

大学等との共同研究に関する 平成15年度研究概要報告

(核燃料サイクル公募型研究及び
先行基礎工学研究を除く)

2004年9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)

2004

JNC TN1400 2004-010

2004年9月

大学等との共同研究に関する平成15年度研究概要報告
(核燃料サイクル公募型研究及び先行基礎工学研究を除く)

報告者 テーマ一覧参照
編集 機構技術展開部 技術協力課

要旨

機構は、機構が取り組む研究開発プロジェクトに関する基礎・基盤的研究を大学及び研究機関(以下「大学等」という。)との研究協力を図り進めている。

本報告書は、平成15年度に実施した大学等との共同研究21件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、本報告書には、核燃料サイクル公募型研究及び先行基礎工学研究により進めている大学等との共同研究については除いている。

JNC TN 1400 2004-010
September 2004

Brief report of the Joint Research with Universities, etc. for 2003
(Except the research by the JNC Cooperative Research Scheme
on the Nuclear Fuel Cycle)

Reported by : refer to the Theme Table
Edited by : Technical Cooperation Section, Technology Management Division

Abstract

The Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC) promote the basic and fundamental research in relation to the research and development projects of JNC through collaboration with universities and other research institutes (referred to as "universities, etc." below).

This report includes a summary of the results of the research carried out in fiscal year 2003 on 21 joint researches with universities, etc.

In addition, this report removes the research by the JNC Cooperative Research Scheme on the Nuclear Fuel Cycle.

一 目 次 一

1. 大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究テーマ一覧	v
2. 大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告		
(1) ガス巻込み現象数値解析に関する研究 1	1
(2) 個人のリカバリ受容判断に関する数理科学的研究	4
(3) 拡散波・レーザー分光法を用いる非破壊・非接触内部診断の開拓と 表面状態計測への応用	6
(4) 高温用電磁超音波探触子(EMAT)の小型高性能化に関する研究	9
(5) 酸素濃度制御下 LBE 中金属元素等の溶解度特性評価に関する研究	17
(6) 電気化学的手法による溶融塩系での f 元素の化学的研究	24
(7) TRU 元素のプロトノン分析化学的研究	27
(8) 小型高輝度電子源に関する研究	30
(9) ガス巻込み現象詳細実験：気泡巻込み機構に関する研究	34
(10) Si ₃ N ₄ を母材とした Am 含有ターゲット燃料製造プロセスの開発	39
(11) マルチレベルモーリングによる微細組織変化に基づく材料の磁気特性変化解析法の開発	42
(12) ガス巻込み現象詳細実験：くぼみ渦発達機構に関する研究	48
(13) ナトリウム液滴の燃焼挙動に関する研究	51
(14) ウラン及び希土類元素の硫化物の調整及び磁気的な物性に関する共同研究	59

(15) 極低酸素ポテンシャル LBE 中金属元素等の溶解度特性評価に関する研究	63
(16) ガス巻込み現象詳細実験：渦生成機構に関する研究	71
(17) 粒子充填挙動と粒子物性に関する基礎研究	75
(18) 高出力ミリ波セラミック焼結法による制御棒材の改良と長寿命化（その2）	78
(19) ヘリカルコイル型蒸発管内の沸騰現象の可視化実験	82
(20) FBR プラントにおけるき裂進展評価手法の高度化に関する研究(Phase II)	88
(21) 天然環境における有機物の化学特性に関する研究	93

1. 大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究テーマ一覧
(核燃料サイクル公募型研究及び先行基礎工学研究を除く)

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究テーマ一覧 [1/2]
 (核燃料サイクル公募型研究及び先行基礎工学研究を除く)

・・・平成 15 年度で終了した研究テーマ

No.	研究テーマ	機構側担当箇所	機構側 研究者	大学側研究者 所属機関・氏名	研究期間
1	ガス巻込み現象数値解析に関する研究 1	大洗 技開部 流体 Gr	大島 宏之	茨城大学 工学部 機械工学科 助教授 田中 伸厚	平成 15 年度 ～ 平成 17 年度
2	個人のリスクの受容判断に関する数理科学的研究	社内公募型研究推進室	篠田 佳彦	茨城大学 工学部 共通講座 教授 小澤 哲	平成 15 年度 ～ 平成 17 年度
3	拡散波・レーザー分光法を用いる非破壊・非接触内部診断の開拓と表面状態計測への応用	東海 環境センター 先進リサイクル部 プロ開 Gr	石井 克典	茨城大学 工学部 火災通信工学科 教授 藤井 寛一	平成 15 年度 ～ 平成 16 年度
4	高温用電磁超音波探触子(EMAT)の小型高性能化に関する研究	敦賀 国際センター I S I Gr	上田 雅司	大阪大学 大学院 工学研究科 教授 西川 雅弘	平成 14 年度 ～ 平成 15 年度 終了
5	酸素濃度制御下 LBE 中金属元素等の溶解度特性評価に関する研究	大洗 技開部 材料研 Gr	古川 智弘	関西大学 工学部材料工学科 教授 大石 敏雄	平成 13 年度 ～ 平成 15 年度 終了
6	電気化学的手法による溶融塩系での F 元素の化学的研究	社内公募型研究推進室	永井 崇之	京都大学 原子炉実験所 教授 山名 元	平成 15 年度 ～ 平成 15 年度 終了
7	TRU 元素のアモルファス分析化学的研究	東海 環境センター 先進リサイクル部 乾式アモルファス Gr	佐藤 史紀	京都大学 原子炉実験所 教授 山名 元	平成 15 年度 ～ 平成 16 年度
8	小型高輝度電子源に関する研究	大洗 社内公募型研究 推進室	山崎 良雄	高エネルギー・加速器研究機構 加速器研究施設 助教授 浦川 順治	平成 15 年度 ～ 平成 16 年度
9	ガス巻込み現象詳細実験: 気泡巻込み機構に関する研究	大洗 技開部 開発 Gr	木村 輝之	筑波大学 機能工学系 助教授 文字 秀明	平成 15 年度 ～ 平成 17 年度
10	Si ₃ N ₄ を母材とした Am 含有ターゲット燃料製造プロセスの開発	大洗 照射センター AGS	逢坂 正彦	東京工業大学 原子炉工学研究所 教授 矢野 豊彦	平成 15 年度 ～ 平成 15 年度 終了
11	マルチレベルモデリングによる微細組織変化に基づく材料の磁気特性変化解析法の開発	大洗 技開部 材料研 Gr	中桐 俊男	東京大学 先端科学技術研究センター 教授 相澤 龍彦	平成 15 年度 ～ 平成 16 年度

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究テーマ一覧 [2/2]
(核燃料サイクル公募型研究及び先行基礎工学研究を除く)

◆ ◆ ◆ 平成 15 年度で終了した研究テーマ

No.	研究テーマ	機構側担当箇所	機構側研究者	大学側研究者 所属機関・氏名	研究期間
12	ガス巻込み現象詳細実験：くぼみ渦発達機構に関する研究	大洗 技開部 開発 Gr	木村 暢之	東京大学 大学院工学系研究科 附属原子力工学研究 施設 助教授 岡本 孝司	平成 15 年度 ～ 平成 17 年度
13	ナトリウム液滴の燃焼挙動に関する研究	大洗 技開部 熱化学 Gr	石川 浩康	東邦大学 物理学科 教授 佐藤 研二	平成 12 年度 ～ 平成 16 年度
14	ウラン及び希土類元素の硫化物の調整及び磁気的な物性に関する共同研究	社内公募型研究推進室	佐藤 宗一	東北大学 多元物質科学研究所 助教授 佐藤 修彌	平成 15 年度 ～ 平成 15 年度 終了
15	極低酸素ボテンシャル LBE 中金属元素等の溶解度特性評価に関する研究	大洗 技開部 材料研 Gr	古川 智弘	名古屋大学 難処理人工物研究センター 教授 藤沢 敏治	平成 14 年度 ～ 平成 15 年度 終了
16	ガス巻込み現象詳細実験：渦生成機構に関する研究	大洗 技開部 開発 Gr	木村 暢之	名古屋大学 大学院工学研究科 教授 辻 義之助	平成 15 年度 ～ 平成 17 年度
17	粒子充填挙動と粒子物性に関する基礎研究	東海 環境センター 先進技術部 ブル開 Gr	石井 克典	姫路工業大学 大学院 工学研究科 機械系工学専攻 生産プロセス工学部門 粉粒体工学研究室 教授 廣田 満昭	平成 15 年度 ～ 平成 16 年度
18	高出力ミリ波セラミック焼結法による制御棒材の改良と長寿命化（その 2）	敦賀 国際センター 炉心技術開発 Gr	北野 彰洋	福井大学 遠赤外領域開発 研究センター 教授 出原 敏孝	平成 15 年度 ～ 平成 17 年度
19	ヘリカルコイル型蒸発管内の沸騰現象の可視化実験	敦賀 国際センター システム技術開発 Gr	戸田 信一	福井大学 工学部機械工学科 助教授 永井 二郎	平成 15 年度 ～ 平成 17 年度
20	FBR プラントにおけるき裂進展評価手法の高度化に関する研究(Phase II)	敦賀 国際センター プラント機器技術開発 Gr	土井 基尾	福井大学 工学部機械工学科 助教授 飯井 俊行	平成 13 年度 ～ 平成 15 年度 終了
21	天然環境における有機物の化学特性に関する研究	東濃 超深地層研究 Gr	岩月 謙希	北海道大学 大学院 地球環境科学研究所 助教授 長尾 誠也	平成 14 年度 ～ 平成 16 年度

2. 大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告
(核燃料サイクル公募型研究及び先行基礎工学研究を除く)

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	ガス巻込み現象数値解析に関する研究 1		
研究者所属、氏名			
大学側	茨城大学 工学部 機械工学科 助教授 田中 伸厚		
機構側	大洗工学センター 要素技術開発部 流体計算工学研究グループ 研究主幹 大島 宏之		
研究実施場所	茨城大学工学部機械工学科 機構 大洗工学センター Fセルボ 3F		
通算研究期間 (予定)	平成 15 年 8 月 ~ 平成 18 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 8 月 ~ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
サイクル機構では実用化戦略調査研究において、様々なプラント候補概念の検討を実施している。これらの概念候補のうちナトリウム冷却炉に関しては、原子炉容器のコンパクト化が検討されているが、出力に比して原子炉容器を小さくすると冷却材流速が増大し、自由液面からカバーガスの巻込みが発生する可能性がある。このため設計成立性の観点から自由液面からのガスの巻込み現象は、重要な評価項目の 1 つとなっている。本研究は、設計で遵守すべきガス巻込みの判断基準の策定に寄与するため、計算科学的手法をベースとする高度な流動評価手法を確立することを目的とする。			
【研究内容（概要）】			
本共同研究は平成 15 年度から 3 カ年の計画で実施する。流動数値解析において支配方程式離散化手法として使用される有限体積法に注目し、各種乱流モデルや液面形状模擬手法との相性、現象再現性に対する適用性等を確認し、ガス巻込み判定手法に寄与できる最適な数値解析手法を抽出する。以下に実施する研究の項目を示す。			
<ol style="list-style-type: none"> 1) 解析モデルの調査および構築 2) ベンチマーク問題による検証解析 3) 詳細実験解析 4) 1)~3)に基づくガス巻込み判定解析手法の提案 			
【使用主要施設】			
茨城大学 工学部 機械工学科計算機			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

(1) 平成 15 年度

① 解析モデルの調査および構築

気液界面におけるガス巻き込み現象のメカニズムの解明やその評価に適用できる可能性を有する解析モデルを調査するとともに、その調査結果をもとに解析手法を構築した。

② ベンチマーク問題等による検証解析

①で構築した解析手法に対して基本検証を行なうとともに、既存のガス巻込み実験データを対象としたベンチマーク問題解析を実施した。

【研究成果（当該年度）】

(1) 解析モデルの調査および構築

まず、ガス巻き込み現象のメカニズムの解明やその評価に適用できる可能性を有する解析モデルの調査を行なった。ガス巻き込み現象そのものの数値シミュレーションには、自由液面の挙動を再現できる手法が必要となるが、この自由液面の取り扱いが可能となる手法としては、VOF (Volume of Fluid) 法、VOF 法を発展させた MARS (Multi-interface and Advection and Reconstruction Solver) 法、CIP (Cubic Interpolated Pseudo-Particle) 法、さらには計算格子を用いない方法として粒子法などが代表的な候補として挙げられる。これらの手法について、解析精度、汎用性、モデルパラメータの取り扱い易さ、計算負荷、適用事例の多さなどを検討した結果、CIP 法が現時点でガス巻込み解析に最適であると判断した。

CIP 法は各計算格子点上でスカラ値と空間微分値を用いて格子点間を 3 次補間する手法であり、移流方程式を高精度に且つ安定に解くことが可能である。さらに圧縮性と非圧縮性流体、あるいは気体と液体、固体を統一的に解析できる手法

(C-CUP (CIP-Combined Unified Procedure) 法) へも拡張されている。反面、矩形格子を用いることを前提としているため、原子炉容器内など複雑な形状に対する適用性に乏しい。そこで、この CIP 法を二次元では三角形要素、3 次元では四面体要素に展開した CIVA (Cubic Interpolation with Volume/Area coordinates) 法を新たに提案し、これを用いた解析コードの開発を行なった。

(2) ベンチマーク問題等による検証解析

(1)で開発した解析コードに対して、基本検証として以下の 3 つの解析を実施した。

立方体ドリブンキャビティ問題

Re 数 = 400, 1000 の 2 ケースを実施し、流速分布について Ku の結果と比較したところ良好な一致が得られた。

三次元貯水槽内流体のスロッシング問題

静止状態から一定周期を持つ加速度を与えたときの自由液面挙動解析を実施し、岡本らの実験結果と良好に一致することを確認した。

三次元水柱崩壊問題

水柱が崩壊し壁面に衝突するまでの自由液面形状や先端位置の変化について解析を実施した。壁面衝突までの先端位置変化は Martin の試験結果と良好に一致した。

以上の3種類の解析から本解析コードの妥当性が確認された。

さらに、本手法を既存のガス巻込み実験データを対象としたベンチマーク問題（電力中央研究所で実施された円筒容器内循環渦実験）に適用した。円筒容器を矩形メッシュで模擬する構造格子解析では、単相および気液二相の2ケースを設定した。また、形状にフィットさせた非構造格子解析では単相を仮定した1ケースを設定した。構造格子と非構造格子の結果比較では、円周形状が階段状に模擬される前者の方が相対的に現象再現性が劣化しているが、いずれのケースも解析時間の都合上粗メッシュを用いたため、実験で得られた流速分布を十分に再現するに至っていない。今後さらに解析メッシュの解への依存性を確認していく必要がある。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成16年度

- ① 平成15年度の(2)を継続し、解析モデルの構築および基本検証を完了する。
- ② 詳細実験解析
別途実施する詳細実験結果を対象とした解析を実施し、解析手法の精度評価を実施するとともに、ガス巻込み現象のメカニズム解明のため、解析結果の分析を行う。

平成17年度

- ① 平成16年度の②を継続する。
- ② ガス巻込み判定解析手法提案
判定手法策定の観点から適切な数値解析手法及び解析条件を提案する。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- (1) 山崎俊輝, 北山努, 田中伸厚, CIVA 法による混相流数値解析, 日本流体力学会年会講演論文集 (2003), pp.98-99.
- (2) 北山努, 田中伸厚, CIVA 法による混相流の数値シミュレーション, 第 53 回理論応用力学講演会講演論文集 (2004), pp.121-122.
- (3) 北山努, 山崎俊輝, 田中伸厚, CIVA 法を用いた多相流体解析法の開発, 日本機械学会 2003 年度年次大会(2003).

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	個人のリスクの受容判断に関する数理科学的研究		
研究者所属、氏名			
大学側	茨城大学大学院 理工学研究科 応用粒子線科学専攻 エネルギーリスク情報科学講座 ^(注) 教授 小澤 哲、助教授 渡 淳 ^(注) 平成 16 年 4 月発足（旧：システム情報科学専攻 数理感性工学講座）		
機構側	本社 社内公募型研究推進室 室長 岩田 耕司、副主任研究員 篠田 佳彦		
研究実施場所	茨城大学 日立キャンパス 小澤・渡 研究室 機構 大洗工学センター 重水炉工学試験室 2 階 社内公募型研究推進室 居室		
通算研究期間 (予定)	平成 15 年 8 月 ~ 平成 18 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 8 月 ~ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
<p>科学技術、工業製品、情報システム、プラントなど、人間の作ったシステムや技術の社会的受容性に関して、その決定素過程を科学的に解明する研究方法を確立する。それを原子力施設の社会的受容性の研究に応用する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>人間の作ったシステムや技術の社会的受容性を科学的に解明する研究方法として、(1) 実験心理学と認知心理学の手法、(2) 数理感性工学と計量言語学の手法、(3) 計算機シミュレーションの手法に注目して研究を行っている。人間の作ったシステムや技術が社会的に受容されるプロセスを分析すると、人間の作ったシステムや技術に関する情報がどのように伝達され、それをどのように人々が感じ、その印象をどのように他人に発信するかという問題に帰着する。その情報は多くの場合、「ことば」で表現されている。メッセージの表現の仕方によって、同じ内容でも、個人の受容の様子は大きく変化する。また、同じメッセージが与えられても、それ以前に、個人が蓄積している知識によっても、受容の様子は大きく変化する。これらに関するデータを実験心理学と認知心理学の手法を使って取得する。その際、個人に与えるメッセージ、個人が発信するメッセージを数理感性工学と計量言語学の手法を使って、科学的に分析することが重要である。メッセージは個人の間で交信されるだけでなく、公的機関、マスコミ、企業、団体等がメッセージの発信源になる。これらがどのようなメカニズムでメッセージを発信しているか、それが個人にどのように影響するかについて、実験心理学と認知心理学の手法、数理感性工学と計量言語学の手法を使って、研究する必要がある。これらの知見を基礎に目的とする問題を総合的に検討するためには、計算機シミュレーションの手法が重要になる。複数エージェント間のメッセージ交換を数学的に表現するモデルを構築し、社会的受容という一種の非線形現象を解明することに努力している。</p>			
【使用主要施設】			
計算機システム（茨城大学）			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

(1) 実験心理学と認知心理学の手法

ミューチップという新しい技術を紹介する一連のメッセージを準備した。このメッセージの与え方を変えながら、この技術を被検者が受け入れるか否かを本学の学生を対象としてアンケート調査した。この実験心理学の研究方法がこの問題について有効であることが確かめられたので、原子力の安全性の問題についても同様の心理学実験が効果的であると考えられる。

(2) 数理感性工学と計量言語学の手法

コンピュータを使って、文章を分析するシステムを導入した。これによって、語彙を品詞的に分類し、その統計をとることが可能である。とりわけ、形容詞、形容動詞に注目し、その中から、感性用語を抽出することができる。一般的な感性用語以外に、原子力の安全性に関する問題では、どのようなことばを感性用語とすべきかについて、今後、検討を行う必要がある。

(3) 計算機シミュレーションの手法

量子力学の数学表現形式をまねて、メッセージの受容に関する数学的モデルを構築した。上の(1)と(2)を組み合わせて得られる一連の実験データを再現するシミュレーションが可能か否かを試金石として、数学的モデルを改良する努力を行っている。

【研究成果（当該年度）】

(1) 研究目的の達成のために、実験心理学と認知心理学の研究手法を活用することが、重要であることが確認できた。新しい科学技術を紹介する際に、被検者に与えるべきメッセージの作成方法に関するノウハウを蓄積した。メッセージが個人にどのように受け入れられるかを実験心理学の方法で調べることができると確認した。

(2) メッセージを数理感性工学と計量言語学の手法を使って、客観的・定量的に評価する方法を開発した。開発した方法が、研究目的の達成のために有効であることを確認できた。

(3) 個人と個人、個人と公的機関、マスコミ、企業、団体等の間でメッセージが交換されることによって意志決定が進行するメカニズムを数学的に表現し、そのダイナミックスを計算機シミュレーションの手法を使って解析した。モデルに含まれるパラメータを変えることによって、様々な意志決定のダイナミックスが出現しうることを確認した。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

今年度は、研究目的の達成のための方法論を確立し、今後行うべき研究・調査事項を確定できたので、翌年度は、それらの事項について、精力的にデータを蓄積することが重要であると思われる。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

(1) S. Ozawa, *Computer Simulation of Decision Making Dynamics in Society Using Artificial Society Model*, Seminar at Institute of Theoretical Physics, University of Heidelberg, 2003.12

(2) 石田、湊、小澤『商品顧客満足度のモデル化と企業・顧客間情報共有の影響分析』日本品質管理学会誌、投稿中

(3) 石田、湊、小澤『顧客の商品に対する感性の購入意思決定・品質予測への影響分析』日本感性工学会誌、投稿中

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	拡散波・レーザー分光法を用いる非破壊・非接触内部診断の開拓と表面状態計測への応用		
研究者所属、氏名			
大学側	茨城大学 工学部 メディア通信工学科 教授 藤井 寛一		
機構側	東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 プルトニウム燃料開発 Gr グループリーダー 木原 義之、鈴木 政浩 石井 克典		
研究実施場所	茨城大学 工学部 メディア通信工学科 機構 東海事業所 乾式プロセス・材料試験棟		
通算研究期間 (予定)	平成 15 年 8 月 ~ 平成 17 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 8 月 ~ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
<p>核燃料サイクルの燃料製造分野において、経済性向上に加え、環境負荷低減及び核不拡散性向上の観点より、振動充填燃料が注目されている。低除染 MOX 燃料粒子の検査(粒径、真球度、密度、内部空孔の有無、成分分布、表面粗さ等)を効率的に実施するには、粒子物性を非破壊・非接触・迅速に測定評価できる手段が必要である。</p> <p>本研究では内部診断法として、レーザー照射により燃料粒子から反射されてくる信号(音波、赤外線、弾性波、起電力)を検知する反射法と透過する信号を検知する透過法に関して原理実証を実施するとともに、超音波ホログラフィーにより得られた信号の 3 次元表示を試みる。また表面粗さ評価法として、表面弾性波(ラム波及びレイリー波)による方法とスペックルパターンによる方法に着目し、表面粗さの測定と定量化判断を試みる。</p>			
【研究内容(概要)】			
<ol style="list-style-type: none"> 内部診断法(透過法)に関する原理実証試験を実施する。パルス変調した大出力半導体レーザーをポンピング光として垂直上方から試料に入射させ、熱(拡散波)あるいは衝撃波に変換し、試料通過後の信号を音波、赤外線、弾性波、起電力として高感度で検出することを試みる。 内部診断法(反射法)に関する原理実証試験を実施する。レーザー照射によって発生した熱によって上昇気流が生じ、大気の屈折率が試料表面上から距離とともに連続的に変化する。水平方向からプローブレーザーを入射し、その偏光及びスペクトル特性から試料内部の情報の検出を試みる。 上記 1 及び 2 による内部診断検出結果を、破壊検査や他の非破壊検査手法(X 線 CT、超音波診断)により検証する。 超音波ホログラフィー法により、内部診断法(透過法及び反射法)の測定結果の 3 次元表示を試行する。 表面状態計測として、表面弾性波(ラム波及びレイリー波)による表層計測法を展開する。 表面状態計測として、スペックルパターンによる表面粗さの測定とその強度の統計処理(fully developed & partly developed)により定量化判断を行う。 先に展開した回折法とともに、回折像のコンピューター画像解析を行い、相関から表面粗さを定量的に評価する。 上記表面状態計測法による測定結果を他手法(顕微鏡による観察)により検証する。 ウラン粒子や MOX 粒子への適用性を検討する。 			
【使用主要施設】			
茨城大学 工学部 メディア通信工学科 レーザー試験装置類 一式 機構 東海事業所 乾式プロセス・材料試験棟 粒子物性分析装置類 一式			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成15年度は、低除染MOX（Mixed oxides）燃料粒子の検査を効率的に実施するために、非常に高感度であり、非接触、遠隔計測ができ、非破壊で物体内部の情報を得ることが可能である光熱変換現象を利用し、液体および固体の混合状態の計測を進めた。

固体をターゲットとする前に、光熱変換現象による成分比や均一性の計測に関する知見を深めるため、液体をターゲットとし、光熱変換現象の一種である熱レンズ法を用いた以下の実験を実施した。

- (1) 3種類の市販飲料水の熱レンズ信号による区分。
- (2) 不純物混入による拡散状況のリアルタイム検出。
- (3) ポンプ光とプロープ光に関するシステム評価。
- (4) 3種類の市販飲料水の熱レンズ信号による区分および劣化の比較。
- (5) 液体試料の色による影響。
- (6) 超低濃度測定。

また、固体をターゲットとした場合の、光熱変換放射における赤外線を検出するためのセンサーの開発を実施した。

【研究成果（当該年度）】

基礎実験として光熱変換現象の一種である熱レンズ法を利用し、液体計測に重点をおいて研究を進めた。初めに3種類の市販の飲料水（紅茶、緑茶、グレープ）の熱レンズ信号の検出を行い、それらを比較することにより3種類を明確に区分することに成功した。また、蒸留水に不純物としてヨード液を滴下し、蒸留水でのヨード液の拡散状況を熱レンズ信号としてリアルタイムで検出した。また開封後の劣化の計測を行ったところ、劣化以前と比べ熱レンズ信号強度が低下するということがわかった。また、プロープ光としてHe-Neレーザー（ $\lambda=632.4\text{nm}$ ）を使用していることより、プロープ光の液体試料の色に対する影響の有無を知るため、6色の水溶液を用意し計測を行った。その結果、赤色の液体試料では他の色に比べ信号強度が非常に強いことをはっきりと確認することができた。その他の色においても信号強度のばらつきが見られた。これまで実験を行った試料は、人間の目でも明らかに違いがわかる溶液に対して計測を行ってきたが、人間の目では判断できないような無色透明で希薄な溶液に対して、熱レンズ信号を検出する実験を行った。蒸留水に対し、1~5%の食塩水溶液を混入した低濃度計測を行ったところ、熱レンズ信号強度の違いをはっきりと確認することができた。またMOX燃料の液相状態において2成分混合溶液の成分組成比を正確に知る必要性があるため、蒸留水(4ml)に対し、エタノールを0~100%溶解した際の成分組成比の測定を行った。この測定から、熱レンズ効果は混合溶液の組成成分比とその屈折率および熱伝導率などの熱物性値に依存することがわかった。

一方、熱レンズ法の実験システムに関しては、ポンプ光とプロープ光の角度依存性、ポンプ光の変調周波数依存性に関する実験を同時に実施した。

固体計測においては、光熱変換現象により粒子の背面に到達する拡散波の到来と同時に放射される微弱な赤外線を迅速、高感度にて検出するため、偏波保持光ファイバ（PMF）を用いたマッハツエンダ一型センサーを開発した。このセンサーを用いれば、約100分の1以上の温度変化を1[m]程度の時間分解能で過渡計測することがわかった。

現在は温度変化、時間分解能、空間分解能の定量化を目的に実験を行っており、これらの計測と同時に遠隔計測について同時に研究を進めている段階である。もし燃料粒子の内部に異常があれば、正常な燃料とは熱拡散が異なり、放射される赤外線の強度や伝播時間において変化が見られると考えている。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

固体内部計測用のセンサーとして開発されたマッハツエンダー型偏波保持ファイバー（PMF : Polarization Maintaining Fiber）は温度変化測定に関して 0.1°C 温度変化の間に多数の縞の変位が見られたため、0.01～0.001°C 以上の高い分解能を持っていると思われる。平成 16 年度は、これを透過型光熱変換放射測定のセンサーとして使用し、燃料粒子の内部構造（空孔の有無やその座標の検知、成分分布の均一度など）を正確に評価する。また、これらを総括した 3 次元計測を高精度かつ迅速に得ることを目標とする。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- (1) 桜井、鵜野、藤井、清水、時田、カラー ホログラフィに伴うクロストーク像の低減、
第64回応用物理学会学術講演会 31p-T-12、2003.8.
- (2) 金 昌秀、藤井 寛一、透過型光熱変換物体内部診断—熱レンズ法による液体の区分と不純物混入過渡検出一、15 年度 SVBL 成果報告会、2003.9.18.
- (3) 金 昌秀、高橋 威裕、桜井 紀昌、藤井 寛一、P-44 光熱変換分光高感度過渡計測、
平成15年度日立先端技術マーケット D-3、2003. 10. 24～25.
- (4) 桜井 紀昌、金 昌秀、高橋 威裕、藤井 寛一、*石井 克典、*鈴木 政浩
(茨城大学大学院、 *核燃料サイクル開発機構)、熱レンズ法による液体の不純物濃度の過渡計測、
電気学会 2003 P05、 2003.11.27.
- (5) 桜井 紀昌、金 昌秀、高橋 威裕、藤井 寛一、*石井 克典、*鈴木 政浩 *河野 秀作、
(茨城大学大学院、 *核燃料サイクル開発機構)、 熱レンズ法による試料の過渡計測、
レーザー学会 2003、2003.11.27.
- (6) ○内山武志、谷口宙、藤井寛一(茨大)、石井克典、鈴木政浩、河野秀作(核燃料サイクル機構)、
光ファイバー干渉計による高感度遠隔熱波計測の基礎研究、
H15 年度SVBL・共研センター合同成果報告会、2004.3.
- (7) 後藤貴文、○諏佐佳英、藤井寛一(茨大)、プリズム分散方式による外部共振器型半導体レーザー波長可変特性、H15 年度SVBL・共研センター合同成果報告会、2004.3.
- (8) ○後藤貴文、諏佐佳英、藤井寛一(茨大)、ファイバー方式モードロック半導体レーザー、
H15 年度SVBL・共研センター合同成果報告会、2004.3.
- (9) 賴本晃良、○桐山卓也、見目裕、藤井寛一(茨大)、石井克典、鈴木政浩、河野秀作(核燃料サイクル機構)、スペックルコントラスト法による表面粗さの測定、H15 年度SVBL・共研センター合同成果報告会、2004.3.
- (10) ○金昌秀、高橋威裕、桜井紀昌、藤井寛一、久保田俊夫、白石昌武(茨大)、
石井克典、鈴木政浩、河野秀作(核燃料サイクル機構)、
光熱変換法を用いる液体試料の区分とリアルタイム濃度検出、H15 年度SVBL・共研センター合同成果報告会、2004.3.
- (11) ○桜井紀昌、高橋威裕、金昌秀、藤井寛一久保田俊夫、白石昌武(茨大)、
石井克典、鈴木政浩、河野秀作(核燃料サイクル機構)、
混合溶液における熱レンズ効果の研究、H15 年度SVBL・共研センター合同成果報告会、2004.3.
- (12) 金昌秀、○高橋威裕、桜井紀昌、藤井寛一久保田俊夫、白石昌武(茨大)、
石井克典、鈴木政浩、河野秀作(核燃料サイクル機構)
光熱変換法を用いた液体試料の濃度分布計測、H15 年度SVBL・共研センター合同成果報告会、
2004.3.

以上

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	高温用電磁超音波探触子(EMAT)の小型高性能化に関する研究		
研究者所属、氏名			
大学側	大阪大学大学院工学研究科 教授 西川 雅弘、助手 大塚 裕介		
機構側	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 山下 卓哉、上田 雅司、徐 陽、田川 明弘		
研究実施場所	大阪大学 工学研究科 機構 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 12 月 ~ 平成 16 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 7 月 ~ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
<p>原子炉容器廻りの供用期間中検査において、超音波による検査装置の運転操作性を向上するため、EMAT センサー及び走査機構を含めた探傷システムの軽量化が求められている。そのため、感度や指向性等の性能を維持向上させつつ、EMAT センサーの小型軽量化を達成するための検討を行う必要がある。従来の EMAT センサーの開発手法は、試作及び実験の繰り返しによる試行錯誤に依存する場合が多く、EMAT センサーの構造特性による励起渦電流場と超音波音場特性との相関関係に着目した理論上の検討は不十分と考えられる。本研究では、このような背景において、EMAT センサーの構造寸法等パラメータとしたコンピュータ解析、解析結果に基づくセンサー設計・試作、および実験による性能評価を行い、高温用 EMAT の小型高性能化を図る。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>上述の研究目的に対して、実験と数値計算により EMAT の最適パラメータの検討、試作と改良を進め、高温用小型高性能 EMAT の性能評価を行う。具体的には以下の課題について検討を行う。</p> <ul style="list-style-type: none"> (1) 既存の電磁超音波探触子(EMAT)の性能評価 (2) 解析による EMAT の設計 (3) EMAT の試作と常温性能評価 (4) EMAT の高温特性の解析と実測評価 (5) 電磁石型 EMAT の原理実証実験 			
【使用主要施設】			
<p>核燃料サイクル開発機構 : LeCroy 社 waverunner オシロスコープ LT584M RITEC 社 RAM-5000 高電圧探傷器 ヤマト科学株式会社 DH-62 恒温器</p> <p>大阪大学 : 位置決めシステムポジショナー XY 平面（水平面）の位置分解能 100μm、PC による外部制御が可能</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 14 年度は、既存の電磁超音波探触子の性能を評価した。EMAT の小型高性能化に対して、EMAT の一般的な (Periodic Permanent Magnet (PPM) 磁石構造ではなく、加速器分野でウイグラー やアンジュレーターの挿入光源用磁気回路として知られる Halbach 磁石配置を取り入れ、SH 波用 EMAT の磁石構造として用いた場合の磁気特性を数値解析によって評価を行った。その結果、Halbach 磁石配置は、一般的な磁石構造の磁気特性に比べ、高磁場特性を有していることを明らかにした。また、実際に Halbach 構造 EMAT を試作し、超音波の伝搬特性を調べたところ、PPM 構造 EMAT と超音波の指向性は同じで、出力が大きい高性能の EMAT であることがわかった。

平成 15 年度は、高温(200°C と 240°C)での EMAT の性能評価、EMAT の送信周波数を可変にした際の欠陥検出強度と受信周波数依存性、そしてパルス磁場 EMAT の検討を行った。高温環境下においては、解析法で Halbach 磁石構造のわずかの熱減磁が予測された。この場合でも PPM 構造より強力である、また実測では、Halbach 磁石構造がほぼ減磁しない結果が得られた。なお、Halbach-EMAT を用いた高温超音波特性測定において、信号レベルは常温レベルから 15%の減少が観察された。EMAT の送信周波数を変えて欠陥探傷を行うと、超音波のフォーカス点が欠陥位置とは必ずしも対応しないが、EMAT と欠陥までの相対距離が 40mm の範囲では 700KHz から 900KHz の周波数で探傷できることを示した。また、受信周波数は、EMAT から欠陥までの距離と送信周波数に依存していることを示した。永久磁石が不要で更なる軽量化と高出力が期待できる EMAT としてパルス磁場 EMAT を提案し原理実証実験を行った。その結果、出力は PPM 構造 EMAT の 1/5 であったが、パルス磁場を用いても超音波を送信できることを明らかにした。

【研究成果（当該年度）】

1. EMAT の高温特性の解析と実測評価

①EMAT の高温特性解析

Halbach 構造 SH 波 EMAT は、PPM 構造 SH 波 EMAT より強力な磁束密度分布と超音波指向性を有することを既に解析と実測で検証した。一方、高磁気特性を有するレア・アースマグネット材料(サマリウム・コバルトシリーズやネオジウムシリーズ)では、一般的に残留磁束密度 B_r と保磁力 H_{cB} は負の温度係数を持ち、高温使用において、 B_r の低下に伴う磁気特性の低下と H_{cB} の低下による減磁特性の劣化が考えられる。磁石構造の磁気性能は通常磁束密度で評価され、常温では、ガウスマータによる磁束密度分布を計測できるが、プローブの核心であるホール素子が半導体材料から構成され、高温使用が制限されている。ゆえに、磁石構造の高温特性は通常解析手法で評価される。

解析の結果、Halbach- EMAT は高温における磁気特性と超音波音圧の低下が 200°C の場合、10% 以下であり、240°C の場合、15% 以下に限られている。また、高温熱減磁による磁気特性と超音波音圧の低下は 200°C と 240°C の場合、それぞれ、2% と 5% 程度に過ぎない。また、高温使用において、Halbach 磁石構造には、縦磁化磁石と横磁化磁石の残留磁束密度がほぼ同様な材料を用いれば、磁石厚み $a=b$ における Halbach 磁石構造が最強の磁気特性を有することを明らかにした。これは常温の場合と同じである。

Halbach 磁石構造は SH 波 EMAT の高温磁石構造として使用可能と結論できる。

②EMAT の高温特性実測

ここでは、超音波の強度を実測することにより、Halbach- EMAT の高温磁気特性と超音波信号特性変化を検討した。実測の結果、Halbach 磁石構造の高温減磁が殆ど発生していないことが分かった。これは解析の予測結果と異なっている。高温減磁曲線のクニック部分の形状による解析精度への影響と考えられる。なお、EMAT -Halbach の高温特性評価の結果、240°C 高温における超音波信号レベルの低下は 15% 程度に限られていることが分かった。

従って、Halbach 構造は高温 SH 波 EMAT の磁石構造として適すると考えられる。

2. EMAT の位置と受信強度の関係

従来の探傷方法は、探傷装置が周方向溶接線の長手方向へ移動しながら、EMAT が取り付けてある部分の駆動装置により垂直方向に走査できる 2 軸構造となっていた。この方法では、探傷する周波数を固定して行うために EMAT から欠陥までの距離が一定であり、溶接線の幅に相当する距離だけ走査しなければならなかった。しかし、EMAT の超音波指向性は送信周波数によって自由に変えられるので、駆動機構を用いて探傷位置を変えるという部分を、周波数を可変すること

で置き換えることができるのではないかと考えた。周波数可変方式で検討を行わなければならぬことは、EMAT の送信周波数に対応して超音波の指向性も変わる反面、超音波強度も変化すること、2 個の EMAT をそれぞれ送信器／受信器として横並びで配置する場合は、EMAT の幾何学的な焦点と超音波の収束点が一致せず、探傷位置では超音波がデフォーカスとなってしまい受信強度が低下する要因になることがあげられる。これらの影響を調べるために、EMAT の配置と受信強度、受信周波数の関係を 3D モデルによる数値計算により求めた。

EMAT の位置と欠陥の位置関係を Fig.2.1 のように定義する。X 軸上に送信 EMAT がある状態では回転角 $\theta = 0^\circ$ であり、欠陥は超音波の伝播方向に対して垂直に位置している。回転角 $\theta = 0^\circ$ における EMAT の中心位置から欠陥までの距離を探傷距離と呼ぶことにする。次に実際の EMAT の位置を模擬するために、EMAT を $\theta > 0^\circ$ だけ回転させた位置の EMAT の中心から欠陥までの距離を焦点距離と呼ぶことにする。探傷距離と焦点距離が等しいときは、超音波が欠陥方向へ伝播した際に、超音波のフォーカス点が欠陥位置と一致することを意味している。焦点距離と探傷距離が異なる場合は、欠陥位置では超音波がフォーカスされず、極端な場合十分な探傷が行えない可能性があることを示している。

走査する範囲を 40mm とした場合にその範囲を探傷できる周波数について検討するため、欠陥がない条件に対して超音波の指向性を計算した。Fig.2.2 は、回転角 $\theta = 0^\circ$ における X 軸上の超音波強度分布を示したものである。試験片厚さは 25mm とした。超音波強度が最大となる位置は、周波数が低くなるにつれて EMAT から離れていき、周波数が 900KHz では 50mm の位置で超音波強度が最大であり、700KHz では 90mm の位置で最大となっている。したがって、周波数を 700KHz から 900KHz まで変えることで、探傷距離を 50mm から 90mm までと 40mm の探傷範囲を確保できる。焦点距離と探傷距離の関係を表 2.1 に示す。焦点距離 50mm, 65mm, 90mm は周波数 900KHz, 800KHz, 700KHz と対応している。探傷距離を焦点距離と同じケースについて考えると、焦点距離と探傷距離が等しい場合はフォーカス位置での探傷、それ以外はデフォーカス位置での探傷となる。これら 9 つのケースについて受信強度の計算を行った。

Fig.2.3 は欠陥幅 12.5mm、欠陥深さ 12.5mm(25% 欠陥)に対する欠陥幅方向(y 軸方向)に対する受信強度分布を示している。送信周波数が 700KHz では、探傷距離が 90mm のとき最も信号強度が大きく、探傷距離が近くなるにつれて信号強度は減少し、探傷距離 50mm では探傷距離 65mm のケースよりも受信強度が大きく減少していることがわかる。送信周波数 900KHz の場合も同様に、焦点距離が 50mm のとき最も信号強度が大きく、焦点距離が遠くなるにつれて信号強度が減少している。それに対して、送信周波数 800KHz では探傷距離 65mm で最も信号強度が大きいが、探傷距離 50mm, 90mm でも探傷距離 65mm に対して 2 割程度の信号強度の減少であった。表 2.2 に送信周波数に対する各探傷距離での受信強度比を示す。ここで受信強度比とは、同一周波数に対して 3 つの探傷距離で最も受信強度が大きかったものを基準として、受信強度がどれだけ変化するかを示している。送信周波数が 900KHz と 700KHz では受信強度が 60% 減少してしまうこともあるが、800KHz では 25% 程度の減少ですみ、送信周波数を変えることで異なる位置に存在する欠陥の探傷を行える結果が得られた。

3. 受信波形による欠陥位置の評価

超音波による探傷では、超音波の送信時間と受信時間から伝播時間が求め、音速が既知であることを前提に欠陥位置を推定する。しかし、実際には超音波の送信時間や受信強度が小さいために受信時間を正確に判断することが難しいケースも存在する。EMAT は超音波を励起するためにコイルへ高周波電流を流しており、その周波数が超音波の周波数となり送信周波数を容易に把握できる。また、バースト波を送信する際に任意に波の数を設定できる。受信器では、EMAT の磁石幅が周波数フィルタの役割を果たすので、周波数に注目して欠陥位置に対する受信周波数の関係について調べた。

Fig.3.1 に実験配置図を示す。PPM 構造 EMAT を使用した。磁石厚は 2.5mm、個数は 12 個を 2 列とした。送信周波数は 650KHz から 900KHz までとした。幅 12.5mm、深さ 25mm の欠陥を有する厚さ 50mm の SUS 製の試験片に対して、送信器と受信器を同一平面上に配置した。EMAT の中心から欠陥までが 100mm となる距離を保って、欠陥幅の中心を基点として送信器と受信器をそれぞれ逆方向に 10° ずつ回転させた。EMAT を欠陥方向へ 40mm 移動したときの送信周波数と受信周波数の関係を Fig.3.2 に示す。送信周波数が 800KHz の場合は受信周波数も 800KHz で、送信周波数と受信周波数が一致している。しかし、800KHz よりも低い送信周波数では、受信周波数は送信周波数よりも高くかつ 800KHz よりも低い周波数で受信されていた。800KHz よりも高い

送信周波数では、受信周波数は送信周波数よりも低くかつ 800KHz よりも高い周波数で受信されていた。すなわち、EMAT と欠陥との距離を一定として、異なる周波数で超音波を送信すると、受信周波数はある周波数へ送信周波数から多少シフトすることを意味している。欠陥位置と受信周波数の関係について、それぞれの送信周波数ごとに整理したのが Fig.3.3 である。EMAT を欠陥へ近づけるにつれて、受信周波数が高周波側へ徐々にシフトしていくことがわかる。

送信面のある 1 点から受信面で間隔が d 離れている 2 つの点までの行路差は、送信器と受信器が離れると大きくなる。行路差は受信面での超音波の位相分布に影響を与えるため、超音波の位相が π ずれる距離 D_λ と磁石幅 d が必ずしも等しくならない場合があり、このことが送信周波数と受信周波数が一致しない理由であると考えられる。Fig.3.4 は、受信 EMAT の受信面に超音波が伝播してきた際に得られる受信波形について示したものである。まず始めに、 D_λ と d が等しい場合について考える。超音波が受信 EMAT の受信面に磁石 1 個分だけ伝播すると振幅分に相当する受信強度が得られることになる。超音波がさらに磁石 1 個分だけ伝播すると、1 個目の磁石と 2 個目の磁石では超音波の位相が π ずれているが磁石の磁極も N 極、S 極となっており、受信強度をよりいっそう強め合うことができ符号は反転して受信される。同様に超音波が伝播していくと受信強度は次第に大きくなってくる。次に D_λ が d よりも大きい場合について考える。超音波が、磁石 1 個分だけ伝播すると D_λ と d が等しい場合と同様に、振幅に相当する受信強度が得られることになる。しかし、さらに超音波が磁石 1 個分伝播すると状況は異なってくる。 D_λ が d よりも大きいため 1 個目の磁石において、超音波の振幅の符号が逆になる部分が存在している。こうした部分は、超音波の受信強度を弱める方向に働くので受信強度は極大値とはならず、さらに超音波が伝播した時刻で極大値となる。結果として、受信強度が極大となる時刻が遅くなるため受信周波数は下がる。以上のように、受信される超音波の周波数は送信周波数と必ずしも一致せず、周波数シフトの大きさを求ることは EMAT と欠陥との位置を推定できる方法の 1 つであることが示された。

4. パルス磁場 EMAT の実証実験

PFN 回路はコンデンサーとコイルから構成されており、同じ大きさの電流を一定時間流せる回路である。製作した PFN 回路の放電特性を確認するため、磁場コイルを接続しその端子電圧をオシロスコープで測定した。Fig.4.1 は、放電開始後の電圧波形を示している。スイッチをオンした後、電圧は 380Vまで立ち上がり、その後約 30μs の時間電圧を一定に維持していた。そして、40μs から一旦電圧は 100V 程低下し、それから徐々に電圧が低くなっていく波形となり 100A の電流を安定的に流すことができた。超音波を発生させる時間は 30μs あれば十分であり、電圧／電流が一定となっているタイミングで超音波を発生させるコイルに高周波電流を流せば、磁石型 EMAT と同様に超音波が発生することになる。次にパルス磁場 EMAT を製作し、超音波の送受信実験を行った。送信器に永久磁石タイプである PPM 構造 EMAT あるいはパルス磁場 EMAT、受信器に PPM 構造 EMAT を使用した。磁石の厚さは 3mm、送信周波数は 510KHz、試験片にはステンレスを使用したので、超音波は試験片表面を伝播する表面 SH 波が発生することになる。Fig.4.2 は、送受信間距離 200mm における PPM 構造 EMAT とパルス磁場 EMAT で発生した超音波を受信した波形である。どちらの波形とも約 65μs 以降から超音波を受信しており受信時間が一致していた。また、Fig.4.3 は受信波形を規格化して拡大したものである。パルス磁場 EMAT で発生した超音波は PPM 構造 EMAT と全く一致していた。したがって、PFN 回路を用いてパルス的に磁場を発生させる方法によっても、永久磁石を使う EMAT と同様に表面 SH 波を発生できることが明らかとなった。パルス磁場 EMAT で得られる出力を評価するため、試験片と接する面の垂直磁場をガウスマータで調べた。Fig.4.4(a) は、PPM 構造 EMAT の磁石面と底面積の 1/4 の磁場分布を示している。PPM 構造 EMAT では、磁場は正負に周期的に振動している。また、磁場が最大、最小となる部分の磁場の平坦部が磁石の幅(10mm)と同程度の長さ生じていることがわかる。それに対して、磁場コイルとコイルに定常電流を流したときの磁場分布を Fig.4.4(b) に示す。コイルの巻き方は上段のコイルに対しては時計方向に巻いていく、同じコイルを 5 個並べた構造となっている。下段のコイルに対しては反時計方向に巻いて、同様に 5 個並べている。磁場の分布は、x 方向は周期的に変化しているが全体にバイアス磁場が発生しており、磁場強度の最大値、最小値の大きさは等しくない。それに加え、磁場の平坦部分も PPM 構造 EMAT とは異なり短くなっていた。バイアス磁場が発生するのは、磁場コイルの形状に依存している。x 方向

のコイル成分においては、上端と下端では常に左から右へ電流が流れ、中央部では逆方向へ流れる構成となっており、x 方向に対して上段のコイルでは紙面の表から裏へ磁場を発生することになる。下段のコイルでは上段コイルの逆方向に磁場が発生する。このように、x 方向のコイル成分がバイアス磁場の発生原因となっている。また、x 方向のコイル成分は、周期的な磁場を発生させることには貢献しないため、その分磁場の平坦部分が PPM 構造 EMAT よりも小さくなってしまった。磁場強度の比較をするため、PPM 構造 EMAT とパルス磁場 EMAT の磁場分布を y 方向に対して平均化した結果を Fig.4.5 に示す。PPM 構造 EMAT では垂直方向の磁場強度の peak-to-peak の値は 610mT であり、パルス磁場 EMAT では 120mT となり約 5 倍異なっていた。超音波の受信波形では、Fig.4.2 より PPM 構造 EMAT では 1.39V、パルス磁場コイルでは 0.27V であり約 5 倍となっていた。磁場の振幅強度と超音波の受信強度は比例しており、パルス磁場にしたことやバイアス磁場による超音波発生への影響はないと言える。パルス磁場 EMAT では、現状においては PPM 構造 EMAT の 1/5 の出力しか得られていないが、磁場コイルと超音波発生のコイルを組み合わせることで、磁石を用いた EMAT と同様に超音波を出力できることを実証した。

【成果の反映状況】

従来の EMAT より小型化、かつ高温でも高性能な Halbach 構造 EMAT は、磁場の方向が縦向きである磁石に加えて横向きの磁石も使用し、EMAT 送信面で磁気エネルギーを高めた構造となっている。具体的には、EMAT の高さ方向も従来よりも低く 7mm とすることで重量を抑えた。超音波の指向性特性は、PPM 構造 EMAT と同じであり、出力強度は 1.4 倍と高性能化した。探傷方向は送信周波数を変えることで探傷することが可能であることから駆動部品の削減に貢献できる。また、送信周波数と受信周波数の関係より欠陥位置を予測できることを示した。高温環境下でも Halbach 構造 EMAT は PPM 構造 EMAT より高温時の磁場強度の減少幅は大きいが、出力は PPM 構造 EMAT よりも大きいことがわかった。以上のことより、Halbach 構造 EMAT は、高温用 EMAT として十分な性能を維持しながら、探傷装置の軽量化に寄与できる。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

「EMAT の配置と欠陥検出感度に関する検討」

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

日本原子力学会 2003 年秋の大会、D2

「高磁場配置型 SH 波 EMAT 実測による特性評価」

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

日本原子力学会 2004 年春の年会、D3

「高磁場配置型 SH 波 EMAT の高温特性について」

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

日本原子力学会 2004 年春の年会、N20

「PFN による高磁場発生と EMAT への応用」

長船和典、大塚裕介、山家正博、西川雅弘

日本原子力学会 2004 年春の年会、N33

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.

Yang XU, Akihiro TAGAWA, Masashi UEDA and Takuya YAMASHITA, Yusuke OHTSUKA, Kazunori OSAFUNE and Masahiro NISHIKAWA, "Development of SH Wave Electromagnetic Acoustic Transducer (EMAT)", 3rd international Conference on Non-Destructive Testing, October 15th to 17th, Crete, Greece.

Yang XU, Akihiro TAGAWA, Masashi UEDA and Takuya YAMASHITA, Yusuke OHTSUKA, Kazunori OSAFUNE and Masahiro NISHIKAWA, "Characterization of SH Wave Electromagnetic Acoustic Transducer (EMAT) at Elevated Temperature", 2004 ASME/JSME Pressure Vessels and Piping Conference, July 25th to 29th, La Jolla, San Diego, U.S.A. (To be presented)

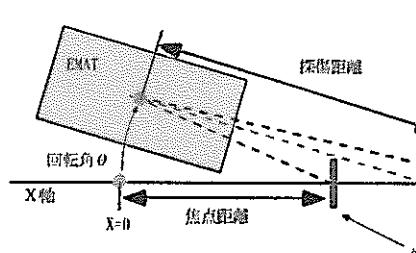


Fig. 2.1 探傷距離と焦点距離の関係

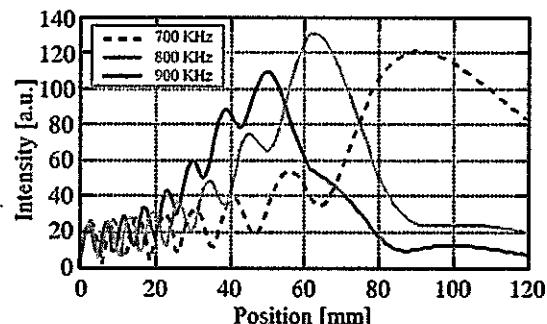
Fig. 2.2 回転角 $\theta=0^\circ$ におけるX軸上の超音波強度分布

Table 2.1 欠陥位置における超音波の焦点との関係

		探傷距離		
		50mm	65mm	90mm
焦点距離	50mm	○	△	△
	65mm	△	○	△
	90mm	△	△	○

○:フォーカス位置での探傷

△:デフォーカス位置での探傷

Table 2.2 異なる焦点距離に対する各送信周波数における受信強度

送信周波数／焦点距離	探傷距離		
	50 mm	65 mm	90 mm
900 KHz / 50mm	1	0.78	0.43
800 KHz / 65mm	0.79	1	0.75
700 KHz / 90mm	0.37	0.78	1

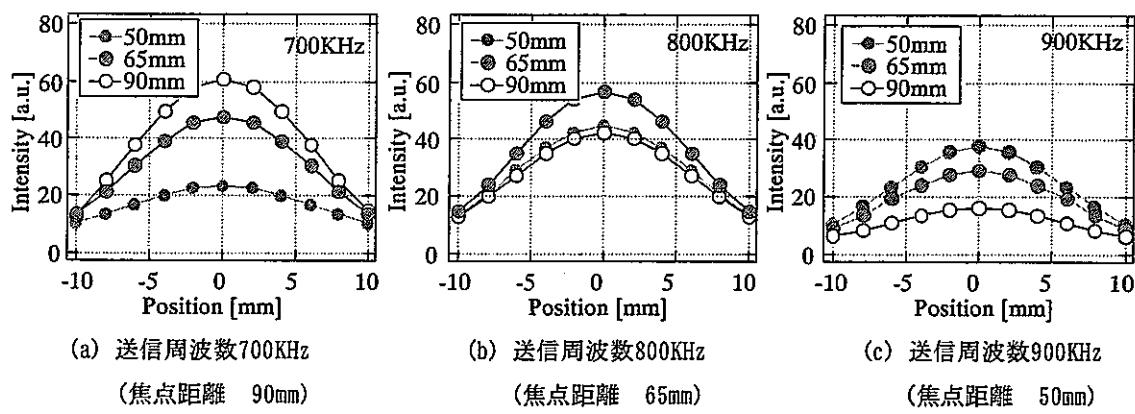


Fig. 2.3 欠陥幅12.5mm、欠陥深さ12.5mm (25%欠陥)に対する傷方向の強度分布

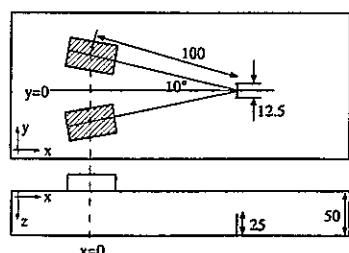


Fig. 3.1 実験配置図

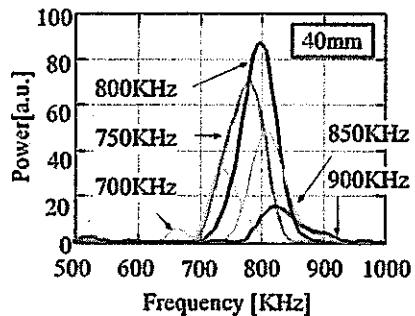


Fig. 3.2 $x=40\text{mm}$ における受信波形のパワースペクトル

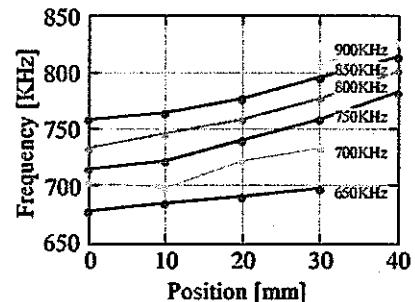


Fig. 3.3 各測定位置における受信周波数

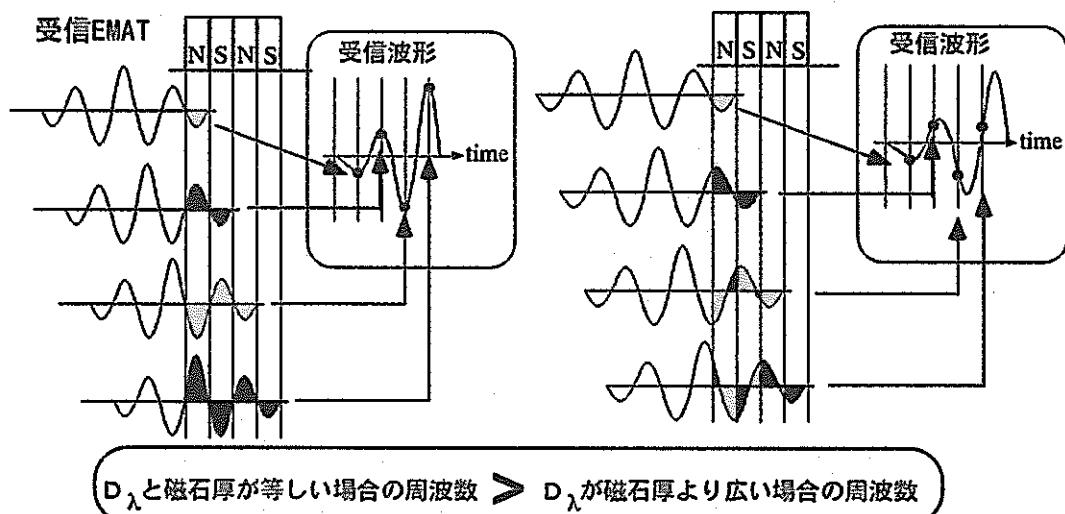


Fig. 3.4 伝搬してきた超音波が受信器で検出される際の受信強度と受信波形の関係

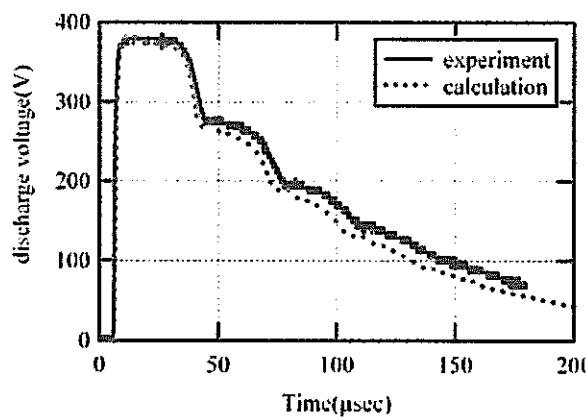


Fig. 4.1 PFN の放電波形

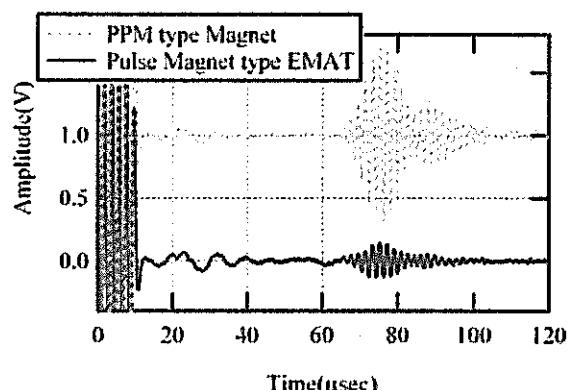


Fig. 4.2 受信波形

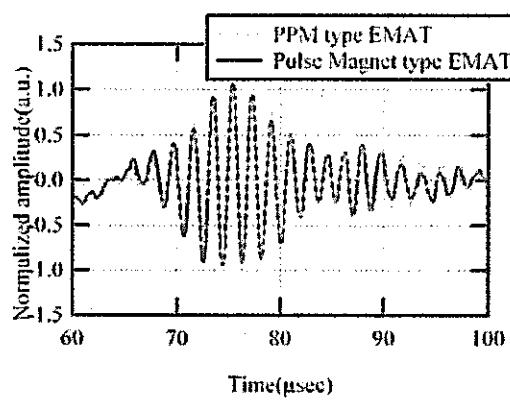


Fig.4.3 規格化した受信波形

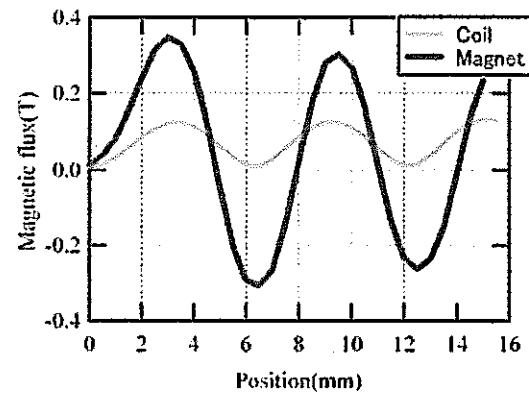
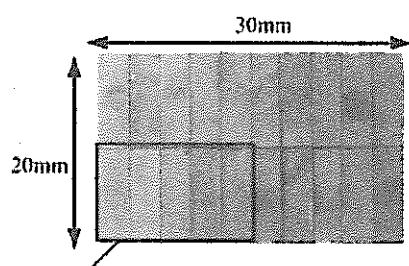
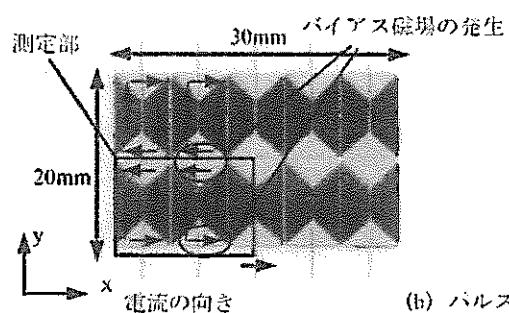


Fig.4.5 垂直磁場方向の比較



(a) PPM型 EMAT



(b) パルス磁場 EMAT

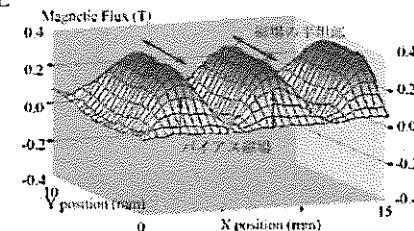
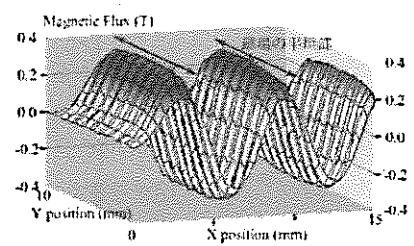


Fig.4.4 PPM型 EMATとパルス磁場EMATの磁場分布

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	酸素濃度制御下 LBE 中金属元素等の溶解度特性評価に関する研究		
研究者所属、氏名			
大学側	関西大学工学部先端マテリアル工学科 教授 大石敏雄 専任講師 市井一男		
機構側	大洗工学センター 要素技術開発部 新材料研究 Gr. G L 青砥紀身 副主研 古川智弘		
研究実施場所	関西大学 工学部 先端マテリアル工学科 機構 大洗工学センター ナトリウム機器構造第 1 試験室		
通算研究期間 (予定)	平成 13 年 10 月 ~ 平成 16 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 6 月 ~ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
中小型炉の冷却材やナトリウム冷却炉における 2 次系簡素化を達成する新型蒸気発生器中間熱媒体として鉛ビスマス共晶合金（以下、LBE）の利用が検討されている。これらプラントの成立性を左右する課題のひとつとして LBE 中の高温材料腐食問題が挙げられている。この材料腐食評価を行っていくには、LBE 中における鉄鋼材料の主要金属元素やガス成分の溶解度が基礎データとして必要となる。これまでにロシアの研究機関により鉄鋼材料元素の溶解度データが報告されているが、それは溶解度式のみの提示にとどまっており、データの信頼性について確認できない状況にある。そこで本研究では、LBE 中鉄鋼材料の腐食機構解明に資することを目的に、腐食量に影響するとされている酸素濃度制御下 LBE 中における鉄鋼材料金属元素やガス成分等の溶解度データを取得していくことを目的とした。			
【研究内容（概要）】			
<p>平成 13 年度実施項目 共同研究の初年度として以下に関する文献調査を行い、2 年度以降の実験研究の計画の参考資料とした。</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. LBE の酸素分析 2. LBE の酸素溶解度と酸素分圧測定 <p>平成 14 年度実施項目</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. Pb 中の溶解酸素分析 2. Pb-PbO および Bi-Bi₂O₃ 平衡の酸素分圧測定 <p>平成 15 年度実施項目</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. Pb, Bi および LBE 中の溶解酸素分析 2. Pb-PbO, Bi-Bi₂O₃ および LBE-PbO 平衡の酸素分圧測定 3. LBE 中の酸素の濃度と酸素分圧の関係 			
【使用主要施設】			
関西大学 工学部： 溶解度測定装置、各種材料分析装置 機構 大洗工学センター： 各種材料分析装置			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

本研究の初年度であった平成 13 年度は、LBE 中の酸素分析、酸素溶解度と酸素分圧（ボテンシャル）測定、および本研究に必要となる種々の系における熱力学データ等に関する文献調査を実施し、平成 14 年度より開始した実験研究計画立案のための現状の課題の整理を進めた。また、これらの整理結果を踏まえて、LBE 中酸素分析手法や酸素濃淡電池による高温 LBE 中酸素濃度測定手法に関する検討を進めるとともに、LBE 中の各種金属元素や炭素の溶解度測定試験計画を立案した。

平成 14 年度は、上記の予備検討を踏まえて、Pb-O、Bi-O 系について溶解酸素測定と酸素分圧測定を実施し、それら測定データの信頼性向上に向けた試験技術開発を進めた。

平成 15 年度は、これまでの知見をもとに、分析結果の信頼性を確認しつつ、Pb-O および Bi-O 系にて信頼性の高い分析結果が得られることを確認し、LBE 中の酸素濃度と酸素分圧との関係を調べた。

【研究成果（当該年度）】

1. LBE 中の溶解酸素分析

金属中の酸素分析は通常「不活性ガス溶解赤外線吸収法」により行われている。本測定法を LBE 中酸素分析に用いる場合、構成元素の Pb と Bi の融点・沸点がともに比較的低いために、Ni や Sn 等の浴を用いて試料の蒸気圧を下げる必要がある。一方、本測定法では、酸素を CO ガスとして抽出する必要があり、Boudouard 反応を考慮すると測定温度を高く設定する必要がある。

そこで本研究では、酸素濃度が既知の標準試料を作製し、その試料を用いて、適した分析条件を決定した後に、LBE の飽和酸素濃度を求めた。

1.1 各種急冷法における冷却速度の比較

これまでに各種方法で溶解・急冷を行い、酸素分析値とそのばらつきを考察し、Pb および Bi の酸素飽和溶解試料の作製方法を検討してきた。その際、冷却速度が遅ければ試料内に温度差が生じ、酸素濃度が均一な試料が得られないことがわかった。そこで、金属に LBE を用い次の 3 つの急冷法から冷却方法を選定した。

- ① 石英管内で金属を直接溶解する。
- ② 石英管内にアルミナ製タンマン管を入れ、その中で金属を溶解する。
- ③ ②に加えて、冷却時の熱伝導を促進するため、石英管とアルミナタンマン管の間隙に Sn 粒を入れる。

冷却曲線の結果を Fig. 1 に示す。この結果より①の方法が最適であるが、Pb および LBE に対しては平衡させる酸化物に PbO (LBE と平衡する酸化物に関しては後述する) を用いるため、PbO と SiO₂ の反応が懸念され、不適当と判断し、③の冷却法を採用し、Bi に対してのみ①の方法を用いることとした。

1.2 酸素飽和 Pb 試料の作製と酸素濃度分析

酸素飽和 Pb 試料は、アルミナタンマン管内で溶解・凝固させた Pb の表面に、円板状に圧粉成型した PbO を設置し、Fig. 2 に示すような炉内で、973 K で 54 ks 保持し、上記③の冷却方法を用いて作製した。酸素分析は、堀場製作所製の酸素・窒素同時分析装置 (EMGA 620W) を用い、以下の条件で測定した。

試料洗浄液 : HCl (1 + 3)、洗浄時間 : 10 秒、試料重量 : 0.3~0.8 g、抽出温度 : 1773, 1873 K
浴金属 : Sn (Sn のモル分率 = 0.6)

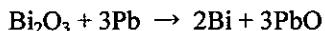
973 K における Pb 中の飽和酸素濃度は、91 mass ppm が得られ、文献値 (99^{1), 113^{2), 115^{3) mass ppm) と近似した値が得られた。これより、冷却法を含む本酸素分析法は満足できるものと判断した。}}}

1.3 Bi および LBE の 973 K における酸素飽和試料の作製と酸素分析

酸素飽和 Bi 試料は、Fig. 3 に示す装置を用い、石英管内で溶解・凝固させた Bi の上部に Bi₂O₃ を設置し、973 K で 36 ks 保持し、上記①の冷却方法を用いて作製した。

LBE に対しては平衡する酸化物の組成を決める必要がある。本研究では出発物質として LBE と PbO を用いた場合と、LBE と Bi₂O₃ を用いた場合の平衡後の酸化物の種類について検討した。両酸

化物とも 973 K で 36 ks 保持した。冷却後の酸化物の X 線回折測定結果を Fig.4 に示す。出発物質が PbO、Bi₂O₃の場合とともに、主として PbO のピークが認められた。Bi₂O₃を用いた場合には、冷却後の LBE の蛍光 X 線分析で合金の組成が Bi の高濃度側に移行していた。以上の事実より、973 K において



の置換反応が起こったものと考えられた。これらの結果より、LBE と平衡する酸化物は状態図から Bi₂O₃がわずかに溶け込んだ PbO の固溶体であると判断し、次項の他の温度における飽和酸素濃度測定では、LBE と平衡させる初期酸化物として PbO を用いることにした。

Fig. 5 には、Pb、Bi および LBE の酸素分析結果を示した。本実験では、純 Bi に対しては Otsuka ら¹⁾に近い値を示した。

1.4 種々の温度における PbO と平衡する LBE 中の飽和酸素濃度

973 K における分析値の信頼性を確認することを兼ねて、878, 1023 および 1073 K における飽和酸素濃度測定を行った。この場合も出発試料として LBE と PbO を用いたが、各温度の急冷後の酸化物の粉末 X 線回折結果からすべて PbO のピークのみであることを確認した。Fig. 6 に酸素濃度の対数を温度の逆数に対して示した。図から明らかなように酸素濃度の対数は 1/T に対して良好な直線関係を示し、最小二乗法により次に示す直線回帰式を得た。

$$\log(C_o / \text{mass ppm } O) = 7.16 - \frac{4.85 \times 10^3}{T} \quad (\pm 0.003) \quad (878 \leq T/K \leq 1073) \quad (1)$$

2. LBE-PbO 平衡の酸素分圧測定

LBE 合金中の酸素の溶解量と酸素分圧の関係を調べることを最終目的とし、イットリアで安定化されたジルコニア固体電解質を用いた電気化学的方法により、昨年度に引き続き、まず Pb-PbO および Bi-Bi₂O₃ 平衡の酸素分圧測定を行い、本法の信頼性を確認した後、LBE と酸化物との平衡酸素分圧の測定を行った。

2.1 実験方法

構成した Pb-PbO、Bi-Bi₂O₃ および LBE-PbO 系における電池は

(一) Pt-LaCrO₃/ Pb - PbO / ZrO₂ (+ Y₂O₃) / Cu - Cu₂O / Pt (+) [I]

(一) Pt-Ir/ Bi - Bi₂O₃ / ZrO₂ (+ Y₂O₃) / Cu - Cu₂O / Pt (+) [II]

(一) Pt- LaCrO₃/ LBE-PbO(+Bi₂O₃) / ZrO₂ (+ Y₂O₃) / Cu- Cu₂O / Pt (+) [III]

である。

2.2 結果および考察

2.2.1 Pb - PbO および Bi - Bi₂O₃ の起電力測定

Fig.7 に電池 [I]、Fig.8 に電池 [II] でそれぞれ得られた起電力と温度の関係を示す。

Fig. 7 から明らかなように起電力と温度の間には 700 K 以上で良好な直線関係が得られた。700 K 以下で起電力値がずれる理由としては、電池の抵抗が大きくなるためと考えられる。この結果より、本測定方法では 700 K 以上で酸素分圧測定が可能であると結論付けられた。

Fig. 8 では、1012 K で起電力の勾配に変化が見られるが、文献によると 1003 K で Bi₂O₃ は α (単斜晶) から δ (立方晶) への変態があり⁷⁾、これに起因しているものと考えられた。

電池[I]の 700 K 以上および電池[II]の 1012 K 以下と以上の温度で起電力値の直線回帰式を求め、さらに、これらの起電力値と Cu - Cu₂O の文献値⁷⁾から、PbO および Bi₂O₃ の標準生成ギブズエネルギーを算出し、式(2)、(3)および(4)に示した。

$$(PbO)/\text{kJ mol}^{-1} = -221 + 0.102T \quad (0.30) \quad (709 \leq T/K \leq 970) \quad (2)$$

$$(Bi_2O_3)/\text{kJ mol}^{-1} = -585 + 0.294T \quad (0.95) \quad (771 \leq T/K \leq 1012) \quad (3)$$

$$(Bi_2O_3)/\text{kJ mol}^{-1} = -553 + 0.264T \quad (0.30) \quad (1012 \leq T/K \leq 1067) \quad (4)$$

PbO の標準生成ギブズエネルギーに対しては Roine⁸⁾のデータ集の値と、Bi₂O₃のそれに対しては Roine⁷⁾の値、Isecke⁴⁾の値、亀田ら¹⁰⁾の値と比較したところ、ともによく一致しており、本実験で使用するジルコニア固体電解質の電池が正常に作動することを確認した。

2.2.2 Pb - Bi - O 系合金の酸素分圧測定

前述した Bi - Bi₂O₃ および Pb - PbO を試料極に用いた起電力測定により得た実験技術を生かして、電池[III]を用いて LBE(44.5 mol% Pb - 55.5 mol% Bi 合金)と PbO 系酸化物 (PbO(+Bi₂O₃)と記す) 平衡の起電力測定を行った。

得られた起電力と温度の関係を Fig. 9 に示した。図中の起電力値の温度に対する 1100 K における急激な勾配の変化は PbO の融解に対応していると思われる。

得られた起電力値の直線回帰式から算出した平衡酸素分圧の対数と温度の逆数の関係は、それぞれ式(5)および(6)に示すとおりとなった。

$$\log(p_{O_2} / P^\circ) = 11.34 - 2.288 \times 10^4 / T \quad (720 \leq T/K \leq 1098) \quad (5)$$

$$\log(p_{O_2} / P^\circ) = 2.874 - 1.359 \times 10^4 / T \quad (1098 \leq T/K \leq 1252) \quad (6)$$

ここで P° は 101325Pa である。

3. 酸素未飽和の LBE 中の酸素濃度と酸素分圧の関係

本研究では、これまでに LBE の酸素飽和溶解度と酸化物平衡の酸素分圧をそれぞれ温度の関数で求めた。しかし、実際に LBE を原子炉冷却材として使用する際には、酸素濃度をこの酸素溶解度より低く制御しなければならないだけでなく、LBE の未飽和溶解時の酸素濃度と酸素分圧の関係を把握しておく必要がある。そこで、これまでに求めたデータを用いて、LBE の酸素未飽和溶解時の酸素濃度と酸素分圧の関係を推定（算出）し、Fe - Fe₃O₄ および Fe - FeO 平衡⁸⁾の酸素ポテンシャルとともに Fig. 10 に示した。同図には H₂/H₂O 比も点線で示した。例えば 700 K で考えるならば、PbO が析出する 1.7 mass ppm O から冷却材の配管材料の被膜 Fe₃O₄ 生成に必要な約 3.10-6 mass ppm O の間に LBE 中の酸素濃度を制御しなければならない。また、同温度で H₂/H₂O 混合ガスによりこれを制御する場合、0.00001 < H₂/H₂O < 10 の範囲の混合比にする必要がある。

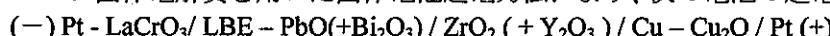
4. 結言

鉛一ビスマス液体合金中の酸素の溶解度測定と酸化物と平衡する液体 Pb - Bi 合金の酸素分圧測定を行い、以下の知見を得た。

- (1) 酸素分析の標準試料を 973 K でそれぞれの酸化物と平衡する純 Pb および純 Bi 中の飽和酸素濃度とし、種々の急冷法で分析試料の作製を試みた。その結果、Bi に対しては「石英管内で Bi を直接溶解」し、石英管を水中急冷する方法が、Pb に対しては「石英管内に冷却時の熱伝導を促進するため Sn 粒を入れ、続いてアルミナ製タンマン管を入れ Pb を溶解」し、石英管を水中急冷する方法が最適であることがわかった。この結果より、LBE に対しては Pb と同じ方法で急冷試料を作製した。
- (2) 酸素分析は浴に錫を用い ($x_{Sn} = 0.6$)、洗浄に使用する酸は Pb, LBE の場合 1+3 の塩酸、Bi の場合 1+4 の硝酸、抽出温度は 1773 および 1873 K で行った。
- (3) 分析の結果、973 K における Pb 中の飽和酸素濃度は 91 mass ppm、Bi に対して 178 mass ppm が得られ、文献値と近似した値が得られた。
- (4) 878, 973, 1023 および 1073 K で溶解・急冷することで LBE の酸素飽和溶解度を測定した。その結果、酸素濃度の対数は温度の逆数に対して良好な直線関係を示しており、次の直線回帰式を得た。

$$\log(\text{mass ppm O}) = -4.85 \times 10^3 / T + 7.16 \quad (878 \leq T / K \leq 1073)$$

- (5) ジルコニア固体電解質を用いた固体電池起電力法により、次の電池の起電力測定を行った。



その結果、以下の平衡酸素分圧の対数と温度の逆数の関係の直線回帰式を得た。

$$\log(p_{O_2} / P^\circ) = 11.34 - 2.288 \times 10^4 / T \quad (720 \leq T/K \leq 1098)$$

$$\log(p_{O_2} / P^\circ) = 2.874 - 1.359 \times 10^4 / T \quad (1098 \leq T/K \leq 1252)$$

- (6) 以上の結果より、LBE の酸素未飽和溶解時の酸素濃度と酸素分圧の関係を推定し、ポテンシャル相図を作成した。

参考文献

- (1) S. Otsuka and Z. Kozuka: Trans. JIM, 22(8), (1981), 558-566.
- (2) C. B. Alcock and T. N. Belford: Trans. Faraday Soc., 60(1964)822-835.
- (3) B. F. Gromov, Y. I. Orlov, P. N. Martynov and V. A. Gulevsky: HLMC 98, (1998).
- (4) B. Isecke and J. Osterwald: Z. Phys. Chem., N.F., 115(1979)17-24.
- (5) C. B. Griffith and M. W. Mallett: J. Amer. Chem. Soc., 75(1953)1832-1834.
- (6) R. M. Biefeld and S. S. White: J. Am. Ceram. Soc., 64(3),(1981),182-184.
- (7) O. Knacke, O. Kubaschewski and K. Hesselmann: Thermochemical Properties of Inorganic Substances, 2nd ed., Springer Verlag (1991).
- (8) A.Roine: Outokumpu HSC Chemistry for Windows,Chemical Reaction and Equilibrium Software with Extensive Thermochemical Database,(2000). (9) I.Barin: Thermochemical Data of Pure Substances,3rd ed.
- (10)亀田和夫,山口勉功,昆 利子:日本金属学会誌, 56(1992)900-906.

【成果の反映状況】

当初計画に達したことから、平成 15 年度をもって本共同研究を終了する。なお、本研究で得られた研究成果は、鉛ビスマス冷却炉における材料腐食研究ならびに鉛ビスマス中酸素濃度制御技術開発研究に反映されている。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- (1) 大石敏雄、酸素濃度制御下 LBE 中溶解度特性評価に関する研究－平成 13 年度共同研究成果報告書－”, 核燃料サイクル開発機構調査報告書 JNC TY9420 2002-001、2002 年 3 月
- (2) 大石敏雄、古川智弘、青砥紀身、酸素濃度制御下 LBE 中溶解度特性評価に関する研究－平成 14 年度共同研究成果報告書－”, 核燃料サイクル開発機構研究報告書 (JNC TY9400 2003-005)、2003 年 3 月
- (3) 大石敏雄、古川智弘、青砥紀身、酸素濃度制御下 LBE 中溶解度特性評価に関する研究－平成 15 年度共同研究成果報告書－”, 核燃料サイクル開発機構研究報告書 (登録手続き中)、2003 年 3 月
- (4) 岸本敦、和田彰人、市井一男、大石敏雄、青砥紀身、古川智弘、Pb,Bi および Pb-Bi 共晶合金の酸素分析と酸素分圧測定、日本金属学会 2004 年春季 (第 134 回) 大会、2004 年 3 月
- (5) 平成 15 年度成果を、資源素材学会「平成 16 年度資源・素材関係学協会合同秋季大会」他にて発表予定

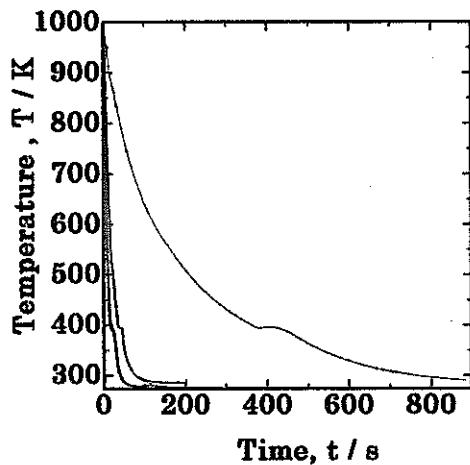


Fig.1 Comparison of cooling rates among ①, ② and ③.

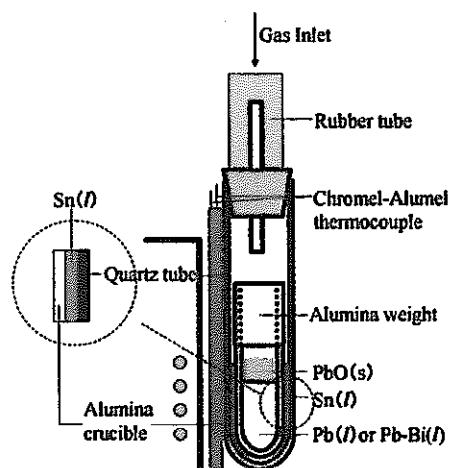


Fig.2 Schematic apparatus for quenching of lead or LBE.

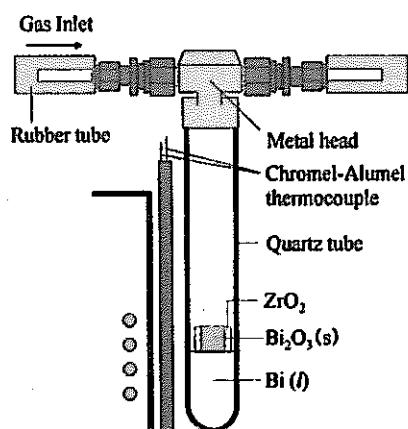


Fig.3 Schematic apparatus for quenching of bismuth.

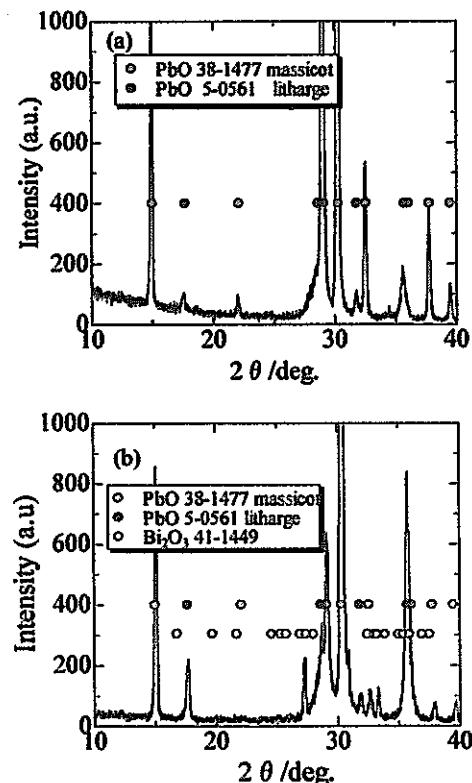


Fig.4 XRD patterns of the oxide equilibrated with LBE at 973 K.
Starting materials were LBE + PbO: (a), and LBE + Bi₂O₃: (b).

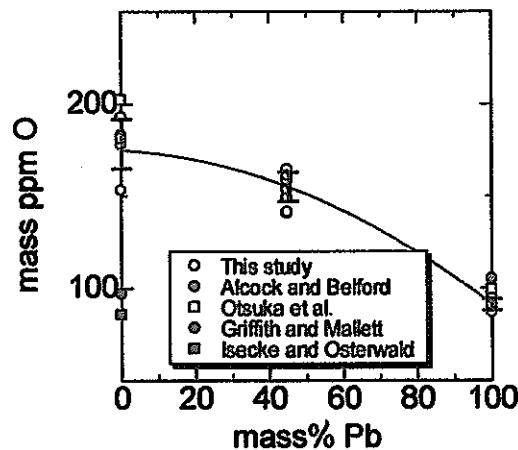


Fig.5 Solubility of oxygen in Pb-Bi system at 973 K.

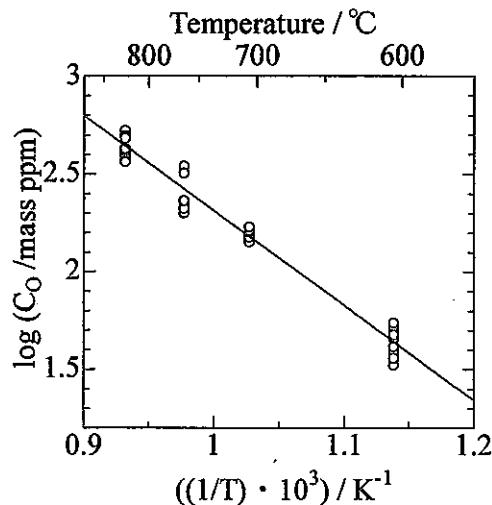


Fig.6 Dependencies of oxygen concentrations in LBE on the temperature.

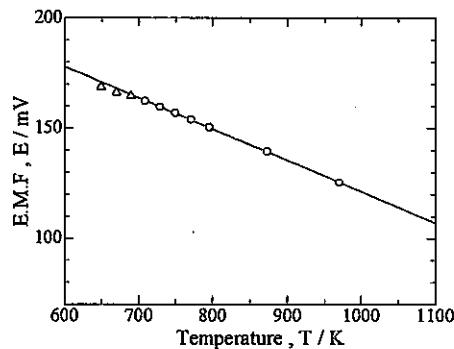


Fig.7 Relationship between EMF and temperature of the cell,
(—) Pt-LaCrO₃/ Pb-PbO/ZrO₂(+Y₂O₃) / Cu-Cu₂O/ Pt (+).

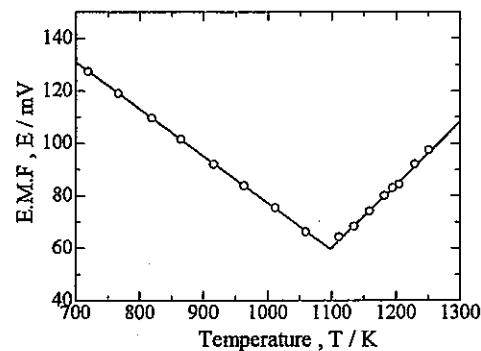


Fig.9 Relationship between EMF and temperature of the cell,
(—) Pt-LaCrO₃/ LBE-PbO(+Bi₂O₃)/ ZrO₂(+Y₂O₃)/ Cu-Cu₂O/Pt (+).

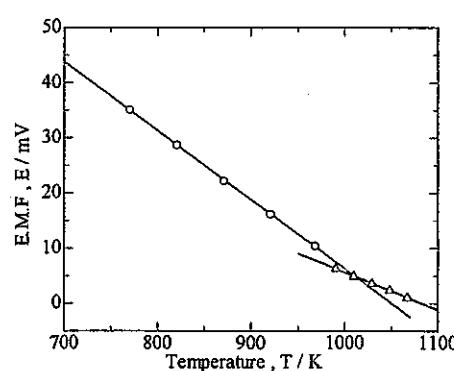


Fig.8 Relationship between EMF and temperature of the cell,
(—) Pt-Ir/ Bi-Bi₂O₃/ ZrO₂(+Y₂O₃)/ Cu-Cu₂O/ Pt (+).

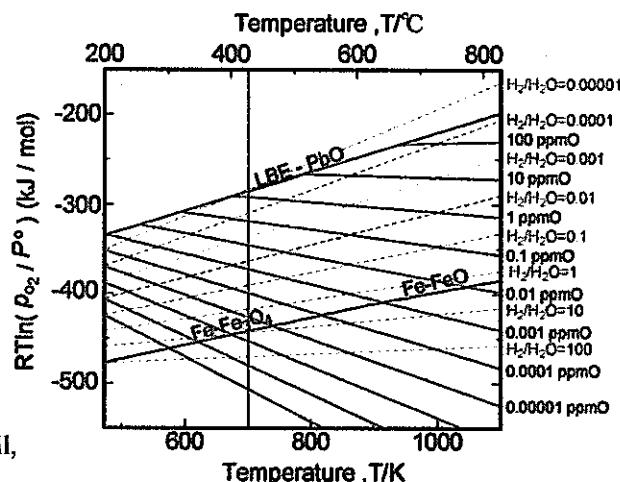


Fig.10 Relationship between oxygen concentration and oxygen potential in liquid LBE.

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	電気化学的手法による溶融塩系での f-元素の化学的研究		
研究者所属、氏名			
大学側	京都大学 原子炉実験所 藤井俊行、白井 理、山名 元		
機構側	社内公募型研究推進室 永井崇之、岩田耕司		
研究実施場所	京都大学 原子炉実験所 機構 東海事業所		
通算研究期間 (予定)	平成 15 年 8 月 ～ 平成 16 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 8 月 ～ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
<p>溶融塩電解法による乾式再処理技術に関するプロセス研究の推進にあたって、溶媒である溶融塩中の溶質元素濃度の In-Situ 測定を行い、電解制御条件にフィードバックすることが望まれている。また、溶融塩中の溶質元素の化学形態を把握することは、乾式再処理プロセス研究において、非常に貴重なデータであるにもかかわらず、これらの情報は、非常に限定された条件のものしか公開されていない。</p> <p>本研究では、京都大学原子炉実験所と共同で、昨年度に引き続き、溶融塩中の f-元素（アクチニド元素、FP 元素）を対象に、電気化学的手法による元素濃度測定試験を実施するとともに、溶質元素の化学形態に関する電気化学的データの蓄積を行う。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>溶融塩電解法乾式再処理プロセスの溶媒（NaCl-2CsCl 溶融塩等）中に存在する f-元素（アクチニド元素、FP 元素）を対象に、元素濃度が In-Situ 測定可能な電気化学的手法による検出技術の確立を目指し、電気化学的手法による測定実験を実施する。また、電気化学的手法による測定のリファレンスとなる元素の化学形態に関する電気化学的データの蓄積を進める。</p>			
【使用主要施設】			
<p>京都大学 原子炉実験所 ホットラボ 試験室 1 溶融塩分光測定グローブボックス</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

本研究では、Ar ガス雰囲気において、溶融塩電解法乾式再処理プロセスの溶媒（NaCl-2CsCl 溶融塩等）中に溶存するウラニルイオンを電解還元し、吸収スペクトル測定により UO_2^{2+} および UO_2^+ のモル吸光係数を求め、吸収スペクトル測定および自然電位測定から $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$ の酸化還元平衡電位を導き出した。

また、NaCl-2CsCl 溶融塩中のウランイオンの電解を行い、 U^{4+} および U^{3+} のモル吸光係数および $\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+}$ の酸化還元平衡電位を求めた。

さらに、溶融塩中の溶存元素濃度を In-Situ 測定可能な電気化学的に検出する技術の確立を目指し、NaCl-2CsCl 中のウラニルイオンを対象に、電気化学的手法（ディファレンシャル・パルス・ボルタンメトリー等）による測定実験を行った。

【研究成果（当該年度）】

本研究の成果を、以下に列挙する。

(1) 923K の NaCl-2CsCl 溶融塩中の UO_2^{2+} を電解によって UO_2^+ へ還元し、吸収スペクトル測定により①および②に示すモル吸光係数を求めた。また、電解還元途中の吸収スペクトルと glassy-carbon 電極電位から③の平衡電位を求めた。

$$\textcircled{1} \quad \text{① } \text{UO}_2^+ \text{ のモル吸光係数 } \varepsilon_{395\text{nm}} = 832 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$$

$$\varepsilon_{620\text{nm}} = 12.5 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$$

$$\varepsilon_{775\text{nm}} = 15.9 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$$

$$\textcircled{2} \quad \text{② } \text{UO}_2^{2+} \text{ のモル吸光係数 } \varepsilon_{<350\text{nm}} > 832 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$$

$$\varepsilon_{450\text{nm}} = 57.2 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$$

$$\textcircled{3} \quad \text{③ } \text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+ \text{ の平衡電位 } E = -0.903 \pm 0.007 \text{ V vs. Cl}_2/\text{Cl}^-$$

(2) 923K の NaCl-2CsCl 溶融塩中で U-metal を U^{3+} に電解溶解し、吸収スペクトルを測定するとともに、減圧蒸留により精製した UCl_4 を 923K の NaCl-2CsCl 溶融塩中へ添加して吸収スペクトルを測定し、①および②のモル吸光係数を求めた。また、 U^{3+} から U^{4+} への電解酸化および U^{4+} から U^{3+} への電解還元の吸収スペクトルと glassy-carbon 電極電位から③の平衡電位を求め、サイクリック・ボルタンメトリーによる平衡電位と一致することを確認した。

$$\textcircled{1} \quad \text{① } \text{U}^{3+} \text{ のモル吸光係数 } \varepsilon_{480\text{nm}} = 1,259 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$$

$$\varepsilon_{570\text{nm}} = 963 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$$

$$\textcircled{2} \quad \text{② } \text{U}^{4+} \text{ のモル吸光係数 } \varepsilon_{455\text{nm}} = 8.87 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$$

$$\varepsilon_{605\text{nm}} = 4.88 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$$

$$\varepsilon_{670\text{nm}} = 6.47 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$$

$$\textcircled{3} \quad \text{③ } \text{U}^{4+}/\text{U}^{3+} \text{ の平衡電位 } E = -1.481 \pm 0.004 \text{ V vs. Cl}_2/\text{Cl}^-$$

(3) 923K の NaCl-2CsCl 溶融塩中の UO_2^{2+} を対象に、ディファレンシャル・パルス・ボルタンメトリーを行い、 UO_2^{2+} 濃度が高くなるほど検出電流値が大きくなることを確認した。

【成果の反映状況】

本研究において得られた成果は、以下に示す外部発表を行うとともに、酸化物電解法プロセス研究を進める上で必要な基礎データであることから、当該分野の社内担当部署へ情報を提供している。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

Takayuki NAGAI, Toshiyuki FUJII, Osamu SHIRAI, Hajimu YAMANA :
“Study on Redox Equilibrium of $\text{UO}_2^{2+}/\text{UO}_2^+$ in molten NaCl-2CsCl by UV-Vis Spectrophotometry”
J. Nucl. Sci. and Tech. (受理済、審査中)

永井崇之、藤井俊行、白井 理、山名 元：
“溶融塩中における f-元素の紫外可視吸光分光研究(3)－NaCl-2CsCl 中のウラン、ウラニルイオンの吸収スペクトル”
日本原子力学会「2004 年春の年会」B53

永井崇之、藤井俊行、白井 理、山名 元：
特許出願（出願番号：特願 2004-48271）
発明名称：酸化物溶融塩中の溶存イオンの価数調整方法およびその装置

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	TRU 元素のプロセス分析化学的研究		
研究者所属、氏名			
大学側	京都大学 原子炉実験所 藤井俊行、白井 理、山名 元		
機構側	東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進サイクル開発部 乾式プロセスグループ 佐藤史紀、田山敏光		
研究実施場所	京都大学 原子炉実験所	機構 東海事業所 電気化学試験室	
通算研究期間 (予定)	平成 15 年 10 月 ~ 平成 17 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 10 月 ~ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
機構では、FBR サイクル実用化戦略調査研究として、乾式再処理技術に関するプロセス研究を進めているが、溶媒（溶融塩、溶融塩）中の溶質元素の化学形態を把握することは、プロセスの効率化を図る上で非常に重要である。しかし、これらの情報は非常に限定された条件のものしか公開されておらず、プロセス研究を進める上で必要となる基礎データを蓄積し、汎用的なデータベースを構築することが望まれる。このため、本研究では、京都大学原子炉実験所との共同研究として、溶融塩中のアクチニド元素、FP 元素の化学形態に関する光学的手法を用いた基礎試験を実施し、基礎データの蓄積を進める。			
【研究内容（概要）】			
乾式再処理プロセスの溶媒（LiCl-KCl 溶融塩等）中に存在する溶質元素（アクチニド元素、FP 元素）の化学形態に関する汎用的なデータベースの構築を目指し、光学的手法の一つである蛍光発光スペクトル分析法を用いた基礎試験を実施し、溶質元素の化学形態に関する基礎データを取得するとともに、より高い測定精度が期待できる光学的手法の確立に向けた検討を行う。			
【使用主要施設】			
京都大学 原子炉実験所 セミホット実験室 溶融塩分光測定グローブボックス 及び蛍光分光装置（F-2500）			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

乾式再処理塩化物溶媒中での蛍光発光測定の可能性を調べるための、基礎的な情報の収集を以下の課題について行ってきた。

- ① Eu の蛍光発光の基礎データの採取（水溶液）
- ② 低温溶融塩中の Eu の蛍光発光の確認試験
- ③ U の蛍光発光の基礎データの採取（水溶液）
- ④ U を含む塩（固体）の蛍光発光特性の試験
- ⑤ Eu の蛍光発光の基礎データの採取（水溶液）
- ⑥ 低温溶融塩中の Eu の蛍光発光の確認試験
- ⑦ U の蛍光発光の基礎データの採取（水溶液）
- ⑧ U を含む塩（固体）の蛍光発光特性の試験

【研究成果（当該年度）】

実験所に既設の蛍光分光器を使用して、 $\text{NaCl}-2\text{CsCl}-\text{UO}_2\text{Cl}_2$ 固体塩を使用した蛍光測定試験を実施した。今回の試験で得た結果を以下に示す。

- ・ 試料中の UO_2Cl_2 濃度をパラメーターとした測定を行い、蛍光強度の濃度依存に関する知見を得た。蛍光強度と濃度の関係については、試料中の UO_2Cl_2 濃度が約0.1mol%以下の場合に、正の相関を示すことが分かった。濃度が0.1mol%を超える場合には、蛍光強度が減衰する濃度消光効果が確認された。
- ・ 測定中の試料温度をパラメーターとした試験を行い、蛍光強度の温度依存性に関する知見を得た。蛍光強度は試料温度を50°Cから90°Cへと上昇させるに従い、徐々に小さくなることが分かった。蛍光強度と試料温度の関係については、測定データのアレニウスプロットを行い、概ねアレニウスの法則に従うことが分かった。
- ・ 今回の試験で用いた測定試料について、電子顕微鏡による断面観察およびEDXによるU分布測定を行った。断面観察の結果から、試料には中央部分に不定形の空隙が生じること、EDXによる測定から、Uは固体部分には均一に分布することが分かった。
- ・ 測定試料に対する水分の影響を検討するため、測定試料へ微量の水分を添加する試験を行った。水分の添加前後では蛍光スペクトルの形状が大きく変化し、水添加前の530nm付近の蛍光ピークが、添加後は500nm、520nm、545nmおよび570nm付近の4つ蛍光ピークへ変化することが分かった。さらに、この蛍光スペクトルが変化した試料を加熱し、試料中の水分を蒸発除去することを試みたが、加熱後の蛍光スペクトルにも同様の4つのピークが見られ、元のピーク形状に戻らないことを確認した。
- ・ 大気中で測定試料を取扱った場合の湿分の影響を確認する目的で、試料を充填した光学セル上部をゴム栓で密封し、大気中に数時間静置した後に蛍光スペクトルを測定する試験を行った。試験により、ゴム栓を用い気密を保つ方法で、測定試料を大気中でほぼ一昼夜、蛍光スペクトルを変化させずに保持できることを確認した。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

蛍光発光法に関する以下の今後の課題に関して、蛍光分光装置の試料保持装置の改良を行い、ウランの検出の定量性を向上させる取り組みを行う。

- ・電子顕微鏡による試料断面の観察結果から、試料内部には不定形の空隙が存在することが分かった。このため試料作成時の形状のばらつきによる蛍光スペクトルへの影響について、実際に試験を行い確認する必要がある。
- ・温度と蛍光強度の関係から、測定試料を冷却することにより蛍光強度が増加し、試料中のU濃度の検出下限を向上できる可能性が考えられる。このため、液体窒素等により測定試料を冷却した場合の蛍光測定を行う。

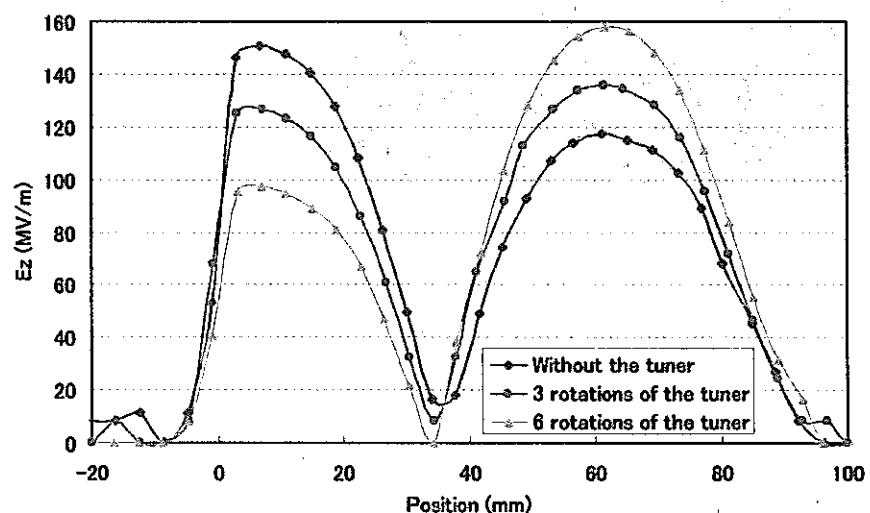
【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

なし

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	小型高輝度電子源に関する研究		
研究者所属、氏名			
大学側	高エネルギー加速器研究機構 加速器研究施設：浦川 順治教授		
機構側	社内公募型研究推進室：山崎 良雄、岩田 耕司		
研究実施場所	高エネルギー加速器研究機構 加速器研究施設		
通算研究期間 (予定)	平成 15 年 9 月 ~ 平成 17 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 9 月 ~ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
<p>原子力分野において、高分解能の非破壊検査を行う方法として、電子線形加速器を用いた X 線 CT が実用化されているが、更なる高分解能化と小型可搬化が実現できれば、より汎用性の高い非破壊検査が可能となる。このため高輝度（高電流かつ低エミッタンス（ビーム平行性がよい））の電子ビームが発生可能な RF 電子銃を用いて、小型高輝度電子源を実現するための研究を進めている。本共同研究は、高エネルギー加速器研究機構、加速器研究施設において、ビーム評価試験を含めた RF 電子銃の高度化に関する研究を行う。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>小型高輝度電子源に関する研究の具体的な研究項目を以下に示す。なお以下の研究項目は、本研究の中で最も本質的であり、それらの解決が研究の主眼となる。</p> <p>(1) フォトカソードの作製技術の確立</p> <p>より高量子効率、長寿命、高安定で動作するフォトカソードの研究を行う。そのために、現在最も長寿命、高量子効率である Cs₂Te カソードの作製条件に関する研究を進める。一般に、このカソードの作製条件は高真空雰囲気が必要とされているため、カソード蒸着部と電子銃本体は、一体化することが常識であり大型の装置になってしまう。そこで、装置を小型化するために、蒸着系は独立を行い、その後 RF 電子銃へ装着するシステムを検討する。</p> <p>(2) マルチバンチレーザーの安定動作の確立</p> <p>フォトカソードからマルチバンチ電子ビームを励起するためのマルチバンチレーザーの安定制御に関する研究を行う。特に、電子ビームの加速試験を通して、マルチバンチ電子ビームを安定に加速できる条件に関するレーザーの研究を行う。</p>			

また、電子銃からのビームを高輝度のまま後段に輸送するためのビーム集束用のソレノイドコイルを設計製作した。そのソレノイドにRF電子銃を取り付け、真空立上げ及び、RFエージングの準備を完了した。



ビーズ法による RF 電子銃の軸上電界強度（π モード）

② カソード蒸着及びロードロック系の整備

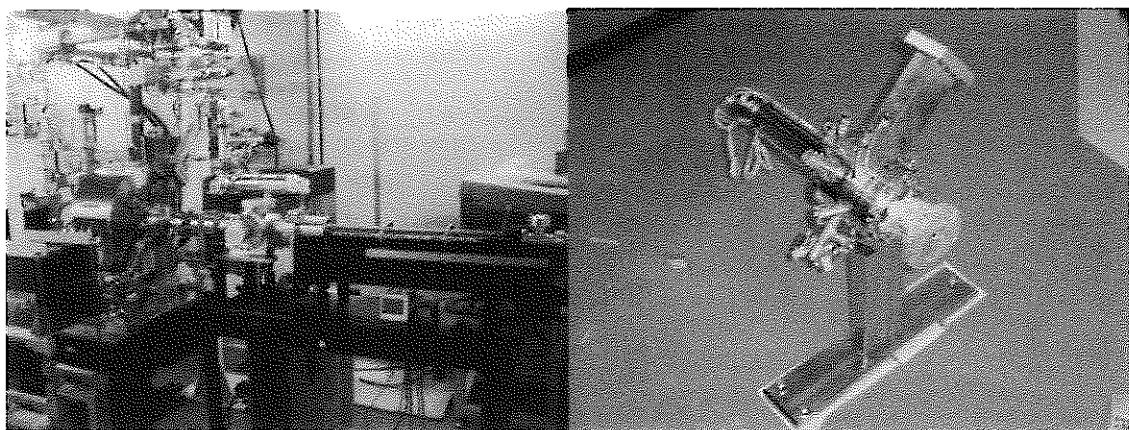
フォトカソードの準備系として、真空系が独立した3つの装置系であるカソードの蒸着系、輸送系、ロードロック系を作製した。これらの装置の真空立上げ等を完了した。機構側研究者は、装置全体の組み上げ調整、およびカソードの量子効率評価系の構築を行った。

③ マルチバンチレーザー紫外光レーザーの整備

フォトカソードから、マルチバンチビームを励起するための紫外光レーザーの光路設計、組み上げ準備を完了した。機構側研究者は、光路設計のためのアンプ増幅率の解析を一部担当した。

④ テストベンチビームラインの組み上げ整備

ビームを評価するためのビームモニター系を含んだビームラインの設計を完了し、組み上げ作業を行っている。機構側研究者は、テストベンチの計測系の配置および設計を一部担当した。



RF 電子銃とロードロック系

RF 電子銃

(2) ATF 加速器入射部による RF 電子銃ビームテストおよび評価

RF 電子銃テストベンチに先立ち、同じタイプの RF 電子銃を用いている ATF 加速器の入射部において、将来、テストベンチに役立つ電子銃の設定条件をサーベイした。

① 短パンチビームの発生

テストベンチビームライン後段では、ビームのパンチ幅が空間電荷効果によって増大してしまうことが問題となる。そこで、パンチ幅の増大を極力押さえ、後段のビーム評価系に輸送し、ビーム評価を行う必要がある。そこで、空洞への入力 RF とレーザーのタイミングを変え、理論的に予想されている空洞内でのパンチ幅の圧縮現象を検証した。その結果、条件によって RF 電子銃内部でパンチング効果があげられることを確認した。その際、ビームの質のパラメータであるエミッタنسも極端に劣化することがないことを確認した結果を示した図を図 1, 2 に示した。図 1 は、横軸にレーザータイミングを RF の位相で表し、縦軸にその際の RF 電子銃からの電子ビーム強度を電荷量で測定した結果である。なお、横軸位相の 0 度はカソード表面電界強度が最大の点である。レーザーの時間幅は半値幅で約 10psec 程度である。図 1 のプロット上に示してある矢印の 4 点で出力電荷が一定になるようにレーザーパワーを調整した状態で、それぞれパンチ幅とエミッタنسを測定した結果が図 2 である。図 2 から、レーザータイミングが 20 度程度の部分で、パンチ幅の圧縮が確認された。同時にエミッタنسの減少も観測されたが、詳細な解釈は現在進行中である。

② ビーム軌道の理論的および数値的計算による実験結果の評価

J. Gao 氏による RF 電子銃のビーム理論解析および数値計算コードの GPT により、上記実験結果の評価を行った。詳細の評価解析は現在進行中である。

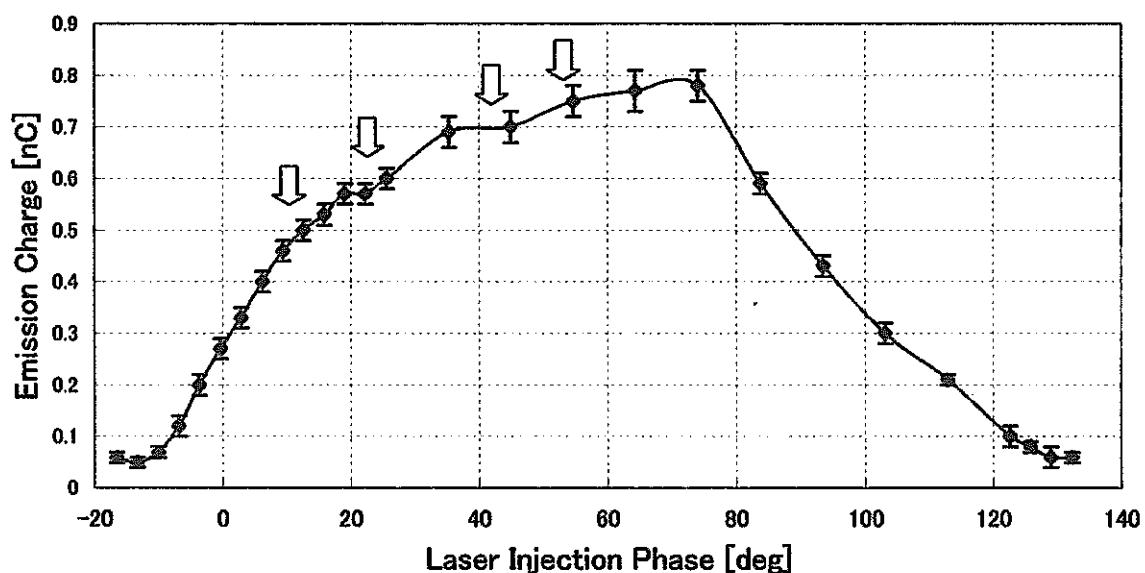


図1：エミッション
電荷のレーザー入射
位相依存性

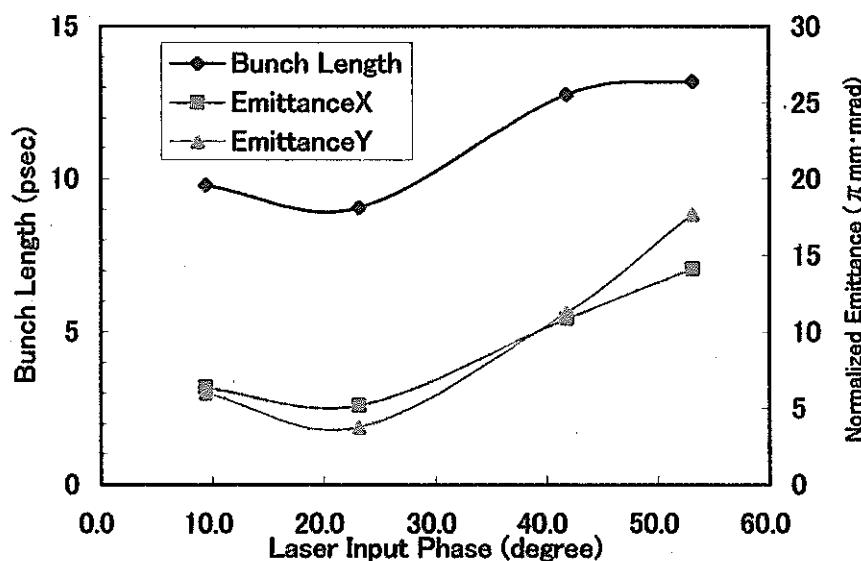


図2：バンチ幅とエ
ミッタンスのレーザ
ー入射位相依存性

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

平成16年度は以下の研究内容を実施する予定である。

- ① テストベンチに用いるRF電子銃のビームを発生させるための準備を行い、ビームの計測制御系を整備する。
- ② フォトカソードをRF電子銃に装着し、ビーム発生を行い、その評価を行う。より高量子効率、長寿命のカソードに関する研究を行う。具体的には、Cs-Teカソード等の作製条件と量子効率の依存性、その表面状態の変化を詳細に観測し、最適な長寿命、高量子効率の条件を明らかにしていく。
- ③ RF電子銃からのマルチバンチビームの発生、評価を行う。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- 1) 山崎他、RF電子銃のビームトランスポート、加速器科学的研究会2003

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	ガス巻込み現象詳細実験：気泡巻き込み機構に関する研究		
研究者所属、氏名			
大学側	筑波大学大学院 システム情報工学研究科 助教授 文字 秀明		
機構側	大洗工学センター 要素技術開発部 新技術開発試験グループ 上出 英樹		
研究実施場所	筑波大学：機能工学系 混相流実験室 機構：大洗工学センター ナトリウム流動伝熱試験室	当該年度	平成 15 年 7 月～ 平成 16 年 3 月
通算研究期間 (予定)	平成 15 年 7 月～ 平成 18 年 3 月	研究期間	平成 15 年 7 月～ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
<p>高速炉の実用化概念として、経済性の向上のために原子炉容器をコンパクト化した炉型が検討されている。コンパクト化された原子炉容器では冷却材流速が増大することから、自由界面からのガスの巻込みの判定は、設計成立性の観点から重要な評価項目となっている。設計で遵守すべきガス巻込みの判断基準を策定することを目的に大学との共同研究を実施する。</p> <p>本研究では、ガス巻き込み発生に大きく影響するくぼみ渦について、現象を渦の生成、発達（成長、減衰）、気泡の巻き込みの段階に分け、特に気泡の巻き込み段階について、実験研究を実施する。これにより、ガス巻込み現象の解明、及びガス巻込み判定手法策定に必要なデータを取得する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>本研究は平成 15 年度から 3 年間の計画で実施する。ガス巻き込み現象は自由液面近傍に循環（渦）が発達するとともにその下方に下降流が存在するとき、くぼみを伴った渦が形成され、渦と下降流の相互作用の中で渦が発達し、くぼみの先端で気泡が液中に離脱すると考えられている。本研究では、このようなガス巻き込み現象の中で、渦の先端から気泡が離脱する点について、境界条件の影響を定量的に明らかにするものである。これまでの他の研究では、定常的な渦（安定な層流渦）を強制的に作り、循環や下降流速の強さをパラメータとして気泡の離脱条件を把握することが行われてきた。しかし形状を模擬したモデル試験など実現象に比べると、渦が安定るためにガスコアが長く引き延ばされ気泡が離脱しにくい。本研究では、渦の強さの変動や液面の波立ち、乱流、遠方の速度変動など実現象に見られる比較的不安定で過渡的な気泡の離脱という側面から新しい知見を得ようとするものである。</p> <p>水を作動流体とし、渦と下降流を生成できる試験装置を作成する。解析評価することを考え、できるだけシンプルに実機をモデル化した体系とする。ステレオ画像処理法や粒子画像流速測定法、モアレ法など最新の計測手法を適用し、渦周りの流速場、液面形状など気泡の離脱にかかる種々の計測を試みる。これにより境界条件が気泡離脱に及ぼす影響について知見を得る。</p>			
【使用主要施設】			
筑波大学 機能工学系、混相流実験室内 水流動試験装置			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 15 年度は、ガス巻き込み渦先端からの非定常な気泡離脱現象を解明する第一段階として、ガスコアの非定常特性を明らかにする実験を実施した。水流動実験装置を設計・製作し、ガスコアの非定常運動を調べるためのステレオ画像処理計測系の整備を行った。実験では、まず、従来の研究と同様に定常なガス巻き込み渦に関して実験を行い、従来の研究結果を確認した。その後、流量変動によるガスコアの運動特性、特に、ガスコア長の変化と離脱気泡の発生条件への流量変動の影響を調べた。

【研究成果（当該年度）】

図 1 に設計・製作した水流動実験装置を示す。上の図は上面図、下の図は側面図である。試験部はウォータージャケットで囲まれた円筒容器で、容器内壁に沿って（接線方向に）水流が流入するよう作られている。流入した水は容器下部に設けた出口より容器外部に流出する。出口配管には電磁流量計、ポンプが接続されている。ポンプにより駆動された水は整流部を経て、再び試験部に流入する。試験部内では水は旋回して流れると共に、出口に向かって流れ、旋回流と下降流の両方が存在する。また、ポンプによって駆動される水の流量は旋回速度および下降流速に影響を及ぼすが、ポンプと電磁流量計は制御盤を介して連結され、PC 制御により水流量を所定の流量に設定することおよび任意波形の所定の時間的変動を与えることが出来る。試験部および出口部分配管は透明アクリルで作られ、光学計測を可能にしている。ガスコアの形状計測は試験部側面に設置された 2 台のカメラによりステレオ計測される。レンズにテレセントリックレンズを用い、画像の視差を極力抑えた。

図 2 に平均流量 6 L/min で、振幅±1.5 L/min、周期 10 s の正弦波的な流量変動を与えた場合のガスコア長の時間変化と電磁流量計を介して計測した流量の比較を示す。水流量はほぼ正弦波形状で変化している。これに対して、ガスコア長は周期的变化をしているものの、水流量の変動とは位相差がある。これは、水流量が変化するとき、容器内の旋回流動が慣性のためにすぐには変化せず時間遅れをもつためと考えられる。また、水流量が正弦波的な変動をするのに対して、ガスコア長は短くなるときには時間変化は急勾配であり、逆に、長くなるときには時間変化の勾配は緩い。これも内部の流体の慣性のためと考えられる。ガスコア長の時間変化は水流量の変動と同期するほかに、更に長周期の変化をも示す。これは装置全体に関わる流動が影響しているのではないと考えられる。図 2 で示した例のほかに、流量変化幅を変えた場合や変動周期を変えた場合の実験も行った。ガスコア長の時間変化が非正弦波的で周期的な変動をすることや、流量変化とは位相差を持つ特徴は他の条件でも認められた。しかし、流量変化幅が小さくなると、また、周期が長くなると、その特徴は徐々に明確でなくなる。つまり、ガスコア長の時間変化は小さくなり、周期性が失われる。周期性が明確でなくなるため、流量変化との位相差も同時に不明確になる。流量変化幅が小さくなることおよび周期が長くなることは、流量の時間変化が小さくなることに対応する。したがって、流量の時間変化が小さくなるとガスコア長の時間変化が小さく、かつ周期性が失われると言える。これは、流れの乱れが影響を与え、ガスコア長の周期的な変化が失われるためではないかと考えられる。試験部に流入する水は試験部内の流体に旋回を与えるが、流量が減少するときは逆に旋回に対して抵抗力を及ぼす。このとき流入する水の流れと試験部内で旋回水流の間でせん断力が働き、乱れが生じる可能性がある。したがって内部の流れは常に乱れ含んでおり、この乱れの影響が流量の時間変化の影響に比べ増加するとき、ガスコア長の周期的な変化が失われるものと考えられる。

図3に平均流量 6 L/min で、流量変化幅±1.5 L/min の正弦波的な変動（周期 10, 15, 20 s）を与えた場合のガスコア長を示す。このときの最大流速は 7.5 L/min で、最小流量は 4.5 L/min である。図には、最大、最小、平均のそれぞれの流量で定常的に水が流入した場合のガスコア長（定常ガスコア長）を横線で示した。流量が変動する場合のガスコア長は最小流量および平均流量に対応する定常ガスコア長より長いが、最大流量に対応する定常ガスコア長より短い。この傾向は、流量変動幅や変動周期を変えた場合でも、ほぼ同様であった。また、定常状態ではガスコアより気泡が離脱し、ガス巻き込みが発生する流量を変動の最大流量に設定した場合でも、変動流量の条件下では気泡離脱が発生しないことが示された。内部流体の慣性による旋回流発達の時間遅れのためと考えられるが、これらの結果は、非定常状態のガス巻き込みが発生する流量条件は、定常状態に比べて高い値になることを示唆している。つまり、巻き込みを発生させない条件としては、非定常状態の方が緩和される可能性があることを示す。

以上のように当該年度では、実験装置を設計・製作し、流量変動によるガスコアの運動、特にガスコア長の時間変動を、ステレオ画像処理法により明らかにした。旋回流の慣性によるガスコア長の変化の時間遅れやせん断流による乱れの影響が観察され、ガスコア先端からの気泡離脱については、それを発生させない流量条件は定常流に比べ緩和される可能性があることを示した。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 16 年度は、引き続き水流動装置を用いて、ガスコア先端からの気泡離脱に対する乱れの影響を調べるため、実験を実施する予定である。流量変動による影響を画像処理法で計測するほか、計測系を整備し PIV を用いて流れ場を詳細に計測する。また、自由液面や下降流、乱流強度の変動を制御できるように実験装置を改造し、それぞれの変動が及ぼすガス巻き込み現象への影響を明らかにする。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

なし

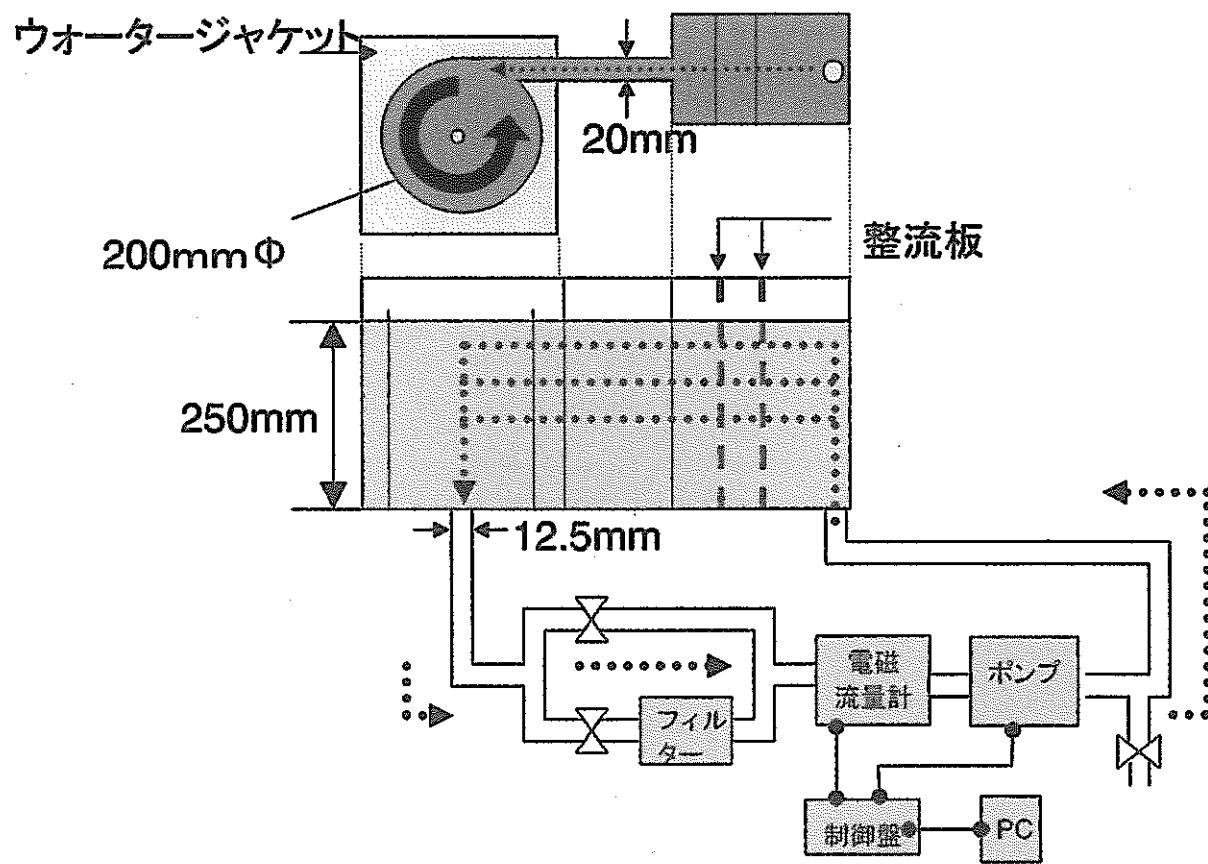
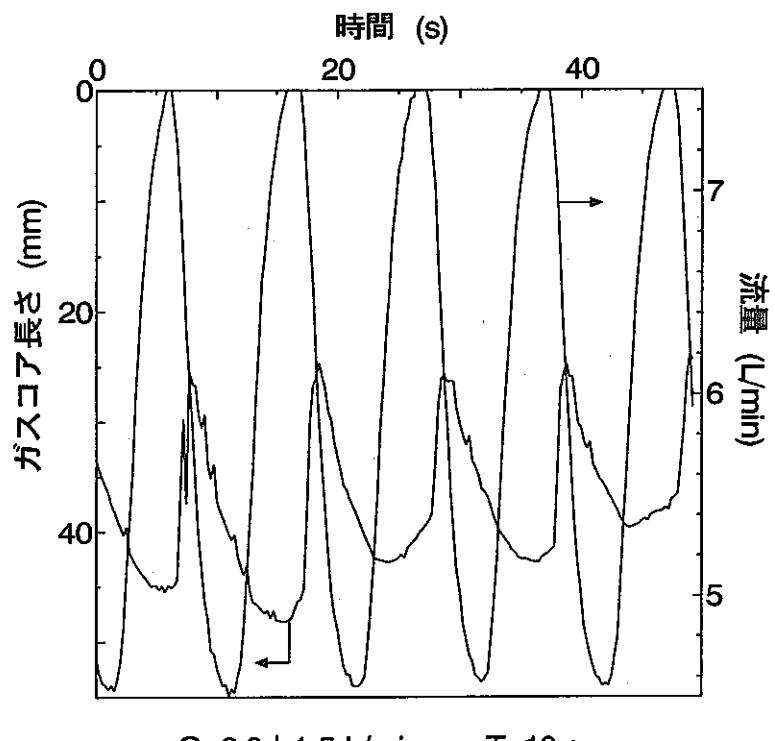
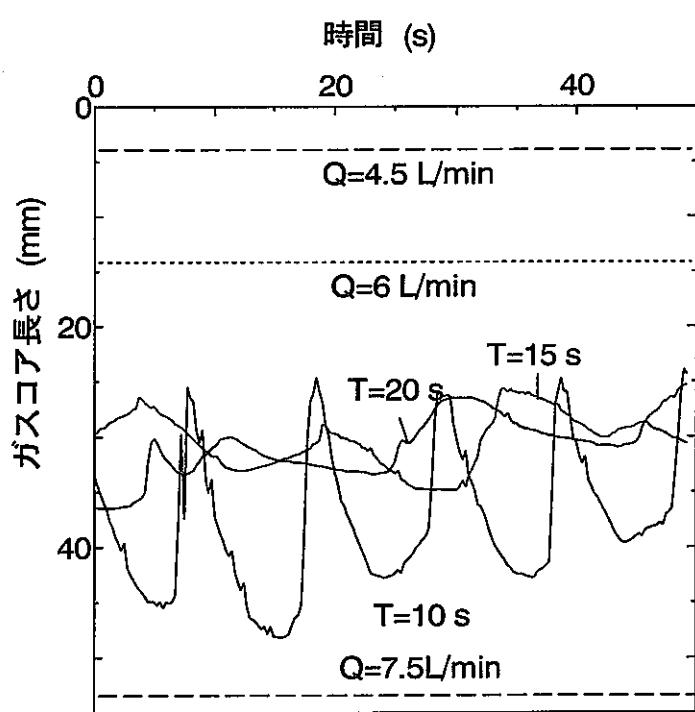


図1 水流动実験装置



$Q=6.0 \pm 1.5 \text{ L/min}$ $T=10 \text{ s}$
図 2 周期的な流量変動とガスコア長の変化



$Q=6 \pm 1.5 \text{ L/min}$
図 3 異なる周期をもつ流量変動に対するガスコア長の変化

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	Si_3N_4 を母材とした Am 含有ターゲット燃料製造プロセスの開発		
研究者所属、氏名			
大学側	東京工業大学 原子炉工学研究所 教授 矢野豊彦		
機構側	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 照射燃料試験室 室長 滑川 卓志 副主任研究員 逢坂 正彦		
研究実施場所	東京工業大学 原子炉工学研究所 ニュークリアセラミックス実験室 機構 大洗工学センター 照射燃料試験施設		
通算研究期間 (予定)	平成 15 年 11 月 ～ 平成 16 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 11 月 ～ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
<p>環境負荷低減の目的でマイナーアクチニド (MA) の核変換を行なう形態としては、これまで主に機構が検討してきた U 及び Pu に少量の MA を添加した燃料と、主に日本原子力研究所が検討してきた MA を主成分とする燃料及びターゲットが考えられる。原研との融合研究においては、これらの試料を実験室規模で製造した上で「常陽」を用いた照射試験を実施し、MA 含有燃料及びターゲット開発の共通的課題である照射特性評価を行うことにより、環境負荷を軽減できる将来の燃料サイクル構築に資することを目的としている。</p> <p>本共同研究においては、Am を含有するターゲットの候補として、ターゲットの母材としての特性が良好である Si_3N_4 をベースとした形態に着目し、製造プロセスをメインとした特性をコールド試験により評価することを目的とする。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>本研究では、アメリシウムを比較的高濃度に含有したターゲット燃料を実験室規模で作製するための基礎データを取得するために、耐放射線特性のすぐれた窒化ケイ素(Si_3N_4)を母剤とした焼結体の作製条件を明らかにすることを目的とする。模擬元素としては、アメリシウムの代替材としてセリウムを用いる。すなわち、市販の窒化ケイ素粉末と酸化セリウム粉末を用い、粉末調整方法、成型条件、焼結条件を変えて焼結体を作製し、高密度焼結体を得ることの出来る製造プロセスを明らかにする。</p>			
【使用主要施設】			
<p>東京工業大学 原子炉工学研究所 ニュークリアセラミックス実験室</p> <ul style="list-style-type: none"> (1) 焼結炉（黒鉛炉、FVPHP-R-5 型、ハイマルチ 5000、富士電波製） (2) 熱伝導度測定 (LF/TCM-FA8510B, 理学電気製) (3) X 線回折測定 (PW-1700, Philips 製) 			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

共同研究事項のうち、

- (1) 試料条件である、Ce濃度が13及び20wt%の条件で、柱状試料で相対密度が理論密度の90%以上で、外観上、欠けやひび割れの無い焼結体を得ることができた。
- (2) 上記の焼結体を得るための、粉末調整、金型成形、焼結条件、焼結助剤の影響を明らかにすることことができた。
- (3) 焼結体の検査項目のうち、外観、寸法、密度、構成相、内部組織観察、室温における熱伝導度、硝酸への溶解度について、明らかにすることことができた。

（詳細は下記を参照）

【研究成果（当該年度）】

1. 成形性の検討

固定用セラミックスの形状は高さと直径がほとんど等しい円柱型である。このような形状に一軸加圧で成形すると、成形体内の密度分布が大きくなり、焼結時に亀裂の原因となる。そのため、密度分布を小さくするために潤滑材としてステアリン酸を添加し、その影響を調べた。 Si_3N_4 に5wt%の CeO_2 を加え、焼結助剤として5wt%の MgO を添加した。 Si_3N_4 +助剤量に対しステアリン酸を0, 1, 2wt%加えた試料を作製した。ステアリン酸は顆粒状なのでアルミナ乳鉢で粉碎してから用いた。混合はエタノールを用いた湿式ボールミルで24時間行った。ロータリーエバポレータで乾燥後、アルミナ乳鉢で粉碎し、目開き355μmのふるいで造粒した。その後、1750°Cで1時間、窒素雰囲気下で焼結した。詰め粉には窒化ホウ素を用いた。その結果、潤滑剤添加量2wt%、一軸成型圧60MPa以上で、かさ密度3.0g/cm³以上の焼結体が得られることが明らかになった。

2. 金属酸化物助剤添加の影響

CeO_2 自身も焼結助剤として働くが、より緻密な焼結体を得るために金属酸化物助剤添加が焼結性に及ぼす影響を検討した。ここでは Al_2O_3 、 Y_2O_3 、 $\text{Al}_2\text{O}_3+\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 ZrO_2 、 MgO を各5wt%使用し、また CeO_2 の添加量は15.97wt%（13wt%-Ce）及び、24.57wt%（20wt%-Ce）とした。なお、混合は遊星ボールミルにより行い、ステアリン酸を1wt%添加、成型圧80MPa、焼結は1700-1800°Cとした。その結果、13wt%-Ceでは、金属酸化物無添加の場合、1800°Cでも85%程度の相対密度であったが、 Al_2O_3 、 $\text{Al}_2\text{O}_3+\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 ZrO_2 を同時に添加した場合、焼結性が向上し、1800°C焼結で相対密度90%程度が得られ、一方、20wt%-Ceでは、無添加でも1750°C以上で相対密度90%程度、 ZrO_2 ではそれ以上となつたが、そのほかの金属酸化物添加は逆に密度の低下をもたらすことが分かった。

3. 特性評価

ここまで実験を基にし、特性評価用試料の作製手順を定めた。

原料粉末として $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ を使用し、 CeO_2 を加え（13wt%-Ce, 20wt%-Ce）、焼結助剤（ Al_2O_3 , ZrO_2 ）を5wt%、ステアリン酸を試料重量に対し2%添加し、エタノールを用いた湿式ボールミル法で24時間混合した。その後スラリーをロータリー・エバポレータで真空乾燥させ、得られた混合粉末をアルミナ乳鉢で解碎し、目開き355μmのふるいで造粒後、一軸加圧60MPaで成形した。黒鉛炉を用いて、焼結温度1750°C（13wt%-Ce+ Al_2O_3 のみ）、1800°C（その他すべて）、0.1MPa N₂雰囲気中で2時間焼結した。焼結時の炭化を防ぐために、BNるつぼを使用し、詰め粉（BN/ Si_3N_4 ）中で焼結した。

得られた試料を用いて、XRD分析、SEM観察、熱伝導度測定、硝酸溶解性の評価を行つた。

すべての試料で窒化ケイ素の他、Ce が CeSiO_2N もしくは $\text{Ce}_{4.67}(\text{SiO}_4)_3\text{O}$ として結晶化していた。また Ce が 3 値に還元していた。また、 ZrO_2 を添加した試料では試料表面及び内部に ZrN が生成していた。相対密度は、 ^{13}Ce だけを加えた試料を除いては 95% 以上と十分に緻密化していることがわかる。開気孔率も同様に、 ^{13}Ce を除いて 1% 以下と小さく、十分に緻密化していることがわかった。

全ての試料で熱容量が同程度(0.68cal/K・g)であると仮定し、求めた熱伝導度は、 Al_2O_3 を助剤として添加した試料では、17W/m・K と他の試料と比較して半分以下の小さい値となつたが、他は、40W/m・K 以上を示した。同じ金属助剤添加のものでは Ce 量が多いほど、熱伝導度は悪くなつた。

沸騰 8M 硝酸溶解試験の結果、4 時間でも、すべての試料の重量減少は 1% 以内であり、色が変化した以外は目だった外見の変化は見られなかつた。 ^{13}Ce では他の試料よりも大きな重量減少が見られたが、これは ^{13}Ce の試料の開気孔率が 4% と、他の試料に比べて大きいためであると考えられる。その他の試料ではほぼ同程度の重量減少となり、 CeO_2 も含めた金属酸化物の量が多いほど重量減少が大きくなる傾向が見られた。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

本研究は、単年度契約であり、しかも研究期間が極めて短かったため、一部、実験装置の不都合や、時間的な制約で実施できなかつた評価事項がある。すなわち、高温における熱伝導度測定、および、熱安定性の評価である。さらに、各物性値は測定したものの、その値が何に起因するかを明らかにするためには微細構造評価などを行い、詳細な解析が必要である。

なお、本研究で得られた研究成果は今後、Am ターゲット燃料製造プロセスの検討に反映される予定である。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

現在のところ、実験データが得られたばかりなので、発表実績は無い。今後、サイクル機構と協議の上、公表していく予定である。

大学等との共同研究に関する平成15年度研究概要報告書

研究テーマ	マルチレベルモデリングによる微細組織変化に基づく材料の磁気特性変化解析法の開発		
研究者所属、氏名			
大学側	東京大学 先端科学技術研究センター 相澤龍彦教授、諫訪嘉宏助手		
機構側	大洗工学センター 要素技術開発部 新材料研究グループ 青砥紀身、中桐俊男		
研究実施場所	東京大学 先端科学技術研究センター 機構 大洗工学センター ナトリウム機器構造第1試験室		
通算研究期間 (予定)	平成15年9月～ 平成17年3月	当該年度 研究期間	平成15年9月～ 平成16年3月
【研究目的】			
<p>高速炉の実用化のためにはプラントの安全性および経済性のさらなる向上が要求される。そのため、高速炉構造材料の特性向上や材料の適切な健全性評価法の開発が望まれる。したがって、高速炉構造材料の損傷評価および余寿命評価は高速炉の実用化に向けて極要技術の一つである。</p> <p>本研究では、有限要素法をベースとして、ステンレス構造材料の長時間クリープ損傷時の微細組織変化モデルおよび微細組織変化に伴うマクロな材料特性変化を再現可能な計算手法開発を目指す。</p>			
【研究内容(概要)】			
<p>(1) 平成15年度</p> <p>高温構造材料における微細組織変化では応力-変形場とともに、Cr等の元素の拡散が大きな影響を与える。そこで、これまで開発してきた有限要素法ベースのマルチレベルシミュレーションプログラムに組み込み可能な、元素拡散を取り扱うための手法を開発する。また、従来知見を基に、Cr化合物の生成等を考慮した鉄鋼材料中のCr拡散モデルを開発する。</p> <p>(2) 平成16年度</p> <p>平成15年度に開発した元素拡散を取り扱い可能な手法に対し、Cr化合物の生成の影響を評価可能な機能を組み込む。また、平成15年度に開発したCr拡散モデルを、上記①で開発した手法に適用し、これまで実施されたクリープ試験片等に見られるCr量分布およびCr移行に伴う磁性相生成挙動との比較検討を実施する。さらに、ブラックスゲートセンサーによる磁気特性測定結果との比較検討を実施する。</p>			
【使用主要施設】			
走査型電子顕微鏡、汎用計算機			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

拡散プロセスと変形との連成に関して検討を行った。特に、微細組織の異方性が等価拡散係数に及ぼす影響に関しては、マルチレベルモデリングがきわめて有効であることがわかつてきた。またセル構造体のように、きわめて敏感な構造における変形に関しても、フェーズフィールド法によるアプローチが有効であることがわかつってきた。

【研究成果（当該年度）】

1. 微細組織を表現するユニットセルモデル

この課題に対応する手法として、ここでは、2つの手法を提案する。第1は、SEMあるいは高分解能光学顕微鏡で撮影した組織写真からの直接的なユニットセル作成である。この方法では、測定した写真からの情報によって、得られる微細組織情報は限定されるが、実際に観測される組織を代表するユニットセルモデルを抽出し、応力解析あるいは拡散などと連成させた解析が可能となる。詳細は2章で述べる。

第2は、フェイス・フィールド法 (Phase-Field Method : PFM) を活用して、所定の合金組成における相平衡、相分配状態を考慮した多相からなる微細組織を発生させたり、所定の構造をもつ多結晶組織を創出したり、設計に応じた微細組織を創出することができる。実際に確証された組織ではないが、磁気変化測定に応じて、理論的に可能な微細組織モデルを創出できる。本年度の共同研究では、この2つの手法を中心に理論的考察、検討をおこなってきた。

2. 実組織ユニットセルモデル

通常、材料組織評価を行うには、高分解能工学顕微鏡、SEM さらに TEM で組織観察するのが通例である。基本的には2次元情報であるが、適当な仮定の下では、これを当該材料の代表的な組織としている。したがって、この写真からユニットセルモデルができれば、計算機上に当該材料の微細組織を代表する数学モデルが構築できる。これが、実組織ユニットセルモデルの目標である。

本モデルでは、図1において、第1に微細組織写真像を画像処理し、多結晶組織の場合には、粒内領域と粒界組織とをそれぞれ異なるセグメントとして識別、登録する。次に、この画像から、均質化した物性（例えば剛性率）が用いるユニットセルのサイズに依存しない最小限の大きさのユニットセルを決定する。すなわち、形状・寸法によらず、対象とする微細組織を代表するユニットセルを決定する。最後に、セル全体を有限要素分割し、用いる数学モデルとする。この場合、

粒内、粒界領域はそれぞれ異なるセグメントとして登録してあり、この段階でもそれが別個のモデルとして表現される。

より複雑な組織の例で考察しよう。図2では針状組織を有する組織を含む組織写真の場合には、対象とする針状組織がもつ画素濃度範囲に注目し、その範囲にある像のみをセグメント化し、他領域を差別化する。その上で、画像処理により針状組織とそれ以外（ここではより低弾性率の母材としている）から対象組織を再構成する。その後の処理は上記と同様である。これにより、複雑な形状組織であっても、同一の物性をもつものとして扱い、その特徴を有するユニットセルを構築できる。また図3に示すように、多相からなる複雑な組織に対しても、同様の手法により、剛性・応力解析に用いるユニットセルを作ることが可能である。

上記の方法により、きわめて広い範囲で材料組織を代表するユニットセルモデルを創出し、その剛性評価、応力解析などが可能となる。さらにこのユニットセル上でボアの発生、合体などをモデル化することで、本ユニットセルによる非線形解析により、組織変化をシミュレーションすることも可能となる。ただし、なぜこの組織なのか、解析により得られる現象がどの程度組織に依存しているかなどに関しては、このユニットセルモデルの構築法では応えるすべがない。

3. PFMによるユニットセルモデル

一般に、PFMでは、系のもつ自由エネルギー変化から、保存量ならびに非保存量の時間変化を求め、初期の形態（例えば、核生成サイト）からの組織形成を記述することができる。したがって、弾性エネルギー、ケミカルポテンシャルなど、異なる場が連成する現象でも、自由エネルギーというスカラーワークを付加するだけで、連成効果を考慮できる。また変分方程式あるいは変分不等式への一般化により、有限要素法による統一的なフォーミュレーションも可能である。

図4に代表的な核生成からの粒成長現象のPFMによる計算例を示す。この場合、構成元素の濃度などに保存量および結晶方位・相などの非保存量を同時に取り扱い、発展方程式を解くことにより、多結晶材料の形成プロセスをシミュレートできる。

図5に、多結晶からなる微細組織成長結果を示す。実組織モデルでは、当該の微細組織を代表するユニットセルの選択が課題であったが、PFMによるモデルでは、粒成長メカニズムの自己相似性の保持が課題となる。自己相似性を保持することで、粒成長の本質を保存しつつ、種々の多結晶状態からなるユニットセルを創出できる。

特に結晶粒の異方性が問題になることが多い。すなわち、自己相似性を保ちつつ、粒成長が方向依存性を有する場合である。図6において界面易動度に角度依存性を入れた場合の粒成長の比較を行う。等方性の場合（図中左）と比較すると、2回対称の異方性の場合には、水平方向に扁平化した組織が得られる。このように、テクスチャ形成にも本手法は有効となる。実際、図7においてそれぞれのケースの粒成長プロセスを比較してみよう。同一の核生成サイトからスタートしても、最終的なユニットセルで表現される微細組織は大きく異なることがわかる。

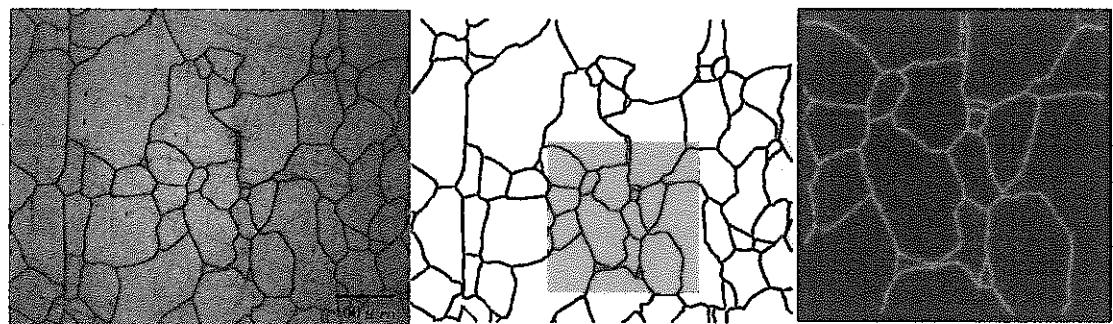


図1 微細組織写真の画像処理

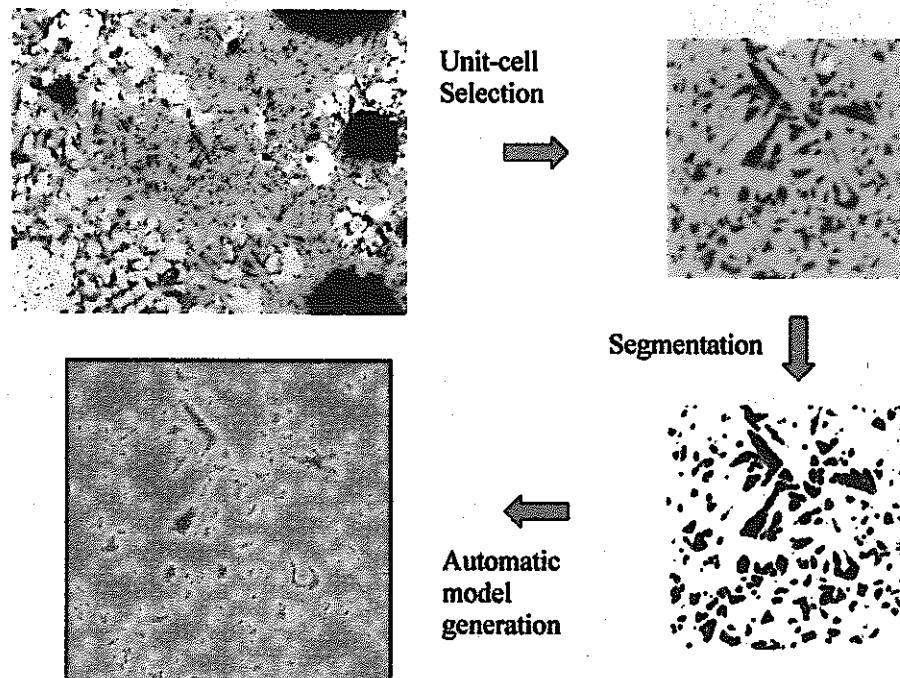


図2 針状組織の画像処理

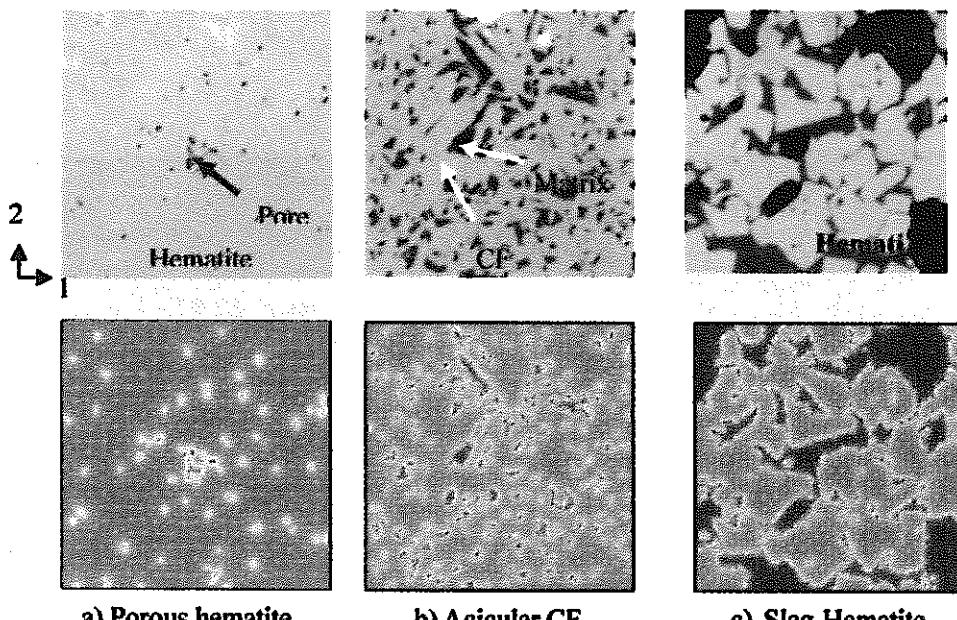


図3 多相からなる複雑な組織の画像処理

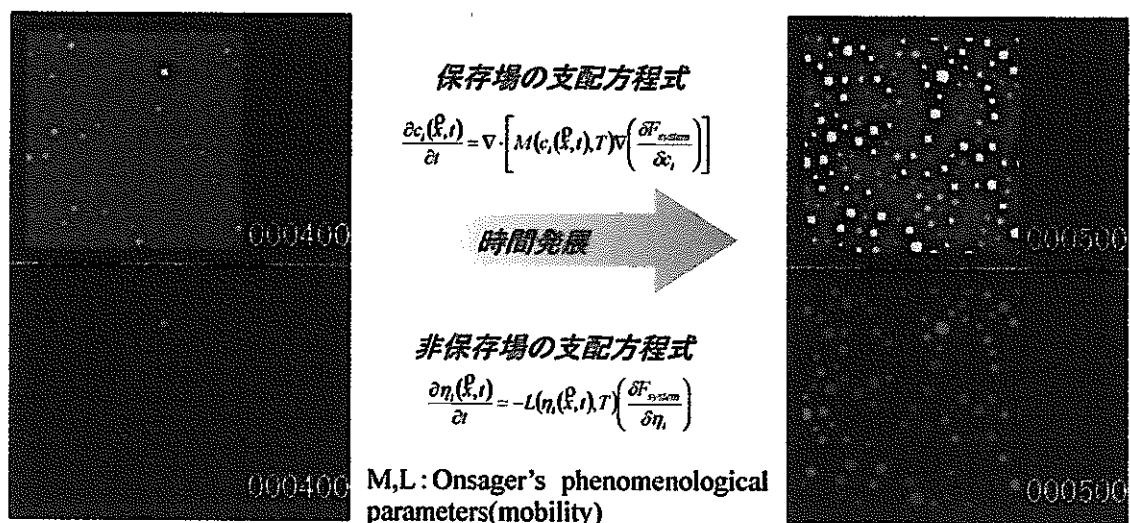


図4 核生成からの粒成長現象の PFM

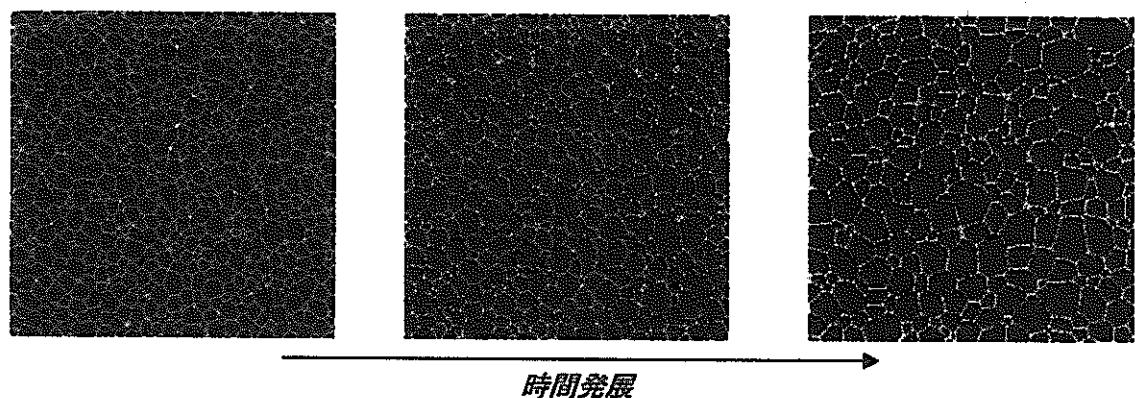


図5 多結晶からなる微細組織成長結果

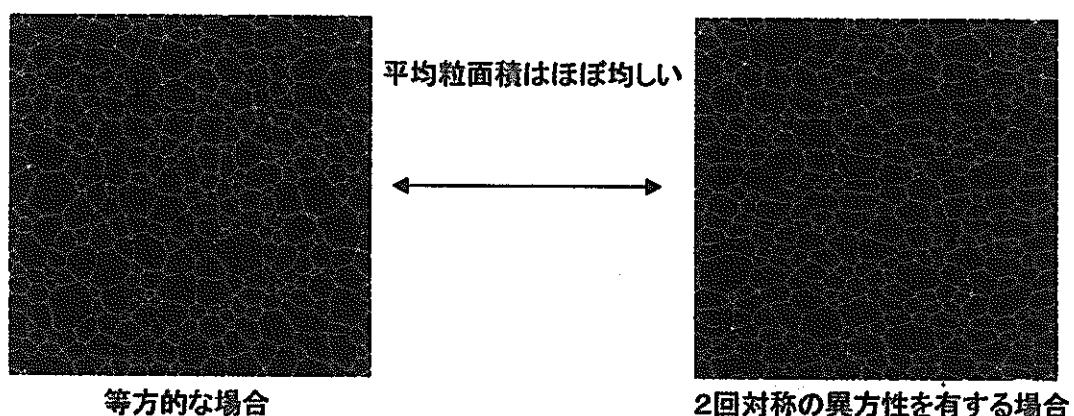
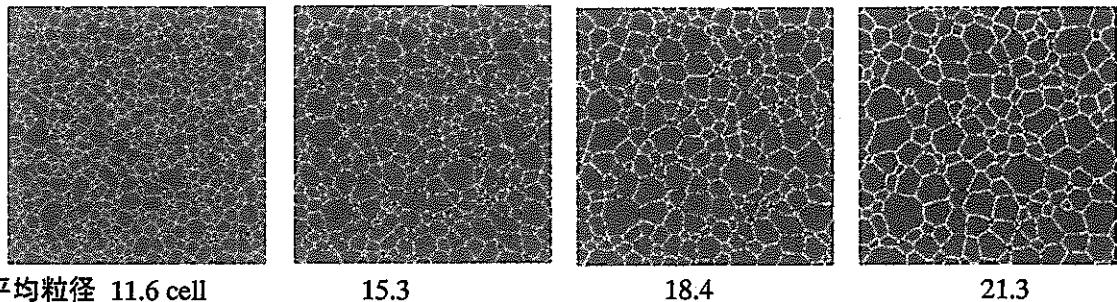


図6 界面易動度に角度依存性を入れた場合の粒成長

等方的な場合



異方性を有する場合

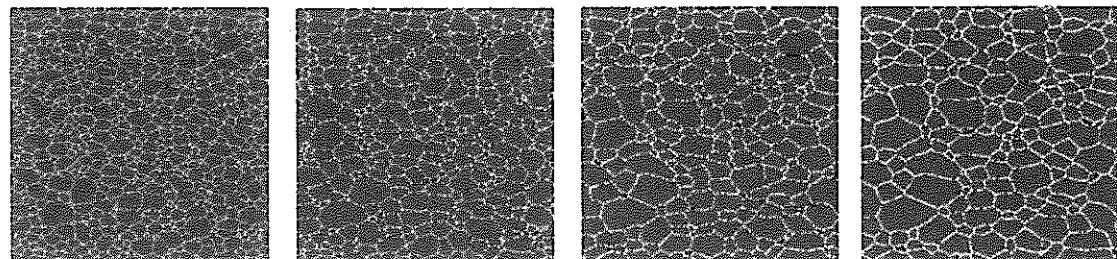


図7 等方的な場合と異方性を有する場合の粒成長プロセス

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

Fe-Cr-Ni 鋼における Cr 濃度変化による相変化さらに多結晶モデルにおける粒界への Cr 拡散・偏析と相変化は、PFM による創出したユニットセルモデル上での、Cr 拡散と相分離を扱う適切な対象となる。次年度は、磁気測定との定量的な比較も含め検討を行う。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- (1) 相澤龍彦、諏訪嘉宏：マルチレベルモデリングによる実組織を考慮した高温損傷評価。フォラム保全学。1 [4] (2003) 44-52.
- (2) 諏訪嘉宏、相澤龍彦：Phase-Field 法と均質化法を用いたマルチレベルシミュレーション。日本金属学会講演集(2003、北海道)87.
- (3) T. Aizawa, Y. Suwa and S. Muraishi: Real microstructure modeling for stiffness and stress analyses of texture in ores. ISIJ-Internation. (2004) (to be published).
- (4) Y. Suwa, T. Mukai and T. Aizawa: Computational mechanics model of 2D-cellular solid in compression with consideration of microstructural development. Proc. WCCM VI (2004, Sep. Beijin) (to be published).

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	ガス巻込み現象詳細実験：くぼみ渦発達機構に関する研究		
研究者所属、氏名			
大学側	東京大学 工学系研究科 システム量子工学専攻 教授 岡本 孝司		
機構側	大洗工学センター 要素技術開発部 新技術開発試験グループ 上出 英樹		
研究実施場所	東京大学：大学院工学系研究科 附属原子力工学研究施設 機構：大洗工学センター ナトリウム流動伝熱試験室		
通算研究期間 (予定)	平成 15 年 7 月 ~ 平成 18 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 7 月 ~ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
<p>高速炉の実用化概念として、経済性の向上のために原子炉容器をコンパクト化した炉型が検討されている。コンパクト化された原子炉容器では冷却材流速が増大することから、自由界面からのガスの巻込みの判定は、設計成立性の観点から重要な評価項目となっている。設計で遵守すべきガス巻込みの判断基準を策定することを目的に大学との共同研究を実施する。</p> <p>本研究では、ガス巻き込み発生に大きく影響するくぼみ渦について、現象を渦の生成、発達（成長、減衰）、気泡の巻き込みの段階に分け、特にくぼみ渦の発達段階について、実験研究を実施する。これにより、ガス巻込み現象の解明、及びガス巻込み判定手法策定に必要なデータを取得する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>本研究は平成 15 年度から 3 年間の計画で実施する。ガス巻き込み現象は自由液面近傍に循環（渦）が発達するとともにその下方に下降流が存在するとき、くぼみを伴った渦が形成され、渦と下降流の相互作用の中で渦が発達し、くぼみの先端で気泡が液中に離脱すると考えられている。本研究では、このようなガス巻き込み現象の中で、渦がどのように発達するか、下降流との間に過渡的な現象として何が起こるのかを定量的に明らかにするものである。これまでの他の研究では、定常的な渦を強制的に作り、循環や下降流速の強さをパラメータとして気泡の離脱条件を把握することが行われてきた。本研究では、ガス巻き込み現象が過渡現象であることに着目し、渦の発達という側面から新しい知見を得ようとするものである。</p> <p>水を作動流体とし、渦と下降流を生成できる試験装置を作成する。解析評価を考え、できるだけシンプルな体系とする。パルスレーザーと画像解析を組み合わせた最新の粒子画像流速測定法などを適用し、瞬時の空間速度分布を時々刻々捉えることで、渦の成長・減衰、下降流との過渡的な相互作用の計測を試みる。</p>			
【使用主要施設】			
東京大学 大学院工学系研究科 附属原子力工学研究施設内 水流動試験装置			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 15 年度は、実験装置の設計と製作を行うとともに、ダイナミック P I V システムの整備を行い、予備的な実験データの取得を行った。

【研究成果（当該年度）】

ガス巻き込み現象は、比較的短時間に旋回渦が発達し、ガスを巻き込む現象である。このことから、ガス巻き込み現象のメカニズムを、定量的に評価することは困難であった。本研究においては、高速度カメラと高速度パルスレーザを組み合わせ、毎秒 1000 枚以上の画像データを取得することで、過渡変動現象を定量的に捉える事を目的としている。本年度は、プロジェクトの初年度として、実験装置の設計、製作と、高速度で速度分布を定量化できるダイナミック P I V システムの整備を実施した。さらに、予備的な検討として、ガス巻き込み現象を開発したシステムによって捉え、渦の成長や渦構造などに関して定性的なデータを取得した。また、過渡変動速度ベクトルを定量的に取得できることを確認した。

実験装置は、自由液面を持つ回流水槽である。図 1 に試験装置の概略図を示す。流路形状は幅 200mm、高さ 300mm のアクリル製であり、アクリル構造物を挿入することで任意形状の流路を形成できる。この流路にはインバータ付のポンプが接続されており、任意の流量を流すことが可能である。このような透明回流水槽に水を循環させるとともに、直径 10mm の吸い込み管を流路下部に設置した。この吸い込み

管は、水と屈折率がほぼ等しい FEP 製であり、水中に入れると光学的には水と同様となる。このため、吸い込み管による画像のひずみなどは生じない。レーザシートは斜め下部から照射し、カメラは水平方向から記録する。

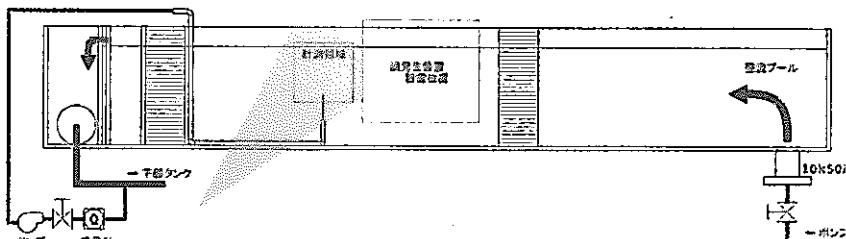


Fig.1 Schematic of test section

レーザは 2000Hz で発振させ、それに同期して高速度カメラを 2000fps で動かす。用いたカメラは、2000fps で 100 万画素(1024x1024)の Photron MAX である。ガス巻き込み現象は、ほぼ 0.3 秒の短い時間で発生するが、十分な時間解像度を持っている。渦中心では線回流が強いため、トレーサの追従性が悪くなるとともに、面外速度が非常に大きくなる。しかし、画素数が十分に多いことと、カメラの撮影速度が十分に速いために、比較的誤差なく速度分布の計測が可能である。

図 2, 3 に、表面にくぼみ渦が形成された後、ガス巻き込みに至らなかった条件、および、ガス巻き込みが発生した条件における瞬時速度分布と液面形状を示す。実際には、このような画像および速度分布が時系列画像データとして取得されている。これらの図を見ると、同様にくぼみ渦が発生したとしても、この渦が成長せず、くぼみ渦と流出部との間になんら相関関係が発生しない状況では、ガス巻き込みは起こりえない。2 次元断面を見ているので、必ずしも渦中心部が捉えられていない可能性もあるが、速度分布を調べてみても、渦が流出部とはなんら関係が無い様である。一方、ガス巻き込みが生ずる場合には、くぼみ渦から流出部へ直接渦糸が接続され、はっきりとした関係が見て取れる。くぼみ渦と流出部との相対的な関係が重要であることが良くわかる。

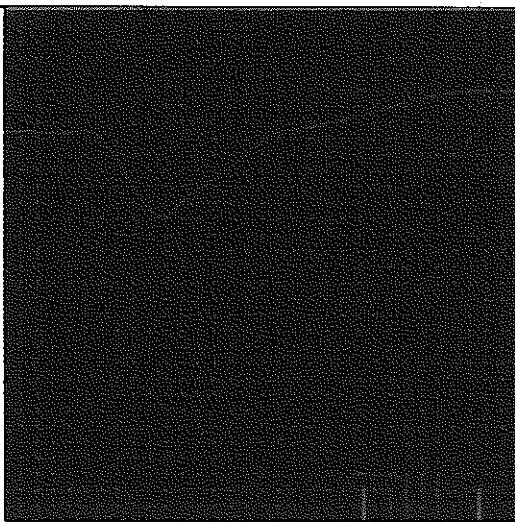


Figure 2: Instantaneous velocity (no entrainment)

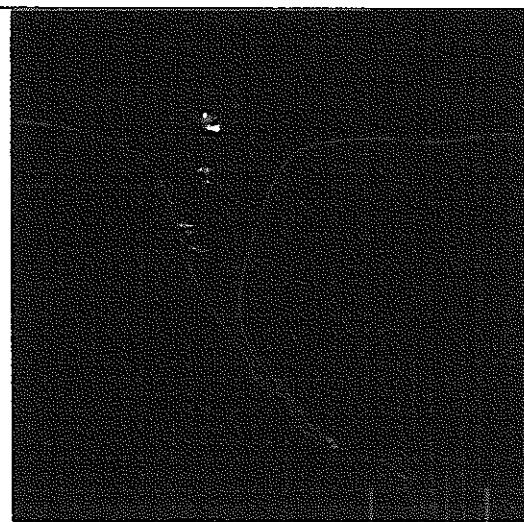


Figure3: Instantaneous velocity (Entrainmant)

以上のことから、ガス巻き込み現象に置いては流出部とくぼみ渦との過渡的な関係が重要であることがわかった。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 16 年度は、実験データを蓄積するとともに、過渡変動速度データを解析し、くぼみ渦の発達の過程を評価する。さらに、様々な条件や、様々な断面に対して速度分布を計測し、過渡的な現象を評価するための研究を実施する予定である。

これらの検討を通じて、ガス巻き込み現象の発生を評価するためのツールを整備していく。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- 1) Okamoto, K. et al., "Transient flow field measurement under the gas-entrainment condition," NTHAS-4, submitted.
- 2) Okamoto, K. et al., "Application of Dynamic PIV for free-surface vortex analysis," ISMTMF-4, submitted.

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	ナトリウム液滴の燃焼挙動に関する研究		
研究者所属、氏名			
大学側	東邦大学 理学部 物理学科 教授 佐藤 研二		
機構側	大洗工学センター 要素技術開発部 热化学安全試験グループ 副主任研究員 石川 浩康、同 堂田 哲広、GL 宮原 信哉		
研究実施場所	東邦大学 理学部 物理学科 機構 大洗工学センター 高速炉安全性第3試験室		
通算研究期間 (予定)	平成 12 年 6 月 ~ 平成 17 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 8 月 ~ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
<p>ナトリウム液滴燃焼挙動の現象論的解明に向けて、液滴の着火挙動、着火後の燃焼挙動、落下挙動及び燃焼に伴う落下挙動の変化を把握することを目的とする。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>(1) 静止ナトリウム液滴燃焼実験（東邦大学実施分） ナトリウムの静止液滴を対象に、空気流速度を従来にくらべてより高速側に拡張して着火・燃焼実験を実施し、着火過程及び着火後の燃焼挙動を調べ、さらにそのときの液滴付近の温度の変化も調べる。</p> <p>(2) ナトリウム液滴落下燃焼実験（機構実施分） 落下距離、液滴直径、液滴初期温度等を変えた条件で单一液滴を落下燃焼させる実験を実施し、燃焼速度や燃焼によって生じる落下速度などの挙動を調べる。</p>			
【使用主要施設】			
<p>静止液滴燃焼基礎実験装置（東邦大学に設置） 落下液滴燃焼実験装置（機構 大洗工学センター 高速炉安全性第3試験室）</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

(1) 静止ナトリウム液滴燃焼実験（東邦大学実施分）

平成 12 年度は、静止ナトリウム液滴の着火時及び燃焼過程での液滴温度や火炎温度を計測する方法を検討し、計測システムの考案・製作及び機能確認試験を実施した。平成 13 年度は、微細熱電対を用いた温度計測システムの性能向上とノイズ対策、ナトリウム液滴生成系の改善を行った後に、ナトリウム静止液滴が着火燃焼する時の高速度映像と温度の同時記録を実施した。平成 14 年度は、ナトリウム液滴生成系、温度測定系、撮影系に改善を行った後に、シース型微細熱電対を用い、初期液滴温度、気流速度を変えて、ナトリウム静止液滴が着火燃焼するときの高速度映像と液滴温度の同時記録を実施した。平成 15 年度は、空気供給系の改善を行って上向き乾燥空気流中での静止ナトリウム液滴の着火・燃焼実験を実施し、高速度カメラによる撮影映像をもとに現象の詳細観察とそれにもとづく着火遅れ時間の測定を行った。液滴初期直径の設定値は 4 mm 一定とし、液滴初期温度の設定値は、300、400°Cとした。液滴付近の温度の時間変化については測定結果を得るまでは至らなかった。

(2) ナトリウム液滴落下燃焼実験（機構実施分）

平成 12 年度は、最大落下距離約 8m の大型試験装置の準備及びナトリウム供給方法の改善を行った後に、落下高さを変えた実験を 2 回実施した。平成 13 年度は、落下高さを変え、初期液滴径約 5mm で初期液滴温度を変えた実験を 3 回実施した。実験結果から課題を抽出し、測定方法の改善、測定装置の改造及び性能試験を実施した。平成 14 年度は、落下高さをパラメータとし、2m、4m、6m、8m からの落下燃焼データを初期液滴径約 5mm で取得した。平成 15 年度は、初期液滴径をパラメータとした初期液滴径約 4mm および約 6mm の落下燃焼データ、窒素ガス雰囲気での初期液滴径約 5mm の落下運動および液滴形状に関するデータ、ポリプロピレン球の落下運動データを取得した。

【研究成果（当該年度）】

(1) 静止ナトリウム液滴燃焼実験（東邦大学実施分）

- ・流量計測系を含む空気供給系の改良を行った結果、空気流速の設定範囲の最大値がこれまでの 60 cm/s から 200 cm/s へと増加し、これにより、空気流速の影響をより広範囲に調べることが可能となった。
- ・実験を行った範囲では、300°C で 200 cm/s の条件において液滴の上端（下流端）部分が空気流に暴露後縦方向に伸びてしまう現象がみられたが、その他の実験条件では液滴がほぼ球形を保った状態で着火現象が生じた。このときの着火現象に関して得られた主な結果を以下に示す。
- ・着火（本研究では着火を液滴表面に接する気相部での橙色の発光の出現で定義）はいずれの流速でも液滴上端付近を除く全領域にわたってほぼ同時刻に生じることが示された。図 1.1、図 1.2 に、それぞれ液滴初期温度が 300°C と 400°C のときの着火過程の連続写真の例を示す。
- ・着火時の発光は液滴の上流側ほど強く、また流速が大きいほど着火後の発光強さが急激に増す。液滴初期温度 300°C を中心に着火に至る過程で液滴の上流側表面に一時的に現れる多数の柱状（針状）突起は 300°C の場合高流速になってもみられる。突起は低流速ではおおむね着火までに消失するが高流速では一部消滅しないままに着火に至ることもある。初期液滴温度が高くなると突起の発生はあまり顕著ではなく、400°C ではある範囲の高流速域でわずかに発生がみられる程度となる。
- ・着火時刻までの間に液滴を包む煙層（微粒子の層）が形成されるがその厚さは流速の増加とともに減少する。また、高流速では、上流から伸びる煙層が液滴の下流側で表面から離れる現象が観察され、流れのはく離がおきていることが示唆される。
- ・図 1.3 に着火遅れ時間と流速との関係を示す。本研究で実験を行った範囲では、着火遅れ時間は流速の増加とともに減少する。ただし、着火遅れ時間の流速による変化の割合は、流速の増加とともに小さくなる傾向がみられる。液滴直径 4 mm の代表的な着火遅れ時間の測定値として、初期液滴温度 400°C のときに、50 cm/s で 0.68 s, 100 cm/s で 0.52 s, 200 cm/s で 0.37 s の値が得られた。今回実験を行った最大流速の値は、前年度までに比べると大きく増加したが直径 4 mm の落下液滴での終端速度と比べるとまだ小さい。より大きな有限の空気流速で最小着火遅れ時間が現れる可能性も考えられるがその存在についてはさらに高流速域での実験を行って確認する必要があり今後の課題と考えられる。

(2) ナトリウム液滴落下燃焼実験（機構実施分）

昨年度までに実施した初期液滴径約5mmのナトリウムを用いた実験結果では、落下時間が同じ大きさおよび密度を持った球と比較して約20%増加する傾向が見られた。液滴の形状変化、燃焼が液滴の落下運動に与える影響を調べるために、初期液滴径をパラメータとした落下データ、未燃焼ナトリウム液滴の落下データおよび液滴形状データ、およびポリプロピレン球の落下データ（液体ナトリウムと近い密度をもつ）を取得した。また、燃焼量データも合わせて取得した。

約4mmと約6mmのナトリウム液滴を高さ約8mから落下させて、落下燃焼データを取得した。これに関する結果を以下に示す。

- ・液滴がノズル先端から離れて測定位置に落下移動するまでの時間が液滴径によって異なるため、初期液滴測定装置を改造し、タイムラグ調整機能を追加した。これによって、約4mmおよび約6mmの径が異なった液滴の場合でも測定が可能となった。
- ・初期液滴径約4mmのナトリウム液滴を作るため、ノズルに供給するナトリウムを微流量で制御できる流調弁を追加した。また、直径0.3mm内径0.2mmの極細ノズルを使用し、ノズルの閉塞が起こりやすい条件であったため、Na純度管理の見直し、運転方法の改善などの対策を施した。
- ・初期液滴径約4mmの実験データを表2.1に示す。実験の結果、初期質量から換算した初期液滴径は3.34mmとなった。初期質量16.57mgの液滴は約8m落下する間に43%にあたる7.12mgが燃焼した。8.02m落下するまでの時間は平均1.746sであった。
- ・初期液滴径約6mmの実験データを表2.2に示す。実験の結果、初期質量から換算した初期液滴径は5.95mmとなった。初期質量93.60mgの液滴は約8m落下する間に17%にあたる16mgが燃焼した。8.02m落下するまでの時間は平均1.468sであった。
- ・ナトリウム液滴が約8m落下する間で燃焼する割合は初期液滴径が小さいほど大きく、これはこれまでの知見と同様であった。現在、これまでの実験データと合わせて、燃焼量の定量的な評価を実施している。

未燃焼状態のナトリウム液滴の落下運動および液滴形状を調べ、燃焼および形状変化が液滴の落下運動に及ぼす影響を調べた。これに関する結果を以下に示す。

- ・未燃焼状態でナトリウム液滴を落下させるため、約3m³の実験容器内を低酸素濃度状態にする必要があった。装置の密閉性を上げる措置を施し、また窒素ガス供給設備を装置に追加した。その結果、酸素濃度を1%未満に維持できるようになった。
- ・落下距離8mの位置でナトリウムの液滴形状を撮影するため、落下速度8m/sの直径5mm液滴を撮影可能な高速度カメラおよび照明設備を設置した（露出時間1/20,000秒、1000フレーム/秒）。
- ・窒素雰囲気中での初期液滴径約5mmのナトリウム液滴の落下データを表2.3に示す。実験の結果、回収質量から換算した液滴径は4.71mmとなった。8.02m落下するまでの時間は1.444sであった。窒素雰囲気中を約8m落下したナトリウム液滴の形状を図2.1に示す。形状はほぼ球体であるが、若干落下方向の前方が潰れているのが観察された。

液体ナトリウムの密度に近いポリプロピレンでできた球を用いて、落下運動データを取得した。これに関する結果を以下に示す。

- ・ポリプロピレン球の落下運動データを表2.4に示す。8.02m落下するまでの時間は、直径3.99mm、4.79mm、6.34mmに対して、それぞれ1.460s、1.422s、1.373sであった。

落下運動について

- ・ナトリウム液滴およびPP（ポリプロピレン）球の落下の実験値を図2.2に示す。液滴径5.95mmの落下時間は、ポリプロピレン球のそれと大差ないが、直径3.34mmの液滴の落下時間は大きく異なる。また、未燃焼状態のナトリウム液滴の落下運動は、ポリプロピレン球の落下運動に近かった。現在、これまでの実験データとあわせて、燃焼が液滴の落下運動に及ぼす影響を評価している。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

(1) 静止ナトリウム液滴燃焼実験（東邦大学実施分）

平成 16 年度は、引き続き既設のナトリウム静止液滴燃焼実験装置等を用いて静止ナトリウム液滴の着火燃焼実験を行い、着火遅れ時間に及ぼす液滴直径の影響と空気流速の影響（高流速側のデータの拡充）について調べ、液滴の着火燃焼挙動と空気流速の関係を整理する。

(2) ナトリウム液滴落下燃焼実験（機構実施分）

平成 16 年度は、平成 15 年度までに取得した落下距離をパラメータとした燃焼・落下データ、初期液滴径をパラメータとした燃焼・落下データ、未燃焼ナトリウム液滴の落下データおよび液滴形状データ、およびポリプロピレン球の落下データを整理し、ナトリウム液滴の落下時の燃焼速度および落下運動についての知見をまとめる予定である。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

平成 11 年度

- (1) 佐藤、静止ナトリウム液滴燃焼基礎実験（II），JNC TJ9400 99-011，1999 年 10 月
- (2) 大野、他、ナトリウム液滴落下燃焼実験（2）－ASSCOPS の液滴燃焼モデルの評価－，JNC TN9400 99-079，1999 年 10 月
- (3) 佐藤、他、静止ナトリウム液滴の自発着火過程の観察、第 37 回燃焼シンポジウム D332，1999 年 12 月
- (4) 大野、他、ナトリウム液滴の落下燃焼挙動に関する実験研究（第 2 報），第 37 回燃焼シンポジウム D333，1999 年 12 月

平成 12 年度

なし

平成 13 年度

- (5) 佐藤、ナトリウム液滴の燃焼挙動に関する研究－ナトリウム静止液滴燃焼実験－（平成 12、13 年度共同研究成果報告書），JNC TY9400 2003-008，2003 年 3 月

平成 14 年度

- (6) 佐藤、他、静止ナトリウム液滴の自発着火過程の温度測定，第 40 回燃焼シンポジウム P316，2002 年 12 月
- (7) 佐藤、ナトリウム液滴の燃焼挙動に関する研究－ナトリウム静止液滴燃焼実験－（平成 14 年度共同研究成果報告書），JNC TY レポート登録手続き中
- (8) 堂田、他、ナトリウム液滴の落下燃焼挙動に関する実験研究（第 3 報），第 40 回燃焼シンポジウム B341，2002 年 12 月
- (9) 堂田、他、ナトリウム液滴落下燃焼実験（FD-2），JNC TN9400 2003-011，2003 年 3 月

平成 15 年度

- (10) 武隈、他、静止ナトリウム液滴の自発着火過程の温度測定，第 41 回燃焼シンポジウム講演論文集，pp. 167-168，2003 年 12 月
- (11) 佐藤、空気流中の静止ナトリウム液滴の着火挙動、原子力施設の消防防災技術に関する成果発表会資料，pp. 1-39 - 1-44，2004 年 3 月

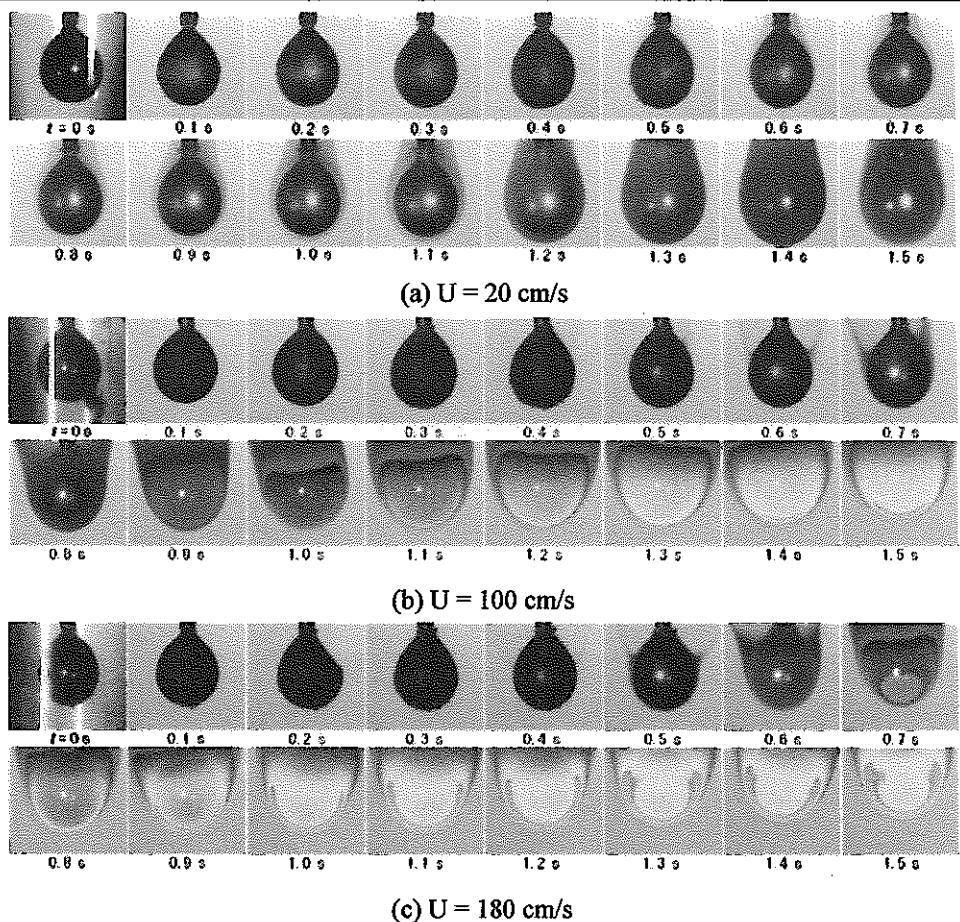


図 1.1 着火過程の連続写真. 液滴初期直径 $4 \pm 0.2 \text{ mm}$, 液滴初期温度 300°C , 空気温度 25°C , U : 空気流速.

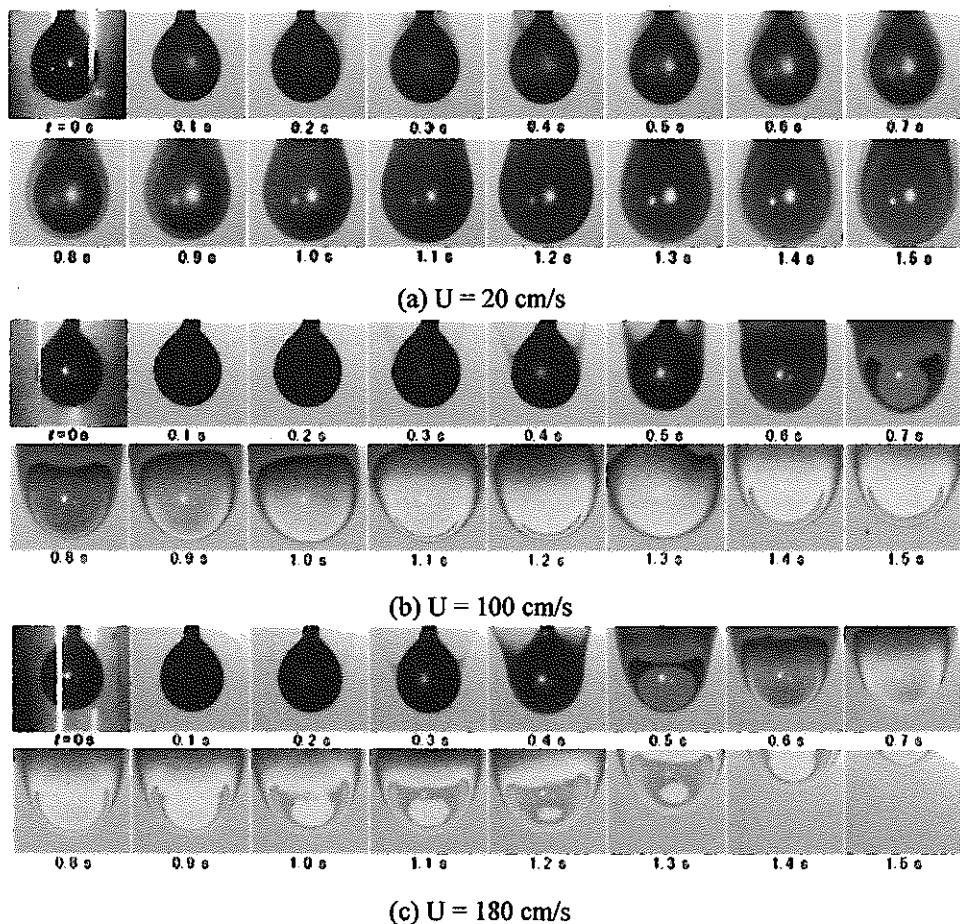


図 1.2 着火過程の連続写真. 液滴直径 $4 \pm 0.2 \text{ mm}$, 液滴初期温度 400°C , 空気温度 25°C .

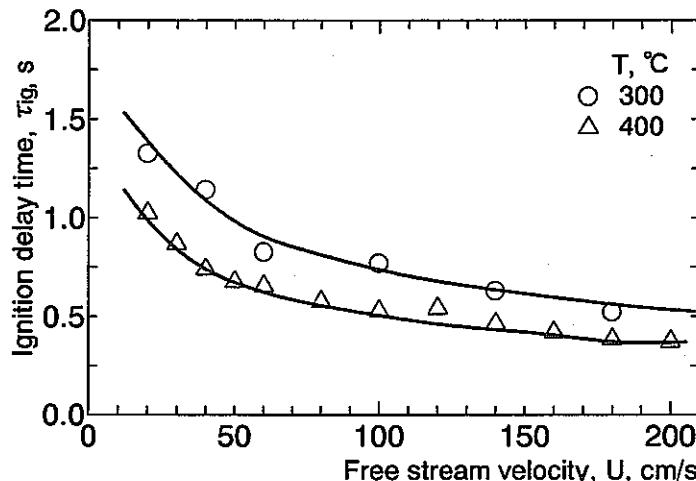


図 1.3 着火遅れ時間と空気流速との関係。液滴直径 4 ± 0.2 mm, 空気温度 25 °C, T : 液滴初期温度。

表 2. 1 初期液滴径約 4mm の落下液滴燃焼実験データ

Case	初期質量 (mg)	回収質量 (mg)	着火遅れ 時間 (s)	液滴通過時間 (s)			
				1.88(m)	3.67(m)	5.67(m)	8.02(m)
1-1	16.57 ^{*1}	9.72	—	—	—	—	—
1-3		8.96	—	—	—	—	—
1-5		9.26	0.536	0.694	1.040	1.370	1.754
1-6		9.39	0.480	0.660	0.998	1.340	1.895
1-7		—	0.656	0.996	1.329	1.707	
1-8		—	0.659	0.978	1.301	1.673	
1-9		—	0.658	0.998	1.326	1.870	
1-10		—	0.641	0.965	1.286	1.648	
1-11		—	0.669	—	1.310	1.704	
1-12		—	0.656	0.995	1.323	1.738	
1-13		—	0.655	0.989	1.324	1.708	
1-14		—	0.654	—	1.329	1.700	
1-15		—	0.662	0.988	1.318	1.897	
1-16		—	0.655	0.987	1.326	1.704	
1-17		—	0.655	0.988	1.320	1.696	

※1 滴下直後の液滴を回収したサンプルの Na 定量分析結果

※2 11 滴分の液滴を回収し、Na 定量分析結果を 11 分割した値

表 2. 2 初期液滴径約 6mm の落下液滴燃焼実験データ

Case	初期質量 (mg)	回収質量 (mg)	着火遅れ 時間 (s)	液滴通過時間 (s)			
				1.88(m)	3.67(m)	5.67(m)	8.02(m)
2-3	93.60 ^{*1}	80.35	0.816	0.638	0.921	1.182	1.470
2-4		69.20	—	0.639	0.917	1.181	1.465
2-5		81.95	0.784	0.638	0.921	1.184	1.473
2-6		78.90	0.784	0.633	0.910	1.177	1.465

※1 滴下直後の液滴を回収したサンプルの Na 定量分析結果

表 2. 3 窒素雰囲気中での初期液滴径約 5mm のナトリウム液滴の落下データ

Case	初期質量 (mg)	回収質量 (mg)	液滴通過時間 (s)				形状撮影
			1.88(m)	3.67(m)	5.67(m)	8.02(m)	
B2-1	データ 処理 中	46.4 ^{※1}	0.631	0.914	1.178	1.452	-
B2-2			0.630	-	1.171	1.450	-
B2-3			0.629	-	1.169	1.452	-
B2-4			0.629	0.905	1.167	1.449	-
B2-5			0.628	0.909	1.166	1.443	-
B2-6			0.627	-	1.164	1.441	-
B2-7			0.627	0.90733	1.169	1.446	-
B2-8			0.626	0.90557	1.162	1.439	-
B2-9			0.626	-	1.161	1.444	-
B2-10			-	-	-	-	-
B2-11			-	-	-	-	-
B2-12			-	-	-	-	-
B2-13			0.62489	0.89768	1.15755	1.43399	-
B2-14			0.62465	0.90223	1.16214	1.43415	-
B2-15			-	-	-	-	○
B2-16			-	-	-	-	○
B2-17			-	-	-	-	○
B2-18			-	-	-	-	○
B2-19			-	-	-	-	○
B2-20			-	-	-	-	○
B2-21			-	-	-	-	○
B2-22			-	-	-	-	○
B2-23			-	-	-	-	○
B2-24			-	-	-	-	○
B2-25			-	-	-	-	○

※1 25 滴分の液滴を回収し、Na 定量分析結果を 25 分割した値

表 2. 4 ポリプロピレン球の落下運動データ

RunNo	球径(mm)	質量 (mg)	液滴通過時間 (s)			
			1.88(m)	3.67(m)	5.67(m)	8.02(m)
1	3.99	30.6	0.618	0.906	1.175	1.457
4		30.4	0.610	0.901	1.171	1.463
7		30.7	0.617	0.906	1.175	1.460
12		28.5	0.618	0.901	1.171	1.458
17		32.2	0.617	0.905	1.175	1.462
2	4.79	49.4	0.612	0.893	1.152	1.424
5		48.4	0.612	0.892	1.151	1.422
8		53	0.612	0.892	1.147	1.422
13		53.4	0.612	0.888	1.147	1.418
18		52	0.606	0.888	1.153	1.425
3	6.34	114.5	0.606	0.877	1.118	1.371
6		117.3	0.606	0.872	1.118	1.375
9		113.9	0.605	0.876	1.121	1.370
14		122.4	0.606	0.877	1.121	1.374
19		125.5	0.606	0.877	1.119	1.375

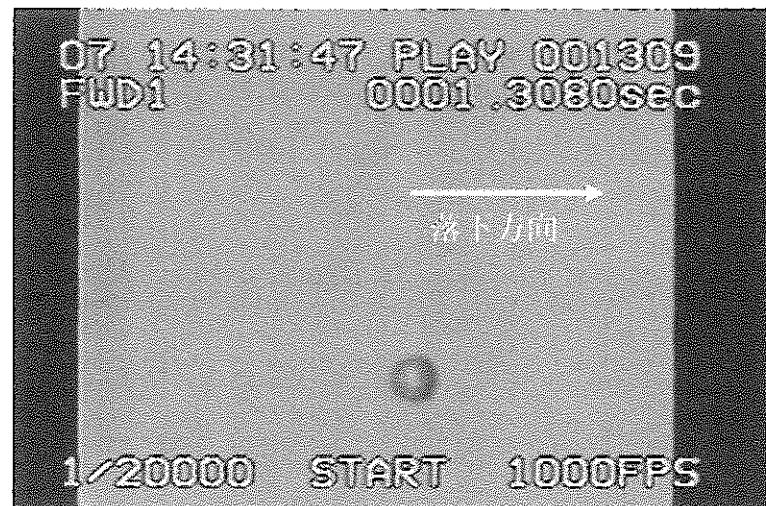


図 2. 1 窒素霧囲気中を約 8m 落下したナトリウム液滴の形状

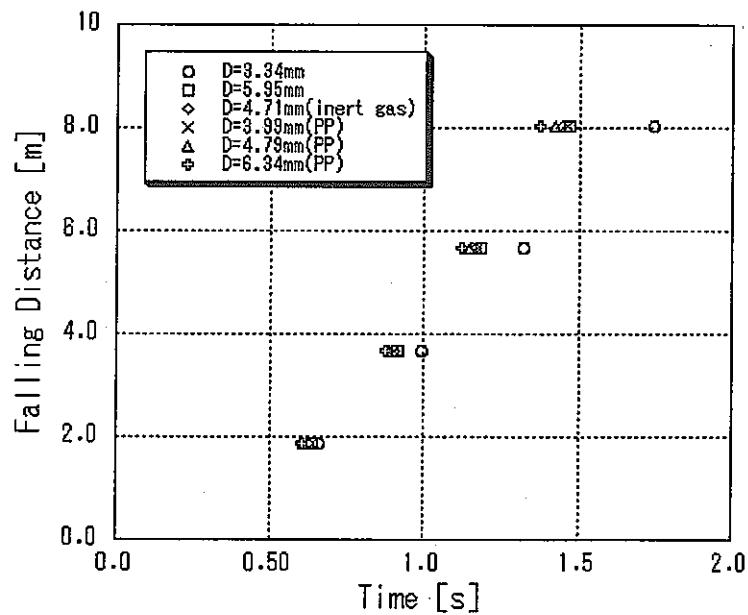


図 2. 2 ナトリウム液滴および PP 球の落下の実験値

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	ウランおよび希土類元素の硫化物の調製及び磁気的な物性に関する共同研究		
研究者所属、氏名			
大学側	東北大学 多元物質科学研究所 佐藤修彰助教授		
機構側	社内公募型研究推進室 佐藤宗一・岩田耕司		
研究実施場所	東北大学 多元物質科学研究所 機構 東海事業所 再処理センター 分析所 1階		
通算研究期間 (予定)	平成 15 年 8 月 ~ 平成 16 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 8 月 ~ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
ウランおよび希土類元素の硫化物との反応性の違いにより、ウラン中に希土類物質のみを析出させる調製方法についての試験を行う。さらに、得られた硫化物試料を用いて磁気分離試験を行い、本手法の成立性についての知見を得る。			
【研究内容（概要）】			
(1) 硫化物の磁性と分離可能性の検討 希土類元素は硫化物やオキシ硫化物等のさまざまな形態を有する。そこで、硫化物を磁気分離・回収するための最も有効な化合物の組み合わせを決定する。			
(2) 選択的な硫化試験 希土類およびウラン酸化物の混合物および、それらの固溶体を出発原料として選択的な硫化試験を行う。			
(3) 磁気分離試験 希土類およびウラン化合物の組み合わせについての磁気分離試験を行う。			
(4) 研究のまとめ 得られた知見をもとに、研究報告書を作成する。			
【使用主要施設】			
東北大学 多元物質科学研究所 RI 使用施設 機構 東海事業所 再処理センター 分析設備			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

(1) 硫化物の磁性と分離可能性の検討

希土類元素は硫化物やオキシ硫化物等のさまざまな形態を有する。そこで、硫化物の磁化率を測定し、磁気分離・回収するための最も有効な化合物の組み合わせを決定した。

(2) 選択的な硫化試験

希土類およびウラン酸化物の混合物および、それらの固溶体を出発原料として選択的な硫化試験を行った。

(3) 磁気分離試験

希土類およびウラン化合物の組み合わせについての磁気分離試験を行った。

(4) 研究のまとめ

得られた知見をもとにして、研究報告書を作成している。

【研究成果（当該年度）】

熱力学的考察

500°Cにおける、酸素—イオウ—希土類・ウランの状態図からウランは硫化せずに酸化物の状態のままで、希土類元素を選択的に硫化するための条件が存在することを熱力学的な考察により見出した。

選択硫化

UO_2 , Eu_2O_3 , Nd_2O_3 の混合粉末を硫化剤の H_2S あるいは CS_2 雰囲気下で 500°C で一時間反応させた試料を X 線回折 (Rigaku Type RAD-IC) により解析したところ、ウランはいずれの場合も硫化されずに UO_2 のまま存在¹⁾ していた。しかし、Eu については EuO_2S , EuS が、Nd については $\text{Nd}_2\text{O}_2\text{S}$, Nd_3S_4 が生成していた。また後者の CS_2 雰囲気下では、ウランは酸化物のままで、Eu や Nd については、より硫化の進んだ Eu_3S_4 や Nd_2S_3 として存在した。

磁化率測定表1 質量磁化率(g^{-1})

物質	質量磁化率
Eu_2O_3	2.4×10^{-5}
$\text{Eu}_2\text{O}_2\text{S}$	3.2×10^{-5}
EuS	15×10^{-5}
Nd_2O_3	2.8×10^{-5}
$\text{Nd}_2\text{O}_2\text{S}$	3.0×10^{-5}
Nd_2S_3	2.8×10^{-5}
Nd_3S_4	2.8×10^{-5}

硫化により得られた化合物の磁化率を振動試料磁力計（東英工業 VSM-5SC-5HF）にて測定したところ、表1に示すように EuS を除いて、質量磁化率はセスキ酸化物と同程度であった。

また、得られた磁化率から算出した有効磁気モーメントと、基底状態状態の f 電子の電子配置から計算した有効磁気モーメントとを比較したところ、Nd については 3 倍で値数の変化は無かった。Eu については EuS はオキシ硫化物は 3 倍であったが、より硫化の進んだ EuS については 2 倍にまで還元されており、EuS については、磁化率が大きくなる事が分かった。²⁾

磁気分離

選択硫化の試験結果から実際の試料を H_2S で硫化した場合に考えられる、(a) UO_2 , Eu_2O_2S , Nd_2O_2S (b) UO_2 , EuS , Nd_2O_2S (c) UO_2 , Eu_2O_2S , Nd_3S_4 (d) UO_2 , EuS , Nd_3S_4 (e) UO_2 , EuS , Nd_2S_3 の混合試料について磁気分離試験を実施した。磁気分離試験では、プラスチック製のイオン交換カラム (I.D. 6 mm ϕ) に SUS430 網 (線径 50 μm) を充填した磁気フィルター (体積充填率 1.5%, 長さ 5 cm) と永久磁石 (NEOMAX 住友特殊金属) 0.5 (T) を用い、懸濁液をフィルター通過後に回収し、再度、磁気フィルターを通過させるバッチ方式とした。磁気分離器を 3 回通過させた流出液中のそれぞれの元素の濃度から、Eu と Nd の濃度を U の濃度で除して U との分離能を算出した結果を表 2 に示す。ここで、分離能の値が 1 の場合には、ウランと挙動が同じであることから、分離がなされなかったといえる。したがって、オキシ硫化物の場合には値が 1 に近く、したがつて分離能は低い結果となった。しかし、より硫化の進んだ物質である、 Nd_3S_4 や Nd_2S_3 , EuS においては良好な分離能を得られることが分かった³⁾。

表2 希土類元素とウランとの分離能

	Eu/U	Nd/U
(a) Eu_2O_2S , Nd_2O_2S	1.52	1.00
(b) EuS , Nd_2O_2S	0.34	0.94
(c) Eu_2O_2S , Nd_3S_4	1.17	0.39
(d) EuS , Nd_3S_4	0.17	0.47
(e) EuS , Nd_2S_3	0.26	0.53
Eu_2O_3 , Nd_2O_3	0.88	1.36

1) N.Sato et.al. : Proc. Korea-Japan Workshop on Nuclear Pyroprocessing (2003)

2) 佐藤宗一他 : 日本原子力学会[2003 年秋の大会]I13

3) 佐藤宗一他 : 日本原子力学会[2004 年春の年会]B4

【成果の反映状況】

現在、機構においては実用化戦略調査研究の一環として、先進再処理技術の調査研究が進められている。本研究の成果は、先進的再処理プロセスのひとつである ORIENT サイクル新分離技術として取り上げられ、その前処理方法として使用するプロセスが WG 報告書¹⁾ 内に提案された。

また、2003 年 10 月に開催された”Korea-Japan workshop on nuclear pyroprocessing”にて報告（共研先、東北大から発表）した²⁾。その後、韓国側からの要望により情報を提供し、（原子力学会および磁気分離に関するワークショップの要旨）さらに、共同研究についても示唆されている。

1) 社内資料、FBR サイクル開発推進部、燃料サイクルシステム Gr. 実用化戦略調査研究 エンジニアリングメモ WG 報告書 FS-FSG-03-001

2) Korea-Japan Work shop on Nuclear Pyroprocessing, NUPYRO 2003 Seoul 2003

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- 1) 佐藤他、再処理工程への磁気分離の適用技術に関する研究(III)
日本原子力学会「2003年秋の大会」 I13
- 2) 佐藤他、再処理工程への磁気分離の適用技術に関する研究(IV)
日本原子力学会「2004年春の年会」 B04
- 3) 佐藤他、硫化物の選択浸出を用いる再処理法の研究 (I)
日本原子力学会「2004年秋の大会」 → 申込み済み
- 4) SATO et.al.: Selective sulfurization of uranium and Rare-earth oxides using H₂S and CS₂
Korea-Japan workshop on Nuclear Pyroprocessing
- 5) SATO et.al.: elective sulfurization and magnetic separation of uranium and Rare-earth oxides mixture
Global Symposium on Recycling, Waste Treatment and Clean Technology (REWAS 04) → 申込み済み

特許

1)選択硫化と部分溶解による再処理法 申請済み

特願 2004-031205

2)選択硫化と磁気分離による再処理方法 申請済み

特願 2004-031314

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	極低酸素ポテンシャル下 LBE 中金属元素等の溶解度特性評価に関する研究		
研究者所属、氏名			
大学側	名古屋大学 エコトピア科学研究機構 環境システム・リサイクル科学研究部門 (元、同大学難処理人工物研究センター) 教授 藤澤敏治、助手 佐野浩行		
機構側	大洗工学センター 要素技術開発部 新材料研究 Gr. GL 青砥紀身 副主研 古川智弘		
研究実施場所	名古屋大学エコトピア科学研究機構 環境システム・リサイクル科学研究部門 機構 大洗工学センター ナトリウム機器構造第 1 試験室		
通算研究期間 (予定)	平成 14 年 1 月 ~ 平成 16 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 8 月 ~ 平成 16 年 3 月
<p>【研究目的】 中小型炉の冷却材やナトリウム冷却炉における 2 次系簡素化を達成する新型蒸気発生器中間熱媒体として鉛ビスマス共晶合金（以下、LBE）の利用が検討されている。これらプラントの成立性を左右する課題のひとつとして LBE 中の高温材料腐食問題が挙げられている。この材料腐食評価を行っていくには、LBE 中における鉄鋼材料の主要金属元素やガス成分の溶解度が基礎データとして必要となる。これまでにロシアの研究機関により鉄鋼材料元素の溶解度データが報告されているが、それは溶解度式のみの提示にとどまっており、データの信頼性について確認できない状況にある。そこで本研究では、LBE 中鉄鋼材料の腐食機構解明に資することを目的に、溶解度特性に影響すると考えられる LBE 中の溶存酸素を除外した純な LBE 中における鉄鋼材料金属元素やガス成分等の溶解度データを取得していくことを目的とした。</p>			
<p>【研究内容（概要）】</p> <p>上記研究目的を達成するために、以下に分類した研究内容について平成 13 年度からの 3 年度の予定で研究を実施する。</p> <ol style="list-style-type: none"> (1) 極低酸素ポテンシャル下 LBE 中の Fe の溶解度特性評価試験 (2) 上記試験における技術課題の整理 (3) 極低酸素ポテンシャル LBE 中鉄鋼材料主要構成元素の溶解度特性評価試験 (4) 極低酸素ポテンシャル下 LBE 中主要添加金属元素の溶解度特性評価試験 (5) 主要元素同士の溶解度特性に及ぼす相互評価確認試験 			
<p>【使用主要施設】</p> <p>名古屋大学エコトピア科学研究機構環境システム・リサイクル科学研究部門 ： 溶解度測定装置、各種材料分析装置 機構 大洗工学センター： 各種材料分析装置</p>			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 13 年度は、鉄-鉄酸化物系の平衡を利用して LBE 中の酸素分圧制御を行い、反応速度の緩慢性が懸念されデータ取得が難しいと考えられる低温度側 (673K) において鉄鋼材料の主構成元素である鉄の溶解度測定を行うとともに、技術課題の整理を行い平成 14 年度以降の本格的な試験に向けた準備を行った。

平成 14 年度は、酸化物平衡法および気相平衡法により、LBE 中の酸素分圧を制御し、1273 K を中心とした高温域で鉄の溶解度測定を行った。また、LBE 中の酸素濃度の分析方法について詳細に検討を行い、酸素分析条件を確立した。その結果、酸化物平衡法においては溶解度データが得られたが、気相平衡法では溶解度データを得るには至らなかった。また、溶解度データが揃い始めた段階であるため、熱力学的に考察することはできなかった。

平成 15 年度は、引き続いて鉄の溶解度測定を進め、得られた結果と既報との比較検討を行った。さらに、Cr および Ni についても溶解度データを取得した。

【研究成果（当該年度）】

1. 酸素の熱力学的特性

1.1.1. 酸素溶解反応における平衡定数及び自己相互作用助係数

以下に CO-CO₂ 制御雰囲気下における LBE への酸素溶解反応及びその平衡定数を示す。



$$K_{(1-1)} = \frac{h_0 \cdot p_{\text{CO}}}{p_{\text{CO}_2}} = f_0 [\text{mass \% O}] \cdot \left(\frac{p_{\text{CO}}}{p_{\text{CO}_2}} \right) \quad (1-2)$$

ここで、 h_0 及び f_0 はそれぞれ酸素の mass% 表示の Henry 基準の活量、活量係数を示す。(1-2)式の両辺の常用対数を取り、 $\log f_0 = e_0^0 \cdot [\text{mass \% O}]$ を代入し整理すると、

$$\log \left[[\text{mass \% O}] \cdot \left(\frac{p_{\text{CO}}}{p_{\text{CO}_2}} \right) \right] = \log K_{(1-1)} - e_0^0 \cdot [\text{mass \% O}] \quad (1-3)$$

と表される。ここで、 e_0^0 は酸素の自己相互作用助係数を示す。

CO-CO₂ 制御雰囲気下における酸素溶解度試験結果について、(1-3)式の左辺を縦軸に、[mass%O] を横軸として示した結果を Fig. 1 に示す。図中のプロットの添え字は $\log p_{\text{O}_2}$ を示す。また、これらの結果をもとに、 $\log K_{(1-1)}$ 及び e_0^0 の温度依存式を以下のように決定した。

$$\log K_{(1-1)} = -\frac{10200(\pm 300)}{(T/\text{K})} + 4.7(\pm 0.3) \quad (1223\text{-}1323 \text{ K}) \quad (1-4)$$

$$e_0^0 = -\frac{5.7(\pm 0.3) \times 10^6}{(T/\text{K})} + 4700(\pm 300) \quad (1223\text{-}1323 \text{ K}) \quad (1-5)$$

1.1.2. 酸素溶解反応の標準自由エネルギー変化

(1-4)式より(1-1)式の反応の標準自由エネルギー変化は以下のように表せる。

$$\Delta G_{(1-1)}^\circ / \text{J} = -R(T/\text{K}) \cdot \ln K_{(1-1)} = 195000(\pm 5000) - 91(\pm 6) \cdot (T/\text{K}) \quad (1223\text{-}1323 \text{ K}) \quad (1-6)$$

また、(1-7)式の反応の標準自由エネルギー変化^[5]は(1-8)式のように報告されている。



$$\Delta G_{(1-7)}^\circ / \text{J} = -283000 - 86 \cdot (T/\text{K}) \quad (298\text{-}3000 \text{ K}) \quad (1-8)$$

これらから、LBE への酸素溶解反応の標準自由エネルギー変化を以下のように決定した。



$$\Delta G_{(1-9)}^\circ / \text{J} = -88000(\pm 5000) - 5(\pm 6) \cdot (T / \text{K}) \quad (1223\text{~}1323 \text{ K}) \quad (1-10)$$

1.1.3. ロシアの文献値との比較

(1-10)式より(1-9)式の反応の平衡定数は以下のように表される。

$$\log K_{(1-9)} = \log \left(\frac{h_0}{p_{\text{O}_2}^{1/2}} \right) = \frac{4600(\pm 300)}{(T / \text{K})} + 0.2(\pm 0.3) \quad (1223\text{~}1323 \text{ K}) \quad (1-11)$$

これを $\log h_0$ について整理し、さらに $\log h_0 = e_0^{\text{O}}[\text{mass \% O}] + \log[\text{mass \% O}]$ を代入し、整理すると以下の式になる。但し、 e_0^{O} については(1-5)式を用いた。

$$\frac{1}{2} \log p_{\text{O}_2} = e_0^{\text{O}}[\text{mass \% O}] + \log[\text{mass \% O}] - \frac{4600(\pm 300)}{(T / \text{K})} - 0.2(\pm 0.3) \quad (1223\text{~}1323 \text{ K}) \quad (1-12)$$

この式より酸素分圧を定めることで、温度と LBE へ溶解する酸素濃度の関係が得られる。

(2-16)式を用いて、種々の酸素分圧における温度と酸素溶解度の関係を求め、Fig. 2 に示す。また、ロシアの研究機関 (IPPE) により報告されている^[7]以下の溶解度式も併せて示す。また、●、▲はそれぞれ酸素分圧 ($\log p_{\text{O}_2} = -11, -13$) における実験結果を表す。

$$\log[\text{mass \% O}] = 1.2 - \frac{3400}{(T / \text{K})} \quad (673\text{~}973 \text{ K}) \quad (1-13)$$

Fig. 2において、酸素分圧を一定に保持したまま温度を下げてゆくと、やがて LBE と平衡する酸化物相が生成する。Fig. 2 の関係はこの酸化物が生成するまでが有効範囲となる。伊藤らは、1173Kにおいて LBE と LBE の溶融酸化物が共存する場合の平衡酸素分圧は、その温度での Pb と PbO, Bi と Bi₂O₃ が共存する場合のそれぞれの平衡酸素分圧の間に位置し、しかも Pb と PbO が共存する側に近い値であると報告している^[9]。さらに、冷却材の使用温度範囲である 673K~973Kにおいては、平衡する酸化物は固体に変わり、さらには Pb と Bi の酸化物の中間化合物が存在することが考えられる。これらのことより、酸化物が生成する平衡酸素分圧を Pb と PbO が共存する場合の平衡酸素分圧にて近似し、点 a~e で示す。冷却材の使用範囲である 673K~973K にて、点 a~c と IPPE の溶解度式を比較すると、本研究結果がかなりの温度外挿をしたにもかかわらず、比較的よく一致している。このことから、IPPE の結果は LBE とその酸化物を平衡させた状態で、LBE 中の酸素濃度を測定したものと推測される。

2. 酸素溶解への鉄の影響

2.1. 実験結果

(1-1)式および(1-2)式の酸素溶解反応及びその平衡定数について、ここでは、酸素と一緒に鉄も溶解するため、(1-2)式内の $\log f_0$ は以下のように表される。

$$\log f_0 = e_0^{\text{O}} \cdot [\text{mass \% O}] + e_0^{\text{Fe}} \cdot [\text{mass \% Fe}] \quad (2-1)$$

したがって、(1-3)式を整理すると以下のようなになる。

$$\log \left[[\text{mass \% O}] \cdot \left(\frac{p_{\text{CO}}}{p_{\text{CO}_2}} \right) \right] - \log K_{(1-1)} + e_0^{\text{O}} \cdot [\text{mass \% O}] = -e_0^{\text{Fe}} \cdot [\text{mass \% Fe}] \quad (2-2)$$

ここで、 e_0^{Fe} は酸素と鉄の間の相互作用助係数を示す。(2-2)式の左辺を縦軸に、[mass%Fe]を横軸とした場合、原点から引いた直線の傾きより e_0^{Fe} が求まる。そこで e_0^{Fe} の温度依存式の算出には、種々の実験条件ごとに e_0^{Fe} を求めて、それらの温度依存式を算出した。算出結果を実験結果とともに Fig.3 に示す。

2.2. ロシア文献値との比較

ロシアの IPPE によって、以下のような鉄の溶解度式が提示されている。

$$\log C_{\text{Fe}} = 2.1 - 4380 \cdot (T^{-1}/\text{K}^{-1}) \quad (673\text{~}1173 \text{ K}) \quad (2-3)$$

今回の実験結果と、IPPE の溶解度式との比較を Fig. 4 に示す。◇は Fe-FeO 平衡、▲は $a_{\text{Fe}}=1$ の条

件下での気相平衡法での実験点を表す。なお、 $\text{FeO}-\text{Fe}_3\text{O}_4$ 平衡の実験点は鉄活量が変化しているため、単純な比較はできないため図には載せなかった。Oxygen Free として示した線は、以下のようにして酸素の影響がない状態での鉄溶解度を算出したものである。

LBE に酸素が全く溶解していない場合には、次式で表される。

$$\log[\% \text{Fe}] - \log a_{\text{Fe}} = \log K_{(3-10)} - e_{\text{Fe}}^{\text{Fe}} [\% \text{Fe}] \quad (2-4)$$

上式において、 $\log K_{(3-10)}$ 、 $e_{\text{Fe}}^{\text{Fe}}$ はこれまでに温度の関数として表されているので、 $a_{\text{Fe}}=1$ を代入すれば、(2-4)式は酸素の影響がない状態での鉄濃度の温度関数として見ることができる。このようにして(2-5)式を得る。

$$\log C_{\text{Fe}} = 10.7(\pm 0.3) - 1.7(\pm 0.1) \times 10^4 \cdot (T^{-1}/\text{K}^{-1}) \quad (873\text{~}1323\text{K}) \quad (2-5)$$

プラント冷却配管の使用温度範囲である 673K~973K にて、酸素影響のない状態での溶解度式を IPPE の溶解度式と比較すると、鉄濃度に大きな差が見られた。また、今回の $\text{Fe}-\text{FeO}$ 平衡での実験結果が比較的 IPPE の溶解度式に近い値を示したため、IPPE の結果は LBE に若干酸素が溶解している状態における実験結果ではないかと考えられる。

2.3. 鉄一酸素系の溶解度曲線の作成

本研究のまとめとして、これまで得られたデータに基づき計算した、 $a_{\text{Fe}}=1$ とした場合における各温度においての鉄一酸素系の溶解度曲線を実験点とともに Fig. 5 に示す。これより、酸素の溶解に伴って鉄の溶解度が上昇し、また温度が低下するに伴い、その相互作用が大きくなっていくことがわかる。

3. 鉄溶解に及ぼす Cr の影響

3.1. 実験結果

平衡到達の確認は、測定温度中で最も低温である、平衡到達まで最も時間がかかると思われる 873K にて調べたところ、21.6ks(6h)、43.2ks(12h)の鉄濃度・クロム濃度がほぼ変化が見られなかった。このことから、いずれの温度においても 43.2ks(12h)にて平衡に達しているとし、溶解度とした。Fig. 6 に縦軸に鉄溶解度、横軸にクロム溶解度をとり実験結果をプロットした図を示す。鉄溶解度・クロム溶解度ともに温度の上昇に伴って増加していく傾向が見られた。

3.2. 考察

3.2.1. Fe-Cr 合金中の鉄活量の計算

Fe-Cr 合金堆積に LBE を溶解させた場合においては、これまでの鉄堆積を用いた実験とは異なり、鉄活量は 1 ではなくなるため、計算によって求める必要性がある。

ここでは、既知である 1873K での Fe-Cr 合金の $\Delta \bar{H}_i$ 、 $\Delta \bar{S}_i^{ss}$ [8] から

$$\Delta \bar{G}_i^{ss} = \Delta \bar{H}_i - T \Delta \bar{S}_i^{ss} = RT \ln \gamma_i \quad (3-1)$$

$$a_i = \gamma_i X_i \quad (3-2)$$

の 2 式を用い、今回実験を行った温度について活量 a_{Cr} 、 a_{Fe} を計算し、これらの計算点から近似直線の関係式を導出し、今回使用した Fe-Cr 合金堆積の Cr モル分率 0.17、Fe モル分率 0.83 を代入することにより、Fe-Cr 合金堆積中の Cr 活量、Fe 活量を得た。計算結果を以下に示す。

$$a_{\text{Cr}} = 0.24 \quad a_{\text{Fe}} = 0.84 \quad (873\text{K}) \quad (3-3)$$

$$a_{\text{Cr}} = 0.21 \quad a_{\text{Fe}} = 0.86 \quad (1073\text{K}) \quad (3-4)$$

$$a_{\text{Cr}} = 0.20 \quad a_{\text{Fe}} = 0.83 \quad (1273\text{K}) \quad (3-5)$$

3.2.2. Cr との相互作用の検討

前述より、LBE 中へ鉄が溶解する反応式とその平衡定数は、それぞれ以下の(3-10)式、(3-11)式のように表せる。

$$\text{Fe}(\alpha, \gamma) = \text{Fe} \text{ (in LBE)} \quad (3-10)$$

$$K_{(3-10)} = \frac{h_{\text{Fe}}}{a_{\text{Fe}}} = \frac{f_{\text{Fe}} [\% \text{Fe}]}{a_{\text{Fe}}} \quad (3-11)$$

(3-11)式の両辺に対数をとり、ステンレス鋼を用いた実験条件のため Cr の溶解を考慮し、 $\log f_{\text{Fe}} = e_{\text{Fe}}^{\text{Fe}} [\% \text{Fe}] + e_{\text{Fe}}^{\text{O}} [\% \text{Cr}] + e_{\text{Fe}}^{\text{Cr}} [\% \text{Cr}]$ を代入し整理すると、以下の(3-12)式のように変形でき

る。

$$\text{Log}K_{(3-5)} = e_{\text{Fe}}^{\text{Fe}} [\% \text{Fe}] + e_{\text{Fe}}^{\text{O}} [\% \text{O}] + e_{\text{Fe}}^{\text{Cr}} [\% \text{Cr}] + \log[\% \text{Fe}] - \log a_{\text{Fe}} \quad (3-12)$$

これより、各温度における $e_{\text{Fe}}^{\text{Cr}}$ を算出し、温度依存式作成すると次式のとおりとなる。

$$e_{\text{Fe}}^{\text{Cr}} = -1.5(\pm 0.1) \times 10^4 \cdot (T^{-1}/\text{K}^{-1}) + 11.3(\pm 0.2) \quad (873 \sim 1273 \text{K}) \quad (3-13)$$

これより、測定温度域では $e_{\text{Fe}}^{\text{Cr}}$ は負の値をとっており、Cr の溶解に伴って鉄の溶解度が上昇し、また温度が低下するに伴い、その相互作用が大きくなる。

4. LBE への Ni の溶解度測定

4.1. 実験結果

平衡到達の確認は、測定温度中で最も低温である、平衡到達まで最も時間がかかると思われる 873Kにおいて、43.2ks(12h)と 86.4ks(24h)では Ni 濃度の変化はほぼ見られなかった。このことから、いずれの温度においても保持時間を 86.4ks(24h)とし、得られた値を溶解度とした。Fig. 7 に LBE 中の Ni 溶解度と温度の関係を示す。これより LBE 中の Ni 溶解度の温度依存式を以下のように決定した。

$$\log(C_{\text{Ni}} / \text{mass \%}) = 1.51 - \frac{1080}{(T / \text{K})} \quad (5-1)$$

5. おわりに

高速増殖炉の冷却材として候補となっている LBE について、極低酸素ポテンシャル下における主要金属元素等の溶解度特性評価の基礎研究として、LBE の鉄溶解度測定ならびに Cr 溶解度、Ni 溶解度測定を行い、以下の知見を得た。

① LBE 中における酸素の熱力学的特性について、酸素溶解反応の標準自由エネルギー変化及び酸素の自己相互作用助係数として以下の式を得た。

$$\frac{1}{2} \text{O}_2(\text{g}) = \text{O} \text{ (in LBE)}$$

$$\Delta G^\circ / \text{J} = -88000(\pm 5000) - 5(\pm 6) \cdot (T/\text{K})$$

$$e_{\text{O}}^0 = -5.7(\pm 0.3) \times 10^6 \cdot (T^{-1}/\text{K}^{-1}) + 4700(\pm 100) \quad (1223 \sim 1323 \text{ K})$$

② LBE 中における鉄の溶解反応の標準自由エネルギー変化、鉄に対する酸素の相互作用助係数、鉄の自己相互作用助係数として次式を得た。

$$\text{Fe}(\alpha, \gamma) = \text{Fe} \text{ (in LBE)}$$

$$\Delta G^\circ / \text{J} = -200(\pm 10) \cdot (T/\text{K}) + 3.3(\pm 0.1) \times 10^5 \quad (873 \sim 1323 \text{ K})$$

$$e_{\text{Fe}}^{\text{O}} = -1.1(\pm 0.1) \times 10^7 \cdot (T^{-1}/\text{K}^{-1}) + 8700(\pm 100) \quad (873 \sim 1323 \text{ K})$$

$$e_{\text{Fe}}^{\text{Fe}} = -7.6(\pm 0.5) \times 10^4 \cdot (T^{-1}/\text{K}^{-1}) + 44.1(\pm 0.5) \quad (873 \sim 1323 \text{ K})$$

③ これらの算出したデータから鉄-酸素の溶解度曲線を作成し、鉄と酸素の相互溶解特性を明らかにした。本系は各元素間の相互作用が非常に大きく、これらを無視することはできない。

④ 溶融 LBE 中の Fe-Cr 間の相互作用助係数として次式を得た。

$$e_{\text{Fe}}^{\text{Cr}} = -1.5(\pm 0.1) \times 10^4 \cdot (T^{-1}/\text{K}^{-1}) + 11.3(\pm 0.2) \quad (873 \sim 1273 \text{ K})$$

⑤ LBE 中における極低酸素分圧下での Ni 溶解度の温度依存式として次式を得た。

$$\log C_{\text{Ni}} = 1.51 - 1080 \cdot (T^{-1}/\text{K}^{-1}) \quad (873 \sim 1273 \text{ K})$$

参考文献

- [1] OECD: NEA, IAEA URANIUM 2001, (2001).
- [2] 大蔵省印刷局: 原子力安全白書(平成 7 年度版),(1995).
- [3] H.Sano, T.Fujisawa : JFY2001 Joint Research Report, JNC TY9400 2002-005
- [4] H.Okamoto,:J.Phase Equilibria, 15(3), (1994), 361-362 日本金属学会編: 金属物理化学, 丸善, (2000)
- [5] 伊藤聰, 川名俊行 : 資源と素材, D3-6, (2002), 337-338
- [6] B. F. Gromov et al.: The Problems of Technology of the Heavy Liquid Metal Coolants (Lead-Bismuth, Lead)(1998).
- [7] Haltgren et al.: Selected Values of the Thermodynamic Properties of Binary alloys (1981),700.

【成果の反映状況】

当初計画に達したことから、平成 15 年度をもって本共同研究を終了する。なお、本研究で得られた研究成果は、鉛ビスマス冷却炉における材料腐食研究ならびに鉛ビスマス中酸素濃度制御技術開発研究に反映されている。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- (1) 佐野浩行, 藤澤敏治, “極低酸素ポテンシャル下 LBE 中金属元素等の溶解度特性評価に関する研究－平成 13 年度共同研究成果報告書－”, 核燃料サイクル開発機構研究成果報告書 JNC TY9400 2002-005, 2002 年 3 月
- (2) 佐野浩行, 藤澤敏治, 古川智弘, 青砥紀身 “極低酸素ポテンシャル下 LBE 中金属元素等の溶解度特性評価に関する研究－平成 14 年度共同研究成果報告書－”, 核燃料サイクル開発機構研究成果報告書 JNC TY9400 2003-002, 2003 年 3 月
- (3) 佐野浩行, 藤澤敏治, 古川智弘, 青砥紀身 “極低酸素ポテンシャル下 LBE 中金属元素等の溶解度特性評価に関する研究－平成 15 年度共同研究成果報告書－”, 核燃料サイクル開発機構研究成果報告書 (登録手続き中), 2004 年 3 月
- (4) 内藤崇、佐野浩行、藤澤敏治、古川智弘、青砥紀身、“酸化物平衡法による LBE 中の鉄溶解度測定”、日本原子力学会 203 年秋の大会予稿集 (静岡大学), 2003 年 9 月

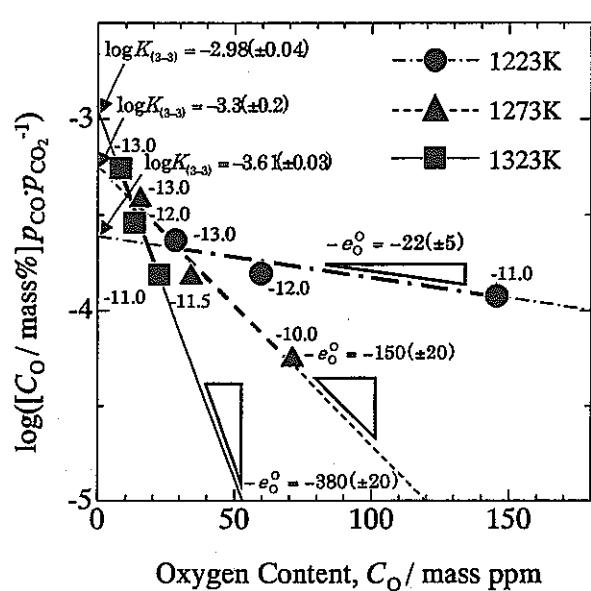


Fig.1 Relation between $\log([C_O / \text{mass\%}] p_{CO} p_{CO_2}^{-1})$ and oxygen content in LBE.

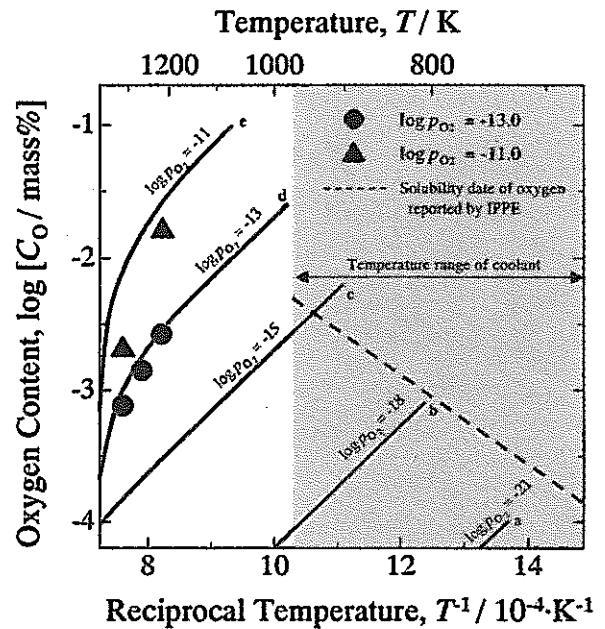


Fig.2 Experimental date and solubility reported by IPPE.

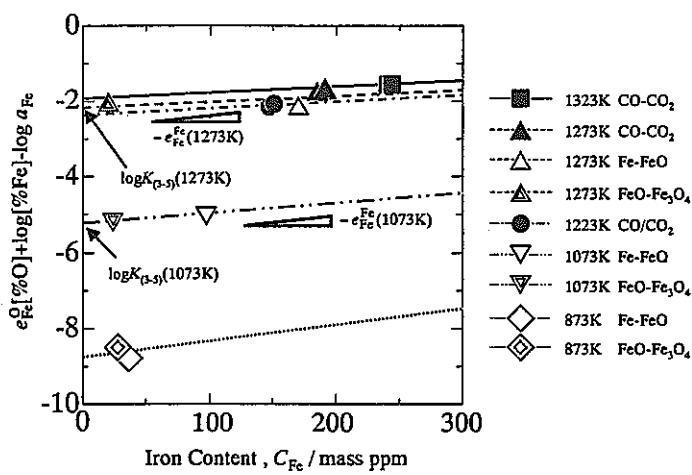


Fig.3 Relation between $e_{Fe}^0 [\%O] + \log[\%Fe] - \log a_{Fe}$ and Iron Content.

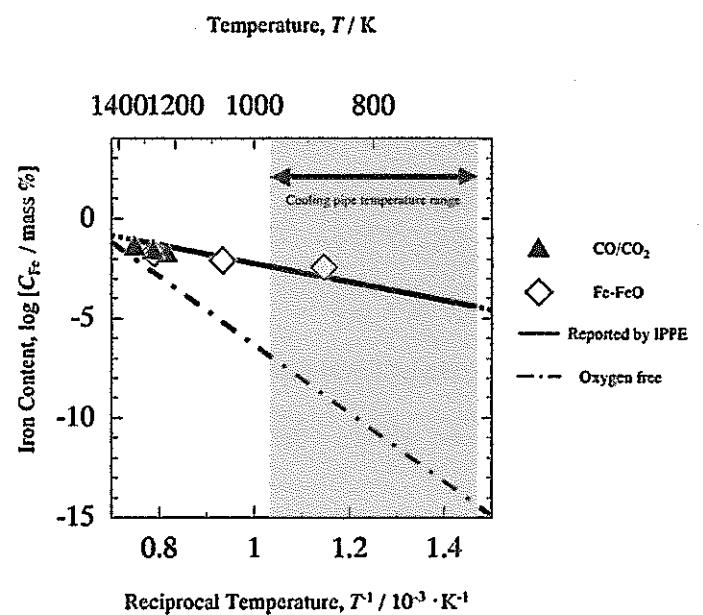


Fig.4 Experimental data and solubility reported by IPPE

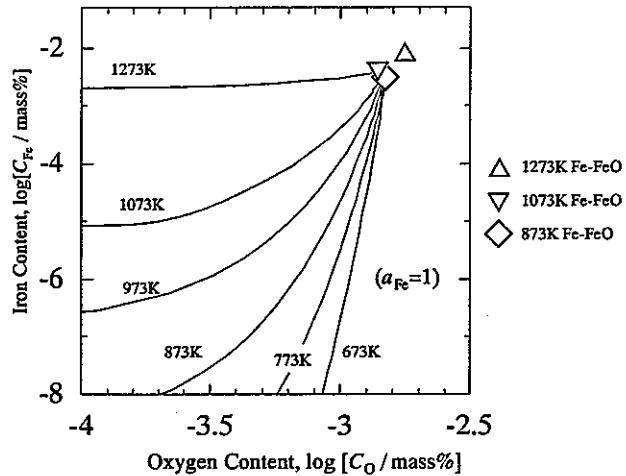


Fig.5 Effect of oxygen content on the iron solubility.

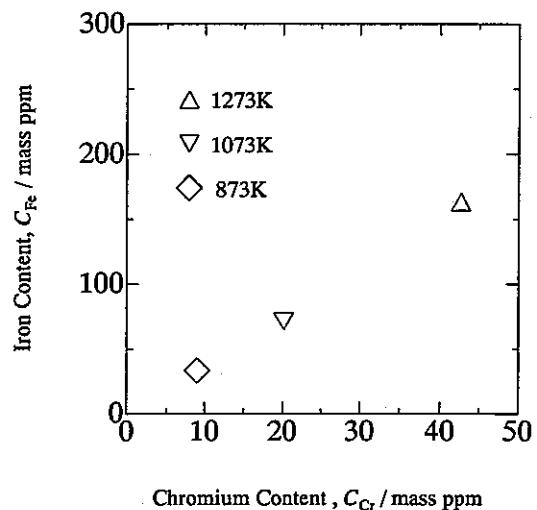


Fig.6 Relationship between chromium content and iron content in LBE.

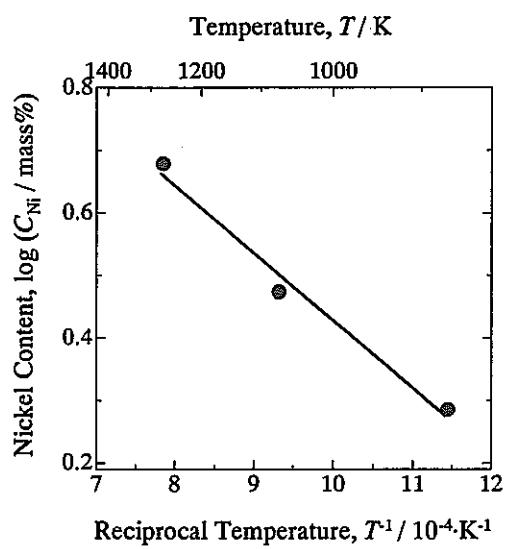


Fig.7 Relation between nickel content and temperature.

大学等との共同研究に関する平成15年度研究概要報告書

研究テーマ	ガス巻込み現象詳細実験：渦生成機構に関する研究		
研究者所属、氏名			
大学側	名古屋大学 工学研究科 エネルギー理工学専攻 助教授 辻 義之		
機構側	大洗工学センター 要素技術開発部 新技術開発試験グループ 上出 英樹		
研究実施場所	名古屋大学：大学院工学研究科エネルギー理工学専攻 工学部6号館 機構：大洗工学センター ナトリウム流動伝熱試験室		
通算研究期間 (予定)	平成15年8月～ 平成18年3月	当該年度 研究期間	平成15年8月～ 平成16年3月
【研究目的】			
<p>高速炉の実用化概念として、経済性の向上のために原子炉容器をコンパクト化した炉型が検討されている。コンパクト化された原子炉容器では冷却材流速が増大することから、自由界面からのガスの巻込みの判定は、設計成立性の観点から重要な評価項目となっている。設計で遵守すべきガス巻込みの判断基準を策定することを目的に大学との共同研究を実施する。</p> <p>本研究では、ガス巻き込み発生に大きく影響するくぼみ渦について、現象を生成、発達（成長、減衰）、気泡の巻き込みの段階に分け、特に渦の生成段階について、実験研究を実施する。これにより、ガス巻込み現象の解明、及びガス巻込み判定手法策定に必要なデータを取得する。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>本研究は平成15年度から3年間の計画で実施する。ガス巻き込み現象は自由液面近傍に循環（渦）が発達するとともにその下方に下降流が存在するとき、くぼみを伴った渦が形成され、渦と下降流の相互作用の中で渦が発達し、くぼみの先端で気泡が液中に離脱すると考えられている。本研究では、このようなガス巻き込み現象の中で、渦の生成について、ミクロな渦からマクロな渦への遷移などその機構を明らかにするものである。これまでの他の研究では、定常的な渦（安定な層流渦）を強制的に作り、循環や下降流速の強さをパラメータとして気泡の離脱条件を把握することが行われてきた。しかし渦そのものがどのような流れから発生するのかなど生成機構については全く未検討である。本研究では、ミクロな渦からマクロな渦への遷移など生成機構の側面から新しい知見を得ようとするものである。</p> <p>水を作動流体とし、渦と下降流を生成できる試験装置を作成する。解析評価することを考え、できるだけシンプルな体系とする。レーザーと液面での屈折を利用した液面勾配の計測など最新の計測手法を適用し、自由表面での変動、渦生成にかかる種々の計測を試みる。これにより境界条件が渦の生成に及ぼす影響について知見を得る。</p>			
【使用主要施設】			
名古屋大学 大学院工学研究科 エネルギー理工学専攻 工学部6号館内 水流動試験装置			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 15 年度は、実験装置の製作と測定系の整備おこなった。また、界面傾斜角の瞬時変化からくぼみ渦を検出する基準を提案し、渦生成に関わる界面傾斜角の検出を実際におこなった。分布関数から渦形状を再構成する方法についての考察をおこなった。具体的な成果については下記を参照。

【研究成果（当該年度）】

本年度は、実験装置の製作と測定体系を整えることをおこなった。図 1 に装置概要を示す。水路の全長は 1480[mm]、幅 100[mm]である。水路を流れる水はポンプで循環させており、水路に流入する前に整流器を通すことにより主流の乱れを減衰させ層流にしている。構造物として、直径 80[mm]の円柱を流路幅が最小で 40[mm]になるように中心からずらして設置した。界面傾斜角の測定は、これまでに研究開発してきた、レーザーと位置検出素子（P S D）を用い、屈折の法則に基づき算出した。レーザーと P S D 素子の相対的な位置がずれないようにするため、両者を一体化して水路上を 2 次元的に移動できるようにした。レーザー光の直径は 0.2[mm]、P S D の有効受光面サイズは 22×22 [mm]、位置分解能は 12 [μm]である。応答時間は信号処理回路によって 33[kHz]に制約される。

実験は円柱直径と断面平均流速に基づくレイノルズ数を $Re=3951,3395,2838,2281,1725$ の 5 条件とした。計測される界面傾斜角の時系列データからスペクトル、確率密度関数などの統計量を計算した。しかし、後流に形成されるくぼみ渦はバックグラウンドの乱流変動に埋もれていまい、定量的な議論をすることができなかった。そこで、くぼみ渦の検出方法について考察した。

界面傾斜角は、流れ方向 θ_x とそれに垂直方向 θ_y の二成分が計測可能である。その情報からのくぼみ渦検出基準について簡単な渦モデルに基づく議論をおこなった。スポット上を渦が通過したとき、流れ方向界面は一旦下がりそしてまた上昇するので、 θ_x は渦中心で符号が反転する。垂直方向には界面傾斜角度の方向は一定で中心に近づくにつれ大きくなるので、 θ_y は渦中心付近で極大値をとる。つまり、傾斜角 θ_x の符号が反転し、かつその位置で θ_y が極値をとる場合に渦が通過したことになる。この検出基準を計測データに適用して渦の検出をおこなった。データ処理の過程で、バックグラウンドの細かな界面の揺らぎをローパスファイルで除去すること、明確な渦構造を確定するための敷居値が必要となることがわかった。本手法により実際に検出された渦の時間位置は、直接計測された傾斜角度データの変化をよくとらえていることを各実験条件により確認した。

このようにして抽出されたくぼみ渦による傾斜角の変動を検出時間位置を中心にアンサンブル平均し、渦の界面傾斜角の集合平均をもとめた。これは、平均的にみたくぼみ渦の傾斜角の変化に対応する。 θ_y が正の値と負の値でキャンセルされるのを防ぐため、 $\theta_x=0$ のとき $\theta_y>0$ と $\theta_y<0$ の場合の 2 通りにわけた。図 2 は $Re=3951$ 、流路中心軸上の $X=0,65,140[\text{mm}]$ における集合平均波形である。 X は円柱からの距離を表す。円柱後流に放出されたくぼみ渦は、およそ円柱直径と同程度までの $X=65[\text{mm}]$ の区間は成長し、その後減衰する。この傾向はレイノルズ数を変えてても同様であり、くぼみ渦が成長するのは、構造物近くに限られると考えられる。傾斜角の最大値は約 3 度であり、流れ方向の角度が垂直方向の角度よりも大きくなっている。これは、くぼみ渦の形状が完全な軸対称ではなく、流れ方向に傾いた形状をしているためであり、乱流場と相互作用するくぼみ渦の 1 つの特徴と考えられる。

界面傾斜角の計測データに基づき、くぼみ渦の界面形状を再構成する方法について考察した。円柱後流に生成されるくぼみ渦は、常に一定の形状ではなく乱流場の影響を受けてランダムに揺らいでいるものと考えられる。そこで、くぼみ渦に起因する傾斜角度の分布関数を計測データから計算した。図3はその一例である。渦の成長の度合いとレイノルズ数により、この分布関数は特徴的な形状を示す。

流路中心軸上の測定では、くぼみ渦がP S D光スポットの位置を一様に等確率で通過すること、また渦形状が軸対称であることを仮定することにより、界面傾斜角の分布関数とくぼみ渦形状との関係式を導出した。円筒座標系において、くぼみ渦の半径位置 $r_1 < r < r_2$ におけるその形状を、 A 、 n を未知数として $s = A \cdot r^n$ と近似する。このとき傾斜角の分布関数は一意的に以下のようになる。

$$\log P(\theta_y) = C \cdot \log \frac{1}{n(n-1)A} - \frac{2-n}{n-1} \log(nA) + \frac{2-n}{n-1} \log \theta_y$$

そこで、実測された傾斜角の分布関数（図3）から A 、 n が定まり、界面形状 $s = A \cdot r^n$ を定めることができる。半径位置 $r_1 < r < r_2$ を、十分に短く取りながら順次かえていくことにより、くぼみ渦の全体像を再構成できる。本手法により再構成されたくぼみ渦の形状を図4に示した。従来から報告されている渦の特徴をよく再現していることがわかる。

以上の結果から、界面傾斜角の時間的変化を調べることは、くぼみ渦を検出する上で有用な物理量であることがわかる。本研究により提示された渦の検出基準と形状の再構成法によりくぼみ渦形状を定量的に評価できる可能性を示した。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成16年度は、構造物後流に生成したくぼみ渦が、乱流との相互作用によりどのように成長していくのかを界面傾斜角の変化から定量的に特徴づける点、従来から提案されている渦モデルに基づき、界面傾斜角と他の物理量（循環と下降流速）との関連を明らかにする点を目標に研究を進める。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- 1) 小畠貴則、藤井和芳、辻 義之、久木田豊、他、「構造物後流にできる乱流渦とガス巻き込みに関する実験的研究」、日本原子力学会中部支部講演会（2003）,R34

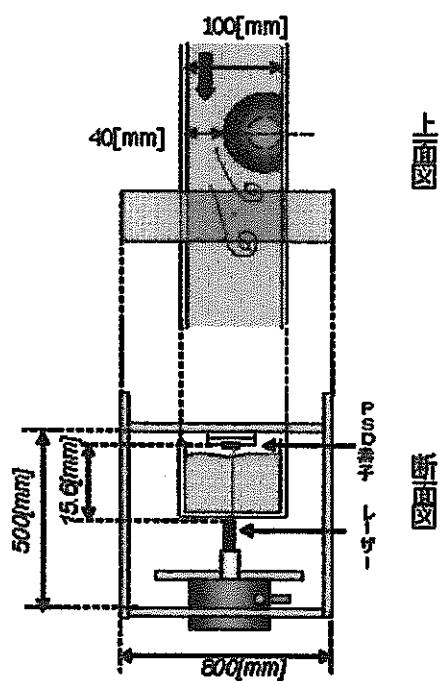


図 1 実験装置概要

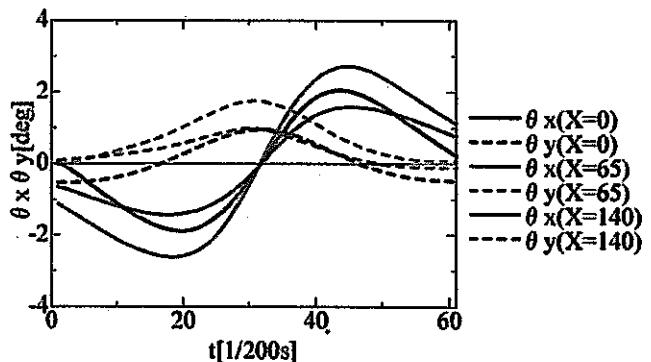


図 2 界面傾斜角の集合平均波形

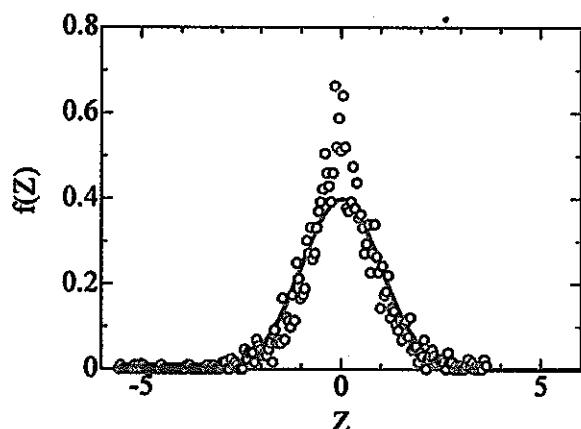


図 3 界面傾斜角の分布関数

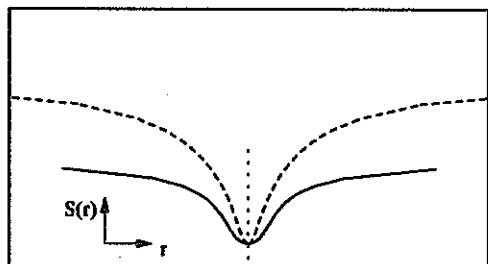


図 4 再構成されたくぼみ渦形状

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	粒子充填挙動と粒子物性に関する基礎研究		
研究者所属、氏名			
大学 側	兵庫県立姫路工業大学 大学院 工学研究科 機械系工学専攻 生産プロセス工学部門 粉粒体工学研究室 教授 廣田満昭、助教授 鈴木道隆		
機 構 側	東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 プラトニウム燃料開発 Gr 木原 義之、鈴木 政浩、石井 克典		
研究実施場所	兵庫県立姫路工業大学 大学院 工学研究科 機械系工学専攻 生産プロセス工学部門 粉粒体工学研究室 機構 東海事業所 環境保全・研究開発センター 乾式プロセス・材料試験棟		
通産研究期間 (予定)	平成 15 年 9 月～ 平成 17 年 3 月	当 該 年 度 研 究 期 間	平成 15 年 9 月～ 平成 16 年 3 月
【研究目的】 核燃料サイクルの燃料製造分野において、経済性向上に加え、環境負荷低減及び核不拡散性向上の観点より、振動充填燃料が注目されている。高品質の振動充填燃料ピンを製造するには、上流側工程である燃料粒子製造工程から受け入れることができる燃料粒子の物性値の範囲を定める必要があり、この範囲を定めるには燃料粒子の各種物性値と振動充填挙動との関係を明らかにする必要がある。 また振動充填挙動の予測式として現在 Ayer の式が用いられているが、これは球状粒子のみに適用可能であり、粒子形状が球状から大きく外れる場合や粒子表面が粗れた場合に最高到達充填率が低下したり、粒子の比重や材質の違いにより充填挙動が変化したりする現象を説明することができず、燃料粒子の各種物性値も考慮に入れた充填挙動予測式の整備が必要である。 本研究では燃料粒子の粒子物性のうち、粒度分布、粒子の形状、表面粗さ、硬度等に着目し、粒子物性が振動充填挙動に影響を与えるメカニズムの解明を進めるとともに充填挙動予測式の整備を進め、その結果を基にウラン粒子や MOX 粒子への適用性を検討する。			
【研究内容（概要）】 (1) 平成 15 年度 ①模擬粒子の粒子形状と表面粗さに関連したデータを得るために、顕微鏡による粒度分布測定及び粒子形状の観察、真円度の測定等を実施した。 ②各種模擬粒子を用いて振動充填試験を実施し、最高到達充填率した。 ③上記①及び②で得られたデータから、粒子物性と振動充填挙動（充填率）の関係を評価した。			
【使用主要施設】 小型加振機			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 15 年度は振動充填をさまざまな条件下で実施し、高充填率を得ることのできる振動条件や粒子物性を検討した。振動条件については振動周波数、加速度や重りの影響について、粒子物性については粒子径、粒子形状について着目し、粒子充填率が 80% から 85% を達成できる条件を明確にするための実験と Ayer の式による計算結果の両面から実施した。

【研究成果（当該年度）】

平成 15 年度に実施した実験ならびに計算から次のような研究成果を得た。

- 1) 振動周波数が振動充填挙動に与える影響はごくわずかであり、加速度の影響も 10G 以下では加速度の増加とともに充填率が増加するが、10G 以上であれば加速度の影響はほとんどないことがわかる。
- 2) 粒子形状については、球形から極端に外れる真円度が 0.9 以下の不定形などの形状であれば充填率の低下に繋がるが、それ以上であれば高密度充填できることがわかった。また、球形度が 0.9 程度の粒子の中には球形粒子よりも充填率が高くなるものもあり、今後さらなる検討が必要である。
- 3) 粒子径が 0.1mm 以下と小さな場合には粒子間付着力が影響を与えるために粒子密度の増加につれて充填率はわずかに増加するが、粒子径が大きな場合には粒子密度が充填率に与える影響は少なく、密度の小さな粒子の実験結果を高密度の燃料粒子に適用できると思われる。
- 4) 大小 2 成分粒子混合充填の場合、大粒子の粒子径ならびに大小粒子の粒子径比が充填率に与える影響は大きく、最密な充填条件を与える粒子径比と混合分率が存在する。
- 5) 軽量の荷重を加えることで、充填率向上の効果は期待できないものの、燃料棒製造工程での粒子充填時間が短縮できる。

以上の結果から、最も充填率に影響を与える要因は粒子径と粒子形状と 2 成分充填時は混合粒子径比であることがわかった。また、連続投入法により粒径比約 0.045 倍の大小 2 成分粒子充填の場合に充填率 85% を達成することができた。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 16 年度は以下の 3 つの課題を実施する予定である。

1. 粒子形状の影響も含めた 2 成分粒子充填時の空間率推定プログラムの作成

鈴木らの 2 成分粒子充填の空間率推定プログラム CALVOID2 に真円度などの粒子形状パラメーターを取り込み、粒子形状も含めた空間率推定プログラムを検討する。

2. 粒子の充填性に及ぼす粒子形状の影響の定式化

1) プログラム作成のためには粒子形状の影響を定式化する必要がある。このために真円度 0.8 近傍と 1.0 近傍とをつなぐ 0.9 前後の粒子を使って充填実験を行うとともに、形状を表す指標として真円度が適切なかどうかを検討する。

2) 充填率の粒子径依存性が粒子形状によって異なる(丸歪と角歪の $300 \mu\text{m}$ 粒子の充填率が大きく異なる)原因を解明する。2 次元投影画像だけでなく、X 線マイクロ CT による画像解析などにより 3 次元的な粒子形状測定し、粒子径によって形状が異なっているのかどうかを検討する。

3) 粒子の硬度や粒子表面の凹凸状態が流動性や充填挙動に与える影響を調べる。

AFM を使って粒子表面の微細な凹凸状態を観察、定量化する。

3. 粒子の充填性に及ぼす粒子形状以外の影響の定式化

1) 不定形微小粒子の充填挙動に対する粒子密度の影響

粒子径が大きく自重で充填される場合には粒子密度は充填性に大きな影響を与えないが、微粒子の場合には付着力が大きく、粉体の流動性は粒子密度によって異なるとの知見がある。したがって密度の異なる $\text{HfO}_2(8.94\text{g/cc})$ 、 $\text{CeO}_2(7.04\text{g/cc})$ 、 $\text{ZrO}_2(5.78\text{g/cc})$ 等の粉碎粒子を用いた基礎的な実験、もしくは理論研究・解析評価を行う。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

1) 粒子充填挙動と粒子物性に関する基礎研究（平成 15 年度共同研究報告書）（登録手続き中）

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	高出力ミリ波セラミック焼結法による制御棒材の改良と長寿命化（その2）		
研究者所属、氏名			
大学側	福井大学遠赤外領域開発研究センター 教授 出原敏孝, 助教授 光藤誠太郎, 大学院生（博士後期課程） 星月久昇 福井大学工学部超低温物性実験施設 助教授 小川 勇		
機構側	敦賀本部 国際技術センター 炉心技術開発 Gr. GL 西 裕士, 石橋淳一, 北野彰洋		
研究実施場所	福井大学 遠赤外領域開発研究センター 機構 敦賀本部 国際技術センター研究棟	当該年度 研究期間	平成 15 年 11 月 ~ 平成 16 年 3 月
通算研究期間 (予定)	平成 15 年 11 月 ~ 平成 18 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 11 月 ~ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
<p>制御棒材を形成する B_4C ペレットは、高温・中性子照射等過酷な条件下におかれため、照射損傷・変形が生じ、これが制御棒寿命の制限因子になっている。現在、制御棒長寿命化のためにシュラウド管を用いたペレットの固定化が研究されつつある。しかし、別の観点から、B_4C ペレット自体の改良による長寿命化の方策を探ることも重要であり、シュラウド管を用いずに長寿命化が達成できれば構造が簡素化されて有益である。本研究では、新たな高出力ミリ波セラミック焼結法の技術を応用して、B_4C ペレットの高密度化・高強度化を達成し、シュラウド管無しでの制御棒長寿命化を目指す。高出力ミリ波セラミック焼結法とは、ジャイロトロン光源を用いた遠赤外高出力新技術の一つであり、従来法より短時間で高密度・高強度・緻密な構造をもつセラミックを焼結することができる画期的な方法である。本研究では、B_4C 粉末からの高出力ミリ波セラミック焼結により、最適条件下で 4 ~ 5 倍程度の寿命延長を達成することを最終目標とする。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>1) 「もんじゅ」の制御棒に用いられている現状の B_4C ペレットに高出力ミリ波照射を行い、ペレット表面の改質を促して高強度化することにより、ペレットの高温、中性子照射による損傷、変形を抑制する。</p> <p>2) B_4C 粉末を高出力ミリ波によって焼結することにより、高密度・高強度・緻密構造をもつ B_4C ペレットを焼結する。焼結の諸条件(ミリ波パワー、焼結速度、加圧条件、等)の最適化を図り、制御棒の長寿命化を達成する。</p>			
【使用主要施設】			
福井大学遠赤外領域開発研究 センタープロジェクト実験室内 24GHz ジャイロトロンセラミックス焼結装置			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 15 年度は、

- 1) B_4C ペレットの 2200°Cまでの、超高温焼結を実現するため、電磁波焼結装置に放射熱温度計を設置し 2300°Cまでの測温及び温度制御を可能にした。
- 2) 超高温焼結に耐える保温材の選定を行い、その配置を最適化することにより 2200°Cまでの昇温を可能とした。
- 3) B_4C ペレットの焼結温度と緻密化の関係を 2200°Cまで調べた。
- 4) また SEM により B_4C ペレットの組織の観察を行い、焼結温度と焼結の状態の関連を調べた。

【研究成果（当該年度）】

B_4C セラミックスの焼結には 2000°Cを超える高温が必要である。一般的な焼結においては、保温性が高く、電磁波の吸収量の小さい、アルミナファイバーボードを焼結体の保温のために使用しているが、このボードの耐熱温度は最高で 1800°Cである。そのため、2000°C以上に加熱が必要な B_4C 試料を直接取り囲むことが出来ない。そこで、アルミナファイバーボードと試料の間に融点が 2200°C と高温で電磁波の吸収の小さい BN パウダー（窒化硼素パウダー）を入れた。また、BN 成形体ケース（窒化硼素成形体）に試料を入れて焼結を行なうことにより、試料の周りの粉末による熱伝導むらを防ぐ構造を用いた。また、これには、焼結中に試料から発生するガスを抑制する働きもある。アルミナファイバーボードについても大きさや厚さの最適化を行い、内径を $\phi 9\text{cm}$ 、厚さを 1cm をとした。この保温材の最適化により、2200°C付近まではアルミナファイバーボードの内壁が耐熱温度を超えて溶けることがなく昇温できることを確認した。図 1 に最適化した保温材の配置を示す。また、図 2 に 2200 °C 度まで昇温した時の典型的な昇温過程を示す。また 2000 °C以上の測温を可能にするために放射熱温度計を設置した。図 3 に最高焼結温度と試料の相対

Thermal insulation

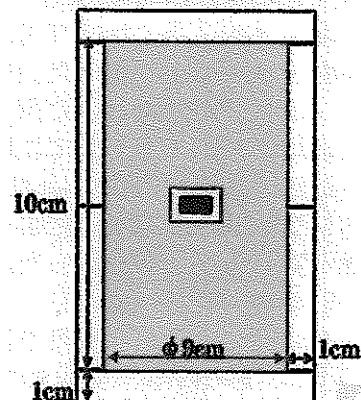


図 1 保温材の最適配置

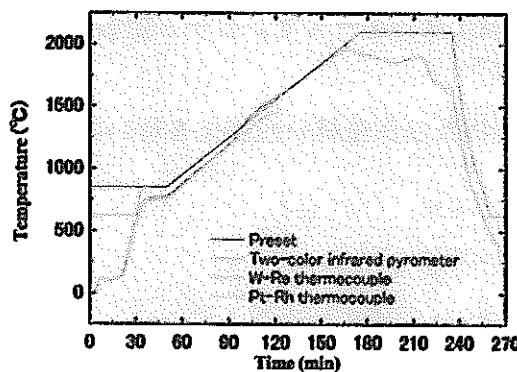


図 2 典型的な昇温過程

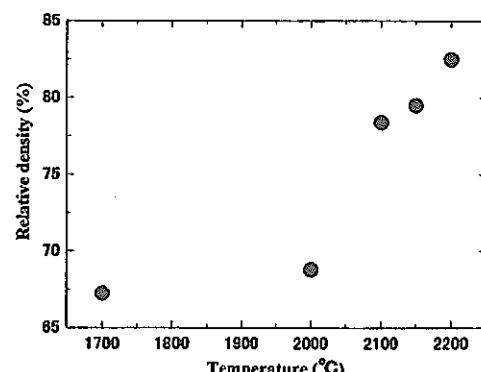


図 3 焼結温度と相対密度の関係

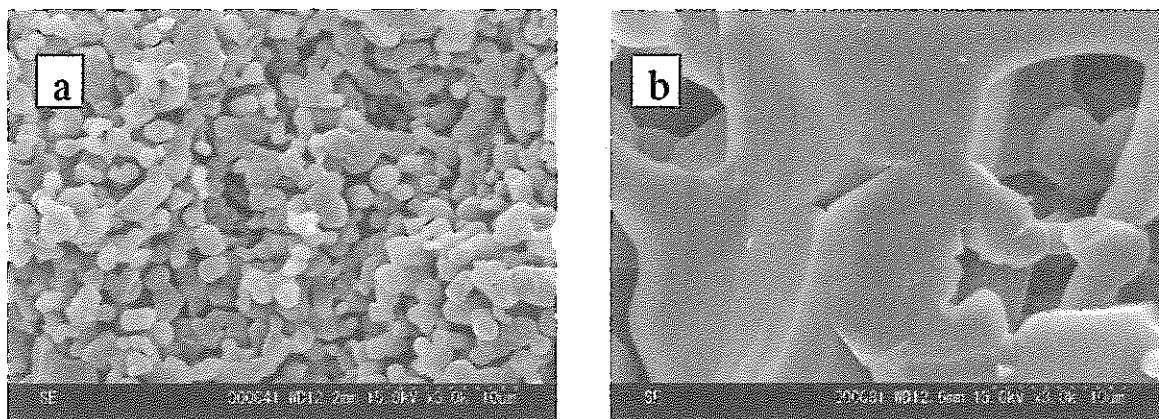


図 4 B_4C セラミックスの破断面の SEM (a)最高焼結到達温度 $1700^{\circ}C$,
(b)最高焼結到達温度 $2200^{\circ}C$

密度の関係を示す。 $2000^{\circ}C$ 以上で焼結することにより緻密化が急激に進み、 $2100^{\circ}C$ で約 80% の理論密度を達成した。 $2100^{\circ}C$ 以上で緻密化の進行が停滞している原因を調べるために、試料の破断面を SEM により調べた。図 4(a) に示すように最高焼結到達温度 $2200^{\circ}C$ において、十数ミクロンのポアが消滅せずに残っている。また、ほとんど焼結が進んでいない $1700^{\circ}C$ の SEM(図 4(b))においても、すでに同程度の大きなポアがみられる。一連の最高焼結到達温度の異なる試料の破断面の SEM より、 $2100^{\circ}C$ までに数ミクロンの小さなポアは消滅しているが、グリンサンプルの不均一によって生じた比較的大きな(十数ミクロン以上)のポアが消滅せずに残っていることがわかった。そこで、現在一軸プレスによってグリンサンプルの成形を行っているが、これに変わり、より均一にグリンサンプルを作ることができると考えられる、鋳込み成形による初期成形を試みている。以上の結果から均一なグリンサンプルを得れば、 $2100^{\circ}C$ 以下で目標とする 90% 以上の相対密度が達成されると考えられる。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成 16 年度は、

- 1) 鋳込み成形による初期成型を行い、より均一なグリンサンプルを得る。
- 2) 1)のグリンサンプルの超高温電磁波焼結を行い相対密度 90% 以上の焼結体を得る。
- 3) 2)の試料について、密度の評価、硬さ試験を実施する。
- 4) 若狭湾エネルギーセンターで行われる高エネルギーイオンビーム照射による B_4C ベレットの評価実験に試料の提供を行う。
- 5) 3)及び 4)の試験結果をもとに、昇温過程及び保温材の最適化を行い試料の長寿命化を行う。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- 1) Microwave heating of boron carbide rods
T. Idehara, S. Sabchevski, S. Mitsudo and H. Hoshizuki
7 th Int. Conf. on Electron Beam Technologies, Varna, Bulgaria (2003, 6, 1-6).
- 2) Sintering of high-quality ceramics using a compact gyrotron system
H. Hoshizuki, T. Kuroda, S. Mitsudo, T. Idehara, M. Glyavin, A. Eremeev, F. Tanahashi, T. Honda and Y. Iwai
30 th IEEE Int. Conf. on Plasma Science, 2PB01, Jeju, Korea, June 2-5, (2003. 6).
- 3) 24GHz ジャイロトロンによる B_4C セラミックスの焼結
星月久昇, 松浦和成, 光藤誠太郎, 出原敏孝, 本田知己, 岩井善郎, 北野彰洋, 石橋淳一,
西 裕士
日本物理学会 2003 年秋季大会, 20aYA-9, 岡山大学, 岡山, 2003 年 9 月 20-23 日
- 4) Millimeter wave sintering of B_4C by using a compact gyrotron system
H. Hoshizuki, S. Mitsudo, T. Idehara, T. Saji, M. Glyavin, A. Eremeev, T. Honda,
Y. Iwai, A. Kitano, J. Ishibashi, H. Nishi and I. Shibahara
Conference Digest of 28th Int. Conf. Infrared and Millimeter Waves, TP-10, Ohtsu,
Shiga, Japan 405-406 (2003. 9. 28-10. 2)
- 5) 松浦和成、星月久昇、佐治他三郎、光藤誠太郎、出原敏孝、北野彰洋、石橋淳一、
西 裕士
日本物理学会北陸支部 学術講演会, 金沢大学理学部, 金沢, B-p12, 講演予稿集 p. 22
(2003. 11. 22).
- 6) 300GHz Gyrotron を用いた加熱装置の開発
星月久昇、松浦和成、佐治他三郎、光藤誠太郎、出原敏孝
日本物理学会北陸支部 学術講演会, 金沢大学理学部, 金沢, B-p13, 講演予稿集 p. 23
(2003. 11. 22).
- 7) Boron Carbide Ceramics Sintering by Using 24 GHz Compact Gyrotron
S. Mitsudo, H. Hoshizuki, K. Matsuura, T. Saji, T. Idehara, M. Glyain, A. Eremeev,
T. Honda, Y. Iwai, A. Kitano, H. Nishi and I. Shibahara
International Symposium on Novel Materials Processing by Advanced Electromagnetic
Energy Sources (MAPEE' 04), 19-22 March, 2004, Osaka, Japan.
- 8) 24GHz ジャイロトロンによる B_4C セラミックスの焼結 V
星月久昇, 松浦和成, 佐治他三郎, 光藤誠太郎, 出原敏孝, 北野彰洋, 石橋淳一,
西 裕士
日本物理学会第 59 回年次大会, 27pWH-6, 九州大学, 福岡, 2004 年 3 月 27-30 日

大学等との共同研究に関する平成15年度研究概要報告書

研究テーマ	ヘリカルコイル型蒸発管内の沸騰現象の可視化実験		
研究者所属、氏名			
大学側	福井大学工学部・機械工学科・助教授 福井大学大学院工学研究科・ファイバーナンディ工学専攻・教授 " " ·助教授(併任)	永井 二郎 山本 富士夫 村井 祐一	
機構側	敦賀本部国際技術センター・システム技術Gr・チームリーダー " " ·研究主幹	戸田 信一 吉川 信治	
研究実施場所	福井大学 工学部機械工学科 熱工学実験室 機構 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15年11月～ 平成18年3月	当該年度 研究期間	平成15年11月～ 平成16年3月
【研究目的】			
<p>高速増殖炉もんじゅに採用されているヘリカルコイル型蒸発管内の沸騰二相流を可視化し、従来知見の少なかった流動特性及び熱伝達特性との関連性を把握し、蒸発器の安全な運用と将来の高性能化に資することを目的とする。特に、ドライアウト点振動の有無とそれに及ぼす各種パラメータの影響の把握、管内ボイド率や流速の変化、管内濡れ性が流動特性と熱伝達特性に及ぼす影響の把握を目指す。</p>			
【研究内容（概要）】			
<p>本共同研究者の一部は、平成12年～14年度にかけて、「蒸発器ヘリカルコイル内気液二相流の多次元解析」に関する共同研究を実施し、ヘリカルコイル型蒸発管内の流体力学的構造について可視化・画像解析による解明を進めるに成功した。しかしながら、実験は基本的に等温系の気液二相流であり、得られた研究成果が、対象とするもんじゅの蒸発管に直接には適用できなかった。一方、サイクル機構その他様々な研究機関において、ヘリカルコイル型蒸発器のマクロ的熱伝達特性（すなわち入口・出口の熱流体的条件）は解明されてきているが、ヘリカルコイル型蒸発管内の沸騰二相流を可視化し局所的な熱流動特性を把握するには至っていない。</p> <p>そこで本共同研究では、透明なガラス製二重管（内管はヘリカルコイル型）を熱交換器として用い、外部の加熱媒体として透明な熱媒体オイルを使用し、ヘリカルコイル内に純水を作動流体として流して、ヘリカルコイル型蒸発管内の沸騰現象を可視化することを第一の目標とする。</p> <p>可視化により得られる重要な知見としては、(i)ドライアウト点振動の有無、(ii)ドライアウト点振動に及ぼす流量・伝熱量・寸法等の影響の把握、(iii)局所ボイド率や流速、(iv)平均および局所熱伝達特性と沸騰二相流動との関連性、(v)熱伝達特性と沸騰二相流に及ぼす管内表面の濡れ性の影響、が挙げられる。ガラス製二重管の寸法を変化させ、水の流量・熱媒体オイル温度等を変化させながら、可視化と各種計測を行うことにより、上記(i)～(v)の各項目について実験的に調べる。なお、大学での施設を利用して沸騰可視化実験を行う制約から、本実験条件のレイノルズ数やゲイリー数は、実際のもんじゅの蒸発器と比較すると小さな値となってしまうが、ディーン数については比較的同条件にて実施することが可能である。</p>			

【使用主要施設】

- ・熱媒体油循環式 多目的自動温度調節機（加藤理機製作所 MARKⅢ－3 H (15/125)
油使用最高温度 250°C、ポンプ流量 100L/min、ヒータ 9kW

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成 15 年度は、ガラス製二重管（内管がヘリカルコイル型）を用いた沸騰二相流の可視化装置を試作し、熱媒体油による加熱により水の強制流動沸騰実験を実施した。

【研究成果（当該年度）】

本年度は、まず、試作した沸騰二相流の可視化装置により水の沸騰実験が可能であるかどうかを確かめ、次に、パラメータを数種類変えながら可視化実験を行った。

○実験装置と方法（→別添資料の図 1 参照）

- ・内管がヘリカルコイルのガラス製二重管を熱交換器として使用した。各部の寸法は以下の通りである。

外管：胴径 40mm、高さ 360mm、

内管：外径 7.4mm、内径 5mm、曲率半径 14mm、ピッチ 10mm、巻き数 32 卷

内管、外管の出入口は、外径 10mm

- ・内管には、ヘッド差により鉛直上向きに純水を流す。外管には、鉛直下向きに加熱用熱媒体油（透明、使用最高温度 350°C）を流す。

- ・実験条件（パラメータ）は以下の通りである。

水の流量： 0.1、0.5、0.7 [L/min] の 3 通り

水の入口温度： 40°C で一定

油の流量：（ほぼ）一定

油の入口温度： 170°C～250°C まで 10°C 每

内管内側表面の濡れ性： 通常面と撥水面（シリコンオイル系の撥水剤を内管表面に加熱吸着させたものが撥水面で、平衡接触角が約 75° であった。通常面の平衡接触角は約 35° であった。）

水の流量 3 通りに対応する各無次元数の値は、別添資料の表 1 に示す。レイノルズ数やゲイリー数については、実機（もんじゅ）での値と大きく異なるが、ディーン数は比較的近い値をとっている。

- ・観察手段と計測項目

デジタルビデオカメラ(30 コマ/秒)によりヘリカルコイル内の沸騰二相流を撮影した。

計測項目は、水の入口・出口の温度と圧力、水の入口の体積流量、油の入口・出口の温度である。

○実験結果

- (1) 本実験手法により、ヘリカルコイル型蒸発管内の沸騰現象可視化が可能であることが分かった（ただし、もんじゅ蒸気発生器での熱流体的諸条件とは異なる条件下での実験である）。内管（ヘリカルコイル）に流す水の流量の最大値は 0.7L/min であったが、加熱用熱媒体油の設定温度が 200°C 以下の場合でも十分沸騰していたことから、水の流量は、さらに増やすことができる事が分かった（→レイノルズ数を実機での値に近づけることができる）。

- (2) 本実験条件範囲内では、全ての条件においてドライアウト点の振動現象が観察された。ちなみに、本研究では液体部分がほぼ蒸発しつくした場所をドライアウト点と呼ぶ(→別添資料の図2を参照)。その原因については、気液二相流の流動不安定(Ledinegg不安定、密度波不安定、等)の観点から、今後考察する予定である。参考のため、ガラス製二重管を水平方向に設置(水が水平方向に流れる)した場合にも、同様の振動現象が観察された。
- (3) 熱媒体油が高温の場合(局所的な熱流束が大きい場合)、ドライアウト点の振動が小さいものと大きいものが交互に現れるパターンが確認できた。まず、小さい振動(第一波)が起こり、飽和水は内管入口付近ですぐに過熱蒸気になって気相になる。そして、その後から第二波がおとずれ、今度は第一波よりも高い位置までドライアウト点が移動する。このパターンは油の温度が高いほど顕著に現れ、出口側が湿り蒸気になるとほとんど一定の振幅・周期で振動を繰り返していた。
- (4) 別添資料の図3に、水の流速とドライアウト点振動周期の関係を示す。ドライアウト点の振動周期は数秒オーダーであり、水の流速(流量)の増加にともない、振動周期は長くなる傾向があることが分かる。また、油の温度(局所的な熱流束)の増加にともない、振動周期は短くなる。
- (5) ドライアウト点が振動する下端部は、ヘリカルコイル部よりさらに下方に至ったため、ドライアウト点振動の振幅は、正確には測定できなかった。ちなみに、実験者の感覚(主観)としては、流速や油の温度が変わっても、振幅には大きな変化は無かったようである。
- (6) 別添資料の図4に、水の流速と平均熱流束の関係を示す。平均熱流束は、水の入口・出口の温度・圧力測定値から比エンタルピー増加量を求め、それに水の流量を掛け算することにより求めた。図より、ヘリカルコイル型蒸発管全体の平均熱流束は、水の流速(流量)によって定まり、油の温度にはほとんど依存しないことが分かる。図中に示した実線は、水の顯熱+潜熱の計算値であるが、実験値が実線とほぼ一致することから、平均熱流束の内訳はほとんど水の顯熱と潜熱であり、過熱蒸気の顯熱は無視できる程小さいことが分かる。
- (7) 別添資料の図5に、水の流速と出口過熱度の関係を示す。水の出口過熱度に対する流速(流量)の影響は比較的小さく、流速の増大にともないわずかに過熱度は増加することが分かる。また、油の温度が高くなると、出口過熱度は増加する。
- (8) (別添資料の図3～図5を参照) ヘリカルコイル内管表面の濡れ性の変化により、ドライアウト点の周期と出口過熱度に違いが見られたが、平均熱流束には違いが見られない。濡れ性が低くなると(撥水面)、ドライアウト点の振動周期に及ぼす流速の影響が小さくなり、出口過熱度が増大することが分かった。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

本年度の成果および課題をふまえて、今後は下記の事項を実施する予定である。

（平成 16～17 年度）

- ・高速度ビデオによる沸騰二相流（特にドライアウト振動現象）の撮影
- ・高速度ビデオ観察映像の検討と文献調査により、気液二相流の流動不安定（特にドライアウト点の振動）の原因考察
- ・ポンプの強制流動により、水の流速をより広範囲に変化させた実験の実施
- ・水の入口温度（サブクール度）を変えた実験の実施
- ・内管（ヘリカルコイル）の寸法（特に、曲率半径と内径）を変えた実験の実施
- ・内管をストレート管にしたもの比較実験を行い、ドライアウト点振動の原因の考察
- ・パソコンとデータロガーとビデオの同期により、温度・圧力・流量計測と撮影の同期
- ・ガラス製二重管内外の徹底した洗浄等によるガラス管の焦げ付き防止策の検討

また、以下は、具体的な手法は今のところ分からぬが、出来れば実施したい事項である。

- ・ヘリカルコイル管断面内の気液二相分布の観察あるいは局所的な乾き度やボイド率の測定
- ・局所的な管表面温度や熱流束の測定

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- ・混相流学会年会講演会 2004（8/5～7、岡山）で発表予定

“ヘリカルコイル内の強制流動沸騰二相流可視化の試み”

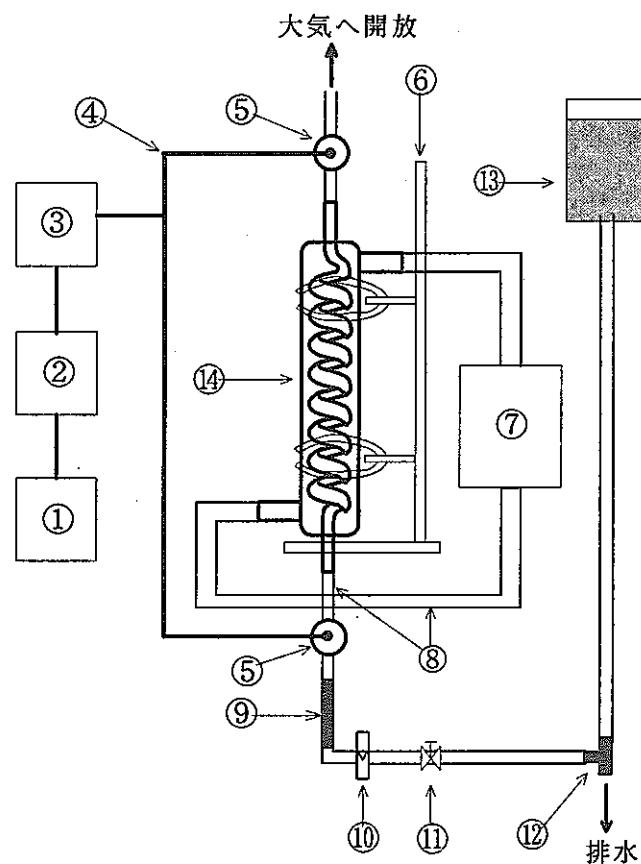
駒井、○永井、竹内、戸田、吉川、村井、山本

- ・International Forum on Heat Transfer (IFHT2004) (11/24～11/26, 京都) での発表検討中

“Effects of Surface Wettability on Pool-Boiling Heat Transfer and Forced Convection Boiling Phenomena in Helical Coiled Tube”（仮題）”

（内容は、沸騰現象に及ぼす濡れ性の影響についてのみ）

<別添資料>



① PC	⑧ 耐熱ホース
② データロガー	⑨ 加熱装置
③ 冷接点	⑩ 流量計
④ 熱電対	⑪ バルブ
⑤ 圧力計	⑫ 三方弁
⑥ 热交換器を支える台座	⑬ 純水供給タンク
⑦ 高温油循環装置	⑭ 热交換器

図1 実験装置 概要

表1 水の流量と各無次元数の値

水の流量 [L/min]	レイノルズ数:Re		ディーン数:K		ゲイリー数	
	圧縮水	過熱蒸気	圧縮水	過熱蒸気	圧縮水	過熱蒸気
0.7	4.52×10^3	2.08×10^5	1.91×10^3	8.79×10^4	2.57×10^0	1.14×10^7
0.5	3.22×10^3	1.47×10^5	1.36×10^3	6.23×10^4	1.31×10^0	5.81×10^6
0.1	6.46×10^2	2.97×10^5	2.73×10^2	1.26×10^5	5.25×10^{-1}	2.32×10^5

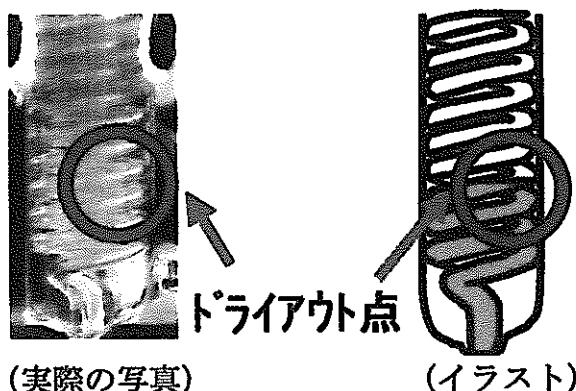


図2 本研究におけるドライアウト点

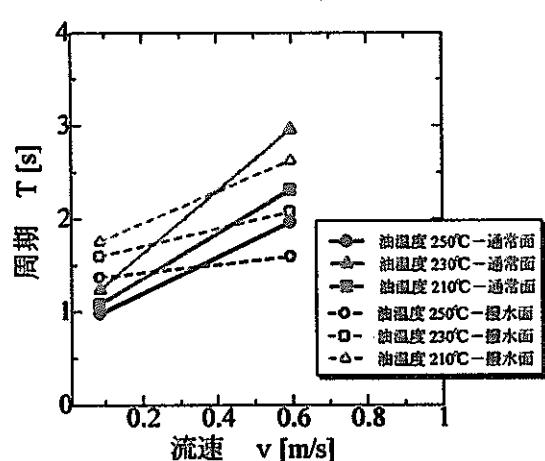


図3 水の流速と油の入口温度と振動周期の関係（濡れ性の影響も含む）

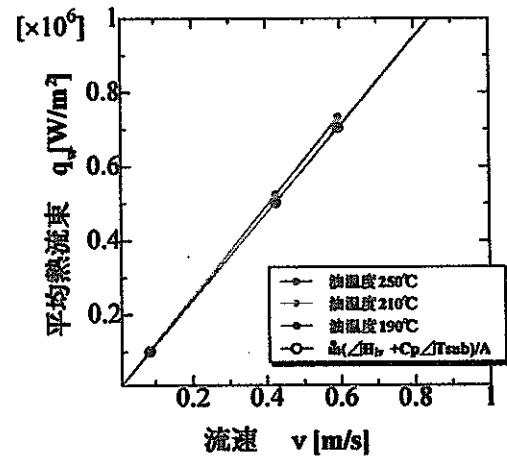


図4 水の流速と平均熱流束の関係

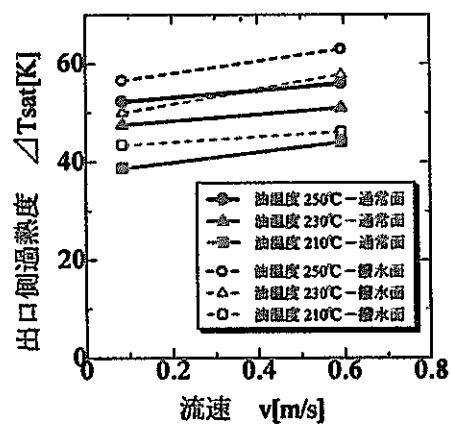


図5 水の流速と出口過熱度の関係（濡れ性の影響も含む）

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	FBR プラントにおけるき裂進展評価手法の高度化に関する研究 (Phase II)		
研究者所属、氏名			
大学側	福井大学 大学院工学研究科 教授 飯井 俊行		
機構側	敦賀本部 国際技術センター プラント機器技術開発グループ グループリーダー 渡士 克己, 土井 基尾, 橋本 貴司		
研究実施場所	福井大学 工学部 機械工学科 材料工学実験室 機構 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 6 月 ~ 平成 16 年 3 月	当該年度 研究期間	平成 15 年 5 月 ~ 平成 16 年 3 月
【研究目的】			
FBR プラント維持基準のための基盤技術整備として各種三次元き裂の健全性評価方法の調査研究及び熱応力下疲労き裂進展挙動の評価を実施し, き裂進展評価手法の高度化を進めること.			
【研究内容（概要）】			
原子力機器は, き裂の発生を防止することを目的とした技術基準により設計・維持されている. しかしながら, 現実には機器設計荷重と実働荷重, 特に熱応力の違いによりき裂が発生し破損に至ったケースが何度となく存在する. また, 最近の動向として, 軽水炉については検査・評価・補修から構成されるプラント維持基準のうちき裂進展評価を含む評価部分が日本機械学会より JSME S NA1-2000 「発電用原子力設備規格維持規格」が発行された. 今後 FBR のプラント維持基準を立案していく場合にもき裂進展評価手法を早急に確立する必要があるが, それには軽水炉において負荷形態として考慮されていないクリープ疲労を加味したき裂進展挙動の基礎データが不可欠であると考え, 平成 12 年度に共同研究「FBR プラントにおけるき裂進展評価手法の高度化に関する研究」を実施した.			
Phase II では、平成 12 年度の共同研究で得られた成果をもとに、三年間の予定で FBR プラントの維持規格立案に向け具体的な展開を図るべく、クリープ域にて想定すべきき裂の健全性評価手法の調査・開発および熱応力下疲労き裂進展挙動の評価（特に評価不要欠陥選定の基礎となる低荷重域のき裂進展データ取得）を実施し、き裂進展評価手法の高度化を進める.			
【使用主要施設】			
福井大学 大容量高速疲労き裂進展試験システム			

【進捗状況（当該年度までの概要）】

平成13年度は、12年度の共同研究で得られた成果をもとに、クリープ域にて想定すべきき裂の健全性評価手法の調査・検討および熱応力下疲労き裂進展挙動の評価(特に評価不要欠陥選定の基礎となる低荷重域のき裂進展データ取得)を実施し、き裂進展評価手法の高度化を進めた。

平成14年度は、前年度に引き続きFBRプラントの維持基準立案に向け具体的な展開を図った。

平成15年度は、3年計画のまとめとしてFBRプラントの維持基準立案に向け、亀甲状欠陥の強度評価法の目安を得ると共にき裂進展評価手法の高度化を提案した。また K_{max} 増により ΔK_{th} が漸減する材料を予測する手法を提案し、その有用性を確認した。

【研究成果（当該年度）】**(1) 亀甲状欠陥の強度評価手法の開発**

モデル化した亀甲状き裂の強度評価を行う場合に、軸方向複数き裂、周方向複数き裂各々が独立に存在する場合と近似的に考えてよいことを破面調査により確認した。平成15年度には(2)に示す「目標K値誤差を指定しうる三次元有限要素解析システム」を開発し、まずは一様引張を受ける板中交差円形き裂について解析を可能とした。このシステムを用いて試算した結果、モードIにて開口するき裂の変形特性は交差き裂により大きな影響を受けないようだという結果が得られ、ATT試験体の解体調査結果と併せて考えると、交差欠陥を2個の直交する方向に単独で存在する欠陥として強度評価を行ってよいようであるとの目安を得た。

(2) クリープ疲労き裂進展評価手法の高度化

仏国規格A16,JNC作成欠陥評価指針の比較を行った。その結果、現在提案されている簡易クリープ疲労き裂進展評価手法の基本的な考え方には大差がなく、K値を用いて弾塑性破壊力学パラメータを推定し、これによりき裂進展評価を行うものであることが確認できた。この方向については今後とも変わることがないと考えられる。ただし、これらの規格では基本的なき裂構造、荷重条件に対するK値解を数式や表の形で与えており、実際の複雑な構造中に発見された割れを評価する場合には評価する担当者のモデル化技量に負うところが大となる可能性がある。そこで昨今の計算機能力の飛躍的な向上を背景に、任意構造中のき裂に対するK値を容易に評価可能とする「目標K値精度を指定しうる三次元き裂有限要素解析システム」(図1, 2, 3)を開発し、これを利用することによる簡易クリープ疲労き裂進展評価手法の高度化を提案した。

(3) 熱応力下疲労き裂進展挙動の評価

熱応力対策が十分に施された FBR プラントを念頭におき、熱応力下疲労き裂進展挙動を精度よく推定するため、S55C, SUS304, HT60, SS400, 2.25Cr-1Mo, SUS316, SUS321, T91, Inconel718 の低荷重域の疲労き裂進展データを取得した。今回得られたデータを ASME pressure vessel code Sec. XI, JSME 軽水炉プラント維持規格中の疲労き裂進展評価線図と比較した結果、今回のデータは S55C, HT60 を除きこの線図の上限にほぼ対応していることが確認できた。また K_{\max} 増により ΔK_{th} が漸減する材料を予測する手法を提案し、その有用性を確認した。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】又は【成果の反映状況】

本研究で得られた研究成果は FBR プラントの維持基準準備検討に反映されている。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- 1) Comparison of near threshold fatigue crack growth data by K_{\max} -constant method with the post-construction codes
Nuclear Engineering and Design 220(2003) 285-292
- 2) FBR プラントにおけるき裂進展評価手法の高度化に関する研究 (Phase II)
平成 13 年度 JNC TY4400 2002-001
平成 14 年度 JNC TY4400 2003-002
共同研究報告書 JNC TY4400 2004-001

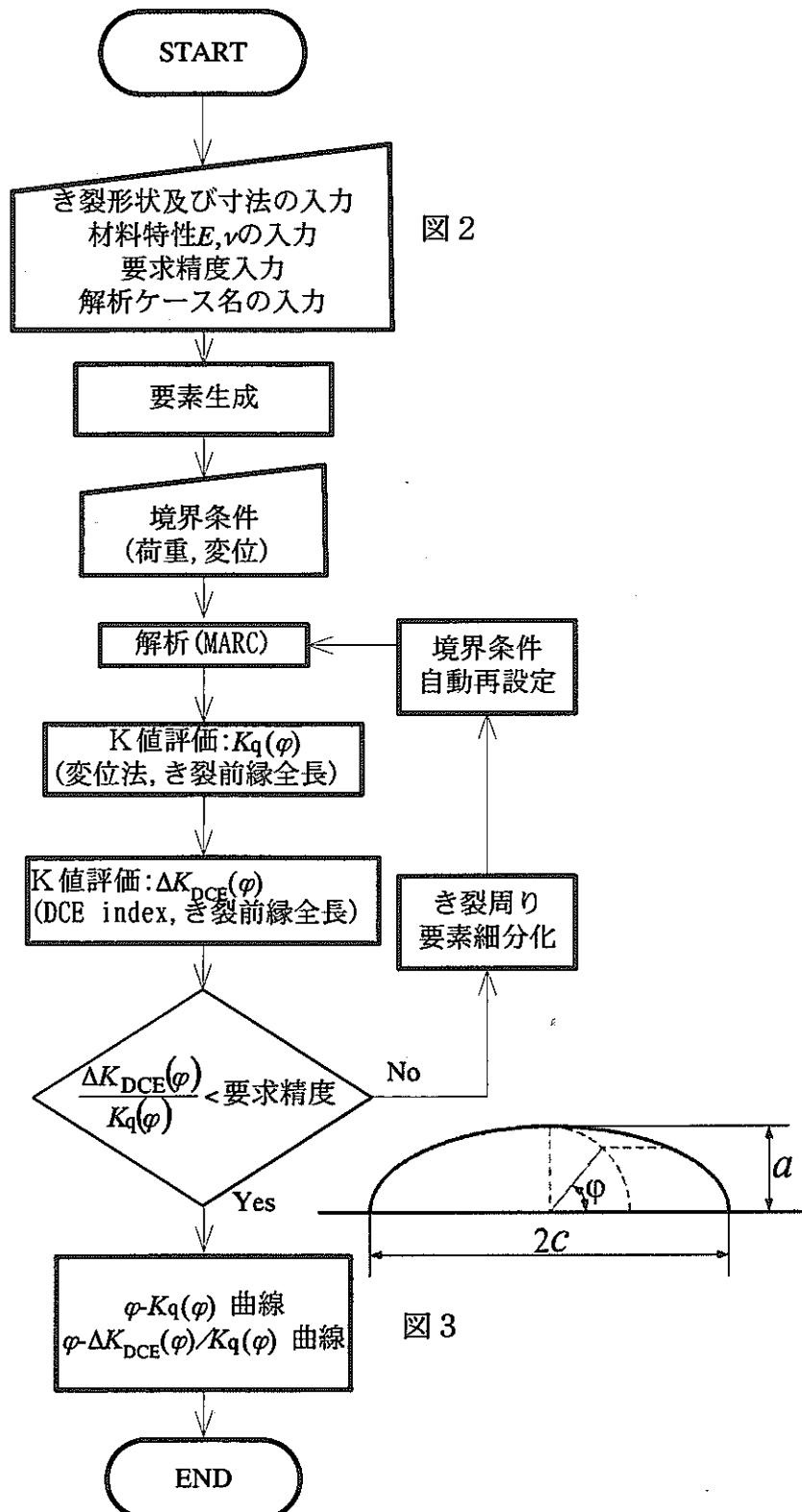


図 1 三次元有限要素解析システムのフローチャート

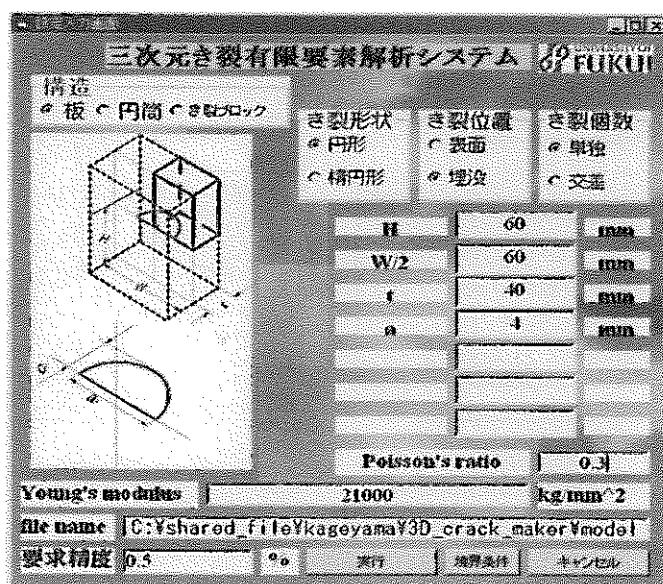


図2 インプット画面例

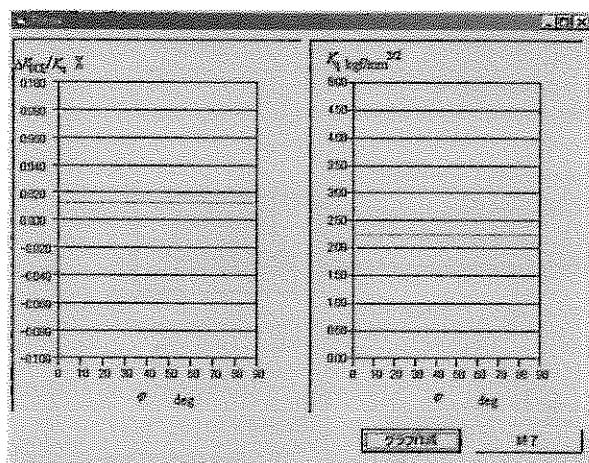


図3 アウトプット画面例

大学等との共同研究に関する平成 15 年度研究概要報告書

研究テーマ	天然環境における有機物の化学特性に関する研究		
研究者所属、氏名			
大学側	北海道大学 大学院地球環境科学研究科 長尾誠也 助教授		
機構側	東濃地科学センター 瑞浪超深地層研究所 超深地層研究グループ 岩月輝希		
研究実施場所	北海道大学 大学院地球環境科学研究科 機構 東濃地科学センター 東濃鉱山及び周辺試錐孔	当該年度 研究期間	平成 15 年 5 月 ～ 平成 16 年 3 月
通算研究期間 (予定)	平成 14 年 9 月 ～ 平成 17 年 3 月		
【研究目的】			
地下深部の岩盤や地下水中に存在する各種有機物は、放射性核種を含む様々な物質の存在状態や移動挙動に影響を与えるとともに、地下微生物の栄養源となり地下深部の化学的状態（酸化還元状態や酸性・アルカリ性条件）に影響する重要な因子の一つである。このため、本共同研究では地下深部に存在する微量な有機物の採取方法・分析方法の開発を行うとともに、その地下深部における地球化学的特性に関する解析を行う。			
【研究内容（概要）】			
有機物の採取・分析方法の開発、地球化学環境との関係、物質の移動特性に対する影響などについて調査解析を行う。			
【使用主要施設】			
北海道大学 大学院地球環境科学研究科 機構 東濃地科学センター 東濃鉱山及び周辺試錐孔			
【進捗状況（当該年度までの概要）】			
平成 14 年度下半期に契約締結後、東濃ウラン鉱床周辺の試錐孔で採取した地下水から腐植物質を抽出した。また、新に掘削された試錐孔から有機物に富む岩芯試料を採取し、地下水中の腐植物質とともに、化学形の分析を行った。			
平成 15 年度は、地下水中の低分子有機物の定性・定量分析、有機物濃縮システムの構築とその性能確認等を行った。また、腐植物質特性の分析手法について検討した。			

【研究成果（当該年度）】

(1) 地下水中の低分子有機物分析、有機物濃縮システムの構築

- ・ 東濃地域の地下水中の低分子有機物（クエン酸、ビルビン酸、リンゴ酸、コハク酸、乳酸、ギ酸、酢酸、レブリン酸、ピログルタミン酸、プロピオン酸、イソ酪酸、n-酪酸、イソ吉草酸、n-吉草酸、薗酸、マロン酸）の定性・定量分析を行った。その結果、乳酸、酢酸等が検出された。その他の、低分子有機物については、検出限界以下であった。このことから、地下水流动とともに移動し得る低分子有機物の種類は限られ、かつ量も少ないと推測された。しかしながら、これらの低分子有機物は微生物活性の指標となり得るものであり、正確に定量する手法が必要である。
- ・ 地下水中の検出限界以下の濃度の有機物について正確な定量値を得るために、ボーリング孔における地下水湧水圧と定圧弁、限外ろ過システム、逆浸透膜を利用した有機物濃縮システムを構築した（図1）。その結果、総溶存有機物濃度を指標として、数倍～20倍程度の有機物濃縮が可能となった。
- ・ 有機物濃縮システムを用いて、東濃鉱山の堆積岩中の地下水を対象に有機物の濃縮採取を行った結果、表1のように実際に有機物を濃縮できることが確認できた。また、有機物濃縮に伴って、ウラン等の金属元素も濃縮されており（表2）、天然環境での有機物と微量金属元素の関係について定量的な考察が可能となると考えられた。
- ・ 地下深部の様々な化学環境（中性～弱アルカリ・弱～強還元環境）における金属元素と有機物間の錯体形成時の錯体形成係数を求めるために、原位置の化学環境を再現し、様々な有機物と金属元素の反応を再現できる実験システムを構築した（図2）。構築した実験システムを用いて低分子、中分子、高分子の代表的有機物として、酢酸、シデロフォア、フルボ酸を用いて性能確認を行った。その結果、予察的に錯体形成係数を評価できることが確認できた。

(2) 3次元蛍光分光光度法の有機物研究への適用

腐植物質の蛍光スペクトルは、構成有機物や構造特性の違いが反映され、蛍光ピークの数、波長位置、相対蛍光強度が異なり、天然水の簡易特性分析法としての有効性が報告されている。本研究では、蛍光特性の全体像を把握でき、河川や海水試料中の溶存腐植物質の特性評価手法として利用されている3次元蛍光分光光度法を東濃地域の地下水に適用した。地下水は堆積岩（KNA-6S）と花崗岩層（KNA-6G）から坑道にあけた試錐孔とパッカ一式地下水サンプラー（TH-6）を用いて採取した。試料採取後、孔径0.45ミクロンのフィルターでろ過したろ液を分析用試料とした。地下水の腐植物質は励起波長300nm、蛍光波長420nmと励起波長305、蛍光波長420nmに蛍光ピークを有し、分離精製したフルボ酸と同様なスペクトル形状を示した（図3）。この結果は、フルボ酸が溶存有機物の大部分を占めることと調和的である。また、TH-6で採取された地下水は、堆積岩と花崗岩層では異なる蛍光特性を示し、溶存物質の濃度と特性の違いが示唆された。このような違いは、地下水腐植物質の起源物質の違い、あるいは移行過程における選択的な吸着等の効果が考えられる。

【今後の予定（翌年度以降の概要）】

平成16年度は、定量的な有機物回収を目的として、地下水・岩石中から有機物のサンプリングを継続するとともに、新規サンプリングシステムを用いて濃縮採取した天然の有機物と、ウラン等の金属元素との錯体形成に関する調査研究を行う。

【レポート、学会誌・国際会議への発表論文等】

- 1) 長尾誠也・岩月輝希（2003）3次元蛍光分光光度法による東濃地域地下水中的溶存腐植物質の特性研究、腐植物質研究会要旨集

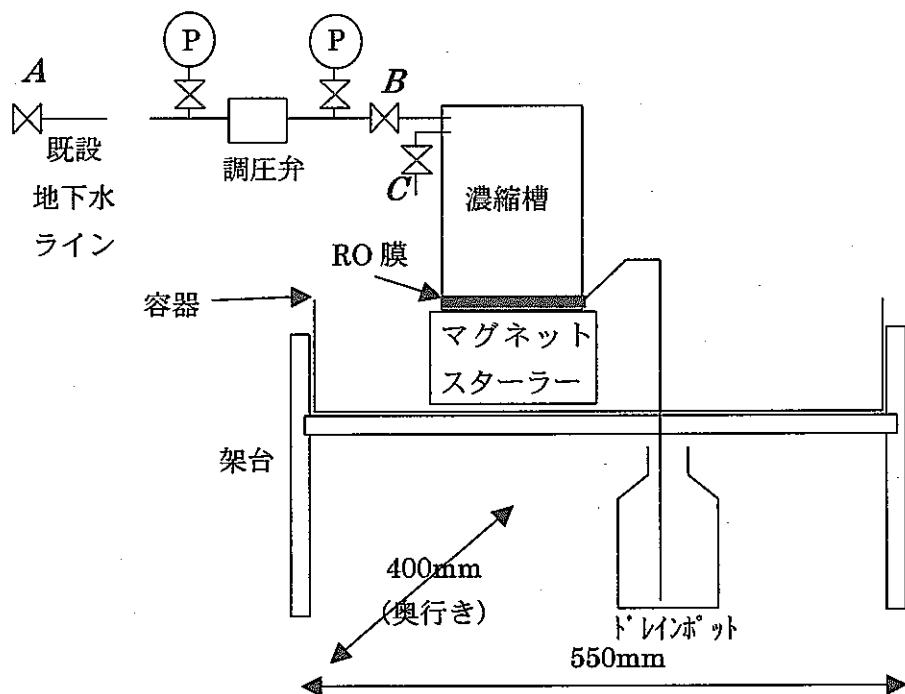


図1 逆浸透膜を利用した有機物濃縮システムの構築

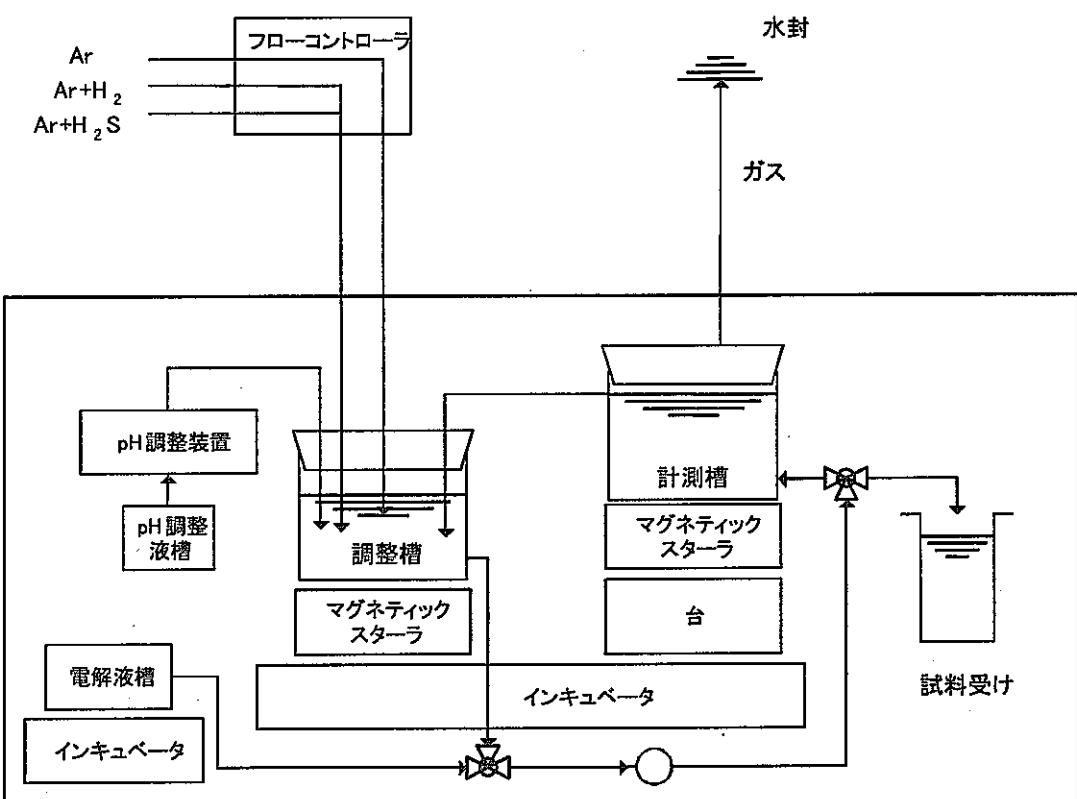


図2 金属有機錯体反応システムの構築

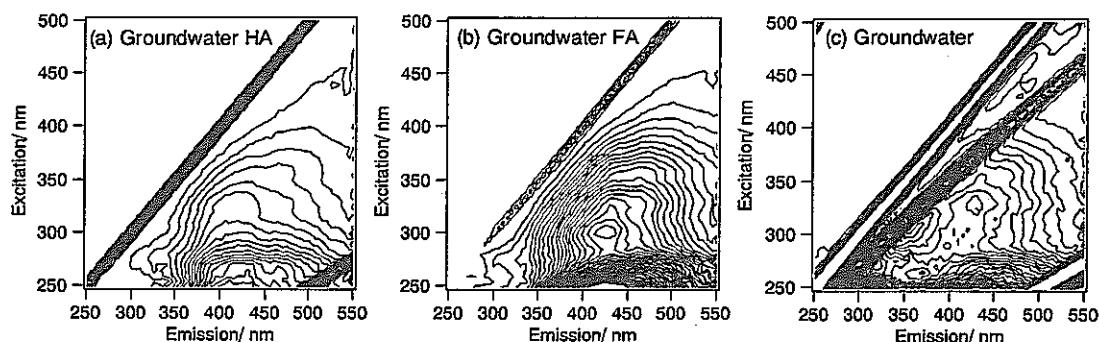


図3 分離精製したフミン酸、フルボ酸と地下水試料の3次元蛍光スペクトル
フミン酸、フルボ酸濃度は10mg/l

表1 原位置有機物濃縮システムによる有機物濃縮例

	濃縮時間 [Hour]	TOC [ppm]		濃縮度 [—]
		原水	濃縮水	
1回目	71.2	1.6	10.3	6.3
2回目	144.6	2.4	33.4	14.1
3回目	187.8	2.7	51.1	18.8

表2 原位置有機物濃縮システムによる溶存化学成分濃縮例

	原水	濃縮水	超純水
Si	280	4600	3.9
Ti	2.4	12	0.73
Al	17	270	0.17
Fe	34	49	33
Mg	17	310	0.25
Ca	1700	1600	4.6
K	440	1600	190
Na	13000	120000	5.8
Br	11	21	10
Hg	0.53	5.7	0.22
U	0.22	0.65	<0.001