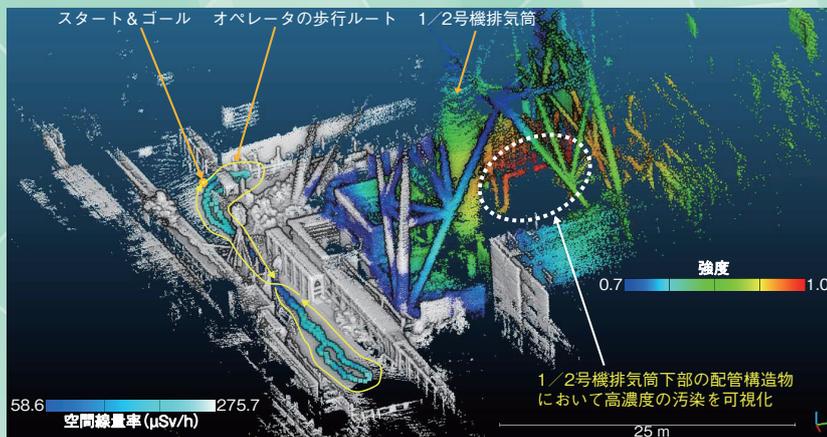


原子力機構の研究開発成果 2022-23



1F1/2号機排気筒付近における空間線量率と高濃度汚染箇所を可視化した3次元マップ（トピックス1-10）



HTTR - 水素製造試験プロジェクトを開始
(第6章ハイライト)



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、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。原子力機構は、新型コロナウイルス感染症対策を徹底しつつ、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。

東京電力福島第一原子力発電所（1F）事故への対応では、福島県内に研究開発拠点の整備を進めつつ、1F 廃止措置と周辺地域の環境回復に向けた研究開発を行っています。また、JRR-3 や J-PARC 等における中性子や放射光を利用した物質・材料科学研究、新原理・新現象の発見などを目指す先端的研究や安全性向上に関する研究で世界をリードする研究成果の創出に努めております。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期待される高温ガス炉技術の研究開発を進めるとともに、高速実験炉「常陽」の早期運転再開を目指してまいります。さらに、放射性廃棄物の処理処分に関する研究開発、「もんじゅ」、「ふげん」等の原子力施設や東海再処理施設等の廃止措置を安全かつ着実に進めてまいります。

原子力機構は、将来ビジョン「JAEA 2050 +」で、原子力以外の分野との協働・融合等により社会的な課題解決に貢献していく“新原子力”の実現を掲げています。その実現に向けた取り組みの一つとして、イノベーション活動推進のための組織「JAEA イノベーションハブ」を昨年設置しました。今後も研究開発成果の産業界への橋渡しなど、研究開発成果の普及に向けた取り組みの強化に努めてまいります。

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。

2022 年 10 月

国立研究開発法人
日本原子力研究開発機構

理事長

小口 正範

原子力機構の研究開発体制と本誌の構成について

10

1

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の廃止措置と福島環境回復に役立つ研究成果を創出する

12

1-1

放射線存在下の水中での燃料デブリの劣化過程

－ UO_2 ・ジルコニウム・ステンレス鋼から生成する固溶体は放射線存在下でも安定－
熊谷 友多

14

1-2

物質組成が不明瞭な燃料デブリの臨界性を評価する

－ 希ガスモニタリングのための新しい未臨界燃焼計算コードシステムを開発－
Eka Sapta Riyana

15

1-3

原子炉圧力容器下部の破損メカニズムを明らかにする

－ BWRの複雑な下部構造における材料間反応を想定した熔融試験－
山下 拓哉

16

1-4

ヨウ素酸イオンを効果的に取り除くにはどうする？

－ バライト (BaSO_4) へのヨウ素酸の共沈を分子レベルで評価－
徳永 紘平

17

1-5

放射性廃棄物の安全な保管のための特性把握

－ 炭酸塩スラリーの化学組成による影響－
堀田 拓摩

18

1-6

過酷な放射線場でガンマ線核種分析を実現する

－ 簡易非破壊測定に向けた高線量特化型ガンマ線スペクトル測定システムの構築－
冠城 雅晃

19

1-7

廃炉作業環境中の放射性物質を「その場」で測定！

－ 空気中の α 粒子のリアルタイム監視で燃料デブリ取出し作業の安全性向上へ－
坪田 陽一

20

1-8

 $\alpha/\beta/\gamma$ 線のエネルギースペクトルを弁別して同時に測定

－ Phoswich型 $\alpha/\beta/\gamma$ 線検出器を用いた連続モニタリング装置の開発－
森下 祐樹

21

1-9

光ファイバを用いた片側読み出し型放射線位置検出器の開発

－ 新分光システムによる光の波長分析により高感度位置検出を実現－
寺阪 祐太

22

1-10

廃炉現場の汚染分布を3次元マップで“見える化”

－ 見えない汚染を仮想空間で把握し、作業員の被ばくを低減－
佐藤 優樹

23

1-11

河川からの放射性セシウム流出にかかる大型台風の影響

－ 平成27年9月関東・東北豪雨と令和元年東日本台風の比較から－
中西 貴宏

24

1-12

セシウムを長期にわたり保持する地衣類の謎に迫る

－ 計算化学が解き明かす代謝物とセシウムの錯体形成力－
町田 昌彦

25

1-13	長半減期放射性核種テクネチウム 99 を迅速に測定する －固相抽出とガス反応を組み合わせ、ICP-MS での迅速分析を実現－ 松枝 誠	26
1-14	レーザーを用いて微量 Sr 同位体を選択的に検出 －同重体及び安定同位体を多く含む試料の前処理簡略化に貢献－ 岩田 圭弘	27
1-15	無人ヘリによるホットスポット可視化の信頼性向上を目指して －飛行条件を考慮したデータ選択によって検出精度を改善－ 志風 義明	28
1-16	事故後の空气中セシウム濃度の減少傾向を調査する －国のモニタリング結果から減少速度を評価－ 阿部 智久	29
1-17	町では空間線量率が早く下がる理由とは？ －放射性セシウムの挙動から見えてくる低減効果－ 吉村 和也	30

2

安全研究・防災支援

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	31
-------------------------	----

2-1	外的事象による原子炉リスクの特性を把握する －動的アプローチによる溢水起因リスクの確率論的評価－ 久保 光太郎	32
2-2	軽水炉事故時の格納容器内の流れを把握する －外面冷却と初期密度成層の位置関係による物質輸送挙動の変化－ 安部 諭	33
2-3	原子炉過酷事故における燃料デブリの堆積形態の予測 －格納容器の床面に堆積する塊状デブリの質量割合の測定－ 岩澤 譲	34
2-4	日本家屋での屋内退避効果の評価に必要なパラメータ値を明らかにする －粒子状及び気体の元素状ヨウ素の浸透率と沈着率を実家屋とチャンバー実験で取得－ 廣内 淳	35
2-5	原子炉の配管は巨大地震にどれだけ耐えられるのか －長期間使用された原子炉配管の地震脆弱性評価手法の開発－ 山口 義仁	36
2-6	廃炉で発生するアスベスト廃棄物の処理処分へ道筋 －クリアランスレベル算出のための被ばく線量評価手法の開発－ 島田 太郎	37

3

先端原子力科学研究

ハイライト

新原子力の実現に向けた基礎研究

38

3-1

周期表の重い極限領域で何が起こるか？

－ 105番元素ドブニウム分子で見えた周期律のほころび－
佐藤 哲也

39

3-2

超伝導検出器で K^- 中間子の強い相互作用を測る－ K^- 中間子原子の X 線分光精度を飛躍的に向上－
橋本 直

40

3-3

ウラン化合物で見つかった電子の遅い揺らぎ

－ 次世代量子コンピュータにつながる超伝導の謎に迫る－
徳永 陽

41

3-4

電子状態のトポロジが磁気制御に貢献

－ 磁気メモリの大幅な省電力化につながる新原理を発見－
荒木 康史

42

3-5

高効率オルト－パラ転換触媒設計への知見

－ ステップ表面に吸着した水素分子の高速オルト－パラ転換の実証－
植田 寛和

43

3-6

母岩への吸着におけるウラン保持過程を紐解く

－ 表面吸着は 2 種類の化学形態が関与して起こる－
Huiyang Mei

44

3-7

ボース粒子のコヒーレントな性質の解明に迫る

－ ボース・アインシュタイン凝縮体におけるジョセフソン流の振る舞いを決定－
内野 瞬

45

4

原子力基礎工学研究

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

46

4-1

低コスト可搬型核物質検知装置の開発

－ 新しい非破壊核物質検知技術の原理実証実験に成功－
米田 政夫

47

4-2

核データと粒子輸送計算を繋げる

－ 多群定数作成機能等を実装した FRENDY 第 2 版の開発－
多田 健一

48

4-3

照射損傷の従来の理論予測が通用しない理由を探る

－ 耐照射性セラミックスにおける照射損傷メカニズム－
石川 法人

49

4-4	建物影響を考慮した詳細な大気拡散・線量評価を初めて実現 －局所域高分解能大気拡散・線量評価システム「LHADDAS」の開発－ 中山 浩成	50
4-5	核燃料サイクルシミュレーターを一般公開 －高速・汎用・柔軟な NMB4.0 を開発し、将来の原子力利用戦略立案に貢献－ 西原 健司	51
4-6	ADS のための信頼性指向加速器の実現に向けて －核変換用 30 MW リニアックの堅牢なビーム光学設計－ Bruce Yee-Rendon	52
4-7	医用ラジオアイソトープ用吸着材の性能向上に向けて －アルミナのモリブデン酸イオン吸着メカニズムの解明－ 藤田 善貴	53

5 中性子及び放射光利用研究

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	54
5-1	ガスとビームの衝突の際に出た光でビームの状態を判断 －ガスシートビームプロファイルモニタの開発－ 山田 逸平	55
5-2	ディープラーニングによって中性子測定のを大幅に向上 －高精度のノイズ除去技術の開発によって中性子反射率測定を 10 倍以上高速化－ 青木 裕之	56
5-3	中性子ビームの偏極可能波長領域を大幅に拡大 －“超”高臨界角中性子偏極スーパーミラーへのブレイクスルー－ 丸山 龍治	57
5-4	蛋白質のドメイン構造と活性部位が連動した揺らぎの発見 －中性子散乱と分子シミュレーションによる蛋白質ダイナミクスの解析－ 中川 洋	58
5-5	中性子散乱が拓くガラス固化技術の高度化研究 －添加剤に誘起されるホウケイ酸ガラスのナノ構造変化を解明－ 元川 竜平	59
5-6	放射光で環境にやさしい圧電材料を創る －チタン酸ビスマスナトリウムの高圧相における局所構造解析－ 米田 安宏	60
5-7	Eu 化合物に現れる「重い電子」はどのように形成されるのか？ －局在・磁気的な Eu 4f 軌道がつくるバンド構造の放射光による直接観測－ 川崎 郁斗	61

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

62

6-1

HTTR の新たな耐震重要度分類を策定する

－運転・試験で得られた知見を活用した合理的な耐震重要度分類－
小野 正人

63

6-2

超高温炉内環境の出力分布測定に挑戦

－高温ガス炉の炉外漏えい中性子による出力分布測定法の開発－
深谷 裕司

64

6-3

高温ガス炉の建設コスト削減を目指して

－高温ガス炉の被覆燃料粒子のためのセシウム捕獲物質の開発－
相原 純

65

6-4

IS プロセスにおける水素生産効率の向上

－ヨウ化水素分解工程用水素分離膜の耐食性を改善－
Odtsetseg Myagmarjav

66

6-5

IS 法による水素製造運転の長時間化を達成

－閉サイクルループを用いた新規の起動手順を導入－
田中 伸幸

67

6-6

高温ガス炉の革新的な RPV 冷却設備の開発

－冷却方式の構造の違いと冷却に及ぼす外部パラメータの影響の比較－
高松 邦吉

68

6-7

高温ガス炉のより高精度な炉心解析を目指して

－疑似物質法により黒鉛の空孔率を自由に指定できる炉心解析手法の開発－
沖田 将一朗

69

7

高速炉研究開発

ハイライト

高速炉サイクルの研究開発基盤の整備

70

7-1

化学反応を伴う流れ場を高速に解析する新しい手法を開発

－数値シミュレーションによる次世代革新炉開発に向けた取り組み－
小坂 亘

71

7-2

高速炉事故時に生じるエアロゾルの挙動を把握する

－多セル区画実験装置を用いたエアロゾル移行挙動実験－
梅田 良太

72

7-3

高速炉機器の破損を予測する

－多孔板試験体の繰返し負荷試験と寿命予測－
安藤 勝訓

73

7-4	核燃料中の酸素拡散現象を正確に捉える － MOX 燃料の酸素自己拡散係数の測定とその評価－ 渡部 雅	74
7-5	放射性廃棄物の低減を目指した高速炉燃料の開発 －高濃度アメリカウム含有 MOX 燃料の化学量論に基づく熱伝導率の評価－ 横山 佳祐	75
7-6	「もんじゅ」性能試験データの活用に向けて －解析値と測定値の不一致を解明－ 大釜 和也	76
7-7	高度化 MOX 燃料の実用化に向けて －燃料中の酸素含有量の微量変化を測定－ 廣岡 瞬	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	環境基準にも配慮した埋設施設の設計に向けて －埋設施設の配置や構造が変わることで浸出するウラン濃度は変わるのか－ 小川 理那	80
8-2	安全な保管に向けた核燃料物質の処理方法の確立 －有機物含有核燃料物質の安定化処理－ 多田 康平	81
8-3	有害物質を含む放射性廃棄物の安定固化に向けて －アルカリ活性材料で固化処理された鉛の保持機構の解明－ 佐藤 淳也	82
8-4	鋼材表面塗装膜の除去技術 －レーザークリーニング技術の表面物質分離性能評価－ 山根 いくみ	83
8-5	管理区域内火災等による汚染履歴のある施設の廃止措置 －大型グリーンハウスによるウラン濃縮研究棟の一括解体－ 石仙 順也	84
8-6	α 線放出核種を含む廃液を貯留していた大型槽の解体 －被ばく低減措置とこれからの廃止措置へ向けた作業データの取得－ 横塚 佑太	85
8-7	汎用装置で地下の岩石の割れ目をずらすことに初成功 －様々な地下利用に向けて大きく進展－ 石井 英一	86
8-8	軟らかい岩盤内で水が流れにくい場所を予測する －立坑掘削に伴う水理力学連成応答解析による透水性評価－ 尾崎 裕介	87

8-9	よく似た化学組成を持つ火山砕屑物を判別する －局所法による火山ガラスの化学組成分析手法の構築－ 鏡味 沙耶	88
8-10	熱力学的収着モデルで放射性核種の挙動を予測する －処分場の環境変遷が緩衝材中の核種移行に与える影響を評価－ 杉浦 佑樹	89
8-11	緩衝材中の放射性炭素の移行挙動を把握する －圧縮ベントナイト中のカルボン酸、アルコールの拡散試験－ 石寺 孝充	90

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	91
9-1	機械学習により高解像度の流れ場を効率的に予測 －多重階層度の定常流を予測する畳み込みニューラルネットワークを開発－ 朝比 祐一	92
9-2	GPU スーパーコンピュータにおけるマルチスケール流体解析の高速化 －局所細分化格子において通信を削減する領域分割手法を開発－ 長谷川 雄太	93
9-3	水分子の量子ゆらぎをとらえる －汎用分子シミュレーションコード PIMD を用いた水の高精度計算－ 志賀 基之	94
9-4	環境中ラジウムの基本特性解明に向けた研究 －実験とシミュレーションによる水溶液中バリウムイオンの構造解明－ 山口 瑛子	95

10

核不拡散・核セキュリティ技術開発

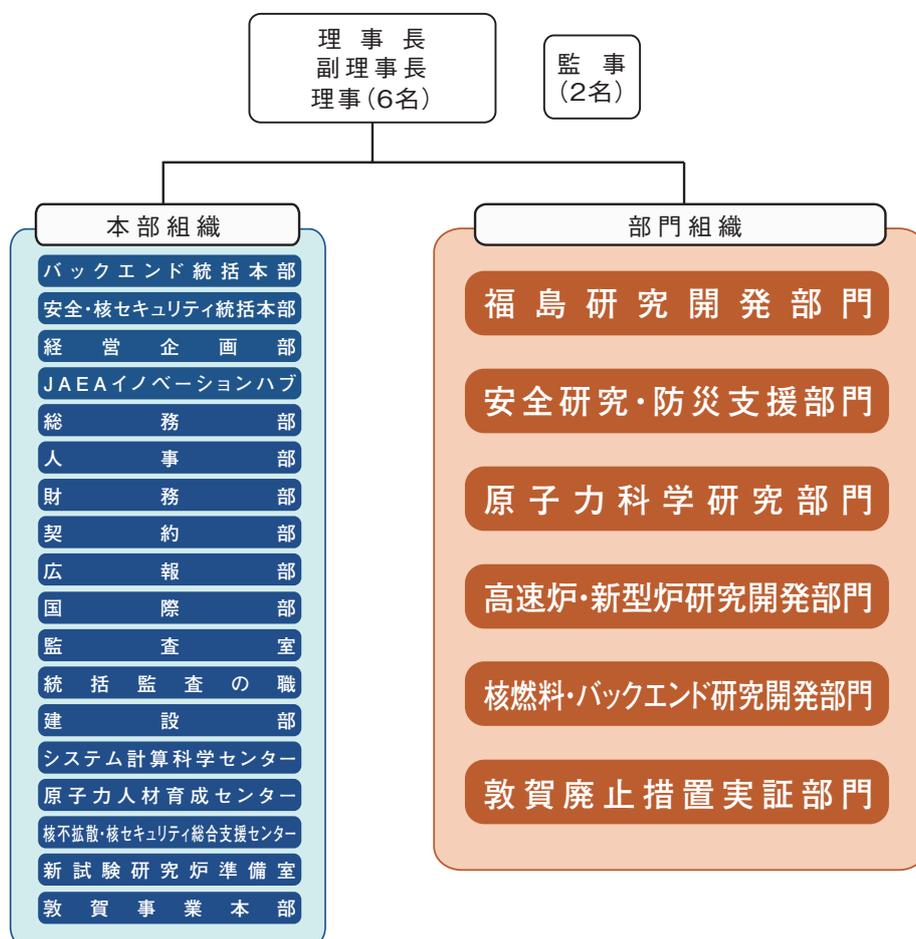
ハイライト	原子力平和利用を支える核不拡散・核セキュリティに関する技術開発・人材育成	96
10-1	核物質計量管理のための非破壊分析装置の小型化を目指して －レーザー駆動中性子源を用いた中性子共鳴透過分析システムの実証－ 弘中 浩太、李 在洪	97

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か所から数か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. **原子力科学研究所 先端基礎研究センター**は、JAEAの将来ビジョン「JAEA 2050+」に掲げる新原子力の実現へ向けて先端原子力科学分野の基礎研究を強化し、新原理・新現象の発見、新物質・新材料の創製、革新的技術の創出などを目指します。このため、「原子力先端核科学」、「原子力先端材料科学」、及び「先端理論物理」の分野を設定し、7研究テーマを展開しています。
4. **原子力科学研究所 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. **原子力科学研究所 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 JRR-3 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



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、高温ガス炉と水素製造施設の接続に必要な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



英知を結集し、1Fの廃止措置と福島環境回復に役立つ研究成果を創出する



図1-1 福島研究開発部門の主要な研究開発施設と福島以外の各研究開発部門及び施設との連携状況

福島研究開発部門では、1F廃止措置及び福島環境回復に関する研究開発を行うため、福島県内に研究拠点となる施設の整備を進めています。また、1F廃止措置等に係る喫緊の課題について原子力機構全体で横断的に取り組んでいます。

原子力機構は、我が国における原子力に関する唯一の総合的原子力研究開発機関として、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(1F)の事故直後から、福島県内での活動を開始しました。福島研究開発部門では、福島県内に研究開発施設の整備を進めつつ、原子力機構の総合力を最大限発揮すべく福島以外の各研究開発部門・拠点と連携・協働し、1F廃止措置等に向けた研究開発及び周辺地域の環境回復に向けた研究開発に取り組んでいます(図1-1)。

福島県太平洋沿岸の浜通り地域に設置している廃炉環境国際共同研究センター(CLADS)国際共同研究棟、楡葉遠隔技術開発センター(NARREC)及び大熊分析・研究センターの3施設は、東日本大震災及び原子力災害によって失われた浜通り地域等の産業を回復するため、当該地域の新たな産業基盤の構築を目指す国家プロジェクト「福島イノベーション・コースト構想」(廃炉分野)の一翼を担う施設として、それぞれの役割に応じて廃止措置等に向けた研究開発を行っています。廃止措置等に向けた研究開発として、主に燃料デブリの取出し、事故進展シナリオの解明、発生する放射性廃棄物の処理・処分、遠隔操作技術等に係る研究開発に取り組み、1F廃止措置に貢献しています(図1-2)。

燃料デブリの取出しにおいては、原子炉内からの取出し、移送、保管及び管理の一連のプロセスを安全かつ確実に実施するため、安全・リスク評価を的確に行

う必要があり、燃料デブリの性状把握、炉内状況把握に関する研究開発を進めています。一例として、取り出す燃料デブリの性状を把握する上で、長期間にわたって水中に残存していた燃料デブリの劣化状態を推定することが一つの指標となります(トピックス1-1)。また、燃料デブリを取り出す際に、核燃料物質と水の比率、形状等が変化することで万が一にも再臨界しないように、その可能性を評価することも重要です(トピックス1-2)。

また、現在の燃料デブリの性状把握や炉内状況把握を行う上で、事故進展シナリオ、事故発生直後の炉内状況を推定することが鍵となります。このため、事故発生時の炉内状況推定として、1F原子炉特有の構造を考慮した破損メカニズムの検討が必須となります(トピックス1-3)。

1F事故及び廃止措置の過程で発生した放射性廃棄物の安全かつ安定的な保管、将来の処分を行うため、放射性廃棄物の適切な処理・処分方法の検討が必要となります。処理方法の一つとして、多種多様な放射性物質や化合物が含まれる汚染水の処理において、想定外の処理状態が生じることに備え、既存とは異なる元素除去技術を開発しておくことも重要となります(トピックス1-4)。また、放射性廃棄物を保管する上では、放射線の影響を考慮して一般の廃棄物とは異なる管理方法を検討しておくことも必要です(トピックス1-5)。

廃止措置等に向けた研究開発	環境回復に係る研究開発	研究開発基盤の構築
<ul style="list-style-type: none"> ▶ 燃料デブリの取出し (トピックス 1-1、1-2) ▶ 事故進展シナリオの解明 (トピックス 1-3) ▶ 放射性廃棄物の処理・処分 (トピックス 1-4、1-5) ▶ 遠隔操作技術等 (トピックス 1-6、1-7、1-8、1-9、1-10) 	<ul style="list-style-type: none"> ▶ 環境動態 (トピックス 1-11、1-12、1-13、1-14) ▶ 環境モニタリング・マッピング技術 (トピックス 1-15、1-16、1-17) 	<ul style="list-style-type: none"> ▶ 楯葉遠隔技術開発センターの運用 ▶ 大熊分析・研究センターの整備・運用 ▶ 廃炉環境国際共同研究センターでの研究 基盤整備・基礎基盤研究の推進

図 1-2 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の取組み
「廃止措置等に向けた研究開発」「環境回復に係る研究開発」「研究開発基盤の構築」の 3 項目を柱に、各項目で実施すべき事項を抽出して研究開発を行っています。

高線量環境下の廃炉作業では、作業の効率化や作業者の被ばく低減のため、放射線測定器や遠隔での汚染箇所特定方法を開発する必要があります。そこで、過酷な環境下でも測定可能な検出器や汚染箇所を可視化できる装置の開発を行っています。検出器開発の例として、高線量・高湿度下でも動作可能な検出器(トピックス 1-6、1-7) や複数の放射線を迅速に測定できる検出器(トピックス 1-8) の開発を進めています。また、光ファイバを用いた新しい手法での汚染位置特定方法の開発(トピックス 1-9) や放射線分布を測定する検出器とレーザーによる 3 次元マッピング装置を組み合わせた三次元的に汚染箇所を把握できる装置の開発を進めています(トピックス 1-10)。

環境回復に係る研究開発に関しては、福島県が整備した福島県環境創造センター研究棟(三春町)及び環境放射線センター(南相馬市)に CLADS の研究拠点を設置し、福島県、国立環境研究所及び原子力機構の三者連携を通じて、環境動態研究や環境モニタリング・マッピング技術開発等に取り組んでいます(図 1-2)。

環境動態研究については、1F 事故により環境中に放出された放射性物質のうち、特に主要な放射性核種である¹³⁷Cs の環境中における移行や蓄積、生態系への移行に着目し、科学的知見に基づく住民の不安解消、自治体による避難指示区域・特定復興再生拠点解除検討の判断や農林水産業の復興計画策定のための基盤情報を提供することが重要となります。そのため、台風時の河川水系における放射性セシウム流出量の変化傾向(トピックス 1-11) など、自然環境中での動態の解明や、生体内における放射性セシウムの保持メカニズムに関する計算科学研究(トピックス 1-12) などの生態系への移行挙動の解明に関する研究開発を進めています。

環境中に存在する放射性核種には¹³⁷Cs 以外に⁹⁰Sr や⁹⁹Tc なども含まれる可能性があるため、それらの核種を分析する手法が必要となります。煩雑な前処理等により長い分析時間を要した⁹⁹Tc や⁹⁰Sr の分析を簡易・迅速化する分析法の開発(トピックス 1-13、1-14) は、動態把握の正確性向上・効率化に貢献が期待されます。

環境モニタリング・マッピングについては、自治体による政策的なスケジュール決定や避難指示区域等解除の検討の判断に資するため、空間線量率の測定や被ばく線量を予測・評価することが重要となります。このため、無人ヘリと放射線分布を測定する検出器を組み合わせることで、広範囲を迅速に測定できる手法の開発(トピックス 1-15) や空間線量率の変動に影響を及ぼす自然的・人為的要因の推定(トピックス 1-16、1-17)を行っています。

これらの 1F 廃止措置等に向けた中長期ロードマップのマイルストーンの鍵となる研究開発成果の創出、環境回復に向けた自治体の避難指示解除等の計画立案に資するデータの収集・評価を行い、関係機関へ提供・発信しています。また、地域・教育機関との連携事業やイベント、報道発表を通じ、廃止措置等の取組状況について情報発信・共有することで地元住民等の理解促進に取り組んでいます。さらに、研究開発成果の現場への実装において、地元企業の参加や技術移転の促進を通じ、福島県浜通り地域の技術向上、地域活性化・雇用創出に貢献しています。

令和 4 年度から始まる第 4 期中長期計画においては、当面の主要課題として「燃料デブリの試験的取出しへの貢献」「放射性廃棄物の処理・処分、ALPS 処理水の処分に向けた対応」及び「特定復興再生拠点の解除に資する情報提供・発信」に優先的に取り組みます。また、燃料デブリ取出し等の技術的に難易度の高い廃炉工程を安全、確実、迅速に推進していくことに加え、住民が安全に安心して生活する環境の整備に向けた環境回復のための調査及び研究開発を引き続き行っていきます。研究施設の整備では、廃止措置に伴い発生する放射性固体廃棄物の分析及び ALPS 処理水の第 3 者分析の役割を担う大熊分析・研究センター分析・研究施設第 1 棟での分析作業を開始しました。さらに、廃止措置でこれまでに培った技術や知見、経験を、原子力施設のバックエンド対策等にも活用するとともに、世界とも広く共有し、各国の原子力施設における安全性の向上等に貢献してまいります。

1-1 放射線存在下の水中での燃料デブリの劣化過程

— UO_2 ・ジルコニウム・ステンレス鋼から生成する固溶体は放射線存在下でも安定—

表 1-1 模擬デブリ試料

本研究で用いた模擬デブリ試料（一部）の出発物質、合成時の加熱処理条件と、観測された主なウラン含有相を示しています。模擬デブリ試料のウラン相としては、ウラン酸化物 ($UO_2 \cdot U_3O_8$) や UO_2 に他の金属イオンが溶け込んで固溶体となった UO_2 (s.s.) が観測されました。

模擬デブリ	出発物質*	加熱処理条件	主なウラン相
USZr 1200-O	UO_2 , Zr, SUS 304	1200 °C, 2% O_2	U_3O_8
USZr 1600-O	UO_2 , Zr, SUS 304	1600 °C, 2% O_2	UO_2 (s.s.) (低Zr濃度)
USZr 1600-A	UO_2 , Zr, SUS 304	1600 °C, Ar	UO_2
USZrO ₂ 1600-O	UO_2 , ZrO ₂ , SUS 304	1600 °C, 2% O_2	UO_2 (s.s.) (高Zr濃度)

* 出発物質に含まれる金属元素の物質量は次のとおり。
U : Zr : Fe+Cr+Ni (ステンレス鋼成分) = 1 : 1 : 1

東京電力福島第一原子力発電所 (1F) の事故では、核燃料とその被覆管や原子炉の構造材料が高温で反応して燃料デブリが形成されたとみられています。1F の燃料デブリは水と接触した状態にあり、放射線による水の分解によって起こる化学反応の影響を受けて変質する可能性があります。この水中での変質は、二酸化ウラン (UO_2) ではよく研究されており、水の放射線分解で発生する過酸化水素 (H_2O_2) が表面の U を酸化 (4 価から 6 価へ) することが原因です。 H_2O_2 による酸化が燃料デブリでも進む場合、6 価の U は水に溶けやすいため、U を主成分とする固相の中に閉じ込められている放射性物質の放出が起こり得ます。そこで、この H_2O_2 酸化による燃料デブリの劣化過程を明らかにするため、模擬試料を用いた研究を行いました。

本研究では、 UO_2 、ステンレス鋼 (SUS304)、ジルコニウム (Zr) の粉末を混合し、酸素濃度の異なる条件で加熱処理を行い、模擬デブリ試料を合成しました (表 1-1)。ステンレス鋼は原子炉の構造材料成分として、Zr は被覆管成分として加えました。合成した試料を H_2O_2 水溶液に浸漬し、溶け出した U の濃度を測定するとともに、試料表面をラマン分光法により分析しました (図 1-3)。U 濃度の測定では、一度溶け出した U が析出し、浸漬 6 日目以降は U の濃度が低下するという結果が得られました (図 1-3 (a))。この析出反応を確かめるため、試料表面を分析したところ、ウラニル過酸化物が明瞭に観測されました (図 1-3 (b))。ウラニル過酸化物は 6 価に酸化された U が、さらに H_2O_2 と反応して生成します。ウラニル過酸化物の生成は、試験を行った試料のうち Zr の酸化物 (ZrO_2) を加えて合成

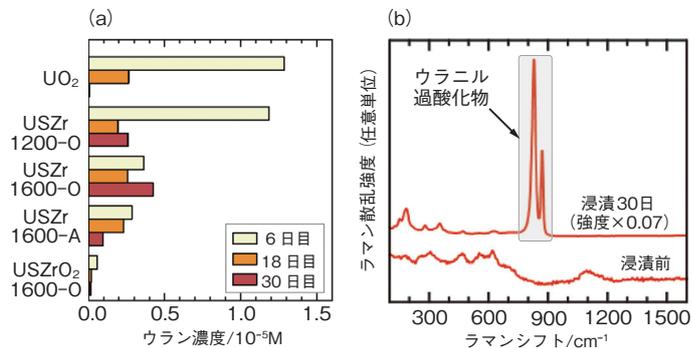


図 1-3 模擬デブリ試料の浸漬試験結果

浸漬試験で観測された (a) U の溶出濃度と (b) ウラニル過酸化物のラマンスペクトルを示しています。ラマンスペクトルは USZr1600-O で測定された結果です。USZrO₂1600-O を除き、他試料でもウラニル過酸化物の形成は同様に観測されました。

した試料 (USZrO₂1600-O) を除き、共通して観測されました。この結果から、放射線分解により H_2O_2 を含む水質で燃料デブリの劣化が進んだ場合、U が酸化され、ウラニル過酸化物が生じると予測できます。一方で、変化が見られなかった USZrO₂1600-O について、X 線による結晶構造解析や電子顕微鏡を用いた元素分析の結果を確認すると、この試料では UO_2 に他の元素が溶け込んだ固溶体 (表 1-1 では UO_2 (s.s.) と表記) が形成され、他の元素 (主に Zr) の含有量が高いことが分かりました。これは、USZrO₂1600-O の合成では、Zr を UO_2 に溶け込みやすい酸化物の形で添加したためです。また、浸漬による溶出 U 濃度も、他の試料より極めて少ない結果となっていました。これらの結果から、 UO_2 に他の元素が溶け込む高温反応が進むと、U が溶けにくくなり、 H_2O_2 に対して安定性が高くなることが分かりました。

本研究の結果から、ウラニル過酸化物は、 H_2O_2 による劣化の痕跡と考えることができるため、今後行われる燃料デブリサンプルの分析において、サンプルが H_2O_2 劣化の影響を受けているかどうか峻別するための指標として利用できると考えられます。また、本研究では固溶体の形成によって H_2O_2 による劣化が抑制されることが分かりました。固溶体の形成は、1F で実際にサンプリングされた微粒子の分析結果から示唆されていますので、1F の燃料デブリは化学的に安定な性質を持っている可能性があります。

本研究は、原子力機構「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」(JPJA18P18071886) の一部として実施しました。

(熊谷 友多)

●参考文献

Kumagai, Y. et al., Uranium Dissolution and Uranyl Peroxide Formation by Immersion of Simulated Fuel Debris in Aqueous H_2O_2 Solution, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.59, issue 8, 2022, p.961-971.

1-2 物質組成が不明瞭な燃料デブリの臨界性を評価する —希ガスモニタリングのための新しい未臨界燃焼計算コードシステムを開発—

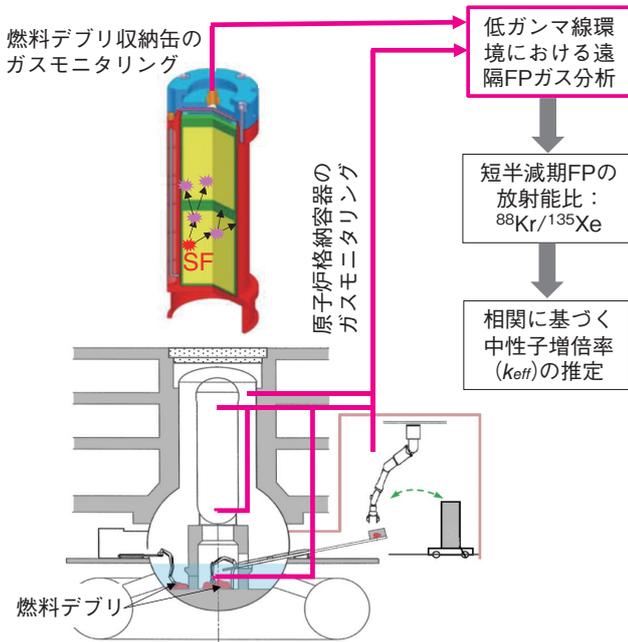


図1-4 希ガスモニタリングによる臨界性評価の概念
本法は、燃料デブリ収納缶（上）または原子炉格納容器内（下）の各所からガスを採取し、ガス中の ^{88}Kr と ^{135}Xe の放射能比を遠隔モニタリングします。また、あらかじめ求めた $^{88}\text{Kr}/^{135}\text{Xe}$ 放射能比と中性子増倍率の関係（図1-5）から、各所における臨界性を評価するものです。

東京電力福島第一原子力発電所の燃料デブリを取り出して安全に管理するためには、燃料デブリの臨界性や核物質量を把握しておくことが重要です。燃料デブリ内では自発核分裂（SF）反応と中性子誘起核分裂（IF）反応により、半減期の短い核分裂生成物（FP）が生成されていると考えられます。代表的なFPとしてクリプトン88（ ^{88}Kr ）やキセノン135（ ^{135}Xe ）などが知られていますが、これらはSF反応とIF反応ではFP生成量が異なります。

この特性を利用して、図1-4に示すように原子炉格納容器（PCV）内や燃料デブリ収納容器内の物質組成が不明瞭な燃料デブリの臨界性（中性子増倍率や核燃料物質量）を推定する方法を開発しています。まず、PCVや燃料デブリ収納容器からガスを採取し、 ^{88}Kr と ^{135}Xe の放射能比をバックグラウンド放射能が低い場所で遠隔モニタリングします。次に、 $^{88}\text{Kr}/^{135}\text{Xe}$ 放射能比と中性子増倍率との相関をあらかじめ計算等で予測しておくことで、組成が不明な燃料デブリに対して、その体系での臨界性を予測します。

この方法を確立するためには、未臨界体系におけるFP生成量と中性子増倍率との相関をあらかじめ正確に

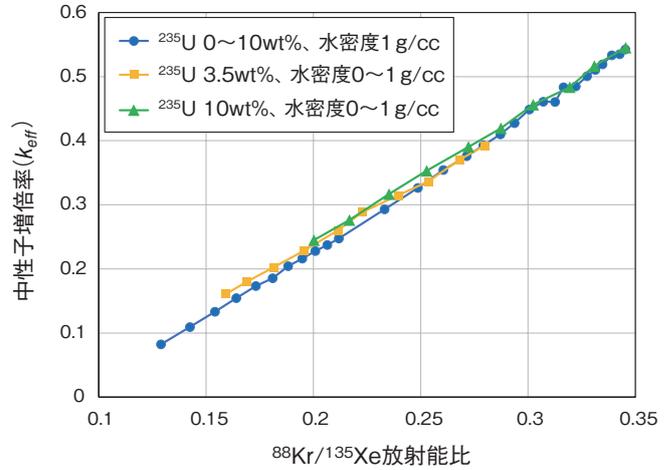


図1-5 希ガス放射能比と中性子増倍率の相関
開発したモンテカルロシミュレーションコードを、ウラン量や水分量が異なる燃料デブリを収納した容器に対して適用した際に得られた、 $^{88}\text{Kr}/^{135}\text{Xe}$ 放射能比と中性子増倍率との相関を示します。中性子増倍率は直線的に変化することから、 $^{88}\text{Kr}/^{135}\text{Xe}$ 放射能比から臨界性を評価できます。

評価することが必要です。今回、私たちはSF反応とIF反応を考慮してFP生成量と中性子増倍率の相関を評価することができるモンテカルロ法に基づく未臨界燃焼計算コードを世界で初めて開発しました。本計算コードの開発はSF反応とIF反応を考慮するために必要な理論、アルゴリズム、データを、マサチューセッツ工科大学が公開しているOpenMCコードに組み込むことにより行いました。

図1-5には、開発した計算コードを燃料デブリ収納容器に適用した結果を示します。計算では、実際には測定が困難な燃料デブリ中のウラン235（ ^{235}U ）量や含水率をパラメータとして変化させ、 $^{88}\text{Kr}/^{135}\text{Xe}$ 放射能比と中性子増倍率との相関を3次元モンテカルロシミュレーションにより計算しました。その結果、パラメータに依らず中性子増倍率は直線的に変化し、測定される $^{88}\text{Kr}/^{135}\text{Xe}$ 放射能比から臨界性を評価できる可能性が示されました。

開発した計算コードは、今後のPCV内の臨界監視システムの設計や燃料デブリの非破壊測定技術の開発などに活用されることが期待されます。

(Eka Sapta Riyana)

●参考文献

Riyana, E. S. et al., Depletion Calculation of Subcritical System with Consideration of Spontaneous Fission Reaction, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.59, issue 4, 2022, p.424-430.

1-3 原子炉圧力容器下部の破損メカニズムを明らかにする - BWR の複雑な下部構造における材料間反応を想定した溶融試験 -

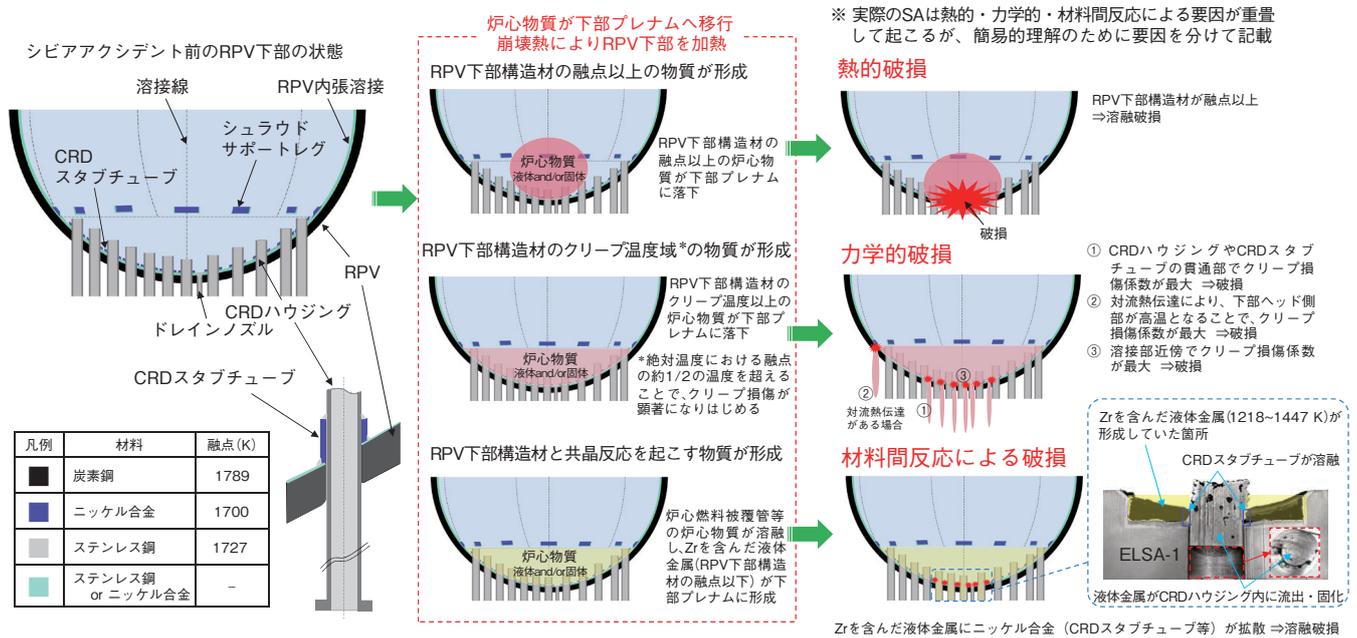


図1-6 圧力容器 (RPV) 下部の破損メカニズム

RPV 破損要因として、主に熱的損傷、力学的損傷、材料間反応による損傷が想定されています。材料間反応による損傷を検証するために、東京電力福島第一原子力発電所 (1F) 2号機の事故進展の条件を想定した ELSA-1 試験を実施しました。その結果から、1F2号機の制御棒駆動機構 (CRD) ハウジング内には溶融金属が残存している可能性を推定しました。

東京電力福島第一原子力発電所 (1F) の廃炉作業では、高線量下にある原子炉圧力容器 (RPV) 内や格納容器 (PCV) 内の状況把握が喫緊の課題です。そのため、内部調査、事故進展解析、模擬試験等により、損傷した炉内状況の推定が行われていますが、RPV 下部の破損メカニズムの解明には至っていません。その理由は、内部調査が困難なことに加え、これまでのシビアアクシデント (SA) 解析や模擬試験の多くが、加圧水型軽水炉 (PWR) 体系を対象としているためです。また、1F と同じ沸騰水型軽水炉 (BWR) の RPV 下部は、制御棒駆動機構 (CRD) が存在するなど、PWR 体系よりも複雑で、破損メカニズムの知見も少ないことが挙げられます。

私たちは、東京電力ホールディングス株式会社と共同で、BWR 特有の複雑な下部構造について、構造や材料構成を考慮しつつ、RPV 下部の破損メカニズム (図1-6) を検討しました。事故時の炉心エネルギーの推移を評価した結果、1F2号機では炉心物質落下までのエネルギー増加が少なく、炉心燃料が完全に溶融する温度に至っていません。そのため、下部プレナムに移動した炉心燃料の多くは未溶融の状態であったと推定されます。つまり、RPV 下部では燃料被覆管、制御棒、チャンネルボックス等の金属物質が溶融し、溶融プールが形成したと考えられます。

また、このような状況では、材料間反応 (共晶溶融:

材料本来の融点よりも低い温度で液化が起こる現象) により RPV が破損する可能性があります。そこで本研究では、共晶溶融による RPV 下部構造の破損を検証する模擬試験 (ELSA: Experiment on Late In-vessel Severe Accident phenomena) を実施しました。

この試験では、事故の初期段階で炉心燃料が RPV 下部に移行したと仮定して、RPV 下部を模擬した試験体に溶融金属を装荷し、黒鉛ヒーターで全体を加熱しました。試験体は、溶融金属プールの組成と共晶反応が想定されるニッケル合金を多く含む CRD の貫通部を模擬しました。また、試験時の昇温条件は、1F2号機の事故進展解析の結果から設定しました。

試験結果より、溶融プールの状態によっては、RPV 下部は熱的破損やクリープ破損が生じない条件下においても、共晶溶融によって破損する可能性があることを検証しました。また、試験結果では、1F2号機の CRD ハウジング内に溶融金属が残存する可能性が示唆されました。

今後は、他の要因が重畳する条件下での RPV 下部破損のシナリオについても検討を行い、1F の原子炉内の状態把握を進めることで、燃料デブリ取出しに役立てたいと考えています。また、SA 解析コードの高度化にも役立つ知見の集約を目指します。

(山下 拓哉)

●参考文献

Yamashita, T. et al., BWR Lower Head Penetration Failure Test Focusing on Eutectic Melting, Annals of Nuclear Energy, vol.173, 2022, 109129, 15p.

1-4 ヨウ素酸イオンを効果的に取り除くにはどうする？ —バライト (BaSO₄) へのヨウ素酸の共沈を分子レベルで評価—

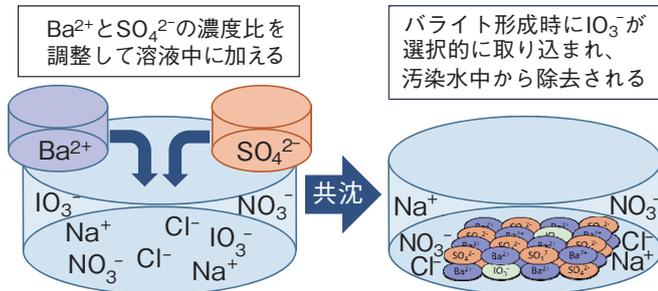


図1-7 バライト生成を利用したIO₃⁻の除去法の確立
ヨウ素酸 (IO₃⁻) を含む水溶液に対して、Ba²⁺/SO₄²⁻ 等のパラメーターを調整してBaCl₂とNa₂SO₄の水溶液を添加します。ただちにバライトが生成沈殿し、その時にIO₃⁻が塩化物イオンや硝酸イオンの競合効果を受けずに選択的にバライトに取り込まれます。

核燃料の核分裂生成核種の中には半減期が極めて長いものが存在し、それらの適切な処理処分方法の開発は重要な課題です。特に東京電力福島第一原子力発電所での汚染水処理に含まれるヨウ素129 (¹²⁹I) は、核分裂生成核種の中でも半減期が特に長く (1.6 × 10⁷ 年)、かつ水溶液中からの除去が困難なヨウ化物 (I⁻)・ヨウ素酸 (IO₃⁻) の陰イオンとして存在します。これらヨウ素の陰イオンのうちI⁻に対してはヨウ化銀 (AgI) の生成による処理が知られている一方、IO₃⁻は水溶液中に多く存在する塩化物イオンや硝酸イオンとの競合によりイオン吸着時の除去効率が著しく低下するため、有効な処理処分法は未だ開発されていません。そこで本研究では、IO₃⁻に対する新規の除去方法として、極めて安定な鉱物であるバライト (BaSO₄) 中にIO₃⁻を取り込ませることによりIO₃⁻を除去する手法の開発を行いました。イオン半径が大きな元素から構成されるバライトは様々な元素を取り込むことができ、また著者の先行研究よりIO₃⁻と同様の長半減期の陰イオン核種であるセレン79 (⁷⁹Se) も効果的に取り込むことも分かっています。バライトは、塩化バリウム (BaCl₂) の水溶液と硫酸ナトリウム (Na₂SO₄) の水溶液を混ぜるだけで生成し沈殿します。その時、水溶液中に含まれるIO₃⁻等の微量イオンがバライトの結晶中に取り込まれます (共沈反応)。本研究では、バライトを生成させるときのIO₃⁻の除去挙動を、水溶液のpH、加えるBa²⁺とSO₄²⁻のモル比 (Ba²⁺/SO₄²⁻) 等のパラメーターを様々に変化させた室内実験により詳細に調べ、IO₃⁻除去に最適な条件を見つけ出しました (図1-7)。その結果、バライトによるIO₃⁻の除去に最も影響を与えるパラメーターがBa²⁺/SO₄²⁻

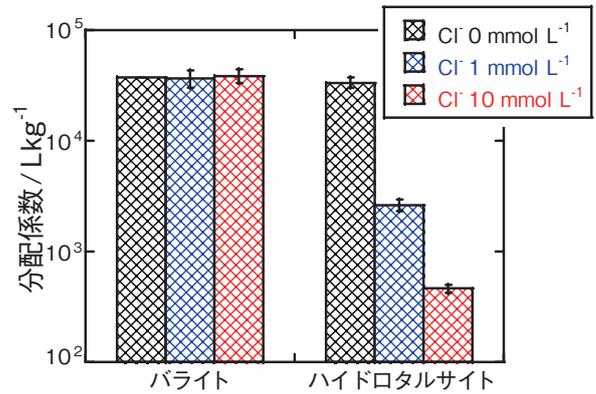


図1-8 バライトとMg-Al LDHへのIO₃⁻の除去効率の比較
競合イオンとして塩化物イオン (Cl⁻) を添加した系での、バライトとハイドロタルサイト (Mg-Al LDH) に対するIO₃⁻の分配係数 (K_d) を求めます。Cl⁻濃度の上昇によりMg-Al LDHの分配効率は著しく減少する一方、バライトは一定の高い分配効率を示します。

であることが分かり、SO₄²⁻の割合が小さいほど多くのIO₃⁻が、塩化物イオンや硝酸イオンの影響を受けずに分配されました。しかし置換されるIO₃⁻とSO₄²⁻は電荷の数が異なり、取り込まれたIO₃⁻がバライト内部で安定に存在しているかは分かりません。そこで本研究では広域X線吸収微細構造 (EXAFS) 法により、得られたバライト内部でのIO₃⁻の局所構造の特定を行いました。その結果、バライト構造内でのIO₃⁻とSO₄²⁻の電荷の違いによる不整合は、不純物としてバライトに置換されるナトリウムイオンとの結合 (I-Na) により補填されており (2IO₃⁻ + 2Na⁺ ⇌ Ba²⁺ + SO₄²⁻)、バライト内部にてIO₃⁻は安定に存在していることが示されました。

これら従来の手法に対するバライトを用いたIO₃⁻の除去手法の優位性を示すため、従来陰イオン処理に用いられてきたハイドロタルサイトに代表される層状複水酸化物 (LDH) と本研究のバライト共沈法とのIO₃⁻に対する分配効率の比較を行いました (図1-8)。競合イオンとして塩化物イオン (Cl⁻) 濃度を变化させた系でのそれぞれの分配係数 (固液分配比、K_d : K_d値が大きいほど固相側に分配されます) を明らかにしたところ、LDHはCl⁻濃度の上昇により著しく除去効率を減少させた一方、本研究のバライト共沈法はCl⁻濃度の影響を受けずに一定の高い除去効率を示しました。このバライト共沈法の高い除去効率は、硝酸イオンや硫酸イオン等の他の陰イオンを含んだ系においても確認されており、放射性元素を含む汚染水からIO₃⁻を効果的に除去する手法として本研究で明らかにしたバライト共沈法が非常に有用であることが示されました。

(徳永 紘平)

●参考文献

Tokunaga, K. et al., Effective Removal of Iodate by Coprecipitation with Barite: Behavior and Mechanism, Chemosphere, vol.266, 2021, 129104, 10p.

1-5 放射性廃棄物の安全な保管のための特性把握 —炭酸塩スラリーの化学組成による影響—

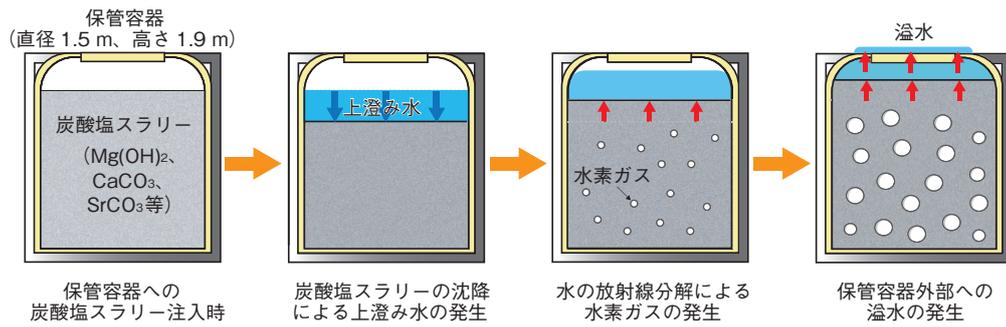


図1-9 炭酸塩スラリーの体積膨張・液位上昇の推定挙動

一時保管に伴い、炭酸塩スラリーの沈降による上澄み水が発生します。そして、スラリー内で発生した水素ガスがスラリーから抜けず、スラリーの上面とともに上澄み水を押し上げたために、保管容器上部のベント孔から容器外に溢水したと推定されています。

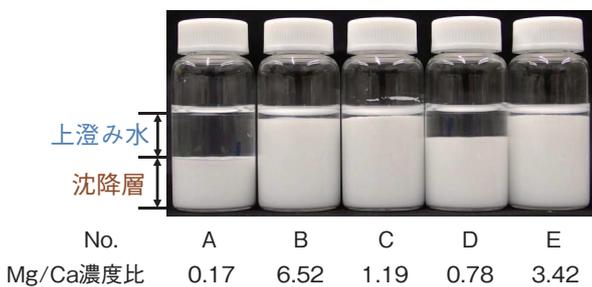


図1-10 作製した模擬炭酸塩スラリーの外観

懸濁物質濃度を 150 g/L に統一し、設定した Mg/Ca 濃度比の原水を用いて作製した模擬炭酸塩スラリーは、2 週間の静置により Ca の割合が高いスラリー A で最も沈降性が高いことが確認できます。

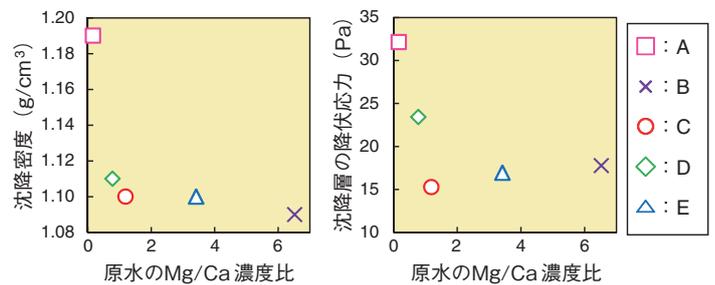


図1-11 原水の Mg/Ca 濃度比と沈降密度及び降伏応力の関係

原水の Mg/Ca 濃度比が低い、すなわち Ca の割合が高いスラリー A が最も高い沈降密度及び降伏応力を示しました。

東京電力福島第一原子力発電所において、多核種除去設備 (ALPS: Advanced Liquid Processing System) から発生した炭酸塩沈殿物を主とするスラリー状の廃棄物 (炭酸塩スラリー) を充てんした一部の保管容器から、上澄み水が漏れ出す事象 (溢水) が発生しました。炭酸塩スラリーに含まれるβ線放出核種による水の放射線分解により発生する水素ガスの気泡の保持が、溢水に関与することが推定されました (図1-9) が、同時期に保管されていた大部分の保管容器において同様の事象は観察されませんでした。溢水発生条件を明らかにするには、炭酸塩スラリー自体の特性にも目を向ける必要がありました。そこで本研究では、まず溢水が発生した保管容器内の炭酸塩スラリーの組成を模擬した模擬炭酸塩スラリーを作製しました。そして、気泡の保持特性に影響すると考えられる炭酸塩スラリー沈降層の「密度 (沈降密度)」及びスラリー内での気泡の動き出しに関わる指標として沈降層の「降伏応力」を、非放射性条件下で測定し、炭酸塩スラリーの組成との関係を明らかにしました。

溢水が発生した炭酸塩スラリーが調製された時期のALPS 運転条件及び炭酸塩スラリーの主要元素であるALPS 処理前の水 (入口水) 中のマグネシウム (Mg) 及びカルシウム (Ca) 濃度 (ppm) の分析記録を調査したところ、他の期間と比較して Mg 及び Ca 濃度が高

いことが分かりました。そこで、入口水の Mg 及び Ca 濃度の比率に着目し、Mg 及び Ca の比率を変えた五つの模擬入口水 (原水) を調製しました。これら原水から炭酸塩等を沈殿させ、実機 ALPS と同じ濃縮方式のクロスフローフィルタ方式により懸濁物質濃度が 150 g/L になるまで濃縮を行い、模擬炭酸塩スラリーを作製しました。次に、2 週間の静置による沈降試験を実施して沈降密度及び降伏応力を測定しました。

この結果、原水中の Mg/Ca 濃度比が低い、すなわち Ca の割合が高いほど高い沈降性を示し、静置後の沈降密度及び降伏応力が高くなることが分かりました (図1-10、図1-11)。このような原水組成の違いによる降伏応力等の特性の差が保管容器内での気泡の保持特性の違いを生み出している可能性が考えられます。

以上のことから、原水の Mg/Ca 濃度比による模擬炭酸塩スラリーの沈降密度及び降伏応力への影響を明らかにし、溢水した保管容器内の炭酸塩スラリーを模擬するには入口水の組成に関する情報が重要であることを明らかにしました。今回明らかになった炭酸塩スラリーの特性を踏まえつつ、今後は照射試験による放射性条件下での特性評価を実施する予定です。

(堀田 拓摩)

●参考文献

堀田拓摩ほか、溢水した高性能容器内炭酸塩スラリーの組成を模擬した炭酸塩スラリーの作製と特性評価, JAEA-Technology 2021-012, 2021, 34p.

1-6 過酷な放射線場でガンマ線核種分析を実現する —簡易非破壊測定に向けた高線量特化型ガンマ線スペクトル測定システムの構築—

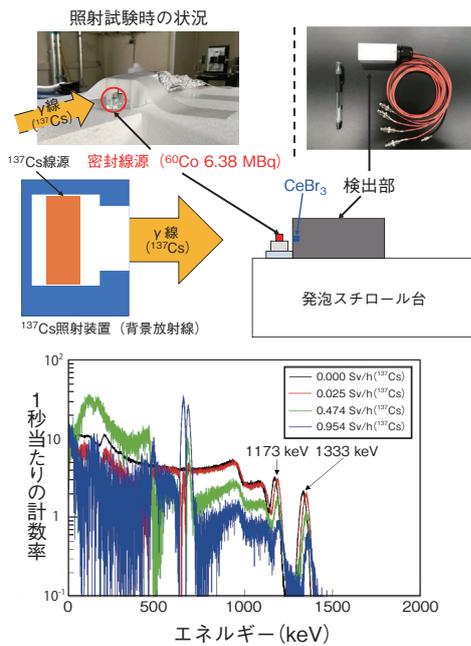


図1-12 ^{137}Cs 照射場における密封線源 (^{60}Co) の測定状況
標準放射線場 (^{137}Cs) の照射線量率を変えながら、6.38 MBq
の密封線源 (^{60}Co) のガンマ線スペクトル測定を実施しました。

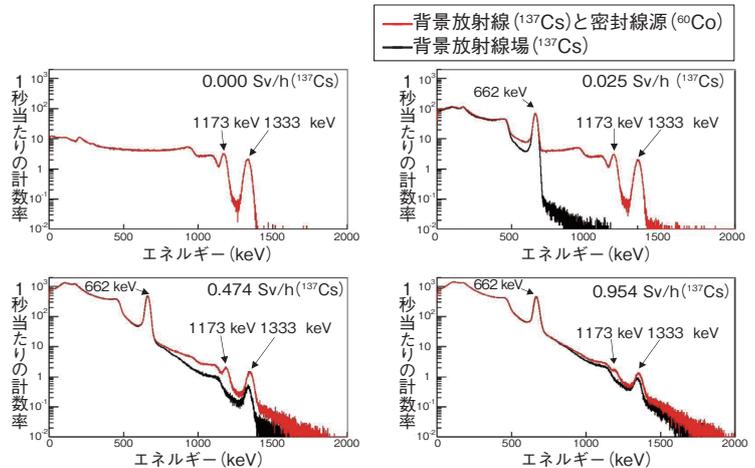


図1-13 密封線源のガンマ線スペクトル測定への背景放射線の影響
 ^{137}Cs 照射線場の照射線量率を変えながら (0.000 Sv/h, 0.025 Sv/h,
0.474 Sv/h, 0.954 Sv/h)、密封線源 (^{60}Co 6.38 MBq) のガンマ線スペ
クトルの変化を観察しました。密封線源のガンマ線スペクトルは、背景の
 ^{137}Cs 照射線量率が高くなるに伴いサム効果によって埋もれてしまいます。

図1-14 差分スペクトル (背景放射線の影響を除去したスペクトル)
 ^{60}Co 密封線源 + ^{137}Cs 背景放射線のスペクトル (図1-13—線)
から背景放射線場スペクトル (図1-13—線) を差し引き、
差分スペクトルを導入することで、背景放射線の影響を排除
し、 ^{60}Co のみのスペクトルを確認することができました。

東京電力福島第一原子力発電所 (1F) の廃止措置では、高線量率でかつ狭窄部が多い過酷な環境下での放射線測定が求められます。今後は、これまで主に測定対象としてきた汚染由来の核種 (^{137}Cs や ^{90}Sr) に加えて、原子炉格納容器内 (PCV) に多く存在する ^{154}Eu 、 ^{60}Co 、 ^{244}Cm 、並びに U や Pu の核燃料物質の非破壊測定も想定されます。そのため、高線量率場でも重厚な遮蔽を使わずに多様なガンマ線核種を識別できる簡易的な非破壊測定に向けた小型の検出器を開発しています。

私たちは、上記の要望に応えるため、(I) 微小 CeBr_3 シンチレーターパッケージ (5 mm × 5 mm × 5 mm)、(II) 高速デジタル信号処理、そして、(III) 後段電源印加型の高線量率測定用光電子増倍管を組み合わせた高線量率特化型ガンマ線スペクトル測定システムを開発しました。また、これまでに 1 Sv/h を超えるガンマ線照射場 (^{137}Cs 及び ^{60}Co) において、核種分析に必要なガンマ線のエネルギー分解能 (662 keV で 5.2%、1333 keV で 4.2%) を実証してきました。

一方で、実際の 1F 測定環境は、 ^{137}Cs 由来の背景放射線がある中で、他のガンマ線核種を識別する必要があります。そのため、 ^{137}Cs 照射場 (背景放射線) の照射線量率を変えながら、6.38 MBq の ^{60}Co 密封線源 (^{60}Co 線源) のガンマ線スペクトルを測定しました (図1-12)。

図1-13は、背景放射線場の照射線量率ごとの ^{60}Co 線源と背景放射線による合計値 (赤線) 並びに背景放射線 (^{137}Cs) のみ (黒線) のガンマ線スペクトルを示します。照射線量率が高くなるに伴って、 ^{60}Co 線源の 2

本の全エネルギー吸収ピーク (1173 keV、1333 keV) が、背景放射線の連続成分に埋もれていきます。これは、 ^{137}Cs ($^{137\text{m}}\text{Ba}$) からの 662 keV のガンマ線が、立ち上り時間よりも短い時間に複数計測されることで起こる現象 (サム効果) で、信号処理では解決が困難です。そこで、背景放射線の成分を差し引いたスペクトル (差分スペクトル) を導出しました (図1-14)。差分スペクトルでは、 ^{137}Cs 照射線量率が 0.954 Sv/h の際にガンマ線スペクトルで埋もれていた 1173 keV のピークを識別することができ、 ^{60}Co の同定が可能になりました。また、線源強度を定量化するため、差分スペクトルから全エネルギー吸収ピークの実効面積 (S_p) を算出しました。その結果、背景放射線 (^{137}Cs) を照射しない条件 (0.000 Sv/h) と比較すると、照射線量率が 0.954 Sv/h において、1173 keV ピークの S_p は 1/5 程度 (0.23)、1333 keV ピークの S_p は 1/4 程度 (0.27) の過小評価となりました。

本研究では、高線量率特化型ガンマ線スペクトル測定システムと解析手法を組み合わせることで、約 1 Sv/h の ^{137}Cs 線源による放射線場で、遮蔽なしの条件で、主要核種 (^{137}Cs) 以外のガンマ線核種の識別に成功しました。一方で、さらなる高線量率場対応並びに核種の定量化に及ぼす影響を改善するための研究を進めていきます。さらに、今後は、段階的に 1F 現場への実践投入を目指していく予定です。

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に基づくものです。

(冠城 雅晃)

●参考文献

Kaburagi, M. et al., Identification and Quantification of a ^{60}Co Radiation Source under an Intense ^{137}Cs Radiation Field Using an Application-Specific CeBr_3 Spectrometer Suited for Use in Intense Radiation Fields, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.59, issue 8, 2022, p.983-992.

1-7 廃炉作業環境中の放射性物質を「その場」で測定！ — 空気中の α 粒子のリアルタイム監視で燃料デブリ取り出し作業の安全性向上へ —

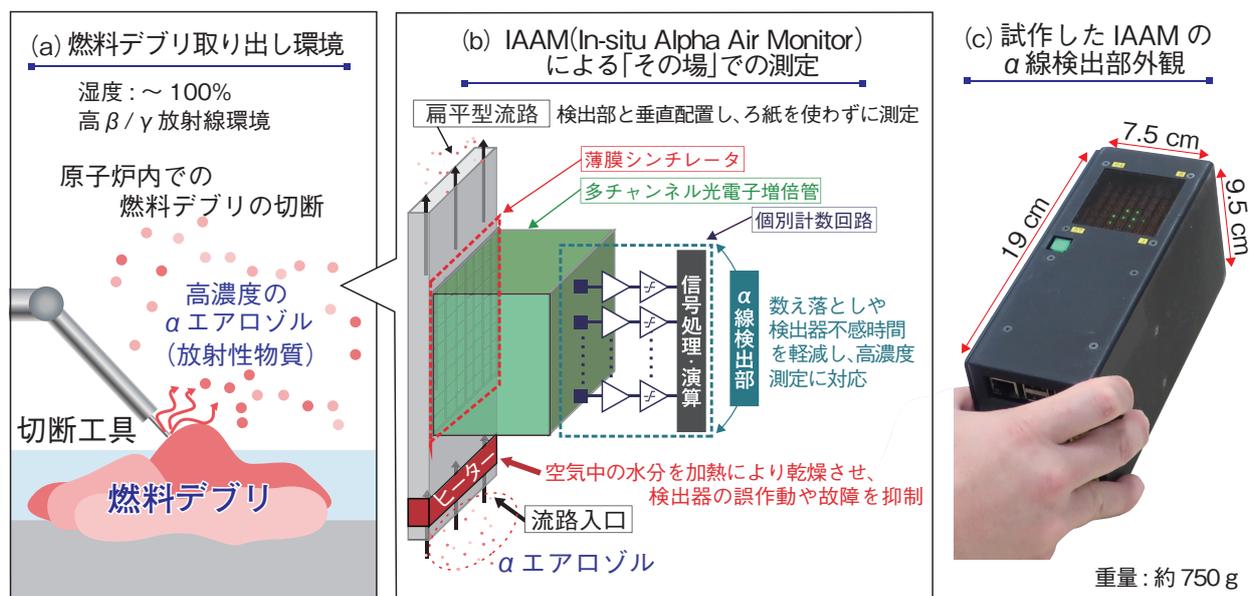


図1-15 In-situ Alpha Air Monitor (IAAM) による α エアロゾル測定イメージ

(a) 1F-PCV内の高湿度、高線量環境で発生する高濃度の α エアロゾルの「その場」測定を目指し、(b) ヒーターでの空気乾燥、扁平型流路と α 線検出器の垂直配置、薄膜シンチレータと多チャンネル光電子増倍管等を組み合わせたIAAMを設計しました。(c) に試作した α 線検出部を示します。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)の廃炉作業においては、損傷した炉心からの燃料デブリの取出しが今後本格化し、機械やレーザー等による燃料デブリの切断過程で格納容器(PCV)内の空気中に微細な切断片(微粒子)が飛散することが予想されます。特に α 核種を含む微粒子(α エアロゾル)は吸入したときの内部被ばく影響が大きいと見られ、閉じ込め対策に加え1F-PCV内の「その場」での濃度のモニタリングが重要です。

しかし、1F-PCV内の極めて高湿度かつ高線量環境で高濃度の α エアロゾルを測定するためには、ろ紙にエアロゾルを集塵し、半導体検出器により測定するタイプの従来型 α 線用ダストモニタは、高湿度環境での検出器誤動作、ろ紙の目詰まり、濃度測定レンジ(上限)の制限、 β/γ 線感度等の課題があり、その適用は非常に困難です。

そこで、1F-PCV内で α エアロゾルをモニタリングするための要求事項として、①「高湿度環境での確実な動作」、②「ろ紙を使わない α エアロゾル測定」、③「高濃度の α エアロゾル測定」、④「 β/γ 線環境での α エアロゾルの選択的測定」の四つを抽出し、それらを満足する機器としてIn-situ Alpha Air Monitor (IAAM)を設計・試作しました。

試作したIAAMとその使用イメージを図1-15に示します。前述の要求事項に対する開発のポイントは次の通りです。

- ① 流路入口のヒーターでの乾燥により空気中の水分による検出器の誤作動や故障を抑制できます。水滴の吸い込みによる α 線の遮蔽の懸念も除外可能です。

- ② 幅が α 線の飛程より十分短い「扁平型」の流路に対して α 線検出器を垂直配置することで、ろ紙を使わない α エアロゾル測定を可能としました。
- ③ 薄膜シンチレータと多チャンネル光電子増倍管を組み合わせ、放射線の入射によるシンチレータの蛍光を64群に分離して測定することで、信号の数え落としや検出器不感状態の影響を軽減しました。本手法により、最大 3.2×10^2 Bq/cm³(1F-PCV内で想定される濃度の30倍以上)の α エアロゾル濃度を測定できます。
- ④ 薄膜シンチレータの厚さと信号処理時の「しきい値」を α 線の選択的測定に最適化しました。100 mSv/hの高 γ 線環境においても、 γ 線の影響なしに α エアロゾルのみを選択的に測定可能です。

開発したIAAMは、1F-PCV内の燃料デブリ切断作業で想定される状況下で α エアロゾル濃度を「その場」でモニタリングできるため、濃度の異常変動等を速やかに検知できるなどの利点があり、安全性の大幅な向上が期待できます。今後は、東京電力ホールディングス(株)と情報交換をしつつ、1Fの作業環境における動作確認と運用を目指します。IAAMの高濃度 α エアロゾルの測定能力は、1F以外の核燃料施設の廃止措置においても作業者の安全性向上への貢献が期待出来るため、そのような現場への適用も見据えて研究開発を進めていきます。

本成果は、弘前大学被ばく医療総合研究所との共同研究によるものです。

(坪田 陽一)

●参考文献

Tsubota, Y. et al., Development of an In-situ Continuous Air Monitor for the Measurement of Highly Radioactive Alpha-Emitting Particulates (α -Aerosols) under High Humidity Environment, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, vol.1030, 2022, 166475, 7p.

1-8 $\alpha/\beta/\gamma$ 線のエネルギースペクトルを弁別して同時に測定 — Phoswich型 $\alpha/\beta/\gamma$ 線検出器を用いた連続モニタリング装置の開発 —

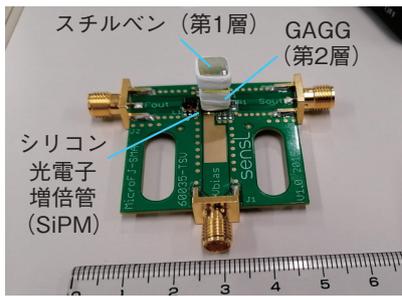


図1-16 開発した Phoswich 型 $\alpha/\beta/\gamma$ 線弁別検出器
第1層は α 線と β 線検出用のスチルベンシンチレータ、第2層は γ 線検出用のGAGGシンチレータで構成されています。また、その下にシリコン光電子増倍管(SiPM)を配置しています。

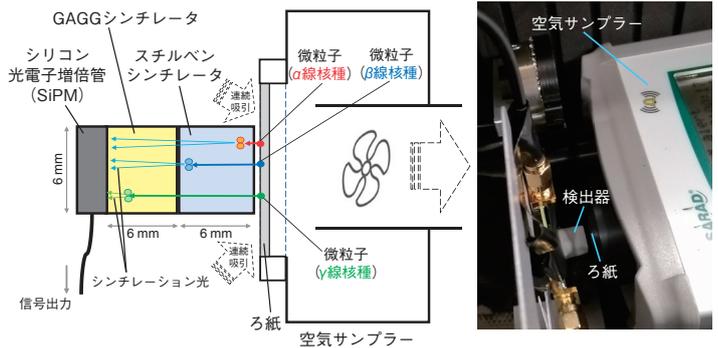


図1-17 開発したポータブル $\alpha/\beta/\gamma$ 線連続空気モニタリング装置
概念図(左)と写真(右)を示します。ろ紙に捕集される放射性物質の $\alpha/\beta/\gamma$ 線をPhoswich型検出器で連続測定ができる装置です。

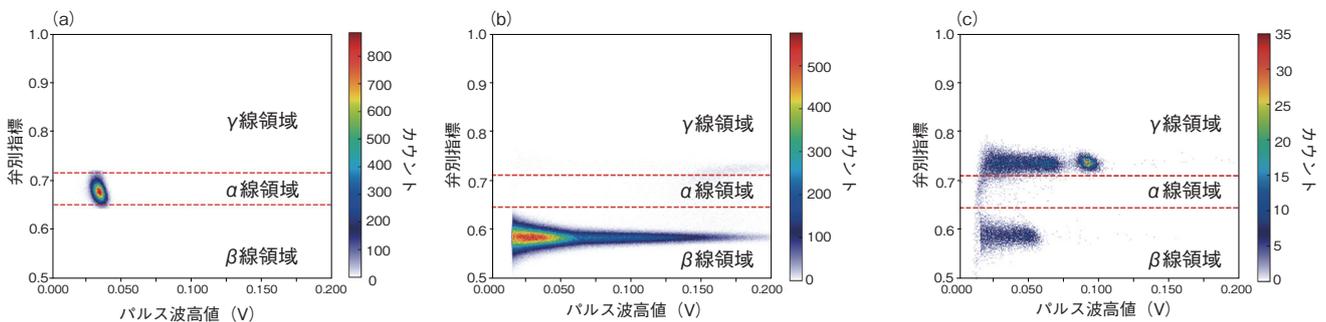


図1-18 PSD技術による弁別結果

一つの検出器で $\alpha/\beta/\gamma$ 線のエネルギースペクトルを弁別して同時に測定できています。従来は三つの検出器をそれぞれ使い分ける必要がありました。(a) ^{241}Am 線源から放出される α 線、(b) ^{90}Sr - ^{90}Y 線源から放出される β 線、(c) ^{137}Cs 線源から放出される γ 線を示します。 γ 線が第1層目でもエネルギーを付与するため、 β 線領域にも計数が見られます。

東京電力福島第一原子力発電所の廃炉現場では、 α 線、 β 線、 γ 線の放出核種が混在する汚染が存在します。そのため、各放射線を測定する際に、 α 線ではZnS(Ag)シンチレーション検出器、 β 線ではGM計数管、 γ 線ではNaI(Tl)シンチレーション検出器が用いられます。このように放射線に対して個別の検出器が必要となるため、未知の放射性物質が混在する汚染環境の測定では時間が掛かります。

そこで、未知の放射性物質を迅速に検出するために、Phoswich型 $\alpha/\beta/\gamma$ 線弁別検出器を開発しました(図1-16)。また、開発した検出器をポータブル型の空気サンプラと組み合わせることで、ポータブル $\alpha/\beta/\gamma$ 線連続空気モニタリング装置も開発しました(図1-17)。

検出器は、第1層目にスチルベンシンチレータ(サイズ:6mm×6mm×6mm)、第2層目には1層目と同じサイズの $\text{Gd}_3(\text{Ga}, \text{Al})_5\text{O}_{12}(\text{Ce})$ (GAGG)シンチレータを備えています。GAGGシンチレータの底面にはシリコン光電子増倍管(SiPM)を光学的に結合しました。SiPMから出力される電圧信号にパルス波形弁別(PSD)技術を適用することにより、 α 線、 β 線、 γ 線を正確に弁別測定することができました(図1-18)。

開発した検出器のエネルギー分解能は、5.5 MeVの α 線に対して $22.1 \pm 0.21\%$ FWHM(半値幅)、0.662 MeV

の γ 線に対して $10.3 \pm 0.18\%$ FWHMでした。また、実測したエネルギースペクトルは同じ測定体系のモンテカルロシミュレーションの計算結果とよく一致しました。

また、ポータブル $\alpha/\beta/\gamma$ 線連続空気モニタリング装置を用いて、 ^{222}Rn (ラドン)濃度が約 $200 \text{ Bq}/\text{m}^3$ のコンクリート建物の地下において、 ^{222}Rn 濃度の連続測定を実施しました。その結果、 α 線、 β 線、 γ 線を正確に弁別測定することができ、かつ、 ^{222}Rn 及び ^{220}Rn の子孫核種である ^{212}Bi (6.1 MeV)、 ^{214}Po (7.7 MeV)、 ^{212}Po (8.8 MeV)のそれぞれのピークを検出することに成功しました。

$\alpha/\beta/\gamma$ 線を測定するには、従来は三つの検出器をそれぞれ使い分ける必要があり、連続モニタリング装置への適用に不向きでした。開発したモニタリング装置は、一つの検出器で α 線、 β 線、 γ 線を正確に弁別しエネルギースペクトルを測定できることから、廃止措置の施設や原子力施設等から放出される未知の放射性物質の早期検出に役立てることができそうです。

本研究は、日本学術振興会科学研究費若手研究(JP19K15482)「 γ 線バックグラウンド下で動作可能な遠隔 α 線空気モニタリング装置の開発」の支援を一部利用して実施されました。

(森下 祐樹)

●参考文献

Morishita, Y., Development of a Portable Alpha-Beta-Gamma Radioactive Material Continuous Air-Monitoring System, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, vol.1027, 2022, 166258, 7p.

1-9 光ファイバを用いた片側読み出し型放射線位置検出器の開発 —新分光システムによる光の波長分析により高感度位置検出を実現—

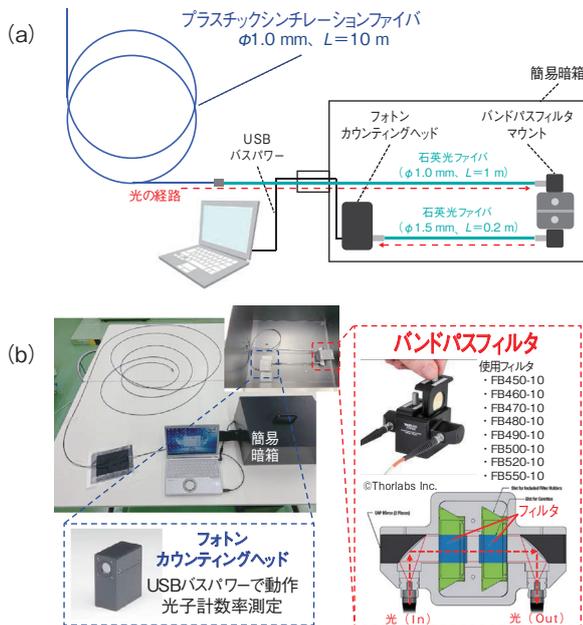


図1-19 光ファイバを用いた片側読み出し型放射線位置検出器 (a) 開発した検出器の構成、(b) 開発した検出器の写真を示します。プラスチックシンチレーションファイバの発光を石英光ファイバ、バンドパスフィルタを介して光子カウンティングヘッドにて受光します。これにより、検出効率の大幅な改善に成功しました。

私たちは東京電力福島第一原子力発電所（1F）廃炉作業環境における作業員の被ばく低減を目的とし、光ファイバを用いた放射性物質分布測定法の開発を行っています。光ファイバは本来の用途である光伝送路としての利用だけではなく、光ファイバそのものを放射線センサとするアプリケーションも多くあります。その代表例として、光ファイバ両端への光の到達時間差から光ファイバへの放射線入射位置を特定する飛行時間分析（Time-of-Flight: TOF）法があります。TOF法は光ファイバに沿って一次元的に放射線分布を測定可能であり、複雑かつ広範囲の汚染分布を一次元的ないしは二次元的に迅速に測定する場合に有用な手法ですが、原理上光ファイバ両端からの光読み出しが必須であるという問題があり、この点が設置自由度及び高線量率対応の点で制約となっていました。この点を解決するため、名古屋大学との共同研究により片側読み出し型光ファイバ放射線位置検出器を開発し、原理検証を進めてきました。本研究では分光に特定の波長の光のみを通すバンドパスフィルタと光電子増倍管を用いることにより片側読み出し型光ファイバ放射線位置検出器の検出効率を改善し、アプリケーションの幅を広げることを目指しました。

開発した検出器の構成を図1-19に示します。本検出器は放射線センサ部のプラスチックシンチレーション

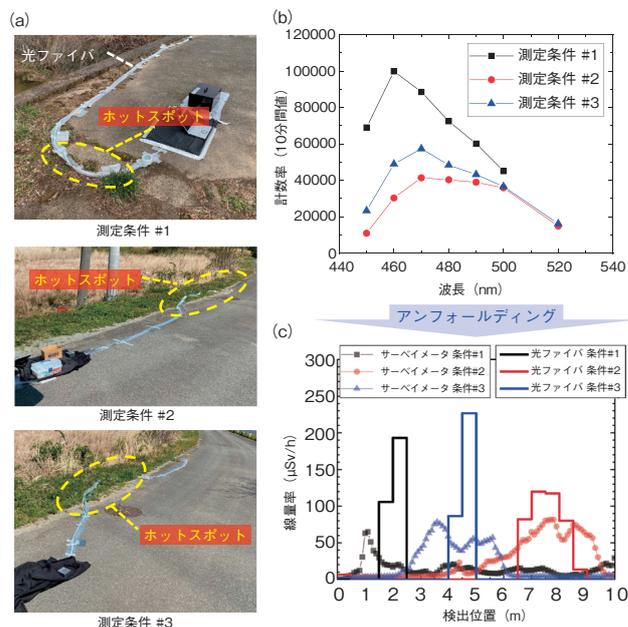


図1-20 福島県帰還困難区域屋外環境における実証試験 (a) 実証試験の様子、(b) フィルタごと・測定条件ごとに得られた計数率、(c) 実際の表面線量率とアンフォールディング結果の比較を示します。新たに開発した片側読み出し型光ファイバ検出器により、100 μSv/h以下のホットスポットを捉えることに成功しました。

ファイバの発光を、石英光ファイバ及びバンドパスフィルタを介して光子カウンティングヘッド（光電子増倍管）に注入し、光子計数率を測定します。ここで、バンドパスフィルタ（透過波長：450 nm、・・・、550 nm）を順次入れ替えることにより、光ファイバ内での光減衰波長依存性を反映した計数率スペクトルを得ることができます。これにより、アンフォールディング法（逆推定法の一つ）による片側読み出し型光ファイバ放射線位置検出器の高感度化を実現しました。福島県帰還困難区域屋外環境における実証試験の様子及び結果を図1-20に示します。実証試験の結果、3通りの測定条件についてサーベイメータとの比較で最大表面線量率100 μSv/h未滿のホットスポット位置を大まかに捉えることができ、これまでの検出下限である数十 mSv/hを大幅に改善できました。この片側読み出し型光ファイバ放射線位置検出器の検出効率改善及び実環境での実証は、今後の1F原子炉建屋内への実用化につながる有望な成果です。

本研究は、原子力機構「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」（JPJA19B19206529）の「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., First Demonstration of a Novel Single-End Readout Type Position-Sensitive Optical Fiber Radiation Sensor Based on Wavelength-Resolved Photon Counting, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, vol.1034, 2022, 166793, 6p.

1-10 廃炉現場の汚染分布を3次元マップで“見える化” — 見えない汚染を仮想空間で把握し、作業員の被ばくを低減 —

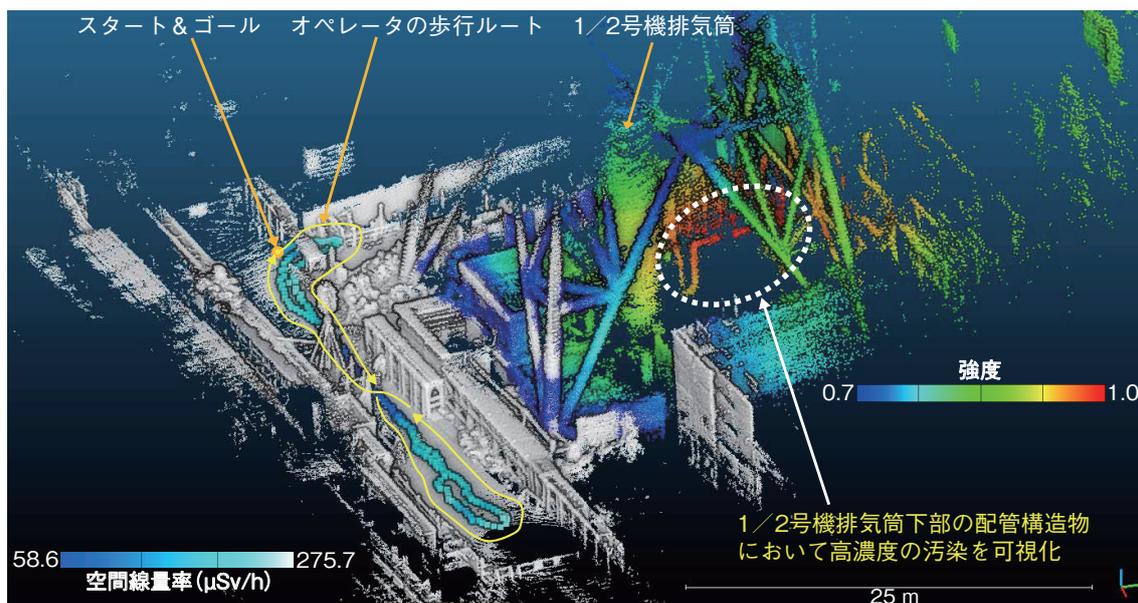


図1-21 1F1/2号機排気筒付近における空間線量率と高濃度汚染箇所を可視化した3次元マップ

実証試験では、iRISを携帯したオペレータが比較的線量率の低い通路を移動しながら測定を行いました。iRISのSLAM機器で取得した3次元モデル上に、コンプトンカメラで可視化した放射性物質のイメージと、サーベイメータで取得した線量率情報をカラー表示しました。歩行ルート上の線量率(図中左)と、コンプトンカメラで可視化した高濃度汚染箇所(図中右)をカラー表示しています。図中右のカラーバーの強度は、赤色に近いほど放射性物質が多く集積していることを示しています。これにより、1/2号機排気筒下部の配管構造物に高濃度の汚染を可視化しました。iRISを用いることで、短時間の測定により3次元の汚染状況を可視化することが可能となります。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故から11年と半年の歳月が経過しましたが、1F建屋内には作業員の立ち入りや長時間作業が困難な高線量率エリアが残されています。この作業現場において放射能汚染の分布を把握することは、作業員の被ばく低減や作業計画の立案を進める上で極めて重要です。

このような背景を踏まえて、作業環境の放射能汚染分布を3次元的に見える化する統合型放射線イメージングシステム[iRIS(アイリス):integrated Radiation Imaging System]を考案しました。これは、放射性物質を見える化するカメラであるガンマ線イメージャ、環境認識デバイス、ロボット並びにクロスリアリティ技術等、複数のセンサ・機器・可視化技術を統合することにより、遠隔にて放射能汚染の分布を3次元的に把握するというコンセプトのもとに創出したものです。

これまでに、ガンマ線イメージャの一種であるコンプトンカメラと、レーザ光を利用したSLAM(自己位置推定と環境地図作成の同時実行)機器を組み合わせ、移動しながら一度に作業環境の汚染分布をスキャンできるシステムを開発しました。この実証試験を、東京電力ホールディングス株式会社の協力のもと1F1/2号機の排気筒付近で実施しました。当該排気筒の下部は線量率が高く、作業員の進入や長時間の滞在が難しいエリアです。コンプトンカメラを用いた従来の定点測定(汚染の

2次元分布測定)では、高濃度汚染箇所の特定のためには複数点から対象エリアを測定しなければならず、コンプトンカメラの移動と測定を繰り返す必要がありました。一方でiRISでは、排気筒下部に進入することなく比較的線量率が低い通路上を歩行移動しながら連続的に測定を実施することにより、わずか5分未満でデータ取得を完了できました。さらに、SLAM機器で取得した作業現場の3次元モデルに、コンプトンカメラで取得した放射性物質のイメージをカラー表示することによって、高濃度汚染箇所(排気筒下部の配管)を可視化した汚染の3次元マップを描画することに成功しました(図1-21)。同時にサーベイメータの測定情報を組み合わせることにより、オペレータの移動ルート上の線量率もマップ上に表示できます。今後、さらに高線量率環境での利用を目的とし、原子炉建屋内部における実証試験を進めます。

本成果はプレス発表後に、複数の報告会や雑誌記事^{*1-2}で紹介しています。

(佐藤 優樹)

*1 佐藤優樹, 統合型放射線イメージングシステムの開発, 検査技術, vol.27, no.5, 2022, p.9-15.

*2 佐藤優樹, 統合型放射線イメージングシステム iRIS を用いた放射能汚染の3次元可視化, Isotope News, no.781, 2022, p.19-23.

●参考文献

Sato, Y. et al., Radiation Imaging Using an Integrated Radiation Imaging System Based on a Compact Compton Camera under Unit 1/2 Exhaust Stack of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.59, issue 6, 2022, p.677-687.

1-11 河川からの放射性セシウム流出にかかる大型台風の影響 —平成27年9月関東・東北豪雨と令和元年東日本台風の比較から—

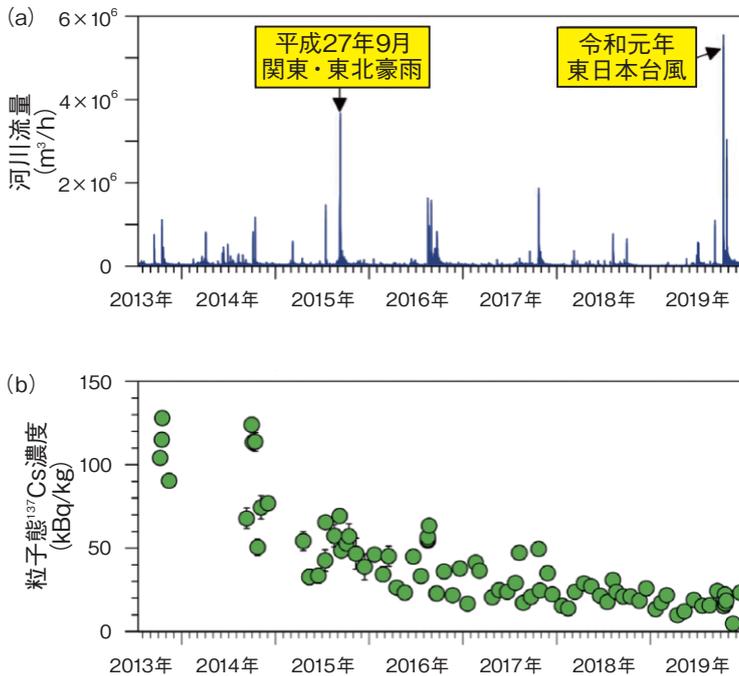


図1-22 河川流量と粒子態¹³⁷Cs濃度の推移

(a) 2013年秋から2019年末まで観測された請戸川の河川流量の推移から、平成27年9月関東・東北豪雨と令和元年東日本台風の出水規模の大きさが分かります。
(b) 同期間の河川水中の粒子態¹³⁷Cs濃度の観測結果からは、出水の影響によらず、時間とともに¹³⁷Cs濃度は低下していることが示されています。

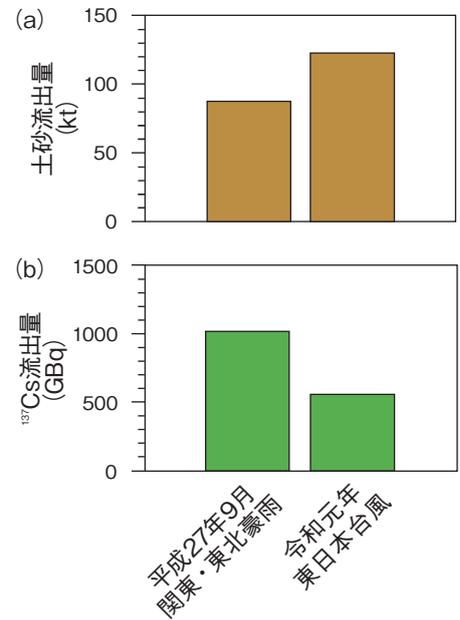


図1-23 平成27年9月関東・東北豪雨と令和元年東日本台風の流出量の比較

粒子態¹³⁷Cs濃度の低下によって、令和元年東日本台風の方が(a)土砂流出量が多いにもかかわらず(b)¹³⁷Cs流出量は少なくなりました。

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、現在も環境中を少しずつ移動しています。中でも、河川を経由した陸域からのCs流出は、生活圏や海洋への再移動となるため、定量的な評価結果を提供することが住民の安全・安心につながります。そのため原子力機構では、2017年末までの観測結果を基にした計算モデル「MERCURY」を開発し、河川からのCs流出量を評価できるようにしました。しかし、近年の豪雨災害の激甚化・頻発化が引き起こす想定外のCs流出でさえも計算モデルで予測可能なことを検証するためには、代表的な河川での継続観測が実証データとして欠かせません。本研究では、2019年10月に甚大な被害をもたらした「令和元年東日本台風」(東日本台風)によるCs流出を評価するとともに、それまで1F事故後最大の出水であった「平成27年9月関東・東北豪雨」(関東・東北豪雨)との比較を行いました。

原子力機構では、2013年秋より1F近傍の請戸川において河川流量と土砂流出量を連続観測するとともに、土砂に含まれるCsの濃度(粒子態Cs濃度)を定期的に測定しています。東日本台風による出水は、観測期間

中(2013年9月～2019年12月)で最大の河川流量を記録し(図1-22(a))、土砂流出量は年間土砂流出量の73%を占めました。関東・東北豪雨の出水時も年間流出量の85%を占めており、出水時の土砂流出がCs流出に強く影響することが分かります。一方で粒子態Cs濃度は、土砂流出の規模によらず、時間とともに低下していることも明らかになりました(図1-22(b))。そのため、関東・東北豪雨による出水時と比較すると、東日本台風時の土砂流出量は約1.4倍に増加しましたが(図1-23(a))、粒子態Cs濃度の低下により、Cs流出量は約半分減少しました(図1-23(b))。3年間で約半分に低下していく粒子態Cs濃度の変化傾向を考慮すると、今後発生が見込まれる数年～数十年に一度の大規模出水においても、Cs流出量は関東・東北豪雨や東日本台風と比べて少なくなると考えられます。

MERCURYで計算された東日本台風時のCs流出量(353GBq)は観測結果と整合しており、MERCURYの有用性も改めて確認されました。これからも継続観測とMERCURYの高度化を進めていく予定です。

(中西 貴宏)

●参考文献

Nakanishi, T. et al., Impact of Extreme Typhoon Events on the Fluvial Discharge of Particulate Radiocesium in Fukushima Prefecture, Journal of Coastal Research, special issue no.114, 2021, p.310-314.

1-12 セシウムを長期にわたり保持する地衣類の謎に迫る —計算化学が解き明かす代謝物とセシウムの錯体形成力—

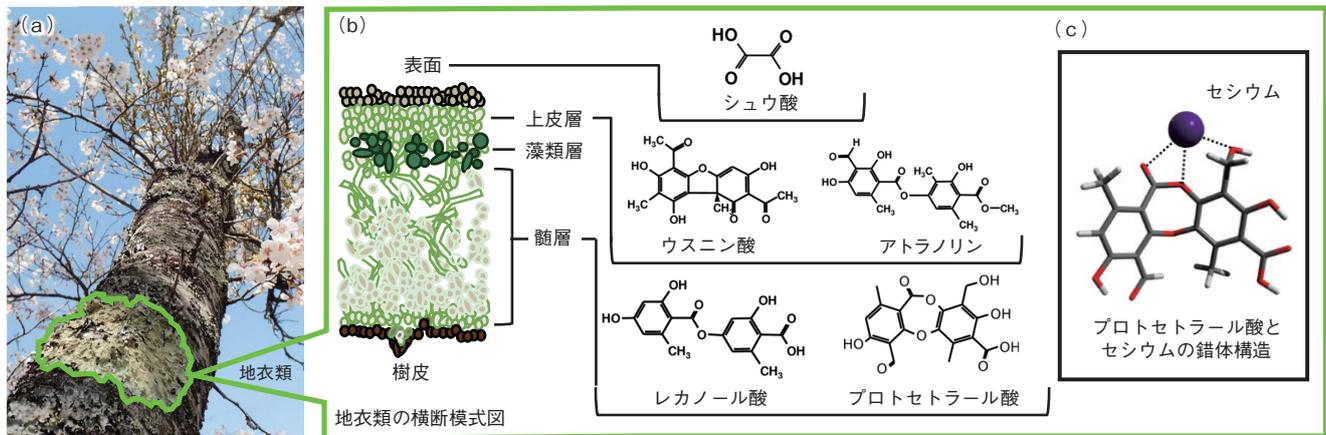


図1-24 地衣類：(a) その生息している姿と (b) 組織構造及び分泌される代謝物と (c) セシウムとの錯体構造
地衣類（キウメノキゴケ：サクラの樹幹に見られる緑色の着生物）が生息している様子 (a) とその内部構造の模式図を示します。ウメノキゴケなどでは、各層にて異なる代謝物を分泌します (b)。計算によると、上皮層の代謝物は水素が一つ脱離した状態、髄層の代謝物はそのままの状態、各々、セシウムを含むアルカリ金属元素と強い錯体形成力を示します。(c) は計算で得られたプロトセトラール酸とセシウムの錯体構造です。

地衣類とは菌類と藻類（またはシアノバクテリア）の共生体で、岩や樹木の幹表面（図1-24 (a)）のほか、家やビルの壁等にも見られ、身近な場所を注意深く観察すると、意外にも簡単に見つけることができます。このように、至るところに生息している地衣類は、他の生物と比べ、放射性セシウムを長期間にわたり保持する性質が以前から知られていましたが、その保持機構についてはほとんど分かっていません。もし、その保持機構が分かれば、どのような生物が放射性セシウムを長期間保持するのかについてのヒントが得られ、生態系での放射性セシウムの動態を理解する上で重要な知見になると考えられます。

本研究では、その謎を解き明かすため、地衣類内の菌類が生成する代謝物の一部が放射性セシウムと強く錯体を形成することで長期の保持が可能になるのでは？という仮説を立て、その検証を計算化学により試みました。

まず、福島で実際に放射性セシウムを保持していると確認されたウメノキゴケ類が産生する代表的代謝物を選び出し、その後、それらとセシウム及びその他のアルカリ金属元素との錯体形成力を、量子化学計算手法を用いて計算します。

しかし、室温かつ水中という生体内の環境では、出現する錯体構造は一つではなく複数現れるため、それらを効率良くかつ高精度に求める必要があります。この問題に対しては、2段階に計算を分ける手法、すなわち1段階では、精度は高くないが高速計算が可能で、錯体を取り得る複数の構造を取得し、2段階では、1段階で得られた複数の構造を基に高精度計算をスーパーコンピュータで並列に計算する手法を採用することで計算を

大幅に高速化し、多くの錯体構造を計算することに成功しました。

計算によると、上皮層で産生されるウスニン酸とアトラノリン（図1-24 (b)）では、水素が一つ脱離した状態でセシウムを含むアルカリ金属元素と強い錯体形成力を示す一方、髄層で産生される代謝物のレカノール酸とプロトセトラール酸では、水素が脱離しないそのままの状態で強い錯体形成力を示します。特に、プロトセトラール酸では、計算で得られた錯体構造（図1-24 (c)）から、セシウムが三つの赤い部分で示された酸素と配位し、最も強く錯体を形成することが分かりました。これらの結果が意味することは、地衣類がアルカリ金属元素を含む中性～弱アルカリ性の水と接した場合は、上皮層の代謝物が水素を脱離させ、強くアルカリ金属と錯体を形成する一方、弱酸性～中性の水の場合、髄層の代謝物がアルカリ金属と強く錯体を形成できることを示しており、地衣類は性質の異なる水と接してもセシウムを含むアルカリ元素を十分に保持できる能力を失わないことが示唆されました。

以上、実験・観察による研究が困難なため、放射性セシウムの長期にわたる保持機構は謎とされてきましたが、本研究により、環境の変化に応じ、複数の代謝物が適材適所で、その保持に関与しているという可能性が示唆されたことから、地衣類のセシウム保持機構の解明に一步近づけたと考えています。今後は、他の生物についても同様の手法を用いて、セシウム保持だけでなく、代謝物一般の機能についても調べ、生命の不思議を紐解くことに貢献したいと考えています。

(町田 昌彦)

●参考文献

Suno, H., Machida, M. et al., Quantum Chemical Calculation Studies toward Microscopic Understanding of Retention Mechanism of Cs Radioisotopes and Other Alkali Metals in Lichens, Scientific Reports, vol.11, 2021, 8228, 13p.

1-13 長半減期放射性核種テクネチウム 99 を迅速に測定する — 固相抽出とガス反応を組み合わせ、ICP-MS での迅速分析を実現 —

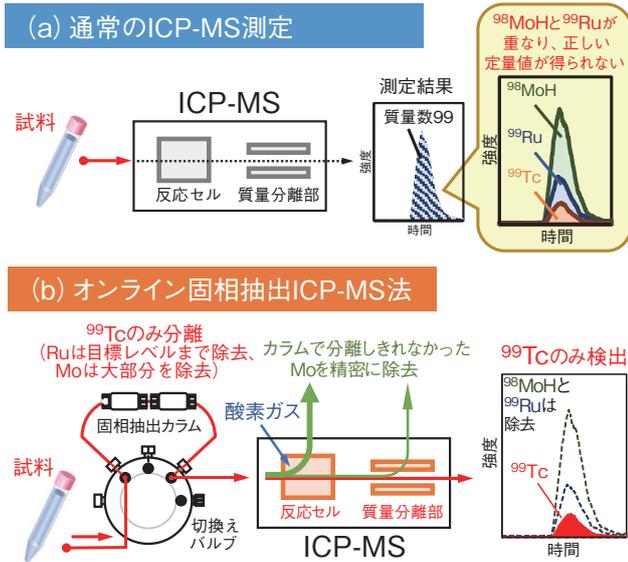


図1-25 (a) 通常のICP-MS測定と (b) 開発したオンライン固相抽出ICP-MS法

通常のICP-MSによる ^{99}Tc 測定は、同じ質量数である ^{99}Ru や ^{98}MoH が定量を阻害するため正しい値を求めることはできませんでしたが、開発した手法は ^{99}Ru や ^{98}MoH の分離機構をシステム内に組み込むことにより、 ^{99}Tc のみの検出が可能になりました。

テクネチウム 99 (^{99}Tc) は、ウラン 235 (^{235}U) などの核分裂時にセシウム 137 (^{137}Cs) やストロンチウム 90 (^{90}Sr) と同等の収率 (約 6%) で発生する半減期 21 万年のベータ線放出核種です。海洋中での移動度が高い一方、特定の海藻に蓄積することが知られています。海外の再処理施設では年間放出量と海藻中の ^{99}Tc 濃度の傾向が類似していることを確認しており、海洋動態研究の指標核種としての利用が期待されますが、日本には公定分析法がありません。よって、本研究では、 ^{99}Tc の環境動態調査に向けた分析手法の開発を行いました。

一般的に行われていた ^{99}Tc の放射能分析 (^{99}Tc の場合、ベータ線を測定します。) は他のベータ核種を全て分離する必要があり、その前処理に多大な労力と時間を要します。加えて、放射能分析では感度が低いため、極微量の ^{99}Tc を分析するには大量の試料を濃縮する必要があります。そのため、今回は少ない試料量で高感度に分析可能な誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS) を用いて分析法の開発を行いました。ICP-MSは特定の質量数を持つ元素の濃度を精密に測定でき、 ^{99}Tc の場合は質量数 99 を測定します。しかし、ICP-MSでは同じ質量数 99 を持つ安定同位体のルテニウム 99 (^{99}Ru) と、装置内でモリブデン 98 (^{98}Mo) に水素が付加した ^{98}MoH という物質が ^{99}Tc と同時に検出されてしまい、正しい定量値が得られない問題がありました (図 1-25 (a))。そこで、 ^{99}Tc を選択的に吸着する樹脂を充てんした固

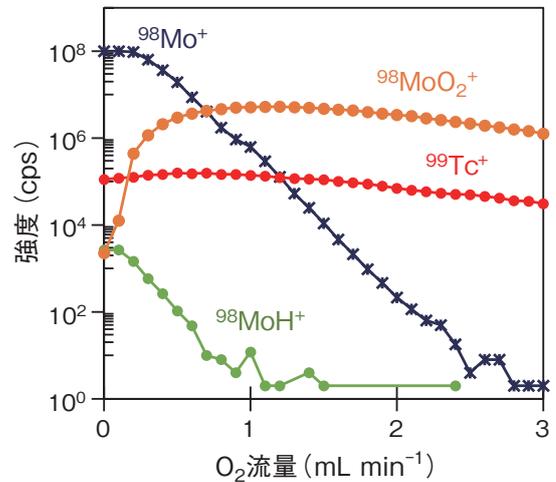


図1-26 ICP-MSの反応セル内での酸素に対する ^{98}Mo 及び ^{99}Tc の反応挙動

^{99}Tc が酸素とほとんど反応しないのに対し、 ^{98}Mo と ^{98}MoH は大部分が $^{98}\text{MoO}_2$ へと酸化され、質量分離が可能となりました。この化学反応を利用して、 ^{98}Mo が過剰に存在する試料でも ^{99}Tc を正しく定量できるようになりました。

相抽出カラムとICP-MS内の反応セル内に酸素ガスを導入する (従来、 ^{99}Tc 分析に反応セルは利用されていませんでした。) といった多段階分離機構を組み込んだ分析システムを構築し、干渉物質の効率的な分離を試みました (図 1-25 (b))。固相抽出カラムは条件を最適化することにより、 ^{99}Tc に対して、 ^{99}Ru を4000分の1以下、 ^{98}Mo を3000分の1以下にまで除去しました。しかし、日本の海水の分析例を見ると ^{99}Tc に対して ^{99}Ru は400倍以上、 ^{98}Mo は16億倍以上存在しており、固相抽出のみでは ^{98}Mo の分離率が不足していることが分かりました。次に、ICP-MS内の反応セル内に酸素ガスを導入すると ^{99}Tc はほぼ反応せず、 ^{98}Mo 及び ^{98}MoH は酸化して主に $^{98}\text{MoO}_2$ (質量数 130) に変換することから、質量分離が可能になりました (図 1-26)。これらの結果から、固相抽出と酸素ガスによる化学反応を一つのシステムとして併用することで、 ^{99}Tc に対して ^{98}Mo が1兆倍含まれる試料でも、 ^{99}Tc の精密な測定が可能になりました。

本法で海水の放射能標準物質に含まれる ^{99}Tc を分析し、報告値 (159 ~ 250 mBq/L) に対して、 200.1 ± 9.6 mBq/Lと誤差範囲を含めて報告値の範囲内に入っており、本分析法の妥当性を確認しました。本分析法は1検体当たり30分以内で分析可能であり、多検体処理を必要とする広域での環境動態調査における貢献が期待されます。
(松枝 誠)

●参考文献

Matsueda, M. et al., Online Solid-Phase Extraction-Inductively Coupled Plasma-Quadrupole Mass Spectrometry with Oxygen Dynamic Reaction for Quantification of Technetium-99, ACS Omega, vol.6, issue 29, 2021, p.19281-19290.

1-14 レーザーを用いて微量 Sr 同位体を選択的に検出 —同重体及び安定同位体を多く含む試料の前処理簡略化に貢献—

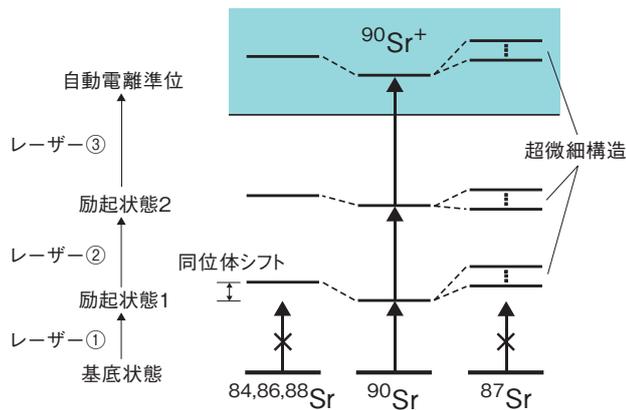


図 1-27 ⁹⁰Sr の元素・同位体選択的レーザー共鳴イオン化
Sr 原子のエネルギーレベルは元素固有のものですが、同位体間においても同位体シフト及び超微細構造 (⁸⁷Sr のみ) によりわずかに異なります。したがって、レーザーの波長を微調整することで、⁹⁰Sr 原子のみを同位体選択的にイオン化することができます。

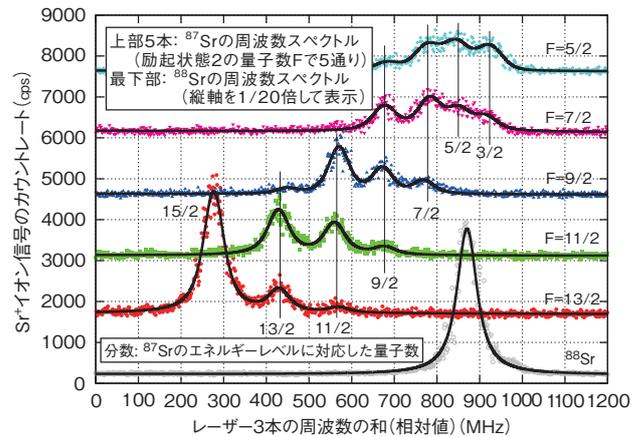


図 1-28 観測された ⁸⁸Sr 及び ⁸⁷Sr の周波数スペクトル例
表 1-2 のスキーム (B) において、レーザー①、②により励起状態 2 に遷移させて、レーザー③の周波数をスキャンして観測された ⁸⁸Sr 及び ⁸⁷Sr のスペクトルです。⁸⁷Sr のみ自動電離準位の超微細構造に起因するエネルギーレベルの分裂が観測されています。

表 1-2 レーザー共鳴イオン化時の Sr 安定同位体 (⁸⁴Sr、⁸⁶Sr、⁸⁷Sr、⁸⁸Sr) に対する ⁹⁰Sr の光学的同位体選択性
2 種類のレーザー共鳴イオン化スキーム：(A) 689.4 nm-487.4 nm-393.8 nm 及び (B) 689.4 nm-472.4 nm-404.2 nm について、Sr 安定同位体に対する ⁹⁰Sr の光学的 (質量分析を含まない) 同位体選択性を評価し、 $10^3 \sim 10^5$ 程度と高い値が得られました。

スキーム	⁸⁴ Sr	⁸⁶ Sr	⁸⁷ Sr	⁸⁸ Sr
(A)	4×10^5	1×10^4	2×10^5	5×10^3
(B)	6×10^5	3×10^3	2×10^5	1×10^4

2011 年に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故では、大量の放射性物質が環境中に放出されました。ストロンチウム 90 (⁹⁰Sr、半減期 28.8 年) はその主要な放射性核種の一つであり、カルシウムと同じアルカリ土類金属元素であるため、体内に摂取した際の骨組織への沈着による内部被ばくの問題が指摘されています。

⁹⁰Sr の分析手法は、大きく放射線計測手法と質量分析手法に分けられます。前者は、⁹⁰Sr の娘核種であるイットリウム 90 (⁹⁰Y) との放射平衡まで数週間放置し ⁹⁰Y から放出される β 線を測定する方法が代表的ですが、この方法では放射平衡に時間を要し迅速分析は難しいと考えられています。後者は、⁹⁰Sr をイオン化して直接計測する方法ですが、広く使用されている誘導結合プラズマ質量分析法では ⁹⁰Y の娘核種で ⁹⁰Sr と同じ質量数のジルコニウム 90 (⁹⁰Zr) による同重体干渉、及び Sr 安定同位体を多く含む試料では質量数の近い ⁸⁸Sr の質量スペクトル干渉を抑制するため、試料条件により複雑な前処理過程が要求されることがあります。

本研究では、図 1-27 のとおり ⁹⁰Sr 原子のエネルギーレベルに合わせて波長を微調整した 3 本の半導体レーザーにより ⁹⁰Sr 原子のみを元素・同位体選択的にイオン化 (レーザー共鳴イオン化) する手法に着目し、四重

極質量分析計を用いて Sr⁺ イオンを計測する装置を開発しました。高い同位体選択性が期待される 2 種類のイオン化スキーム：(A) 689.4 nm-487.4 nm-393.8 nm 及び (B) 689.4 nm-472.4 nm-404.2 nm について、Sr 安定同位体の同位体シフト (⁸⁴Sr、⁸⁶Sr、⁸⁷Sr、⁸⁸Sr) 及び超微細構造に起因するエネルギーレベルの分裂 (⁸⁷Sr のみ) を観測しました。図 1-28 は、スキーム (B) のレーザー③ (波長 404.2 nm) の周波数をスキャンして観測された ⁸⁸Sr 及び ⁸⁷Sr のスペクトル例です。これらの分光データをもとに、Sr 安定同位体各々に対する ⁹⁰Sr の光学的 (質量分析を含まない) 同位体選択性を評価し、表 1-2 のとおり $10^3 \sim 10^5$ 程度と高い値が得られました。本手法により、特に ⁹⁰Zr 及び Sr 安定同位体を多く含む土壌試料及び海洋試料等の分析において、既存の質量分析法と比較して試料の前処理過程の大幅な簡略化が期待されます。

本研究の一部は、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」(JPJA18B18071760) の「レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム 90 の迅速分析技術開発」の助成を受けたものです。

(岩田 圭弘)

●参考文献

Iwata, Y. et al., Isotope Shift and Hyperfine Structure Measurements on Triple Resonance Excitation to the Autoionizing Rydberg State of Atomic Strontium, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, vol.275, 2021, 107882, 9p.

1-15 無人ヘリによるホットスポット可視化の信頼性向上を目指して —飛行条件を考慮したデータ選択によって検出精度を改善—

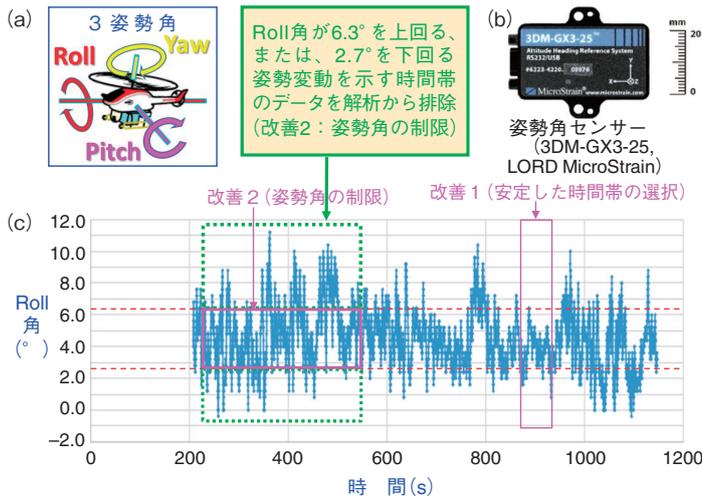


図1-29 測定システムへの追加機能：姿勢角センサー
測定システムに装備した無人ヘリの姿勢角 (a) を記録する姿勢角センサー (b) 及び Roll 角の経時変化 (c) を示します。測定時間内に角度が変化することで、手振れ写真のように画像が劣化しました。解析手法の改善1 (安定した時間帯の選択)、改善2 (姿勢角の制限) に使用した範囲も示しました。

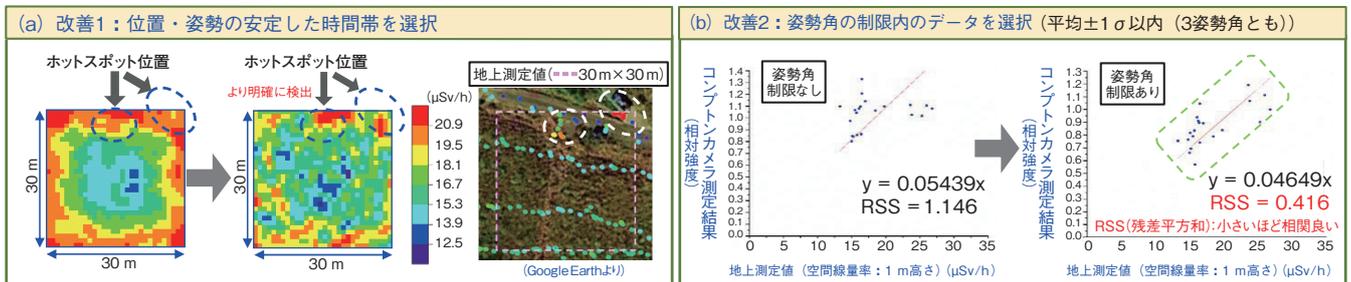


図1-30 飛行条件を考慮したデータ選択による周辺線量当量率マップの改善例

(a) 改善1：位置・姿勢の安定した時間帯を選択した場合の周辺線量当量率マップの変化、(b) 改善2：姿勢角を制限した場合の地上測定値との相関の変化を示します。これらの改善により、ホットスポット (破線楕円内) の検出精度が向上しました。

東京電力福島第一原子力発電所事故により広範囲に放出された放射性セシウム等による汚染状況の的確な把握や除染作業の効率化のためには、上空から広範囲を迅速に移動測定できる無人ヘリコプター (無人ヘリ) の活用が期待されます。汚染分布を撮影できるコンプトンカメラが地上で用いられていましたが、私たちは無人ヘリ搭載コンプトンカメラシステムを開発して福島県の高線量率地域において測定試験を行ってきました。ただ放射線の入射する角度が重要となるコンプトンカメラの測定では、上空の風の強い状況下での姿勢の不安定さのため測定精度が低下するという課題がありました。そこで、本研究では風に流されてもすぐに戻るといった自律航行型無人ヘリの特性に注目し、小型カメラ、レーザー距離計、姿勢角センサー (図1-29 (b))、温度センサー、及び計数率と飛行位置をリアルタイム表示するソフトウェアをコンプトンカメラシステムに追加装備し、姿勢角や位置等の飛行条件をより適切に記録することにより、ホットスポット検出等の測定精度の改善を試みました。

福島県大熊町の野外で無人ヘリ R-MAX G-I にそのコンプトンカメラシステムを搭載して測定を行いました。地上値測定で事前に判明したホットスポット付近の上空約 20 m の定位置からガンマ線源画像撮影を行うホバリングフライトによる測定 (約 15 分間) を行いました。

その結果から、地上 1 m 高さの周辺線量当量率マップを得て、地上でサーベイメータを用いて歩行測定した値

と比較しました。15 分間のフライト中、姿勢角は時々大きく乱れていました (図1-29 (c))。そこで、より精度良く線源位置を特定するために、次の二つの改善を各々実施しました。改善1では15分間の全測定データを使った時に比べて、比較的姿勢が安定していた約1分間 (図1-29 (c)、870～934秒) のデータを用いると、エリア右上のホットスポットを確認しやすくなりました (図1-30 (a))。また、改善2では姿勢が不安定な時間帯 (図1-29 (c)、224～546秒) でも、姿勢角が所定の範囲内に入っているときのデータのみを使うと、改善1と同様にホットスポットを確認しやすくなりました。測定結果と地上測定値との相関を表す指標としての残差平方和 (RSS) は、低線量率から高線量率までの全線量率範囲で分布が回帰直線に近い (相関が良い) ほど値が小さいですが、改善2により1.15から0.42へ減少 (図1-30 (b)) したことは、測定結果と地上測定値との相関の改善を示しています。線量換算時の直線性が良いと、地上測定値の再現性が良くなります。高線量率域までの再現性がホットスポット検出に重要で、検出精度の向上を示しています。

このように、飛行条件を考慮したデータ選択を解析に取り入れることで、ホットスポットの検出精度や周辺線量当量率分布の測定精度が改善されることが分かりました。これらの成果は今後の上空からのホットスポット検出や汚染分布測定において活用が期待されます。

(志風 義明)

●参考文献

Shikaze, Y. et al., Improvement of Analysis Results from the GAGG Scintillator Compton Camera Operated on an Unmanned Helicopter by Selecting Stable Flight Conditions, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.59, no.1, 2022, p.44-54.

1-16 事故後の空气中セシウム濃度の減少傾向を調査する — 国のモニタリング結果から減少速度を評価 —

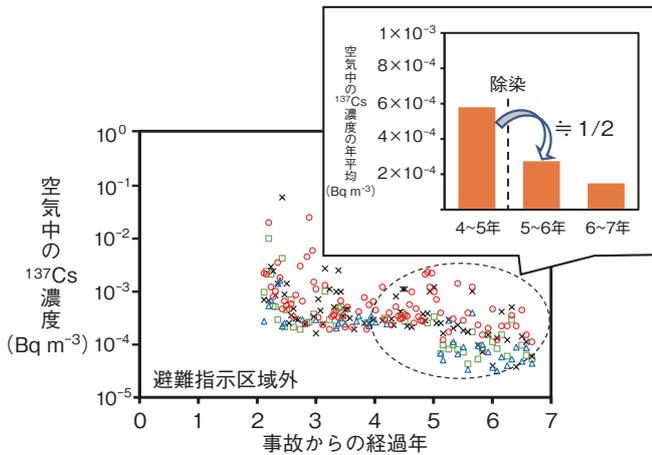


図1-31 空气中¹³⁷Cs濃度の経時変化

避難指示区域外における調査地点4か所で測定した空气中¹³⁷Cs濃度の経時変化から、いずれの地点においても減少傾向であることが確認されました。また、事故後5年以降、空气中¹³⁷Cs濃度が除染によって急速に減少し、半分程度まで減少したことが分かりました。

2011年3月に発生した東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故後の住民の内部被ばく評価の観点から、空气中の放射性セシウム(¹³⁷Cs)濃度のモニタリングが継続的に行われています。発電所からの放出がなくなった現在において、大気中への¹³⁷Csの主要な供給源は、地表面からの再浮遊と考えられています。測定しにくい空气中の¹³⁷Cs濃度を、測定しやすい地表面の¹³⁷Cs沈着量で除して求められる再浮遊係数(RF)を評価しておくことは、広域に情報を得られやすい地表面の¹³⁷Cs沈着量から空气中の¹³⁷Cs濃度を容易に推定することができ、広域を対象とした内部被ばく評価に有効です。

本研究では、そのようなRFの事故後の長期的な変動傾向の特徴を評価するために、原子力規制庁が1F事故後から継続的に実施し、広く公開している空气中の¹³⁷Cs濃度測定結果を解析しました。また、その結果をチェルノブイリ事故時の既報結果と比較しました。また、データを人の出入りが制限されていた避難指示区域の内側と外側で比較することにより、人為的活動の影響を評価しました。

空气中の¹³⁷Cs濃度の測定は、2013年5月から2017年11月まで、避難指示区域内2か所及び避難指示区域外4か所で、1か月ごとに実施されました。地表面の¹³⁷Cs沈着量は、文部科学省による第3次航空機モニタリング調査に基づいて再評価された¹³⁷Cs沈着量の分布図のデータを用いました。

空气中の¹³⁷Cs濃度測定結果は、観測期間中の全ての地点において、時間とともに減少する傾向を示しました。特に避難指示区域外では、事故後5年以降において、急速な減少が見られましたが、これは除染の影響による

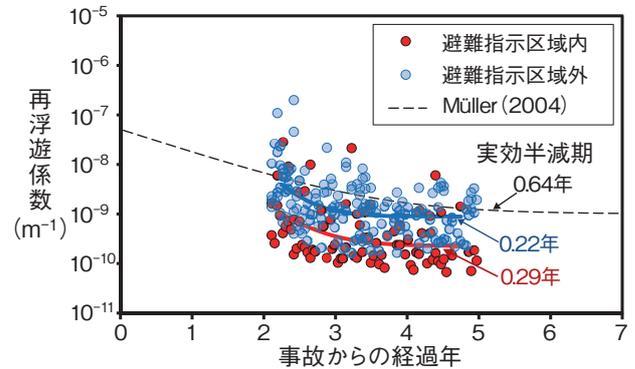


図1-32 再浮遊係数の経時変化と実効半減期

除染前の再浮遊係数(地表面から空气中へ飛散する割合)は、実効半減期(係数が半分になるまでの期間)と比較すると、避難指示区域内(0.29年)よりも避難指示区域外(0.22年)の方が速く、また、福島の方がチェルノブイリ事故の時(0.64年)より速く減少することが分かりました。

ものと考えられます。(図1-31)。除染以外の人為的活動の影響を評価するため、事故後2年から除染が行われる前の事故後5年までの期間におけるRFの変動傾向を単指数関数モデルにフィッティングして比較しました(図1-32)。避難指示区域内外で比較すると、避難指示区域外の方がRFは高く、実効半減期が速いことが分かりました。避難指示区域内は風などの自然現象由来の再浮遊が主な要因であることに対して、避難指示区域外は自然現象由来に加え、人為的活動由来の再浮遊があるためだと考えられます。避難指示区域外でRFの減少が速いのは人為的活動で再浮遊するような成分の減少が速いためであり、人為的活動で特に再浮遊が起こりやすい場所(道路、農地など)では、再浮遊する¹³⁷Cs濃度の減少が速いことを示唆しています。

また、本研究で得られたRFの変動傾向についてチェルノブイリ事故の既報の報告結果と比較しました(図1-32)。本研究でモデル化した福島のRFの半減期は、本研究と同じ単指数関数モデルで示されたMüller*の結果よりも短く、特に避難指示区域外はその傾向が顕著であることが分かりました。

これらの知見は、福島における被ばく評価の推定に活用できるだけでなく、地表面の汚染がある場所における今後の内部被ばく評価のパラメータ決定に重要な知見であると考えられます。

(阿部 智久)

* Müller, H. et al., Model Description of the Terrestrial Food Chain and Dose Module FDMT in RODOS PV6.0, RODOS(RA3)-TN(03)06, 2003, 55p.

●参考文献

Abe, T. et al., Temporal Change in Atmospheric Radiocesium during the First Seven Years after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident, Aerosol and Air Quality Research, vol.21, issue 7, 2021, 200636, 11p.

1-17 町では空間線量率が早く下がる理由とは？ —放射性セシウムの挙動から見てくる低減効果—

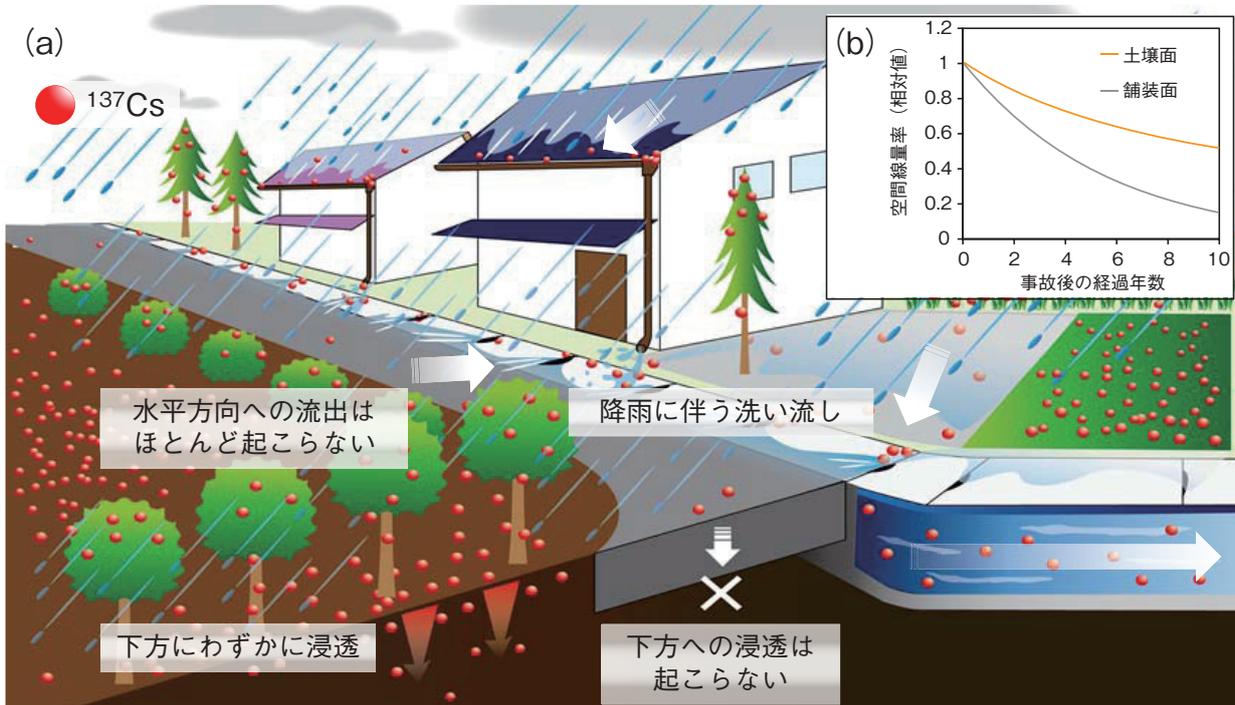


図1-33 (a) 市街地における¹³⁷Csの挙動(概観図)、及び(b)¹³⁷Csの挙動を考慮して推定した空間線量率の減少傾向
市街地の地表は主に土壌面のほか、舗装面や家屋といった人工面により覆われます。¹³⁷Csの深度方向への浸透や、降雨に伴う水平方向への流失といった挙動は土壌面と人工面とで異なり、空間線量率の減少傾向に影響します。

市街地における空間線量率の減少傾向を理解することは、将来的な被ばく線量の予測や東京電力福島第一原子力発電所周辺の避難指示区域解除を判断する上で重要です。これまでの研究により、空間線量率は森林や農地といった他の土地利用よりも、市街地で早く減少することが報告されていますが、そのメカニズムは分かかっていませんでした。そこで本研究では、これまでの研究を集約し、主な線源となる放射性セシウムの市街地における挙動について体系的に整理するとともに、その挙動と空間線量率の減少傾向との関係について評価しました。

市街地は森林や農地といった他の土地利用と異なり、土壌面に加えてその地表を舗装面や家屋といった人工面が覆います。空間線量率は、放射性核種(特に放射性セシウム)の放射性崩壊により減少します。また、地表にある放射性核種の下方への浸透に伴う、土壌による遮蔽効果の増加や、降雨に伴う水平方向への流失といった挙動によっても減少します。放射性崩壊は普遍的に生じる一方、これらの放射性核種の挙動は、土壌面と人工面で異なります。図1-33(a)に市街地における¹³⁷Csの挙動を表した概観図を示します。市街地の土壌面の多くは公園や庭の平坦地であり、平坦地では土壌浸食の影響を受けないため、降雨時でも水平方向への流出はほとんど起こりませんが、下方への浸透がわずかに起こります。

これに対し、舗装面では、下方への浸透はほとんど起こりませんが、降雨に伴い表面の¹³⁷Csが洗い流されるため、時間とともに沈着量が減少します。このように、空間線量率の減少に対して土壌面では放射性セシウムの下方への浸透が、人工面では水平方向への洗い流しが寄与することが分かります。

これまでに報告されている、平坦な土壌面における¹³⁷Csの下方への移動速度、及び舗装面における¹³⁷Cs沈着量の減少速度を元に、空間線量率の経時的な減少を計算しました(図1-33(b))。空間線量率は、舗装面より土壌面よりも速やかに減少し、舗装面では事故から10年後の時点で土壌面の約31%の値を示しました。以上の結果は、土壌面における下方への浸透よりも、人工面における流失の方が空間線量率の低減効果が大きいことを示しています。舗装面などの人工面は、市街地の主要な被覆要素です。そのため人工面の存在が、他の土地利用よりも早い空間線量率の低減に寄与しているものと考えられます。

本研究の一部は、環境省委託事業「令和3年度放射線健康管理・健康不安対策事業(放射線の健康影響に係る研究調査事業)」において得られた成果です。

(吉村 和也)

●参考文献

Yoshimura, K., Air Dose Rates and Cesium-137 in Urban Areas—Deposition, Migration, and Time Dependencies after Nuclear Power Plant Accidents, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.59, issue 1, 2022, p.25-33.

原子力安全と原子力災害対応の継続的改善に向けて

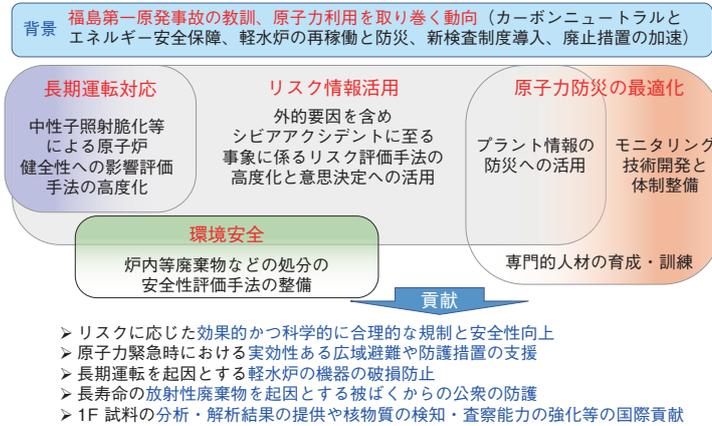


図2-1 安全研究・防災支援の主な取組

1F 事故の教訓等を踏まえ、原子力安全と原子力災害対応の継続的改善に貢献するため、外的事象を要因とするシビアアクシデントに至る事象のリスク評価研究を始め、原子力防災対応、長期運転対応研究、環境安全研究を柱とした活動を行っています。

安全研究・防災支援部門では、東京電力福島第一原子力発電所（1F）事故の教訓等を踏まえた安全研究に加え、災害対策基本法等に基づく指定公共機関としての緊急時への対応や、平常時の備えとしての研修等を行っています。具体的には、図2-1に示すように、設計基準を超えるシビアアクシデントに至る事象を対象としたリスク評価研究、原子力防災研究を通じた実効性のある広域避難や防護措置の支援、実機材等を利用した安全上重要な設備の中性子照射脆化等に関する長期運転対応研究、1F 廃棄物の処分や中深度処分を対象とした環境安全研究を柱とした活動を行っています。これらの活動を通して、原子力規制行政への技術的支援を行うとともに、関係行政機関及び地方公共団体の原子力災害対策の強化に貢献しています。

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。このほか、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、経済協力開発機構／原子力機関（OECD/NEA）の国際共同プロジェクトとして、原子力機構が運営機関を務める 1F 事故情報の分析・事故

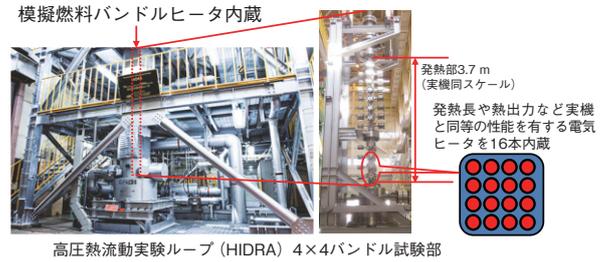


図2-2 高圧熱流動実験ループ（HIDRA）

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。

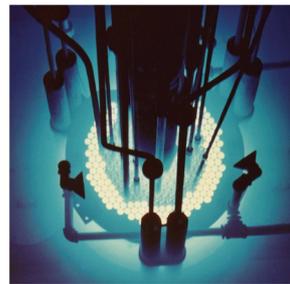


図2-3 原子炉安全性研究炉（NSRR）

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。

解析等を進めています。

原子力防災分野では、原子力災害発生時の屋内避難の被ばく低減効果の評価等、緊急時における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、原子炉施設内での配管破断時の漏水により機器が水没し、その安全機能が失われることで炉心損傷に至るリスクの評価（トピックス 2-1）、原子炉事故時の格納容器内の気体の流れに関する大型模擬装置を活用した実験と解析による評価（トピックス 2-2）、原子炉事故時の燃料デブリの冷却性評価のためのデブリ形態の予測（トピックス 2-3）、原子力災害時の日本家屋での屋内避難の有効性評価（トピックス 2-4）、経年劣化した原子炉配管の地震に対する破損確率の評価（トピックス 2-5）、原子力発電所の廃炉で発生するアスベスト廃棄物の処理・処分時の被ばく線量評価（トピックス 2-6）に関する成果について紹介します。

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 事故により周辺地域に放出された放射性物質の汚染状況を無人ヘリコプターで測定する際の精度向上の取組み（トピックス 1-15）に関する成果を第 1 章に記載しています。

2-1 外的事象による原子炉リスクの特性を把握する —動的アプローチによる溢水起因リスクの確率論的評価—

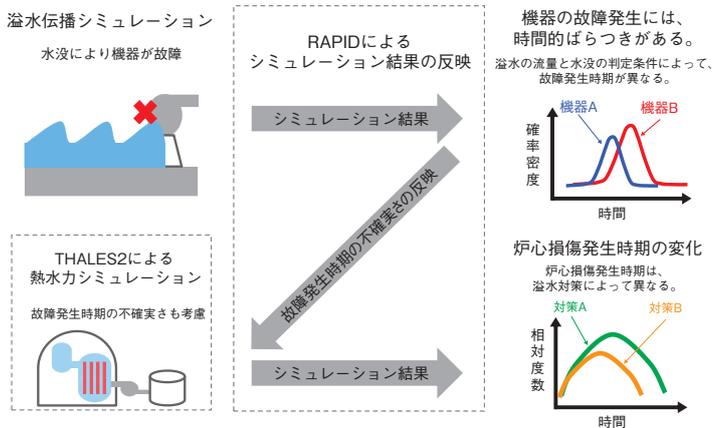


図2-4 不確実さを考慮した溢水伝播シミュレーション結果の熱水力シミュレーションへの反映

溢水伝播シミュレーションによって得られる機器の水没による故障発生時期の確率分布を熱水力シミュレーションに反映することにより、溢水伝播（浸水が隣接する部屋に広がっていく現象）によるプラント応答を考慮した動的確率論的リスク評価（動的PRA）を実施しました。

「リスク」は、安全に関わる重要な指標です。原子炉のリスクの算出には、通常、機器の故障による影響を樹形状の図によって整理する確率論的リスク評価（Probabilistic Risk Assessment: PRA）手法が用いられ、地震や津波のような外的事象を含むケースにも適用されます。得られたリスクに関する情報（例えば、原子炉の炉心が損傷する頻度）は、継続的な安全性の向上等に向けた様々な意思決定に活用することができます。原子力機構は、先進的なPRA手法の一つである動的PRA手法を整備しており、その一環として本手法において中心的な役割を果たすツールであるRAPID（Risk Assessment with Plant Interactive Dynamics）を開発しています。動的PRAは、従来のPRAで用いられる樹形状の図に多様なシミュレーションを連携させます。それにより、従来のPRAで考慮が難しい機器の故障発生タイミング等の時間的影響をモデル化できます。特に、原子力施設内の配管破断等により生じる浸水によって機器の故障が生じる事象（溢水）の評価に動的PRAを使うことで、溢水が隣接する部屋に広がっていく現象（溢水伝播）による機器の故障発生時期や、そのプラント応答への影響を詳細に考慮できます。

そこで、本研究では、図2-4のように、RAPIDを用いて溢水伝播シミュレーションの結果をシビアアクセシブル総合解析コードTHALES2による熱水力シミュレーションへ反映し、加圧水型原子炉のタービン建屋内で発生する溢水の動的PRAを実施しました。事故の影響を緩和する対策として、①運転員による溢水源の隔離

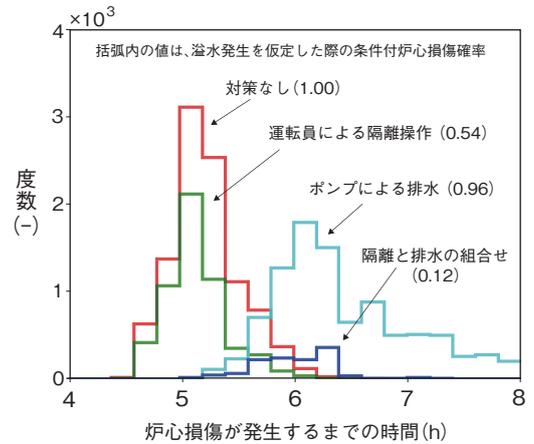


図2-5 対策による炉心損傷発生時間の変化

隔離操作や排水操作を行った場合に、炉心損傷が発生するまでの時間に対する度数分布の変化を示しています。従来の静的PRAでは、このような時間依存性の情報は得られません。

操作と②ポンプによる排水の二つの対策を考慮し、溢水の発生から炉心損傷するまでの時期や炉心損傷する確率への影響を評価しました。

評価結果として、上記二つの対策を講じた場合の溢水発生から炉心損傷が発生するまでの時間の変化を図2-5に対策別に示します。ここでは、モンテカルロ法による10,000回の試行を行いました。運転員によって隔離操作を行った場合は、後期に生じる水没による機器の故障を回避させ、5時間以降に生じる炉心損傷を効果的に低減します。また、ポンプを使って排水した場合は、水没による機器の故障発生時期を遅らせ、炉心損傷発生時期を遅らせます。それらの二つの対策を併せて行えば、相乗効果によって、より効果的に炉心損傷を回避させ、溢水発生を仮定した際の条件付炉心損傷確率を1桁程度低減させることが分かりました。このことは、動的PRAにより、溢水による機器の故障発生時期を詳細に考慮したリスク評価が可能であることを示しています。

このようなリスク評価の結果により、施設のリスク特性をより詳細に理解でき、効果的な安全対策の策定等の意思決定が可能になります。今後は、溢水以外の事象を対象としたリスク評価にも取り組み、様々な対策の効果等を検証していきます。

本研究の一部は、東京大学のスーパーコンピューターOakbridge-CX並びに原子力機構のスーパーコンピューターICE X及びHPE SGI 8600を利用して実施しました。

（久保 光太郎）

●参考文献

Kubo, K. et al., Simulation-Based Dynamic Probabilistic Risk Assessment of an Internal Flooding-Initiated Accident in Nuclear Power Plant Using THALES2 and RAPID, Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part O: Journal of Risk and Reliability, 2022, 11p., doi.org/10.1177/1748006X221091604

2-2 軽水炉事故時の格納容器内の流れを把握する — 外面冷却と初期密度成層の位置関係による物質輸送挙動の変化 —

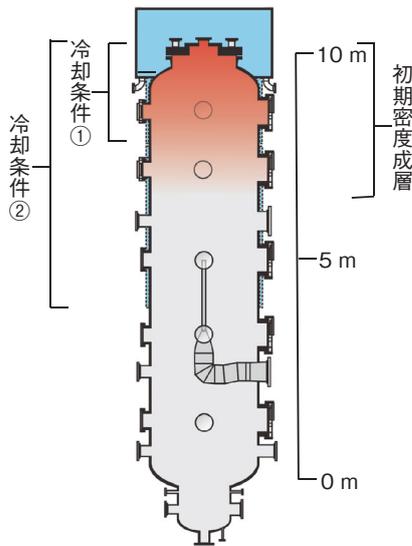


図2-6 CIGMA 装置による外面冷却実験の概要

直径 2.5 m、高さ 11 m の試験容器を有し、様々な計測装置により高精度かつ高分解能に 3 次元的な挙動を測定することができます。冷却条件①は初期密度成層よりも冷却が狭いケース、②は広いケースです。

軽水炉のシビアアクシデント (SA) 時、格納容器内は、高温の気体が噴出することで、高温・高圧状態となります。加えて、燃料棒の損傷に伴い、炉心に含まれるジルコニウム金属と高温の蒸気が反応 (水-Zr 反応) することで大量の水素が発生します。高濃度の水素が一か所に溜まる (局在化する) と水素爆発の脅威が高まります。2011 年の東京電力福島第一原子力発電所事故では、格納容器の過温破損により水素が原子炉建屋に漏洩し、爆発によって建屋が大破しました。

私たちは、SA 時の格納容器内における高温・多成分気体の複雑な熱及び物質輸送現象を把握するために、実験及び数値シミュレーションを駆使した研究を進めており、その中核を成す実験装置が CIGMA です (図 2-6)。本装置は、格納容器気相部を模擬した直径 2.5 m、高さ 11 m の試験容器を持つ大型装置です。特徴として、試験容器を外面から冷却して容器内で自然対流を駆動させ、壁面の冷却及びガスの局在化や混合挙動を調査することができます。

容器壁を通じた外部との熱のやり取り等により生じる自然対流は、SA 時の格納容器冷却挙動を把握する上で重要な物理現象です。これに関連する CIGMA 実験の一例を図 2-6 に示します。水素のような軽い気体が局在化する代表的な流体力学的現象に、閉じた容器内の上部に溜まる密度成層化 (流体が混ざり合わず、層状化している様子) があります。本実験では、初期条件として空気とヘリウム (水素の代替気体) の混合気体により密度成層を形成した後に、外面冷却により自然対流を促

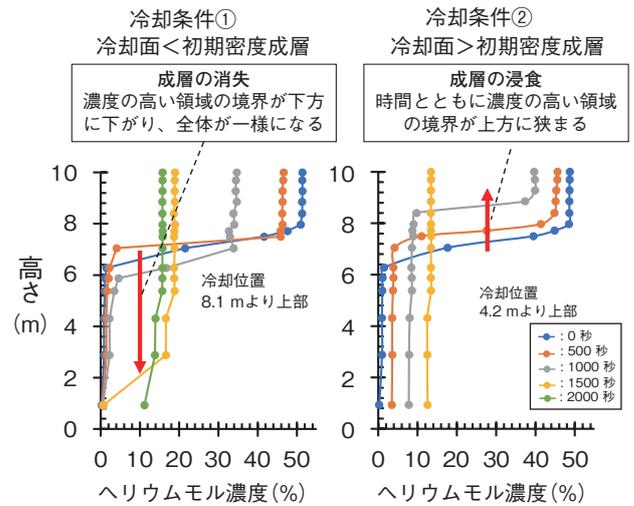


図2-7 外面冷却で誘起されるヘリウム濃度分布の変遷

初期密度成層と冷却面の相対的な位置関係により、ヘリウム濃度の空間分布の時間変化は大きく変わります。冷却条件① (冷却面 < 初期密度成層) では「成層の消失挙動」、冷却条件② (冷却面 > 初期密度成層) では「成層の浸食挙動」が見られました。

しました。圧力、温度分布、ガス組成を測定することで、容器冷却挙動及び熱と物質の分布の変遷 (輸送挙動) を把握しました。冷却条件に関して、初期密度成層よりも冷却面が狭い場合と広い場合の 2 条件で実施しました。以下に、ガス組成に着目した特徴的な現象を示します (図 2-7)。

冷却条件① (冷却領域が成層厚よりも狭い場合) では温度低下により、成層内の密度が成層より下部の気体密度を上回ったときに混合が開始され、成層内のヘリウム濃度は低下しつつ、成層は下方に拡大します (成層の消失)。一方、冷却条件② (冷却領域が成層厚よりも広い場合) では、冷却によって発生する大きな自然対流により、成層の下端から浸食します (成層の浸食)。

自然対流に関する実験は過去に欧州でも実施されてきましたが、以上のように冷却位置と初期密度成層の相対的位置による挙動の違いに関して、系統的な整理が本研究によって初めてなされました。これらの知見は、SA 時の格納容器内での熱・物質輸送の振る舞いを理解することに役立ち、それに基づいて最適なアクシデントマネジメント策 (事故対策) の提言等をする礎になります。また、近年発展が目覚ましく、将来的に更なる活用が期待されている数値シミュレーションの有効性評価用データとしても有用です。

CIGMA 装置は原子力規制委員会原子力規制庁からの受託事業「軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査」で整備されました。

(安部 論)

●参考文献

Abe, S. et al., Experimental Investigation of Natural Convection and Gas Mixing Behaviors Driven by Outer Surface Cooling with and without Density Stratification Consisting of an Air-Helium Gas Mixture in a Large-Scale Enclosed Vessel, Annals of Nuclear Energy, vol.166, 2022, 108791, 18p.

2-3 原子炉過酷事故における燃料デブリの堆積形態の予測 —格納容器の床面に堆積する塊状デブリの質量割合の測定—

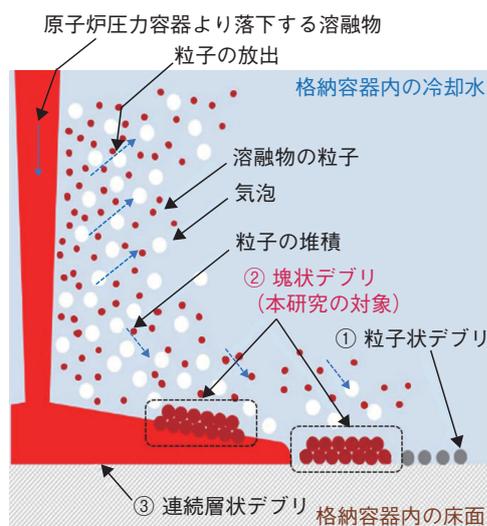


図2-8 格納容器内の冷却水中で想定されるデブリの形態
SAでは、RPVからの溶融物の落下条件により、PCVの床面に堆積するデブリは異なる3種類の形態(①~③)となると想定されます。本研究の対象は塊状デブリです。

原子炉過酷事故(シビアアクシデント:SA)では、原子炉圧力容器(RPV)が破損して高温の溶融炉心(溶融物)が格納容器(PCV)に落下する可能性があります。このとき、PCVに落下した溶融物が床面のコンクリートを侵食する溶融炉心/コンクリート相互作用(MCCI)はPCVの健全性の脅威となります。MCCIの防止・緩和を目的として、日本ではあらかじめRPVが破損する前にPCVへ注水する対策を採用しています。当該対策の有効性を評価するためには、床面に堆積した溶融物(デブリ)の冷却性を評価することが必要です。

PCVの床面に堆積したデブリは、溶融物の落下条件(溶融物の物性、温度、冷却水の温度及び水深等)により、異なる3種類の形態となると想定されます(図2-8)。冷却水に落下して粒子化した溶融物が個別に堆積した「粒子状デブリ」、溶融した状態で床面に堆積して粒子同士が結合した「塊状デブリ」及び粒子化せずに直接床面に堆積した「連続層状デブリ」です。塊状デブリ及び連続層状デブリは粒子状デブリと比較して冷却水との接触面積が小さくなるため、冷却性が低下します。

デブリの冷却性を評価するためには、PCVの床面に堆積したデブリの総質量に占める異なる形態のデブリの質量割合と堆積範囲を予測することが必要です。塊状デブリの質量割合の予測手法の構築を目的として、冷却水に低融点金属を溶融物として落下させる模擬実験を実施しました。実験装置の床面に堆積したデブリを回収することにより、塊状デブリの質量割合を計測しました。落下条件である溶融物の温度、冷却水の温度及び水深を系統的に変化させた

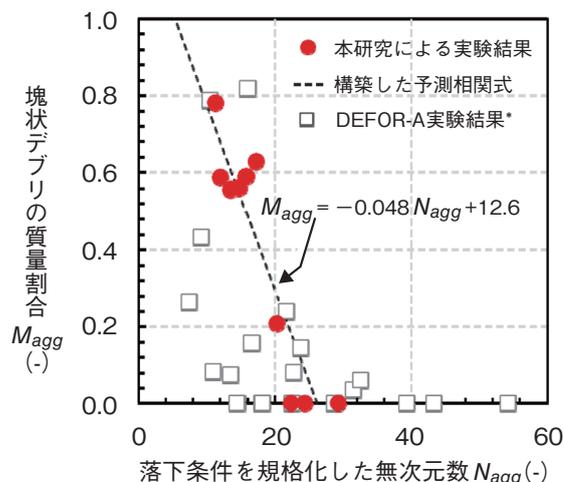


図2-9 塊状デブリの質量割合を予測する相関式の構築
低融点金属を溶融物として冷却水に落下させる模擬実験の結果に基づき、溶融物の落下条件を規格化した無次元数(N_{agg})を用いて、塊状デブリの質量割合(M_{agg})を予測する相関式を構築しました。

場合の塊状デブリの質量割合の変化を調査しました。

実験結果に基づき、溶融物の落下条件を規格化した無次元数を用いて塊状デブリの質量割合を予測する相関式を構築しました(図2-9)。溶融物の落下条件を規格化した無次元数は、落下条件である溶融物の温度、冷却水の温度及び水深を単純に掛け合わせた無次元の値であり、複数ある実験条件を単一の無次元数で表現するものです。構築した相関式をスウェーデン王立工科大学により実施されたDEFOR-A実験結果*に適用しました。DEFOR-A実験は、本研究と同様に塊状デブリの質量割合を測定した模擬実験です。本研究とは物性が異なる酸化物を溶融物として用いていますが、本研究と同様の特徴を有する塊状デブリが堆積しました。構築した相関式は塊状デブリの質量割合の分布の全体の傾向を再現しました。このように、多様な溶融物の落下条件に対して適用できる塊状デブリの質量割合の予測手法を構築しました。

これまでに得た知見に基づき、実際の原子炉のSAで想定される多様な落下条件に対しても適用が可能な機構論的なモデルを構築することにより、デブリの冷却性を評価するための信頼性の高い手法の整備を進めます。

本研究は、筑波大学との共同研究の成果の一部です。
(岩澤 譲)

* Kudinov, P. et al., Agglomeration and Size Distribution of Debris in DEFOR-A Experiments with $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-WO}_3$ Corium Simulant Melt, Nuclear Engineering and Design, vol.263, 2013, p.284-295.

●参考文献

Iwasawa, Y. et al., Experiments of Melt Jet-Breakup for Agglomerated Debris Formation Using a Metallic Melt, Nuclear Engineering and Design, vol.386, 2022, 111575, 17p.

2-4 日本家屋での屋内退避効果の評価に必要なパラメータ値を明らかにする —粒子状及び気体の元素状ヨウ素の浸透率と沈着率を実家屋とチャンバー実験で取得—

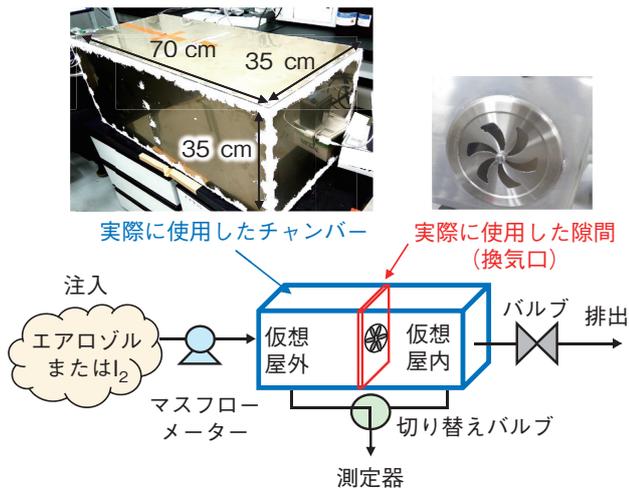


図2-10 チャンバー実験の概略図

チャンバーの真ん中を換気口で区切っており、仮想屋内外の I_2 またはエアロゾルの濃度を測定することができます。仮想屋内外の濃度の時間変化を基に、浸透率と沈着率を求めます。なお、実家屋実験では測定器を家屋内外に置き、屋内外の濃度を測定しました。

屋内退避は、原子力災害時の住民の被ばくを低減するための防護措置の一つです。屋内の放射能濃度は主に①単位時間あたりに屋内空気が入れ替わる割合を表す「空気交換率」、②屋外の放射性物質が隙間に付着せずに屋内に侵入する割合を表す「浸透率」、③屋内での壁面や床面への単位時間あたりの沈着割合を表す「沈着率」によって計算されます。

原子力災害初期の内部被ばく評価に重要な核種の一つとして、ヨウ素が挙げられます。大気中に放出されたヨウ素の形状は化学的性質・挙動によって、①気体中に浮遊する微小粒子（エアロゾル）に付着したヨウ素（粒子状ヨウ素）、②気体の元素状ヨウ素（ I_2 ）、③気体の有機ヨウ素（ CH_3I など）に大別され、浸透率と沈着率の値は互いに異なり、ヨウ素形態の存在割合によって屋内退避の効果が異なる可能性があります。しかしながら、特に I_2 の知見はほとんどなく、さらに浸透率と沈着率は床面や隙間の材質によって異なります。家屋の特徴は国によって異なるため、海外で調査されたパラメータ値を、日本家屋での屋内退避効果の評価に適用することは不適切であり、日本家屋に応じたパラメータ値を整備する必要があります。

本研究では、日本家屋での浸透率と沈着率の取得を目的に、日本の実家屋での実験（実家屋実験）を実施しました。 I_2 については、毒物のため実家屋で実験できないため、実家屋の空気交換を模擬したチャンバーでの実験（チャンバー実験）によって評価しました。チャンバー実験の結果の実家屋への適用可能性を検討するため、粒子状ヨウ素については両実験で評価しました。なお、粒子状ヨウ素の挙動は同粒径を持つ他のエアロゾルと変わ

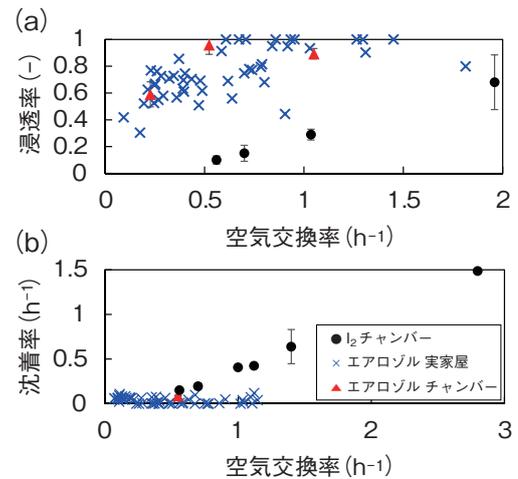


図2-11 浸透率 (a) と沈着率 (b) の空気交換率との関係

I_2 については、浸透率がエアロゾルより小さいことから、粒子状ヨウ素より屋内に侵入しにくいこと、沈着率が大きいことから屋内表面に付着しやすいことが分かりました。なお、エアロゾルにおける実家屋実験とチャンバー実験での値に相違がないことから、チャンバー実験で得られたパラメータ値を実家屋に適用可能であると言えます。

らないとし、本実験では粒径 $0.3 \sim 1 \mu\text{m}$ のエアロゾル（ NaCl 粒子）を用いて求めた値を、粒子状ヨウ素の値として評価しました。この粒径は、原子力事故時に観測された粒子状ヨウ素と同じ粒径です。実家屋実験は集合住宅2部屋と戸建住宅3戸で実施し、屋内外のエアロゾル個数濃度を連続測定することで、浸透率と沈着率を求めました。チャンバー実験では、換気口で真ん中を区切ったチャンバー（図2-10）を利用し、仮想屋内外の濃度を交互に測定して、 I_2 とエアロゾルの浸透率と沈着率を求めました。

実験結果を図2-11に示します。エアロゾルと I_2 の浸透率はそれぞれ $0.3 \sim 1$ と $0.15 \sim 0.7$ であり、 I_2 の方が小さいことから、元素状ヨウ素は粒子状ヨウ素よりも侵入しにくいことが分かりました。エアロゾルと I_2 の沈着率はそれぞれ $0.007 \sim 0.2 \text{ h}^{-1}$ と $0.2 \sim 1.5 \text{ h}^{-1}$ であり、 I_2 の方が大きいことから、元素状ヨウ素は粒子状ヨウ素よりも表面に沈着しやすいことが分かりました。エアロゾルの沈着率以外は空気交換率が大きいほど値が大きくなる傾向を示しました。

本研究の結果から、浸透率と沈着率はエアロゾルと I_2 で異なり、ヨウ素形態の存在割合に応じて屋内退避の効果を評価する必要性を示しています。今後は、これらの値を用いて日本家屋での屋内退避による効果を評価する予定です。

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年度原子力施設等防災対策等委託費（防護措置の実効性向上に関する調査研究）事業」の成果の一部です。

（廣内 淳）

●参考文献

Hirouchi, J. et al., Penetration Factor and Indoor Deposition Rate of Elementary and Particulate Iodine in a Japanese House for Assessing the Effectiveness of Sheltering for Radiation Exposures, Journal of Radiological Protection, vol.41, 2021, p.S139-S149.

2-5 原子炉の配管は巨大地震にどれだけ耐えられるのか —長期間使用された原子炉配管の地震フラジリティ評価手法の開発—

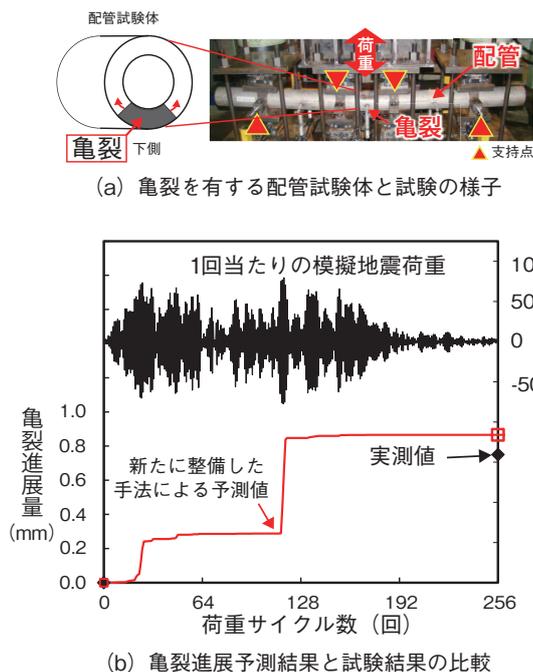


図2-12 亀裂進展評価手法の妥当性確認試験

実際の配管に地震による揺れを模擬した荷重を加える試験 (a) により、亀裂進展量の実測値 (◆) と新たに整備した手法による予測値 (□) とがよく一致していることから、整備した手法の妥当性を確認しました (b)。

東京電力福島第一原子力発電所の事故の教訓を踏まえ、原子力発電所に対する地震を起因とした確率論的リスク評価 (地震 PRA) やリスク情報の活用が重要となっています。地震 PRA では、安全上重要な機器や配管などの地震による破損確率 (地震フラジリティ) を考慮して、炉心損傷頻度などを求めることができます。配管に着目すると、長期間の使用による亀裂などの発生が考えられ、それによって配管の強度が低下し、地震フラジリティが上昇することとなります。そのため、長期間運転された原子炉を対象に地震 PRA を実施する際には、経年劣化が配管の地震フラジリティに及ぼす影響を考慮することが重要です。しかし、原子力発電所で起こり得るあらゆる地震の大きさを対象に、地震による亀裂進展も考えて地震フラジリティを算出できる解析コードはありませんでした。

そこで、まず、設計上の想定を超える巨大な地震の揺れによる配管の亀裂の進展を評価する手法を、揺れの大きさや波形を系統的に変化させた実験及び数値解析を通じて整備しました。また、図2-12に示すように、実際の配管に地震による揺れを模擬した荷重を加えた試験において、この評価手法の妥当性を確認しました。

次に、この手法を、亀裂を有する構造物の破壊に影響する様々な因子の不確かさを考慮して構造物の破損確率を定量的に評価する確率論的破壊力学に基づき、亀裂

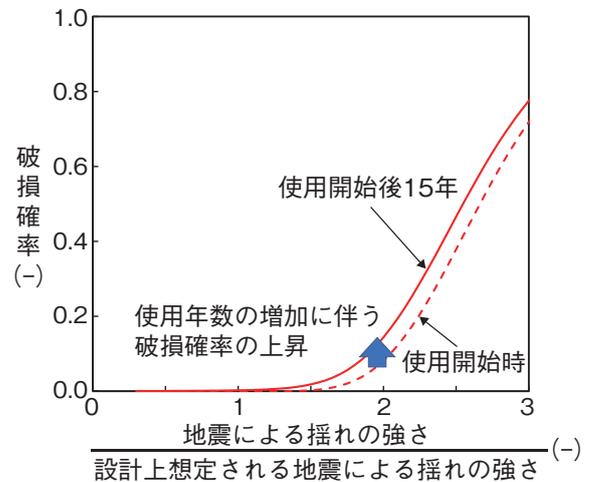


図2-13 地震による揺れの大きさや配管の使用期間と破損確率の関係の例

PASCAL-SP2 を用いることで、使用年数の増加や地震の揺れによる亀裂進展を評価して破損確率を算出することができ、地震による破損確率である地震フラジリティの変化を定量的に評価できます。

の進展などを評価して配管の破損確率を求める解析コード PASCAL-SP に組み込むことで、長期間使用された配管の地震フラジリティを算出できる唯一の解析コード PASCAL-SP2 を開発しました。

さらに、PASCAL-SP2 を用いて配管の地震フラジリティを評価するための手順、推奨される手法及びモデルなどについて、それらの技術的根拠とともに取りまとめた評価要領を整備しました。整備した解析コード及び評価要領を活用することで、図2-13に示すように、使用年数の増加による亀裂の発生や進展、並びに地震による揺れの増大に伴う地震フラジリティ曲線の変化を定量的に評価できます。

今後、PASCAL-SP2 及び評価要領を用いて、長期間使用された原子炉配管の地震の揺れに対する安全性や、様々な保全活動の改善効果を破損確率などのリスク指標に対して定量的に示すなど、安全性向上評価などにおけるリスク情報の活用に関する取組みをさらに進めていきます。

本成果は、原子力規制委員会原子力規制庁からの受託事業「原子力施設等防災対策等委託費 (高経年化を考慮した建屋・機器・構造物の耐震安全評価手法の高度化) 事業」の成果の一部です。

(山口 義仁)

●参考文献

山口義仁ほか、原子炉配管に対する確率論的破壊力学解析コード PASCAL-SP2 の使用手引き及び解析手法 (受託研究), JAEA-Data/Code 2020-021, 2021, 176p.

山口義仁ほか、経年配管を対象とした地震フラジリティ評価要領 (受託研究), JAEA-Research 2020-017, 2021, 80p.

2-6 廃炉で発生するアスベスト廃棄物の処理処分へ道筋 —クリアランスレベル算出のための被ばく線量評価手法の開発—

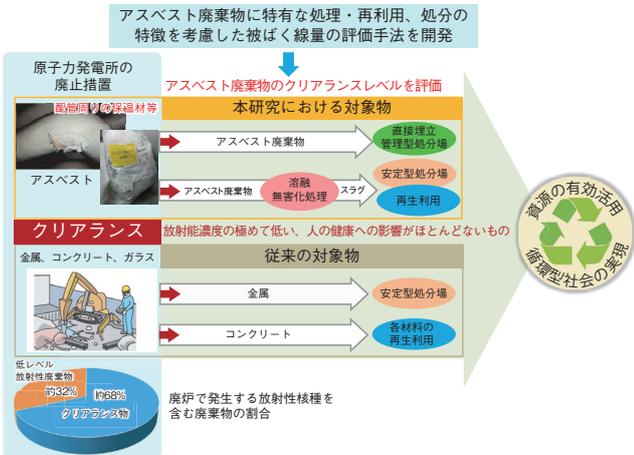


図2-14 アスベスト廃棄物のクリアランスレベル評価の概要
アスベスト廃棄物は、処理、処分、再利用方法が金属、コンクリートとは異なるため、アスベスト廃棄物の処理マニュアルに記載される処理・処分方法とそれに従った作業の実態の調査結果に基づいて、被ばく評価手法を新たに開発し、その手法による解析からアスベスト廃棄物のクリアランスレベルを初めて算出しました。

原子力発電所の廃止措置（廃炉）で発生する大量の廃棄物のうち、その放射能濃度が極めて低く人の健康への影響がほとんどないものについては、国の認可・確認を経て、普通の廃棄物として再利用または処分できます。これを「クリアランス制度」といい、金属・コンクリートに対して適用されています。

一方、アスベスト廃棄物は、以前はクリアランス制度の対象ではなく、放射能濃度が極めて低くても処理できずに保管されていました。この処理を進めるためには、吸入防止のための二重梱包や溶融無害化処理などの、一般のアスベスト廃棄物に対して行われている特別な処理・処分の特徴を反映した被ばく評価手法が必要となります。そこで、処理・処分の特徴を反映し、以下のようなアスベスト廃棄物の処理・処分時の被ばく経路と評価パラメータを決定して、被ばく線量を評価する手法を開発しました（図2-14）。

まず、特別管理産業廃棄物であるアスベスト廃棄物の処理・処分作業の実態を調査し、被ばく線量評価の対象とすべき被ばく経路を決定しました。アスベスト廃棄物の処分が認められる管理型最終処分場に関する経路などが新たに加わりました。次に、アスベスト廃棄物の特性に基づき、すべての被ばく経路について、被ばく線量評価に使用する評価パラメータの取り得る値の範囲とその分布型（確率密度）を整理しました。そしてクリアランスレベルを算出するための被ばく線量を評価する決定論的解析では、その範囲の中から保守的な代表値を決定しました。さらに、範囲

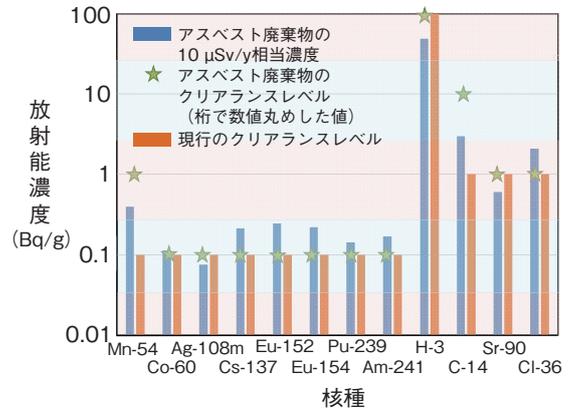


図2-15 代表的な核種のアスベスト廃棄物に対するクリアランスレベルの評価結果

被ばく線量評価結果から、年間10 μSvに相当する濃度の最小値を算出しました。その最小値に対して国際基準に沿ってオーダー（桁）で表す方法によりアスベスト廃棄物のクリアランスレベルを算出しました。それらの値は現在のクリアランスレベルと同値以上となりました。

と分布型は評価パラメータの不確かさの影響を評価する確率論的解析で与えました。

この方法を用いて、以前原子炉を対象にクリアランス規則で規定されていた33核種のクリアランスレベルを原子力機構が開発した被ばく線量評価コードPASCLR2により評価しました。その結果、アスベスト廃棄物のクリアランスレベルは現在のクリアランスレベルと同値以上となりました（図2-15）。また、確率論的解析で評価された線量は決定論的解析での線量の10倍以内となり、低確率で生じる値の組み合わせが生じた場合でも被ばく線量が過度に大きくなることはないこととする規制要求を満足し、代表値を組み合わせで評価した決定論的解析の結果が適切であることが確認できました。

以上の結果から、アスベスト廃棄物に対しても、金属・コンクリートを対象とした現在のクリアランスレベルをそのまま適用することが可能であることを明らかにしました。アスベスト廃棄物にもクリアランスレベルが適用可能となったことで、廃止措置で発生するアスベスト廃棄物の処理・処分を適正に進める道が拓け、循環型社会の実現につながることを期待されます。

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「原子力発電施設等安全技術対策委託費（廃止措置・クリアランスに関する検討）事業」（平成29年度から令和2年度）の成果の一部です。

（島田 太郎）

●参考文献

島田太郎ほか、放射性物質を有するアスベスト含有廃棄物を対象としたクリアランスレベルの評価、保健物理, vol.57, no.1, 2022, p.5-29.

新原子力の実現に向けた基礎研究

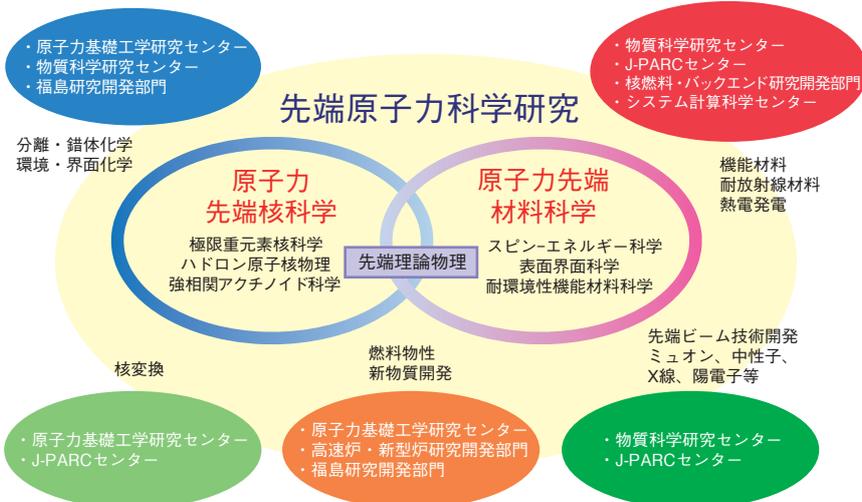


図 3-1 先端原子力科学研究

将来の新原子力の実現に向けて、新原理・新現象の発見、新物質・新材料の創製、革新的技術の創出を目指し、学術的に高いインパクトを持った世界最先端の研究を推進しています。原子力機構内及び国内外の研究機関との連携により、研究体制を強化します。

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。一方、20年後あるいは30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、その端緒を拓く最先端の研究を進めることが重要です。

先端基礎研究センターでは、原子力機構の将来ビジョン「JAEA 2050+」に掲げる新原子力の実現へ向けて、先端原子力科学分野の基礎研究を強化し、新原理・新現象の発見、新物質・新材料の創製、革新的技術の創出などを目指します。その中で、他分野との積極的な融合と原子力科学技術を通じたイノベーションを加速するとともに、国際的な競争力を高めることにより優秀な研究人材を集約し、原子力基礎科学分野におけるCOEとしての役割を確立します。

先端基礎研究センターは、2022年度から始まった第4期中長期計画において、①「原子力先端核科学」、②「原子力先端材料科学」、及びこれらを有機的に結びつける③「先端理論物理」の分野により組織化を行いました(図3-1)。①は、極限重元素核科学研究、ハドロン原子核物理研究、及び強相関アクチノイド科学研究で、また②は、スピン-エネルギー科学研究、表面界面科学研究、及び耐環境性機能材料科学研究で構成されます。この新たな組織の構築につながった2021年度の成果の例を、以下に示します。

「原子力先端核科学」の極限重元素核科学研究では、105番元素ドブニウム(Db)の気相化学実験を行い、Db化合物の揮発性を調べました(トピックス3-1)。この結果、Db化合物は、同じ属の元素化合物の傾向から外れ、相対論効果によって最外殻電子の軌道が変化していることが分かりました。本成果は、超重元素領域の周期表の構築に資するものとなります。ハドロン原子核物理分野では、 ${}^3\text{He}$ 及び ${}^4\text{He}$ 原子核にそれぞれK中間子が回っている系のエネルギーを調べることで、原子核とK中間子に働く核力を調べる実験を行いました(トピックス3-2)。J-PARCの実験において、超伝導転移端型マイクロカロリメータを新たに開発し、高分解能のX線分光を行った結果、 ${}^4\text{He}$ と ${}^3\text{He}$ の間に働く強い相互作用によるエネルギーシフトが小さいことが明らかになりました。本研究

を進展させることで、中性子星の性質が明らかになると考えられます。強相関アクチノイド科学研究では、ウラン化合物である UTe_2 を調べました(トピックス3-3)。物質内部の電子状態をミクロに調べる核磁気共鳴法を用いて調べたところ、ウランが持つ5f電子に由来する電子の揺らぎを観測しました。この特徴を活かせば、量子コンピュータへの応用につながると考えられます。

「原子力先端材料科学」としてのスピンロニクス研究の発展により、ジュール熱の影響を受けない電子デバイスを作ることで省電力化が飛躍的に進むと考えられます。先端基礎研究センターは、トポロジー構造と呼ばれる物質内の電子状態を利用することで、電子スピンを制御する原理を確立しました(トピックス3-4)。これは、大容量磁気メモリの発熱を5桁も減少させる成果となります。近年、温室効果ガスや有害ガスを発生しないクリーンな燃料として水素に注目が集まっています。水素を輸送する際には、液体水素にする必要があり、このとき、混在する2種類の分子、すなわち、オルト水素とパラ水素において、発熱を引き起こすオルト水素をパラ水素化にする技術が必要となります。表面界面科学分野では、この過程を観測する装置を開発することに成功しました(トピックス3-5)。オルト-パラ変換過程の測定は、この変換技術にイノベーションをもたらし、新たなエネルギー社会の実現につながると期待できます。界面の研究は、高レベル放射性廃棄物の地層処分においても重要です。これらを長期にわたり閉じ込めるため、何らかの理由で漏出した放射性核種を、粘土鉱物など周囲の岩盤に付着させる天然バリアを利用します。今回、土壌中にある酸の濃度と粘土鉱物への付着の関係を明らかにし、さらに吸着を機能させる錯体には2種類あることが分かりました(トピックス3-6)。

先端理論物理研究では、「量子コンピュータ」や「量子通信・量子暗号」など、量子力学を利用した技術のベースとなる新たな理論を構築しています。今回、高い操作性・制御性で着目される冷却原子気体を調べました。本成果はアトムロニクスと呼ばれる新たな量子回路の実現につながると期待されます(トピックス3-7)。

3-1 周期表の重い極限領域で何が起こるか？ - 105番元素ドブニウム分子で見た周期律のほころび -

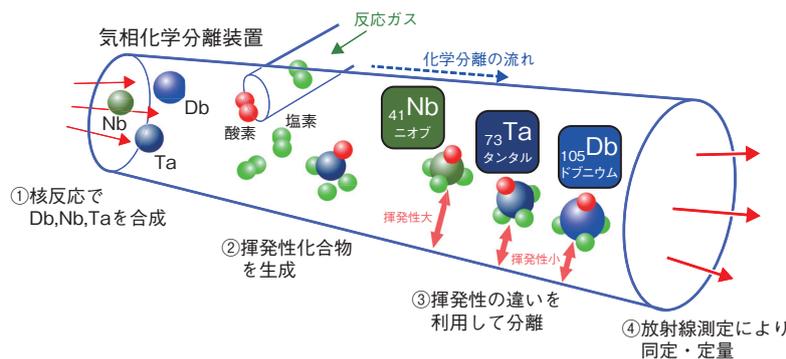


図3-2 実験イメージ図

核反応で合成した短寿命のニオブ(Nb)、タンタル(Ta)、そしてドブニウム(Db)同位体を、速やかに実験装置に導入し、揮発性のオキシ塩化物を合成します。合成した化合物分子を、ガス流にのせて一定温度に保たれた石英製分離カラムを通過させると、揮発性の違いによってカラムの通過効率が変化します。カラム温度と収率の相関関係から、分子の揮発性を求めることができます。

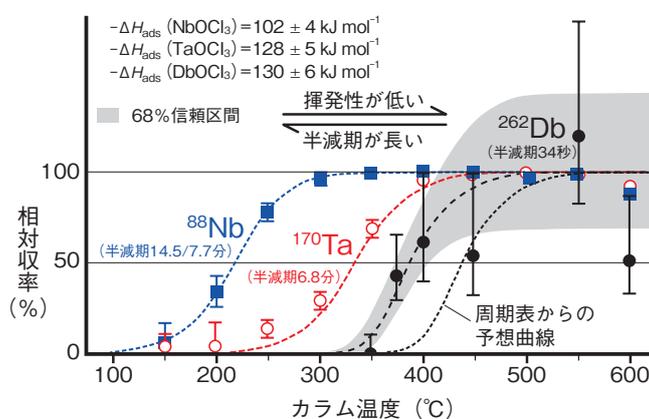


図3-3 Nb、Ta及びDbオキシ塩化物について得られたカラム温度に対する収率の変化

得られたカラム温度-収率曲線と、目的分子の分離カラム表面へに対する吸着挙動シミュレーションを比較することによって、目的化合物の分離カラム表面(石英)に対する吸着の強さ(吸着エンタルピー $-\Delta H_{\text{ads}}$)を求めました。カラム温度-収率曲線は、揮発性が低いほど高温側に、半減期が長いほど低温側に移動します。固体表面への吸着の強さは、揮発性と相関関係にあることから、化合物それぞれの気体になりやすさを推定することができます。

原子番号が103を超える非常に重い元素は、超アクチノイド元素または超重元素と呼ばれます。超重元素は地球上には存在せず、大型加速器からの重イオンビームによる核反応によって人工的に合成されます。このような重い元素では、原子核の周りを運動する電子の速さが光速に近づき、化学的性質を特徴づける電子の軌道が影響を受けるため(相対論効果)、超重元素は元素周期表の予想とは異なる性質を示す可能性が指摘されてきました。

105番元素ドブニウム(Db)は、周期表上ではニオブ(Nb)やタンタル(Ta)と同じ第5族元素(遷移金属元素)に属する超重元素です。Dbの場合、核反応で合成できる原子の生成率が5分当たり1個程度と極めて低く、そのうえ寿命が約30秒と短いために、一度に一つの原子しか扱うことができません。そのため実験が難しく、発見後50年が経つ現在も、その化学的性質はよく分からないままとなっています。

本研究では、原子力機構のタンデム加速器を用いてDbを合成し、独自に開発したオンライン気相化学分離装置によって、Db揮発性化合物の化学合成と迅速化学分析を行いました。さらに、揮発性の大きさ(気体にな

りやすさ)について、同族元素であるNb及びTa化合物との相互比較を行いました(図3-2)。

その結果、純粋なドブニウム化合物(オキシ塩化物: DbOCl_3)の分離に世界で初めて成功するとともに、Db化合物の揮発性がTa化合物と同程度であり、周期表からの予想に比べて高いことを明らかにすることができました(図3-3)。この予想より高い揮発性は、強い相対論効果の影響によって、「電子を放出しやすい」というDbの金属的な性質が、周期表の予想よりも弱まっており、化合物分子を形成する化学結合が「電子をお互いに共有する」という非金属的な性質を帯びたためであると考えられます。本研究成果は、掲載紙であるドイツ化学会誌 *Angewandte Chemie* 国際版裏表紙を飾りました。

相対論効果は、重い元素だけに特有のものではありません。全ての元素に内在し、周期表全体に影響を与えています。本成果は、化学全体の基礎となる周期表全体への理解につながるだけでなく、近年、分子設計や物質創生などでますます活用されている理論化学計算の高精度化への貢献が期待されます。

(佐藤 哲也)

●参考文献

Chiera, N. M., Sato, T. K. et al., Chemical Characterization of a Volatile Dubnium Compound, *DbOCl₃*, *Angewandte Chemie International Edition*, vol.60, issue 33, 2021, p.17871-17874.

3-2 超伝導検出器で K^- 中間子の強い相互作用を測る — K^- 中間子原子の X 線分光精度を飛躍的に向上—

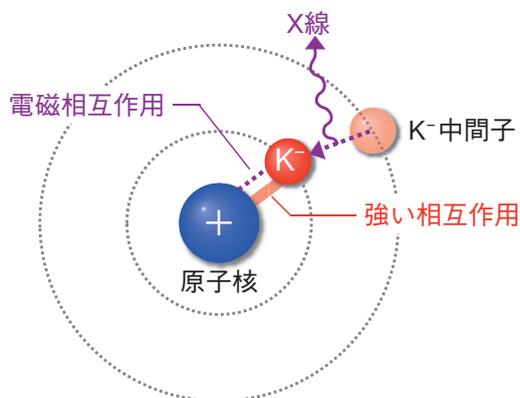


図3-4 K^- 中間子原子のイメージ図

電子と同じように負電荷を持つ K^- 中間子は、通常の原子中の電子と置き換わって電磁相互作用によって K^- 中間子原子を形成することができます。このとき、強い相互作用がわずかに軌道エネルギーそして X 線エネルギーを変化させます。

原子は正電荷を持つ原子核と電子が電磁相互作用によって束縛した系ですが、電子を別の負電荷粒子に置き換えることもできます。今回、私たちは K^- 中間子が束縛した K^- 中間子原子に着目しました (図 3-4)。クォークから構成される中間子には強い相互作用も働くので、 K^- 中間子原子が内殻準位に遷移するとき放出する X 線を精密に測定し、電磁相互作用のみの計算値と比較することで、原子核との間に働く強い相互作用を調べることができます。 K^- 中間子の研究は、同じくストレンジクォークを持つ Λ 粒子などの研究と合わせて、中性子星内部の解明に重要な役割を果たすと考えられています。

今までの K^- 中間子原子の X 線分光実験では、 K^- 中間子ビームの強度に限られること、エネルギー分解能と検出効率を両立する X 線検出器が無い、などの困難がありました。私たちは、J-PARC ハドロン実験施設で供給される大強度 K^- 中間子ビームを液体ヘリウム標的中に止めることで、大量の K^- 中間子ヘリウム原子を生成しました。そして、超伝導転移端 (Transition Edge Sensor: TES) 型マイクロカロリメータを用いて X 線を測定しました。

TES 検出器は物質が超伝導へと転移するときわずかな温度範囲で急激に電気抵抗が変化する現象を利用したエネルギー分解能の良い極低温検出器で、多素子化により有効面積を拡大できるため検出効率も同時に確保し

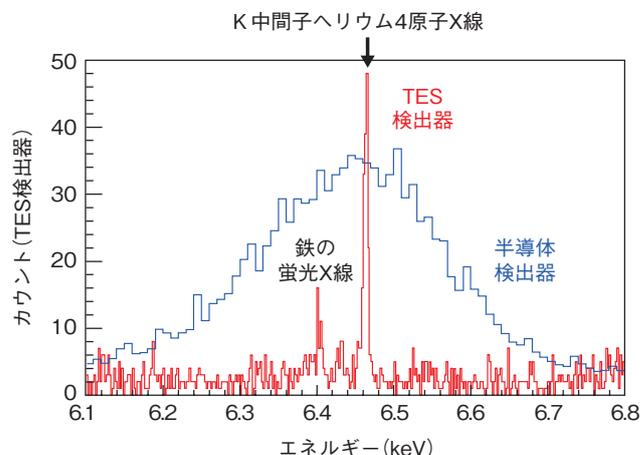


図3-5 K^- 中間子ヘリウム 4 原子の $3d \rightarrow 2p$ 遷移 X 線スペクトル
私たちの実験では K^- 中間子原子の X 線を TES 検出器で測定し、従来の半導体検出器での測定に比べて圧倒的なエネルギー分解能で、中心値を高精度で決定しました。

ます。私たちは、この検出器を初めて荷電粒子ビームラインでの実験に使用しました。特に、 K^- 中間子ビームには、何倍もの π^- 中間子が含まれるため、高感度な検出器には厳しい環境です。私たちは、検出器への荷電粒子の入射を極力抑え、信号波形の解析で荷電粒子の影響を取り除くことで、6 eV (FWHM) 程度の良いエネルギー分解能での K^- 中間子原子の X 線測定に成功しました (図 3-5)。

私たちは、ヘリウム 4 とヘリウム 3 のデータを取得し、それぞれの $2p$ 軌道において、強い相互作用によるエネルギーシフトが小さいことを、従来の半導体検出器での測定に比べて約 10 倍の精度で決定しました。この結果は、 K^- 中間子と原子核との間に働く強い相互作用の引力の大きさに強い制約を与えます。今後、他の K^- 中間子原子 X 線の測定や、近年発見された K^- 中間子が強い相互作用で原子核中に束縛された系の研究を進めることで、 K^- 中間子の強い相互作用の詳細が明らかになり、中性子星の性質に K^- 中間子がどう影響するかが分かっていく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基盤研究 (A) (JP16H02190) 「J-PARC におけるエキゾチック原子の革新的研究」及び文部科学省卓越研究員事業の助成を受けたものです。

(橋本 直)

●参考文献

Hashimoto, T. et al., Measurements of Strong-Interaction Effects in Kaonic-Helium Isotopes at Sub-eV Precision with X-Ray Microcalorimeters, Physical Review Letters, vol.128, issue 11, 2022, 112503, 6p.

3-3 ウラン化合物で見つかった電子の遅い揺らぎ —次世代量子コンピュータにつながる超伝導の謎に迫る—

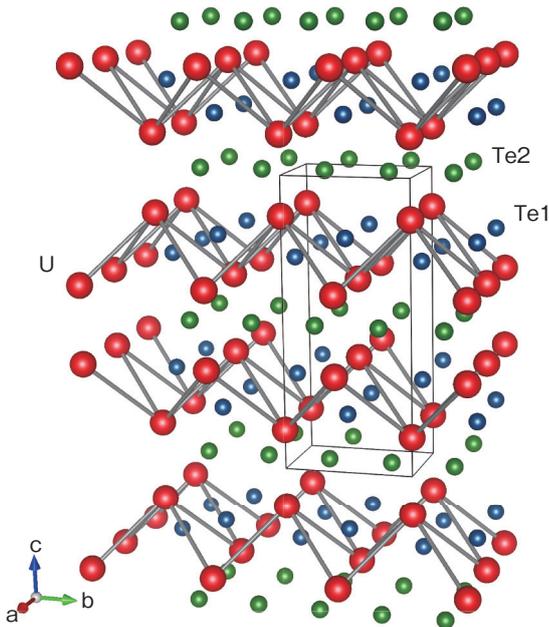


図3-6 スピン三重項超伝導体 UTe_2 の結晶構造
ウラン原子 (●) は、結晶中でジグザグ状の特徴ある構造を持ちます。

コンピュータや携帯電話、インターネットのような、私たちの社会生活を変える技術革新の基盤となるのは、新しい性質を持った新物質の発見です。物質中にはアボガドロ数 (10^{23} 個) 程度の膨大な数の電子が存在しており、それらが互いに強い相関を持って集団として振る舞うとき、新奇な磁性や超伝導など、物質の新しい性質 (= 新しい電子状態) が生まれます。周期律表にある元素の組合せは無数にあり、その数だけ新物質の発見が期待されるのですが、特にここ数年、その発見の舞台として、ウランを含む化合物に大きな注目が集まっています。

本研究で対象としたウラン化合物 UTe_2 (図3-6) は、2018年末にアメリカの研究グループにより発見された超伝導体です。通常の超伝導体では、超伝導を担う二つの電子のスピンは反対方向を向いていますが (スピン三重項状態)、 UTe_2 ではスピンが同じ方向に揃ったスピン三重項超伝導と呼ばれる新しい超伝導が実現しています。発見直後からそのメカニズムの解明を目指し、国際的に激しい研究競争が続けられています。

今回私たちは、核磁気共鳴 (NMR) 法を用いて、 UTe_2 の電子状態の解明を行いました。NMR法は、電子と原子核との間の相互作用を利用して、物質内部の電子状態をミクロに探ることができる実験手法です。その原理は、MRIとして医療の分野でも応用されています。私たちは本研究のため、NMR法で観測可能な ^{125}Te 核を、天然存在比の7%から99%に濃縮した特別な UTe_2 単結晶を育成しました。その結晶を用いて、NMRの核スピン-スピン緩和率 ($1/T_2$) の測定を行い、物質内部の

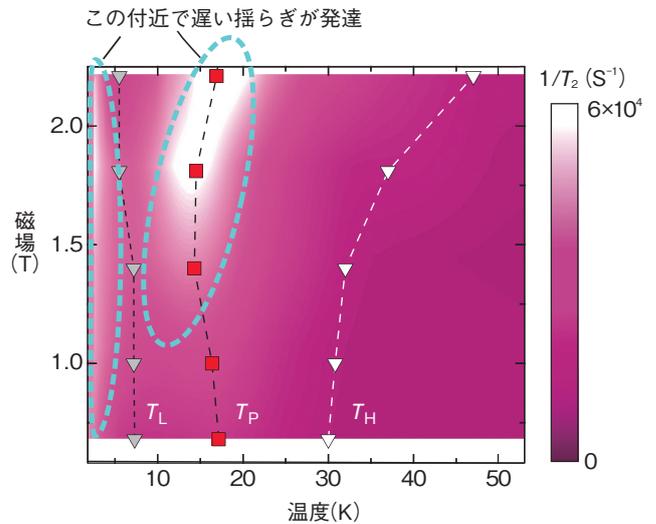


図3-7 核スピン-スピン緩和率 ($1/T_2$) の磁場-温度依存性
温度を下げると T_H (▽) 以下で電子の遅い揺らぎが徐々に発達し始め、 $1/T_2$ の値が増大します。さらに、温度を下げると揺らぎは T_P (■) でピークを持って一旦減少し、 T_L (▽) 以下で再び増大します。

スピンや電荷の揺らぎの強さを調べました。その結果、MHz以下という、電子系としては非常に低い周波数を持った遅い揺らぎが、約30 K以下の低温で出現していることを見出しました (図3-7)。このような遅い揺らぎの出現は、図3-6に示す特徴的な構造を持ったウラン原子の電子間に、強い相互作用 (長距離相関) が生じていることを示しています。スピン三重項超伝導のメカニズムにおいて、この遅い揺らぎの出現がどのような意味を持つのか、今後明らかにする必要があります。

UTe_2 を始めとするウラン系のスピン三重項超伝導体は、次世代量子コンピュータへの応用が期待される「トポロジカル超伝導」がバルクで実現する系として注目されています。トポロジカル超伝導は、これまで超伝導物質の表面や界面においてのみ実現すると考えられてきましたが、スピン三重項超伝導では、物質全体がトポロジカル超伝導となり得ます。 UTe_2 を利用してスピン三重項超伝導の基本原則を解明できれば、それを基盤として新しいトポロジカル超伝導体の設計や開発も期待されます。原子力機構はJRR-3やSPRING-8など、ウラン物質科学を強力に推進できる最先端の実験環境を備えています。その統合的な活用は、国際的にも高い研究競争力をもたらします。それらを武器に、私たちはこの新しい超伝導体の謎に挑んでいきます。

本研究は、日本学術振興会科学研究費基盤研究 (A) (JP20H00130) 「ウラン化合物におけるスピン三重項超伝導状態の研究」の助成を受けて行われました。

(徳永 陽)

●参考文献

Tokunaga, Y. et al., Slow Electronic Dynamics in the Paramagnetic State of UTe_2 , Journal of the Physical Society of Japan, vol.91, no.2, 2022, 023707, 5p.

3-4 電子状態のトポロジーが磁気制御に貢献 —磁気メモリの大幅な省電力化につながる新原理を発見—

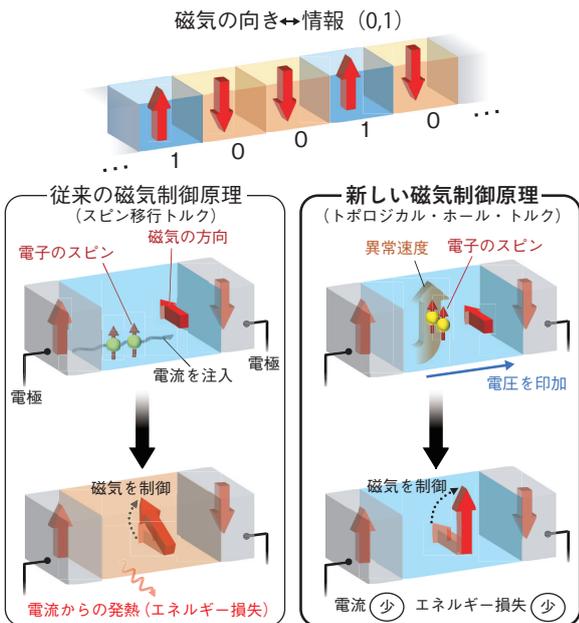


図3-8 電気的な磁気制御の模式図

磁気メモリ(上図)では、電気的な磁気制御により情報を記録します。電流を用いる従来技術では、電気抵抗に由来した発熱によるエネルギー損失が問題となります(左下図)。トポロジー由来の「異常速度」を活用すると、より省電力で電子のスピンを揃え、磁気を制御することができます(右下図)。

磁石が示す磁気は、N極・S極と呼ばれる方向を持ちます。この磁気の方角を二進数(0,1)と対応付けることにより、磁石に情報を記録することができます(図3-8上)。最近では高速・大容量の情報を記録できる磁気メモリ等の開発に向けて、磁気の源である電子の「スピン」を制御する「スピントロニクス」と呼ばれる技術が、精力的に研究されています。特に、磁気メモリ動作の基本原則として、金属の中に電流を流し、その電流が運ぶ電子のスピンのことによって磁気を制御するメカニズム「スピントロニクス」が、1990年代に理論提案されて以降広く用いられてきました(図3-8左下)。この方法により、1mmの1万~100万分の1という微細な領域の磁気を制御することができ、高密度・大容量の情報処理に期待が持たれています。一方で、金属中を流れる電流は電気抵抗の影響を受けるため、磁気メモリの高密度化に伴って、電気抵抗による発熱(ジュール熱)に起因したエネルギー損失は無視できない問題となります。私たちはこの問題を解決するため、電気抵抗の影響を受けず、より省電力で磁気制御を可能とする、電気的な磁気制御の新しいメカニズムを発見しました。

この省電力化のカギとなるのが、一部の物質中で電子状態が示す内部構造「トポロジー」です。トポロジーの構造を持つ電子に電圧を掛けると、電気抵抗に影響されず、電圧の方向に対して垂直方向へと逸れて動く「異常速度」と呼ばれる挙動を示します。この異常速度に従って、電子のスピンはエネルギー損失なく揃い、省電力での磁気制御が可能になります。私たちは対称

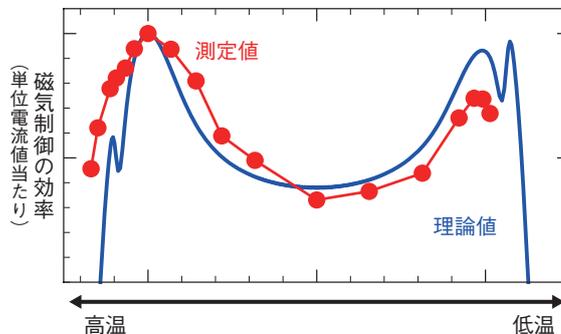


図3-9 新原理による省電力な磁気制御の検証

強磁性ルテニウム酸ストロンチウム(SrRuO₃)において、電流による磁気制御効率を測定しました。測定の結果、温度依存性には二つのピーク構造が見られました(—線)。これは異常速度に基づく新原理の理論計算値(—線)と良く一致します。

性に基づく理論解析により、この省電力な磁気制御メカニズム「トポロジカル・ホール・トルク」を見出しました(図3-8右下)。従来のスピントロニクスに比べると、本研究で提案したトポロジカル・ホール・トルクに必要な電流は約100分の1となります。これは、電力消費を約10000分の1に削減できることに相当します。

さらに私たちは、この新原理による省電力な磁気制御の理論提案を、酸化物の磁石であるルテニウム酸ストロンチウム(SrRuO₃)を用いた測定により実証しました。温度を変えながら単位電流値当たりの磁気制御の効率を測定したところ、その温度依存性は二つのピークを持つ特異な構造を示し、さらに制御効率の大きさ自体も従来機構で説明できないほど大きいことが分かりました。これらの特異な温度依存性と大きさは、この物質中の電子が示すトポロジー構造「ワイル点」に基づく「トポロジカル・ホール・トルク」の原理によって説明できることを、理論的に初めて明らかにしました(図3-9)。

本研究によって実証された磁気制御の新原理は、スピントロニクスの省電力化に向けて「トポロジー」の果たす役割の重要性を提示するものです。今後はトポロジーを強く示す材料の探索・開発により、磁気メモリ等の大幅な省電力化に貢献す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基盤研究(S)(JP19H05622)「ノンコリニアスピントロニクス」及び文部科学省卓越研究員事業の支援を受けて行われました。

(荒木 康史)

●参考文献

Araki, Y. et al., Intrinsic Torques Emerging from Anomalous Velocity in Magnetic Textures, Physical Review Letters, vol.127, issue 27, 2021, 277205, 7p.
 Yamanouchi, M., Araki, Y. et al., Observation of Topological Hall Torque Exerted on a Domain Wall in the Ferromagnetic Oxide SrRuO₃, Science Advances, vol.8, issue 15, 2022, eabl6192, 6p.

3-5 高効率オルト-パラ転換触媒設計への知見 -ステップ表面に吸着した水素分子の高速オルト-パラ転換の実証-

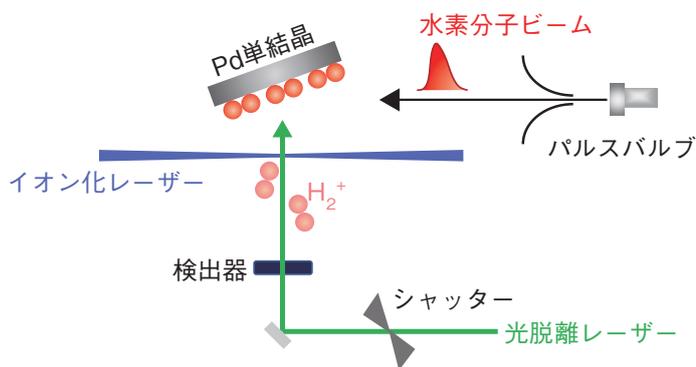


図3-10 水素分子ビーム、光脱離法及びレーザー分光法を組み合わせたオルト-パラ転換時間測定法の開発

水素分子ビームの照射により水素分子を固体表面に吸着させ、光脱離レーザー照射により水素分子を固体表面から光脱離させます。脱離した水素分子の核スピン状態をイオン化レーザーにより弁別検出することで、オルト水素とパラ水素の存在量が分かります。脱離するまでの時間を制御することで、表面での水素分子の核スピン状態変化を精密に追跡することができます。

水素は、温室効果ガスや有害ガスを発生しないクリーンな燃料として期待されています。水素分子にはプロトンが核スピンを持つことに由来して、パラ水素とオルト水素と呼ばれる2種類の核スピン異性体が存在します。水素を液化貯蔵する際に、オルト水素が混在する水素ガスを液化すると、オルト水素の持つ回転エネルギーに起因する発熱が起きるため、前もってオルト水素をパラ水素化してから液化することが必要です。これは、水素液化におけるボイルオフ問題と呼ばれています。オルト-パラ転換は、固体表面で促進されることが知られていますが、その効率は十分ではなく、また物理的なメカニズムも未解明の点が多いのが現状です。したがって、オルト-パラ転換メカニズム解明とそれに基づく転換を促進する触媒開発は、今後の水素のエネルギー利用において極めて重要な課題です。

これまでのオルト-パラ転換の研究は、固体表面に物理吸着した水素分子に主眼が置かれていました。しかし特異な表面構造を有する固体表面では、水素は物理吸着の他に、化学吸着することが知られています。過去の研究では、固体表面に化学吸着した水素分子の転換速度が物理吸着の場合に比べて速いことが示唆されてきましたが、従来の実験で用いられた表面への水素の供給及び熱脱離法では転換を追跡する時間分解能が不十分であったため、直接転換時間を測定することが困難でした。私たちは、分子ビーム、光脱離法及びレーザー分光法を組み合わせた新たな転換時間測定法を開発し（図3-10）、

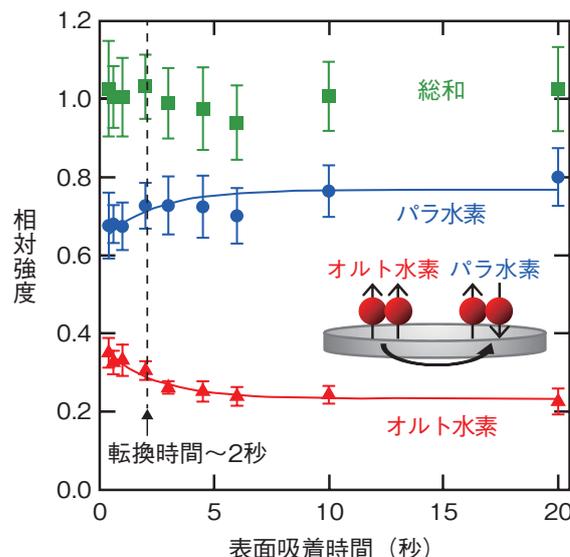


図3-11 パラジウム表面に化学吸着したオルト水素及びパラ水素の存在量の経時変化

オルト水素の存在量は吸着時間とともに減少し、一方パラ水素の存在量は増加しました。これらの経時変化を指数関数でフィッティング解析し、転換時間が約2秒の高速オルト-パラ転換が起きていることを明らかにしました。

時間分解能を従来の測定法よりも2桁改善させることに成功しました。この手法を用いて分子の核スピン状態変化を追跡することで、表面温度 50 K でパラジウム (Pd) のステップ表面である (210) 面に化学吸着した水素分子のオルト-パラ転換時間が2秒程度であることを実験的に決定しました(図3-11)。この転換時間は、過去に報告されている物理吸着系のものに比べて1/100 ~ 1/1000程度であり、オルト-パラ転換が非常に速く起きていることを意味しています。Pd (210) 表面では、ステップ端のPd原子上に水素分子が化学吸着することが知られています。この高速オルト-パラ転換は、パラジウムの特異なステップ表面構造に起因した水素分子と基板との相互作用の強さを反映したものです。本研究成果は、オルト-パラ転換における表面構造の重要性を示すものであり、新たな高効率な転換触媒設計につながることを期待されます。

本研究は、日本学術振興会科学研究費基盤研究 (A) (JP17H01057) 「固体表面における高感度スピン検出法の開発と遷移金属酸化物への応用」、新学術領域研究 (研究領域提案型) (JP18H05518) 「水素の先端計測による水素機能の高精度解析」、基盤研究 (C) (JP20K05337) 「固体表面での水素のオルト-パラ転換におけるエネルギー散逸過程の解明」、文部科学省卓越研究員事業及び原子力機構黎明研究の助成を受けたものです。

(植田 寛和)

●参考文献

Ueta, H. et al., Direct Measurement of Fast Ortho-Para Conversion of Molecularly Chemisorbed H₂ on Pd(210), Physical Review B, vol.102, issue 12, 2020, 121407(R), 5p.

3-6 母岩への収着におけるウラン保持過程を紐解く —表面吸着は2種類の化学形態が関与して起こる—

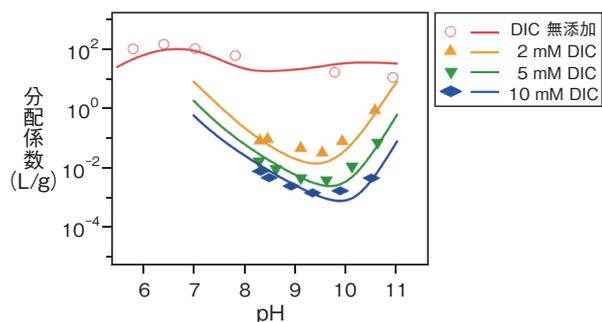


図3-12 収着実験とモデリングの結果
分配係数データ (R_d) の実験 (点) 及びモデリング結果 (実線) を示しています。

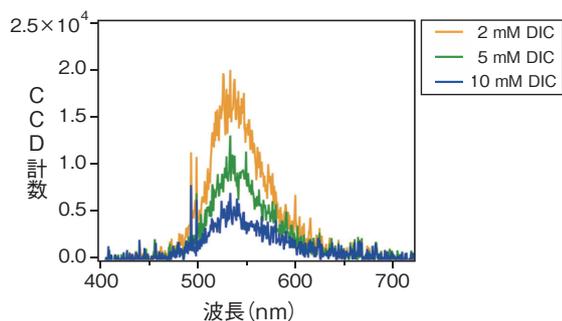


図3-14 低温レーザー蛍光法の結果
535 nm を中心とするブロードなピーク形状は、複数の収着種が共存することを示しています。

高レベル放射性廃棄物の地層処分では、原子力発電の結果生じた放射性廃液をガラス固化し、地下深部に埋設して処分します。処分した廃棄物の放射能レベルが十分に低下するまでには数万年以上かかるため、長期間の安全性を評価する必要があります。地層処分において、粘土鉱物などを含む周辺の岩盤はウランを含む放射性核種を収着・保持し、その移行を遅延させる天然バリアとして機能します。したがって、粘土鉱物と地下水の接触する界面での放射性核種の収着過程を評価することが重要です。地下水が高濃度の溶存炭酸 (DIC) イオンを含む場合、放射性核種と錯体を形成することによって粘土鉱物への収着に影響を与える可能性があります。しかしこの過程の定量的な評価手法はなく、解決すべき課題です。本研究では、使用済燃料の主成分である6価ウラン (U (VI)) を対象として、岩盤中に一般的に含まれる粘土鉱物であるイライトへの収着量と収着機構の関係を調べました。

まず、模擬地下水中の DIC 濃度を変化させながら、イライトへの U (VI) 収着実験を行いました。その結果、U (VI) の分配係数 (R_d)、すなわち吸着量が DIC 濃度の増加とともに下降しました (図3-12)。次に、収着反応のモデルを用いて実験データを解析したところ、データを説明するためには、粘土鉱物表面で二つの異なる錯体を考慮する必要があることが分かりました (図3-13)。

この二つの錯体に関する収着構造を区別するために、

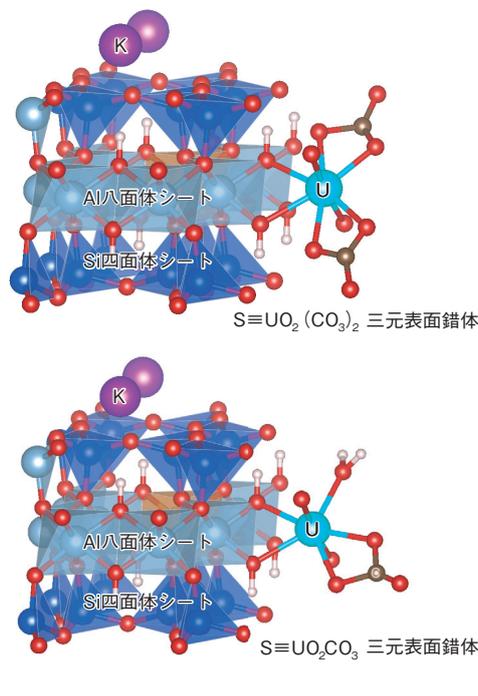


図3-13 表面における三元錯体の2種類の吸着様式
ウラン-炭酸錯体の吸着様式には、炭酸イオンの数に応じて吸着様式を区別することができます。

低温時間分解レーザー蛍光分光法 (TRLFS) を用いた分光観察を行いました。この方法は、界面に吸着した U (VI) イオンの周りのイオンや配位子の結合状態を区別することに適しています。私たちのこれまでの研究で、スペクトル測定から、吸着種の構造を区別できることが分かっています。本研究ではその感度を高めるために、試料を 3.3 K と低温まで冷却しました。その結果、高感度で検出した蛍光スペクトルの形状が変化しないことから、U (VI) は DIC 濃度で抑制を受けながらも、イライトに収着することが分かりました (図3-14)。すなわち、535 nm を中心とする広がったピーク形状は、複数のスペクトルが畳み込まれていることを示しているため、複数の収着種の存在を示します。2種類の錯体の関与は、二つの指数関数の減衰曲線 (蛍光寿命に対応) の解析で明らかになりました。

本研究を通してイライトへの U (VI) 吸着の量的関係と収着機構の関係が明らかになりました。この知見を活用することで、一般の粘土鉱物への放射性核種の収着を評価できると期待されます。

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁からの受託事業「令和2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 (ニアフィールドシステム評価確証技術開発)」の成果の一部です。

(Huiyang Mei)

●参考文献

Mei, H. et al., Uranium (VI) Sorption on Illite under Varying Carbonate Concentrations: Batch Experiments, Modeling, and Cryogenic Time-Resolved Laser Fluorescence Spectroscopy Study, Applied Geochemistry, vol.136, 2022, 105178, 8p.

3-7 ボース粒子のコヒーレントな性質の解明に迫る —ボース・アインシュタイン凝縮体におけるジョセフソン流の振る舞いを決定—

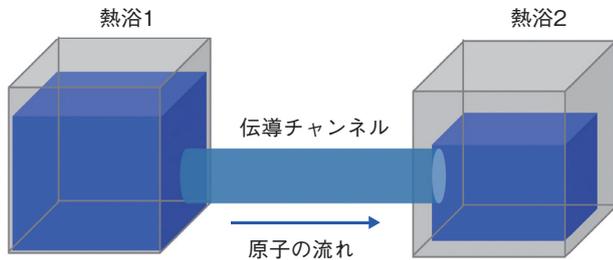


図3-15 冷却原子気体で実現されるメソスコピック系の概念図
冷却原子気体では、二つの熱浴とそれらをつなぐ伝導チャンネルから成る2端子輸送系が実現されています。各熱浴には冷却原子気体が捕獲されていて、原子の流れが伝導チャンネルを介して生じる仕組みとなっています。

現在、「量子コンピュータ」や「量子通信・量子暗号」など、量子力学の原理を利用した量子技術に関心が集まっており、世界的な競争が繰り広げられています。しかし、これらの量子技術を社会実装するためには、これまで以上に量子多体系を深く理解し制御していく必要があります。このような現状の中、量子多体系の本質を理解するためのプラットフォームとして、操作性・制御性の高い人工量子系である冷却原子気体が注目されています。

冷却原子気体は、真空中に捕獲され極低温まで冷却された原子集団のことで、1995年のボース・アインシュタイン凝縮体 (BEC) の実現後、爆発的に研究されるようになりました。特に最近、注目を浴びているテーマの一つが、冷却原子気体を用いたメソスコピック系の研究です (図3-15)。

メソスコピック系は元来、微細加工技術が可能な半導体などの固体電子系で発展してきました。特に、メソスコピック領域 (典型的にはマイクロメートル・スケール) で生じる非自明な輸送現象が注目され、調べられてきました。冷却原子気体においても、マイクロメートル・スケールでの系の制御技術が確立したことで、メソスコピック系の物理との接点が生まれました。

冷却原子気体を用いたメソスコピック系では、固体電子系での検証が難しい量子現象を観測できます。本研究で行った BEC の輸送現象はその典型例であり、ボース粒子のコヒーレントな性質を解明する上で重要な問題です。

BEC では、量子力学的な位相が系全体で揃った状態

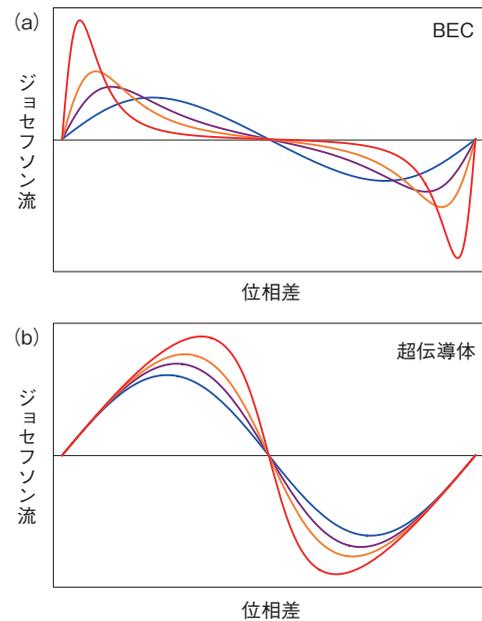


図3-16 BEC と超伝導体でのジョセフソン流の振る舞いの違い
(a) BEC におけるジョセフソン流の振る舞いの様子です。熱浴間の結合が強くなるにつれ (青→紫→黄→赤)、正弦曲線からのずれが顕著となり、発散的な振る舞いが現れます。(b) 同様の解析を超伝導体で行った場合の結果で、結合を強くしても発散的な振る舞いは現れません。

が実現します。二つの異なる位相を持った凝縮体がメソスコピックな伝導チャンネルを通じて結合していると、位相差に伴う散逸のない流れが生じることが知られており、ジョセフソン流と呼ばれています。ジョセフソン流は元々、超伝導体において発見されました。超伝導体では、異なる電子状態が対を作って凝縮し、やはり位相が系全体で揃った状態が実現しています。このような類似性から、超伝導体と BEC とではジョセフソン流の振る舞いに違いはないと考えられてきました。

本研究では、この予想が一般には成立しないことを理論的に示しました。特に、超伝導体と BEC では異なる輸送機構が生じていることが分かりました。輸送機構の違いは熱浴間の結合が強い場合で顕著となり、ジョセフソン流の振る舞いに決定的な違いが現れることが明らかとなりました (図3-16)。本研究成果は、「アトムロニクス」とも呼ばれている冷却原子気体を用いた量子回路の実現と応用のためのシーズ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基盤研究 (C) (JP21K03436) 「アトムロニクスの新展開」、松尾学術振興財団松尾学術研究助成「ボース・アインシュタイン凝縮体におけるメソスコピック輸送現象」及び文部科学省卓越研究員事業 (JPMXS03) 「冷却原子気体により実現可能な量子輸送に関する研究」の助成を受けたものです。

(内野 瞬)

●参考文献

Uchino, S., Tunneling Hamiltonian Analysis of DC Josephson Currents in a Weakly-Interacting Bose-Einstein Condensate, Physical Review Research, vol.3, issue 4, 2021, 043058, 13p.

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

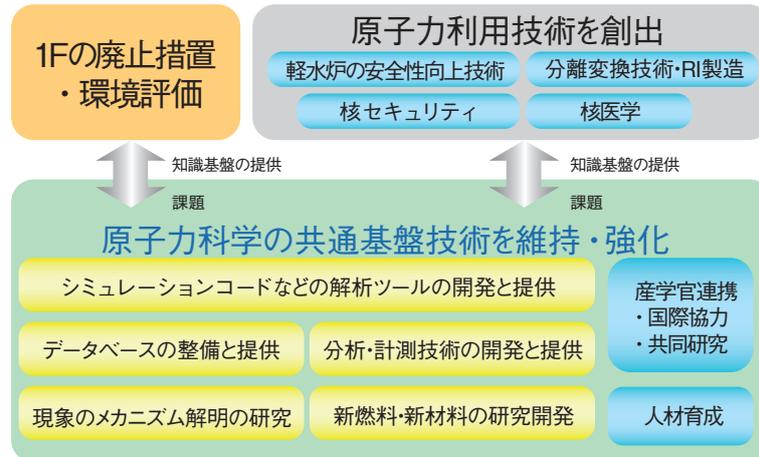


図4-1 原子力基礎工学研究の概要

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。令和4年度から始まる第4期中長期計画においては、シミュレーション技術の高度化を進め革新的な原子力利用技術の創出につながる基盤的研究開発を行っていく予定です。開発した基盤的技術は産業界・大学・政府機関などに提供し、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・RI製造や核医学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（図4-1）。

空港や港湾において、核物質等に対するセキュリティ検査の必要性がありますが、装置が大型で高価になるという課題があります。そこで、安価で可搬性が高い装置の実現として核物質検知法の一つであるアクティブ法を用いた検出器の開発を行っています。検出器で使用される中性子源と対象核物質から放出される中性子を区別するために、中性子線源（カリホルニウム 252 (^{252}Cf) 強度を疑似的に変化させる可搬性が高い回転照射装置を開発し、核物質検知に成功しました。今後、検査装置の実用化が期待されます（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。しかし、炉心解析等の放射線輸送計算の為に、断面積処理等の核データ処理が必要となります。核データ処理に係わる海外コード依存低減とオープンソース化による機能向上を目的としてFRENDYの機能向上を行い、第2版を公開しました。FRENDY第2版では、より多くの機能が追加されており、FRENDYの重要性がますます高まることが期待されます（トピックス4-2）。

酸化物核燃料等のセラミック材料は、高速核分裂片などの放射線環境に曝されることで照射損傷を起こします。近年、特定のセラミックスにおいて照射損傷が理論値と異なっておりその原因が不明でした。照射損傷の際に形成される約10 nmの表面ナノ構造（ナノヒロック）を詳細に観察した結果、セラミックの再結晶化の速度が非常に速いために耐照射性が高まることを明らかにしました（トピックス4-3）。

都市域での放射性物質拡散による被曝評価は大気拡散

計算と建物による遮蔽を考慮する必要があります。しかし、3次元的に考慮した線量評価はできませんでした。そこで、高分解能大気拡散計算コード（LOHDIM-LES）と建物の遮蔽効果を考慮した線量率評価コード（SIBYL）及び都市大気拡散の高速計算が可能な計算コード（CityLBM）を統合した局所域高分解能大気拡散・線量評価システム「LHADDAS」を、システム計算科学センターとの連携研究により開発しました。この評価システムは、原子力事故時の放射性物質の漏えいや原子力施設の解体時の放射性物質の飛散の監視と環境影響評価への活用が期待されます。（トピックス4-4）。

将来の多様な原子炉（高速炉、軽水炉、小型炉ほか）利用で生じる廃棄物処分の負荷を低減するための技術開発の検討が進められています。これらの技術の導入した場合の将来シナリオを設定し、その放射性物質や核物質の扱いを評価するための高速で汎用性・柔軟性の高い解析システムNMB4.0（Nuclear Material Balance）を東京工業大学と共同開発しました。これにより、持続的な原子力利用のために、多様な原子力システム及び核燃料サイクル技術の研究開発や実装戦略の立案に貢献することができます（トピックス4-5）。

高レベル放射性廃棄物の有害度を低減するために加速器駆動核変換システム（ADS）を開発しています。ADS用加速器には未臨界炉心の加速ビームのトリップによる熱疲労を低減するため、非常に高い信頼性が必要となります。今回、加速器設計の鍵となる高い加速効率を実現するため、超伝導高周波空洞の最新技術を取り入れた設計を行いました。シミュレーション結果から、信頼性が向上した加速器の実現に向けた設計手法を確認できました（トピックス4-6）。

核医学検査薬の一つであるテクネチウム 99m はモリブデン 99 (^{99}Mo) を原料としています。近年、核セキュリティなどの観点から高濃度ウラン燃料からの分離精製ではなく、モリブデン 98 に中性子を照射して製造する放射化法が注目されています。しかし、放射化法は ^{99}Mo の生成量が少ないため、効率的に ^{99}Mo を回収する吸着材（アルミナ）の性能向上が必要となります。今回、アルミナへの Mo 吸着メカニズムを明らかにするとともに、Mo 吸着容量を向上する手法を開発しました（トピックス4-7）。

4-1 低コスト可搬型核物質検知装置の開発 —新しい非破壊核物質検知技術の原理実証実験に成功—

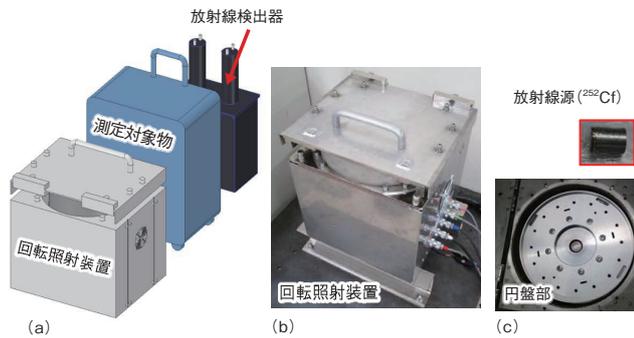


図4-2 (a) 新たな検出装置による測定の概要、(b) 開発した回転照射装置、(c) 回転照射装置内の円盤部及び放射線源
測定時は回転照射装置の横に測定対象物を配置し、測定対象物を挟むように放射線検出器を配置します。

世界的にテロの脅威が高まっており、空港や港湾においても放射性物質に対するセキュリティ検査が実施されています。中でも核物質を用いたテロは社会に甚大な影響を与えるものとして深く憂慮され、核セキュリティ用の核物質検知装置の重要性が増している状況にあります。アクティブ法は有望な核物質検知法の一つであり、検査対象物に放射線を照射して核物質と反応させ、その反応によって出てくる放射線を検出することにより核物質を検知します。この手法は、核物質自身が放出する放射線を測定するパッシブ法に比べて圧倒的な検出感度と正確性を持っている一方で、従来のアクティブ装置は、加速器を用いた放射線発生器が必要となるため、装置自体が高価で大型なものになるという課題がありました。

本研究では、安価で可搬性が高いアクティブ装置の実現を目指し、新たな放射線発生器として測定対象物の近傍で放射線源を高速回転させる回転照射装置を開発しました。開発した回転照射装置(図4-2)は、直径31 cmの円盤を内蔵しており、その外周部に放射線源(カリホルニウム252 (^{252}Cf))を取り付けて最大で1分間に3000回転させることができます。その回転照射装置は、従来の放射線発生器(加速器を使用するためコストは約3000万円以上)よりも大幅な低コスト化(約400万円)が図られています。また、寸法は、横幅43 cm、奥行35 cm、高さ57 cmとコンパクトであることから、必要な場所に容易に移動させることが可能です。

一般的に、 ^{252}Cf から放出された中性子はウラン235 (^{235}U)等の核物質と核分裂反応を引き起こし、その反応によってさらに多くの中性子が放出されます。したがって、 ^{252}Cf から放出された中性子以外の中性子が確認できれば、そこに核物質があるということになります。しかし、ただ単に中性子を照射した場合には放射線源からの中性子と核物質からの中性子を区別できないため、核物質の有無を検知することは困難です。回転照射装置

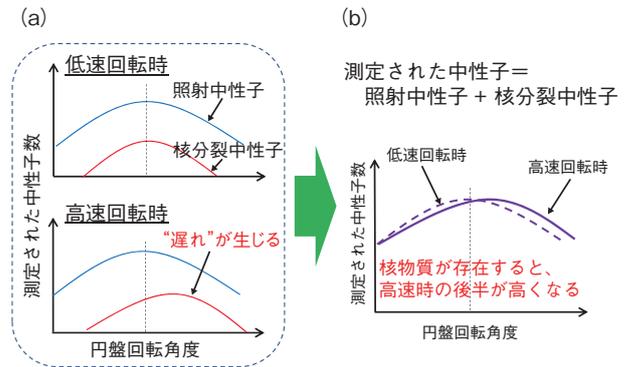


図4-3 回転照射装置による核物質検知の原理
高速回転時に核分裂中性子だけに“遅れ”が生じることを利用することで核物質を検知することができます。

による核物質検知の原理を図4-3に示します。放射線源からの中性子(図4-3(a):—)は測定対象物を通り抜けて、そのまま検出器で測定されるのに対し、核分裂反応により放出される中性子(図4-3(a):-)は時間的に少し“遅れ”て検出器で測定されます。回転照射装置で放射線源を回転させることにより放射線源と核物質の距離を一定間隔で変化させると、核分裂反応数や核分裂反応により放出される中性子量も回転に同期して変化します。核分裂反応により放出される中性子の“遅れ”は数マイクロ秒程度とわずかであるため、低速で回転させた場合には放射線源からの中性子(照射中性子)と核物質からの中性子(核分裂中性子)の強度は全く同じように変化しているように見えます。一方で、高速で回転させた場合には中性子の強度変化の違いが観測できるようになります(図4-3(b))。このことから核物質がある場合には低速回転と高速回転の測定データに差異が生じ、この差異の有無によって核物質が検知できることを見い出しました。開発した回転照射装置を用いた実証実験を京都大学複合原子力科学研究所において実施し、核物質を検知できることが確認できました。

開発した回転照射装置は、従来のアクティブ装置で用いられる放射線発生器より大幅に安価(1/10程度)・小型であり、放射線源として少量の ^{252}Cf を採用することによりRI許認可申請の必要がない表示付認証機器とすることができるというメリットもあります。すなわち、これを用いた新しい核物質非破壊検知装置は従来のアクティブ装置と同等の検知性能を持ちつつ、低コスト化・可搬性向上を図ることができます。このため、空港や港湾など、全国の運輸関連施設等だけでなく、大規模イベントにおける核物質検査等での活用にも適しています。また、核物質検知装置を幅広く普及させることは、それ自体が核テロの抑止に繋がると期待されます。

(米田 政夫)

●参考文献

Komeda, M. et al., First Demonstration Experiment of the Neutron Rotation Method for Detecting Nuclear Material, Annals of Nuclear Energy, vol.159, 2021, 108300, 8p.

4-2 核データと粒子輸送計算を繋げる

—多群定数作成機能等を実装した FRENDY 第2版の開発—

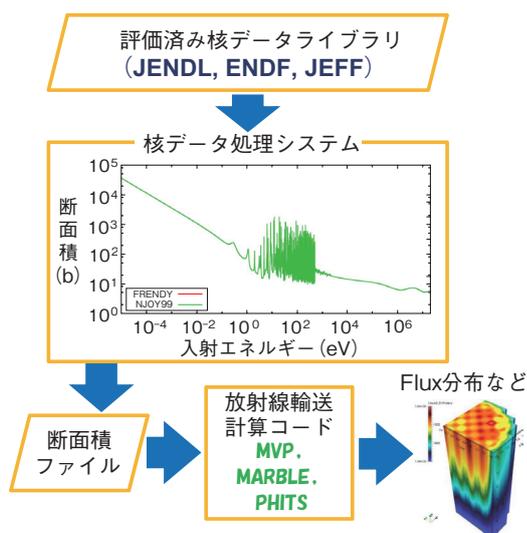


図4-4 評価済み核データから輸送計算の流れ

放射線輸送計算コードで核データライブラリを利用するためには、各温度点で断面積の計算などの核データ処理を行い、それぞれの放射線輸送計算コードで利用可能な断面積ファイルと呼ばれる形式に変換する必要があります。

放射線輸送計算コードは、原子炉の炉心解析や遮蔽計算、被ばく評価など、様々な場面で利用されています。図4-4のように放射線輸送計算コードは、中性子と原子核の反応確率等の基礎的な物理データを必要としており、これには、評価済み核データライブラリを処理したものを用います。原子力機構では、放射線輸送計算コード (MVP や MARBLE、PHITS など) や、評価済み核データライブラリ (JENDL) を整備してきましたが、これらを繋ぐ核データ処理システムの開発は長年行われていませんでした。評価済み核データライブラリから放射線輸送計算までの全てのデータ・コードを国産技術で賄うことを目的に、2013年度より核データ処理システム FRENDDY の開発を開始し、2019年の3月にオープンソースのソフトウェアとして第1版を公開しました。

核データ処理では、図4-5のように様々なデータ処理を行う必要があります。断面積ファイルは放射線輸送計算コードで異なるため、核データ処理システムの開発には核データライブラリだけでなく、各輸送計算コードに特有の知識も必要となります。このように様々な分野の専門知識が必要となる核データ処理システムの開発は、世界的に見てもほとんど行われていませんでした。FRENDY は日本だけでなく世界的にも注目を集めており、OECD/NEA/Data Bank での核データ処理システムの一つとして採用されるなど、世界中で広く利用されています。

私たちは、第1版公開後も名古屋大学、北海道大学、(株) グローバル・ニュークリア・フュエル・ジャパン等と協力して様々な機能を開発してきました。例えば多群定数作成機能や、確率テーブルの計算精度向上に貢献する

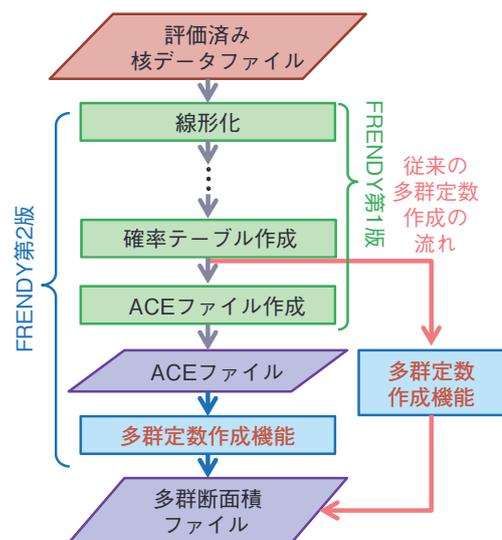


図4-5 FRENDDY の多群定数作成の計算フロー

FRENDY 第2版では、連続エネルギーモンテカルロ計算コードで用いられる断面積ファイル形式である ACE ファイルから、多群断面積ファイルを作成する多群定数作成機能を開発しました。

確率テーブルの統計誤差計算機能などです。これらの機能の中でも、図4-5に示すメーカー等が開発している多群放射線輸送計算コードで用いる多群断面積ファイルを作成する機能の開発が、特に産業界から強く求められていました。FRENDY の多群定数作成機能の開発については、日本原子力学会の技術賞特賞を受賞するなど、高い評価を受けています。第1版公開後に開発したこれらの機能をまとめ、2022年1月に FRENDDY 第2版として公開しました。

FRENDY では、従来の核データ処理システムとは異なり、図4-5に示すように放射線輸送計算の参照解の計算に広く利用されている連続エネルギーモンテカルロコード用の断面積ファイルである ACE ファイルから多群断面積ファイルを作成しています。ACE ファイルは世界的に広く利用されている断面積形式であり、世界中の機関から公開され、参照計算に利用されています。FRENDY はこれらの既存の ACE ファイルを起点として多群断面積ファイルを作成することができます。そのため、FRENDY を用いることで、参照計算に利用されている ACE ファイルと全く同じ核データ処理手法、処理条件で多群断面積ファイルを作成することが可能となります。これにより、核データ処理手法や処理条件の違いの影響を除去した参照計算と多群放射線輸送計算の比較が実現しました。

FRENDY 第2版では、異なる核種間の共鳴が干渉する効果など、従来の核データ処理システムでは取り扱えなかった効果を考慮することが可能となりました。今後これらの機能の充実に伴い、FRENDY の利用が進んでいくことが期待されます。

(多田 健一)

●参考文献

Yamamoto, A., Tada, K. et al., Multi-Group Neutron Cross Section Generation Capability for FRENDDY Nuclear Data Processing Code, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.58, issue 11, 2021, p.1165-1183.

4-3 照射損傷の従来の理論予測が通用しない理由を探る —耐照射性セラミックスにおける照射損傷メカニズム—

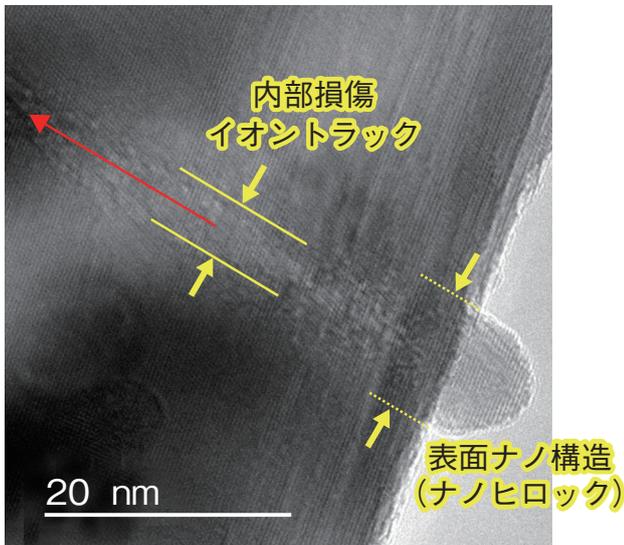


図4-6 イオン照射した CeO_2 に形成されたナノ構造組織
透過型電子顕微鏡の観察によって、イオンビームの飛跡 (→) に
よって形成された内部ナノ構造の径が表面ナノ構造の径より
も小さいことが分かります。

セラミックスは、原子力材料として利用される際、高速核分裂片などの放射線によって照射損傷を起こします。例えば数十 MeV 以上の高速重イオンビームをセラミックスに照射すると、イオンの飛跡に沿ってイオントラックと呼ばれる内部損傷が形成されます。飛跡に沿った局所溶融を想定する熱スパイク理論に基づく計算で、多くのセラミックスについてイオントラックの径を正確に予測できます。

ところが、近年、特定のセラミックスにおいて、熱スパイク理論で予測されるイオントラックの径(理論値)よりも、実際に観測される径(実験値)が明らかに小さいことが指摘されるようになりました。特に、耐照射性の強いセラミックスにおいて、理論値と実験値のずれが顕著でした。なぜ、特定の材料で従来の理論が通用しないのでしょうか。イオンビームが入射する材料表面に形成される約 10 nm の表面ナノ構造(ナノヒロック)を詳細に観察していくうちに、その理由が明らかになりました。

図4-6に示すように、耐照射性が強いセラミックスの代表である CeO_2 においては、イオントラックの径が、ナノヒロックの径よりも小さいことが分かりました。これまで多くのセラミックスで知られていたナノ構造の大小関係とは違う様相を呈しています。図4-7(a)に示すように、耐照射性が弱いセラミックスにおいては、飛跡に沿って局所溶融するために表面隆起が発生し、その

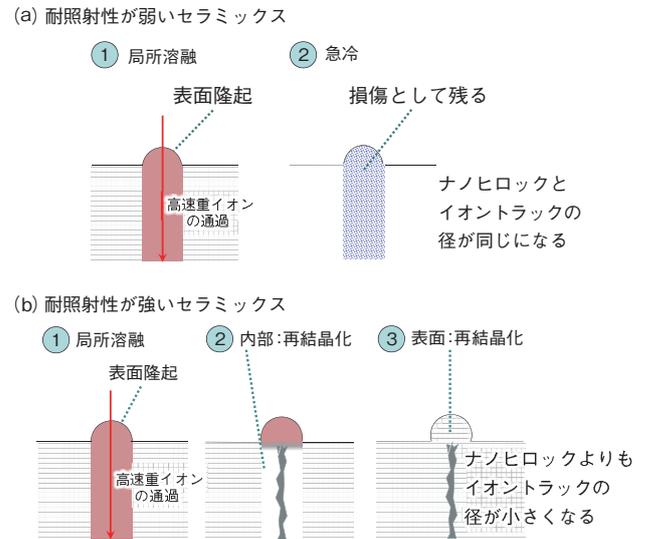


図4-7 高速重イオンを照射した後に形成されるナノ構造形成プロセスの概念図

(a) 耐照射性が弱いセラミックスと (b) 耐照射性が強いセラミックスとは、図のようにナノ構造形成プロセスが異なると考えられます。

後、溶融部分が「そのままの大きさで損傷として残る」というプロセスが想定されます。実際に、ナノヒロックとイオントラックの径が同じであることが実験で確認できます。また、この場合はイオントラックの径について、理論値と実験値とが一致します。

一方で、耐照射性が強いセラミックスは、図4-7(b)に示すように、最初のプロセスは同じですが、 CeO_2 等で観察した結果から、内部の溶融部分が再結晶化により回復したと考えられます。従来の理論で想定されていなかった再結晶化現象のために、イオントラックが収縮していたと考えられるのです。再結晶化を証明するもう一つの証拠があります。ナノヒロックの結晶形態がきちんと回復していることです。図4-6を見ても、ナノヒロック中の原子が層状に並んだ規則的な原子配列で構成されており、再結晶化によってきれいな結晶状態が形成されたことが分かります。本研究の結果から、特定のセラミックスの耐照射性が強い理由は、再結晶化の速度が非常に速いためであると分かりました。再結晶化を最大化することができれば、材料の耐照射性を大きく向上させ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基盤研究(C)(JP20K05389)「耐照射性セラミックスの表面ナノ構造観察による照射損傷メカニズムの解明」の助成を受けたものです。

(石川 法人)

●参考文献

石川法人ほか, 高速重イオン照射したセラミックスにおける照射損傷メカニズム, 原子衝突学会誌しょうとつ, 2021, vol.18, issue 3, 2021, p.43-55.

4-4 建物影響を考慮した詳細な大気拡散・線量評価を初めて実現 — 局所域高分解能大気拡散・線量評価システム「LHADDAS」の開発 —

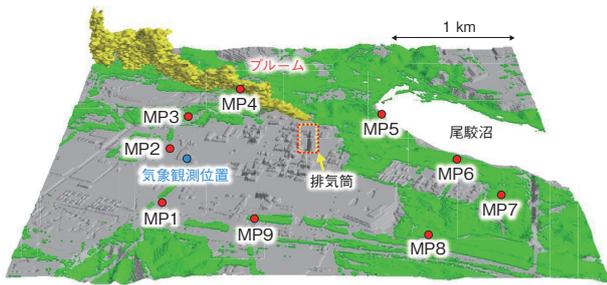


図4-8 六ヶ所再処理工場から放出された放射性プルームの流れと拡がり

プルームはMP2とMP3の間の上空周辺を通過しています。放射性核種の大気中3次元濃度分布は、検出できない濃度レベルまで示しており、放射線影響が想定される範囲ではありません。

原子力施設の運転時や事故時、あるいは都市域での放射性物質拡散テロへの対応における影響評価では、放射性物質の大気放出に対する放出点近くでの建物の影響を考慮した大気拡散計算と線量評価が必要となります。しかし、これまでの放射性物質の大気拡散・線量評価システム（原子力機構のSPEEDI、WSPEEDIなど）では、このような詳細な大気拡散計算と建物による遮蔽を3次元で考慮した線量評価はできませんでした。そこで、個々の建物の影響を受けた風の流れを考慮した高分解能大気拡散計算コード(LOHDIM-LES)^{*1}と建物の遮蔽効果を考慮した線量率評価コード(SIBYL)^{*2}及び都市大気拡散の高速計算が可能な計算コード(CityLBM)^{*3}を統合した局所域高分解能大気拡散・線量評価システム「LHADDAS」を、システム計算科学センターとの連携研究により開発しました。「LHADDAS」は、原子力施設の安全審査における線量評価について、これまで用いられてきた風洞実験では困難な実際の気象条件を取り込んだより現実的な評価手法としての利用が期待されます。また、事前・事後詳細解析により、原子力事故時の施設内外作業員の被ばく線量評価、都市域での放射性物質拡散テロに対する汚染状況の把握と住民及び対応要員の被ばく線量評価が可能です。さらに、即時解析による都市大気拡散テロ時での迅速な拡散計算結果の情報提供も可能です。

開発した「LHADDAS」による大気拡散計算と線量率評価について、青森県六ヶ所村の再処理工場で2006年から2008年に実施された試験運転の際のモニタリングデータを活用してシステムの検証を行いました。試験運転の際に管理放出された放射性希ガス（クリプトン85（⁸⁵Kr））について、敷地内のモニタリングポスト（MP）で大気中濃度と空間線量率が測定されています。まず、「LHADDAS」の大気拡散計算コードLOHDIM-LESにより、再処理工場の排気筒から放出された⁸⁵Krの大

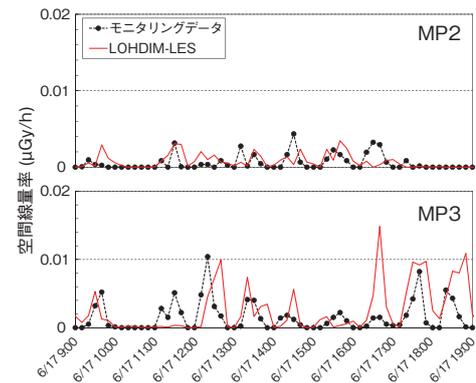


図4-9 空間線量率の時系列変化

六ヶ所再処理工場敷地内のモニタリングポストの空間線量率の施設寄与分のみの測定値と計算値の比較を表しています。対象地点・期間における自然放射線による空間線量率は0.016 μGy/h程度を変動しており、濃度が高い再処理工場敷地内においても、空間線量率の上昇は自然放射線による変動の範囲内になっています。

気拡散計算を行いました。この計算では、細密地理情報を用いて標高・建物・樹木分布を5 mの高分解能計算格子により精緻に解像しました。図4-8に計算による⁸⁵Krのプルームの流れと拡がりを示します。次に、線量率評価コードSIBYLを用いて、LOHDIM-LESによる⁸⁵Krの3次元濃度分布から建物遮蔽効果を考慮して線量率評価を行いました。図4-9に示すように、MP2での滑らかな変動やMP3での鋭いピークの発生など、敷地内の異なるモニタリングポストでの空間線量率の測定値の時間変動パターンを、計算により良好に再現することに成功しました。これにより、現実の事象に対する「LHADDAS」の大気拡散及び線量率評価の性能を実証しました。

今後は、「LHADDAS」を、様々な大気拡散事象の課題解決へ活用していきます。特に、原子力施設からの放射性物質の大気放出に対して、原子力サイト内の詳細な拡散解析と放射線計測データの融合解析により、放射性物質の分布と放出量、あるいは汚染状況を逆推定する手法の開発を進めます。これにより、原子力事故時の放射性物質の漏えいや原子力施設の解体時の放射性物質の飛散の監視と環境影響評価への活用を目指しています。

(中山 浩成)

●参考文献

Nakayama, H. et al., Development of Local-Scale High-Resolution Atmospheric Dispersion and Dose Assessment System, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.59, issue 10, 2022, p.1314-1329.

*1 Nakayama, H. et al., Development of Local-Scale High-Resolution Atmospheric Dispersion Model Using Large-Eddy Simulation Part 6: Introduction of Detailed Dose Calculation Method, Journal of Nuclear Science and Technology vol.58, 2021, p.949-969.

*2 Satoh, D. et al., Simulation Code for Estimating External Gamma-Ray Doses from a Radioactive Plume and Contaminated Ground Using a Local-Scale Atmospheric Dispersion Model, PLOS ONE, vol.16, no.1, 2021, e0245932, 26p.

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

4-5 核燃料サイクルシミュレーターを一般公開

—高速・汎用・柔軟な NMB4.0 を開発し、将来の原子力利用戦略立案に貢献—

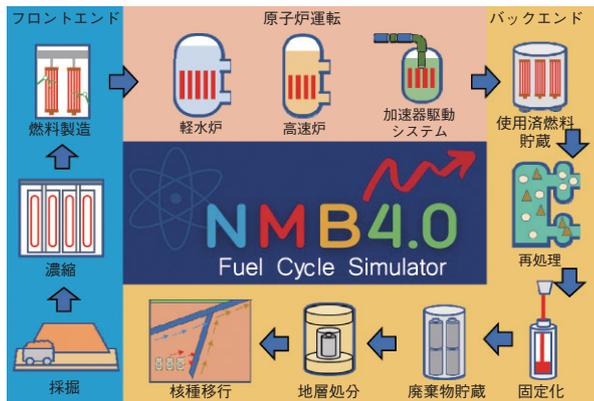


図4-10 NMB4.0 が取り扱う核燃料サイクル
燃料採掘から地層処分までの全ての工程を流れる核燃料物質及び核分裂生成物の物量を評価することができます。

現在我が国では、将来の原子力利用のために様々な炉形（高速炉、軽水炉、小型炉ほか）や、廃棄物処分の負荷を低減する再処理技術の開発が進められています。実現を目指して開発を本格化するにあたっては、導入による原子力産業への効果を明らかにする必要があります。そのため、新技術の導入時期や導入規模を想定し、図4-10に示すような核燃料サイクル内で取り扱われる核燃料や廃棄物の物量、及びそれらを取り扱う施設規模を明らかにすることで技術の得失を評価することが必要です。そのような評価において核燃料サイクルシミュレーターと呼ばれるプログラムが使われます。これまで、国内において汎用的なシミュレーターは公開されておらず、海外でも多くの優れたシミュレーターは非公開です。しかし、多様な機関で行われている炉形開発などの新技術を公平に評価するためには、共通のシナリオとシミュレーターを用いた解析が不可欠であり、非公開であることは大きな障害となりました。そこで、原子力機構と東京工業大学は、高速で汎用性・柔軟性の高いシミュレーターである NMB4.0 を共同開発し、東京工業大学 HP (<https://nmb-code.jp>) にて、2022年3月に公開しました。NMBは Nuclear Material Balance の略です。本シミュレーターは、以下のような特徴を備えています。

高速性：従来のシミュレーターでは、ウランやプルトニウムなどの20～30種類程度の核物質の原子炉内の燃焼変化を計算することが主流でした。しかし、放射性廃棄物の発生や処分を正確に評価するために、NMBでは、ウランが核分裂して生成される150種類程度の核分裂生成物の計算を可能としました。多種類の物質の燃焼変化を計算するために、高速かつ十分な精度で燃焼方程式を解く解法の開発に成功し、従来解法では数時間を要する計算が、数分で終わるようにすることができました。

汎用性：NMBでは原子力発電に関わるほぼ全ての工程を解析することができます(図4-10)。原子炉については、現代の主力炉である軽水炉のほか、将来型炉であるナトリウム冷却高速炉、ガス冷却炉、加速器駆動システムな

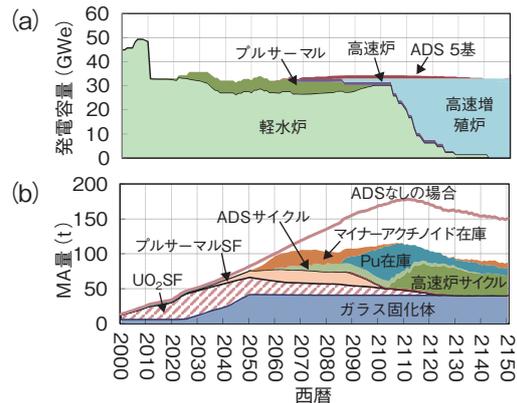


図4-11 NMB4.0 の解析例

今世紀後半に高速増殖炉に本格移行するシナリオ(a)において、マイナーアクチノイド(Np, Am, Cm)がどのように蓄積するかを(b)に示します。2050年からマイナーアクチノイドを分離し、2060年から5基の加速器駆動システム(ADS)を段階的に導入して核変換することで、高速増殖炉の本格稼働前にマイナーアクチノイドの蓄積量(茶色線)を低減でき、地層処分場の負荷を緩和できる可能性が示されました。

どを解析可能なように、データベースを整備しました。

核燃料サイクルについては、他のシミュレーターではあまり含まれていない放射性廃棄物の地層処分について十分な精度の温度計算モデルと充実したデータベースを作成しました。地層処分では処分場の温度上昇が、処分場規模を計算するときに考慮することが必須ですが、多くのコードでは評価されていません。NMBでは日本で検討されている地層処分場設計に対してコード内部で温度評価が可能なデータベースを備えており、処分場規模が評価可能です。

柔軟性：我が国の原子力利用の将来像は、軽水炉プロセスの不透明さ、高速炉開発の遅れ、地層処分地選定の困難さなどにより、非常に見通しが悪くなっています。そのため、原子力利用の撤退や継続、高速炉導入時期の変化など多彩なシナリオを解析できるような設計としました。(解析例:図4-11)さらに、様々な状況に対応できるよう、パラメータを固定化することなくモデル式で記述するようにしています。例えば、高速炉の新燃料に含まれるプルトニウムの量や、放射性廃棄物をガラス固化する際に含むことのできる放射性物質の量を、放射性物質の組成に応じて評価可能とするモデル式を作成しました。

今回の公開を契機に、広くユーザー・開発者を募集しています。ユーザーとして、大学、研究所、メーカー、電力事業者などを想定し、持続的な原子力利用のために、将来型原子炉及び核燃料サイクル技術の研究開発や実装戦略の立案に役立てられることを期待します。さらには、NMBを中心としたコミュニティを醸成し、経済性や環境負荷などの評価機能の充実や、他電源を含めエネルギー分野横断的な評価研究の実現に向け研究プラットフォームの役割を果たすよう、発展を続けていきたいと考えています。

本研究は、東京工業大学との共同研究「使用済燃料再処理における放射性核種の分離および、先進的核燃料サイクルの諸量評価についての研究」(令和3年度)における成果を含みます。

(西原 健司)

●参考文献

Okamura, T., Nishihara, K. et al., NMB4.0: Development of Integrated Nuclear Fuel Cycle Simulator from the Front to Back-End, EPJ Nuclear Sciences & Technologies, vol.7, 2021, 19, 13p.

4-6 ADS のための信頼性指向加速器の実現に向けて —核変換用 30 MW リニアックの堅牢なビーム光学設計—

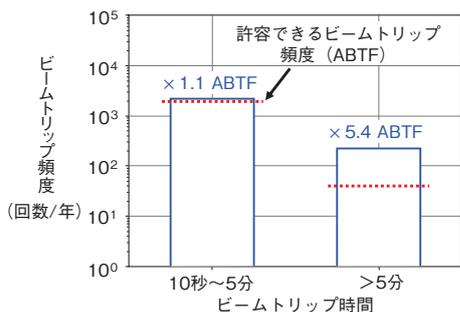


図4-12 加速器駆動システム (ADS) のビームトリップ頻度
2020年度のJ-PARC リニアックのビームトリップ頻度 (青棒) と ADS リニアックの許容できるビームトリップ頻度 (ABTF、赤点線)*を示しています。J-PARC のリニアックでは、10秒未満のビームトリップは起こっていません。

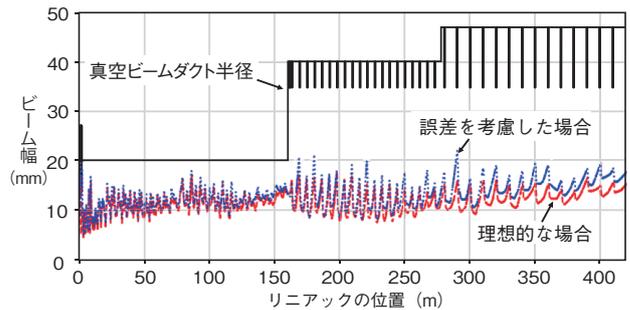


図4-14 最大水平ビーム幅
誤差のない理想的な状態 (赤破線) と機器の設置誤差といった現実的な誤差を入れた状態 (青点線)、及びリニアックの真空ビームダクト半径 (黒実線) を示しています。現実的な誤差を考慮した場合でもビーム幅がビームダクト半径に対して十分に小さく、ビーム損失の少ない十分な性能を発揮できることを示しています。

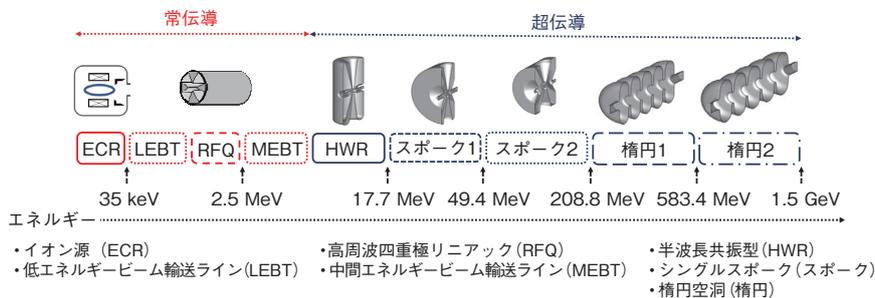


図4-13 JAEA-ADS リニアックの構成

2.5 MeV から 1.5 GeV までの加速のほとんどは、超伝導セクション (HWR、スポーク及び楕円空洞) で行われます。

原子力機構は、高レベル放射性廃棄物処分の問題に対処するために、加速器駆動システム (ADS) を開発しています。JAEA-ADS では、30 MW の超伝導陽子線形加速器 (リニアック) を用いて未臨界原子炉を駆動する核破砕中性子を生成します。ADS 用リニアックには厳格な信頼性が必要です。つまり、未臨界炉心構造材の熱疲労を軽減するために、ビームが突然停止するビームトリップの頻度を厳しい規定値以下に抑える高い信頼性が必要です。図4-12は、J-PARC リニアックと JAEA-ADS リニアックに要求されるビームトリップ頻度の比較です。主な課題は、5分以上のビームトリップ頻度の低減です。10秒～5分のビームトリップ頻度は許容可能なビームトリップ頻度 (ABTF) に近く、10秒以下のビームトリップは起こっていません。そのため、JAEA-ADS リニアックでは、信頼性を高めて ABTF 以下で動作する設計を目指しました。その第一歩として、長い運転停止につながる超伝導加速部でのビーム損失によって引き起こされるビームトリップ頻度を減らし、許容可能なビーム損失で安定したビーム運転を可能にする設計を追求しました。

JAEA-ADS リニアックは、図4-13に示すように、常伝導及び超伝導高周波加速空洞を用いて、ビーム電流 20 mA の陽子ビームを 1.5 GeV の最終エネルギーに加速します。設計の鍵となる高い加速効率を実現するため、超伝導高周波空洞の最新技術を取り入れて設計を行

いました。JAEA-ADS リニアックは、他の ADS 計画の加速器よりも高いビーム電流で運転するため、ビーム粒子間に働くクーロン反発力により横方向のビーム幅の増大、そしてビーム損失の増加をもたらします。したがって、電磁石による収束力や加速空洞による発散力といった外部の力と、粒子間の発散力との適切なバランスをとることにより効率的にビームを制御できるよう、リニアック構成機器のパラメータを定めました。

多数の陽子 (1×10^8) を使用したシミュレーションにより設計を最適化し、誤差のない理想的な状態と、機器の設置誤差といった現実的な誤差を入れた状態ともに、人の手による保守作業が可能とされるビーム損失量に対して二桁低いビーム損失を実現しました。図4-14は、誤差のない理想的な場合と、ランダムな設置誤差及び電磁石印加電圧のふらつきを考慮した 1000 以上の場合についての、シミュレーションから得られたビーム軸に水平方向の最大ビーム幅を示しています。その結果、ビームは良く制御され、ビーム損失は許容可能な量を十分に下回りました。以上により、JAEA-ADS 用の信頼性指向加速器の実現に向けた堅牢なりニアック設計を得ることができました。

(Bruce Yee-Rendon)

* 近藤恭弘, Yee-Rendon, B. ほか, ADS 用超伝導リニアックの研究開発, プラズマ・核融合学会誌, vol.98, no.5, 2022, p.222-226.

●参考文献

Yee-Rendon, B. et al., Design and Beam Dynamic Studies of a 30-MW Superconducting Linac for an Accelerator-Driven Subcritical System, Physical Review Accelerators and Beams, vol.24, issue 12, 2021, 120101, 17p.

4-7 医用ラジオアイソトープ用吸着材の性能向上に向けて —アルミナのモリブデン酸イオン吸着メカニズムの解明—

表 4-1 アルミナの Mo 吸着容量及びミルクング溶液中の Mo と Al 量
アルミナは溶液の pH が低いほど、多くのモリブデン酸イオンを吸着しました。同様に、Mo 脱離と Al 混入も多くなる傾向を示しました。

溶液 pH	Mo 吸着容量 (mg-Mo/g)	ミルクング		
		回数	Mo 脱離量 (mg-Mo/g-Al ₂ O ₃)	Al 混入量 (mg)
pH2	74.1	1回目	2.77	0.08
		2回目	2.33	0.06
pH4	61.5	1回目	0.88	0.02
		2回目	0.92	0.02
pH6	53.8	1回目	0.68	—
		2回目	0.62	—

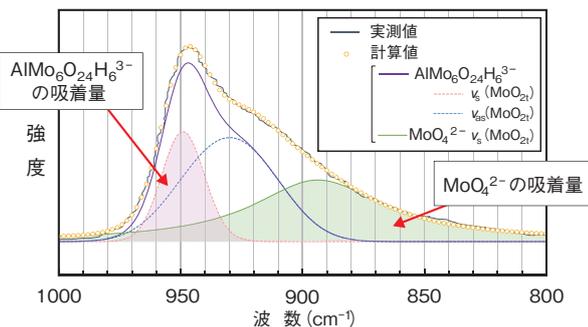


図 4-15 ラマン分光による各モリブデン酸イオン吸着量 (pH4)
ラマン分光スペクトルを各モリブデン酸イオンピークでフィッティングして、ピーク面積から各イオン種の吸着量を比較しました。

核医学検査薬として代表的な核種であるテクネチウム 99m (^{99m}Tc) は、モリブデン 99 (⁹⁹Mo) を原料としています。現在、⁹⁹Mo はウランの核分裂により製造 (核分裂法) されていますが、核セキュリティなどの観点からモリブデン 98 (⁹⁸Mo) に中性子を照射して製造する放射化学法が注目されています。しかし、核分裂法に比べて放射化学法は ⁹⁹Mo を極めて少量ずつしか製造できないという欠点があります。一般に、⁹⁹Mo から ^{99m}Tc を取り出す際には、⁹⁹Mo を吸着したアルミナ (Al₂O₃) に生理食塩水を流す (ミルクング) と ^{99m}Tc のみがアルミナから溶離されるという現象を利用します。したがって、核分裂法と同等の ^{99m}Tc を取り出すためには、アルミナにより多くの ⁹⁹Mo を吸着できるように Mo 吸着性能の向上を図る必要があります。そこで、吸着量を増やすため、私たちは Mo がアルミナに吸着する際の形態であるモリブデン酸イオンに着目し、その吸着メカニズムの解明を目指しました。

まず、モリブデン酸イオンを含む異なる pH の溶液にアルミナを浸して Mo 吸着した後、生理食塩水を流してミルクングを行いました。その結果、pH が低いほど Mo を吸着しますが、ミルクングの際に余分な Mo 脱離及び Al 混入を生じ、得られる ^{99m}Tc の純度が下がることが分かりました (表 4-1)。次に、アルミナ表面の OH 基の量を比較しました。その結果、吸着前と比較して pH4、pH6 では OH 基が増えますが、pH2 ではほぼ変化しませんでした。これは、溶液への浸漬により表面

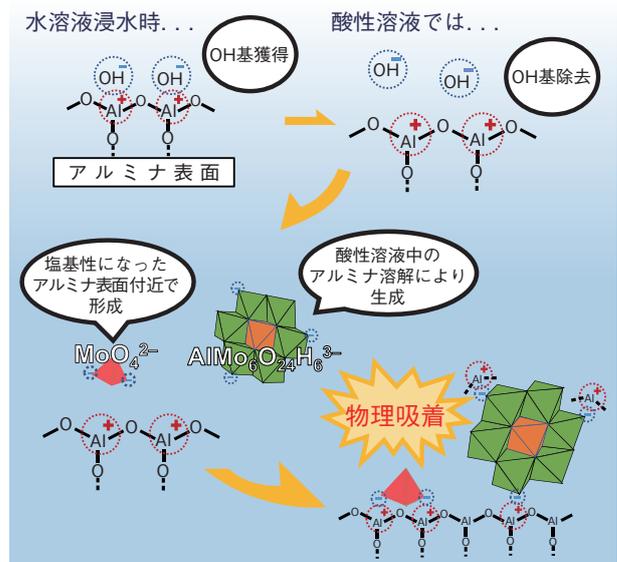


図 4-16 アルミナのモリブデン酸イオン吸着メカニズム

①アルミナは周囲条件下で水和し、水溶液に浸すと表面に OH 基を獲得します。②アルミナを酸性溶液に浸すと酸の濃度に応じて OH 基が表面から除去され、正に帯電されます。③ OH⁻ の放出により、アルミナ表面近くが局部的に塩基性になり、MoO₄²⁻ の形成が促進されます。④アルミナは酸性溶液にわずかに溶解し、AlMo₆O₂₄H₆³⁻ が生成されます。⑤二つの陰イオンは、アルミナ表面の正に帯電したサイトとの静電相互作用により物理吸着されます。

の OH 基が増えますが、Mo 吸着量が多いと OH 基の生成が抑制されることを示しています。さらに、吸着したモリブデン酸イオン種を調べました。その結果、吸着したイオン種は Mo (VI) を含むイオンであることが示されました。続いて、吸着するモリブデン酸イオン種の特定制及び吸着量の比較をしたところ、吸着したモリブデン酸イオン種は MoO₄²⁻ 及び AlMo₆O₂₄H₆³⁻ であることが分かりました (図 4-15)。また、先に述べた pH が低いほど Mo 脱離及び Al 混入量が増えることと、二つのモリブデン酸イオン種の吸着量から、AlMo₆O₂₄H₆³⁻ は吸着力が弱いことが推定されました。

この結果から、アルミナへの Mo 吸着メカニズム (図 4-16) を明らかにするとともに、Mo 吸着容量を向上する手法として、1) アルミナの比表面積向上による表面 OH 基の増加、2) アルミナの結晶相制御による表面 OH 基の増加、3) MoO₄²⁻ のモリブデン酸イオン種で吸着するための Mo 溶液の最適化という三つの手法を見いだしました。本成果に基づく Mo 吸着容量を向上したアルミナの開発は、核セキュリティに優れた放射化学法の迅速な実用化に貢献します。

本研究は、日本学術振興会科学研究費基盤研究 (B) (JP17H04256) 「⁹⁹Mo/^{99m}Tc 国産化を推進する空間構造に優れた新規アルミナ吸着剤の開発」の助成を受けたものです。

(藤田 善貴)

●参考文献

Fujita, Y. et al., Mechanisms Responsible for Adsorption of Molybdate Ions on Alumina for the Production of Medical Radioisotopes, Bulletin of the Chemical Society of Japan, vol.95, no.1, 2022, p.129-137.

幅広い科学技術・学術分野における革新的成果の創出を目指して

原子力機構では、科学技術基本計画に基づき中性子利用研究や放射光利用研究を通して科学技術イノベーションの創出を促し、科学技術・学術の発展や産業の振興に貢献することを目指しています。そのため、大強度陽子加速器施設 J-PARC や、高性能汎用研究炉 JRR-3、大型放射光施設 SPring-8 (図 5-1) 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。



J-PARC 物質・生命科学実験施設 (MLF)



JRR-3



SPring-8

図 5-1 中性子及び放射光利用研究を展開する施設

(1) J-PARC センターでの性能向上に関する研究開発

J-PARC は、リニアック、3 GeV シンクロトロン、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。

加速器では、目標である陽子ビーム出力 1 MW 相当でビーム調整試験を行い、安定な高出力運転のために不可欠なビームロス低減に関して、3 GeV シンクロトロンで従来の 0.2% から 0.15% へと改善を進めました。リニアックでは陽子ビームがワイヤ方式のビーム形状モニタに衝突し軌道から逸脱する事象を減らすため、ガスをシート状に形成する方式のモニタを開発しました (トピックス 5-1)。今後、運転への実装に向けて開発を進める予定です。

MLF では入射陽子のビーム出力を前年度の 600 kW から 700 kW に増加させ、中性子実験装置 21 台とミュオン実験装置 3 ラインを運用して 151 日の利用運転を行い、物質科学、材料科学等に関わる幅広い実験を実施しました。中性子利用実験では、物質の表面・界面の構造解析に関して、約 100 万にも及ぶデータを学習 (ディープラーニング) させることにより、測定データから統計ノイズを除去する方法を考案し、測定時間を 1/10 以下に短縮しても高精度の構造評価を可能とする手法を開発しました (トピックス 5-2)。

また、試料内部のミクロな磁気構造の探索に有効な偏極中性子を得るための偏極スーパーミラーの開発を進め、その Fe/Ge 多層膜の最小膜厚が従来の 6 nm 以下に微細化しても磁化が消失しない条件を見だし、ニッケルの全反射臨界面の 5 倍程度であった偏極可能な運動量遷移を 6 倍以上へ向上させました (トピックス 5-3)。この技術を利用し、磁性体の磁気構造解析などの成果の創出が期待されます。

(2) 物質科学研究センターでの研究開発

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。

中性子利用研究では、ドメイン構造と呼ばれる蛋白質の高次構造の揺らぎが、触媒反応の舞台となる局所的分子構造を制御していることを発見しました (トピックス 5-4)。本研究により、酵素蛋白質 MurD の活性に寄与するアミノ酸残基の構造や揺らぎは、ドメインの運動という蛋白質全体の協同的な揺らぎによって巧みに制御されていることが見えてきました。また、高レベル放射性廃液のガラス固化体の原料であるホウケイ酸ガラスの階層構造への添加剤の影響を明らかにしました (トピックス 5-5)。本研究により、ホウケイ酸ガラスにおいて、ホウ素とケイ素それぞれを多く含むナノドメイン周期構造の形成と消失、また、ナノスケール構造体の形成と抑制が Na_2O や ZnO/CaO 、 Li_2O など添加剤の量に大きく影響されることが明らかになり、ガラス固化体製作技術高度化への貢献が期待されます。

放射光利用研究では、圧電トランスデューサーへの利用が期待されている非鉛圧電材料の局所構造を明らかにしました (トピックス 5-6)。本成果は、圧電材料内部に生じる強誘電的ドメインの大きさや形を制御して目的の圧電特性を得る技術 (ドメインエンジニアリング) の開発につながるものであり、環境に負荷の小さい圧電材料の設計に指針を与える重要な成果です。また、電子の有効質量が重くなる現象により注目されているユロピウム (Eu) 化合物について、そのエネルギーバンド構造を初めて明らかにしました (トピックス 5-7)。Eu の 4f 軌道の電子の電気伝導的性質への関与を明らかにした本成果は、物性物理の分野で重要な問題となってきた“重い電子状態”の形成メカニズムの解明への新たな手がかりとなり、新規の希土類系超伝導化合物の開発などの物質設計につながると期待されます。

5-1 ガスとビームの衝突の際に出た光でビームの状態を判断 —ガスシートビームプロファイルモニタの開発—

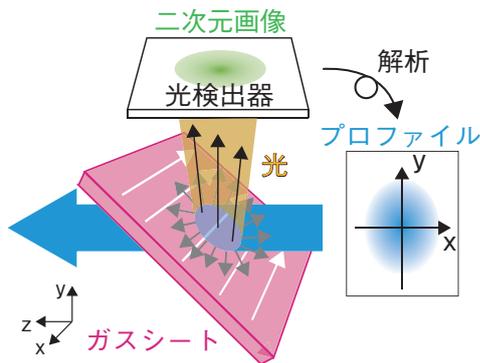


図5-2 ガスシートビームプロファイルモニタの概念図
z方向に進むビーム（青色）が、x方向に流れているガスシート（桃色）を通過すると、ビームガス相互作用によりガス粒子が励起・脱励起して光（灰色矢印、黄色）が放出されます。その光をカメラ等で撮影することでビーム形状の情報を含む二次元画像を取得します。

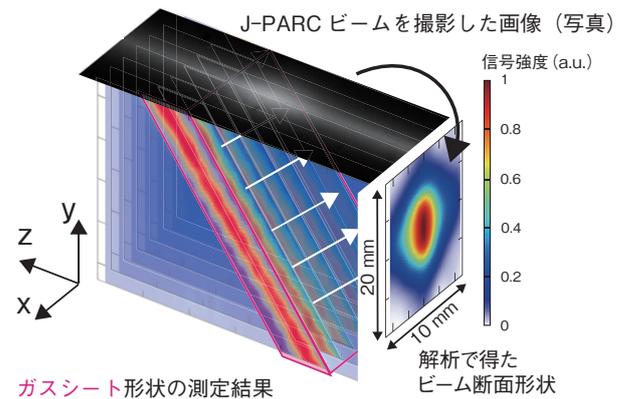


図5-3 実際の測定結果を概念図に対比させた図
実際に撮影された写真では発生した光の信号が白く検出されており、ビームがガスシートを通過していく様子が観測されました。この写真はビームを上から見た図となっているため、上下(y)方向に光が積算されたものとなります。そのため、ガスシート形状の情報を用いて適切に解析することで、右端の二次元プロファイル及び図5-4の積分プロファイルが得られます。

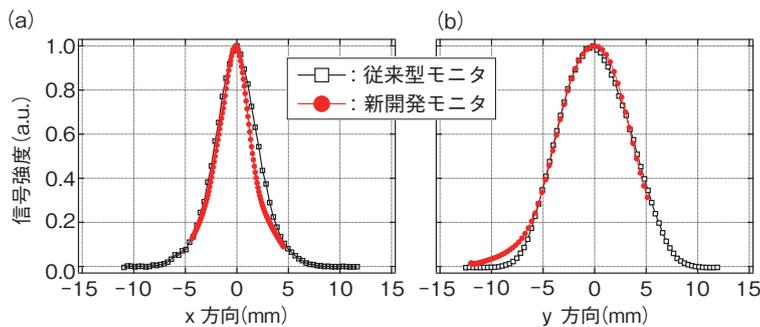


図5-4 従来型モニタと新開発モニタで得られたビームプロファイルの比較

(a) はx方向、(b) はy方向のビームプロファイルを示します。従来型（ワイヤ式）モニタで得られる信号は、図5-3の二次元プロファイルをx、y方向に積分した信号に相当します。両モニタで得られたプロファイルを比較してみると、x、y両方向ともおむね一致しました。

J-PARCのような大強度陽子加速器において、大強度を実現するために最も重要なことは加速器機器の放射化を最低限に抑えることです。機器の放射化は設計軌道から外れたビーム粒子の衝突に起因し、放射線量が高くなると機器のメンテナンスが困難となります。そのため、ビームの軌道や形状（プロファイル）を常に監視して、設計通りの状態になるように適切にビームを制御する必要があります。現在J-PARC リニアックでビーム形状を測定しているモニタは、金属ワイヤとビームの相互作用を利用する方式で、ビーム軌道を設計軌道からそらせてしまう可能性が高く、ワイヤの放射化及び破損を引き起こすという欠点があり、加速器大強度化の枷となっていました。

そこで私たちは、図5-2に示すようなワイヤの代わりにガスを利用した、ビームへの影響が小さく放射化・破損しないモニタを開発しました。ビーム粒子がガス粒子の近傍を通過すると、相互作用によりガス粒子が励起され、光が放出されます。その光の分布はビーム形状に依存するので、発生する光を直接カメラで撮影すればビーム形状が得られます。そこで私たちは、導入するガスをシート状にする工夫を行い、ビームの断面形状の情

報が得られるモニタとしました。このモニタを用いて、J-PARCのビームによる光を撮影した写真が図5-3の白黒画像です。白い部分が発生した光による信号で、ビームがガスシートを通過する様子が観測できました。この画像は直ちにビーム断面形状を示すわけではありませんので、データ解析により断面に変換する手法を考案しました。この解析により画像データからビーム断面形状の情報に変換することに成功し、図5-4のように従来型モニタで得られた結果と一致するデータが得られました。

一般に、ワイヤではなくガスを利用した場合でもビーム粒子の軌道をそらせる可能性があるため、ビーム品質が悪化すると予想していました。しかし、微量のガスを導入した場合は予想に反してビームの品質が向上する、という結果が得られました。これはビームガス相互作用により光とともに生じるプラズマが、ビーム品質の悪化を招くビーム粒子同士の反発力を打ち消したためと考えられます。今後この現象の研究を進め、ビームガス相互作用メカニズムのさらなる理解を深め、より安定なJ-PARCを目指すとともに、さらなる大強度化を実現したいと考えています。

(山田 逸平)

●参考文献

Yamada, I. et al., High-Intensity Beam Profile Measurement Using a Gas Sheet Monitor by Beam Induced Fluorescence Detection, Physical Review Accelerators and Beams, vol.24, issue 4, 2021, 042801, 13p.

5-2 ディープラーニングによって中性子測定を大幅に向上 —高精度のノイズ除去技術の開発によって中性子反射率測定を10倍以上高速化—

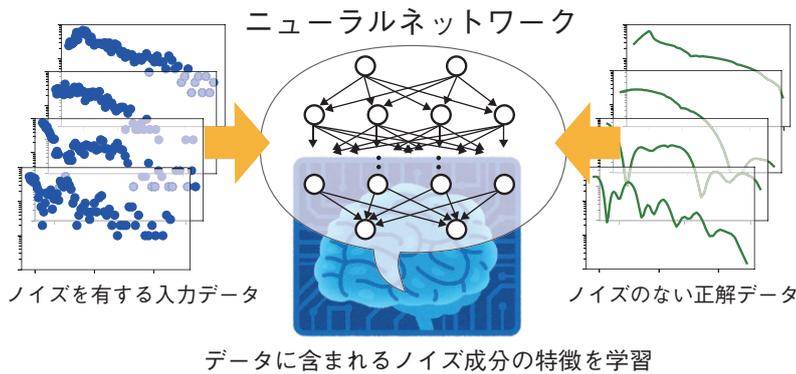


図5-5 中性子反射率のデータからノイズを除去するニューラルネットワークの概念図

中性子反射率の短時間測定で得られるノイズを含むデータ（●）に対して、シミュレーションで生成したノイズのないデータを正解データ（→）として、ノイズの特徴を学習して、測定データからノイズのみを除去します。

中性子反射率法は、様々な材料やデバイスの表面やその内部にある界面の構造を評価するために用いられています。試料に照射した中性子ビームの反射信号の波長や入射角依存性を解析することで、表面・界面での分子の分布をナノメートルオーダーで評価可能です。測定には、数 cm 四方以上の試料で数 10 分から数時間以上、小さな試料の場合にはさらに長時間を要します。そのため、状態が時々刻々と変化する試料を測定する場合には、この測定時間よりも遅い変化を示すものしか評価することができません。一方で、中性子実験は、J-PARC などの大規模実験施設の限られたマシンタイムを国内外の多くの研究者でシェアしているため、効率良く実験を行うことが必要です。このように、中性子測定では測定の高速化が常に求められてきました。しかし、ただ測定時間を短縮するのでは、信号強度が低下し、データに含まれる統計ノイズが大きくなるため、信頼性が大きく低下します。本研究では中性子反射率のデータ処理にディープラーニング（深層学習）を適用することで、測定データに含まれるノイズを除去し、短時間で測定したデータでも高精度の構造評価が可能な手法を開発しました。

J-PARC に設置された中性子反射率装置での短時間計測で得られるノイズを含む実験データに対して、計算機シミュレーションで生成したノイズのないデータを正解データとして、中性子反射率データに含まれるノイズの特徴を人工ニューラルネットワークによって学習しました。20 万以上に及ぶ多数のデータセットによる学習を行うことで、未知のデータであっても正確にノイズを除去して精度の高いデータを予測することが可能になりました（図 5-5）。図 5-6 の青色の点は通常の中性子反射率測定での 1/20 の測定時間で測定されたデータを表しています。緑色で示された長時間かけて測定されたノイズのないデータと比較すると、データ点が上下に大きく

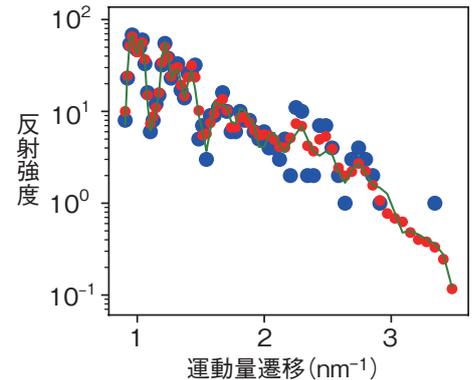


図5-6 ノイズ除去前後の中性子反射率データの比較

中性子反射率の短時間での測定データ（●）から、本技術によりノイズを除去すると（●）、ノイズのない理想的なデータ（→）によく一致したデータが得られます。

ばらついており、短時間の測定では大きなノイズが生じることが分かります。これにディープラーニングによるノイズ除去を行った結果が赤色の点であり、緑色のデータとよく一致し、ノイズが低減されています。測定データに含まれるノイズの大きさを示す指標であるピーク信号雑音比（数値が大きいほどノイズが少ないことを表している）は、約 2 時間の測定時間で得られる通常の中性子反射率測定ではおおむね 30 dB ですが、測定時間を 1/20 にすると 22 dB にまで低下します。このデータに本研究で開発したデータ処理を施すと、ピーク信号雑音比は 29 dB 以上に向上し、通常データとほぼ同等の精度が得られました。一方、ディープラーニングを用いない従来のデジタルフィルタ処理では 24 dB 程度までしか改善されず、ディープラーニングによる高精度化の効果が極めて高いことが示されました。

以上のように、ディープラーニングを用いたノイズ処理技術を開発することで、中性子反射率測定において実験結果の精度をほとんど低下させずに測定時間を 1/10 以下にまで短縮可能となりました。この技術によって、一定時間内により多くの測定を行えるようになるため、限られた大型実験施設の運転時間を効率的に使用できるようになります。また、これまでの実験では捉えることのできなかった高速なダイナミクスを直接観察できるようになるため、新しい現象の発見につながる可能性があります。

本研究は、日本学術振興会科学研究費基盤研究 (B) (JP19H02768) 「気相分子によって駆動される高分子材料のダイナミクス」及び科学技術振興機構未来社会創造事業 (大規模プロジェクト型) (JPMJMI18A2) 「界面マルチスケール 4 次元解析による革新的接着技術の構築」の支援を受けて行われたものです。

(青木 裕之)

●参考文献

Aoki, H. et al., Deep Learning Approach for an Interface Structure Analysis with a Large Statistical Noise in Neutron Reflectometry, Scientific Reports, vol.11, 2021, 22711, 9p.

5-3 中性子ビームの偏極可能波長領域を大幅に拡大 —“超”高臨界角中性子偏極スーパーミラーへのブレイクスルー—

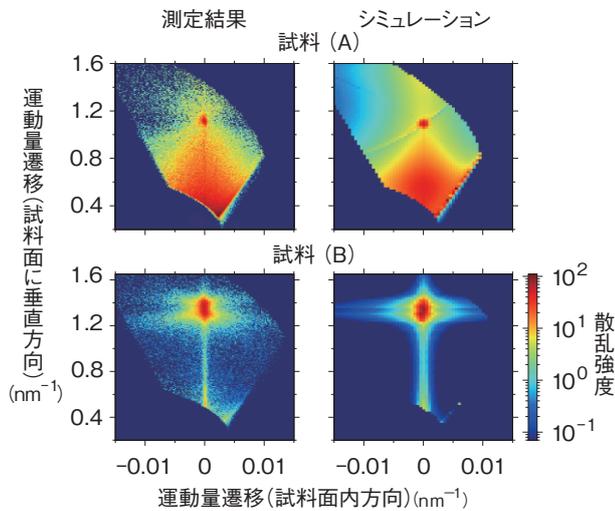


図5-7 Fe/Ge 多層膜の非鏡面偏極中性子散乱測定とシミュレーションによる散乱強度分布

試料 (A) Fe : 3.5 nm、Ge : 2.2 nm、試料 (B) Fe : 3.5 nm、Ge : 1.2 nm、ともに 50 対層で Ge 層厚が 2 nm 以下になると隣り合う Fe 層間に強磁性層間交換結合が生じ、散乱が Fe 層の周期に対応する運動量遷移 (1.34 nm^{-1} 近傍) に局所化します。

中性子はスピン 1/2 を持つことから物質中の磁気構造に敏感であり、中性子のスピンを磁場に平行または反平行な成分のみに偏極して試料に入射する偏極中性子散乱によって、試料内部のミクロな磁気構造を非破壊で得ることができます。私たちは、今後期待される J-PARC の物質・生命科学実験施設 (MLF) における偏極中性子を利用した成果創出に貢献するため、中性子ビームを偏極するデバイスである中性子偏極スーパーミラーの高性能化に関する研究開発を進めてきました。中性子偏極スーパーミラーは、強磁性体と非磁性体を交互に積層した磁気多層膜であり、J-PARC MLF で得られる幅広い中性子波長領域を持つ中性子ビームを偏極するため、層厚を変えながら成膜されます。MLF 中性子源の性能をフルに活用するには、偏極スーパーミラーの層厚分布のうち、最も層厚の小さい部分を 1 対層当たり 6 nm 以下とすることが必要です。しかし、スパッタリングによって成膜された磁気多層膜は、このような層厚の小さい領域ではキュリー温度の減少により自発磁化が消失するので、片方のスピンの中性子だけに偏極することができなくなります。これにより、偏極スーパーミラーの偏極可能領域は Ni の全反射臨界角の 5 倍程度の運動量遷移に制限されるのがこれまでの現状でした。

本研究では、偏極スーパーミラーに用いられる Fe/Ge 多層膜に対し、MLF のビームライン偏極中性子反射率計

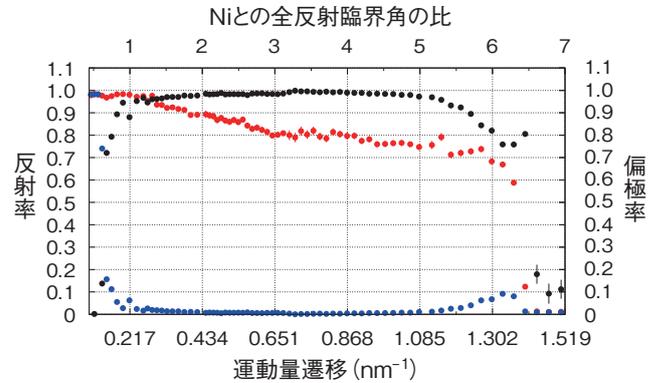


図5-8 本研究で成膜した中性子偏極スーパーミラーの偏極中性子反射率測定結果

磁場に平行を●、反平行なスピンの中性子反射率を●で、スーパーミラーからの反射ビームの偏極率を●で、それぞれプロットしています。スーパーミラーからの反射ビームは、Ni の全反射臨界角の 6 倍以上までの運動量遷移領域で磁場に平行な成分に偏極されています。

「写楽」(BL17) において非鏡面偏極中性子散乱測定を行った結果、図 5-7 のように Ge 層厚が 2 nm より小さい領域では隣り合う Fe 層の間で強磁性的な層間交換結合が形成されることを明らかにしました。これを利用すると 1 対層の層厚が 6 nm 以下であってもバルクと同等の磁化を維持できることに着目し、トータル 10436 層、全層厚約 $32 \mu\text{m}$ の偏極スーパーミラーを成膜しました。BL17 において偏極中性子反射率を測定したところ、図 5-8 のように Ni の全反射臨界角の 6 倍以上 (“超”高臨界角) の運動量遷移という 2022 年 5 月現在で世界最高の偏極可能域を達成しました。

しかし、本研究で得られた偏極可能波長域をもってしても、MLF で得られる中性子ビームの全波長域をカバーするには十分ではありません。いまだメカニズムが解明されていない半導体スペーサを介する磁気層間交換結合等に関する研究を実施する一方、サイエンスの様々な分野において果たすべき役割が近年ますます増大している偏極中性子の利用についてもさらなる高度化を進める予定です。

本研究の一部は、日本学術振興会科学研究費基盤研究 (C) (JP19K12647) 「中性子スピンエコー法を用いた多層膜面内磁気構造の実空間における解析手法の探索」の助成を受けたものです。

(丸山 龍治)

●参考文献

Maruyama, R. et al., Improved Performance of Wide Bandwidth Neutron-Spin Polarizer Due to Ferromagnetic Interlayer Exchange Coupling, Journal of Applied Physics, vol.130, issue 8, 2021, 083904, 10p.

5-4 蛋白質のドメイン構造と活性部位が連動した揺らぎの発見 —中性子散乱と分子シミュレーションによる蛋白質ダイナミクスの解析—

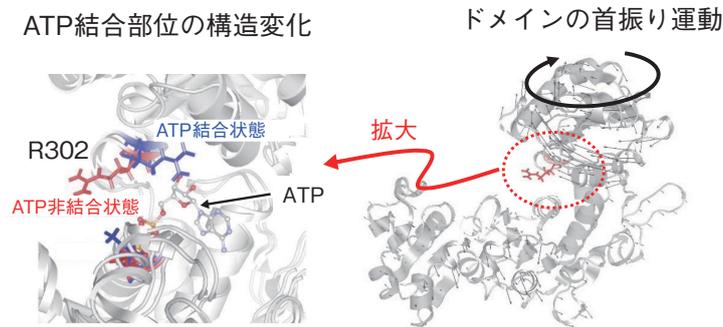


図5-9 ATP結合部位 R302 (302番目のアルギニンの側鎖)の構造変化(左)とドメインの首振り運動(右)

ATP非結合状態では、ドメインの首振り運動に連動して、アルギニン側鎖の配向が変化します。ATP結合に伴い、R302の向きが固定化され、首振り運動が停止します。

蛋白質はナノメートルサイズのコンパクトな3次元構造であるドメインと呼ばれる構造から構成されます。比較的大きな蛋白質は、複数のドメイン構造から構成され、マルチドメイン蛋白質と呼ばれます。各ドメインは安定した構造を取っている一方で、ドメイン間をつなぐ柔軟なヒンジ領域を介してドメイン構造は相対的に位置や向きを変え、例えば機能部位であるATP結合部位の構造が連動して変化します(図5-9)。このようなドメインスケールでの構造動態を解明することが、酵素活性等の蛋白質の機能発現メカニズムの理解に必要であると考えられています。中性子スピネコー(NSE)は中性子準弾性散乱測定法で最も高いエネルギー分解能を持ち、ナノメートル及びナノ秒という時空間のスケールで蛋白質の構造とダイナミクス(構造の揺らぎ)を観測できるため、蛋白質のドメイン運動を捉えるのに有効な手法となります。

本研究では、典型的なマルチドメイン蛋白質であるMurDに着目しました。MurDは細胞壁の合成に係る酵素蛋白質であり、ATP(アデノシン三リン酸)結合による構造変化が機能に必須です。しかし、ドメイン構造とATPの結合部位の構造や揺らぎの相関は未解明のままです。本研究では、NSEと計算科学を組み合わせ、その解明に取り組みました。

図5-10は、NSEで測定を行った結果で、中性子波数 Q ($0.1 \sim 0.22 \text{ \AA}^{-1}$)に対する、蛋白質のドメイン運動に由来する実効拡散係数 D_{eff} の変化を示しています。ATP非結合状態とATP結合状態のMurDの D_{eff} を比べると、ATP非結合状態で見られる $0.15 \text{ \AA}^2/\text{ns}$ 辺りのピーク

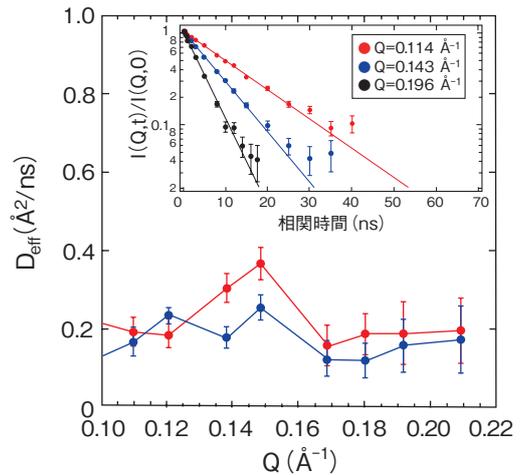


図5-10 ATP非結合状態(赤)とATP結合状態(青)の実効拡散係数 D_{eff} の Q 依存性

ATP結合によって、 0.15 \AA^{-1} 付近のピークが消失します。挿入図に中性子スピネコーで測定したATP非結合状態の中間散乱関数 $I(Q,t)/I(Q,0)$ を示します。 $I(Q,t)/I(Q,0) = \exp(-Q^2 \cdot D_{\text{eff}} \cdot t)$ の式から実効拡散係数が求まります。

はATP結合により小さくなることを発見しました。そして、この動きの抑制がどのようなドメイン運動の変化に由来するのかを分子シミュレーションで詳細に調べたところ、図5-9右で示すような首振り運動のようなドメイン運動と対応することを突き止めました。さらに、計算機による詳細な解析から、図5-9左に示すように、このドメイン運動はATP結合サイトである302番目のアルギニンの側鎖の揺らぎと連動していることが示され、ドメイン運動によって制御される局所構造の揺らぎがATP結合に重要であることが分かりました。従来の研究では、このようなドメイン運動は全く予測されておらず、ATP結合に伴うドメイン運動の変化の詳細が初めて特定されたことはMurDの酵素活性の分子メカニズムの理解を大きく進展させました。

本研究の解析からは、活性に寄与するアミノ酸残基の構造や揺らぎは熱的にランダムに揺らいでいるのではなく、ドメイン運動という蛋白質全体の協同的な揺らぎによって巧みに制御されていることが見えてきました。蛋白質の構造とダイナミクスは、広い時空間スケールで特徴づけられますが、このような異なる階層間の構造動態の関係を理解することが、蛋白質の機能解明に重要であることが分かりました。

本研究は、科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業(さきがけ)(JPMJPR14L7)「中性子散乱と計算機科学の融合による蛋白質のドメインダイナミクスの解析」の支援を受けたものです。

(中川 洋)

●参考文献

Nakagawa, H. et al., Conformational Dynamics of a Multidomain Protein by Neutron Scattering and Computational Analysis, Biophysical Journal, vol.120, issue 16, 2021, p.3341-3354.

5-5 中性子散乱が拓くガラス固化技術の高度化研究 — 添加剤に誘起されるホウケイ酸ガラスのナノ構造変化を解明 —

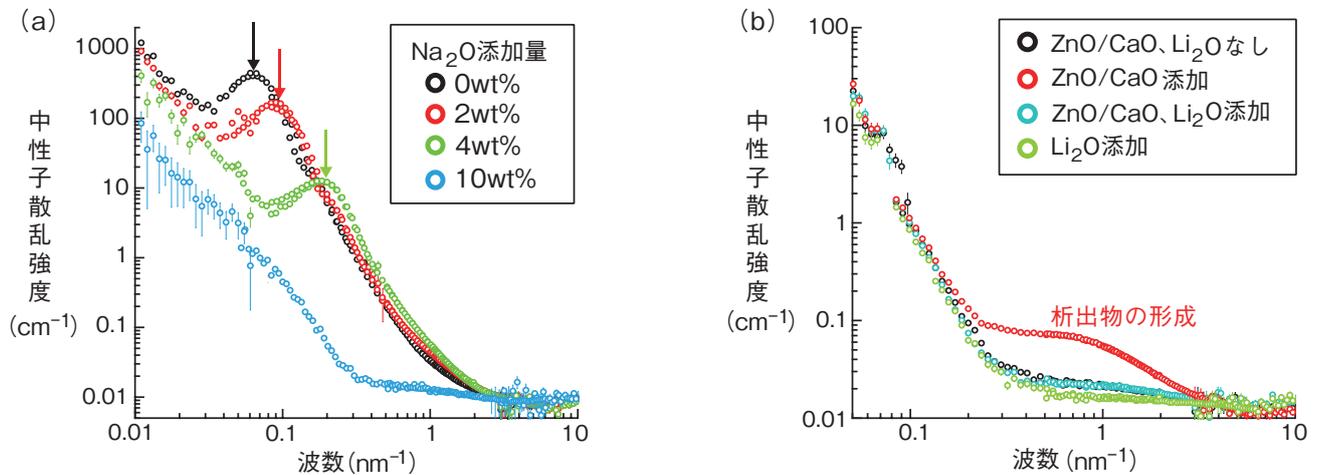


図5-11 ガラス固化用ホウケイ酸ガラスで得られた中性子小角散乱 (SANS) 測定の結果

(a) Na_2O の添加量を変化させた4種類の試料 [0wt% (○)、2wt% (●)、4wt% (◇)、10wt% (◎)] による SANS データです。矢印で示したピーク位置 (Q_m) とナノドメインの周期サイズ (D) には反比例の関係 ($D = 2\pi/Q_m$) が成り立つため、 Na_2O 量が増加するほど周期構造のサイズが小さくなることを示しています。(b) ホウケイ酸ガラス (Na_2O を 10wt% 含む) への ZnO/CaO と Li_2O の添加効果を調べる目的で測定した4種類の試料 [ZnO/CaO 、 Li_2O なし (○)、 ZnO/CaO 添加 (●)、 ZnO/CaO 、 Li_2O 添加 (◇)、 Li_2O 添加 (◎)] の SANS データです。 ZnO/CaO を添加した●のデータにおいてショルダーピークが現れたことは、ガラス中にナノサイズの析出物が形成されたことを反映しています。

放射性廃棄物のガラス固化研究は長年継続されていますが、主として減容化、安定性・耐久性の観点から作製条件の最適化が進められてきました。その一方で、ガラス化処理過程で現れる白金族元素の析出やイエローフェイズ (モリブデン酸塩による結晶相) の発生等が顕在化した問題として残されています。今後、さらにガラス固化技術の高度化を進めるには、材料の微視的構造を理解して、その知見を材料設計にフィードバックしていく必要があると私たちは考えています。

既存のガラス固化に用いるホウケイ酸ガラスには、性能向上を目的として、例えば、ガラスの融点降下に Li_2O 、耐水性向上に Al_2O_3 、分相の抑制に ZnO/CaO が添加されています。ところが、これらの成分がナノスケールでのガラス構造に対してどのような影響を与えるのか、構造科学としての裏付けは進んでいないのが現状です。そこで私たちは、ホウケイ酸ガラスに含まれる添加剤 (Na_2O 及び ZnO/CaO 、 Li_2O) がナノ構造に与える影響を中性子小角散乱 (SANS) 法で明らかにする研究を進めました。

図5-11 (a) は、 Na_2O 添加量を変化させて SANS 測定を行った結果です。波数 $0.06 \sim 0.25 \text{ nm}^{-1}$ に観測されたピークは、ガラス内部に周期的なナノドメインが形成されたことを示しています。その周期サイズ D はピーク位置 Q_m から定量され、 Na_2O 量の増加に伴い小

さくすることが分かります。添加量 10wt% (◎) では、ピークは消失し周期構造は形成されません。ガラス組成と周期サイズの関係から、ホウ素とケイ素をリッチに含む2種類のドメインが周期的に分布していると考えられています。各ドメインには、それぞれ取り込まれやすい放射性核種が偏在する可能性が高く、有益な構造情報を得ることができました。次に、 ZnO/CaO 、 Li_2O の添加による影響を調べた結果を図5-11 (b) に示します。 ZnO/CaO を含む試料 (●) では明瞭なショルダーピークが観測され、数ナノの析出物が形成されたことが分かります。本来、 ZnO/CaO は分相抑制を期待して添加されますが、ナノスケールでは不均一を形成する方向に作用することが分かりました。一方、 Li_2O を同時に加えた試料 (◎) ではショルダーピークは観測されず析出物は形成されません。 ZnO/CaO と Li_2O を同時に添加する場合には、ガラス内の不均一を抑制できることが明らかになりました。今後、中性子散乱法による分析を進めることで構造科学的な理解がさらに深まるはずで、そこで得られる知見は、ガラス固化技術の高度化に寄与するものとして期待されています。

本研究は、日本学術振興会科学研究費基盤研究 (B) (JP18H01921) 「中性子線による構造学的理解が拓くガラス固化技術の高度化」の助成を受けたものです。

(元川 竜平)

●参考文献

Motokawa, R. et al., Nanoscopic Structure of Borosilicate Glass with Additives for Nuclear Waste Vitrification, Journal of Non-Crystalline Solids, vol.578, 2022, 121352, 7p.

5-6 放射光で環境にやさしい圧電材料を創る ーチタン酸ビスマスナトリウムの高温相における局所構造解析ー

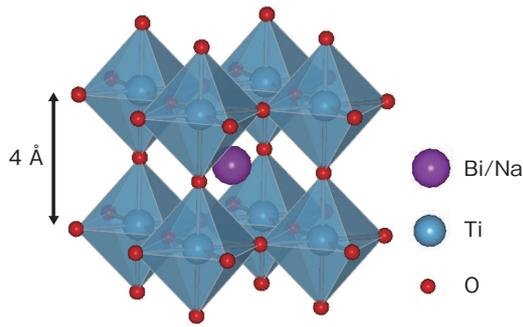


図5-12 鉛を含まない圧電材料として期待されているチタン酸ビスマスナトリウムの結晶構造 (Bi:ビスマス、Na:ナトリウム、Ti:チタン、O:酸素)

Bi/NaにはBiとNaが50%ずつの割合で存在します。

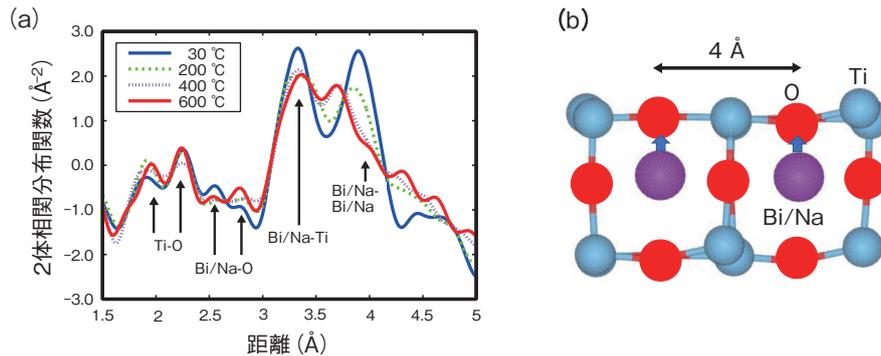


図5-13 (a) チタン酸ビスマスナトリウムの2体相関分布関数、(b) 2体相関分布関数をモデルフィットすることによって得られた構造

図5-12を真上から見た様子です。チタン酸ビスマスナトリウムの高温相は、Biが矢印の方向にシフトし、大きな分極を生み出しています。

圧電体は、電圧を掛けると伸び縮みするユニークな物質です。圧電現象には、電場により正と負のイオンの位置が変位し、表面に正と負の電荷が現れる性質（分極）が利用されています。現在主流の圧電材料には鉛が使われていますが、環境や人体への影響を踏まえ、非鉛材料の開発が望まれています。そのような系の候補として、チタン酸ビスマスナトリウム ($\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$: BNT) が注目されています (図5-12)。中央に示したBi/NaにはBiとNaが半半ずつの割合で存在し、金属イオンと酸素イオンの位置が相対的にずれることによって分極が生じます。BNTは室温で分極を示しますが、温度を上げると100℃付近で一旦分極が消失し、200℃以上の高温相で室温より大きな分極が現れます。すなわち、高温での分極の起源を明らかにすることで、より優れた圧電材料を開発できると期待されています。

新奇な圧電材料の開発には、内部のミクロな構造を観察することが必要になります。一般的な粉末X線結晶構造解析では、周期的な構造を仮定して平均構造を求めます。しかし圧電体ではイオン位置の乱れなどから周期構造が失われていることがあり、イオンの位置を平均構造の解析から求めることは困難となります。私たちはこれまで、大型放射光施設SPring-8において高エネルギーX線を利用した2体相関分布関数 (Pair Distribution Function: PDF) という手法を提案してきました。これは、物質中の原子間距離の分布から詳細な

構造を推定するもので、特に放射光を利用すると、周期性からずれたナノメートル (10^{-9} m) 程度の微小な構造の変化を短時間で高精度に求めることができます。

本研究では、BNTの高温相におけるイオンの位置を明らかにするため、PDF解析を行いました。図5-13(a)は室温(—線)と高温相(---線)において得られたPDFです。原子と原子の距離を反映したいくつかのピークが観測されました。特に高温相において、4Åに現れるBi/Na-Bi/Na間の距離に相当するピークの強度が温度とともに減少しています。これは、Biイオンの位置が、周期的構造(図5-12)を仮定した平均構造における位置からずれていることを示します。この結果から図5-13(b)の構造が明らかになりました。BNTの高温相においては、Biが矢印の方向にずれることによって大きな分極が生み出されることが分かりました。

このように、PDF解析を使うことによって一般的な構造解析では不明であった分極発現機構を明らかにしました。現在、Biイオンの大きなずれを室温においても実現する優れた圧電体を開発するため、構成元素を変えるなどの試みにより研究開発を継続しています。

本研究は、日本学術振興会科学研究費基盤研究(C)(JP19K04502)「ハイブリッド構造を利用した人工リクサーの作製と次世代多機能材料創製への応用」の助成を受けたものです。

(米田 安宏)

●参考文献

Yoneda, Y. et al., Nanoscale Structural Analysis of $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ in High-Temperature Phases, Japanese Journal of Applied Physics, vol.60, no.SF, 2021, SFFA08, 10p.

5-7 Eu 化合物に現れる「重い電子」はどのように形成されるのか？

—局在・磁気的な Eu 4f 軌道がつくるバンド構造の放射光による直接観測—

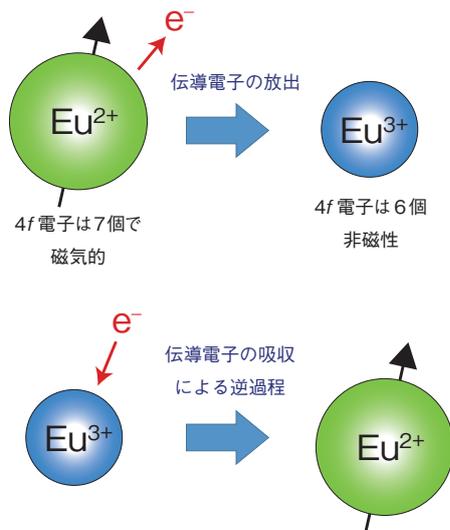


図5-14 Eu 化合物の価数の不安定性

Eu 化合物では 2 価状態と 3 価状態のエネルギー差が非常に小さく、伝導電子とやり取りすることで価数が時間・空間的に揺らぎます。

希土類化合物は、多様な超伝導など複雑な物性を示すことから、強相関電子系の中でも重要な位置を占めています。また、希土類元素は強い磁力を持つ永久磁石の材料になることから、その化合物は高機能磁気デバイスの素材となるポテンシャルを持ちます。これらの物性の本質は、希土類元素が持つ 4f 電子にあります。これらの 4f 電子が他の電子軌道と混ざりながら、結晶中を飛び回る遍歴性を獲得し、バンド・フェルミ面を形成することにより、多様な磁性・超伝導現象を引き起こします。ただし、このような遍歴性を持つためには、4f 電子の束縛エネルギーが比較的小さいことが必要であり、超伝導を示す物質系はセリウム (Ce)、イッテルビウム (Yb) 化合物に限られていました。しかし、近年、ユウロピウム (Eu) 化合物においても 4f 電子が遍歴性を獲得して特異な物性を示すものがあることが分かってきており、注目されています。

希土類化合物中の希土類元素は、そのほとんどにおいて 3 価が安定になることが知られています。しかし、Eu 化合物では 2 価と 3 価状態のエネルギー差が小さいため、図 5-14 に示すように伝導電子とのやり取りを通じて 4f 電子数が不安定になるという特徴があります。4f 電子数の不安定性は、比較的簡単に 4f 電子が結晶中を動き回りやすくなることを意味し、それが Eu 化合物の物性の起源であると言えます。現時点では超伝導を示す Eu 化合物の報告はありませんが、4f 電子の電子相関効果により電子の質量が極めて大きくなる重い電子状態の発現がいくつかの化合物で報告されています。

今回私たちは、Eu 化合物で初めて重い電子状態を観測

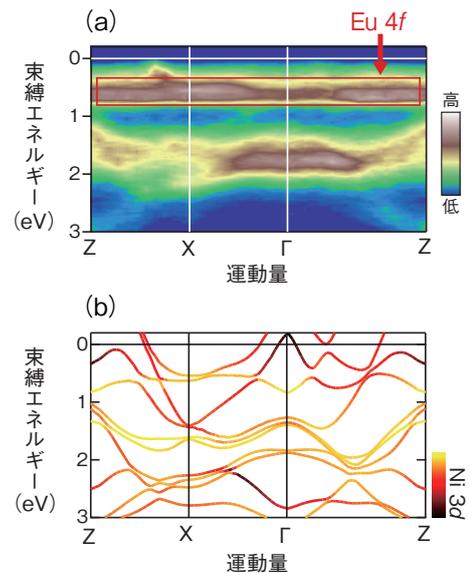


図5-15 EuNi₂P₂ のバンド構造と計算の比較

(a) 角度分解光電子分光法によって得られた EuNi₂P₂ のバンド構造です。横軸は運動量空間の座標で、イメージの色は光電子強度を示しており、強度が強いところがバンド構造に対応しています。(b) 実験と同じエネルギー・波数領域における計算によるバンド構造です。バンドの色はそれぞれ Ni 3d の電子軌道からの寄与を示しています。

された EuNi₂P₂ という物質に対して、角度分解光電子分光実験を SPring-8 の原子力機構専用軟 X 線ビームライン (BL23SU) で実施しました。角度分解光電子分光法は放出された電子の運動エネルギーと放出角度を測定することにより、物質のバンド構造を直接観測できる手法です。

図 5-15 (a) は EuNi₂P₂ に対する角度分解光電子分光法により得られたバンド構造を示します。実験の結果、Eu 4f 電子が作るフラットなバンド構造を明瞭に観測することができました。バンドがフラットであることは電子の有効質量が大きいことを意味し、このバンド形状が重い電子状態の起源であると考えられます。また、理論計算 (図 5-15 (b)) との比較の結果、4f 軌道は、Ni の 3d 等の他軌道と混成していることが明らかとなりました。この結果から、価数の不安定性により Eu の 4f 電子が遍歴性を獲得し、他の電子軌道と共同でバンド構造を形成していることが明らかになりました。また、4f 成分はフェルミ準位にも存在することを確認することができました。電気伝導や熱物性はフェルミ準位の電子の運動によって決まるため、これは 4f 軌道由来の重い電子が物性に大きな影響を与えていることを意味します。

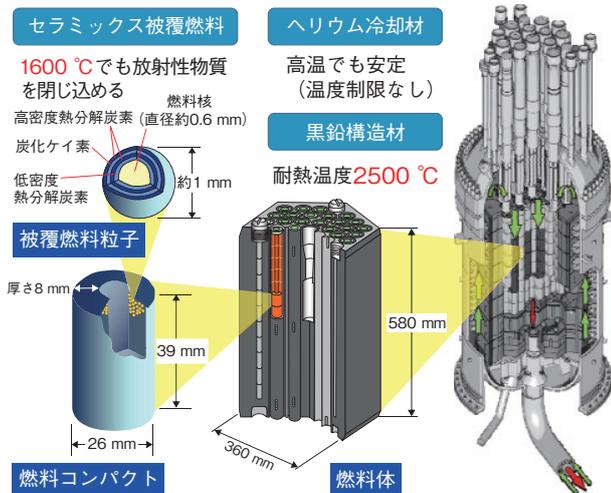
この結果は Eu 化合物において重い電子状態が形成されるメカニズムを解明する上で大きな手掛かりになると考えられます。今後は EuNi₂P₂ のような 4f 電子が遍歴する重い電子系物質で、超伝導などの新しい物性が発見され、Eu 化合物の研究がさらに展開していくことが期待されます。

(川崎 郁斗)

●参考文献

Kawasaki, I. et al., Electronic Structure of the Intermediate-Valence Compound EuNi₂P₂ Studied by Soft X-Ray Photoemission Spectroscopy, Physical Review B, vol.104, issue 16, 2021, 165124, 8p.

高温ガス炉とこれによる水素製造・熱利用技術の研究開発



安全性 (S)

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

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



経済効率性の向上 (E)

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

環境への適合 (E)、エネルギーの安定供給 (E)

- ・高燃焼度燃料、高効率発電により使用済燃料発生量を低減
- ・カーボンフリーの水素の安定供給により地球温暖化を抑制

図6-1 高温ガス炉の特長と HTTR-水素製造試験施設

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における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、高温の熱を利用した水素製造、ヘリウムガスタービンによる高効率発電等の多様な産業利用に応えることができる安全性の高い原子炉です（図6-1左）。これまで、原子力機構では、我が国唯一の高温ガス炉である高温工学試験研究炉（HTTR）を用いた各種の実証試験、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については、2004年に950℃の熱を原子炉から取り出すことに世界で唯一成功し、2010年には950℃で50日間の連続運転により安定に高温の熱を供給できることを実証しました。また、2011年に、原子炉の冷却機能を喪失した異常事象を模擬した試験を行い、人為的な操作がなくとも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。

現在、地球温暖化の原因とされる温室効果ガスの排出量を削減する「脱炭素化」が世界的に取り組まれています。我が国においては、2020年10月に当時の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、2021年6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ました。その中で、原子力産業は重

要分野の一つに指定されており、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、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。

このような状況の中、原子力機構は、HTTRの運転・試験等で得られた知見を活用した原子炉施設の耐震健全性評価上重要な耐震重要度分類の策定（トピックス6-1）、高温ガス炉の特徴を利用した出力分布測定法の開発（トピックス6-2）、放射性核種の閉じ込め性能を強化した被覆燃料粒子の開発（トピックス6-3）、カーボンフリー水素製造法である熱化学法水素製造法ISプロセスの水素生産効率向上及び長時間安定運転の研究（トピックス6-4及び6-5）、高温ガス炉のさらなる安全性向上及び設計手法の高度化の研究（トピックス6-6及び6-7）を進めています。また、HTTR-水素製造試験プロジェクト（図6-1右）を今年度より開始しました。本プロジェクトでは、HTTRに水素製造施設を新たに接続し、HTTRから得られる高温熱を活用した水素製造技術の確証を行う計画で、水素製造施設と接続するための改造内容の具体化、許認可手続、設備改造及び試験を段階的に実施します。

6-1 HTTR の新たな耐震重要度分類を策定する

－運転・試験で得られた知見を活用した合理的な耐震重要度分類－

表6-1 HTTRの耐震重要度分類（Sクラス）

高温ガス炉の特長を考慮して策定した耐震重要度分類（Sクラス）を示します。Sクラス施設は、停止機能（制御棒系）、閉じ込め機能の一部等となります。従来の耐震重要度分類と比べて、冷却系はSクラスからBクラスとなります。

施設	主要設備
原子炉冷却材圧力バウンダリを構成する機器・配管系	①原子炉圧力容器 ②原子炉冷却材圧力バウンダリに属する容器（中間熱交換器等）・配管（1次ヘリウム配管（二重管）等）・循環機（1次ヘリウム循環機等）・弁（1次冷却設備の主要弁等）
使用済燃料を貯蔵するための施設	①使用済燃料貯蔵設備貯蔵プール ②原子炉建家内の使用済燃料貯蔵設備貯蔵ラック（上蓋を除く。）
原子炉の緊急停止のために急激に負の反応度を付加するための施設及び原子炉の停止状態を維持する施設	①制御棒及び制御棒駆動装置（スクラム機能に関するもの）
その他	①1次ヘリウム純化設備（原子炉格納容器内のもの） ②破損燃料検出系（原子炉格納容器内のもの） ③1次ヘリウムサンプリング設備（原子炉格納容器内のもの） ④原子炉格納容器バウンダリに属する配管・弁（1次冷却材を内蔵する1次ヘリウム純化設備等の原子炉格納容器貫通部配管・弁）

原子炉施設では、設備の機能ごとに耐震重要度分類を定めて、耐震重要度分類に応じた地震力を用いて耐震評価を行います。耐震重要度分類はSクラス、Bクラス及びCクラスの3種類があり、各クラスの評価に用いる地震力の大きさは異なります。Sクラス、Bクラス及びCクラスの各設備は、それぞれ、一般産業施設等の3.0倍、1.5倍及び1.0倍の強度を保持できるように設計されます。高温工学試験研究炉（HTTR）の耐震評価に用いる地震動の加速度は、建設当時では350 Galでしたが、東日本大震災後では973 Galとなりました。今後、原子炉施設の評価に用いる地震動の加速度は、東日本大震災の経験を踏まえて増大する傾向にあります。そのため、耐震重要度分類は、必要以上に上位のクラスに分類してしまうと、過度に大きな地震力を用いて評価することとなり、耐震設計にかかる費用が増加します。

HTTRの耐震重要度分類は、1980年代後半の設計段階で策定されました。当時、高温ガス炉の安全上の特長を十分理解するための技術的知見及び運転実績の蓄積が不足していたため、実用発電用原子炉の耐震重要度分類を準用していました。しかしながら、その後得られた運転実績及び試験結果から実用発電用原子炉の耐震重要度分類は必要以上に保守的な設定であることが分かってきました。そこで、HTTRで実施した運転・試験等の経験を活用し、新たに合理的な耐震重要度分類を策定しました。

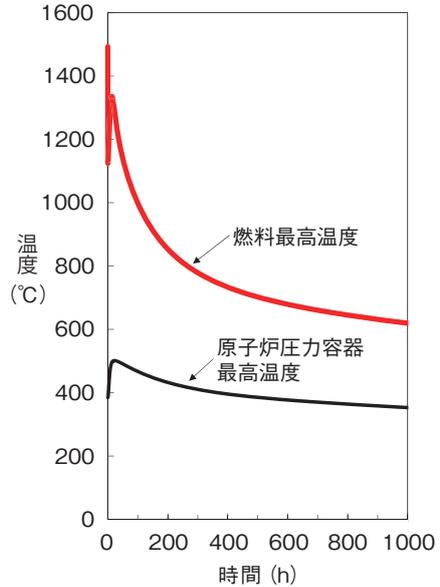


図6-2 新たな耐震重要度分類の妥当性確認の評価
B、Cクラスの施設が機能喪失し、炉心を十分に冷却できない条件下での原子炉の冷却挙動を示します。燃料最高温度及び原子炉圧力容器最高温度は制限温度を超えることはなく、新たな耐震重要度分類の妥当性を確認しました。

安全要求の高いSクラス施設の耐震重要度に当たっては、地震起因の事故によってB、Cクラスの安全機能が喪失しても、Sクラス施設が機能すれば、事故が安全に収束すること及び一般公衆に過度の放射線被ばくを与えるおそれがないこと（実効線量5 mSv以下）に着目しました。Sクラス施設を表6-1に示します。新しい耐震重要度分類の妥当性を確認するために、B、Cクラスの施設が機能喪失し、炉心を十分に冷却できない条件下で評価を実施しました。評価の判断基準は、設計基準事故の判断基準を参考にし、核分裂生成物放散の障壁である原子炉圧力容器の温度が550℃以下であることとしました。評価結果を図6-2に示します。燃料最高温度は初期値から1114℃に低下した後、再び上昇しますが初期値を上回ることなく許容設計限界温度1600℃に到達しませんでした。また、原子炉圧力容器の最高温度は制限温度550℃を超えることはありませんでした。また、被ばく評価の結果は、実効線量が約3.0 mSvとなりました。

評価の結果、新たな耐震重要度分類の妥当性を確認しました。また、原子力規制委員会は2020年6月に、耐震重要度分類の結果が設置許可基準規則に適合していることを確認しました。

（小野 正人）

●参考文献

Ono, M. et al., Seismic Classification of High Temperature Engineering Test Reactor, Nuclear Engineering and Design, vol.386, 2022, 111585, 9p.

6-2 超高温炉内環境の出力分布測定に挑戦 —高温ガス炉の炉外漏えい中性子による出力分布測定法の開発—

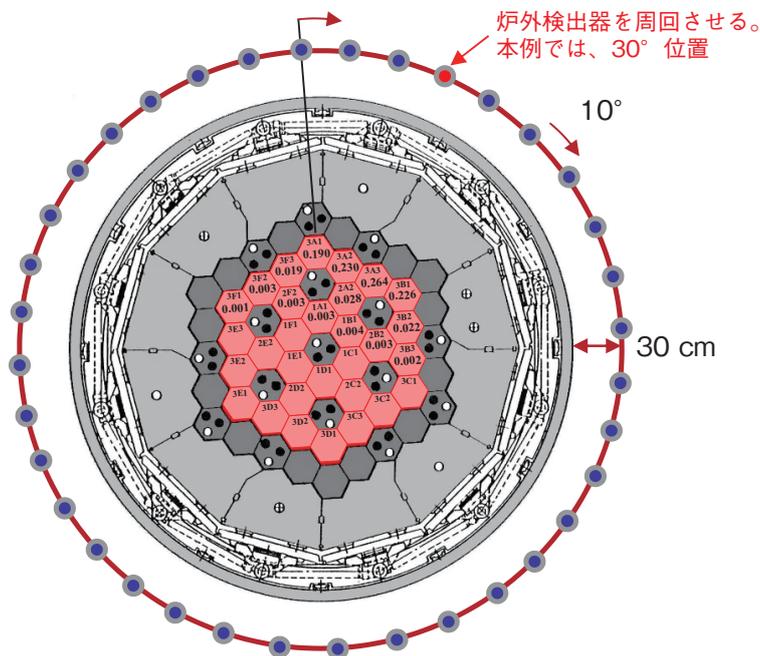


図6-3 高温ガス炉の炉外検出器による炉内燃料への感度
HTTR 体系で压力容器近辺に炉外検出器を想定した際の検出器信号に対する、各燃料ブロックで発生する中性子の寄与を示します。赤いセルが燃料ブロックです。全炉心で合計すると1になるように規格化しています。

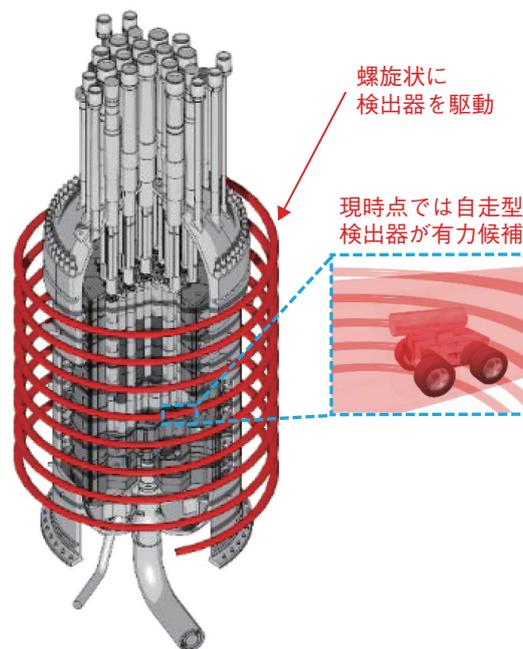


図6-4 炉外検出器の移動概念
炉外検出器を移動させる軌道の一例です。本概念は CT 技術に類似した原理を用いますので、測定検出器の移動方法も CT と同様、螺旋軌道が理想的です。

高温ガス炉では、ヘリウムガス冷却材を用い、炉内の核分裂エネルギーを熱エネルギーとして取り出します。高温工学試験研究炉（HTTR）では、2004年4月19日に世界で初めて原子炉出口冷却材温度 950℃の達成に成功しました。この高温を利用し、熱効率 50% の高効率な発電、カーボンニュートラルに期待される水素製造など多くの可能性が期待できます。

一方で、現在商用利用されている軽水炉では、炉内の温度が 300℃程度であるため、炉内への直接的な中性子検出器の挿入が可能です。そして、この炉内検出器を利用して燃料集合体ごとの出力分布の測定が可能です。これにより、効率的に燃料を燃やすための燃料管理が可能となります。

それに対し、高温ガス炉では、炉内の温度が最高で 1000℃にも達する超高温環境であるため、炉内への検出器の挿入ができず、軽水炉で培ってきた運転管理技術の一部が適用できないこととなります。また、高温ガス炉の運転管理においても、炉内の出力分布が測定できれば、燃料管理による効率的な燃焼の他に、燃料温度推定精度の向上により、安全裕度を合理的に削減し、より経済的な高温ガス炉設計の実現が可能となります。

この観点から、炉外検出器を用いた炉外漏えい中性子

の観測による炉内の出力分布測定法を検討するに至りました。幸運なことに、中性子減速材の特性の違い（軽水炉：軽水、高温ガス炉：黒鉛）により、高温ガス炉の中性子の飛程が軽水炉よりも長いことが利点になることを発見しました。図 6-3 に、高温ガス炉の炉外検出器による炉内燃料への感度を示します。検出器信号に対する各燃料ブロックで発生する中性子の寄与を表しますが、炉心の中心部分まで感度があることが分かります。軽水炉の場合、外周部の燃料集合体しか測定できません。

この利点を活かし、多くの測定点を設けることによる CT（Computed Tomography）と同様の原理の出力分布の逆算法を発明し、HTTR 体系で数値的な原理実証に成功しました。図 6-4 に示すように、現時点では、CT と同様、螺旋軌道による検出器の駆動を想定します。

このアイデアの有意性が認められ、2021年度、文部科学省原子力システム研究開発事業（JPMXD02）「高温ガス炉の出力分布測定のための核計装システムの開発」として課題が採択され、原子力機構、株式会社 ANSeeN、静岡大学の産学官の連携で実用化に向けた開発を進めています。

（深谷 裕司）

●参考文献

Fukaya, Y. et al., Computed Tomography Neutron Detector System to Observe Power Distribution in a Core with Long Neutron Flight Path, Annals of Nuclear Energy, vol.168, 2022, 108911, 7p.

6-3 高温ガス炉の建設コスト削減を目指して —高温ガス炉の被覆燃料粒子のためのセシウム捕獲物質の開発—

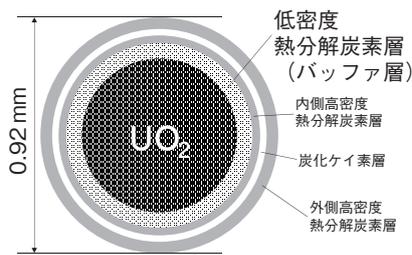


図6-5 我が国唯一の高温ガス炉である高温工学試験研究炉 (HTTR) 用の被覆燃料粒子 (CFP) の断面図

HTTRでは、 UO_2 の微小球 (UO_2 燃料核)をセラミックスの被覆層で四重に被覆した直径1 mm程度のCFPを用いています。核分裂性物質及び核分裂生成物 (FP)は各CFPに保持されます。低密度熱分解炭素層 (バッファ層)は一番内側の被覆層です。 UO_2 燃料核から放出されたガスを溜めるための被覆層です。

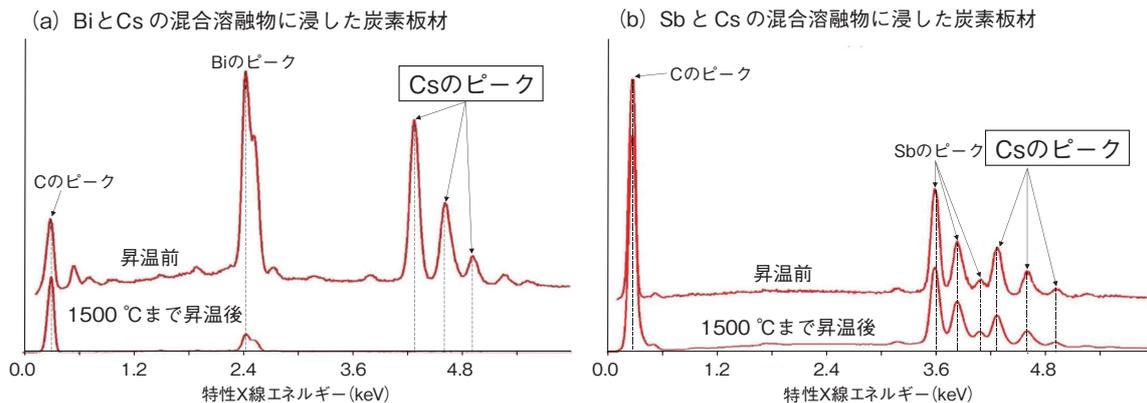


図6-6 1500℃までの昇温前後の試料のEDXスペクトル (上が昇温前、下が昇温後)

Cs-Biに浸した炭素からはCsがほとんど消えてしまいました (a) が、Cs-Sbに浸した炭素にはCsが残っていました (b)。(The American Society of Material Engineering より許可を得て下記参考文献より転載)

高温ガス炉 (HTGR) の燃料の最小単位は、直径1 mm程度の被覆燃料粒子 (CFP) です。我が国では、 UO_2 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6-5)。核分裂性物質及び核分裂生成物 (FP) は被覆層によって閉じ込められ、各CFPに保持されます。しかしながら、破損していないCFP (健全CFP) からですら、事故が起こらなくてもHTGR燃料の寿命のうちにはFPであるセシウム (Cs) のうち0.34%ほどが被覆層中を拡散して放出されるという計算結果があります*。この健全CFPからのCsの漏れを減らすことができれば、原子炉の保守時の被曝線量を低く抑えられることから、遮蔽壁を薄くする等によりプラント小型化と建設コスト削減が可能になります。そのためには、(a) 拡散障壁である被覆層を厚くする、(b) CFP中にCsを捕獲する物質を添加する、という二つの方法が考えられます。本研究では後者の実現可能性調査を行いました。

まず、基本方針を定めました。本研究では、CFP被覆層のうち最も内側である低密度熱分解炭素層 (バッファ層) にCsを捕獲するための元素を添加することにしました。文献調査により、混ぜる元素としては、Csとともに炭素に吸収されやすく、かつCsと化合物を形成する第15族元素が適当であろうと予測しました。そこで、第15族元素をバッファ層に添加することにより、健全CFPからのCsの漏れを抑えることを基本方針としました。

次に、第15族元素のうち毒性がないアンチモン (Sb)

とビスマス (Bi) について、本当にバッファ層中でCsを捕獲することができる可能性があるのかどうか、実験的に調べました。まず、炭素板材 (バッファ層の模擬物質) をCsとSb (Cs-Sb) またはCsとBi (Cs-Bi) を重量比1:1の混合溶融物中に590℃で1時間保持し、Cs-SbまたはCs-Biを炭素中に吸収させました。次に、取り出した炭素板材をAr中で10℃/minで1500℃ (HTGR燃料の通常運転時の最高温度と同等) まで昇温しました。そして、昇温の前後に炭素板材中の元素をエネルギー分散型X線 (EDX) 分光法で調べたところ、Cs-Biに浸した炭素板材からはCsがほとんど消えてしまいました (図6-6 (a)) が、Cs-Sbに浸した炭素板材にはCsが残っていました (図6-6 (b))。なお、Cs単独に浸した炭素板材の場合、昇温によりCsのピークはほとんど消滅することを別途確認しました。

以上により、Csを捕獲するためにバッファ層に添加する元素としては、Biは不適當ですが、Sbは有効である可能性があることが分かりました。今後は長時間の加熱試験を行い、Sbが有効かどうかさらに詳しく調べたいと考えています。

本研究は、福井大学との共同研究の成果の一部です。
(相原 純)

* Sawa, K. et al., Prediction of Nongaseous Fission Products Behavior in the Primary Cooling System of High Temperature Gas-Cooled Reactor, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.31, issue 7, 1994, p.654-661.

●参考文献

Sasaki, K. et al., Development of Cesium Trap Material for Coated Fuel Particles in High Temperature Gas-Cooled Reactors, Proceedings of 28th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE 28), Online Conference, 2021, ICONE28-61765, 6p.

6-4 IS プロセスにおける水素生産効率の向上 —ヨウ化水素分解工程用水素分離膜の耐食性を改善—

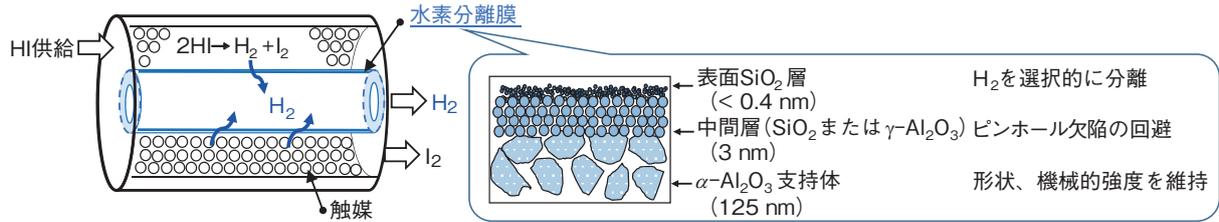


図6-7 H₂分離膜を備えたHI分解用膜反応器

HI分解の反応率を向上する膜反応器に組み込まれたH₂分離膜は、管状多孔質のα-Al₂O₃支持体を基材とし、その外側に対して、SiO₂またはγ-Al₂O₃の中間層、表面にH₂選択性のSiO₂層を持つ三層構造をしています。

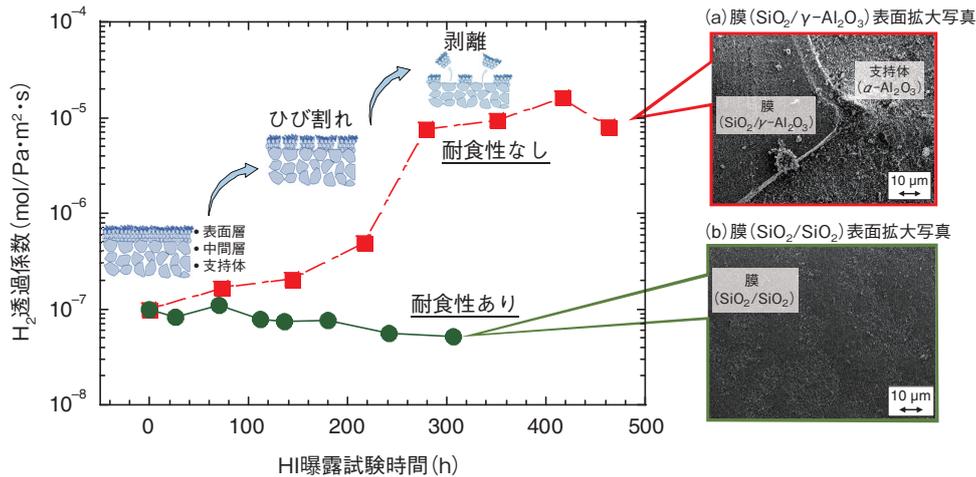


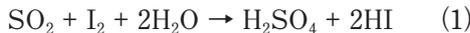
図6-8 HI曝露下における中間層に (a) γ-Al₂O₃層 (b) SiO₂層を持つH₂分離膜のH₂透過係数の変化

中間層を従来のγ-Al₂O₃からSiO₂に変更した新規のH₂分離膜は、腐食性のHIガス環境でも安定な性能を示しました。

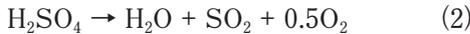
核熱を利用して水を分解する熱化学法水素製造法ISプロセス (IS法) は、二酸化炭素を排出せずに大量の水素 (H₂) を製造する最も有望な方法と考えられています。原子力機構は、1980年代半ばから高温工学試験研究炉 (HTTR、日本初の高温ガス炉) を熱源としてIS法の研究を進め、H₂製造の発展に大きく寄与してきました。

IS法は、次の三つの化学反応を組み合わせることで水分解を行う化学プロセスです。

ブンゼン反応 (100℃)



硫酸分解反応 (850℃)



ヨウ化水素分解反応 (400℃)



ヨウ化水素 (HI) 分解反応では、HIの平衡分解率が20%と低く、これに対して、H₂分離膜を用いて反応とH₂分離を一体化し、分解率を向上させることができる膜反応器が提案されています (図6-7)。

この膜反応器の実現には、強腐食性のHIガス環境に適応したH₂分離膜が必要です。H₂分離膜は、約100μm多孔質セラミックスα-Al₂O₃支持体に、0.4nm以下の細孔を持つSiO₂層を製膜することで、H₂の分離機能を発現します。この時、支持体と表面SiO₂層の間には、細孔径の違いに伴う表面SiO₂層の欠陥発生を防止するため、中間の細孔径 (約3nm) の中間層を導入しており、従来は、熱・化学的に安定で孔径制御性に優れた

α-Al₂O₃層を用いていました。

従来膜に対するHI曝露試験では、200時間後にH₂透過係数の大幅な増加が見られました (図6-8)。この状態の膜表面をSEM観察したところ、中間層のγ-Al₂O₃層がHIガスにより腐食して一部が剥離し、α-Al₂O₃支持体が露出していました (図6-8写真 (a))。つまり、H₂透過係数の大幅な増加は、中間層にHIガスに対する耐食性がないためであることが分かりました。

したがって、HIガスに対する耐食性を向上させるため、中間層のγ-Al₂O₃層をより耐食性の高い材料に変更する必要性がありました。そこで、表面SiO₂層よりも大きな細孔径になるよう孔径を制御したSiO₂層をγ-Al₂O₃層の代わりに中間層とした、新しいH₂分離膜を開発しました。新規膜は300時間のHI曝露後でも、H₂透過係数はわずかな変化しなく、膜表面のSEM観察においても表面及び中間のSiO₂層が変化せず安定に存在していることを確認できました (図6-8写真 (b))。これにより、HIガス環境において、耐食性の高いH₂分離膜の開発に成功しました。今後、開発したSiO₂中間層を持つH₂分離膜を組み込んだ膜反応器の性能試験を行う予定です。

本研究は、内閣府総合科学技術・イノベーション会議の戦略的イノベーション創造プログラム (SIP) 「エネルギーキャリア」の委託研究課題「熱利用水素製造」の成果の一部です。

(Odtsetseg Myagmarjav)

●参考文献

Myagmarjav, O. et al., Fabrication, Permeation, and Corrosion Stability Measurements of Silica Membranes for HI Decomposition in the Thermochemical Iodine-Sulfur Process, International Journal of Hydrogen Energy, vol.46, issue 56, 2021, p.28435-28449.

6-5 IS 法による水素製造運転の長時間化を達成 —閉サイクルループを用いた新規の起動手順を導入—

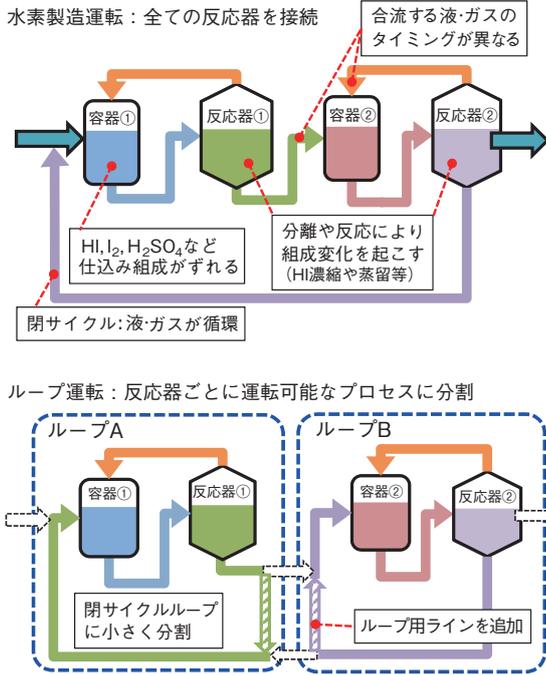


図6-9 ループ運転と水素製造運転の比較
反応器ごとに運転可能な閉サイクルループを構成するようにプロセスを分割することで、起動時の組成調整を独立して行うことができます。

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) の研究開発を進めています。IS 法は、ヨウ素と硫黄の化学反応を複数組み合わせ水素を分解する化学プロセスです。

長時間の安定した水素製造運転には、IS プロセス内を流れるヨウ化水素 (HI) やヨウ素 (I₂) などの多くの成分を含む溶液やガス (流体) に対して、起動時の過渡状態に発生する流体の組成変動を解消して、運転を開始しなければなりません。これまでの起動手順では、IS プロセスを構成する HI 濃縮や蒸留などの、分離や反応により流体の組成を変化させる反応器を、全て同時に起動していました。この場合、起動の過渡状態で、様々な要因、例えば、溶液仕込み時の組成のずれや、複数の反応器からの溶液やガスが合流するタイミングのずれで、目標組成からの変動が発生します。さらに、閉サイクルの IS プロセスでは、全ての反応器が連結された系統構成で、流体が循環しているため、一つの反応器で発生した変動がプロセス全体に伝わり、他の反応器での変動発生の要因となってしまいます。そのため、安定した起動には、これらの要因を全系で予測した起動手順が必要ですが、これまでは、予測が困難で、初期の数時間～数十時間において運転停止につながる大きな変動が発生し、長

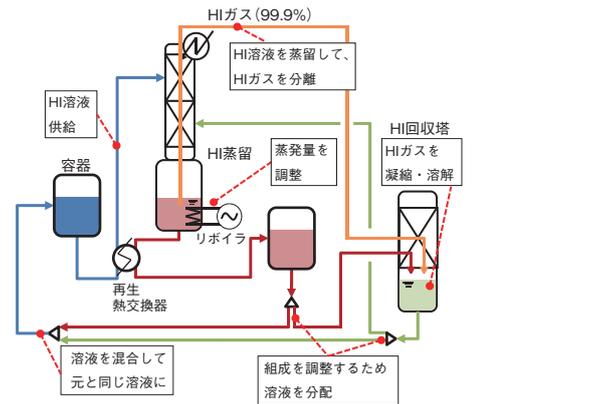


図6-10 閉サイクルループ装置構成例：HI 蒸留塔ループ
ループ運転が可能となるように、HI 蒸留などの IS プロセスの主要な反応器ごとに四つの閉サイクルループに分割して再構成しました。

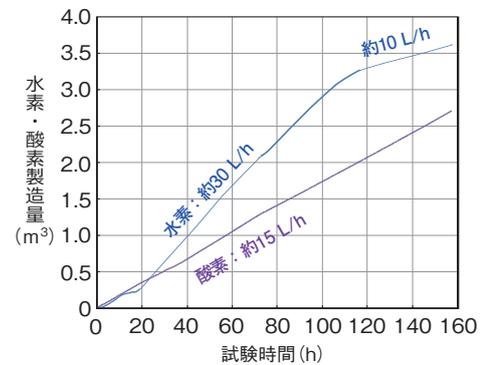


図6-11 連続水素製造試験による水素製造量の測定結果
既設の連続水素製造試験装置に対して、ループ運転による起動手順を適用することで、従来よりも長時間となる150時間の運転に成功しました。

時間の安定運転を阻害していました。このため、組成変動を小さくできる起動手順の開発が一つの課題でした。

この課題解決のため、起動時に、反応器ごとの閉サイクルのループを構成することで、反応器の組成調整などの運転を独立に行える起動手順を考案しました (図6-9)。このループ構成を IS プロセスの系統構成に適用するため、系統に含まれる反応器を、元の状態に戻すことができる可逆な単位操作の組合せに分類し、それぞれをループとして分割することで、全系を独立した四つの閉サイクルループとして、再構成しました (図6-10)。このようにして分割したループを利用して、各ループ内で、反応器の起動時の組成調整を行い、完了後に、全てのループ間を接続することで、安定に運転を開始できる起動手順を新たに考案しました。

この起動手順を既設の連続水素製造試験装置に組み込むために系統を改造し、ループ運転により起動した結果、組成の安定性が向上し、プロセス内の物質が2回以上循環した上で、従来の5倍以上となる150時間の連続水素製造運転の成功につなげました (図6-11)。今後は、このループ運転を発展させることで、長時間の運転をより安定に行うことが可能な自動運転システムの開発を進めていく予定です。

(田中 伸幸)

●参考文献

Tanaka, N. et al., Introduction of Loop Operating System to Improve the Stability of Continuous Hydrogen Production for the Thermochemical Water-Splitting Iodine-Sulfur Process, International Journal of Hydrogen Energy, vol.46, issue 55, 2021, p.27891-27904.

6-6 高温ガス炉の革新的な RPV 冷却設備の開発

— 冷却方式の構造の違いと冷却に及ぼす外部パラメータの影響の比較 —

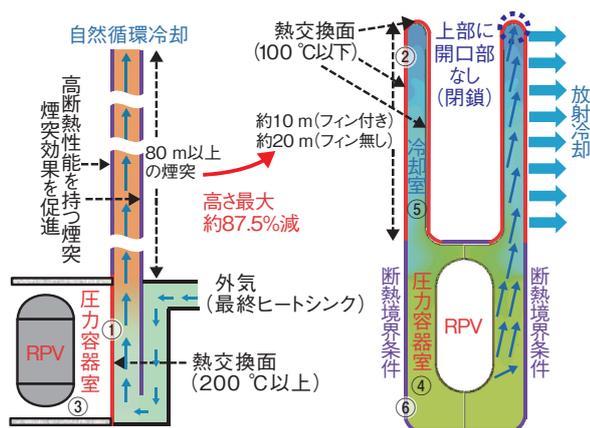


図6-12 自然循環冷却方式(左)と放射冷却方式(右)の構造の違い
 自然循環冷却方式(左)：最終ヒートシンクである外気がダクトに直接取り込まれます。ダクト内の空気はRPVから放射された熱により加熱されます。加熱された空気は高断熱性能を持つ煙突内を煙突効果で上昇し、煙突出口から再び外気へ放出されます。煙突効果を促進させるため、高さ80m以上の煙突が必要です。
 放射冷却方式(右)：RPVから冷却室(⑤)へ熱は直接放射(輻射)されます。同時に、圧力容器室(④)内の加熱された空気は自然対流で冷却室(⑤)へ上昇します。冷却室(⑤)内に溜まった空気は冷却室外表面(②)からの放射で冷却され、下降します。自然循環冷却方式(左)の煙突高さとは比べて、放射冷却方式(右)の冷却室の高さは、最大約87.5%も低くできます。

(a) 通常運転時

自然循環冷却方式 (図 6-12 左)	放射冷却方式 (図 6-12 右)
外気が触れる熱交換面(①)の温度は、200℃以上に達する。外気とともにダクト内に取り込まれた(侵入した)可燃物が低温発火する可能性を検討する必要あり。仮に低温発火が発生した場合、煙突効果による火災(燃焼)の促進を検討する必要あり。ダクトや煙突が詰まると温度が急上昇。	外気が触れる熱交換面(②)の温度は、100℃以下。外気とともに取り込まれた(侵入した)可燃物が低温発火する可能性なし。RPVを含む圧力容器室(④)は断熱壁(⑥)で巻かれ外気と触れないため、低温発火の可能性はない。
外気の温度、風速、湿度、ダクト及び煙突の長さ、表面粗さ、曲がり部等が除熱量に影響を与える。	外気の温度のみが除熱量に影響を与える。輻射的に風速、湿度のパラメータはなし。
ダクト及び煙突内の内部気体は外気であるため、自然循環(自然対流)の不安定現象あり。流体振動により未制御の除熱量の増減あり。構造物への影響を検討する必要あり。	圧力容器室(④)及び冷却室(⑤)の内部気体は外気でないため、不安定現象なし。流体振動なし。構造物への影響なし。

(b) 自然災害発生時

自然循環冷却方式 (図 6-12 左)	放射冷却方式 (図 6-12 右)
台風、ハリケーン、トルネード及び豪雨の発生時、自然災害の擾乱による背圧の変化はダクト及び煙突内の自然循環に影響を与える。流れが滞留及び逆流も発生。	ダクト及び煙突なし。大きな熱交換面(②)や冷却室(⑤)の大きなくぼみにおける自然対流熱伝達率は無風状態で設計しているため、自然災害の擾乱が生じた場合、自然対流熱伝達率が増加し、除熱性能は向上。

表 6-2 2種類の受動的 RPV 冷却設備の比較検討結果

通常運転時(a)でも、自然災害発生時(b)でも、自然循環冷却方式(図6-12左)より放射冷却方式(図6-12右)の方が、影響を受ける外部パラメータ数や検討すべき項目数が少なく、事故時の安全性を高められます。

近年、炉心溶融が生じない高温ガス炉への期待が高まっています。従来の冷却設備は、原子炉圧力容器(RPV)から放出される熱を除去するため、ポンプ等による水の強制循環を用いた能動的RPV冷却設備を採用しています。しかし、電力の供給が遮断されるとポンプ等が駆動できず、除熱能力が著しく低下する可能性があります。この場合においても、高温ガス炉で炉心溶融は生じませんが、RPVの使用制限温度を超え、運転停止となる可能性があります。

そこで、東京電力福島第一原子力発電所の事故のようにヒートシンクを喪失することなく、動的機器や非常用電源等も必要とせず、受動的に事故時でも炉心から崩壊熱を除去できる、さらに安全なRPV冷却設備が検討されています。

現在、実用高温ガス炉向けに、外気(大気)の自然循環を用いた受動的RPV冷却設備が候補に挙がっています(図6-12左)。外気を冷却材として使用するため、冷却材の喪失はありません。しかしながら、自然循環冷却方式(図6-12左)は、影響を受ける外部パラメータ数や検討すべき項目数が多いと懸念されました(表6-2)。そこで、私たちは放射冷却を用いた革新的な受動的RPV冷却設備を開発しました(図6-12右)。なお、実用高温ガス炉で求められるRPVからの除熱量は、熱流束に換算すると3kW/m²*ですが、自然循環冷却方式では約3kW/m²であるのに対し、放射冷却方式では、実機を模擬した伝熱試験装置を用いて実験を行った結果、約7kW/m²も除熱できることを確認しました。

次に、自然循環冷却方式や放射冷却方式を実用化す

るためには、通常運転時(表6-2(a))、及びあらゆる自然災害発生時(表6-2(b))で、事故時の崩壊熱を受動的に除去できるのか、安全性を評価する必要があります。そこで冷却方式の構造の違いと、冷却に及ぼす外部パラメータの影響を検討しました。通常運転時、自然循環冷却方式は、外気とともにダクト内に取り込まれた(侵入した)可燃物が熱交換面(①)で熱せられ、低温発火が発生する可能性があります。また、自然対流熱伝達率に影響する外部パラメータ数の多さ、自然循環の不安定現象や流体振動の発生等により、除熱能力が低下する恐れがありました。さらに、台風や豪雨等の自然災害発生時、自然循環冷却方式は外気の擾乱の影響を受け、除熱能力が低下する可能性もありました。一方、放射冷却方式は、通常運転時及び自然災害発生時も安全に確実に除熱できることを確認し、自然循環冷却方式よりも事故時の安全性を高められる可能性を明らかにしました。なお、いずれの冷却方式でも圧力容器室(③、④)は閉空間ですが、いずれも内部気体の温度上昇に伴う圧力上昇は問題になりません(圧力上昇の影響はありません)。

本研究は、日本学術振興会科学研究費基盤研究(C)(JP18K05000)「メルトダウンが起こりえない受動的放射冷却を用いた原子炉圧力容器の革新的冷却設備」の助成を受けたものです。

(高松 邦吉)

* Argonne National Laboratory, 私信。

●参考文献

Takamatsu, K. et al., Comparisons between Passive RCCSs on Degree of Passive Safety Features Against Accidental Conditions and Methodology to Determine Structural Thickness of Scaled-Down Heat Removal Test Facilities, Annals of Nuclear Energy, vol.162, 2021, 108512, 10p.

6-7 高温ガス炉のより高精度な炉心解析を目指して — 疑似物質法により黒鉛の空孔率を自由に指定できる炉心解析手法の開発 —

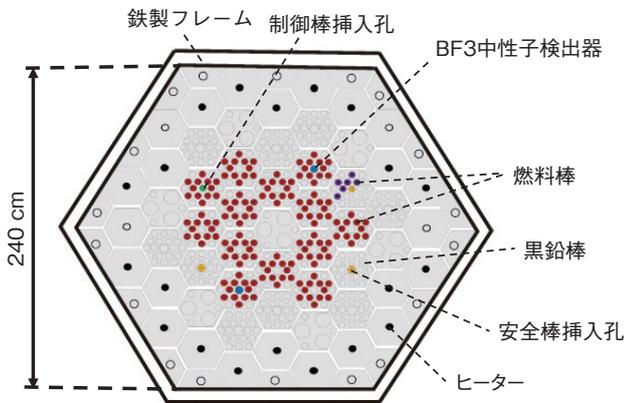
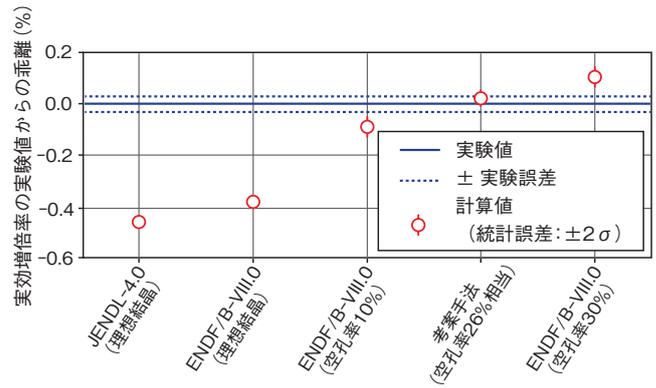


図6-13 高温ガス炉臨界実験装置 VHTRC の断面図
VHTRC は、高さ方向に 240 cm、紙面奥行き方向に 120 cm の六角柱が二つ重なる六角柱状水平 2 分割型の黒鉛減速の臨界実験装置です。高温ガス炉の炉心核特性に関する炉物理研究に利用されていました。

黒鉛を減速材とする高温ガス炉を設計する上では、主に熱中性子による核分裂連鎖反応で臨界状態を維持していることから、炉心解析において、熱中性子の挙動を正確に評価することが重要です。その評価には、熱中性子と同程度のエネルギーを持つ、黒鉛の結晶の低周波数の格子振動と熱中性子との相互作用を定量的に考慮する必要があります。

そのための核データの一つに、熱中性子散乱則データ（物質の運動や構造が熱中性子に及ぼす影響を考慮するためのデータ）があります。これまで、黒鉛の熱中性子散乱則データとして、黒鉛の理想結晶（全ての原子が規則正しく並ぶ理想的な結晶）に対して評価されたものが利用されてきましたが、実際の高温ガス炉で使われる黒鉛は理想結晶ではなく、空孔（結晶格子の規則性が乱れた箇所にできる空隙）を含んでいます。低周波数の格子振動が黒鉛の空孔近傍で増加することから、実際の黒鉛の空孔率（結晶がどの程度空孔を含んでいるかの割合）を考慮した熱中性子散乱則データを用いることができれば、熱中性子の挙動をより正確に評価できると考えられます。

近年、ノースカロライナ州立大学の Hawari らにより、黒鉛の空孔率をパラメータとした、実際の原子炉級黒鉛に対応した熱中性子散乱則データが作成され、米国の最新の核データのライブラリである ENDF/B-VIII.0 に収録されました。しかし、このデータは、空孔率 10% 及び 30% の原子炉級黒鉛にしか対応しておらず、これらは必ずしも実際の高温ガス炉で使われる黒鉛の空孔率



使用した熱中性子散乱則データ(他の核データはJENDL-4.0を使用)

図6-14 既存の熱中性子散乱則データとそのまま使用した場合及び考案手法を使用した場合に得られる実効増倍率と、実験から得られた実効増倍率との比較

熱中性子散乱則データとして、JENDL-4.0（国産の核データのライブラリ）、ENDF/B-VIII.0（米国の核データのライブラリ）及び考案手法を使用し、これらから求めた実効増倍率と、実験から得られた実効増倍率を比較しています。JENDL-4.0では、理想結晶の場合の値が、ENDF/B-VIII.0では、理想結晶の場合の値、空孔率 10% の場合の値、空孔率 30% の場合の値が、それぞれ示されており、考案手法では、実際に使用された黒鉛の空孔率を模擬（空孔率 26% 相当）した場合の値が示されています。

と一致していないため、十分とは言えません。

そこで、私たちは、ユーザーが自由に黒鉛の空孔率を指定して評価することが可能な手法を考案・開発しました。ここで、網羅的に全ての黒鉛の空孔率に対応するようにライブラリを整備すると、取り扱う核データ量が膨大となるため、利便性の観点から望ましくありません。そのため、取り扱う核データ量を増やすことなく実現するために、ミシガン大学の Conlin らによって提唱された疑似物質法という手法に着目しました。元々この手法は、軽水炉の核熱結合解析で必要となる膨大な温度点に対する核データ量の削減を目的に、異なる 2 点の温度に対応した核データを利用して、その間の温度の状態を確率論的に表現するというものです。

私たちは、本手法と同様に、異なる 2 点の空孔率の黒鉛の熱中性子散乱則データから、その間の空孔率の状態を確率論的に表現することができると考えました。考案・開発手法の妥当性を示すため、高温ガス炉臨界実験装置 VHTRC（図 6-13）に対して、炉心内での中性子の生成・消滅のバランスを表す、炉心解析精度の指標の一つである実効増倍率を計算し、過去に得られた実験結果との乖離の程度を評価しました。その結果、私たちの考案した手法から得られた実効増倍率は、従来のライブラリから得られる実効増倍率と比べ、実験値とより一致していることを確認することができました（図 6-14）。

（沖田 将一朗）

●参考文献

Okita, S. et al., A Pseudo-Material Method for Graphite with Arbitrary Porosities in Monte Carlo Criticality Calculations, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.58, issue 9, 2021, p.992-998.

高速炉サイクルの研究開発基盤の整備

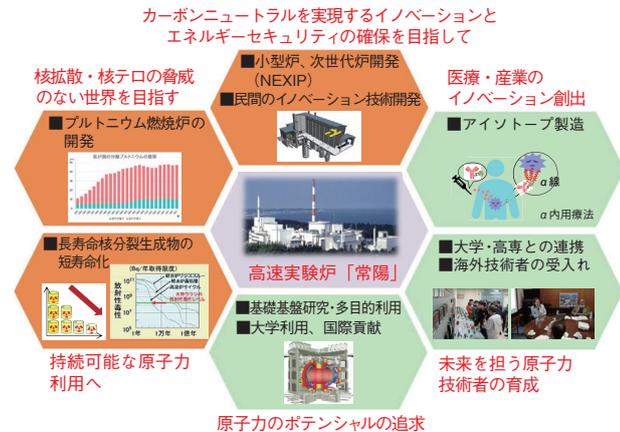


図7-1 研究プラットフォームとしての高速実験炉「常陽」の役割
プルトニウム燃料の燃焼、長寿命核種の廃棄物減容、小型炉・次世代炉開発と呼ばれるイノベーション関連照射に加え、医療・産業のイノベーション創出を含めた幅広い利活用を目指します。

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長を有しています。

2018年12月に国の原子力関係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、それに基づき高速炉・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。大洗研究所に設置された高速実験炉「常陽」は、これまでも長寿命核種の廃棄物減容等に取り組んできましたが、戦略ロードマップを受けて、図7-1に示すような分野へ研究プラットフォームとしての活用を考えています。特に医療用ラジオアイソトープ製造は国内外からの期待が大きく、重点的に取り組む予定です。このようなニーズを踏まえ、早期運転再開を目指して、図7-2に示す新規制基準対応を進めています。本章では、原子力機構が実施している最新の研究開発

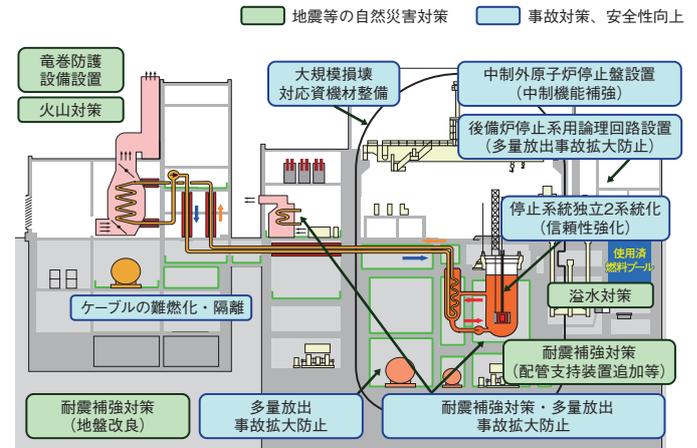


図7-2 高速実験炉「常陽」の新規制基準対応
耐震、自然現象（竜巻等）に加え、多量の放射性物質等を放出する事故の拡大防止対策などを進めます。

の中から、いくつかの成果について紹介いたします。「化学反応を伴う流れ場を高速に解析する新しい手法を開発（トピックス7-1）」は、新しい手法を開発し、既往の厳密な数値流体解析手法より、1/10以下の時間で計算できるようにしたもので、多くのケースを評価することで研究が加速します。「高速炉事故時に生じるエアロゾルの挙動を把握する（トピックス7-2）」では、Na燃焼を可視化する新たな実験装置を開発しました。模擬エアロゾルによる実験で貴重なデータが取得でき、Na燃焼時のNa酸化物エアロゾルの移行挙動解明が期待されます。「高速炉機器の破損を予測する（トピックス7-3）」は、高速炉機器に関する疲労試験の数値解析で新たな手法を提案し、従来設計より合理的な設計評価が見込めることを確認しました。「核燃料中の酸素拡散現象を正確に捉える（トピックス7-4）」は、新たな実験手法を開発し、これまでは測定が困難だったMOX燃料の定比組成の酸素自己拡散係数を取得することに成功したもので、MOX燃料中の酸素の欠陥濃度と拡散係数の関係が評価可能となりました。「放射性廃棄物の低減を目指した高速炉燃料の開発（トピックス7-5）」は、Am-MOXの熱伝導率測定結果とAm含有量の影響を明らかにし、Am含有がMOX燃料の熱伝導率に与える影響を計算する式を導出しました。燃料中心温度等を決定する上での設計技術に貢献するものです。「[もんじゅ]性能試験データの活用に向けて（トピックス7-6）」は、再現解析値（試験を模擬した解析）との間に解釈が難しい不一致のある測定値について、制御棒駆動軸の熱収縮による制御棒位置の変化の影響を考慮することで、信頼できるデータとして整備することに成功したもので、データの信頼性向上につながるものです。「高度化MOX燃料の実用化に向けて（トピックス7-7）」は、Am及びNpの含有率と、さらに温度と酸素分圧を変数として、O/M比を予測する評価式を作成したもので、燃料設計の高度化に貢献するものです。

7-1 化学反応を伴う流れ場を高速に解析する新しい手法を開発 —数値シミュレーションによる次世代革新炉開発に向けた取組み—

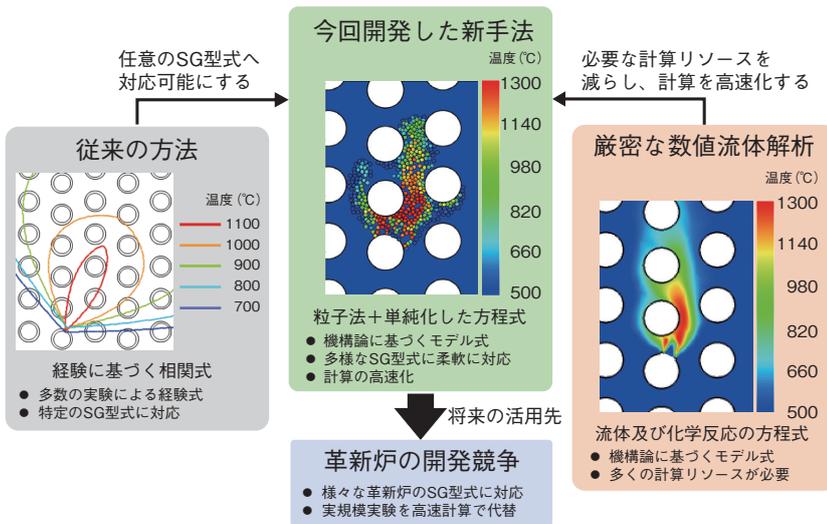


図7-3 新しい解析手法の意義

新たに開発した手法は、従来の評価手法に比べて、多様な蒸気発生器 (SG) の型式や伝熱管 (図中の白い円) の配置に対応可能です。既往の厳密な数値流体解析手法より、はるかに短い時間で計算が完了します。これらの特長により、様々な革新炉の開発において色々な SG 設計オプションを比較し、検討することが容易になります。

ナトリウム (Na) 冷却高速炉の蒸気発生器 (SG) と呼ばれる機器は、発電設備に送る蒸気を作るため、内部に水が流れる鋼製の伝熱管を液体 Na 中に多数本通した構造を持っています (図 7-3、図 7-4 にはこれを輪切りにした断面を示しています)。何らかの理由で伝熱管に亀裂が生じ、Na と水が直接接触してしまうと、化学反応による発熱を伴い周囲に様々な影響を与えます。SG の安全性を確認するには、この Na-水反応現象とその影響の評価が不可欠です。

図 7-3 に示すように、従来の方法では、ある特定の設計アイデア (すなわち SG 型式) に対して多数の実験により経験式を構築して安全性の評価を行ってきました。近年はコンピュータを用いた数値シミュレーションを活用していますが、Na-水反応現象は流体運動や化学反応などが複雑に関係する現象で、厳密な数値流体解析を行う場合、計算に時間を要します。

昨今の原子力イノベーションにおける革新的原子炉の開発では、様々な新しい SG 型式が探求されており、その度新しい実験を一から行うには多大な時間と費用が必要となります。そこで高速な計算シミュレーションで実験を代替して、新しい SG 型式が安全かどうか、容易に評価できることが求められています。

数値シミュレーションの方法として、計算格子を用いる方法と計算上の粒子を用いる方法がありますが、上記の要求に応えるため、計算原理をシンプルにでき、計算高速化及び3次元への拡張が容易な後者 (粒子法) を採用しました。ただし、新たに Na と水の化学反応とそ

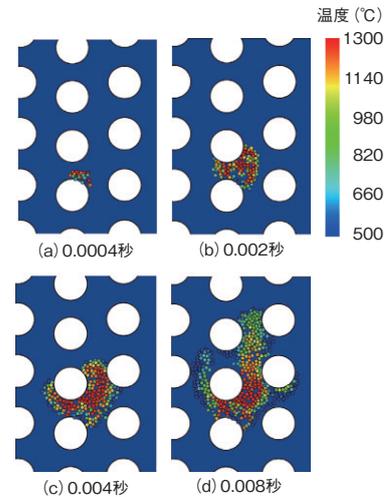


図7-4 蒸気発生器内の水蒸気の流動
伝熱管の1本から水蒸気が右上方向へ噴出したときの流れと温度分布の解析結果です。

れに伴う大きな発熱現象を粒子法という枠組みの下で捉え直す必要がありました。検討の結果、伝熱管から噴き出した水蒸気を粒子の集団とみなし、個々の粒子に位置・速度に加えて水蒸気量など化学反応に関する情報を持たせ、移動と化学反応熱を単純な方程式で計算する新しい手法を開発しました。今回の研究により、粒子法の特長を維持しつつ、Na と水の化学反応という新しい要素を取り込むことができました。

新しい手法に対してはその計算精度の確認が重要であり、厳密な数値流体解析と比較を行いました。図 7-3 では Na-水反応が広がる領域とその温度分布を示していますが、新しい手法は厳密な手法と遜色ない温度分布評価が可能であった上に、計算に要する時間は 1/10 以下となりました。また図 7-4 に示すように、Na-水反応現象の影響範囲が時間とともに広がる状況も再現することができました。なお安全性を確認する評価では、これらの温度分布をもとに、伝熱管壁の劣化や損耗の速さなどを計算して、伝熱管破損の位置・時刻などを予測していきます。

今回、粒子法を SG へ適用することを通じて、変形や破損を表現しやすいという特長もつかむことができました。今後は、より実際の SG に近い形状での3次元シミュレーションや、複数の伝熱管が破損するような事象の評価を可能とするべく、さらなる適用性と精度の向上に取り組みます。

(小坂 亘)

●参考文献

Kosaka, W. et al., Development of Reacting Jet Evaluation Model Based on Engineering Approaches with Particle Method for Improvement of LEAP-III Code, Proceedings of 19th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-19), Brussels (Online), Belgium, 2022, 11p.

7-2 高速炉事故時に生じるエアロゾルの挙動を把握する —多セル区画実験装置を用いたエアロゾル移行挙動実験—

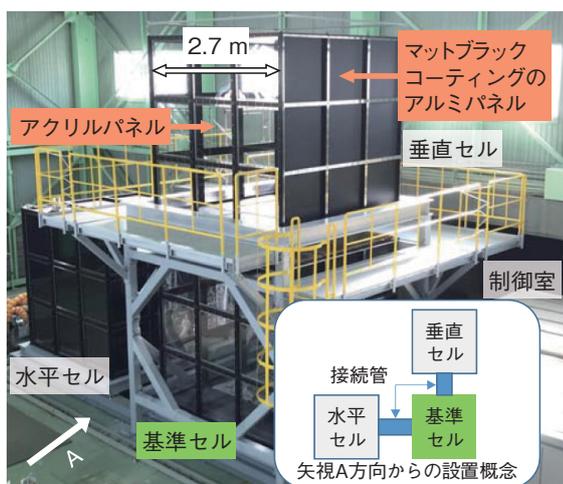


図7-5 多セル区画実験装置 (MET)

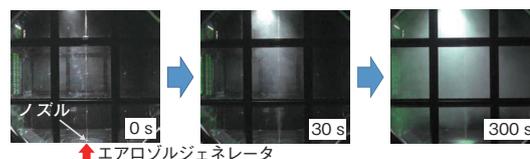
Na 燃焼時の自然対流条件を模擬した実験施設で、Na 燃焼時に発生する Na 酸化物エアロゾルを模擬したシリカ微粒子を使用することでエアロゾルの移行を観察することができます。

高速炉では、高い冷却性能を有するナトリウム (Na) を冷却材として使用します。一方、Na は化学的に活性で、漏えいして空気に触れると燃焼します (Na 燃焼)。燃焼により生成した Na 酸化物のエアロゾルが空調用ダクト等を介して隣接する部屋 (セル) に移行した場合、人体へ悪影響を及ぼしたり、制御機器等の故障によりプラントの運転に支障を来したりする可能性があります。これまでの Na 燃焼試験の多くは単一セルを対象に実施されてきたため、隣接セルへのエアロゾル移行挙動の評価に対する実験的知見は十分ではありません。

そこで、エアロゾルのセル間の基本的な移行挙動を把握するために、多セル区画実験装置 (Multiple cells with Expandable connecting pipe Test : MET) を開発しました (図7-5)。MET は三つのセルとこれらを接続する種々な形状の亚克力製の管 (接続管) で構成されています。セルは、Na 燃焼時での自然対流条件と相似となるように一辺が 2.7 m の立方体で設計し、各面は光学計測 (カメラやレーザー) のための亚克力パネルとレーザーの反射を抑制するコーティングが施されたアルミパネルで構成しました。また、接続管の等価断面積がエアロゾルの振る舞いに与える影響を把握するため、各パネルは容易に脱着が可能な構造として、光学計測や接続管の等価断面積を任意に設定できるようにしました。本実験では、実際に Na を燃焼させる代わりに Na 酸化物の初期粒径と密度を模擬したシリカ (SiO₂) の微粒子を用い、これをブラシで巻き上げて圧縮空気にて上昇させることでエアロゾルの発生を模擬するエアロゾルジェネレータを新たに考案し、模擬エアロゾルを底面からセル内へ導入しています。

図7-6 は、図7-5 のうち、基準セルと水平セルを配

(a) 模擬エアロゾルを供給中の基準セルの様子



(b) 隣接するセルへの模擬エアロゾルの移行挙動の様子

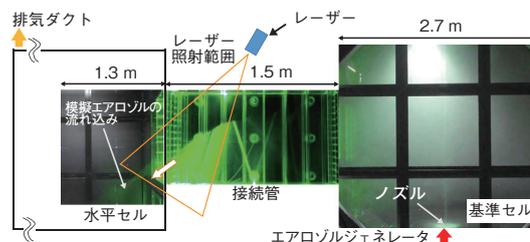


図7-6 模擬エアロゾルの可視化実験結果例

模擬エアロゾルが基準セル内に充満した後、隣接するセルに流れ込みます。レーザー照射範囲では、より鮮明に模擬エアロゾルが映し出されています。

置した試験体系での結果です。模擬エアロゾルの移行挙動をカメラで観察し、接続管には可視化用レーザーを照射してより鮮明な画像を得る工夫をしました。なお、本試験では、水平セルの排気ダクトを解放して系統内を均圧にした基本的条件の下で実施しました。図7-6 (a) は、模擬エアロゾルを供給するセル (基準セル) 内での移行挙動を示しており、時間経過に伴い、基準セル内で模擬エアロゾルが上方へ移行し、上方からセル全体に充満していく様子が分かります。さらに時間が経過すると、図7-6 (b) に示すように、模擬エアロゾルが接続管を通して隣接するセル (水平セル) に流れ込む様子が観察できます。また、二つのセルを垂直に配置した試験体系においても、水平配置時と同様に模擬エアロゾルが基準セルに充満し、基準セルから隣接するセル (垂直セル) に流れ込む挙動を確認しています。さらに、可視化観察を補強するため、試験後に各セルの床面に沈降した模擬エアロゾルの分布と質量を測定し、基準セル及び隣接する水平若しくは垂直セルに沈降した模擬エアロゾル量の平面分布評価に資する基本的なデータを取得しました。

以上の結果から、MET を用いて各セルや接続管内の模擬エアロゾルの移行を可視化し、模擬エアロゾルの基本的な移行挙動を把握することができました。今後は本成果を評価手法の検証に反映することで、Na 燃焼時の Na 酸化物エアロゾルの移行挙動解明の一助となることが期待されます。

本研究は、文部科学省からの受託事業「革新的ナトリウム冷却高速炉におけるマルチレベル・マルチシナリオプラントシミュレーションシステム技術の研究開発」の成果の一部です。

(梅田 良太)

●参考文献

Umeda, R. et al., Experimental Study on Aerosol Transport Behavior in Multiple Cells with Expandable Connecting Pipe for Safety Assessment of Sodium-Cooled Fast Reactors, Proceedings of 28th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE 28), Online Conference, 2021, ICONE28-61200, 9p.

7-3 高速炉機器の破損を予測する —多孔板試験体の繰返し負荷試験と寿命予測—

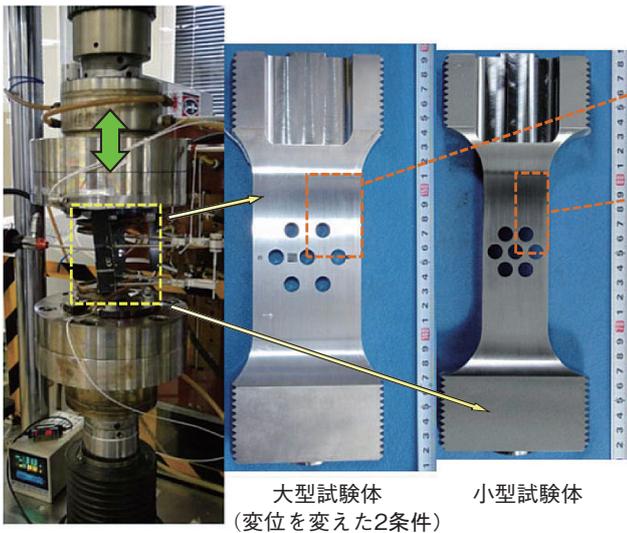


図7-7 多孔板試験体と疲労試験機の設置状況
熱交換器の管板構造の一部を模擬した試験体に対して、550℃で繰返し変位を与えて亀裂を発生させる試験を行い、亀裂発生までの繰返し数を実験的に求めました。板の幅と孔の距離を変えた2種類の試験体を用いました。

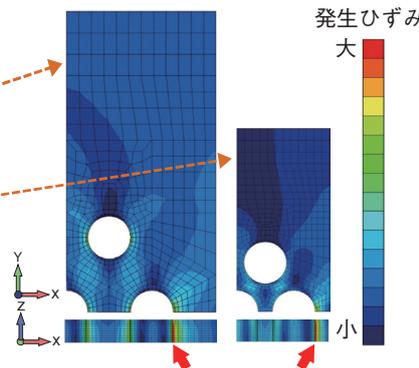


図7-8 非弾性解析による最大引張時の発生ひずみの予測結果
有限要素法解析により発生する応力やひずみを予測します。解析は対称性を考慮し、試験部の1/4をモデル化して行いました。最外孔の内側(赤矢印)で大きなひずみが発生していることが分かります。

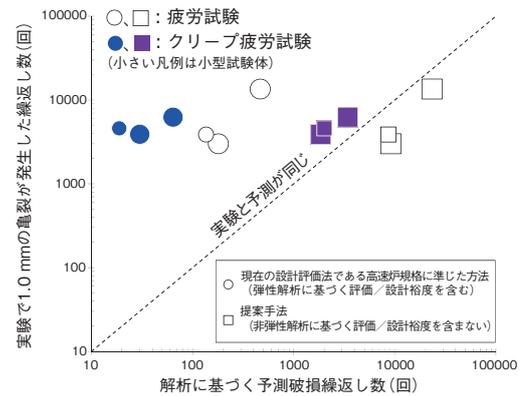


図7-9 有限要素法の解析結果に基づく寿命評価
高速炉規格に準じた方法による繰返し数(クリープ疲労損傷の制限に相当)は、試験に比べはるかに少なく保守的であることが分かります。

高速炉の運転温度は、軽水炉(300℃前後)に比較して、はるかに高い550℃であり、原子炉容器の入口と出口の温度差が軽水炉に比べて大きくなります。このため、高速炉の機器は運転に伴い大きな熱変動による熱応力が繰返し発生することとなり、繰返し負荷による破損を適切に防ぐことが重要となります。

高速炉の設計では、「日本機械学会 発電用原子力設備規格 設計・建設規格 第II編 高速炉規格」(高速炉規格)を適用します。この中には上記の破損を防ぐため高速炉の機器で特徴的なクリープ変形と金属疲労が重畳したクリープ疲労損傷に対する制限が含まれていますが、破損繰返し数(寿命)の予測の難しさから大きな保守性を有しており、高度化が期待されています。

本研究では、高速炉規格のクリープ疲労損傷の制限の保守性の確認及び機器の寿命を適切に予測する評価法の開発を目的に、複数の孔を有する平板試験体(多孔板試験体)に対して引張と圧縮変位を繰返し負荷する疲労試験と疲労試験中の最大引張位置で保持するクリープ疲労試験の2種類の試験及びこれらに対する有限要素法解析を行いました(図7-7)。

解析では、従来設計で用いている弾性解析と、解析コストや材料特性の設定の難しさから設計で用いられてこなかったものの、計算機の発達による計算コスト低下

により設計での適用が期待されている非弾性解析を、非弾性解析用材料物性値を整備の上で実施しました。非弾性解析の結果、最外孔の内側に大きなひずみが発生することが予測され(図7-8)、試験で亀裂の発生した位置と一致しました。

次に弾性解析の結果に基づき、高速炉規格に準じた方法によりクリープ疲労損傷の制限に相当する繰返し数の算定を行うとともに、非弾性解析に基づく評価法(提案手法)による寿命予測を行いました。評価の結果、高速炉規格に準じた方法では設計裕度を含むこともあり、算定された繰返し数(制限値に相当)は試験における亀裂発生寿命よりもはるかに少なく大きな保守性を有していることを確認できました。一方で、設計裕度を含まない非弾性解析に基づく評価法(提案手法)は精度良く寿命を予測しており、適切な設計裕度を加えることで従来設計より合理的な設計評価を見込めることが確認できました(図7-9)。

今後は様々な構造物試験やその解析評価を行い、適切な設計裕度の設定方法も含め、非弾性解析による評価法(提案手法)を設計評価法として規格化する検討を進めていく計画です。

(安藤 勝訓)

●参考文献

Ando, M. et al., Assessment of Failure Life Evaluation Methods for Structural Discontinuities with Fatigue and Creep-Fatigue Tests on Multiperforated Plate Made of Mod.9Cr-1Mo Steel, Journal of Pressure Vessel Technology, vol.143, issue 6, 2021, 061505, 9p.

7-4 核燃料中の酸素拡散現象を正確に捉える - MOX 燃料の酸素自己拡散係数の測定とその評価 -

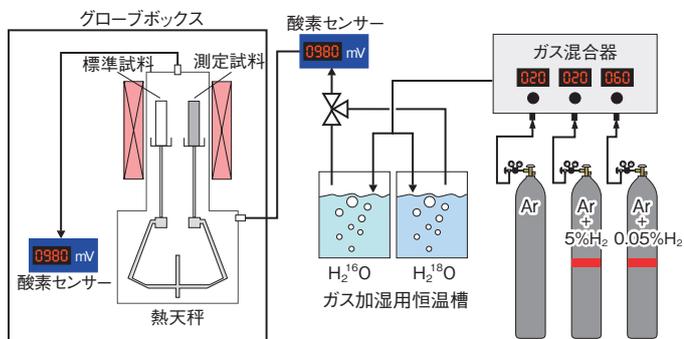


図7-10 酸素自己拡散係数測定装置の概略図
本装置は、測定雰囲気中の酸素同位体濃度を一定に制御する系統と、測定試料のわずかな重量変化を連続的に計測する熱天秤で構成されます。

高速炉で使用される混合酸化物 (MOX) 燃料において、その構成元素であるウラン (U)、プルトニウム (Pu) 及び酸素 (O) の拡散は、酸化・還元、焼結、照射中の元素移動といった MOX 燃料を使用する上で把握すべき重要な現象と密接に関係しています。このうち酸素の拡散は、上記の現象に加えて MOX 燃料の基礎物性 (酸素ポテンシャル、格子欠陥濃度等) とも深く関係するため、拡散の速さを表す拡散係数を測定・評価することが不可欠です。しかし、MOX 燃料の酸素拡散係数は、その重要性にもかかわらず、データが非常に少ないことが課題でした。これは、一般的なトレーサー法では、拡散熱処理と質量分析をそれぞれ行うため、測定手順が複雑であり拡散過程中に直接測定ができないこと、MOX 燃料の酸素/金属原子数比 (O/M 比) の保持が困難なこと等の測定上の課題に起因したものでした。

そこで私たちは、MOX 燃料の酸素拡散係数のデータを拡充することを目的として、酸素同位体 (^{18}O) を高濃度を含む酸素同位体水 (H_2^{18}O) を用いた実験手法を新たに開発しました。図7-10に実験装置の概略図を示しますが、本手法では測定試料中に含まれる ^{16}O と酸素同位体水由来の ^{18}O が置換した際のわずかな重量変化を熱天秤で連続的に計測し、その重量変化速度を解析することで酸素自己拡散係数を算出します。また、アルゴン (Ar)+ H_2 ガスを酸素同位体水で加湿することで、 H_2 - H_2O 平衡反応によって測定雰囲気中の ^{18}O の量をコントロールし、MOX 燃料の O/M 比を一定にしながらの測定が可能となりました。これによって、トレーサー法よりもシンプルな手順で、これまでは測定が困難だった MOX 燃料の定比組成

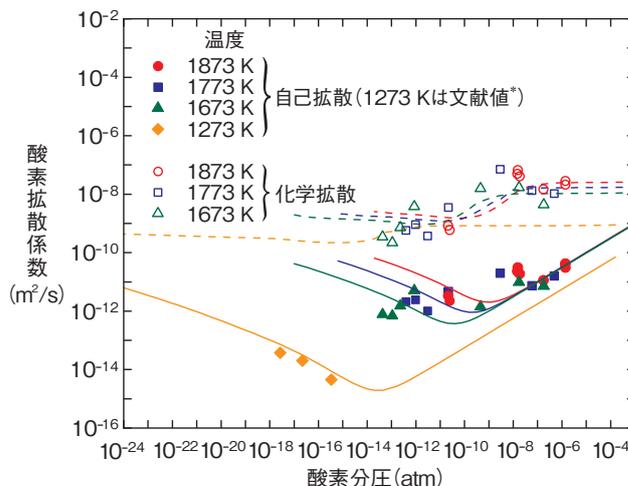


図7-11 酸素拡散係数の実験値と計算結果
図中の各シンボルは $(\text{U}_{0.7}\text{Pu}_{0.3})\text{O}_2$ 及び $(\text{U}_{0.55}\text{Pu}_{0.45})\text{O}_2$ における酸素拡散係数の実験値を示しています (後者のデータは 1273 K の文献値)。また、実線及び破線は本研究で得た評価式による計算値を示しており、実験値を良く再現できています。

の酸素自己拡散係数を取得することに成功しました。本手法によって幅広い温度でデータを取得できたことから、酸素自己拡散係数の温度依存性が明らかとなり、加えて拡散に関する基礎的な物性値である酸素欠陥の移動エネルギーについても求めることができました。さらに、これらのデータと熱力学データを組み合わせることで、MOX 燃料中の酸素の欠陥濃度と拡散係数の関係が評価可能となりました。図7-11に酸素拡散係数の実験値と計算値を示します (図中の化学拡散は試料中に濃度分布がある場合の拡散と定義されます)。酸素拡散係数の計算結果は、文献値も含めた実験データと良く一致していることが分かります。また、本研究と Pu 含有率が異なるデータについても良く再現できており、温度及び酸素分圧だけでなく組成の変化に関しても本研究で得た評価式を用いて評価可能であることが示されました。本研究で得られた酸素自己拡散係数及びこれらの取得データから求めた評価式によって、これまで経験式や既存モデル式の外挿によって求めていた MOX 燃料の焼結及び酸化・還元に要する時間や照射中の酸素再分布の時間変化等を予測することが可能となりました。これにより、MOX 燃料の製造プロセスの最適化や MOX 燃料照射挙動解析コードの改良といった高速炉燃料技術の高度化に貢献することができます。

(渡部 雅)

* Vauchy, R. et al., Oxygen Self-Diffusion in Polycrystalline Uranium-Plutonium Mixed Oxide $\text{U}_{0.55}\text{Pu}_{0.45}\text{O}_2$, Journal of Nuclear Materials, vol.467, part 2, 2015, p.886-893.

●参考文献

Watanabe, M. et al., Oxygen Self-Diffusion in Near Stoichiometric (U,Pu) O_2 at High Temperatures of 1673-1873 K, Journal of Nuclear Materials, vol.542, 2020, 152472, 7p.

7-5 放射性廃棄物の低減を目指した高速炉燃料の開発 —高濃度アメリシウム含有 MOX 燃料の化学量論に基づく熱伝導率の評価—

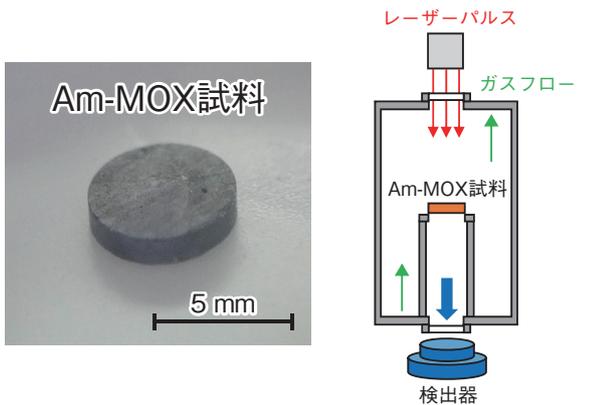


図7-12 レーザーフラッシュ法による熱伝導率測定の概要
左の写真が実際に測定した Am-MOX 試料です。右の概略図に示すように試料表面をレーザーパルスで加熱し、試料裏面の温度変化を検出器で測定します。本測定装置は試料周辺に加湿した H₂ ガスを流すことで、酸素分圧を調整しています。

長半減期で発熱性を有するアメリシウム (Am) 等のマイナーアクチノイド (MA) を放射性廃棄物から分離し、高速炉で核変換する方策が検討されています。これにより、放射性廃棄物の処分場に与える負担を軽減し、人体への有害度が低減するまでの期間も大幅に短縮することが可能となります。そこで、私たちは、MA を高速炉で核変換し消滅させるために、MA を含有したウラン (U)・プルトニウム (Pu) 混合酸化物 (MOX) 燃料の研究開発を行ってきました。MOX 燃料への MA 添加により高速炉内での照射挙動が変化するため、その影響を把握することが必要となります。把握すべき燃料の熱的特性は数多いですが、燃料の熔融を防ぐ観点から、燃料中心温度に大きく影響する熱伝導率が、特に重要な物性となります。熱伝導率については、従来の MOX 燃料には数多くの研究データがありますが、MA を含有した MOX 燃料については、3%までの Am を含有した MOX 燃料の熱伝導率が報告されているのみでした。また、MOX 燃料の熱伝導率は酸素 (O) と金属 (U、Pu 及び Am) の原子数比 (O/M 比) の影響も受けることが知られており、熱伝導率測定の際は考慮する必要があります。これらのことから、Am 含有量が高い MOX 燃料の熱伝導率測定は O/M 比を一定に調整することが必要であり、いままでこのようなデータは報告されていません。

私たちは、Am 含有量をパラメータとした Am 含有 MOX 燃料 (Am-MOX) を作製し、O/M 比を化学反応式から推定される元素比率である化学量論組成に調整して、レーザーフラッシュ法により熱伝導率を測定しました。Am 含有量は 5%、10% 及び 15% としました。これにより Am が MOX 燃料へ与える影響が明らかとなり、Am-MOX の照射挙動がより精度良く評価できるようになります。レーザーフラッシュ法による試験の概要を図 7-12 に示しますが、測定試料の表面をレーザーパ

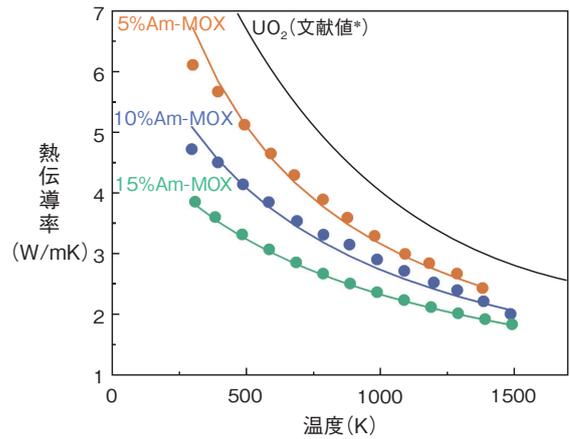


図7-13 Am-MOX の熱伝導率測定結果と Am 含有量の影響
レーザーフラッシュ法での測定により、5%、10%及び15%の Am を含有した MOX 燃料の熱伝導率を測定しました (図中丸印)。測定結果から化学量論に基づく評価を行い、Am 含有が MOX 燃料の熱伝導率に与える影響を計算する式を導出しました。

ルスで加熱し、試料裏面に熱が伝わることで生じる試料の温度変化を放射温度計等の検出器で測定します。温度変化の速度及び測定試料の厚さ等から熱拡散率を求め、これに比熱及び試料密度を考慮することで、熱伝導率を導出することができます。また、O/M 比を一定に制御し、その影響を抑えるために、測定装置を改良して試料周辺に加湿した H₂ ガスを流すことで、酸素分圧を調整しました。導出した結果から、固体物性モデルに基づき、Am をパラメータとして化学量論組成の MOX 燃料の熱伝導率を計算する式を作成し、結果の比較を行いました。

このように導出した熱伝導率をまとめ、UO₂ の文献値*と比較した結果 (図 7-13)、Am 含有量が増加するとともに、熱伝導率が低下することが分かり、低温であるほど Am 含有による影響が大きく、高温になるほど影響が小さいことも分かりました。また、Am 含有量にかかわらず温度の上昇とともに、熱伝導率が低下することも分かりました。さらに、計算式から算出した熱伝導率は、測定値を良く再現することができました (図 7-13 の線)。これにより、試料密度及び Am 含有量の情報から熱伝導率を評価することが可能となり、高速炉の Am-MOX の燃料中心温度等を決定する上での設計技術に貢献できます。

今後は、今回取得した化学量論組成の熱伝導率に加え、化学量論組成から外れた熱伝導率を測定することで、より総合的な評価及び定式化を行いたいと考えています。

本研究は、文部科学省からの受託事業「マイナーアクチノイド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究」の成果の一部です。

(横山 佳祐)

* Carbajo, J. J. et al., A Review of the Thermophysical Properties of MOX and UO₂ Fuels, Journal of Nuclear Materials, vol.299, issue 3, 2001, p.181-198.

●参考文献

Yokoyama, K. et al., Measurements of Thermal Conductivity for Near Stoichiometric (U_{0.7-z}Pu_{0.3}Am_z)O₂ (z = 0.05, 0.10, and 0.15), Nuclear Materials and Energy, vol.31, 2022, 101156, 7p.

7-6 「もんじゅ」性能試験データの活用に向けて —解析値と測定値の不一致を説明—

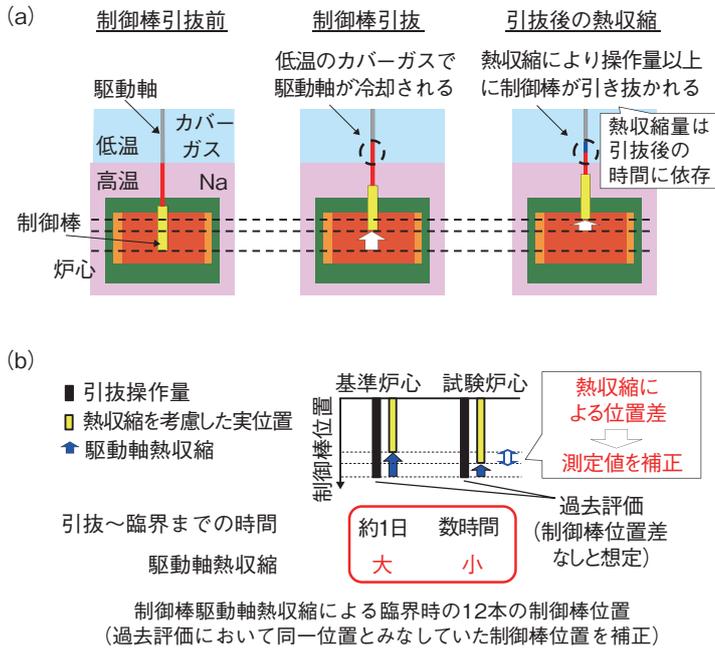


図7-14 制御棒駆動軸熱収縮の (a) 発生メカニズム及び (b) 測定値への影響補正
制御棒駆動軸熱収縮により生じた制御棒位置の差による測定値への影響を補正しました。

原子炉設計に適用する核解析手法の妥当性確認には原子炉実機での試験測定値との比較が有効であるため、数少ない実機測定である「もんじゅ」試験を活用すべく試験データの評価・整備を進めています。

試験データの中には、測定値と再現解析値（試験を模擬した解析）の間に解釈が難しい不一致があるものもあります。例えば、固定吸収体（原子炉運転・制御のための制御棒と同等の機能を有する試験用集合体）の反応度値測定試験では、同吸収体を1体及び3体装荷した試験（以下、各Case1及びCase2）のうち、Case1のみに測定値と解析値間に不確かさの合計を超えた差がありました。解析に最新知見を反映しても不一致は解消できませんでした。

本試験では、固定吸収体装荷前後の炉心（基準炉心/試験炉心）の臨界制御棒位置の差により固定吸収体の反応度値を測定していますが、試験データの収集条件、評価過程を精査し、制御棒駆動軸の熱収縮による制御棒位置の変化が影響していることを突き止めました。駆動軸熱収縮とは、制御棒引抜により制御棒を吊り下げる駆動軸の一部が高温ナトリウム(Na)層から低温アルゴン(Ar)カバーガス層に移動することに伴い徐々に熱収縮し、操作量以上に制御棒が引き抜かれる現象です。熱収縮による制御棒位置変化は1 mm未滿のわずかな量であり、制

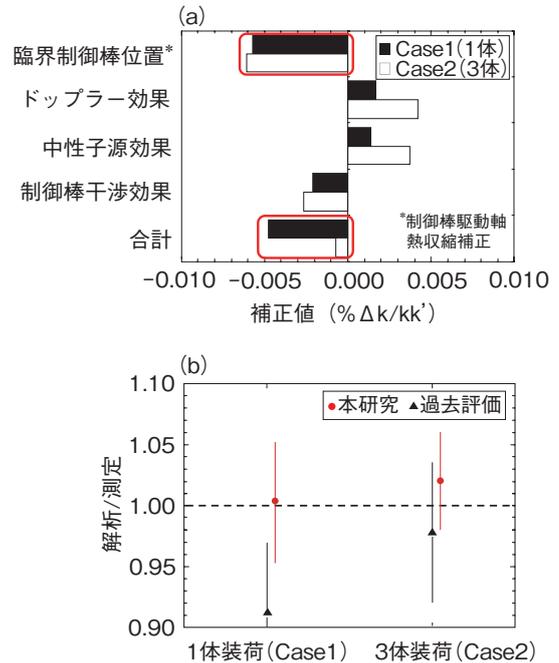


図7-15 固定吸収体の反応度測定試験データの (a) 詳細補正及び (b) 測定と解析の比較（不確かさは解析と測定の寄与の合計）
制御棒駆動軸熱収縮を含む詳細補正を適用することで、両ケースの測定値と解析値が一致することを確認できました。

御棒引抜後の時間に依存します（図7-14）。

Case1の試験では、炉心中心の1本の制御棒(C1)の位置変化から固定吸収体の反応度値を測定しています。それ以外の12本の制御棒の引抜操作量は両炉心で同じです。しかし、詳細に試験時の制御棒操作履歴を調査したところ、これら12本の制御棒について、所定位置に引抜後、臨界制御棒位置を測定するまでの時間が基準炉心で約1日、試験炉心で数時間と大きく異なっており、この操作履歴の差により、C1以外の駆動軸熱収縮量が両炉心で有意に異なることが分かりました。駆動軸熱収縮による制御棒位置変化を補正した結果、Case1の測定値と解析値が一致しました（図7-15）。なお、Case2にも同様に補正を適用していますが、他補正要因と相殺し、過去に評価された測定値と大きな差は生じないことを確認しました。

本研究によりケース間で整合しない測定値と解析値間の不一致を解消し、本試験を信頼できる妥当性確認用データとして整備することに成功しました。上記知見は他の試験（燃料集合体の反応度値測定試験）にも適用し、データの信頼性向上につなげています。その他のデータについても再評価し、高品質な核解析手法の妥当性確認用データベースを構築していきます。

（大釜 和也）

●参考文献

Ohgama, K. et al., Evaluation of Fixed Absorber Reactivity Measurement in the Prototype Fast Reactor Monju, Nuclear Technology, vol.207, issue 12, 2021, p.1810-1820.

7-7 高度化 MOX 燃料の実用化に向けて —燃料中の酸素含有量の微量変化を測定—

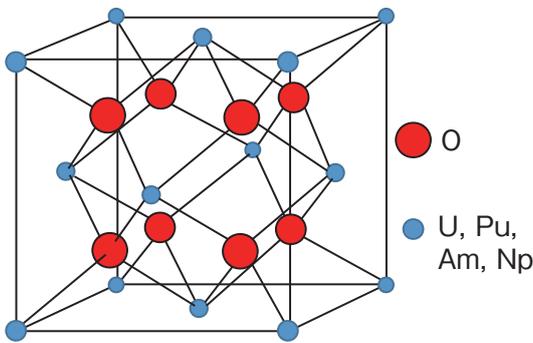


図7-16 MOX 燃料の結晶構造の模式図
O は温度や周囲の酸素分圧に応じて MOX 燃料の結晶から出たり入ったりできます。このため、O と金属元素 (U、Pu、Am、Np) の原子数比が、例えば 1.999、1.998 … のように連続的に変化します。

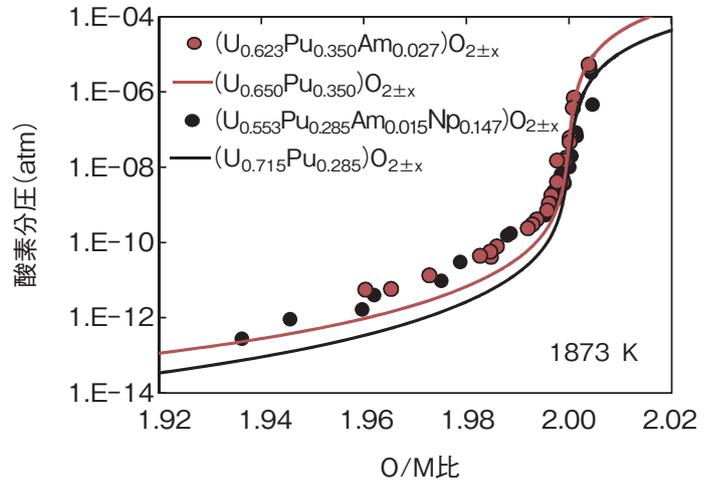


図7-17 MOX 燃料の O/M 比と周囲の酸素分圧の関係 (1873 K)
他の条件 (温度、酸素分圧及び Pu 含有率) が同じ場合、Am 及び Np の含有によって MOX の O/M 比は低くなることが分かりました。特に、Am は Np よりも O/M 比を低くする効果が大いことが分かりました。

使用済核燃料の中にはアメリシウム (Am) やネプツニウム (Np) 等のマイナーアクチノイド (MA) と呼ばれる元素が含まれ、これらは長い半減期と強い放射能を持ちます。これらの元素は、高速炉を用いて半減期が短く放射能が弱い元素に変換することが可能であるため、MA を含有させた高速炉用 MOX 燃料の研究開発が進められています。MOX 燃料は、酸素 (O) と金属元素 (ウラン (U)、プルトニウム (Pu)、Am 及び Np) の原子数比 (O/M 比) が連続的に変化する特異な性質を持つ物質です。図7-16に MOX 燃料の結晶構造の模式図を示します。温度と周囲の酸素分圧に応じて、O が結晶中から抜けたり (還元)、結晶中に入ったり (酸化) することで、結晶中の O/M 比が連続的に変化します。O/M 比がわずかでも変化すると、MOX 燃料の融点や熱伝導率といった燃料設計において重要な物性が大きく変化することが分かっているため、MOX 燃料の O/M 比を正確に把握することが重要になります。

私たちの研究グループでは、Am を含有する MOX 燃料と、Am 及び Np を含有する MOX 燃料を対象に、酸素センサー及び熱天秤と呼ばれる装置を用いて、様々な

温度と酸素分圧に対して酸化・還元に伴う微量な重量変化を測定しました。これによって、温度と酸素分圧に対する O/M 比のデータを取得することができました。

図7-17に横軸を O/M 比、縦軸を酸素分圧としたグラフを示します。温度と酸素分圧が同じ場合、MA 含有 MOX 燃料と、MA を含有しない MOX 燃料を比べると、MA 含有 MOX 燃料の方がより低い O/M 比になる結果が得られました。これは、特に Am 酸化物が有する非常に還元されやすい性質によるものと考えられます。

これまでにも MOX 燃料の O/M 比に関する研究は報告されていましたが、MA 含有 MOX 燃料のデータは極めて限られていました。今回新たに取得したデータと既報のデータを合わせて解析することで、Am 及び Np の含有率と、さらに温度と酸素分圧を変数として、O/M 比を予測する評価式を作成することができました。このような定量的な評価はこれまでになかったものです。今後は、この評価式を利用して原子炉内の O/M 比を予測し、その O/M 比に対応した物性値や原子炉内での振る舞いを予測・シミュレーションする研究を進める予定です。

(廣岡 瞬)

●参考文献

Hirooka, S. et al., Oxygen Potential Measurement of (U,Pu,Am)O_{2±x} and (U,Pu,Am,Np)O_{2±x}, Journal of Nuclear Materials, vol.542, 2020, 152424, 9p.

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、2022 年 4 月 1 日改訂）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、放射性廃棄物の処理処分を含めた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着実に進めつつ、ガラス固化技術の高度化に係る技術開発等に取り組んでいます。2021 年度は、13 本のガラス固化体を作製しました。

本章での当該分野の技術開発成果として、ウランを含む放射性廃棄物の埋設事業実施に向けたトレンチ埋設施設的设计検討に資する研究（トピックス 8-1）、放射性廃棄物の処理への取組みとして有機物含有核燃料物質の安定化処理法の開発（トピックス 8-2）、環境有害物質を含む放射性廃棄物の安定固化技術の開発に向けたアルカリ活性材料で固化処理された鉛の性状調査（トピックス 8-3）、一般でも使用されるレーザークリーニング技術を用いたウラン付着塗装膜への適用（トピックス 8-4）について紹介しています。また、原子力施設の廃止措置への取組みとして汚染履歴のある施設の解体（トピックス 8-5）及び α 線放出核種を含む廃液貯蔵タンクの解体（トピックス 8-6）について紹介しています。

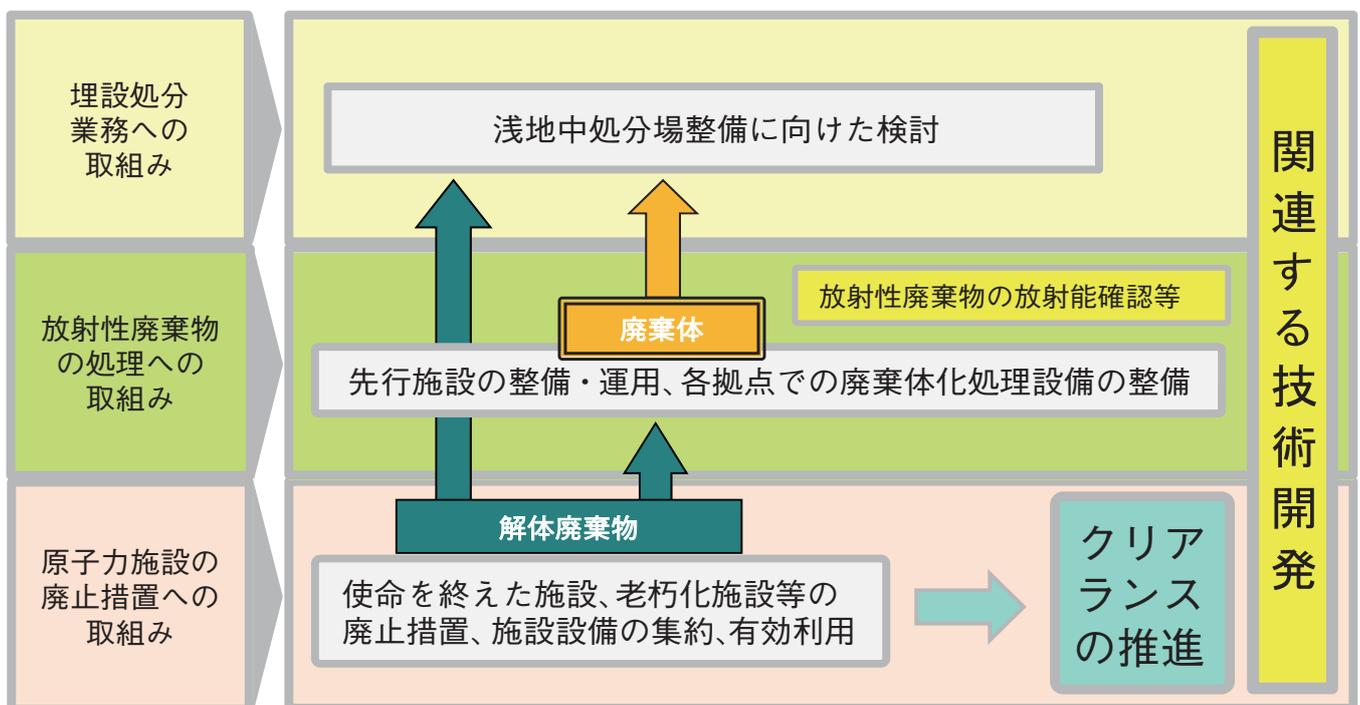


図 8-1 低レベル放射性廃棄物対策の概要

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300m以深の安定な岩盤の中に、粘土を主成分とする緩衝材で包み込んで埋設します（図8-2）。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8-7、8-8）。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8-9）。瑞浪超深地層研究所（花崗岩を対象）では、2022年1月16日までに坑道の埋め戻し及び地上施設の撤去を終了しました。

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、地質環境の長期安定性に関する研究の成果や地下の研究施設での研究成果も活用して、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8-10、8-11）。

これらのような研究開発で得られた成果により、知識マネジメントシステムを用いた知識ベースの拡充を継続しており、第3期中長期目標期間（2015年度～2021年度）における研究開発成果の取りまとめをCoolRep4（CoolRep：ウェブを活用した次世代レポーティングシステム）として公開しています。（CoolRep: <https://kms1.jaea.go.jp/CoolRep/index.html>）

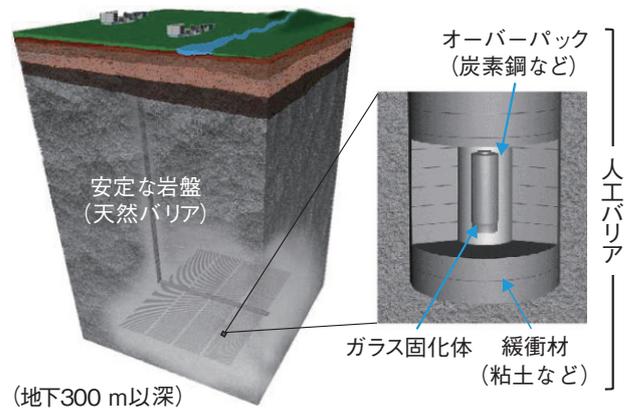


図8-2 地層処分システムの基本概念



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 環境基準にも配慮した埋設施設の設計に向けて

—埋設施設の配置や構造が変わることで浸出するウラン濃度は変わるのか—

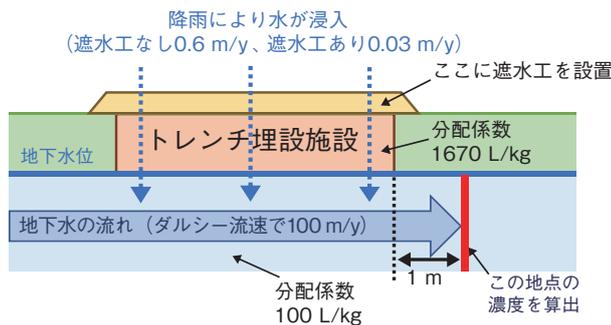


図8-4 トレンチ埋設施設からウランが浸出するイメージ
遮水工がない場合は0.6 m/y、ある場合は0.03 m/y施設へ水が浸入し、ダルシー流速が100 m/yの地下水が流れている環境を想定しました。分配係数はトレンチ埋設施設を1670 L/kg、帯水層中を100 L/kgとしました。

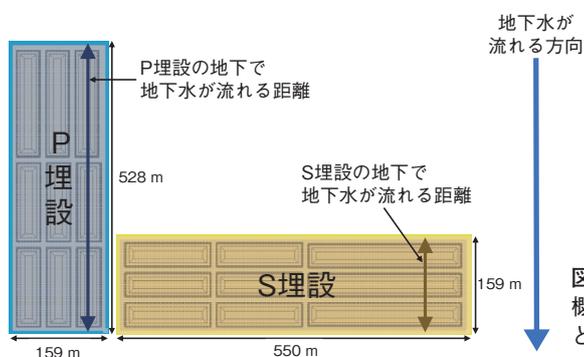


図8-5 検討中の埋設施設の配置と地下水の流れる方向
概念設計より、トレンチ埋設施設はP埋設とS埋設を設置することを検討しています。

埋設事業センターは、研究施設等廃棄物のための埋設施設の設計を検討しています。廃棄物中には人に対して化学毒性を有する放射性核種も存在します。その一つがウランで、研究施設等廃棄物にはウランを多く含むものがあり、処分方法としてトレンチ埋設が検討されています。

そこで、埋設施設の規制には、一般公衆に対する被ばく線量評価が要求されていますが、より安全な埋設施設を目指し、これまで実施してこなかったウランの環境基準*に対する評価について、概念設計で設計したトレンチ埋設施設を参照して検討しました。

概念設計では、トレンチ埋設施設は「P埋設」と「S埋設」の二つの配置を併設することを計画しました。トレンチ埋設施設の安全を評価する際には、図8-4のように、降雨によりトレンチ埋設施設に水が浸入し、放射性核種が水に溶解して施設の外へ移行する可能性を考慮します。図8-5のとおり、二つの施設は互いに垂直になるように配置されているため、地下を流れる地下水の距離が異なります。今回は、それぞれの施設からウランが浸出することを想定し、解析コードGSA-GCL2を用いて、施設の端から1 mの地点における地下水中の濃度を評価しました。また、埋設するウランの量は、規則で定められている最大の濃度から算出し、ウランが移行するパラメータ（分配係数等）は従来の線量評価で使

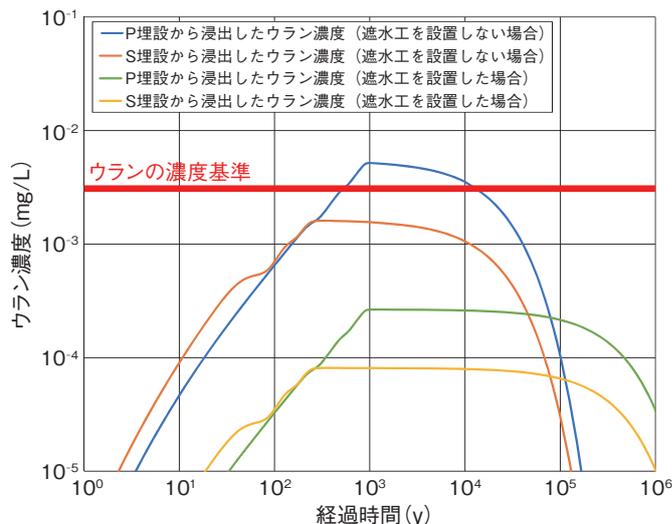


図8-6 P埋設及びS埋設から浸出したウランの地下水中濃度の経時変化
解析により求められた埋設施設から1 mの地点における帯水層中のウランの濃度の時間変化を示したグラフです。S埋設はP埋設よりウランの濃度が低く、濃度が最大となる時間が早くなりました。また、遮水工を取り入れた場合には、ウランの濃度がさらに低くなりました。

用した値と同じとしました。

評価した結果を図8-6に示します。浸出したウランの最大濃度がS埋設はP埋設の半分以下まで低くなり、濃度が最大となる時間がS埋設はP埋設の1000年より早い300年となることが分かりました。また、図8-4のような遮水工を取り入れた設計の場合では、最大の濃度となる時間に変化はほとんどありませんでしたが、ウランの最大濃度が10分の1以下まで低くなることが分かりました。日本ではウランの環境基準*を0.002 mg/Lと定めていますが、環境基準*を超えていたP埋設においても基準を下回りました。

これらの結果より、施設の配置を変えたり、遮水工を設置したりすることで環境基準*を満足させることが可能であると考えられます。しかし、施設には遮水工等の人工物を用いるため、ウランの濃度が最大となる時期が長期経過後と想定される場合は、劣化等を留意する必要があります。この結果は、今後のトレンチ埋設施設の設計を検討するための重要な知見となります。

(小川 理那)

* 公共用水域の水質汚濁に係る環境基準のうち、人の健康保護に関する環境基準（要監視項目）、水道法に基づく水質管理目標値（水質管理上留意すべき項目）

●参考文献

小川理那ほか, トレンチ埋設施設に起因する帯水層中のウラン濃度の試算, JAEA-Technology 2022-008, 2022, 46p.

8-2 安全な保管に向けた核燃料物質の処理方法の確立 —有機物含有核燃料物質の安定化処理—

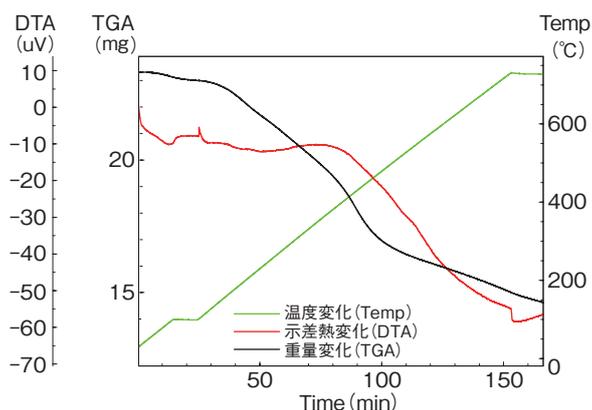


図8-7 有機物含有核燃料物質の示差熱分析結果
高純度 Ar 雰囲気（酸素濃度約 2000 ppm）条件にて 750 °C まで 5 °C /min で昇温しました。示差熱変化 (DTA 曲線) から 750 °C までの昇温過程において異常発熱の原因となり得る発熱ピークは観察されませんでした。



図8-8 有機物含有核燃料物質の安定化処理時の外観変化

(a) 熱処理工程前外観、(b) 200 °C 熱処理後の外観、(c) 700 °C 熱処理後の外観を示します。熱処理工程を進めるにつれ当該有機物含有核燃料物質の外観が薄茶褐色から淡緑色へ変化している様子が分かります。また、熱処理後、初期重量 104.34 g から 70% 程減少しており、外観からは体積が減少していることが分かります。

核燃料サイクル工学研究所では、老朽化した原子力施設の計画的な廃止措置を進めています。廃止措置対象施設の一つである B 棟は、建設から 60 年以上経過しており、施設内の核燃料物質の払出しが進められ、その一部として有機物含有核燃料物質を高レベル放射性物質研究施設 (CPF) で受け入れました。しかし、貯蔵中に有機物の放射線分解によると思われるガスが発生し、収納袋が徐々に膨らむという問題が発生してしまいました。当初は膨らむ度に収納袋を交換するといった対処療法的な対応を行っていましたが、抜本的な解決を目指し、当該核燃料物質をガスの発生しない安定した状態へ処理することを目指し検討を始めました。

ガスが発生しない状態とするまでの安定化処理方法を検討するために γ 線スペクトロメトリー、元素分析、質量分析を実施し核燃料物質の性状を調査し、当該有機物含有核燃料物質には想定どおりガス発生への寄与が大きい α 線核種が多く含まれていることを確認しました。一方、分析のために試料の溶解作業を実施した結果、試料は難溶性であり、溶解に多くの硝酸溶液を必要とすることも分かりました。通常の核燃料再処理と同様に、有機溶媒を用いて放射性核種を分離後、脱硝転換による処理方法を想定した場合、当該核燃料物質 104.34 g に対し最低でも、硝酸溶液が 50 L、有機溶媒は 20 L 以上が必要と評価され、処理時に廃液、廃溶媒が多量に発生する本手法は施設への負荷が非常に大きいことが分かりました。

そこで代替法として加熱による安定化処理を検討することとし、当該核燃料物質を加熱した際の安全性を

確認するため少量の試料で示差熱分析を実施しました。図 8-7 に示すとおり、750 °C までの昇温過程において異常発熱の原因となり得る発熱ピークは発生せず、熱処理中に発火や発熱といった火災の原因となり得る事象は発生しないことが分かります。また、模擬試料の示差熱分析結果との比較により当該核燃料物質に含まれる有機物がイオン交換樹脂である可能性が高いことも明らかになりました。この樹脂は 750 °C までの昇温で完全分解が可能であると報告されており、加熱が有効な処理方法であると裏付けられました。

上記の結果を踏まえ、当該核燃料物質全量に対して熱処理を実施しました。処理条件は安全を考慮した段階的なものとし、200 °C (1 h) → 400 °C (1 h) → 700 °C (20 min) の手順となります。処理後は、図 8-8 に示す各工程の外観からも分かる通り体積が減少しており、重量においても 104.34 g から 34.22 g へ大きく減少しました。この結果より、含まれていた有機物が分解されたと判断することができます。

当該核燃料物質は、熱処理後、2020 年 10 月 19 日に収納袋へ収納・保管しました。保管中は毎月点検を実施し、2022 年 5 月 17 日現在で収納袋の膨張がないことから、ガスが発生しない状態であることを確認しています。

本成果は、同様な有機物含有核燃料物質を長期的かつ安全に保管する安定化処理方法であり、種々の原子力施設の廃止措置の際に性状不明な核燃料物質の処理検討に役立ちます。

(多田 康平)

●参考文献

先崎達也, 多田康平ほか, 有機物含有核燃料物質の安定化処理, JAEA-Testing 2022-001, 2022, 28p.

8-3 有害物質を含む放射性廃棄物の安定固化に向けて —アルカリ活性材料で固化処理された鉛の保持機構の解明—

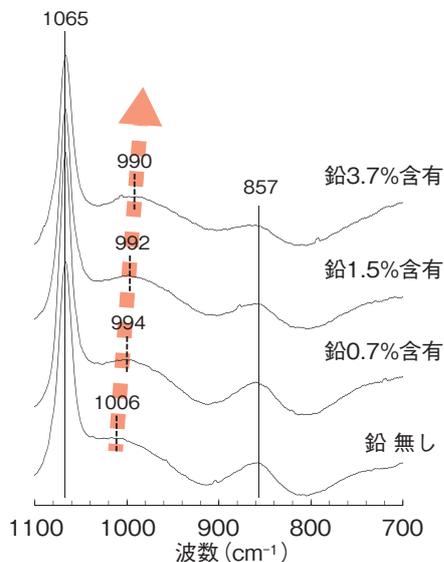


図8-9 固化試料の主要構造であるケイ素と酸素の化学結合状態の変化

ラマン分光分析で得られたスペクトルから、鉛の混合率が增加することにより、ケイ素と酸素の結合状態が変化（1000 cm⁻¹ 付近のピークがシフト）し、鉛が構造中に取り込まれていることがわかりました。

原子力施設では遮蔽材としての鉛が広く利用されています。鉛は、産業廃棄物において有害物質に指定されており、廃棄する際の有害物質の溶出量には規制が設けられています。放射性廃棄物に含まれる有害物質に関する規制はまだありませんが、放射性廃棄物の基準に加えて、有害物質を含む産業廃棄物に求められる基準も満たす廃棄体を作製する技術を開発することで、処分した際の環境負荷を低減できると考えています。

私たちは、このような有害物質と放射性物質を同時に含む低レベル放射性廃棄物の安定固化に向けて、一般的な固化材料のセメントをはじめとした様々な固化材料を用い、廃棄体の中に有害物質を閉じ込める処理技術の開発に取り組んでいます。候補材料の一つであるアルカリ活性材料は、セメントとは異なるメカニズムで硬化し、ケイ素とアルミニウムが主成分の非晶質の無機固化材料で、陽イオンの閉じ込め性能を有することが知られています。今回は、アルカリ活性材料の適用性の評価に向けて、原子力施設で広く利用されている鉛を対象に、アルカリ活性材料で固化された鉛の存在形態を調査しました。その結果、鉛が非晶質構造の一部として取り込まれていることを明らかにしました。

アルカリ活性材料固化試料は化学試薬を用いて作製し、固化試料中に0.7、1.5、3.7mass%の鉛が含まれるように塩化鉛を混合しました。固化試料を対象としたラ

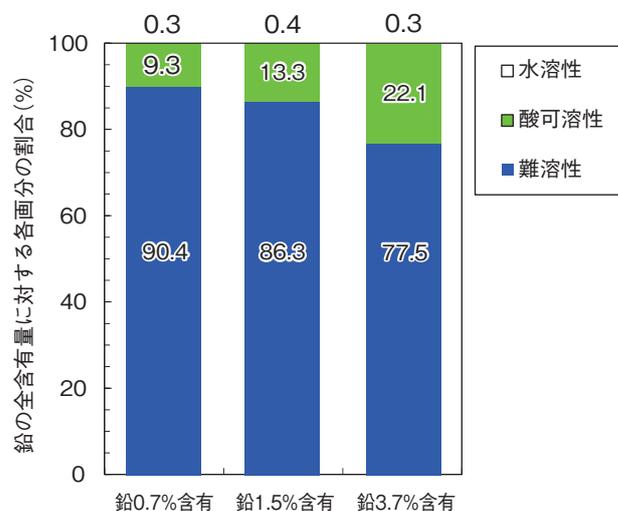


図8-10 固化試料からの鉛の溶出のしやすさ
混合した鉛の75%以上が難溶性として存在し、溶出しにくい形態をとっていることがわかりました。

マン分光分析の結果から、鉛の添加量の増加に伴い、ケイ素と酸素の結合状態が変化しており（図8-9）、さらにX線回折分析や熱重量示差熱分析などを行った結果、鉛がアルカリ活性材料の骨格の一部に取り込まれていることがわかりました。また、水溶液の酸の強さを段階的に変えた溶出試験を実施し、固化試料から水溶液への鉛の溶出のしやすさを調査した結果、75%以上の鉛は難溶性として存在していました（図8-10）。水溶性の鉛は1%未満となりほとんど存在せず、残りは酸可溶性の鉛として存在していました。以上の結果から、アルカリ活性材料において鉛は、非晶質構造の一部として取り込まれ、容易に溶出しない形態になっていることがわかりました。この技術を適用することにより、有害物質の閉じ込め性に優れた固化処理技術を開発できる可能性が見い出されました。

得られた成果をもとに、アルカリ活性材料の有害物質の閉じ込め性に関する理解を深めて適用性の評価を進め、有害物質を含む放射性廃棄物を安定固化可能な処理技術の開発に取り組んでいきます。

本研究は、京都大学との共同研究「有害物質を含む廃棄物の処理及び廃棄体の経時変化に関する共同研究」（平成31年度）で実施されたものです。

（佐藤 淳也）

●参考文献

Sato, J. et al., Stabilization of Lead with Amorphous Solids Synthesized from Aluminosilicate Gel, Journal of Hazardous Materials, vol.385, 2020, 121109, 9p.

8-4 鋼材表面塗装膜の除去技術 —レーザークリーニング技術の表面物質分離性能評価—

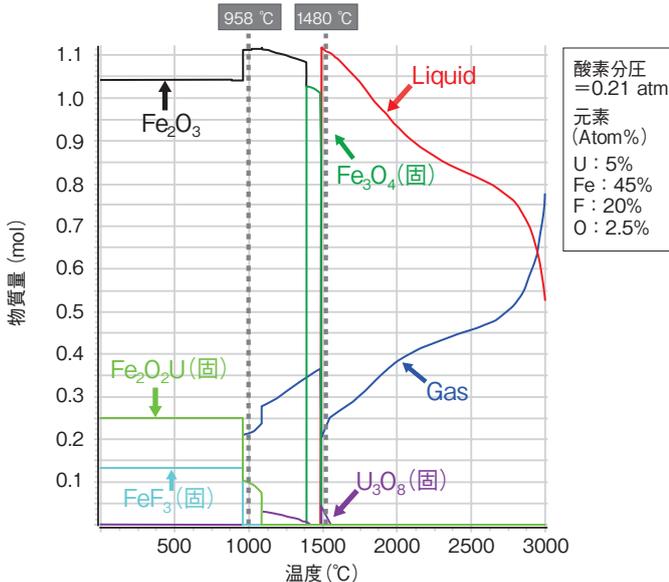


図8-11 大気雰囲気中における鉄 (Fe) とウラン化合物 (U_3O_8) の熱力学解析結果
縦軸は物質量 (mol)、横軸は温度 ($^{\circ}C$) を示します。ウラン (U) は $958^{\circ}C$ 付近で気化するのに対して鉄 (Fe) は $1480^{\circ}C$ 付近で部分的に液化しました。

人形峠環境技術センターの設備解体撤去に伴い約 13 万トンの廃棄物が発生し、そのうち放射性物質によって汚染されていない廃棄物 (Non Radioactive waste: NR) となる非放射性廃棄物は約 80% であると見込まれています。NR 対象となる鋼材の一部は表面の塗装膜が汚染された可能性を否定できないものがあります。現在、これらの塗装膜をグラインダー等の回転研磨工具により除去していますが、粉塵の飛散や吸入防止のためのグリーンハウスの設置や重装備が必要です。

本研究で着目したレーザークリーニング技術は、建設現場等で使用される表面除去技術であり、対象物を隔離したまま表面除去が可能であるため、粉塵対策の重装備が不要となり、作業者の負担軽減、二次廃棄物の低減が期待できます。しかしながら、高温環境下におけるウランと鋼材の反応性や分離物の回収方法が未確立であり、ウランが付着した鋼材に適した例はありません。

そこで本研究では、ウラン付着塗装膜へのレーザー分離技術の適応性の検証として、高温環境下におけるウランと鋼材の反応性評価、粉体分離性能評価及び分離物の飛散方向の評価を実施しました。

塗装膜表面に付着したウランはレーザー照射により溶融した鋼材に取り込まれる恐れがあるため、鉄、ウラン共存時の高温環境下における熱力学解析からウランと鋼材の反応性評価を実施しました。その結果、図 8-11 のように、大気雰囲気において温度上昇させた場合、ウラン化合物の

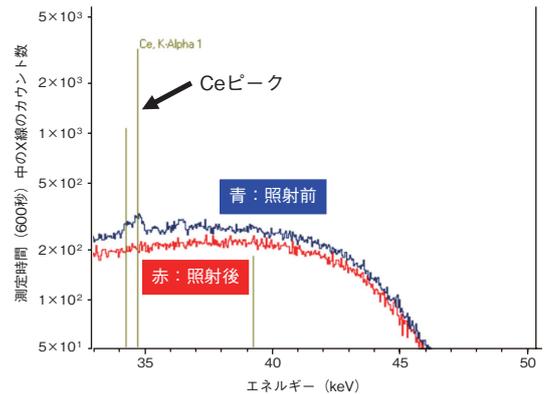


図8-12 酸化セリウム塗布試験の照射前後の蛍光X線スペクトル
縦軸に強度、横軸にエネルギーを示します。照射前 (青) には明確に存在したセリウム (Ce) のピークが、照射後 (赤) には観察されなくなりました。

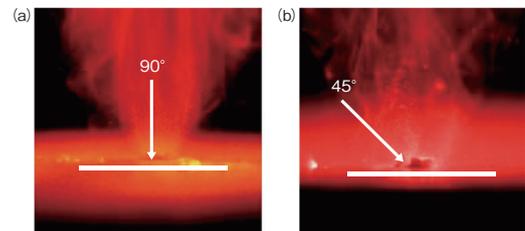


図8-13 レーザー照射時の塗装膜飛散挙動
鋼材表面に対して照射角度が変わっても垂直方向に飛散します。

沸点は鋼材の液化温度より低く、先に気化するため、鋼材に取り込まれる可能性は低いことが明らかとなりました。

また、塗膜に付着した粉体の反応挙動評価を目的に、酸化ウランと同様の結晶構造 (蛍石構造) を示す酸化セリウムを用いて粉体付着模擬試料を作製し、レーザーを照射しました。その結果、図 8-12 のように照射後、セリウムのピークは検出されなくなり、さらに、照射前はあまり検出されなかった鉄、クロム等の鋼材成分が多く検出されました。そのため、塗装膜に付着したウランの粉体はレーザー照射により共に分離・除去できる可能性が高いことが分かりました。

また、分離物の飛散状況の評価として、高速度カメラを用いて塗装膜飛散挙動を撮影しました。その結果、図 8-13 のように飛散物はレーザーの照射角度に依存することなく、鋼材面より垂直方向に多く飛散しました。よって照射面に対して垂直方向から吸引することで効率的に飛散塗装膜の回収ができるとみられます。また、高速度カメラによる温度解析の結果、レーザー照射時の鋼材周辺はウラン化合物の気相生成温度を超えることを確認しました。

以上のことから、本技術はウランが付着する鋼材塗装膜に対しても塗装膜とともにウランの分離が期待できます。今後ウランが付着した実鋼材にて持出基準レベルまでの除染試験を実施する予定です。

(山根 いくみ)

●参考文献

山根いくみほか, レーザークリーニングによる鋼材表面塗装膜の分離・除去, JAEA-Technology 2021-038, 2022, 18p.

8-5 管理区域内火災等による汚染履歴のある施設の廃止措置 —大型グリーンハウスによるウラン濃縮研究棟の一括解体—

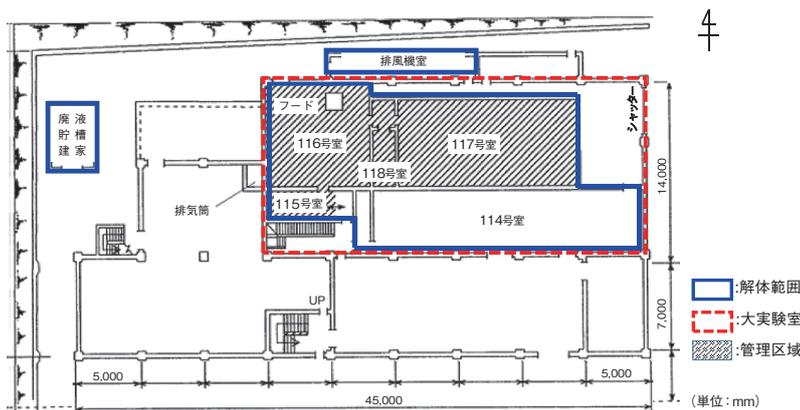


図8-14 「ウラン濃縮研究棟」1階平面図

廃止措置時点において「ウラン濃縮研究棟」では、大実験室内に設置された鉄骨構造の部屋の一部を管理区域としていました。また、管理区域の周囲には排気・排水設備等が設置されていました。



図8-15 大型のグリーンハウスの設置

火災により汚染が広がった管理区域を含む部屋を解体・撤去するため、それらを覆う大型のグリーンハウスを設置しました。



117号室の解体



図8-16 廃止措置前後の大実験室内の様子

管理区域を設定していた部屋を解体・撤去し、空となった大実験室内を北東のシャッター付近から見た様子です。管理区域解除後は一般施設として利用しています。

原子力科学研究所の「ウラン濃縮研究棟」は、1972年に竣工し、1998年度までウラン濃縮に関する研究に用いていた施設です。その後、使用を終了した設備の撤去など行いつつ維持管理をしていましたが、施設中長期計画に従い、2019年度に残存していた施設の解体、除染を行い、管理区域を解除して廃止措置を完了しました。

本施設は、建家内の非管理区域にある大実験室と呼ばれる吹き抜けの部屋（約420 m²）に、独立した鉄骨構造の部屋を設け、その一部を管理区域（約182 m²）としていました。平面図を図8-14に示します。

本施設では、1989年に発煙事象、1997年に火災事故が発生し、管理区域内にウランによる汚染が拡散しました。廃止措置の事前調査では、その際の残存汚染が床と壁面の境目等にも確認されました。このため、原子力科学研究所において過去に実績のある「管理区域である部屋内部の壁や床の汚染を完全に除去して管理区域を解除する工法」を採らずに、「部屋を全て解体撤去する工法」を採用しました。本工事では、汚染が広がった管理区域を区画する壁や天井を丸ごと解体するため、解体工事中に管理区域から非管理区域に汚染が漏れいするのを完全に防ぐ必要があります。汚染拡大防止措置については、管理区域の部屋が設置された大実験室全域を一時

的な管理区域として汚染拡大を防ぐ方法も検討しましたが、管理区域解除時に要する汚染検査の労力が膨大となるため、解体する部屋全体を覆う大型のグリーンハウス（図8-15）を設置し、管理区域の部屋を慎重に解体する方法を用いました。また、床面は汚染の飛散を防止するため汚染箇所の粘着シートによる固定を行ったうえで床材剥離を実施し、汚染の残存するコンクリート面のはつりは、作業場所ごとに部分的なグリーンハウスを設置して集塵機能付きの電動工具を用いて行いました。

本施設の廃止措置においては、部屋の解体のほか、管理区域内外の設備（フード1基、核燃料保管庫4基、放射性廃棄物保管容器1基、放射性廃液貯槽4基、排水配管、排気フィルタユニット、排気ダクト等）を解体撤去しました。

「ウラン濃縮研究棟」の廃止措置は、汚染拡大防止措置、火災防止対策など安全に配慮して作業を遂行し、計画どおり2019年度に管理区域の解除を無災害で達成しました（図8-16）。管理区域の解除後の建家は、一般施設として利用しています。本施設の廃止措置により得られた知見は、除染が困難な汚染が残存する施設の安全な廃止措置の遂行に活かせるものと考えています。

（石仙 順也）

●参考文献

石仙順也ほか、ウラン濃縮研究棟の廃止措置, JAEA-Technology 2020-011, 2020, 70p.

8-6 α 線放出核種を含む廃液を貯留していた大型槽の解体 —被ばく低減措置とこれからの廃止措置へ向けた作業データの取得—

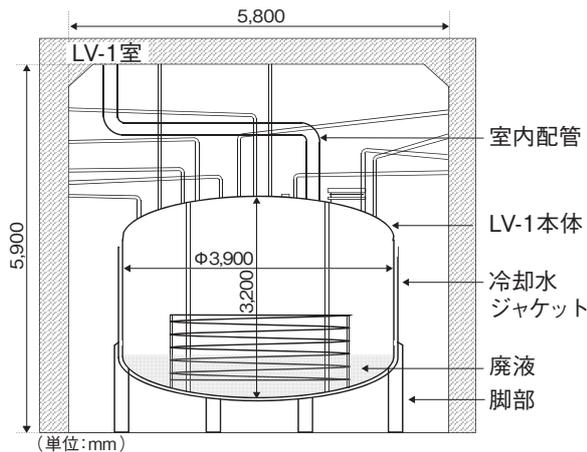


図8-17 LV-1設置概略図

LV-1は非常に狭いスペースに設置されていました。また、LV-1室内には複雑に配管が敷設され、本体には高線量の残留廃液があるなど、LV-1の解体は様々な制約の中で行われました。

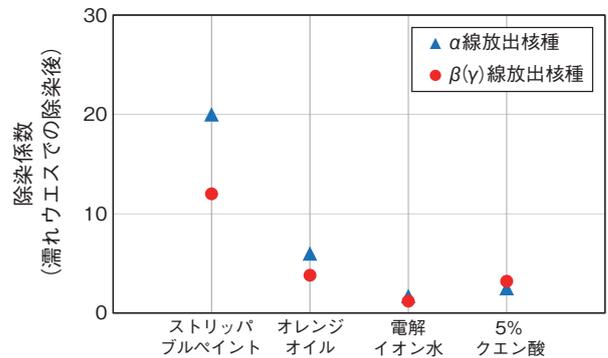


図8-18 除染試験結果

濡れウエスによる簡易除染後、4種類の薬剤を用いて除染を行いました。簡易除染にて遊離性汚染のほとんどが除去できますが、その後の除染ではストリッパブルペイントが最も効果的でした。

	切断効率 (切断長(cm)/切断時間(h))	切断時間比 (切断時間(h)/GH*入域時間(h))	1人・日当たりの平均切断長 (cm/人・日)
エアラインスーツ	240	0.33	324
全面マスク	300	0.49	601
全面マスク/ エアラインスーツ比	1.25	1.47	1.86

1日当たりのGH*入域時間は作業全体の平均値(4.1h)としました。

*GH(グリーンハウス)とは汚染拡大防止囲いを表します。

表8-1 装備による切断作業効率の比較

防護装備による切断効率に大きな差はありませんが、エアラインスーツ装備では着脱装に時間を要するため、切断時間比では大きな差がありました。

再処理特別研究棟は、1968年に使用済燃料を用いた再処理試験(PUREX法)を実施し、日本で初めてプルトニウムの回収に成功した施設であり、1996年から廃止措置として設備・機器の解体を実施しています。解体するにあたり、今後の廃止措置作業の効率化や作業工程の見積りのため、作業管理、放射線管理、廃棄物管理等のデータを取得しています。本報告では、 α 線放出核種を含む核分裂生成物含有廃液を貯留していた大型槽(LV-1)(図8-17)の解体で得られた知見について述べます。

廃止措置を行う上で、解体作業前の除染は作業員の被ばく低減に非常に重要です。しかし、除染方法により効果は異なるので、有効な除染方法を検討するため、LV-1内底部(材質:SUS304L)を用いて遊離性汚染の除染試験を行いました。除染試験では初めに濡れウエスを用いた拭き取りによる簡易除染を行いました。その後LV-1底部を4分割し、それぞれ5%クエン酸、電解イオン水、オレンジオイル及びストリッパブルペイントを用いた除染を行い、その除染係数(除染前の放射能面密度を除染後の値で割ったもの)の比較を行いました(図8-18)。この結果、LV-1のような α 線放出核種が多く付着し、簡易除染では汚染除去が不十分な貯槽等については、ストリッパブルペイントを用いた除染が有効と分かりました。このデータは今後、類似設備の解体を行う際の除染方法の検討に非常に有用です。

次にLV-1本体の切断作業にて、防護装備による作業効率の違いを比較するため、作業員がエアラインスーツあるいは全面マスクを装備した場合の切断効率と切断時間を比較しました(表8-1)。LV-1本体はチップソーを用いて切断しました。切断時の空気中放射能濃度の上昇を防ぐため、LV-1内全体に塗料による汚染固定をした後に行いました。その結果、切断中の空気中放射能濃度が低いことを確認でき、装備を全面マスクに切り替えることが可能でした。これら2種類の装備着用時の作業データから1人・日当たりの平均切断長を比較すると、装備により1.8倍以上の差があることが分かりました。除染及び汚染固定後に切断した今回の作業にかかった人工数の合計は743人・日でした。一方、表8-1の結果を用いて、仮に除染及び汚染固定をせずにすべてエアラインスーツ装備で切断した場合の人工数を推定すると912人・日となりました。これらの評価から、除染及び汚染固定は、作業員の被ばく低減だけでなく、人工数の削減にも有効であることが分かりました。このように、今回の解体作業を通じて廃止措置の工程を検討する上で非常に重要なデータを取得できました。

今後の廃止措置作業においても、継続してデータを取得し、評価・解析を実施することで廃止措置の効率化に反映していきます。

(横塚 佑太)

●参考文献

横塚佑太ほか, 再処理特別研究棟における廃液貯槽 LV-1 の原位置解体—解体準備作業—, JAEA-Technology 2020-017, 2021, 56p.
横塚佑太ほか, 再処理特別研究棟における廃液貯槽 LV-1 の原位置解体—解体作業—, JAEA-Technology 2021-037, 2022, 44p.

8-7 汎用装置で地下の岩石の割れ目をずらすことに初成功 —様々な地下利用に向けて大きく進展—

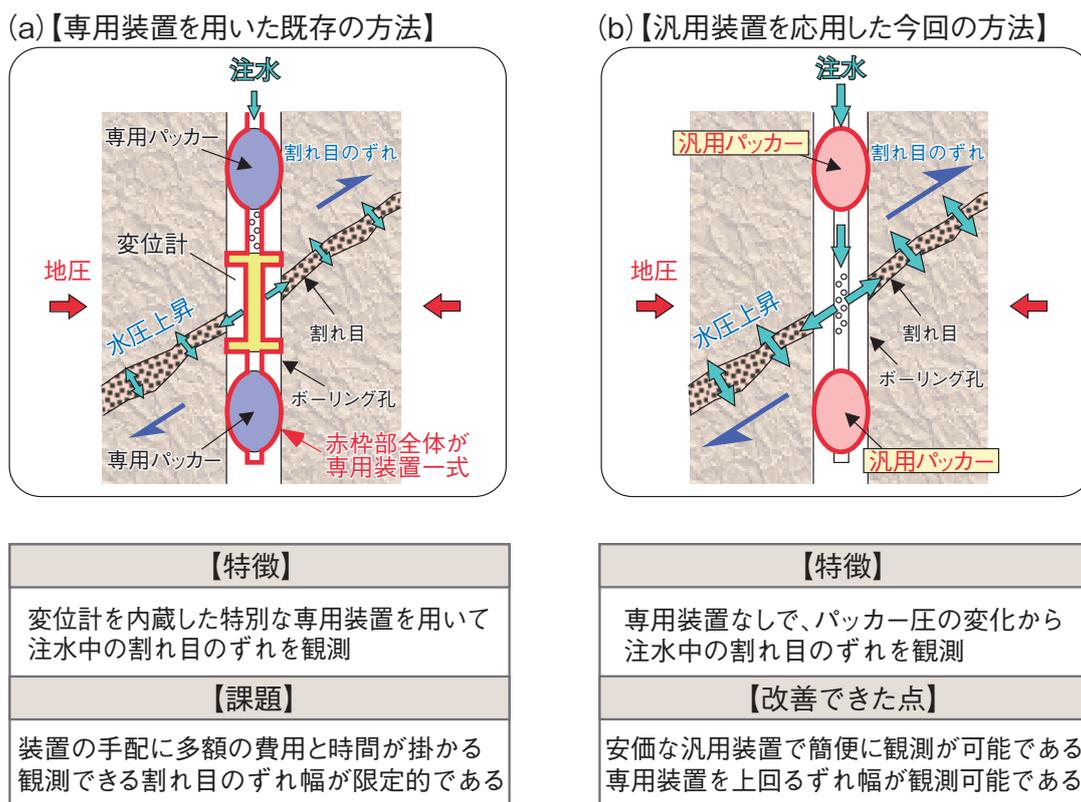


図8-19 既存の専用装置を用いた方法 (a) と今回開発した汎用装置を応用した方法 (b) との比較
それぞれの方法の特徴、既存の方法の課題及び今回の方法の改善点を整理しています。

高レベル放射性廃棄物の地層処分では、地殻変動などに伴って地下の割れ目がずれることにより割れ目の透水性が上昇し、地層の閉じ込め性能に影響を及ぼす可能性を検討する必要があります。この検討のためには実際に地下の割れ目を人工的にずらす試験が有効であり、そのためには試験中の割れ目のずれを観測する方法が必要となります。近年、海外で開発された方法では、まず、特別な専用装置をボーリング孔内の割れ目部に設置します。次に、注水により割れ目内の水圧を上昇させることで割れ目を人工的にずらし、そして、特別な専用装置によりそのずれを観測し、割れ目のずれが透水性に与える影響を調べます (図8-19 (a))。

しかし、このような試験を国内で行うためには、その都度、海外の専門業者に依頼する必要があり、多額の費用と時間がかかります。また、現在用いられている試験装置では、観測できる割れ目のずれ幅の上限が数 mm と限定的であるなど、技術的な課題がありました。

今般、新たな方法として、地層の透水性を測定するために従来用いていた汎用的な試験装置を活用して注水中の割れ目のずれを観測する方法を考案しました (図8-19 (b))。本方法では、割れ目がずれる際に、試験区間長がわずかに変化することで、パッカーと呼ばれるゴム製の容器内の圧力が変化する現象を利用します。こ

の現象を室内実験で詳しく調べた結果、割れ目のずれ幅とパッカー圧の変化に一定の関係が存在することが分かりました。この関係を利用して、幌延深地層研究センターの堆積岩の地下の割れ目 (断層) を対象に実証試験を行った結果、本方法が有効であることが確認できました。

今回行った実証試験では、数 cm に及ぶ破壊を伴わずれまで観測できました。観測したずれの大きさは、既存の専用装置で観測できるずれよりも大きなものでした。そして、このような大きなずれが生じて、透水性に有意な変化が生じないことを注入後の割れ目の透水性から確認することができました。

今回の成果により、今後、国内でも割れ目を人工的にずらし、割れ目のずれが透水性に与える影響を容易に調べられるようになりました。この方法は、地下深部へ流体・ガス注入を行った際に発生し得る割れ目沿いの瞬間的に生じるすべりの抑制対策 (注入方法の検討) や地下の割れ目の力学的安定性の評価にも活用できます。したがって、高レベル放射性廃棄物の地層処分のほか、CO₂ 地中貯留、地熱・石油・天然ガス開発、鉱山開発、斜面防災といった様々な地下利用に係る分野の課題解決に広く貢献することが期待されます。

(石井 英一)

●参考文献

Ishii, E., A Conventional Straddle-Sliding-Packer System as a Borehole Extensometer: Monitoring Shear Displacement of a Fault during an Injection Test, Engineering Geology, vol.275, 2020, 105748, 12p.

8-8 軟らかい岩盤内で水が流れにくい場所を予測する —立坑掘削に伴う水理力学連成応答解析による透水性評価—

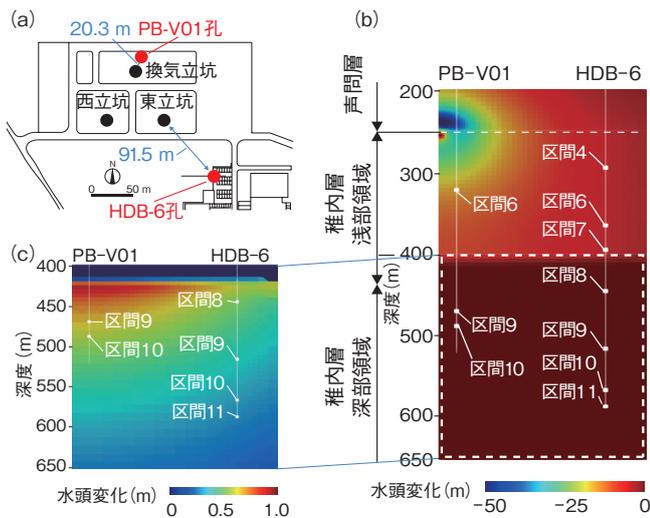


図8-20 立坑及びボーリング孔の位置と水理力学連成解析による排水開始1年後の水頭変化の鉛直分布
(a) 立坑及び本研究で着目したボーリング孔 (PB-V01 孔、HDB-6 孔) の位置、(b) 深度 200 m 以深における水頭分布、(c) 深度 400 m 以深の水頭分布の拡大を示しています。

地層処分における安全評価において、地下水が流れにくく、放射性核種の移行速度が抑制される低透水性の領域を把握することは重要です。通常の水理試験等では水圧応答が小さいために、低透水性領域の分布を評価することが困難ですが、地下施設からの排水量が多い立坑掘削時には低透水性の領域でも水圧応答が生じ得ることにより、直接的に評価できる可能性があります。そこで、地下深部における透水性の評価を目的として、幌延深地層研究センターの換気立坑の掘削深度が 250 m に到達後の 1 年間の排水に伴う水圧応答の再現解析を実施し、深度 250 m 以深に位置する稚内層における透水性を評価しました。

幌延深地層研究センターの地下に分布する堆積岩では、岩盤が軟らかく変形しやすいため、坑道からの排水に伴い岩盤が変形し水圧応答が影響を受けること（多孔質弾性効果）が予測されます。そこで、地下水の流動と岩盤の変形の両方を考慮した水理力学連成解析により立坑掘削時の水圧応答の再現解析を実施しました。今回の解析では、市販の解析プログラムである FLAC3D-5.01 を使用しました。

解析では換気及び東立坑近傍のボーリング孔における声間層と稚内層を対象とし（図 8-20(a)）、稚内層内は、既往研究における地下の力学状態に基づいて、深度 400 m で高透水性の浅部領域と低透水性の深部領域に更に分割しました。声間層及び稚内層浅部では原位置試験により取得された透水性を、稚内層深部では健岩部相当の透水性を仮定したモデルを用いて解析しました。図 8-20(b) は、解析により推定された排水開始から 1 年後の深度方向の水頭分布を示しています。排水に伴い声間層及び稚内層浅部では水頭が低下しました

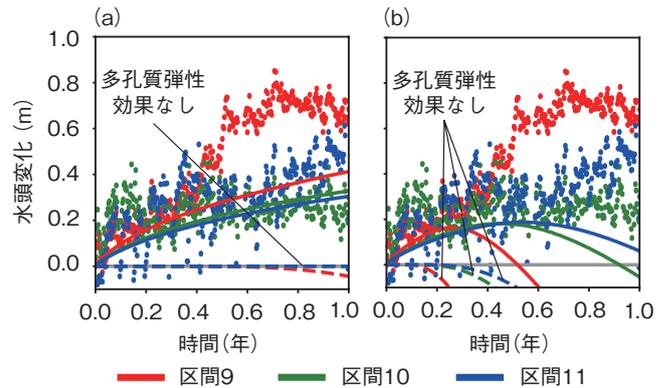


図8-21 HDB-6号孔における深度500m以深におけるシミュレーションによる水頭変化と観測値の比較
(a) 稚内層浅部及び深部の各々を高透水性及び低透水性と仮定した場合、(b) 稚内層深部の透水性が浅部と同等に高透水性と仮定した場合の結果です。異なる色で観測区間ごとの結果を、実線及び破線は多孔質弾性効果を考慮した場合と考慮しない場合の解析結果で、点は観測値を示しています。

が（図 8-20(b)）、稚内層深部では多孔質弾性効果により上昇した水頭が低透水性の岩盤により保たれています（図 8-20(c)）。図 8-21 は深度 500 m 以深における解析結果と観測値の比較を示しており、図 8-21(a) では稚内層浅部及び深部の各々を高透水性及び低透水性と仮定し、図 8-21(b) は稚内層深部の透水性が浅部と同じ高透水性と仮定しています。両結果とも多孔質弾性効果を考慮することにより水圧の上昇を再現していますが、図 8-21(a) に示す解析結果の方が観測値とより調和的であることから、稚内層深部の深度 500 m 以深は健岩部と同程度に低透水性であると推察できました。このように、多孔質弾性効果の影響が顕著な場合にも、その影響を考慮することにより透水性の評価ができました。深度 400 m から深度 500 m においても、モデルの透水性を様々に仮定した場合の解析結果と観測値を比較したところ、深度とともに徐々に透水性が低下するモデルから得られる解析結果が観測値と最も整合的であり、稚内層では浅部から深部にかけて透水性が徐々に低下することが推定されました。声間層や稚内層では、亀裂や断層の水理的連結性が透水性を支配する要因となることから、稚内層では断層の水理的連結性が深度とともに低下していると解釈できます。

本研究により、幌延深地層研究センターの地下の稚内層では、断層の水理的連結性が深度に応じて低下し深度 500 m 以深においては健岩部相当の低透水となることが推察されました。また、本研究の解析事例は、力学水理連成応答の影響が顕著な場合の参考事例となると考えられます。

(尾崎 裕介)

●参考文献

Ozaki, Y. et al., Variation in Fault Hydraulic Connectivity with Depth in Mudstone: An Analysis of Poroelastic Hydraulic Response to Excavation in the Horonobe URL, Geomechanics for Energy and the Environment, vol.31, 2022, 100311, 13p.

8-9 よく似た化学組成を持つ火山碎屑物を判別する —局所法による火山ガラスの化学組成分析手法の構築—

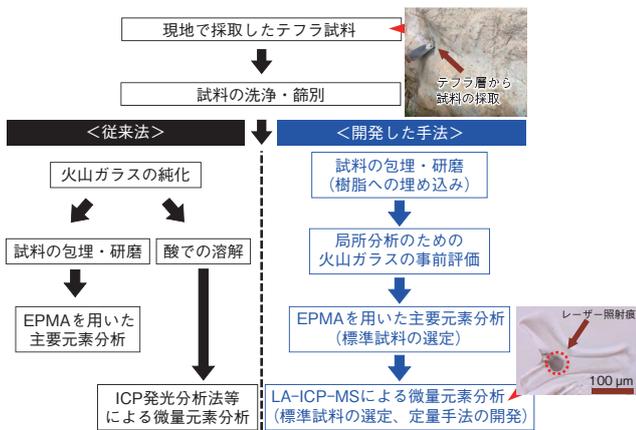


図8-22 本研究で構築した火山ガラスの分析フローチャート
火山ガラスに適した前処理手法の検討、EPMAとLA-ICP-MSによる火山ガラスの化学組成分析手法の開発を行い、微量元素組成の情報を含めてテフラの詳細な対比を可能にしました。

地層処分システムの長期的な安全性を評価するには、将来の地質環境の安定性を過去の自然現象の履歴に基づいて予測する必要があります。火山噴火で噴出した火山灰などの火山碎屑物（テフラ）は、広範囲に短時間で堆積するため、地層や地形の編年において同時間面の指標となります。テフラを用いる年代学（テフロクロロジー）は、自然現象の履歴の解明に有効です。テフロクロロジーでは、堆積年代の分からない地層から採取されるテフラが、既知のテフラのうち、どのテフラと同じか調べる（対比する）ことによってテフラを含有する層やその周囲の地層の年代を求めます。テフラの対比では、その特徴（形状、構成物、屈折率、化学組成等）を把握し、比較します。特にテフラに含まれる火山ガラスの化学組成は重要な指標の一つですが、同じ給源から異なる時期に噴出した火山ガラスでは、主要元素組成が類似している場合があります。そのため、火山ガラスの微量元素組成を指標としたテフラの対比が注目されています。

従来、火山ガラスの微量元素組成の分析は、鉱物片等を多量に含むテフラから火山ガラスだけを分離（純化）し、それらを酸で溶解して測定する湿式分析によって行われてきました。しかし、従来法では試料の前処理が煩雑であり、また、ガラスの純化の程度（鉱物片の混入など）が分析結果に大きく影響する可能性がありました。このような課題を解決するために、煩雑な前処理が不要な局所分析による火山ガラスの微量元素組成分析手法を検討しました。

本研究では、火山ガラスに適した前処理手法を検討し、電子プローブマイクロアナライザ（EPMA）での火山

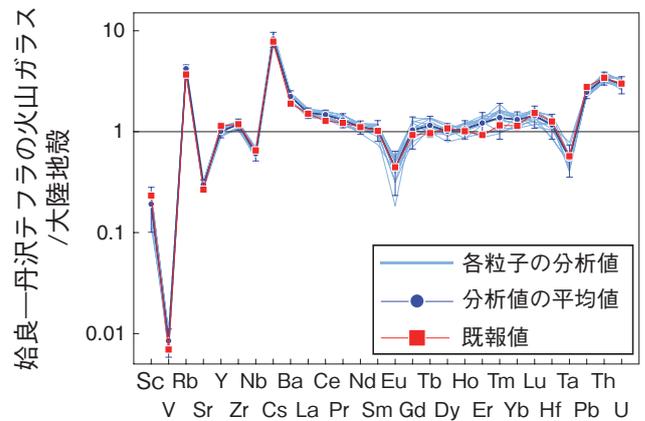


図8-23 開発した手法によって測定した始良—丹沢テフラの火山ガラスの微量元素濃度を大陸地殻で規格化した組成パターン微量元素濃度の測定結果が、既報値と一致し、適切に分析できていることが分かりました。

ガラスの主要元素組成分析手法及びレーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析法（LA-ICP-MS）による微量元素分析手法を開発・整備しました（図8-22）。本研究の分析では、試料の溶解を必要とせず、固体のまま分析可能ですが、事前に試料表面の研磨が必要となります。火山ガラスは、鉱物に比べ形状が不規則であり、研磨の際に脱落しやすいため、本研究では既存の手法を最適化して樹脂へ埋め込む方法を整備しました。また、LA-ICP-MSでの高精度な微量元素の定量分析で鍵となるEPMAでの主要元素組成の分析では、測定対象である火山ガラスと主成分が類似したガラス質な標準試料を用いることで、鉱物を標準物質として用いる従来法よりも高精度な分析を可能にしました。そして、LA-ICP-MSによる微量元素組成の分析では、従来、一つの標準試料を用いた検量線法が採用されてきましたが、火山ガラスと主成分が類似した試料を含む三つの標準試料を用いる定量手法を確立しました。その結果、テフラの対比に十分な精度で火山ガラスの微量元素組成が得られることが確認され（図8-23）、火山ガラスの化学組成を迅速に分析することが可能になりました。

テフロクロロジーにおいては、対比の基準となるテフラカタログの堅牢さが重要となります。微量元素組成を含めた化学組成が明らかになっている国内のテフラは未だ少ないため、今後は、多数点を迅速に分析可能な本技術を用いて、対比の基準となるデータベースの充実化を図りたいと考えています。

（鏡味 沙耶）

●参考文献

鏡味沙耶ほか、東濃地科学センターにおける火山ガラスの化学組成分析手法—EPMAを用いた主要元素分析及びLA-ICP-MSによる微量元素分析—, JAEA-Testing 2021-001, 2021, 49p.

8-10 熱力学的収着モデルで放射性核種の挙動を予測する —処分場の環境変遷が緩衝材中の核種移行に与える影響を評価—

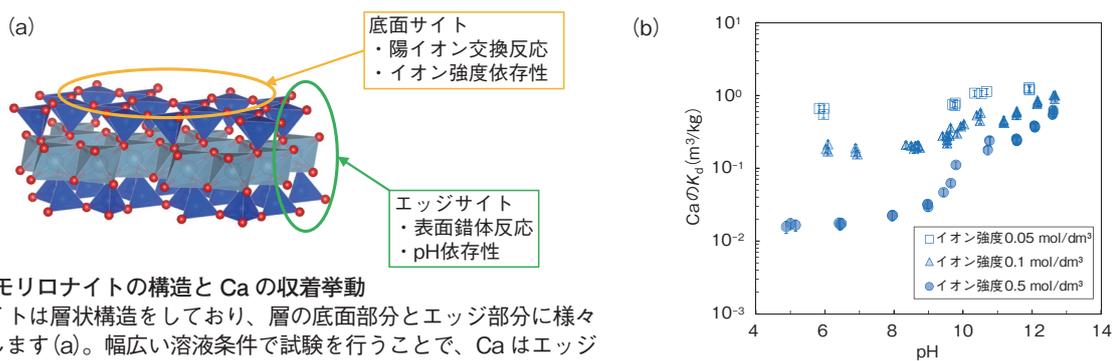


図8-24 モンモリロナイトの構造とCaの収着挙動

モンモリロナイトは層状構造をしており、層の底面部分とエッジ部分に様々な元素を収着します(a)。幅広い溶液条件で試験を行うことで、Caはエッジサイトにも収着することが確認されました(b)。

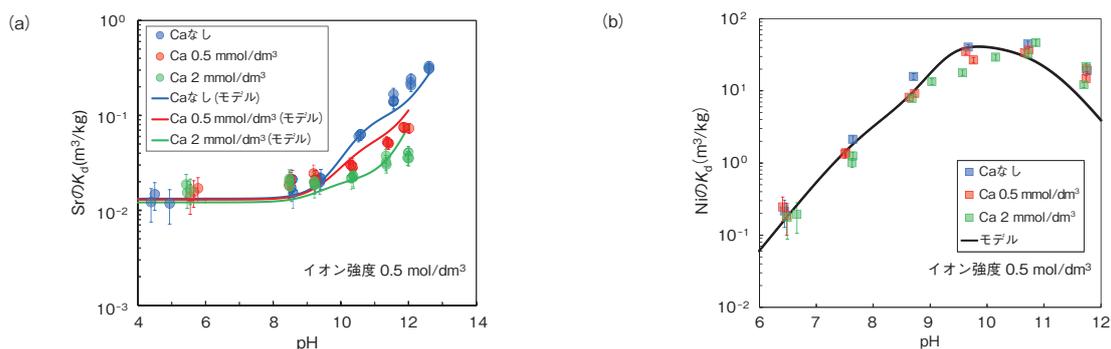


図8-25 Sr及びNiの K_d とCaの影響

Caの存在によってSrの K_d は低下しましたが(a)、Niの K_d は影響を受けませんでした(b)。本試験によって得られた収着パラメータを用いて熱力学的収着モデルにより再現計算を行ったところ、結果を良好に再現することができました。

高レベル放射性廃棄物の処分場にはセメント系材料が使われることが想定されており、長期間の環境変遷によってセメントが溶出して廃棄体周囲の緩衝材の間隙水中カルシウム(Ca)濃度が高くなることが考えられます。緩衝材には放射性核種を収着してその移行を遅延させる役割がありますが、Ca濃度が高くなると放射性核種とCaの収着の競争が起こり、収着が阻害されることが考えられます。放射性核種が緩衝材や岩盤中の粘土鉱物などに収着する度合いは収着分配係数(K_d (m^3/kg))という値で表されます。地層処分場の安全性を評価するには様々な条件で K_d を取得することが理想的ですが、 K_d は溶液のpHや組成によって変化するため、全ての条件で実測することは現実的ではありません。そこで、収着のメカニズムに基づいて K_d を予測する熱力学的収着モデルという手法が研究されています。

本研究では緩衝材中で収着を支配する粘土鉱物であるモンモリロナイトに対するCaの収着挙動を調べました。また、地層処分の性能評価上重要な元素として挙げられるストロンチウム(Sr)及びニッケル(Ni)の収着に及ぼすCaの影響を評価しました。

一般に、粘土鉱物に対する収着は底面サイトにおける陽イオン交換反応とエッジサイトにおける表面錯体反応に分けられ、前者はイオン強度(塩濃度)、後者はpHの影響を受けます(図8-24(a))。これまでCaは陽イオン交換反応によって収着することは知られていましたが、幅広い溶液条件でCaの K_d を取得したところ、高イオン強度の条件では高pHで K_d が大きく上昇し、表面錯

体反応による収着が顕著となることが確認されました(図8-24(b))。この傾向はCaと同族元素のSrでも確認され(図8-25(a))、弱酸性のpH領域から表面錯体反応が顕著となる遷移金属元素のNi(図8-25(b))とは異なるものでした。次に、Sr及びNiのエッジサイトに対する収着に及ぼすCaの影響を評価する試験を行ったところ、Srの収着はCaの存在によって阻害されたものの、Niの収着は影響を受けていませんでした。このことは、エッジサイトは複数種存在することを示唆しています。これらの結果を踏まえ、Caと化学的性質が似ているSrは同じサイト、Niは異なるサイトに収着すると仮定し、PHREEQCという地球化学計算コードを用いて熱力学的収着モデルにより実測値の再現を行い、各元素の収着パラメータ(log K)を導出しました。得られたlog Kを用いて計算を行うと、収着競争試験の挙動を良好に再現することができました。

本研究から、元素はその化学的性質によってそれぞれ異なるエッジサイトに収着することが実験とモデルから明らかとなりました。今後、収着パラメータを蓄積することで様々な条件での K_d を熱力学的収着モデルにより予測することができ、時間経過によって処分場周辺の環境が変化した場合でも、その影響を予測することができると期待されます。

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(JPJ007597)(沿岸部処分システム高度化開発)」の成果の一部です。

(杉浦 佑樹)

●参考文献

Sugiura, Y. et al., Surface Complexation of Ca and Competitive Sorption of Divalent Cations on Montmorillonite under Alkaline Conditions, Applied Clay Science, vol.200, 2021, 105910, 10p.

8-11 緩衝材中の放射性炭素の移行挙動を把握する —圧縮ベントナイト中のカルボン酸、アルコールの拡散試験—

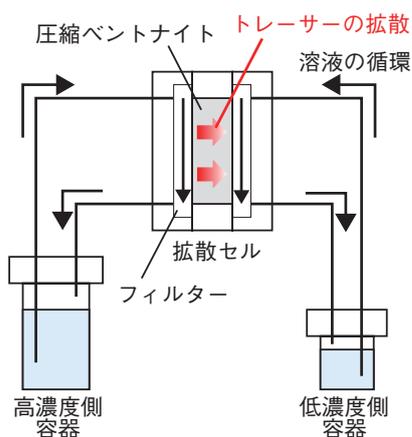


図8-26 拡散試験装置の概略図

装置の拡散セル内部に圧縮ベントナイトが充てんされ、その両端のフィルター内に試験溶液が流れます。高濃度側容器にトレーサー（酢酸、酪酸、ブタノール）を添加し、ベントナイト中を拡散したトレーサーを低濃度側容器で回収して、透過量を測定します。

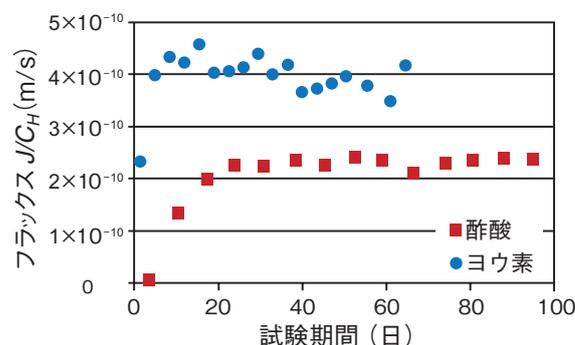


図8-27 拡散試験の結果

圧縮ベントナイトからのトレーサーの単位面積、単位時間あたりの透過量（フラックス）の時間変化（酢酸とヨウ素の例）を示します。フラックスは高濃度側溶液中のトレーサー濃度で規格化しています。

表 8-2 試験により得られた実効拡散係数 (D_e) と形状因子 (FF)

酢酸 (No.1, 2) 及び酪酸 (No.3, 4) はヨウ素と同等の FF 値ですが、ブタノール (No.5, 6) と重水は異なる FF 値を示します (同じ No. の試料間で値を比較)。これは、酢酸や酪酸の拡散経路はヨウ素と同じですが、ブタノールは重水と拡散挙動が異なることを示します。

No.	酢酸		酪酸		ヨウ素		No.	ブタノール		重水	
	D_e (m ² /s)	FF (×10 ⁻³)	D_e (m ² /s)	FF (×10 ⁻³)	D_e (m ² /s)	FF (×10 ⁻³)		D_e (m ² /s)	FF (×10 ⁻³)	D_e (m ² /s)	FF (×10 ⁻³)
1	2.3×10^{-12}	2.1	—	—	4.0×10^{-12}	1.9	5	2.5×10^{-12}	4.5	1.7×10^{-11}	7.7
2	2.6×10^{-12}	2.4	—	—	4.4×10^{-12}	2.1	6	3.2×10^{-12}	5.7	2.0×10^{-11}	8.8
3	—	—	8.0×10^{-13}	0.93	2.0×10^{-12}	1.0					
4	—	—	6.2×10^{-13}	0.71	1.5×10^{-12}	0.74					

地層処分される放射性廃棄物のうち、原子炉内で放射化された金属材料等には、放射性炭素 (^{14}C) が含まれています。地層処分では、廃棄物周囲に緩衝材として圧縮ベントナイトが設置され、放射性核種の移行を抑制します。しかしながら、 ^{14}C はベントナイトへあまり吸着せず、圧縮ベントナイト中を移行しやすいことから、安全上重要な核種となっています。廃棄物中の ^{14}C の一部は、低分子量の有機化合物として放出されると考えられています。そのため本研究では、カルボン酸（酢酸と酪酸）及びアルコール（ブタノール）の圧縮ベントナイト中の拡散試験を実施し、それらの拡散挙動を調べました。また、拡散挙動の報告例の多いヨウ素と重水を用いて同条件で試験を行い、カルボン酸及びアルコールの拡散挙動と比較しました。

拡散試験装置 (図8-26) により測定した圧縮ベントナイトからのトレーサーの透過量（フラックス）の時間変化を図8-27に示します。フラックスは時間とともに徐々に増加し、一定の値となります。この一定のフラックスよりフィックの法則に基づいて拡散係数（実効拡散係数： D_e ）を算出し、 D_e から形状因子 (FF) を計算しました (表8-2)。 FF は、 D_e を各トレーサーの自由水中での拡散係数 (D_0) で除することで算出され、拡散経路の特性（屈曲の度合いなど）を示しています。各試料の FF を比較すると

(同じ手順で作製しても試料の状態に違いがあり、同条件の試料でも結果に差異が出るため、同じ No. の試料間で値を比較します。)、酢酸と酪酸の FF は、これらと同様に陰イオンとして拡散するヨウ素と同等の値ですが、ブタノールは同じ電気的に中性のトレーサーである重水とは異なる FF 値を示します。このことは、ブタノールと重水の拡散挙動には違いがありますが、酢酸や酪酸の拡散経路はヨウ素と同じであり、酢酸、酪酸、ヨウ素の D_e の違いはそれらの D_0 の違いのみに起因することを示しています。すなわち、カルボン酸（酢酸と酪酸）の D_e は、ヨウ素の D_e から D_0 を利用して推定可能であることが分かりました。

地層処分の安全評価では、圧縮ベントナイト中の放射性核種の D_e を正確に把握することが重要です。これまで、カルボン酸の D_e はあまり報告がありませんが、ヨウ素の D_e は数多く報告されています。本研究の結果は、ヨウ素の D_e をカルボン酸の D_e の設定へ活用することを可能とし、 ^{14}C の D_e 設定の精度向上に寄与する成果です。

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁からの受託事業「平成 27～29 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 (JPJ007597) (直接処分等代替処分技術開発)」の成果の一部です。

(石寺 孝充)

●参考文献

Ishidera, T., Diffusion of Acetic Acid, Butyric Acid, and Butanol in Compacted Montmorillonite, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, vol.330, issue 1, 2021, p.149-158.

原子力研究開発を支える計算科学技術

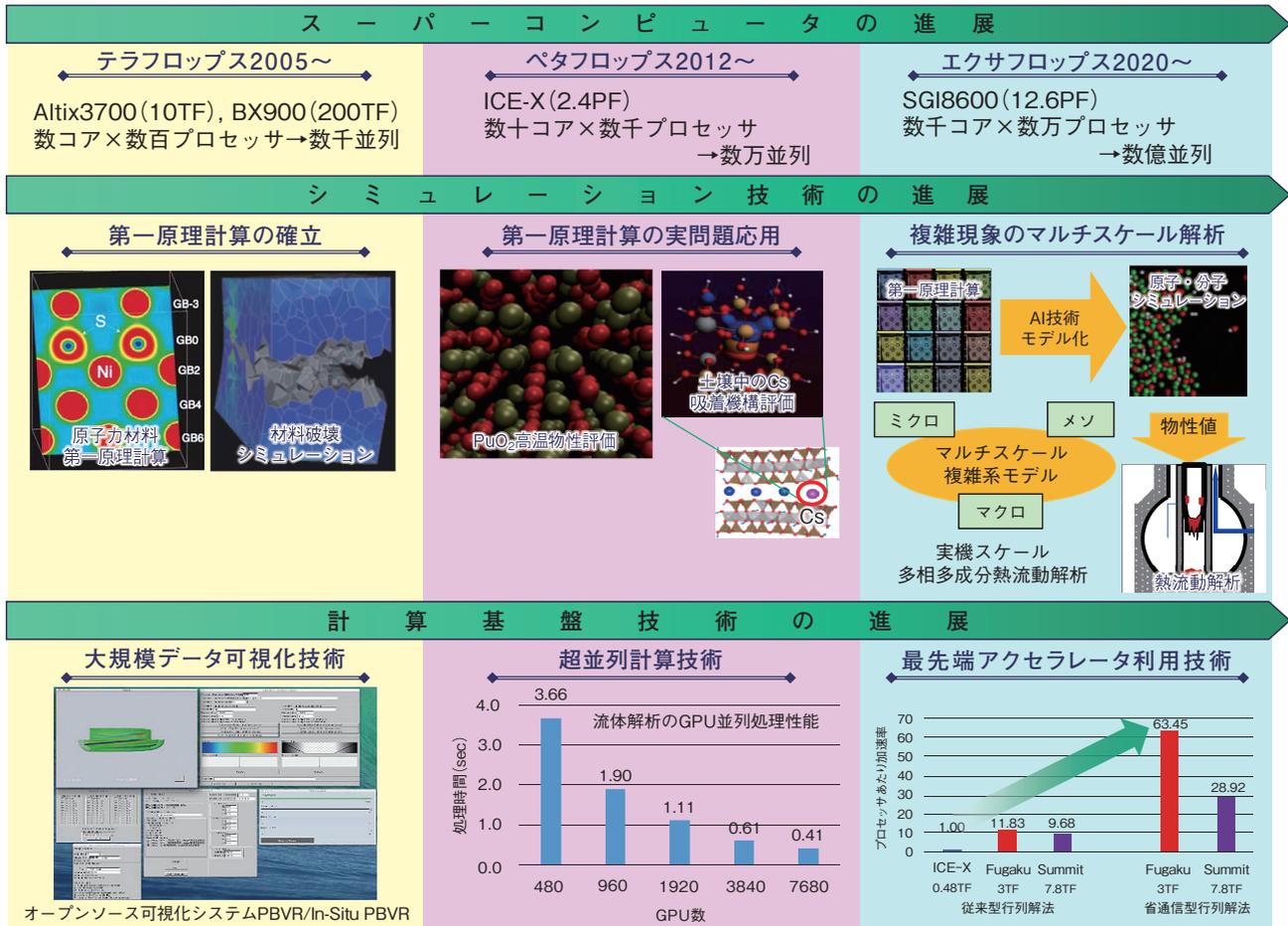


図9-1 システム計算科学センターにおける計算科学研究

スーパーコンピュータ及びそれを使いこなす計算基盤技術の進展に合わせて、シミュレーション技術が発展し、より大規模な実問題の解析が可能となりました。これまでに開発・蓄積してきたシミュレーション技術と計算基盤技術を発展させ、原子力分野における複雑現象解析に取り組んでいます。

放射性物質の環境動態、土壤汚染の機構解明、過酷事故の解析等、東京電力福島第一原子力発電所事故を契機に発生した課題の解決や将来の原子力システムの研究開発には、様々な要因が絡み合う複雑な現象の解析技術が不可欠です。例えば、過酷事故の解析では核燃料や構造材の溶融・移行過程を評価するマクロスケールの熱流動解析だけでなく、溶融物の混合による複雑な界面形成を評価するメソスケールの解析、高温高压の極限環境下における元素拡散、化学反応、相変化による物性変化を評価するミクロスケールの原子・分子シミュレーションといった異なるスケールの解析を統合した解析技術が必要です(図9-1中段)。このようなシミュレーション技術に加え、「富岳」をはじめとする最先端スーパーコンピュータ(スパコン)における高性能計算を可能とするアクセラレータ利用技術、超並列計算技術等の計算基盤技術も必要となります(図9-1下段)。

システム計算科学センターでは、これまでスパコンを活用した原子力研究開発の支援を目的として、複雑現象のより高度な解析を可能とするシミュレーション技術及び計算基盤技術を開発してきました。現在、これらの技術を発展させ、最先端スパコンを駆使した複雑現象解析に取り組んでいます(図9-1)。

2021年度は、計算基盤技術の開発に関して、以下の二つのテーマに取り組みました。トピックス9-1では、計算コストの大きい数値流体力学(CFD)解析によって得られた高解像度の計算結果を深層学習によってモデル化して代理モデルを構築する手法を開発しました。トピックス9-2では、マルチスケールのCFD解析を可能とする適合格子細分化(AMR)法の新しい領域分割手法を開発し、並列処理性能を向上しました。一方、これまでに開発したシミュレーション技術を応用した複雑現象の量子化学研究として以下の三つのテーマに取り組みました。トピックス1-12(第1章)では、地衣類が放射性セシウムを長期間保持する仕組みを量子化学計算によって探りました。トピックス9-3では、原子の量子ゆらぎの効果を取り扱うことが可能な原子シミュレーションコードPIMDを開発し、最も基礎的な解析対象である水においてこの効果が重要であることを明らかにしました。トピックス9-4では、ラジウムの環境動態の理解に向けて、その類似元素であるバリウムを用いた実験と原子シミュレーションによりバリウムの水和構造を明らかにしました。

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 機械学習により高解像度の流れ場を効率的に予測 — 多重階層度の定常流を予測する畳み込みニューラルネットワークを開発 —

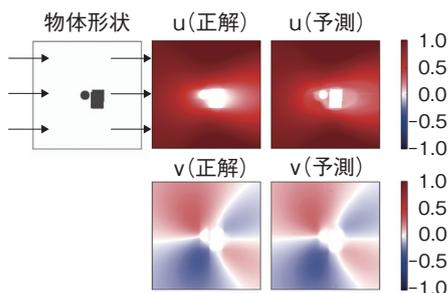


図9-2 機械学習による物体周りの流れ場の予測結果
1024² 格子を用いた流体シミュレーション (正解) と機械学習 (予測) によって予測した物体周りの2次元定常流れを示します。ここで、 u 、 v は横軸方向と縦軸方向への規格化された流速を示し、矢印で示されるように、計算領域の中心に配置された物体に向かって左壁から一様な流れが流入する条件で計算を行いました。

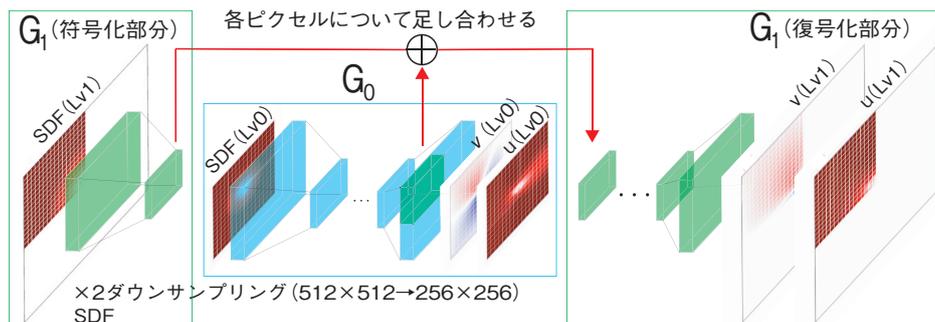


図9-3 提案した流れ場予測モデルの概念図

低解像度の全体データ (Lv0) と高解像度の部分データ (Lv1) に対する二つのCNNである G_0 (青)、 G_1 (緑) を組み合わせて高解像度の流れ場を予測します。最初に、高解像度 (Lv1) の物体形状の符号付き距離関数 (SDF) の全体データとそれをダウンサンプリングした低解像度 (Lv0) のSDFを用います。高解像度ネットワーク G_1 は、符号化部分と復号化部分に分割されます。高解像度SDFの一部を G_1 により符号化した後ダウンサンプリングし、解像度を G_0 の符号化データと合わせます。低解像度SDFから流れ場全体を予測する G_0 の符号化データより、 G_1 の予測領域と対応する部分 (256 × 256) を切り出し、 G_1 の符号化データ (256 × 256) と足し合わせた後 G_1 で復号化することで、大域的に整合した高解像度の流れ場の一部分を予測します。

画像データの高精度な機械学習を実現した畳み込みニューラルネットワーク (Convolutional Neural Network: CNN) 等を応用することで、流体シミュレーション結果を機械学習によって予測する代理モデルの構築が可能になりつつあります。代理モデルはシミュレーションに比べて計算コストが大幅に小さく、流体問題の即時予測や大規模なパラメータスキャン等において高い需要があります。しかしながら、従来の流れ場予測モデルはメモリの制約等により、512² ピクセル (格子) 程度の画像サイズまでしか適用できませんでした。このため、高解像度データに対しては、部分領域毎に独立に予測を行うモデルが提案されていますが、この手法では部分予測結果の結合後の構造に不整合が生じます。

本研究では、この課題を解決するために新しい流れ場予測モデルを開発しました。CNNによる流れ場予測では符号付き距離関数 (SDF、物体からの距離により物体内外を表現する関数) を入力データとして物体周りの流れ場を出力します。従来モデルでは、高解像度のSDFを部分領域毎に分割してCNNを適用していました。一方、本研究では、高解像度SDFをダウンサンプリングした低解像度SDFを用意して、分割した高解像度SDFと、全領域の低解像度SDFを組み合わせて、大域的に整合した高解像度の流れ場予測を行うことに成功しました (図9-2)。

CNNでは、複数の畳み込み層により入力データを符号

化し、その後逆畳み込み層により必要な出力データへと復号 (復元) します。開発したモデルは、低解像度データのCNN (G_0) と高解像度データのCNN (G_1) から構成されます (図9-3)。図9-2の例では、1024² 格子の高解像度データを学習するために512² 格子の低解像度データを用意し、 G_0 に全領域の低解像度SDF (512²)、 G_1 に1/4領域の高解像度SDF (512²) を入力しています。ここで、 G_0 の符号化データより G_1 の予測領域と対応する部分領域 (256 × 256) を切り出して、それと解像度が合うようにダウンサンプリングされた G_1 の符号化データ (256 × 256) と足し合わせることで、 G_0 が保持している大域的な構造を伝えます。結合は階層的に行われ、領域全体の構造が低解像度側から与えられるため、高解像度の部分予測結果を大域的に整合させます。このような階層的なCNNは画像処理分野でも提案されていますが、低解像度CNN、高解像度CNNの両方に全領域のデータが入力されていました。本研究では、分割された高解像度データを用いることでメモリ使用量を抑えつつ高解像度の流れ場予測を行うことが可能となりました。これにより流体問題の即時予測や大規模なパラメータスキャンが実施出来ます。

本研究の一部は、学際大規模情報基盤共同利用・共同研究拠点 (課題番号: jh210049-MDH) の支援の下で得られた成果です。

(朝比 祐一)

●参考文献

Asahi, Y. et al., AMR-Net: Convolutional Neural Networks for Multi-Resolution Steady Flow Prediction, Proceedings of 2021 IEEE International Conference on Cluster Computing (IEEE Cluster 2021), Portland (Online), Oregon, U.S.A., 2021, p.686-691.

9-2 GPU スーパーコンピュータにおけるマルチスケール流体解析の高速化 —局所細分化格子において通信を削減する領域分割手法を開発—

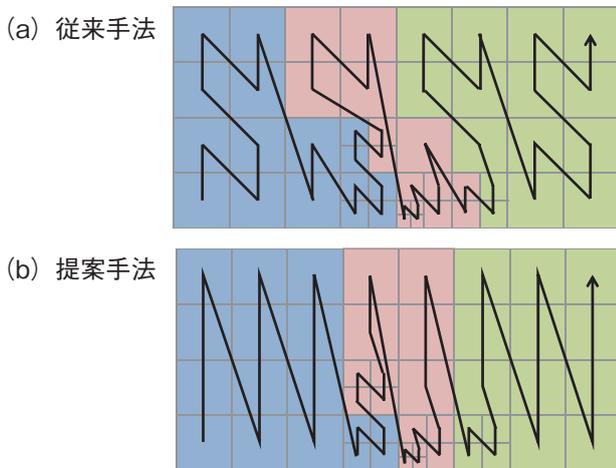


図9-4 局所細分化格子 (LMR) 法における領域分割法
LMR の2次元の模式図を示します。折線矢印は従来手法 (a) と提案手法 (b) で生成した一筆書きで格子を辿る順序を表し、これを格子点数が等しくなるように分割することで、青、赤、緑の3つの小領域が生成されます。

物体や壁などの周りを流れる風などの流体は、物体から離れた領域の大域的な流れと壁の近くの小さい渦が共存するマルチスケールな現象です。そのような流体を効率的に解析するために、原子力機構と東京工業大学(東工大)は流れのスケールに応じて格子解像度を変化させる局所細分化格子 (Local Mesh Refinement: LMR) 法に基づく数値流体解析 (Computational Fluid Dynamics: CFD) コードを共同で開発してきました。本研究では、東工大で開発された LMR 法 CFD コードに対して、原子力機構が新しい領域分割法を提案することで、計算速度が向上しました。

本研究で採用した直交格子の LMR 法では、必要な解像度に応じて一つの格子を8つの格子に細分化する操作を繰り返すことで局所的に細分化された格子を生成します。この手法に基づき、物体近傍のみに高解像度格子を集中させることで、一様格子と比較して格子点数を0.715%まで削減しました。一方で、複数のプロセスを用いた並列計算における領域分割法に課題が残っていました。

従来の手法では、一本の空間充填曲線 (Space-Filling Curve: SFC) を用いて領域分割を行っていました (図9-4(a))。SFCはいわゆる「一筆書き」の数学的表現で、図9-4の事例では空間をN字型に辿る操作を格子解像度に応じて階層的に構築することで、全ての格子を辿る一筆書きを自動的に生成します。これを格子点数が等しくなるように分割することで計算負荷が均一な領

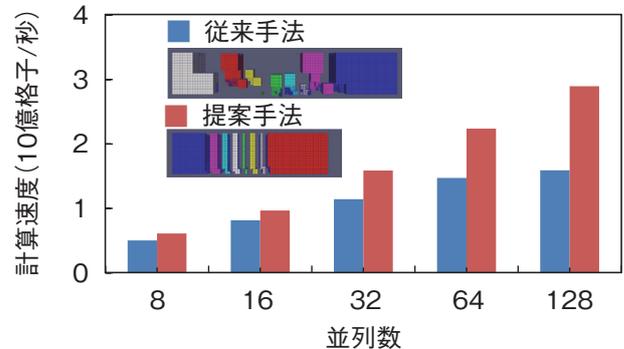


図9-5 計算領域の形状と計算速度の比較
1.84億格子を用いた流体解析において並列数を上げたときの計算速度を示します。凡例内の図は各手法により8分割された計算領域の形状で、提案手法により各小領域の表面積や接続数が小さくなっています。提案手法により、従来手法に対して最大1.82倍の高速化を達成しました。

域分割が可能となります。SFCはLMR法の領域分割で標準的に用いられていますが、一方で、複雑に入り組んだ断面形状が形成されると、通信量(各小領域の表面積)や接続数(各小領域が互いに隣り合う数)が大きくなります (図9-5)。

そこで本研究では、計算領域を直交格子状に粗く分割してから各領域で局所的なSFCを生成し、それを接続することで異なる順序の一筆書きを構築して領域分割を行う手法を提案しました (図9-4(b))。SFCを局所的な領域に閉じ込めることで、複雑な断面形状を回避することができ (図9-5)、並列計算における通信量及び通信の接続数を削減することができます。提案手法により、従来手法に比べて通信量が最大で1/3程度に削減され、通信の最大接続数が1/2~1/3に削減されました。このような並列処理の改善により、1.84億格子を用いた流体解析の並列処理性能を大きく向上し、128プロセスを用いた並列計算において1.82倍の高速化を達成しました (図9-5)。

本研究の一部は、日本学術振興会科学研究費基盤研究(S)(JP26220002)、研究活動スタート支援(JP19K24359)、若手研究(JP21K17755)、HPCIシステム利用研究課題(課題番号: hp180146)、学際大規模情報基盤共同利用・共同研究拠点(課題番号: jh200050)支援の下で得られた成果です。

(長谷川 雄太)

●参考文献

Hasegawa, Y. et al., Tree Cutting Approach for Domain Partitioning on Forest-of-Octrees-Based Block-Structured Static Adaptive Mesh Refinement with Lattice Boltzmann Method, Parallel Computing, vol.108, 102851, 2021, 12p.

9-3 水分子の量子ゆらぎをとらえる

—汎用分子シミュレーションコード PIMD を用いた水の高精度計算—

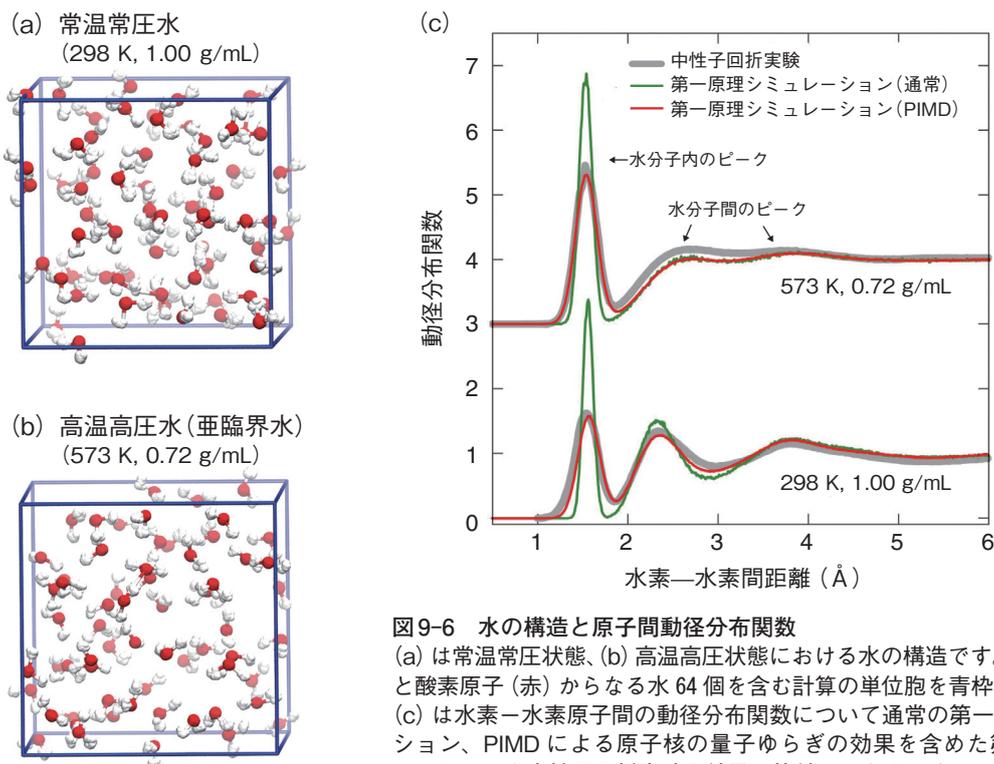


図9-6 水の構造と原子間動径分布関数

(a) は常温常圧状態、(b) 高温高压状態における水の構造です。水素原子(白)と酸素原子(赤)からなる水64個を含む計算の単位胞を青枠で示します。(c) は水素—水素原子間の動径分布関数について通常の第一原理シミュレーション、PIMDによる原子核の量子ゆらぎの効果を含めた第一原理シミュレーションを中性子回折実験の結果と比較したものです。

物質は原子で構成されており、原子の集団運動を追随する分子シミュレーションを行うことで、物質の性質を知ることができます。原子運動は各原子が持っている電子の振る舞いによって決まるため、電子の振る舞いを支配している量子力学を用いて計算する「第一原理計算」と呼ばれる手法によって電子の振る舞いを明らかにし、その結果に基づいてさらに原子運動を計算する「第一原理シミュレーション」が必要となります。第一原理シミュレーションは、高性能の大型計算機を利用することで、これまで知られていなかった物質の微視的振る舞いを続々と解明してきています。そうした中で、私たちの最も身近な物質の一つといえる水の構造については、従来の第一原理シミュレーションでは実験結果を再現できないことが知られていました。それは、水分子に含まれている水素原子が非常に軽いため、電子と同じように量子力学の影響を受けるので、通常の第一原理シミュレーションでは考慮されていない「量子ゆらぎ」(物体の位置が確率的にしか存在できない状態)を示すためです。特に水分子から他の分子へ水素が移るような化学反応では量子ゆらぎの影響が大きいので、この影響を第一原理シミュレーションで正確に計算できれば、原子燃料の再処理、環境中の放射線元素の動態などを含む、種々の水中での化学反応をより正確に評価することができます。それには、電子の第一原理計算に加え、原子核の量子ゆら

ぎを扱った計算が必要です。そこで、システム計算科学センターでは、原子力分野の基盤研究技術として、原子核の量子ゆらぎを取り入れた計算手法とそのソフトウェア「PIMD」を開発してきました。これを用いて、水の第一原理シミュレーションを行いました。図9-6では、動径分布関数(原子間距離の分布)について、通常の第一原理シミュレーションと、PIMDを用いて量子ゆらぎを含めた第一原理シミュレーションを中性子回折実験(結晶による中性子の回折現象を利用し物質の構造を解析する実験)と比較しています。水素原子の量子ゆらぎが大きいほど、グラフのピークが低く幅が広がります。通常の第一原理シミュレーションでは実験と乖離する部分があるのに対し、PIMDを用いたものは実験とよく一致しており、水分子から他の分子へ水素が移るような化学反応をより正確に評価可能となることが期待できます。

PIMDはシステム計算科学センターのウェブサイト(<https://ccse.jaea.go.jp/software/PIMD/index.jp.html>)でオープンソースソフトウェアとして公開され、国内外の研究者によって利用されています。PIMDの特徴は、様々な第一原理計算コードと組み合わせて、原子核の量子ゆらぎを取り入れた計算などの高度な第一原理シミュレーションが可能なことであり、物理学、化学、材料科学分野の研究で役立っています。

(志賀 基之)

●参考文献

Thomsen, B. and Shiga, M., *Ab Initio* Study of Nuclear Quantum Effects on Sub- and Supercritical Water, *Journal of Chemical Physics*, vol.155, issue 19, 194107, 2021, 11p.

9-4 環境中ラジウムの基本特性解明に向けた研究 — 実験とシミュレーションによる水溶液中バリウムイオンの構造解明 —

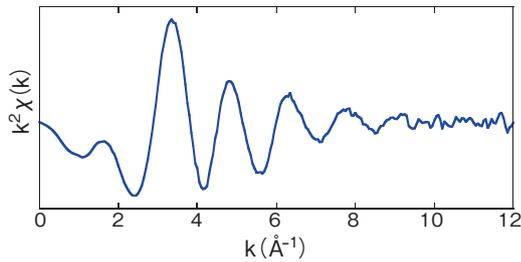


図9-7 水和Ba²⁺のEXAFSスペクトル
実験で得られたスペクトルを示します。これを解析し理論式でフィッティングすることで表9-1の結果が得られました。

表9-1 算出された水分子の配位数とBaイオンとの距離
実験及びシミュレーションにより求めた結果を示します。SCAN汎関数を用いた値が実験結果に最も近いことが分かります。

	手法及び汎関数	配位数	距離 (nm)
実験	EXAFS	8.0	0.279
	SCAN	7.8	0.278
シミュレーション	BLYP	7.3	0.283
	BLYP-D3	8.3	0.283

ラジウム (Ra) はウランやトリウム放射壊変により生成するため、放射性廃棄物の処理やウラン鉱山周辺の環境問題の解決において重要な放射性元素です。しかし、Raの取扱いの難しさから、水和構造などの基本的な物理化学的性質さえも不明な点が多いのが現状です。

そこで本研究では、類似元素(アナログ元素)であるバリウム (Ba) に着目しました。Baは周期表上でRaより一周期小さいですが、Raと同じアルカリ土類金属であり、イオンの大きさが類似していることから、化学的挙動がRaに類似することが知られています。本研究では、広域X線吸収微細構造(Extended X-ray Absorption Fine Structure: EXAFS)法を用いた実験及び密度汎関数法に基づいた第一原理分子動力学法(*Ab Initio* Molecular Dynamics: AIMD)のシミュレーションにより、Baの水和構造を解明することを目指しました。

EXAFS法は、対象元素の原子の配位数や、その原子と近接原子との距離を直接的に測定できる手法です。試料が固体/液体/気体のいずれでも測定が可能で、元素選択性が高く、比較的低濃度でも測定が可能という利点があります。本研究では、高エネルギー加速器研究機構のPF-AR(Photon Factory Advanced Ring)にあるビームラインNW10Aで実験を行いました。測定試料は、0.5 Mの硝酸バリウム溶液をナイロンポリ製バッグに封入し作製しました。実験で得られたEXAFSスペクトルを図9-7に示します。

AIMDシミュレーションでは、用いる汎関数によって結果が異なるため汎関数の選択が重要であることが知ら

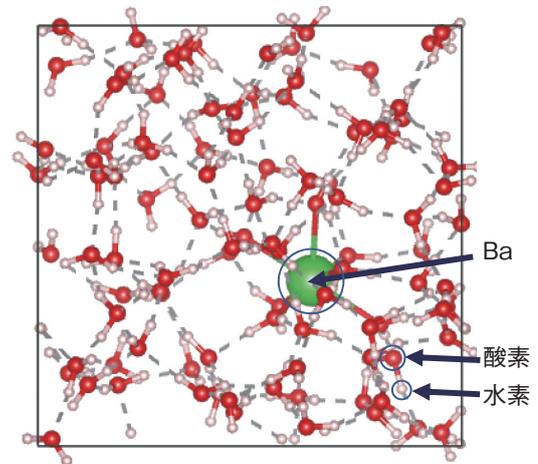


図9-8 シミュレーションを実施したセル
シミュレーションを実施した、1辺1.4457 nmの立方体中に1個のバリウムイオン及び100個の水分子が存在する構造を示します。この構造を用いて60 psの計算を実施し、得られた構造を解析することで表9-1の結果が得られました。

れています。最近では、SCAN(Strongly Constrained and Appropriately Normed)汎関数が開発され、+1価イオンの水和構造をより良く再現できると報告されています。そこで本研究では、+2価であるBaイオン(Ba²⁺)にも応用できるのではないかと考え、SCAN汎関数を用いてシミュレーションを行いました(図9-8)。比較のため、これまで一般的に用いられてきたBLYP(Becke-Lee-Yang-Parr)及びBLYPに分散力の効果を入れたBLYP-D3の二つの異なる汎関数を用いたシミュレーションも行いました。

実験とシミュレーションそれぞれにより、Ba²⁺の第一水和殻に存在する水分子中酸素の数(配位数)及びBa²⁺と酸素の距離を算出しました(表9-1)。これらの値を比較したところ、SCAN汎関数を用いた結果が実験値に最も近くなりました。この結果はSCAN汎関数により+2価イオンの水和構造をより良く再現できることを示しており、RaをはじめとしたBa以外の+2価イオンの水和計算にも応用が期待できるため重要です。今後は、同様の手法をRaに適用しRaの水和状態を調べると共に、アナログ元素であるBaとの違いを定量的に評価していきたいと考えています。

本研究は、東京大学及び大阪大学との共同研究「放射性元素の環境中動態に関する研究」の成果の一環であり、日本学術振興会科学研究費研究活動スタート支援(JP19K23432)「実験とシミュレーションによるラジウムの粘土鉱物への吸着構造の解明」の助成を受けたものです。
(山口 瑛子)

●参考文献

Yamaguchi, A. et al., Hydration Structures of Barium Ions: *Ab Initio* Molecular Dynamics Simulations Using the SCAN Meta-GGA Density Functional and EXAFS Spectroscopy Studies, *Chemical Physics Letters*, vol.780, 2021, 138945, 5p.

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た高放射性物質中の核物質等を非破壊で測定する技術 (トピックス 10-1) 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た広範囲の核・放射性物質の検知技術の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、2021年3月まで実施した過去の非核化事例調査及び非核化達成のための要因分析を参考にしつつ、非核化の効果・効率的な実施の観点から、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や廃棄の方法、及びそれらの検証方法等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。また核不拡散や核セキュリティに係る基本的事項や昨今の動向を分かり易くまとめた「核不拡散ポケットブック」及び「核不拡散動向」を随時、更新しています。

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 5300 名が参加しています。2021 年度も新型コロナウイルス感染症の影響が継続し、海外向けはオンライン方式を主とし、一部ハイブリッド方式を取り入れて実施しました。ビデオ教材開発にも取り組み、より効果的なオンライントレーニング開発に取り組みました。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。本プロジェクトは最長 2024 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 核物質計量管理のための非破壊分析装置の小型化を目指して —レーザー駆動中性子源を用いた中性子共鳴透過分析システムの実証—

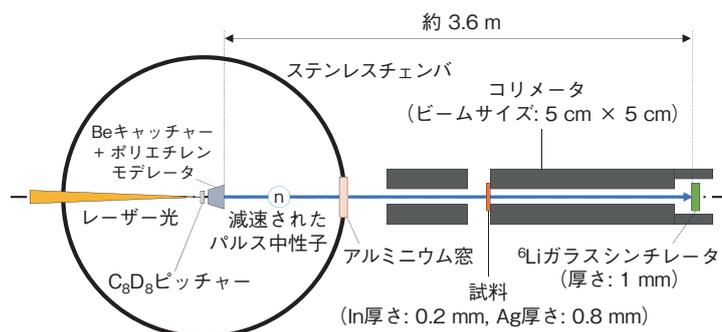


図10-2 大阪大学のLDNSを用いた透過中性子測定実験の概要図
本レーザー駆動中性子源 (LDNS) では、レーザー光を重水素化ポリスチレン片 (C_8D_8 ピッチャー) に照射して発生・加速させた重水素等を、さらにベリリウム片 (Be キャッチャー) に衝突させることで高速中性子を生成します。この高速中性子をモデレータで減速し、試料を透過させた後、約3.6 mの飛行経路終端に設置した中性子検出器で検出しました。核物質の模擬試料として、インジウム (In) と銀 (Ag) の薄膜を飛行経路上に設置しました。

原子力の平和利用を担保するためには、各国や地域が平和利用の目的で保有する核物質量を適宜測定し、収支状況等を管理していくこと (計量管理) が重要です。一方で、計量管理を必要とする核物質は、原子力の利用拡大とともに増え続けており、限られたリソースで計量管理を行うため、特に核物質を計量するプロセスの効率化が課題となっています。短時間で効率よく核物質を計量するために非破壊分析装置が活用されていますが、高い精度で計量するための装置は大規模であるため、核物質が存在する原子力施設等での導入は容易ではありません。また、次世代原子炉の燃料や高線量核物質への対応も課題となっています。これらの課題を解決するため、私たちは、非破壊分析装置の小型化を目指し、レーザー駆動中性子源 (Laser-Driven Neutron Source: LDNS) を用いた中性子共鳴透過分析 (Neutron Resonance Transmission Analysis: NRTA) システムの開発を行っています。

NRTA では、パルス中性子源から発生した中性子が試料を透過して検出器に到達するまでの飛行時間 (Time-of-Flight: TOF) を測定することで、中性子の速度 (エネルギー) 分布を求めます。原子核は、固有の中性子共鳴エネルギーにおいて大きな核反応確率を持つため、透過中性子の到達時間分布 (TOF スペクトル) には、核反応確率に応じた透過率の減少が共鳴ピークの凹みとなって現れます。凹みの位置及び深さは、試料中の原子核の種類と量によって決定されるため、これを分析することで、核物質の計量を行うことができます。本手法は、検出器を試料から離して設置できるため、使用済核燃料のような強い放射能を伴う核物質の測定にも有効です。

NRTA で核物質を精度良く計量するためには、中性子の飛行距離を長く、中性子源のパルス幅を短くするこ

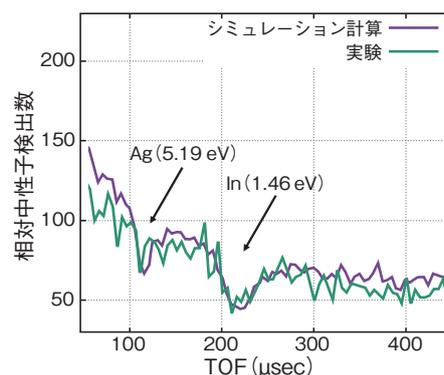


図10-3 実験結果とシミュレーション計算によるTOFスペクトル

In と Ag の中性子共鳴エネルギーの位置には、それらの存在を示す凹みが現れています。本結果は、中性子共鳴透過分析 (NRTA) により試料の識別に成功したことを示唆しており、LDNS が NRTA に適用可能であることを示しています。

とが有効です。一方で、システムを小型化するためには、中性子の飛行距離を短くしたいため、計量の精度を維持するには、より短いパルス幅の中性子源が必要となります。そこで私たちは、短いパルス幅の中性子を発生でき、かつ、近年の技術革新により今後さらなる小型化・高性能化が期待できる LDNS に着目しました。

LDNS を NRTA に適用して装置を小型化するにあたり、ガンマ線背景事象の増加や、単位時間当たりの中性子検出数の増加 (高計数率化) への対応が課題となります。この課題を解決するため、私たちは、低いガンマ線感度と高い中性子検出効率を兼ね備えたりチウム6 (${}^6\text{Li}$) ガラスシンチレータを用いた中性子検出器 (特願 2021-214537) や、高計数率化に対応したデータ処理システム等の開発を行ってきました。さらに、LDNS の短いパルス幅を活かすため、高速中性子を効果的に減速するためのモデレータをシミュレーション計算により設計しました。また、適用可能性を実証するため、大阪大学で開発した LDNS を用いて、NRTA システムによる透過中性子測定実験を行いました。実験の概要を図10-2、透過中性子の TOF スペクトルを図10-3 に示します。図10-3 のとおり、実験結果はシミュレーション計算と類似の傾向を示し、TOF スペクトル中にはインジウム (In) と銀 (Ag) の存在を示す共鳴ピークが確認できます。これは、LDNS を用いた NRTA により試料の識別に成功したことを示しており、LDNS を NRTA に適用することで、従来よりも小型な非破壊分析装置の実現が期待できることを本研究により実証できました。

本研究は、文部科学省「核セキュリティ強化等推進事業費補助金」事業の一環として実施したものです。

(弘中 浩太、李 在洪)

●参考文献

弘中浩太ほか, レーザー駆動中性子源を用いた中性子共鳴透過分析システムの実証, 第42回日本核物質管理学会年次大会会議論文集, 東京 (オンライン開催), 日本, 2021, 4p.

原子力機構の研究開発成果 2022-23

URL : <https://rdreview.jaea.go.jp/>

発行 2022年10月

編集・発行 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

成果普及情報誌『原子力機構の研究開発成果』編集委員会

委員長 吉澤 道夫

委員 弥富 洋介 鈴木 喜雄 小泉 光生 鷺谷 忠博 飯島 和毅
知見 康弘 西尾 勝久 原田 秀郎 森田 泰治 西畑 保雄
酒井 健二 北村 誠司 竹上 弘彰 寺内 誠 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

〒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

©2022 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、1F1/2号機排気筒付近における空間線量率と高濃度汚染箇所を可視化した3次元マップ（左上）とHTTR水素製造試験施設（右下）です。

前者は、放射線計測をはじめとした異分野技術の組合せから成る統合型放射線イメージングシステム（iRIS）を用いて、1Fサイト内の汚染状況を可視化したものです。本システムは、廃炉現場における作業者の被ばく低減や作業計画の立案に貢献します（第1章トピックス1-10、p.23）。

後者に関しては、高温ガス炉HTTR（高温工学試験研究炉）の熱を用いて水素を製造するプロジェクトを2022年度に開始しました。これにより、原子炉と水素製造施設の接続技術の確立を目指します（第6章ハイライト、p.62）。



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8版」もご参照ください。

原子力機構全体の活動状況は、「2021年度事業報告書」をご参照ください。