

博士研究員による平成14年度研究概要報告

2003年8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
電話：029-282-1122（代表）
ファックス：029-282-7980
電子メール：jserv@jnc.go.jp

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)
2003

JNC TN1400 2003-009

2003年8月

博士研究員による平成14年度概要報告

報告者 テーマー覧 参照
編集 技術展開部 技術協力課

要旨

機構では、博士号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14年度で6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、研究者としての業務を得るとともに、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14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、4件の研究テーマが平成14年度で終了した。

JNC TN 1400 2003-009

August 2003

Brief report on the research by JNC Postdoctoral Fellows for 2002

Reported by : refer to the Theme Table

Edited by : Technical Cooperation Section, Technology Management Division

Abstract

The Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC) commenced a JNC Postdoctoral Fellowship Program in 1997 in order to raise capable researchers by providing an appropriate research environment to young postdoctoral researchers, which means that fiscal year 2002 was the sixth year of the program.

The purpose of this program is to provide young researchers full of originality with opportunities to perform research independently on themes related to leading research, and basic and fundamental research of JNC, selected by the researchers themselves and approved by JNC, for a period of two or three years and also to promote the efficiency of JNC's research.

This report includes a summary of the results of the research on sixteen themes performed by JNC Postdoctoral Fellows in the fiscal year 2002. Of these, research into four themes ended in 2002.

— 目 次 —

1. 博士研究員による平成 14 年度研究テーマ一覧	iv
2. 博士研究員による平成 14 年度研究概要報告	
(1) ナトリウム燃焼の化学熱力学に関する研究	1
(2) 月吉断層が土岐花崗岩中の空隙構造へ与える影響に関する研究	14
(3) 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	26
(4) 海水準変動と海岸浸食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	32
(5) 12Cr フェライト鋼を用いた FBR 用構造物についての LBB 評価に関する研究	43
(6) 長寿命小型鉛ビスマス冷却炉心の概念構築及び流量変更による負荷追従の研究	52
(7) 「もんじゅ」蒸気発生器伝熱管の ISI 装置における渦電流探傷技術の高度化研究	64
(8) ウラン化合物磁性材料実用化のための基礎的研究	87
(9) 单成火山活動の時空分布と確率論的将来予測	97
(10) 岩石の電磁気物性解明と電磁アロス観測への応用	109
(11) コロイドの固相表面への付着現象を考慮した多孔質媒体中のコロイドの移行メカニズムの解明および核種移行評価モデルの開発	119
(12) フェライト系鋼の微細構造制御によるスエリング特性改善と機械的性質の向上に関する研究	129
(13) 「もんじゅ」ISI 技術開発における超音波探傷技術の高度化に関する研究	134
(14) 日本列島における過去の地殻変動特性の抽出と未来の構造運動予測 — 重力データを用いて —	159
(15) 深部地質環境における地下微生物の代謝活性およびその地球化学的役割	170
(16) 中性子照射セラミックスの微構造及び物理的特性と結晶結合様式の相関	179

1. 博士研究員による平成 14 年度研究テーマ一覧

博士研究員による平成 14 年度研究テーマ一覧【1/2】

... 平成 14 年度で終了した研究テーマ

採用年度	No.	博士研究員 氏名	研究テーマ 【研究予定期間】	研究実施場所	研究協力者
平成 12 年度	1	功 黄 キトウ 錦濤	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 技開部 材料研 Gr	古川 智宏
	2	村山 セア チジ 大西 セリア 智恵美	月吉断層が土岐花崗岩中の空隙構造へ与える影響に関する研究 【平成 12 年 4 月～平成 15 年 3 月】	東濃 地質環境研究 Gr	水野 崇
	3	丘 わかな 崔 錦坤	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 環境センター 処分研究部 システム解析 Gr	畠中耕一郎 澤田 淳 内田 雅大
	4	加賀 夕乃 鎌滝 孝信	海水準変動と海岸浸食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 地質環境研究 Gr	藤原 治
平成 13 年度	5	1 ヨンシ 俞 淵植	12Cr フェライト鋼を用いた FBR 用構造物についての LBB 評価に関する研究 【平成 13 年 4 月～平成 16 年 3 月】	大洗 技開部 構造 Gr	浅山 泰
	6	トシ NS キー ヴラジミール	長寿命小型鉛ビスマス冷却炉心の概念構築及び流量変更による負荷追従の研究 【平成 13 年 4 月～平成 16 年 3 月】	大洗 システム部 炉燃 Gr	水野 朋保 高木 直行
	7	ミハラケ オビデウ マリウス	「もんじゅ」蒸気発生器伝熱管の ISI 装置における渦電流探傷技術の高度化研究 【平成 13 年 4 月～平成 16 年 3 月】	敦賀本部 国際センター ISI システム開発 Gr	横山 邦彦
	8	弘 アヒロ 木村 昭裕	ウラン化合物磁性材料実用化のための基礎的研究 【平成 13 年 4 月～平成 16 年 3 月】	人形峠 環境保全部 遠心機課	野村 光生 横山 薫
平成 14 年度	9	マーティン アントリュー ジェイムス	単成火山活動の時空分布と確率論的将来予測 【平成 13 年 4 月～平成 16 年 3 月】	東濃 地質環境研究 Gr	藤原 治 梅田 浩司
	10	マツモト ヒロシ 松本 裕史	岩石の電磁気物性解明と電磁アクロス観測への応用 【平成 13 年 4 月～平成 16 年 3 月】	東濃 地質環境研究 Gr	茂田 直孝
	11	チヅュ ヒロミ 鎮守 浩史	コロイドの固相表面への付着現象を考慮した多孔質媒体中のコロイドの移行メカニズムの解明および核種移行評価モデルの開発 【平成 13 年 4 月～平成 15 年 4 月】(注)	東海 環境センター 処分研究部 処分バリア Gr	黒澤 進 吉川 英樹

(注) 当初計画より前倒しで終了した。

博士研究員による平成 14 年度研究テーマ一覧【2/2】

採用年度	No.	博士研究員 氏名	研究テーマ 【研究予定期間】	研究実施場所	研究協力者
平成 14 年 度	12	ヤマシタ シンイチロー 山下真一郎	フェライト系鋼の微細構造制御によるスチールング特性改善と機械的性質の向上に関する研究 【平成 14 年 4 月～平成 17 年 3 月】	大洗 照射センター 燃材部 MMS	赤坂 尚昭 吉武 康光 山県 一郎
	13	ジヨウ ボブ 徐 阳	「もんじゅ」ISI 技術開発における超音波探傷技術の高度化に関する研究 【平成 14 年 4 月～平成 17 年 3 月】	敦賀本部 国際センター ISI システム開発 Gr	上田 雅司 田川 明広
	14	トドウ タクシ 工藤 健	日本列島における過去の地殻変動特性の抽出と未来の構造運動予測 －重力データを用いて－ 【平成 14 年 4 月～平成 17 年 3 月】	東濃 地質環境研究 Gr	野原 壮
	15	ムラミ ヒサキ 村上 由記	深部地質環境における地下微生物の代謝活性およびその地球化学的役割 【平成 14 年 4 月～平成 17 年 3 月】	東濃 地質環境研究 Gr	岩月 輝希
	16	アキシタ マサヒコ 秋吉 優史	中性子照射セラミックスの微構造及び物理的特性と結晶結合様式の相関 【平成 14 年 10 月～平成 17 年 3 月】	大洗 照射センター 燃材部 MMS	館 義昭 堂野前貴子 小野瀬庄二

2. 博士研究員による平成 14 年度研究概要報告

博士研究員（H12）平成14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		
研究協力者 所属・氏名	大洗工学センター 要素技術開発部 新材料研究グループ 古川 智弘	所属長 役職・氏名	新材料研究 グループリーダー 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 14 年 4 月 ~ 平成 15 年 2 月

【研究目的】

「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れたが、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。

【研究内容（概要）】

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 $\text{Na}\cdot\text{Fe}\cdot(\text{O},\text{H})$ 中心として、 NaFeO_2 , Na_4FeO_3 , Na_5FeO_4 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。

【使用主要施設】

本研究を実施するために使用する装置名とその内容：

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。
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。
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。
4. X 線回折装置：試料成分、相の検定、不純物の検査。
5. Thermo-Calc コード等を用いた熱力学模擬計算。

【進捗状況（当該年度までの概要）】

In 2000, a high temperature mass spectrometer (the equipment for the thermodynamic study of Na-Fe oxides) had been developed; ionization cross-sections of sodium-containing molecules had been determined by theoretic calculations so vapor pressures of sodium-containing molecules could be measured.

In 2001, thermodynamic analysis for the main Na-Fe oxides, NaFeO_2 , Na_3FeO_3 , Na_4FeO_3 and Na_5FeO_4 , had been evaluated both by experimental measurements and theoretic assessment of existing data in literatures; a thermodynamically consistent user database of Na-Fe-O system had been created; the basic frame of the Na-Fe-O phase diagrams was built up.

In 2002, data of $\text{Na}_3\text{Fe}_5\text{O}_9$, $\text{Na}_8\text{Fe}_2\text{O}_7$ and $\text{Na}_4\text{Fe}_6\text{O}_{11}$ were determined; a set of ternary Na-Fe-O phase diagrams and their chemical potential diagrams have been constructed up to 1200K; high temperature stability of those Na-Fe oxides was examined, a gas-inlet system was equipped for the high temperature mass spectrometer; a complete thermodynamic database of the Na-Fe-O-H-C system has been created; simulation calculations were also made; effects of $\text{H}_2\text{O}+\text{CO}_2$ atmosphere on equilibrium states of these Na-Fe oxides were studied by experiments and theories, relationship between local environmental conditions and the corrosion type was discussed too.

【研究成果（当該年度）】

① High temperature phases in Na-Fe-O system, such as $\text{Na}_8\text{Fe}_2\text{O}_7$, $\text{Na}_3\text{Fe}_5\text{O}_9$ and $\text{Na}_4\text{Fe}_6\text{O}_{11}$, were evaluated. Together with the other phases tested by the high temperature mass spectrometer, thermochemical stability of the main Na-Fe oxides was understood. It was found that sodium vapor was released from these compounds at high temperatures. Reaction routes were observed by the high temperature mass spectrometer as the following,

- (1) $\text{Na}_5\text{FeO}_4(\text{s}) = \text{Na}_4\text{FeO}_3(\text{s}) + \text{Na}(\text{g}) + 1/2\text{O}_2(\text{g}), \quad (\text{T}<640)$
- (2) $\text{Na}_5\text{FeO}_4(\text{s}) = 1/2\text{Na}_8\text{Fe}_2\text{O}_7(\text{s}) + \text{Na}(\text{g}) + 1/2\text{O}_2(\text{g}), \quad (\text{T}>640)$
- (3) $\text{Na}_4\text{FeO}_3(\text{s}) = \text{Na}_3\text{FeO}_3(\text{s}) + \text{Na}(\text{g}), \quad (550-750\text{K})$
- (4) $\text{Na}_8\text{Fe}_2\text{O}_7(\text{s}) = 2\text{Na}_3\text{FeO}_3(\text{s}) + 2\text{Na}(\text{g}) + 1/2\text{O}_2(\text{g}), \quad (673-813\text{K})$
- (5) $\text{Na}_3\text{FeO}_3(\text{s}) = \text{NaFeO}_2(\text{s}) + 2\text{Na}(\text{g}) + 1/2\text{O}_2(\text{g}), \quad (823-1023\text{K})$
- (6) $\text{NaFeO}_2(\text{s}) = 1/3\text{Fe}_3\text{O}_4(\text{s}) + \text{Na}(\text{g}) + 1/3\text{O}_2(\text{g}), \quad (1200-1350\text{K})$
- (7) $\text{Na}_3\text{Fe}_5\text{O}_9(\text{s}) = 3\text{NaFeO}_2(\text{s}) + \text{Fe}_2\text{O}_3, \quad (\text{T}<1030\text{K}).$
- (8) $\text{Na}_4\text{Fe}_6\text{O}_{11}(\text{s}) = \text{NaFeO}_2(\text{s}) + \text{Na}_3\text{Fe}_5\text{O}_9(\text{s}), \quad (\text{T}<1270\text{K}).$

From the pressure-temperature relationships, Na-Fe-O phase diagram constructed recently was examined and the stability of these Na-Fe oxides at high temperatures was quantitatively determined as functions of temperature, oxygen potential and sodium vapor pressure.

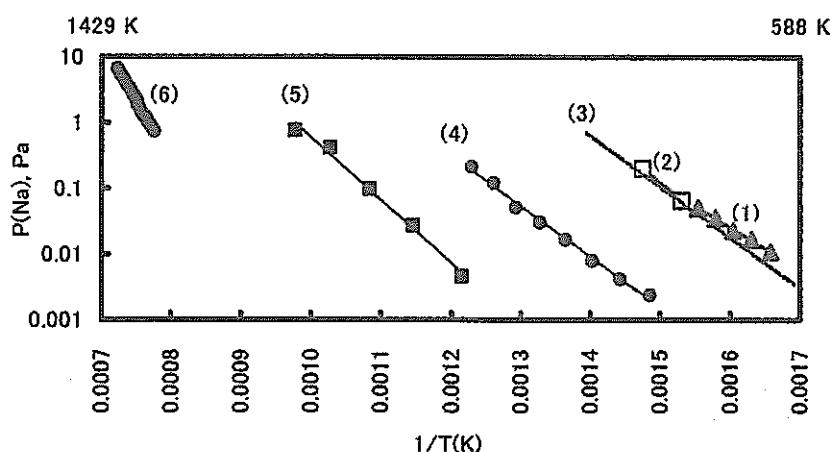


Fig. 1: Sodium vapor pressure over Na-Fe oxides

- ② The user database of Na-Fe-O-H-C for Thermo-Calc and MALT2 has been completed. A set of ternary Na-Fe-O phase diagrams from room temperature to 1200K and some chemical potential diagrams have been constructed too. The phase diagrams show very good consistency with the existing experimental results reported up to now.

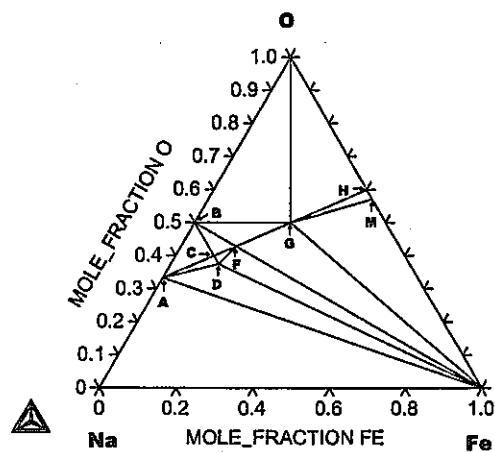


Fig.2: Na-Fe-O, 273-535K

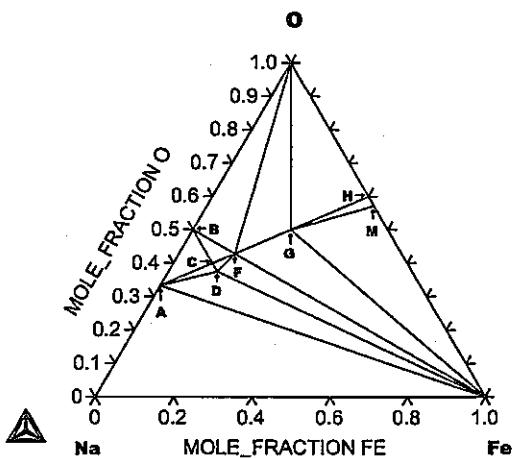


Fig. 3: Na-Fe-O, 535-637 K

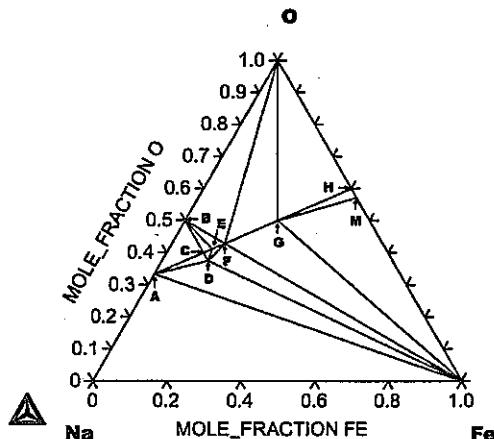


Fig. 4: Na-Fe-O, 637-694K

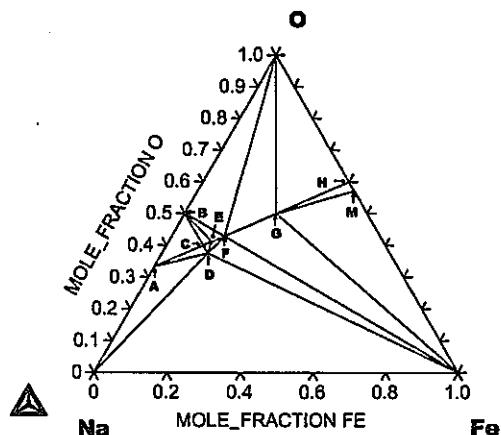


Fig. 5: Na-Fe-O, 694-838K

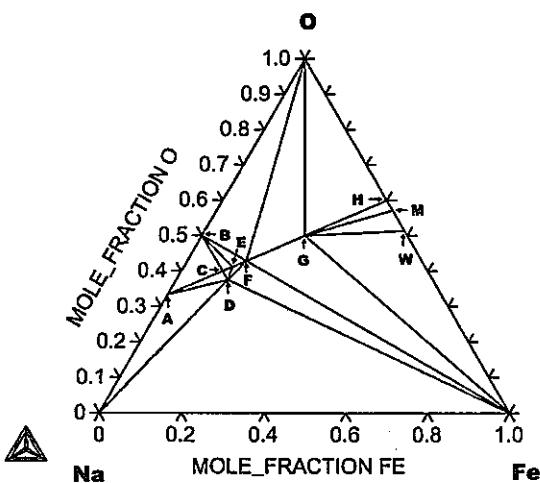


Fig. 6: Na-Fe-O, 838-944K

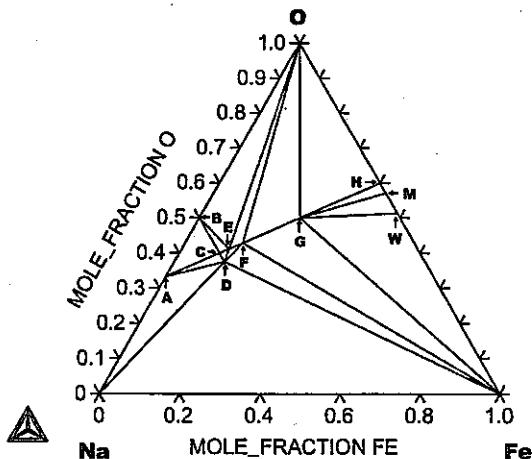


Fig. 7: Na-Fe-O, 944-1030K

(A: Na_2O , B: Na_2O_2 , C: Na_5FeO_4 , D: Na_4FeO_3 , E: $\text{Na}_8\text{Fe}_2\text{O}_7$, F: Na_3FeO_3 , F: NaFeO_2 , H: Hematite, M: Magnetite)

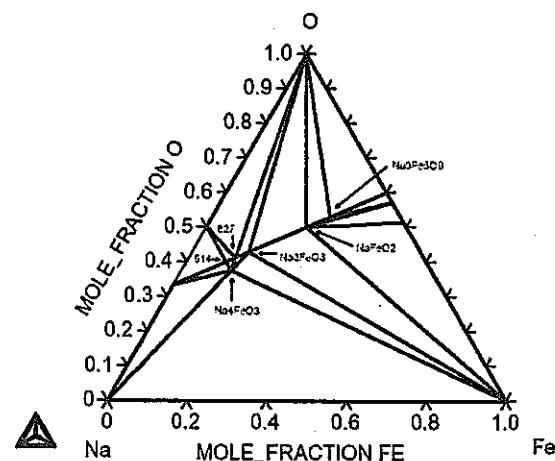


Fig. 8: Na-Fe-O, 1030-1200K

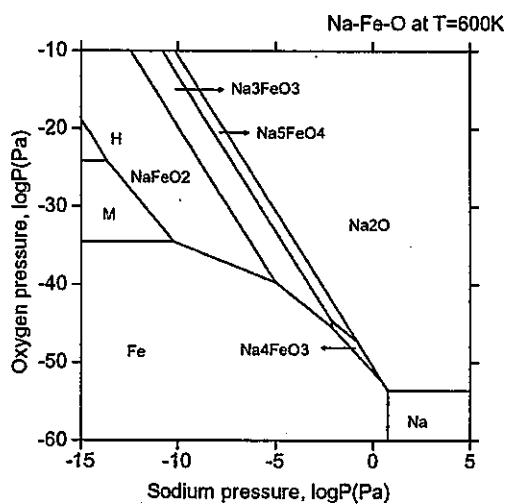


Fig. 9: Na-Fe-O system, T=600K

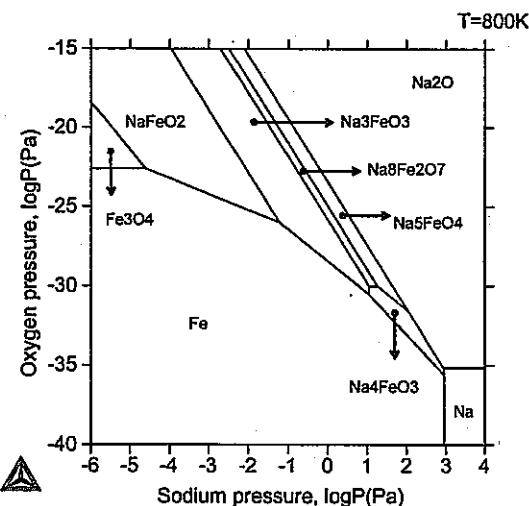


Fig. 10: Na-Fe-O system, T=800K

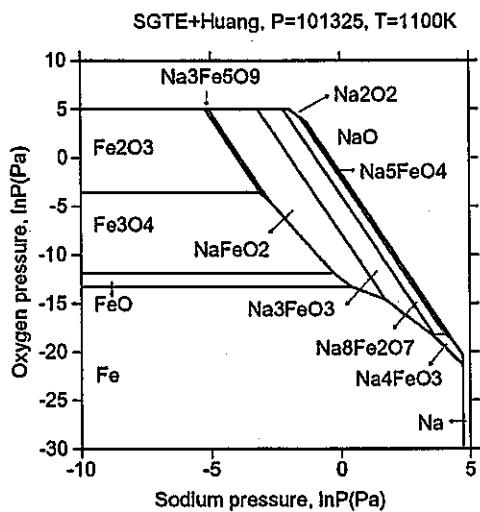


Fig. 11: Na-Fe-O system, T=1100K

- ③ In Na-Fe-O-H-C system, oxygen-sodium potential diagrams as functions of water vapor pressure and carbon dioxide pressure have been constructed. So, the influence of H₂O and CO₂ on Na-Fe oxides was quantitatively studied.

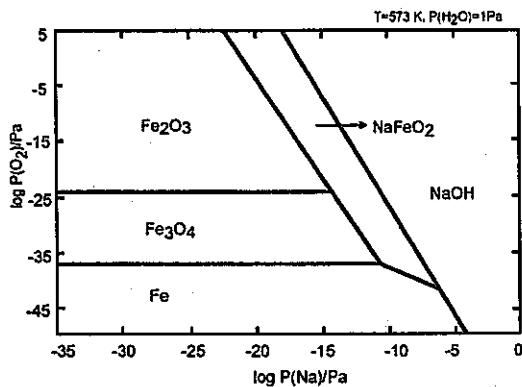


Fig. 12: Na-Fe-O-H system, T=573, P(H₂O)=1Pa

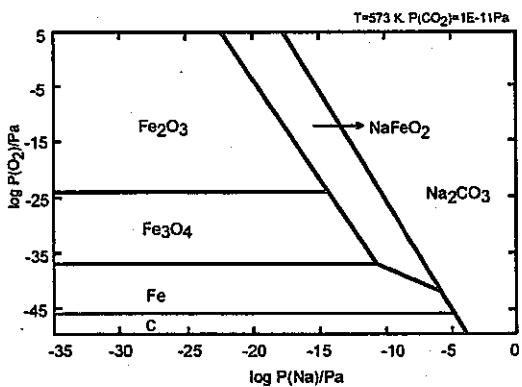


Fig. 13: Na-Fe-O-C system, T=573, P(CO₂)=1E-11Pa

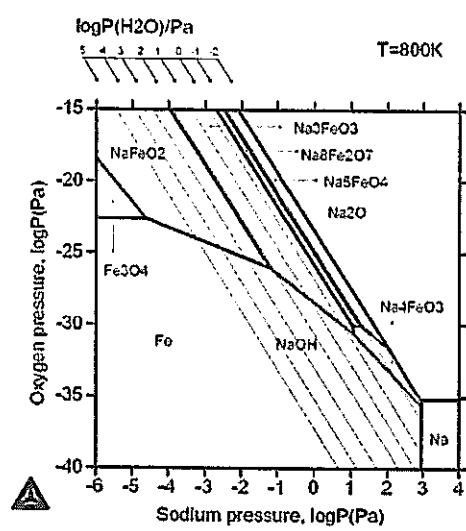


Fig. 14: Na-Fe-O-H system, T=800K

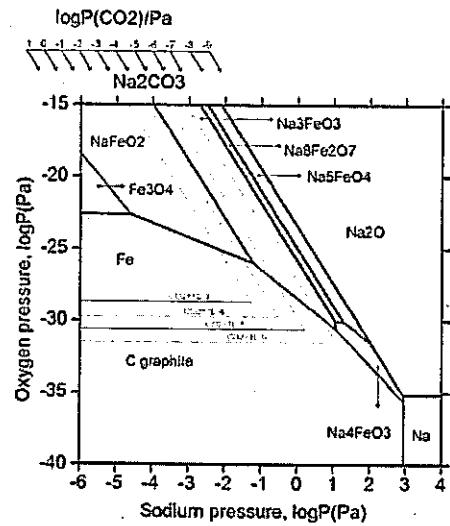


Fig. 15: Na-Fe-O-H-C system, T=800K

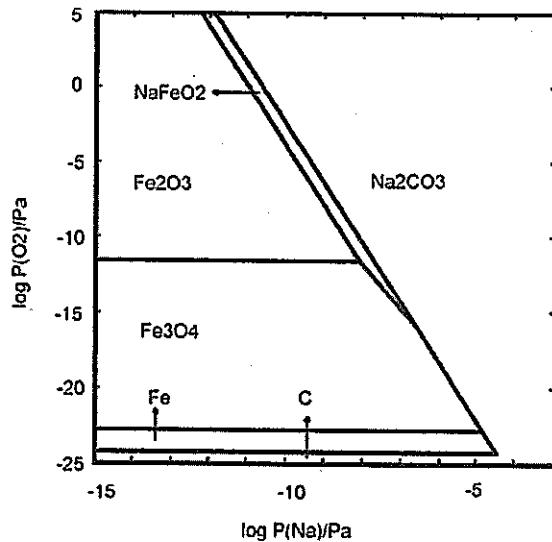


Fig. 16: Na-Fe-O-H-C system at 800K,
 $P(\text{CO}_2)=33\text{Pa}$, $P(\text{H}_2\text{O})<1\text{atm}$

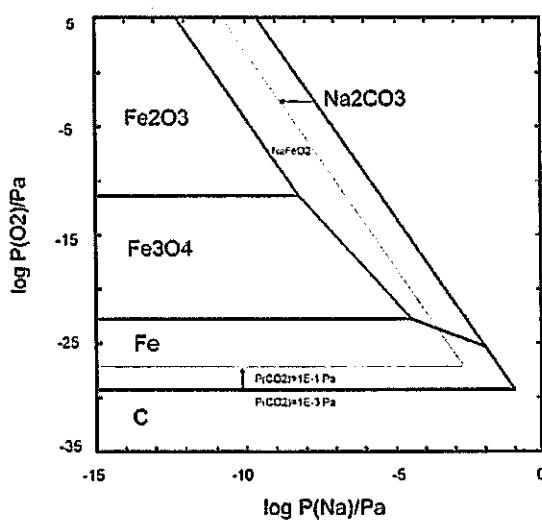


Fig.17:Na-Fe-O-H-C system, T=800K
 $P(H_2O)=1600$ Pa, $P(CO_2)\geq 1E-3$ Pa

The calculation in simulating atmosphere condition suggested that $NaFeO_2$ should be the most stable sodium ferrite together with Na_2CO_3 as shown in Fig. 16-17 while other sodium ferrites such as Na_5FeO_4 , Na_3FeO_3 etc...would be no longer stable in equilibrium state.

From the simulation calculations carried out above, the following conclusions could be made.

- The equilibrium states in Na-Fe-O-H-C is greatly depends on the environmental conditions. Apart from temperature, oxygen potential and sodium pressure, the water vapor pressure and carbon dioxide pressure also have strong influence on behaviors of Na-Fe oxides in the Na-Fe-O-H-C system.
 - Molten salts $NaOH$ or Na_2CO_3 has high possibility to be formed in a wide range of temperature and gases conditions which play great role in the so-called "Molten Salt Corrosion Mechanism" of sodium-leak incident of FBRs.
 - It seems that the influence from CO_2 surpasses that of H_2O to dominate the chemical potential diagram, i.e., CO_2 may have stronger influence on equilibrium states in Na-Fe-O-H-C system than H_2O does.
- ④ A gas-inlet system was added into the high temperature mass spectrometer (Fig.18). This system makes it possible to introduce water vapor and carbon dioxide into the Knudsen cell. So, the influence of environment on chemical stability of sodium iron oxides could be studied. The experiments showed that by introducing H_2+CO_2 , H_2O+CO_2 environment could be established by the reaction $H_2+CO_2=H_2O+CO$. The ration of H_2O/CO_2 could be adjusted by changing input ratio of H_2/CO_2 .

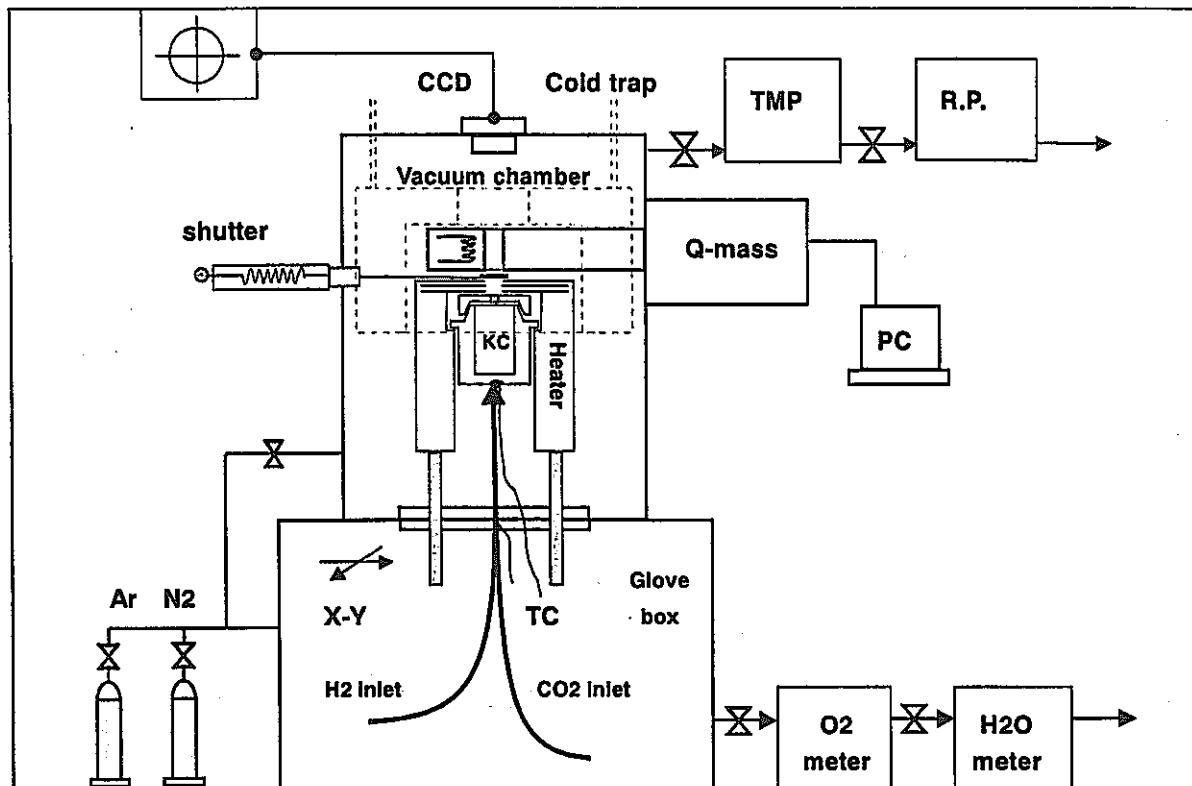


Fig. 18: Schematic of the gas-inlet KEMS

Though the calculations suggested that Na₂CO₃ could be formed even if the pressure of CO₂ is very low as shown in Fig. 17, experiments by gas-inlet KEMS showed that the reaction rate of sodium ferrates with CO₂ was a time-consuming process. Formation of NaOH is actually the dominant process instead of formation of Na₂CO₃ in case of sodium ferrates in H₂O/CO₂ environments. It indicates that reaction kinetics would play a great role in chemical behaviors of sodium ferrates in H₂O/CO₂ environments.

All the experimental results listed in Table 1 seem to be against the equilibrium calculations made in the previous sections. Thus, it is necessary to analysis possible reasons for this discrepancy. One possible reason could be attributed to the kinetic process because it was reported that CO₂ may require much longer time to react with sodium compounds while reaction rate of water with sodium seems very fast. That could explain why Na₂CO₃ was difficult to be identified by XRD analysis in these experiments. Secondly, mass transportation of water vapor may also strongly hamper its reaction with other compounds. The formation of NaOH may require much more amounts of H₂O than that the inlet system could supply as the gas inlet amount is limited to a molecular flow range to prevent the equilibriums inside the Knudsen cell from destruction. For instance, the formation of 1 mg NaOH may require at least 7-14 hours in these gas-inlet experiments if 5-10% of the inlet H₂O reacted with the Na-Fe oxides. For this reason, introduction of water vapor and CO₂ into the KC seems not enough to cause the corresponding reactions to a considerable extends in the gas-inlet KEMS experiments. If the reaction time is long enough, the calculated equilibrium states should be established finally.

Table 1: Experiment results of Na-Fe oxides at various environmental conditions investigated by gas-inlet KEMS

Test sample	Gas inlet conditions	Gas pressure inside the K-cell	Observed compounds by XRD	Memo
Na ₅ FeO ₄	H ₂ +CO ₂ inlet 873-923K 20hrs	P _{H2O} =0.5~1Pa P _{CO2} =0.5~1Pa P _{Na} =1~10Pa P _{NaOH} =10 ⁻² ~1Pa	Na ₅ FeO ₄ , Na ₈ Fe ₂ O ₇ , NaOH	No evidence of Na ₂ CO ₃ and other Na-Fe oxides were found. Possible reaction: 2Na ₅ FeO ₄ +H ₂ O=Na ₈ Fe ₂ O ₇ +2NaOH 2Na ₅ FeO ₄ =Na ₈ Fe ₂ O ₇ +2Na+O ₂
Na ₅ FeO ₄	CO ₂ inlet 873-923K 20hrs	P _{CO2} =0.5~1Pa P _{Na} =1~10Pa	Na ₅ FeO ₄ , Na ₈ Fe ₂ O ₇	No evidence of Na ₂ CO ₃ and other Na-Fe oxides were found. Thermal decomposition would have occurred. 2Na ₅ FeO ₄ =Na ₈ Fe ₂ O ₇ +2Na+O ₂
Na ₃ FeO ₃	H ₂ +CO ₂ inlet 873-923K 20hrs	P _{H2O} =0.5~1Pa P _{CO2} =0.5~1Pa P _{Na} =1~10Pa P _{NaOH} =0.04-1Pa	Na ₃ FeO ₃ , NaFeO ₂ NaOH Fe ₃ O ₄ ,	No evidence of Na ₂ CO ₃ and other Na-Fe oxides were found. Possible reaction: Na ₃ FeO ₃ +H ₂ O=NaFeO ₂ +2NaOH
Na ₅ FeO ₄	H ₂ +O ₂ inlet 523-573K 10hrs, 53hrs, 108hrs.	P _{H2O} =8~10Pa P _{Na} <1E-3Pa	Na ₅ FeO ₄ , NaOH Na ₃ FeO ₃ NaFeO ₂	NaOH was found from the initial stage. When the amount of Na ₅ FeO ₄ decreased, Na ₃ FeO ₃ and NaFeO ₂ were found. Possible reactions would be, Na ₅ FeO ₄ +H ₂ O? Na ₃ FeO ₃ +2NaOH Na ₃ FeO ₃ +H ₂ O? NaFeO ₂ +2NaOH
Na ₅ FeO ₄	CO ₂ inlet 523-573K, 100hrs	P _{CO2} =8~10Pa P _{Na} <1E-3Pa	Na ₅ FeO ₄	No evidence of Na ₂ CO ₃ and other Na-Fe oxides were found. No reactions observed.

- ⑤ To overcome the shortcomings of the gas-inlet KEMS experiments, a separated experiment conducted by T. Furukawa may provide another evidence to support the above conclusions, in which flowing air including water vapor and CO₂ was sweeping over Fe+Na₂O₂ at rate of 100ml/min at 823 K. In this condition, the gas amounts were about 120 times than that used in the gas-inlet KEMS experiments.

The relationship between reaction time and the products was given in Table 2. It showed that NaOH was formed since the very beginning. Na₂CO₃ was able to be identified by XRD after a few hours. It can also be noticed that the longer the reaction time, the more the content of Na₂CO₃. NaFeO₂ was found as the final stable sodium ferrite. At the initial stage, however, no sodium ferrites were found except for Fe₂O₃. It indicated that the Na₂CO₃ was probably formed via reaction of NaOH+CO₂, instead of reaction between sodium ferrites and CO₂ directly. The reason might be that the reaction speed of NaOH+CO₂ is much more faster. These results again suggested that reaction rate of CO₂ with sodium ferrates would be much slower than other possible reaction routes.

Table 2: Fe+Na₂O₂ in H₂O+CO₂ at 823 K

Time (hour)	Observed products
2	Na ₂ O ₂ , NaOH
4.5	Na ₂ O ₂ , NaOH, Fe ₂ O ₃
7	NaOH, Na ₂ CO ₃ , NaFeO ₂ , Na ₂ O ₂
20	NaFeO ₂ , Na ₂ CO ₃ , NaOH

* Products listed in order of its amount identified by the XPD analysis

- ⑥ From early studies by Aoto and Furukawa, two corrosion mechanisms were proposed, i.e., the corrosion by means of formation of Na-Fe complex oxides and the Molten Salts Corrosion. The corrosion rates in the later case were about several times faster than those in the former case. So, the later type of corrosion is of more significance for the safety analysis point of view.

The formation of NaOH was a precondition for the Molten Salts Corrosion. According to the previous calculation, it is clear that NaOH is thermodynamically stable as long as water vapor is present in the surrounding environment. The further experiments in various gas-inlet conditions again confirmed that NaOH can be formed even if the water vapor pressure is very low. So, the Molten Salts Corrosion would happen in such a condition that the water vapor supply is adequate. Thus, water vapor transport from the surrounding area to the reaction zone will play important role in this process. Corrosion mechanisms at different location may be quite different depending on its local environmental conditions. For example, the reaction zone can be classified as the following two large types:

- The open interface of Fe and the reactants exposed to the atmosphere, where water vapor can be supplied from the air.

In this zone, a quantity of NaOH liquid could be formed. If the environmental condition meets other requirements for occurrence of the Molten Salt Corrosion mechanism, a high corrosion rate to the iron-based structure materials could not be avoided. Since the corrosion speed is a few times higher than those in nearby areas, it consequently would result in holes in the steel and let sodium penetrate the steel to cause further serious damages. In theory, possibility of the contact of sodium with concrete flour could not be denied. However, the probability of explosion out of reaction of sodium with the water stored in the concrete is almost impossible, because the stored water in concrete can not meet the demand that an explosion requires in an instant moment.

- The close inner zone isolated by the reactant and products, where only very limited amount of water and carbon dioxide were enclosed in the reaction system.

In these zones, Na-Fe complex oxides would be the main reaction products. The chemical states of sodium ferrates will be determined by temperature, oxygen potential and the amount of sodium. If the local oxygen had been consumed very quickly, the oxygen potential would decreased to such a low level that even Na₄FeO₃ would be stable. During the development of the whole complex chemical reaction processes, oxygen potential might also have chances to change by various oxygen transportation processes, such as diffusion through the liquid, solid or other tunnels formed during the Molten Salt Corrosion occurred in neighbors. So, formation of other sodium ferrites like Na₅FeO₄, Na₃FeO₃ as well as NaFeO₂ would be also reasonable. Considering the thermal decomposition of sodium ferrites at high temperatures, NaFeO₂ and Na₃FeO₃ would have higher probability to be found in these areas in case of the sodium-leak incident.

【成果の反映状況】

本年度で終了します。

本研究で得られた研究成果は、学会誌へ投稿及び国際会議への発表に反映されている。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

JNC レポート :

- (1) JNC レポート TN9400 2000-101 : "System Assessment and Calibrations of the Knudsen Effusion Quadrupole Mass Spectrometer", 2000 年 8 月
- (2) JNC レポート TN9400 2001-046 : "Quantum Mechanic Study of Electron Impact Ionization Cross Sections of Sodium-containing Molecules", 2001 年 2 月
- (3) JNC レポート JNC TN9400 2001-095 : "Determination of Gibbs Energy of Formation of Na_3FeO_3 by High Temperature Mass Spectrometer", 2001 年 10 月
- (4) JNC レポート JNC TN9400 2002-006, "Assessment of Thermochemical Data of Ternary Na-Fe Oxides and Calculation of Na-Fe-O Phase Diagram", 2002 年 4 月。
- (5) JNC レポート (登録手続中)、"Physical and Chemical Properties of sodium ferrates and equilibrium calculations in $\text{H}_2\text{O}/\text{CO}_2$ environment", 2003 年 1 月。
- (6) JNC レポート (登録手続中)、"Thermochemical investigation of sodium combustion", 2003 年 2 月。

国際会議での発表

- (7) The 47th International Conference on Analytical Science and Spectroscopy, Aug. 19-22, 2001, Toronto, Canada, "Study of electron impact ionization cross sections of sodium-containing molecules".
- (8) The 17th IUPAC Conference on Chemical Thermodynamics (ICCT), July 27-Aug. 4, 2002, Rostock, Germany. Thermodynamic study of Sodium-iron oxides Part I: Mass spectrometric study of Na-Fe oxides", Book of Abstract, p196-197;
- (9) The 17th IUPAC Conference on Chemical Thermodynamics (ICCT), July 27-Aug. 4, 2002, Rostock, Germany. "Part II: Ternary phase diagram of the Na-Fe-O system", Book of Abstract, p227.
- (10) The 11th International IUPAC Conference of High Temperature Materials Chemistry, 山上会館東京大学、"High temperature behavior of Na-Fe oxides in $\text{H}_2\text{O}+\text{CO}_2$ atmosphere", 2003 年 5 月 18-23.

国内会議での発表

- (11) 日本質量分析学会: 第 49 回質量分析総合討論会 (2001)、2001 年 6 月 18-20 日、東京大学、"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", 講演要旨集 p94-95.
- (12) 日本原子力学会, 2001 年秋の大会、2001 年 9 月 19-21 日、北海道大学、"Development of Vapor Pressure Measurement System by Using Mass Spectrometer", 予稿集第三分冊 p669.
- (13) 日本熱測定学会: 第 37 回熱測定討論会、2001 年 11 月 20-22 日、仙台国際センター、"高温質量分析計による Na_4FeO_3 の蒸気圧測定", 熱測定討論会講演要旨集 p60-61.
- (14) 日本質量分析学会: 第 50 回質量分析総合討論会 (2002)、2002 年 5 月 15-17 日、京都工芸織維大学、"Na-Fe-O 系に関する熱力学解析". 講演要旨集 p72-73.
- (15) 日本熱測定学会: 第 38 回熱測定討論会、2002 年 10 月 24-26 日、金沢市、"蒸気圧測定による NaFe 複合酸化物の高温安定性に関する研究".
- (16) 日本原子力学会: 2003 年春の大会、2003 年 3 月 27-29 日、アルカス SASEBO、"NaFe 複合酸化物 $\text{Na}_4\text{Fe}_6\text{O}_{11}$ の熱力学評価", 口頭発表予定.

学会誌への投稿

- (17) J. Huang, T. Furukawa, K. Aoto and M. Yamawaki, J. Mass Spectrometry Society of Japan, "Study of electron impact ionization cross-sections of sodium-containing molecules", Vol.50, No.6, 2003, p296-300.
- (18) J. Huang, T. Furukawa and K. Aoto, Thermochimica Acta, "Thermodynamic study of sodium-iron oxides Part I: Mass spectrometric study of Na-Fe oxides",
- (19) J. Huang, T. Furukawa and K. Aoto, Thermochimica Acta, "Thermodynamic study of sodium-iron oxides Part II: Ternary phase diagram of the Na-Fe-O system", 2003. (in print)
- (20) J. Huang, T. Furukawa and K. Aoto, The Journal of Chemical Thermodynamics, 2003. (submitted)
- (21) J. Huang, T. Furukawa and K. Aoto, Journal of Physics and Chemistry of Solids, "High temperature behavior of Na-Fe oxides in $\text{H}_2\text{O}+\text{CO}_2$ atmosphere", 2003. (to be published)

博士研究員（H12）平成14年度研究概要報告書

研究テーマ	月吉断層が土岐花崗岩中の空隙構造へ与える影響に関する研究		
研究者氏名	大西 セリア 智恵美		
研究協力者 所属・氏名	東濃地科学センター 地質環境研究グループ 水野 崇	所属長 役職・氏名	地質環境研究 グループリーダー 福島 龍朗
研究実施場所	東濃地科学センター 瑞浪地科学研究館		
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 14年 4月 ~ 平成 15年 3月
【研究目的】			
<p>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).</p> <p>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.</p> <p>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>			
【研究内容（概要）】			
<p>Samples from Toki granite 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.</p> <p>For this study, samples will be selected for petrographic, Bulk Porosity, Laser Scanning Microscope (LSM) analysis and Permeability measurements</p> <p>Detail petrological analyses will be carried out in order to identify differences in mineralogy, texture and fracture patterns of granitic rock.</p> <p>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.</p> <p>For the pore structure analysis under Laser Scanning Microscope, the research will be conducted at University of Tokyo.</p> <p>Due to restrict samples of boreholes, preliminary research will be conducted during the first year in order to develop and optimize the method.</p> <p>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, XRD), JNOC (bulk porosity), University of Tokyo (LSM) and Kyoto University (permeability)			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

During the fiscal year of 2000, I reviewed the geology of Tono Area primarily around the Tsukiyoshi Fault and started experiments with different impregnation methods at DH-6 borehole. MIU3 borehole was selected for of description of detail structural analysis to constrain the effects of the Tsukiyoshi fault in the Toki Granite. Detail sampling, bulk porosity and pore size distribution was measured.

In the fiscal year of 2001, detailed characterization of the structures including main faults, fractures and indication of fault movement was performed in macroscopic and microscopic scales at MIU3 drillcore. Impregnation method and characterization of pore structure were performed using laser scanning microscope in collaboration with Ass. Prof. Shimizu at University of Tokyo. Additional work consisted of XRD analysis of clay mineralogy in fault zone and initial permeability measurement at Kyoto University.

In the fiscal year of 2002, the main research achievements were the improvement of digital image analysis and permeability measurement, discussions and writing publications.

【研究成果（当該年度）】

During the fiscal year of 2002, my research was an extension of earlier pore structure investigations and their relationship with geological structures and deformation in the Toki granite. The majority of the time was spent improving the laser scanning microscope and permeability measurement, as well to combine all data for a final publication for an international journal.

From the study of structures described in the previous report, four main domains (undeformed, cataclastic seams, damage and fault core) were identified from detail structural analysis of the drill core of MIU3 borehole (fig.1). Microscopic analysis of oriented samples indicates anisotropy in microcrack development in two orthogonal directions – H and V sections in relation to major subvertical fault and fracture orientation. The fractures are well developed in the damage zone of the Tsukiyoshi Fault (fig.2). The samples were used for impregnation method and permeability measurement to understand the influence of fractures on the transport properties of Toki Granite. Bulk porosity measured with He Pycnometer and Hg injections shows the increasing porosity toward the fault zone (table 1). Connected porosity from accumulate volume illustrate its variations with pore diameter (fig. 3). Bimodal pore distribution is observed in the fresh and cataclastic domains with more heterogeneous pore distribution in the damage and fault zone.

During the course of my research, improvement on the digital image analysis taken under the laser scanning microscope - LSM (fig.4 and 5) was applied to the Toki granite. The LSM used in this study is the Olympus Fluoview Laser Microscope equipped with K-Ar laser source (488nm, 543nm, 568nm). In this study we were able to capture digital intensity maps of green light fluorescence excited by blue (488nm) wavelength laser beams. The fluorescence intensity ranges from 0-4096 grey levels. The resolution of the CLSM depends upon the microscope lens as well with the depth. The optical resolution using different optical lens is described by *Shimizu and Shimada, 2002*. Different kinds of approaches were applied i.e., *Hellmuth et al, 1993, Montoto et al, 1995, Nishiyama and Kusuda, 1994* to the measurement to obtain quantitative information on the pore structure. However, using digital image analysis to improve image quality by contrast manipulation and application of spatial filters (*Gonzales and Woods, 2001*) may cause great variations on the quantitative result of porosity and connectivity (*Onishi and Shimizu, in review*). Additionally, for low porosity rocks like Toki Granite, which ranges from less 1% to 6% and where the pore is restricted to grain boundary, cleavage, intragranular fractures, it is most likely that the error from digital image is higher than the bulk measurement. Therefore, the LSM was used as a tool to visualize the microcracks and correlate the microstructure with possible flow pathway.

Figure 5 illustrates 2D digital images of the four described domains in the x-y and x-z plane. All the digital images are displayed using objective 10x with pixel resolution of 1.38microns and size of 1024x1024 pixels. The laser beam is able to detect the fluorescence from the resin through grain and open cracks up to a depth of 200 microns as observed in the x-z profiles. However, the laser usually attenuates with depth either by light refraction or reflection by the silicate and crack geometry. In the fresh granite (fig.5A) the images taken from H and V sections indicate that, indistinctly, the resin fills most of the grain boundaries and intragranular fractures. The shape of the grain can be distinguished in the x-y profiles. 3-D images of pore structure show the

distribution of microcracks. Similarly, this is observed in the domain of cataclastic seams (fig.5B). The resin is concentrated along the wall of cataclastic seams as well along grain boundaries and intragranular fractures. The anisotropy in microcrack is well characterized in the damage zone as illustrated in fig. 5C. Although alteration increases toward the fault zone, anisotropy in microcracks observed in unaltered samples is very clear. In general, resin can be observed concentrated along network microcracks in H sections and along sub-parallel open cracks in V sections. Such open cracks cut through different minerals. In the sample from the fault zone (fig.5D), the resin is concentrated in the matrix of surrounding fragments of minerals. It also fills intragranular fractures in the grains of quartz and feldspars. The high concentration of resin in the matrix seems to be related to grain size reduction and abundant clay minerals as described previously by XRD analysis.

Permeability measurement was performed to understand the influence of fracture pattern on the transport properties of the Toki granite. The cylindrical core plug samples are from the same depth as used for petrographic analysis, porosity measurement and pore structure. Permeability was performed by a high P-T gas apparatus at room temperature (fig.6). A total of nineteen samples were measured by the pressure-oscillation method (*Fisher, 1992, Kranz et al, 1990*) to assess the anisotropy of microcracks in the MIU3 samples. Improvement of data quality was achieved by installing a digital converter. In the oscillation method, confining pressure and pore pressure are applied to core sample. Confining pressure is increased gradually up to 200MPa while the pore pressure is kept constant at 20MPa (for confining pressure lower than 30MPa the pore pressure used is 1MPa). Confining pressure is then decreased incrementally to the initial value. The pore pressure is then oscillated to a desired frequency on the upstream side of the sample. The frequency generates a sine curve, which is phase and amplitude shifted on the downstream side. With these parameters the permeability is calculated.

Permeability measurements were performed on samples oriented orthogonally, i.e., H and V sections in relation to the main subvertical structures. The results are listed on table 1. In order to verify the relationship between permeability and microcracks, permeability results were plotted into two graphics as shown in figure 7a and 7b. The permeability is plotted as a function of confining pressure. The fig. 7a illustrates the permeability of H sections that yield permeability from 10^{-15} m^2 (at 5MPa) to 10^{-19} m^2 (at 200MPa). The overall trend demonstrated that the permeability is quite heterogeneous during loading and unloading of confining pressure. It also shows a large hysteresis during pressure release suggesting variations on the microcrack distribution.

Conversely, the initial permeability for V sections ranges from 10^{-16} at 5MPa to 10^{-19} m^2 at 200MPa (table 1, fig.7b). The sample from the fault core is an exception. It has the highest initial permeability (10^{-14} m^2) and it decreases abruptly when confining pressure is applied. This is explained by the heterogeneous grain size due to shearing. Excluding the fault, overall permeability in V sections is one order of magnitude lower than the same sample measured at H sections. It is also noted that the permeability values plotted during loading and unloading of confining pressure for samples from cataclastic seams and damage zone are uniform (fig.7b). Additionally, the permeability at 200MPa is not scattered as observed at H sections.

The results from permeability at H sections strongly suggest those network microcracks are highly connected, thus resulting in high permeability. Conversely, sub parallel open cracks are less connected and sensitive to the applied pressure resulting in low permeability (*Onishi et al, in prep*).

Summary:

Tsukiyoshi fault is a case study for site characterization and performance assessment. Investigation of deformation and fracture system in the MIU3 drill core of Toki Granite reveals that the Tsukiyoshi fault affects the granite by inducing different types of fractures in macroscopic and microscopic scales. The fracture anisotropy dominantly developed in the damage zone seems to be related to the deformation by the fault zone. Detailed investigation of fractures and microcracks gives us clues to the evolution of the fault zone and understanding of fluid transport along heterogeneous microcracks. The anisotropy in microcracks was characterized by petrographic analysis, resin impregnation and permeability measurement. High permeability is related to high connectivity of network microcracks while lower permeability is related to open cracks that are pressure sensitive and has low connectivity.

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.
- Gonzalez, R.C. and Woods, R.E. — 2001. Digital Image Processing. Prentice Hall, Upper Saddle River, New Jersey, 79 pp.
- Hellmuth, K.H., Sjöström-Kauppi M. and Lindberg, A. –1993. Study of porosity and migration pathways in crystalline rock by impregnation with ¹⁴C-polymethylmethacrylate. *Journal of Contaminant Hydrology*, 13, 403-418.
- Kranz, R.L., Saltzman, J.S. and Blacic, J.D., 1990. Hydraulic diffusivity measurements on laboratory rock samples using an oscillating pore pressure method. *Rock Mech. Min. Sci. & Geomech. Abstr.*, 27(5): 345-352
- Montoto, M. Martinez-Nistal, A. Rodriguez-Rey, A. Fernando-Merayo, N. and Soriano, P. – 1995. Microfractography of granite rocks under confocal scanning laser microscopy. *Journal of Microscopy*, 177(Pt2): 138-149.
- Nishiyama, T. and Kusuda, H. –1994. Identification of pore spaces and microcracks using fluorescent resins. *Technical Note- Int. J. Rock. Mech. Sci. & Geomech. Abstr.*, 31, 4, 369-375.
- Onishi, C.T. and Shimizu,I.— 2003. Imaging of microcracks in granite by a fluorescent method assisted by laser scanning microscope (LSM). *The journal of Geological Society of Japan*. In review
- Onishi, C.T., Shimizu, I., Mizoguchi, K., Uehara, S.-I. and Shimamoto, T. – in prep. Anisotropy in microcracks in granite affected by fault zone and the influence in the transport properties.
- Shimizu, I. and Shimada, K., 2002. Development of a polarized laser scanning microscope and its use to quantitative analysis of rock textures. *Jour. Geol. Soc. Japan*, 108(5): 306-317
- Wibberley, C.A.J. and Shimamoto, T.—2003. Internal structure and permeability of major strike-slip fault zones: the Median Tectonic Line in Mie Prefecture, southwest Japan. *J. Structural Geology*, 25: 59-78.

【成果の反映状況】

The research conducted at JNC-TGC improved the understanding of the influence of fracture on the transport properties in the Tsukiyoshi Fault. A combination of geological data and different techniques were applied to determine the physical properties of Toki Granite and to infer the anisotropy of microcracks. This result is important for input in groundwater models and performance assessment.

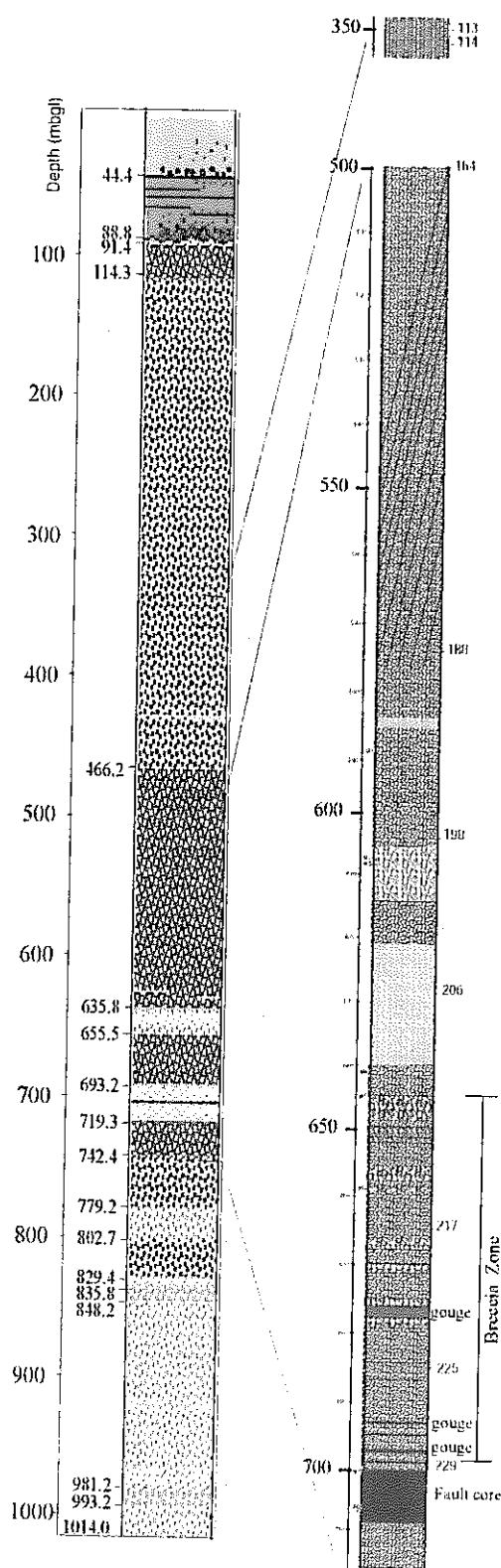
【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

1. C.T. Onishi and I. Shimizu - Characterization of pore structure of crystalline rock affected by a reverse fault under Laser Scanning Microscope, Tono area. – *Deformation Mechanism, Rheology and Tectonics Conference –DRT2001*, Noordwijkerhout, The Netherlands.
2. Onishi, C.T., Shimizu, I., Mizoguchi, K., Uehara, S. and Shimamoto, T. - Change in Pore structure and permeability in granite toward a fault zone: Preliminary results. *-Japan Earth and Planetary Science Joint Meeting- Earth 2001*, Tokyo, Japan.
3. Parkinson, C.D., Motoki, A, Onishi C.T. and Maruyama, S. - Ultrahigh-Pressure pyrope-kyanite granulites and associated eclogites in Neoproterozoic Nappes of Southeast Brazil. *-Fluid/ Slab/Mantle Interactions and Ultrahigh-P Minerals Workshop*, 2001, Waseda University, Japan.
4. 水以知子,大西セリア智恵美,溝口一生, 上原真一 - 断層近傍の花崗岩の浸透率と間隙構造.清,嶋本利彦.日本地質学会第108年年会,金沢大学
5. Onishi, C.T., Shimizu, I., Mizoguchi, K., Uehara, S. and Shimamoto, T.– Anisotropy of pore structure and permeability in granite: preliminary results, *AGU Fall Meeting*, 2001, Hydrology Section, H51A-0303.
6. Onishi, C.T., Shimizu, I., Mizoguchi, K., Uehara, S. and Shimamoto, T. – Influence of fault on the anisotropy of pore structure and permeability in granite, Tono Area, Central Japan, *AGU Fall Meeting*, 2002, Tectonophysics Section, T21A-1074.

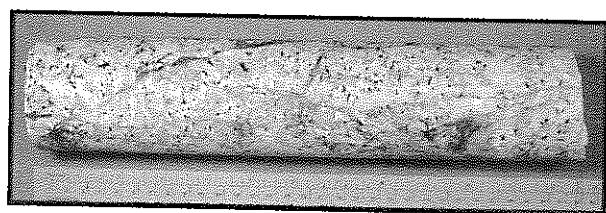
Publications:

1. Onishi, C.T. and Mc Crank, G. - Faults Structures measured in Akeyo Formation, Mizunami Gymnasium road (with attached map). Short Note, 2001
2. 清水以知子、大西セリア智恵美、松田二一口茂彦、田崎和江、荻原茂騎、遠藤一佳、松本良-走査型レーザー顕微鏡による岩石組織の可視化：螢光象-地質学雑誌 108, no11, 2002.
3. Onishi, C.T. and Shimizu Ichiko - Imaging of microcracks in granite by a fluorescent method assisted by laser scanning microscope (LSM) – in review – Journal of Geological Society of Japan, 2003
4. Onishi, C.T., Shimizu, I., Mizoguchi, K., Uehara, S. and Shimamoto, T.- Anisotropy in microcracks in granite affected by fault zone and the influence in the transport properties –*in prep*

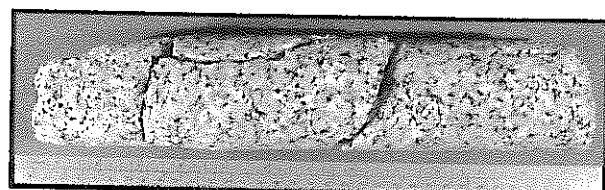
MIU-3 Borehole



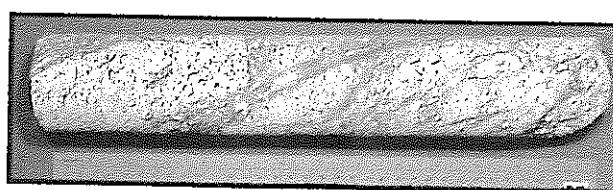
A Fresh Biotite Granite
Depth: 350m
low fracture density
homogeneous medium grained granite



B Cataclastic Seams
Depth: 600m
moderately fractured
coarse grained biotite granite
fracture sealed by chlorite and fragments of minerals



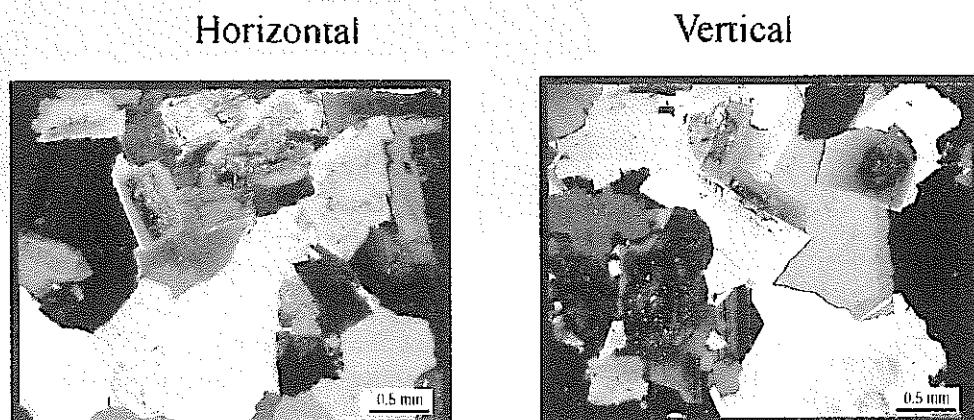
C Damage Zone
Depth: 679m
moderately fractured with visible open fracture
coarse grained biotite granite



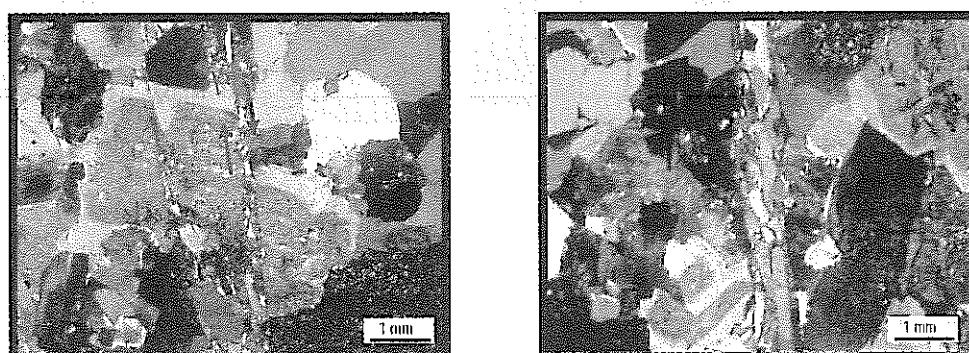
D Fault Zone : Foliated Cataclasite

Depth: 707m
core of the fault zone with shear bands, drag faults
overall fragmentation and mineral reduction
shear zones are composed mainly of clay minerals
(smectite, chlorite, haloysite, calcite)

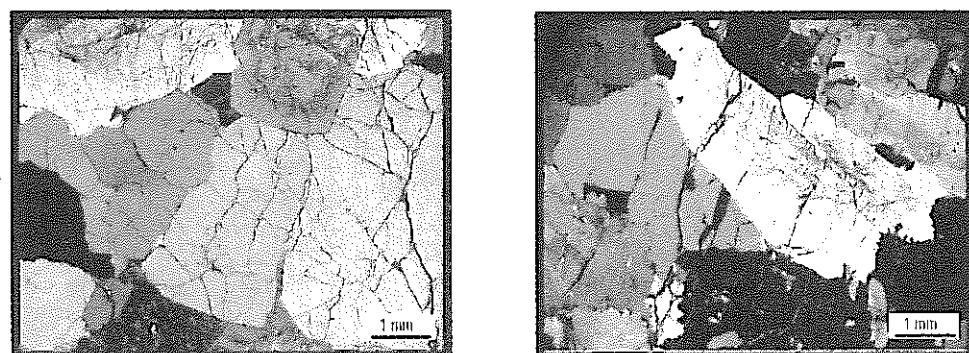
Fig.1 Drilcore of MIU3 borehole. Variations on texture and deformation is shown from 300-720m depth.
Representative samples of Toki Granite from four domains are shown from A to D.



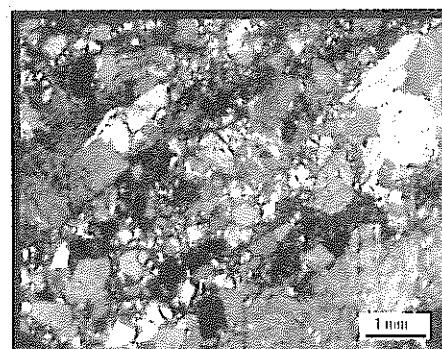
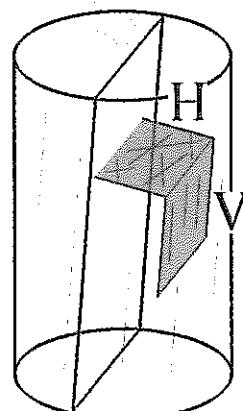
A Fresh Biotite Granite



B Cataclastic Seams



C Damage Zone



D Fault Zone : Foliated Cataclasite

Fig.2 Representative samples from Toki Granite. Anisotropy in microcrack is well developed in the damage zone.

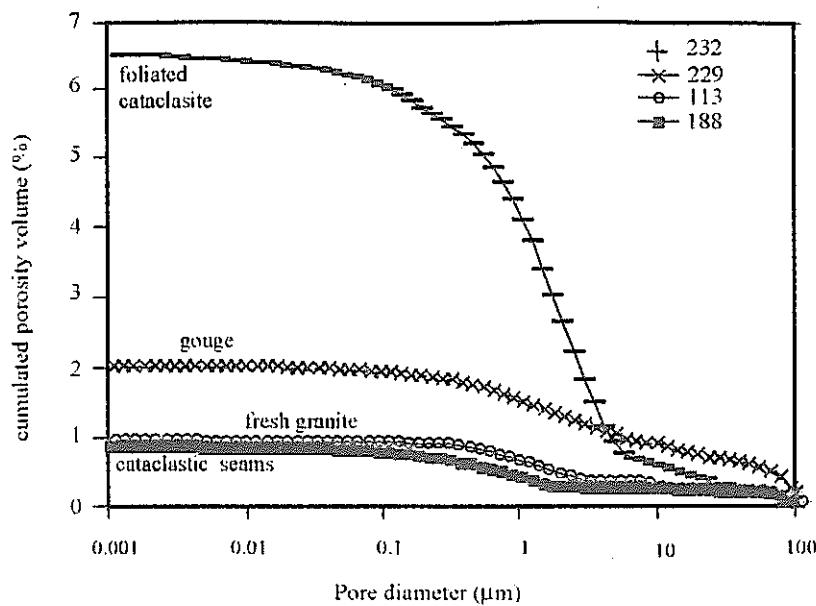


Fig. 3. Cumulated volume curves illustrating the relationship between pore diameter and porosity in four domains. Fresh granite and cataclastic seams are similar with bimodal curve, indicating two different kinds of porous. Gouge includes a wide range of pores and foliated cataclasite is more complex due to the process of fragmentation and grain size reduction.

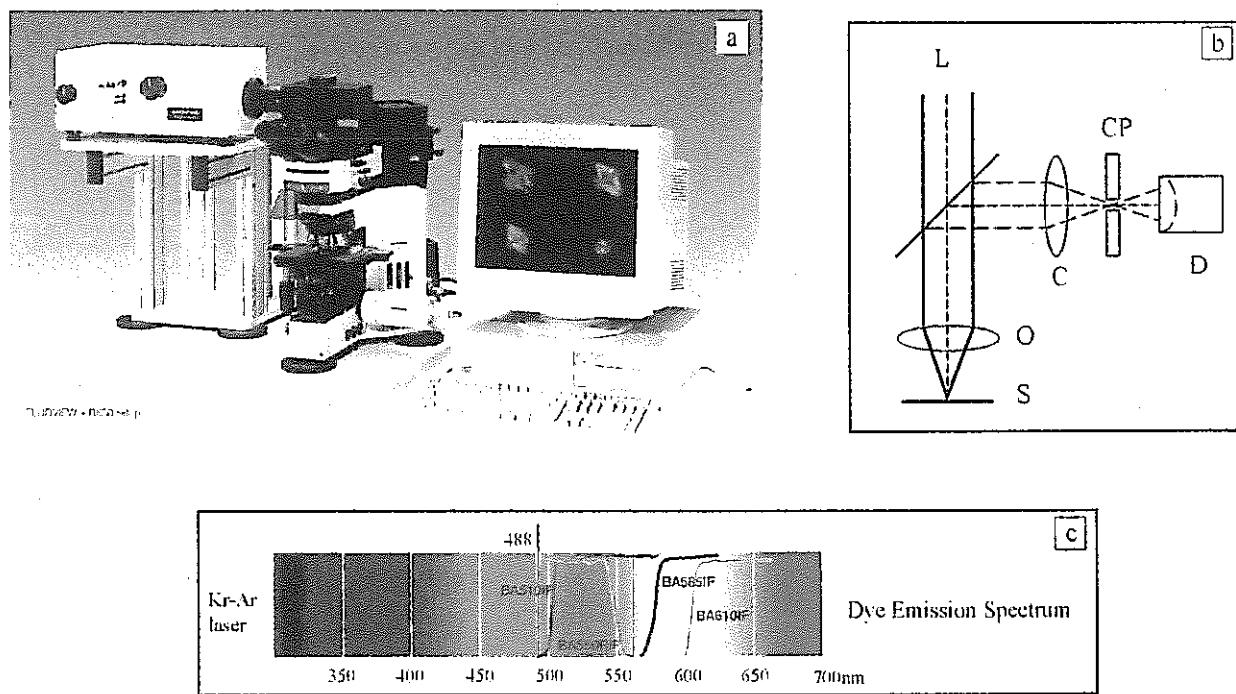


Fig. 4. (a) Laser scanning microscope - LSM. (b) Principle of LSM. L: laser source. O: objective lens. C: condenser lens. CP: confocal pin-hole. D: detector. (c) Emission spectrum for Kr-Ar laser.

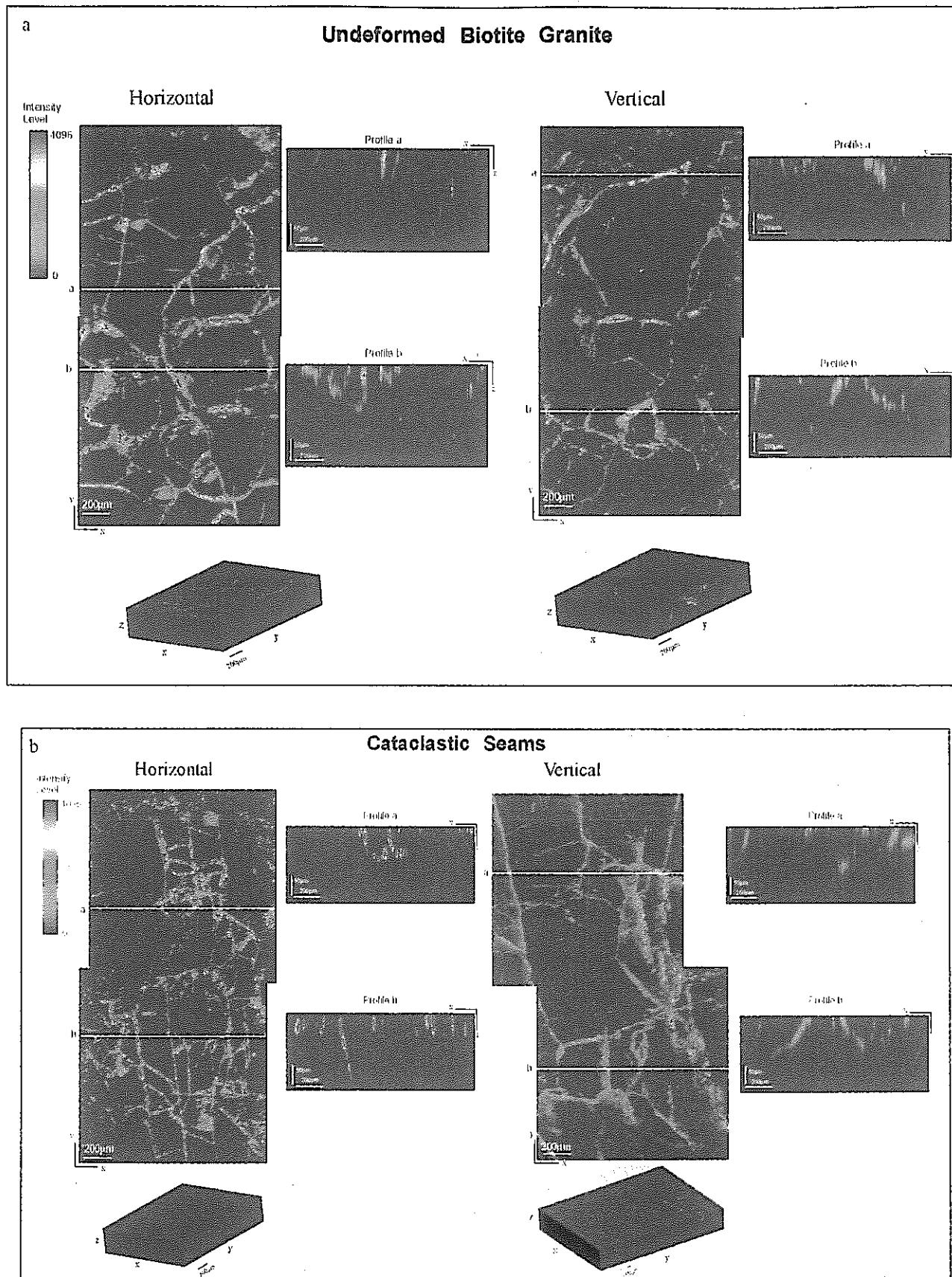


Fig. 5. 2-D images of resin impregnation in two orthogonal directions is shown for the fresh granite (a) and cataclastic seams (b). Note that resin fills mainly along grain boundaries and intragranular fractures. The X-Z profile illustrates the depth of resin indicating the pore geometry and 3-D block diagram shows the distribution of microcracks.

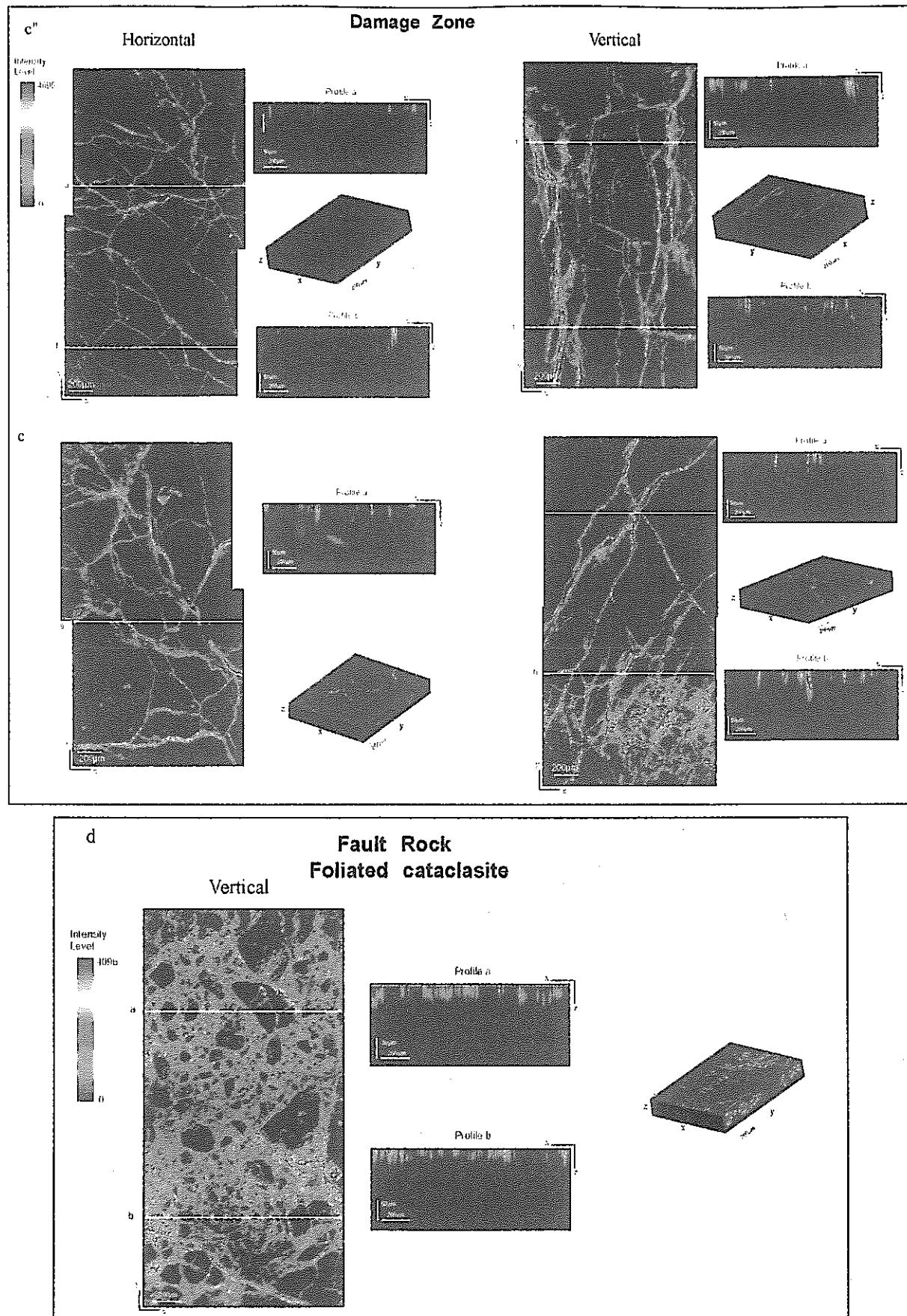


Fig. 5 (cont.). 2-D images of resin impregnation of damage zone (c" .c) and fault zone (b). Note the anisotropy of microcrack clearly developed at damage zone. Network microcrack is well developed in the H section and the sub-parallel open fractures ain the V sections. In the fault rock, the resin is concentrated in the matrix due to grain size reduction.

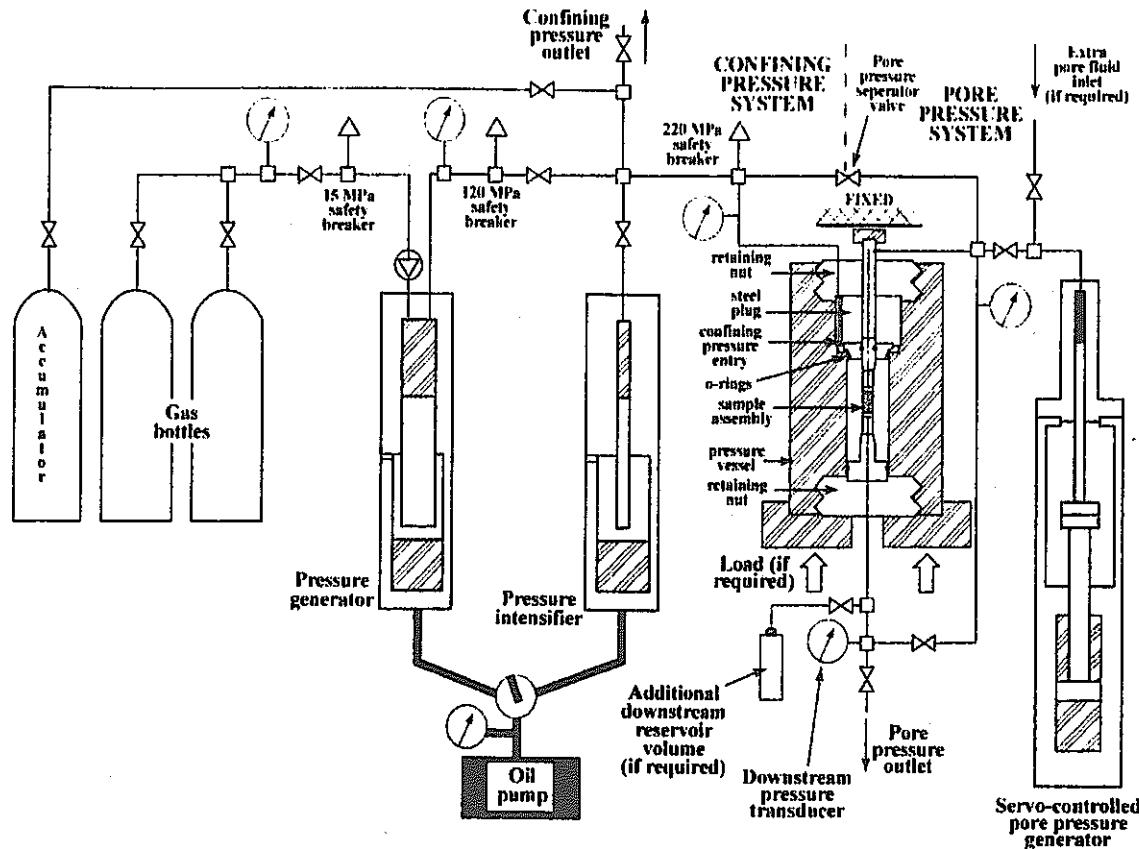


Figure 6. Diagram of high-pressure-temperature aas apparatus used to measure permeabilities (after Wibberley and Shimamoto, 2003)

sample	depth	rock type	porosity %	Run number	length mm	diameter mm	Range of permeability 10^{-13} m^2											
							5MPa	30MPa	50MPa	70MPa	110MPa	140MPa	170MPa	200MPa	140MPa	80MPa	50MPa	30MPa
113H	350	fresh biotite granite	0.99	GR329*	20.4	19.2										-18.408	-18.093	-17.87
				GR530	27.1	25.2	nd	-17.609	-18.032	-18.22	-18.555	nd	nd	nd				
113H				GR482	37.2	25	-17.39	nd	-18.036	-18.287	-18.491	-18.556	-18.648	-18.752	-18.633	-18.394	-17.936	-17.709
114H	325	fresh biotite granite	0.91	GR529	24.1	25	nd	-16.288	-17.085	-17.944	-18.282	nd	nd	nd	nd	-18.21	-18.052	-17.489
114V				GR531	33.2	25.2	nd	-17.674	-17.934	-18.15	-18.398	nd	nd	nd	nd	-18.292	-18.098	-17.747
164-	501	fresh biotite granite	0.86	nd	nd	nd												
188H	575	cataclastic seams	0.91	GR205	10.9	19	nd	-17.38	nd	-17.7656	-18.07	-18.2	-18.1	-18.26	-18.24	-18.06	-17.91	-17.45
188V				GR444	61.5	24.9	-17.89	-17.94	-18.08	-18.12	-18.21	-18.52	-18.6	-18.59	-18.54	-18.35	-18.23	-17.92
188V				GR447	10.7	24.58	-17.62	nd	-18.202	-18.307	-18.472	-18.549	-18.608	-18.707	-18.549	-18.343	-17.275	-17.279
198H	602	cataclastic seams	1.31	GR333	22.85	25.2	-16.5154	nd	nd	-18.79	-18.91	-19.23	-19.33	-19.18	-18.66	-18.66	-18.15	
198V				GR481	17.0	24.65	-17.3265	nd	-18.354	-18.582	-18.852	-18.984	-18.999	-19.055	-18.908	-18.612	-18.235	-17.68
206H	629	weak altered catacl	1.51	GR335	11.35	25.5	-15.2783	nd	-16.942	-17.268	-17.497	-17.626	-17.702	-17.809	-17.719	-17.509	-17.236	-16.936
206V				GR331	39.2	25.3	-16.5698	nd	-17.452	-17.919	-18.221	-18.366	-18.517	-18.515	-18.396	-18.149	-17.876	-17.876
217H	660	weak altered gouge	1.19	GR334	20.95	25.1	-16.3831	nd	-16.579	-17.125	-18.207	nd	-18.37	-18.604	-18.561	-18.365	-18.092	-17.488
217V				GR480	22.0	25	-16.7266	nd	-17.417	-17.822	-18.297	-18.498	-18.702	-18.821	-18.71	-18.34	-17.922	-17.102
225-	685	gouge	1.57	nd	nd	nd												
229H	698	weak altered gouge	2.03	GR330*	25.4	17.3												
229H				GR445	40.7	24.9	-15.5208	nd	-16.956	-17.281	-17.733	-17.951	-18.128	-18.266	-18.147	-17.785	-17.433	-16.829
229V				GR332	39.8	25.3	-15.9	-16.792	-17.302	-17.78	-18.18	-18.41	-18.73	-18.89	-18.708	-18.27	-17.847	-17.26
TF2	707	foliated cataclasite	6.71	GR446	39.7	18.1	-14.2918	-16.569	-17.3233	-17.536	-18.034	-18.31	-18.544	-18.754	-18.615	-18.327	-17.991	-17.351

Table 1 Summary of laboratory-derived data for porosity and permeability for all the samples in this study

* denotes sample with leakage during measurement.

nd = not determined

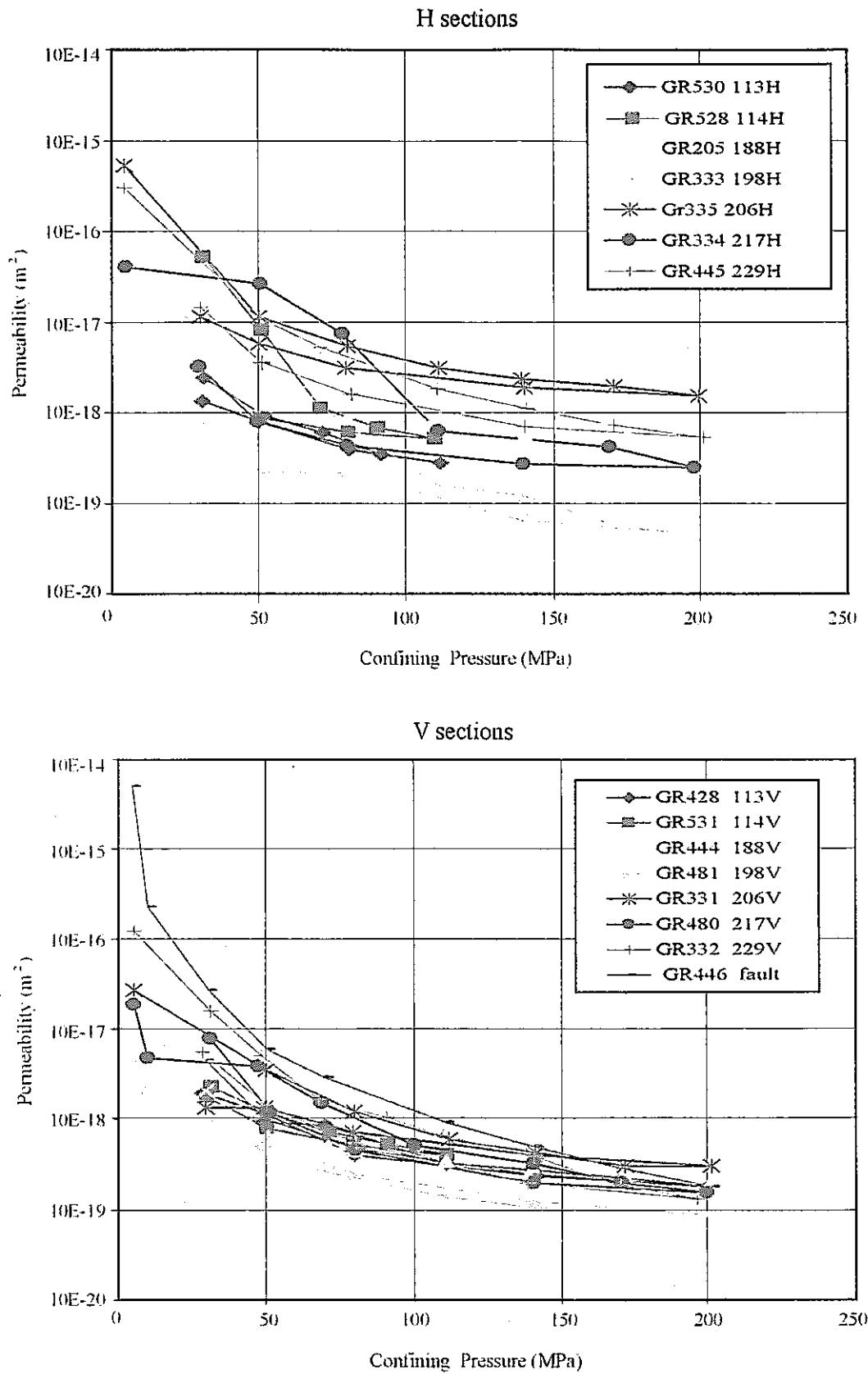


Fig 7. Permeability results of Toki granite as function of confining pressure. Complete cycle of loading and unloading of confining pressure for the H and V sections.

博士研究員（H12）平成14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 システム解析グループ G.L 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 グループリーダー 内田 雅大
研究実施場所	機構 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 14 年 4 月 ~ 平成 15 年 3 月
<p>【研究目的】</p> <p>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>【研究内容（概要）】</p> <p>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>			

【使用主要施設】

機構の地層処分基盤研究施設（ENTRY）および試験棟など

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 12 年度は、岩盤割れ目系における幾何形状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などの堆積岩を対象に割れ目系の幾何形状特性（セグメントとジョグ構造や連結パターン及び先端部の形態など）に注目し、野外調査を行った。また、割れ目調査と並行して割れ目系の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、砂などを用いた室内実験も実施した。

平成 13 年度は、セグメント構造を呈する割れ目系において亀裂の成長や物質移動などに大きく影響を及ぼすと考えられる伸張性ジョグ構造（空隙構造）やその水理特性などを解明するために、フィールドにおいて過去に物質の移動経路であった天然亀裂の構造や充填鉱物および充填構造などの調査を通じ、伸張性ジョグ構造の形成メカニズムや三次元幾何形状の把握および水理特性などの解析を実施した。

平成 14 年度は、前年度までに行った研究内容を踏まえ、以下にまとめる内容の研究を実施した。

【研究成果（当該年度）】

平成 14 年 4 月から平成 15 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る。

1. 割れ目充填物と亀裂ネットワーク特性

千葉県南房総半島には、フィリピン海プレートの沈み込みに伴って北米プレート側に付加した中期中新世以降の深海堆積物が広く露出している。それらの付加体堆積物を不整合に覆う地層群のうち、房総半島最南端域に分布する千倉層群白浜層中には多数の白色細脈が見られる。これが割れ目充填鉱物である。割れ目充填鉱物は、過去に水みちや物質の移動経路であった亀裂中に存在しており、この割れ目充填物を用いて充填鉱物や充填物構造を調べることで割れ目系岩盤における水理及び物質移動にもっとも寄与すると考えられるジョグ構造の幾何形状特性や亀裂ネットワーク構造及び水理特性などの解析を行った。

割れ目充填物は南房総に分布する堆積岩の中でも白浜層だけに見られる特徴的な地質構造であり、白浜層と整合的な関係にある白間津層には、このような割れ目充填物が見られない。白浜層だけに見られるこの割れ目充填鉱物は、一般的に乳白色、灰白色を呈し、厚さは 1mm も満たないものから数 cm に達するものまで様々であるが、1cm 以下のものがほとんどである。割れ目充填鉱物を幾何形状的に分類すると途中で分岐することなく直線状に数 m 続く直線タイプと直線状の主脈から分岐する枝分かれタイプ、また、不規則に分岐を繰り返すクモの巣タイプなどがよく見られる。

写真 1 には、南房総の最南端野島崎周辺の白浜層と千倉町白間津付近で白浜層と白間津層の境界部（整合的、点線矢印）周辺の白浜層の露頭写真を示した。

2. 亀裂形成時期の推定

白浜層の割れ目充填物には、しばしば角礫状の小片などが取り込まれており、写真 2 の①と②のように角礫の中心部を横切りながら充填鉱物が狭在している。割れ目充填物の分布形状やマーカー（角礫）になるものから天然割れ目系（亀裂ネットワーク）の形成時期をある程度推定できる。これらは少なくとも割れ目充填物の充填が行われる前に白浜層がある程度固結した後、地殻変動や周辺岩盤に働く応力場の影響で亀裂が形成されたことを示唆していると考えられる。特に、写真 3 の①の場合は②とは違い、角礫がせん断方向への変移（モード II）と共に開口的構造（モード I）を呈している。これは角礫と周辺のマトスックス部がある程度固結した後、応力の変化などを受け、ジョグ構造と思われるこのような構造が出来上がったと考えられる。写真 2 の②は、所謂モード I（開口割れ目）的な破壊後に充填されたケースであると考えられる。今回の調査からは、割れ目充填物を用いることで亀裂の形成時期や進展の様子、亀裂ネットワーク構造などを推定することができる。

3. 物質の移動経路

割れ目系の中で水みちとして機能するのは、開口性割れ目である。写真2の③、④、⑤には、白浜層に発達する開口性割れ目を示した。特に、開口性割れ目の中でも分布の連続性を有するものが有効な水みちや物質の移動経路としての働きをする。また、開口性割れ目の幾何形状や充填鉱物及び充填構造などによっては、水理的性質（流れの様子や流量・方向等）の推定が可能な場合もある。例えば、写真2の③と④は、割れ目充填物の分布から過去に有効な水みちであったことが伺えると共に写真2の⑤とは違い、充填物の両側から結晶化が進んでいることからも充填物の形成後も割れ目が開口のままで引張応力場の環境下に置かれたことが示唆される。また、同じ開口性割れ目の中でも④と⑤のように結晶化が見られるものと見られないものがあり、これらの亀裂ネットワーク構造や水理的性質の違いなどを含め、割れ目充填物は、水みち形成までの状況や流動方向・応力場の状況などを推定する上で非常に有効な手段であると考えられる。

4. ジョグ構造の水理的役割

セグメント構造を呈する割れ目系においてセグメント同士の連結と成長が起こるところがジョグ部であり、その呈する構造をジョグ構造と呼んでいる。特に、伸張性応力下で形成される伸長性ジョグ部は、開口性割れ目・開口的な地質構造を呈することから流体の移動経路として挙げられるところの一つである。今回の割れ目充填物の調査からもそのような傾向が示唆された。写真2の⑥と⑦のジョグ構造から分かるように開口的空間が充填鉱物で充たされており、または開口構造のままのものもある。また、写真2の⑧に見られるようなジョグ構造からは、セグメントとジョグ構造の三次元的な広がりや連結構造などの幾何形状や水理地質構造などを推定する上で非常に重要な鍵になるとを考えられている。このような割れ目充填物を用いたジョグ構造に対する水理的性質などの検討から、まず、水理・物質の移動経路としてのチャンネル効果があることが挙げられる。特に、伸張性ジョグ構造は開口的な地質構造を呈することからスケールにもよるが地下流体の貯留域としての機能もあると考えられる。

5. 亀裂の連続性推定

割れ目充填物は、亀裂形成時やそのメカニズム及び物質移動などにおける水理地質構造などを推定する上で非常に重要な要素である。今回のジョグ構造などに発達する割れ目充填物の情報などから、これらの割れ目充填鉱物は、少なくとも割れ目系のネットワーク構造を通じて流体の移動が行われたことを証明してくれると共に亀裂系の連結性があることも示唆している。

6. ジョグ構造の水理的遅延効果

セグメント構造におけるジョグ部は、今まで述べたように水みち・移動経路としての機能を持つ。しかし、セグメントの成長や連結性における未発達によっては、水理的な遅延効果をもたらすことも考えられる。これはセグメント構造の基本的な性質に起因する。セグメント構造は、基本的に断層破碎帶などが一本の連続した構造ではなく不連続的にとびとびした小破碎帶（セグメント）の集合体で構成されていること言う。このような性質は、セグメント構造の発達過程によって破碎帶内の核種移行の速度や移行距離、その結果としての遅延効果も考えられる。セグメントとジョグ構造が水みち・移動経路として有効に機能するためには、その成長性と連結性という条件を充たすことが必要である。大きな破碎帶（大セグメント）は、隣接する多数の小破碎帶（小セグメント）などが連結されることにより成長するからである。

このようなジョグ構造の水理的遅延効果は、成長性と連結性に欠ける未発達のジョグ構造や圧縮性ジョグ部などで起こると予想される。写真3には、セグメント構造における水理的遅延効果を表した。図の中の矢印は、水理的遅延効果が予想されるところである。

【成果の反映状況】

本研究で得られた研究成果は、高レベル放射性廃棄物の地層処分研究における天然バリア解析等を行う際の亀裂ネットワーク構造解析や水理・物質移行メカニズムの解明の解析に反映されている。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

国内学会：

- 1) 崔鉉坤・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) 崔鉉坤・登坂博行 (2001) : ジョグ構造におけるセグメントの連結様式と水理地質構造特性、日本応用地質学会平成 13 年度研究発表会講演論文集 p.291-294
- 3) 崔鉉坤・登坂博行 (2002) : 割れ目充填物によるジョグ構造の三次元幾何形状や水理地質構造解析、日本応用地質学会平成 14 年度研究発表会講演論文集 p.173-176

国際会議：

- 4) 崔鉉坤 (2001) : 放射性廃棄物の地層処分に関する日本の研究現状と水理・物質移動に関する研究、韓国岩盤工学会ワークショップ、論文集、P.141-153

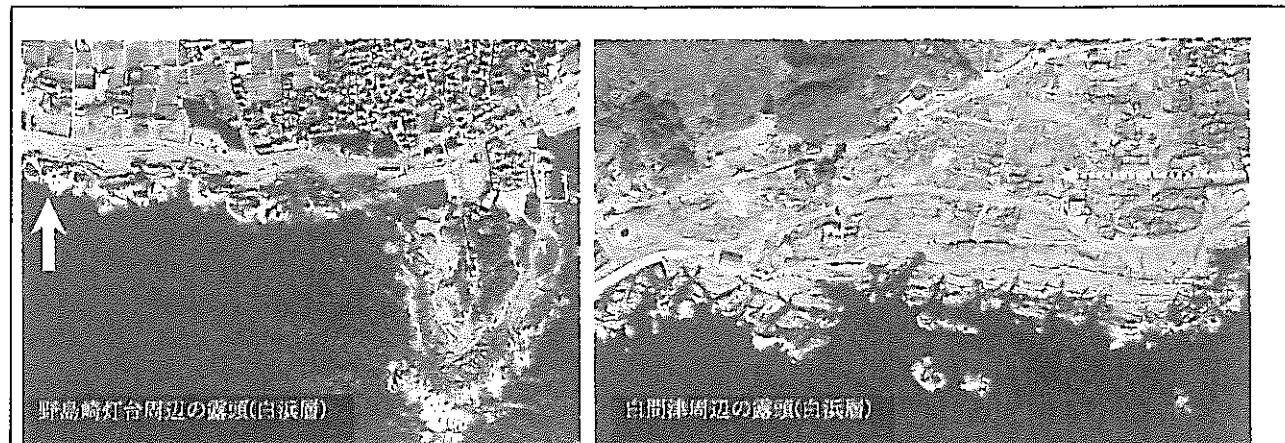


写真1 南房総半島の白浜町野島崎灯台周辺の白浜層と千倉町白間津周辺の白浜層の露頭

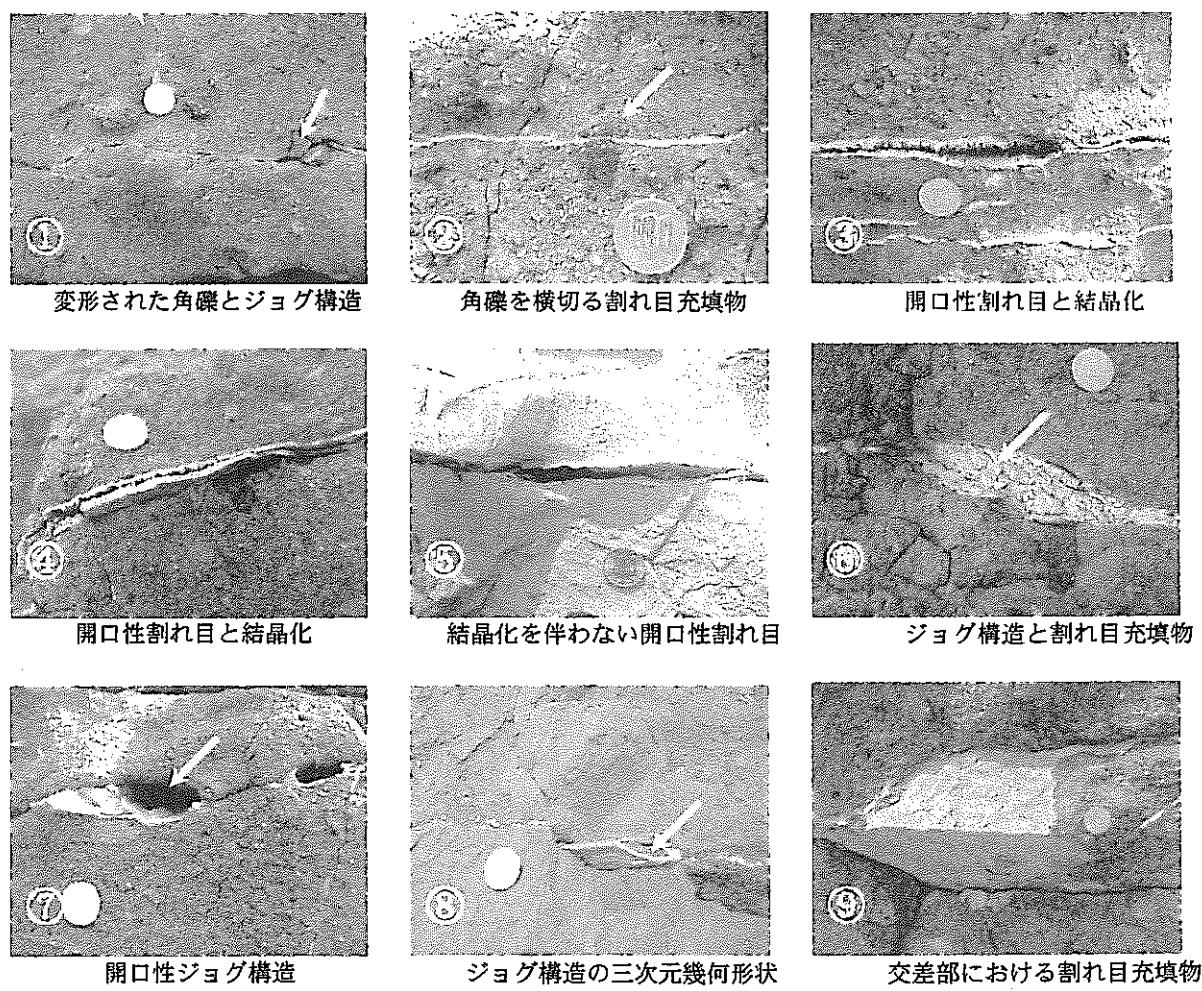


写真2 様々な割れ目充填物と開口性割れ目及びジョグ構造

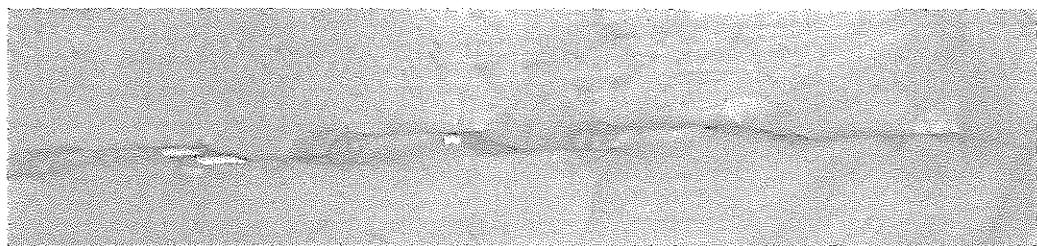


写真3 セグメント構造における水理的遅延効果

博士研究員（H12）平成14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 所属・氏名	東濃地科学センター 地質環境研究グループ 藤原 治	所属長 役職・氏名	地質環境研究 グループリーダー 福島 龍朗
研究実施場所	東濃地科学センター 瑞浪地科学研究館		
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 14年 4月 ~ 平成 15年 3月

【研究目的】

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、地層に高密度で放射性炭素年代値を入れ、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。

【研究内容（概要）】

堆積相解析および化石の産状と種組成の解析を行い、地層中で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ためである。それ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攪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、海水準変動に關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。

【使用主要施設】

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（真亀川流域2本、夷隅川流域2本）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、4) 3件の学会講演を実施した。

平成13年度は、1) 千葉県九十九里浜周辺のボーリングコア試料3本分計65m（真亀川流域）の処理と貝化石試料の組成解析および、貝化石117試料の年代測定、2) 千葉県館山市周辺に分布する完新統の野外調査および、貝化石58試料の年代測定、3) 論文の公表を2件と学会講演を7件実施した。

平成14年度は、1) 千葉県九十九里浜周辺のボーリングコア試料から得られた貝化石126試料の年代測定、2) 千葉県館山市周辺に分布する野外調査および、貝化石64試料の年代測定、3) 論文の公表を5件と学会公演を4件実施した。

【研究成果（当該年度）】

1. はじめに

過去の堆積環境は、地層の詳しい堆積相解析や化石群集の分析をおこなうことによって知ることができる。さらに、地層の中に高い密度で年代測定値を入れると、堆積環境の経時変化とそれに対する侵食・堆積作用のレスポンスが理解される。このような研究を組み合わせて、海水準変動と関連した侵食・堆積のサイクルを高分解能で求め、そのサイクルに対応した地層形成のプロセスを捉えることを試みてきた。

2. 九十九里浜地域の完新統

この地域では、外海に面した海岸地域における地層形成、すなわち地形発達過程を復元する。

貝殻密集層から得られる化石群集の大部分は、同じ時間・場所で生息した生物から構成されるのではなく、それぞれが異なる時間・場所で生息した生物が混合したいわゆる“混合群集”である。したがって、得られた貝殻を使って年代測定や群集解析を行い、堆積年代や堆積環境を推定・復元する際には、それらが同じ時間・場所で生息していたものかを十分に吟味する必要がある。特に地層の正確な堆積年代を求める場合、時間平均化（time averaging：異なる時期に生息していた生物が同一層準に埋没し混合することにより、古生物の種組成などの情報が平均化されること）の効果を評価しなければならない。そこでこの研究では、貝殻密集層における時間平均化を具体的な年代値をもって明らかにする目的で、¹⁴C年代測定をおこなった。

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で掘削したものである（第1図）。地層の堆積年代を決めるため、コア中から得られた貝化石の放射性炭素年代値を求めた。年代測定は、東濃地科学センターのペレトロンで行い、測定値の暦年補正はStuiver et al. (2000) のCALIB 4.3の方法Bを用い、データセット3を使用した。海水のリザーバー効果は400年とした。ボーリングコアの岩相と化石群集に関する詳細な記載は、前年度までの報告書にそれぞれ記載済みである。年代値は、ボーリングコア3本(MG1, MG2, MG3)で合計317試料の年代値が平成12年度から平成14年度3月末までに得られている。

各コアは下位から上位へと、下部外浜、上部外浜、海浜と環境が変化する上方浅海化のサクセッションを示す。これらの地層はそこに含まれる貝化石の¹⁴C年代値から、縄文海進後の約6,000年間に、海水準の低下に応答して海岸線が海側へ前進する過程で形成されたと解釈される。地層に含まれる個々の貝殻密集層の中で複数の試料の年代を測定すると、年代値はある幅を持ってばらつく。その幅は、完新統基底部の貝殻密集層で最も大きく、上方へ行くほど小さくなる。例えば最も沖側のMG1コアでは、基底部の貝殻密集層（下部外浜環境）は約6,100年、上部の貝殻密集層（上部外浜環境）は約400年の年代幅を持っている（第2図）。一枚の貝殻密集層に閉じ込められた年代幅が、侵食によって削剥された地層の厚さを近似的に示すと考えると、堆積環境の違いによって侵食の度合いや周期などが異なることを示す。すなわち、侵食・堆積イベントの規模が、下部外浜環境において堆積物が前進する最前面で大きく古い堆積物を取り込んで再堆積が起きており、上部外浜環境ではそのような現象が相対的に小規模であると解釈される。また3本のボーリングコアで比べると、MG1からMG2をへてMG3（沖側から陸側）へと、基底部の貝殻密集層の中に含まれる貝殻の年代幅はそれぞれ、約6,100年、約4,900年、約1,400年と小さくなる（第2図）。これは、陸域から堆積物が前進する過程で、陸側に比べて沖側がより長期間海底面に露出していたことによる。以上の結果により、堆積シーケンス中の相対的な位置の違いによって、貝殻密集層の時間平均化には大きな差があることがわかった。

これらは、沿岸域というセッティングにおいて陸域から海方向へと堆積物が前進する過程で、侵食と堆積を繰り返しながら地層が形成されたことを示すデータである。このように、地層中に高密度で¹⁴C年代値を入れることによって、地層の発達過程を時間変化の中で位置づけることができるようになった。これを堆積相や化石の解析と結びつけることによって、時間軸の入った地形発達プロセスを復元した。

3. 館山地域の完新統

この地域では、内湾域における地層形成、すなわち地形発達過程を復元する。

内湾域における堆積プロセスを明らかにするため、千葉県館山市周辺に分布する完新統の調査を行っている（第1図）。ここにみられる完新統の堆積物は、内湾性の泥岩主体で、数10cmおきに粗粒堆積物が挟まれる互層からなる（第3図）。このような砂泥互層は、静穏時の泥が堆積する静かな湾環境に、突発的なイベント（ストームや地震による津波など）時に粗粒な堆積物が流入することの繰り返しによって形成される。なかでもここで見られる粗粒堆積物の形成要因は、含まれる貝化石の¹⁴C年代値と段丘の離水年代との対比によって地震による津波であると推定されている（Fujiwara et al., 2000など）。これら津波によって形成された堆積物の内部構造とその側方変化を詳細に調べることによって、内湾域における地層形成過程を明らかにできる。よって、平成12、13年度に引き続き、千葉県館山市南西部を流れる巴川沿いの露頭を精査した。

ここで観察されるイベント堆積物のそれぞれの内部は4つのユニットに区分される。それは下位か

らユニット Tna, ユニット Tnb, ユニット Tnc, ユニット Tnd とする（第 3 図）。

ユニット Tna の基底部は明瞭な侵食面で、その堆積物は下位のシルト層を侵食したものと思われる粘土礫を多量に含み、平行葉理やくさび型斜交層理の発達した粗粒砂層である。その上位に重なるユニット Tnb は、所々巨礫を含みくさび型斜交層理やハンモック状斜交層理が観察される中粒—粗粒砂層と植物片を含む細粒砂層のユニットである。その上位にはユニット Tnb から漸移する植物質ラミナとシルト質砂層の細互層からなるユニット Tnc が重なる。最上部にみられるユニット Tnd は、木片が密集するシルト層からなり、ノーマル堆積物へと漸移的に変化する。このような堆積物が周期的に泥層中に挟まれる。

上述したようなイベント堆積物の特徴は、重力流によって形成されたターピタイトや、ストームによって形成されたテンペスタイトとは異なり、津波によって形成された堆積物に特有な内部構造であると考えられる。このような津波特有のシーケンスモデルの一般化をおこなった。

このような特徴的な津波堆積物は、外海に面した九十九里浜のコアからは見出されていない。この理由のひとつは、古館山湾や古巴湾のような深い内湾の場合、ストームによる堆積作用が届かないため、津波堆積物が形成された後、平常時の泥の堆積によって保存されることである。

4. 津波によって生き埋めにされた二枚貝化石の産状

館山周辺の完新統にて、急速な堆積作用によって生き埋めにされたと思われる二枚貝の産状を見いだしたので報告する。

急速な埋没によって形成された化石群、すなわちセンサス化石群は、最近さまざまな時代の地層から報告されている (Kondo, 1997; 近藤, 1999 など)。センサス化石群は、津波やストームによる侵食のあとに急速な堆積作用が生じ、それに対応しきれなかった底生動物が生き埋めになって形成される。堆積物に浅く潜る二枚貝の場合、多くの種は堆積物に急速に埋められると、通常の生息姿勢とは上下逆転した姿勢をとって上に向かって脱出しようとするものが多い（第 4 図）。このとき、脱出に成功したものは再び通常の生息姿勢に戻って生活するが、脱出に失敗して窒息死したものは逆転姿勢のまま堆積物中に残される。したがって、地層中に見られる逆転姿勢を示す二枚貝化石は、急速な堆積作用を伴うイベントが生じたことの証拠となる。このような内生二枚貝化石の産状観察は、過去に生じた地層の攪乱を評価するための有効な手法となる可能性がある。

調査地域の堆積物は前述したように、泥質堆積物と粗粒な砂質堆積物からなる。泥質堆積物は生物攪拌作用を受けた砂質シルトからなり、ウラカガミガイ、イヨスダレガイ、マツヤマワスレガイ、トリガイ、オオモモノハナガイ、ウミタケガイなどの二枚貝化石を自生もしくは同相的な産状で含む、水深 10 m 程度の内湾に堆積した地層で、この堆積物をここではノーマル堆積物と呼ぶ。一方砂質堆積物は、基底部がシャープな侵食面を示し、侵食面直上には場合によって泥岩の偽礫や異地性の貝化石を含む。上方細粒化し、上部は漸移的にノーマル堆積物へと変化するこの堆積物は、1 回の堆積イベントで形成されたと考えられ、大量の礫、他生の貝化石をレンズ状に含む。この粗粒堆積物はいわ

ゆるイベント堆積物である。ここに含まれる化石はウラカガミガイやトリガイに加え、上下のノーマル堆積物中に含まれる化石とは明らかに生息環境の異なる（岩礁など）ものが含まれ、湾周辺から運搬されてきたものが混在している。このイベント堆積物の基底部から約10cm下位に、正常な生息姿勢とは逆転した姿勢を示すマツヤマワスレガイやイヨスダレガイがみられる（第5図）。これらの種は堆積物中に浅く潜って生活し、水管を水中に出して植物プランクトンを摂食する懸濁物濾過食者である。一般的に、懸濁物濾過食者は摂食する際に活発に移動して餌を探す必要がないため、運動能力に乏しい。一方、オオモノハナガイなどの堆積物食者は通常の生息姿勢と思われる姿勢で見つかる（第5図）。水管を海底面上にのばし、海底のデトリタスを摂食する堆積物食者の場合、海底面上の餌を探して移動する必要があるため、優れた運動能力を持っている。その運動能力の差によって、マツヤマワスレガイなどが急速な堆積イベントによる埋没からの脱出に失敗して窒息死したことに対し、オオモノハナガイは脱出に成功してその後も生活を続けることができたと解釈される。また、浅潛没者であるマツヤマワスレガイなどがノーマル堆積物中に逆転姿勢でみつけられることから、この急速埋没を起こした堆積イベントが、この地域では、マツヤマワスレガイを洗い出すような侵食量を伴わなかったと解釈される。すなわち、イベントの種類は津波やストームなど複数の可能性が考えられるが、ある程度の水深がある内湾環境においては、イベントの影響が侵食よりも堆積作用を大きく引き起こすものであったと解釈される。

このように、二枚貝化石の産状を指標とすることによって、底質の攪乱を量的に評価すること、すなわち、過去のイベントの性質を読みとれることが明らかになってきた。

5. 房総半島北部地域の更新統

これらの地域では、完新統で構築したモデルがより古い地層でも適用できるかを確認し、モデルの検証をおこなうために更新統を対象に研究をおこなう。

調査をおこなった地域は、千葉県木更津周辺地域、千葉県銚子周辺地域、茨城県北浦湖畔地域である。

木更津周辺地域では、中一上部更新統の下総層群地蔵堂層（酸素同位体比ステージ11）から木下層（同ステージ5）までの5累層が露出していて、それぞれ3~1回の海進・海退サイクルを記録した堆積シーケンスから構成されている。この地域の堆積物は泥層と砂層とによって1回の堆積サイクルをなし、その特徴と古地理から古東京湾という広大な湾を埋めた広い意味での内湾堆積物であると解釈される。これらの環境は、館山地域の小さな内湾環境と、九十九里浜地域の外海に面した環境との中間的な環境を示すと考えられる。

銚子周辺地域では、上部更新統の下総層群香取層（上記の木下層相当層）を調査した。ここは九十九里浜における完新統のコア試料と直接比較できる古環境であったと思われるが、化石の保存状態が悪く、比較をおこなうことができるデータは得られなかった。

北浦湖畔地域では、上部更新統の下総層群見和層（酸素同位体比ステージ5：木下層相当層）が露

出している。この地域の下総層群は、その地層の累重様式と堆積相の特徴から、木更津地域の下総層群と銚子地域の下総層群との中間的な環境で形成されたものと考えられる。

【成果の反映状況】

この研究では過去の堆積環境を、地層の詳しい堆積相解析や化石群集の分析を行うことによって詳細に復元した。さらに、地層の中に高い密度で年代測定値を入れることによって、堆積環境の経時変化とそれに対する侵食・堆積作用のレスポンスを明らかにした。このように、堆積学、古生物学、年代学を統合することにより、地層の形成プロセスを速度論的に扱うことができ、より現実的かつ具体的な地層や地形の形成モデルの議論が可能になってきた。

過去に生じた侵食・堆積プロセスの理解は、海水準変動に関連した地層形成の予測に貢献する。この研究で明らかにした沿岸域での地層形成メカニズムの詳細は、海岸地形の発達を予測することに貢献し、表層あるいは地下の土地利用計画などに応用できる。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

学会発表

鎌滝孝信・藤原 治；完新統の貝殻密集層における時間平均化の一例；2002年日本第四紀学会大会、2002年8月23日、信州大学。

Fujiwara, O., Kamataki, T., and Masuda, F.; Significance of sedimentological time-averaging for estimation of depositional age by ^{14}C dating on molluscan shells. AMS 9, 2002年9月10日、名古屋大学。

藤原 治・鎌滝孝信・酒井哲弥・布施圭介・増田富士雄・田村 亨；津波堆積物を識別する堆積シーケンスモデルー南関東の内湾の例ー；日本地質学会第109年年会、2002年9月14日、新潟大学。

藤原 治・鎌滝孝信；内湾における津波堆積シーケンスとフィリピン海プレート北東縁の津波ポテンシャル；北淡活断層シンポジウム2003、2003年1月16, 17日、北淡町震災記念公園。

論文

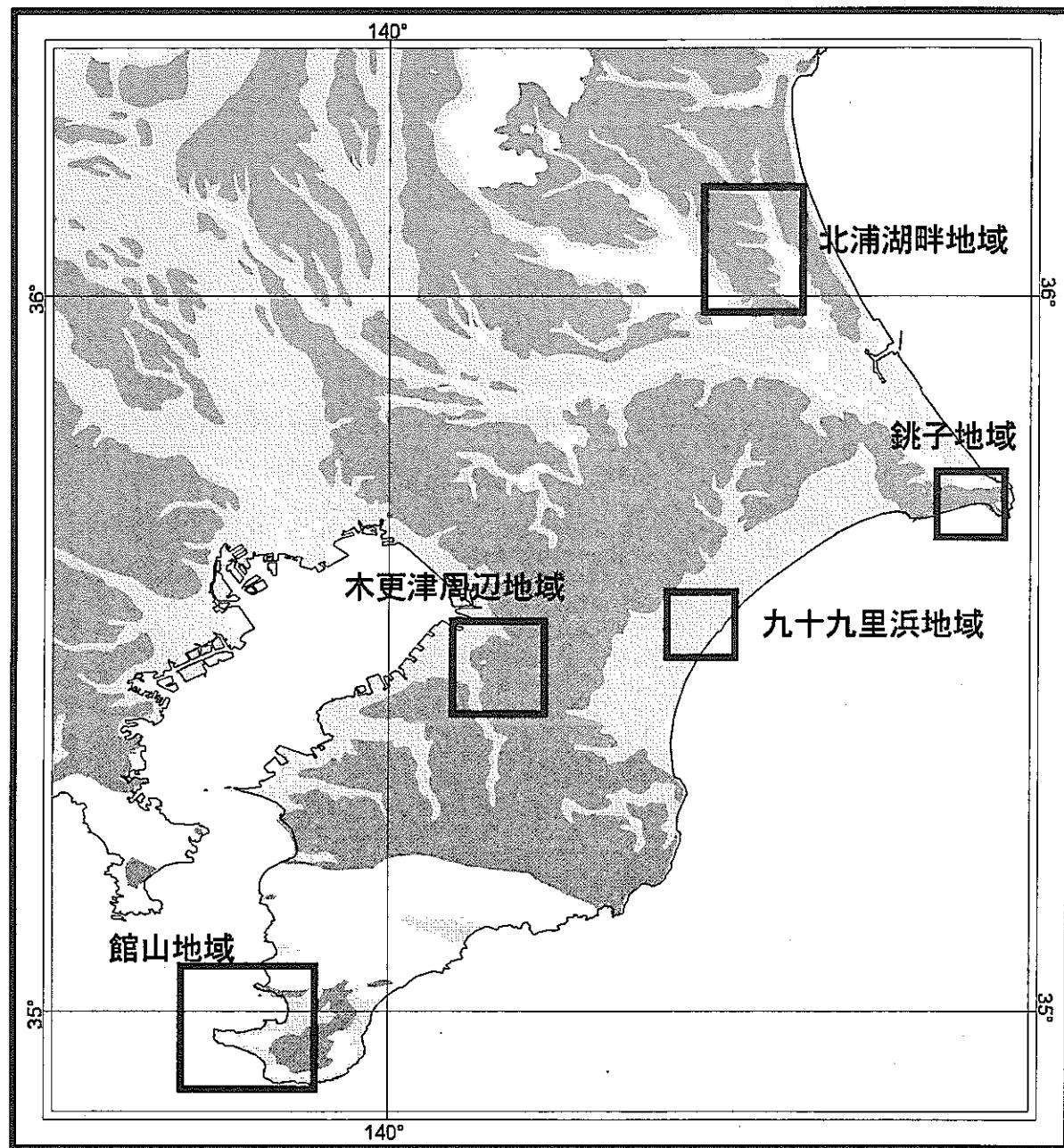
Kamataki, T. and Fujiwara, O., 査読中, Example of time averaging within shell beds from the Holocene coastal sequence in the Kujukuri strand plain, Boso Peninsula, central Japan.

Fujiwara, O., Kamataki, T., and Masuda, F., 査読中, Sedimentological time-averaging and ^{14}C dating of marine shells., *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*.

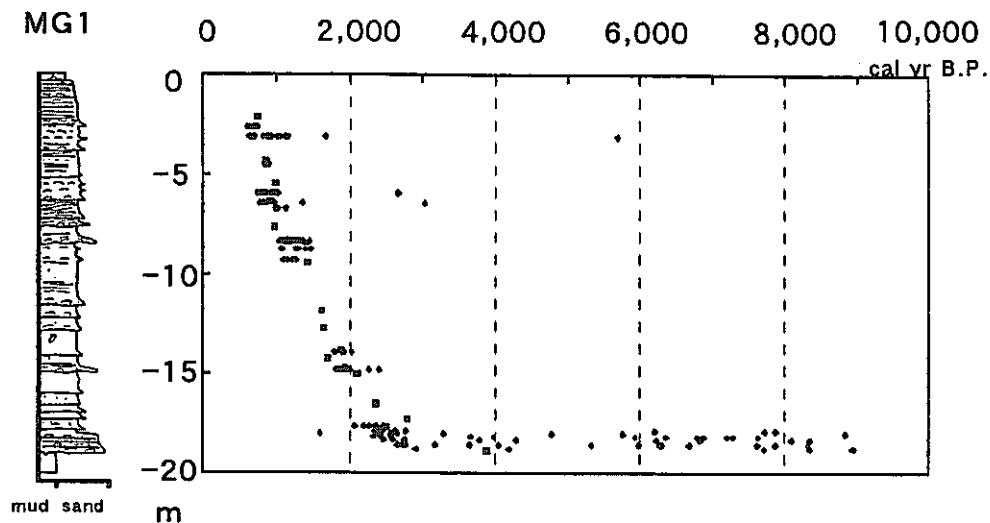
藤原 治・鎌滝孝信, 2003, 堆積学的Time-averagingの ^{14}C 年代測定による堆積年代の推定における重要性ー房総半島の沖積層の研究例からー. 第四紀研究, 42, 27-40.

藤原 治・鎌滝孝信・田村 亨, 2003, 内湾における津波堆積物の粒度分布と津波波形との関連ー房総半島南端の完新統の例. 第四紀研究, 42, 67-81.

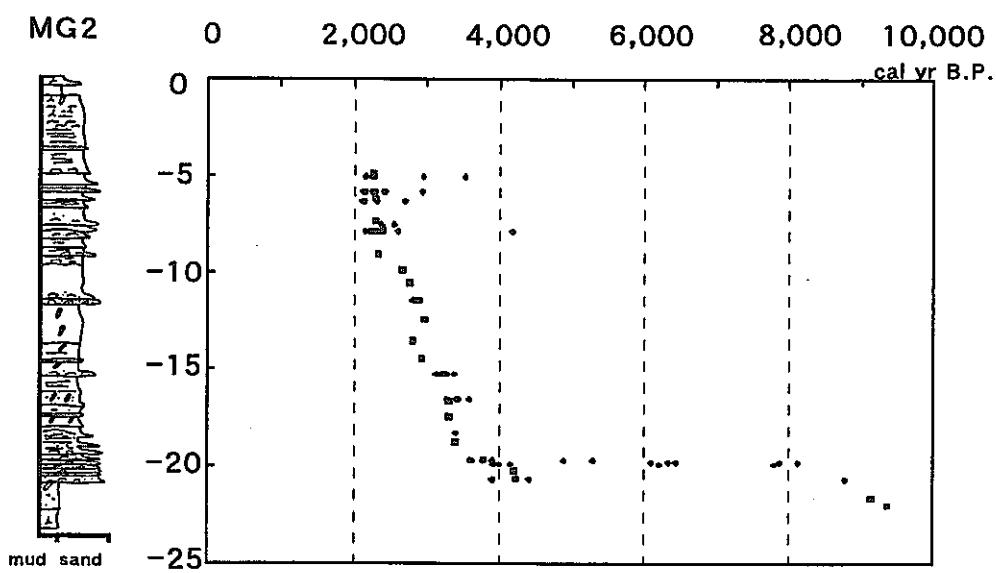
山口正秋・須貝俊彦・藤原 治・大森博雄・鎌滝孝信・杉山雄一, 査読中, 濃尾平野ボーリングコア解析にもとづく完新統の堆積過程. 第四紀研究.



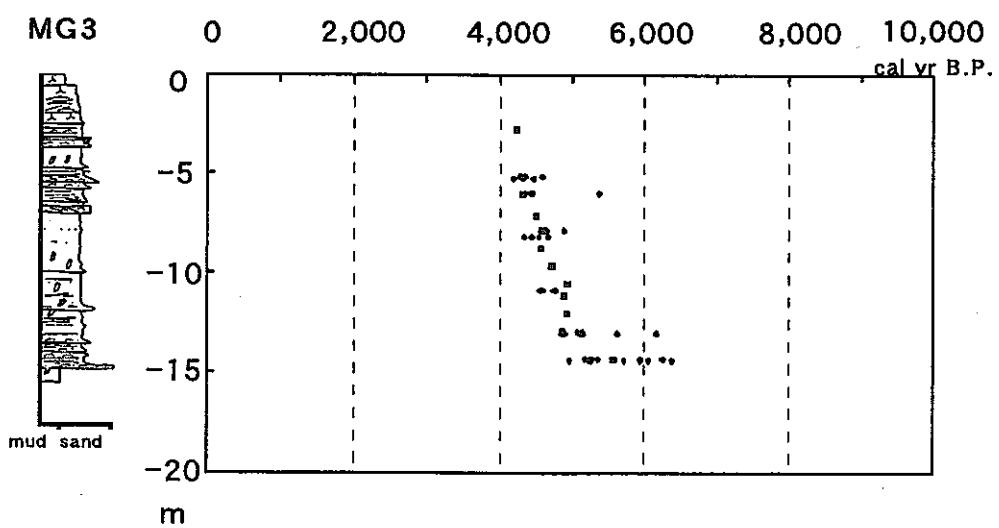
第1図 調査地点



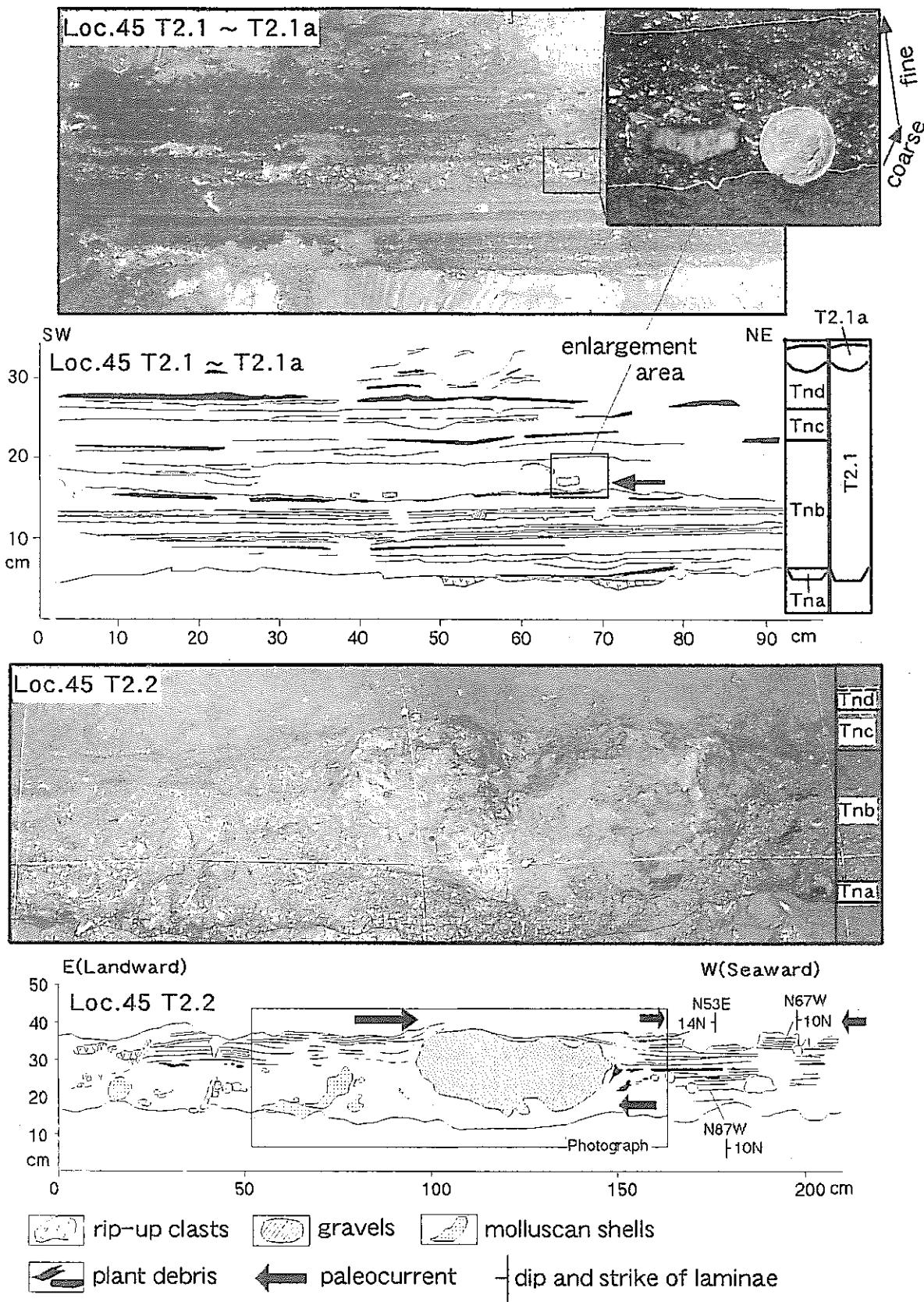
第2図 MG 1コアに含まれる貝殻の¹⁴C年代値



第3図 MG 2コアに含まれる貝殻の¹⁴C年代値

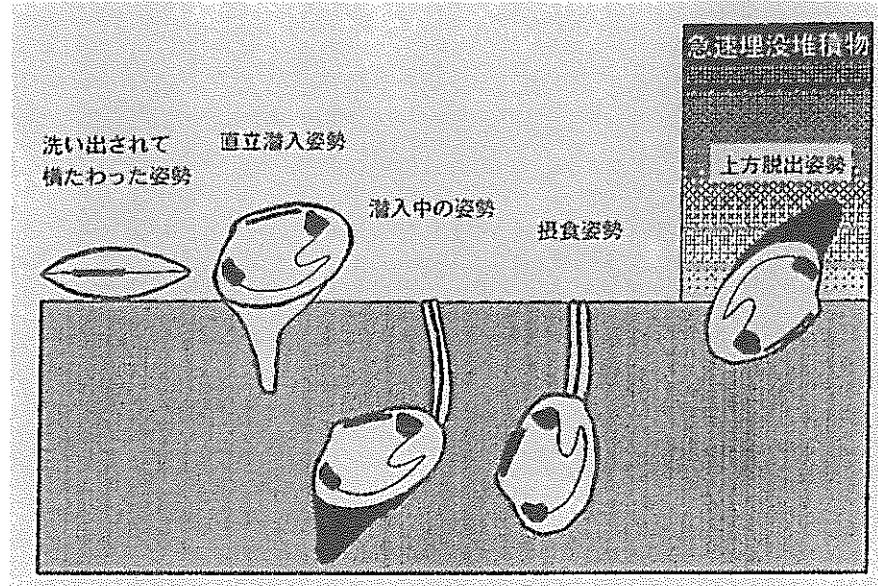


第4図 MG 3コアに含まれる貝殻の¹⁴C年代値



第5図 館山地域で観察される津波堆積物

藤原ほか, 2003より



第6図 内生二枚貝の示す様々な産状

Kondo, 1997, 近藤, 1999より



マツヤマワスレ (*Callista chinensis*)
: 懸濁物濾過食者



オオモモノハナガイ (*Macoma praetexta*)
: 堆積物食者

第7図 二枚貝化石の産状写真

博士研究員（H13）平成14年度研究概要報告書

研究テーマ	12Cr フェライト鋼を用いた FBR 用構造物についての LBB に関する研究		
研究者氏名	俞 淵植		
研究協力者 所属・氏名	大洗工学センター 要素技術開発部 構造信頼性研究グループ 浅山 泰	所属長 役職・氏名	構造信頼性研究 グループリーダー 笠原 直人
研究実施場所	大洗工学センター Fセルボ		
通算研究期間 (予定)	平成 13 年 4 月 ~ 平成 16 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 14 年 4 月 ~ 平成 15 年 3 月
【研究目的】	<u>12Cr Ferrite Steel を用いた FBR 用構造物についての LBB 評価に関する研究</u>		
	<ol style="list-style-type: none"> 1. クリープ疲労での LBB 評価 → オーステナイト鋼配管用に開発された LBB 理論の 12Cr 系フェライト鋼構造物においての成立性を検証し、問題点を把握したうえ、その対策をとる。 2. 热応力を考慮した板曲げ応力におけるき裂開口挙動 → 現状の FBR 構造物のき裂開口挙動の評価に適用可能な新しい評価法を有限要素法により開発する。 		
【研究内容（概要）】	<p>昨年度は主に現行の LBB 理論を用いて、FBR 用候補材として期待される 12Cr フェライト鋼における健全性評価を実施した。その結果から、今年度は現 LBB 理論について次のような改善案を考慮し、評価における合理化および高度化を図った；1) 热応力を想定した大型管における膜と板曲げ応力下でのき裂開口評価法開発 2) 材料の物性値に沿った不安定破壊の評価</p> <p>通常の LBB 理論は、主として軽水炉の荷重条件及び材料を想定しており、き裂進展挙動による貫通とき裂寸法の評価、所定の冷却材漏洩を許容する検出可能なき裂評価及び不安定破壊を生じる限界き裂評価をその内容としている。上記のように FBR のような高温構造物の特徴を考慮した新たな方法で FBR の LBB 評価を実施することによって、結果の信頼性及び正確性が確保されることはもちろん、将来高温構造物の健全性における各パラメータの影響度及び安全裕度を評価する際にもその効果が期待される。</p>		
【使用主要施設】	<p>パソコン(有限要素プログラム FINAS) 冷却材模擬漏洩試験装置(大洗工学センター)</p>		

【進捗状況（当該年度までの概要）】

初年度である平成13年度は、大型FBR構造物におけるLBB評価を実施し、報告書としてまとめた。

平成14年度は、材料と荷重条件に沿ってLBB評価における各項目の高度化を図った。

【研究成果（当該年度）】

1. 熱応力を考慮した板曲げ応力におけるき裂開口挙動

き裂開口変位の評価は、プラントの安全性と経済性を担保する構造物の健全性評価において、極めて重要な評価項目である。既存の評価法は、軽水炉のような耐圧設計を中心としている構造物を評価対象としたため、膜応力をベースにしている。しかしながら、漏洩量検知の立場から考えてみると、従来の評価法は熱応力主体のFBR構造物においてかなり保守側の評価になる恐れがある。そのため、FBRの荷重条件を想定し、膜及び板曲げ応力によるき裂開口変位の評価法が必要である。本研究では、有限要素法による解析に基づいて、構造物が膜応力と板曲げ応力を受ける場合でのき裂開口変位に関する評価法を検討した。

(1) 膜と曲げを受ける平板でのき裂開口変位(COD)評価

まず、平板を対象とし、膜と板曲げ応力によるCOD挙動を有限要素解析により求め、その結果を定量化した。膜応力に関するCODは従来から以下のTada-Parisの評価法がよく用いられる。

$$\delta = \frac{4\sigma a}{E} V(\xi) \quad (1)$$

$$\xi = a/W$$

$$V(\xi) = -0.071 - 0.535\xi + 0.169\xi^2 - 0.090\xi^3 + 0.020\xi^4 - 1.071 \frac{1}{\xi} \ln(1-\xi)$$

$$E' = \begin{cases} E & \text{Plane Stress Condition} \\ \frac{E}{1-\nu^2} & \text{Plane Strain Condition} \end{cases}$$

ここで、 δ , a , σ , W , E および $V(\xi)$ は、それぞれ、き裂開口変位、き裂長さ、膜応力、板幅、縦弾性係数、弾性開口変位の無次元数である。

式(1)により、膜応力に対する COD 無次元数を以下のようにした。

$$V_m(\xi) = \frac{\delta_m \cdot E'}{4\sigma_m \cdot a} \quad (2)$$

膜応力に対するき裂開口挙動の解析結果を図1に示す。図1から、平面応力条件で本研究と Tada-Paris の式がよい一致を示していることがわかった。

次に、曲げ応力負荷時のき裂開口変位を求めた。曲げ応力負荷時のき裂長さと板表面でのき裂開口変位（引張り側）の関係を解析により求め、その結果を以下に示す9次式でフィットした。フィッティングに伴う誤差は0.1%以下である。

$$\delta_b = \frac{4\sigma_m \cdot a}{E'} V_b(\xi) \quad (3)$$

$$V_b(\xi) = \sum_{i=0}^9 A_i \cdot \xi^i$$

$$0 < \frac{a}{W} \leq 0.9$$

A ₀	A ₁	A ₂	A ₃	A ₄
1.0549	-10.378	93.101	-490.58	1589.1
A ₅	A ₆	A ₇	A ₈	A ₉
-3210.0	4008.3	-2954.0	1143.3	-168.25

(1)式と(3)式の COD 無次元数 $V(\xi)$ の比較を図 2 に示す。膜に対しては $V(\xi)$ は単調増加するが、曲げに対しては $a/W=0.4$ までは徐々に低下し、それ以上になると漸増する。この結果から、同じ応力であれば、膜応力に比べて曲げ応力の効果が小さいことが判る。

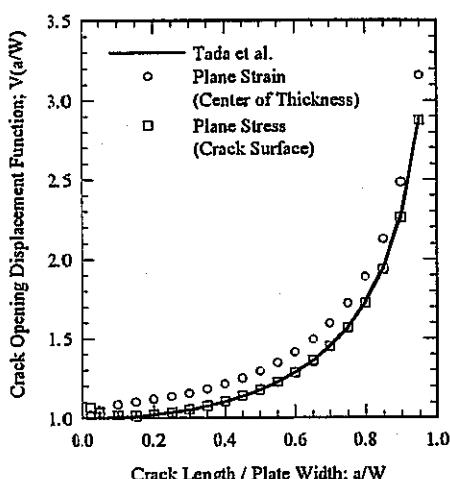


図 1 膜応力に対する平板でのき裂開口挙動

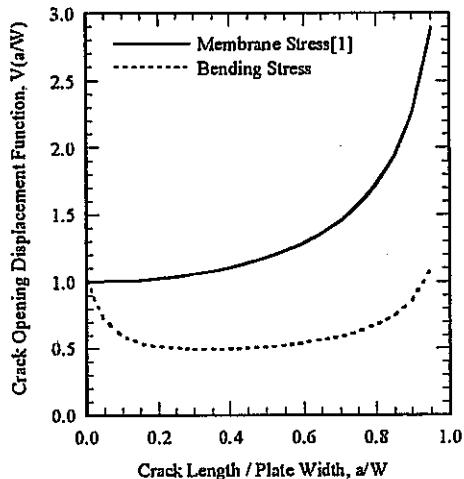


図 2 膜と曲げ応力に対する平板でのき裂開口挙動

(2) 膜と板曲げを受ける配管でのき裂開口変位 (COD) 評価

配管での COD 挙動に関するパラメータとしては、平板と同じき裂角度及び配管の寸法関数である R/t が必要である。既存の膜応力ベースの研究例は Tada-Paris 評価法及び GE/EPRI 評価法がある。Tada-Paris 評価法は、 $R/t=10$ でのき裂開口面積を評価し、き裂開口を橍円形として仮定することにより COD の評価が可能になる。

Tada-Paris の評価法

$R/t=10$ で、

$$A_m = \frac{\sigma_m}{E} (\pi R^2) I_m(\theta) \quad (4)$$

$$I_m(\theta) = 2\theta^2 \left[1 + \left(\frac{\theta}{\pi} \right)^2 \left\{ 8.6 - 13.3 \left(\frac{\theta}{\pi} \right) + 24 \left(\frac{\theta}{\pi} \right)^2 \right\} \right. \\ \left. + \left(\frac{\theta}{\pi} \right)^3 \left\{ 22.5 - 75 \left(\frac{\theta}{\pi} \right) + 205.7 \left(\frac{\theta}{\pi} \right)^2 - 247.5 \left(\frac{\theta}{\pi} \right)^3 + 242 \left(\frac{\theta}{\pi} \right)^4 \right\} \right] \quad (5)$$

$$\delta_m = \frac{2A_m}{\pi c} \quad (6)$$

$$c = \theta R \quad (7)$$

$$(0 < \theta < 100^\circ)$$

ここで、Rは配管の平均半径、θはき裂半角である。

GE/EPRI の評価法

$$\delta_m = \frac{4\sigma_m c}{E} V_m \left(\frac{\theta}{\pi}, \frac{R}{t} \right) \quad (8)$$

$$V = 1 + A \left[4.55 \left(\frac{\theta}{\pi} \right)^{1.5} + 47.0 \left(\frac{\theta}{\pi} \right)^3 \right] \quad (9)$$

$$A = \left[0.125 \left(\frac{R}{t} \right) - 0.25 \right]^{0.25} \quad 5 \leq \frac{R}{t} \leq 10 \quad (10)$$

$$A = \left[0.4 \left(\frac{R}{t} \right) - 3.0 \right]^{0.25} \quad 10 \leq \frac{R}{t} \leq 20$$

$$(0 \leq \theta/\pi \leq 0.5)$$

上記の評価法は、最大 $R/t=20$ までの配管の中心部に対し、膜応力における COD の評価となっている。一方、FBR のような熱応力主体の構造物は、構造健全性の観点から R/t が 20 以上の場合が多く、かつ熱による板曲げ応力が想定される。そのため、本研究では今までの解析結果に基づいて $R/t=160$ までに対し、膜と板曲げ応力における COD 挙動を調べた。特に膜応力に関しては、漏洩量検知の観点から、配管の内部及び外部での正確な評価が必要されるため、配管の内部、中心部及び外部での結果を求めた。

膜及び板曲げ応力による COD の無次元数を次のように定めた。

$$V_m^{\text{in}} \left(\frac{\theta}{\pi}, \frac{R}{t} \right) = \frac{\delta_m \cdot E}{4\sigma_m \cdot c_{in}} \quad (11)$$

$$V_m^{\text{mean}} \left(\frac{\theta}{\pi}, \frac{R}{t} \right) = \frac{\delta_m \cdot E}{4\sigma_m \cdot c_{mean}} \quad (12)$$

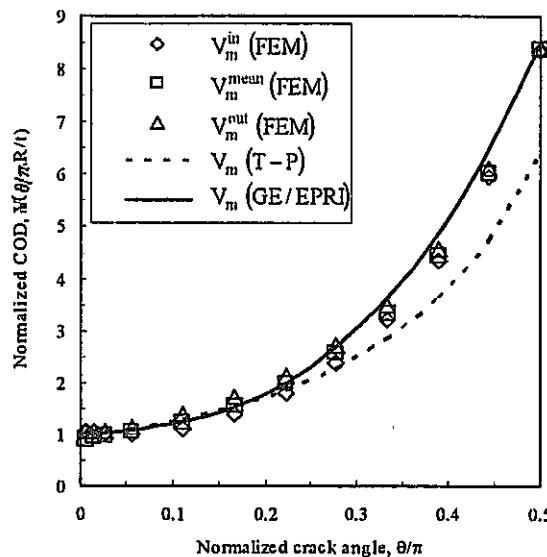
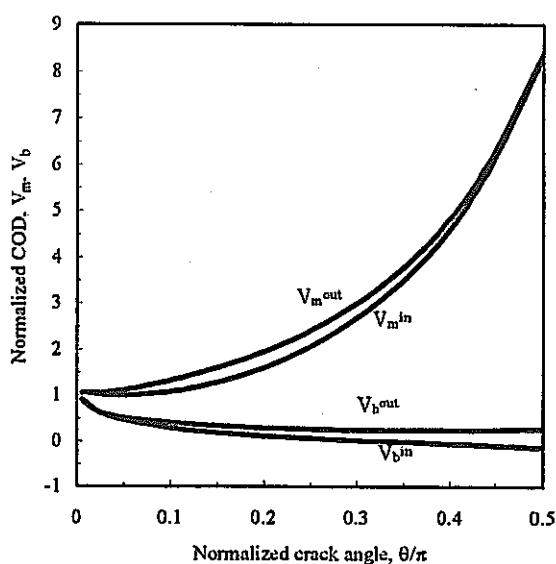
$$V_m^{\text{out}} \left(\frac{\theta}{\pi}, \frac{R}{t} \right) = \frac{\delta_m \cdot E}{4\sigma_m \cdot c_{out}} \quad (13)$$

$$V_b^{\text{in}} \left(\frac{\theta}{\pi}, \frac{R}{t} \right) = \frac{\delta_b \cdot E}{4\sigma_b \cdot c_{in}} \quad (14)$$

$$V_b^{\text{out}} \left(\frac{\theta}{\pi}, \frac{R}{t} \right) = \frac{\delta_b \cdot E}{4\sigma_b \cdot c_{out}} \quad (15)$$

ここで、添字m及びbはそれぞれ膜応力と板曲げ応力下での事象であることを意味する。なお、in、mean 及びoutは、配管の内部、中心部及び外部を意味する。

有限要素の解析から求めた膜応力に対する COD 無次元数の一例を図3に示す。また、膜と曲げ応力に対する COD 無次元数の一例を図4に示す。添字は式(11)～(15)と同様である。本研究の結果から、平板と同様に膜応力に比べて板曲げ応力の効果が小さいことが判る。

図3 膜応力に対する配管のき裂開口挙動($R/t=10$)図4 膜と板曲げ応力に対する配管のき裂開口挙動 ($R/t=10$)

(3) まとめ

有限要素解析を用いて、板及び管が膜と曲げ応力を受ける場合のき裂開口変位を調査した。板の場合は膜応力ベースの評価式が既に存在しており、本研究では曲げ応力ベースの評価式を新たに提案した。一方、管の場合は既存の膜応力ベースの評価式が大型管には適用し難いことから、FBR 用 1 次配管系の寸法である $R/t=160$ までのき裂開口挙動を調査した。また曲げ応力ベースのき裂開口変位についても同様の寸法まで評価した。全体的にまとめると、曲げ応力によるき裂開口変位は膜応力によるものに比べ小さいことと、き裂の大きさによる傾向も異なっていることがわかった。特に管の場合は大型になるほどこののような傾向が顕著であった。本研究の結果から LBB 評価上より正確な検出き裂の算出が可能になり、高温構造物における健全性評価手法の高度化が期待される。

2. R6 法による不安定破壊評価

昨年度に実施された従来の評価法による LBB 評価の結果に基づいて、解決すべき案及びその対策を検討した。そのなかで、構造物の不安定破壊評価については、塑性崩壊概念に基づく既存の正味断面応力基準から、弾塑性破壊まで考慮できる R6 法の検討を行った。R6 法の妥当性についてはすでに多くの研究実績があり、特に FBR のような高温構造物での健全性評価にも適していると考えられる。図 5 に R6 の概念を簡単に紹介する。

図 5 の L_r は応力項で通常流動応力と応力値の比を、 K_r は破壊韌性値と応力拡大係数の比を取り。破壊評価線図 (FAC) を用いてき裂の進展を考慮し、不安定破壊発生点が評価できる。既存の正味応力概念が全断面塑性理論に基づいていることに対し、R6 法は弾塑性破壊 (EPFM) についても延性材料の不安定破壊評価を可能とするメリットを有する。

以下に、「旭」1 次系 Y ピースの手動トリップを想定し、R6 法の Opt.2 による不安定破壊評価の一例を挙げる。

(1) 材料

フェライト鋼 (HCM12A、J-R は Mod. 9 Cr - 1Mo)

弾性率、 $E=166.0\text{GPa}$
降伏応力、 $\sigma_y=333.0\text{MPa}$

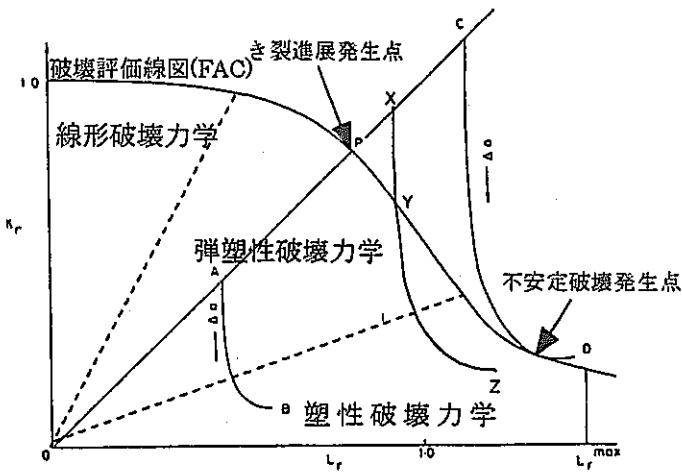


図5 不安定破壊評価に用いるR6の概念

流動応力、 $\sigma_f=365.0\text{MPa}$
弾性追従係数、 $q=3.0$
Ramberg-Osgood 定数、 $\alpha=1.03$ 、 $n=11.8$
基準応力、 $\sigma_0=333.0\text{MPa}$
破壊靱性値、 $J_{1c}=671300.0\text{N/m}$

(2) 荷重条件

「旭」1次系Yピースの手動トリップでの応力値
1次膜応力（内圧）、 $P_m=3.5\text{MPa}$ 、2次管曲げ応力（熱膨張）、 $Q_{bg}=157.0\text{MPa}$ 、
1次管曲げ応力（S1 地震）、 $P_{bg-s}=2.44\text{MPa}$ 、1次管曲げ応力（自重） $P_{bg-w}=20.0\text{MPa}$
において、一次応力には1.5、2次応力には1.1の安全係数を加える。

(3) 不安定破壊評価

① FAC 作成

Opt.2 の FAC 評価は以下のとおりである。

$$L_r \leq L_r^{\max}$$

$$K_r(L_r, \sigma_y, \varepsilon_{ref}) = \left(\frac{E \varepsilon_{ref}}{L_r \sigma_y} + \frac{L_r^3 \sigma_y}{2 E \varepsilon_{ref}} \right)^{-1/2} \quad (16)$$

$$L_r > L_r^{\max}$$

$$K_r = 0$$

$$\text{ただし、 } L_r^{\max} = \frac{\sigma_f}{\sigma_y}$$

ここで、 ε_{ref} は真ひずみである。

② 評価値と FAC 比較

き裂角度に対する L_r と $K_r (=K/K_{Is})$ を評価し FAC と比較

③ 不安定評価

FAC の外側の評価点から不安定評価(安定評価)を実施

安定き裂進展を予測し、FAC と接触すると安定、接触しないと不安定になり、不安定になる前のき裂の最大値をもって限界き裂長さとみなす。

(4) 評価の結果及び考察

HCM12A における評価の結果を図 6 に示す。手動トリップを想定した Y ピースでの限界き裂の大きさは、図 6 において FAC と曲線 AA' (図 5 の CO に相当)との接点に応じており、半角 79.6° が算出された。一方、Z 係数から算出した限界き裂半角は、昨年度の評価結果から半角 31.0° であった。両方を比べると R6 による限界き裂の長さの方が大きいことから、その分裕度も大きく算出できることになる。既存の Z 係数からの評価は、Z 係数そのものが HCM12A のデータではなく一般のフェライト鋼のデータであることと、管の寸法及びき裂の大きさに従ったデータの外挿が誤差の大きな原因になる。評価結果として設計上の荷重レベルで限界き裂半角が 31.0° になるのはあまりにも厳しすぎることから、材料に沿った Z 係数の整備がない限り、正味断面応力基準による不安定破壊はその正確性が欠けることを意味する。R6 法においても評価上必要な材料データの整備が要求されることになるが、不安定破壊を弾塑性領域まで拡張できることからより論理的な評価手法であると考えられる。

上記のことから R6 法は高温構造物の候補材であるフェライト鋼の不安定破壊評価において、従来の評価法より合理的でかつ現実的な結果が期待される。

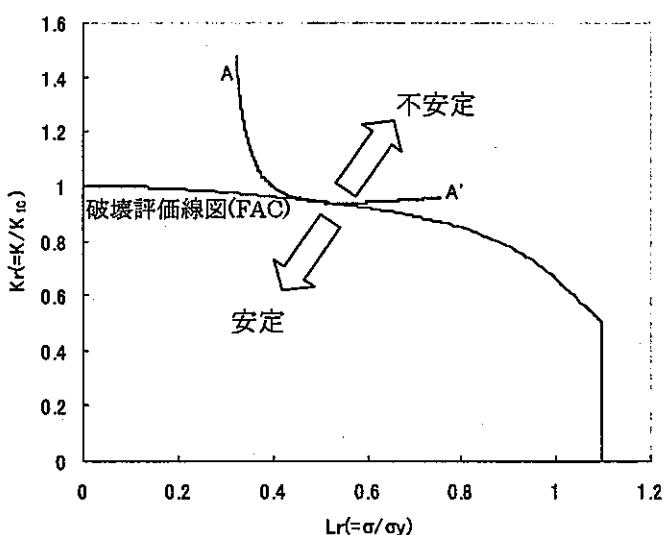


図 6. 「旭」 1 次系の Y - ピースにおける不安定破壊評価

3. 冷却材模擬漏洩試験

構造物におけるき裂進展挙動及び冷却材検出性能を把握することは LBB 評価による構造健全性の観点から上その位置付けが高い。そのため、平成 15 年度 2 月より約 1 年間の試験計画を立て、大洗工学センターのナトリウム機器構造第 2 試験室で冷却材

(1) 試験目的

エルボの試験体に変位制御型の疲労荷重を加え、まず貫通までのき裂進展挙動を把握する。き裂進展挙動は、ピーチマークを用いて調査する。貫通後は冷却材の漏れを測定し、き裂の大きさとの相関を把握する。さらにき裂の大きさによる構造物のコンプライアンスを評価する。

(2) 試験体

試験体はSUS304のエルボで面内曲げ応力が著しい横腹に放電加工による予き裂を入れたものである。図7に試験体の取り付け状況を、表1に試験体の仕様を示す。

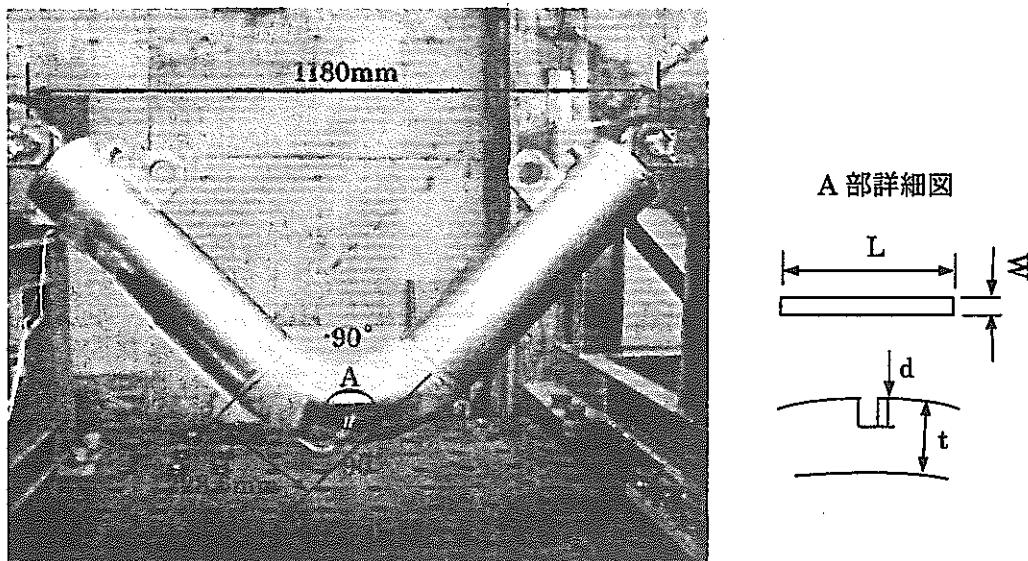


図7. 試験体の取り付け状況

表1. 試験体の仕様

	t(肉厚)	w(スリット幅)	L(欠陥長さ)	d(欠陥深さ)	試験体数
Sch.40	7.1	0.3	7.1	1.42	2
Sch.10s	3.4	0.3	3.4	0.68	2

(3) 試験条件

現在Sch.40の試験体に最大圧縮変位13.4mm、荷重比R=0.1を想定し、変位制御型の片振り疲労荷重を加え、き裂進展試験を実施している。有限要素解析によりエルボの曲がり部に生じる弾性応力分布の結果を図8及び図9に示す。

また、き裂貫通後には管の内部に6~8kg/cm²の圧力を掛け、一定内圧下でのき裂の大きさによる冷却材の漏れの変化を調査している。

(4) 期待成果

試験体における荷重条件を変えることによって、き裂進展挙動、構造物のコンプライアンス及びき裂面の粗さなどの変化が予測される。これらのパラメータは特に冷却材の漏洩に影響を及ぼすこととなり、今後冷却材検出性評価においてより現実的な評価が期待される。

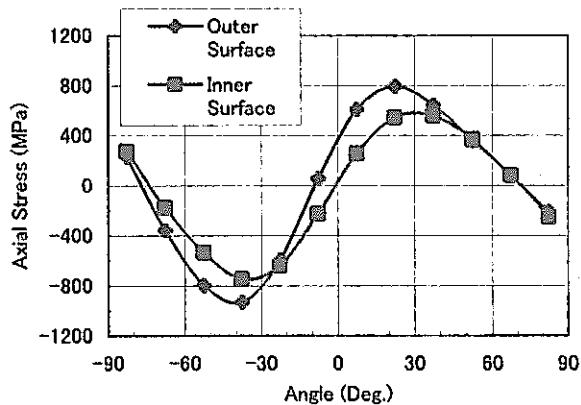
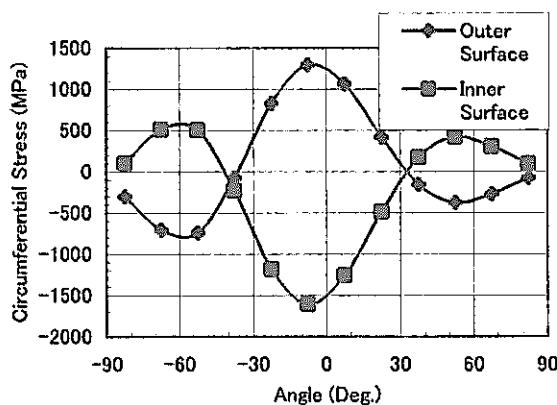


図8. エルボにおける周方向応力分布(図7参考) 図9. エルボにおける軸方向応力分布(図7参考)

4. まとめ

本年度は、膜と板曲げを受ける平板及び管でのき裂開口変位を調査することで LBB 理論の高度化を、R6 による不安定破壊評価の有効性を検証することによって LBB 理論の合理化を図った。また現在実施している冷却材模擬漏洩試験からは、より現実的な冷却材の検出性評価が予測される。昨年度及び本年度の研究成果を合わせ、今後 12Cr フェライト鋼を用いた FBR 用高温構造物における LBB 評価を実施する。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 15 年度は、13 年度と 14 年度の研究成果を用いて、高温構造物で LBB 評価が必要な個所における応力計算とともに、LBB 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. Y.S. Yoo(2002), LBB Assessment on Ferrite Piping Structure of Large-scale FBR, JNC TN9400 2001-120.
2. Y.S. Yoo(2002), LBB Assessment on Ferrite Piping Structure of Large-scale LMFR, 2002 ASME-PVP Conference.
3. Y.S. Yoo(2003), Crack Opening Displacement of Circumferential Through-Wall Cracked Cylinders Subjected to Tension and In-plane Bending Loads, JNC TN9400 2002-079.
4. H. Machida and Y.S. Yoo(2003), Crack Opening Displacement of Through-Wall Plate Cracks Subjected to Bending Load, Nuclear Engineering and Design.(On proceeding)
5. H. Machida and Y.S. Yoo(2003), Crack Opening Displacement Of A Crack In A Plate Subjected To Bending Load, SMiRT-17.(On proceeding)
6. H. Machida and Y.S. Yoo(2003), Crack Opening Displacement of Though-Wall Cracks in Plate Subjected to Bending Load, Fall Meeting of the Atomic Energy Society of Japan, #311.(On proceeding)
7. Y.S. Yoo(2003), Crack Opening Displacement of Circumferential Through-Wall Cracked Cylinders Subjected to Tension and In-Plane Bending Loads, Nuclear Engineering and Design.(On proceeding)

博士研究員（H 13）平成14年度研究概要報告書

研究テーマ	長寿命小型鉛ビスマス冷却炉心の概念構築および流量変更による負荷追従の研究		
研究者氏名	TOSHINSKY, Vladimir (トシンスキイ・ヴラジミール)		
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 炉心・燃料システムグループ 水野 朋保, 高木 直行	所属長 役職・氏名 水野 朋保	炉心・燃料システム グループリーダー
研究実施場所	大洗工学センター FBR サイクル国際研究開発センター		
通算研究期間 (予定)	平成 13 年 4 月 ~ 平成 16 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 14 年 4 月 ~ 平成 15 年 3 月
<p>【研究目的】</p> <p>この研究の目的は、負の温度反応度フィードバックを高めた長寿命小型鉛ビスマス冷却炉心の概念を構築することである。制御棒を用いず、流量変更による負荷追従が達成されるようなフィードバック特性を実現する。</p>			
<p>【研究内容（概要）】</p> <p>At the first stage of this study, the temperature feedback components will be analyzed with a focus on their effectiveness on reactivity change during flow rate adjustment, and the most significant ones will be selected.</p> <p>Using such components as parameters, the scope calculations will be performed with a purpose to find range of each reactivity component variation, for which the load-following by flow rate adjustment is successful. For these computations, the possible variation of load (power) will be assumed the same as for conventional reactors. The above analysis will be performed for typical long-life small Pb-Bi cooled reactor.</p> <p>Then, several long-life small reactor core designs will be examined from the viewpoint of required temperature feedback components. As a result, some of core designs will be selected, which characteristics are the closest to the required ones, for the further consideration.</p> <p>Then, the attempt will be done on modification of selected designs to meet required characteristics by enhancing reactivity feedbacks using several methods: H/D adjustment, use of Pb-Bi reflector with heat source, adding zirconium hydride to core region, use of gas expansion module, etc.</p> <p>Then, for the successfully modified core designs, the load-following capability will be confirmed using power plant simulator. Additionally, optimization of flow rate control will be performed.</p>			
<p>【使用主要施設】</p> <p>The computations for this study are performed using:</p> <ul style="list-style-type: none"> - WS GP7000 (Unix OS) [SRAC code]; - PC ofbrf84 (Linux OS) [SLAROM, JOINT, CITATION, PERKYM, CITBETA, PENCIL6.1, TRITAC, SNPERT3D]; - PC ofbrf22 (Windows OS) [SPAKS code]. 			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

During H13, the load-following capabilities by flow rate control have been investigated for LSPR design. It was found that original LSPR design does not possess features to perform load following by flow rate control without violation the design constraint – the cladding hot spot temperature. For improvement load following capabilities, the additional feedback was introduced by implementing heat source (HS) in radial reflector region. This innovation resulted in significant improvement of results and made load-following capabilities feasible.

The mentioned research was, however, performed using rather simple computational models. Additionally, it was done only for BOC conditions, when, as well known, the estimates of feedbacks are not conservative. In order to make the analysis more comprehensive, accurate enough with reasonable requirement on computation costs, several computational approximations were implemented during H14 study. Finally, the best suited for this particular problem has been selected.

【研究成果（当該年度）】

The Table 1 and 2 recalls the major LSPR specifications. Figure 1 describes the computational model for neutronics-thermal hydraulic analysis. Table 3 shows compositions of non-fissionable regions, i.e. regions, which do not contain fuel materials, such as reflectors, shielding, etc. These compositions were taken from JNC report [TN9400 2002-053], entitled “Design Studies on Small Fast Reactor Cores”. The axial dimensions of these regions are kept the same as in mentioned report, except the gas plenum. Since the LSPR has Pb-Bi as bonding material, while design described in report have He bonding, the gas plenum for LSPR is placed above the core and its length is adjusted according to inlet/outlet temperature difference.

As it seen from the Figure 1, the model assumes 7 channels, where channels for control rods and backup rod are newly introduced as compared to H13 LSPR analysis.

For convenience of computation reactivity feedbacks with different *NUETRONIC* approximations – 2D/3D, diffusion/transport, different group numbers - the system **EXPERT** was developed during H14 year, which consists of set of batch files & utility programs automatically generating INPUTs for such codes as: SLAROM (cell calculation), CITATION (diffusion, criticality/burnup), TRITAC (transport, criticality), PERKY (perturbations in diffusion approximation), SNPERT3D (perturbations in transport approximation) and others, depending on required task. **EXPERT** also performs coupling of *NUETRONIC* and *THERMAL-HYDRAULIC* analysis, where the last one is executed using steady-state module of SPAKS code, developed during H13.

Since the detailed description of **EXPERT** is not main purpose of this report, herein I will just briefly mention that the system operates as followings:

- for pre-selected required neutronics approximation and given initial guess of temperatures it performs iterative burnup & thermal computations, updating microscopic cross-sections until convergence of temperatures and k-effective at MOC;
- using obtained micro cross-section set, performs burnup calculation from BOC to EOC, evaluating burnup reactivity swings and providing number densities for MOC and EOC;
- using calculated number densities, the system generates micro-cross sections sets for BOC/MOC/EOC, generate delayed neutrons data/reactivity maps/ temperatures for BOC/MOC/EOC, etc.

Table 4, Tables 5a&5b, and Table 6 shows the calculations of temperatures, reactivity coefficients, and delayed neutron data using **EXPERT** system for LSPR design. For that computation, “3D/Transport/18GR” approximations were pre-selected for neutronics analysis.

Utilizing **EXPERT** system is rather convenient for selecting approximations for conservative and precise enough estimate of feedbacks for LSPR design with reasonable computation costs. Such analysis will be

【研究成果（当該年度）】

done using Table 7, 8 (page 11).

Table 7 (Case A) shows the integrated feedbacks coefficients for BOC/MOC/EOC using "2D/Diffusion/18GR" approximation. The results reveal that coefficients are reduced from BOC to EOC confirming the well-known fact, that safety analysis at EOC is conservative.

Table 7 (Case B) demonstrate the coefficients as a function of energy groups in 2D diffusion approximation for the most severe case – EOC (at it was proven above). In general, the conservativeness of analysis is destroyed with reduction of energy groups considered, and the most sensitive characteristics is coolant density coefficient and void reactivity. They change in order of magnitude at shifting from 70 GR analysis to 7 GR. The other characteristics show very small sensitivity. From computational cost viewpoint, the 18 GR analysis is (probably) acceptable.

Since LSPR is small reactor – the precise treatment of neutron leakage is important for safety analysis. To check the sensitivity of feedbacks, diffusion and transport neutronics approximations for their computations were applied and results are shown on Table 7 (Case C). It is seen that 2D diffusion gives rather non-conservative estimate of Doppler, coolant density coefficients, and void reactivity. The 3D diffusion estimates coefficients and void with reasonable accuracy. The exception is coolant density coefficient, which is calculated non-conservatively as compared with more precise – transport calculation.

Table 1. Major LSPR specifications.

Parameters	Value
Thermal output [MW]	150
Core lifetime, years	15
Primary condition [°C] (inlet /outlet)	360/510
Core diameter, cm	195
Core height, cm	130
Fuel type	(PU)N
Coolant type	Pb-Bi
Cladding type	ODS
Bonding material	Pb-Bi
Total number of S/A*	169

* See Table 2 for detailed S/A specifications.

Sometimes an the following approximation is made for simplification: using core average temperature distribution rather than fuel/structure/coolant temperature distribution for corresponding nuclides, when generating micro cross-section sets. As it seen from Table 8, such an approach results in rather non-conservative estimate of Doppler (fuel) feedback. The other parameters are almost insensitive to such the approximation.

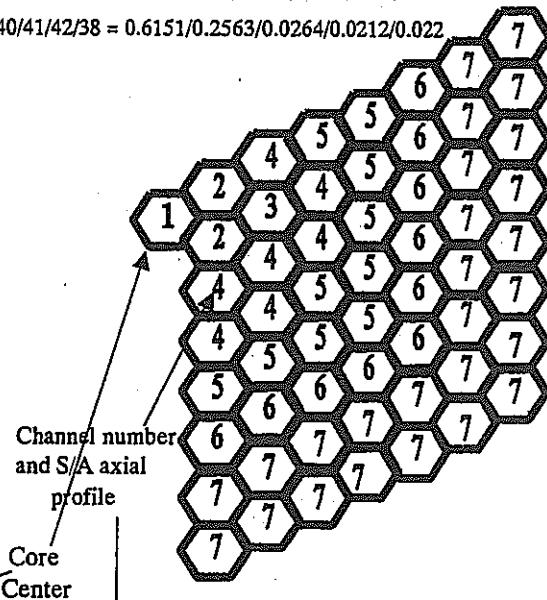
To summarize the above research on feedbacks, the following conditions will be applied for LSPR feedbacks evaluations, when investigating LSPR load-following capabilities:

- a) EOC:
- b) 3D, 18GR, Diffusion approximation for all coefficients, excluding coolant density feedback;
- c) 3D, 18 GR, Transport approximation for coolant density feedbacks.

【研究成果（当該年度）】

<u>Number of S/As:</u>	
Core	57
Control rods	4
Reflector	30
Shielding	78
Total	169
<u>S/As specifications:</u>	
Number of fuel pins	217/169
Blanket/(LEZ&HEZ)	
Pin diameter [mm]	14.97
Cladding' thickness [mm]	0.80
Smear density [TD]	0.80*0.95
Pu enrichment (LEZ/HEZ)**	12.97/13.49
Duct thickness [mm]	2
Duct gap [mm]	2
Bundle pitch [mm]	237.73

Table 2. S/A specifications.

[†]Fe/Cr/Ni/Mo/Mn = 0.855/0.118/0.006/0.015/0.005^{**}Pu39/40/41/42/38 = 0.6151/0.2563/0.0264/0.0212/0.022

Top	CH1	CH2	CH3	CH4	CH5	CH6	CH7
	CRDV	SHD_T	CRDV	SHD_T	SHD_T	REF	SHD_R
	CRDV	GSPL	CRDV	GSPL	GSPL	REF	SHD_R
	CRDV	SPRG	CRDV	SPRG	SPRG	REF	SHD_R
	CRDV	IBL	CRDV	HEZ	HEZ	REF	SHD_R
	CRDV	IBL	CRDV	LEZ	HEZ	REF	SHD_R
	CRDV	IBL	CRDV	LEZ	HEZ	REF	SHD_R
	CRDV	IBL	CR	LEZ	HEZ	REF	SHD_R
	CRDV	IBL	CR	LEZ	HEZ	REF	SHD_R
	CRDV	IBL	CR	HEZ	HEZ	REF	SHD_R
Bottom	CRDV	SHD_B	CR	SHD_B	SHD_B	REF	SHD_R
	12.4817	20.5418	6.4471	30.0246	27.9901	21.5827	40.2879

Fig 1. Calculation model.

CRDV: Drives of control rods [Channel -CH3] and backup rod CH1 (See Table3).

SHD_B: Bottom shield (See Table3).

CR: Control rod (See Table3).

SPRG: Spring (See Table3).

GSPL: Gas plenum (See Table3).

SHD_T: Top shielding (See Table3).

REF: Radial reflector (See Table3).

SHD_R: Radial shield (See Table3).

IBL: Inner blanket (See Table2).

LEZ: Low enrichment zone (See Table2).

HEZ: High enrichment zone (See Table2).

【研究成果（当該年度）】

CRDV (STRUCTURE:COOLANT=0.04:0.96)

FE	2.90380E-03	CR	4.00800E-04	PB	1.28952E-02
NI	1.29122E-05	MO	7.89885E-06	MN	2.06920E-05
BI	1.57608E-02	W	1.03050E-04	B-10	0.00000E+00
B-11	0.00000E+00				

SHD B (B4C:STRUCTURE:COOLANT=0.40:0.20:0.40), B-NAT, 90%TD

FE	1.22690E-02	CR	1.69340E-03	PB	5.47400E-03
NI	5.45540E-05	MO	3.33730E-05	MN	8.74190E-05
BI	6.67100E-03	W	8.70760E-05	B-10	8.13400E-03
B-11	3.27520E-02				

CR (B4C: STRUCTURE:COOLANT =0.20:0.23:0.57), B10-30%, 80%TD

FE	1.45190E-02	CR	2.00400E-03	PB	7.43000E-03
NI	6.45610E-05	MO	3.94940E-05	MN	1.03460E-04
BI	9.05000E-03	W	1.03050E-04	B-10	5.27600E-03
B-11	1.23110E-02				

SPRG

FE	1.22690E-02	CR	1.69340E-03	PB	5.47400E-03
NI	5.45540E-05	MO	3.33730E-05	MN	8.74190E-05
BI	6.67100E-03	W	8.70760E-05	B-10	0.00000E+00
B-11	0.00000E+00				

GSPL

FE	1.33580E-02	CR	1.84370E-03	PB	5.58800E-03
NI	5.93960E-05	MO	3.63350E-05	MN	9.51790E-05
BI	6.82900E-03	W	9.48040E-05	B-10	0.00000E+00
B-11	0.00000E+00				

SHD T (STRUCTURE:COOLANT=0.60:0.40)

FE	4.23960E-02	CR	5.85170E-03	PB	5.58800E-03
NI	1.88520E-04	MO	1.15320E-04	MN	3.02090E-04
BI	6.82900E-03	W	3.00900E-04	B-10	0.00000E+00
B-11	0.00000E+00				

REF (STRUCTURE:COOLANT=0.04:0.96)

FE	2.90380E-03	CR	4.00800E-04	PB	1.28952E-02
NI	1.29122E-05	MO	7.89885E-06	MN	2.06920E-05
BI	1.57608E-02	W	1.03050E-04	B-10	0.00000E+00
B-11	0.00000E+00				

SHD R

FE	1.45190E-02	CR	2.00400E-03	PB	2.68660E-03
NI	6.45610E-05	MO	3.94940E-05	MN	1.03460E-04
BI	3.28360E-03	W	1.03050E-04	B-10	9.15820E-03
B-11	3.68760E-02				

Table 3. Compositions of non-fissionable regions.

【研究成果（当該年度）】

CASE: EOC

COOLANT TEMPERATURE MAP							
(FROM CORE BOTTOM TO CORE TOP)							
633.150	633.150	633.150	633.150	633.150	633.150	633.150	633.150
633.150	635.310	633.150	642.845	642.332	633.150	633.150	633.150
633.150	641.515	633.150	667.199	665.069	633.150	633.150	633.150
633.150	649.280	633.150	686.167	682.550	633.150	633.150	633.150
633.150	661.449	633.150	708.320	702.227	633.150	633.150	633.150
633.150	678.500	633.150	732.577	722.852	633.150	633.150	633.150
633.150	712.945	633.150	778.193	759.843	633.150	633.150	633.150
633.150	735.222	633.150	806.441	782.288	633.150	633.150	633.150
633.150	735.222	633.150	806.441	782.288	633.150	633.150	633.150
633.150	735.222	633.150	806.441	782.288	633.150	633.150	633.150
CH1	CH2	CH3	CH4	CH5	CH6	CH7	
STRUCTURE TEMPERATURE MAP							
(FROM CORE BOTTOM TO CORE TOP)							
633.150	633.150	633.150	633.150	633.150	633.150	633.150	633.150
633.150	636.267	633.150	660.387	658.360	633.150	633.150	633.150
633.150	644.199	633.150	700.664	695.619	633.150	633.150	633.150
633.150	653.625	633.150	726.231	718.155	633.150	633.150	633.150
633.150	667.969	633.150	753.569	740.563	633.150	633.150	633.150
633.150	686.483	633.150	779.526	761.129	633.150	633.150	633.150
633.150	718.970	633.150	814.804	788.069	633.150	633.150	633.150
633.150	735.222	633.150	806.441	782.288	633.150	633.150	633.150
633.150	735.222	633.150	806.441	782.288	633.150	633.150	633.150
633.150	735.222	633.150	806.441	782.288	633.150	633.150	633.150
CH1	CH2	CH3	CH4	CH5	CH6	CH7	
FUEL TEMPERATURE MAP							
(FROM CORE BOTTOM TO CORE TOP)							
0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
0.000	642.853	0.000	747.333	737.694	0.000	0.000	0.000
0.000	662.618	0.000	861.466	842.349	0.000	0.000	0.000
0.000	683.316	0.000	915.698	886.919	0.000	0.000	0.000
0.000	712.271	0.000	964.321	920.362	0.000	0.000	0.000
0.000	740.254	0.000	995.710	939.469	0.000	0.000	0.000
0.000	760.821	0.000	983.353	920.342	0.000	0.000	0.000
0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
CH1	CH2	CH3	CH4	CH5	CH6	CH7	

OTHER PARAMETERS

Thermal Power	= 150.00024 [MW]
Flow rate	= 6830.00000 [kg/s]
Maximum coolant velocity	= 0.74401 [m/s]
T_core_inlet	= 360.00000 [C]
T_core_outlet (aver)	= 509.34443 [C]
Temperature rise	= 149.34443 [C]
Nominal hottest T_coolant	= 551.51010 [C]
Nominal hottest T_cladding	= 577.12996 [C]
Nominal hottest T_fuel	= 802.25570 [C]
Core average T_coolant	= 414.02632 [C]
Core average T_cladding	= 438.21609 [C]
Core average T_fuel	= 555.58036 [C]
Pressure drop friction: (CORE + SPRING + GSPL)	= 0.02680 [MPa]
Pressure drop acceleration:(CORE + SPRING + GSPL)	= 0.00009 [MPa]
Pressure drop total: (CORE + SPRING + GSPL)	= 0.02689 [MPa]

Table 4. Calculation result of SPAKS code.

[研究成果 (当該年度)]

CASE: EOC, 18GR, XYZ-Transport

```
*****
***** REACTIVITY MAP: DOPPLER (FUEL) dK/KK' *****
***** (FROM CORE BOTTOM TO CORE TOP) *****
 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00
 0.000E+00 -1.368E-05 0.000E+00 -9.247E-05 -1.045E-04 0.000E+00 0.000E+00
 0.000E+00 -1.679E-05 0.000E+00 -8.084E-05 -8.780E-05 0.000E+00 0.000E+00
 0.000E+00 -2.836E-05 0.000E+00 -1.047E-04 -1.071E-04 0.000E+00 0.000E+00
 0.000E+00 -4.383E-05 0.000E+00 -1.250E-04 -1.166E-04 0.000E+00 0.000E+00
 0.000E+00 -5.228E-05 0.000E+00 -1.312E-04 -1.144E-04 0.000E+00 0.000E+00
 0.000E+00 -1.208E-04 0.000E+00 -2.811E-04 -2.349E-04 0.000E+00 0.000E+00
 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00
 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00
 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00 0.000E+00
  CH1      CH2      CH3      CH4      CH5      CH6      CH7
```

TOTAL dK/KK'/°C : -3.558E-06
 COEFFICIENT TdK/dT : -4.026E-03

```
*****
***** REACTIVITY MAP: DOPPLER (COOL+STRUCTURE) dK/KK' *****
***** (FROM CORE BOTTOM TO CORE TOP) *****
-3.878E-11 -4.469E-10 -4.478E-10 -7.609E-09 -1.075E-08 -4.675E-10 6.510E-10
-3.128E-08 -5.037E-07 -1.882E-07 -6.607E-06 -7.095E-06 -3.379E-07 1.270E-08
-5.482E-08 -6.615E-07 -2.282E-07 -6.783E-06 -7.025E-06 -3.904E-07 1.073E-08
-9.974E-08 -1.176E-06 -4.961E-07 -9.368E-06 -8.972E-06 -4.991E-07 1.337E-08
-1.322E-07 -1.846E-06 -6.065E-07 -1.143E-05 -1.001E-05 -5.621E-07 1.618E-08
-1.441E-07 -2.259E-06 -9.772E-07 -1.205E-05 -9.877E-06 -5.460E-07 1.466E-08
-3.448E-07 -4.850E-06 -2.103E-06 -2.198E-05 -1.711E-05 -1.141E-06 2.723E-08
-2.662E-07 -2.874E-06 -8.502E-07 -8.334E-06 -6.147E-06 -4.912E-07 5.987E-09
-5.412E-08 -6.430E-07 -1.352E-07 -1.584E-06 -1.057E-06 -7.340E-08 7.277E-10
-2.976E-12 -1.298E-10 -1.040E-11 -3.221E-10 -1.717E-10 -2.331E-12 3.002E-14
  CH1      CH2      CH3      CH4      CH5      CH6      CH7
```

TOTAL dK/KK'/°C : -2.900E-07
 COEFFICIENT TdK/dT : -2.799E-04

```
*****
***** REACTIVITY MAP: VOID dK/KK' *****
***** (FROM CORE BOTTOM TO CORE TOP) *****
-1.007E-05 -7.595E-06 -1.041E-05 -9.604E-05 -9.246E-05 -4.888E-04 -9.217E-06
-1.883E-04 -1.571E-04 -2.044E-04 -6.666E-04 -2.475E-03 -8.678E-03 -1.464E-04
-8.795E-05 -1.324E-05 -1.356E-05 2.178E-03 -3.969E-04 -5.993E-03 -1.150E-04
-1.477E-05 1.001E-04 -4.850E-05 3.649E-03 -1.814E-04 -7.279E-03 -1.420E-04
 6.728E-05 2.948E-04 2.752E-04 4.861E-03 -1.690E-04 -7.852E-03 -1.545E-04
 1.114E-04 3.902E-04 6.307E-04 5.039E-03 -1.673E-04 -7.639E-03 -1.502E-04
 8.879E-05 4.465E-04 -1.371E-03 3.814E-03 -2.888E-03 -1.400E-02 -2.778E-04
-1.111E-04 -6.479E-04 -1.187E-03 -3.956E-03 -3.794E-03 -3.831E-03 -7.567E-05
-9.189E-05 -2.745E-04 -2.700E-04 -7.748E-04 -7.493E-04 -9.790E-04 -1.705E-05
-2.589E-07 -4.451E-07 -7.673E-07 -1.053E-06 -7.619E-07 -1.230E-06 -1.187E-08
  CH1      CH2      CH3      CH4      CH5      CH6      CH7
```

TOTAL dK/KK' : -5.701E-02
 TOTAL(CORE+UPPER STRUCTURES) dK/KK' : 3.459E-03

Table 5a. Maps of reactivity coefficients.

【研究成果（当該年度）】

CASE: EOC, 18GR, XYZ-Transport

***** RREACTIVITY MAP: FUEL DENSITY (dK/KK')/(dRO/RO) *****
 ***** (FROM CORE BOTTOM TO CORE TOP) *****

CH1	CH2	CH3	CH4	CH5	CH6	CH7
0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
0.000E+00	-2.921E-04	0.000E+00	1.934E-02	2.049E-02	0.000E+00	0.000E+00
0.000E+00	-2.583E-04	0.000E+00	1.583E-02	1.713E-02	0.000E+00	0.000E+00
0.000E+00	-3.766E-04	0.000E+00	2.107E-02	2.210E-02	0.000E+00	0.000E+00
0.000E+00	-4.056E-04	0.000E+00	2.484E-02	2.522E-02	0.000E+00	0.000E+00
0.000E+00	-4.295E-04	0.000E+00	2.578E-02	2.537E-02	0.000E+00	0.000E+00
0.000E+00	-1.635E-03	0.000E+00	5.330E-02	4.799E-02	0.000E+00	0.000E+00
0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00
0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00	0.000E+00

TOTAL (dK/KK')/(dRO/RO): 3.151E-01

W/O RADIAL (REFL&SHILD) (dK/KK')/(dRO/RO): 3.151E-01

***** RREACTIVITY MAP: STRUCTURE DENSITY (dK/KK')/(dRO/RO) *
 ***** (FROM CORE BOTTOM TO CORE TOP) *****

CH1	CH2	CH3	CH4	CH5	CH6	CH7
1.228E-08	1.497E-07	2.472E-07	1.475E-05	2.395E-05	5.800E-05	2.680E-06
-2.330E-06	-2.992E-05	-7.931E-05	-1.096E-03	-8.204E-04	3.223E-03	6.493E-05
-8.431E-06	-1.044E-04	-2.856E-04	-2.000E-03	-1.578E-03	2.522E-03	1.145E-04
-2.668E-05	-2.356E-04	-5.729E-04	-3.040E-03	-2.248E-03	3.303E-03	2.217E-04
-5.640E-05	-4.154E-04	-7.456E-04	-3.926E-03	-2.614E-03	3.868E-03	8.212E-05
-8.539E-05	-5.251E-04	-1.183E-03	-4.218E-03	-2.644E-03	4.044E-03	1.615E-04
-2.237E-04	-1.037E-03	-2.157E-03	-6.440E-03	-3.623E-03	8.015E-03	4.530E-04
-1.103E-04	-1.386E-04	-4.681E-04	-3.426E-04	1.418E-03	1.492E-03	3.205E-05
-2.681E-05	-2.544E-05	-1.090E-04	6.569E-05	3.812E-05	1.304E-04	3.369E-06
-3.046E-10	2.255E-09	2.048E-09	1.681E-08	3.803E-08	8.889E-09	1.234E-10

TOTAL (dK/KK')/(dRO/RO): -1.334E-02

W/O RADIAL (REFL&SHILD) (dK/KK')/(dRO/RO): -4.113E-02

***** RREACTIVITY MAP: COOLANT DENSITY (dK/KK')/(dRO/RO) ***
 ***** (FROM CORE BOTTOM TO CORE TOP) *****

CH1	CH2	CH3	CH4	CH5	CH6	CH7
5.547E-07	1.856E-06	2.795E-06	7.360E-05	1.331E-04	1.398E-03	2.395E-06
4.103E-05	1.020E-04	2.752E-04	3.634E-04	8.987E-04	6.917E-02	5.873E-05
3.158E-05	3.865E-05	1.629E-04	-1.390E-03	-7.687E-04	5.834E-02	1.042E-04
-3.481E-05	-1.001E-05	4.818E-04	-2.405E-03	-1.328E-03	7.768E-02	2.018E-04
-1.827E-04	-1.164E-04	4.585E-04	-3.436E-03	-1.598E-03	9.127E-02	7.452E-05
-3.214E-04	-1.923E-04	2.649E-03	-3.831E-03	-1.633E-03	9.468E-02	1.461E-04
-7.249E-04	-3.421E-04	1.929E-04	-4.626E-03	-8.686E-04	1.850E-01	4.073E-04
-6.485E-05	1.294E-04	2.099E-03	3.355E-03	5.943E-03	3.865E-02	2.795E-05
7.229E-05	5.536E-05	3.556E-04	4.175E-04	6.858E-04	4.714E-03	2.823E-06
3.764E-08	1.203E-08	2.245E-07	7.101E-08	8.458E-08	2.677E-07	1.008E-10

TOTAL (dK/KK')/(dRO/RO): 6.122E-01

W/O RADIAL (REFL&SHILD) (dK/KK')/(dRO/RO): -9.693E-03

Table 5b. Maps of reactivity coefficients.

【研究成果（当該年度）】

a) CASE: BOC

Group	Effective delayed neutron fraction	Decay constant [1/sec.]
1	7.51368E-05	1.30195E-02
2	7.70946E-04	3.13830E-02
3	6.69080E-04	1.34204E-01
4	1.36286E-03	3.45474E-01
5	6.22313E-04	1.37147E+00
6	2.29316E-04	3.74597E+00
β_{eff}	$3.65349E-03$	
Prompt neutron lifetime		2.47859E-07 [sec]

b) CASE: MOC

Group	Effective delayed neutron fraction	Decay constant [1/sec.]
1	7.42956E-05	1.30200E-02
2	7.61341E-04	3.13776E-02
3	6.56920E-04	1.34324E-01
4	1.33052E-03	3.45358E-01
5	6.04290E-04	1.36878E+00
6	2.24250E-04	3.73658E+00
β_{eff}	$3.56209E-03$	
Prompt neutron lifetime		2.54102E-07 [sec]

c) CASE: EOC

Group	Effective delayed neutron fraction	Decay constant [1/sec.]
1	7.35419E-05	1.30202E-02
2	7.53704E-04	3.13703E-02
3	6.47133E-04	1.34389E-01
4	1.30499E-03	3.45253E-01
5	5.90062E-04	1.36689E+00
6	2.19926E-04	3.72887E+00
β_{eff}	$3.48943E-03$	
Prompt neutron lifetime		2.61887E-07 [sec]

Table 6. Neutron parameters for BOC/MOC/EOC.

【研究成果（当該年度）】

a) CASE: (RZ, DIFFUSION, 18 GR)

Integrated reactivity coefficients*	BOC	MOC	EOC
Fuel density, $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	3.256E-01	3.171e-01	3.101E-01
Structure density, $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	-3.315E-02	-3.606E-02	-3.940E-02
Coolant density, $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	2.871E-02	1.750E-02	5.100E-03
Doppler [fuel component], $(\Delta k / kk') / ^\circ C$	-4.194E-06	-3.834E-06	-3.558E-06
Doppler [coolant & structure components], $(\Delta k / kk') / ^\circ C$	-2.890E-07	-2.828E-07	-2.804E-07
Void reactivity, \$	-1.328E+00	-1.070E+00	-7.529E-01

* See Tables 5a and 5b for details.

b) CASE: (RZ, DIFFUSION, EOC)

Integrated reactivity coefficients*	7GR	18GR	70GR
Fuel density $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	3.103E-01	3.101e-01	3.077E-01
Structure density $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	-3.698E-02	-3.940E-02	-3.780E-02
Coolant density $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	1.418E-02	5.100E-03	2.540E-03
Doppler [fuel component] $(\Delta k / kk') / ^\circ C$	-3.638E-06	-3.558E-06	-3.556E-06
Doppler [coolant & structure components] $(\Delta k / kk') / ^\circ C$	-3.022E-07	-2.804E-07	-2.756E-07
Void reactivity, \$	-2.972E+00	-7.529E-01	-1.330E-01

* See Tables 5a and 5b for details.

c) CASE: (18GR, EOC)

Integrated reactivity coefficients*	RZ-DIFFUS	3D-DIFFUS	3D-TRANS
Fuel density $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	3.101E-01	3.009e-01	3.151E-01
Structure density $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	-3.940E-02	-3.851E-02	-4.113E-02
Coolant density $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	5.100E-03	3.815E-03	-9.693E-03
Doppler [fuel component] $(\Delta k / kk') / ^\circ C$	-4.194E-06	-3.834E-06	-3.558E-06
Doppler [coolant & structure components] $(\Delta k / kk') / ^\circ C$	-2.804E-07	-2.828E-07	-2.900E-07
Void reactivity, \$	-7.529E-01	1.749E+00	9.913E-01

* See Tables 5a and 5b for details.

Table 7. Integrated reactivity coefficients as function of computational approximations.

【研究成果（当該年度）】

a) CASE: (RZ, DIFFUSION, 18 GR; Fuel, structure, coolant temperature distributions are used)

Integrated reactivity coefficients	BOC	MOC	EOC
Fuel density, $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	3.256E-01	3.171e-01	3.101E-01
Structure density, $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	-3.315E-02	-3.606E-02	-3.940E-02
Coolant density, $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	2.871E-02	1.750E-02	5.100E-03
Doppler [fuel component], $(\Delta k / kk') / ^\circ C$	-4.194E-06	-3.834E-06	-3.558E-06
Doppler [coolant & structure] components, $(\Delta k / kk') / ^\circ C$	-2.890E-07	-2.828E-07	-2.804E-07
Void reactivity, \$	-1.328E+00	-1.070E+00	-7.529E-01

b) CASE: (RZ, DIFFUSION, 18 GR; Core average temperature distribution is used)

Integrated reactivity coefficients	BOC	MOC	EOC
Fuel density, $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	3.254E-01	3.172e-01	3.102E-01
Structure density, $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	-3.297E-02	-3.594E-02	-3.935E-02
Coolant density, $(\Delta k / kk') / (\Delta \rho / \rho)$	2.907E-02	1.766E-02	5.090E-03
Doppler [fuel component], $(\Delta k / kk') / ^\circ C$	-4.876E-06	-4.428E-06	-4.088E-06
Doppler [coolant & structure] components, $(\Delta k / kk') / ^\circ C$	-2.816E-07	-2.750E-07	-2.724E-07
Void reactivity, \$	-1.368E+00	-1.089E+00	-7.574E-01

Table 8. Integrated reactivity coefficients as function of approximations for temperature treatment.

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

The study, performed during H14, reveals the method for conservative, precise enough and acceptable from computation costs viewpoint estimate of feedbacks of LSPR reactor. The results of that study will be directly applied for the further investigating of load-following capabilities for LSPR by flow rate adjustment.

As study during H13 demonstrated, the significant enhancement of feedback can be provided by using heat source in radial reflector region. Since analysis should be done at EOC, it is necessary to perform burnup calculation not only in core region, but also in HS region. Taking into account the placement of HS, it may be expected that burnup calculation with diffusion approximation may not provide precise result. Thus, the next step of the study will be mastering and application of more precise computation tools for burnup calculations, such as NSHEXBURN (HexZ transport approximation) and MVP_BURN (Monte Carlo).

Developed tool – EXPERT, can be (after small modifications) applied for evaluation of reactivity feedbacks of designs with different coolant types (Na, Pb-Bi), different fuel types (PuUN, PuU-Zr) as well as different bondings (Na, Pb-Bi, He). The comparison of safety characteristics of different designs is also matter of future interest.

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- [1] V. Toshinsky and H. Hayashi "Enhancement of Reactivity Feedback at ULOF for Small Size Long-Life Pb-Bi Cooled Reactor by Implementing Heat Source in Radial Reflector", Trans. Int. Youth Nuclear Congress (*IYNC2002*), p.158, April 16-20, 2002, Taejon, Korea.
- [2] V. Toshinsky and H. Hayashi "Feasibility Study on Small Long-Life PB-BI Cooled Reactor with Capability of Load Following by Flow Rate Adjustment", Int. Conf. On the New Frontiers of Nuclear Tech.: React. Phys., Safety and High Performance Computing (*PHYSOR2002*), October 7-10, 2002, Seoul, Korea.
- [3] V. Toshinsky and H. Hayashi, "Investigation of Load Following Capabilities by Flow Rate Control for Small Long-Life Pb-Bi Cooled Reactor," 日本原子力学会「2002年秋の大会」

博士研究員（H13）平成14年度研究概要報告書

研究テーマ	もんじゅ蒸気発生器伝熱管の ISI 装置における渦電流探傷技術の高度化研究		
研究者氏名	MIHALACHE OVIDIU MARIUS (ミハラケ・オビデウ・マリウス)		
研究協力者 所属・氏名	敦賀本部 国際技術センター I S I システム開発グループ 横山 邦彦	所属長 役職・氏名	ISI システム開発 グループリーダー 山下 卓哉
研究実施場所	敦賀本部 国際技術センター 研究棟		
通算研究期間 (予定)	平成 13 年 4 月 ~ 平成 16 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 14 年 4 月 ~ 平成 15 年 3 月

【研究目的】

もんじゅ蒸気発生器（SG）伝熱管に対する供用期間中検査（ISI）装置の開発は、ナトリウム－水反応事故の未然防止による財産保護の観点から、もんじゅ運転再開へ向けての重要課題とされている。

現状、軽水炉における SG 伝熱管の ISI 技術は渦電流探傷法（ECT）が主流となっているが、伝熱管に強磁性のクロモリ鋼を使用していること等の特殊性から、通常の ECT では特に外面付近の欠陥検出が困難であり、リモートフィールド（RF）法の適用などの検出性能向上のための研究開発が進められてきた。

そこで本研究では、2次元および3次元の電磁場解析コードによる解析結果に基づき、欠陥検出性を向上させた新しいタイプの ECT センサの提案を行うとともに、人工知能（ニューラルネットワーク）技術を応用した逆解析法による欠陥検出技術の開発を行い、ISI 装置の高度化を行うことを目的とする。

また、もんじゅの原子炉容器（RV）廻りの ISI 技術に関し、溶接線の体積検査における漏えい磁束法の適用性について、試験と解析による成立性評価を行い、検査装置合理化の可能性を探る

【研究内容（概要）】

1. 既存 ECT センサによる欠陥検出性能の解析・評価
 - 1.1 ECT センサおよび RF センサ用 2 次元解析コードの開発と改良
 - 1.2 実験データとの比較による 2 次元解析コードの性能検証
 - 1.3 2 次元解析コードによる既存 ECT センサの性能評価（サポート部、ナトリウム付着部および溶接部）
 - 1.4 3 次元解析コードの開発
 - 1.5 実験データとの比較による 3 次元解析コードの性能検証
2. 新型高性能 ECT センサの提案と人工知能技術による欠陥検出技術の高度化
 - 2.1 新型高性能 ECT センサの提案
 - 2.2 解析によるセンサ性能評価（欠陥の種類、大きさによる影響）
 - 2.3 解析によるセンサ性能評価（走査速度、サポート部、溶接部等の影響）
 - 2.4 新しい信号処置技術による欠陥信号の抽出
 - 2.5 欠陥信号データベースの構築

- 2.6 逆解析による欠陥形状の再構成技術の開発
 - 2.7 上記検討を踏まえた検査装置の改良および最適化
-
- 3. 漏えい磁束法の RV 溶接線体積検査への適用性検討
 - 3.1 実験による欠陥検出性能の評価
 - 3.2 解析による欠陥検出性能の評価
 - 3.3 上記評価を踏まえた漏えい磁束法の適用性検討

【使用主要施設】

The main equipments used for the research are the following:

- personal PC – 2CPU's Pentium IV 2.2 GHz, 3 GB memory, 260 GB hard-disk;
- scientific journals available in the JNC library: Research in Nondestructive Evaluation, Materials Evaluation, IEEE Transaction on Magnetics, NDT&E International, The Journal of the British Institute of Non-Destructive Testing;
- supercomputer in Oarai center, 32 CPU, 2 GB memory per CPU;
- magnetic flux device equipment which consists of the following items:
 - a) digital oscilloscope – 16 channels;
 - b) Hall sensors – active surface $0.7 \times 1.5 \text{ mm}^2$, operation range = 0.1 Gauss – 2 Tesla, transversal field detection, linearity 1%;
 - c) X-Y-Z stage – remote controller, scanning area: $54 \times 60 \text{ mm}^2$, speed control, step size movement;
 - d) Hall sensor source : high precision DC current source ranging from 1 – 250 mA;
 - e) Amplifier : range : 1-10000 amplification;
 - f) Filter: high pass filter;
 - g) Magnetizer yoke based on NEOMAX magnets.
- samples for measuring signals from defects located near welds and heat affected zone;
- remote field equipment (excitation coil system, detection coils, lock-in amplifier system, digital oscilloscope, X displacement stage with remote controller);
- samples of ferromagnetic tubes with outer defects and welds.

【進捗状況（当該年度までの概要）】

The research theme is divided in four topics.

First topic consists in the development of numerical electromagnetic code (time transient and non-linear analysis) based on the finite element method (FEM):

- 2 dimensional model (axisymmetric and planar X-Y configuration) are faster and can be used to model the field on the boundaries (used for inputs in the 3D code). Also they are suitable for generations of database signals when geometry of sources and materials can be described in two dimensions.
- 3 dimensional model (X-Y-Z) are more appropriate to deal with the real situations but are very complex and time expensive.

Second topic covers the evaluation of the actual and older remote field sensors used in the in-service inspection of Monju steam generator tubes (evaporator and superheater).

In the *third topic* is studied the feasibility of applying enhanced magnetic method in order to detect outer defects located in the weld, bond or HAZ in reactor's vessel of Monju reactor. Both experimental and numerical simulation will be conducted to improve the magnetic field detection.

The *forth topic* is related to the development of new eddy current sensors with better capabilities in detecting defects in Monju reactor steam generator tubes. It is also proposed a reconstruction of the defects parameters (length, width) and their classification using an artificial neural network.

The present situation of the research (after 2 years of research) is the following:

Concerning 1st Topic the 2 dimensional codes (axisymmetric and planar X-Y geometry) were developed and completed. Also a new 3 dimensional remote field eddy current code was developed. The code has been benchmarked with an eddy current problem and experimental remote field measurements of defects signal in steam generator.

Regarding 2nd Topic it was finished the analysis of three remote field devices: ZETEC 1, ZETEC 2 and Mitsubishi probe used previously in the in-service inspection.

...Regarding the 3rd Topic an experiment was set-up and the signals from defects located in the weld vicinity were measured using magnetic field method. Due to the lack of time, the research on this topic will be canceled for the time being.

Concerning the 4th Topic new advanced remote field devices were studied in order to improve the defect detection. Defect signal was investigated for several geometry and remote field (RF) device configurations. Was analyzed the effect of the RF device speed, support plate and weld. The effect of the probe speed in the RF equipment was measured experimentally and simulations of the phenomena were carried out. The remote field sensor was optimized in order to increase the signal to noise ratio and to minimize the effect of Na on the defect signal.

【研究成果（当該年度）】

The main results obtained only during the 2nd research year are summarized briefly hereafter:

Topic 1:

A new 3D remote field code for materials with linear magnetic characteristic was developed in order to simulate the remote field eddy current effect. The code is based on the reduced magnetic vector potential and electric scalar potential. In this way it is avoided modeling of the source field. The development of a 3D code is necessary in order to include the 3-dimensional effects of the evaporator tubes geometry in Monju reactor like for example: a) the effect of the partial circumferential defects; b) the displacement of excitation coil in x and y direction; c) tube bending; d) speed effect of the excitation coil; e) other non-axisymmetric effects.

Presently the code has been benchmarked (see Appendix I) with an eddy current test problem (in case of a non-magnetic tube and for a ferromagnetic material with the similar properties of Monju steam generator tubes). Good agreement of the 3D simulation with the result form the 2D code was obtained. The 3D code can interpolate the magnetic field in the domain using both linear and quadratic finite elements. In the latest benchmark test, the 3D remote field eddy current code was compared with experimental measurements of the remote field signal from outer defects in the evaporator steam generator tube. A very good agreement could be obtained only when a very fine mesh was used in both excitation and detection area and the second order finite elements were used to interpolate the field. More details about 3D code development and testing is presented in Appendix I.

Topic 4:

It was studied the influence of the speed effect on the remote field device. In Appendix II is presented experimental measurements of the effect of the probe speed on the remote field equipment. Experimental measurements showed that there is a strong influence of the probe speed

even for low values of speed as 0.4 m/s. Simulations of the experiment showed that there is a feedback also from the amplifier system which is responsible for this effect. This effect is very important since the speed of remote field device during in-service inspection can vary up to 1 m/s.

In Appendix III is evaluated the influence of the electro-magnetic properties of steam generator tubes on the defect signal using remote field technique. The experimental data and simulations result fits very well (including phase and amplitude) in a large range of excitation frequencies: 100, 150, 200, 250, 300 and 350 Hz. The analysis showed that the fitting can be achieved for a several combination of the electro-magnetic properties of tube but with different signal amplitudes.

Another part of the research was focused on the evaluation of sodium influence on the remote field signal in Monju steam generator tubes. The following situations can arise: when the defect is filled with Na, or there is a Na drop or there is a thin Na layer. The Na signal can be considered a noise in the defect signal. More details about parameter survey and evaluation of sodium signals are presented in Appendix IV.

The remote field eddy current device has been optimized for two specifics situations: one is more appropriate in case of sodium layer and when sodium fills the defect (amplitude of signal can increase up to 800%, signal/noise ratio increases 30%); the second optimized configuration is more suitable when dealing with Na drop (amplitude signal increases 120% and signal/noise ratio increases up to 30%). More details about optimizations results can be seen in the Appendix IV.

Conclusions

The main results obtained during the 2nd year of the research are the followings:

- was developed a 3 dimensional remote field eddy current code; the code has been benchmarked with an eddy current problem (for both non-magnetic and ferromagnetic material) and the remote field signal from an experimental measurement;
- was experimentally measured the effect of the probe speed in the remote field equipment. The effect was successfully simulated and explained;
- was evaluated the defect signal and influence of the material electromagnetic properties of the Monju steam generator tubes,
- were simulated the influence of the Na layer, Na drop and defects filled with Na on the RF signal.
- was optimized the remote field device in order to increase the defect signal, the signal/noise ratio and to minimize the effect of Na layer on the defect signal

The results of the 2nd year research were evaluated in internal JNC reports and technical meetings and will be presented at international conferences and published in international journals (see Reports [15-21])

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

The research activity for 3rd research year will be focused mainly on the following items:

- a) optimizations of the remote field eddy current device to increase the signal/noise.
- b) Development of algorithms for separation of the remote field signal from the signal of support plates and Na drop
- c) optimizations and improvements of the 3D code remote field code (parallelization, adding the speed effect of the excitation and detection coil in the electromagnetic equations);

d) simulations of the RF effect in 3D geometry

The RF effect will be evaluated in cases that are impossible to be described using the 2D axisymmetric code as: i) non-circumferential and axial defects; ii) curvature of the tube in bend parts and in helical coil; iii) wobbling evaluation due to lift-off and inclination of the excitation; vibrations of the excitation source;

e) creating a database for RF signals from Monju Evaporator tubes using 2D code.

f) reconstructions of defects shape from remote field simulated signals (axisymmetric geometry) using artificial neural network; classification of defects using neural networks

g) recognition of support plate signals and filtering of defects signal under support plate (in 2D axisymmetric geometry) using neural networks.

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- [1]. Ovidiu Mihalache, Zhenmao Chen, Kenzo Miya, "Recent Progresses in Studies on the Advanced Magnetic Flux Leakage Testing", Journal of the Japan Society of Applied Electromagnetics and Mechanics, Volume 9, Number 1, p. 72-77, 2001.
- [2]. Ovidiu Mihalache, Zhenmao Chen, Bogdan Cranganu-Cretu, Kenzo Miya, "Experimental Measurements of ID and OD Signals in Welds using Magnetic Methods", International Journal of Applied Electromagnetics and Mechanics, IOS Press, Vol. 15, p. 61-66, 2002.
- [3]. Zhenmao Chen, Gabriel Preda, Ovidiu Mihalache, Kenzo Miya, "A Fast Scheme for Forward Analysis of Nonlinear Electromagnetics Problems", Proceedings of the 10th International Symposium on applied Electromagnetics and Mechanics, May, 13-16, 2001, Tokyo, Japan, JSAEM Studies in Applied Electromagnetics and Mechanics, Vol. 9, p.497.
- [4]. Bogdan Cranganu-Cretu, Gabriel Preda, Ovidiu Mihalache, Zhenmao Chen, Kenzo Miya, "B-H curve reconstruction from MFL signals based on Genetic Algorithms", Proceedings of the 10th International Symposium on applied Electromagnetics and Mechanics, May, 13-16, 2001, Tokyo, Japan, JSAEM Studies in Applied Electromagnetics and Mechanics, Vol. 9, p.643.
- [5]. O. Mihalache, G. Preda, B. Cranganu-Cretu, Z. Chen and K. Miya, "Reconstructions of Inner and Outer Defects in Ferromagnetic Materials from Experimental Remanent Magnetic Measurements by using Neural Networks", JSAEM Studies in Applied Electromagnetics and Mechanics, Applied Electromagnetics (III), Proceedings of the Third Asian Symposium on Applied Electromagnetics - ASAEM, Hangzhou, China, May 28-30, 2001, pp293-296.
- [6]. M. Lozovan, V.M. Cosma, Monica Cosma Rochat, O. Mihalache, H. Chiriac, "On Some Linear and Angular Displacement Electromagnetic Sensors", International Symposium on Applied Electromagnetics and Mechanics ISEM, Tokyo, May 13-16, 2001 (accepted for publication).
- [7]. Zhenmao Chen, Gabriel Preda, Ovidiu Mihalache, Kenzo Miya, "Reconstruction of Crack Shape from MFL Signals by using a Rapid Forward Solver and an Optimization Approach", 13th Conference on the Computation of the Electromagnetic Fields - COMPUMAG, Lyon-Evian, France, 2-5 July 2001 (accepted for publication).
- [8]. Gabriel Preda, Bogdan Cranganu-Cretu, Ovidiu Mihalache, Florea Ioan Hantila, Zhenmao Chen, Kenzo Miya, "Nonlinear FEM-BEM Formulation and Model-Free Inversion Procedure for Reconstruction of Cracks using Pulse Eddy-Currents", 13th Conference on the Computation of the Electromagnetic Fields - COMPUMAG, Lyon-Evian, France, 2-5 July 2001 (accepted for publication).

- [9]. B. Cranganu-Cretu, O. Mihalache, G. Preda, F. Hantila, Z. Chen and K. Miya, "2D and 3D Simulations of MFL Signals for Non-linear Magnetic Materials", JSAEM Studies in Applied Electromagnetics and Mechanics, Applied Electromagnetics (III), Proceedings of the Third Asian Symposium on Applied Electromagnetics - ASAEM, Hangzhou, China, May 28-30, 2001, pp37-40.
- [10]. G. Preda, B. Cranganu-Cretu, O. Mihalache, F. Hantila, Z. Chen and K. Miya, "Fast Procedure for Crack Reconstruction in Nonlinear Materials using FEM-BEM with Polarization Method and Neural Networks", JSAEM Studies in Applied Electromagnetics and Mechanics, Applied Electromagnetics (III), Proceedings of the Third Asian Symposium on Applied Electromagnetics - ASAEM, Hangzhou, China, May 28-30, 2001, pp301-304.
- [11]. O. Mihalache, "The Effect of Speed in Harmonic Analysis for RF Signal", JNC internal report, presented at ECT Meeting, JSAEM, Tokyo, Japan, December 7, 2001.
- [12]. O. Mihalache, "Analyses of weld signal and defects signal in weld in case of bend part and helical coil", JNC internal report, presented at ECT Meeting, JSAEM, Tokyo, Japan, February 12, 2002.
- [13]. O. Mihalache, "Technology Development for Monju ISI: Advanced ECT Computational Analysis of SG Tubes", The 11th Monju-ICTDC Symposium, March 13, 2002.
- [14]. O. Mihalache, "Advanced Remote Field Computational Analysis of Steam Generators Tubes", The 8th International Workshop on Electromagnetic Nondestructive Evaluation, Saarbrucken, Germany, June 12-14, 2002.
- [15]. O. Mihalache, K. Yokoyama, Y. Imai, "Influence of the probe speed on the RF signals in RF equipment", JNC internal report, presented at ECT Meeting, Tsuruga, ICTDC, JNC, Japan, September 2, 2002.
- [16] O. Mihalache, K. Yokoyama, Y. Imai "Comparison of the Experimental Remote Field (RF) Signal with Simulations", JNC internal report, presented at ECT Meeting, JSAEM, Tokyo, Japan, March 06, 2003.
- [17] O. Mihalache, "Parameter Survey for the Remote Field Device. The effect of Na", JNC internal report, presented at ECT Meeting, JSAEM, Tokyo, Japan, March 06, 2003.
- [18]. O. Mihalache, K. Yokoyama, Ueda Masashi, Yamashita Takuya, "Evaluation of Sodium Effect in Monju Steam generator Tubes using Eddy Currents", Annual Meeting of the Atomic Energy Society Japan, Sasebo, March 28, 2003.
- [19] O. Mihalache, Kunihiko Yokoyama, Ueda Masashi, Yamashita Takuya, "Evaluation of the Effect of Sodium in Steam Generator Tubes using Remote Field" ENDE 2003, The 9th International Workshop on Electromagnetic Nondestructive Evaluation, Saclay, France, 15-16 May, 2003. (to be presented, paper will be review for publishing in journal).
- [20]. O. Mihalache, Kunihiko Yokoyama, Ueda Masashi, Yamashita Takuya, " 3D Finite Element Modeling for Simulating Remote Field Flaw Detection in Magnetic Steam Generator Tubes" , QNDE 2003, 30th Annual Review of Progress in QNDE, July 27 –August 1, Green Bay, Wisconsin, USA, 2003. (to be presented, paper wil be review for publishing in journal).
- [21] O. Mihalache, Kunihiko Yokoyama, Ueda Masashi, Yamashita Takuya, "Development of a 3D ECT Code with Application to the ISI of Monju SG tubes", Annual Meeting of the Atomic Energy Society Japan, Shizuoka, September (to be presented).

Appendix I. Benchmark for the 3D Remote Field eddy current code

A 3D remote field eddy current FEM code was developed in order to be able to evaluate the remote field effect in ferromagnetic tubes. The 3D code is based on the reduced magnetic vector potential and scalar potential and is able to calculate the eddy current distribution inside of ferromagnetic materials with linear magnetic characteristic. The code has the capability to work with both linear and quadratic elements. The advantage of the second order elements is a better approximation of the field in the element. In case of ferromagnetic materials, the field at the interface air-material is better approximated. The main drawback of the second order elements is that the matrix size of the problem increases up to 10 times comparing with the same problem solved with linear elements.

The 3D code was first evaluated with a simple benchmark presented in Figure 1. A source coil (current density is equal to 10^6 A/m^2 , excitation frequency is equal to 100 Hz) is surrounded by a ferromagnetic material (relative magnetic permeability is equal to 4, electrical conductivity is equal to $7 \times 10^6 \text{ S/m}$). The magnetic flux density (B_z) is evaluated along Line 1 (as is indicated in the picture). The geometry of the problem is axisymmetric and the solution can be also computed using the 2D axisymmetric code.

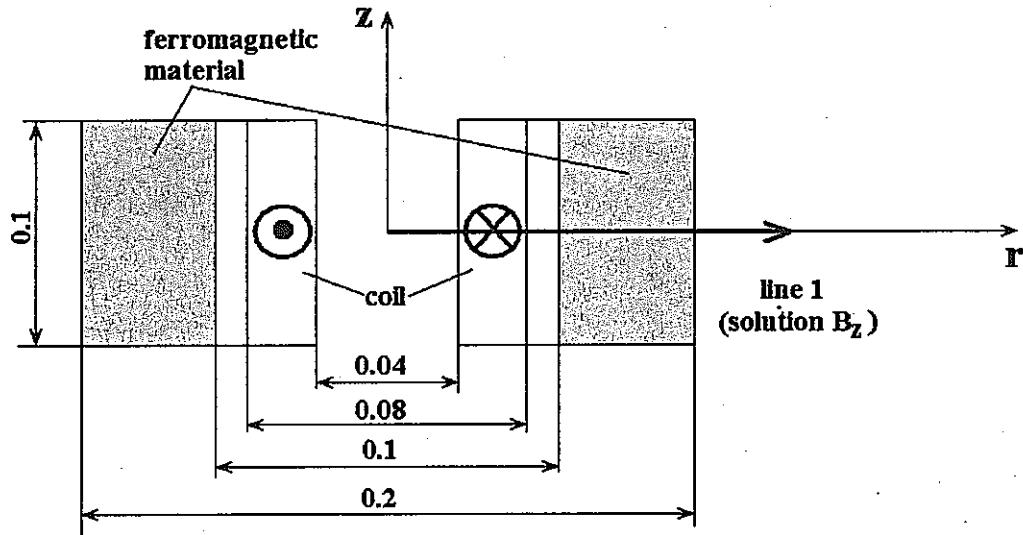


Figure 1. Definition of the benchmark problem

In Figure 2 is presented the comparison between the results of the 2D axisymmetric code and the 3D remote field code. When linear elements (500,000) were used in the 3D code, the agreement between 2D solution and 3D is relatively good except on the interface air-material. When quadratic elements (80,000) were used in the 3D code it can be seen that the agreement with the 2D solution is much better especially at the interface air-material.

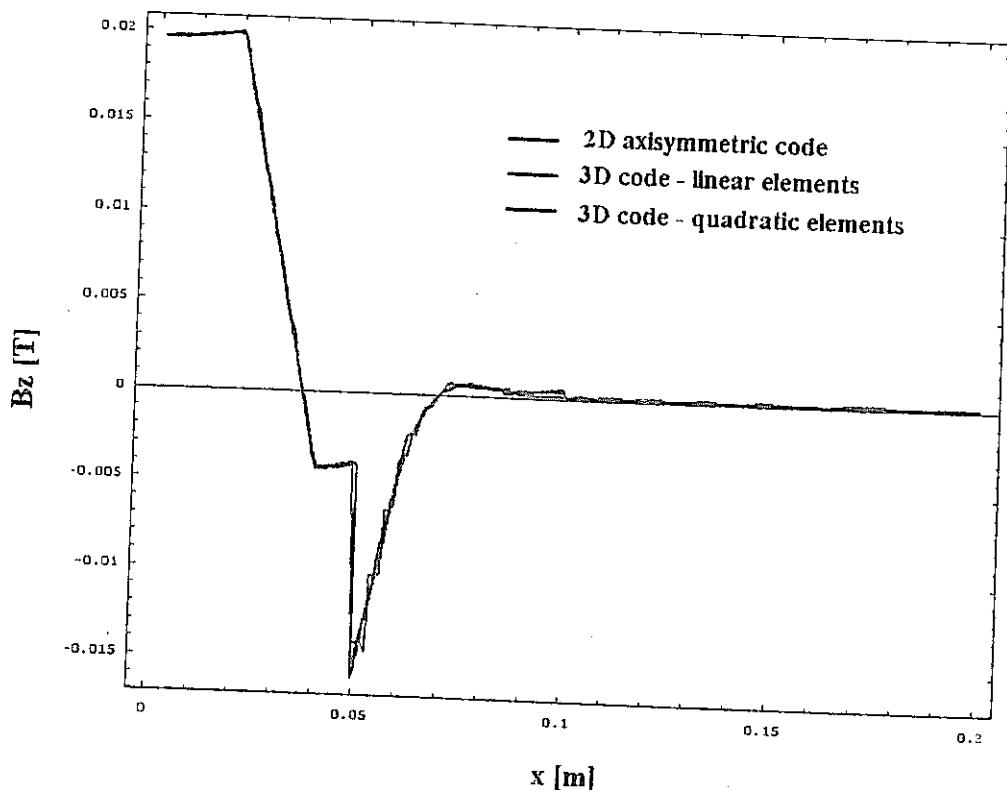


Figure 2. Comparison between solution of 2D axisymmetric code and 3D code with linear and second order elements

In the 2nd benchmark was simulated the variation of magnetic field in the material for higher values of the magnetic permeability ($\mu_{\text{relative}}=100$) and electrical conductivity ($\sigma=3.5 \times 10^6$ S/m). The excitation frequency was chosen to be 50 Hz. The number of finite elements was increased from 6,000 to 500,000. In Figure 3 it is shown the influence of the number of linear elements on the magnetic flux density. The solution from the 3D remote field code (red line) is compared with the solution from the 2D axisymmetric code (black line)

It can be noticed when the number of finite elements is increasing the field is better approximated in the ferromagnetic area. However, due to the high value of the magnetic permeability of the material, linear elements can not accurate interpolate the variation of the magnetic field, especially at the interface air-material. In Figure 4 it is presented the influence of the number of quadratic elements on the magnetic flux density. It can be noticed as the number of elements is increasing the higher is the accuracy of the magnetic flux density inside of ferromagnetic tube.

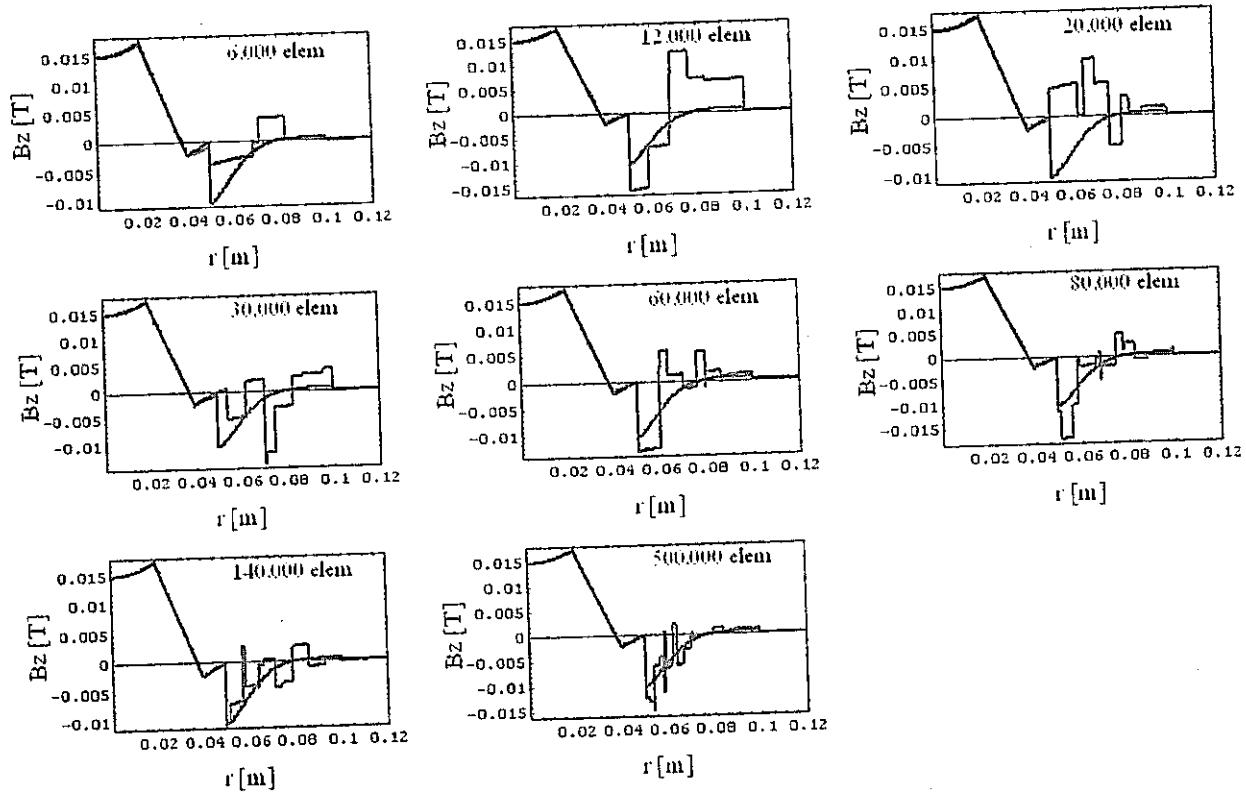


Figure 3. Variation of the magnetic flux density along Line 1 for linear elements:
black line- 2D solution, red line- 3D solution

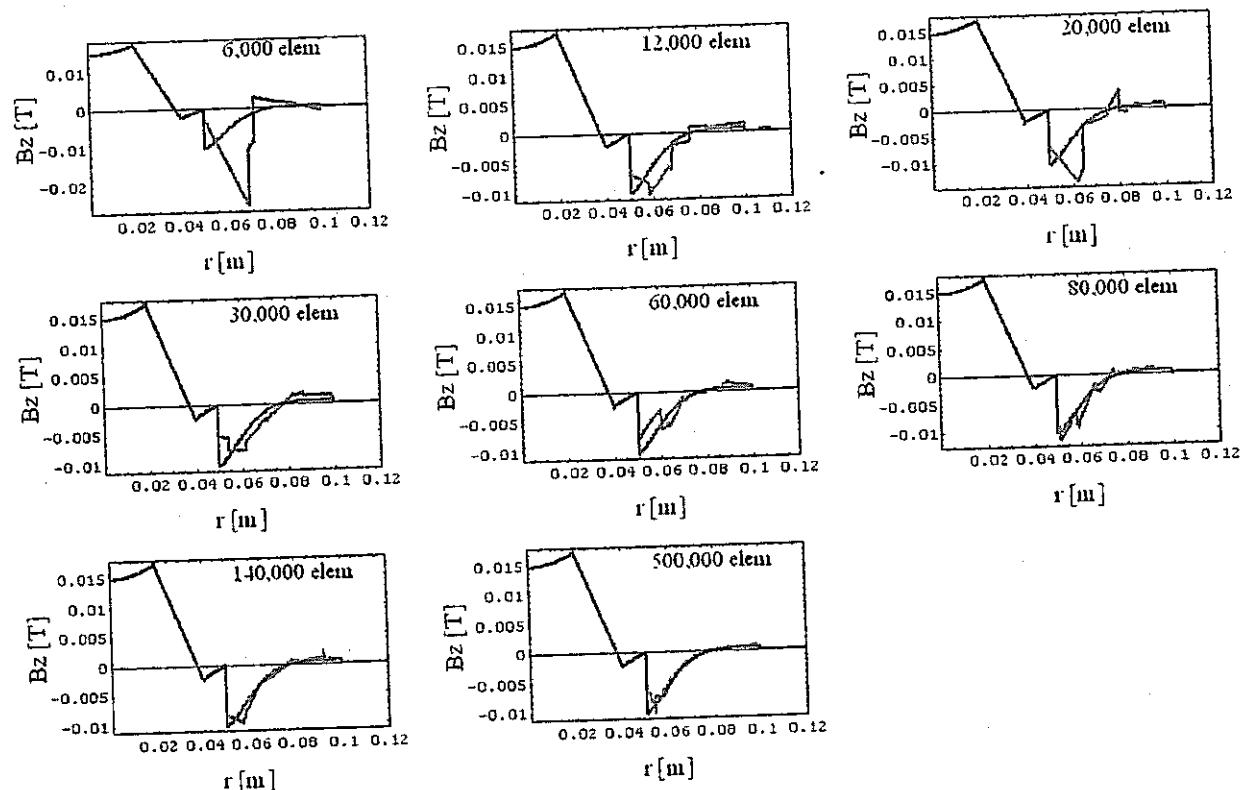


Figure 4. Variation of the magnetic flux density along Line 1 for quadratic elements:
black line- 2D solution, red line- 3D solution

In the 3rd benchmark was simulated the remote field signal from an outer defect in a steam generator tube (sample from Monju evaporator tube) . The experiment was carried out by Japan Society of Electromagnetics Japan (JSAEM). A schematic of the experiment is pictured in Figure 5a, where ferromagnetic tube and defects are both axisymmetric. A remote field device (consisting in an excitation coil and two detection coils) is passing in the axial direction the defect zone. The differential signal of the two detection coils represents the defect signal.

The remote field signal was computed for 500,000 second order finite elements. In Figure 5b is presented the comparison between simulated remote field signal and experimental measurement. It can be seen that the defect signal can be accurately computed in a 3-dimensional geometry.

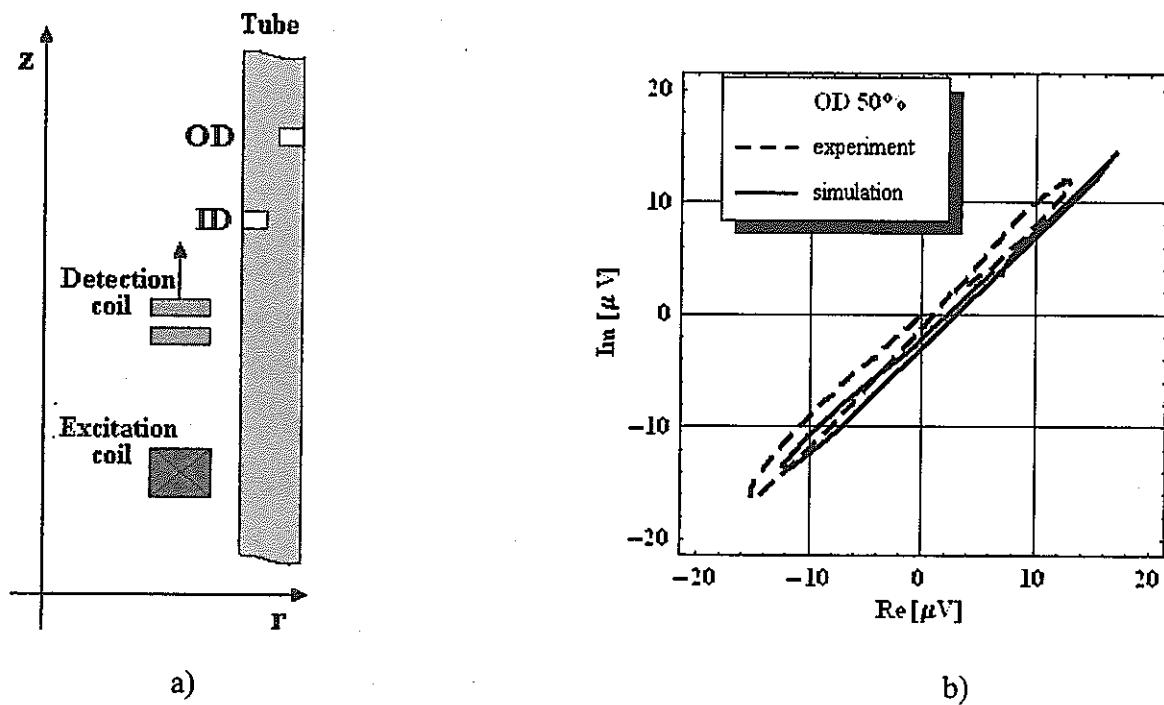


Figure 5. a) Description of the experiment geometry **b)** Comparison between numerical simulation (3D remote field code) and experimental measurements of OD 50% t signal in ferromagnetic tube ($\mu_r=100$, $\sigma=3.5 \times 10^6$ S/m, freq.=500 Hz)

The code is still in the development process in order to be optimized for running with up to 2,000,000 second order elements or 20,000,000 linear elements. Also, in order to speed-up the solution, is in development a parallel version of the 3D remote field code to use up to 16 CPU's (optimized for use with the FUJITSU PRIME POWER 2000 computer in Oarai center).

Appendix II. Experimental measurements of the effect of the probe speed in RF equipment. Simulations of the effect and explanations.

In the RF method, usually the excitation coil is moving inside of a ferromagnetic tube. The detection coils system pick-up the defect signal which is first pre-amplified and then amplified. Finally the signal is recorded or visualized using a digital oscilloscope. This is illustrated in the Figure 6.

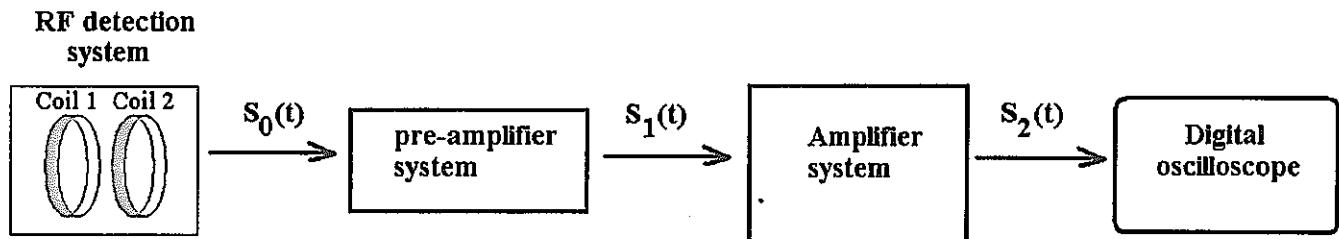


Figure 6. Schematic of the RF detection equipment

The speed effect is present in the signal $S_0(t)$ due to the modifications of the eddy currents in the tube. The amplified signal $S_2(t)$ should have the same behavior like signal $S_0(t)$ if the amplification is a constant. In reality the amplifier has a constant time and what he have is something like the following relation:

$$S_2(t) = \text{const2} * \frac{1}{\tau} \int_{-\tau/2}^{\tau/2} S_1(t + t') dt'$$

where τ is the amplifier time constant (in our case $\tau=10$ ms)

The influence of the amplifier time constant was measured experimentally for the OD20%, width 0.3 mm at the 50mm/s speed (see Figure 7). It can be seen that when the time constant of the amplifier increases the signal is smoothing and the noise from the signal disappear. The time constant of the amplifier acts like a filter device.

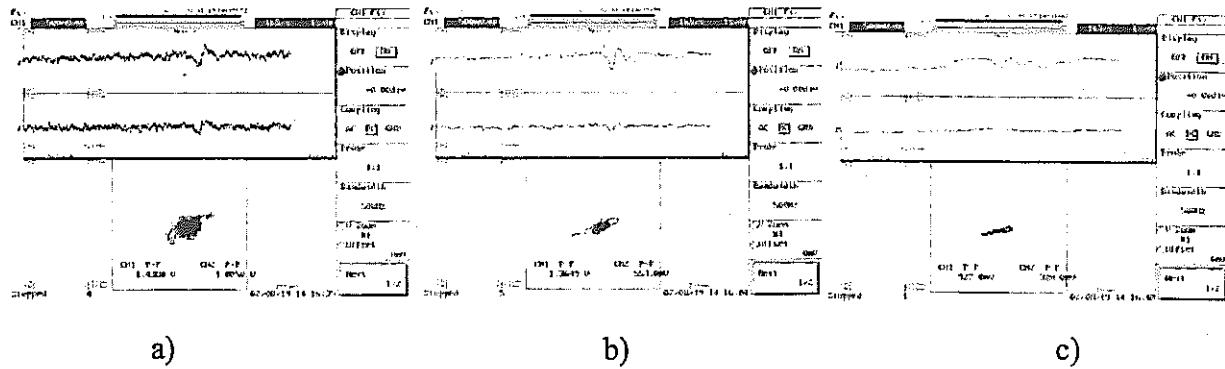


Figure 7. Effect of the amplifier time constant (OD 20%, width 0.3 mm, speed 50 mm/s):

a) $\tau = 10$ ms; b) $\tau = 30$ ms; c) $\tau = 100$ ms

In order to simulate this effect first was computed numerically the defect signal (see the Figure 8). Then, in order to have a close signal like in experimental measurements, a random noise 30% from the signal amplitude was added to the defect signal resulting the signal S1. The result is shown in Figure 9.

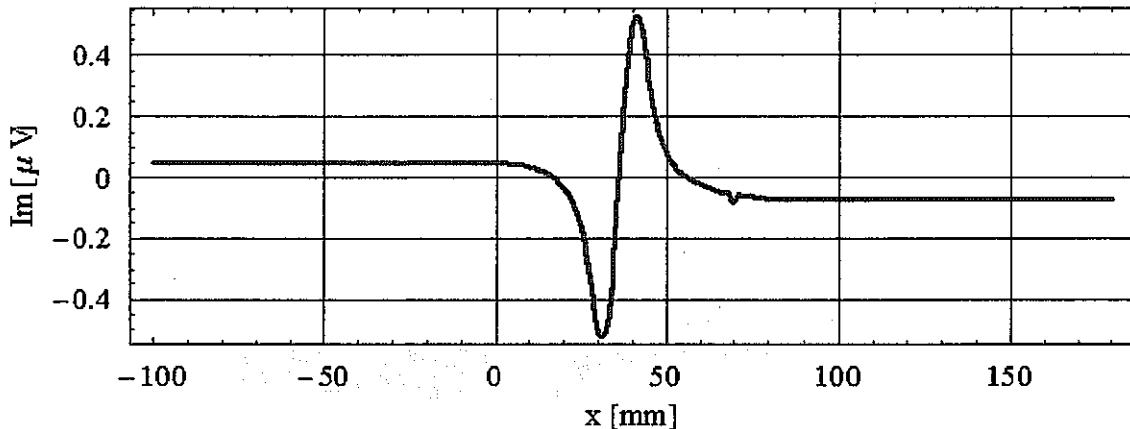


Figure 8. Numerical simulation of the signal S1 (OD20%, width 0.3 mm)

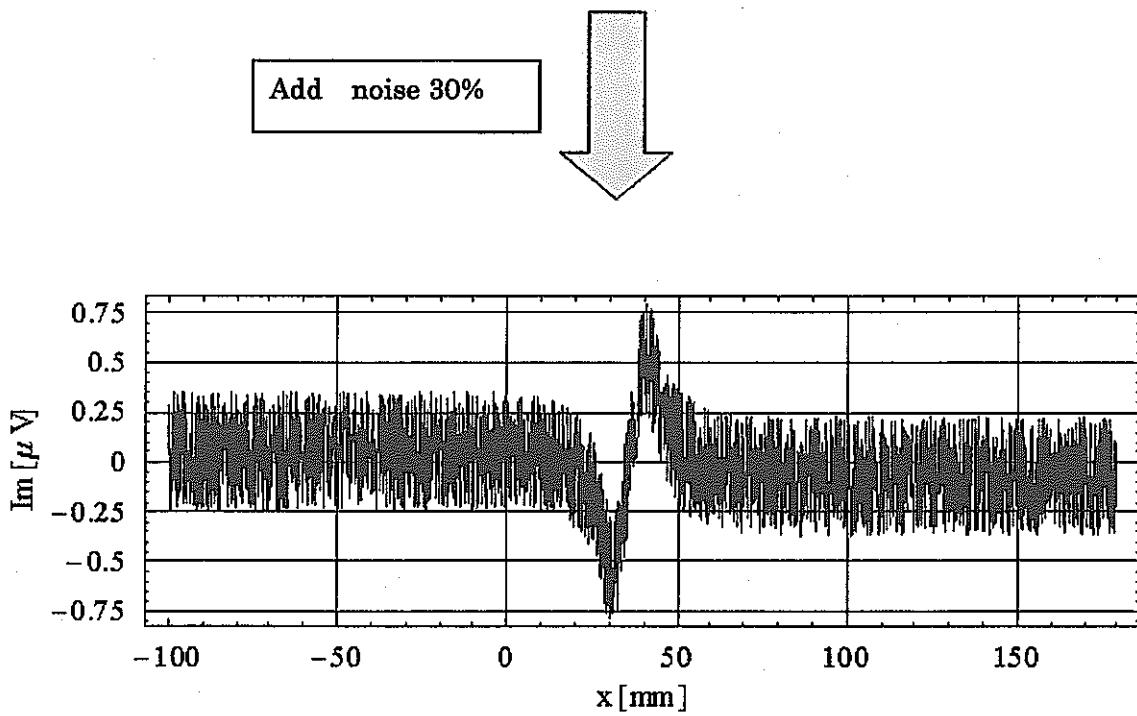


Figure 9. Numerical simulations of the signal S1 (OD20%, width 0.3, noise=30%)

If the real signal S1 is amplified then due to the time constant of the amplifier the output signal S2 is modified as was presented in Figure 7. It can be observed as the time constant of the amplifier increased the output signal S2 is smoothing in the same way like the experimental measurements (see Figure 10, Figure 11, Figure 12). The black line represents the real measured signal. The red line represents the defect signal after passing the amplifier system.

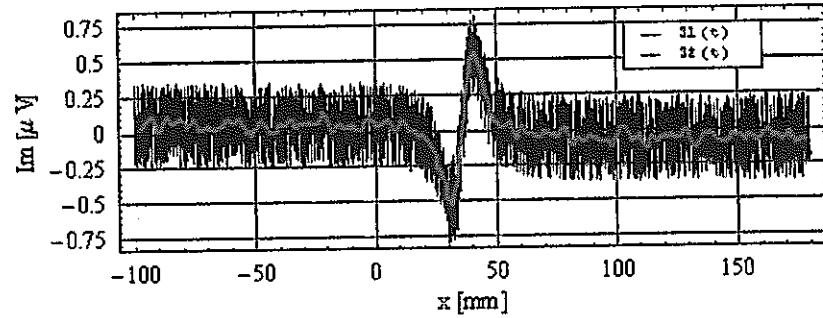


Figure 10. Numerical simulation for $\tau = 10$ ms of signal S2 (OD20%, width 0.3 mm)

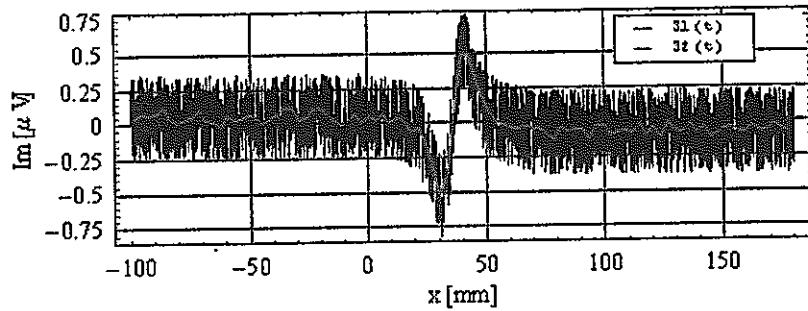


Figure 11. Numerical simulation for $\tau = 30$ ms of signal S2 (OD20%, width 0.3 mm)

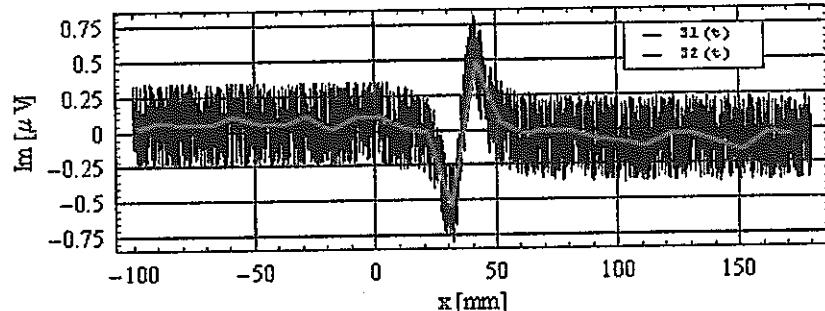


Figure 12. Numerical simulation for $\tau = 100$ ms of signal S2 (OD20%, width 0.3 mm)

The effect of the probe speed for the same time constant of the amplifier was measured experimentally and it is shown in Figure 13. Using the same defect signal like in Figure 9, the amplified signal S2 was computed in several cases when the speed of probe changes: 100, 200 and 400 mm/s. The time amplifier constant was $\tau = 10$ ms like in the experimental measurements.

The results are presented in Figure 14, Figure 15 and Figure 16. It can be seen that there is a great effect on the real signal S2 as the speed of the probe increase to 400 mm/s. The black line represents the real measured signal. The red line represents the defect signal after passing the amplifier system. This effect is much bigger than the speed effect on the eddy current distribution in the tube.

In the simulations of the RF signal in a RF device it is necessarily to take into account also the feedback from the amplifier (and pre-amplifier) system since this introduces additional constraints and the final signal could have different properties than the initial output signal from the

RF detection coils

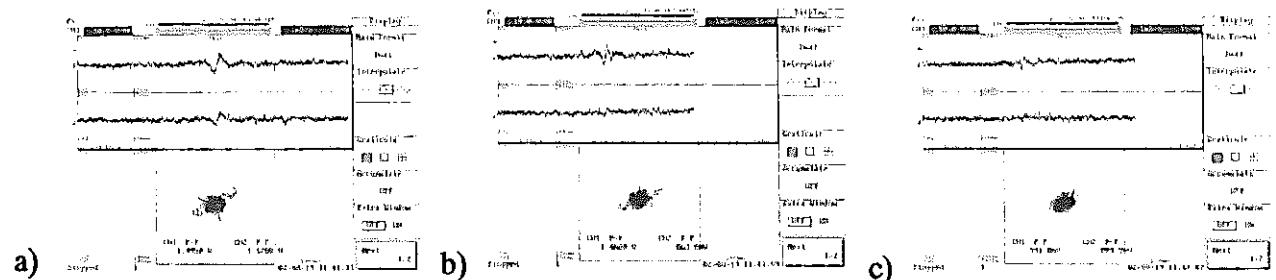


Figure 13. Effect of the probe speed (OD 20%, width 0.3 mm, $\tau = 10$ ms) a) at 50 mm/s; b) 100 mm/s ;c) 200 mm/s

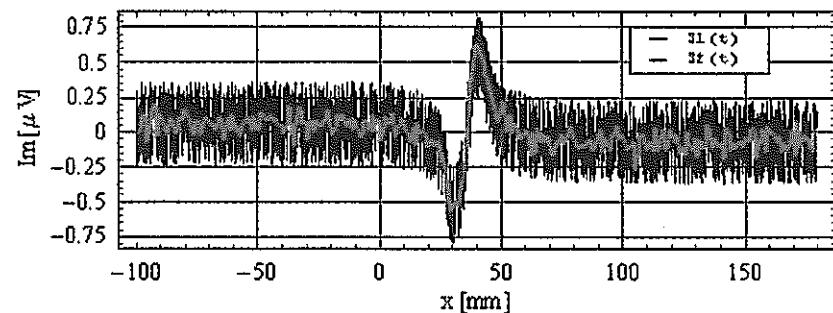


Figure 14. OD20%, width 0.3 mm, speed 100 mm/

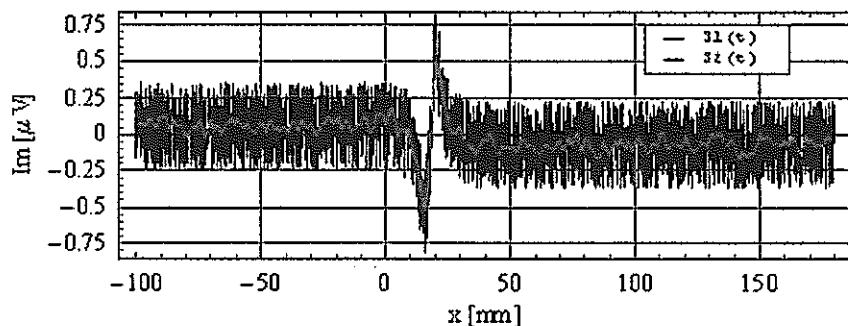


Figure 15. OD20%, width 0.3 mm, speed 200 mm/

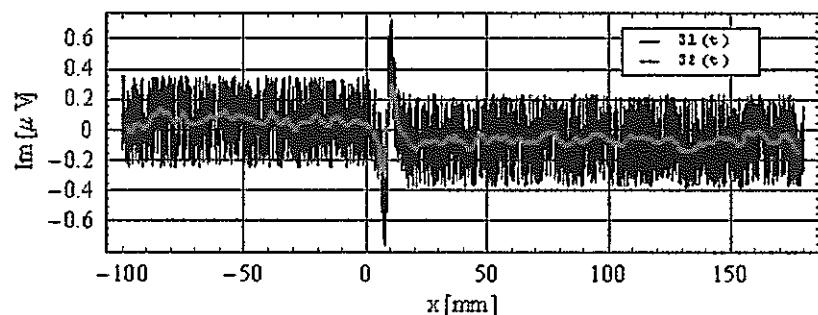
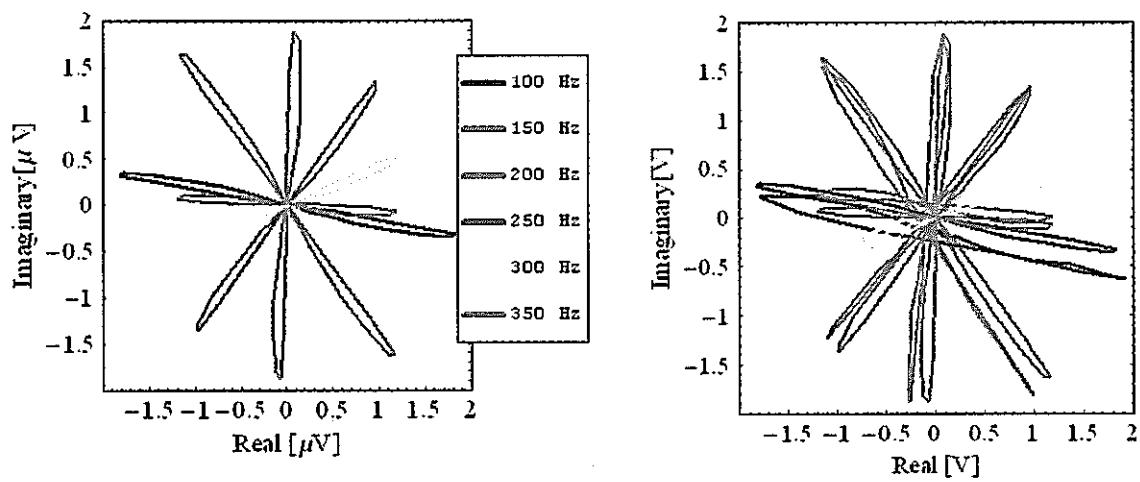


Figure 16. OD20%, width 0.3 mm, speed 400 mm/

Appendix III. Comparison of experimental measurements of the remote field eddy current signal with 2D code simulations results. Influence of the steam generator tube electro-magnetic properties

The double exciter remote field eddy current device was used to measure the outer defect (OD 20%t, circumferential, width 5 mm) signal in the evaporator steam generator. The remote field signal was recorded at several frequencies: 100, 150, 200, 250, 300 and 350 Hz. The objective of this experiment was to verify the simulations results against remote field measurements data from steam generator tubes in Monju evaporator. Also, was evaluated the influence of the electrical conductivity and magnetic permeability of the steam generator tubes.

In Figure 17 a) is presented the simulated RF signal. In Figure 17 b) is



a) simulated RF signal

b) comparison of simulated RF signal with experimental data

Figure 17 .Tube electro-magnetic properties: $\sigma = 3.5 \times 10^6 \text{ S/m}$, $\mu_r = 110$

It was found that several tube parameters can match the phase of the defect signal but with different signal amplitude. The range of these parameters is illustrated in the Table 1.

Table 1

<i>Tube electric conductivity</i>	<i>Tube relative magnetic permeability</i>	<i>Amplification</i>
$2.00 \times 10^6 \text{ S/m}$	200	2.74×10^6
$2.25 \times 10^6 \text{ S/m}$	180	2.58×10^6
$2.50 \times 10^6 \text{ S/m}$	160	2.33×10^6
$2.75 \times 10^6 \text{ S/m}$	140	2.01×10^6
$3.00 \times 10^6 \text{ S/m}$	130	1.96×10^6
$3.25 \times 10^6 \text{ S/m}$	120	1.88×10^6
$3.50 \times 10^6 \text{ S/m}$	110	1.76×10^6

3.75×10^6 S/m	100	1.61×10^6
4.00×10^6 S/m	90	1.44×10^6
4.25×10^6 S/m	85	1.41×10^6
4.50×10^6 S/m	80	1.38×10^6
4.75×10^6 S/m	75	1.34×10^6
5.00×10^6 S/m	70	1.27×10^6
5.25×10^6 S/m	65	1.20×10^6
5.50×10^6 S/m	60	1.11×10^6
5.75×10^6 S/m	57.5	1.08×10^6
6.00×10^6 S/m	55	1.04×10^6

However, during the experiment the remote field signal is amplified using the same constant amplification 1.76×10^6 , and in this case the tube conductivity is 3.5×10^6 S/m and the tube relative magnetic permeability is 110, which was also confirmed using another method for measuring these parameters.

Appendix IV. Influence of the sodium (Na) on the RF signals. Optimization of the remote field device to minimize the effect of sodium

Several parameters of the Remote Field device are investigated in order to find out what are the main parameters of an optimized Remote Field device. The source of the noise in the signal is considered to be Na (Na layer, Na fills the defect and Na drop).

Sometimes is difficult to define the noise because in some situations the noise is present only when the defect exists. For example, when Na fills the defect, if the "filling" is considered a noise than this noise exists only if the defect is present. There is no pure "filling" noise in the absence of the defect. The situation is different in case of Na drop where the Na drop signal can be computed in the absence of the defect. The third situation appears in case of Na layer. It is possible to calculate only the Na layer signal but the amplitude of this signal is almost zero since it will be only a point in the (real, imaginary) signal representation.

An optimized Remote Field configuration is the one which can measure:

- (I) the highest signal amplitude from the defect
- (II) the highest Signal/Noise level.

The following defects are investigated:

- OD 20%, width 0.5 mm
- OD 20%, width 5 mm

The following effects are investigated

- Influence of tube thinning (see Figure 18)
- Influence of Na layer (see Figure 19)
- Influence of Na filled (Na fills the defect – see Figure 20)
- Influence of Na drop (see Figure 21)

In addition were investigated:

- the combination of the any two above effects (6 cases)
- the combinations of any three above effects (4 cases)
- all four above effects (1 case)

To optimize the remote field device the following parameters were changed during simulations:

- a) constant current and constant voltage excitation source;
- b) excitation and detection number of wires;
- c) distance between detection coils (edge to edge)=1, 3, 5, 7, 9 mm;
- d) detection coil length =1, 3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17, 19, 21, 23, 25, 27, 29 mm;
- e) excitation frequency= 100, 250, 500 Hz;
- f) distance between detection and excitation (center to center)= 60, 80, 100, 120, 140 mm

The conclusions of these analyses are the following:

- the defect is detectable when there is a tube thinning and Na layer. The defect signal slightly decreases.
- the defect is detectable when is filled with Na. The amplitude of the remote field signal slightly decreases.
- the Na drop (circumferential) signal is stronger than defect signal. In this case a separate analysis (based on a multi-frequency technique) is required to remove the Na drop signal.

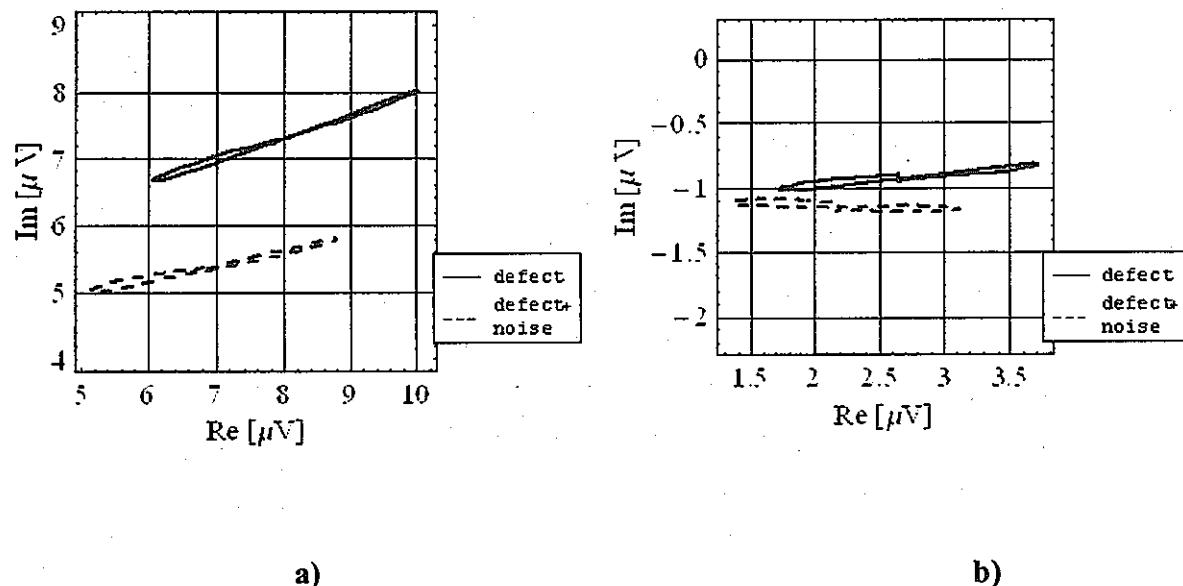


Figure 18. Noise = tube thinning; distance excitation-detection = a) 60 mm; b) 120 mm

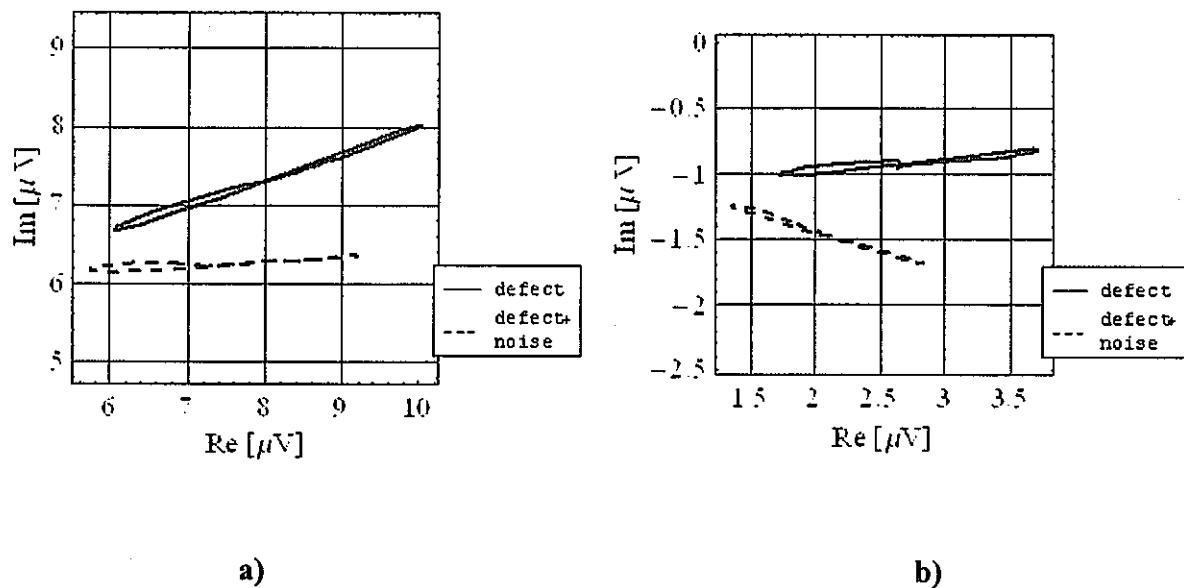


Figure 19. Noise = Na layer; distance excitation-detection = a) 60 mm; b) 120 mm

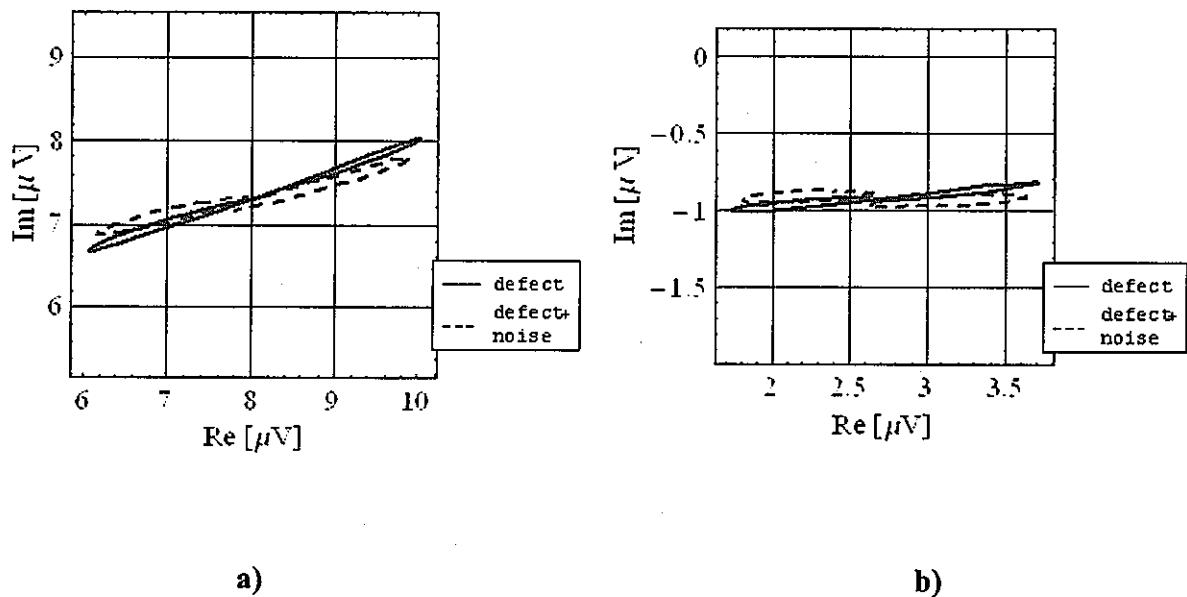
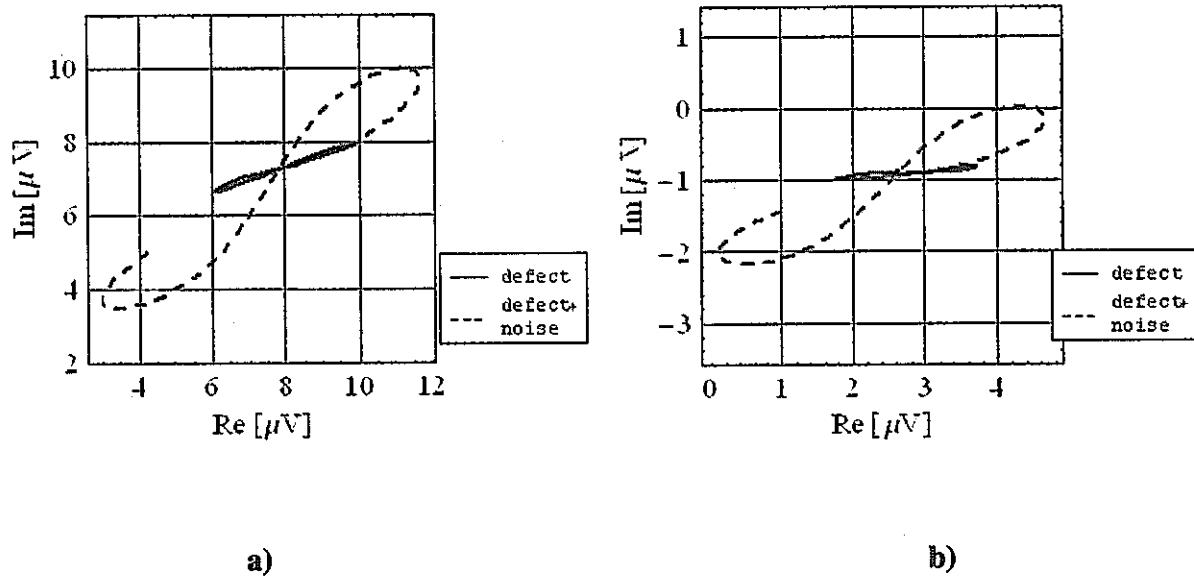


Figure 20. Noise = Na filled; distance excitation-detection = a) 60 mm; b) 120 mm

Figure 21. Noise = Na drop; distance excitation-detection = a) 60 mm; b) 120 mm

The next step was to evaluate what is the influence of the distance between detection coils and detection length on the remote field signal. There is a correlation between these two parameters as is presented in Figure 22.

The main conclusion of these analyses is the following:

- the amplitude of the signal increases when the distance between detection coils increases.

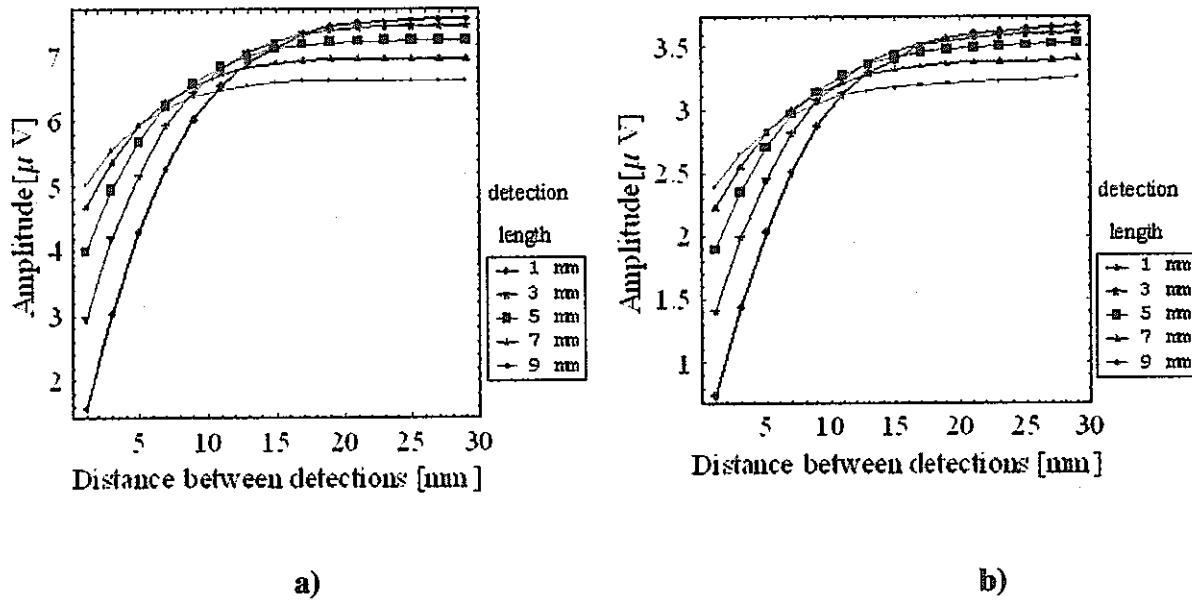


Figure 22. OD 20%, width 0.5 mm; distance excitation-detection = a) 60 mm; b) 120 mm

In the next evaluation the signal/ noise ratio was computed using the formula:

$$S/N = \frac{Signal_{defect}}{Signal_{noise}}$$

The source of the noise can be:

- ❖ Na layer;
- ❖ tube inner thinning
- ❖ Na fills the defect
- ❖ Na drop

The NOISE SIGNAL is evaluated in the following way:

$$S_{noise} = Signal_{defect+noise} - Signal_{defect}$$

The conclusions of these analysis the following:

If the distance between detection coils increases then

- S/N decreases in case of tube thinning
- S/N increases for Na layer
- S/N decreases when the defect is filled with Na
- S/N decreases for Na drop

The most optimized Remote Field configurations can be identified, based on the parameter survey. The range of the parameters is described in Table 2 for every specific configuration: tube thinning, Na layer, Na fills the defect and Na drop.

As it can be seen in the Table 2, the optimum operating point depends on which criteria is used to characterize best the Remote Field device: S/N or Amplitude.

Legend

DE- distance between detection and excitation coils(center to center)

DD- distance between detection coils (edge to edge)

L – detection length

1 [1,..,11] – means “1” is the most optimal values but the parameter can range between [1,..,11]

Table 2. Optimum parameters for Remote Field device in several configurations

	Signal/Noise	Amplitude
Tube thinning	DE = 60 mm v=100 Hz DD = 1 [1,..,11] mm L = 1 [1,..,5] mm	DE = 60 mm v=250 Hz DD = 13 [9,..,13] mm L = 9 [1,..,9] mm
Na layer	DE = 60 mm v=100 Hz	DE = 60 mm v=250 Hz

	DD = 29 [11,..,29] mm L = 9 [1,..,9] mm	DD = 13 [9,..,13] mm L = 9 [1,..,9] mm
Na fills the defect	DE = 60 ,120 mm v=100 Hz DD = 1 [1,..,11] mm L = 1 [1,..,9] mm	DE = 60 mm v=250 Hz DD = 11 [7,..,11] mm L = 7 [1,..,7] mm
Na drop	DE = 60, 120 mm v=500 Hz DD = 1 [1,..,11] mm L = 1 [1,..,5] mm	DE = 60 mm v=250 Hz DD = 29 [11,..,29] mm L = 9 [1,..,9] mm

In this example are presented two optimized RF configuration at 100, 250 and 500 Hz.

In the next tables are presented only the most relevant cases, in order to simplify the evaluation and comparison procedure:

- a) defect
- b) defect + Na layer
- c) defect + Na layer + Na filled
- d) defect + Na layer + Na filled + Na drop.

The following rules were applied:

- a) The Amplitude signal and the Signal/Noise ratio are indicated for every configuration (initial and optimized).
- b) The increase of the value is schematically represented by the "↑" symbol.
- c) The decreases of the value is indicated with the "↓" symbol.
- d) The percentage "%" (compared with the initial remote field configuration) is written in the round bracket.

The main parameters of the optimized remote field device configurations are described in Table 3

The final conclusions of the optimization are the followings:

- the **OPTIMUM CONFIG1** is suitable in case of Na layer and Na fills the defect.
The defect amplitude increases up to 800% and S/N increases with up to 30% compared with the INITIAL CONFIG.
- the **OPTIMUM CONFIG2** is suitable in case of Na drop. The defect amplitude increases up to 120% and S/N increases up to 30% compared with the INITIAL CONFIG.
- the optimum operating frequency is around 250 Hz (see Table 4).

Table 3. Examples of optimized Remote Field configurations.

	PARAMETERS	Initial RF config.	Optim. config.1	Optim. config.2
1.	Excitation number of turns	1000 wires	1000 wires	1000 wires
2.	Detection number of turns	3000 wires	3000 wires	3000 wires
3.	Distance excitation-detection (center to center)	120 mm	60 mm	60 mm
4.	Distance between detection coils	3 mm	11 mm	1 mm
5.	Detection length	3 mm	5 mm	3 mm
6.	Excitation length	8 mm	8 mm	8 mm

Table 4. Comparison of Remote Field configurations. Excitation frequency 250 Hz.

	PARAMETERS	Initial config.	Optim. config.1	Optim. config.2
Case. nr.	SIGNAL FROM DEFECT	Ampl. [μ V]	Ampl. [μ V]	Ampl. [μ V]
1.	OD 20%, width 0.5 mm	2.3	9.46 (311.8%) ↑	4.15 (80.66%) ↑
2.	OD 20%, width 5 mm	7.83	34.19 (336.6%) ↑	14.15 (80.72%) ↑
5	OD 20%, width 0.5 mm - Na layer	1.43	6.75 (372.7%) ↑	2.96 (106.96%) ↑
17.	OD 20%, width 0.5 mm - Na layer+Na filled	1.28	5.82 (353.7%) ↑	2.67 (107.87%) ↑
18.	OD 20%, width 5 mm - Na layer+Na filled	3.43	15.27 (345.9%) ↑	7.17 (109.4%) ↑
29.	OD 20%, width 0.5 mm - Na layer+Na filled+Na drop	3.44	24.97 (626.1%) ↑	6.94 (101.7%) ↑
30.	OD 20%, width 5 mm - Na layer+Na filled+Na drop	3.07	22.67 (639.4%) ↑	6.22 (102.96%) ↑

	SIGNAL/NOISE			
5	Signal=OD 20%, width 0.5 mm Noise=Na layer	1.68	2.22 (31.89%) ↑	2.17 (29.34%) ↑
17.	Signal=OD 20%, width 0.5 mm Noise=Na layer+Na filled	1.47	1.73 (17.51%) ↑	1.79 (21.79%) ↑
18.	Signal=OD 20%, width 5 mm Noise=Na layer+Na filled	1.19	1.25 (4.91%) ↑	1.34 (12.43%) ↑
29.	Signal=OD 20%, width 0.5 mm Noise=Na layer+Na filled+Na drop	0.47	0.2 (-36.8%) ↓	0.44 (-7.09%) ↓
30.	Signal=OD 20%, width 0.5 mm Noise=Na layer+Na filled+Na drop	0.8	0.67 (-17.02%) ↓	0.79 (-2.21%) ↓

博士研究員（H13）平成14年度研究概要報告書

研究テーマ	ウラン化合物磁性材料実用化のための基礎的研究		
研究者氏名	木村 昭裕		
研究協力者 所属・氏名	人形崎環境技術センター 環境保全技術開発部 遠心機処理技術課 野村 光生, 横山 薫	所属長 役職・氏名	遠心機処理技術課 課長 松原 達郎
研究実施場所	人形崎環境技術センター 濃縮工学施設及び製鍊転換施設 東北大学金属材料研究所、東北大学極低温科学センター		
通算研究期間 (予定)	平成 13年 4月 ~ 平成 16年 3月	当該年度 研究期間	平成 14年 4月 ~ 平成 15年 3月
<p>【研究目的】</p> <p>ウランはその電子配置から、合金化することにより強磁性体となる可能性が高い。またこれまでの低温での磁性の研究から、ウランを含む合金はウランの寄与により強い磁気異方性をもつことが知られている。$Nd_2Fe_{14}B$ に代表される希土類磁石のように強い磁気異方性を有することは永久磁石に必要な大きな保磁力を得るための必須の要件であるから、ウランと添加元素の組み合わせによっては、ウラン合金は優れた永久磁石となる可能性がある。ウラン合金により高い磁気転移温度と磁場強度の大きい永久磁石が開発できれば、加速器や医療用などの用途への応用が期待できる。そして、現在大量に貯蔵保管されている劣化ウランの有効利用に道が開けると考えられる。今までにウラン合金の強磁性体として $UFe_{10}Si_2$ などいくつかの化合物が知られている。しかしながら、これらの化合物では保磁力が小さく永久磁石とするのには不十分である。そこで本研究ではウラン合金を創製し、高い保磁力、高い磁気転移温度及び高い残留磁化をもった合金の発見をめざし、その磁気的特性を明らかにすることを目的とする。</p>			
<p>【研究内容（概要）】</p> <p>上記のウラン3元系合金 $UFe_{10}Si_2$(ThMn₁₂型)は磁気転移温度が高いこと、室温近傍での飽和磁化が大きいこと及び磁気異方性が強いことから、今までに知られているウラン合金の中で最も永久磁石に近い合金であると考えられている。しかし、前述のように保磁力が小さいことから、このまで永久磁石とするには不十分である。そこで、本研究ではこの合金を出発物質として、Si元素の他元素への置換や第4元素の侵入を試みる。この操作によって格子の形状はあまり変化することなしに格子定数のみが変化し、U-U、Fe-Fe、U-Fe間の原子間距離が変化して、その磁気的相互作用も異なったものになることが期待できる。この結果、磁気転移温度、飽和磁化、残留磁化及び保磁力がどのように変化するか観察する。また残留磁化と保磁力は液体窒素温度、室温及び高温でどのように変化するかについても測定し、それぞれの温度でのウランの磁気異方性への寄与についても考察し、さらに永久磁石として優れた合金の作成を行うための指針とする。同様に結晶構造が知られていて室温以上で強磁性を示すが、永久磁石とするには不十分な合金であると思われる Th_2Ni_{17}型の $U_2Fe_{13}Si_4$ 及び $U_2Fe_{15}Ge_2$についても、Co元素置換や侵入を試み、磁性の変化を観察する。</p> <p>以上の件に関して具体的には最初にウランと添加金属を高周波炉やアーク炉を利用して溶解し、ウラン合金を創製する。次にX線回折やSEM及びEPMAなどの顕微鏡で組織観察し、溶解した合金が不純な相を含まない単相物質であるかどうか判定するとともに格子定数を明らかにする。単相物質である場合には</p>			

その磁化の磁場依存 ($-15\text{kOe} < H(\text{外部磁場}) < 15\text{kOe}$ 、液体窒素温度、室温近傍、高温) や磁化の温度依存(室温以上)などの磁気特性や硬度計による機械強度を測定する。いろいろな組成を用いて、このプロセスを繰り返して実験を行い、永久磁石として最適な組成を見出す。また、保磁力は合金の処理の手法によっても大きく変化する場合があることが知られている。そこで試験の実績に基づき合金の組成を絞り込み、時効処理、合金粉碎及び磁場プレスなどの操作により、その組成で最適の条件を確定する。

【使用主要施設】

施設	装置	仕様
濃縮工学施設 (OP-1)	高周波溶解熱分析装置	温度上限 1650°C
同上	熱処理炉	温度上限 1100°C 長時間熱処理時 800°Cまで 雰囲気 真空 到達真空度 10^{-4}Pa アルゴン
同上	小型磁場プレス装置	最大プレス圧力 6 トン、最大印加磁場 15kOe 形成体形状 直方体 $1.5 \times 1 \times 1\text{cm}$
同上	熱磁気分析装置	測定温度範囲 室温～800°C 印加磁場 1kOe 程度 雰囲気 真空 (10^{-3}Pa) アルゴン
同上	磁束密度磁界曲線測定装置	測定温度範囲 液体窒素温度～200°C 最大印加磁場 15kOe
同上	グローブボックス	ロータリーポンプ真空排気 アルゴン雰囲気作業可能
製鍊転換施設	低速切断機	精密低速切断機 アイソメット 回転数 10~300rpm 無段变速 セラミックス刃
同上	モノアーク炉	加熱温度 約 2000°C るつぼ寸法 ホール寸法 容積 数量
		$13\phi/7\phi \times 10^D\text{mm}$ 0.8cc 2
		$20\phi/12\phi \times 10^D\text{mm}$ 2.1cc 2
		$30\phi/20\phi \times 15^D\text{mm}$ 7.5cc 4
		$40\phi/30\phi \times 15^D\text{mm}$ 14.5cc 2
		$50\phi/40\phi \times 15^D\text{mm}$ 24.0cc 2
		$60\phi/50\phi \times 15^D\text{mm}$ 35.7cc 1
同上	X線回折装置	走査範囲 $-20^\circ \sim 163^\circ (2\theta)$ 検出器走査速度 每分 $1/32^\circ, 1/16^\circ, 4^\circ$ 手動走査速度 每秒 $0\sim 2.5^\circ$ 連続可変 アナログ自記記録

同上	SEM	分解能 6nm 倍率 ×15~200000 コーティング 金
同上	O-C-N 分析装置	分析範囲 C 分析 0.00-4.0% 1.0g 0.00-40.0% 0.1g 0.00-99.9% <0.05g O 分析 0.00-6.0% 1.0g N 分析 Lo 0.00-0.1% 1.0g Hi 0.001-0.5% 1.0g 分析精度 C 分析 ±0.0010 または±0.75%C O 分析 ±2PPM または含有量の±2% N 分析 ±2PPM または含有量の±2%
開発試験棟	EPMA	検出可能元素 Li-U 空間分解能 2 μm コーティング 炭素

以上は人形峠環境技術センターの設備である。

施設	装置	仕様
α 放射体実験室	小型単結晶育成炉 (テトラアーク炉)	引き上げ式 最大出力 30V×30A×4 本
同上	X線回折装置	X線管 モリブデン 最大出力 1.2kW
低温実験室	VSM 磁化測定システム	最大印加磁場 14T(140kOe) 測定温度範囲 4.2K(-268.8°C)~293K(20°C)

以上は東北大学金属材料研究所及び同極低温科学センターの設備である。

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 13 年度は、3つの系 $UFe_{10}T_ySi_{2-y}$ ($T=Mn, Ni, Zr$) 系、 $UT_yFe_{10-y}Si_2$ ($T=Mn, Ni$) 系 ($y=0.5, 1$) 及び $UFe_{10}Si_2B_x$ ($x=0.1, 0.25, 0.5, 0.75, 1, 1.25, 1.5, 2$) について化合物を作成し X 線回折試験を行うとともに、これらの化合物の磁気履歴及び熱磁気特性の測定から飽和磁化、キュリー点などを明らかにした。

平成 14 年度は、 $UFe_{10}T_ySi_{2-y}$ ($T=Ti, V, Cr, Cu, Ge, B$) 系 ($y=0.5, 1$)、名目上の組成が $U_2Fe_{31-y}X_y$ ($X=Si, Ge, Ti$) ($y=2-6$) 及び $U_3Fe_{43-y}X_y$ ($X=Si, Ge, Ti$) ($y=3-9$) となる化合物(金属混合物)を作製し、これまでに、このうち $UFe_{10}T_ySi_{2-y}$ ($T=Ti, V, Cr, Cu, Ge, B$) 系 ($y=0.5, 1$) 及び $U_2Fe_{31-y}X_y$ ($X=Si, Ge$) 系 ($y=2-6$) について磁気履歴及び熱磁気特性の測定から飽和磁化、キュリー点などを明らかにした。また、 $UFe_{10}Si_2$ 及び $UFe_{10}Si_2B_{0.25}$ 化合物を粉末化し、磁場中プレス及び焼結試験を実施し、磁気履歴など磁気特性の変化を観測した。さらに東北大学において共同研究を実施し、 $UFe_{10}Si_2B_x$ ($x=0, 0.25, 0.5$) の単結晶を育成し、強磁場中でそれらの磁化測定を行った。

【研究成果（当該年度）】

以下の①から⑤は昨年度に引き続き永久磁石原料となり得るウラン化合物を探索するために行なった。また⑥では実際に $UFe_{10}Si_2$ 及び $UFe_{10}Si_2B_{0.25}$ を用いて永久磁石の作製を試みた。⑦は東北大学において実施した共同研究の結果である。

①金属ウランの準備

化合物の原料となる金属ウランは純度 99.9% のものを使用しているが、大気中で長年保管されていたため、表面はかなり酸化されている。そこで本研究では原料の秤量の直前に、以下の比で混合した溶液中で金属ウランを陽極にセットし電解することにより、表面の酸化物層を取り除いた。

電解液 エタノール：エチレングリコール：リン酸 = 1 : 1 : 1

②化合物の合成

化合物は目的の組成となるように重量調整した構成元素を、アルゴン雰囲気中においてモノアーク炉で溶解することにより得た。原料として使用した元素の純度は $U3N$, $Fe4N$, $Si4N$, $Ti4N$, $V3N$, $Cr4N$, $Cu5N$, $Ge5N$, $B99.5\%$ である。B はランプ(塊)のまま使用するとアーク溶解時にはじき飛んでしまうのであらかじめ乳鉢により粉末化して用いた。合成の出発物質とした化合物は $UFe_{10}Si_2$ である。

この化合物を選んだ理由は、既に結晶構造及び基本的磁気特性が調査されていて発現する磁性への U の磁気モーメントの役割もある程度明確になっているため、以後の研究の比較物質として最適であると考えたからである。さらに、 $UFe_{10}Si_2$ 中で U は理論から期待される能力を十分に發揮しているとは言えず、わずかな組成の変化でさらに U の磁気モーメントの役割を大きくできる可能性がある。 $UFe_{10}Si_2$ を基本に大きな結晶構造の変化を生じることなしに元素置換、浸入などの固溶が可能であるならば、Fe または Si の置換や B の浸入によって、相互作用する元素の組み合わせと格子定数とが変化する。このことによって、概要でも述べたように特に U-Fe 間や Fe-Fe 間の磁気交換相互作用も変化することが期待できる。実際に希土類化合物である $RFe_{11}Ti$ (R :希土類) では N 元素を侵入固溶させると、飽和磁化やキュリ一点などの特性が向上したという例もある。そこで昨年度までは次の 3 つの系 $UFe_{10}T_ySi_{2-y}$ ($T=Mn, Ni, Zr$) 系、 $UT_xFe_{10-x}Si_2$ ($T=Mn, Ni$) 系及び $UFe_{10}Si_2B_x$ 系について $UFe_{10}Mn_{0.5}Si_{1.5}$, $UFe_{10}MnSi$, $UFe_{10}Ni_{0.5}Si_{1.5}$, $UFe_{10}NiSi$, $UFe_{10}Zr_{0.5}Si_{1.5}$, $UFe_{10}ZrSi$, $UFe_{9.5}Mn_{0.5}Si_2$, $UFe_{9.5}Ni_{0.5}Si_2$, UFe_9MnSi_2 , UFe_9NiSi_2 , $UFe_{10}Si_2B_{0.1}$, $UFe_{10}Si_2B_{0.25}$, $UFe_{10}Si_2B_{0.5}$, $UFe_{10}Si_2B_{0.75}$, $UFe_{10}Si_2B$, $UFe_{10}Si_2B_{1.25}$, $UFe_{10}Si_2B_{1.5}$, $UFe_{10}Si_2B_2$ の以上 18 種類の化合物を合成した。今年度はこれらに引き続いて $UFe_{10}T_ySi_{2-y}$ ($T=Ti, V, Cr, Cu, Ge, B$) 系について $UFe_{10}Ti_{0.25}Si_{1.75}$, $UFe_{10}Ti_{0.5}Si_{1.5}$, $UFe_{10}TiSi$, $UFe_{10}V_{0.5}Si_{1.5}$, $UFe_{10}VSi$, $UFe_{10}Cr_{0.5}Si_{1.5}$, $UFe_{10}CrSi$, $UFe_{10}Cu_{0.5}Si_{1.5}$, $UFe_{10}CuSi$, $UFe_{10}Ge_{0.5}Si_{1.5}$, $UFe_{10}GeSi$, $UFe_{10}B_{0.25}Si_{1.75}$, $UFe_{10}B_{0.5}Si_{1.5}$ を作製した。また出発物質となる $UFe_{10}Si_2$ 及び $UFe_{10}Si_2B_x$ 系については昨年度合成したこれらの化合物に不純な相が確認された。そこで、過去に $UFe_{10}Si_2$ を研究した文献[1]に U:Fe:Si の組成比が 1:9.2:1.8 で合成したとき不純な相が存在することなくこの化合物を作製できることが記されていたので、組成を調整して出発物質である $UFe_{10}Si_2$ については $UFe_{9.2}Si_{1.8}$ の組成で、 $UFe_{10}Si_2B_x$ 系に対しては $UFe_{9.2}Si_{1.8}B_{0.25}$, $UFe_{9.2}Si_{1.8}B_{0.5}$, $UFe_{9.2}Si_{1.8}B_{0.75}$ の組成で溶解を行った。さらに本年度は名目上の組成が $U_2Fe_{31-y}X_y$ ($X=Si, Ge, Ti$) ($y=2-6$) および $U_3Fe_{43-y}X_y$ ($X=Si, Ge, Ti$) ($y=3-9$) となる化合物の作製を試みた。この組成を選んだ理由は、希土類化合物の中で磁石として有用になりうるものが下記の式に従い $CaCu_5$ 型構造から希土類(R)を Fe または Co(T)のペアに置換することによって導かれているものが多く、ウラン化合物についても $U_2Fe_{15}Ge_2$ (2:17) や $UFe_{10}Si_2$ (1:12) などの化合物が存在することから同様のことがいえると考えられ、2:31 や 3:43 の組成も計算上可能と予測されるからである。

$$mRT_5-nR+2nT=R_{m-n}T_{5m+2n}$$

R:希土類、アクチノイド、T:遷移金属、その他 Si などの第 3 元素、n, m:整数

溶解は構成元素が充分均質に混合するように 15 分間行った。アーク停止後、試料は炉の冷却系によりすみやかに室温まで冷却された。溶解後、すべての化合物はボタン状に合成された。合成時の質量ロスはすべて 1% 前後とごくわずかであり、このロスの物性への影響は無視できると考えられる。また常温では大気中でも化学的に安定で表面は金属光沢を保ち、激しい酸化などの現象は見られなかった。合成した化合物は下記の実験に使用するのに適した形状にするために、低速切断機により複数個に切断した。

③構造解析

$UT_xFe_{10-x}Si_2$ ($T = Ti, Cr, B$) 系について合成した化合物の組成と Fe などの不純相の有無の確認をするため X 線回折装置により粉末 X 線回折を行った。特定の面のみによる回折を防ぐために試料はメノウ乳鉢により粉末化した後、ガラス基盤に貼り付けた。なお、すべての化合物で粉末化後も酸化などの現象は見られず、これらは非常に安定した物質であると考えられる。X 線の線源には Cu 隕極管を用い 30kV × 30mA の出力条件で特性 X 線を発生させ、開き角 2.5° のソーラースリット、1° の発散スリット及び散乱スリット、0.02mm の受光スリットを通過させ、1° /分の速度で 2θ が 10° から 60° までの回折パターンを得た。このパターンから元素置換や固溶によつても作製した化合物の結晶構造は $UFe_{10}Si_2$ が示す正方晶の $ThMn_{12}$ 型から変化していないと考えられる。そこで 2θ が 43° から 44° 付近に現れる 2 つの回折ピークを (022) 面及び (231) 面によるものと仮定し格子定数 a 及び c を決定した。その結果を Table1 に示す。また $UFe_{10}CrSi$ に関しては Fe によると思われる回折ピークが $2\theta=44.8^\circ$ 付近に明確に認められた。このことはこれらの化合物中に Fe の相が含まれていることを示唆していく、この相の磁化への影響に注意する必要がある。

今後 $UFe_{10}Ti_{0.25}Si_{1.75}$, $UFe_{10}V_{0.5}Si_{1.5}$, $UFe_{10}Cu_{0.5}Si_{1.5}$, $UFe_{10}CuSi$, $UFe_{10}Ge_{0.5}Si_{1.5}$, $UFe_{10}GeSi$, $UFe_{9.2}Si_{1.8}B_{0.25}$, $UFe_{9.2}Si_{1.8}B_{0.5}$, $UFe_{9.2}Si_{1.8}B_{0.75}$ についても構造解析を行う予定である。

④磁気履歴測定

磁束密度磁界曲線測定装置(VSM)により、室温で外部磁場-15kOe と 15kOe の間で磁化の磁場依存性を測定した。ここから、飽和磁化(M_s)、残留磁化(M_r)及び保磁力(H_c)を求めた。これらの値を Table2 に、参考に $UFe_{10}Si_2$ の磁気履歴曲線を Fig.1 に示す。本来飽和磁化とはそれ以上外部磁場が増加しても、磁化が大きくならなくなつたときの値であるが、装置の限界からここでは 15kOe で試料が示す磁化の値を飽和磁化とした。 $UFe_{10}B_{0.5}Si_{1.5}$ など磁気履歴曲線 (Fig.2) の挙動から 15kOe の磁場では完全に磁化が飽和していないと思われる試料があるので注意が必要である。 $UFe_{10}T_ySi_{2-y}$ 系すべての化合物で飽和磁化は $UFe_{10}Si_2$ の飽和磁化を下回っているが、前述したよう多くの化合物で 15kOe の外部磁場では磁化が飽和していないので、さらに強い磁場中ではより大きな飽和磁化を示す可能性がある。

$U_2Fe_{31-y}X_y$ ($X=Si, Ge$) ($y=2-6$) に関しては $U_2Fe_{28}Ge_3$ の飽和磁化が $60.03 \mu_B/f.u.$ となるなど比較的大きな値を示す結果が得られたが、後述のキュリ一点測定での磁化曲線の挙動から、これは主に化合物とならなかつた鉄またはその固溶体によってもたらされたものと推察される。

残留磁化は試料に 15kOe の磁場を印加した後、再び磁場をゼロに戻したとき試料が示す磁化の値である。また保磁力は残留磁化をゼロとするために最初に磁場を印加した方向とは逆の方向に印加する必要のある磁場の大きさである。飽和磁化が物質固有の値であるの対し、残留磁化及び保磁力は試料の加工プロセスにより、金属組織を制御することで大きく変わる値である。この測定ではアーク炉で溶融した試料をそのまま測定しただけであるので、永久磁石に必要な有意の残留磁化及び保磁力は得られていない。

⑤キュリ一点測定

熱磁気分析装置(磁気天秤)によりキュリ一点を測定した。測定温度範囲は室温から 800°C まで、1kOe の磁場中で行った。800°C の高温まで観測するので、試料の酸化を防ぐため真空中で測定をおこなつた。

測定されたキュリ一点を Table3 に示す。キュリ一点とは強磁性から常磁性への転移温度である。この温度以上では化合物の磁場に引きつく能力はほとんど失われる。このことは実際の測定では磁化の急激な減少として観測される。キュリ一点より高温側では磁石として機能しないので、この転移温度が高温である

ほど実用的な永久磁石に適していて、最低でも 300°C 以上のキュリ一点が必要とされている。Fig.3 には UFe_{9.2}Si_{1.8} (UFe₁₀Si₂) の熱磁気曲線の例を示す。磁化の減少は数十度の温度範囲で生じるが、Table3 に示すキュリ一点はこの磁化の温度依存曲線の減少の勾配が最も大きくなる（極値となる）温度とした。

いくつかの化合物で複数のキュリ一点が観測されるが、特に 700°C 付近より高温度で観測されるキュリ一点は X 線回折の結果もふまえて、試料に若干存在すると考えられる α-Fe (文献値：キュリ一点 767°C) またはその固溶体によるものと推測される。特に Fe は今回第 3 元素として混ぜた Ti, V, Cr, Si, Ge と固溶体を構成することが知られていて、これらの固溶体のキュリ一点が純粋な α-Fe と比較して正負どちらにも変化するため合成した化合物によってさまざまなキュリ一点が観測されたと考えられる。1:9.2:1.8 の組成で調製された UFe₁₀Si₂ のキュリ一点は 355°C でのみ確認され、期待通り鉄の不純相は存在しなくなったと考えられる。同様に U:Fe:Si がこの組成で調製された UFe₁₀Si₂B_{0.25} 及び UFe₁₀Si₂B_{0.5} についても鉄の相は確認されなくなった。しかし、UFe₁₀Si₂B_{0.75} では鉄の相を抑制することはできなかった。

また新たに作製した U₂Fe_{31-y}X_y (X=Si, Ge) (y=2-6) に関してはすべての組成で鉄またはその固溶体によるものと思われる磁気転移が非常に強く観測された。この結果から、これらは期待通りの組成を持った化合物にはなっていないと思われる。しかしながら Si 系は 290~360°C 付近で、Ge 系は 220~280°C 付近でも磁気転移がみられ、今後この転移がどのような組成の化合物によって生じるのか調査する必要がある。

⑥合金粉碎、磁場中プレス、焼結

はじめに UFe₁₀Si₂ をメノウ乳鉢で粉末化し、ステアリン酸亜鉛を全体の 30vol% となるよう混入し、よく攪拌した。次に適量を金型にセットして 15kOe の磁場中、588MPa の圧力でプレスを行った。さらにプレスされた試料をアルゴン雰囲気中、1100°C で 1 時間焼結を行った。焼結前にステアリン酸亜鉛を分解し、脱離させるため真空中 200°C で 2 時間熱処理をした。作製した試料について磁気履歴と熱磁気曲線を測定した。Fig.4 には焼結前後の UFe₁₀Si₂ の磁気履歴の第 2 象限を示した。残留磁化と保磁力を注目すると、焼結前の UFe₁₀Si₂ と比較してそれらの値はそれぞれ 1.6 倍、1.1 倍と增加了。しかし、永久磁石とするにはより高い残留磁化と保磁力を要するため、不十分な結果であった。今回の試験でこれらの値があまり增加しなかったのは焼結の際の熱処理によって軟磁性で逆磁区が発生しやすい Fe が主成分の不純な相が大量に発生したためであると考えられる。Fig.5 に示したように熱磁気曲線の測定では 712°C でこの相によるとと思われる磁気転移がはっきりと観測された。同じ磁場中プレス、焼結試験を 1:9.2:1.8 の組成で調製された UFe₁₀Si₂ 及び UFe₁₀Si₂B_{0.25} に対しても行ったが、高い保磁力及び残留磁化は得られなかった。その理由は最初の UFe₁₀Si₂ と同様に Fe が主成分の不純な相が大量に発生したためであると考えられる。これらでは焼結前に Fe の相が生じない組成で調製したにもかかわらず、焼結後は熱磁気曲線の測定で 700°C 付近にキュリ一点がはっきりと観測された。このことから 1100°C の焼結では、焼結後に原料の UFe₁₀Si₂ または UFe₁₀Si₂B_{0.25} は一部が相分離を起こすと考えられる。そのため、より高い残留磁化及び保磁力を得るには今後は分離して Fe などの軟磁性相が生じない温度条件での焼結が必要であると思われる。

⑦UFe₁₀Si₂ 及び UFe₁₀Si₂B_x (x=0.25, 0.5) の単結晶の育成と磁性測定

UFe₁₀Si₂, UFe₁₀Si₂B_{0.25} 及び UFe₁₀Si₂B_{0.5} について小型単結晶育成炉(テトラアーケ炉)により単結晶の育成を行った。その際、Fe の相が発生しないようにするために、U:Fe:Si の組成比は 1:9.2:1.8 とした。ラウエ法でこれらが単結晶であること及び正方晶構造を示すことを確認した。また同時にその結晶軸の方向を決定した。得られた単結晶について -268.8°C から 20°C の間で c 軸及び a 軸方向それぞれに最高 140kOe の磁場を印加して磁化の磁場依存を測定し、飽和磁化、磁気異方性などを明らかにした。

Fig.6 から Fig.8 に a 軸及び c 軸方向に磁場を印加したときの UFe₁₀Si₂, UFe₁₀Si₂B_{0.25}, 及び UFe₁₀Si₂B_{0.5} の室温での磁化の測定結果を示す。飽和磁化は UFe₁₀Si₂ 及び UFe₁₀Si₂B_{0.5} がそれぞれ 16.74 μ_B/f.u., 16.34 μ_B/f.u. で、これに対し、UFe₁₀Si₂B_{0.25} は 17.04 μ_B/f.u. と最も大きい値を示した。どの化合物も c 軸方向が磁化容易軸で一軸磁気異方性を示した。また、磁化困難軸である a 軸方向で UFe₁₀Si₂ では 30kOe 付近で

磁化の急激な上昇が観測される。これに対して、 $\text{UFe}_{10}\text{Si}_2\text{B}_{0.25}$ では磁化は徐々に増加し、今回の測定範囲である 140kOe まで磁化が飽和することなく、 $\text{UFe}_{10}\text{Si}_2$ と比較して強い磁気異方性が観測された。 $\text{UFe}_{10}\text{Si}_2\text{B}_{0.5}$ では 35kOe 付近で $\text{UFe}_{10}\text{Si}_2$ と同様の急激な磁化の上昇が観測され、その後 50kOe 付近で飽和に達した。この磁化の急上昇は測定温度の低下とともににより明確に観測されるようになった。

優れた永久磁石の原料となりうる磁性材料には以下のことが要求される。

1. 飽和磁化が大きい。
2. キュリ一点が高い。
3. 強い一軸異方性を持つ。(磁化を結晶の一方に向かわせる能力が高いこと。)

既知のウラン化合物でこの条件を最も満たしていたものは $\text{UFe}_{10}\text{Si}_2$ であったが、今回の単結晶の測定から、新たに合成した $\text{UFe}_{10}\text{Si}_2\text{B}_{0.25}$ は $\text{UFe}_{10}\text{Si}_2$ と比較して飽和磁化が大きいこと及び磁気異方性が強いことからさらに永久磁石とするのにふさわしい化合物であると考えられる。

参考文献

[1] P.Estrela, M.Godinho, A.P.Gonçalves, M.Almeida, J.C.Spirlet, J. Alloys Comp. Vol.230, 1995 p35.

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 15 年度は、 $\text{UFe}_{10}\text{Si}_2$ 及び $\text{UFe}_{10}\text{Si}_2\text{B}_{0.25}$ について磁石作製の焼結時に鉄の相が生じない条件を見いだし、このときの磁気履歴の変化を観測する。また名目上の組成が $\text{U}_2\text{Fe}_{31-y}\text{X}_y$ ($\text{X}=\text{Si,Ge,Ti}$) ($y=2-6$) および $\text{U}_3\text{Fe}_{43-y}\text{X}_y$ ($\text{X}=\text{Si,Ge,Ti}$) ($y=3-9$) 化合物の磁気履歴及び熱磁気特性の測定から飽和磁化、キュリ一点などを明らかにするとともに合成された相の分析も行う予定である。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

2002 the International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES'02)
で論文発表

題目 「Magnetic properties of $\text{UFe}_{10}\text{Si}_2\text{B}_x$ ($x=0.1, 0.25, 0.5, 0.75, 1, 1.25, 1.5, 2$)」
掲載雑誌 Acta Physica Polonica B Vol.34(2003)

Table1 Lattice parameters

Sample	a(Å)	c(Å)
UFe ₁₀ Si ₂	8.407	4.742
UFe _{9.2} Si _{1.8}	8.395	4.744
UFe ₁₀ Ti _{0.25} Si _{1.75}	*1	*1
UFe ₁₀ Ti _{0.5} Si _{1.5}	8.437	4.737
UFe ₁₀ TiSi	8.432	4.738
UFe ₁₀ V _{0.5} Si _{1.5}	*1	*1
UFe ₁₀ VSi	*1	*1
UFe ₁₀ Cr _{0.5} Si _{1.5}	8.395	4.717
UFe ₁₀ CrSi	8.407	4.715
UFe ₁₀ Cu _{0.5} Si _{1.5}	*1	*1
UFe ₁₀ CuSi	*1	*1
UFe ₁₀ Ge _{0.5} Si _{1.5}	*1	*1
UFe ₁₀ GeSi	*1	*1
UFe ₁₀ B _{0.25} Si _{1.75}	8.376	4.734
UFe ₁₀ B _{0.5} Si _{1.5}	8.358	4.724
UFe _{9.2} Si _{1.8} B _{0.25}	*1	*1
UFe _{9.2} Si _{1.8} B _{0.5}	*1	*1
UFe _{9.2} Si _{1.8} B _{0.75}	*1	*1

Table3 Curie temperature

Sample	T _c (°C)	T _{c2} (°C)	T _{c3} (°C)
UFe ₁₀ Si ₂	357	712	
UFe _{9.2} Si _{1.8}	355		
UFe ₁₀ Ti _{0.25} Si _{1.75}	326	750	
UFe ₁₀ Ti _{0.5} Si _{1.5}	289		
UFe ₁₀ TiSi	238	782	
UFe ₁₀ V _{0.5} Si _{1.5}	278	≈800	
UFe ₁₀ VSi	180	≈800	
UFe ₁₀ Cr _{0.5} Si _{1.5}	269	740	
UFe ₁₀ CrSi	165	744	
UFe ₁₀ Cu _{0.5} Si _{1.5}	341	765	
UFe ₁₀ CuSi	182	287	749
UFe ₁₀ Ge _{0.5} Si _{1.5}	365	721	
UFe ₁₀ GeSi	279	364	730
UFe ₁₀ B _{0.25} Si _{1.75}	352	754	
UFe ₁₀ B _{0.5} Si _{1.5}	349	768	
UFe _{9.2} Si _{1.8} B _{0.25}	366		
UFe _{9.2} Si _{1.8} B _{0.5}	360		
UFe _{9.2} Si _{1.8} B _{0.75}	364	754	
U ₂ Fe ₂₉ Si ₂	288	768	
U ₂ Fe ₂₈ Si ₃	324	764	
U ₂ Fe ₂₇ Si ₄	347	735	
U ₂ Fe ₂₆ Si ₅	356	704	
U ₂ Fe ₂₅ Si ₆	340	638	
U ₂ Fe ₂₉ Ge ₂	220	784	
U ₂ Fe ₂₈ Ge ₃	245	771	
U ₂ Fe ₂₇ Ge ₄	269	768	
U ₂ Fe ₂₆ Ge ₅	273	767	
U ₂ Fe ₂₅ Ge ₆	263	684	721

Table2 Value of the saturated magnetization (M_s), remanence magnetization (M_r) and coercive force (H_c) at room temperature

Sample	M _s (μB/f.u.)	M _r (μB/f.u.)	H _c (kOe)
UFe ₁₀ Si ₂	18.61	1.59	0.17
s-UFe ₁₀ Si ₂ *2	-----	2.50	0.19
UFe _{9.2} Si _{1.8}	9.13	1.32	0.20
s-UFe _{9.2} Si _{1.8} *2	-----	2.61	0.17
UFe ₁₀ Ti _{0.25} Si _{1.75}	16.86	1.07	0.18
UFe ₁₀ Ti _{0.5} Si _{1.5}	17.54	1.76	0.18
UFe ₁₀ TiSi	13.61	1.35	0.19
UFe ₁₀ V _{0.5} Si _{1.5}	14.07	0.83	0.16
UFe ₁₀ VSi	11.95	0.88	0.16
UFe ₁₀ Cr _{0.5} Si _{1.5}	14.56	1.08	0.17
UFe ₁₀ CrSi	13.49	1.30	0.17
UFe ₁₀ Cu _{0.5} Si _{1.5}	18.57	1.12	0.20
UFe ₁₀ CuSi	15.51	0.82	0.18
UFe ₁₀ Ge _{0.5} Si _{1.5}	14.66	1.09	0.18
UFe ₁₀ GeSi	13.57	0.91	0.21
UFe ₁₀ B _{0.25} Si _{1.75}	13.71	1.25	0.22
UFe ₁₀ B _{0.5} Si _{1.5}	10.76	1.18	0.28
UFe _{9.2} Si _{1.8} B _{0.25}	13.86	0.85	0.23
s-UFe _{9.2} Si _{1.8} B _{0.25} *2	-----	1.34	0.21
UFe _{9.2} Si _{1.8} B _{0.5}	16.96	0.96	0.22
UFe _{9.2} Si _{1.8} B _{0.75}	13.41	1.05	0.27
U ₂ Fe ₂₉ Si ₂	53.62	2.90	0.15
U ₂ Fe ₂₈ Si ₃	52.25	4.66	0.19
U ₂ Fe ₂₇ Si ₄	42.22	3.92	0.19
U ₂ Fe ₂₆ Si ₅	50.24	3.12	0.18
U ₂ Fe ₂₅ Si ₆	36.84	2.50	0.19
U ₂ Fe ₂₉ Ge ₂	58.69	2.60	0.15
U ₂ Fe ₂₈ Ge ₃	60.07	5.15	0.15
U ₂ Fe ₂₇ Ge ₄	50.24	3.12	0.18
U ₂ Fe ₂₆ Ge ₅	52.87	3.48	0.15
U ₂ Fe ₂₅ Ge ₆	43.87	2.80	0.15

*1 は今後測定予定

*2 は粉碎、磁場中プレス及び焼結を行った試料

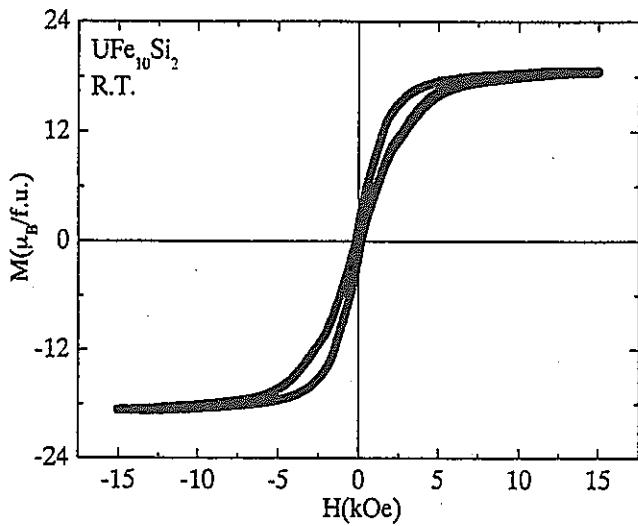


Fig.1 Hysteresis loop for UFe₁₀Si₂ at room temperature

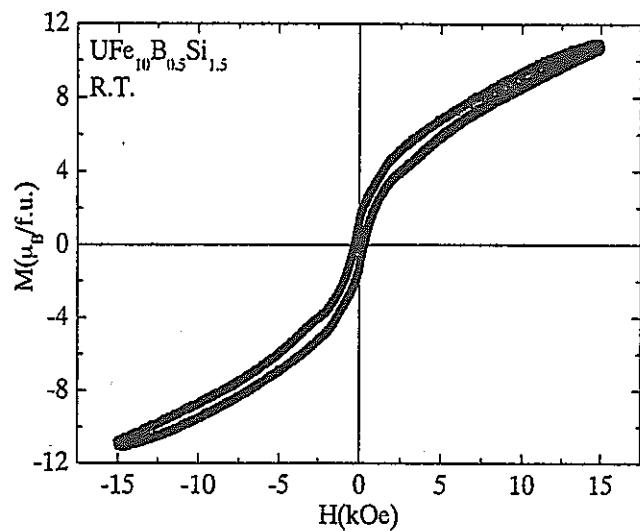


Fig.2 Hysteresis loop for UFe₁₀B_{0.5}Si_{1.5} at room temperature

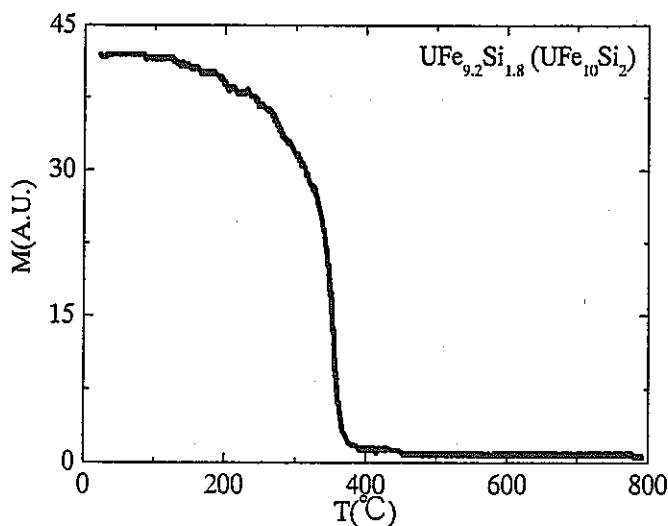


Fig.3 Temperature dependence of the magnetization for UFe_{9.2}Si_{1.8} (UFe₁₀Si₂)

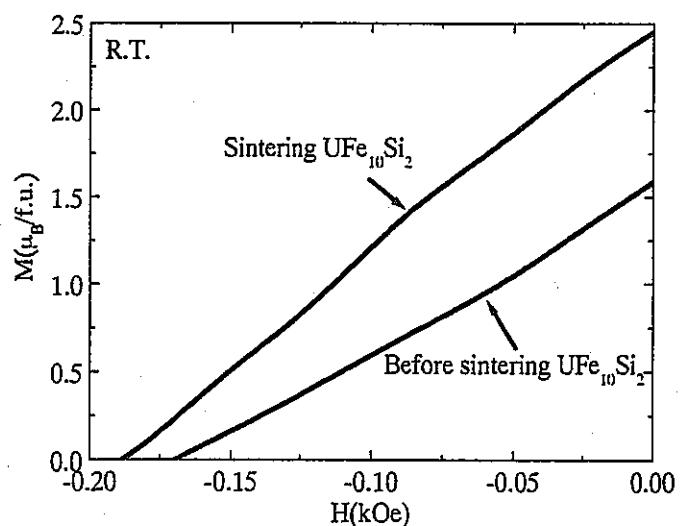


Fig.4 Second quadrant of hysteresis loop for sintering and before sintering UFe₁₀Si₂ at room temperature

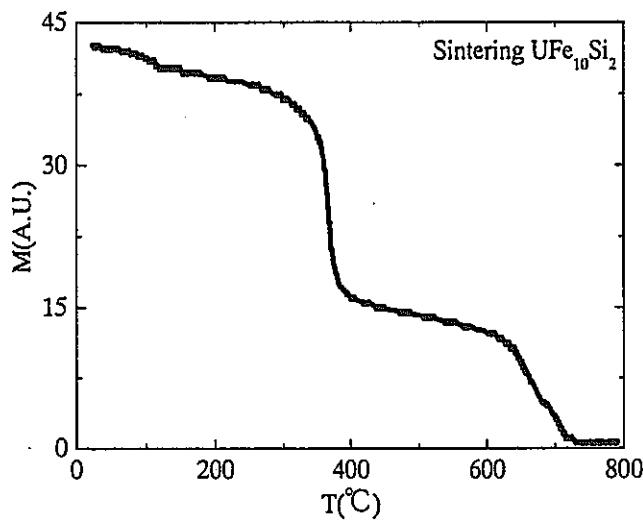


Fig.5 Temperature dependence of the magnetization for sintering $\text{UFe}_{10}\text{Si}_2$

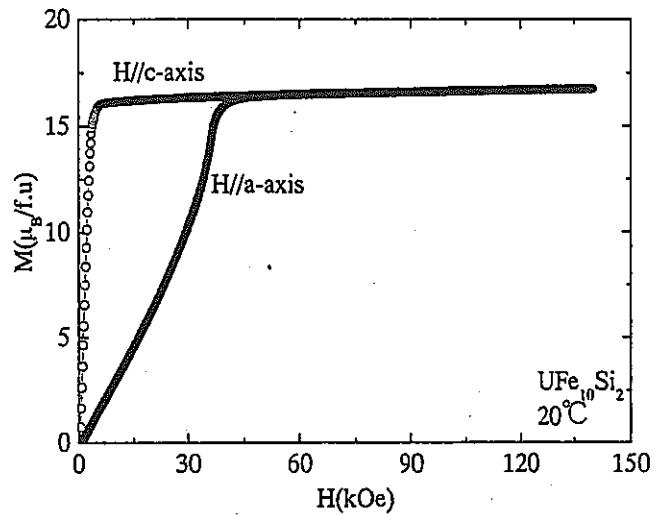


Fig.6 Magnetization curves along a-axis and c-axis for the single crystal of $\text{UFe}_{10}\text{Si}_2$ at 20°C

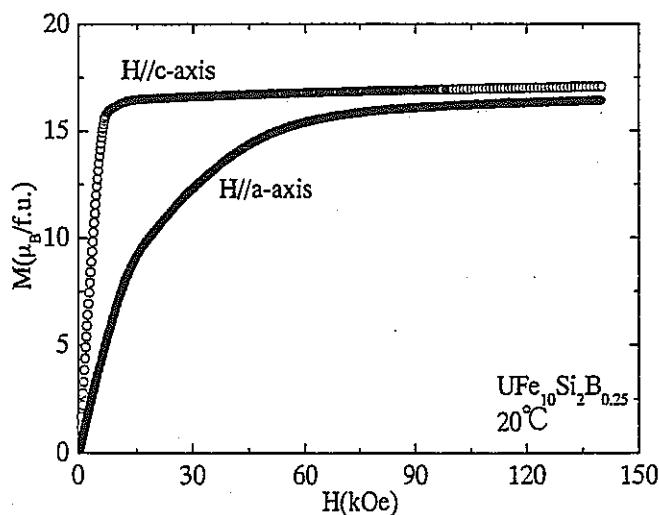


Fig.7 Magnetization curves along a-axis and c-axis for the single crystal of $\text{UFe}_{10}\text{Si}_2\text{B}_{0.25}$ at 20°C

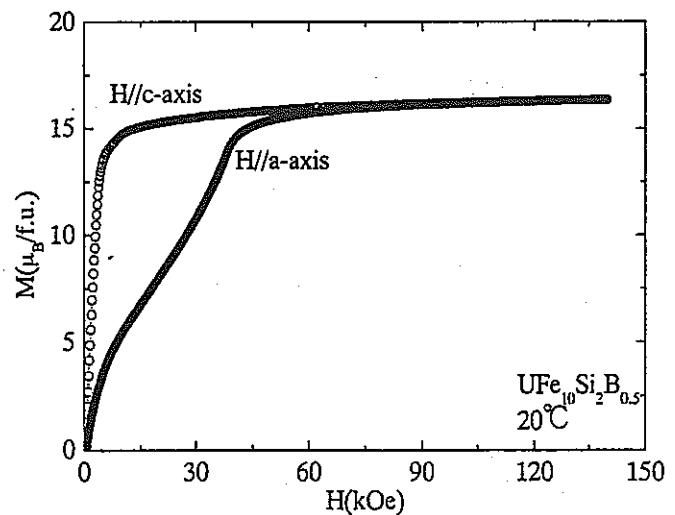


Fig.8 Magnetization curves along a-axis and c-axis for the single crystal of $\text{UFe}_{10}\text{Si}_2\text{B}_{0.5}$ at 20°C

博士研究員（H13）平成14年度研究概要報告書

研究テーマ	単成火山活動の時空分布と確率論的将来予測		
研究者氏名	MARTIN, ANDREW JAMES (マーティン・アンドリュー・ジェイムス)		
研究協力者 所属・氏名	東濃地科学センター 地質環境研究グループ 藤原 治	所属長 役職・氏名	地質環境研究 グループリーダー 中司 昇
研究実施場所	東濃地科学センター 瑞浪地科学研究館		
通算研究期間 (予定)	平成 13年 4月 ~ 平成 16年 3月	当該年度 研究期間	平成 14年 4月 ~ 平成 15年 3月

【研究目的】

高レベル放射性廃棄物の地層処分については、地質環境の長期安定性の観点から、将来の火山活動の発生の可能性やその影響について適切に評価することが重要である。特に、単成火山群については、成層火山に比べて活動の空間的な範囲（火道の形成範囲）が広範におよぶことから、そのための予測手法を開発することが不可欠である。本研究では、山陰地方および伊豆半島の単成火山群を例として、過去の火山活動の時空分布およびそれを規制する要因を検討するとともに、確率論的予測モデルにより、今後10万年程度の火山活動の予測を試みる。

【研究内容（概要）】

米国の処分予定地であるネバダ州のユッカマウンテン地域には、鮮新世～第四紀の単成火山群が分布している。そのため、米国エネルギー省（DOE）を中心に、将来、サイト内に新たな火山が発生する可能性を予測するための確率論的予測モデルの開発が進められている（例えば、Connor et al., 2000など）。本研究では、我が国の代表的な単成火山群である神鍋火山群にこのモデルを適用すると同時に、広域的な地殻構造等を反映した予測ができる新たなモデルを開発する。

具体的には、文献調査や野外調査に基づき、対象地域の火山の分布、噴火年代、火山配列の時間的変遷等を明らかにするとともに、活断層等の地質学的データや地球物理学的データをコンパイルし、広域的な地殻構造の特徴及び火山活動との関連性などについて検討した。

また、既存のモデルおよび今回作成した予測モデルを用いて火山の形成確率を計算するとともに、5000年後、1万年後、5万年後、10万年後といった各時間単元ごとに当該地域の確率分布図を作成した。

【使用主要施設】

NEC製デスクトップ VG15S/474CW62
ノートブックコンピュータ(SONY VAIO PCG-R505S/PD)

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成13年度は、神鍋単成火山群の地質および年代値、西南日本の地質および火山周辺の地下構造、ユッカマウンテンの確率論的な研究に関する文献調査を実施し、コンパイルデータに基づいて、神鍋単成火山群を対象に今回作成した予測モデルを用いて解析を実施した。

平成14年度は、東伊豆単成火山群対象にした確率論的予測モデルを作成した。

【研究成果（当該年度）】

本年度上半期の研究では、主に東伊豆単成火山群の研究に関する文献調査を実施し、コンパイルデータおよび確率論的予測モデルを用いて火山形成確率分布図を作成した。また、ネバダ州のユッカマウンテン地域における同様の評価結果および昨年度実施した神鍋単成火山群の結果との比較・検討を行った。

この報告書の概要は下記の通りである。

1. 東伊豆単成火山群に関する文献調査の結果および背景の概要

1-1. テクトニクス

1-2. 東伊豆単成火山群

2. 確率論的の検討の結果

2-1. Spatial (S) モデル

2-2. Spatio-temporal (ST) モデル

2-3. Modified モデル

2-4. 考察

3. まとめ

1. 東伊豆単成火山群に関する文献調査の結果および背景の概要

1-1. テクトニクス

東伊豆単成火山群は伊豆半島の東部に分布する。伊豆半島はフィリピン海プレート・ユーラシアプレート・北米プレートの境界に位置するため、地殻変動や火山活動が活発な地域である (Fig. 1(a))。

1-2. 東伊豆単成火山群

東伊豆単成火山群は、59のスコリアコーンおよびそれに関連する溶岩または溶岩ドームなどから形成されている (荒牧・波室 1977・高橋ほか 2002) (Fig 1(b))。層序学的手法を用いたこれまでの調査によると、15万年前から現在まで噴火活動を繰り返し生じていることが明らかにされている (早川・小山, 1992; 小山, 1993; 小山ほか, 1995; 高橋ほか, 2002)。また、本火山群のうち最も新しい単成火山は、1989年に伊豆半島東海岸の沖3kmに生じた手石海丘である (Okada and Yamamoto, 1991; 小山, 1993 など)。この地域の噴火活動は、150~80kaには現在の単成火山群の北部に限られていたが、80ka以降は南部でも噴火活動が開始した。噴火頻度は、150~40kaでは、7900年に1回であったが、40kaから現在までは2500年に1回に増加している (小山ほか 1995)。Fig 1(b)によると、単成火山群の北端の二つの配列を除いて、他の火山列は、北西—南東方向に卓越する傾向が認められる。

なお、東伊豆単成火山群の地質および年代測定のデータは確率論的予測モデル作成においては十分なものであることから、今回新たな試料のサンプリングや K-Ar 年代測定は実施しなかった。

2. 確率論的の検討の結果

東伊豆単成火山群の噴火確率分布を推定するために spatial (S) モデル、spatio-temporal (ST) モデル、modified モデルの3つの確率モデルによる計算を試みた。それぞれのモデルによる予計算結果は下記の通りである。

なお、本研究において取り扱う「火山」は、1万年以内に形成されたスコリアコーン・溶岩ドーム・タフーリング・マール等、マグマの噴出によって地表に形成されたものと定義する。

2-1. Spatial (S) モデル

S モデルについては、Epanechnikov Kernel function (Diggle, 1985; Gutz and Lutman, 1995 など) および Gaussian Kernel function (例えば、Condit et al., 1998; Connor et al., 2000 など) について検討を行った。

Kernel function は、個々の火山体の位置を中心として対称的な分布を示す確率密度関数 (pdf) である。このモデルにおいて計算された recurrence rate の分布は、smoothing coefficient (h-値) と近傍の火山の距離との関数となる。個々の火山の Kernel function を計算することによって、単成火山群の全体の確率分布図を作成することができる。なお、Spatial recurrence rate は 1km^2 ごとの確率を、Temporal recurrence rate は、すべての火山の年代から全体としての確率を計算した。つまり、ある火山群における spatial recurrence rate は変数となり、temporal recurrence rate は定数となる。この二つの recurrence rate を組み合わせ、将来の火山の形成確率を予測する。

今回、Epanechnikov および Gaussian の両方について計算を試みた。計算結果は、Kernel function の違いよりむしろ smoothing coefficient (h 値) の与え方に依存する。たとえば、東伊豆単成火山群の場合、Gaussian Kernel ($h=3\text{ km}$) の計算結果は、Epanechnikov Kernel ($h=9\text{ km}$) の結果と類似した確率分布となる。

Smoothing coefficient (h 値) は低い値の場合、各火山の近傍で、確率が高くなる。このモデルによると、噴火する確率が最も高い範囲は、東伊豆単成火山群の東端に位置する。昨年度実施した神鍋単成火山群に比べて東伊豆単成火山群では、火山の数も多く、活動期間も長いため、予測の結果を検証することが可能である。確率分布図は 40ka 以前の火口の分布のデータに基づいて、その後の 4 万年間の確率を計算したものである。また、Fig. 2 には、20ka から現在までに実際、噴火した火口の位置も併せて示している。これらによると、h-値を 5 km に設定した場合に比べて、h-値を 9 km に設定した場合の確率分布が実際の火口の分布により調和的であることがわかる。したがって、東伊豆単成火山群の場合には、h-値は 8 km 以上に設定する必要があると考えられる。

2-2. Spatio-temporal (ST) モデル

S モデルの問題点の一つは、解析領域全体に一定の recurrence rate を与えているため、地域ごとの recurrence rate の違いを反映できない。すなわち、新しい火山の周辺も古い火山の周辺も同じ recurrence rate で計算される。

一方 nearest-neighbour 法による spatio-temporal モデル (Ripley, 1981; Connor and Hill, 1995) では、個々の火山の位置と形成年代を考慮できるため、空間・時間の双方に重み付けをした recurrence rate を計算ことができる。

それぞれの地域の空間・時間 recurrence rate を合計することにより、火山群の全体としての空間・時間 recurrence rate を推定できる。火山群全体としての時空 recurrence rate は、火山の年代値から計算することができることから、上記の合計した結果と比較することにより、最適な nearest-neighbour の数 (計算に用いる火山の数) を決定できる。

東伊豆単成火山群を対象とした計算によると、nearest-neighbour を 7 あるいは 8 にした場合が、実際の時空 recurrence rate = 1 volcanic event / 2,500 (小山ほか 1993) と最も近い値になる。

Fig. 3 に示した確率分布は、過去 2 万年以前に形成された火山の分布のデータに基づいて、最近 2 万年間の確率を計算したものである。(a) は nearest-neighbours = 6 の場合、(b) は

nearest-neighbours=7 の場合を示す。火山の年代値は、小山ほか（1993）および高橋ほか（2002）を用いた。S-T モデルにより、東伊豆単成火山群のすべての火山のデータを用いて、今後 1 万年間に火山が形成する確率を計算した（なお、*nearest-neighbours=7*とした）。その結果、S モデルと同様に東伊豆単成火山群の東部において最も高い確率 ($10^{-0.3} \sim 10^{-0.5}$) となる。

2-3. Modified モデル

S・S-T モデルは、過去の火山の位置および年代に基くものである。Connor and Hill (1995) は、点過程に基く確率モデルである S・S-T モデルが火山のクラスター化・線状配列化・移動といった火山活動の特徴を反映することを示した。昨年度、実施した神鍋単成火山群の長期確率分布の結果においても S・S-T モデルは、クラスター化の傾向を表現することができた。しかしながら、東伊豆単成火山群での最近 2 万年間の予測結果と実際に形成された火山の分布を比較すると、実際の火山は比較的確率が低いところに形成されたことがわかる。

東伊豆単成火山群は、過去から現在までの活動の中で、火山の線状配列が移動したことが知られている（小山ほか、1993 など）。また、伊豆半島の全体をみれば、火山活動はフィリッピン海プレートの沈み込みに対して、東から西へ移動したことが認められる（高橋、1989）。S・S-T の双方のモデルは、このような火山活動の移動を充分に予測できない。

そのため、今回、上記の火山活動の特徴を考慮した二つの modified モデルを作成した。一つのモデルは S モデルを (Fig. 4a, b)、もう一つのモデルは S-T モデルを (Fig. 4c) ベースに火山の線状配列および移動を表現できるものである。

Modified S モデル (MS) は、ellipsoid Gaussian により将来の火山の配列が長軸に一致するよう計算を行うものである。移動については、現在の火山の分布範囲の両端が想定される期間に移動していくものとした。なお、将来の火山の配列方向や移動距離は、過去の地質データおよび地殻構造のデータに基づき推定した。

Modified S-T モデルは、Fig. 4c に示すように予測される移動・配列に火山の分布が対応するものとした。Fig. 5 は、通常の S-T モデルと MS-T モデルによる結果について、比較を行ったものである。S-T モデルに比べて MS-T モデルでは、最近に形成された火山の分布や配列をうまく表現できる。

2-4. 考 察

MS・MS-T モデルは新たな火山の形成・配列を予測することを可能とするが、そのためには予測の前提となる過去の火山の数が十分必要である。つまり、ネバダ州のユッカマウンテンの単成火山や山陰地方の神鍋単成火山群等のように、火山の数が少ない地域や東北・中国地方に見られる火山の密集域と密集域の間に位置する火山が存在しない地域では、予測結果の信頼性は低いと言わざるを得ない。

したがって、このような地域では、上記の確率モデルに他の地質学や地球物理学のデータ（例えば、地震波トモグラフィー、重力構造、地殻熱流量等）によるモデルを結合していくことが不可欠となる。これらの試みは、例えば、ユッカマウンテンにおいて確率モデルに重力構造を考慮した予測等が行われている（Connor ほか、2000）。

また、これまでの予測結果の問題点の一つとして、例えば、神鍋・扇ノ山単成火山群の予測結果では、高い確率の領域が比較的新しい神鍋単成火山群（～0.25Ma）の周辺ではなく、より古い活動による扇ノ山単成火山群（1.2～0.6Ma）周辺に分布することがあげられる。しなしながら、近年の地震波トモグラフィーの解析によると神鍋単成火山群の直下には、深部のマグマ溜りと考えられる P 波の低速度異常が認められている（Zhao and Ochi, 2000）。したがって、神鍋単成火山群の場合、これらのデータを考慮することにより、モデルの信頼性を向上されることが可能となる。

東伊豆単成火山群の場合、地熱のデータを組み合わせることにより、従来のモデルを高度化することが可能と考えられる。Fig. 6 に示したように、最近 2 万年以内に形成された比較的新しい火山は、高い地温勾配を示す地域とほぼ一致している。さらに、比較的浅いマグマ溜りに由来すると考えられる安山岩・ディサイトの火山は、高い地温勾配の地域と関連する可能性がある。

確率モデルに、地震波トモグラフィーや地温勾配等の他のパラメータを導入する方法として、ベイズ法がある。例えば、上記の空間統計学的モデルを *a priori* 確率分布関数として、考慮するデータは likelihood function として取り扱い、双方を normalize して計算するものである。現在、東伊豆単成火山群の局所的な地域および東北日本の広域的な地域における予測の検討を実施中である。

3.まとめ

空間統計学（点過程モデル）に基づく従来のモデルおよびその改良モデルを用いて東伊豆単成火山群における将来の火山の発生の確率を検討した。

- S-モデル (Gaussian か Epanechnikov kernel) によると、東伊豆単成火山群において今後 1 万年に火山が発生する確率は、最も高い地域で $10^{-0.3} \sim 10^{-0.5}$ である。
- S-T モデルにおいても、一番高い噴火確率は $10^{-0.3} \sim 10^{-0.5}$ になる。
- 火山の線状配列および移動を考慮した Modified S (MS) および S-T (MS-T) 確率モデルを開発した。
- これらのモデルによると確率が最も高い範囲は火山群に東側になる。

東伊豆単成火山群の今後 1 万年間の確率はアリゾナ州の Sprigerville のような大型の火山群（約 400 volcanic event）(Condit and Connor, 1996) と同じオーダの値となるが、神鍋・扇ノ山火山群およびユッカマウンテン地域に属する単成火山群（約 40 volcanic event）に比べ 1 オーダ高い値となる。

現時点では、点過程モデルによる予測が最適な方法と考えられるが、この方法はデータ数に大きく依存することから、火山の少ない地域や非火山地域の予測には、他の地質学・地球物理学データを考慮することが必要となる。

参考文献

- 荒牧重雄・葉室和親 (1977): 東伊豆単成火山群の地質-1975-1977 中伊豆の異常地殻変動に関連して. 地震研彙報, 52, 235-278.
- Condit, C. D. and Connor, C. B., 1996, Recurrence rates of volcanism in basaltic volcanic fields: An example from the Springerville volcanic field, Arizona. *Geol. Soc. Am. Bull.*, 108, 1225-1241.
- Connor, C. B. and Hill, B. E., 1995, Three nonhomogenous Poisson models for the probability of basaltic volcanism: Application to the Yucca Mountain region, Nevada. *Jour. Geophys. Res.* 100, 10,107-10,125.
- Connor, C. B., et al., 2000, Geologic factors controlling patterns of small-volume basaltic volcanism: Application to a volcanic hazards assessment at Yucca Mountain, Nevada. *Jour. Geophys. Res.* 105, 417-432.
- Conway, et al., 1998, Recurrence rates of basaltic volcanism in SP cluster, San Francisco volcanic field, Arizona. *Geology* 26, 655-658.
- Diggle, P. J., 1985, A kernel method for smoothing point process data. *Appl. Statist.* 34, 138-147.
- Furuyama, K., 1993, K-Ar ages of Late Neogene monogenetic volcanoes in the east San-in district, southwest Japan. *Chikyu Kagaku*, 47, 519-532.
- 早川由紀夫・小山真人 (1992): 東伊豆単成火山地域の噴火史 1: 0~32ka. 火山, 37, 167 – 181.
- 小山真人 (1993): 伊豆半島の火山とテクトニクス. 科学, 68, 312-321.
- 小山真人・早川由紀夫・新井房夫 (1995): 東伊豆単成火山地域の噴火史 2 : 主として 32ka 以前の火山について. 火山, 40, 191-209.
- Lutz, T. M. and Gutmann, J. T., 1995, An improved method for determining and characterizing alignments of pointlike features and its implications for the Pinacate volcanic field, Sonora, Mexico. *Jour. Geophys. Res.* 100, 17,659-17,670.

- Nakamura, K., 1977, Volcanoes as possible indicators of tectonic stress orientation - Principle and proposal. *Jour. Volcanol. Geoth. Res.* 2, 1-16.
- Okada, Y. and Yamamoto, E., 1991, Dyke intrusion for the 1989 seismovolcanic activity off Ito, central Japan. *Jour. Geophys. Res.* 96, 10,361-10,376.
- Ripley, B. D., 1981, Spatial Statistics, In: Wiley Series in Probability and Mathematics.
- 高橋正樹・菊池康次・漆畠忠之・荒牧重雄・葉室和親 (2002): 東伊豆単成火山群玄武岩類の液相濃集元素組成. 日本大学文理学部自然科学研究所「研究紀要」, 37, 119-134.
- 田中明子・矢野雄策・笛田政克・大久保泰邦・梅田浩司・中司昇・秋田藤夫 (1999): 抗井の温度データによる日本の地温勾配値のコンパイル. 地質調査所月報, 50, 457-487.
- Zhao, D., and Ochi, F., 2000, Evidence for the location and cause of large crustal earthquakes in Japan. *Jour. Geophys. Res.* 105, 13,579 – 13,594.

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

今後は、東北の第四紀火山及び中国地方の阿武単成火山群等を対象に、地震波トモグラフィーや地熱データを考慮した予測モデルの高度化を図る予定である。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

Martin A.J., Takahashi M., Yusa Y. and Ishimaru T. 2002. Utilizing probability analyses to predict the long-term spatial patterns of monogenetic volcanoes in SW Japan. Japan Earth and Planetary Science Joint Meeting, No. G004-010. (平成14年5月30日)

マーチン アンドリュー・高橋 正樹・湯佐 泰久・梅田 浩司・石丸 恒存. 2002. 単成火山群の確率論的将来予測－東伊豆および東山陰地方の単成火山を例にして－. 日本地質学会第109年学術大会講演要旨 p157. (平成14年9月15日)

棚瀬 充史・石丸 恒存・古澤 明・二ノ宮 淳・マーチン アンドリュー. 2002. 兵庫県北部、神鍋単成火山群太田、神鍋火山のテフラ年代. 日本地質学会第109年学術大会講演要旨 p157. (平成14年9月14日)

Martin A.J., Takahashi M., Yusa Y., Umeda K. and Tanemura M. 2002. Probabilistic modeling of the long-term spatial patterns of eruptive centers: Case studies from Higashi-Izu and Kannabe-Oginosen monogenetic volcano groups, Japan. *Eos Trans. AGU*, 83(47), Fall Meet. Suppl., Abstract V22C-11, p319. (平成14年12月10日)

Martin A.J.. 2003. Application of probabilistic assessment to distribution of volcanoes in Japan. NUMO 2nd International Tectonics Meeting, Tokyo. (平成15年3月12日)

Martin A.J., Umeda K. and Yusa Y. 2003. Probabilistic approaches for predicting the long-term spatial and temporal characteristics of monogenetic volcanoes; application to two monogenetic volcano fields in Japan. *JNC Technical Review*, 18, 59 – 70. (平成15年3月)

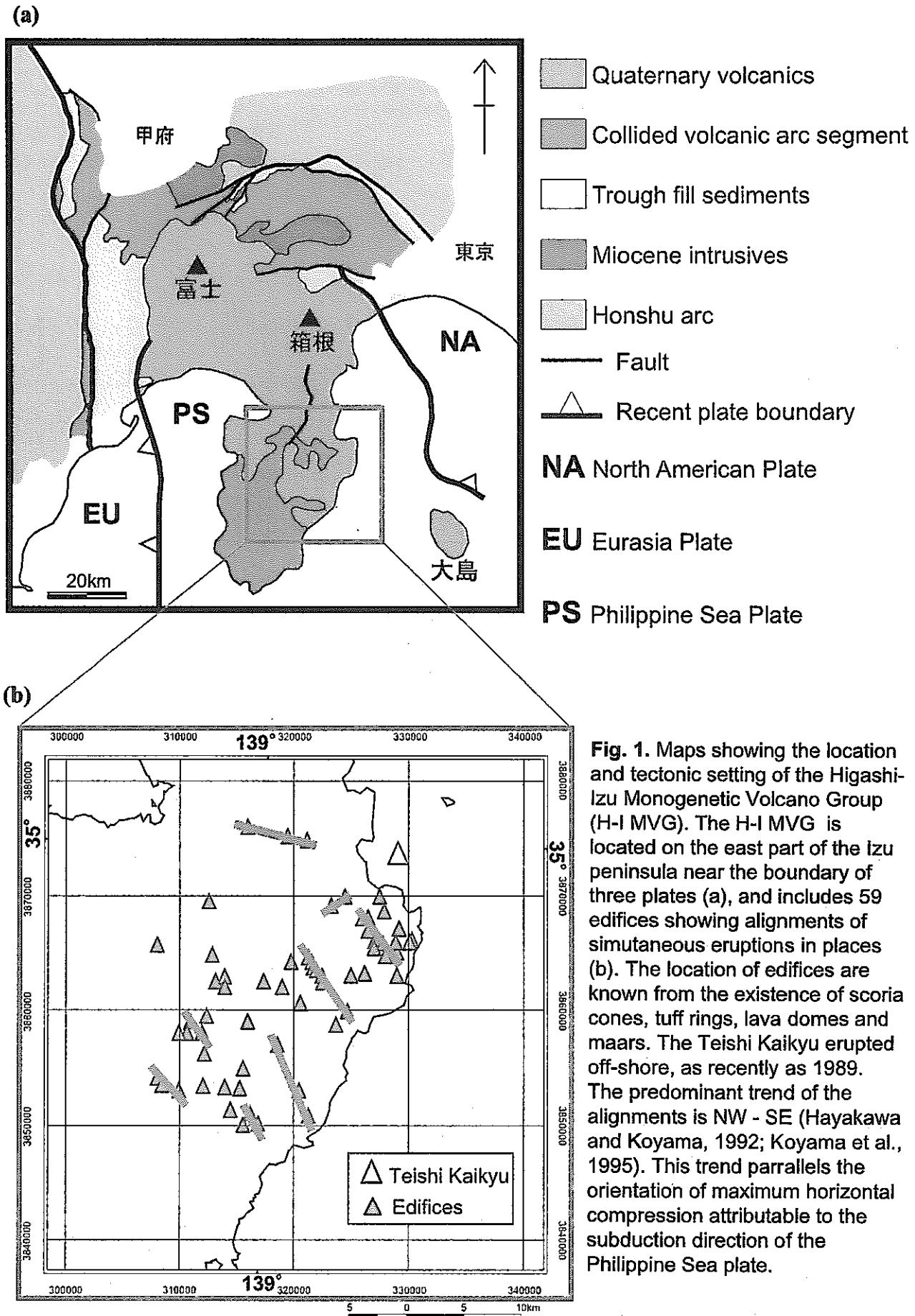


Fig. 1. Maps showing the location and tectonic setting of the Higashi-Izu Monogenetic Volcano Group (H-I MVG). The H-I MVG is located on the east part of the Izu peninsula near the boundary of three plates (a), and includes 59 edifices showing alignments of simultaneous eruptions in places (b). The location of edifices are known from the existence of scoria cones, tuff rings, lava domes and maars. The Teishi Kaikyu erupted off-shore, as recently as 1989. The predominant trend of the alignments is NW - SE (Hayakawa and Koyama, 1992; Koyama et al., 1995). This trend parallels the orientation of maximum horizontal compression attributable to the subduction direction of the Philippine Sea plate.

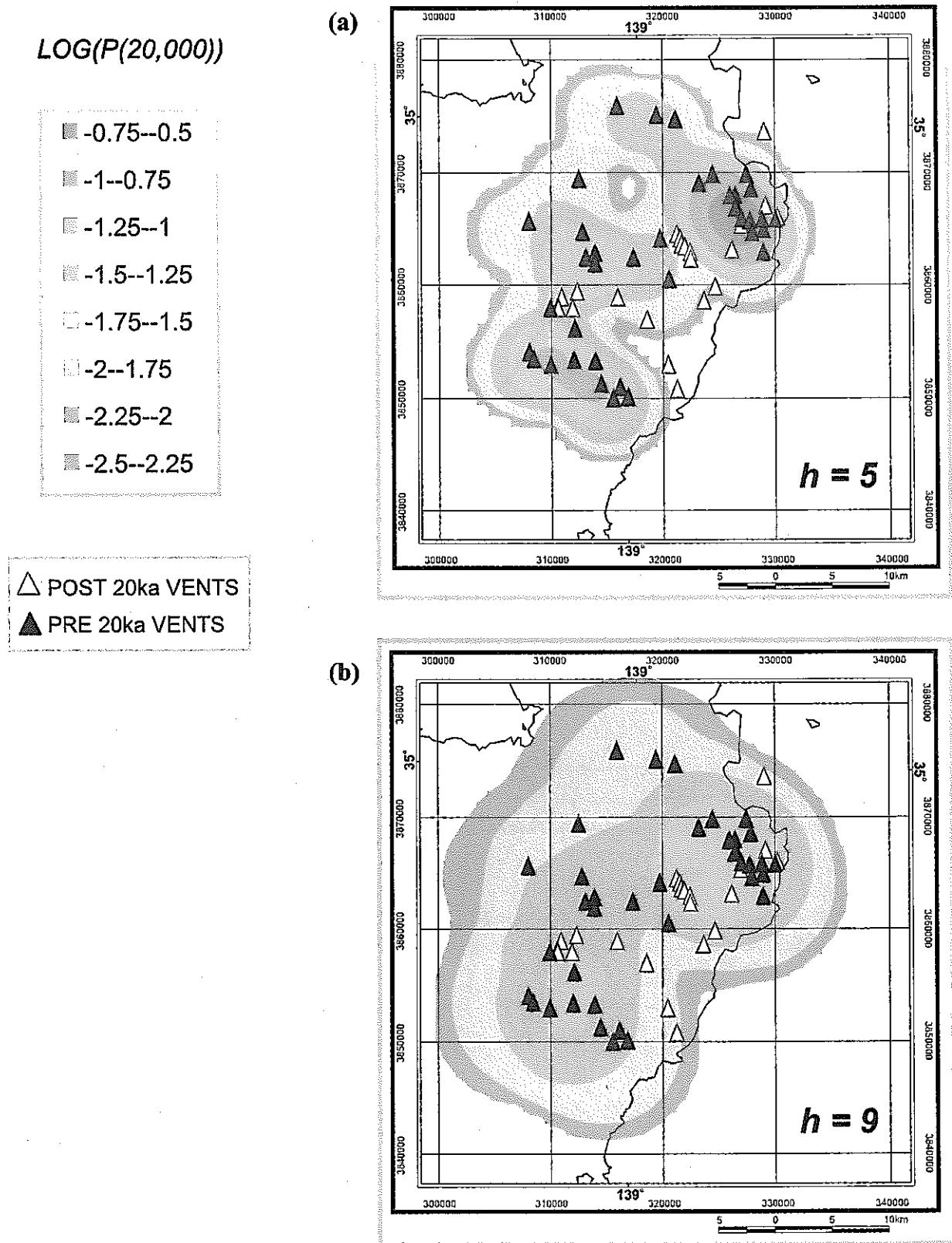


Fig. 2. Maps showing the probability of one or more volcanic event(s) forming in the period from 20ka to present. The calculation was made using data from vents that formed prior to 20ka (filled triangles) and a regional recurrence rate of one event per 2,500 yrs with $h = 5$ km (a) and $h = 9$ km (b). Subsequent eruptions that formed during the 'prediction' period are shown by open triangles. Plots calculated with a smoothing coefficient of at least $h = 9$ km are suitable for this field.

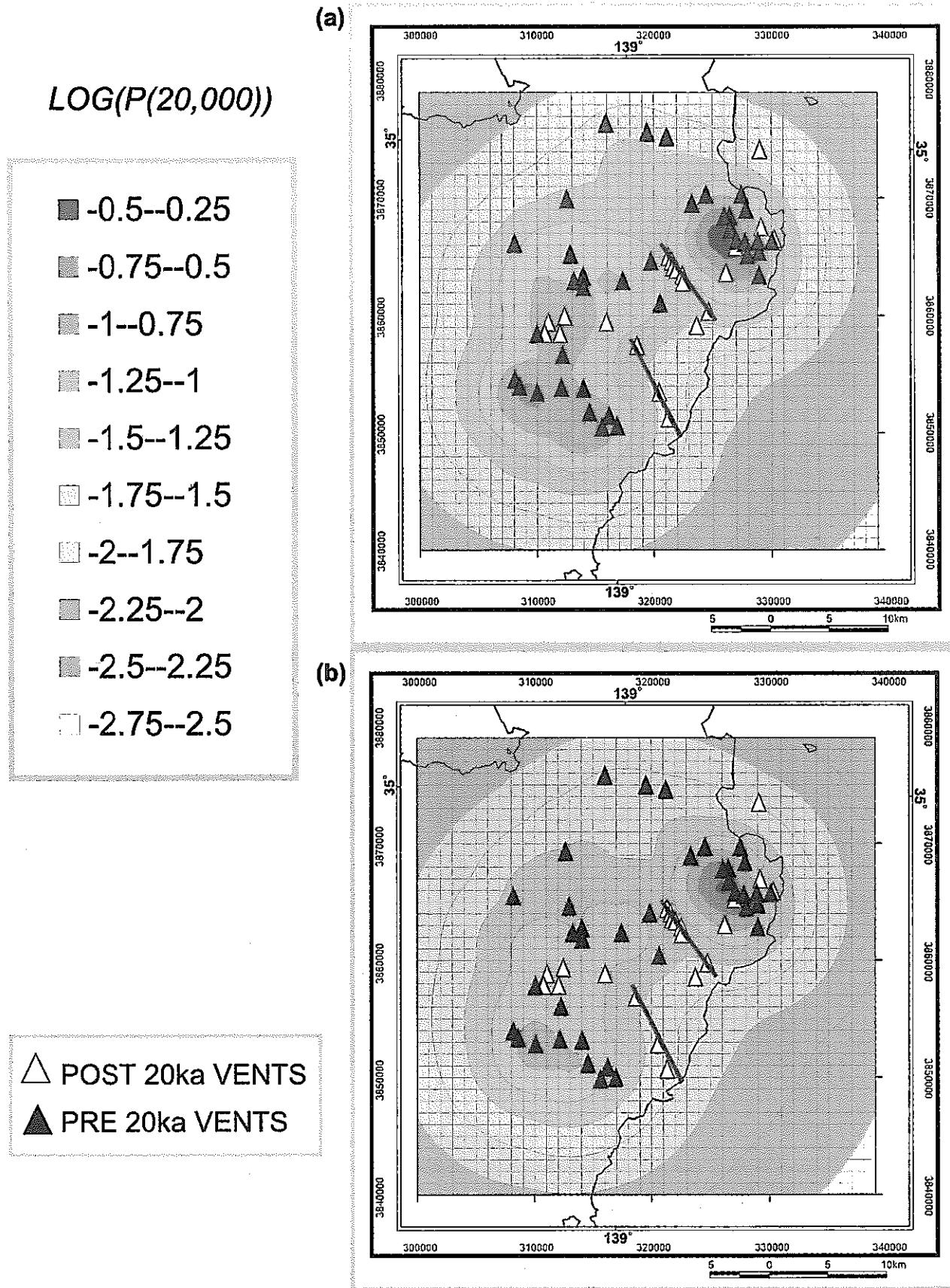


Fig. 3. Maps showing the probability of one or more volcanic event(s) forming in the period from 20ka to present. The calculation was made using data from vents that formed prior to 20ka (filled triangles) with six nearest-neighbours (a) and seven nearest-neighbours (b). As with the S model, the S-T model fails to capture subsequent alignments (marked with a line).

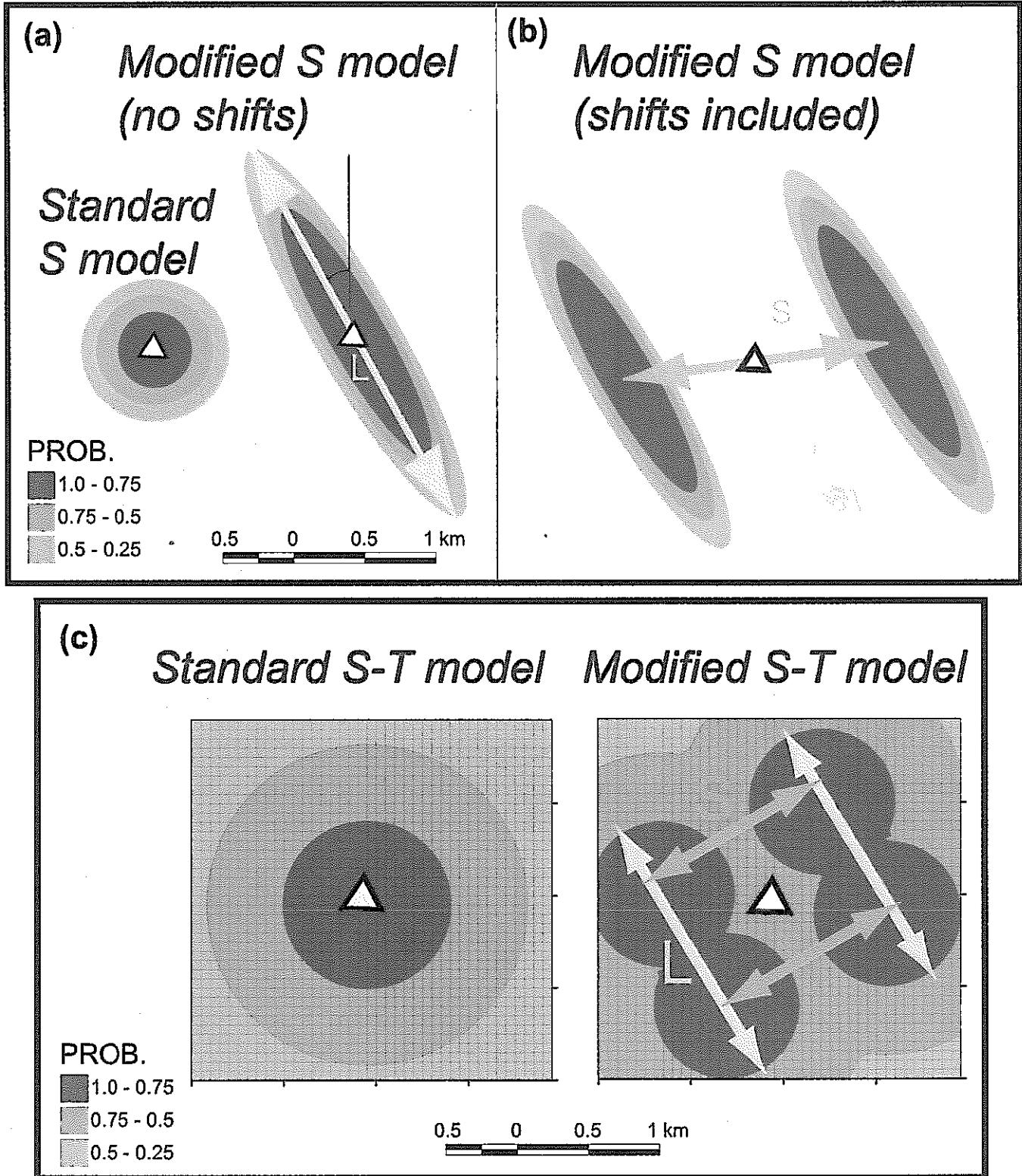


Fig. 4. (a) Vent alignments (L) are modelled using an ellipsoid Gaussian (major axis parallel to alignment trend). (b) Expected future shifts (S) are estimated from historic shift rates and new points calculated either side of current vents. (c) With the MS-T model, points are redistributed based on the length of previous average vent alignments (L) and shifts (S).

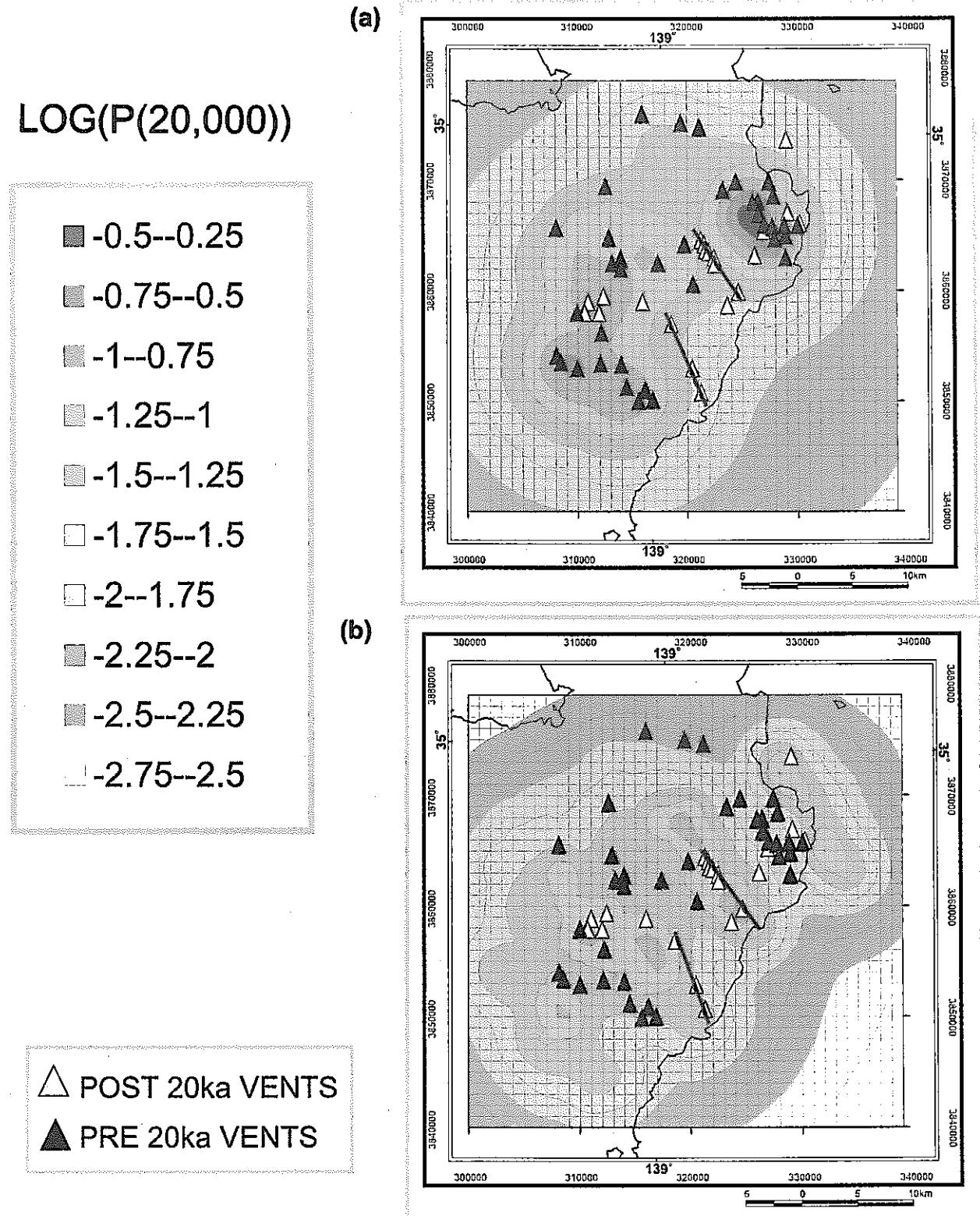


Fig. 5. Maps showing the probability of one or more volcanic event(s) forming in the period from 20ka to present. The calculation was made using data from vents that formed prior to 20ka (filled triangles) using the S-T model (a) and M-S-T model (b). For the 20ka period the M-S-T model appears to capture new vents and alignments throughout the volcanic field.

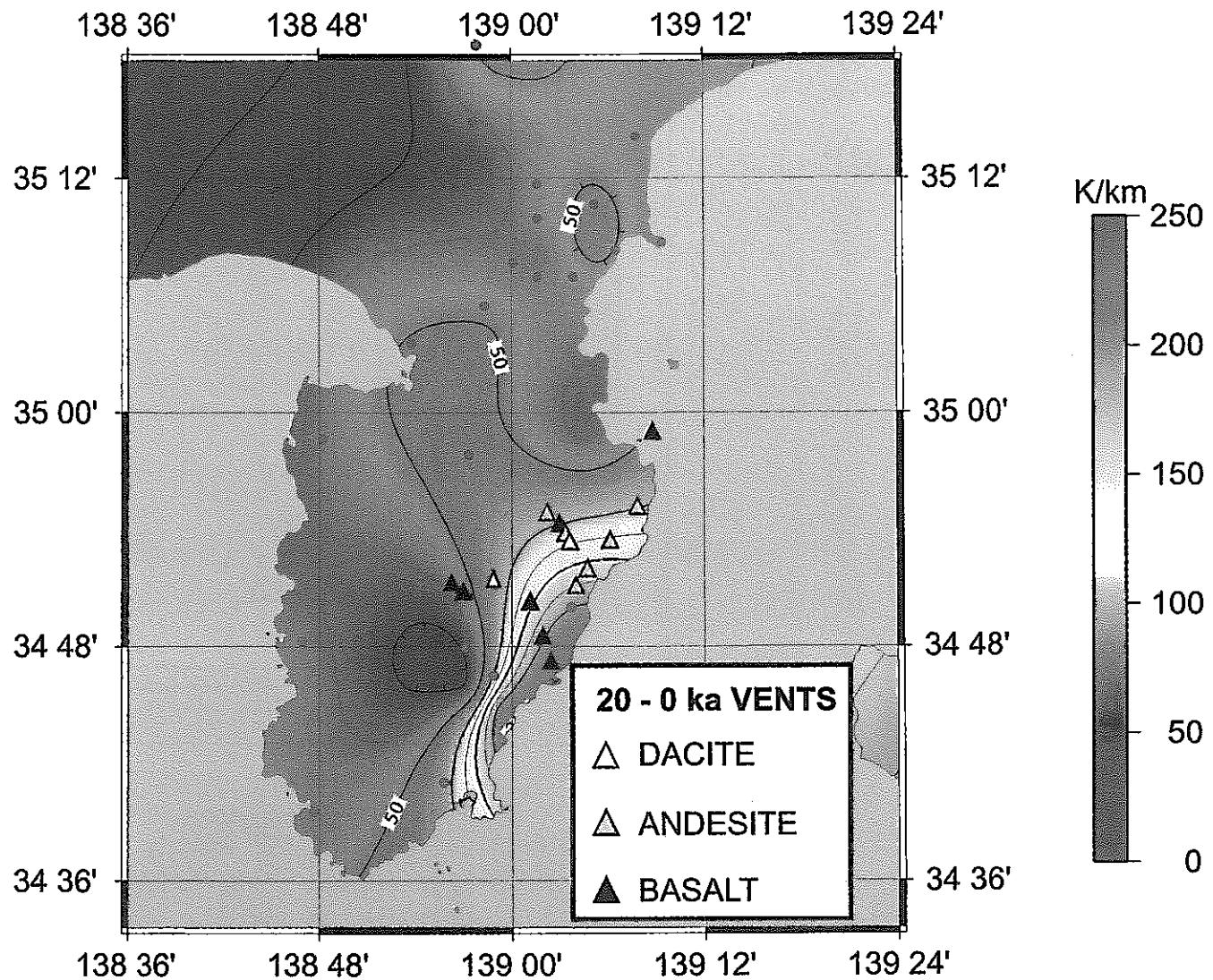


Fig. 6. Map showing the spatial distribution of the geothermal gradient in the vicinity of the Higashi-Izu Monogenetic volcano field calculated from 23 boreholes (filled circles). The distribution of monogenetic volcanoes that formed from 20,000 yrs to present are also shown. (Borehole data from Tanaka et al., 1999).

博士研究員（H13）平成14年度研究概要報告書

研究テーマ	岩石の電磁気物性解明と電磁アクロス観測への応用		
研究者氏名	松本 裕史		
研究協力者 所属・氏名	東濃地科学センター 地質環境研究グループ 茂田 直孝	所属長 役職・氏名	地質環境研究 グループリーダー 中司 昇
研究実施場所	東濃地科学センター 瑞浪地科学研究館		
通算研究期間 (予定)	平成 13年 4月 ~ 平成 16年 3月	当該年度 研究期間	平成 14年 4月 ~ 平成 15年 3月
<p>【研究目的】 高レベル放射性廃棄物の地層処分に係わる地質環境調査においては、地下水の分布を含めて地質構造を把握することが重要である。不均質な地下構造を対象とする場合、坑井による局所探査より、2次元、3次元の遠隔探査が有利である。しかし、常温常圧付近では含水による岩石の力学的性質の変化はわずかであり、現在の遠隔探査の主力である弾性波探査に多くを期待することはできない。また、電気・電磁探査においても、従来のように変化の幅の少ない電気伝導度の絶対値のみを観測対象とするのでは探査能力は必ずしも高くない。そこで本研究では電磁アクロス等で得られる地下の電磁気構造を解釈し地質構造（岩石種、含水分布構造）を推定する際に必要な知見を蓄積することを目指す。 </p>			
<p>【研究内容（概要）】 含水岩石の「$1/f$型」誘電分散を解明し、地層処分に係わる地下水のモニタリングに適用可能な物性モデルを構築する。以下に平成13年度、14年度に行った研究課題と15年度に予定する課題を整理して記す。具体的な内容は表1を参照。 </p> <p>(A) 岩石電磁物性に関する文献調査研究 含水岩石の電磁物性に関する過去研究を整理し、地下水モニタリングに有用な、あるいは解明すべき現象を抽出する。</p> <p>(B) 複素誘電率測定手法の確立 従来の岩石のインピーダンス測定手法を再吟味し、必要に応じて既存の手法の改善、新しい手法の開発を行う。</p> <p>(C) 含水岩石および模擬物質の誘電分散の実験研究と物性モデルの構築 含水岩石の誘電分散は電気伝導性の異なる界面での電気化学反応が、粒界の形状など幾何学的效果を通して発現するものであると考えられる。そこで適当なモデル実験により(C-1)単一界面の電気化学物性を理解したうえで、(C-2)複合界面による不均質系の誘電物性を解明する。</p>			
<p>【使用主要施設】 データ入出力ボード National Instruments DAQ-Card6052E(16ch A/D (500 kS/s)および 2ch D/A(850 kS/s)内蔵) 関数発生器 Agilent 33120A(1 mHz - 1MHz 対応) デジタルオシロスコープ IWATSU Bringo DS-8812 (2ch, 100MS/s) LCR メーター 日置電機 LCR ハイテスタ 3522-50 (1 mHz - 100 kHz 対応) </p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成13年度は 1) 岩石の電磁気物性に関する文献調査研究、2) 実験計画の策定、3) 岩石のインピーダンス測定予備実験および実験計画の実行の三項目を行なった。

平成14年度は 1) アクロス計測による複素誘電率測定手法の確立、2) イオン伝導体の誘電分散測定と「 $1/f$ 型」誘電分散の理解のためのモデル実験を行った。

【研究成果（当該年度）】

平成14年度の研究背景

平成13年度の文献調査により次のことが明らかになった。

【岩石電磁物性】

岩石の誘電物性は次のように整理されることが分かってきた。1) 含水岩石は高周波(> kHz)でデバイ型誘電分散(緩和周波数 f_0 の前後で粒界水のイオンの挙動が伝導電流から変位電流に移り変わることにより、 $f < f_0$ での誘電率の増大、 $f \sim f_0$ での電気伝導度の増大が起こる)を示す。低周波(mHz 以下 ~ kHz)では、2) 粘土鉱物や金属鉱物を含む岩石試料は、イオン交換反応や酸化還元反応により強い誘電分散を生じ、プロードな誘電緩和スペクトルを示す。3) 上記鉱物を含まない岩石や水(イオン伝導性が卓越する系と考えられる)では複素誘電率の実部と虚部が低周波数とともに周波数にほぼ反比例して増加する「 $1/f$ 型」誘電分散(註)を示す。

註：「 $1/f$ 型」誘電分散という学術用語はまだ存在しない。ここで提示する「 $1/f$ 型」誘電分散という現象は、界面のあるイオン伝導体がもつ普遍的な現象であると思われるが、これまで、的確な測定方法に欠け、研究例が少なく一般の理解も得られていない。

【従来の研究の問題点】

岩石の複素誘電率測定ではケーブルの浮遊容量やノイズに対する対処が重要である。文献ではその問題点に対する対処の記述が足りない場合もあり、データの信頼性の評価が難しい。

【 $1/f$ 型誘電分散の位置づけ】

地殻浅部を構成する含水岩石の間で、粘土層や金属鉱物は Hz オーダーの周波数で例外的に強い誘電性を持ち、IP(強制分極)法探査の対象とされてきたが、それ以外の岩石は観測も研究もなされてこなかった。我々は地殻の大部分の岩石は $1/f$ 型誘電分散を示すと考えている。地下水の遠隔監視のためには、 $1/f$ 型誘電分散を解明し、観測された複素誘電率を岩石の含水状態を表すパラメーター(含水率、温度など)と関連づけることが不可欠である。 $1/f$ 型誘電分散の誘電性は比較的小さいため、従来法の精度では検出できなかつたが、電磁アクロスによる高精度観測を用いれば検出可能であると考えている。

以上の検討を受けて、本研究の研究計画を表1のようにまとめた。これまでに実施した課題に今後の実施予定の課題を加えて整理した。このうち、平成14年度は項目(B)と(C-1)について重点的に研究を行なった。

平成14年度の研究成果

(B) アクロス計測と4.2極法による複素誘電率測定手法の確立

【概要】

バルクと界面のアドミッタンスの測定、評価を可能にする、信頼性の高い複素誘電率測定法を確立した。本計測システムでは、アクロスの計測体系を採用することで、信号とノイズの同時測定、およびアドミッタンスとその誤差の評価を可能にした。またボルタモグラムを求めることもできる。この測定手法を用いると、界面とバルクの関連した現象の解析が容易になり、また測定の不安定さやバイアスをより明確に認識できる。これらは従来法にない特徴であり、今後の複素誘電率測定の標準すべき測定手法であると考えている。

[測定システムの製作]

図1(a)の測定システムを製作して測定を行った。任意関数発生器により出力した正弦波信号をバッファアンプを介して被測定インピーダンスに印加する。オペアンプを用いた電流一電圧変換回路により電流Iを電圧値 $V_{rm} = I \times R_m$ に変換する。 V_{c1} 、 V_b 、 V_{c2} 、 V_{rm} を差動アンプを介してA/Dボードに接続し、任意関数発生器による信号出力と同期させてA/D変換を行った。

[クロス測定理論と誤差評価]

以下の手順により、測定された V_{c1} 、 V_b 、 V_{c2} 、 V_{rm} の時間波形から Y_{c1} 、 Y_b 、 Y_{c2} とその誤差を求めた。測定の際、 STACK 後の時系列波形 $V(t_k) = V(k\Delta t)$ ($k=0,1,\dots,N-1$) に正弦波 n 周期が含まれるように印加信号を設定しておく。 $V(t_k)$ のフーリエ変換により得られる離散スペクトル $V(\omega_k) = V(k/2N\Delta t)$ ($k=-N/2-1,0,1,\dots,N/2$) から印加信号の周波数成分 ($k=n$) とその高調波成分 ($k=2n, 3n, \dots$) のラインスペクトル群と、その間に $n \cdot 1$ 本づつ存在するノイズ成分のスペクトル群が得られる(図2)。前者を信号チャンネル、後者をノイズチャンネルと呼び、両者の振幅からそれぞれ信号振幅、ノイズ振幅の数値が得られ、S/N を評価できる。得られた電流・電圧スペクトル $I(\omega) \cdot V(\omega)$ の位相振幅比とその誤差からアドミッタンスとその誤差を求める。

[バルク物性の測定と界面物性の評価]

導電性に寄与する電荷(イオン、電子)が異なる層の界面を電流が流れるとき、電気二重層が形成されて電気化学反応を介した電荷移動が起こる。このため、界面のアドミッタンス Y_{if} はバルクのアドミッタンス Y_b と異なるスペクトルをもち、高周波極限ではほぼ無限大だが、周波数が下がるにつれ顕著に減少する。

図1(a)において、 $Y_{c1}(Y_{c2})$ は図1(b)のようにバルク部のアドミッタンス $Y_{b1}(Y_{b2})$ と電気二重層のアドミッタンス $Y_{if1}(Y_{if2})$ の直列回路になっていると考えられる。 Y_b と Y_{b1} はセル定数だけ違うとすると、 $Y_{if1} = Y_{c1} \cdot Y_{b1} = Y_{c1} \cdot Y_b / |Y_{b\infty}| \times |Y_{c1\infty}|$ の関係が成り立つ。ここで $Y_{b\infty}$ 、 $Y_{c1\infty}$ は Y_b と Y_{c1} の高周波極限、あるいは $Y_{if1} >> Y_b$ となる高周波での値である。

[データ表示法の検討]

岩石電磁物性の表現では複素比抵抗がよく用いられてきた。しかし、電磁波伝播(マックスウェル式)の評価で普通用いられているのは、コンダクタンス、キャパシタンスの並列モデルであり、また測定される岩石の電磁物性もこの並列モデルになじむことから、複素電気伝導度 $\sigma^* \equiv \sigma' + j\sigma'' = \sigma + j\omega\epsilon$ または複素誘電率 $\epsilon^* \equiv \epsilon' - i\epsilon'' = \epsilon + \sigma / j\omega$ を用いるのがよい。このとき電流密度 i と電場 E は

$$i = (\sigma + j\omega\epsilon)E = \sigma^*E \quad (1)$$

$$i = i\omega(\epsilon + \sigma / j\omega)E = j\omega\epsilon^*E \quad (2)$$

と書ける。

含水岩石では一般に σ は周波数依存性を持たないが、 ϵ は顕著な分散性を持つ。本研究では ϵ の分散性をよく表現するために ϵ^* を用いる。また導電性に比べ小さな誘電性の指標として、 $\tan\delta = \epsilon''/\epsilon'$ の代わりに $\cot\delta = \epsilon'/\epsilon''$ を用いる。

(C-1) 単一界面の電気化学物性

[固液界面の存在により誘発される誘電分散の観測実験]

バルクの水と、固液界面を含む系との比較を行い、固液界面の存在により誘電分散が誘発されることを確認する。

図6(a)のセルと電極を用いてバルクの水の複素誘電率を測定する。バルクの水の中に導電性の固層、絶縁性の固層が存在することの影響を調べるために、電位電極間にステンレスメッシュ、樹状プラスチックを挿入して測定を行う。電位電極表面に分極が形成されるのを防ぐために、針状の電極を用いた。

図7(a)のように、バルクの水の複素誘電率の実部は $10^2 \sim 10^4$ Hz の範囲で 700 pFm^{-1} (比誘電率で約 80) で一定であり、誘電分散は起こらない。電位電極間にステンレスメッシュを入れると 1 kHz 以下で誘電分散が観測された。しかし、絶縁性材質であるプラスチックの樹を入れた場合は $10^2 \sim 10^4$ Hz でも誘電分散が生じていない。

この結果は次のように解釈できる。電流の向きと垂直にステンレスメッシュをいれると、メッシュ表面でイオンがたまり、メッシュを挟んで正負のイオンの濃度勾配ができる。イオンの濃度勾配により化学ボテンシャルの勾配ができると、それを駆動力として電気化学反応が起こるため、メッシュを通して電流が流れやすくなる。このため低周波ではメッシュの間の水層でなく、メッシュを通して流れる電流が増加するが、この電流は変位電流成分を含むため、誘電率の増大として観測される。プラスチックは絶縁性なので、電流は常にプラスチックの隙間を流れ、誘電分散も生じない。

電流方向の断面積の小さな針状の電極でも、針の両面にイオンの滞留が生じる。また電極の向きが電流方向に直角でないと、電極の両端で正負のイオンの濃度勾配ができ、分極が生じる。図7(b)で10Hz以下で誘電率がマイナス方向に振れるのは、電位電極の分極の影響と考えられる。10Hz以下の電極分極によるバイアスを避けるため、電位電極をメッシュにして電位電極自身の存在による誘電分散の測定を行った。

[溶存イオンによる複素誘電率の変化]

脱イオン水、およびNaCl溶液の複素誘電率を測定したところ図8のようになつた。NaCl濃度により電気伝導度 σ が変わり、 σ に比例して緩和周波数が変化していることが分かる。電位電極間では $\epsilon \propto f^{1.5}$ 、 $\epsilon \propto f^{0.5}$ 、 $\epsilon \propto f^{1.0}$ なる誘電分散が生じている。図7(b)で電位電極の分極に起因するバイアスに隠れる低周波領域では、このような現象が観測されると思われる。

以上より、ステンレスメッシュと水の固液界面の存在により誘電分散が生じること、その誘電分散は以下の性質を備えることが分かった。

- (1) 周波数の違いにより $1/f$ 型分散、および類似した誘電分散が観測される。
- (2) $1/f$ 型分散はイオン導体中に界面が存在する場合に発現する。
- (3) $1/f$ 型分散のスペクトルにおいて電気伝導度 σ と周波数 f の変換則が成立する。つまり $1/f$ 型分散の複素誘電率スペクトルは、 $\epsilon^* = A(f/\sigma)$ の形にかける。

(C-2) 複合界面による不均質系の誘電物性

[固液複合系の誘電分散の測定]

土壤試料、濡らしたガラスピーブや砂などの誘電分散を測定し、個々の不均質構造と、それの示す複素誘電率スペクトルの関係を調べた。単一界面で観測した現象が複合界面の形状効果を通してどのように発現するかを調べるとともに、複素誘電率スペクトルを規定する構造パラメーターを調べる。

表面を濡らしたガラス、砂、あるいは完全に水につけたものは、 $\epsilon' \propto f^{1.5}$ となる誘電分散を示した。これは水の二極法測定で観測されるスペクトルと同じであり、固液界面の容量的性質を表していると考えられる。一方土壤試料では $1/f$ 型誘電分散が観測された。

土壤試料はサブミクロンオーダーの細粒からなり、粒界水もミクロン以下の厚さになる。電気二重層の厚さはサブミクロン程度であるため、その粒界水はバルクとは異なる物性をもつと考えられ、これが $1/f$ 型誘電分散の発現に密接に関連しているのかもしれない。

(B,C-1, C-2) アクロス計測による複素誘電率測定とバルク物性、界面物性測定の例：土壤サンプル [概要]

15年度の研究で開発した測定法、解析法を用いた研究例として、土壤サンプルの複素誘電率測定結果を報告する。

[測定と界面アドミッタンスの評価]

ステンレスメッシュ電極と試料セル(セル定数0.10 m)を用いた土壤試料の測定結果を図3に示す。さらに先に述べた手順で $Y_{in}(Y_{in})$ を推定した。 $Y_{cl}(Y_{cl})$ と Y_b のセル定数の補正にはそれぞれの1kHzでの絶対値を用いた。図4に結果を示す。測定誤差の大きなangle(Y)、 ϵ^* の実部のみ誤差棒をつけた。

図2(b)の Y_b に相当するバルク部では $1/f$ 型誘電分散が観測された。一方 $Y_{cl}(Y_{cl})$ では $\epsilon' \propto f^{1.5}$ なる誘電分散が観測されたが、これは次のように解釈される。

[界面アドミッタンスの解釈]

キロヘルツ以下の低周波では、電流電極表面では電気二重層が形成され、電気化学反応を介した電

荷移動が起こる。このため低周波では Y_{el} には電気二重層の持つ界面アドミッタンス Y_{if} の性質が強く現われる。 Y_{if} の性質は電気化学の分野でよく研究されており、その現象論的モデルとしてFaraday Impedanceが提出されている。

これは界面の容量的性質をあらわす仮想素子constant phase element(CPE)、電極-溶液界面での電気化学反応を表す反応抵抗 r 、反応生成物の拡散を表すWarburgインピーダンス Z_w の三つの素子からなる。ここで $Z_w = s(j\omega)^{-1/2}$ であり、CPEはアドミッタンス $Y_{CPE} = (j\omega)^n C$ を持つ。測定された Y_{el} をよく表すRandles等価回路のパラメーターを求めるとき、 Z_w は r に比べ小さく、 Y_{if} はCPEと反応抵抗の並列回路で近似できることがわかった。このとき、

$|Y_c| \propto f^\alpha$, $\text{angle}(Y_c) = \beta = \text{const.}$, ただし $\alpha = \tan^{-1}(in)$, $\beta = \text{angle}(in)$
という関係が導かれるが、これは観測された Y_{if} の特徴と符合する。

このように、観測された界面アドミッタンス Y_{if} は定性的、定量的に理解でき、 Y_{if} の推定が妥当であることが分かった。

[バルク部で観測された1/f型誘電分散]

一方、バルク部の1/f型誘電分散については、過去の研究でも定性的な説明はなされていないが、鉱物粒子と水の固液界面での電気二重層の形成と電気化学反応がその本質であると考える。(前出「固液界面の存在により誘発される誘電分散の観測実験」参照)。

(B、C-1a) 固体イオン伝導体の複素誘電率測定

[概要]

誘電分散を物質科学的に検証するため、固体イオン伝導体の複素誘電率測定を行った。固体試料では、温度変化によるイオンの移動度の制御、高温での電場印加により形成したイオンの濃度勾配を常温下で保存して測定することなどが可能である。

[固体イオン伝導体の複素誘電率測定]

イオン伝導性鉱物の例としてonyx (CaCO_3)およびパイレックスガラスについて、200-400 °Cにおける複素誘電率を測定した。板状試料の両面に銀ペーストを塗布して電極とし二極法で測定を行った。結果を図9に示す。周波数をシフトさせるとすべてのスペクトルが重なった。電気伝導度のアレニウスプロットをしたところ、図10のようにアレニウス則 $\sigma = \sigma_0 \exp(-E_a / k_b T)$ (k_b はボルツマン因子、 E_a は活性化エネルギー、 σ_0 は定数)の成立することが分かり、活性化エネルギー E_a は約0.2 eVと求まった。

以上より、次のことが結論される。

- (1) 固体イオン導体において、明確に1/f型誘電分散が存在することを確認した。
- (2) 誘電分散に周波数と温度の変換則 (law of correspondence between frequency and temperature)が成立することを確認した。
- (3) ここで扱った資料では、イオン伝導の活性化エネルギーの値は0.2 eVであり、構造水由来の H^+ の伝導を示唆する。

4. 平成14年度のまとめと平成15年度の研究計画

以上の研究成果を表1の研究計画に再整理し、15年度の研究計画の概要を記す。

○14年度の研究成果

- ・ 課題(B) 複素誘電率測定手法の確立
 - 測定システムを作成し、当初の予定を完了した。
- ・ 課題(C-1) 単一界面の電気化学物性、(C-2) 複合界面による不均質系の誘電物性
 - 一部の項目を実施し、一定の成果を挙げたが、次年度継続して実施する項目を残した。
 - (C-1a) 界面電気化学現象の理解
 - ・ 「固体イオン伝導体の複素誘電率測定」を行い、電気伝導度の熱活性化エネルギーを求め、電気伝導に関するイオン種の推定を行った。また固体イオン伝導体へのイオンドープによる複素誘電率変化のドープに取り掛かったが、結果を出すまでに

至らなかった。

➢ (C-1b) 界面電磁物性の定性的理解

- ・水などの各種試料の複素誘電率測定を行い、電流電極表面の電気二重層のアドミタンスを推定し、これが Faraday Impedance により説明されることを確認した。
- ・「固液界面の存在により誘発される誘電分散の観測実験」により、固液界面の存在により誘電分散が起こることを示した。固液界面でのイオンの濃度勾配により起こる電気化学反応がその原因であることが示唆された。
- ・固液界面でのイオンの濃度勾配の形成と化学反応の進行過程のモデル作成は未着手。

➢ (C-1c) 複素誘電率測定と $1/f$ 型誘電分散の現象論的理

- ・「固液界面の存在により誘発される誘電分散の観測実験」において、水の中の NaCl 濃度により複素誘電率の緩和周波数の変化が起こることが分かった。

➢ (C-2a) 単一界面の物性モデルの不均質系への拡張

- ・土壤サンプル、砂や、含水岩石の模擬試料（ガラスピース）を用いて不均質構造と複素誘電率スペクトルの関係を調べた。粒径が小さいことが、 $1/f$ 型誘電分散の発現に重要であることが示唆されたものの、構造と複素誘電率の関係のモデル化の手がかりはまだ得られていない。

➢ (C-2b) 不均質系の誘電率測定と素過程に基づくモデル化

- ・未実施

○ 15 年度の研究計画

- ・課題 (C-1)、(C-2) を継続して実施する。

➢ (C-1) 単一界面の電気化学物性

- ・現象を定式化しやすいモデル実験を企画し、固液界面でのイオンの濃度勾配形成と電気化学反応のモデル化を行う。イオン伝導性の異なる層構造の誘電分散を測定し、一次元構造の物性測定とモデル化を目指す。

➢ (C-2) 複合界面による不均質系の誘電物性

- ・岩石模擬試料の複素誘電率測定を行う。単一界面の物性と不均質系の物性を比較し、複合界面の複素誘電率を規定する不均質構造パラメーターの抽出とそのモデル化を行う。幌延堆積岩試料など、含水岩石試料の測定を行い、岩石試料と岩石模擬試料の物性を比較する。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

- ・平成 15 年度は、研究計画に従い、課題(C-1)、(C-2)に取り組む予定である。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- ・Matsumoto, H., Shigeta, T., Kumazawa, M. and Nakajima, T. Study of dielectric dispersion of ionic conductors using ACROSS measurement system. IUGG2003 で発表予定
- ・松本裕史、茂田直孝、熊沢峰夫、中島崇裕. 「水の遠隔電磁探査における誘電分散の基礎研究」. 2002 年度 CA 研究会報告書

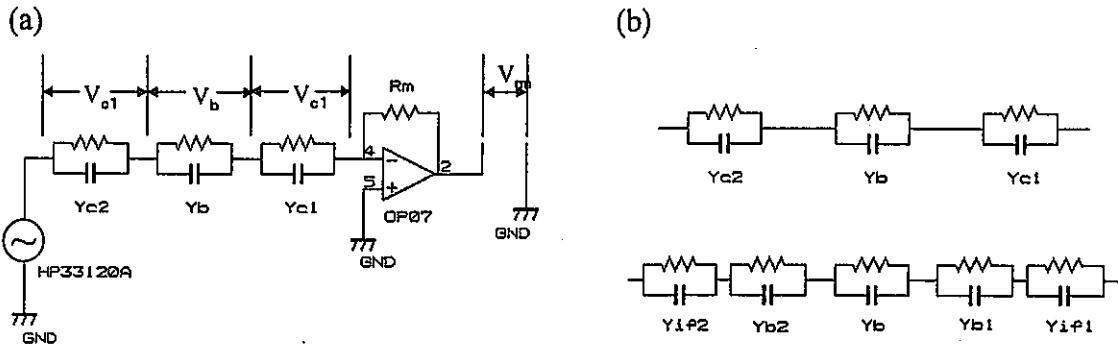


図1 (a) 测定回路 (b) 测定されるアドミッタンス (上段) と界面アドミッタンス、バルクのアドミッタンスのモデル

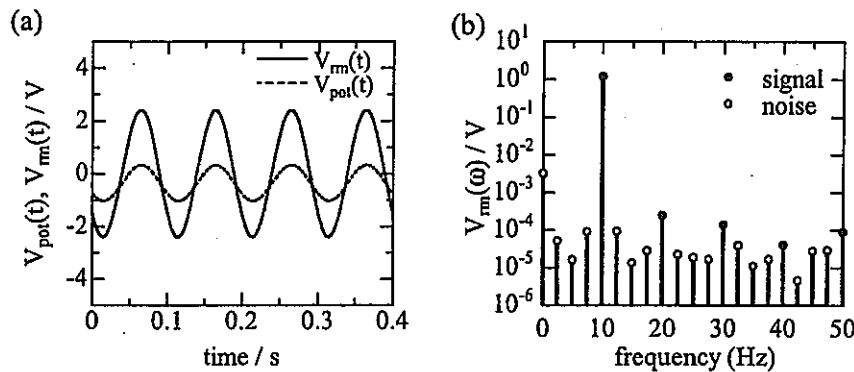


図2 アクロス測定とデータ処理。(a) 测定された電圧電流波形と (b) FFT で得られたスペクトル。

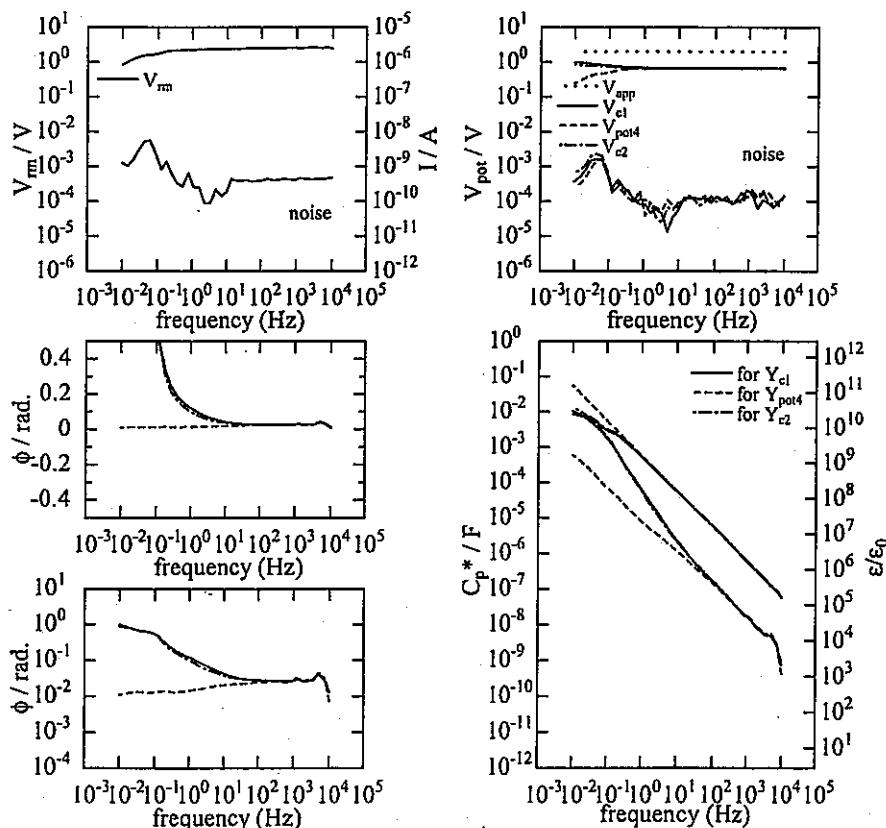


図3 アクロス計測による土壌試料の複素誘電率測定結果

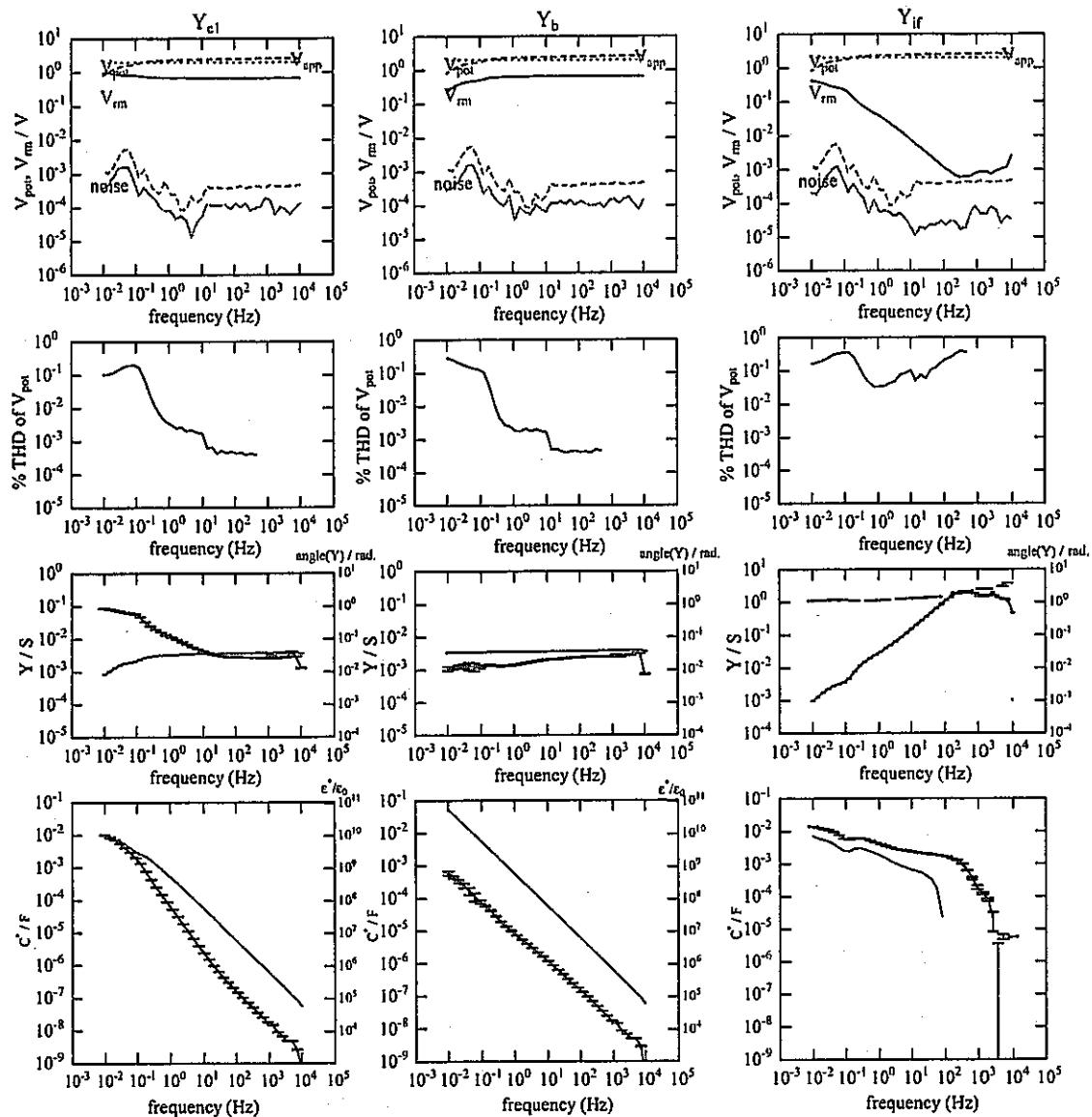


図4 土壤試料で測定されたバルク物性と界面物性。

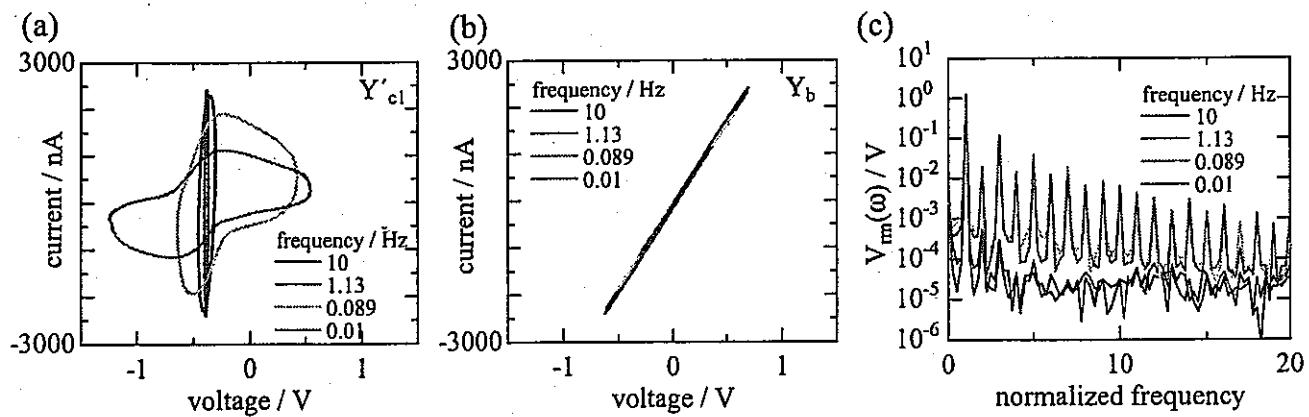


図5 土壤試料の測定における界面、およびバルク部のボルタモグラム、および電流スペクトル

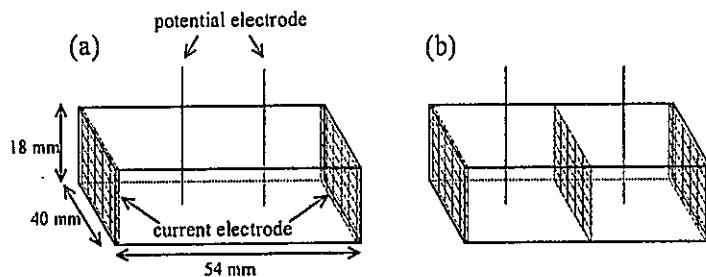


図6 試料セルと電極。(a)バルクの水の複素誘電率測定。(b)金属メッシュと水の界面の物性測定。

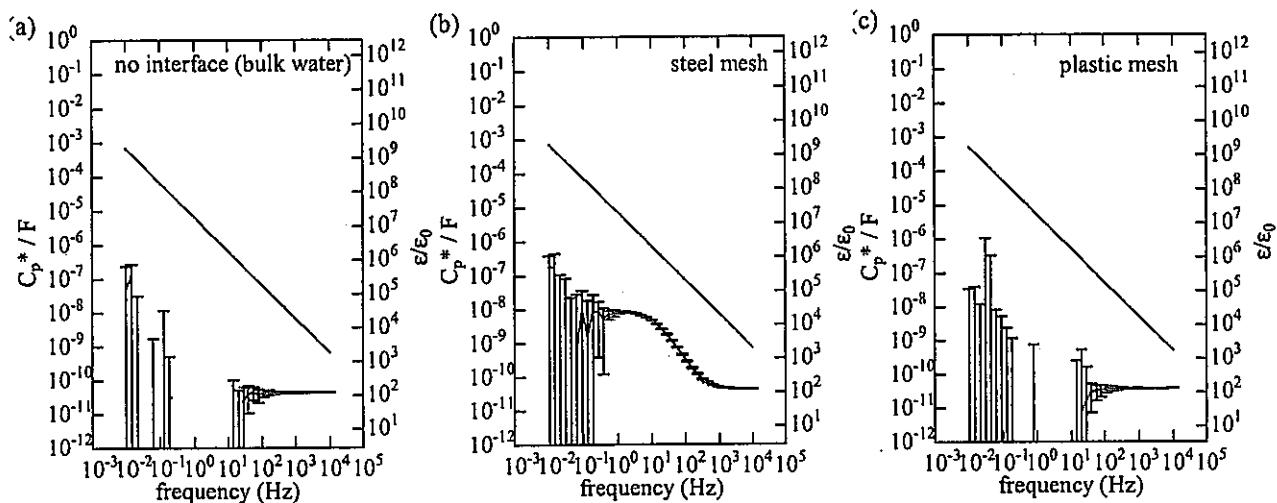


図7 (a) 四極法で測定した水の複素誘電率。(b)電位電極間に金属メッシュを挟んだ場合の測定結果。(c)電位電極間に樹状プラスチックを挟んだ場合の測定結果。S/Nが約3桁のデータなので、複素誘電率の実部と虚部の差が3桁以上になると急激に誤差が大きくなっている。

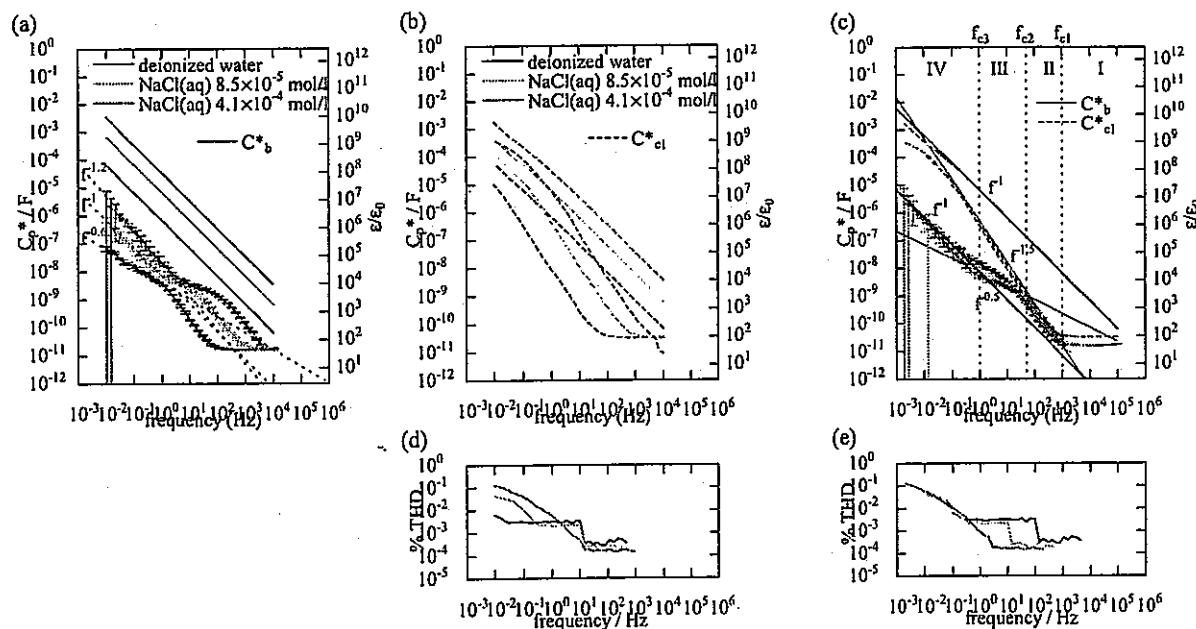


図8 金属一水界面の存在により誘起される1/f型誘電分散。ステンレスメッシュの電位電極をもちいて四極法形式の測定を行った。

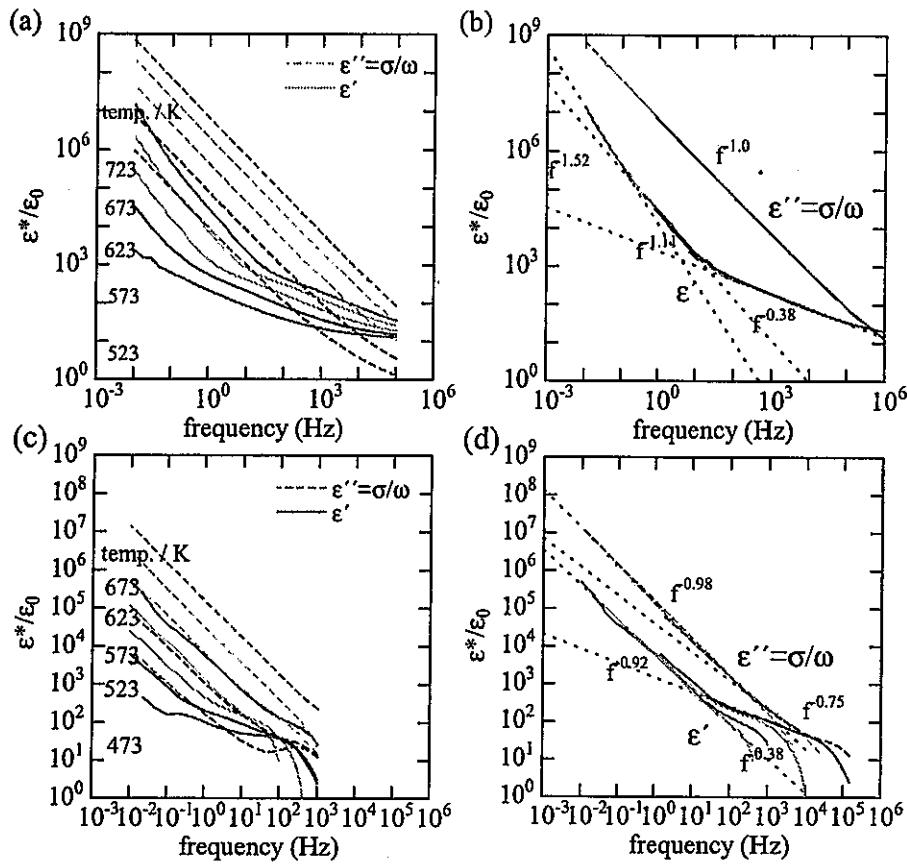


図9 (a)二極法で測定されたガラスの複素誘電率。 (b)各温度でのスペクトルを電気伝導度 s で規格化したもの。 (c)、(d) onyx についての結果。

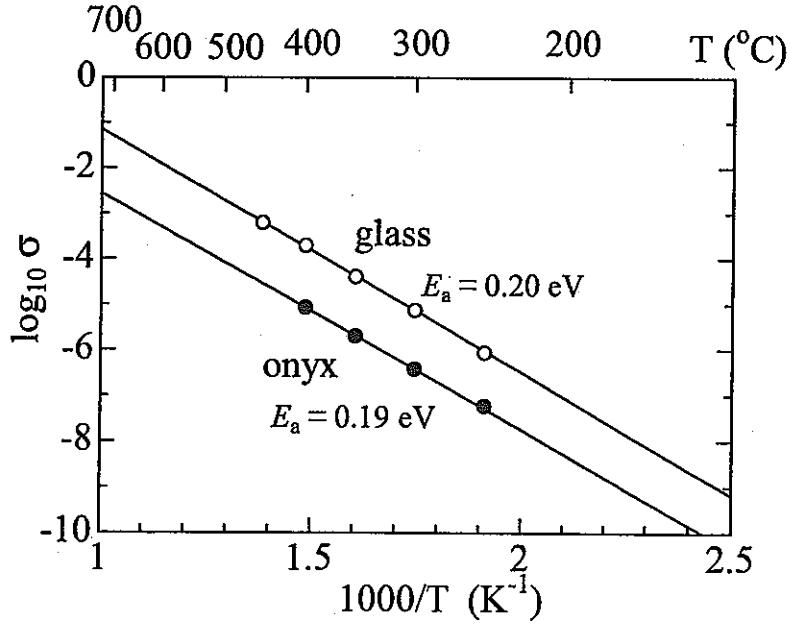


図10 ガラス、onyx の電気伝導度のアレニウスプロット。

博士研究員（H13）平成14年度研究概要報告書

研究テーマ	コロイドの固相表面への付着現象を考慮した多孔質媒体中でのコロイドの移行メカニズムの解明および核種移行評価モデルの開発		
研究者氏名	鎮守 浩史		
研究協力者 所属・氏名	東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部 処分バリア性能研究グループ 吉川 英樹	所属長 役職・氏名	処分バリア性能研究 グループ GL 油井 三和
研究実施場所	東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部 地層処分基盤研究施設		
通算研究期間 (予定)	平成 13年 4月 ~ 平成 16年 3月	当該年度 研究期間	平成 14年 4月 ~ 平成 15年 3月

【研究目的】

放射性廃棄物地層処分システムの性能評価において、核種の形成する真性コロイドや、地下水コロイドに核種が収着して形成される擬似コロイドが核種移行に与える影響を考慮することが重要であるが、これまでにはその影響を適切に考慮した評価は行われていない。本研究では、現段階の知見が少ない多孔質媒体中におけるコロイドの移行挙動について、特に系の諸条件から受ける影響が大きいと考えられる、移行コロイドの固相表面への付着現象のメカニズムを解明することで、このメカニズムに基づいた核種移行評価モデルの開発に資することを目的とする。

【研究内容（概要）】

固相として、ガラスピーブ充填カラム等の模擬多孔質媒体や堆積岩等の実岩石を用い、コロイドとして、ポリスチレンラテックス粒子等の標準コロイドやベントナイト粒子等の天然コロイドを用いて、カラム試験およびバッチ試験、ならびに固相表面上の付着コロイドの観察を行う一方で、コロイド-固相表面間の相互作用ポテンシャルおよびコロイドの付着量に関する解析を行い、付着メカニズムを明らかにする。さらに、このメカニズムに基づいた核種移行評価モデルの開発のため、模擬核種として用いる非放射性核種を単独で存在させた系、あるいはコロイドと共存させた系におけるカラム試験および、核種のコロイドへの収着性を確認するためのバッチ試験を行う。各々の試験や観察においては、固相媒体の空隙率、固相表面の不均質性、コロイドの種類と粒径、溶液のイオン強度、流速等のパラメータの影響を調べることにより、メカニズムの解明およびモデルの構築を行う。

【使用主要施設】

地層処分基盤研究施設(ENTRY) 第二試験棟内 COLLOID エリア

<主な使用設備・装置>

- コロイド移行試験設備：送液システム
- 表面観察装置：光学顕微鏡
- コロイド溶液分析装置：分光光度計

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成13年度は、①「コロイドの固相表面への付着現象を考慮した核種移行評価モデルの開発における重要因子の抽出と整理」、②「コロイド-固相間物質移動係数の推定に関する考察」、③「平行平板間流れ場中における固相表面上の付着コロイドのその場観察」、④「固相球充填カラムを用いたカラム試験」、⑤「付着・脱離係数の推定」を実施した。

平成14年度は、⑥「平行平板間流れ場および多孔質媒体中の流れ場におけるコロイドの付着量に関する検討」、⑦「コロイドの固相表面への付着現象観察」、⑧「固相球充填カラムを用いたカラム試験」、⑨「付着係数の評価」を実施した。

【研究成果（当該年度）】

平成14年4月から平成15年3月までの研究成果（上記実施内容の⑥～⑨）の概要をまとめる。

⑥「平行平板間流れ場および多孔質媒体中の流れ場におけるコロイドの付着量に関する検討」

昨年度までに報告した通り、本研究の全体としての目的である、コロイドの固相表面への付着現象を考慮した核種移行モデルの開発には、既往の多孔質媒体を対象としたモデルで仮定されている、コロイド-固相間の物質移動の取り扱い方（瞬時反応、一次または二次反応と仮定する等）についての検証と、適切な溶質-コロイド間の物質移動の取り扱い方の仮定が重要であると考えられる。本研究の主な検討対象であるコロイド-固相間の物質移動については、既往の研究では、その取り扱い方の仮定が現象の観察で得られた知見に基づいているとは限らない。このことは、固相が不均質な場合だけでなく、均質な場合についてもいえることである。そこで本研究では、コロイドの固相表面への付着現象観察を行い、観察結果をコロイド-固相間の物質移動の取り扱い方に反映させるため、付着の程度を表すパラメータを決定する手法の開発を行った。

本研究では、付着現象のその場観察を平行平板間流れ場の系で実施し、得られた付着量についての結果を、多孔質媒体中でのコロイドの移行過程における付着現象の物質移動係数の評価に適用する。その際、流れ場の異なる系における付着現象を比較することになるため、それぞれの流れ場での付着量を調べておく必要がある。そこで、平行平板間流れ場と多孔質媒体を模擬する固相球充填媒体中の流れ場における固相表面への物質移動をシャーウッド数 Sh で評価することとした。ここで、流れ場の違いのみによる物質移動量の違いに着目するため、コロイドが固相表面の近傍にあり、両者の表面間距離が $\sim 10^2 \text{ nm}$ 程度で働くと考えられる、DLVO 力等の表面間力を考慮せずに、固相表面への単位時間、単位面積当たりの物質移動量を、付着フラックスとして評価した。

まず、付着現象観察を実施する平行平板間流れ場における固相平板表面への物質移動量 Sh_{theo} は、ペクレ数 Pe を用いて、(1)式のように表される¹⁾ (Fig. 1 (a)参照)。

$$Sh_{theo} = \frac{1}{\Gamma(4/3)} \left(\frac{2Pe}{9x} \right)^{1/3} \quad (1)$$

ただし、

$$\Gamma(4/3) = 0.89 \quad (2)$$

であり、流れ方向の座標 x 、平行平板の間隔 $2b$ 、平均流速 v_{mean} 、コロイドの半径 a 、コロイドの拡散係数 Dc 、流量 Q 、流れ場の幅 W 、ボルツマン定数 k 、絶対温度 T 、溶液（純水）の粘性係数 μ を用いて、

$$\bar{x} = x/b \quad (3)$$

$$Pe = \frac{3v_{mean}a^3}{2b^2D_c} \quad (4)$$

$$v_{mean} = \frac{Q}{2bW} \quad (5)$$

$$D_c = \frac{kT}{6\pi\mu a} \quad (6)$$

である。ここで、平行平板間流れ場中の固相平板表面への付着フラックス j_{theo} は、この系において定義されるシャーワッド数 Sh_{def} との関係式³を用いれば、(7)式のように表される。そこで、(7)式により、(1)式で求めた Sh_{theo} の値を Sh_{def} に代入することで、 j_{theo} を求めることができる。

$$j_{theo} = \frac{D_c C}{a} Sh_{def} \quad (7)$$

一方、多孔質媒体を模擬する均一固相球充填媒体については、媒体中の单一固相球への付着現象を考える。局所の付着フラックスを固相球全表面について積分することにより、単位時間、单一固相球当りの付着コロイド数 I は、固相球の半径 R 、流れ方向の軸に対する角度 θ 、固相球が充填されていることによる流れ場への影響を表すパラメータ A_s ³を用いて、(8)式のように表される⁴。簡単のため、固相球表面にコロイドが均一に付着しているものと考えると、単位時間、単位面積当たりの付着コロイド数 (I の平均値) i は、(9)式のように表される (Fig. 1 (b)参照)。

$$I = \frac{A_s^{1/3} D_c C R^{4/3}}{1.15} \left(\frac{3U}{4D_c} \right)^{1/3} \cdot 2\pi \cdot \int_0^\pi \frac{\sin^2 \theta}{\left(\theta - \frac{\sin 2\theta}{2} \right)^{1/3}} \quad (8)$$

$$i = \frac{I}{4\pi R^2} \quad (9)$$

なお、コロイドは单層で不規則に分散して固相表面に付着することが、後述の、⑦「コロイドの固相表面への付着現象観察」において確認されており、液相中に含まれるコロイドの数に比べて、付着するコロイドの数は十分に少ないため、局所の付着フラックスを固相球全表面について積分するという方法は妥当であると考えられる。

以上の解析結果から、平行平板間流れ場における固相平板表面への付着フラックス j_{theo} と、均一固相球充填媒体中の单一固相球表面への単位時間、単位面積当たりの付着コロイド数 i が一致するような試験条件下では、これらの流れ場の異なる系における付着フラックスが等しいと考えることができる。このような条件を設定するためには、試験における流速を、 j_{theo} と i が一致するように決定すればよい。しかし、本研究では、固相表面近傍での流速が与えるコロイドの脱離への影響を考慮して、固相表面上での速度勾配に着目した。固相表面に付着したコロイドは、流体力学的な力を流れ場から受けることにより脱離する可能性がある。そこで、流れ場の異なる系における脱離の影響の差を小さくするために、以下のように試験における流速を設定した。

平行平板間流れ場中の放物線状の速度分布における固相表面での速度勾配は、平均流速を用いて(10)式のように表される⁶。また、均一固相球充填媒体中の単一固相球の表面に着目すると、流れ方向の軸に対して90°の位置での速度勾配は、(11)式のように表される⁴。これらの固相表面近傍での速度勾配が一致するように、付着現象観察およびカラム試験での流速を設定した。

$$\left| \frac{\partial v}{\partial y} \right|_{y=0,2b} = \frac{3v_{mean}}{b} \quad (10)$$

$$\left| \frac{\partial v_x}{\partial y} \right|_{y=0} = \frac{3A_s U}{2R} \quad (11)$$

v ：平行平板間流れ場中の速度

v_x ：固相球充填媒体中の流れ場における球表面での速度の x 成分

試験では、平行平板間流れ場の系で実施した付着現象の観察結果から得られた付着フラックスを、カラム試験で用いる固相球充填カラム単位体積中の全固相球表面積倍し、多孔質媒体単位体積当たりの付着コロイド数の時間変化を求め、付着係数を評価した。この際、試験における流速の設定において、 j_{theo} と i が一致していないことに対する補正を行った(⑨参照)。

Figure 2 には、付着係数の評価手順を示した。室内試験では、均質系に限らず不均質系においても、従来のカラム試験による手法とは独立して、付着現象観察と付着量の理論的考察による手法を用いて、付着係数を得ることができる。今後、原位置の地質媒体を用いたカラム試験結果の解析に、これら二通りの手法により評価された付着係数を適用することで、精度の高い核種移行評価モデルの検証が可能となる。

⑦「コロイドの固相表面への付着現象観察」

昨年度から引き続いて、複数の試験条件下において、コロイドの固相表面への付着現象観察を実施した。Figure 3 に付着現象観察装置概略図を示す。コロイドを付着させる固相には、2枚のガラス平板(49 mm × 29 mm × 厚さ 1 mm) を用い、これらを厚さ 1 mm のゴム板を介して挟んで固定して、固相表面に付着したコロイドの観察用フローセルを作製した。コロイドには、粒径 940 nm の蛍光球形ポリスチレンラテックスコロイドを用い、 10^1 M または 10^2 M の NaCl 水溶液に 20 mg/l の濃度で分散させた溶液として使用した。コロイド溶液は、送液ポンプによりセルの一端から流量 1.3 ml/min (観察部での平均流速は 16 cm/min) で流入させ、その反対側から流出させるようにした。観察は、落射式蛍光装置を搭載した光学顕微鏡に倍率 10 倍または 50 倍の長作動距離対物レンズを装着して行った。この際、蛍光コロイド粒子の励起波長である 468 nm 付近の波長のみを透過するフィルタを通して光を照射し、508 nm の発光波長で蛍光を発するコロイドを観察した。観察したのは上側のガラス平板表面に付着したコロイドで、光学顕微鏡に接続したデジタルカメラで観察画像を適宜撮影した。観察画像はパーソナルコンピュータにより画像解析を行い、付着コロイド数を求めた。固相表面へのコロイドの付着フラックスは、既往の研究による付着コロイド数の時間変化を表すモデル(⑨参照)でフィッティングすることにより求めた。なお、本試験系におけるレイノルズ数 Re は、溶液の動粘性係数 ν を用いて、 $Re = 2b v_{mean} / \nu = 2.7$ であり、(1)式の適用に必要な定常の層流という流体力学的条件を満たしている。また、観察箇所についての制限はないが、流路の入口および出口部での流れの乱れを避けるために、流路の中央部を観察した。これは、既往の研究³と同様である。

⑧ 「固相球充填カラムを用いたカラム試験」

昨年度から引き続いて、複数の試験条件下において、固相球充填カラムを用いたカラム試験を実施した。Figure 4 にカラム試験装置概略図を示す。固相球には、平均の直径が 0.39 mm のガラスピーブーズを用い、内径 1 cm のガラスカラムに、カラム長さ 30 cm の場合は 35 g、10 cm の場合は 12 g を充填した。なお、ガラスピーブーズは試験での使用前に、超音波洗浄器の水浴内で 3×10^1 M の HCl 水溶液と純水による洗浄をそれぞれ順に行つた後、60 °C の恒温槽内で乾燥させた。コロイド溶液には、付着現象観察の場合と同様に、粒径 940 nm のコロイドを、 10^1 M または 10^2 M の NaCl 水溶液に 20 mg/l の濃度で分散した溶液を用いた。流速は、⑥で述べた手法により、3.2 mm/min（流量は 0.10 ml/min）と設定した。流出液をフラクションコレクターで分取した後、分光光度計によりコロイド濃度を測定した。さらに、流入溶液を、コロイド溶液の溶媒と同様であり、コロイドの含まれない 10^1 M または 10^2 M の NaCl 水溶液に切り替えて、付着コロイドの脱離の状況を測定した。

⑨ 「付着係数の評価」

多孔質媒体中のコロイド移行モデルにおける付着現象に関する物質移動係数について、本研究で実施した、付着現象観察結果とカラム試験結果から評価した。評価する物質移動係数は、以下に示す(12)式および(13)式で表される、コロイド—固相表面間の付着および脱離現象を一次反応として考慮したコロイド移行モデルにおける付着係数 k_d である。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - U \frac{\partial C}{\partial x} - \frac{\partial S}{\partial t} \quad (12)$$

$$\frac{\partial S}{\partial t} = k_d C - k_r S \quad (13)$$

C : 液相コロイド濃度、S : 固相に付着しているコロイド濃度、t : 時刻、x : 流れ方向の座標

D : 分散係数、U : 流速（溶液フロントの速度）、 k_d : 付着係数、 k_r : 脱離係数

まず、付着現象観察結果を用いた付着係数の評価について述べる。Fig. 5 に示した観察画像の例（NaCl 濃度が 10^2 M、時間が 240 min の場合）から分かるように、コロイドが単層で不規則に分散してガラス平板表面に付着している様子が観察された。このような観察結果から、コロイドのガラス平板表面への付着フラックスを以下のようにして求めた。既往の研究⁹によると、固相表面の単位面積当たりの付着コロイド数は、付着したコロイドの脱離や、付着したコロイドが後続のコロイドの付着を阻害する、ブロッキングという現象を考慮すると、時間に対して非線型となり、(14)式のように表すことができる。

$$n(t) = \frac{j_0}{\beta} (1 - e^{-\beta t}) \quad (14)$$

$n(t)$: 固相表面の単位面積当たりの付着コロイド数

j_0 : 初期の付着フラックス

β : 脱離およびブロッキングの効果を表すパラメータ

測定した付着コロイド数の経時変化を Fig. 6 および 7 に示した。それぞれの結果は、溶液の NaCl 濃度が、 10^2 M の場合 (Fig. 6) と 10^1 M の場合 (Fig. 7) で、観察領域はそれぞれ、720 μm × 530 μm、138 μm × 104 μm の範囲であったが、ここでは 100 μm² 当りの付着コロイド数 N として示してある。また、測定結果のプロットを(14)式によりフィッティングした曲線を Fig. 6 および 7 中に示した。このフィッティングにより求めた j_0 と β の値はそれぞれ、溶液の NaCl 濃度が 10^2 M の場合が $j_0 = 1.6 \times 10^3$ particles/min · 100 μm²、 $\beta = 1.9 \times 10^{-3}$ 1/min であり、 10^1 M の場合が $j_0 = 1.0 \times 10^2$ particles/min · 100 μm²、 $\beta = 6.9 \times 10^{-4}$ 1/min であった。

一方、Fig. 8 および 9 にはカラム試験の結果を示した。試験結果は、時間を横軸に、コロイドの流入濃度に対する流出濃度の比である C/C_0 を縦軸にとった破過曲線として示した。それぞれの結果は、溶液の NaCl 濃度が 10^{-2} M の場合 (Fig. 8) と 10^{-1} M の場合 (Fig. 9) である。また、Fig. 8 および 9 には、(12)式および(13)式で表されるコロイド移行モデルの数値解析結果を示した。本試験では、流入溶液を、それぞれのコロイド溶液の NaCl 濃度と同様で、コロイドの含まれない 10^{-1} M または 10^{-2} M の NaCl 水溶液に切替えて、付着コロイドの脱離の状況を測定したが、コロイドの有意な脱離は観察されなかった。そのため、(13)式の脱離の項 $k_d S$ を無視して、 k_d の値のみをフィッティングにより求めた。なお、本研究では、これらの破過曲線における C/C_0 の時間変化についての厳密な検討までは行わず、コロイド溶液の流出の初期段階でフィッティングした。

付着現象観察結果から求めた付着フラックス j_0 は、固相平板単位面積当たり、単位時間当たりの付着コロイドの増加数であるので、これを、カラム試験で用いた固相球充填カラム単位体積中の全固相球表面積倍することにより、(13)式の $\partial S / \partial t$ に相当する、多孔質媒体単位体積当たりの付着コロイド数の時間変化を求めた。この際、試験における流速の設定において、 j_{theo} と i が一致していないため、 j_{theo} に対する i の比を j_0 に乘じるという補正を行った。厳密には、(7)式と(9)式により求められる j_{theo} と i に関する詳細な検討もさらに必要であるが、この補正是、現時点ではおむね妥当であると考えられる。また、カラム試験の結果から、脱離が無視できることから、(13)式の脱離の項を無視し、 $\partial S / \partial t$ が $k_d C$ に等しいものとして、 C の値にコロイド溶液の流入濃度を代入することで k_d を求めた。

Table 1 に、カラム試験と付着現象観察から得られた k_d の値を示した。これらの結果は、付着現象観察結果を用いることにより、カラム試験結果の破過曲線にコロイド移行モデルでフィッティングさせるという従来の手法とは独立した手法で、多孔質媒体中のコロイドの移行挙動を記述する移流分散式中におけるコロイドの付着係数が得られ、これらの値と、従来の手法により得られた値との相違が 2 倍以内程度となったことを示している。このことから、本手法は適用可能性を有していると考えられる。

本研究では固相として均質媒体を用いたが、付着現象観察は、固相に岩石薄片などの不均質媒体を対象として行うことも可能であり、固相表面の凹凸と付着位置の関係を調べて、付着現象についての知見を得るとともに、付着係数を推定することができると思われる。

参考文献

- 1) Adamczyk, Z. and van de Ven, T. G. M.: Deposition of particles under external forces in laminar flow through parallel-plate and cylindrical channels. *J. Colloid Interface Sci.* **80**, 340-356 (1981).
- 2) Sjollema, J. and Busscher, H. J.: Deposition of polystyrene particles in a parallel plate flow cell. 1. The influence of collector surface properties on the experimental deposition rate. *Colloids Surfaces* **47**, 323-336 (1990).
- 3) Happel, J.: Viscous flow in multiparticle systems: slow motion of fluids relative to beds of spherical particles. *Am. Inst. Chem. Eng. J.* **4**, 197-201 (1958).
- 4) Levich, V. G.: *Physicochemical Hydrodynamics*, Prentice Hall, New Jersey, 80-87 (1962).
- 5) Dabros, T., van de Ven, T. G. M.: Kinetics of coating by colloidal particles. *J. Colloid Interface Sci.* **89**, 232-244 (1982).

【成果の反映状況】

当初計画では、平成 15 年度も研究を実施する予定であったが、当初の研究目標の主要な項目に関し、実施方法を変更することにより、当初計画より早めに達成し、研究の区切りをつけることができたため、当初計画より前倒しで平成 15 年 4 月で終了した。

本研究で得られた研究成果は、核種移行評価モデルにおいて必要となる、コロイドの固相表面への付着の程度を表すパラメータを決定するための新たな手段として適用可能と考えられる。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

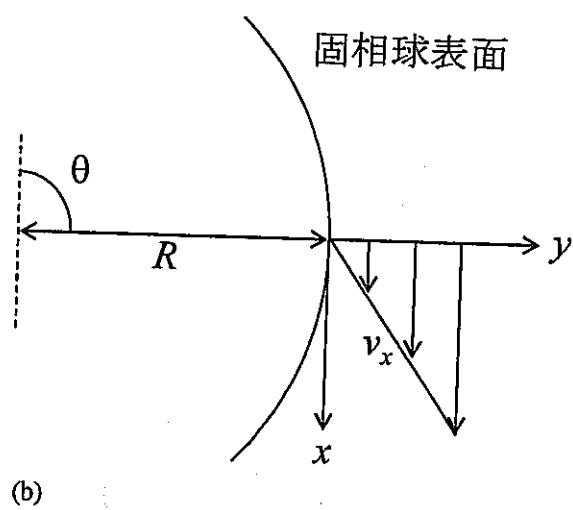
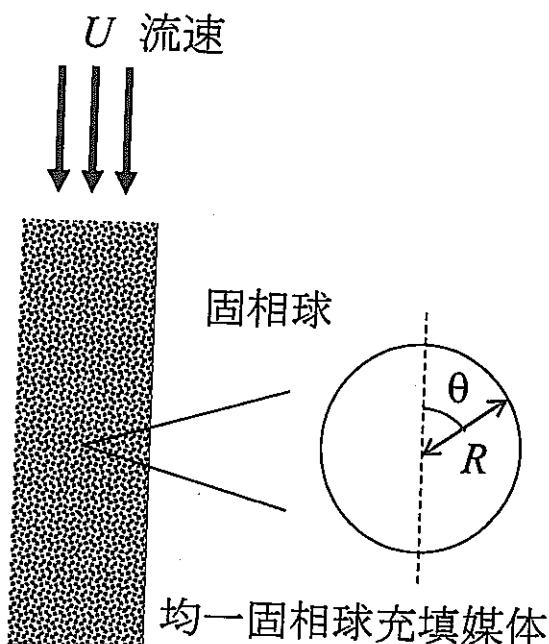
〈研究論文〉 鎮守浩史, 油井三和, 多孔質媒体中のコロイドの移行過程における付着係数の評価手法, 原子力バックエンド研究, Vol.9, No.2 (2003)

〈学会発表〉 鎮守浩史, コロイドの付着における物質移動係数の新たな評価手法の適用, 日本原子力学会バックエンド部会主催 第 18 回バックエンド夏期セミナー, 2001 年 8 月 1 日~2 日, 新潟東映ホテル
鎮守浩史, 油井三和, コロイドの移行過程における付着係数の評価手法, 日本原子力学会 2003 年春の年会, P7, 2003 年 3 月 27~29 日, アルカス佐世保, 要旨集(第Ⅲ分冊) p. 927

平行平板間流れ場



(a)



(b)

Fig. 1 Schematic description of the flow field in a parallel-plate channel (a) and the flow field on the surface of a single solid particle in a packed-bed column (b).

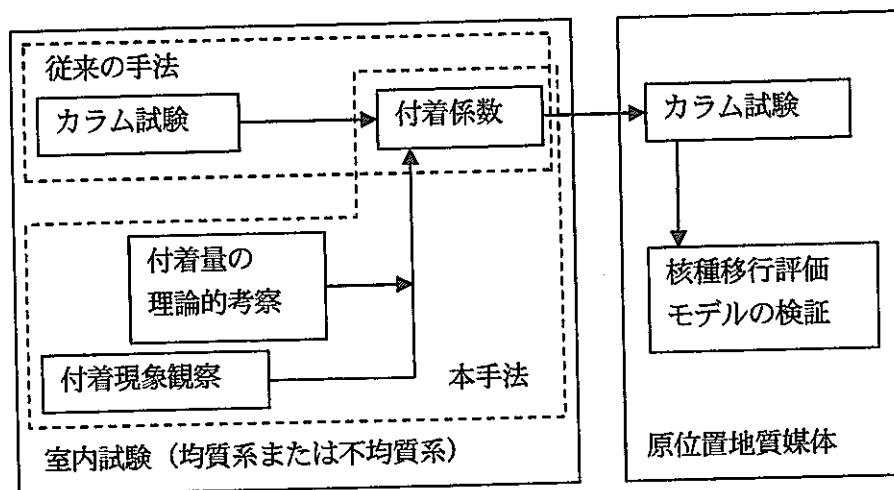


Fig. 2 Evaluation procedure of deposition coefficients in colloid transport.

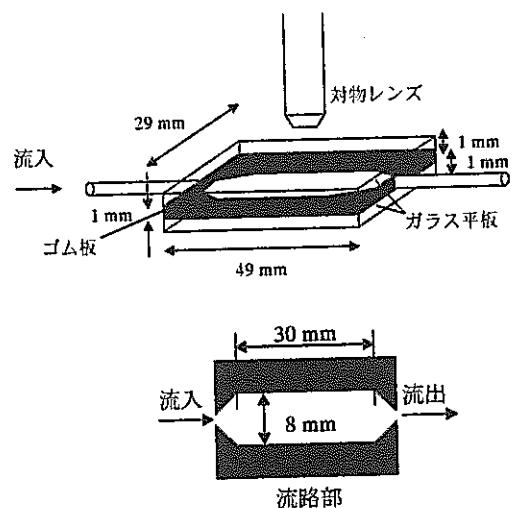


Fig. 3 Schematic description of the parallel-plate flow cell.

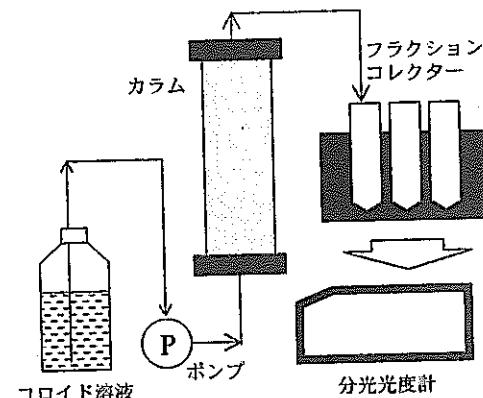


Fig. 4 Schematic description of the packed-bed column system.

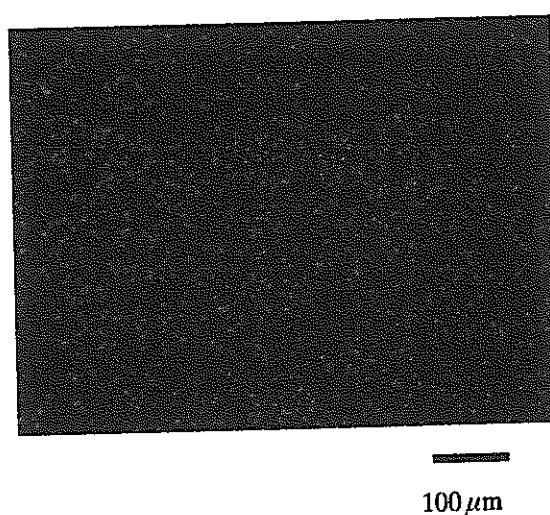


Fig. 5 Observed colloid particles deposited on glass plate. (NaCl concentration: 10^{-2} M, time: 240 min)

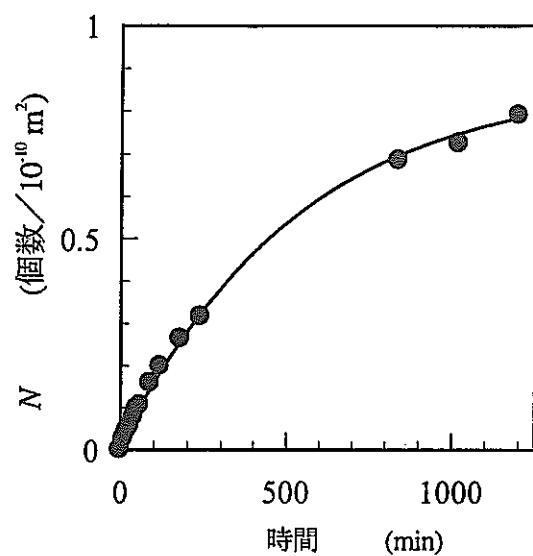


Fig. 6 Number of deposited latex particles N (particles/ $100 \mu\text{m}^2$) as a function of time (min). The drawn line is the best fit of Eq. (11) to the data points. (NaCl concentration: 1×10^{-2} M)

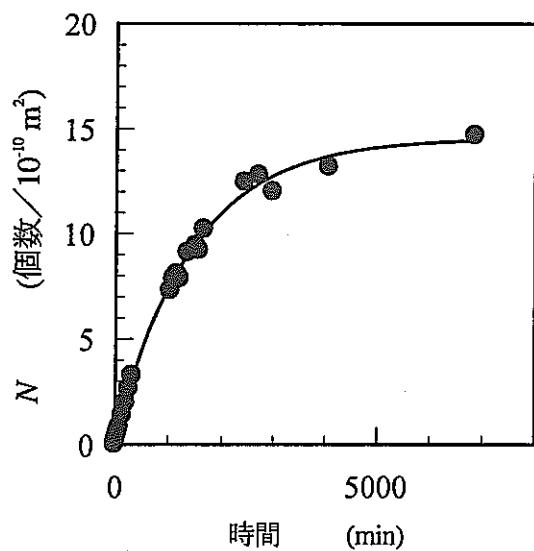


Fig. 7 Number of deposited latex particles N (particles/ $100 \mu\text{m}^2$) as a function of time (min). The drawn line is the best fit of Eq. (11) to the data points. (NaCl concentration: 1×10^{-1} M)

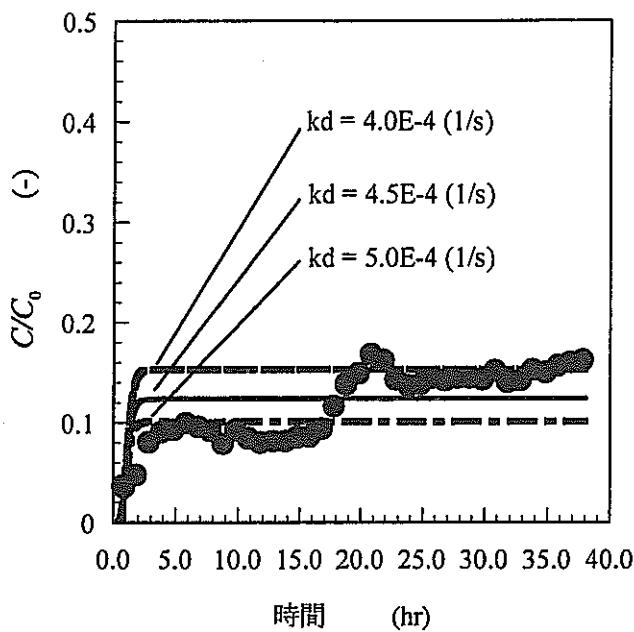


Fig. 8 Breakthrough curve of the latex particles (solid circles) with fitting results by the colloid transport model with different values of k_d (lines). (NaCl concentration: 10^2 M, column length: 30 cm)

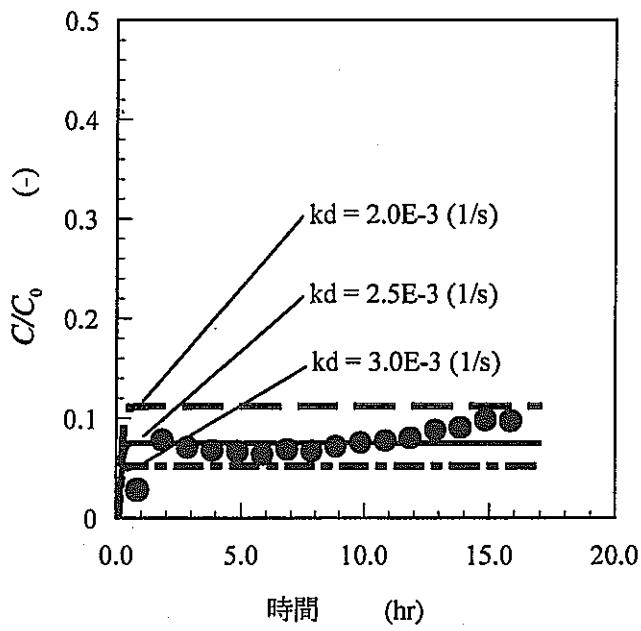


Fig. 9 Breakthrough curve of the latex particles (solid circles) with fitting results by the colloid transport model with different values of k_d (lines). (NaCl concentration: 10^1 M, column length: 10 cm)

Table 1 Deposition coefficients k_d (1/s) evaluated with packed-column experiment and observation of colloid deposition in a parallel-plate channel.

NaCl 濃度	1×10^2 M	1×10^1 M
カラム試験	4.5×10^{-4} 1/s	2.5×10^{-3} 1/s
付着現象観察	2.5×10^{-4} 1/s	1.5×10^{-3} 1/s

博士研究員（H14）平成14年度研究概要報告書

研究テーマ	フェライト系鋼の微細構造制御によるスエリング特性改善と機械的性質の向上に関する研究		
研究者氏名	山下 真一郎		
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, 吉武 康光, 山県 一郎	所属長 役職・氏名	照射材料試験室長 中村 保雄
研究実施場所	大洗工学センター 燃料材料試験部 照射材料試験室		
通算研究期間 (予定)	平成 14年 4月 ~ 平成 17年 3月	当該年度 研究期間	平成 14年 4月 ~ 平成 15年 3月

【研究目的】

サイクル機構では、高速増殖炉の高燃焼度化に伴う炉心構成材料として酸化物分散強化型（Oxide Dispersion Strengthened ; ODS）フェライト鋼およびフェライト/マルテンサイト（F/M）鋼を有力な候補材料の一つとして位置付け、精力的に研究と開発を実施してきた。ODS 鋼では、加速シミュレーション（電子とイオン）照射試験による予備的な耐スエリング性の評価と各種の機械試験による強度特性評価が終了し、耐スエリング性と高温クリープ強度に優れた合金であることが確認されている。一方、F/M 鋼では、中性子照射材と熱時効材を用いて微細構造を主体とした微視的観点からの検討や微細構造変化（ミクロ）と強度特性変化（マクロ）の相関などを系統的に評価する試みがなされている。現時点における ODS 鋼および F/M 鋼の研究開発の課題は、①中性子照射データの拡充（ODS 鋼）、②微細構造変化とスエリング特性の相関の解明（ODS 鋼および F/M 鋼）、③微細構造変化と強度特性変化の相関の解明（ODS 鋼および F/M 鋼）、④フェライト系鋼の照射下スエリング（クリープ）モデルの構築であり、これらを本研究の目的とする。①～③により得られる知見と本博士研究員がこれまでにシミュレーション（電子）照射で取得したパラメータを総合的に補完することで、モデルの構築を試み、最終的には、フェライト系材料のスエリング特性改善と機械的性質向上を期待できる微細構造設計案を提案し、高性能燃料に適用可能な材料の設計に反映できると考える。

【研究内容（概要）】

サイクル機構におけるフェライト系鋼の研究進捗状況は鋼種間（ODS 鋼と F/M 鋼）で異なるため、以下のように鋼種毎の検討項目を設定して研究を進める。

① ODS 鋼に関する研究の概要：中性子照射試料に対して、透過型電子顕微鏡（Transmission Electron Microscope ; TEM）観察と高分解能電子顕微鏡（High Resolution Electron Microscope ; HREM）観察の技術を駆使した詳細な微細構造の解明により、モデル構築に必要なパラメータ（転位密度、照射欠陥クラスターの数密度とサイズ、有効点欠陥濃度、析出物や分散粒子の種類とサイズおよび界面構造など）のいくつかを新たに導出する。また、同時に強度特性（DBTT のシフト、韌性、高温クリープ）との相関を解明するために、上記のパラメータを用いて照射条件（温度、時間、損傷速度）に対する強度特性変化の定量化を図る。最終的には、これらの結果から耐スエリング性や機械的性質向上のためのナノ構造制御法を提案する。

② F/M 鋼に関する研究の概要：中性子照射材と熱時効材を用いて系統的かつ詳細に微細構造観察と機械的試験を行い、析出物の形成挙動（析出物の種類、サイズ分布、形成サイト）と強度特性（DBTT シフト、引張強度）変化の相関関係を明らかにする。また、実用を視野に入れた温度変動型の長時間熱時効材の微細構造観察と強度特性評価も検討対象とする。他の研究対象項目は基本的に ODS 鋼とほぼ同一である。

【使用主要施設】

MMF (FE-TEM (JEM-2010F)) および MMF-2 (TEM (JEM-4000FX))

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 14 年度は、(1) CMIR-4 照射 ODS フェライト鋼の薄膜（再）観察および濃度分析（～H14.6）、(2) SVIR-1 照射 ODS 鋼の薄膜およびレプリカ膜観察、濃度分析（H14.7～H14.12）、(3) 集束イオンビーム（Focused Ion Beam ; FIB）加工装置による微小薄膜 TEM 試料作成法の確立（H15.1～）に従事した。これらの研究により、上述した研究目的の、①中性子照射データの拡充、②微細構造変化とスエリング特性の相関の解明、④照射下スエリング（クリープ）モデルの構築、のための実験的データが取得できたものと考えている。

【研究成果（当該年度）】

(1) CMIR-5 照射 ODS フェライト鋼の薄膜（再）観察および濃度分析（～H14.6）

《研究テーマ全体における本サブ研究テーマの位置付け》

- ・ 中性子照射データの拡充
- ・ 照射下スエリング（クリープ）モデル構築に必要なパラメータの拡充
- ・ 耐スエリング性向上のための高安定ナノ酸化物粒子制御法の検討

背景：平成 9 年度から平成 11 年度の三カ年に亘る先行基礎工学研究（協力課題名：ODS フェライト鋼の照射特性に関する研究）の一環として、炉心材料照射リグ（Core Materials Irradiation Rig）CMIR-4 で材料照射試験を行った薄肉細管 ODS フェライト鋼（1DS, 1DK）の微細組織観察を行い、照射特性を評価した。スエリングや転位組織などの巨視的評価では、本 ODS フェライト鋼が中性子照射後も極めて高い組織安定性を有することが確認されている。しかしながら、ナノサイズオーダーで微細分散する酸化物粒子の微細構造およびその安定性に関しては、取得できたデータの不確定性から十分な解釈には至っていないかった。

実施内容：先に実施した先行基礎工学研究の中で十分な理解に至らなかった分散酸化物粒子の微細構造およびその安定性を明らかにするために、CMIR-4 で照射（Table 1）した ODS フェライト鋼（1DS, 1DK）の詳細な TEM 観察及び EDS 分析を再度実施した。

結果および考察：①分散酸化物粒子は照射条件（温度、照射量）に依存し、異なる照射下挙動を示した。同程度の照射量で温度が異なった場合、粒子の数密度、粒径に大きな差は認められず温度の違いは粒子安定性に大きな影響を及ぼさないことが示された（Fig.1）。一方、照射量が異なる鋼種間での比較では、数密度が低下し、粒径が増加する傾向、いわゆる粒子のオストワルド成長、が有意な差として示された（Fig.2）。なお、1DS, 1DK 鋼の分散粒子の数密度・粒径変化は、他の析出強化型合金と比べて極めて低く、特記すべき事項である。②Ti と Y で構成されている複合酸化物粒子（<30nm）の濃度分析から、粒子表面における Y 濃度の上昇、中心部における Ti 濃度の上昇が認められた（Fig.3）。この酸化物を構成している金属元素比の有意な差は、複合酸化物粒子が三次元的に成分の異なる二相から構成されていることを示唆するものである。

結論：①1DS, 1DK の分散酸化物粒子（ TiO_2 , Y_2O_3 , Ti+Y 複合酸化物）は 21dpa までの中性子照射で、総じて安定であることが確認された。また、②複合酸化物粒子は、二層構造（外層： Y_2O_3 、内層： TiO_2 ）を呈して、フェライト母相内における照射下安定性は極めて高いと考えられる。

成果：サイクル機構で合金開発し、薄肉細管形状の加工に初めて成功した ODS フェライト鋼の中性子照射データを取得した。この照射データとは、具体的に本鋼種（1DS, 1DK）に関する照射下スエリング（クリープ）モデル構築に必要なパラメータである。

(2) SVIR-1 照射 ODS 鋼の薄膜およびレプリカ膜観察、濃度分析（H14.7～H15.3）

《研究テーマ全体における本サブ研究テーマの位置付け》

- ・ 中性子照射データの拡充
- ・ 微細構造変化とスエリング特性の相関の解明
- ・ 照射下スエリング（クリープ）モデル構築に必要なパラメータ（特に、析出物や分散粒子の種類とサイズ）の拡充
- ・ 耐スエリング性向上のための高安定ナノ酸化物粒子制御法の検討

背景：前項（1）の共同研究の範疇では、1DS 及び 1DK 鋼で露見した強度異方性を、再結晶処理あるいは相変態処理により改善を図った組織制御型 ODS 鋼の電子照射も併せて実施している。この加速照射試験では、照射点欠陥クラスター形成・成長の動的観察からスエーリングの温度依存性について知見を得た。また、異なる条件（化学組成、初期組織、メカニカルアロイイング（Mechanical Alloying；MA）時の雰囲気ガス）で製造された ODS 鋼の耐照射特性を比較し、最適製造条件の検討も行っている[1]。

実施内容：材料照射用反射体（Surveillance Irradiation Rig）SVIR-1 で照射（Table 2）した ODS 鋼（Ar-MA マルテンサイト鋼（M93）、He-MA フェライト鋼（F94）、Ar-MA フェライト鋼（F95））および非照射材の微細構造観察用試料（レプリカ膜も含む）を作成し、転位組織、キャビティ（バブル、ポイド）、第二相（分散酸化物粒子や析出物）組織の中性子照射下挙動を評価した。

結果および考察：①転位密度は、いずれの ODS 鋼でも照射前後の変化量は小さく（特に、M93 で顕著）、安定である。これは、初期からの高密度、タングリング状態が転位の回復を抑制したものと推定される。②MA 時に残留した appm (atom parts per million) オーダーのガス元素は、ガス種に関わらず照射前段階からバブル化して母相中に存在していた。中性子照射により He-MA の F94 では、局所的（全組織中の数%の領域）にポイド形成が認められたが、Ar-MA の M93、F95 ではポイドの形成は観察されなかった。③抽出レプリカ膜および薄膜観察結果、EDS 濃度分析結果から、15dpa までの照射において分散酸化物粒子および炭化物（主に $M_{23}C_6$ 型）の形状・大きさ・分散状態・化学組成に照射前後の大きな差異は見られず、SVIR-1 照射条件の範囲において安定であった。高温で照射した M93 では、W をベースとした Laves 相が局所的に形成していることが明らかとなった。

結論：①組織制御型 ODS 鋼は、鋼種に関わらず、照射下の転位組織は安定であった。この傾向は、初期組織がマルテンサイトの場合、より顕著であった。また、②スエーリング（ポイド形成）の低減には MA 時に Ar ガスを用いると効果的であることが示された。③分散酸化物粒子および炭化物は、中性子照射下において安定であった。なお、若干の Laves 相形成が認められたことから、W 添加量の最適化は必要であると考える。

成果：強度異方性改善を図った組織制御型 ODS 鋼で初めての照射データを取得し、モデル構築に必要なパラメータ（特に、析出物や分散粒子の種類とサイズ）を拡充した。各種 MA パラメータを含んだ ODS 鋼の微細構造変化とスエーリング特性の相関に関する実験的なエビデンスを得た。

[Ref.]

- [1] S.Yamashita et al, J.Nucl.Mater.283-287 (2000) 647.

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

《平成 15 年度》①材料学的パラメータを大きく変えた ODS 鋼（非照射材）を用いて進めている陽電子消滅測定により、欠陥濃度評価、及び微小欠陥クラスターのサイズ分布評価を行う予定である。この評価を通じて、ODS 鋼のような複雑な実用型合金系でも有用な実験手段として位置付けられるよう解説・解析手法を確立したい（通年）。②TEM 観察、陽電子消滅測定で得られたパラメータを用いて、現象論的な観点からスエーリングのモデル式構築に取り掛かる。モデル式に対する速度論的なアプローチが必要と判断する場合は、電子を用いた加速シミュレーション照射試験も検討する（下期）。③既得の強度試験結果と照合して、微細構造変化と強度特性変化の相関の解明（ODS 鋼および F/M 鋼）に着手する（下期）。④既得の F/M (PNC-FMS) 鋼の微細構造観察（非照射材、照射材）及びシャルピー衝撃試験+破断面観察（非照射材）結果から、析出物形成挙動と強度特性変化の相関に関して検討を進める（上期）。

《平成 16 年度》①拡充可能な照射データを蓄積しながら、スエーリングモデル式の妥当性を検討する。②照射下スエーリング（クリープ）モデル式構築により、フェライト系材料のスエーリング特性改善と機械的性質向上を期待できる微細構造設計案を提案する。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

“Oxide Particles Stability in Oxide Dispersion Strengthened Ferritic Steels During Neutron Irradiation,” S.Yamashita, K.Oka, T.Yoshitake, N.Akasaka, S.Ukai and S.Ohnuki, *Effects of Radiation on Materials : 21th International Symposium, ASTM STP1447, M.L.Grossbeck, Ed., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 2003 (to be published)*

参照資料 1

Table 1 CMIR-4 照射試料の化学組成および照射条件

鋼種	基本組成 (mass%)	照射温度 (°C)	照射量 ($\times 10^{26} \text{n}/\text{m}^2$)	dpa
1DS	Fe-11.0Cr-2.7W-0.4Ti-0.40Y ₂ O ₃	450	3.6	18.0
		542	3.4	17.0
1DK	Fe-12.9Cr-2.8W-0.5Ti-0.27Y ₂ O ₃	542	4.2	21.0
		561	2.1	10.5

Table 2 SVIR-1 照射試料の化学組成と照射条件

鋼種	基本組成 (mass%)	照射温度 (°C)	照射量 ($\times 10^{26} \text{n}/\text{m}^2$)	dpa	備考
M93	Fe-9Cr-2W-0.2Ti-0.35Y ₂ O ₃	397	0.5	2.5	Ar 中 MA
		497	3.0	15.0	
		534	1.4	7.0	
F94	Fe-12Cr-2W-0.3Ti-0.23Y ₂ O ₃	397	0.5	2.5	He 中 MA
		497	3.0	15.0	
		534	1.4	7.0	
F95	Fe-12Cr-2W-0.3Ti-0.23Y ₂ O ₃	397	0.5	2.5	Ar 中 MA
		497	3.0	15.0	
		534	1.4	7.0	

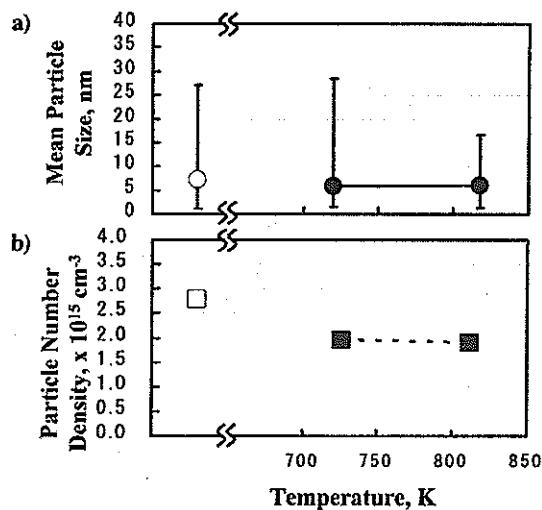


Fig.1 Temperature dependence of a) mean particle size and b) particle number density in 1DS at the same dose level (17.0, 18.0 dpa)

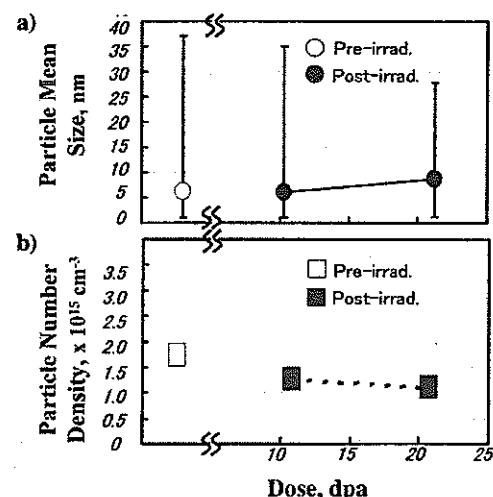


Fig.2 Dose dependence of a) mean particle size and b) particle number density in 1DK at the same temperature level (815, 834 K)

参考資料 2

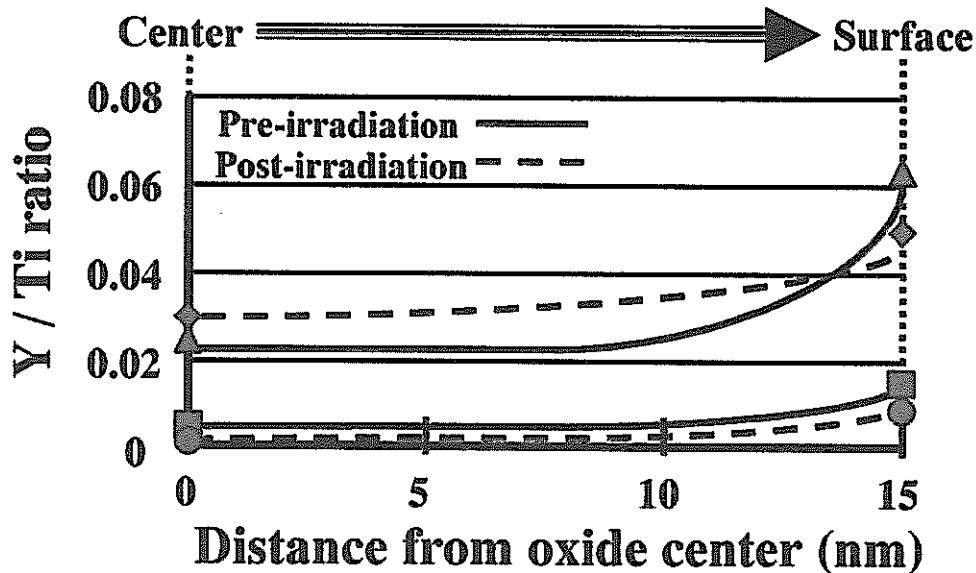


Fig.3 – Yttrium/Titanium ratio of complex oxide particles at the center and surface.

Lines(—) and broken lines (---)mean the results of EDS analysis from the pre- and post-irradiated samples, respectively.

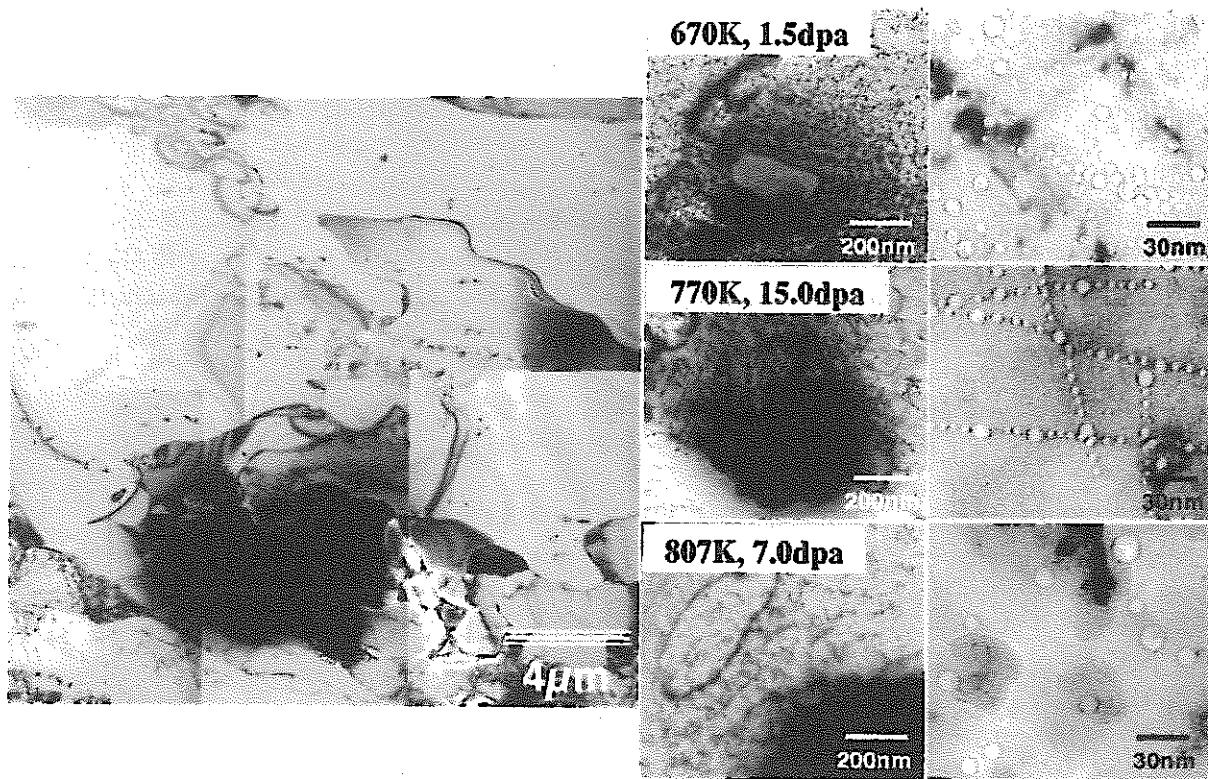


Fig.4 –TEM images of irradiation-induced I/V type clusters of He-MA steel, F94, formed locally in the vicinity of unidentified inclusion . Void aligning along the edge dislocation was recognized at the given irradiation condition.

博士研究員（H14）平成14年度研究概要報告書

研究テーマ	「もんじゅ」 ISI 技術開発における超音波探傷技術の高度化に関する研究		
研究者氏名	徐 陽		
研究協力者 所属・氏名	敦賀本部 国際技術センター ISI システム開発グループ 上田 雅司、田川 明広	所属長 役職・氏名	ISI システム開発 グループリーダー 山下 卓哉
研究実施場所	敦賀本部 国際技術センター 研究棟		
通算研究期間 (予定)	平成 14年 4月 ~ 平成 17年 3月	当該年度 研究期間	平成 14年 4月 ~ 平成 15年 3月
【研究目的】 「もんじゅ」の供用期間中検査(ISI)で用いる原子炉容器(RV)廻り検査装置について、対象機器の体積検査に適用する超音波探傷技術を高度化し、欠陥検出性能の向上を図るため、新型高性能電磁超音波(EMAT)探触子の開発と性能評価及びその信号処理と探傷技術に取り組む。 本研究では、低ノイズレベル、高検出性能の高温用小型 EMAT 探触子及びその信号処理法の実用化を目指す。			
【研究内容(概要)】 本研究では、「もんじゅ」原子炉容器溶接線近傍の非破壊検査に用いる電磁超音波トランステューザ(EMAT)とその探傷法について、下記の検討を行なう。 (1) 現有システムの性能評価 総合機能試験(SKS)のノイズ原因究明と信号処理による欠陥検出性能の向上と安定化を図り、ノイズレベルを1/2以下にすることを目標とする。 (2) 新型高性能 EMAT 探触子の開発 現在、「もんじゅ」検査装置の高度化として検査機本体の重量を半減する計画であることから、EMAT についても重量を半減させながら、従来の検出性能(高温において、探触子単体の場合、板厚の20%相当のスリットをS/N=2以上で検出、検査器に載せる場合、板厚の50%相当のスリットをS/N=2以上で検出)を維持することを目標とする。具体的な研究内容は、 ① 新型 EMAT の設計と最適化：小型軽量化、解析・実験による感度向上の検討 ② 探傷技術による欠陥検出性能の向上：探触子配置と計測性の検討 ③ 信号処理を用い、有効信号の抽出とノイズ信号の除去による欠陥検出性能の向上 である。 なお、②、③に関する検討は現有探触子と新型探触子で共通である。			
【使用主要施設】 ISI 校正建物 本研究を実施するために使用する装置 LeCroy社 wavrunner オシロスコープ LT584M RITEC社 RAM-5000 高電圧探傷器 データ集録と解析用コンピュータ、GPIBボード 中央精機株式会社 ALDシリーズX・YステージALD-230-C2P MMC-K/Jリモートボックス 中央精機株式会社 ALV/ALZシリーズZステージALZ-230-C2P CAT-C 3 axis controller ヤマト科学株式会社 DH-62 恒温器			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 15 年度 3 月までは、

- ①既存 EMAT センサーの構造調査、指向性特性測定、高温特性測定、インピーダンス特性測定
- ②磁石材料の選定、EMAT 試作用材料の調査と注文
- ③SH 波用 EMAT に新しい磁石構造を導入し、その磁気特性解析、超音波指向性特性解析を実施した。

【研究実施状況（当該年度）】

1. 既存 EMAT センサーの性能評価

①既存 EMAT 構造

既存電磁超音波探触子 EMAT(Electromagnetic Acoustic transducer)は、Fig. 9 に示した SH 波 (horizontally polarized shear wave) 用 EMAT の一般的な磁石配置 PPMs(Periodic Permanent Magnets)構造を持ち、隣接角柱状磁石を N、S 極逆向き配置により、1列 16 個の磁石(高さ 20×幅 10×厚み 2.5、単位 : mm)計 2 列から構成され、渦電流誘導(検出)用コイルがプリント基盤上で作製された物である。送受信 EMAT は各自独立構成され、一定角度をなす一体構造で移動し体積検査を担う。送信電気信号が直接受信されないようにステンレス鋼ケースで電気信号を遮断してある。

この構造を軽量化するため、材料選定や構造改良で磁気特性を向上させることにより、磁石部分を軽量化し、さらに外乱電気信号を遮断する金属ケースを軽量化することが考えられる。本報告書では、永久磁石の選定と EMAT 用新型磁石配置の構造検討による磁気特性の向上と超音波強度の向上に関する解析結果について述べる。

②既存 EMAT の指向性特性

体積検査において、EMAT の送受信指向性は検出分解能を左右し、欠陥位置決定に大きな影響を与える。既存 EMAT の相対指向性の実測結果を添付資料-1 の Fig.1 と Fig. 2 に示す。送受信 EMAT の設計上の屈折角は 60° であるが、送信 EMAT は指向性が鋭く、入射角が 45~50° ぐらいで設計目標から離れている。一方、受信 EMAT は 30~80° 範囲内にほぼ均一な指向性を持ち、この範囲内に伝播してきた超音波の受信感度が均一で、広範囲の信号を拾うので、ノイズや擬似信号を受信する可能性が高い。実測の指向性特性が設計目標と異なる原因は、磁石単体の寸法や性能のばらつき、センサ一作製によるばらつきが考えられる、なお、被検体表面において、隣接磁石の境界近傍に渦電流損失が起き、指向性に悪い影響を与えるので、構造改善により部分的磁束密度低減が指向性向上に有利だと考えられる。後述する Halbach 磁石構造は指向性の改善に期待される。

③既存 EMAT の高温特性

高温による熱雑音の増加や磁石の高温減磁による性能低下は、EMAT の高温性能を低下させると予測される。高温における EMAT 性能の把握は新型 EMAT 開発に当たって重要な参考になるので、既存 EMAT の高温特性を計測した。

検査条件：被検体 T=50mm の SUS304 板；検査対象：検査面反対側に位置する深さ 25mm×長さ 25mm の放電加工スリット；超音波周波数：730KHz。室温でスリットからの反射超音波信号を最大にする位置に EMAT をセットし、EMAT を固定した状態で温度を上昇し、受信信号の温度依存性を集録すると同時に、高速フーリエ変換(FFT)で周波数解析を行なった。

Fig. 3 と Fig. 4 はそれぞれ室温(21°C)と高温 200°Cにおける無平均化処理の反射超音波信号及び FFT 解析結果である。ノイズレベルは室温と高温とでは大きな差異が見られない。ノイズ周波数は駆動周波数 730KHz よりやや低めに存在する。信号ノイズ比(SN 値)は室温で約 4、高温で 2.5 程度であるが、50 回平均化処理した結果の Fig. 5 において、高温の SN 値も 5 に達成し、FFT のノイズレベルも小さくなつた。異なる温度による振幅と位相変化を Fig. 6 に示した。温度增加に伴い、受信信号レベルが低下し、位相シフトも見られる。この位相シフトは音速変化によるものと考えられる。

一般的に、SH波 EMATの屈折角 θ は式

$$\sin \theta = \frac{C}{2af} \quad (1)$$

で評価される。ただし、 a はFig. 9に示した磁石の厚み、 C は被検体のSH波音速、 f は周波数である。温度が変化すると、被検体の音速 C が変化し、式(1)により、屈折角 θ も変り、超音波の伝播経路が変化する。つまり、Fig. 6に示した位相シフトと振幅低下は、音速変化による超音波ビーム路程の変化が原因の一つと考えられる。

Fig. 7は温度200°Cにおける反射超音波振幅の駆動周波数に対する依存性である。同図において、溶金及び熱影響部を介して探傷した場合の結果もまとめた。両者共に駆動周波数730kHzより低い周波数の約690~700kHzで最大振幅が現れた。温度によるEMATの指向性(ここでは超音波強度分布の形状を意味する)が変化しないと仮定すれば、この最大振幅が現れた周波数において、超音波の伝播経路が常温経路に回復し、屈折角 θ が常温と同様になると考えられる。実際、温度変化による、音速 C が変化し、EMATの指向性が変化すると考えられ、EMAT位置を走査しながら周波数を変化させ、信号最大値を探索し、高温における最適探傷周波数を決定しなければならない。これは今後の課題である。

Fig. 8にスリットからの反射超音波信号の最大振幅の温度依存性を示した。上の曲線は直接スリットを探傷する場合の信号レベルで、下の曲線は溶金と熱影響部を介して探傷する場合の信号レベルである。全体的に、溶接線を通過した超音波信号レベルが低くなっている。これは溶金と熱影響部の結晶異方性・粗大粒による超音波散乱が原因だと考えられる。図に示した2つの直線はそれぞれ探傷周波数変化に伴う最大反射超音波信号レベルを修正した場合の超音波信号の仮想温度依存性である。この仮想特性から、高温200°Cにおける信号レベル降下は、溶接線を通過する場合と通過しない場合で、それぞれ12%と9%程度である。なお、溶接線の存在による信号レベルの降下は約25%程度である。

「もんじゅ」 ISIにおける被検対象は溶接線近傍の亀裂状欠陥と想定される。溶接線を越えるか越えないかにより、熱影響部近傍の欠陥信号レベルが変化するので、溶金を挟んで両側から検査を行なうのが望ましいが、片側から検査する場合に比べて検査時間が倍以上になるので、効率的にはよくない。従って探傷手法や信号処理により信号レベル低下を補う処理法が期待される。

④既存EMATの常温インピーダンス特性

EMAT の励磁コイルの巻き数、ケーブル特性インピーダンス及びケーブルの接続方法などは、高周波(数百 KHz)における EMAT 送受信インピーダンスを決める重要なパラメータである。EMAT 及び接続ケーブル全体のインピーダンス整合性は、探傷器のパワーを十分に利用でき、EMAT の性能を最適に発揮できるかどうかの要である。従って、既存 EMAT のインピーダンス特性は、新型 EMAT 開発に当たって、重要な参考値があるので明確にする必要がある。

添付資料一2 の計測結果に基づき、常温において既存 EMAT のインピーダンスは既定周波数(730kHz 若しくは 530kHz)において、50~70Ω程度である。この測定はある程度リフトオフ距離を設定した結果であるが、EMAT のインピーダンスはリフトオフ距離に依存するので、検査時に用いたリフトオフ距離に合わせてインピーダンス整合性を行なう必要がある。なお、温度増加に伴い、上記インピーダンスが変化する可能性があるので、使用温度に合うインピーダンスの最適調整が重要である。

2. 永久磁石の選定

「もんじゅ」原子炉容器廻りの ISI は、高温(200°C以上)、高放射線(10^4 Sv 以上)の過酷な環境であり、それに対応できる永久磁石の使用が EMAT 性能発揮の要なので、磁石の選定が重要である。

高性能磁石としてネオジム系、サマリウム・コバルト系磁石が挙げられる。常温状態ではネオジム系は残留磁束密度・保磁力が高く断然有利であるが、キュリー温度が 310~350°C と低く、負の温度係数が高いので、温度上昇に伴う性能低下が激しく、200°C 近傍でサマリウム・コバルト系磁石の温度-磁束密度曲線と交差し、探触子コイル内部の電流による発熱も考慮するとネオジム系の使用

を控えたほうが安全である。サマリウム・コバルト系磁石はキュリー温度が820-920°Cくらい、温度減磁が小さい、磁気性能確保に余裕がある反面、脆いという弱点があり、組立の困難さが予想される。現時点では、使用温度で最高性能と考えられる永久磁石はR33H(信越化学工業株式会社)、H-30SH(日立金属株式会社)が挙げられる。ちなみに、既存EMATに採用された永久磁石はR30H(信越化学)であり、R33Hのほうは10%程度性能が向上している。なお、R33H、H-30SHなどの磁石の主成分が $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ であり、耐放射線(γ 線、ニュートロン)性能が優れて、放射線による減磁率がほぼ0に近いので、探傷環境における性能劣化が発生しないと考えられる。

一方、高温減磁を考慮する場合、磁石構造・用途に合わせて、R33H磁石のみではなく、温度減磁に強いR28HS磁石の使用も考えられる。

3. 磁石の磁束密度分布の解析及び考察

EMATの性能向上と軽量化には、磁気特性を向上させることが必要条件である。このため、単体磁石をはじめ、磁石構造全体の磁気特性を把握し、磁気特性の構造依存性を明確にしなければならない。

永久磁石の磁気特性分布を求めるために静磁場解析を行なった。解析理論の説明は、添付資料-3を参照されたい。解析対象の磁石は角柱状磁石と想定し、紙面垂直方向に寸法無限と仮定して、2D解析を行なった。解析は微分方程式に基づく有限要素解析コードFEMLABを用いた。なお、解析結果は添付資料-4を参照されたい。

ここで、常温における磁石構造の磁気特性について考察する。

①単体磁石の磁気特性解析結果

Fig.11に解析用磁石の形状と解析座標系・評価断面位置を示した。渦電流と相互作用により、有効ローレンツ力を生成するy方向磁束密度 B_y だけを考慮すれば良いので、 B_y の解析結果のみについて考察する。

Fig.12に、細長状単体角柱磁石の B_y 分布を示した。R32H磁石(残留磁束密度は $B_r=1.12\text{T}$)を用いた。(a)は磁極表面からリフトオフ距離0.1-5.0mmの異なる断面における B_y 分布である。磁石表面近傍において横方向の分布範囲は磁石の厚み程度で、リフトオフ距離の増加につれ、 B_y の最大値が減少し、横方向の分布範囲が広がる。距離0.1mmにおける最大 B_y は0.47T程度である。(b)は高さ(磁化方向)寸法Lの異なる磁石の磁束密度 B_y の磁石中心断面(y軸)における分布であり、Lが大きいほど磁束密度 B_y が大きいことが分かった。つまり、単体磁石の場合、磁化方向寸法が大きいほど磁石の磁気特性が強い。

②PPM磁石構造の磁気特性解析結果

Fig.13とFig.14は、Fig.9に示したSH波用EMATのPPM磁石構造(8周期:隣接する磁石が逆向きに配置する2つの磁石は一つの磁石配置周期を構成する)のy方向磁束密度 B_y 分布である。解析条件は、a=2.5mm、L=10mm、R22HS磁石(残留磁束密度 $B_r=0.94\text{T}$)を用いた。解析は対称性を利用し、1/4部分について行なった。Fig.13(b)の B_y コンタ分布は(a)のカラー分布を参照するとより明瞭になる。また、(b)の B_y の方向性分布から各磁石中心部の磁束密度はほぼy方向に揃っていることが分かった。リフトオフ距離の変化に伴い、 B_y が減少する(Fig.14(a))現象は単体磁石の場合と変わらないが、磁石中心断面y方向における磁束密度 B_y 分布(Fig.14(b))は単体磁石と大きく変わった。即ち、磁石の高さ寸法Lが3mmから10mmに変化しても、y方向磁束密度 B_y はほとんど変化しない(L=3mmの場合、多少小さい)。これは多数の磁石配置により、x方向の磁束密度変化が隣接磁石に抑えられ、y方向に磁力線が揃うことによると考えられる。この分布特性により、磁石磁化方向(y方向)の寸法は重要ではなく、磁石製作上、性能のばらつきの許す範囲に、寸法の短い磁石(例えば5mm)でも束にすると寸法の長い磁石と同じように強力な磁気特性を有することが分かった。磁石構造の軽量化においてはこの特性が大きな意味を持つ。

③Halbach 磁石構造の磁気特性解析結果

一方、磁石配置の工夫による磁気特性の向上が考えられる。Fig. 10 は Halbach により提案された加速器分野でよく知られているアンジュレータの挿入光源用磁気回路として知られている磁石構造である。この構造は SH 波用 EMAT の PPM 磁石構造の各磁石の間に横方向に磁化した扁平状磁石を互いに逆向き配置で挿入することにより構成される。この構造の磁束密度が向上する理由は、ワーキング面 (Fig. 10 においては上面になる)において横方向に磁化した磁石の挿入により、磁力線が簡単に隣接磁石に戻れず、より遠回りしてから戻るので、y 方向磁束密度が高くなるものと理解される。

Fig. 15-17 は、Halbach 磁石構造の磁束密度分布と PPM 磁石構造の磁束密度分布の比較である。R32H 磁石 (残留磁束密度は $B_r = 1.12T$) を用いた。構造全体の高さ寸法 (y 方向) が L、縦方向に磁化した磁石の厚みが a、横方向に磁化した磁石の厚みが b で、a+b を固定する状態で、a と b の寸法組合せを変化させながら磁束密度分布の変化を求めた。

比較として、Fig. 15(a) に a=2.5mm、b=0mm の PPM 磁石構造の結果を示した。この図から分かるように、多数磁石配置における磁束密度は単体磁石 (Fig. 12(a)) より 10% 程度大きい磁気特性が得られる。これはすでに説明したように、x 方向磁束密度が隣接する磁石の磁場に拘束され、y 方向に寄与し、y 方向の磁束密度を増大させるとなる。なお、Fig. 15 と Fig. 14 を比較すると、リフトオフ距離 0.1mm 所の最大磁束密度の比は両磁石材料の残留磁束密度の比に近い値になっている。

一方、Halbach 構造の解析例 (a=b=1.25mm) は Fig. 15(b) で示した。ワーキング面近傍で磁束密度が大幅 (1.6 倍程度) に増大したことが分かった。即ち、磁石の量を増加せず、適切な構造設計により磁気特性が増大できる。Fig. 16 は a, b 組合せ変化、或いは L 変化による磁束密度分布の変化を示した。Fig. 16(a) は、L=7mm、a+b=2.5mm を固定し、a と b の組合せを変化させた場合の y 方向磁束密度 B_y 分布である。ワーキング表面において a が大きいほど、磁束密度が小さい。ただし、リフトオフ距離の増加につれ、一部の磁束密度曲線が交差し逆転する。いずれの場合でも、Halbach 構造の磁束密度は PPM 磁石構造より上回る。なお、リフトオフ距離が 1mm 以内で使用する場合、a=1.0mm、b=1.5mm 構造も a=b=1.25mm 構造のように優れた磁気特性を有する。

Fig. 16(b) は、a=b=1.25mm を固定し、L を変化させた場合の Halbach 構造における磁束密度のリフトオフ距離依存性である。+ の記号は Fig. 10 のワーキング表面 (y 軸の + 方向) からの磁束密度分布に対応し、- の記号は Fig. 10 のワーキング面反対 (y 軸の - 方向) 表面からの磁束密度分布に対応する。図の中心部にある縦線は磁石の表面を意味し、線の右側は磁石の外部、左側は磁石の内部を表す。この図から、Halbach 磁石構造の場合でも、磁石の磁化方向 (y 方向) の寸法 L が重要ではないことが分かった。さらに、Halbach 磁石構造において、磁石構造両側に異なる磁気特性を有することが特徴である。ワーキング表面側の磁束密度の増加はその反対側磁束密度の減少を代価として得られ、構造全体の磁気エネルギーが PPM 構造と同様である。

Fig. 17 は磁石高さ寸法 L=7mm を固定し、a=b 同時に変化させた場合における磁束密度のリフトオフ距離の依存性である。a+b が大きいほど、リフトオフ距離の大きい位置における磁束密度が大きい、EMAT のリフトオフによる感度の低下が抑制される。言い換えれば、単体磁石の厚みが増えるほど EMAT の耐リフトオフ特性がよくなる。ただし、磁石構造の軽量化において、実用超音波周波数範囲、超音波屈折角 θ (式(1)) 範囲が超音波探傷条件により制限されるので、磁石厚み寸法の設定範囲が限定される。結果として、数種類の寸法の磁石構造を選択し、解析と実測の試行錯誤で最終磁石構造を決定すると考えられる。

4. 超音波指向性解析及び考察

EMATにおいて、送信探触子の場合、コイルに高周波電流を流すと電磁誘導により被検体内に渦電流が励起され、永久磁石から提供された静磁場との相互作用で、同周波数のローレンツ力が被検体表面近傍に発生し、結晶格子に伝わり、超音波として被検体に伝播する。受信探触子の場合はその原理が逆である。コイルにより生成した磁場は永久磁石の静磁場よりも弱いので、磁場解析と渦電流解析を独立で行ない、ローレンツ力を求めることができる。

超音波指向性解析の理論説明は添付資料-3 を参照されたい。

第3部分でまとめた磁束密度分布の解析結果を踏まえ、さらに渦電流解析を行ない、式(10)によりローレンツ力のピーク値を求め、式(12)の周波数効果を導入して、式(11)から超音波音圧を算出する。なお、本報告書では、超音波音圧の絶対値を論じず、相対的な評価を行なった。

解析ではPPM磁石構造とHalbach磁石構造を有するEMATについて行ない、主な解析パラメータは、磁石配置半周期 2.5mm (PPM磁石構造の場合、 $a=2.5\text{mm}$; Halbach磁石構造の場合、 $a+b=2.5\text{mm}$)、磁石高さ寸法 $L=7\text{mm}$ 、リフトオフ距離 0.5mm を用いた。コイル材料は銅として、導電率 $5.998 \times 10^7 \text{S/m}$ を用いた。被検体材料はSUS304ステンレス鋼で、音速 3120m/s、導電率が銅の 2.4%と仮定した。なお、励磁電流密度は $8 \times 10^9 \text{A/m}^2$ である。

①渦電流分布特性

Fig.18は渦電流解析用モデルを示した。磁石構造のワーキング表面からリフトオフ距離 0.5mm の位置に被検体 SUS304 板材を設置し、コイルは 0.05mm 厚みの銅線と仮定した。Fig.19に示したのは、SUS304 被検体に励起した渦電流密度の深度分布である。横軸は表面からの深さで、縦軸は渦電流密度である。周波数の増大につれ、被検体表面における最大渦電流密度が減少し、浸透深さも減少する。被検体表面における渦電流密度の最大値は励磁電流密度より 2 枝小さい。

②ローレンツ力解析範囲による超音波指向性と屈折角変化特性

超音波音圧は励起されたローレンツ力の相互干渉結果である。ローレンツ力は渦電流と磁束密度の関数である。磁束密度は磁石からのリフトオフ距離の増加につれ減少する一方、Fig.19から分かるように、渦電流密度も被検体表面からの深度増加に伴い、周波数に依存しながらも減衰していく。当然、正確に超音波強度を評価するために、全部の渦電流の影響を考慮するのが正しいが、計算時間が長引く代わりに、計算深度の増加による渦電流と磁束密度の影響がだんだん小さくなると予測できるので、計算時間と解析精度のバランスを全面的に考慮すると、必ずしも被検体全領域に励起された渦電流データを用いる必要がない。すなわち、渦電流の計算範囲による超音波特性の変化特性を明確する必要がある。Fig.20-23に示したのは上記内容を把握するための解析結果である。

Fig.20に、異なる渦電流密度の評価深度によるSH波音圧の変化特性を示した。深度方向の渦電流データの増加に伴い、SH波強度がまず増加しそれから減少し安定していく。これは、Fig.19の渦電流密度分布に対応している。解析構造はPPM構造、解析周波数は700kHz、評価距離はEMAT中心から100mmと10mを用いた。二つの評価距離において、強度の絶対値以外、超音波分布特性はあまり変化しない。

Fig.21は、超音波強度と屈折角のローレンツ力の評価範囲(表面から深さ 4mmまで)依存性を示し、Fig.20からの整理結果である。超音波強度変化は渦電流密度分布と相似し、屈折角は僅かの変化があるが 0.1° 範囲以内に留まる。つまり、超音波伝播方向が渦電流評価深度にあまり依存しない。注意すべきは、数値解析で求めた屈折角は式(1)による算出した屈折角 θ (63.05°)とのずれが存在する。この原因是、超音波音源の分布が異なるからと考えられる。式(1)の屈折角は、距離 a で離れた無限個の多数点音源の干渉により合成した遠距離音場における超音波屈折角である。一方、上記の数値解析結果は独立した多数点音源ではなく、ある体積内における点音源の体積効果があるので、計算結果も異なってくる。なお、浅い渦電流評価深度の解析結果は、式(1)に近い値を示したのは、浅い音源ほど式(1)の仮定条件に近い点音源集合を構成するからである。この点音源集合は渦電流評価深度の増加につれ、式(1)との仮定条件と段々外れ、両者で求めた超音波屈折角の差も拡大する。一方、解析半径も影響因子の一つと考えられる。

Fig.22とFig.23はHalbach磁石構造($a=b=1.25\text{mm}$)における解析結果である。超音波強度はPPM構造より強い。また超音波屈折角の範囲が異なることなど、変化特性が多少異なる。屈折角の異なる原因是、磁束密度分布の異なりによるローレンツ力の分布が異なり、点音源の強度分布が異なるからである。Halbach構造の磁束密度分布はPPM構造より各分布半周期において、中心部が大きく、両側が小さく、式(1)の点音源分布に近い構成になっているので、Halbach構造の超音波屈折角は式(1)に近い値を示す。

このように、ローレンツ力の評価範囲の変化に伴い、超音波強度が変化するが、分布特性はほぼ変化しないし、屈折角も僅かの変化しか見られないので、異なる磁石構造に関する超音波特性の相対比較を行なうにあたり、浸透深さまでの渦電流を用いることで十分評価できると考えられる。

以下の解析はこの趣旨により、浸透深さまでの渦電流だけを注目し、超音波指向性評価を行なう。

③超音波指向性の周波数依存性

Fig. 24 と Fig. 25 はそれぞれ PPM 構造と Halbach 構造の超音波指向性の周波数依存性である。解析半径は EMAT 中心から 100m と 10m の距離で、解析周波数は 700kHz～1.6MHz である。ローレンツ力の評価範囲は渦電流の浸透深さまでの部分を用いた。解析半径 10m の場合、周波数の増大につれ、超音波指向性が鋭くなるが、強度が減少する。これは周波数が高いほど被検体表面に励起される渦電流密度最大値が小さくなり、浸透深さも小さくなるからである。なお、解析半径 100mm の場合、1.1MHz を超えた周波数において、メインロープはサイドロープと同じレベルに退化する現象が観察される。これは後述のように、EMAT において、周波数が高いほど近距離音場限界点が長い特徴があり、1.1MHz 以上の周波数では、100mm が近距離音場範囲に入ることになるからである。一方、解析では、周波数 600kHz 以下において、近距離音場と遠距離音場ともに安定な超音波指向性が見つけなかった。式(1)に $C = 3120\text{m/s}$ と $a = 2.5\text{mm}$ を代入すると、SH 表面波の臨界周波数は 624kHz であることが分かる。周波数が 624kHz 以下になると式(1)から \sin 関数の値が 1 より大きく算出され、実数の θ が存在しなくなるからである。

Fig. 26 は超音波指向性ピーク値と屈折角を超音波周波数の関数として整理しまとめた結果である。周波数の増大につれ、超音波強度が凡そ線形的に減少し、屈折角も減少していく。その周波数変化による超音波指向性の連続変化例は Fig. 27 に示した。650kHz の場合、表面波成分がかなり大きいが、周波数の増大に伴い、屈折角が減少し、表面波成分も減少し、メインロープが鋭くなる。つまり超音波エネルギーが段々集中していく。高周波による材料評価が有利であることを示唆しているが、材料内部の減衰現象を考慮すると、最適周波数範囲が存在すると考えられる。

このように、実探傷において、近距離音場限界点の考慮と適切な超音波周波数の選定は、EMAT を用いた体積検査にとっては極めて重要である。

④Halbach 磁石構造の磁石厚みパラメータ変化による超音波強度の変化特性

Fig. 28 と Fig. 29 に示したのは、磁石配置半周期 $a+b=2.5\text{mm}$ を固定し、 a と b の組合せを変化させた場合、Halbach 磁石構造を有する SH 波 EMAT の超音波指向性特性、および超音波強度と屈折角の磁石厚み寸法 a (Fig. 10 参照) の依存性である。評価距離はそれぞれ 100mm と 10m で、解析周波数は 700kHz を用いた。Fig. 28 から分かるように、超音波指向性を左右する EMAT の構造パラメータは $a+b$ であり、 a と b の異なる組合せは、超音波強度を制御している。なお、超音波屈折角は a 、 b 組合せに多少依存しながらも変化範囲は約 0.3° 程度しかない。これもやはり各構造の磁束密度分布が異なることが原因だと考えられる。なお、Fig. 10 に示した Halbach 構造において、磁束密度分布の周期性を求めるため、横方向に磁化した磁石が Halbach 磁石周期以外に一つ余分に配置されている。上記の屈折角変化は余分に配置された磁石の寸法効果、磁石構造全体の磁気特性分布によると考えられる。700kHzにおいて、100mm と 10m の評価距離における超音波強度は、絶対値以外、超音波指向性に関する大差が見られない。また、 $a=b=1.25\text{mm}$ の Halbach 構造 EMAT における超音波強度は PPM 構造 EMAT の超音波強度の 1.4 倍強も達成している。つまり、磁石材料の量がほぼ一定でありながら、Halbach 磁石構造を用いることにより、EMAT の性能が 1.4 倍も増大することができた。EMAT の性能高度化が可能と示唆している。

なお、Fig. 30 は 50mm を評価距離とする場合の超音波指向性を示した。100mm の結果 (Fig. 28) と比較すると、サイドロープレベルの増大が観察される。これもまた、EMAT を用いた体積検査において、探傷距離に合う探触子特性の評価が重要であることを示唆している。

⑤磁石配置周期数による超音波指向性の変化

Fig. 31 に示したのは、磁石配置周期数変化による SH 波 EMAT の超音波指向性変化である。評価距離はそれぞれ 100mm と 10m である。全体的な特徴として、磁石配置周期数が多いほど超音波強度が大きいし相対的な指向性も鋭い、超音波屈折角も式(1)で求めた角度に近い。同図において、配置周期数 8 の PPM 構造の解析結果も示したが、6 周期の Halbach 構造より超音波強度が弱いことが観察される。なお、配置周期数が 4 の場合、表面波成分が増加し、配置周期数が 2 の場合、指向性が広がることも観察される。つまり、ある程度配置周期数が大きいほうが超音波指向性にとって有利であることを示唆している。

Fig. 32 と Fig. 33 は、異なる磁石配置周期数の EMAT 構造における超音波指向性の周波数依存性を示した。低周波数において、配置周期数が大きいほど指向性が鋭くなり、超音波強度も強くなるが、周波数の増加につれて、配置周期数が大きいほど、サイドロープがメインロープレベルに発達する現象が見られる。すなわち、近距離音場限界点が小さくなると考えられる。

⑥SH 波 EMAT の近距離音場特性

以上の分析により、EMAT の近距離音場特性の把握は、EMAT を用いた材料特性評価や欠陥探傷に重要で不可欠である。

Fig. 34 は SH 波 EMAT の超音波音圧線分布である。解析は、 $a=b=1.25\text{mm}$ の Halbach 磁石構造、磁石配置周期数 8、超音波周波数 700kHz を用い、超音波屈折角(63.275°)に沿って行なった。図面の中央部にある縦線は近距離音場限界点を示し、その左側は近距離音場、右側は遠距離音場である。この場合、近距離音場限界距離が 35.6mm である。近距離音場において、超音波音圧は振動しながら変化し、遠距離音場においては、音圧が一方的に減少していく。これは上記の 700kHz における超音波指向性解析結果(50mm, 100mm, 10m)が一つの強力なメインピークを示す理由である。

なお、Fig. 35 に周波数 700kHz から 1.1MHz 範囲における近距離音場特性を示した。周波数の増加に伴い、超音波音圧が低下するのは、渦電流密度が減少したからである。一方、周波数の増大につれ、近距離音場限界点が増大することが観察される。これは上記求めた高周波数における超音波メインピークがサイドピークレベルに変化した理由である。解析磁石構造($a+b=2.5\text{mm}$)EMAT にとっては、1.1MHz 以上の周波数を用い、100mm を検査距離とする探傷が不適切であることを示した。

Fig. 36 は、異なる評価距離における超音波指向性(音圧)分布である。評価距離の増大につれ、指向性が鋭くなるが、強度が減少し、屈折角も変化していく。この結果は Fig. 37 からより明瞭になる。評価距離の増大に従い、屈折角と超音波強度と共に、最初迅速に減少し次第に減少速度が緩やかに変わっていく。超音波屈折角は探傷距離に依存性することを示した。つまり、実際の探傷において、探傷距離に合った EMAT の指向性特性を把握するのが重要である。

最後に、SH 波 EMAT の全体的な音圧分布特性をより明瞭するため、Fig. 38 のような近距離音場分布の解析を行なった。この解析は周波数 700kHz を用い、2D で行なった。Fig. 38 に示したのは、送信 EMAT の直下に位置する被検体内部における超音波音圧分布である。解析に用いた EMAT は磁石配置周期数 8 であり、近距離音場分布において 1 つのメインロープと 7 つのサイドロープがはっきりと観察される。なお、色分布から、超音波指向性の屈折角方向も予測できる。

5. まとめ

- ① 既存 EMAT の構造特性、高温特性、指向性、インピーダンス特性などを調べ、新型 EMAT 開発に参考とする情報準備を行なった。
- ② EMAT 試作に関する材料、備品の注文を行なった。
- ③ 初めて Halbach 磁石構造を電磁超音波分野に導入し、SH 波用 EMAT の磁石構造とする可能性について解析手法で検討し、明確した。
- ④ Halbach 磁石構造は PPM 磁石構造より強い磁束密度分布を持ち、リフトオフ特性が強く、それを用いた EMAT の超音波強度は PPM 磁石構造の 1.4 倍までも向上できる。つまり、磁石材料の

重量を増やせず、EMAT の性能高度化ができることを示唆した。

- ⑤ SH 波 EMAT の磁石構造全体の高さ寸法 L が 5mm 以上であれば、ワーキングエリアにおける磁束密度分布がほぼ L に依存しない、磁石高さ寸法だけを減少することにより EMAT の軽量化可能を示唆した。
- ⑥ SH 波用 EMAT の超音波指向性(メインロープ、サイドロープの形状など)は、超音波周波数に依存する。近距離音場においてメインロープはサイドロープと区別できず、探傷が不可能になる。従って、探傷実行にあたり、探傷距離に合った EMAT 構造設計および最適周波数の選定が極めて重要である。
- ⑦ 磁石配置周期数は超音波指向性に大きな影響を与え、磁石重量と配置周期数の両方を考慮した EMAT 構造設計が必要である。
- ⑧ 一方、Halbach 磁石構造は扁平状磁石を使用するので、高温環境において、高温不可逆減磁による横方向に磁化した磁石の磁気特性を低下し、構造全体の磁気特性が低下される恐れがあるので、適切な磁石材料の選定、適切な Halbach 磁石構造の設計が高温 EMAT 開発上の重点である。磁石の高温安定化処理を行なうことなどにより高温減磁の影響を低減することが考えられる。

主要参考文献

1. B.W.Maxfield and C.M.Fortunko, "The Design and Use of Electromagnetic Acoustic Wave Transducers (EMATs)", Materials Evaluation, Vol.41, p.1399-1408, 1983.
2. K.Halbach, J.Chin, E.Hoyer, H.Winick, R.Cronin, J.Yang and Y.Zambre, "A permanent magnet undulator for Spear", IEEE transactions on Nuclear Science, Vol. 28, p.3136-3138, 1981.
3. R.B.Thompson, "A Model for the Electromagnetic Generation and Detection of Rayleigh and Lamb Waves", IEEE Trans. On Sonics and Ultrasonics, SU-20, pp.340-346, 1973.
4. B.W.Maxfield, A.Kuramoto and J.K.Hulbert, "Evaluating EMAT Designs for Selected Applications", Materials Evaluation, Vol.45, pp.1166-1184, 1987.
5. R.B.Thompson, "Physical Principles of Measurements with EMAT Transducers", in Physical Acoustics, Vol.XIX, Edited by R.N.Thurston and A.D.Pierce, New York, Academic, pp.157-181, 1990.
6. 川島 捷宏, "電磁超音波の基礎と応用", 非破壊検査, Vol.34, pp.796-803, 1985.
7. K.Hogberg, "Ultrasonic Testing Using the EMAT Technique-Electro Magnetic Acoustic Transducer", Materials and Design, Vol.14, No.4, pp.251-252, 1993.
8. H.J.Saltzburger, G.Hubschen and M.Kroning, "Electromagnetic Ultrasonic (EMUS) Probes: State of the Art and Developments for Application in Nuclear Power Plants", Proceedings of the 12th International Conference on NDE in the Nuclear and Pressure Vessel Industries, pp.137-142, 1993.

【今後の予定】

平成 15 年度は

- ① 高温減磁を考慮した磁石構造設計、高温減磁による磁石磁気特性変化、Halbach 構造と PPM 磁石構造 EMAT の試作、両者の特性比較、常温・高温性能評価比較；
- ② 探傷技術(EMAT の配置など)による欠陥検出性向上の検討；
- ③ 信号処理によるノイズ信号の低減技術の検討；
- ④ 数値解析による EMAT 構造設計法の改良を行う；
- ⑤ 結晶粒寸法による EMAT 受信信号レベル変化の検討；

平成 16 年度は

- ① 平成 15 年度の結果を踏まえ、最適 EMAT 構造の決定と最終性能評価；
- ② 探傷技術に合わせる信号処理手法の確立；
- ③ モックアップ上 EMAT 性能特性評価；

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. 徐陽、田川明広、上田雅司、山下卓哉、“電磁超音波探触子(EMAT)構造に関する検討”、平成 14 年度第 2 回超音波分科会、2002.11、千葉幕張。
2. 徐陽、田川明広、上田雅司、山下卓哉、大塚裕介、長船和典、西川雅弘、“SH 波用電磁超音波探触子(EMAT)の構造特性”、第 10 回超音波による非破壊評価シンポジウム、2003.1、東京品川。
3. Yang XU, Akihiro TAGAWA, Masashi UEDA and Takuya YAMASHITA, Yusuke OHTSUKA, Kazunori OSAFUNE and Masahiro NISHIKAWA, “A New Structure of SH Wave Electromagnetic Acoustic Transducer (EMAT)”, 27th International Symposium on Acoustical Imaging, March 24th to 27th, 2003, Saarbrucken, Germany.
4. 徐陽、田川明広、上田雅司、山下卓哉、“SH 波電磁超音波探触子(EMAT)の構造設計に関する検討”、JNC レポート、JNC NT4400 2002-002、2003.1。
5. 徐陽、第 12 回「もんじゅ・国際技術センター報告会」、“EMAT 用高磁場配置型磁石構造に関する検討”、2003.3、福井敦賀国際技術センター。
6. 徐陽、田川明広、上田雅司、山下卓哉、大塚裕介、長船和典、西川雅弘、“「もんじゅ」用 ISI 装置の開発ー(その 5)EMAT 用高磁場配置型磁石構造に関する検討”、日本原子力学会「2003 年春の年会」、2003.3、長崎佐世保。
7. 大塚裕介、長船和典、西川雅弘、徐陽、田川明広、上田雅司、山下卓哉、“「もんじゅ」用 ISI 装置の開発ー(その 6)高磁場配置型 EMAT の室温における SH 波伝搬特性”、日本原子力学会「2003 年春の年会」、2003.3、長崎佐世保。
8. 徐陽、田川明広、上田雅司、山下卓哉、大塚裕介、長船和典、西川雅弘、“Halbach 磁石配置を用いた SH 波用 EMAT センサーの開発”、日本非破壊検査協会平成 15 年度春季大会、2003.5、東京千代田(予定)。
9. 大塚裕介、長船和典、西川雅弘、徐陽、田川明広、上田雅司、山下卓哉、“「もんじゅ」用 ISI 装置の開発ー(その 8) EMAT の配置と欠陥検出感度に関する検討ー”、日本原子力学会「2003 年秋の大会」、2003.9、静岡県静岡(予定)。
10. 徐陽、田川明広、上田雅司、山下卓哉、大塚裕介、長船和典、西川雅弘、“「もんじゅ」用 ISI 装置の開発ー(その 9) 高磁場配置型 EMAT の実測による特性評価”、日本原子力学会「2003 年秋の大会」、2003.9、静岡県静岡(予定)。

1. 既存 EMAT 指向性特性

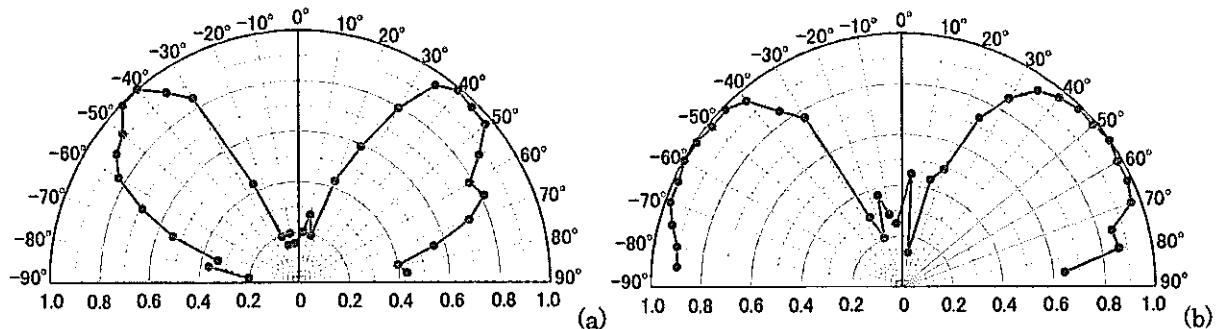


Fig.1 Directionality of transmitter

Fig.2 Directionality of receiver

2. 既存 EMAT 高温特性

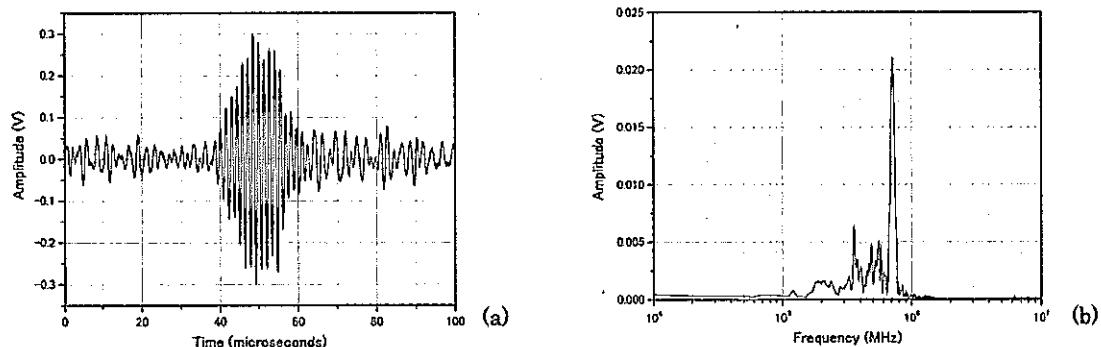


Fig.3 Reflected ultrasonic wave signal from a 50% thickness slit on the opposite surface at room temperature (21 °C).

(a) raw waveform no averaging, and (b) frequency distribution analyzed by Fast Fourier Transform (FFT).

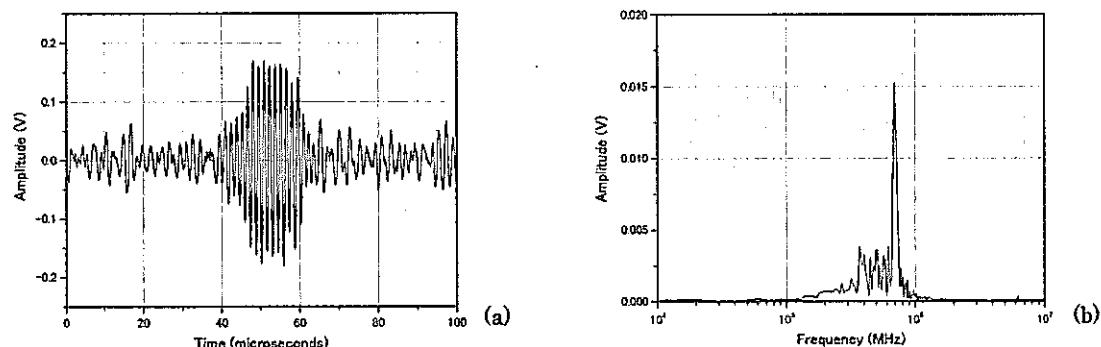
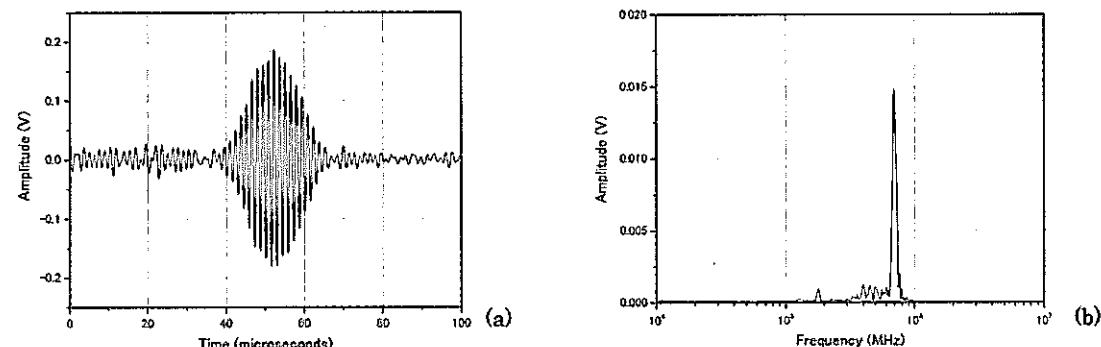


Fig.4 Reflected ultrasonic wave signal from a 50% thickness slit on the opposite surface at high temperature (200 °C).

(a) raw waveform no averaging, and (b) frequency distribution analyzed by Fast Fourier Transform (FFT).

Fig.5 Reflected ultrasonic wave signal from a 50% thickness slit on the opposite surface at high temperature (200 °C).
(a) raw waveform with 50 times averaging, and (b) frequency distribution analyzed by Fast Fourier Transform (FFT).

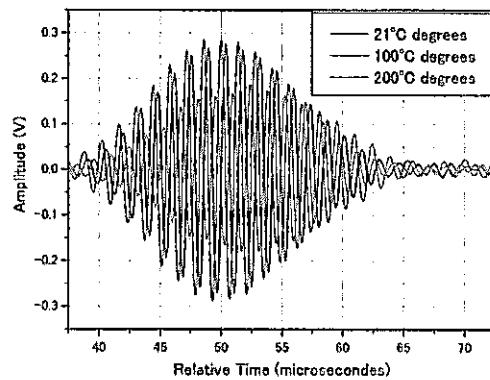


Fig.6 Phase shift and amplitude reduction of reflected ultrasonic wave signal from a 50% thickness slit at temperatures higher than room temperature.

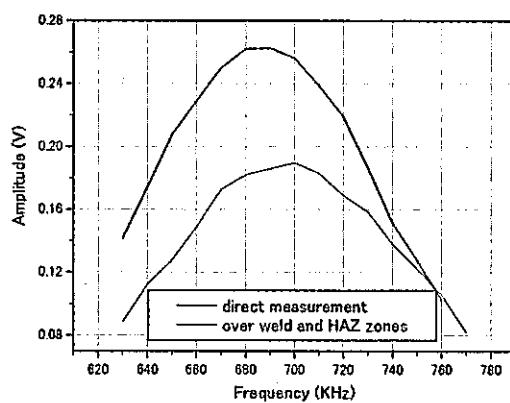


Fig.7 Frequency dependence of maximum amplitude of reflected ultrasonic wave signal from a 50% thickness slit at temperature 200 °C in the cases of direct measurement and passing through weld and heat affected zone (HAZ).

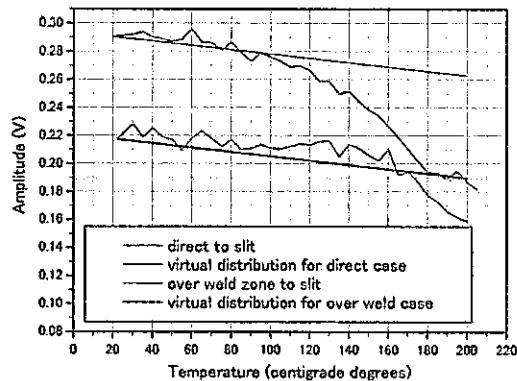


Fig.8 Temperature dependence of maximum amplitude of reflected ultrasonic wave signal from a 50% thickness slit.

既存 EMAT の常温インピーダンス計測結果例

①計測パラメータ

- L： 自己インダクタンス(単位： μH 、H：ヘンリー)
- C： 静電容量(キャパシタンス)(単位：nF、F：ファラッド)
- R： 抵抗(単位： Ω 、 Ω ：オーム)
- G： コンダクタンス(単位：mS、S：ジーメンス)
- $|Z|$ ：インピーダンスの大きさ(単位： Ω 、 Ω ：オーム)
- $|Y|$ ：アドミタンスの大きさ(単位：mS、S：ジーメンス)

②50Ω 標準抵抗における計測結果

インピーダンスマータを用い、50Ωの純抵抗のインピーダンスを計測し、計測系の誤差範囲を調べた。

試験片：RITEC 社の標準 50Ω 抵抗

計測結果

項目	10Hz	730KHz	1MHz
L(μH)	20	0.007	0.0034
C(F)	/	/	/
R(Ω)	50.14	50.31	50.42
$ Z (\Omega)$	50.14	50.31	50.42

表の中にキャパシタンスのデータ “/” は計測不能の意味である。

③インピーダンス計測結果例

#50-1T1：(50mm 板厚、送信探触子#1号)

項目	10(Hz)	650(KHz)	670(KHz)	690(KHz)	710(KHz)	730(KHz)	760(KHz)
L	60	12.415	12.308	12.207	12.11	12.017	11.889
C	/	-4.829	-4.585	-4.359	-4.149	-3.955	-3.689
R	11.143	38.09	38.65	39.22	39.78	40.32	41.17
G	89.75	26.26	25.87	25.5	25.14	24.8	24.29
$ Z $	11.143	63.41	64.64	65.87	67.09	68.29	70.13
$ Y $	89.74	15.769	15.469	15.181	14.905	14.642	14.259

#50-2R2：(50mm 板厚、受信探触子#2号)

項目	10(Hz)	650(KHz)	670(KHz)	690(KHz)	710(KHz)	730(KHz)	760(KHz)
L	92	13.66	13.569	13.483	13.402	13.332	13.224
C	/	-4.389	-4.158	-3.946	-3.749	-3.565	-3.316
R	1.4093	32.05	32.58	33.11	33.63	34.12	34.91
G	709.7	31.2	30.69	30.2	29.73	29.31	28.64
$ Z $	1.409	64.34	65.76	67.18	68.6	70.02	72.16
$ Y $	709.8	15.542	15.207	14.885	14.578	14.281	13.859

静磁場と超音波指向性解析の基礎理論

マクスウェルの電磁方程式により、変位電流を無視する場合、支配方程式のアンペアの法則は

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} \quad (1)$$

ファラデーの電磁誘導法則は

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\partial \mathbf{B} / \partial t \quad (2)$$

磁束密度の保存則は

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (3)$$

ガウスの法則は、式(1)の発散を取り、整理すると、

$$\nabla \cdot \mathbf{J} = 0 \quad (4)$$

となる。ただし、 \mathbf{H} は磁界の強さ、 \mathbf{B} は磁束密度、 \mathbf{E} は電界の強さ、 \mathbf{J} は電流密度である。

永久磁石などの硬質磁性材料の構成方程式は

$$\mathbf{B} = \mathbf{B}_r + \mu_0 \mu_r \mathbf{H} \quad (5)$$

の形になる。ただし、 \mathbf{B}_r は残留磁束密度、 μ_0 は真空の透磁率、 μ_r は比透磁率である。

磁気スカラーポテンシャル V_m を導入し、式 $\mathbf{H} = -\nabla V_m$ を(5)に代入し、さらに(3)に代入すると、次式となる。

$$-\nabla \cdot (\mu_0 \mu_r \nabla V_m - \mathbf{B}_r) = 0 \quad (6)$$

永久磁石の磁束密度分布は微分方程式(6)を解くことにより求められる。

一方、電気スカラーポテンシャル ϕ および磁気ベクトルポテンシャル \mathbf{A} を導入し、式(2)と(3)を満たすように電界の強さ \mathbf{E} と磁束密度 \mathbf{B} を次のように表すことができる。

$$\mathbf{E} = -\nabla \phi - \partial \mathbf{A} / \partial t \quad (7)$$

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \quad (8)$$

これらの方程式を解くことにより、渦電流

$$\mathbf{J}^i = -\sigma \partial \mathbf{A} / \partial t \quad (9)$$

が求められる。ただし、 σ は導電率である。

なお、ローレンツ力は

$$\mathbf{F} = \mathbf{J}^i \times \mathbf{B} \quad (10)$$

から計算できる。

超音波の音圧式は

$$P(t) = \frac{\rho}{4\pi} \iint_S \frac{1}{r} \alpha \left(t - \frac{r}{C} \right) dS \quad (11)$$

で表すことができる。ただし、 ρ と C はそれぞれ被検体の密度とSH波の音速、 r は音源から解析位置までの距

離、 $a(t)$ は点音源振動位置の振動加速度で、ここで、下記のローレンツ力を代わりに使用した。

$$F(t) = A_F \sin \varpi(t - r/C) \quad (12)$$

超音波強度分布は式(11)による算出でき、超音波指向性結果が求められる。

1. 解析用磁石配置モデル

(1). 通常の SH 波用 EMAT 磁石配置構造

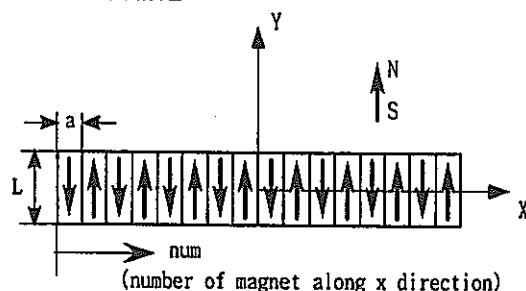


Fig.9 Usual arrangement structure of permanent magnet for SH wave EMAT.

(2). Halbach 磁石配置構造

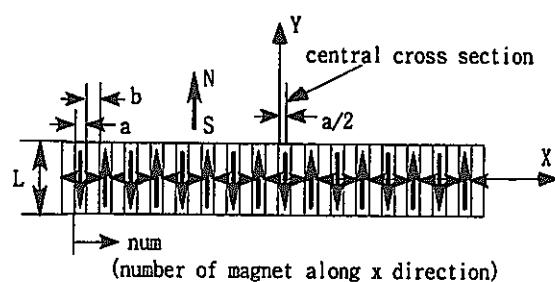


Fig.10 Halbach arrangement structure of permanent magnet for SH wave EMAT.

(3). 磁石単体の解析モデル

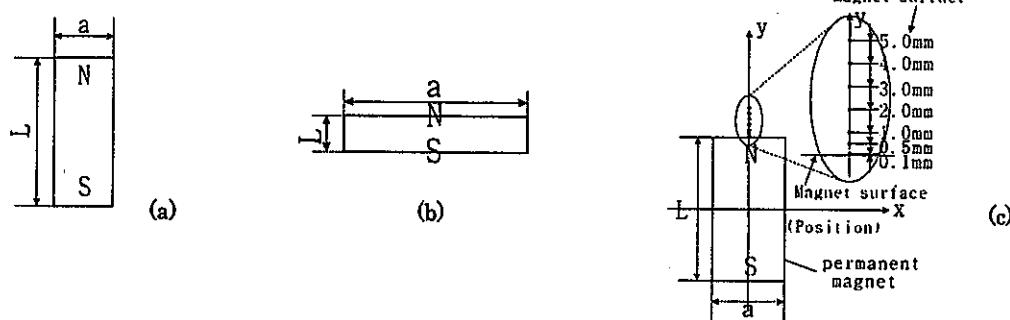
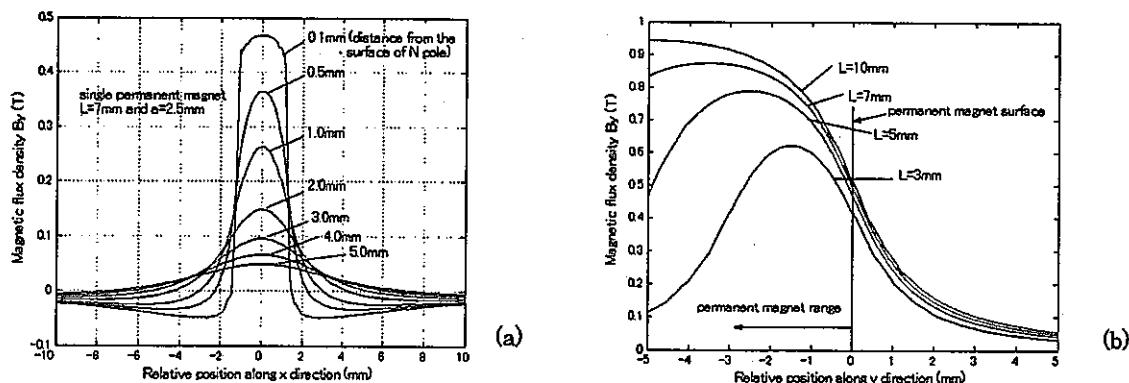


Fig.11 Permanent magnet pattern and evaluated positions. (a) and (b) shape and size, (c) evaluated positions.

2. 磁束密度分布特性

Fig.12 Magnetic flux density B_y distributions of single permanent magnet(s) ($a=2.5\text{mm}$, different L length) (a) at different distance from the surface of magnet, and (b) on the central cross section along the magnetization direction.

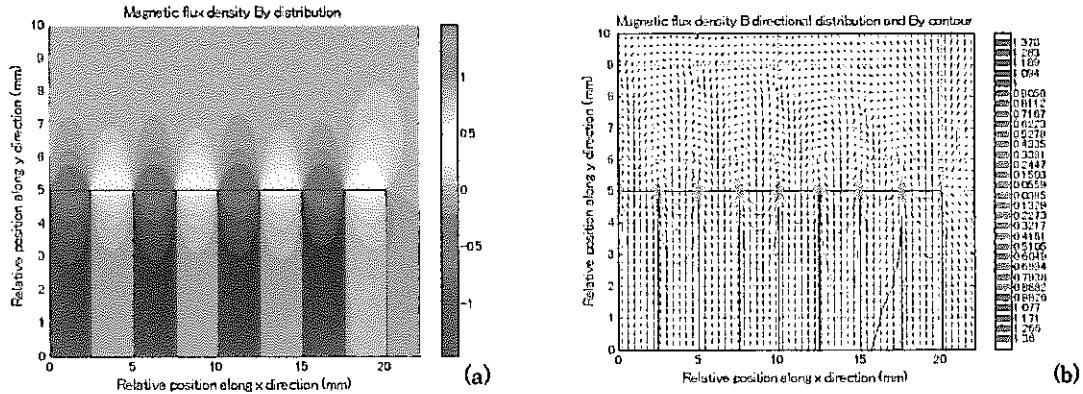


Fig.13 Magnetic flux density distributions of usual arrangement structure of permanent magnet for SH wave EMAT. (a) B_y distribution, (b) B_y contour and B directional distribution.

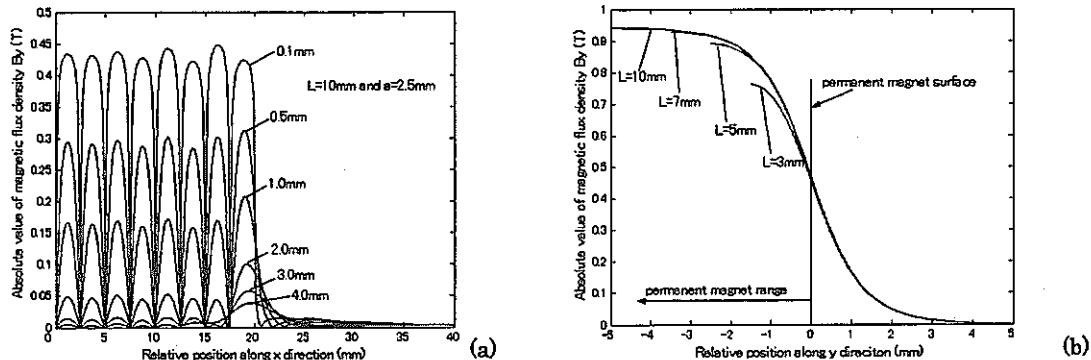


Fig.14 Magnetic flux density B_y distributions of usual arrangement permanent magnet structure (a) at different distance from the working surface of the structure, and (b) on the central cross section through $x=1.25\text{mm}$ position.

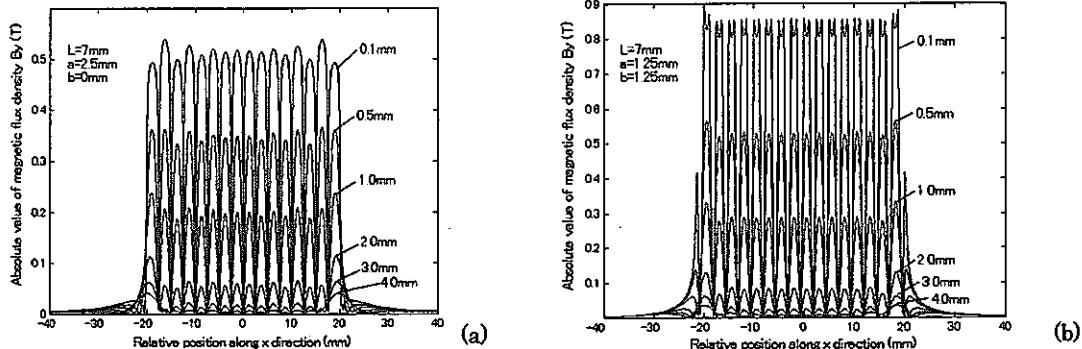


Fig.15 Magnetic flux density B_y distributions at different distance from the working surface of (a) an usual arrangement permanent magnet structure, and (b) a Halbach arrangement permanent magnet structure.

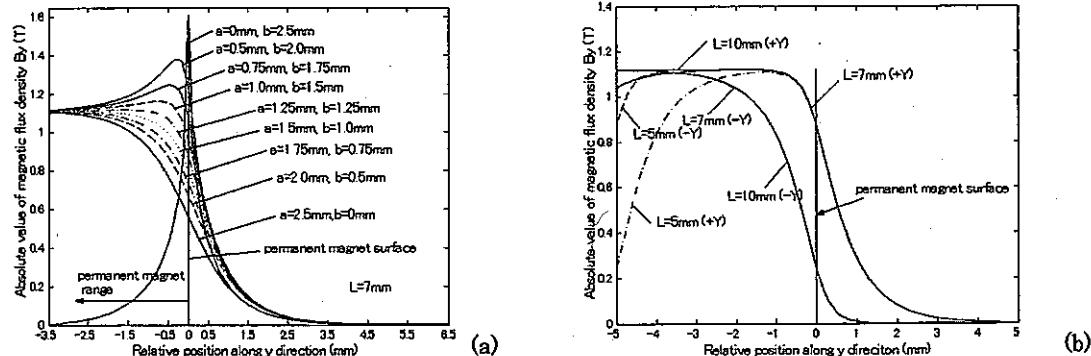


Fig.16 Comparison of magnetic flux density B_y distributions on the central cross section of Halbach arrangement permanent magnet structure with (a) the same $L=7\text{mm}$ length and different size a,b pair, and (b) the same $a=b=1.25\text{mm}$ pair and different L length.

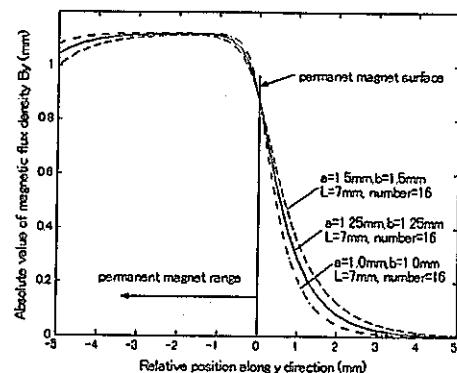


Fig.17 Comparison of magnetic flux density B_y distributions on the central cross section of Halbach arrangement permanent magnet structure with the same $L=7\text{mm}$ length and different $a=b$ pair length.

1. 湍電流の解析モデルと分布特性

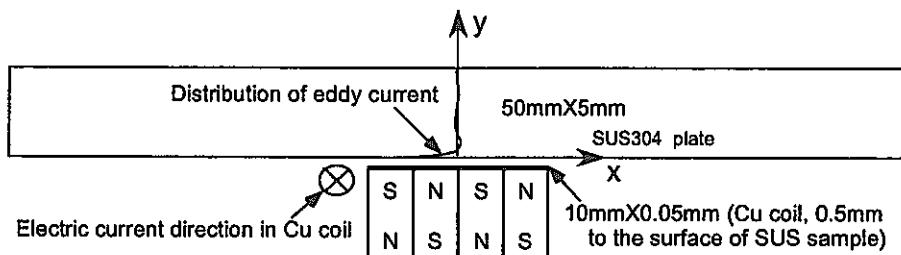


Fig. 18 Calculation model for eddy current.

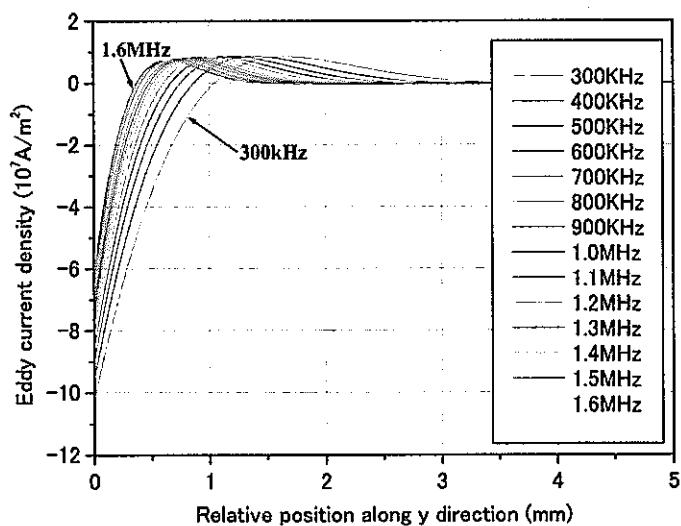


Fig. 19 Distributions of eddy current at frequency range from 300kHz to 1.6MHz.

2. 超音波指向性解析結果

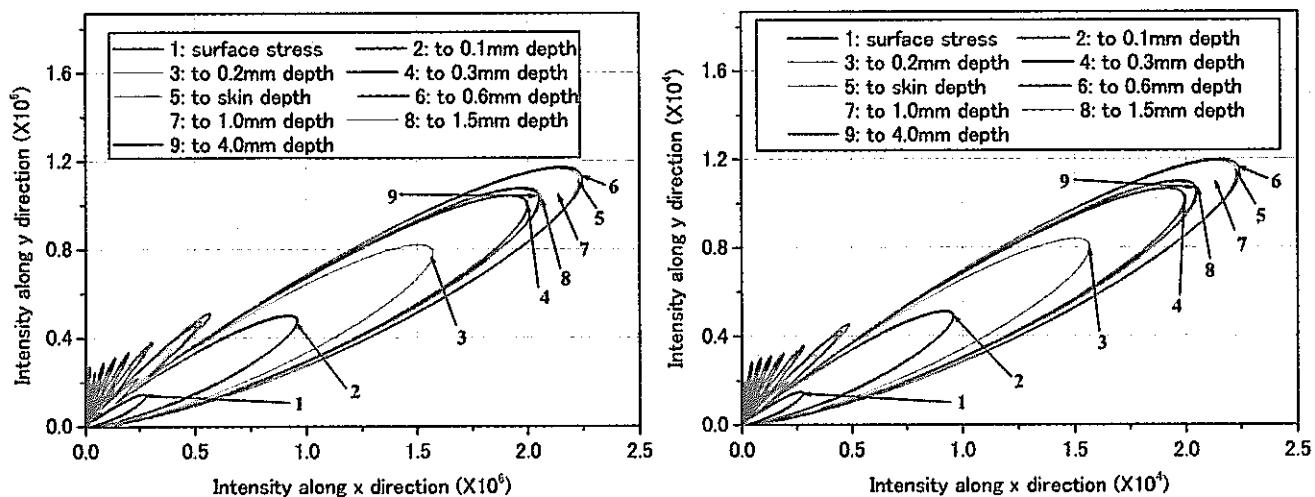


Fig. 20 Intensity distributions of SH wave corresponding to different evaluated depth of eddy current for SH wave EMAT with PPM structure. The evaluated distance is 100mm(left) and 10m(right).

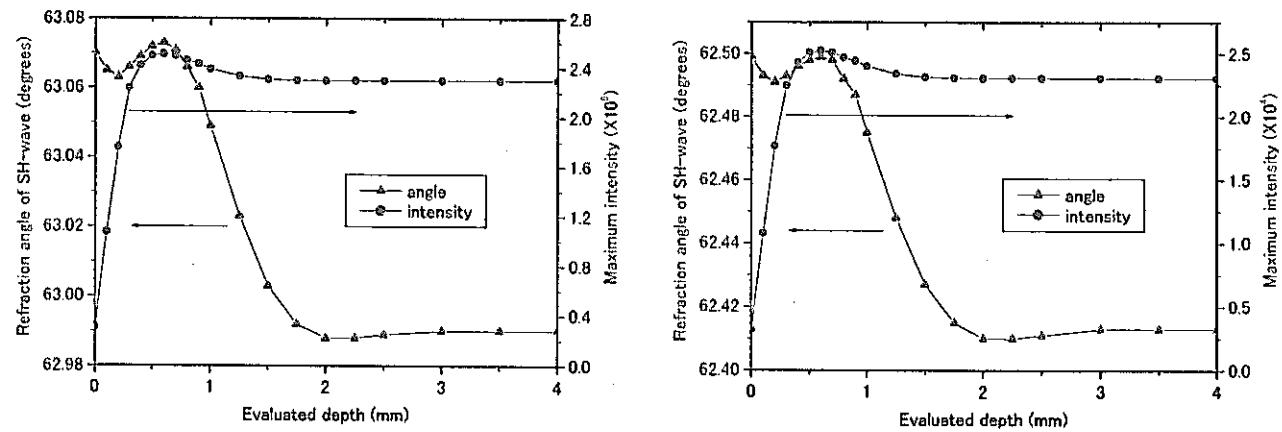


Fig. 21 Peak intensity and refraction angle distributions of SH wave as functions of evaluated depth of eddy current for SH wave EMAT with PPM structure. The evaluated distance is 100mm(left) and 10m(right).

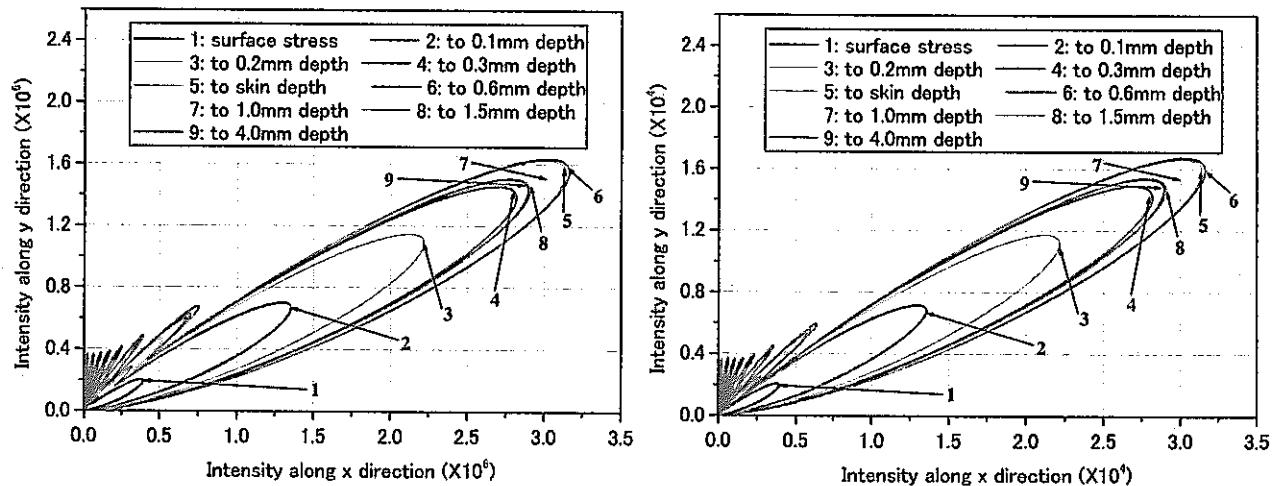


Fig. 22 Intensity distributions of SH wave corresponding to different evaluated depth of eddy current for SH wave EMAT with Halbach structure. The evaluated distance is 100mm(left) and 10m(right).

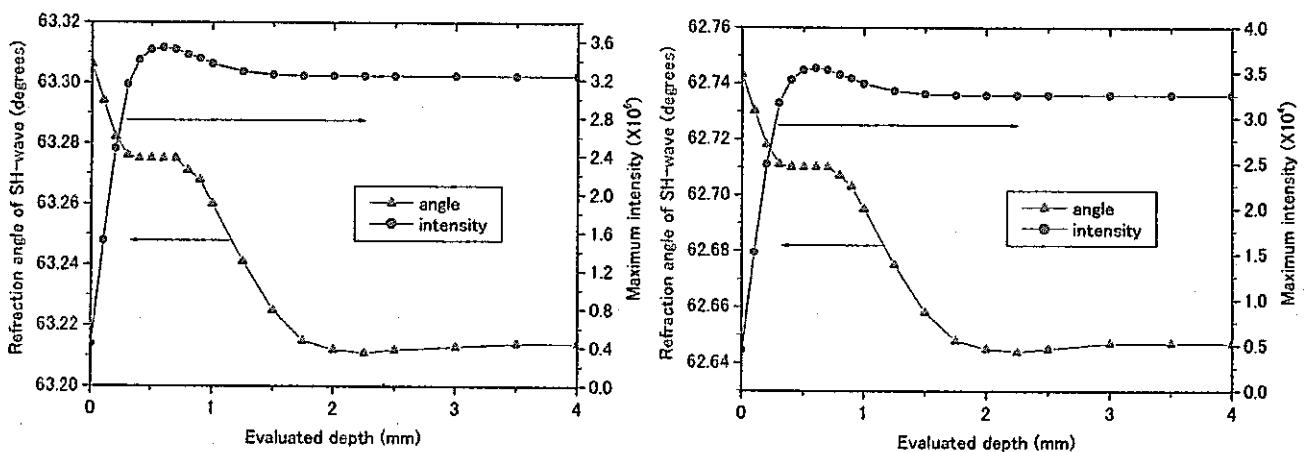


Fig. 23 Peak intensity and refraction angle distributions of SH wave as functions of evaluated depth of eddy current for SH wave EMAT with Halbach structure. The evaluated distance is 100mm.

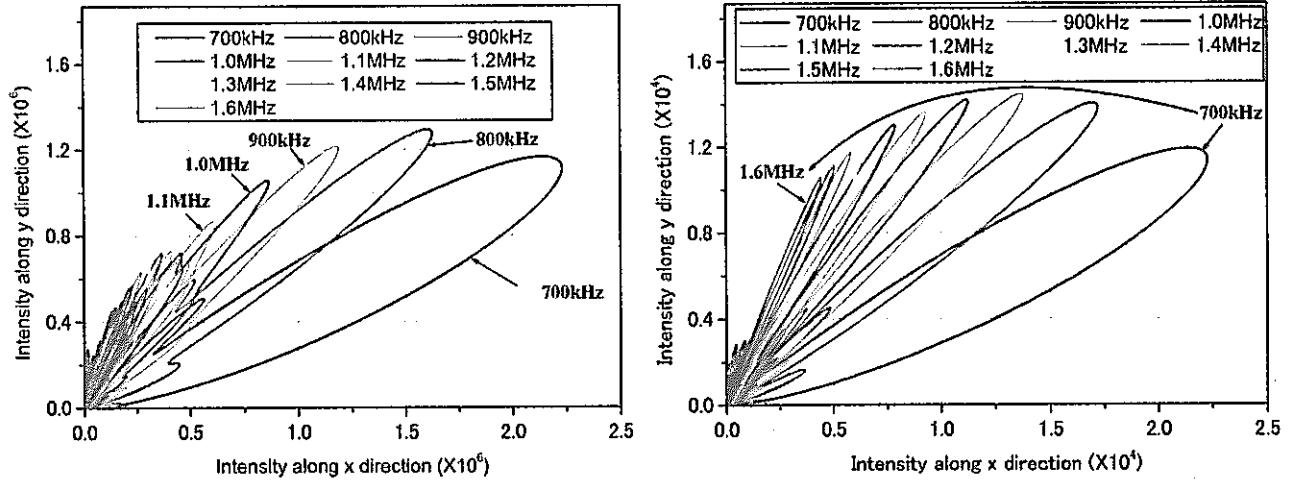


Fig. 24 Intensity distributions of SH wave as a function of ultrasonic frequency from 700kHz to 1.6MHz for SH wave EMAT with PPM structure. The evaluated distance is 100mm(left) and 10m(right).

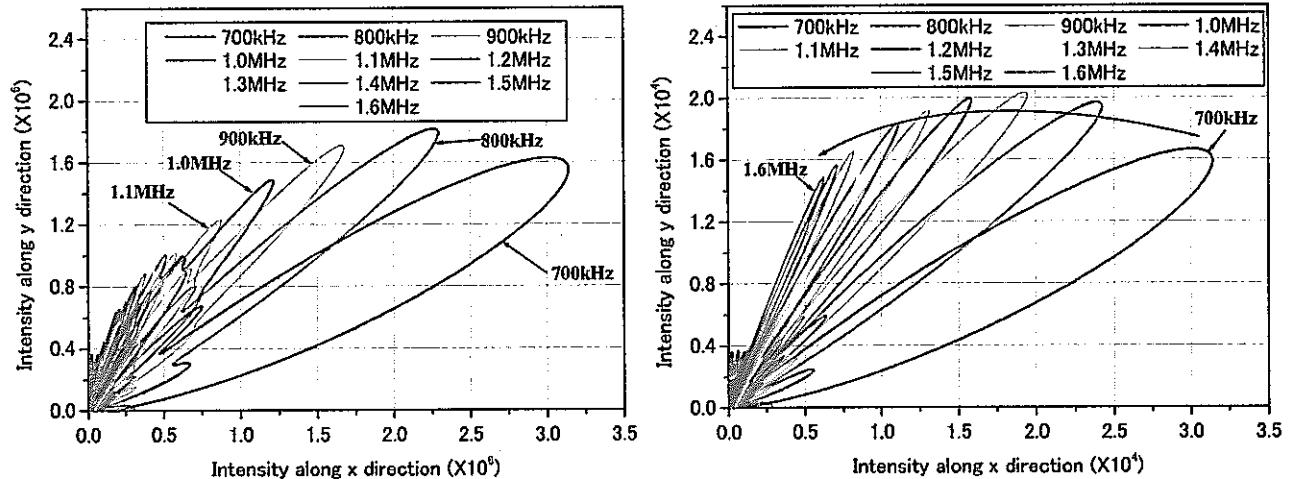


Fig. 25 Intensity distributions of SH wave as a function of ultrasonic frequency from 700kHz to 1.6MHz for SH wave EMAT with Halbach structure. The evaluated distance is 100mm.

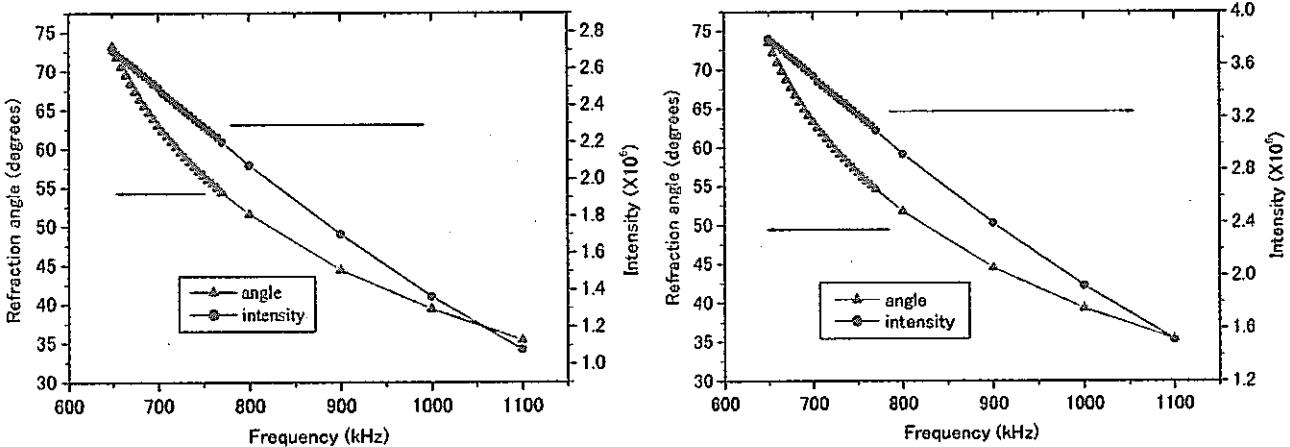


Fig. 26 Peak intensity and refraction angle distributions of SH wave as functions of ultrasonic frequency for SH wave EMAT with PPM structure(left) and Halbach structure(right). The evaluated distance is 100mm.

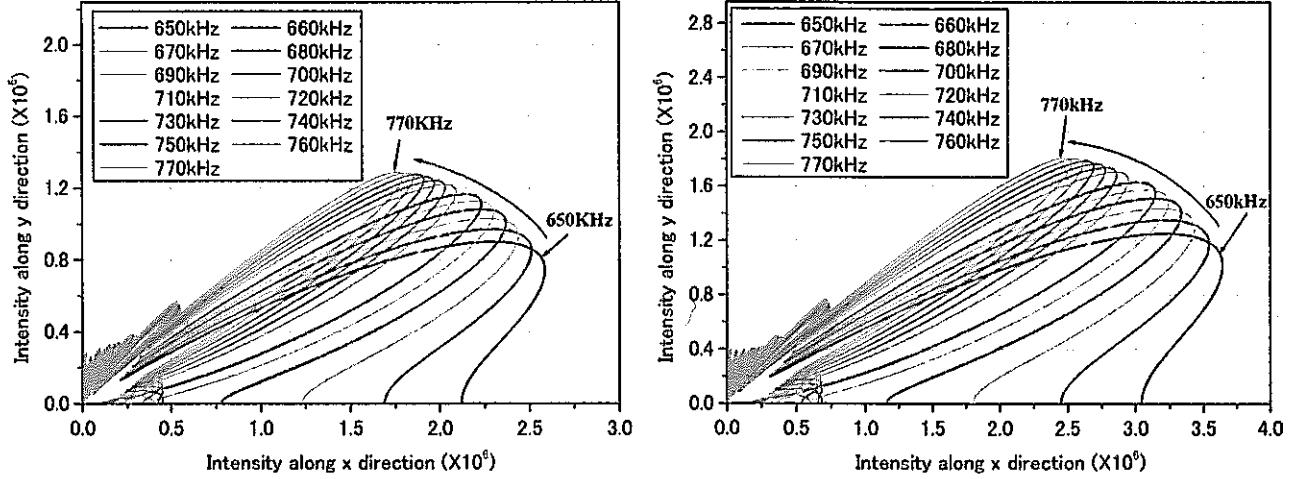


Fig. 27 Intensity distributions of SH wave as a function of ultrasonic frequency from 650kHz to 770kHz for SH wave EMAT with PPM structure(left) and Halbach structure(right). The evaluated distance is 100mm.

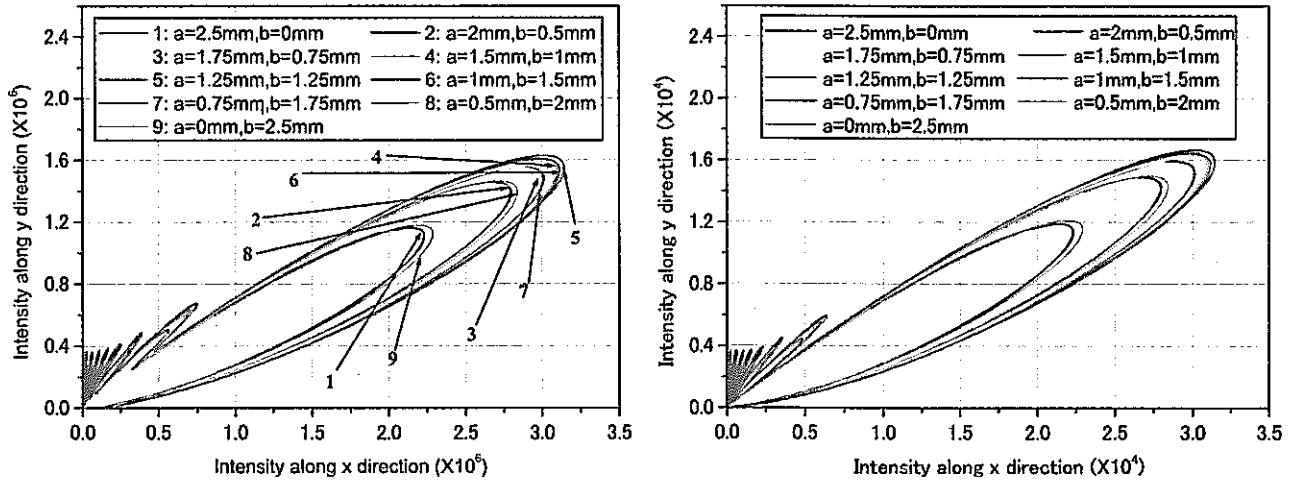


Fig. 28 Intensity distributions of SH wave as a function of the combination of a and b at frequency 700kHz for SH wave EMAT with Halbach structure. The evaluated distance is 100mm(left) and 10m(right).

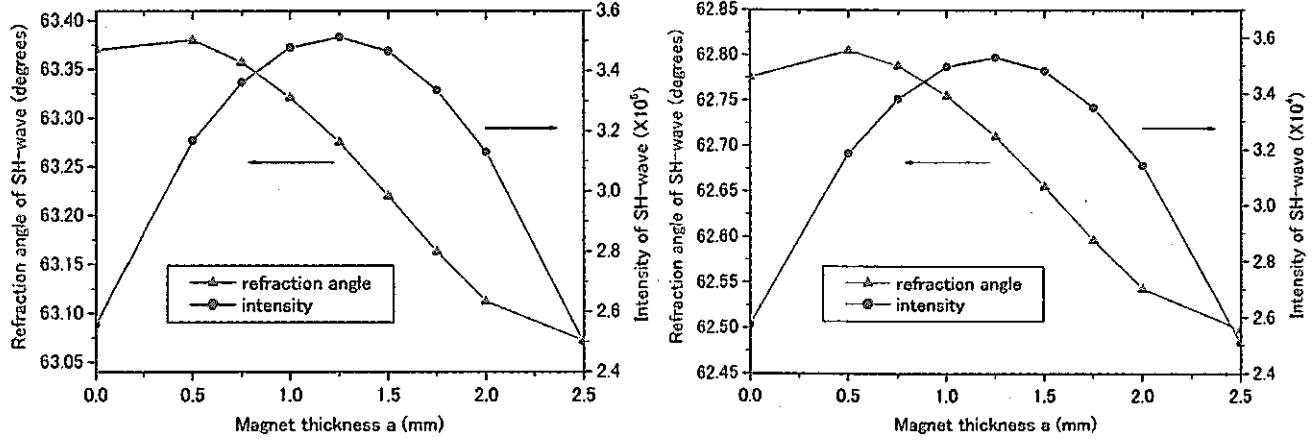


Fig. 29 Peak intensity and refraction angle distributions as functions of the combination of magnet size a and b for SH wave EMAT with Halbach structure. The evaluated distance is 100mm(left) and 10m(right).

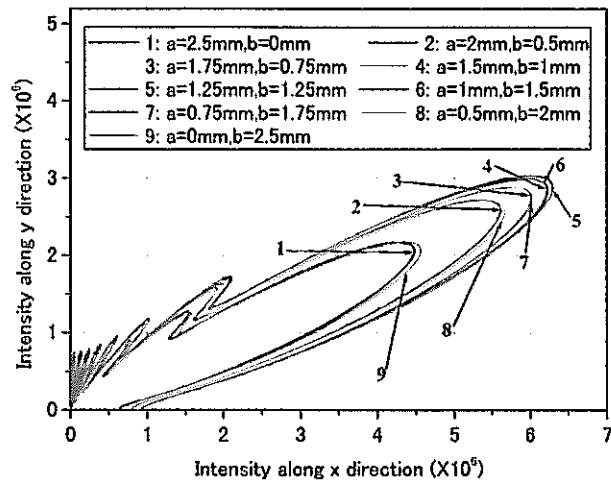


Fig. 30 Intensity distributions of SH wave as a function of the combination of magnet size a and b at frequency 700kHz for SH wave EMAT with Halbach structure. The evaluated distance is 50mm.

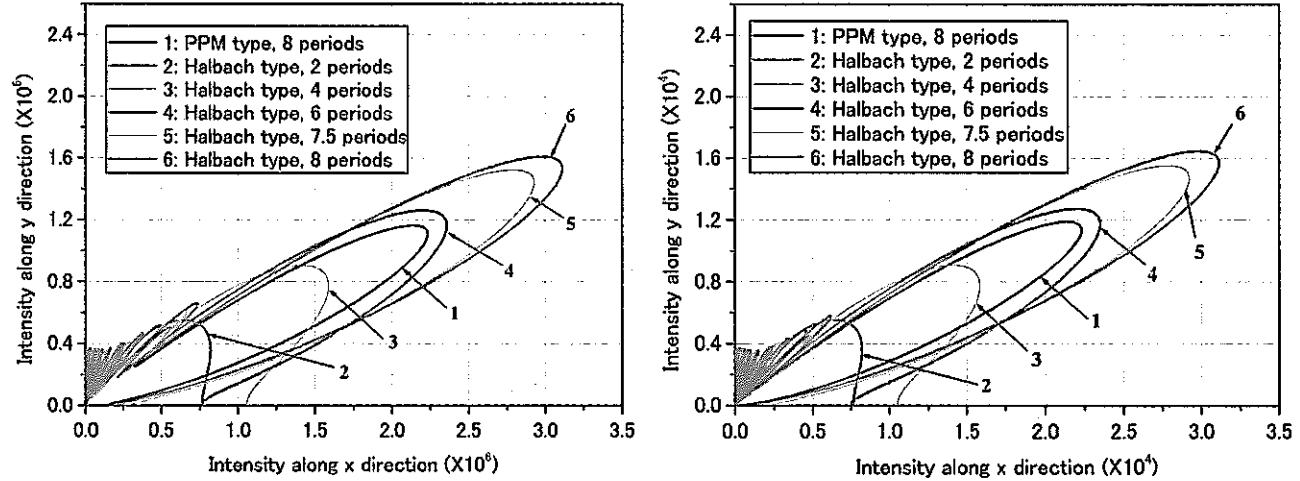


Fig. 31 Intensity distributions of SH wave as a function of the arrangement-period at frequency 700kHz for SH wave EMAT with Halbach structure. The evaluated distance is 100mm(left) and 10m(right).

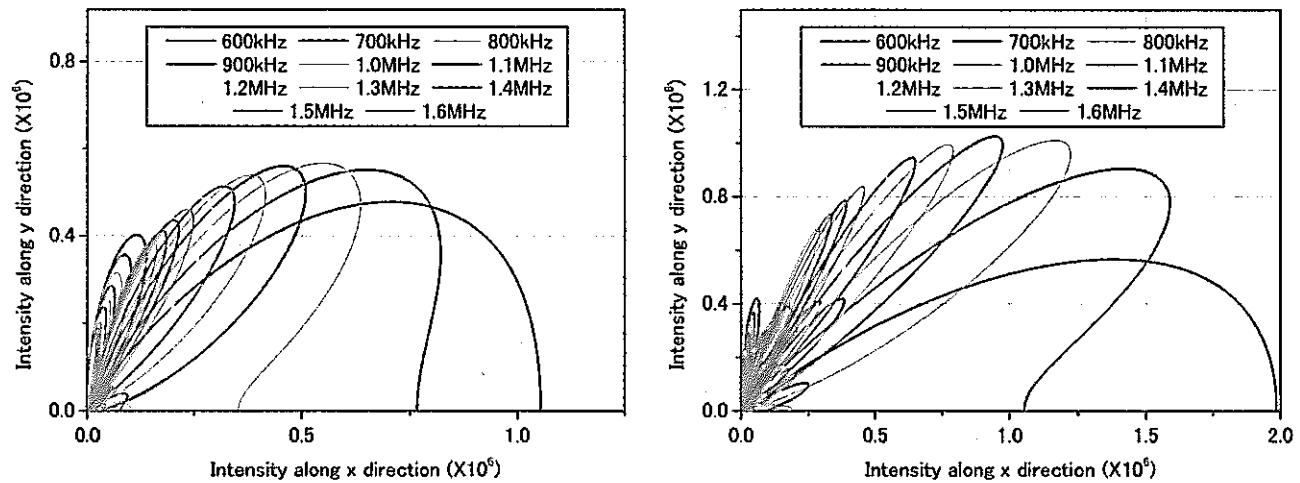


Fig. 32 Intensity distributions of SH wave as a function of ultrasonic frequency from 600kHz to 1.6MHz for SH wave EMAT with Halbach structure. The evaluated distance is 100m and the period of magnet arrangement is 2(left) and 4(right).

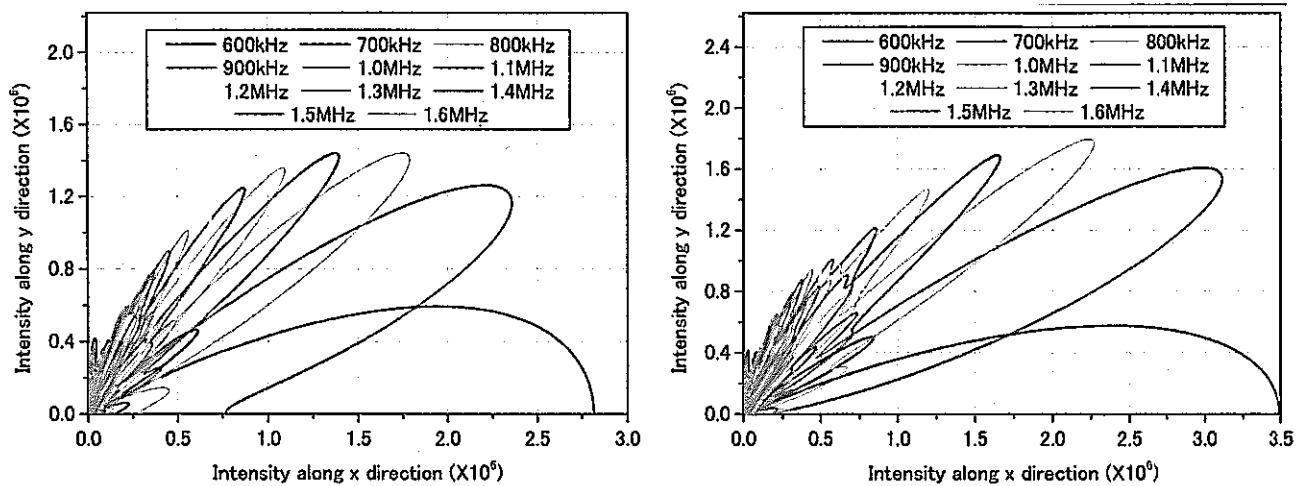


Fig. 33 Intensity distributions of SH wave as a function of ultrasonic frequency from 600kHz to 1.6MHz for SH wave EMAT with Halbach structure. The evaluated distance is 100m and the period of magnet arrangement is 6(left) and 8(right).

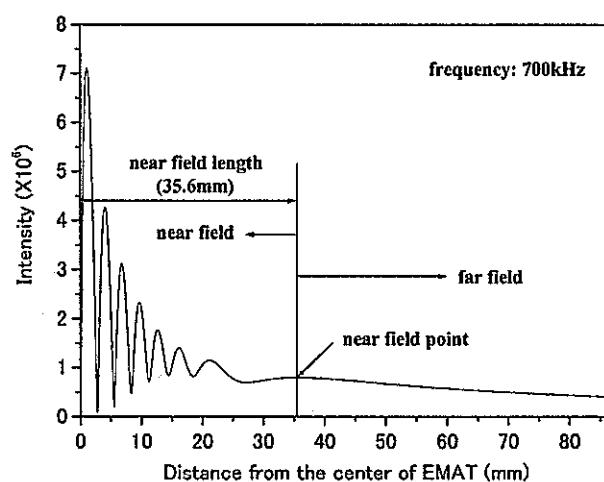


Fig. 34 Intensity changing pattern of SH wave as a function of distance from the center of SH wave EMAT with Halbach structure, evaluated along the refraction angle 63.275 degrees.

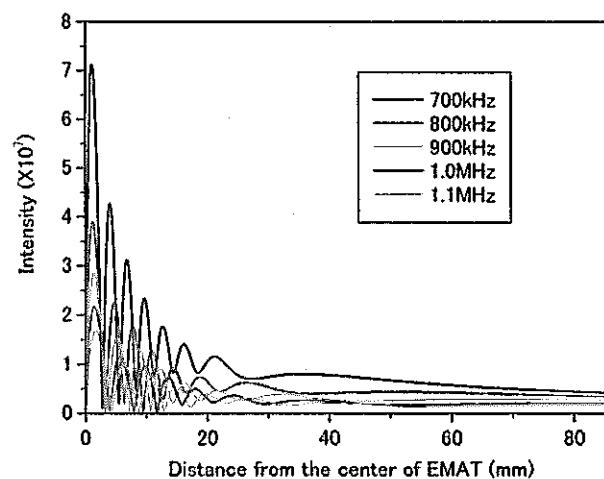


Fig. 35 Intensity changing pattern of SH wave as a function of ultrasonic frequency and distance from the center of SH wave EMAT with Halbach structure, the directions are along the refraction angles at different frequencies, respectively.

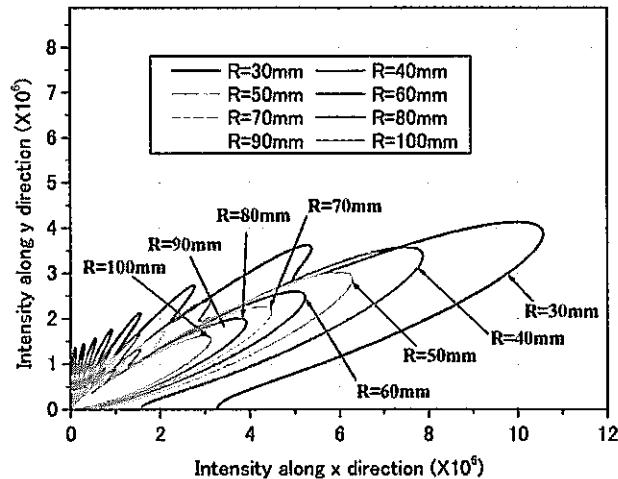


Fig. 36 Intensity distributions of SH wave as a function of evaluated distance at frequency 700kHz for SH wave EMAT with Halbach structure.

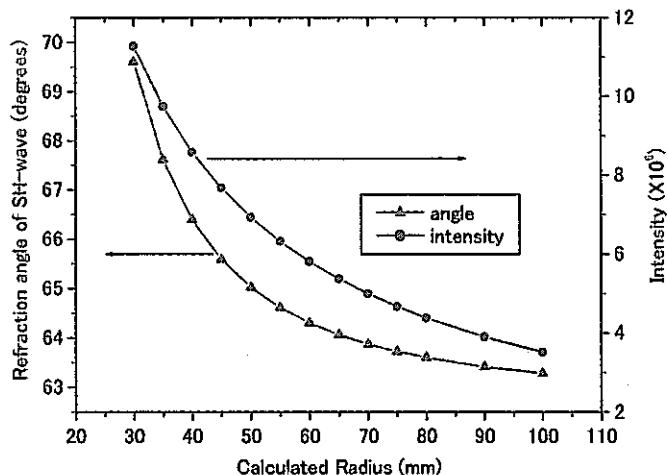


Fig. 37 Peak intensity and refraction angle distributions as functions of evaluated distance at frequency 700kHz for SH wave EMAT with Halbach structure.

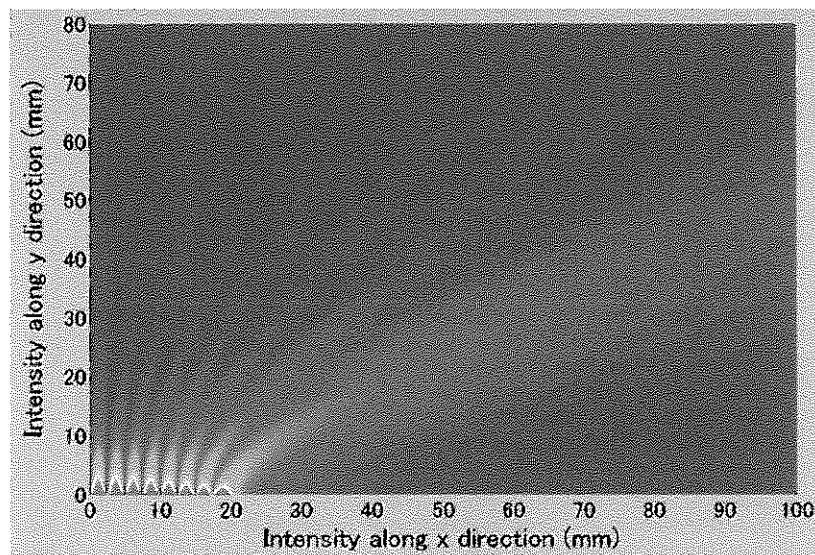


Fig. 38 Intensity distributions of SH wave as a function of evaluated position at frequency 700kHz for SH wave EMAT with Halbach structure.

博士研究員（H14）平成14年度研究概要報告書

研究テーマ	日本列島における過去の地殻変動特性の抽出と未来の構造運動予測 —重力データを用いて—		
研究者氏名	工藤 健		
研究協力者 所属・氏名	東濃地科学センター 地質環境研究グループ 野原 壮	所属長 役職・氏名	地質環境研究 グループリーダー 中司 昇
研究実施場所	東濃地科学センター 瑞浪地科学研究所		
通算研究期間 (予定)	平成 14年 4月 ~ 平成 17年 3月	当該年度 研究期間	平成 14年 4月 ~ 平成 15年 3月
【研究目的】			
<p>地球の表層地質環境の変動は、人間生活の社会的・物質的側面に直に影響する。そのため人類が持続可能な社会システムを模索する上で、地質環境の長期安定性に関する議論は不可避であると同時に、緊急の課題である。その中で議論すべき力学的変動の要因の大部分は、地質環境内部にあるのではなく、それを取り巻く地殻の構造運動にあり、日本列島スケールでの地殻構造を明らかにする事はこれらの運動様式を解明するための大前提となる。</p> <p>地球内部の物質に起因する引力は原因となる密度分布から直接的に伝達される。そのため、地震波の様な伝播経路の不確定性、地殻熱流量のような地表への到達時間の遅れ等が存在しないという特徴がある。また、地表の観察事実から地下の様子を推測する手法には、新期の堆積物や火山噴出物等、観察の一様性、精度を乱す要因が多く存在する。そこで、地表からは見えない地下の構造変化について引力を使って透視することは、極めて有効な手段であると考える。本研究では重力異常解析を中心に、その他の手法も統合して求まる3次元地下構造を現在進行中の構造運動の瞬間断面と捉え、“構造”と“運動”的両立できる“構造運動”を解明し、その地質環境への影響を究明する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>重力異常によって透視される地下構造の情報は、①現在の構造を表現するという意味での静的情報、あるいは②長期にわたる地殻変動の経過の記録という意味での動的情報として利用する。①の利用法として、地表からは見えない活断層の検出等、防災上重要な基礎データとしての活用が挙げられる。②の情報は、地質学的あるいは古地磁気学的手法によって得られている日本列島形成史に関する仮説と関連づけて考察する。これによって、地表面における観測事実から推定される日本列島の構造運動のイメージを地下方向に拡張して考察する事が可能となる。さらに地表からは観測されない変動の歴史が新しい情報として付加され将来予測に拡張できる事も十分期待できる。具体的な解析としては、(I)「重力異常分布を用いた地体構造区分」と、(II)「重力異常と地形の coherence から日本列島下の有効弹性厚分布を求める手法」を出発点とする。これらの解析結果と他の地球物理学的観測結果、構造地質学的知見を総合し、日本列島下の精密な地下構造ならびに強度分布を推定し、過去から未来へ向けての構造運動に関して新しい知見を与える。</p>			
【使用主要施設】			
<ul style="list-style-type: none"> 汎用 FEM 非線形構造解析システム FINAS: サイクル機構大洗工学センターにて開発中の有限要素法(FEM)構造解析コードを、地殻構造運動シミュレーションに応用。 重・磁力データ地下構造解析システム: Encom Technology 社製 ModelVision Pro を瑞浪地科学研究所内のワークステーションに導入し、日本列島地下構造解析に使用。 			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

本研究を実施するにあたり、はじめに解析の基本となる 0.重力データの収集、整備を実施した。その結果、日本列島陸域においては、わが国最大規模の重力データ量を背景として研究を開始するに至った。研究計画段階では、1.重力異常を用いた地体構造区分と2.重力異常と地形の coherence を求める作業を出発点として挙げた。これらに関して問題を整理・細分化し、準備が整った項目から解析に着手した。さらに、当博士研究員が所属する東濃地科学センター・地質環境研究グループの研究業務を支援する形で 3.当初予定した以外の研究を追加して実施した。それぞれの研究の進捗状況概要を以下に列挙する。

0. 日本列島重力データベースの構築

本研究は、重力異常分布から抽出された地下構造特性を他の観測事実と照合しながら考察を進める事が軸となる。そのため地下の構造や運動に関連する様々な観測データの収集・目的に応じた再編集が必要である。本研究を推進するにあたって必要なデータを一所に収集管理し、目的に応じて参照できる環境を整えた。

1. 重力異常を用いた地体構造区分に向けての解析

重力異常データには時間と構成物質の情報が含まれない。そこで構造運動を視野に入れるためには他手法のデータ・情報との照合・連結が不可欠となる。本研究では重力異常分布と照合する情報を以下の 3 つのタイムスケールに分類した。

- ・短(<100 年): GPS、地震
- ・中(<数 10 万年): 活断層、地形
- ・長(>数 10 万年): 地質

その上でそれぞれのタイムスケールに見られる特徴が重力異常ではどのように表現されるか、あるいは双方の情報に不足している情報を補完し合えないかについて、それぞれ議論を開始した。

2. 重力異常と地形の coherence に関する解析

従来の手法を改良して、有効弹性厚の異方性を検出する事に成功した。日本列島の有効弹性厚分布の水平解像度向上に向け、手法の開発に着手した。

3. 当初予定した以外の研究

地質環境研究グループが平成 14 年度に実施した紀伊半島南部における電磁探査(MT 法)、温泉ガスのヘリウム同位体比測定等への支援のため、重力異常分布から地下の密度構造を推定し、当該地域の総合地下構造解析に反映させた。

【研究成果（当該年度）】

0. 日本列島重力データベースの構築

0-1. 重力データ: 日本列島域について、西南日本重力研究グループ(2001)・データベース(西南日本陸域・約 9 万点)、金沢大編集重力データ(日本全国・約 96 万点内陸域約 15 万点)、地質調査所(2000)(日本列島陸域・約 6 万 3 千点)、をはじめ、その他数十の機関によって測定された重力データ(約 9 万点、(金沢大編集データと重複あり))を集約し、わが国最大規模の重力データベースを構築した。本研究では、これらをもとに、解析目的に応じて最適なデータセットの組み合わせを行い使用する。必要に応じて各データ帰属機関と調整を行なう。

西南日本重力研究グループ、金沢大データについては現在も再編集中であり、本研究はこの作業を当該機関と連携しながら進めている。特に本研究は、精度の面においても最高レベルの重力データベース構築を目指すため、各観測値に含まれる誤データの修正あるいは削除作業を実施している。本報告書当該研究期間においては九州・近畿・中部地方において詳細なデータ検証作業を行なった。その結果、約 200 点の観測データに関して解析結果を乱すエラー(ブーゲ異常にした時の誤差 2mgal 以上)が含まれている可能性が強く示唆された。これらの誤データに関しては、観測記録にさかのぼれるものは原因を特定し、修正を試みた。修正が不可能なものは解析から外す処置を行なった。これらのデータベースに基づく九州の

重力異常図の例を図1(a)に示す。この図作成に用いたデータは、西南日本重力研究グループ(12,712点)、地質調査所(現産総研)(8,460点)、新エネルギー・産業技術総合開発機構(6,249点)、金属鉱業事業団(2,743点)、資源エネルギー庁(1,746点)、国土地理院(1,582点)の測定による。

本研究では新しい解析手法(後述)の開発を進めている。新手法を確立する上で日本列島のような複雑な地下構造をもつ地域の他に、より広域に渡って同一の構造が継続するような大陸域のデータを用い、比較検討する必要がある。そこで本研究では、北米大陸のデータ(米国 National Geodetic Survey 編集、1,378,875点)を並行して利用できる環境を整えた。

0-2. その他のデータ

- ・GPS:国土地理院による GPS 連続観測データは、全国について入手可能であるが、今回は 2000 年三宅島噴火前後の日本列島中央部の地殻変動をテストケースとして検証するため、伊豆諸島一本州島中部のデータ(観測点:190点、期間:1999~2000年)を収集した。
- ・地震:気象庁統合震源(全国)、京大防災研(西南日本)、同丹波地域詳細について収集し、フォーマットを統一した。
- ・地形:国土地理院数値地図 250m メッシュから緯度ー経度ー標高データを作成した。
- ・活断層:中田 高・今泉俊文編(2002)「活断層詳細デジタルマップ」より、活断層位置情報を抽出。
- ・地殻熱流量:Yamano (1995)による日本列島と周辺海域の地殻熱流量データを入手した。

1.重力異常を用いた地体構造区分に向けての解析

重力異常分布の短波長成分は浅部の密度構造に起因する。ここでは主に上部地殻の密度分布を解析対象とするため、100~80km 以下の短波長成分を抽出した。九州地方における波長 100km 以下の重力異常分布の例(値が大きいほど白色)を図1(b)に示す。この図では、上部地殻が高密度の物質で構成されている地域は白く表現される。この段階でも、九州地方の上部地殻がいくつかの高密度の地塊によって構成され、断裂構造や火山列が間を分割している様子が示唆された。同地域の重力異常勾配分布図を図1(c)に示す。

1-1. 短いタイムスケール(<100 年)の地殻変動と地下密度構造

応力開放、あるいは新たな応力付加が起ったとき、地表面の変位量は第一近似的には地下を半無限弾性体と仮定して表現できる。しかしながら実際の GPS 観測データを見ると、均質媒体を仮定したときの変動とは異なる成分が足し合わされているように見える。これらの原因として、地殻の強度の水平変化や既存の切断面が変動の向き・量に関与している事が想像できる。一方、地下の強度(硬さ)の変化は密度の変化としても反映され、その情報は重力異常分布の中に取り込まれている。

そこで今回はまず、日本列島の GPS 観測データを入手し、地表下を半無限弾性体と仮定したときの地表の変動がどの程度再現できるかの調査を行った。この経験をもとに今後は、均質媒体では表現の困難な観測変動量の抽出を試みる予定である。この手法での目標は、得られた地殻変動の不均質成分と、(上部地殻の密度分布起源である)短波長重力異常分布がどのような形で関連しているかを明らかにする事である。以下の成果の詳細は Bulletin of Volcanology 誌に投稿中であり、公開を予定している。

(1-1-a) 半無限弾性体を仮定したときの地表の(GPS)変動解析

Okada (1992)は、ある半無限弾性体・ある断層を仮定したときの任意の点における変位量を計算するコードを提供した。本研究ではこのコードを参照し、原因となる断層(あるいは点震源)運動の最適パラメータ・セットを求めるシステムを構築した。最適断層モデルを求めるため、GPS 変位観測データと、与えた断層モデルによる理論変位量の反復照合を数百万回行った。

このシステムを三宅島 2000 年噴火時の伊豆諸島一本州中部の GPS 観測データに適用し、この時の地殻変動を最もよく説明するダイクの位置やマグマ貫入量、マグマ供給元の収縮位置の特定を試みた。その結果、図2の太直線(三宅島ー神津島間)の位置(深さ3~13km)にダイクの貫入(1.8 km^3)を想定し、ダイク中央地下 10km の地点に収縮(-1.1 km^3)源を置くと、GPS 観測値を最も満足すると推定できた。各観測点における GPS 観測変動量(白矢印)と最適パラメータによる計算変動量(黒矢印)の分布を図2に示す。

以上から、広域(500km 四方程度)の GPS 地殻変動を説明する目的において半無限弾性体の仮定は有効と考えられる。一方、GPS 観測値には、均質な弾性体としては理解が困難な理論値からのずれが常に生じている事も明らかである。そのようなずれの中には原因となる断層形状をより複雑に設定すれば解決できるもの

もあるが、多くは(特に原因から離れた地域では)地殻強度の不均質によるしわ寄せが表現されていると予想される。

強度の不均質には間接的に密度の不均質や切断面の分布が関わっているであろう。そのため今後は短波長重力異常分布との照合によって、それらの関連を明らかにしていく予定である。

1-2. タイムスケール中(<数 10 万年):活断層・地形との関連

活断層と重力異常勾配との関連を調査開始した。近畿地方 170km 四方の範囲における重力異常勾配分布と活断層分布の対応例を図3に示す。これは本研究開始前に行なった重力異常勾配と地震活動の関連調査(工藤・河野, 1999)で用いた手法を活断層データ(上記 0-5.)に適用した結果である。図の横軸は重力異常勾配、縦軸(左、棒グラフ)は各重力異常勾配値域(1 mgal/km 毎)における単位面積あたりの活断層データ点数を示す。重力異常勾配が4mgal/km 以下の地域は解析範囲全体の面積の約94パーセントであり、これ以上の勾配を持つ地域はきわめて限られた場所である。重力異常が急勾配の地域に活断層が分布する傾向が見られる。その一方で、記載された断層とは対応しない位置にも重力異常急勾配帯が散見される。それらの多くは、地表からは確認できない伏在する断層構造の可能性が示唆される。

地形と重力異常の関連については両者の coherence(後述)を求めることで検討をはじめた。これについては 2.の解析と同時進行しているため、後で述べる。

1-3. タイムスケール大(>数 10 万年):地質学的情報との関連(九州の例)

九州地方について、火山・構造地質に関する情報収集を開始した。地表の観察から得られた情報と重力異常分布に対応が見られた例を以下に列挙する。複数の研究領域からの情報を総合し解析を進める事で、より詳細な地下構造情報を抽出出来ると予想される。

- ・中央構造線の西方延長の問題: 地質学的には臼杵一八代構造線が中央構造線にあたるとの記述があるが、四国で明瞭に中央構造線と対応する重力異常急変帯は極めて素直に大分一熊本構造線の下につながっている。
- ・豊肥火山帯: 火山体内に数段の階段状の重力異常分布を発見した。5My に及ぶ南北引っ張りによって生成され (Kamata & Kodama, 1994)、かつ中央構造線の連続性は保たれているという制約条件から、本火山帯の構造発達史を再構築あるいは精密化できる可能性がある。
- ・表層仮定密度の問題: 阿蘇山周辺のブーゲ異常は表層仮定密度 2.67g/cc ではカルデラ形状に呼応して内側に 1 つの大きな負の重力異常域(図1(b)白線内)が存在するが、この負の異常域は、仮定密度を下げていくにつれて負の目玉が南北二つに分かれる事が明らかになった。過去の主活動域の地下での枝分かれ、あるいは時代による変動などの可能性がある。
- ・大崩山コールドロン: 環状の花崗岩脈に対応した位置から内側へ重力異常の急激な落ち込み(図1(c)白線内)。重力異常分布から、これまでに分かっている構造情報の補間が出来る。
- ・別府-島原地溝・鹿児島地溝: 重力異常から、詳細な形状推定が可能と考えられる。

2. 重力異常と地形の coherence に関する解析

- ・異方性の検討: 本研究に入る前に、重力異常と地形の coherence(波長ごとの相関)から、日本列島リソスフェアの大まかな有効弾性厚分布を見積もった(Kudo et al., 2001)。この手法を発展させ、様々な方位について coherence を独立に求め、リソスフェアの有効弾性厚(強度)に異方性がないかどうかの検討を実施した。新手法の有効性を実証するため、広範囲にわたり特定の方向性の地下構造をもつ地域として、北米西部の Great Basin を解析地域に選定した。その結果、重力異常・地形の coherence から推定される有効弾性厚は、解析方向による差が検出された(図4)。この地域の有効弾性厚は、方向によって 6~11km まで変化(図5)し、最も厚く求まる方向と薄く求まる方向はほぼ直交することが明らかになった。この変化は、曲げ剛性にして約 6~7 倍の差に相当する。この結果を受けて、今後は日本列島の上部地殻強度の異方性分布抽出に向け、手法を改良していく予定である。
- ・アイソスター以外の鉛直方向外力関与の可能性—琵琶湖の場合: 琵琶湖周辺域において同様の coherence 分布を求めるに、解析領域内の最大波長成分においても全波長領域で coherence はほぼ 0 であった。この結果から琵琶湖周辺域のリソスフェアの上下運動は、少なくともアイソスターの概念からは解釈

が不可能である。そこでリソスフェアの上下変動を地殻より下からの力が支配している可能性について議論し、その原動力の特定を試みた。名古屋大学地震火山観測研究センターによるフィリピン海プレート上面形状モデルを簡略化し、その上で引きずられる高粘性流体の圧力分布等のシミュレーションを試みた(名古屋大学情報連携基盤センター所有、汎用流体解析コード利用)。その結果、琵琶湖周辺のみならず、伊勢湾から若狭湾にかけての低地帯の地殻直下に強い負の圧力分布(図6)が生じる可能性が示唆された。本解析に関する詳細は *Tectonophysics* 誌に受理され公開予定である。

- ・**その他の発見:** 短波長側で仮定表層密度の違いによる coherence 分布の変化を精査することにより、新しい表層密度推定法を開発した。仮定密度が現実の値に近づくほど標高値の大小による重力異常値の乱れが少なくなる(coherence が0に近づく)現象を捉え、応用した。
- ・**未解決の問題:** 解析区間ごとに特有な狭い波長領域で coherence が立ち上がる現象が散見される(例えば図7)ことを発見したが、その原因特定には至っていない。

3. 当初予定した以外の研究成果

地質環境研究グループによる紀伊半島南部の MT 法電磁探査による地下の比抵抗構造断面と、短波長重力異常分布(波長 70km 以下)から推定される密度構造断面を照合する事により、この地域の地下構造に関して新しい知見を得た(例えば図8)。特に重要な成果として、この地域下に高比抵抗($>100 \Omega \cdot m$)—高密度(周囲より $0.07 g/cm^3$ 程度高い)体が存在する事が強く示唆された。双方の解析断面と、側方への重力異常分布からその 3 次元的な形状は、南北に数 10km 幅 10km、程度の板状で、深さ数 km~15km にわたって西に傾斜する構造が示唆された。さらにこの板状構造と地表が接する部分には、熊野酸性岩類が南北に連なって露出している。また、半島南東縁に位置する熊野カルデラの地下における形状も重力異常分布に鮮明に現れている。これらの知見は、この地域のマグマ形成史と隆起運動に代表される地質環境変遷史を再構築する上で、重要な制約を与えると期待される。

参考文献:

- Geological Survey of Japan (GSJ) (ed.), 2000, Gravity CD-ROM of Japan, Digital Geoscience Map P-2, Geological Survey of Japan.
- 国土地理院, 1997, 数値地図 250m メッシュ(標高), CD-ROM.
- Kamata, H. and K. Kodama, 1994, Tectonics of an arc-arc junction: an example from Kyushu Island at the junction of the Southwest Japan Arc and the Ryukyu Arc. *Tectonophys.* 233, 69–81.
- 工藤 健・河野芳輝, 1999, 西南日本の重力異常勾配と地震活動との関連, *地震* 2, 52, 341–350.
- Kudo, T., A. Yamaji, M. Furumoto and T. Nagao, 2001, Effective elastic thickness of island arc lithosphere under Japan, *The Island Arc*, 10, 135–144.
- 中田 高・今泉俊文編, 2002, 活断層詳細デジタルマップ, 東京大学出版会, DVD-ROM, 60p.
- Okada, Y., 1992, Internal deformation due to shear and tensile faults in a half-space, *Bull. Seismol. Soc. Am.*, 82, 1018–1040.
- Shichi, R and A. Yamamoto (representatives of the Gravity Research Group in Southwest Japan), 2001. Gravity Database of Southwest Japan (CD-ROM), Bull. Nagoya University Museum, Special Rept., No.9.
- Yamano, M., 1995. Recent heat flow studies in and around Japan. In Gupta, M. L. & Yamano, M. (eds.) *Terrestrial heat flow and geothermal energy in Asia*, Oxford & IBH Publishing, New Delhi, 173–201.

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成15年度は下記0.,1.,2.を中心に、平成16年度は下記3.を中心に実施する予定である。

0. 日本列島重力データベースの構築

九州・近畿・中部地方で行なった重力データベースの再編集作業を継続し、日本列島陸域全体について行なう。

1. 重力異常を用いた地体構造区分

日本列島の地下の密度分布でみた地体構造区分、潜在断層抽出を試みる。地質学的推定に基づく研究成果との照合により、両者の補完、新知見のまとめを行なう。GPS等測地学的手法により明らかにされた現在の地殻変動(特に歪分布)と地体構造・地下の密度分布がどう関連するのか、短いタイムスケールにおける地下構造と運動の関係を検証する。

2. 重力異常と地形の coherence に関する解析

スペクトル推定法の変更・改良により、日本列島の有効弾性厚分布の水平分解能を従来の2倍以上に改善する。地殻強度の異方性を解析できるシステムを構築し、その水平変化について議論の対象に含める。

3. 結果の検証

1.2.により得られた強度・構造運動に関する新知見は、計算機によるシミュレーション的手法(動的有限要素法、汎用流体解析プログラム利用)で検証する。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

査読のある論文:

○ Takeshi KUDO, and Koshun YAMAOKA, Pull-down basin in the central part of Japan due to subduction-induced mantle flow, Tectonophysics, 2003 (印刷中).

○ Koshun YAMAOKA, Takeshi KUDO, Masashi KAWAMURA, Fumiaki KIMATA and Naoyuki FUJII, Long-lasting dike intrusion in the 2000 eruption of Miyake-jima volcano - where did the magma come from? -, Bulletin of Volcanology, 2003 (査読中).

学会発表:

○著者:工藤 健・山岡耕春・山路 敦; 題名:浮力に逆らって下降した琵琶湖地域下の地殻ーその原動力への考察ー; 学会名:地球惑星科学関連学会; 場所:国立オリンピック記念青少年総合センター; 年月:2002年5月

○著者:Takeshi KUDO and Koshun YAMAOKA; 題名:Pull-down basin in the central part of Japan due to subduction-induced mantle flow; 学会名:American Geophysical Union, Fall Meeting 2002; 場所:San Francisco; 年月:2002年12月

○著者:Koshun YAMAOKA, Takeshi KUDO, Masashi KAWAMURA, Fumiaki KIMATA and Naoyuki FUJII; 題名:Long-lasting dike intrusion in the 2000 eruption of Miyake-jima volcano - Creep or chamber deflation?; 学会名:American Geophysical Union, Fall Meeting 2002; 場所:San Francisco; 年月:2002年12月

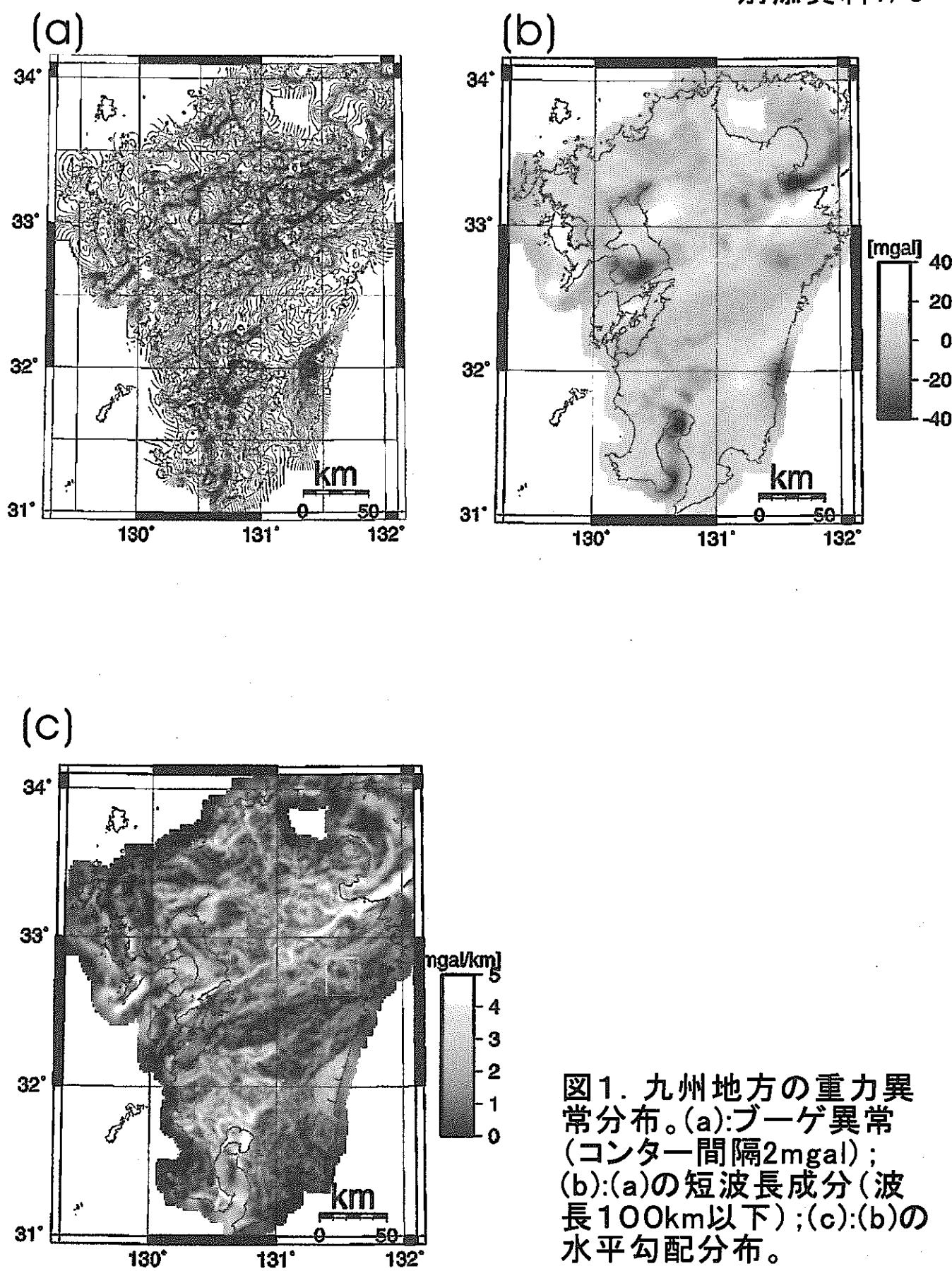


図1. 九州地方の重力異常分布。(a):ブーゲ異常(センター間隔2mgal);(b):(a)の短波長成分(波長100km以下);(c):(b)の水平勾配分布。

別添資料2/5

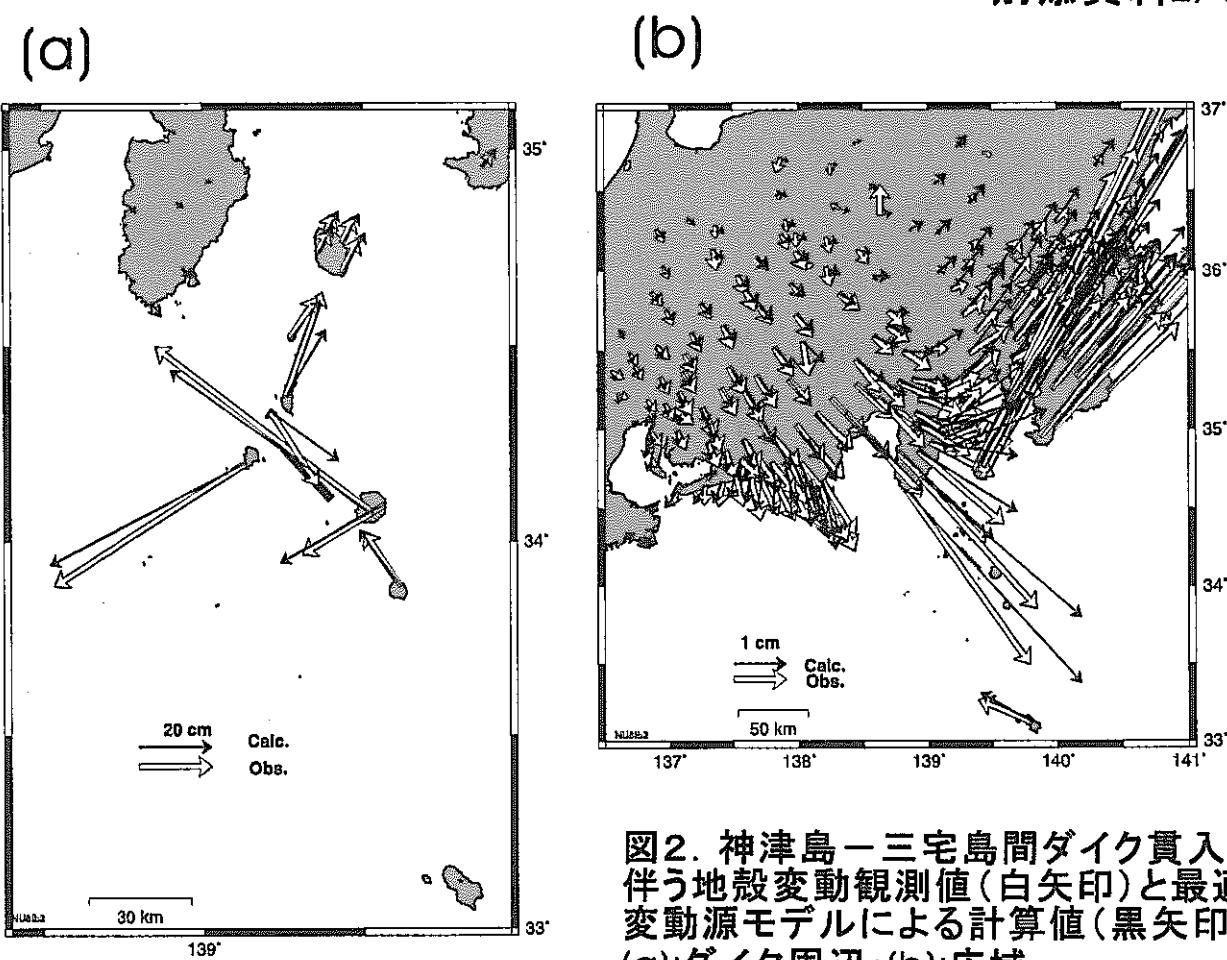


図2. 神津島一三宅島間ダイク貫入に伴う地殻変動観測値(白矢印)と最適変動源モデルによる計算値(黒矢印)。(a):ダイク周辺;(b):広域。

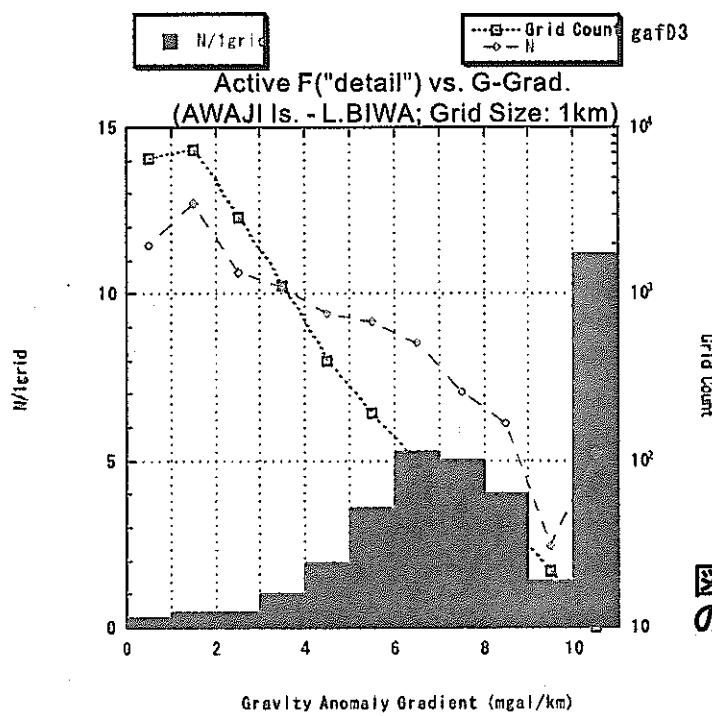


図3. 重力異常勾配と活断層分布の対応。近畿地方の例。

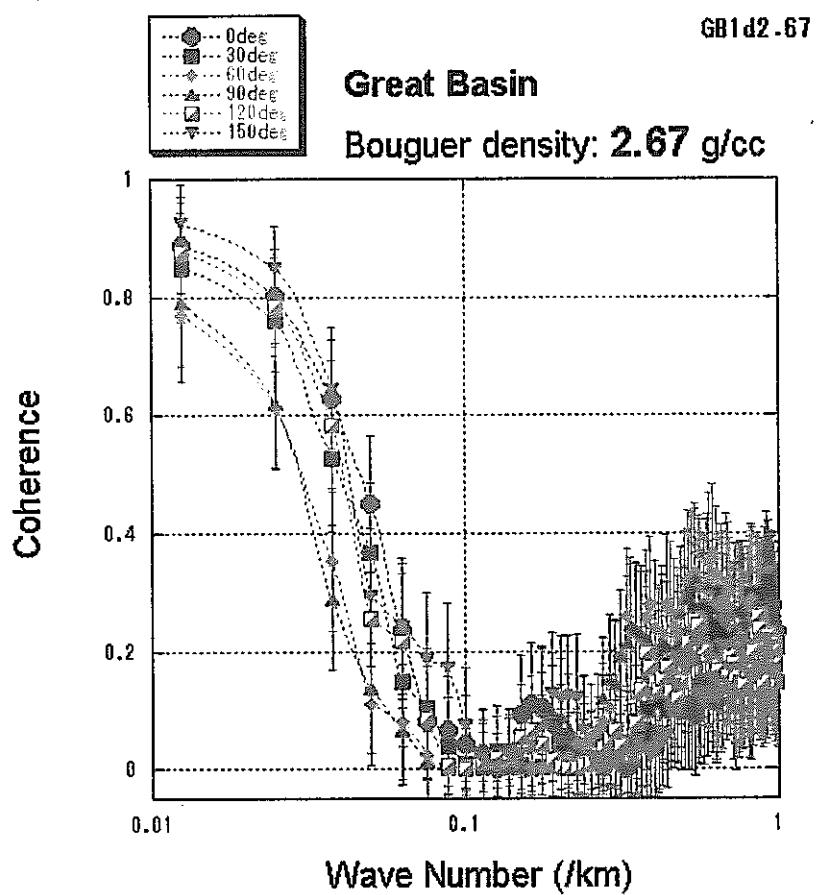


図4. 1方向サーチによる、ブーゲ異常と地形のcoherence。Great Basin 500X500kmの解析範囲の結果。解析方位東西が0度。30度間隔で半時計回りに150度まで解析方位を回転した例。

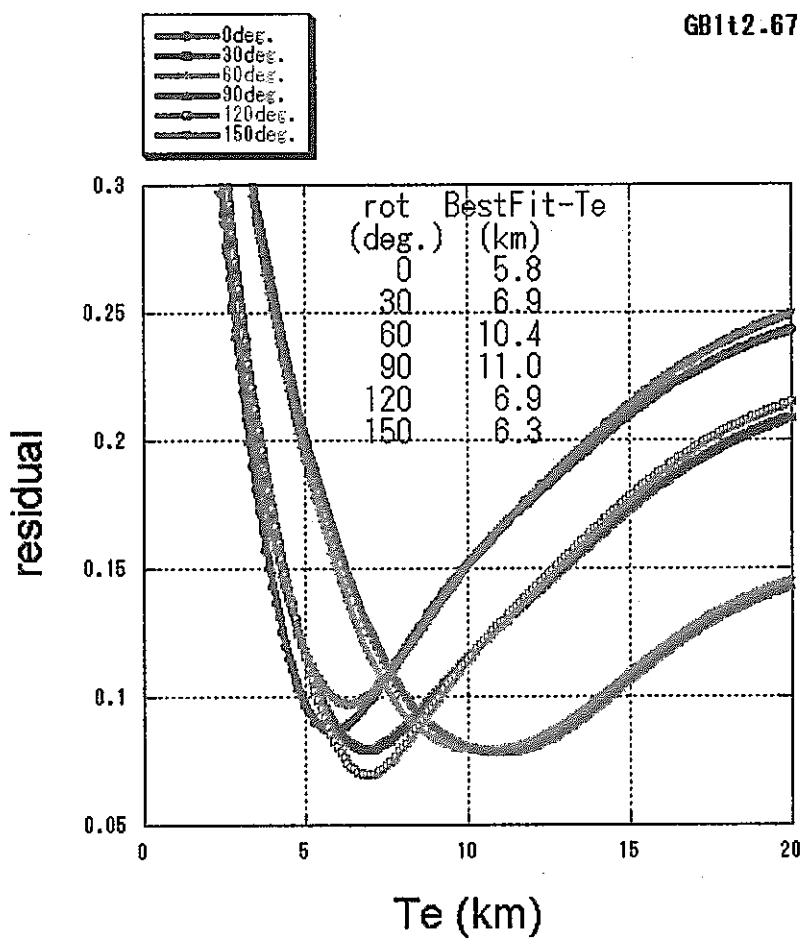


図5. 仮定有効弾性厚Teを変化(横軸)させたときの理論予測 coherence分布と、図4における結果との残差(二乗平均平方根; 縦軸)。図中に各解析方位で残渣最小となるTe値を示す。0度から-30(=150)度の間にTe最薄となる方位が存在すると考えられる。

別添資料4/5

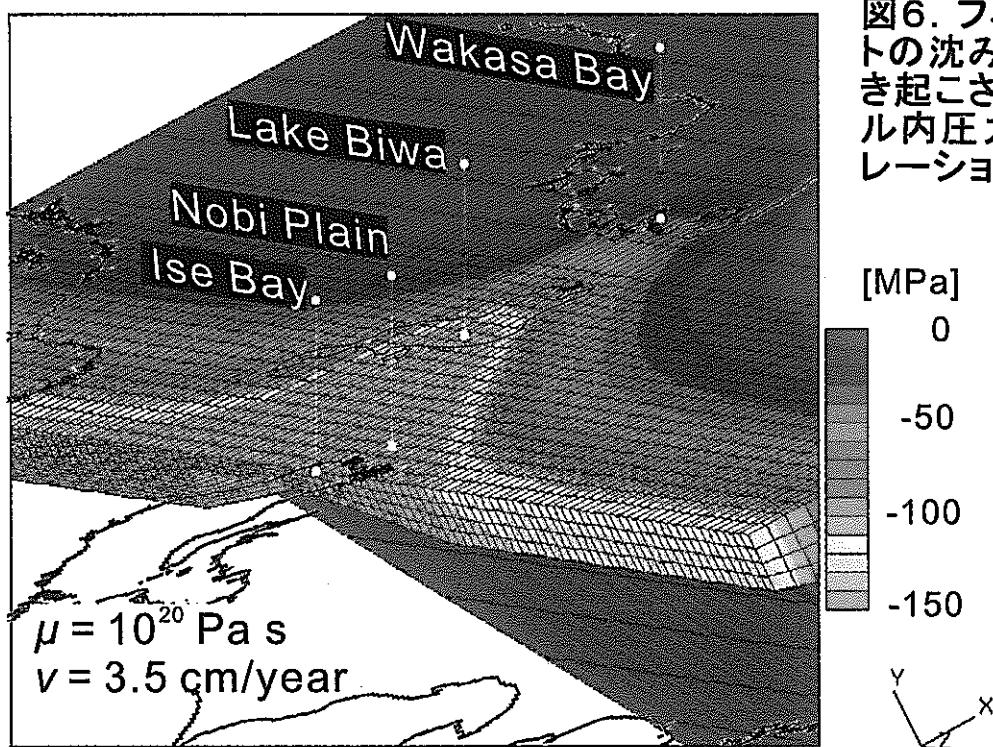


図6. フィリピン海プレートの沈み込みによって引き起こされる上部マントル内圧力分布(シミュレーション例)。

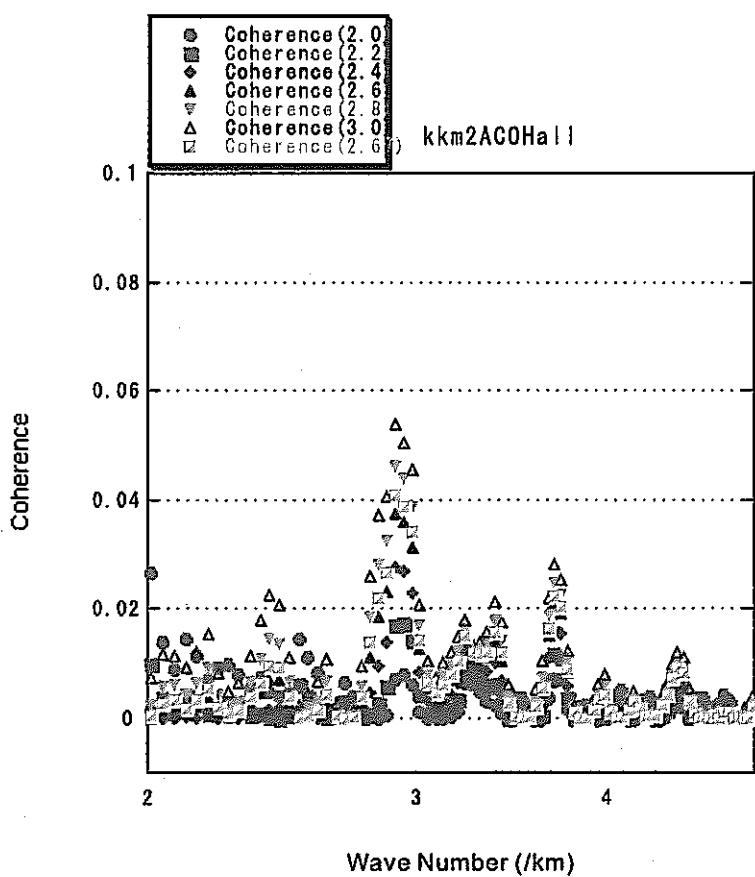
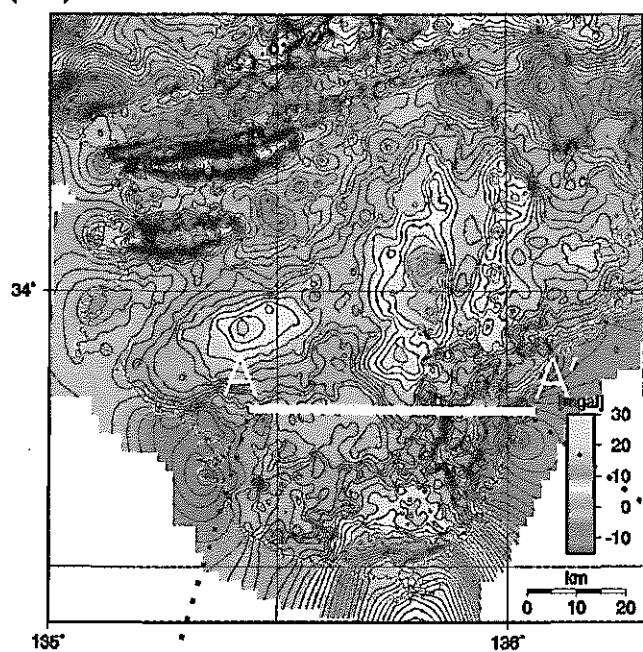


図7. 重力異常と地形のcoherence(短波長部分)。東北日本北上山地を含む $175 \times 175 \text{ km}$ の範囲の解析例。ブーゲ補正密度を $2.0 \sim 3.0 \text{ mgal/cc}$ まで変化させて計算。

別添資料5/5

(a)



(b)

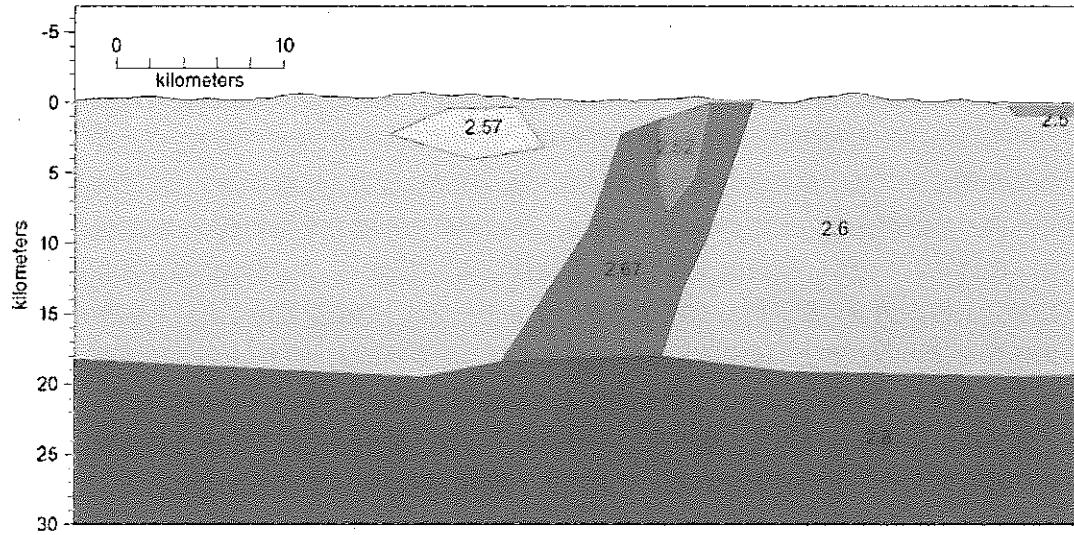
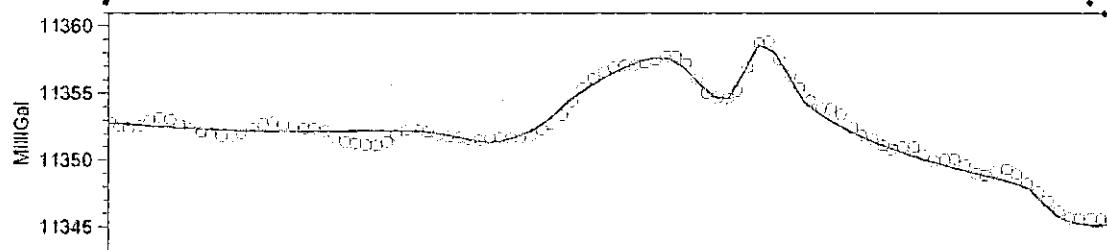


図8. (a) 紀伊半島の短波長ブーゲ異常分布図(波長70km以下の成分)。
 (b) 断面A-A'における密度構造解析例。上段：重力異常実測値(赤丸)と仮定した密度構造から得られる理論値(青実線)。
 下段：仮定した密度構造断面。図中の数字は各構造に仮定した密度(g/cm^3)。

博士研究員（H14）平成14年度研究概要報告書

研究テーマ	深部地質環境における地下微生物の代謝活性およびその地球化学的役割		
研究者氏名	村上 由記		
研究協力者 所属・氏名	東濃地科学センター 地質環境研究グループ 岩月 輝希	所属長 役職・氏名 中司 昇	地質環境研究 グループリーダー
研究実施場所	東濃地科学センター 物質移行試験室、試料前処理室、質量分析室、岩石鉱物試験室、水質分析室、ペレトロン年代測定棟、東濃鉱山、超深地層研究所用地内		
通算研究期間 (予定)	平成 14年 4月 ~ 平成 17年 3月	当該年度 研究期間	平成 14年 4月 ~ 平成 15年 3月

【研究目的】

地下環境中の微生物はその代謝過程を通して、地下環境中の酸化還元条件に影響を与えるとともに、地層中の鉱物の溶解・沈澱に関与する可能性が指摘されている。地下の地球化学反応に関与している代表的な微生物として、硫酸還元菌が挙げられるが、これらの微生物は地下深部に普遍的に存在していることが明らかになってきた。硫酸還元菌は自然界における硫黄の循環に重要な役割を果たしており、硫酸イオンを利用して増殖し、その代謝産物として硫化水素を生成することが知られている。硫化水素は還元性の高い物質であるため、地下の酸化還元状態に十分影響を及ぼしうる。また、放射性廃棄物の地層処分をおこなう際、硫化水素の存在がオーバーパックの金属部分の腐食を引き起こす可能性もある。したがって、地下環境における硫酸還元菌の活性を明らかにすることは、地層処分の安全評価を行う上で、1) 酸化還元反応への関与、2) 金属腐食性ガスの生成、という点において重要な情報になる。しかしながら、地下における硫酸還元菌の活性に関する情報は乏しく、硫酸還元菌の持つ還元緩衝能力およびガス生成能力についての評価は十分になされていない。

本研究では、東濃地域の地質環境において硫酸還元反応を行っている微生物群集を明らかにするとともに、地下環境におけるそれらの微生物の活性を見積もることによって、微生物の地球化学的プロセスにおける役割を明らかにすることを目的とする。

【研究内容（概要）】

本研究では、微生物の生息域である岩石および地下水試料を対象として、地下深部の硫酸還元菌の多様性・活性に関する調査研究をおこなう。微生物による硫酸還元活性の大きさは、原位置における地球化学条件だけでなく、そこに存在する硫酸還元菌の種類と現存量に依存するものと考えられる。したがって、各地質環境における硫酸還元菌の優占種の分布を明らかにし、優占種の硫酸還元活性能力について把握する。また、地下環境における硫酸還元菌の天然群集についても、その硫酸還元能力を見積もり、群集組成との関連性について評価・検討をおこなう。硫酸還元微生物の多様性に関しては、分子生物学的手法を用い、硫酸還元をおこなうために必要な酵素に特異的な遺伝子をターゲットとして、原位置環境における硫酸還元菌種の分布とそれらの活性を調べる。また、硫酸還元活性に関しては、培養法によって微生物の硫酸還元速度および硫化水素生成量を測定し、環境中における微生物による硫酸還元能力の見積もりをおこなう。

また、岩石コア試料を用いるにあたって、地下微生物を研究する際「掘削時におこる陸上微生物による岩石コアの汚染」を把握しておくことが必須である。そのため、掘削行程において岩石コア内に侵入した掘削水をモニターし、汚染のない岩石試料を採取するための手法開発も同時におこなう。

【使用主要施設】

グローブボックス、ガス循環装置、オートクレーブ、クリーンベンチ、インキュベーター、サブコアリング装置、蛍光顕微鏡、微生物培養用ファーメンター（以上、物質移行試験室に設置）
キャビラリー電気泳動装置、ガスクロマトグラフ（以上、質量分析室に設置）

【進捗状況（当該年度までの概要）】**A. 硫酸還元菌種の分布の把握およびそれらの活性に関する測定****サンプリング**

岩石コア試料：超深地層研究所用地における堆積岩を対象とした試錐孔（MSB-2 および 4 号孔）を用いて調査をおこなった。瑞浪層群の明世界層および土岐夾炭層における様々な岩相から、10 m おきに、計 13箇所の健岩部にて岩石コアを採取した。試料採取はコアが掘削されてからできるだけ迅速におこなった。採取した試料は、脱酸素剤とともに真空パック保存によって実験室に持ち帰り、極力汚染が少ないと考えられる中心部のみサブコアリングによって嫌気的に回収した。サブコアリングには、広島大学・長沼 肇 助教授らによって開発されたサブコアリング装置を使用し、回収した中心部分のコアは、適宜前処理を行った後、実験に用いるまで冷蔵および冷凍保存した。

地下水試料：上記試錐孔にて掘削行程中に揚水された地下水の採取を行った。掘削過程で生じる掘削水による地下水の汚染は、掘削水中に添加される蛍光染料（ナフチオン酸ナトリウム）によってその汚染度を把握している。揚水した地下水中の蛍光染料濃度を常時モニタリングし、染料濃度がある程度減少した後（約 1%）、地下水の本採水をおこなった。各深度の地下水は、採取後直ちに嫌気的保存の処理および濾過処理を行い、実験に用いられるまで冷凍および冷蔵にて保存した。

全菌・生菌計数

採取した地下水試料中の全菌・生菌細胞を蛍光顕微鏡によって計数した。全菌計数用の地下水試料は、採水後直ちに中性ホルマリン溶液を用いて細胞を固定し（終濃度 5%）、観察を行うまでは冷蔵保存した。全菌細胞の染色試薬は Acridine Orange, DAPI, および SYBR Green I の 3 種類を用いた。また、生菌数に関しては、Live/Dead BacLight Bacterial Kit（健全な細胞膜をもつ細胞を検出する試薬），CTC（呼吸活性を持つ細胞を検出する試薬），FDA, sFDA, cFDA（エステラーゼ活性をもつ試薬を検出する試薬；各試薬で蛍光強度が異なる）を染色試薬としてそれぞれ用いた。

硫酸還元菌の単離

採取した岩石コアおよび地下水中から硫酸還元をおこなう微生物に関して、分離・培養をおこなった。分離には、Postgate's 培地, *Archaeoglobus* 用培地、および瑞浪層群・土岐夾炭層のリグナイトから抽出した溶液をそれぞれ用いた。現段階 20 株の硫酸還元菌の単離を進めている（内一部は未単離）。単離が進められている菌株は、乳酸および酢酸を電子供与体として増殖に用いているものがほとんどである。また、リグナイト抽出溶液のみで増殖をおこなうことができる硫酸還元菌の培養にも成功した。

単離した株のうち、3 株について、16S rDNA をターゲットとした遺伝子解析をおこなった。

地下水における硫酸還元速度の測定

地下水中に存在する硫酸還元菌の硫酸還元速度を見積るために、天然微生物群集について培養試験を行った。採取した各地下水試料を 10 ml 容量のガラス製バイアルに分注し、呼吸をおこなう際の電子供与体としてそれぞれ乳酸、酢酸、プロピオン酸、酪酸、フミン酸、ギ酸、ピルビン酸、エタノール、リグナイト岩石抽出液を、電子受容体として硫酸イオンを添加した。各試料バイアル瓶は、ゴム製キャップ、アルミキャップで密閉した後、室温にて約 4 ヶ月培養をおこなった。キャビラリー電気泳動装置を用いて、培養過程における硫酸イオンおよび硫化物イオン濃度を測定し、硫酸イオン濃度の経時変化から硫酸還元速度の見積もりをおこなった。また、地下水試料中に存在する硫酸還元菌の有機物（電子供与体）利用能を調べ、深度における硫酸還元菌の群集組成の違いについて考察した。

硫酸還元菌の深度分布に関する解析

天然地下環境中における硫酸還元菌群集の分布を把握するために、分子生物学的手法の一部である Dot blot hybridization および Fluorescent in situ hybridization をおこなう予定であるが、その対象試料について以下のような処理をおこなった。

Dot blot hybridization：オートクレーブ滅菌済みのメンブランフィルター（直径 47 mm, 孔径 0.2 μm ）を用いて、採取した地下水 5-10 L を直ちに濾過し、-86°Cにて冷凍保存をおこなった。

FISH (Fluorescent in situ hybridization)：採取した地下水は、直ちに中性ホルマリンで固定した（終濃度 4%）。固定したサンプルは、4°Cにて一晩静置し、その後ポリカーボネイト製のメンブランフィルター（直径 25 mm, 孔径 0.2 μm ）を用いて、それぞれの容量で濾過した（1, 10, 50, 100 ml）。その後、各フィルターを 2% (wt/vol) NaCl+50% (vol/vol) ethanol 溶液で洗浄・固定・インキュベーションを行った後、-20°Cにて冷凍保存をおこなった。

B. 岩石試料における掘削時の汚染に関する試験

瑞浪市の超深地層研究所用地における、堆積岩を対象とした試錐孔（MSB-3 号孔）を用いて、掘削水によって引き起こされる岩石コア内部における微生物汚染の評価を行った。掘削行程で、掘削水中に 2 種類の汚染指標物質を混入させ、掘削水の岩石コア試料中における混入（汚染）度合いを指標物質濃度を追うことによって把握することを目的とした。汚染指標物質には、掘削水中の微生物と挙動を共にすると考えられる蛍光ビーズ（直径 0.2 μm ）および掘削水中の水分子と挙動を共にすると考えられる perfluorocarbon tracer (perfluoromethylcyclohexane: PFT)を使用した。これらの汚染指標物質の濃度管理は、掘削過程で 1-3 時間ごとに掘削水を採取・分析することによって行った。

サンプリング

岩石試料は、平成 14 年 9 月初旬から約 1 ヶ月間、堆積岩の様々な岩相・岩質を対象として計 19 箇所にて採取した。今回使用した汚染指標物質の一つである PFT は、揮発性という特徴を有する。そのため、岩石コア内に侵入した後、揮発・拡散し、掘削水と挙動を共にしない恐れがある。予備実験として、岩石コア（堆積岩）を PFT 溶液に浸漬させた場合の、岩石コア内部への PFT の拡散時間を調べた。その結果、PFT 溶液に浸漬し始めてから約 5 時間後には、コア中心部にて PFT が検出された。PFT の拡散時間は、岩相および岩質によっても異なることは予想される。しかし、少なくとも 5 時間以内には半径 4 cm の堆積岩コア内部にて、PFT の拡散が起こりうる可能性が示唆された。したがって、掘削水の岩石侵入度をより正確に評価するために、サンプリングはコアリング開始から 3-5 時間以内におこなった（岩芯記載・写真撮影の直後）。採取されたサンプルは、適宜前処理を行った。蛍光ビーズ計数および PFT 分析用の岩石試料はハンドドリルを用いてサブコアリングを行い、試料を回収したのち、各前処理・測定をおこなった。

【研究成果（当該年度）】**A. 硫酸還元菌種の分布の把握およびそれらの活性に関する測定**全菌・生菌計数

各サンプル中の微生物細胞数を図 1 に示す。今回採取した地下水中の全菌数は約 10^4 - 10^5 cells ml^{-1} 、生菌数は検出試薬によってばらつきはあるものの、約 10^2 - 10^5 cells ml^{-1} の範囲で計数された。全菌数および生菌数は、土岐夾炭層下部に位置する深度 132 m において最も高い値が観察され、風化花崗岩に位置する深度 171 m において最も少ない値が得られた。この生菌数に関する深度プロファイルは、過去において東濃鉱山周辺の堆積岩地下水を対象として得られた生菌数の傾向と一致していなかった。東濃鉱山周辺における堆積岩地下水中の生菌細胞数は、土岐夾炭層下部において最も低い値が得られていたが、MSB-2 試錐孔においては土岐夾炭層下部に位置する地下水中で最も高い値が得られた。MSB-2 号孔においては塩分濃

度の高い地下水の存在が確認されており、東濃鉱山周辺における堆積岩地下水の組成と異なっている。したがって、これらの生菌数に関する結果の違いは、原位置における地下水流动と関連している可能性がある。地下水中の生菌数分布に関する評価をおこなうためには、今後もデータの蓄積が必要である。

今回得られた全菌数および生菌数に関するデータは、地下における硫酸還元菌数およびその活性の見積もりに関するデータと合わせることによって、地下微生物群集全体における硫酸還元菌の割合および活性の大きさを推察することができると考えられる。

硫酸還元菌の単離

現段階で単離が進められている菌株は、乳酸および酢酸を電子供与体として増殖に用いる能力があることが確認されている。現在単離を進めている硫酸還元菌の約 20 株のうち、3 株について遺伝子解析を用いた種の同定をおこなった。その結果、これらはすべて *Desulfotomaculum guttoides* もしくは *Clostridium celerecrescens* に近縁であることが明らかとなった（相同性 98%）。*Desulfotomaculum* 属や *Clostridium* 属の一部は、重金属を還元することが知られており、特に本研究で近縁種となった *C. celerecrescens* はウラン廃鉱から分離された種である。したがって、本菌株も硫酸還元だけでなくウランなどの重金属を還元する可能性があり、この菌株の堆積岩における分布および存在密度を明らかにする必要があると考えられる。

また、瑞浪層群に分布するリグナイトをエネルギー源として増殖をおこなうことができる硫酸還元菌の培養にも成功した。この菌株の存在は、原位置の硫酸還元菌が有機炭素源としてリグナイトを利用している事実を示している。菌の単離・特性調査をさらに進めることによって、原位置における硫酸還元反応のメカニズムに関する知見が得られると考えられる。

地下水における硫酸還元菌の有機物利用能

地下水および岩石中に存在する有機物は、錯体形成や吸着によって放射性核種と相互作用を起こすと考えられている。特にフルボ酸、フミン酸などの腐食物質は核種と錯体を形成し、低分子の有機物は拡散および吸着によって核種移行に影響を及ぼす可能性がある。地下に存在する微生物は、増殖過程でエネルギーを得る際に有機物を利用するものが数多く存在する。したがって、微生物が利用する有機物の種類および利用後の分解産物を把握しておくことは、有機物が関連した核種移行の観点からも重要である。

今回試験を行った地下水中的硫酸還元菌群集は、さまざまな有機物を利用して硫酸還元をおこなうことが示された（図 2）。これらの有機物は、硫酸還元菌が呼吸をおこなう際の電子供与体として利用されていると考えられ、その利用能は地下水を採取した深度によって異なっていた。例えば、土岐夾炭累層上部にて採取した地下水（深度 79-130 mab）中の硫酸還元菌群集は、主に乳酸・ピルビン酸・エタノールを用いて増殖するのに対し、土岐夾炭累層下部における地下水（深度 132-153 mab）中では、乳酸・エタノールなどはほとんど利用せず、フミン酸が主な電子供与体であった。土岐夾炭累層下部においては、乳酸などの低分子有機物よりもむしろ、フミン酸などの高分子有機物が豊富に存在していると考えられる。したがって、原位置に存在する硫酸還元菌は、環境条件に適応した有機物利用能を持つ可能性がある。また、花崗岩地下水中に存在する硫酸還元菌群集は、添加したほとんどすべての有機物を電子供与体として利用できることが示された。硫酸還元菌は呼吸をおこなう際、硫酸イオンを電子受容体として、さまざまな種類の有機酸を電子供与体として用いることが知られているが、硫酸還元菌の種類によって利用できる電子供与体が異なっている。したがって、電子供与体の利用能の違いは、そこに存在する硫酸還元菌の種組成の違いを反映しているものと考えられ、土岐夾炭累層の上部、下部、および花崗岩における硫酸還元菌の種組成が異なっていることが示唆された。特に、花崗岩における硫酸還元菌群集は多様性に富んでいる可能性が示された。電子供与体利用能の結果から、土岐夾炭累層上部に存在する硫酸還元菌は *Desulfovibrio* 属、*Desulforhopalus* 属などのグループ I に属する種であることが推測される。また、花崗岩に存在する硫酸還元菌は酢酸を利用しているため、グループ I およびグループ II に属する種の両方が存在し、プロピオン酸を利用する硫酸還元菌が存在することから、*Desulfovibulus* 属に属する種が存在する可能性がある。

また、瑞浪層群の土岐夾炭累層にはリグニンが豊富に存在することから、硫酸還元菌による炭素源としてのリグニンの利用能も調べた。その結果、土岐夾炭累層下部および花崗岩地下水においては、リグニンを添加した方が硫酸還元が促進されたのに対し、土岐夾炭累層上部では、リグニンの存在が微生物の硫酸還元反応を阻害していることが確認された。土岐夾炭累層上部には海成層である明世累層が存在しており、ここに存在する硫酸還元菌は、リグニンではなく海成層由来の有機物を主に利用している可能性がある。一方で、土岐夾炭累層下部および花崗岩の硫酸還元菌は、環境中にリグニンが豊富に存在していることから、難分解性であるリグニンを利用できるよう適応したと考えられる。これらの結果は、微生物の生理学的特性が、生息する環境条件を良く反映していることを示している。

有機物はこれらの微生物に取り込まれた後、「分解」というプロセスを経て形を変えられ、再度環境中へ生産される。地下環境において、有機物は核種移行に影響を及ぼすと考えられているため、微生物による有機物利用や有機物形態の変化に関する情報も、物質移行を考える上で重要であると考えられる。特に、本研究によって、土岐夾炭累層下部においてはフミン酸が硫酸還元菌によって利用されることが示された。したがって、今後はフミン酸が硫酸還元菌によってどういう形に分解されるのかを明らかにしておく必要があると考えられる。また、全ての地下水試料中に存在する硫酸還元菌が、リグナイト岩石抽出液を利用して硫酸還元を行うことが示されたが、リグナイト中の具体的な有機物組成に関する情報も、今後必要になってくる。

地下水における硫酸還元速度の測定

各地下水中の硫酸還元菌群集における硫酸還元速度を見積もったところ、硫酸イオンが十分に存在する状態で $3\text{--}9.5 \times 10^1 \mu\text{mol ml}^{-1} \text{ day}^{-1}$ の速さの範囲で硫酸還元をおこなう能力を持つことが示された（図2）。土岐夾炭累層上部の地下水で、最も高い硫酸還元速度が得られ、花崗岩健岩部の地下水で最も低い値が得られた。また、土岐夾炭累層上部以外の岩相で採取された地下水では、リグニンの添加によって硫酸還元速度も速くなることが示された。様々な有機物を添加した条件下で硫酸還元速度を見積もった結果、リグナイト岩石抽出溶液の存在下で微生物による硫酸還元反応が最も促進され、その速度は $4.62 \times 10^1 \mu\text{mol ml}^{-1} \text{ day}^{-1}$ であることが示された。過去の研究成果から、堆積岩の原位置環境における硫酸イオンの供給速度は、約 $10^4 \mu\text{mol ml}^{-1} \text{ day}^{-1}$ であると推測されている。それを考慮すると、地下の硫酸還元菌は、硫酸イオンの供給速度の $1000\text{--}10000$ 倍もの速さで硫酸還元反応を進める能力を持っており、原位置における微生物の還元緩衝能力は十分に大きい可能性がある。また、この反応によって生成された硫化水素が、還元環境の維持に関与していると考えられる。このような微生物の還元緩衝能力に関する評価は、地下環境において酸化的反応を起こす因子及びイベントが発生した場合でも、微生物活動が還元環境の形成・維持の緩衝剤として十分機能しうる可能性を提示している。

B. 岩石試料における掘削時の汚染に関する試験

掘削水から混入した岩石コア中の汚染指標物質濃度

岩石コア内部への掘削水混入は、2種類の汚染指標物質（直径 $0.2 \mu\text{m}$ 蛍光ビーズおよびパーフルオロカーボン、以下 PFT）の濃度を測定することによって見積もった。掘削水に混入させた汚染指標物質は、掘削行程中、ほぼ均一な濃度を維持していた。岩石コア内部における蛍光ビーズの混入濃度を図3に示す。岩石コア中に混入した蛍光ビーズおよびPFT濃度から、岩石コア表面（表面から内側 $0\text{--}15 \text{ mm}$ ）においては、ほとんどのサンプルで掘削水による汚染が確認された。コア表面から内側 $15\text{--}30 \text{ mm}$ においても、複数の岩石サンプルで蛍光ビーズが検出されており、汚染が起こっていると考えられる。しかし、コア表面から $30\text{--}40 \text{ mm}$ においては、蛍光ビーズの混入はほとんどのサンプルで検出されず、汚染されていないと考えられる。これらの結果は、以前おこなわれた掘削水による汚染評価試験の結果と一致しており、したがって、汚染のない岩石コアサンプルを得るには、コア表面から内側 3 cm までを取り除くことで対処できると考えられる。これを踏まえると、大孔径の岩石コアサンプルを用いることによって、掘削水中からの汚染に

関する問題はある程度解決できることが明らかになった。また、岩石コア内部において蛍光ビーズが検出されたサンプルは、礫岩および粗粒の砂を含んでいる岩石であった。これらの岩相による汚染の差違は、PFTを用いた汚染の検出でも同様の傾向が得られていることから、サンプルの岩相を観察することによって、ある程度の汚染を除去できると考えられる。

本研究の結果から、大孔径コアの使用および岩芯観察によって、ある程度の掘削水による汚染を防ぐことができる可能性が示唆された。しかしながら、礫岩を含まない岩石コアサンプルにおいてもコア中心部まで汚染が確認されているものもあり、今後はこれらの汚染が何によって制限されているのかを明らかにする必要がある。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

A. 硫酸還元菌種の分布の把握およびそれらの活性に関する測定

硫酸還元菌株の単離・培養

現在得られている約 20 株の硫酸還元菌について、遺伝子解析を用いた同定および特性試験（適性温度・pH テスト、有機物利用能、硫酸還元速度等）をおこなう。

硫酸還元菌の天然群集における硫酸還元活性

現在培養を行っている地下水および岩石試料について、引き続き測定試験を進めるとともに、他の試錐孔から採取した地下水についても活性測定試験を試みる。

硫酸還元菌群集の分布

分子生物学的手法（ハイブリダイゼーション）を用いて、原位置における硫酸還元菌種の群集組成および存在量の把握を試みる。

B. 岩石試料における掘削時の汚染に関する試験

現在得られたデータをもとに、岩石コアの割れ目本数、RQD 値、空隙率、透水係数、岩相等について掘削水による微生物汚染の評価指標となりうる項目について検討する。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

学術論文

東濃地域における地下水化学と地下微生物の相互作用.

村上 由記, 岩月 輝希, 長沼 純 (2003) 地学雑誌, Vol. 112(2) (印刷中)

Abundance and viability of subsurface microbial communities in sedimentary and igneous rock aquifers.

Murakami, Y., Y. Fujita, T. Iwatsuki, T. Naganuma. Book title "Land and Marine Hydrogeology" Elsevier Science B. V., Amsterdam (in press)

Abundance and viability of the groundwater microbial communities from a borehole in the Tono uranium deposit area, central Japan.

Murakami, Y., Y. Fujita, T. Naganuma, T. Iwatsuki. (2002) Microbes and Environments. 17: 63-74.

国内学会口頭発表

東濃ウラン鉱床におけるナチュラルアナログ研究? 地下微生物の酸化還元緩衝能力に関する評価-

村上 由記, 岩月 載希, 濱 克宏, 長沼 純, 日本原子力学会 2003 年春の大会, 長崎県・佐世保市, 3 月 27-29 日, 2003

国内学会ポスター発表

東濃地下堆積岩および花崗岩に生息する微生物の現存量および群集組成

村上由記, 谷本大輔, 濱 克宏, 天野健治, 岩月輝希, 長沼純, 地球惑星科学関連学会合同大会, 東京都・代々木, 5 月 27-31 日, 2002

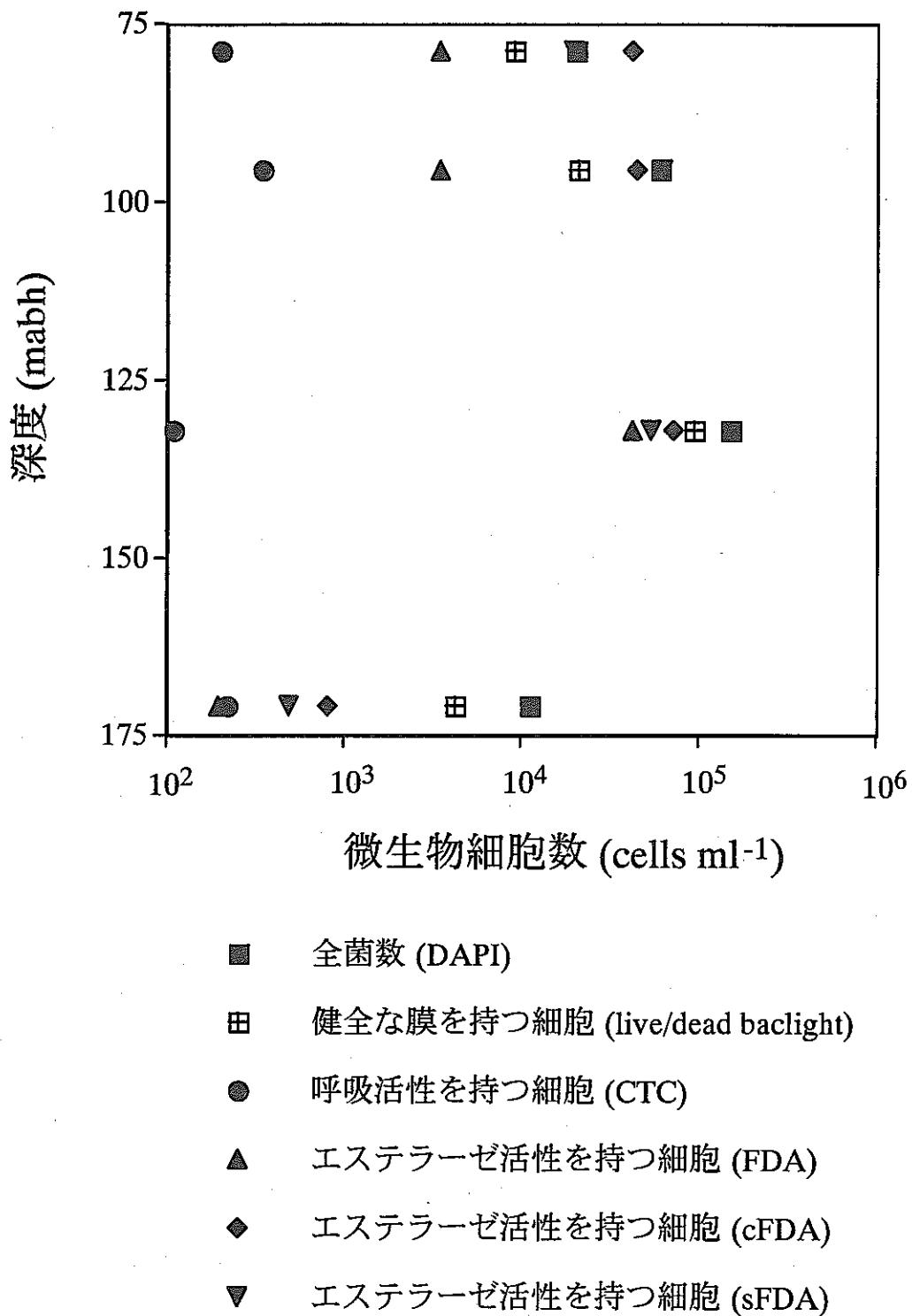
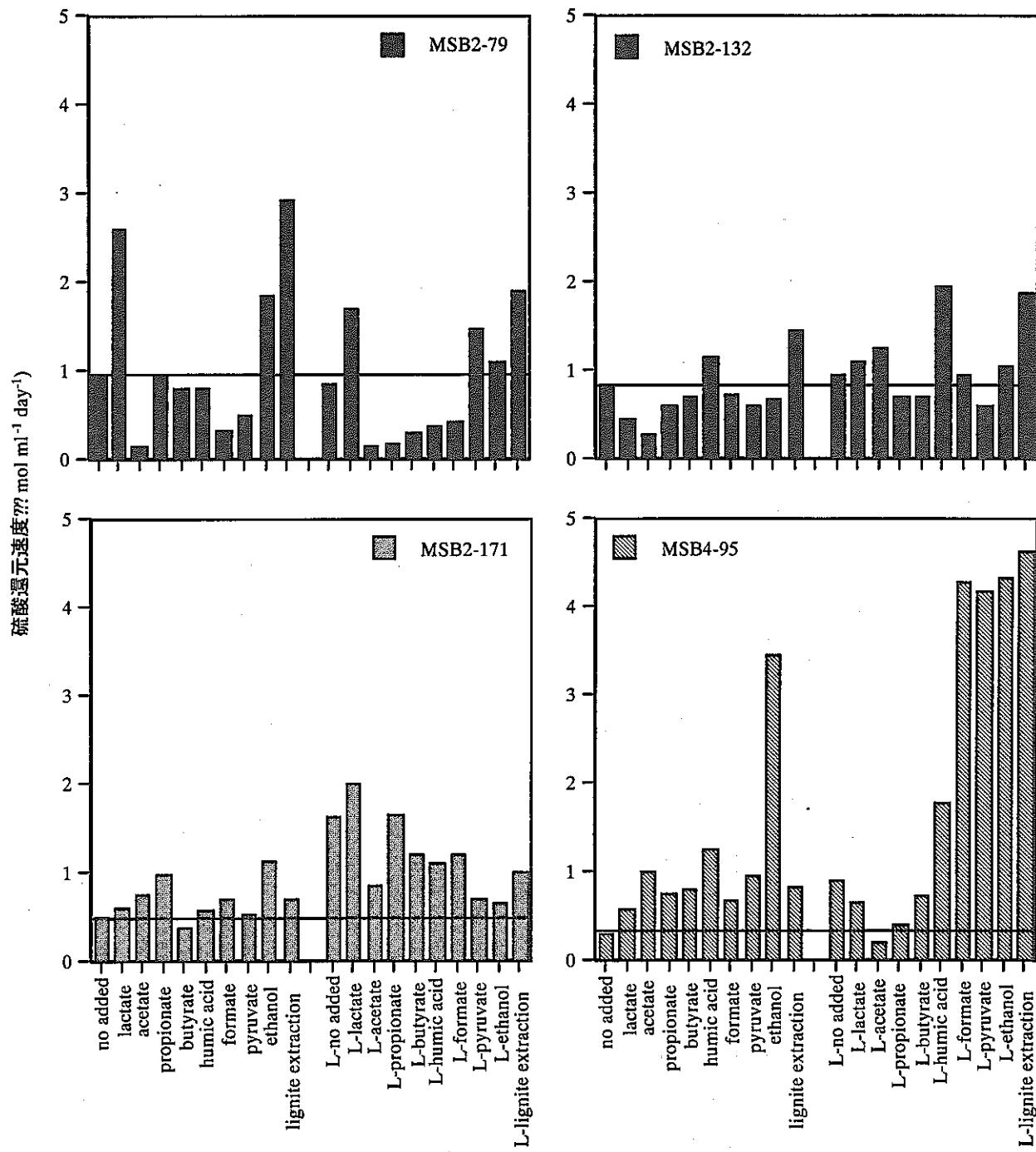


図 1. 地下水中における全菌数および生菌数の深度プロファイル

図 2.

硫酸還元菌群集における硫酸還元速度



電子供与体として利用される有機物の種類

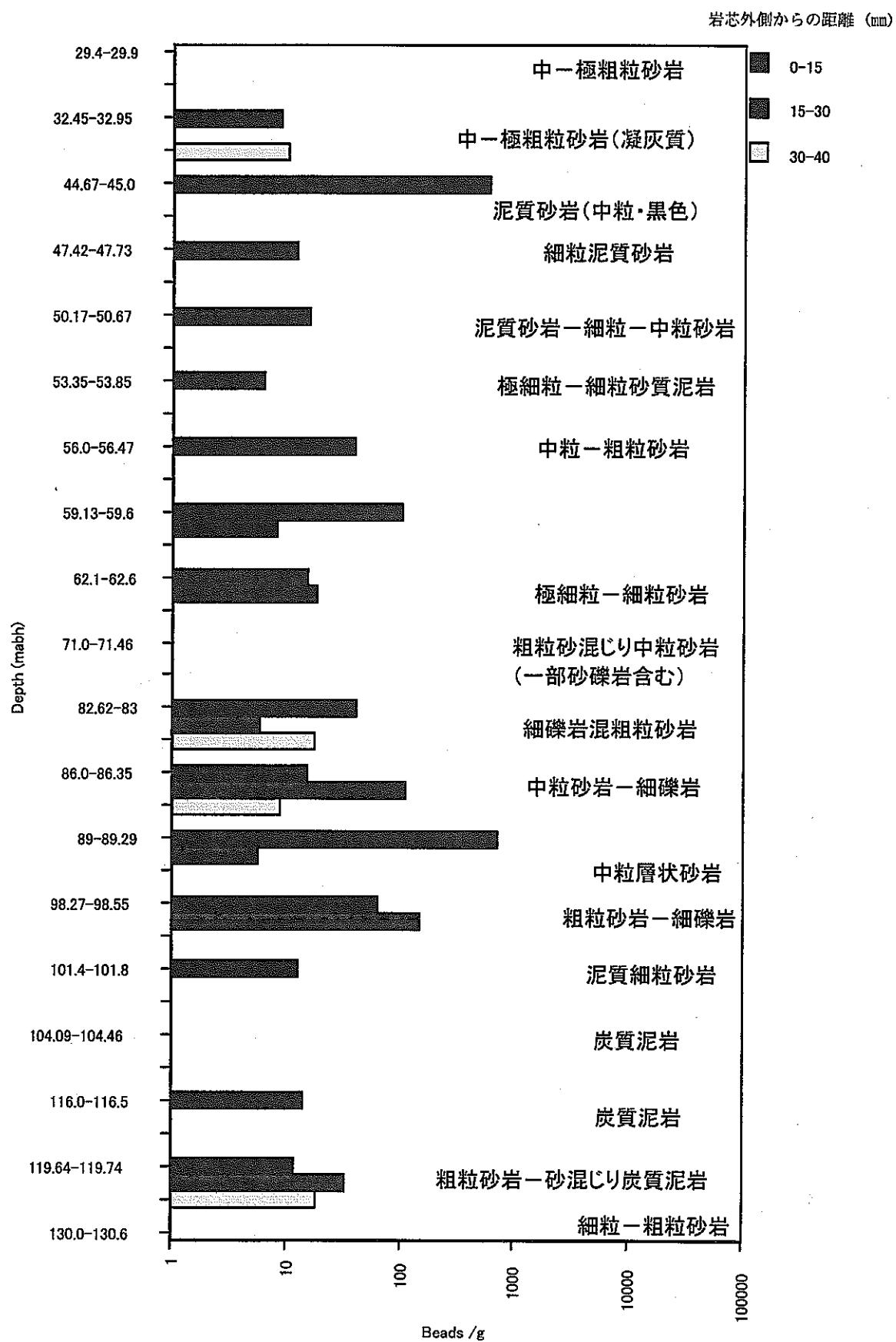


図3. 掘削水から混入した岩芯コア中の蛍光ビーズ濃度

博士研究員（H14）平成14年度研究概要報告書

研究テーマ	中性子照射セラミックスの微構造及び物理的特性変化と結晶結合様式の相関		
研究者氏名	秋吉 優史		
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 小野瀬 庄二, 館 義昭, 堂野前 貴子	所属長 役職・氏名	照射材料試験室長 中村 保雄
研究実施場所	大洗工学センター 燃料材料試験部 照射材料試験室		
通算研究期間 (予定)	平成14年10月～ 平成17年3月	当該年度 研究期間	平成14年10月～ 平成15年3月
【研究目的】			
<p>核燃料の再処理により発生する高レベル廃棄物の地層処分に於ける環境負荷の低減を目的として超ウラン元素(TRU), 長寿命核分裂生成物(LLFP)の核変換処理の必要性が近年高まっており, 核変換集合体にTRUやLLFPを保持する不活性母材として, セラミックスが候補にあげられている。しかしながら, セラミックスの中性子照射による損傷挙動, 特に重照射領域に於ける局所的な結晶構造の変化については, 必ずしも十分なデータが取得されているとは言えない。またセラミックスには結合様式, 結晶構造が異なる多種の材料があり, 損傷の程度がそれぞれ異なるため照射挙動に関する統一的な解釈に至っていない。そのため, 結合様式や結晶構造の異なる複数のセラミックスについて同一条件での中性子照射により導入される欠陥を解析し, 巨視的な特性変化との関連を明らかにする事により照射安定性の評価を行う。</p>			
【研究内容(概要)】			
<p>本研究ではTRUやLLFPの核変換処理を行う燃料ピンの不活性母材として適切な材料を検討するに当たって必要な照射安定性を評価する事を目的としている。高速実験炉「常陽」に於いて中性子照射を行った代表的な構造材用のセラミックス(α-Al₂O₃, AlN, β-Si₃N₄, β-SiC)に対して, 中性子照射に伴うマクロなスエリング(寸法変化)及び熱的, 機械的特性変化を評価する。一方, 高分解能の透過型電子顕微鏡により中性子照射欠陥構造を解析し, さらにX線回折を行うことにより, 結晶中の点欠陥, 転位ループなどの欠陥構造導入の形態を評価する。これらのマクロな特性変化とミクロな微構造変化の解析結果を比較, 検討することにより, 特性変化の発現メカニズムを探求する。</p>			
<p>本研究では四種類の材料に対して多くの条件下で照射を行った試料を取り扱うが, 照射温度, 照射量が異なる同一材料の試料の物性値変化を測定し, さらに等時焼鈍による回復挙動を測定することにより, 照射条件の違いがどのように影響するのかを知ることが出来る。また, 同一条件下で照射を行った結晶系の異なる試料を比較し, 照射挙動の違いを結晶の結合様式(イオン結合性/共有結合性)や結晶構造に立脚して解釈を行う。</p>			
【使用主要施設】			
<ul style="list-style-type: none"> MMF, MMF-2 : 透過型電子顕微鏡 (JEOL JEM-4000EX(加速電圧400kV), JEM 2010F(電界放射型加速電圧200kV)), 熱膨張測定装置(真空理工株式会社製 DL-7000Y-RH), レーザーフラッシュ法熱伝導度測定装置(真空理工株式会社製 TC-7000), X線回折装置(理学電機株式会社製 CN4056A), イオンシニング装置(GATAN製 DUO-MIL Model 600TMP), ダイナミック超微小硬度計(島津製作所製 DUH-W201) 			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

・研究計画の策定

CMIR-4 及び CMIR-5 試料の利用法を検討し、具体的な研究を遂行するまでの実験計画を策定し、研究期間全体にわたる具体的な研究スケジュールを策定した。

・試験装置の整備、立ち上げ

照射後試験を実施するため、MMS の熱膨張率測定装置の修理、整備、昇温条件設定を行い、白金パンなどの治具の作製を含めて実運用に入った。ダイナミック超微小硬度計はコールド試験室に導入を行い、コールド材での基礎評価を行っている。ディンプルグラインダーについては整備終了した。熱拡散率測定装置、X 線回折測定装置、イオンシニギ装置については現在整備中。

・RI 試料の調整

東工大に保管されている CMIR-4 H6T51, 53, 55, 57, H6T61, 63, 65, 67, H6T71, 72, 73 キャップセルで中性子照射を行ったセラミックス試料を MMF へ輸送した。さらに、CMIR-5 で照射を行った試料を L9T52, 54, 56, 58, L9T62, 64, 66, 68 キャップセルから取り出し、洗浄作業を行い、試料の分類を行って測定を行える状態にした。

・低温照射 $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ セラミックスの TEM 観察

透過型電子顕微鏡により、CMIR-4 H6T72, H6T73 キャップセルで比較的低温で照射を行った $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ の照射後観察を行った。

・CMIR-5 照射セラミックスのスエリング測定

CMIR-5 L9T62, 64, 66, 68 各キャップセルで照射を行った四種のセラミックス試料について照射後の長さ測定を行った。さらに、1500°Cまで 100°C毎に 1 時間の等時アニールを行い、室温で測定を行うことによりアニールによるスエリングの回復挙動を測定中。

【研究成果（当該年度）】

・低温照射 $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ セラミックスの TEM 観察

中性子照射による転位ループの導入と密接に関係する格子間原子の挙動を調べるために (Table 1, Fig. 1,2 を参照) 比較的低温の H6T72, H6T73 キャップセルで照射を行った $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 試料の観察を JEOL JEM-2010F 高分解能電界放射型透過電子顕微鏡により行った。H6T72 キャップセルで照射を行った照射まま材から H6T72s1 薄膜試料に、H6T73 キャップセルで照射を行った試料を等時アニール後に切断して H6T73s1 薄膜試料にそれぞれイオンシニギ法により調整した。観察の結果共に多数の転位ループが確認されたが、H6T72s1 では転位ループのサイズが 10nm 前後であるのに対して H6T73s1 では 5nm 程度と比較的小さな転位ループが中心であった。転位密度も H6T73s1 では比較的少ない。H6T72s1 の観察結果を Fig.3 に、H6T73s1 の観察結果を Fig.4 に示す。

過去に行われた H6T71 キャップセルで照射を行った $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ のアニール前後の観察では、アニール前の試料(照射まま材)中にはほとんど明確な転位ループが含まれておらず、主にクラスター状の欠陥が確認されるのみであった。アニール後の試料中には少数の転位ループが生成されることが確認されている。アニール前の H6T71s1 の観察結果を Fig.5 に、アニール後の H6T71s2 の観察結果を Fig.6 に示す。

今回観察を行った H6T72s1 と H6T71s1 を比較すると、H6T71s1 中では観察されなかった大きな転位ループが H6T72s1 中では多数確認されたことから、H6T71 の照射温度 377°C と H6T72 の照射温度 394°C の間で格子間原子が移動し転位ループの形成が始まると考えられる。

H6T71s2 と H6T73s1 の比較では、H6T73 よりも若干 H6T71 の方が照射量が多いが、アニール後の試料の観察結果の比較では H6T73s1 の方がより多くの転位ループが導入されていた。点欠陥の導入密度は照射中の温度に依存するフレンケル対の再結合距離によって決まり(高温で照射をするほど再結合距離は大きく、点欠陥の導入密度は低い)、より低温の H6T71 で照射を行った方が多くの点欠陥が導入されてい

る。しかし、照射後のアニールにより H6T71s2 中では再結合を免れた一部の格子間原子がわずかな転位ループを形成するのみである。それに対して、H6T73 は 542°C と十分高温で照射を行っており、照射中に形成された転位ループが蓄積し、さらにアニールによって転位ループが消滅することはないため、H6T73s1 はアニール後の試料同士の比較で H6T71s2 よりも多くの転位ループが導入されていると考えられる。この結論は熱拡散率の測定結果と一致する。しきい温度よりも照射温度が高ければ照射量が低くても転位ループが導入されていることが確認されたことから、H6T72s1 は照射量が H6T71s1 よりも 3 倍近く多いがそれよりも照射温度の差が転位ループの有無に決定的影響を与えたと考えられる。

さらに、H6T73s1 よりも H6T72s1 の方が転位の量が多いという観察結果は、アニール後の熱拡散率が H6T72 で照射した試料よりも H6T73 で照射した試料の方が低いままであるという実験結果と一致し(生成した転位ループは 1500°Cまでのアニールにより消滅しないことが確認されており、転位ループが形成されるとアニールしても格子間原子と対で生成された空孔が消滅せずに残るため存在する点欠陥量が多く、熱拡散率が低い)、しきい温度以上の照射では照射量に依存して転位ループが導入されると言える(H6T73 の方がずっと照射温度は高いが、それよりも照射量の方が支配的)。

• CMIR-5 照射セラミックスのスエリング測定

セラミックスに対する中性子照射に伴うスエリング挙動を調べるために CMIR-5 L9T62, 64, 66, 68 キャプセルで照射を行った棒状試料($1.2 \times 1.2 \times 15\text{mm}$)の巨視的寸法をマイクロメーターにより測定した。L9T64, L9T68 の試料に関しては全体的に CMIR-4 までの照射でスエリング量は飽和しておらず、照射量の増加に伴ってスエリングが大きくなつた。 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, AlN が 2%以上の大きなスエリングを示し、 $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$, $\beta\text{-SiC}$ が 0.3~0.5%程度の小さなスエリングを示した。CMIR-4, 5 で照射した各試料の比較のグラフを Fig.7 に示す。

L9T62, L9T66 キャプセルは照射中にナトリウムが侵入したと思われ、 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, AlN はほとんどの試料が細かく碎けてしまつておらず一本も測定することが出来なかつた。 $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$, $\beta\text{-SiC}$ は測定することが出来たが L9T62 $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 1.77%, $\beta\text{-SiC}$ 0.336%, L9T661 $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 5.39%, $\beta\text{-SiC}$ 9.31%と L9T62 $\beta\text{-SiC}$ を除いて異常に大きなスエリングを示しており、ナトリウム浸析による影響と考えられるため比較対照からは除外した。

以前行った CMIR-4 H6T61, 63, 65, 67 キャプセルで照射した試料の測定結果と今回の測定結果(二本の平均)を各キャプセルの照射条件と共に Table 2 に示した。また、各材料別に照射温度、照射量、巨視的寸法変化量のグラフを Fig.8 a~d に示す。

$\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ について

過去のデータから高温で照射した方がスエリングが大きくなり、照射量に従つてスエリングが増加し飽和しないという傾向が得られていたが、L9T64 と L9T68 の比較ではより高温で照射した L9T68 の方が 2.3%で L9T64 1 の 2.6%よりもややスエリングが小さいという結果となつた。同温度で照射した試料の比較では、やや低温で照射を行つた L9T63 ($3.9 \times 10^{26}\text{n/m}^2$, 585°C) 1.8%と L9T64 ($7.3 \times 10^{26}\text{n/m}^2$) の 2.6%, 高温で照射を行つた H6T67 ($3.7 \times 10^{26}\text{n/m}^2$, 735°C) 2.0%と L9T68 ($6.9 \times 10^{26}\text{n/m}^2$) 2.3%というように照射量に伴いそれぞれ増加はしている。他の文献から得られたより高温・高照射量でのデータと比較して、L9T68 のスエリングは小さすぎるため、アニールによる回復挙動、微構造観察などによってさらに詳細な評価を進めていく。

AlN について

高温で照射した試料の方がスエリングが大きくなると言う傾向が明らかとなつた。照射量の増加に従いスエリングは増加しており、飽和する傾向は見られない。L9T64 2.2%, L9T68 2.3%程度と照射温度がやや低く(L9T64: 585°C, L9T68: 735°C) 照射量がやや多い(L9T64: $7.3 \times 10^{26}\text{n/m}^2$, L9T68: $6.9 \times 10^{26}\text{n/m}^2$) L9T64 の方が若干スエリングが小さく、温度の影響の方がやや勝つている(高温ほどスエリングが大きい)と考えられる。

$\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ について

L9T64 0.40%, L9T68 0.30%となり、同程度の照射量では高温で照射した試料の方がスエリングが小さいという傾向が明らかとなった。H6T63($3.9 \times 10^{26}\text{n/m}^2$, 585°C)とL9T64の同温度で照射した試料の比較では H6T63 0.36%と L9T64 の 0.40%とそれほど大きな差ではなく、温度が重要なパラメーターとなっていると考えられる。

$\beta\text{-SiC}$ について

L9T64 の試料が 0.30%となり、同温度で CMIR-4 で照射した H6T63 の 0.40%よりも継続照射によりスエリングが小さくなってしまったと言うことになり詳細な原因究明が必要である。高温側でほぼ同温度で照射を行った H6T67 ($3.7 \times 10^{26}\text{n/m}^2$, 735°C) が 0.35%, H6T65 ($4.2 \times 10^{26}\text{n/m}^2$, 731°C) が 0.45%に対して、L9T68 は 0.54% と大きなスエリングを示している。しかし、 $\beta\text{-SiC}$ のスエリングは 1000°C 以下の照射では比較的低照射量 ($\sim 1 \times 10^{24}\text{n/m}^2$) で飽和することが報告されており、これらのスエリングは当該温度での飽和量を超てしまっている。アニールの回復挙動などを詳細に検討する必要がある。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

- 平成 15 年度はアニールによる CMIR-4/5 照射試料の各種物性変化(スエリング、熱拡散率、微小硬度)の回復挙動を測定し、各セラミックスへの照射欠陥の導入状態を詳細に把握する。
- 物理的特性変化の測定操作と平行して、欠陥の導入状態をより直接的に把握するため透過電顕観察試料の調整、観察を順次していく。
- 平成 16 年度も引き続き測定、観察を行う。得られたデータから順次学会発表、論文発表を行っていくが、最終的に得られた体系的データから理論構築を行い、研究詳細報告書を作成する。

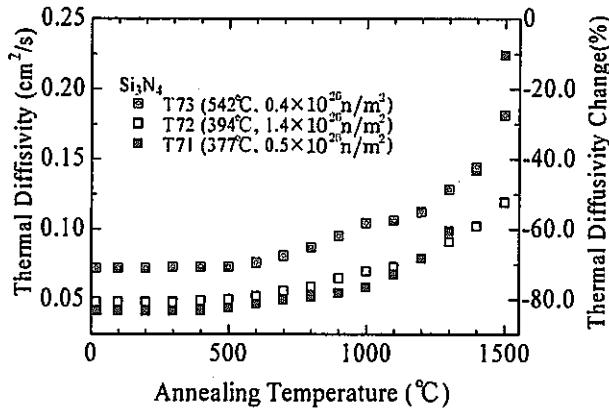
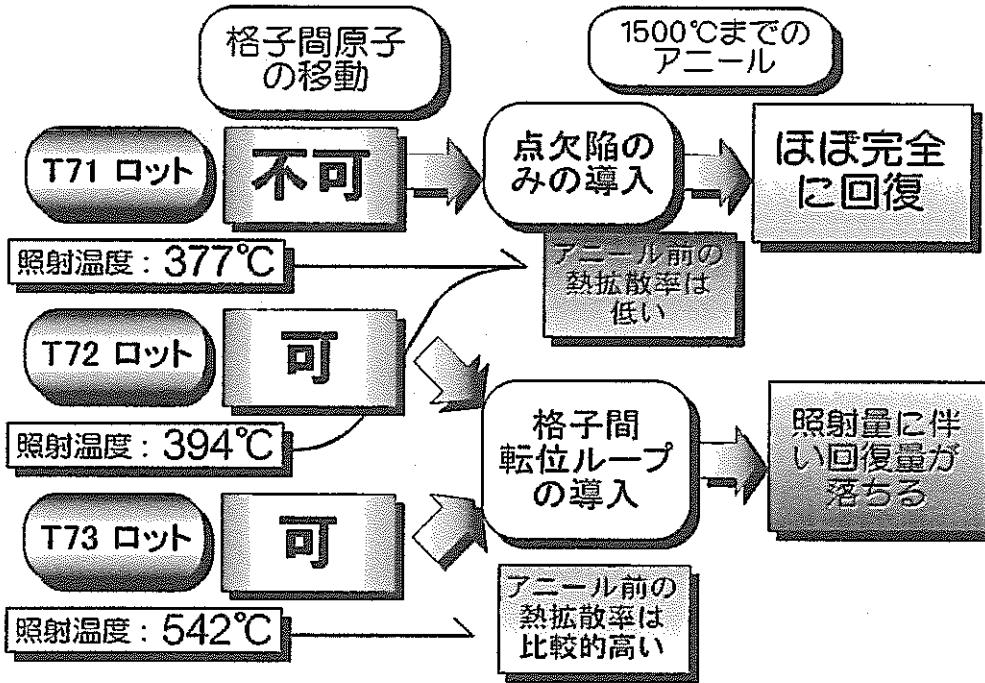
【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- 2003/9/29-10/2 に名古屋で開催される PacRim-5 (The 5th International Meeting of Pacific Rim Ceramic Societies) に Submit を行い Abstract を提出した。
- 2003/12/7-12 に京都で開催される ICFRM-11 (11th International Conference on Fusion Reactor Materials) に Submit を行い Abstract を提出した。

Table 1 H6T7x キャプセルで照射を行った $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ の熱拡散率測定結果からの転位ループ導入状態の推察

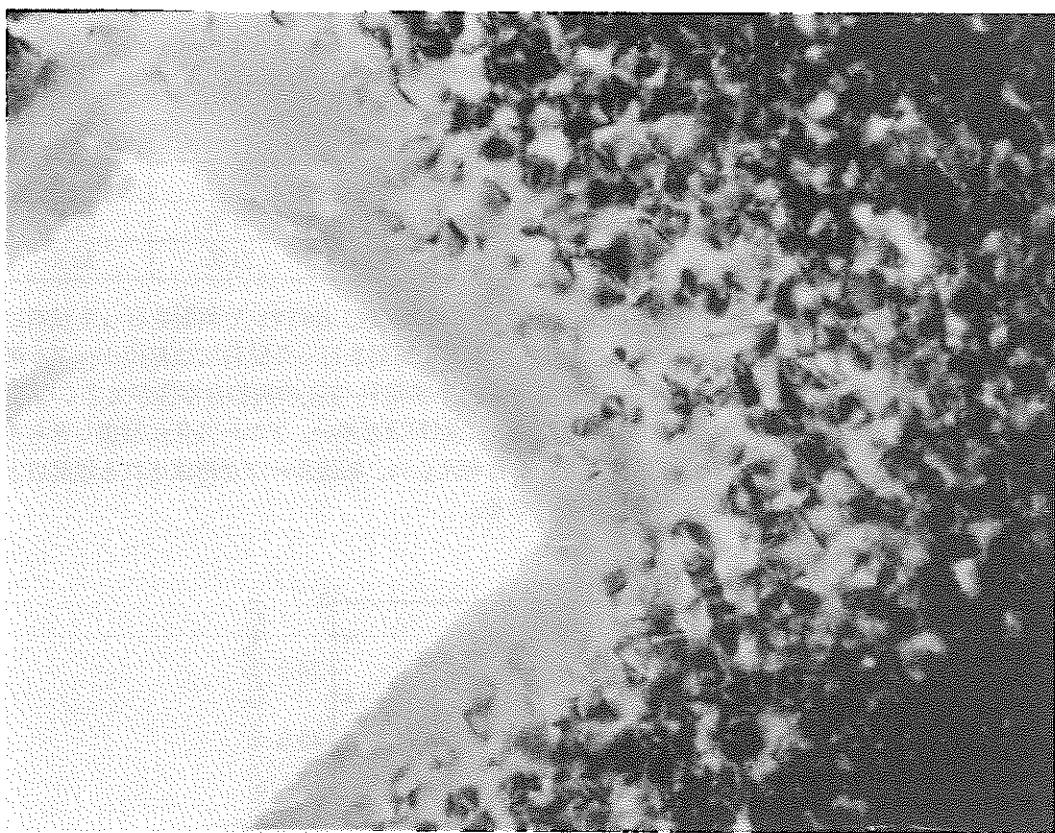
キャプセル	照射温度 (°C)	照射量 ($10^{26}\text{n}/\text{m}^2$)	転位ループ	点欠陥量	熱拡散率低下率	
					(アニール前)	(アニール後)
H6T71	377	0.5	出来ない	多い	84%	10%
H6T72	394	1.4	出来る(多い)	多い	81%	52%
H6T73	542	0.4	出来る(少ない)	少ない	71%	28%

380 °C 前後で格子間原子が動き出すと仮定した場合、それ以下の温度の H6T71 で照射を行った試料には転位ループは含まれておらず、それ以上の温度の H6T72, H6T73 で照射を行った試料には転位ループが形成されていると推測される。また、照射温度が高くなるに従って格子間原子-空孔の再結合半径が大きくなるため、As-Irradiated で試料に残っている点欠陥の量は低温で照射した試料ほど多い。アニール後に回復しきらずに残る熱拡散率の低下量は転位ループの生成量に依存していると考えられ、転位ループが形成される温度以上で照射した試料では照射量に従って回復せずに残る量が多くなる。

Fig. 1 中性子照射した $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ のアニールに伴う熱拡散率回復挙動Fig. 2 中性子照射した $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ の熱拡散率回復挙動の解析結果

JNC TN1400 2003-009

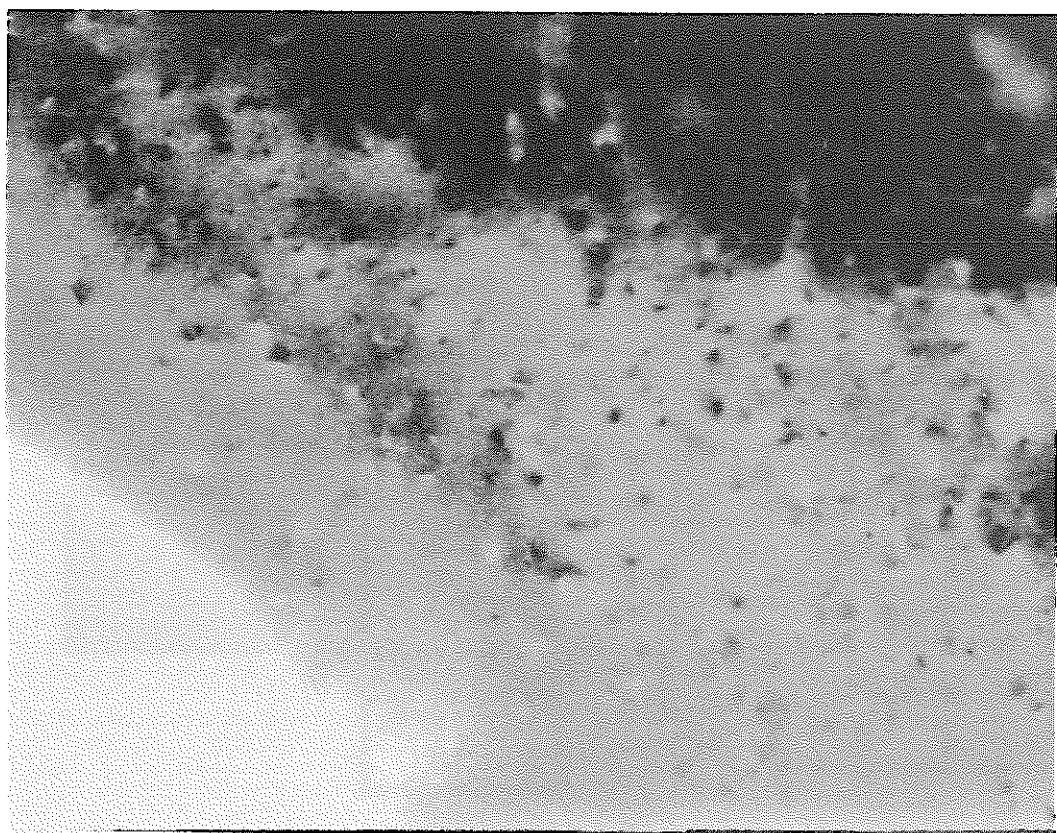
H6T72 : $1.4 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ 394 °C



— 50 nm (MAG = 0.450×10^6 , 摄影倍率 300 k)

Fig. 3 EM0453.bmp $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ (T72 As-Irradiated) BF #2

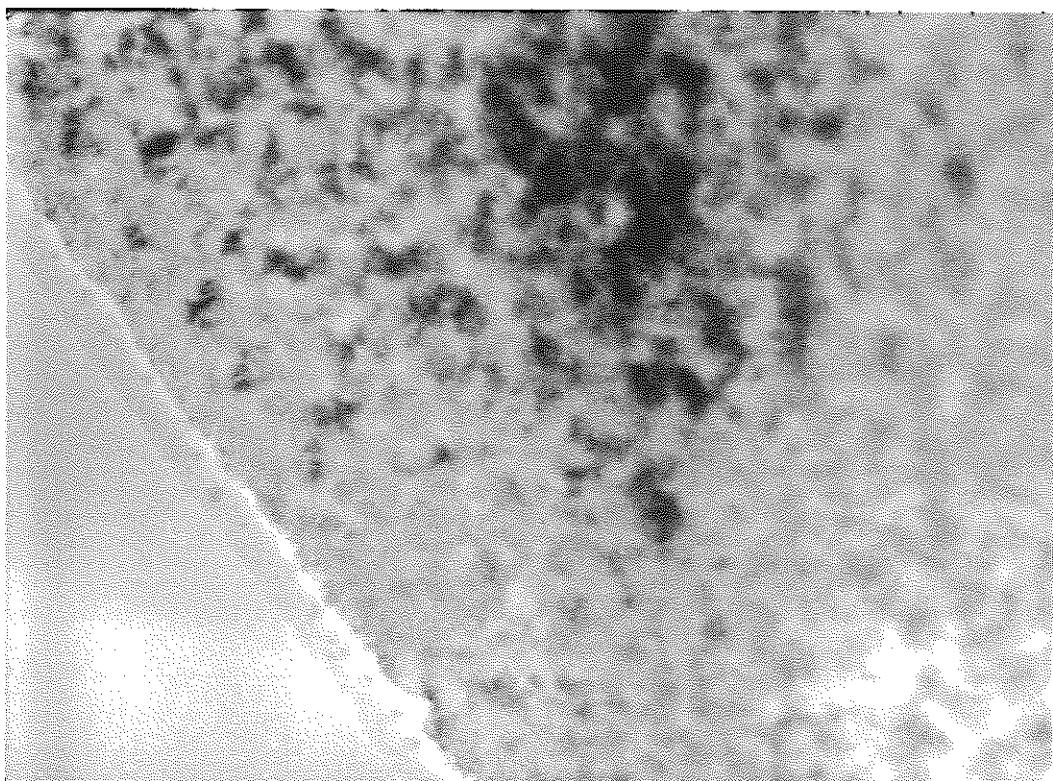
H6T73 : $0.4 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ 542 °C



— 50 nm (MAG = 0.450×10^6 , 摄影倍率 300 k)

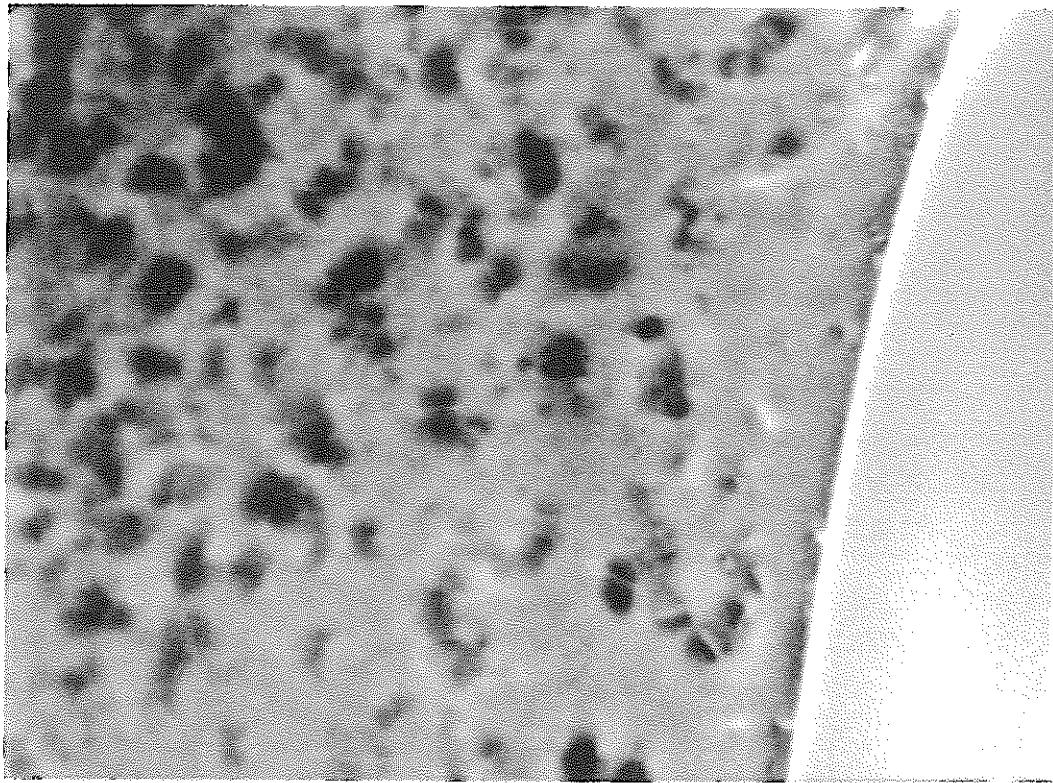
Fig. 4 EM0487.bmp $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ (T73 Annealed) BF #2

H6T71 : $0.5 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ 377 °C



— 20 nm (MAG = 0.627×10^6 , 摄影倍率 300 k)

Fig. 5 1800_2-1200.bmp $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 照射 (T71 As-Irradiated) MB



— 20 nm (MAG = 0.627×10^6 , 摄影倍率 300 k)

Fig. 6 1755_2-1200.bmp $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 照射 (T71 Annealed) MB

Table 2 CMIR-4, 5 照射セラミックスの照射条件と巨視的寸法変化

Sample	照射キャップセル	照射量 (n/m ²)	照射温度 (°C)	Swelling
				(%)
$\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$	H6T61	2.8×10^{26}	482	1.114 * ¹
	H6T63	3.9×10^{26}	585	1.769 * ¹
	L9T64	7.3×10^{26}	585	2.590
	H6T65	4.2×10^{26}	731	2.257 * ¹
	H6T67	3.7×10^{26}	735	1.960 * ¹
	L9T68	6.9×10^{26}	735	2.303
AlN	H6T61	2.8×10^{26}	482	2.000 * ²
	H6T63	3.9×10^{26}	585	1.915 * ¹
	L9T64	7.3×10^{26}	585	2.240
	H6T65	4.2×10^{26}	731	2.001 * ¹
	H6T67	3.7×10^{26}	735	1.782 * ¹
	L9T68	6.9×10^{26}	735	2.300
$\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$	H6T61	2.8×10^{26}	482	0.193 * ¹
	L9T62	5.3×10^{26}	482	1.770 * ³
	H6T63	3.9×10^{26}	585	0.355 * ¹
	L9T64	7.3×10^{26}	585	0.397
	H6T65	4.2×10^{26}	731	0.229 * ¹
	L9T66	8.0×10^{26}	731	5.387 * ³
	H6T67	3.7×10^{26}	735	0.161 * ¹
	L9T68	6.9×10^{26}	735	0.303
$\beta\text{-SiC}$	H6T61	2.8×10^{26}	482	0.417 * ¹ * ⁴
	L9T62	5.3×10^{26}	482	0.336 * ³
	H6T63	3.9×10^{26}	585	0.399 * ¹
	L9T64	7.3×10^{26}	585	0.304
	H6T65	4.2×10^{26}	731	0.445 * ¹
	L9T66	8.0×10^{26}	731	9.312 * ³
	H6T67	3.7×10^{26}	735	0.351 * ¹
	L9T68	6.9×10^{26}	735	0.535

*¹ 以前の研究で測定された値*² 試料破損のため破断面を研磨して使用。値は回復挙動からの逆算値*³ ナトリウム侵入と思われるキャップセル*⁴ 東工大搬入時端面破損のためそれ以前に機構側で測定した値

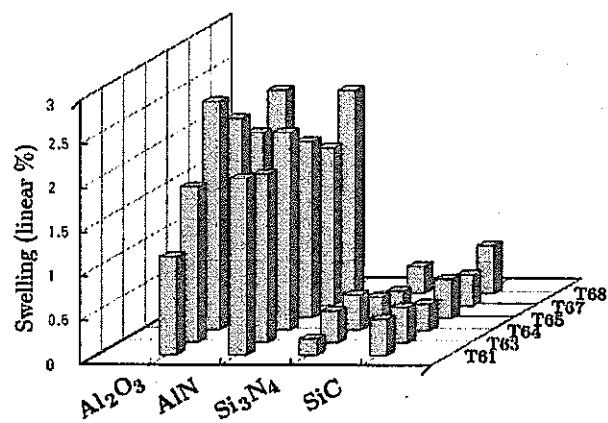


Fig. 7 4 種類のセラミックスの中性子照射による巨視的寸法変化の比較 (As-irradiated)

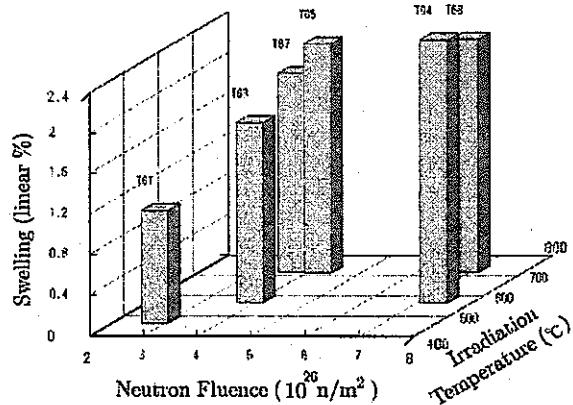


Fig. 8-(a) $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ の巨視的寸法変化

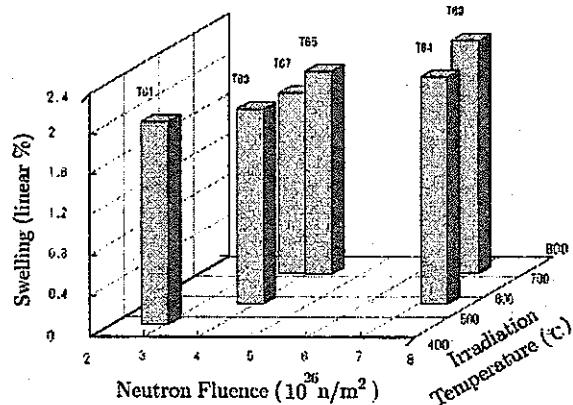


Fig. 8-(b) AlN の巨視的寸法変化

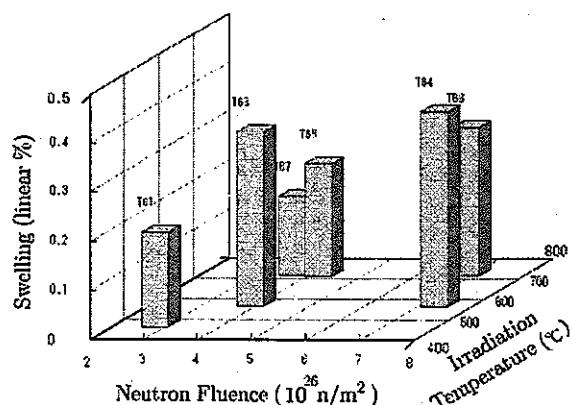


Fig. 8-(c) $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ の巨視的寸法変化

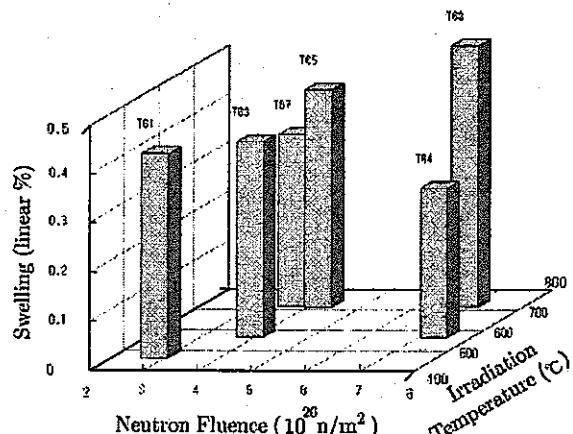


Fig. 8-(d) $\beta\text{-SiC}$ の巨視的寸法変化

Fig. 8 各材料毎の中性子照射に伴う巨視的寸法変化の比較 (As-Irradiated)