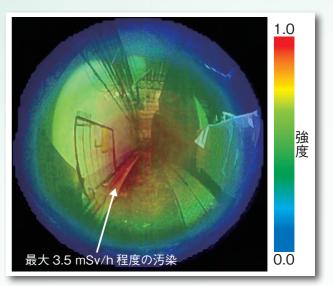


多相多成分三次元熱流動解析手法 JUPITER によるペデスタル内部の溶融物詳細堆積挙動(トピックス 1-1)



1F3 号機タービン建屋内通路における放射性物質の可視化結果 (トピックス 1-7)



はじめに

平素より、日本原子力研究開発機構(原子力機構)の研究開発に関し、多大なご理解とご支援を 賜り誠にありがとうございます。

我が国唯一の総合的原子力研究開発機関としての原子力機構の使命は、原子力科学技術を通じて、人類社会の福祉と繁栄に貢献することです。その実現のため、原子力機構は、産業界や大学等との積極的な連携と協働を通じて、東京電力ホールディングス福島第一原子力発電所事故への対応、原子力の安全性向上研究、核燃料サイクルの研究開発、放射性廃棄物の処理・処分技術開発といった分野の研究開発を重点的に実施するとともに、これらを支え新たな原子力利用技術を創出する基礎基盤研究と人材育成にも取り組んでいます。

福島第一原子力発電所事故への対応では、福島県富岡町の廃炉国際共同研究センター国際共同研究棟を昨年から本格運用するなど、原子炉施設の廃止措置に係る課題解決と環境回復に向けた研究開発に、組織の総力を挙げて取り組んでいます。基礎基盤研究の分野においては、核変換による「放射性廃棄物の処理方法」に関する研究が21世紀発明賞を受賞するなど、顕著な成果が得られています。また、研究用原子炉については、原子力規制委員会の新規制基準への対応を進めており、本年6月には原子炉安全性研究炉(NSRR)の運転を再開いたしました。一方、「もんじゅ」及び東海再処理施設については、原子力規制委員会から廃止措置計画の認可を受け、本格的な廃止措置段階に入りました。今後、計画に従い、安全、着実な廃止措置に取り組んでまいります。

本誌では、原子力機構が日々取り組んでいる研究開発で得られた最新成果の代表的なものをご 紹介いたします。

これらを通じて、原子力機構の研究開発に一層のご理解を賜りますとともに、引き続き、私どもの研究開発活動にご指導とご鞭撻を賜りますよう、よろしくお願いいたします。

2018年10月

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

理事長

児玉敏雄

	原子力機構の研究開発体制と本誌の構成について	8
1	福島第一原子力発電所事故の対処に係る研究開発	
	英知を結集し 1F の廃止措置と環境回復に役立つ研究成果の提供を目指す	10
1.	デブリはどのように形成されているのか?	11
	ー大規模数値解析による詳細なデブリ分布推定と再臨界性の評価-	
2.	事故初期に放出した 2 種類の不溶性セシウム粒子	12
	ー主成分がケイ酸である粒子形成過程の解明-	
3.	ステンレス鋼とセシウムの化学反応を解明する	13
	- 東京電力福島第一原子力発電所炉心内セシウム分布評価に向けて -	
4.	被覆材が混ざった核燃料は水に溶けにくくなる	14
	ージルコニウムによるウラン酸化物の溶出抑制を観測-	
5.	汚染水処理により発生する廃棄物を調査する	15
	ー炭酸塩スラリーの詳細な分析-	
6.	汚染水処理後の二次廃棄物等を安全に長期保管する	16
	ー事故対策・廃止措置を随所に支える放射線分解研究の進展-	
7.	東京電力福島第一原子力発電所建屋内部の汚染状況を把握する・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	17
	ー放射性物質の三次元可視化技術の開発-	
8.	レーザーによる遠隔サンプリングを目指して	18
	ーレーザーを用いたコンクリートのサンプリング技術開発-	
9.	廃止措置のためのロボットシミュレータの開発	19
	ーシミュレーションによる遠隔操作習熟、ロボット性能評価ー	
10.	上空からの土壌中の放射性物質の深さを検知	20
	- γ線スペクトルを利用した深度分布推定技術の開発-	
11.	起伏地形の放射線量分布をより高精度に捉える	21
	ー起伏地形における高精度な航空機モニタリングの実現	
12.	放射性セシウムは町のどこにどれだけ存在するか?	22
	ー市街地における放射性セシウムの分布評価ー 	
13.		23
	ー事故後約5年間での土砂、放射性セシウムの移動解析 –	
14.	海底における放射性セシウムの分布の探求	24
	ー海底地形に規制される海底土の種類と放射能との関係- 海洋に放出された放射性物質の拡散を予測する	0.5
15.		25
1.6	ー沿岸域から外洋スケールの拡散シミュレーションー 効果的な森林除染の条件とは	06
16.	効果的な緑体味楽の条件とは・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	26
17	ー 味楽による空间線重率の低減効果をシミュレーショフー 粘土へのセシウム吸着をナノスケールで直視	07
17.		27
10	ー高輝度放射光を用いた光電子顕微鏡で化学状態の可視化を実現- 放射性セシウムが土壌に吸着される様子を計算で解明	28
18.	放射性センリムが工場に吸着される様子を計算で解明	28
10	- 柏工とセジウムの原ナシミュレーショノー 福島の環境回復に係る研究成果をより身近なものへ	20
19.		29
	ー包括的評価システムの開発と根拠となる科学的知見の明示-	

2	安全研究	
	安全性の継続的改善を実現するために	30
1.	過熱炉心の冷却性能を予測する	31
_	ー沸騰遷移後の炉心熱伝達挙動のモデル化に向けた実験 - ***********************************	0.
2.	冷却材喪失事故時の燃料の健全性を評価する	32
3.	シビアアクシデント時の放射性物質放出量の高精度評価を目指して	33
٥.	- 原子炉制御材の酸化を考慮した事故解析 -	
4.	原子力災害時の自動車内外で被ばくの違いを評価する	34
	- 放射線挙動解析のための自家用車モデルの開発とその適用 -	
5.	再処理施設重大事故時の閉じ込め性能を評価する	35
	ー揮発しやすい放射性ルテニウムの移行・沈着挙動解明に向けた実験ー	
6.	環境試料中のウラン微粒子から核物質の履歴を推定	36
	ー保障措置のための単一ウラン微粒子の化学形・同位体比データの取得-	
3	先端原子力科学研究	
	未来を拓く先端原子力科学研究・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	37
1.	核分裂における原子核の様々なちぎれ方を捉える	38
	ー放射性物質の毒性低減技術に貢献ー	
2.	タンパク質で金属から身を守る?	39
	ーゾウリムシ細胞表面の水溶性糖タンパク質と重金属の結合-	
3.	ハイパー核をγ線で見る	40
4	ー中性子星に潜む「奇妙さ」を暴けるかー ウラン化合物で現れる磁場に強い超伝導の仕組みを解明	41
4.	リラノ化合物で現れる	41
5.	型は温にむける 高相皮核磁丸疾鳴渦をが切らがにした刺しい電 1次窓	42
٥.	一微小な反強磁性体を揃える新手法を提案ー	12
6.	スピン流発電の高効率化へ	43
	ーマグノン状態密度を中性子散乱で決定-	
4	原子力基礎工学研究	
7	原子力科学の共通基盤技術を維持・強化して原子力利用技術を創出	44
	は、1 / 1 1 1 1 1 1 1 1 1	4-
1.	マイナーアクチノイドの核データ精度向上を目指して	45
	ー中性子共鳴構造を使った熱中性子捕獲断面積実験データの評価-	
2.	放射線環境中のセラミックスがもつ自己修復能力	46
	ーセラミックスの表面を観察する新しい手法による成果-	
3.	計算科学を用いて割れにくい合金を設計する	47
	- 雷子状態計算によるマグネシウム合金開発 -	

4.	溶媒抽出メカニズムの解明に向けて	48
5.	か射線による遺伝情報変質プロセスを解明!	49
J.	- 1 eV 以下の極低エネルギー電子の役割を解明-	10
6.	BNCT によるがん細胞殺傷効果の理論的な予測に成功	50
•	- 新しい薬剤の開発や治療計画の最適化に役立つ数理モデルを開発-	
7.	過酷事故時における放射性核種の動きを見定める	51
	- 原子炉内における放射性核種の放出・移行挙動を評価-	
8.	ADS の核特性予測の信頼性向上に向けて	52
	一米国臨界集合体を用いた鉛冷却材の核データ検証実験-	
9.	レーザーで微弱陽子ビームを取り出す新技術	53
	一核変換実験施設に必要な要素技術を確立ー	
10.	原子力発電所の安全対策の高度化を目指して・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	54
	- 過酷事故時でも使用可能な計測ケーブル被覆材の検討 -	
5	中性子利用研究等	
	幅広い科学技術・学術分野における革新的成果の創出を目指して・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	55
1.	広帯域高周波加速空胴による世界初の大強度陽子ビーム加速の達成	56
	ー高調波成分によるビーム不安定性の解明ー	
2.	高精度パルス中性子解析による高強度鉄鋼材料の強さの解明	57
	ーラスマルテンサイト鋼の変形中の転位評価解析-	
3.	幅の狭い良質なパルス中性子ビームの供給を目指して・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	58
	ー中性子パルス整形のための低放射化型熱中性子吸収材の開発-	
4.	高性能な鋼の開発に向けた新たな分析手法を実現	59
	ーものづくり現場における利便性に優れた小型加速器中性子源の活用-	
5.	透過中性子によるスピン配列の観測に成功	60
	ー極限環境におけるスピン配列の観測やマッピングへの応用が可能に-	
6.	ガラス固化体中の白金族元素の化学状態を突き止める	61
	ー放射光イメージングXAFS 異種元素相関解析を利用した最先端分析-	
7.		62
	ー放射光 X 線吸収実験で明らかにした金属微粒子の表面構造-	
6	高温ガス炉水素・熱利用研究	
	高温ガス炉とこれによる水素製造・熱利用技術の研究開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	63
1.	高温ガス炉の安全性を追求する	64
	ー極大地震時における高温ガス炉の事故シナリオ影響評価-	
2.	高温ガス炉による環境負荷低減に向けて	65
	ー高温ガス炉の特長を活かした放射性廃棄物減容の研究-	
3.	プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全性向上に向けて	66
	ー酸素ゲッターの機能を持つ ZrC 層の被覆試験-	

4.	受動的放射冷却を用いた高温ガス炉の冷却設備を開発	67
5.	高温ガス炉の中性子源交換作業の改良	68
	ー交換プロセスにマッチさせた中性子源用輸送容器の小型化-	
6.	IS 法の水素製造効率の向上に向けて	69
	ー水素分離膜を用いた反応器でヨウ化水素分解を促進-	
7.	IS 法による水素製造における金属材料の適用性評価	70
	ー実環境(ヨウ化水素ガス分解環境)におけるニッケル基合金の耐食性-	
7	高速炉研究開発	
	高速炉サイクル技術に関する研究開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	71
1.		72
	ー世界の最新高速炉開発プロジェクトへの展開を目指して一	
2.	MOX 燃料の機械的性質を評価する	73
_	- 超音波法により測定した MOX 燃料中の音速データに基づくヤング率の評価-	7.4
3.	高速炉燃料ピン中のセシウムのふるまいを評価する	74
1	- 高速炉 MOX 燃料ピン照射挙動解析手法の開発	75
4.	タキのため高速炉燃料の建転中のかるよりを指揮。	75
5.		76
0.	- 高速炉に適した供用期間中検査の設定手法の開発と規格化-	, 0
6.	ナトリウム冷却高速炉の伝熱管検査技術の高度化を目指して	77
	ー微小欠陥検出のためのハイブリッド型渦電流探傷センサの開発-	
7.	高速炉過酷事故時の化学反応挙動を評価する	78
	ーコンクリートとナトリウムの化学反応ダイナミクスー	
8	バックエンド対策及び再処理技術に係る研究開発	
	バックエンド対策及び再処理技術に係る研究開発	79
1.	複数施設からの廃棄物の放射能をまとめて評価する	81
	ー異なる研究炉の廃棄物に共通的な放射能評価手法の検討ー	
2.	地下水に含まれる希土類元素の極微量分析	82
	ー地下の酸化還元環境推定を目的としたオンサイト固相抽出法の構築-	
3.	坑道を閉鎖するとどんな地下水環境ができるのか?	83
	- 坑道閉鎖後の地下水環境の変化を世界で初めて観測 -	
4.	断層の連続性を推定する手法を構築	84
_	ー岩石の力学的性質に着目した新指標 DI を提案ー	
5.	地下の生物膜は高濃度に金属元素を濃集する	85
	ー微生物-岩石-地下水相互作用による金属元素の収着プロセスを把握-	

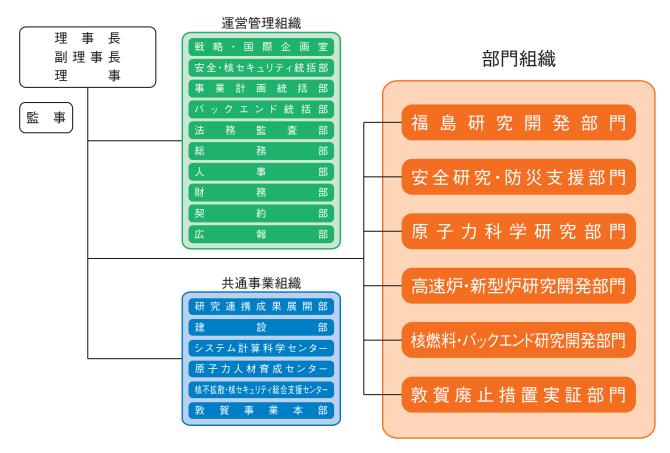
6.	割れ目を持つ泥岩中の物質移行経路を探る	86
	一溶存ガスに飽和した地下水中でのトレーサー試験手法の確立-	
7.	岩石の鉱物量比を効率的に測定する・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	87
	- 元素分析と画像処理を用いたモード測定手法の開発 -	
8.	土砂の動きに伴う放射性物質の動きを評価する	88
	ー公開データを用いた土砂の動きの簡便な評価手法の活用-	
9.	放射性物質のガラス固化技術	89
	ー適切なガラス媒体の探求ー	
9	システム計算科学研究	
		00
	原子力研究開発を支える計算科学技術・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	90
1.	AI 技術で固体物理学の難問に挑戦	91
	ー機械学習が量子シミュレーションを劇的に高速化ー	
2.	原子の拡散挙動解析から鉄鋼材料の脆化を明らかにする	92
	- 第一原理計算に基づくキネティックモンテカルロによる拡散係数の評価 -	
3.	原子力材料の放射線ダメージの新しい世界規格を提案	93
	ーシミュレーションに基づいた材料損傷評価式の構築-	
4.	大規模シミュレーションを実行しながら可視化する技術を開発	94
	-粒子ベースボリュームレンダリングによる In-Situ 可視化-	
10	核不拡散・核セキュリティ科学技術開発	
. •	原フカ亚和利田を主こる核子が数。核われっした。// 明オスは後期終。 社会は	O.F.
	原子力平和利用を支える核不拡散・核セキュリティに関する技術開発・人材育成・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	95
1.	新たな年代測定法の開発	96
	ー試料中の放射平衡を利用して分析時間を短縮ー	

原子力機構の研究開発体制と本誌の構成について

本誌は、研究開発分野ごとの最新の成果を各章にまとめて紹介しています。各章の成果は、おおむね担当する各研究開発部門の活動と対応しています。各研究開発部門は、研究開発の性格や利用する施設・装置によって、1ヶ所から数ヶ所に跨った研究開発拠点で実際の活動を行っており、研究開発拠点は、日本全国に所在しています。以下に、各研究開発部門の成果がどの研究開発拠点で生み出されているか、概略を紹介します。

- 1. 福島研究開発部門は、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所の原子力事故への対応として、廃止措置及び環境回復に向けた研究開発、並びに廃止措置の推進のために必要不可欠な研究開発拠点の整備を進めています。
- 2. **安全研究・防災支援部門 安全研究センター**は、原子力科学研究所において原子力発電所、核燃料サイクル 施設及び放射性廃棄物処分施設に関する国の安全規制を支援する研究を進めています。
- 3. **原子力科学研究部門** 先端基礎研究センターは、原子力科学研究所において、先端原子力科学における未踏 分野の開拓を進め、新原理、新現象の発見、新物質の創生、新技術の創出を目指して、「アクチノイド先端基 礎科学」と「原子力先端材料科学」の 2 分野を設定し、6 研究テーマを展開しています。
- 4. **原子力科学研究部門 原子力基礎工学研究センター**は、原子力科学研究所において、原子力利用を支える様々な要素技術の基礎・基盤的な研究を進めています。
- 5. **原子力科学研究部門 物質科学研究センター**は、原子力科学研究所及び J-PARC センターにおいて中性子を利用する研究を、播磨地区において放射光を用いた研究を進めています。

組織体制図



2018年4月現在

- 6. 高速炉・新型炉研究開発部門 炉設計部及び高温ガス炉研究開発センターは、大洗研究所において、高温ガ ス炉の技術開発や高温熱を用いて水から水素を製造する技術、ヘリウムガスタービン技術等の多目的熱利用 の研究開発を実施しています。
- 7.高速炉・新型炉研究開発部門 炉設計部、燃料サイクル設計部、高速炉サイクル研究開発センター及び敦賀 **総合研究開発センター**は、長期的エネルギー安全保障・地球環境問題に対応するため高速炉を中核とする核 燃料サイクルの確立に向けた研究開発を行っています。大洗研究所において高速炉システムの安全性強化を 目指した研究開発を、敦賀総合研究開発センターにおいて、高速増殖原型炉もんじゅに係る成果の取りまと めや高速炉の検査・補修技術開発等を、核燃料サイクル工学研究所において、核燃料・バックエンド研究開 発部門と協力してプルトニウム燃料の製造、使用済燃料の再処理に係る研究開発などを進めています。
- 8. 核燃料・バックエンド研究開発部門は、それぞれの研究開発拠点において安全かつ合理的な原子力施設の廃 止措置及び放射性廃棄物の処理処分対策について技術開発を進めています。また、高レベル放射性廃棄物の 地層処分については幌延深地層研究センターと東濃地科学センターにおいて、深地層を総合的に調べる技術 の整備を、核燃料サイクル工学研究所において、処分場の設計や安全評価を行う技術の高度化を進めていま す。このほか、核燃料サイクル工学研究所において軽水炉サイクルに関する技術開発を行っています。
- 9. システム計算科学センターは、柏地区と原子力科学研究所を中心に先端的シミュレーション技術開発、計算 科学基盤技術開発及び計算機の運用・保守を行っています。
- 10. 核不拡散・核セキュリティ総合支援センターは、本部及び原子力科学研究所を拠点として、国際原子力機関 (IAEA) 等の国際機関や各国における技術開発、核物質の管理と利用に係る透明性確保に資する活動、政策 調査研究を行っています。また、アジア諸国に対して、能力構築に貢献する人材育成支援事業を継続しています。

研究開発拠点



福島第一原子力発電所事故の対処に係る研究開発

英知を結集し 1F の廃止措置と環境回復に役立つ研究成果の提供を目指す



図 1-1 福島県内における主要な研究開発拠点とその活動状況

東京電力福島第一原子力発電所 (1F) の事故以降、原子力機構は我が国で唯一の原子力に関する総合的な研究開発機関として、1F の廃止措置及び環境回復に係る研究開発に取り組んでいます (図 1-1)。

廃止措置に関しては、政府が定めた中長期ロードマップを踏まえ、国内外の英知を結集する廃炉国際共同研究センターを中心に、事故進展シナリオの解明(トピックス 1-1、1-2)、燃料デブリの取出し(トピックス 1-3、1-4)、放射性廃棄物の処理・処分(トピックス 1-5、1-6)、遠隔操作技術(トピックス 1-7~1-9)に係る研究開発を進めています。

研究推進においては、2017年度に同センターの中核となる「国際共同研究棟」(図1-1右下)の運用を開始したことで、産学官による研究開発と人材育成を一体的に進める体制が強化され、国内外の研究者が参集する会合を地元で多数開催することができました。2018年度には「廃炉研究等推進事業費補助金」が創設されました。これまで以上に大学・研究機関との連携を強化し、研究開発と人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築していきます。

廃止措置や災害対応等に必要な遠隔操作機器の開発・ 実証試験フィールドの外部供用を実施している楢葉遠隔技 術開発センター(図1-1左下)においては、2016年度 の本格運用からこれまで100件を超える産学官による 利用(2016年度:38件、2017年度:64件、利用割合: 図1-1左下)がありました。今後も外部利用に向け、ロボットの試験方法の開発・設計、シミュレーション技術等の 開発を通じて試験設備の高度化を図っていきます。

燃料デブリや様々な放射性廃棄物の分析・研究を行うための施設として、大熊分析・研究センターを整備しています。 同センターは、施設管理棟(居室、会議室、ワークショップ 等から構成)、第1棟及び第2棟で構成されます(図1-1右上)。施設管理棟は2018年3月から運用が開始されました。現在、低、中線量のがれき類、水処理二次廃棄物等の分析を行う第1棟については建設を進めており、燃料デブリ等の分析を行う第2棟は詳細設計を行っています。

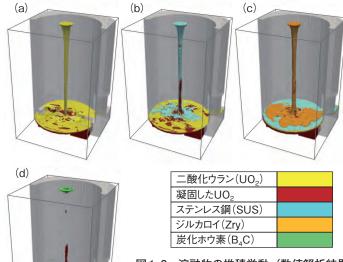
これら三つのセンターは、福島イノベーション・コースト構想の一翼を担う廃炉関連施設とされており、1Fの廃止措置の加速化に貢献していきます。

環境回復に関しては、福島県環境創造センターが策定 した中長期取組方針等に基づいて、原子力機構、福島県、 国立環境研究所の三者で研究開発等に取り組んでいます (図 1-1 左上)。2017 年 4 月に発生した帰還困難区域内 の十万山林野火災の際には、地域の要請を受けて、三者 が合同で火災に伴う放射性セシウムの挙動調査・解析を 実施しました。福島環境安全センターを中心に進めてい る研究開発としては、未除染の森林、河川、沿岸海域等 の線量評価手法の確立を目指した環境モニタリング・マッ ピング技術開発 (トピックス 1-10、1-11) や環境中に放 出された放射性物質の移動挙動を解明・予測すること を目的とした環境動態研究 (トピックス 1-12~1-15)、 除染・減容技術等に係る研究開発(トピックス 1-16~ 1-18) があります。さらに研究成果については、研究者、 自治体、地域の方々等の多様なニーズに応じたシステム を構築して、公表していきます(トピックス1-19)。

福島研究開発部門は、今後とも国内外の英知を結集し、1Fの廃止措置や環境回復のための研究成果を生み出し、発信していきます。また、地域の企業や研究・教育機関など関係機関と連携、ネットワークを構築することにより、地域産業の活性化や人材育成につなげ、福島復興に貢献していきます。

デブリはどのように形成されているのか?

大規模数値解析による詳細なデブリ分布推定と再臨界性の評価ー



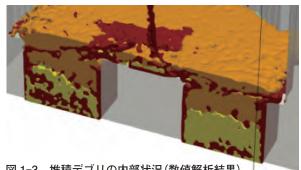


図 1-3 堆積デブリの内部状況(数値解析結果) 堆積したデブリの内部は溶融した U、凝固した U、Zry が複雑に分布していることが分かります(色が示す成分は 図 1-2 に同じ)。

図1-2 溶融物の堆積挙動(数値解析結果)

上部中心から密度の大きい順に(a)UO₂、(b)SUS、(c)Zry、(d)B₄C の順に落下させました。落下した物質が複雑に堆積していく様子が分か ります。B₄C は他の成分よりも流入量が少なくかつ上境界面での凝固 により、ペデスタル底部への落下はほとんど見られませんでした。

原子力発電所の過酷事故において炉心などが融ける ことで発生する、核燃料と構造物の混合物(燃料デブリ) の組成分布や、このような物質の再臨界の可能性の予測 は難しく、原子炉過酷事故時評価や、東京電力福島第一 原子力発電所(1F)の廃止措置における課題となって います。過酷事故では、原子炉停止から全電源停止まで のわずかな時間差の違いなどで、融けた物質の流れ落ち 方や堆積状況などに違いがあることが想定されます。一 般的に、わずかな時間差などの状況の違いの影響を考え るためには、計算機による数値解析が有効なツールと考 えられます。しかし、現在使われている過酷事故のため の数値解析手法では、様々な現象に対する近似や、原子 炉の形状などに対しての簡素化が行われており、デブリ の組成分布を推定することは困難でした。

原子力機構では、様々な仮定や近似を用いず、また 複雑な原子炉の形状をできるだけ正確に再現した上で、 溶融物の挙動を取り扱う数値シミュレーションコード JUPITER を開発しました。JUPITER は、物理的/熱 力学的に厳密な基本方程式のみを用いて物質の溶融、融 けた物質の移動や混合を計算し、デブリの組成分布を推 定することができます。

JUPITER を用いて、原子炉圧力容器の下の空間(ペ デスタル) への溶融物の堆積挙動の解析 (数百秒程度の 時間スケール)を行いました。さらに、得られたデブリの 組成分布を基に連続エネルギーモンテカルロコード MVP で中性子実効増倍率を求め、再臨界の可能性を調べま した。解析では、上面の中心部から密度の大きい順に、

融けた二酸化ウラン(UO。)、ステンレス鋼(SUS)、 ジルカロイ (Zrv)、炭化ホウ素 (B₄C) をペデスタル 内部へ流入させ、底部に堆積する様子を計算しました。 図 1-2 に示すように、最初に流入した UO。は、底部に ある2ヶ所のくぼみ(サンプピット)の中で一部固まり ながら、底部の床面に広がります(図1-2(a))。その後、 他の溶融物と複雑に混ざり合いながら、堆積していくこ とが分かります (図 1-2(b)~(d))。図 1-3 は、デブリ 内(溶融物を含む)の状態を見るために、ペデスタルの 中心断面を可視化した結果です。壁への熱伝導により冷 やされることで、壁に近い方からデブリが固まっている ことが分かります。また、重いUO2が下に、軽いZry が上に位置し、それらが複雑に分布しています。このよ うな分布は、物理的/熱力学的な基本方程式により、デ ブリの移動や凝固を計算したことで得られたものです。

これまでの再臨界解析では、デブリ内部は均一に混 ざった状態を仮定していました。ここでは、JUPITER で得られたデブリの組成分布を基に、MVPを用いて、 注水によりデブリ上部に水がある仮定の下、デブリ中に 水を含む場合と含まない場合の中性子実効増倍率を求め ました。その結果、非現実的な含水率を想定した場合を 除いて、臨界に至らない結果が得られました。

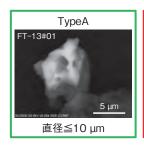
今後は、実験結果との比較による検証と、デブリ堆 積挙動について計算の条件を様々に変更した解析を行い ます。さらにそれらを基にした臨界性解析を実施し、炉 内状況の推定と保守性を排除した臨界性評価を通じて、 1F の廃止措置に貢献していく予定です。

●参考文献

山下晋ほか、燃料デブリ分布と再臨界予測における多相多成分詳細流体解析手法と連続エネルギーモンテカルロコードとの連成解 析,日本原子力学会和文論文誌, vol.17, issues 3-4, 2018, p.99-105.

1-2 事故初期に放出した2種類の不溶性セシウム粒子

- 主成分がケイ酸である粒子形成過程の解明-



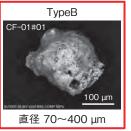


図1-4 不溶性 Cs 粒子と呼ばれる 2 種類の粒子 TypeA 粒子は数ミクロンと非常に小さく、首都圏を含め 広範囲で報告されていますが、TypeB は粒径が大きく、 1F1 北側の限られた場所で見つかっています。

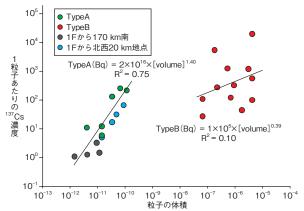
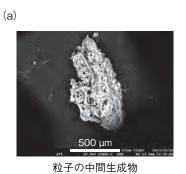


図 1-5 粒子の体積と Cs 濃度の関係 TypeA の比放射能は TypeB に比べ大きいことが判明しました。



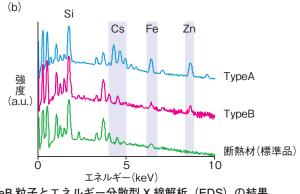


図 1-6 発見された生成途中と推定される TypeB 粒子とエネルギー分散型 X 線解析 (EDS) の結果 (a) 繊維状のケイ酸化合物が部分的に溶融している様子を確認できます。 (b) 標準的な断熱材と放射性粒子のうち TypeB の特徴が一致しました。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故では、事故初期の限られた時期に、水に溶けない(不溶性)セシウム(Cs)が放出したケースが確認されました。この不溶性かつ $1 \mu m \sim 1 mm$ 程度の大きさの粒子の放出は、福島事故固有の現象であると考えられています。

これまでの研究で2種類の不溶性Cs 粒子が確認されています(図1-4)。どちらの種類も主成分がケイ酸で、その中にCs が入り込んでいることが分かっています。ケイ酸は水に溶けない(ガラスコップと同じ成分)ため、粒子も水に溶けないものと推定されます。また2種類の粒子のうち、TypeAと呼ばれる粒子は、見つかっている粒子の大きさも数ミクロンです。放射能は弱いのですが、Csの濃度が高いため、検出感度があまり高くないエネルギー分散型X線分析装置を用いてもCsを検出することが可能です。一方、TypeBと呼ばれる粒子は大きさが数百ミクロンあり、肉眼で見ることもできますが、Csの濃度は低いことが確認されています。単位体積あたりの放射能濃度を比放射能といいますが、上記の関係を明らかにするため2種類の粒子を粒子の体積と含まれるCs濃度で図示すると、TypeB粒子の傾きはTypeA粒子に比

べ緩やかで、比放射能は TypeB 粒子の方が小さいことが明確になりました。また、2011 年 3 月 14 日未明から放出したと考えられている先行研究の結果(図 1-5 の●と●)と TypeA 粒子は、比放射能の関係が一致しました。

比放射能の小さい TypeB 粒子は、3月12日の1号 機(1F1)水素爆発で飛散したことが判明しています。 また、粒子が沈着している場所も、1F1 水素爆発直後 に汚染された、北側の限られた場所であることが明ら かになっています。TypeB 粒子を詳しく調べたところ、 繊維状のケイ酸化合物が付着している例が確認されまし た (図 1-6(a))。この発見を基に原子炉建屋周辺で使用 されているケイ酸化合物を調査したところ、建屋内部で 使われていた断熱材の元素組成と、TypeB 粒子の構成 元素がほぼ一致しました(図 1-6(b))。このことから、 TypeB 粒子については原子炉建屋に充満した Cs がケ イ酸化合物でできた繊維状の断熱材に吸着し、水素爆発 の熱と爆風により収縮・粉砕し、飛散したものと推定さ れました。一方、TypeA 粒子は比放射能が大きいなど の特徴から、生成過程には不明な点が多く、今後の検討 課題となっています。

●参考文献

Satou, Y. et al., Analysis of Two Forms of Radioactive Particles Emitted during the Early Stages of the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Station Accident, Geochemical Journal, vol.52, issue 2, 2018, p.137-143.

1-3 ステンレス鋼とセシウムの化学反応を解明する 東京電力福島第一原子力発電所炉心内セシウム分布評価に向けて一

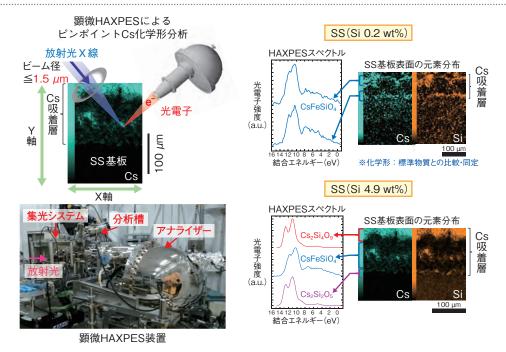


図 1-7 Cs を付着させた SS の顕微 HAXPES によるピンポイント Cs 化学形分析結果

水酸化セシウム蒸気と反応させた SS 断面の微細組織観察の元素分布(右図) により、Cs 付着層の Si と Cs が似た分布挙動を 示していることから、両者が化合物を形成していることが示唆されました。さらに顕微 HAXPES(左下図)の化学形分析により、 SS中のSi濃度の違いにより生成するCs化合物の化学形が異なることが分かりました(右図)。今後は、その存在が明らかとなっ た Cs 化合物の化学特性を考慮したモデルを構築することで、炉心内の Cs 分布評価の精度向上に貢献していきます。

東京電力福島第一原子力発電所における作業員の被 ばくを管理する上では、γ線源の大半を占めるセシウム (Cs) の炉心内分布に関する情報が必要になります。特 に、Cs が構造材のステンレス鋼(SS)と化学反応を起 こして固着する Cs 化学吸着挙動の評価が重要です。こ れまで、事故進展解析コードを用いた Cs 化学吸着量の 予測が行われてきましたが、解析コード間で解析結果に 大きな差異が見られるなど、不確かさが大きいのが現状 です。この原因の一つとして、モデルで考慮する Cs の 化学形が異なっていることが挙げられています。

Csは、様々な化学形をとり、蒸気圧や水への溶解度 が化合物の種類によって大きく異なるため、燃料や炉心 内の構造物中に存在する Cs がどのような化学形をとる かによって、燃料や炉心内構造物からの放出されやすさ や、気相中、あるいは、水相中への移行のしやすさに大 きな影響を与えることが考えられます。したがって、炉 心内の Cs 分布の精度を向上させるためには、炉心内構 造物に多く用いられている SS に付着した Cs の化学形、 すなわち、SSと Cs蒸気との化学反応を明らかにする ことが重要となります。ところが、これまで、SS中に 不純物として存在しているケイ素(Si)と Cs が化合物 を形成していることは分かっていましたが、生成する化 合物の大きさが非常に微細なためか、様々な Cs 化合物

の存在が示唆されるなど、はっきりしていませんでした。

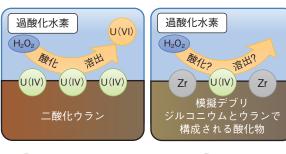
そこで私たちは、マイクロビーム放射光を励起光と する硬 X 線光電子分光装置(顕微 HAXPES)と走査 型電子顕微鏡(SEM)を組み合わせた分析法を用いる ことで、ミクロンレベルで存在する化合物を同定するた めの分析技術開発に取り組みました。また、Cs 化合物 の化学形については、SS中のSi濃度に影響する可能 性が考えられたため、Si濃度の異なる試料を用いた試 験を行いました。その結果、これまで明らかになって いなかった SS と Cs 蒸気との化学反応により生成する Cs化合物の同定に成功し、その分布を明らかにしまし た (図 1-7)。すなわち、SS 中に微量に存在する Si 濃 度が高くなると鉄 (Fe) の入った Cs 化合物 (CsFeSiO4) のみではなく、Cs₂Si₂O₅やCs₂Si₄O₉といった組成の異 なる Cs 化合物が生成するようになり、複雑な化学反応 が起きていることが分かりました。

今後は、本研究でその存在が明らかとなった様々な Cs 化合物に対して、その化学特性、すなわち、蒸気圧 や水への溶解度等を明らかにしていきます。そして、こ れら Cs の放出移行挙動に影響を与える主要な因子を考 慮したモデルを構築することで、炉心内の Cs 分布評価 の精度向上に貢献していきます。

●参考文献

Kobata, M., Nakajima, K. et al., Chemical Form Analysis of Reaction Products in Cs-Adsorption on Stainless Steel by Means of HAXPES and SEM/EDX, Journal of Nuclear Materials, vol.498, 2018, p.387-394.

1-4 被覆材が混ざった核燃料は水に溶けにくくなる ージルコニウムによるウラン酸化物の溶出抑制を観測ー





U(VI) 溶けやすい 6価ウラン



ジルコニウム

図 1-8 過酸化水素による U の溶出反応 U の溶出が燃料デブリで起きるかどうかは分かっていませんでした。そこで模擬デブリを使って実験を行いました。

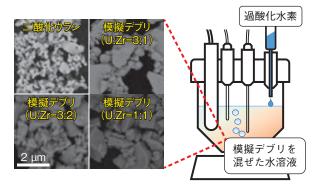


図1-9 試料の電子顕微鏡像と反応実験の方法 実験ではUO₂ 及び模擬デブリを使って、水溶液中での過酸化水素との反応を調べました。

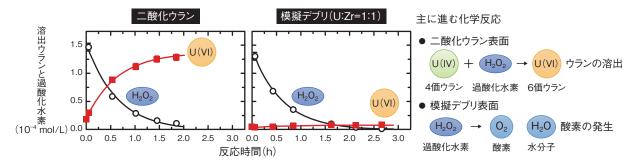


図 1-10 UO_2 と模擬デブリとの過酸化水素反応挙動の比較 UO_2 では過酸化水素の反応が U の溶出を引き起こします。一方、模擬デブリでは U の溶出はほとんど起こらず、過酸化水素は酸素と水分子とに分解することが分かりました。

原子炉で使用された核燃料は高い放射能を持つため、水と接触すると放射線作用による化学反応が起こり、核燃料を構成するウラン(U)が水に溶け出すことが知られています。そのため、東京電力福島第一原子力発電所(1F)の燃料デブリでも類似の反応が起きる可能性がありますが、溶融により組成が変化した燃料デブリではどの程度の溶出が起きるのか分かっていませんでした。

放射線作用による U の溶出は、図 1-8 のように水の 放射線分解で作られる過酸化水素により核燃料表面の 4 価の U が酸化され、水に溶けやすい 6 価の U になるた めに起こります。燃料デブリの酸化劣化を推定するため には、この過酸化水素の反応がどのように進むのかを理 解する必要がありました。

今回の研究では、燃料デブリに多量に含まれると考えられるジルコニウム(Zr)の影響を調べました。Zr は核燃料を被覆する材料の主成分で、スリーマイル島原子力発電所事故の燃料デブリにも多量に含まれていた物質です。実験では、図1-9に示すように、模擬デブリとしてZrとUで構成される酸化物を調製し、水中で過

酸化水素と反応させ、溶け出してくる U の量を測定しました。その結果、過酸化水素濃度の低下により何らかの反応が起きていることがうかがえるものの、U の溶出はほとんど見られませんでした。結果の例として、過酸化水素との反応により U が溶け出してくる様子を二酸化ウラン (UO2) と模擬デブリ (U と Zr の比が 1:1) との間で比較したものを図 1-10 に示します。この結果から、模擬デブリ表面では過酸化水素が分解されているのではないかと考え、検証実験を行いました。その結果、模擬デブリの表面では、過酸化水素はわずかに U を酸化するだけで、ほとんどが分解して酸素となっていたことが明らかになりました。この結果から、Zr を含む燃料デブリは放射線作用による酸化に対して高い耐性を持つと期待することができます。

今後は、Zr以外の含有元素についても検討し、燃料デブリの中長期的な化学的安定性に関する基礎研究を通じて、1F燃料デブリの安全な取出しと保管を支援していきます。

●参考文献

Kumagai, Y. et al., Reaction of Hydrogen Peroxide with Uranium Zirconium Oxide Solid Solution-Zirconium Hinders Oxidative Uranium Dissolution, Journal of Nuclear Materials, vol.497, 2017, p.54-59.

汚染水処理により発生する廃棄物を調査する

-炭酸塩スラリーの詳細な分析-



図1-11 炭酸塩スラリーの外観写真

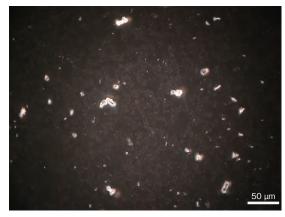


図 1-12 炭酸塩スラリーの拡大画像 図より、粒子径分布測定を行った結果、粒子径が数 µm 程度の粒子が多いことが分かりました。

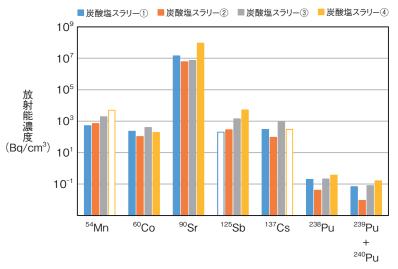


図 1-13 放射化学分析結果 4種類の炭酸塩スラリーの放射化学分析結果です。スラリー中 では⁹⁰Srの濃度が一番高いことが分かりました。 (白抜きのバーは、検出下限値を示します。検出下限値は測定 核種ごとに異なります。)

東京電力福島第一原子力発電所(1F)では、汚染水 中の放射性物質の除去を目的として、多核種除去設備な どの汚染水処理設備が稼働しています。汚染水処理に伴 いスラリーや使用済み吸着材といった二次廃棄物が発生 しています。このような二次廃棄物は、通常の原子力発 電所の運転では発生しないため、安全に保管し処理・処 分する方法を新たに検討する必要があります。そのため には、廃棄物の性状を明らかにすることが重要です。

多核種除去設備から発生する二次廃棄物のうち、炭 酸塩沈殿工程から発生する炭酸塩スラリーは、廃棄物中 の放射性物質の量や種類が多く、発生量も多いため、廃 棄物の中でも優先的に分析する必要があります。そのた め、1Fの多核種除去設備から発生した炭酸塩スラリー が保管されている高性能容器 (HIC) より、発生時期や 採取位置を変えて4種類採取し、原子力機構にて各種 分析を行いました。

採取した炭酸塩スラリー (図 1-11) は、10 mL を PET バイアルに入れた状態で 10~100 mSv/h ほどの 高い線量率(容器表面の線量率)でした。

マイクロスコープにより炭酸塩スラリーの拡大画像 を撮影 (図 1-12) し、炭酸塩スラリーの粒子径分布測

定を行った結果、粒子径が数 μm 程度の粒子が多いこと が分かりました。

誘導結合プラズマ発光分光分析(ICP-AES)装置を 用いた元素濃度分析の結果、マグネシウム(Mg)及び カルシウム (Ca) が炭酸塩スラリーの固体成分中のそ れぞれ20質量%程度であり、炭酸塩沈殿工程での除去 対象である Mg 及び Ca を除去できていることが分かり

炭酸塩スラリーの放射化学分析の結果、主に図 1-13 に示す8核種が検出され、最も放射能濃度の高い核種 はストロンチウム-90 (⁹⁰Sr) であることが分かりました。 また、炭酸塩スラリーから発せられる高線量の放射線は、 ⁹⁰Sr とその娘核種であるイットリウム-90(⁹⁰Y)由来の 放射線であるということが分かりました。

これらの分析結果は、炭酸塩スラリーの処理処分方 法の検討に役立てられます。

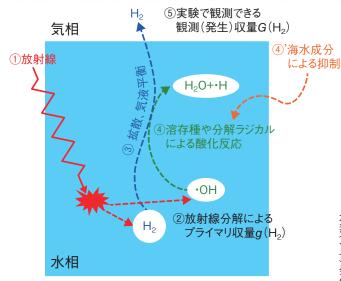
本研究は、経済産業省平成25年度補正予算「廃炉・ 汚染水対策事業費補助金(事故廃棄物処理・処分技術の 開発)」及び平成26年度補正予算「廃炉・汚染水対策 事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開 発) | の一部です。

●参考文献

Fukuda, Y. et al., Characterization of Carbonate Slurry Generated from Multiple Radio-Nuclides Removal System in Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Proceedings of 2017 International Congress on Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP 2017), Fukui and Kyoto, Japan, 2017, paper 17077, 10p., in CD-ROM.

1-6 汚染水処理後の二次廃棄物等を安全に長期保管する

- 事故対策・廃止措置を随所に支える放射線分解研究の進展-



一般的に $G(H_2) \leq g(H_2)$

表 1-1 1F 廃止措置で重要な H。発生への影響因子

影響因子	影響因子による主な現象(本研究)		
海水塩分 (X ⁻ 、ハロゲン化物イオン)	塩化物・臭化物イオン X ⁻ による酸 化性の・OH ラジカルの消費(捕捉)		
ゼオライト、 固体酸化物	固体の表面と酸化性の生成物(・OH を含む)との結合(相互作用)		
液深 (浸水高さ)、粘度	水中の反応から逃れる H₂の液面への到達(水中での滞在)時間		
液体流動			
吸収線量率	エネルギー吸収の異なる場所(孤立スパー)で生成した H₂ と・OH との反応		

東京電力福島第一原子力発電所 (1F) 事故直後から、私たちは汚染水処理や二次廃棄物などの保管方策を中心に、冷却水に含まれる海水の塩分を主要な影響因子としてセシウム吸着、水素 (H₂) 発生、構造材の腐食、ガスや熱の流動といった一連の研究開発を進めて、そこで得た成果を適時、東京電力や関連メーカーに安全対策上必須の情報として提供してきました。また、中長期ロードマップに基づく 1F 廃止措置の中で生じた放射線関連などの諸問題に対してもその都度、それらの原因究明への要請に迅速に応えて協力してきました。

その中で、H₂ 発生は建屋損壊などの事故拡大の原因となった爆発と結びついて、廃棄物処理・処分を含む廃止措置(放射性物質管理)において最も危惧すべき現象と考えられています。その発生源の中で、特に水の放射線分解は核分裂生成物や超ウラン元素の放射性物質からの放射線によって起こるため、数百度以上の高温を必要とせず、原子炉内だけでなく、放射性物質が存在する全ての場所で継続的にH₂を発生させることができるため、今も廃止措置の各段階に応じた研究を進めています。

図 1-14 放射線分解による水素 (H_2) 生成と水中での反応 (模式) 平常時の炉心の密閉条件では H_2 は水中に溶存していますが、事故時には開放状態になってしまい、ほとんど大気中に放出されます。 放射線①で生成した H_2 ②は液面に移動する際③、同じく生成したラジカルに捕らえられます④が、海水の塩分はこの捕捉をブロックしてしまいます④'。

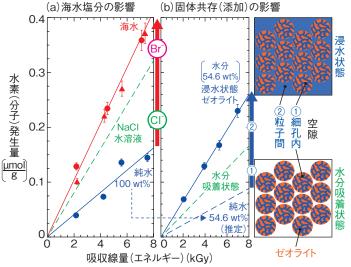


図 1-15 H_2 発生に及ぼす (a) 海水塩分の影響と (b) 固体共存 (添加) の影響 (試料高さ一定 (1 cm) 条件)

海水(a) では塩化物イオン(CI^-)、臭化物イオン(Br^-)の順に影響して、純水に比べて H_2 発生量が大きくなります。浸水したゼオライト(b) では水の入る場所の粒子内の細孔①、粒子間の隙間②の順に影響して、浸水時の水分だけでは説明できない H_2 発生の促進が確認されます。

放射線による水の分解で H_2 が生成してから大気中に 放出されるまでの現象(図 1-14)は、水一金属反応な どのほかの H_2 発生源と違って、様々な過程を経て起こ るため、 H_2 発生は多くの条件、因子の複合的な影響を 受けます。このため、基礎研究で扱わない実際の材料や 実機を再現した条件を基にして、1F で鍵となる H_2 発 生への影響を科学的に見いだしてきました(表 1-1)。

実験結果の代表例を図 1-15 に示します。事故時に投入された海水は純水と同様に原子炉を冷却しますが、海水での H_2 発生は純水よりも大きくなります (図 1-15 (a))。これは塩辛さを生む塩分の塩化物イオン(Cl^-)と臭化物イオン(Br^-)が水中の H_2 消費を抑えてしまうためです。また、浸水したゼオライト試料から発生する H_2 は、試料を占める水(重量%)からの H_2 だけでは説明できません(図 1-15 (b))。これは水の分解生成物とゼオライトの固体表面との相互作用のためで、この影響を考慮することは従来の施設安全評価の向上につながります。

本研究では、材料の腐食を及ぼす過酸化水素 (H_2O_2) やその分解で生じる酸素 (O_2) についても調べています。

●参考文献

永石隆二, シビアアクシデント後対策のための水の放射線分解研究の展開, Radioisotopes, vol.66, no.11, 2017, p.601-610.

1-7 東京電力福島第一原子力発電所建屋内部の汚染状況を把握する - 放射性物質の三次元可視化技術の開発 -

信号処理基板 光学カメラ



図 1-16 小型・軽量コンプトンカメラ の外観

コンプトンカメラは、γ線を測定するセンサーと、信号を処理するための基板及び光学写真を撮影するためのカメラから構成されています。

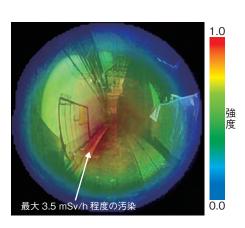


図 1-17 1F3 号機タービン建屋内通路に おける放射性物質の可視化結果

床面に這わされたホース付近の床面・壁 面に局所的な汚染を映し出すことに成功 しました。

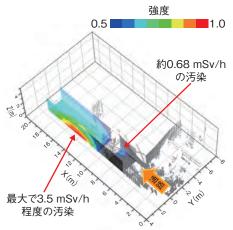


図1-18 放射性物質の三次元分布図 測定現場の三次元モデルに放射性物質の可 視化イメージを重ね合わせて作成した汚染 分布マップです。

"見えない放射線を見る"一これは、放射線から人を守ることはもちろん、その場所の汚染状況を把握するためにも重要です。東京電力福島第一原子力発電所(1F)建屋内では床面や壁、天井、機器、がれき等の様々な物体に放射性物質が付着しており、汚染箇所が三次元的に存在しています。また、建屋内には作業員が侵入できない、長時間作業が実施できないといった放射線量率が高いエリアが存在します。このような高線量率環境において三次元的な汚染の分布を遠隔で測定することにより、汚染源を特定し、効率的な除染に役立てることができれば、廃炉作業の一層の加速につながります。今回、1Fの建屋内部に飛散した放射性物質を三次元的に可視化するための手法を開発しました。

飛散した放射性物質による汚染の分布を測定するための装置として、目に見えない放射性物質を可視化できるガンマカメラという放射線測定器が有望視されています。しかし、従来のガンマカメラは数 kg ~数+kg と重いため、廃炉現場での活用が容易ではありませんでした。

原子力機構は、早稲田大学の片岡らが開発したコンプトンカメラ (ガンマカメラの一種) をベースに線量率が高い現場でも持ちこみやすく、遠隔機器にも搭載可能なように約680gまで小型軽量化したコンプトンカメラを開発しました (図1-16)。小型化を達成したことにより、従来のコンプトンカメラでは大きな遮へい体が必要となる高線量率環境においても、遮へい体を小さく

し、可搬性を保ったまま測定を行うことができます。今回このコンプトンカメラを用いて、東京電力の協力のもと、1F3号機タービン建屋内通路で汚染分布の測定試験を実施しました。その結果、空間線量率が0.4~0.5 mSv/h の高線量率環境において、表面線量率が最大3.5 mSv/h 程度の局所的な汚染源の撮影に成功しました。図1-17は、光学カメラで取得した測定現場の写真に、得られた汚染分布のイメージを重ねて放射性物質(主として¹³⁷Cs)を可視化したものであり、測定の所要時間は1分未満でした。

さらに、レーザー光を利用した測域センサーを用いて測定現場の三次元モデルデータを取得し、ここにコンプトンカメラで取得した汚染分布のイメージを重ねることにより、汚染分布を三次元的に描画することに成功しました(図1-18)。測定環境の壁面及び床面において、周囲に比べて線量率が高い2ヶ所の汚染源が映し出されています。この汚染分布図は、実環境の寸法や外観を反映していることから、作業員が汚染源の在りかをこの分布図を用いて視認することにより、注意喚起に伴う被ばく線量の低減や、除染計画の立案に役立つものと考えています。

現在、小型クローラーロボットへの本システムの搭載を進めており、併せて遠隔で1F原子炉建屋内部の三次元汚染分布を測定するためのシステムの開発を進めています。

●参考文献

Sato, Y. et al., Radiation Imaging Using a Compact Compton Camera Inside the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Building, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.55, issue 9, 2018, p.965-970.

1-8 レーザーによる遠隔サンプリングを目指して -レーザーを用いたコンクリートのサンプリング技術開発-

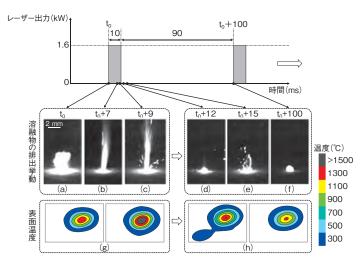


図 1-19 レーザー照射部の様子と照射部周辺の温度分布 レーザーの照射条件は、パルス幅 10 ms、ピーク出力 1.6 kW、繰り返し周波数 10 Hz、スポット径 1.1 mm です。時間 t_0 はレーザーを照射した瞬間を示します。(a) \sim (f) は高速度カメラで撮影した映像であり、(a) \sim (c) がレーザー照射中、(d) \sim (f) はパルス照射間のレーザー停止中の様子です。(g) 及び(h) は赤外線サーモグラフィで撮影したレーザー照射部周辺の温度です。直接レーザー照射中の挙動を観察することで、現象の把握を行いました。

東京電力福島第一原子力発電所の安全で確実な廃止措置は、国家的課題です。この廃止措置においては、原子炉圧力容器、原子炉格納容器等の構造物の長期健全性が重要視されており、それらの評価を行うための研究開発が行われています。他方、高度経済成長期に建設された道路、トンネル等の公共インフラにおいても老朽化に伴い、その健全性保持と更新が国家的課題です。これらに共通する技術的な課題は、作業者の安全を確保し、かつ効率的に検査可能な技術の確立です。廃止措置では、高線量等の理由により人が近づいて作業を行うことが困難であり、公共インフラでは、高所作業等で作業者が常に危険にさらされることから、ロボット等の遠隔操作機器を組み合わせた技術が必要不可欠です。

レーザー技術は、遠隔操作機器とのマッチング性、コンパクト性等の優れた特徴を有することから、各分野で注目されています。本研究では、このレーザー技術を活用してコンクリート構造物を対象とした遠隔サンプリング技術の開発を行いました。レーザーは準連続発振(Quasi Continuous Wave:QCW)ファイバーレーザーを用いており、この特徴は、光軸調整が不要なことや、光ファイバーによるフレキシブルな導光等がありますが、特筆すべきはレーザー照射時の時間幅(パルス幅)をミリ秒に制御しつつ、高ピーク出力で照射可能なことです(パルス照射)。図1-19にレーザー照射中の様子とレーザー照射部周辺の温度分布を示します。図1-19(a)~(c)に示すように、レーザーをコンクリートに照射すると、

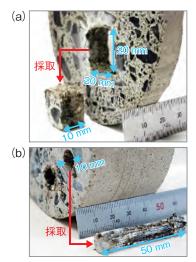


図 1-20 コンクリートのサンプリング試験結果
(a) はレーザーピーク出力 2 kW で四角柱型のサンプリング 試験を行った結果です。32 秒で 20 mm 角、深さ 10 mm の サンプリングが可能となりました。(b) はレーザーピーク出 力 6 kW で円筒型のサンプリング試験を行った結果です。 ピーク出力を増加させることで、直径 10 mm、深さ 50 mm のサンプリングが可能となりました。

そのエネルギーにより表面が溶融、蒸発するとともに電離が起こり、レーザーと同軸上にレーザー誘起プラズマ・プルームが生成します。これにより、レーザーエネルギーの物質への吸収が促進され、高温・高圧状態が生じ溶融物が周辺に飛散します。ただし、パルス照射間のレーザー停止中も図1-19(d)~(f)に示すように、プルームは消失しますが、溶融物の飛散は継続します。図1-19(g)、(h)に示すように、レーザー照射部の溶融物はレーザー停止中も1300℃以上に維持されます。以上のことから、今回の試験では、連続照射よりもレーザー停止中に溶融物を排出でき、より深い部分にレーザーを到達させることが可能なパルス照射の有効性を示すことができました。さらに、適切なパルス照射は照射部を溶融状態に保ちつつ、周辺への熱影響を減少させることが期待できることが分かりました。

図 1-20 は、レーザー照射によるコンクリートのサンプリング試験の一例です。レーザーピーク出力を増加させることで、深さ 50 mm 厚のサンプリングが可能となりました。

本技術の実用化に向けては、コンクリートの機械的 強度低下を防止するため、さらなる熱影響部の制御等の 課題はありますが、近い将来、廃止措置や公共インフラ 補修への貢献が期待できます。

本研究は、内閣府総合科学技術・イノベーション会議の戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)「インフラ維持管理・更新・マネジメント技術」の成果の一部です。

●参考文献

Nguyen, P. L., Yamada, T. et al., Experimental Characterization of Concrete Removal by High-Power Quasicontinuous Wave Fiber Laser Irradiation, Journal of Laser Applications, vol.29, issue 4, 2017, p.041501-1-041501-11.

1-9 廃止措置のためのロボットシミュレータの開発 ーシミュレーションによる遠隔操作習熟、ロボット性能評価ー



図 1-21 開発したロボットシミュレータ 1F 原子炉建屋内三次元データを利用して遠隔操作ロボット の性能評価やオペレータの操作訓練を行うシミュレータを 開発しました。

東京電力福島第一原子力発電所 (1F) の廃止措置では、 人が作業現場に近づくことが難しいため、遠隔技術の導 入が不可欠です。作業現場は階段やがれき、水没領域な どの環境があり、作業内容も調査や除染等と多様です。 必要となる機器の仕様や性能は多岐にわたるとともに、 これらの機器を有効に活用するためには高度な操作技術 が必要となり、操作者を訓練していく環境の整備が重要 です。しかし、ロボット設計開発時における試行錯誤や 操作訓練時に必要なフィールドの構築、ロボットの破損 等の負担は少なくありません。そこで本研究では、計算 機上で仮想的な作業環境モデル及びロボットモデルを用 いて、廃止措置に係るロボット開発及び操作訓練の効率 化に寄与するために、ロボットシミュレータと呼ぶ技術 の開発を行っています(図1-21、図1-22(a))。

開発中のロボットシミュレータは、産業技術総合研究所が 開発しているロボット開発用統合ソフトウェア Choreonoid (コレオノイド)をベースとしていて、私たちは1F内三 次元データを取り込んで、廃止措置のロボットによる遠 隔作業に必要となる模擬機能を追加し、ロボット開発や 遠隔操作習熟に役立てるための研究開発をしています。

廃止措置では原子炉建屋内調査や格納容器内調査作 業の一部は水没領域で実施されていて、水中環境での遠 隔機器・ロボットの動作検証や操縦訓練を行うことは大 変重要です。そのため、私たちはロボットシミュレータ の機能の一つとして、水中ロボット動作模擬機能の開発 を行いました。シミュレータに読み込んだロボットモデ





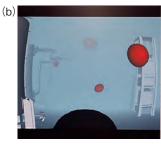




図1-22 シミュレーションによる再現の例と模擬効果の例 (a) 右側が実際の実験環境とロボット、左側がシミュレータ 上に実現した例です。(b) 水中環境シミュレーション時に、 視覚効果模擬機能として障害物の出現と透明度を変化させた 例を示しています。

ルの動作を模擬するために、ロボットモデルのボディに対 する表面力や浮力、機器のモデルを移動させることによ り発生する抵抗力、揚力等を計算することができます。

また、これまでの廃止措置の作業において、遠隔機器・ ロボットに搭載されている操縦用カメラのレンズへの塵や 汚れ等の付着や、ノイズの影響により映像上の視認性に 影響を与える障害が発生しています。そこでカメラ視野に 視覚的なノイズや障害物、レンズの歪み効果、透明度等を 模擬的に提示する機能の開発を行いました(図 1-22(b))。

さらに、廃止措置に用いられている遠隔操作ロボットは、 信頼性の観点から有線ケーブルを介して双方向に制御信 号やデータの通信を行うシステムによって操縦されてい ます。このような有線通信の場合でも通信状態に関わる トラブルが報告されており、通信状態変化を含んだ状況 で機器の操縦訓練を行うことが重要です。このため、私 たちはシミュレータ内の通信伝達遅延、通信データの欠 損、通信速度の低下等の状態を設定することで通信状態 を変化させる通信障害模擬機能を開発しました。これら の開発した模擬機能はシミュレータに実装され、シミュ レータに取り込んだロボットモデルや 1F の原子炉建屋 内三次元環境モデルと連携することで、遠隔操作ロボッ トによる作業を体験することができます(図1-21)。

現在も廃止措置の進行とともに必要となってくる模 擬機能の開発や作業環境データの整備等を進めており、 今後もロボットの開発促進やオペレータの操作習熟の観 点から廃止措置の推進に寄与していきます。

●参考文献

Kawabata, K. et al., Development of a Robot Simulation System for Remotely Operated Robots for Operator Proficiency Training and Robot Performance Verification, Proceedings of 14th International Conference on Ubiquitous Robots and Ambient Intelligence (URAI 2017), Jeju, Korea, 2017, p.561-564, in USB Flash Drive.

1-10 上空からの土壌中の放射性物質の深さを検知 - r 線スペクトルを利用した深度分布推定技術の開発-

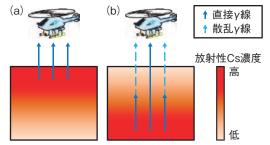


図 1-23 無人ヘリによるモニタリングイメージ

(a) 放射性 Cs の土壌中の分布深さが浅い場合、放射性 Cs から放出される直接 γ 線の割合が高く、(b) 分布深さが深い場合、直接 γ 線は土壌粒子で遮へいされ、散乱 γ 線の割合が高くなります。

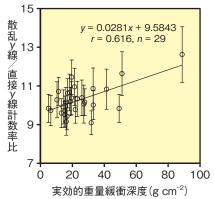


図 1-24 無人ヘリとコア土壌の測定結果 エラーバーは、得られた計数率の計数誤差を表します。土壌中放射性 Cs の分布深さに応じて、無人ヘリ測定で得られた散乱 γ 線/直接 γ 線の計数率比が変化していると考えられます。

東京電力福島第一原子力発電所事故から7年経過し、土壌表面に沈着した放射性セシウム(Cs)は、降雨、天地返しと呼ばれる除染工法及び動物による掘り返し等で、深い場所に高濃度で存在するケースがあることが分かっています。土壌深くの放射性 Cs は、植物の根から吸収される恐れがあり、その範囲を簡便に地表で検知できる技術が求められていました。また、そのような技術は、除染する深さを決定する上でも有用です。私たちは、事故後から、無人へリ(R-Max G1、ヤマハ発動機株式会社)を用いた放射線モニタリング技術の開発を行っており、この技術は、広い範囲の放射性 Cs の分布状況を迅速かつ簡便に測定することを可能としてきました。

今回、上空で取得できる γ 線スペクトルの特徴から、土壌中放射性 Cs の深さを測定する技術の開発に成功しました。図 1-23 に示すような理論が正しいのか、直接 γ 線領域及び散乱 γ 線領域の割合と、同じ場所の土壌サンプルによる深度分布データとの比較実験を圃場で実施しました(図 1-25)。この圃場は、南部を除いて反転耕と呼ばれる土壌の天地返しを行っています。モニタリングで得られた γ 線スペクトルから、散乱 γ 線領域(50~450 keV)及び直接 γ 線領域(450~760 keV)の計数率比(\underline{R} atio of \underline{P} eak and \underline{C} ompton:RPC)を計算しま

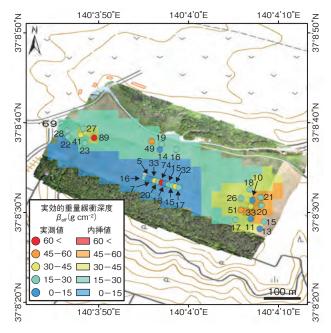


図 1-25 Cs の深さ分布の推定 β_{eff} と実測 β_{eff} の比較図 1-24 の相関式から推定した β_{eff} は、実測値とおおむね一致しました。無人へりの結果から推定された β_{eff} は、そのエリアでの平均的な土壌中放射性 Cs の分布深さを表していると考えられます。

した。放射線検出器には、 137 Cs に対してエネルギー分解能が良好な LaBr $_3$ (Ce) シンチレータを用いました。土壌では、採土器を用いて約 60 cm のコアサンプルをランダムに採取し、実験室で放射性 Cs 濃度を測定した結果から、土壌中放射性 Cs の分布深さを求めました。分布深さは、実効的重量緩衝深度 (β_{eff} (g cm $^{-2}$)) というパラメータで表すことができます。このパラメータの値が大きいほど、放射性 Cs の土壌中分布深さが大きいことを意味しています。

図 1-24 に示すように、RPC 及び $\beta_{\rm eff}$ の間には良好な正の相関がありました。その相関式から、図 1-25 に示すように圃場全体の推定 $\beta_{\rm eff}$ マップを作成しました。圃場の全域を無人ヘリで測定した結果に、土壌サンプリングの結果(丸印)を併せて示しています。このように広い圃場の土壌中放射性 Cs 分布を、無人ヘリによるモニタリングで推定することができました。これらの技術は、今後、広範囲の帰還困難区域の除染を効率的に進める上でも、有効な手段となると考えられます。

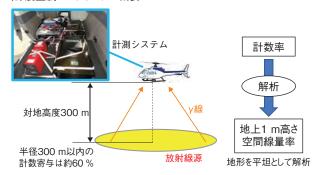
本研究は、独立行政法人家畜改良センター及び東京 大学との共同研究「圃場空間線量モニタリングと土壌から牧草への放射性セシウムの移行環境の解明」の一部と して実施した成果です。

●参考文献

Ochi, K. et al., Estimation of the Vertical Distribution of Radiocesium in Soil on the Basis of the Characteristics of Gamma-Ray Spectra Obtained via Aerial Radiation Monitoring Using an Unmanned Helicopter, International Journal of Environmental Research and Public Health, vol.14, issue 8, 2017, p.926-1-926-14.

1-11 起伏地形の放射線量分布をより高精度に捉える - 起伏地形における高精度な航空機モニタリングの実現 -

(a) 航空機モニタリングの概要



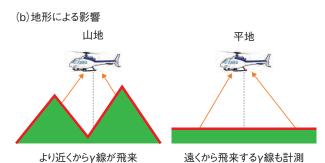


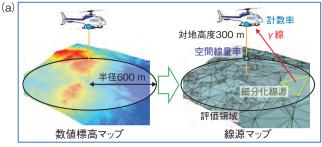
図1-26 地形の起伏による測定への影響

(a) 航空機モニタリング測定データ解析は地形を平坦とみなして計数率を空間線量率に換算しています。(b) 同レベルの汚染でも計測 γ 線計数率は異なります。

航空機モニタリングは、対地高度約300mの上空から広域なエリアに対して、地上における空間線量率や地表面に沈着した放射性核種濃度を迅速に測定することができる、モニタリングツールの一つです(図1-26(a))。航空機モニタリングでは、有人ヘリコプター以外に、無人飛行機やドローン等様々な飛翔体が使用されています。航空機モニタリングによって得られたデータは、汚染状況の把握をはじめとする様々な用途に使用されています。その中でも、近年、住民の被ばく線量の推計等にも用途が拡大されていることから、データの精度を向上させることは重要な課題の一つとされています。

現在までに日本国内で実施されている航空機モニタリングでは、測定されたデータを解析する際に、測定対象の地形を全て平坦であるとみなして解析が行われています。地形に起伏があることによって、同程度の汚染密度にもかかわらず、測定される計数率が異なるため、地上の空間線量率を過大・過小評価してしまう可能性があります(図 1-26(b))。日本の場合、原子力発電所周辺の地形が比較的平坦である欧米と比べて、国土に対して山地が占める割合が多いため、その影響を把握するとともに、解析誤差の低減方法を開発しています。

航空機モニタリングにおける解析では、計数率 C (cpm) を空間線量率換算係数 CD (cpm/(μ Sv/h)) で除することによって地上 1 m 高さの空間線量率 D (μ Sv/h) が算



数値標高マップを三角形面線源の集合体として上空300 mに おけるγ線束を計算

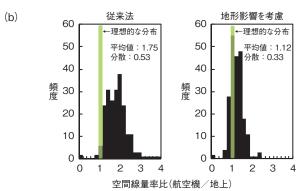


図1-27 地形の起伏を考慮したデータ解析手法と結果 地形の起伏に応じた γ 線計数率を計算し、空間線量率を求め ました。従来法と地形影響を考慮した手法により得られた空 間線量率を地上測定結果と比較しました。

出されています。

D = C/CD

地形に起伏がある場合、CD 値が測定対象となる地形に応じて異なるため、この影響を考慮した解析を行いました。図 1-27 (a) に示すように、測定点直下の数値標高マップから三角面線源を組み合わせた線源マップを作成し、線源マップを構成する小三角形面線源群から放出される γ 線の上空 $300~\mathrm{m}$ における線束の計算値を基に、各測定点の地形に応じた CD 値を用いて解析を行いました。

福島県内の217地点における航空機モニタリングと地上測定により得られたDを比較することによって、地形効果を考慮した場合と考慮しない場合の精度を比較・評価しました。評価には、図1-27(b)に示す航空機モニタリングと地上測定値との比の頻度分布を使用しており、一線で示すような分布が最も理想的な分布となります。頻度分布の比較から、地形影響を考慮した手法を用いた場合、従来法を用いた場合の平均値で1.75に対して1.12、分散は0.53に対して0.33となり、より地上測定値に近い値が得られる結果となりました。

本研究により、地形影響を考慮することによって、データ解析精度が向上することが示されました。将来的に国内で実施されている航空機モニタリングへの実装を目指します。

●参考文献

Ishizaki, A. et al., Application of Topographical Source Model for Air Dose Rates Conversions in Aerial Radiation Monitoring, Journal of Environmental Radioactivity, vol.180, 2017, p.82-89.

1-12 放射性セシウムは町のどこにどれだけ存在するか? - 市街地における放射性セシウムの分布評価-

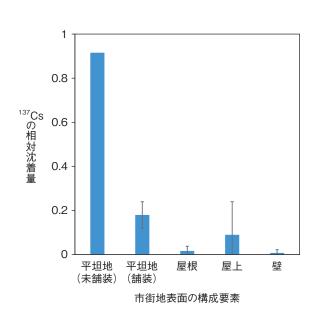


図1-28 市街地表面の構成要素ごとの ¹³⁷Cs 相対沈着量 エラーバーは、得られた相対沈着量の標準偏差を表します。調 査を行った 2015 年 1 月時点で、市街地に特有の構成要素では、 未舗装の平坦地に比較して沈着量が顕著に低いことが分かりま した。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故後、陸域 における放射性セシウム (Cs) の動態は、森林や河川 といった環境において様々な調査がなされてきました。 一方、市街地の放射性 Cs の動態はあまり評価されてい ませんでした。市街地は草地や畑地といった土壌面のほ か、家屋や舗装面など多様な要素で構成されています。 そのため、放射性 Cs の動態は、他の陸域環境と大きく 異なると考えられます。そこで本研究では、市街地にお ける放射性 Cs の分布を評価するため、2015年1月に 帰還困難区域に位置する11の建造物とその敷地を対象 に、市街地表面の主要な構成要素である建造物の屋根、 ないしは屋上と壁、未舗装及び舗装された平坦地におけ る $^{137}\mathrm{Cs}$ の沈着量を測定しました。事故直後(2011 年 3月23日時点)の初期¹³⁷Cs 沈着量が異なる調査対象 地域間の比較を可能にするため、得られた ¹³⁷Cs 沈着量 は、隣接する未舗装の平坦地の初期 ¹³⁷Cs 沈着量で除し、 相対沈着量として評価しました。未舗装の平坦地の初期 ¹³⁷Cs 沈着量は、今回の調査で得た ¹³⁷Cs 沈着量から物 理減衰を補正して求めました。これは、1F事故後の調 査により、未舗装の平坦地に沈着した ¹³⁷Cs の多くはそ の場に残り、水平方向への流失が非常に少ないことが報 告されているためです。

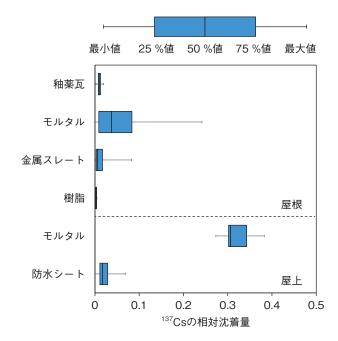


図 1-29 屋根及び屋上における素材ごとの ¹³⁷Cs 相対沈着量 ¹³⁷Cs 相対沈着量は、釉薬瓦や金属スレートなど表面が滑らかな素材で低く、表面が多孔質なモルタルで顕著に高い値を示しました。表面が滑らかな素材では、¹³⁷Cs が速やかに除かれやすいものと考えられます。

構成要素ごとの ¹³⁷Cs 平均相対沈着量を比較した結果、舗装面は未舗装面の約20 %程度の値を示し、他の構成要素においても未舗装面の10 %未満の値が示されました (図1-28)。本研究は除染を行っていない帰還困難区域内で実施しています。そのため、以上の結果は、市街地に降下した放射性Csの大部分が、除染を行わなくても初期降下時の流失及びその後の降雨に伴う流失により速やかに市街地から除かれたことを示唆しています。

図1-28に示された構成要素のうち、屋根と屋上の相対 沈着量は比較的大きな変動係数を示しました。屋根の 素材は多岐にわたりますが、多孔質な素材は ¹³⁷Cs をよく 吸着することが、ヨーロッパでの研究により報告されてい ます。そこで、図1-29では屋根と屋上について素材ごとの 相対沈着量を比較しました。日本の屋根、屋上素材に ついても、表面が滑らかな釉薬瓦や金属スレート、樹脂、 防水シートの相対沈着量は顕著に低い一方で、表面に塗 装処理を施していないモルタルで高い相対沈着量が得られ ました。以上のことから、市街地に降下した放射性Csの 多くは、事故後の約4年間で流失しましたが、その残存 性は構成要素の素材に依存することが分かりました。

本結果は今後、除染計画の策定や、市街地における空間線量率のシミュレーションに役立つことが期待されます。

●参考文献

Yoshimura, K. et al., Distribution of ¹³⁷Cs on Components in Urban Area Four Years after the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant Accident, Journal of Environmental Radioactivity, vols,178-179, 2017, p.48-54.

1-13 河川上流域の放射性セシウム動態を予測する - 事故後約5年間での土砂、放射性セシウムの移動解析 -

標高 (m) 300 350 400 450 500 550

図 1-30 解析対象領域の三次元構造モデル 赤枠は図 1-31 の表示範囲を示します。GETFLOWS では三次元的にモデルを作成し、各格子に透水係数 や、マニング係数等を付与し、地表流と地表水を同 時に計算します。得られた水循環場から表層にお ける土砂、放射性 Cs 輸送の計算を実施し、環境中 での放射性 Cs 動態を予測します。水平解像度は約 10 m です。

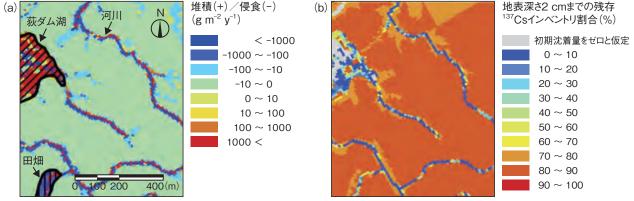


図 1-31 2011 年 5 月~ 2015 年 12 月の期間における (a) 侵食、堆積量及び (b) 残存 ¹³⁷Cs インベントリ割合 田畑を含む森林流域から河川を通じて流出する土砂、放射性 Cs の再分布の解析結果を示します。土壌侵食は河川近傍や森林のガリで大きく、それに対応して ¹³⁷Cs 残存割合も低下しています。

東京電力福島第一原子力発電所事故によって、陸域に 沈着した放射性セシウム(Cs)は、粘土鉱物を含む土壌 粒子に強く吸着する特性があることから、土壌表層に今 なお大部分が残っています。流域内の放射性 Cs 動態を予 測するにあたり、重要なのは台風等の降雨による表層土壌 流亡ですが、降雨時以外を含め、流域内の放射性 Cs 動 態を計算するには、地下水と地表水を計算する必要があ ります。そこで本研究では、原子力機構の調査サイトの一 つである川内村荻野沢川流域を対象に、土砂及び放射性 Cs の移動を考慮した流域水循環モデル GETFLOWS を用いた数値解析を行いました(図 1-30)。

2011年5月~2015年12月の期間における侵食、堆積量及び残存 ¹³⁷Cs インベントリ割合を図 1-31に示します。河川近傍や森林のガリでの侵食量及び ¹³⁷Cs のインベントリ低下割合が大きく、一方、河川から離れた森林での侵食はほとんど生じておらず、 ¹³⁷Cs インベントリの低下割合は小さいことが分かりました。つまり、河

川から離れた森林においては、物理的減衰が一番の低下要因であることが分かりました。この期間に河川へ流出した ¹³⁷Cs の発生源を確認したところ、河川近傍からの寄与は、河川から離れた森林からの寄与に比べ 1 桁程度大きい結果でした。河川近傍において侵食量が大きい理由として、降雨により飽和した表層土壌に表面流が生じ、侵食が促進されることが推察されました。侵食しやすい河川近傍で ¹³⁷Cs インベントリが低下すること、また深度方向への ¹³⁷Cs の移行によって、今後河川への ¹³⁷Cs 流出量は低下することが期待されます。一方で、除染や帰還に伴う耕作再開などにより、侵食量が増大することから、それに伴って流出する放射性 Cs の下流への影響を注視していく必要があります。

今後、本解析法の検証と改良を進め、土砂由来の放射性 Cs 流出のみならず、生物移行性の高い、水に溶けた放射性 Cs 流出の再現解析を行い、メカニズムの解明に役立てていきます。

●参考文献

Sakuma, K. et al., Evaluation of Sediment and ¹³⁷Cs Redistribution in the Oginosawa River Catchment near the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant Using Integrated Watershed Modeling, Journal of Environmental Radioactivity, vol.182, 2018, p.44-51.

1-14 海底における放射性セシウムの分布の探求

-海底地形に規制される海底土の種類と放射能との関係-

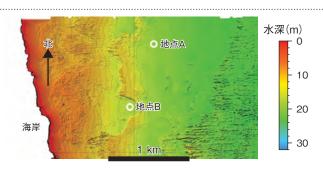
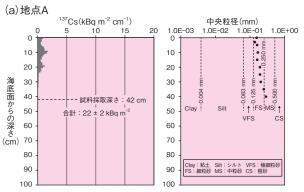


図 1-32 海底地形

図 1-33 の試料採取地点を示しています。水深は沖に向かって深くなっていきますが、地点 B の東側は崖になっていて急に水深が浅くなっています。特に、地点 B は南〜東〜北側は崖に囲まれている凹状の窪地です。なお、調査全域から一部を抜粋しています。



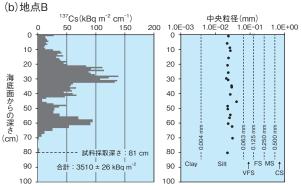


図 1-33 地点 A 及び地点 B の海底土の放射性 Cs (137Cs) の鉛直分布

図1-32の試料採取地点を示しています。(a) 粒径が大きい地点Aにおける測定例、(b) 粒径が小さい地点Bにおける測定例です。

東京電力福島第一原子力発電所の事故により地表に 沈着した放射性セシウム(Cs)の一部は、山地森林から貯水池や河川を経て河口・沿岸域に流入します。河口・沿岸域では、流入した放射性 Cs が堆積する場所とその 程度を理解することは、海産物への放射性 Cs の影響評価において重要となります。河川から流入する放射性 Cs のうち、土砂に吸着した放射性 Cs の堆積の程度は、堆積場の状況によって異なると考えられます。そこで、海底土の放射性 Cs の分布と海底地形の関連を調査しました。

図1-32に、音波測量により得られた海底地形図を示します。調査の結果、調査対象とした福島県の河口・沿岸域のうち、沖合5kmまでの海底の半分以上は海底土が堆積していない岩盤が広く分布し、海底土の分布域は海底面全体の約4割であることが分かりました。海底地形の特徴としては、沖合いに向かって一様に水深が緩やかに深くなる領域(例えば図1-32の地点A付近から沖合い)と、高さ数mの崖と接する領域(例えば図1-32の地点Bの周辺)の2種類に大別されることが分かりました。

海底土が分布する図 1-32 に示した地点 A 及び地点 B で、海底面から最大約 1 m 程度の深さの柱状の海底土を採取し、深さ方向に $1 \sim 2$ cm ごとに放射性 Cs 濃度や粒径を計測しました(図 1-33)。沖合いに向かって一様に水深が緩やかに深くなる領域の海底土の大部分は、図 1-33(a) の地点 A に示すような、砂質の粒子(0.1

 ~ 0.5 mm)から構成されています。また、 $1 \, \mathrm{m}^2$ あたりの放射性 Cs の堆積量は、近くに河口を持つ河川の河川敷などでの堆積量と比べて、 $2 \, \mathrm{fh}$ から $1 \, \mathrm{fh}$ 程度少ないことが分かりました。一方、図 1-33 (b) の地点 B に示すような崖に接する領域では、比較的細粒(シルト相当: $0.004 \sim 0.063 \, \mathrm{mm}$)の粒子が多くなります。また、放射性 Cs の堆積量は地点 A に示すような領域よりもやや多く、特に地点 B の周囲で崖に囲まれた凹状の窪地では、河川敷などで確認される堆積量と同等の地点も確認されました。

地点 A 及び地点 B で海水の流れの速さを計測したところ、地点 B は地点 A と比べて有意に流れが遅いことが分かりました。これは、窪地を形成する崖が海水の流れを妨害するため、流速が低下したものと考えられます。つまり、地点 B のような環境では、流れが停滞することによって、放射性 Cs がより多く吸着した細粒の粒子が沈降しやすくなり、放射性 Cs の堆積が促進されたと考えられます。しかし、海底地形の調査の結果、地点 B のような地形は海底面全体の約 0.2% に過ぎないことから、このような地点は極めて限定的であるといえます。

これらの成果は、海洋における放射性物質だけでなく一般的な汚染物質の挙動の解明に役立つとともに、環境中での予測シミュレーションの精度向上に重要な知見となると考えられます。

●参考文献

Tsuruta, T. et al., Horizontal and Vertical Distributions of ¹³⁷Cs in Seabed Sediments around the River Mouth Near Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, Journal of Oceanography, vol.73, issue 5, 2017, p.547-558.

1-15 海洋に放出された放射性物質の拡散を予測する - 沿岸域から外洋スケールの拡散シミュレーション-

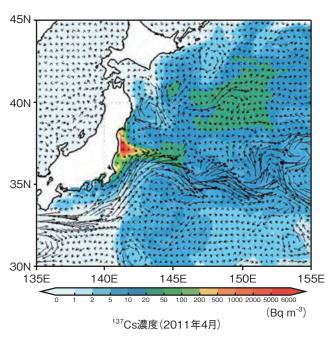


図1-34 4月の平均表層 ¹³⁷Cs **濃度** (Bq/m³) ¹³⁷Cs が沿岸から外洋へ拡散される過程で黒潮続流が大きな役割を担っていることが示唆されました。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故により海洋へセシウム -137(¹³⁷Cs)が放出されました。その海洋中拡散を明らかにするため、海洋調査やシミュレーションにより数多くの研究が行われてきました。シミュレーションは、時空間的に連続して ¹³⁷Cs の海洋中拡散を解析することが可能です。しかし、放出量や海況データ等に起因する誤差が含まれています。本研究では、海況データに着目し、5種類の海況データを入力データとした海洋拡散シミュレーションを実施することで、海況データの相違による ¹³⁷Cs の海洋中拡散への影響を解析しました。そして、福島県沿岸域から北太平洋広域までの ¹³⁷Cs の海洋中拡散を明らかにしました。

本研究では、原子力機構が開発した海洋拡散モデルSEA-GEARNを使用しました。海洋拡散モデルに入力する海況データは、日本海洋科学振興財団、海洋研究開発機構、気象庁、米国海洋大気庁により、数値シミュレーションに観測データを同化させるデータ同化手法を適用して計算された結果を使用しました。放出源となる1Fから海洋へ直接放出された137Csの放出量は、1Fの南北放出口付近で測定された137Cs濃度データを基にして推定された放出量を適用しました。海表面への137Cs沈着量は、原子力機構が推定した最新の大気放出量を適用した大気拡散シミュレーションの計算値を入力しました。

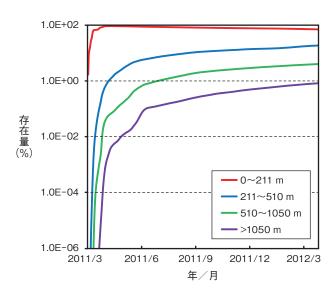


図 1-35 拡散計算結果から深度ごとの 137 Cs 存在量を解析した結果

事故発生から1年後には水深200 mよりも深いところへ 137Cs が輸送されたことが示唆されました。

水平解像度が低いシミュレーションと比較して、高解像度シミュレーションは福島県の海岸線と沖合で観測された¹³⁷Cs 濃度を良好に再現しており、事故から数ヶ月間は海洋へ直接放出された¹³⁷Cs が福島県沿岸を主に南北方向に拡散したことが示唆されました。北太平洋西部や北太平洋全域を対象としたシミュレーションは、比較的解像度が低いにもかかわらずデータ同化手法により主な海流の変動を良好に再現しており、¹³⁷Cs が沿岸から外洋へ拡散される過程で黒潮続流が大きな役割を担っていたことが示唆されました(図 1-34)。

拡散計算結果から深度ごとの 137 Cs 存在量を解析した結果、海洋への直接放出と大気からの沈着により海洋へ移行した 137 Cs は、事故直後は主に表層(海表面から水深 211 m)に存在していましたが、時間の経過とともに表層以深にも輸送されました(図 $^{1-35}$)。事故から 146 0の表層、中層(211 210 m)、深層(137 Cs の存在量はそれぞれ約 210 0、4、0.8% でした。

本研究結果により、海況データにかかわらず事故起源の¹³⁷Csが北太平洋において水平的に広く拡散するとともに表層から底層方向に拡散されることが示唆されました。さらに長期間の数値シミュレーションを実施して存在量の時系列変化を定量化することが今後の課題です。

●参考文献

Kawamura, H., Kobayashi, T. et al., Oceanic Dispersion of Fukushima-Derived Cs-137 Simulated by Multiple Oceanic General Circulation Models, Journal of Environmental Radioactivity, vol.180, 2017, p.36-58.

1-16 効果的な森林除染の条件とは

一除染による空間線量率の低減効果をシミュレーションー

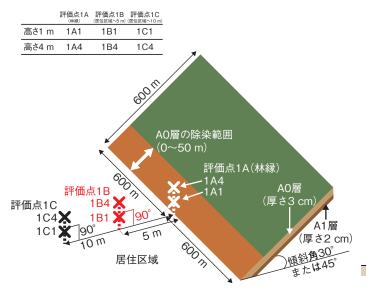


図1-36 森林土壌の斜面の数が1(単一斜面)の場合の 評価体系

空間線量率の評価点として、森林と居住区域の境界である 林縁 (1A)、林縁から居住区域側へ 5 m (1B) 及び 10 m (1C) 離れた点を設定し、3 点それぞれに対し、屋外にいる成人 を想定した高さ 1 m 及び 2 階建て住居を想定した高さ 4 m を設定しました。

東京電力福島第一原子力発電所の事故では、放出された放射性セシウム(Cs)によって森林が汚染されました。放射性 Cs は、森林土壌に留まり、これを除去することで空間線量率の低減が期待されます。しかしながら、このような除染を森林全体に適用してしまうと、膨大な除去土壌が発生し、その管理や費用で多大な負担が生じます。また、そのような除染によって、森林土壌が流出し、水源かん養や災害防止といった森林の有する多面的な機能が損なわれる可能性が高まります。このため、林野庁では森林除染の方法として、落葉や森林土壌の表層の除去を段階的に実施することを推奨しています。

本研究では、そのような除染方法として、森林土壌の表面から A0層(落葉などの堆積有機物層)と A1層(土壌部分の層)を放射線源と仮定し、その A0層のみを除染した場合の居住区域の空間線量率を、三次元輸送計算コード MCNP を用いて解析しました。線源の森林土壌として斜面の数が 1 の場合(図 1-36)と、三方を森林に囲まれた一軒家を想定した斜面の数が 3 の場合を設定しました。この際、森林土壌の傾斜角や土壌中の放射

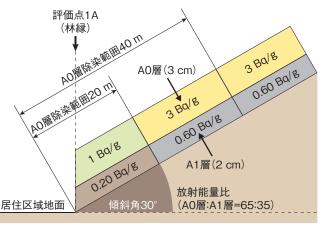


図 1-37 A0 層に放射性 Cs が多く存在し、かつ汚染が平面的 に不均一な場合の断面図

A1 層の約 2 倍の放射性 Cs が A0 層に存在し、居住区域に近い場所の森林土壌の放射性 Cs 濃度に比べて離れた場所の森林土壌の放射性 Cs 濃度が 3 倍となっている場合を想定し、林縁から 20 m 以遠の汚染が、林縁から 20 m までよりも 3 倍高い設定にした例です。

性 Cs の量が異なるケース、森林土壌の汚染が平面的に 不均一なケースについても解析しました。また、全ての ケースに対し、どの範囲の A0 層を除去した場合に居住 区域のどの地点の空間線量率が、どの程度低減するかに ついて解析しました。

その結果、斜面の数や傾斜角によらず、A0層を除去しても、居住区域(特に住居の2階)の空間線量率は 林縁に比べると下がりにくいことが分かりました。

また、A0層に多くの放射性 Cs が存在し、その汚染が均一である場合は、林縁から 20 m までの A0 層を除去するのが効果的ですが、例えば図 1-37 のように、林縁から 20 m までの森林土壌中の放射性 Cs 濃度に比べて、より離れた場所の放射性 Cs 濃度が 3 倍となっているような場合、居住区域の空間線量率を効果的に低減するためには、林縁から 40 m までの A0 層を除去する必要があることが分かりました。

このように、シミュレーションを行うことによって、 汚染の分布に応じた効果的な森林除染の方法を検討する ことが可能となります。

●参考文献

邉見光ほか, 3 次元輸送計算コード MCNP を用いた森林除染による空間線量率の低減効果の検討, 原子力バックエンド研究, vol.24, no.1, 2017, p.3-14.

1-17 粘土へのセシウム吸着をナノスケールで直視

ー高輝度放射光を用いた光電子顕微鏡で化学状態の可視化を実現ー

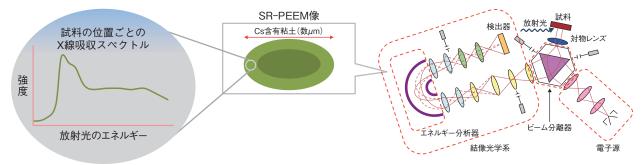


図 1-38 SR-PEEM による Cs 含有粘土のナノスケール化学分析の概念図

放射光のエネルギーに依存した光電子の強度(X 線吸収強度)を画像データとして測定することで、粒子中の位置ごとの X 線 吸収スペクトル情報を得ます。

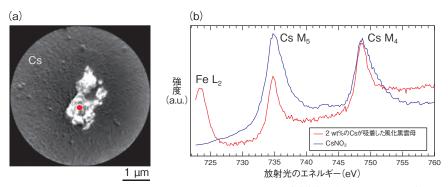


図 1-39 (a)人工的に Cs を 2 wt% 吸着した風化黒雲母の SR-PEEM 像、(b) (a) の赤印位置での X 線吸収スペクトル(一線)及び $CsNO_3$ 参照スペクトル(一線) との比較

(a) Cs 濃度が大きい部分が白くなります。(b) 粘土中の Cs の化学状態は $CsNO_3$ と似ていること、Fe が 3 価の酸化状態であることが分かりました。

東京電力福島第一原子力発電所の事故に伴い放出さ れた放射性セシウム(Cs)は、土壌表層数 cm の粘土鉱物 に強固に吸着することが知られています。安全かつ環境 負荷の低い除染処理方法が模索され、その技術開発には Cs の粘土に対する吸着状態及び吸着・脱離のメカニズ ムを知ることが重要となっています。しかしながら、極め て微量の Cs を含む粘土は、数μm以下の不規則な大き さ、組成、形態の環境試料であるため、Cs の吸着挙動を 調べることは容易ではありません。高輝度放射光を用い た光電子顕微鏡(synchrotron radiation photoemission electron microscope: SR-PEEM)は、ナノスケールの 空間分解能で元素別に化学状態を可視化できる分析技術 です(図 1-38)。SR-PEEM は他の分析法より優れた機 能を持っていますが、粘土のような電気を流さない試料 (絶縁物) を分析対象とした場合、試料帯電という分析上 の致命的な問題が起きます。しかしながら、厚さ数 nm の薄い炭素膜を表面に付ければ、この問題を回避できる ことが分かりました。そこで、SPring-8の高輝度放射 光(400~1900 eV の高輝度軟 X 線放射光)を使うこと によって、粘土鉱物の一種である風化黒雲母中の Cs の

化学状態のナノスケール分析に成功しました。

図 1-39 (a) に示すように、大きさ数 μ m の粘土鉱物に対してクリアな顕微鏡像が得られました。Cs は試料全体に観察されることから、Cs を 2wt% 吸着(飽和吸着)した試料では、Cs は表面に偏るようなことはなく粒子の内部にまで浸透し均一に吸着していることが分かりました。さらに、粒子の識別及び各粒子内の元素分布の情報に加えて、図 1-39 (b) に示すように粒子内の特定位置における Cs の化学状態が測定でき、その化学状態は比較試料である CsNO $_3$ と類似であることが分かりました。鉄(Fe)の存在とその分布及びその価数が 3 価であることも明らかとなりました。これらの化学状態に関する実空間情報から、Cs 吸着メカニズムに関する理解が進みつつあります。

今回開発したミクロサイズの微粒子の化学状態に関するナノスケール可視化技術は、除染土壌や廃炉に関わる模擬燃料デブリの分析などの原子力分野の課題解決への適用とともに、ナノ電子デバイスの絶縁材料や酸化物表面が示す触媒機能の解明など、次世代イノベーションを支える機能性材料の研究開発への応用も期待されています。

●参考文献

Yoshigoe, A. et al., Nanoscale Spatial Analysis of Clay Minerals Containing Cesium by Synchrotron Radiation Photoemission Electron Microscopy, Applied Physics Letters, vol.112, issue 2, 2018, p.021603-1-021603-5.

1-18 放射性セシウムが土壌に吸着される様子を計算で解明 - 粘土とセシウムの原子シミュレーション -

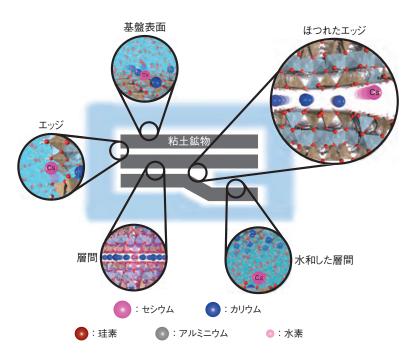


図1-40 粘土鉱物の各種表面の原子レベルモデリング 粘土鉱物の表面には、基盤表面、エッジ、層間、水和した層間、ほつ れたエッジと呼ばれる Cs の吸着箇所が存在すると予想されています。 各表面の原子構造をモデル化し、シミュレーションによって吸着の様 子を調べました。

2011年3月に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故によって、環境中に放射性セシウム (Cs) が放出されました。その一部は表土に強く吸着され、住民避難の主な原因となりました。その後、主に表土を剥ぐ除染方法によって大規模な除染が実施され、放射能と空間

線量率の低減に成功しましたが、除染による廃棄土壌は 膨大な量に上るため、その減容処理や管理が新たな問題 となってきています。

減容技術の開発や長期管理のリスク評価のためには、どのように Cs が土壌に吸着しているのかを知ることが手助けになると考えられます。これまでの研究によって、放射性 Cs は、土壌中に存在する粘土鉱物に強く吸着することが知られています。しかし、なぜ吸着するのか、その吸着メカニズムは不明でした。メカニズム究明が困難な理由の一つとして、最新の実験装置を使っても観測できないほど小さな領域で吸着が起こっていることが挙げられます。図 1-40 に示すように、粘土鉱物には数種類の表面構造があり、それぞれが異なる吸着の強さを示すと考えられてきました。しかし、その詳細を観測することは非常に困難です。

そのような極小領域の研究には、コンピューターシミュ

表 1-2 各吸着箇所における吸着エネルギー

コンピューターシミュレーションによって得られた各吸着箇所における Cs の吸着エネルギー(kJ/mol)を示します。値が小さいほど吸着力が強いことを表します。この表から、「ほつれたエッジ」がその他の吸着箇所よりも強い吸着を示すことが分かります。

吸着箇所	吸着エネルギー (kJ/mol)
ほつれたエッジ	-27
水和した層間	-4
エッジ	-2
基盤表面	-19 以上

レーションが力を発揮します。私たちは、米国の研究機関及び量子科学技術研究開発機構と協力して、図1-40に示す原子レベル表面構造を手分けしてモデル化し、各表面の構造や表面から Cs までの距離を原子スケールで変化させて、スーパーコンピュータでエネルギーを計算し、構造の違いが吸着エネルギーに及ぼす影響を評価しました(表1-2)。この系統的なシミュレーションの結果により、風化によってえぐれた「ほつれたエッジ」と呼ばれる、ナノメートル程度の大きさを持つ楔形構造が、最も強く Cs を吸着することが示されました(表1-2)。ほつれたエッジによる強い吸着仮説は 50 年ほど前に提唱されましたが、実験による仮説の証明は困難でした。本論文では、シミュレーションを用いて各表面における原子レベルの吸着の様子を調べることにより、この仮説の証明に成功しました。

本研究では、上記の結果とこれまでの実験結果から 得られた知見に基づいて、有望な減容技術や長期管理の 際のリスクについても評価しました。

今後は、本研究で明らかになった吸着メカニズムを 基にして、廃棄土壌の減容化に貢献すべく研究開発を進 めていきます。

●参考文献

Okumura, M. et al., Radiocesium Interaction with Clay Minerals: Theory and Simulation Advances Post-Fukushima, Journal of Environmental Radioactivity, vol.189, 2018, p.135-145.

1-19 福島の環境回復に係る研究成果をより身近なものへ - 包括的評価システムの開発と根拠となる科学的知見の明示 -

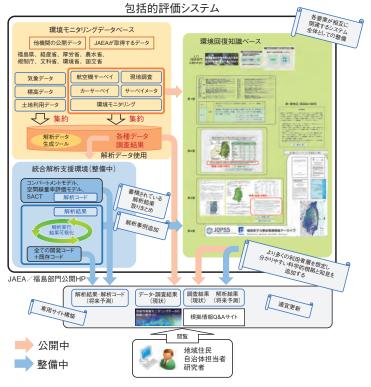


図 1-41 包括的評価システム全体及び各構成要素概念図

包括的評価システムは、原子力機構や他機関が収集した調査データを統一的なフォーマットで取りまとめ、公開する「環境モニタリングデータベース」、各種解析ツールの解析結果を閲覧できる「統合解析支援環境(整備中)」及びそれらの成果を Q&A 形式で分かりやすく取りまとめた「環境回復知識ベース」の三つの要素から成っています。

東京電力福島第一原子力発電所の事故により環境中に 放出された放射性物質、特に放射性セシウム (Cs) は、現 在でも森林にその多くが沈着しています。時間の経過とと もに、これら環境中の放射性物質は水流や風などの自然 の駆動力によって移動し、最終的には生活圏や海に到達し、 生活や健康に影響を及ぼす可能性が懸念されています。

これらの全体像を把握し、影響を評価し、対策を講じるために、原子力機構や多くの研究機関で調査研究が実施されていますが、それらは報告書や論文、パンフレット、インターネットといった様々な媒体に分散して存在しており、住民や自治体の方々が必要な情報を取得するにはかなりの労力が必要となります。そのため、それら情報へ至る道しるべの整理として、私たちは、大学や複数機関からの協力を得て、放射性 Cs の環境動態研究及び福島の環境回復に関する科学的知見を収集し、私たちの調査研究成果と合わせて取りまとめました。そして、放射性 Cs の環境動態に関して包括的な評価を可能とするシステム(包括的評価システム)を開発しました(図 1-41)。

これらの調査研究で得られた測定データ等は、環境モニタリングデータベースに共通フォーマットで集約されており、可視化も可能です。また、今回構築した放射性 Cs

の環境動態に関する科学的知見の根拠情報(環境回復知識ベース)を参照することで、利用者が知りたい事項を様々な媒体を介することなく、詳細さの程度に応じた複数段階の知識を一つのホームページから閲覧することができます。さらに、より詳細な放射性 Cs の環境動態を知りたい場合には、統合解析支援環境を利用することで、環境条件の組合せ(土地利用、地形、植生及び放射性 Cs 沈着量)を設定することにより、その解析結果を閲覧することができます。加えて、それらの成果を Q&A 形式で分かりやすく取りまとめ、利用者の知識レベルに応じた情報提供をできるようにしました(環境回復知識ベース)。このように、利用者の様々なニーズに応じることができるシステムを構築しました。

現在、森林中における放射性 Cs の循環や、河川に流出する溶存態 Cs の起源が、放射性 Cs の動きの把握に重要であることが分かってきています。今後はこれらに関する調査研究を進め、長期的な放射性 Cs の動きを把握し、それらの知見に基づいて情報発信を進めることで住民の不安の低減等に努めていきます。また、調査研究の進展に伴って、最新の情報をいかに反映して更新していくかについても課題として検討を進めていきます。

●参考文献

鶴田忠彦, 北村哲浩ほか, 福島における放射性セシウムの環境動態研究の現状ー根拠となる科学的知見の明示をより意識した情報発信の一環として一, JAEA-Review 2017-018, 2017, 86p.

齊藤宏, 北村哲浩ほか, 福島の環境回復に係る包括的評価システムの整備に向けた取り組み, JAEA-Review 2017-040, 2018, 34p.

安全性の継続的改善を実現するために

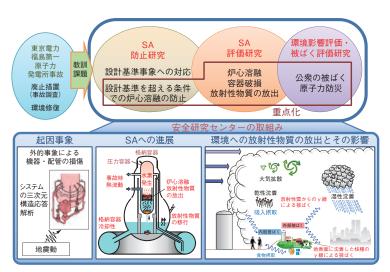


図2-1 安全研究センターにおける安全研究の取組み 1F 事故の教訓を踏まえ、多様な原子力施設の安全評価(主に設計基準 事象内)に加え、SA の防止や評価、環境影響等に関する研究に取り 組んでいます。

安全研究センターでは、原子力安全の評価等に係る 原子力安全規制行政への技術的支援並びに解析や試験、 計測技術等に係る長期的視点からの先導的・先進的な安 全研究に取り組み、規制基準の整備等の「合理的に達成 できる安全の最高水準を目指した継続的改善の追求」に 貢献しています。

特に、図 2-1 に示すように、東京電力福島第一原子 力発電所(1F)事故の反省を踏まえ、設計基準事象へ の対応を中心とした 1F 事故以前の研究スタイルを見直 しました。原子力施設等のリスクを低減するため、シビ アアクシデント (SA) の発生防止と評価に関する研究、 緊急事態への準備と対応に関する研究、1F 事故に係る 放射線影響や放射性廃棄物管理に関する研究、1Fの廃 止措置時の安全性確保のための研究を重点的に進めてい ます。また、原子力防災分野では、原子力緊急時支援・ 研修センターとの連携を強め、研究成果を緊急時への備 えや実働に反映するための取組みを進めています。

SA 研究においては、SA 時の現象解明や効果的な事 故拡大防止策の整備を目指しています。そのため、図 2-2 に示すように、大型格納容器試験装置 (CIGMA) によ る格納容器損傷の要因となる高温の気相挙動や水素ガ ス等の混合ガスの熱流動挙動等に着目した試験を実施 しています。また、SA評価手法の高度化の観点から、 OECD/NEA 国際共同プロジェクトの 1F 事故に関する ベンチマーク解析で得た知見を基に、SA 解析コードに よる解析精度の向上を目指しています。また、図 2-3 に示 す原子炉安全性研究炉(NSRR)を用いて、反応度事故



CIGMA の基本仕様

最高使用圧力	1.5 MPa
供給ガス最高温度	973 K
試験容器高さ	11.2 m
試験容器直径	2.5 m
冷却プールと冷却ジャ	ケットを具備
温度やガス濃度分布等	等の詳細計測

大型格納容器試験装置(CIGMA) 図 2-2 事故時の高温高圧の蒸気や水素の挙動並びに種々の事故 拡大防止策を模擬できるように設計されています。



図 2-3 原子炉安全性研究炉 (NSRR)

反応度事故時に生じる原子炉 の急激な出力ト昇を模擬した 実験を安全に行うことができ ます。

(原子炉施設の安全性を評価するために想定する「設計基 準事故 (の一つ) 時の燃料の破損限界や燃料破損が原子炉 施設に及ぼす影響等に着目した研究を実施しています。

1F 事故の周辺環境における放射性物質の分布調査を 行うため、有人のヘリコプターを用いた航空機モニタリ ング技術の開発を進めるとともに、防災基本計画に従っ た緊急時対応技術として、九州電力川内原子力発電所周 辺におけるバックグラウンドモニタリングを実施してい ます。さらに、国からの要請を受けて、保障措置のため の極微量核物質分析技術に関する研究も、クリーンルー ム施設を利用して実施しています。

本章では、最近の研究成果から、沸騰遷移後の過熱炉心に おける熱伝達挙動のモデル化に向けた検討(トピックス 2-1)、 冷却材喪失事故時に水蒸気に含まれる空気が燃料被覆管 の高温酸化に及ぼす影響の評価(トピックス 2-2)、SA 時の 原子炉制御材の酸化を考慮した事故解析(トピックス 2-3)、 放射線挙動解析のための自家用車の簡易モデルの開発 (トピックス 2-4)、高レベル濃縮廃液の蒸発乾固事故時 における放射性物質移行挙動の評価(トピックス 2-5)、 顕微ラマン分光などを用いた単一ウラン微粒子の化学 形・同位体比分析法の開発 (トピックス 2-6) に関する 成果を紹介します。

なお、当センターが取り組んできた 1F 事故対応につい ては、山地の起伏地形に適した航空機モニタリングデータ 解析法の開発(トピックス 1-11)及び森林除染による空 間線量率低減効果のシミュレーション(トピックス 1-16) に関する成果を第1章に記載しています。

2-1 過熱炉心の冷却性能を予測する

- 沸騰遷移後の炉心熱伝達挙動のモデル化に向けた実験-

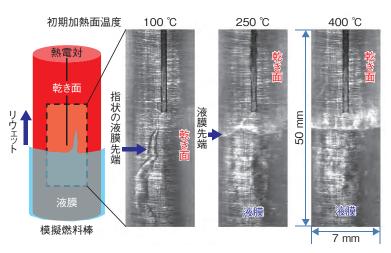


図2-4 リウェット時の液膜先端可視化画像

リウェット前の加熱面温度を変化させた場合の液膜先端を、高速度カメラで撮影した可視化画像です。低温の場合は指状の液膜先端形状が見られ、温度の上昇とともに先端形状は周方向に均一になります。また高温の場合、液膜先端から多量の液滴が飛び散っています。

軽水炉において何らかの原因で炉心出力の急激な上 昇等が起こると、燃料被覆管表面がドライアウトする場 合が考えられますが、燃料の健全性確保のためにはドラ イアウトによる温度上昇を抑制することが求められます。 日本原子力学会の基準では、被覆管温度とその継続時間 を用いてドライアウトした燃料の健全性を判断します。 この基準は、運転時の異常な過渡変化を考慮して、沸騰 遷移後の熱伝達挙動に関する実験相関式を基に作成され ていますが、東京電力福島第一原子力発電所の事故後に 原子力規制委員会により制定された新規制基準では、ス クラム失敗事象 (ATWS) という、より厳しい条件を 考慮することが求められています。ATWS 条件は、従来 研究で実施された実験条件よりも高圧・高冷却材流量・ 高熱流束である場合が多いため、学会基準で用いられる 相関式の適用範囲を逸脱する場合があり、新たなモデル の開発が必要です。そのため、ATWS 条件に近い熱水 力条件下での沸騰遷移後の過熱炉心における熱伝達挙動 に関し、支配現象の理解のための基礎実験と、その検証 データ取得のため原子炉と同じ高圧での実験を行い、半 機構論的なモデルの構築を目指しています。

基礎実験では、ドライアウトした被覆管表面が液膜の 進展によって再び濡れる、リウェット現象のメカニズム の把握を目指しています。リウェット速度はドライアウ ト終息時刻の要因であり、その予測はドライアウト時の 被覆管温度と継続時間を評価するために重要です。この 装置では液膜先端を詳細に可視化することが可能です。 図 2-4 に高速度カメラによる液膜先端の可視化画像を

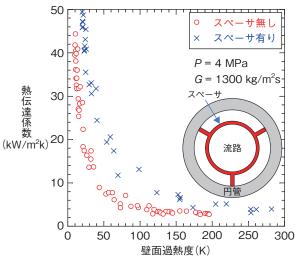


図2-5 熱伝達係数へのスペーサの影響 圧力 (P) 4 MPa、質量流束 (G) 1300 kg/m²s の条件 における模擬燃料棒乾き面の熱伝達係数です。燃料棒を 模擬した円管内にスペーサを設置した場合、壁面過熱度 200 K 以下の領域において熱伝達係数が向上しています。

示します。初期伝熱面温度が低い場合には指状の先端形状であり、温度が高くなるに従い先端形状が周方向に均一になることが分かります。このように初期伝熱面温度や気相、液相の流速の違いにより、液膜先端の形状や先端から飛び散る液滴の量が大きく異なることを明らかにしました。これらの現象はリウェット直前の熱伝達の増加に関係することから、リウェット速度を支配する大きな要因であると考えられます。

高圧実験では円管内の流れにおいて、特に熱伝達挙動へのスペーサの影響を調べています。燃料集合体には燃料棒同士の位置を保つためにスペーサが設置されていますが、ATWSのような高冷却材流量、高熱流束の条件では、沸騰遷移後の熱伝達挙動にスペーサが強く影響することが考えられます。図 2-5 に円管内の乾き面において計測した表面の熱伝達係数を示します。沸騰水型原子炉の丸セル型を模擬したスペーサがある場合、壁面温度200 K以下の領域において熱伝達係数が増加することが示されており、これは液滴を含む蒸気流(噴霧流)がスペーサ周辺で乱され、それによって液滴が乾き面に付着しやすくなることで生じていると考えられます。種々の圧力・冷却材流量条件で実験を行い、相対的に低圧・高流量の条件でスペーサの影響が顕著であることが分かりました。

これらの知見を基に、リウェット等の沸騰遷移後の熱 伝達挙動を精密に予測できるモデル開発を進めています。

本研究は、原子力規制委員会原子力規制庁の委託研究「平成27年度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉の事故時熱流動調査)事業」として実施しました。

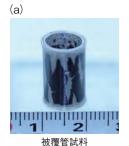
●参考文献

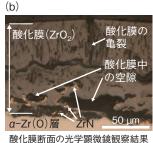
Satou, A. et al., Experimental Investigation of Post-BT Heat Transfer and Rewetting Phenomena, Proceedings of ANS International Conference on Best Estimate Plus Uncertainties Methods (BEPU 2018), Lucca, Italy, 2018, BEPU2018-270, 12p., in USB Flash Drive.

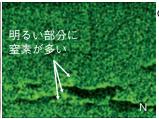
2-2

冷却材喪失事故時の燃料の健全性を評価する

- 水蒸気雰囲気中の空気が燃料被覆管の高温酸化に及ぼす影響-







EDSによるNの面分析結果

図2-6 酸化試験後試料の外観及び酸化膜断面 の写真

(a) 空気分圧 70%で 1273 K、2400 秒間酸化した 被覆管試料の外観、(b) の左図に酸化膜断面の 光学顕微鏡観察結果及び右図にエネルギー分散型 X線分光法 (EDS) による窒素 (N) の面分析結果 を示します。酸化膜と酸素固溶 Zr(α-Zr(O)) 層と の界面付近に窒化物 (ZrN) 及び多くの空隙が見られています。

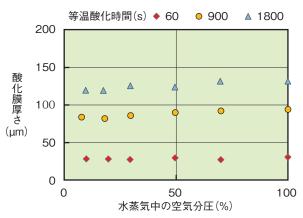


図2-7 1473 K における酸化膜厚さの水蒸気雰囲気中の空 気分圧依存性動

いずれの時間においても、空気分圧が増加するに伴って酸化膜 厚さは増加していきます。

発電用原子炉施設での冷却材喪失事故における燃料からの熱及び水素の発生は、燃料被覆管周囲の雰囲気に強く影響されます。燃料被覆管が水蒸気中で高温となった場合の酸化の様子及び酸化速度については、従来多くのデータや知見が得られてきたものの、使用済燃料プールでの事故の場合のように、水蒸気に空気が混入したような条件下での酸化については、ほとんど知見が得られていませんでした。本研究では、水蒸気に空気が混入した条件で燃料被覆管を冷却材喪失事故を模擬した温度に加熱し、その際の酸化の様子について調べました。

現在の燃料被覆管はジルコニウム(Zr)を主成分とし、高温の酸化性雰囲気中ではその表面に酸化膜を形成しますが、この酸化膜が厚くなると被覆管の機械的性質が劣化し、酸化が著しい場合には燃料の破断につながります。一方、雰囲気中の窒素は、窒化物を形成することでZrの酸化を促進させることが分かっています。また、高温においてZrと水蒸気が反応すると酸化とともに水素が発生します。この水素の一部は、燃料被覆管の金属部に吸収され燃料被覆管を脆くするなどの原因となります。このような被覆管での酸化膜の形成、窒素による酸化及び金属部水素吸収の促進は、冷却材喪失事故時の

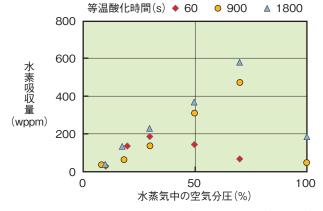


図 2-8 1473 K における被覆管水素吸収量の水蒸気雰囲気中の空気分圧依存性

いずれの時間においても、空気分圧の増加に伴って水素吸収量は増加していきます。空気分圧の高い領域での水素吸収量の減少は、雰囲気中の水蒸気分圧の低下によるものです。

燃料棒の形状維持に悪影響を与えます。

本研究では、燃料被覆管材料として用いられる Zr 合金の一種であるジルカロイ4(Zry-4:未照射)試料を対象に、1273 及び 1473 K の温度で、その水素吸収と酸化膜の成長に対する水蒸気雰囲気中の空気分圧の影響を評価しました。この結果から、被覆管の酸化は図 2-6に見られるような酸化膜と金属部との界面付近で形成された窒化物に加え、図 2-7 のように水蒸気雰囲気中の空気分圧によっても加速されることが分かりました。

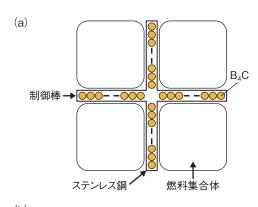
図 2-8 には、高温酸化中に燃料被覆管の金属部に吸収された水素量を示します。水素吸収が水蒸気雰囲気中の空気分圧の増加によって促進されることが分かります。これは、窒化物の形成によって酸化膜の緻密さが失われ、酸化反応に伴って生成した水素が金属部に到達しやすくなるためです。一方、空気分圧がある程度高くなると、雰囲気中の水蒸気分圧が低下し酸化に伴い発生する水素量が相対的に減るため、水素吸収量は低下する傾向を示します。

本研究により、空気が混入した水蒸気中で高温となった燃料被覆管の酸化メカニズムを明らかにすることができました。

●参考文献

Negyesi, M. et al., The Influence of the Air Fraction in Steam on the Growth of the Columnar Oxide and the Adjacent α-Zr(O) Layer on Zry-4 Fuel Cladding at 1273 and 1473 K, Annals of Nuclear Energy, vol.114, 2018, p.52-65.

2-3 シビアアクシデント時の放射性物質放出量の高精度評価を目指して - 原子炉制御材の酸化を考慮した事故解析 -



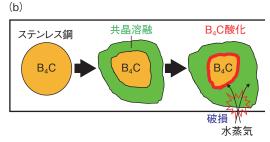
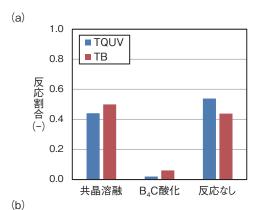


図2-9 B₄C 制御棒の溶融進展

(a) BWR 制御棒は、中性子吸収材 (制御材) であるホウ素の化合物 B_4 C とステンレス鋼からなります。(b) B_4 C が共晶溶融により液化することで制御棒被覆部が損傷し、 B_4 C 酸化が開始されます。

軽水炉シビアアクシデント(SA)に関する安全規制に 活用できる技術的知見の取得を目的に、放射性物質(特 にヨウ素(I)及びセシウム(Cs))の化学的挙動に着目し たソースターム評価研究を行っています。沸騰水型原子炉 (BWR) では制御棒の中性子吸収材に炭化ホウ素 (B₄C) を使用しており、その酸化で生成されるホウ素化学種 は原子炉冷却系内における I や Cs の化学反応に影響を 及ぼします。これらの化学種の変化はその後の移行挙動 に影響することから、B₄C 酸化量の評価は非常に重要で す。しかし、BWR 制御棒 (図 2-9(a)) では SA 時の温度 上昇によって内部からステンレス鋼被覆部と B₄C の共晶 溶融が進行し、被覆部が破損して初めて B₄C の酸化が 開始するなど、その進展は複雑です(図 2-9(b))。特に、 B₄C /ステンレス鋼間の共晶溶融により反応面積が低下 し、B₄C酸化反応速度に影響することから、解析には炉 心損傷進展を考慮可能なSA総合解析コードが必要です。

本研究では、BWR 制御棒形状に適用可能な B₄C 酸 化モデルを構築し、SA 総合解析コード THALES2 に 導入するとともに事故解析に適用しました。東京電力福島第一原子力発電所と類似のプラントを想定し、原子炉



	B ₄ C酸化に伴う生成量(mol)				
	$B_{2}O_{3}$	СО	CO ₂	CH ₄	H ₂
TQUV*1	77.6	1.5	37.3	2.1×10 ⁻¹⁵	331
TB*2	2140	273	797	2.0×10 ⁻¹³	8353

*1TQUV: 高圧·低圧注水失敗

*2TB:電源喪失

図 2-10 (a) 制御棒の B_4C 酸化割合と (b) 酸化に伴う生成物 (B_4C 酸化量と B_2O_3 を含む生成量)

減圧操作の有無により原子炉冷却系内の雰囲気条件が大きく異なる二つの事故シナリオ(減圧操作を実施する TQUVと実施しない全交流電源喪失 TB)を解析対象 としました(図 2-10(a)(b))。

二つの事故シナリオで共晶溶融の割合は同程度ですが、 B_4C の酸化割合が大きく異なります。減圧により水蒸気枯渇状態で炉心損傷が進展した TQUV では全交流電源喪失シナリオ TB よりも酸化が抑制されるなど、 B_4C 酸化量の事故シナリオ依存性が明らかとなりました。また、 B_4C 酸化により、ホウ素酸化物(B_2O_3)に加えて二酸化炭素などのガスも生成されます。これらは原子炉冷却系内の I や Cs の化学反応に影響を及ぼすだけでなく、格納容器に移行することで液相からのガス状ョウ素(I_2 、有機ョウ素)の放出挙動への影響が大きい格納容器液相の pH を変化させます。

今後は、別途開発中の原子炉冷却系内化学反応モデルとの連携によって、生成される I 及び Cs 化学種やその後の移行挙動への B_4C 制御材の影響について検討を進めます。さらに、格納容器内のョウ素化学反応モデルとの連携により、環境への放出量を評価する予定です。

●参考文献

Ishikawa, J. et al., Source Term Analysis Considering B₄C/Steel Interaction and Oxidation during Severe Accidents, Proceedings of the 25th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE25), Shanghai, China, 2017, ICONE25-67858, 7p.

2-4

原子力災害時の自動車内外で被ばくの違いを評価する

放射線挙動解析のための自家用車モデルの開発とその適用

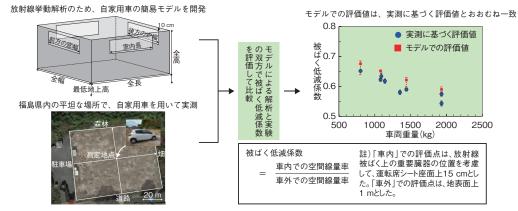


図 2-11 放射線挙動解析のための自家用車モデルの開発

放射線挙動解析のための自家用車の簡易モデルを開発して、被ばく低減係数を評価し、実測に基づく値と比較してみました。この結果、両者はおおむね一致しており、モデルの妥当性を検証することができました。



飛来した放射性物質からの放射線 (クラウドシャイン)

→ 被ばく低減係数0.66~0.88

地表面に沈着した放射性物質からの放射線 (グランドシャイン)

→ 被ばく低減係数0.64~0.73

原子力災害時の避難は、住民の被ばくを回避するための基本的な防護措置の一つであり、全ての原子力発電所立地道県において、自家用車での避難が基本的な手段の一つとして避難計画において定められています。

自家用車避難においては、避難のタイミングや経路を誤った場合、飛来した放射性物質からの被ばくや沈着した放射性物質からの被ばくが生じます。このような事態を想定し、避難時の被ばくの程度を考慮した上で、効果的な防護戦略を計画するためには、自家用車の遮へいによって、どの程度の被ばくを低減できるのかを評価しておく必要があります。しかし、このような目的に適した自家用車の評価モデルは提案されていませんでした。

本研究では、車両重量Mに着目し、以下の評価式を使って車体の厚さdを算定し、図2-11に示すように、形状を直方体と仮定して、放射線挙動解析のための自家用車モデルを開発しました。

$M - M_0 = \rho \cdot d \cdot S$

ここで、 M_0 は屋根と窓の重量、S は車両の表面積、 ρ は鋼板の密度です。屋根は厚さが他の箇所とは明確に異なるため、メーカーに問い合わせて得られた回答を基に 0.8 mm と設定しました。車両の形状に関する情報については、諸元表等の公開情報のみを使って設定し、車両の表面積S を算出しました。

開発したモデルで MCNP-5 による放射線挙動解析を 行い、日本国内の代表的な自家用車4車種について、グ ランドシャインに対する被ばく低減係数を評価しました。

また、評価結果の再現性を確認し、モデルの妥当性を検証するため、福島県内の平坦な場所において、上記の

図2-12 原子力災害時のクラウドシャインとグランドシャインに 対する被ばく低減係数

開発したモデルを利用して、自家用車の被ばく低減係数を評価しました。被ばく低減係数は、自家用車の重量、被ばく経路、放射線のエネルギーによって変動していましたが、クラウドシャインからの被ばくはおよそ1~3割、グランドシャインからの被ばくはおよそ3~4割低減されることが分かりました。

4 車種を含む 8 車種について、グランドシャインに対する被ばく低減係数を実験的に評価しました。モデルによる評価結果と、実測による評価結果を比較して図 2-11に示します。実測に基づく被ばく低減係数は、車両重量とともに小さくなる傾向が見られました。これは車両重量とともに車体の厚さ d が厚くなるためであると考えられ、本研究で開発したモデルでの評価結果も同様の傾向を示し、実測の結果を良く再現することができました。

このように開発したモデルを使って、国内の代表的な4車種について、クラウドシャインとグランドシャインに対する被ばく低減係数を評価しました。なお、クラウドシャインに関する解析では、 γ 線エネルギーとして 0.4 MeV、1 MeV 及び 1.5 MeV と仮定しました。評価の結果、クラウドシャイン及びグランドシャインに対する被ばく低減係数は、車両重量と γ 線エネルギーに応じて変動し、それぞれ、0.66 ~ 0.88 及び 0.64 ~ 0.73 (地表面に分布している場合)となりました(図 2-12)。

自家用車での避難をより効果的に行うためには、本研究で評価した被ばく低減効果だけでなく、他の防護措置と組み合わせて最適な戦略を事前に策定し、避難時に適切な行動をとることも必要になってきます。今後は、今回の成果も活用しつつもこれらの点を考慮して、被ばく低減効果が高くかつ実現可能性の高い自家用車避難等、原子力防災の最適化研究を実施する予定です。

本研究は、原子力規制委員会原子力規制庁の委託研究「平成27、28年度原子力施設等防災対策等委託費(防護措置の実効性向上に関する調査研究)事業」の一環として実施されました。

●参考文献

Takahara, S. et al., Dose-Reduction Effects of Vehicles Against Gamma Radiation in the Case of a Nuclear Accident, Health Physics, vol.114, no.1, 2018, p.64-72.

2-5 再処理施設重大事故時の閉じ込め性能を評価する - 揮発しやすい放射性ルテニウムの移行・沈着挙動解明に向けた実験 -

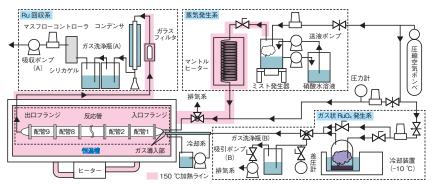


図2-13 実験装置の概略図

気体状 Ru と硝酸を含む水蒸気を混合することで、蒸発乾固事故の気相条件を模擬することが可能です。配管内に沈着した Ru、配管を通過しフィルタで捕集された Ru 及びフィルタを通過した Ru の量から、Ru の移行挙動を評価しました。

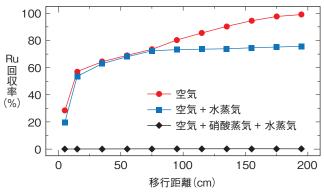


図2-14 気相条件と Ru の沈着挙動

乾燥空気中や水蒸気を含む空気中では気体状 Ru は分解し、配管に多くが沈着しました。一方で、硝酸を含む水蒸気中では気体状 Ru のまま配管を通過しました。

再処理施設の安全性を確認するためには、頻度は低いが、発生した場合には大きな影響を与える「重大事故」 についても考慮し評価することが重要です。

使用済核燃料の再処理時に生じる高レベル濃縮廃液は、含有する放射性物質の崩壊熱により加熱された状態にあり、再処理施設では常にこれを冷却しています。何らかの障害によりこの冷却機能が失われた場合、廃液の沸騰や乾固に至り、放射性物質が放出されるおそれがあります。この事故は、重大事故の一つとして定義されており「蒸発乾固事故」と呼ばれています。

この事故が発生した際の安全性を評価するためには、事故時の放射性物質の移行挙動を把握することが求められます。フランス原子力庁や原子力機構で過去に実施した廃液の加熱試験から、特にルテニウム(Ru)は加熱時に揮発性の化合物を形成し、他の元素よりも放出される割合が大きくなることが知られています。この性質に加え、Ru は放射性同位体 (106Ru、103Ru) を持つことから、公衆への被ばく評価を行う上で重要な元素です。

私たちはこの Ru の事故時の移行挙動を評価するため の実験装置(図 2-13)を製作し、実験を行いました。 気体状 Ru として四酸化ルテニウムを用い、施設内の



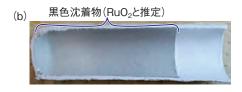


図 2-15 (a) 配管沈着 Ru 及び (b) フィルタ回収 Ru の外観 空気や水蒸気を用いた実験では、配管の入口付近に RuO $_2$ と 推定される黒色の沈着物を確認しました。また水蒸気を用いた実験では、ガラスフィルタで Ru の微粒子が捕集されました。

移行経路を模擬したガラス製の配管中(図2-13 恒温槽) に供することで Ru を沈着させ、その分布から移行挙動 を評価しました。基礎的なデータを得るために空気中や 水蒸気中での実験を行い、蒸発乾固事故で生じる気相雰 囲気を模擬した条件として硝酸を含む水蒸気を用いた実 験を行いました。

図 2-14 に、各実験で得られた Ru のガラス配管に対する沈着割合の結果を示します。また、図 2-15 に、空気を用いた実験における配管の Ru の沈着の写真及び水蒸気を用いた実験後のガラスフィルタの写真を示します。空気中では投入した Ru のほぼ全量が配管へ沈着しました。水蒸気中では Ru の多くが配管内へ沈着したものの、投入量の 30% 程度がガラスフィルタ中で回収されました。これは配管内で Ru の微粒子が形成されたことを示しています。一方で、硝酸を含む水蒸気を用いた場合には Ru の沈着は観測されませんでした。これは硝酸が気体状 Ru を安定化する効果を持つためと考察しています。

これらの結果は、事故時の Ru の移行挙動のほか、発生した気体状 Ru の吸着除去を行う上でも有用な情報であり、再処理施設の安全性評価上重要な知見であると考えられます。

●参考文献

Yoshida, N. et al., Migration Behavior of Gaseous Ruthenium Tetroxide under Boiling and Drying Accident Condition in Reprocessing Plant, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.55, issue 6, 2018, p.599-604.

2-6

環境試料中のウラン微粒子から核物質の履歴を推定

保障措置のための単一ウラン微粒子の化学形・同位体比データの取得ー

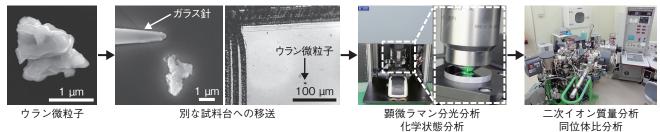


図2-16 ウラン微粒子の化学形・同位体比分析の流れ

数 μm 程度の極めて小さいウラン微粒子を対象に、顕微ラマン分光分析と二次イオン質量分析による測定方法を組み合わせた、新たな分析手順を開発しました。

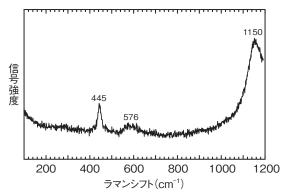


図 2-17 標準ウラン微粒子から得られたラマンスペクトル 複数のピークの位置から、 UO_2 の構造を持つことが分かります。

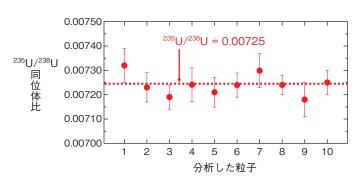


図2-18 ²³⁵U/²³⁸U 同位体比分析結果 ラマン分光測定を行った後のウラン微粒子に対して、正確に 同位体比を分析することができました。

原子力発電の燃料として用いられるウラン(U)は、質量数の異なる同位体を有しています。特に、²³⁵Uの存在割合(ウラン濃縮度)はその用途によって変化し、原子力発電用の燃料では濃縮度が数 % の低濃縮ウランが用いられます。さらに、濃縮度が 90 % 程度になると、核兵器の原料として用いることができます。私たちは、国際原子力機関(IAEA)が世界各国の原子力関連施設で採取した環境試料中に含まれる U やプルトニウム微粒子の同位体組成を分析し、軍事目的に利用できるような核物質がないかを調べています。

また、燃料サイクルの過程では、ウラン鉱石の精錬や転換、濃縮、燃料への加工など多くの工程があり、各工程に適した化学形のUが用いられます。例えば、製錬では八酸化三ウラン(U_3O_8)、原子力発電用の燃料としては二酸化ウラン(UO_2)が用いられます。そのため、ウラン微粒子の同位体比の情報に加えて、化学形も判別できれば、各施設で行ったU取り扱い履歴の詳細な推定が可能になると期待されています。しかし、これまでは一つのウラン微粒子に対して同位体比と化学形の双方を分析した例はありませんでした。

そこで私たちは、顕微ラマン分光分析と質量分析を組み合わせた新たな分析技術を開発しました(図2-16)。 電子顕微鏡下においてウラン微粒子を特定し、微細な ガラス針を用いて測定用試料台に移送します。次に、顕微ラマン分光(レーザー光を粒子に入射し、粒子から出るラマン散乱光との波長のずれを観測すること)により、その化学形を分析します。その後、二次イオン質量分析(一次イオンを粒子に照射し、粒子から放出される二次イオンを質量分離すること)により同位体比を分析することで、一つのウラン微粒子の化学形と同位体比の両方を明らかにできます。

図 2-17 には、代表例として化学形が UO_2 であり、天然の同位体組成を持つ標準ウラン微粒子から得られたラマンスペクトルを示しました。445 cm-1、576 cm-1、1150 cm-1 の位置に UO_2 の構造に由来したピークが観測されたため、その化学形を正しく判別できました。また、図 2-18 にはラマン分光分析を行った後に、質量分析によって標準ウラン微粒子 10 個の同位体比を測定した結果を示しました。全てのウラン微粒子で天然の組成($^{235}U/^{238}U=0.00725$)と良く一致した測定結果が得られ、開発した手法によりウラン微粒子の化学形と同位体比の両方を正しく分析することができました。

本研究は、原子力規制委員会原子力規制庁の委託研究「平成 29 年度保障措置環境分析調査」の成果の一部です。

●参考文献

Yomogida, T. et al., Chemical State and Isotope Ratio Analysis of Individual Uranium Particles by a Combination of Micro-Raman Spectroscopy and Secondary Ion Mass Spectrometry, Analytical Methods, vol.9, issue 44, 2017, p.6261-6266.

先端原子力科学研究

未来を拓く先端原子力科学研究

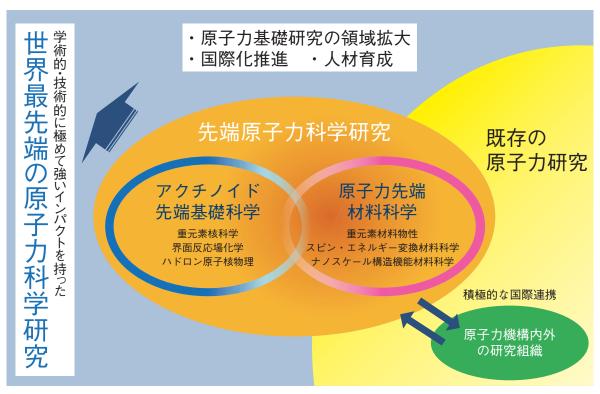


図3-1 先端原子力科学研究の位置づけ 学術的・技術的に極めて強いインパクトを持った世界最先端の原子力科学研究を目指しています。

原子力にかかわる技術の多くは、総合科学の結集として、その基盤が支えられています。しかし、原子力研究開発においては、10年後あるいは20年後に実用化される原子力利用の新しいフェーズに対し、その端緒を拓く研究を進めておくことも必須の課題です。

先端基礎研究センターでは、原子力科学における無限の可能性を基礎科学の立場から掘り起こし、さらにその過程から新しい学問分野を開拓し、学術の進歩と最先端の科学技術の振興を図ることを目指しています。

2015年度から始まった中長期計画では、アクチノイド先端基礎科学及び原子力先端材料科学の2分野で研究をスタートしました。アクチノイド先端基礎科学では、新しい概念の創出を目指した原子核科学や重元素科学を、原子力先端材料科学では、新しいエネルギー材料物性機能の探索とそのための新物質開発を実施しています。これらの各分野間の連携や、原子力機構内外の研究組織との協力を通して、学術的・技術的に極めて強いインパクトを持った世界最先端の原子力科学研究を推進し、新原理・新現象の発見、新物質の創成、革新的技術の創出などを目指しています(図3-1)。

2017 年度は、アクチノイド先端基礎科学では、核分裂における原子核の様々なちぎれ方を捉える一放射性物質の毒性低減技術に貢献ー(トピックス 3-1)として、核分

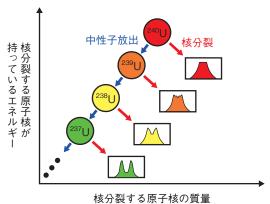
裂の仕組みに関する新たな知見がタンデム加速器を用いて得られました。タンパク質で金属から身を守る?ーゾウリムシ細胞表面の水溶性糖タンパク質と重金属の結合ー(トピックス 3-2)は、生物のタンパク質と重金属との興味深い関係の成果が得られています。また、ハイパー核をγ線で見るー中性子星に潜む「奇妙さ」を暴けるかー(トピックス 3-3)は、J-PARC ハドロン実験施設で得られた、中性子星の内部構造の解明につながる成果です。

一方、原子力先端材料科学では、ウラン化合物で現れる磁場に強い超伝導の仕組みを解明一極低温における高精度核磁気共鳴測定が明らかにした新しい電子状態ー(トピックス 3-4) は、新しい超伝導材料開発への貢献が期待される成果です。アンチな磁石に機密保持一微小な反強磁性体を揃える新手法を提案ー(トピックス 3-5) は、磁性体の磁気の異方性を制御する新しい方法を提供する成果です。また、スピン流発電の高効率化へーマグノン状態密度を中性子散乱で決定ー(トピックス 3-6)では絶縁体の中のスピンの流れを、中性子散乱を用いて調べた興味ある成果が得られています。

先端基礎研究センターでは、以上に述べたような原子力基礎研究を通して、高い専門性を有し総合能力を発揮できるような原子力人材の育成も重要な課題として位置づけています。

3-1 核分裂における原子核の様々なちぎれ方を捉える

- 放射性物質の毒性低減技術に貢献-



127127 0 13 120 9

図3-2 核分裂と中性子放出の競合

高いエネルギーを持った²⁴⁰U は核分裂することもありますが、中性子を放出して²³⁹U になることもあります。この二つの過程は原子核のエネルギーが低くなるまで続きます。これにより、高エネルギーの核分裂では複数の原子核が関与するため、混在して観測されます。それらを分離できないことが問題となっていました。

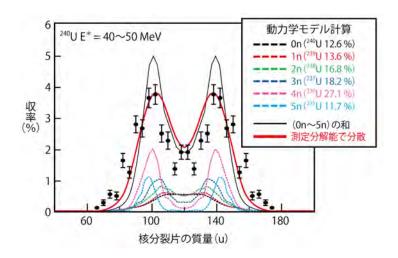


図3-3 高エネルギーの核分裂におけるちぎれ方

●は励起エネルギーE*= $40 \sim 50$ MeV を持った 240 U を合成したときに観測されるちぎれ方です。 $0 \sim 5$ 個の中性子を放出することにより $^{235-240}$ U の六つの原子核の核分裂が混在しています(破線: $0n \sim 5n$)。足し合わせると—線のようになり、実験データを良く再現しています。

原子力エネルギーの利用により、燃料であるウランより重い原子核が作り出され、放射性のゴミとしてその処理が問題となっています。これらの原子核は、軽水炉のような低いエネルギーの中性子では核分裂しませんが、より高いエネルギーの中性子を当てることで核分裂を起こして壊すことができます。この場合、軽水炉での核分裂とは異なり、原子核は核分裂する前に高いエネルギーを持っています。このような核変換の方法を実現するためには、高いエネルギーでの核分裂メカニズムを理解する必要があります。

核分裂は原子核が変形して、やがて二つの軽い原子核にちぎれる現象です。その過程を調べるためには、二つの原子核の質量がどのようなバランスでちぎれたか(ここでは"ちぎれ方"、専門用語では核分裂質量分布と呼ぶ)を観測することが重要になります。しかしながら、高いエネルギーを持った原子核のちぎれ方は、実験的に困難なことからこれまで調べられておらず、したがって高エネルギー核分裂のメカニズムもよく分かっていません。

本研究では、原子力機構タンデム加速器施設において、ウラン 238 標的に酸素 18 ビームを照射する実験を行い、様々な原子核を合成し、それらのちぎれ方を広いエネルギー領域にわたって取得しました。高いエネルギーを持った原子核は核分裂して壊れることもありますが、中性子を放出して少しエネルギーが低い別の原子核になることもあります。図 3-2 の例では、高いエネルギーを持ったウラン-240 (240U) がいくつもの中性子を放出

しています。²⁴⁰Uをつくったとしても、観測される核分裂には²⁴⁰Uのみならず、²³⁹U、²³⁸U、²³⁷Uなどの多くの核種が寄与することになります。したがって、図中の枠内に示したようなそれぞれの原子核のちぎれ方が混在して観測され、これらを単独で抽出することができません。これが先述の実験的な困難の理由です。

私たちは、動力学モデルと中性子放出の効果を組み 合わせることで、それぞれの核種の核分裂の寄与を分離 することに成功しました。図3-3はその一例です。本 研究により、²⁴⁰Uで観測されたデータは始めには高い エネルギーを持っていたものの、実際は破線で示した6 核種の核分裂のちぎれ方の足し合わせであることが初め て明らかとなりました。本成果は、高いエネルギーを持っ た原子核のちぎれ方(図3-3の例では----線で示した ²⁴⁰U のちぎれ方)を初めて得たものであり、高エネルギー 核分裂研究の道を拓いたといえます。今後は即発中性子 などのメカニズムに深く関与している物理量も併せて観 測し、核分裂の理解を進めたいと考えています。このよ うな研究は、未知の核種・エネルギー領域における核分 裂データの評価に指針を与え、核分裂を利用した放射性 物質の毒性低減のための核変換技術へ貢献することが期 待されます。

本研究は、文部科学省の原子力システム研究開発事業「高燃焼度原子炉動特性評価のための遅発中性子収率 高精度化に関する研究開発」の助成を受けました。

●参考文献

Hirose, K. et al., Role of Multichance Fission in the Description of Fission-Fragment Mass Distributions at High Energies, Physical Review Letters, vol.119, issue 22, 2017, p.222501-1-222501-6.

3-2 タンパク質で金属から身を守る? - ゾウリムシ細胞表面の水溶性糖タンパク質と重金属の結合-

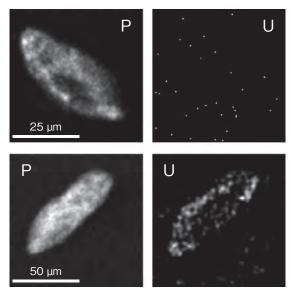


図 3-4 ゾウリムシ細胞への U の吸着 上図は生細胞中のリン(P)とウラン(U)、下図はあらかじめ薬 品処理して死滅させた細胞の Pと U です。 U の水溶液にゾウリ ムシ細胞を入れた後、micro-PIXE という陽子線ビームを使っ た非破壊元素分析法により細胞の元素分布を測定しました。細 胞自体の分布は、細胞の主要元素である P で示しています。

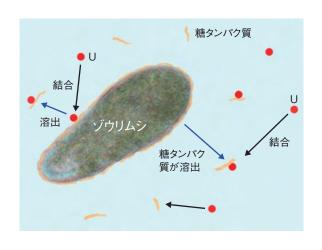


図3-5 ゾウリムシ細胞表面の糖タンパク質とUの結合 細胞全体を覆う糖タンパク質にUが結合した後に細胞から溶け出す、または溶け出た糖タンパク質にUが結合することにより、細胞へのUの吸着が減少すると考えられます。

環境中には様々な微生物がいます。放射性核種を含む金属元素が地質・水環境中を動くとき、バクテリアなどの微生物が、細胞の表面に金属元素を吸着する、細胞から分泌するリン酸イオンにより金属元素のリン酸塩をつくる、といった微生物特有の作用をすることが知られています。バクテリアは、土壌や環境水中ではそれらより大きい生物と生態系を形成しています。ミドリムシ、アメーバ、ゾウリムシ等の原生動物は大きさが十~数百 μ mの単細胞微生物で、一般的にバクテリア等を捕食するので、バクテリア等の生息数をコントロールしています。本研究では、これまでほとんど検討されていなかった原生動物と金属元素の反応を調べました。

本研究では、淡水に生息する代表的な原生動物である ゾウリムシと水溶液中のウラン(U)の反応を調べました。ゾウリムシの生細胞に吸着した U はほとんど検出 できませんでしたが、あらかじめ薬品(細胞固定液)で 死滅処理した細胞には U が検出されました(図 3-4)。 この違いが生じる理由を明らかにするため、実験後の水 溶液を分析したところ、ゾウリムシから分泌された有機 物に一部の U が結合していたことが分かりました。こ の水に溶け出た有機物を分離・濃縮して特性を調べたと ころ、分子量約 25 万の非常に大きい糖タンパク質であることが分かりました。

ゾウリムシの細胞表面は、水に溶けやすい糖タンパク質で覆われています。この糖タンパク質の分子量は25~30万程度であり、これらの特徴は、本研究でUと結合した糖タンパクの性質と一致します。このことから、U水溶液に入れたゾウリムシ生細胞にUが検出されなかったのは、Uが結合した表面糖タンパク質が細胞から離れて水に溶解したためであること(図3-5)及びあらかじめ薬品で死滅処理した細胞でUが検出されたのは、薬品によって表面タンパク質が細胞に固定されていたので、そこにUが吸着したためであると考えられます。

ゾウリムシは金属元素に敏感で、耐性が低いことが 知られています。ゾウリムシ細胞表面の糖タンパク質の 役割は解明されていませんが、金属の毒性から身を守る 手段なのかもしれません。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究(C)(No.25420910)「微生物の食物連鎖末端における持続的アクチノイドリン酸塩形成に関する研究」の助成を受けたものです。

●参考文献

Kozai, N. et al., Complexation of Eu(III), Pb(II), and U(VI) with a *Paramecium* Glycoprotein: Microbial Transformation of Heavy Elements in the Aquatic Environment, Chemosphere, vol.196, 2018, p.135-144.

3-3 ハイパー核をγ線で見る - 中性子星に潜む「奇妙さ」を暴けるか-

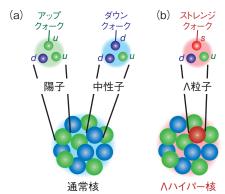


図3-6 通常核とΛハイパー核 (a) は陽子と中性子のみからできている普通の原子核、(b) はそれにΛ粒子を加えたハイパー核を表します。

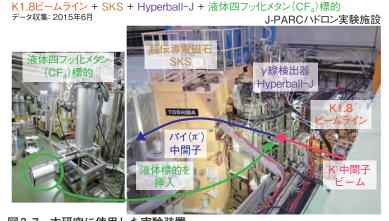


図3-7 本研究に使用した実験装置 J-PARC で得られた K^- 中間子のビームを液体四フッ化メタン標的に入射して、ハイパー核を生成します。それと同時に、標的周りに設置した γ 線検出器によって、ハイパー核から放出される γ 線を測定します。

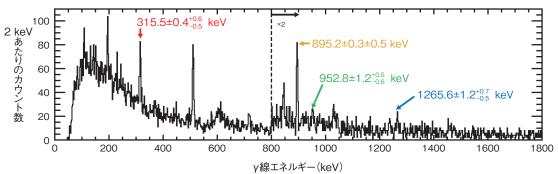


図 3-8 測定された γ 線スペクトル $^{10}_{10}$ F ハイパー核からの γ 線を四つ観測、同定することに成功しました。エネルギーの誤差が二つありますが、一つ 目が統計誤差、二つ目が系統誤差です。ほかにもピークが何本か見えていますが、 $^{10}_{10}$ F が生成されていない場合でも見えているなどの理由からバックグラウンドだということが分かっています。

通常の原子核は、陽子と中性子という2種類の構成要素からできています(図3-6(a))。クォークのレベルで見ると、どちらもアップクォークとダウンクォークという2種類のクォークからできていますが、クォークは全部で6種類あることが知られています。では、アップ/ダウンクォークを別のクォーク、例えばストレンジクォークに変えた場合、原子核はどのように変わるでしょうか?このような特別な原子核をハイパー核と呼びますが、その中でもラムダ(A)粒子を含むハイパー核(図3-6(b))について、これまでも盛んな研究がなされてきました。

ハイパー核を研究する動機はいろいろありますが、そのうちの一つとして、中性子星が挙げられます。中性子星の内部にはΛ粒子が天然に存在していると考えられているので、中性子星の性質を理解するにはΛハイパー核の性質を調べることが必要です。中性子星は巨大なハイパー核なので、その性質を知るにはなるべく大きなハイパー核を調べたいのですが、これまでの研究は技術的な

理由から主に軽いハイパー核を調べるものでした。

私たちは、図 3-7 の J-PARC ハドロン実験施設で行われた実験で、これまで研究されたよりも重いハイパー核であるフッ素 19 Λ ハイパー核(19 F)を作って、そこから出て来る光(γ 線)を観測することに成功しました(図 3-8)。その結果は、私たちが以前に測定した軽いハイパー核($^{\Lambda}$ Uウム 4 Λ ハイパー核(4 He)やリチウム 7 Λ ハイパー核(7 Li))のデータを使って理論的に計算した予想値と良く一致していました。これは、これまでに得られた知識から、軽いハイパー核だけでなくより重いハイパー核の構造も十分に理解し得ることを示しています。

今回のような研究をさらに進め、より重いハイパー 核の構造を精密に調べることで、中性子星の内部構造と いう未解決問題に決着をつけることができると期待され ています。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究 (A) (No.15H02079) 「ハイパー核ガンマ線分光で解明する AN 相互作用の荷電対称性」の助成を受けたものです。

●参考文献

Yang, S. B., Tanida, K. et al., First Determination of the Level Structure of an sd-Shell Hypernucleus, ${}^{19}_{\Lambda}$ F, Physical Review Letters, vol.120, issue 13, 2018, p.132505-1-132505-5.

3-4 ウラン化合物で現れる磁場に強い超伝導の仕組みを解明

ー極低温における高精度核磁気共鳴測定が明らかにした新しい電子状態ー

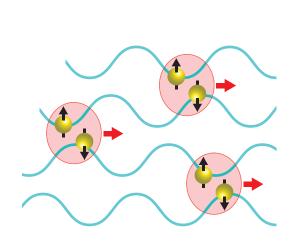


図 3-9 超伝導の概念図

物質中の多数の電子(●)は電子スピン(➡)と呼ばれる磁石の ような性質を持ちます。この電子スピンを互い違いの方向に 向けてクーパー対と呼ばれる対を組み、波(~)のように流れ る(→)ことで超伝導状態となります。

超伝導現象は電気抵抗が完全にゼロとなるため、リ ニアモーターカーを始め、実用的な現象として利用され ています。しかし、超伝導を作るにはとても低い温度を 作らなければならないことや、超伝導は磁場にも弱く、 強い磁場で壊れてしまうことがより幅広い分野での実用 化にあたって障害となっています。そのため、より高温 で超伝導になるものや、より強い磁場に耐えられる超伝 導体の研究が現在も盛んに行われています。

現在原子力機構で精力的に研究を進めているウラン 化合物 URu₂Si₂ の超伝導は、磁場に非常に強いという 性質を持っており、その原理の解明が重要な課題となっ ていました。しかし、核燃料物質であるために取扱いが 難しく、これまでの研究では十分な精度の測定ができて いませんでした。そこで、原子力機構の施設を活用する ことで、超純良な単結晶ウラン化合物 URu₂Si₂を新た に合成し、測定に最適な形状(直径1 mm、長さ2 mm 程度の円柱型)に加工しました。その結果、極低温(約 -273 ℃)領域におけるウラン化合物の超伝導状態にお いて世界最高精度の核磁気共鳴測定に成功しました。核 磁気共鳴法は物質中の原子核が持つ磁石のような性質 (核スピン) を通して、原子核の周りにある電子を微視 的に調べる手法で、超伝導を作りだす電子の状態を知る ことができます。

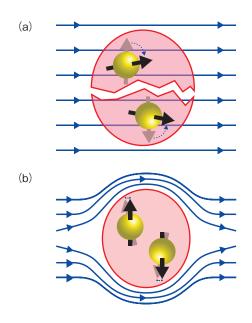


図3-10 超伝導電子対に磁場(一)をかけたときの振る舞い (a) 通常はスピンが磁場方向に倒れ、クーパー対が壊れます。 (b) ウラン化合物 URu₂Si₂ ではスピンが一方向に向いており、 磁場で倒れないため、強い磁場下でもクーパー対が保たれます。

物質中の多数の電子は、電子スピンと呼ばれる磁石 のような性質を持っており、各電子スピンの向きは普段 はバラバラの方向を向いています。その電子間に引力が 働くと、電子はスピンの向きを互い違いの方向に向けて クーパー対と呼ばれるペアを作り、整列した波のような 状態を作ることで超伝導状態になります(図3-9)。こ こに強い磁場を近づけると、電子スピンは磁場の向きに 倒れてしまうため、クーパー対を組めなくなり超伝導は 壊れることが知られています (図 3-10(a))。 今回私た ちは、高精度核磁気共鳴測定により、URu₂Si₂の電子ス ピンは一方向に向いており、強い磁場下でも倒れない新 しい状態になっていることを実証しました。そして、こ の電子状態のために、本物質では磁場に強い超伝導が実 現していることが分かりました(図3-10(b))。この成 果は超伝導現象の理解を深めるとともに、より実用的な 超伝導体の探索に指針を与えるものと期待されます。ま た、このような新しい状態は、非常に多くの電子を持つ ウランが起源となって現れる新しい状態と考えられ、今 後の基礎物性物理学の進展、原子力基礎科学の充実に寄 与するものと思われます。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金若手研 究(B)(No.16K17757)「多極子秩序と共存する新奇超 伝導状態の微視的解明」の助成を受けたものです。

●参考文献

Hattori, T. et al., Evidence for Spin Singlet Pairing with Strong Uniaxial Anisotropy in URu₂Si₂ Using Nuclear Magnetic Resonance, Physical Review Letters, vol.120, issue 2, 2018, p.027001-1-027001-5.

3-5 アンチな磁石に機密保持

- 微小な反強磁性体を揃える新手法を提案 -

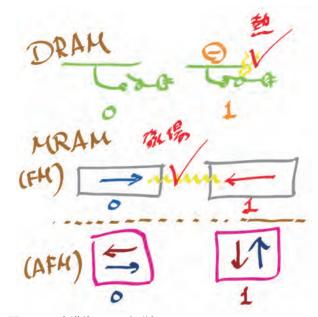


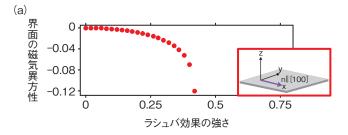
図 3-11 半導体メモリと磁気メモリ

0と1のデータを半導体メモリ(DRAM)では電気(一)の有無で、磁気メモリ(MRAM)では磁気(矢印)の向きで記憶します。このとき、電気は発熱の問題があり、通常の磁石(FM)では漏れ磁場による混線が問題となります。アンチ磁石(AFM)では磁気は常に打ち消し合うため、データの混線や漏れ出しがないという特性があります。

インターネットやスマートフォン、来たるべき AI 社会。現代の生活は、多くのデジタルデータに支えられています。デジタル処理の中枢にあるメモリ素子では、データを書き込み、記憶し、読み出すといった基本的な動作を一秒間に何十億回も繰り返しています。通常この動作は、電気の流れやすさを調節できる半導体という材料を使って、電気の目まぐるしいオンオフで実現していますが、これが熱を出しエネルギーを浪費してしまいます。増え続けるデータ量とともに、デジタル処理に関わる消費エネルギーの増大が、いま大きな問題となっています。

この問題の解決策として、「磁気メモリ」と呼ばれる新しいタイプのメモリ素子に期待が寄せられています。電気のオンオフに代えて「磁気が揃う向き」にデータを格納し、消費エネルギーを大幅に抑えるものです(図 3-11)。この磁気メモリの基本部分にはナノスケールの微小な磁石が使われ、世界中で最適な素材の研究が進められています。その最先端にあるのが、「反強磁性体」と呼ばれる材料です。

反強磁性体は、磁気が揃う性質を持ちながら外部に 磁場を出さず、また外部の磁場に反応しにくい「アンチ 磁石」であり、ほかの磁気材料では実現できない優れた 特性を持っています。例えば、漏れ磁場によるメモリ素 子間の混線やデータ漏えいが原理的にないため、高集積



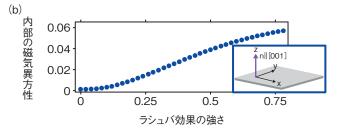


図 3-12 ラシュバ効果による反強磁性体の磁気異方性
(a) ある種の反強磁性体では、試料界面の磁気異方性が負の値をとり、面に沿った方向 x(→、[100] 方向) が有利になります。
(b) 一方、試料内部では正の値をとり、垂直方向 z(♠、[001] 方向) になることが分かりました。さらに、ラシュバ効果の大きさを変化させることで、それぞれの異方性の大きさを調節することも可能です。グラフの横軸縦軸は、反強磁性体中の電子が持つ特徴的なエネルギー(eV) を単位としています。

化の限界を乗り越え、さらにデータの安全性確保にも寄与すると考えられます。また、放射線によって生じる電子機器の誤作動に対する耐性の観点からも強い関心が持たれています。

私たちは、この反強磁性体の磁気の揃う方向を支配する「磁気異方性」という性質に着目しました。物質中の特殊相対論効果(ラシュバ効果)を取り入れた理論モデルの解析を行い、特定の条件を満たす反強磁性体では、素子の内部と表面で磁気の向きやすい方向が全く異なることを明らかにしました。また、図 3-12 に示すように、これらの磁気異方性は、ラシュバ効果の強さに伴って変化します。これまでの研究により、ラシュバ効果は適切な異種材料を貼り合わせるなどのほか、外部から直接電圧を加えることで変調できることが分かっており、本研究によって反強磁性体の磁気異方性も同様の方法で適切な値に調節できることが分かりました。

一般に、サイズが小さいほど表面の効果がより支配的となります。このため、本研究で見いだされた性質はナノスケールで特に重要となり、微小な反強磁性体を使った次世代型磁気メモリの設計指針に貢献するものです。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究 (C) (No.16K05424) 「スピン起電力による磁気エネルギー利用法の理論研究」の助成を受けたものです。

●参考文献

Ieda, J. et al., Magnetic Anisotropy by Rashba Spin-Orbit Coupling in Antiferromagnetic Thin Films, Journal of the Physical Society of Japan, vol.87, issue 5, 2018, p.053703-1-053703-4.

3-6 スピン流発電の高効率化へ -マグノン状態密度を中性子散乱で決定-

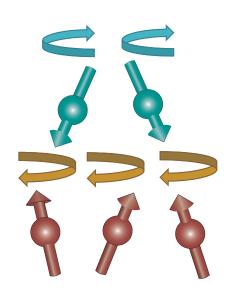


図 3-13 2種類のスピンによる回転モード 磁性体イットリウム鉄ガーネット中の鉄イオンの上向きと下向きの2種類のスピンによる回転モードです。このモード がマグノンとしてスピン流を生み出します。

スピン流発電は、磁石である電子のスピンの運動や 流れ、すなわちスピン流で発電できる画期的な発電方法 です。スピン流はスピンの回転運動の流れ(マグノン) であり、例えば温度勾配により生じます。その流れが白 金などの電極上で、電圧として現れ発電します。これま で効率が高いイットリウム鉄ガーネット(YIG)という 磁性体を用いて発電が調べられてきました。この YIG という磁性体の組成は Y₃Fe₅O₁₂ であり、図 3-13 に示 したように上を向いたスピンと下を向いたスピンが、そ の数の比が 3:2 となるように含まれ、上を向いたスピン の数が多くなっています。これがこの YIG が強磁性体 (フェリ磁性体)となる理由です。またスピンの回転には、 右回りと左回りがあり、エネルギーによって特定の方向 にのみ回転できます。一見、全く自由に回転できそうな スピンにこのような制限が対称性から出てきます。さら にこの回転がスピン流と密接に関係しており、二つの回 転が混ざってしまうと効率が下がることが理論的に指摘 されています。この YIG では、この二つの回転のエネ ルギーが約30 meV と大きく分裂し、図3-13の左回り のスピンの回転のみが低温で起こることから、効率が高 くなることが分かってきました。さらに、その回転の状 態数の大きさが効率を決めます。そのマグノンの状態数 は、中性子散乱によって、マグノン状態密度として測定 することが可能です。しかしこれは散乱強度を絶対値で 評価する必要があることから実験的に難しく、これまで

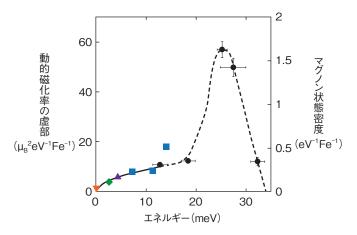


図3-14 中性子散乱で得られたマグノン状態密度 この大きさは動的磁化率の虚部に比例し、スピン流発電の量を決定します。----線で示すようにゾーン境界では大きなピークとなります。各データ点の色は、装置や条件が異なることを示しています。

直接には求められていませんでした。

今回、J-PARCセンターの物質・生命科学実験施設の非弾性中性子散乱装置である、四季、AMATERAS、DNAという三つの装置を用いて、3桁にわたる幅広いエネルギー領域で、中性子散乱強度の絶対値評価を行い、図3-14に示すようなマグノン状態密度を求めることに成功しました。YIGのような複雑な磁気構造での導出方法が分かったことで、今後、ほかの多くの物質に応用することができるようになりました。

最近、より効率の高いスピン流発電物質の開発が試みられていますが、その強磁性体物質の条件としては、右回りと左回りの二つの回転が重ならないこと、そして図 3-14 のマグノン状態密度がより高いことが、重要な因子となります。これらの様子は中性子散乱により直接求めることができます。

スピン流発電は温度勾配だけでなく、超音波による格子振動によっても生じることが知られています。これにはマグノンポーラロンというマグノンとフォノンとが混ざった状態が重要な役割を担っていると考えられます。今後はマグノンだけでなく、スピン流発電へのフォノンの効果も中性子散乱により調べていく予定です。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究 (B) (No.25287094)「中性子散乱による温度勾配下での 素励起流測定」の助成を受けたものです。

●参考文献

Shamoto, S. et al., Neutron Scattering Study of Yttrium Iron Garnet, Physical Review B, vol.97, issue 5, 2018, p.054429-1-054429-9.

原子力基礎工学研究

原子力科学の共通基盤技術を維持・強化して原子力利用技術を創出

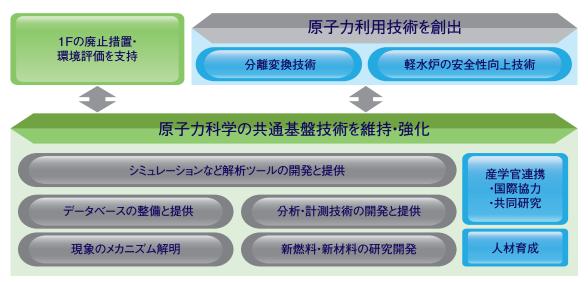


図4-1 原子力基礎工学研究の概要

原子力科学の共通基盤技術を維持・強化しています。さらに、東京電力福島第一原子力発電所 (1F) の廃止措置等を 下支えし、軽水炉の安全性向上、放射性廃棄物の有害度を低減させる分離変換技術などの研究開発も進めています。

原子力エネルギーの利用や放射線利用は、基礎となる データベースやシミュレーション解析コードなどのツー ル、分析技術、現象のメカニズムに関わる知識など共通 基盤技術・知識基盤によって支えられています。私たち は、常に最新の知見や技術をこれらに取り込む研究開発 を行い、様々な産業界・大学・政府機関などに提供をし ています。また、軽水炉の安全性向上や放射性廃棄物の 有害度を減らす分離変換技術など新しい原子力利用技術 の研究開発も行っています(図4-1)。本章では、近年 の研究開発による成果を紹介します。

使用済核燃料に含まれるマイナーアクチノイド(MA) 核種の多くは強い毒性があるため、有害度を低減する 技術を開発しています。MAの一つであるアメリシウム (Am) の熱中性子捕獲断面積について測定技術の違いで 実験結果が異なる課題がありました。私たちは、共鳴構 造の影響を放射化法で測定された結果に対して補正する 方法を開発し、飛行時間法による結果と整合することを 確認し、MA の核データに関わる課題の一つを解決しま した(トピックス 4-1)。

特定のセラミックスは放射線に強い性質を持ちます が、その理由は不明でした。このメカニズムを解明する ため、新しいナノスケールの観察法を開発しました。セ ラミックスに重粒子線を照射して、原子の配列が乱れて も即座に再結晶化して自己修復することを新しい観察法 で確認することに成功しました(トピックス 4-2)。

材料科学シミュレーションによる割れにくい合金の設計・ 開発に挑戦しています。結晶境界にある合金元素の占有 率を指標とすることにより、合金の割れにくさを予測する ことが可能であることを確認しました (トピックス 4-3)。

放射性廃棄物の中から特定の金属を分離する溶媒抽 出法を研究しています。抽出剤(有機相)と水相の界面 にある金属イオンの構造が抽出性能に影響を及ぼすと考

えられていますが、その構造を観察して決定できる技術 がありませんでした。私たちは、先進的なレーザー分光 法を用いて、界面のユーロピウム (Eu) イオンの構造 を突き止めることに成功しました(トピックス 4-4)。

放射線による遺伝子情報の変質に極低エネルギーの 二次電子が影響することを解析的に突き止めました。こ の成果は、放射線による突然変異やがん誘発の初期要因 を解き明かす重要な知見です(トピックス 4-5)。

ホウ素中性子捕捉療法 (BNCT) 用のがん治療薬剤 の開発や治療計画の最適化に役立てるため、確率論的マ イクロドジメトリ動態モデルと解析コード PHITS を組 み合わせて、理論的にがん細胞殺傷効果を予測すること に成功しました(トピックス 4-6)。

軽水炉で過酷事故が起きて放射性物質が環境に放出さ れ、公衆が被ばくする事態を想定した研究をしています。 公衆の被ばく量を評価するためには、核燃料からの放出 割合、原子炉内の移行割合、原子炉外への放出割合など を評価する必要があります。私たちは、実際の環境に近い 条件でストロンチウム (Sr) の放出・移行実験を行い、詳 しい化学的挙動データを取得しました(トピックス 4-7)。

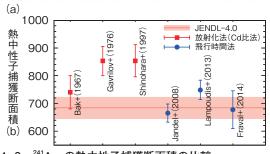
私たちは、MA を加速器駆動核変換システム (ADS) で減容する技術開発の一つとして、米国の臨界集合体と 高濃縮ウランを用いて冷却材である鉛の核データの検証 を進めています(トピックス 4-8)。

ADS の実現に向けた核変換実験施設の要素技術とし てレーザー荷電変換システムを開発し、J-PARC の大強 度陽子ビームから微小出力ビームを制御して取り出せる 技術の基礎を試験により確認しました(トピックス 4-9)。

原子力発電所の過酷事故時の高温、腐食環境下でも耐 える金属被覆無機絶縁 (MI) 計測ケーブルを調査・検 討して、ニッケル基合金 NCF600 が優れた材料である ことを試験を実施して確認しました(トピックス 4-10)。

4-1 マイナーアクチノイドの核データ精度向上を目指して

ー中性子共鳴構造を使った熱中性子捕獲断面積実験データの評価ー



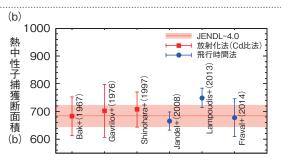


図4-2 ²⁴¹Am の熱中性子捕獲断面積の比較

(a) 放射化法で測定された熱中性子捕獲断面積は、飛行時間法による実験データより大きくなる傾向がありました。図には、核データライブラリ JENDL-4.0 での値と誤差を横線と帯で示しています。(b) 放射化法による実験データへ開発した補正法を適用することで、飛行時間法の値と実験誤差の範囲内で整合することが分かりました。これにより、捕獲断面積全体の一層の高精度化が可能になると期待されます。

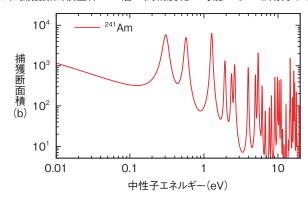


図4-3 ²⁴¹Am の捕獲断面積に見られる中性子共鳴構造 ²⁴¹Am のような MA 核種には、0.5 eV 以下にも中性子共鳴が存在する核種が多くあります。この低エネルギー領域の中性子共鳴構造は、MA 核種だけでなく、U や Pu を含む重い核種でよく観測される特徴です。この中性子共鳴構造を反映した熱中性子捕獲断面積の厳密な補正法を開発しました。

原子炉で使用された核燃料中には、ウラン(U)やプルトニウム(Pu)などと中性子との核反応によって生成されたマイナーアクチノイド(MA)が蓄積しています。MA 核種の多くは寿命が長く、毒性が強いため、それらの管理や処理処分を適切に行う必要があります。この負担を軽減する目的で、MA 核種による有害度を低減するための研究開発が進められており、そのシステム設計に必要となる基盤データの一つが捕獲断面積です。熱中性子エネルギーにおける断面積(熱中性子捕獲断面積)は、捕獲断面積の規格化にも利用され、全エネルギー領域の精度向上にとって極めて重要な基盤データです。

熱中性子捕獲断面積は、飛行時間法と放射化法で測定されてきました。飛行時間法は熱中性子エネルギーのみならず広いエネルギー範囲における捕獲断面積の導出に威力を発揮しますが、絶対値の決定には大きな実験誤差を生じる可能性がありました。一方、放射化法は熱中性子エネルギーなど局所的ではあるものの、捕獲断面積の絶対値を容易に導出することが可能であり、その精度も高いと考えられてきました。

これらの実験解析法によって導出された MA 核種の熱中性子捕獲断面積には、実験誤差の範囲を超えた大きな食い違いが生じていることが知られていました。図 4-2(a)に、アメリシウム-241(²⁴¹Am)に対して飛行時間法と放射化法で導出された熱中性子捕獲断面積の実験データ

を示します。この図に見られる矛盾を解決することが、 精度向上に不可欠でした。

本研究では、多くの MA 核種に特有な低エネルギー領域の中性子共鳴構造(図 4-3)と、放射化法の解析で利用されるカドミウム (Cd) 比法の関係に着眼しました。Cd 比法では、大きな熱中性子捕獲断面積を持つ Cd の特徴を使って、0.5 eV 以下の中性子成分を含む場合と含まない場合の照射を行い、その差から中性子共鳴の効果を除去して熱中性子捕獲断面積を導出します。0.5 eV 以下の低エネルギー領域に中性子共鳴が存在する場合、過去の実験解析でその影響が適切に考慮されていないことに私たちは注目し、核データライブラリに収録されている中性子共鳴構造を使って、この影響を補正する手法を開発しました。

この手法を²⁴¹Am の熱中性子捕獲断面積の実験データへ適用した結果を図 4-2(b)に示します。実験解析法の問題により生じていた断面積値間の矛盾が解消され、実験データが誤差の範囲で整合することが分かりました。

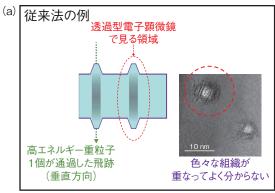
本研究で開発した手法は汎用性があり、低エネルギー領域に中性子共鳴を持つ全ての核種へ適用することで、熱中性子捕獲断面積の系統的な高精度化が期待されます。

本研究は、文部科学省の原子力システム研究開発事業「マイナーアクチニドの中性子核データ精度向上に係る研究開発」の成果です。

●参考文献

Mizuyama, K., Iwamoto, N. et al., Correction of the Thermal Neutron Capture Cross Section of ²⁴¹Am Obtained by the Westcott Convention, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.54, issue 1, 2017, p.74-80.

4-2 放射線環境中のセラミックスがもつ自己修復能力 -セラミックスの表面を観察する新しい手法による成果-



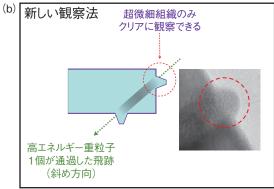
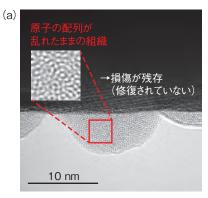


図4-4 従来の観察法の例と新しい観察法

重粒子の照射によって形成された表面の超微細組織(隆起物)のみを観察することを目指しました。従来法では、超微細組織以外の組織も重なってしまいます(a)。一方、新しい観察法では、観察対象の超微細組織のみをクリアに観察できるようになります(b)。

一般に、高エネルギー重粒子線を照射したセラミックスには、顕著な照射損傷が生じています。ところが、特定のセラミックス(例:フッ化バリウム(BaF₂)や二酸化ウラン(UO₂)等)においては、予想より照射損傷が少ないことが分かっています。なぜ特定のセラミックスのみ「放射線に強い」のか、そのメカニズムを解明することは重要な課題です。高エネルギー重粒子線を照射したセラミックスの表面には、数ナノメートルの大きさの超微細組織が発生します。私たちは、この超微細組織の中に、放射線に強い理由が隠されているのではないかと考え、超微細組織を観察する手法の開発に着手しました。

図 4-4 は、従来の観察法と新しく開発した観察法の比較です。重粒子一個がセラミックス試料を通過すると、表面には超微細組織(超微細な隆起物)が形成されます。従来の観察法では、図 4-4(a)のように超微細組織以外の組織が重なってしまい、どれだけ高倍率で見ても超微細組織の様子はよく分かりませんでした。そこで、重粒子線を斜めから照射してみると、試料の端に超微細組織が形成されました。図 4-4(b)のように、照射角度の工夫と透過型電子顕微鏡を採用することで、高い分解能でクリアに超微細組織を観察できるようになりました。



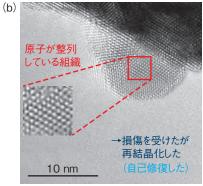


図 4-5 新しい観察法で観察した超微細組織の写真 通常のセラミックス(例: $Y_3Fe_5O_{12}$)では、照射後の原子の 配列は乱れてしまっています(a)。ところが、特定のセラミッ クス(例: BaF_2)では、再結晶化によって自己修復が起きて いることが分かりました(b)。

一般に、高エネルギー重粒子線を照射すると、照射された場所の原子の配列が乱れます。通常のセラミックス (例: イットリウム鉄ガーネット $(Y_3Fe_5O_{12})$) の照射表面に発生した超微細組織を新しい方法で観察すると、予想 どおり原子の配列は乱れていました(図 4-5(a))。配列の乱れが、修復されずにそのまま残っている状態です。

一方、放射線に強い特定のセラミックス(例: BaF_2 やフッ化カルシウム(CaF_2)等)では、上記のセラミックスと異なり、超微細組織の内部の原子が整列していることが分かりました(図 4-5 (b))。超微細組織の内部の原子の配列が照射によって一旦は乱れたにもかかわらず、すぐに原子の配列が整列し直した(再結晶化した)ことが示唆されました。放射線に強いこれらのセラミックスは、高エネルギー重粒子線の照射によって原子の配列が乱れても、即座に「自己修復」したと考えられます。放射線に強い特定のセラミックスには、自己修復能力が備わっていることが示唆されました。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究(C)(No.16K06963)「高速重イオン照射によって形成された表面ナノ構造の直接観察」の助成を受けたものです。

●参考文献

Ishikawa, N. et al., Hillocks Created for Amorphizable and Non-Amorphizable Ceramics Irradiated with Swift Heavy Ions: TEM Study, Nanotechnology, vol.28, no.44, 2017, p.445708-1-445708-11.

4-3 計算科学を用いて割れにくい合金を設計する

電子状態計算によるマグネシウム合金開発

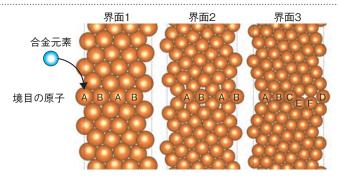
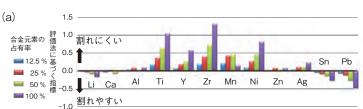
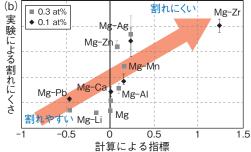


図4-6 界面構造の原子モデル

金属材料は粒界や双晶と呼ばれる結晶の境界が存在しており、とりわけ Mg においてはそこから割れが発生・進展することが知られています。図のような原子モデルを用いて境界の構造を作成し、境界に合金元素を添加することによって割れへの影響を評価することができます。





構造材料の機能で重視されるのは、強度と延性と割れにくさです。マグネシウム合金は、延性が低く割れやすいものの、軽いという特徴から、現在広く用いられているアルミニウム合金に代わる材料として注目されており、パソコンのボディーや自動車などの輸送機器の構造部材などに用いられています。そのため、より延性や割れにくさを高めるマグネシウム合金の開発が求められています。

マグネシウム合金では、粒界や双晶境界という結晶の界面(境目)から割れが発生することが分かっており、この界面の特性にもたらす合金元素の影響が割れの特性を決めていると考えられることから、計算シミュレーションによる合金設計手法の開発に着手しました。このような合金元素の影響を明らかにするには、原子レベルのモデルと電子の結合までを考慮した複雑な計算が求められます。また、多様な界面の構造モデルを作成し、それぞれに対して様々な合金元素の影響を調べることは、莫大な計算時間を必要とします。そのため、体系的な評価は過去にはあまり行われてきませんでした。このような中、本研究では、原子力機構の大型計算機 ICE X を最大限に活用して、マグネシウム (Mg) と合金元素の間の電子的な相互作用に基づいて割れにくさを評価する方法を構築しました。

図 4-6 は、マグネシウム合金でよく観察されている 界面構造の原子モデルです。界面 1 ~ 3 はそれぞれ、 (1011)、(1012)、(3032) 双晶に対応し、界面上の原 子で等価な配置を持つものに A ~ F の番号を示してい ます。今回は界面の違いによる影響を包括的に調べるた めに、3 種類の異なる界面を作成しました。この界面の 原子の場所に合金元素が存在するときの影響を電子構造 に基づく計算によって評価します。さらに、割れが生じ

るときには界面が離れて表面を作るため、離れた状態も 同時に評価します。ここで、破壊力学理論に表面を作る ときの方がエネルギー的に安定なものが割れやすいとい う指標があります。この指標を応用して、合金元素が ある場合に表面の作りやすさがどのように変化するか を調べることにより、割れにくさを評価する指標(= 計算による指標)を新たに構築しました。図4-7(a)は、 図 4-6 で構築した指標 ((1012) 双晶の場合) を用いて、 Mg における今回対象とした合金元素の影響を占有率別 に計算した結果です。この評価法では、リチウム(Li)、 カルシウム(Ca)、スズ(Sn)、鉛(Pb) が負の値を示し、 割れを促進する合金元素であることが予測されます。他 方、これら以外の元素は正の値を示しました。特に、ジ ルコニウム(Zr) は割れにくくする影響が強いことが予 測されます。割れにくさについて、本研究で構築した 指標(100%の場合)によって得られた結果と実験によって 得られた結果を比較すると、本研究と実験の結果には良 好な相関が見られました(図4-7(b))。また、本研究に よって予測した Zrが、実験でも割れにくさを大きく向上 させていることが確認できました。

計算シミュレーションを用いた合金設計は、合金開発に係る時間やコストを大きく削減できるとともに、希少元素を用いない産業利用価値の高い合金開発への応用が可能であることから、資源の少ない我が国の製造業の発展に貢献することが期待されます。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究 (C) (No.16K06714)「六方晶金属における塑性異方性 改善のための合金設計手法の開発」の助成を受けたもの です。

●参考文献

Tsuru, T. et al., Interfacial Segregation and Fracture in Mg-Based Binary Alloys: Experimental and First-Principles Perspective, Acta Materialia, vol.151, issue 1, 2018, p.78-86.

4-4 溶媒抽出メカニズムの解明に向けて

- 界面に存在する金属イオンをレーザーを使って観測-

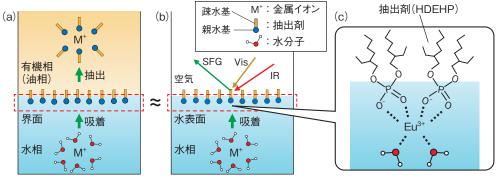


図4-8 (a) 一般的な溶媒抽出の概略図 (b) 本研究法の概略図 (c) 本研究で明らかにした界面における金属イオンの構造 実際の溶媒抽出の系から(a) 有機相を除去することによって(b)、金属イオンは界面に吸着し留まりやすくなります。この界面に留まった金属イオンを可視 (Vis→) 光と赤外 (IR→) 光のパルスレーザーの入射によって発生する和周波 (SFG→) 光を検出することで捉え、界面に存在する金属イオンの構造を明らかにしました(c)。

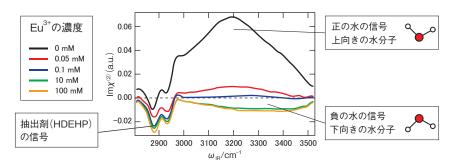


図4-9 ヘテロダイン検出振動和周波発生分光法という先進的なレーザー分光法によって得た界面の振動スペクトル Eu³+の濃度を増やしてゆくと、水のバンドの符号が正から負に反転する結果を得ました。水のバンドの符号は界面に存在する水分子の向きと対応しており、負の水のバンドは、図 4-8(c)のように、抽出剤に吸着した Eu³+に水分子が下向きで結合していることを示しています。

溶媒抽出法とは、水と油が混ざらない性質を利用し、 金属イオンが溶けている水と、抽出剤と呼ばれる薬品を 溶かした油を接触させ、目的とする金属イオンを水から 油へ移動させて分離する方法です(図 4-8(a))。溶媒抽 出法は、原子力発電により発生した放射性廃棄物の処理 方法として、現在最も重要視されている方法で、この技 術を高めることは、非常に重要な研究課題です。

これまで溶媒抽出法の技術を高めるために、水中の金属イオンの構造と油に移った後の金属イオンの構造に注目した基礎研究が行われてきました。一方で、水と油の接触する界面で、金属イオンが油へ抽出されるきっかけとなる反応が起こるので、界面で起こる反応のメカニズムを解明することができれば、溶媒抽出技術を向上させるための新しい手掛かりが得られると期待されます。しかしながら、界面において抽出される金属イオンの様子を観測することは困難で、溶媒抽出の際に界面で実際に何が起こっているのか、よく分かっていませんでした。

本研究では、界面から油へ移動する直前の金属イオンの様子を捉えるために、油を除去した、空気と水の界面(水表面)に留まった金属イオンを先進的なレーザー分光法により観測しました(図4-8(b))。実験では、一般的な溶媒抽出の代表例として、抽出剤にジー2-エチルヘキシルリン酸(HDEHP)、金属イオンにユウロピウムイオン(Eu³+)を選び、界面の振動スペクトルという実験

データを得ました(図4-9)。 Eu^{3+} の濃度が増えるにつれ、正の符号の水の信号が、負の符号の信号に変化することを見いだしました。これは、 Eu^{3+} の濃度が増えるにつれ、界面で上を向いていた水分子が、下を向くようになったことを示しています。すなわち、 Eu^{3+} の濃度を増やすと、図 4-8 (e) に示すように、界面の HDEHP に Eu^{3+} が吸着し、さらにその Eu^{3+} に水分子が下を向いて結合していることを意味しています。このような Eu^{3+} が HDEHPと水分子に挟まれた構造は、有機相中でも水相中でもこれまで報告されておらず、 Eu^{3+} は界面で特有の構造を形成して存在することを突き止めました。

以上の結果から、HDEHPを用いた Eu³+の溶媒抽出の反応モデルを次のように提案しました。Eu³+は水相では水分子に取り囲まれていますが、界面にくると HDEHPと水分子に挟まれた構造を形成し、その後に HDEHPに取り囲まれて有機相に抽出されていくというモデルです。

今後は、実際の放射性廃棄物の溶媒抽出において、界面で何が起こっているのかを明らかにし、金属イオンの回収率や分離能力等の向上につながる研究を行っていきます。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金若手研究 (B) (No.17K14919)「液液界面で起こる溶媒抽出機構 の解明とそれに基づいた核分裂生成物の分離法の開発」 の助成を受けたものです。

●参考文献

Kusaka, R. et al., The Structure of a Lanthanide Complex at an Extractant/Water Interface Studied Using Heterodyne-Detected Vibrational Sum Frequency Generation, Physical Chemistry Chemical Physics, vol.20, issue 4, 2018, p.2809-2813.

4-5 放射線による遺伝情報変質プロセスを解明!

- 1 eV 以下の極低エネルギー電子の役割を解明-

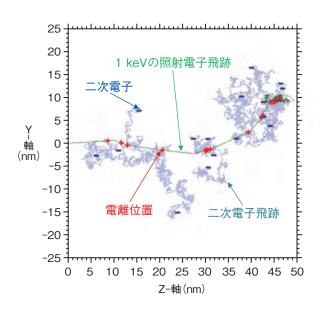


図 4-10 水中に 1 keV 電子線を照射した際の電子飛跡 (+) は電離が誘発された位置です。この水中の一部に DNA が存在すると仮定し、(+) で示した水の電離分布等から、 DNA 損傷数を推定します。 DNA 損傷が 1 nm 以内に複数 個生成されると修復困難になり、生物影響が誘発されると考えられています。

細胞中で、遺伝情報を担う DNA が放射線照射を受けると、DNA の二重螺旋の一部切断(一本鎖切断)や完全な切断(二本鎖切断)、遺伝情報を担う塩基の損傷などが生じます。これら損傷の多くは修復されますが、複数の損傷が DNA の 1 nm 以内で同時に生じた場合、修復される確率が極端に減少することが実験的に示されています。このような損傷はクラスター損傷と呼ばれ、細胞死や突然変異・発がんなどの生物影響を誘発すると考えられています。しかし、放射線照射実験によるクラスター損傷の検出は非常に困難です。

本研究では、DNAへの電子線照射を模擬する電子・正イオン間等のクーロン力を考慮した動的モンテカルロコードを開発し、様々な放射線照射により生体内で生成される電子とDNAとの相互作用を解析しました。図 4-10は、1 keV のエネルギーを持つ電子が DNA を含む水中に入射した場合に電離(+の位置)を起こし、二次電子(一)を発生させる様子を図示したものです。計算により、まず、DNAの 1 nm 以内に DNA 鎖切断と塩基損傷を含むクラスター損傷が一定の頻度で発生することを明らかにしました。さらに、1 eV 以下の極低エネルギーにまで減速した二次電子は、最終的に電離位置から数 nm 以上離れた場所に分布し、その近傍に DNA が存在すると DNA に付着して還元的塩基損傷が生成されることを

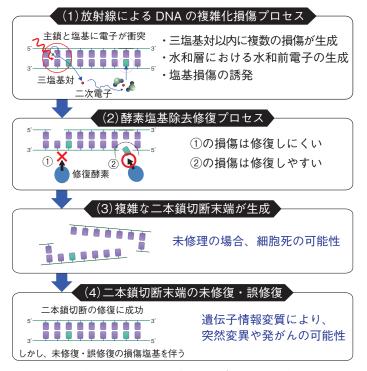


図4-11 塩基損傷を伴う二本鎖切断の生成プロセスと生体影響の関係 放射線により生成された DNA 損傷が酵素の修復機能により二本鎖切断に 変換されるプロセスを示しています。損傷がクラスター化した場合、この二本 鎖切断の末端に塩基損傷が残り、遺伝子情報が変質する可能性があります。

見いだしました。

解析結果から、電子線が DNA 中を通過する際に生成されるクラスター損傷部位と、極低エネルギー電子が関与した、孤立した塩基損傷から構成される複雑な損傷が生成され得ることが予測できました(図 4-11(1))。このうち、孤立した塩基損傷は修復酵素による除去作用で一本鎖切断に変換されます(図 4-11(2))。これがクラスター損傷部位に生じた鎖切断の反対側の鎖に生じると、結果的に二本鎖切断が生成し、この二本鎖切断は切断端近傍に塩基損傷を含みます(図 4-11(3))。この場合、二本鎖切断が修復されたとしても、遺伝情報を担う塩基の損傷が残存し、生物影響が誘発される可能性があります(図 4-11(4))。

本解析は、極低エネルギー二次電子が生体内で遺伝子情報の変質に関与することを初めて示したものであり、放射線による突然変異やがんの誘発の初期要因を解き明かすための重要な知見となるものです。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究(B) (No.15H02823)「クラスター DNA 損傷に対する細胞内修復動態と損傷の局在化メカニズム」、基盤研究(B) (No.16H02959)「イオンビーム生物影響の原因となる二本鎖切断末端に関する研究」、基盤研究(C) (No.17K07022)「イオントラックコアによる微視的複雑体系の放射線作用解明研究」の助成を受けたものです。

●参考文献

Kai, T. et al., A Significant Role of Non-Thermal Equilibrated Electrons in the Formation of Deleterious Complex DNA Damage, Physical Chemistry Chemical Physics, vol.20, issue 4, 2018, p.2838-2844.

4-6 BNCT によるがん細胞殺傷効果の理論的な予測に成功 -新しい薬剤の開発や治療計画の最適化に役立つ数理モデルを開発-

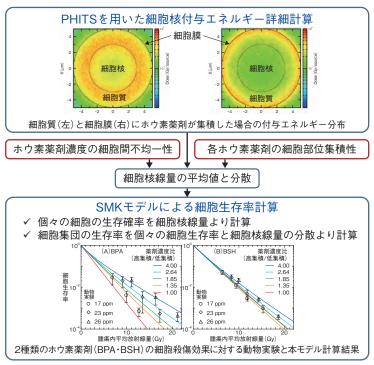


図4-12 本研究で開発した数理モデルによる解析の流れ

ホウ素中性子捕捉療法(Boron Neutron Capture Therapy: BNCT)は、あらかじめホウ素薬剤を投与したがん患者に中性子ビームを照射し、ホウ素と中性子の核反応で生じる α 粒子やリチウム(Li)イオンを用いてがん細胞を殺傷する治療方法です。体内で α 粒子やLi イオンが飛べる距離は細胞 1 個分程度(\sim $10~\mu$ m)のため、がん細胞に薬剤を集中して取り込ませれば、正常細胞にあまり損傷を与えずにがん細胞のみ選択的に破壊することができます。したがって、がん細胞と正常細胞が混在している悪性度の高い脳腫瘍などに対して特に効果的で、現在、その臨床研究が進められています。

BNCTでは、同じ放射線量でも投与する薬剤の種類や濃度によってがん細胞殺傷能力(治療効果)が異なることが知られています。しかし、その詳細なメカニズムはまだ解明されていませんでした。そこで、本研究では、原子力機構が中心となって開発している粒子・重イオン輸送計算コード「PHITS」と、確率論的マイクロドジメトリ動態モデル(Stochastic Microdosimetric Kinetic Model: SMK モデル)を組み合わせ、BNCTによるがん細胞殺傷効果を理論的に予測する数理モデルを開発しました。

開発した数理モデルによる解析の流れを図 4-12 に示します。まず、PHITS を用いて、ホウ素薬剤が細胞核、細胞質、細胞膜及び細胞外に局在した場合の細胞核に与えるエネルギーをそれぞれ詳細に計算しました。そして、ホウ素薬剤の細胞部位集積性と細胞間不均一性を考慮し、

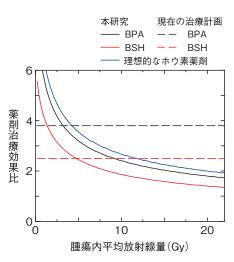


図4-13 様々な薬剤に対する治療効果比の腫瘍内 平均線量依存

本モデルで推定した2種類のホウ素薬剤(BPA・BSH)及びがん細胞全体に均一に分布すると仮定した理想的なホウ素薬剤の治療効果比を、X線治療を基準(=1)として推定した値

腫瘍全体の平均放射線量ではなく、細胞生存率により直接的な関係にある細胞核内に限定した放射線量(細胞核線量)の平均値と分散を評価しました。また、得られた細胞核線量の平均値と分散を SMK モデルの入力情報として、個々のがん細胞の生存確率及びそこから推定される細胞集団の生存率を計算しました。その結果、本モデルによる計算値は動物実験結果を良く再現することが分かりました。さらに、得られた結果を基に、腫瘍内平均放射線量と薬剤ごとの X 線治療と比べた治療効果比の関係性を推定し、現在の治療計画では低/高線量側での治療効果をそれぞれ過小/過大評価している可能性が高いことを明らかにしました(図 4-13)。

本研究により、(1) 薬剤治療効果比を高めるためには、より細胞核近傍に集積性を持ち、細胞間に均一に分布するホウ素薬剤の開発が鍵となること、(2) 治療計画を高度化するためには、薬剤治療効果比の放射線量依存性を考慮することが重要であることを定量的に明らかにしました。

本研究で開発した数理モデルは、これまで限られた動物 実験結果などから経験的に決定されていた BNCT の薬剤 治療効果比を理論的に予測可能とするため、今後の創薬 研究や治療計画の最適化に役立つと期待されています。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究(C)(No.26461900)「BNCT 及び RI 内用療法の生物効果比に関する理論的研究」の助成を受けたものです。

●参考文献

Sato, T. et al., Microdosimetric Modeling of Biological Effectiveness for Boron Neutron Capture Therapy Considering Intra- and Intercellular Heterogeneity in ¹⁰B Distribution, Scientific Reports, vol.8, issue 1, 2018, p.988-1-988-14.

4-7 過酷事故時における放射性核種の動きを見定める

原子炉内における放射性核種の放出・移行挙動を評価ー

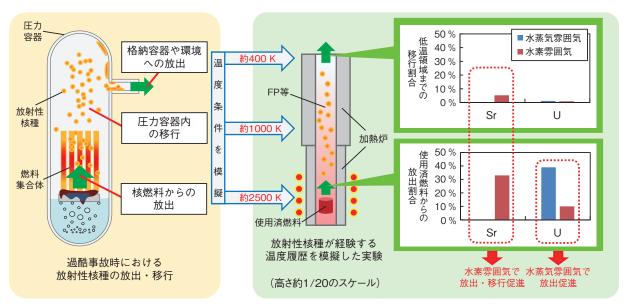


図 4-14 過酷事故時において放射性核種が経験する温度履歴を模擬した実験により得られた Sr 及び U の放出割合と低温領域までの移行割合

SA 時において、放射性核種が炉心燃料からの放出や炉内の移行する際に経験する温度履歴を模擬して、使用済燃料を加熱し、燃料中の Sr 及び U の初期量に対しての放出割合と低温領域までの移行割合をそれぞれ算出しました。これまで、限られた情報から SA 時でもほとんど放出されないと考えられていた Sr や U は、それぞれ水素雰囲気や水蒸気雰囲気において、燃料からの放出が促進されることが分かりました。また、Sr は有意量が低温領域まで移行していくことが分かりました。この結果は、Sr は格納容器等まで移行する可能性を示唆するものです。

軽水炉の安全性向上のためには、過酷事故(SA)時に高温の炉心燃料から放出され、圧力容器等の炉内高温領域を経て、格納容器や環境に放出される放射性核種の拳動(放出・移行拳動)を詳細に把握することにより、公衆被ばくの評価を精度良く行う必要があります。この放射性核種の放出・移行拳動の把握は、線源となる放射性核種の炉内分布を知るためにも必要であり、東京電力福島第一原子力発電所(1F)等の廃炉作業計画立案や工法選定のためにも役立ちます。放射性核種の放出・移行拳動は、化学拳動、すなわち「放射性核種がどのような化学反応を生じてどのような化学形態となるか」に依存します。このため放射性核種の化学拳動を体系的に評価してデータベース化・モデル化するための基礎基盤研究を行っています。

SA 時には主に公衆被ばくの観点でセシウムやヨウ素が重要となりますが、1F 事故によりこれまでほとんど原子炉の炉心から放出されないと考えられていたストロンチウム(Sr)やウラン(U)等も、発熱性、放射線毒性等の観点から重要となることが分かりました。そこで、これらの放射性核種も含めたデータベースを構築するために、国際協力により実験を行い、炉心燃料からの放出や炉内移行挙動に関するデータや知見を取得しました。

実験においては、これらの放射性核種の化学挙動に 大きく影響を与える雰囲気条件に着目し、水蒸気を含ん だ雰囲気(水蒸気雰囲気)条件のみならず、炉内構造物の酸化等により生じ得る水素を含んだ雰囲気(水素雰囲気)条件も対象としました。また、使用済燃料を試料として使用し、SA時にこれらの核種が放出・移行する際に経験する温度履歴を模擬することにより、実際の環境に近い条件で実験を行いました(図4-14)。使用済燃料を約2500 Kまで加熱し、放出されて低温領域まで移行するまでの間に装置に沈着したSr、U等の定量分析を行い、使用済燃料からの放出割合や低温領域までの移行割合を算出しました。

その結果、Srや U は、それぞれ水素雰囲気及び水蒸気雰囲気において多量に放出することが分かりました(図 4-14)。また、化学平衡計算等による解析の結果、Srや U は使用済燃料中で金属 Srや UO_3 等の揮発性の化学形態となるため、放出が促進されることを明らかにしました。さらに、有意量の Sr は低温領域まで移行していくことが分かりました。この結果は、SA 時の炉内の雰囲気条件によっては、Sr は格納容器等まで移行する可能性を示唆するものです。

今後は、Sr等の放出・移行時の化学挙動に関する化学反応等の詳細データを取得し、化学挙動のデータベースの拡充・モデル化を進めていきます。

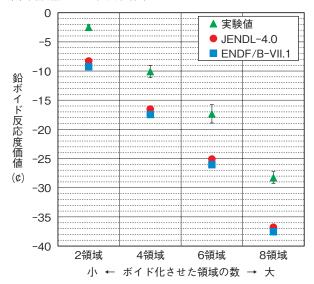
本研究は、仏国 CEA との共同研究によって得られた成果です。

●参考文献

Miwa, S. et al., Release and Transport Behaviors of Non-Gamma-Emitting Fission Products and Actinides in Steam and Hydrogen Atmospheres, Nuclear Engineering and Design, vol.326, 2018, p.143-149.

4-8 ADS の核特性予測の信頼性向上に向けて -米国臨界集合体を用いた鉛冷却材の核データ検証実験-

(a) 高濃縮ウラン/鉛実験体系



原子力発電所から排出される使用済燃料を再処理し、 ウラン、プルトニウムを取り出した後に残る高レベル放 射性廃棄物は、長期間にわたり強い放射線を出し続ける 核種(長寿命核種)を含んでいます。このため、人間の 生活環境に影響を及ぼさないように、数百メートルより 深い安定な地層中に埋設することとされています。私た ちは、高レベル放射性廃棄物処分の負担軽減を目指し て、放射性毒性が強い長寿命核種を分離し、中性子との 核反応として核分裂させることで、安定または短寿命の 核種に変えることが可能な、核変換専用のシステム(加 速器駆動システム: ADS) を検討しています。 ADS で は、安全性の高い冷却材として化学的に安定な鉛ビスマ ス合金を使用することを検討しています。しかし、我が 国では、原子力分野で鉛ビスマスを冷却材として使用し た経験はなく、特に鉛の核的反応に係わる特性(核反応 断面積)は十分に検証されていません。そこで本研究で は米国の臨界集合体を用いて、ADS と同様の高速中性 子体系で、鉛の核反応断面積を検証するための新たな実 験データを取得しました。

ADSでは、鉛ビスマスの核破砕で発生した高速中性子は、冷却材の鉛ビスマスとの核反応で徐々に減速され、その過程で核燃料に吸収されて核分裂を起こします。核分裂で発生する高速中性子も、同様の減速過程を経て次の核分裂に使われます(核分裂連鎖反応)。したがって、ADS中の中性子を媒介とした核分裂連鎖反応を正確に予測するためには、中性子の減速に関する冷却材中の鉛との核反応断面積を精度良く評価することが重要です。また、この核分裂連鎖反応が起こる様子は、使用する燃料の種類によっても異なります。そこで実験では、典型的な二つの実験体系(²³⁵Uを多く含む高濃縮ウラン/鉛実験体系、²³⁸Uを多く含む低濃縮ウラン/鉛実験体系)

(b) 低濃縮ウラン/鉛実験体系

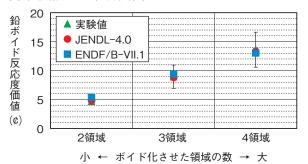


図 4-15 鉛ボイド反応度価値における実験値と解析値の比較

▲は実験値、●は JAEA で開発された評価済み核データライブラリ (JENDL-4.0)、■は米国で開発された評価済み核データライブラリ (ENDF/B-VII.1)を用いた解析値です。低濃縮ウラン/鉛実験体系の図では、実験値と解析値が良く一致しているため、実験値が解析値に隠れています。

を構築し、それぞれの実験体系の鉛を段階的に除去(ボイド化)することで、高速中性子体系中の鉛で減速される中性子量の減少が核分裂の連鎖に与える影響度(鉛ボイド反応度価値)を測定しました。このように、それぞれの燃料を用いた実験で、鉛の有無による核分裂連鎖反応の変化を調べることで、鉛と中性子との反応の精度を多角的に検証することができます。

高速中性子体系中の²³⁵U を多く含む高濃縮ウラン燃 料は鉛に減速された中性子の方が核分裂を起こしやすい ため、高濃縮ウラン/鉛実験体系で鉛を減らしたことで 減速される中性子の割合が減って核分裂の連鎖が起こり にくくなり、負の鉛ボイド反応度価値が観測されました (図 4-15(a))。一方、高速中性子体系中の ²³⁸U を多く 含む低濃縮ウラン燃料は減速されていない高速中性子の 方が核分裂しやすいため、低濃縮ウラン/鉛実験体系で 鉛を減らしたことで減速されていない高速中性子が増え て核分裂の連鎖が起こりやすくなり、正の鉛ボイド反応 度価値が観測されました(図4-15(b))。これらの測定 結果に対して、日米の核反応断面積データ (核データ) を用いた鉛ボイド反応度価値の解析値と比較した結果、 いずれの核データも、低濃縮ウラン/鉛実験体系では実 験値を良く再現する一方で、高濃縮ウラン/鉛実験体系 では実験値を過大評価することが分かりました。

今回の実験では、燃料の種類を変えることで鉛の核反応断面積を多角的に評価できる、世界でも類のないデータを取得することができました。今後も日米で協力し、高速中性子体系での鉛の核反応断面積を評価するためのデータを拡充することで、核変換技術に関する研究開発を進めていきます。

本研究は、米国ロスアラモス国立研究所との共同研究で得られた成果の一部です。

●参考文献

Fukushima, M., Oizumi, A. et al., Lead Void Reactivity Worth in Two Critical Assembly Cores with Differing Uranium Enrichments, Nuclear Science and Engineering, vol.189, issue 1, 2018, p.93-99.

4-9 レーザーで微弱陽子ビームを取り出す新技術

-核変換実験施設に必要な要素技術を確立-

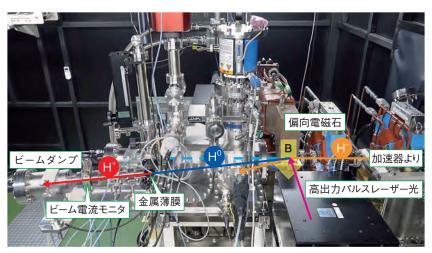


図 4-16 新たに構築したレーザー荷電変換システム H^- ビームをエネルギー 3 MeV まで加速する加速器の下流に、高出力レーザーと照射位置の変動が極めて 小さいレーザー光輸送系を設置し、偏向電磁石中で H^- ビーム(橙色)にレーザー光(桃色)を照射します。

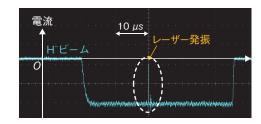


図4-17 レーザーにより欠損した H ビームの波形 偏向電磁石中で H ビーム (水色) にレーザー光を 照射すると、H が中性化し磁場中を直進します。このため、H ビームの電流値がゼロになり、欠損します (図中央の破線で囲まれた部分)。

高レベル放射性廃棄物の減容化・有害度低減を目的 として、大強度の高エネルギー陽子ビームで長寿命放射 性核種を短寿命化するのが、加速器駆動核変換システム (ADS) です。ADS は陽子加速器と未臨界炉を組み合 わせたシステムであり、その開発に向けた技術課題解決 に必要な基礎的研究を行うため、J-PARC において核 変換実験施設を検討しています。実験施設では、大強度 の負水素イオン (H、400 MeV/250 kW) ビームを用い、 ターゲットの技術開発を行います。また、大強度の H ビームから微小出力の陽子(H⁺、最大 10 W)ビームを 取り出し、小出力の原子炉である未臨界の臨界実験装置 に導入し、ADS の成立性に係る核特性などの研究を行 います。取り出した H⁺ ビームは原子炉の駆動源となり、 その安全性に係わることから、微小出力のH⁺ビームを 長時間安定に取り出すことが必要不可欠となります。パ ルス電磁石や金属薄膜を用いる一般的なビーム取出し方 法では、電磁石の異常や金属薄膜の変形等により大出力 ビームが取り出される可能性があり、安定に微小出力 ビームを取り出せません。今回、長時間安定に H⁺ ビー ムを取り出すため、レーザー荷電変換システムを開発し、 試験を行いました。

開発したレーザー荷電変換システムは、H⁺ビームのバックグランドを完全に除去するためにレーザー光と H ビームの衝突点を偏向電磁石内に設置し、既存の加速器(ビームエネルギー 3 MeV)と接続しました(図 4-16)。また、試験では実験の要求より取り出した H⁺ビーム出力が5~10 W 相当、出力変動が5%以下という目標を設定しました。さらに、J-PARC の運転スケジュールとの整合を図るため、取出し時間の目標を7日(延べ56 時間)以上としました。このような H⁺ ビームを生成するために、高出力で Hビームの繰り返し数25 Hz に同期するパルスレーザー光源(1.6 J/pulse、25 Hz)を新たに開発しました。さらに、レーザー光の照射位置を安定に制御するレーザー光の輸送系も構築しました。

このシステムを用いて試験を行った結果、ビーム出力変動を約3%以内に抑えながら約8W相当のH"ビームを約8日間(延べ65時間)にわたり取り出すことに成功し、当初の目標を達成することができました(24-17)。

以上の結果から、実験施設に必要な要素技術の一つである、J-PARCにおける大強度陽子ビームから微小出力ビームを長期間安定に取り出すための制御技術の基礎を確立することができました。

●参考文献

Takei, H. et al., Beam Extraction by the Laser Charge Exchange Method Using the 3-MeV LINAC in J-PARC, Plasma and Fusion Research, vol.13, special issue 1, 2018, p.2406012-1-2406012-6.

4-10 原子力発電所の安全対策の高度化を目指して

一過酷事故時でも使用可能な計測ケーブル被覆材の検討ー

表 4-1 Air 及び Air/ H_2O 雰囲気試験における MI ケーブル被覆材の破損時間の予測酸化速度は放物線則に従うため、保守的な暴露初期より酸化速度を算出しました。酸化速度より、実際の被覆材の厚みを考慮して破損時間を予測した結果、NCF600 は SUS316 と比較して、Air 及び Air/ H_2O 雰囲気では約 4 倍以上長く使用可能なことが確認されました。

材種		SUS316		NCF600	
条件		Air	Air/H ₂ O	Air	Air/H ₂ O
酸化速度 (mg/cm²/h)		2.4	6.9	0.6	1.6
破損予測時間(h)	φ 1.6 mm (被覆材厚さ: 0.23 mm)	77	27	325	122
	φ 3.2 mm (被覆材厚さ: 0.32 mm)	107	37	453	170

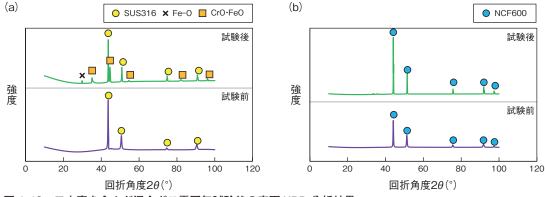


図 4-18 ヨウ素を含んだ混合ガス雰囲気試験後の表面 XRD 分析結果
(a) SUS316 表面に形成された酸化物は Fe-O 及び CrO·FeO と同定された一方で、(b) NCF600 表面に層状の生成物が確認されたものの表面 XRD 分析では同定できませんでした。

原子力発電所で使用されている計装用低圧ケーブルの絶縁材や被覆材として、高分子材料が主に使用されていますが、東京電力福島第一原子力発電所事故の経験を踏まえると、さらなるケーブルの耐性向上が必要です。一方、過酷事故発生時の炉内環境は、高温、核分裂生成物、大気露出といった複合環境と推測され、計測ケーブル被覆材の腐食による早期損傷が懸念されます。そこで、材料試験炉(JMTR)での計測技術開発で培われた知見をもとに、過酷事故発生時の環境下でも耐え得る金属被覆無機絶縁(MI)ケーブルの開発に着手しました。

MI ケーブルを構成する被覆材、絶縁材及び芯線の材料は、過酷事故環境における耐熱性及び耐放射線性を有する材料を選定しました。このうち、被覆材については、高温高圧、水蒸気、酸化雰囲気に耐えられ、汎用性の高いオーステナイト系ステンレス鋼 SUS316 及びニッケル基合金 NCF600 を選定しました。

まず、核分裂生成物が存在しない雰囲気における腐食特性を評価するため、模擬大気(Air)及び模擬大気に水蒸気を添加した(Air/H₂O)雰囲気下で、重量変化を測定し、暴露初期の酸化速度を算出しました。実際のMIケーブル被覆材の厚みを考慮して、破損時間を予測した結果、NCF600の方がSUS316よりも約4倍以上

長く使用可能であり、事故終息まで十分に計測ができる 見通しを得ました(表 4-1)。

次に、燃料が破損し、核分裂生成物であるョウ素ガスが含まれた環境を模擬した条件(温度 800 ℃、暴露時間 96 h)では、SUS316 表面には、腐食生成物が不均一に形成され、容易に剥離することが確認されました。この結果は、酸素及び水蒸気を含んだ雰囲気よりもさらに複雑な腐食特性を有していることを示唆します。一方、NCF600 の表面は均一な酸化皮膜が形成されましたが、X線回折(XRD)分析で検出できないほどの薄さであることが確認されました(図 4-18)。この結果からも過酷事故時では NCF600 が良好な材料である見通しが得られました。

本結果で得られた知見をもとに、MI ケーブルの基本 仕様を決定するために、放射線環境下における電気特性 を含めた総合的な評価を行い、原子力発電所への適用性 について検討しています。

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁の委託事業 「平成28年度発電用原子炉等安全対策高度化技術基盤 整備事業(特殊環境下で使用可能な監視システム高度 化)」の成果の一部です。

●参考文献

Nakano, H. et al., High-Temperature Oxidation of Sheath Materials Using Mineral-Insulated Cables for a Simulated Severe Accident, Mechanical Engineering Journal, vol.5, issue 2, 2018, p.17-00594-1-17-00594-12.

中性子利用研究等

幅広い科学技術・学術分野における革新的成果の創出を目指して

原子力機構では、科学技術基本計画に基づき中性子利 用研究や放射光利用研究を通して科学技術イノベーショ ンの創出を促し、科学技術・学術の発展や産業の振興に 貢献することを目指しています。そのため、大強度陽子 加速器施設 J-PARC や、大型放射光施設 SPring-8 の ビームライン等を活用して、中性子施設・装置の高度化 や、中性子・放射光を利用した原子力科学、物質・材料 科学を先導する研究開発を行っています。

(1) J-PARC に関する研究開発

J-PARCは、リニアック、3 GeV シンクロトロン、 50 GeV シンクロトロンの三つの陽子加速器と、中性子、 ミュオンを用いて物質・材料研究に関する実験を行う物 質・生命科学実験施設(MLF)、K 中間子等を用いた原 子核・素粒子実験を行うハドロン実験施設及びニュート リノを発生させるニュートリノ実験施設から成り、国内 外の利用に供しています(図5-1)。



図 5-1 J-PARC の加速器及び研究施設配置

加速器においては、目標であるビーム出力1MWで の安定運転を目指してビーム調整試験と機器の高度化が 進められました。リニアックでは、加速ビーム電流40 mA で安定に運転を行うとともに、イオン源で200日の連 続運転を達成しました。3 GeV シンクロトロンでは、 金属磁性体の持つ広帯域周波数特性を活かして、マルチ ハーモニック励振での大強度陽子ビーム加速に世界で初 めて成功しました(トピックス5-1)。

2017年度、J-PARCでは、MLFに400kWまでの ビームを供給し、目標の8サイクル(176日)の中性子 利用運転を、90%を超える良好な稼働率で実施しました。 MLFでは、中性子実験装置20台とミュオン実験装置 2台を運用し、物質科学、材料科学等にかかわる幅広い 実験が行われたほか、国際的な人材育成に貢献する中性 子・ミュオンスクール等も開催され13か国、49名が参 加しました。中でも、高分解能のパルス中性子回折装置 である BL19 「匠」では、高強度の鉄鋼材料強化機構を 解明するため、転位評価の手法開発を行い、この手法を

用いて高強度鋼であるラスマルテンサイト鋼の引張変形 中の転位密度や配置等を定量化することに成功しました (トピックス 5-2)。また将来、さらに物質の構造、相転 移、残留応力などの研究を発展させるため、パルス幅が 狭く時間減衰の早い良質なパルス中性子ビームを供給す るための吸収材 (Au-In-Cd 合金) を開発し、その加工・ 接合性を実証しました(トピックス 5-3)。

(2) 中性子や放射光を利用した研究開発

物質科学研究センターは、中性子や放射光を用いた先 端分析技術を開発・高度化し、幅広い科学技術・学術分 野における革新的成果・シーズの創出を目指しています。

2017年度、中性子利用研究では、理化学研究所(理研) 及び東京都市大学と共同で、理研が開発した小型中性子 源を使った鋼材開発等に有用な、新たな分析手法の確立 に成功しました(トピックス 5-4)。今後、材料の基礎研究、 新材料開発及び品質検査のために行われる研究室レベル での相分率測定に利用されると期待されています。また、 J-PARC MLFの NOBORUで、中性子透過率スペク トル測定から原子配列のみならずスピン配列も決定でき ることを新たに実証しました(トピックス5-5)。この 手法では、従来の回折法で必要とされる強度よりも弱い 中性子でスピン配列を決定することができるので、上述 の小型中性子源を使った実験へ展開される予定です。

放射光利用研究では、二次元の分解能を備えたイメー ジング XAFS 技術(図 5-2)を適用することにより、 ガラス固化体中に存在する白金族元素の化学状態が、隣 り合わせる白金族元素の種類に影響されることを原子レ ベルのミクロなスケールで示しました(トピックス5-6)。 これは、ガラス固化体の安定な製造・保管に貢献する知 見です。また、次世代エネルギー技術として注目されて いる燃料電池について、動作中の燃料電池の X 線吸収ス ペクトルを測定することで、電極触媒の反応中の化学状態 を極めて詳細に知ることができました (トピックス 5-7)。 このような各種物性と XAFS の複合的「その場」観察 の重要性は、今後ますます高まっていくでしょう。



図 5-2 大型放射光施設 SPring-8 の原子力機構専用ビーム ライン BL22XU の実験ハッチ 3 の内部

5-1 広帯域高周波加速空胴による世界初の大強度陽子ビーム加速の達成 - 高調波成分によるビーム不安定性の解明-



図 5-3 J-PARC 3 GeV シンクロトロンの高周 波加速空胴

金属磁性体を直接水冷する方式を採用し、従来の加速空胴の倍以上となる 22 kV/m を実現しました。 さらに金属磁性体の持つ広帯域周波数特性を活かして、マルチハーモニック励振での大強度陽子ビーム加速に世界で初めて成功しました。

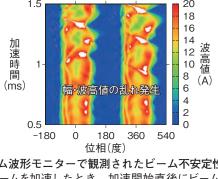


図 5-4 ビーム波形モニターで観測されたビーム不安定性 大強度陽子ビームを加速したとき、加速開始直後にビームの塊 (バンチ) の幅と波高値が大きくなったり小さくなったりを繰り返すビーム不安定性 が観測されました。

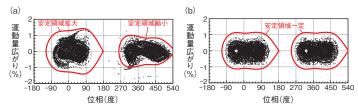


図 5-5 シミュレーションで再現したビーム不安定性 (a) は粒子トラッキングシミュレーションにより、ビームを捕獲する安定 領域が拡大・縮小を繰り返し、ビーム不安定性を引き起こすことが分かりました。(b) は比較のために載せたビームが安定な場合の結果です。

J-PARC 3 GeV シンクロトロン加速器は、大強度陽子ビームを 25 Hz の高繰り返しで加速する装置です。陽子ビームは加速空胴において発生する高周波電圧によって加速されますが、J-PARC では従来に比べて倍以上の高周波電圧勾配を実現する必要があり、これまでのフェライト磁性体ではなく、金属磁性体を用いた加速空胴を新たに開発しました(図 5-3)。 さらに金属磁性体には、広帯域周波数特性が備わっていることを活かして、単一の加速空胴で複数の周波数の高周波電圧を同時に作り出すマルチハーモニック励振も大強度陽子ビーム加速において初めて実現しました。

ところが、ビーム強度が設計値である1 MW に近づくにつれて、ビーム損失を伴うビーム不安定性が起きるようになりました。図 5-4 にビーム波形モニターの等高線プロットを示します。3 GeV シンクロトロンにおいてビームは二つの塊 (バンチ)として加速されますが、バンチの幅や波高値が激しく振動しているのが分かります。大強度陽子ビームを取り扱うビーム力学理論は、これまで様々なビーム不安定性を説明してきましたが、今回観測されたものは既知の理論から予想されるよりも 1/10 ほど速い時間で増大することが、データの解析から判明しました。

そこで新しく採用した広帯域周波数特性を持つ加速 空胴が、この未知のビーム不安定性の原因ではないかと 考えました。大強度陽子ビームを加速する際には、ビー ム自身が電流源となって加速空胴にウエイク電圧と呼ばれる加速を邪魔する電圧を発生します。これはビームを安定に加速するために元々かけている高周波電圧を乱し、ビーム損失につながります。このウエイク電圧を消去するシステムは既に導入されていましたが、ビーム電流をフーリエ解析して得られる主成分のみ消去すれば十分であると考えられていました。ところが、独自に開発したシミュレーションコードを使用して今回の現象を詳しく調べたところ、無視できると考えられていたビーム電流の主成分以外の高調波成分が急速に増大することが初めて示されました。

図 5-5 にシミュレーション結果を示します。この図はビーム分布(黒点)とビームが安定に加速される領域(赤線)の関係を示しています。(a)はビームが不安定な場合で、ビーム電流の高調波成分により安定領域が拡大・縮小を繰り返し、その過程で安定領域からビームがこぼれることが分かりました。(b)はビームが安定な場合で、安定領域の拡大・縮小が起こっていません。このことから、無視できると考えられていたビームの高調波成分が、広帯域周波数特性を持つ加速空胴の影響で新たなビーム不安定性を引き起こしていることを突き止めました。

この研究結果を基に、高調波成分によるウエイク電 圧を消去する検討を行い、設計値である1 MW ビーム 加速を達成することができました。

●参考文献

Yamamoto, M. et al., Observation of Simultaneous Oscillations of Bunch Shape and Position Caused by Odd-Harmonic Beam Loading in the Japan Proton Accelerator Research Complex Rapid Cycling Synchrotron, Progress of Theoretical and Experimental Physics, vol.2017, issue 11, 2017, p.113G01-1-113G01-24.

5-2 高精度パルス中性子解析による高強度鉄鋼材料の強さの解明 -ラスマルテンサイト鋼の変形中の転位評価解析-



図 5-6 J-PARC の高分解能な中性子回折装置「匠」 匠の全体写真及び引っ張りながらその場で行う中性子回折実験の様子(右下の写真)です。

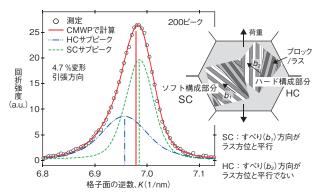


図 5-7 引張塑性変形した状態の軸方向の回折プロファイルの例 塑性変形前は対称性の良い回折プロファイルが塑性変形後は非対称になり、SC と HC が異なる振る舞いを示します。

マルテンサイト鋼は、Fe-C 系合金(鋼)をオーステ ナイト組織が安定な高温領域から急冷したときに起こる 速い相変態によって形成されたマルテンサイト組織を有 する鋼であり、転位と呼ばれる欠陥を高密度で含んでい るため高強度構造材料としてよく知られています。マル テンサイトには、生成温度範囲によってラス、バタフラ イ、レンズ、薄板状の四つの形態が存在します。これら のうち、ラスは熱処理用鋼に現れる実用上最も重要な組 織形態です。ラスマルテンサイト鋼は、ラス状のマルテ ンサイトを持つ鋼のことをいいます。ラスは数十nm の 帯状(層状)の領域であり、いくつかのラスはブロック を形成し、さらに配向がほぼ同じブロックは集合してパ ケットを形成します。ラスマルテンサイト鋼は、塑性変 形の初期段階では非常に大きな強度増加(加工硬化)を 示すという特徴を持っています。しかしながら、転位密 度が非常に高く組織が微細であるため電子顕微鏡のよう な手法では組織変化の観察が困難であり、大きな加工硬 化のメカニズムが解明されていませんでした。

私たちは、J-PARCの中性子回折装置「匠」(図 5-6)の装置高分解能を利用した転位評価手法を開発し、この手法をラスマルテンサイト鋼の引張変形中の中性子回折実験で得られたデータの解析に応用し、引張塑性変形中の転位の密度や配置状態等を定量化することで引張変形中の加工硬化メカニズムを解き明かしました。図 5-7 は引張塑性変形した状態の引張方向の回折プロファイルを示

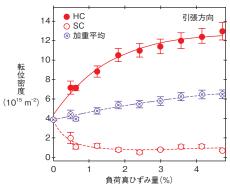


図5-8 引張変形の負荷ひずみ量に対する転位密度の変化 変形が進行するとき、SC では転位密度が減少し軟化しますが、 HC では転位密度が増加し加工硬化が起こることを表します。

しています。変形前は対称性の良い回折プロファイルが、塑性変形後は非対称になることを発見しました。CMWP (Convolutional Multiple Whole Profile fitting) 法と呼ばれる転位評価解析によるプロファイル解析を行ったところ、非対称性のプロファイルを二つのサブピークに分離することに成功し、塑性変形の原因である転位すべりがパケット間で異なることを示唆しました。すなわち、転位すべりに有利な軟質パケット(ソフト構成部分:SC)と不利な硬質パケット(ハード構成部分:HC)の存在を発見しました。

さらに詳細な解析を行った結果、二つのパケット間で応力及び転位密度・転位配置の分配が起こることも発見しました。例えば図 5-8 において、変形前の転位密度が既に大きいにもかかわらず、HCでは変形中の転位密度が増加し、より大きな応力を負担して加工硬化が起こりました。一方、SCでは転位密度が減少し軟化が起こりました。このことは、HCが加工硬化に重要な役割を果たしていることを表しています。これらの結果は、ラスマルテンサイト鋼が塑性変形の初期段階で大きな加工硬化を起こす原因を明らかにしました。

今後は、この転位評価解析手法及び装置の高度化を 行い、先端鉄鋼や金属材料の開発のみでなく、日本刀の 結晶学的組織及び転位解析を行い古代の冶金学の解明に も役立てたいと考えています。

●参考文献

Harjo, S. et al., Work Hardening, Dislocation Structure, and Load Partitioning in Lath Martensite Determined by *In Situ* Neutron Diffraction Line Profile Analysis, Metallurgical and Materials Transactions A, vol.48, no.9, 2017, p.4080-4092.

5-3 幅の狭い良質なパルス中性子ビームの供給を目指して -中性子パルス整形のための低放射化型熱中性子吸収材の開発-

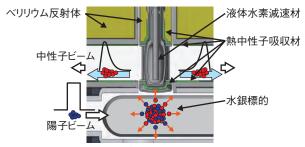


図 5-9 核破砕中性子源断面図

減速材に流入する遅い中性子を吸収するために、熱中性子吸収材を中性子ビーム孔周りに配置します。

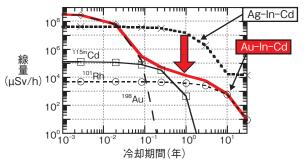
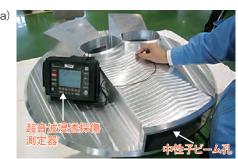


図 5-10 Au-In-Cd による 6 MW・y 運転後の放射線量の低減 Au-In-Cd の導入により、使用後 1 年冷却したときの線量 (表面から 1 m) は、Ag-In-Cd と比べ 3 桁も低減します。

J-PARC物質・生命科学実験施設(MLF)の核破砕中性子源は、大強度パルス陽子ビームを水銀ターゲットに入射し、発生した高速中性子を減速材で減速して熱・冷中性子に変え、物質や材料の構造・機能を調べる実験装置に供給します。例えば、物質中の残留応力の変化に起因する中性子回折ピークのわずかな変化を測定するには、パルス幅が狭く時間減衰の早い良質なパルス中性子が必要です。一方、高速中性子の中には、散乱を繰り返しながらエネルギーを下げ、時間的に遅れて減速材に入ってくる中性子が存在します。これがパルス中性子の時間減衰を長くします。時間減衰を短くするため、MLFでは、遅い熱中性子を吸収する材料を減速材や反射体のビーム孔周囲に適切に配置しています(図 5-9)。

MLFでは熱中性子吸収材として共鳴吸収型の銀-インジウム-カドミウム(Ag-In-Cd)合金を使用し、世界最高の中性子波長分解能を有するパルス中性子を供給していますが、減速材は構造材であるアルミ合金の中性子損傷のため6年ごと(1 MW 照射)に交換する必要があります。一方、ビーム運転に伴い半減期418年の^{108m}Agの蓄積量が増えて残留放射能が高くなると、機器交換や長期にわたる保管を行う上で問題になります。

私たちは、次に使う熱中性子吸収材料として、中性子吸収エネルギーが Ag と類似し、かつ残留放射能の大きな低減が見込める金(Au)に着目し、Au-In-Cd 合金



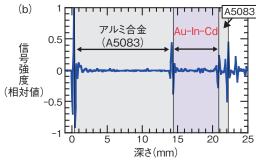


図 5-11 HIP 接合後の (a) 反射体実機の中性子ビーム孔部位と (b) 超音波浸透探傷測定器 (UT) の測定結果の例 HIP 接合後に UT で中性子ビーム孔周りの接合状態を確認しました。全ての接合部の場所で接合部境界から超音波の反射が観測され、良好な接合であることが示されました。

の開発に取り組みました。計算により Au-In-Cd 合金が、Ag-In-Cd と同等の熱中性子吸収特性を示し、かつ使用済み機器の放射線量を3桁低減できることを見いだし(図 5-10)、実用化に向けて合金の製造も行いました。

Au-In-Cd 合金は、冷却水による浸食、核発熱による熱除去のため、減速材や反射体の構造材であるアルミ合金と密着させる必要があります。私たちは HIP (熱間等方圧加圧)を利用した小試験片サイズ(100 g 程度)で接合試験を行い、設計で要求される強度(30 MPa)の3倍に達する条件を見いだしました。しかしながら実機接合では部材総重量が500 kg(Au-In-Cd 合金を約10 kg含む)となるため、熱容量の増加により、内部は温まりにくく、温度上昇に遅延を伴い、表面と内部とで温度差が生じます。部材の表面と内部ともに、温度や保持時間が限定された最適な接合条件(535 ± 5℃で1時間保持)を満足することが必要でした。そこで、熱解析により、接合部材の表面と内部が最適な接合条件を満足する条件を見いだし、その結果を実機に適応することで、健全な接合状態が得られることを確認しました(図5-11)。

今後、本研究で開発した材料に置き換えていくことで、低放射化による使用済み機器の取扱い負担を軽減するとともに、良質なパルス中性子ビームを供給し、物質の構造、相転移、残留応力などの研究分野の発展に引き続き貢献できるものと考えています。

●参考文献

Teshigawara, M. et al., Implementation of a Low-Activation Au-In-Cd Decoupler into the J-PARC 1 MW Short Pulsed Spallation Neutron Source, Nuclear Materials and Energy, vol.14, 2018, p.14-21.

5-4 高性能な鋼の開発に向けた新たな分析手法を実現 -ものづくり現場における利便性に優れた小型加速器中性子源の活用-

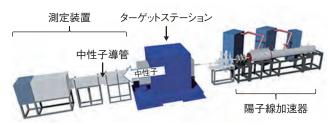


図 5-12 理研小型加速器中性子源システム (RANS) の基本構造 陽子線加速器によって陽子を加速し、ターゲットステーション内の ベリリウム(Be) 薄膜に衝突させて核反応を起こし、中性子を発生させます。



図 5-13 RANS に設置した回折計 ターゲットステーションの下流 5.38 m の位置に 2 軸回転ステージと検出器から成る小型回折計を設置しました。

近年、地球温暖化対策として二酸化炭素(CO₂)排出量の削減が求められており、自動車などの輸送機器では、軽量化による燃費向上が求められています。自動車の軽量化には、薄くかつ高強度な高張力鋼板の利用が適していますが、プレス加工性との両立が実用化の鍵となります。オーステナイト組織はこれを可能にする鋼組織の一つであり、この相分率を正しく把握して制御することが、新たな高張力鋼板の開発に重要です。相分率の測定には、鋼に対して透過性に優れた「中性子回折法」が有効ですが、ビーム強度の弱い小型中性子源では実施が困難と考えられてきました。そこで本研究では、図5-12に示す「理研小型中性子源システム(RANS)」を用いて、小型中性子源による中性子回折の実現と、それによる残留オーステナイト相分率測定の実現を目指しました。

本研究では、測定試料にフェライトとオーステナイトの2相から成る複相鋼を用いました。回折測定では、結晶構造によって決まる回折パターンが得られます。したがって、用いた複相鋼では2種類の相に由来する回折線が同時に得られ、これらの回折強度の比較により、オーステナイト相分率を求めることができます。まず、RANSにおける回折計の構築では、効果的な遮へいの

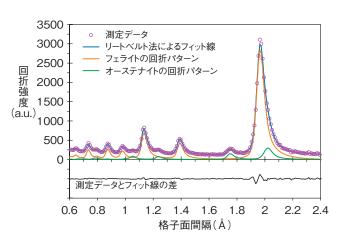


図 5-14 RANS の回折測定で得られた複相鋼のオーステナイト とフェライトの回折ピーク

リートベルト法(回折パターンから結晶構造を精密化する手法)により、測定結果(○)を理論的な回折パターン(一線)に照らし合わせて求められるフェライト相(一線)とオーステナイト相(一線)の回折強度比から、サンプル内のフェライト/オーステナイトの割合を知ることができます。

配置によりバックグラウンドノイズを低減し、出力の小さい小型中性子源でも複数の回折ピークを識別できるようにしました。また、小型装置の強みである利便性を最大限に生かすため、設置した回折計を小型化し、各装置や試料へのアクセス性を確保しました。さらに試料の全方向測定ができるように、試料を2軸回転させながら回折線を測定する方式を取り入れました(図5-13)。これらの方式により、試料の全方位を5時間で測定でき、図5-14に示すように、オーステナイトとフェライトの両回折ピークを同時に得ることに成功しました。その結果、複相鋼のオーステナイト相分率は13.1%となり、大型実験施設の測定結果13.9%と比較して1%以内の差で一致する結果が得られ、小型中性子源の有用性が示されました。

今後、さらなる検出器の増設や中性子源の改良によって、本手法の測定時間の短縮と精度の向上が見込まれます。そして、本技術は鋼材や鋼板の品質管理や開発にとどまらず、広く材料の基礎研究や新素材開発及び品質検査といったものづくり現場に貢献することが期待できます。

本研究は、原子力機構、理化学研究所及び東京都市大学の共同研究の成果です。

●参考文献

池田義雅, 鈴木裕士ほか, 小型中性子源の現場利用を目指した残留オーステナイト相分率測定手法の開発, 鉄と鋼, vol.104, no.3, 2018, p.138-144.

5-5 透過中性子によるスピン配列の観測に成功

極限環境におけるスピン配列の観測やマッピングへの応用が可能に

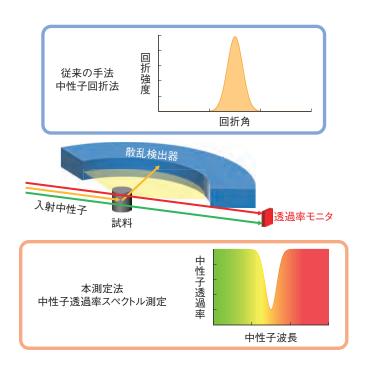


図5-15 中性子回折法と中性子透過率スペクトル測定の比較図中性子回折法では、回折された中性子を測定するために広い角度で中性子の経路を空けておく必要があるのに対し、中性子透過率スペクトル測定では、透過中性子の方向のみを空ければ測定できます。

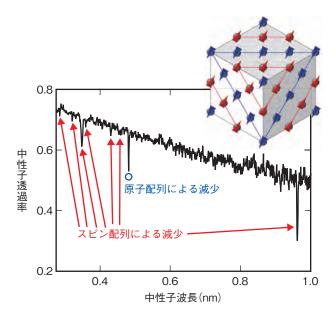


図5-16 NiO 単結晶の中性子透過率スペクトル 図中の○は原子配列に起因する透過率の減少(ブラッグディップ)を示しています。→で示したディップは、原子配列では生じないものであり、反強磁性のスピン配列による減少であると説明できます。右上の内挿図は、反強磁性のスピン配列のイメージです。▲と▲は、それぞれ上向きと下向きスピンを表しています。

中性子回折法は、中性子を物質に入射した際に生じる回折パターンから物質中の原子及びスピン配列を解析する手法です(図 5-15)。中性子回折法では、解析精度を向上させるために、できるだけ広い角度で回折中性子を測定する必要があります。一方、私たちが着目した中性子透過率スペクトル法は、回折した中性子そのものを観測する代わりに、回折に伴う中性子透過率の減少から構造を決定します。透過中性子測定では、回折測定のような角度分解測定をすることなく構造を決定できるという利点があります。これまで、同手法は原子配列の決定に用いられてきました。また、中性子透過率スペクトルを二次元検出器で測定し、原子配列の空間分布をイメージングする手法として利用されてきました。

このような背景の下、私たちは、この中性子透過率スペクトル測定から原子配列のみならずスピン配列も決定できるはずであると着想し、新たに実験を行いました。図 5-16 は、J-PARC 物質・生命科学実験施設(MLF)

の中性子源特性試験装置 NOBORU で測定した、反強磁性体である酸化ニッケル (NiO) 単結晶の中性子透過率スペクトルを示したものです。原子配列による回折(○)に加え、反強磁性のスピン配列による回折(→)が透過率の減少(ブラックディップ)として観測されました。同様に、NiO 粉末を測定したところ、理論予測に従い、スピン配列による回折が、シグナルは弱いものの段差状の透過率の減少(ブラッグエッジ)として観測されました。

本研究により、中性子透過率スペクトル測定が従来報告されていた原子配列のみならず、スピン配列の解析にも有効であることが実証されました。今後は、大きな開口角を作ることができない超高圧・強磁場・極低温などの極限試料環境機器と組み合わせた測定などへの展開が期待されます。また、中性子透過率スペクトルを二次元検出器でイメージングすることで、磁気記憶媒体におけるスピン配列のマッピングなども可能になります。

●参考文献

Mamiya, H., Oba, Y. et al., Magnetic Bragg Dip and Bragg Edge in Neutron Transmission Spectra of Typical Spin Superstructures, Scientific Reports, vol.7, 2017, p.15516-1-15516-8.

5-6 ガラス固化体中の白金族元素の化学状態を突き止める - 放射光イメージング XAFS 異種元素相関解析を利用した最先端分析 –

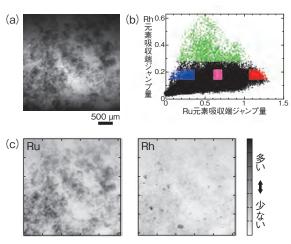


図5-17 ガラス試料中の Ru 及び Rh の分布相関
(a) のイメージング画像から Ru と Rhの XAFS 信号を求め、その吸収端ジャンプ量から、(b) 画像中各ピクセルの吸収端ジャンプ量の相関プロット及び(c) 各元素の存在量をグレースケールで表した分布図を導出します。

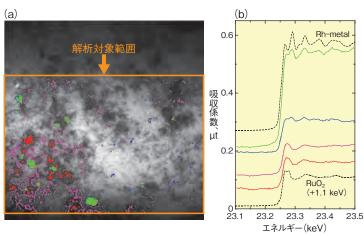


図5-18 分布相関ごとに分離導出したイメージング XAFS スペクトル 図 5-17(b)の Ru と Rh の分布相関に基づき画像中の領域を特定し(a)、それぞれの領域ごとにイメージング XAFS 信号を導出します(b)。標準試料のスペクトル(破線)との比較から、Ru が多く分布する領域(赤色)の Rh の化学形は酸化物であり、一方、Ru の分布量が少ない領域(青色)の Rh の化学形は金属であることが分かります。

使用済燃料の再処理により発生する高レベル放射性廃 液は、ホウケイ酸ガラスと高温で溶融混合され、ガラス固 化体として中間貯蔵の後、地層処分される計画になって います。ガラス固化体には、30以上もの元素が含まれてお り、ガラスによく溶けるものもあれば、溶けにくいものもあ ります。これらの各元素の化学状態や局所構造を調べるこ とは、ガラス固化体の健全性を担保する上で非常に重要で す。放射光 XAFS (X-ray Absorption Fine Structure) 分析は、高い元素選択性と微量成分への適応力が高いこ とから、ガラス固化体中の各成分の分析に世界中で幅広 く用いられています。 私たちは、この XAFS に二次元分解 能を加えたイメージング XAFS 技術を開発し、対象試料 中の元素の分布を求めるとともに、特定領域のXAFS信 号を選択的に取り出す分析に利用しています。白金族元素 (Ru、Rh 及び Pd) は、ホウケイ酸ガラスに溶けにくく、 ガラス溶融炉の底部に蓄積し、しばしば固化体製造プロセ スの障害になっています。そこで私たちは、ガラス固化部 と協力し、ホウケイ酸ガラス中の白金族元素の挙動につい て、イメージング XAFS により詳細に調べました。

図 5-17 は、廃液成分を含んだホウケイ酸ガラス試料の放射光イメージング XAFS 分析の結果です。図から明らかなように、ガラス中の Ru と Rh の分布は均一ではなく、凝集析出していることが分かります。ここまでは既に分かっていたことであり、わざわざ放射光を使って調べるまでもありません。本研究の特長は、これら Ru と Rh の分布の相関を調べ、その相関の特徴を基に XAFS 信号を分離して求めたことにあります。ホウケイ酸ガラス中の Rh の化学状態には特異的な性質があり、金属と酸化物が混在していますが、観察される酸化

物の化学形が化学平衡の観点から予想される Rh_2O_3 ではなく、 RhO_2 のみであることが先行して行われた XAFS 分析から分かっています。

図 5-17 (b) は、画像中の各ピクセルから求めた Ru と Rh のイメージング XAFS の吸収端ジャンプ量(元素の存在量に比例)の X-Y プロットです。この分布相関から、Ru が多く分布している領域(赤色)、Ru があまり分布していない領域(青色)、Rh が多く分布している領域(黄緑)のように領域を分けました。 X-Y プロット中の各点は、それらを図 5-18 (a) に色分けして示すように、画像中に 1 対 1 で対応させることができます。この後、この画像中の各領域からの X 線強度を得て、図 5-18 (b) に示すように領域ごとのイメージング XAFS スペクトルを取得しました。解析の結果、Ru が多くあるところのRh の化学形は RhO2 であり、Ru が少ないところの化学形は Rh 金属であることが分かりました。さらに、Rh が多く分布している場合の化学形は Rh 金属でした。

これらの結果は、Rhの化学形は基本的には金属ですが、Ruと分布が一致しているところだけ、Rhの化学形がRhO2であることを示しています。つまり、ガラス中のRhの化学状態は、Rhそのものの熱力学的性質よりも、Ruとの分布相関により強く支配されているのです。私たちはこのイメージング XAFS 分析技術を、様々な元素同士の相関にも適用し、ガラス固化体中の複雑な化学的挙動を解明し、ガラス固化技術の高度化に貢献したいと考えています。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究(C)(No.15K04739)「空間分解能を備えたイメージング XAFSによる異種元素間の化学的相関分析」の助成を受けたものです。

●参考文献

岡本芳浩ほか, 放射光 XAFS およびイメージング XAFS 法による模擬ガラス試料中のロジウム元素の化学状態分析, 日本原子力学会 和文論文誌, vol.16, no.4, 2017, p.180-190.

5-7 燃料電池触媒の反応中における酸化状態変化を観測 - 放射光 X 線吸収実験で明らかにした金属微粒子の表面構造 -

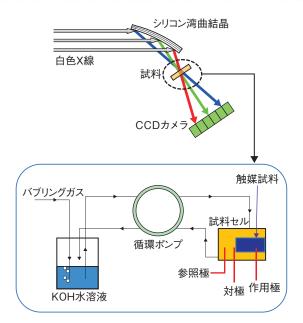


図 5-19 X 線吸収分光システムの概要図

分散型 X 線吸収分光システムでは、湾曲結晶に白色 X 線を 照射することで、エネルギー幅を持った X 線を一度に作り出 します。これにより、X 線吸収分光測定の高速化が可能にな り、溶液を循環させて電位を制御できる試料セルと組み合わ せることで、電極反応中の触媒状態変化を直接観測すること ができます。

次世代エネルギー技術と呼ばれる燃料電池の開発が 盛んに行われています。燃料電池は発電中に温室効果ガスである二酸化炭素を全く排出しないというメリットが ある一方、電極触媒として高価なプラチナ金属を使う必要があるなど、さらなる普及に向けての課題点も指摘されています。プラチナは酸化により劣化するものと考えられており、燃料電池の動作中にプラチナ金属触媒がどう酸化されるかを調べることは重要です。

X線吸収分光法は元素選択性を持ち、電極構成要素のプラチナだけの情報を選択的に得て、吸収端位置の測定によりプラチナの酸化状態を決定できます。図 5-19に、本研究で採用した分散型 X線吸収分光システムと試料周りの概要を示します。通常の方法では、分光結晶を動かして X線のエネルギーを変える必要がありますが、本方法では機械的に動く機構を必要とせずに吸収分光を計測でき、測定の高速化が図れます。これを利用して、触媒にかかる電位を掃引して電極触媒反応を変化させながら X線吸収分光を高速連続測定し、触媒反応中におけるプラチナ金属の酸化状態変化を観測しました。

燃料電池の反応では酸素還元反応が律速過程と考えられています。実験では電極を浸した溶液に酸素バブリングを施すことで酸素還元反応を実現させ、酸素を追い

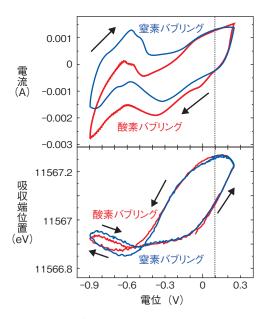


図 5-20 電流 - X線吸収端位置同時測定結果 図 5-19 の作用極での電位掃引に対する、電流とプラチナ触 媒吸収端位置変化を示しています。電流の変化から触媒反応 の様子が分かり、X線の吸収端位置によりプラチナ触媒の表 面酸化状態が示されます。これらの同時測定によって、反応

が起きている際の触媒表面の酸化状態を決定できました。

出した窒素バブリングの結果と比較しました。プラチナ 触媒に対して電位を掃引させ、触媒反応に伴う電流変化 と、同時測定した X 線吸収分光によるプラチナの吸収 端位置変化を、図 5-20 に示します。電位を高電位側から 低電位側に変化させていくと、0.1 V 以下では酸素バブリング下の電流が負方向に増大していることが見て取れます。これは酸素の還元反応に伴い電流が新たに流れたためです。この反応開始電位において、X 線吸収端位置は比較的高い値を取っており、吸収端位置が高いほどプラチナが酸化されていることを示しています。このことから、プラチナ触媒表面が酸化膜で覆われた状態にて酸素還元反応が開始することが分かりました。また、電位を下げるにつれ吸収端位置が下がりますが、酸素バブリングの方が緩やかな傾きを示すことから、酸素の存在によりプラチナ触媒表面の還元反応が阻害されることも分かりました。

本研究により、反応開始電位におけるプラチナ触媒の酸化状態を決定できました。この結果は、酸素還元反応をより高電位側に広げる高性能な触媒の開発につながるものと考えています。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金若手研究(B) (No.16K17540) 「分散型 X 線吸収分光による精密局所歪測定」の助成を受けたものです。

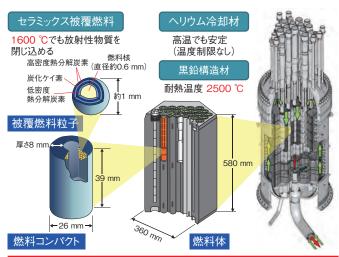
●参考文献

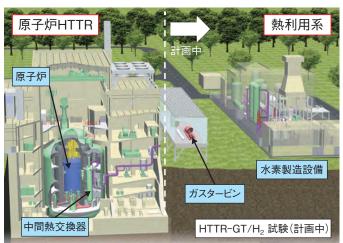
Kusano, S., Matsumura, D. et al., Study of Catalytic Reaction at Electrode-Electrolyte Interfaces by a CV-XAFS Method, Journal of Electronic Materials, vol.46, issue 6, 2017, p.3634-3638.



高温ガス炉水素・熱利用研究

高温ガス炉とこれによる水素製造・熱利用技術の研究開発





安全性

- ・燃料被覆に耐熱性に優れたセラミックスを使用
- ・黒鉛構造材(減速材)により事故時の温度変化が緩慢
- ・不活性なヘリウムガスは構造物と反応しない

高温ガス炉は、以上の特長により、原理的に炉心溶融を 起こす可能性がない炉型である

経済性

熱のカスケード利用による廃熱の削減(熱利用率80%) ガスタービン発電による設備の簡素化、高効率化(発電効率50%) 環境負荷低減

高燃焼度燃料、高発電効率により使用済燃料発生量を低減 二酸化炭素フリーの水素製造により地球温暖化を抑制

図 6-1 高温ガス炉の特長

高温ガス炉は、ヘリウムガス冷却、黒鉛減速の熱中性子炉で、優れた固有の安全性を有しており、水素製造や発電などの多様な熱利用 に応えることができる原子炉です。

エネルギー資源に乏しい我が国では、海外からの化 石資源の依存度を下げ、さらに地球温暖化問題解決に向 けて二酸化炭素の排出量を低減するために、安全性の確 保を大前提として原子力エネルギーの利用を進めること を基本方針としています。高温ガス炉は、ヘリウムガ スタービンによる高効率発電、水素製造、さらにはガス タービンの廃熱を利用した海水淡水化等の多様な産業利 用に応えることができる原子炉です(図6-1)。2018年 7月に閣議決定された第5次エネルギー基本計画の「第 3節 技術開発の推進 2.取り組むべき技術課題 | におい ては、「水素製造を含めた多様な産業利用が見込まれ、 固有の安全性を有する高温ガス炉など、安全性の高度化 に貢献する技術開発を、海外市場の動向を見据えつつ国 際協力の下で推進する」と記載されています。

文部科学省が設置した高温ガス炉産学官協議会では、 高温ガス炉の実用化戦略、海外戦略等の検討が進められ ており、特に、ポーランドの高温ガス実験炉及び商用炉 に向けた協力方針、国内体制等が昨年度定められました。 茨城県大洗町にある日本初の高温ガス炉 HTTR の設計、 安全審査、建設、運転、メンテナンス、さらには新規制 基準に基づく安全評価等を通して養ってきた世界最先端 の我が国の高温ガス炉技術を、海外のプラントを用いて 維持させ、将来我が国へ戻すことが狙いです。

HTTR は、国産技術により建設され、2004年に 950 ℃の熱を取り出すことに世界で唯一成功、2010 年 に950℃で50日間の連続運転により、安定に高温核熱 を供給できることを実証しました。また、同じ年に原子 炉の冷却機能が喪失し、原子炉停止に失敗する異常事象 を模擬した試験を実施した結果、原子炉出力が自然に静 定し、安定な状態に維持されることを実証しました。

現在、私たちは、高温ガス炉技術の開発として、高 温ガス炉のさらなる安全性追求に向けた地震リスク評価 手法の開発、環境負荷低減に向けた廃棄物削減研究、酸 素ゲッターの機能を持つ ZrC 層の被覆試験、受動的放 射冷却を用いた高温ガス炉の冷却設備開発、高温ガス 炉の中性子源の新たな交換方法の開発を進めています (トピックス 6-1~6-5)。また、高温ガス炉の熱を利 用した革新的水素製造技術である熱化学法 IS プロセス の研究においては、水素製造効率向上に向けた HI 分解 膜反応器の開発及び IS 環境における工業材料の適用性 評価を行いました(トピックス 6-6、6-7)。

HTTR は、新規制基準に係る適合性確認において、 高温ガス炉が持つ固有の安全性から、大規模な改造・補 強なしで運転再開が認められる見込みで、これに伴い運 転再開に向けた最終準備を着々と進めています。

6-1 高温ガス炉の安全性を追求する

-極大地震時における高温ガス炉の事故シナリオ影響評価-

2400

2000

1600

1200

800

400

0

二重管破断

+スタンドパイプ破損 +黒鉛構造物損傷

炉 1200

心 最 1100

高 温 1000

900

炉心最高温度℃

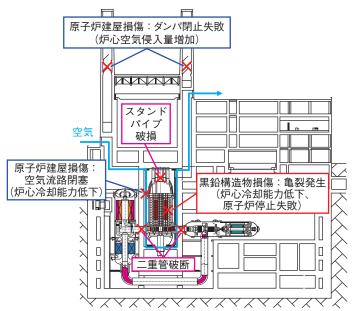


図 6-2 地震に起因する被ばく上最も厳しい事故シナリオ 二重管やスタンドパイプ破損に加え、原子炉建屋損傷による炉 心空気侵入量増加や炉心冷却能力低下、黒鉛構造物損傷による 炉心冷却能力低下や原子炉停止失敗を想定します。

図 6-3 原子炉建屋や黒鉛構造物損傷時の炉心最高温度変化原子炉建屋損傷時(③) は炉心放散熱量が低下し、原子炉建家健全時(①、②) に比べて炉心最高温度が上昇します。黒鉛構造物損傷時(②) は原子炉停止に失敗し、再臨界発生により炉心高温状態が保持されます。

200

50 100

経過時間(s)

事故発生からの経過時間(h)

③二重管破断+スタンドパイプ破損+原子炉建屋

損傷、または原子炉建屋及び黒鉛構造物損傷

①二重管破断

破損のみ

400

+スタンドパイプ

600

高温ガス炉の実用化に向け、発生可能性が極めて小さい事故についても、安全性確認が必要です。そこで、プラント状態が急峻に変化する条件(クリフエッジ)を明らかにすることを目標に、敷地境界での被ばく上最も厳しい事故シナリオを検討しました。

事故シナリオについては、地震に起因して燃料酸化要因の炉心空気侵入量が最大となる原子炉冷却材出入口部の二重管と制御棒を格納するスタンドパイプの同時破損に、原子炉建屋や黒鉛構造物損傷により複数の安全設備故障が重畳するシナリオを選びました(図6-2)。また、評価ではスタンドパイプ破損時の冷却材放出により浮上する制御棒位置変化、ダンパ閉止失敗による原子炉建屋への空気侵入、炉心を間接的に冷やすため原子炉建屋内に設けた空気流路閉塞、黒鉛構造物亀裂生成による制御棒挿入失敗や炉心からの放散熱量低下を考慮しました。

上記事故シナリオの各安全設備故障について影響を評価した結果、原子炉は事故直後、制御棒浮上により出力が過渡的に上昇するものの、ドップラー効果により直ちに未臨界に至り、温度上昇は120℃程度に抑制されました(図6-3)。その後、炉停止初期の崩壊熱により炉心最高温度はゆっくり上昇しますが、炉心での発生熱

は構造物中の熱伝導や放射伝熱により大気や土壌に放散 され、事故後、数十~百時間で炉心からの放散熱量が崩 壊熱量を上回り、以後、炉心最高温度は単調に減少しま した(図 6-3 ①、③)。このとき、原子炉建屋損傷時でも 炉心最高温度は過去の試験で燃料破損が生じないことが 確認された温度である1900 ℃に至りませんでした(③)。 黒鉛構造物損傷による制御棒挿入失敗時は、事故後、数 百時間で再臨界が発生しますが、炉心での崩壊熱や核分 裂による発生熱量の総和は炉心からの放散熱量に一致 し、炉心最高温度は一定保持されました(②)。放射性 物質放出については、事故直後の原子炉建屋頂部からの 高所放出量はいずれの場合も変わりません。一方で、原 子炉建屋損傷時(③)は原子炉建屋健全時(①、②)に 比べ、事故後、炉心最高温度上昇により燃料被覆を放射 性物質が拡散し、地表面レベルでの漏えい量が増大する ため、事故収束期間と想定した3ヶ月間の敷地境界で の被ばく線量積算値は約6倍増加しますが、クリフエッ ジは見いだされませんでした。

本研究は、文部科学省の国家課題対応型研究開発推 進事業「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進 事業」の一部として実施しました。

●参考文献

Sato, H. et al., Probabilistic Risk Assessment Method Development for High Temperature Gas-Cooled Reactors (1) Project Overviews, Proceedings of 2017 International Congress on Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP 2017), Fukui and Kyoto, Japan, 2017, paper 17078, 7p., in CD-ROM.

6-2 高温ガス炉による環境負荷低減に向けて -高温ガス炉の特長を活かした放射性廃棄物減容の研究-

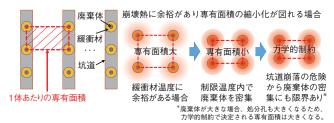


図 6-4 処分場専有面積の考え方

緩衝材が 100 ℃を超えない範囲で密に配置することにより、専有面積の低減ができます。一方で、力学的制約により、専有面積の削減には限界があります。直接処分ではキャニスターが大きいため、力学的制約による専有面積も大きくなります。

表 6-1 1 TWeh 発電あたりの高レベル放射性廃棄物発生体数と処分場 専有面積の比較

発電量あたりの廃棄物発生量と専有面積を直接処分、再処理時において高 温ガス炉と軽水炉で比較しています。本ケースでは全て、処分場専有面積が 力学的制約により決まっており、キャニスターの大きさにより差が出ています。

原子炉設計諸元	軽水炉 (PWR)	高温ガス炉	優位性
燃焼度 (GWd/t)	45.0	119.5	約3倍
発電効率(%)	34.5	45.6	+32 %
直接処分	軽水炉(PWR)	高温ガス炉	優位性
廃棄体発生体数 (キャニスター/TWeh)	2.92	1.20	-59 %
廃棄体 1 体あたりの専有面積(m²/キャニスター)	192 (力学)*	204 (力学)*	-
専有面積 (m²/TWeh)	560	244	-56 %
ガラス固化体(再処理)	軽水炉 (PWR)	高温ガス炉	優位性
廃棄体発生体数 (キャニスター/TWeh)	3.40	2.32	-32 %
廃棄体 1 体あたりの専有面積(m²/キャニスター)	90 (力学)*	90 (力学)*	-
專有面積 (m²/TWeh)	306	209	-32 %

^{*}力学的制約。

原子力発電において廃棄物問題は重要です。廃棄物 処分の安全性は、廃棄物の腐食・漏えいを想定し、公衆 が受ける被ばく量を制限し、確保されます。さらに、廃 棄物減容は必要とされる処分場面積を削減する観点から 重要です。

高温ガス炉は、その高温を利用した効率的な発電により、発電で発生する核分裂生成物 (FP) が軽水炉の7割程度との利点があります。このような利点を活かし、廃棄物削減による環境負荷低減を目的とします。直接処分では、被覆粒子燃料の閉じ込め機能の高さは処分後も期待でき、燃料の高温耐性から、貯蔵中の冷却にも有利です。

ガラス固化体は、キャニスターに入れられ(以下、廃棄体)、緩衝材で囲まれ、地層中に処分されます。使用済燃料についても同様の処分を仮定します。廃棄体からの崩壊熱による緩衝材の変質を防ぐため、100 ℃以下に温度を保つ必要があります。そのため、制限温度を超えない範囲で、廃棄体の間隔を狭くし、処分場専有面積を低減します(図 6-4)。

次に、単位発電量あたりの廃棄体発生を表 6-1 に示します。力学的制約により専有面積が決定されるため、キャニスターの大きさに比例して廃棄体1体あたりの専

表 6-2 高温ガス炉放射性廃棄物及び処分法の最適化 表 6-1 に示した高温ガス炉の廃棄物処分に対し最適化を行い、 さらなる減容を図りました。専有面積は直接処分で 5 割減、 再処理時は 8 割減、群分離併用時は 9 割減と大幅な減容効果 を確認しました。

直接処分	代表 ケース	最適化 ケース	優位性		
処分法	竪置き	横置き	-		-
冷却期間(年)	54	94	-	-	-
廃棄体 1 体あたりの 専有面積(m²/キャニスター)	204 (力学)*1	104	-49 %		-
專有面積(m²/TWeh)	244	125	-49 %		-
再処理	代表 ケース	最適化 ケース	優位性	群分離 併用	優位性
処分法	竪置き	横置き	-	横置き	-
再処理までの期間(年)	4	5.5	-	4	-
冷却期間(年)	54	94	-	154	-
廃棄体発生体数 (キャニスター/TWeh)	2.32	1.77	-23 %	0.83*2	-64 %
廃棄体 1 体あたりの 専有面積(m²/キャニスター)	90 (力学)*1	20 (力学)*1	-78 %	29*3	-68 %
專有面積(m²/TWeh)	209	36	-83 %	24	-88 %
	,			24	-88 %

^{*1}力学的制約。

有面積が大きくなります。高温ガス炉の廃棄物発生体数及び処分場専有面積は軽水炉と比較し、直接処分時に軽水炉の6割減、再処理時に3割減となります。その理由は、再処理では前述の発電効率の高さにより、直接処分では、さらに、エネルギー発生あたりの超ウラン元素(TRU)の発生量が少ない核特性によります。

さらに、この高温ガス炉廃棄物の発生を基準とし、条件最適化による減容を検討しました(表 6-2)。処分法は力学的制約にかからないことを狙い、横置き方式としました。直接処分に関しては、処分前の冷却期間 94 年で専有面積が半減します。短半減期の FP は減衰し、半減期が長い TRU の崩壊熱が主体となる領域で、冷却期間の延長は効率的ではありません。再処理時は再処理を 1.5年の遅延のみで、ガラス固化体発生体数が 2 割減、94 年冷却後の処分(力学的制約に到達)で、専有面積が 8 割減となります。さらに、群分離技術の併用も検討しました。群分離で Sr-Cs を分離して別の廃棄物とした場合、これを含めても、廃棄物発生体数は 6 割減となります。154 年冷却後の処分で専有面積は 9 割減となります。

このように、高温ガス炉導入による廃棄物の大幅な 削減と環境負荷低減を確認しました。

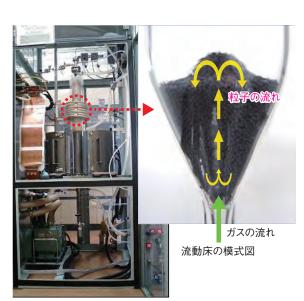
●参考文献

Fukaya, Y. et al., Optimization of Disposal Method and Scenario to Reduce High Level Waste Volume and Repository Footprint for HTGR, Annals of Nuclear Energy, vol.116, 2018, p.224-234.

^{*2} ガラス固化体及び Sr-Cs 廃棄体です。

^{*3} Sr-Cs 廃棄体は力学的制約で、ガラス固化体ではマイナーアクチノイド(MA)の 崩壊熱で決定しています。

6-3 プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全性向上に向けて -酸素ゲッターの機能を持つ ZrC 層の被覆試験 -



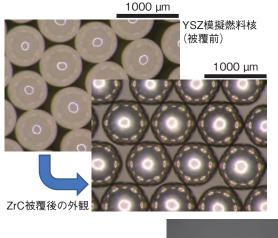
ZrC被覆実験装置

図 6-5 原子力機構が所有する ZrC 被覆実験装置 組成比 1:1 の ZrC を化学蒸着できる臭化物法を採用した世界 唯一の実験装置です。装置内部の流動床と呼ばれる領域で、 温度 1350 ℃で粒子を流動させながら被覆します。

軽水炉の使用済燃料の再処理で取り出されるプルトニウム (Pu) は、MOX 燃料として軽水炉や高速炉で利用される計画です。また、物理的な固有安全性の特徴を持つ高温ガス炉を利用することでも、Pu インベントリを減らしながら炉心溶融によるリスクを排除させつつ、安全にエネルギーを得られるメリットがあります。一方、核分裂性物質が 6 割以上を占める再処理 Pu を、効率良く大量に燃焼させるためには、燃焼度 600 GWd/t という通常のウラン燃料の 10 倍以上の燃焼度が必要です。これを可能とする、核拡散抵抗性の高い高温ガス炉用 Pu 燃料の超高燃焼度における健全性の確保は、核セキュリティと安全性の両立の観点から重要です。

高温ガス炉に特徴的な被覆燃料粒子は、直径 0.5~mm程度の燃料核を炭素層と炭化ケイ素(SiC)層の極薄セラミックス(厚さ $25\sim45~\mu\text{m}$ 程度)で四重に被覆した、大きさ 1~mm に満たない燃料です。この被覆燃料粒子の Pu を、化学的に安定なイットリア安定化ジルコニア(Yttria Stabilized Zirconia:YSZ)の母材に固溶する方法で、被覆燃料粒子からの Pu の回収が極めて困難になり、従来の酸化物燃料に比べて核セキュリティリスクを大幅に低減できます。しかしながら、被覆燃料粒子の高燃焼度化のためには、核分裂反応に伴う余剰酸素に起因する内圧破損に対する健全性の確保が課題でした。

本研究では、余剰酸素の分圧上昇の抑制による Pu 燃



観 YSZ 模擬燃料核 ZrC被覆圏

図 6-6 被覆実験で得られた ZrC 被覆層の外観と断面 ZrC は同じ炭化物セラミックスであるSiC と異なり、金属的な 特性を併せ持ち、光沢のある外観をしています。断面の観察は、 被覆粒子をダイヤモンドで研磨して行います。

焼高温ガス炉用燃料の高燃焼度での安全性向上を目的として、酸素ゲッターの機能を持たせた炭化ジルコニウム (ZrC) を燃料核へ直接被覆する技術を開発しました。熱的特性に優れる ZrC を YSZ 模擬燃料核へ直接被覆するには、炭素 (C) とジルコニウム (Zr) の組成を定比 (C/Zr 比を 1) に制御することが重要です。そこで、原子力機構が開発した ZrC 被覆実験装置 (図 6-5) を用いて、定比 ZrC を被覆可能な臭化物化学蒸着法の被覆条件を調べました。

まず、これまで炭素層の存在下で最適化されていた定比 ZrC 被覆条件を修正する必要がありました。そこで、C 成分が欠乏しやすい ZrC の特性に着目し、C/Zr 比が 1 を超える方向に、温度分布等を修正する工夫を行いました。YSZ 模擬燃料核を用いて被覆試験を行った結果、燃焼度 600 GWd/t における余剰酸素の捕捉に必要な厚さ($10~\mu$ m)の約 2 倍(約 $21~\mu$ m)の定比 ZrC の直接被覆に成功しました(図 6-6)。

今後は、化学的特性が Pu に似たセリウム (Ce) を YSZ に固溶させた模擬燃料核を製造し、これを用いた ZrC 被覆試験を通じて燃料製造の基盤技術を確立する 計画です。

本研究は、文部科学省の原子力システム研究開発事業「プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュリティ強化型安全燃料開発」の助成を受けました。

●参考文献

Ueta, S. et al., Development of Security and Safety Fuel for Pu-Burner HTGR: Part 5 — Test and Characterization for ZrC Coating, Proceedings of the 25th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE 25), Shanghai, China, 2017, ICONE 25–67530, 4p.

6-4 受動的放射冷却を用いた高温ガス炉の冷却設備を開発 -事故時崩壊熱除去方法の概念成立に向けて-

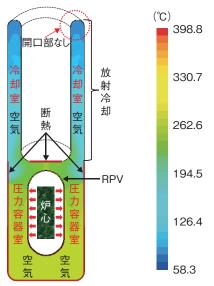


図6-7 解析モデル及び温度分布の解析結果

炉心を除き RPV も含めた構造物及び冷却設備の温度は、事故時の 2 1/4Cr-1Mo 鋼の制限温度 550 ℃を超えず、まだ約 151 ℃の裕度があります。今後は圧力容器室から除熱ができないような断熱境界条件を変更し、除熱できる熱流束の増倍を試みます。

東京電力福島第一原子力発電所の事故後、炉心溶融が生じない高温ガス炉への期待が高まっており、事故時に炉心から崩壊熱を間接的に除去できる受動的冷却設備の役割が重要となっています。既に原子力機構にある高温ガス炉(HTTR)は、原子炉圧力容器(RPV)から放出される熱を除去するため、ポンプ等による水の強制循環を用いた炉容器冷却設備を採用しています。しかし、電力の供給が遮断されるとポンプ等が駆動できず、除熱能力が著しく低下する可能性がありました。この場合においても、高温ガス炉では燃料破損は生じませんが、RPV温度が制限温度を超える可能性があります。そこで本研究では、動的機器及び非常用電源等を必要とせず、通常運転時の放熱を最小限にして、事故時の崩壊熱を受動的に除去できる方法を検討しました。また、スケールモデル(伝熱試験装置)による概念成立性評価の方法も検討しました。

現在、実用高温ガス炉において、受動的な大気の自然循環を用いた冷却設備が候補に挙がっています。しかし、バードストライクなどで大気吸入口が塞がれると、大気の自然循環に依存した冷却設備は、除熱能力が低下する可能性がありました。そこで、放射冷却をできるだけ用いた新たな冷却設備(格納容器)を提案しました。放射冷却できる冷却室の面の数を倍増させるために、内面、上面、外面を有するドーナツ形状を採用しました(図 6-7)。この形状は、各面を加工及びフィン等も追加できるので、熱交換面積をさらに増加できます。ここで、HTTRの運転時に RPV から放出される熱は、熱流束に換算すると $1.2 \sim 2.5 \ \mathrm{kW/m^2}$ ですが、今回は、実用高温ガス炉の $3 \ \mathrm{kW/m^2}$ の除熱を試みました。

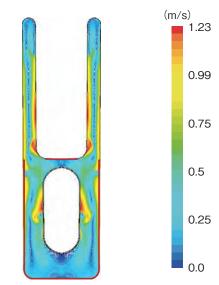


図 6-8 速度分布の解析結果

冷却設備内の空気の速度分布は最大約1.2 m/s で十分低いです。 つまり、ダクト(煙突)等による煙突(チムニー)効果を用い て自然対流を促進させる必要もないことが分かりました。

最初に、冷却設備の熱流動現象を解析的に詳細に評価しました。これにより大気の温度が 40 ℃の場合でも、炉心を除き RPV も含めた構造物及び冷却設備の温度は、事故時の 2 1/4Cr-1Mo 鋼の制限温度 550 ℃を超えず、受動的に除熱できることを明らかにしました(図 6-7)。本研究では最も厳しく温度を高めに見積もるよう、圧力容器室から除熱ができないような断熱境界条件を設定しました。今後は断熱境界条件を変更し、圧力容器室から地面等への放熱効果を考慮します。その際、RPV 周りのコンクリート、炭素鋼等の温度もできるだけ下げ、断熱材を必要としない伝熱経路を検討します。

一方、空気がよどまない曲線形状を採用した結果、冷却設備内の空気の速度分布は最大約1.2 m/s でした(図6-8)。 つまり、ダクト(煙突)等による煙突(チムニー)効果を用いて、自然対流を促進させる必要もないことが分かりました。反対に、自然対流を促進させると、除熱能力を高めることができます。

さらに、実機に対するスケールモデルの縮小率が \mathbf{x}^{-1} の場合、実機の輻射及び自然対流を同時に再現するため に必要な、スケールモデル内の空気の加圧量は $\mathbf{x}^{1.5}$ であることを明らかにしました。

以上のように、新たな事故時崩壊熱除去方法の概念を 提案し、その成立性を解析的に明示することができました。 本研究の成果を受けて、現在、九州大学との共同研究 として、スケールモデルを製作し、実験を実施中です。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究 (C) (No.15K06676)「受動的安全性を持つ原子炉圧力 容器の冷却設備」の助成を受けたものです。

●参考文献

Takamatsu, K. et al., New Reactor Cavity Cooling System (RCCS) with Passive Safety Features: A Comparative Methodology between a Real RCCS and a Scaled-Down Heat-Removal Test Facility, Annals of Nuclear Energy, vol.96, 2016, p.137-147.

6-5 高温ガス炉の中性子源交換作業の改良 - 交換プロセスにマッチさせた中性子源用輸送容器の小型化-

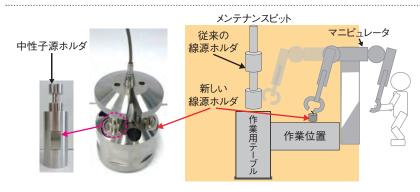


図 6-9 改善後の中性子源交換作業のイメージ 従来の輸送容器の線源ホルダ(直径 155 mm、 高さ 1285 mm)に対して、線源ホルダを小型化 (直径 75 mm、高さ 135 mm)したことにより、 マニピュレータ操作者近傍で取り扱えるように なり、中性子源ホルダを取り出した後に作業位 置に移動させる操作を省略できました。



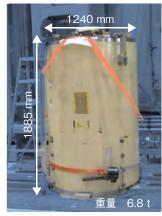






図 6-10 輸送容器

(a) の従来の輸送容器と比較して、(b) の新たな輸送容器は、寸法を約2/3、重量は1/3に小型化しました。また、従来の鉄板に固縛する方式から、鉄板にボルトで固定する構造にすることで、地震に対する安全性も向上しました。さらに、小型化により、建家内での移動作業を安全かつ容易に行えるようになりました。

高温ガス炉の実用化を目指すためには、原子力機構が有する我が国初の高温ガス炉である高温工学試験研究炉(HTTR)で保守管理に係る技術を蓄積し、継続的に改善して高度化することが重要です。

HTTRでは、運転時は原子炉の起動のため、また停止時は炉内に設置している広領域中性子検出器の健全性確認のため、中性子源を炉内に常時設置しています。

HTTRでは、中性子源としてカリホルニウム 252 を 図6-9 に示す中性子源ホルダ (直径 30 mm、高さ 100 mm) に装荷して取り扱います。中性子源の交換作業は、メンテナンスピット内で、マニピュレータによる遠隔操作で行います。中性子源は約7年を目途に交換しており、今後も定期的な交換が必要です。

中性子源交換作業の課題として、一つ目に中性子源が小さくマニピュレータによる取扱いが難しいこと、二つ目に輸送容器の構造により耐震安全性が不足していることが挙げられます。

そこで、これらの課題の解決策を検討し、以下の2点を提案しました。作業の安全性を高めるためにマニピュレータ操作者近傍で中性子源を取り扱えるようにすること、また、耐震安全性を高めるために輸送容器を小型化してボルトで固定する構造にすることです。

私たちは、この検討結果を基に新たな線源ホルダと 輸送容器を製作しました。

マニピュレータ操作者近傍で中性子源を取り扱えなかった原因は、図6-9に示すように、従来の線源ホルダが大きく、作業位置に引き込むことができないことです。このため、作業位置から離れた場所で中性子源ホルダを線源ホルダから取り出し、作業位置へ移動させる操作が必要でした。私たちは、線源ホルダを小型化することで作業位置に引き込むことを可能とし、目測の誤りやマニピュレータの誤操作等により中性子源ホルダを誤って落下させる可能性のある操作を省略することに成功しました。また、線源ホルダを小型化したことにより、図6-10(a)の従来の輸送容器と比較して、図6-10(b)のとおり新たな輸送容器の本体も小型化でき、ボルトで固定する構造とすることで耐震安全性を向上させることにも成功しました。

このように、過去の作業から課題を明確化し、その解決策を反映させた新たな輸送容器を完成させることで、中性子源交換作業の安全性を高める改良をしました。

今後も保守管理における継続的な改善に取り組むとともに、ノウハウを蓄積して高温ガス炉の実用化に貢献していきたいと考えています。

●参考文献

Shimazaki, Y. et al., Improvement of Neutron Startup Source Handling Work by Developing New Transportation Container for High-Temperature Engineering Test Reactor (HTTR), Journal of Nuclear Science and Technology, vol.54, issue 2, 2017, p.260-266.

6-6 IS 法の水素製造効率の向上に向けて

- 水素分離膜を用いた反応器でヨウ化水素分解を促進-

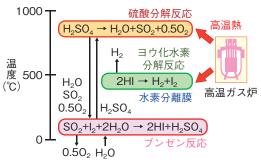


図 6-11 IS 法の反応構成

IS 法は HI、硫酸を製造するブンゼン反応工程、HI を 分解して水素を製造する HI 分解反応工程、硫酸を 分解して酸素を製造する硫酸分解反応工程で構成さ れます。

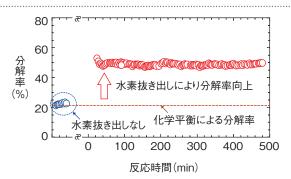
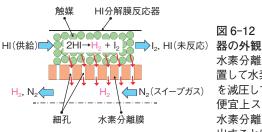


図 6-13 反応場からの水素抜き出しによる HI 分解率の向上 HI分解試験の結果を示したものです。水素を抜き出さない場合には、分解率は化学平衡の値に留まりますが(\bigcirc)、反応で生じた水素を抜き出す場合には、分解率を約50 %まで安定して向上させることができました(\bigcirc)。





分離膜を透過する水素の様子

図 6-12 水素分離膜と HI 分解膜反応 器の外観

水素分離膜の外側に HI 分解用触媒を配置して水素を生成し、水素分離膜の内側を減圧して(基盤研究段階の本実験では、便宜上スイープガス (N_2) を用いました)、水素分離膜の細孔を透過した水素を抜き出すことにより、分解率を向上させることができます。

高温ガス炉の熱利用技術として、熱化学水素製造 IS法の研究開発を行っています。IS法はヨウ素 (I) と硫黄 (S) を用いた化学反応で、水を分解して水素と酸素を製造します。原料に炭素を含まないことから、将来の CO_2 フリー水素製造技術の一つとして期待されています (図 6-11)。

水素を製造するヨウ化水素(HI)分解反応は400~500℃で行われますが、その分解率は化学平衡の制約から約20%に留まっています。したがって、生成する水素量の約5倍のHIをHI分解反応器などへ循環させる必要があり、このことがエネルギーロスやHI循環系の機器肥大化の要因となって、IS法の性能向上を図る上での課題の一つとなっていました。

HI分解反応は温度に対する依存性が低く、高温にしても分解率をあまり上げることはできません。しかし、反応の場から何らかの方法で水素を連続的に抜き出すことができれば、反応を促進して分解率を向上できますので、HI循環量を低減してエネルギーロスを減らし、水素製造効率を向上させることができます。そこで、水素分離膜を用いて反応過程で水素を除去できるHI分解膜反応器の基盤技術の開発を行いました。

水素分離膜の機能については、強酸・高温のHI環境で使用できるとともに、分解率を向上できるように高い水素とHIの分離比、分離膜面積を小さくできるように高い水素透過率の両立が必要です。水素透過率の観点からは分離膜の細孔径を大きくすることが必要であり、一

方、細孔径が大きくなるとHIも透過しやすくなって分離比が低下します。よって、細孔径の調整が分離膜開発の重要なポイントです。そこで、耐酸性、耐熱性に優れたセラミックス水素分離膜の開発において、多孔質のアルミナ基材へ蒸着させるシリカ膜の成膜用原料溶液成分、蒸着温度などを調整して細孔径を制御し、短尺のシリカ膜(分離膜有効長30 mm)ではほぼ目標の分離比と水素透過率を両立させています。

この水素分離膜を HI分解膜反応器(図 6-12)に組み込み、分離膜内側の水素分圧を下げることで、分離膜を透過させて水素を抜き出すHI分解の試験を行いました(図 6-13)。反応場から水素が抜き出されない場合、化学平衡の分解率に留まっていますが、水素が抜き出された場合、分解率は約50%へ向上できており、HI分解膜反応器の基盤技術を開発できました。試算によると、この技術の実用化により3%程度の水素製造効率の向上が期待できます。IS法の水素製造効率は40%程度の見通しを得ており、本技術開発は、これを将来的に50%まで高めるための重要な成果と位置づけています。HI分解膜反応器の実用化を目指して、今後、水素分離膜の長尺化などの研究開発を進めていく計画です。

本研究は、内閣府総合科学技術・イノベーション会議の戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)「エネルギーキャリア」の委託研究課題「熱利用水素製造」で実施されました。

●参考文献

Myagmarjav, O. et al., Hydrogen Production Tests by Hydrogen Iodide Decomposition Membrane Reactor Equipped with Silica-Based Ceramics Membrane, International Journal of Hydrogen Energy, vol.42, issue 49, 2017, p.29091-29100.

6-7 IS 法による水素製造における金属材料の適用性評価 - 実環境(ヨウ化水素ガス分解環境)におけるニッケル基合金の耐食性 -

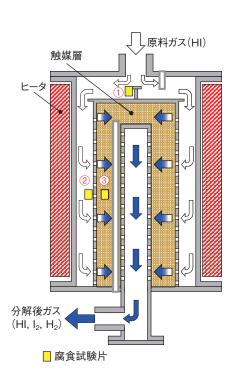


図 6-14 ヨウ化水素ガス分解環境における材料腐食試験 装置上部から流入した HI ガスは、触媒層内で生じる化学反応で 分解され、 I_2 、 H_2 及び未分解 HI となり流出します。HI ガス分 解環境は、① HI ガス導入部、②触媒層上流、③触媒層内から 成り、それぞれに腐食試験片を暴露しました。

高温ガス炉の熱利用技術の一つである熱化学水素製造 IS 法では、腐食性の高いヨウ化水素(HI)、ヨウ素(I₂)などを高温で取り扱うため、機器に用いる材料には高い耐食性が求められます。セラミックスやガラスなどの無機材料はこれら環境の多くで耐食性を有することが知られていますが、将来の実用化に向けたスケールアップの観点から、機器材料には可能な限り、産業での使用実績に富む金属材料の適用が望ましいと考えられます。

HI 分解反応においては、従来の知見から、ニッケル基合金が水分共存下の HI ガス環境に耐性を有することが分かっています。一方、水分が共存しない純 HI ガスを高温環境(500 $^{\circ}$ C)で触媒を用いて I_2 と I_2 に分解する実反応環境に対する耐食性は不明です。特に I_2 は金属ヨウ化物を生成しやすく腐食が一層進む可能性があります。そこで私たちは、ニッケル基合金の一種であるハステロイ $^{\circ}$ C-276(HC-276)を実反応環境に暴露して耐食性を調べ、その適用性を評価しました。

材料腐食試験(図 6-14)では、実反応環境中に腐食 試験片を設置し、暴露前後の試験片の重量変化から腐食 速度を求めました。従来の知見から、水分共存下の暴

5-1-F	=1:FA	腐食試験後		
試験片材質	試験前	1)	2	3
HC-276	• 327 H			9
SUS316	. 55 50	Care E	1 3	

図 6-15 腐食試験片の外観

腐食試験後、①では部分的に母材の金属を残しており、腐食の程度が軽いことが分かります。②及び③では均一に荒れた表面状態を呈しており、全面腐食の進行が確認されました。いずれも、SUS316に比べ HC-276 は滑らかな表面状態を示します。

表 6-3 試験片の腐食速度

試験片を HI ガス分解環境に延べ 100 時間暴露し、試験前後の重量変化から腐食速度を評価しました。HC-276 は、本環境中で使用に耐える範囲の耐食性を示しました。

試験片材質	位置	温度(℃)	ガス組成	腐食速度(mm/y)
	1	110	HI	0.01
HC-276	2	500	HI	0.52
	3	500	HI+I ₂ +H ₂	0.75
SUS316	1	110	HI	0.37
	2	500	HI	6.53
	3	500	HI+I ₂ +H ₂	5.76

露条件では腐食速度が放物線則に従うため、本試験では暴露時間を保守的に100時間としました。試験片はHC-276に加え、参照材料として汎用耐食金属として知られるステンレス鋼(SUS316)を用いました。試験片は、温度及びガス組成が異なる三つの位置(①HIガス導入部、②触媒層上流、③触媒層内、図6-14及び表6-3)に設置し、結果を比較しました。

暴露後の試験片の外観(図 6-15)から、いずれの試験 片も均一に腐食しており、全面腐食が進行したと考えられます。腐食速度(表 6-3)は、低温の位置①ではいずれも低い値ですが、高温の位置②③では、SUS316が約 6 mm/y と使用に耐えないほど激しく腐食しました。一方、HC-276 のそれは、触媒層前後で腐食速度が増加し、 I_2 による腐食の進行が示唆されるものの、最大で0.75 mm/y と使用に耐えることを明らかにしました。

今後は、より長時間の暴露試験により腐食速度の変化を調べるとともに、予備酸化処理や HI 分解環境への水分添加を用いた、材料表面への保護酸化膜形成による HC-276 の耐食性向上に取り組んでいく予定です。

●参考文献

Kamiji, Y. et al., Corrosion Resistance of Nickel-Based Alloy to Gaseous Hydrogen Iodide Decomposition Environment in Thermochemical Water-Splitting Iodine-Sulfur Process, Proceedings of 5th International Conference on Chemical and Biological Sciences (ICCBS 2018), Bucharest, Romania, 2018, p.51-54, in USB Flash Drive.

高速炉研究開発

高速炉サイクル技術に関する研究開発

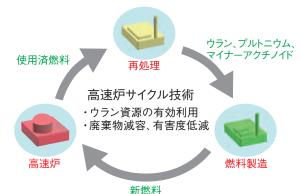


図 7-1 高速炉サイクル技術

高速炉サイクル技術は、高速炉で発電しながら燃料を燃やし、 使用済燃料を再処理して抽出されるウラン、プルトニウム等 をリサイクルして再び高速炉で燃やす原子力システムです。

高速炉サイクル技術は、原子力を長期にわたって用いる上で必要となるウラン資源の利用効率を飛躍的に高める可能性を有しており(図 7-1)、これを社会に受け入れられる技術とすることが目標です。東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故のように、放射性物質を大量に放出する原子力災害のリスクを極限まで低減できる高速炉サイクル技術を目指し、自然災害なども含め、シビアアクシデントに至る要因を幅広く想定してその発生防止と影響緩和を強化した設計とすることで、安全性を強化した概念を創出します。

●プラント過渡熱流動ナトリウム試験開始

「冷やす」性能をより確実なものにするため、ポンプなどの動力機器に頼らない方法で、事故時に炉心を冷却する技術を開発しています。大洗のプラント過渡熱流動ナトリウム試験装置(PLANDTL)(図 7-2)ではナトリウム冷却高速炉の炉心を模擬した試験体(図 7-3)を用いて、自然循環で炉心を冷却する試験を開始しました。ここで得られた成果により、非常用の電源が完全に失われた条件でも、確実に炉心を冷やすことができるようになり、ナトリウム冷却炉の安全性向上に貢献します。



図 7-2 プラント過渡熱流動ナトリウム試験装置 「冷やす」技術をより確実にするため、緊急時に炉心を冷やすための装置の試験を開始しました。

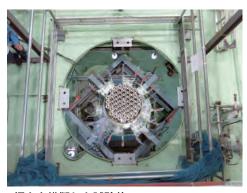


図 7-3 炉心を模擬した試験体 電気ヒータを組み込んだ模擬炉心を、ナトリウムの自然循環 で冷やす試験を行います。

●各分野の研究開発成果紹介

高速炉でも安全性を確保するための方策は軽水炉と同じです。もし事故が発生しても原子炉を「止める」「冷やす」放射性物質を「閉じ込める」を徹底することにより、1Fのような過酷事故を防止すること、原子炉の性質をしっかり把握し、故障・トラブルを防止するために保全をしっかり行うことが目標です。

高速炉の安全性に関して、私たちは世界各国と協力して世界標準となる安全性の要件と、それを実現するための設計ガイドの作成を進めています(トピックス 7-1)。これにより、世界中のナトリウム冷却高速炉の安全性を向上することが目標です。

原子炉の性質を把握するための研究として、プルトニウムとウランを混合した酸化物燃料の性質を測り、原子炉中でのふるまいを予測するための研究を進めています(トピックス 7-2 ~ 7-4)。これら成果により、原子炉の安全性や性能を予測する精度が向上します。

故障・トラブルを防止するための保全技術の開発も行っています。系統・機器の安全に対する重要度を科学的に考慮した、保全のためのプログラムを構築する研究を行っています(トピックス 7-5)。この研究により、安全を確保した上で合理的な検査が可能となります。この成果はアメリカ原子力学会の基準として認められ、世界の高速炉の安全性向上に貢献しています。また、冷却系機器の一つである蒸気発生器について、保全のための伝熱管検査技術の開発も行っています(トピックス 7-6)。この技術により、伝熱管のより微小な欠陥を検出できるようになり、事故・故障を未然に防止することが期待されます。

「閉じ込める」を徹底するための研究として、事故時にナトリウムが建物のコンクリートと接触した場合の現象を評価する研究を進めています(トピックス 7-7)。この成果によりナトリウムとコンクリートの化学反応の影響を正確に評価できるようになり、「閉じ込める」性能をより確実なものにできます。

7-1 次世代ナトリウム冷却高速炉の安全設計ガイドライン -世界の最新高速炉開発プロジェクトへの展開を目指して-

表 7-1 各国の最新 SFR

日本、フランスは、これまでの開発経験から増殖技術は習得済みであり、使用済燃料や放射性廃棄物対策を主な狙いとしています。一方、ロシア、インド、中国では、エネルギーセキュリティの観点から高増殖を指向しており、早期の本格導入を目指して開発が進められています。

国名	名称	電気出力 (MWe)	位置づけ
日本	次世代 SFR	750	実証炉
フランス	ASTRID	100 ~ 200	実証炉
ロシア	BN-1200	1220	商用炉
インド	CFBR	600	商用炉
中国	CFR1000	1000	商用炉

第4世代原子力システム国際フォーラム (GIF) では、次世代のナトリウム冷却高速炉 (SFR) の国際標準となる「安全設計クライテリア (SDC)」と、これを具体的に設計に展開するための推奨事項を示す「安全設計ガイドライン (SDG)」の整備を進めています。私たちは、これまでに「常陽」「もんじゅ」の設計・建設・運転、実用化研究開発によって蓄積された SFR の安全設計技術に基づいて、これらのドキュメントの整備の中核を担って活動を続けています。これらのドキュメントは、GIF や国際原子力機関(IAEA)の活動を通じて世界に発信され、各国の最新の SFR 安全設計に浸透してきています。また、GIF を通じて各国の規制機関や国際機関にも送付され、フィードバックを得ながら改定を行っています。

世界各国で開発が進められている最新 SFR の代表例を表 7-1 に示します。最新 SFR の安全設計では、SFR の特徴に応じた設計対策が講じられており、特に、シビアアクシデントの防止と緩和に関して、SDC/SDG に沿った設計対策が導入されています。

具体的には、SDC/SDGでは炉心損傷防止について受動的な反応度低減機能または固有の反応度フィードバック特性を活用した出力低減機能を備え炉心損傷を回避して原子炉停止できること、格納機能確保について炉心損傷を想定しても原子炉冷却材バウンダリの破損を防止すること、つまり、図7-4(a)で示されるように、原子炉容器内での事故終息(IVR)の達成を推奨しています。各国の最新 SFR では、いくつかの設計選択があるものの、受動的方策の導入あるいは強化が検討されており、フランスの ASTRID では流体圧浮遊式制御棒及び

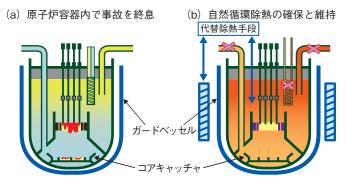


図 7-4 SDC/SDG におけるシビアアクシデントの防止と緩和に関する設計対策のイメージ

(a) 万が一、原子炉停止に失敗し、炉心損傷に至った場合にも原子炉容器内で損傷炉心を保持し冷却できるようにする対策です。 (b) 自然循環除熱機能を有する崩壊熱除去系に加えて、多様性のある代替除熱手段を取り入れて、炉心をナトリウムから露出させることなく除熱を確保する対策です。

キュリー点電磁石方式の自己作動型炉停止機構が検討されており、ロシアの BN-1200 やインドの CFBR でも類似の概念が検討されています。また各国の最新 SFR では、炉内コアキャッチャの設置等が検討されており、炉心損傷時の IVR 達成を目指しています。

原子炉停止後の崩壊熱除去については、SFR では高 沸点のナトリウムを冷却材として用いていることから、 冷却材沸騰までの温度上昇余裕が大きく炉心損傷に至る までの時間余裕が大きい、自然循環能力が高い、静的機 器による液位維持が可能といった特長があります。この ような特長を踏まえて、SDC/SDGでは、原子炉容器 とガードベッセルの信頼性を確保して原子炉容器内ナト リウム液位を維持すること、崩壊熱除去系の機能強化や 独立性の高い代替手段により冷却性を維持することに よって、崩壊熱除去機能の喪失を実質的に回避すること を推奨しています。各国の最新 SFR では、図 7-4(b) に示されるように、1次冷却材系全域をカバーするガー ドベッセルの設置、多様性に配慮した崩壊熱除去系構成、 自然循環能力の取り込み等によって防止対策の信頼性向 上を図って、崩壊熱除去に必要なナトリウム液位の喪失 と炉停止後の崩壊熱除去設備の機能喪失に起因する炉心 損傷の防止を目指しています。

このように、SDC/SDG に沿って安全対策の強化を 図る方向で各国の最新 SFR の安全設計が進められてい ます。今後も私たちは、これまでの高速炉開発経験を最 大限に活用して、高速炉の安全設計を世界の最新高速炉 開発プロジェクトへ展開することを目指していきます。

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁の「平成 28 年度高速炉国際協力等技術開発」の成果の一部です。

●参考文献

Kubo, S. et al., Study on Safety Design Concept for Future Sodium-Cooled Fast Reactors in Japan, Proceedings of International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Next Generation Nuclear Systems for Sustainable Development (FR17), Yekaterinburg, Russia, 2017, IAEA-CN245-164, 10p., in USB Flash Drive.

7-2 MOX 燃料の機械的性質を評価する

一超音波法により測定した MOX 燃料中の音速データに基づくヤング率の評価

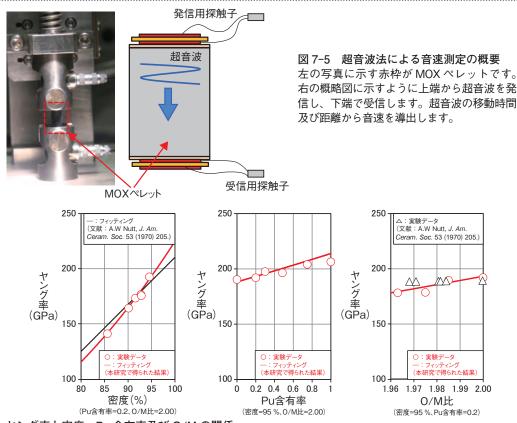


図 7-6 ヤング率と密度、Pu 含有率及び O/M の関係 音速測定結果からヤング率を評価することが可能です。密度、Pu 含有率、O/M 比をパラメータとした音速測定結果から、 ヤング率に対するこれらの影響を評価しました。

照射中の燃料ピンの健全性を確保するためには、燃料 と被覆管との機械的な相互作用(FCMI)による被覆管の 破損を防止する必要があります。この FCMI の挙動を評 価する上で、ウラン・プルトニウム混合酸化物(MOX)燃 料のヤング率等の機械的性質は重要な物性です。ヤング 率は MOX 燃料の密度やプルトニウム(Pu) 含有率の影響 を受けることが知られています。また、MOX 燃料中の酸素 (O)と金属(U及びPu)の原子数比(O/M比)の影響も受 けることが予想されます。しかしながら、これらの影響を総 括的に評価し、定式化した例はこれまでありませんでした。

そこで私たちは、密度、Pu含有率及びO/M比をパ ラメータとして様々な MOX ペレットを作製し、超音波 法により MOX ペレット中を伝播する音速を測定しま した。超音波法による試験の概要を図7-5に示します。 超音波法では、超音波の発信用探触子と受信用探触子に よって超音波が伝播する時間を測定します。超音波が伝 播する時間と距離が分かれば、その速度が分かります。 得られた音速のデータから、ヤング率等の機械的性質を 導出することができます。

このようにしてヤング率を評価した結果(図7-6)、 密度が低くなるとヤング率が大幅に低下することが分か

りました。このヤング率の低下は、MOX ペレット内に 気孔が増加し、力を受ける有効断面積が減少して強度が 低下したためと考えられます。

Pu 含有率の影響については、Pu 含有率が大きくな るとヤング率は上昇することが分かりました。これま での研究から、Pu含有率が大きくなると原子間距離が 短くなることが分かっています。これは原子間の結合力 が強くなっているためと考えられ、ヤング率の上昇は原 子間の結合力の増加によるものと考えられます。また、 O/M 比が低くなるとヤング率は低下する結果が得られ ましたが、これも同様に原子間の結合力の低下によるも のと考えられます。

今回取得したデータから、密度、Pu 含有率及び O/M 比をパラメータとしてヤング率等の機械特性を計算する 式を導出しました。これにより、正確な物性値を用いて FCMI を評価することが可能となり、MOX 燃料の設計 技術に貢献することができました。

今後は、今回取得した機械的性質に加えて、熱伝導 率等の様々な性質を合わせて解析することで、MOX 燃 料の物性を統合的かつ機構論的に評価したいと考えてい ます。

●参老文献

Hirooka, S. et al., Sound Speeds in and Mechanical Properties of (U,Pu)O_{2-x}, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.55, issue 3, 2018, p.356-362.

7-3 高速炉燃料ピン中のセシウムのふるまいを評価する

-高速炉 MOX 燃料ピン照射挙動解析手法の開発-

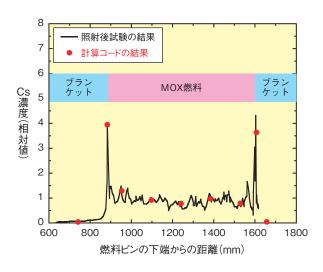


図 7-7 燃料ピンの Cs 濃度の軸方向分布

照射後の Cs 濃度の軸方向分布では、MOX 燃料とブランケットとの上下境界部で、Cs 濃度が局所的に高くなっています。過去の知見を基に、燃料ペレット内では Cs が熱拡散し、隣接する燃料ペレット間では Cs が蒸発・凝縮することにより、Cs が燃料ピン内を移動するモデルを開発しました。このモデルを燃料ピン照射挙動計算コード(CEDAR)に組み込み、Cs 濃度の軸方向分布を解析した結果、試験結果を再現できました。

高速炉の混合酸化物(MOX)燃料ピンでは、燃焼が進むに伴い核分裂生成物(FP)のセシウム(Cs)が温度の低い部分に向かって移動し、他のFPと化合物を形成することにより、燃料ペレットの温度や被覆管の寸法に影響を及ぼすことがあります。このような Cs のふるまいを予測するため、Cs のふるまいを解析するモデルを開発し、照射中の燃料ピンに生じる温度変化や被覆管に加わる荷重と変形を予測する計算コード(CEDAR)に組み込みました。これにより、照射中の燃料ピンに生じた Cs のふるまいとともに、それが燃料ピンに及ぼす影響を予測できるようになりました。

Cs のふるまいのうち、燃料ピン内の移動については、過去の研究結果から、Cs の熱拡散と蒸発・凝縮のプロセスで移動するモデルを開発し、CEDAR による燃料ペレットの温度分布を基に、Cs が燃料ピン内を径方向や軸方向に移動する現象を解析できるようにしました。フランスの高速原型炉"Phenix"で高燃焼度まで照射した燃料ピンの Cs 濃度分布を解析した結果を図 7-7 に示します。照射中に Cs が燃料ピン内を移動して MOX 燃料ペレット部の上下端に蓄積し、Cs 濃度が局所的に高くなった状況を解析で再現することができました。

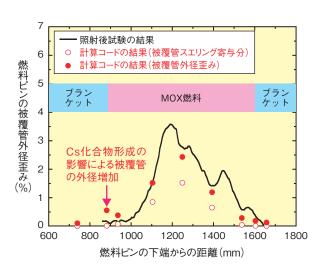


図 7-8 燃料ピンの被覆管外径歪みの軸方向分布 照射後の被覆管の外径増加は、MOX 燃料部における被覆管のス エリングが支配的になっています。Cs が蓄積した MOX 燃料部 の上下端部では外径増加はほとんど認められません。CEDAR の 解析では、MOX 燃料部の下端部に Cs-U-O 系の酸化物が形成し、 ブランケットペレットが膨張して被覆管に荷重が加わりました

が、被覆管の外径寸法への影響は小さくなっています。

Cs の化合物については、酸素(O)やウラン(U)、モリブデン(Mo)などのFPとの化学平衡計算を行い、様々な化合物の形成状態を予測するモデルを開発しました。このモデルもCEDARの燃料温度や酸素量を反映してCs 化合物の形成状態を解析します。

高燃焼度燃料ピンの解析では、Cs 化合物は Cs-Mo-O 系と Cs-U-O 系の化合物がほとんどを占める結果になりました。前者の化合物は燃料ペレットと被覆管との隙間に堆積することで、燃料ペレットの温度を下げる効果があると考えられています。解析では、この化合物は MOX 燃料ペレット部の軸方向全域にわたって形成し、実際の形成状態と整合しました。後者の化合物は Csの蓄積部で主に形成しますが、その密度が燃料よりも低いため、膨張により燃料ペレットと被覆管が接触する原因になることがあります。解析では、Cs-U-O 系酸化物が MOX 燃料ペレット部の下端に蓄積することにより、被覆管と燃料ペレットが接触し、被覆管に荷重が加わりましたが、被覆管の外径寸法への影響は小さく、図 7-8に示すように、被覆管の外径歪みの測定結果を適切に再現することができました。

●参考文献

Uwaba, T. et al., Coupled Computer Code Study on Irradiation Performance of a Fast Reactor Mixed Oxide Fuel Element with an Emphasis on the Fission Product Cesium Behavior, Nuclear Engineering and Design, vol.331, 2018, p.186-193.

7-4 安全のため高速炉燃料の運転中のふるまいを把握

-燃料中の酸素割合による燃料形状・最高温度への影響-

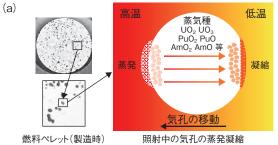


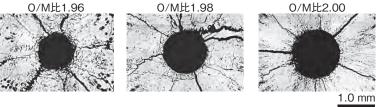
図 7-9 中心空孔形成のメカニズム (a) 製造時に存在する燃料ペレットの気孔は、原子炉で照射されると高温側から UO_3 等が蒸発し、低温側に凝縮します。 (b) これを繰り返すことで、気孔が燃料中心部に移動し、中心空孔を形成します。

高速炉燃料は安全確保のため、原子炉の運転中、燃料溶融を防止するよう、最高温度を融点以下に設計することが求められます。酸化物燃料(MOX 燃料)の温度評価においては、燃料中の酸素(O)と金属(ウラン: U、プルトニウム: Pu等)の原子数比(O/M 比)が、燃料の物性・照射挙動を通じて大きな影響を与えることが知られています。また、私たちは、高レベル放射性廃棄物の減容・有害度低減に向け、マイナーアクチノイド(MA)を含有した燃料の開発も実施しており、MA 含有燃料への影響の把握も重要です。そこで、高速実験炉「常陽」で O/M 比をパラメータとした MA 含有燃料の短時間照射試験を行い、温度評価の予測精度の向上に資するため O/M 比の影響の把握を行いました。

燃料温度に大きく影響する照射挙動として、照射開始直後の中心空孔形成による燃料形状や密度の変化挙動が重要です。これは、図 7-9 に示すように、製造時に燃料ペレット中に含まれた気孔が、内面の燃料物質 (UO₃等)が高温側で蒸発→低温側で凝縮を繰り返し、燃料中心部に移動・集中し形成されるもので、中心空孔が大きいほど伝熱距離が短縮するとともに密度も増加するので、燃料中心温度を大きく低下させる効果があります。

今回の照射試験では、図 7-10 に示すように、中心空 孔径の O/M 比の依存性が見られました。この図に示す ように、O/M 比 2.00 の試料は 1.96、1.98 のものと比べ

(a) O/M比の違いによる中心空孔径に違い(Pu含有率:約31wt%、Am含有率:約2.4wt%)



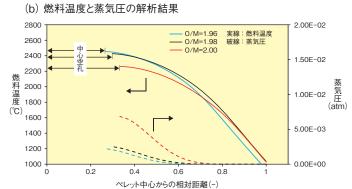


図 7-10 O/M 比による中心空孔径の違いと解析結果 (a) O/M 比 2.00 の試料は、O/M 比 1.96、1.98 よりも中心空孔径が大きくなっていました。(b) 解析の結果、O/M 比 2.00 の試料は、O/M 比 1.96、1.98 よりも燃料中心温度が 200 ℃程度低くなっていましたが、蒸気圧が高いことが分かりました。

て、中心空孔径が大きい結果でした。一般的に O/M 比が 2.00 に近い方が熱伝導度は大きく温度は低下するため、中心空孔径は小さくなると考えられますが、今回得られた結果は、逆の傾向でした。O/M 比が 2.00 近傍では、酸素ポテンシャルが高くなることが知られています。酸素ポテンシャルの増加は、蒸気圧を高めるため、私たちは、この現象が、O/M 比による燃料の蒸気圧の違いによると考え、最新の知見に基づき O/M 比と蒸気圧の関係を整備し、新たな気孔移動モデルを構築しました。また、アメリシウム (Am) など MA の添加も蒸気圧に影響を与えるため、気孔中の蒸気種として MA も取り入れました。このモデルによる評価の結果、図 7-10 のとおり、O/M 比 2.00 の試料は 1.96、1.98 よりも燃料中心温度が 200 ℃程度低く評価されましたが、蒸気圧は高く、その結果として、中心空孔が大きくなることを適切に模擬できることが分かりました。

このように、O/M 比による蒸気圧への影響を取り入れることで、照射初期の燃料形状変化を適切に模擬でき、燃料温度の予測精度を向上できました。MA 含有燃料の照射実績は国内外で少なく、今回、MA を考慮した気孔移動モデルを照射試験で確認できたことは貴重な成果です。MA 含有燃料の照射挙動の把握に向けて、今後、長期間の定常照射を含む各種照射試験を実施することが期待されており、今回の成果は照射挙動の予測、安全確保に大いに貢献するものです。

●参考文献

Ikusawa, Y. et al., Oxide-Metal Ratio Dependence of Central Void Formation of Mixed Oxide Fuel Irradiated in Fast Reactors, Nuclear Technology, vol.199, issue 1, 2017, p.83-95.

7-5 高速炉の性能維持のためにどんな検査が必要か - 高速炉に適した供用期間中検査の設定手法の開発と規格化-

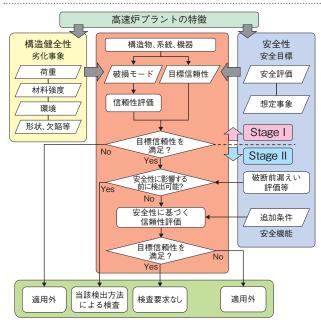


図 7-11 供用期間中検査の設定フロー 機器の信頼性及び発電所の安全性に着目した 2 段階の評価を行い、高速炉に適した検査内容を設定します。

国内の原子力発電所では、日本機械学会(JSME)が 策定する維持規格に基づき供用期間中検査が実施され、 運転中に必要な性能が維持されています。しかし、この 規格の対象は軽水炉のみであり、高速炉で実施すべき供 用期間中検査を定めた維持規格はありませんでした。海 外に目を向けても、米国機械学会(ASME)に、高速炉 への適用を想定した液体金属炉用維持規格があるものの、 未完のまま 30 年以上改定されておらず、使用不可能な状 態でした。維持規格は、運転中の性能維持のためにはも ちろん、設計開発段階においても、検査のためのアクセス 性等を考慮した設計を実現するために非常に重要です。

そこで私たちは、高速炉に適した供用期間中検査の 設定手法を、システム化規格概念に基づき開発すること にしました。ここで、システム化規格概念とは、まず、 信頼性(破損しない確率)に対する目標値(目標信頼性) を定め、次にそれを達成するために必要な設計や維持に 対する要求を規定することにより、機器の信頼性を合理 的に確保することを目指した我が国発案の概念です。

図 7-11 に、提案した供用期間中検査の設定フローを示します。Stage Iと II の 2 段階から構成されます。Stage I では、機器の信頼性に着目します。材料や使用環境等の条件から、機器にどんな劣化が懸念されるかを考え、信頼性を評価します。信頼性が目標値を満足する場合、Stage II に進みます。Stage II では、プラントの安全性に着目します。亀裂等を安全性に影響が生じる前に検出可能か評価し、可能な場合、その検出方法を供

既存炉・革新炉共通の維持規格として展開

ASME Code Case N-875

●原子力機構が開発主導
●プラントの特徴を考慮して
柔軟に検査方法を設定可能な画期的な維持規格

速炉

ASMEとJSMEで共同タスク

ナトリウム冷却型高速炉

ASMEとJSMEで共同タスク グループを設置し、規格化を検討

●維持規格整備のニーズを抽出●設計、検査技術等に関する知見を収集

図 7-12 提案手法の国際標準化プロセス

原子力機構の知見や成果に基づき提案した供用期間中検査の設定手法は、世界的な規格策定団体である ASME で規格化されるとともに、現在、炉型を問わず適用可能な基本コンセプトとして、他の炉型への展開が図られています。

用期間中検査に採用します。検出が不可能な場合には、 十分に保守的な追加条件を課した上で、信頼性評価を再 度実施し、信頼性が目標値を満足すれば、供用期間中検 査の要求を不要とします。このように私たちの設定フ ローでは、機器の安全上の重要性や、材料や環境、検査 性等を考慮して、高速炉に適した供用期間中検査を設定 することができます。

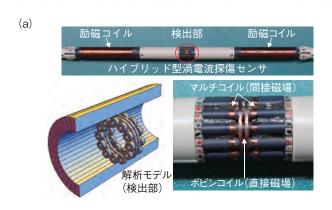
提案フローに基づき、高速増殖原型炉「もんじゅ」のガードベッセルと炉心支持構造物を例題にして、供用期間中検査の内容を検討しました。Stage Iでは、懸念される劣化事象として、ガードベッセルについてはクリープ疲労、炉心支持構造物については疲労を抽出し、信頼性評価の結果、目標信頼性を満足することを確認しました。Stage II では、いずれの機器も検査が困難なことから、板の厚みの10%という深い亀裂が全周にわたって存在するという非常に保守的な追加条件での信頼性評価を実施し、目標信頼性を上回ることを確認しました。以上の検討から、ガードベッセルと炉心支持構造物については、目標信頼性に対して十分信頼性が高く、供用期間中検査の要求は不要と判定しました。

本研究を含む高速炉に適した供用期間中検査の設定 手法の開発に係る成果は、ASMEでの液体金属炉用維 持規格の検討に用いられ、2017年7月に、高速炉主要 機器の供用期間中検査を定めた Code Case N-875とし て規格化されました。現在、さらに他の炉型への展開が 図られています(図 7-12)。

●参考文献

Takaya, S. et al., Determination of In-Service Inspection Requirements for Fast Reactor Components Using System Based Code Concept, Nuclear Engineering and Design, vol.305, 2016, p.270-276.

7-6 ナトリウム冷却高速炉の伝熱管検査技術の高度化を目指して 一微小欠陥検出のためのハイブリッド型渦電流探傷センサの開発ー



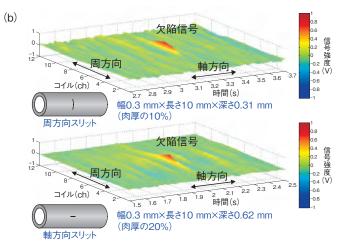
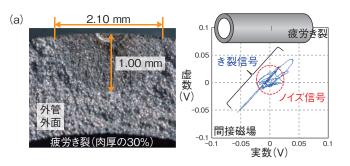
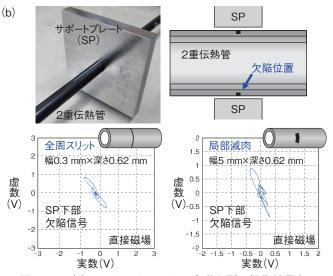


図 7-13 (a) 開発したハイブリッド型渦電流探傷センサと (b) マルチコイルによる人工欠陥(周・軸方向スリット) の探傷結果

ナトリウム冷却高速炉の蒸気発生器で採用を計画し ている伝熱管を対象に、微小欠陥や伝熱管サポート下 部の欠陥を検出できる直接磁場と間接磁場を組み合わせ たハイブリッド型渦電流探傷センサの開発を行ってい ます。伝熱管は、強磁性かつ小口径(外径 ø19 mm、内 径 ø12 mm 程度)のため、軽水炉や原型炉と比べ検査が 難しくなります。また、欠陥の大きさや深さを評価する とともに欠陥の進展予測が可能な精度の高い検査技術が 求められます。そこで、微小欠陥の検出に優れ、サイジ ングに必要な高い分解能を有する小さなコイルをアレイ 状に複数並べたマルチコイルセンサの開発に着手しまし た。伝熱管外面まで渦電流を多く流し、欠陥による渦電 流の変化を高感度に受信できるコイル配置や形状を解 析と実験で追及しました。図 7-13 は、開発したセンサ と伝熱管の外面に付与した放電加工欠陥(周スリット幅 0.3 mm、長さ 10 mm、深さ 0.3 mm (肉厚の 10%)) の 探傷結果です。欠陥の位置や形状などが視覚的に把握で きるようになりました。次に、より欠陥の開口部の狭い 疲労き裂の検出を目標に、コイル形状の最適化とともに ボビンを樹脂材から磁性材に変更するなどの改良を行





(a) マルチコイルによる疲労き裂の探傷結果と 図 7-14 (b) ボビンコイルによるサポートプレート下部の探傷結果 グラフ軸は、 $X = \sin(\omega t)$ 、 $Y = \sin(\omega t + 90^{\circ})$ を意味します。

い、深さ1 mm の疲労き裂(幅10 μm 以下)の検出に 成功しました(図7-14(a))。

さらに、従来は二つのセンサ(直接磁場と間接磁場) を使って欠陥の位置や大きさを評価していましたが、セ ンサの検出位置が異なりそれぞれの挙動も違うため、困 難でした。このため、二つのセンサを一つに集約させる ことができないか検討しました。そこで電気的な切替方 式ではなく、シンプルにかつ連続的に両方の磁場を同時 に利用できるように、抵抗を計測系の回路内に入れて、 それぞれの検出信号を探傷器に上手く流す方法を考えま した。これにより一つのセンサで直接磁場と間接磁場の 同時利用が可能となりました。この方法を用いてボビン コイルによるサポート(強磁性)下部の管外面欠陥の探傷 結果は、間接磁場の場合、欠陥信号はサポートの影響を 受けてしまいますが、直接磁場を利用すると、サポート の影響を受けずに欠陥を明瞭に検出することができまし た (図 7-14(b))。

今後は、検査期間の短縮を目的に、ナトリウムをド レンしない環境での検査の実現を目指す予定です。

●参考文献

Yamaguchi, T. et al., Development of a Hybrid ECT Sensor for JSFR SG Double-Wall Tubes, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.54, issue 11, 2017, p.1201-1214.

7-7 高速炉過酷事故時の化学反応挙動を評価する - コンクリートとナトリウムの化学反応ダイナミクスー

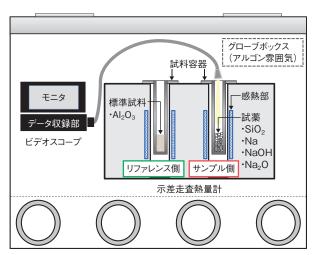
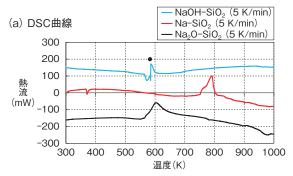


図 7-15 実験装置及び実験状況

ナトリウムーコンクリート反応時に想定される各反応の速度がど の程度速いかを把握するため、昇温速度を変えた熱分析を実施 しました。反応中の試料表面をビデオスコープで観察できます。

ナトリウム冷却高速炉では、冷却材であるナトリウム (Na) が漏えいした場合の対策として、化学的に活性な Na と構造コンクリートが直接接触することによる化学反応を 防止するために、鋼製のライナを設けています。しかし、ライナが破損するような過酷な事故を想定した場合、Na-コンクリート反応が発生することが懸念されます。この反応は、発熱反応であり、コンクリートを浸食するとともに 可燃性ガスである水素が発生することから、これらの化学反応挙動を評価することが重要になっています。

このため、これまでに国内外で様々な実験研究が行わ れ、本反応に関するデータが取得されてきましたが、複雑 な現象であることから十分に反応機構を解明するには 至っていません。そのため、化学反応動力学的観点から 支配的な化学反応を特定し、機構論的に評価できる手法 を構築しています。そこで、反応挙動の基礎的な情報を得 るために構造コンクリートの主成分の一つであるシリカ (SiO₂) と Na の反応を対象とした熱分析を実施し、得ら れたデータより速度論的挙動を評価しました。熱分析では、 化学的に活性な Na を扱うため、アルゴン雰囲気のグロー ブボックスに設置した示差走査熱量計(DSC)装置を使 用しました(図7-15)。サンプルとして、Na 若しくは 副次的な反応で生成する水酸化ナトリウム(NaOH)や 酸化ナトリウム(Na₂O)と SiO₂ とを混合させたもの を用い、昇温速度 3~10 K/min で最大 1073 K まで加 熱しました。図 7-16(a)は、SiO₂と Na 若しくは Na 化合物との反応に対する DSC 曲線の比較を示したもの です。この結果から、NaOH あるいは Na₂O と SiO₂ の 反応は、いずれも約600 K以下で開始していますが、 NaOH-SiO₂ 反応では NaOH の融解(約 583 K)直後



(b) NaOH-SiO。反応中の試料表面状況

反応中の試料表面状況を確認できました。

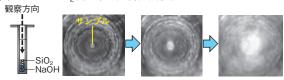


図 7-16 DSC 曲線の比較と反応中の観察結果 ナトリウムーコンクリート反応時に想定される各反応の熱分析を 実施し、反応性を確認することができました。(a)の DSC 曲線から各反応の反応開始温度と速度論的挙動とともに、(b)のような

に NaOH 融液と SiO。の固液反応によるものと思われる 急激な発熱ピーク (●) が出現し、劇的な反応速度論的 挙動が示されるとともに、容器からの試料の噴出が観察 されました (図 7-16(b))。これは、反応により生成す る水蒸気の系外への放出が急激に起こることによるもの と考えられます。一方、Na-SiO2反応の反応開始温度は、 NaOH あるいは Na₂O と SiO₂ の反応に比べて 100 K 以 上高い温度を示し、NaOHとSiO2の反応に比べて比較 的緩やかな速度論的挙動により反応が進行するものと考 えられます。昇温速度 3 ~ 10 K/min に変化させた試験 結果から、Na-SiO₂ 反応と Na₂O-SiO₂ 反応では、昇温 速度の増大とともに反応開始温度のピークが高温側にシ フトする速度論的特徴が見られたため、速度論的評価 手法により活性化エネルギーを求めました。その結果、 Na-SiO₂ 反応は約 231 kJ/mol、Na₂O-SiO₂ 反応は約 106 kJ/mol となり、Na-SiO₂ 反応は Na₂O-SiO₂ 反応 よりも相対的に遅い傾向にあることが分かりました。な お、NaOH-SiO。反応は、上述のとおり、他の反応より も劇的に速いことを確認し、同反応が支配的な反応機構 であるとの見通しが得られました。

今後は、SiO₂以外のコンクリートの主成分と Na 若しくは Na 化合物の反応挙動を把握するための試験を進め、これらの化学反応挙動を機構論に評価できる反応挙動評価手法を構築していく予定です。

本研究は、広島大学との共同研究「平成 26 年度化学 反応速度論解析による化学反応メカニズムの解明研究」、 「平成 27 年度ナトリウムーコンクリート反応の速度論 に関する研究」、「平成 28 年度ナトリウムーコンクリー ト反応機構に関する研究」の成果の一部です。

●参考文献

菊地晋ほか, ナトリウム冷却高速炉の研究開発における熱分析の利用, 熱測定, vol.43, no.1, 2016, p.11-18. Kikuchi, S. et al., Thermal Behavior of Sodium Hydroxide-Structural Concrete Composition of Sodium-Cooled Fast Reactor, Journal of Thermal Analysis and Calorimetry, vol.131, issue 1, 2018, p.301-308.

バックエンド対策及び再処理技術に係る研究開発

原子力施設の廃止措置及び廃棄物の処理処分に向けて

原子力機構は、「施設の集約化・重点化」、「施設の安全確保」及び「バックエンド対策」を「三位一体」で整合性のある総合的な計画として具体化し、廃止措置対象として44施設を挙げた施設中長期計画(2017年4月1日策定、2018年4月1日改訂)として取りまとめました。2018年3月28日には高速増殖原型炉「もんじゅ」の廃止措置計画、また、同年6月13日には東海再処理施設の廃止措置計画について、それぞれが原子力規制委員会の認可を受けました。このような状況にあって、原子力施設の廃止措置及び廃止措置等で発生する放射性廃棄物の処理処分を安全かつ適切に行うために、新たな技術や知見を導入し、廃止措置及び廃棄物の処理処分のトータルでの安全性向上及びコスト削減を目指した技術の開発を推進していくことが必須となります。原子力機構では、安全で効率的な施設解体プロセス、発生する放射性

廃棄物の最小化や安定化などの処理プロセス、放射能確認を含めた処分プロセスに関連する技術開発を総合的に行っています(図8-1)。また、低レベル放射性廃棄物の埋設処分事業については原子力機構の業務に伴い発生したものに加え、大学、民間等の研究施設等からの発生分も処分事業の対象として取り組んでいるところです。

今年度の当該分野の技術開発成果としては、埋設処分時の放射性廃棄物の確認技術として、「複数施設からの廃棄物の放射能をまとめて評価する」があります(トピックス 8-1)。また、以下の紹介に加えて、バックエンド研究開発部門が取り組んできた東京電力福島第一原子力発電所事故対応に係る成果「汚染水処理により発生する廃棄物を調査する」についても別途第1章で紹介しています(トピックス 1-5)。

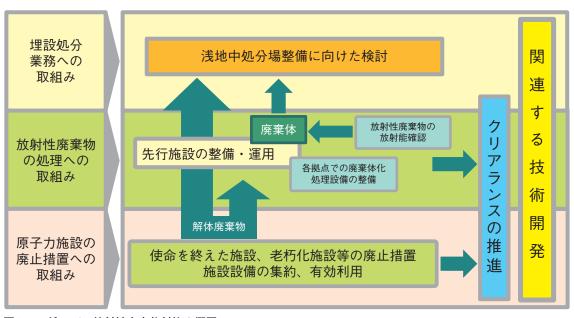


図 8-1 低レベル放射性廃棄物対策の概要

低レベル放射性廃棄物対策として、原子力施設の廃止措置や放射性廃棄物の処理、放射能確認等の放射性廃棄物の発生から処分に至るプロセスに関連する技術開発を進めています。

地層処分の技術と信頼を支える研究開発

地層処分は、原子力発電に伴って発生する高レベル放射性廃棄物などを、何万年にもわたって人間の生活環境から隔離するための対策として、国際的にも共通した最も実現性の高いオプションです。今後の原子力政策の動向にかかわらず高レベル放射性廃棄物などは既に発生しており、その対策への負担は将来世代に先送りするわけにはいきません。現在の我が国の方針では、使用済燃料の再処理により発生する高レベル放射性廃液を、ガラス原料と混ぜ、高温で溶かし合わせてガラス固化体にします。

これを、30~50年程度冷却のために貯蔵した後、金属製のオーバーパックに封入した上で、地下300m以深の安定な岩盤の中に、粘土を主成分とする緩衝材で包み込んで埋設します(図8-2)。地層処分の事業は、候補地の選定から処分場の閉鎖まで100年以上を要するため、国が責任を持って継続的に地層処分の技術基盤を強化し社会の信頼を得ながら段階的に進めていくことが重要です。そのため、私たちは様々な観点から地層処分の技術と信頼性を支える研究開発に取り組んでいます(図8-3)。

深地層の科学的研究

まず、地層処分の環境である地下深部の岩盤や地下水 などを総合的に研究するため、岐阜県の東濃地科学セン ター (花崗岩) と北海道の幌延深地層研究センター (堆 積岩) で二つの深地層の研究施設計画を実施しています (トピックス 8-2~8-6)。また、地質環境の長期安定性 に関する研究として、土岐地球年代学研究所において年 代測定技術の開発・整備を進めるとともに、火山や活断 層などの自然現象の活動履歴を調べ、将来の変化を予測 するための技術開発を進めています(トピックス8-7)。

地層処分システムの研究開発

東海村の核燃料サイクル工学研究所の研究施設では、 人工バリアのシステム挙動や放射性核種の移動特性に関 する実験データなどを基に、深地層の研究施設計画で得 られる情報などを活用して、処分場の設計や安全評価に 必要な技術の開発を進めています(トピックス 8-8)。

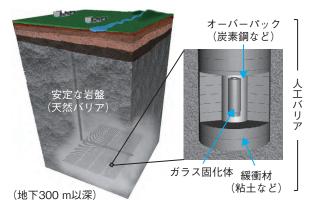


図 8-2 地層処分システムの基本概念

また、これまでの研究開発成果は知識マネジメント システムを用いた知識ベースとして体系的に管理・継承 していくため、ウェブを活用したレポーティングシステ ム(CoolRep)として公開しています。

(CoolRep: https://kms1.jaea.go.jp/CoolRep/index.html)



図8-3 地層処分技術に関する研究開発の実施体制と成果の反映先

再処理の安全性向上と廃止措置における技術の高度化を目指して

東海再処理施設は、2018年6月13日に廃止措置計 画の認可を受け、廃止措置段階に移行しました。本施設 においては、施設のリスク低減にかかわる取組みとして、 溶液状態で貯蔵している放射性物質をより安定な形にす るため、2028年度の処理完了を目標に掲げ、高放射性 廃液のガラス固化処理を安全最優先で着実に進めつつ、 ガラス固化技術の高度化に係る技術開発等に取り組んで います。また、低放射性廃液の固化処理技術開発につい ても、環境への影響に配慮した硝酸分解処理技術開発や 新しいセメント固化技術開発を進めています。

ガラス固化技術の高度化については、白金族元素の 挙動解明に係る試験など、様々な観点で進めています。 ガラス固化体の発生本数をいっそう低減するため、さら に進んだ方法や固化材料を探求しており、非放射性の模 擬試料を用いるほか、理論計算でガラス固化体の熱的挙 動を推論するなど、合理的な工夫を行いながら試験を行 うとともに、ホウケイ酸塩ガラスに代わる具体的な材料 の検討を進めています(トピックス 8-9)。

8-1 複数施設からの廃棄物の放射能をまとめて評価する -異なる研究炉の廃棄物に共通的な放射能評価手法の検討-

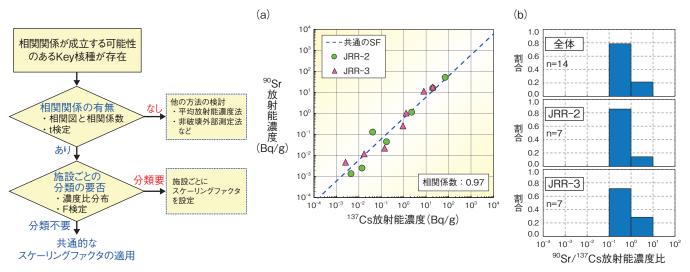


図8-4 複数施設に共通的なSFの検討フロー Key 核種と難測定核種の放射能濃度に相関関係 が成立した場合に、濃度比を施設ごとに分ける 必要性を判定することで、複数施設に共通的な SFの適用を検討しました。

図 8-5 (a) JRR-2 と JRR-3 の廃棄物における 90 Sr と 137 Cs の放射能濃度の相関図と (b) 施設ごとの 90 Sr と 137 Cs の濃度比分布 JRR-2 と JRR-3 の廃棄物中の 137 Cs と 90 Sr の放射能濃度は、相関係数は 0.97 であり、(a) に示す相関図や、有意水準 1% で t 検定を行った結果から、相関が確認されました。また、双方の施設の濃度比は、(b) に示す分布の形の違いについて有意水準 1% で分散分析検定 (F 検定) を行った結果、まとめて扱うことは妥当と判定されました。この結果、(a) に示すように共通の SF が適用できました。

私たちは、研究機関や医療機関等から発生する低レベル放射性廃棄物の埋設処分を計画しています。この廃棄物を埋設処分する際には、放射性物質の種類(核種)ごとの放射能濃度(濃度)が、処分場に受入れ可能な濃度よりも低いことを確認する必要があります。しかし、個々の廃棄物から試料を採取し核種ごとの濃度を定量することは、費用も時間もかかるため、合理的な放射能評価方法を構築する必要があります。

このため、これまでは研究炉から発生する廃棄物の放射 能評価方法の構築に向けて、単一の研究炉を対象として 比較的測定が容易なγ線放出核種(Key 核種)と難測定 核種の平均的な濃度比(スケーリングファクタ: SF)を利 用して評価する SF 法や、分析で得られた濃度の平均値で 評価する平均放射能濃度法の適用性を確認してきました。 しかし、研究炉は様々な規模の原子炉があるため、単一の 施設ごとに SF 法等を構築していくことは非合理的です。

そこで、原子力機構にある研究炉 JRR-2 と JRR-3 において、双方の施設に共通的な SF 法の検討を行いました。JRR-2 と JRR-3 は、燃料や運転履歴は異なるものの、同じ重水減速冷却型の原子炉であり、核種生成機構及び廃棄物への核種の移行挙動が類似しています。これらの金属廃棄物について、Key 核種である 60 Co 及び 137 Cs とともに、難測定核種である 90 Sr 等の 19 核種を分析し、得られた濃度を用いて検討を行いました。

図 8-4 に示す検討フローに従い、JRR-2 と JRR-3 双方の Key 核種と難測定核種の濃度の相関関係について、図 8-5(a) に示す相関図や統計的な手法(t 検定)により判定しました。相関関係があると確認された Key 核種と難測定核種の濃度比を JRR-2 と JRR-3 に分け、図 8-5(b) に示す濃度比分布の形の違いから施設ごとに分けて扱うことの必要性を判定する分散分析検定(F検定)を行いました。分ける必要がないと判定されれば、双方の施設の濃度比をまとめて SF 値を評価することは妥当と考えます。

本検討の結果、¹³⁷Cs と ⁹⁰Sr では濃度の相関係数は 0.97 であり、かつ有意水準 1 % の t 検定で相関ありと判定 されるとともに、有意水準 1 % の F 検定では濃度比を まとめて扱うことは妥当との判定になりました。⁶⁰Co と ⁶³Ni 及び ¹⁵²Eu、¹³⁷Cs と ²³⁹Pu+²⁴⁰Pu についても同様の 結果が得られ、計 5 種類の難測定核種について JRR-2 と JRR-3 に共通の SF が適用できる結果が得られました。

一方、共通的な SF が適用できなかった 14 種類の難測定核種については、分析データ数を増やした後の相関性再評価、単一の施設ごとの SF 設定、平均放射能濃度法の適用性確認等の方法を検討しています。

今後は、本検討手順を雛形として、他の施設から発生した廃棄物の分析データを蓄積し、共通的な放射能評価方法の適用範囲の拡大や信頼性の向上を図ります。

●参考文献

林宏一, 出雲沙理ほか, JRR-2 及び JRR-3 保管廃棄物に対する放射能濃度評価方法の検討, JAEA-Technology 2018-001, 2018, 66p.

8-2 地下水に含まれる希土類元素の極微量分析

-地下の酸化還元環境推定を目的としたオンサイト固相抽出法の構築-

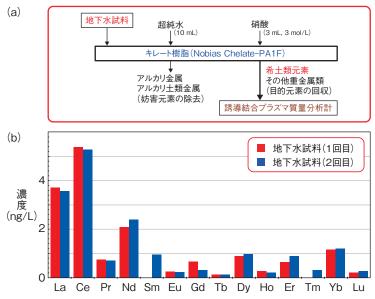


図 8-6 希土類元素の分析手法の概略及びオンサイト固層抽出法により 採取した地下水試料中の希土類元素の測定結果

(a) は分析手法の概略です。回収した元素は実験室に持ち帰り、誘導結合プラズマ質量分析計により測定しました。本研究ではキレート樹脂による試料の前処理方法の改善を実施しました。(b) はオンサイト固層抽出法による地下水試料中の希土類元素の測定結果です。同地点から連続的に採取した2試料の測定結果がそれぞれ良く一致しており、本手法の再現性についても確認できました。実験室で同一試料の繰り返し分析も実施しており再現性を確認しています。本研究により地下水試料中の極微量(0.1 ng/L 以下)の希土類元素分析に成功しました。

地下深部での酸化還元環境や pH 等の化学的環境に関する情報は、高レベル放射性廃棄物の地層処分に必要な地下深部の地質環境の予測・評価において重要です。これまでに、地下水中の鉄等の化学組成の分析から、地下深部での酸化還元電位の復元が検討されてきました。加えて、地下水試料等に含まれる微量のセリウム (Ce) 等の希土類元素の分布を明らかにすることにより、物質の供給源や酸化還元環境の変遷に関する情報を得ることができると考えられています。しかし、希土類元素の存在量は非常に少ないため、分析値が得られないケースが多くあります。さらに、海水の影響を受けた地下水試料では他成分の影響により、誘導結合プラズマ質量分析計による希土類元素の分析は妨害され、データの取得が困難となります。

一方、エチレンジアミン四酢酸塩 - イミノ二酢酸型のキレート樹脂(株式会社日立ハイテクフィールディング製)は妨害元素となるバリウム(Ba)等を除去可能であり、これまでに天然試料中の希土類元素分析に用いられてきました。しかし、このキレート樹脂は海水試料への適用例が主流であり、河川や地下水試料での研究例はほとんどありません。また、地下水では多くの試料でろ過後にも沈殿が認められることから、試料の変質による分析値

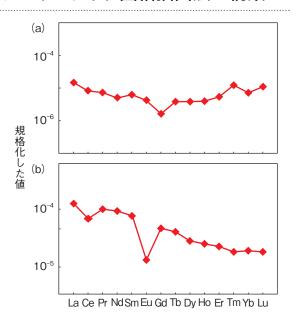


図 8-7 オンサイト固相抽出法による地下水試料中 の希土類元素の測定結果

(a) は岐阜県、(b) は山梨県で採取したオンサイト固層 抽出法による地下水試料中の希土類元素の測定結果です。実際の環境解析では図のように地下水試料に含まれる希土類元素存在比の規格化された分布パターンで結果が示されます。(b) では酸化還元環境の変遷を反映していると思われるユーロピウム(Eu)の負の異常(相対的に低い値)が認められます。

への影響が懸念されます。したがって、採水直後に目的成分を分離・濃縮することが有効です。しかし、地下水の採水現場(オンサイト)でのキレート樹脂による固相抽出はこれまでに報告例がありません。

本研究では標準試料及び天然試料を用いて、目的元素の回収率や再現性等を確認し、キレート樹脂の適用性を詳細に評価しました。混合標準試料のキレート濃縮試験(100 mL の試料を 10 mL に濃縮)では、希土類元素で約90%以上の回収率を得ることができました。また、妨害元素である Ba 等を 99%以上除去することができました。さらに、天然試料を用いて再現性の確認及び従来法との比較試験を実施し、オンサイト固相抽出法による地下水試料中の極微量の希土類元素分析の実用化につなげることができました(図 8-6、図 8-7)。採水現場でキレート樹脂を使用することにより、地下水中の希土類元素分析を効率良く実施できると考えられます。今後はオンサイトでの大量濃縮を検討しており、作業時の試料汚染の低減や回収率を向上させていくことが重要です。

本報告は、経済産業省資源エネルギー庁の「地層処 分技術調査等事業(地質環境長期安定性評価確証技術開 発)」の成果の一部です。

●参考文献

Watanabe, T. et al., Onsite Chelate Resin Solid-Phase Extraction of Rare Earth Elements in Natural Water Samples: Its Implication for Studying Past Redox Changes by Inorganic Geochemistry, Limnology, vol.19, issue 1, 2018, p.21-30.

8-3 坑道を閉鎖するとどんな地下水環境ができるのか? - 坑道閉鎖後の地下水環境の変化を世界で初めて観測-

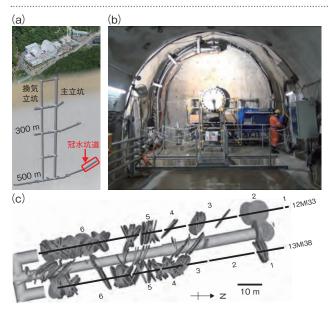


図 8-8 瑞浪超深地層研究所の概念図及び止水壁の写真(a) は瑞浪超深地層研究所の概念図(赤い四角が冠水坑道)、(b) は冠水坑道を閉鎖する止水壁です。(c) は冠水坑道とボーリング孔の位置図で、黒い太線はボーリング孔の観測区間を、数字は区間番号を示します。円盤は冠水坑道、12MI33 号孔、13MI38 号孔で観察された割れ目を投影したものです。

岩盤に坑道を建設し維持管理している期間は、地下水 の汲み上げや換気、セメント材料の使用などにより坑道 周辺の地下水環境(地下水の水圧や化学的性質)が変化 します。変化した地下水環境が坑道閉鎖後にどうなるの か、これまでは主に室内試験やシミュレーションの結果 から推測されていましたが、実際の坑道で観察した例は ありませんでした。実際の地下環境は非常に複雑である ため、地下水環境の変化に対し、どのプロセスがどの程 度影響するかを明らかにすることは重要な課題です。私 たちは、地下 500 m の花崗岩に掘削した体積約 900 m³ の坑道(冠水坑道:図8-8(a))を、2016年1月から鉄 筋コンクリート製の止水壁(図 8-8(b))で閉鎖して地 下水で満たし、約1年間かけて冠水坑道内の地下水の 水質変化を観察しました。また、冠水坑道の掘削に先立 ち、冠水坑道から5m離れた位置にボーリング孔を掘 削し(12MI33 号孔:図 8-8(c))、冠水坑道周辺の地下 水の水質を観測し続けました。

冠水坑道内の地下水のpHは、閉鎖直後は9以下でしたが、閉鎖から6ヶ月程度で約10まで上昇しました。一方で、冠水坑道周辺の地下水(12MI33号孔区間2の結果を例示)のpHは常に9以下でした(図8-9(a))。このことから、冠水坑道内では、壁に吹き付けたコンクリート中の鉱物(水酸化カルシウム等)が反応して、地下水のpHが上昇したと考えられます。また、地下水と接触していた吹付コンクリートの表面に方解石(CaCO₃)が沈殿しており、地下水とコンクリートとの反応面積が低下していると考えられました。アルカリ化した冠水坑道内の地下水は、本試験では坑道の開放部に浸み出して

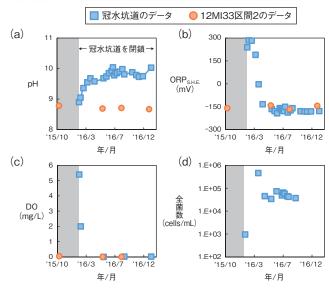


図8-9 坑道の閉鎖期間中における地下水水質と微生物数の変化(a)は地下水のpHの時間変化、(b)は地下水のORPの時間変化を示します。(c)は地下水のDOの時間変化、(d)は冠水坑道内の地下水中にいる微生物数の時間変化を示します。 は冠水坑道の地下水を、 は12MI33 号孔区間2の地下水をそれぞれ表します。灰色の期間は冠水坑道が開放されていた期間(~2016年1月)を示します。

きましたが、仮に坑道を埋め戻したとすると、坑道周辺 の地下水流動速度に依存して、時間とともに周辺岩盤へ 拡がると推察されます。

冠水坑道の中には、大気に触れて酸化した地下水を注水しており、当初、地下水の酸化還元電位(ORP)は酸化的な値(+300 mV前後)でしたが、閉鎖後3週間程度で冠水坑道周辺の地下水と同程度の還元的な値(-150 mV前後)になりました(図8-9(b))。このORPの低下と同じタイミングで溶存酸素(DO)濃度も低下しており(図8-9(c))、さらに地下水中にいる微生物の数が大きく増加しました(図8-9(d))。増加した微生物は、主に酸素を消費する微生物であったことが分かっています。この結果から、人為的な影響(坑道の掘削・開放による酸素の混入)を受けた地下水の中で、微生物が酸素を消費して、本来の還元的な状態への回復が促進されたことが示唆されました。

本研究の結果、坑道の掘削・維持管理・閉鎖による 地下水環境の変化は、地下水流動、酸素の侵入、水 - 鉱 物間の反応、微生物反応などが主なプロセスであること が分かりました。さらに、これまでに室内試験やシミュ レーションで推測していた様々なプロセスが、実際の地 下環境においてどの程度の速さでどの程度の影響がある のかを、世界で初めて把握することができました。

本成果は、実際の地層処分事業において安全評価をする際に役立つ重要な知見となります。

今後は、実際の地層処分を想定して、より大規模な坑道を閉鎖した際の地下水環境の変化を把握し、どのプロセスが重要であるかを確認する必要があると考えています。

●参考文献

林田一貴、村上裕晃ほか、坑道閉鎖試験に基づく坑道掘削・閉鎖時の化学環境変化プロセスの考察、地球化学、vol.52, no.1, 2018, p.55-71,

8-4 断層の連続性を推定する手法を構築 -岩石の力学的性質に着目した新指標 DI を提案-

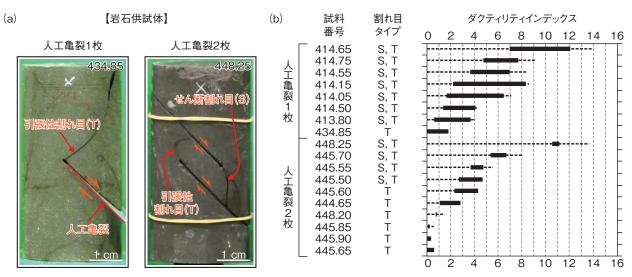


図8-10 (a)破壊実験において断層(人工亀裂で模擬)から派生した割れ目のタイプと(b) DIの関係 引張性割れ目(T)は引っ張り破壊の証拠を示す割れ目、せん断割れ目(S)は引っ張り破壊の証拠を示さず、ずれた証拠 のみを示す割れ目のことを指します。

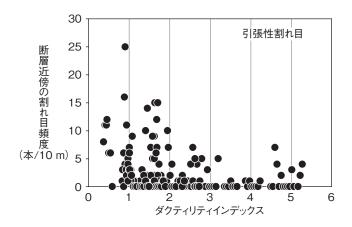


図 8-11 コアに認められる天然の断層近傍の引張性割れ目 頻度と DI の関係

図 8-12 断層の連続性と DI の関係 浅部は引張性割れ目が断層同士を良く連結させることが分かり ます。

断層は断層同士が連結し合うことにより大きくなることが知られています。その連結様式は様々ですが、図 8-10(a) に示すような引張性割れ目が二次的な割れ目として断層から派生すると、断層が連結しやすくなることが知られています。しかし、どのような力学条件だとそのような割れ目が断層から派生しやすいのか、定量的には十分に理解されていませんでした。

本研究では、ダクティリティインデックス(DI)という新たな指標を用いて、断層から引張性割れ目が派生しやすくなる力学条件を理論解析、室内実験及び野外観察より検討しました。DI は岩石に実際にかかっている平均的な応力を岩石の引張強度で除した値で定義され、浅部ほど小さくなります。理論解析の結果、DI が

2以下だと断層から引張性割れ目が派生しやすいことが分かりました。この結果は室内での破壊実験や天然のコア観察でも確認でき、実験では DI が 2 以下だと引張性割れ目のみが断層(人工亀裂で模擬)から選択的に派生することが確認できました(図 8-10 (b) の試料番号434.85、448.20、445.85、445.90 及び 445.65)。コア観察では、DI が 2 以下の断層近傍に引張性割れ目が多く発達することが確認できました(図 8-11)。これらの結果から同一の地層内でも DI に応じて浅部と深部で断層の連続性が異なることが考えられ(図 8-12)、このような知見は、地層処分のサイト選定において地下水の流れを適切に評価する際に重要となります。

●参考文献

Ishii, E., Far-Field Stress Dependency of the Failure Mode of Damage-Zone Fractures in Fault Zones: Results from Laboratory Tests and Field Observations of Siliceous Mudstone, Journal of Geophysical Research: Solid Earth, vol.121, issue 1, 2016, p.70-91.

8-5 地下の生物膜は高濃度に金属元素を濃集する - 微生物-岩石-地下水相互作用による金属元素の収着プロセスを把握ー

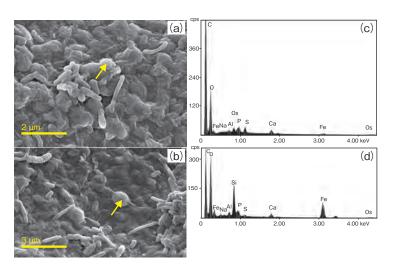


図 8-13 バイオフィルムの走査型電子顕微鏡観察像と化学成分分析結果 (a) 堆積岩環境下で形成されたバイオフィルム、(b) 花崗岩環境下で形成されたバイオフィルムの (c) バイオフィルムの EDX 分析結果 (堆積岩) 、(d) バイオフィルムの EDX 分析結果 (花崗岩) を示します。 バイオフィルム中には鉄、カルシウムや硫黄など多くの元素が含まれていることが分かりました。

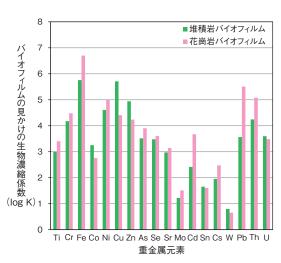


図 8-14 バイオフィルムの見かけの生物濃縮係数 縦軸は、バイオフィルム中の金属元素濃度/地下水中 の金属元素濃度を示します。地下水中の元素のバイオ フィルムに対する見かけの濃集の程度を示しています。 Cr、Fe、Ni、Cu、Zn、Pb、Th 等が高濃度で濃集されていることが分かりました。

地下深くの環境中には、多くの微生物が生存していることが明らかになっています。自然界には浮遊性微生物と付着性微生物が存在しており、基質に付着した微生物は細胞外多糖を分泌して生物膜(バイオフィルム)を構成します。地下環境においても微生物はバイオフィルムの形態で生息すると考えられていますが、その存在量や代謝機能、金属元素との相互作用については十分理解されていません。地下にバイオフィルムが形成されている場合、放射性廃棄物の地層処分において、廃棄体から放出した核種を細胞表面に収着したり、細胞内に濃集・鉱物化、あるいは核種の形態を変化させることにより、核種の移行を促進または遅延させるなどの影響を及ぼす可能性があります。したがって、地層処分システムにおいてバイオフィルムがどのような影響をもたらすのかを評価する必要があります。

私たちは、東濃ウラン鉱床周辺の地下環境に分布する 花崗岩及び堆積岩中の地下水環境下においてバイオフィルムが形成されていることを確認しました(図 8-13)。そこで、これらのバイオフィルムを対象として、地下水及びバイオフィルム中の微生物密度、種組成について、蛍光顕微鏡を用いた直接観察法や遺伝子解析手法を用いた調査を行いました。また、それぞれの試料に含まれる微量元素濃度を分析し、地下水中の金属元素濃度とバイオ フィルム中の金属元素濃度の比から生物濃縮係数を算出するとともに、鉱物学的特性に関する考察を行いました。

その結果、バイオフィルム中の微生物群集組成は、地 下水のものと比べて多様性が低く、堆積岩ではメタンを 栄養源とする微生物(Methylobacillus flagellatus に近縁 な種)、花崗岩では有機物を栄養源とする従属栄養性微 生物 (Ignavibaterium album に近縁な種) が全体構成の 約80%程度を占めていることが示されました。また、バ イオフィルム中の微量元素濃度を分析した結果、クロム: Cr、鉄: Fe、ニッケル: Ni、銅: Cu、亜鉛: Zn、鉛: Pb、トリウム: Th などの元素が高濃度で濃集されてお り、堆積岩環境下で形成されたバイオフィルムと花崗岩 環境下のものでは、バイオフィルムへの元素収着特性が 異なることが明らかになりました(図8-14)。バイオ フィルム及び地下水の化学組成や酸化還元状態に基づく 地球化学計算結果から、堆積岩バイオフィルム中では主 に水酸化鉄、花崗岩バイオフィルムでは硫化鉱物が形成 され、それらの鉱物も金属元素の濃集に寄与している可 能性が示されました。

本研究成果は、バイオフィルムが重元素と相互作用することで、地層処分システムにおける放射性核種の移行において遅延効果をもたらす可能性を示唆しています。

●参考文献

Amano, Y. et al., Characteristics of Naturally Grown Biofilms in Deep Groundwaters and Their Heavy Metal Sorption Property in a Deep Subsurface Environment, Geomicrobiology Journal, vol.34, issue 9, 2017, p.769-783.

8-6 割れ目を持つ泥岩中の物質移行経路を探る

一溶存ガスに飽和した地下水中でのトレーサー試験手法の確立-

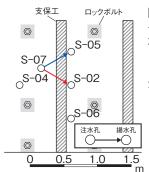


図 8-15 試験レイアウト 各試験孔は坑道壁面からほぼ 水平方向に 3 m 程度掘削して います。→は予備試験、→は トレーサー試験における水の 流れの方向を示しています。

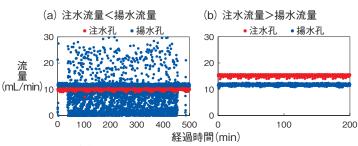


図 8-16 試験条件と脱ガスの発生との関係

(a) の条件では、脱ガスに起因する揚水孔の流量データの乱れが生じているのに対し、(b) の条件では、脱ガスの発生が抑制されていることから、脱ガスを抑制するには「注水流量>揚水流量」の条件が適しています。

原位置トレーサー試験は、岩盤中の物質移行挙動を 原位置の環境下(地下水の流動状態や地下水水質)で直 接測定できるメリットがあります。しかし、堆積岩においては、岩盤中の割れ目を対象とした原位置トレーサー 試験は、国内外を含めて適用事例が非常に少ないのが現 状です。そのため、地層処分における堆積岩の岩盤中の 物質移行メカニズムを把握するための調査や解析上必要 なデータの取得には、堆積岩中の割れ目を対象とした原 位置トレーサー試験手法の確立が重要となります。

幌延深地層研究センターの深度 350 m 調査坑道に分布する泥岩中の地下水には、被圧状態でメタンや二酸化炭素が多量に溶存しており、圧力の解放に伴ってこれらの溶存ガスが脱ガスすることが分かっています。このため、間隙水圧を変化させて行うトレーサー試験においては、脱ガスによって移行経路内が不飽和状態になることを抑制することが必要です。また、トレーサー試験の品質を確保するためには、トレーサー回収率を可能な限り高くすることも重要となります。そこで、試験条件として注水流量と揚水流量を変化させ、原位置トレーサー試験を行うとともに、トレーサーを用いずに水のみで注水・揚水を行う予備試験を行い、これらの結果に基づき、試験条件(注水流量及び揚水流量)が脱ガスの発生やトレーサー回収率に与える影響を評価しました。試験孔のレイアウトを図 8-15 に示します。

予備試験結果から、揚水流量(●)を注水流量(●)よ

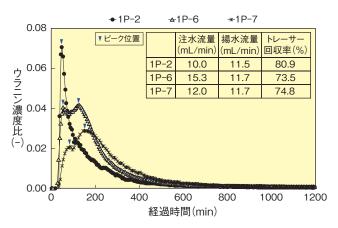


図 8-17 試験条件とトレーサー回収率の関係

「注水流量>揚水流量」の場合(1P-6、1P-7)は破過曲線に複数のピークが生じていることから、トレーサーが相対的に多くの経路をたどって移行しているため、「注水流量<揚水流量」の場合(1P-2)と比べてトレーサー回収率が低くなる傾向にあります。したがって、トレーサー回収率を高くするには「注水流量<揚水流量」の条件が適しています。

り大きく設定した場合には、流量計の計測部に気泡が混 入することに起因して、経過時間に対して脱ガスの影響 と考えられる流量の乱れが確認できます(図8-16(a))。 逆に、注水流量を揚水流量より大きく設定した場合には、 経過時間に対しておおむね安定した流量が保持されてい ることが確認できます(図8-16(b))。したがって、脱 ガスの発生を抑制するためには、注水流量を揚水流量よ り大きく設定することが必要であることが分かります。 一方で、ウラニン(非収着性)を用いたトレーサー試験 結果から、揚水流量を注水流量より大きく設定した場合 (1P-2) は注水流量を揚水流量より大きく設定した場合 (1P-6、1P-7) に比べ、トレーサー回収率が高くなる 傾向にあることが分かります(図 8-17)。特に 1P-6 や 1P-7 は破過曲線に複数のピークが現れており、トレー サーが相対的に多くの経路をたどって移行しているため にトレーサー回収率が低くなったと考えられます。した がって、脱ガスの発生を抑制しつつ高いトレーサー回収 率を達成するには、注水流量が揚水流量よりも大きい条 件で、可能な限り揚水量を大きく設定することが試験条 件として最も適していると言えます。

今回の検討結果から、溶存ガスが飽和した地下水が流れる岩盤中の割れ目を対象に、間隙水圧の変化を伴う原位置トレーサー試験を実施する場合において、脱ガスの影響を抑制しつつ、高品質の試験データを取得するための手法を確立することができました。

●参考文献

武田匡樹ほか,ガスが溶存した地下水を含む泥岩中の割れ目を対象とした原位置トレーサー試験条件の設定に関する検討,原子力バックエンド研究,vol.25, no.1, 2018, p.3-14.

8-7 岩石の鉱物量比を効率的に測定する

一元素分析と画像処理を用いたモード測定手法の開発ー

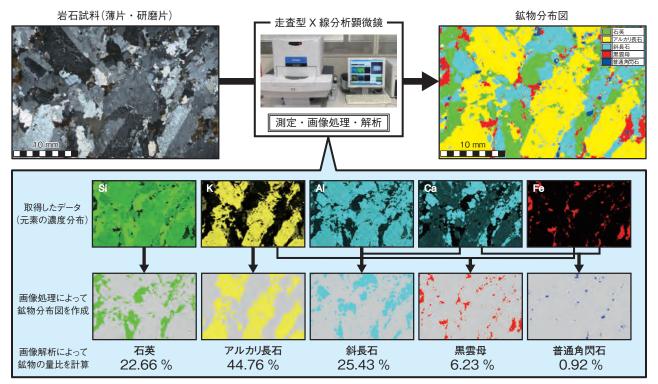


図 8-18 本手法によるモード測定の概要

岩石試料を走査型X線分析顕微鏡で分析し、取得した元素濃度分布の画像データを画像処理して、鉱物分布図を作成します。 各鉱物分布図を画像解析することで、各鉱物の量比を求めます。

岩石の鉱物量比を示すモード組成は、岩石の研究を行 う上で重要な情報で、主に薄片(岩石をガラスに接着し て光が透過するまで薄くすり減らしたもの)を偏光顕微 鏡で観察しながら鉱物を計数するポイントカウンティン グ法によって測定が行われています。しかし、この手法 は、熟練者でも2~3時間ほど集中して偏光顕微鏡で 観察する必要がある、測定者の鉱物判別能力に結果が左 右されるなどの問題点があります。そこで、この研究で は、「難解な技術や知識を必要としない」、「簡便に行え る」、「ポイントカウンティング法ほど測定者の鉱物判別 能力に左右されない」という手法として、走査型 X 線 分析顕微鏡と画像処理・解析ソフトウェアを用いたモー ド測定手法の開発を行いました(図8-18)。ここでは、 石英、アルカリ長石、斜長石、黒雲母、普通角閃石から なる花崗岩を測定の対象としました。

この手法は、研磨した岩石または薄片試料を走査型 X 線分析顕微鏡で分析して、得られた画像データをパソコ ン上で画像処理・画像解析することで、各鉱物の量比を 求めます。走査型X線分析顕微鏡は、試料表面にX線 ビームを照射し、元素濃度の分布に関する情報が取得で きる装置です。測定には特別な化学処理なども必要なく、 設定した条件で自動的に試料表面を走査し、元素濃度分 布を画像データとして得ることができます。この手法で は、約18時間自動測定を行い、測定対象の鉱物に含ま れるケイ素:Si、カリウム:K、アルミニウム:Al、カ ルシウム: Ca、鉄: Fe の各元素の濃度分布図を取得し ます。この画像を画像処理ソフトウェアで読み込み、画 像を一定の重ね順で画像処理することで、それぞれの鉱 物の範囲を適切に示す鉱物分布図が作成できます。鉱物 分布図を画像解析することで、各鉱物の分布面積が求め られ、モード組成を計算することができます。ソフトウェ アでの作業は一定の手順で行うので、実作業時間は30 ~60 分程度です。

本手法の測定結果は、同一試料で熟練者が行ったポ イントカウンティング法の結果と比較しても、ほとんど 変わりません。本手法では短時間で効率的に、個人の判 別能力ではなく元素濃度に基づく定量的なモード組成が 得られると言えます。また、この手法は粒径が 100 μm 以上で化学組成の異なる鉱物からなる岩石であれば、花 崗岩以外の深成岩や半深成岩にも適用することができる ことを確認しています。

本報告は、経済産業省資源エネルギー庁の「地層処 分技術調查等事業(地質環境長期安定性評価確証技術開 発) | の成果の一部です。

●参考文献

植木忠正ほか, 走査型X線分析顕微鏡と画像処理・解析ソフトウェアを用いたモード測定, 地質学雑誌, vol.123, no.12, 2017, p.1061-1066.

8-8 土砂の動きに伴う放射性物質の動きを評価する -公開データを用いた土砂の動きの簡便な評価手法の活用-

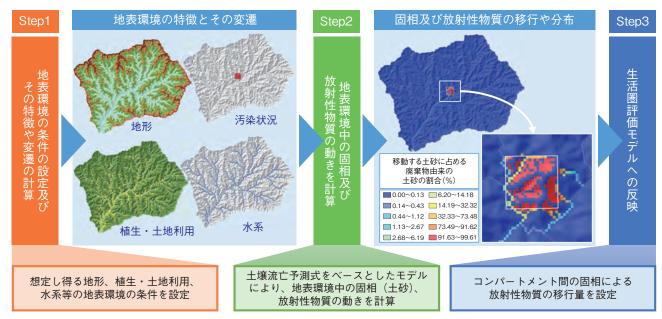


図 8-19 地表環境中の土砂と放射性物質の動きの評価と生活圏評価との関係の整理例

地形や植生・土地利用、水系、汚染状況等の地表環境の状態を様々に設定し(Step1)、それに応じた土砂の動き及びそれに伴う放射性物質の動きを計算できるようにしました(Step2)。この手法により、地表環境中の土砂の動きに伴う放射性物質の動きの特徴を把握し生活圏評価に反映できる見通しが得られました(Step3)。

地層処分の安全性の評価においては、地下 300 m以深に設置される処分施設からの廃棄物由来の放射性物質の移行を評価するとともに、人間の生活環境である地表環境(生活圏)に至った後の移行のプロセスと、人間への被ばくのプロセスを想定することで被ばく線量の算出・評価(生活圏評価)を行います。地表環境中での廃棄物由来の放射性物質の移行は、液相や固相(水や土砂に該当)の移動に伴うものであり、人間への被ばくには、放射性物質を含む水の摂取等が影響します。

一方、こうした移行のプロセスや被ばくの経路は、地 形や土地利用などの地表環境の特徴に大きく左右されま す。また、地層処分の安全性の評価の対象となる数万~ 数十万年といった遠い将来の地表環境を正確に予測する ことも困難です。

そのため、生活圏評価では、地表環境の構成をコンパートメントと呼ばれる均質な区画の組合せとして、また、地表環境での放射性物質の移行プロセスと被ばく経路をコンパートメント間での水や土砂、放射性物質の移動として、それぞれ一般化して表現した生活圏評価モデルがよく用いられています。さらに、長期的な評価では、侵食や運搬等に伴う土砂の動きにも着目する必要があります。

本研究では、今後処分場の場所が特定された際に、その場所の地表環境の状態(地形や植生・土地利用、水系等)

に応じて、地表環境中での侵食に伴う土砂の運搬・堆積による放射性物質の動きを計算できるようにしました。この計算では、農業土木分野で広く使われている土壌流亡予測式と簡易的な水理公式を併用したモデルを構築し適用しました。このモデルは、公開情報として容易に入手できる地形や土地利用、降水量等の情報を入力データとして利用し、環境中の放射性物質の広域的な分布や主要な河川流域からの流出量の経年変化を計算できるものであり、東京電力福島第一原子力発電所事故を受けた環境動態研究でも適用されています。

図 8-19 は、Step1 で設定した地表環境に対して、Step2 で土砂の移動を計算した例です。この例では、地下の処分施設からの廃棄物由来の放射性物質の移行と地表環境への流出点が別途検討・推定された場合を想定し、その流出点を含む領域から侵食された土砂が、河川に沿って移動しながら希釈されていく状況を示しています。

この手法により、公開データを活用した簡便な計算で、土砂の動きやそれに伴う放射性物質の動きを想定する地表環境や、その時間変遷の特徴を考慮して評価することが可能になりました。これは、生活圏評価で重要となるコンパートメント間での土砂の移動量やそれに伴う放射性物質の移行量を、想定する地表環境や時間変遷の特徴に応じて定量的に見積ることに適用できると考えられます。

●参考文献

Yamaguchi, M. et al., Predicting the Long-Term ¹³⁷Cs Distribution in Fukushima after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident: A Parameter Sensitivity Analysis, Journal of Environmental Radioactivity, vol.135, 2014, p.135-146.

8-9 放射性物質のガラス固化技術 - 適切なガラス媒体の探求 -

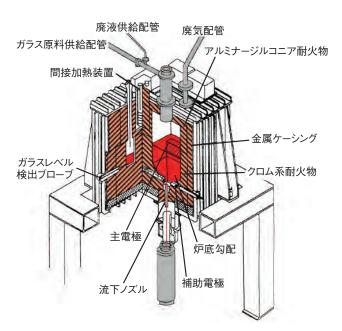


図 8-20 ガラス固化技術開発施設のガラス溶融炉 ガラス固化技術開発施設(\underline{T} okai \underline{V} itrification \underline{F} acility: \underline{T} VF)で採用されているガラス溶融炉です。 \underline{T} 0 mm ϕ × 70 mmL)に含浸させて、溶融炉において直接通電により溶融し、キャニスタ内に流下させる方法である、液体供給式直接通電型セラミックメルター法を用いた固化処理を行っています。

使用済燃料の再処理によって生じる高レベル放射性 廃液は、ガラス固化施設において、図 8-20 の溶融炉で安 定なガラス固化体に処理後、最終処分までの間、高レベ ル放射性廃棄物(High-level radioactive waste: HLW) として貯蔵保管します。ここでガラスとは、非晶質の固 体であり、昇温した場合、特定の温度範囲でガラス転移 現象(急速に剛性と粘度が低下し流動性が増す現象)を 示す紀元前より人類になじみのある物質です。

ガラスは、一般的には割れやすいと考えられていますが、表面に疵がなければ、結晶と同程度の大きな剛性と著しく高い粘性を持っており、理論的には、様々な材料の中で最も強靭な材料の一つとしてみなすことができます。13世紀以前のイスラム帝国では、熱膨張率が低く、耐酸性、硬度及び化学的耐久性に優れた材料としてホウケイ酸塩ガラス(borosilicate glass: BSG)が既に知られていました。しかしながらBSGが商業規模の普及を遂げたのは、19世紀末から行われた光学ガラスの開発成果によります。HLW 製造用のガラスは、前述したような特性で、固化媒体として良好な性能を持つBSGが用いられています。

BSG を使用した HLW の製造法は、既に確立された

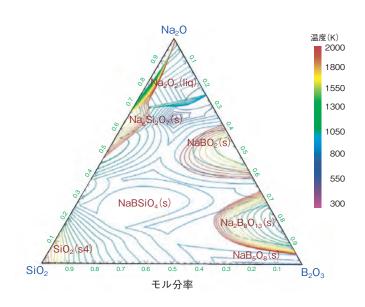


図 8-21 SiO₂-B₂O₃-Na₂O 系の液相面投影図 私たちが所有している熱力学データベースを用いることにより、ガラスの状態図を作成することができます。この図は、空気中(酸素濃度:20.95%)における SiO₂-B₂O₃-Na₂O 系の三元系状態図で、液相面投影図と呼ばれているものです。同図を利用することにより、ガラスの組成と液相点との関係について容易に知ることができます。

技術ですが、ガラス固化体の発生本数をより削減するために、一部の核分裂生成物を固化前に除去したり、無限にあるガラスの組成を適切に変化させたりすることにより、さらに進んだ固化材料や固化方法の探求をしています。ガラス固化体の性能試験を行うときには、通常、強い放射線を放出する核分裂生成物等をガラスに充てんすることを避け、可能な限り非放射性の模擬試料を用いて、より多くのデータを取得しています。また、ガラス固化工程では、極めて高い温度を使用することになるので理論計算により、ある程度ガラス固化体の熱的挙動を推算した上で試験を行っています。これには熱力学的諸量を必要とするため、これまでは存在しなかった多くのデータを計算科学的手法により取得し、さらにデータベース化することにより、図8-21に示すような三元系状態図の構築も可能にしてきました。

このような研究開発とともに、新たなガラス固化媒体の探索も段階的に実施しており、BSGに代わる材料として、例えば、多様な元素を充てんできる可能性がある鉄リン酸塩ガラスを選択肢の一つとして挙げ、低レベル放射性廃棄物への適用性も踏まえた上で検討を進めています。

●参考文献

Amamoto, I. et al., Research on Vitrification Technology to Immobilize Radioactive Sludge Generated from Fukushima Daiichi Power Plant: Enhanced Glass Medium, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.53, issue 10, 2016, p.1467-1475. 天本一平, 放射性廃棄物のガラスによる固化, Journal of the Society of Inorganic Materials, Japan, vol.24, no.391, 2017, p.393-401.

システム計算科学研究

原子力研究開発を支える計算科学技術

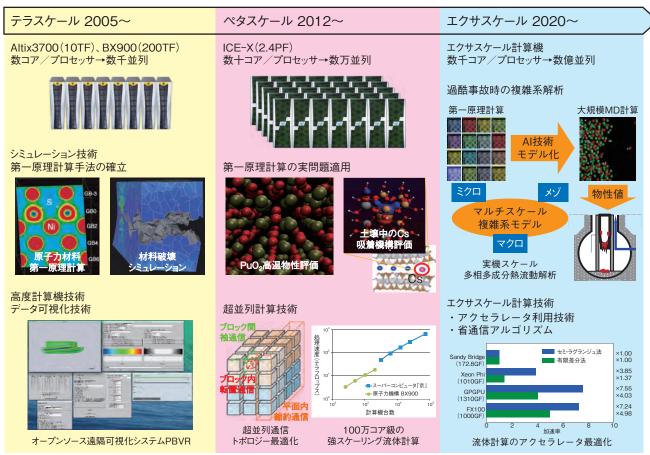


図 9-1 システム計算科学センターにおける計算科学研究 これまでに開発・蓄積してきたテラ・ペタスケール計算技術を発展させ、原子力分野における複雑系解析のためのエクサスケール計算技術開発を推進しています。

放射性物質の環境動態、汚染土壌の減容、過酷事故の解析等、東京電力福島第一原子力発電所事故を契機に発生した課題の解決や将来の原子力システムの研究開発には、様々な要因が絡み合う複雑な現象の解析技術が不可欠です。例えば、過酷事故の解析では核燃料や構造材の溶融・移行過程を評価するマクロスケールの熱流動解析だけでなく、溶融物の混合による複雑な界面形成や亀裂進展等の破壊現象を評価するメゾスケールの解析、高温高圧の極限環境下における元素拡散、化学反応、相変化による物性変化を評価するミクロスケールの量子計算を機械学習によって統合する新たな多スケール・多物理の解析技術が必要です。このようなシミュレーション技術に加え、将来のエクサスケール計算機の高度利用を可能とする計算機技術も必要となります。

システム計算科学センターでは、これまで複雑現象解析の基礎となる量子計算、流体計算等のシミュレーション技術及び数値計算アルゴリズム、可視化等の計算機技術を開発してきました。現在、これらの技術を発展させ、エクサスケールの複雑現象解析を可能とする新たなシミュレーション技術及び計算機技術の開発に取り組んでいます(図 9-1)。このような複雑現象の解析技術は原子力研究開発全般における共通基盤技術となります。

2017年度は、福島の再生・復興への計算科学技術の活用として、土壌中の粘土鉱物における様々な表面への放射性セシウム吸着機構を第一原理計算で解明しました(第1章トピックス1-18)。一方、複雑現象解析に必要な様々なミクロ・メゾスケール解析の高度化に関する成果として、(1)機械学習を用いたモンテカルロ法によって、重元素化合物等の強相関電子系の量子多体問題の高速計算を可能とした成果(トピックス9-1)、(2)原子力材料の劣化に関連して、鉄鋼材料中の粒界に不純物原子が集まる機構をキネティックモンテカルロ計算によって解明した成果(トピックス9-2)、(3)原子力材料の照射損傷に関連して、分子動力学計算に基づいて、照射損傷の修復過程を考慮した新たな材料損傷評価式を構築した成果(トピックス9-3)を紹介します。

また、将来のエクサスケール計算を支える計算機技術として、大規模シミュレーションを計算しながらその場で対話的に可視化解析することを可能とする、新たなIn-Situ 可視化システムの開発に関する成果を紹介します(トピックス 9-4)。

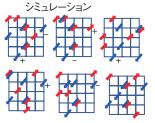
システム計算科学センターでは、原子力研究開発の 共通基盤となる計算科学技術の研究を、今後も着実に進 展させ、その成果を積極的に展開していきます。

9-1 AI 技術で固体物理学の難問に挑戦

ー機械学習が量子シミュレーションを劇的に高速化ー

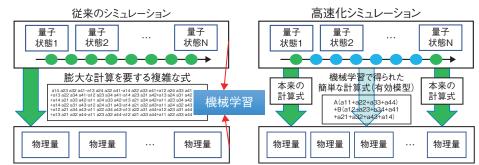
(a) 従来の量子多体系物理計算では 膨大な計算が必要

例:高温超伝導体の電子状態のシミュレーション



✓ スピン下向き電子 ✓ スピン上向き電子 量子状態は膨大な数の状態の 量子的重ね合わせになる

(b) 計算式を置き換え、劇的な高速化



多数の量子状態の物理量の平均を計算

図9-2 計算手法の概略と模式図

(a) 量子多体系計算の模式図と(b) 機械学習を用いたモンテカルロ法(自己学習モンテカルロ法)の概略を示します。従来のシミュレーションにおいて膨大な計算を要する複雑な式を、機械学習によって見いだした、より簡便な式に置き換えることで高速化を達成します。

物質の性質の多くは、その物質に含まれる電子集団の 振る舞いの違いによって説明されます。特に、銅酸化物 高温超伝導体やウラン等を含む重元素化合物などの物質 は、電子同士が強く相互作用する強相関電子系と呼ばれ ており、これらの物質での電子の挙動の理解は現代の固 体物理学における重要な問題の一つとして位置づけられ ています。これらの電子集団の振る舞いを正確にシミュ レーションするためには、電子の量子力学的性質を考慮 した量子シミュレーションが必要です。例えば、電気抵 抗がゼロになる超伝導状態においては、電子はペアを組 んで運動することが知られていますが、液体窒素温度以 上の高温で超伝導体になる銅酸化物高温超伝導体中での 電子集団の挙動は分かっておらず、その超伝導メカニズ ムは固体物理学ひいては物理学全体の大きな謎の一つと なっており、量子シミュレーションや理論解析、実験に より盛んに研究が行われています。

しかしながら、量子シミュレーションは、扱う電子の数が増えると考慮しなくてはならない場合の数が指数 関数的に増大していくため計算負荷が非常に高く、現在 の最新のスーパーコンピュータを用いたとしても強相関 電子系を十分に理解することは困難でした(図 9-2(a))。 そこで、世界中の多くの研究者が高精度で高速な計算手 法の開発を試みています。

本研究では、近年計算科学分野で急速に発展している「機械学習」に着目しました。機械学習とは、膨大な

データをコンピュータに学習させることで、その背後にあるパターンなどを自動的に見いだす手法で、人間には見つけ出すことが困難なパターンも見いだすことが時に可能となります。本研究では、高精度な量子シミュレーション手法である量子モンテカルロシミュレーションにおいて、機械学習を用いてその本質を抽出した有効模型を作成し、高速にシミュレーションする手法(自己学習モンテカルロ法)を開発することに成功しました。

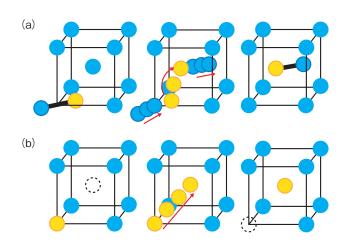
マルコフ連鎖モンテカルロシミュレーションでは、対象となる模型が作るマルコフ連鎖という確率過程を用いて物理量(電子密度等)を計算します。しかし、シミュレーションを行うために必要なマルコフ連鎖の遷移確率の計算には、量子系の複雑さを反映した非常に複雑な式を用いた計算が必要となります。そこでトライアルシミュレーションとして従来のシミュレーションを実行しこの複雑な計算式に関する学習データを集め、機械学習によりその背後にあるパターンを見いだすことで簡単な計算式で表される有効模型を構築します。本シミュレーションではこの有効模型でのシミュレーションを途中に挟むことにより、物理量を高速(最大で1万倍)に計算することができます(図 9-2(b))。

本研究による高速化によって、より現実の物質の構造を反映させた複雑な模型を取り扱うことが可能となり、これまで謎となっていた物質の多彩な物性の解明が期待されます。

●参考文献

Nagai, Y. et al., Self-Learning Monte Carlo Method: Continuous-Time Algorithm, Physical Review B, Rapid communication, vol.96, issue 16, 2017, p.161102-1-161102-6.

9-2 原子の拡散挙動解析から鉄鋼材料の脆化を明らかにする -第一原理計算に基づくキネティックモンテカルロによる拡散係数の評価-



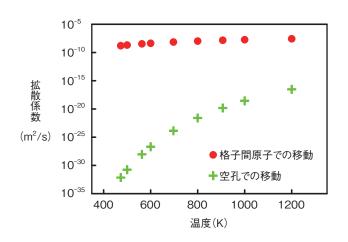


図9-3 リン原子の移動の仕方

(a) は原子対の相手を変えて移動する場合、(b) は隣接する空孔の位置へ移動する場合を表します。左図と右図は移動の前後の配置を、中央図はその間の移動の様子を表します。 ●はリン原子、●は鉄原子、→は原子の動きを表します。

図9-4 シミュレーションで評価した温度に対する拡散係数 どちらの場合でも、高温になるほど速く移動するが、格子間原子での移動は、空孔での移動より数十桁速いことが分かります。

原子炉の炉心を覆う鉄鋼材料では、原子炉運転中に、高温で中性子線照射を受けることで、結晶格子の安定な位置にいた鉄の原子が弾き出され、動き回るようになります。これに伴って不純物原子も動き出し、結晶の規則正しい並びが乱れている粒界に集まり、そこの強度を弱めてしまうことがあります。このような現象は脆化と呼ばれ、最終的には材料の割れにつながる場合もあります。そのため、原子炉を安全に運転するためには、不純物原子の移動の仕方や粒界への集まる速さを評価して、粒界での不純物の量を予測することが重要となります。

リンは鉄鋼材料中の不純物であり、粒界での脆化を引き起こします。リン原子は、弾き出されたことで格子の間を動き回る鉄格子間原子と対を作り、その相手を変えることにより移動します(図 9-3(a))。一方、弾き出しにより鉄原子があった位置は空孔になり、空孔に隣の原子が移動することで空孔も動き回りますが、空孔が隣に移動してきたとき、リン原子が空孔の位置に移動することでもリン原子は移動します(図 9-3(b))。そして、これらの移動は高温になるほど活発になります。図 9-3のようなリン原子の移動の仕方は、第一原理計算から得

られる原子の様々な配置のエネルギーの大きさの考察から見つかります。しかし、移動の仕方のみでは、その速さは分かりません。そこで今回、キネティックモンテカルロシミュレーションで図 9-3 に基づいて原子を動かし、リン原子が移動した時間と距離を測り、様々な温度での拡散係数を計算することで、その移動の速さを評価しました(図 9-4)。その結果、格子間原子での移動は、空孔での移動に比べ桁違いに速いことが確認されました。この結果は、温度や照射の様々な条件での粒界のリンの量の予測、さらには鉄鋼材料の脆化の評価に役立ちます。

実験では測定が難しい原子レベルの挙動から巨視的な脆化の評価を目指すこのような手法は、マルチスケールと呼ばれ、計算機による有効な研究方法です。今後、この手法をさらに高精度化し、原子力材料の脆化の評価や予測に貢献していきたいと考えます。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究(C)(No.15K06429)「粒界偏析エネルギーの算出方法に関する拡散レートモデルによる評価」の助成を受けたものです。

●参考文献

Ebihara, K. et al., Modeling of Phosphorus Transport by Interstitial Dumbbell in α-Iron Using First-Principles-Based Kinetic Monte Carlo, Materials Transactions, vol.58, no.1, 2017, p.26-32.

原子力材料の放射線ダメージの新しい世界規格を提案 9 - 3ーシミュレーションに基づいた材料損傷評価式の構築ー

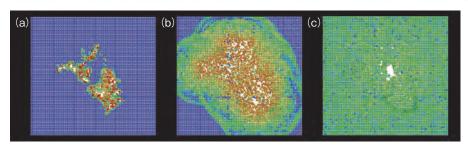


図9-5 物質中の弾き出し損傷分子動力学 シミュレーション

高エネルギー粒子により固体中の原子が弾 き出されます。まず、従来評価式に相当す る欠陥生成が起きます(a)。その後、その 影響は広範囲に及び欠陥数は従来評価式 よりも多くなり(b)、その後冷却過程を経る と、実際に残留する欠陥数は従来評価式よ りも少なくなります(c)(図は Andrea Sand による)。

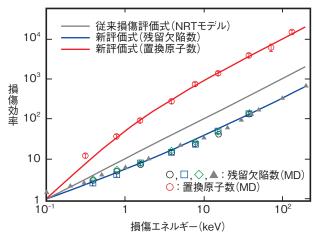


図9-6 新しい材料損傷評価式と分子動力学の結果の比較

-つの高エネルギー粒子が弾き出す平均原子数は損傷効率と呼ばれ ています。粒子のエネルギー(損傷エネルギー)が増すにつれてこ の値が増えていきます。位置の置換があった原子数を全てカウント する場合と、最終的に欠陥として残った原子数のみをカウントする 場合とを分けて考えると、従来の NRT モデルはそのどちらにも良 い評価式になっていません。新評価式である「残留欠陥数」と「置 換原子数」は MD の結果を良く再現していることが分かります。

固体中の原子に電子、中性子、陽子などの高エネル ギー粒子を照射すると、衝突された原子は大きなエネル ギーを付与され、結晶中の決まった位置から弾き出され 場合によっては連鎖反応的に次々に多くの原子が弾き出 されます(図9-5)。私たちはこのような現象を弾き出 し損傷と呼んでいます。この現象によって結晶構造が乱 れ、固体が元来持っていた性質が変化します。原子力材 料は放射線にさらされますので、元の材料のサイズや強 度などの特性が変化してしまうと、安全性や経済性に影 響を与えてしまいます。しかしながら、このような変化 を事前に知っておけば適切な材料の管理が可能になりま す。そのためには、粒子がいくつ原子を弾き出すのかを 知っておかなくてはなりません。従来、これは Norget、 Robinson 及び Torrens の三人が 1960 年代に提唱した 損傷評価式 (NRT モデル) で行われてきました。これ は粒子のエネルギーに比例して弾き出される原子数を換 算する単純な式で、使いやすい反面、実験や高精度シミュ レーションの結果をあまり良く表していないことが問題 になってきました。

2011年にOECD/NEAの活動の一環として「原子力 システム燃材料マルチスケールモデリングに関するワーキ ングパーティ」が発足し、原子力機構からは三人の計算 材料科学の専門家が参加しました。その中の弾き出し損 傷研究のエキスパートによる会合で、より現実に合った 材料損傷評価式が必要ではないかという結論に達し、そ

れを構築する国際的なプロジェクトが立ち上がりました。 その方法は、まず物理的な考察により評価式の形を決定 し、分子動力学 (MD) による弾き出しシミュレーショ ン結果をデータベースとして式の係数を決定するという 2段階の方式を選択しました。これにより評価式が単な るフィッティングで得られた非物理的な式になることを 回避し、その上照射実験が存在しない材料については計 算科学で補完できる理にかなった方法です。

図 9-5(c) から分かるように一度弾き出された原子の 大半はまた格子位置に戻ってきます。このような効果を 考慮して修正した評価式を作成しました。図 9-6 の一線 で示されているように、この式は実際に格子位置に戻ら ず欠陥として残留する原子数を良く表していることが分 かります。

今回得られた評価式は金属だけでなく、セラミックス や半導体などにも適用できるようにしました。よってこ れらの評価式は照射損傷の世界規格として今後広く利用 できると考えています。

また、1ナノ秒以内で損傷過程は終了しますが、有限 温度では欠陥は徐々に移動するため、長時間かけて欠陥 はさらに消滅したり結合してクラスタ化したりします。 この変化を知らなければ実際に観測される弾き出し損傷 をモデル化したことになりません。

この弾き出し損傷の長時間の振る舞いについては、私た ちの既往研究が OECD/NEA の報告書に記載されました。

●参考文献

Nordlund, K., Suzudo, T. et al., Improving Atomic Displacement and Replacement Calculations with Physically Realistic Damage Models, Nature Communications, vol.9, 2018, p.1084-1-1084-8.

9-4 大規模シミュレーションを実行しながら可視化する技術を開発 - 粒子ベースボリュームレンダリングによる In-Situ 可視化-

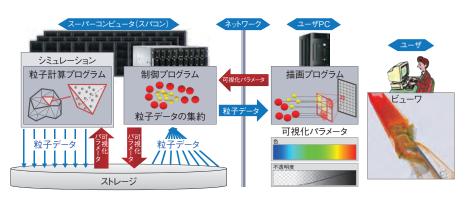


図9-7 In-Situ PBVR のフレームワーク構成

スパコン上のシミュレーションに結合された粒子計算プログラムが可視化用の粒子データを生成し、ストレージ上に出力します。制御プログラムが粒子データを集約し、ネットワークを介してユーザ PC に転送します。ユーザ PC 上の描画プログラムは粒子データを画面に投影して可視化画像をビューワに表示します。ユーザは可視化画像を観察し、色、不透明度等の可視化パラメータを調整します。調整後の可視化パラメータは制御プログラムを介してストレージに出力されます。粒子計算プログラムはストレージ上の可視化パラメータを読み込み粒子生成に使用します。

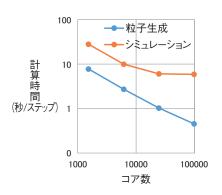


図9-8 Oakforest-PACS 上での性能 問題規模を 240 × 240 × 1920 (約1億 格子) に固定し、可視化用に約1000万 粒子(約250 MB)を使用しました。横 軸は演算器の数(コア数)、縦軸は1ス テップの計算時間です。

スーパーコンピュータ (スパコン) は大量の演算器を結合した計算機で、演算器の間で計算データを通信しながら大規模なシミュレーションを実行し、計算結果としてデータを生成します。従来は、データをストレージに出力し、シミュレーションが終了してからデータの可視化解析を行っていました。しかしながら、このような入出力に必要なストレージの処理性能が近年のスパコン性能の飛躍的向上に追いつかず、巨大なデータ (~ペタバイト)に対して従来の可視化手法を適用することが困難になってきました。このようなデータ入出力の問題を避けるため、シミュレーションと同時に可視化処理を実行し、巨大なデータの代わりに圧縮された可視化画像 (~メガバイト)を出力する In-Situ 可視化が重視されています。

しかしながら、従来の In-Situ 可視化には次の二つの課題があります。第一に、ポリゴンを描画する従来の可視化手法では、視点を変える度に多数の演算器で処理するポリゴンの前後関係を正しい順字で描画するために多数の演算器間の通信が発生します。この通信時間はしばしばシミュレーションの計算時間を上回り、シミュレーションを阻害します。第二に、従来の In-Situ 可視化では、事前に視点位置、色、不透明度等からなる可視化パラメータを設定する必要があるため、可視化パラメータの調整に多数のシミュレーションを繰り返す必要がありました。

これらの問題を解決するため、粒子ベースボリュームレンダリング (Particle-Based Volume Rendering: PBVR)

という手法を利用して、新しい In-Situ 可視化フレームワーク「In-Situ PBVR」を開発しました(図 9-7)。PBVR はデータを可視化用の粒子データに変換(粒子生成)して描画する手法です。従来の可視化手法のポリゴンデータと比べて、PBVR における粒子データは順序の並べ替え、すなわち、演算器間の通信が不要であり、データサイズが極めて小さいという特徴があります。この特徴を生かして、スパコン上でシミュレーションを阻害しない粒子計算を実現し、さらに、視点に依存しない粒子データをユーザ PC 上で描画することで、対話的に視点位置を変更できるようになりました。これに加えて、ユーザ PC で対話的に調整した可視化パラメータをスパコンのストレージを介して粒子計算に反映する仕組みを作り、シミュレーション実行時に対話的に可視化パラメータを調整できる In-Situ 可視化を実現しました。

In-Situ PBVR を原子炉圧力容器内部の熱流動シミュレーションに結合し、最先端スパコン「Oakforest-PACS」を使って処理性能を調査しました。 図 9-8 の性能評価に示すとおり、粒子生成計算時間は演算器を約 $1500 \sim$ 約 10 万まで増やしても加速し続け、シミュレーションの $8 \sim 28$ % 以内に抑えられました。粒子データはOakforest-PACSからインターネット経由で転送され、対話的な可視化を実現しました。

なお、本件に関連した研究において、第28期可視化 情報学会論文賞を受賞しました。

●参考文献

Kawamura, T. et al., Performance Evaluation of Runtime Data Exploration Framework Based on In-Situ Particle Based Volume Rendering, Supercomputing Frontiers and Innovations, vol.4, no.3, 2017, p.43-54.

Kawamura, T. et al., Algebraic Design of Multi-Dimensional Transfer Function Using Transfer Function Synthesizer, Journal of Visualization, vol.20, issue 1, 2017, p.151-162.

核不拡散・核セキュリティ科学技術開発

原子力平和利用を支える核不拡散・核セキュリティに関する技術開発・人材育成

核不拡散・核セキュリティ総合支援センター (ISCN) は、核兵器・核テロの脅威のない世界を目指して、国内外の関係機関と連携し、核不拡散・核セキュリティ分野における技術開発や人材育成等を実施しています (図 10-1)。

日本のための、そして世界のための技術開発

国内外の動向を踏まえた核不拡散・核セキュリティ 強化のための技術開発を実施しています。従来の技 術では測定が難しい最新の技術開発に取り組み、東 京電力福島第一原子力発電所事故の溶融燃料等の核 物質の量を測定する技術や、核検知・測定に関し、核 共鳴蛍光による重遮へい物内核物質探知技術、外部 パルス中性子源を用いて、高放射性物質中の核物質 等を非破壊で測定する技術の開発を行っています。最 近では、日米で協力して、核セキュリティ事象における 核・放射性物質の魅力度評価手法開発にも取り組んで います。犯罪行為等に使用された核物質等の特徴を分 析し、起源や履歴を特定する核鑑識技術の開発につい ては、確度向上及び迅速化を目指した技術の高度化を 進めるとともに、核・放射線テロ事象後を対象とした核 鑑識技術開発に着手しました。トピックス 10-1 は、核 鑑識で重要な要素の一つであるウラン精製年代測定で ISCN が新たに開発した手法に関する研究成果です。

技術的知見に基づく政策研究

原子力施設における核不拡散(保障措置: Safeguards と核セキュリティ: Security)の相乗効果について政策研究を実施しています。両者(英語の頭文字から 2Sと称する)をともに強化、推進していく観点から、2Sの相乗効果の可能性を分析・評価し、効果が期待できる工程・条件を明らかにするとともに、将来の核燃料サイクル施設を想定し、2S各々で使用する計測・監視技術や機器及び情報を、相互に共有する可能性

を視野に入れて、適用性・実現性の障害を評価し、 その対応策を検討しています。

人材育成支援

2010年4月の核セキュリティ・サミットでの政府の表明に基づき、2011年4月からアジア諸国を始めとした各国への人材育成支援事業を開始し、2018年3月までに核セキュリティや保障措置に関して国内外で実施したセミナー、トレーニング等に、国内外から約3800名が参加しています。こうした活動は、アジアを中心とした地域で人材育成に貢献しており、日米両政府から高く評価されています。

CTBT に係る国際検証体制への貢献

国際的な核実験監視体制の確立に向けて、包括的 核実験禁止条約(CTBT)国際監視制度施設や国内デー タセンターの暫定運用を実施しています。2017年9月の 第6回北朝鮮核実験では、CTBT放射性核種観測所 データの解析評価結果を国等へ適時に報告し、CTBT 国内運用体制に基づく国の評価に貢献しました。

核物質輸送及び研究炉燃料にかかわる業務支援

各研究開発拠点が行う核物質輸送を支援するとともに、試験研究炉用燃料の需給及び使用済燃料の処置方策の検討を実施しています。高濃縮ウラン燃料の対米返還輸送を計画的に推進することにより、世界的な核セキュリティを強化してきた地球規模脅威削減イニシアティブに貢献しています。

理解増進のための取組み

核不拡散・核セキュリティ分野の動向やそれらに対する分析、ISCNの活動等を掲載したニューズレターのメール配信や国際フォーラムの開催等により、国内外における本分野の理解増進に貢献しています。



図 10-1 核不拡散・核セキュリティ総合支援センターの実施内容及び連携機関 国内外の関係機関と連携し、核不拡散・核セキュリティ強化に資する活動を行っています。

10-1 新たな年代測定法の開発

ー試料中の放射平衡を利用して分析時間を短縮ー

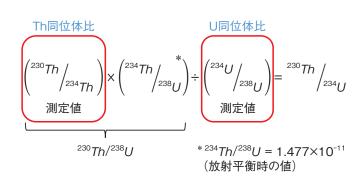


図10-2 同位体標準物質を用いない年代測定法の概要を表す式

試料中で放射平衡の状態にある 234 Th/ 238 U 比は半減期より計算できます。試料中の 230 Th/ 234 Th 同位体比及び 234 U/ 238 U 同位体比の測定結果と本式より、年代測定に必要な 230 Th/ 234 U 比を明らかにすることができます。

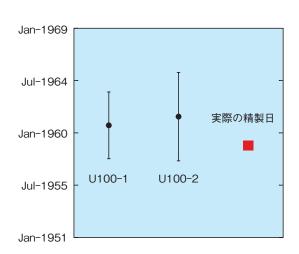


図10-3 U標準物質(U100)の年代測定結果本法をU標準物質の年代測定に適用したところ、実際の精製日と測定誤差の範囲で一致する結果が得られました。

核物質・放射性物質を用いたテロへの対策として、それらの物質のセキュリティ強化が、各国の責任として求められています。その一環として、核物質・放射性物質が犯罪等に用いられた場合、それらの物質の元素組成、物理・化学的形態等を分析し、その物品の出所、履歴、輸送経路、目的等を分析・解析する核鑑識技術の整備が各国で進められています。核物質の年代測定は、核物質が最終的に精製された日を明らかにする技術であり、推定された精製日は、核鑑識において重要な情報とされています。

年代測定の原理としては、例えば、ウラン(U)試料の製造過程において、U以外の元素は分離されるため、製造時のU試料中には、その子孫核種のトリウム(Th)は含まれないと仮定できます。一方で、時間の経過とともに、分離精製されたU試料中に再び子孫核種のThが一定の速度で生成されていきます。したがって、試料中の親核種Uと子孫核種Thの比を測定することで、製造日を明らかにすることができます。試料中の親核種Uと子孫核種Thの比を測定するためには、試料に既知量の同位体を添加し、質量分析計で同位体比を測定する「同位体希釈質量分析法」が広く用いられています。試料中のUとThを正確に定量することができる非常に優れた手法ですが、添加する既知量の同位体標準溶液の濃度

管理や、試料の厳密な重量測定・希釈操作が必要となります。そこで、試料中で放射平衡状態にある²³⁸U/²³⁴Th比を利用するという新たな発想の下、より簡便な分析操作による U の年代測定法の確立に取り組みました。本法では、同位体標準溶液を添加する必要がなく、試料中の Th 同位体比(²³⁰Th/²³⁴Th)と U 同位体比(²³⁸U/²³⁴U)を測定することにより、年代測定に必要な²³⁰Th/²³⁴U比を明らかにすることができます(図 10-2)。

実際の分析操作としては、U 試料を酸溶液に溶解させた後、2 段階のイオン交換分離によって U と Th を分離精製し、表面電離型質量分析計によって U 及び Th 同位体比を測定します。従来法である同位体希釈質量分析法では、試料の厳密な重量測定や希釈操作及び同位体標準溶液の添加後の待ち時間などが影響し、約3日間の分析時間を要しますが、新たに開発した方法では、分析操作を6時間で完了することができ、迅速化を達成しました。本法を U 標準物質の年代測定に適用したところ、実際の精製日と測定誤差の範囲で一致する結果が得られました(図 10-3)。

現在は、本法のアイディアを放射線計測に適用した 方法及び従来法である同位体希釈質量分析法との比較実 験を、欧州共同研究センターとの共同研究として実施し ており、本法の確証試験を進めています。

●参考文献

Okubo, A. et al., Uranium Age-Dating Using In-Situ Isotope Ratios by Thermal Ionization Mass Spectrometry for Nuclear Forensics, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, vol.314, issue 1, 2017, p.231-234.

◆表紙デザインと画像◆

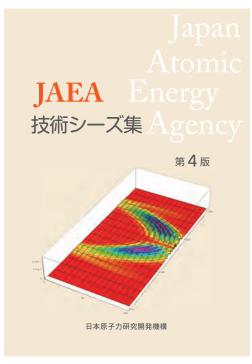
デザイン要素に取り入れています「正六角形」は玄武すなわち亀の甲羅を表し、長寿のシンボルとして古来より尊ばれた紋様です。なお、高速増殖原型炉「もんじゅ」と高温工学試験研究炉「HTTR」の燃料体も正六角形です。

画像は、機構論的数値解析手法 JUPITER によるペデスタル内部に堆積する各種溶融物の堆積挙動(左上)と 1F3 号機タービン建屋内 通路における放射性物質の可視化結果(右下)です。

前者は、炉心構成材の主な成分である二酸化ウラン、ステンレス鋼、ジルカロイなどの溶融物をペデスタル内部へ流入させ、その広がり、 堆積挙動を JUPITER により機構論的にシミュレーションした結果です(第 1 章 トピックス 1-1、p.11)。

後者は、高線量率環境の 1F 建屋内において、小型・軽量コンプトンカメラを用いて撮影し、放射性物質の広がりを色付けして可視化したものです。床面に這わされたホース付近に局所的な汚染を検知しました(第1章トピックス 1-7、p.17)。





原子力機構が保有する知的財産のうち、産業上応用可能な特許 技術やノウハウ等を解説した「JAEA 技術シーズ集 第4版」も ご参照ください。



CSR (Corporate Social Responsibility) を含む原子力機構全体の活動状況は、アニュアルレポート「原子力機構 2018」をご参照ください。

原子力機構の研究開発成果 2018-19

発 行 2018年10月

編集・発行 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

成果普及情報誌『原子力機構の研究開発成果』編集委員会

委員長 中島 宏

委 員 立松 研二 鈴玉 知明 大久保綾子 小山 真一 杉田 裕

江坂 文孝 社本 真一 森田 泰治 森 貴正 竹田 幸治 酒井 健二 髙田 孝 高田 昌二 浜田 広次 水野 崇

佐藤 和彦

印 刷 松枝印刷株式会社

本誌は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が年に一回発行する研究開発の成果普及情報誌です。 本誌の内容、入手及び著作権利用に関するお問い合わせは、下記までお願いいたします。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

研究連携成果展開部 研究成果管理課

〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2-4

TEL 029-282-6387 FAX 029-282-5920

e-mail ird-seika_shi@jaea.go.jp