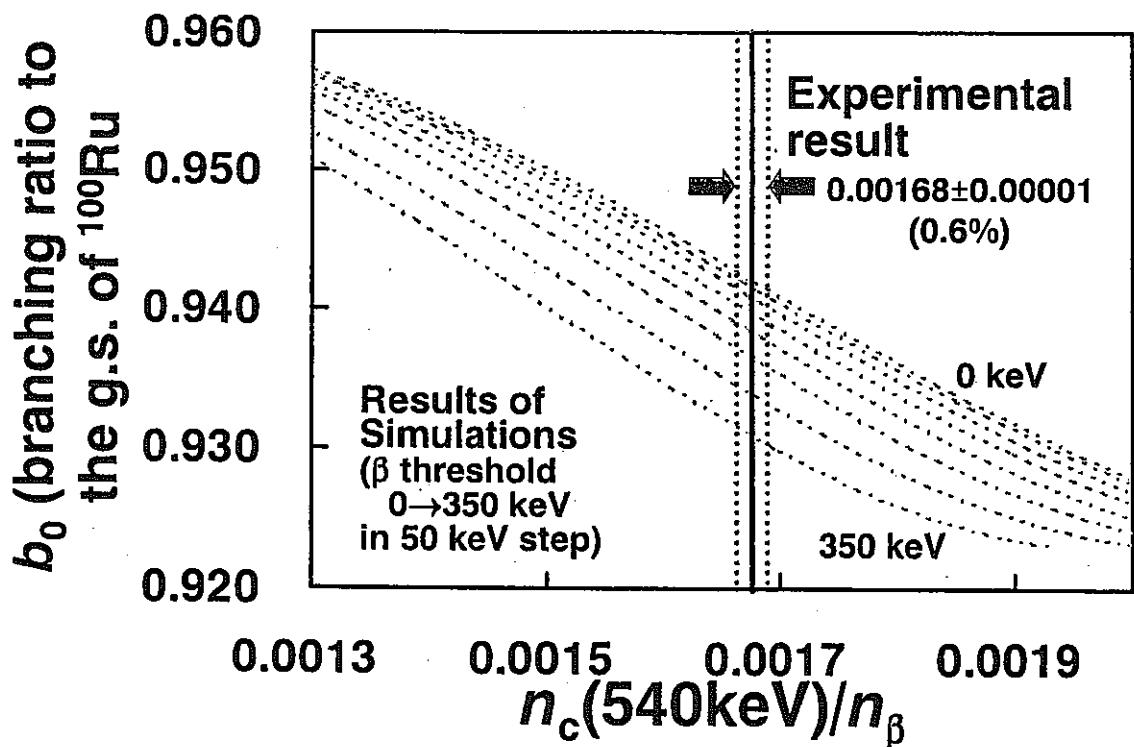


図4：540keV  $\gamma$ 線に対する  $n_c/n_\beta$  の実験値（垂直の実線が中心値を、点線が誤差の両端値を表す）と、シミュレーションによる基底状態への $\beta$ 分岐比の  $n_c/n_\beta$  依存性（点線の曲線）。複数の曲線は、 $\beta$ 検出器の検出閾値が異なる（0から350keVの範囲、50keVステップ）。

## 博士研究員（H10）平成12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 (高アルカリ溶液による変質)		
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 役職・氏名 処分バリア GL 油井 三和	
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12年 4月 ~ 平成13年 3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（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。

### 【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が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置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 11~13 溶液 ( $\text{Ca}(\text{OH})_2$ , KOH, NaOH の混合溶液) を使用する。

### 【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、表面分析室、第一試験棟）

分析装置：XRD, SEM, TEM, ICP, ICP-MS, AAS, 等

### 【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 12 年 4 月から平成 13 年 3 月まで実施した研究内容は主に高 pH 溶液による①モンモリロナイト試料、②モンモリロナイトと長石混合試料、③モンモリロナイトと石英混合試料の 50、85、110、150℃ 試験であった。内容は X 線回折分析による生成物質の定量化や走査型電子顕微鏡による鉱物観察、溶液の抽出分析による試験後の組成変化を求めるものである。

### 【研究成果（当該年度）】

平成 12 年 4 月から平成 13 年 3 月まで実施した研究内容は、高アルカリ溶液を利用した緩衝材の変質試験であり、試験後の金チューブ ( $7.3\phi \times 6.9\phi \times 70\text{mm}$ ) を遠心分離して解体後、溶液を抽出して組成変化を調べた。また地層処分の際に緩衝材に混合する珪砂を想定して石英も利用した。

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)、長石 (Albite)、石英(Quartz)を対象に、これらの試料をメノウ乳鉢で粉末にして 200mesh の篩 (目開き  $75\mu\text{m}$ ) 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に封入してオートクレープに入れ、一定期間中反応させる。モンモリロナイトと鉱物は 1 : 1 の比率 (wt%) で混合する。試料 (固体) と溶液の比率は 1 : 10 (wt%) である。

\* 試験温度 (℃) : 50、85、110、150

\* 試験期間 (day) : 10、30、60、200.

\* 溶液: 蒸留水、高 pH 溶液 ( $\text{Ca}(\text{OH})_2$ , KOH, NaOH を混合させた溶液; pH 11、12、13)

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

以下に試験結果を示す

主な 2 次生成鉱物は analcime であり、最も低い 50℃ 試験では方解石も認められた。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。2 次生成鉱物の定量化としては、主に X 線回折の結果に頼っており、標準添加法を利用した X 線用試料を製作 (モンモリロナイトと analcime 混合試料の懸濁液を風乾させた定方位法がもっとも良い再現性を示した) した結果、より正確な定量化が可能になった。これ以外に長石混合試料や石英混合試料も同様の方法で定量化を行った。X 線検量線作成に利用した試料は各混合比率において 4 試料ずつ製作して行った。定量化の結果は表 1, 2, 3 に示す。

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。しかし X 線粉末回折分析と走査型電子顕微鏡観察からは 50℃ においても粒径  $0.25\mu\text{m}$  程度の analcime が観察されており、85℃ 試験では明瞭な X 線ピークも確認されている。これは、従来の高温変質試験 (TRU チームの 200℃ 試験) 結果が、低温環境にも適用可能と考えられる。モンモリロナイトと長石混合試験では 110℃ 以上の温度から、モンモリロナイト試験よりも analcime の生成量が増える傾向を示した。これはこの温度帯から長石の変質が激しく、それにより analcime 生成に適したイオンの供給が多いいためと考えられる。また、110℃ 以上からはすべての溶液において analcime の生成が確認された。

モンモリロナイトと石英混合試験では、2 次 analcime の生成量が最も少なかった。これはゼオライトの成長速度が溶液中の Al 濃度に依存するためであり、すなわち Si/Al 比率が低いほどゼオライトの成長が速くなることからも推測される (たとえば Donahoe and Liou, 1985)。この他にも高 pH での溶解速度論で報告される石英 > 長石 > 黒雲母 > カオリナイト > スメクタイトのような溶解順序 (たとえば Bunge and Radke 1982, Savage et al. 1992) と妥当な結果を示した。これ以外の原因としては、Si の存在が中性溶液環境では  $\text{H}_4\text{SiO}_4$ 、高アルカリ環境では  $\text{H}_3\text{SiO}_4^-$  が支配的であるため、高アルカリ環境では  $\text{SiO}_2 + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_3\text{SiO}_4^- + \text{H}^+$  のような反応によって、石英の溶解は pH を減少させるとも考えられる。

従来のスメクタイト鉱物のアルカリ変質研究から報告されている CSH や CASH gel などは、今回の試験では観察できなかったが、これは固相対液相の比率が従来の研究では 1g : 1000ml のように液相が高

かったためだと考えられる。すなわち、溶液中の Si や Al の濃度（固相からの供給源）が低いためにゼオライトよりも CSH gel などが生成しやすいと考えられる。したがって同様の試験の場合、固相に対する液相の比率が低ければゼオライトが生成しやすいと推測される。

定量化させたデータをもとに、モンモリロナイト試料、モンモリロナイトと長石混合試料、モンモリロナイトと石英混合試料の pH 13 溶液を利用した反応を Arrhenius の速度式に代入させて、生成した analcime の活性化エネルギー (Ea) を求めた結果 51.9~59.6 kJ/mol の範囲を示した。

- ・ モンモリロナイト試料 (54.9 kJ/mol)
- ・ モンモリロナイトと長石混合試料 (51.9 kJ/mol)
- ・ モンモリロナイトと石英混合試料 (59.6 kJ/mol)

これは Berrer (1980) が示した範囲内 (40~60 kJ/mol) である。しかし、実際の処分場は温度 100°C 以下、緩衝材はブロック状であり、乾燥密度が高く (約 2.0 g/cm<sup>3</sup>)、桂砂を混合するとすれば、ゼオライト化の速度は試験結果よりもさらに遅くなると考えられる。

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 11	pH 12	pH 13
50°C	200 日	—	—	—	1.3
	30 日	—	—	—	0.5
85°C	60 日	—	—	—	1.5
	200 日	—	—	0.5	1.8
110°C	10 日	—	—	—	1.6
	30 日	—	—	0.5	2.6
	60 日	—	—	1.0	3.5
	200 日	—	0.5	0.7	3.5
150°C	10 日	0.5	1.0	1.2	11.0
	30 日	1.0	1.2	1.6	22.0
	60 日	1.0	2.1	2.3	23.0
	200 日	0.5	1.5	2.0	23.0

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

温度	反応時間	蒸留水	pH 11	pH 12	pH 13
85°C	30 日	—	—	—	2.6
	60 日	—	—	—	2.2
	200 日	—	—	—	2.7
110°C	10 日	—	—	1.0	2.6
	30 日	—	—	2.4	4.0
	60 日	—	—	4.0	7.5
	200 日	—	—	4.5	9.0
150°C	10 日	2.0	2.0	2.8	11.0
	30 日	1.0	1.0	2.8	18.0
	60 日	1.2	1.3	4.6	32.0
	200 日	2.3	2.2	4.2	33.0

表 3 X 線回折によるモンモリロナイトと石英混合試料中に生成した analcime 量( wt % )

温度	反応時間	蒸留水	pH 11	pH 12	pH 13
85°C	60 日	—	—	—	0.3
	200 日	—	—	—	0.4
110°C	60 日	—	—	—	0.3
	200 日	—	—	—	1.0
150°C	10 日	—	—	0.4	3.3
	30 日	—	—	2.3	3.5
	60 日	—	0.5	2.4	6.7
	200 日	—	0.4	2.6	7.0

※ ( - ) は検出不可または無し。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 13 年 3 月で終了。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

「Applied Clay Science」に投稿準備中。

## 博士研究員（H10）平成12年度研究概要報告書

研究テーマ	ウラン鉱山に生育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	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	所属長 役職・氏名	部長
所属・氏名	時澤 孝之, 佐藤 和彦, 長柄 収一		安田式郎
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12年 4月 ~ 平成13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、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。

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。

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。

### 【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。

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。

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、土壤立地との関係を調べる。

### 【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10年度は、人形峠環境技術センター内の各堆積場や採掘場跡地において植物へのラジウム移行について調べた。

平成11年度は、土壤一植物系におけるラジウムの挙動について他の元素との比較を行った。

平成12年度は、人形峠環境技術センター周辺の森林や草本群落における植物へのラジウム移行特性について、植物の種間差や地域間差を調べた。

### 【研究成果（当該年度）】

平成12年度の研究概要をまとめる。

植物のラジウム濃度人形峠環境技術センター周辺の自然林は各堆積場、採掘跡地の今後の植生を表していると考えられ、将来的な天然放射性元素の動態アナロジーとして活用できる。そこで、センター構内の周辺保安林に調査区を設置し、土壤から植物へのラジウムの移行を調べた。

調査区として、周辺保安林に成立する植生が異なる3つの林分P1, P2, P3を選んだ。また、構外にある吉井川河川敷の草本群落も調査対象に加えた(P4)。相対胸高断面積による各林分の優占種は、P1がコナラ、P2はアカマツ、P3はクリ・ミズナラである。P4はアシの純群落である。これら4地域から土壤と、そこに生育する主要な植物計12種を採取した。土壤はA層・B層に分け採取し、分析した。植物は枝(イネ科植物については桿)と葉に分け分析した。

#### 1. 土壤と植物のラジウム濃度

各調査区間の土壤のラジウム濃度の違いは小さいが、一方で植物のラジウム濃度は大きく異なることを示した。

土壤A・B層のラジウム濃度を表1に示す。各土壤層ともP1のラジウム濃度がほかの地区に比べて高い傾向を示したが、土壤A層では地区間の差が有意ではなく、土壤B層ではP1のみ有意な違いがみられた。土壤B層は土壤A層に比べラジウム濃度が、P1では高くP2,3では低かったがそれ層間で有意な差はみられなかった。

各調査区の主要構成種のラジウム濃度を比較すると調査区間で有意な違いがあり、P1のコナラやP3のクリ・ミズナラに比べ、P2のアカマツやP4のアシで低い傾向が見られた(表2)。桿枝について種毎にみると、最も高かったのはP1のヤマウルシで、最も低かったP4のアシと比較して66倍も異なっていた。同一地区内でも種によってラジウム濃度は変化し、P1では22倍の違いが見られた。葉のラジウム濃度は桿枝に比べ植物間差が小さいが、全体で12倍の違いがみられた。また、同一種でも調査地区によって違いが見られ、ミズナラやクロモジをP1とP3で比較すると、P1の方が大きかった。

#### 2. ラジウムとカルシウムの濃縮比の関係

各調査区でみられた植物のラジウム吸収能の大きな違いはカルシウム吸収能の違いで説明されることが明らかになった。

ラジウムとカルシウム両元素の濃縮比(植物の元素濃度/土壤の元素濃度)についてその相関をみた(図1)。土壤はA層の値を用いた。桿枝・葉とともに両元素間の濃縮比には有意な相関があった。この関係から、y切片を0として下に示す回帰式が得られた。

$$\text{桿枝: } y = 0.075x \quad (R^2=0.71) \quad (P<0.01)$$

$$\text{葉: } y = 0.039x \quad (R^2=0.44) \quad (P<0.01)$$

ここで、x, yはそれぞれカルシウム、ラジウムの濃縮比である。

### 3.植物のカルシウム濃度と土壤のラジウム：カルシウム比

土壤から植物へのラジウムの移行しやすさについて、種特性と土壤特性に分け解析した。

上に得られたラジウムとカルシウムの濃縮比の関係は、 $[Ca]_{pl}$ （植物のカルシウム濃度）、あるいは、 $[Ra]_{soil}/[Ca]_{soil}$ （土壤のラジウムとカルシウムの濃度比）が大きくなるほど $[Ra]_{pl}$ （植物のラジウム濃度）が大きくなることを意味する。各植物のラジウム濃度がどちらの要因の影響を受けているかを明らかにするために、 $[Ca]_{pl}$  と  $[Ra]_{soil}/[Ca]_{soil}$  の分布をみた（図2）。 $[Ra]_{soil}/[Ca]_{soil}$  は P 1 が最も高く次いで P 3, P 2, P 4 の順に低くなり、P 1 と P 4 で 9 倍の違いがみられた。この違いは主に  $[Ca]_{soil}$  が土壤間で異なるためであった。 $[Ca]_{pl}$  は桿枝・葉とともにチマキザサがもっとも低く、 $[Ca]_{pl}$  がもっとも高かった植物との間にそれぞれ 2.2 倍と 5 倍の差が見られた。

この分布図から、各植物の $[Ra]_{pl}$  について以下のことがいえる。P 1 のチマキザサで低かったのは  $[Ca]_{pl}$  の低さが影響した。P 2 のアカマツや P 4 のアシの $[Ra]_{pl}$  が低かったのは  $[Ca]_{pl}$  と  $[Ra]_{soil}/[Ca]_{soil}$  の両方の低さが影響した。ミズナラやクロモジの $[Ca]_{pl}$  は P 1 と P 3 でほぼ同じであり、これらの種の $[Ra]_{pl}$  が P 3 で低かったのは  $[Ra]_{soil}/[Ca]_{soil}$  の低さが影響した。このように、各植物のラジウム濃度は、それぞれの植物種が示すカルシウム濃度と生育する土壤のラジウム・カルシウム比の組み合わせによって説明されることがわかる。

植物のカルシウム濃度は植物分類群の科あるいは属レベルで類似しており、桿枝についてはアシやササのようなイネ科では低く(<1 mg g<sup>-1</sup>)、ブナ科(コナラ、ミズナラ、クリ)やカエデ科(オオモミジ、ウリハダカエデ)では高かった(>4 mg g<sup>-1</sup>)。葉では、ブナ科やカエデ科で 6 ~ 7、イネ科は 6 mg g<sup>-1</sup> 以下であった。このように、植物種間でカルシウム濃度は大きく異なっているが、植物系統学上の分類が植物のもつラジウム移行特性の種間差を知る上で役立つことが示唆された。

### 【今後の予定（翌年度以降の概要】

なし

### 【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

“Uptake of <sup>226</sup>Ra by plants at an uranium mine and milling in Ningyo-toge, Japan, and the relationship with alkaline earth elements” (Journal of Environmental Radioactivity に投稿中)

表1 土壤のラジウム濃度 ( $\text{mBq g}^{-1}\text{dw}$ )

	P1	P2	P3	P4
土壤A層	65.7	46.9	47.2	41.6
土壤B層	78.1	30.3	36.8	

表2 植物のラジウム濃度 ( $\text{mBq g}^{-1}\text{dw}$ )

	幹, 桧	葉
P1		
コナラ	13.2	7.2
ミズナラ	10.1	7.0
オオモミジ	10.6	5.4
チゴユリ		5.2
クロモジ	3.5	5.7
チマキザサ	1.2	2.9
ヤマウルシ	26.6	18.2
イヌツゲ	6.8	12.3
P2		
アカマツ	1.5	1.5
P3		
ミズナラ	4.9	4.4
ウリハダカエデ	6.6	3.3
クロモジ	2.2	2.8
クリ	6.3	4.6
P4		
アシ	0.4	2.6

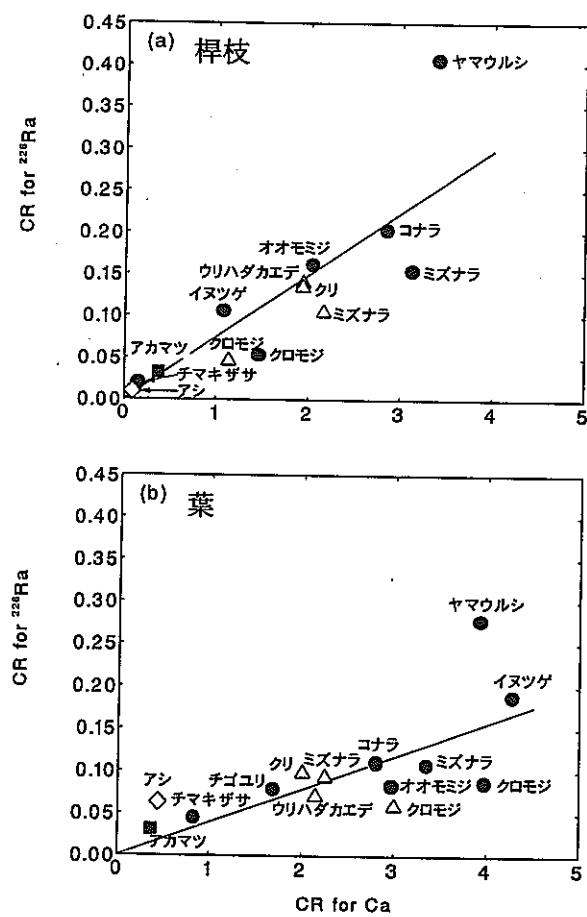


図1 ラジウムとカルシウムの濃縮比(CR)の関係。

●, ■, △, ◇はそれぞれ調査区P1, P2, P3, P4を表す。

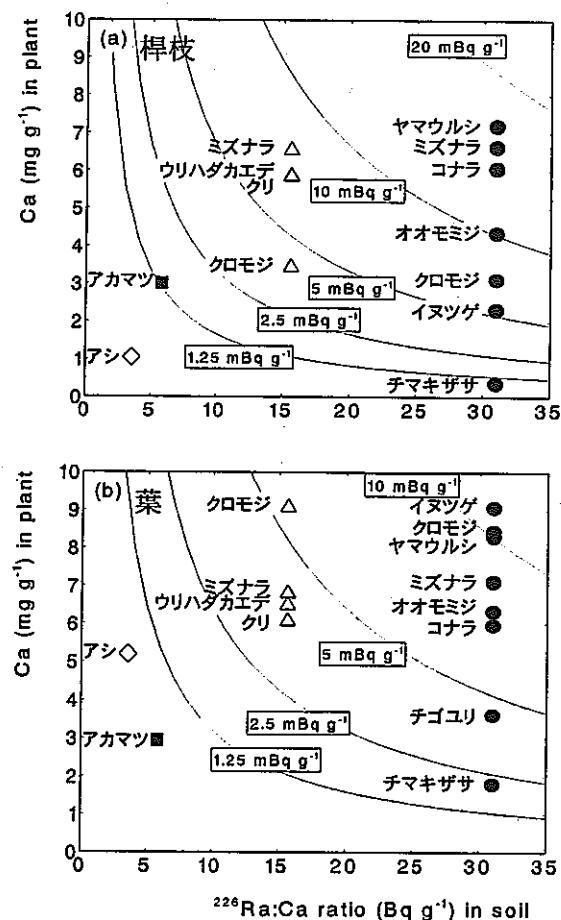


図2 各調査区における土壤のラジウム・カルシウム比と植物のカルシウム濃度。曲線は植物のラジウム濃度を示す等高線。

## 博士研究員（H10）平成12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 青嶋 厚、駒 義和	所属長 役職・氏名	グループリーダー 青嶋 厚
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 12年 4月 ~ 平成 13年 3月
<p><b>【研究目的】</b></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、プロセスに適応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><b>【研究内容（概要）】</b></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て作成する。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抽出反応の定常状態における挙動をモデル化し、シミュレーションにより評価する。</p> <p>計算は、表計算ソフトを用いて行う。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><b>【使用主要施設】</b></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。

平成12年度は、シュウ酸による各金属の抽出に対する影響を計算により評価できるようにした。また、バッチ試験のデータをもとに、FP元素の抽出挙動を検討する式を追加した。また、計算コードを利用して、試験条件を設定し、実際の向流試験に適用した。

### 【研究成果（当該年度）】

平成13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の基礎データとなる。分配比は、抽出プロセスの数値シミュレーションを行ううえで、重要なパラメータの一つであり、計算の精度に大きく影響するため、できるだけ多くのデータを収集することが求められる。これまでには、Amやランタニドの抽出に関するものを中心収集してきたが、シミュレーションの適用範囲を拡張するために、ZrやFeなどの元素に対しても収集・整理を行った。これらの金属に関しては、文献などに公表されているデータは多くないが、機関においても、基礎データの取得試験として行われているので、それらも利用している。なお、ZrやFeなどの元素を加えた計算を行うために、これまでにAmなどに関して行ってきたように、収集したデータを用いて分配比を推算するための検討も進めた。本研究では、機関で行われた抽出試験結果をもとに、分配比をプロセス内の硝酸濃度関数として整理した。

TRUEXプロセスでは、Zr等の成分がAm等とともに抽出されるのを妨げるためにシュウ酸が添加されている。これまでの計算では、シュウ酸と金属成分により生成する非抽出性の錯体の影響を考慮していなかった。これは、通常用いられているシュウ酸濃度では、Amやランタニドの抽出に対してはほとんど影響しないと考えられるためである。今年度は、その影響を計算コードに加え、シュウ酸濃度を変化させたときの各成分の濃度プロファイル変化を検討した。そのため、シュウ酸も計算で取り扱うことができるよう、シュウ酸自身のTRUEX溶媒(CMPO-TBP-n-ドデカン混合溶媒)に対する抽出データについて検討した。また、シュウ酸の解離平衡、および各金属成分との錯形成反応についても整理し、計算コードにこれらの反応の影響を追加した。

#### (2) 金属元素抽出に対するシュウ酸の影響評価

金属抽出に対するシュウ酸の影響に関しては、これまでに行われてきた試験においては、Amやランタニドの抽出にほとんど影響しない濃度領域での使用がほとんどであったため、計算でも考慮していなかった。しかしながら、プロセスの最適条件を検討するうえでは、シュウ酸の影響を評価できなくては、計算結果により提案される条件が、実際の試験に近いものであるとはいえない。そこで、TRUEXプロセスにおいて存在する金属元素と、シュウ酸との錯体生成量を計算するためにコードの改良を行った。現在、Am、ランタニド(EuおよびCe)、Zr(IV)、Mo(VI)、およびFe(III)の錯形成について計算可能であり、生成したシュウ酸錯体はTRUEX溶媒には抽出されないとした。計算コードでは、シュウ酸の解離反応と、シュウ酸と金属との錯形成反応の平衡式から、平衡時における金属イオン、シュウ酸イオン、金属・シュウ酸錯体等の各濃度と、平衡定数との関係式を導く。ここで得られた式と、物質収支式とを連立することにより、はじめにシュウ酸イオン濃度を算出し、それを用いて、他の濃度を計算する。なお、錯体を形成する金属とシュウ酸との割合に関しては、1:1、2、3、および4まで考慮した。シュウ酸の解離平衡定数および金属とシュウ酸の錯形成定数は、Vandegriftらによりまとめられた報告書から引用した。この計算では、Mo(VI)とシュウ酸との錯形成も考慮しているが、Moはさまざまな化学形態での存在が考えられる。本計算では、それらを十分に評価できていないため、錯形成するAmやランタニドの割合にそれらが影響を及ぼ

している可能性を含んでいる。しかしながら、今回計算の対象とした条件において、錯体を形成する Am やランタニドの割合は小さい。したがって、その計算結果を用いて傾向を考察しても、重大な問題にならないと考えられる。

この改良したコードを用いて、Am および Eu の濃度プロファイル計算を行い、シュウ酸の影響を考慮した場合のプロセス内の抽出挙動の変化を調べた。図 1 には、計算の対象とした TRUEX プロセス抽出試験のフローシート（抽出・洗浄部）を示す。この試験では、抽出器にミキサセトラ（19 段）を用いている。抽出溶媒には、0.2MCMPO-1.0MTBP-n-ドデカン混合溶媒を使用し、1 段目から供給している。洗浄液は、FP 元素の除染効率を高めるために、14 段目（硝酸濃度 7.7M）と 19 段目（硝酸濃度 0.3M）の 2ヶ所から供給されている。処理溶液は、FBR 燃料再処理第一サイクルラフィネートを用い、8 段目から供給している。シュウ酸は、処理溶液および洗浄液（14 段目のみ）とともに、0.03M で供給されている。図 2 には Am の、図 3 には Eu の濃度プロファイルを示す。両図からわかるように、昨年度行っていたシュウ酸による影響を無視した計算の結果と同じく、Am、Eu ともに同様に傾向を示している。どちらのプロファイルにおいても、洗浄部（9～19 段目）に関しては、シュウ酸の効果を考慮しても濃度プロファイルはほとんど変化しない。一方、抽出部（1～8 段目）においては、非抽出性のシュウ酸錯体の割合が高くなるため、水相側のトータルの金属濃度が高くなり、シュウ酸の効果を考慮しないときと比べて、水相出口に排出される金属量が増加する。しかしながら、この排出される金属の割合は、シュウ酸の効果を考慮した場合でも、供給された金属全体の約 0.05% であり、この試験に供給されたシュウ酸濃度であれば、Am やランタニドの抽出にはほとんど影響しないことがわかった。また、プロセスへの供給シュウ酸濃度の Am 回収率に及ぼす影響を評価した。ここに、Am の回収率は、プロセスに供給された Am の総量に対する有機溶媒に抽出され、溶媒とともにプロセスから放出される Am の総量の比と定義する。図 4 には、図 1 に示したフローシートにおいて供給シュウ酸濃度を変化させたときの Am 回収率の変化を示す。供給シュウ酸濃度を高くすると、プロセス内でのシュウ酸濃度が高くなり、非抽出性のシュウ酸錯体を形成する量が増え、回収率は減少していく。Zr や Mo の除染率を高めるためには、目標とする Am 回収率を達成できる最大のシュウ酸濃度設定することが一つの方法である。このフローシートに対しては、目標の回収率を 99.9% に設定して検討を行った。その結果、試験の行われた条件（Feed、Scrub1 ともに 0.03mol/L）よりさらに高められる（例えば、Feed から 0.045mol/L、Scrub1 から 0.06mol/L）ことがわかった。

### (3) 数値シミュレーションによる向流抽出試験条件の検討

数値シミュレーションは、抽出プロセスの試験条件の最適化に有用な手段の一つである。実験室規模の試験の場合、変更可能な主要なプロセス条件は、各供給液の流量およびそれらの組成である。このうち、流量に関しては、抽出器の体積を考慮し、抽出平衡に十分な接触時間をとること、および、分離あるいは回収したい金属の量に対応した溶媒量を与えることを等を基準に決定する。一方、供給する金属組成に関しては、対象とする PUREX プロセス高レベルラフィネートに依存するが、酸濃度や FP 等の除染を行うために投入する試薬の濃度に関しては、目標とする回収あるいは除染率を満たすことが可能な値に設定する必要がある。しかしながら、これらの試薬の投入により、プロセス内に金属の蓄積を生じさせたり、錯体を生成して沈殿するなど、プロセスの運転に悪影響を及ぼす状況がおこりうる。そこで、本研究では、数値シミュレーションにより、いくつかの条件を選定し、シミュレーションコードの評価、および数値シミュレーションにより設定した条件の妥当性を検討を、選定した条件により向流抽出試験を行った試験結果と計算値との比較により行うこととした。

今回の検討では、既存の抽出器を用いることとしたため、抽出器はミキサセトラ 16 段で固定とした。供給液に関しては、以下のように設定した。溶媒は、0.2MCMPO/1.4MTBP/n-ドデカン混合物とし、1 段目より流量 195ml/h で供給する。Feed 液は、0.026M Eu、0.01M Zr、0.02M Fe を含み、9 段目より流量 150ml/h で供給する。洗浄液は、流量 45ml/h で、16 段目より供給する。供給する酸濃度および、Eu とそれ以外の金属とを分離するためのシュウ酸の添加濃度をパラメータとし、さまざまな値を与えて計算を行い、それぞれに対して各金属の回収・除染率を計算した。ここに、回収率は、Feed 液中に含まれる各金属の量と溶媒とともにプロセスから放出されるその金属の量の比とし、除染率は、Feed 液中に含まれる各金属の量と酸溶液とともにプロセスから放出されるその金属の量の比とする。この計算の結果から、以下に示す 4 つの条件を選定し、向流抽出試験を行った。向流試験のフローシートを図 5 に示す。

条件 1 : Feed 液 (2.5M HNO<sub>3</sub>、0.03M H<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)、洗浄液 (2.5M HNO<sub>3</sub>、0.02M H<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)

この条件は、Eu 回収率および Zr、Fe の除染率がともに計算上 99.9% を達成できる値として選定した。

この条件に対する濃度プロファイルの計算値を図 6 に示す。

条件 2 : Feed 液 (2.5M HNO<sub>3</sub>、H<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>なし)、洗浄液 (2.5M HNO<sub>3</sub>、H<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>なし)

これは、シュウ酸を添加しないこと以外は、条件 1 と同じ条件で行う試験である。条件 1 と 2 を比較することにより、シュウ酸添加による効果について評価する。この計算値を図 7 に示す。

条件 3 : (3.5M HNO<sub>3</sub>、0.01M H<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)、洗浄液 (3.5M HNO<sub>3</sub>、H<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>なし)

これは、酸濃度を高めることにより、Fe の分配比を上昇させること、および、シュウ酸の添加量を減らすことにより、Zr を水相側に逆抽出されにくくすることにより、これらの金属が十分に除染されないことを確認する。計算結果を図 8 に示す。

条件 4 : (2.5M HNO<sub>3</sub>、0.1M H<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)、洗浄液 (2.5M HNO<sub>3</sub>、0.1M H<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)

これは、高濃度のシュウ酸を添加することにより、酸廃液側に Eu の一部を移行させるために設定した。これにより、濃度が低すぎるため、計算値と実験値の比較を行うことが困難な抽出部 (1~9 段目) での、Eu 濃度の計算結果の比較評価を行うことが目的である。計算結果を図 9 に示す。

なお、これらの条件による試験が現在行われている。

#### 【今後の予定（翌年度以降の概要）】

なし（期間終了のため）

#### 【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., Vol. 37, No. 11, pp.963-969, 2000
- 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
- 3) Numerical Simulation for Concentration Profiles of Americium and Lanthanides in the CMPO-TBP Solvent Extraction System, Journal of Nuclear Fuel Cycle and Environment, in Press
- 4) Numerical simulation of extraction behavior of major components in the CMPO-TBP-HNO<sub>3</sub> system, ATALANTE2000
- 5) Preparation of Am-MOX for irradiation tests, ATALANTE2000
- 6) TRUEX プロセスの数値シミュレーションコード開発（2）－シュウ酸錯体の計算－、日本原子力学会「2001 年春の年会」、発表予定

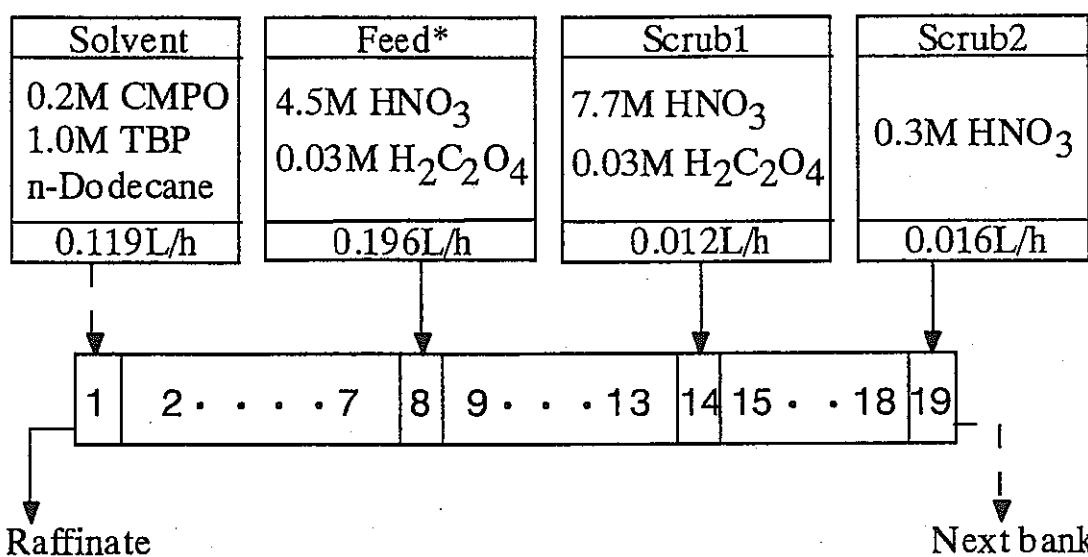


図1 TRUEX プロセス向流抽出試験フローシート

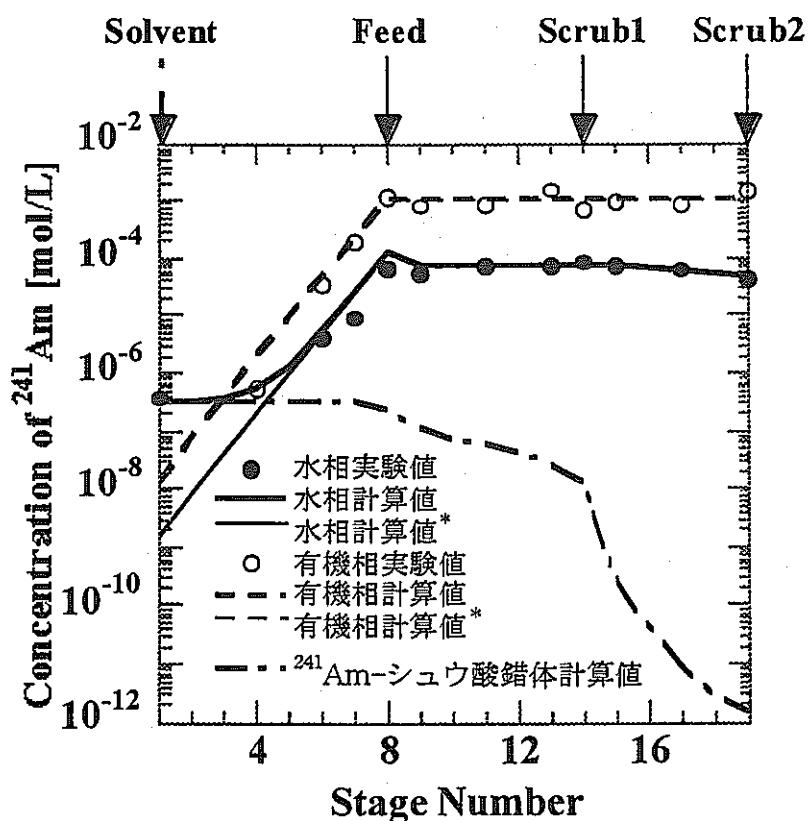


図2  $^{241}\text{Am}$  の濃度プロファイル  
(\*シュウ酸添加なし)

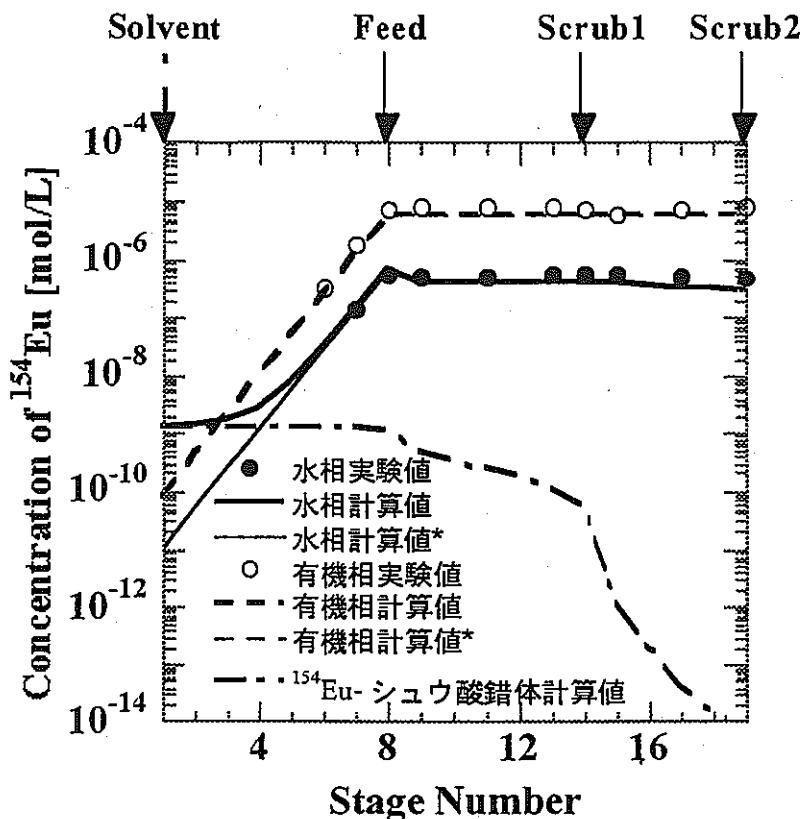


図3  $^{154}\text{Eu}$  の濃度プロファイル  
(\*シュウ酸添加なし)

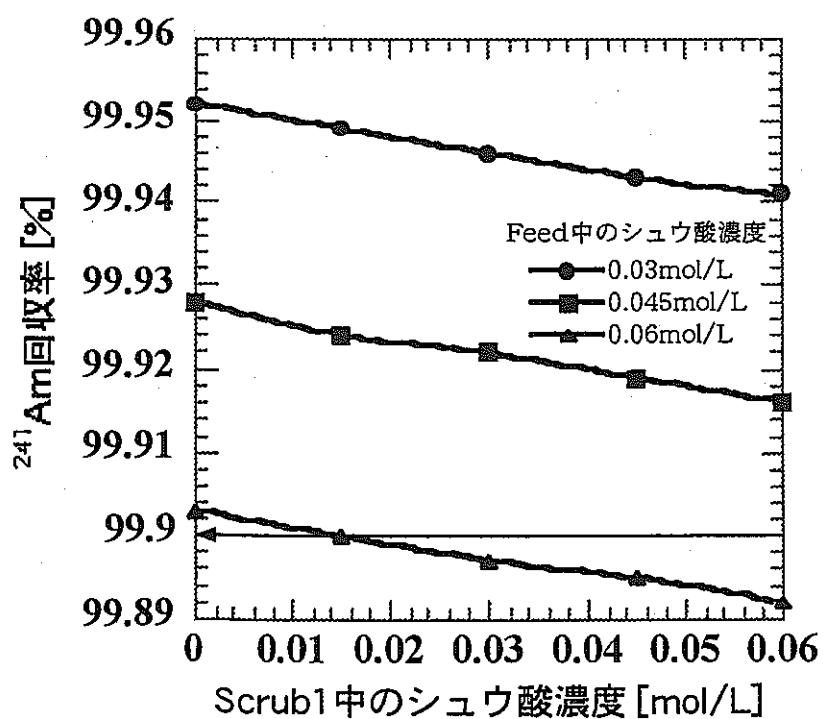


図4 シュウ酸添加濃度と  $^{241}\text{Am}$  回収率の関係（計算値）

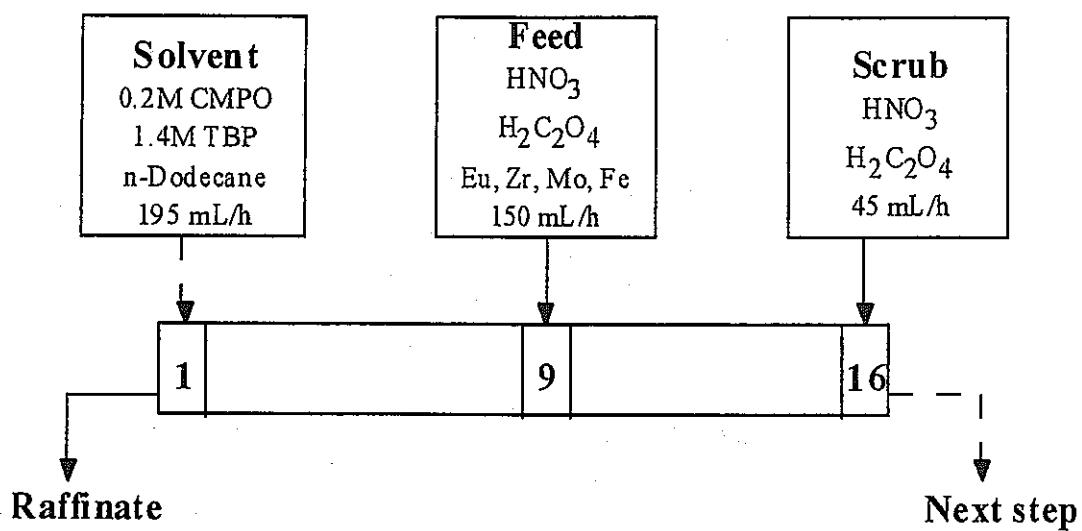


図 5 計算コードにより決定したフローシート  
(硝酸、シュウ酸濃度は試験により異なる)

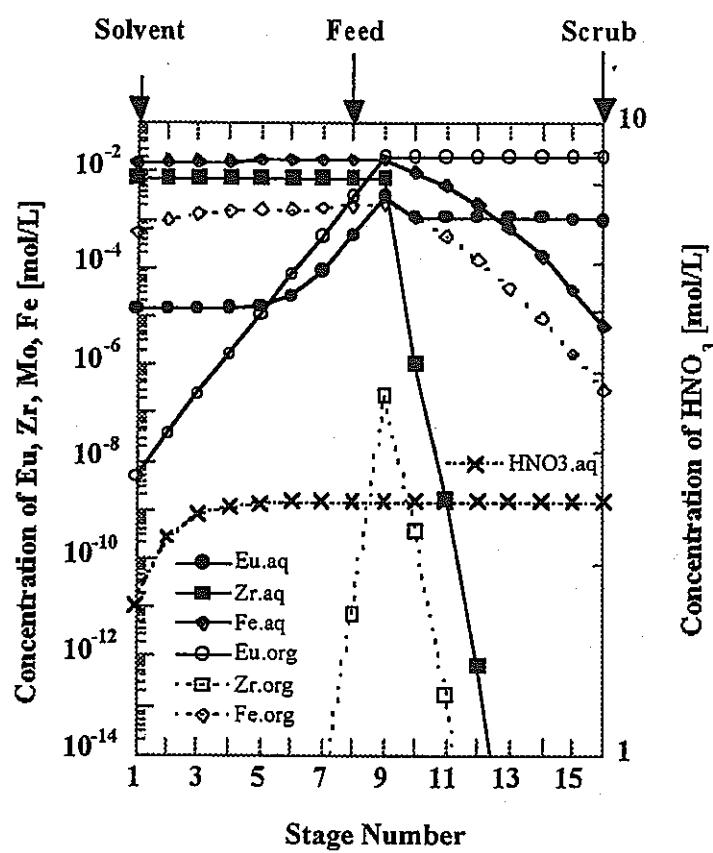


図 6 条件 1 に対する計算結果

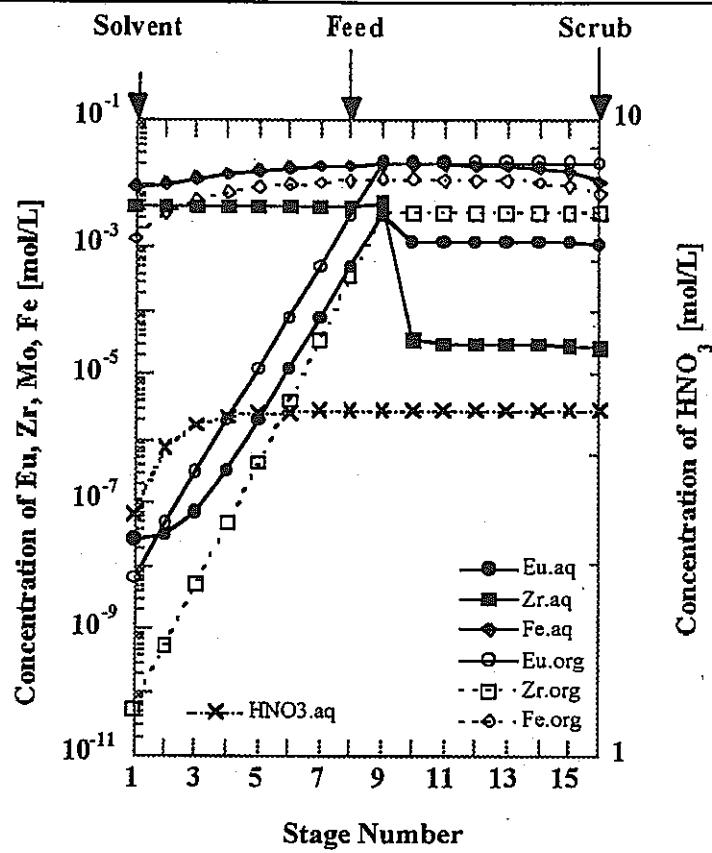


図 7 条件 2 に対する計算結果

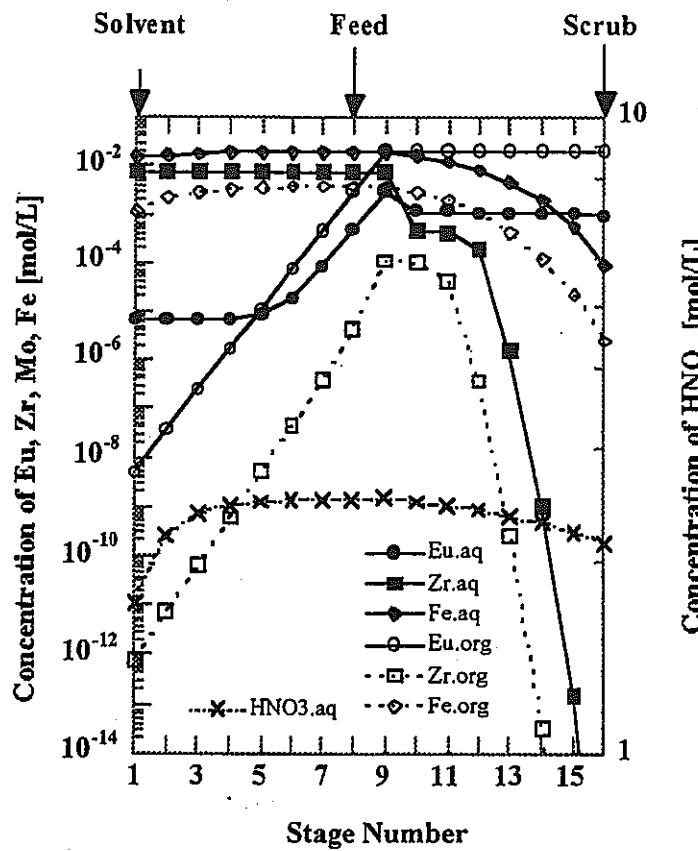


図 8 条件 3 に対する計算結果

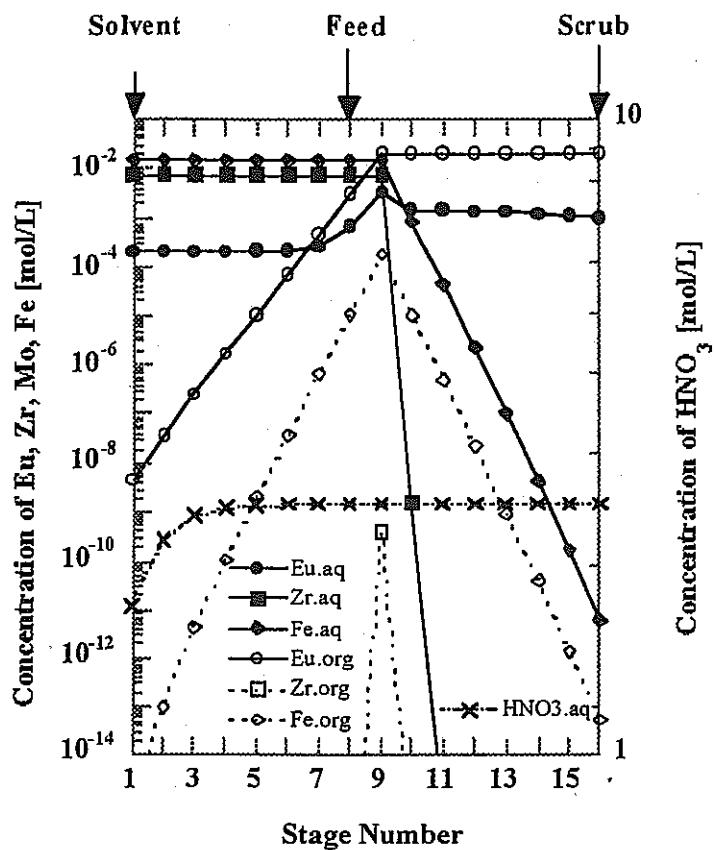


図9 条件4に対する計算結果

## 博士研究員（H10）平成12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 役職・氏名 馬場 務	グループリーダ 馬場 務
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 12年 4月 ~ 平成 12年 10月
<p><b>【研究目的】</b></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できるとされている。これまで<math>5\ f</math>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、<math>5\ f</math>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><b>【研究内容（概要）】</b></p> <p>アクチニド系の原子は、原子番号が大きく、<math>5\ f</math>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<math>5\ f</math>電子系磁性体<math>\text{UGe}_2</math>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<math>\text{UO}_2</math>などの磁気秩序をもつ<math>5\ f</math>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実験と異なった結果を導くことから、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、実験値と比較し、物質の特性を評価する。また、<math>\text{UO}_2</math>は絶縁体であるために、バンドギャップを求め、電子が熱伝導に寄与し始める特性温度を調査する。</p>			
<p><b>【使用主要施設】</b></p> <p>パーソナルコンピューター（VT-Alphashell）</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に基づいたプログラム開発により、アクチニド化合物 UGe<sub>2</sub>のバンド構造、Fermi 面の解析を実施した。

平成11年度上半期は、更に UGe<sub>2</sub>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評価を実施した。

平成12年度は、UGe<sub>2</sub> の論文作成と、二酸化ウラン (UO<sub>2</sub>) のバンド構造の解析を行い絶縁体構造のキーポイントとなるバンドギャップの有無についての検討を実施した。

### 【研究成果（当該年度）】

アクチニド化合物 UO<sub>2</sub>は、極めて安定な核燃料物質であり（融点は（2578±20°C））、燃料の熱拡散に対し重要な要因となる熱伝導率は、温度の上昇と共に格子振動のため減少するが、特性温度T<sub>0</sub>=1700°C当たりから電子の寄与のため急激に上昇する。これは、UO<sub>2</sub>が絶縁体でバンド構造にバンドギャップΔE<sub>G</sub>をもつためであり、実験によればΔE<sub>G</sub>=1.8 eVである。UO<sub>2</sub>のバンドギャップをバンド計算で求めるために、プログラム開発を行い、バンド構造解析を実施した。

これまでにも UO<sub>2</sub>のバンド計算は行われてきたが、スピン・軌道相互作用を無視した計算のみで、アクチニド化合物では、その相互作用は無視できるほど小さくないことが分かっている。本研究では、相対論的スピン分極密度汎関数法により、この相互作用を完全に取り入れた計算を行った。

結晶構造は萤石 (CaF<sub>2</sub>) 型の面心立方構造をもち、反強磁性状態体である。磁気構造は最近の研究から 3·k 構造であることが判明し、非常に複雑である。そのため、ここでは簡単化して Type 1 の磁気構造とした（図1）。

最初にテスト計算として非磁性体で計算を行い、バンド構造と状態密度を得ることができた（図2）。O<sub>2p</sub>バンド（6本）よりかなり高いエネルギーの所に U<sub>5f</sub>バンド（7本）がある。電子軌道ごとの状態密度から、電子軌道の混成がほとんど無いことがわかった。さらに、O<sub>2p</sub>バンドと U<sub>5f</sub>バンドを詳しく見た（図3·1）。U<sub>5f</sub>バンドの下から1本目と2本目のバンドがエネルギー的に分離し、この間に E\_F がくれば絶縁体で、電子が詰まる最高エネルギー値（=フェルミエネルギー：E\_F）で状態密度はゼロとなる。状態密度（DOS）の解析から分かるように、1本目のバンドの近傍で状態密度が極小をとり、絶縁体構造に近い結果を得ることができた（図3·2）。

次に Type 1 の反強磁性構造に対し計算を行い、バンド構造を得た（図4）。U<sub>5f</sub>バンドの下から2本目のバンドと3本目のバンドがエネルギー的に一部だけ重り、非磁性体と同様に、絶縁体構造に近い結果が得られた。

また、従来の方法では評価することができない、スピン・軌道相互作用の効果を評価することができた。軌道角運動量 (L) とスピン (s=±1/2) の相互作用により、全軌道角運動量は L±1/2 に分裂する。この効果を見るために、O<sub>2p</sub>と U<sub>5f</sub>の軌道を全軌道角運動量で分けて状態密度を求めた（図5）。図から、スピン・軌道相互作用は非常に大きなことが分かり、絶縁体構造に近くなった理由は、U<sub>5f(5/7)</sub>軌道がフェルミエネルギーに状態密度をもたないことが原因と分かった。

磁気モーメントは、実験値、1.74 μ\_B に対し、計算では 1.34 μ\_B となった。主な軌道における電子占有数は、O<sub>1s</sub>=1.9、O<sub>2p</sub>=5.2、U<sub>2p</sub>=5.2、U<sub>5f</sub>=2.3 個であり、ウランの 5f 電子はほぼ 2 個であることが分かった。

以上のように、相対論的スピン分極密度汎関数法に基づいた UO<sub>2</sub>の電子構造解析を可能にすることことができた。現在の計算法ではスピンギャップは現れていない。非相対論的 d 電子系でスピンギャップの系に対し成功を収めている LDA+U 近似を、相対論的 5f 電子系に導入することにより、スピンギャップが現れ更に詳しい情報が得られると考えられる。

研究を終了するに当たり、2年半の研究成果を以下にまとめる。

#### 平成10年度

アクチニド化合物の電子物性の解析評価するために、相対論的スピン分極密度汎関数法に基づいたバンド計算法の理論構築を行い、プログラム開発を実施した。作成したプログラムを用いて、アクチニド化合物 UGe<sub>2</sub> の電子構造解析を行い、バンド構造、Fermi 面などを得ることが出来た。

#### 平成11年度

更に UGe<sub>2</sub> の電子構造解析を進め、電子比熱、磁気モーメント、状態密度などの基礎物性値を得ることが出来た。計算結果と実験結果との比較から、開発した計算法がアクチニド化合物の物性評価に十分有効であることが示せた。

#### 平成12年度

平成10-11年度に行った UGe<sub>2</sub> の物性解析の成果を論文にまとめた。また、核燃料である二酸化ウラン (UO<sub>2</sub>) の電子構造の解析を行い、高温領域の熱伝導度に影響を与える絶縁体構造のバンドギャップの有無についての検討を実施した。計算結果は、実験結果が示す絶縁体構造とは異なり、弱いが金属状態を得た。LDA+U 近似により、絶縁体構造になると予想する。

#### 【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成12年10月で研究を終了する。

#### 【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

##### 論文投稿

Electronic Structure and Fermi Surface of Ferromagnetic UGe<sub>2</sub>  
by Relativistic Spin-Polarized Linearized APW method.  
Submitted to Journal of the Physical Society of Japan  
Syougo TEJIMA, Hiroshi YAMAGAMI, Noriaki HAMADA.

##### 学会発表

相対論的 LAPW 法による反強磁性 UO<sub>2</sub> の電子構造  
日本物理学会、2000 年秋の分科会（新潟大学）

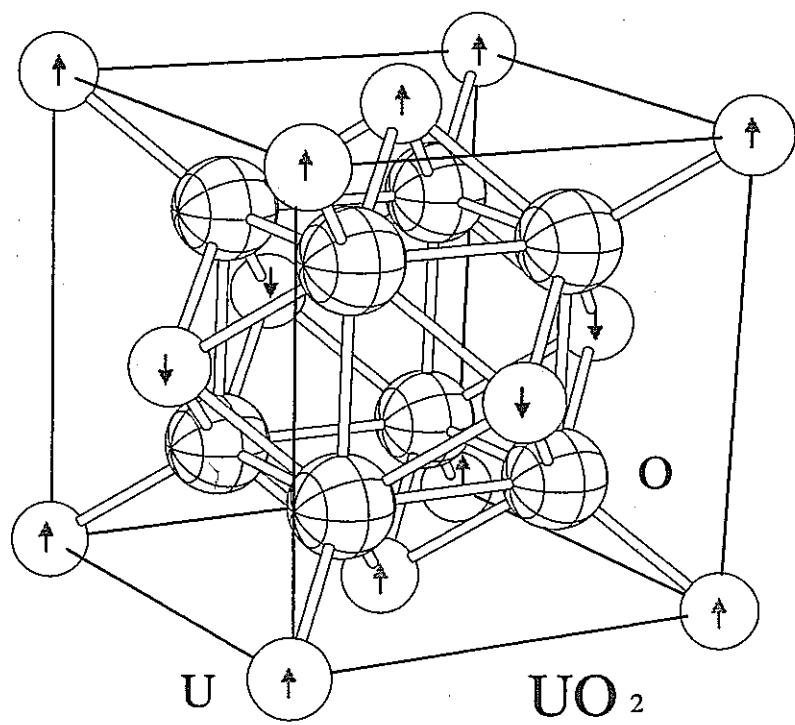


図1 萤石構造とウランのスピニの向き

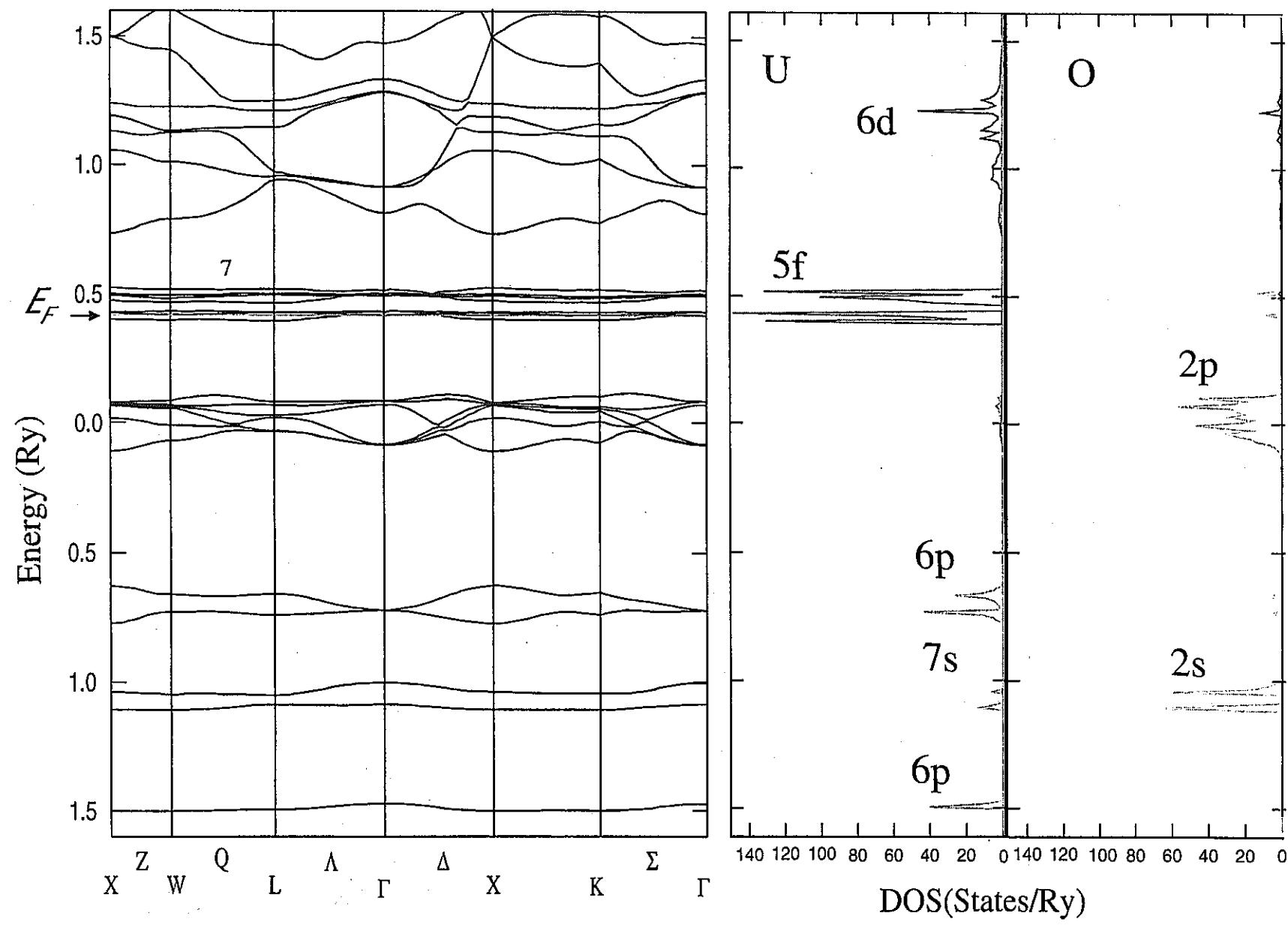


図2 非磁性体バンド計算によるバンド構造と状態密度

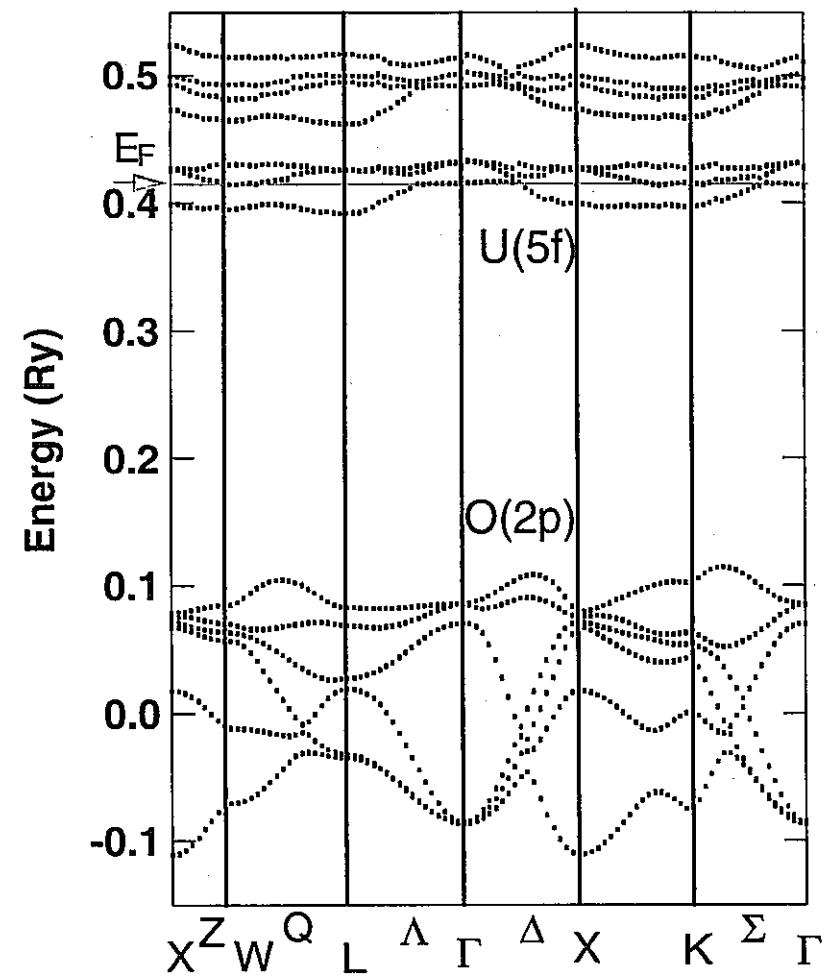


図 3-1  $U(5f)$  と  $O(2p)$  の  
非磁性バンド構造の詳細

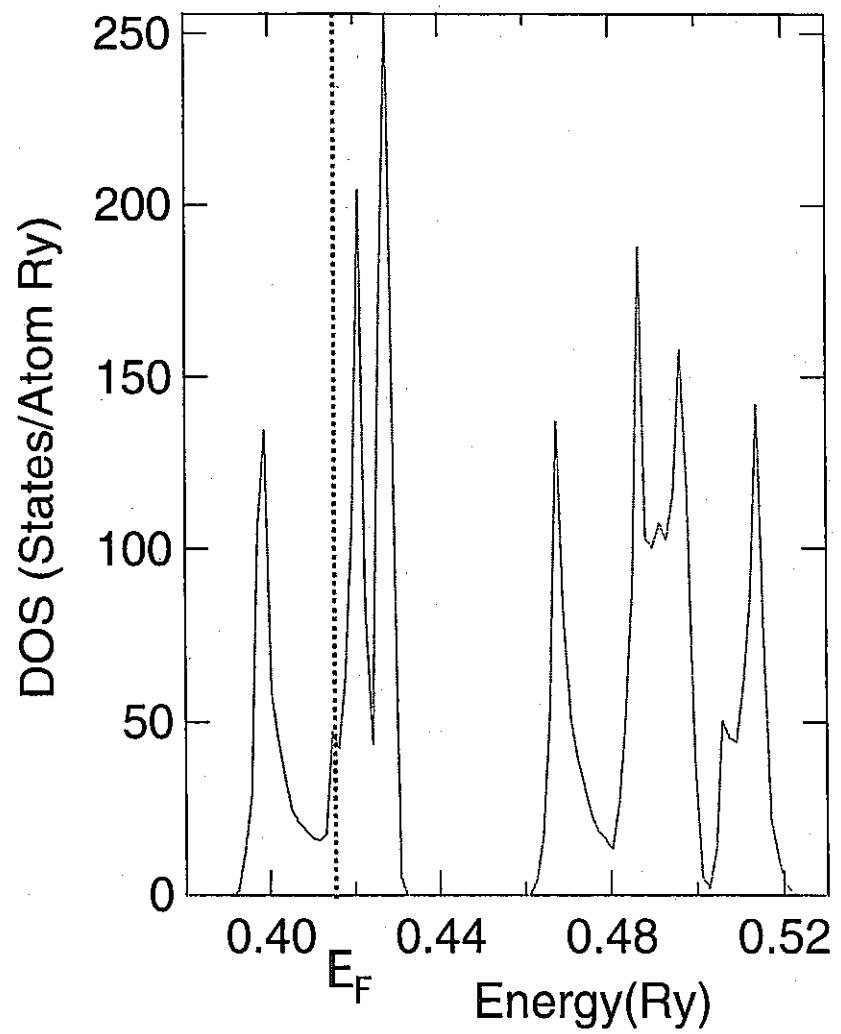


図 3-2  $U(5f)$  の  
非磁性状態密度の詳細

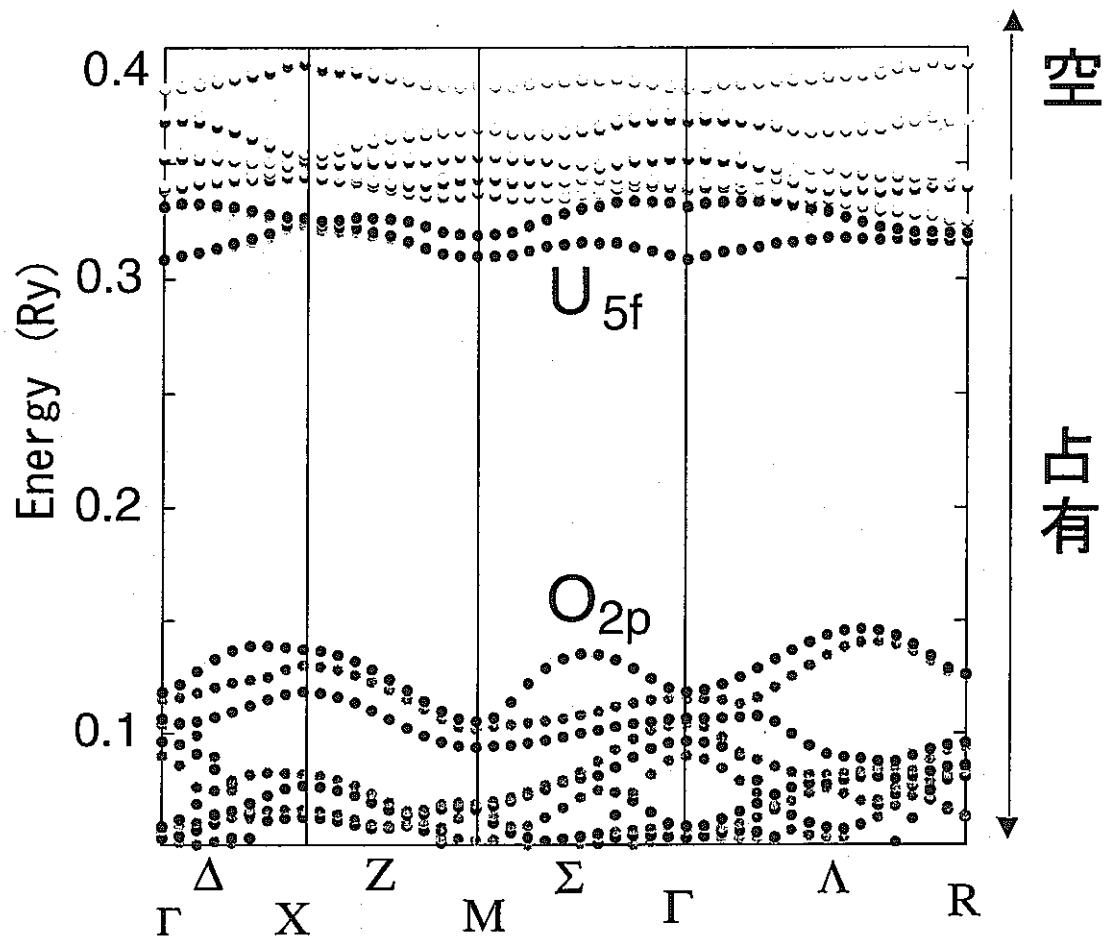


図 4-1 反強磁性バンド構造

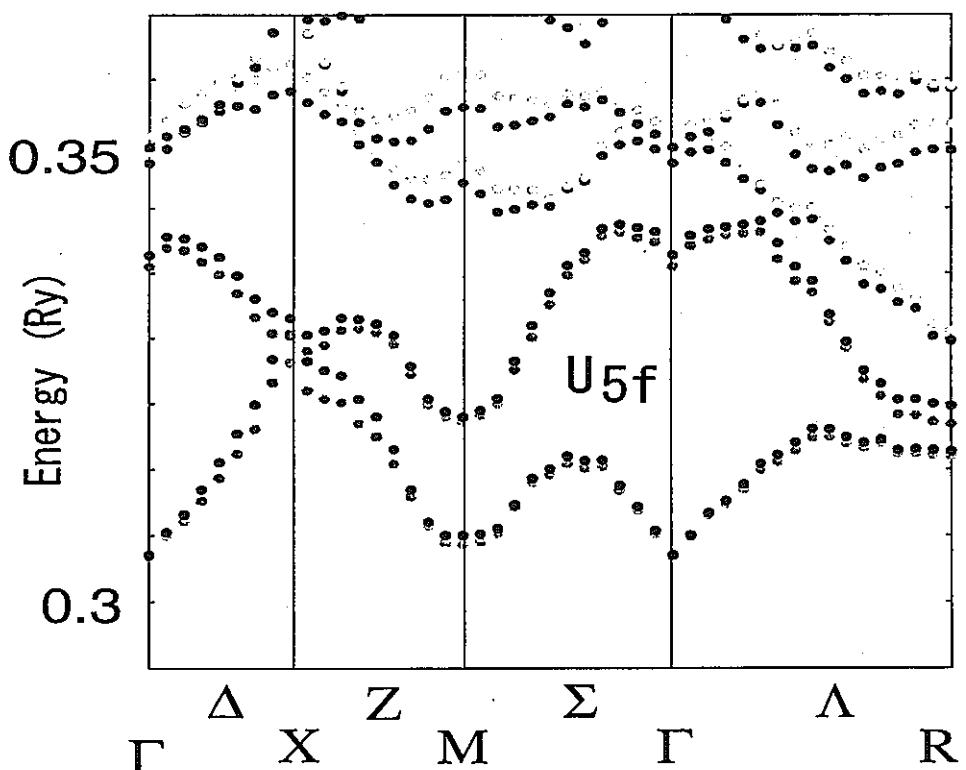


図 4-2 拡 大 図

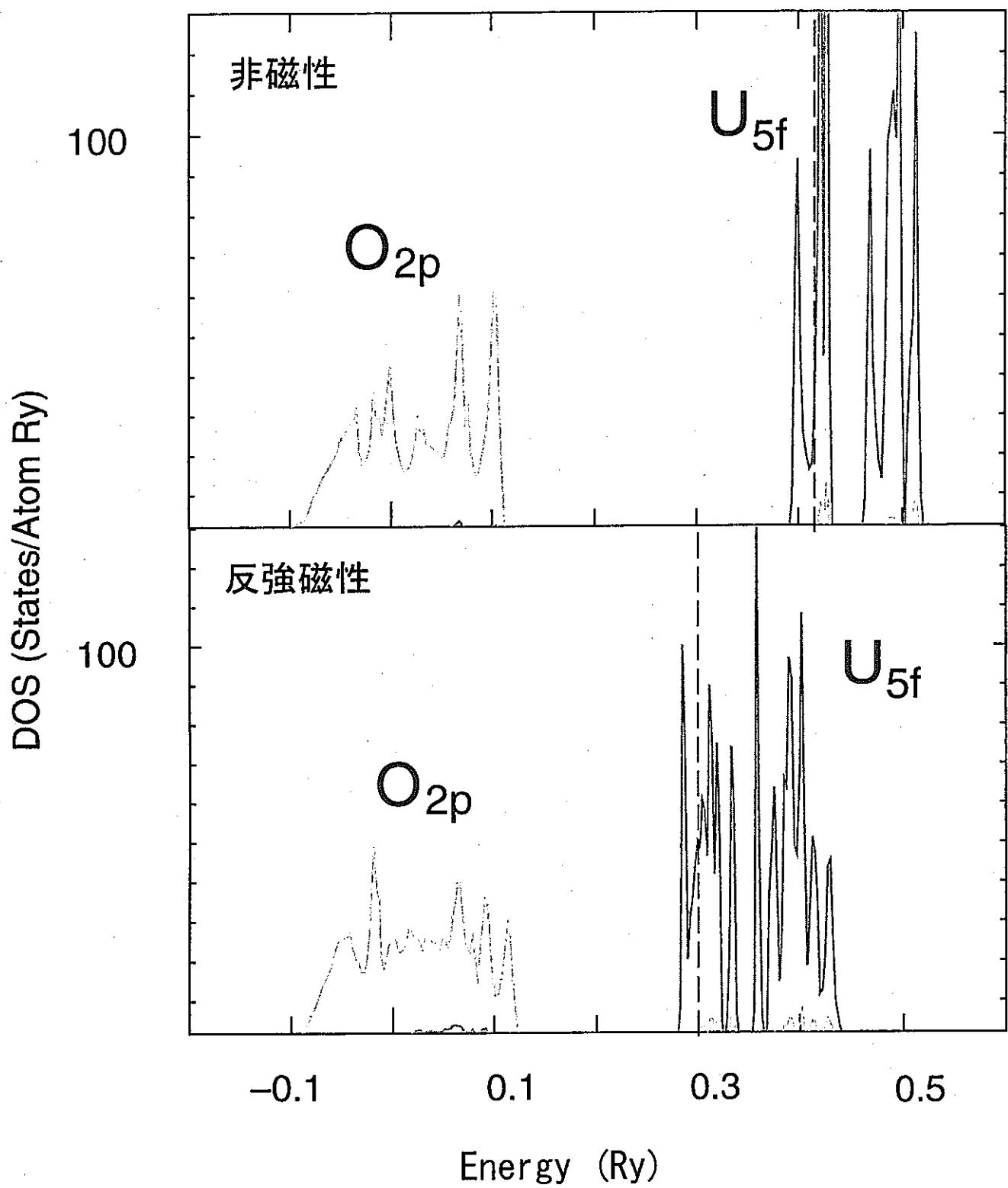


図 5 非磁性と反強磁性との状態密度の比較

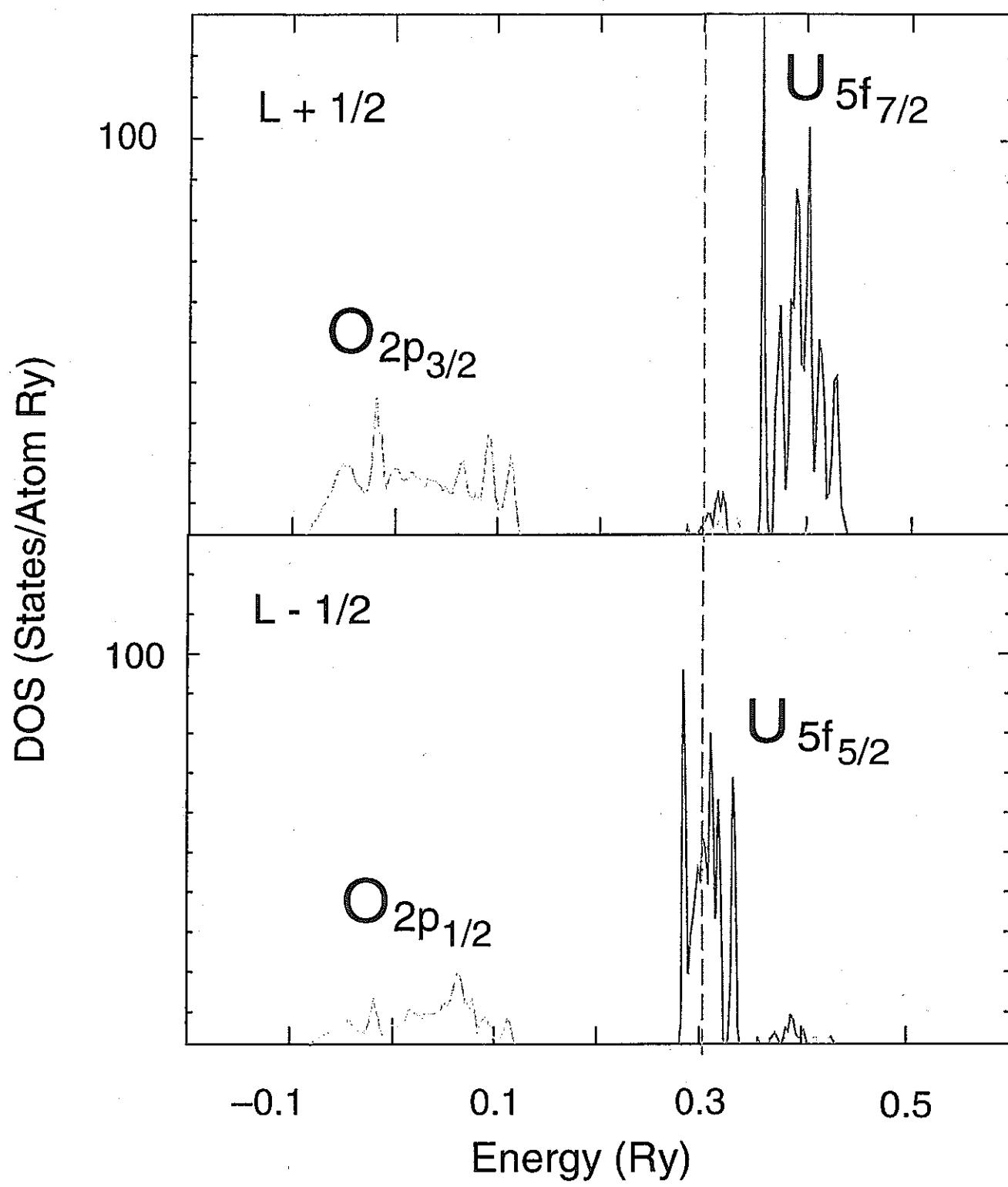


図 6 反強磁性状態におけるスピン・軌道相互作用の効果

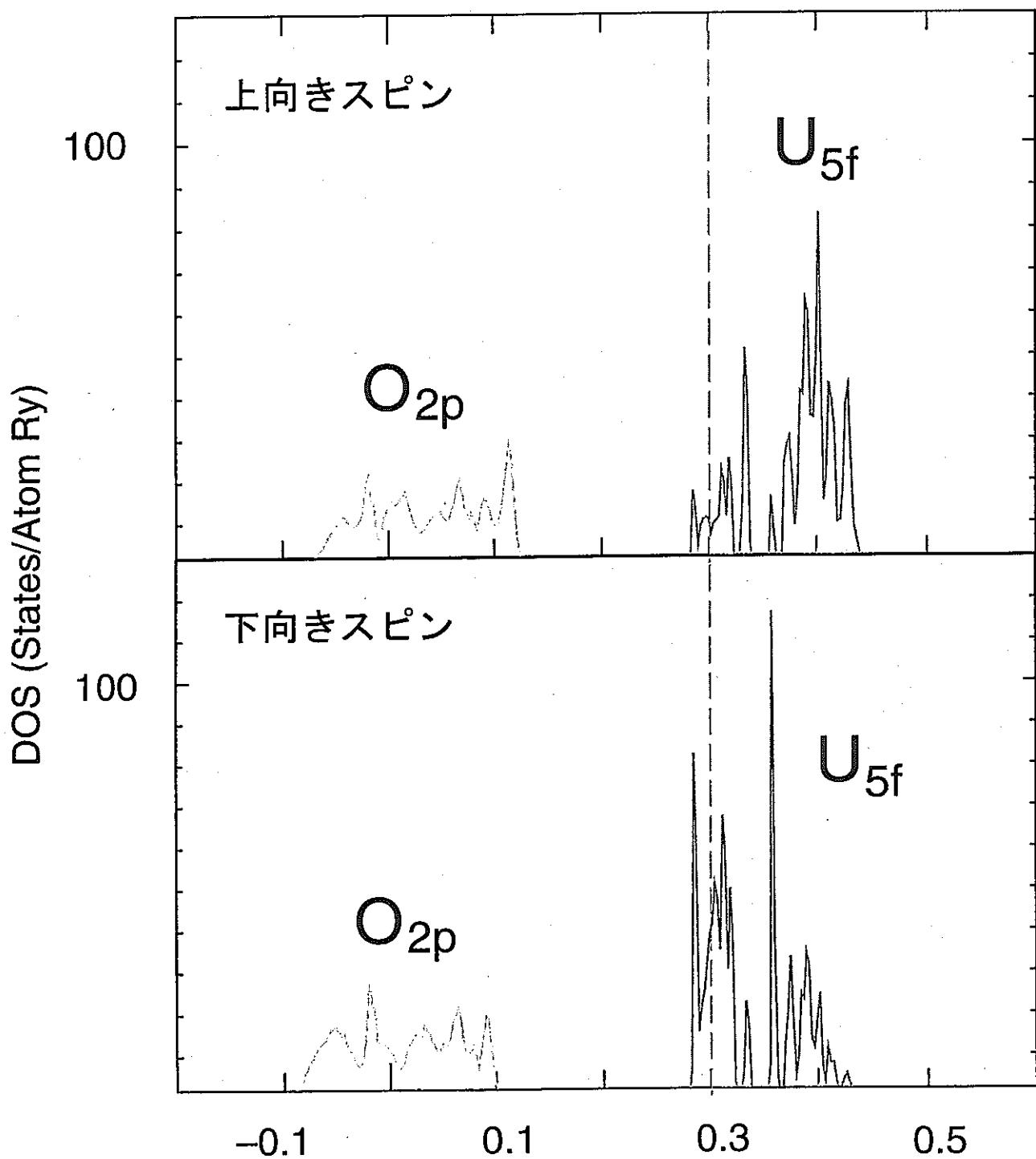


図7 磁性の原因となる上向きスピンと  
下向きのスピンの状態密度

## 博士研究員（H10）平成12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动に関する研究		
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 地質環境長期予測グループ・岩月輝希、施設技術グループ・徐勝、伊藤茂、阿部雅人、渡辺雅人	所属長 役職・氏名	施設技術 GL 宮田 初穂
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 12 年 4 月 ~ 平成 13 年 3 月
<b>【研究目的】</b>			
<p>地層中における物質の移動を解析する上で、地下水の流动状態は不可欠の情報の一つである。現在地下水の流动状態解析は、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、地下水中的希ガスを用いた地球化学的な地下水流动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、水一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、地質学的数据とを併せることにより、地球化学的見地から地下水の流动状態を詳細に把握する。</p>			
<b>【研究内容（概要）】</b>			
<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、地下水の流动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、地下水の流动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>地下水の流动状態の解析では、希ガスデータにより地下水流动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>			
<b>【使用主要施設】</b>			
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） 東濃鉱山および、その周辺領域（試錐孔、MPシステムなど）			

### 【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、大気を標準試料として、精度の確認を行った。

平成11年度は、水試料を用いた地下水試料分析時の精度評価を行った。その後、東濃鉱山調査試験地域における地下水試料の分析及び、データ解析に必要な岩石試料のデータ取得を行った。

平成12年度は、広域地下水流动調査地域における地下水試料の分析及び、データ解析に必要な岩石試料のデータ取得を行ない、地下水溶存ヘリウムによる地下水流动解析を試みた。

### 【研究成果（当該年度）】

平成12年度の研究成果の概要をまとめる。

地下水試料の採取はDH-12・-13及び、MIU-4号孔より行った。DH-12・-13及び、MIU-4号孔においては、1000m対応揚水試験装置により地上まで揚水された地下水試料を採取している。DH-12号孔においては、湧水量が多かったため、水理試験を考慮し圧力損失の内容大口径のパイプを試験区間から地上まで伸ばし、自噴する地下水を採取した。地下水試料採取用の試料容器には、長さ60cm・内径8mm・肉厚1mmのステンレス管を用い、両端にプラグバルブを装着したものを使用した。この試料容器内に気泡がなくなるまで試料をオーバーフローさせ続け、その後、ステンレス管両端のバルブを閉じることによって採水を行った。この場合、溶存ガスの脱ガスあるいは、大気の混入が危惧されるため、採水1地点につき2～3試料採取し、再現性を見た。

## 1. 結果

### 1. 1 ヘリウム

測定した地下水試料のヘリウム存在度( $^4\text{He}$ )と同位体比を表1に示した。大気と平衡にある場合の水試料中の $^4\text{He}$ 濃度は $4.55 \sim 4.76 \times 10^{-8}\text{ccSTP/gH}_2\text{O}$ (大気が5～15°Cの場合)である。また、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は $1.38 \times 10^{-6}$ であることが知られている(Benson and Krause, 1980)。地下水中に溶存するトリチウムが壊変し、 $^3\text{He}$ が加わった場合、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は $1.7 \times 10^{-6}$ から $1.9 \times 10^{-6}$ (トリチウムの初期濃度をそれぞれ5.5・10T.U.とした場合)まで上昇する。今回測定した地下水はすべて、この値よりも低くなっている。

DH-12・MIU-4号孔より採取した地下水のヘリウム同位体比は試錐孔ごとに異なり、その特徴は、深度によらず $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比がほぼ一定であることが分かった(図1)。同一地点で3試料採取した結果、同位体分析値の系統的な変化は見られなかった。揚水された地下水を分析した場合、地下水と溶存ガスの分離が起こりやすいと考えられるため、採水した試料の中の(溶存ガス起源の)気泡の量により定量値は変わってくるおそれがある。また、空気の混入によるヘリウム同位体比の変動を考慮する必要がある。同位体分析値の系統的な変化は見られていないため、大気の混入による影響は無視できるといえる。

### 1. 2 ネオン

測定した地下水試料のネオン存在度( $^{20}\text{Ne}$ )と同位体比を表1に示した。大気と平衡にある場合の水試料中の $^{20}\text{Ne}$ 濃度は $1.75 \sim 1.92 \times 10^{-7}\text{ccSTP/gH}_2\text{O}$ (大気が5～15°Cの場合)である。天水を起源とした地下水の場合もこの値は変わらない。同一地点で3試料採取した結果、約10倍の $^{20}\text{Ne}$ 濃度の違いが見

られた。ヘリウム同位体比の再現性の良さから、空気の混入はあまりないといえる。したがって、ネオン定量値の変動は、採水した試料の中の（溶存ガス起源の）気泡の量を反映している。定量による議論は、実測値を何らかの方法で補正した後、行なう。

$^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$  比と  $^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$  比との関係を DH-3 号孔・堆積岩中の地下水のデータとともに図 2 に示した。大気中の  $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$ ・ $^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$  比はそれぞれ、9.80・0.0290 である。大気一天水間でネオン同位体の分別が起こるという報告は現在のところない。図 2 からは、測定した地下水のデータはいずれも大気成分近くにプロットされている。Bottomley et al. (1984) は、カナダ・マニトバ州の WNRE サイトで採取したいくつかの地下水試料において、低い  $^{20}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$  比 (~8.8) と高い  $^{21}\text{Ne}/^{22}\text{Ne}$  比 (~0.068) を観測している（図 2）。各データは、大気のネオンと大陸地殻から発生するネオンとの混合線付近に位置し、WNRE サイトで採取した地下水試料は、地下水運動中に地殻で発生したネオンを溶解していることがわかる今回の測定試料においては、この影響はないといえる。

### 1. 3 アルゴン

測定した地下水試料のネオン存在度 ( $^{40}\text{Ar}$ ) と同位体組成を表 2 に示した。大気と平衡にある場合の水試料中の  $^{40}\text{Ar}$  濃度は  $3.44 \sim 4.34 \times 10^{-4} \text{ ccSTP/gH}_2\text{O}$  (大気が 5~15°C の場合) である。天水を起源とした地下水の場合もこの値は変わらない。採水した試料の中の（溶存ガス起源の）気泡の量の違いによる定量値の変動が、アルゴン測定時にも見られているといえる。 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比と  $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比との関係を図 3 に示した。大気中の  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ ・ $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比はそれぞれ、295.5・0.1880 である。天水のアルゴン同位体比も大気と分別が起こるという報告は現在のところない。測定した地下水のデータはいずれも大気成分近くにプロットされている（図 3）。

### 2. 花崗岩より採取した地下水の溶存希ガスの起源について

1 章で述べたように、東濃地域の地下水中のネオン・アルゴン同位体比に変動は見られなかった。

岩石中の  $^{21}\text{Ne}$  の生成速度 [ $J$  ( $^{21}\text{Ne}$ )] は、

$$J\left(^{21}\text{Ne}\right) = 6.7 \times 10^{-21} \times [U] \times \{ 1 + 0.123 \left( [\text{Th}] / [U] - 4 \right) \} \quad (\text{ccSTP} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}) \quad (1)$$

で表される (Craig and Lupton, 1976)。岩石中の U・Th 濃度として、土岐花崗岩の典型値 (U: 5ppm, Th: 25ppm) を用いると、東濃地域の岩石中の  $^{21}\text{Ne}$  の生成速度は、 $3.8 \times 10^{-20} \text{ ccSTP/g y}$  となる。地下水の滞留時間を  $t$  (年) とした場合、 $t$  年間に地下水中に蓄積される  $^{21}\text{Ne}$  は、Andrews and Lee (1979) の He 蓄積の式と同様に、

$$^{21}\text{Ne} = t \Lambda_{\text{Ne}} \times J\left(^{21}\text{Ne}\right) \times \rho_R / \rho_w \times (1-\phi) / \phi \quad (2)$$

$\Lambda_{\text{Ne}}$ : 岩石から発生した Ne が地下水中に放出される割合

$\rho_R$ ,  $\rho_w$ : 岩石・水の密度 ( $\text{g cm}^{-3}$ )

で表される。岩石の空隙率  $\phi$  に土岐花崗岩の空隙率 0.8% を、地下水滞留時間にこの付近の地下水の年代 (14,000 年; Iwatsuki et al., 2000) を用いると、発生したネオンすべてが地下水中に放出された場合 ( $\Lambda_{\text{Ne}}=1$ ) でも、地下水中に蓄積される  $^{21}\text{Ne}$  は  $2 \times 10^{-13} \text{ ccSTP/gH}_2\text{O}$  となる。この値は、大気と平衡にある水、すなわち涵養時に地下水に含まれる  $^{21}\text{Ne}$  の約 0.04% である。堆積岩の場合  $J$  ( $^{21}\text{Ne}$ ) に大きな変化はないが、空隙率が大きいため、地下水中に蓄積される  $^{21}\text{Ne}$  は少ない。つまり、東濃地域の地下水において、岩石から発生する成分によるネオン同位体の変動が見られないことは妥当の結果で

ある。

次に、 $^{40}\text{K}$  の  $\beta$  壊変による  $^{40}\text{Ar}$  の地下水への付加による変動について考える。花崗岩中の  $\text{K}_2\text{O}$  の濃度を 5%とした場合、岩石中の  $^{40}\text{Ar}$  の生成速度 [ $J(^{40}\text{Ar})$ ] は、 $^{40}\text{K}$  の壊変定数  $5.55 \times 10^{-10} (\text{y}^{-1})$ に基づいて計算すると、 $1.55 \times 10^{-13} \text{ ccSTP g y}^{-1}$  となる。上記のネオンの場合と同様に、地下水滞留中に周囲の岩石から発生した  $^{40}\text{Ar}$  がすべて地下水中に溶け込んだと仮定すると、東濃地域の地下水中に蓄積される  $^{40}\text{Ar}$  は  $8 \times 10^{-7} \text{ ccSTP/gH}_2\text{O}$  となる。涵養時に地下水に含まれる  $^{40}\text{Ne}$  は  $3 \sim 4 \times 10^{-4} \text{ ccSTP/gH}_2\text{O}$  である。したがって、滯水層で発生した  $^{40}\text{K}$  起源の Ar によるアルゴン同位体の変動が見られないことは妥当の結果である。

ネオン、アルゴン同位体比とは異なり、ヘリウム同位体比は 1 桁以上の変動が見られた。溶存ヘリウムの起源は基本的に 3 成分が考えられる。各成分の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比・ $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比の違いを利用して、今回分析した東濃地域の地下水中のヘリウムの起源を推定した。図 4 は、花崗岩中の地下水における  $^3\text{He}/^4\text{He}$  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の混合ラインを示す。曲線で囲まれた部分は、大気成分と放射壊変成分の混合によってえられる地下水の同位体の特徴を示している。放射壊変成分の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は、花崗岩の化学組成より見積もった。

DH-13, MIU-4 号孔より採取した花崗岩中の地下水は、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、これらの地下水は、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。岩芯試料の化学分析より推測した、岩石から得られるヘリウム同位体比は  $1.3 \sim 3.8 \times 10^{-8}$  であり、この値は、Torgersen and Clarke (1987) が見積もった上部地殻から発生するヘリウム同位体比とよく一致している。したがって、地下水に蓄積されているヘリウムが、原位置で発生したヘリウムに由来するものがあるいは、地殻深部より上昇してきたものであるかはヘリウム同位体比のみでは分からぬ。

DH-12 号孔より得られた地下水はいずれも、この混合ラインよりも明らかに上にプロットされる。DH-12 号孔の地下水を、端成分が大気成分の単純な 2 成分の混合であるとすると、もう一つの端成分は  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が  $3 \sim 5 \times 10^{-7}$  となる。DH-12 号孔岩芯試料の Li 分析 (5 試料) では、Li 濃度は、 $38 \sim 66 \text{ ppm}$  となった。このデータからは、岩石から発生する  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が  $3 \sim 5 \times 10^{-7}$  とはなりえない。DH-12 号孔の地下水中のヘリウムの起源としてほかの成分を考える必要がある。

### 3. ヘリウムフラックスの見積もり

2 章より、花崗岩中の地下水中は、周囲の岩石或いは、地殻上部より発生した成分の溶解によりヘリウム同位体比が変動していることがわかった。地下水溶存ヘリウムによる地下水年代の推定・地下水流动解析を行なう上で、単位時間あたり地殻深部より上昇するヘリウム量 (ヘリウムフラックス) を見積もることは不可欠である。

ヘリウムフラックスは以下の式によって計算可能である。

$$[\text{He}]_{\text{ex}} = \frac{t \cdot F}{\phi \cdot h}$$

$[\text{He}]_{\text{ex}}$  : 地層中で加わったヘリウム濃度 ( $\text{ccSTP/gH}_2\text{O}$ ) (3)

$h$  : 滞水層の厚さ (cm)

$f$  : 岩石の空隙率

$F$  : ヘリウムフラックス ( $\text{ccSTP} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{y}^{-1}$ )

今回測定した地下水試料のヘリウムデータから、東濃地域のヘリウムフラックスを見積もった。な

お、溶存ガスの抽出率・(溶存ガス起源の) 気泡の量の違いを補正するため、ヘリウム濃度の値は、以下の方法で計算した値を使っている。

$$C_{He} = [{}^4He]_{det} \cdot \frac{1.83 \times 10^{-7}}{[{}^{20}Ne]_{det}} \text{ (ccSTP / gH}_2\text{O)} \quad (4)$$

$C_{He}$  :  ${}^4He$  補正濃度 (ccSTP/gH<sub>2</sub>O)

$[{}^4He]_{det}$  :  ${}^4He$  実測値 (ccSTP/gH<sub>2</sub>O)

$[{}^{20}Ne]_{det}$  :  ${}^{20}Ne$  実測値 (ccSTP/gH<sub>2</sub>O)

なお、ここで、 $1.83 \times 10^{-7}$  は 10°C の大気と平衡にある蒸留水中の  ${}^{20}Ne$  の濃度である。つまりこの補正式は、ネオンの実測値と理論値から、抽出率あるいは、気泡の濃縮率を見積もり、ヘリウム・ネオンの抽出・濃縮率を同じと仮定したうえで、 ${}^4He$  実測値をネオンで規格化したものである。

(4) 式において、 $[He]_{ex}$  はヘリウム濃度補正值から 10°C の大気と平衡にある蒸留水中のヘリウム濃度 ( $4.65 \times 10^{-8}$  ccSTP/gH<sub>2</sub>O) を差し引いた値、堆積岩の空隙率に 0.49、地下水年代として  ${}^{14}C$  年代を採用した。また、滞水層の厚さについては、それぞれの試錐孔の柱状図より見積もった。土岐夾炭累層下部層中には、低透水層が存在し、低透水層を境に地下水の滞留系が分かれていることが指摘されているため、低透水層上部については、生俵累層シルト岩下部 (TH-6 のみ) あるいは、明世累層上部から土岐夾炭累層下部層の凝灰質岩濃縮部までの距離約 70~100m を滞水層の厚さとした。低透水層下部については、土岐夾炭累層下部層の凝灰質岩濃縮部から土岐花崗岩との境目までの約 30m を滞水層の厚さとした。

図 5 は、上の仮定に基づき計算した  $[He]_{ex} \times \phi \times h$  (ccSTP/cm<sup>2</sup>) を縦軸に、 ${}^{14}C$  年代を横軸にとったものである。原点と各データポイントを結んだ傾きがヘリウムフラックス (F) となるが、結果は図 5 のようにばらついた。図 5 中の 3 つの直線は、TH-3 号孔の土岐夾炭累層、TH-6 号孔の 2 ポイント及び、そのほかのデータポイントから得られた回帰直線である。それぞれの直線の傾きは、ヘリウムフラックスとして、それぞれ、 $5.9 \times 10^{-7} \cdot 1.1 \times 10^{-7} \cdot 1.6 \times 10^{-8}$  (ccSTPcm<sup>-2</sup>y<sup>-1</sup>) に相当する。今回用いたモデルによるヘリウムフラックス計算値は、年代の不確定性、試錐孔ごとの深度プロファイルの違いなどにより、大きな不確定性を持っていると考えられる。TH-3 号孔の土岐夾炭累層下部層より採取した地下水は、比較的若い地下水との混合が示唆されている。 ${}^{14}C$  年代はこの影響を受け、相対的に若い年代を与えていようとすれば、図 5 中の TH-3, 124.0m のデータポイントは本来よりも左にずれ、見かけ上高いヘリウムフラックス値を与えている可能性がある。

ヘリウムフラックス値は、天然ガス中の He 濃度、地下水中的ヘリウム濃度など実測値からの推定が世界各地で行われたり、大気中のヘリウム濃度からのモデル計算値なども提出されている。モデル計算値や気体試料の実測値 ( $3 \times 10^{-6}$  ccSTP/cm<sup>2</sup>/y) に比べて、今回の値は 1~2 衍低い値となっている。しかし、近年になって、地下水中的ヘリウム濃度からフラックスを計算する試みが多くなされており、それらの値と本研究の値は大きく違っていない。

ヘリウムフラックスの地域間での違い、地下水の分析値からのフラックスの見積もりに関しては、現在でも統一した見解はない。地下水中的ヘリウム濃度から、地下水年代の推定を行う場合、ヘリウムフラックスを正確に見積もることは不可欠であり、今後より深い検討を行う必要がある。

#### 4. 地下水流動解析への適用について

今回得られた地下水のヘリウムの深度プロファイルとヘリウムフラックスを用いて簡単に地下水流

動解析への適用例を示す。

Stute et al. (1992)は涵養域から流出域に至るまでの領域における、地下水中のヘリウム濃度の深度プロファイルのコンピュータシミュレーションを行った。その結果、涵養域においては、深度とともに、ヘリウム濃度が増加し、流出域においては、深度によるヘリウム濃度の違いはあまり見られない。また、同一深度において涵養域と流出域でのヘリウム濃度とを比べると数桁の違いが見られている(図6)。ヘリウムフラックス値、涵養域と流出域間の距離の設定、岩石の空隙率など東濃地域のデータを用いて計算し直す必要があるが、Stute et al. (1992)は、各パラメータを10倍程度変えても基本的な特徴は変わらないとしている。Stute et al. (1992)の結果とDH-3・-12・-13及び、MIU-4号孔より得られたヘリウム濃度の深度プロファイルとを比較すると、DH-12は流出域のプロファイル付近、MIU-4は涵養域と流出域の中間付近、DH-3・-13が涵養域のプロファイル付近にプロットされる。また、ヘリウム濃度の深度プロファイルもモデルと良く一致している(図6)。3次元有限要素法による定常飽和一不飽和浸透流解析の結果、東濃鉱山周辺の地下水は東濃鉱山の北部を通る東西方向の尾根線の南側を涵養域とし、土岐川を流出域としている結果となっている(三枝他, 1998)。この解析結果によれば、DH-13は涵養域、DH-12は流出域に位置する。ヘリウムの結果は、この解析結果と一致している。

今後より詳細なヘリウム濃度のプロファイルと東濃地域のデータを用いたヘリウム濃度の深度プロファイルのシミュレーションを行うことによって、これを検証する必要があるであろう。

## 5. まとめ

本年度の成果は以下のとおりである。

(1) 東濃地域の地下水中のヘリウム同位体比は、大気と平衡にある水よりも低い。DH-12、MIU-4号孔より採取した花崗岩中の地下水においては、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は深度によらずほぼ一定となった。

(2) 東濃地域の地下水中のネオン・アルゴン同位体比は、大気と平衡にある水からの変動はない。東濃地域の地下水の年代と岩石からのネオン・アルゴンの生成速度から考えると、この結果は妥当であるといえる。

(3) ヘリウムフラックスは、 $0.02 \sim 0.59 \times 10^{-6} \text{ ccSTP/gH}_2\text{O}$ の範囲と見積もることができた。

(4) 花崗岩中の地下水のヘリウム濃度の深度プロファイルは、東濃鉱山周辺の地下水が、東濃鉱山の北部を通る尾根線を涵養域とし土岐川を流出域として考えた場合にえられると思われるシミュレーション結果とよく一致することが分かった。

### 【今後の予定(翌年度以降の概要)】

本年度で研究を終了する

### 【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：東濃鉱山周辺の地下水中のヘリウム同位体比、2000年度 日本地球化学会年会 講演要旨集、pp. 138

Geochemical Journal誌への論文投稿(登録管理手続き中)

「Helium and neon isotopes in deep groundwaters from Tono area, Central Japan / N. Morikawa」

表1.DH-12, -13, MIU-4号孔より採取した地下水中のヘリウム・ネオン濃度及び同位体比

試錐孔	深度 (m)	地層 <sup>#</sup>	<sup>4</sup> He	<sup>20</sup> Ne ( $\times 10^{-8}$ ccSTP/gH <sub>2</sub> O)	<sup>3</sup> He/ <sup>4</sup> He ( $\times 10^{-6}$ )	<sup>20</sup> Ne/ <sup>22</sup> Ne	<sup>21</sup> Ne/ <sup>22</sup> Ne
			( $\times 10^{-7}$ ccSTP/gH <sub>2</sub> O)				
DH-12	157.45～164.12	S-G	660	0.87	0.384 (13) <sup>E</sup>	9.65 (8) <sup>E</sup>	0.0280 (5) <sup>E</sup>
DH-12	:	S-G	470	0.48	0.420 (15)	9.93 (11)	0.0286 (8)
DH-12	:	S-G	2900	3.5	0.401 (14)	9.89 (8)	0.0285 (5)
DH-12	178.00～280.17	G	2700	2.3	0.326 (12)	10.04 (9)	0.0294 (10)
DH-12	:	G	1800	2.8	0.333 (12)	9.90 (9)	0.0290 (4)
DH-12	345.9～387.2	G	2800	1.6	0.488 (17)	9.98 (8)	0.0294 (4)
DH-12	:	G	340	0.18	0.502 (20)	10.06 (10)	0.0283 (5)
DH-12	388.9～429.7	G	2100	1.6	0.468 (17)	9.79 (8)	0.0283 (4)
DH-12	:	G	1500	1.0	0.499 (19)	n.d. <sup>\$</sup>	n.d.
DH-12	:	G	7100	5.2	0.486 (17)	9.78 (8)	0.0288 (4)
DH-12	431.4～510.0	G	1200	0.86	0.444 (16)	9.88 (8)	0.0293 (4)
DH-12	:	G	1800	2.3	0.435 (17)	9.94 (8)	0.0292 (4)
DH-12	:	G	800	0.92	0.447 (18)	9.83 (8)	0.0287 (3)
DH-13	60.50～74.15	G	10	2.4	0.448 (18)	9.71 (9)	0.0297 (6)
DH-13	:	G	18	2.9	0.457 (17)	9.93 (8)	0.0294 (6)
MIU-4	82.50～88.65maBH	TL	48	1.5	0.138 (5)	9.88 (9)	0.0291 (5)
MIU-4	:	TL	100	3.0	0.125 (5)	9.95 (8)	0.0288 (3)
MIU-4	:	TL	9.8	0.17	0.139 (7)	9.97 (12)	0.0282 (8)
MIU-4	95.02～134.47maBH	G	130	2.7	0.101 (5)	n.d.	n.d.
MIU-4	:	G	190	4.1	0.108 (4)	n.d.	n.d.
MIU-4	:	G	91	1.5	0.109 (6)	n.d.	n.d.
MIU-4	314.95～316.95maBH	G	61	0.62	0.091 (4)	9.97 (9)	0.0300 (5)
MIU-4	:	G	33	0.40	0.098 (4)	9.99 (11)	0.0297 (5)

<sup>#</sup>: A :明世累層 F, TU : 土岐夾炭累層上部層, TL : 土岐夾炭累層下部層, G : 土岐花崗岩, S-G : 碽岩(花崗岩含む)<sup>\$</sup> : 測定せず<sup>E</sup> : ( ) 内の数字は  $1\sigma$  の誤差

表2 地下水中の<sup>40</sup>Ar濃度及び、アルゴン同位体比

採水日	採水地点 (m)	<sup>40</sup> Ar ( $\times 10^{-4}$ ccSTP/gH <sub>2</sub> O)	<sup>38</sup> Ar/ <sup>36</sup> Ar	<sup>40</sup> Ar/ <sup>36</sup> Ar
2000/7/26	DH-12 157.45~164.12	2.1	0.189 (5) <sup>#</sup>	298 (3) <sup>#</sup>
2000/7/26	DH-12 157.45~164.12	0.79	0.191 (6)	297 (3)
2000/7/26	DH-12 157.45~164.12	6.0	0.1871(16)	284 (3)
2000/8/27	DH-12 178.00~280.17	3.0	0.189 (5)	302 (3)
2000/8/27	DH-12 178.00~280.17	6.0	0.188 (3)	299 (3)
2000/12/19	DH-12 345.9~387.2	1.7	0.187 (3)	292 (3)
2000/12/19	DH-12 345.9~387.2	0.14	0.187 (11)	292 (3)
2000/12/7	DH-12 388.9~429.7	2.4	0.188 (2)	298 (3)
2000/12/7	DH-12 388.9~429.7	1.2	0.190 (3)	293 (3)
2000/12/7	DH-12 388.9~429.7	5.9	0.189 (2)	292 (3)
2000/11/22	DH-12 431.4~510.0	1.3	0.189 (4)	295 (4)
2000/11/22	DH-12 431.4~510.0	2.2	0.1851(11)	287 (3)
2000/11/22	DH-12 431.4~510.0	1.1	0.185 (4)	290 (3)
2000/9/1	DH-13 60.50~74.15	5.9	0.186 (5)	298 (3)
2000/9/1	DH-13 60.50~74.15	5.0	0.187 (4)	291 (3)
2000/7/24	MIU-4 82.50~88.65mabh	2.1	0.187 (3)	296 (3)
2000/7/24	MIU-4 82.50~88.65mabh	5.5	0.185 (6)	294 (3)
2000/7/24	MIU-4 82.50~88.65mabh	0.18	0.191 (11)	296 (3)
2000/8/13	MIU-4 95.02~134.47mabh	4.2	n.d.	n.d.
2000/8/13	MIU-4 95.02~134.47mabh	5.6	n.d.	n.d.
2000/8/13	MIU-4 95.02~134.47mabh	1.9	n.d.	n.d.
2000/12/2	MIU-4 314.95~316.95mabh	n.d.	n.d.	n.d.
2000/12/2	MIU-4 314.95~316.95mabh	0.61	0.186 (2)	292 (3)
2000/12/2	MIU-4 314.95~316.95mabh	0.37	0.188 (5)	293 (3)

<sup>#</sup>: 誤差( $1\sigma$ )<sup>†</sup>: 測定せず

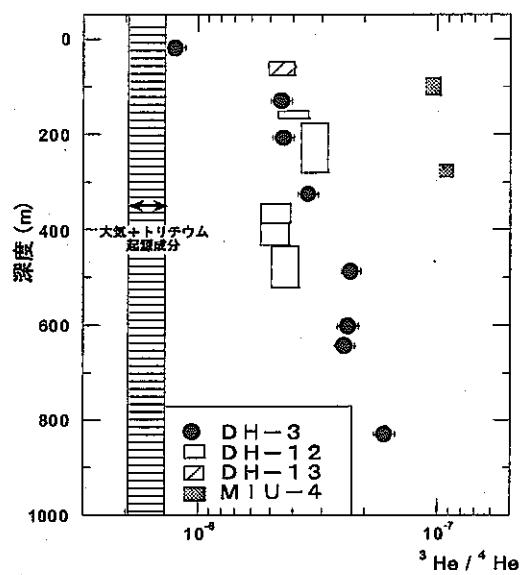


図1 花崗岩中の地下水の ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 同位体比の深度プロファイル

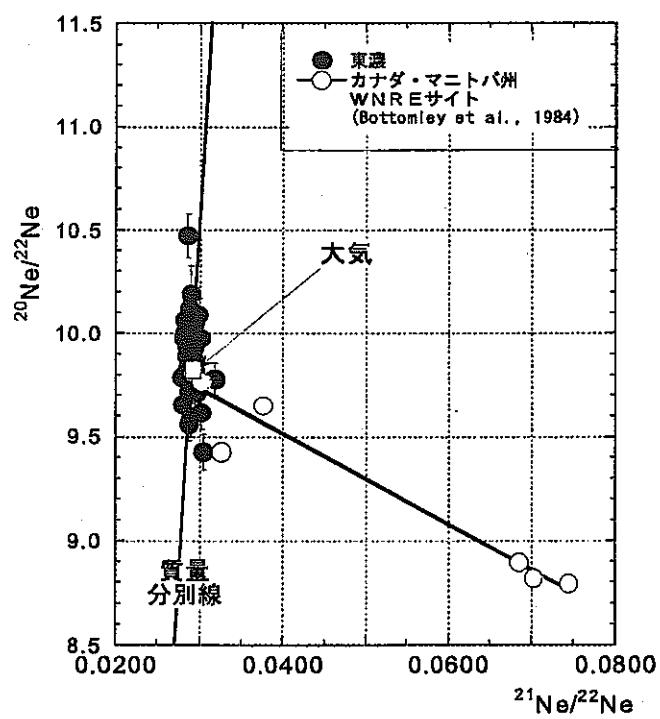


図2 東濃地域の地下水のネオン同位体比

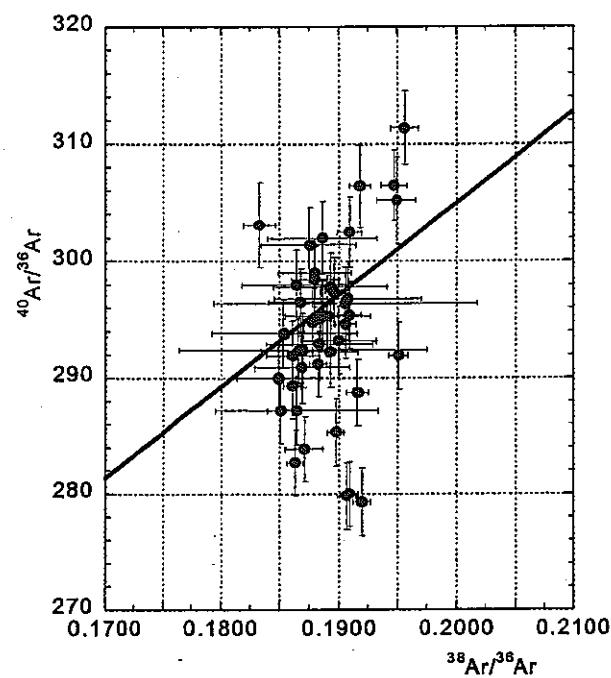


図3 東濃地域の地下水のアルゴン同位体比

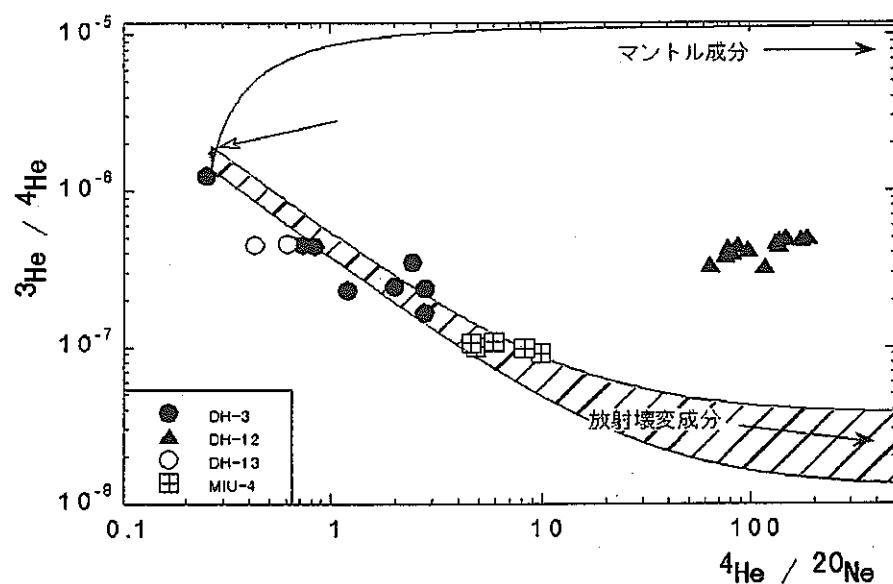


図4 花崗岩中の地下水の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比の関係

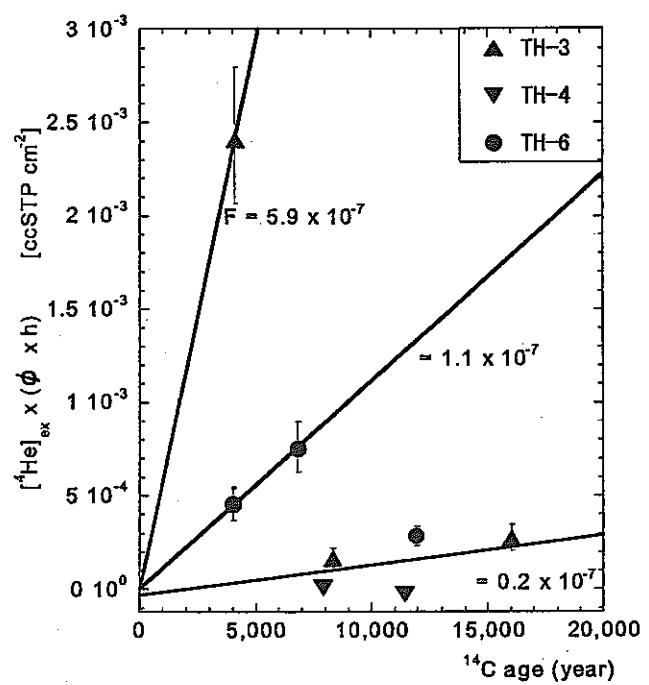


図5  $^{14}\text{C}$  年代及び、溶存ヘリウム濃度によるヘリウムフラックスの計算結果

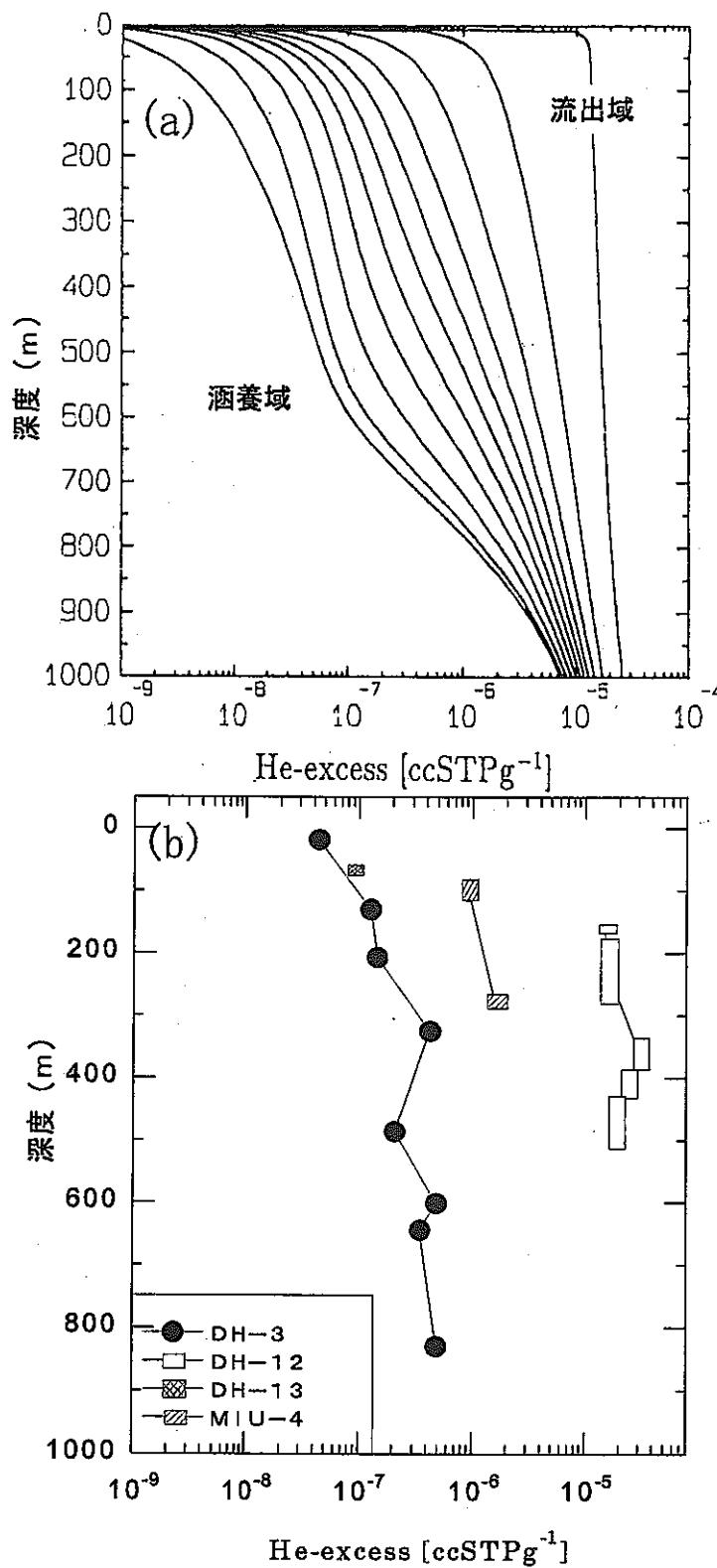


図6 Stute et al. (1992)によるTwo-dimensional helium transpor modelのシミュレーション結果(a)と、東濃地域の花崗岩より採取した地下水試料の過剰<sup>4</sup>He濃度の深度プロファイ尔(b)との比較

## 博士研究員（H11）平成12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	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 赤坂 尚昭, 山県 一郎, 堂野前 貴子	所長 役職・氏名	室長 宮川 俊一
研究実施場所	大洗工学センター 照射材料試験施設		
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12年 4月 ~ 平成13年 3月
<b>【研究目的】</b> 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ボ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。			
<b>【研究内容（概要）】</b> 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ボ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、析出物とボ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。			
<b>【使用主要施設】</b> 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)			

### 【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 12 年度は、EDS 装置の故障のために濃度分析作業がほぼ不可能の状態だったので、平成 11 年度の組織観察データより高純度 Fe-15Cr-20Ni 系モデル合金におけるポイド欠乏帯の測定および、下半期はそれに加えて照射誘起粒界偏析計算プログラムの検証を行った。また、平成 11 年度の成果を日本金属学会で発表を行い、下半期から現在までかけて Journal of Nuclear Material 誌に投稿し、査読を受けている最中である。また EDS 装置については平成 13 年 2 月後半に、完全ではないが使用できる状態になったので、残りの試料の分析を進めている。

### 【研究成果】

平成 13 年 4 月までの研究成果の概要をまとめる。

#### (1) ポイド欠乏帯出現の条件

高速中性子照射後のモデル合金の一部に顕著なポイド組織が観察され、結晶粒界付近には明らかにポイドが存在しない領域、いわゆるポイド欠乏帯が観察された。Table 1 に示されるように、ポイド組織はモデル合金の中でも Fe-15Cr-20Ni 三元合金並びに Mo 添加合金において比較的多く発達し、P、Si、Ti-C 添加合金は 476°C 照射材において多少のポイドがみられたが、その量は他の合金に比べて少ない傾向を示した。しかし、ポイド欠乏帯を明らかに確認するためには、ある程度の密度でポイドが存在していかなければならない。そこで、得られた微細組織写真によるポイド欠乏帯の視認の可否と今まで得られているポイド関連データより、ポイド欠乏帯が確認できる条件を調査した。

ポイドに関する情報としては、大きく分けてポイド平均径、ポイド数密度、スエリングに分けられる。単純に考えるとポイド数密度が高ければ、ポイド欠乏帯が存在できると推測することができるのだが、ポイド数密度とポイド欠乏帯の関係では Fig. 1 の (1) の様にポイド欠乏帯が不明瞭である△印がついているにもかかわらず、ポイド欠乏帯が認められる (2) のポイド数密度よりも明らかにポイドが高密度に存在しているので、ポイド数密度だけではポイド欠乏帯の有無を説明することは難しい。しかしそスエリング (Fig. 2) で考慮するとポイド欠乏帯の有無との関係がかなり整理でき、スエリング値 3、4%程度がポイド欠乏帯が測定できるしきい値になっていると考えられる。

#### (2) ポイド欠乏帯と照射条件

(1) で前述したようにポイド欠乏帯は全ての試料においてみられたわけではなく、Fe-15Cr-20Ni 三元合金並びに Mo 添加合金において比較的多く発達し、P、Si、Ti-C 添加合金は 476°C 照射材において多少のポイドがみられたが、その量は他の合金に比べて少ない傾向を示し、572°C、621°C 照射材においては明確なポイドは認められなかった。さらにポイド欠乏帯については全ての温度域で確認されたのは Mo 添加合金のみであり、Fe-15Cr-20Ni 三元合金は 621°C、P 添加合金は 572°C、621°C 照射材においてポイドがほとんど存在しないか、少なくともポイド欠乏帯を確認することができなかった。ポイド欠乏帯の形状は、ポイド列の存在形式によりいくつか分けられる。

Fig. 3 は、実際にポイド欠乏帯が生じた試料におけるポイド欠乏帯幅と照射温度の相関を示す。ポイド欠乏帯の幅は照射温度の上昇に応じて大きく増加する傾向を示している。また、同一温度においては、添加元素の違いによる影響は少ないと考えられる。昨年度の報告より、ポイド欠乏帯は結晶粒界移動とともに生じると報告している。その中で電子線照射による結果では結晶粒界移動は oversize 元素の添加によって抑制されると述べているが、Fig. 3 の結果では oversize 元素である Mo を添加した合金においても明確なポイド欠乏帯の抑制は生じていない。この原因については、はっきりとはしていないが、おそらく中性子照射はカスケード損傷が主であるために電子線照射に比べてポイドの様な他の 2 次欠陥が生成しやすく、それらによるシンクの分散化が起こると、損傷速度が数千分の一と小さいので電子線に比べて点欠陥の生成が少なく、結果として結晶粒界に流れ込む点欠陥、特に格子間原子の寄与が減少することが原因であると考えられる。また、前述のようにポイド欠乏帯の幅は照射温度の上昇に伴い大きく増加するのは、原子空孔の方が粒界に拡散して移動を引き起こす役割としての格子間原子よりも比較的大きいことを示唆しているといえ、格子間原子の役割が大き電子線照射の結果と異なる傾向を示した。

### (3) 照射誘起偏析計算コードの概要

照射誘起偏析のシミュレーションの高度化を目的とし、平成12年度後半に照射誘起偏析計算用の計算機および計算プログラムを導入した。計算プログラムは、米 Lawrence Livermore 研究所において開発された LSODE (Livermore Solver for Ordinary Differential Equations) と呼ばれる拡散方程式を常微分方程式をベースとして米 Argonne 国立研究所の N. Q. Lam らにより照射誘起偏析の計算コードとして開発され、その後、各研究者により改良されているうちで北大のグループが用いている計算コードを中性子照射に合わせて改良したプログラムを入手した。主な諸元としては Table 2 に示すとおりである。

計算の進め方としては、プログラムそのものの精度および計算の妥当性を調べる意味で、様々な照射条件（照射温度および照射量）での計算を行い、その後実際の照射条件に合わせた条件で、実験結果とつきあわせてプログラム改良の方針を探る予定である。しかし今年度はプログラムを導入したばかりなので、前者の様々な照射条件での計算結果を一般的な照射誘起偏析理論に照らし合わせて、定性的に妥当かどうか検討した。Fig. 4~7 はそれぞれ Fe-15Cr-20Ni-2.5Mo (Si のみ Fe-15Cr-20Ni-0.5Si) 材の結晶粒界における Cr, Ni, Mo, Si 濃度の照射温度、照射量の依存性の計算結果を示す。Cr および Mo は oversize 原子であることから基準濃度よりも低濃度になり、Ni および Si は undersize 原子であることから高濃度になるはずである。後者はどの照射量、どの温度域においても概ね理論的推測に従っていることがわかるが、前者のうち低温 (273K=0°C) における濃度が基準よりも高くなってしまっており、照射量が低いほど顕著である。これはこのプログラムの仕様上、点欠陥の拡散による効果が大きいため、点欠陥、とくに原子空孔の生成量、移動量がきわめて低い条件においては大きな誤差が生じると言われており、この結果はそれを裏付けるものである。

Table 1. 各合金におけるボイド欠乏帯の有無

合金	476°C 照射材		572°C 照射材		621°C 照射材	
	ボイド数	欠乏帯の有無	ボイド数	欠乏帯の有無	ボイド数	欠乏帯の有無
Fe-15Cr-20Ni	多	○	多	○	少	△
Fe-15Cr-20Ni-0.5Si	少	△	無	×	無	×
Fe-15Cr-20Ni-2.5Mo	多	○	多	○	多	○
Fe-15Cr-20Ni-0.025P	多	○	無	×	無	×
Fe-15Cr-20Ni-0.25Ti-0.06C	少	△	無	×	無	×

### 【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成13年度は、モデル合金の残りの試料の分析を行い、照射誘起偏析に及ぼす諸因子の影響について考察するとともに、とくに溶質原子のサイズ効果に関する照射誘起偏析の計算プログラムとの整合を行い、高速中性子照射条件に最適なパラメータを導出する予定である。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、高速中性子照射条件における照射誘起偏析挙動に及ぼす諸因子について明らかにしたいと考えている。

### 【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

学会発表（日本金属学会 2000 年秋期大会）

学会誌（J.Nucl.Mater.誌）に投稿、査読中。

Table 2. 照射誘起偏析計算プログラムの主な設定項目とその範囲

特徴および設定項目	設定可能範囲
プログラム言語	FORTRAN
設定可能温度*1)	100.0~999.9 (K)
設定可能損傷量*1)	0.001~999.9 (dpa)
EDS プローブ径*1)	0~9999999 (nm)
設定元素・設定可能濃度*2)	Cr, Ni, Si, Mo : 0.1%以上 (wt.%)

\* 1) 計算の可否は考慮しない。

\* 2) Fe は bal. としている。

\*

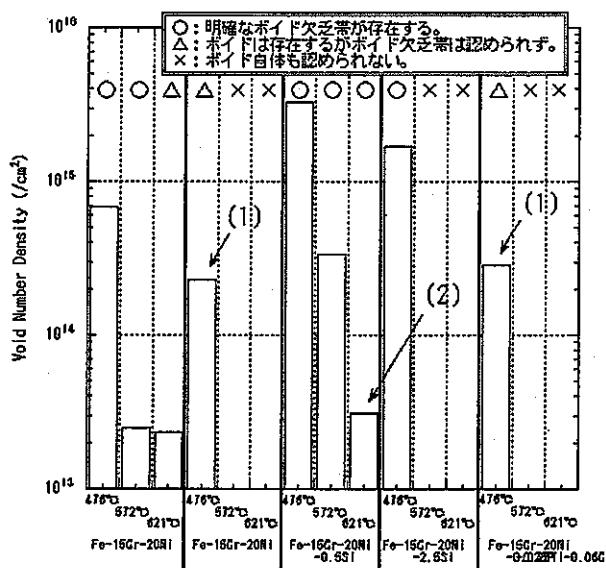


Fig. 1. 粒界移動の有無とポイド数密度の関係

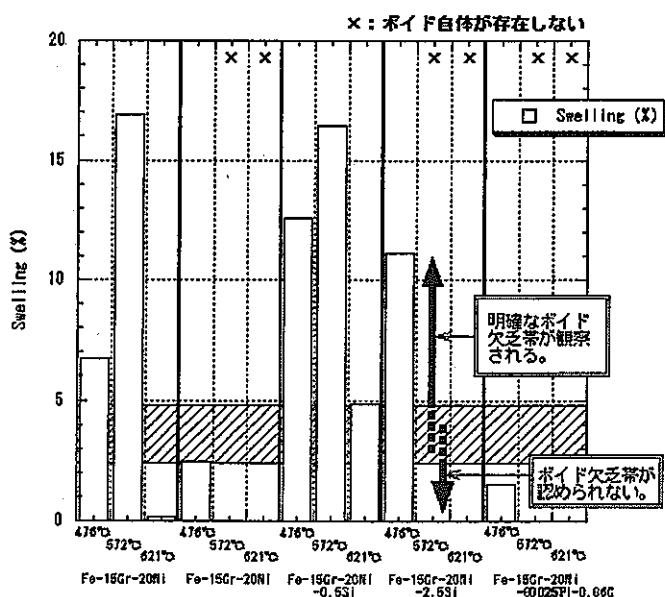


Fig. 2. 粒界移動の有無とスエリングの関係

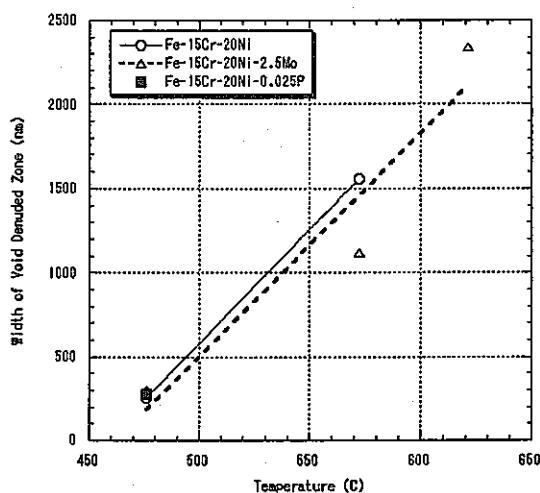


Fig. 3. ボイド欠乏帯幅の照射温度依存性

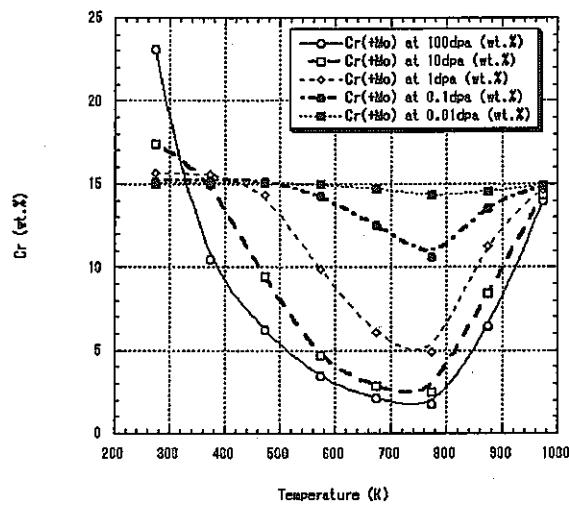


Fig. 4. 偏析濃度の照射温度依存性(Cr)

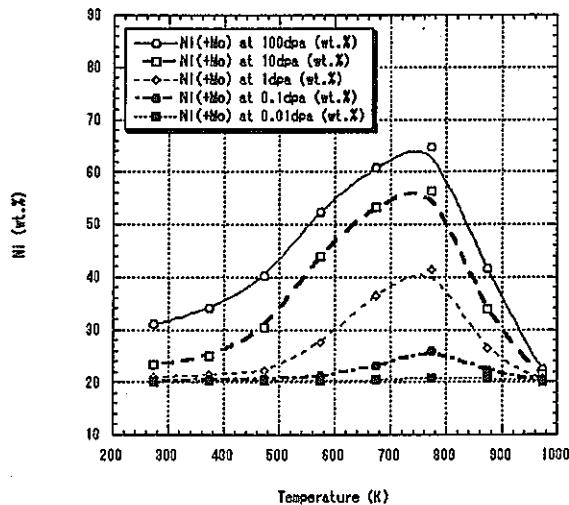


Fig. 5. 偏析濃度の照射温度依存性(Ni)

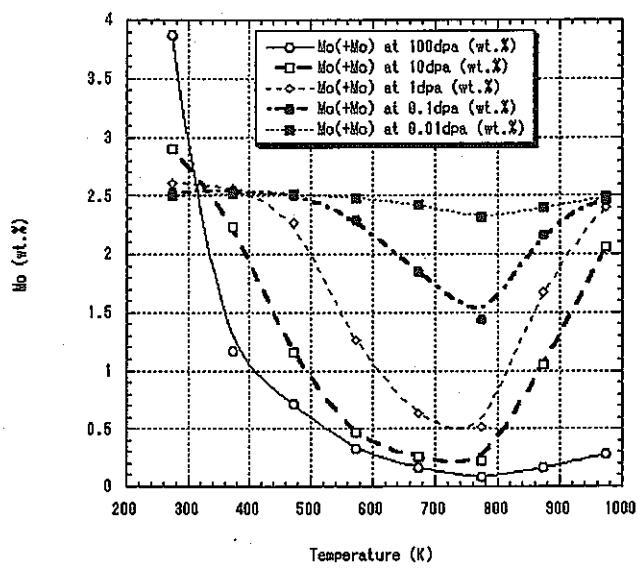


Fig. 6. 偏析濃度の照射温度依存性(Mo)

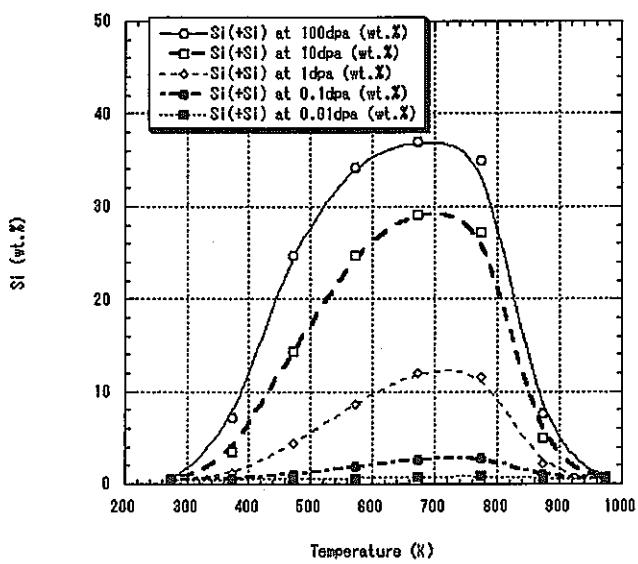


Fig. 7. 偏析濃度の照射温度依存性(Si)

博士研究員（H11）平成12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动の变化の把握に関する研究		
研究者氏名	周 啓 友		
研究協力者 所属・氏名	松 井 裕哉 東濃地科学センター地質環境特性研究グループ	所属長 役職・氏名	地質環境特性研究 グループリーダー 武田精悦
研究実施場所	東濃地科学センター、東濃鉱山		
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 12 年 4 月 ~ 平成 13 年 3 月
【研究目的】	<p>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>		
【研究内容（概要）】	<ol style="list-style-type: none"> <li>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）           <p>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。</p> </li> <li>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）           <p>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> </li> </ol>		
【使用主要施設】	東濃地科学センター、東濃鉱山		

### 【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成12年度までに、岩盤中の不飽和帯の把握に対する比抵抗映像法の適用性の検討を中心とした基礎的な実験及び数値実験を室内にて実施した。その結果、多孔質媒体及び亀裂岩盤に対する同手法の適用性が示された。この結果に基づき、平成12年度は、不飽和帯の形成プロセスの解明を目的とした室内実験と数値実験を実施すると共に、原位置計測のための予備試験を実施した。

### 【研究成果】

平成12年4月から平成13年3月までの研究成果の概要を以下に纏める。

#### 1. 電極設置面と垂直している方向の水分移動を検知する比抵抗映像法の適用性に関する室内実験

本実験は、地面配置電極だけによる電極設置面と垂直している方向の水分移動を検知する比抵抗映像法の適用性を検討するために、40 cm x 40 cm x 38 cm スケールの凝灰岩ブロックを利用して実施した。凝灰岩ブロック表面に64個の電極を埋設し、岩石ブロックを蒸留水で飽和させながら、ブロック内の見掛け比抵抗変化を四極法で三次元的にモニタリングした（図1）。その結果、地面配置電極だけを利用する比抵抗映像法によってブロック内部の地下水水位を決めるのは困難であるが、電極設置面と垂直な方向の水分移動とブロック内の飽和プロセスは明瞭に捉えられることが示された（図2）。

#### 2. 電極設置面と垂直している方向の水分移動を検知する比抵抗映像法の適用性に関する数値実験

凝灰岩ブロックを利用した室内実験は、ブロック境界が存在しているため、二極法での測定が困難であり、ブロック内の見掛け比抵抗変化をモニタリングする際には、四極法だけを利用していた。このため電極設置面と垂直している方向の水分移動を検知するために、二極法を利用した場合の比抵抗映像法の適用性を検討するために、半無限媒質の地面に64個の電極設置（電極間隔0.5m）を仮定して、三次元有限要素法で二極法での見掛け比抵抗測定結果をシミュレーションし、地下水水位面の変動に対する三次元比抵抗分布の変化を数値実験で検討した（図3）。この結果、二極法を用いて地面配置電極だけを利用した比抵抗映像法により地下水水位面の変動を捉えられることが分かった（図4）。

#### 3. 電極の長期安定性に関する原位置実験

室内実験で確認した電極は原位置測定に応用する適用性を検討するために、東濃鉱山第二立坑第一計測坑の左側壁（堆積岩）に16個の電極を今まで確認した方法（瓦止めしつくいモルタル充填剤とステンレスSCT系アンカーの組み合せ）で設置し、四極法で岩盤抵抗の経時変化を測定した。東濃鉱山内の軟岩においても電極設置後ほぼ二週間で充填剤が固化し、今的方法で電極を設置し、計測を行えることが確認された。また、測定した岩盤の抵抗は最初の1850時間ではわずかに上昇しているものの、計測期間中にはほとんど変化がないと見える（図5）。この結果から、前述の方法で設置した電極は安定しており、原位置での長期間の測定に適用できることを証明された。

#### 4. 不飽和過程の把握を目的とする室内実験

岩盤中の水分移動に伴う空洞周辺不飽和帯の形成プロセスを解明するために、原位置の不飽和発生プロセスを抽出し、各プロセスを検討するための岩盤ブロックモデルを用いた室内実験を実施した。

##### （1）凝灰岩岩石ブロック中の浸透過程及び空洞の浸透過程への影響

本実験は40 cm x 40 cm x 20 cmスケールのほぼ均質である凝灰岩ブロックを用いて実施した。ブロックの上端に幅30 cm、奥10 cm、高さ25 cmのタンクを付け、電気伝導度317-333 $\mu\text{s}/\text{cm}$ の塩水をタンクに24 cm程度入れ、岩石ブロックへ浸透させながら、一定の時間間隔で岩石ブロック内の比抵抗を計測し、岩石ブロック内の水分移動をモニターした。岩石ブロック内の比抵抗の測定は、ブロック表面に測定用電極を64個（深さ2.5 cm）設置して、四つの電極を一つの組み合わせとして水平、垂直と斜めの四つの方向で組み合わせ毎に実施した。六ヶ月間後ブロック中心部分がほぼ飽和状態になったと判断し、ブロックの裏側か

ら直径6 cm、深さ15 cmの孔を掘削し、孔周辺部の比抵抗分布の計測を更に八ヶ月間実施した。

測定データの解析から次の成果が得られた。

① 均質に見える多孔質媒体であっても水の流れは不均一である。

図6は円孔掘削前のブロック内の二次元見掛け比抵抗分布の経時変化を示す。比抵抗の等值線は、最初ほぼ水平に、そして図面の左側に傾いていって、徐々にブロックの両側から下がってくるように見える。一つの原因として、ブロックの境界が測定した抵抗値へ影響を与えていたことが考えられるが、この影響は見掛け比抵抗の換算時に、既にmirror方法で消去している。従って、二次元断面内の比抵抗分布の非対称な形状は、浸透した水がブロックの両側を選択的に流れている可能性を示唆していると考えられる。ブロック表面色の変化もこの可能性を裏づけている。中心部の流れが両側より遅いのは空気封入(air entrapment)の影響であると考えられる。

② 均質に見える多孔質媒体中であっても、空洞周辺の地下水の変動は空間的には不均質で、時間的には不安定である可能性がある。

図7はブロック中央に円孔掘削後計測した二次元見掛け比抵抗分布の経時変化を示す。この図から円孔周辺の水分変動が明瞭に読み取れ、円孔からの影響範囲と影響程度が時間と共に変わっていることが分かった。この結果では、著しい影響を受けている影響範囲は孔壁からほぼ孔直径に相当する所までであり、わずかな変化が見られる領域は孔壁から孔径の二~三倍に相当する所まで及んでいる。影響の程度は全体として小さく、岩石ブロック全体の水分分布に対する著しい影響は現れていない。

### (2). 飽和している単一亀裂を有する凝灰岩ブロックからの蒸発プロセス

飽和している岩盤マトリックスと亀裂からの地下水の排水メカニズムを検討するために、40 cm x 40 cm x 20 cmスケールのほぼ均質である凝灰岩ブロックに一本の人工亀裂を作成し、岩石ブロック全体を飽和させてから、風がなく、空気湿度が飽和に近い条件下で、重力によって岩石ブロック全体を排水させながら、ブロック内の二次元見掛け比抵抗分布の経時変化をモニターした。電極の設置と比抵抗の測定は浸透過程を検討する時的方法と同様である。この実験から岩石ブロックからの排水が、亀裂の上部(本実験の亀裂上部が解放されているため)から始まり、徐々に亀裂の下部まで広がってくることが分かった(図8)。この結果は、地下空洞を掘削する場合、もし岩盤中の亀裂の上端部が大気開放されている場合或いはその条件を揃えている場合は、空洞の近傍からではなく、むしろ奥側から不飽和状態になる可能性があることを示していると考えられる。図8に示すように、岩盤マトリックスからの排水は亀裂からの排水がほぼ完了した段階から始まる。マトリックスからの排水は亀裂面に沿って発生するが、最初は亀裂上のある所から始まり、徐々に広がっていく様相を呈し、面全体としては均質な排水状態ではない。以上の結果から、岩盤中に亀裂がある場合は、地下水の排水は亀裂内で生じ、速度は速く、主に重力によって生じると考えられる。その後、マトリックスからの排水が徐々に生じる所になり、その速度は著しく遅くなる。

### (3). 亀裂とマトリックス部における水分移動の相互作用プロセス

ほぼ均質の40 cm x 40 cm x 20 cmスケールの凝灰岩ブロックにY形の人工亀裂を作り、亀裂とマトリックス中の水分移動の相互作用プロセスを検討するための実験を行った。電極の設置、岩石抵抗の測定及び塩水の浸透方法は、4.(1)の浸透実験時的方法と同様である。図9は、岩石ブロック内の二次元の比抵抗分布の経時変化を示している。ブロック中の塩水は、最初主に亀裂に集中して流れており、マトリックスへの水の拡散が亀裂中の流れに及ぼす影響は小さいが、徐々にこの影響が強くなり、亀裂中の流れが大きく衰減する様子が分かった。一方、マトリックスへの水の拡散プロセスは、亀裂の存在によって助長され、亀裂が岩石ブロック上部の小ブロックの飽和プロセスを加速させる役割をしていることが分かった(図10)。

## 5. 比抵抗映像法のデータを用いた岩盤特性に関するパラメーターの算出の試み

対象となる岩盤の地質環境特性を定量的に把握するためには、小スケール（ミリからセンチメートル程度）の室内測定方法だけではなく、原位置岩盤特性に関するパラメーターを同定できる方法の開発が極めて重要である。ここでは、比抵抗映像法のデータから岩盤特性に関するパラメーターの算出を試みた。算出に使ったデータは、浸透実験の際円孔を掘る前に計測した時空間的な比抵抗データである。原位置岩盤での測定もこの室内試験と基本的には同じであるため、以下に示す方法も原位置岩盤特性のパラメーターの算出に適用しうるものと考えられる。

#### (1). 分散係数 (longitudinal dispersivity) の算出

ここでは、比抵抗変化により捉えられた岩盤への水分の浸透プロセスが、飽和している同じ岩盤中へのトレーサの分散プロセスと同等と考える。この仮定により、トレーサの分散プロセスを記述する数学解を比抵抗の時間的な変化関係に応用し、データフィッティングによって岩盤の分散係数 (longitudinal dispersivity) を算出した。表1は、算出した分散係数を示す。分散係数はオーダ的に既存の研究で得られているデータと一致した。また、得られた分散係数の値は浸透方向の距離と共に増加する傾向が見え、今まで報告された分散係数のスケール効果と対応するものとして捉えられる。

#### (2). 流動速度の算出

上記データフィッティングによって分散係数を算出する際には、地下水の流動速度も同時算出した。しかし、岩石ブロックでの実験初期にはブロックをカバーしていなかったため、蒸発によって浸透プロセスが遅延し、算出した速度値は真の岩石ブロック中の水の流動速度ではない可能性が高い。このためブロックにカバーを施した後の実験によって得られた浸透前線の移動から地下水の流動速度を計算した。地下水の流動速度は $2.71 \times 10^{-6}$  cm/sと $1.06 \times 10^{-5}$  cm/s間に分布しており、タンク中の水位の上下変動から計算した流動速度と良く一致すると共に、深度の増加と共に低下する傾向がある（図1-1）。理論的には、飽和している岩盤中の地下水の流動速度は、岩盤の飽和透水係数と等価である（動水勾配が1であると仮定して）ため、原位置においてこの方法で各スケールに対する岩盤の飽和透水係数或いは不飽和透水係数を把握できるか否かが研究のもう一つの重大な課題である。

比抵抗映像法のデータから岩盤特性に関するパラメーターの算出する方法は、他の方法と比べて三つの大きな利点がある。(1). 原位置での計測が容易である。(2). 測定する対象のスケールは数センチ程度から数メートルまで任意に変化させることができる。(3). 多方向或いは三次元（少なくとも二次元）の測定が可能であるため、岩盤特性に関するパラメーターの異方性も検討できる可能性がある。

以上、平成12年度の研究では、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実験、数値実験及び原位置測定でさらに確認した。岩盤中の水分移動に伴う不飽和帯の形成プロセスに関しては、それぞれの凝灰岩岩石ブロックを利用した室内実験及びシミュレーションにより検討した。

#### 【今後の予定（翌年度以降の概要）】

今後は、室内実験で得られたデータに基づいて、岩盤中の水分移動プロセスをさらに検討すると共に、原位置測定を中心に、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検討していく予定である。

1. 室内実験結果の検討と補助室内実験、測定
2. 原位置測定場所の検討、選定
3. 原位置の測定及び関連問題の解決
4. 原位置で測定した結果の解析及び解析結果の確認
5. 室内実験と原位置測定からの結果に基づいて岩盤不飽和特性に関する現象の総合検討

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

原著論文

- (1). Zhou, Q. Y., J. Shimada, and A. Sato, Three-dimensional spatial and temporal monitoring of soil water content using electrical resistivity tomography, *Water resources research*, 37(2), 273-285, 2001.
- (2). Zhou, Q. Y., J. Shimada, and A. Sato, Temporal variations of three-dimensional rainfall infiltration process in heterogeneous soil, *Water resources research*, 2001, 審査中.
- (3). Zhou, Q. Y., H. Matsui, J. Shimada, and A. Sato, Estimation and Mapping of rock dispersivity based on electrical resistivity tomography, *Water resources research*, 2001, 審査中.

会議論文

- (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*, AGU, Tokyo, 2000.6.
- (2). Zhou, Q. Y., J. Shimada, and A. Sato, Three-dimensional rainfall infiltration process in heterogeneous soil, *2<sup>nd</sup> international symposium on preferential flow*, ASAE, Hawaii, 2001.1.
- (3). Zhou, Q. Y., H. Matsui, J. Shimada, and A. Sato, Effectiveness of electrical resistivity tomography at the ground surface in monitoring fluctuations of groundwater level, *Proceeding of Japanese Association of Hydrological Sciences*, Takamatu, 2001.6, 予定.
- (4). Zhou, Q. Y., H. Matsui, J. Shimada, and A. Sato, Applications of electrical resistivity tomography in mapping rock dispersivity and monitoring water flow in heterogeneous media, *International groundwater symposium "Bridging the Gap between Measurements and Modeling in Heterogeneous Media"*, IAHR, California, 2002.3, 予定.

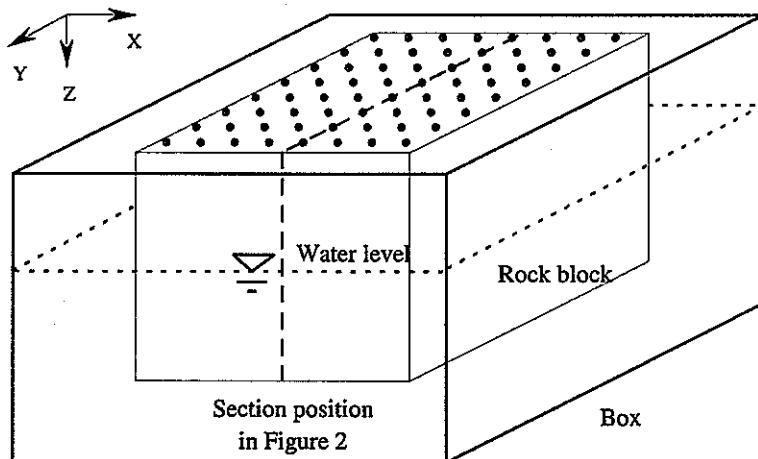


Figure 1. Experiment setup in the laboratory.

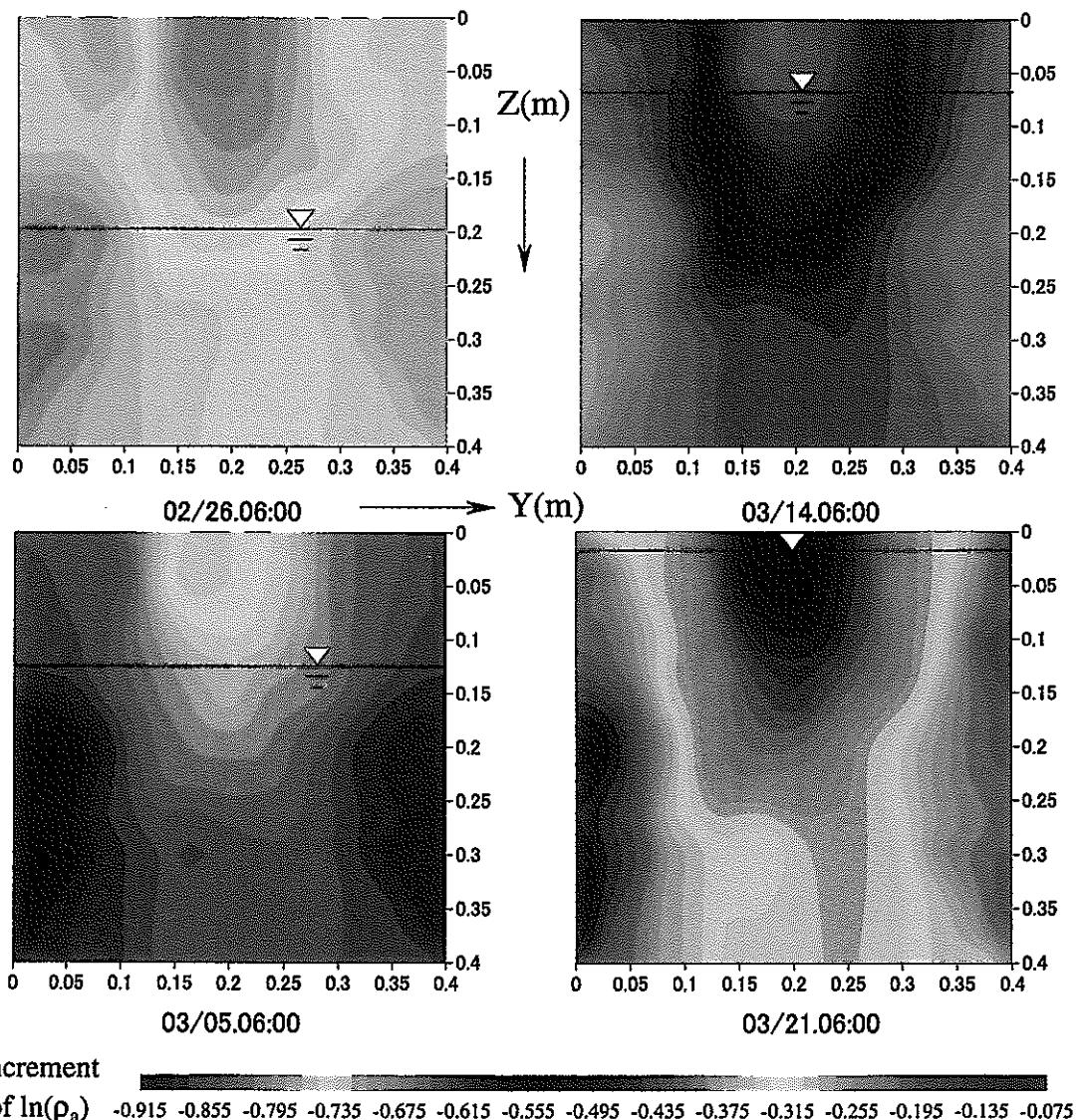
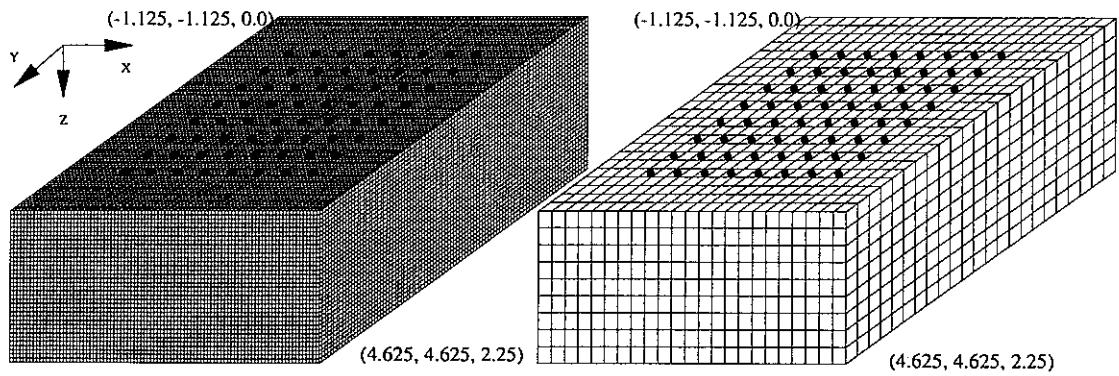


Figure 2. Temporal variations of  $\Delta \ln(\rho_a)$  in an Y-section of 40 cm x 40 cm x 38 cm tuffaceous rock block ( $X=0.22-0.23$  m).



(a). Element size:  $0.0625\text{m} \times 0.0625\text{m} \times 0.0625\text{m}$   
 Total nodes:  $93 \times 93 \times 37$   
 Region size:  $5.75\text{m} \times 5.75\text{m} \times 2.25\text{m}$

(b). Element size:  $0.25\text{m} \times 0.25\text{m} \times 0.25\text{m}$   
 Total nodes:  $24 \times 24 \times 10$   
 Region size:  $5.75\text{m} \times 5.75\text{m} \times 2.25\text{m}$

Figure 3. Element division schemes for the calculations of (a) electrical potential and (b) simulated apparent resistivity distribution.

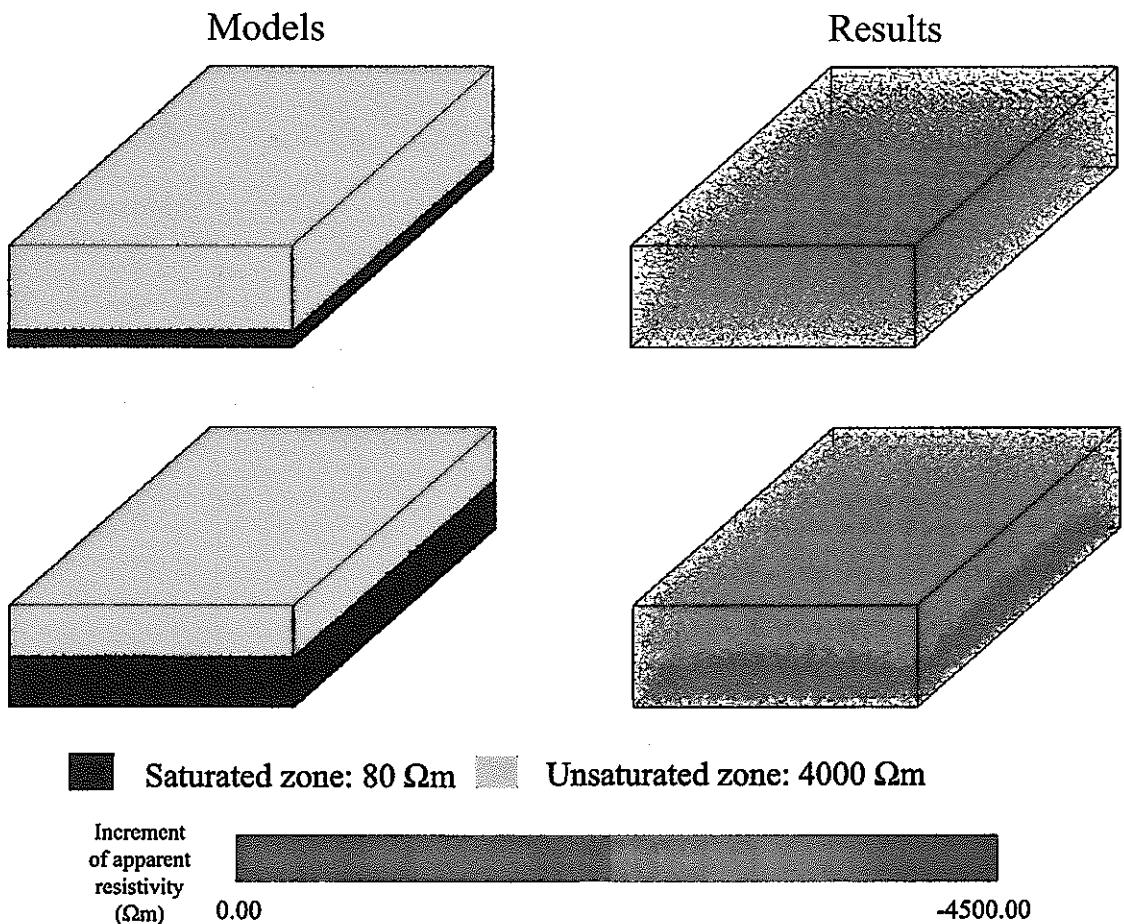


Figure 4. A comparison between resistivity models (left) and the simulated apparent resistivity distributions (right).

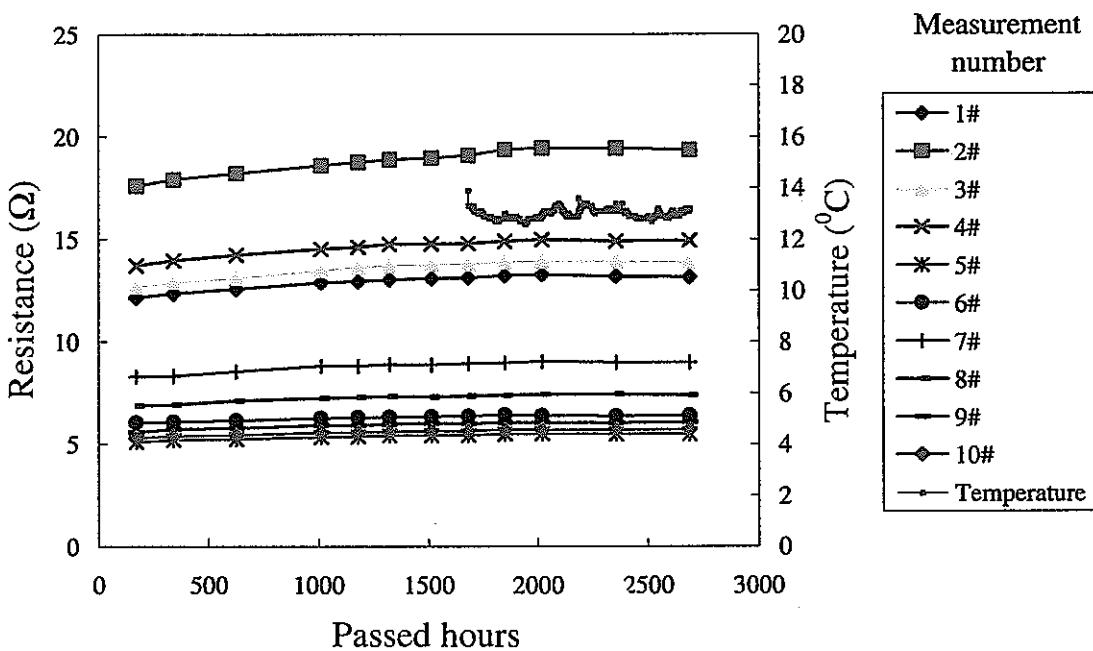


Figure 5-a. Time series variations of the resistances measured at the wall of the Cavity 1#, Shaft 2# in Tono Mine.

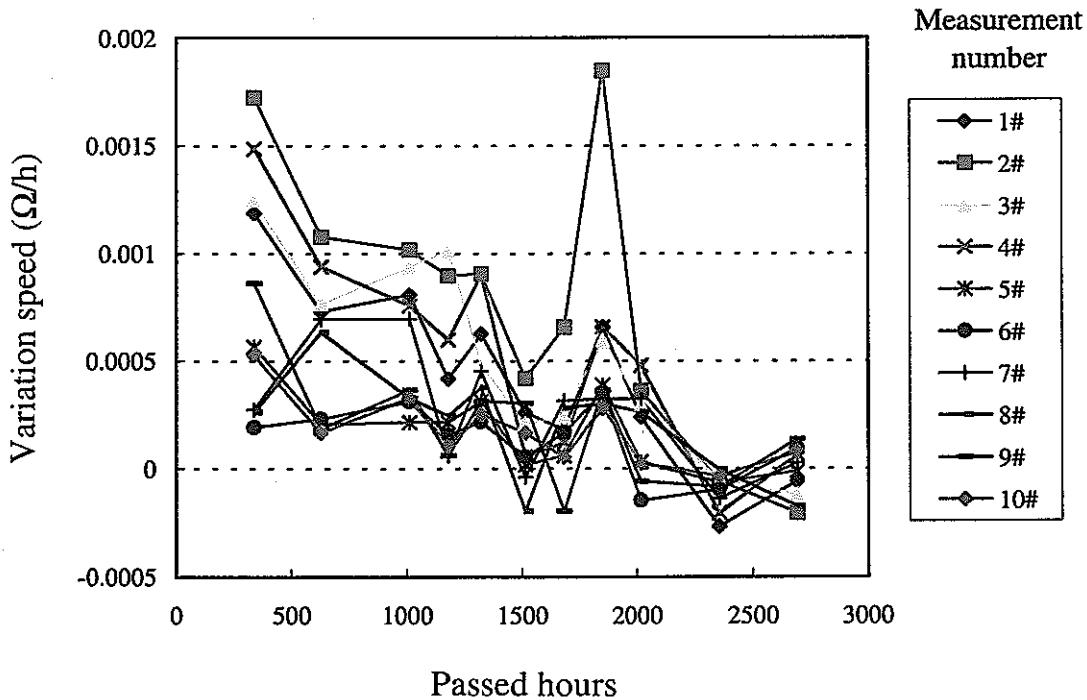


Figure 5-b. Time series changes in the variation speed of the resistances measured at the wall of the Cavity 1#, Shaft 2# in Tono Mine.

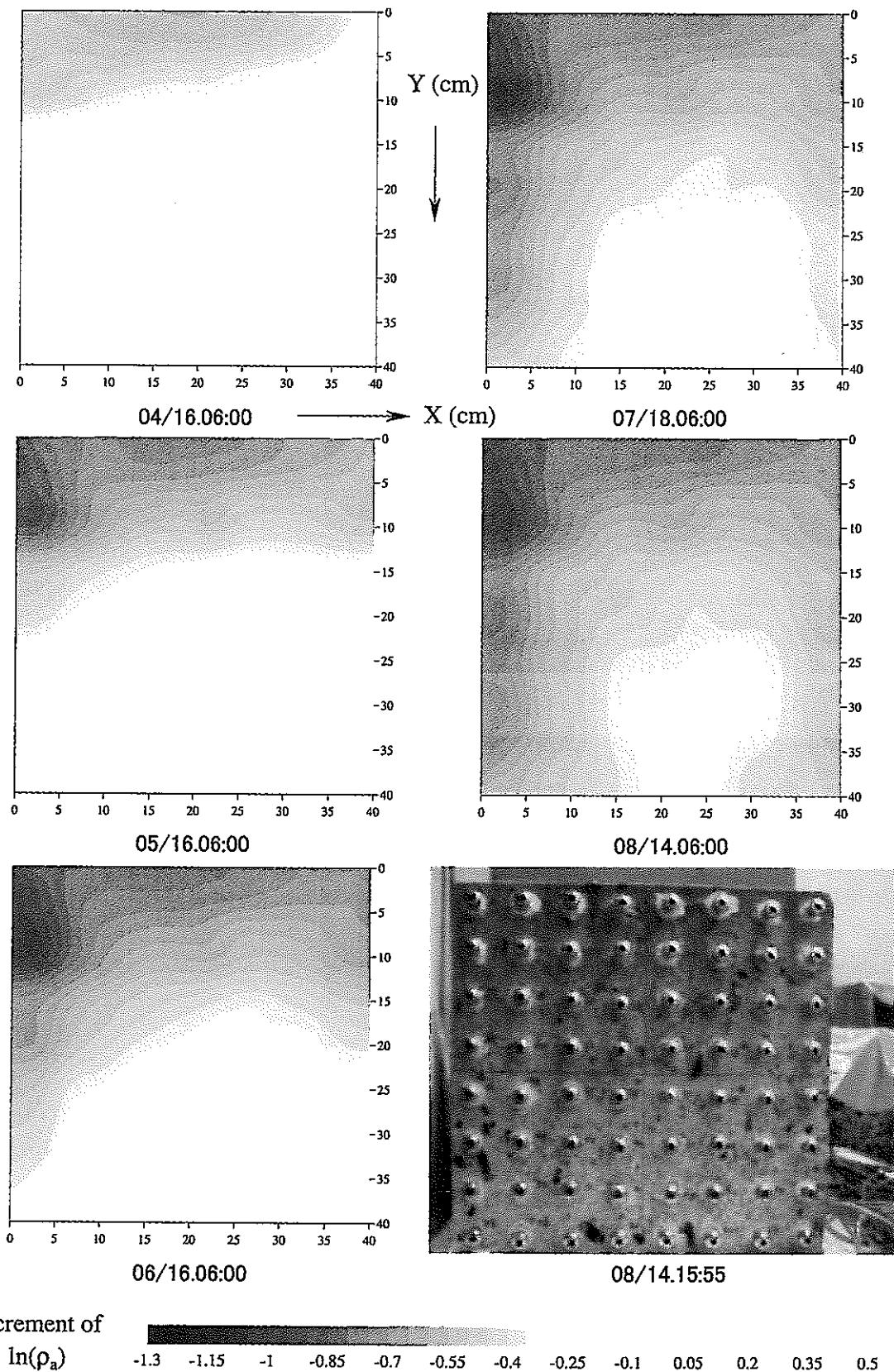


Figure 6. Temporal variations of  $\Delta \ln(\rho_a)$  in the  $40 \text{ cm} \times 40 \text{ cm} \times 20 \text{ cm}$  tuffaceous D-block. The conductivity of the water is  $317\text{-}333 \mu\text{s/cm}$  (Wenner array, 0.0-0.08m depth).

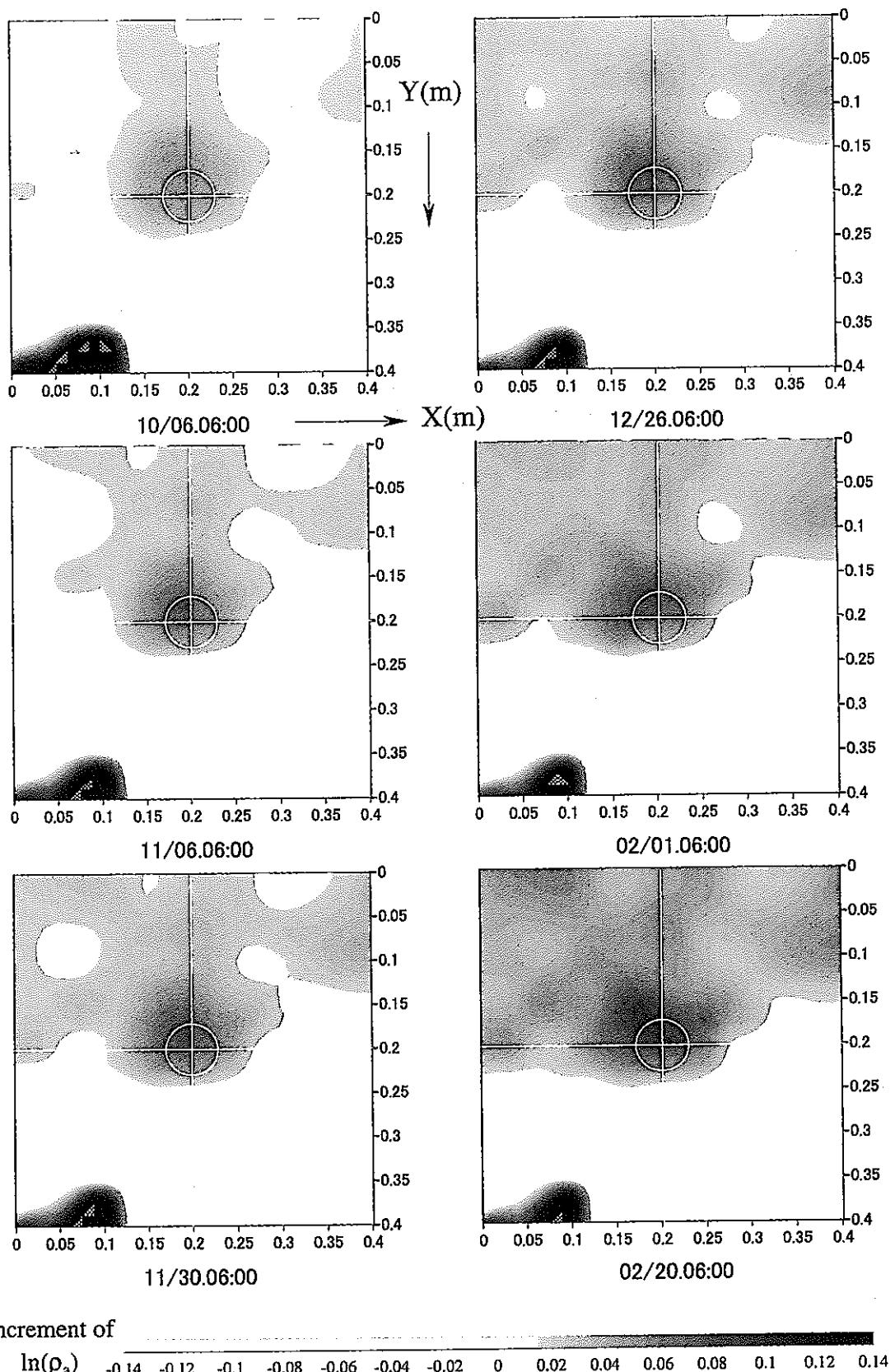


Figure 7. Temporal variations of  $\Delta \ln(p_a)$  in the 40 cm x 40 cm x 20 cm tuffaceous D-block with a hole. The conductivity of the water is 317-333  $\mu\text{s}/\text{cm}$  (Wenner array, 0.0-0.08m depth).

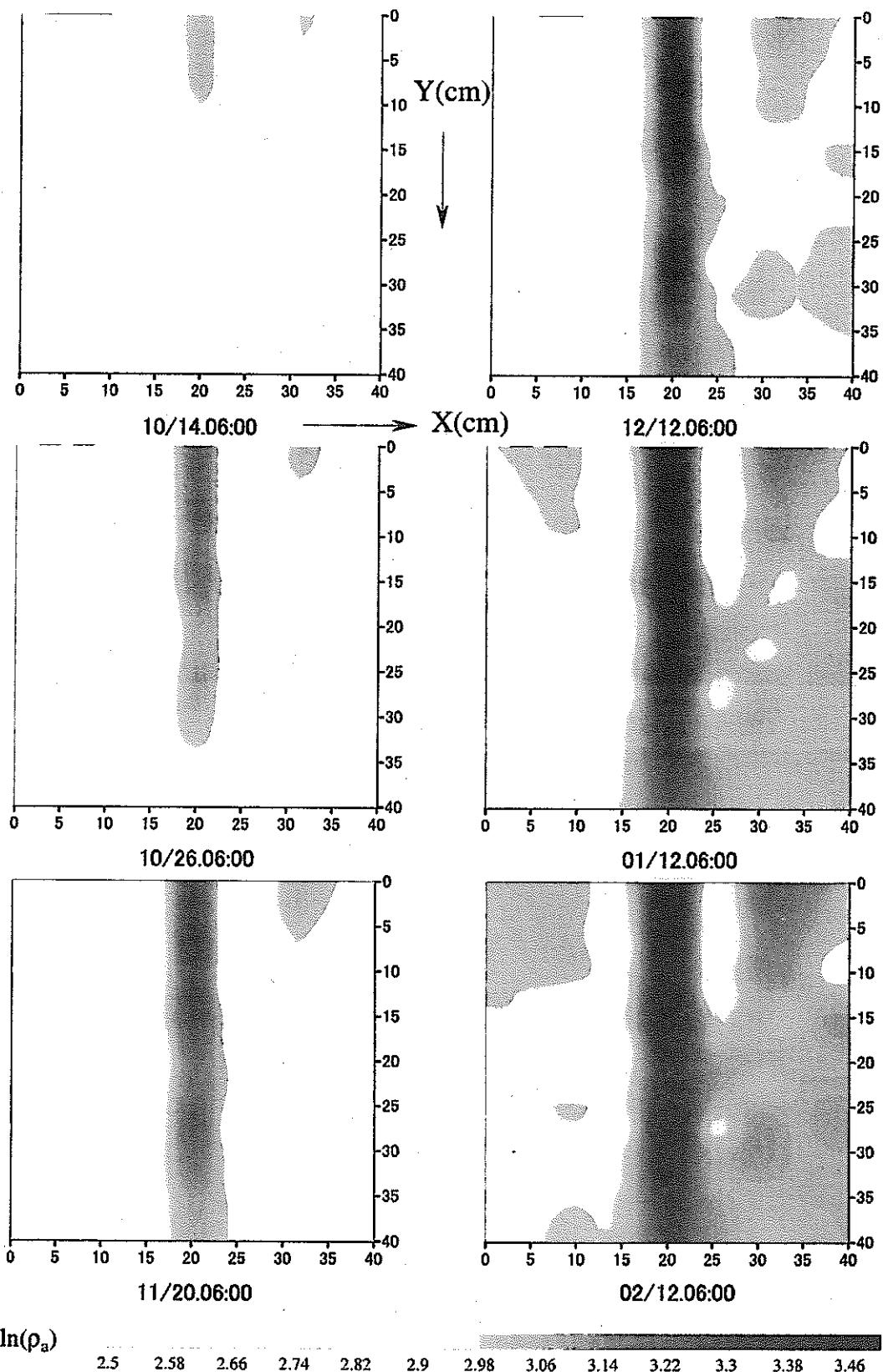


Figure 8. Temporal variations of  $\ln(\rho_a)$  in the 40 cm x 40 cm x 20 cm tuffaceous E-block. The conductivity of the water is 317-333  $\mu\text{s}/\text{cm}$  (Wenner array, 0.0-0.08m depth).

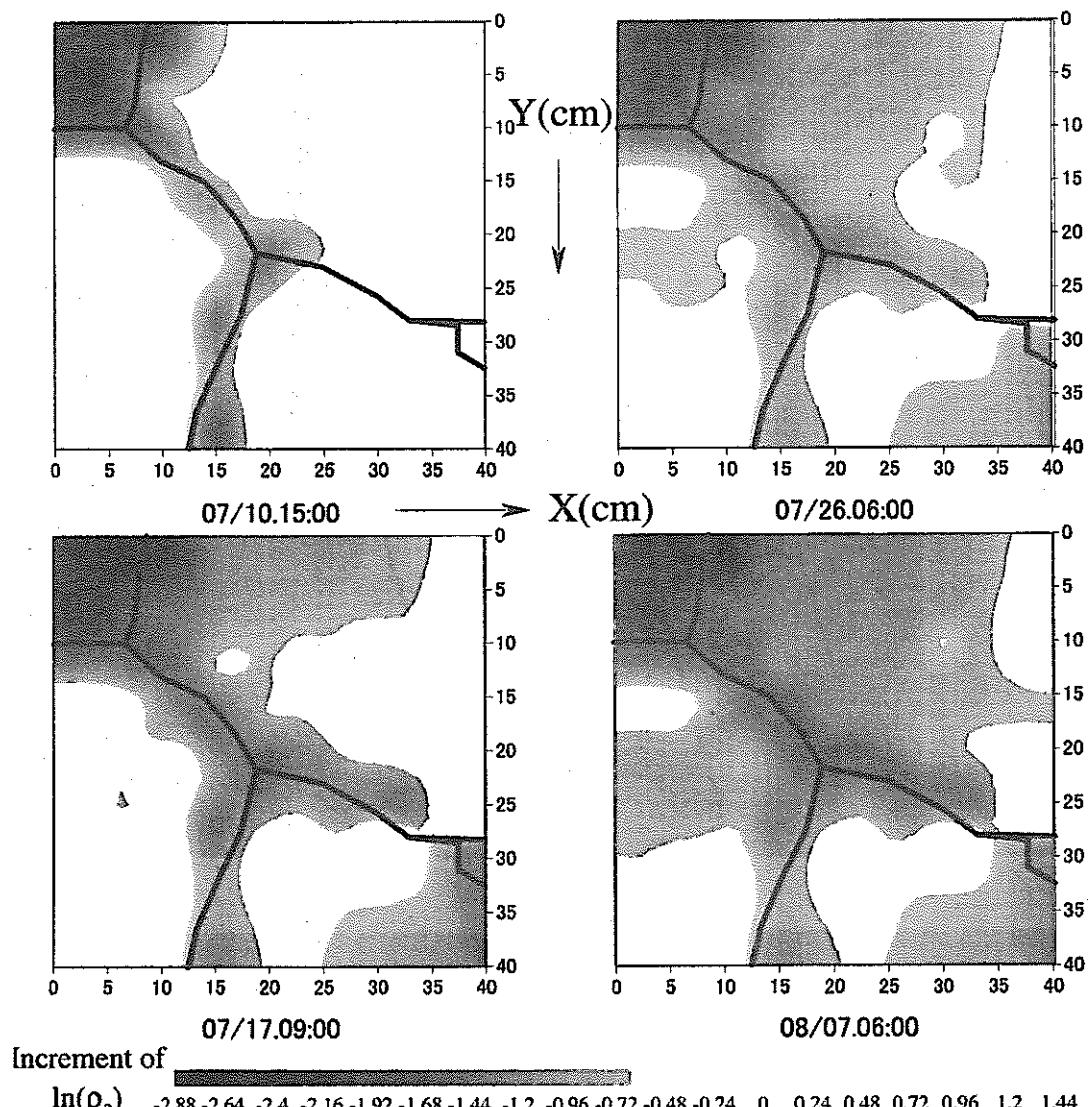


Figure 9. Temporal variations of  $\Delta \ln(\rho_a)$  in the  $40 \text{ cm} \times 40 \text{ cm} \times 20 \text{ cm}$  tuffaceous G-block with a Y-shape fracture. The conductivity of the water is  $317\text{-}333 \mu\text{s/cm}$  (Wenner array, 0.0-0.08m depth).

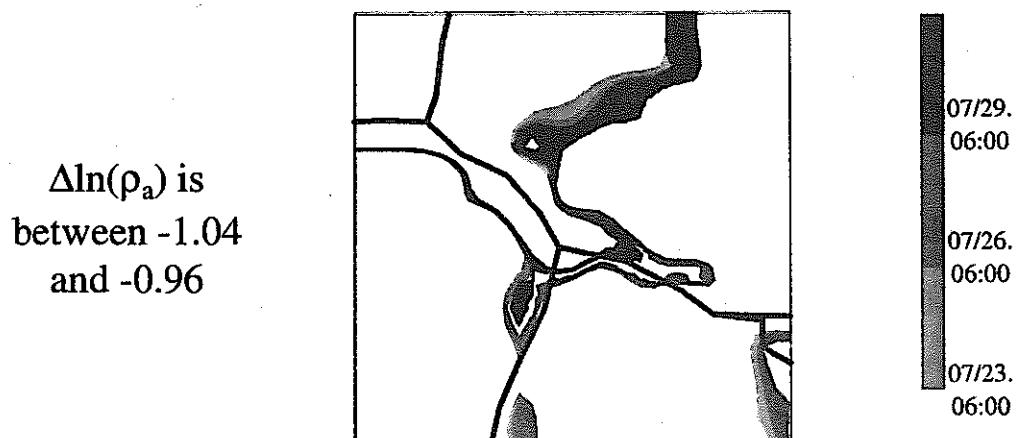


Figure 10. Temporal variations of  $\Delta \ln(\rho_a)$  between -1.04 and -0.96 in the  $40 \text{ cm} \times 40 \text{ cm} \times 20 \text{ cm}$  G-block. The conductivity of the water is  $317\text{-}333 \mu\text{s/cm}$  (Wenner array, 0.0-0.08m depth).

Table 1. Summary of the estimated longitudinal coefficient of hydrodynamic dispersion  $D$ , dispersivity  $\alpha$ , and water velocity  $v$  for the rock block.

X (cm)	Y (cm)	$v \times 10^{-6}$ (cm/s)	$\alpha$ (cm)	$D \times 10^{-10}$ (m <sup>2</sup> /s)	A	B	X (cm)	Y (cm)	$v \times 10^{-6}$ (cm/s)	$\alpha$ (cm)	$D \times 10^{-10}$ (m <sup>2</sup> /s)	A	B
10	2.5	0.49	0.31	0.15	0.09	0.45	10	22.5	3.07	2.09	6.42	0.05	0.50
15	2.5	0.54	0.15	0.08	0.09	0.43	15	22.5	2.89	2.03	5.87	0.07	0.49
20	2.5	0.49	0.18	0.09	0.27	0.35	20	22.5	2.83	2.33	6.61	0.06	0.50
25	2.5	0.54	0.21	0.11	0.15	0.41	25	22.5	2.79	1.92	5.36	0.08	0.49
30	2.5	0.55	0.22	0.12	0.08	0.45	30	22.5	2.84	2.30	6.55	0.07	0.50
17.5	2.5	0.45	0.14	0.06	0.11	0.42	17.5	22.5	3.00	2.58	7.74	0.06	0.49
22.5	2.5	0.42	0.15	0.06	0.14	0.39	22.5	22.5	2.82	2.76	7.77	0.07	0.50
10	7.5	1.59	0.61	0.97	0.24	0.37	10	27.5	3.00	2.90	8.69	0.06	0.55
15	7.5	1.49	0.44	0.65	0.19	0.39	15	27.5	2.96	2.74	8.09	0.07	0.54
20	7.5	1.51	0.51	0.77	0.16	0.41	20	27.5	2.88	2.61	7.50	0.08	0.54
25	7.5	1.48	0.56	0.83	0.11	0.43	25	27.5	2.92	2.58	7.52	0.08	0.53
30	7.5	1.55	0.56	0.87	0.04	0.47	30	27.5	2.91	2.69	7.85	0.08	0.53
17.5	7.5	1.26	0.54	0.68	0.08	0.45	17.5	27.5	3.25	2.68	8.72	0.08	0.50
22.5	7.5	1.28	0.69	0.89	0.08	0.45	22.5	27.5	3.04	2.94	8.94	0.08	0.53
10	12.5	2.28	0.85	1.93	0.03	0.47	10	32.5	2.79	3.98	11.11	0.06	0.69
15	12.5	2.27	0.83	1.90	0.07	0.46	15	32.5	3.09	2.98	9.20	0.08	0.58
20	12.5	2.22	0.98	2.18	0.06	0.46	20	32.5	3.12	2.69	8.39	0.08	0.56
25	12.5	2.19	1.06	2.33	0.06	0.47	25	32.5	3.12	2.74	8.55	0.08	0.55
30	12.5	2.23	1.11	2.47	0.03	0.47	30	32.5	3.15	2.93	9.23	0.08	0.56
17.5	12.5	2.08	1.20	2.50	0.06	0.47	17.5	32.5	3.41	2.70	9.20	0.09	0.52
22.5	12.5	1.92	1.59	3.05	0.05	0.48	22.5	32.5	3.13	3.52	11.00	0.08	0.58
10	17.5	2.94	1.08	3.16	0.06	0.47	10	37.5	3.49	3.25	11.32	0.08	0.59
15	17.5	2.63	1.73	4.53	0.05	0.49	15	37.5	3.32	3.56	11.83	0.07	0.62
20	17.5	2.69	1.30	3.50	0.08	0.46	20	37.5	3.72	2.34	8.72	0.08	0.51
25	17.5	2.59	1.65	4.27	0.08	0.47	25	37.5	3.93	1.82	7.16	0.09	0.47
30	17.5	2.67	1.79	4.79	0.04	0.49	30	37.5	3.82	2.91	11.14	0.08	0.51
17.5	17.5	2.51	2.44	6.13	0.04	0.51	17.5	37.5	3.76	2.94	11.03	0.09	0.53
22.5	17.5	2.44	2.36	5.76	0.05	0.51	22.5	37.5	3.53	3.34	11.80	0.09	0.57

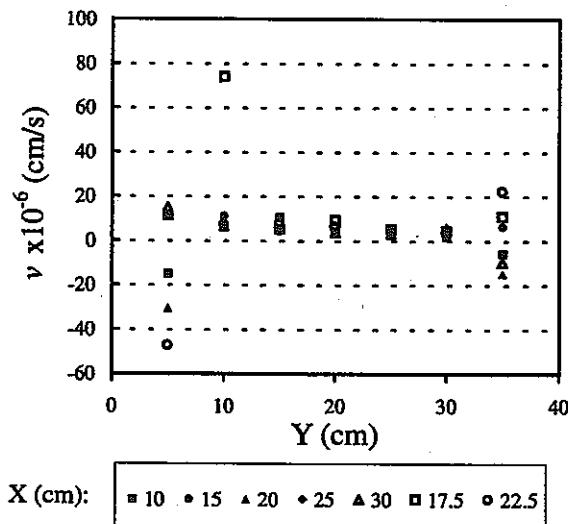


Figure 11. Variations of the estimated real flow velocity with the transport distance.

博士研究員（H11）平成12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 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 放射化学研究 Gr 佐藤 治夫	所 属 長 役職・氏名	GL 山田 一夫
研究実施場所	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12年4月～ 平成13年3月
<p><b>【研究目的】</b>          高レベル放射性廃棄物の地層処分において、物理的・化学的緩衝材として圧縮ベントナイトを使用することが検討されている。緩衝材に期待される効果の1つにガラス固化体から溶出した放射性核種の移行遅延効果があり、圧縮ベントナイト中の物質移行挙動の解明が重要なテーマの1つとなっている。第2次取りまとめにおいては、ベントナイト中の物質移行が実効拡散係数で評価されており、実効拡散係数は重要なデータの1つである。これまで、放射性、非放射性を含め様々な陽イオンや陰イオンの実効拡散係数のベントナイト乾燥密度に対する依存性が研究されてきたが、処分地周辺の地下水のイオン強度(0.01～0.6)や岩盤温度(60℃程度)を考慮した研究は少ない。これらの地質環境は処分サイトにより異なるので、地層処分の安全評価やサイト選定を行うためには実効拡散係数のイオン強度依存性や温度依存性を明らかにする必要がある。本研究では、圧縮ベントナイト中の実効拡散係数のイオン強度依存性と温度依存性を取得し、そのメカニズムの解明を目的として、実効拡散係数とベントナイトの微細構造および間隙水の構造・物性の関係について検討する。       </p>			
<p><b>【研究内容（概要）】</b> 圧縮ベントナイト中のイオンの実効拡散係数のイオン強度依存性と温度依存性を調べるために、イオン強度と温度をパラメーターとした透過拡散試験を行う。実効拡散係数のイオン強度依存性は拡散物質のイオン価により異なるので、陽イオンとして <math>\text{Sr}^{2+}</math>、陰イオンとしては <math>\text{I}^-</math> を使用する。天然ベントナイト中にはカルサイトなどの可溶性不純物が含まれているので、ベントナイトの間隙水のイオン強度が外部で調整したイオン強度と異なる可能性がある。そこで、分級と酸処理を繰り返すことにより不純物を除去したスメクタイト(以下、精製スメクタイト)を使用することで、より厳密にイオン強度を調整した条件(0.01～0.5 M)で拡散実験を行う。ベントナイト乾燥密度は0.9 Mg/m<sup>3</sup>とする。これは、Kunigel V1(スメクタイト含有率約50重量%)にケイ砂を30重量%混合し1.6 Mg/m<sup>3</sup>の乾燥密度で圧縮した時の部分スメクタイト密度に相当する。実効拡散係数の温度依存性からは拡散の活性化エネルギーを導出することができる。自由水中のイオンの拡散の活性化エネルギーは15-30kJ/mol程度であるが、間隙水の構造や物性が自由水と異なればこれより大きな活性化エネルギーをとる可能性がある。          実効拡散係数のイオン強度や温度に対する依存性はベントナイトの微細構造や間隙水の物性と関連があると考えられる。Na型スメクタイトはイオン強度が高くなると凝集する性質があるため、圧縮ベントナイトの間隙構造がイオン強度により変化する可能性がある。そこで、間隙構造の変化をX線回折装置や走査型・透過型電子顕微鏡により観測し、実効拡散係数のイオン強度依存性と間隙構造の関係について検討する。また、拡散物質は間隙水やスメクタイトの層間水を拡散経路として移行するので、間隙水の構造や物性が、間隙水中の拡散係数や拡散の活性化エネルギーに影響を与えると考えられる。そこで分光学的な手法(Raman, FT-IR, NMR)により間隙水の構造について研究を行う。       </p>			
<p><b>【使用主要施設】</b>          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)】

平成11年度は、ベントナイトの間隙水の分子レベルでの構造について研究するため、含水ベントナイトの分光学測定(ラマン分光法、核磁気共鳴法)を実施した。また、圧縮ベントナイト中のイオンの実効拡散係数の塩濃度に対する依存性を取得することを目的として透過拡散試験を開始した。

平成12年度は、イオンの透過拡散試験の結果を解析し、実効拡散係数と塩濃度の関係を明らかにした。拡散係数とベントナイトの微細構造の関係を明らかにするため、圧縮ベントナイトの微細構造観察(電子顕微鏡、X線回折法)に基づいて微細構造のモデル化を行った。分子動力学法—均質化法(MD-HA)結合解析法に構造モデルを適用して、トリチウム水(HTO)の拡散問題の解析を行った。また、ベントナイトの間隙水のラマンスペクトルと含水率の関係より、間隙水の分子構造について検討を行った。

### 【研究成果】

圧縮ベントナイト中の  $\text{Sr}^{2+}$ 、 $\text{I}^-$ イオンの透過拡散試験を行い、外部溶液の塩濃度と実効拡散係数の関係について研究した。透過拡散試験は温度  $25 \pm 0.2^\circ\text{C}$ 、外部溶液の塩濃度  $0.01, 0.05, 0.1, 0.3, 0.5 \text{ M}$  の条件で行った。ベントナイト試料(クニピアF:クニミネ工業(株)および MX-80:American Colloid Co.)を乾燥密度が  $0.9$  または  $1.6 \text{ Mg/m}^3$  (クニピアF)および  $1.8 \text{ Mg/m}^3$  (MX-80)になるように圧縮成型した。なお、クニピアFは Na 型モンモリロナイトの純度を高めるために精製処理が施されている<sup>[1]</sup>。試料を拡散試験カラムに設置した後、塩濃度を調整した溶液で1ヶ月程度含水飽和させた。試験終了後の測定から、外部溶液の塩濃度が高いほど、ベントナイト供試体に含まれる Na 濃度が高いことがわかった。したがって、外部溶液の塩濃度を調整することにより、試料内部の塩濃度がある程度コントロールできると言える。透過拡散試験には非循環型の透過拡散カラムを使用した(Fig. 1a)。カラムはベントナイト供試体を含む試料フォルダーとその両側の2つの溶液セルで構成される。ベントナイトが膨潤した際にセル内に浸出していくことを防止するために、溶液セルと試料フォルダーの間にセラミックフィルターが配置されている。含水膨潤後に溶液セルの一方の溶液を、NaCl 濃度を調整した  $\text{SrI}_2$  溶液( $\text{ca. } 3 \times 10^{-3} \text{ M}$ )と交換し、任意時間毎にもう一方の溶液セルからサンプリングする。試験終了後に、溶液セルの一方に  $\text{D}_2\text{O}$  溶液を加え( $\text{ca. } 6$  重量%)、HDO の実効拡散係数の取得を行った。サンプリングした試料の  $\text{Sr}^{2+}$  および  $\text{I}^-$ イオンの濃度は ICP 発光分析により定量し、HDO の濃度は ATR 法により FT-IR で定量した。試料濃度から積算透過量を計算し、それぞれの拡散物質について破過曲線を作成した。

定常状態の破過曲線の解析より、ベントナイト中の拡散物質の実効拡散係数および見かけの拡散係数を導出した。解析の便宜上、セラミックフィルターを含むベントナイト供試体を無限に広がる平板であると仮定し、1次元拡散問題を取り扱う。実効拡散係数は、定常状態の拡散フラックス  $J$  および平板内の溶質の濃度勾配より、次式のように表される。

$$D_e^{net} = -J \frac{L}{\Delta C_p} \quad (1)$$

ここで、 $L$  はベントナイト供試体の拡散方向の長さで、 $\Delta C_p$  は供試体の間隙水中の濃度勾配である。拡散フラックス  $J$  は破過曲線の傾き  $dQ(t)/dt$  として表される。なお、溶液セルと接する供試体の間隙水中の溶質濃度は溶液セル内の濃度と等しいと仮定した。ベントナイト中の実効拡散係数は、セラミックスフィルター内の濃度減少を考慮して、

$$D_e^b = \frac{l_b}{\frac{L}{D_e^{net}} - \frac{l_{f1} + l_{f2}}{D_e^f}} \quad (2)$$

より計算できる<sup>[2]</sup>。ここで、セラミックフィルターの実効拡散係数  $D_e^f$  は、フィルターを拡散媒体とした透過拡散試験により別途求めた。セラミックフィルター中の  $\text{Sr}^{2+}$ 、 $\text{I}^-$ イオンの実効拡散係数  $D_e^f$  は溶液セルの塩濃度に対しては変化がないので、それぞれの値の平均値を使用した。

見かけの拡散係数  $D_a^{net}$  は、透過拡散問題にフィックの第2法則を適用し、「time-lag」法により導出した<sup>[3, 4]</sup>。

$$D_a^{net} = \frac{L^2}{6 t_e^{net}} \quad (3)$$

ここで、 $t_e^{net}$  は遅延時間で、定常状態の破過曲線を直線近似した際の時間軸の切片で、 $L$  は試料全体の長さである。実効拡散係数の補正のように、見かけの拡散係数についてもセラミックフィルターによる遅延を補正する方法についても現在検討を進めている。

る方法についても現在検討を進めている。

Fig. 2 に精製ペントナイト ( $\rho_{dry} = 0.9 \text{ Mg/m}^3$ ) における  $\text{Sr}^{2+}$  および  $\text{I}^-$  イオン, HDO の破過曲線を示す。ただし、積算透過量は間隙水中の濃度勾配で規格化されている。 $\text{Sr}^{2+}$  および  $\text{I}^-$  イオンとともに塩濃度が高くなるにつれ拡散フラックスが増加する傾向が見られた。定常状態においては、拡散フラックスは供試体中のいかなる位置においても等しいので、破過曲線の塩濃度に対する変化はペントナイト中の拡散フラックスの変化に等しい。ほぼ全ての破過曲線が時間の経過とともに直線的に増加する定常状態にあると見なせる。しかし、塩濃度が 0.01 M の条件の  $\text{Sr}$  については、定常状態であることを判断できなかった。Fig. 3 に実効拡散係数の塩濃度に対する依存性を示す。 $\text{Sr}^{2+}$  については塩濃度が 0.05 から 0.5 M まで増加するに従い、実効拡散係数が  $7.7 \times 10^{-13}$  から  $2.1 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{sec}$  まで増加している。一方、 $\text{I}^-$  イオンの実効拡散係数は、塩濃度が 0.01 から 0.5 M まで増加するに従い、 $6.6 \times 10^{-12}$  から  $5.5 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{sec}$  まで一桁程度増加した。HDO の実効拡散係数は、塩濃度 0.01 M の条件では、 $6.7 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{sec}$  であったが、塩濃度 0.05 – 0.5 M の条件では、塩濃度に対しては変化せず、 $1.2$ – $1.4 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{sec}$  であった。

定常状態の破過曲線の解析より導出した  $\text{Sr}^{2+}$  イオンの遅延時間は、塩濃度が低いほど大きい。遅延時間が共存する陽イオン ( $\text{Na}^+$ ) の濃度に依存していることから、遅延は  $\text{Sr}^{2+}$  イオンのイオン交換的な吸着挙動と関連があると考えられる。遅延時間より計算した見かけの拡散係数  $D_a^{net}$  の塩濃度に対する依存性を Fig. 4 に示す。塩濃度の増加 (0.05–0.5 M) に伴い、 $D_a^{net}$  は  $3.0 \times 10^{-12}$  から  $1.3 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{sec}$  まで増加したが、実効拡散係数  $D_e^b$  と比較すると、その変化は小さい。HDO については塩濃度に対する変化はほとんど認められず、 $1.4$ – $2.2 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{sec}$  であった。一方、 $\text{I}^-$  イオンについても遅延は観測されたが、破過曲線の最小二乗近似を行うと遅延時間が負となつたため、見かけの拡散係数の解析を行わなかった。このことは、遅延時間が短く、それに対する最小二乗誤差が大きいためであると考えられる。

文献[5]によれば、透過拡散法または In-diffusion 法により求めた  $\text{Sr}$  の見かけの拡散係数は、塩濃度に対してはほとんど変化がないことが報告されており、この傾向は本研究で得られた結果と調和的であった。しかし、精製ペントナイト ( $\rho_{dry} = 0.9 \text{ Mg/m}^3$ ) における  $\text{Sr}^{2+}$  イオンの実効拡散係数は、塩濃度が高くなるに従い増加しており、文献[5]で報告された傾向とは全く逆であった。塩濃度依存性に対する乾燥密度の影響を確認するために行われた MX-80 ペントナイト ( $\rho_{dry} = 1.8 \text{ Mg/m}^3$ ) および精製スメクタイト ( $\rho_{dry} = 1.6 \text{ Mg/m}^3$ ) 中の  $\text{Sr}^{2+}$  イオンの実効拡散係数の塩濃度依存性についても、精製ペントナイト 0.9 Mg/m<sup>3</sup> で得られた傾向と同じであった。このように、過去の研究で報告された傾向とは異なり、 $\text{Sr}^{2+}$  イオンの実効拡散係数は、乾燥密度、ペントナイトの種類に関わらず、塩濃度が高いほど増加すると考えられる。このように、本研究で得られている結果は過去に報告されている理論的取り扱いとも相反することから、現在も実効拡散係数の塩濃度依存性のメカニズムについて検討を進めているところである。一方、 $\text{I}^-$  イオンの塩濃度依存性は、陰イオン ( $\text{I}^-$  および  $\text{Cl}^-$ ) について報告されている傾向<sup>[6]</sup> と調和的であることから、陰イオン排除効果により説明される。

実効拡散係数の温度依存性について透過拡散試験を開始したが、その過程で透過拡散カラムの構造の問題が明らかになつたため、循環型の透過拡散試験システムを開発した。前述の非循環型の透過拡散カラムを高温下での実験に使用した場合、カラムを恒温槽内で 60°C 程度に加熱すると水蒸気により内部の圧力が上昇する。サンプリングのために、恒温槽からカラムを取り出し、一方のサンプリング蓋を開放すると、2つのセル間に圧力差が生じ、溶液の移動が起こる。この傾向はフィルターの透過拡散試験を行う際に顕著で、フィルターによる拡散係数の補正が不可能であることが明らかになった。そこで、チューブポンプで溶液を循環させる循環型の拡散カラムを作製した (Fig. 1b)。循環型の拡散カラムでは、サンプリング用の溶液セルは恒温槽の外部にあり、室温付近にあるため、温度上昇に伴い試料を挟む溶液セル間で差圧が発生することはない。また、試料溶液を循環させた場合でも、試料温度は恒温槽の設定温度と大差がなかった。今後、循環型の透過拡散システムで再度、温度依存性のデータの取得を開始する。

$\text{Sr}^{2+}$  および  $\text{I}^-$  イオンの透過拡散試験より、イオンの実効拡散係数は、ペントナイトの種類、乾燥密度に依らず、塩濃度が高いほど大きな値をとることがわかった。イオンは圧縮ペントナイトの間隙水や層間水を拡散経路として移行するので、実効拡散係数の塩濃度依存性は、ペントナイトの微細構造、間隙水の物性、およびペントナイトとイオンの静電的な相互作用の塩濃度に対する依存性に起因すると考えられる。これらのうち、特にペントナイトの微細構造と塩濃度、乾燥密度の関係を明らかにするために、電子顕微鏡観察および X 線回折測定に基づいてペントナイトの間隙構造のモデリングおよび HTO の拡散解析を行った。

ペントナイトを構成する粒子はスメクタイトの団粒であり、その形状は、板状で底面方向の大きさは 100 μm 程度、厚さは 10 μm 程度である。ペントナイトを圧縮成型後に含水飽和させると、スメクタイトの団粒はより小さなスメクタイトの粒子に分離する。これらの小さな粒子は数層かそれ以上のスメクタイト単層 (幅 100–10000 nm 程度、厚さ 1 nm 程度) から構成されており、その粒子を積層体と呼ぶ (Fig. 5)。

積層体–積層体間の間隙 (外部間隙) のサイズおよび間隙率は、層間の選択的水和のため、積層体の膨潤挙動によりコントロールされていると考えられる。そこで、含水飽和した圧縮ペントナイトの X 線回折測定を行い、スメクタイトの底面間隔と乾燥密度および含水溶液の塩濃度との関係について調べた。含水ペントナイト

のXRDプロファイルには、底面間隔で3.52, 1.88, 1.56 nmに相当する回折ピークが観察され、積層体により底面間隔が異なることを示唆する。低い乾燥密度(0.8~1.0 Mg/m<sup>3</sup>)では3.52 nmまたは1.88 nmの底面間隔を持つ積層体が混在するが、乾燥密度の増大とともに前者が相対的に減少し、乾燥密度が1.2~1.3Mg/m<sup>3</sup>の条件では後者の積層体のみが存在するようになる(Fig. 6a)。乾燥密度0.9 Mg/m<sup>3</sup>の条件で、含水させる溶液のNaCl濃度を0.0~0.5 Mまで変化させたところ、塩濃度が0.3 M以上では3.52 nmの底面間隔のピークは観察されなかった(Fig. 6b)。これに対して、1.88 nmの底面間隔は塩濃度によらず一定であった。このことは、高い塩濃度の条件では、積層体の底面間隔が1.88 nmに保たれたまま、積層数が増加していることを示唆する。以上の観察に基づいて、均質微細構造モデルを考案し、外部間隙サイズL [nm]を積層体の積層数n [-]および底面間隔d<sub>(001)</sub> [nm]の関数として理論的に定式化した。

$$L = n\delta \left( \frac{1}{(1+\lambda)^2} \frac{\rho_{clay}}{\rho_{dry}} - 1 \right) - (d_{(001)} - \delta)(n-1) \quad (4)$$

ここで、δはスメクタイト単層の厚さ(1.0nm), ρ<sub>clay</sub>およびρ<sub>dry</sub>はスメクタイトの真密度(2.88 Mg/m<sup>3</sup>)およびペントナイトの乾燥密度[Mg/m<sup>3</sup>], λは積層体の端面一端面間の開きdと積層体の底面方向の長さaの比d/aである(Fig. 7)。この式は積層数とともに外部間隙サイズが増加することを示しており、塩濃度が高くなると外部間隙サイズが増加すると考えられる(Fig. 8)。また、乾燥密度が高くなるに従い、外部間隙サイズは急速に小さくなる。均質微細構造モデルに基づいて、スメクタイトの配向がある場合のトリチウム水の拡散問題をMD-HA結合解析法により解析し、実測値と比較した。スメクタイトの配向方向と平行に拡散した場合と比較した結果、実測値よりも2倍程度大きな実効拡散係数が得られた(Fig. 9)。解析において間隙構造の屈曲の効果を考慮することにより、実験値と計算値はより近くなると考えられる。

ペントナイトの間隙水について、ラマン分光法により研究を行ったところ、間隙水がバルク水とは異なる性質を持つことが示唆された。ペントナイトの間隙水の構造や物性は、イオンの間隙水拡散係数と密接に関係すると考えられている。例えば、間隙水の粘性が自由水のそれより高ければ、間隙水拡散の活性化エネルギーは自由水中のそれ(15kJ/mol程度)よりも大きくなる可能性がある。そこで、ペントナイトの間隙水の構造をラマン分光法により調べ、自由水との構造の違いについて検討した。ラマン分光法による自由水の構造の研究は多く、水が水素結合の強さが異なるいくつかの状態の水分子が存在する混合モデル(mixture model)が提唱されている<sup>[7]</sup>。自由水のラマンスペクトルは、3250, 3400および3620cm<sup>-1</sup>にプロードなピークが存在し、この順に水素結合が弱い水分子に帰属されている。スメクタイト表面付近の水は氷のように構造化されている可能性があり、もし、そうであればペントナイトの間隙水では3250cm<sup>-1</sup>のピークが顕著となることが期待される。

試料はクニピアF(Na型モンモリロナイト98重量%以上含有)を98, 95, 90, 80, 75重量%の含水率で混合したもので、表面にカバーガラスをかけた。励起レーザーはAr+レーザー(514.5nm)でレーザー出力は200mWに設定し、無偏光でラマン散乱の検出にはCCDマルチチャンネルディテクターを使用した。測定はすべて室温(24~26°C)で行った。Fig. 10にペントナイトの間隙水のラマンスペクトルを示す。含水率が低くなるほど3250cm<sup>-1</sup>周辺の散乱強度が3400cm<sup>-1</sup>に比べ相対的に増加している。3250cm<sup>-1</sup>と3400cm<sup>-1</sup>のピーク強度比は間隙水の水素結合の強さの目安となり、含水率が低いほどピーク強度比は高いので、水素結合が強い水分子が多いことを示唆される。間隙水の構造の変化は、スメクタイト-水間の相互作用に起因するものと考えられるので、間隙水の構造変化は表面付近に限られ、ある程度、表面から離れた位置にある水はバルク水と変わらない構造を持つと考えられる。<sup>1</sup>H-NMRによる水の自己拡散係数の測定から、含水率が98~75重量%程度の範囲で、自己拡散係数の急激な低下が報告されており<sup>[8]</sup>、本研究の結果と調和的であると言える。また、<sup>1</sup>H-NMRや赤外分光法などから<sup>[9]</sup>、スメクタイト表面には数nmのオーダーで自由水とは構造が異なる水が存在することが示唆されており、そこでの拡散も水の構造の影響を受けると考えられる。

以上の結果に基づいて、ペントナイトの微細構造および水の物性の変化と実効拡散係数の塩濃度依存性の関係について考察を進める。まず、圧縮ペントナイトの微細構造の変化とスメクタイト-水界面の水和による水の構造変化がトリチウム水の拡散に与える影響について、MD-HA結合解析法により評価した。間隙水の塩濃度が微細構造に与える影響としては、凝集による積層数の増加による外部間隙サイズの増加が挙げられる。例えば、Pusch et al.<sup>[10]</sup>は、イオン交換水のように塩濃度が低い条件では、積層数nは数層~5層程度で、塩濃度が高い海水程度の条件では、積層数nが20層程度になると記述している。式4に従えば、λ=0.01の時、外部間隙サイズは6.0 nm(n=5)および21.0 nm(n=20)と計算される。間隙水の分光学的研究の結果や、分子動力学法による水の自己拡散係数の低下<sup>[11]</sup>を考慮すると、スメクタイト表面から2 nm程度の範囲の水の自己拡散係数はバルク水よりも小さいと考えられる。したがって、層間水および間隙水の多くが、バルク水よりも小さな自己拡散係数を持ち、その割合は塩濃度が高くなると減少すると考えられる。その結果、塩濃度が高いほど、ペントナイト中のトリチウム水の実効拡散係数は大きくなると予測される。MD-HA結合解析法により積層数に対するトリチウム水の実効拡散係数を計算したところ、積層数の増大とともに実効拡散係数は

増大した(Fig. 11)。しかし、その変化は小さく、積層数n=5の条件と積層数n=16の条件を比較しても1.3倍程度であった。トリチウム水の実効拡散係数を塩濃度を変えた条件で取得した研究例はないので、重水(HDO)の結果と比較した。HDOの実効拡散係数は、塩濃度が0.01-0.5Mの範囲ではほとんど変化していない。積層数が塩濃度に対して依存しているならば、この傾向はMD-HA結合解析法の結果と調和的であると考えられる。このように、間隙構造の変化と水の物性を考慮したとしても、塩濃度に対する実効拡散係数の変化はわずかであると考えられる。 $\text{Sr}^{2+}$ および $\text{I}^-$ イオンの実効拡散係数は塩濃度に対してより大きく変化していることから、間隙構造と水の物性に加え、スメクタイトとイオンとの相互作用(イオン交換的吸着、陰イオン排除効果)を考慮しなければならない。

#### 参考文献

- [1] 渋谷, 小原, 小田, 久保田, 久野, 柴田 : JNC TN8400 99-066 (1999).
- [2] Sato, H. : *Mater. Res. Soc. Proc.* 608, 267-274, (2000).
- [3] Crank, J. : *The Mathematics of Diffusion*, 2<sup>nd</sup> ed. (Pergamon Press, Oxford, 1975).
- [4] Oscarson, D.W. : *Clays Clay Mineral.* 42, 534-543 (1994).
- [5] Murrinen, A., Penttila-Hiltunen, P. and Rantanen, J. : *Mater. Res. Soc. Proc.* 84, 803-812, (1987).
- [6] Murrinen, A., Penttila-Hiltunen, P. and Uusheimo, K. : *Mater. Res. Soc. Proc.* 127, 743-748, (1989).
- [7] Walrafen, Fisher, Hokmabadi and Yang : *J. Phys. Chem.*, 6970-6982, (1986).
- [8] Nakajima, Y. : *Amer. Mineral.* 85, 132-138 (2000).
- [9] Sposito and Prost : *Chem. Rev.*, 82, 554-572, (1982).
- [10] Pusch et al. : , SKB Technical report TR 90-43 (1990).
- [11] Ichikawa et al. : *Eng. Geol.*, 54, 21-32, (1999).

#### 【今後の予定(翌年度以降の概要)】

循環型透過拡散試験システムを使用して $\text{Sr}^{2+}$ ,  $\text{I}^-$ イオンおよびHDOの拡散試験を実施し、非循環型カラムを使用した従来の試験結果の比較と拡散の活性化エネルギーの導出を行う。また、スメクタイトとイオンの相互作用を考慮して、MD-HA結合解析を行い、実効拡散係数の塩濃度依存性のメカニズムを議論する。

#### 【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 覚, 佐藤治夫, 圧縮ペントナイト中の $\text{Sr}^{2+}$ イオンの実効拡散係数の塩濃度依存性。(学術雑誌:原子力学会誌(和文紙)に投稿予定)

鈴木 覚, 藤島敦, 上野健一, 市川康明, 藤井直樹, 河村雄行, 柴田雅博, 佐藤治夫, 圧縮ペントナイトの微細構造のモデル化とMD-HA結合解析法による拡散問題の解析。(学術雑誌:粘土科学に投稿予定)

Kozaki, T., Suzuki, S., Kozai, N., Sato, S., Ohashi, H., Observation of microstructure of compacted bentonite by microfocus X-ray computerized tomography (micro-CT), (submitted to Journal of Nuclear Science and Technology)

鈴木 覚, 河村雄行, 分子動力学法によるNa型スメクタイトの層間水の振動スペクトルの研究. JNC TN8400 2001-005)

鈴木 覚, 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, vol. 22, no. 7 (2000)

鈴木 覚, 間中光雄, 森田光男, ベントナイト間隙水のラマン測定, JNC TN8400 2000-020

Fujishima, A., Suzuki, S., Ueno, K., Tachi, Y. and Shibutani, T., EXAFS analysis of Sm adsorbed on montmorillonite. Spring-8 User Experiment Report.

##### (2) 学会等での発表

鈴木 覚, 佐藤治夫, 圧縮ペントナイト中の $\text{Sr}^{2+}$ および $\text{I}^-$ イオンの実効拡散係数の塩濃度依存性, 日本原子力学会2001年春の大會, 2001年3月

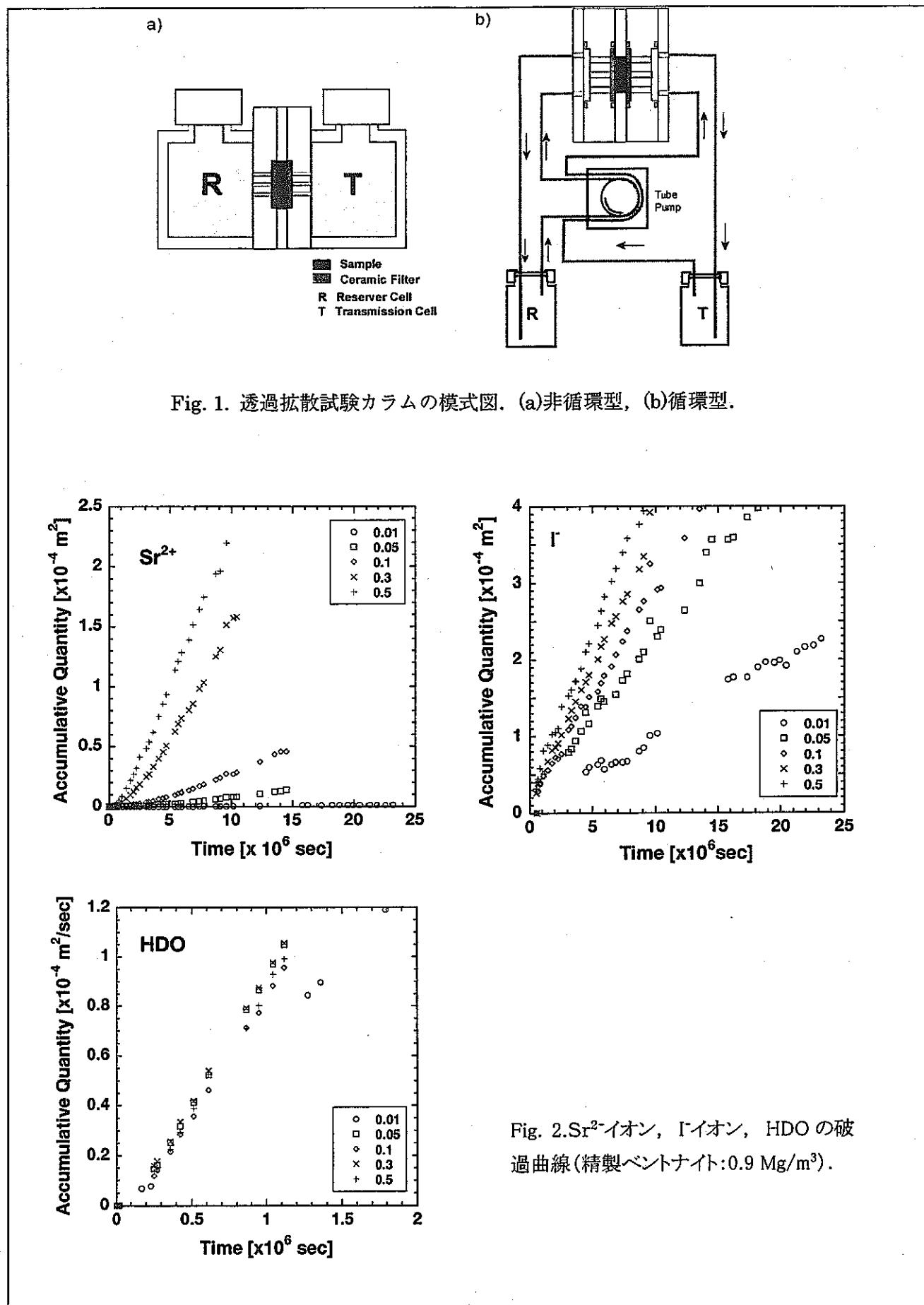
鈴木 覚, ラマン分光法によるペントナイトの間隙水の構造の研究, 地球惑星科学連合大会, 2000年6月

鈴木 覚, ベントナイトの間隙水のラマン分光測定, 日本原子力学会2000年秋の大会, 2000年9月

藤島敦, 鈴木 覚, 上野健一, 館幸男, 渋谷朝紀, EXAFS解析によるモンモリロナイトに対するSmの吸着構造の検討, 日本原子力学会2000年秋の大会, 2000年9月

鈴木 覚, ラマン分光法によるペントナイトの間隙水の構造の研究, 第44回粘土科学討論会, 2000年10月

鈴木 覚, 河村雄行, 分子動力学計算によるNa型スメクタイトの層間水の振動スペクトルと運動性の研究, 第44回粘土科学討論会, 2000年10月



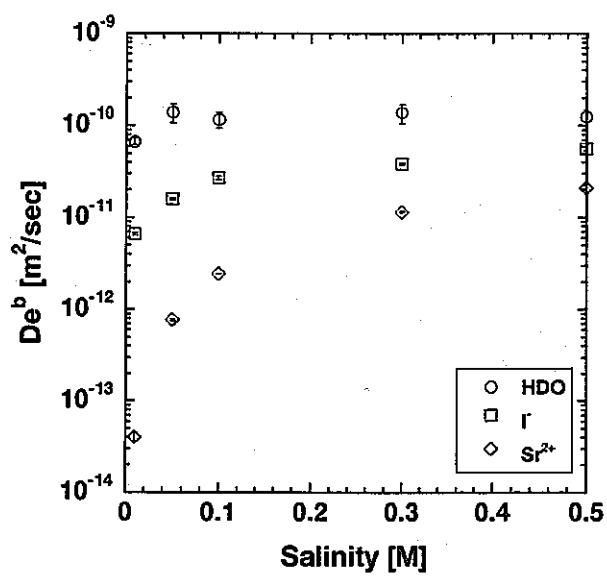


Fig. 3.  $\text{Sr}^{2+}$ ,  $\text{I}^-$ イオン, HDO の実効拡散係数の塩濃度依存性 (精製ベントナイト:  $0.9 \text{ Mg/m}^3$ ).

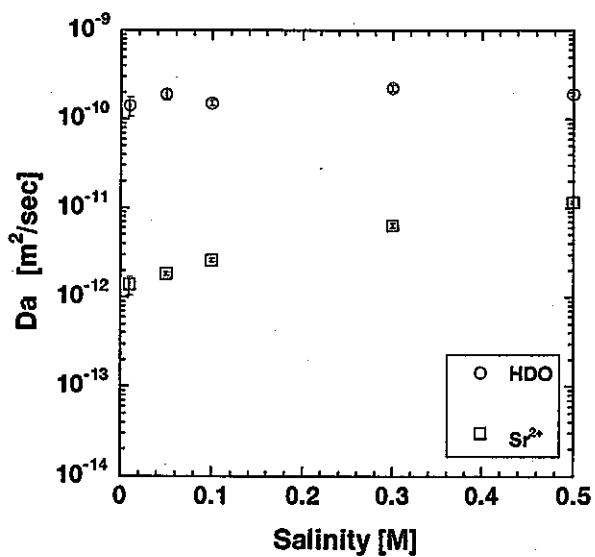


Fig. 4.  $\text{Sr}^{2+}$ イオン, HDO の見かけの拡散係数の塩濃度依存性 (精製ベントナイト:  $0.9 \text{ Mg/m}^3$ ).

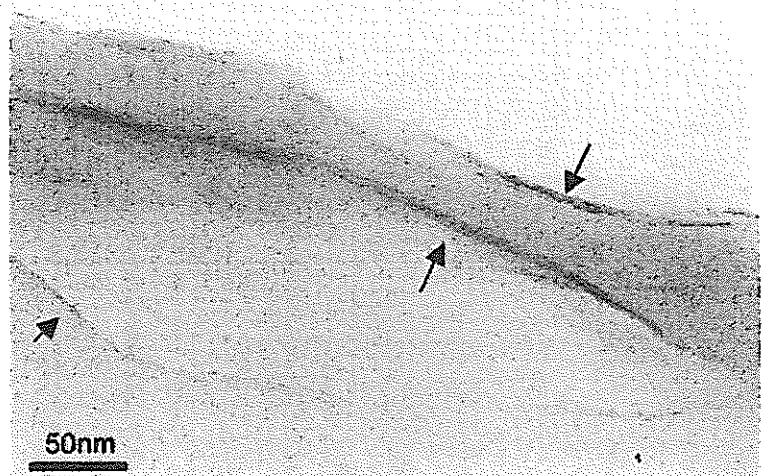


Fig. 5. Na型スメクタイトの積層体の透過電子顕微鏡写真.

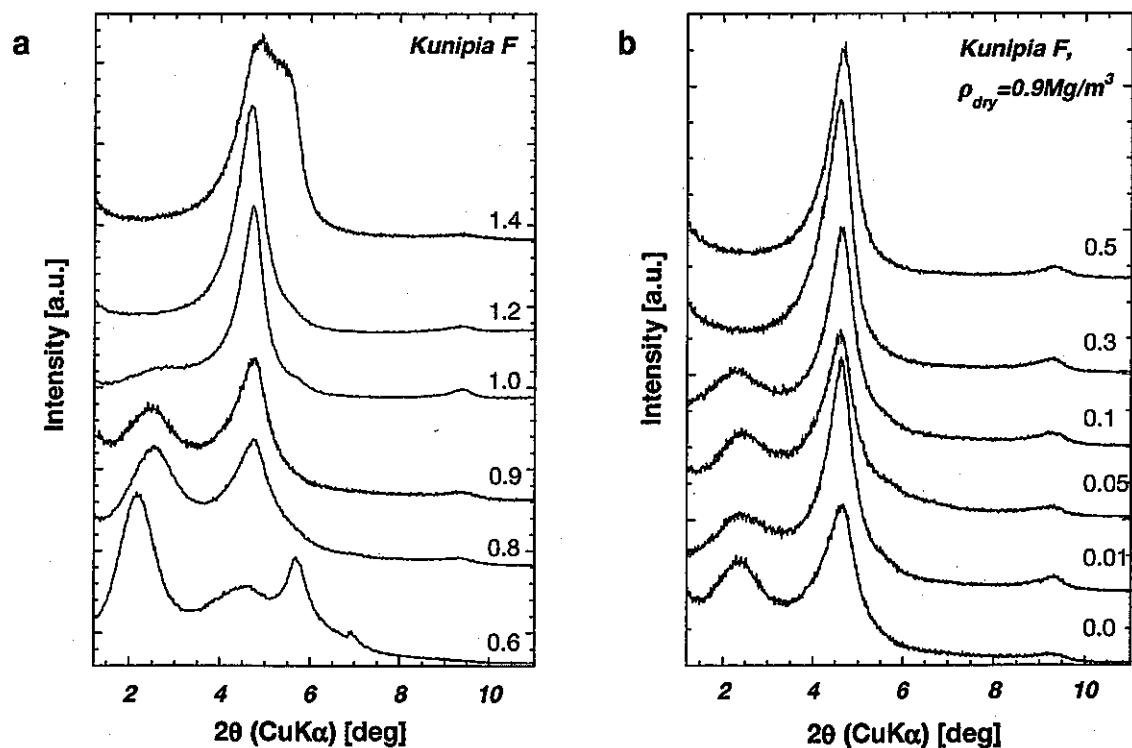


Fig. 6. 圧縮ベントナイト(クニピアF)のXRDパターン. (a) 乾燥密度に対する変化.  
(b) 塩濃度に対する変化(乾燥密度: 0.9 Mg/m<sup>3</sup>).

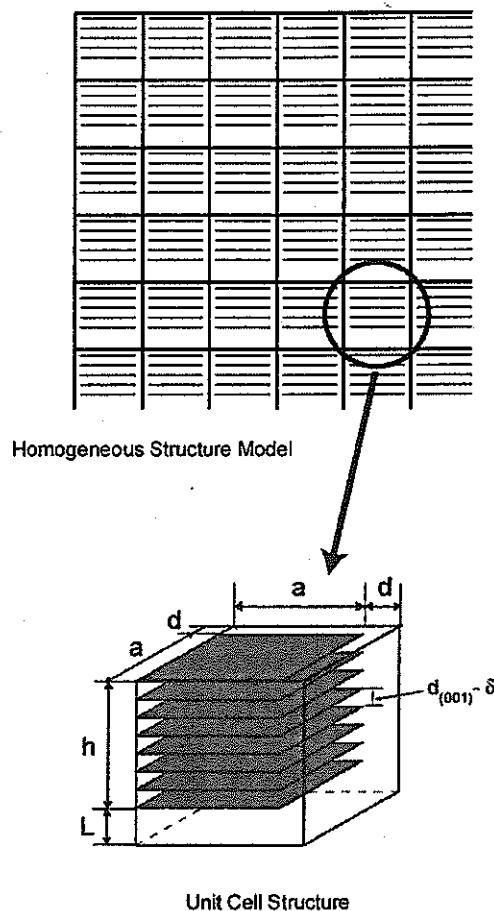


Fig. 7. 圧縮ベントナイトの微細構造モデル.

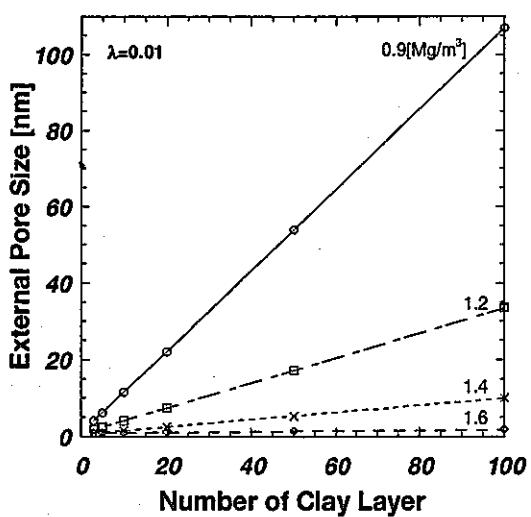


Fig. 8. 外部間隙サイズと積層数の関係.

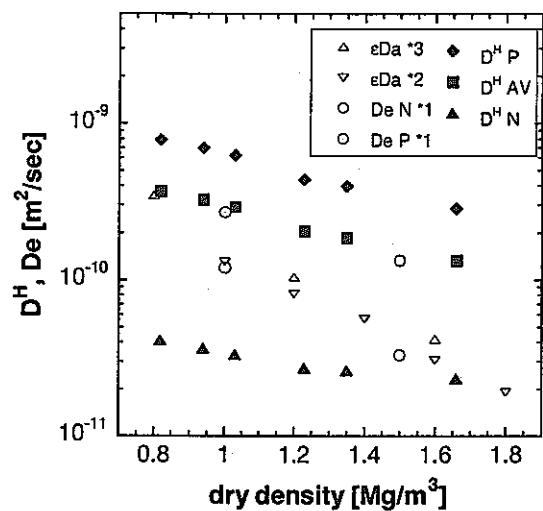


Fig. 9. 均質構造モデルによるトリチウム水の均質化拡散係数のMD-HA 結合解析. 乾燥密度に対する依存性と実験値との比較. 白抜きは実験値, 黒塗りはモデルによる計算値を示す. \*1 は透過拡散試験法より得られた値, \*2 および 3 は見かけの拡散係数と間隙率の積から求めた値である.

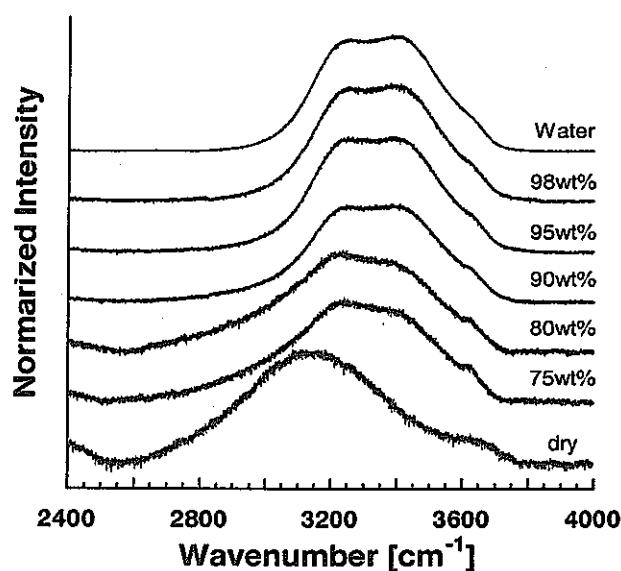


Fig. 10. ベントナイトの間隙水のラマンスペクトル. 数字は含水率を示す.

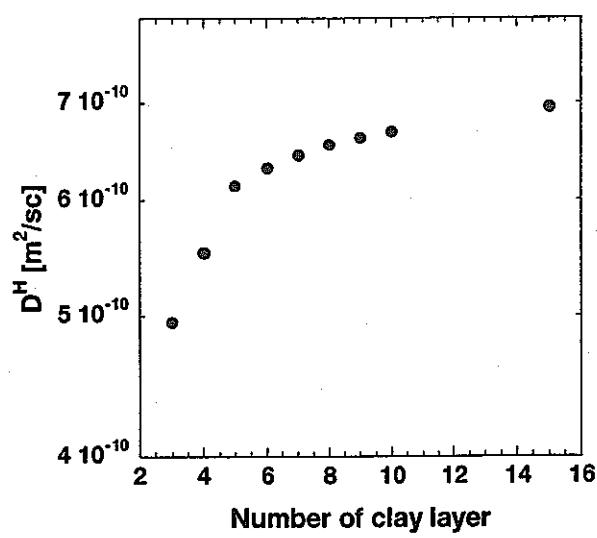


Fig. 11. トリチウム水の均質化拡散係数の積層数依存性(乾燥密度:0.9 Mg/m<sup>3</sup>)

## 博士研究員（H11）平成 12 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 要素技術開発部 高速炉安全工学グループ 近藤 悟, 飛田 吉春, 小西 賢介	所 属 長 役職・氏名	高速炉安全工学 グループ・リーダー 近藤 悟
研究実施場所	大洗工学センター 高速炉安全性第4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 12 年 4 月 ~ 平成 13 年 3 月
<p><b>【研究目的】</b></p> <p>高速炉を実用化するためには、炉心損傷の事象推移を適切に予測し、仮に炉心損傷事故が生じたとしても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。</p> <p>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一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。</p> <p>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><b>【研究内容（概要）】</b></p> <p>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。次に、通常の気液二相流との比較から気液密度比の影響を一般化し、SIMMER-III の汎用性を拡張する。</p> <p>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。</p> <p>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。従来の 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場合があるため、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><b>【使用主要施設】</b></p> <p>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所 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 年度には、実際の溶融炉心で現れるような高密度の液体を含む気液二相プールに対する SIMMER-III コードの運動量交換モデルの適用性を検討し、モデルの改良に着手した。

平成 12 年度は、上記のモデル改良を継続して気液密度比の影響を一般化するとともに、気泡形状に応じて気液間摩擦が適切に選択できる新たなモデルを開発した。また、非凝縮ガスを含む気液二相プールの相変化過程を適切に記述する目的でコードに導入された拡散律速型蒸発/凝縮モデルを検証するため、画像処理システムを独自に開発して基礎実験を行い、蒸発/凝縮モデルの妥当性を検討した。

### 【研究成果（当該年度）】

高密度の液体を含む気液二相プールに対する運動量交換モデルの検証、改良およびモデル開発に関しては平成 11 年度概要報告書および平成 12 年度上半期実施報告書に詳述したので、本報告書では拡散律速型蒸発／凝縮モデルの検証研究についてのみ述べる。

SIMMER-III コードの流体力学部では、多成分系多相流における相変化や熱伝達などの複合現象を取り扱われる。従来の SIMMER-III の、いわゆる伝熱律速の概念に基づく蒸発／凝縮モデルでは、例えば、気相から気液界面までの熱流束と気液界面から液相までの熱流束との差を潜熱で除すことによって凝縮速度が評価されている。ところで、気相に非凝縮成分が混在する場合、拡散抵抗の存在によって気相が純蒸気である場合と比べて気液界面の凝縮速度が著しく低下することが知られている。この現象を適切に記述するため、拡散律速の概念に基づいた蒸発／凝縮モデルが導入されているが、モデルを直接検証できるような実験データはこれまでのところ存在しない。

本研究では、まず、非凝縮成分を含んだ気泡群の凝縮実験において可視化画像から気泡径やボイド率を定量化するための画像処理プログラムを構築し、その妥当性を検討した。次に、SIMMER-III による解析を行い、解析結果と画像処理によって定量化した実験結果とを比較することによって拡散律速型の蒸発／凝縮モデルの妥当性を検討した。以上を通して、炉心溶融事故で形成される多成分多相流の評価手法の高度化と SIMMER-III コードの信頼性向上を図る。具体的な研究内容を以下に述べる。

#### 1. 検証実験の概要

実験は九州大学附属環境システム科学研究所センターの気泡凝縮実験装置を用いて行った。装置の概略を Fig. 1 に示す。実験で用いたパイレックス製矩形水槽は高さ 500mm、幅 300mm 奥行き 30mm で、この水槽に水位が 384mm になるように脱気した蒸留水を入れた。水槽底部のプレナムからノズルを通して水蒸気（凝縮成分）と窒素（非凝縮成分）の混合ガスを注入した。水蒸気はプレナムに接続した蒸気発生器で発生させた。水槽背面には加熱用の温水ジャケットを取り付けてあり、ジャケット内の電気ヒータの出力を調整して水槽の温度を一定に保った。また、流動状態の可視化画像はジャケット背面からの透過光撮影によって高速度カメラとデジタルカメラで収録した。

#### 2. 画像処理プログラムの概要

ビデオテープに収録した可視化画像から気泡径やボイド率を定量化するための画像処理プログラムは RAD (Rapid Application Development) ツールである Delphi を用いて全て独自に作製した。この画像処理プログラムの最大の特徴は、画像上に SIMMER-III と全く同様のメッシュセルを設定し、各セル内の物理量を算出できることにある。アルゴリズムの概略を Fig. 2 に示す。まず、連続画像の 1 枚目を原画像として入力し、続いて背景画像を取り込む。次に、SIMMER-III コードの入力ファイルと同様の解析メッシュを画像上に設定する。その後、原画像から背景画像を除去して気泡のみを抽出し、Fig. 3 に示したような 2 値化処理を行う。続いて、2 値化画像上でラベリング処理を行い、各気泡に通し番号を付ける。この通し番号を媒介変数として各気泡の重心位置と直径を配列に格納する。1 枚目の原画像に対して以上の処理が終了すれば、フレームを更新して時間的に連続する次の画像を読み込み、同様の処理を行う。当初指定した枚数だけ画像の処理が終了すれば、設定した各セルごとに時間平均した気泡径およびボイド率を出力する。なお、処理結果の妥当性に関しては、気泡を模擬した固定粒子を用いて検定実験を別途行うことにより確認している。

#### 3. SIMMER-III による解析

SIMMER-III による解析は、Fig. 4 に示したように実験装置を模擬した直角座標 2 次元体系で行った。すなわち、プールの奥行き方向には物質、運動量およびエネルギーの輸送が行われないものと仮定している。この体系では、解析開始時に下から 384mm までが単相の水で満たされているとし、それより上側はカバーガスで覆われているものとした。水槽内の温度条件は実験と同じである。体系上端の圧力は大気圧で与え、下端の圧力は大気圧、水頭圧およびガスがノズルを通過する時の圧力損失の和

で与えた。ガスは、実測値より換算した流量で体系底面の中央 200mm の領域から一様に吹き込むことを想定した。吹き込んだガスの温度は体系下端の圧力における飽和温度で与えた。なお、実際の実験では気泡の分裂や合体がほとんど認められなかつたため、解析においても分裂・合体に伴う気液界面積の変化は考慮していない。また、気泡径およびボイド率の時間平均値を求める際には、ガスが体系全体に拡がった後の 10 秒間で解析結果を平均した。

#### 4. 解析結果と実験結果との比較検討

本研究では、ガスに含まれる非凝縮成分の影響を調べるために、純粋な水蒸気を吹き込んだ場合と非凝縮成分である窒素を水蒸気に混入して吹き込んだ場合とを検討した。Fig. 5 は純粋な水蒸気を吹き込んだ場合の気泡径およびボイド率の鉛直方向分布に関して、従来の伝熱律速型の蒸発／凝縮モデルを用いた SIMMER-III の解析結果と実験結果とを比較したものである。この図からガスに非凝縮成分が含まれていない場合の気泡群の凝縮過程は従来の SIMMER-III で適切に再現されていることがわかる。つまり、実験の妥当性と従来のコードの信頼性の双方を確認することができる。ところが、非凝縮成分を含む気泡群の凝縮過程に対して従来の伝熱律速モデルを用いて解析を行ったところ、気泡径、ボイド率の双方が過少評価される傾向が認められた。そこで、非凝縮成分が混在する場合の凝縮を拡散律速モデルを用いて解析した結果、Fig. 6 に示すように気泡径およびボイド率が適切に再現されることが明らかになった。これは、伝熱律速モデルでは窒素の拡散抵抗が考慮されていなかったため水蒸気の凝縮速度が過大評価されていたのに対し、拡散律速モデルでは拡散抵抗および凝縮速度が適切に評価されている結果と考えられる。また、この拡散律速型の蒸発／凝縮モデルを用いた解析において、瞬時的なボイド率分布の径時変化を実験結果と比較したものが Fig. 7 である。Fig. 7 の上段は実験の可視化画像を処理して得られた結果を SIMMER-III の post-processing ツールである vcplot で表示したものであり、下段は拡散モデルの解析結果を同じく vcplot で表示したものである。窒素を混入した実験では、体系内の気泡分布が時間とともに左右に揺動する状態が観察されたが、解析結果からも同様の傾向が得られていることがわかる。この揺動の周期は実験においても解析においても約 12 秒であった。したがって、時間平均した気泡径やボイド率の定量的な分布だけでなく、瞬時的なボイド挙動も拡散律速モデルを導入した SIMMER-III によって定性的に再現されることがわかった。

#### 5. まとめ

SIMMER-III コードへの導入が検討されている拡散律速型の蒸発／凝縮モデルを検証するために行った本研究の成果をまとめると、以下のようになる。

- (1) 非凝縮成分を含む気泡群の凝縮実験において、気泡径およびボイド率を定量化するための画像処理プログラムを開発し、その妥当性を検討した。
- (2) 開発した画像処理プログラムを用いて、実際の気泡凝縮実験から定量的な実験データを得た。
- (3) SIMMER-III コードによる解析結果と実験結果とを比較検討した。その結果、拡散律速型の蒸発／凝縮モデルを導入した SIMMER-III は、伝熱律速モデルを用いた従来の解析結果と比べて、非凝縮成分が混在する気泡群の凝縮過程をより適切に再現できることが明らかになった。

#### 【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プールに対する運動量交換モデルの検証については PIV で定量化した液相速度場を解析結果と比較して、さらに詳細な検討を進める。また、これに関連して溶融金属内の気泡の分裂・合体に伴う気液界面積の変化が気液間摩擦に与える影響を検討する。

拡散律速型の蒸発／凝縮モデルの検証に関しては、今後さらに多くの実験データを蓄積することにより、広範な条件に対してモデルの妥当性を検討していく。

固液流における粒子粘性モデルに関しては、既にモデル改良のためのサーベイを始めているが、今後、既存の実験データとの比較検討を通して汎用性の高いモデルへの改良を行う。

#### 【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," *Phase 2 Code Assessment of SIMMER-III*, JNC TN9400 2000-105, pp. A15-A33 (2000).
- (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," 9<sup>th</sup> SIMMER Review Meeting (2000).
- (4) Suzuki, T., Tobita, Y., Kondo, S., and Yamano, H., "SIMMER-III Analysis of Gas-Liquid Flows with Large Liquid Densities," Proc. 2<sup>nd</sup> Japan-Korea Symposium on Nuclear Thermal Hydraulics and Safety

- (NTHAS2), pp. 73-80, Fukuoka, Japan, Oct. 15-18 (2000).
- (5) Saito, Y., Hibiki, T., Mishima, K., Tobita, Y., Suzuki, T. and Matsubayashi, M., "Visualization and Measurement of Liquid Velocity Field of Gas-Liquid Metal Two-Phase Flow using Neutron Radiography," *Proc. 9<sup>th</sup> International Symposium on Flow Visualization*, Edinburgh, UK, Aug. 22-25 (2000).
  - (6) 齊藤, 日引, 三島, 飛田, 鈴木, 松林, "中性子ラジオグラフィによる液体金属一ガス二相流の液相速度計測," 第28回可視化情報シンポジウム講演論文集 (2000).
  - (7) 三島, 日引, 齊藤, 飛田, 小西, 鈴木, "高密度比気液二相流に関する基礎研究", JNC TY9400 2000-018 (2000).
  - (8) Suzuki, T., Tobita, Y., Kondo, Sa., Saito, Y. and Mishima, K., "Analysis of Gas-Liquid Metal Two-Phase Flows using Multiphase, Multicomponent Fluid-Dynamics Code," *Nuclear Engineering and Design*, to be submitted (2001).
  - (9) Kondo, Sa., Yamano, H., Suzuki, T., Tobita, Y., Fujita, S., Cao, X., Kamiyama, K., Morita, K., Fischer, E., Brear, D., Shirakawa, N., Mizuno, M., Hosono, S., Kondo, T., Maschek, W., Kiehaber, E., Buckel, G., Rineiski, A., Flad, M., Coste, P., Pigny, S., Louvet, J. and Cadiou, T., "SIMMER-III: A Computer Program for LMFR Core Disruptive Accident Analysis," JNC TN9400 2001-002 (2000).
  - (10) Maschek, W., Rineiski, A., Kiehaber, E., Buckel, G., Morita, K., Flad, M., Coste, P., Pigny, S., Louvet, J., Cadiou, T., Rimpault, G., Kondo, Sa., Tobita, Y. and Suzuki, T., "SIMMER-III Code Development for Accelerator Driven System (ADS)," *Proc. of 1<sup>st</sup> CAPRA Seminar*, Windermere, UK, June 26-28 (2000).
  - (11) Maschek, W., Rineiski, A., Morita, K., Kiehaber, E., Buckel, G., Flad, M., Coste, P., Pigny, S., Rimpault, G., Louvet, J., Cadiou, T., Kondo, Sa., Tobita, Y., Suzuki, T., Yamano, H. and Fujita, S., "SIMMER-III Code Development for Analyzing Transients and Accidents in Accelerator Driven System (ADS)," *Proc. of 4<sup>th</sup> Topical Meeting on Nuclear Application of Acceleration Technology*, Washington D.C., USA, Nov. 12 (2000).
  - (12) 鈴木, "円管内固液混相流の流動と熱伝達", 粉体工学会誌, Vol. 36, No. 9, pp. 44-46 (1999).
  - (13) 守田, 藤本, 福田, 飛田, 山野, 鈴木, 近藤, "多成分多相流の熱流動現象の数値シミュレーションに関する研究," JNC TY9400 2000-013 (2000).
  - (14) 鈴木, 山野, 飛田, 近藤, "画像処理を用いた拡散律速型蒸発／凝縮モデルの検証", JNC TN9400 2001-041 (2001).
  - (15) Suzuki, T., Yamano, H., Tobita, Y., Kondo, Sa., Morita, K. and Fukuda, K., "A Verification for Diffusion-Limited Vaporization/Condensation Model of SIMMER-III Code using Image-Processing Techniques," *Nuclear Engineering and Design*, to be submitted (2001).

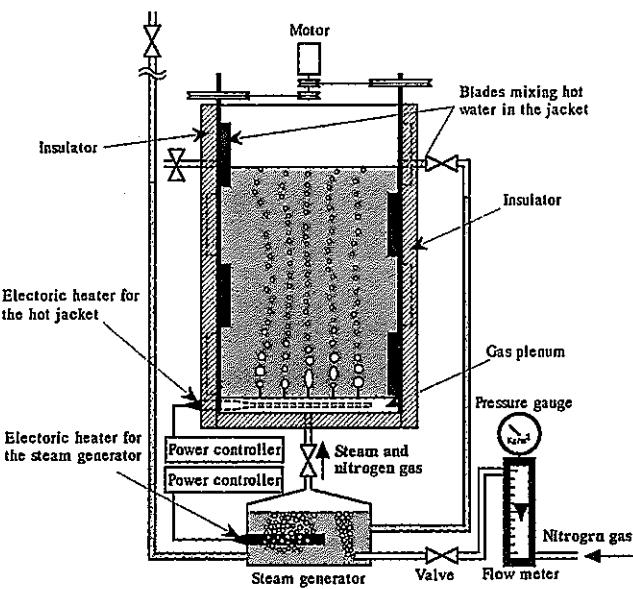


Fig. 1. Experimental apparatus.

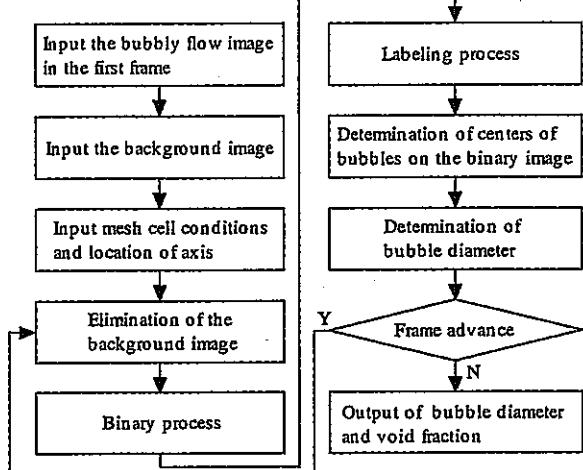
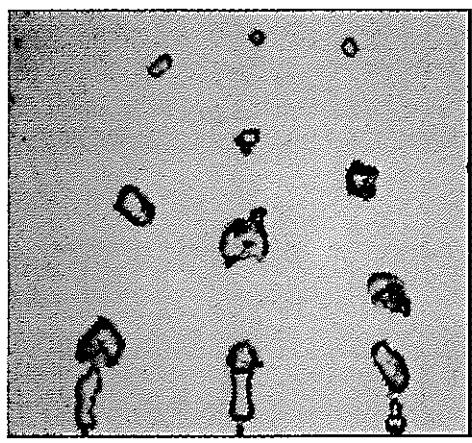
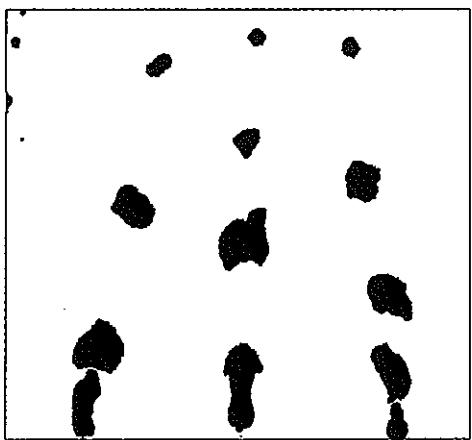


Fig. 2. Flow chart of image processing program.



(a) original image



(b) binary image

Fig. 3. Binary process.

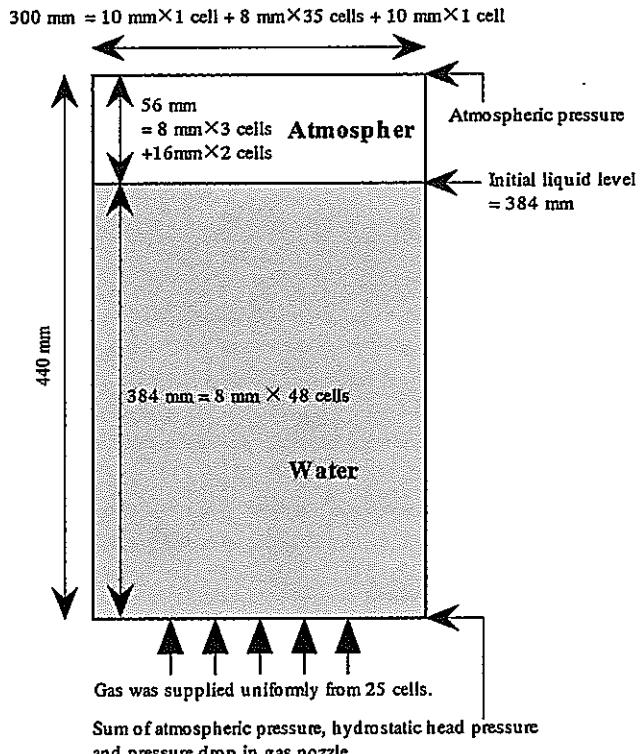


Fig. 4. Geometric model for analysis.

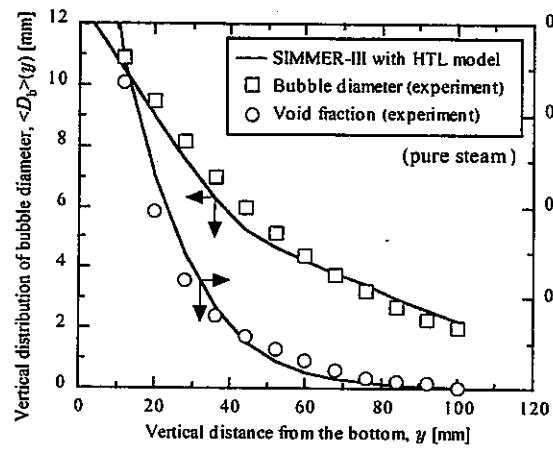


Fig. 5. Comparison between HTL model and experiment for pure steam system.

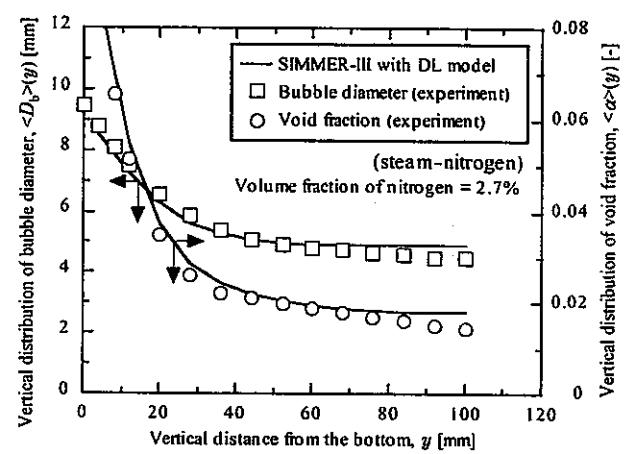


Fig. 6. Comparison between DL model and experiment for steam-nitrogen system.

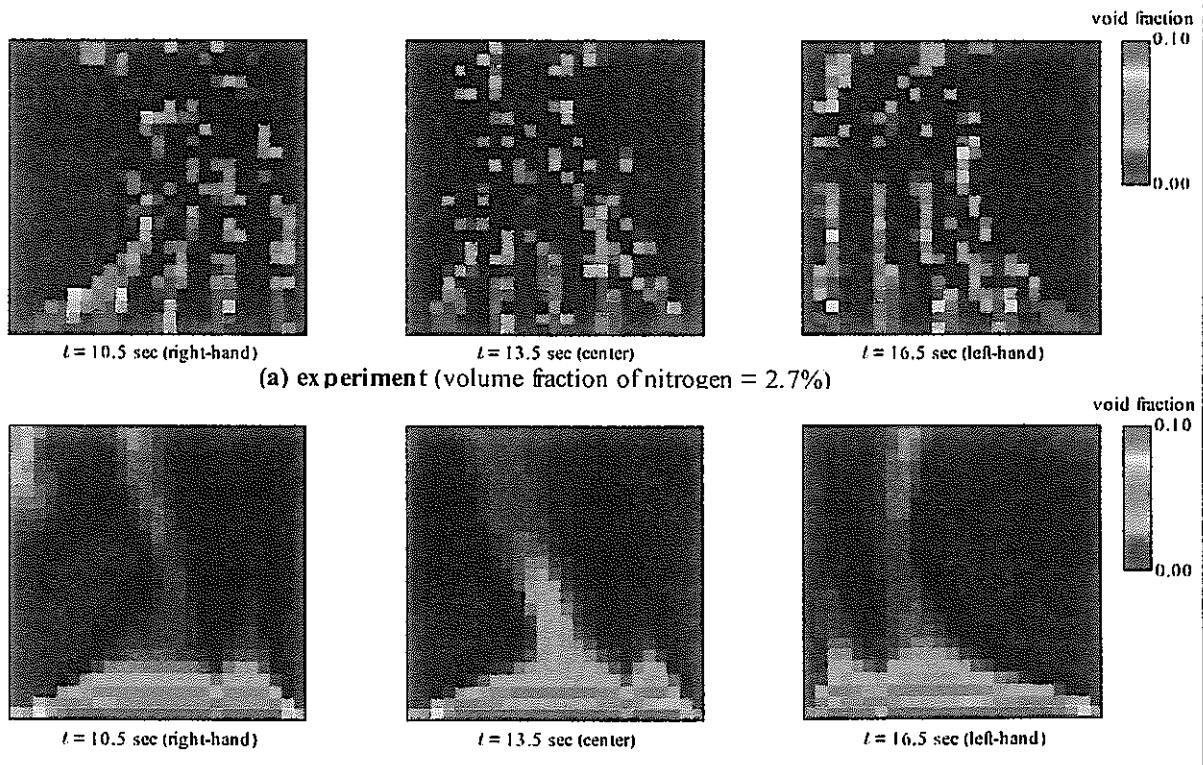


Fig. 7. Comparison of void distributions between SIM-III analysis with diffusion-limited model and experiment for steam-nitrogen system.

## 博士研究員（H 11）平成 12 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溶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 所属・氏名	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 Gr 飛田 吉春	所 属 長 役職・氏名	丹羽 元 GL
研究実施場所	大洗工学センター 機器構造第一試験室		
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 12 年 4 月 ~ 平成 13 年 3 月
<b>【研究目的】</b>			
<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>			
<b>【研究内容（概要）】</b>			
<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>			
<b>【使用主要施設】</b>			
大洗工学センター (大型計算機、Workstation、 SIMMER-III code 等)			

### 【進捗状況（当該年度までの概要）】

The drag coefficient correlations of hot particles in multi-particle system under laminar and turbulent flow conditions have been developed. The thermal fragmentation models due to boiling effect, external pressure pulse or the solidification of a melt droplet surface have been developed based on the instability analysis. The models are implemented into SIMMER-III and applied to simulate QUEOS, MIXA06 and KROTOS 28 experiments. In order to estimate the pressure exerted on the surface of the melt droplet, a vapor film collapse model and a heat conduction model are constructed and coded to study the pressure generation in the vapor film during the vapor film collapse and in the solid shell during the solidification, respectively. They are summarized in the following.

### 【研究実施状況（当該年度）】

#### (1) Development of drag correlations of a hot particle with vapor film in multi-particle system

In the fuel coolant interaction (FCI) phenomena, a configuration that a hot particle/droplet surrounded with vapor film moves in coolant liquid is featured, for which the drag correlation has not been developed. The drag correlation between a single hot particle with a vapor film and its surrounding coolant liquid was developed [7], based on the configuration observed from Nelson's experiment. Before the proposed drag correlations are implemented into the multi-phase, multi-component, fluid dynamics computer code, such as SIMMER-III to study FCI, the effect of the other particles on original particle's drag force should be considered in the proposed correlations. In this study, the drag coefficient correlations between a hot particle/droplet and the surrounding coolant liquid in multi-particle/droplet mixture system under laminar and turbulent flow conditions are developed based on the single hot particle model and basic conservative equations, in which the effect of the other particles on the original particle is considered by employing the mixture viscosity concept, developed by Ishii. The drag coefficient correlations are arranged into the formula expressed in dimensionless number as the following: for laminar case

$$C'_{D-\beta b} = a_0 (1 - \alpha_p)^{2n} + \frac{Ev\mu_0}{Re \rho_0} (1 - \alpha_p)^{2n} a_1 + \left( \frac{Ev\mu_0^2}{g_0 \rho_0} \right)^{\frac{1}{3}} (1 - \alpha_p)^{2n} a_2 + \frac{g_0}{Re^2} a_3$$

where  $a_0 = 1.894$ ,  $a_1 = -0.0001936$ ,  $a_2 = -0.05501$  and  $a_3 = 0.4013$  in the range of Reynolds number and Ev number from 100 and 60 to 2000 and 600, respectively. The n is -1.75 for particle, proposed by Ishii. For turbulent case

$$C'_{D-\beta b} = w_0 (1 - \alpha_p)^{2n} + \frac{Ev\mu_0}{\rho_0 Re} w_1 (1 - \alpha_p)^n + \left( \frac{Ev\mu_0^2}{g_0 \rho_0} \right)^{\frac{1}{3}} w_2 (1 - \alpha_p)^{2n} + \frac{g_0}{Re^2} w_3$$

where  $w_i$  is the constant, which is determined by employing Nelson and QUEOS experiments,  $w_0 = 0.006495$ ,  $w_1 = 0.06883$ ,  $w_2 = 0.01146$  and  $w_3 = 5.103$  and  $n = -1.75$  in the range of Reynolds number and Ev number from 3000 and 60 to 120000 and 400, respectively.

The proposed correlations are implemented into SIMMER-III and improved the agreement with QUEOS experiment, as shown in Fig. 1.

#### (2) Development of thermal fragmentation models

The fragmentation model of the melt droplets is essential to numerically study the FCI process. In the current multi-phase multi-component mathematical model, SIMMER-III, only a hydrodynamic fragmentation model has been employed. The calculated results of MIXA06 by SIMMER-III show that the thermal fragmentation (breakup) rate model is required for simulation tools [6]. In the past the thermal fragmentation mechanisms have been studied widely, but for self-triggering fragmentation cases, including boiling effect and solidification effect, no fragmentation rate models have been

proposed for simulation tools. In this study thermal fragmentation mechanisms are mapped out in Fig. 2, based on the thermal condition of the melt droplet and coolant. A Taylor instability mechanism is proposed to be the mechanisms for all three regions. The fastest growth mode of the instability is assumed to be the fragmentation rate. Based on the thermal condition of each region, simplified fragmentation rate expressions are proposed. The unified normalized thermal fragmentation rate is

$$\frac{1}{m_0} \frac{dm}{dt} = C_A C_B H(t - t_{lag}) e^{C_B(t-t_{lag})}$$

where  $C_A$  is constant of 0.01 and  $C_B$  is the parameter related to the acceleration exerted on the droplet surface, which is shown in the following table for different triggering events. The Heaviside function  $H(t - t_{lag})$  is designed to consider the time delay of the fragmentation after the triggering events occur in the system.

Triggering Event	External Pressure Pulse	Boiling Effect	Surface Solidification
$C_B$	$C_{PP}(P - P_\infty)$	$C_{BE}\Delta q_{NB\_MFB}$	$C_{SS}(T_{mp} - T_c)$

For the case that the fragmentation is induced by external pressure pulse, since the acceleration on the droplet surface is proportional to the external pressure pulse strength,  $C_B$  can be written as a function of pressure pulse. Because the pressure in the vapor film during the film collapse is also related to the droplet temperature, ambient pressure, coolant temperature and properties of the materials, a vapor film collapse model is constructed to solve the pressure generation in the vapor film. In this model, the dynamic film boiling process is modeled by writing a momentum equation for film dynamics, an energy equation for each region of the melt droplet, coolant vapor and liquid and linking each region by the appropriate boundary conditions. The integral approach is used in each region for the energy equations where the differential equation is integrated over the region and a temperature profile was assumed. The Runge-Kutta-Gill method is employed to solve the nonlinear differential equations. This model is used to solve the parameter  $C_{PP}$  according to the physical configuration of the system. An example is calculated in which the initial conditions are based on the conditions of Nelson's experiments. The pressure in the vapor film during the film collapse is plotted in Fig. 3, which shows that the generated pressure in the vapor film during the film collapse is several times as the triggering pressure pulse.

For the case that the fragmentation is induced by the boiling effect, since the pressure pulse in the vapor film is proportional to the evaporation rate difference between the stable vapor film boiling (MFBD) and nucleate boiling, which is related to the difference of the heat transfer to the interface of the vapor/coolant liquid,  $C_B$  can be written as a function of heat flux change. The  $C_{BE}$  is calculated by the vapor film collapse model described above according to the physical configuration of the system, in which the triggering event is modeled by the change of the heat flux to the coolant, instead of the external pressure pulse.

When a molten droplet is exposed to a coolant liquid, its surface solidifies. The deformation induced in the solid shell tends to compress the inner liquid region. This condition is aggravated by the extremely low compressibility of the droplet liquid. The pressurization on the interface between the solid shell and the inner molten liquid may be induced during the solidification process on the surface of the droplet, which induce the instability of the droplet surface. For the case that the fragmentation is induced by the solidification of the droplet surface, since the solidification of the droplet surface is dominated by the heat-transfer from the droplet to the coolant at the solidification point,  $C_B$  can be written as a function of the temperature difference between the droplet surface and coolant liquid.

Because the pressure generation is related to the temperature distribution in the droplet, coolant temperature and properties of the materials, a heat conduction model is constructed to solve the pressurization in the solid shell, which is based on the assumption that the solidified shell acts in an elastic manner, like a membrane with elasticity on the droplet surface. In this model, considering the solid shell with elasticity, the total surface tension can be written as

$$\sigma_t = \sigma + \frac{D_s}{2R}$$

where  $\sigma_t$  is the surface tension of the melt droplet including the term of shell stiffness,  $\sigma$  is the surface tension of the melt droplet without the solid shell,  $D_s$  is the shell stiffness and R the radius of the droplet. The  $C_{ss}$  is calculated by this model according to the physical configuration of the system. An example is calculated in which the initial conditions are based on the conditions of MIXA06's experiment. The variation of the thickness of the solid shell with time is plotted in Fig. 4. The variation of the total surface tension and pressurization with the thickness of the solid shell is plotted in Fig. 5. These two figures show that the instability is possible during the solidification on the droplet surface. In the range of the time scale of the fragmentation (several milliseconds), the total surface tension is not increased very large, the same order as that without the solid shell. During this period, the pressure increases to hundreds bars. That means the instability can be induced by the solidification on the droplet surface.

The diameter of the cross section of the spikes on the surface due to the instability is considered as the size of the fragments, which can be written as

$$d_{frag} = \frac{d}{\left( \frac{\Delta P d}{2\sigma_t} \right)^{0.25}}$$

where  $d_{frag}$  is the fragment size, d is the diameter of the original droplet and  $\Delta P$  is pressure exerted on the droplet surface. The prediction of the fragment size given by this model is compared with several experimental data, as shown in Fig. 6, which show the ability of this model.

The proposed model is implemented into SIMMER-III and applied to simulate the MIXA06 experiment. The front advancement of the stream of the melt droplets in water is plotted in Fig. 7, which shows that in the low Weber number case the proposed thermal fragmentation model much improves the prediction of the front advancement of the stream of the melt droplets in water comparing with hydrodynamic fragmentation model.

#### 【今後の予定（翌年度以降の概要）】

In the next year, 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 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 TN9400 2000-105.
- [2] Xuewu Cao and Yoshiharu Tobita, Simulation of Premixing Experiment QUEOS by SIMMER-III, JNC TN9401 2000-100.
- [3] Xuewu Cao and Yoshiharu Tobita, Study on Drag Coefficient For the Particle/Drop Under FCI Condition, JNC TN9401 2000-x (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, Drag Correlations For Hot Particle/Droplet with Vapor Film, 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-x (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」G7.
- [8] Xuewu Cao and Yoshiharu Tobita, Verification of SIMMER-III Modeling on FCI Through the Simulation of MIXA Experiment, 日本原子力学会「2001年春の年会」J24.
- [9] Xuewu Cao and Yoshiharu Tobita, Verification of Drag Coefficient Model on Premixing Phase of Fuel Coolant Interaction, ICMF 2001, 4<sup>th</sup> International Conference on Multiphase Flow, May 27-June 1, 2001, New Orleans, USA.
- [10] Xuewu Cao and Yoshiharu Tobita, A Proposal of the Thermal Fragmentation Model for Numerical Study of FCI, 日本原子力学会「2000年秋の大会」(in submission).

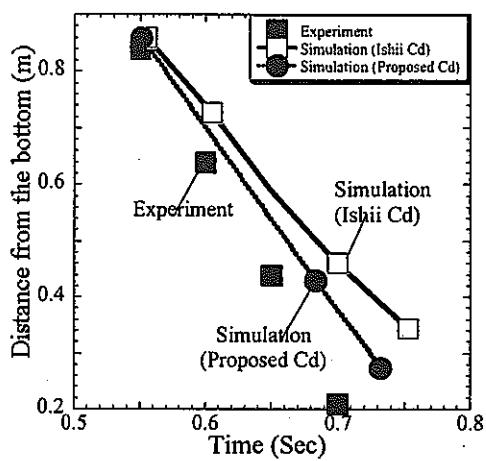


Fig. 1 The front advancement of sphere cloud in Q35 by SIMMER-III

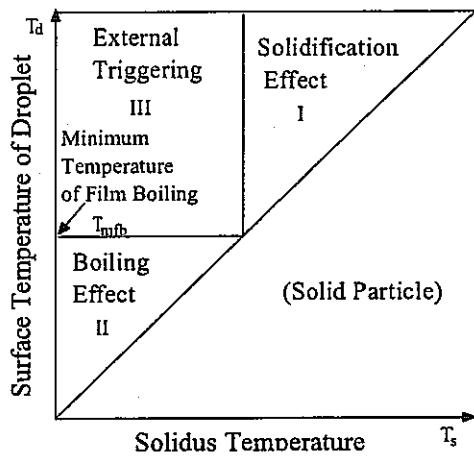


Fig. 2 The map of the thermal fragmentation mechanism

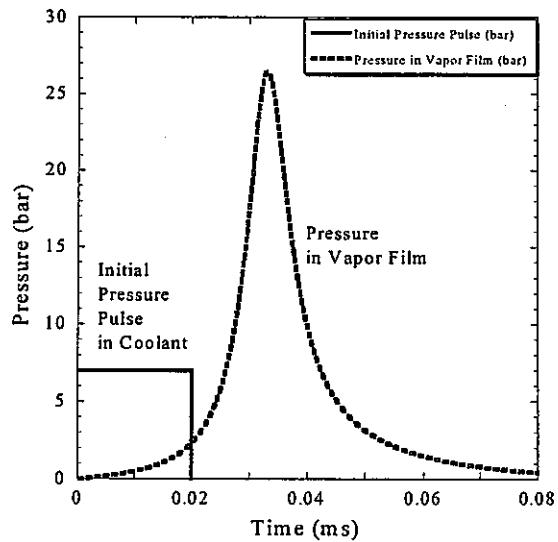


Fig. 3 The pressure in vapor film during the film collapse

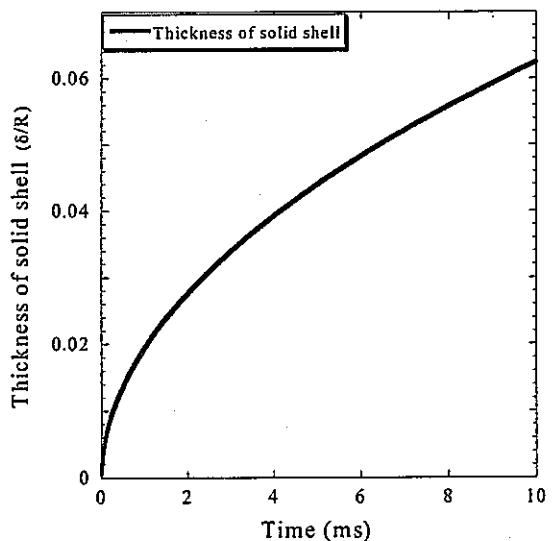


Fig. 4 The variation of thickness of solid shell with time

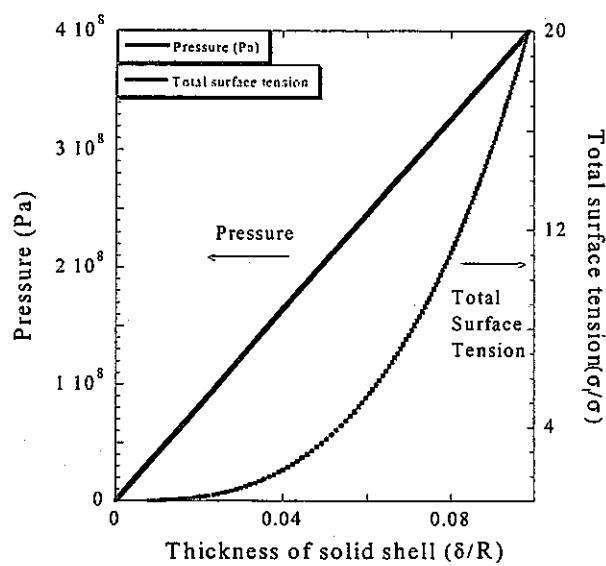


Fig. 5 The variation of total surface tension and pressure on the interface with thickness of solid shell

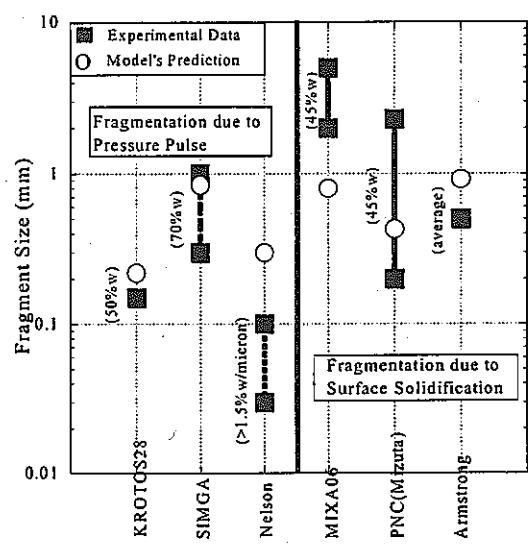


Fig. 6 The comparison of fragment size with experimental data

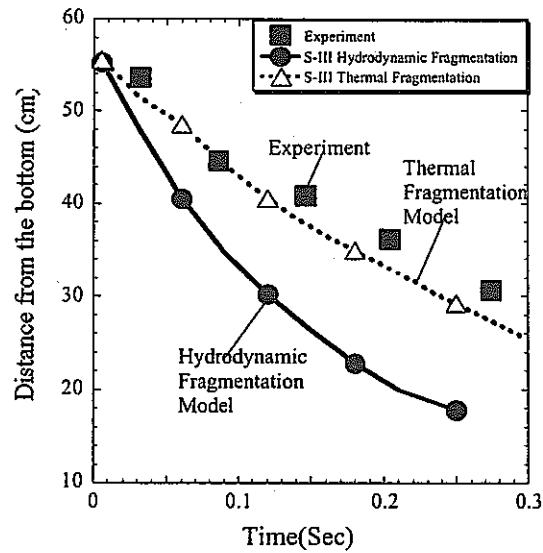


Fig. 7 The front advancement of the melt droplets in water in MIXA06

## 博士研究員（H11）平成12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 所属・氏名	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 名古屋大学大学院工学研究科 教授 井口 哲夫 東京大学大学院工学系研究科 教授 中澤 正治	所 属 長 役職・氏名	実験炉部技術課長 大戸 敏弘
研究実施場所	大洗工学センター ナトリウム分析棟		
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12年 4月 ~ 平成13年 3月
<b>【研究目的】</b> 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目標に、詳細かつ統括的な検討を行なう。			
<b>【研究内容（概要）】</b> レーザ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の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。			
<b>【使用主要施設】</b> 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）			

### 【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。

平成12年度は、前年度に設計、導入したRIMSシステムについて立ち上げ調整を行い、「常陽」のカバーガス中のXe同位体分析への性能評価試験を実施した。またRIMSの感度校正用に大気圧イオン化質量分析システム(APIMS)を導入し、性能評価試験を実施した。

### 【研究成果（当該年度）】

#### 1. RIMSシステムの立ち上げ調整

##### 1.1 飛行時間型質量分析器(TOFMS)の調整

まず数回に渡り十分なベーキングを行い、真空度が数日で $10^{-7}$ Paのオーダに達することを確認した。その後、電子銃を用いてTOFMS(飛行時間型質量分析器)の調整を行なった。試料ガスとしてはXeの純ガスを用い、ニードル弁による流量調整により、真空度が飛行管側で $10^{-5}$ Pa程度となるようにリーグ注入した。さらにTOFMSのイオン源中の反発電極と引出電極間に矩形パルス状の高電圧を附加することで、電子衝撃イオン化により生じたイオンをパルス状に飛行管に送り込みTOFMSを動作させた。各電極に印可する電圧、及びイオン検出に用いるMCPの動作条件を最適化することで、直線型のTOFMSとして動作させた場合、100程度の質量分解能を有し、反射型のTOFMSとして動作させた場合には300程度の質量分解能を有することを確認した。

##### 1.2 超音速パルス分子線バルブ(PSV)の調整

電子銃による電子衝撃イオン化を用いたPSVの動作試験を行なった。このPSVは数 $10\sim100\mu\text{sec}$ のガスジェットを10Hzで発生することが出来、それを矩形パルス発生時に同期して動作させた。同じ真空度に対し、信号強度は二桁向上した。また同期を外すことで信号強度が急激に減少することを確認した。

##### 1.3 Xe共鳴イオン化用レーザの調整

本システムによりXe、Krの共鳴イオン化に必要な256nm、212nmを発生する。これまでに行なった調整は以下に示すものであり、これは最も基本的なものである。この調整には、レーザを起動するたびに数時間程度を要する。

###### 1.3.1 Nd:YAGレーザの調整

OPOを励起する為に三倍波出力で400mJ/pulseが良好なモードにて必要であることから、本Nd:YAGレーザはインジェクションシーディングされたオシレータと後段の二段の増幅器の組み合わせにより構成されている。良好なモードを有するレーザの発振の為、フラッシュランプ電圧、Qスイッチのタイミング、シーダ、リアミラー、光軸等の最適化を図り、基本的な調整を行なった。その結果、出力400mJ/pulseで、シングルモード、TEM00モードの良好なビームの発生を確認した。

###### 1.3.2 OPOレーザの調整

後段の二倍高調波発生器の変換効率が20%程度であることを考えると、OPO出力としては512nmで50mJ/pulse必要であることから、OPOも上記のNd:YAGレーザと同様、オシレータと後段の二段の増幅器の組み合わせにより構成されている。オシレータでは結晶のダメージを抑える為、出来るだけ小さな励起光で発振させる必要があり、最適化の結果、数mJでの発振に成功した。またオシレータ出力を355nmと同軸上に合わせて二段の増幅器に入射し、位相整合条件を満たすように結晶軸を調整することで、512nmで50mJ/pulse出力を確認した。

### 1.3.3 二倍高調波発生器、和周波混合発生器の調整

一対の BBO 結晶により二倍高調波発生、及び和周波混合発生を行なう。一方は光軸のコンペンセータとして動作する。光軸と位相整合条件を満たすように結晶軸を調整することで、10mJ/pulse 程度の 256nm、212nm の発生を確認した。更にペリンプロックアブリズムを用いて波長をスキャンした際に、出力光の光軸が変わらないように調整を行なった。

## 2. Xe 検出性能評価実験

Xe 共鳴イオン化用レーザと TOFMS を連動させ、RIMS による Xe 検出予備実験を行なった。まず Nd:YAG レーザに対し、フラッシュランプ用トリガーと Q スイッチ用トリガーの同期はデジタル遅延発生器 DG535(Stanford Research 社製)より行った。またマスター オシレータとしてデジタル遅延発生器 9656A(Princeton Applied Research 社製)からの 10Hz の基準 TTL パルスを DG535 と PSV を供給することで、Xe 共鳴イオン化用レーザと TOFMS の同期をとった。レーザ出力は写真 1 に示したように四枚の誘電体多層膜ミラーにより導き、収差を抑える為片凸の球面レンズにより TOFMS のイオン化チャンバ内に集光した。PSV の背圧は約 1 気圧、パルス幅は 50 μ sec 前後である。また TOFMS は反射型にて動作させた。なお試料としては天然同位体組成比の 30ppb の Xe を含む Ar ガスを用いた。

試料として温度制御型材料照射装置(MARICO)を用いて内圧クリープ破断強度試験を行なった際に破断試料より放出されカバーガス中に移行するタグガスを模擬して作成した天然同位体組成比の 10ppb の Kr、Xe を含む Ar ガスを用いた。30 分間の積算により求めた質量スペクトルを図 1 に示す。質量分解能は 800 度であり、レーザイオン化を用いることで電子衝撃イオン化を用いた場合に比べ大幅な改善が図れていることが判る。また表 1 に同位体組成比に関する測定結果と文献値の比較を示す。上記試験において、破断試料の同定を行なう為には、最低濃度の核種 2% に対し同位体組成比の測定精度 20% 以内であることが必要である。従って本表から本システムが感度、精度共に要求性能を満たすことを確認した。

なお Ar の質量数の辺りに複数のピークが見られる。これらのピーク強度は入射レーザパワーに比例する。また共鳴イオン化の波長以外でも存在する。もんじゅ FFDL への適用を考えた場合には本ピークの相対イオン強度は二桁向上するので、MCP の飽和により窒息させ、性能を低下させる原因となる可能性がある。現在原因を解明中であるが、おそらく用いている波長が紫外域で光子のエネルギーが金属の典型的な仕事関数の値を超えることから、窓材等で反射、散乱したレーザが電極に当たって光電子を放出し、電極間の電場により加速されて主な成分である Ar をイオン化したものと考えている。まず Ar の質量数である 40 周辺をマスゲートにより除去することを検討している。

## 3. APIMS 基礎性能評価実験

APIMS について RIMS の検出感度補正措置としての適用に当たり性能評価試験を行なった。試料としては天然同位体組成比の同じ濃度の Kr,Xe を含有する Ar ガスを用いた。Kr,Xe の濃度は 100ppt から 10ppb までマスフローコントローラーを用いてスキャンした。図 2 に Kr、図 3 に Xe の質量スペクトルを示す。大気圧イオン化には共鳴イオン化のような選択性が無い為、同重体干渉による影響が見られる。この影響の無い核種について検量線を作成したのが図 4、図 5 である。本手法が濃度に対し良好な直線を有することを確認できる。また検出限界については Kr,Xe 共に 50ppt 程度であり、以上から APIMS が本適用に対し十分な性能を有することが確認できた。

### 【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 13 年度は、これまで導入、調整を図ってきた各機器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】

- 1) 原野英樹、野瀬正一、伊藤和寛、渡辺賢一、井口哲夫、「RIMS を用いた Na 冷却型高速炉用破損燃料位置検出システムの開発」、第 61 回応用物理学会学術講演会(2000 年)6p-V-1
- 2) 野瀬正一、原野英樹、伊藤和寛、渡辺賢一、井口哲夫、「レーザ共鳴イオン化質量分析法を用いた高速実験炉『常陽』微量希ガス検出システムの設計」、日本原子力学会 2000 年秋の大会(2000 年) C27
- 3) 原野英樹、野瀬正一、伊藤和寛、「レーザ共鳴イオン化質量分析法 (RIMS) を用いた Na 冷却型高速炉用破損燃料位置検出システムの開発 —「常陽」RIMS システムの設計—」、JNC TN9400 2000-076 (2000 年)
- 4) Hideki HARANO, Shoichi NOSE, Kazuhiro ITO, Kenichi Watanabe, Tetsuo Iguchi, "Laser Resonance Ionization Mass Spectrometry for Failed Fuel Detection and Location in the Experimental Fast Reactor JOYO.", The tenth international symposium on resonance ionization spectroscopy and its applications, Knoxville, Tennessee, USA (October 8-12, 2000).

表 1 Xe ガスの同位体分析結果と文献値の比較

m/z	Abundance [%]		Ratio M/N
	Measurement (M)	Natural (N)	
128	1.84	1.92	0.96
129	26.80	26.44	1.01
130	4.00	4.08	0.98
131	21.27	21.18	1.00
132	27.04	26.89	1.01
134	10.35	10.44	0.99
136	8.70	8.87	0.98

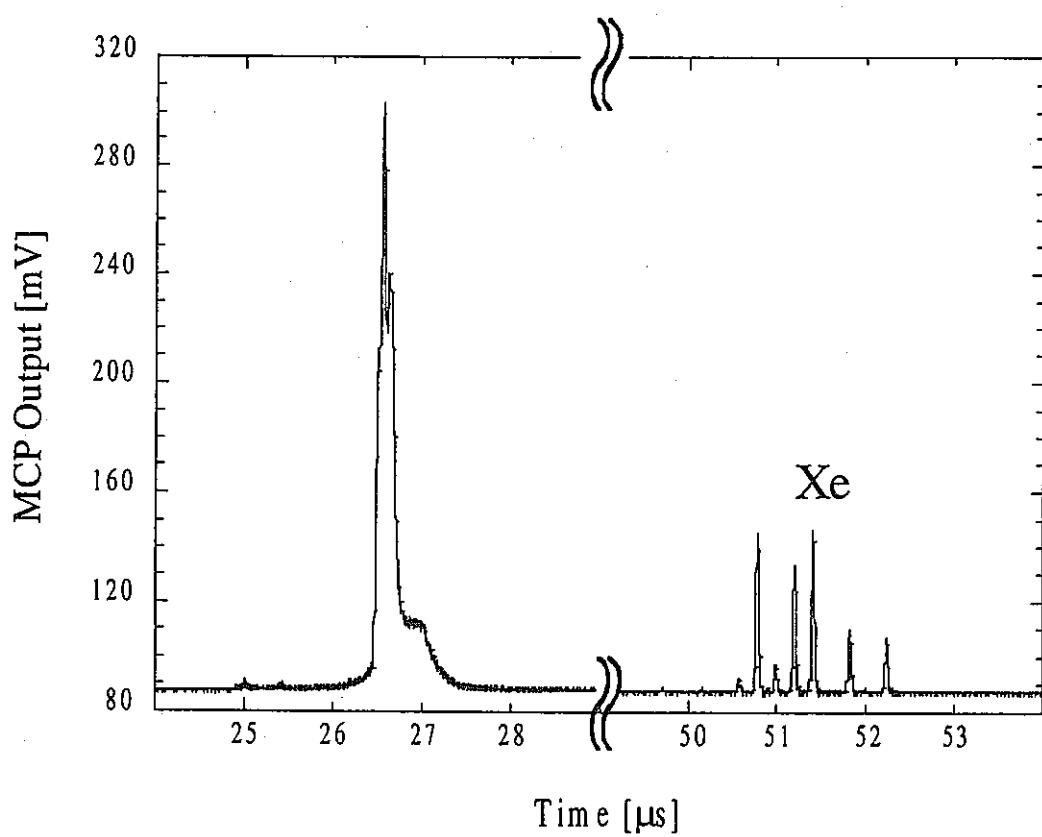


図 1 「常陽」でのクリープ照射試験試料が破断してタガガスが放出されたカバーガスを模擬した Ar ガス中微量 Xe ガスの質量スペクトル測定結果

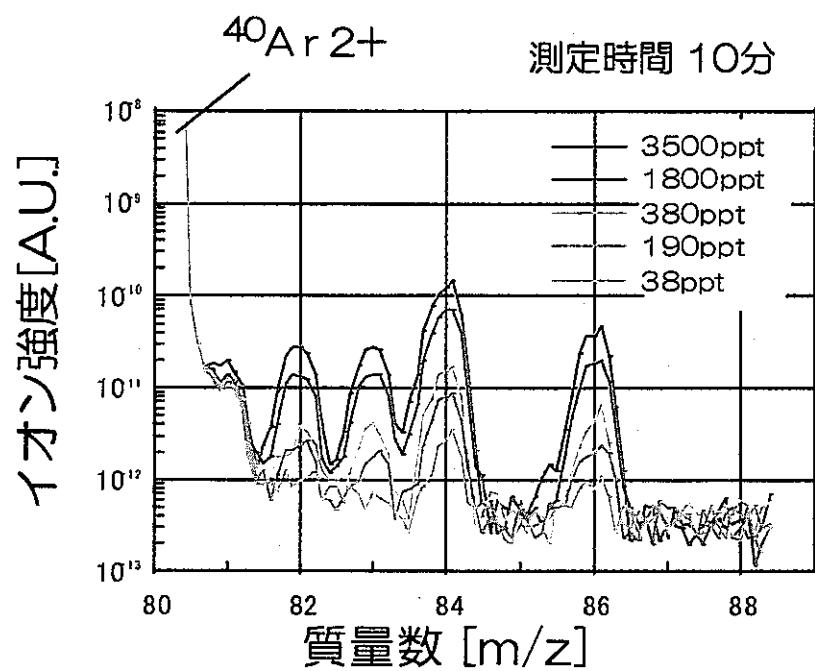


図2 APIMSによるKrガス測定結果

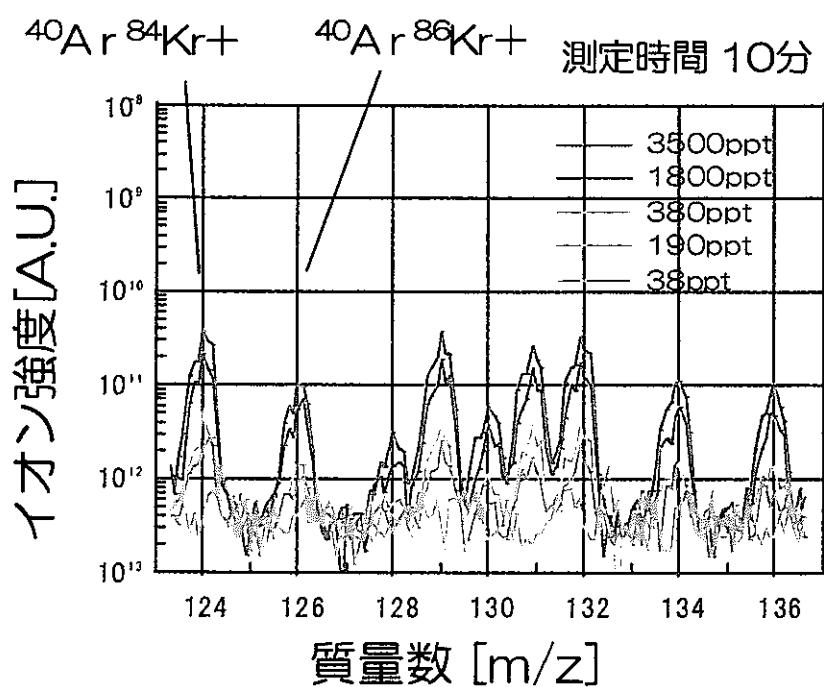


図3 APIMSによるXeガス測定結果

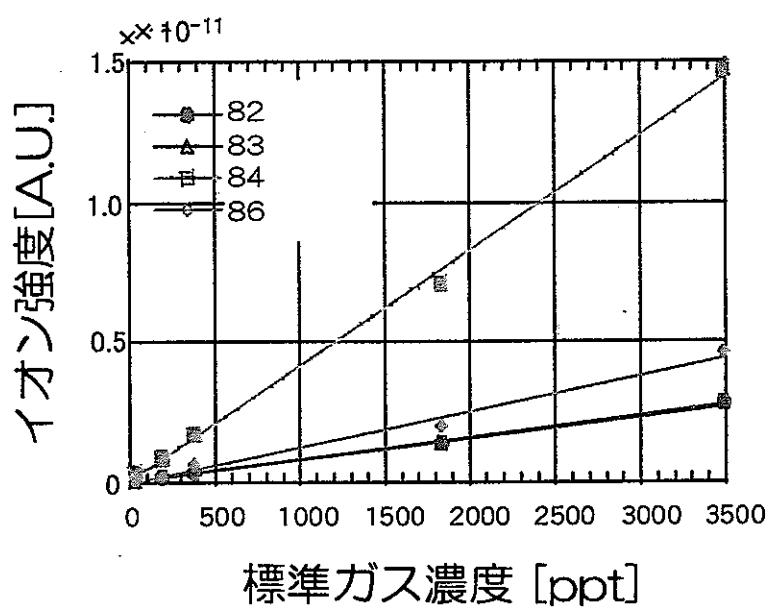


図4 Krガス測定によるAPIMSの検量線

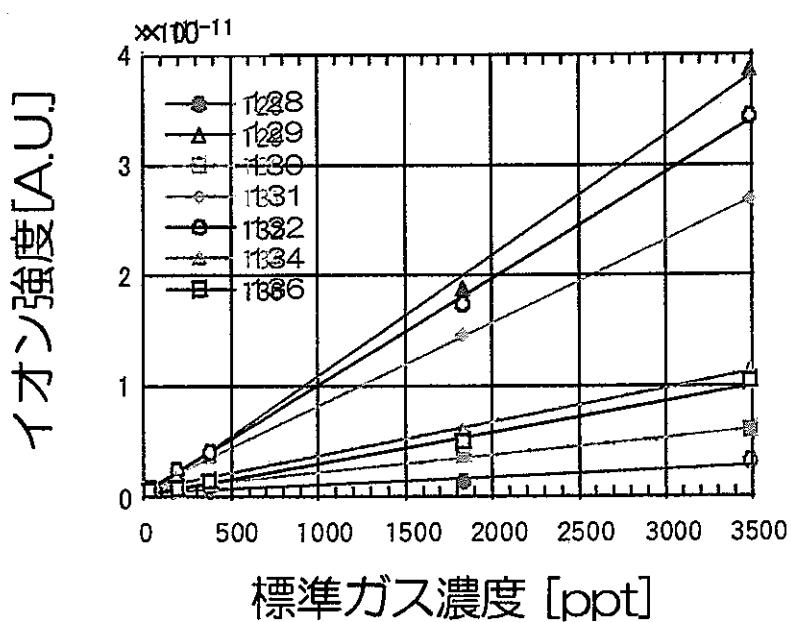


図5 Xeガス測定によるAPIMSの検量線

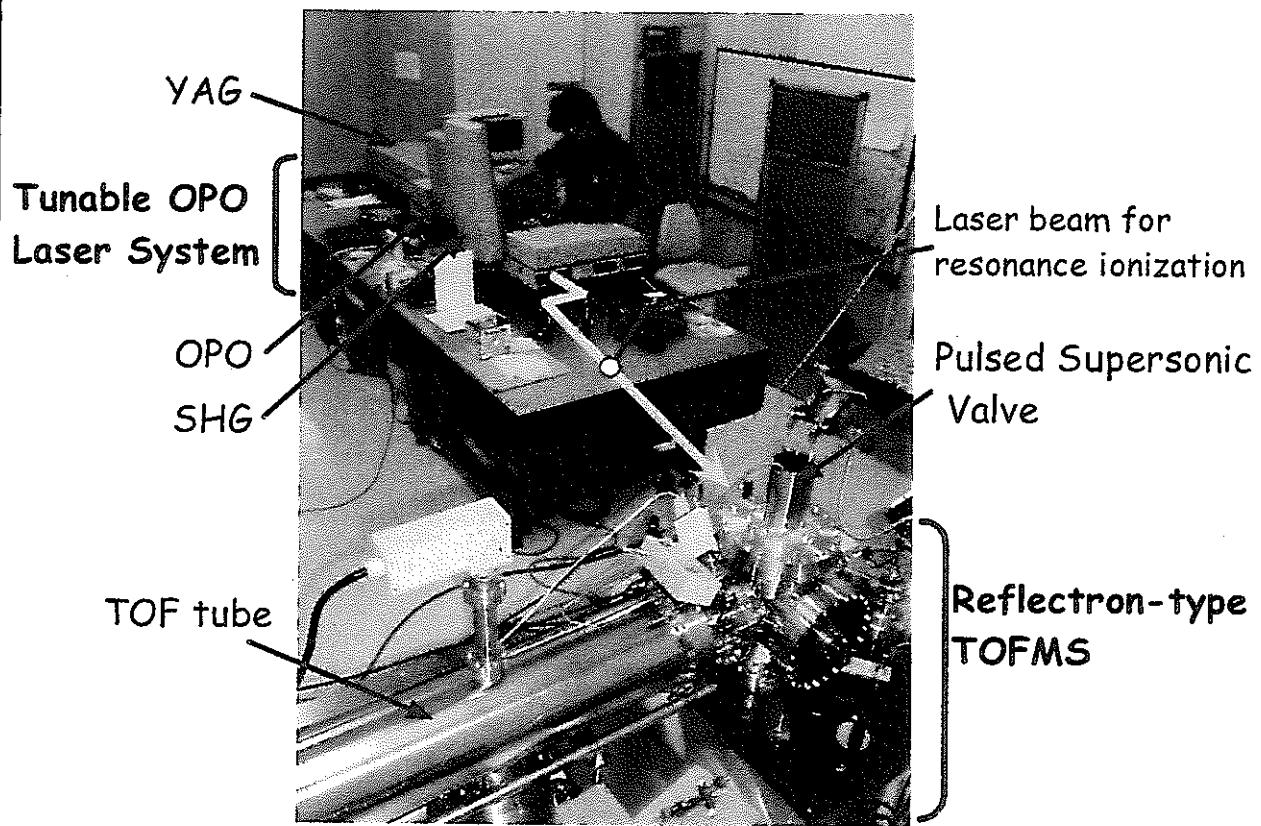


写真1 Xe用RIMSシステム

博士研究員（H12）平成12年度研究概要報告書

研究テーマ	ナトリウム燃焼の化学熱力学に関する研究		
研究者氏名	黄 錦涛(Jintao HUANG)		
研究協力者 所属・氏名	大洗工学センター 要素技術開発部 機器・構造安全工学 Gr. 古川 智弘	所属長 役職・氏名	グルーブリーダー 青砥 紀身
研究実施場所	大洗工学センター ナトリウム技術開発第1試験室		
通算研究期間 (予定)	平成12年 4月 ~ 平成15年 3月	当該年度 研究期間	平成12年 4月 ~ 平成13年 3月
【研究目的】			
<p>「もんじゅ」のナトリウム漏えい事故以来、漏えい箇所を模擬した体系によるナトリウム漏えい燃焼実験が実施された。その際、ナトリウム燃焼生成物による鉄基材料の腐食について化学熱力学的および化学量論的な検討が行なわたれど、ナトリウム化合物は、酸素、水蒸気や水素など雰囲気の強い影響を受けやすいために測定する環境により熱力学データに大きな誤差が生じやすく、高い信頼性を持つデータが整備されていないことが明らかとなった。そのため、ナトリウム化合物の熱力学特性を雰囲気制御可能な条件下で直接測定し、信頼性の高い熱力学データを得て、腐食機構を解明することを目的とした。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>サイクル機構に導入されている四重極質量分析計で信頼性の高いナトリウム化合物の蒸気圧を測定出来るように、試料部の改造を行う。研究対象は <math>\text{Na}\cdot\text{Fe}\cdot(\text{O},\text{H})</math> 中心として、<math>\text{NaFeO}_2</math>, <math>\text{Na}_4\text{FeO}_3</math>, <math>\text{Na}_5\text{FeO}_4</math> 等の代表的な化合物から蒸発特性を測定し、各化合物の安定な条件を明らかにする。さらに、これらのナトリウム化合物の挙動と雰囲気の関係について、制御可能な雰囲気下で、酸素、水蒸気、水素などの影響を調べる。これらの実験結果と熱力学計算コード（Thermo-Calc）を用いて、多元・多相系での平衡解析や、模擬するある環境条件での反応挙動を調べる。</p>			
【使用主要施設】			
<p>本研究を実施するために使用する装置名とその内容：</p> <ol style="list-style-type: none"> <li>1. Na 化合物蒸気圧測定装置：Knudsen-cell 蒸発+四重極質量分析計（Microvision Plus 300D）、蒸気分圧の測定により、材料の熱力学データを評価。</li> <li>2. 熱測定装置 TG-DTA：相変態の確認、定性測定；相変温度の測定。</li> <li>3. 热測定装置 DSC：相変態に関する吸熱・放熱、Na 化合物の熱容量等の定量測定。</li> <li>4. X線回折装置：試料成分、相の検定、不純物の検査。</li> <li>5. Thermo-Calc コード等を用いた熱力学模擬計算。</li> </ol>			

### 【進捗状況（当該年度までの概要）】

（平成 12 年度より研究着手）完成した蒸気圧測定装置の調整、パラメータ影響調査、および温度・蒸気圧校正を実施した。また、ナトリウム化合物と試料容器（クヌーセンセル）材質との反応性に関する研究を実施し、白金製セルを用いることで蒸気圧測定試験を実施できる見通しを得た。ナトリウムを含有する分子のイオン化断面積は、現在のところ、実験データと理論的結果の両方とも報告されていないため、本研究で分子軌道理論に基づく BEB モデル（Binary-Encounter-Beth model）を用いて、Fe-Na-O-H 系中の NaO(g)、NaOH(g)、Na<sub>2</sub>O(g) および Na<sub>2</sub>(g) の分子イオン化断面積を電子衝撃エネルギーの関数として求めた。さらに、このモデルから得られた結果について信頼性の評価を実施した。

### 【研究成果（当該年度）】

本研究に使用するクヌーセン流出四重極質量分析計（以下、KEMS）は、平成 11 年 12 月に完成、設置された。ナトリウム一鉄複合酸化物の信頼性のある熱力学データを取得していくにあたり、この納入された同装置構成から得られるデータの信頼性を事前に評価しておくことが重要となる。

そこで、本研究開始からのこれまでの半年間に、以下に示すように、装置のセッティング、各種パラメータの影響調査、温度および圧力校正等を実施するとともに、これらに基づいて蒸気圧測定条件を最適化し、蒸気圧算出に必要な装置定数を以下のとおり決定した。

$$\text{装置定数 } K = 337500 \pm 5500 \quad (\text{蒸気圧 } P(\text{Pa}) = K * I * T / (\alpha * \beta * \sigma))$$

当初、蒸気圧測定装置のナトリウム化合物充填セルとして使用する予定であった耐熱性に優れるモリブデン（Mo）は、水酸化ナトリウム（NaOH）やナトリウム酸化物（Na<sub>2</sub>O<sub>2</sub>、Na<sub>2</sub>O）と激しい反応があり使用に適していないことが、その後の予備試験で分かった。そこで、ナトリウム化合物と試験容器との反応性についての検討（約 20 種類の金属を抽出）を行い、選定した白金（Pt）について、NaOH、NaFeO<sub>2</sub>、Na<sub>2</sub>O を用いて高温試験を行った。この結果、Pt セルは 1200°C まで腐食は見られず、クヌーセンセル（試験容器）の材質として、蒸気圧測定試験に使用できることを明らかにした。

高温質量分析評価では、蒸気圧解析に必要なイオン種を得るために電子衝撃イオン化断面積（ $\sigma$ ）を必要とする。しかしながら、原子の蒸気種に対するイオン化断面積については、既に実験的に測定され、データベース化されているのに対して、分子の蒸気種のそれに対しては、理論的な評価および実験的データが非常に限定されているのが現状である。特に、ナトリウムを含有する分子のイオン化断面積は、現在のところ、実験データと理論的結果の両方とも報告されていない。そこで、本研究で分子軌道理論に基づく BEB モデル（Binary-Encounter-Beth model）を用いて、Fe-Na-O-H 系中の NaO(g)、NaOH(g)、Na<sub>2</sub>O(g) および Na<sub>2</sub>(g) の分子イオン化断面積を電子衝撃エネルギーの関数として求めた。さらに、このモデルから得られた結果について信頼性の評価を実施した。

### 【詳細結果】

これまでに実施した各種の事前評価結果の概略を以下に示す。

#### （1）クヌーセンセル-質量分析部間の垂直軸合わせ

蒸気圧を測定するにあたっては、クヌーセンセル-質量分析部間の垂直軸のズレを最小限にとどめておく必要がある。そこで、同装置の上部に CCD カメラシステムを付加し（Fig.1 参照）、このカメラ映像をベースに両者の垂直軸合わせを行った。この結果をもとに、クヌーセンセルの標準位置（XY 方向）を決定し、再現性のあるデータを取得することができるようにになった。

#### （2）質量分析部の質量数測定校正

一連の予備評価をしている段階で、質量数の校正を実施しても、フィラメントの安定性等の影響を受けて時間とともにわずかではあるが、質量数測定位置が徐々に変化することがわかった。導入した四重極質量分析計では低質量数および高質量数の 2 点を設定することで質量数を校正することができるが、この影響は質量数の高い側で特に注意が必要であり、これまでの調査結果から、高質量数側を最適化することで、低質量数側に影響を及ぼさない範囲で、広い質量数測定範囲で校正を最適化す

ることが分かった。

### (3) 真シグナル識別およびノイズ減少評価

蒸気圧測定では、クヌーセンセルから生じる蒸気とクヌーセンセルが装填されたチャンバー内に残存する不純物蒸気との区別が重要となる。本装置には、液体窒素 ( $\text{LN}_2$ ) をチャンバー壁に充填、冷却させることでチャンバーからの不純物蒸気(主は  $\text{H}_2\text{O}$ )を減少させることができる。そこで、銀(Ag)を標準試料(測定試料)として、 $\text{LN}_2$ 充填前後の各質量のイオン強度(蒸気圧に相当)を測定した。

この結果、 $\text{LN}_2$ 充填しチャンバー温度を低下させることで、18amu ( $\text{H}_2\text{O}$ ) のイオン強度が減少すること、そしてクヌーセンセルから発せられる真シグナルである  $107\text{amu}^{(107)\text{Ag}}$  および  $109\text{amu}^{(109)\text{Ag}}$  の強度は変化しないことを確認した。つまり、チャンバーに  $\text{LN}_2$ を充填することで効率よくクヌーセンセルからの蒸気を検出することができる事を確認できた。

### (4) 電子衝撃エネルギーの決定とパラメータ調整による感度改善

電子衝撃エネルギーの決定は、Ag および鉛 (Pb) を用いて定めた。この結果から、約 6eV 程度からイオン化断面積が増加しはじめ、20eV でほぼ飽和することが確認された。この結果から、電子衝撃エネルギーを 20eV とすることとした。

さらに、測定感度を向上させるために、イオンエネルギーおよび外部電圧をパラメータにして測定感度評価を実施した。その結果、イオンエネルギーを 5.5eV、外部電圧を 110V とすることで感度を効果的に向上できることができた (Fig.2)。

### (5) 温度校正

熱力学データ取得に対して、温度の測定精度が非常に重要なことはいうまでもない。そこで、Pb および Ag を温度校正試料として、両試料の融解・凝固時の温度挙動から温度校正を行った。本装置校正では次式を適用することで精度よく温度校正ができることが分かった (Fig.3)。

$$T(\text{K-cell}) = T(\text{set}) \times 1.058 - 0.443$$

ここで、  $T(\text{K-cell})$  : クヌーセンセル温度 (真温度)、°C

$T(\text{set})$  : 熱電対指示値、°C

### (6) 蒸気圧校正

最も重要な蒸気圧校正を Ag および Pb を標準試料として実施した。

はじめに、両試料のイオン強度の温度依存性を測定し、これから、エンタルピー ( $\Delta H$ ) を算出した。この結果は、それぞれ-62.3kcal/mol および-42.2kcal/mol であり、これまでに報告されている値とよく一致することを確認した (Fig. 4)。

この結果に基づいて、蒸気圧算出に必要な装置定数 (K) を算出した。この両者の結果はよく一致し、両者の結果に基づき、本装置における K は、 $337500 \pm 550$  と決定した。

この時の、蒸気圧測定条件は以下のとおり。

Electron emission current: 0.29mA

Impact electron energy: 20eV

Ion energy: 5.5eV

Extract voltages: 110V

Geometrical position of the K-cell:

Vertical position of the K-cell: 0mm

Left (X-axis); 5.07mm

Right (X-axis); 5.83mm

Back (Y-axis); 5.08mm

Front (Y-axis); 5.21mm

### (7) ナトリウム化合物と Mo セルとの反応性

上記の装置の基本特性試験を終了し、Na 化合物を用いた分析に着手した。ここでは Mo セルの中に  $\text{NaFeO}_2$  を設置し、室温から 1200°C までの温度範囲で試験を実施した。この結果、 $\text{NaFeO}_2$  の分解物である  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  とともに、セルとの反応生成物である  $\text{Na}_2\text{MoO}_4$  と  $\text{Na}_2\text{Mo}_3\text{O}_6$  が検出された。また、Mo と NaOH の反応性について調べた結果、800°C 以上で Mo は激しく腐食され、セルが壊れることが確認された。

これらの結果から、Na 化合物の測定には Mo の使用が適していないことがわかった。

#### (8) ナトリウム化合物と Pt セルとの反応性

ナトリウム化合物と試験容器（試験セル）との反応性についての検討を行い、Pt セルが使用に適していると判断した。そこで、可視化システムが備えられた赤外線加熱炉を用いて、1200°Cまでの Pt-NaFeO<sub>2</sub> 反応性確認試験を行った。その結果、Pt は元の光沢のある金属色を保持し、NaFeO<sub>2</sub> との反応が生じないことが確認された。また、NaOH を Pt セルの中に設置し、加熱した時にも、NaOH 液体全てが蒸発するまで Pt との反応は観察されなかった。

この予備試験試験結果を踏まえ、Pt 製 クヌーセンセルを製作し、Na<sub>2</sub>O 試料の蒸気圧測定試験を開始した。その結果、本蒸気圧測定装置の温度上限の 1200°C まで、白金は クヌーセンセルとして使えることが明らかとなった。

#### (9) Q-mass 分析部の感度改良

信頼性の高い Na 化合物の化学熱力学特性値を取得するには、その分析精度をいかに高く保つかという課題がある。各種の微量な蒸気種の発生を伴う Na 化合物の蒸気圧測定では、特にバックグラウンドレベルの分析精度を上げておく必要がある。このため、Q-mass のフィラメント材質をタンクスデン(W) から ThO<sub>2</sub>/Ir に変更して検出感度の向上を図った。変更前後の検出感度について比較検討した結果、電子発射率が数十倍高くなり、バックグラウンドレベルの検出感度が大幅に向上した。

#### (10) ナトリウムを含有する分子イオン化断面積の評価

Fe-Na-O-H 系の中のナトリウムを含有する分子として、NaO(g)、NaOH(g)、Na<sub>2</sub>O(g) および Na<sub>2</sub>(g) を評価対象とし、蒸気圧解析に必要となる電子衝撃イオン化断面積について評価検討を実施した。この結果、修正イオン化断面積相加法 (MAR) のような古典的モデルでは、電子衝撃エネルギーが低い場合にイオン化断面積の計算に適さないことがわかった。一方、近年提案された分子パラメータを用いる BEB モデルを用いてイオン化断面積を評価した結果、電子衝撃エネルギーの関数として示すことができた (Fig. 5)。さらに、これらのナトリウムを含有する分子のイオン化ポテンシャルを、Gaussian コードを用いて計算し、BEB モデルによって予測されたデータの信頼性を評価した。この結果、本研究課題である、高温質量分析によるナトリウム化合物の蒸気挙動評価に反映できることがわかった。

#### 【今後の予定（翌年度以降の概要）】

これまでの結果をもとに、平成 13 年度は、Na<sub>2</sub>O、NaFeO<sub>2</sub>、Na<sub>4</sub>FeO<sub>3</sub> 等のナトリウム化合物の蒸気圧測定を実施していく。また、雰囲気制御中の各種ガス成分 (H<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O および O<sub>2</sub>) の影響を調べていくための、ガス導入システムの設計・製作を実施する。

平成 14 年度は、ナトリウム化合物へのこれらガス成分の影響評価、ならびに熱力学量の整備を実施していく。

#### 【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- (1) JNC 研究成果報告書：“System Assessment and Calibrations of the Knudsen Effusion Quadrupole Mass Spectrometer”、JNC TN9400 2000-101、2000 年 8 月
- (2) JNC 研究成果報告書：“Quantum Mechanic study of Electron impact Ionization Cross Sections of Sodium-containing Molecules”、技術資料登録中、2001 年 2 月
- (3) 論文口頭発表：“ナトリウムを含有する分子の電子衝撃イオン化断面積に対する量子力学的研究”、第 49 回質量分析総合討論会、2001 年 6 月（論文口頭発表予定）

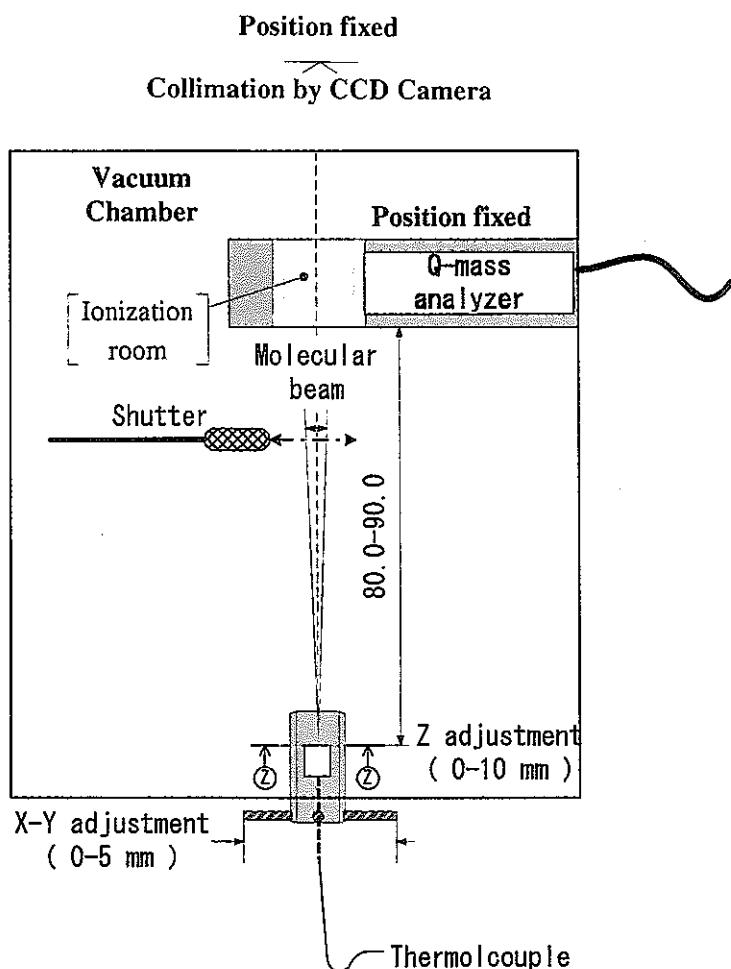


Fig.1 : クヌーセン流出四重極質量分析計の構成

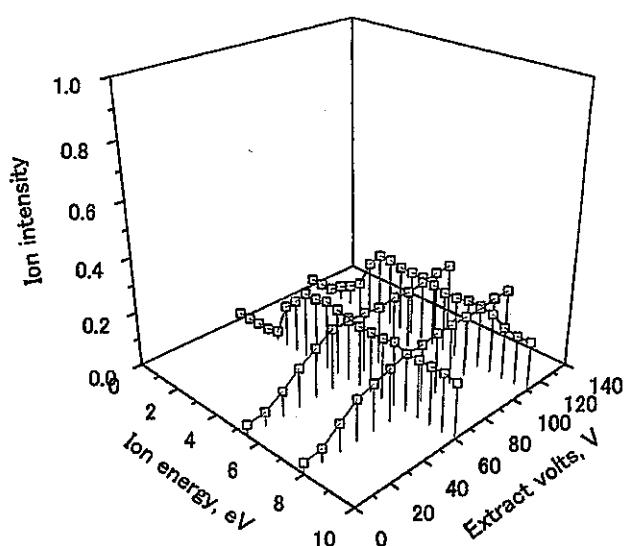


Fig.2 : Q-mass パラメータ調節によるイオン検出感度の変化

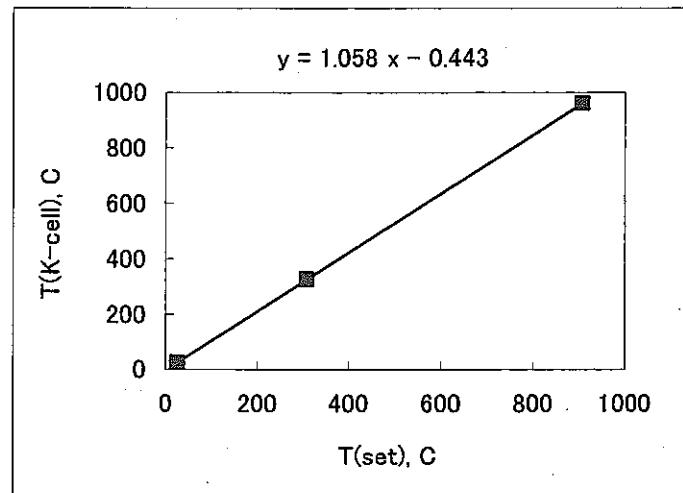


Fig.3 : 温度校正結果

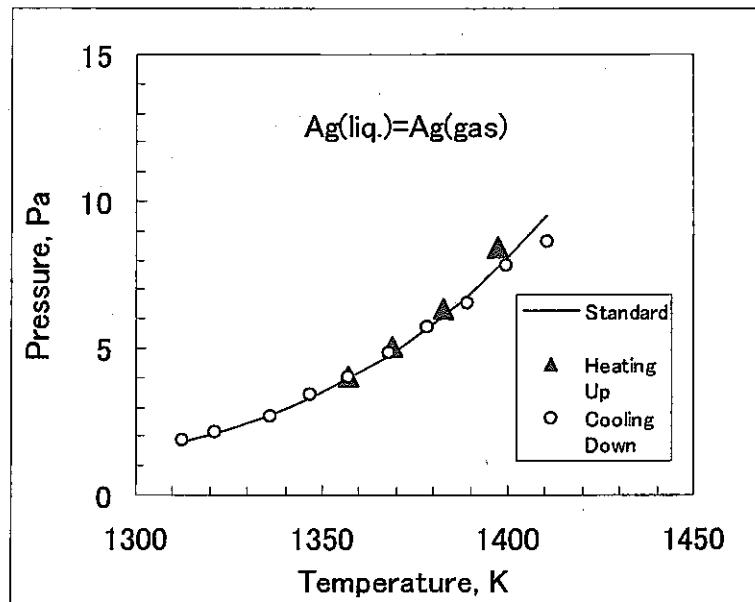


Fig. 4 : Ag を用いて蒸気圧校正結果

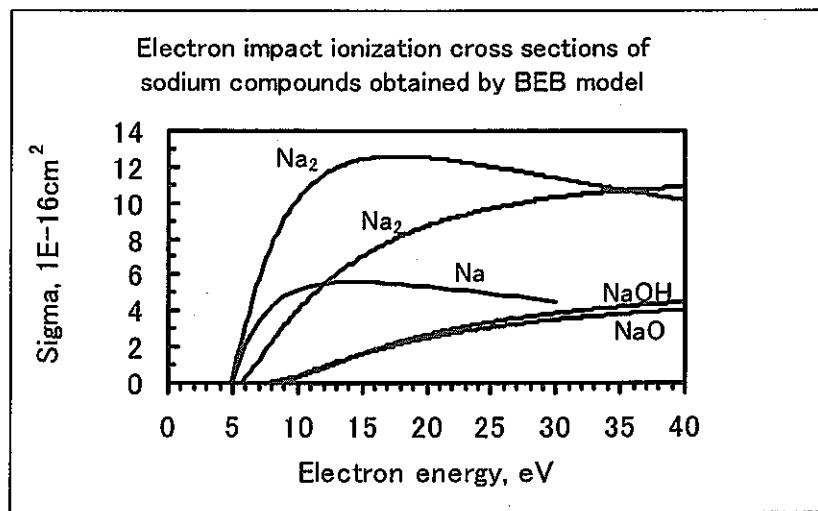


Fig. 5 : ナトリウム分子のイオン化断面積

## 博士研究員（H13）平成12年度研究概要報告書

研究テーマ	月吉断層を例とした断層発展過程における空隙構造の形成メカニズムに関する研究		
研究者氏名	大西 セリア 智恵美		
研究協力者 所属・氏名	地質環境特性研究グループ 濱 克宏	所属長 役職・氏名	地質環境特性研究 グループリーダー 武田 精悦
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 12年 04月 ~ 平成 15年 03月	当該年度 研究期間	平成 12年 04月 ~ 平成 13年 03月
<p><b>【研究目的】</b>            The complexity history of the Tsukiyoshi fault has been recorded in the Toki Granite at Tono Mine. Adjacent to the Tsukiyoshi fault damaged zone, the fault may have also affected the properties of the host rock by development of micro cracks. Such structure can be analyzed in detail under Laser Scanning Microscope (LSM).            LSM is a useful tool for visualizing structures in a 3D image with a resolution of 200 nanometers. Using this method it is possible to acquire detailed image of the pore geometry that will be useful to understand the connectivity of pore structure and to address the influence of micro cracks on the permeability. In addition, with LSM it is possible to exclude fractures related to drilling, thus obtaining a more accurate data about pore structure of the crystalline rock.</p>			
<p><b>【研究内容（概要）】</b>            Samples from Toki granitic rock will be selected from available boreholes that cut the Tsukiyoshi fault. In this case, it will be possible to select samples outside of the macro-scale damage zone to study the influence of the fault at the micro-scale in the granitic rock.            For this study, samples will be selected for petrographic, Electron Micro Probe Analysis (EPMA) and Laser Scanning Microscope (LSM) analysis.            Detail petrological analyses will be carried out in order to identify differences in mineralogy, texture and fracture patterns of granitic rock.            As crystalline rock often has low porosity, a 3D reconstruction of high resolution of Tono granitic rock may reveal interconnected porosity or a preferred orientation of micro cracks, and on small scale, the effect on permeability could be assessed. Furthermore, with this technique is possible to exclude fractures originated from drilling and other from no natural processes.            For the pore structure analysis under Laser Scanning Microscope, the research will be conducted at University of Tokyo.            LSM is a relatively new technology and new applications in material science are being developed. The variable composition, mineralogy and texture of geological samples may affect the results of data acquisition. For example, in the case of granitic rock, minerals with natural fluorescence such as uranium and some minerals with ferrous iron, manganese oxide may affect the pore structure analysis. Those effects need to be identified and quantified. This is possible using Electron Probe Micro Analysis (EPMA). Therefore, some initial petrography and EPMA works need to be performed prior to the LSM research to achieve more accurate results. Due to restrict samples of boreholes, preliminary research will be conducted during the first year in order to develop and optimize the method.            The use of LSM will improve our understanding about physical properties of the rock mass (e.g. porosity, connectivity, and permeability) in a micro-scale and their effect in geological environment.</p>			

### 【使用主要施設】

Tono Geoscience Center (sampling, sampling preparation, petrography, SEM, EPMA)  
University of Tokyo (LSM)

### 【進捗状況（当該年度までの概要）】

During fiscal year 2000 my research at JNC was carried out to investigate pore structures and their relationship with structures and deformation in the Toki granite. Impregnation of granite with resin was done to visualize and develop understanding of pore structure in 3D.

Faults and fractures characterize the deformation in granitic rocks. They are the main factor for increasing flow paths and controlling the migration of contaminant materials. In fault zones where brittle deformation dominates, connectivity of micro-cracks is one of the most important factors that control porosity and permeability. Contaminants such as radionuclides may diffuse into pore structures increasing mass transport-travel time and the retardation potential of a geological system. Knowledge of pore structures and effective porosity of granite from intact to highly fractured fault rock is important for input to models of groundwater systems, mass transport and performance assessment.

Following this idea, samples were selected to allow investigation of a range in deformation style from undeformed to highly deformed granite from the core of the Tsukiyoshi fault. A technique using the Laser Scanning Microscope – LSM (Fredrich et.al, 1995) to observe resin impregnation into samples was applied to constrain the pore structure of Toki granite. Samples of granite are from two boreholes DH-6 and MIU-3. The impregnation was performed at TGC and analyzed using LSM at Tokyo University. Bulk porosity measurements by helium pycnometer on these samples were performed at Japan National Oil Corporation (JNOC) in Chiba Prefecture. Trial permeability measurements were performed at Kyoto University using a pressure oscillation method. (Fisher and Paterson, 1992).

### 【研究成果（当該年度）】

#### Purpose:

1. To determine the porosity and 3D geometry of pore structure of resin impregnated core samples of Toki Granite using Laser Scanning Microscope (LSM);
2. To test different kinds of resin to assess both the efficiency of resin infiltration and their respective potential to enhance the visibility of micro-cracks and pores in the granite
3. To optimize the method of LSM for granite
4. Start permeability measurement in order to understand the relationship with pore structure and fluid pathway.

**Sampling:** Preliminary work was with samples from the DH-6 borehole. In total, ten samples were selected from different depths and with different textures (described in my 2<sup>nd</sup> report of activities). Concurrently, sampling in the hanging wall of the Tsukiyoshi Fault Zone (TFZ) was performed in the MIU-3 borehole. In core from this borehole it is possible to observe three main strands of the Tsukiyoshi fault. Twelve samples were selected: ones concentrated in the granite enclosed within the shear zones; samples from the undeformed moderately fractured structural domain and samples from the core of the fault. The later two were taken to represent the potential end members in terms of deformation and porosity of the Toki granite.

**Methods:** Macroscopic and petrographic description of the selected samples of DH-6 borehole were performed prior to resin impregnation in order to determine the mineralogy, textures and microstructures. Scanning electron microscope (SEM) analysis was carried out to characterize the morphology and distribution of micro-cracks. Posterior LSM analysis and bulk porosity were measured.

Three different resins (Spurr, Methyl Metacrylate and Super Glo) where tested in samples of DH-6 to assess which were most effective for acquiring better results and enhance the pore in granite.

In the samples from MIU-3 macroscopic and petrographic description, bulk porosity measurement, pore structure analyses and trial permeability measurement were carried out.

#### Results:

**Borehole Dh-6-** Petrographic analysis indicates the Toki Granite intersected by DH-6 is a typical biotite-granite. Dikes of quartz phorphyry and diabase were also intersected. In general, although the granite samples appear unaltered in hand-specimen, under the microscope most of them show evidence of alteration and micro-cracks (Fig 1a and b), intragranular and intergranular cracks could be identified using

SEM (Fig 1c and d).

Resin impregnation using Spurr (60mPas) and Methyl Metacrylate (<1.5mPas) was successful in filling micro-cracks, voids along grain boundaries, vein boundaries and biotite cleavage. Thus both types are effective regardless of differences in composition and viscosity. However, observation of pore structure acquired from 3D-image analysis, indicates that the low viscosity resin, Methyl Methacrylate, is better for enhancing the pore structure due to somewhat more effective impregnation of micro-cracks, easy manipulation and low cost. The third resin, Super Glo, was also tested but it was not successful because this resin (a mixture of resin and yellow dye) did not harden after impregnation and could not be used for the image analysis.

To build confidence of the LSM data and to help to understand the relationship with depth and main structures, bulk porosities of the same Dh-6 samples were also measured by He pycnometer. The average bulk porosity of the Toki granite range from 0.62-3.25%.

**Borehole MIU-3-** The relationship between deformation and pore structures was investigated using drill core samples from the MIU-3 borehole, which penetrates the Tsukiyoshi fault at a depth of 700m. Samples are from depth of 350, 352, 501, 570, 604, 629, 660, 685, 698, 705.44, 705.7, and 707 m. Since it is on going work, in this report three representative samples from the hanging wall are described. The samples were selected on the basis of degree of deformation indicated by the fracture frequency (fracture/m) from drill core logging. The selected samples are:

1. Moderately fractured domain at depth of 350m represented by undeformed biotite granite.
2. Highly fractured domain, at depth of 540m, which corresponds a zone of cataclastic seams, possible related to deformation by the Tsukiyoshi fault.
3. The core of the TFZ, represented by foliated cataclasite from a depth of 707m.

**Macroscopic features:**

1. Undeformed biotite granite is from the moderately fractured structural domain. The fracture density of selected samples is < 5 fracture/m in core. It is medium grained biotite granite with low mineral alteration. This zone is located around 200m above of the fault without any macroscopic structural influence of the TFZ (Fig. 2a).

2. The highly fractured zone of cataclastic seams occurs adjacent to the Tsukiyoshi fault. It has a sub-vertical dip and width ranging from 0.5 – 2cm. The seams is characterized by fragments of mineral grains dispersed in a matrix of chlorite. Small Riedel shear occurs in the matrix. Most of plagioclase and K-feldspar of the granite enclosing cataclastic seams are altered. No slickensides were observed along the shear planes. Fracture density is > 5fractures/m. (Fig. 2b).

3. The central part of the Tsukiyoshi fault is characterized by foliated cataclasite. The shear zones are characterized by overall fragmentation and mineral reduction. These shear zones are composed mainly by clay minerals (rich in chlorite). Fragments of brecciated granite and fragmented minerals are observed between the shears. Shear bands and drag faults give indication of movement. (Fig.2c). High angle fractures (dip 70-75°) with no evidence of reverse movement were observed in the core. These are possibly related to another structure intersecting the MIU site; possibly a high angle structure oriented NW or NNW. This orientation is very prominent in plots of structural data from other boreholes at the site.

**Microscopic observation and effective porosity.**

1. Undeformed biotite granite is composed mainly of quartz, plagioclase, K-feldspar and biotite. The structure observed under optical microscope is related to intragranular micro-cracks in quartz and feldspars. Alteration occur along micro-cracks. Incipient alteration is observed in the K-feldspar and serecite filling micro-cracks network is observed in the core of plagioclase (Fig. 3a). Effective porosity from He Pycnometer range from 0.5-1.5%.

2. In the highly fractured zone of cataclastic seams, fragments of minerals with no fabric are observed in a matrix of fine chlorite and fine grained minerals (Fig. 3b). The seams are arranged parallel to each other. Microstructures consist of intragranular cracks observed in quartz and feldspars adjacent to the cataclastic seams. Plagioclase is strongly altered in the core to serecite and biotite to chlorite. Effective porosity from He Pycnometer is 2.4%.

3. The foliated cataclasite from the core of the fault is characterized by fragmentation and grain size reduction. A foliation developed in the fragments is defined primarily by elongate d biotite, brecciated quartz and feldspars. Clay minerals (serecite) and fine calcite occurs in the matrix. Amorphous calcite is concentrated adjacent to the shear zone. The shear zone is defined by a zone of very fine, dark materials (difficult to distinguish under optical microscope) surrounding small grains of quartz and feldspars (Fig.3c). Effective porosity from He Pycnometer range from 3.5-4.5%.

### **Resin Impregnation:**

1. In the undeformed biotite granite, resin fills grain boundaries, intragranular, intergranular micro-cracks and cleavages (Fig. 4a). The shape and geometry of pore structure is attained by a 3D reconstruction using LSM. Sectioining of 1 $\mu$ m sectioned slices is done for the sample describe above.

2. In sample from highly fractured zone with cataclastic seams, the image shows the resin concentrated along the wall of cataclastic seams and along micro-cracks normal and parallel to the seams. The sectioning and 3D reconstruction shows the relationship between 3-D structure and resin distribution (Fig. 4b).

3. In the core of the fault, it is noticed that the resin fills the matrix thoroughly, being concentrated along the foliation and surrounding oriented but broken minerals. It is observed surrounding fragmented grains. The sectioning and 3D reconstruction shows a wide diffuse image (Fig. 4c).

Quantification of porosity from image analysis is possible and on-going work.

### **Permeability measurement:**

Trial permeability measurement was carried out on samples from undeformed granite and highly fractured zone of cataclastic seams. They were measured at the Kyoto University by pressure oscillation method where pore pressure is kept constant at 20MPa while the confining pressure is increased (up to 200MPa). The data, presently in chart form is still being analyzed and assessed.

### **Summary:**

1. Testing of different resins were carried out on the DH-6 samples. Methyl Methacrylate was selected because of better enhancement of pore structure in granite along grain boundary, intragranular and intergranular micro-cracks and mineral cleavages.

2. Effective porosity measured by helium pycnometer indicates a range of porosity for granite. The lowest porosity of 0.5% is from the undeformed granite whereas 5.4% is the higher and correspond the porosity of the core of the Tsukiyoshi fault.

3. Samples from MIU-3 borehole were used to better understand the influence of fault and related fractures in the granite. Qualitative information of the pore structure was acquired for undeformed granite, cataclastic seams and the core of the fault zone.

4. Result of resin impregnation was successful in filling cleavages, intragranular and intergranular fractures and grain boundaries. Study of micro pore structures show a visible and describable change in pore structure as approaching to the fault. This change can be related to deformation of the TFZ and hence to increased porosity.

5. LSM is an additional method to measure porosity. It allows to visualize the distribution and geometry/shape of pores in 2 and 3D, discerning matrix porosity from fracture porosity

### **References**

Fisher G.J. and Paterson, M.S, 1992 – Measurement of permeability and storage capacity in rocks during deformation at high temperature and pressure, Fault mechanisms and transport property of rocks-A festschrift in honor of W.F. Brace, ed. Brian Evans and Teng-fong Wong, New York, 213-252.

Fredrich, J.T., Menendez, B. and Wong, T-F, 1995 – Imaging the pore structure of geomaterials. Science, 268, 276-279.

### **【今後の予定（翌年度以降の概要）】**

-Borehole MIU-3 and possibly MIU-2 needs to be investigated to constrain the structural analysis of faults and fractures related or not to the Tsukiyoshi fault and probably other structures at the MIU site. Additional sampling may be necessary.

- Continue pore structure analysis and its quantification
- Continue permeability study and measurement.

### **【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】**

1. June/2000- Attend an international Conferences -Western Pacific Meeting –WPGM in Tokyo
2. Nov/2000 - Participation on a three weeks field trip to Brazil with the Super Plume Project geology group of the Tokyo Institute of Technology (TITech)
- 3.April/2001- Attend an International Conference - Deformation Mechanism, Rheology and Tectonics Conference –DRT2001, entitle: Characterization of pore structure of crystalline rock affected by a reverse fault under Laser Scanning Microscope, Tono area, Japan.

### Optical Microscope

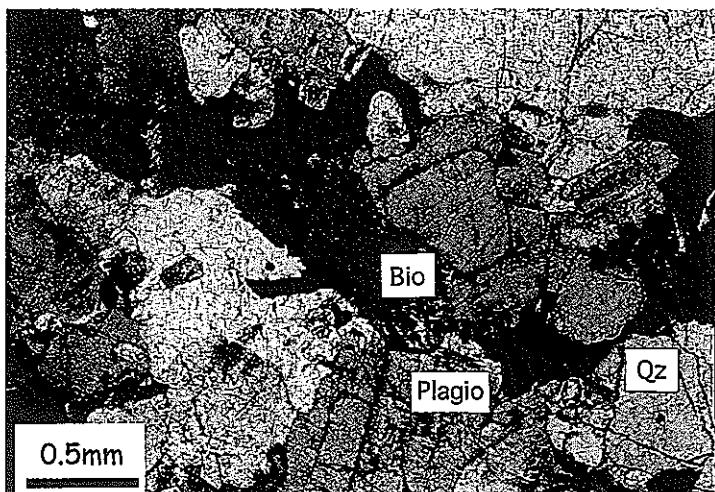


Fig. 1A

Toki Granite of DH6 borehole.

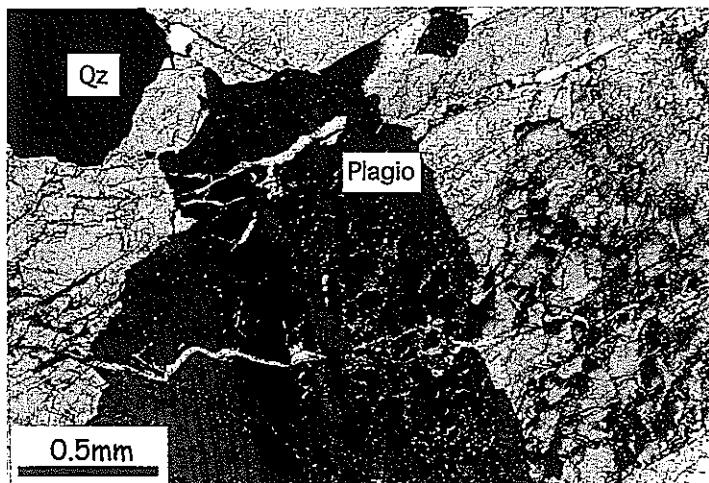
Most of quartz and plagioclase are fractured.

View under polarized light.

Fig. 1B

Network fracture observed in plagioclase. Clay minerals are developed in the fracture. Cross cutting calcite vein is shown.

View under polarized light.



### Scanning Electron Microscope (SEM)

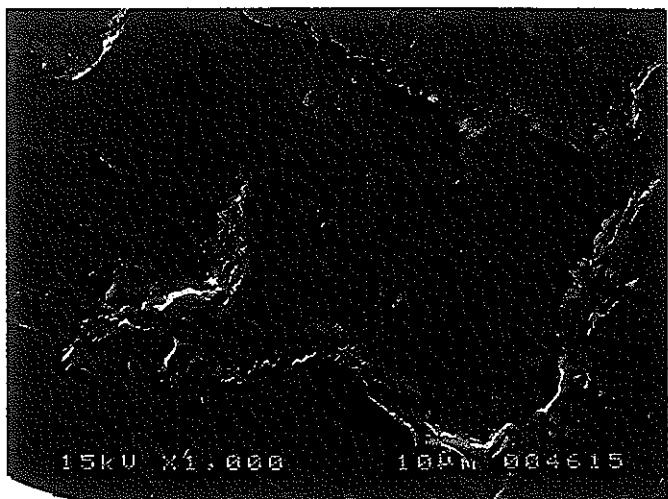


Fig. 1C

intragranular fracture in Plagioclase

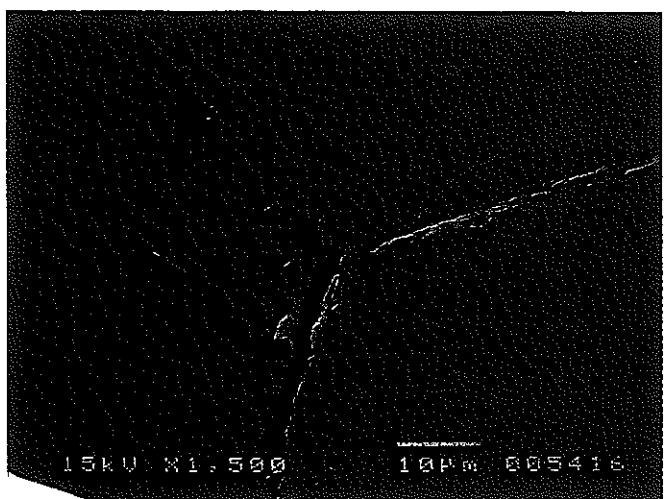
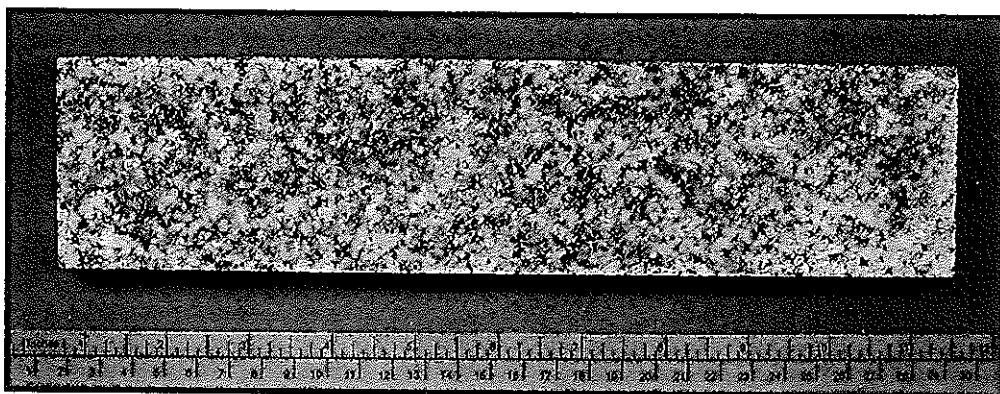


Fig. 1D

intergranular fracture along grain boundary

## MIU3 - Macroscopic Features



Undeformed Biotite Granite

Sample from relatively unfractured rock volume at about 350m depth.

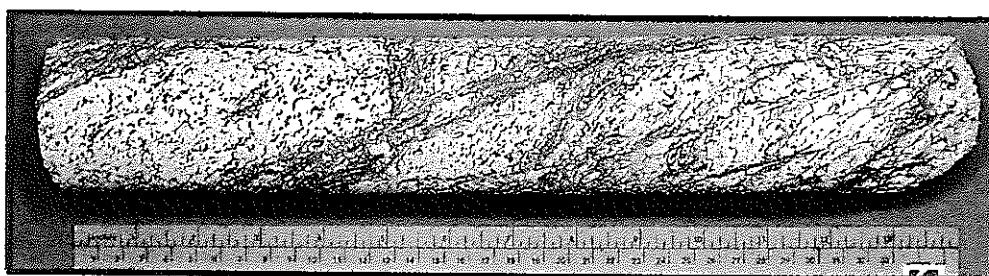
Fig. 2a



Cataclastic Seams

Sample from about 600m depth in highly fractured coarse grained biotite granite. Note the subvertical seams of dark green color.

Fig. 2b

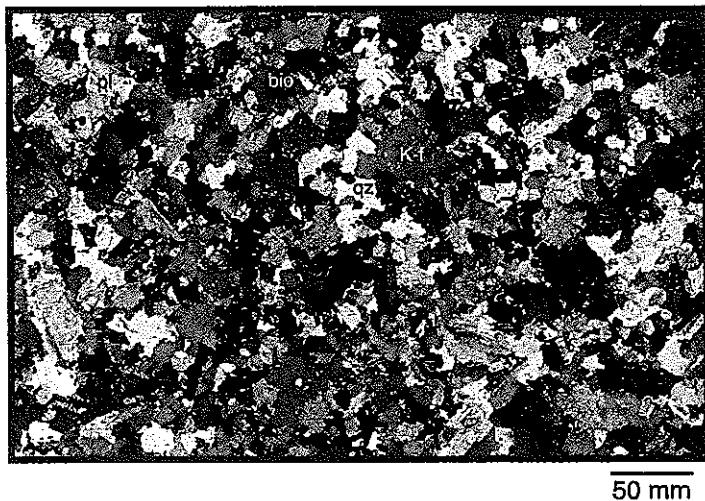


Foliated Cataclasite

Sample from the core of the TFZ. It shows shear zones characterized by overall fragmentation and mineral reduction localized between the shears. Shear bands and drag faults give indication of movement.

Fig. 2c

## MIU3 - Microscopic Features



Undeformed Biotite Granite  
(Slightly altered)

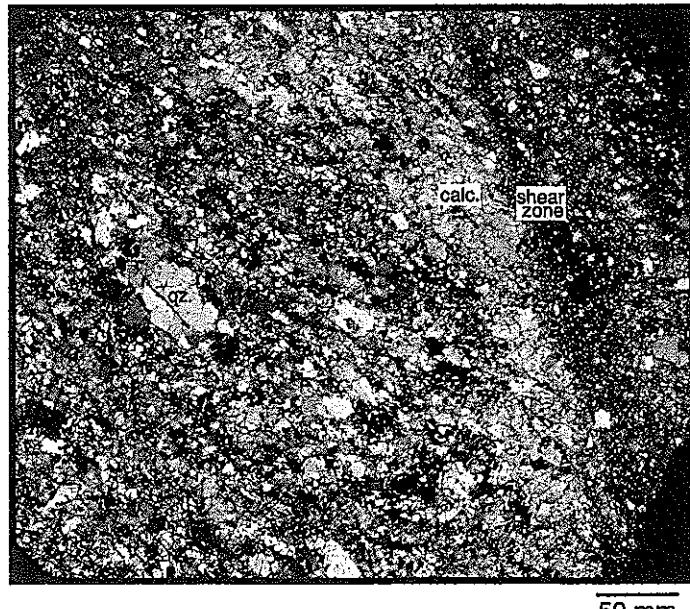
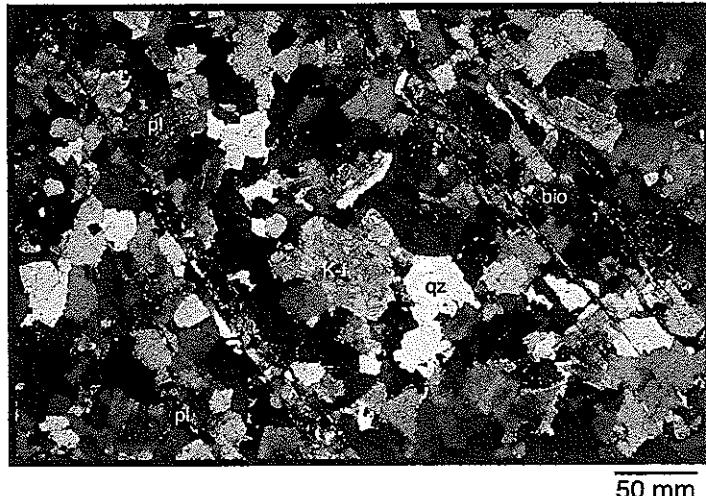
Medium biotite granite.  
Alteration in the core of  
plagioclase is a common  
feature of the Toki Granite.

Fig. 3a

### Cataclastic Seams

The seams is observed in the coarse grained granite.  
They are filled by fragmented  
granitic composition minerals in  
a matrix of chlorite.

Fig. 3b

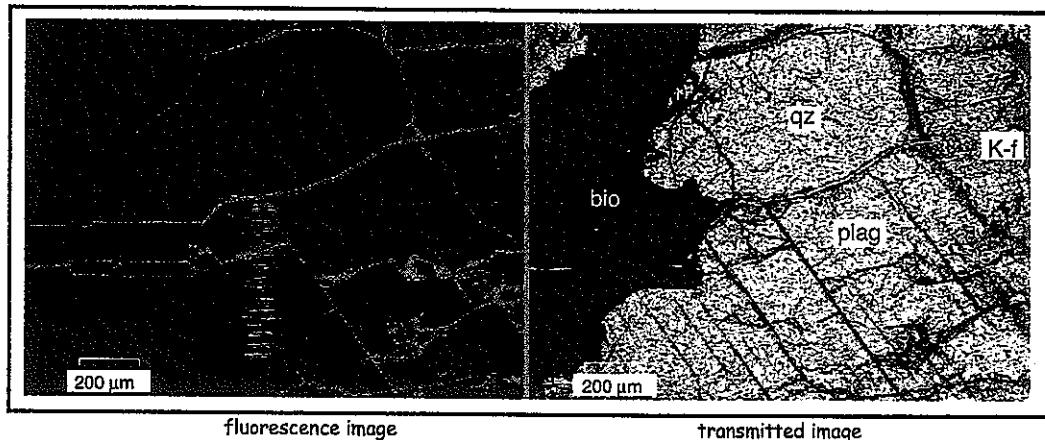


Foliated Cataclasite

Characterized by mineral size  
reduction and a well developed  
foliation defined by alignment of  
brecciated minerals.  
Concentration of amorphous calcite  
occurs adjacent to the shear zone.

Fig. 3c

## MIU3 - Resin Impregnation



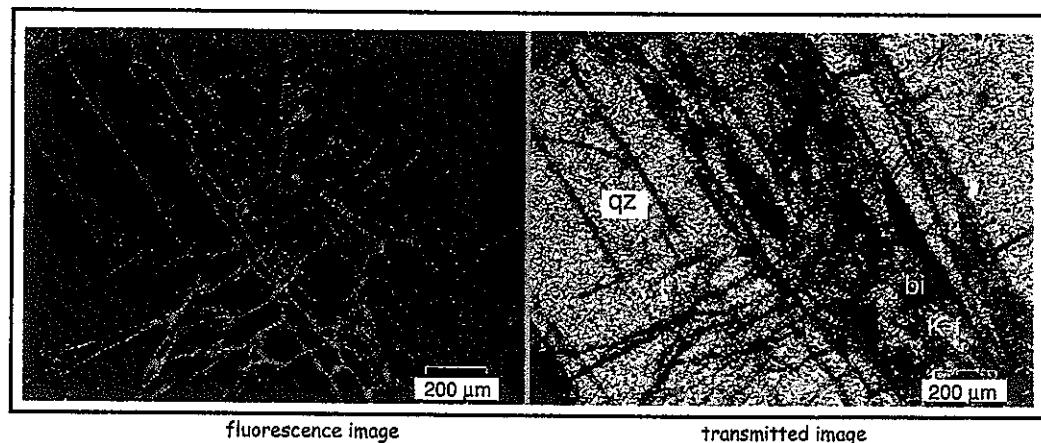
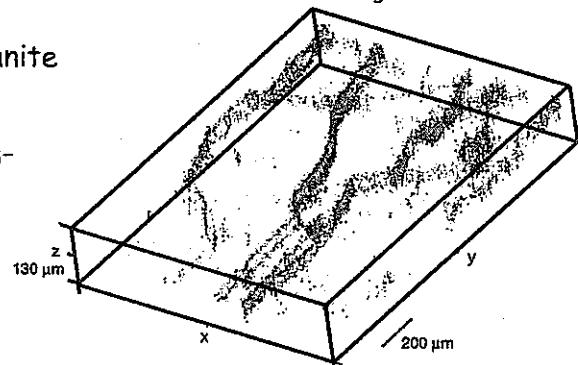
## Undeformed Biotite Granite

Left view: Fluorescence image showing the good resin filling of grain boundaries and intragranular fractures and cleavages.

Right view: Plane light view of granite.

3D image reconstruction of 1 $\mu$ m optical sliced sections, showing a 3D shape of pore structure.

Fig. 4a



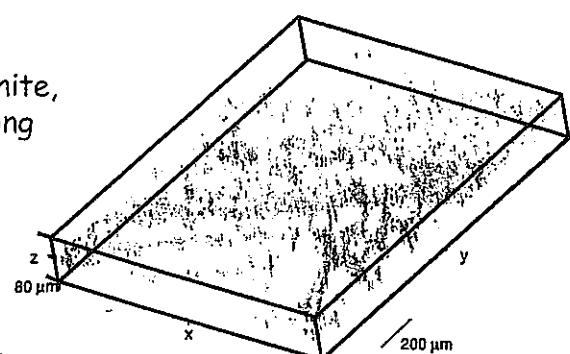
## Cataclastic Seams

Left view: In coarse grained biotite granite, the resin impregnation is concentrated along the wall of cataclastic seams and micro-cracks

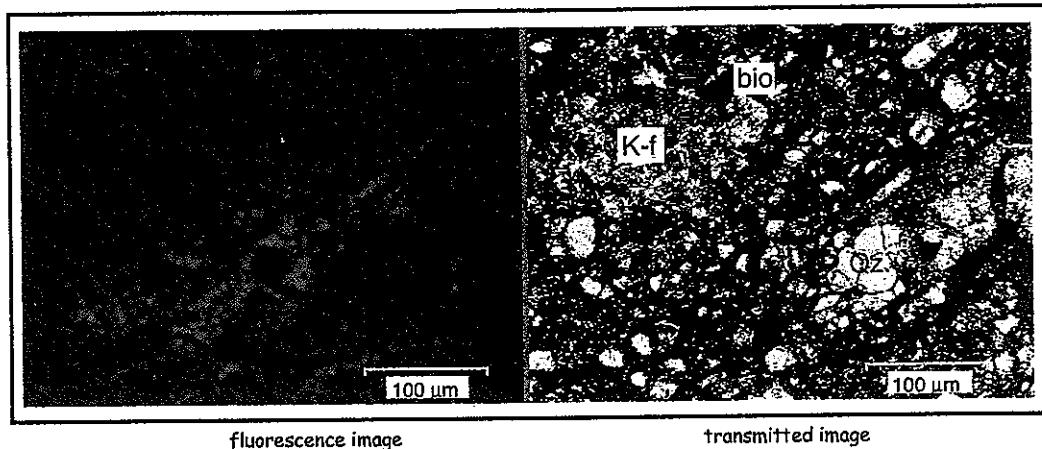
Right view: Cataclastic seams cutting a quartz mineral (plane view)

### 3D image reconstruction of 1 $\mu$ m optical sliced sections, showing the distribution of resin.

Fig. 4b



### MIU3 - Resin Impregnation



fluorescence image

transmitted image

#### Foliated Cataclasite

Left view: A section of the core of the TFZ shows the resin impregnation around fragmented grains of the cataclastic matrix.

Right view: broken grains floating in the fine dark cataclastic matrix (plane view)

Sectioning and 3D image reconstruction of 1μm optical sliced sections, showing the matrix porosity of the fault zone.

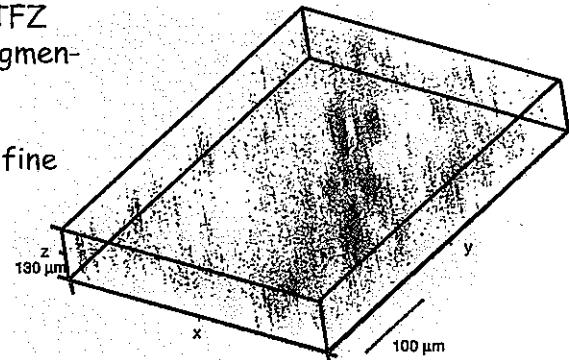


Fig. 4c

## 博士研究員（H12）平成12年度研究概要報告書

研究テーマ	セグメント構造を考慮した割れ目系の三次元形態の推定法および水理モデルの構築手法に関する研究		
研究者氏名	崔 鈺坤		
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 システム解析 Gr GL 内田 雅大 東京大学大学院地球システム工学専攻助教授 登坂博行	所 属 長 役職・氏名	システム解析 GL 内田 雅大
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12年 4月 ~ 平成15年 3月	当該年 度 研 究 期 間	平成12年 4月 ~ 平成13年 3月
<p><b>【研究目的】</b>          割れ目系岩盤を利用した人工構造物（ダム、トンネル、発電所、石油・LPG・圧縮空気の地下備蓄施設、高レベル放射性廃棄物の地層処分場など）の建設においては、力学的・水理学的安定性の確保や明確な評価が求められる。特に、大規模人工構造物の建設サイトとしては、割れ目系岩盤に立地される場合が多く、その内部に発達している地質学的不連続面（割れ目）に対する評価が非常に重要となる。今後、さらに、割れ目系岩盤を利用したエネルギー備蓄施設の建設やLPG、圧縮空気などのように、より高压で移動性の高い物質の備蓄、また、高レベル放射性廃棄物の地層処分などが検討されており、岩体中の節理や断層破碎帯などのような割れ目（系）の構造をいかに捉え、さらに水理地質構造を推定し、長期にわたる気相物質や放射性核種の移動経路や移行予測を行うことが今後の重要な課題となっている。以上のような研究背景を踏まえて、特に、割れ目系の幾何学的形態を考慮した水理概念モデルを構築することを目的とする。</p>			
<p><b>【研究内容（概要）】</b>          以下に研究内容の概要を述べる。構造地質学および形態論的考え方を基本として深部地下における割れ目面の空間的つながりや三次元的出現形態パターンを議論すると共に、セグメント構造を考慮した割れ目系の解析手法および水理モデルを提案する。また、それを利用した実データの解析を行う。具体的な研究の内容は、以下に示す。</p>			
<p>－考え方および論理性の構築</p> <p>割れ目の形態的分類と分類された各部分の水理的特性を把握し、従来割れ目系に対し提唱されている概念モデルの検証を行う。特に、研究に当たっては地質的イベントがより単純な軟岩中の割れ目調査と室内実験との対比を行うと共に複雑な地質イベントを経た結晶質岩についても割れ目系の形態的観点から水理的特性の支配因子の抽出を試みる。具体的な研究の内容や手順を以下に示す。</p> <p>－割れ目の幾何学的形態および水理特性との関連性の検討</p> <p>① 自然界の割れ目は、離散化し、セグメント化した雁行構造を呈していることから割れ目系の解析においては、幾何学的および形態論的考え方を重視し、セグメント構造を考慮した解析の必要性についての検討を行う。</p> <p>② 出現形態や地質構造などの違いから割れ目は、セグメント本体部とセグメントジョグ部（割れ目交差部）とに分離・区分して考えることができる。従って、既存の割れ目データやフィールドデータを用いてセグメント本体部の幾何形状およびセグメントジョグ部の連結部の幾何形状の把握と水理特性との関連性の検討を行う。</p> <p>－室内実験による割れ目形態の再現および水理構造と形態特性に対する考察</p> <p>③ アクリルなどを用いた室内実験による割れ目の再現や形態特性および水理特性との関連性などを明らかにする。特に、セグメントジョグ部の三次元形態の及ぼす影響の検討を行う。</p> <p>－セグメント構造を考慮した水理概念モデルの構築</p> <p>④ セグメントジョグの形態（割れ目連結部）と水理的な連続性（割れ目の連結性）の検討、また、セグメント構造を考慮した水理概念モデルの構築を行う。</p>			
<p><b>【使用主要施設】</b></p> <p>機構 東海事業所 地層処分基盤研究施設（ENTRY）および試験棟など</p>			

## 【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成12年度は、主に野外の割れ目調査と室内における割れ目の再現実験（アナログ実験）などを行った。まず、割れ目調査は割れ目系における幾何学的形態特性を把握することを目的として神奈川県三浦半島の城ヶ島地域を中心とした堆積岩を対象に割れ目系の幾何形態特性（セグメント構造特性、ジョグ構造、連結パターン及び先端部の形態など）に注目して調査を行った。また、野外の割れ目調査と並行して割れ目系の発達及び成長過程や連結パターンなどを室内実験レベルで明らかにするため、粘土、アクリル、砂などを用いた割れ目系の成長過程の再現実験も実施した。

## 【研究成果（当該年度）】

平成12年4月から平成13年3月までに行った研究の内容や研究成果の概要を以下にまとめた。

### 1. 割れ目の形態特性

#### 1.1 セグメント構造とジョグ構造

本年度は割れ目の持つ規則性や法則性、いわゆる割れ目の一般形態特性の把握を試みた。このためまず、様々な材料に見られる割れ目を対象に詳細な観察などを通じ、それぞれの材料が持つ固有の形態パターンや規則性、類似性などの検証を行った。これにより岩盤の割れ目を含め、対象とした割れ目には以下のような形態的特性の存在が示唆された。セグメント構造、ジョグ構造、レンズ構造、スプレー構造、形態的類似性などである。写真1には多数の異なる材料に見られる割れ目の出現形態パターンの例を幾つか示した。写真1に示した中で木材やコンクリート、アスファルトなどに見られる割れ目は、主に収縮や不同沈下などによるものと考えられる。特に、上記の材料にも雁行構造（echelon）の発達が見られるのが、このような雁行構造は一般的に横ずれ変位成分が卓越する応力環境下でよく形成されるものとして知られている。今後は材質や応力環境なども含めた割れ目系に見られる出現形態パターンの法則性を追究していく。

#### 1.2 フィールドにおける割れ目の形態特性

今年度の調査では、割れ目系の幾何形態特性を把握ため神奈川県三浦半島の城ヶ島地域を中心に房総半島などの主に第三紀の堆積岩を対象に野外の割れ目調査を実施した。特に、割れ目系におけるセグメント化現象、セグメント構造特性、ジョグ構造などに注目して調査を行った。また、割れ目の連結部、先端部での出現形態パターンやジョグ構造における伸張性ジョグと圧縮性ジョグの地質構造および形態的違いなどの調査も行った。

割れ目系のモデル化や三次元構造を推定する上で割れ目の幾何学的な形態情報（割れ目の長さ、幅、連続性や連結パターンなど）は重要である。従来の研究からも知られている割れ目系のセグメント構造とジョグ構造を実際のフィールドにおいて詳細な観察と検証を試みた。特に、城ヶ島地域の西海岸に広く露出している海食台地には小断層系を含む大小様々な割れ目（系）が発達しており、セグメント構造の発達様子やセグメントジョグの構造、出現形態などがよく観察できる。

セグメントの大きさは空中写真でも確認できる100m～数10mのスケールから数cm程度の小スケールまで様々であった。また、ジョグ構造としてはオフセットやデュプレックスジョグなどの発達が多く、圧縮性ジョグよりは伸張性ジョグと思われるものが多く確認された。特に、ジョグ構造の内部には多重レンズ構造も見られ、階層構造を呈している。このような形態特性は割れ目やセグメントの発達過程におけるある一時期を現しており、また、当時の応力環境なども反映していると考えられる。これらの割れ目系に見られる形態情報からセグメント構造の成長の履歴や周辺の応力環境、変位方向などが推定可能であるとともに今後の割れ目やセグメントの成長の予測などを行う上で有効な情報として利用できると考えられる。

城ヶ島地域を中心に行われた今年度の割れ目調査で割れ目系にはセグメント構造、ジョグ構造、またはフラクタル性（形態的自己相似性）などのような形態特性を呈していることが分かった。特に、セグメント構造特性におけるセグメントの連結部や先端部ではレンズ構造、スプレー構造のようにある規則性を持ち固有の形態的パターンを呈していることが多かった（写真1参照）。これらのことから

フィールドにおける割れ目系の空間的広がりや三次元形態推定なども含めた割れ目系を解釈する上で形態特性の把握は重要で且つ有効な判断要素になることが示唆された。

## 2. 室内実験による割れ目の形態解析

割れ目系の成長のメカニズムやプロセスを把握するために従来からアナログ実験として砂や粘土などを用いた室内実験がしばしば行われてきた。本年度は、室内実験レベルにおける割れ目系の形態特性を明らかにするために、主に粘土や合成樹脂（アクリル）を用いて割れ目（セグメントとして見なすこともできる）の発生から成長過程、または、セグメント構造とジョグ構造の形成のメカニズムや割れ目先端部の形態、セグメントの連結パターンなどの形態解析を試みた。

### 2.1 粘土実験

粘土を用いた本年度の室内実験では二通りの実験を行った。一つは、人工的な割れ目（雁行状・ランダム状配列）を粘土に発生させた後、室内の常温で自然乾燥することで収縮によって割れ目がどのように形成され成長し、また連結されていくのかなどのような割れ目の成長過程の全容を調べた。

図1には、粘土が自然乾燥により収縮することによってできる割れ目の成長パターンや連結パターンなどを時系列的に表したものである。この実験結果から例えば、複雑な構造や形態を呈する割れ目もその成長過程をたどることによって現時点で見られる割れ目は成長過程のどの段階に相当するのか、また、比較・対比や今後の予測などの可能が示唆される。二つ目は、人工的な割れ目（セグメント）をランダムまたは雁行状に配列させた後、粘土を二つのアクリル板の上に載せ、せん断応力を加える（境界条件は2軸を拘束）ことでセグメントがどのように成長し、連結されていくかなどを含めたせん断応力下における割れ目系の発達過程、セグメント境界部における連結パターンなどを調べた。このような粘土を用いたせん断実験から人工的に発生させた割れ目の配列状と応力場との関係により伸張性ジョグと圧縮性ジョグが形成され、伸張性ジョグ部ではせん断変位と共に早い段階から成長が始まるのに対し、圧縮性ジョグ部ではセグメントの成長や連結が起こりにくく、最終的には褶曲され、pressure ridge構造を呈することなどが分かった。

図2は、粘土を用いたせん断実験での伸張性ジョグと圧縮性ジョグにおけるセグメントの成長の違いを表したものである。これは従来の実験結果とも整合的であり、城ヶ島地域などのフィールドにおいても検証された。今後は水理実験も行なう予定である。

### 2.2 アクリル実験

アクリル材は透明であるため割れ目の成長や連結パターンなどを3次元的に捕らえることができる。従って、上記の粘土実験同様にアクリルを用いた室内実験も行った。アクリル（10cmx7cmx2cm）に人工的な伸張性ジョグと圧縮性ジョグをつくり（境界条件は拘束なし）、せん断応力の増加と共にセグメント（各々のクラックや割れ目）がどのように成長し、連結されていくかなどを調べた。それから、セグメントの間隔やオーバーラップの度合いを変えるなど様々な条件を想定し行うと共に、圧縮性ジョグと伸張性ジョグにおける成長や連結パターンおよび破壊領域の大きさ、セグメント先端部での成長パターンなどの違いも調べた。また、本年度に行った室内実験と野外の割れ目調査などを通じて割れ目の成長と連結パターンには図3に示したPollard(1994)などが行った研究結果と非常に整合的な結果が得られた。

今後は、写真2に示すようにアクリル（10cmx8cmx5cm）の空間上に人工的な割れ目（セグメント）を発生（ランダムまたは雁行状に）させた後、応力（せん断および引っ張り）を与えることで3次元空間上におけるセグメントの動きや成長および連結パターンなどを調べる予定である。

## 3. セグメントの成長モデル

野外の割れ目調査や粘土、アクリルなどを用いた室内のアナログ実験などの結果から割れ目（セグメント）の成長プロセスや連結様式を支配する要因としては多数考えられる。これには実験の境界条件も含め少なくとも岩石や岩種のような地質学的要因（実験の場合は実験材料の材質）、周辺の応力環境のような力学的要因、また、割れ目の間隔や配列状況のような幾何学的要因などが挙げられる。

セグメントの成長と連結パターンは上記した支配因子によって強く影響されるとともに選択的な成長や連結によってより大きなセグメントへと成長していくか、または取り残され孤立し成長が止まるかのどちらかになると考えられる。以下にセグメントの成長モデルを単純化して考えてみる。

割れ目系は一般的に卓越方向性（ランダムと雁行配列）を持つ場合と持たない（無方向性、不規則的な分布）場合があると考えられる。図4は、前述した二つの分布形態にせん断応力と引っ張り応力が働く場合におけるセグメントの成長モデルを模式的に表したものである。また、図5は横ずれ断層などの伸張性ジョグ部におけるセグメントの成長過程を三次元成長概念モデルとして表したものである。割れ目系に見られるセグメント構造とジョグ構造は様々なスケールで確認されており、その分布形態を三次元的に描いたものが図6である。

特に、横ずれ成分が卓越する横ずれ断層における伸張性ジョグの中心部では引っ張り応力環境の支配下にあり、シアレンズ構造または多重レンズ構造（ジョグ構造）ができやすい。また、せん断変位が大きいセグメントの中心部とジョグ部のところでは主にせん断破壊（モードII）が起こる。しかし、せん断変位の減少とともに各セグメントの末端部にいくにつれてはひずみの解消と変位の消滅によりスプレー構造が形成されるのが一般的な形態パターンとして知られている。また、セグメントジョグ部の垂直方向においても末端部に行くにつれて変位やひずみも小さくなり、破壊（モードI）も徐々に収まり最終的には終息していくことになると考えられる。

図7は、上記した横ずれ断層の伸張性ジョグ部に形成されると考えられる形態パターンなどを2次元から3次元モデル、また空間モデルとして表したものである。

#### 4. 水理概念モデル

割れ目系のセグメント構造、特にジョグ構造における伸張性ジョグ部では、割れ目の発生、密度、連結度などが良いことが割れ目調査や室内実験などから示唆された。また、変位方向（すべり方向）に対し、垂直（鉛直）方向で開口割れ目の形成が多いなどからこちらの方向に沿って地下水や核種のような流体、物質などの挙動や移動が起こる可能性が高いと考えられる。これに対し圧縮性ジョグ部では、ジョグ部周辺が圧縮域になるため伸張性ジョグ部のような開口割れ目の形成や連結、または水みちになり得る隙間ができるにくい環境であると考えられる。

図8は、上記のことを踏まえて横ずれ断層におけるセグメントとジョグ構造の特性を考慮した水理概念モデルを模式的に描いたものである。割れ目系がセグメント構造を呈することによって水理的な流れは少なくとも引張応力の支配下にあり、割れ目などが形成しやすく、しかも移動経路の確保が容易な伸張性ジョグ部を経路として選択的に起きると考えられる。また、周辺に多数の伸張性ジョグの存在があってこれらがお互いに連結されることにより、より大きな水みちへと成長することもあり得ると考えられる。今後は、室内水理実験などを通じて検証を行う予定である。

#### 【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成13年度は、平成12年度研究の継続で野外の割れ目調査と室内実験を実施する予定であるが、調査対象や実験内容の拡張を行う。特に、割れ目の調査では花崗岩地域（最終処分サイトの候補地でもある）を中心とした調査と堆積岩との比較検討を行う。また、室内実験では実験装置や実験材料の改良と改善、水理実験も実施する予定である。

平成14年度は、平成12～平成13年度までに行った割れ目調査や室内実験などの研究成果から得られた新知見やデータの整理と割れ目系のモデル化および水理構造解析などの総合的な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】

- 1) 崔鈺坤・登坂博行 (2000) : 割れ目系に見られるセグメント構造の形態特性と水理構造の評価  
日本応用地質学会平成12年度研究発表会講演論文集 p.153-156
- 2) 崔鈺坤・内田雅大・登坂博行 (2001) : セグメント構造特性を考慮した割れ目系の水理特性について、現在投稿準備中。

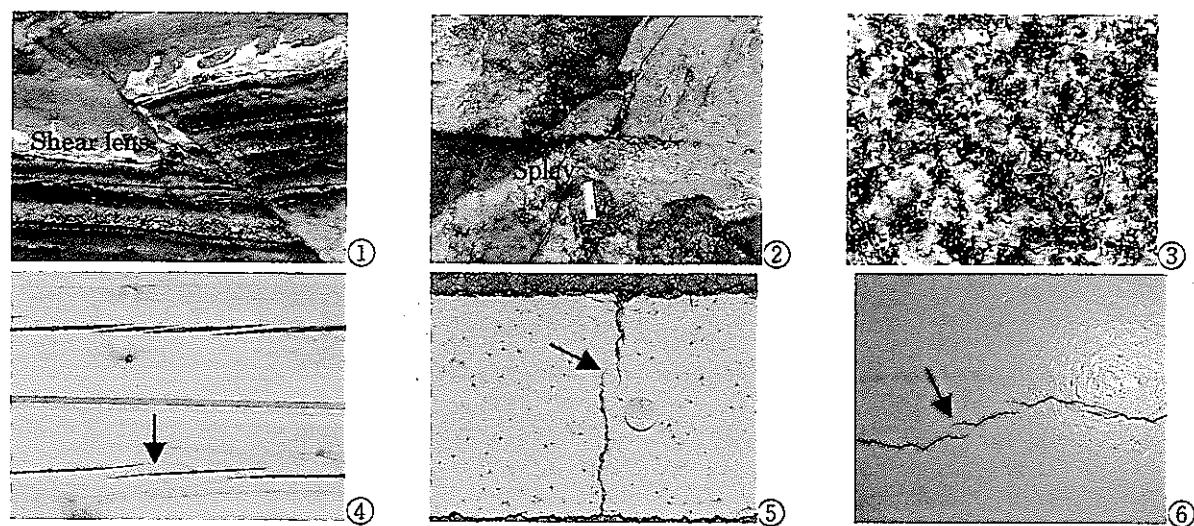


写真 1. 様々な材料に見られる割れ目の形態パターン, ①と②: 神奈川県城ヶ島の砂岩と泥岩, ③: 花崗岩, ④: 木材, ⑤: アスファルト, ⑥: コンクリート, (→: ジョグ部 )

*The growth and linkage of the fractures by the drying in clay*

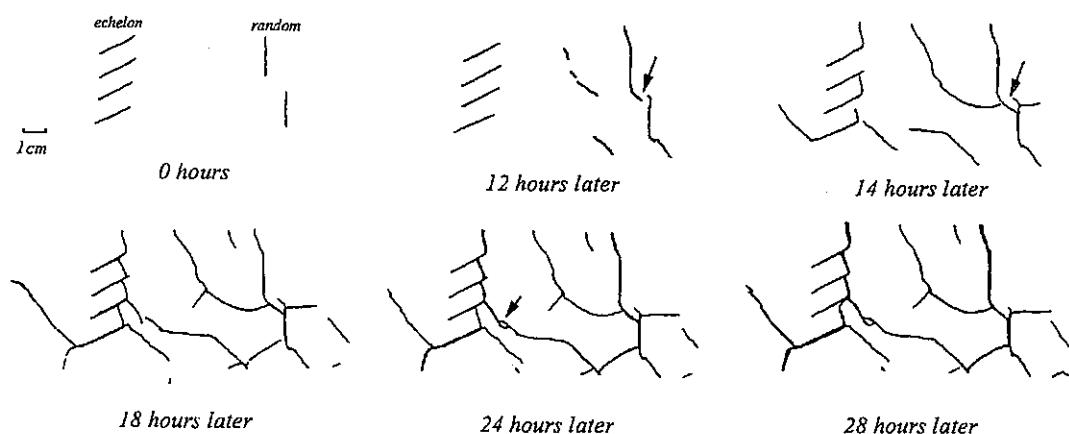


図 1. 粘土の自然乾燥による割れ目の成長と連結パターン (→: ジョグ部 )

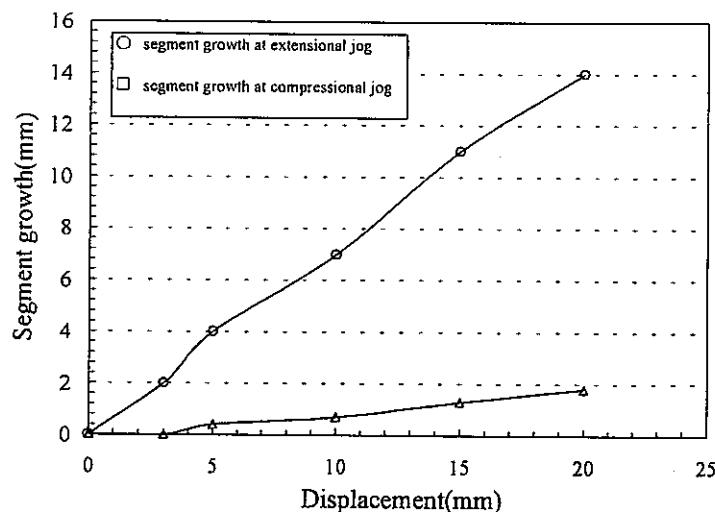


図 2. 伸張性ジョグと圧縮性ジョグにおけるセグメント成長の違い

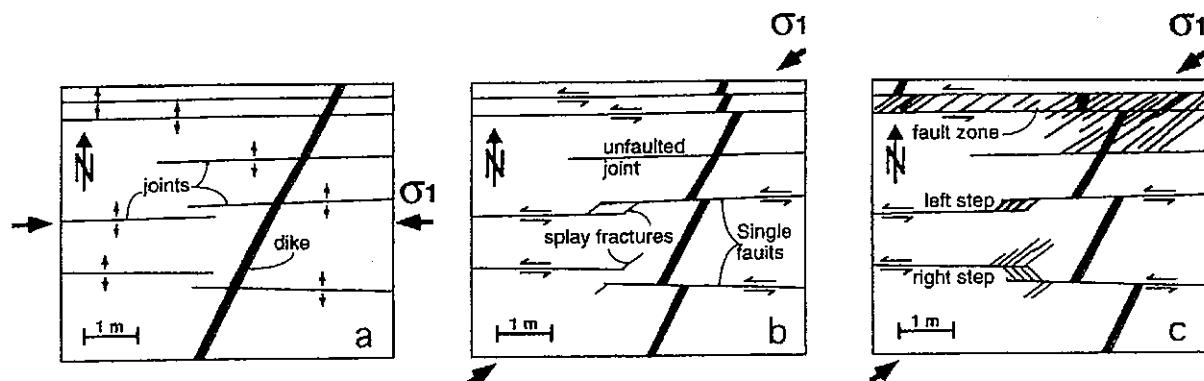


図3. セグメント構造の成長と連結パターン (Pollard et al, 1994)

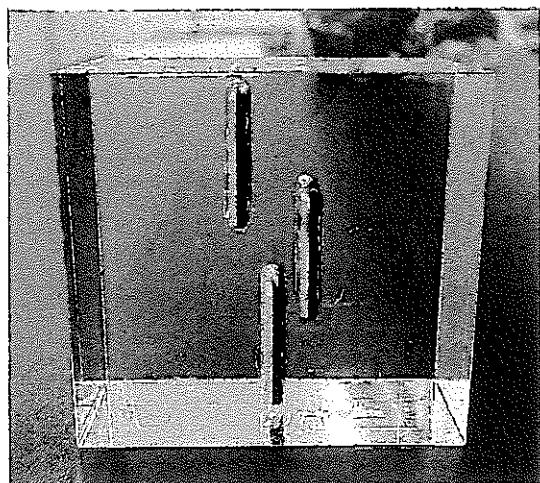


写真2. 空間に発生させたセグメント

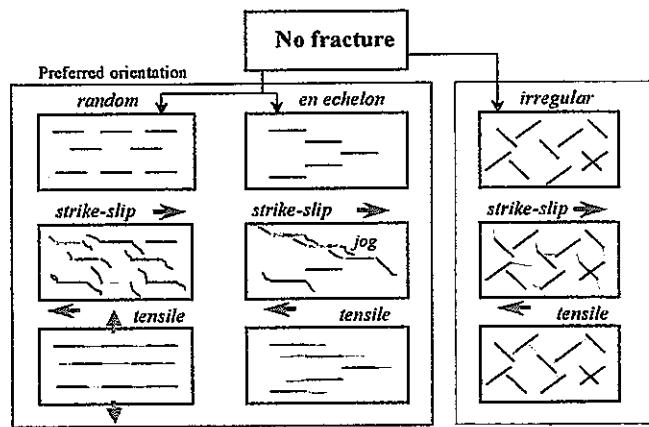


図4. セグメントの成長モデル

The three-dimensional growth model of the segmented fracture

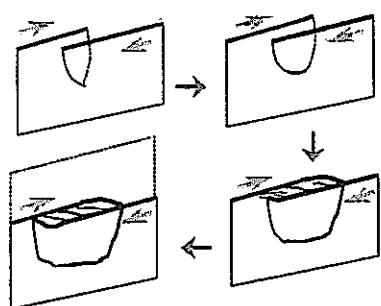


図5. セグメントの三次元成長モデル

A three-dimensional conceptual model in the fracture segment

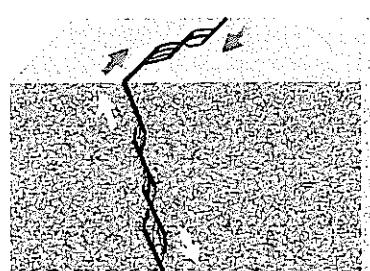


図6. セグメント構造の三次元概念モデル

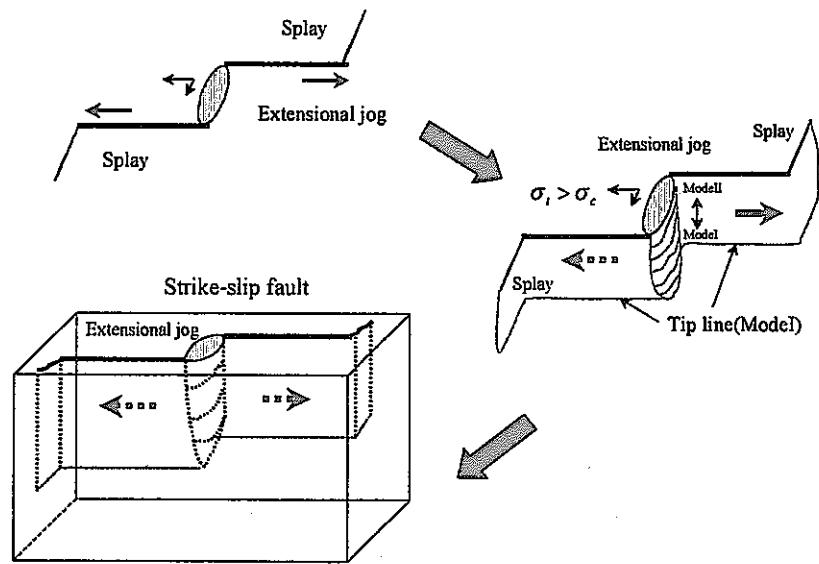


図 7. 伸張性セグメントジョグ部の三次元形態モデル

The conceptual model of the hydrogeological structure in the segmented fracture

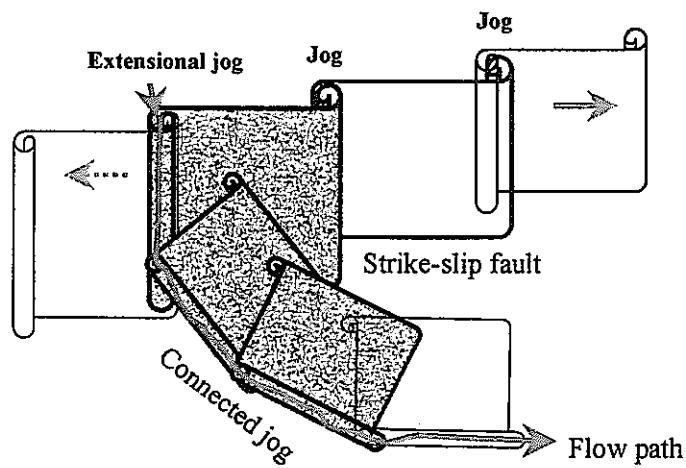


図 8. セグメント構造を考慮した水理概念モデル

博士研究員（H12）平成 12 年度研究概要報告書

研究テーマ	海水準変動と海岸地形発達の将来予測に関する基礎研究：化石、堆積相そして堆積年代からの高精度地層形成メカニズムの解明		
研究者氏名	鎌滝 孝信		
研究協力者	東濃地科学センター 地質環境長期予測研究グループ 藤原 治	所属長 役職・氏名	グループリーダー 清水 和彦
所属・氏名			
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 12 年 4 月 ~ 平成 15 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 12 年 4 月 ~ 平成 13 年 3 月
<b>【研究目的】</b>			
<p>氷河性海面変動や地球温暖化による環境変動が海岸の侵食や堆積、すなわち地形発達にどのような影響を及ぼすかを明らかにすることは、沿岸地域の環境保全のみならず土地利用計画などにとって重要な課題である。将来を予測するためには、過去に起こった現象のプロセスやメカニズムを如何に詳細に解明するかが鍵である。日本の沿岸平野は過去約 1 万年間の海面変動に伴う侵食と堆積の結果として形成されたものである。本研究は、データの豊富な南関東の海岸堆積物を例に、気候や海面変動に対応した侵食・堆積のプロセスを具体的かつ正確に復元する手法を開発するとともに、侵食と堆積による地形発達を予測するモデルを構築することを目的とする。そのためには、地層に高密度で炭素 14 年代値を入れ、侵食・堆積の周期を高分解能で求め、その周期に対応した化石群集の種構成の変化を明らかにして、水深・水温等の変遷を従来よりも高い時間分解能で把握する必要がある。さらに、地層に見られる貝殻密集層に注目し、そこに含まれる化石群集と堆積構造の特徴から地層の形成過程を読みとり、過去に生じた侵食や堆積作用などを推定する技術が必要である。</p>			
<b>【研究内容（概要）】</b>			
<p>堆積相解析および化石の産状と種組成の解析を行い、地層中の時間変化に沿った環境変動を明らかにする。貝殻密集層中に産出する化石の詳細な産状観察と堆積物の観察によって、地層の成因に着目した地層区分の方法であるシーケンス層序学における重要な地層境界面の正確な認定を行う。地層境界面を認定することによって、海進一海退サイクルによる環境変動のリズムを読みとる。産出した貝化石の年代を測定し、地層の堆積年代・堆積速度を求める。さらに、貝殻密集層を形成する貝殻で、様々な保存状態のものを 1 つのサンプル（層準）の中で複数個に対して年代測定をする。これは、ひとつの貝殻密集層中にどの位の年代幅をもった化石が混在しているのかを明らかにすることによって、大規模な侵食イベントの頻度や規模（侵食量）そして海岸線の埋積（前進）速度を見積もる。二枚貝など、比較的運動能力の低い海洋底生動物の生息条件には、底質の侵食とその後の急速埋没、すなわち海底の物理的擾乱が大きく関わっている。このように、二枚貝は海底の物理環境によって種の棲み分けがなされているので、二枚貝化石を指標にすることによって、海底の物理環境の変遷を高精度で復元する。これらの解析によって明らかにされた沿岸環境の変遷から、海水準変動に関係した海岸地形発達の将来予測に関する議論を展開する。</p>			
<b>【使用主要施設】</b>			
東濃地科学センター ペレトロン			

### 【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成12年度は、1) 千葉県九十九里浜周辺のボーリングコア試料4本分計75mの処理と貝化石試料の組成解析および年代測定の一部、2) 千葉県館山市のコア、神奈川県三浦半島のコア計80mの処理、3) 千葉県館山市に分布する完新統の野外調査および貝化石試料の年代測定の一部を実施した。

### 【研究成果（当該年度）】

#### 1) ボーリングコア試料

##### 1-1) 試料と方法

この研究で使用するボーリングコアは、核燃料サイクル開発機構が、房総半島東部九十九里浜周辺、房総半島南部館山市周辺、三浦半島で掘削したものである。

試料を流水下において1mm目のふるいで洗い、化石と堆積物に分離した。その後、残った二枚貝殻の中で殻頂部が残っている標本のみを1個体として数えた。これは、1個体を複数個体として数えることを防ぐためである。合弁個体は2個体、離弁個体は1個体として数えた。産出する貝化石のほとんどの種は現在も生息しているので、現在の貝類の地理的分布や深度分布(Oyama, 1973; 波部, 1977; 肥後・後藤, 1993など)をから環境の変遷を推定する。このような、現生種貝類の地理的分布や深度分布に関する情報に基づいて、第四紀の貝類化石群を分析する手法は、ほとんど常套手段といえるほど広く用いられている(例えば、Aoki and Baba, 1980)。これは、日本近海の現生貝類の生息分布に関するデータが多量に蓄積されている(例えば、大山, 1952; Oyama, 1973)からで、信頼性はある程度保たれると考える。また、最近では貝類、中でも二枚貝類が、ストーム(暴風)など比較的頻繁に起こるイベント堆積作用に伴う物理的擾乱(洗い出しや急速な埋没など)によっても制限されていることが明らかになりつつある(例えば、Kondo, 1997, 1998; 鎌滝, 1999; Kamataki, 2000MS)。よって、貝化石の産出状態や種構成を指標とすることによって、堆積当時の海底における物理的擾乱の度合いを、相対的ではあるが推定することができる。

増田(1998)やFujiwara et al. (2000)らによって、高密度の年代測定、化石の分析、そして堆積相解析を組み合わせることによって、過去のイベントを地層から読みとれることが明らかになってきた。それらの地層は、侵食と堆積をイベント(ストームや津波など、突発的な事象)として繰り返すことによって形成され、海岸の地形発達を促す。そしてイベントの周期や規模を読みとることによって、海岸地域における地形発達史を明らかにすることが可能となる。それにはまず、地層の厚さと堆積年代から地層の堆積速度を求める必要がある。コア中で垂直方向に年代測定を高密度でおこなうことによって、その部分での“堆積速度”が求められる。ここで対象とするような浅海域(海岸地域)で形成された地層では、連続した堆積作用の歴史を記録しているわけではなく、イベントによる侵食や堆積作用を繰り返した結果が地層として残されている。よってこの“堆積速度”とは、ある一定期間にそこに堆積する地層の厚さ、すなわち見かけの“堆積速度”ということになる。よって、侵食量を見積もるために、欠落した地層の年代を求める必要がある。

この研究で扱う九十九里浜のコア中に観察される地層には、侵食面が複数みられ、その侵食面上には貝殻密集層が形成されている。この貝殻密集層の中には、下位の地層の中に含まれていた化石が再堆積して混ざっている(藤原ほか, 2000)。貝殻密集層中に閉じこめられた再堆積した貝殻が示す年代幅によって、侵食面を形成したときの侵食量、すなわち欠落した地層の厚さを見積もることができる。これによって貝殻密集層として地層に残されるイベントがどの程度の量の地層を削剥するのか、もしくはどれくらいの周期でそれが記録されている

のかを明らかにする。これらのデータをベースとして、侵食や堆積作用による海岸の地形発達史を明らかにする。

この研究は、1) コアの処理、2) 化石群集の解析、3) コアの堆積環境の推定、4) 高密度での年代測定、という一連の作業をバランス良く、そして高い精度で組み合わせることによって効果的に成果を達成できる。現在までに1) を終了し、2), 3), 4) を一部実施した段階であり、堆積速度やイベントの周期や規模を見積もるために貝化石からのデータを取得しつつある。今後はそれらのデータを検討しながら、海岸地形発達の具体的なプロセスを検討してゆく。現時点までに九十九里浜周辺の、真亀川と夷隅川流域で掘削したコア3本（第2, 3, 4図）の解析をおこなったので、明らかになったことを以下に記載する。

### 1-2) コア資料の記載

#### 1-2-1) 真亀川 (MG1, MG2) コア (第1, 2, 3図)

MG1 (第2図), MG2 (第3図) 両コアで115サンプルを処理し、貝化石の群集解析をおこなった。

コアの下部から上部へと以下のような変化がみられる。

##### 下部外浜環境 (第5図) :

侵食面直上の地層には、穿孔貝によって穿孔された泥岩礫や、下部の地層からと思われる泥岩の偽礫を含む。化石は保存状態の悪いもの（摩滅した破片）と新鮮なものが混ざって産出する。

その上では、生物攪拌作用（生物の摂食・排泄活動や巣営活動によって堆積物が攪拌されること）を受けた泥質細粒砂層中に、チヨノハナガイ (*Raetellops pulchella*) やミゾガイ (*Siliqua pulchella*) が多く産出する。これらは主に泥質の堆積環境を示している。

##### 上部外浜環境 (第5図) :

斜交層理の発達した細粒砂層中に、ヒメバカガイ (*Mactra crossei*), フジノハナガイ (*Chion semigranosus*) などが多く産出する。これらは前浜から上部外浜の堆積環境を示している。

##### 前浜環境 (第5図) :

平行葉理が発達し、前浜堆積物に特徴的にみられるとされ、ゴカイの仲間による摂食痕とされる生痕化石 *Macaronichnus segregatis* を含む。貝化石は全くみられない。

##### 後浜環境 (第5図) :

前浜堆積物と比べてやや粗粒な堆積物となり、生痕化石や植物片の化石が多くみられる。貝化石は全くみられない。

#### 1-2-2) 夷隅川 (IS2) コア (第1, 4図)

IS2コアでは15サンプルを処理し、貝化石の群集解析をおこなった。

コアの下部から上部へと以下のような変化がみられる。

##### 内湾環境 :

干潟；植物片を多く含む泥岩中にオキシジミ (*Cyclina sinensis*), イボウミニナ (*Batillaria zonalis*) が多く産出する。これらは干潟の環境を示す化石群である。

湾央付近；生物攪拌作用を受けた泥質細粒砂層中に、ウラカガミ (*Dosinella penicillata*), シズクガイ (*Theora fragilis*), チヨノハナガイ (*Raetellops pulchella*), ゴイサギ (*Macoma tokyoensis*) など、内湾泥

底に生息する種が多く産出する。

下部外浜環境（第5図）：

ラビーンメント面（海進に伴う外浜侵食によって形成される侵食面）直上で、穿孔貝によって穿孔された泥岩礫や、下部の地層からと思われる泥岩の偽礫を含む。化石は保存状態の悪いもの（摩滅した破片）と新鮮なものが混ざって産出する。保存状態の悪いものは、泥岩に穿孔する二枚貝類の破片が多く、新鮮なものは、現在の外浜に生息するヒメバカガイ（*Mactra crossei*）などが多い。

上部外浜環境（第5図）：

真亀川コアと同様に、ヒメバカガイ（*Mactra crossei*）を中心とする化石群である。

### 1-3) 解釈

真亀川流域で掘削された MG1, MG2 コアでみられる化石群の変化は、縄文海進以降の相対的海水準の低下（海退）に対応していて、外浜が埋め立てられて浅海化し海浜へと移り変わっていく過程を記録している。外洋に面したところで地層が形成されたと考えられる MG2 コアでみられる深度 21m 付近の侵食面（第3図）は、その年代値（藤原ほか, 2000）から、最大海進期以降で海退の過程で形成されたダウンラップ面（堆積物が陸域から前進することによって形成される面）と推定される。このダウンラップ面よりも下位の地層は基盤の更新統であると考えられるため、完新統はこの侵食面よりも上位の地層のみである。よってこの地層はダウンラップ面以降の地層、すなわち高海水準期堆積体（海水準が高い時期から低下していくときの堆積物）のみからなる。海進期堆積体（海進期に形成された地層）は、高海水準期に陸方向から堆積物がプログラデーション（前進）する過程で侵食され、すべて削剥されてしまって残らなかつたと考えられる。このように不完全な堆積シーケンスが形成されたと解釈できる。

一方、内湾域で地層が形成され始めたと考えられる IS2 コアでは、オキシジミ（*Cyclina sinensis*）やイボウミニナ（*Batillaria zonalis*）などの貝化石を含む干潟堆積物から、徐々に海水準が上昇し、内湾堆積物を経て、その上に侵食面をもって上部外浜堆積物が重なる。この侵食面は深度約 8m 付近でみられ、海水準が上昇することに伴って内湾が埋め立てられ、外洋的な環境になったことによって形成されたラビーンメント面（波食によって形成された侵食面）と解釈される。その上位は最大海進から、海水準の下降に伴って浅海化する様子が記録されている。この地点では、内湾域から海進が始まり海進期の堆積物が厚く堆積したため、高海水準期における堆積物のプログラデーションの際に地層が削剥され切らずに、海進期堆積体が残されていると解釈できる。

このように、この地域の地層の形成は氷河性海水準変動に大きく支配されていることが明らかである。しかし、両地点でみられるコアの下部の岩相、特に地層の残され方に関しては、その堆積環境によって大きく異なる。今後、さらに深い内湾の環境で堆積した館山地域で掘削されたコアの群集解析を進め、比較する予定である。

### 2) 处理済みコアの今後の作業予定

九十九里浜の他のコアと館山、三浦のコアは、試料の処理（堆積物と化石の分離）の段階まで行っていて、今後、環境の変遷を明らかにするための貝化石の群集解析をおこなう。さらに、貝殻密集層の形成に関係した、侵食と堆積というイベントによる侵食量を見積もるため、貝殻の年代測定を行う。

### 3) 陸上露頭

気候変動に伴う海水準変動に対応した侵食や堆積のプロセスを復元するためには、まず地層の形成メカニズムを明らかにする必要がある。その方法の一つとして、堆積相の側方変化を明らかにし、どのような営力によってその地層が堆積したのかを復元することがあげられる。コア試料だけでは堆積相の側方変化が詳しくわからないので、房総半島南部の千葉県館山市の平久里川流域および巴川流域に分布する陸上に露出した完新統を対象に、平成12年6月と11月、平成13年1月の3回にわたって野外調査を行った。

環境変化を明らかにするために採取した試料（1試料は約7リットルの定量試料）は、平久里川セクションで39試料、巴川セクションで20試料の計59試料である。

両地域共に、合弁（二枚貝の殻が合わさった状態）で生息姿勢を保ったウラカガミガイ (*Dosinella penicillata*)などを散在的に含む泥岩を中心とした内湾堆積物中に、離弁（二枚貝の殻がはずれた状態）の貝化石を多く含む粗粒なイベント堆積物が挟まっている。堆積岩には静穏時（平常時）に堆積したもの（ノーマル堆積物）と、突発的な事象によって堆積したもの（イベント堆積物）がある。突発的な事象は、ストーム（暴風）や地震による津波などが代表的である。これらはいずれも強い波や流れを引き起こし、海底の侵食作用とそれに引き続く急速な堆積作用をもたらす。研究対象地域とした館山周辺は、古館山湾という東京湾の中に開いた湾で、適度に遮蔽されているため平穏時には泥が堆積するような静かな環境であったことが推定される。そこに津波が入ってくると、外の環境からの粗粒物質や引き波による陸源物質を豊富に含む地層が形成される。その後、再びもとの環境に回復し泥が堆積するようになり、砂岩泥岩互層が形成される。このように、砂岩泥岩互層を形成するような、静穏時の堆積作用とストームや津波などのイベント堆積作用の繰り返しが、内湾における浅海域の地形発達をコントロールする要因の代表である。

そこで、堆積構造（地層が堆積する過程で形成される堆積物中の構造で、その形成時期と形成営力によって区別される）の観察とともに含まれる化石の組成や産状の違い（例えば、殻の表面が新鮮であるのか摩滅しているのかという違いや、二枚貝の殻が合わさった状態であるのか離れた状態であるのかという違いなど）を考慮することによって、それらの堆積物の形成された営力の違いをより詳細に明らかにできるのではないか、という着眼点のもと、堆積相と化石の産状・種構成の解析を行っている。この解析によって、地層の形成プロセスを明らかにし、海水準変動に関係した海岸地形発達の履歴を明らかにする。

### 4) 貝化石の年代測定

現在、コア試料、陸上露頭試料あわせて100試料を、ペレトロンに測定依頼中である。

### 引用文献

- Aoki, N. and Baba, K., 1980, Pleistocene assemblages of the Boso Peninsula, Central Japan. *Sci. Rep., Inst. Geosci. Univ. Tsukuba, Sec B*, 1, 107-148.
- 藤原 治・鎌滝孝信・増田富士雄, 2000, 前進型外浜堆積物中の貝殻の起源: 千葉県九十九里浜の完新統の<sup>14</sup>C年代値. 月刊地球, Vol. 22, 3, 202-205.
- Fujiwara, O., Masuda, F., Sakai, T., Irizuki, T., and Fuse, K., 2000, Tsunami deposits in Holocene bay mud in southern Kanto region, Pacific coast of central Japan. *Sedimentary Geology*, 135, 219-230.
- 波部忠重, 1977, 日本産軟体動物分類学: 二枚貝綱/掘足綱. 372p, 北隆館, 東京.

- 肥後俊一・後藤芳央, 1993, 日本及び周辺地域産軟体動物総目録. 854p, エル貝類出版局, 大阪.
- 鎌滝孝信, 1999, 堆積速度に影響された貝化石群: 中部更新統下総層群巖層の例. 地質学論集, 54, 175-188.
- Kamataki, T., 2000MS, Formation of shallow-marine molluscan assemblages in a depositional sequence: an example of the middle Pleistocene Yabu Formation, Shimosa Group, Boso Peninsula central Japan. Unpublished Doctoral dissertation, Department of Geology and Mineralogy, Kyoto University, 107p.
- Kondo, Y., 1997, Inferred bivalve response to rapid burial in a Pleistocene shallow-marine deposit from New Zealand. *Palaeogeogr. Palaeoclimatol. Palaeoecol.*, 128, 87-100.
- Kondo, Y., 1998, Adaptive strategies of suspension-feeding, soft-bottom infaunal bivalves to physical disturbance: evidence from fossil preservation. Jhonston, P. A. and Haggart, W. (eds.) *Bivalves: An eon of evolution — paleobiological studies honoring Norman D. Newell*: 377-391, University of Calgary Press, Calgary.
- 増田富士雄, 1998, 高密度で測定された<sup>14</sup>C年代測定値による完新統のダイナミック地層学. 地学雑誌, 107, 713-727.
- 大山 桂, 1952, 海産貝類の垂直分布について. 日本貝類学会誌 (ヴィーナス), 17, 27-36.
- Oyama, K., 1973, Revision of Matajirō Yokoyama's type mollusca from the Tertiary and Quaternary of the Kanto Area. 148p. with 57 plates, Palaeont. Soc. Japan, Spec. Pap. No. 17.

#### 【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成13年度は、引き続きコア試料の解析と陸上露頭における野外調査と試料の分析、そして貝化石の年代測定を実施する予定である。また、貝殻密集層を古環境（主に海底の侵食、堆積など物理環境）の指標として使うためには、貝殻がどのように運搬・集積されるのかを明らかにする必要がある。そこで、貝殻の種類と動き出す流速との関係を調べるため、京都大学大学院理学研究科にある実験用水路を用いて実験をおこなう。

平成14年度は、完新統で得られた成果を異なる時代の地層に応用できるかを確認するため、房総半島に分布する更新統の野外調査をおこない、海水準変動が関係した海岸地形発達の将来予測に関する議論の構築をおこない、研究のまとめとする。

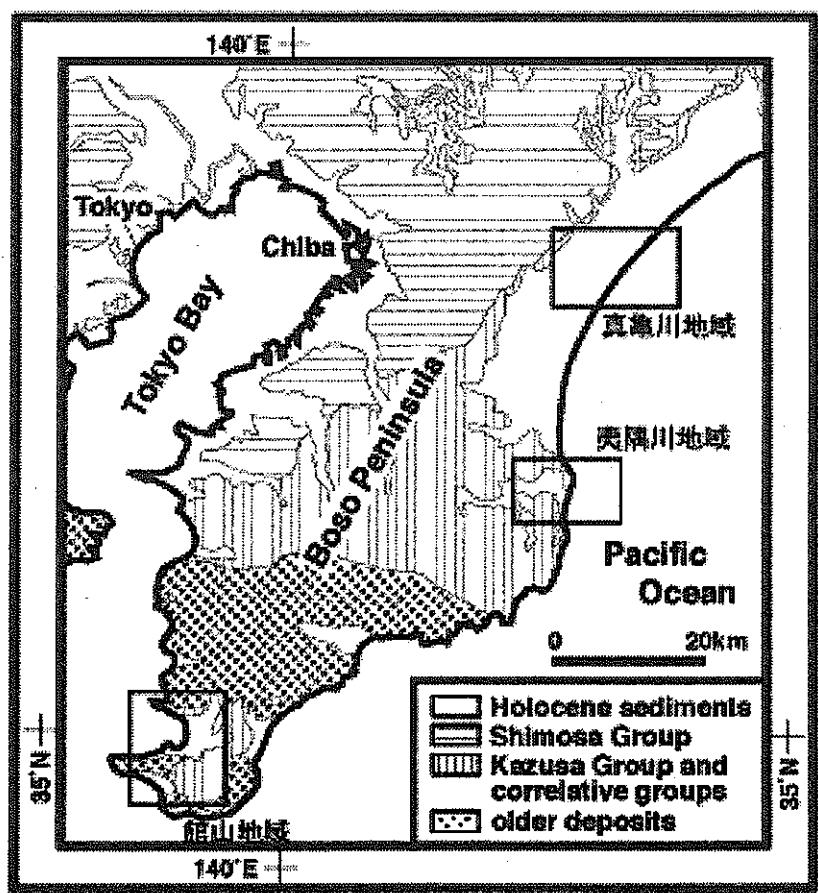
【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

学会発表

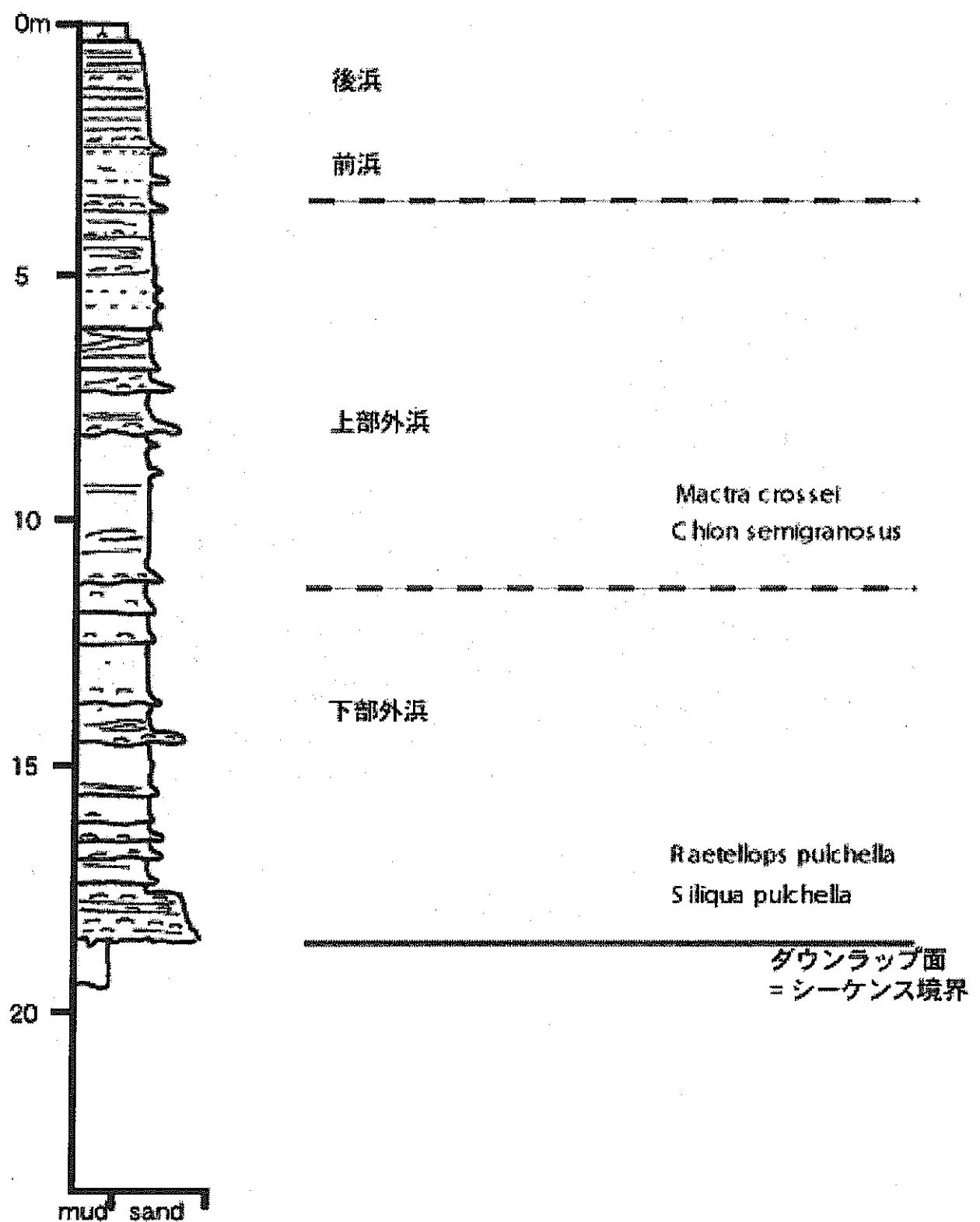
- 1) 鎌滝孝信；堆積シーケンス中における浅海棲底生動物群の形成：中部更新統下総層群藪層の例。日本地質学会第 107 年年会。2000 年 9 月 30 日島根大学。
- 2) 近藤康生・鎌滝孝信；二枚貝類を中心とした下総層群の底生動物化石群集、特に生活様式組成と堆積作用の関係。2000 年日本第四紀学会大会、プレシンポジウム。2000 年 8 月 23 日千葉県立中央博物館。
- 3) 酒井哲弥・藤原 治・鎌滝孝信；房総半島夷隅川低地の完新統からみた地形発達。日本地質学会第 107 年年会。2000 年 9 月 30 日島根大学。

論文・報告書

- 1) 岡崎浩子・佐藤弘幸・中里裕臣・鎌滝孝信, 2000, 房総半島中部下総層群藪層のテフラ、堆積システム、シーケンス層序。2000 年日本第四紀学会巡検案内書。
- 2) 岡崎浩子・佐藤弘幸・中里裕臣・鎌滝孝信, 2000, 中部更新統下総層群藪層から復元された砂嘴一内湾システム。堆積学研究, **52**, 63-74.
- 3) 近藤康生・鎌滝孝信, 印刷中, 房総第四系の二枚貝類を中心とする陸棚底生群集の再評価、特に貧化石層に含まれる低多様度の群集について。第四紀研究。



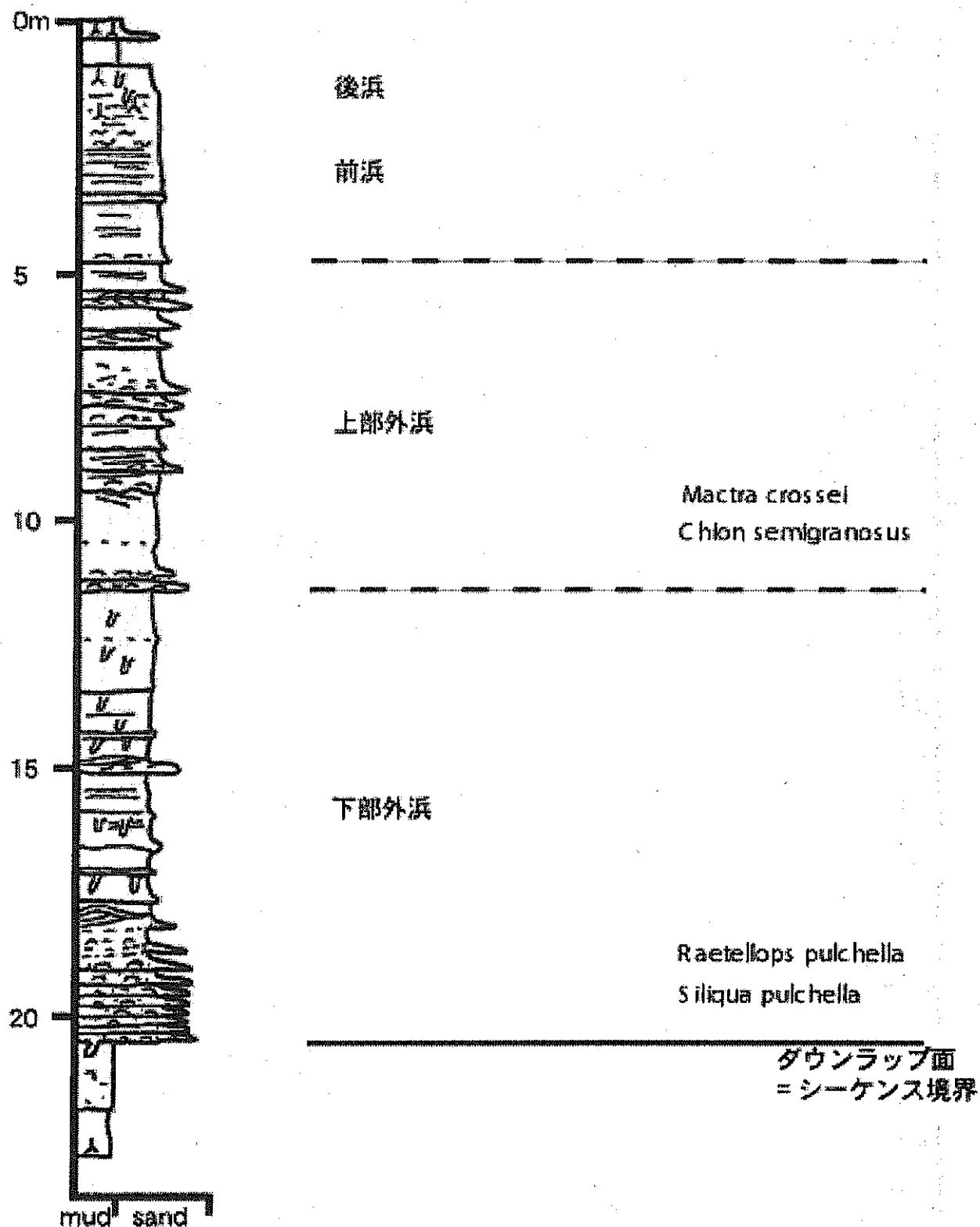
第1図 調査地域



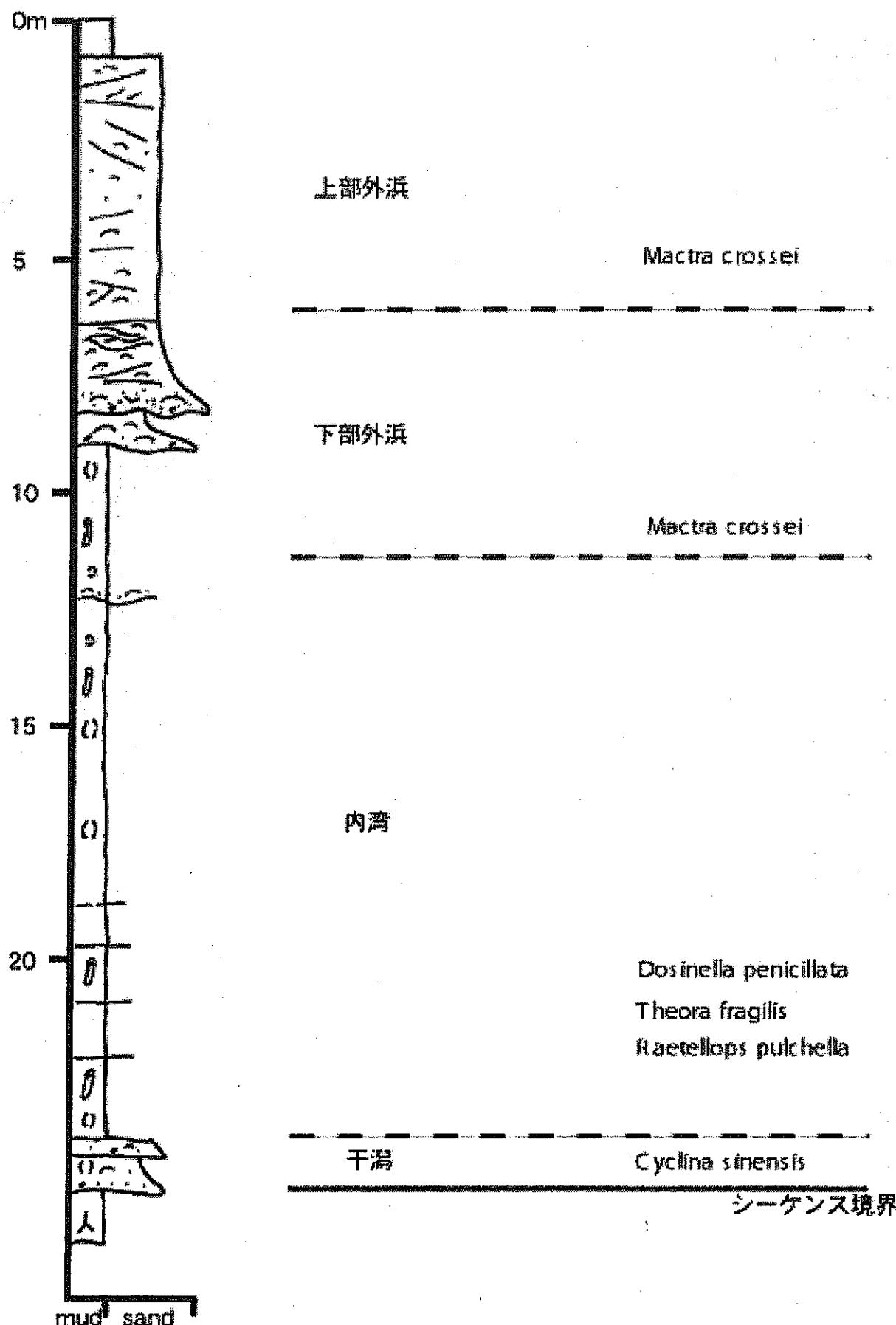
第2図 真龜川MG1コアの柱状図とその環境解釈

## 堆積環境

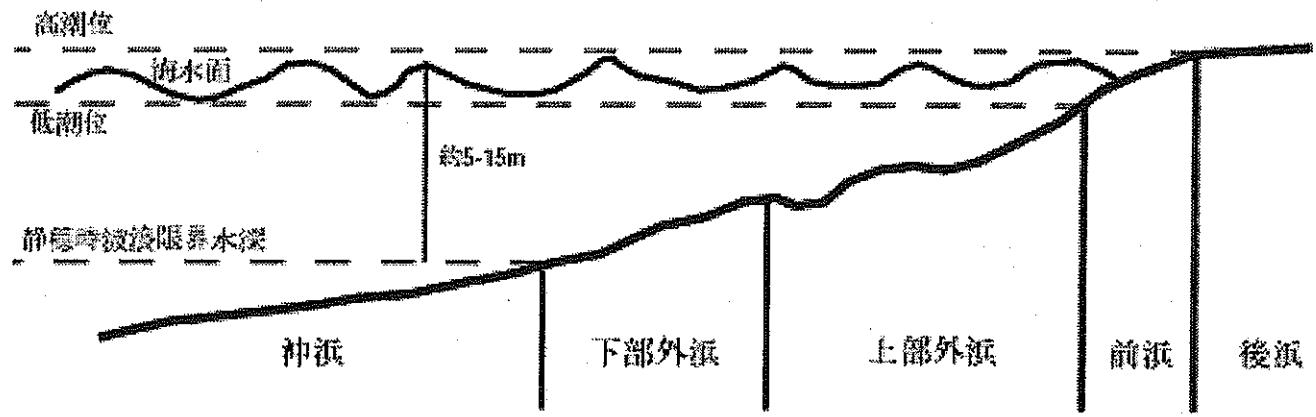
## 特徴的に産出する貝化石



第3図 真龜川MG2コアの柱状図とその環境解釈



第4図 実験川IS2コアの柱状図とその環境解釈



第5図 陸棚上部における深度区分