

ISSN 2188-1464 eISSN 2188-1472



原子力機構の研究開発成果 2021-22



グラフェン (炭素原子 1 層でできた網) を酵素分子が 通り抜けるイメージ (トピックス 5-6)



地形・処分場深度変遷解析ツールを用いた処分場深度と地形変化の 計算例(トピックス 8-9)



はじめに

平素より、日本原子力研究開発機構(原子力機構)の研究開発につきまして、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。

原子力機構の使命は、我が国唯一の総合的な原子力研究開発機関として、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。当機構では、昨年来、新型コロナウイルス感染症 対策を徹底しつつ、テレワークなどの新しい働き方を取り入れながら、安全を最優先に、機構の使 命の実現に向けて業務に取り組んでいます。

当機構の業務のうち、福島第一原子力発電所事故への対応では、燃料デブリの分析に向けた準備 などの廃止措置と環境回復に向けた研究開発を行っています。安全研究・防災支援の分野では、原 子力安全の評価等の原子力安全規制行政への技術的支援のほか、先進的な原子力安全及び防災に関 する研究に取り組んでいます。高速炉・新型炉開発では、2050年カーボンニュートラルの実現に 向け期待される高温ガス炉技術の研究開発とともに、国の戦略ロードマップに則り高速炉開発に関 する技術的課題に取り組んでいます。また、核燃料サイクルに関する研究開発や放射性廃棄物の処 理処分技術に関する研究開発を進めており、廃止措置の分野では、バックエンドロードマップ等に 基づき、もんじゅ、ふげん、東海再処理施設等の廃止措置を進めています。原子力の基礎基盤研究 の分野では、新たな原子力利用の創出や、未踏の研究分野を開拓し、学術の進歩と最先端の科学技 術の振興を目指した取組を進めています。本年5月には、原子力機構が保有する大型の供用施設と 設備を外部の研究者が利用しやすいよう、関連情報と申請窓口をひとつにまとめたオープンファシ リティプラットフォームの運用を開始し、本年2月に運転を再開した研究用原子炉 JRR-3の外部 供用を開始するなど、産学官との一層の連携・協働に向けた体制整備に努めています。

原子力機構は、将来ビジョン「JAEA 2050 +」において、原子力以外の分野とも融合を進めるこ とで、気候変動問題の解決、エネルギーの安定確保、未来社会 Society5.0 の実現に貢献する"新原 子力"の実現を目指すことを掲げました。その実現に向けて昨年 11 月に改定した「イノベーショ ン創出戦略」に基づき、今後、幅広い分野との融合によるオープンイノベーションの取組を通じて、 社会の変革への貢献をより強力に推進してまいります。

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の成果をご紹介いたします。 本誌が、原子力機構の研究開発に対する理解の一助となれば幸いです。

引き続き、ご支援、ご指導を賜りますよう、よろしくお願いいたします。

2021年10月

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

児玉敏雄 理事長

原子力機構の研究開発体制と本誌の構成について

10

福島第一原子力発電所事故の対処に係る研究開発

ハイライト	英知を結集し、1Fの廃止措置と福島の環境回復に役立つ研究成果を創出する	13
1-1	燃料デブリの正体を明らかにする -制御棒由来の金属系燃料デブリの形成メカニズム解明- 墨田 岳大	14
1-2	燃料デブリの非破壊測定に向けた検出器開発 - CeBr ₃ を用いた高線量率測定用ガンマ線スペクトロメトリシステム- 冠城 雅晃	15
1-3	燃料デブリ中の放射性核種の存在状態を解明する -コンクリートとの高温反応生成物の構造と Sr、Ba の存在位置を明らかにする- 須藤 彩子	16
1-4	より安全な燃料デブリの臨界管理を実現するために -燃料デブリ環境を模擬する STACY 更新炉の炉心構成の最適化- 郡司 智	17
1-5	土壌に固着したセシウムの除去方法を開発 -汚染した土壌の処理に備えて- Xiangbiao Yin、駒 義和	18
1-6	圧力容器内部における炉心溶融挙動の解明に向けて -原子炉圧力容器の破損メカニズムの評価- 間所 寛	19
1-7	超音波で鉄筋コンクリートの腐食劣化を探る -廃止措置のための非破壊検査技術の開発に向けて- 古澤 彰憲	20
1-8	格納容器材料の腐食予測を目指す 放射線環境下での腐食データベースの構築 佐藤 智徳	21
1-9	光ファイバを用いて高放射線環境で放射線強度分布を測る 一光の波長成分に着目した放射線位置検出に関する新しいアプローチー 寺阪 祐太	22
1-10	大型台風がもたらした河口域の沈降粒子量への影響 - 2019 年の河口域での放射性セシウムの観測結果から- 御園生 敏治	23
1-11	AI が放射線マップを賢く作成 -福島での放射線測定のビッグデータを活用- 佐々木 美雪	24
1-12	空間線量率減少の予測精度の向上のために -環境要因による経時変化を新たなモデル式で再現- 安藤 真樹	25

1-13	河川でのセシウムの環境動態は堆積物の性質が握る -河川堆積物と放射性セシウムの吸脱着メカニズムを解明- 藤原 健壮	26
1-14	貯水池底質からの放射性セシウムの再移動 -流入水と放流水のマスバランス評価から得られた知見- 舟木 泰智	27
1-15	わずかな量の骨の ⁹⁰Sr をすばやく分析 -生体内硬組織試料中 ⁹⁰ Sr の ICP-MS 測定に向けた Sr レジンの適用性- 小荒井 -真	28
1-16	樹木中でセシウムはどのような状態で存在するのか -放射光を使ってセシウムが樹体内を移動しやすい理由を解明- 田中 万也	29
1-17	森林内の空間線量率を決めるガンマ線はどこからくるのか? -シミュレーションにより明らかにされた放射性物質の存在位置と空間線量率との関係- 金 敏植	30
1-18	コンクリートへのセシウム吸着挙動解明に向けて -機械学習分子動力学によるセメント水和物の高精度シミュレーション- 小林 恵太	31



ハイライト	原子力安全と原子力災害対応の継続的改善に向けて	32
2-1	原子力災害時に甲状腺被ばく線量を正確に把握する -小型で持ち運びが容易な甲状腺ヨウ素モニタの開発- 西野 翔	33
2-2	原子力事故時に汚染したモニタリングポストは正しく測れるのか?を考える -モニタリングポストの建屋汚染による線量率測定値への影響推定- 平岡 大和	34
2-3	飛翔体衝突による構造物の損傷を予測する ーより現実的条件を考慮した貫入現象の解析的影響評価ー 康 作夷	35
2-4	高レベル濃縮廃液蒸発乾固事故時の放射性物質の揮発挙動を評価する -揮発しやすい放射性ルテニウムについて亜硝酸による抑制効果を確認- 吉田 涼一朗	36
2-5	統計的機械学習で原子炉圧力容器の脆化を予測する -長期運転時の健全性評価のさらなる信頼性向上を目指して- 髙見澤 悠	37
2-6	炉内等廃棄物から漏出した核種の地下環境での動きを探る -地下水中のカルシウムの影響を考慮したニオブ吸着モデルの構築- 大平 早希	38

2-7	1 個のウラン粒子から隠れたウラン精製活動を検知 -精製時期を推定するための ²³⁰ Th/ ²³⁴ U 原子個数比分析技術- 鈴木 大輔	39
2-8	人に代わって事故現場へ入るロボットを操る -原子力災害対応用ロボット操作員の養成- 千葉 悠介	40

3	先端原子力科学研究	
ハイライト	未来を拓く先端原子力科学研究	41
3-1	多核子移行反応で明らかになる核分裂 -未開拓領域の核分裂研究に道- 西尾 勝久	42
3-2	ハイパー核「グザイ核」の質量を決定 -中性子星の構造を理解するための新たな知見- 谷田 聖	43
3-3	磁石を使った絶対零度近くへの冷却 -量子的に揺れる微小磁石が実現する極低温冷却材「イッテルビウム磁性体」- 常盤 欣文	44
3-4	放射線に負けない熱電発電の実現に向けて ースピンを利用した熱電発電素子の耐放射線特性- 岡安 悟	45
3-5	重水クラスターの低エネルギー振動モードの解明 -テラヘルツ・赤外吸収分光法と第一原理計算の活用- 山川 紘一郎	46
3-6	エキゾチックな<i>P。</i>の正体を探る ーコンパクトペンタクォークとハドロン分子が混在したハイブリット模型による解析ー 山口 康宏	47



ハイライト
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

48

高エネルギー中性子利用の促進に向けて -基礎科学や医療のための核反応データベースを開発-中山 梓介

49

4-2	機械学習を用いた核反応データ評価手法を提案 -高品質な高エネルギー核反応データベースの開発に貢献- 岩元 大樹	50
4-3	燃料デブリの化学状態を明らかにする -顕微ラマン分光法の適用可能性- 日下 良二	51
4-4	最新の計算科学を用いて原爆被爆者の線量を再評価 -日米共同研究の成果によりさらに精度の高い疫学調査が可能に- 佐藤 達彦	52
4-5	放射性物質の様々な条件の大気拡散計算を高速化 -大気拡散データベースシステム WSPEEDI-DB を開発- 寺田 宏明	53
4-6	高強度アルミニウム合金の自発的破壊現象の解明 −水素でアルミニウムがもろくなる原因の解明と、計算科学による高強度合金設計− 都留 智仁	54
4-7	陽子ビーム照射で材料はどの程度損傷するのか? -高エネルギー陽子ビームを用いる加速器駆動システムの安全に貢献- 明午 伸一郎	55

5 中性子及び放射光利用研究等

ハイライト	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	56
5-1	大強度陽子ビームの安定運転に向けて -入射用薄膜の状態監視装置の開発- Saha Pranab Kumar	57
5-2	鋳鉄が強化されるメカニズムを大強度パルス中性子ビームにより解明 -その場中性子回折実験により鋳鉄の組織挙動を原子配列の観測で調べる- Stefanus Harjo	58
5-3	幅広いエネルギー領域で高スピン偏極したパルス中性子ビームを実現する -偏極ヘリウム 3 を用いた高性能中性子スピンフィルターの開発と応用- 奥平 琢也	59
5-4	高温で実現する伝導電子スピンの奇妙な「短距離秩序」 −世界で初めて合成した新物質 Mn ₃ RhSi で見つかった謎の金属状態− 山内 宏樹	60
5-5	廃棄豚骨を利用した金属吸着剤の開発 -食品廃材を利用した安価で高性能な金属吸着技術を実現- 関根 由莉奈	61
5-6	速い分子は炭素原子の網を通り抜ける -酸素分子がグラフェンをすり抜ける現象を発見- 吉越 章隆	62

63

5-7 - 1	<mark>歯磁性半導体における磁化過程を原子レベルで解明</mark> −実用スピントロニクス材料開発への一歩、半導体が磁石になるメカニズムに迫る- ウ田 幸治
------------	---

6	高温ガス炉水素・熱利用研究	
ハイライト	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	64
6-1	高温ガス炉事故時の詳細な熱流動挙動を予測する -高温ガス炉の事故時空気侵入挙動評価手法の開発- 青木 健	65
6-2	被覆燃料粒子の健全性を維持するための核設計上の方針を提示 -燃料核移動速度を低減する理想出力分布条件の導出- 沖田 将一朗	66
6-3	プルトニウムを安全に減らす高温ガス炉の実現に向けて - 模擬燃料核の微細構造の知見の取得 相原 純	67
6-4	IS 法で用いる金属部材の耐食性向上を目指して -硫酸分解ガス環境でセラミックスと同等の耐食性を有する鋼材を発見- 広田 憲亮	68
6-5	IS 法の水素製造効率向上に向けて -シリカ膜反応器を用いてヨウ化水素分解率を改善- Odtsetseg Myagmarjav	69
6-6	IS 法の主反応の省エネルギー化に成功 -ブンゼン反応過電圧を低減する膜・電極を開発- 田中 伸幸	70
6-7	臨界制御棒位置計算作業の時間短縮化に向けて -臨界制御棒位置を自動で探索するユーティリティツールの開発- Hai Quan Ho	71



ハイライト)高速炉サイクルの研究開発基盤の整備

72



中性子で分離塔内部の吸着元素を見てみよう - 共鳴中性子イメージングによる分離塔内部元素の非破壊可視化-宮﨑 康典

73

7-2	大型高速炉の出力分布の計算精度を改善 -制御棒計算手法の高度化研究- 滝野 -夫	74
7-3	高速炉の炉心崩壊事故時の溶融物質の挙動評価を目指して -制御棒溶解材の基礎物性データベース整備- 高井 俊秀	75
7-4	耐照射性に優れる炉心材料の最適な合金を目指して -材料劣化因子である照射点欠陥挙動の定量評価技術の開発- 関尾 佳弘	76
7-5	3 価マイナーアクチノイドを回収するための抽出クロマトグラフィ分離法の改良と実証 - 効率の高い MA(III)/Ln(III) 分離プロセス- 渡部 創	77

8	バックエンド対策及び再処理技術に係る研究開発	
ハイライト	原子力施設、再処理施設の廃止措置及び廃棄物の処理処分に向けて	78
8-1	研究施設等廃棄物の埋設事業を円滑に進めるために -重要核種選定に必要な「基準線量相当濃度」の整備- 菅谷 敏克	80
8-2	固体吸着材による廃抽出溶媒からの核燃料物質の回収 -模擬廃抽出溶媒におけるイミノ二酢酸基の錯形成反応の調査- 荒井 陽一	81
8-3	難処理廃棄物を安定な廃棄体にする -バイヤー法を用いた放射性アルミニウム廃棄物処理技術の検討- 関 美沙紀	82
8-4	プルトニウム取扱施設の安全性向上に向けて -グローブボックス窓板用火災対策シートの開発- 川崎 浩平	83
8-5	坑道掘削で生じた割れ目を直接見る -樹脂注入による掘削損傷領域の割れ目の可視化技術- 櫻井 彰孝	84
8-6	坑道掘削に伴う不飽和領域形成の影響因子 -溶存ガス量と岩盤の透水性に着目した解析的検討- 宮川 和也	85
8-7	ミクロからマクロへ:鉱物の年代測定から山地の形成過程に迫る -低温領域の熱年代学的手法から見えた奥羽脊梁山地の隆起形態- 福田 将眞、末岡 茂	86
8-8	地質試料の放射性炭素年代測定に必要な試料量を低減 -従来法の 20 分の 1 となる微少量試料の前処理手法の構築- 渡邊 隆広	87

8-9	地形や処分場深度の変化を考慮した安全性の評価 -地層処分の安全評価のための地形・処分場深度変遷解析ツールの開発- 山口 正秋	88
8-10	電気化学的手法でオーバーパックの腐食挙動を評価する - 塩水環境における緩衝材共存下での炭素鋼の不働態化条件の探索 北山 彩水	89

9	システム計算科学研究	
ハイライト	原子力研究開発を支える計算科学技術	90
9-1	環境評価基準を満たす汚染物質拡散シミュレーション -メートルスケールのリアルタイム風況解析のアンサンブル計算を実現- 小野寺 直幸	91
9-2	富岳と Summit を用いたエクサスケール流体解析 -メニーコア CPU と GPU で共通に利用可能な混合精度行列解法の開発- 井戸村 泰宏	92
9-3	従来の量子力学概念を越えた先に見えた特異な現象「フェルミアーク」を理論的に予言 - 重元素化合物内での強く影響しあう多数の電子の挙動を解明する新手法の開発- 永井 佑紀	93
9-4	アルミニウム合金の水素脆化防止 -合金内部の金属間化合物の中から水素をよく吸うものを計算で特定- 山口 正剛	94



田崎 真樹子

ハイライト	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
10-1	核兵器と核テロの無い世界の実現に向けて 一非核化の事例調査と要因分析-	96

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基盤の 構築を進めています。
- 2. 安全研究・防災支援部門 安全研究センター及び原子力緊急時支援・研修センターは、原子力科学研究所に おいて原子力発電所をはじめとする原子力施設に関する国の安全規制を支援する研究を、また、ひたちなか 市において緊急時のモニタリングと防護措置に関する研究開発を進めています。
- 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、新物質の創製、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、7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 な基礎・基盤的な研究や技術開発を進めています。
- 5. 原子力科学研究部門 物質科学研究センター及び J-PARC センターは、原子力科学研究所及び J-PARC に おいて中性子を利用する研究を進めています。また、物質科学研究センターは、播磨放射光 RI ラボラトリー において放射光を用いた研究も進めています。



組織体制図

2021年10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 プラント技術イノベーション推進室、炉設計部、燃料サイクル設計室、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、青森研究開発センター、核燃料サイクル工学研究所及び人形峠環境 技術センター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、東濃地科学センターにおいて 地質環境の長期安定性評価解析技術等の整備を、幌延深地層研究センターと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、それぞれ進めています。このほか、核燃料サイクル工 学研究所において核燃料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及び計 算科学基盤技術開発、並びに計算機及びネットワークの運用・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において IAEA 保障措置や核鑑識・ 検知技術開発、政策的な調査・分析、アジア地域を中心とした人材育成支援、CTBT 国際監視施設等の暫定運 用及び核物質輸送に係る支援等、国内外の核不拡散・核セキュリティ強化に資する活動を行っています。



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の廃止措置と福島の環境回復に役立つ研究成果を創出する



図 1-1 中長期計画に基づく福島第一原子力発電所事故の対処に係る研究開発に関する取組み

原子力機構は日本で唯一の原子力に関する総合的な 研究開発機関として、東京電力福島第一原子力発電所 (1F)事故直後から、その役割を果たすために福島県内 での活動を開始しました。福島研究開発部門を中核に研 究開発拠点の整備を進めながら、1F 廃止措置及び周辺 地域の環境回復に係る研究開発に取り組んでいます。現 在は、1F 事故の対処に係る研究開発として主に図1-1 に示す分野での取組みを実施しています。

福島研究開発部門に設置している廃炉環境国際共同 研究センター (CLADS)の国際共同研究棟、楢葉遠隔 技術開発センター (NARREC)、大熊分析・研究センター の三つの施設は、福島イノベーション・コースト構想 (廃 炉分野)の一翼を担い、研究開発を通じて 1F 廃止措置 に貢献しています。また、CLADS は、福島県が整備 した福島県環境創造センター (三春町及び南相馬市)に 研究室を設置し、福島県及び国立研究開発法人国立環境 研究所との三者連携を通じて福島の環境回復に関する研 究開発等に取り組んでいます。さらに原子力機構全体 で 1F 廃止措置や環境回復に取り組むため、福島研究開 発部門以外の部門との連携にも注力するとともに、産学 官連携、諸外国の研究機関等との国際協力を進め、中長 期的な研究開発及び関連する活動を行う人材の育成等も 行っています。

国による『1F 廃炉の中長期ロードマップ』、原子力 捐害賠償・廃炉等支援機構 (NDF) が策定する 『戦略プ ラン』において、東京電力や 1F 廃炉関連企業が応用研 究から実用化研究を行う一方で、原子力機構が基礎・基 盤研究を担うことが期待されており、これらの研究開発 活動の連携を進める必要があります。福島研究開発部門 では、実施する研究開発が真に現場のニーズに基づくも のとなるよう、東京電力、国の関係機関、1F 廃炉関連 企業等のステークホルダーと調整の上、『基礎・基盤研 究の全体マップ』を策定し、最新の現場ニーズを踏まえ て毎年アップデートしています。また、環境回復に係る 研究開発では、『福島復興再生基本方針』等の国の政策 や社会のニーズを踏まえつつ研究開発を行い、成果の公 表及び自治体への技術提供を通じて住民の帰還や産業の 復旧・復興の促進、住民生活の安全・安心の確保に貢献 しています。

福島研究開発部門では、今後も国内外の英知を結集 し、1F 廃止措置や環境回復のための研究開発を進め、 得られた成果を国内外に積極的に発信していきます。ま た、地域の企業や研究・教育機関などとのネットワーク の構築を進めることで、地域産業の活性化や人材育成に つなげ、連携のプラットフォームとして活躍することで 福島復興に貢献していきます。

1 燃料デブリの正体を明らかにする –制御棒由来の金属系燃料デブリの形成メカニズム解明–



図 1-2 作製した金属系燃料デブリ要素試料断面の反射電子像

左から右に試料中の炭化ホウ素 (B₄C) 濃度が増加しています。青矢印で示した暗い部分が "(Cr,Fe)₂B 相" (クロム、鉄、ホウ 素から成る金属間化合物)の晶出物、水色矢印で示した明るい部分が "γ-Fe 相" (鉄、ニッケル、クロムから成る金属相)、緑矢 印で示した灰色の部分が "(Cr,Fe)₂₃(C,B)₆ 相" (クロム、鉄、炭素、ホウ素から成る金属間化合物)です。



図1-3 ステンレス鋼と炭化ホウ素を主成分とする金属系燃料デブリの形成メカニズム (a)炭化ホウ素濃度が低い(<3%-B₄C)場合、(b)炭化ホウ素濃度が高い(≧3%-B₄C)場合です。材料中の炭化ホウ素濃度 の違いにより初めに晶出する相(初晶)及び最終的な組織が異なります。濃度は質量%です。

私たちは、東京電力福島第一原子力発電所(1F)過 酷事故によって生成し、現在も原子炉内に残存する"燃 料デブリ"に関する研究を行っています。"燃料デブリ" とは核燃料や金属材料、コンクリートなどが高温で反応・ 溶融した後に冷えて固まったものです。

燃料デブリの取出しや処置方法を検討する上で、その 物理的・化学的性状は重要な指標となります。いまだその 全容は明らかになっていませんが、燃料デブリはその主成 分を踏まえて、次のように分類できると考えられています。

- ●ステンレス鋼や炭化ホウ素、金属ジルコニウムを主
 成分とする金属系燃料デブリ
- ●ウランやジルコニウム、ステンレス鋼等の酸化物を 主成分とする酸化物系燃料デブリ
- ●ケイ酸等を主成分とするコンクリート系燃料デブリ

1F では制御棒材料に炭化ホウ素を使用していたこと から、鉄鋼材料との共晶溶融反応(材料の融点よりも低 い温度での液化現象)により、炭化ホウ素成分を含んだ 金属系燃料デブリが多く存在すると考えられています。 ところが過去に起きた原子炉過酷事故(米国スリーマイ ル島原子力発電所や旧ソ連チェルノブイリ原子力発電 所)では、制御棒等の材料や炉型が異なるため、炭化ホ ウ素を含む金属系燃料デブリは生成していません。

そこで私たちは、"金属系燃料デブリはどのようにし てできたのか?"という形成メカニズムを明らかにす るために、制御棒の構成材料であるステンレス鋼と炭化 ホウ素を原料として金属系燃料デブリの要素試料を作 製し分析しました。図1-2は作製した試料断面の反射 電子像です。試料中の炭化ホウ素濃度の増加とともに、 "(Cr,Fe)₂B相"(クロム、鉄、ホウ素から成る金属間化 合物)が大きく、多量に晶出することが分かりました。

詳細に分析したところ、この金属系燃料デブリは 図 1-3 のような過程を経て形成することが分かりまし た。材料中の炭化ホウ素濃度が低い場合は、高温の溶 融金属から" γ -Fe相"(鉄、ニッケル、クロムから成 る金属相)が初めに晶出し、その後"(Cr,Fe)₂B相"が 晶出します(図 1-3 (a))。炭化ホウ素濃度が高い場合 は、初めに"(Cr,Fe)₂B相"が晶出し、その後" γ -Fe相" と"(Cr,Fe)₂₃(C,B)₆相"(クロム、鉄、炭素、ホウ素か ら成る金属間化合物)が晶出します(図 1-3 (b))。また、 この形成メカニズムは、試料中の炭素、ホウ素、クロム の挙動から説明できることを明らかにしました。

このように、私たちは、材料学的観点に基づいた基 礎研究から、燃料デブリの正体やその特性を実験に基づ いて明らかにしようとしています。

本研究の一部は、日本学術振興会科学研究費補助金 若手研究(No.JP20K15209)「高精度かつ簡便な金属 系燃料デブリ中ホウ素濃度定量法の開発」の助成を受け たものです。

(墨田 岳大)

●参考文献

Sumita, T. et al., Solidification and Re-Melting Mechanisms of SUS-B₄C Eutectic Mixture, Journal of Nuclear Materials, vol.543, 2021, 152527, 15p.

1-2 燃料デブリの非破壊測定に向けた検出器開発 - CeBr₃を用いた高線量率測定用ガンマ線スペクトロメトリシステム-



図 1-4 開発した高線量率測定用ガンマ線スペクトロメトリシ ステム

(a) 小型軽量な測定システムを開発しました。(b) 高線量率 測定に向け開発した光電子増倍管へ、シンチレーターが組み込 める構造になっています。(c) 微小な立方体 (5 mm × 5 mm × 5 mm) の CeBr₃ を密封したパッケージを構築しました。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)では、廃炉工程 の最難関に位置づけられている原子炉格納容器内からの 燃料デブリの取出しに向けた準備が進められています。 燃料デブリは、核燃料と構造材等が高温で溶けて混ざり 冷えて固まったもので、組成が不均一なため、保管や処 理処分の方法を決めるためには非破壊測定等を用いて燃 料デブリの特性を把握する必要があります。通常の原子 力施設では、燃料デブリのような高放射線を有する核燃 料物質を測定する場合、半導体検出器に遮蔽を施した大 型な測定装置が利用されます。しかし、1Fは、事故によ る損傷や瓦礫により狭窄部が多く、さらに、高線量率下で の作業では遠隔機器を利用する必要があります。そこで、 私たちは、高線量率下でガンマ線スペクトルを取得でき る小型軽量な測定システムを開発しました(図1-4(a))。

当該システムでは、半導体検出器よりも高線量率測 定に有利なシンチレーター方式を採用しました。CeBr₃ は、発光時間が短く (20 ns 以下)、エネルギー分解能が 良く (4% 程度)、高線量率下でのガンマ線スペクトル測 定に適したシンチレーターです。私たちは、CeBr₃を 微小な立方体 (5 mm × 5 mm × 5 mm) に加工し、潮解 を防ぐために密封しました (図 1-4(c))。これを、高線 量率測定のために開発した光電子増倍管と組み合わせ て、センサーユニットを製作しました (図 1-4(b))。さ



図1-5 ガンマ線スペクトル分布 (a)¹³⁷Cs 照射場と(b)⁶⁰Co 照射場で、それぞれ 1407 mSv/h 並びに 2221 mSv/h までの線量率までのガンマ線スペクトル測 定をして、エネルギー分解能を評価しました。

らに、当該システムの信号処理では、1Fの高線量率かつ多様な測定環境を考慮し、デジタル信号処理を採用することで高速かつ柔軟な信号処理を可能としています。

当該システムの高線量率下での性能を調べるため、 137 Cs並びに 60 Coの放射線照射場において、線量率ごとのガンマ線スペクトルを取得しました(図1-5)。 (a) 137 Cs 照射場では、線量率が26 mSv/hから1407 mSv/hで照射したところ、エネルギー分解能(662 keV)は26 mSv/hで4.2%、高線量率の1407 mSv/hでは5.5%でした。同様に、(b) 60 Co 照射場では、22 mSv/hから2221 mSv/hまで照射して、エネルギー分解能(1333 keV)は、22 mSv/hで3.1%、高線量率の2221 mSv/hで4.2%になりました。上記のエネルギー分解能は、使用済核燃料や放射性廃棄物の非破壊測定において測定対象核種となる 134 Cs、 137 Cs、 60 Co、 154 Euを識別するために必要なエネルギー分解能を満たしています。

本成果は、東京大学並びに産業技術総合研究所との 共同研究で実施し、今後、燃料デブリの迅速な非破壊測 定の実現に向けて研究開発を継続し、1Fの安全かつ円 滑な廃止措置の実現に向けて貢献していきたいと考えて います。

(冠城 雅晃)

●参考文献

Kaburagi, M. et al., Gamma-ray Spectroscopy with a $CeBr_3$ Scintillator under Intense γ -ray Fields for Nuclear Decommissioning, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, vol.988, 2021, 164900, 8p.

-3 燃料デブリ中の放射性核種の存在状態を解明する ーコンクリートとの高温反応生成物の構造と Sr、Ba の存在位置を明らかにするー





図1-7 MCCI 生成物の階層構造のイメージ (U,Zr)O2 粒子は下方に沈みやすく、一方で Sr、Baを含むケイ酸ガラスは上方で凝固し やすいと予測されます。落下した溶融物が急 冷され、上部にできるクラストには気泡や亀 裂があり、ケイ酸ガラス層に冷却水が接触す る可能性が考えられます。

ケイ酸ガラス(Sr、Ba 含有)

図1-6 (a) 模擬 MCCI 生成物イメージ及び外観写真(b) 試料切断面金相写真 (c) 溶融部上方電子顕微鏡写真(d) 溶融部下方電子顕微鏡写真 コンクリート片上に炉心成分混合物を装荷し、集光加熱により MCCI を模擬し ました。冷却後の試料を切断し、断面を観察したところ、試料溶融部上方では 暗いケイ酸ガラス相(Sr、Ba含有)が多く、溶融部下方では明るい(U,Zr)O₂ 粒 子が多い状態であることが確認できました。

東京電力福島第一原子力発電所事故では、核燃料や炉 心構造材等から構成される溶融物が格納容器床面に流下 し、コンクリートと高温で反応(Molten Core-Concrete Interaction: MCCI)したと推測されます。MCCI 生成 物は事故後これまでに冷却水と接触し続け、表面から水 溶性の放射性核種が少しずつ溶け出し、建屋内に徐々に 拡散している可能性が考えられます。MCCI 生成物の構 造や、放射性核種の凝集位置を把握することは、建屋内 での放射性核種の凝集位置を把握することは、建屋内 での放射性核種の移行挙動を知るために重要です。そこ で本研究では、核分裂生成物(FP)の中でも高い放射能 を持つ Sr と Ba に着目し、非放射性の Sr と Ba を含む 模擬 MCCI 生成物を高温で作製することで、MCCI 生 成物の構造と Sr 及び Ba の凝集位置を実験により調べ ました。

図 1-6(a)に模擬 MCCI 生成物のイメージと外観写真を 示します。ペレット状に成型した炉心成分の模擬混合物 ($U_{0.5}Zr_{0.5}O_2$ 、 ZrH_2 、ステンレス鋼、 B_4C 、Mo-Ru-Rh-Pd 系合金、 $BaCO_3$ 、 $SrCO_3$)をコンクリート片上に置 き、集光加熱装置でペレット上面に集光し加熱すること で、溶融した炉心成分とコンクリートが高温で反応する MCCI を模擬しました。

冷却後の試料を鉛直方向に切断し、断面を光学顕微 鏡で観察した結果を図1-6(b)に示します。試料上部の 灰色の領域では、炉心成分がコンクリート成分とともに 溶融・固化しています。その下部のコンクリート部分は溶 融していませんが、熱で劣化し脆くなっています。溶 融部の上方及び下方の電子顕微鏡写真を図1-6(c)及び (d) に示します。主要な生成相は、暗く見えるケイ酸ガ ラスと明るく見える (U,Zr)O₂ 粒子です。元素分析の結 果、ケイ酸ガラス相には Sr、Ba がそれぞれ平均 3at%、 2at% の比率で含まれ、(U,Zr)O₂ 粒子には Sr と Ba は 含まれないことが分かりました。今回の実験系につい て熱力学的な解析を行ったところ、Sr、Ba は (U,Zr)O₂ よりケイ酸ガラス中に移行するほうが安定であることが 分かりました。

上方では $(U,Zr)O_2$ が 2 ~ 3 µm の微細粒子としてガ ラス中に析出していますが、下方では 10 ~ 20 µm の比 較的大きな粒子として析出し、また領域に占める割合も 多くなっています。これは、比重の大きい $(U,Zr)O_2$ 粒 子が溶融凝固の過程で下方に沈みやすく、その結果 Sr、 Ba を含むケイ酸ガラス相の多くが上部で固化したと考 えられます。

今回の結果から予測される MCCI 生成物の模式図を 図 1-7 に示します。現状の事故シナリオの見解として、 1F 格納容器底部に堆積した実際の燃料デブリ表面には、 水で急速に固まった、コンクリート成分を含まないクラ ストが形成されたと予想されています。一般的に急冷さ れたクラストには亀裂や気泡 (空洞) ができやすく、Sr と Ba を含む上方のケイ酸ガラス層に冷却水が接触しや すい状態であると考えられます。今後はケイ酸ガラス中 に含まれる Sr と Ba の溶出挙動について検討し、建屋 内の放射性核種の移行挙動の把握に役立てていきたいと 考えています。

(須藤 彩子)

●参考文献

Sudo, A. et al., Experimental Evaluation of Sr and Ba Distribution in Ex-Vessel Debris under a Temperature Gradient, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.58, issue 4, 2021, p.473-481.

4 より安全な燃料デブリの臨界管理を実現するために –燃料デブリ環境を模擬する STACY 更新炉の炉心構成の最適化–



図1-8 STACY 更新炉の概念図と最適化パラメータ STACY 更新炉(臨界集合体)のUO2燃料棒は格子板で支持されます。中央の格子にUO2燃料棒とコンクリート棒、外側の格子には臨界状態にするためのUO2燃料棒のみを装荷します。中央の格子間隔は燃料デブリの置かれている中性子減速条件を模擬するため任意に調整します。

東京電力福島第一原子力発電所事故では、核燃料が 溶融し、鉄やコンクリートなどの構造材を含んだ燃料デ ブリが生じていると考えられています。燃料デブリの取 り出しとその後の管理に必要な臨界安全の観点から、そ の臨界特性をコンピュータ解析により評価する研究が進 められています。解析評価は臨界実験で確認する必要が ありますが、燃料デブリの臨界実験による検証データが ありません。そこで私たちは、組成の明らかな模擬燃料 デブリと定常臨界実験装置 STACY 更新炉でその臨界 特性を把握することを目指しています。

燃料デブリにコンクリートが含まれる場合、コンク リートそのものが水分を含んでいることから、周囲の水 とともに中性子減速に寄与する一方で、水以外のコンク リートの成分である Mg、Si、Al、Ca などが臨界特性 に与える影響も評価する必要があります。事前の摂動計 算の結果、Si の中性子捕獲反応が臨界特性に与える影 響が顕著だったため、これを効率的に観測できるような 炉心構成が必要だと分かりました。そのためには模擬燃 料デブリを出来るだけ多く用いることも考えられます が、組成によっては調製が技術的に困難であること、実 験後に大量の廃棄物が生じることなどの理由から、UO₂ 燃料棒とコンクリート棒の組合せによって燃料デブリを 模擬することにより、Si の感度が少量のコンクリート 試料から最大限に得られる炉心構成を構築することを目 指しました。



図1-9 炉心構成の最適化結果の例

最適化を行った炉心構成では、模擬燃料デブリを大量に装荷した最も理想的な場合に対して、全体の Si 感度は下がるものの、 試料あたりの感度は高く、現実的に構築可能な炉心構成が得られました。この他に、P1 = 1.00 cm、1.50 cm の場合についても 最適化を実施しています。

図1-8に示すように、燃料棒は炉心タンク内に設置 された格子板により所定の間隔で配列されます。この格 子間隔を変えることで、燃料デブリが置かれている様々 な中性子減速条件を模擬することが可能です。最適化に おいては、燃料棒本数を減らすことができる2領域炉 心構成を考案し、中央の領域に UO。燃料棒とコンクリー ト棒を、その外側には UO2 燃料のみを入れ、双方の格 子間隔 (P1、P2) と領域の大きさ (D1、D2)、コンクリー ト棒の割合(w)をパラメータとしました。このうち燃 料デブリの中性子減速条件である P1 を臨界性が大きく なるような任意の値とした場合に、Si の中性子捕獲反 応の感度が最大となるように P2、D1、D2、wを最適 化しました。図1-9に炉心構成最適化の結果の例を示 します。最適化後の炉心構成は、大量の模擬燃料デブリ を調製して装荷した最も理想的な場合に比べ、全体の Si 感度は下がるものの、試料1本当たりで得られる感 度は2.74 倍となり、現実的に構築可能な炉心構成が得 られました。本試験データは、Si を含むコンクリート 成分が臨界特性に与える効果の把握に大きく寄与し、廃 炉作業時の燃料デブリの取扱いにおける臨界評価手法の 整備に役立つことが期待されます。

本成果は、原子力規制委員会原子力規制庁からの受 託研究「東京電力福島第一原子力発電所燃料デブリの臨 界評価手法の整備」事業の成果の一部です。

(郡司 智)

●参考文献

Gunji, S. et al., Criticality Configuration Design Methodology Applied to the Design of Fuel Debris Experiment in the New STACY, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.58, issue 1, 2021, p.51-61.

1-5 土壌に固着したセシウムの除去方法を開発 - 汚染した土壌の処理に備えて-



図1-10 土壌から Cs を除去するための水熱処理試験装置 土壌粒子を入れた反応槽を恒温槽に設置し、Cs を脱離するため の水溶液を連続的に流通させる試験を行いました。Cs は、装置 から排出される水溶液に回収されます。



図1-11 汚染土壌から放射性 Cs を回収する実験の結果 反応温度が 200 ℃を超えると土壌に残る放射能が大きく低下し、 高い Cs の除去率が得られます。

東京電力福島第一原子力発電所とその周辺環境の土 壌は、事故によりセシウム 137 (¹³⁷Cs) などの放射性核 種で汚染しました。発電所内外の汚染土壌は保管管理さ れており、将来の処分の検討に備え、有望な減容技術を あらかじめ用意しておく必要があります。放射性 Cs は、 土壌の一部成分に強く吸着することが知られ、ふるい分 けにより粗く分離できますが、さらに高い効果を得るた めには化学処理が不可欠です。

Cs は土壌粒子の層状構造の中に1価の陽イオンとし て安定に保持されています。強く結合した Cs イオンを 脱離させるには、水の沸点を超える高い温度で Cs と交 換する陽イオンを高濃度に含む溶液と作用させることが 必要となります。加圧した条件 (水熱条件) において土 壌粒子と水溶液を接触した後に、粒子を Cs を含む水溶 液から分離しますが、室温まで冷却してから分離する方 法では、再び Cs の吸着が起こり除染の効果が損なわれ てしまいます。Cs を土壌から除去するためには、加圧下 で土壌粒子と水溶液を接触させ、かつ、Cs を含む水溶 液から分離する工学処理を実現しなければなりません。

工学的な原理実証のため、高温高圧下で連続的に固体(土壌粒子)と液体(水溶液)を接触させ、Csを除去 する試験を行いました。土壌粒子を入れた反応槽を恒



図 1-12 Cs を吸着したバーミキュライトの水熱条件下での Mg による置換

Cs を吸着したバーミキュライトでは、Cs 吸着層(層間距離 10.7 Å (=10⁻¹⁰ m))のピークがカリウム(K)吸着層(10.1 Å)とともに 見えていますが、150 ℃以上での0.01 M 塩化マグネシウム溶液によ る水熱処理で Cs 吸着層のピークが消失しています。



図 1-13 土壌粒子の層状構造に安定化された Cs を Mg により 置換して脱離する反応のモデル

層に捉えられた Cs イオン (1 価) を Mg イオン (2 価) により置 き換える反応は温度依存性があり、高温で効率的に進行します。

温槽に設置し、これに水溶液を連続的に流通する装置 を製作して用いました(図1-10)。陽イオンとして過去 の研究により有効であることを見いだしたマグネシウ ム(Mg)溶液を用いて、実際の汚染土壌からのCs除 去を試みたところ、反応温度が200℃を超えると土 壌に残る放射能が大きく低下し、高いCsの除去率が 得られました(図1-11)。Csを吸着したバーミキュラ イトからMgイオンと置換してCsが除去される様子 をX線回折により調べたところ、25℃ではMg吸着層 (14.3 Å(=10⁻¹⁰ m)のピーク)が認められないのに対し、 150℃以上ではCs吸着層(10.7 Å)が消失し、Mgと Kに由来するピークのみが観察されました(図1-12)。 バーミキュライトの層状構造に捉えられたCsをMgと 置き換えるとき、200℃以上の温度においてより効率 的に達成できるものと考えられます(図1-13)。

本法は化学的な処理技術として効果的かつ実用的で あると考えられ、土壌除染のための有望な候補技術にな ると期待できます。

本研究は、東京工業大学との共同研究「亜臨界水洗 浄と固相抽出を利用した固体廃棄物からの放射性物質の 回収」の成果の一部です。

(Xiangbiao Yin、駒 義和)

●参考文献

Yin, X., Koma, Y. et al., Selective Removal of Radiocesium from Micaceous Clay for Post-Accident Soil Decontamination by Temperature-Controlled Mg-Leaching in a Column, Journal of Hazardous Materials, vol.387, 2020, 121677, 10p.

1-6 圧力容器内部における炉心溶融挙動の解明に向けて - 原子炉圧力容器の破損メカニズムの評価-



図1-14 解析コードによる2号機炉心温度分布 SA 解析コード RELAP/SCDAPSIM を用いて、事故進展解析を 実施しました。事故時における RPV 及び PCV 圧力の計測値と、 解析により得られた値を比較して、下部プレナムへの炉心物質 移行についての感度解析を実施し、移行のタイミングと物量に ついて推定しました。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)の廃止措置 において、原子炉圧力容器(RPV)内部及び格納容器 (PCV) 内部の燃料デブリや核分裂生成物の状況を推定・ 把握することが必要です。事故後の原子炉の内部は線量 が高く、炉心損傷の全容を把握することは困難ですが、 2号機では PCV 内部調査が少しずつ進んでおり、ペデ スタル (RPV を支持する円筒状の構造物) 内部の状態 が次第に分かってきています。ペデスタル内部の構造物 が比較的健全であることから、RPV からペデスタル内 部に流出した燃料デブリは比較的低温であったと予想さ れ、酸化物の核燃料が完全に溶融する温度には至ってい なかったと推定されています。従来の一般的な理解では、 まず、RPV 下部ヘッドにおいて高温の酸化物溶融プー ルが形成され、RPV は熱的及び機械的な負荷によって 破損に至ると考えられていましたが、最近の現場情報や 解析結果によると、2 号機では下部ヘッド内部に堆積し た燃料デブリのうち、融点の低い金属成分が先に溶融し、 酸化物成分が固体のまま固液混合状態となって金属溶融 プールが形成され、RPV が破損したものと考えられて います。

そこで、1F 特有の破損メカニズムを解明するため、 まず、過酷事故解析(SA)コードによる2号機事故進 展解析を実施し、炉心領域から下部ヘッドに移行した炉 心物質量の推定を行いました。図1-14に解析結果によ る事故時の炉心の温度分布を示します。2011年3月14 日午後9時から炉心温度が上昇し、午後10時には炉心 領域の中心部温度が2500℃を超え、炉心溶融プールの 形成を予測しています。その後、数時間かけて炉心物質 の約6割が下部ヘッド内部に移行したと推定していま



図1-15 LIVE-J1 試験における温度分布* RPV下部ヘッドを模擬したLIVE試験装置の温度分布を示します。 固体粒子状態で装荷した模擬物質は、下部ヘッド底部から溶融を 開始し、溶融プールが形成されました。溶融プールは下部から次 第に上部及び水平方向に発達し、最終的には壁側部に最も熱的負 荷がかかることが分かりました。

す。その後、下部ヘッドの破損によって燃料デブリはペ デスタル内部に落下しますが、下部ヘッドの損傷部位や 損傷挙動については明らかではありません。

そのため、独・カールスルーエ工科大学(KIT)と共 同で、融点の異なる二つの模擬物質(燃料デブリの酸化 物成分・金属成分をセラミック・硝酸塩でそれぞれ模擬) を用いて下部ヘッドにおける固液混合プールの熱的挙動 を把握する実験を実施しました。実験装置は1F実機と 1:5.5のスケールの下部ヘッドを模擬したLIVE試験 装置(KIT所有)を用い、固体粒子の模擬物質(セラミッ ク約245 kg及び硝酸塩約80 kg)を装荷し、容器内 部に設置されたヒーターによる加熱により崩壊熱を模擬 しました。境界条件については、試験装置上部は断熱、 側部は空気による自然対流としました。

図1-15に試験結果として温度分布の変化を示しま す。実験では下部から溶融が始まり、その後、溶融プー ルは上部及び水平方向に発達しました。固液混合の状態 でも対流による水平方向の熱伝達はある程度生じるた め、容器側部への熱負荷が大きくなることが実験で示さ れました。今後、数値解析と組み合わせることで、2号 機の圧力容器の破損メカニズムの解明に貢献したいと考 えています。

本研究の一部は、原子力機構と KIT との共同研究に より得られた成果です。

(間所 寛)

* 間所寛ほか,下部ヘッド固液混合溶融プールの熱的挙動に関す る LIVE 試験,日本原子力学会 2021 年秋の大会予稿集, online, 2021, 2J08.

●参考文献

Madokoro, H. et al., Estimation of the Core Degradation and Relocation at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Unit 2 Based on RELAP/SCDAPSIM Analysis, Nuclear Engineering and Design, vol.376, 2021, 111123, 15p.

·7 超音波で鉄筋コンクリートの腐食劣化を探る - 廃止措置のための非破壊検査技術の開発に向けて-



図 1-17 鉄筋とコンクリート間の密着の程度による鉄筋を伝 播する超音波の伝播形態の違い



図 1-18 鉄筋コンクリートの鉄筋を伝播する超音波を測定す る実験装置と使用した試験体

東京電力福島第一原子力発電所の廃止措置は、長期の プロジェクトです。安全で円滑な廃止措置を完遂するため には、地震や水素爆発で損傷した建屋構造物等の健全性 を維持することが不可欠です。また、今後の地震等による さらなる損傷を防ぐためにも建屋構造物等の劣化状況を簡 便に測定・評価できる技術を確立することが重要です。炉 内への海水注入が実施されたことや建屋が雨ざらしである ことから、私たちは特に鉄筋コンクリート構造物の腐食劣 化に焦点をあて、非破壊的に評価可能かを調査しました。

鉄筋コンクリートの腐食劣化の過程は図1-16のよう に進展します。健全な鉄筋コンクリートは、鉄筋と周囲 のコンクリートが強固に密着しており、腐食劣化が進展 すると密着の程度が低下します。鉄筋を伝播する超音波 は、鉄筋とコンクリートとの密着の程度によりその波形 が異なります。したがって、その波形の変化を捉えるこ とで鉄筋コンクリートの腐食劣化を検出可能であると考 え(図1-17)、私たちは図1-18に示す実験装置を用いて、 鉄筋コンクリート試験体の劣化の程度と超音波の波形の 変化の相関を調べる試験を行いました。また、鉄筋コン クリートの劣化は、試験体を電解腐食(通電することで 腐食を生じさせる)することで模擬しました。

実験では、遠方に非接触で超音波を励起可能なナノ 秒パルスレーザー源を用い、鉄筋コンクリート試験体 の鉄筋の片方の端面に対してレーザーを照射することで



図 1-19 電解腐食時間ごとの超音波信号

(a)時間領域、(b)周波数領域です。(a)の点線囲いの信号は、
 (b)の点線囲いのピークに対応します。(b)中の白矢印は、(a)の信号における低周波数成分が腐食の進展によって減少していることを示し、黒矢印は鉄筋径に依存するピークが白矢印で示した低周波成分の減少により顕在化していくことを示します。
 (b)のΔfは、腐食の進展によってピークの位置が高周波側に遷移したことを示します。

超音波を発生させ、その鉄筋の反対側の端面に超音波探 触子を設置して波形を測定しました。超音波波形の取得 後に試験体を電解腐食させ、一定時間ごとに同様の実 験で得られた超音波の波形が図 1-19(a) であり、その 周波数スペクトルが図 1-19(b) です。図 1-19(a)、(b) の超音波信号から、電解腐食時間が一定時間(本実験で は 48 時間)以降に測定した超音波信号には、特徴的な 共振信号が現れることが分かります(図中の点線囲い)。 これは鉄筋ーコンクリート間の密着の程度が低下する ことで波の伝播形態が変化したことに起因するもので、 図 1-19(b) では低周波成分の減少として表れます。こ の共振信号は鉄筋端面における超音波の共振によって発 生しており、図 1-19(b) 中の Δf は、電解腐食によって 鉄筋の径が減少することによって、このピークが高周波 側へ遷移したことを示したものです。

鉄筋コンクリートの腐食が進展し、鉄筋-コンクリート間の密着の程度が低下すると、低周波領域の信号強度 が低下し相対的に鉄筋径に相関する信号が顕在化するこ と、径の減少によってこの周波数が高周波側へ遷移する ことは、鉄筋を伝播する超音波が、鉄筋コンクリートの 腐食劣化の検出及び腐食の程度の評価に応用できる可能 性があることを示しています。

(古澤 彰憲)

●参考文献

Furusawa, A. et al., Proposal of Laser-Induced Ultrasonic Guided Wave for Corrosion Detection of Reinforced Concrete Structures in Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Decommissioning Site, Applied Sciences, vol.9, issue 17, 2019, 3544, 12p.



図 1-20 ラジオリシスデータベースを用いた放射線環境下にあ る水質の解析例(1)

臭化物イオンは海水に含まれますが、臭化物イオン濃度が高くか つ線量率が高い場合に、鋼材の腐食を加速させる過酸化水素の発 生量が多くなると予想されます(1 M = 10^3 mol/m^3)。

東京電力福島第一原子力発電所の格納容器(PCV) 内部の滞留水や冷却水は、燃料デブリや飛散したセシウ ム等からの放射線にさらされ、かつ、海水注入等により 外部から流入したイオン種、鋼材から溶出した金属イオ ン種等の多くの不純物を含んでいると考えられます。ま た、現在 PCV 内は窒素ガスで置換されていますが、今 後の廃炉作業に伴い開放されて酸素が入り込み様々な溶 存酸素(DO)濃度(0 ~ 8 ppm)となると推測されま す。放射線照射下では、水の放射線分解(ラジオリシス) が起こり、鋼材の腐食を加速させる過酸化水素(H₂O₂) 等が発生します。これは、PCV などの構造物の腐食発 生につながり、廃炉作業の阻害要因となることが懸念さ れます。そのため本研究では、今後の廃炉工程の進展に 伴うPCV内の環境変化を考慮し、多様な不純物、比較 的強いガンマ線照射環境、幅広い DO 濃度の条件で発生 するラジオリシスや腐食現象を予測するために必要な知 見をデータベースとして取りまとめることを目的としま した。本研究は、原子力機構が量子科学技術研究開発機構、 大阪府立大学、東京工業大学、東北大学、東京大学と連 携して実施しました。本データベースは、ラジオリシス に関するラジオリシスデータベース、放射線照射下での 腐食に関する放射線下での腐食データベース、廃炉工程 における潜在的腐食影響についてまとめた腐食調査票の 整理の3部構成となっています。このうち原子力機構で は主にラジオリシスデータベース整備を担当しました。

ラジオリシスでは、酸素や水素などの安定な化学種だけではなく、不安定なラジカル種も生成し、またこれらの生成した化学種間でも化学反応が発生します。このよ



図 1-21 ラジオリシスデータベースを用いた放射線環境下にあ る水質の解析例(2)

炭酸イオンは空気中や地下水中などに含まれますが、炭酸イオン濃 度が高くかつ線量率が高い場合に、鋼材の腐食を加速させる過酸 化水素の発生量が多くなると予想されます(1 M = 10^3 mol/m³)。

うな反応を、数値解析を用いて予測することとしました。 文献等により、基本となる水の分解生成物のほか、塩化 物イオン、臭化物イオン、硫酸イオン、炭酸イオン及び 炭酸水素イオン、鉄イオンに関する合計215の反応式及 び反応速度定数を収集し、上記の6種の不純物イオンが 共存する水のラジオリシスデータベースを作成しました。

データベースを用いた解析例として、不純物成分の 中で臭化物イオンと炭酸イオンに関する H₂O₂ 濃度の解 析結果をそれぞれ図 1-20 及び図 1-21 に紹介します。 PCVの材料である炭素鋼の腐食速度はH₂O₂ 濃度に比 例して速くなります。解析結果から、高線量率の環境で は、H₂O₂の発生量を低減するには DO 濃度を低減する ことが必要で、臭化物イオンや炭酸イオン濃度を低減す ることも効果的であると分かりました。また、低線量率 ではあまり臭化物イオンの影響は現れないが、炭酸イオ ンの場合は濃度増加とともにいずれの線量率でもH2O2 が増加することが分かりました。また、海水由来の陰イ オン等や鋼材から溶出する鉄イオンの存在により、ラジ オリシスによる生成物の生成量が大きく変化することも 明らかとなりました。本データベースは、放射性物質を 含む汚染水の保管容器の腐食環境や、水の放射線分解に より発生する水素量の評価などにも応用が期待されま す。今後は、本データベースをより幅広い条件に拡充す るとともに、腐食抑制法の研究に活用していく予定です。 本研究は、文部科学省「英知を結集した原子力科学 技術・人材育成推進事業 |の「放射線環境下での腐食デー タベースの構築|で実施したものです。

(佐藤 智徳)

●参考文献

佐藤智徳ほか, 放射線環境下での腐食データベース (受託研究), JAEA-Review 2021-001, 2021, 123p.

1-9 光ファイバを用いて高放射線環境で放射線強度分布を測る - 光の波長成分に着目した放射線位置検出に関する新しいアプローチー



図1-22 波長分解分析法の概念図

光ファイバの発光をファイバの片側で分光し、光ファイバ内での光減衰量が波長 (光の色)によって異なることを利用して放射線強度分布を逆推定します。



図 1-24 ⁹⁰Sr/⁹⁰Y 線源を用いたベータ線入射位置測定結果 線源強度 1 MBq の ⁹⁰Sr/⁹⁰Y 由来のベータ線入射位置が推定できて います。

東京電力福島第一原子力発電所 (1F) 廃炉作業現場で は、作業者の被ばく線量管理や効率的な除染を行うため、 放射性物質の分布を詳細に測る必要があります。放射性 物質の面的分布を測る手法の一つに、放射線に有感な 光ファイバ(以下、ファイバ)を用いる手法があります。 その中でもファイバ両端に到達する光の時間差からファ イバへの放射線入射位置を決定する飛行時間法が 1F 敷 地内で使われた実績があります。一方で、飛行時間法は 1F 原子炉建屋内のような高線量率の環境では信号の分 離が厳しくなるため適用が難しく、またファイバの両端 に光センサを配置する必要があるため、高線量率の環境 への適用が難しいという課題がありました。そこで、私 たちは高線量率の環境へ適用可能であり、さらにファイ バの片側のみからの光読出しにより放射性物質の分布が 測定可能な手法である「波長分解分析法」を、名古屋大 学と共同で開発しました。

図1-22に開発した手法の概要を示します。この手法 ではまず、ファイバと放射線が反応することに由来する 発光を、ファイバの片側に設置した分光器で分光し、波 長スペクトル(光の色ごとの相対強度)を取得します。 一方、光はファイバ内を伝わる際に吸収・散乱を起こす ため徐々に減衰していきます。ここで、その減衰の大き さは光の色ごとに異なり、光伝播距離の違いによりスペ



図1-23 波長スペクトルの光ファイバ内での減衰 光の波長ごとに光ファイバ内での減衰量が異なる ことで、光伝播距離の違いによりスペクトル形状 が変化することが分かります。



図 1-25 ⁶⁰Co 線源を用いたガンマ線入射位置測定結果 3 Gy/h の高線量率でガンマ線入射位置が推定できています。

クトル形状が変化します(図1-23)。したがって、ファ イバ発光位置ごとに分光器で測定される波長スペクトル をあらかじめ測定しておくことで、波長スペクトルか ら放射線強度分布を逆推定することが可能です。この 新しい手法によりファイバの片側からの光読出しによ りファイバに沿って放射線強度分布が推定可能となっ たことに加え、光量の積分値を測定することから信号 の数え落としが発生しないため高線量率での測定が可 能となりました。本手法による放射線強度分布測定試 験結果を図 1-24、図 1-25 に示します。ここでは、線 源強度1 MBqの⁹⁰Sr/⁹⁰Y 由来のベータ線入射位置測定 (図 1-24) と、3 Gy/h という飛行時間法が適用困難な 高線量率での⁶⁰Coガンマ線入射位置測定(図1-25)に ついて示しています。いずれの結果も実際の放射線入射 位置を正しく推定できており、本手法が1F 廃炉作業環 境におけるベータ線源位置検知及び高線量率環境でのガ ンマ線分布検知に応用可能であることが確認されました。

本研究は、原子力機構「英知を結集した原子力科学 技術・人材育成推進事業」(JPJA19B19206529)の「一 次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋内放射 線源分布計測」の成果の一部です。

(寺阪 祐太)

●参考文献

Terasaka, Y. et al., Feasibility Study of the One-Dimensional Radiation Distribution Sensing Method Using an Optical Fiber Sensor Based on Wavelength Spectrum Unfolding, Journal of Nuclear Engineering and Radiation Science, vol.7, issue 4, 2021, 042002, 7p. 廃炉環境国際共同研究センターほか,一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋内放射線源分布計測(委託研究) – 令和元 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業-, JAEA-Review 2020-063, 2021, 44p. 1-10 大型台風がもたらした河口域の沈降粒子量への影響 - 2019年の河口域での放射性セシウムの観測結果から-





図1-26 対象地域、方法及び主要な結果

(a) 福島県沿岸域の河川の沖合に4ヶ所の調査地点を設定しました。 図中には水深線を記しています。(b) 調査地点にはセジメントトラップ (St.1 ~ St.4) を係留し、沈降粒子を捕集しました。(c) 請戸川の ¹³⁷Cs 流出量の経時変化(図中の青線)と4地点のセジメントトラップ で取得した沈降粒子(図中のポイント)の¹³⁷Cs フラックスを比較しま した。

東京電力福島第一原子力発電所 (1F) 事故後、海産物 への放射性物質の移行が懸念されることから、海域では 放射性セシウム (Cs) の動態研究が行われています。事 故から 10 年経過した現在、1F からの放射性 Cs の海洋 放出は限定的となり、海洋への供給源としては、陸域か ら河川を介した輸送が主になると考えられます。そこで、 私たちは河川から海洋に供給される放射性 Cs の実態解 明のため、河口域での調査を行ってきました。河川から 海洋への放射性 Cs の移行は、台風などで河川水位が上 昇し、流れが速くなる「洪水時」に、特に顕著です。こ れは、放射性 Cs が細かな粒子に吸着されやすく、洪水 時に粒子とともに河川水に洗い流され、海洋に供給され るためです。本研究では、洪水時における海洋への放射 性 Csの移行メカニズムを評価するため、2019年の台風 (Bualoi)時に、河口沿岸域の4ヶ所にセジメントトラッ プ (ST) を設置して、海面付近から海底方向に沈降して くる粒子(沈降粒子)を連続的に捕集し、その放射性 Cs 濃度 (¹³⁷Cs)、沈降粒子量の測定を行いました。

ST による沈降粒子のサンプリングは、台風の接近した 2019 年 10 月 25 ~ 26 日を含む 1 週間実施しました。 図 1-26 (a) に示すように、調査地点は、1F 周辺の浜通りの河川の中で流域面積の大きい請戸川河口域と沖合に2 地点(St.1:水深 10 m と St.4:水深 60 m)、請戸川より北側で1 地点(St.2:水深 27 m)、請戸川より南側で1 地点(St.3:水深 30 m)の合計 4 地点としました。 各地点に、図 1-26 (b)のように ST を係留し、沈降粒

子を日ごとに捕集しました。

沈降粒子量は、台風接近時に、最も多くなることが 分かりました。また、地点ごとに比較すると、河口域に 近い St.1 で最も多く、岸から 14 km 離れた St.4 の約 100 倍でした。また、St.2 及び St.3 では St.1 に比べて 少ない沈降粒子量となりました。

¹³⁷Cs フラックス (¹³⁷Cs の移動量を表す指標で沈降粒 子量に¹³⁷Cs 濃度を掛けたもの) は、台風接近時に大き く上昇しました。特に St.1 では、台風前後より 2 桁ほ ど高い数値を示しました。これは、請戸川の観測点 (河 口から約 3.5 km 上流) で、原子力機構が連続観測して いる水位 (流量の指標) と濁度 (河川水中¹³⁷Cs 濃度の 指標) から推定された請戸川の¹³⁷Cs 流出量 (流量×河 川水中の¹³⁷Cs 濃度) の経時変化と同様の傾向を示しま した (図 1-26(c))。また、沈降粒子の¹³⁷Cs フラックス の上昇期間は、台風接近前後の 2 日程度と短く、その 後は台風前と同様のレベルに戻りました。

本研究により、台風時における河川から海洋への流出 量は請戸川河口域では顕著だったものの、おおむね沿岸 14 km 以内に影響は留まり、期間も台風接近の一時期に 過ぎないことが分かりました。

本研究は、原子力規制委員会原子力規制庁からの受 託研究「平成 31 年度放射性物質測定調査委託費(福島 県近沿岸海域等における放射性物質等の状況調査)事業」 の成果の一部です。

(御園生 敏治)

●参考文献

御園生敏治ほか, 平成 31 年度福島県近沿岸海域等における放射性物質等の状況調査(受託研究), JAEA-Research 2020-008, 2020, 166p.

1-11 AI が放射線マップを賢く作成 - 福島での放射線測定のビッグデータを活用-



図 1-27 機械学習を用いて作成した空間線量率マップ

(a) は従来の換算手法を用いて上空で得られた放射線測定値を地上1m空間線量率に換算したマップ、(b) は機械学習(構築した ANN)を用いて換算したマップです。(c) は各換算値と地上測定値の相対変化率(*RD*)を比較したヒストグラムです。機械 学習を利用することで従来法に比べて、より精度の高い換算を行うことができるようになりました。

私たちは東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故 後、環境中の放射線モニタリングや原子力防災のための ツールとして、無人機を用いた上空からの放射線測定技 術の研究開発を進めています。本技術は、人が立ち入れ ない場所も含め、迅速に広範囲を測定できるというメ リットがある一方、上空での測定値から地上の線量率に 換算する際の不可避的な不確かさが存在するというデメ リットがあります。従来の換算手法では、測定対象とな る地表面は平らで線量率分布が一定と仮定した簡易的な パラメータで換算していましたが、仮定条件から逸脱す る地形や線量率の変化が複雑なエリアでは不確かさが大 きくなります。換算の精度を向上させるために私たちは 逆問題解析手法を用いた解析手法の研究開発を行いまし たが、解析時間がかかる課題がありました。本研究では 換算の精度に加えて、逆問題解析手法より計算速度を大 幅に向上させるため、AIの一種である人工ニューラル ネットワーク(ANN)を用いた機械学習による解析手 法の開発を行いました。

まず、ANN 構築のための訓練データとして、1F 事 故後に福島で行われた放射線測定のビッグデータの中か ら、無人ヘリコプターによる上空からの放射線測定デー タ及び歩行式サーベイメータによる地上測定データを、 10 m四方メッシュで作成し、合計37936 個のデータセッ トを準備しました。ANN の構築には、汎用のソフトウェ アである NeuralWorks Predict (NeuralWare 社製) を用いました。構築した ANN と訓練データ以外のデー タセットを用いて地上線量率への換算を行い、地上測定 値との誤差の全平均(RMSE)及び測定位置ごとの残 差の割合(RD)を指標として、従来法からの改善度を 評価しました。

従来法(図1-27(a))と機械学習(図1-27(b))で換 算した線量率の分布マップを比較すると、機械学習によ る換算では、除染などにより線量の勾配が大きくなるエ リアの鮮明度が向上しています。誤差の全平均 RMSE は、従来法が1.00、機械学習は0.66となりました。ま た、図1-27(c)に示す RDのヒストグラムから、測定 位置ごとの残差も全体的に小さく(0に近く)なってい ることが分かります。従来法では簡易的なパラメータで 換算していましたが、機械学習では多くのデータの経験 値から得られた、最適なパラメータを取得することがで き、換算精度が向上したと考えられます。

また、図 1-27 のエリアにおいて逆問題解析手法では 数時間必要だった解析時間は、機械学習による換算では、 ANNの構築が完了していれば数分で行うことができました。

このように、機械学習を用いることで、従来の換算 手法に比べ、より簡便かつ高い精度で、地上測定結果に 近い線量率分布を再現できることが分かりました。今後、 現状の放射線測定情報と測定高度情報に加えて、写真の 色情報を付加し、土地利用をファクターとして考慮する ことにより、さらなる精度向上が見込まれます。

本研究は、名古屋大学との共同研究の成果の一部です。 (佐々木 美雪)

●参考文献

Sasaki, M. et al., New Method for Visualizing the Dose Rate Distribution around the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Using Artificial Neural Networks, Scientific Reports, vol.11, 2021, 1857, 11p.





図1-28 1Fから80km 圏内の空間線量率の経時変化傾向 (a) 80km 圏内全域及び各土地利用区分、(b)各避難指示区域(土地利用区分は建物用地)について、空間線量率の比率(2011年



東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故の後、放 射線量分布マップを作成するため、また避難指示区域 の解除判断等に資する基礎データを取得するため、京 都大学原子炉実験所の開発による走行サーベイ装置 KURAMAシステム(以下、「KURAMA」)を用いた空間 線量率測定を2011年6月以降継続的に実施してきました。 KURAMA は一般の乗用車に搭載可能な放射線測定器で、 道路上を移動しながら空間線量率を連続測定します。

本研究では、空間線量率の経時変化の傾向を正しく 把握するため、これまで蓄積した膨大な測定データを分 析しました。空間線量率は、放射性セシウムの放射性崩 壊による減衰のほかに降雨や除染等の環境影響によって も減少していきます。環境影響による減少速度を定量的 に評価する指標として環境半減期があり、現在広く用い られている2成分環境半減期モデルでは、減少が速い(環 境半減期が短い)成分と減少が遅い(環境半減期が長い) 成分の組合せで表されます。

事故の影響を大きく受けた 1F から 80 km 圏内全域 において、2011 年 6 月から 2018 年 11 月までの走行 サーベイ測定により得られた空間線量率は、放射性セ シウムの放射性崩壊によれば、2011 年 6 月を 1 とす ると 2018 年 11 月には 0.29 まで減少すると予測され た(図 1-28(a)実線)のに対し、実際には 0.08 程度ま で減少していました(図 1-28(a)データ点〇)。この違 いが環境半減期による減少で、2 成分環境半減期モデル によれば、80 km 圏内全域での減少傾向は同図破線で表



図 1-29 空間線量率の経時変化とモデル式から求めた結果の 比較

避難指示解除準備区域における森林及び建物用地に分類される 測定データについて、Two-group モデルにより求めた環境半減 期を用いることで、空間線量率の経時変化をよく再現すること ができました。

されます。また、土地利用区分の影響を調べた結果、建 物用地で減少が最も速く、森林では最も遅い結果となり、 人間活動が活発な場所では空間線量率の減少が速いこと が分かりました。

空間線量率の変化の傾向は、避難指示区域の種別に よっても異なり(図1-28(b))、避難指示解除準備区域 や居住制限区域では除染作業が積極的に進められた結 果、2013年から空間線量率の減少が加速し(同図矢印)、 帰還困難区域と差が生じてきていることが分かりまし た。この空間線量率の変化は、従来の単純な2成分環 境半減期モデルではうまく表現できません。そこで、除 染の効果を考慮し、速い成分の環境半減期が変化する Two-group モデルを導入しました。本モデルを用いて、 避難指示解除準備区域での速い成分の環境半減期を評 価した結果、2013年以降では0.5~1年と評価され、 それ以前の2~3年に比べて非常に短くなっていることが 明らかになりました。図 1-29 に示すように、本モデルに より評価した環境半減期を用いることで、空間線量率の 経時変化を良好に再現できるようになりました。これら の成果は除染の効果を可視化するもので、今後の除染や 避難指示解除に係る検討において活用が期待されます。

本成果は、原子力規制委員会原子力規制庁からの受 託研究「平成 30 年度放射性物質測定調査委託費(東京 電力株式会社福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物 質の分布データの集約)事業」の成果の一部を含みます。 (安藤 真樹)

●参考文献

Andoh, M. et al., Evaluation of Decreasing Trend in Air Dose Rate and Ecological Half-Life within an 80 km Range from Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, Using Car-Borne Survey Data Measured by KURAMA Systems Up to 2018, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.57, issue 12, 2020, p.1319-1330.

1-13 河川でのセシウムの環境動態は堆積物の性質が握る - 河川堆積物と放射性セシウムの吸脱着メカニズムを解明-



図1-30 Cs の堆積物への吸着分配係数 溶液中の Cs の濃度が低くなると、溶液中 Cs 濃度に対する堆積 物に吸着された Cs の濃度比(分配係数、K_d)が大きくなりました。 これは、堆積物に吸着されやすいことを示しています。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)の事故により 拡散された放射性セシウム(Cs)は、いまだに森林の土 壌に残っており、少しずつ河川水系に流出しています。 将来の河川水中でのCs(特に、生物に取り込まれやす い溶けている形態)の濃度を推測するためには、河川水 中の濃度を決める堆積物へのCsの吸着メカニズムの解 明が必要です。そこで、1Fから北側に位置する小高川 と請戸川の下流域において、河川敷の堆積物を採取し、 Csの吸着・脱離特性を評価しました。

試験溶液中の添加 Cs の濃度を変えて堆積物への吸着 試験を行いました。試験は直径 2 mm のふるいにかけた 堆積物に 0.01 mol dm⁻³ (M) の塩化ナトリウム (NaCl) 溶液を容器に入れて、Cs 溶液を添加し、振とうさせま した。平衡到達を確認した 68 日後の試験結果は、いず れの河川堆積物でも Cs の濃度が低くなると堆積物に吸 着する割合 (分配係数、 K_d)が増加しました (図 1-30)。 これは、堆積物に含まれる鉱物に Cs を吸着しやすい部 分があるが、その量が少ないために濃度が低い場合に は相対的に吸着した量が多くなるためと考えられます。 次に、吸着試験を行った堆積物を、脱離力の弱い溶液 から強い溶液に段階的に入れて、吸着した Cs の脱離試 験を行い、Cs の吸着力の強さを評価しました。吸着試



図1-31 多段抽出法による Cs の脱離割合

事故由来の Cs だけを吸着した堆積物試料(添加 Cs 濃度 0) と、 さらに 10⁻³ から 10⁻⁹ mol dm⁻³の Cs を添加して吸着試験を行っ た後の堆積物試料について、様々な溶液で Cs を脱離し、その 吸着力の強さを調べました。試料の表面を溶かす試薬でも脱離 しないことが確認され、脱離しづらい吸着形態が試料内部にあ ることが分かりました。

験時の添加 Cs の濃度が低くなるほど、塩化ナトリウム (NaCl) や塩化カリウム (KCl) で脱離されるイオン交換 的な吸着成分の割合が減少し、鉱物表面を溶解する効果 がある塩酸 (HCl) や、粘土鉱物の層間の間隔を広げる 効果があるドデシルアミン塩酸塩で脱離できる Cs の割 合が増加しました (図 1-31)。このことから、堆積物に 含まれる鉱物の表面には、比較的容易に脱離する吸着形 態と、脱離しづらい吸着形態が混在し、前者の吸着サイ トから優先的に脱離されていることが分かりました。ま た、請戸川に比べて小高川の方が、1F 由来の Cs だけ を吸着した堆積物試料 (RI 非添加)のイオン交換的な吸 着成分の割合が多くなっています。これは、両河川の表 層地質環境が異なり、小高川の方が、雲母鉱物よりも風 化が進んだスメクタイト (イオン交換的な吸着成分が多 い)等の粘土鉱物の割合が多いためと考えられます。

現在の河川水中の放射性 Cs 濃度は非常に低く(請戸 川:0.1 Bq/L 程度)なっていますが、これはこのよう に Cs が堆積物中の鉱物の中でも脱離しづらい部分と強 く結合しているためと考えられます。今回得られた吸脱 着特性は、将来の河川水中の放射性 Cs 濃度の推測に役 立てていきます。

(藤原 健壮)

●参考文献

Tachi, Y., Fujiwara, K. et al., Key Factors Controlling Radiocesium Sorption and Fixation in River Sediments around the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. Part 1: Insights from Sediment Properties and Radiocesium Distributions, Science of The Total Environment, vol.724, 2020, 138098, 11p.

Tachi, Y., Fujiwara, K. et al., Key Factors Controlling Radiocesium Sorption and Fixation in River Sediments around the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. Part 2: Sorption and Fixation Behaviors and Their Relationship to Sediment Properties, Science of The Total Environment, vol.724, 2020, 138097, 10p.

1-14 貯水池底質からの放射性セシウムの再移動 -流入水と放流水のマスバランス評価から得られた知見-





図1-32 貯水池の溶存態¹³⁷Cs

(a) 流入水と放流水の溶存態¹³⁷Cs 濃度を比較した結 果、放流水の濃度の方が高く、減少速度が遅いことが 分かりました。(b) 貯水池の湖底付近では、溶存酸 素濃度(DO)が低下し、還元的な環境が形成されて、 溶存態¹³⁷Cs 濃度が高くなる傾向が認められました。 (c) 貯水池の下流へ放出される溶存態¹³⁷Csの年間総 放出量の約32%~40%が貯水池の内部負荷(底質か らの溶出)によるものと考えられます。

水から水生生物や農作物への放射性核種の移動を評価する上では、河川や貯水池などの水中に溶解した放射性核種の起源と動態を解明することが重要です。本研究では、生物学的に利用性が高く、かつ大きな移動性を有する水に溶解した状態(溶存態)の放射性セシウム(¹³⁷Cs)に着目し、貯水池底質(貯水池底の堆積物)から河川水への再移動量を流入水と放流水の時間変化及びマスバランス評価から考察しました。

調査は、2014 年から 2019 年までの6 年間、福島県浪 江町の大柿ダムで行いました。毎月定期的に採取した流 入水と放流水を、メンブレンフィルターを用いてろ過し、 ろ液中の¹³⁷Cs 濃度を測定し、溶存態の濃度としました。 調査の結果、溶存態¹³⁷Cs 濃度は流入水よりも放流水 のほうが有意に高く、また、流入水と放流水のいずれも 時間とともに減少する傾向を示しました(図 1-32(a))。 溶存態¹³⁷Cs 濃度の環境半減期は、流入水では約 2.9 年、 放流水では約 3.6 年と推定され、放流水の溶存態¹³⁷Cs は、流入水よりも濃度の減少速度が遅いことが明らかに

なりました。これらの結果は、溶存態¹³⁷Cs 濃度が貯水

池の内部負荷(底質から湖水への溶出)によって高めら

れていることを示唆しています。

貯水池内では、水温が急激に変わる水温躍層の発生 に伴い、表層水と底層水の循環が停滞します。そのため、 湖底付近では、溶存酸素濃度(DO)が低下し、還元的 な環境が形成されるとともに、溶存態¹³⁷Cs濃度が高く なる傾向が認められました(図1-32(b))。還元的な環 境下では、有機物が微生物によって分解され、アンモニ ウムイオンが生成します。底層水中の溶存態¹³⁷Cs濃度 の上昇は、この水中のアンモニウムイオンと底質中のセ シウムイオンとのイオン交換が要因と考えられます。

あわせて、流入水と放流水の流量と溶存態¹³⁷Cs 濃度 の時間変化から、2017年と2018年の2年間について、 貯水池の溶存態¹³⁷Csのマスバランスを評価しました。 その結果、貯水池の下流へ放出される溶存態¹³⁷Csの年 間総放出量の約32%~40%が貯水池内部で生成された、 すなわち底質から溶出した溶存態¹³⁷Csが占める可能性 が示唆されました(図1-32(c))。

以上の結果から、貯水池の底質は中長期的に溶存態 ¹³⁷Csの主要な供給源となる可能性が高く、今後もモニ タリングを継続することが重要です。

(舟木 泰智)

●参考文献

Funaki, H. et al., Reservoir Sediments as a Long-Term Source of Dissolved Radiocaesium in Water System; a Mass Balance Case Study of an Artificial Reservoir in Fukushima, Japan, Science of The Total Environment, vol.743, 2020, 140668, 9p.

1-15わずかな量の骨の⁹⁰Sr をすばやく分析 - 生体内硬組織試料中⁹⁰Sr の ICP-MS 測定に向けた Sr レジンの適用性-



図1-33 骨や歯の⁹⁰Sr 測定における新規 ICP-MS 法と従来の放射能測定法の分析手法の比較 私たちは樹脂カラムでの化学分離を繰り返すことで、骨中の多量の Ca をほぼ全て除去する化学分離法を開発しました。この手法を既に 開発された ICP-MS 法と組み合わせることで測定妨害元素を除去し、従来の放射能測定法より迅速に骨や歯の⁹⁰Sr を分析できました。

> 表 1-1 ICP-MS 法と放射能測定法による 0.1 g のウシの骨や歯の ⁹⁰Sr の分析結果 新規 ICP-MS 法と放射能測定法の測定結果を比較することで、ICP-MS 法が骨や歯の ⁹⁰Sr を 正確に分析でき、小さな骨や歯の ⁹⁰Sr を低い検出下限値で分析できることが分かりました。

試料	ウシ骨		ウシ歯			
手法	ICP-MS法	放射能測定法	ICP-MS法	放射能測定法		
⁹⁰ Sr濃度±SD (Bq/kg)	700±250	750±65	210±94	240±24		
検出下限値 (Bq/kg)	36	91	36	87		

ストロンチウム 90(⁹⁰Sr)は、半減期 28.8 年の原子 炉内で生成しやすい核分裂生成核種であり、生体内で骨 や歯に取込まれやすいことが知られています。⁹⁰Sr は 組織の形成時期に骨や歯に取り込まれるため、骨や歯の 中の⁹⁰Sr はその形成時期における動物への放射性核種 の取込み量や生息環境の⁹⁰Sr 分布の指標になると考え られます。しかし、採取できる骨や歯の中には魚の耳石 やヒトの乳歯のように、試料量が1gに満たないものも あり、1~10gの骨や歯の⁹⁰Sr 分析に最適な従来の放 射能測定法は、適用が難しいと考えられました。

少量試料の分析に有利な誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS)法は、これまでに土壌や植物試料に含まれ る⁹⁰Srの分析に適用され、放射能測定法と同程度の検 出感度で分析できることが報告されています。しかし既 存のICP-MS法は土壌や植物などカルシウム(Ca)の 少ない試料を対象としているため、骨や歯に含まれる多 量のCaにより測定が妨害される可能性がありました。 本研究では、Srのみを選択的に抽出する樹脂カラムを 用いて、ICP-MS法による⁹⁰Sr測定時の骨に含まれる 妨害元素の除去手法を検討しました。

0.1 gの骨と歯を酸に溶かした後、Sr を選択的に吸着する物質(クラウンエーテル)を含む樹脂カラムを通過させ妨害元素を除去しました。この樹脂カラムを通した溶液を、⁹⁰Sr 分析用に高感度な測定条件に設定したICP-MS 法で測定しました。0.1 gの骨や歯にもともと含まれる約 11 ug の⁸⁸Sr (安定同位体)が化学分離前

後でどれだけ減少したかを ICP-MS 法により測定し、 Sr の回収率としました。

私たちは樹脂カラムでの分離操作を2回繰り返す手法 を開発し、骨に含まれる多量のCaのほぼ全て(99.999%) を除去しながら、80%以上の Sr を回収できるようにし ました。既に開発された ICP-MS 法は、⁹⁰Sr とほぼ同 じ原子質量を持ち極微量でも測定に干渉するジルコニウ ム (Zr) を、酸素ガスと反応させて、ICP-MS 測定に干 渉しない質量数 (⁹⁰Zr と¹⁶O の和である 106) に変化さ せることにより、除去します。私たちの開発した化学分 離技術とこの ICP-MS 法を組み合わせることで、従来 の放射能測定法(20日間)に比べ短い11時間で骨や歯 に含まれる⁹⁰Srを測定することができました(図1-33)。 本法と従来の放射能測定法で⁹⁰Sr が高濃度に含まれるウ シの骨や歯を分析したところ両手法の測定値が一致し、 ICP-MS 法で骨や歯の中の⁹⁰Sr を測定できたことが分 かりました (表 1-1)。また、ICP-MS 法の検出下限値 は放射能測定法よりも低く(表 1-1)、小さな骨や歯 の⁹⁰Sr分析に適していることを示すことができました。 今回開発した分析法を用いて、動物の生息環境の追跡調 査を今後展開していく予定です。

本研究は東北大学との共同研究「環境中移行に関わ る被災動物の菌に記録されたストロンチウムの取り込み 履歴の解明について|の成果の一部です。

(小荒井 一真)

●参考文献

Koarai, K. et al., Rapid Analysis of ⁹⁰Sr in Cattle Bone and Tooth Samples by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, Journal of Analytical Atomic Spectrometry, vol.36, issue 8, 2021, p.1678-1682.

1-16 樹木中でセシウムはどのような状態で存在するのか - 放射光を使ってセシウムが樹体内を移動しやすい理由を解明-



図1-34 Csを吸着したスギ試料の EXAFS スペクトル解析結果 EXAFS スペクトル振動を抽出し、フーリエ変換した結果です。 実線が測定データで、点線はモデルによるフィッティング結 果です。これにより原子間距離や配位数の情報が得られます。 1 Å は 0.1 nm (10⁻¹⁰ m) に相当します。

東京電力福島第一原子力発電所事故により環境中に 放出された放射性セシウム(Cs)は、福島県を含む広 範囲の陸域に沈着しました。特に、森林は福島県の面積 の約70%を占めていることから、放射性Csの環境動 態の理解のために多くの調査・研究が行われてきました。 それらを通じて分かったことは、樹木中に取り込まれた 放射性Csが時間とともに転流(樹木中を移動)してい るということです。これは、放射性Csが樹木中で動き やすい化学形態であることを示唆しています。しかし、 樹木中でのCsの化学状態について調べた研究はほとん どありませんでした。

そこで本研究では、広域 X 線吸収微細構造(EXAFS) 法を用いてこの課題に取り組みました。まず、福島県の 森林でスギ、アカマツ、コナラ、コシアブラを採取しま した。ここで、スギ、アカマツは福島県の代表的な常緑 樹、コナラ、コシアブラは落葉広葉樹としてそれぞれ研 究対象としました。採取した試料は、それぞれ樹葉、樹 皮、心材、辺材の各部位に切り分けた後、粉砕しました。 この粉砕試料を安定 Cs を含む水溶液中に浸して Cs を 吸着させました。そして、樹木の各部位に Cs がどのよ うに吸着しているのかを調べるために放射光施設におい て EXAFS スペクトル測定を行いました。

スギ試料の測定から、どの部位も水和 Cs⁺ イオン (CsCl 水溶液) と同様の EXAFS スペクトルが得られま した (図 1-34)。また、EXAFS スペクトルの解析結果 からは、Cs とその周りにいる水分子の酸素原子に由来



図1-35 樹木へのCs吸収と転流の概念図 樹冠や樹幹に沈着した放射性Csが葉面や樹皮を経由して樹木 中に吸収されます。その後、動きやすい化学形態(Cs⁺イオン) を保ちながら樹体内を転流していくと考えられます。より長い 時間スケールでは、根も重要な吸収経路となります。

するピークのみが見られました。これは、Cs⁺イオンが 水分子を周りに伴った (水和)状態であることを示して おり、樹木組織表面のサイト (水素イオンが解離し、負 に帯電したカルボキシル基やヒドロキシ基等) に静電的 に吸着した状態であると考えられます。これを外圏型表 面錯体 (以下、外圏錯体) といいます。しかし、こうし た外圏錯体は比較的弱い吸着形態ですので、樹幹流や樹 液中の他の陽イオン (K⁺や Ca²⁺ など) との競合により、 実際の樹木組織には Cs はほとんど吸着しないと考えら れます。このことから、樹木中に取り込まれた放射性 Cs は動きやすい化学形態 (Cs⁺ イオン) を保ちながら、 樹体内を転流していくものと解釈できます (図 1-35)。

こうした外圏錯体による Cs 吸着はスギだけでなく、 アカマツ、コナラ、コシアブラに対しても同様の結果が 得られました。樹木中の放射性 Cs の分布を支配する要 因としては 1) Cs の化学状態、及び 2) 植物生理学的 性質の二つに大きく分けることができます。本研究の成 果は、1)を明らかにしたことであり、今後 2) につい て個々の樹種の研究が進むことで、森林における放射性 Cs の動態の全容が明らかになると考えています。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金挑戦的 萌芽研究(No.JP15K12206)「森林に沈着した強放射 能粒子の探索及び樹葉による葉面吸収機構の解明」の助 成を受けたものです。

(田中 万也)

●参考文献

Tanaka, K. et al., Speciation of Cesium in Tree Tissues and Its Implication for Uptake and Translocation of Radiocesium in Tree Bodies, Science of The Total Environment, vol.755, part 2, 2021, 142598, 8p.

1-17 森林内の空間線量率を決めるガンマ線はどこからくるのか? ーシミュレーションにより明らかにされた放射性物質の存在位置と空間線量率との関係ー



図 1-36 森林内の放射性物質から発するガンマ線と空間線量率の関係を示す模式図

(a) 放射性セシウム(¹³⁴Cs 及び¹³⁷Cs)が、森林内(樹木、リター層、土壌層)に分布しガンマ線を発する概略図を示します。森林 内の異なる場所にある放射性セシウムから放出されるガンマ線は、空間線量率(地上1m)に各々、寄与します。(b)福島県川内村 の混交林における空間線量率への寄与の内訳を示すシミュレーション結果とその経時変化(2011年~2017年)を示します。

福島県の面積のおおよそ70%は森林であるため、林 業従事者を始めとして住民の多くが森林内の空間線量率 の経時変化に深い関心を寄せています。森林内の空間 線量率の変化を予測するには、放射性物質(¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs)の物理崩壊の半減期を考慮するほか、森林内で の移動や森林外への流出を把握する必要があります。

しかし、それらの移動先及び移動量だけでは空間線 量率の変化を知ることはできません。森林を表すモデ ルを構築し、放射性物質から放出されるガンマ線が、 どのように森林内の土壌や樹幹及び枝葉に散乱され減 衰するのかを調べるシミュレーションが必要となりま す(図1-36(a))。

その際、樹木の物質密度や寸法の他、放射性物質の樹 木の部位ごとの存在量や土壌への浸透量等の情報が必要 となるため、森林総合研究所及び筑波大学と連携し、そ れらの詳細な情報を入手しました。その結果、森林内で のガンマ線のシミュレーションが可能となったほか、得 られた空間線量率に対し森林内のどの位置にある放射性 物質が、どれほどの寄与を及ぼすかを詳細に分析できる ようになりました。 その分析結果から、2015 年以降、森林内の空間線 量率のほとんどが森林土壌の上部5 cm 内にある放射 性物質から来るガンマ線に由来することが分かりまし た (図 1-36(b))。

しかし、事故当初は、放射性物質の一部は樹冠部に もあったほか、土壌表層のリター層と呼ばれる落葉・落 枝等が堆積した層にも存在していたため、空間線量率へ の寄与は異なり、時間とともに現在に至ったことが分か りました。

以上のように、人々が深い関心を寄せる空間線量率 の経時変化を正確に分析するには、適切な環境モデルの 構築とガンマ線のシミュレーションが必要です。さらに シミュレーションを活用すれば、森林内の空間線量率を 低減するための効果的かつ実行可能な方法の事前テスト 等も可能になります。例えば、木材チップを土壌表層に 敷いた場合、どれほどの低減効果が期待できるか等の推 定が容易に実施可能となります。今後は、このシミュレー ションの特徴を活かし、コストも加味し低減効果が期待 される最適な方法の提案等を目指します。

本研究は、森林研究・整備機構森林総合研究所及び 筑波大学との共同研究で得られた成果の一部です。 (金 敏植)

●参考文献

Malins, A., Kim, M. et al., Calculations for Ambient Dose Equivalent Rates in Nine Forests in Eastern Japan from ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs Radioactivity Measurements, Journal of Environmental Radioactivity, vol.226, 2021, 106456, 12p.

1-18 コンクリートへのセシウム吸着挙動解明に向けて -機械学習分子動力学によるセメント水和物の高精度シミュレーションー



図 1-38 セメント水和物表面・水界面における水・イオンの分布と輸送特性

 (a) 機械学習分子動力学により得られたセメント水和物表面・水界面の構造を示しています。ここで、セメント表面と水溶液界面の境界を z=0 としています。(b) 計算により得られた界面付近での水・カルシウムイオンの分布、水の拡散係数です。表面付近で水の拡散係数が著 しく低くなり、同時にイオンが表面付近に局在していることが分かります。

東京電力福島第一原子力発電所では、原子炉容器の 破損等の結果、大量の放射性セシウムが原子炉格納容器 のコンクリートに吸着し、非常に高い線量となっている ことが分かっています。廃炉において生じる大量の汚染 コンクリートの処理、減容化等において、コンクリート 中のセシウムの吸着挙動を明らかにしていくことが重要 となります。

セシウムはコンクリート中のセメント水和物に強く 吸着されることが知られています。セメント水和物は 非常に多孔質な物質であり、セシウムは水とともにセメ ント細孔中を移動し、セメント水和物表面に吸着される と考えられています。セシウムがどのような吸着サイト にどのような強度で吸着するか等の情報を得るためには シミュレーションが重要となります。このような系のシ ミュレーションでは、細孔中の水・イオンの輸送、化学 反応を考慮した大規模シミュレーションが必要となりま す。従来の高精度シミュレーション手法である第一原理 計算では、このような大規模計算は不可能なものでした。

そこで、本研究では機械学習分子動力学法と呼ばれる 手法を用い、この問題の解決に取り組みました。この手 法では、原子数が数十から数百程度の様々な構造に対す る第一原理計算データを大量に作成し、機械学習により 第一原理計算の結果を再現する予測モデル(機械学習力場)を作成します(図1-37)。この機械学習力場を用いた分子動力学計算が機械学習分子動力学法と呼ばれますが、この手法では、第一原理計算並みの精度を持ちながら、第一原理計算より遥かに低い計算コストでのシミュレーションが可能となります。

本研究においては、まず、セメント水和物の基本構成元素であるシリコン、カルシウム、水素、酸素に対する機械学習力場の構築に取り組みました。構築した機械学習力場を用い、セメント水和物 - 水界面での数千原子規模の大規模分子動力学計算を実施し、水・カルシウムイオンの輸送・吸着特性を計算したところ、セメント水和物表面付近での水の拡散定数の実験値をよく再現することに成功しました(図1-38)。

セメント水和物のような、複雑な系に対する高精度 シミュレーションは、従来の計算手法では困難なもので したが、機械学習分子動力学法により、セメント水和物 の高精度シミュレーションが可能となりました。今後は セシウムイオンを含んだセメント水和物の機械学習力場 の構築を行い、コンクリートへのセシウムイオン吸着挙 動の解明に取り組んでいく予定です。

(小林 恵太)

●参考文献

Kobayashi, K. et al., Machine Learning Potentials for Tobermorite Minerals, Computational Materials Science, vol.188, 2021, 110173, 14p.

原子力安全と原子力災害対応の継続的改善に向けて



図2-1 リスク評価とその活用を軸とする安全研究・防災支援の取組み 1F事故の教訓等を踏まえ、原子力利用に伴うリスク評価のため、シビ アアクシデントの防止や評価、外的事象の影響、環境影響、緊急時モニ タリング技術等に関する研究を重点化しています。

安全研究・防災支援部門では、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 進的な原子力安全及び防災に関する研究に取り組み、規 制・基準類の整備等、「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。

安全研究分野では、東京電力福島第一原子力発電所 (1F)事故以降、その教訓や課題を踏まえ、設計基準事 象(原子炉施設の安全性を評価するために想定する事象) への対応が中心であった研究構成の見直しを進めてきま した。現在は、原子力利用に伴うリスクの評価と不確か さの低減のため、図 2-1 に示すように、シビアアクシ デント(SA)の発生防止と評価に関する研究、外的事象 の影響評価手法に関する研究、緊急事態への準備と対応 に関する研究、1F事故に係わる放射線影響や放射性廃 棄物管理に関する研究を重点的に進めています。

原子力機構の安全研究の特色として、事故等で想定 される条件を適切に模擬することのできる、大型実験施 設の活用があります。図 2-2 に示す高圧熱流動実験ルー プ(HIDRA)はその一つで、新規制基準で要求される設 計基準を超える過酷な熱水力条件の炉心熱伝達実験を実 施し、炉心冷却性能の評価手法を高度化することを目指 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(設計基準事象の一つ) 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。この他、安全上 重要な機器の材料劣化・構造健全性に関する研究、保障 措置のための極微量核物質分析技術に関する研究なども 実施しています。さらに、OECD/NEA 国際共同プロ



図2-2 高圧熱流動実験ループ(HIDRA) 設計基準を超える過酷な熱水力条件での炉心冷却性能の評価に関する実験データを取得します。



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上昇や、設計基準を 超える高温条件を模擬した実験を安全に行うことができます。

ジェクトとして、原子力機構が運営機関を務める 1F 事 故情報の分析・事故解析 (ARC-F) 等を進めています。

原子力防災分野では、原子力災害発生時の屋内退避 の被ばく低減効果等、対策の実効性向上に役立つ研究を 進めています。また、1F 事故後の周辺環境における放 射性物質の分布について異なる手法で取得した空間線量 率データを統合化する手法の開発や、1F 沿岸海域にお ける海底土の放射性物質分布調査を進めています。さら に、緊急時の迅速な線量率評価に役立つバックグラウン ドモニタリングを、全国の原子力発電所周辺で実施して います。

本章では、安全研究・防災支援部門の最近の研究成果 から、原子力災害時に速く正確な内部被ばく線量の把握 に役立つ測定器開発(トピックス 2-1)やモニタリングポ ストが汚染された場合の影響推定(トピックス 2-2)、原 子炉建屋への飛翔体衝突影響の評価(トピックス 2-2)、原 子炉建屋への飛翔体衝突影響の評価(トピックス 2-3)、 再処理施設の重大事故時にガス状ルテニウム化合物の放 出抑制が生じる条件の解明(トピックス 2-4)、最新の統 計的機械学習による照射脆化予測(トピックス 2-5)、放 射性核種の地下環境での移行評価(トピックス 2-5)、放 射性核種の地下環境での移行評価(トピックス 2-6)、ウ ラン精製年代分析技術の開発(トピックス 2-7)について、 また福島研究開発部門の成果から、原子力災害対応用 ロボット操作員の養成に向けた取組み(トピックス 2-8) を紹介します。

なお、安全研究・防災支援部門が取り組んできた 1F 事 故対応については、1F 燃料デブリのより安全な取扱いに 向けた臨界性評価実験の最適化(トピックス 1-4)、事故後 の空間放射線量率の減少傾向の分析(トピックス 1-12) に関する成果を第1章に記載しています。

2-1 原子力災害時に甲状腺被ばく線量を正確に把握する -小型で持ち運びが容易な甲状腺ヨウ素モニタの開発-





図2-5 測定の様子 甲状腺ヨウ素モニタの上に首をのせた姿勢で測定します。

原子力災害時など、環境中に放射性ヨウ素を含む大 量の放射性物質が放出されるようなケースにおいては、 多くの住民や緊急作業者を対象として、甲状腺モニタリ ングを行う必要があります。甲状腺モニタリングでは、 甲状腺に集まった放射性ヨウ素からのγ線を体外測定す ることにより、放射性ヨウ素の摂取量を定量し、内部被 ばく線量を評価します。放射性ヨウ素の半減期は短い ため (¹³¹I は、約8日)、摂取後できるだけ早く測定を行 う必要があります。ところが、病院などに設置されてい る既存の核医学用甲状腺モニタは、大型・固定式である 場合がほとんどで、緊急時に現地に持ち込んで使用する ことはできません。このため、多数の住民の甲状腺測定 を、短期間に実施することは容易ではありません。東京 電力福島第一原子力発電所事故の際は、空間線量測定用 のサーベイメータを用いて、簡易的な甲状腺測定が行わ れた例もありますが、高バックグラウンド線量率下では、 甲状腺摂取量を正確に評価することが困難なケースも報 告されています。

そこで、私たちは、緊急時に避難所等へ持ち込んで 使用することができ、かつ高バックグラウンド線量率下 においても精度の良い測定が可能な甲状腺ョウ素モニタ を開発しました。開発したモニタは、図 2-4 に示すように、 箱型の遮蔽体 (鉛・タングステン合金)の内部に、エネ ルギー分解能の優れた y 線検出器を 2 個配置した構造を とります。周囲の環境からのバックグラウンド放射線を 遮蔽し、甲状腺に集まった放射性ヨウ素からの信号を選 択的に検出することができます。使用する y 線検出器は、 想定される測定条件に応じて、LaBr₂(Ce) シンチレーショ

図2-4 開発した甲状腺ヨウ素モニタ

箱型の遮蔽体の中に、エネルギー分解能の良いγ線検出器を2個配 置します。周囲の環境からのバックグラウンド放射線を遮蔽し、甲 状腺に集まった放射性ヨウ素からのγ線を選択的に検出することが できます。卓上型であり、避難所等でも簡単に設置できます。



図2-6 本モニタで測定可能な甲状腺等価線量の下限値 高バックグラウンド線量率下でも十分な測定性能が得られます。 甲状腺に同量の放射性ヨウ素が存在する場合でも、線量換算係数 の大きい小児の方が、測定下限値が大きくなります。

ン検出器(高検出効率モデル)、または、CdZnTe半導体検出器(高エネルギー分解能モデル)から選択可能です。甲状腺ヨウ素モニタの上部に被検者の首をのせた姿勢で測定する卓上型を採用しており(図2-5)、机と椅子さえ準備できれば、避難所等でも容易に設営することができます。

原子力機構 原子力科学研究所 放射線標準施設の y 線 照射場を用いて高バックグラウンド線量率下を模擬した 環境において、開発した甲状腺ョウ素モニタの性能試 験を実施しました。測定可能な甲状腺等価線量の下限 値を評価したものが図 2-6 になります。高バックグラ ウンド線量率下において、成人と子供 (5 歳児)のいず れについても、健康影響調査が必要と考えられるレベル (約 100 mSv) よりも十分低い甲状腺等価線量が測定可 能であることを確認できました。その他、精度の良い測 定を行うために必要な、モニタの校正法や、バックグラ ウンド補正法などの周辺技術もあわせて整備済みです。

今後は、本甲状腺ョウ素モニタを製品化し、原子力 防災用として、発災場所となり得る原子力施設や、それ らが立地する道府県のオフサイトセンター等へ配備する ことを目指します。また、ヨウ素内用療法などの核医学 分野への展開も検討しています。

本成果は、原子力規制委員会原子力規制庁からの受 託研究「平成 29 ~ 31 年度放射線対策委託費(放射線安 全規制研究戦略的推進事業費(No.JPJ007057))」にお いて得られたものです。

(西野 翔)

●参考文献

Nishino, S. et al., Prototype Test of a Portable Thyroid Dose Monitoring System Using Gamma-Ray Spectrometers, Radiation Measurements, vol.134, 2020, 106292, 5p.

2-2 原子力事故時に汚染したモニタリングポストは正しく測れるのか?を考える ーモニタリングポストの建屋汚染による線量率測定値への影響推定一





図 2-7 PHITS による計算の体系

半径 100 m の地表上にコンクリート建屋と測定器からなる実 寸の MP を置いた体系を構築しました。測定器内では検出部と なる Nal(TI) 結晶を模擬しています。構造物が無い空間は空気 で満たしました。

放射性物質が放出される原子力災害が発生した場合、 周辺に住む住民に対しては周辺環境の空間放射線量率 (線量率)を根拠に避難等の防護措置が講じられます。 周辺環境の線量率は、放射線測定器が屋根に設置された モニタリングポスト(MP)等で測定されます。しかし、 周辺環境と同様に MP の建屋が汚染された場合、測定 器との距離が近いために線量率の測定値が周辺環境の線 量率よりも高くなってしまいます。実際に、MP 屋根の 汚染により線量率の測定値が高くなった事例がありまし た*。これでは不要な避難等により避難人数が過度に増 え、対応が追いつかなくなるといった過大な防護措置の 実施につながる可能性があります。そこで本研究では、 MP 建屋の汚染が線量率の測定値にどの程度影響を与え るのかを評価しました。

影響評価には、放射線の輸送計算コード Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS)を用いま した。まず、MP 建屋及び地表面が汚染されたものと 仮定し、図 2-7 に示すシンプルな計算体系を作成しまし た。なお、測定器表面は汚染しにくい素材かつ面積が小 さく、影響の程度が小さいと見込んだため、今回は対象 外としました。MP は実物を参考にコンクリート建屋と測 定器の模擬を実寸で再現しています。測定器は NaI (Tl) シンチレーション式で、検出部である円柱形の NaI (Tl) 結晶にて、放射線を捕らえます。地表は土壌とし、そ の半径は汚染からの y 線の空気中平均自由行程を考慮し 100 m としました。PHITS による計算では、MP 建屋

図 2-8 MP 建屋汚染の測定値への影響

PHITS による計算から、図 2-7 の体系のような環境下で MP 屋根 と地表が同じ表面密度で均一に汚染されているとき、MP 建屋汚 染由来の線量率は測定値の 44% 程度を占めることを示しました。

の表面と地表面が同じ表面密度で均一に汚染されている ものとし、測定器の NaI (Tl) 結晶に到達した放射線の エネルギーとその数から、測定される線量率を推定し ました。発生させた放射線は、セシウム 134、セシウム 137 及びヨウ素 131 が出す y 線です。放射能の核種割合 は東京電力福島第一原子力発電所事故を参考に設定しま した。地表からの放射線影響を周辺環境、測定器に近い MP 屋根からの放射線影響を MP 建屋からの影響である と分類しました。

以上の条件で PHITS による計算を行い、測定される 線量率の内訳を評価したところ、MP 建屋汚染由来が約 半分の 44% を占め、残りの 56% 分が周辺環境由来とな ることが推定できました (図 2-8)。したがって、本計 算条件では、MP で測定される線量率の過大評価につな がる可能性が示唆されました。ただし、今回はシンプル な体系を用いたため、MP 建屋汚染の影響が過大となっ たと考えられます。

今後はより現実に近い体系で計算を行う等、実際の原 子力災害対応への適用に向けた検討を進めていきます。

本成果は、原子力機構のスーパーコンピュータ「ICE X」 を利用して得られたものです。

(平岡 大和)

* 水谷朋子ほか,東海再処理施設周辺の空間線量率監視における福 島第一原子力発電所事故の影響について,日本保健物理学会第 44 回研究発表会,水戸,日本,2011, B-42, p.110.

●参考文献

Hiraoka, H. et al., Influence of Artificial Radionuclide Deposited on a Monitoring Post on Measured Value of Ambient Dose Rate, Proceedings of 27th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE-27), Tsukuba, Japan, 2019, 5p.

2-3 飛翔体衝突による構造物の損傷を予測する -より現実的条件を考慮した貫入現象の解析的影響評価-



図2-10 飛翔体衝突による RC 板の局部損傷の解析結果 垂直衝突では、(a)の平坦型飛翔体と(b)の半球型飛翔体の損傷 範囲は(b)がわずかに小さいもののほぼ同じであることが確認でき ます。(b)の垂直衝突と(c)の斜め衝突を比較すると、斜め衝突 では貫入深さが深い箇所があるものの全体的には貫入深さは垂直衝 突よりも浅くなり、損傷範囲は垂直衝突よりも広くなる傾向がある こと等を確認しました。

原子力規制委員会の新規制基準では、竜巻飛来物や 航空機等の飛翔体が原子力施設に衝突する事象(飛翔体 衝突)に対し、施設の安全性の確保が要求されています。 この安全性の評価では、飛翔体衝突による原子力施設の 建屋等の局部損傷(図 2-9)と全体損傷に対する構造健 全性の評価、並びに建屋の壁や床を伝播した衝撃波が建 屋内包機器に及ぼす影響評価等が求められています。こ のうち私たちは、建屋外壁を対象とした飛翔体衝突によ る局部損傷評価に係る手法の整備及び異なる衝突条件に よる影響評価に取り組んでいます。

建屋外壁のような鉄筋コンクリート (RC) 板状構造 物(以下、RC 板)の局部損傷は貫入、裏面剝離、貫通 の損傷モードに区分され、その損傷モードに応じて実験 データに基づく局部損傷評価式が提案されています。し かし、それらは衝突時に変形・損傷しない剛な飛翔体 (剛 飛翔体) による垂直衝突を対象としたものがほとんどで した。そこで、航空機のように衝突時に飛翔体自身も損 傷する飛翔体 (柔飛翔体) を対象に、より現実的な衝突 条件である斜め衝突や複数の飛翔体先端形状等に対する 局部損傷評価式を提案することを最終目標としました。 まずは、異なる衝突角度、2種類の飛翔体先端形状(平 坦型:先端部が円盤状、半球型:先端部が球殻状)によ る建屋の局部損傷に係る解析的影響評価を行うため、航 空機のエンジンを模擬した飛翔体が建屋の外壁を模擬し た RC 板に衝突する場合の有限要素数値解析手法を整備 し、その妥当性を既存の平坦型飛翔体による垂直衝突の 実験結果を用いて検証しました。

次に、この解析手法を用いて、局部損傷のうち貫入 に着目してその現象を解析しました。その結果、RC 板 の表面損傷に着目すると、垂直衝突と斜め衝突では表面



図2-11 RC板の損傷に寄与する内部エネルギー履歴 飛翔体の先端形状が RC板の損傷へ及ぼす影響には、(a) 垂直衝 突か(b) 斜め衝突かによって違いが表れました。衝突時の RC板 の内部エネルギーで比較すると、垂直衝突の場合には、半球型飛 翔体が平坦型飛翔体を大きく下回っているのに対し、斜め衝突の 場合には、飛翔体の先端形状による違いは小さくなっています。

表 2-1 表面損傷範囲の解析結果

解析ケース	衝突条件		表面損傷範囲* (H × W × D)	
ケース1	平坦型、	垂直衝突	140 × 129 × 50	
ケース2	半球型、	垂直衝突	130 × 120 × 50	
ケース3	平坦型、新	斜め衝突	$240 \times 140 \times 50$	
ケース4	半球型、約	斜め衝突	240 × 130 × 70	
*: クラックの範囲	を含む。	D:最大貫入深さ(単位:mm)		

損傷範囲が大きく異なり、斜め衝突の場合には縦に長 くなり垂直衝突よりも損傷面積が広くなる傾向がある ことを確認しました。また、表面損傷においては、飛 翔体の先端形状による違いはほとんど確認されません でした(表 2-1、図 2-10)。

さらに、飛翔体衝突では表面だけでなく RC 板の内 部でも損傷が発生していることから、RC 板の損傷に寄与 する内部エネルギーに着目した分析も行いました。その 結果、垂直衝突の場合、半球型飛翔体では平坦型飛翔体 より RC 板の内部エネルギーが約4割小さくなりました。 これは半球型飛翔体の先端部の座屈によりエネルギーが 消費され、RC 板の損傷が小さくなったためと予想され ます。一方、斜め衝突の場合、飛翔体の先端形状による 違いは小さく、垂直衝突とは異なる傾向が得られていま す。また、平坦型飛翔体では、衝突角度が垂直0度から 斜め45度になったことにより RC 板の内部エネルギー が約3割低減したのに対し、半球型飛翔体では、垂直 衝突と斜め衝突による RC 板の内部エネルギーはあま り変わらない結果となりました(図 2-11)。

垂直衝突に比べて斜め衝突では RC 板の局部損傷が低 減することを示す今回の解析結果は、より現実的な衝突 条件として衝突角度等を考慮することにより、局部損傷 評価の合理化が期待できることを示します。一方で、先 端形状が RC 板の損傷に与える影響が異なることから、 RC 板の損傷と飛翔体の先端形状等の関係に係る、さら なるデータ取得が必要であることも分かりました。

今後は、建屋外壁の局部損傷評価に加え、飛翔体衝 突による建屋全体損傷評価や建屋内包機器に及ぼす影響 評価に係る手法の整備にも取り組んでいきます。

(康 作夷)

●参考文献

Kang, Z. et al., Impact Simulations on Local Damage of Reinforced Concrete Panel Influenced by Projectile Nose Shape, Mechanical Engineering Journal, vol.7, issue 3, 2020, 19-00566, 20p.
2-4 高レベル濃縮廃液蒸発乾固事故時の放射性物質の揮発挙動を評価する -揮発しやすい放射性ルテニウムについて亜硝酸による抑制効果を確認



図 2-13 試験装置図

模擬廃液を一定の条件(模擬廃液:約103℃で、一定の蒸気発生 速度)で加熱しました。乾燥空気を導入しポンプで排気することに より、加熱により発生したガスを回収液まで移行させます。この際、 配管の途中でフィルタにより飛沫が捕集され、ガスのみが回収液で 捕集されます。仕切りは亜硝酸ナトリウム(NaNO₂)水溶液の添 加時に発生する NO_xの影響を小さくするためのものです。

再処理施設では、使用済核燃料からウラン、プルト ニウムを回収した後の放射性元素を含む高レベル濃縮廃 液(以下、廃液)を一時貯蔵しています。放射性元素の 崩壊熱を取り除くため、廃液は常に冷却されています。 電源喪失等によってこの冷却機能が失われ、事故収束の 対策が十分機能しない場合、廃液温度が上昇し沸騰、乾 固に進展する恐れがあります。この事故は、「高レベル 濃縮廃液の蒸発乾固」として、再処理施設における重大 事故(設計上の条件より厳しい条件によって発生する事 故)の一つとして、十分な安全対策が求められています。

放射性元素のうちルテニウム(Ru)は、廃液中で揮発性 の化合物(以下、ガス状 Ru)を形成することから他の金属 元素と比べて多量に放出されることが報告されています。 廃液から Ru がガス状の化合物として放出されると、飛 沫のようにフィルタで捕集ができないことから、施設外へ 放出されるリスクが高くなります。そのため、Ru の放出挙 動の把握は、安全評価上重要な検討課題となります。

ガス状 Ruは、廃液中の Ru硝酸塩が硝酸により酸化されることで形成すると推測される一方、放射線分解によ

図2-12 蒸発乾固事故時における廃液タンク内のイメージ図 廃液タンクで発生したガスや飛沫等の配管系への流出を模式的 に表した図です。蒸発乾固事故時には、廃液からは水蒸気、硝 酸蒸気、NO_xに加えて廃液の飛沫、ガス状 Ru(RuO₄)が主と 考えられる揮発性物質の放出が想定されます。



図2-14 亜硝酸濃度とRu放出フラックスとの関係 沸騰中の模擬廃液における亜硝酸濃度とRu放出フラックスの 関係を表した図です。模擬廃液中の亜硝酸濃度が高くなること により、Ru放出フラックスが指数的に小さくなる関係が確認 できます。

り生成する亜硝酸で還元されるため、放出が抑制される 可能性が考えられます (図 2-12)。

本研究では、沸騰状態下における亜硝酸濃度とガス状 Ruの放出の関係を実験的に明らかにするために、模擬廃 液(廃液成分を非放射性核種で模擬した溶液)に亜硝酸 ナトリウム水溶液を添加することで亜硝酸濃度を一定に 維持した条件において、放出されるガス状 Ruを捕集し てその量を測定しました(図 2-13)。

試験の結果を図 2-14 に示します。模擬廃液中の亜硝 酸濃度が高いほど模擬廃液からのガス状 Ruの放出が抑 制されることが分かります。さらに、亜硝酸濃度の増加に 対して Ru 放出フラックスが指数関数的に減少することも 初めて明らかになりました。放射性物質の放出を定量的 に評価する上で重要な知見であり、活用が見込まれます。

本成果は、原子力規制委員会原子力規制庁からの受 託研究「平成 30 年度原子力施設等防災対策等委託費(再 処理施設内での放射性物質の移行挙動に係る試験等)事 業」の成果を用いて取りまとめたものです。

(吉田 涼一朗)

●参考文献

Yoshida, R. et al., Restraint Effect of Coexisting Nitrite Ion in Simulated High Level Liquid Waste on Releasing Volatile Ruthenium under Boiling Condition, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.58, issue 2, 2021, p.145-150.

2-5 統計的機械学習で原子炉圧力容器の脆化を予測する -長期運転時の健全性評価のさらなる信頼性向上を目指して-



図2-16 ノンパラメトリックベイズ (BNP) 法による解析

- (a)得られる確率分布の模式図:ここでは可視化のため、中性子照射量を変数として脆化量の確率分布を示していますが、それ以外にも 多くの因子を変数として取り扱うことができます。そして、照射量等の因子について任意の値を指定すると、それに対応した脆化量 の確率分布が得られます。
- (b) 脆化予測の精度向上:計算値と実測値の差(残差)の標準偏差を示しており、値が小さいほど予測性が優れることに対応します。

(c) 脆化量の評価結果:我が国の現行脆化予測法のマージンが概ね保守的に設定されていることを示しています。

安全上重要な機器である原子炉圧力容器(RPV) は、運転期間中に破壊しないことが求められています。 RPVの構造健全性評価では、図2-15に示すように、 RPVの構造材料(RPV鋼)の抵抗力(破壊靭性値)が、 原子炉配管が破断した際に注入される緊急炉心冷却水に より RPV 内表面が急冷される際等で生じる破壊力(応 力拡大係数)を上回ることを確認します。RPV鋼は炉 心からの中性子照射を受けると抵抗力が低下し、脆性破 壊する温度が高温側へ移行する(照射脆化する)ことが 知られています。このため、長期運転時の脆化の程度(脆 化量)を把握することが安全上重要になっています。

脆化量は照射条件や化学成分に依存することが知ら れており、我が国では中性子照射による微細組織変化の 分析結果等を踏まえた脆化予測法が整備されています。 長期運転時の RPV の健全性評価のさらなる信頼性向上 のためには、脆化量をより精度良く予測する手法の整備 が不可欠です。また、現行の構造健全性評価では、脆化 量の予測値に予測誤差等を考慮して一定のマージンを加 えていますが、そのマージンが適切に設定されているこ とも重要です。

私たちは、脆化への影響因子を分析し、照射条件や 化学成分に応じた脆化予測の不確かさを評価するため、 既往知見に捉われない機械学習とベイズ統計に基づくノ ンパラメトリックベイズ (BNP) 法を世界で初めて脆化 予測に適用しました。BNP 法は、多数の因子が複雑に 影響し合うデータを統計的類似性に基づき自動的に分類 し、図 2-16(a) に示すようにデータ全体の確率分布を 多変量の確率分布の重合せで求めることができる手法 で、データの数やばらつきに応じた計算値の不確かさを 定量的に評価することができます。

この手法を用いて、加圧水型原子炉の監視試験デー タ(監視試験は、脆化量の把握のため、RPVに装荷さ れた RPV と同じ鋼材の試験片を定期的に取り出して実 施されるものです)を対象に解析を行いました。その結 果、図 2-16(b) に示すように、従来、脆化への影響が 大きいとされている銅(Cu) やニッケル(Ni) 含有量に 加え、ケイ素(Si) 含有量を考慮することで脆化予測の 精度が向上することを明らかにしました。さらに、中性 子照射量と Cu、Ni、Si 含有量を考慮した BNP 法によ る脆化量の計算結果と実測値、我が国の現行脆化予測法 で考慮されるマージンの範囲(破線)を比較し、BNP 法 による計算結果は、不確かさ(エラーバー)を含めて概 ね破線の範囲内に分布することから、同マージンは適切 に設定されていることを確認しました(図 2-16(c))。

今後は、BNP 法に基づく不確かさ評価を、現行の構造健全性評価における安全裕度の定量評価や、我が国で 実用化に向けた研究開発が進められている確率論的手法に基づく構造健全性評価に活用していきます。

本成果は、原子力規制委員会原子力規制庁からの受 託研究「平成28~30年度原子力施設等防災対策等委 託費(軽水炉照射材料健全性評価研究)事業」の成果の 一部です。

(髙見澤 悠)

●参考文献

Takamizawa, H. et al., Bayesian Analysis of Japanese Pressurized Water Reactor Surveillance Data for Irradiation Embrittlement Prediction, Journal of Pressure Vessel Technology, vol.143, issue 5, 2021, 051502, 8p.

2-6 炉内等廃棄物から漏出した核種の地下環境での動きを探る -地下水中のカルシウムの影響を考慮したニオブ吸着モデルの構築-





本研究では、既存のモデルで考慮されていた溶存種 Nb(OH)₅、 Nb(OH)₆⁻に加えて、溶解度実験で生成が推定された CaNb(OH)₆⁺を 追加し、吸着種として Ca を含む surf_OCaNb(OH)₆を追加しました。

原子力発電所などの廃炉等から、放射能濃度が高い 炉内構造物等の廃棄物(炉内等廃棄物)が発生します。 この炉内等廃棄物は長半減期核種を含み、長期的に生活 環境から遠ざけることが必要なため、地下への埋設処分 が検討されています。処分の安全評価では、長期の間に 廃棄物から放射性核種が漏出し、処分場周りの岩盤中を 移行して生活環境に到達し、人間に被ばくを与える可能 性を考慮します。漏出した放射性核種の移行は、岩盤を 構成する鉱物への吸着により遅延することが期待されま す。放射性核種の吸着性は地下水中の共存イオンの影響 を受けると考えられ、また地下水組成は長期的な処分環 境変化により変動すると考えられます。そのため、この 変動に応じた信頼性のある核種の吸着性能を評価するた めの吸着モデルを構築する必要があります。

ニオブ94 (⁹⁴Nb) は炉内等廃棄物に含まれる長半減期 (2.03 万年)の核種で、処分の安全評価において被ばく 線量に寄与するため重要な核種です。Nbの鉱物への吸 着の研究例は少ない中で、Nbの吸着性に対する地下水 成分であるナトリウム (Na) 及びカルシウム (Ca)の影 響を調べた研究*があります。岩盤を構成する鉱物のう ち、比表面積の大きさから高い吸着性を有すると考えら れる粘土鉱物の一種であるイライトへの Nb 吸着につい て、Naが共存する条件においては、Nb 水酸化物錯体 (Nb_x(OH)_y^{5x-y})の溶存/吸着種を考慮する既存のモデル (図 2-17) によって実験値を説明できる一方で、Ca が 共存する条件においては、この既存モデルによる解析値 と実験値に乖離が見られており (図 2-18)、Ca 共存下



図 2-18 0.1 M Ca(CIO₄)₂ 水溶液中でのイライトへの Nb 吸着特性の解析結果

本研究のモデルにより、Ca 共存下における先行研究 の実験値*の傾向を説明することができました。なお、 吸着分配係数は、固相(鉱物)に吸着した Nb 濃度と 液相の Nb 濃度との比であり、値が大きいほど高い吸 着性を示します。

での吸着モデル構築が課題でした。

そこで本研究ではこの乖離の要因として、これまで 考慮されていなかった Ca を含む Nb 水酸化物錯体の 存在を仮定し、新たな Nb 吸着モデルの構築に取り組 みました。まず Caを含む Nb 水酸化物錯体の溶存種 を検討するため、Ca 共存系における Nb 溶解度実験 を行いました。Ca 濃度及び pH を変化させて Nb の溶 解度を測定した結果、これまで報告されている溶存種 (Nb(OH)₆, Nb(OH)₇²⁻)だけではなく、Ca を含む Nb 水 酸化物錯体(CaNb(OH)₆⁺)が生成し、支配的な溶存種であ ることが示されました。このため吸着種も Ca を含む Nb 水酸化物錯体を形成していると考えられること、さら に吸着データに pH 依存性がないことから、H⁺ を含まない 吸着反応(surf_O⁺+CaNb(OH)₆⁺=surf_OCaNb(OH)₆)を 仮定した新たな吸着モデルを構築しました(図 2-17)。 溶解度実験から決定した CaNb(OH)₆⁺の熱力学データを 用い地球化学計算コード(PHREEQC)により解析を 行った結果(図 2-18)、これまで説明できなかった既往研 究の実験値*の傾向について、説明可能なことを確認し ました。

本研究の成果は、今後実施される炉内等廃棄物の処分 における⁹⁴Nbの岩盤への吸着性能に関して、信頼性の 高い評価を行うための科学的根拠として活用されます。 (大平 早希)

* Ervanne, H. et al., Modelling of Niobium Sorption on Clay Minerals in Sodium and Calcium Perchlorate Solutions, Radiochimica Acta, vol.102, issue 9, 2014, p.839-847.

●参考文献

Yamaguchi, T., Ohira, S. et al., Consideration on Modeling of Nb Sorption onto Clay Minerals, Radiochimica Acta, vol.108, issue 11, 2020, p.873-877.

2-7 1個のウラン粒子から隠れたウラン精製活動を検知 -精製時期を推定するための²³⁰Th/²³⁴U原子個数比分析技術-



図2-19 精製日からの経過年数と²³⁰Th/²³⁴U原子個数比との関係 ウランを精製した直後から²³⁴Uの放射壊変により²³⁰Thが蓄積し てきます。両核種の原子個数比を分析することにより、精製日か らの経過年を明らかにすることができます。

国際原子力機関 (IAEA) は、ウランなどの核物質が 平和利用の目的以外に使用されないことを確認するため、 保障措置活動を行っています。その一つに保障措置環境 試料分析があり、これは IAEA 査察官が原子力施設に赴 いた際に特別な布で施設内外の壁などの拭取りを行い、 その布に付着した極微量の核燃料の組成や量を分析する ことにより未申告の原子力活動を検知するものです。採 取した拭取り試料は、原子力機構を含む技術認定された 9カ国・2機関で構成される IAEA ネットワーク分析所 (NWAL)で分析されます。ウランが、いつ精製されたか を知ることは、核兵器開発計画の存在を示す重要な証拠 になると考えられます。そのため、拭取り試料に付着した ウラン粒子1個から、精製からの経過年数を推定する 分析技術の確立が要求されていました。私たちは要求に 応えるため、この分析法の開発に着手しました。

開発にあたって私たちは、ウランの同位体²³⁴Uが 約25万年の半減期でトリウム(²³⁰Th)に放射壊変するこ とに着目しました。図2-19に示すように、ウラン中の ²³⁰Th/²³⁴U原子個数比は、精製日から経過するにしたがっ て高くなるため、この比を分析することで、ウラン精製 から現在までの経過時間を推定することができます。

まとまったウランの量があるならば²³⁰Th/²³⁴U原子 個数比の分析は容易ですが、拭取り試料に付着してい る個々のウラン粒子は非常に小さく、重量がナノグラ ム (10⁻⁹ g) 程度であるため、一般的な実験室においては、 環境中の塵に含まれる天然ウランの影響を受け、正しい 結果を得ることは非常に困難です。このため私たちは、 「高度環境分析研究棟」のクリーンルーム実験室におい て、精製からの経過年数が既知のウラン粒子を用いて、



図 2-20 分析に用いたウラン粒子の 電子顕微鏡写真

1 個のウラン粒子 (1/100 mm 程度の 大きさ)を対象に²³⁰Th/²³⁴U 原子個数 比を分析することで、ウランの精製 活動が行われた詳細な時期の推定な どが可能になります。

表 2-2 1個のウラン粒子を用いた精製からの経過年数の分析結果 原子個数比の不確かさは大きいものの、極微量の原子個数比を測定す ることに成功し、経過年を正しく推定することができました。

試料 番号	粒径 (µm)	²³⁰ Th/ ²³⁴ U 原子個数比 (× 10 ⁻⁴)	推定精製 経過年(年)	実際の精製 経過年から のずれ(年)
1	9	1.60 ± 0.37	57 ± 33	3.6
2	8	1.72 ± 0.43	60 ± 36	2.0
3	9	1.94 ± 0.75	68 ± 63	-6.2

1個のウラン粒子を対象とした極微量化学分離を伴う ²³⁰Th/²³⁴U原子個数比分析技術を開発しました。ここで 正確な原子個数比を得るため、試料に標準物質を添加す る同位体希釈法を適用しました。標準物質は通常ウラン とトリウムのそれぞれについて準備し添加する必要があ りますが、私たちは²²⁹Th/²³³U原子個数比が既知の単 一標準物質を調製して用いました。これにより試料への 添加量や標準物質の重量を厳密に管理せずとも正確な分 析値を得ることができます。図 2-20 に分析した粒子の 画像の例を示します。ウラン粒子を溶解、標準物質の添 加、化学分離の前処理をした後、誘導結合プラズマ質量 分析計 (ICP-MS) により²³⁰Th/²²⁹Th 比と²³⁴U/²³³U 比 を分析し、²³⁰Th/²³⁴U原子個数比を算出して精製からの 経過年数を推定しました。

得られた結果を表 2-2 に示します。粒径が 8 ~ 9 µm の粒子に対して、実際の精製経過年(61 年)を-6.2 ~ 3.6 年の範囲内のずれで推定することができました。結果と して、IAEAの要求通り、ウラン精製からの経過年数を 1個のウラン粒子から推定する技術の確立に成功しまし た。今後は、ウラン粒子中に生成されたフェムトグラム (10⁻¹⁵ g)以下の超極微量²³⁰Thを精度良く測定するた めに、高感度の多重検出器を装着した ICP-MS を使う などして、精製時期の推定精度を上げるとともに、この 技術を IAEA からの依頼分析に適用することで、国際 貢献していきたいと考えています。

本成果は、原子力規制委員会原子力規制庁からの受 託研究「令和2年度軽水炉等改良技術確証試験等委託費 (保障措置環境分析調査)事業」の成果の一部です。

(鈴木 大輔)

●参考文献

Suzuki, D. et al., Age Determination Analysis of a Single Uranium Particle for Safeguards, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, vol.328, issue 1, 2021, p.103-111.

2-8 人に代わって事故現場へ入るロボットを操る - 原子力災害対応用ロボット操作員の養成-

表 2-3 原子力機構緊急事態支援組織が保有する各種遠隔機材 原子力機構の研究用原子炉等の原子力施設において、放射性物 質による汚染で作業員が立ち入ることのできない事故が起きた 場合に備えて、以下の遠隔機材を保有しており、操作員の訓練 を行っています。また、これら保有機材の機能向上のための改 良や老朽化した機材の更新も行っています。



原子力機構は、所有する原子力施設が事故を起こした ときのための緊急事態支援組織 (支援組織)を楢葉遠隔 技術開発センターに設置しています。緊急事態支援の対象 となる施設は、原子力科学研究所研究用原子炉 JRR-3、 核燃料サイクル工学研究所「東海再処理施設」、大洗 研究所材料試験研究炉 JMTR、同高温工学試験研究炉 HTTR、同高速実験炉「常陽」、高速増殖原型炉「もん じゅ」及び新型転換炉原型炉「ふげん」です。支援組織 では、これらの対象施設において放射性物質による汚染 で作業員が立ち入ることができない事故が起きた場合に 備え、事故現場に投入し内部状況の調査・測定を行うロ ボットや、上空から撮影・測定等を行う小型無人航空機 を保有しており、これら遠隔機材の保守管理、機能向上 のための改良を行っています。また、事故現場で遠隔機 材を操作する操作員の教育・訓練も、2017 年から継続 的に行っています。操作員メンバーは上記の緊急時支援 対象各施設の職員で構成されており、楢葉遠隔技術開発 センターの中の訓練設備を用いて、操作技能を向上させ るためのトレーニングを行っています。これを遠隔機材 操作員の操作訓練と呼びます。

操作訓練で使用する遠隔機材は、偵察用ロボット、作 業用ロボット、小型無人へりの3種類があります(表 2-3)。 偵察用ロボットは、比較的小型のロボットで、事故現場 の撮影、放射線測定を行います。作業用ロボットは、人 間の手の様なマニプレータを備えており、偵察用ロボッ トが乗り越えられない障害物の撤去や、必要に応じて弁 の操作等を行います。小型無人へりは、いわゆるドロー ンで、事故現場の上空を飛行しながら施設外観の確認を 行います。

操作訓練は、初級から始まり、中級、上級訓練へと



図2-21 中級訓練における目視外操作訓練の様子 事故時は、ロボットに取り付けられたカメラ映像のみで正確にロ ボットを操作しなければなりません。カメラ映像は二次元で距離 感が掴みにくいため、目視外操作は目視操作と比べて格段に難し くなります。このため、操作訓練を定期的に実施しています。

段階を踏んで内容が高度化していきます。各職員の上達 度によっては追加訓練も行っており、遠隔機材の事前知 識がない職員であっても一定期間内で確実に操作技能が 習得できるプログラムになっています。本稿では、初級 及び中級訓練の内容を述べます。

初級訓練では、導入教育として関係法令やロボット の仕様を座学で学んだ後、訓練用実機で操作の基本手順 を学びます。偵察用ロボットや作業用ロボットなど地面 を走るものについては、目視での基本走行と障害物等の 乗り越え、狭隘部の走行、マニプレータにより物を掴む 操作技能を習得し、小型無人へリでは、有線式ドローン を用いて離着陸及びホバリング操作技能を中心に習得し ます。

中級訓練は、初級訓練で習得した基礎知識と基本操 作技能を踏まえ、より事故時の状況に即した応用操作の 習得を目的としています。偵察用ロボット及び作業用ロ ボットについては、ロボットのカメラを介した目視外操 作(図 2-21)、小型無人へリについては、無線式ドロー ンを用いて指定したポイントを飛行通過する操作の技能 を習得します。操作員が操作訓練を行える機会は年間1 ~2回程度と少ないため、毎回、訓練の最初に前回ま でのおさらいをする反復教育を行うなど、知識定着の工 夫をしています。

2021年4月現在、原子力機構には上記の教育・訓練 を受けた操作員が総計24名おり、操作技能を維持する ため、定期的な操作訓練を行い、万が一の事故に備えて います。また、訓練内容や訓練設備についても、各対象 施設の現場状況に即した訓練を行うため、適宜改善を 図っています。

(千葉 悠介)

●参考文献

千葉悠介ほか, 緊急時対応遠隔機材の機構内各拠点操作員育成プログラム初級編・中級編, JAEA-Technology 2019-002, 2019, 29p.

未来を拓く先端原子力科学研究

原子力科学の発展に先鞭をつける学術的・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、新物質の創製、革新的技術の創出などを目指すとともに、この分野における国際 的中核研究拠点としての役割を果たします。



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、将来の原子力科学の萌芽と なる未踏の研究分野を開拓し、新原理・新現象の発見や新 物質の創製、さらには新技術の創出を実現し、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(図 3-1)。

アクチノイド先端基礎科学では、新しい概念の創出 を目指した物理・化学の基礎先端研究を、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。そしてこれらの 国際的研究活動の中心的役割を担うべく横断的な理論物 理研究を進めています。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 創製、革新的技術の創出などを目指しています。

2020年度は以下のような成果を挙げました。

重元素核科学の分野では、多核子移行反応で明らかになる 核分裂-未開拓領域の核分裂研究に道-(トピックス 3-1) として、未知の核分裂反応を調べる方法を見いだしまし た。核分裂のメカニズム及び原子核の構造の解明につな がる成果です。界面反応場化学の分野では、樹木中でセ シウムはどのような状態で存在するのか-放射光を使っ てセシウムが樹体内を移動しやすい理由を解明-(第1章 トピックス 1-16)として、樹木に取り込まれたセシウ ムの化学状態を明らかにしました。福島の森林における セシウム移行挙動の解明に役立つ成果です。ハドロン原 子核物理の分野では、ハイパー核「グザイ核」の質量を 決定-中性子星の構造を理解するための新たな知見-(トピックス 3-2)として、特殊な原子核であるグザイ ハイパー核が生成する事象を解析しました。中性子星の 内部の状態を理解することに役立つ成果です。

一方、重元素材料物性の分野では、磁石を使った絶対 零度近くへの冷却―量子的に揺れる微小磁石が実現する 極低温冷却材「イッテルビウム磁性体 |-(トピックス 3-3) として、絶対零度に近い 0.04 K に到達できる装置を開発 しました。ヘリウム3を使用しない冷却方法として期待さ れる成果です。スピン-エネルギー材料物性の分野では、 放射線に負けない熱電発電の実現に向けて-スピンを利 用した熱電発電素子の耐放射線特性-(トピックス 3-4) として、熱電素子と放射性同位体を組み合わせた同位体 電池の放射線耐性を明らかにしました。宇宙探査機電源 として利用される同位体電池の耐用年数評価に役立つ成 果です。ナノ材料物性の分野では、重水クラスターの低 エネルギー振動モードの解明ーテラヘルツ・赤外吸収分 光法と第一原理計算の活用-(トピックス 3-5)として、 重水分子クラスターの THz 領域における赤外吸収スペ クトルの測定に成功しました。地球の放射エネルギー収 支に与える水蒸気の影響を評価することに役立つ方法と して期待されます。

また、先端理論物理の分野では、エキゾチックな P_cの 正体を探るーコンパクトペンタクォークとハドロン分子が 混在したハイブリット模型による解析-(トピックス 3-6) として、クォークを5個持つペンタクォークの質量と 寿命を理論的に予測しました。ハドロンの奇妙な性質の 解明につながると期待されます。

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 多核子移行反応で明らかになる核分裂 -未開拓領域の核分裂研究に道一



図 3-2 多核子移行反応と核分裂の質量数分布

(a) ¹⁸O と²³⁷Npの多核子移行反応により、励起状態にある複合核
 ²⁴⁰Puが生成される例を示します。(b) ¹⁸O + ²³⁷Npの多核子移行反応
 実験で得た様々な核種(複合核)の核分裂における核分裂片質量数
 分布で、一度の実験で得た結果です。実線はモデル計算を表します。

核分裂は原子核に見られるユニークな現象で、原子 カエネルギーに利用されています。基礎科学では、原子 核の核分裂に対する安定性が超重元素の存在限界を支配 し、また、天体で起こる速い元素合成過程では、反応の 終盤で起こる重い原子核の核分裂が身の回りの元素組成 を変えると考えられています。新たな核分裂データがも たらす核分裂の知見は、産業利用と基礎科学に大きく貢 献します。

プルトニウム 239 (²³⁹Pu) が熱中性子を吸収すると 複合核 (²⁴⁰Pu) と呼ばれる励起状態の原子核が生成され、 核分裂が起こります (図 3-2)。これまで、原子核に中 性子を吸収させることで核分裂を調べる実験が多く行わ れました。一方、この方法で調べることができる核種に は限界があります。理由は、標的として利用できる高純 度な同位体核種が少ないこと、また、半減期の短い核種 も標的にできません。一方、私たちは、重イオン反応で 生じる多核子移行反応を利用することで、多くのデータ を一度に取得できることを示しました。これを応用すれ ば、星の中で作られる中性子数の多い原子核の核分裂な ど、未開拓なデータの供給が可能になります。

実験は、原子力科学研究所にあるタンデム加速器施設 を用いて行いました。多核子移行反応の原理を図 3-2(a) に示します。ここでは、酸素(¹⁸O)ビームをネプツニウ ム(²³⁷Np)に衝突させ、²⁴⁰Puの核分裂を観測する例を



図 3-3 大小核分裂片の平均質量数

図 3-2 に示した様々な複合核の核分裂片質量数分布から 得られたもので、重い核分裂片と軽い核分裂片の質量中 心をプロットしたものです。重い核分裂片の質量数がほ ぼ一定であることから、重い原子核の構造が核分裂を支 配することが分かりました。

示します。¹⁸O と²³⁷Npの間で中性子や陽子の交換が生 じ、結果として窒素(¹⁵N)と²⁴⁰Puが生じたものです。 ここで得られた²⁴⁰Puの核分裂片質量数分布を図 3-2(b) に示します。結果は、²³⁹Puの中性子入射核分裂と同じで、 中性子入射核分裂を代理できることが分かりました。同 様に、交換する中性子数と陽子数に応じて様々な原子核 が作られることを利用し、多種にわたるデータを一度の 実験で取得しました。図 3-2(b)のうち複合核^{236, 239}Np、 ^{238, 239}Pu、^{240, 241}Amは、中性子ビームを用いた実験では 得ることができません。成功のカギは、散乱粒子(¹⁵N など) を事象ごとに識別する測定技術を開発したことです。

図 3-2(b)に示した質量数分布から、面白い規則性が 見つかりました。質量数分布のふた山構造は、重い核分 裂片と軽い核分裂片の生成を意味しますが、図 3-3 に、 それぞれの質量数の中心を示します。興味深いことに、 重い方は核種によらず質量数が 136 ~ 138 と一定であ るのに対し、軽い方は単調に増加することが分かりまし た。これは、重い核分裂片に核分裂を助長する内部構造 が存在し、これが出現するように原子核がちぎれていく ことを示しています。

本研究は、文部科学省原子力システム研究開発事業 「高速系革新炉の成立性に影響する核データの新規測定 技術開発」の助成を受けました。

(西尾 勝久)

●参考文献

Vermeulen, M. J., Nishio, K. et al., Measurement of Fission-Fragment Mass Distributions in the Multinucleon Transfer Channels of the ¹⁸O+²³⁷Np Reaction, Physical Review C, vol.102, issue 5, 2020, 054610, 11p.

3-2 ハイパー核「グザイ核」の質量を決定 - 中性子星の構造を理解するための新たな知見-



図3-4 写真乾板中で観測された新たなΞハイパー核事象の顕微鏡画像とそのイメージ図

グザイマイナス(Ξ⁻) 粒子が A 点で窒素 14 原子核に吸収され Ξ ハイパー核を形成し、ベリリウム 10 Λ 核(#1) とヘリウム 5Λ 核(#2) に崩壊しました。ベリリウム 10 Λ 核は、B 点でいくつかの原子核(#3 から #6) といくつかの中性子(電荷を持っていないので飛跡は残らない)に崩壊し、ヘリウム 5 Λ 核は C 点でヘリウム 4 原子核(#7)、パイ中間子(#8) と陽子(#9) に崩壊しました。

通常の原子核は陽子と中性子からできていますが、そ れら以外のストレンジクォークを含む A (ラムダ)、Ξ (グザイ)等の重粒子 (バリオン)を含むような特殊な 原子核をハイパー核と呼びます。これまで、ストレンジ クォークを1個持つ A 粒子を含むハイパー核の研究が 盛んに行われてきましたが、さらに進んでストレンジ クォークを2個持つ Ξ 粒子を含む Ξ ハイパー核につい ての研究はほとんど進んでいませんでした。

Ξ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。三粒子は中性子星内に発生し得る粒子の一つで、その発生条件は陽子や中性子との間に働く力の強さに依存することから、その強さを地上実験によって決めることが必要で、Ξハイパー核の実験データの充実は長い間望まれていました。

私たちは、J-PARCハドロン実験施設で行われた実 験で、大強度・高純度の負電荷K中間子(K^-)のビーム を用いて負電荷を持つ Ξ 粒子である Ξ^- を大量に生成し、 これを総計 1500 枚の特殊な写真乾板に入射させて Ξ ハ イパー核が生成した事象を記録しました。その後写真乾 板を現像し、独自に開発した光学顕微鏡システムでご れらの事象を探索したところ、 Ξ^- 粒子が写真乾板中の 原子核に吸収されて Ξ ハイパー核を作ったあと二つの ハイパー核に分裂する事象を観測しました(図 3-4)。 解析の結果、この事象は写真乾板中の窒素 14 原子核 に Ξ^- が吸収されて、二つの Λ ハイパー核(ベリリウム 10 Λ とヘリウム 5 Λ) に崩壊した事象であることが分 かりました。

さらに、今回見つかった Ξ ハイパー核において、Ξ 粒子の束縛エネルギーが 1.27 ± 0.21 MeV であること も分かりました。もしも働く力がクーロン力のみであれ ば束縛エネルギーは 0.39 MeV と計算されますが、上 記 1.27 MeV との差は Ξ⁻粒子と原子核との間に働く強 い相互作用による引力によるもので、今回の結果からそ の強さを求めることができます。Ξ⁻粒子と原子核の間 に働く力は、天体サイズの原子核ともいえる中性子星の 内部の状態を理解する上で重要であり、本研究で新たな 知見が得られました。

これまでに解析されたのは、この実験で得られたデー タのまだ一部で、今後もこのような事象の発見が期待さ れます。また、私たちは写真乾板の全面探査法と呼ばれ る新たな Ξ ハイパー核の探索法を開発しています。こ れによりさらに 10 倍の Ξ ハイパー核を発見できるもの と見込んでいます。多くの Ξ ハイパー核事象の観測に より、Ξ 粒子の強い相互作用の詳細が明らかになること で、中性子星の性質に Ξ 粒子がどう影響するかが分かっ てく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 (S) (No.JP23224006)「エマルションによる大統計ダ ブルハイパー核生成実験」の助成を受けたものです。

(谷田 聖)

●参考文献

Hayakawa, S. H., Tanida, K. et al., Observation of Coulomb-Assisted Nuclear Bound State of $\Xi^{-14}N$ System, Physical Review Letters, vol.126, issue 6, 2021, 062501, 6p.

3-3 磁石を使った絶対零度近くへの冷却 -量子的に揺れる微小磁石が実現する極低温冷却材「イッテルビウム磁性体」・



図3-5 量子揺らぎを利用した磁気冷却、その特徴と利用 通常の磁性体では、磁気モーメント(図中の磁石)が低温で整 列し、熱を吸収しなくなります(左上図)。量子効果の強い磁性 体では、絶対零度まで磁気モーメントが量子揺らぎのため整列 せず、熱を吸収できます(左下図)。極低温への冷凍機は、量子 コンピュータなどへの利用が期待されます。

極低温と呼ばれる、絶対温度 0.1 K 以下の低温は、 超伝導などの基礎研究や量子コンピュータなどに必要で あるため、現在も極低温冷却の需要は旺盛です。

極低温冷却には、現在はヘリウム3を使用する冷凍 機が主流です。しかし米国同時多発テロ事件以降、核物 質検出器に使用するヘリウム3の需要が急増し供給危 機が発生しました。これにより、ヘリウム3を必要と しない磁気冷却に対する関心が高まっています。

磁気冷却では、磁性体中の微小磁石を意味する磁気 モーメントの揺れのエネルギーが周囲の熱を吸収します (図 3-5)。一般的に、低温では、磁気モーメントは向き を揃え、揺れは止まることで熱を吸収しなくなります。 この性質のため到達温度に限界がありました。

これを克服する鍵となるのが量子効果です。ニュー トンの古典力学では絶対零度では熱的な揺らぎの消失に より、磁気モーメントや原子は完全静止するはずですが、 より正確にミクロを描写する量子力学を適用すると、絶 対零度でも磁気モーメントなどは静止せず揺れているこ とが分かります。これを、熱揺らぎに対して量子揺らぎ と呼んでいます。例えば、ほとんどの物質は、温度を下 げたときの熱揺らぎの減少とともに低温で固化します が、量子効果が強く現れるヘリウムは絶対零度でもヘリ ウム元素自身が量子的に揺れているため、固化せず液体 状態を保持します。磁性体においては、「磁気フラスト レーション」という、磁気モーメントの整列を阻害する 効果により、熱揺らぎのない極低温でも量子的に揺れ続 ける物質が存在します。このような磁性体では、磁気フ ラストレーションによる量子効果の顕在化により、極低



図3-6 実際の冷却過程

試作装置(内挿写真)による冷却の様子です。磁気冷却により 絶対温度で 0.04 K に到達します。

温へ冷却できる可能性があります。

今回、量子効果が強いとされる KBaYb(BO₃)₂ に着目 しました。この物質を用いて冷却装置を試作し、従来冷 却材を用いた市販磁気冷却装置と性能を比較しました。 市販装置の到達温度は 0.08 K ですが、試作装置は大幅 に絶対零度に近い 0.04 K に到達できました(図 3-6)。

また、従来の冷却材は水分子を多く含むため、潮解、 風解といった劣化を起こす問題もありました。一方、本 研究で用いた KBaYb(BO₃)₂ は水分子を含まないため、 空気中で安定です。

現在主流のヘリウム冷凍機の長所は、連続冷却が可能 なため低温が長時間維持できる点で、欠点は非常に複雑 な構造、希少なヘリウム3の必要性です。一方、磁気冷 却は構造が簡単でヘリウムが不要です。そのため、国際 宇宙ステーションでの利用も検討されています。大きな 欠点は連続冷却ができなかったことですが、最近の研究開 発によって、この欠点も解消されており、今後はヘリウム3 を使用する冷凍機を代替していくことが期待されます。

本研究の KBaYb(BO₃)₂ は、従来物質より高性能で、 なおかつ空気中でも安定であるため、今後主流となる磁 気冷凍機に搭載されるスタンダードな冷却材となり、広 く活用され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研究活動 スタート支援(No.JP20K22338)「ウラン系強磁性超伝導 体の量子臨界現象」、国際共同研究加速基金(国際共同 研究強化(B))(No.JP20KK0061)「ウランが創発するスピ ン三重項超伝導の新しい物理」の助成を受けたものです。 (常盤 欣文)

●参考文献

Tokiwa, Y. et al., Frustrated Magnet for Adiabatic Demagnetization Cooling to Milli-Kelvin Temperatures, Communications Materials, vol.2, issue 1, 2021, 42, 6p.

3-4 放射線に負けない熱電発電の実現に向けて - スピンを利用した熱電発電素子の耐放射線特性-



図 3-7 (a)熱電発電の概念図、(b)スピンゼーベック効果(SSE) 素子の模式図、(c) 320 MeV 金イオンで照射された SSE 素子 の電顕写真

(a) 異種金属接合に温度差を与えると電気が発生します(ゼー ベック効果)。

(b) 面直方向に温度差を加え面内に磁場を印加すると、磁性体の面内磁化 M により金属層にスピン Js が注入され、このスピン が種となり温度差、磁化の双方に垂直な方向に電圧 E_{ISHE} が発生します。

熱を電気に変換する熱電素子は、自動車や工場の廃熱 を回収、再利用する環境発電の一環として重要です。ま た、放射性同位体と組み合わせた同位体電池は、宇宙探査 機電源として利用されています。熱から電気を作る方法が 熱電発電ですが、異種金属や半導体の接合構造(熱電対) が使われます。両接点に温度差を与えると電圧が発生、電 流が流れます(図 3-7(a))。この接合は放射線に弱く、性 能劣化の原因となります。そのため同位体電池の放射性 同位体は、遮蔽の容易な特殊な核種に限定されています。

原子レベルの微細加工の発展で、電子の持つスピンと 呼ばれる磁石の強さを表す特性が利用可能になり、スピ ントロニクス("spintro"スピンの+"nics"技術)と 呼称されます。スピントロニクスに基づくスピン熱電素 子が近年開発され、既存技術を凌駕すると期待されてい ます。さらに、スピントロニクス素子は、半導体が苦手 な放射線耐性が高いとされ、高放射線環境下で応用が期 待されます。スピン熱電素子を同位体電池に組み込めば、 放射線環境下での熱電発電の開発につながりますが、放 射性同位体との共存下でスピン熱電素子性能がどの程度 維持されるかは未確認でした。私たちはスピン熱電素子 の一つであるスピンゼーベック効果(SSE)素子を用い、 放射線耐性を検証しました。素子は基板上に形成した金 属/磁性体の二層膜で、熱電発電にはこの界面が重要と 考えられています(図 3-7(b))。



図 3-8 SSE 素子の放射線環境下での健全性の検証 重イオン昭射景を増やしていくと 妻子の執った

重イオン照射量を増やしていくと、素子の熱電性能である SSE 電圧(●)が減少していき、あるしきい値を越えると消 失します。素子の熱電性能は試料中の磁石の強さに依存し、限 界点近傍で性能が急激に劣化するのは界面の影響です。この限 界点を使用済核燃料近傍に当てはめ、素子の健全性を見積もり ました。

界面に対して厳しい条件で、使用済核燃料近傍での熱 電発電を模擬するため、作製した素子に高エネルギー重 イオン線(320 MeV 金イオン)を照射しました。図 3-7(c) の青色の矢印は、重イオンの透過跡を表し、黒線内側の 帯状の所は、結晶構造が破壊されて形成されたナノサイ ズの欠陥です。この部分の磁性体は磁石の性質を失い、 素子の熱電変換には寄与しなくなりました。照射量に対 して熱電素子の性能を評価したところ、照射量増加に伴 い熱電性能を表す SSE 電圧 (●) は減少し、あるしき い値を超えると完全に消失します(図 3-8)。こうして スピン熱電素子の重イオン線の耐用限界が確認されまし た。この結果を基に最も過酷な使用環境として使用済核 燃料ペレット表面近傍を想定し、スピン熱電素子が受け る核分裂片を重イオン線で模擬し、その累積照射量の上 限を見積もりました。使用済燃料表面から漏れ出てくる ~100 MeV の核分裂片量を燃料キャスク表面の中性子 線量から見積もり、実験で得られた耐用限界照射量をス ピン熱電素子の動作期間に換算したところ、数百年間に わたり発電性能が劣化せず、十分な耐用年数が確保でき ることが分かりました。

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.JP17K05126)「スピンゼーベック素子の耐放射 線特性」の助成を受けたものです。

(岡安 悟)

●参考文献

Okayasu, S. et al., Tolerance of Spin-Seebeck Thermoelectricity against Irradiation by Swift Heavy Ions, Journal of Applied Physics, vol.128, issue 8, 2020, 083902, 7p.

3-5 重水クラスターの低エネルギー振動モードの解明 - テラヘルツ・赤外吸収分光法と第一原理計算の活用-



図3-9 アルゴン固体中の重水クラスターの最安定構造

第一原理計算により、Ar 固体内に形成した(a)2量体、(b)3量体、(c)4量体の最安定構造を決定しました。クラスターに最隣接の Ar 原子は実線、第二隣接の Ar 原子は破線で各々結ばれています。



図3-10 重水クラスターのテラヘルツ・赤外吸収スペクトルの加熱温度依存性 試料加熱前と15 K、20 K、25 K での加熱後に、8 K の温度で測定しました。図内の1~6の数字は、対応する重水クラスター のサイズ (クラスター内の分子数)を示し、縦棒は吸光度のスケールを表します。横軸の波数は光の周波数に比例しており、 33 cm⁻¹ ~ 1 THz です。吸光度の増加は、対応する重水クラスターの量が増えたことを意味します。

水分子のナノサイズの凝集体(クラスター)は、「水 素結合」の性質を解き明かす目的で、分光手法を用いて 精力的に研究されています。しかし、赤外(IR)域に 比べて低エネルギーであるテラヘルツ(THz)域のスペ クトル測定例は極めて少なく、水分子二つから成る2量 体についてさえ、THz 吸収と振動モードの対応づけは 未決定でした。本研究では、Ar 固体中に重水分子(D₂O) のクラスターを生成した後に、THz・IR 吸収スペクト ルを測定し、Ar 固体の効果を取り入れた第一原理振動 計算の結果と合わせることで、2、3、4量体の THz 吸 収ピークの由来を決定しました。

液体ヘリウムを用いて8Kに冷却した金基板上に、 Ar と D_2O の混合ガスを凝縮し、真空中で試料を作成し ました。吸収スペクトルの測定には、IR 域と THz 域に 対応する2種類の検出器を用いました。第一原理計算 では、Ar 固体中に生成した2、3、4量体の最安定構造 と振動数を決定しました。図 3-9に、得られた最安定 構造を示します。

図 3-10 は、THz・IR 吸収スペクトルの測定結果です。 各吸収ピークはクラスターの特定の振動モードに由来 し、吸収光の周波数がそのモードの振動数に等しくなり ます。3 量体以上の IR 吸収ピークに注目すると、試料 の加熱温度が上がるとともに吸光度が増加しています。 これは、D₂O の熱拡散によるクラスターのサイズ成長 を意味します。IR 域と THz 域の吸収ピーク強度の加熱 温度依存性を比較し、さらに第一原理計算の結果と合わ せることで、各 THz 吸収ピークが 2、3、4 量体のどの 振動モードに由来するかを明らかにしました。

この成果は、氷や水の物性を特徴づける「水素結合 ポテンシャル」の高精度決定に直結します。また、「大気 における水分子のクラスター形成が温室効果を高めるこ と」が近年分かってきており、本研究により得られた「THz 吸収強度のクラスターサイズ依存性」のデータは、水の 温室効果の大きさを精密決定するという大気環境科学の 一大テーマを解決する上で、不可欠な情報となります。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金若手研究(No.JP18K14182)「テラヘルツ・赤外分光法を用いた水分子の核スピン転換機構の解明」の助成を受けたものです。

(山川 紘一郎)

●参考文献

Yamakawa, K. et al., Terahertz and Mid-Infrared Spectroscopy of Matrix-Isolated Clusters and Matrix-Sublimation Ice of D_2O , The Journal of Chemical Physics, vol.152, issue 17, 2020, 174310, 13p.

3-6 エキゾチックな P。の正体を探る ーコンパクトペンタクォークとハドロン分子が混在したハイブリット模型による解析ー



図 3-11 標準的なハドロン:バリオンとメソン 素粒子クォーク (q) からなるハドロンであるバリオン (qqq) とメソン (qq) の模式図です。 \bar{q} は反クォークを表します。多くのハドロンはこの描像で 大別することができ、陽子や中性子はバリオン、湯川秀樹 (ノーベル物理 学賞受賞) が予言したπはメソンの仲間です。



図3-12 *P。ペンタクォーク構造の例:コンパクト状態とハドロン分子* 五つのクォークから構成されると予想されるコンパクトペンタクォーク状態とハ ドロン分子の模式図です。ハドロン分子はπ交換力などの力で束縛しています。 *P。*はこれらの状態のどちらか、若しくは混合状態と考えられています。

近年、世界の大型加速器実験施設より、これまでの予 想を超えたハドロンの観測報告が相次ぎ、その正体を探 るべく活発な研究が行われています。ハドロンとは、原 子核を作る陽子や中性子の仲間の総称で、現在までに数 百種類が知られています。ハドロンはバリオンとメソンに 大別され、それぞれクォーク三つやクォークと反クォーク から成る単純な構造が考えられていました(図 3-11)。 ここでクォークは素粒子の仲間で、反クォークはクォー クの反粒子を指します。

しかし近年、単純なメソンやバリオンの描像では説明 できない「エキゾチックハドロン」が報告されています。 特に関心が持たれているのは欧州の加速器施設 LHC で の実験で報告された " P_c " と呼ばれるハドロンです。こ の P_c は五つのクォークからなるハドロン (=ペンタ クォーク) と考えられています。ペンタクォークの候補 は最初、兵庫県にある SPring-8 より Θ と呼ばれたも のが報告されましたが、その後存在は確認されませんで した。LHC の P_c は初のペンタクォーク発見となるかも しれません。

標準ハドロンよりも構成クォーク数が多い*P*。では、 五つのクォークがどのようなハドロン構造を形成してい るのか全く分かっていません。本研究の目的は、理論的 に*P*。構造を記述する模型の構築を行い、その予言を実 験値と比較することでその正体を探ることです。

これまでの研究では、五つのクォークが密集して束 縛状態を作るコンパクトペンタクォーク(c5q)状態や、 5 クォークがバリオンとメソンのクラスターに分かれ、



図 3-13 得られたペンタクォークの質量と寿命 実験値(■)と本研究の予言値(■)の比較です。 図中の■、■の中心位置はペンタクォークの質量 を、高さは寿命の逆数に対応し、エネルギーの単 位(メガ電子ボルト(MeV))で表現されています。 併記された数字はその質量の値を表します。

それらが分子のように緩く束縛したハドロン分子などの 構造が提案されました (図 3-12)。先行研究ではそれら 構造は独立に議論されてきました。しかし、c5g 状態は 分裂してハドロン分子となること (またはその逆) がで き、この二つの状態は「混ざり合う」ことができます。 本研究ではこの混合に着目し、c5g 状態とハドロン分子 が混合することを考慮したハイブリット模型を提案しま した。ハドロン分子を構成するメソンとバリオンの間に はπメソン (図 3-11)を交換するπ交換力と呼ばれる力 を考えます。この力は陽子と中性子の間に働くことで原 子核を形成する重要なものとして知られています。

状態の混合(図 3-12)に着目したハイブリット模型を用い、ペンタクォークのエネルギーを予言しました(図 3-13)。得られた予言値のうち三つは、P_cの質量・ 寿命の実験値と類似した値となりました。図中の矢印で結ばれたペアが対応する実験値と予言値になります。この結果より、P_cは c5q 状態とハドロン分子が混合した エキゾチックな状態である可能性が高いことが分かりま す。本模型による解析では、これまでの実験データが示 す三つのP_cの他に、未知のペンタクォークが複数存在 する可能性も予言されました。今後の実験による探索が 期待され、また、それは本模型のさらなる検証にもつな がります。P_cの構造を解明することは、「クォークの閉 じ込め」と呼ばれる、この宇宙の物質が素粒子クォーク からどのようにして形成されたか、という根本的な問題 の解明につながることが期待されています。

(山口 康宏)

●参考文献

Yamaguchi, Y. et al., Pc Pentaquarks with Chiral Tensor and Quark Dynamics, Physical Review D, vol.101, issue 9, 2020, 091502, 7p.

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)の廃止措置等に知識基盤を提供するとともに、軽水炉の安全性向上技術、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 は常に新技術の創出と最新の知見や技術を取り込みなが ら研究開発を行い、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技術や放射性 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。本章では、近年の 研究開発による成果を紹介します(図 4-1)。

原子核物理や医療分野での利用に向けて、重陽子によ る核反応を用いた新たな高エネルギー中性子源が提案さ れています。今回、従来の計算手法では十分に考慮されて いなかった量子力学的効果を取り入れることで、重陽子に よる核反応断面積を精度良く予測する計算手法を開発し ました。また、本手法の計算値を基に核反応データベース JENDL/DEU-2020を整備しました。これを利用すること で様々な中性子源の設計が容易になり、高エネルギー中性 子の利用が促進されることが期待されます(トピックス 4-1)。

核反応断面積などの原子核固有の情報を表す核データ は、原子力利用に欠かすことのできない知の基盤データです。 近年、注目されている機械学習を用いて核データを評価す る手法を提案しました。本手法を用いることで高精度の 評価値とその不確かさ情報を併せ持つ高品質の核データ ベースの開発への貢献が期待できます(トピックス 4-2)。

東京電力福島第一原子力発電所で発生した燃料デブ リの化学的状態の知見は廃炉工程を左右する重要な情報 の一つです。今回、デブリの分析の手法として、極微量 のサンプルや、強い放射線に対しても適用可能である顕 微ラマン分光分析に注目しました。本手法を用いてウラ ン酸化物と過酸化水素との反応を測定したところ、2種 類のウラニル過酸化物が生成すること、その分布状態を ミクロンオーダーで可視化できました。本手法を実デブ リに適用することでデブリの性状把握への貢献が期待で きます(トピックス 4-3)。

放射線被爆の線量評価においては、状況に合わせた

詳細な臓器線量評価が不可欠であり、これまで人体模型 モデル等の整備・改良を進めてきました。近年において 第一原理に基づいた計算コードの利用が増えていること から、最新の計算科学技術を用いて代表的な被爆条件に 対する臓器線量を再評価しました。その結果、多くの臓 器では10%の範囲内で一致しており、現在の線量評価 推定が十分な精度を有することが分かりました。本成果 により、より精度の高い線量評価システム構築への貢献 が期待できます (トピックス 4-4)。

これまで、原子力事故時の放射性物質の大気拡散過程 解析に用いてきた世界版緊急時環境線量情報予測システ ムWSPEEDIは、高度な気象データを用いることから 計算時間を要し、様々な条件の計算結果を比較検討する ことは困難でした。今回、WSPEEDIによる計算結果 を即座に作成できる新たな計算手法となる大気拡散デー タベースシステムWSPEEDI-DBを開発しました。本 手法を用いた様々な気象条件における大気拡散計算結果 は、モニタリングポスト計画の最適化や防災訓練への活 用が期待できます (トピックス 4-5)。

高強度アルミニウムは、航空宇宙分野やスポーツ用 品等で広く使われていますが、破壊現象の一つである水 素脆化が知られています。今回、ナノスケールの実験観 察と電子状態計算から原子レベルの欠陥構造の挙動を予 測し、水素が集積することで自発的剥破壊が生じること を明らかにしました。計算機による効率的な合金設計が 可能であることから、我が国の製造業の発展に貢献する ことが期待されます(トピックス 4-6)。

高レベル放射性廃棄物の有害度を低減する加速器駆動システム (ADS)の陽子ビームによる材料損傷評価 に必要な弾き出し断面積を初めて測定しました。また、 最新の分子動力学モデルを原子力機構が中心となって 開発している粒子輸送計算コード (PHITS) に組み込ん だ計算結果は測定値と良い一致を示しました。本手法 により材料損傷評価の精度を向上できることから、高 エネルギー加速器施設のさらなる安全性向上が期待で きます (トピックス 4-7)。

4-1 高エネルギー中性子利用の促進に向けて - 基礎科学や医療のための核反応データベースを開発-



図4-2 種々の中性子源から得られる中性子のエネルギー分布 (最大値を1に規格化、原子炉は0.1 MeV以上) J-PARC等の陽子加速器を用いた核破砕中性子源や原子炉、電子 加速器から得られる中性子の多くは10 MeV以下です。一方、重 陽子加速器を用いると10 MeV以上の中性子が多く得られます(実 線はリチウムに40 MeV の重陽子を衝突させた際の実験値)。

基礎科学から産業応用まで、中性子の利用は大きな 広がりを見せています。その中で、原子核物理や医療、 核融合炉開発などの分野では、10 MeV 以上の高いエネ ルギーを持った中性子が大量に必要とされはじめていま す。しかし、原子炉などを用いた従来の中性子源では、 こうした要求を満足させる中性子を供給することはでき ません (図 4-2)。そこで、10 MeV 以上の中性子を効 率良く得るための新たな中性子源として、陽子一つと中 性子一つからなる粒子である「重陽子」による核反応を 用いたものが提案されています。

利用目的に応じた様々な仕様の中性子源を設計し、そ の性能を検討するには、重陽子を標的に衝突させた際に 発生する中性子の量を様々な条件(重陽子の運動エネル ギー、標的物質の種類など)で精度良く予測できなけれ ばなりません。しかし、後述するように、従来のシミュ レーションソフトでは信頼性の高い予測ができませんで した。これはシミュレーションソフトに内蔵されている 核反応計算手法が、重陽子の持つ量子力学的な波として の性質を十分に取り入れておらず、物質を構成している 原子核と重陽子が反応する確率(重陽子反応断面積)を 精度良く予測することができないためです。

本研究では、量子力学的効果を考慮した複数の理論モ デルを物理的な整合性を保ちつつ組み合わせることで、 重陽子反応断面積を予測する新たな計算手法を開発しま



図4-3 重陽子加速器を用いた中性子源のシミュレーション結果 実線は図 4-2 の実線に実験誤差を付与して表示したものです。破 線は JENDL/DEU-2020 のデータを参照してシミュレーション ソフト PHITS で計算を行った結果です。点線は PHITS に内蔵さ れている核反応計算手法を用いて計算を行った結果です。

した。さらに、中性子源の設計に適用できるよう、本計 算手法による重陽子反応断面積の予測値をシミュレー ションソフト内で参照できるデータ形式にまとめ、重陽 子加速器を用いた中性子源設計用の核反応データベース JENDL/DEU-2020として整備しました。

JENDL/DEU-2020 を用いたシミュレーションの精度 検証結果の一例を図 4-3 に示します。図の通り、重陽子 反応断面積として JENDL/DEU-2020 のデータを用い ることで、シミュレーションソフトに内蔵の核反応計算手法 から求めた重陽子反応断面積を用いた場合よりも実験値 の予測精度が大幅に向上しています。また、これ以外の条 件においても同程度の予測精度の向上が確認できました。

JENDL/DEU-2020 を使用することで、シミュレー ションの信頼性が大きく向上します。これにより、経験 や実測に依存せずに中性子源の設計や運用が可能にな り、今後、基礎科学や医療、材料開発など幅広い分野に おいて高エネルギー中性子の利用が促進されることが期 待されます。

本研究の一部は、日本学術振興会科学研究費補助金 若手研究(No.JP19K15483)「低エネルギー重陽子核 反応の高精度計算とそれに基づく小型中性子源の検討」 の助成を受けて実施しました。

(中山 梓介)

●参考文献

Nakayama, S. et al., JENDL/DEU-2020: Deuteron Nuclear Data Library for Design Studies of Accelerator-Based Neutron Sources, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.58, issue 7, 2021, p.805-821.

4-2 機械学習を用いた核反応データ評価手法を提案 - 高品質な高エネルギー核反応データベースの開発に貢献-



図 4-4 理論モデルによる^{nat}Si(p,X)²²Na 反応断面積の解析値 と提案手法による評価値の比較

最新の理論モデルでも、高エネルギーの核反応断面積の実験値 を予測することは困難です。

核反応断面積などの原子核固有の物理量を表す核 データは、原子力の研究開発をはじめ、放射線を利用し た医療分野や放射線環境下における被ばく線量評価・半 導体装置の開発で欠かすことのできない知の基盤データ です。これらの核データは、これまで世界各地の研究機 関で取得された膨大な実験データをもとに核反応理論モ デルや経験式を駆使して評価され、評価済み核データラ イブラリと呼ばれる核反応データベースとして整備され ています。先人の英知と多大な努力により、核データの 品質は向上してきましたが、それでもなお、理論モデル や経験式では説明できない物理量に対しては、評価値と 実験結果との間に乖離が存在し、これを解決する新たな 評価手法の確立が期待されてきました。

近年、ニューラルネットワークや深層学習をはじめとす る種々の機械学習技術が注目され、様々な研究分野で応 用されています。私たちは、これらの機械学習のテクニッ クの中で、ガウス過程回帰と呼ばれる手法に着目し、こ れを応用して核データを評価する手法を提案しました。

ガウス過程回帰はベイズ統計に基づく機械学習法の 一つで、提案手法は、実験誤差情報を含んだ実験デー タを学習することで、任意のエネルギー点における断面 積などの物理量を、不確かさを含めて評価することが できます。図4-4は、半導体素子の材料として使われ るケイ素原子核(^{nat}Si)と高エネルギー陽子との核反応



図4-5 提案手法により得られる^{nat}Si(p,X)²²Na反応断面積評価値の不確かさ情報((a)1標準偏差、(b)相関係数行列) 標準偏差により、それぞれのエネルギー点における断面積評価値の不確かさが分かるだけでなく、相関係数により、エネルギー間の断面積の関係の強弱も把握することができます。

(^{nat}Si(p,X)²²Na 反応)で生成されるナトリウム 22 (²²Na) の核種生成断面積に対する、提案手法による評価値と最 新の理論モデルによる解析値との比較を示したもので す。10 MeV を超える高エネルギー核反応では、最新の 理論モデルでも断面積を精度良く予測することは困難で したが、提案手法では、断面積を実験データから帰納的 に推定するため、実験値との大幅な乖離を生じることな く断面積を評価することができます。

図 4-5 は、提案手法によって得られた^{nat}Si(p,X)²²Na 反応断面積の不確かさの情報を示したものです。この図 のように、従来手法では評価することができなかった高 エネルギー核反応に対する断面積評価値の不確かさの情 報を視覚的にとらえることが可能になりました。この特 長を利用して、核データの精度向上の観点から効果的な 実験を議論することができるとともに、核データを利用 した研究開発分野で、被ばく線量や放射線損傷量などの 評価値に対する核データに起因する不確かさを推定する ことも可能です。

提案した手法を、理論モデルによる予測が困難な高エ ネルギー核反応に対する核データ評価に用いることで、 従来手法では実現できなかった高精度の評価値とその不 確かさ情報を併せ持つ高品質な高エネルギー核反応デー タベースの開発に貢献することが期待されます。

(岩元 大樹)

●参考文献

Iwamoto, H., Generation of Nuclear Data Using Gaussian Process Regression, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.57, issue 8, 2020, p.932-938.

4-3

燃料デブリの化学状態を明らかにする - 顕微ラマン分光法の適用可能性-



図 4-6 過酸化水素水に浸漬した U₃O₈ のラマンスペクトル測 定結果の例

2種類のウラニル過酸化物(シュトゥット: [(UO₂)(O₂)(H₂O)₂](H₂O)₂ とメタシュトゥット: (UO₂)(O₂)(H₂O)₂)が観測されました。



図 4-8 シュトゥットの生成量を横軸にメタシュトゥットの生成 量を縦軸にプロットした散布図

2種のウラニル過酸化物の生成量の間に相関がないことから、 これらの化合物はそれぞれ独立に生成したことを示唆しています。

東京電力福島第一原子力発電所の事故で発生した燃料 デブリは、核燃料と構造材などが溶け混ざり冷え固まっ て生成した未知の複雑な固体物質であると考えられます。 燃料デブリがどの様な化学物質から成り立っているかなど の化学的状態の知見は、今後の炉内からの取出しや、デ ブリの保管、処理・処分などの廃炉工程を左右する重要な 情報の一つになると考えられます。しかしながら燃料デブ リの化学的状態を明らかにする方法は定まっていません。

そこで本研究では、詳細な化学状態の分析を行うこと ができる、顕微ラマン分光法の利用に着目しました。顕微 ラマン分光法は、対物レンズを通してレーザー光を試料 に照射し、散乱する光の分光・検出により試料の振動構 造情報を得る測定法です。測定には試料の前処理の必要 がなく、さらには、極微少量のサンプルに対しても行うこ とができるため、高い放射能を持つ燃料デブリの測定を 安全で簡単にできる可能性が高いことが大きな特徴です。

燃料デブリは、炉内で水と接触しているため水の放 射線分解により発生した過酸化水素などと反応して、事 故直後とは異なった化学的状態にあると予想されます。 本研究では、この燃料デブリの経年変化を踏まえた分析 を将来可能とすることを見据えて、基礎的なウラン酸化 物の一つである U₃O₈ が過酸化水素と反応して変化した 様子を顕微ラマン分光法により観測しました。 ラマン測定の結果、過酸化水素との反応により U₃O₈



図4-7 U₃O₈表面上に生成した2種類のウラニル過酸化物の 分布と光学顕微鏡画像

メタシュトゥットよりもシュトゥットの方が優勢的に生成したこ とを示しています。

表面にシュトゥットとメタシュトゥットという水和数の 異なる2種類のウラニル過酸化物が生成したことが明ら かになりました(図4-6)。また、これらの生成物の試 料表面における分布を観測したところ、メタシュトゥッ トよりもシュトゥットの方が優勢的に生成したことが分 かりました(図4-7)。さらに、シュトゥットとメタシュ トゥットの生成量の間に相関が観測されなかったことか ら(図4-8)、これらの2種類のウラニル過酸化物はそ れぞれ独立に生成したと示唆されます。

ウラニル過酸化物は、使用済核燃料やUO2の酸化反応によっても生成することが知られています。また最近では、より実際の燃料デブリに近い、ウラン-ステンレス鋼-ジルコニウム系の模擬デブリとの反応でも生成することが分かってきています。したがって、実際の燃料デブリでもウラニル過酸化物が生成している可能性があり、ウラニル過酸化物を分析することにより燃料デブリの経年変化に関わる情報が得られると考えられます。さらに、顕微ラマン分光法はウラニル過酸化物以外の化合物も分析可能であるため、複雑な混合物と考えられている燃料デブリの正確な性状把握に貢献すると期待されます。

本研究は、原子力機構「英知を結集した原子力科学 技術・人材育成事業」(JPJA18P18071886)の助成を 受けたものです。

(日下 良二)

●参考文献

Kusaka, R. et al., Distribution of Studtite and Metastudtite Generated on the Surface of U_3O_8 : Application of Raman Imaging Technique to Uranium Compound, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.58, issue 6, 2021, p.629-634.

4-4 最新の計算科学を用いて原爆被爆者の線量を再評価 - 日米共同研究の成果によりさらに精度の高い疫学調査が可能に-



図4-9 本研究の実施体制

放射線影響研究所が研究のとりまとめ及びデータ提供を行い、米国国立がん研究所が成人・小児人体模型の開発、 フロリダ大学が妊婦人体模型の開発、原子力機構が線量計算及び臓器線量データセットの整備を担当しました。



図4-10 代表的な被爆条件に対して本研究と現在使われている線量推定システムで計算した臓器線量の差分 数値が大きいほど、本研究で計算した結果の方が大きいことを意味します。

原爆被爆者の健康影響に対する疫学調査結果は、国 際放射線防護委員会が放射線防護に関する勧告を策定す る際、最も重要な基礎データとして利用されています。 その疫学調査には、各人の被爆状況に合わせた詳細な臓 器線量評価が不可欠となり、放射線影響研究所が中心と なって原爆被爆者線量推定システムを数十年にわたって 整備・改良してきました。そのシステムでは、計算した 光子や中性子の強度から被爆者の臓器線量を推定するた めに、1980年代に開発された三つの年齢群に対する数 式人体模型と、当時の計算機性能でも動作可能な近似式 を多く含む放射線挙動解析コードが採用されています。 しかし、近年の放射線防護研究や医学物理計算では、近 似を使わない第一原理計算に基づいて個々の放射線挙動 を追跡する計算コードや CT 画像などから構築した詳細 な人体模型の利用が増えてきており、原爆被爆者の臓器 線量推定システムでもそれら最新の計算技術を用いた再 評価が望まれていました。

このような背景から、私たちの研究グループでは、 図 4-9 に示す日米共同研究体制を確立し、最新の計算 科学技術を用いて代表的な被爆条件に対する臓器線量を 再評価しました。具体的には、① 1945 年の日本人標準 体型に調整した成人男女及び年齢別小児男女に対する人 体模型の開発、② 1945 年の典型的な日本人標準体型に 調整した在胎週別妊婦に対する人体模型の開発、③それ ら人体模型と原子力機構が中心となって開発を進める最 新の放射線挙動解析コード PHITS を組み合わせた代表 的な被爆条件に対する臓器線量計算、④様々な照射条件 に対する臓器線量データセットの整備を実施しました。

代表的な被爆条件に対して、本研究と現在使われ ている線量推定システムで計算した臓器線量の差分を 図 4-10 に示します。図より、多くの臓器に対して、両 者は 10%の範囲内で一致することが分かります。これ は、現在の線量推定システムが様々な近似を導入してい るものの十分な精度を有していることを改めて示した結 果と言えます。一方、結腸や骨髄に対しては、両者は最 大で約±15%の差があることが分かりました。これは、 臓器形状を精緻に再現し、より近似の少ない放射線挙動 解析コードを採用した効果と考えられます。今後は、本 研究成果を原爆被爆者線量推定システムに取り込み、よ り精度の高い疫学調査や、それに基づくリスクモデルの 更新を予定しています。

本研究は、放射線影響研究所との共同研究「原爆被 爆者に対する被ばく線量計算手法の開発に関する共同研 究」の成果の一部です。

(佐藤 達彦)

●参考文献

Sato, T. et al., Dosimetric Impact of a New Computational Voxel Phantom Series for the Japanese Atomic Bomb Survivors: Methodological Improvements and Organ Dose Response Functions, Radiation Research, vol.194, issue 4, 2020, p.390-402.

4-5

放射性物質の様々な条件の大気拡散計算を高速化 - 大気拡散データベースシステム WSPEEDI-DB を開発-



図 4-11 新規開発の計算手法(下段)と従来手法(上段)の比較

従来手法では放出条件ごとに必要であった拡散計算の実行を、新規手法では不要としました。試験計算では、1ケース約7分必要であった放出から1日後までの計算が、新規手法では3、4秒で終了するなど、100分の1以下の時間で計算結果を得ることができました。



図 4-12 WSPEEDI-DB システムの構成と計算の流れ

システムの計算機能により大気拡散計算出力のデータベースを作成し、解析機能によりこのデータベースに対して放出条件を適用して 計算結果を作成します。計算結果は様々な図形を作成して可視化します。これらの機能は Web ブラウザを用いて簡便に操作できます。

中央防災会議の防災基本計画では、国は、地域防災 計画・避難計画の具体化・充実化に当たって地方公共団 体が大気拡散計算を活用する場合には、専門的・技術的 観点から支援を行うものとされています。これに貢献す るには、これまで原子力事故時の放出源情報の推定や大 気拡散過程の解析等に用いてきた、世界版緊急時環境線 量情報予測システム WSPEEDI による詳細な大気拡散 計算結果を効率的に提供する必要があります。しかし、 WSPEEDI の高度な数値モデルは計算時間を要するた め、気象条件を含む様々な条件の計算結果を比較検討す るような利用は困難でした。

そこで、WSPEEDIによる様々な条件の計算結果を 即座に作成できる新たな計算手法(図4-11)を開発しま した。この手法では、原子力施設など放出地点が定まっ ている場合、放出期間、放出核種、放出率を特定しない 計算結果のデータベースを事前に作成しておくことによ り、放出源情報を設定するだけでその条件に基づく予測 結果を即座に得ることができます。具体的には、放出期 間を一定間隔で分割した各期間について単位放出条件 (1 Bq/時)の大気拡散を計算し、全放出期間ケースの 結果を保存します。放射性核種は、拡散挙動が類似する 5 グループに分け、その代表 5 核種についてのみ放射性 壊変がない条件で計算して、後から核種ごとの壊変率を 適用することで任意の核種に対応できます。この計算を、 毎日の気象データ更新に合わせて定常的に実行して過去 から数日先までの連続的なデータベースを整備しておき ます。これに分割期間ごとの放出条件を適用した計算結 果を全放出期間で合算することで、任意の放出条件に対 する計算結果を作成できます。さらに、各種機能を簡便 に操作できるインターフェイスを整備し、大気拡散データ ベースシステム WSPEEDI-DB (図 4-12) を開発しまし た。この WSPEEDI-DB により作成できる過去の気象 条件に対する様々な仮想放出条件の計算結果は、モニタ リング計画の最適化や、模擬モニタリングデータ作成及び 緊急時対策で想定すべき事象の把握等の防災訓練への活 用が考えられます。その一例として、島根原子力発電所周 辺の1年間の計算結果を用いてモニタリングポスト配置の 有効性を評価したところ、現状の配置は、非降水時は空 間線量率の空間分布把握に有効だが、降水時はモニタリ ングポストで把握できない高線量地域が想定され、その 把握には機動的測定が有効であることを提示できました。

本研究は、島根県原子力環境センターとの共同研究 「緊急時モニタリングにおける大気拡散シミュレーショ ンの活用に関する研究」(平成28~令和元年度)で実施された内容を含んでいます。

(寺田 宏明)

●参考文献

Terada, H. et al., Atmospheric-Dispersion Database System that Can Immediately Provide Calculation Results for Various Source Term and Meteorological Conditions, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.57, issue 6, 2020, p.745-754.

4-6 高強度アルミニウム合金の自発的破壊現象の解明 - 水素でアルミニウムがもろくなる原因の解明と、計算科学による高強度合金設計・



図4-14 実験による破壊現象の観察

(a) アルミニウム合金中の欠陥構造、(b) それぞれの欠陥構造ごとの水素分配、(c) 水素集積による結合エネルギーと界面凝集エネルギーの変化を示します。水素は欠陥の中でも微細粒子との界面によく集まることが分かります。さらに、たくさんの水素が飽和することなく集まり、一定の濃度を超えると界面の結合力がゼロより小さくなり、自発的剥離を生じることが分かります。

アルミニウム合金は、航空宇宙分野や、鉄道車両、ス ポーツ用品などに広く使われてはいるものの、水素脆化 と呼ばれる水素が関係する破壊現象のため、さらなる高 性能化が阻まれていました。近年、軽量かつ高強度な炭 素繊維複合材料(CFRP)が航空機などの新たな構造部 材として使われるようになっていますが、製造・加工・ 修理のコストと信頼性の観点から金属材料のニーズは高 く、軽量で高強度なアルミニウム合金の開発が期待され てきました。

高強度アルミニウム合金は、材料中の水素によって割 れを誘発する構造材料に好ましくない特性を持っていま す。そこで、水素によって誘発される破壊挙動の特徴を 捉えることを目的に、高分解能電子顕微鏡や大型シンク ロトロン放射光施設を用いて、アルミニウム破壊挙動の 4D 観察を行ってきました。これらのナノスケールの実験観 察から材料中の原子レベルの欠陥構造の挙動を予測する ことで、これらの欠陥構造に水素を含む状態を、原子モ デルを用いて再現する枠組みを開発し、電子状態計算に よって欠陥構造と水素の関係、さらには破壊に至るプロセ スを明らかにすることを目的として研究を進めてきました。

図 4-13(a)は、シンクロトロンX線トモグラフィー によって得られた高強度アルミニウム合金の破壊後の破 面を見た三次元イメージです。この破面は擬へき開破面 と呼ばれ、金属材料でよく観察される破壊形態とは異な り、水素が存在することによって形態が変化して割れや すくなることを示しています。同じ試料の破面を、低加 速走査型電子顕微鏡を用いてさらにミクロスケールで見 たものが図 4-13(b)になります。破面には高強度化のた めに析出させたナノスケールの MgZn₂ 微細粒子が存在 し、アルミニウムと微細粒子の界面で剥離が生じている ことが明らかになりました。

次に、水素が偏析する傾向を調べるために、原子モ デルに基づく電子状態計算によって、実際に材料中に存 在する全ての欠陥構造に対して水素が集まる可能性を検 討しました。図 4-14(a)と(b)には、合金中に存在する 欠陥構造の模式図と計算によって評価された合金中の水 素分配を示しています。材料中には、一般に、空孔、転位、 粒界などの欠陥が存在し、加えて、対象とする高強度ア ルミニウム合金では微細粒子が存在していますが、今回 の計算からこれまで水素が集まらないといわれていた微 細粒子との界面によく集まることを明らかにしました。 図 4-14(c)には多数の水素が集積した際の界面における 結合エネルギーと界面凝集エネルギーの変化を示してい ます。(結合エネルギーは高いほど水素が界面に集まり やすいことを示しており、凝集エネルギーは界面におけ る接着力を示す破壊現象に関連した指標です。)その結 果、界面には多数の水素が集まりやすく、水素分子が形 成されながら集積し続けることが分かりました。さらに、 多数の水素の集積によって界面の凝集エネルギーは低下 していき一定の量に達した時点でゼロになります。

このように、水素は界面で飽和することなく安定的 に集積し、その結果、界面の接着力が喪失することによっ て自発的剥離を生じていることが分かりました。 微細粒 子はアルミニウム合金の高強度化には不可欠ですが、解 析によって水素を集めやすく、割れを促進することが明 らかになりました。計算機による合金設計では、効率的 な合金開発への応用が可能であることから、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、科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業 (CREST、JPMJCR1995)及び産学共創基礎基盤研究 プログラム (Project 20100114)の支援を受けたものです。 (都留 智仁)

●参考文献

Tsuru, T. et al., Hydrogen-Accelerated Spontaneous Microcracking in High-Strength Aluminium Alloys, Scientific Reports, vol.10, 2020, 1998, 8p.

4-7 陽子ビーム照射で材料はどの程度損傷するのか? - 高エネルギー陽子ビームを用いる加速器駆動システムの安全に貢献-





図4-16 鉄の弾き出し断面積の実験値と計算値の比較 ADS で重要な鉄について、10 MeV 以上のエネルギー領域で過去 に測定例がなく、今回、世界で初めてこのエネルギー領域の実験 データを取得しました。

図4-15 原子力機構が提案する加速器駆動システム(ADS)の概要 陽子ビーム導入部にあたる鉄鋼製の「ビーム窓」は ADS の成立性を左 右する主要機器ですが、その放射線損傷評価に必要な弾き出し断面積の 実験データがありませんでした。

原子力発電に伴い発生する高レベル放射性廃棄物を 効率的に減容し、有害度を低減する核変換を目的とし た加速器駆動システム(ADS)の実現に向け、原子力 機構では研究開発を進めています。ADS では、図 4-15 に示す数十億電子ボルトの高エネルギー陽子ビームの導 入部「ビーム窓」に鉄鋼を、また加速器の電磁石には銅 を用います。ビーム窓などの材料に陽子ビームが入射す ると原子の弾き出しが起こり、放射線損傷により材料が 劣化します。原子あたりの弾き出し数は、陽子ビームの 強度(陽子束)に原子の弾かれやすさ(弾き出し断面積) を乗ずることにより計算されますが、弾き出し断面積の 実験データは数少なく、特に ADS で重要な数十億電子 ボルト(数 GeV)のエネルギー領域における鉄につい ては測定例がなく、計算に用いるモデルの妥当性の評価 ができませんでした。

本研究では、ADS で重要な鉄と銅の弾き出し断面積 を J-PARC の加速器を用いて測定しました。この測定 では、金属の格子中に損傷が生じると電子の流れが阻 害され、電気抵抗が高くなる性質を利用しました。一 度生成した損傷が熱運動により回復するのを防ぐため、 -269 ℃(4 K)程度に冷却した試料に陽子ビームを入 射し電気抵抗の増加を観測しました。この実験により、 世界で初めて GeV エネルギー領域における鉄の弾き出 し断面積を取得しました。

次に、原子力機構が中心となり開発を進めている粒

子輸送計算コード PHITS に原子の弾き出しモデルを組 み込み弾き出し断面積を計算し、取得した実験値と比較 しました。これまで弾き出し損傷評価に用いられてきた 計算モデル (NRT モデル) による計算値は、1 千万電 子ボルト (10 MeV) 以下の陽子に対する実験値と比較 的良い一致を示すことが知られていましたが、図 4-16 に示すように GeV のエネルギー領域では計算値は実験 値の約2倍であり、NRT モデルには問題があることが 明らかになりました。そこで、最新の分子動力学法に基 づく材料損傷モデル (arc モデル) を PHITS コードに 組み込み、弾き出し断面積を計算した結果、計算値は実 験値と良い一致を示し、より高い精度で材料の損傷評価 が行えるようになりました。

本研究で行った弾き出し断面積測定と材料損傷モデ ルの精度確認により、ADSのみならず広く J-PARC のような高エネルギー加速器施設で使われる材料の損傷 評価精度が向上し、さらなる安全性向上につながるもの と期待しています。

本研究は、文部科学省の原子力システム研究開発事 業(No.JPMXD0216815810)「J-PARC を用いた核変 換システム(ADS)の構造材の弾き出し損傷断面積の 測定」で実施した成果です。

(明午 伸一郎)

* Jung, P., Atomic Displacement Functions of Cubic Metals, Journal of Nuclear Materials, vol.117, 1983, p.70-77.

●参考文献

Matsuda, H., Meigo, S. et al., Measurement of Displacement Cross-Sections of Copper and Iron for Proton with Kinetic Energies in the Range 0.4 - 3 GeV, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.57, issue 10, 2020, p.1141-1151.

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、高性能汎用 研究炉 JRR-3 や大強度陽子加速器施設 J-PARC、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 センターでの研究開発

5

J-PARCは、リニアック、3 GeV シンクロトロン、 メインリング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。

加速器においては、目標である陽子ビーム出力1 MW での安定運転を目指したビーム調整試験と機器の高度化 が進められました。特筆すべきは、1 MW で 38 時間の 連続運転を稼働率 90% 以上で実施できたことです。こ の成果により、設計値である 1 MW での安定運転の目 途を立てることができました。より長期間の連続運転のた めに、3 GeV シンクロトロンのビームの荷電変換入射に 使用している炭素薄膜の消耗度合いをオンラインで計測で きるシステムを構築しました。これにより、炭素薄膜が破 損する前に予防保全的に交換することが可能となり、稼 働率のさらなる向上が期待できます(トピックス 5-1)。

2020年度、MLF では年間を通して 600 kW で大強度 のビームを利用者に安定供給しました。新型コロナウイ ルスの感染拡大に伴い、計画した 7.2 サイクル(159日) の運転を調整して144日の運転を行い、中性子実験装置 21 台とミュオン実験装置 2 ラインを運用する中で、物質 科学、材料科学等にかかわる幅広い実験を実施しました。 中でも、工学材料回折装置「匠」(BL19)(図 5-1)では、 建設機械や自動車、核燃料キャスクなどの部品に広く使 われている鋳鉄が、過酷な環境下を模擬して繰り返し引 張・圧縮変形させると、強度が増加するメカニズムを明 らかにすることに成功しました(トピックス 5-2)。また、 中性子ビーム実験の高度化では、高エネルギーから低エ ネルギーまでの幅広いエネルギーを持つ中性子ビームを 一度に偏極するためのヘリウムガスを用いた高性能中性子 スピンフィルターの開発と利用研究を推進しました。特に、 中性子核反応測定装置「ANNRI」(BL04) ではこれま で不可能であった1 eV 程度のエネルギーを持つ中性子 を偏極することに成功し、¹³⁹La 原子核の偏極吸収に伴う y線角度相関を初めて測定しました(トピックス 5-3)。 この他にも、この技術は、磁性体の磁気構造解析や物質 中の水素位置の決定、基礎物理実験などに応用され始め ており、今後様々な科学的な成果が得られることが期待 されます。



図 5-1 J-PARC MLF 工学材料回折装置「匠」(BL19)

(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 端測定技術を開発・高度化し、幅広い科学研究・開発分 野における革新的成果・シーズの創出を目指しています。

2020年度、中性子利用研究では、金属磁性体 Mn_aRhSi に見られる短距離磁気秩序相が常磁性領域と は相分離した状態で、高温まで維持されることを明らか にしました(トピックス 5-4)。この現象が見つかったのは 今回が初めてですが、金属磁性体に普遍的に存在する可 能性があり、伝導電子スピンの振る舞いについて新しい 側面を捉えた研究です。また、社会に広く応用できる研 究例として、牛や豚の廃棄骨を安価な吸着剤として利用 する技術開発でも成果を得ました(トピックス 5-5)。これ は、動物の骨が金属を取り込むことを利用したもので、そ の金属吸着の鍵は炭酸アパタイトに含まれる炭酸であるこ とを突き止めました。それを利用して、簡単な処理を施す ことでストロンチウムやカドミウムに対して既存の吸着 剤の数十倍から数百倍もの高い吸収性能を持つ材料を作 成することができるようにしたものです。放射性物質は もちろん、有害な重金属の除去にも応用可能な技術です。 なお、2021 年度から JRR-3 の供用を再開するのに合 わせ、上記のような価値ある成果を JRR-3 で生み出す べく、中性子実験装置や利用環境の整備等も進めました。

放射光利用研究では、機能性材料として注目されて いるグラフェンの酸素原子の透過性について報告してい ます(トピックス 5-6)。グラフェンは炭素原子一層分 の厚みを持つ薄膜ですが、水素以外の気体分子をほぼ透 過させない「ガスバリア性」を有しています。ところが、 高速の酸素分子は、グラフェンを非破壊で透過すること を世界で初めて発見しました。この成果は、新しい機能 を持った保護膜の開発へと発展することが期待されま す。また、高性能なスピントロニクスデバイスを実現す る候補材料として強磁性半導体が注目されており、その 磁気秩序の形成メカニズム解明のため、磁性を担う元素 の電子軌道状態を詳細に調べました(トピックス 5-7)。 これは長年にわたる強磁性発現メカニズムの論争の決着 に大いに寄与するものです。この成果は、新規強磁性半 導体の性能向上の鍵であり、既に極低温では実証されて いる次世代スピントロニクスデバイスの室温動作実現に 向けた指針を与えるものです。

5-1 大強度陽子ビームの安定運転に向けて - 入射用薄膜の状態監視装置の開発-



図5-2 3 GeV シンクロトロンの荷電変換入射方式概念図 左上から入ってきた入射 H⁻ ビームは、第一薄膜を通過すること で電子二個が取れて陽子(H⁺)に変換され、周回軌道(赤線) に合流します。周回陽子ビーム(H⁺)と入射(H⁻)ビームは磁 石によって逆に曲がるため、同じ磁石を使って第一薄膜上で重 ねることができます。重なった状態で入射 H⁻ は陽子に変換する ので、周回ビームに何度も重ねて入射することができます。変 換しきれず残った H⁻ や H⁰ は、第二、第三薄膜によって陽子に 変換され、入射ダンプに導かれ廃棄されます。

大強度陽子加速器施設(J-PARC)の3 GeV シンク ロトロンでは、リニアックで加速した負水素(H)ビーム を入射する際に、炭素薄膜を通し陽子(H)に変換して、 周回している陽子ビームに重ねて入射します(図 5-2)。 この手法を荷電変換入射と呼びます。この入射方式に よって、ビームサイズを広げずに大電流ビームを蓄積す ることができますが、安定運転のためには入射のたびに ビームが照射される炭素薄膜の劣化状態を把握する必要 があります。本方式では、炭素薄膜で電子をはぎ取れな かった中性水素原子(H⁰)やH が一定量存在し、それ が入射部周辺で失われた場合に放射化を引き起こすた め、再度炭素薄膜を通過させ陽子に変換した上で入射ダ ンプに導いて廃棄しています。

私たちは、この入射ダンプへのビーム輸送ライン中に 電流モニタ(CT)及びマルチワイヤプロファイルモニ タ(MWPM)を設置し、ダンプへ輸送される H⁰と H の量を測定することで、炭素薄膜の劣化状態を監視する 手法を開発しました。薄膜に異常がなければ、入射ビー ムのほとんどは陽子に変換されるため、H⁰と H の量は 非常に少なくなります。そのため CT で観測される信号 強度は非常に小さくなり、精度良い測定は難しくなりま す。そこで私たちは、入射(H)ビームが 0.81 マイク ロ秒ごとに塊(パルス)として入射されていることに着 目し、CT 信号の高速フーリエ変換(FFT)処理を行い、 その時間構造に対応した周波数である 1.23 MHz のピー クを取り出して解析することで、高い測定精度を実現し ました。CT での測定は、ビームに影響を与えないため、



図5-3 ダンプに廃棄された割合と薄膜の厚みの履歴 CTによってダンプに廃棄される電流量の絶対値を測定し、 MWPMの測定からH⁰とH⁻の存在量の相対的な比を得ること ができます。それらのデータから評価した厚みは、ビーム照射 による昇華で照射直後に下がりますが、その後は形状変化やピ ンホールの形成によって厚みが変動しています。本研究開発に よって運転中に薄膜を使用しながら、膜厚変化を測定すること が可能となりました。

運転中連続に行うことができ、入射に失敗した粒子量の 連続的な変化を測定できます。また MWPM を導入す ることで、入射ダンプ輸送ライン上で異なる軌道を通る H[°]とH[°]の存在量の相対的な比を得ることを可能にしま した。MWPM で測定したデータのうち H⁰の存在量は、 ほぼ薄膜の厚みによって決まります。一方 H の存在量 は、薄膜で電子がはぎ取られなかった場合以外に、入射 ビームが薄膜の大きさより広がっていて、薄膜と衝突し なかった場合にも増えます。そのため、CT の連続測定 で得られたダンプに廃棄されるビーム量のうち、入射 ビームの状態変化によるビーム量と、薄膜の状態が変化 したことによるビーム量とを、MWPMの測定と合わせ ることで切り分けることができます。最終的に、この薄 膜の状態変化に起因するビーム量から、測定時の薄膜の 厚みを決めることができます。上記手法により評価した、 ダンプに廃棄されたビームの割合、及び変換効率から導 出した薄膜の厚さの測定結果を図 5-3 に示します。

これまでは、運転中に膜の厚さを測定する手法は存 在しませんでしたが、本研究開発によって運転中の薄膜 を使用しながら、膜厚変化を測定することが可能となり ました。このシステムによって、2年間にわたって薄膜 の測定を行うことで、薄膜の経時変化を定量的に評価し、 長期間連続使用可能であることを確かめました。このよ うな薄膜の状態変化と寿命に関する貴重なデータを、世 界で初めて取得することに成功しました。

(Saha Pranab Kumar)

●参考文献

Saha, P. K. et al., First Measurement and Online Monitoring of the Stripper Foil Thinning and Pinhole Formation to Achieve a Longer Foil Lifetime in High-Intensity Accelerators, Physical Review Accelerators and Beams, vol.23, issue 8, 2020, 082801, 13p.

5-2 鋳鉄が強化されるメカニズムを大強度パルス中性子ビームにより解明 - その場中性子回折実験により鋳鉄の組織挙動を原子配列の観測で調べる-



図5-4 鋳鉄の引張圧縮変形中のその場中性子回折実験の様子及び得られた結果

(a) 実験で用いた鋳鉄の内部組織は、フェライト、パーライト(フェライトとセメンタイトの層状組織)及び球状黒鉛から構成 されています。(b) J-PARC MLF の BL19 に設置された工学材料回折装置「匠」を用いた繰り返し引張圧縮変形中のその場 中性子回折実験では、負荷方向の情報を+90°検出器、負荷方向に対して垂直方向の情報を-90°検出器で同時に測定します。 (c) 中性子回折データから解析した結果、繰り返し数の増加に伴いフェライトの外力への寄与が高くなり、鋳鉄全体の強度を 増大させる一方で、セメンタイトの寄与は限られ、球状黒鉛はほとんど寄与しないことが分かりました。

鋳鉄は、「フェライト」、「パーライト」及び「球状黒鉛」 の三つの構成相(組織)を持つ鉄系の材料であり、高い 外力に耐えることができ複雑な形状を作りやすいことか ら建設機械の油圧機器のケーシングや自動車の様々な 部品、使用済核燃料のキャスクなどに広く使われてい ます(図 5-4(a))。鋳鉄を、過酷な環境を模擬した繰り 返し引張圧縮変形させると、強度が増加することが知ら れています。しかし、なぜ強度が増力することが知ら れています。しかし、なぜ強度が増すのか、そのメカニ ズムは謎のままでした。そこで、そのメカニズムを解明 するために、材料の構成相それぞれの負担する力及び 組織の変化をその場中性子回折実験により観測しまし た(図 5-4(b))。

透過力の高い中性子を用いた回折実験では、試験片 内部のそれぞれ構成相の原子配列に関連した回折線を定 量的に解析することにより、各構成相が担う応力(強度) 及び結晶欠陥に関する情報を得ることができます。その 結果、次のことが分かりました(図 5-4(c))。①繰り返 し引張圧縮変形中に、「フェライト」の組織中に転位と いう結晶欠陥の蓄積が起こることで、「フェライト」の 強度が高まっていきます。「フェライト」は、組織の割 合が最も多いため、鋳鉄全体の強度を増大させていきま す。一方、「パーライト」の組織中に含まれている「セ メンタイト」は、割合が 2.2% しかないため、鋳鉄全体 の強度への寄与は限られています。②「球状黒鉛」は、 驚くことに応力を負担せず、鋳鉄全体の強度へはほとん ど寄与していません。

鋳鉄の繰り返し引張圧縮変形中の強度が増加する挙動を定量的に詳しく解析できたのは、J-PARC物質・ 生命科学実験施設 (MLF)の大強度パルス中性子ビーム により鋳鉄中の微量な構成相も含む各相の振る舞いの測 定に成功したことによります。J-PARC MLF の BL19 に設置された工学材料回折装置「匠」では、試験片の変 形試験に関して連続したその場中性子回折実験ができる 手法を開発したことが、本研究に役立ちました。

鋳鉄は、私たちの生活基盤を支えている重要な一つ の鉄系材料であり、熱処理等のプロセスによって基地 組織や黒鉛の形態と分布を比較的容易に変化させること で、広範な材料特性及び応用先をカバーすることが可能 な材料です。したがって、鋳鉄で起きている現象の理解 が深まれば、それを基に数値計算と熱処理手法の高度化 につながり、様々な応用を考慮した材料設計へのフィー ドバックとな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新学術 領域研究(研究領域提案型)(No.JP18H05479)「精密 構造解析によるキンク形成・強化のメカニズム解明」の 助成を受けたものです。

(Stefanus Harjo)

●参考文献

Harjo, S. et al., Neutron Diffraction Monitoring of Ductile Cast Iron under Cyclic Tension-Compression, Acta Materialia, vol.196, 2020, p.584-594.

5-3 幅広いエネルギー領域で高スピン偏極したパルス中性子ビームを実現する - 偏極ヘリウム3を用いた高性能中性子スピンフィルターの開発と応用-



図5-5 J-PARC で作製した³He スピンフィルター ³He スピンフィルターは中性子を吸収しない特殊なガラスセル に³He ガスとアルカリ金属を封入した中性子偏極デバイスです。 ³He 原子核は片方スピンの中性子のみ吸収するため、内部の³He ガスの核スピンを揃えた状態で、中性子ビームを透過させること で、中性子ビームのスピンを揃えることができます(偏極中性子 ビーム)。³He スピンフィルターは、従来の偏極デバイスでは偏 極が難しかった 100 meV 以上の高いエネルギーの中性子を含め、 幅広いエネルギーの中性子を偏極させることができます。

中性子は電荷を持たない、透過性が高い、軽元素と も反応しやすいなどの他に、スピンを持つという重要な 特徴を持っています。中性子ビームのスピンを揃える(偏 極する)ことにより、磁気構造解析、物質中の水素の位 置決定、磁場イメージングなど、中性子ビームの応用範 囲が飛躍的に広がります。J-PARC物質・生命科学実 験施設(MLF)に代表されるパルス中性子源は原子炉 中性子源とは異なり、1 meV ~ 1 keV 程度の幅広いエ ネルギーの中性子を使用できるという特徴を持ちます。 現在、広く使われている中性子偏極デバイスである磁気 スーパーミラーは数十 meV 以下のエネルギーの中性子 しか偏極できません。

より幅広いエネルギーの中性子を偏極するために、私 たちは核スピン偏極³He ガスをガラスセルに封入した 中性子偏極デバイスである³He スピンフィルターを開 発しました(図 5-5)。³He スピンフィルターは³He ガ スの量を調節することにより、1 meV ~ 10 eV 程度ま での幅広いエネルギーの中性子を偏極することができ、 また、広い立体角を持つという特徴から、試料により散 乱された中性子のスピンを解析することも可能です。こ のデバイスでは³He ガスを如何に高い偏極率で偏極で きるか、そして³He ガスの偏極を如何に中性子ビーム ライン上で保つかが開発の鍵となります。ガラスセル内 部に不純物が存在すると³He の偏極度を低下させてし まうので、非常に清純な環境下でガラスセルに³He ガ スを封入する真空システムを構築しました。また、³He



図 5-6 中性子小角散乱実験における ³He スピンフィルターを 用いた偏極解析装置

試料で散乱された中性子ビームのスピンを³He スピンフィルター で解析しました。実験中は³He ガスの核偏極を保持するために、 ヘルムホルツコイルで磁場を印加します。本装置を中性子小角・ 広角散乱装置「大観」(BL15)に導入することで、物質中の水素の 位置決定には、パルス中性子小角散乱装置と³He スピンフィルター を組み合わせた偏極解析法が有用であることを実証しました。

ガスを偏極させるために約100 W のレーザー照射シス テムを新たに構築し、³He 核スピン偏極度85% という 世界最高水準の中性子偏極性能を持った³He スピンフィ ルターの開発に成功しました。一方、³He の核偏極はレー ザー照射をやめると、ガラスセル内部の不純物の影響や、 周囲の不均一磁場により徐々に偏極度が低下していきま す。そこで、ガラス内部の不純物を可能な限り取り除く ガス封入プロセスの考案、ビームライン上における均一 な磁場環境の開発など、ビームライン上で性能良く³He スピンフィルターを使用するための開発を行いました。

この³He スピンフィルターをビームライン BL04、 BL06、BL10、BL15、BL21 に導入し、中性子ビー ムを用いた実験を行いました。中性子核反応測定装置 「ANNRI」(BL04) では1 eV 程度のエネルギーの中性 子を偏極することに成功し、¹³⁹La 原子核の偏極中性子 吸収に伴う y 線に角度分布が存在することを世界で初め て発見しました。また、中性子小角・広角散乱装置「大 観」(BL15) では物質中の水素の位置決定には、パルス 中性子小角散乱装置と³He スピンフィルターを組み合 わせた、中性子偏極解析法が非常に有用であることを 示しました (図 5-6)。この他にも磁気構造解析や、基 礎物理実験などで³He スピンフィルターを用いた実験 が数多く行われており、今後様々な科学的成果が得られ ることが期待されます。

(奥平 琢也)

●参考文献

Okudaira, T. et al., Development and Application of a ³He Neutron Spin Filter at J-PARC, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, vol.977, 2020, 164301, 8p.

5-4 高温で実現する伝導電子スピンの奇妙な「短距離秩序」 -世界で初めて合成した新物質 Mn₃RhSi で見つかった謎の金属状態-



図 5-7 空間反転対称性がない Mn₃RhSi 格子中の 磁性原子 Mn の配列





図 5-9 Mn₃RhSi で予想される磁気的な短距離秩序状態の模式図



図 5-8 中性子散乱法とミュオンスピン緩和法の相補性を活かした秩序状態の観測

(a) 中性子で磁気秩序の状態と構造が分かります。

(b) ミュオンで試料中の磁気的な短距離秩序が占める領域の体積割合の温度変化が分かります。

電子のスピンは物質の磁性に原子レベルで関与して います。磁性体の常磁性相では、電子スピンの向きはバ ラバラな無秩序状態にあり、低温の秩序相になると物質 全体で平行や反平行に一様に揃う「長距離秩序」状態に 移行します。多くの場合、この状態変化は相転移温度か ら低温に向かってスピンの整列による磁化の変化(秩序 変数の発達)という形で起こりますが、局所的に秩序が 高い「短距離秩序」と呼ばれる状態が、相転移温度以上 から前駆現象として現れることもあります。ところが、 この短距離秩序の領域が不均一に混在(相分離)してい る、前駆状態とは言いがたい中間状態が磁性を示す金属 でいくつか見つかっています。しかし、その起源は長年 の謎とされています。

そこで私たちは、この謎の金属状態と短距離秩序の 関係の整理につながるヒントを得るため、新物質を探 索しました。相転移論で知られている空間反転対称性 の破れによる秩序変数の不均一化を起源の一つと考え、 それを検証するため、空間反転対称性がない Mn₃RhSi (マンガン3-ロジウム-シリコン)という磁性を示す金属 に着目し、その合成に世界で初めて成功しました(図 5-7)。 空間反転対称性がない結晶構造は、スピンの向きを平行 や反平行からずらす相互作用が働くため、複雑な秩序を 生む可能性を秘めており、近年、物性研究で注目を集め ています。

中性子散乱を用いると、Mn₃RhSi で Mn スピンの向き が反平行に揃う反強磁性秩序や反強磁性的ではない短距 離秩序が起きていることが観測されました(図 5-8(a))。 中性子散乱法では、鋭い散乱の強度、周期性から試料全 体の平均としての磁気モーメント(スピン)の大きさ、 その配列を、幅の広い散乱(散漫散乱)強度からは短距 離秩序状態の磁気モーメントの平均サイズを知ることが できます。一方で、平均情報なので、全体の体積に対し て短距離秩序状態の領域が占める体積分率が分からない ことから、二つの(秩序)状態が同時に存在する相分離 状態を識別できません。そこで、ミュオンスピン緩和法 を相補的に利用し、その短距離秩序状態の体積分率を調 べたところ、初めてその相分離と短距離秩序状態内の磁 気モーメントの大きさが分かるようになりました。これ により、この物質では、磁気的な短距離秩序が常磁性状 態と共存する相分離状態が、反強磁性転移温度の190 K (-83 °C)よりもはるかに高い温度 720 K (447 °C)まで 維持されていることが分かりました(図 5-8(b))。

今回、新物質で伝導電子スピンの一部が秩序化し相 分離した状態(図 5-9)が高温で発見されたことで、金 属磁性体ではこのような秩序状態が空間反転対称性の破 れと関連して普遍的に存在する可能性が浮かんできまし た。さらに、Mn₃RhSiの相転移温度以下では短距離秩 序が異なるスピン構造の長距離秩序と共存する奇妙な二 相分離状態が観測されています。この起源の解明も今後 の大きな課題となっています。

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.JP25390133)「中性子散乱による高次多極 子自由度がもたらす秩序メカニズムの解明」の助成を受 けたものです。

(山内 宏樹)

●参考文献

Yamauchi, H. et al., High-Temperature Short-Range Order in Mn₃RhSi, Communications Materials, vol.1, 2020, 43, 6p.

5-5 廃棄豚骨を利用した金属吸着剤の開発 - 食品廃材を利用した安価で高性能な金属吸着技術を実現-



図 5-10 廃棄骨を利用した金属吸着剤開発の概要

豚骨等を重曹水溶液に浸漬させて得られる高炭酸含有アパタイトが高効率にストロンチウムやカドミウムを吸着しました。

工業地帯周辺では、カドミウムや鉛などの金属による 環境汚染を防ぐために以前より様々な防止対策が行われ ています。また、2011年の東京電力福島第一原子力発 電所事故以降、放射性物質の広域拡散を防止する技術確 立の重要性が改めて認識されています。中でも、人体に 摂取されたとき骨に取り込まれやすい放射性ストロンチ ウムの広域拡散の防止は重要であり、高性能かつ安価で 大量生産が可能な吸着剤の確立が必要とされています。

動物の骨は、ストロンチウムやカドミウム、鉛など の金属を取り込みやすいことが知られています。そのた め、過去には廃材である牛骨や豚骨などを安価な吸着剤 として実際の原子力施設で利用する試みも行われていま した。しかし、その性能は既存の吸着剤に比べて低く、 実用化に至っていませんでした。骨が有する高い金属取 込み性能の理由として、骨の主成分であるアパタイト(以 下、HAP)に元来含まれる炭酸が重要な働きをすると 考えられてきましたが、従来の炭酸量を制御する術は今 までなく、その詳しいメカニズムは不明でした。

本研究では、より高効率に、かつ低コストで環境中から有害金属を除去できる吸着剤の実現を目指して、骨が有する金属吸着性能を解明し、そのメカニズムを活かして吸着性能を向上させることを目的としました(図 5-10)。 まず、加圧加熱して廃棄豚骨から有機物を取り除きました。その後、重曹(炭酸水素ナトリウム)水溶液に浸漬させることで、多量の炭酸基を骨由来のHAPに導入できることを発見しました。また、重曹水溶液の濃度を増



図 5-11 ストロンチウムに対する高炭酸含有アパタイトの吸着 分配係数

比較として同じ条件で人工合成アパタイト、未処理骨、クリノプ チロライト、モルデナイトの吸着分配係数を測定しました。また、 導入された炭酸量が異なる炭酸アパタイトについても吸着分配係 数を測定しました。図中の重曹〇%は豚骨試料を浸漬させた水溶 液の濃度を示しています。

加させると導入される炭酸量も増加することを発見しま した。作製した炭酸 HAP を用いて、ストロンチウムや カドミウムに対する吸着性能を調べました。吸着性能は 図 5-11 の吸着分配係数で見ることができます。ストロ ンチウムに対して、炭酸 HAP は未処理の骨に比べて約 250 倍高い吸着性能を示しました。さらに、天然ゼオライ トの中で最も高効率でストロンチウムを吸着することで知 られるクリノプチロライトと比較して約 20 倍高い性能を 示しました。また、カドミウムに対しては、クリノプチ ロライトに比べて約 370 倍高い吸着性能を示しました。

異なる量の炭酸を含む炭酸 HAP に対してストロンチ ウムに対する吸着性能を調べたところ、含まれる炭酸の 量が多くなるとともにストロンチウムに対する吸着性能 が向上することが分かりました(図 5-11)。炭酸 HAP の表面は、炭酸が導入されることにより負に帯電し、正 電荷のストロンチウムが吸着されやすい状態になってい ることを確認しました。さらに、X 線吸収微細構造評 価法により、炭酸 HAP ではストロンチウム吸着に適し た新しい吸着サイトが形成されていることが分かりまし た。このように、食品廃棄骨を重曹に漬け込むだけで、 ストロンチウムやカドミウムに対して高い吸着性能を示 す材料の作製が可能であることを発見しました。

本成果は、汚染水の浄化や環境浄化、また、有用金属 回収への応用が期待されます。

(関根 由莉奈)

●参考文献

Sekine, Y. et al., Carbonated Nanohydroxyapatite from Bone Waste and Its Potential as a Super Adsorbent for Removal of Toxic Ions, Journal of Environmental Chemical Engineering, vol.9, issue 2, 2021, 105114, 12p.

5-6 速い分子は炭素原子の網を通り抜ける -酸素分子がグラフェンをすり抜ける現象を発見-



図5-12 放射光リアルタイム光電子分光と超音速ノズル分子 ビームを組み合わせたガスバリア特性評価実験 (a) 銅基板上のグラフェンに速度を変えた酸素分子を当てながら 行う放射光光電子分光観察の概念図です。(b) 運動エネルギーが 1.22 eV の酸素分子ビームを照射した前後の光電子スペクトルの 比較です。紫の成分の増加が、酸素分子がグラフェンを透過して 銅表面を酸化した証拠です。

炭素原子1層の網であるグラフェンは、低い電気抵抗などの優れた物性を持つことから、高性能・高機能な 超集積回路素子や透明導電膜など、次世代機能性材料と して注目されています。その特異な物理的性質から、そ の発見に対して2010年ノーベル物理学賞が授与されま した。さらに、グラフェンは、優れたガスバリア性能を 持つことが知られ、易酸化性の遷移金属触媒(Ni、Cu など)の酸化保護膜への応用が期待されています。しか しながら、ガスバリア性の詳細は不明な点が多く残って います。

よく知られているように、大気のような環境の酸素 分子は、26 meV 程度の運動エネルギーを持つ分子が大 部分を占めますが、それ以上の大きなエネルギーを持 つ(速い)分子も微量ですが存在します。このような大 きな運動エネルギーの酸素分子は、反応途中に存在する 山(活性化障壁)を乗り越えることが可能です。私た ちは、SPring-8の原子力機構専用軟X線ビームライン (BL23SU)の表面実験ステーションの超音速ノズル分 子線装置を使って、Cu(111)基板上に化学気相成長し たグラフェンに対して、最大2.3 eV 程度までの運動エネ ルギーの酸素分子ビームを照射した際の表面化学状態の 変化を、放射光軟X線(700 eV 程度)を使った光電子



図5-13 グラフェン(炭素原子1層でできた網)を酸素分子 が通り抜けるイメージ 遅い酸素分子は炭素の網によって跳ね返され通り抜けできないが、 分子が高速(>0.8 eV)になると透過できます。

分光によってリアルタイム分析しました(図 5-12(a))。 図 5-12(b) は、運動エネルギーが 1.22 eV の酸素分 子ビーム照射前(左)と照射後(右)の酸素原子の1s 軌道に束縛されていた光電子のエネルギースペクトルで す。銅表面の酸化を示すピーク(紫部分)の増加が観察 されています。同様のスペクトルの変化は、0.8 eV 以 上のエネルギー条件で観察されました。さらに、透過後 においてもガスバリア性が維持されること(非破壊透 過)も分かりました。放射光実験に加えて計算機シミュ レーションを行った結果、高エネルギーの酸素分子の透 過が、グラフェンの炭素原子の抜け穴(欠陥)を介して 非破壊に起こることが分かりました(図 5-13)。高速な 酸素分子のグラフェンの欠陥を介した非破壊透過現象の 発見は、分子の「速度」を利用した分子フィルターへの 応用などに期待されています。また、高速の酸素分子は、 身の回りに存在するので、通り抜けを防ぐことができれ ば、食品劣化や金属の錆を防ぐ保護膜の開発につながる ことも期待されています。

本研究は、東北大学との共同研究「材料表面プロセ スの放射光リアルタイム光電子分光研究」の成果の一部 です。

(吉越 章隆)

●参考文献

Ogawa, S., Yoshigoe, A. et al., Gas Barrier Properties of Chemical Vapor-Deposited Graphene to Oxygen Imparted with Sub-electronvolt Kinetic Energy, The Journal of Physical Chemistry Letters, vol.11, issue 21, 2020, p.9159-9164.

5-7 強磁性半導体における磁化過程を原子レベルで解明 - 実用スピントロニクス材料開発への一歩、半導体が磁石になるメカニズムに迫る-



図 5-14 Mn 4% の (Ga,Mn)As の XMCD の温度・磁場依存性 (a) ●は実験結果、実線は解析結果です。(b) *T*_c 直下の温度 での三つの磁性成分 (FM、Linear、SPM) の分離の様子です。 黒実線はそれぞれの合計です。

次世代スピントロニクス材料として半導体でありなが ら、強磁性にもなる強磁性半導体が注目されています。 強磁性半導体の研究は、代表的な半導体であるガリウ ムヒ素 (GaAs) に少量のマンガン (Mn) を添加したガリ ウムマンガンヒ素 Ga_{1-x}Mn_xAs((Ga,Mn)As) において強 磁性が発見されたことから大いに発展しました。強磁性 というのはある温度 (*T_c*) より低温側で発現する現象で あり、強磁性半導体を実用するには強磁性が室温で実 現する必要があります。発見から 20 年以上経った現在 においても (Ga,Mn)As の強磁性転移温度の最高記録は -73 ℃に留まり、その強磁性発現のメカニズムは研究者 間で見解が分かれ、長年にわたる論争が続いています。

(Ga,Mn)As が強磁性になるメカニズムを正しく知るた めには、強磁性の担い手である Mn 原子の 3d 軌道の電 子が持つスピンに注目して、その磁化過程を観察すること が必要であると考えました。そこで、元素と電子軌道の それぞれについて選択的に磁性状態を観測することがで きる X 線吸収磁気円二色性(XMCD)実験から Mn 3d 電子がどのように強磁性の性質を持ち始めるのかを調べ ました。実験は大型放射光施設 SPring-8 の原子力機構 専用軟 X 線ビームライン(BL23SU)において実施しま した。

図 5-14 (a) は、Mn が 4 % 添加された $T_c = 65$ K の (Ga,Mn)As 試料について、XMCD 信号強度から求めた Mn 3d 電子の磁気モーメントのそれぞれの温度での磁



図5-15 三つの磁性成分割合の温度依存性 温度降下にしたがって、強磁性成分 *P*_{FM} は *T*_C から増加、一方、超 常磁性成分 *P*_{SPM} は *T*_C よりかなり高い温度の *T*_{SPM} から増加します。



図5-16 T_{SPM} 近傍の磁化 過程の様子

矢印は Mn 原子の磁気モー メントの向きです。 T_{SPM} 近 傍で強磁性的領域がまばら にでき始め、それらが T_c で 全体的に広がっていきます。

場依存性です。温度降下につれて磁気モーメントが増大 しているのは、強磁性状態が強くなっていっていること を示しています。この測定結果について、磁場に対して 変化しない強磁性(FM)成分、磁場に対して直線的に 変化する(Linear)成分、磁場に対して曲線的に変化 する超常磁性 (SPM) 成分の三つの成分に分解して抽 出 (図 5-14(b)) し、それぞれの存在割合 P_{FM} 、 P_{Linear} 、 P_{SPM} (つまり $P_{\text{FM}} + P_{\text{Linear}} + P_{\text{SPM}} = 1$)の温度依存性を 示したものが図 5-15 です。注目すべきは、P_{SPM}成分の 温度依存性であり、温度降下にしたがって、 $P_{\rm FM}$ は $T_{\rm c}$ より低い温度から増加するのに対し、P_{SPM}成分はT_cよ りかなり高い温度から増加し、T_c付近で最大となった 後、P_{FM}成分の増加に従い減少に転じていることです。 そして、この傾向は Mn 濃度が違う Tc が異なる別の試 料においても共通であることも分かりました。今回の結 果から、T_cよりも高い温度で既にまばらに強磁性的な 微小領域(SPM 領域)が形成(図 5-16)され、その SPM 領域が T_c でお互い重なり合うことにより、全体 として強磁性になっていくことが明らかになりました。

本成果は掲載号の注目論文及び表紙に選出され、解 説記事も公開されました。

本研究は、東京大学、京都産業大学との共同研究「機 能性磁性半導体薄膜の開発と放射光を利用した電子状態 の研究」の成果の一部です。

(竹田 幸治)

●参考文献

Takeda, Y. et al., Direct Observation of the Magnetic Ordering Process in the Ferromagnetic Semiconductor Ga_{1-x}Mn_xAs via Soft X-ray Magnetic Circular Dichroism, Journal of Applied Physics, vol.128, issue 21, 2020, 213902, 11p.

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



図 6-1 高温ガス炉の特長と HTTR-熱利用試験計画

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 用に用いることができ、また、エネルギー基本計画のエネルギー政策の基本的視点(3E + S)に応えることが可能です。私たちは、 日本初の高温ガス炉 HTTR に熱利用系を接続し、原子炉を用いた多様な熱利用の実証を目標としています。

高温ガス炉は、ヘリウムガスタービンによる高効率 発電、水素製造等の多様な産業利用に応えることができ る安全な原子炉です(図 6-1)。これまで、原子力機構 では、高温工学試験研究炉(HTTR)を用いた各種の実 証試験、高温の熱を利用した水素製造技術やガスタービ ンの開発、高温ガス炉の実用化を目指した商業炉の検討 や国際協力を進めてきました。

HTTR に関しては、2004 年に 950 ℃の熱を取り出す ことに世界で唯一成功し、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、2011年には安全性実証試験として、 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、原子炉出力がほぼ ゼロに低下して自然に静定し、安全な状態に維持され ることを実証しました。この後、東日本大震災を機に 2013 年に制定された新規制基準への適合性確認審査の ため長期間停止していましたが、2020 年6月に原子炉設 置変更許可を取得し、2021 年7月に運転を再開しました。

最近の動向としては、2020年10月に菅内閣総理大 臣が宣言した「2050年カーボンニュートラル、脱炭素 社会の実現を目指す」を受け、2020年12月に経済産 業省が中心となって「2050年カーボンニュートラルに 伴うグリーン成長戦略」として、14の重要分野ごとに 高い目標を掲げた実行計画が策定されています。この中 で、原子力産業がその一つに指定され、小型モジュラー 炉(SMR)、高温ガス炉、核融合が記載されており、多 様な原子力技術イノベーションを加速していくことが明 示されています。高温ガス炉に関しては、「①HTTRを 活用し、安全性の国際実証に加え、2030年までに大量 かつ安価なカーボンフリー水素製造に必要な技術開発を 支援。②安全性・経済性・サプライチェーン構築・規制 対応を念頭に置いた開発支援を行いながら、技術開発・ 実証に参画。海外の先行プロジェクトの状況を踏まえ、 海外共同プロジェクトを組成していく。③日本の規格基 準普及に向けた他国関連機関との協力を推進。」と記載 されており、高温ガス炉とそれに関連する技術について、 大きな期待とプロジェクト推進の強い意志が示されてい ます。

原子力機構では、このような大きな期待の中で高温 ガス炉関連技術の研究開発を着々と進めています。実用 化に向けた研究開発としては、通常運転時及び事故時の 高温ガス炉内の熱流動挙動の予測、被覆燃料粒子の健全 性を維持するための核設計上の方針、余剰プルトニウム (Pu)を安全に減らす高温ガス炉の実現に向けた研究開 発を進めています(トピックス 6-1、6-2、6-3)。また、 熱化学法水素製造法 IS プロセスによる水素製造技術開 発に関しては、耐食金属材料開発のための腐食試験、水 素製造効率向上に向けた耐食性分離膜や電極材の開発 を進めています(トピックス 6-4、6-5、6-6)。さらに、 HTTR の運転に関する技術開発に関しては、臨界制御 棒位置を自動で探索するユーティリティツールの開発を 進めています(トピックス 6-7)。

6-1 高温ガス炉事故時の詳細な熱流動挙動を予測する –高温ガス炉の事故時空気侵入挙動評価手法の開発–



図6-2 高温ガス炉における熱流動現象の模式図 高温ガス炉の原子炉内では熱や中性子照射による黒鉛ブロック の変形により生じる間隙等を流れる漏れ流れ、空気侵入事故時

の初期段階では分子拡散による空気の炉内侵入が起こります。

私たちは原子力エネルギーの多様な産業利用に向け て、優れた安全性を有する高温ガス炉の研究開発を行っ ています。高温ガス炉の特徴的な事故の一つに、原子炉 内の黒鉛構造物の酸化を引き起こす空気侵入事故があり ます。この空気侵入事故の安全評価では、原子炉外の空 気を伴い原子炉全体で生じる自然循環流れの発生時間の 予測が重要です。しかし、原子炉内の流動抵抗や空気濃 度の現実的な評価が困難であることから、従来は、黒鉛 酸化量が最大となる自然循環流れの発生時間を仮定した 保守性の高い評価を行っていました。一方、評価におけ る保守性を適正化し、自然循環流れ発生の時間遅れを精 度良く予測できれば、安全性を維持したまま高温ガス炉 の経済性が大幅に向上することが期待されます。そこで、 本研究では高温工学試験研究炉(HTTR)の建設に係る 経験を活かし、原子炉システム解析コード RELAP5 を 用いた高温ガス炉の空気侵入事故時における空気侵入挙 動評価手法を開発しました。

図 6-2 に示すように、高温ガス炉の原子炉内では、 ヘリウムガスが熱膨張や中性子照射等により炉心を構成 するブロック間に生じる間隙等を流れ、燃料冷却のため に設けられた流路を流れない漏れ流れが生じます。燃料 温度評価のため、漏れ流れをより現実的に評価するには 炉内温度分布及び燃料冷却流路、隣り合うブロック間の バイパス流れ、ブロック積層面間のクロス流れの圧力損



図 6-3 (a) 漏れ流れ解析の検証体系及び結果、(b) 分子拡散 モデルの検証体系及び結果

漏れ流れ評価に係る解析コードの改良及び分子拡散モデルの導 入により、解析結果は実験結果及び厳密解と良く一致しました。

失を精度良く評価する必要があります。そこで、既往実 験で得られた圧力損失評価式の導入、輻射伝熱分布の詳 細化を含む解析コードの改良を行いました。また、空 気侵入事故時の原子炉内空気濃度予測に重要な空気の 侵入過程であり、従来手法では扱えなかった分子拡散 現象を考慮するため、一次元分子拡散モデルを新たに RELAP5 に導入しました。

開発した評価手法を検証するため、解析結果を実験 結果や厳密解と比較しました。図 6-3 (a) は漏れ流れ 評価の検証体系及び結果です。四つの黒鉛ブロックを積 層し、燃料冷却流路、バイパス流れ及びクロス流れを模 擬した実験装置での圧力分布実験結果と解析結果を比較 した結果、解析結果はクロス流れによる圧力損失を再現 し、実験結果と良く一致しました。図 6-3 (b) は分子 拡散モデルの検証体系及び結果です。空気とヘリウムガ スを内蔵した二つの領域を、中央部にバルブを設けた配 管で接続した体系において、バルブ開放後の分子拡散に よる空気 - ヘリウムガス混合過程の空気濃度の解析結果 を理論的に導出される厳密解と比較しました。解析結果 は初期空気濃度に対して、約±2%の範囲で厳密解と良 く一致しました。

今後は評価手法のさらなる高度化に向けて、局所的に生 じる三次元的な自然対流現象の評価モデル開発を行います。 (青木 健)

●参考文献

Aoki, T. et al., Methodology Development for Transient Flow Distribution Analysis in High Temperature Gas-Cooled Reactor, Proceedings of 2020 International Conference on Nuclear Engineering (ICONE 2020), online, U.S.A., 2020, ICONE2020-16199, 6p.

6-2 被覆燃料粒子の健全性を維持するための核設計上の方針を提示 - 燃料核移動速度を低減する理想出力分布条件の導出-





図 6-4 燃料核移動のメカニズム

燃焼が進むにつれて、被覆層の炭素が燃料核からの遊離酸素と反応 し、高温側で気化、その後、低温側で析出・蓄積していきます。燃 料核移動とは、このときに高温側にできた隙間に燃料核が押し出さ れ移動する現象です。また、核移動速度(KMR)は、燃料コンパク ト中の温度と温度勾配に依存します。

高温ガス炉では、二酸化ウランの燃料核を熱分解炭 素と炭化ケイ素で多重に被覆した被覆燃料粒子 (CFP) が用いられており、この被覆層は、燃焼に伴い発生する 核分裂生成物 (FP) を CFP 内に保持する機能を有して います。原子炉の運転に伴う公衆被ばく量の低減の観点 から、この FP 保持機能を損なわないように CFP の健 全性を維持する必要があります。CFP の主要な破損機 構の一つに燃料核移動が挙げられ、燃料核移動の大きさ は、核移動速度(KMR)の時間に関する積分値として評 価されます(図 6-4)。そのため、燃料核移動の低減の 観点から CFP の健全性を維持しつつ、今後さらなる燃 焼度の向上を目指す上では、KMR をできる限り低減す るように設計を行う必要があります。しかし、燃料核移 動の低減の観点から CFP の健全性を維持するための核 設計上の方針は、これまで必ずしも明確ではありません でした。そこで、私たちは、KMR を低減する理想出力 分布の条件に着目しました。このような理想出力分布の 条件を明らかにすることができれば、燃料核移動を低減 するという観点から、理想出力分布に近づくように燃料 濃縮度の配置を最適化すること等が可能となります。 KMR を低減する理想出力分布は、KMR 分布におけ

図6-5 核移動速度を低減する理想出力分布の例 熱出力 50 MW の高温ガス炉を対象に、燃料核移動を低減 する理想出力分布を求めました。出力は、炉心下部で低く、 炉心上部になるにつれて高くなります。

る最大値が最も小さくなる状態を実現する出力分布であ ると換言することができます。そこで、まず、ラグラン ジュ未定乗数法の考え方に基づいて、総出力を一定とす る条件を拘束条件とした極値問題を解くことで、KMR 分布が一定の値を取る、すなわち KMR 分布が平坦にな るときに燃料核移動を低減する理想出力分布を実現でき ることを明らかにしました。次に、KMR 分布が平坦に なるときの出力分布の形状を解析的に求めることは、解 くべき方程式が非常に複雑となり困難であると考えられ たため、出力分布を繰り返し更新することで KMR の分 布を徐々に平坦化する数値計算手法を整備しました。

以上の考え方に基づき、軸方向の KMR の分布を平 坦にする出力分布を求めることができました(図 6-5)。 これにより KMR を低減する理想出力分布を導出するこ とが可能となり、燃料核移動の低減の観点から燃料濃縮 度の配置の最適化を実施するといった CFP の健全性を 維持するための核設計上の方針を立てることができるよ うになりました。今後、本成果を活用した燃料濃縮度の 配置のさらなる最適化等により、長期燃焼が可能な実用 高温ガス炉の設計研究に取り組んでいきます。

(沖田 将一朗)

●参考文献

Okita, S. et al., Derivation of Ideal Power Distribution to Minimize the Maximum Kernel Migration Rate for Nuclear Design of Pin-in-Block Type HTGR, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.58, issue 1, 2021, p.9-16.

6-3 プルトニウムを安全に減らす高温ガス炉の実現に向けて - 模擬燃料核の微細構造の知見の取得-



図6-6 大洗研究所にある高温工学試験研究炉(HTTR)の燃料^{*1,*2} 被覆燃料粒子は、UO₂燃料核を四重に被覆したもので、直径1mm程 度です。燃料コンパクトは、被覆燃料粒子を黒鉛結合材で焼き固めたも のです。これを黒鉛スリーブに収め、さらに黒鉛ブロックに挿入します。



1 µm

図 6-8 Pu 燃焼高温ガス炉用模擬燃料核(CeO₂-YSZ 核) の中心部の微細構造(走査透過型電子顕微鏡明視野像) 結晶粒の間に空隙がありません。空隙があると、所定スペッ クの直径を有する燃料核内に、設計上要求される量の核分裂 性物質を充填できなくなる可能性があります。

(Taylor & Francis Ltd, http://www.tandfonline.com より許可を得て Aihara, J. et al., Influences of the ZrC Coating Process and Heat Treatment on ZrC-coated Kernels used as Fuel in Pu-burner High Temperature Gas-cooled Reactor in Japan, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.58, 2021, p.107-116. Published online: 23 Aug 2020, Taylor & Francis Ltd より転載)

図6-7 (化学的)不活性母材燃料を用いた被覆燃料粒子の構造と核拡散抵抗性 不活性母材として用いるイットリア安定化ジルコニア (YSZ) は化学的に安定であり、 通常燃料 (MOX など) と異なり酸やアルカリに難溶で再処理が難しいため、核拡散抵 抗性が高いと考えられています。

我が国では、利用目的のないプルトニウム (Pu) を保 持しないという原則を堅持して原子力利用を進めてきまし た。この考え方に基づき、原子力委員会は、事業者に対 し、原子力発電所の使用済燃料から再利用できるウラン (U) や Pu を取り出して生産された燃料 (MOX 燃料) を時 宜を失わずに確実に消費することを要求しています^{*3}。そ こで、安全性に優れた高温ガス炉を使って効率的に再処 理 Pu の量を減らすことが可能な Pu 燃焼高温ガス炉概 念が提案されています。

高温ガス炉燃料の最小単位は、直径 1 mm 程度の被覆 燃料粒子 (CFP) です。核分裂性物質及び核分裂生成 物は各 CFP に保持されます。我が国では、UO₂ の小 球である燃料核を四重に被覆した CFP を用いていま す (図 6-6)。Pu 燃焼高温ガス炉の概念においては、燃 料核として化学的に安定な不活性母材燃料核を採用して います。不活性母材燃料は再処理が難しいため、核拡散 抵抗性が高いと考えられるからです (図 6-7)。本研究 では、燃料核を具体的には PuO₂ を含むイットリア安定 化ジルコニア (YSZ)、PuO₂-YSZ としました。

本研究では、PuO₂-YSZ 核製造技術開発を担当した 原子燃料工業株式会社が、燃料製造方法の確立に資する ことを目的として製造した模擬 PuO₂-YSZ 核の検査の 一環として、原子力機構が微細構造観察を行いました。 Pu の模擬物質として化学的性質が類似するセリウム (Ce)を用いました。Ce、イットリウム(Y)、ジルコニ ウム(Zr)各々の硝酸塩の粉末を水に溶かし、アンモニ ア水の中に滴下してゲル状の粒子を作り、焼結して模擬 PuO₂-YSZ核(CeO₂-YSZ核)を製造しました。

製造したCeO₂-YSZ 核の中心部の微細構造観察を行い、 結晶粒が密に分布していることを確認しました(図 6-8)。 燃料核の結晶粒間に空隙があると、所定スペックの直径 を有する燃料核内に、設計上要求される量の核分裂性物 質を充填できなくなる可能性があります。したがって、 結晶粒間の空隙の割合があまりに大きい場合、上記の 不活性母材燃料核製造方法を見直す必要がありました。 よって、本知見より、上記の不活性母材燃料核製造方法 が有効に機能する可能性を示すことができました。

本研究は、文部科学省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」の成果の一部です。

(相原 純)

- *1 後藤実ほか、小型高温ガス炉システムの概念設計(Ⅱ)-核設計一, JAEA-Technology 2012-017, 2012, 29p.
- *²日本原子力研究開発機構 高温ガス炉研究開発センター,高 温ガス炉とは,https://www.jaea.go.jp/04/o-arai/nhc/jp/faq/ index.html (2021年9月16日閲覧).
- *3 原子力委員会, 我が国におけるプルトニウム利用の基本的な考え方, 平成30年7月31日, http://www.aec.go.jp/jicst/NC/iinkai/ teirei/siryo2018/siryo27/3-2set.pdf (2021年9月16日閲覧).

●参考文献

Aihara, J. et al., Influences of the ZrC Coating Process and Heat Treatment on ZrC-Coated Kernels Used as Fuel in Pu-Burner High Temperature Gas-Cooled Reactor in Japan, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.58, issue 1, 2021, p.107-116.

6-4 IS 法で用いる金属部材の耐食性向上を目指して – 硫酸分解ガス環境でセラミックスと同等の耐食性を有する鋼材を発見・



図 6-9 各材料の腐食時間増加に伴う平均腐食速度変化及び Alloy800H、3AI フェライトにおける皮膜/母材断面の AI マップ 3AI フェライトの腐食速度は、400 h で SiC と同等の腐食速度 を示しました。また、この材料の腐食試験後断面を観察すると、 Alloy800H とは異なる均一厚さの AI 濃化酸化皮膜が観察されました。

高温ガス炉の熱利用技術の一つである熱化学法水素 製造法 IS プロセス (IS 法) は、腐食性の高いヨウ化水素、 硫酸を高温で扱うことから、各種構造部材には、耐熱性 や耐食性に優れた材料が求められます。特に硫酸を分解 する反応容器(硫酸分解器)内は、IS 法の中で最も高 温の 850 ℃に達することから、私たちはこれまで硫酸 分解器にセラミックスの炭化ケイ素(SiC)を適用する ことを検討してきました。

しかし、今後の大量の水素製造が要求される実用プラ ントを想定した場合、SiCを製造する焼結炉の寸法制 約や溶接の接合が難しい等、大型化が困難であることに 加えて、脆性材料のSiCは、クラックを発生させない 強度設計が必要なことが問題点です。そこで、私たちは SiCと同等の腐食速度 0.1 mm / 年を達成可能な金属材 料の探索を開始しました。

耐食性向上には、高温加熱時に母材表面に形成され る酸化皮膜をどのように形成させるかがポイントである と考え、供試材には、種々異なる酸化皮膜形成を意図し て、主にFe、Cr系酸化皮膜を形成する鉄(Fe)基合金 の Alloy800H、Alloy825、Al系酸化皮膜を形成するア ルミニウム(Al)を多量に含有したフェライト系ステン レス鋼である 3Al フェライト、Ni系酸化皮膜を形成す るニッケル(Ni)基合金の Alloy600、Si 系酸化皮膜を形 成するシリコン(Si)を含有した Ni 基合金 2.4Si-Ni 基 合金を選びました。

腐食試験は、96wt%の硫酸溶液を加熱蒸発させ、 850℃まで昇温することで、実用プラントと同様の環境と しました。図 6-9 に各材料の腐食試験時間の増加に伴



図6-10 3AI フェライトでの X 線回折による表面構造同定及 び同材料断面の TEM 拡大観察写真

3AI フェライトでは、α アルミナの回折ピークが確認されました。また、同材料の断面拡大観察により、α アルミナの酸化 皮膜は、隙間のない緻密な 1 μm 厚の皮膜となっていました。

う平均腐食速度の変化を示します。24 h 経過後に最も 大きい腐食速度を示したのは、Alloy800H でした。一 方で、3Al フェライトは、他のどの材料よりも小さい腐 食速度 0.42 mm /年となりました。また、100 h 後には、 いずれも 24 h 後よりも小さい腐食速度となり、3Al フェ ライトでは、0.18 mm /年となりました。400 h 後には、 同材料の腐食速度は、SiC の腐食速度と同等となりま した。

腐食試験後の酸化皮膜の状態を確認すべく、腐食の 激しかった Alloy800H の 100 h 後及び耐食性に優れた 3Al フェライトの 400 h 後における皮膜/母材断面の Al 元素マッピングを行いました。Alloy800H では、Cr 系酸化皮膜の下層に存在した Al 層は完全に破壊されて いたのに対して、3Al フェライトでは、均一な厚さの Al 層が形成されていました。

図 6-10 に 3Al フェライトにおける腐食試験後の X 線回折による表面構造同定及び同材料断面の透過電子顕 微鏡(TEM)拡大観察写真を示します。X 線回折では、 母材のフェライト相と酸化皮膜の α アルミナの回折ピー クが検出されました。また、同材料の TEM 観察から、 隙間のない緻密な 1 μm厚の酸化皮膜が確認されました。 したがって、3Al フェライトの良好な耐食性は、この α アルミナが母材表面に均一形成されたためであることが 分かりました。

本研究は、日本製鉄株式会社との共同研究「IS プロ セス環境における耐食合金開発に関する研究」の成果の 一部です。

(広田 憲亮)

●参考文献

広田憲亮ほか,高温硫酸分解ガス環境下におけるステンレス鋼及び Ni 基合金の耐食性評価及び表面皮膜構造解析,材料と環境, vol.70, issue 3, 2021, p.68-76.

6-5 IS 法の水素製造効率向上に向けて -シリカ膜反応器を用いてヨウ化水素分解率を改善・



図 6-11 シリカ膜の外観写真 アルミナ基材上に、化学蒸着により水素選択性のシリカの 薄膜を形成しています。





図 6-13 HI 供給量に対する HI 分解率の関係 HI 供給量が小さいほど HI 分解率が増加し、平衡分解率の 20% を大きく超えて、最大で 70% に達しました。

図6-12 シリカ膜に対する各種ガスの透過性能 シリカ膜は高い水素透過性に加えて、分離対象の HI ガスの 透過が抑えられ、高い H₂/HI 選択性を有しています。

高温ガス炉の熱利用技術として、熱化学法水素製造法 IS プロセス(IS法)の研究開発を行っています。IS法は、 次の三つの化学反応を組み合わせて水分解により水素製 造を行う化学プロセスです。

ブンゼン反応(100℃)

 $SO_2 + I_2 + 2H_2O \rightarrow H_2SO_4 + 2HI$ (1) 硫酸分解反応 (850 ℃)

 $H_2SO_4 \rightarrow H_2O + SO_2 + 0.5O_2$ (2) ヨウ化水素 (HI) 分解反応 (400 ℃) 2HI → H₂ + I₂ (3)

これらの反応の中で HI 分解反応の平衡反応率は、 400 ℃で約 20% と比較的低いため、反応率の向上が課 題となっています。この課題解決のため、HI 分解反応 触媒と水素ガス (H₂) 選択性の分離膜を組み合わせた 膜反応器の研究開発を行っています。これまでに、高い H₂ 選択透過性を持ち、高腐食性の HI 環境でも安定な水 素分離膜を開発し、その水素分離膜と HI 分解反応触媒 を組み合わせた膜反応器の実証を行ってきました。

水素分離膜として、アルミナ基材上にヘキシルメトキシ シランを化学蒸着したシリカ膜を製膜しました(図 6-11)。 このシリカ膜に対する各種ガス(He、H₂、N₂、HI)の 透過性能を測定したところ、作成したシリカ膜は高い H_2 透過性能に加えて、高い H_2 /HI 透過性能比 (HI に対する H_2 の選択性)を示しました (図 6-12)。加えて、腐食性の HI 環境においても 11 時間安定に機能することが確認できました。

このシリカ膜を組み込んだ膜反応器を用いて、HI 供給 量に対する HI 分解率の関係を検討しました(図 6-13)。 膜反応器は触媒である活性炭を充てんした金属を外管と し、シリカ膜を内管として挿入することで構成されてい ます。HI は金属管とシリカ膜の隙間を流れ、HI 分解反 応(式3)により生じた H₂ が選択的にシリカ膜を通して 抽出されることになります。この膜反応器は、HI 供給 量が小さいほど良好な性能を示し、最大で 98%の H₂ 抽 出率に達し、そのときに平衡分解率の 20% よりも大幅 に向上した 70%の HI 分解反応率を示しました。これは、 膜反応器の導入により、HI 分解反応の循環流量を 80% 削減し、熱効率を 1% 改善させることに相当し、膜反応 器の実用化に求められる性能を実証しました。今後は、 膜反応器の大型化に必要な長尺の製膜技術の開発を進め ていく予定です。

(Odtsetseg Myagmarjav)

●参考文献

Myagmarjav, O. et al., Comparison of Experimental and Simulation Results on Catalytic HI Decomposition in a Silica-Based Ceramic Membrane Reactor, International Journal of Hydrogen Energy, vol.44, issue 59, 2019, p.30832-30839.

6-6 IS 法の主反応の省エネルギー化に成功 –ブンゼン反応過電圧を低減する膜・電極を開発–



図6-14 カチオン交換膜を用いたブンゼン反応(膜ブンゼン法) 陽極と陰極をカチオン交換膜で隔て、陰極側でヨウ素(I₂)の還 元によりヨウ化水素酸(HI)が生成し、陽極側で二酸化硫黄(SO₂) の酸化により硫酸が生成します。



図 6-15 開発した多孔質金電極の表 面拡大写真

多孔質状の金表面により、反応に有効 な表面積が増加し、陽極反応が容易に 進行することで、電極反応に伴う過電 圧が減少します。

水素社会の実現を目指し、高温ガス炉の熱利用技術 として、熱化学法水素製造法 IS プロセス (IS 法)の研 究開発を行っています。IS 法は、ヨウ素と硫黄の化学 反応を組み合わせて水分解により水素製造を行う化学プ ロセスです。

IS 法の出発点であるブンゼン反応は、水にヨウ素と 二酸化硫黄を反応させることで硫酸とヨウ化水素酸の2 種類の酸を生成します。このブンゼン反応を進行させる ために、水素イオン選択透過性を有するカチオン交換膜 を利用した電解セルでブンゼン反応を進行させる、膜ブ ンゼン法と呼ばれる方法があります(図 6-14)。従来は ブンゼン反応後に2種類の酸の分離を必要としていま したが、カチオン交換膜で隔てた2室で、2種類の酸を 分離した状態で反応させられるため、反応後の溶液分離 操作を必要としない簡易で優れた方法として期待されて います。しかしながら、従来の電極及びカチオン交換膜 を用いた膜ブンゼン反応では、電解セルに生じる過電圧 が大きく、消費電力が過大となるため、熱効率の面で実 用的ではなく IS 法への適応は実現していません。過電 圧は、主に陽極側の電極反応及び水素イオンの透過に伴 う膜抵抗により発生することが分かっています。そこで、 膜ブンゼン反応の実現を目指し、過電圧を低減する新規 の電極及びカチオン交換膜の開発を試みました。



図6-16 ブンゼン反応過電圧の電流密度依存性 開発した電極及びカチオン交換膜を用いた膜ブンゼン 法では、従来の結果と比べて、1/3以下の反応過電圧 まで低減しています。

電極に対して、芝浦工業大学と共同で、陽極用の多孔 質状の金電極を開発しました(図 6-15)。多孔質化の結果、 電極の有効表面積が増大し、陽極反応の進行が容易にな り、電極反応に伴う過電圧を低減することができました。

カチオン交換膜に対しては、量子科学技術研究開発 機構で研究開発している放射線グラフト膜製作技術を利 用し、水素イオンの透過に必要な導電性を担うイオン交 換基を従来膜と比べて多く導入した膜を作成しました。 これにより、ブンゼン反応に必要な水素イオンの透過に 伴う膜抵抗を削減しました。

これら新規の電極及びカチオン交換膜を組み込んだ 膜ブンゼン反応試験を行い、ブンゼン反応が量論比で進 行するとともに、従来の電極やカチオン交換膜の使用時 に比べて、200 mA/cm²の電流密度において、過電圧が 1/3 以下の 0.21 V と大きく低減できることを示しまし た(図 6-16)。この結果により、実用的な熱効率の達成 に見通しを立て、膜ブンゼン反応の技術的適用性を示す ことができました。

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」 の成果の一部です。

(田中 伸幸)

●参考文献

Sawada, S., Tanaka, N. et al., Overvoltage Reduction in Membrane Bunsen Reaction for Hydrogen Production by Using a Radiation-Grafted Cation Exchange Membrane and Porous Au Anode, International Journal of Hydrogen Energy, vol.45, issue 27, 2020, p.13814-13820.

6-7 臨界制御棒位置計算作業の時間短縮化に向けて - 臨界制御棒位置を自動で探索するユーティリティツールの開発-



図6-17 ユーティリティツールのフローチャート ユーティリティツールは、燃焼計算前に MVP コードで制御棒 の臨界位置を自動で探索します。その後、MVP-BURN コード による燃焼計算を行い、燃焼に伴って変化した物性値を次のス テップに渡して臨界位置を自動で探索し、この計算を燃焼末期 まで自動で繰り返します。

臨界制御棒位置は、炉心の核特性を把握する上で直 接測定できる貴重な情報であり、核特性評価手法の妥 当性を確認する上でも重要なパラメータの一つです。し かし、従来の臨界制御棒位置の計算では、手動で多数回 臨界計算を行って制御棒の臨界位置を探し出す必要があ り、多くの手間と作業時間が必要でした。特に、運転に より燃料の燃焼が進む場合、燃料の核種密度データが変 化するため、上記の作業に加え、物性値のデータを入れ 替えながら臨界制御棒位置を探し出す作業が必要となる ため、作業量が膨大となることが課題でした。例えば、 高温工学試験研究炉 (HTTR) 炉心の核特性評価で使用 する MVP コード等のモンテカルロコードを用いる場合、 燃焼期間全ての臨界制御棒位置の計算に1週間以上の 作業時間が必要となります。そこで、計算作業時間を短縮 しつつ、かつ高精度の計算を行うことを目的として、臨 界制御棒位置を自動探索できるユーティリティツールを開 発しました。

ユーティリティツールのアルゴリズムを図 6-17 に示 します。初めに、任意の制御棒位置を含む初期値を入 力し、MVP コードで実効増倍率(k_{eff})を計算します。 MVP の計算が終了すると臨界状態(k_{eff} =1)かどうか をチェックします。非臨界(k_{eff} <1 or k_{eff} >1)のときは、 制御棒の位置を再調整し、臨界状態になるまで計算を繰 り返します。 k_{eff} がほぼ1に達する(誤差を指定してそ の範囲内に収まる)と制御棒位置が記録され、指定され た出力と運転時間で MVP-BURN による燃焼計算が実 行されます。この後、燃料の燃焼に伴って変化した核種 密度データを読み取り、次のステップの入力データを更



図6-18 HTTRの運転に伴う臨界制御棒位置の変化 初期値をゼロとした場合における臨界制御棒位置の変化量を 示します。ユーティリティツールを利用した場合の計算結果 は、実験データとの差が約5%となり良く一致しています。

新して計算が実行されます。次に、前のステップと同様 に臨界制御棒位置の自動探索が始まり、これを指定した 燃焼度まで繰り返します。

従来、炉心の燃焼に伴う臨界制御棒位置変化の計算 は、計算量が膨大となるために制御棒位置を固定して計 算されてきましたが、本ユーティリティツールでは常に 臨界制御棒位置を求めて計算するため、原子炉の運転を より忠実に再現できます。さらに、臨界制御棒位置の自 動検索、核種密度の自動更新、計算システムでのジョブ 実行など、これまで手作業で行ってきた全ての計算を自 動化することにより、作業時間を2日未満に短縮でき ました。この時間短縮は、より詳細な計算モデルを開発 する上でも大きなメリットとなります。

HTTR の運転に伴う臨界制御棒位置の変化を図 6-18 に示します。この結果から、本ユーティリティツールを 使った計算値は、測定値と良く一致しており、実験値と の差は約5%であることが確認できました。

以上の結果から、本ユーティリティツールは、HTTR の臨界制御棒位置を精度良く評価できること、計算に必 要な複雑な作業を自動化できること、これにより作業時 間を約1/3に短縮できることが確認できました。今後、 本ユーティリティツールを活用することで、より詳細な 計算モデルの開発が可能となり、HTTR 炉心の核計算 精度向上への貢献が期待できます。また、この計算手法 は、HTTR のみならず、他の原子炉にも応用できるこ とから、今後の利用価値も高まるものと考えられます。 (Hai Quan Ho)

●参考文献

Ho, H. Q. et al., Preparation for Restarting the High Temperature Engineering Test Reactor: Development of Utility Tool for Auto Seeking Critical Control Rod Position, Nuclear Engineering and Design, vol.377, 2021, 111161, 9p.
高速炉サイクルの研究開発基盤の整備



図7-1 先進的設計評価・支援手法(AI 支援型革新炉ライフサイクル最適化手法:ARKADIA) ARKADIA は、高速炉開発に関する三つのシステム(ナレッジマネジメントシステム、仮想プラントライフシステム及び評価支援・応用システム) を、人工知能で支援されたプラットフォームをベースに統合することで、評価指標に応じた最適化オプションを自動的に提示します。

高速炉及びこれに対応した燃料サイクル(高速炉サ イクル)は、世界のエネルギー需要への対応と地球環境 の保全を両立するために期待される、持続的エネルギー 供給システムです。ウラン資源の大部分を有効利用する ことにより、千年を超える長期にわたってエネルギーを 供給できる技術であり、半減期が長いマイナーアクチノ イド(MA)を核変換することで、地層処分に供するガ ラス固化体の発熱や放射性毒性を大きく低減することが できる特徴を有しています。

2018年12月に国の原子力閣僚会議にて決定された 「戦略ロードマップ」において、我が国の今後10年程 度における高速炉開発に係る作業が特定されました。こ の中で、多様化する高速炉の意義を実現するためには再 処理技術を伴う必要があり、高速炉に付随するバックエ ンドへの対応等の必要性が示されています。さらに、原 子力分野の研究開発、人材育成及びこれらを支える研究 基盤に対して、国内外の先端技術を導入しながら、国際 的な競争力の点においても維持・発展することとされて います。そこで、原子力機構では、国の戦略ロードマッ プの基本方針に則り研究開発方針を策定し、高速炉・新 型炉研究開発部門では、国内外の最先端の技術を取り入 れた先進的設計評価・支援手法、安全性向上技術、放射 性廃棄物の減容化・有害度低減や高速炉の経済性向上に 向けた技術、燃料製造・再処理等の燃料サイクル技術の 開発、安全基準及び規格基準の開発と標準化等に取り組 んでいます。図 7-1 に示す先進的設計評価・支援手法は、 高速炉開発に関する三つのシステム(ナレッジマネジメ ントシステム、仮想プラントライフシステム及び評価支 援・応用システム)を、人工知能で支援されたプラット フォームをベースに統合することで、評価指標に応じた 最適化オプションを自動的に提示します。

本章では、原子力機構が実施している最新の研究開発 の中から、いくつかの成果について紹介いたします。「中性 子で分離塔内部の吸着元素を見てみよう(トピックス 7-1)」 は、MAの分離に用いる「抽出クロマトグラフィ」の技 術開発に関して、中性子イメージング技術においてパル

ス発生源から検出器までの中性子の飛行時間でエネル ギーを求め、分離塔透過後に減少した中性子の数とその エネルギーから元素の空間分布と種類をそれぞれ特定す ることにより、分離塔内部に形成される吸着帯の可視化 を実現したものです。「大型高速炉の出力分布の計算精 度を改善(トピックス7-2)|では、大型炉心に対する 制御棒の計算誤差に対して、制御棒と周辺燃料の中性子 吸収反応率の比を核反応データに乗ずる「反応率比保存 法」の主要要因である「制御棒と周辺燃料の中性子吸収 反応の比|に着目してモンテカルロ法を用いて参照解を 求め、さらに燃料棒と周辺燃料に体系モデルにおいて複 数の燃料領域や境界条件の改良を行うことにより誤差評 価の改善が図られました。「高速炉の炉心崩壊事故時の 溶融物質の挙動評価を目指して(トピックス 7-3) は、 制御棒とステンレス鋼の溶融挙動と生成された制御棒溶 解時の移行挙動に関するモデルの改良にあたり、他の研 究機関と連携することにより固相から液相にわたる広い 温度領域で制御棒溶解材の密度や比熱に関する物性デー タを計測し、組成割合や温度による影響を明らかにしま した。本成果により、溶融炉心物質の発熱量を大幅に低 減する効果が期待されます。「耐照射性に優れる炉心材 料の最適な合金を目指して(トピックス 7-4) は、燃料 被覆管材料の長寿命評価のため、材料劣化を引き起こす スエリング(膨張)現象を把握することを目的に、改良 ステンレス鋼と同材料を対象にして、照射後のボイド欠 乏帯の幅を電子顕微鏡観察することで、空格子の拡散係 数と濃度の数値化に成功し、空格子の拡散係数とスエリ ング量の定量的な関係性を導出しました。「3価マイナー アクチノイドを回収するための抽出クロマトグラフィ分 離法の改良と実証(トピックス 7-5)|は、世界的に再 処理プラント等で利用実績がある溶媒抽出法を中心とし た3価のMA (MA(III)) 回収プロセスの開発において、 軽希土元素と重希土元素のふるまいの違いを利用した分 離法を開発し、硝酸水溶液中に高純度で MA(III) を回収 できることを実証しました。

7-1 中性子で分離塔内部の吸着元素を見てみよう - 共鳴中性子イメージングによる分離塔内部元素の非破壊可視化-



図7-2 共鳴中性子イメージングの実験方法

分離塔には、多孔質シリカ粒子にスチレンージビニルベンゼン共重 合体を被覆した有機無機複合担体に、CMPO 抽出剤を染み込ませ た粒子(CMPO 含浸吸着材)を詰めておきます。分離塔を透過後 に減少した中性子数から、同位体の判別だけではなく、空間分布が 可視化できます。

使用済核燃料の再処理プロセスにおいて、エネルギー 源として再利用するウランとプルトニウム以外の元素等 は高レベル放射性廃液として管理され、ガラス固化処理 後、地層処分されます。私たちは、半減期の長いマイ ナーアクチノイド(MA)を高レベル放射性廃液から分 離することで、地層処分に係る廃棄物発生量や潜在的な 有害度の低減を目指しており、MA と親和性の高い粒子 (CMPO 含浸吸着材)を充てんした分離塔による「抽出 クロマトグラフィ」の技術開発を進めています。廃液を 供給後、親和性にしたがって、MA は分離塔内で吸着帯 を形成し、その他元素と分離されます。実廃液を用いた 本技術の実証実験では 99% の MA 分離を達成しており、 MA 製品の純度向上には、分離塔内部の現象、例えば供 給液の流れや粒子との接触状況等を明らかにする必要が あります。そこで、本研究では、MAの模擬元素である ユウロピウム (Eu) を分離塔に供給し、共鳴中性子イメー ジングによって、吸着帯の可視化を試みました。

図 7-2 に J-PARC の中性子照射実験装置での実験模 式図を示します。中性子を分離塔に照射し、透過した中 性子を検出器で測定します。このとき、パルス中性子源 から検出器までの中性子の飛行時間で中性子エネルギー を求め、分離塔透過後に減少した中性子の数とそのエネ ルギーから、元素の空間分布と種類をそれぞれ特定します。 これらの情報を組み合わせた中性子ラジオグラフィ像の濃 淡によって、分離塔の内部構造を"見る"ことができます。



図 7-3 中性子エネルギーに対する透過率の測定結果 分離塔透過前後における中性子の減少割合を示しています。本情 報から、分離塔にW、Mo、Co、Mnの元素が含まれていること が分かります。



図7-4 分離塔の外観写真と中性子ラジオグラフィ像 分離塔内部で形成した Eu の吸着帯を、分離塔を破壊することな く、"見る"ことができます。

抽出クロマトグラフィのように、分離塔内部に H₂O (軽水)を含む場合、中性子が透過しにくくなり、ラジ オグラフィ像が得られなくなります。そこで、私たち は、化学的性質が同じで、水素より少し重く、中性子と 反応しにくい重水素を用いることによって、この課題を 克服しました。図 7-3A は重水、B は硝酸を重水素化し た重硝酸、C は重硝酸で調製後、Eu を供給した分離塔 の中性子透過スペクトルをそれぞれ示します。重水や重 硝酸で満たした分離塔の透過率は、H₂Oの20%に比べ て 50% 程度まで向上し、乾燥粒子の充てん時と同等に なりました。透過率 C では、中性子エネルギー 0.46 eV で特徴的な中性子数の減少が見られました。このエネル ギーの値は同位体固有であり、最も大きく共鳴反応する Eu-151の存在を示す証拠となります。先述の通り、分 離塔内部に Eu の吸着帯が形成されていると予想され、 図 7-4C の中性子ラジオグラフィ像において、明瞭な Euの吸着帯を確認しました。

本研究によって、分離塔内部に形成した吸着帯の可 視化が可能になりました。今後、溶離する際の吸着帯の 時間変化や、複数元素の分離過程における吸着帯の様子 を追跡できるように検討を進めます。また、共鳴中性子 イメージングの結果をフィードバックし、抽出クロマトグ ラフィによる最適な MA 分離条件を策定するため、数値 シミュレーションコードの高度化にも取り組んでいきます。 (宮崎 康典)

●参考文献

Miyazaki, Y. et al., Observation of Eu Adsorption Band in the CMPO/SiO₂-P Column by Neutron Resonance Absorption Imaging, JPS Conference Proceedings, vol.33, 2021, 011073, 7p.

<mark>7-2</mark> 大型高速炉の出力分布の計算精度を改善

-制御棒計算手法の高度化研究-



図7-5 制御棒と周辺燃料の体系モデルの改良

改良モデルでは、制御棒の置かれた場所に応じて周辺の複数の燃料領域(内側炉心燃料、外側炉心燃料、径方向ブランケット)を 扱うとともに、反射(等方反射)と真空の二つの境界条件により、 炉心の中心から外側へ向かう中性子の流れを模擬しました。

制御棒は原子炉を運転・制御する重要な装置です。制 御棒による中性子吸収効果が正しく評価されないと、炉 心の設計に影響が出てしまいます。径方向に扁平化した 大型炉心では、制御棒の計算誤差により、径方向の出力 分布にも計算誤差が発生しやすく、それを考慮した余裕 を持った設計をしなければならないという課題がありま した。

さて、制御棒の計算のどこで誤差が生まれるのでしょうか。まず、設計用の炉心計算が、下記の二段階で行われることを説明しなければなりません。

第一段階では、制御棒や燃料の集合体内といった炉心 の一部分の詳細な構造に着目した計算を行い、第二段階 で炉心全体に着目した計算を行います。ここで、第二段 階で集合体内の詳細構造を扱わなくても第一段階の結果 が再現されるよう、核反応データに係数をかけ実効的な ものにします。制御棒に関しては、第一段階で計算した 制御棒と周辺燃料の中性子吸収反応率の比を核反応デー タに乗ずる「反応率比保存法」が確立していました。

従来は図 7-5(a)の制御棒と周辺燃料の体系モデルを 設定し第一段階の計算を行い、炉内の全ての制御棒につ いてこのモデルを適用していました。本研究では、従来 モデルの再構築に挑みました。モデルの妥当性を判断す る指標として、反応率比保存法の主要因子である「制 御棒と周辺燃料の中性子吸収反応率の比(以下、α値)」 に着目しました。また、炉心体系を制御棒や燃料集合体 の詳細構造から忠実にモデル化できるモンテカルロ法に より参照解を求めました。統計的手法であるモンテカル



図7-6 大型炉心の径方向出力分布の改善例 モンテカルロ法で算出した参照解からの相対差異をプロット したものです。図7-5の改良モデルにより、炉心の中心から 離れた領域においても、制御棒のモデル化が影響する出力分 布の計算精度を改善できました。

ロ法では、膨大な計算時間を要するため、炉心設計には 従来の決定論的手法の高度化が必要とされました。

炉心の中心に近い所にある制御棒については、制御 棒と周辺燃料の本数比を対象炉心と合わせるなどの従来 モデルの修正で、比較的容易にα値を改善でき、炉心 の中心付近の制御棒の中性子吸収の過大評価が原因で生 じていた計算誤差を改善する目途が立ちました。しかし ながら、炉心の中心から離れた所にある制御棒について は、α値を参照解と合わせることができません。制御棒 周辺に内側炉心燃料、外側炉心燃料、径方向ブランケッ トと複数の領域があること、さらには炉心の中心から外 側にかけて中性子の流れがあり、向きによって流れ方が 変わることがその原因と考え、図7-5(b)の改良モデル を考案しました。扇型の領域分割により複数領域の周辺 燃料配置を模擬するとともに、反射と真空の二つの境界 条件の組合せにより中性子の流れを模擬しています。こ れにより、α値を改善することができました。

炉心設計計算への改善効果をいくつかの制御棒挿入 パターンについて評価した結果、上述の改良モデルに より、制御棒の反応度価値については、モンテカルロ法 による参照解との相違が0.13%以下(従来の6分の1) に改善、径方向の出力分布についても図7-6に例を示 すように参照解との相違が改善し、0.35%以下(同3分 の1)となりました。こうして、大型高速炉に対して使 用できる高精度の制御棒計算手法を構築できました。 (滝野 一夫)

●参考文献

Takino, K. et al., An Investigation on the Control Rod Homogenization Method for Next-Generation Fast Reactor Cores, Proceedings of Joint International Conference on Supercomputing in Nuclear Applications + Monte Carlo 2020 (SNA + MC 2020), Chiba, Japan, 2020, p.92-96.

7-3 高速炉の炉心崩壊事故時の溶融物質の挙動評価を目指して -制御棒溶解材の基礎物性データベース整備-



図 7-7 ステンレス鋼と、ステンレス鋼に制御棒材(炭化ホウ素)を 5%溶解させた制御棒溶解材の (a)密度評価結果、 (b) 比熱評価結果

ステンレス鋼に制御棒材(炭化ホウ素)を溶解させると、(a)制御棒溶解材の密度は低下し、(b)比熱は上昇する傾向が見られました。破線より左側の液相物性データは、過冷却状態の液相の物性値を示します。

ナトリウム冷却高速炉(高速炉)においては、万が一、 燃料が溶融して炉心が崩壊する重大事故が発生した場合 に、溶融炉心物質が原子炉容器内で保持・冷却されるこ とを評価することが重要です。

高速炉の出力調整に用いる制御棒材(炭化ホウ素)及 びその被覆管材(ステンレス鋼)の溶融温度は、それぞ れ約 2770 K 及び約 1720 K ですが、事故時に燃料損傷 部近傍の高温雰囲気に両者がさらされた場合には、それ らの溶融温度より低い温度で、合金(制御棒溶解材)を 形成して液化する現象が知られています。制御棒溶解材 には流動性があるので、これが、溶融炉心内に混ざって いくことにより、溶融炉心物質の発熱量を大幅に低減す る効果が期待されます。より合理的な高速炉の設計に資 するため、高温下における制御棒材とステンレス鋼の合 金化による液化挙動と、生成される制御棒溶解材の溶解 炉心内の移行挙動を評価できるように解析プログラムの 改良を進めています。この改良にあたっては、固体から 液体までの広い温度範囲にわたって、いろいろな組成割 合での制御棒溶解材の密度、比熱等の物性データが必要 になります。そこで、連携研究機関と協力し、制御棒溶 解材の物性データ整備と解析プログラムの改良を並行し て実施しています。

物性データ整備では、まず溶融温度が最も低くなる と考えられるステンレス鋼中に5%炭化ホウ素を溶解さ せた制御棒溶解材を合成し測定に着手しました。図7-7 にステンレス鋼と制御棒溶解材の(a)密度、(b)比熱 の測定結果を示します。図7-7(a)より、ステンレス鋼 中に5%の炭化ホウ素を溶解させることにより、密度は 室温で約6%低下すること、温度上昇に伴い制御棒溶解 材の密度の減少量はステンレス鋼より若干少なくなる 傾向があることが分かりました。一方、図7-7(b)より、 比熱は室温で約7%上昇し、固相における温度上昇に伴 う比熱の変化は、ステンレス鋼、制御棒溶解材とも同様 の傾向を示しますが、液相では比熱は温度によらずほぼ 一定となることが分かりました。以上より、炭化ホウ素 5%を溶解させた制御棒溶解材に対して相変化をまたぐ 物性データを整備しました。今後、制御棒溶解材中の炭 化ホウ素溶解割合を変えて物性データの測定を行い、熱 物性データ集としてまとめるとともに、固液相共存領域 の物性推定方法を検討し、これら物性評価式を作成して、 解析プログラムの改良に役立てる予定です。

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁からの受託 事業である「平成 28 年度高速炉の国際協力等に関する 技術開発」の成果の一部です。

(高井 俊秀)

*¹ Fukuyama, H. et al., Thermophysical Properties of Molten Stainless Steel Containing 5 mass % B₄C, Nuclear Technology, vol.205, issue 9, 2019, p.1154-1163.

*² 原子力安全基盤機構,複雑形状部機器配管健全性実証(IAF)事 業原子炉圧力容器の異材溶接部に関する高温材料特性データ集, JNES-RE-2012-0024, 2013, 122p.

●参考文献

Takai, T. et al., Thermophysical Properties of Stainless Steel Containing 5 mass % B₄C in the Solid Phase, Nuclear Technology, vol.205, issue 9, 2019, p.1164-1174.

7-4

耐照射性に優れる炉心材料の最適な合金を目指して -材料劣化因子である照射点欠陥挙動の定量評価技術の開発-





図7-9 Fe-Cr-Ni 系オーステナイト鋼中性子照射材(476 ℃、18 dpa^{*})に形成した ボイド欠乏帯

各鋼種のボイド欠乏帯幅は、結晶粒 A 及び B に形成された幅を複数箇所にて測定し、 これらを平均して算出しています。空格子の拡散性に依存するボイド欠乏帯は、Ni 成分量 の増加に伴い増加し、材料中の空格子の拡散性が鋼種ごとに異なることが示されました。 ** dpa は displacement per atom の略であり、中性子照射量 (弾き出し損傷量)の単位を表す。



図7-10 空格子拡散係数とスエリング 量の関係(図7-9の4鋼種の評価結果) 図7-9のボイド欠乏帯幅を用いて、空 格子拡散係数を算出し、スエリング量 との定量的な関係性を構築することが できました。これら4鋼種においては、 Ni成分量増加に伴うスエリング量の低 下は空格子の高い拡散性に起因するこ とが示されました。

料要素は炉心燃料集合体内に束ねられ、炉心へ装 10⁻¹ 荷されます。 原子炉の基本的安全機能として、核燃料は核分裂に より放出される放射性物質の外部漏えいを防止するため に燃料被覆管と呼ばれる金属薄肉細管で覆われています

核燃料そのものに加え、発生する核分裂生成物は、

燃料被覆管や上部及び下部の端栓で封じ込められ

ています。この一体の構造を燃料要素と呼び、燃

に燃料被覆管と呼ばれる金属薄肉細管で覆われています (図 7-8)。燃料被覆管は炉内で中性子照射の影響を受け ることから、材料劣化が生じにくいこと(耐照射性)が 要求されます。

現在、私たちは高速炉を利用した放射性廃棄物の低 減化に係る研究開発として、既存の燃料被覆管材(改 良 SUS316 相当鋼)の性能を超える長寿命の燃料被覆 管の開発を進めています。長寿命化のためには、特に材 料劣化を引き起こすスエリング(膨張)現象を抑えるこ とが重要です。スエリングは、照射により生成した点欠 陥(空格子及び格子間原子)の材料中の挙動(拡散や量) に起因します。そのため、スエリング抑制には点欠陥挙 動を適切に制御することが重要ですが、既往研究では点 欠陥挙動とスエリング量との定量的関係性が明らかに なっておらず、さらにスエリング量の評価手法は確立さ れているものの、点欠陥挙動は手法確立に至っていませ ん。この評価手法を開発した上で、合金成分の異なる様々 な鋼種に対してこれらの関係性を明らかにできれば、主 要合金成分の選定や微量元素添加による成分微調整に係 る適切な設計戦略を構築することができ、既存の合金設 計手法を補う新手法として活用が期待されます。

そこで、本研究では、改良 SUS316 相当鋼と同じ Fe-Cr-Ni 系オーステナイト鋼を対象に、点欠陥挙動を 評価するための手法開発を試みました。照射後組織から 評価できる手法として、空格子の拡散性に依存するボイ ド欠乏帯(照射により粒界に形成されるボイドの無形成 層)に注目しました。このボイド欠乏帯の幅を透過電子 顕微鏡観察により測定し、既存のボイド欠乏帯の形成理 論式(拡散係数依存)と反応速度論式(濃度依存)を用 いた計算を組み合わせた結果、空格子の拡散係数と濃度 の数値化に成功しました。図 7-9 は Cr 量を 15wt% に 固定し、Ni 量を 15wt% から 30wt% に変化させた 4 鋼 種の中性子照射材(「常陽|照射材)で形成されたボイ ド欠乏帯を示したものであり、Ni 成分量によりその幅 が変化することが分かります。代表として、この幅を用 いて算出した拡散係数と各鋼種のスエリング量の関係を 図 7-10 に示します。4 鋼種におけるスエリング抑制は、 拡散係数の増加に起因するものであることが分かり、拡 散係数とスエリング量の定量的関係性を導くことができ ました。今後は、スエリング抑制に関する合金成分設計 の最適化を目指して、"材料固有の拡散係数がどの数値 をとる場合に、スエリング抑制が図れるか"といった知 見を取得するために、合金成分を変えた様々な中性子照 射済試料に対するデータ拡充を行い、これらの関係性の 精度向上を図っていく予定です。

本研究は、北海道大学との共同研究「高速増殖炉用 オーステナイト系ステンレス鋼における照射欠陥蓄積挙 動の定量的評価に関する研究」の成果の一部です。 (関尾 佳弘)

●参考文献

Sekio, Y. et al., Effect of Nickel Concentration on Radiation-Induced Diffusion of Point Defects in High-Nickel Fe-Cr-Ni Model Alloys during Neutron and Electron Irradiation, Materials Transactions, vol.60, issue 5, 2019, p.678-687.

7-5

3 価マイナーアクチノイドを回収するための抽出クロマト グラフィ分離法の改良と実証 - 効率の高い MA(III)/Ln(III) 分離プロセス-





原子力発電によって生成する使用済燃料の処理に伴 い発生する放射性廃棄物の減容化・有害度低減の有望 な選択肢として、長半減期で発熱性を有するAmやCm といった3価のマイナーアクチノイド(MA(III))を放 射性廃棄物から分離し、核変換することが考えられてい ます。これまでに日本だけでなく、アメリカやフランス を含む様々な国で、種々の金属元素を含む高レベル放射 性廃液(HLLW)からMA(III)を分離するための研究 が実施されてきています。ランタノイド元素(Ln(III)) は効率的な核変換を阻害するためMA(III)と分離する 必要がありますが、水溶液中でMA(III)と同じく3価 のイオンとなり類似の化学的挙動を取るため、MA(III) とLn(III)との分離が開発の主要な課題です。

世界的には多くの利用実績のある溶媒抽出法を用い たプロセスの開発が多く見られますが、我々は溶媒抽出 の原理を利用しつつ、より廃棄物発生量が少ないと期待 される抽出クロマトグラフィ技術を用いた開発を進めて います。本技術は多孔質シリカ粒子表面にポリマーを被 覆した粒子(SiO₂-P)に、MA(III)に親和性のある抽 出剤を含浸させた粒子を吸着材として用い、カラム操作 によって MA(III)の分離回収を可能とします。これまで の研究では、抽出剤である CMPO、HDEHP を含浸さ せた吸着材をそれぞれ、一段目、二段目のカラムとして 利用した二段階の分離法の開発を行ってきました。一段 目では種々の金属の中から化学的に類似の MA(III)と Ln(III)とが回収され、二段目において MA(III)が Ln(III)



遠隔操作用バルブ切替装置 図7-12 ホットセル内に設置した試験装置 0.3 M 死体積供給液 HNO3 0.8 M HNO3 1 M HNO3 3 2 2 2 41Am Nd

元素濃度(/



図7-14 HDEHP カラムでの分離曲線 MA(III) と *h*Ln が 0.8 M(mol/dm³)硝酸の通液により分離し、 MA(III) の硝酸水溶液中への分離回収に成功しました。

から分離されます。本プロセスでは、MA(III)の回収 率が70%にとどまること、最終的に得られる MA(III) 製品溶液に錯形成剤を多く含むことが課題でした。

より実用性の高い MA(III)回収プロセスを構築する ことを目的として、CMPO 及び HDEHP への Ln(III) の親和性の違いに着目し、軽希土類元素 (ILn: La-Nd) と重希土類元素 (hLn: Sm-Gd) の振る舞いの違いを利 用した分離法を考案しました(図 7-11)。これまで二段目 に利用していた錯形成剤である DTPA を一段目のカラム に用いることで、MA(III)の錯形成剤を含まない硝酸中 への高収率な回収を狙いました。模擬 HLLW を用いた カラム分離試験によりプロセス条件の最適化を行い、得 られたフローを用いてホットセル内での実 HLLW を 対象とした実証試験を実施しました(図 7-12)。その 結果、一段目のカラムにおいて ILn とその他金属元素を (図 7-13)、二段目のカラムにおいて MA(III) と *h*Ln とを分離(図7-14)することに成功しました。Ndは 二段目のカラムでは MA(III)とは分離されないものの、 一段目のカラムで目標とする除染係数100を達成可能 であることを示しました。本プロセスを用いることで、 90% 以上の MA(III) を高い純度で硝酸水溶液中に回収 出来ることを実証し、実用性のある MA(III) 回収プロ セスを提示できました。

本研究は、芝浦工業大学との共同研究「MA 回収用吸 着材の最適化に関する研究」の成果の一部です。

(渡部 創)

●参考文献

Watanabe, S. et al., Improvement in Flow-Sheet of Extraction Chromatography for Trivalent Minor Actinides Recovery, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, vol.322, issue 3, 2019, p.1273-1277.

原子力施設、再処理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、保有する原子力施設の安全強化とバッ クエンド対策の着実な実施により研究開発機能の維持・ 発展を目指すため、原子力施設 89 施設を対象に、「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 画として具体化した「施設中長期計画」(2017年4月1 日策定、2021年4月1日改定)として取りまとめました。 その後、2018年3月28日に高速増殖原型炉「もんじゅ」 の廃止措置計画、同年6月13日に東海再処理施設の廃 止措置計画が、原子力規制委員会の認可を受けました。 また、「三位一体」のうち「バックエンド対策」につい ては、東海再処理施設の廃止措置に約70年を要するこ とから、施設の廃止措置と放射性廃棄物の処理処分につ いての長期にわたる見通しと方針を示した「バックエン ドロードマップ」(2018年12月26日策定)として取 りまとめました。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。

東海再処理施設については、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ていま す。本施設においては、施設のリスク低減に係る取組み 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。今年度はガラス流下停止事象の対策を講じ た新型溶融炉の施工設計を行い、製作に着手しました。

今年度の当該分野の技術開発成果として、低レベル 放射性廃棄物(研究施設等廃棄物)の埋設事業実施に 向けた重要核種選定の精度を向上するための手法の整 備(トピックス 8-1)、核燃料物質を用いた再処理試験 で発生した廃抽出溶媒から放射性物質を回収する技術の 開発(トピックス 8-2)、廃棄体の健全性に影響を与え る金属(Al)とコンクリートの反応を抑制する技術の 検討(トピックス 8-3)があります。また、プルトニウ ム取扱施設の安全性の向上に向けて、既設のグローブ ボックスの窓板に貼り付けて火災損傷防止効果を高める 窓板用火災対策シートの開発(トピックス 8-4)につい て紹介しています。



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基盤的な研究開発を推進

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 300 m 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)。原子力機構では、実 施主体である原子力発電環境整備機構による処分事業と 国による安全規制の両面を支える技術基盤を整備し、地 層処分技術の信頼性を支える研究開発に取り組んでいま す (図 8-3)。

北海道幌延町の幌延深地層研究センター(堆積岩を対 象)では、地下の研究施設を活用して、実際の地質環境 における人工バリアの適用性確認等の研究課題に取り組 んでいます(トピックス 8-5、8-6)。また、岐阜県土 岐市の東濃地科学センターでは、土岐地球年代学研究所 において、地質環境の長期安定性に関する研究を実施し ています(トピックス 8-7、8-8)。瑞浪超深地層研究 所(花崗岩を対象)では、研究開発を終了し坑道の埋め 戻し及び地上施設の撤去等を進めています。 茨城県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、地下の研究 施設で得られる情報を活用して、地層処分システムの 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 8-9、8-10)。

これらのような研究開発で得られた成果は、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

8-1 研究施設等廃棄物の埋設事業を円滑に進めるために -重要核種選定に必要な「基準線量相当濃度」の整備-



図8-4 安全審査における国の要求と現状の対応の概要 現在、立地場所の選定が進行中であることから、将来の様々な立 地環境を考慮した基準線量相当濃度を算出し、安全評価に与える 影響を検討しています。



生活圏における 降水 - 般公衆の被ばく 河川 5. ・湖沼 ○河川水利用 埋設施設 ○土地利用 地下水による放射性核種の 及び廃棄体 ○灌漑水利用 (トレンチ処分のイメージ) ○河川岸利用

図8-5 基準線量相当濃度算出に用いた被ばくの想定(シナリオ) 埋設施設の安全評価では、埋設施設の廃棄物から一般公衆が被ばく する想定(シナリオ)を基に被ばく線量を評価し、基準線量相当濃 度を算出します。例えば、河川水利用では、汚染した河川水の飲用や、 その水で飼育した畜産物の摂取等による被ばくを考慮しています。

図8-6 トレンチ処分の基準線量相当濃度の評価例 河川水利用では、最小値であった C-14 がさらに低 くなることが分かりました。灌漑水利用、河川岸 利用では、被ばくに寄与する割合の高い新たな核 種(CI-36等)のあることが分かりました。これら は、実際の立地条件を反映した安全評価により選定 される可能性の高い核種を幅広く選定することとな り、安全審査に向けた信頼性が向上すると考えます。

私たちは、原子力機構及び国内の研究施設等から発 生する低レベル放射性廃棄物(研究施設等廃棄物)を埋 設する事業(トレンチ処分及びピット処分)の実施主体 です。埋設事業の安全審査においては、一般公衆が埋設 施設から被ばくする想定(シナリオ)に基づく被ばく線 量評価(安全評価)によって、国が定める線量基準を満 足することを示すとともに、被ばく線量への寄与の大き い核種(重要核種)を選定し、重要核種に対する最大放 射能濃度と総放射能量を示す必要があります。また、廃 棄物の処理方法や廃棄物の測定・分析方法を検討する際 にも、この重要核種を中心として検討がなされるため、 埋設事業を円滑に推進する上でも重要核種を具体的に選 定することが重要です。図 8-4 にその概要を示します。

重要核種は、国が定めた基準線量の被ばくをもたらす 核種ごとの放射能濃度(基準線量相当濃度)と埋設する 廃棄物に含まれる核種の放射能濃度から求める比の大き い核種から選定します。基準線量相当濃度の値が低い核 種は、廃棄物に含まれる放射能濃度が低くても被ばく線 量が高くなることとなり、重要核種となる可能性が高く なります。これまでは、基準線量相当濃度として、埋設 処分における放射能濃度の法規上の上限値を決める際の 根拠となった値(旧原子力安全委員会の値)を使ってき ました。現在、埋設施設の立地場所の選定が進行中であ り、事業者としては様々な立地環境を想定しておく必要 があります。このため将来の様々な立地環境を考慮した 「シナリオ」(図 8-5)を設定して基準線量相当濃度を算 出し、安全評価に与える影響を検討しました。

代表的な核種に対する基準線量相当濃度について、トレ ンチ処分の例を図 8-6 に示します。河川水利用のシナリオ では、被ばく線量が高くなる立地環境条件(生活圏が近く、 短い移行距離等)を想定したため、従来、最小値であっ たC-14の値がさらに低くなることが分かりました。また、 様々な立地環境を考慮したシナリオ(灌漑水利用、河川 岸利用)を用いたことで、被ばくに寄与する割合が高い 新たな核種(Cl-36等)のあることが分かりました。

今回の成果から、幅広い立地環境に基づいた基準線量相 当濃度を用いることで、実際の立地場所を反映した安全評 価により選定される可能性の高い核種を幅広く選定できる ことから、安全審査に向けた信頼性が向上すると考えます。 (菅谷 敏克)

●参考文献

菅谷敏克ほか,研究施設等廃棄物の浅地中処分のための基準線量相当濃度の検討(その1), JAEA-Technology 2021-004, 2021, 79p.

8-2 固体吸着材による廃抽出溶媒からの核燃料物質の回収 -模擬廃抽出溶媒におけるイミノニ酢酸基の錯形成反応の調査-





老朽化した原子力施設の廃止措置が進められていま す。廃止措置の完遂には、核燃料物質やそれらの廃棄物 を化学的に安定な状態に処理することが不可欠です。本 研究では、実験室規模の再処理試験で発生した抽出溶媒 の廃液を対象としました。PUREX プロセスを対象と した再処理試験ではリン酸トリブチル(TBP)を用い ますが、試験、分析で発生する廃抽出溶媒の廃液中には、 核燃料物質のウラン(U)やプルトニウム(Pu)を微 量に含有しているものもあります。抽出溶媒は抽出した 核燃料物質の放射線により分解し、その結果、水素やニ トロ化合物等の爆発性物質が発生、蓄積する危険性があ り、速やかな安定化処理が必要です。廃抽出溶媒中の核 燃料物質の回収方法として、炭酸ナトリウム溶液等によ る逆抽出法が一般的ですが、大量のアルカリ系廃液の発 生が課題です。そこで、元素の吸着と溶離が可能である 固体吸着材に着目し、廃抽出溶媒中でも直接吸着反応を 示す固体吸着材を見出すことで、廃抽出溶媒処理法とし て確立できると考えました。

本研究ではイミノ二酢酸型の市販吸着材を使用し、 溶媒中における錯形成反応について調査を進めまし た。図 8-7 にイミノ二酢酸基の構造を示します。まず、 TBP の劣化成分の代表としてリン酸ジブチル(DBP) を含む溶媒に模擬核燃料物質として Zr(IV)(Pu(IV)の模 擬)を装荷した溶媒を調製し、CR11 キレート樹脂(三 菱ケミカル社製)を一定時間模擬廃抽出溶媒に浸漬させ ました。また、イミノ二酢酸基の Zr との結合状態を比



図8-8 模擬廃抽出溶媒から吸着処理した Zr の PIXE 画像

表8-1 Zr に近接する原子の種類と距離(EXAFS分析) 硝酸溶液で吸着処理した試料はイミノ二酢酸に由来するOと、 ZrO(NO₃)₂と錯体を形成し、模擬廃抽出溶媒で吸着処理した試 料は、硝酸基は存在せず、イミノ二酢酸に由来するOとZrO²⁺ の化学形態で錯形成していると予想されます。

=_b.\#)	医フ	原子数	結合間距離	
記(不)	原于	(個)	(10 ⁻¹⁰ m)	
「古殿」で、古	0	8.2	2.16	
11月16月12日)12日	Ν	4.2	2.28	
吸着材(硝酸溶液)	0	4.0	2.14	
(300分吸着処理)	Ν	2.2	2.35	
带将应持山边推	0	4.0	2.05	
悮 / 焼 焼 畑 山 冶 妹	Ν	1.8	2.18	
吸着材(模擬廃抽出溶媒)	0	3.8	2.06	
(300分吸着処理)	Ν	_	_	

較するために、Zr を溶解した硝酸溶液に浸漬させた試料も調製しました。各吸着材の Zr の吸着状況をマイク ロ PIXE 分析、Zr との化学結合状態を EXAFS 分析に より明らかにしました。

図 8-8 にマイクロ PIXE 分析による吸着材に吸着し た Zr の分布状況を、図 8-9 に垂直方向における Zr の 強度を示します。1 分間の吸着時間でも、吸着材内部に まで Zr が分布しています。吸着材全体のイミノ二酢酸 基が有効に利用されていると推察されます。表 8-1 に EXAFS 分析による吸着した Zr の原子の種類と距離に 関する分析結果を示します。イミノ二酢酸基と Zr は、 硝酸溶液中ではZrO(NO₃)2、模擬廃抽出溶媒中では ZrO²⁺と、異なる化学形態でイミノ二酢酸と錯形成する ことが示唆される結果を得ました。イミノ二酢酸基は模 擬廃抽出溶媒中の金属と直接錯形成することを明らかに し、さらに、短時間で吸着反応が進行すると示唆する結 果を得たことから、廃抽出溶媒処理に適用可能であると 考えられる結果を得ました。これらの結果を手掛かりに、 吸着容量の向上を目指した新規吸着材の合成や吸着元素 の回収に関する調査に着手する予定です。

本研究のマイクロ PIXE 分析は、量子科学技術研 究開発機構高崎量子応用研究所のイオン照射研究施設 (TIARA)、EXAFS 分析はあいちシンクロトロン光セン ターの BL11S2 にて行いました。

(荒井 陽一)

●参考文献

Arai, Y. et al., Microscopic Analyses on Zr Adsorbed IDA Chelating Resin by PIXE and EXAFS, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, vol.477, 2020, p.54-59.

8-3 難処理廃棄物を安定な廃棄体にする -バイヤー法を用いた放射性アルミニウム廃棄物処理技術の検討-



図8-10 バイヤー法を応用した基本的な処理フロー図 ① AI をアルカリ溶液で溶解します。②アルカリ溶液に溶解しな い残渣をろ過によって除去します。③薄い塩酸を添加し(中和)、 水酸化物を生成させます。④水酸化物を乾燥させ、焼成しやす いように粉砕します。⑤電気炉を用いて焼成し、安定なアルミ ナに変換します。

原子力施設で発生した固形の放射性廃棄物は、一般 にコンクリートで固めて廃棄体にして処分しています。 材料試験炉 (JMTR)をはじめとする研究用原子炉では、 炉内の構造材としてアルミニウム (Al) やその合金が 多く使用されていますが、コンクリートと反応し水素ガ スを発生する性質があるため、廃棄体の健全性に影響を 与える問題があります。そこで、Alをコンクリートと 反応しない物質へと変換し、安定な廃棄体にする技術の 検討を行いました。

Al の化合物の中からコンクリートと反応して水素ガ スを発生せず、コンクリートの速乾材として利用され ている酸化アルミニウム(アルミナ)に着目しました。 アルミナに変換する技術は、工業製造法として用いら れているバイヤー法を応用することにしました。一方、 JMTR の炉内で長期間使用した Al 合金は Al よりも半 減期の長い核種の生成も多くなり、Al 合金の放射能を 大きくしています。本法では、強アルカリである水酸化 ナトリウム(NaOH)水溶液等を用いて Al を溶解させ、 Al 合金中に含まれる添加元素や不純物元素を除去する 特徴も有しているものとしました。これにより、添加元 素や不純物元素の放射化により生成される半減期の長い 核種を除去できれば Al 成分の廃棄物の放射能量を下げ ることも期待できます。

本法の基本的処理フローを図 8-10 に示します。焼成



図8-11 1000 Cにて焼成した試料のX線回折スペクトル 1000 Cで焼成した試料はX線回折により、 α 、 β 、 γ の結晶構 造が異なる3種類のアルミナであることを確認しました。

表 8-2 各工程で発生する試料の放射能割合の推移 照射した AI 合金を用いて、図 8-10 の工程で発生する試料中に含ま れる全放射能を 100 に規格化し、各工程での放射能の割合を算出し ました。99% 以上が不溶残渣に含まれていることが分かりました。

	不溶残渣	水酸化物	廃水
Cr-51	99.3	0.5	0.2
Fe-59	100.0	LTD	LTD

LTD:検出下限値未満

後の試料について、X線回折による結晶構造解析を行ったところ、図 8-11 に示す通り、異なる3種類のアルミナであることを観測しました。これら異なったアルミナの特性は、 α - アルミナや γ - アルミナは純度の高い安定なもの、 β - アルミナはナトリウム (Na) を含んだものであり、これらのアルミナは、コンクリートと反応性が低いことを確認しました。

また、京都大学研究用原子炉で照射した AI 合金を用 いて、本法の各工程で発生する試料中の放射能測定を行 いました。この結果を表 8-2 に示します。AI 合金中に 含まれる Cr や Fe の放射化により生成する核種の 99% 以上を不溶残渣除去工程で取り除くことができ、焼成で 生成する最終的なアルミナの放射能量を低減できること を実証しました。

これより、放射性アルミニウム廃棄物を安定な廃棄 体にする技術として有効であり、さらに Al 廃棄物の放 射能量を低減できる廃棄物処理方法を確立することがで きました。今後、実用化に向け、作製したアルミナとコ ンクリートへの混錬等による特性の検討を進め、廃棄体 への適用性の検討を進めていく予定です。

本研究は京都大学複合原子力科学研究所の共同利用 で得られた成果を含みます。

(関 美沙紀)

●参考文献

関美沙紀ほか, JMTR の廃止措置に向けた難処理廃棄物の廃棄体化のための処理方法の開発-炉内構造物と使用済イオン交換樹脂-, デコミッショニング技報, no.62, 2020, p.9-19.

関美沙紀ほか, 放射性アルミニウム廃棄物処理方法, 特開 2021-32570, 2021-03-01.

(b) PC板単体 (c) 本シート貼付けAC板

8-4 プルトニウム取扱施設の安全性向上に向けて - グローブボックス窓板用火災対策シートの開発-





図8-13 UL94 規格 5 V 相当の燃焼試験

(a) 燃焼試験の様子

(a) 水平固定した試料に下方から炎高さ 125 mm のバーナーで断続接炎します。
 (b) バーナー離炎後最大1秒で自己消火し、損傷範囲は最大 63 mm でした。
 (c) バーナー離炎後最大1秒で自己消火し、損傷範囲は最大 73 mm でした。



図 8-14 強制燃焼試験

垂直固定した試料に対し、炎高さ 125 mmのバーナーで側方から連続 90秒間接炎します。PC板単体はバー ナー離炎後最大7秒で自己消火、本 シート貼り付けAC板はバーナー離 炎後最大1秒で自己消火しました。



図8-15 火災試験 試料にほとんど密着させ た状態で燃焼させ、PC 板単体及び本シート貼り 付け AC 板は着火しませ んでした。

にて断続的に5秒間の接炎を5回繰り返す(UL94規格5V相当)試験(図8-13)を行い、本試料がPC板に相当する自己消火性を有する火災損傷防止効果があることを確認しました。さらに、過酷な条件でかつ窓板の設置状態に近似させ、垂直固定した本試料に連続的に接炎する強制燃焼試験(図8-14)、工程室内火災を想定しペーパータオル1500gの総発熱量に相当するエタノール(質量濃度62%、総重量1500g)を用いた火災試験(図8-15)を行い、いずれの試験結果においてもPC板単体と比較して遜色のないことを確認しました。

また、使用環境影響確認試験においては、GB 内の核燃 料物質からのガンマ線5~60年の加速照射及び窓板近傍 に設置された蛍光灯からの紫外線10~20年の加速照射を 行い、難燃性、視認性等に変化がないことを確認しました。

これらの試験結果から、本シートを既設 GB の AC 窓 板に貼り付けることで、PC 板相当の自己消火性を有し、 火災損傷防止効果が期待できるとともに、実際の放射線 環境下でも適用できる見通しを得ることができました。

現在、本シートは、Pu3 既設 GB の窓板に貼り付け が完了し、運用されています。本開発は、原子力施設 はもちろんのこと、化学・薬品産業の GB の AC 窓板、 その他 AC 板を用いている所での火災損傷防止対策、ま た AC 板の表面保護対策として広く適用されることが期 待できます。

(川崎 浩平)

図 8-12 火災損傷防止対策の概略図

(a) Pu3の代表的な GB の構成:受払搬送設備(約10 m×1 m×1 m)1基 設備 GB(約3 m×3 m×1 m)2基を示します。
 (b) 各 GB のアクリル窓板に本件で開発した火災対策シート(c)を貼り付ける対策を実施しました。

プルトニウム燃料第三開発室(Pu3)は、高速炉用 MOX 燃料の製造施設であり、プルトニウムを取り扱う 大型のグローブボックス(GB)を多数設置しています。 GBを構成する窓板には、過去の火災試験等で安全性を 確認してアクリル(AC)製樹脂(可燃性)を採用して いますが、万一の工程室内火災による延焼防止の観点か ら、直接的な火災対策が課題でした。Pu3では、新規 制基準施行(2013年12月)以降に新たに設置するGB の窓板には難燃性のポリカーボネート(PC)製樹脂を 用いることにしていますが、既設GBのAC窓板(約 2300枚)を難燃性PC板に交換することは、汚染リス ク、コスト及び作業期間の観点から非現実的でした。そ のため、放射線環境下で劣化せず、火災損傷防止効果が あるPC製の火災対策シート(以下、本シート)を開発し、 AC窓板に貼り付ける対策を考案しました(図 8-12)。

開発に際しては、既設AC窓板と同じ厚さのAC板 10 mmに火災対策シートを貼り付けた試料(以下、本 試料)と同厚のPC板単体を用いて比較評価する燃焼試 験及び使用環境(ガンマ線、紫外線)影響確認試験を実 施して実効性を確認しました。本シートには、高分子材 料の燃焼性試験で広く用いられている米国UL94規格 において最も高い難燃性 V-0を有する透明な PC 製の 難燃シート(厚さ 0.38 mm)を選定し、AC窓板に貼り 付けるための粘着材は、施工性、交換時の取り外し性を 考慮した特殊なものを採用しました。

燃焼試験は、各試料を水平固定して下方からバーナー

●参考文献

川崎浩平ほか, グローブボックス窓板用火災対策シートの開発, JAEA-Technology 2020-025, 2021, 80p.

8-5 坑道掘削で生じた割れ目を直接見る -樹脂注入による掘削損傷領域の割れ目の可視化技術-



図8-16 樹脂注入試験の実施位置 幌延深地層研究センターの深度 350 m 調査坑道のうち、 試験坑道3を対象として実施しました。



図8-17 樹脂注入試験装置(上)とパッカー装置(下) 樹脂は、圧力容器を介してシリンジポンプにより一定の圧力で注 入しました。

高レベル放射性廃棄物(HLW)の地層処分場の建 設に際しては、立坑やアクセス坑道、処分坑道などの 掘削に伴い、周辺岩盤に掘削損傷領域(Excavation Damaged Zone: EDZ)が形成されます。EDZ内部で は、新たな割れ目(EDZ割れ目)の形成などにより岩盤 の透水性が増加することから、廃棄体埋設後の放射性核 種の選択的な移行経路になることが想定されます。そのた め、HLWの地層処分の安全評価において、EDZ割れ 目の分布や開口幅を定量的に把握することが重要となり ます。

本研究では、EDZ割れ目を直接可視化して観察する ことを目的として、樹脂注入試験を実施しました。過去 にも、割れ目への樹脂注入による可視化は行われていま したが、使用した樹脂が水の90~800倍程度の高い粘 性を有することから、注入時に割れ目を広げるなどの擾 乱が無視できない可能性がありました。そこで、割れ目 に擾乱を与えないように、紫外線を照射すると発光する 蛍光剤を添加した粘性の低い樹脂(水の7倍程度の粘性) を新たに開発しました。岩盤への注入は、幌延深地層研 究センターの深度350 mの試験坑道3(図8-16)にお いて、図8-17に示す装置を用いて注入しました。注入 圧は、坑道周辺の間隙水圧と同程度(約0.1 MPa)に 設定しました。なお、過去の調査により、EDZが坑道



図8-18 割れ目への樹脂の固着状況

可視光(a)及び紫外線照射下(b)でのオーバーコアリング試料の観察写 真です。割れ目((a)と(b)の赤色矢印)に、注入した樹脂が固着してい る((b)の青光した部分)ことが分かりました。これらの割れ目は、樹脂注 入孔のコア観察結果から、EDZ割れ目であることが確認されています。



図8-19 割れ目の開口幅と樹脂注入孔の孔口からの距離との関係 壁面周辺(孔口から約0.3 m)は、開口幅が大きな割れ目が発達 しているとともに、割れ目発達頻度も高いことが分かりました。

壁面から 0.6 m 程度の広がりであることが分かっているこ とから、注入孔の長さは約 1.0 m に設定しました。樹脂 が固まった後、注入孔を含む領域の岩石試料をオーバー コアリングにより採取しました。図 8-18 に示す紫外線 照射下でのコアの観察写真において赤色矢印で示すよう に、樹脂が割れ目に固着していることを確認しました。

次に、樹脂注入により固定した割れ目を紫外線照射 下で近接撮影し、開口幅を画像上で測定しました。割れ 目の開口幅と樹脂注入孔の孔口からの距離との関係を 図 8-19 に示します。図より、孔口から 0.3 m までの範 囲では、割れ目の開口幅は最大で 1.02 mm であり、発 達頻度が高いことが分かりました。一方、孔口から 0.3 m 以深では、割れ目の開口幅は最大で 0.19 mm であり、 発達頻度が低いことが分かりました。

今回得られた成果は、EDZ割れ目の開口プロセスの 予測や、坑道埋め戻し後に埋め戻し材の膨潤等による割 れ目の閉塞を考慮した透水係数の将来予想モデルの構築 等、地層処分の安全評価の信頼性向上に資する基礎的な データとなります。

本研究は、京都大学との共同研究「幌延センターに おける掘削損傷領域の可視化手法の検討」の成果の一部 です。

(櫻井 彰孝)

●参考文献

Aoyagi, K., Sakurai, A. et al., Visualization of Fractures Induced around the Gallery Wall in Horonobe Underground Research Laboratory, Proceedings of 5th ISRM Young Scholars' Symposium on Rock Mechanics and International Symposium on Rock Engineering for Innovative Future (YSRM 2019 and REIF 2019), Ginowan, Japan, 2019, 6p., in USB Flash Drive.

(b)

99.8%

溶存ガス量:少

1.5 m

8-6 坑道掘削に伴う不飽和領域形成の影響因子 - 溶存ガス量と岩盤の透水性に着目した解析的検討-



図8-20 解析領域と計算条件

(a) 立坑を上から見た断面、(b)(a)の緑線を横から見た断面を 示しています。

表 8-3 数値解析に用いた代表的なパラメータ例(基本ケース) 浸透率と有効空隙率は、既存の観測結果を用いました。溶存ガス 濃度は、初期水圧における飽和ガス濃度を計算しました。

EDZ の浸透率(m ²)	5.1 × 10 ⁻¹⁵	初期 CH ₄ 濃度 (mol/L)	3.3 × 10 ⁻²
健岩部の浸透率(m ²)	5.2 × 10 ⁻¹⁷	初期 CO ₂ 濃度 (mol/L)	6.0×10^{-3}
有効空隙率(%)	50	初期水圧(Pa)	2.45×10^{6}

高レベル放射性廃棄物の地層処分では、地下での坑道 等の掘削に伴い、坑道壁面近傍に人為的な割れ目を伴う 掘削損傷領域(EDZ)が形成されます。EDZ では岩盤 の透水性が増加することから、岩盤中の水飽和度の低下 と共に坑道内の大気が岩盤に侵入し、地層が有する放射 性核種の移行を遅延させる機能に影響を与えることが考 えられています。一方で、地下水中に多量の溶存ガスが 含まれている場合、岩盤への大気の侵入が見られず、不 飽和領域の形成に溶存ガスが影響を与えている可能性が 示唆されています。本研究では、不飽和領域の形成に対 する影響因子の役割を明らかにすることを目的として、 飽和度の低下量と飽和度低下の影響が及ぶ範囲(不飽和 領域の広がり)を指標とし、地下水中の溶存ガス量と岩 盤の透水性に着目した数値解析を実施しました。

幌延深地層研究センターの坑道を準一次元モデルに より模擬し、地下水と溶存ガスの二相流数値解析を用い た感度解析を実施しました(図 8-20)。初期状態では、 岩盤は深度に応じた静水圧を持つ地下水で飽和してお り、地下水には水圧に応じた量の溶存ガス(メタンと二 酸化炭素)が含まれると仮定しました。坑道部が大気に 解放されることで、圧力変化による地下水の流れと地下 水から遊離した溶存ガスの二相流が生じます。これを数 値解析することで、掘削影響による不飽和領域の形成を、 最大 50 年間模擬しました。例として、250 m 調査坑道 の条件を模擬した基本ケースにおける溶存ガス濃度や岩



300 m

250 m 調査坑道を模擬した解析例 図 8-21

(a)

95%

100

飽和 度 (%)

(a) 基本ケース、(b) 溶存ガス量の初期値を 1/10 にしたケー ス、(c)(b)の坑壁からの距離5mの拡大図を示します。 図中の矢印は、50年における値を示しています。飽和度の 低下と不飽和領域の広がりに大きな差が見られることが分 かります。

盤の透水性などのパラメータを表 8-3 に示します。不飽 和領域の形成に対する溶存ガス量と岩盤の透水性の影響 を調べるために、基本ケースに対して溶存ガス量が小さ いケースや岩盤の浸透率が高いケースを複数設けました。

解析結果の一例を図 8-21 に示します。基本ケース (図 8-21(a)) では、飽和度は、坑道壁面近傍の EDZ において最も低い値を示し、不飽和領域の広がりは、 50 年後に約 300 m に達しています。岩盤の浸透率など はそのままで溶存ガス量のみを小さくしたケースでは、 50年後における飽和度の低下はほとんど見られず、不 飽和領域の広がりは EDZ 近傍に限られていることが分 かります(図 8-21(b))。また、溶存ガス量は基本ケー スと同じで岩盤の浸透率のみを高くしたケースでは、飽 和度の低下量は基本ケースと同程度であるのに対し、不 飽和領域の広がりは浸透率に依存して大きくなることが 分かりました。

本研究の結果、不飽和領域の形成に対する影響因子 として、溶存ガス濃度は、飽和度の低下量と広がりの両 方に影響する一方で、岩盤の透水性は、主に不飽和領域 の広がりのみに影響することが分かりました。

本結果は、岩盤内部への酸素の侵入を評価する際や、 回収可能性を維持した処分場の長期的な安全性へ影響を 与える事象の整理等において、有用な知見となります。 (宮川 和也)

●参考文献

Miyakawa, K. et al., The Effect of Dissolved Gas on Rock Desaturation in Artificial Openings in Geological Formations, Proceedings of 5th ISRM Young Scholars' Symposium on Rock Mechanics and International Symposium on Rock Engineering for Innovative Future (YSRM 2019 and REIF 2019), Ginowan, Japan, 2019, 6p., in USB Flash Drive.

8-7 ミクロからマクロへ:鉱物の年代測定から山地の形成過程に迫る -低温領域の熱年代学的手法から見えた奥羽脊梁山地の隆起形態-



図8-22 岩石の上昇・冷却と熱年代法に基づく温度一時間履歴の推定法 岩石は地下深部で形成後、隆起・侵食によって徐々に地表に接近し、最終 的には地表面に露出します。現在地表で採取した岩石に対して、年代を刻 み始める温度(閉鎖温度)の異なる複数の熱年代法を適用すると、各手法 の閉鎖温度に対応した年代値が複数点得られます。この年代値をつなぐ曲 線は岩石が経験した温度一時間履歴、すなわち冷却履歴に相当します。

高レベル放射性廃棄物の地層処分のためには、10万 年といった長期間にわたって安定的な地質環境を有する 処分サイトの選定が求められます。東濃地科学センター では地質環境の長期安定性を評価・調査する技術開発を 進めており、なかでも隆起・侵食の評価は処分サイトの 設計や安全評価に関係し、将来の地殻変動で廃棄体が人 類の生活圏に接近する可能性や、地下水流動の解析に対 する地形変化の影響を評価する上でも重要です。

その評価手法の一つである熱年代法は、ウランなど の放射性核種が別の元素に変化する現象(放射壊変) に基づいた放射年代測定法の一種で、試料が経験した 温度の変化(熱履歴)を調べる分析法です。当センター で実施している熱年代法の例として、フィッション・ トラック法や (U-Th)/He 法(以下、それぞれ FT 法、 He法)が挙げられます。これらの手法は、アパタイト やジルコンと呼ばれる約0.1 mm 程度のミクロな鉱物を 対象に、化学成分や結晶構造を分析することで年代を 測定します。また、各年代法が年代を刻み始める温度 (これを閉鎖温度と呼びます)は理論的・実験的に決め られているため、鉱物の年代を求めると、いつ何℃で あったか、といった過去の熱履歴を調べることができま す(図 8-22)。ここで、山地の降起や侵食といったプロ セスは、岩石試料から見ると地下深部の高温から地表付 近の低温までの冷却過程に相当します(図 8-22)。した がって、得られた年代値が若ければ、対応する熱年代法 の閉鎖温度から地表温度までの冷却期間が短いというこ とになり、より最近まで高温の地下にあったと解釈でき ます。さらに、地下の温度構造を仮定すると、ある地点



図8-23 二つの山地の隆起メカニズムと対応する年代値の 空間分布

山地の隆起メカニズムの推定には、山地を横断する方向の 年代値の空間的な分布パターンが有用な指標となります。 (a) 木曽山脈のようにブロック状に隆起した場合、不安定な 地形を持つ両縁が最も侵食されるため、逆断層のある山麓 に向かって年代値が若くなります。(b)奥羽脊梁山地のよう なドーム状隆起では、傾斜が大きい中央部が最も侵食され るため、山頂に向かって若くなります。

がどのくらいの速さで地表に上昇してきたのかといった 隆起・侵食の歴史を復元することが可能です。これを山 地の横断方向に複数地点で実施すれば、数~数十 km の スケールで山地全体がどのように隆起・侵食してきたか といったマクロの情報を得ることができます。

東北地方の山々は、2011 年の東北地方太平洋沖地震 に見られるような、太平洋プレートが日本海溝で沈み込 む運動によって東西方向の圧縮を受けており、これは約 300万年前から現在まで続いているとされます。東北地 方の中軸部に位置する奥羽脊梁山地の隆起も、この頃か ら本格的に開始したと考えられていますが、隆起のメカ ニズムについては議論が分かれていました。本研究では、 従来よりも空間的に密な測定間隔で FT 法及び He 法に 基づく熱年代学分析を行い、奥羽脊梁山地がドーム状に 隆起してきた可能性を提案しました。これは、既に国内 で研究されている木曽山脈などの隆起形態と異なること を示しています(図 8-23)。その原因として、木曽山脈は、 東西の山麓に分布する逆断層の活動が支配的な一方で、 奥羽脊梁山地では地下に分布する高温領域の存在が隆起 に寄与すると考えられます。今後、このようなドーム状隆 起が、同じようなプレートが沈み込む地域で普遍的に起 こる現象なのかといった点に注目し、国内の他の山地に 加えて、海外の山地でも同様の研究を続ける予定です。

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金新学術 領域研究(研究領域提案型)(No.JP26109003)「異な る時空間スケールにおける日本列島の変形場の解明」の 助成を受けたものです。

(福田 将眞、末岡 茂)

●参考文献

Fukuda, S., Sueoka, S. et al., (U-Th)/He Thermochronometric Mapping Across the Northeast Japan Arc: Towards Understanding Mountain Bilding in an Island-Arc Setting, Earth, Planets and Space, vol.72, issue 1, 2020, 24, 19p. 福田将眞, 末岡茂ほか, フィッション・トラック法を利用した島弧山地の熱年代学, RADIOISOTOPES, vol.70, issue 3, 2021, p.173-187.

8-8 地質試料の放射性炭素年代測定に必要な試料量を低減 - 従来法の 20 分の 1 となる微少量試料の前処理手法の構築-



図8-24 微少量での放射性炭素年代測定の分析フローチャート 試料前処理手法を最適化し、従来法の20分の1の量となる微 少量での放射性炭素測定に成功しました。

放射性炭素の半減期は約5730年であり、過去5万年 間程度の地質試料等の年代測定に適用されています。そ の手法を放射性炭素年代測定と言い、地球科学等の分野 で幅広く用いられている重要な手法です。地層中の有機 物、炭酸塩、及び地下水中の溶存無機炭素の放射性炭素 年代測定結果をもとに、地層の形成年代や地下水の滞留 時間等に関する情報を得ることができます。効率的かつ 必要な精度でデータを取得するためには、地層が形成さ れた際の情報を保持している試料の選別が必要です。し かし、採取した全サンプル中から得られる適切な測定対 象物(植物片等)の量は限られています。したがって、 地質試料の年代測定では微少量での分析を可能にする手 法の構築が求められています。

放射性炭素年代測定では、まず洗浄後の試料を燃焼 させ、発生した混合ガスから二酸化炭素のみを取り出 します。次に水素と鉄触媒を用いて、二酸化炭素を固 体であるグラファイトに還元します。得られたグラファ イトを加速器質量分析装置で分析します。土岐地球年 代学研究所では試料の燃焼を行う元素分析計に自動グ ラファイト調製装置を接続することで、これまで手作 業で実施していた試料燃焼からグラファイト調製まで の前処理作業を完全自動化し効率的に分析を進めてい ます。この装置を使った従来法では1 mg 以上の炭素が 必要となっていましたが、本研究では独自にグラファ



図8-25 微少量(従来法の20分の1)での放射性炭素測定結果 (a) は炭素量1 mg、(b) は0.1 mg及び0.05 mgでの測定結果 です。微少量での測定結果は既報値と不確かさの範囲内で一致 しました。

イト調製時の分析条件を最適化し、炭素量1 mg 以下の 微少量でも年代測定結果を得られる試料前処理手法を 検討しました(図 8-24)。

本研究では、国際標準試料等を用いて炭素量 0.1 mg、 及び炭素量 0.05 mg での試験測定を実施しました。特に、 装置内部で使用する鉄触媒の添加量を調整することによ り、グラファイトの収率が改善されたことで微少量の試 料前処理を行うことができました。炭素量 0.1 mg 及び 0.05 mg での測定結果は既報値と不確かさの範囲内で一 致しました(図 8-25)。これは従来法の 20 分の 1 の炭 素量で年代測定ができることを示しています。また、微 少量で年代測定を実施する際に重要となる分析作業時の 炭素汚染評価を行い、試料燃焼時に使用する銀製の容器、 及び装置内を適宜洗浄することで、分析時に混入する炭 素(バックグラウンド)の低減も同時に行うことができ ました。今後は、バックグラウンドの補正手法の構築を 進め、さらに少量である炭素量 0.05 mg 以下での測定 を検討しています。

本研究は経済産業省資源エネルギー庁からの受託事 業「平成28~30年度高レベル放射性廃棄物等の地層 処分に関する技術開発事業(沿岸部処分システム高度化 開発)」の成果の一部です。

(渡邊 隆広)

●参考文献

Watanabe, T. et al., Preliminary Report on Small-Mass Graphitization for Radiocarbon Dating Using EA-AGE3 at JAEA-AMS-TONO, Geochemical Journal, vol.55, no.4, 2021, p.277-281.

8-9 地形や処分場深度の変化を考慮した安全性の評価 - 地層処分の安全評価のための地形・処分場深度変遷解析ツールの開発-



図8-26 地形・処分場深度変遷解析ツールを用いた処分場深度と地形変化の計算例 複数の隆起速度の設定(ケース1~4)に対して、処分場深度と地形変化を計算しました。図のように地形と処分場深度変化にはいくつ かのパターンがあり、計算結果がどのパターンに近いかを推定することで、安全評価で着目する影響の判断に活用できます。また、出力 される地形や深度変化の定量的な情報を、地下水流動や地表への核種移行経路の評価の前提条件として活用することも可能となります。

高レベル放射性廃棄物の地層処分では、火山・火成 活動、地震・断層活動、隆起・侵食等の自然現象による 著しい影響が回避されるように除外要件などに照らして サイトが選定されます。一方、幅広い地域で確認されて いる気候変動や緩慢な隆起・侵食の影響については、そ の影響をあらかじめ評価しておくことが重要です。

本研究では、隆起・侵食が地層処分システムの性能に 及ぼす影響を、場所に依存する影響も含めて広く評価で きるようにするために、隆起・侵食による地形及び処分 場深度の時間変化を、初期の地形、隆起速度やその分布、 処分場の位置等の条件を変えて迅速に計算できるツール を構築しました。隆起・侵食によって地形や処分場深度 が変化すると、それらは地下水流動場の変化を介して処 分場から地表への核種の移行挙動や移行経路、地表への 流出場所等に影響を及ぼすことが想定されます。一方、 地形や処分場深度の変化は、評価の対象となる場所の条 件、例えば初期条件としての地形や処分場位置、隆起速 度等に依存するため、それらの組合せによってどのよう な変化が顕在化するのかが異なることになります。具体 的には、場所の条件の違いによって、A~Cの三つの パターンが想定されます。

- A) 地形と処分場深度ともに変化が小さい
- B) 処分場深度変化のみが大きい
- C) 地形と処分場深度ともに変化が大きい

図 8-26 は今回構築したツールを活用して複数の隆起 速度の設定(ケース1~4)に対して、処分場深度と地 形変化を計算したものです。このように本ツールを様々 な場所の条件に適用して地形と処分場深度の時間変化を 計算し、それらが上記のどのパターンに近いかを推定す ることで、安全評価における隆起・侵食の影響を考慮す る際に着目すべき場所の条件やそれによる影響(例えば 移行経路の変化や地表への流出場所の変化等)の判断に もつながると考えられます。また、本ツールにより出力 される地形や深度変化の定量的な情報を、地下水流動や 地表への核種移行経路の評価の前提条件として活用する ことも可能となります。

今後は本ツールを活用し、地下水流動や地表への核 種移行経路の評価、さらにはそれらを用いた核種移行評 価や生活圏評価につなげていくことが重要です。

(山口 正秋)

●参考文献

山口正秋ほか, 地層処分における隆起・侵食影響評価のための地形・処分場深度変遷解析ツールの開発, 原子力バックエンド研究, vol.27, issue 2, 2020, p.72-82.

8-10 電気化学的手法でオーバーパックの腐食挙動を評価する - 塩水環境における緩衝材共存下での炭素鋼の不働態化条件の探索-



図8-27 高レベル放射性廃棄物の地層処分の概念図 ガラス固化体を封入する容器である炭素鋼製のオーバーパックに は、ガラス固化体の放射能や発熱が高い期間(1000年間)、ガラ ス固化体と地下水の接触を防ぐ機能が期待されています。

高レベル放射性廃棄物の地層処分では、ガラス固化 体を封入する容器である炭素鋼製のオーバーパックはベ ントナイトを主な構成材料とした緩衝材で周囲を覆われ た状態で埋設されます(図 8-27)。炭素鋼の腐食形態は、 不働態化が発生しない場合には全面腐食、発生する場合 には局部腐食となります。不働態化は耐食性の良い薄い 酸化被膜(不働態皮膜)が金属表面に生成する現象で す。全面腐食の場合、腐食速度に基づいて腐食量を推定 することができるため、炭素鋼製オーバーパックの寿命 を予測することができます。一方、局部腐食では孔食な どの激しい腐食が起こりうるため、全面腐食の場合より も短期間で炭素鋼製オーバーパックが腐食により貫通す る可能性があります。したがって、局部腐食の起こらな い条件で炭素鋼製オーバーパックを使用することが重要 です。このことから処分環境で不働態化を起こす条件を 把握する必要があります。このため従来より炭酸に富む 地下水環境など、不働態化しやすいとされる条件での調 査が行われています*1。他方、近年、処分に向けての廃 棄物輸送の観点から、沿岸域近くでの立地が好ましい*2 と考えられ、そうした場の地下水環境を想定した調査も 必要となっています。

本研究では、アノード/カソード分極測定により、模 擬緩衝材(ベントナイト)に覆われた状態での炭素鋼の 腐食挙動を調査しました。地層処分で想定している地下 の環境を模擬するため、雰囲気は低酸素雰囲気とし、試 験溶液には沿岸部の地下水を想定し、海水起源の地下水 と降水起源の地下水が混合した地下水を想定した水溶 液(人工海水を蒸留水で希釈した水溶液)を用いました。 また、炭素鋼の不働態化が生じやすいことが知られて いる高pH環境での不働態化挙動を検討するためpHは 8.5、10、12に調整しました。緩衝材に炭素鋼電極を埋



図8-28 分極測定結果

pHを8.5、10、12に調整し、人工海水を蒸留水で10倍希釈した溶 液中での分極測定の結果です。電流密度の停滞が生じている緩衝 材なしpH12の条件では不働態化が発生したと考えられます。

め込み、低酸素グローブボックス内で試験溶液を真空含 浸させ80℃まで昇温させた後、アノード/カソード分 極測定を実施しました。比較のため、緩衝材に覆われて いない条件でも測定を行いました。

図 8-28 に測定結果を示します。緩衝材なしの条件で は、pH 12 で不働態化の兆候と考えられる電流の停滞 が観察されました。一方、緩衝材ありの条件では、どの pH 条件でも不働態化を示す挙動は観察されませんでし た。これは、緩衝材の持つ pH 緩衝作用により炭素鋼に 接する溶液(ベントナイト間隙水)の pH が低下した結 果、試験溶液が高 pH であっても不働態化しなかったと 考えられます。また、いずれの場合にも、試験溶液のイ オン強度に依存した変化は確認できませんでした。

これらの結果から、沿岸部の地下水を想定した溶液 条件で、炭素鋼の不働態化が起きやすいとされる高 pH 条件においても、緩衝材に周囲を覆われていれば不働態 化が発生する可能性は低く、腐食形態は全面腐食である ことが分かりました。これらの成果は、沿岸域での地層 処分における炭素鋼製オーバーパックの腐食に対し、全 面腐食を基本とする腐食評価モデルの適用性が確認でき ました。

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁からの受託 事業「平成 29 年度、平成 30 年度高レベル放射性廃棄 物等の地層処分に関する技術開発事業(沿岸部処分シス テム高度化開発)」において得られた成果の一部です。 (北山 彩水)

*1 谷口直樹ほか, 圧縮ベントナイト中における炭素鋼の腐食形態と 腐食速度の評価, JNC-TN8400 99-003, 1999, 88p.

*2 総合資源エネルギー調査会 電力・ガス事業分科会 原子力小委 員会 地層処分技術 WG, 地層処分に関する地域の科学的な特性 の提示に係る要件・基準の検討結果, 2017, p.59-62.

●参考文献

Kitayama, A. et al., Electrochemical Behavior of Carbon Steel with Bentonite/Sand in Saline Environment, Materials and Corrosion, vol.72, issues 1-2, 2021, p.211-217.



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

スーパーコンピュータの性能は、一秒に可能な演算回数(フロップス)で評価され、今後標準となると目されるエクサ(10の18乗)フロップス級 の計算機をフル活用する技術(エクサスケール計算機技術)が求められています。システム計算科学センターではこれまで開発してきた技術に加え、 エクサスケール計算機技術、機械学習技術等の最新技術を取り入れ、原子力分野における複雑現象解析のための基盤技術開発を推進しています。

放射性物質の環境動態、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、 事故やテロ等で放射性物質が放出された際、その拡散を 迅速に予測するには建物周辺の複雑な風の流れを気象 データから再現する必要があり、そのためには風の流れ を高速かつ高精度に計算する流体解析技術が必要となり ます。また、次世代原子炉の材料開発や過酷事故解析に おいては、材料の複雑な原子配列を再現する nm スケー ルの解析と、その結果を取り入れて cm スケールの燃料 溶融現象などを解析する技術が重要となります。そして、 これらの複雑現象の解析は、「富岳」に代表される、数 十の演算器を集積した CPU を多数用いて数百万の並列 計算が可能な、エクサ(10 の 18 乗)フロップス級の計 算機をフル活用する技術(エクサスケール計算機技術) と組み合わせることで、これまで不可能だった大規模な 解析が可能となることが期待されます。

システム計算科学センターでは、これまで複雑現象 解析の基礎となる原子・分子シミュレーション、流体計 算等の解析技術、及び、数値計算アルゴリズム、可視化 等の技術を開発してきました。現在、これらの技術を発 展させ、機械学習技術によるシミュレーションの高度化、 大規模解析を可能とする新たなエクサスケール計算機技 術、さらに気象学分野で近年発展した「データ同化技術」 の応用によるシミュレーションの精度向上に取り組んで 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。

2020年度は、福島の再生・復興への計算科学技術の 活用として、福島県の森林における空間線量率の主要因 を明らかにするとともに(第1章トピックス1-17)、コンク リートへのセシウム吸着機構を解明するための原子シミュ レーションの基礎を確立しました(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解析技術の高度化 に関しては、新たな物性評価手法の開発や材料設計 への応用、また、高速な流体計算手法の開発や実用 的な都市気流計算の実現に成功した成果を紹介しま す(トピックス9-1、9-2、9-3、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 環境評価基準を満たす汚染物質拡散シミュレーション –メートルスケールのリアルタイム風況解析のアンサンブル計算を実現-



図 9-2 オクラホマ市の野外拡散実験に対する汚染物質の可視化 市街地中心部を含む4 km 四方の解析領域に対して、メソスケー ル気象予測モデルが与える気象条件及び市街地中心部の建物 データを反映した、汚染物質拡散の可視化事例を示します(観 測点:A~H)。

汚染物質の大気拡散解析は、都市街区内の放射性物質 の拡散予測に基づく核テロ対策や原子力発電所の廃炉作 業で必要となる放射性物質拡散の事前評価など、原子力 分野の課題解決に大きく貢献できます。この解析技術は、 都市街区内の詳細な風況解析に基づくスマートシティ設 計にも応用できるなど、幅広い工学分野への貢献も期待 できます。

都市部は様々な建物や構造物が林立した複雑な形状 をしており、それらにより空気の流れ(風)が乱流状態に なるため、時々刻々と変化する流れを予測できる高精度 な数値流体力学(CFD)解析が必要となります。また、 それらの流れが人の生活圏に及ぼす影響を評価するため には、数 km の都市広域から数 m の細かな路地等をモ デル化した大規模なマルチスケール解析が必須です。一方 で、核テロ対策等の緊急時の汚染物質拡散予測には、実 時間よりも速いシミュレーションの実現が求められます。

しかしながら、その実現には、以下の二つの課題の解 決が必要であることが分かりました。第一の課題は計算 の高速化です。既存の CFD 手法にて、細かな路地等を 捉えた高解像度シミュレーションを実施する場合には、 リアルタイム計算を実現するために数十倍の高速化が必 要です。第二の課題は計算の高精度化です。従来の汚染 物質拡散手法を用いたシミュレーションでは、実験結果 との差異が5倍程度となりますが、これを環境アセス メント等で用いられている指標の2倍以内へと改善す ることが必要です。

それらの課題を、私たちは二つの技術革新により解決しました。第一の技術革新はリアルタイムのマルチスケールシミュレーションの実現に向けた高速化技術です。本研究では都市の風の流れのスケールの違いに着目し、そのスケールに応じて計算格子の解像度を変化することができる適合格子細分化(AMR)法に基づくCFD解析コード CityLBM を開発しました。具体的には、流れが乱流状態となる建物周りにのみ細かな計算格子を配置することで、AMR 法を適用していない手法と比較し



図 9-3 汚染物質放出量で規格化した濃度の観測と計算の比較 一つの観測時刻、8 観測点(図 9-2:A~H)での汚染物質濃度 の各アンサンブル値(白抜き)及びアンサンブル平均値(塗り つぶし)を示します。破線は誤差が2倍(Factor2)、点線は誤 差が10倍(Factor10)となります。

て計算格子点数(計算量)を約10倍削減し、10倍の高 速化を達成しました。また、この解析手法に<u>Graphics</u> <u>Processing Unit</u>(GPU)向けの最適化を適用すること でさらに10倍の高速化を実施し、最終的に約100倍の 高速化を達成することで、実時間よりも速いシミュレー ションを実現しました。加えて、本手法により、計算時 間が同じ場合の比較で、解像度を従来の3倍高めるこ とにも成功しました。

第二の技術革新は、確率論的な評価に基づく解析精 度の向上です。高い解像度の解析では、乱流の影響によ り汚染物質濃度が高い領域が間欠的に移流し、計測機器 の時系列値に大きな変動を与えます。そこで、初期値が 僅かに異なる複数ケースのアンサンブル計算に基づく確 率論的な評価を行うことで、解析の高精度化を図りまし た。米国オクラホマシティの市街地中心部から汚染物質 を模擬したトレーサーガスを拡散させた野外拡散実験* に対する検証解析(図 9-2)を行なった結果、各アンサ ンブルケースの汚染物質濃度の計算値(白抜き記号)が 観測値(黒線)に対して大きく分散しているのに対し て、そのアンサンブル平均値を用いた評価(塗りつぶし) により、環境アセスメントの基準値(実験との差異が 2 倍以内)を全観測点(8 観測点×3 時刻)の70%以上 で達成しました(図 9-3)。

以上の技術革新により、実験結果との差異を2倍以 内まで改善したリアルタイムのアンサンブル計算を世界 で初めて実現しました。

本研究の一部は、日本学術振興会科学研究費補助金 基盤研究(C) (No.JP19K11992)、基盤研究(C) (No. JP17K06570)、基盤研究(B) (No.JP17H03493)、学 際大規模情報基盤共同利用・共同研究拠点(課題番号: jh200050-NAH)の支援の下で得られた成果です。

(小野寺 直幸)

●参考文献

Onodera, N. et al., Real-Time Tracer Dispersion Simulations in Oklahoma City Using the Locally Mesh-Refined Lattice Boltzmann Method, Boundary-Layer Meteorology, vol.179, issue 2, 2021, p.187-208.

^{*} Leach, M. J., Final Report for the Joint Urban 2003 Atmospheric Dispersion Study in Oklahoma City: Lawrence Livermore National Laboratory Participation, UCRL-TR-216437, 2005, 94p.

9-2

富岳と Summit を用いたエクサスケール流体解析 -メニーコア CPU と GPU で共通に利用可能な混合精度行列解法の開発-



図 9-4 混合精度行列解法の模式図

連立一次方程式 Ax=b の反復行列解法を示します。行列 A の近似解を求め る前処理計算に「富岳」で新たに利用可能となった 16bit 演算(緑) を適 用して4倍の演算数を同時処理することで計算を加速します。これ以外の 反復行列解法計算には64bit 演算(青)を用います。

「富岳」をはじめとする1秒間に10¹⁸回規模の演算を 処理できるエクサスケール計算機を駆使した数値流体力 学(CFD)解析(エクサスケール流体解析)が原子力 分野を含め幅広い科学・工学分野で活用されつつありま す。このような大規模CFD解析を効率的に実行するた めに、エクサスケール計算機向けの計算アルゴリズムが 必須となっています。今回、CFD解析の中核を成す行 列計算に関して、メニーコアCPU計算機「富岳」(理 化学研究所)で新たに利用可能となった可変精度演算を 活用した混合精度行列解法を原子力機構と理化学研究所 (理研)が共同で開発しました。この解法を理研が「富 岳」向け、原子力機構がGPU計算機「Summit」(オー クリッジ国立研究所)向けに実装し、メニーコアCPU 及びGPUに基づくエクサスケール計算機で高性能計算 が可能であることを実証しました。

CFD 解析では流体モデルの時間発展を離散化するこ とで得られる連立一次方程式 Ax=b を多数回計算しま す。ここで、格子数 N の問題に対して、CFD スキーム が与える行列 A はサイズ N × N の大規模疎行列、b は 現在の時刻の流体変数によって決まるサイズ N のベク トル、x は次の時刻の流体変数を表す解ベクトルを示し ます。このような大規模疎行列の計算では反復行列解 法を用いますが、大規模 CFD 解析では1回の計算に数 千回以上の反復計算が必要となっていました。反復回 数を削減する方法として、前処理行列 M をかけて問題 を M⁻¹Ax=M⁻¹b と変換して、問題を解きやすくする手法 があります。ここで、M は A の近似解となるように選 びますが、その近似精度は任意に選ぶことができます。



図 9-5 混合精度行列解法の処理性能比較 [Oakforest-PACS]、「富岳」における 1440 台の CPU 及び「Summit」における 1440 台の GPU を 用いて計測したプラズマ流体解析(約 1000 億 格子)の行列解法の処理性能比を示します。

本研究では前処理計算以外の反復行列解法の計算には科 学技術計算で標準的な 64bit 演算を利用し、前処理計算 に 16bit 演算を利用する混合精度行列解法を構築しまし た (図 9-4)。16bit 演算は機械学習で多用されており、 これまで GPU では利用可能でしたが、CPU では「富岳」 ではじめて利用可能となりました。64bit 演算に比べて、 16bit 演算は一度に 4 倍の演算数を処理できるため、演 算加速に有効です。本研究では、16bit 演算による桁落 ちを防ぐように問題を規格化することで、計算精度の劣化 を回避することに成功し、反復回数を一桁削減しました。

「富岳」と「Summit」において、1440 プロセッサを 用いて約1000億格子規模のプラズマ流体解析を実施し、 開発手法の処理性能を従来のメニーコア CPU 計算機 「Oakforest-PACS」(東京大学/筑波大学)と比較しま した(図 9-5)。ここで、CFD 解析の処理性能を決める 主要なハードウェア性能(メモリバンド幅)の比は「富 岳」、「Summit」ともに「Oakforest-PACS」の約2倍 となります。従来手法を用いた場合には1.5倍の性能向 上であったのに対し、開発手法を用いた場合には「富岳」 で 5.2 倍、「Summit」で 2.8 倍とハードウェア性能比を 上回る性能向上が得られ、メニーコア CPU と GPU の 両方で開発手法の有効性を確認できました。

本研究は、文部科学省「富岳」成果創出加速プログ ラム「核燃焼プラズマ閉じ込め物理の開拓 (hp200127)」 およびOak Ridge Leadership Computing Facility (OLCF) Director's Discretion Project「Exascale CFD Simulations at JAEA (CSC367)」の支援の下で得られた成果です。 (井戸村 泰宏)

●参考文献

Idomura, Y. et al., Acceleration of Fusion Plasma Turbulence Simulations Using the Mixed-Precision Communication-Avoiding Krylov Method, Proceedings of International Conference for High Performance Computing, Networking, Storage and Analysis (SC), online, U. S. A., vol.1, 2020, p.1318-1330.

9-3 従来の量子力学概念を越えた先に見えた特異な現象 「フェルミアーク」を理論的に予言 - 重元素化合物内での強く影響しあう多数の電子の挙動を解明する新手法の開発-



図 9-6 強く相互作用する電子を簡潔に表す

半導体等における通常の電子の集団(相互作用が小さい集団)の解析は、20世紀中に物理理論や計算手法が開発され簡潔な解析 手法が存在しています((a) 左図:青丸は電子を表す)。ウラン等の原子番号の大きい元素を含む重元素化合物((a) 右図:水色 の丸は電子、赤は相互作用を表す)では、多数の電子が互いに強く影響しあって運動しています。その運動は複雑で計算が困難 ですが、量子力学の方程式を一部拡張し、方程式の係数に虚数が現れることを許すことで、その複雑な動きを的確に捉えられる ことが分かりました。その結果、電子のエネルギーの振る舞いに「フェルミアーク」が現れることを理論的に予言することがで きました(b)。

物質の性質の多くは、物質中の電子の振る舞いによっ て説明されます。電子はミクロの世界を支配する量子力 学の法則に従って運動しており、日常の常識から外れた 奇妙な振る舞いを見せることがあります。例えば、電気 抵抗が突然ゼロとなる「超伝導」はその一例で、電子の 動きを量子力学により計算することで、そのような現象 を理論的に予言することが可能となります。これらの性質 を活用することで、リニアモーターカーや MRI 技術など、 様々な革新的な技術が開発されてきました。しかし、これ らの物質の超伝導は超低温で発現するため、より高温で 超伝導となる物質の探索が日夜行われています。30年前 に発見された銅酸化物高温超伝導体は、従来の超伝導体 より100度以上も高い温度で超伝導が発現しますが、電 子同士の相互作用が強く、互いに強く影響を及ぼしなが ら運動するため、従来の計算方法では現象を再現すること ができません (図 9-6(a))。このような互いに強く影響を 及ぼしあう電子集団を有する物質は高温超伝導体だけで なく、ウラン等の重元素を含む重元素化合物も該当します。

もし、強く影響を及ぼしあう電子集団を理論的に解析 することが可能になれば、高温超伝導のような優れた性 質を示す未知の物質探索が可能になると考えられ、新た な計算手法の開発を目指して、世界中の研究機関が研究 開発を行ってきました。

本研究では、互いに強く影響を及ぼしあう電子集団が 特異な性質を示す重元素化合物の電子の振る舞いに注目 し、他の電子の影響を強く受けながら運動する電子を表 現する方法を探索しました。その際、重元素化合物の電 子が、比較的自由に動ける電子と他の電子の影響を強く 受ける電子の二つの側面を持つことに着目しました。そ して、従来の発想を大きく転換し、従来とは異なる量子 力学原理を用いることで、より的確にその運動を捉える ことに成功しました。発見した理論を用いて計算した結 果、重元素化合物では見つかっていない特異な現象(「フェ ルミアーク」と呼ばれる量子現象)を理論的に予言する ことが可能となりました(図 9-6(b))。

フェルミアークとは、電子のエネルギーの高さを表 す等高線が千切れたように見える領域のことです。銅酸 化物高温超伝導体では角度分解光電子分光実験等で観測 がされていますが、重元素化合物では見つかっていませ ん。フェルミアークは通常の電子の集団運動の解析では 現れません。通常、等高線は連続的につながった線で表 されますが、量子力学の方程式を一部拡張し、方程式の 係数に虚数が現れることを許すことでこのような千切れ た領域が現れます。

開発した理論を用いて新現象が予測可能となれば、今 後、高温超伝導など革新的機能を持つ物質の発見も、そ の先に期待できると考えられます。

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.JP15K00178)、(C)(No.JP18K03552)、 新学術領域研究(研究領域提案型)(No.JP18H04228) (No.JP16H00995)の助成を受けたものです。

(永井 佑紀)

●参考文献

Nagai, Y. et al., DMFT Reveals the Non-Hermitian Topology and Fermi Arcs in Heavy-Fermion Systems, Physical Review Letters, vol.125, issue 22, 2020, 227204, 7p.

9-4 アルミニウム合金の水素脆化防止 - 合金内部の金属間化合物の中から水素をよく吸うものを計算で特定





図9-7 Al₇FeCu₂ 化合物結晶構造と水素原子の 入る位置 水素(H)原子位置には二種類あり、Al、Fe、Cu 原子の格子占を中心とするボロノイ多面体の頂点

原子の格子点を中心とするボロノイ多面体の頂点 に位置するものが薄い色の球、面の中心に位置す るものが黒い色の球です。

アルミニウム合金は、鉄鋼などのように比較的歴史が ある構造用金属であるにもかかわらず、長らく、その強 度は大幅には向上していません。例えば、航空機などに 用いられるジュラルミンなどのアルミニウム合金では、 添加する亜鉛の量を増やせば強度を向上できることは、 昔から知られていました。その一方で、このように合金 元素を添加することによって生成された高強度アルミニ ウム合金では、製造段階で水素が内部に入ってしまうた め、水素脆化による破壊が誘発されることが分かってい ます。水素は最も小さな元素であり、材料の内部を素早 く動きます。その水素挙動を直接的に捉えることは困難 であることから、水素が変形や破壊に及ぼす影響はあま り分かっていません。しかしながら、水素をできるだけ 取り除くことができれば、水素脆化を防止できることは 確かです。

このため私たちは、アルミニウム合金中に含まれる 様々な金属間化合物の中にもしも水素をよく吸う化合 物があれば、その化合物の量を材料内部で増やしてあげ ることにより、水素脆化を防ぐことができるのではない かと考えました。そこで第一原理計算によって、いくつ かの化合物の水素を吸う能力を調べました。その結果、

図 9-8 Al₇FeCu₂ 化合物のアルミニウム中での水素吸蔵能力 水素原子はセルの中で最初は 0.56 eV/atom というエネルギーで吸われ、 だんだん吸われにくくなるものの、約 40 原子のセルの中で約 8 個の水 素原子が吸われると期待できます。

Al₇FeCu₂という化合物が水素を強く吸うことを発見しました。

図 9-7 は Al₇FeCu₂ 化合物の結晶構造と、水素原子が 入ることのできる格子間の候補位置を示したものです。 ここでは、ボロノイ多面体分割という方法で、水素原子 の入りやすそうな位置を探し出しています。次に、水素 原子を置いて第一原理計算からエネルギーを計算し、水 素を強く捕まえる位置を発見しました。さらに図 9-8 に示すように、どのぐらいの量の水素を吸うことができ るかを、計算から評価しました。

この計算の後、Al₇FeCu₂の含有量を増やしたアルミ ニウム合金において水素脆化が抑制される効果が見られ ることが、実験で確認されました。そこで、このアルミ ニウム合金を水素脆化が抑制された合金として、また、 Al₇FeCu₂含有量を増やして水素を吸わせて脆化を抑制 する方法を、国内特許として九州大学と共同出願しまし た(特願 2020-96333)。

本研究は、科学技術振興機構産学共創基礎基盤研究 プログラム (No.JPMJSK1412)「ヘテロ構造制御:水 素分配制御によるアルミニウム合金の力学特性最適化」 の支援を受けました。

(山口 正剛)

●参考文献

Yamaguchi, M. et al., Hydrogen Trapping in Mg₂Si and Al₇FeCu₂ Intermetallic Compounds in Aluminum Alloy: First-Principles Calculations, Materials Transactions, vol.61, issue 10, 2020, p.1907-1911.

10 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 術開発や人材育成支援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。核検知・測 定技術開発に関し、外部パルス中性子源を用い高放射性 物質中の核物質等を非破壊で測定する技術や、大規模イ ベント等の核セキュリティの強化を目的とし、放射線イ メージング等を用いた広範囲の核・放射性物質の検知技 術開発を行っています。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、小型で比較的安価な検出器を組み合わ せた核・放射線テロ事象後の初動対応者向け検出器開発 や AIを用いたデータ解析技術開発を実施するとともに 国際共同試料分析を通じた国際的核鑑識能力の向上に貢 献しています。また、日米で協力して核・放射線テロ対 策のための核・放射性物質の特性評価や脅威の削減方法 の開発にも取り組んでいます。

技術的知見に基づく政策研究

関係行政機関からの要請に基づき、過去に非核化を 達成した南アフリカ、ウクライナ、ベラルーシ及びカザ フスタン、核開発を試みたリビア、イラン、イラク、北 朝鮮等における非核化に向けた取組み事例を、核開発の 動機、内外情勢、核開発の進捗、制裁等の効果等の観点 で調査し、非核化達成のための要因分析を実施していま す(トピックス10-1)。また、原子力平和利用の観点か ら、核兵器に利用可能な核物質の処理・処分、その製造 施設等の無能力化、及びそれらの検証に係る技術的プロ セスについて調査検討を行っています。

人材育成支援

2011年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、2021年3月までに核セキュリティ や核不拡散(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、延べ約4900名が参加してい ます。2020年度は新型コロナウイルス感染症の影響下 でも海外向けを中心にオンライン方式に切り替え、本分 野で世界初となる4件の海外向けオンライントレーニン グを実施する等して、人材育成支援を継続しました。こ うした活動を通して、アジアを中心とした地域で核不拡 散・核セキュリティ分野で活躍する人材を輩出しており、 IAEAや国内外から高く評価されています。

CTBT に係わ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しています。CTBT機関(CTBTO) の核実験検知能力強化を目的として、日本政府が2017年 2月にCTBTOに行った拠出により、CTBTOとの放射 性希ガス共同観測プロジェクトを、2018年から北海道幌 延町と青森県むつ市で実施しています。同プロジェクト では、主に東アジア地域の放射性キセノンバックグラウン ドの挙動解明のための観測を継続しており、国の政策実 現に大きく貢献しています。本プロジェクトは2022年 3月まで延長することが決定されました。

核物質輸送及び研究炉燃料に係わる業務支援

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と連携機関 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 核兵器と核テロの無い世界の実現に向けて - 非核化の事例調査と要因分析-

			核開発能力及び非核化の方法	(非核化要因の③、⑥)				
		対象国	核兵器等の解体・廃棄等	核兵器に転用可能な 核物質の処理・処分等	非核化の特徴、関連する	主要な非核化要因		
	非核化を 実施した国	南アフリカ	高濃縮ウラン (HEU) 型核 爆発装置6発を保有したが、 自ら解体・廃棄	HEU は国内保管	南アフリカ自身による 非核化	1~3, 6~8		
(A)		イラク	核開発は計画段階で放棄ホート取得		受け入れざるを得なか った非核化	2,5,7		
		リビア	核開発は計画段階で放棄	未取得	迅速な非核化	2~8		
	核兵器を 継承したが 撤去した国	ウクライナ				()~3, 5~8		
		カザフスタン	旧ソ連から核兵器を継承、	NEU は国外撤出	安全保障の提供と引き			
(B)		ベラルーシ	後に露国に搬出	HEU は国外搬出 (一部未完)	換えに非核化を決断			
(C)	非核化等が 追求されて いる国	北朝鮮	6 回の核実験実施済み。 複数の核弾頭を保有して いると推定される	HEU/プルトニウム を保有	米朝枠組み合意、六者 会合が実施されるも、 合意破棄で非核化に至 らず	(1)~8)		
		5水され(いる国 イラン 核開発は計画段		未取得	包括的共同作業計画 (JCPOA)に基づく 非核化	(1)~8)		

表 10-1 非核化の特徴及び関連する非核化要因等

核兵器と核テロの無い社会を実現していくためには、 核兵器不拡散条約に加入した非核兵器国が、同条約を誠 実に履行していくことが必要不可欠です。私たちは、上 記の観点及び将来的に非核化を成功裏に導く方策を探る ため、過去の非核化への事例の調査と要因の分析を行い ました。

まず事例調査の対象国として、(A) 非核化を実施し た国、(B) 核兵器を継承したが撤去した国、また(C) 非核化等が追求されている国、の計8か国を選び、核開 発及び非核化の歴史、核開発能力及び非核化の措置等を 調査しました(表 10-1)。例えば、秘密裏にウラン濃縮 及び核開発を行っていたイラクは、1991年の湾岸戦争に 敗北し、国際連合安全保障理事会決議(UNSCR)に基 づき大量破壊兵器 (WMD) の廃棄を受け入れました。同 国の秘密裏の核活動の検証は、国際原子力機関(IAEA) が、国際連合大量破壊兵器廃棄特別委員会(UNSCOM) の協力と支援を得て実施しました。一方同じく秘密裏に ウラン濃縮及び核開発を実施しようとしたリビアは、自 身の核開発能力が皆無だったこともあり、2003年末に リビア経済を疲弊させていた制裁の解除を条件に、それ らの廃棄を決断しました。同国からのウラン濃縮関連資機 材等の搬出は、米英により迅速に実施されました。

次に私たちは上記の事例調査をベースに、国際社会 が非核化を導く上で鍵となる8つの要因(非核化要因) を抽出しました。それらは①核開発の動機/継承した核 兵器を維持しようとした動機、②非核化決断時点の内外 情勢、③核開発の進捗度、④制裁の効果、⑤非核化の国際的枠組み、⑥非核化の方法、⑦非核化の検証方法・検 証者、⑧非核化の対価です。

そして最後に、国際社会が非核化を成功裏に導く可能 性のある方策を、8つの非核化要因を元に分析しました。 まず対象国に非核化を決断させる上では、対象国の①核 開発の動機と、②同国を取り巻く内外情勢を鑑み、対象 国に非核化を決断させる⑧対価が必要であり、安全保障 の提供や、特に対象国が国際社会から制裁を課されてお りそれが対象国に一定の影響を及ぼしていれば、④制裁 の解除が一定の役割を果たし得ます。次に非核化の実施 体制及び方法について、⑤非核化の国際的枠組みには、 核兵器国(NWSs)を含む国際的な合意や、核兵器の知 見を有する NWSs の関与が必要であり、また対象国の ③核開発の進捗度や対象国の②内外情勢を考慮して、不 可逆的な⑥非核化の方法・手段を選択し、それを効果的、 効率的かつ迅速に実施する必要があると考えます。そし て⑦非核化の検証について、対象国が核兵器を保有して いる場合には核不拡散の観点から NWSs が、そうでない 場合には、IAEA が、NWSsの協力を得て、対象国と 締結している包括的保障措置協定や追加議定書による検 認手法等を基本として検証を行うことが適切と考えます。

今後は、対象国が非核化を決断した後の⑥非核化の 方法・手段と、⑦非核化の検証方法・検証者に焦点を当 て、より詳細かつ具体的な措置や手順等につき研究を深 めていきます。 (田崎 真樹子)

●参考文献

田崎真樹子ほか, 非核化達成のための要因分析に関する研究(4)イラク:非核化の特徴について, 日本核物質管理学会第40回年次大 会論文集, 東京, 日本, 2019, p.93-96.

原子力機構の研究開発成果 2021-22

URL : https://rdreview.jaea.go.jp/

発		行	2021 4	手10月								
編集	ミ・ 発	約	国立研	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構								
成果	是普及	长情報 誌	影『原子	力機構の)研究開] 発成果』	編集委	奏員会				
委	員	長	吉澤	道夫								
委		員	岩月	仁	鈴木	喜雄	小泉	光生	鷲谷	忠博	飯島	和毅
			宇田川	豊	香西	直文	原田	秀郎	森田	泰治	横田	光史
			酒井	健二	北村	誠司	佐藤	博之	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** JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課 (研究連携成果展開部研究成果管理課は、2021年10月に名称が変わりました。) 〒 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

©2021 日本原子力研究開発機構(禁無断転載)

◆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、高温工学試験研究炉「HTTR」の燃料体も正六角形です。

画像は、グラフェン(炭素原子1層でできた網)を酸素分子が通り抜けるイメージ(左上)と地形・処分場深度変遷解析ツールを用 いた処分場深度と地形変化の計算例(右下)です。

前者では、私たちの身の回りにある酸素分子の中で高速な酸素分子が炭素原子の網であるグラフェンを透過できることを放射光実験 と計算機シミュレーションから明らかにできました。本研究は、錆や食品腐食などの防止膜の開発等の応用が期待されています(第5 章トピックス 5-6、p.62)。

後者は、複数の隆起速度の設定に対して処分場深度と地形変化を計算したものです。地形と処分場深度変化にはいくつかのパターン があり、どのパターンに近いかを推定することで、安全評価で着目する影響の判断に活用できます(第8章トピックス 8-9、p.88)。



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7版」もご参照ください。

原子力機構全体の活動状況は、「2020年度事業報告書」をご参照ください。