

ISSN 2188-1464 eISSN 2188-1472



原子力機構の研究開発成果 2023-24



グラフェンの構造と固体電解質膜の電気化学反応系から成る水素同位体 分離デバイスの概念図(トピックス 3-5)



最新核データライブラリ JENDL-5 の開発と利用(トピックス 4-2)



はじめに

平素より日本原子力研究開発機構(原子力機構)の研究開発活動にご理解、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の追求を通じて人類社会の福祉と繁栄に貢献することであり、その実現に向けて安全を最優先に日々研究開発に取り組んでおります。

今、原子力を取り巻く社会環境は大きく変化をしております。特に脱炭素社会の実現といった大きな方向性の転換はまさに原子力にとって大きなイノベーションのチャンスであり、原子力機構としてもこのダイナミックな変化を捉えて、大胆な発想の転換を通じて着実に社会に貢献してゆきたいと考えております。

そのため原子力機構はこの4月から新たなビジョン「ニュークリアとリニューアブルで拓 く新しい未来」を掲げました。

具体的には国家の方針である 2050 年カーボンニュートラルの実現に向けて、原子力機構としての活動の方向性をまとめたもので、「ニュークリアとリニューアブル技術の相乗効果(Synergy)の追求」「原子力自体のサステナブル(Sustainable)化」「原子力技術の多様(Ubiquitous)化」の3本柱から成り立っております。

Synergy においては特にリニューアブル・エナジーとの相乗効果の高い新型革新炉の開発に 取り組んでおります。Sustainable においては高レベル放射廃棄物の減容・毒性低減・再資源化 に取り組むとともに設備廃止措置の着実な実施、更には東京電力福島第一原子力発電所の廃 炉に向けた支援などに取り組んでおります。Ubiquitous ではがん治療用の放射性同位体の製造、 JRR-3 や J-PARC などの中性子や放射光を利用した新素材の開発などに取り組んでおります。

本誌ではこれら原子力機構が取り組んでいる研究開発を通じて得られた最新の知見、成果 をご紹介いたします。原子力機構の活動状況の公表を通じて一層のご理解、ご支援につなが ることを期待してやみません。引き続きよろしくお願いいたします。

2023年10月

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

小口正能 理事長

原子力機構の研究開発成果 2023-24

CONTENTS

	原子力機構の研究開発体制と本誌の構成について	10
1	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	13
1-1	耐熱性能を向上した中性子検出器の開発 −高温ガス炉特有の熱サイクル負荷に対する考慮− 小澤 太教	14
1-2	高温ガス炉を利用した水素製造技術の確証に向けて – HTTR–熱利用試験施設の安全設計方針を策定– 青木 健	15
1-3	高温ガス炉の燃料健全性を合理的に評価するには? -高温ガス炉用 TRISO 燃料の損傷評価法の合理化- 沖田 将一朗	16
1-4	高温ガス炉使用済燃料の再処理技術の成立性検討 -既存の PUREX 技術を用いた再処理の経済性向上- 深谷 裕司	17
1-5	IS 法による水素製造の安定性向上に向けて - ヨウ素析出による配管閉塞を防止する溶液組成制御法の開発- 上地 優	18
1-6	IS 水素製造法の消費エネルギーを低減 −架橋により膨潤を抑制したヨウ化水素濃縮用カチオン交換膜を開発− 田中 伸幸	19
1-7	IS 法で用いる金属部材の耐食性向上を目指して - 沸騰硫酸環境下に耐えられるコーティング材を発見- 広田 憲亮	20



23

21

22

24

原子力機構の研究開発成果 2023-24

2-4	高速炉用ラッパ管への異材溶接の適用を目指して -運転中に想定される高温での適用性を微細構造解析から解明する- 丹野 敬嗣	25
2-5	高速炉の遮蔽設計の合理化に向けて -最新の知見に基づいた「もんじゅ」ナトリウム放射化量の評価- 毛利 哲也	26

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	27
3-1	アクチノイド原子核のγ線核分光技術を確立 -超重元素の原子核構造研究に前進- Riccardo Orlandi	28
3-2	クォークが生み出す核力の斥力芯の起源に迫る - J-PARC における Σ ⁺ 粒子と陽子の散乱実験- 七村 拓野	29
3-3	ウラン化合物超伝導体の純良化に成功 -ウラン系超伝導の機構解明に寄与する- 酒井 宏典	30
3-4	音波の高感度な測定を目指して -音波が結晶の電流-電圧特性を変える- 森 道康	31
3-5	なぜ 1 原子層のグラフェンで水素と重水素を分離できるのか? −量子トンネル効果で重水素を大量生産− 保田 諭	32
3-6	高性能・高機能トンネル磁気抵抗素子を実現する積層電極構造の開発に成功 -新磁性材料を用いたトンネル磁気抵抗素子の産業応用へ大きく前進- 鈴木 和也	33
3-7	薄型磁石に潜む不思議なエネルギー -極小の空間で初めて起こるエネルギー生成機構の理論的解明- 鈴木 渓	34



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	35
4-1	アクティブ法による核物質非破壊測定装置の開発 - 3 つの非破壊分析測定を実施できる世界初の装置 Active-N - 土屋 晴文	36

4-2	多様化するニーズに応える基盤データベースを提供 −最新の核データライブラリ「JENDL-5」を開発− 岩本 修	37
4-3	MA 核変換用窒化物燃料再処理における MA 回収率の向上に向けて -腐食性ガスを使わずに白金族化合物中のネプツニウムを塩化物にすることに成功- 林 博和	38
4-4	キレート法を応用した新規腐食抑制手法を開発 - EDTA を利用した金属イオン導入によりすき間腐食を抑制- 青山 高士	39
4-5	計算科学を用いて合金の強度を評価する -元素戦略による電子状態計算に基づく合金設計- 都留 智仁	40
4-6	アクチノイド重元素が水と油の間を移動するメカニズム -振動和周波発生分光法による溶媒抽出界面の分子構造研究- 日下 良二	41
4-7	重粒子線治療の全身被ばく線量評価システムが完成 -過去の重粒子線治療の症例から学び、未来の放射線治療に活かす- 古田 琢哉	42
4-8	核破砕反応で放出する中性子を測る -核反応モデルによる予測精度向上に向けて- 岩元 大樹	43

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	44
5-1	大強度負水素イオンビームの損失原因を探る -残留ガスとの衝突で電荷を失った中性ビームを観測- 田村 潤	45
5-2	世界最高圧力下での中性子非弾性散乱実験に成功 - 21 万気圧での金属水素化物の水素振動励起を観測- 服部 高典	46
5-3	パルス超強磁場下での中性子回折実験の実現 - 30 テスラ以上の強磁場パルスマグネットシステムの開発- 渡辺 真朗	47
5-4	原子の磁気を原子核の磁気と比べて測る -強い磁石の開発や磁気構造の解明に役立つ新中性子散乱法- 目時 直人	48
5-5	全固体電池内のリチウムイオンの動きを捉えることに成功 -中性子深さ分析によりイオンのリアルタイム計測を実現- 大澤 崇人	49
5-6	アクチノイドのレーザーアシスト分離法の原理実証 - f 電子を光で操作し、抽出剤で分離・回収する- 横山 啓-	50

原子力機構の研究開発成果 2023-24

5-7

高輝度放射光で解き明かすシリコン酸化膜の成長過程 -ナノデバイスの世界を支配する界面欠陥とキャリア捕獲-津田 泰孝

51

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	52
6-1	機械学習なら核燃料物質内の原子の動きを予測できるかも? - 機械学習分子動力学法の核燃料物質への適用に向けて- 小林 恵太	53
6-2	液体金属脆化の元素選択性の解明 -脆化発生のエネルギー基準:原子論的弱い相互作用- 山口 正剛	54
6-3	水に溶けたラジウムの姿を世界で初めて分子レベルで究明 -キュリー夫妻による発見から 125 年、ラジウムの分子レベル研究の幕開け- 山口 瑛子	55
6-4	仮想空間で大規模なシミュレーション結果を探索 -対話的な遠隔 VR 可視化を可能に- 河村 拓馬	56
6-5	原子力シミュレーションを加速するデータ変換手法の開発 - 1 6bit 演算を用いた行列解法で 64bit 演算と同等の収束特性を達成- 伊奈 拓也	57



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	58
7-1	大規模イベントを核・放射線テロから守る -高速中性子線がどの方向から飛来しているかを特定する検出装置の開発- 高橋 時音	59

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	廃止措置に向けた研究開発/環境回復に係る研究開発	60
8-1 廃止措置	チョルノービリ原子力発電所から学ぶ - 1F の燃料デブリの経年変化を抑える条件とは- 北垣 徹	62
<mark>8−2</mark> 廃止措置	燃料デブリから放出される放射線を明らかにする −多様な燃料デブリの制動放射 X 線の特性と線量率影響の解明− 松村 太伊知	63
<mark>8-3</mark> 廃止措置	チェレンコフ放射の指向性を利用して ⁹⁰Sr/⁹⁰Y と ¹³⁷Cs の弁別を実現 - ⁹⁰ Sr/ ⁹⁰ Y と ¹³⁷ Cs の線源位置を同時検出- 寺阪 祐太	64
<mark>8-4</mark> 廃止措置	作業空間内構造物種別の自動識別 -深層学習による点群データからの構造物識別手法の開発- 今渕 貴志	65
<mark>8-5</mark> 廃止措置	1F 原子炉内のセシウム分布予測に向けて -事故時におけるセシウムの原子炉内ふるまい解析コードを改良- 三輪 周平	66
8-6 廃止措置	1F 原子炉建屋内に残存するセシウムの性状予測に向けて - セシウムの非鉄構造材料への吸着挙動を解明- 中島 邦久	67
8-7 廃止措置	燃料デブリ等の安全な保管管理を目指して -水素漏えい・拡散挙動解析に関する研究開発- 寺田 敦彦	68
8-8 廃止措置	水素の燃焼挙動を数値解析により解明する -火炎の不安定性に及ぼす温度や圧力の影響- Thwe Thwe Aung	69
8-9 廃止措置	冷却水を止めた場合の 2 号機の温度分布を推測する -空冷状態での燃料デブリ熱伝達数値シミュレーション- 山下 晋	70
8-10 環境回復	河川水系での放射性セシウムの動きに森林が影響 -森林内移行と流域規模の動態を結び付けたモデル開発- 佐久間 一幸	71
8-11 環境回復	陸域に沈着した放射性セシウムは将来どう動くのか? -陸域における放射性セシウムの 1F 事故後 30 年間の挙動予測- 池之上 翼	72
8-12 環境回復	貯水池底質からの放射性物質の再溶出メカニズム -底質中の水の水質分析結果から得られた知見- 舟木 泰智	73
8-13 環境回復	河口域での放射性セシウムの挙動を観測 -海底付近の濁った層を形成する粒子の起源推定- 御園生 敏治	74
8-14 環境回復	地衣類は放射性セシウムのレコーダーだった 一分析装置を組み合わせ生体組織中のセシウム分布を明らかに一 土肥 輝美	75

8-15 環境回復	プルトニウム同位体の迅速分析を目指して -前処理操作を必要としない分析技術へ- 松枝 誠	76
8-16 環境回復	事故後の住民の被ばく管理手法をレビュー -住民が安心できる帰還困難区域の解除に向けて- 吉村 和也	77

9	地層処分技術に関する研究開発	
ハイライト	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	78
9-1	割れ目を直接観察して将来の透水性を予測 -樹脂注入による割れ目可視化技術の応用- 青柳 和平	79
9-2	地下でのアクチニド核種移行への影響物質の把握 - 花崗岩及び泥岩中地下水への微量元素添加試験 - 宮川 和也	80
9-3	地層処分深度の侵食履歴を推定 -光ルミネッセンス熱年代法をボーリングコアに適用し熱履歴を復元- 小形 学	81
9-4	加速器質量分析装置 超小型化への挑戦 -結晶表面を用いて原子・分子をふるい分ける- 神野 智史	82
9-5	緩衝材の膨潤と層間陽イオンの振る舞い −緩衝材に含まれるモンモリロナイトの膨潤性は K ⁺ と NH₄ ⁺ でどうして変わるのか- 川喜田 竜平	83
9-6	拡散モデルによる核種移行予測の精度向上を目指して -圧縮 Ca 型ベントナイトを対象とした拡散実験及びモデル開発- 深津 勇太	84

10 安全を最優先としたバックエンド対策の着実な推進

ハイライト	原子力施設の廃止措置及び廃棄物の処理処分に向けて	85
10-1	研究施設等廃棄物の埋設処分に係る効率的な設計に向けて -埋設施設から発生するスカイシャイン線量の評価- 中村 美月	86
10-2	難燃性廃棄物処理試験装置の実用化に向けて -主反応器耐火材の補修材の選定- 木島 惇	87

10-3	ジオポリマーを放射性廃棄物固化に用いるために -ジオポリマー内に生成するゼオライトの生成経路の解明- 佐藤 淳也	88
10-4	プルトニウムの安全な長期保管に向けて -プルトニウムの集約と PVC フリー貯蔵への転換- 廣岡 瞬	89

11	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	90
11-1	原子力災害時の汚染検査迅速化を目指せ -避難車両の汚染検査に用いる車両用ゲート型測定器の性能調査- 平岡 大和	91
11-2	飛翔体衝突を受ける構造物の損傷を明らかにする - 建屋外壁を模擬した鉄筋コンクリート板構造の損傷状態の分析 奥田 幸彦	92
11-3	事故時の原子炉圧力容器の健全性評価手法の精度向上に向けて -破損挙動に及ぼすステンレスオーバーレイクラッドの効果- 下平 昌樹	93
11-4	軽水炉燃料の設計や安全評価をより合理的に −ジルコニウム基合金被覆管の照射成長挙動予測手法の構築− 垣内 −雄	94
11-5	火災時における施設内の閉じ込め性能を維持する -グローブボックス材料火災時の HEPA フィルタの目詰まり特性の評価- 田代 信介	95
11-6	地下に広がる汚染分布を3次元で高精度に評価 -廃炉に向けた地下の汚染状況把握への貢献に期待- 高井 静霞	96
11-7	重大事故時の放射性物質をプールで濾し取るには? - プールスクラビングにおける二相流挙動を数値流体力学解析で評価- 岡垣 百合亜	97
11-8	最新の核データライブラリの妥当性を確認 - JENDL-5 を用いた PWR 燃料照射後試験データの解析 - 渡邊 友章	98

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。





2023年10月現在

研究開発拠点



高温ガス炉とこれによる水素製造・熱利用技術の研究開発



図1 高温ガス炉の特長と HTTR-熱利用試験計画

高温ガス炉は、ヘリウムガス冷却、黒鉛減速の熱中性子炉で、優れた固有の安全性を有しており、水素製造や化学工業分野等への熱、 蒸気供給などの多様な熱利用に用いることができ、また、エネルギー基本計画のエネルギー政策の基本的視点(3E + S)に応えるこ とが可能です。私たちは、日本初の高温ガス炉 HTTR に熱利用系を接続し、原子炉を用いた多様な熱利用の実証を目標としています。

高温ガス炉は、高温の熱を利用した水素製造、化学工 業分野等への熱、蒸気供給など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1左)。我 が国唯一の高温ガス炉である HTTR(高温工学試験研究 炉)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、原子炉の炉心流量を喪 失させた場合の高温ガス炉の安全性を実証する試験を行 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、2022年1月には、 全ての冷却設備を停止し冷却機能喪失を模擬した試験を 実施し、高温ガス炉の安全性を実証しました。2022 年 度からは、HTTR に水素製造施設を接続する HTTR-熱 利用試験計画(図1右)を開始しました。規制対応を含 めた安全評価を進め、2030年までに HTTR の核熱によ る水素製造を実証する計画です。

一方、2022年12月22日に開催された、GX 実行会議(第 5回)で、西村GX 実行推進担当大臣兼経済産業大臣が提出 した「GX 実現に向けた基本方針(案)参考資料」(2023年 2月10日閣議決定)においては、高温ガス炉の実証炉を 2030年代に運転開始することが目標に定められました。 また、これに先立ち、経済産業省の革新炉ワーキング グループ(開催日:2022年7月29日)において、カー ボンニュートラルやエネルギー安全保障の実現に向けた 革新炉開発の技術ロードマップ(骨子案)の中で、高温 ガス炉の技術ロードマップが示されました。本技術ロー ドマップでも、高温ガス炉実証炉の運転開始は2030年 代とされました。

英国においても、2030年代初頭の導入を目指し高温 ガス炉実証炉計画を推進していますが、2022年9月、 英国国立原子力研究所(NNL)と原子力機構が参加する チームが、英国の新型モジュール炉研究開発・実証プロ グラムの予備調査を行う実施事業者として採択され、協 力を開始しました。

このような状況の中、原子力機構は、高温ガス炉実証 炉に適用可能な、熱サイクルに対する耐高温環境性能を 向上した広領域中性子検出器の改良(トピックス 1-1)、 HTTR-熱利用試験施設の安全設計方針の策定 (トピックス 1-2)、より合理的な燃料健全性評価手法の 構築(トピックス 1-3)、高温ガス炉使用済燃料の再処 理技術の成立性検討(トピックス 1-4)を行いました。 また、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 プロセスのヨウ素析出による配管閉塞を防止す る溶液組成制御法の開発(トピックス 1-5)、ヨウ化水 素濃縮用カチオン交換膜の開発(トピックス 1-6)、沸 騰硫酸環境下に耐えられる金属部材のコーティング材の 研究(トピックス 1-7)を進めています。

・1 耐熱性能を向上した中性子検出器の開発 - 高温ガス炉特有の熱サイクル負荷に対する考慮



図1 構造改良前の概略図

原子炉の出力上昇とともに各部位が線膨張により伸びが生じ、応力が リード線に集中します。その後、出力降下することで各部位が元の状 態に戻り、その繰返しの熱サイクル負荷により断線が発生しました。



図2 構造改良した部位の概略図

MIケーブルの芯線はリード線よりも太径となり、線の断面積が広くなるため、従来よりも応力が小さくなります。

HTTR(高温工学試験研究炉)の広領域中性子検出器 (WRM)は、耐熱性能を有した核分裂計数管・電離箱 であり、高温ガス炉特有の高温環境下で使用するために 開発が進められてきました。設計段階においては、高温 連続照射試験による寿命評価を行い、600 ℃の使用環 境でも計測できることを確認しています。

しかしながら、これまでに実施してきた高温試験運 転や安全性実証試験での原子炉運転を通して、熱サイク ルを主な要因とした信号線の断線を経験しました。断線 部位の調査を実施したところ、検出器内部のリード線が 熱サイクルにより断線していることを特定しました。こ のため、リード線近傍の熱サイクル負荷に対する耐熱性 能の向上を目的に断線メカニズムの特定及び構造変更に よる改良を実施しました。

まず、断線メカニズムを特定するために、設計情報か ら断線部位の構成材料を確認しました。その結果、リー ド線とそれに接続する金属管及び MI ケーブル芯線の線 膨張係数に差異があることが判明しました。各材料の線 膨張係数は、MI ケーブル芯線(インコネル)とリード線 (ニッケル)が同等であることに対し、金属管(ハイパロイ: 50%Ni50%Fe 合金) は線膨張係数が小さいことを確 認しました。そのため、線膨張時のリード線と MI ケー ブルの伸びを金属管が吸収することができないことから、 MI ケーブル側への圧縮応力が発生し、MI ケーブル芯線 (φ 0.91 mm) よりも細径のリード線(φ 0.5 mm)に



試験完了後

図3 構造改良後の検証結果(X線画像)

構造改良前の熱サイクル試験では、熱サイクル 30 回でニッ ケル線にき裂を確認しました。構造改良後の試験では 55 回 の熱サイクル後においてもき裂等の異常は発生せず、熱サ イクル負荷に対する耐熱性能の向上に成功しました。

応力集中したことが原因と推定しました(図1)。

検出器の構造改良にあたっては、①線膨張時の応力 緩和、②材料の強度向上に重点をおいて検討を進めまし た。検討の結果、リード線によって MI ケーブル芯線と 金属管を接合する構造を廃止し、MI ケーブル芯線と金 属管を直接接合する構造改良案を採用しました。MI ケー ブルの芯線はリード線よりも太径で固い材料であること から、MI ケーブル芯線を金属管に直接接合することで、 従来よりも、応力集中の緩和及び材料強度の向上を図り ました。さらに、応力が作用する接合部を削減したこと で断線リスクの低減に成功しました(図 2)。

次に、改良後の WRM が HTTR で使用できるか検証 するためにモックアップ試験を実施しました。試験は、 ①断線要因となった熱サイクル試験、② HTTR 特有の 高温環境性能に対する高温耐久試験を行い、いずれの試 験においても導通及び X 線撮影にて、信号線にき裂、細 り等の異常は確認されなかったことから、耐熱性能の向上 を実現した構造変更であることが実証できました(図 3)。

WRMの改良は耐熱性能の向上に併せて、構造の簡素 化による故障リスクの低減及び、信頼性向上による長寿 命化が図られたことで検出器交換等のランニングコスト の低減を達成しました。本成果は、高温ガス炉の実証炉 開発に寄与するものとなりました。

(小澤 太教)

●参考文献

小澤太教ほか, HTTR 広領域中性子検出器の開発-熱サイクル負荷に対する耐熱性能の向上-, JAEA-Technology 2023-007, 2023, 24p.

1-2 高温ガス炉を利用した水素製造技術の確証に向けて - HTTR-熱利用試験施設の安全設計方針を策定-





図1 HTTR-熱利用試験施設の鳥瞰図

HTTR の改造工事により、水素製造施設を新設するとともに、 2次へリウムガス配管を原子炉格納容器、原子炉建家の外に引 き出し、水蒸気改質器に接続します。高温のヘリウムガスは、 水蒸気改質器に供給、冷却され、中間熱交換器に戻ります。

図2 HTTR-熱利用試験施設の一般産業法規適用範囲及び 新たに考慮すべき事象に対する防護方針 HTTR-熱利用試験施設の炉規法、高圧ガス保安法及び一般産 業施設技術基準の適用範囲、並びに新たに考慮すべき事象に 対する防護方針を示しています。

高温ガス炉は、優れた安全性を有するとともに、高温 熱供給が可能な原子炉であることから、大量かつ安価な カーボンフリー水素製造が可能であり、脱炭素社会の実 現に向けて早期実用化が求められています。しかし、高 温ガス炉と水素製造施設を接続した例は世界にまだな く、高い安全性を実現する安全設計の確立が課題です。

この課題に対して、原子力機構は、原子炉出口冷却 材温度 950 ℃を達成した HTTR(高温工学試験研究炉) に、新たにメタン水蒸気改質法による水素製造施設を接 続して水素製造を行う HTTR-熱利用試験を計画してお り(図 1)、原子力規制委員会からの許認可取得を通じて、 高温ガス炉と水素製造施設を接続したシステムの安全設 計確立を目指しています。本研究では、安全設計の考え方 として、水素製造施設の適用法規の考え方や HTTR-熱 利用試験施設の新規制基準への適合方針を作成しました。

大量の高圧ガスを扱う水素製造施設は、一般産業法規 の技術基準を満足するように建設されることで、高圧ガ ス災害に対する公衆安全を確保してきた実績がありま す。また、水素製造施設は、経済的優位性の観点から一 般産業法規の下で設計、建設及び運転されることが、産 業界から望まれています。そこで、水素製造のため、新 たに HTTR に接続する水素製造施設は、水素製造施設 異常時における原子力安全の確保を前提に、一般に原子 炉施設に適用される「核原料物質、核燃料物質及び原 子炉の規制に関する法律」(以下、「炉規法」)ではなく、 高圧ガス保安法等の一般産業法を適用する方針としまし た。同じく水蒸気改質器は、炉規法に加えて、化学プラ ントにおいて細かい技術要件が既に整備されている一般 産業施設技術基準を適用することとしました(図 2)。

次に、原子力規制委員会により新規制基準に適合する と認められた HTTR の安全設計を参考としつつ、水素 製造施設の接続に伴い新たに考慮すべき事象に対して、 規制要件に適合する防護対策の基本方針を提示しまし た。具体的には、水素製造施設から漏えいした水素等の 可燃性ガスの爆発に対して原子炉建家における爆風圧が 10 kPa 以下となるよう原子炉建家一水素製造施設間の 離隔距離を確保すること、竜巻により新たな飛来物とな り得る水素製造施設の破片に対して原子炉建家の健全性 を確認すること、水素製造施設内の一酸化炭素等の有毒 ガスの漏えいに対して原子炉制御室にいる運転員等の健 康状態に影響がないことを確認すること等、規制要件へ の適合方針を作成しました。

今後は水素製造施設と接続するための HTTR 改造内 容の具体化、許認可手続を段階的に実施していきます。 (青木 健)

●参考文献

青木健ほか, HTTR-熱利用試験施設の安全設計の考え方, JAEA-Technology 2022-011, 2022, 60p.

1-3 高温ガス炉の燃料健全性を合理的に評価するには? –高温ガス炉用 TRISO 燃料の損傷評価法の合理化-



図1 模擬燃料コンパクト内の被覆燃料粒子のX線CT画像 HTTR 燃料と同じオーバーコート法と呼ばれる燃料製造方法で 製造した、模擬燃料コンパクトのX線CT画像を取得しました。 燃料コンパクト外表面に近づくほど温度勾配が大きくなり、燃 料核移動が厳しくなることが知られていますが、この画像から、 燃料コンパクト外表面に最も近い被覆燃料粒子の位置を特定し、 考案手法の評価点を決定しました。





図2 燃料コンパクトの非均質な熱伝導計算モデル及び温度上昇分布 左図は、燃料コンパクトから高さ5mm、角度30°の部分を切り取ったモデルです。また、右図が温度上昇分布評価の結果です。 燃料コンパクト外表面付近(図中の CFP1、CFP2)で特に温度勾配が大きくなるため、燃料核移動が最も厳しくなります。

高温ガス炉は、二酸化ウラン等の燃料核を熱分解炭 素と炭化ケイ素で多重に被覆した被覆燃料粒子(CFP) を用いています。CFPの被覆は、燃焼に伴い発生する 核分裂生成物(FP)をCFP内に保持する機能を有しま すが、燃焼が進むにつれて、被覆中の炭素が燃料核から の遊離酸素と反応し、高温側で気化、その後、低温側で 析出・蓄積していき、このとき高温側にできた隙間に燃 料核が押し出される現象「燃料核移動」により破損する 恐れがあります。そこで、設計では、運転期間中の燃料 核移動速度(KMR)を評価し、燃焼末期に燃料核が被 覆に接触しないことを確認しています。

従来、KMR は、評価上の重要パラメータである温度勾 配が最も大きくなる燃料コンパクト外表面を評価点として いましたが、過大に評価され、炉心性能が制限されること が課題でした。そこで私たちは、評価結果の保守性は確保 しつつも燃料コンパクト内の非均質な CFP 分布を考慮す ることで KMR を合理的に評価可能な手法を考案しました。

具体的には、KMR の評価点を、模擬燃料コンパクト のX線 CT 画像(図1左)を基に、CFP が存在しない ことが確認された燃料コンパクト外表面からの位置とす る(図1右)手法を考案しました。HTTR(高温工学試 験研究炉)燃料の場合、評価点は燃料コンパクト外表面 から 0.20 mm 内側の位置となり、従来手法に比べ考案 手法の採用により KMR を約 8% 低減できることが分か りました。

併せて、考案手法が十分な保守性を持つことを確認 するため、燃料コンパクトの内部構造を忠実に再現した 非均質な熱伝導計算モデル(図2左)から得られる温 度分布(図2右)により計算した KMR の参照評価値と 考案手法から得られる KMR の評価値との比較を行いま した。まずモンテカルロ法中性子輸送計算コード MVP を用いて、燃料コンパクトを CFP 平均充てん率ごとに 径方向に8分割した領域に分けて核分裂反応率(発熱量) を計算しました。

次にこの発熱量分布に基づいて、有限要素法解析コード ANSYS による熱伝導計算により、非均質な熱伝導計 算モデルにおける温度分布を評価しました。この温度分 布に基づいて評価した KMR が考案手法より小さくなる ことから、考案手法が KMR を保守側に評価可能である ことを確認しました。

以上より、燃料コンパクト外表面から CFP が存在す る領域までの内側に評価点を移動させることで、保守性 を確保しつつ合理的に KMR を評価できる手法を新たに 構築することができました。その結果、より長期の燃焼 が可能になる等の炉心性能の向上が期待できます。

(沖田 将一朗)

●参考文献

Fukaya, Y., Okita, S. et al., Study on Evaluation Method of Kernel Migration of TRISO Fuel for High Temperature Gas-Cooled Reactor, Nuclear Engineering and Design, vol.399, 2022, 112033, 9p.

-4 高温ガス炉使用済燃料の再処理技術の成立性検討 - 既存の PUREX 技術を用いた再処理の経済性向上-



図1 被覆燃料粒子と前処理工程

被覆燃料粒子の燃料核を取り出すための前処理工程です。 この工程を経て再処理が可能となります。今回の検討は、 この工程以降の分離工程の最適化を行ったものです。 図2 本研究で提案する分離工程のプルトニウム収支と改善効果 高温ガス炉使用済燃料を劣化ウランで希釈しない分離工程のプルト ニウムの収支と改善効果です。A1-6、A51-56からの還元剤添加量 50% 増、O3の溶媒流量 20% 低減により、ウラン・プルトニウム回 収率 100% を達成できることを明らかにしました。

高温ガス炉の被覆燃料粒子(図1)は、脱被覆して燃料核を取り出す前処理工程を追加することで、現行軽水炉用の再処理施設により再処理が可能です。前処理工程の要素技術は、コールド試験により確証済みであり、現在、HTTR(高温工学試験研究炉)の使用済燃料を用いたホット試験を計画しています。

一方で、再処理工程は PUREX と呼ばれる溶媒抽出 法による抽出・洗浄・逆抽出を繰り返すことにより、純 度を高めつつウラン・プルトニウムを回収しますが、使 用済燃料組成に合わせて工程を組み立てる必要がありま す。先行研究では、六ヶ所再処理施設をなるべく変更し ない条件の下、高温ガス炉使用済燃料の組成を軽水炉の 組成と同程度になるよう、劣化ウランで希釈することを 前提としていました。しかし、高温ガス炉燃料は、軽水 炉燃料より約3倍程度燃焼度(燃料からのエネルギー 発生量)が高いため、それによる発電量も約3倍とな ります。この特長を活かすことができれば、再処理量及 びその費用が軽水炉燃料の 1/3 に低減可能となります。 一方で、先行研究の提案は、劣化ウランで約3倍に燃 料を希釈することで、この利点が損なわれていました。 そこで、六ヶ所再処理施設を模擬した分離工程を対象

に、劣化ウランによる希釈を用いない高温ガス炉使用済

燃料の再処理法を提案するとともに、再処理プロセス計 算コード PARC を用いて有効性を評価しました(図 2)。

分離工程におけるウラン・プルトニウムの回収率は、 ほぼ 100% とする必要があります。一方で、六ヶ所再 処理施設のプロセス量をそのままに、高温ガス炉使用済 燃料の組成の溶液をプロセスに投入すると、溶媒側に抽 出されやすい4価のプルトニウムが、溶媒の流れに沿っ てウラン精製工程に流れ込むことによりロスが発生し、 72% に低下することが分かりました。

そこで、ウラン精製工程へのプルトニウム流入防止 を目的として以下の措置を提案しました。

- プルトニウム洗浄器において注入する還元剤の添加量を50%増加し、プルトニウムを4価から3価に還元すること
- ▶ 溶媒の流量自体を 20% 低減すること

これらの組合せにより、回収率 100% を達成できることを明らかにしました。

また、この分離工程の変更による後段のプロセスへの影響等を考慮した経済性評価を行った結果、既存手法に比べ、再処理費用を 65% 低減可能である見通しを得ました。

(深谷 裕司)

●参考文献

Fukaya, Y. et al., Feasibility Study on Reprocessing of HTGR Spent Fuel by Existing PUREX Plant and Technology, Annals of Nuclear Energy, vol.181, 2023, 109534, 10p.

1-5 IS 法による水素製造の安定性向上に向けて -ヨウ素析出による配管閉塞を防止する溶液組成制御法の開発-



図1 熱化学法水素製造法 IS プロセスの概要 IS 法は、高温の熱と三つの化学反応を利用して水から水素 を製造します。熱源として高温ガス炉と組み合わせること で CO₂ を排出しないカーボンフリー水素製造を実現します。



水素社会におけるカーボンフリー水素製造の実現を目 指し、高温ガス炉の熱を利用した、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(I₂)と硫黄の化学反応を組み合わせて水を分解 し、水素と酸素を生成する方法です(図1)。IS法の主 要な化学反応であるブンゼン反応は液相中で進み、水に I₂と二酸化硫黄を反応させることで硫酸とヨウ化水素酸 (HI)を生成します。この溶液にI₂を多量に溶解するこ とで、硫酸を主成分とする軽液相溶液(軽液)とHIと I₂を主成分とする重液相溶液(重液)の2液相に分離さ せ、それぞれ、酸素生成工程と水素生成工程に送ります。

プロセスを起動するとき、溶液の初期組成と定常組成 との差異や過渡的な運転状態により、ブンゼン溶液中 で水濃度の増加が見られます。I₂ は水にほとんど溶けな いため、I₂濃度の高い重液では、水濃度の増加に伴い、 溶解度が低下して固体 I₂ を析出し配管閉塞を引き起こ します。IS 法による安定的な水素製造を実現するため には、この水濃度を制御・調整し I₂ 析出による配管閉 塞を抑制する必要がありますが、水素製造運転中に HI、 I₂、水等の混合物である重液から選択的に水を抜き出す のは容易ではありません。

そこで私たちは、2 液相分離状態にある重液と軽液で、



図2 硫酸添加脱水法によるヨウ素析出防止

水溶液の濃度が均一になるよう物質が移動するという平衡現象を 利用して溶液組成を制御することで、ヨウ素析出を防止し、配管 閉塞リスクを低減することが可能となりました。

図3 連続水素製造試験設備における硫酸添加脱水法の実証 ビーカースケール試験結果に基づき硫酸供給による脱水量を導 き出し、硫酸供給量に応じて、重液のHI濃度をl₂が析出しな い目標値以上まで増加可能であることをプラントスケールで実 証しました。

2 液相間の水濃度が均一化するように物質が移動するという平衡現象に着目し、重液から水を選択的に抜き出すため、軽液の主成分である硫酸を一時的に添加して溶液の組成を制御することで水素製造の安定性を向上する方法を考案しました。具体的には、軽液の硫酸濃度より高濃度の硫酸を添加することで硫酸濃度を上昇(すなわち、水濃度を低下)させ、2 液相間の界面を通じて、水濃度が高い重液から水濃度が低い軽液へと水を移動させます。その結果、重液中の HI 濃度が上昇することで、12 の溶解度も増加するため、固体 12 の析出を防止し、配管閉塞リスクを低減することができます(硫酸添加脱水法、図 2)。

本手法を IS プロセス連続水素製造試験設備に組み込み、水濃度が増加したブンゼン反応溶液に対して連続的に硫酸を供給した結果、硫酸供給量に応じて HI 濃度が上昇し、I2 析出のリスクが低くなる目標値まで達することを確認(図3)するとともに、硫酸添加により増加した軽液を 2 液相分離後の溶液から運転中に抜き出すことが可能であることを確認し、本手法の有効性をプラントスケールで実証しました。今後は、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。

(上地 優)

●参考文献

Noguchi, H., Kamiji, Y. et al., Hydrogen Production Using Thermochemical Water-Splitting Iodine-Sulfur Process Test Facility Made of Industrial Structural Materials: Engineering Solutions to Prevent Iodine Precipitation, International Journal of Hydrogen Energy, vol.46, issue 43, 2021, p.22328-22343.

1-6 IS 水素製造法の消費エネルギーを低減 -架橋により膨潤を抑制したヨウ化水素濃縮用カチオン交換膜を開発-



図1 (a) HI 濃縮電解電気透析の原理と(b)カチオン 交換膜内部の透過モデル

HI 濃縮電解電気透析では、カチオン交換膜内部のイオン チャネルをH⁺ が移動することで、HI 溶液の濃縮が行われ ます。架橋がないグラフト鎖ではイオンチャネルが容易に 膨潤して広がり、不要なΓとH₂O も移動してしまいます。

高温ガス炉を用いたカーボンフリー水素製造技術と して、ヨウ素と硫黄の化学反応を組み合わせて、水を 分解する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 法では水にヨウ素と二酸化硫 黄を反応させることで、硫酸とヨウ化水素酸(HI)の2 種類の酸を生成します。生成した HI はカチオン交換膜 を組み込んだ電解セルを用いた電解電気透析器(EED) により濃縮します(図1(a))。IS 法の効率向上には、 EED で消費されるエネルギー削減が必要で、そのため に、カチオン交換膜に高い導電性と高い H⁺ 選択性が求 められます。

これまでに、私たちは量子科学技術研究開発機構で開 発している放射線グラフト重合法による製膜技術を利用 し、高い導電率を持つカチオン交換膜を製膜することが できましたが、導電性とH⁺選択性はトレードオフの関 係となり、両立できないことが問題でした。

この問題に対して、HI 濃縮時の膜内部における物質の 透過現象を模擬した数理モデル(EED モデル)(図1(b)) を用いることで、導電性とH⁺ 選択性がトレードオフに なる原因を検討しました。イオン交換基を持つ親水性の グラフト鎖を増やすことで、H⁺ が透過しやすくなり導



図2 架橋を導入したカチオン交換膜の体積膨潤率の測定結果 架橋によりグラフト鎖同士を連結することにより、未架橋膜と比較して、溶 液吸収時の体積膨潤率が低下し、膨潤を抑制できていることを確認しました。



図3 架橋を導入したカチオン交換膜の H⁺ 輸率の測定結果 グラフト鎖の架橋はカチオン交換膜の膨潤を抑制し、イオンチャネルを狭 めたため、H⁺ 以外の物質($\Gamma \ge H_2O$)の透過が抑えられ、H⁺の選択性 の向上に有効であることを示しました。

電性が向上しますが、同時に、膜内へ吸収される HI 溶 液量も増え、イオン(H⁺、I[−])や水の流路であるイオンチャ ネルが過剰に膨潤して広がっていました。このため、濃 縮対象の H⁺ 以外の I[−]や水も容易に透過してしまい、H⁺ 選択性を低下させていることを明らかにしました。

そこで、導電性を高めるためのグラフト鎖を増やして も、イオンチャネルの膨潤を抑制するため、架橋導入に よりグラフト鎖同士の連結性を高めることで、イオン チャネルの膨潤抑制を試みました。

架橋グラフト鎖を導入したカチオン交換膜(架橋膜)を 製膜し、架橋の効果を検証したところ、溶液吸収による 体積膨潤率は未架橋膜と比較して最大で20%低減して おり、膨潤が抑えられていることを確認できました(図2)。 さらに、HI濃縮試験による膜性能を評価したところ、H⁺ 選択性を表すH⁺ 輸率が0.1以上増加していました(図3)。 これは、EEDで消費されるエネルギーの10%削減に相当する 性能向上であり、架橋構造の導入が、HI濃縮に用いるカ チオン交換膜の性能向上に有効であることを示しました。

今後は、この技術を活用し、さらに高性能な膜の開発 に取り組んでいく予定です。

(田中 伸幸)

●参考文献

田中伸幸,熱化学水素製造法 IS プロセスのためのヨウ化水素濃縮用イオン交換膜の開発,膜, vol.47, no.4, 2022, p.197-201.

-7 IS 法で用いる金属部材の耐食性向上を目指して - 沸騰硫酸環境下に耐えられるコーティング材を発見-



図1 各種コーティングを行ったサンプルの腐食時間増加に伴う平均腐食速度変化及び S-ZAC、MS-ZAC をコーティング した SUS304 における皮膜/母材断面の Cr マッピング MS-ZAC をコーティングした SUS304 では、100 h 後も SiC と 同等の耐食性が確認されました。また、この材料の腐食試験後の 断面観察から5 µm 以下の微細な Cr、Al、Si 粒子が確認されました。

高温ガス炉の熱利用技術の一つである熱化学法水素製 造法 IS プロセス(IS法)は、腐食性の高い溶液を用い ることから、反応容器等の構造部材には優れた耐熱性・ 耐食性が求められます。特に液体の硫酸が沸騰環境とな る硫酸分解器は IS法の中で最も厳しい腐食環境となる ため、従来、セラミックスの炭化ケイ素(SiC)を適用 してきました。しかし、大量の水素製造が要求される実 用プラントを想定した場合、SiCは、焼結炉の寸法制約 があることから、大型化が困難です。

そこで私たちは、SiC 並みの耐食性を有する大型化が 容易な金属材料の開発を目指し、金属表面に緻密な膜を 形成することを考えました。供試材には、フッ素コーティ ングした SUS304、また化学的緻密化法により、酸化 物スラリーを緻密に塗布した SUS304 を作製しました。 化学的緻密化法は、 Cr_2O_3 、 Al_2O_3 、 SiO_2 粒子のスラリー を母材にコーティングした後、500 ~ 600 °Cの焼成処 理を行う方法であり、供試材には焼成工程を8回行っ た S-ZAC と、さらなる皮膜の緻密化を図るべく、11 回まで増加させた MS-ZAC を用意しました。

腐食試験は、丸底フラスコ内に濃硫酸を流し込み、容 器加熱することで、沸騰硫酸環境下を再現しました。その 結果、フッ素コーティング処理材は、12 h 試験後に、金 属光沢が現出し、皮膜が完全にはく離し、高い平均腐食 速度を示しました(図1の●)。一方、S-ZAC 処理材は、



図2 (a) 腐食試験前の S-ZAC、MS-ZAC における断面組織及び (b) 腐食試験下の S-ZAC、腐食試験後の MS-ZAC における皮膜の模式図 S-ZAC では、 $Cr_2O_3 \ge SiO_2$ 界面に引張応力が働き、厚い皮膜が湾曲する ことにより、皮膜が剥離したものと考えられます。一方で、MS-ZAC では、 SiO_2 が微粒子化し、空隙が小さくなったことで、皮膜が薄膜化し、皮膜を

維持できたものと考えています。

12 h 試験後の時点では、耐食性を維持しましたが、100 h 試験後に、皮膜が剥離しました(図1の●)。しかし高 緻密化した MS-ZAC 処理材は、100 h 試験後も、SiC (図1の▼)と同様に腐食は進行しませんでした(図1の■)。

次に、これら 100 h 試験後における皮膜/母材断面 の Cr 元素マッピング分析を行った結果、S-ZAC は皮 膜が消滅していたのに対し、MS-ZAC は、5 μm 以下の 微細な Cr、Al、Si 粒子が緻密に残存していました。

図2(a)に、腐食試験前のS-ZAC、MS-ZACの断 面組織を示します。S-ZACは、粗大なSiO2の凝集体や 空隙が観察されたのに対し、MS-ZACでは、酸化物粒子 の微細化、空隙率の低下、皮膜の薄膜化を確認しました。

以上より、沸騰硫酸試験下の皮膜状態を考察すると、 図2(b)の模式図で示すように、S-ZACは、SiO₂の 周辺を囲む Cr₂O₃が膨張し始め、Cr₂O₃とSiO₂界面に 引張応力が働き、厚い皮膜が湾曲することで、皮膜剥離 に至ったものと考えられます。一方、MS-ZACは、含 浸過程で SiO₂が微粒子化し、空隙が小さくなったこと で、皮膜全体が薄膜化し、皮膜を維持できたものと考え ています。今後は、この皮膜の厚膜化に取り組む予定です。 本研究は、トーカロ株式会社との共同研究「IS プロ セス環境での耐食性を向上させた新規コーティング材の 研究」の成果の一部です。

(広田 憲亮)

●参考文献

広田憲亮ほか, 化学的緻密化法でコーティングされた材料の沸騰硫酸環境下での耐食性評価および表面皮膜分析, 材料, vol.72, no.3, 2023, p.255-261.

高速炉サイクルの研究開発基盤の整備



図 1 SmART (<u>Small A</u>mount of <u>R</u>eused Fuel <u>T</u>est) サイクル研究 照射済燃料からマイナーアクチノイド(MA)を分離し、MA 含有燃料として再び「常陽」で照射することで、閉じた サイクル内での高速炉を用いた MA の分離・核変換を実証し、廃棄物減容・有害度低減に大きく貢献します。

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。2022年12月に国の原子力 関係閣僚会議にて改訂された「戦略ロードマップ」にお いても、高速炉を活用することで、原子力の最重要課題 の一つである放射性廃棄物の問題に対処し、原子力全体 を循環型エネルギーとすることが可能とされています。 高速炉開発の意義・多様化する社会ニーズを踏まえた開 発目標としては、「安全性・信頼性」、「経済性」、「環境負 荷低減性」、「資源有効利用性」、「核拡散抵抗性」、「柔軟 性・その他市場性 | が掲げられており、原子力機構には高 速炉サイクル技術開発における中心的役割が期待されて います。また、ハード・ソフト両面での技術開発基盤の整 備、原子力分野の人材育成への貢献も求められています。

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。図1に示すSmART(Small Amount of Reused Fuel Test)サイクル研究は、照射済燃料からマイナー アクチノイド(MA)を分離・回収し、燃料として再利 用することを目的としたもので、これまでにMAの分離・ 回収までを完了しています。現在、照射燃料試験施設で は燃料製造に向けて、燃料製造設備の健全性確認や燃料 模擬物質を用いた燃料ペレット焼結条件の検討を行って いるほか、照射試験用燃料の作製に係る許認可を見据え て、燃料設計の基盤データとなる MA 含有燃料の熱物 性評価を進めています。

本章では、原子力機構が実施している最新の研究開 発の中から、いくつかの成果について紹介いたします。

「炉心損傷事故対策による発生頻度低減効果の評価 (トピックス 2-1)」では、確率論的リスク評価を適用し て設計での想定を超えた事故対策の効果を評価し、炉心 損傷に至る事象の発生頻度が3桁程度低減することが 分かりました。

「溶融炉心物質を原子炉容器内で冷やし閉じ込める (トピックス 2-2)」は、溶融したステンレス鋼をナトリ ウム中に落下させ、X線装置と高速度カメラを用いて可 視化した世界初の試験についての内容です。溶融炉心物 質の炉容器内保持を達成するための安全対策の有効性確 認に大きく貢献します。

「高速炉プラント全体の熱流動挙動を精度良く予測する (トピックス 2-3)」は、1次元プラント動特性解析コード と3次元詳細解析コードを連成させた手法で、計算負荷 を抑えつつ、これまで困難だった温度成層化等の複雑な熱 流動解析が可能になりました。これは、プラント全体の挙動 をまるごと解析できる仮想プラントの実現につながります。

「高速炉用ラッパ管への異材溶接の適用を目指して (トピックス 2-4)」では、燃料集合体のラッパ管材であ るフェライト/マルテンサイト鋼とハンドリングヘッド 等の SUS316 を接合する電子ビーム異材溶接部につい て、マクロな強度試験だけでなく、微細構造解析を行っ ており、実機において高温長時間環境にさらされるラッ パ管に異材溶接技術を適用できる見通しを得ました。

「高速炉の遮蔽設計の合理化に向けて(トピックス2-5)」 では、「もんじゅ」で実施されたナトリウム放射化量評価 試験について、最新の知見に基づいた測定値の再評価や 再現解析の高度化により、解析値と測定値間の不一致を 低減しており、高速炉遮蔽設計の合理化につながります。 2-1

炉心損傷事故対策による発生頻度低減効果の評価 - 高速炉の出力運転時における確率論的リスク評価の適用-



図1 高速実験炉の安全確保に係る主な設備の概要

異常発生時には制御棒の落下挿入により原子炉が停止し、主冷却系 (2次系)のポンプ及び送風機は停止して自然循環モードに移行し、 主冷却系(1次系)のポンプは低速運転に切り替わり、崩壊熱除去 が開始されます。主冷却系(1次系)のポンプの機能喪失時には補 助冷却系が自動起動します。

東京電力福島第一原子力発電所の事故後、原子炉施設 においては設計での想定を超える事故として炉心損傷に 至る恐れがある事故の対策を実施することが求められて います。事故に至る様々な異常や故障等の組合せ(以下、 事象)を想定した上で効果的な対策を検討します。対策 の効果を測る指標として事故の発生頻度があり、対策の 導入前後で事故の発生頻度をどの程度低減できるのか を、確率論的リスク評価(PRA)を適用して定量的に 評価することが重要です。

本研究の目的は、原子力機構が開発して運転経験を有 する高速実験炉の出力運転時を対象に、設計での想定を 超える事故の対策の効果を定量的に評価することです。 評価対象は図1の設備から構成され、通常時に炉心で 生じる熱を主冷却系の空気冷却器によって除去していま す。また、外部電源喪失や原子炉冷却材漏えいなど、異 常(起因事象)が発生した場合には原子炉が自動停止し、 原子炉容器内の液位がリークジャケットなどの静的機器 によって確保され、主冷却系を用いた強制循環または自 然循環によって炉内の崩壊熱が除去され、安全停止に至 るという特徴を有します。主冷却系機能喪失時には補助 冷却系による崩壊熱除去が可能です。

本研究では、最初に対策を講じる前の評価対象へ PRA を適用することによって、炉心損傷に至る事象を 網羅的に抽出するとともに、分類した上で発生頻度を定 量化しました(図2)。その結果を踏まえて、機器のバッ



図2 対策の有無による各事象の発生頻度の低減効果 炉心損傷に至る事象の発生頻度は、設計基準を超える事故 への対策を講じることによってどれも桁違いに低減するこ とを示しています。

クアップ、電源を必要としない主冷却系の自然循環等の 対策が評価対象施設において考案された後、本研究では 対策を講じた評価対象に再び PRA を適用し、事象の発 生頻度を定量化しました。その際に用いられる機器故障 率は、日米の高速炉施設における機器の運転・故障経験 を収録する、原子力機構が開発した高速炉機器信頼性 データベース CORDS を用いるとともに、評価対象施 設における固有の運転・故障経験が適切に反映されるよ う考慮しました。

その結果、図2に示す通り、設計での想定を超える 事故の対策によってULOF ~ SBOの発生頻度の合計値 が3桁程度低減することが分かりました。また、対策の 有無に依らず、発生頻度が最も高い事象は崩壊熱除去機 能喪失になりました。内訳を詳細に分析すると、対策が ない場合に外部電源喪失、かつ主冷却系等の強制循環に 失敗する事象の発生頻度が最も高いことが分かりまし た。一方、主冷却系(1次系)の自然循環等の対策を考 慮した場合にはこの事象の発生頻度は3桁程度低くな り、頻度を低減する効果的な対策であることが分かりま した。

出力運転時における対策の効果を把握できたことか ら、今後は原子炉停止時における炉心損傷に至る事象の 特定、及びその発生頻度を評価する予定です。

(西野 裕之)

●参考文献

Nishino, H. et al., Internal Event Level-1 PRA for Sodium-Cooled Fast Reactor Considering Safety Measures of Defense-In-Depth Level 1 to 4, Proceedings of 30th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE 30), Kyoto, Japan, 2023, ICONE30-1039, 10p.

2-2 溶融炉心物質を原子炉容器内で冷やし閉じ込める -ナトリウム中を落下する溶融炉心物質の振る舞いを可視化する試験-



図1 原子炉容器内での受皿構造による溶融炉心物質の保持 概念

シビアアクシデントが発生したとしても、溶融炉心物質が原子 炉容器下部プレナム内のナトリウム中を落下する過程で粒子状 の固化物となり、受皿構造上に堆積することによって、損傷し た炉心物質を原子炉容器内で冷やし閉じ込めやすくなります。

次世代の革新的な原子炉の一つとして期待されてい るナトリウム冷却高速炉を実用化するためには、その安 全性をより一層高める必要があります。そのため、炉心 燃料が溶け落ちるシビアアクシデントが発生しても、そ の影響が原子炉容器外へ及ぶことがないよう、溶融炉心 物質を原子炉容器内で冷やし閉じ込めること(炉容器内 保持)が重要です。

シビアアクシデント時に溶融炉心物質が原子炉容器 の底部まで落下すると、溶融炉心物質の高熱によって底 部に穴が空き、溶融炉心物質は原子炉容器の外へ漏れ出 る可能性があります。これを防止するために、底部に向 かって落下する溶融炉心物質を原子炉容器内の受皿構造 で受け止める安全対策が検討されています(図1)。こ のような安全対策が有効に機能することを確認するた め、これまでに溶融炉心物質と冷却材ナトリウムの模擬 物質としてそれぞれ低融点金属の溶融物と水を用いた基 礎的な試験を行い、ナトリウム中を落下する溶融炉心物 質は粒子状に固まって沈降し、受皿構造上に堆積する可 能性が高いことを明らかにしました。その一方で、基礎 的な試験で明らかにした溶融炉心物質の挙動を実際の原 子炉内の環境に近い条件で確認することが重要な課題と なっています。

本研究では、ナトリウム冷却高速炉の炉心構成材料の



図2 ナトリウム中を落下する溶融ステンレス鋼のX線画像 炉心構成材料の一つであるステンレス鋼の溶融物がナトリウム 中に落下すると、ナトリウム蒸気の膨張を伴いながら数ミリ秒 の短時間のうちに破砕され、粒子状の固化物となって落下する ことを確認しました。

一つであり、溶融炉心物質の主成分でもあるステンレス 鋼の溶融物を試験容器内のナトリウム中に落下させ、X 線装置と高速度カメラを用いて高速撮影する世界初の可 視化試験を行いました。

図2は、ステンレス鋼の溶融物がナトリウム中を落 下しながら急速に破砕される様子です。この実験後、試 験容器の底部に堆積したステンレス鋼の固化物を観察し た結果、溶融物がナトリウム中に落下すると、溶融物の 内部に少量のナトリウムが取り込まれ、このナトリウム が蒸気となって膨張する際に、その周囲の溶融物が短時 間のうちに破砕され、粒子状になっていることが分かり ました。さらに、ナトリウム中に設置した複数の温度計 の応答から、溶融物は破砕された後、ナトリウムによっ て急速に冷やされて固まったことを確認しました。

本研究は、ナトリウムの高い熱伝導性が原子炉の通常 運転時における炉心燃料の冷却だけでなく、溶融炉心物 質の冷却にも効果的であることを示すとともに、炉容器 内保持を達成するための安全対策の有効性確認に大きく 貢献するものです。

本成果は、経済産業省からの受託事業「令和2年度 高速炉に係る共通基盤のための技術開発」の一環として 実施した成果の一部です。

(松場 賢一)

●参考文献

Matsuba, K. et al., A Series of Molten Stainless Steel-Sodium Interaction Experiments to Develop an Evaluation Methodology for Jet Breakup During Core Disruptive Accidents in Sodium-Cooled Fast Reactors, Proceedings of 2023 International Congress on Advanced in Nuclear Power Plants (ICAPP 2023), Gyeongju, Korea, 2023, 2023433, 8p.



高速炉プラント全体の熱流動挙動を精度良く予測する -1次元プラント挙動解析と3次元詳細解析の連成





(a) EBR-II 炉の機器構成図

(b)3次元詳細解析モデル

図1 (a) 米国高速実験炉 EBR-I の機器構成図と(b) 3 次元詳細解析モデル

米国高速実験炉 EBR-II の格納容器内の1次系全体を1次元プラント動特性解析モデルで模擬し、多次元的な熱流動挙動が予想される領域 を3次元詳細解析モデルで模擬して連成させることで、計算負荷を抑えつつ、温度成層化等の複雑な熱流動現象の解析が可能となりました。



図2 解析結果と試験結果の比較

1次元プラント動特性解析コードと3次元詳細解析コードを連成させた解析を行うことにより、1次元プラント動特性解析では困難な コールドプール内の中間熱交換器出口での熱流動挙動や温度成層化が再現でき、炉心入口温度の上昇を再現できるようになりました。

カーボンニュートラル及びエネルギー安定供給等を目 的とする脱炭素社会の実現に向け、革新炉の一つである ナトリウム冷却高速炉の開発を加速するため、シミュレー ションを活用した研究開発基盤技術の整備を進めていま す。本研究では、スケールの異なる物理現象を、評価の目 的に合った精度と計算負荷でモデル化して解析するため、 プラント全系を1次元プラント動特性解析(1D)モデルで、 多次元的な熱流動挙動が予想される領域を3次元詳細解 析(3D) モデルで模擬し、1D モデルと3D モデルの相互 作用を考慮した 1D-3D 連成解析手法の構築を行っていま す。一例として、米国高速実験炉 EBR-II で行われた試験 を対象とした 1D-3D 連成解析結果を示します。

図 1 (a) に EBR-II の 1 次系内の機器構成図を示します。 炉心部で高温となった冷却材のナトリウムは、上部プレ ナム部を出た後、中間熱交換器(IHX)で2次系ナトリ ウムと熱交換を行い、低温になったナトリウムはコー ルドプール(CP)に流入します。その後、1次系ポンプ によって炉心下部のプレナム部から炉心に戻ります。解 析対象は、通常の運転状態から、原子炉は停止させずに 2次系ポンプを停止し、炉心に入る温度が上昇して、炉 心が径方向に膨張することで、燃料集合体間の間隔が広 がり、自動的に炉心出力が低下する「フィードバック反 応度」の効果を調べた試験です。この試験では、試験開

始直後の高温ナトリウムが IHX 出口から CP に流入し、 CP 内で上部に高温、下部に低温ナトリウムが分布する温 度成層化現象が発生します。1D コードでは、CP を一つ の計算要素とするため、温度成層化ひいては炉心入口温 度上昇の予測が困難でした。そこで、図1(b)に示すよ うに、CPを含む領域を 3D モデルとし、1D コードと 3D コードを連成させる1D-3D連成解析手法を適用しました。

図 2 (a) 及び(b) に 1D-3D 連成解析による CP 内の 3次元詳細解析結果を示します。CP内の熱流動挙動を 3D コードで解くことにより温度成層化の存在を確認し、 計測結果との比較からその妥当性を確認しました。また、 図 2 (c) に 1D コードだけで解いた炉心入口温度の結果と 1D-3D 連成解析結果を比較して示します。 1D コードでは、 温度成層化を考慮できないため、試験結果と差が生じます。 一方、1D-3D 連成解析では、CP 内の温度成層化とポン プに吸い込まれるナトリウム温度を再現できたことで、炉 心入口温度の上昇の様子を再現できるようになりました。

今後、炉心部の3次元核計算との連成や炉容器壁の 構造健全性解析との連携などにより、プラント全体挙動 を計算機上でまるごと解析できる仮想プラントを実現 し、高速炉開発のイノベーションを達成できるよう整備 を進めていきます。

(吉村 一夫)

●参考文献

Yoshimura, K. et al., Application of 1D-CFD Coupling Method to Unprotected Loss of Heat Sink Event in EBR-II Focusing on Thermal Stratification in Cold Pool, Proceedings of 29th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE 29), Shenzhen, China, 2022, ICONE29-89259, 10p.

高速炉用ラッパ管への異材溶接の適用を目指して - 運転中に想定される高温での適用性を微細構造解析から解明する-



図1 ナトリウム冷却高速炉用燃料集合体模式図 ラッパ管には耐照射性に優れた PNC-FMS を適用し、 上下の SUS316 の部材とは異材溶接を行います。

2 - 4

図2 異材溶接部の(a)金相写真、(b)引張特性、(c)Cr 濃度分布、 (d) 複相組織

スピノーダル分解(Cr濃度の偏り)により強度が増加しましたが、延 性に富むオーステナイト相を含んだ複合組織となっていることで、延性 の低下が抑えられています。

高速炉サイクルシステムにおける燃料の安全性(長 期にわたる燃料健全性維持)、経済性(燃料費の低減)、 環境負荷低減性(長寿命核種の核変換率)を向上可能な 高性能燃料集合体の開発を進めています。ナトリウム冷 却高速炉(SFR)のラッパ管は、燃料ピンを収納する 六角断面の外筒管であり(図1)、原子炉の起動・停止 時の制御棒の挿入経路や、地震時に受ける衝撃荷重に対 する燃料健全性等を確保するため、高温及び高照射量が 重畳する過酷環境においても、優れた寸法安定性と強度 を有する必要があります。そこで、中性子照射により生 じる体積膨張(スエリング)が小さく、高温強度も優れ た高強度フェライト/マルテンサイト鋼(PNC-FMS) をラッパ管材料として開発しました。地震時の衝撃荷重 等を考慮して、PNC-FMS ラッパ管(クロム(Cr)濃度: 11wt%)に SUS316 部材(Cr 濃度:17wt%)を電子ビー ムで異材溶接する技術開発を進めています(図1)。

この異材溶接技術の成立性見通しを得るため、SFR の運転中に想定される 400 ℃近傍及び 550 ~ 600 ℃の 高温で3万時間保持する熱時効試験とその後の強度試 験を実施し、異材溶接部の強度が健全に維持されている ことを明らかにしました。ここで、400 ℃、3万時間熱 時効試験後の異材溶接部(図2(a))の引張試験により、 異材溶接部では、「材料強度が増すと延性(伸び)が低 下する」という一般則とは異なり、延性を維持しつつ強 度が向上するという、既往研究では報告例がない事象を 明らかにしました(図2(b))。

この強度改善メカニズムを解明するため、走査型透過 電子顕微鏡を用いた微細構造解析を行い、異材溶接部の Cr 濃度が高く、熱時効により Cr の濃度がナノスケール で偏るスピノーダル分解が起こっていること(図2(c))、 溶接部はスピノーダル分解が起こっている高 Cr 濃度の フェライト相だけでなく、微細なオーステナイト相(高 延性相)が含まれた複相の組織になっていること(図2 (d))を示しました。スピノーダル分解は高Cr濃度のフェ ライト鋼が400~500℃の高温に長時間さらされるこ とで生じる現象で、硬質相を形成して強度増加をもたら すと同時に延性低下を引き起こすことが知られていま す。この微細構造解析結果は、熱時効後の異材溶接部は 硬質相と高延性相から成る複合材料となっており、延性 低下したフェライト相で局所的な破壊が生じても、微細 に分散したオーステナイト相が破壊の進展による延性低 下を抑制することを示しています。

以上の通り、マクロな強度試験だけでなく、微細構造解 析を行うことで、高温長時間環境にさらされる PNC-FMS ラッパ管に電子ビーム異材溶接技術を適用できる見通し を得ることができました。「常陽」再稼働後に照射試験 を実施し、高燃焼度化を想定した評価を進めていきます。 (丹野 敬嗣)

●参考文献

Yano, Y., Tanno, T. et al., Tensile Properties on Dissimilar Welds Between 11Cr-Ferritic/Martensitic Steel and 316 Stainless Steel After Thermal Aging, Journal of Nuclear Materials, vol.555, 2021, 153105, 8p.

2-5

高速炉の遮蔽設計の合理化に向けて - 最新の知見に基づいた「もんじゅ」ナトリウム放射化量の評価・



図1 出力履歴と測定タイミング、放射化量の推移 測定(ナトリウム採取)は計5回実施されています。図2で実 施順に Case1 ~ 5と表記します。半減期の短い²⁴Na は出力上 昇に追従し、半減期の長い²²Na は出力運転とともに蓄積して いきます。グラフ下段の実線は解析値、プロット点は測定のタ イミングを示します。

高速炉の設計手法や核データの妥当性確認に資する ために、「もんじゅ」性能試験のデータベース化とその 信頼性・有用性向上に取り組んでいます。

高速炉の冷却材に使用されるナトリウムは、原子炉運転 中に中性子と反応することで放射化します。具体的には、 ²³Na(n, γ)反応で²⁴Na(半減期約 15 時間)、²³Na(n, 2n) 反応で²²Na(半減期約 2.6 年)が生成されます。²⁴Na は生成量が多く、遮蔽設計における原子炉運転中の主た る γ 線源になり、格納容器内の壁厚や部屋の配置に影響 します。²²Na は半減期が長いため、原子炉停止中にお ける点検やメンテナンス時の作業員被ばく等に影響しま す。「もんじゅ」設計時にはそれらの生成量(ナトリウ ム放射化量)の検証データが限定的であり、設計裕度と してファクター 2.0 が考慮されていました。

1995年の「もんじゅ」性能試験において、出力運転中 にナトリウム放射化量の測定が実施されています(図1)。 測定では、1次冷却系から採取したナトリウムのγ線 を計測することで比放射能(Bq/g)が得られています。 これに1次冷却系中のナトリウムの総量を乗じることで 放射化量(Bq)が評価できます。この放射化量を解析 値と比較することで予測精度が検証できますが、過去の 評価では図2に示すように、測定と解析の間に40%を 超える不一致がありました。本研究では、その妥当性を



図2 ナトリウム放射化量の解析値と測定値の比較 測定値と解析値の見直しにより両者の差が、²⁴Naで解消(測 定誤差内で一致)し、²²Naで約10%程度にまで改善しました。

測定値・解析値の両面から検討しました。測定データの 精査や解析条件の見直しを進める中で、γ線の検出効率 についてはその算出根拠となるデータが残されておらず、 再評価することができませんでした。

半減期の長い²²Na は廃止措置に移行した現在の「も んじゅ」でも検出できます。そこで、γ線の検出効率 とともに現時点の²²Na 放射化量を測定し、放射能の 時間減衰を遡る形で試験時の放射化量を評価すること としました。解析についても核データライブラリに JENDL-4.0 を用い、炉心計算に3次元体系での輸送計 算を取り入れるなど手法を高度化するとともに、試験時 の出力履歴を可能な限り詳細に反映しました。これらの 結果、測定値と解析値の差が改善することを確認しまし た(図2)。²²Na については、解析に²²Na 自身の中性 子吸収効果を取り入れることでさらに改善し、測定誤差 の範囲内で一致する見通しを得ました。

本研究により、信頼性の高いナトリウム放射化量の 試験データを整備することができました。現状の解析精 度は良好であり、ナトリウム冷却高速炉でのナトリウム 放射化量をファクター 1.1 程度で評価できる可能性を見 いだしました。高速炉遮蔽設計の合理化につながる成果 と言えます。

(毛利 哲也)

●参考文献

Mouri, T. et al., Evaluation of Sodium Radioactivity in the Primary System of the Prototype Fast Reactor Monju, Nuclear Technology, vol.209, issue 7, 2023, p.1008-1023.

新原子力の実現に向けた基礎研究



図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。

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、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』の分野で組織しています(図 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。以下、2022 年度 の主な成果をハイライトします。

『原子力先端核科学』の「極限重元素核科学研究」で は、長寿命マイナーアクチノイドの核変換や超重元素の 存在領域を調べる研究を進めています。このための原子 核構造研究では、重イオン核反応によって生成される 様々なアクチノイド原子核をオンラインで分析し、γ線 核分光によって原子核の様々な量子状態を決定する手法 を開発し、未開拓原子核の構造研究を可能にしました (トピックス 3-1)。「ハドロン原子核物理研究」では、 原子核を構成する力の源である核力を理解するため、陽 子や中性子が近づいた際に発生する斥力の解明に進展が ありました。J-PARC において Σ^+ 粒子を生成し、これ と陽子との散乱実験を行うことで、核力の起源として クォークパウリ効果が影響していることが示唆されまし た(トピックス 3-2)。「強相関アクチノイド科学研究」 では、送電・蓄電技術や量子コンピュータへの応用につ ながるウラン化合物の超伝導現象を調べています。近年、 ウランテルル化物(UTe₂)に注目が集まっていますが、

良い単結晶を作ることが困難となっていました。本研究では UTe₂ を塩化物に混ぜ、高温状態で結晶を育成させることで、結晶中の欠陥が少ない純良な結晶の生成に成功しました。今後、超伝導研究が加速されます(トピックス 3-3)。

『原子力先端材料科学』の「スピン-エネルギー科学 研究|では、水中や固体での信号伝達において、電磁 波よりも伝わりやすい音波に着目し、これを高感度で検 出する理論研究を行いました。低温において結晶が一定 の周期で歪むと、同じ周期で電子密度の変化が起き、こ れは試料にかける電圧と電流の特性となって観測され ます。この特性は、音波がある場合と無い場合で顕著 に違うことを発見し、音波検知器の原理を確立しました (トピックス 3-4)。「表面界面科学研究」では、水素イオ ンと重水素イオンが、たった1層のグラフェンを通るト ンネル効果が顕著に違うことを実験的に発見しました。 今後、産業やエネルギー分野で活用が期待される重水素 の濃縮技術に道を拓きます(トピックス 3-5)。「耐環境 性機能材料科学研究|では、ハードディスクドライブの磁 気ヘッドや磁気メモリなどに活用され、放射線耐性が強 いことが期待されているトンネル磁気抵抗素子の性能を 向上させる開発を行っています。薄膜にすることで高速・ 大容量の磁気メモリが可能となりますが、このため、研究 では異なる材料をミクロな厚さで積層させることでトンネ ル磁気抵抗効果を従来に比べて格段に向上させることに 成功しました(トピックス 3-6)。

『先端理論物理研究』では、小型で軽量な磁気デバイ スを開発するための小さな磁石材料に現れる現象を調べ ました。磁石にはマグノンと呼ばれる粒子が存在します が、磁石を薄くすると、マグノンのエネルギー準位状態 が少なくなり、ゼロ点エネルギーが出現することが分か りました。カシミール効果のマグノン版と言え、磁石の 磁気の強さが変わることから、磁気の強さを制御するカ シミアエンジニアリングと呼ばれる分野が拓かれると期 待されます(トピックス 3-7)。

アクチノイド原子核のア線核分光技術を確立

- 超重元素の原子核構造研究に前進-





酸素 18(¹⁸O) ビームでカリホルニウム 249(²⁴⁹Cf) を照射し て生成される原子核です。△E-E検出器で散乱粒子が識別でき ています。

図2 カリホルニウム 248 (²⁴⁸Cf)の(a) y 線スペクトル及び

0.5

(b)

集団回転

D

С В 長寿命状態

寿命

(>200 ns)

²⁴⁸Cf

(MeV) 1.5

劻

1.2

1.2 0.9 0.6 0.3 0.3

0

(b) エネルギー準位

0.1

0.3

y線エネルギー(MeV)

200

100

カウント数 (y線検出器)

(a)¹⁹Oを選んで決定した²⁴⁸Cfのγ線エネルギースペクトルです。 (b)²⁴⁸Cfの回転状態を表す準位構造とともに、寿命の長い励起 状態(水色)を発見しました。これは²⁴⁸Cfの外側の二つの核子 の異なる軌道運動の影響によるものです。

原子力発電の利用で生成される長寿命のマイナーアク チノイドを減容する核変換技術や、マイナーアクチノイ ドを燃焼させる次世代炉では、多くの種類のアクチノイ ド原子核が生成されます。これら技術を確立するには、 これら原子核の構造を知ることが重要です。本研究では、 これまで未測定であった多くのアクチノイド原子核の構 造を一度に調べることのできる技術を開発しました。

様々なアクチノイドを研究するため、私たちは多核子 移行反応に着目しました(図1)。標的に重イオンビー ムを照射すると、衝突する原子核間で中性子と陽子が 様々なパターンで交換され、結果、標的核周りの多くの 核種が生成され、構造を調べることができます。このた めには、イベントごとに生成され、励起状態にある原子 核(複合核)を分析することが必要です。私たちは、散 乱粒子を検出、識別することで、同時に生成されたアク チノイド核種を特定しました。このために開発したのが シリコン △E-E 検出器です。図1のように、△E 部と E 部に付与されるエネルギーを測定することで、粒子識別 ができます。複合核は、γ線を放出することで安定にな りますが、このγ線を測定することで、原子核のエネル ギー準位構造が分かります。この構造は、陽子や中性子 の動きを反映したもの、あるいは原子核の回転など集団

的な振る舞いを表しています。γ線はゲルマニウム線検 出器で測定しました。

実験では、カリホルニウム 249(²⁴⁹Cf、原子番号 98 の同位体)標的を酸素 18⁽¹⁸0)ビームで照射することで、 ²⁴⁸Cf の構造を調べました。この結果、図 2 (b) のような エネルギー準位を構築しました。このうち、励起エネル ギーの 0.9 MeV の所に、長い寿命の状態(200 ナノ秒 以上)があることを発見しました。普通の励起状態より も 20 万倍を超える寿命です。長い寿命の原因は、外側 の二つの核子(陽子または中性子)の軌道運動の向きが 残りの核子と異なり、原子核の回転軸の方向がずれたた めです。また、回転状態に由来する準位構造も観測でき、 ここから原子核の変形度が決定できました。

本実験で図1のように多くの原子核が生成されてお り、現在、解析を進めています。また、さらに重いビー ムを照射することで、超重元素の構造研究も可能になり ます。超重元素のいくつかは、測定が困難なほど寿命が 短いことが分かっています。しかし、低いエネルギーの 長寿命な励起状態を作ることで、むしろ基底状態よりも 長い寿命をとり、検出が容易になることが期待されてい ます。

(Riccardo Orlandi)

●参考文献

Orlandi, R. et al., New K Isomers in ²⁴⁸Cf, Physical Review C, vol.106, issue 6, 2022, 064301, 11p.

3-2 クォークが生み出す核力の斥力芯の起源に迫る – J-PARC における Σ⁺ 粒子と陽子の散乱実験−



図1 Σ^+ 粒子と陽子のスピンが揃った状態の模式図 Σ^+ 粒子は uus、陽子は uud のクォーク組成を持ちます。この状態では二つのアップクォークのスピンとカラー自由度が一致する確率が高く、クォーク同士が全く同じ量子状態になることを 避けるパウリ効果が働き、結果として2粒子間の強い斥力として現れます。

原子核は陽子と中性子(二つをまとめて核子と呼びます) から構成されており、核子の間に働く力である核力がそ の形成に重要な役割を果たしています。核力は比較的離 れているときには引力で、核子が重なり合うほど近づい たときには強い反発力(斥力)へと変化するという性質 があります。多数の核子を結びつける役割をする引力は、 湯川秀樹博士が存在を予見したパイ中間子などが取り持 つ力としてよく分かっています。短距離の強い斥力(斥 力芯)は原子核が自らの引力で潰れずに存在し続けるた めに重要な役割を果たしていますが、どのようなメカニ ズムで生じるかは分かっていません。

核子をさらに細かく見ると、アップクォーク(u)とダ ウンクォーク(d)と呼ばれる素粒子から構成されていま す。核子が重なるほど近づいたときには、核子がクォー クにより構成されていることによる効果が無視できなく なると考えられます。斥力芯の起源の可能性がある効果 として、二つのクォークが全く同じ量子状態となること を防ぐために斥力が働くクォークパウリ効果がありま す。ストレンジクォーク(s)という別の種類のクォーク を構成要素に含む核子の仲間(バリオン)である Σ^+ 粒 子と陽子のスピンが揃った状態(図1)は、クォークパ ウリ効果の影響を支配的に受ける状態であると考えられ ています。この状態の斥力の強さを調べることでクォー クパウリ効果の強さを明らかにすることができます。

二つの粒子の間に働く相互作用を調べるために、Σ⁺ 粒子を陽子と散乱させる実験を行いました。ここで、Σ⁺ 粒子は寿命が 80 ps と非常に短いため、照射する Σ⁺ 粒



図2 散乱の位相差と粒子間距離の関係

 Σ^+ と陽子の散乱の位相差について今回実験で決定した値とそれ によく合致する ESC 理論による計算結果が示してあります。陽 子陽子散乱の位相差と比較すると、核力が引力から斥力へと変 化するような 0.6 fm 程度の距離で Σ^+ と陽子間には強い斥力が 働いていることが分かります。

子を十分な数作ることや散乱が起きた事象を同定することが難しく、従来の研究では精度の良い測定はできていませんでした。私たちは、J-PARCが供給する大強度陽子ビームを利用できるハドロン実験施設でこれまでにない大量の Σ^+ 粒子を生成し、液体水素標的から散乱された反跳陽子を高精度で分析する技術を新たに開発することで十分な量の散乱データを取得しました。解析により、 Σ^+ 粒子と陽子の斥力の強さの指標である散乱の位相差を図2のように得ました。核力の様子を表す陽子陽子散乱の位相差と比較すると、核力は 0.6 fm 前後で引力から斥力へと変化しますが、 Σ^+ と陽子間ではより遠い距離から既に斥力であり、さらに粒子が近づくほど斥力が強くなっていく傾向があることが分かります。

本研究によって二つのバリオンが重なってくるような 短距離では、クォークパウリ効果によって核力に比べ数 倍大きい斥力が生じていると初めて示され、クォークパ ウリ効果が核力の斥力芯の起源の一つであることが明確 になりました。

本研究は東北大学、高エネルギー加速器研究機構、京 都大学、大阪大学との共同研究にて実施され、日本学術 振興会科学研究費基盤研究(A)(JP18H03693)「ハイ ペロン陽子散乱実験によるバリオン間相互作用研究の新 展開」、新学術領域研究(領域提案型)(JP18H05403)「ス トレンジ・ハドロンクラスターで探る物質の階層構造」 の助成を受けて行われました。

(七村 拓野)

●参考文献

Nanamura, T. et al., Measurement of Differential Cross Sections for $\Sigma^+ p$ Elastic Scattering in the Momentum Range 0.44–0.80 GeV/c, Progress of Theoretical and Experimental Physics, vol.2022, issue 9, 2022, 093D01, 35p.

先端原子力科学研究

3-3 ウラン化合物超伝導体の純良化に成功 - ウラン系超伝導の機構解明に寄与する-



図1 溶融塩フラックス法による超伝導 UTe₂ 単結晶育成法 最初にウランを少し過剰に仕込むのがポイントで、黒鉛容器に入 れて、石英管に真空封入して熱処理します。その後、取り出して、 塩は水に溶かして、UTe₂ 単結晶を取り出します。

超伝導は、物質の電気抵抗がゼロとなる現象です。送 電や蓄電、強力な電磁石などへの応用は、省エネルギー 社会に欠かせません。最近は、量子コンピュータ素子と しても注目されています。

ウラン系超伝導はトポロジカル超伝導の候補として注 目され、その超伝導機構解明は物性物理学における最前 線の課題となっています。そのような超伝導候補の一つが、 ウランテルル化物(UTe₂)です。2019年に米国の研究グ ループにより超伝導が発見されました。これまでUTe₂の 単結晶は、化学輸送法という方法で作られてきました。 この方法では、単結晶の品質が問題となっていました。 従来法では、単結晶にわずかなウラン元素欠損が残り、 超伝導特性が影響を受けていたことが分かりました。

そこで私たちは、そのウラン元素欠損を取り除く新しい 単結晶育成方法を考案しました。まず合成条件を単純化 できるフラックス法を選びました。フラックス法とは結晶 の育成方法の一つで、溶液から結晶を育成する手法です。 水に溶かしたミョウバンや食塩の結晶育成が、その身近 な例です。本研究では「水」の代わりに、塩化ナトリウ ム(NaCl)と塩化カリウム(KCl)とを混ぜた「塩」を 用いました。それぞれの塩の融点は約800℃と高いの ですが、お互いを混ぜると、約650℃まで下がります。 この「塩」と、UTe2原料であるウランやテルルをいろ いろな比率で溶かして、高温950℃からゆっくりと冷



図2 いくつかの UTe₂ 試料に対する抵抗率比の温度依存性 従来法で育成した単結晶はわずかな元素欠損で超伝導にならない か、超伝導転移温度が低いのですが、溶融塩フラックス法によって、 超伝導転移温度は上昇し、結晶品質を示す残留抵抗率比が大きく なりました。

やしました。これを溶融塩フラックス法といいます(図1)。 様々な混合比で単結晶育成を試した結果、従来法では平 均的に 1.8 K程度であった超伝導転移温度が、2.1 Kと なる単結晶が安定して得られるようになりました。同時 に単結晶品質の指標である残留抵抗率比も、当時の最高 報告値 88 を大きく超えて 1000 という桁違いに大きな 値に到達しました (図2)。このことは、これまで問題 となっていたウラン欠損を限りなく取り除いたことを意 味します。

超伝導の本質を調べるために単結晶の純良化は極めて 重要で、溶融塩フラックス法は、その決定打となりまし た。本研究で考案した単結晶育成法は再現性が良く、原 料混合比や溶融塩の量を同じにすれば、純良単結晶が 安定して得られます。このことは、超伝導の本質に迫 る実験研究を大きく後押しします。実際、私たちの純 良UTe₂単結晶を用いた様々な精密物性研究が進行中で、 不純物や元素欠損によって隠されていた UTe₂の超伝導 特性が続々と明らかになってきています。

本研究の一部は、日本学術振興会科学研究費挑戦的研究(萌芽)(JP20K20905)「FIB 微細コイルによるトポロジカル相の表面状態検出」と原子力機構の萌芽研究開発制度の助成を受けて行われました。

(酒井 宏典)

●参考文献

Sakai, H. et al., Single Crystal Growth of Superconducting UTe_2 by Molten Salt Flux Method, Physical Review Materials, vol.6, issue 7, 2022, 073401, 10p.

3-4 音波の高感度な測定を目指して - 音波が結晶の電流 - 電圧特性を変える -





図1 電荷密度波を利用した音波検出の模式図

図中央に長方形で表した結晶中に、電荷の密度変化が波状に起き ている様子を表しています。この電荷密度波に電圧(V)を与え て電流(I)を測ります。左から周波数ωの音波が加えられた様子 を表しています。

音波は、水中や固体中では電磁波よりも伝わりやすく、 魚群探知機から腹部超音波検査やタッチパネルなど身近 なところに至るまで広く用いられています。近頃は、音 波を情報媒体として用いる研究も行われるようになりま した。これは、エレクトロニクスで光や電子が担ってい る情報伝達の役割を部分的に置き換えようとするもので す。そのためには、音波を高感度に検出することが必要 になります。

そこで、本研究では音波の検出に電荷密度波を用いる ことを提案しました(図1)。電荷密度波とは、温度を 下げたときに、結晶が一定の周期で歪み、それと同じ周 期で電子密度の変化も起きている状態です。電荷密度波 状態では、電流(1)と電圧(V)が単純な比例関係に はなりません(図2上段中央の青線)。電圧を加えてい くと、ある値以上になったときに電流が流れ始めます。 計算では、電荷密度波が不純物にピン止めされる場合を 考えることで、この振る舞いが再現されます。電流が流 れ始める電圧は、このピン止めが外れることに対応して います。そして、ピン止めを外れた電荷密度波が結晶中 を滑ることで電流が流れている状態となります。このよ うに、電荷密度波状態には、通常の金属中の電気伝導と は異なる電気を流す仕組みがあることが分かります。

ここに音波を加えると、電流と電圧が単純な比例関係 ではないことに加えて、階段状の変化をするようになり

図2 電荷密度波状態の電流電圧特性

上段中央の青線は、電流(*I*) が、ある電圧(*V*) 以上で流れ始め、 単調に増加する振る舞いを示しています。一方、下段中央の赤 線は、周波数ωの音波が加えられた場合です。ωの倍数で階段 状の変化が現れています。右端の図は、*I*と抵抗(*dV/dI*)の関 係に直して示したものです。階段状の変化がピークとなって観 測できます。

ます(図2下段中央の赤線)。しかも、階段状の変化は 規則的に現れ、その間隔が与えた音波の周波数(ω)倍 になることが分かりました。これは、電荷密度波の滑り 運動と音波の振動運動とが干渉して起きる同期現象と理 解されます。実験では、この変化を見やすくするため に抵抗(*dV/dI*)に直して測定します(図2右端の図)。 すると、階段状の変化は鋭いピークとなって現れます。 これらのピークは、周波数(ω)倍に比例する電流のみ に現れるので、音波をかけた場合(On)とかけていな い場合(Off)の電流電圧特性の違いは明確です。しかも、 これらの変化は急激なので、音波が加わったことを高感 度に測定できる可能性があります。また、ピークの間隔 から、ωの値を決める使い方も考えられます。

現在、エレクトロニクスは、電子の持つ磁気(スピン) を応用するスピントロニクスへと進化を続けています。磁 気の流れであるスピン流を音波に変換して遠くに運ぼうと する研究なども進展しています。本研究の成果が、これら 最新技術の発展をさらに先へと押し進め、音波そのもの が情報技術の一端を担うように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) (JP20K03810)「量子クラスターによる磁気熱輸送現象 の理論」、基盤研究(S)(JP21H04987)「中性子スピン偏極物性科学の開拓」の助成を受けたものです。

(森 道康)

●参考文献

Mori, M. et al., Shapiro Steps in Charge-Density-Wave States Driven by Ultrasound, Applied Physics Letters, vol.122, issue 4, 2023, 042202, 5p.

3-5 なぜ1原子層のグラフェンで水素と重水素を分離できるのか? -量子トンネル効果で重水素を大量生産-



図1 (a) グラフェンと(b) 固体電解質膜を用いた電気化学 反応系の概念図

陽極と固体電解質膜の間にグラフェンを入れるのがポイントです。 陽極で水素分子(H₂)と重水素分子(D₂)がイオン化され、その イオンが陰極に移動する過程で、グラフェンにより"ふるい"に かけられます。

重水素(D)は、水素(H)の安定同位体であり、半導体や有機 EL、さらに医薬品などの産業分野や未来のエネルギー源として期待されている核融合に必須の材料です。この重水素は、水素中に含まれる微量の重水素を濃縮分離して得られますが、化学的性質が似ているため H と D を分ける H/D 分離能が悪く、また極低温で分離する 必要があるため製造コストが高くなることが課題です。

グラフェンは、炭素原子が六角形に結合したハニカム 構造を有する、炭素1個分の厚さのシートです(図1(a))。 最近、このハニカム構造の中心部位の"孔"を、重水素 イオン(D⁺)よりも水素イオン(H⁺)が選択的に透過、 常温で高いH/D分離能を発現することが示唆されてい ます。このため、低コストの重水素濃縮分離材料として 注目されています。しかしながら、複雑な材料開発や実 験系の構築といった困難さにより、その分離能のメカニ ズムは未解明のままでした。本研究では、固体電解質膜 を用いた電気化学反応系に着目し、グラフェンのH/D 分離能の起源を解明しました。

図1(b)に示すように陽極に水素分子(H₂)と重水 素分子(D₂)の混合ガスを供給して電極間に電圧を加え ると、H⁺とD⁺が生成し、これらイオンが陰極に流れる 反応が起きますが、このイオンが流れる部位にグラフェ ンを組み込んだ反応系を構築しました。グラフェンで"ふ るい"にかけられたイオンは、陰極で水素同位体ガスに 変換され排出されます。このガスを四重極質量ガス分



図2 (a) H/D 分離能と電圧との関係、(b) 水素イオン (H⁺) と 重水素イオン (D⁺) のポテンシャルエネルギーの電圧による違い 低電圧では、グラフェンのエネルギー障壁が高いため、障壁をす り抜ける量子的な移動が優勢です。高電圧では、エネルギー障壁 の低下で障壁を乗り越える古典的な移動が律速となります。

析によって評価した結果、D₂よりもH₂が多く排出され H/D 分離能が発現することを確認しました。さらに詳細 な実験を行った結果、電圧が大きいほど分離能が減少す ることが分かりました(図2(a))。理論計算により検 証した結果、低電圧領域では、量子トンネル効果により H⁺とD⁺がグラフェンのエネルギー障壁をすり抜ける移 動プロセスが支配的となり(図2(b))、H⁺とD⁺の質 量差に伴う透過確率の違いを反映した高い分離能が発現 することが分かりました。一方、電圧を大きくすると、 グラフェンのエネルギー障壁が減少し分離能がほとんど ない熱エネルギーによる古典的な移動プロセスが支配的 となり分離能も減少することが分かりました。

以上のことから、実験及び理論計算により、グラフェ ンの H/D 分離能は、グラフェンを透過する H⁺ と D⁺ の量 子トンネル効果が起源であることを明らかにしました。

本研究の反応系では陰極に H₂ が選択的に排出され、 陽極に D₂ が濃縮されます。今後は、本研究成果の理論 と実験を合わせた設計指針に基づき、グラフェンの量子 トンネル効果を利用した常温で高分離能を持つ重水素分 離デバイスの構築を試みます。

本研究は、日本学術振興会科学研究費基盤研究(B) (JP21H01751)「水素イオン透過ヘテロ電極界面による 水素同位体分離能の制御」の助成を受けたものです。

(保田 諭)

●参考文献

Yasuda, S. et al., Efficient Hydrogen Isotope Separation by Tunneling Effect Using Graphene-Based Heterogeneous Electrocatalysts in Electrochemical Hydrogen Isotope Pumping, ACS Nano, vol.16, issue 9, 2022, p.14362-14369.

3-6 高性能・高機能トンネル磁気抵抗素子を実現する積層電極構造の開発に成功 -新磁性材料を用いたトンネル磁気抵抗素子の産業応用へ大きく前進-



図1 (a)新開発した積層構造電極の断面透過電子顕微鏡像と(b)開発素子の電気抵抗値の磁場依存性 トンネル磁気抵抗素子(TMR素子)は、磁性電極層/トンネルバリア層/磁性電極層で構成されますが、その磁性電極層には必要な機 能を得るために様々な種類の材料を原子層単位で積層した複雑な磁性電極層が用いられます。本研究では、正方晶マンガンガリウム合 金の優れた磁気特性とTMR特性の両立を達成するために、原子層単位で制御されたMnGa/Mg/CoMn磁性電極層を新規に提案・開発 しました(a)。そして、それを用いた素子のTMR比が従来の素子と比較して10倍以上と大幅な性能の向上を達成しました(b)。

金属に電圧を加えると電子が移動し、電流が流れます。 一方、絶縁体に対して電圧を加えても電子が移動するこ とがないため、電流が流れることはありません。しかし、 1 nm という原子が数個ほどの非常に薄い絶縁体薄膜(ト ンネルバリア層)を金属薄膜でサンドイッチにした素子 に電圧を加えると本来電子を通さない絶縁膜を電子が透 過して電流が流れます。この現象は量子力学で記述され るトンネル効果と呼ばれています。このとき、金属薄膜 に磁石(磁性材料)を用いると、二つの磁石の N 極と S極の向きの違いにより流れる電流の量が大きく変わり ます。これをトンネル磁気抵抗効果(TMR 効果)と呼び、 この現象を介することにより、nm から µm スケールと いうコンパクトなサイズの素子で磁石の磁気的な性質を 大きな電気信号に変換することができます。この現象を 用いた電子デバイスは TMR 素子と呼ばれ(図1(a))、 ハードディスクドライブの磁気ヘッドや磁石の N・S 極 を記録に用いた磁気抵抗メモリ(MRAM)、磁場を電気 信号に変換する磁気センサとして既に私たちの身の回り で用いられており、耐放射線性を有することから原子力 分野や航空宇宙分野への応用も期待されています。

本研究では、トンネル磁気抵抗素子に用いる新しい磁 性材料として正方晶マンガンガリウム合金(MnGa)を 検討しました(図1)。この磁性材料は、薄膜にすると 膜面垂直方向に磁化(磁気的な分極)が向く垂直磁化材 料として知られており、磁化が小さいにもかかわらず、 磁化の向きを揃える力が強いという従来の磁性材料には ない魅力的な性質を兼ね備えており、TMR素子に応用 することにより、高速・大容量 MRAM、テラヘルツ帯 域対応の高周波素子などの次世代スピントロニクスデバ イスを実現することが可能になります。しかし、この磁 性材料を TMR素子の電極材料として利用しようとして も、TMR 効果の大きさを表すトンネル磁気抵抗比(TMR 比)が数%程度しか得られないことが、最大の技術課題 でした。

この課題に対し、本研究では、原子数層という極限に 薄い領域での精密薄膜形成技術を用いて、マンガンガ リウム合金(MnGa)、マグネシウム(Mg)、コバルトマ ンガン合金(CoMn)という3種類の金属材料を高度に 複合した新たな磁性電極層を開発しました(図1(a))。 その結果、室温で約120%のTMR比を達成し、従来の 素子と比較して10倍以上の高性能化に成功しました (図1(b))。本研究成果により、正方晶マンガンガリウ ム合金材料の優れた磁気的な性質を用いた磁気抵抗メモ リ、高周波デバイス、磁気センサの研究開発が産業応用 に向けて大きく前進すると期待されます。

本研究は、科学技術振興機構研究成果展開事業研究 成果最適展開支援プログラム A-STEP トライアウト (JPMJTM20K5)「高保磁力・高 TMR・貴金属フリー 垂直磁化固定層を有する磁気センサ素子の開発」の一環 として実施されました。

(鈴木 和也)

●参考文献

Suzuki, Z. K. et al., Tunnel Magnetoresistance Exceeding 100% in Magnetic Tunnel Junctions Using Mn-Based Tetragonal Alloy Electrodes with Perpendicular Magnetic Anisotropy, AIP Advances, vol.13, issue 3, 2023, 035225, 6p.

3-7 薄型磁石に潜む不思議なエネルギー - 極小の空間で初めて起こるエネルギー生成機構の理論的解明-



図1 磁石内部に現れる微小な粒子「マグノン」の概念図 磁石内部では、マグノンと呼ばれる粒子が現れることがありま す(図中の青丸)。マグノンがいなければ磁石内部のスピン(微 小な磁石)は規則的に整列しています。マグノンが現れると、 マグノンはスピンの向きを変えながら情報を伝えることができ ます(青い波線)。

近年急速に進歩しつつある情報化社会において、磁気 デバイス(磁石を利用した機器)の更なる小型化・軽量 化を目指す際、磁石が微細に加工されるとどのように性 質が変わるか(例えば、磁気の強さや磁気情報の伝わり 方など)を調べることは重要な課題です。一般に、磁石 の内部には原子や電子だけでなく「マグノン」と呼ばれ る粒子が現れることがあります。図1で示されている ように、マグノンは粒子でありながら磁石の中を波のよ うに伝わり、スピン情報(磁石のS極/N極がどちら を向くかの情報)を運ぶため、スピントロニクス分野で の利用が期待されています。

本研究では、磁石を薄くしていくことで磁石内部のエ ネルギーがどのように変化するかを理論計算によって解 明しました。今回は磁石の種類として、イットリウム鉄 ガーネットと酸化クロム(III)という2種類の物質を調 べました。図2の結果が示すように、数ナノメートル 程度まで磁石を薄くすることで、エネルギーが変化する ことを発見しました。

このような現象は、磁石内部の微小な世界で主役となるマグノンの不思議な性質に起因しています。マグノン は粒子として1個2個…と数えることができます。素朴 に考えると、粒子が0個であれば、何も起こらないは ずです。ところが、微小な世界で現れる効果は、粒子が 0個のときにでさえエネルギーを生み出します。実は、



図2 本研究の理論計算から予言された磁石を薄くすることによるエネルギーの変化

横軸は磁石の厚さで、磁石を薄くしていくことで、内部に存在 可能なマグノンの種類(周波数)が制限されていき、結果とし て磁石のエネルギーが変化します(カシミア効果)。紫点はイッ トリウム鉄ガーネット、赤点は酸化クロム(Ⅲ)という磁石の 種類です。

磁石内部はこのような「0 個のマグノン」から生じるエ ネルギーが常に満ちており、本研究の発見は、このエネ ルギーが磁石を極めて薄くすることで変化したことを意 味しています。

これは物理学や光子工学の分野でよく知られている 「カシミア効果」のマグノン版と言える現象です。本来 のカシミア効果は、真空中に2枚の金属板を微小に離し て並べることで、光子に起因した内向きに引く圧力が発 生し、板同士が引き合う現象として1948年に理論で予 言され、およそ50年後に実験で観測されました。本研 究の場合にも、磁石内部の圧力はカシミア効果によって 変化し、その磁石の様々な性質を変えています。イット リウム鉄ガーネットでは、カシミア効果が磁気の強さを 変えることが明らかになりました。一方、酸化クロム(III) のカシミア効果では、磁気の強さは変わらないことが分 かりました。これらの性質は、磁石を薄くしたときの磁 気の強さを制御する際に役立つ知見です。

本研究で得られた成果は、まだ理論計算の段階であり、 まずは実験での検証が望まれますが、将来的にはマグノ ンのカシミア効果を制御し工学応用する「カシミアエン ジニアリング」と呼ばれる分野を切り拓くための基礎学 理となることが期待されます。

(鈴木 渓)

●参考文献

Nakata, K., Suzuki, K., Magnonic Casimir Effect in Ferrimagnets, Physical Review Letters, vol.130, issue 9, 2023, 096702, 6p.

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。

原子力発電や医療・工業分野における原子力利用は、 それらの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、分析・計測技術、現象のメカニズムに関わる 知識など共通基盤技術・知識基盤によって支えられてい ます。私たちは常に新技術の創出と最新の知見や技術を 取り込みながら研究開発を行い、国際協力や共同研究を 通じて原子力人材育成を行っています。本章では、近年 の研究開発による成果を紹介します(図1)。

原子力エネルギーの利用においては、核物質の量や同 位体比を推定する必要があります。これまで困難であっ た照射済核燃料中の核物質量を精度良く測定するため、 3 種類の非破壊分析手法を組み合わせて適用できる世界 初の装置 Active-N を開発しました。Active-N によって 得られる知見は、燃料デブリのみならず核セキュリティ 分野での非破壊分析装置の開発などにつながることが期 待されます(トピックス 4-1)。

核反応断面積などの原子核固有の情報を表す核データ は、原子力利用に欠かすことのできない知の基盤データ です。幅広い放射線利用へ対応するため、中性子反応以 外の陽子、重陽子等を含めた原子核反応データの統合を 行い 2021 年 11 月に JENDL-5 として公開しました。放 射線が関わる広い分野で JENDL-5 が利用され、研究開 発が促進されることが期待されます(トピックス 4-2)。

加速器駆動システム(ADS)を用いたマイナーアクチ ノイド(MA)の核変換技術では、高濃度の MA の処理 を可能にするために専用の窒化物燃料サイクルを開発し ています。MA-白金族化合物を用いることで、塩素ガス 等の腐食性ガスを極力使用しないプロセスを提案しまし た。この工程を組み込んだ、MA 回収率の高い乾式再処 理プロセスの開発を進めていきます(トピックス 4-3)。

原子カシステム(原子炉、再処理等)においては、ス テンレス鋼が多く使用されています。ステンレス鋼の使 用環境では、局部(すき間)腐食が問題になる場合があ ります。腐食抑制効果のある金属イオン(Cu²⁺)に注目し、 キレート化(陰イオン化)することで、すき間内部に導 入することが可能となる技術を開発しました。本手法を 活用してより効果的な腐食抑制剤の開発を探求していき ます(トピックス 4-4)。

材料の機械的特性向上のために、合金化は有効なアプ ローチです。しかし、その添加元素の効果をあらかじめ 予想することは極めて困難です。計算科学を活用し、添 加元素によって異なる電子状態を計算し、そこから力学 特性評価を行う手法を開発しました。本手法は、材料開 発を合理的に進めることが可能となり、元素戦略に基づ く材料開発への貢献が期待されます(トピックス 4-5)。

核燃料再処理の分離性能は溶媒抽出における油相と水 相の界面(油水界面)におけるウランの振る舞いで決ま ります。振動和周波発生(VSFG)分光法を用いて油水 界面におけるウランの化学状態を明らかにすることでウ ランの相間移動メカニズムの解明に成功しました。本手 法を活用して革新的なウランの溶媒抽出分離法の開発が 期待されます(トピックス 4-6)。

放射線治療では正常組織への照射が避けられず、正常組 織でがん(2次がん)などの副作用が発生するリスクがあり ます。そのリスク低減のために、正常組織を含む全身の正 確な線量分布を評価するシステム RT-PHITS for CIRT の 開発を行いました。本システムは、世界最多の重粒子線治 療実績を持つ量子科学技術研究開発機構で、過去に実施 した治療の再評価に活用される予定です(トピックス 4-7)。

放射性廃棄物の減容化・有害度低減のために、ADS が注目されています。ADSは、陽子ビームを用いた核 破砕反応中性子を用いて毒性の弱い物質に変換します。 核破砕中性子は様々なエネルギー分布を持ちますが、エ ネルギーの低い領域(100 MeV 領域)において実験デー タが不足していました。今回、低エネルギー領域で起こ る核破砕反応に関するデータを実験によって取得しまし た。本研究で得られたデータや検証結果は、核反応モデ ルの予測精度向上に向けた貴重なデータとなり、ADS の研究開発のみならず陽子ビームを用いた加速器施設の 設計にも貢献すると期待されます(トピックス 4-8)。
原子力基礎工学研究

4-1 アクティブ法による核物質非破壊測定装置の開発 - 3 つの非破壊分析測定を実施できる世界初の装置 Active-N -



図1 3つの非破壊分析技術の測定原理

中性子を照射して核分裂反応や捕獲反応などを引き起こし、中性 子やガンマ線を発生させます。それらを3つの非破壊分析技術で 測ることによって、測定が困難な使用済核燃料などを高精度に分 析します。

原子力発電所で使用された核燃料を再処理する際に は、燃料中のウラン(U)やプルトニウム(Pu)といっ た核物質の量や同位体比を測る必要があります。使用済 核燃料は、核分裂によりできた様々な放射性物質を含む ため組成が複雑で、大量の放射線を放ちます。このよう な使用済核燃料中の核物質の量や同位体比を測る非破壊 分析技術は確立されていませんでした。

この課題を解決するための方法として、私たちは、1つ の D-T 中性子発生管で3つの非破壊分析技術による測 定を実施できる世界初の装置 Active-N を開発しまし た。開発にあたりまず、核物質測定に使える非破壊分析 技術の検討を行いました。図1に示すように、アクティ ブ法(外部から中性子を試料に照射し、核物質との核反 応で誘発される中性子やガンマ線を測定する)である3 つの分析技術の相補的な利用が有効であると分かりまし た。「ダイアウェイ時間差分析法(DDA)」では核分裂 で発生した中性子を捉え、核分裂性核物質の総量を迅 速かつ正確に測ることができます。「中性子共鳴透過分 析法 (NRTA) では試料から透過する中性子を測定し、 核物質の同位体比を得ることができます。しかし DDA や NRTA では、試料に中性子をよく吸収するホウ素 10 やガ ドリニウム(Gd)などの中性子毒物が含まれていると、検 出される中性子量が減少するため測定精度が劣化します。 そこで、「即発ガンマ線分析法(PGA)」により中性子 毒物が中性子を捕獲したときに放つガンマ線を測り、中 性子毒物の量や種類を求め、DDA や NRTA の測定に フィードバックして測定精度を向上させます。このよう にして3つの分析技術が相補的な役割を担うことで、 使用済核燃料などの核物質が高精度に測定できます。 初期の検討において、3つの分析技術をただ組み合わ

 DDA・PGA測定部
 DDA検出器

 約6 m
 PGA検出器

 DT中性子
 PGA検出器

 DT中性子
 発生管

 Active-N裝置全体図 (NRTA測定部から)
 WRTA測定部

 株音除去用検出器
 (即発ガンマ線用

 検出器を囲う)
 人の合の中性子



Active-Nは、3つの非破壊分析を実施できる世界初の装置であり、 今後、核セキュリティ分野での非破壊分析装置の開発などに用い られます。

せるだけでは、3つの測定が互いに干渉して悪影響を及 ぼし、測定精度を大幅に低下させてしまうことが分かり ました。つまり、3つの分析技術を組み合わせた装置を 実現するためには、相互干渉を極力抑えつつ、測定精度 に直結する信号雑音比を向上させなければなりません。 そのため、まずは各測定の干渉を減らすためにシミュ レーションによる検討を繰り返し、装置を構成する全て の機器の材質、形状、重量、配置、検出効率などを詳細 に評価して、互いの測定に悪影響を及ぼさない装置仕様 を決定しました。次に、信号雑音比を向上させるため、 DDA:中性子照射によるガンマ線の発生を抑えたうえ、 ガンマ線にほぼ感度がない(約10⁻⁷)検出器システム、 PGA:2台の検出器を組み合わせることなどによって 高速中性子の影響を抑えた検出器システム、NRTA:中 性子とガンマ線を弁別することでガンマ線の影響をほと んど受けない(99%以上除去)検出器システムをそれ ぞれ開発しました。図2に開発した Active-N を示しま す。こうして各分析技術の性能を十分に高めたことで、 DDA では使用済核燃料を模擬した試料中の核分裂性核 物質の量を短時間で測定できること、PGA では中性子 毒物を短時間で測定できること、NRTA では核物質の同 位体比を測定できることを実証できました。

Active-Nによって得られる知見は、今後、核セキュ リティ分野(計量管理)での非破壊分析装置の開発など につながることが期待されます。

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(2018 年度~2021 年度)の一環 として実施したものです。

(土屋 晴文)

●参考文献

Tsuchiya, H. et al., Development of an Integrated Non-Destructive Analysis System, Active-N, Journal of Nuclear Science and Technology, https://doi.org/10.1080/00223131.2023.2192529.

4-2 多様化するニーズに応える基盤データベースを提供 -最新の核データライブラリ「JENDL-5」を開発-



図1 核データライブラリ JENDL の開発と利用の模式図

核データライブラリ JENDL-5 は、最新測定データと核反応モデル計算の知見を結集したデータベースです。図の右側で紹介している原子力や放射線利用におけるシミュレーション計算の入力データとなります。このようなデータの一例として、中性子のエネルギーに対するウラン 235 の核分裂反応の起こりやすさを中央部分の赤い実線で示しています。シミュレーションでは、このようなエネルギーによって大きく変化するデータの信頼性が重要です。

中性子などの放射線に関するシミュレーション計算は、 現在の原子力の研究開発において大きな役割を果たして います。原子核の核反応や崩壊に関するデータ(核デー タ)は基本的な入力データであり、シミュレーション結 果の信頼性を左右します。核データライブラリは、様々 な核データをシミュレーション計算で扱いやすいように 整備したデータベースです。日本の核データライブラリ JENDLの初版であるJENDL-1 は、1977年に公開され ました。JENDLは当初、高速炉の開発を目的にしてい ましたが、その後、軽水炉や核融合炉、中性子遮蔽など、 原子力開発の基盤を広く支えるものとして拡張されてき ました。2010年に公開された前版のJENDL-4.0では、 MOX 燃料や高燃焼度化への対応のため、マイナーアク チノイドや核分裂生成物のデータを充実させました。

現在、原子力の分野では、新たなイノベーションへ向 けて多様な原子炉の開発が進められる一方、廃止措置や 放射性廃棄物の有害度低減のための研究開発が進められ ています。また、エネルギー分野以外でも、医療などで 放射線利用が広がっています。このような状況のもと、 新たな原子力を含む幅広い放射線利用へ対応するため、 収録データの大幅な拡張、中性子反応以外の陽子、重陽 子、アルファ粒子や光子などによる原子核反応データの 統合を行い、2021年12月にJENDL-5として公開しま した。(https://wwwndc.jaea.go.jp/jendl/jendl.html)

中性子反応データは核データライブラリの中心的な データであり、特に原子炉の特性を計算するために非常 に高い精度のデータが求められます。J-PARC を含む世 界の加速器施設で、多くの中性子反応データが測定され ており、JENDL-5 では、これら最新の測定データの知 見を反映させ、信頼性を向上させました(図1)。一方、 原子炉の廃止措置では中性子による放射化が問題になる ため、原子炉構造物に含まれる微量元素を含めた評価が 望まれます。JENDL-5 では収録する核種の数を大幅に 増やし、795 核種のデータを収録することでこの要請に 応えました。JENDL-1の77 核種の10倍以上、前版 JENDL-4.0の406 核種から見ても2倍近い規模となっ ています。JENDL-5 は天然に存在する全ての核種を網 羅しており、幅広い素材に対するシミュレーション計算 への利用が可能です。

医療を含む様々な分野で、陽子や重陽子、電子など の荷電粒子加速器を用いた放射線利用が進められていま す。これらの荷電粒子と原子核との反応のデータも、放 射線利用の研究開発を進める上で、重要なデータです。 JENDL-5 では、これまでの JENDL において、目的に 応じて個別に提供していたデータを統合し、利便性を向 上させました。また、荷電粒子の一つであるアルファ粒 子は使用済燃料中のアルファ崩壊によって生成され、使 用済燃料からの放射線の発生源となります。JENDL-5 ではこのアルファ粒子のデータに関しても、放出中性子 のエネルギースペクトルに改良を加え信頼性を向上させ ました。

今後、放射線が関わる広い分野で JENDL-5 が利用され、研究開発が促進されることを期待しています。

(岩本 修)

●参考文献

Iwamoto, O. et al., Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 5: JENDL-5, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.60, issue 1, 2023, p.1-60.

4 - 3

MA 核変換用窒化物燃料再処理における MA 回収率の向上に向けて 一腐食性ガスを使わずに白金族化合物中のネプツニウムを塩化物にすることに成功一



図1 MA 核変換用窒化物燃料サイクルの概要 使用済 MA 核変換用窒化物燃料の再処理によっ て MA を分離回収し、回収した MA を用いて製 造した燃料を再び ADS 炉心に装荷します。



図2 使用済 MA 核変換用窒化物燃料の元素 組成: (a) 金属元素組成、(b) FP 元素組成 標準的な ADS 炉心において、800 MWt で 600 日間燃焼し、630 日間冷却した使用済 MA 核変換用窒化物燃料(固体成分)中の原子数 比を計算した結果*です。金属元素成分の 約 2% を占める白金族元素は MA と安定な 化合物を生成することが予想されます。



図3 Np 窒化物と Pd の反応に よって生成した NpPd₃



図4 MA 核変換用室化物燃料中の MA-白金族化合物の生成及び生成した化合物の処理方法の概要

私たちは、放射性廃棄物の減容化・有害度低減のため に、使用済発電用原子炉燃料の再処理によって発生する 高レベル放射性廃液中の元素を分離し、長半減期核種を 核変換する分離変換技術の研究開発を進めています。加 速器駆動システム(ADS)を用いたマイナーアクチノイ ド(MA)の核変換技術では、MAを高い濃度で含む核 変換専用の窒化物燃料(MA 核変換用窒化物燃料)を使 用しますが、燃料安全性の観点から、炉心内で一度に核 変換できる MA の割合は 20% 程度が限度とされていま す。そこで、より多くの MA を核変換するために、使用 済 MA 核変換用窒化物燃料から MA を分離回収し、回収 した MA を用いて製造した燃料を ADS 炉心に装荷して 核変換することを繰り返す燃料サイクル技術の確立を目 指しています(図 1)。

図2に使用済 MA 核変換用窒化物燃料の元素組成の計 算結果を示します。この使用済燃料中には、核変換によっ て生成した核分裂生成物(FP)を含む MA-FP 化合物 ができることが予想されます。燃料再処理における回収 率を大きくするためには、安定な MA-FP 化合物からも MA を回収することが必要です。私たちが研究開発を進 めている乾式再処理法では、アルカリ金属塩化物からな る溶融塩浴中に MA を溶解して、分離回収を行います。 この塩素化溶解工程においては、設備や装置の腐食の原 因となる塩素ガス等の腐食性ガスを極力使用しないこと を目指しています。 本研究では、MAの一つであるネプツニウム(Np)を 用いて高温反応試験を行い、反応生成物を粉末 X 線回 折法によって同定しました。この結果、Np 窒化物と FP の一つで白金族元素に分類されるパラジウム(Pd)の 1323 K での反応によって NpPd₃ が生成することを確認 しました(図 3)。また、NpPd₃ と塩素化剤である塩化 カドミウム(CdCl₂)の673 K での反応によって Np 塩化 物と副生成物である Pd-Cd 合金が生成することも確認 しました。

これらの結果は、MA 核変換用窒化物燃料中に NpPd。 のような MA-白金族化合物が生成する可能性が高いこ と、及び腐食性ガスを使わずに、この化合物中の MA を 塩化物にできることを示しています。MA の塩化物は溶融 塩浴中に容易に溶解して MA 含有溶融塩浴が得られるた め、これを乾式再処理プロセスに利用する方法を提案し ています(図 4)。今後は、この方法を取り入れた、MA 回収率の高い乾式再処理技術の開発を進めていきます。

本研究は、文部科学省原子カシステム研究開発事業 「安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃 料サイクルに関する研究開発」における成果を含みます。 (林 博和)

●参考文献

Hayashi, H. et al., Formation of MPd_{3+x} (M=Gd, Np) by the Reaction of MN with Pd and Chlorination of MPd_{3+x} Using Cadmium Chloride, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, vol.332, issue 2, 2023, p.503–510.

^{*} Tateno, H., Hayashi, H. et al., Material Balance Evaluation of Pyroprocessing for Minor Actinide Transmutation Nitride Fuel, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.57, issue 3, 2020, p.224-235.

4-4 キレート法を応用した新規腐食抑制手法を開発 - EDTA を利用した金属イオン導入によりすき間腐食を抑制-



図1 (a) すき間腐食断面模式図、(b) [Cu(EDTA)]²⁻構造式、(c) [Cu(EDTA)]²⁻によるすき間腐食発生抑制効果 すき間腐食潜伏期間及び進展期間において、ステンレス鋼から溶け出した金属イオンの加水分解により H⁺ が生じることですき 間内部の pH が低下します。この際、電気的中性を保つためにすき間内部へ陰イオンの泳動が生じます。すき間腐食の抑制には すき間外部に腐食抑制作用を有する陰イオンを添加することが有効であることが知られています^{*1,2}。陽イオンである Cu²⁺ は エチレンジアミン四酢酸 (EDTA) とキレート錯体を形成し、中性溶液中では陰イオンである [Cu(EDTA)]²⁻として存在します。 [Cu(EDTA)]²⁻を NaCl 溶液に加えた結果、SUS 316L のすき間腐食発生が抑制されました。 [Cu(EDTA)]²⁻は陰イオンであるため すき間内部へ泳動し、すき間内部の低 pH 環境において Cu²⁺ と [H₂(EDTA)]²⁻に分離し、すき間腐食を抑制します。

ステンレス鋼の腐食抑制策の一つとして耐食性を向上 させる金属を添加する手法がありますが、銅(Cu)を 添加した合金は比較的安価でかつ腐食成長を抑制する能 力が高いことで注目されています。一方 Cu 添加は腐食 発生リスクを高めることが知られており、課題解決が 望まれています。本研究では、Cu を腐食抑制剤として 溶液中に添加することで腐食発生リスクを増加させずに Cu による腐食抑制作用を発揮することを目指しました。 図1(a)に示すようにすき間内部へのイオンの移動は 電気的中性を保つための陰イオンの泳動が支配的であ り、Cu²⁺のような陽イオンの導入は困難です。そこで、 低pH環境で分解する性質を持つ Cu²⁺ と EDTA のキレー ト錯体である [Cu(EDTA)]²⁻(図1(b))を用いることで すき間内へ直接 Cu²⁻を導入するキレート法に着目し、新 たなすき間腐食抑制方法の確立を目指しました。

SUS 316L ステンレス鋼で作製した試験片を用いて 10 mM (mol L⁻¹)の [Cu(EDTA)]²⁻を溶液中に添加した 0.1 M NaCl 溶液ですき間腐食試験を行った結果を図 1 (c) に示します。0.1 M NaCl 及び 10 mM の Cu²⁺を溶液中 に添加した 0.1 M NaCl の場合と比較して、すき間腐食発 生による電流値上昇までの時間が遅延していることから、 すき間腐食の発生が抑制されることが分かりました。こ のことから、溶液中に添加した Cu²⁺ はすき間内部へ泳動 せず、 $[Cu(EDTA)]^2$ のみがすき間内部へ泳動し、腐食発 生を抑制したと考えられます。また、すき間内部へ泳動し た $[Cu(EDTA)]^2$ は Cu^{2+} を分離する際、すき間内部に生 成する H⁺ と反応します。この反応により、 $[Cu(EDTA)]^{2^-}$ が H⁺ を消費することですき間内部の pH 低下量が減少 したことに加え、分離された Cu^{2+} の腐食抑制作用によ りすき間腐食発生が抑制されたと予想されます。

本研究により、キレート法を用いることにより、腐食 抑制効果のある金属イオンのすき間内部への導入が可能 となることが分かりました。今後は、すき間腐食に対し てより効果的な腐食抑制剤の開発を目指して金属イオン とキレート剤の組合せを探求していきます。

本研究は、日本学術振興会科学研究費研究活動スター ト支援(JP19K23581)「キレート化導入法を用いたス テンレス鋼の局部腐食に対する新規腐食抑制技術の構 築」の助成を受けたものです。

(青山 高士)

●参考文献

Aoyama, T. et al., Introduction of Cu^{2+} to the Inside of the Crevice by Chelation and Its Effect on Crevice Corrosion of Type 316L Stainless Steel, Corrosion Science, vol.210, part 2, 2023, 110850, 10p.

^{*1} Aoyama, T. et al., *In Situ* Monitoring of Crevice Corrosion Morphology of Type 316L Stainless Steel and Repassivation Behavior Induced by Sulfate Ions, Corrosion Science, vol.127, 2017, p.131-140.

²² Aoyama, T. et al., NH₄⁺ Generation: The Role of NO₃⁻ in the Crevice Corrosion Repassivation of Type 316L Stainless Steel, Journal of the Electrochemical Society, vol.166, no.10, 2019, p.C250-C260.

4-5 計算科学を用いて合金の強度を評価する -元素戦略による電子状態計算に基づく合金設計-



図1 転位運動のエネルギーと転位芯構造 BCC 金属の力学特性はらせん転位の運動に基づいて決ま ります。そのため、らせん転位の構造を原子モデルを用い て再現し、電子状態に基づくシミュレーションから、転位 運動のエネルギーを評価することができれば、計算のみで 強度などの力学特性を予測することが可能になります。



図2 (a) 転位と合金元素の相互作用と(b) 濃度 c によって変化する強度と温度の関係 タングステンの転位と多様な遷移金属元素との相互作用エネルギーを計算しました。負号は引力相互作用を示しており、多くの元素が転 位を引きつける効果を持つことが分かります。ただし、その大きさは元素の種類によって大きく異なり、周期表の族によって類似の傾向 を示します。これは、転位との相互作用が電子の結合状態によって決定されることを意味します。さらに、このような相互作用によって マクロな強度特性が大きく変化することが分かりました。

構造材料の力学特性は、欠陥構造の動的挙動によって 決定されます。とりわけ金属材料の変形では、すべり変形 を司る線上の欠陥(転位)の運動が金属材料の強度や延 性などの力学機能を決める最も重要な因子となります。 合金化は、力学機能向上の有効なアプローチですが、添 加される元素の効果をあらかじめ知ることは困難です。そ のため、今日まで様々な合金系が開発されてきたものの、 経験的な知見に基づき設計されています。今後の高度に 制御された材料開発において、経験や勘に頼らない、材料 種によらない包括的な材料設計指針が望まれてきました。

本研究では、合金系の力学機能の起源を電子構造に起 因した転位芯(転位周りの原子がひずんだ部分)の特性 から捉えることを目的とし、元素によって異なる電子状 態を考慮した力学特性の評価を実現するための電子状態 計算による欠陥構造解析と、それを用いた力学特性評価 の方法を検討しました。

図1は、核融合炉用構造材料としての応用が期待され ている体心立方格子(BCC)構造を持つタングステンの らせん転位が運動する際のエネルギー障壁と様々な位置 にある転位芯の構造を示しています。一般に BCC 構造 の転位は Hard(極大値)と Split(最大値)の間にある鞍 点を通って運動することが確認されます。このとき、合 金元素が添加されると、転位との相互作用とエネルギー 障壁を変化させますが、これがマクロな力学特性にどの ように影響するのかを考えます。BCC 合金のらせん転 位の運動が熱活性化過程であることを考慮して、マクロ な力学特性と関連付けます。ここで、力学応答は材料に 含まれる転位の数と、転位の運動で表すことができます。 この転位の運動は熱活性化過程なので、エネルギー障壁 によって記述され、その基礎となる、転位と合金元素の 相互作用について第一原理計算を用いて評価した結果が 図 2 (a) になります。ここで、3d ~ 5d までの遷移金属 を対象として体系的に解析しました。d 電子の状態の変 化によって系統的に変化することから、転位と合金元素 の結合に電子構造が大きく寄与することが確認されまし た。図2(b)は、熱活性化過程に基づく力学モデルから 予測される強度の温度の関係を示しています。Re は濃 度と温度によって複雑に強度が変化することが分かりま すが、これが、実験で観察される固溶軟化と呼ばれる現象 に対応しています。すなわち、合金元素を混ぜると通常は 強度が高くなりますが、一部の元素は柔らかくなります。 このような現象は、転位と合金元素の電子状態に起因す る特殊な状況を考慮して初めて分かったものです。このよ うに、計算機シミュレーションを用いた力学特性評価は、 合金開発にかかる時間やコストを大きく削減できるととも に、新材料の開発にも貢献できることから、今後の元素戦 略に基づく材料開発への貢献が期待されています。

本研究は、科学技術振興機構(JST)の戦略的創造研 究推進事業 さきがけ(JPMJPR1998)「転位芯の局所自 由度を有する力学理論に基づく新奇機能の創出」の支援 を受けたものです。

(都留 智仁)

●参考文献

都留智仁, 電子構造解析に基づく転位運動のモデリングとナノスケールの力学問題への応用, 材料, vol.71, no.8, 2022, p.660-665.

4-6 アクチノイド重元素が水と油の間を移動するメカニズム -振動和周波発生分光法による溶媒抽出界面の分子構造研究-



図1 振動和周波発生 (VSFG) 分光測定のイメージ 油相と水相の界面に可視パルス光(振動数 ω_1)と赤外パルス光(振 動数 ω_2) を入射し、界面から新たに発生する和周波光(振動数 $\omega_1 + \omega_2$) を検出します。



超短パルスレーザーの強い光電場印加によって物質 から発生する光を計測する振動和周波発生(VSFG)分 光法は、気相や液相など異なる2つの相が接触した境界 領域(界面)に存在する分子の構造を明らかにできる先 進的なレーザー分光法です。これまでVSFG分光法に よってアクチノイドなどの核燃料物質や放射性同位体を 測定できる実験環境が整った研究機関は、国内外を問わ ずありませんでした。本研究では、VSFG分光装置を世 界で初めて放射線管理区域内に構築することによって、 アクチノイドの代表であるウランの溶媒抽出分離法にお ける油相と水相の界面(油水界面)の分子構造の情報を 得ることができるようになりました。今回構築した装置 を用い、ウランが油水界面をどのように通過するのかと いう、ウランの相間移動メカニズムを明らかにしました。

VSFG 分光測定(図 1)では、油水界面に可視光と赤 外光を入射し、界面から新たに発生する光(和周波光)を 検出しました。図 2 に今回使用した抽出試薬の POO⁻官 能基に由来する VSFG 分光測定データを示しています。 ウランを水相または油相に溶かすと、信号ピーク位置が 1100 cm⁻¹(一)から 1125 cm⁻¹(一)にシフトし ました。量子化学計算プログラム(Gaussian)を使っ た解析の結果、このシフトは抽出試薬 1 分子の POO⁻



図2 VSFG 分光測定データ

油相に抽出試薬(ジ(2-エチルヘキシル)リン酸)、水相にウラン(ウ ラニルイオン)が溶けた界面の測定結果です。抽出試薬のPOO⁻ 官能基の2つのP-O結合が対称的に伸び縮みする振動(対称 伸縮振動)による信号が観測されています。界面でウランが抽 出試薬と結合していることを示しています。

図3 ウランの相間移動反応モデル

ウランは水相中と油相中それぞれで全く異なった化学状態 で存在していますが、界面で両相の中間的な化学状態に変 化することによって界面を通過することができ、油相と水 相の間を自由に行き来できるというモデルです。

基の酸素原子2個が油水界面においてウラニルイオン (UO₂²⁺)のウラン原子に結合したことに起因している と確認されました(図 3)。

ウランは水相中で水和イオン、油相中で抽出錯体を 形成していることが知られていますが(図3)、両相中 で全く化学状態が異なるにも関わらず、ウランは界面を どのようにして通過するのか分かっていませんでした。 本研究結果は、ウランが界面で抽出試薬と図3の分子 構造を形成することによって、油相と水相の2相間を 移動することを示しています。

抽出の際、ウランは必ず界面を通過するので、界面 は溶媒抽出の重要な反応場であることは明らかです。今 後、界面反応の解明を進めることによって、これまでに 無い革新的なウランの溶媒抽出分離法の開発が期待され ます。

本研究は、日本学術振興会科学研究費若手研究(B) (JP17K14919)「液液界面で起こる溶媒抽出機構の解明 とそれに基づいた核分裂生成物の分離法の開発」、基盤 研究(C)(JP20K05388)「放射性物質の固体表面にお ける吸着状態と移動性の関係の解明」の助成を受けたも のです。

(日下 良二)

●参考文献

Kusaka, R. et al., Development of Heavy Element Chemistry at Interfaces: Observing Actinide Complexes at the Oil/Water Interface in Solvent Extraction by Nonlinear Vibrational Spectroscopy, The Journal of Physical Chemistry Letters, vol.13, issue 30, 2022, p.7065-7071.

4-7 重粒子線治療の全身被ばく線量評価システムが完成 - 過去の重粒子線治療の症例から学び、未来の放射線治療に活かす-



図1 従来の線量計算方法(a)とRT-PHITS for CIRT(b)で評価した人体模擬ファントム内の線量分布の比較例 従来の線量計算方法ではビーム軸周辺の分布しか評価できていないのに対し、RT-PHITS for CIRTでは全身の分布を評価で きています。"+"印が照射中心(100%)を示し、その周囲のピンク色で囲んだ領域が腫瘍領域となります。



図2 RT-PHITS for CIRT の役割のイメージ図 過去に実施した治療の再評価に用い、評価結果を治療後の疫学データと組み合わせることで、2次がんなどの副作用の発生の仕組み の理解につながります。

放射線治療では治療を行う腫瘍領域以外の正常組織 への照射を完全に無くすことはできず、正常組織でがん (2次がん)などの副作用が発生するリスクがあります。 2次がんなどの確率的に非常に低い割合で起きる副作用 の原因を究明するには、患者体内の詳細な被ばく線量分 布を基に、臓器ごとの被ばくがどの程度で、それにより 副作用がどれくらい発生しているのかを膨大な数の患者 に対して調べる必要があります。炭素イオンを光速の約 70%まで加速し、患者の体外から腫瘍に向けて照射す る重粒子線治療では、従来のX線治療に比べて2次がん の発生率が有意に低いとの報告があります。しかし、治 療部位から離れた正常組織への被ばく線量を調べるシス テムがなく、統計的に十分な症例データを用いた定量的 な評価がされていませんでした。

そこで、原子力機構と量子科学技術研究開発機構(量研) では重粒子線治療における治療部位から遠く離れた正常 組織を含む全身の正確な線量分布を評価するシステム RT-PHITS for CIRTの開発を行いました。本システムは、 重粒子線治療の治療計画データから照射装置の部品配置 や患者 CT 画像を抽出し、治療時の重粒子線照射状況を シミュレーションで再現します。シミュレーションには、 原子力機構が中心となって開発したモンテカルロ放射線 挙動解析コード PHITS を用い、照射装置や患者体内で の重粒子線の挙動とこれらの物質との核反応で生じる2 次粒子の挙動を正確に再現します。これにより、従来は十 分に考慮できなかった2次粒子からの被ばくを含めて患 者全身の詳細な線量分布の評価を実現しました(図1)。

本システムは、世界最多の重粒子線治療実績を持つ量 研で、過去に実施した治療の再評価に活用される予定で す。評価結果を治療後の疫学データと組み合わせること で、2次がんなどの放射線治療後の副作用と被ばく線量 の相関関係を明らかにすることができます(図2)。さらに 本研究によって、重粒子線治療の2次がん発生率の低い 理由や放射線治療における副作用の発生の仕組みの究明 を目指します。これを実現することで、将来的な副作用 の発生リスクの低減を考慮した画期的な放射線治療計画 の策定が期待できます。

本成果は原子力機構と量子科学技術研究開発機構との 共同研究による成果であり、共同プレス発表後に雑誌記 事*でも紹介しています。

(古田 琢哉)

* 古田琢哉, 重粒子線治療の全身被ばく線量評価システム RT-PHITS for CIRT の開発, Isotope News, no.787, 2023, p.20-23.

●参考文献

Furuta, T. et al., Development of the DICOM-Based Monte Carlo Dose Reconstruction System for a Retrospective Study on the Secondary Cancer Risk in Carbon Ion Radiotherapy, Physics in Medicine & Biology, vol.67, issue 14, 2022, 145002, 15p.

4-8 核破砕反応で放出する中性子を測る - 核反応モデルによる予測精度向上に向けて-



図1 実験体系

FFAG 加速器で作られた 107 MeV の陽子ビームを真空容器内の 標的に照射し、標的から放出する中性子のエネルギー分布を測 定します。

原子力発電所の使用済燃料は、数万年という長期間 にわたって放射性毒性を持ちます。この毒性を低減す るシステムとして、加速器駆動核変換システム(ADS) が注目されています。ADSは、高エネルギーの陽子ビー ムを標的に照射することによって起こる核破砕反応で発 生する中性子を利用して、放射性毒性の強いネプツニウ ムやアメリシウムなどの物質を毒性の弱い物質に変換し ます。ADSの設計では、核破砕反応で標的から様々な 方向に放出する中性子のエネルギーと強度を精度良く予 測する必要があります。

核破砕反応による中性子の挙動を予測するため、こ れまで様々な核反応モデルが開発されてきました。これ らのモデルは、数百 MeV 以上の高いエネルギーで起こ る核破砕反応で放出する中性子の挙動を高い精度で予測 することができますが、エネルギーが低くなるほど予測 精度が悪くなると考えられています。ところが現状では、 100 MeV 領域において実験データが不足しているため、 核反応モデルの精度を十分に検証することができません でした。そこで本研究では、このエネルギー領域で起こ る核破砕反応に関するデータを実験によって取得し、核



図2 鉛標的からある角度方向に放出する中性子のエネルギー分 布の実験値と3種類の核反応モデルによる解析値との比較 現状の核反応モデルはいずれも、10 MeV 以上で放出する中性子 の予測に課題があることが分かりました。

反応モデルの検証を行いました。

この実験では、京都大学複合原子力科学研究所の固 定磁場強収束(FFAG)加速器を用いました。FFAG加 速器で作られた 107 MeV の陽子ビームを真空容器内の 標的に照射し、標的から放出する中性子のエネルギー分 布を、ビーム進行方向に対して幅広い放出角度で測定し ました(図1)。標的には、ADSの設計で重要な鉄、鉛 及びビスマスを用いました。測定で得られた中性子のエ ネルギー分布と核反応モデルで解析した値を比較した結 果、現状の核反応モデルでは、10 MeV 以上で放出する 中性子の予測に課題があることが分かりました(図2)。

本研究で得られたデータや知見は、核反応モデルの 予測精度向上に向けた貴重なデータとなり、ADSの研 究開発のみならず陽子ビームを用いた加速器施設の設計 にも貢献すると期待されます。

本成果は文部科学省受託研究「原子カシステム研究 開発事業(JPMXD0219214562)、研究課題名:FFAG 陽子加速器を用いた ADS 用核データの実験的研究」に おいて得られたものです。

(岩元 大樹)

●参考文献

Iwamoto, H. et al., Measurement of 107-MeV Proton-Induced Double-Differential Thick Target Neutron Yields for Fe, Pb, and Bi Using a Fixed-Field Alternating Gradient Accelerator at Kyoto University, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.60, issue 4, 2023, p.435-449.

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・イノベーション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 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





ジェング JRR-3 図1 中性子及び放射光利用研究を展開する施設

SPring-8

(2)物質科学研究センターでの研究開発

J-PARC センターでの研究開発

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 で安定な運転のために不可欠なビームロスの低減に関し て、リニアックにおけるビームロスの一因である加速途 中の負水素イオンが水素原子に替わる事象が起きるメカ ニズムを解明しました(トピックス 5-1)。この結果を 元に、ビームロスの更なる低減のための対策を検討して いく予定です。

MLF では入射陽子のビーム出力を前年度の 700 kW から 830 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 144 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、世界の中性子実験施設の中でも最高圧力となる 21 GPa を加えることができる 先導的な実験環境を整備し、蛍石型構造を持つ水素化物(ZiH₁₈、TiH₁₈₄)では、高圧環境下で水素原子の方が金属格子の収縮に比べて優先的に収縮することを明らかにしました(トピックス 5-2)。この高圧実験環境を用いて、今後、様々な物質の高圧下での特性を調べる研究が展開されることが期待されます。

また、中性子回折による強磁場下での物質の磁気構造 評価に関する先導研究に役立てるために、銀銅合金のワ イヤーをコイルに採用し、30 T を超える強磁場を発生 できる独自の小型パルスマグネット装置を開発しました (トピックス 5-3)。MLF で供給される世界最高強度の 中性子パルスを利用し、磁性体の新しい磁気特性の探究 が進むことが期待されます。 物質科学研究センターは、JRR-3 と SPring-8 (原子力 機構専用ビームライン)の実験装置の運用を担うとともに、 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。2022年9月に SPring-8 RI 実 験棟での核燃料物質の使用許可を原子力機構として取得 したことにより、東京電力福島第一原子力発電所の実燃料 デブリに対する放射光分析を今後展開していく計画です。

中性子利用研究では、磁性元素が持つ磁気の大きさ を正確で簡便に評価する新たな手法を開発しました (トピックス5-4)。極低温下の中性子回折実験により、 磁性元素の電子由来の磁気に加えて原子核由来の磁気も 観測できますが、本手法は、この原子核磁気が正確に 計算できることを利用して、電子磁気を評価するとい うものです。実際に、ネオジム化合物 Nd₃Pd₂₀Ge₆ に適 用してネオジム元素の磁気の評価に成功しました。ま た、充電中の全固体リチウム蓄電池中のリチウムイオ ンの動きをリアルタイムで捉えることに成功しました (トピックス 5-5)。熱中性子と⁶Li による(n, α)反応 で発生する α 線とトリチウムのエネルギーを測定するこ とで、電池内のリチウムイオンの位置を可視化したもの です。今後の全固体電池開発の加速が期待されます。

放射光利用研究では、使用済核燃料中の放射性元 素を分離回収する新手法の原理実証に成功しました (トピックス5-6)。本成果は、使用済核燃料に含まれる 元素の中から、特に有害であるアメリシウムをレーザー 光を使って選択的に酸化させることによって抽出分離す ることに成功した成果であり、放射性廃棄物処分の負担 軽減化に貢献することが期待されます。また、半導体 デバイスの性能制御の鍵を握るシリコン酸化膜の成長 過程について、界面欠陥とキャリア(電子、正孔)捕 獲が関与する酸化反応メカニズムを明らかにしました (トピックス5-7)。本成果は、半導体デバイスの省電力 化、信頼性向上、高密度集積化による小型化といった応 用展開につながることが期待されます。

5-1 大強度負水素イオンビームの損失原因を探る - 残留ガスとの衝突で電荷を失った中性ビームを観測-



図1 MEBT2 に設置した H⁰ 粒子診断系

H⁻ビームにシケイン軌道を描かせることにより、偏向電磁石2と3 の間で、H⁰粒子とH⁻ビームを左右に分離します。H⁰粒子が分布す るビーム軸上にグラファイト板を挿入し、H⁰粒子が衝突することで 発生する二次放射線を、シンチレータとPMTを用いて検出しました。



図3 MEBT2 で測定された H⁰ 粒子の x 方向強度分布 グラファイト板の挿入量を x 方向にスキャンしたときの、それぞれ の位置での PMT 信号の時間積分値から、H⁰ 粒子の x 方向強度分 布が得られます。

大強度ビーム加速に伴うビーム損失は、たとえそれが ほんのわずかなものであっても、加速器機器の放射化を 引き起こします。そのため、作業者の被ばく低減等の観 点で、ビーム損失は大強度加速器における重要な課題と なっています。J-PARCリニアックでは、大強度の負水 素イオン(H⁻)ビームを機能分離型ドリフトチューブ リニアック(SDTL)で191 MeVまで加速した後、環 結合型リニアック(ACS)で400 MeVまで加速してい ます。加速途中のH⁻は主に次のような原因で電子を失い い(電子ストリッピング現象)、制御不能な水素原子(H⁰) になるためビーム損失を引き起こします。

- H⁻ビームとビームライン上の残留ガスとの衝突に
 起因する残留ガスストリッピング
- ・高周波バンチ内でのH⁻イオン同士の衝突に起因する高周波バンチストリッピング

 外からの電場・磁場に起因するフィールドストリッピング これらは負イオンリニアックに特徴的なビーム損失要因 であり、ビーム損失の低減にはその詳細な調査が不可欠 となりますが、その方法が確立していませんでした。

そこで私たちは、電子ストリッピングに起因するビーム 損失要因を調べるため、SDTL と ACS の間の第2中エネル



図2 検出された PMT 信号の例

SDTL部のイオンポンプを停止して、MEBT2より上流の区間の圧力 を上昇させたときの PMT 信号の例です。ケース0は、通常の真空 状態で、ケース1、ケース2の順に残留ガス圧力を上昇させています。

ギービーム輸送部 (MEBT2) に専用の H⁰ 粒子診断系を設 置し(図1)、H[®]粒子の相対強度を測定しました。この診断 系では、ビームライン上の H⁰ 粒子を H⁻ビームから分離し、 グラファイト板に衝突させて得られる二次放射線をシンチ レータと光電子増倍管 (PMT) で検出します。MEBT2 の上 流側にある SDTL 部の残留ガス量を変化させて PMT 信号 を測定すれば、ガスストリッピングによる H⁰ 粒子の発生分 のみを評価できます。検出された PMT 信号の例を図2に、 測定した H⁰ 粒子の水平 (x) 方向強度分布を図3に示しま す。解析の結果、通常運転状態において MEBT2 で検出さ れた H[®] 粒子の約半分は、SDTL 部の残留ガスストリッピン グで生成されたものであることが分かりました。残りのH^o 粒子については、電子ストリッピング断面積を用いた計算 により、主に高周波バンチストリッピングによって発生した ものと推定されました。一方 ACS 部では、残留ガス圧力が SDTL 部より一桁低いため、電子ストリッピング損失は主に 高周波バンチストリッピングに起因することが分かりました。 本研究は、SDTL セクションの残留圧力をさらに改善 することが、ビーム損失軽減のために有効であることを 示すものです。

(田村 潤)

●参考文献

Tamura, J. et al., Measurement of H⁰ Particles Generated by Residual Gas Stripping in the Japan Proton Accelerator Research Complex Linac, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, vol.1049, 2023, 168033, 7p.

5-2 世界最高圧力下での中性子非弾性散乱実験に成功 - 21 万気圧での金属水素化物の水素振動励起を観測-



図1 (a) 金属水素化物の結晶構造、(b) 観測された波数-エネル ギーマップと結晶格子間に閉じ込められた水素の振動励起との関係 波数-エネルギーマップは、結晶格子中の水素の振動を反映します。 エネルギー遷移がとびとびで等間隔なのは、水素が金属格子中で量 子的に振動していることを示しています。

金属中の水素は、元の金属の性質を大きく変えるため、 基礎科学や産業応用の観点から重要です。また金属水素 化物は、夢の「室温超伝導」の最有力候補として、近年 盛んに高圧研究が行われています。その超伝導の発現を 担うのは、伝導電子と格子振動の相互作用であり、より 高い超伝導転移温度を持つ物質を実現するためには、高 圧下の水素の振動状態を知ることが重要となっています。

水素の非干渉性散乱を利用した中性子非弾性散乱は、 金属中の水素の振動状態を調べるのに大変有力な手法で す。しかしながらその信号の弱さから、測定可能な圧力 範囲は、これまで3万気圧に限られていました。その ため金属格子を大きく圧縮することができず、水素振動 の顕著な圧力変化を見ることはできませんでした。本研 究では、これを実現するために新たな装置を開発し、中 性子非弾性散乱としては世界最高となる21万気圧での 実験に成功しました。

実験は J-PARC の BL01 に設置された 4 次元空間中 性子探査装置「四季」及び BL21 に設置された高強度 全散乱装置「NOVA」で行われました。小型でも高荷 重を印加できるパリーエジンバラプレスを用い、蛍石型 構造(図1(a))を持つ ZrH_{1.8} 及び TiH_{1.84} を加圧しまし た。これらの物質では、金属原子はほぼ理想的な fcc 格 子をとっており、水素原子は四面体空隙(図1(a)の点 線)に位置しています。その中で水素は、理想的な調和 振動(復元力が変位に比例する振動)をします。図1(b) に実験で得られた波数(Q) —エネルギー(E) マップ と水素の振動励起との関係を示します。Q-Eマップは、



図2 励起エネルギーの金属-水素原子間距離依存性 原子間距離が小さくなると、局所ポテンシャルの形状が狭く なるので、エネルギー準位の間隔が広がり、第一励起エネル ギーは増大します。高圧下(〇、〇)では、同じ結晶構造を 持つ他の金属水素化物の常圧下のトレンドよりも、急峻に立 ち上がります。(APSの許可を得て参考文献より転載)

水素の量子的な振動のため、励起エネルギーは離散的に なっており、またポテンシャル形状が放物線であること を反映して、エネルギー間隔は、ほぼ等間隔になって います。これを加圧すると、第一励起エネルギー E_1 は、 圧力とともに直線的に増大することが分かりました。調 和振動を仮定すると、水素原子の波動関数の広がり Δx と E_1 の間に $(\Delta x)^2 = \hbar^2/2ME_1$ (*M*はプロトンの質量) の関係があるため、 E_1 から Δx を知ることができます。 観測された圧力による E_1 の増大は、水素原子が加圧に より、収縮していくことを示しています。また、その割 合は金属格子の収縮量に比べて大きく、水素原子が優先 的に収縮することが分かりました。

図2に、金属一水素原子間距離 d_{M-H} に対する E₁ の変 化を、常圧下で金属元素を置換したときの変化と比べた ものを示します。加圧による d_{M-H} の減少に伴う E₁ の上 昇は、金属元素を変えたときの変化に比べ急峻であるこ とが分かります。これは金属元素の置換による擬似的な 圧縮(化学圧力)に比べて、加圧による圧縮(物理圧力) が、より直接的にポテンシャル形状に影響を与えるため と考えられます。また、これまで述べた二つの結果はど ちらも、金属原子のイオンコアが水素原子に比べて圧縮 されにくいことで説明ができます。

今回開発した手法は、水素の非干渉性散乱のみならず、 他の散乱や物質にも適用できるため、今後、様々な物質 の高圧下のダイナミクス研究に有用であると考えられます。 (服部 高典)

●参考文献

Hattori, T. et al., Hydrogen Vibration Excitations of $ZrH_{1.8}$ and $TiH_{1.84}$ Up to 21 GPa by Incoherent Inelastic Neutron Scattering, Physical Review B, vol.106, issue 13, 2022, 134309, 9p.

5-3 パルス超強磁場下での中性子回折実験の実現 - 30 テスラ以上の強磁場パルスマグネットシステムの開発-



図1 開発したパルスマグネット装置の構成図

パルスマグネットはコイルの中心に磁場をパルス的に発生させる 装置です。中性子ビームが試料に入射・散乱できる構造にするた めに、コイルの中心に設置する試料はサファイアロッドに取付け、 冷凍機を用いて熱伝導で4Kまで冷却する構造としました。コイ ルと試料の間は真空で熱絶縁して、コイルを液体窒素で冷却する 構造にしました。

これまで強磁場下において磁化、電気抵抗、比熱、電 子スピン共鳴(ESR)、及び核磁気共鳴(NMR)といっ た様々な測定技術の開発が進んできており、強磁場は物 性研究において必要不可欠な環境になっています。これ らの技術は主に世界に多数ある、いわゆる強磁場施設に おいて発展してきました。一方、強磁場を利用した中性 子散乱実験は磁気構造を直接決定できるため、強磁場に より誘起される相の起源に関する知見を得ることができ る等の特徴があり、物性研究において非常に重要な方法 であると認識されています。原子炉型中性子散乱施設で は定常的に中性子が発生するため定常的に磁場を発生さ せる装置が有効ですが、中性子線施設では超電導磁石で は最大17Tまでの装置しかありません。一方、20T以上 の定常磁場を発生させるためには非常に高価な大型装置 が必要になります。例えば、ドイツの原子炉型中性子線施 設には、最大 26 T まで発生可能な装置が設置されていま したが、4 MW の電力が必要で非常に大規模な装置です。

しかし、J-PARC の大強度パルス中性子ビームの利用 が可能になったことで、ユーザーから J-PARC にもパ ルス型強磁場装置を導入して欲しいという声が寄せられ ました。パルス磁場であれば大規模な電力は必要なく、 装置の小型化を同時に達成可能です。そこで、開発者の グループでは 30 T 以上の強磁場を発生可能なパルスマ グネット装置の開発を進めました。複数のビームライン にも移動可能な装置にするため小型・可搬型の装置とし



図2 回折した中性子の到達時間とパルス磁場の時間変化 TOF(<u>Time of Elight</u>)は、中性子源から発生した中性子が試 料により回折し、検出器に到達するまでの中性子の飛行時間で す。緑線はパルス磁場の時間変化です。青色は中性子が試料を 通過するタイミングに合わせて最大値30Tのパルス磁場を印加 した場合、赤色は磁場を印加しなかったときの中性子の検出時 間分布です。これらの検出時間分布のピーク位置は、結晶のあ る面間隔に対応します。

ました。図1に開発したパルスマグネット装置の構成図 を示します。開発したコイルには30T以上の強磁場を発 生しても壊れない、抵抗値が低く剛性が高い銀銅合金ワ イヤーを用いました。

本装置を用いて中性子回折実験を行いました。試料に はマルチフェロイック物質(TbMnO₃)を用いています。 この物質は約30Tの強磁場下で結晶構造がわずかに変化 することが知られています。本装置を用いて、この変化 を確認した実験結果の例を図2に示します。このように、 磁場の有無により中性子が試料で回折して検出器に到達 するピーク時間がわずかに(約0.15 ms)変化すること が明確に観察されました。これは強磁場下で結晶構造が 変化したことを意味します。

本装置は、J-PARCで使いやすい装置にするため、マ グネット本体だけでなく、パルス電源、コントローラー など全ての装置を自ら設計・開発し、組立ても行いました。 よって、今後の改良も高い自由度で行うことができます。

ユーザーから、さらに強磁場での試料の結晶構造の変化を 確認したいと要望が寄せられ、段階的に強磁場化を進めて います。これまで35Tまで最大磁場を上げることに成功し、 結晶構造の変化を測定する中性子実験に成功しました。 現在では、中性子線施設の試料環境機器としては最大級 である40Tの磁場強度を目指した改良を進めています。 本研究は、東北大学との共同研究の成果の一部です。 (渡辺 真朗)

●参考文献

Watanabe, M. et al., Automated Pulsed Magnet System for Neutron Diffraction Experiments at the Materials and Life Science Experimental Facility in J-PARC, Quantum Beam Science, vol.7, issue 1, 2023, 10p.

5-4 原子の磁気を原子核の磁気と比べて測る - 強い磁石の開発や磁気構造の解明に役立つ新中性子散乱法-



図1 中性子磁気散乱強度の温度変化

原子核の磁気に伴う散乱強度を測定すると、調べたい特定の磁 性元素のみに着目できます。原子の磁気による散乱強度(←)と 原子と核の寄与を含む散乱強度(←)を比較して磁性原子の磁気 の強さが決まります。

磁石やモーター、記憶媒体などの磁気は、磁性元素の 電子が担います。同じ磁性元素でも化合物によって磁気 の強さが異なるため測定して決めます。ミクロの磁石で ある中性子は磁気によって散乱されるので、散乱強度か ら磁気の強さが分かります。通常磁気の強さを知るには、 良質の大型結晶を育成し、数百点に及ぶ散乱強度を測定 して適切な補正を施す必要があります。全ての原子が信 号に寄与するからです。今回実証した方法では、特定の 磁性元素が持つ磁気のみに着目するため、その原子核に 誘起された磁気を観察しました。極端な場合、結晶構造 や磁気構造が未知でも一つの磁気散乱だけで測定でき、 簡便で正確です。複数の磁性元素の区別も、今回の手法 により初めて可能になります。

図1に示した Nd₃Pd₂₀Ge₆(ネオジムパラジウムゲル マニウム)の中性子磁気散乱強度は、(1)ネオジム原子 が磁気(赤太矢印)を帯びる T_N =1.8 K以下で増大し、 (2)さらに低温でネオジム原子核に磁気(青矢印)が発生 して強度が増大します。特定の磁性元素では、その磁気 により原子核に磁気が誘起されます。この原子核の磁気 を捉えると特定の磁性元素が持つ磁気のみに着目できま す。核の磁気は核種固有で大きさが正確に分かっている ので、両者の比較により原子の磁気の強さが分かります。



図2 ¹⁴³Nd 核準位の超微細相互作用分裂に伴うスペクトル 超高分解能スペクトルの測定により¹⁴³Nd 核準位の分裂幅が 約 35 mK の温度に相当することが分かりました。この分裂幅 に相当する低温以下で核磁気が発達します。つまり、図1(2) の温度以下の低温における強度の増加が、¹⁴³Ndの核磁気によっ て生じることを実験的に明らかにしました。

J-PARC 物質・生命科学実験施設において、核準位 スペクトルを精密に測定して、原子核が磁気を帯びてい ることを明らかにしました。ネオジム原子が磁気を帯び ると、天然存在比 12.2%の¹⁴³Nd 原子核に磁気が発生 します。その結果、同じ向きに磁気が最大 7/2 の基底状 態から、反対向きで最もエネルギーが高い励起状態の -7/2 まで、エネルギー準位が分裂します(図 2)。中性 子がネオジム原子核に衝突すると、(i)中性子及びネ オジム原子核の磁気が変化しない(図2黒矢印)、中 性子とネオジム原子核が磁気をやり取りして(ii)ネ オジム原子核の磁気が準位一つ分増加(図2青矢印)、 (iii)減少(図2赤矢印)する三つの過程が生じます。 そのため中性子のエネルギースペクトルからネオジム原 子核の準位の分裂幅が分かります。この分裂幅に相当す る温度より低温では核に磁気が発生し、図1(2)の温 度以下のように散乱強度が低温で急激に増加します。

この方法は磁性元素が適当な核の磁気を示す場合に有 効で、その応用範囲を広げることは大変興味深い研究です。 通常の方法だけでは困難な、複雑な磁気構造や結晶構造の 解明が可能になります。そして強力な磁石となる磁性体の 開発や、その機構解明に役立てることができます。

(目時 直人)

●参考文献

Metoki, N. et al., Hyperfine Splitting and Nuclear Spin Polarization in $NdPd_5Al_2$ and $Nd_3Pd_{20}Ge_6$, Journal of the Physical Society of Japan, vol.91, no.5, 2022, 054710, 6p.

5-5 全固体電池内のリチウムイオンの動きを捉えることに成功 - 中性子深さ分析によりイオンのリアルタイム計測を実現-



図1 中性子深さ分析の概要

リチウム全固体薄膜電池に中性子を照射すると、電池の中に存在 している⁶Li と中性子の核反応が起きてa線とトリチウム(³H) が放出されます。発生したa線と³HのエネルギーをSi検出器 で測定します。この実験は、研究炉 JRR-3 にて行いました。

リチウムイオン蓄電池(LIB)は大量の電気を蓄えら れるため、スマートフォンなど様々なデバイスで使用さ れていますが、電解液に有機溶媒を使用しているため発 火の危険性があるという問題点を抱えています。これに 対して、全固体 LIB は電解質が固体の電池で、次世代 の電池として期待されています。全固体 LIB は、通常 のリチウムイオン電池と比較してエネルギー密度が高 く、安全性や耐久性にも優れていますが、技術的には未 熟で量産化には至っていません。

全固体 LIB の性能を向上させるためには、LIB 内部のリ チウムイオンの移動メカニズムを明らかにすることが重要で あると考えられますが、これまでその移動過程を可視化する ことは容易ではありませんでした。特に充放電中のリチウム イオンの動きをリアルタイムで追跡することは困難でした。

そこで私たちは、「中性子深さ方向分析法」で全固体 LIB 内部のリチウムイオンを観測することに挑戦しました。リ チウムには重さの異なる2種類の同位体 (^eLi と⁷Li) があ り、そのうち^eLi は中性子と非常によく反応します。電池 内の^eLi と中性子が反応すると熱中性子誘起核反応によっ てα線とトリチウム (³H) が放出されます (図 1)。発生し たα粒子と³H のエネルギースペクトルを測定すると、そ れらが発生した深さに応じてエネルギーを失うことにな



るため、そのエネルギー損失から反応を起こしたリチウ ムの「表面からの深さ」を可視化することができます。

実験は研究炉 JRR-3 に設置されている即発 v 線分析 装置(PGA)を利用して行いました。本研究では、分 析感度を上昇させるために、⁶Liを濃縮した正極(コバ ルト酸リチウム(LiCoO₂))を用いて全固体 LIB 試料を 作製しました。自然界に⁶Liは 7.5% しかありませんが、 この試料では95.4%まで濃縮しています。固体電解質 としてはリン酸リチウム、負極としてタンタルを用いて います。電池試料を真空容器に入れ、熱中性子を照射し て、中性子深さ方向分析を行いました。実験の結果、実 際に充電を行いながら全固体 LIB 内のリチウムイオン の移動過程を動的に捕捉することに世界で初めて成功し ました(図2)。この実験結果をシミュレーションと比 較したところ、固体電解質中のリチウムイオンは空孔を 埋めるように移動しており、固体電解質中の全領域で移 動するのではなく、固体電解質内の特定の領域のみを移 動していることが判明しました。

充放電中の全固体 LIB 内のリチウムイオンの挙動を 可視化する技術が開発されたことにより、今後全固体電 池の開発が進展すると期待されています。

(大澤 崇人)

●参考文献

Kobayashi, T., Osawa, T. et al., In-Operando Lithium-Ion Transport Tracking in an All-Solid-State Battery, Small, vol.18, issue 46, 2022, 2204455, 9p.

図2 中性子深さ分析のエネルギースペクトル 充電前、充電中、充電後でスペクトルが変化しています。高 いエネルギーほどリチウムイオンが表面に近い場所にいるこ とを示しており、充電によってリチウムが正極 (LiCoO₂)から電解質(Li₃PO₄)へ移動している ことが分かります。2055 keV と 2727 keV はそ れぞれ a 線と³H のもともとのエネルギーを示し ています。QR コードで動画が見られます。

5-6 アクチノイドのレーザーアシスト分離法の原理実証 - f 電子を光で操作し、抽出剤で分離・回収する-



図1 レーザーアシスト分離法の原理と実験結果の一例

 (a) は3価のランタノイド、アクチノイドイオンの可視光吸収スペクトルです。元素ごとに異なるため分離原理として使えます。
 ----- はアメリシウム(Am)の選択励起に用いたレーザーの波長を示しています。カラースケールは、モル吸光係数(M⁻¹cm⁻¹)です。
 (b) はレーザーアシスト分離法のイメージです。混合溶液中でAmのみが内側の電子により光反応している様子を描いています。 イオン半径(-----) はどの元素でもほぼ同じため、一般的な抽出剤(有機配位子)を用いたサイズ認識に基づく元素選択は 難しくなっています。(c) は共鳴多光子励起のスキームです。1段目が選択性、2段目が反応性を担います。(d) はレーザー 照射後の試料を溶媒抽出したときの紫外可視吸収スペクトルの変化です。光反応したAmのみが水相で回収されています。

使用済み燃料に含まれるランタノイド及びアクチノイ ド(f電子系元素)のうちアメリシウム(Am)など毒 性の強い元素を分別できれば、放射性廃棄物の減容や管 理期間短縮が見込まれます。また、ネオジム(Nd)な ど有用元素は国内流通量に比肩する含有量のものがあ り、分離回収に成功すれば再資源化につながります。し かし、f電子系元素は同程度のイオン半径を持つことが 多いために化学分離では効率が悪く、高効率な分離原理 の開発が望まれています。これらの元素は内殻軌道の電 子配置に主たる違いがあるため、可視吸収スペクトル上 に各元素特有の狭い吸収バンドが現れます(図1(a))。 これらの吸収波長に調整したレーザー光で元素選択的に 化学状態を変化させること(ロックオン)ができれば (図1(b))、「ロックオン」したものだけを抽出分離で きるはずです。しかし単純な光吸収では付与されるエネ ルギーが足りず、波長選択により元素を選別(選択励起) できたとしても、エネルギー緩和のために「ロックオン」 の状態を保持することができませんでした。

この問題を克服するために、元素選別を担う光吸収過 程の直後に酸化還元反応を起こす2段階の光反応を試 みることにしました(共鳴多光子励起、図1(c))。実 験では、3価のアメリシウムAm(III)とプラセオジム Pr(III)を混合した硝酸水溶液に対して、Am(III)の 吸収波長(503 nm)に調整した強力なレーザーパルス を照射したところ、Am(III)は5価のAm(V)に変 化しましたが、Pr(III)は全く変化しませんでした。さ らに、溶媒抽出により未反応のAm(III)と Pr(III)を 有機相に移行させると、変化していたAm(V)のみが 水相に残り分離操作を完遂できることを確認しました (図1(d))。すなわち、共鳴多光子励起によりAmのみ を「ロックオン」できること及びそれを他のf電子系元 素から分離できることを確認しました。

今回、アクチノイドの共鳴多光子励起に初めて成功す るとともに、それを使った元素分離を実証しました。本 原理の特徴は、高効率分離が特に望まれている Am と キュリウム (Cm)のように周期表上で隣り合った元素 間でも高い選択性が期待できる点です。それらの分離効 率を飛躍的に高めることができれば、群分離・再処理施 設の簡素化やレアアースの超高純度精錬技術の創出を通 して、放射性廃棄物処分の負担軽減や資源循環型社会の 構築に貢献できると考えています。

本研究は、大阪公立大学及びレーザー技術総合研究所 との共同研究として実施されました。また、日本学術振興 会科学研究費若手研究(JP20K19999)「励起光波長選 択による 4f, 5f 元素分離技術の開発」の助成を受けました。 (横山 啓一)

●参考文献

Matsuda, S., Yokoyama, K. et al., Marking Actinides for Separation: Resonance-Enhanced Multiphoton Charge Transfer in Actinide Complexes, Science Advances, vol.8, issue 20, 2022, eabn1991, 11p.

5-7 高輝度放射光で解き明かすシリコン酸化膜の成長過程 -ナノデバイスの世界を支配する界面欠陥とキャリア捕獲-



図1 SiO₂/Si界面における酸素分子の反応

(a) 典型的な Si 2p スペクトルの時間変化です。(b) SiO₂ 表面から入り込んだ O₂ は SiO₂ 内部を拡散した後、SiO₂/Si 界面に辿り着きます。(c) Si-Si 結合と O₂ が直接反応するためには、大きなエネルギーが必要です。(d) 私たちのモデルでは、界面に生じた欠陥への分子状吸着を介して、反応が進行すると考えています。このような反応には、エネルギーは必要ありません。

パソコンやスマートフォンの演算を司る集積回路の基本構造「トランジスタ」は、Siを酸化し、ゲート絶縁 膜と呼ばれる酸化膜を作製することで構成されます。近 年、トランジスタの高密度集積化に伴い、1 nm 以下と いう薄さの酸化膜を作製することが要求されています。 このような薄い膜厚では、わずかな欠陥が消費電力の上 昇や誤動作の原因となるため、酸化反応を精密に制御し、 欠陥の少ない酸化膜を作製することが不可欠です。しか し、原子レベルの薄い膜厚における酸化反応は十分に理 解されていませんでした。

本研究では、SPring-8の原子力機構専用ビームライ ンBL23SUにおいて、高輝度、高分解能の放射光によ るX線光電子分光法を用いてSi表面の酸化反応をリア ルタイムで観察し、ナノレベルの酸化反応を明らかにし ました。

Si 基板上の酸化膜(SiO₂)は、酸化膜表面からO₂が 取り込まれて内部に拡散し、SiO₂/Si 界面で反応すると いう流れで成長します。これまで、SiO₂/Si 界面に辿り 着いたO₂は、Si-Si 結合と直接反応しSi-O-Si 結合を生 成すると考えられていましたが、そのような過程には高 エネルギーのO₂分子が必要です。膜中を拡散するO₂ の持つ平均運動エネルギーは低いため、O₂ガスによる 酸化は起こり得ないことになってしまいます(図1(c))。 本研究では、SiO₂/Si 界面における欠陥に着目しまし

本研究では、SiO₂/Si 界面における欠陥に着目しました。SiO₂/Si 界面では SiO₂ 生成による体積膨張のため、

大きな歪みが生じます。この歪みにより界面では欠陥が 生成します。この欠陥にキャリア(電子、正孔)が結び つくことで化学的に反応がしやすい状態となり、O₂と反 応するのではないかと予想しました。そこで、放射光を 用いたリアルタイム光電子分光測定により、界面キャリ アの量を反映する Si 2p スペクトルの時間変化(図1(a)) を取得し、そのことを実証しました。さらに、界面 O₂ の量の変化から、キャリアと結びついた欠陥に O₂ が分 子のまま吸着することを見いだしました。その後 O2 は O原子に解離し、Si-O-Si 結合を形成します。このよう な分子状吸着を介する反応はエネルギーを必要としない ことから、図1 (d) のような経路で反応が進むことが 確かめられました。本研究により、SiO₂/Si界面におけ る O₂の反応は欠陥での分子状吸着を介して進行し、そ の過程で Si 基板のキャリアが関与するという新しい反 応メカニズムを提案しました。

欠陥で O₂ が反応することを示した本成果は、欠陥を 消滅させながら SiO₂ 成長が可能であることを示唆して います。よって、本研究を応用することで、デバイスの 省電力化、信頼性向上、更なる高密度集積化による小型 化や高性能化などが期待されます。

本研究は、東北大学、福井工業高等専門学校との共同 研究として実施されました。

(津田 泰孝)

●参考文献

Tsuda, Y. et al., Roles of Excess Minority Carrier Recombination and Chemisorbed O_2 Species at SiO₂/Si Interfaces in Si Dry Oxidation: Comparison Between p-Si(001) and n-Si(001) Surfaces, The Journal of Chemical Physics, vol.157, issue 23, 2022, 234705, 21p.

原子力研究開発を支える計算科学技術



図1 システム計算科学センターにおける計算科学研究

原子力研究開発の DX に向けて、①高精度なシミュレーションを可能とする高性能計算技術、シミュレーション技術、②デジタル ツインを可能とするデータ同化技術、及び③膨大なデータに対する可視化技術、機械学習技術の研究開発に取り組んでいます。

原子力機構が進める廃止措置、福島の環境回復、軽水 炉の安全性向上、新型炉設計、地層処分といった原子力 研究開発において、デジタル技術を活用して研究開発 を効率化するデジタルトランスフォーメーション(DX) を進める上で、スーパーコンピュータを活用した計算科 学やデータ科学の手法が必要となります。例えば、機械 学習に基づく新しい原子・分子シミュレーション技術に よって核燃料や構造材の高精度な物性評価が可能になれ ば、新型炉設計の研究開発が加速すると考えられます。 また、観測データと連携した実時間風況解析が実現でき れば、より確実性の高い汚染物質拡散解析が可能になる と考えられます。

このような技術ニーズに応えるため、システム計算 科学センターでは、①スーパーコンピュータを駆使した 高精度なシミュレーションを可能とする高性能計算技術、 シミュレーション技術、②シミュレーションと観測デー タを融合したデジタルツインを可能とするデータ同化技 術、及び③シミュレーションや観測から得られる膨大な データに対する可視化技術、機械学習技術の研究開発に 取り組んでいます(図 1)。また、これらの技術は原子力 分野以外でも活用できるため、産学官との連携に基づく イノベーションの創出に向けた取組みも推進しています。

2022 年度は、機械学習を応用した高精度な原子・分 子シミュレーション技術の開発及びそれを応用したシ ミュレーション研究として以下の3つのテーマに取り 組みました。トピックス 6-1 では、多数の第一原理計 算結果を学習して原子間力を高精度に予測するニューラ ルネットワークによって高精度かつ大規模な分子動力学 計算を可能とし、核燃料物質の高温物性を再現しました。 トピックス 6-2 では、新型炉設計で問題となっている、 液体金属の冷却材と触れる構造材の脆化現象を第一原理 計算によって解析しました。トピックス 6-3 では、水に 溶けたラジウムの水和構造を SPring-8 で観測し、観測 結果を第一原理計算で再現しました。一方、計算基盤技 術の開発として以下の2つのテーマに取り組みました。 トピックス 6-4 では、これまでに開発してきた遠隔可視 化ソフトウェアを拡張し、ヘッドマウントディスプレイ を用いた VR 可視化を可能としました。トピックス 6-5 では、熱流動解析に現れる大規模な連立一次方程式の行 列解法を機械学習用の 16bit 演算で加速するためのデー タ変換手法を開発しました。

システム計算科学センターでは、原子力研究開発の DX に必要となる計算科学技術の研究開発を今後も着実 に進展させ、その成果を積極的に展開していきます。 6-1

機械学習なら核燃料物質内の原子の動きを予測できるかも? -機械学習分子動力学法の核燃料物質への適用に向けて-



図1 機械学習分子動力学法の概略図

数千通りの小規模な構造に対して第一原理計算を実行し、機械学習により原子間力を予測するニューラルネットワークを作成し ます(上図)。このニューラルネットワークにより大規模かつ高精度な分子動力学計算が可能となり、下図のような燃料が溶け る挙動等の解析が可能になります。

原子力の利用やその研究開発において、核燃料の安 全性を担保し、核燃料が発するエネルギーを効率良く利 用するためには、核燃料物質の比熱の温度依存性や融点 等の高温での物性を正しく理解することが必須となりま す。しかし、核燃料の物性を調べるための実験は難しく、 特に高温では詳細にデータを集めることは困難でした。 そのため、希少な実験データを補うため、原子レベルの 高精度シミュレーションに対し大きな役割が期待されて います。

しかし、従来の原子レベルのシミュレーションでは、 高精度な第一原理計算を用いると計算コストが膨大にな る一方で、計算コストの低い分子動力学計算を採用する と、精度が下がり、実験結果の再現が困難になるという ジレンマに陥っていました。本研究では、高精度な第一 原理計算結果を機械学習し、低計算コストで高精度な分 子動力学計算を実現可能な機械学習分子動力学法と呼ば れる手法を用いて、この問題の解決に取り組みました。

具体的な対象として、次世代の核燃料物質として注 目を集めている、酸化トリウムの高温物性の機械学習分 子動力学計算を実施しました。機械学習分子動力学法で は、数千通りの異なる原子配置に対する第一原理計算を 行い、ニューラルネットワークにより分子動力学計算で 必要となる原子間の力を学習します(図1)。このニュー ラルネットワークを利用した機械学習分子動力学計算に より、酸化トリウムの高温物性の評価に必要な大規模計 算を低計算コストで実施することに成功し、高温での比 熱、融点等の高温物性を高精度に再現することに成功し ました。

機械学習分子動力学法により大規模かつ高精度な分 子動力学計算が可能になったことで、核燃料物質の詳細 な物性を原子レベルのシミュレーションにより取得可能 としました。この手法により、通常運転時のみならず、 シビアアクシデント時のように、実験困難な超高温の核 燃料の状態を推定し評価することが可能となります。本 開発手法は、トリウム燃料だけでなく、ウラン燃料や MOX 燃料への適用も可能であり、今後、それらの物質 についても同様の研究開発を進める予定です。

本研究の一部は、日本学術振興会科学研究費基盤研 究(C)(18K05208)「機械学習分子シミュレーション と実験による粘土鉱物界面水物性の解明」、基盤研究(C) (18K11345)「エクサスケール計算機を想定した量子モ デルシミュレーションに対する並列化・高速化」の助成 を受けたものです。

(小林 恵太)

●参考文献

Kobayashi, K. et al., Machine Learning Molecular Dynamics Simulations Toward Exploration of High-Temperature Properties of Nuclear Fuel Materials: Case Study of Thorium Dioxide, Scientific Reports, vol.12, issue 1, 2022, 9808, 11p.

6-2 液体金属脆化の元素選択性の解明 - 脆化発生のエネルギー基準:原子論的弱い相互作用-



図1 液体金属原子が固体金属中に入ったときのエネルギーと元素選択性(脆化/非脆化)との関係 正のエネルギーは液体金属原子と周囲の固体金属の間の反発力を意味し、負のエネルギーは引力を意味します。



図2 「原子論的弱い相互作用」に基づく脆化基準の概念図 原子侵入を前駆現象として表面吸着誘起の結合切断が生じます。

原子炉構造材料を含む金属材料は、液体金属に触れ ると割れやすくなることがあります。例えば原子力分野 では、加速器駆動未臨界炉と呼ばれる原子炉内に冷却材 の鉛(Pb)とビスマス(Bi)が混ざった液体と鉄鋼材 料が触れる部分があります。温度やその他の条件に依存 しますが鉄鋼材料が割れやすい場合があり、その原因の 解明が割れ対策に必要です。

このような現象を液体金属脆化と呼びますが、ほと んど脆化が生じない場合もあります。例えば鉄鋼材料は 液体ナトリウム(Na)に触れても Pb や Bi と比較する とほとんど脆化しません。このような脆化の程度の違い が液体 - 固体金属の組合せによって生じることを「液体 金属脆化の元素選択性(特異性)」と呼びますが、なぜ それが生じるのかは分かっていませんでした。その解明 は、脆化メカニズムの解明にもつながります。

そこで、第一原理計算という物質の電子状態を正確 に計算する計算科学の手法を用い、元素選択性の原因を 調べるため、約50通りの液体-固体金属の組合せで実 験と計算の結果を比較しました(図1)。すると、液体 金属原子が固体金属の格子中(格子溶解)や粒界中(粒 界吸着)にあるときの相互作用を表すエネルギーが大き な正の値(強い反発)でも大きな負の値(強い引力)で もないときに、脆化が生じやすいことを見い出しました。 つまり、上記の原子論的相互作用が弱いときに脆化が発 生しやすいことが判明しました。

この「原子論的弱い相互作用」の脆化発生エネルギー 基準から推定される脆化の機構を図2に示します。割れ を起こす力は、液体金属原子の表面吸着による固体金属表 面のエネルギー低下と考えられます。しかしこの表面吸着 誘起の割れが生じるためには、その前駆現象として液体金 属原子が固体金属の亀裂先端部分に侵入でき、かつ、それ ほど強く固着しないことが必要条件となっていると考えら れます。そう考えると図1と辻褄の合う理解が得られま すが、詳しい解明には更なる計算科学研究が必要です。

本研究の一部は、文部科学省ポスト「京」萌芽的課 題「基礎科学の挑戦-複合・マルチスケール問題を通し た極限の探求」の成果です。

(山口 正剛)

●参考文献

Yamaguchi, M. et al., Atomistic Weak Interaction Criterion for the Specificity of Liquid Metal Embrittlement, Scientific Reports, vol.12, issue 1, 2022, 10886, 7p.

6-3 水に溶けたラジウムの姿を世界で初めて分子レベルで究明 ーキュリー夫妻による発見から 125 年、ラジウムの分子レベル研究の幕開けー



図1 水和 Ra²⁺ のシミュレーションのスナップショット 1 つの Ra²⁺ が 100 個の水分子に囲まれた構造について 60 ps の 動きを計算し、その解析(図 2)を行うことで表1の結果が得ら れました。

実験とシミュレーションで得られた、Ra²⁺の第一水和圏内に 存在する水分子中酸素の数(配位数)及び Ra²⁺ と酸素の距離 を示します。両者の結果が誤差の範囲で一致しました。

手法	配位数	距離(Å)
放射光実験	9.2 ± 1.9	2.87 ± 0.06
シミュレーション	8.4	2.88

ラジウム(Ra)は1898年にキュリー夫妻によって 発見され、現在では医療や地球科学で活用される一方で 環境汚染が懸念されるなど、広い分野で注目されていま す。しかし、生体内や環境中でのRaの化学反応の詳細 は未だ解明されていません。これらの反応は主に水中で 進行するため、Raが水に溶けた(水和Ra²⁺)時の様子 は最も基礎的で重要な情報です。しかし、Raが放射性 元素であり安定同位体が存在しないことや、Raの壊変 によって気体の放射性元素であるラドンが生成し内部被 ばくの危険性を高めることから、実験の実施には高度な 安全管理が必要です。そのため、ラジウム発見から100 年以上経っても、Ra²⁺の分子レベルの測定実験は行わ れていませんでした。

そこで本研究では、まず、ラドンの漏洩を防ぐ測定容 器を開発し、高濃度 Ra 試料を安全に作製・運搬・測定 する手法を確立しました。そして、世界最高性能の放射 光実験施設の一つである SPring-8 を用いることで、世 界初となる Ra²⁺ 水和構造の分子レベル測定に成功しま した。また、スーパーコンピュータを用いて第一原理分 子動力学シミュレーションを行い(図1)解析したとこ ろ(図2)、実験結果の再現に成功しました(表1)。シ ミュレーションの結果をより詳細に解析し、Raの類似



図2 水和 Ra²⁺の周りの水分子の分布

シミュレーションで得られた各構造において、Raと酸素の距離を全て計算し平均化した結果(動径分布関数)を示します。 斜線部を積算することで、水和 Ra²⁺の第一水和圏内に存在す る水分子の平均個数が求まります(表 1)。

元素として用いられるバリウム(Ba)と比較したところ、 Ra²⁺の第一水和圏内の水分子の平均滞留時間(38 ps) は Ba²⁺の場合(98 ps)よりも短いことが分かり、Ra²⁺ は Ba²⁺ と比べて周辺の水分子を束縛する力が弱く、水 和構造が変化しやすいことが明らかになりました。これ らの結果は、Ra²⁺ が他の同族元素よりも、水から離れ 生体内や環境中の固相に取り込まれやすいことを示唆し ています。

本研究により、放射光実験とシミュレーションによる Raの分子レベルの化学研究手法を確立しました。今後 本手法を基に、より複雑な化学反応の研究に応用すること で、がん治療薬の作用メカニズムの解明や新薬開発、土 壌の年代推定法の精緻化、環境問題の防止・解決等、社 会的に重要な課題の解決へつながることが期待されます。

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、 原子力機構萌芽研究開発制度及び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., Extended X-Ray Absorption Fine Structure Spectroscopy Measurements and *Ab Initio* Molecular Dynamics Simulations Reveal the Hydration Structure of the Radium (II) Ion, iScience, vol.25, issue 8, 2022, 104763, 12p.

表1 実験とシミュレーションの比較

6-4 仮想空間で大規模なシミュレーション結果を探索 - 対話的な遠隔 VR 可視化を可能に-



図1 遠隔 VR 可視化ソフトウェア VR-PBVR の構成

VR-PBVR は遠隔地のサーバとユーザ PC の間で粒子データや可視化パラメータを通信し、ヘッドマウントディスプレイ(HMD)を 用いて VR 空間で大規模データを可視化します。コントローラによるジェスチャ操作で VR 空間の可視化データを操作できます。



図 2 実験機材 使用した HMD (MetaQuest2) とコントローラです。

スーパーコンピュータ(スパコン)上の大規模で複雑な 原子力シミュレーション結果を直感的に理解する上で仮 想現実(VR)を用いた可視化(VR可視化)が有効です。 ヘッドマウントディスプレイ(HMD)(図2)はセンサー で頭部の動きを追跡(ヘッドトラッキング)することで、 没入感のある立体視を実現します。ヘッドトラッキングに は画像の更新が伴うため、60フレーム毎秒(FPS)以 上での画像生成が必要です。しかしながら、従来手法は 3次元データを全てポリゴンと呼ばれる可視化要素に変 換するため、可視化用データが元データに匹敵するほど 大きくなり、HMDに必要な 60FPS を超えることが困 難でした。

粒子ベースボリュームレンダリング(PBVR)という 可視化手法は3次元データを可視化用の粒子データに 変換し、画面に投影して可視化します(図1)。これに 必要な粒子数は画面解像度程度となり、1024²ピクセル で数百万粒子(約100メガバイト)となるため、計算 データに対して可視化用データが大幅に圧縮されて高速 なデータ転送や可視化処理が可能です。私たちはこれま でに、この特長を活かしてクライアント・サーバ型(CS) の遠隔可視化ソフトウェア CS-PBVR を開発し、上記 の課題を解決しました。

本研究では CS-PBVR を HMD 向けに拡張した VR-



図3 VR-PBVR の利用事例 VR-PBVR を使用して熱流動解析結果(約3300万要素)を 可視化しています。

PBVR を開発し(図1)、従来手法では困難だった大規 模データの遠隔 VR 可視化を実現しました。ディスプレ イ上の可視化と異なり、HMD では視点がヘッドトラッ キングで変化し続けます。このため、視点変化を計算し 常時更新するように HMD 向けの処理系を構築し、さら に PC 上で高速に両眼画像を生成する機能を実装しまし た。また、従来のマウス操作に替えて、コントローラに よるジェスチャ制御機能を開発することで、VR 空間内 において両手で可視化データを把持し動かす機能を実装 しました。これにより、VR 空間で PBVR を利用できる ようになりました。

VR-PBVR をスパコン上の約3300万要素の熱流動解 析データに適用しました(図3)。従来の可視化ソフト ウェアでは1FPS以下の描画速度でしたが、VR-PBVR では90FPS以上を達成し、HMDによるスムーズなVR 可視化が可能となりました。VR-PBVRを活用すること で、今後、大規模な原子カシミュレーションから生成さ れる3次元時系列データの理解が進むと期待されます。

本研究は、日本学術振興会科学研究費基盤研究(C) (JP20K11844)「大規模分散 GPGPU シミュレーション の対話的 In-Situ 可視化」の助成を受けたものです。 (河村 拓馬)

●参考文献

Kawamura, T. et al., VR Extension of Client Server Type Particle-Based Volume Visualization Application, Journal of Advanced Simulation in Science and Engineering, vol.10, issue 1, 2023, p.31-39.

6-5 原子カシミュレーションを加速するデータ変換手法の開発 - 16bit 演算を用いた行列解法で 64bit 演算と同等の収束特性を達成-





図1 行列データの変換方法の比較

1次元ポアソン方程式が与える5桁の行列データを4桁の精度 で近似する例を示します。元の行列は各行で対角成分の絶対値 が非対角成分の絶対値の和より大きくなる、あるいは、等しく なる対角優位条件が満たされます。標準的な最近接丸め(四捨 五入)で近似すると2、3行目で前者が後者より小さくなり、 対角優位条件が破れます。一方、新しい対角優位データ変換で は対角成分と非対角成分で異なる数値丸め方向を選択し、対角 優位条件を維持します。

科学技術計算では約16桁の数値(仮数部)を表現可 能な 64bit データが利用されます。一方、約 4 桁の数値 を表現する 16bit データが多用される機械学習の興隆に より、最先端スーパーコンピュータでは 16bit 演算の性 能が 64bit 演算の数倍から数十倍に達しており、16bit 演算を活用することが重要となっています。しかしなが ら、科学技術計算で頻繁に計算される大規模な連立一次 方程式を解く際には 16bit 演算のみで信頼できる結果を 得ることは困難です。このため、64bit 演算と 16bit 演 算を組み合わせて計算精度の維持と高速化を両立する混 合精度行列解法の開発が進められています。混合精度行 列解法では 64bit データから 16bit データに変換する処 理が不可欠ですが、表現可能な桁数の差によって発生す る丸め誤差(図1)の影響により計算時間が増加する、 あるいは、問題によっては解法が破綻するといった課題 がありました。

本研究では原子炉内の熱流動解析に現れるポアソン方 程式が与える大規模な連立一次方程式に対して新たな データ変換手法に基づく混合精度行列解法を開発しまし た。このような大規模な連立一次方程式は通常、反復解 法によって計算されますが、前処理によって近似解を計 算してから反復解法を処理することで収束特性を改善で

図2 ヤコビ法前処理付き反復解法の収束履歴

300 × 300 × 300 格子を用いたポアソン方程式が与える連立一次方程式 Ax = b の反復解法における相対残差 $\|b-Ax\|/\|b\|$ の履歴を示します。64bit データを最近接丸めで 16bit データに変換すると連立一次方程式の解が収束するまでの反復回数が増加していますが、対角優位データ変換では 64bit データと同じ反復回数で解が得られています。

きます。ここで、近似解の計算には任意の精度を適用で きるため、この部分に 16bit 演算を適用して処理を加速 します。本研究では前処理の代表的なアルゴリズムであ るヤコビ法を採用していますが、ヤコビ法は行列データ が対角優位条件(図1)を満たさないと収束が保証され ないことが知られています。ところが、標準的な最近接丸 め(四捨五入)によって行列データを 16bit データに変 換すると、丸め誤差によって対角優位条件が破れて収束 特性が悪化し、反復回数が約3倍に増大しました(図2)。

本研究では、対角優位条件を維持するために対角要素 を絶対値が大きくなる方向に丸め、非対角要素をゼロ方 向に丸める対角優位データ変換を開発しました(図1)。 開発した手法により、前処理を16bit 演算で処理しても 64bit 演算と同等な収束特性(図2)を維持しつつ計算 時間を約10%削減することに成功しました。本成果は HPC Asia 2023 国際会議における Best Paper Finalist に選定されました。

本研究の一部は、日本学術振興会科学研究費基盤研究 (C)(JP22K12053)「ハイブリッド混合精度処理によ るエクサスケール反復解法ライブラリの開発」の支援の 下で得られた成果です。

(伊奈 拓也)

●参考文献

Ina, T. et al., A New Data Conversion Method for Mixed Precision Krylov Solvers with FP16/BF16 Jacobi Preconditioners, Proceedings of the International Conference on High Performance Computing in Asia-Pacific Region (HPC Asia 2023), Singapore, 2023, p.29–34.

核不拡散・核セキュリティ技術開発

原子力平和利用を支える核不拡散・核セキュリティに関する技術開発・人材育成

核不拡散・核セキュリティ総合支援センター(ISCN) は、核兵器・核テロの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、高放射性物質中の核物質等を非破壊 で測定する技術や、大規模イベント等の核セキュリティ の強化を目的とした広範囲の核・放射性物質の検知技術 (トピックス 7-1)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的研究

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、それらの検証 方法等に係る技術的プロセスについて、調査検討を実施 しました。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やすくまとめた「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、2022 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5800名が参加してい ます。2022 年度は新型コロナウイルス感染症による海 外渡航制限が大幅に緩和されたことから、海外向けの対 面形式での実施を再開しました。効果的なオンライント レーニングのために開発したツールや手法を取り入れた 新たな対面形式の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、2018年から北 海道幌延町と青森県むつ市において、CTBTOとの放射 性希ガス共同観測プロジェクトを実施しています。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2024年3月まで延長されました。

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「 核イ鉱剤・核セキュリティ総合支援センダ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。

7-1 大規模イベントを核・放射線テロから守る ー高速中性子線がどの方向から飛来しているかを特定する検出装置の開発-



図1 棒状検出器と散乱体を組み合わせた装置

中性子散乱体(ポリエチレン)の前面と背面にプラスチックシ ンチレーション検出器を設置し、線源に対して 10° ずつ回転さ せながら測定を行いました。図は 90°の方向へ向いている状態 です。0°から 90°の方向へ回転させると、前面の検出器では線 源から見た立体角が大きくなっていくため、計数が増加してい きます。一方背面の検出器は散乱体の影に隠れて計数が減少し ていきます。

オリンピックに代表される大規模公共イベントや、大型の商業施設等において、核・放射性物質を用いたテロ 行為等の発生を未然に防ぐことは、核セキュリティの課題の一つです。会場内部や周辺に、核・放射性物質を持 ち込ませないように、また、仮に持ち込まれたとしても、 迅速に検知し対処できるように、様々な放射線検出器を 用いた装置の開発が進められています。

核物質や工業用放射線源の一部には中性子線を放出す るものがあります。これらの中性子源は、高いエネルギー の中性子を多く放出します。これら高速中性子は透過力 が高く、他の放射線に比べて遮蔽が難しいため、隠す方 法が限られます。したがって、場面によってはこの高速中 性子を検出する方法が核物質などの検知に有効である可 能性があります。私たちの研究では、高速中性子線がど の方向から飛来しているかを素早く絞り込み、より迅速 な対応につなげるための技術の開発に取り組んでいます。

中性子の検出器にはいくつか種類があり、それぞれ検 出できるエネルギーの違いなどの特徴が異なります。例 えば、代表的な中性子検出器であるヘリウム3(³He) 検出器は熱中性子(エネルギーの低い中性子)の検出に 優れており、高速中性子を測定するためには、減速材を 使用してエネルギーを低くして検出する必要がありま す。そのため、中性子の飛来方向が分かりにくく、周囲 の物質で散乱された中性子が検出されるなどするため、



図2 2つの検出器の測定結果の比較と計数の比 回転角の増加に伴い、中性子の計数は、前面の検出器(■)で は増加する一方で、背面の検出器(▲)は散乱体の影に隠れる ため減少していきます。2つの検出器の比をとると(●)、回 転角度に従い直線的に増え、これを利用すると、計数比から線 源方向を推定できることが分かりました。

線源の探索にはあまり向いていません。一方で、プラス チックシンチレーション検出器は、熱中性子を検出する ことはできませんが高速中性子を直接検出することがで きます。この検出器を用いた場合、線源から直接飛来す る中性子を検出し、周辺で散乱した中性子は検出されま せん。そのため、方向によって計数に差が生じるように 検出器の形状を工夫することで、中性子が飛んで来た方 向を推定することができます。私たちは、棒状のプラス チックシンチレーション検出器を用意し、中性子の散乱 体を挟んで両側に2つの棒状検出器を設置した図1のよ うな測定装置を採用しました。この装置を回転させてい くと、両側の検出器で計数に差が生じ、その差を比較し て中性子の飛来方向を推定することができると考えまし た。実際に 10° ずつ回転させて中性子の測定を行ったとこ ろ、図2に示す測定結果を得ました。さらに2つの検出 器の比を計算すると、10°~80°の範囲では計数の比か ら飛来方向を直接推定できることが分かりました。この 測定装置を用いることで、中性子線源の検知と方向の推 定を同時に行うことができ、テロ目的で置かれた線源発 見までの時間を短縮することが期待できます。

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。 (高橋 時音)

●参考文献

Koizumi, M., Takahashi, T. et al., Rod-Shaped Pulse Shape Discrimination Plastic Scintillation Detectors Applied for Neutron Source Direction Survey, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A, vol.1042, 2022, 167424, 6p.



図1 廃止措置に向けた研究開発分野の概略図

1F 廃止措置のため、「炉内状況把握」「燃料デブリの性状分析」「放射線特性評価」「放射線計測・可視化技術開発」「線源・線量 率の推定評価」「放射性廃棄物の性状把握」「処理・処分に向けた方法論の検討」の各分野において、一連の作業プロセスの安全 かつ確実な実施に向けた研究開発を行っています。

原子力機構は、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に取り組んでい ます。これらの取組みは、原子力機構の総合力を最大限 発揮すべく、原子力機構内の関係部門が連携・協働し、 これまでに培った技術や知見、経験を活用しています。 また、原子力機構が保有する施設のバックエンド対策等 にも活用するとともに、世界とも共有し、各国の原子力 施設における安全性の向上等にも貢献していきます。

【 廃止措置に向けた研究開発 】

福島県太平洋沿岸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、楢葉遠隔 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、炉内状況把握、燃料デブリ取出しの ための燃料デブリの性状分析及び放射線特性評価、放射 線計測・可視化技術の開発、線源・線量率の推定評価、 放射性廃棄物の性状把握及び処理・処分に向けた方法論 の検討に取り組み、東京電力福島第一原子力発電所(1F) 廃止措置に貢献しています(図1)。

はじめに、燃料デブリの取出しを行う上で炉内状況を 把握することが重要となります。1F 事故から十数年を 経過した燃料デブリの物理的、化学的及び生物学的な変化(経年変化)を評価するため、チョルノービリ原子力 発電所事故後の状況をレビューし、影響を評価しました(トピックス 8-1)。

廃炉作業においては、燃料デブリを安全に取り扱うため、燃料デブリの放射線特性を明らかにする必要があります。そこで、燃料デブリから発生する制動放射 X線による線量率の評価手法を検討しました(トピックス 8-2)。

廃炉作業における作業者への被ばく低減、廃炉工程 検討のため、放射線の種類や線量率、分布を把握する ことも重要となります。そのため、コア材が液体の光 ファイバを用いた⁹⁰Sr/⁹⁰Y及び¹³⁷Csの弁別と位置を同 時に測定する手法を考案しました(トピックス 8-3)。 また、作業空間の正確な放射線量率分布を把握するため、 深層学習を用いて点群データから自動的に構造物情報を 推定する手法を開発しています(トピックス 8-4)。さ らに、セシウム(Cs)のふるまいを解析するコードの 改良及び非鉄構造材料への吸着挙動の実験的解明を 行い、原子炉や建屋内のCs分布の解明を行いました (トピックス 8-5、トピックス 8-6)。

高線量の放射性廃棄物を保管する場合、そこに含ま れる水分の放射線分解により発生する水素の燃焼・爆 発リスクを評価するため、水素の漏えい・拡散挙動と 燃焼・爆発に係る数値解析、シミュレーション技術の 開発を行いました(トピックス 8-7、トピックス 8-8)。 さらに、燃料デブリ取出し時に冷却水を止めた場合、空 冷による冷却状態を評価するための解析手法を開発しま した(トピックス 8-9)。



図2 環境回復に係る環境動態研究及び環境モニタリング・マッピングの概要図

- (a)「環境動態研究」として、森林、河川から海域に至るまでの放射性物質の調査を行い、それらの結果から放射性物質の移動に関 する予測モデルや被ばく線量の評価に関するシステムの開発などを行っています。
- (b)「環境モニタリング・マッピング技術開発」として、無人航空機や歩行サーベイによる放射線量分布を測定する技術開発を行い、 測定結果を統合したデータから被ばく線量評価を行うシミュレーションシステムの開発などを行っています。

環境回復に係る研究開発

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3機関で緊密な連携・協力を行いながら、 環境回復に係る研究開発とし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2)。

環境動態研究では、1F事故により環境中に放出され た放射性物質のうち、被ばく評価上重要な放射性 Cs に 着目し、環境中における移動や蓄積、生態系への移行な どの挙動を明らかにし、科学的知見を分かりやすく提供 することで、住民の方々の不安解消、自治体による避難 指示解除や農林水産業の復興に向けた計画策定に貢献し ています。また、環境中に存在する放射性核種には極微 量ながら放射性 Cs 以外の核種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。

環境中に放出された放射性 Cs の多くは未除染の森林 域に存在するため、河川へどのように移動するのかを明 らかにすることが必要となります。特に、生態系への移 行で重要となる溶存態 Cs の生成過程として、土壌粒子 からの脱離のほかに、森林域の落葉落枝などの有機物か らの溶出を流域水循環モデルに組み込み、¹³⁷Cs の流出 現象の解明を進めました(トピックス 8-10)。また、土 地利用ごとに¹³⁷Cs の流出挙動が異なることから、土地 の特性を考慮した予測モデルにより 1F 事故後 30 年間 の挙動予測を行いました(トピックス 8-11)。

¹³⁷Cs を含む河川水や土砂が流入した貯水池や沿岸域で は、堆積物(底質)から水への溶出や再懸濁による水生生 物への影響が懸念されるため、そのメカニズムなどの把握 が重要となります。そこで、貯水池の底質に含まれる水の ¹³⁷Cs 濃度と共存するイオン濃度から、底質からの¹³⁷Cs 溶出挙動を考察しました(トピックス 8-12)。また、海水 中での流速・波浪データから、海底付近の¹³⁷Cs を含む懸 濁粒子の発生源を明らかにしました(トピックス 8-13)。 環境中に放出された放射性 Cs が生態系中でどのよう に長期間保持されるかを明らかにすることは、環境動態 を明らかにする上で重要となります。そこで、放射性 Cs を長期間保持することで知られる地衣類中の¹³⁷Cs のミクロな分布と化学形態を、電子顕微鏡など様々な分 析手法を組み合わせて調べ、長期保持の仕組みを明らか にしました(トピックス 8-14)。

1F 事故では、核燃料由来のプルトニウム(Pu) など が環境中に放出された可能性がありますが、過去のグ ローバルフォールアウト起源の Pu などとの区別には、 同位体組成の把握が必要になります。Pu の従来の放射 能測定法では、測定干渉核種の分離に長時間を要して いたため、ICP 質量分析装置を用いた迅速な分析法の 開発を行いました(トピックス 8-15)。

環境モニタリング・マッピング技術開発では、帰還困 難区域の避難指示解除に向けて、空間線量率や放射性物 質の分布や、住民の方々の生活行動に基づき、被ばく線 量を評価することが重要になります。これまでに様々な 機関による被ばく線量評価を網羅的にレビューし、今後 の活用に向けて方法、特徴、留意点などを体系的に整理 しました(トピックス 8-16)。

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。

8-1 チョルノービリ原子力発電所から学ぶ - 1Fの燃料デブリの経年変化を抑える条件とは-



図1 チョルノービリ事故発生直後に確認された「象の足」^{*1} 1986年に発生した事故により生成した、象の足のような形状の燃 料デブリです。放射能が非常に高く、コンクリート成分を多く含 んだ、非常に硬いガラス状の黒い溶岩状物質でした。

2011年の東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故 で炉内に生成した「燃料デブリ」は、数十年に及ぶ取出 し期間中に経年変化によって物理的・化学的特性が変化 し、取出し作業に影響を及ぼす可能性が考えられます。 このため、燃料デブリの経年変化を予測することが重 要ですが、これに関する知見は、1986年に事故が発生 したチョルノービリ原子力発電所4号機(ChNPP-4) のものに限られます。ChNPP-4では、例えば図1に 示す「象の足」と呼ばれる燃料デブリが、事故から約 10年経過後、図2に示すように経年変化が顕著に進行 していることが確認されました。このため本研究では、 ChNPP-4の事故によって形成された燃料デブリの経年 変化に関する知見を調査、整理し、1Fの燃料デブリの 経年変化とその影響について考察しました。

材料の経年変化は、一般的に、物理的、化学的、生物 学的なメカニズムの三つに分類されます。物理的経年変 化とは、化学的変化を伴わない材料劣化のことで、化学 的経年変化は、生物学的影響を伴わない化学反応によっ て引き起こされるものです。また、生物学的経年変化は、 微生物などの生物学的相互作用に起因するものです。

ChNPP-4 における燃料デブリの物理的経年変化として は、季節や日々の温度変化によるもの、建屋内の圧力差に より生じる気流由来のもの、主にα崩壊による放射線の自 己照射によるものが考えられていますが、これらの影響は 比較的小さいと考えられています。次に、化学的経年変化 としては、放射線により反応性が増した水分との反応によ るものが主として考えられ、実際に水分との反応によると 思われるウランを主成分とした析出物が確認されていま す。また、建屋内では多くのカビ等の微生物が確認されて



図2 事故発生から 10 年程度経過後に撮影された「象の足」*2 図1に示す「象の足」を 10 年程度経過後に確認したところ、経年 変化により崩れ始め、その一部が放射性微粒子として飛散してい ることが確認されました。

おり、これによる生物学的経年変化の影響が議論されてい ますが、詳細なメカニズムについてはよく分かっていません。

これらの知見に基づき、1Fの燃料デブリの経年変化 による影響について下記のように考察しました。現在の 1F 炉内は、不活性雰囲気に保たれており、酸化を抑止し、 微生物の増殖を防ぐヒドラジンとともに、連続的に冷却 水が注入された非常に安定した条件です。このため、燃 料デブリの経年変化は ChNPP-4 に比べて小さいと予 想されます。水中に浸漬した鉄を主成分とする燃料デブ リや構造材表面の腐食は一時的に顕著に進むと思われま すが、これにより形成される表面の錆の層は、長期的に は腐食を遅らせるものと考えられます。また、ウランを 多く含む燃料デブリの溶解も限られるものと思われます。

今後、燃料デブリの取出し作業が開始されると、酸素 の混入や、滞留水の流れの変動などが発生します。これ らは燃料デブリの化学的経年変化を促進し、化学的特性 を変化させ、溶解性や放射性核種の移行挙動等に影響を 与える可能性があります。このため、取出し作業中の経年 変化の影響を最小限に抑えるためには、炉内の雰囲気を 不活性に保ち、水流等の変動を抑えること等が重要と考 えられます。また、酸素の混入が避けられない場合に備 え、酸素の影響を考慮した研究も重要であると考えます。 本研究は、日本学術振興会科学研究費若手研究 (JP21K14568)「微生物を含む液中における二酸化ウラ ン表面の微細構造変化」の助成を受けたものです。

(北垣 徹)

- *1 Arutyunyan, R.V. et al., Nuclear Fuel in the "Shelter" Encasement of the Chernobyl NPP, 2010, 240p. (in Russian).
- ² 石川秀高, チェルノブイリ事故から15年 私たちが学んだこと, IV. 事 故現場の今, 日本原子力学会誌, vol.44, no.2, 2002, p.179-186.

●参考文献

Kitagaki, T. et al., Aging of Fuel-Containing Materials (Fuel Debris) in the Chornobyl (Chernobyl) Nuclear Power Plant and Its Implication for the Decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Journal of Nuclear Materials, vol.576, 2023, 154224, 14p.

8-2 燃料デブリから放出される放射線を明らかにする - 多様な燃料デブリの制動放射 X 線の特性と線量率影響の解明-



図1 計算で求めた 1F2 号機炉心当たりの核分裂生成物(FP)放 出の有無に依存したβ線強度





図2 燃料デブリから放出されるγ線と全光子のスペクトル 計算で求めた、原発事故から20年後の燃料デブリ、FPの放出が ある場合の光子スペクトルです。全光子は制動放射X線によって 連続スペクトルを形成しました。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故で発生し た燃料デブリには、UO2燃料、Zr被覆管、B4C制御棒、 SUS 材などが、溶融混合したものがあると考えられて います。近々このような燃料デブリの試験的取出しが計 画されています。今後取り出される燃料デブリを安全か つ合理的に取り扱うために、多様な燃料デブリから放出 される放射線の特性を明らかにすることが求められてい ます。その一環として、これまで考慮されてこなかった 燃料デブリの制動放射 X 線の特性解明と線量率への影 響評価を行いました。

一般的にはγ線の線量率が注目されていますが、燃料 デブリにはウランなど原子番号、密度が高い物質が含ま れていますので、核分裂生成物(FP)が放出するβ線 に起因した制動放射 X線による線量率も考慮する必要 があります。また、セシウム(Cs)など揮発性 FP は、 燃料溶融時に放出されたと考えられており、通常の使用 済燃料とは異なり、制動放射 X線の強度が相対的に大 きくなると考えられます。

そこで私たちは、モンテカルロ計算コード PHITS を 用いて、多様な燃料デブリから放出されるγ線と制動放 射 X 線の生成過程とスペクトルを明らかにし、全光子 (γ線と制動放射 X 線)に対する制動放射 X 線の線量率 への最大寄与を評価しました。

図1にシーグバーンの式(β線の評価式)より導出 した1F2号機炉心当たりのβ線の強度(β線数)につ いて、事故後20年経過後でFPの放出有無をパラメー タとして比較したものを示します。燃料デブリのβ線は、 0.5 MeV 以下では、揮発性 FP 放出有無の影響が大きく、 放出がある場合にβ線強度が低くなることが分かりまし た。一方、図2では事故後20年経過後で放出ありのケー スで全光子と制動放射 X線のみの単位面積当たりの光 子数を比較したものを示します。0.7 MeV 以上の高エ ネルギー側で、制動放射 X線がより支配的であること が分かりました。この制動放射 X線の影響を線量率に 換算すると、その寄与は図2のケースで17%となり、 従来評価してきたγ線のみによる線量率の1.2倍になる ことを明らかにしました。

これまで評価されてこなかった燃料デブリから発生す る制動放射X線の生成メカニズムと特性を解明し、今後 取り出される燃料デブリの安全な取扱いに必要な知見を 得ることができました。

(松村 太伊知)

●参考文献

Matsumura, T. et al., Characterization of Bremsstrahlung and γ -Rays of Fuel Debris, Radiation Physics and Chemistry, vol.199, 2022, 110298, 8p.

8-3 チェレンコフ放射の指向性を利用して⁹⁰Sr/⁹⁰Yと¹³⁷Csの弁別を実現 − ⁹⁰Sr/⁹⁰Yと¹³⁷Csの線源位置を同時検出−



図1 チェレンコフ放射角度のエネルギー依存性 (a) 高エネルギー荷電粒子(例:⁹⁰Sr/⁹⁰Y 由来の β線)による チェレンコフ放射、(b) 低エネルギー荷電粒子(¹³⁷Cs γ線由 来のコンプトン電子)によるチェレンコフ放射、(c) 本研究 で使用した液体ライトガイドを示しています。チェレンコフ放 射角度はエネルギー依存であり、この特性とチェレンコフ光の TOF 分析により⁹⁰Sr/⁹⁰Y と¹³⁷Cs を弁別します。

光ファイバに飛行時間(<u>Time-of-Flight</u>: TOF)法を 適用した放射線位置検出器は、光ファイバ両端への光の 到達時間差から放射線の入射位置を決定する手法であ り、放射性物質の分布を線的に測定する手段として古く から研究されてきました。東京電力福島第一原子力発電 所(1F)事故後は湖沼底部の放射性セシウム(¹³⁷Cs) の分布調査等に活用されています。一方で、本手法は光 ファイバへの放射線の入射位置の把握はできても、核種 を判別することはできませんでした。1F原子炉建屋内 外には¹³⁷Csの他にも純 β 核種のストロンチウム90/ イットリウム90(⁹⁰Sr/⁹⁰Y)が存在し、その詳細な分布 はほとんど把握されていません。近年、目の水晶体の等 価線量限度が引き下げられたこともあり、⁹⁰Sr/⁹⁰Yの分 布把握は今後重要になると考えられます。

私たちは名古屋大学との共同研究により、コア材が液体の光ファイバである液体ライトガイド(Liquid Light Guide:LLG)を利用することで、¹³⁷Csと⁹⁰Sr/⁹⁰Yの位置を同時に測定する手法を考案しました。ここでは、 LLGコア内を通過する荷電粒子により発生するチェレンコフ光のTOF分析を行います。チェレンコフ放射の 指向性は通過する荷電粒子のエネルギーに依存するため、⁹⁰Sr/⁹⁰Yと¹³⁷Csで違いが生じます(図1(a)、(b))。 図1(c)に示すTOF法をLLGに適用して⁹⁰Sr/⁹⁰Yと ¹³⁷Cs点線源位置を測定した結果を図2(a)、(b)に



図2 液体ライトガイドに飛行時間分析 (<u>Time-of-Flight</u>: TOF) 法を適用した⁹⁰Sr/⁹⁰Y、¹³⁷Cs 点線源測定及び両者の弁別 液体ライトガイドに TOF 法を適用し、(a)⁹⁰Sr/⁹⁰Y 点線源、(b)¹³⁷Cs 点線源を測定した結果と、(c)両者の位置と核種を同時に測定した 結果を示しています。1.0 ~ 4.0 mの位置を三つの ROI (<u>Region of</u> Interest) に分割して測定しました。

示します。両者ともに線源位置に応じたピークが確認 できる一方で、チェレンコフ光が LLG の両端に到達し た事象である線源位置ピークと片側のみに到達した事 象である端面反射ピークとの計数比に明確な違いが生 じました。これは、図1(a)、(b)に示す通り、¹³⁷Cs は⁹⁰Sr/⁹⁰Y よりもチェレンコフ放射角度が小さいため、 ¹³⁷Cs では ⁹⁰Sr/⁹⁰Y と比較してチェレンコフ光が LLG 両端 へ届きにくいためです。この違いを利用して両者を弁別 することが可能です。⁹⁰Sr/⁹⁰Y と ¹³⁷Cs の位置分布同時 測定結果を図2(c)に示します。ここでは、図2(a)、(b) で測定したヒストグラムを基に、図2(c)のヒストグ ラムを最もよく再現する核種の位置ごとの組合せを推定 しています。チェレンコフ放射の指向性により形成され る端面反射ピークの計数情報をパラメータとして加える ことにより、⁹⁰Sr/⁹⁰Y と ¹³⁷Cs の位置を同時に測定する ことに成功しました。本手法は 1F 原子炉建屋内のよう な高 γ 線バックグラウンド下における ⁹⁰Sr/⁹⁰Y の選択的 測定への応用が期待されます。

本研究は、原子力機構「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」(JPJA19B19206529)の「一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋内放射線源分布計測」の成果の一部です。

(寺阪 祐太)

●参考文献

Terasaka, Y. et al., A New Application Technique of a Position-Sensitive Liquid Light Guide Cerenkov Counter for the Simultaneous Position Detection of ⁹⁰Sr/⁹⁰Y and ¹³⁷Cs Radioactivity, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, vol.1049, 2023, 168071, 7p.

8-4 作業空間内構造物種別の自動識別 -深層学習による点群データからの構造物識別手法の開発-





図1 構造物識別手法の概要

上段は構造物識別器の学習フェーズを示しており、点群と3次 元 CAD データから教師データセットを作成して識別器の学習を 行っています。下段では学習済みの識別器を用いて、新しい点群 データに対して構造物の形状領域と種別の推論を行っています。

図2 性能評価の結果の一例

(a)の入力点群データに対して、構造物識別器によって(b)に示すように種別が推定されます。(c)は人手によって作成された3次元CADデータ(構造物ラベルの正解)を示しており、
 (b)の推論結果がおおむね再現できていることが分かります。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)の廃炉作業で は、作業者の被ばく低減措置を適切に講じるために、作 業空間の放射線量分布を把握した上で計画立案を行うこ とが重要です。正確な放射線量分布の計算には、作業空 間で計測された部分的な線量率の値に加えて、放射線の 減衰や吸収、散乱といった挙動を計算するために構造物 の位置や形状、材質の情報が不可欠です。従来このよう な情報の整備は、現場で3次元レーザースキャナーを用 いて計測された点群データ(3次元の位置情報を持つ点 の集合)を基に専用のソフトウェアを用いて人手による 3次元モデル作成が行われています。しかし、この作業 には専門的知識が必要なことに加えて、計測データの欠 損等により判別が難しい見た目のデータが多く存在する ことから時間的・人的なコストが生じています。

そこで私たちは、深層学習を用いて点群データから自動 的に構造物情報を推定する手法を開発しています(図1)。 点の配置パターンに基づいて構造物識別器を学習させる ことによって、新しく入力されたデータに対して形状領域 と種別を推定します。さらに、推定した構造物の種別へあ らかじめ紐付けた材質情報を割り付けることで3次元モ デル作成のコストを大幅に削減することが期待できます。 構造物識別器を学習させるためには、膨大な教師データ(機械学習に必要な入力と正解がセットになったデータのことであり、本稿の場合は属性情報が付与された点 群データ)が必要になりますが、その整備は容易ではあ りません。私たちは、既存の原子力施設で計測された点 群データに対して、現場で利用される構造物の管理区 分に基づいて人手で整備した3次元 CAD(Computer Aided Design)データの情報を割り付けることで効率的 に教師データを作成することを実現しました。実際の原子 力施設のデータに対して提案手法を適用して識別器の学 習を行い、交差検証法による性能評価を行った結果、主 要な九つの構造物種別に対して高い推定精度を達成しま した(図2)。このように、これまで人手によって構造物の 形状領域と種別を割り付ける必要があった作業を自動化 することで、廃炉作業の効率化に寄与することができます。

現在、構造物の外観情報等を用いて更なる識別精度の 向上を進めています。今後は、学習していない構造物種 別の判別を行うアルゴリズムの開発を行うとともに、3 次元モデリング手法を統合したシステム化によって 1F 現場適用を目指します。

(今渕 貴志)

●参考文献

Imabuchi, T. et al., Discrimination of the Structures in Nuclear Facility by Deep Learning Based on 3D Point Cloud Data, Proceedings of 2022 IEEE/SICE International Symposium on System Integration (SII 2022), Narvik (Online), Norway, 2022, p.1036-1040.

8-5 1F 原子炉内のセシウム分布予測に向けて -事故時におけるセシウムの原子炉内ふるまい解析コードを改良-



図1 シビアアクシデント解析コードの改良により得られるセシウムの吸着量、化合物、水溶性に関する情報 事故時の原子炉の構造材料であるステンレス鋼へのセシウムの化学的な吸着の有無や吸着により生成した化合物、その水溶性 を明らかにし、改良したモデルをシビアアクシデント解析コードに導入することで、原子炉構造材料におけるセシウムの吸着 状態や、水溶性について検討できるようになりました。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)の燃料デブリ 取出しに向けて、原子炉や建屋内に残っている放射性セ シウム(Cs)は、廃炉作業や建屋等の冠水により水へ溶 出することが想定されます。このため、放射線源である セシウムの分布やその化合物の性状を予測できれば、そ れが水で溶出されるかどうか等が分かり、燃料デブリの 取出し作業時の被ばく評価や廃棄物の処分方法の検討に 役立ちます。例えば、セシウムが構造材料に吸着するこ とで、生成する化合物によっては水に溶出しない化学的 に安定な放射線源として残存する可能性があります。し かし、今まで、セシウムがどのように吸着し、どのよう な化合物を生成するか不明であり、さらに SAMPSON 等 の従来のシビアアクシデント解析コードにおいてそのふ るまいを解析できなかったため、原子炉内に分布するセ シウムの吸着状態や水溶性を検討することは困難でした。

そこで、私たちは、873 ~ 1273 K にて主要な構造材 料であるステンレス鋼とセシウム蒸気の反応実験を行い ました。ステンレス鋼への吸着により生成したセシウム 化合物は、主にステンレス鋼に含まれる鉄(Fe)やケイ 素(Si)との反応生成物である CsFeSiO₄、CsFeO₂ で あること、1F で想定される温度である 1000 K 近傍に て、そのセシウム化合物が異なることを明らかにしまし た。さらに、CsFeSiO₄、CsFeO₂のそれぞれの高純度 試料を作製して、水への溶出実験を行うことにより、約 1000 K以上で生成される CsFeSiO₄ は水溶性が低く、 約 1000 K以下で生成される CsFeO₂ は水溶性が高いこ とを明らかにしました(図 1)。

これらの実験結果をもとに、私たちはセシウム化学吸 着モデルを改良し、原子炉や建屋内各所のセシウムの 事故時のふるまいを解析するための従来の解析コード SAMPSON にこの改良したモデルを導入しました。セ シウムが圧力容器内を移行していく中で経験する温度低 下(約 1300 K から 400 K)を模擬した管状炉によりセ シウムの化学吸着実験を行い、改良した SAMPSON に よりこの実験を解析しました。その結果、移行時の温度 低下に応じた吸着量の変化や生成した化合物をよく再現 し、改良した SAMPSON が妥当であることを確認しま した(図 1)。

この改良した SAMPSON で解析を行うことにより、 今まで不明であった 1F の原子炉内におけるステンレス 鋼へのセシウムの吸着状態や、吸着したセシウム化合物 の水溶性について検討できるようになりました。

本研究成果のうち、従来の解析コード SAMPSON への改良したモデルの導入は、エネルギー総合工学研究所との共同研究により実施しました。

(三輪 周平)

●参考文献

Miwa, S. et al., Improvement of Model for Cesium Chemisorption onto Stainless Steel in Severe Accident Analysis Code SAMPSON (Joint Research), JAEA-Data/Code 2021-022, 2023, 32p.

8-6 1F 原子炉建屋内に残存するセシウムの性状予測に向けて - セシウムの非鉄構造材料への吸着挙動を解明-



図1 1F2 号機原子炉建屋内の制御棒駆動機構交換用レールと シールドプラグ

1Fにおける内部調査により、2号機や3号機では赤色で示したシールドプラグ、さらに2号機では CRD 交換用レールのところで予想外に線量が高くなっていることが報告されています。

東京電力福島第一原子力発電所 (1F) の廃止措置では、 ガンマ(γ)線源の大半を占めるセシウム(Cs)の原 子炉建屋内での分布や水溶性などの性状に関する情報が 重要になります。そして、1F2 号機の内部調査によれば、 調査時点において CRD 交換用レール付近では吸収線量 が最大 42 Gy/h とペデスタル内の7 Gy/h よりも高く、 シールドプラグでは表面の γ 線線量が 6 ~ 11 mSv/h と それ以外の床面の 0.1 ~数 mSv/h 程度よりも予想外に 高くなっていました(図1)。そのため、この両者につ いてそれぞれの原因を探るため、事故時の代表的な Cs 化合物である水酸化セシウム(CsOH)を用いた実験を 行いました。

CRD 交換用レールについては、原子炉格納容器内の 配管に用いられるケイ酸カルシウム保温材(以下、保温 材)に気相中の Cs が化学吸着し、レール上に落下する ことで線量が高くなったのではないかと考えました。そ こで、気相中の CsOH と鋼材との化学吸着実験に用い た同じ装置を用いて保温材についても 600 ~ 800 ℃の 範囲で調べました。その結果、より明確な化学吸着挙 動が見られた 800 ℃の例(図 2)では、保温材は大きな 度合いで収縮するとともに 7 ~ 8 割の重量増加があり ました。また、化学吸着試験後の保温材を 72 時間純水



化学吸着試験前

化学吸着試験後

図2 セシウム蒸気との化学吸着試験前後の保温材の外観 800 ℃の試験では、ケイ酸カルシウム保温材は大きな度合いで収 縮するとともに7~8割の重量増加がありました。セシウムが化 学吸着することでケイ酸カルシウム保温材が CRD 交換用レール 上に落下し、高線量になったのではないかと考えています。

表1 水酸化セシウム水和物試薬とコンクリートとの高温化学 反応生成物

水酸化セシウム水和物(CsOH・H₂O)試薬とコンクリートと の混合粉では、室温でも化学反応を起こすことが確認されました。 そのため、エアロゾルの形態で気相中に存在するセシウムがコン クリート製のシールドプラグと反応することで高線量になったの ではないかと考えています。

試料	室温	200 °C	400 °C
CsOH・H ₂ O と コンクリートと の混合粉	$Cs_2CO_3(H_2O)_3$	$\begin{array}{c} \text{Cs}_2\text{CO}_3(\text{H}_2\text{O})_3 \\ \text{CsAlSiO}_4 \end{array}$	$\begin{array}{c} \text{Cs}_2\text{CO}_3(\text{H}_2\text{O})_3\\ \text{CsAlSiO}_4 \end{array}$

に浸漬させ、水中に溶出した元素の同定は誘導結合プラ ズマ発光分光分析、浸漬後の保温材に残存する化合物の 同定はX線回折(XRD)分析、それぞれの方法により、 水溶性のケイ酸セシウム(Cs₂SiO₃)や水に溶解しにく いアルミノケイ酸セシウム(CsAlSiO₄)の生成が確認 されました。その結果から、Csが化学吸着した保温材 が収縮し、レール上に落下したために線量が上昇した可 能性があると考えられます。

シールドプラグについては、気相中の Cs はエアロゾル の形態で存在していると考えられます。そこで、水酸化セ シウム水和物(CsOH・H₂O)試薬とコンクリートとの 混合粉に対して熱重量・示差熱分析や XRD 分析を実施 することで化学反応の有無を調べました。その結果、室温 でも既に水溶性の炭酸セシウム水和物(Cs₂CO₃(H₂O)₃) が生成し、200 °C以上では水に溶解しにくい CsAlSiO₄ の生成も確認されました(表 1)。したがって、気相中 の Cs がコンクリートと反応するために線量が上昇した 可能性があると考えます。

今後は、化学吸着した Cs 化合物の生成速度や生成割 合などを明らかにすることで、原子炉建屋内での Cs の 性状を予測することを計画しています。

(中島 邦久)

●参考文献

Rizaal, M., Nakajima, K. et al., High-Temperature Gaseous Reaction of Cesium with Siliceous Thermal Insulation: The Potential Implication to the Provenance of Enigmatic Fukushima Cesium-Bearing Material, ACS Omega, vol.7, issue 33, 2022, p.29326-29336. Luu, V. N., Nakajima, K. et al., Study on Cesium Compound Formation by Chemical Interaction of CsOH and Concrete at Elevated Temperatures, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.60, issue 2, 2023, p.153-164.

8-7 燃料デブリ等の安全な保管管理を目指して - 水素漏えい・拡散挙動解析に関する研究開発-



図1 燃料デブリ等の放射性物質の保管容器内部の状況 容器内部に残留した水分が、物質から放出された放射線によっ て分解して、分解生成物として水素が発生します。



図2 水素の漏えい挙動の実験が対象とした部屋(モデル) 天井と側面(右)の各1ヶ所に換気口を設けて、底面から水素を 10 L/min で 420 秒間放出したときの水素の漏えい挙動を調べました。

私たちは、東京電力福島第一原子力発電所事故の復旧 に向けた取組みの中で、今後取出しを予定している燃料 デブリ、廃棄物等の水分を含んだ放射性の物質を安全に 保管・管理するための研究開発を行っています。

放射性物質が入った容器は、水を抜いた状態で保管さ れます。しかし、容器内に水分が残留すると、物質から 放出される放射線で水が分解して水素を発生するため、 それが燃焼・爆発するリスクが懸念されます(図1)。 そこで、保管中に発生した水素を容器や施設内に高濃度 で溜めておかないために、水素を酸素と反応させて水に 戻す(再結合させる)触媒や放射性物質の放出を防ぐフィ ルターの付いた排気口(ベント)等を用いた水素対策が 検討されています。

これらの対策の妥当性の検証や新たな対策の開発を行 う技術として、数値流体力学(CFD)という流れを観察 する数値解析・シミュレーション手法を取り入れ、これを 用いて水素の漏えいや拡散の研究開発を進めています。 その研究の一例として、水素の漏えい挙動の実験をシ ミュレーションで再現して、さらに換気のプロセス、換気口 やその周囲の風等の影響を検証した成果を紹介します。

この実験では、部屋 (図2)の天井と側面(右)に換気口 を設け、室内の底面にある放出口から水素を10 L/min で 420秒間放出して、室内(◆)の水素濃度を計測しました。



図3 (a) 水素濃度の計測点での時間変化と(b) 室内での分布 (a) は天井の換気口付近の計測点の水素濃度の時間変化で、 計算結果が実験結果を良く再現していることが分かります。 (b) は水素放出停止後の水素濃度分布を示しています。①室 内に溜まった水素は②天井の換気口から抜けますが、③側面 の換気口から外気が流入することで自然換気が生じて、④こ れがさらに室内の水素を低減します。

図3に水素濃度の時間変化(a)と分布(b)を示します。 計測点での水素濃度(a)は実験値と良く一致して、放 出開始から上昇し、放出停止後に速やかに低下している のが分かります。これを室内の水素濃度の分布(b)か ら詳しく調べると、部屋の外が無風の場合、①放出口か ら出た空気よりも軽い水素は速やかに天井付近に到達し て、②天井の換気口から室外に排出され、それと同時に、 側面の換気口から室内に外気が流入して、③これが底面 に沿って放出口に到達し、④これと混ざった水素が急激 に低濃度になることが分かりました。一方、部屋の周囲 に右から左に風が吹いている場合、側面の換気口が風の 当たる面にあるため、①~④の換気が加速され、室内の 水素濃度は無風時より早く低下しますが、その反対から の風の場合、室内の水素濃度は無風時よりも上昇する懸 念のあることが明らかになりました。

今後、このような数値解析・シミュレーション技術を 活用し、水蒸気や NOx 等の酸化剤ガスが共存する場合 の水素挙動等を明らかにしていくとともに、換気口周囲 の温度や風の流れといった雰囲気制御を活用した換気シ ステムによる水素の滞留防止技術等の開発に取り組んで いく予定です。

(寺田 敦彦)

●参考文献

Terada, A. et al., Effects of Vent Size and Wind on Dispersion of Hydrogen Leaked in a Partially Open Space: Studies by Numerical Analysis, Nuclear Science and Engineering, vol.197, issue 4, 2023, p.647-659.

8-8 水素の燃焼挙動を数値解析により解明する - 火炎の不安定性に及ぼす温度や圧力の影響-







図1 放射性物質を 保管する容器の内 部の概念図

図2 (a) 2 次元のシミュレーションでの計算の領域 と初期の火炎面の位置及び (b) 0.5 MPa、473 K、5 ms での火炎面の温度分布 (*L*_y = λ)

燃焼していない(未燃) ガスは計算領域の左側から 流入して、燃焼した(既燃)ガスは計算領域の右側 に流出します。 図3 (a) 0.5 MPa、473K、5 ms での細胞状の火炎面 の温度分布(*L*_y = 12 λ) 及び (b) 0.5 MPa での平面状 火炎の燃焼速度 (S_u)、セル状火炎の燃焼速度 (S_{cf}) と速度比 (S_{cf}/S_u) の温度依存性

計算領域の縦軸の範囲を大きくすると、火炎表面 のセル状構造の出現と分離がはっきりと現れます。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)の廃炉では、 保管した燃料デブリ等の高放射性の物質に含まれる水分 から発生する水素(H₂)の管理が重要な課題です。図1 のように、保管容器内に残った水が放射性物質から放出 される放射線で分解されて(放射線分解)、水素が発生 します。この中の水素濃度が燃焼可能な濃度(爆発下限 界)に達して、着火源があると、水素が燃焼します。高 温高圧等の条件ではその燃焼が爆発となり、周囲の設備 や施設の損傷、環境への放射性物質の漏えいが起きてし まいます。また、放射性物質から放出される熱(崩壊熱) で容器内の温度と圧力が上昇して、水素の燃焼に影響を 与える可能性があります。したがって、水素を安全に管 理するには、水素燃焼時の炎(火炎)の挙動や特性を理 解することが必要です。

これを解決する手段の一つとして、シミュレーション や数値流体力学(CFD)解析があります。本研究では、 2次元(2D)の流れの場での水素と空気とが均一に混 合した際の燃焼(水素-酸素予混合燃焼)をシミュレー トして、高温・高圧条件下の火炎の構造と伝播のプロセ スを明らかにしました。

図2(a)に火炎面のシミュレーションの計算方法を 示します。2D計算では、火炎面は直線で示される「安 定な」平面状火炎面(----)とサインカーブで示される「不 安定な」初期火炎面(---)の合成で表されています。そ の合成火炎面(---)は未燃のガスに向かって進みます。 図 2 (b) に火炎面の温度分布の結果を示します。縦(y) 軸の範囲 (L_y)が初期火炎面の波長(λ)程度だと、火炎 面 (青とオレンジの境目)を詳しく確認できませんが、 図 3 (a)のように、その範囲を大きくすると($L_y = 12 \lambda$)、 火炎面が凸凹になり、これが不安定な状態を示すセル(細 胞)状構造の形成を表していることがはっきり分かります。

本研究では、水素の火炎の不安定性を、異なる圧力での温度と燃焼速度の関係から調べました。室温で圧力が 増加すると、平面状火炎の速度は減少しました。一方、 図3(b)のように、高圧で温度が上昇すると、平面状 火炎(▲)とセル(細胞)状火炎(●)の速度が増加し ましたが、それらの速度比(◆)は減少しました。それ に加えて、火炎面のセル状の構造が目立たなくなりまし た。これは、予混合火炎の不安定性が未燃ガスの温度が 高くなると弱くなること、つまり、未燃ガス温度が高い ほど、燃焼がスムーズになることを示しています。以上 のことから、温度と圧力が火炎の不安定性と、その特性 や挙動に影響を与えることが分かりました。

水素-空気の燃焼・爆発の基本的な特性をさらに明ら かにするには、3次元のシミュレーションを適用した研 究が必要ですが、これが実現できれば、1Fの廃止措置 や高放射性の廃棄物管理の現場での水素の安全対策によ り確かな情報を提供できると考えています。

(Thwe Thwe Aung)

●参考文献

Thwe Aung et al., The Effects of Unburned-Gas Temperature and Pressure on the Unstable Behavior of Cellular-Flame Fronts Generated by Intrinsic Instability in Hydrogen-Air Lean Premixed Flames Under Adiabatic and Non-Adiabatic Conditions: Numerical Simulation Based on the Detailed Chemical Reaction Model, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.60, issue 6, 2023, p.731-742.

8-9 冷却水を止めた場合の2号機の温度分布を推測する - 空冷状態での燃料デブリ熱伝達数値シミュレーション-



図1 2号機の空冷シミュレーション対象領域 炉心、下部プレナム、ペデスタル底部にデブリを配 置し、発熱量を既存の知見からそれぞれ 4.79 kW、 21.46 kW、8.75 kW と設定しました。

東京電力福島第一原子力発電所廃止措置における汚染 水対策として、燃料デブリ取り出し時に重要な冷却水停 止(空冷状態)条件での燃料デブリ熱挙動の把握が重要 視されています。しかしながら、高い放射線量により現 地調査が困難であるため、数値シミュレーションの利用が 有効です。原子力機構では圧力容器内外の状態を模擬擬 した燃料デブリの発熱挙動と空冷による冷却状態を解析 評価する手法を開発しました。本手法は、燃料デブリの 熱の伝達に対し、周囲の流体(空気)の詳細な挙動や今 後明らかになるであろう原子炉内部の構造物情報を正確 に反映することができます。加えて、燃料デブリは一様 な物質ではなく、細かいデブリが堆積した砂利のような 性状である多孔質体(非常に多くの微細な空孔を有する 物質)と推定されているため、新たに多孔質体モデルを 導入しました。

開発した手法を用いて、図1に示す圧力容器内部の 炉心、下部プレナム及びペデスタル底部を対象としてそ れぞれに発熱する燃料デブリが存在する条件で、2号機 を対象に空冷シミュレーションを実施しました。解析に おいて、各領域での燃料デブリの量、形状、発熱量は、 現地観測結果やシビアアクシデント解析コードにより推 定された現状最も確からしい知見を反映しました。炉 心、下部プレナム、ペデスタル底部のデブリの発熱量は



図2 従来手法と多孔質体モデルの比較例

温度(℃)

従来手法では、空気はデブリ内部に侵入しませんが、多孔質体モデルを用 いると内部に侵入し、その部分の温度が下がっていることが分かります。



図3 (a) 燃料デブリの温度分布と、(b) 空冷による空気の流れ(気流) とその速度分布

燃料デブリの最高温度は、下部プレナムデブリにおいておよそ470 ℃に達しました。また(b)では、圧力容器内部にて下部プレナムデブリ上部から、他の領域に比べ速度が大きく幅が広い上昇気流が生じていることが分かります。

それぞれ 4.79 kW、21.46 kW、8.75 kW と設定しました。 図2はデブリを均質な固体として表す従来手法と多孔 質体モデルの温度分布の違いを表しています。図より、 多孔質体モデルを用いることにより温度分布は明確に異 なることが分かります。

図3は各領域の燃料デブリの温度(a)と速度の大きさ 分布(b)です。図3(a)では発熱するそれぞれの燃料デブ リは周囲雰囲気よりも高温になっており、特に、下部プ レナムデブリが最も高温になっていることを確認しまし た。図2(右)からは、下部プレナムデブリから上方への 上昇気流、デブリ上部だけでなく、炉心デブリ及びペデ スタル底部のデブリの周囲にも固体モデルでは捉えられ なかった複雑な気流とその温度が明らかとなり、時間的 に変化する空気の流れを解析できるようになりました。 今後は、実験結果との比較による検証と、計算モデルや 条件などを様々に変更した解析を実施することで、本解 析手法の信頼性及び適用性を向上させていく予定です。

本研究は、経済産業省「廃炉・汚染水対策事業費 補助金(燃料デブリの性状把握のための分析・推定 技術の開発)」の研究の一部として実施したものです。 本研究成果は、原子力機構のスーパーコンピュータ [HPESGI8600]を利用して得られたものです。

(山下 晋)

●参考文献

Yamashita, S. et al., Development of a Numerical Simulation Method for Air Cooling of Fuel Debris by JUPITER, Mechanical Engineering Journal, vol.10, no.4, 2023, 22-00485, 25p.

8-10 河川水系での放射性セシウムの動きに森林が影響 -森林内移行と流域規模の動態を結び付けたモデル開発-



図1 解析対象領域の三次元構造モデルと森林内移行 GETFLOWSでは、地質構造を基に地下を三次元、標高データ を基に地表を二次元でモデルを作成し、地表水と地下水を同 時に計算します。得られた水循環場から、表層における土砂、 Cs輸送、さらに今回組み込んだ森林内移行(樹冠、落葉落枝、 土壌間移行や落葉落枝からの溶出等)の計算を実施し、環境中 でのCs動態を予測します。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故由来の放 射性セシウム(Cs)は、その約 70% が未除染の森林域 に存在するため、森林から渓流・河川へ Cs がどのよう に動くのかを把握することが、農作物や淡水生態系中 の Cs 濃度の変化傾向を予測するために重要です。特に 土壌粒子等に吸着された Cs(懸濁熊 Cs)のみならず、 生物移行性の高い、水に溶けた Cs(溶存態 Cs)流出 の現象理解が必要です。既往の研究では、99%が森林 域の太田川上流域(図1)を対象に、流域水循環モデル GETFLOWS を用いた水、土砂及び Cs 移動の数値解析 を行いました。実測値と解析結果の比較を通じ、森林域 での溶存態 Cs の流出には有機物の影響、つまり森林に 存在する落葉落枝の層から溶存態 Cs が溶出し、渓流・ 河川へ流出してきていることが推測されました。本研究 では、森林内 Cs 移行及び有機物からの溶存態 Cs 溶出 現象を GETFLOWS モデルに組み込み、実測値と比較 することで、上流域での溶存態 Cs 流出の現象理解を進 めました。

はじめに図1の流出点において、流量及び土砂流出量、 懸濁態 Cs(ここでは¹³⁷Cs)に関するモデルの再現性 を確認しました。続いて、図1(挿入図)の赤矢印に示 される森林内及び三次元構造モデル間の¹³⁷Cs移行をモ デル化しました。2014年1月から2015年12月までを 対象に、降水量に応じた、図1の流出点における河川 水中の溶存態¹³⁷Csの濃度の計算結果を図2に示します。



図2 河川水中における溶存態及び懸濁態¹³⁷Cs 濃度の計算結果 溶存態と懸濁態¹³⁷Cs は吸着分配平衡仮定での解析をケース 0、森 林域に樹木や落葉落枝の層を考慮し、森林内移行と流域水循環を 結び付けたモデル解析をケース 1 としました。具体的には、有機 物分解に伴う溶存態¹³⁷Cs の供給能と水位上昇に伴う河川水への 落葉落枝の層からの供給をモデル化しました。

ケース0は既往の研究の結果*、ケース1は本研究の結 果になります。吸着分配平衡(溶存態と懸濁態¹³⁷Csは 瞬時にある比率で吸脱着する)を仮定した解析ケース0 (---)の結果は、平水時の溶存態¹³⁷Cs 濃度の実測値 (0.14 ~ 0.53 Bg/L、平均: 0.32 Bg/L)に対して、実測 値に整合的な結果(平均:0.36 Bg/L)でしたが、実測 値で認められた溶存態¹³⁷Cs 濃度の出水時の上昇(○)、 そして夏季に高く冬季に低いといった季節変動(●)を 十分再現することができていません。一方、森林内 Cs 移行及び有機物からの溶脱現象をモデルに組み込んで解 析したところ (---)、実測値と解析値に一部かい離が 認められるものの、この二つの変化傾向を再現すること ができました(ケース0及び1の実測値との相関係数: -0.33、0.62)。つまり、既往の河川の調査結果でも明 らかなように、森林に存在する落葉落枝の層から溶存態 ¹³⁷Cs が溶出し、渓流・河川へ流出してきていると考え られます。

今後も、河川調査や室内実験を通じて、森林の落葉落 枝の層から渓流・河川への溶存態¹³⁷Cs 溶出メカニズム を明らかにすることで、今後の Cs 濃度の減少傾向の予 測や対策を評価していきます。

(佐久間 一幸)

* Sakuma, K. et al., Applicability of K_d for Modelling Dissolved ¹³⁷Cs Concentrations in Fukushima River Water: Case Study of the Upstream Ota River, Journal of Environmental Radioactivity, vols.184–185, 2018, p.53–62.

●参考文献

Sakuma, K. et al., Watershed-Geochemical Model to Simulate Dissolved and Particulate ¹³⁷Cs Discharge from a Forested Catchment, Water Resources Research, vol.58, issue 8, 2022, e2021WR031181, 16p.
8-11 陸域に沈着した放射性セシウムは将来どう動くのか? - 陸域における放射性セシウムの 1F 事故後 30 年間の挙動予測-



図1 1F 事故後 30 年間における (a) 河川から海洋への ¹³⁷Cs 輸送量及び土地利用ごとの寄与率と (b) 30 年後の土地利用ごとの ¹³⁷Cs 残存率及び減少要因の割合

(a) 寄与率は海洋への輸送量に対して、各土地利用から¹³⁷Cs が運搬されてきた割合を示しています。(b) 陸域(森林、耕作放棄地、市 街地、農地) に沈着した¹³⁷Cs は放射性崩壊と降水に伴う運搬によって減少します。円グラフは 30 年後の¹³⁷Cs 残存率、放射性崩壊と 降水に伴う運搬による減少率を示しています。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故によって 陸域に沈着した放射性セシウム(¹³⁷Cs)は、現在も大部 分が陸域に残っています。陸域に沈着した¹³⁷Csは降水 に伴って一部が河川へと運搬され、最終的には海洋へ輸 送されることが知られています。そのため、陸域に残る ¹³⁷Csや海洋へ輸送される¹³⁷Csの長期的な挙動を予測す ることは、¹³⁷Csの人体と環境へ及ぼす長期的な影響を知 るためには重要です。降水に伴って運搬される¹³⁷Csの時 間的な傾向は土地利用ごとに大きく異なるため、土地利 用ごとの¹³⁷Csの挙動特性を考慮することが予測には不可 欠です。そのため、これらの特性を反映するために土地 利用別に土壌、植生中の¹³⁷Csの挙動を考慮した¹³⁷Cs予 測モデルを開発しました。

1F 事故の影響を受けた流域で最大の面積を持つ阿武 隈川流域を対象に 1F 事故後 30 年間の¹³⁷Cs の挙動を予 測しました。本モデルは降雨に伴って流出する水、土壌、 ¹³⁷Cs が河川を通じ海洋まで流出する過程を再現すること ができます。本研究では、除染面積が小さい流域を対象 としたため、除染の影響は考慮していません。実測値と の比較によって、モデルは陸域及び河川中の¹³⁷Cs の挙 動を良好に再現することが確認できました。結果として、 1F 事故後 30 年間で河川から海洋へ輸送される¹³⁷Cs は 25.3 TBg(1 TBg = 10¹² Bg)と推定され、この値は流域 に沈着した¹³⁷Csに対して 4.6% に相当します。また、輸送量に対する市街地と農地からの寄与は合計で 85.3% と推定されました(図 1 (a))。この結果は人間活動が盛んな市街地と農地から運搬されてくる¹³⁷Cs が海洋への輸送に大きく寄与していることを示しています。また、森林、耕作放棄地、市街地、農地に沈着した¹³⁷Cs は 1F事 故後 30 年間でそれぞれ 1.4%、0.9%、20.9%、20.8% の量が降水により取り除かれ、49.7%、50.0%、39.0%、36.7% が残ると推定されました(図 1 (b))。そのため、人間活動が盛んな地域に沈着した¹³⁷Cs の量は、それ以外の地域(森林と耕作放棄地)よりも減少することが示されました。これらの結果は人間活動が陸域における¹³⁷Cs 沈着量の減少を促進することを示唆しています。

本研究は陸域における¹³⁷Csの長期的な挙動の予測結 果を示したものであり、これらの予測結果は将来的な被 ばく線量や環境中の生物へ及ぼす影響を評価するための 有用な情報を提供することができます。今後は1F近傍に 位置する流域において、除染を含む人間活動の影響を考 慮した¹³⁷Csの長期的な挙動の予測を進めていく予定です。 本研究成果は、大阪大学との共同研究「阿武隈川流域 における放射性セシウム輸送モデルの検証、精緻化及び 長期動態評価」による研究成果の一部です。

(池之上 翼)

●参考文献

Ikenoue, T. et al., Thirty-Year Simulation of Environmental Fate of ¹³⁷Cs in the Abukuma River Basin Considering the Characteristics of ¹³⁷Cs Behavior in Land Uses, Science of the Total Environment, vol.876, 2023, 162846, 12p.

8-12 貯水池底質からの放射性物質の再溶出メカニズム - 底質中の水の水質分析結果から得られた知見-





東京電力福島第一原子力発電所事故から 10 年以上が 経過し、水圏生態系の放射性セシウム(¹³⁷Cs)濃度は 全体的に大きく低下していますが、福島県内の一部の河 川・湖沼では、現在も淡水魚の出荷制限措置が継続して います。特に上流域から高い濃度の¹³⁷Cs を含む土砂の 流入が継続している貯水池では、堆積物(底質)から池 水への¹³⁷Csの再溶出や溶出した¹³⁷Csの食物連鎖を介 した淡水魚への濃縮の長期化が懸念されています。その ため、本研究では底質から池水への¹³⁷Csの再溶出のメ カニズムを、底質中に含まれる水(間隙水)の水質の変 動要因と併せて考察しました。

調査は2019年7月に福島県浪江町の大柿ダムで行い ました。池水試料は、メンブレンフィルターを用いてろ 過し、放射能や水質の測定を実施しました。一方、底質 試料からは、深さ方向に1 cm 間隔で間隙水を抽出し、 池水試料と同様に放射能や水質の測定を実施しました。

放射能分析の結果、間隙水の¹³⁷Cs 濃度は池水の溶存 態¹³⁷Cs 濃度(0.07 ~ 0.83 Bq/L)よりも有意に高く、 深度が深くなるにつれて上昇しました(図1(a))。一方、 底質の¹³⁷Cs濃度は5.2×10⁴~2.0×10⁵ Bq/kgであり、 底質と間隙水の間における¹³⁷Csの分配係数(K_d値、底 図1 底質と間隙水の放射能濃度と水質
 (a) 底質と間隙水の¹³⁷Cs 濃度、(b) ¹³⁷Cs の K_d 値、
 (c) 間隙水の水質です。間隙水の¹³⁷Cs 濃度やアン
 モニウムイオン (NH₄⁺) は深度が深くなるにつれて
 上昇することが分かりました。

図2 ¹³⁷Csの K_d 値とアンモニウムイオン (NH₄⁺)の関係 K_d 値とNH₄⁺とは有意かつ負の相関があり、ヨーロッパ(4地点) の先行研究例(Comans, R.N.J. et al. *)と比較すると、大柿ダ ムの底質は¹³⁷Csを溶出しにくい性質があることが分かりました。

質中と間隙水中の濃度の比)は深度が深くなるにつれて 低下しました(図1(b))。また、水質分析の結果、セ シウムイオン(Cs⁺)と同じ1価の陽イオンであるカリ ウムイオン(K⁺)は0.04~0.11 mmol/Lであるのに対し、 アンモニウムイオン(NH₄⁺)は0.24~1.22 mmol/Lと 深度が深くなるにつれて上昇しました(図1(c))。

 K_{d} 値は Cs⁺の主要な競合陽イオンである NH₄⁺と有 意かつ負の相関を示しました。これはイオン交換により 底質に吸着していた ¹³⁷Cs が再溶出し、間隙水の ¹³⁷Cs 濃度が高くなったことを示唆しています。しかしながら、 図 2 に示した諸外国の例に比べて、大柿ダムの底質は ¹³⁷Cs を溶出しにくい性質(同様の NH₄⁺の場合、 K_{d} 値が 高い傾向)を有していることも併せて明らかとなりました。

今後、上記のような再溶出メカニズムを、淡水魚の放 射能濃度の長期予測評価に反映し、出荷制限措置の解除 に向けた対策検討の一助となるように成果を統合してい く予定です。

(舟木 泰智)

* Comans, R.N.J. et al., Interpreting and Predicting *in Situ* Distribution Coefficients of Radiocaesium in Aquatic Systems, Studies in Environmental Science, vol.68, 1997, p.129-140.

●参考文献

Funaki, H. et al., Remobilisation of Radiocaesium from Bottom Sediments to Water Column in Reservoirs in Fukushima, Japan, Science of The Total Environment, vol.812, 2022, 152534, 10p.



図1 対象地域、方法及び主要な結果

(a) 調査地点を■で示します。(b) 2017 年から 2018 年にかけて観測を実施しました。WQ システムは約1年間の連続測定を実施し、 ST システムは 55 日間設置して沈降粒子量を測定しました。(c) 流速と波浪のせん断力に起因する海底土の再懸濁が、高濁度層 中に含まれる粒子の主な起源でした。

東京電力福島第一原子力発電所(1F)事故後、海産 物への放射性物質の移行が懸念されることから、海域で は放射性セシウム (¹³⁷Cs) の挙動を把握する 「動態研究」 が行われています。事故から12年が経過した現在でも、 わずかな量の¹³⁷Cs が河川を介して陸域から海域へ輸送 されています。特に沿岸では、海底土や河川から流入す る土砂等で形成される濁った領域(高濁度層)が海底付 近に存在しています。このような高濁度層中に含まれる ¹³⁷Cs は海底に生息する小型生物やそれらを捕食する底 牛魚へ影響を与える可能性があり、その供給メカニズム の解明が求められています。また、高濁度層は波浪や流 れによって容易に移動するため、放射性物質輸送におい て重要な役割を果たしていると考えられます。そのよう な河口域の高濁度層と河川からの¹³⁷Csの流入量・流入 時期との関係を把握することは、将来的な底生魚への影 響を予測する上で重要な知見となります。そこで本研究 では、高濁度層中の¹³⁷Csに対する河川影響の実態把握 を目的とし、沿岸域で調査を実施しました。

調査地点は、図1(a)に示すように、1F 周辺の河川の 中で流域面積の大きい請戸川河口域としました。図1(b) に示すような水質系(WQ システム)とセジメントトラッ プ系(ST システム)の二つの係留系を設置し、観測を 行いました。ST システムには、セジメントトラップ(ST) という機器を組み込み、高濁度層を形成する粒子(沈 降粒子)量を測定しました。また、WQ システムには、 濁度と流速を測定する機器を組み込み、高濁度層の変動 を捉えました。WQ システムで得られた流速と一般に 公開されている波浪データから粒子移動の指標(せん断 力)をそれぞれ計算しました。

沿岸における濁度の変動(沈降粒子量の変動)は、流 速と波浪のせん断力(海底土の再懸濁)と河川流入(河 川からの土砂等の懸濁物)の3要因で説明できると考 え、全濁度に対する3要因の寄与割合を重回帰分析(複 数の要因の寄与度合いを求める手法)で計算しました。

各要因の割合を用いて、沈降粒子量を区別すると、再 懸濁の割合が、St.1 で平均:79%、St.2 で平均:83% となりました(図1(c))。そのため、高濁度層中に含 まれる¹³⁷Csを含む粒子は再懸濁によるものが支配的で あり、河川流入で新たに供給される¹³⁷Csの影響は小さ いことが示されました。今後は、底生魚への¹³⁷Cs移行 を予測するための基礎データに貢献できるように、高濁 度層中の沖合輸送量等を計算する予定です。

(御園生 敏治)

●参考文献

Misonou, T. et al., Migration Processes of Radioactive Cesium in the Fukushima Nearshore Area: Impacts of Riverine Input and Resuspension, Marine Pollution Bulletin, vol.178, 2022, 113597, 9p.



図1 分析装置類の組合せにより、地衣類の生体組織内で Cs が保持される仕組みを調べた概念図 地衣類の放射性 Cs 分布像の特徴の違いによって分けた組織切片を作製し、オートラジオグラフィ、デジタルマイクロスコープ、 電子顕微鏡分析、量子化学計算を組み合わせることで、長年謎だった地衣類が長期間 Cs を保持する仕組みを推定できました。

地衣類(藻類と共生する菌類の総称)は、陸上に広く 存在し、数十年以上の寿命を持つ生き物で、大気中から 塵や雨水等を通して物質を捉え保持する性質を持ちます。 それゆえに生物を用いて環境汚染を調べる観測法(バイ オモニター)の一つとして、国内外で使われています。

私たちはこの地衣類(図1)を用いて、東京電力福島 第一原子力発電所事故に起因する放射性セシウム(Cs) を含む降下物の性質や空間的な分布を調べるための手法 開発を進めています。地衣類がCsを蓄積することは知 られていましたが、生体内の「どこ」で「どのような化学 形態」でCsを長期間保持するのかは、長年の謎でした。

関連研究では、量子化学計算によって、地衣類中の Cs は、地衣類特有の二次代謝物とCs⁺ イオンが錯形成 し、安定化する可能性が示されています。また、ウメノ キゴケ類は、組織の厚さが数百 µm ほどで明瞭な層状構 造を持ち、産生する代謝物が層により異なるという特徴 を持ちます。そこで、組織を層別に分けて詳細な Cs 分 布情報を取得できれば、Cs 保持に寄与する代謝物を推 定できると考えました。

まず、オートラジオグラフィ(AR)により、地衣類中の Csの分布が可視化された像を取得し、先行研究情報を基に イオン状 Csによる「拡がりを持つ分布」と粒子状 Csに よる「点状の分布」を示す部分に大別しました(図1(1))。 これらを 5 μm 厚にスライスして組織切片とし、それぞ れの AR 像を再度取得することで、通常の 25 μm を超 える 5 μm の分解能で、組織内の深度方向の Cs 分布を 捉えられました。さらに切片 AR 像と、色が分かるデジ タルマイクロスコープ像を重ね合わせて、詳細な Cs と 色素の二次元分布像を得ることに成功しました。その結 果、イオン状 Cs は下部組織中の色素(メラニン様物質) 沈着部に、粒子状 Cs は組織の上部や内部に存在するこ とを初めて発見しました(図1(2))。これらの位置情報 と、量子化学計算や電子顕微鏡分析等から、Cs が長期 間保持される仕組みは、

- ・イオン状 Cs はメラニン様物質との錯形成による安 定な化学構造への捕捉
- ・粒子状 Cs は菌糸の成長による組織表面への埋没や 組織内部での物理的な捕捉

によるものと推定されました。

今回確立した手法を使えば、降下(地衣類へ沈着)時の Cs の化学形態も推定でき、地衣類を言わば Cs のレ コーダーとして活用できると考えられます。また、福島の環境回復研究で関心の高い同じ菌類のキノコや、山野 草などの Cs 保持の機構解明にも有効と期待されます。

本研究は、国立科学博物館との共同研究の成果の 一部で、日本学術振興会科学研究費挑戦的萌芽研究 (JP16K12627)「地衣類における金属蓄積・保持機構の 解明と放射性汚染物質降下量評価への適用」の助成を受 けて実施しました。電子顕微鏡分析は、株式会社日立ハ イテク、日本電子株式会社の協力を得て実施したものです。 (土肥 輝美)

●参考文献

Dohi, T. et al., Accumulation Mechanisms of Radiocaesium Within Lichen Thallus Tissues Determined by Means of *in Situ* Microscale Localisation Observation, PLOS ONE, vol.17, issue 7, 2022, e0271035, 21p.

8-15 プルトニウム同位体の迅速分析を目指して -前処理操作を必要としない分析技術へ-



図1 アクチノイドと CO₂ ガスの反応性

(a) Pu は CO₂ 流量の増加に伴い、2 酸化物まで酸化反応が進みます。一方、(b) Am と (c) Cm は 1 酸化物までは反応が進みますが、2 酸化物の生成はほとんど見られませんでした。よって、もともと同じ質量数の元素でも酸素が付く数によって質量分離が可能となります。



プルトニウム (Pu) の同位体は、高エネルギーのアル ファ線を放出するものが多く、東京電力福島第一原子力 発電所の廃炉を進める際の被ばく管理や放射性廃棄物管 理において、重要な核種です。それらの管理には、Pu 同 位体 (²³⁹Pu、²⁴⁰Pu、²⁴¹Pu、²⁴²Pu、²⁴⁴Pu など)の測定が必 要となります。しかし、従来の放射線を計測する分析法(ア ルファ線スペクトロメトリ) は、エネルギーが近いアル ファ線を放出する核種を事前に Pu と分離する必要があ り、分析に費やす労力・時間が多い、分析者の力量が定 量値に影響を及ぼすなどといった課題を抱えていました。

誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)は、分離 操作をせずに、溶液中の核種を質量数ごとに分別して 検出可能であり、Pu同位体の一斉検出による分析時間 の短縮化を期待できます。しかし、従来のICP-MS法 では、同じ質量数を持つ別の核種が同時に検出され、目 的とする核種の定量が妨害されるという課題を抱えてい ます。²³⁹Puと²⁴⁰Puに対しては、試料中に過剰に存在 するウラン238⁽²³⁸U)からわずかに生成する²³⁸U水素 化物⁽²³⁸UH⁺及び²³⁸UH₂⁺)、そして²⁴¹Puと²⁴⁴Puには アメリシウム241⁽²⁴¹Am)及びキュリウム244⁽²⁴⁴Cm)</sup> がそれぞれ干渉します。この課題を踏まえ、本研究では、 装置内に二つの四重極(電場を使って特定の質量数以外 の核種を除去する機器)と、その間でガスとの反応を起 こすことができるコリジョン・リアクションセル(CRC) **図2** プルトニウム同位体の一斉分析の概念図 CRC 前段の四重極では²³⁸U が除去され、CRC での ²³⁸UO₂ 水素化物の発生を防ぎます。次に、CRC にて Pu、Am、Cm を CO₂ と反応させると、Pu は 2 酸化物、 Am と Cm は 1 酸化物へと変換されます。CRC 後段の 四重極では、2 酸化物の Pu (PuO₂⁺)のみを通過させ、 一度の測定で主要な Pu 同位体 (²³⁹Pu、²⁴⁰Pu、²⁴¹Pu、 ²⁴²Pu、²⁴⁴Pu)を一斉に分析可能となります。

を備えた ICP-タンデム質量分析(ICP-MS/MS)を利 用し、一度の測定で複数の Pu 同位体を検出するための 分別技術を開発しました。

まず、CRC に複数の酸化性ガス(O₂、CO₂ 及び NO) を個別に導入し、Pu、Am 及び Cm の酸化挙動を調査 しました。その結果、CO。を用いることで、Puは2酸 化物(PuO₂⁺)、Am 及び Cm は 1 酸化物(AmO⁺ 及び CmO⁺)に変換されることを見いだしました(図 1)。こ れにより、²⁴¹Pu・²⁴⁴Puと、²⁴¹Am・²⁴⁴Cmとの質量分 離が可能になりました。一方、²³⁸Uが CRC に入ると酸 化反応によって発生した²³⁸UO2⁺が水素化物(²³⁸UO2H⁺、 ²³⁸UO₂H₂⁺)を形成して、²³⁹PuO₂⁺ と²⁴⁰PuO₂⁺ へと干渉 することが分かりました。そこで、CRC 前段の四重極 で²³⁸U⁺を除去することで、CRC での²³⁸UO₂水素化物 の生成を抑制し、結果的に²³⁹Pu、²⁴⁰Pu、²⁴¹Pu、²⁴⁴Pu への干渉を大幅に低減しました。これらの分離技術を 組み合わせることで、一度の測定で主要な Pu 同位体 (²³⁹Pu、²⁴⁰Pu、²⁴¹Pu、²⁴²Pu、²⁴⁴Pu)を一斉に分析するこ とが可能となります(図 2)。なお、²³⁸Pu は ²³⁸U ととも に除去されるため、本法の測定対象外です。

本法は、前処理操作などを行わずに干渉物質を分離可 能であり、環境試料や放射性廃棄物に含まれる Pu の迅 速分析法として活用が期待されます。

(松枝 誠)

●参考文献

Matsueda, M. et al., Using CO_2 Reactions to Achieve Mass-Spectrometric Discrimination in Simultaneous Plutonium-Isotope Speciation with Inductively Coupled Plasma-Tandem Mass Spectrometry, Chemistry Letters, vol.51, no.7, 2022, p.678-682.

8-16 事故後の住民の被ばく管理手法をレビュー - 住民が安心できる帰還困難区域の解除に向けて-



図1 被ばく線量評価事業のレビュー結果

政府、自治体が実施した個人線量評価事業を内容ごとに分類し、 実施自治体ごとに色を分けて示してあります。

国は、2020年代をかけて、帰還意向のある住民が帰 還できるよう、避難指示解除の取組を進めていくことと しています。原子力規制委員会は、避難指示の解除に際 しては住民の被ばく線量を把握・管理するとともに、住 民の被ばく線量や健康不安を低減することが重要である と示しています。東京電力福島第一原子力発電所事故後、 様々な行政機関により行われた被ばく線量評価に関わる 知見や経験は、今後の避難指示の解除に際して、放射線 防護やリスクコミュニケーションに有用な情報となります。 しかし、評価の目的や手法は機関により多種多様で、情 報の精査・整理がなされていませんでした。そこで本研究 では、これまでに実施された様々な評価をレビューし、その 方法や特徴、留意点などについて体系的に整理しました。 従来から行われてきた主な被ばく線量の評価方法の一つ として、個人線量計による実測は個々の住民が実際に受 けた被ばく線量を評価することができるため、主に政府 や自治体により住民への健康不安対策として行われまし

た(図1)。また、被ばく線量に影響する要因(行動経路・範囲とこれに対応する空間線量率、屋内外の滞在時間、建屋による空間線量率の低減率など)は、個々の住民によって異なります。これらの要因のばらつきは、シミュレーションにより被ばく線量の実測値に反映することで、 集団の被ばく線量分布の評価が可能になります。一方で、 これらの手法は被ばく線量を実測する必要があるため、



図2 自治体に導入された被ばく評価システム 情報発信方法に関わるレビューに基づき構築した被ばく評価シ ステムを、サイネージとして実際に自治体に導入しました。本 システムでは、タッチパネル式に行動経路と滞在時間を選択す ることで、容易に被ばく線量を計算することが可能です。

被ばく線量の予測には、適用することが困難です。

上述の各要因をパラメータとして、個人や集団の被ばく 線量をシミュレーションすることも可能です。この場合、 評価対象となる個人や集団のパラメータに実測値を用い ることで遡及的評価が可能であると同時に、パラメータを 仮定して設定することで予測的な評価も可能となります。

個人線量計による測定では、測定器の特性や装着状態、 外部刺激によるノイズなどが測定値に影響します。また、 シミュレーションでは、設定したパラメータに不確実性 が含まれます。そのため、被ばく線量の評価方法を選定 する際には、上述の特徴と併せ、このような不確実性や 評価結果の精度についても考慮することが重要です。

情報発信方法についてもレビューし、現在は得られた 成果を基に、住民の方々のリスクコミュニケーション ツールの一環として、被ばく線量評価システムが自治体 に導入されています(図2)。また、被ばく線量評価に より得られた成果は、各自治体の除染検証委員会に提供 され、特定復興再生拠点の避難指示解除に活かされまし た。本成果が今後の帰還困難区域における避難指示解除 に資することが期待されます。

本研究は、内閣府からの受託事業「令和3年度福島 県における個人線量データの活用等に係る検討事業」に おいて得られた成果です。

(吉村 和也)

●参考文献

Sanada, Y., Yoshimura, K. et al., External Exposure Assessment in the Fukushima Accident Area for Governmental Policy Planning in Japan: Part 1. Methodologies for Personal Dosimetry Applied After the Accident, Journal of Radiation Research, vol.64, issue 1, 2023, p.2–10.

Yoshimura, K. et al., External Exposure Assessment in the Fukushima Accident Area for Governmental Policy Planning in Japan; Part 2. Matters to be Attended for Assessments of External Exposure, Journal of Radiation Research, vol.64, issue 2, 2023, p.203–209.

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 関わらず高レベル放射性廃棄物などは既に発生しており、 その対策への負担は将来世代に先送りするわけにはいき ません。現在の我が国の方針では、使用済燃料の再処理 により発生する高レベル放射性廃液を、ガラス原料と混 ぜ、高温で溶かし合わせてガラス固化体にします。これ を、30~50年程度冷却のために貯蔵した後、金属製の オーバーパックに封入した上で、地下 300 m 以深の安 定な岩盤の中に、粘土を主成分とする緩衝材で包み込ん で埋設します(図1)。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2)。

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 9-1、9-2)。また、OECD/NEA(経済協力開発機構/原子力機関)の協力を得て、アジア地域の地層処分に関わる国際研究開発拠点として地下の研究施設を利用した研究開発を国内外の機関で協力しながら推進し、研究開発成果の最大化を図るために「幌延国際共同プロジェクト」を進めています。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 9-3、9-4)。瑞浪超深地層研究所(花崗岩を対象)では、坑道の埋め戻し(2022 年 1 月完了)後の地下水の状態を確認するための環境モニタリング調査等を実施しています。

茨城県東海村の核燃料サイクル工学研究所の研究施設 では、人工バリアのシステム挙動や放射性核種の移動特 性に関する実験データなどを基に、地質環境の長期安定 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 9-5、9-6)。

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 CoolRepR4 (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。また、2022年9月30日 には「地層処分技術に関する研究開発報告会 一第3期 中長期目標期間の成果取りまとめ(CoolRepR4)につ いて一」を開催し、CoolRepR4の内容を中心に第3期 中長期目標期間の研究開発成果を報告しました。

(CoolRep: https://kms1.jaea.go.jp/CoolRep/index.html) (地層処分技術に関する研究開発報告会 : https://www. jaea.go.jp/04/tisou/houkokukai/houkokukai_r04.html)



図1 地層処分システムの基本概念



図2 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

9-1 割れ目を直接観察して将来の透水性を予測 一樹脂注入による割れ目可視化技術の応用

(a)



図1 EDZ の発達状況と樹脂注入孔、岩石試料採取 位置の関係

EDZ の範囲に相当する、壁面から約1.0 m までボーリ ング孔を掘削して樹脂を注入し、注入孔を含む領域の 岩石試料を採取しました。



図2 樹脂注入後に取得した岩石試料中の割れ目の保持状況 樹脂注入領域周辺から採取した岩石試料の断面写真を示しま す。赤色矢印部分の割れ目に樹脂(青色に発光している部分) が浸透して割れ目が保持されていることを確認しました。

高レベル放射性廃棄物の地層処分場の建設にあたって は、立坑やアクセス坑道、処分坑道などの掘削に伴い、 坑道周辺に割れ目が多く発達します。このような領域を 掘削損傷領域(Excavation Damaged Zone, EDZ)と 呼びます。廃棄体定置後に処分場を閉鎖した後は、廃棄 体のまわりに設置する緩衝材に地下水が浸透し、膨潤す ることにより、EDZの割れ目に作用する圧力が変化し、 割れ目にずれ(変位)が生じることが想定されます。処 分場閉鎖後の長期にわたる廃棄体からの放射性核種の移 行挙動を高い信頼性をもって評価するためには、緩衝材 の膨潤がEDZの割れ目の長期的な水の通りやすさ(透 水性)に及ぼす影響を評価する必要があります。

評価に際しては、割れ目を直接観察することにより、 割れ目が変位することによる開口幅の変化に関する知見 を得ることが望ましいですが、そのような研究事例はあ りませんでした。そこで、幌延深地層研究センターの 深度 350 m 調査坑道のうち、試験坑道3を対象として、 蛍光剤を添加した樹脂を坑道周辺に注入して EDZ の割 れ目の状態を保持した後に、注入領域周辺の岩石を採取 し(図1)、坑道掘削による割れ目の発達状況を観察し



図3 せん断変位、開口幅の計測の概要

(a) に示す拡大写真のうち、青色に発光している部分が割れ目に相当 します。この拡大写真を用いて、もともと割れ目が密着していた状態 からどの程度のずれが生じたかを、(b) に示す考え方で計測しました。



図4 せん断変位と開口幅の関係 せん断変位が増大しても割れ目の開口幅は大きく変化しないこ とが分かりました。

ました(図2)。坑道掘削に伴う割れ目の変位の計測に あたっては、図3(a)に示すような拡大写真を紫外線 照射下で撮影し、割れ目表面をトレースしました。そし て、割れ目の表面の形から、掘削前に割れ目がなかっ た状態(割れ目表面同士がもともと密着していた状態) を推定して、掘削によりどの程度の変位が生じたかを 図3(b)に示すように計測しました。

計測の結果、坑道掘削により割れ目にせん断変位が発 生しても、開口幅に大きな変化は生じないことが分かりま した(図4)。このことから、処分場閉鎖後に想定される 地下水位の回復により緩衝材に地下水が浸潤して膨潤し て将来的に EDZ の割れ目がずれたとしても、それが原因 で透水性に大きな変化は生じないことが想定されます。 本知見は、廃棄体からの放射性核種の移行挙動評価の信 頼性向上や、処分坑道周辺が水みちにならないように設 置する止水壁の設計等に役立つことが期待されます。

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

(青柳 和平)

●参考文献

Aoyagi, K. et al., Resin-Injection Testing and Measurement of the Shear Displacement and Aperture of Excavation-Damaged-Zone Fractures: A Case Study of Mudstone at the Horonobe Underground Research Laboratory, Japan, Rock Mechanics and Rock Engineering, vol.55, issue 4, 2022, p.1855-1869.

9-2 地下でのアクチニド核種移行への影響物質の把握 - 花崗岩及び泥岩中地下水への微量元素添加試験-



図2 ろ液中の溶存微量元素の残存割合

縦軸は各微量元素の添加時の濃度に対するろ液中の溶存元素濃度の割合を示しています。錯体とは、金属と非金属の原子が配位 結合や水素結合することで形成した化合物の総称です。

我が国では高レベル放射性廃棄物を深度 300 m より 深い地層に埋設処分します。1000 年を超える長期間経 過後に放射性核種がゆっくりと地下水中に溶出し、様々 な天然溶存物質との化学反応により放射性物質の移行挙 動に影響が生じることが考えられます。地層処分システ ムの安全性を評価するためには、長期間にわたり放射能 を持つアクチニドの深部地下水中での挙動を予測するこ とが重要になります。アクチニドは、原子番号 90 から 103 までの 14 の放射性元素群であり、天然に存在する トリウム (Th) やウラン (U) の他に原子炉内で生成され る元素が含まれます。

地下水の水質は岩盤の地質を反映し、地表部と地下深 部でも水質は異なります。処分深度における我が国の地 下水中溶存物質が放射性核種の移行挙動に与える影響を 解明するため、本研究では日本を代表し、性質が大きく 異なる2種類の岩盤中(結晶質岩と堆積岩)の地下水 に対して、アクチニドの挙動を模擬するため微量元素 (ランタン(La)、サマリウム(Sm)、ホルミニウム(Ho) といった希土類元素(REE)やU)を添加し、地下水 中で生じ得る化学反応を調べました(図1)。結晶質岩 及び堆積岩の地下水として旧瑞浪超深地層研究所及び 幌延深地層研究センター地下施設から、地下水を採取し ました(それぞれ、瑞浪地下水及び幌延地下水)。採取 した地下水に微量元素試薬を少量添加し、ろ過したろ液 とろ過フィルタに捕集された微小沈殿物についてそれぞ れ化学分析を実施し(図1)、分析結果を熱力学解析か ら推定される瑞浪・幌延の両地下水試料中の溶存物質及 び沈殿物と比較しました。

ろ液の水質分析結果を図2に示します。瑞浪地下水で はREEは炭酸錯体として溶存する一方で、水酸化物沈 殿を形成することが分かりました。幌延地下水ではHoは 炭酸錯体として溶存する一方でリン酸塩沈殿を形成し、 LaとSmは主にリン酸塩沈殿を形成することが分かり ました。Uは両地下水において炭酸錯体を形成すること が分かりました。このことから、幌延地下水と同じ水質に おいては3価アクチニドの挙動は従来考えられていた水酸 化物ではなくリン酸塩により規定される一方で、Uの挙 動は炭酸錯体により規定されることが示唆されました。

地層処分の安全性をより現実的に評価するためには実際の深部地下水を用いた調査が必要であることが、本研 究結果から示唆されます。

本研究は、東北大学との共同研究であり、日本学術振 興会科学研究費基盤研究(B)(JP19H02641)「深部地 下水環境での長半減期核種の移行を支配する物質の解 明」の助成を受けたものです。

(宮川 和也)

●参考文献

Kirishima, A., Miyakawa, K. et al., Deep Groundwater Physicochemical Components Affecting Actinide Migration, Chemosphere, vol.289, 2022, 133181, 12p.

9-3 地層処分深度の侵食履歴を推定 - 光ルミネッセンス熱年代法をボーリングコアに適用し熱履歴を復元・







図1 ルミネッセンスのメカニズム 放射線により電離した電子の一部は鉱物結晶中 の不純物等に捕獲されます。放射線を浴び続け ると電子は次々と捕獲され続けますが、熱や光 刺激を受けると解放され、光(ルミネッセンス) を放出します。光刺激を受けた時に放出される ルミネッセンスを光ルミネッセンス(OSL)と 呼びます。放射線の強さ(電子が捕獲される割 合)が一定だと仮定すると、OSL 信号の強さ から試料の年代を測定することができます。 図2 古地温の復元方法

各温度(20~80℃)で等温環境を仮定したときのOSL信号の成長曲線を示しています。OSL信号の蓄積上限値は周囲の温度に依存するため、上限に達していると考えられるOSL信号を解析することで古地温を逆算できます。

図3 ボーリングコアを対象とした古 地温復元結果

各深度で復元した古地温と現在の地温 を比較した図になります。深度約1km 以深(約40℃以上)の古地温は現在 温度と一致しました。この結果より、 ボーリングコアのOSL熱年代法によっ て古地温構造を復元できることが示さ れました。

地層処分において地形の侵食は、地表と処分場の距離 や地下水流動特性の変化に影響を及ぼす可能性があるた め、評価が必要な天然現象です。そのため東濃地科学セ ンターでは、侵食評価技術の高度化を目的とし、自然放 射線の作用によって鉱物内に生じる捕獲電子が熱や光刺 激によって解放される際に発せられる微弱な光(ルミ ネッセンス、図1)を利用する光ルミネッセンス(OSL) 熱年代法の研究開発を行ってきました。OSL 熱年代法 は鉱物の OSL 信号の蓄積速度(捕獲電子の蓄積速度に 比例)が周囲の放射線量率と温度に依存することを利用 し、侵食作用による地下深部(高温度)から地表(低温 度)までの鉱物の移動履歴(熱履歴)を推定する手法です。 OSL 熱年代法は適用温度が約 30 ~ 70 ℃(地下の場合、 深度1~2 km 以浅の地温に相当)であり、多種ある熱 年代法の中で最も低く、地層処分の対象深度(日本では 0.3 km 以深) スケールに適用可能な現状唯一の手法で す。しかし、捕獲電子の蓄積は、数十万年程度で鉱物中 の不純物等が埋め尽くされ、上限に至ってしまうことか ら、OSL 熱年代法で侵食速度が求められるのは、OSL 信号の蓄積が始まる深度1~2 km から地表まで数十万 年以内に到達できるような侵食速度の非常に速い地域に 限られていました。

そこで、東濃地科学センターでは侵食速度が遅い地域 に対する OSL 熱年代法の利用方法を検討しました。試 料には、侵食が緩慢である岐阜県東濃地域で掘削した全 長約 1.3 km の大深度ボーリングコア中のカリ長石とい う鉱物を用いました。本研究では、OSL 信号の蓄積上 限値が周囲の温度に依存することを利用し、上限に達し ていると考えられる OSL 信号から過去の地温(古地温) を逆算する方法を適用しました(図2)。この手法を大 深度ボーリングコアに適用することで、地中の古地温の 分布、すなわち古地温構造を復元することができます。 そして、復元した古地温構造と現在の地温構造を比較す ることで、過去数十万年の間の地温の安定さ、すなわち 侵食の緩慢さを評価することができます。この手法で解 析を行った結果、深度約1km以深(地温約40℃以上) で古地温と現在地温は一致し、東濃地域の侵食が緩慢で あることと整合しました(図3)。これにより、侵食速 度が遅い地域に対しても、ボーリングコアを使って古地 温を求めることで、OSL 熱年代法の有用性を示すこと ができました。

本成果によって、侵食速度に関わらず OSL 熱年代法 を適用できる可能性を示すことができました。本手法は、 地質条件を問わず侵食速度評価が必要となる地層処分事 業に活かせるものと考えています。

本研究は経済産業省資源エネルギー庁からの受託事業 「平成 30 ~令和4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)(地質環境長 期安定性評価技術高度化開発)」の成果の一部です。

(小形 学)

●参考文献

Ogata, M., Reconstructing the Thermal Structure of Shallow Crust in the Tono Region Using Multi-OSL-Thermometry of K-Feldspar from Deep Borehole Core, Earth and Planetary Science Letters, vol.591, 2022, 117607, 14p.

- 4 加速器質量分析装置 超小型化への挑戦 - 結晶表面を用いて原子・分子をふるい分ける-



図1 東濃地科学センターにある AMS の大きさ比較

開発中の超小型 AMS は従来の 50 分の1サイズ、加速電圧は従来の 100 分の 1、放射線管理区域を必要としません。



図2 結晶表面を用いたフィルター 従来法はガスを用いて妨害分子(同重分子)を 壊していますが、小型化のために加速電圧を低 くしていくと、ガスとの衝突で大角散乱が起き てしまい、分析能力が低下してしまいます。そ れに対して、結晶表面を用いれば、大角散乱さ せずに、妨害分子を壊すことができます。

世界的に脱炭素に向けた動きは加速しており、日本で はレジ袋の有料化が象徴的ですが、欧州では、数年後に 輸出入品に対する炭素税導入が予定されており、バイオ 燃料やプラスチックのバイオマス素材の使用割合(バイ オベース度)の認証が必要とされます。バイオベース度 は考古学や地質学に用いられている加速器質量分析装置 (AMS) を用いて知ることができます。炭素の放射性同 位元素である、炭素 14(¹⁴C)は空気中の全炭素量に対 して一兆分の一だけ存在していて、生きている動植物の 体内にも同じ割合で存在しています。一方、化石燃料には ¹⁴C が含まれていません。したがって、¹⁴C 割合を測定 すればバイオベース度を知ることができます。しかし、 AMS は国際標準化機構(ISO)で定めたバイオベース度 を測る唯一の測定法にも関わらず、国内に 15 基しかなく、 外部者が利用することは難しいのが現状です。その理由 は、AMSの多くは大きさが10メートル以上と大型な上、 放射線管理区域を設けて管理しなければならないからで す(図1)。そのため、小型化し低コストに導入できれば、 一般産業用に普及し、迅速な認証に貢献できると考えて います。他にも、医療分野では¹⁴C で標識した薬を使っ た生体内の薬物動態の分析、考古学や地質学では調査現 場での分析といったことができるようになります。

AMS は分子をふるい分ける "フィルター機能"として 加速器を備えた質量分析装置です。AMS では質量数が 14の炭素を測るために同じ質量数を持つ分子(炭素13、 炭素 12 の水素化物である¹³CH、¹²CH₂)を加速してガ スと衝突させることで分子を壊し、¹⁴C だけを透過させ ることができるようになっています。放射線管理区域不 要の小型 AMS は 2000 年代から開発が進みましたが、 従来の"衝突によるフィルター"(ガスストリッパー法) では大角散乱が障害となり小型化の限界に至っています。

このため私たちは、ガスストリッパー法に代わる結 晶表面ストリッパー法という結晶表面の電子や原子との 相互作用を利用した全く新しいフィルターを着想し、国 際特許を取得しました(図2)。このアイデアによって、 分析能力を犠牲にすることなく従来の 50 分の1のサイ ズ(2メートル四方)まで小型化し、加速電圧も従来の 100 分の1 (四万ボルト) にまで下げることが可能にな ります。現在は、測定に最適な条件の探索、表面散乱過 程のモデル構築など原理実証に向けた取組みを行ってい ます。

(神野 智史)

●参考文献

Fujita, N., Jinno, S. et al., Project for Development of a Downsized AMS System Based on the Surface Stripper Technique, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, vol.532, 2022, p.13-18. 日本原子力研究開発機構ほか,イオンビーム機能性透過膜、イオンビーム機能性透過膜を用いたビームライン機器、イオンビーム機能性透 過膜を用いたフィルター機器、フィルター機器の調整方法, 特許 6569048 号, US11051390, 再公表特許.

9-5 緩衝材の膨潤と層間陽イオンの振る舞い ー緩衝材に含まれるモンモリロナイトの膨潤性は K⁺ と NH₄⁺ でどうして変わるのかー



図1 HLW と TRU 廃棄物の併置処分を想定した場合に懸念 される事象の例(アンモニウムイオン(NH₄⁺)による影響) 一部の TRU 廃棄物に由来する硝酸イオン(NO₃⁻)は、岩盤 や地下水に含まれる鉱物や微生物の作用により、NH₄⁺ など に化学形が変化すると考えられます。NH₄⁺ を含む地下水が 緩衝材に接触するとモンモリロナイトの NH₄ 型化が生じます。

使用済核燃料の再処理等で発生する TRU 廃棄物は、 高レベル放射性廃棄物(HLW)との併置処分が検討さ れています。これらの廃棄物は互いの性質が異なるため、 相互に影響を与える可能性があります。特に、TRU 廃 棄物の中には多量に硝酸塩を含むものが存在し、その 廃棄物から溶出した NO_3^- が岩盤中を移行する過程で、 NH_4^+ などに化学形が変化すると考えられます(図 1)。

HLW の地層処分においては、廃棄体を金属容器(オー バーパック)に密封し、その外側にベントナイトを主成 分とした緩衝材を施すことが検討されています。緩衝材 の特性は、含まれているモンモリロナイトと呼ばれる層 状粘土鉱物に依存し、高い膨潤性(水を吸って膨らむ性 質)による岩盤亀裂の止水機能や、低透水性・収着性に よる核種の移行を遅延させる機能などが期待されていま す。このような緩衝材の特性は、モンモリロナイト層間 の陽イオンの種類によって変化します。

TRU 廃棄物と HLW の併置処分を想定した場合、図 1 に示すように TRU 廃棄物由来の NO₃⁻の化学形が NH₄⁺ に変化して HLW の緩衝材に到達した場合には、モンモ リロナイトの層間陽イオンが NH₄ 型化する可能性があ ります。しかしながら NH₄ 型化したモンモリロナイト の特性については、これまでほとんど調べられていませ んでした。そこで本研究では、NH₄ 型化したモンモリ ロナイトの膨潤性について、相対湿度を変化させながら X線回折 (XRD) 分析を行うことで層間距離の変化を 測定しました。その際、既によく調べられており、NH₄ 型と似た振る舞いが予想されるカリウム (K) 型モンモ リロナイトを比較対象としました。また、層間陽イオン の違いにより膨潤性の違いが生じるメカニズムを考察す



図2 NH₄型及びK型モンモリロナイトの層間陽イオンの振る舞い (a) では底面間隔(層間距離)が相対湿度とともに変化しており、 NH₄型の方がより低い相対湿度で大きな底面間隔を示しています。 (b) は分子動力学計算により得られた、水を含まない状態での構造 モデルです。

るため、分子動力学計算を用いて分子レベルでの層間陽 イオンの挙動について検討しました。

相対湿度を変化させた XRD 分析の結果、図2(a) に示すように NH₄型では K 型よりも乾燥状態での層間 距離が大きく、より低い相対湿度でモンモリロナイトが 膨潤することが分かりました。

また、図2(b)に示す分子動力学計算の結果から、 K型ではK⁺とモンモリロナイトとの間に静電気的な引 力が生じており、NH₄型ではこの静電気的引力に加えて、 NH₄⁺分子とモンモリロナイト表面の酸素原子が水素結 合を生じていることが示唆されました。K⁺はモンモリ ロナイト表面の酸素原子による構造上の窪みにはまり込 むことで層間距離が小さくなることが知られていますが、 NH₄⁺ は酸素原子との水素結合によりこの窪みにはまる ことができず、NH₄型では水を含まない状態でもK型 より大きな層間距離が保持されると考えられます。その 結果、層間に水分子が侵入しやすく、より膨潤しやすい ことが推察されました。

上述した成果を踏まえると、NH₄⁺を含む地下水が緩 衝材と接触し、モンモリロナイトのNH₄型化が生じて も、膨潤性への影響は、K型化による膨潤性の低下より も小さいと考えられます。

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25~29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)(処分シス テム評価確証技術開発)」の成果の一部であり、北海道 大学との共同研究として実施されました。

(川喜田 竜平)

●参考文献

Kawakita, R. et al., Difference in Expansion and Dehydration Behaviors Between NH₄- and K-montmorillonite, Applied Clay Science, vol.231, 2023, 106722, 7p.

9-6 拡散モデルによる核種移行予測の精度向上を目指して - 圧縮Ca 型ベントナイトを対象とした拡散実験及びモデル開発-



図1 拡散試験の概略図

高濃度側容器にトレーサーを含む電解質溶液、低濃度側容器に 同じ濃度の電解質溶液を循環させ、圧縮ベントナイトと接触さ せます。トレーサーは、その濃度勾配により圧縮ベントナイト 中を拡散します。両溶液の濃度変化及び試験後のベントナイト 中の濃度プロファイルを Fick の拡散方程式でフィッティングし、 実効拡散係数(D_e)を算出します。

高レベル放射性廃棄物の地層処分では、廃棄物の周囲 に、緩衝材として圧縮された Na 型ベントナイトが設置 されます。Na 型ベントナイトは、地下水と接触すると 膨潤し、微細な間隙構造を形成するため、放射性核種の 移行を抑制することが期待されます。一方、処分場の施 工等に使用されるセメント材料から地下水中に溶出した Ca²⁺により、ベントナイト中の Na⁺ が置換され、ベン トナイトが Ca 型化する可能性があります。Ca 型ベン トナイトは膨潤性が乏しいため間隙サイズが大きく、核 種移行抑制機能の低下が懸念されます。

本研究では、Na 型と Ca 型ベントナイト中での放射 性ヨウ素($^{125}I^{-}$)の拡散試験を実施し(図 1)、その移 行の速さの指標である実効拡散係数(D_e)を取得しま した。Na 型と Ca 型ベントナイト中での D_e を比較する ことで、ベントナイトが Ca 型化した場合の核種移行へ 及ぼす影響を調べました。また、間隙水中の Ca²⁺また は Na⁺ 濃度のイオン強度(濃度に比例)が D_e に及ぼす 影響を調べ、その変化の要因を検討することで、多様な 地下水の塩濃度条件に適用可能な D_e の予測モデルの開 発を試みました。

拡散試験により取得した Na 型と Ca 型ベントナイト の¹²⁵ I^- の D_e を比較した図を示します(図 2)。図に示 すように、Ca 型ベントナイトの¹²⁵ I^- の D_e (図 2 \bullet)は、 Na 型の D_e (図 2 \bullet)より高い値が得られ、ベントナイ トが Ca 型化することにより¹²⁵ I^- の移行が促進されるこ



図2 Na 型及び Ca 型ベントナイト(密度 0.8 Mg/m³)中の ¹²⁵ 「の D_e の実測値と拡散モデルによる評価

ベントナイトの Ca 型化による間隙構造や固相表面の静電的相互 作用の変化を考慮したモデルによって、拡散特性の予測評価を実 現しました。

とが分かりました。次に、 D_e とイオン強度の関係に着目すると、Na型ベントナイトでは、イオン強度の増加 に伴い¹²⁵ I^- の D_e は増加する傾向を示しました(図2 \blacktriangle)。 これに対し、Ca型ベントナイトでは、¹²⁵ I^- の D_e がイ オン強度に対してほとんど変化せず(図2 \bigcirc)、 D_e にイ オン強度の影響がほとんどないことが分かりました。

これらの結果は、Na 型と Ca 型ベントナイトの間隙 サイズの相違とベントナイト表面の負電荷により形成され る電気二重層(EDL)で説明されます。陰イオンであ る¹²⁵I⁻は、EDLから電気的反発を受けますが、イオン 強度が増加すると、EDLの厚さが減少して移行可能な 間隙の割合が増加し、 $D_{\rm e}$ が上昇します。Ca 型ベントナ イトでは、サイズの大きな間隙が主な移行経路となるため、 間隙全体に対する EDLの割合が少なくなり、 $D_{\rm e}$ に及ぼ す影響が Na 型より小さくなったと考えられます。

Ca 型ベントナイトの特徴であるサイズの大きな間隙 と EDL を考慮した拡散モデルを構築し、¹²⁵ I^- の D_e を 評価しました(図2実線)。図に示すように、モデルに より実験値をおおむね再現できたことから、 D_e の予測 が可能であり、特にベントナイトの Ca 型化による D_e の変化を予測する上での有用性が示されました。地層処 分の安全評価において、 D_e は核種の移行を予測するた めの重要なパラメータであり、本研究の結果は D_e の設 定精度の向上に寄与する成果です。

(深津 勇太)

●参考文献

Fukatsu, Y. et al., Diffusion of Tritiated Water, ¹³⁷Cs⁺, and ¹²⁵I⁻ in Compacted Ca-Montmorillonite: Experimental and Modeling Approaches, Applied Clay Science, vol.211, 2021, 106176, 10p.

10 安全を最優先としたバックエンド対策の着実な推進

原子力施設の廃止措置及び廃棄物の処理処分に向けて

原子力機構は、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、放射性廃棄物の処理・処分を含めた バックエンド対策に係る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)を取りまとめ、原子力施設 89 施設を対象に、「施 設の集約化・重点化」及び「施設の安全確保」を「バッ クエンド対策」に加え「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 日改定)として取りま とめました。2018 年 3 月 28 日には高速増殖原型炉 「もんじゅ」の廃止措置計画、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、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、その成果の現場への実 装を進めるため、技術開発戦略ロードマップを作成しま した。これに基づき、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。

「もんじゅ」については、2022 年 10 月に廃止措置第 1 段階における燃料体取出し作業を全て終了し、解体準 備期間である第2段階に着手しました。また、「ふげん」 については、原子炉建屋内の機器等の解体撤去として、大 型機器を除く原子炉周辺設備(原子炉冷却系A、Bループ) の解体撤去作業を完工し、原子炉本体解体に向けて着実 に進めています。

東海再処理施設については、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高放射性廃液を より安定な形にするため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。今年度は新型溶融炉を核燃料 サイクル工学研究所のコールド試験施設に搬入・設置し、 作動試験を行っています。今後、高放射性廃液の模擬廃 液を用いた試験を行い、ガラス固化処理を安全・安定に 行うためのデータを取得した後、新型溶融炉をガラス固 化技術開発施設に設置する予定です。

本章では、近年の当該分野の技術開発成果として、 低レベル放射性廃棄物(研究施設等廃棄物)の埋設施 設の配置及び設計の検討に必要な施設からの線量の評 価(トピックス 10-1)、設備の解体・廃止措置に伴って 発生する難燃性の物質を含む放射性有機液体廃棄物を燃 焼処理する装置の安定運転に向けたメンテナンス技術の 開発(トピックス 10-2)、ジオポリマーの特性を活かし て廃棄体の中に含まれる放射性元素や有害物質を閉じ込 める固化材料の開発(トピックス 10-3)及び、保有す るプルトニウムの安全な長期保管に向けて、従来のポリ 塩化ビニル(PVC)バッグではなく金属製の密封容器 での貯蔵等の取組み(トピックス 10-4)について紹介 しています。



図1 原子力施設の廃止措置、低レベル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

10-1 研究施設等廃棄物の埋設処分に係る効率的な設計に向けて - 埋設施設から発生するスカイシャイン線量の評価-



図1 スカイシャインγ線のイメージ

トレンチ施設上部から発生する放射線は空気中で散乱されます。散乱により地上へ跳ね返ってきた放射線を スカイシャインγ線と呼びます。



図2 トレンチ施設から敷地境界までの距離 概念設計では、トレンチ施設から敷地境界までの距離は 120 m 以上必要であるとされています。

埋設事業センターは、研究機関、大学、医療機関、民間企業等から発生する研究施設等廃棄物の埋設処分に係る事業を進めています。埋設施設を操業する際、埋設施設周辺の被ばく線量について原子力規制委員会が定めた 基準線量を超えないことを評価する必要があります。その線量基準は、敷地境界でスカイシャインγ線等による 実効線量が50 μSv/y 以下と定められています。スカイ シャインγ線のイメージを図1に示します。

原子力機構が実施した埋設施設の一般的な環境条件で の基本的な設計として概念設計があります。概念設計では、 極めて放射能濃度が低い研究施設等廃棄物を地表付近に 埋設する施設(トレンチ施設)から、敷地境界までの距 離を120 m以上とすることが示されています(図2)。 一方、令和元年に埋設対象廃棄体の物量を調査した結果、 概念設計時に比べて物量が増加したことから施設規模が 変更となり、それに伴い、トレンチ施設の設計も変更し ました。例えば廃棄体の積載段数が地下水位に接触しな いように概念設計時は3段積みでしたが、設計変更後 は4段積みとしています。積載段数が増えたことから 地表面へより近い位置に廃棄体が定置するため、スカイ シャイン線量の増加が見込まれます。そのため、概念設 計ではトレンチ施設から敷地境界までの距離120 m以 上で線量基準50 µSv/y 以下を満たす結果でしたが、設



図3 トレンチ施設からのスカイシャイン線量 トレンチ施設からのスカイシャイン線量を距離ごとに評価して います。最上段の中間覆土厚を厚くして評価した結果、スカイ シャイン線量が低減することを確認しました。

計変更後もその基準を満たすのか評価を行いました。ス カイシャイン線量が最も高くなるトレンチ施設を対象に した評価結果を図3に示します。

図3から、設計変更後(図3一)も評価距離 120 m 地点で線量基準を満足する結果となりました。しかし、 概念設計時(図3一)と比べて裕度がなくなったため、 トレンチ施設の最上段の廃棄体上部の中間覆土厚さを 5 cm 厚くして(図3一)評価を行いました。その結果、 覆土厚変更後(図3一)の評価距離 120 m 地点のスカ イシャイン線量が、覆土厚変更前(図3一)と比べて 3分の2に低減することを確認し、最上段の覆土を厚く することで線量基準に対して裕度を確保できる結果とな りました。

これらの結果から、立地場所における施設配置及び 施設設計を検討する際は、敷地境界までの距離(120 m 以上)及びスカイシャイン線量の評価結果の目安線量 (50 µSv/y)に対する裕度を考慮し、最上段の覆土を厚 くする等の設計検討を行うことが効率的だと考えられま す。また、立地場所ではスカイシャイン線量の重畳を考 慮した施設配置及び施設設計が必要であることが検討事 項として挙げられます。今後も引き続き設計に関する検 討を進めていきます。

(中村 美月)

●参考文献

中村美月ほか,研究施設等廃棄物のトレンチ埋設施設におけるスカイシャイン線量評価, JAEA-Technology 2022-025, 2022, 73p.

10-2 難燃性廃棄物処理試験装置の実用化に向けて - 主反応器耐火材の補修材の選定-



図1 主反応器及び補修部分の概要図

主反応器は上下に分割可能で、内部には厚さ15 cmの耐火材が施工されています。このうち下部分の耐火材は燃焼に伴う酸性 ガスの影響を受けて劣化しやすい部分であり、補修方法を検討 しました。

核燃料サイクル工学研究所では設備の解体・廃止措置 に伴って発生した機械油などの放射性有機液体廃棄物を 保管しています。この放射性有機液体廃棄物の一部は フッ素や塩素を多く含み、難燃性であることから、直接 焼却処理には適しません。そこで私たちは、過熱水蒸気 を用いて難燃物を燃焼しやすい低分子量の有機ガスへ分 解させ、燃焼させる水蒸気改質法に着目し、水蒸気改質 処理装置の開発を行っています。水蒸気改質処理試験 装置の一部である主反応器及び補修部分の概要図を図1 に示します。有機ガスを燃焼させる主反応器には経年劣 化による耐火材のひび割れや剥離が生じるため、補修が 必要となります。そこで、2種類の補修材候補を用いて 既設耐火材を補修し、その適用性を評価しました。

補修材候補として、既設耐火材との親和性を考慮し、 既設耐火材と同等な組成、最高使用温度、熱特性を持つ プラスチック耐火物及びリン酸塩耐火物を主成分とした 2種類を選定しました。劣化した主反応器下部分にそれ ぞれの補修材候補を塗布するとともに、補修材候補の接 着性及び硬度の低下を確認するため、厚み1 cm の円柱 状の補修材(テストピース)を取り付けました。補修後 は実際の水蒸気改質処理と同様の条件である、主反応器 内部の最高温度が 1200 ℃で4 時間の燃焼試験を実施し ました。

補修方法の適用性を評価するため、(1) 既設耐火材 と補修材間の接着性の劣化、(2) 燃焼試験に伴い発生



図2 補修・燃焼試験後の補修部分の俯瞰写真 A及びB部に補修材候補を塗布し、C部にテストピースを取り 付けました。テストピースに対する引張強度測定、硬さ測定を 実施し、補修部分の強度の指標としました。

する酸性ガス等による補修材候補の劣化(硬度低下)、 (3)燃焼試験後における補修材表層のひび割れ等の発 生について調べました。

各調査はテストピースの引張強度測定と硬さ測定及び補 修材の目視観察により行いました。引張強度測定はテスト ピースの剥離に必要な強度を測定するもので、プラスチック 耐火材で 0.9 N/mm²、リン酸塩耐火材で 0.45 N/mm² と、 どちらも一般建築物基準 0.4 N/mm² 以上の引張強度で あり、良好な接着性を保っていました。引張強度測定後 に主反応器からテストピースを外し、硬さ測定を実施し ました。その結果、どちらの補修材も硬度が低下してい ないことが分かりました。目視観察では、図2のよう にプラスチック耐火物で補修した部分は全体的なひび割 れ等が確認されたため、補修材として不適であると判断 できます。リン酸塩耐火物で補修した部分は補修材表層 に数か所のひび割れが確認されたのみでした。この数か 所のひび割れは、いずれは補修が必要になるものの、軽 微なものであることから、リン酸塩耐火物を用いた補修 方法が有効であることが分かりました。

リン酸塩耐火物を用いた補修をすることで、主反応器 の安定的な運転が見込めるようになったことから、水蒸 気改質処理装置が実用化に近づいたということができま す。今後は長期の燃焼試験を行い、実用化に向けて更な る検討を進める予定です。

(木島 惇)

●参考文献

木島惇ほか,水蒸気改質処理試験装置における主反応器耐火材の補修効果確認試験, JAEA-Technology 2022-012, 2022, 14p.

10-3 ジオポリマーを放射性廃棄物固化に用いるために - ジオポリマー内に生成するゼオライトの生成経路の解明-



●Si ●AI ●Na ●O ∘H

図1 Na/AI比に応じて生成したゼオライトの種類と構造 20 ℃で112 日間保管した固化試料中に観察されたゼオライト の種類と構造を示します。Na/AI比の違いにより、生成する ゼオライトの種類が異なることが分かりました。

放射性廃棄物を安全に地中に処分するために、セメン トやガラスなどの固化材料を用いて、廃棄物を容器内に 固定化することが必要です。ガラスは網目状の構造(非 晶質構造)に放射性元素を閉じ込めることができますが、 高温処理が必要です。セメントは、常温で作製可能です が、閉じ込め性能がガラスよりも劣ることが知られてい ます。

私たちは新しい固化材料の候補として、セメントのように常温で硬化し、ガラスのような非晶質構造の中にセシウムといった放射性元素を閉じ込めることができるジオポリマーに着目しています。ジオポリマーの特性を活かし、廃棄物の中に含まれる放射性元素や有害物質を閉じ込める処理技術として、放射性廃棄物の処理に適用するための研究開発に取り組んでいます。

ジオポリマーは、時間の経過とともに非晶質構造の一 部が変化し、ゼオライトのような結晶成分が生成してく ることが分かっています。地中に廃棄体を処分した後も 安定して放射性元素や有害元素を閉じ込めるためには、 長期にわたる廃棄体の性能の変化を推定することが重要 です。そこで今回は、ジオポリマーの材料配合が生成す るゼオライトの種類にどのような影響を及ぼすかを調査 しました。

材料は、ケイ素(Si)とアルミニウム(AI)からなる 非晶質構造を有するメタカオリンとアルカリ剤として水



●Si ●Al ●Na •O ∘H

図2 推定したゼオライトの生成経路 赤外分光分析を用いたジオポリマーの化学結合状態の分析結果 と既往研究で報告されているゼオライトの反応経路*をもとに、 Na/AI 比に応じたゼオライトの生成経路を推定しました。

酸化ナトリウム(NaOH)溶液を用いました。材料配合 は、アルカリ剤とメタカオリンの量比として Na/AI モ ル比(以下、Na/AI比)を 1.18、2.03 及び 3.05 と変化 させました。20 ℃の恒温槽内で最大 112 日間保管し、 X線回折分析により固化試料の結晶成分を、赤外分光分 析により化学結合の変化を調査しました。

保管後28日目以降からゼオライトが生成し始め、 112日間保管した固化試料では、Na/AI比1.18では、 X型ゼオライト及びA型ゼオライトが、Na/AI比2.03 では、A型ゼオライト及びソーダライトが、Na/AI比3.05 では、ソーダライトのみが生成しました(図1)。Na/AI比 に応じて、ジオポリマー中に生成するゼオライト相が異な ることが分かりました。また、赤外分光分析により得られ た化学結合の変化と既往の知見*を踏まえて、Na/AI比 が異なった場合のゼオライトの生成経路の違いを推定す ることができました(図2)。

今後は、ゼオライトの生成が、放射性元素の吸着性能 や圧縮強度などのジオポリマー固化体の性能に及ぼす影響の調査を進め、従来よりも性能を高めた放射性廃棄物 の固化材料の開発に取り組んでいきます。

(佐藤 淳也)

* Mohau M. et al., A Review of the Chemistry, Structure, Properties and Applications of Zeolites, American Journal of Materials Science, vol.7, issue 5, 2017, p.196-221.

●参考文献

Onutai, S., Sato, J. et al., Possible Pathway of Zeolite Formation Through Alkali Activation Chemistry of Metakaolin for Geopolymer-Zeolite Composite Materials: ATR-FTIR Study, Journal of Solid State Chemistry, vol.319, 2023, 123808, 10p.

10-4 プルトニウムの安全な長期保管に向けて ープルトニウムの集約と PVC フリー貯蔵への転換-



図1 PVC バッグの使用により腐食が起こった SUS 製容器 (a) は未使用の SUS 製容器、(b) は SUS 製容器を PVC で梱 包した状態です。核燃料物質を保管することで、(c) のように、 腐食した SUS 製容器が見つかっています。

プルトニウム燃料技術開発センターでは、主にウラン とプルトニウム(Pu)の混合酸化物(MOX)を保有し ています。プルトニウム燃料第一開発室(Pu-1)では MOXの物性研究や照射試験用燃料の製造を、プルトニ ウム燃料第二開発室(Pu-2)及びプルトニウム燃料第 三開発室(Pu-3)では実験炉等に供給するための MOX 燃料の製造をしてきました。Pu-1及びPu-2では核燃 料物質をステンレス(SUS)製容器に収納し(図1(a))、 それをポリ塩化ビニル(PVC)バッグで梱包した状態で 貯蔵しています(図1(b))。PVCバッグは難燃性や取 扱いやすさの利点から用いられてきましたが、機械的な衝 撃で破れ、管理区域内の汚染事故につながった経験があ ります。また、PVCの劣化や後述する PVCの劣化に由 来する塩素による SUS 製容器の腐食のため(図1(c))、 PVC バッグ等の定期的な点検・交換等が必要です。

このため、PVC バッグを用いた貯蔵方法から脱却す べく、金属製の密封容器を用いた貯蔵方法や、燃料集 合体の形態で貯蔵する方法に変更する取組みを進めて います(図2)。金属製の密封容器を用いた貯蔵方法で は、アルミニウム(AI)合金製の容器に核燃料物質を直 接収納し、さらに、この AI 合金製の容器を最大で4個、 SUS 製のキャニスタと呼ばれる密封容器に収納します。

図2 PVC バッグを用いない核燃料物質の貯蔵方法 AI 合金製の金属容器と SUS 製のキャニスタは主に粉末状の核 燃料物質の貯蔵に、燃料集合体(左:もんじゅ型、右:ふげん型) はペレットにした核燃料物質の貯蔵に用います。

キャニスタは、最も新しい施設である Pu-3 に集約し、 貯蔵設備において一元管理して長期保管します。こうす ることで、PVC バッグに起因する点検・交換を必要と せず、より安全で経済的な保管が可能となります。

また、一部の核燃料物質は水分や有機物を含んでいま す。これらは放射線分解により水素ガスを発生し、密封 容器の内圧上昇の原因となります。さらに、核燃料物質 の中には、SUS 製容器内で保管されていたにも関わら ず塩素を含むものが見つかっています。これは PVC の 放射線分解によって発生したと考えられ、時折観察さ れる SUS 製容器の腐食もこの塩素によるものと考えら れています(図 1)。これらの不純物を除去するために、 核燃料物質を熱処理し、不純物が除去されたことを確認 して、キャニスタに収納しています。

このように、Puの安全な長期保管に向け、現在 PVC フリーの貯蔵方法への移行を進めています。この活動 で得られる知見は Pu系のプラントや研究施設の操業に とって大変貴重なものです。現在行っている海外の研究 所との情報交換を継続するとともに、技術開発成果とし ても積極的に発信していく計画です。

(廣岡 瞬)

●参考文献

Hirooka, S. et al., Toward Long-Term Storage of Nuclear Materials in MOX Fuels Fabrication Facility, Frontiers in Nuclear Engineering, vol.2, 2023, 1119567, 7p.

11 安全研究·防災支援

原子力安全と原子力災害対応の継続的改善に向けて



▶ 1F試料の分析・解析結果の提供や核物質の検知・査察能力の強化等の国際貢献

図1 安全研究・防災支援の主な取組み

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1に示すように、設計基準を超えシビ 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した実効性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、炉内等廃棄 物などの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・事故解析等を進



図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3 原子炉安全性研究炉 (NSBB)

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。

めています。

原子力防災分野では、原子力災害発生時の屋内退避の 被ばく低減効果の評価等、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と 空間線量率のマップ化を進めています。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、すべての避難車両が受ける汚染検査をより迅 速に行う方法の研究(トピックス 11-1)、原子炉施設に 飛翔体が衝突した場合の建屋外壁の損傷具合について の評価手法の標準化に向けた研究(トピックス 11-2)、 原子炉圧力容器の破壊に対するステンレス鋼の内張 (ステンレスオーバーレイクラッド)の影響の研究 (トピックス11-3)、軽水炉燃料が長く放射線照 射を受けた場合の形状変化の予測に関する研究 (トピックス 11-4)、核燃料施設の火災で生じるばい 煙によって HEPA フィルタが目詰まりを起こす際の 差圧上昇の予測に関する研究(トピックス 11-5)、 地下に広がる汚染物の分布を高精度に評価する手法の研 究(トピックス 11-6)、気泡を水中に通すことで放射性 物質を取り除く技術(プールスクラビング)の数値計算 による予測に関する研究(トピックス 11-7)、臨界計算 で重要となる核データライブラリの性能に関する研究 (トピックス 11-8) について紹介します。

11-1 原子力災害時の汚染検査迅速化を目指せ - 避難車両の汚染検査に用いる車両用ゲート型測定器の性能調査-



図1 試験の様子

フェンダーとタイヤ接地面、ワイパー部の別々に¹³³Ba 線源を汚 染の模擬として取り付け、ゲートモニタでガンマ線の計数率を測 定しました。

原子力災害時、全ての避難車両はタイヤとワイパー部 の汚染検査を受けます。しかし、箇所別に検査すると長 時間を要し、検査会場が混雑します。そこで、可搬型の 車両用ゲート型測定器(以下、ゲートモニタ)で同時に 検査できれば、検査の迅速化につながります。本研究では、 除染を講じる基準(GM 管式サーベイメータで 40 kcpm の計数率)に基づき、タイヤの汚染を判別できるゲート モニタで、ワイパー部の汚染が判別可能か調査しました。

調査ではまず、汚染の模擬として災害時の主要測定核 種であるヨウ素 131 (¹³¹I) とガンマ線エネルギーが近 いバリウム 133 (¹³³Ba) 線源をタイヤまたはワイパー部 に取り付けて走行させ、ゲートモニタで線源からのガンマ 線の計数率を測定しました (図 1)。原子力規制庁が平 成 29 年に示した「原子力災害時における避難退域時検 査及び簡易除染マニュアル」では、タイヤ接地面を測定 対象としていますが、接地面に線源を取り付けて走行さ せることは困難です。そこで、線源をフェンダーに取り 付けて走行時の計数率を測定し、これに車両を静止させ た状態でタイヤ接地面またはフェンダーに線源を別々に 取り付けた場合の計数率の比を乗じて、走行時のタイヤ 接地面からの計数率を推定しました。続いて、次式を用 いて GM 管式サーベイメータ相当の計数率(GM 換算値) に換算しました。



図2 試験の結果(換算係数と警報発報の確率の関係) タイヤまたはワイパー部の汚染を測定したとき、換算係数の変化 による警報発報の確率を算出しました。換算係数を調整すること で、警報発報のしやすさを変化させることができます。

最後に、換算係数を変数として GM 換算値を求め、 タイヤ接地面とワイパー部の警報発報の確率を算出しま した。このとき、タイヤとワイパー部の汚染からの計数 率は弁別できないため、同じ換算係数を用いて GM 換 算値を算出しました。

汚染が GM 換算値で 40 kcpm 相当の場合に高確率で 警報発報し、それ未満であれば誤って発報する確率を 低く抑えることが要求されます。図2の試験結果から、 タイヤ接地面の汚染に対しては換算係数を4に設定す ることで基準を超えているか否かを判別できる一方、こ の設定ではワイパー部に基準を超える汚染があっても警 報発報の確率が 10% 未満になることが分かりました。 この原因として、ワイパー部は検出器からの距離がタイ ヤよりも遠くなることが考えられます。

以上、測定試験を通じてゲートモニタによる汚染検知 の性能を示すとともに、タイヤに加えワイパー部の汚染 も判別するためのシステム構成及びデータ処理方法の課 題を明らかにしました。今後もゲートモニタによるタイ ヤとワイパー部の同時検査の実現を目指した研究開発を 進めていきます。

本成果は、内閣府の受託研究「平成31年度原子力 防災研究事業」及び「令和2年度原子力防災研究事業」 の成果の一部を含みます。

GM 換算值 = 計数率×換算係数

●参考文献

平岡大和ほか,原子力災害時の車両汚染検査におけるゲート型モニタ活用に向けた性能調査試験(受託研究), JAEA-Technology 2022-003, 2022, 70p.

(平岡 大和)

叉 1

11-2 飛翔体衝突を受ける構造物の損傷を明らかにする - 建屋外壁を模擬した鉄筋コンクリート板構造の損傷状態の分析-





(a) 飛翔体衝突試験の概観(斜め衝突) 飛翔体衝突試験と RC 板構造の損傷状態

(a) 高圧空気発射装置を用いて飛翔体を発射し、RC 板構造へ衝突させる試験を実施しました。(b) 同一試験条件における、垂直衝突 と斜め衝突の違いによる RC 板構造の損傷状態を比較しました。本試験の斜め衝突では、垂直衝突と比べて裏面損傷は低減し、貫入深 さは深くなることが分かりました。



図2 応力波伝播による RC 板構造の裏面剥離損傷 斜め衝突においても、垂直衝突と同様の対称な円錐形状の 最大せん断応力面となることを試験(図2(b))によって 確認しました。

(a) 裏面剥離損傷のイメージ

(b)RC板構造の切断面(試験後)

東京電力福島第一原子力発電所の事故の教訓を踏ま え、2013年に制定された新規制基準では、竜巻飛来物 や航空機等の飛翔体が原子力施設に衝突する事象(飛翔 体衝突)に係る規制が新設されました。これに対応する ため、飛翔体衝突による建屋や機器等への影響を評価す るための手法の整備が重要な課題となっています。この ため、私たちは飛翔体衝突による建屋外壁の局部損傷に 係る試験データを取得するとともに、建屋外壁の局部損 傷評価に係る解析手法の整備に取り組んでいます。

これまでに、建屋外壁のような鉄筋コンクリート (RC)板構造の局部損傷評価には、衝突時に変形しない 剛な飛翔体(剛飛翔体)を用いた垂直衝突による保守的 な衝突試験に基づくものがほとんどでした。そこで本研 究では、衝突時に航空機のように自身が変形する飛翔体 (柔飛翔体)や、立地条件等による斜め方向からの衝突(斜 め衝突)を想定し、より現実的な衝突条件である柔飛翔 体や斜め衝突に対する飛翔体衝突試験データを取得し、 局部損傷評価に係る解析手法の整備及び妥当性確認を行 うことを目的としています。

まずは、飛翔体2種類(剛飛翔体及び柔飛翔体)、衝 突角度2条件(0°:垂直衝突及び45°:斜め衝突)、RC 板構造の板厚2種類(210 mm 及び80 mm)をパラメー タとした RC 板構造に対する飛翔体衝突試験を実施し ました(図1(a))。飛翔体の種類や衝突角度の違いに よる RC 板構造の局部損傷状態の違いについて分析し、 RC 板構造の裏面では、垂直衝突の場合と比較して、斜 め衝突では裏面の損傷状態が大幅に低減すること、及び、 斜め衝突では垂直衝突と比べて貫入深さは深くなること が分かりました(図1(b))。 これらの原因として、貫入深さについては、飛翔体の 先端形状が平坦型であることから、垂直衝突では飛翔体 の先端が RC 板構造に接触する面積が大きくなるのに対 し、斜め衝突では飛翔体の先端が尖頭化し、接触する面 積が小さくなることに起因しているものと考えられます。

また、裏面の損傷状態が大幅に低減したことについて は、RC板構造の損傷状態の詳細調査を踏まえ、斜め衝 突では衝突力のうち RC板構造に対して垂直な力(垂直 力)のみが裏面剥離損傷に寄与しているものと考察しま した(図2(a))。コンクリートの引張強度は一般的に 圧縮強度の約 1/10 であり引張破壊が発生しやすく、裏 面剥離損傷は、衝突による圧縮応力波が裏面の自由境界 で引張応力波に反転することで生じる損傷であることが 知られています。今回の試験結果の損傷状態では、最大 せん断応力面は対称な円錐形状となっており、斜め衝突 においても垂直衝突と同様に垂直力のみが裏面剥離損傷 に寄与していること、斜め衝突では垂直衝突よりも垂直 力が小さくなるため、垂直衝突では発生した裏面剥離が 斜め衝突では発生しなかったことを確認することができ ました(図2(b))。

本研究では、RC 板構造に対する飛翔体衝突試験を実施し、斜め衝突の場合には垂直衝突と比較して裏面の損 傷状態が低減すること、及び、貫入深さは深くなる可能 性があることが分かりました。今後は、得られた試験デー タを基に解析手法を整備し、その妥当性を確認するとと もに、将来的には飛翔体衝突による影響評価解析手法の 標準化を目指し取り組んでいきます。

(奥田 幸彦)

●参考文献

Okuda, Y. et al., Experimental Study on Local Damage to Reinforced Concrete Panels Subjected to Oblique Impact by Projectiles, Journal of Nuclear Engineering and Radiation Science, vol.9, issue 2, 2023, 021801, 12p.

C(T)試験片で求めた

破壊靭性曲線

-60

FEM解析結果から

予測したクラッド

下亀裂の破壊靭性

値の予測範囲

破壊靭性曲線に比べてクラッド

下亀裂の破壊靭性値が高い

-140 -120 -100 -80

現在の健全性評価手法に基づく方法で求めた破壊靭性曲線とク

試験温度(℃)

図2 破壊靭性曲線とクラッド下亀裂の破壊靭性値の比較

11-3 事故時の原子炉圧力容器の健全性評価手法の精度向上に向けて -破損挙動に及ぼすステンレスオーバーレイクラッドの効果-

200

クラッド下

靭性値

(実測)

-160

亀裂の破壊

Δ

0

-180



図1 RPV の健全性評価手法の概要

破壊靭性(--)が応力拡大係数(--)を上回っていることによ り健全性が確認されます。それぞれ、破壊靭性は破壊試験、応力 拡大係数は計算によって求められます。



図3 FEM による亀裂先端の応力解析

(a) 解析モデル:亀裂開口力が最も大きくなる試験片の中央面に対して対称な 1/2 対称モデルを表示しています。(b) 亀裂先端の亀裂開 口方向の応力分布:応力が高い程亀裂から破壊が発生しやすくなります。この結果に基づいて破壊靭性値の予測を行いました(図2)。

軽水炉の安全上重要な機器である原子炉圧力容器 (RPV)は、運転期間中に原子炉配管の破断事故等が生 じた場合にも破壊しないことが求められています。その ためには事故時に想定される負荷に対して破壊が生じ ないように RPV が十分な強度(健全性)を有する必要 があります。図1に示すように、RPV の健全性評価で は、RPVの構造材料の抵抗力(破壊靭性)が、事故時 に緊急炉心冷却水により RPV 内表面が急冷されること によって生じる破壊力(応力拡大係数)を上回ることを 確認します。ここで、破壊靭性は一般的にコンパクトテ ンション型(C(T))試験片(図1左上写真)と呼ばれ る試験片を用いて評価されます。一方、応力拡大係数は 計算によって求め、その際には RPV 内表面近傍に亀裂 の存在を想定します。

RPV 内表面には、腐食を防止するためのステンレス 鋼による内張り(ステンレスオーバーレイクラッド)加 工が行われ、想定亀裂はクラッドの直下に存在する(ク ラッド下亀裂)と考えます。ここで、C(T)試験片に 対して、クラッド下亀裂は亀裂端がクラッドにより閉じ ているという違いがあります。健全性評価精度の向上の ためには、このような亀裂形状の違い等が機器の破損挙 動に及ぼす影響を理解することが重要です。

私たちは、クラッドが破損挙動に及ぼす影響を調べる ため、C(T)試験片と、クラッド下亀裂を含む3点曲 げ試験片を用いた破壊試験を実施しました。その結果、 図2に示すようにクラッド下亀裂を含む3点曲げ試験 片の方が、C(T)試験片に比べて高い破壊靭性値が得

られることを明らかにしました。この結果は、現在の健 全性評価において C(T) 試験片で評価される破壊靭性 が、想定するクラッド下亀裂に対して安全裕度があるこ とを示すものです。

さらに本研究では、クラッド下亀裂の場合に破壊靭 性値が高くなる原因を調べるため、有限要素法(FEM) 解析を実施しました。図3に示したのは、FEM 解析に よって得られたクラッド下亀裂及び C(T) 試験片の亀 裂近傍における亀裂を開こうとする力(応力)の分布で す。クラッド下亀裂の場合、C(T)試験片の亀裂に比 べて応力が高い領域が小さくなっているために、破壊 が生じにくくなっているということを明らかにしまし た。さらに、この応力解析結果に基づいてクラッド下亀 裂に対する破壊靭性値を精度良く予測することに成功し ました(図 2)。この解析的な破壊靭性値の推定方法は、 RPV のような大型構造物の破損予測への適用が期待さ れる手法です。

クラッド以外にも RPV の破損挙動に影響を及ぼすと 考えられる因子として、C(T)試験片と RPV におけ る力の加わり方や亀裂形状(直線か半楕円か)の違い等 があります。今後は、これらの影響についても破壊試験 と解析の両面から明らかにしていきます。

本研究の一部は、原子力規制委員会原子力規制庁から の受託研究「平成28年度原子力施設等防災対策等委託 費(原子力発電施設等安全性実証解析等(軽水炉照射材 料健全性評価研究))事業」の成果です。

(下平 昌樹)

●参考文献

Shimodaira, M. et al., Constraint Effect on Fracture Behavior of Underclad Crack in Reactor Pressure Vessel, Journal of Pressure Vessel Technology, vol.144, issue 1, 2022, 011304, 7p.

11-4 軽水炉燃料の設計や安全評価をより合理的に - ジルコニウム基合金被覆管の照射成長挙動予測手法の構築-



図1 改良合金被覆管の照射成長試験の概要 商用 PWR 条件を模擬可能な照射リグ及び試験片の設計、照射温 度、水化学条件等を検討し、ノルウェー・ハルデン炉を用いた照 射試験を 2011 年から 2018 年までの期間にて実施しました。





図3 照射成長量の予測式(a)及び測定値との比較(b) 本研究で得られた知見を使い、合金成分など被覆管仕様や照射条 件をパラメータとした照射成長挙動予測式を構築しました。

図2 高速中性子照射量 7.8 × 10²⁵(1/m²)における照射成長量と照射中に析出した水素量の関係 試験片材料の違いによらず、水素化物析出に伴って照射成長量が増大していることを明らかにしました。この効果は図3の予測式 第2項(赤字部分)に反映しました。

原子力発電所で使われる燃料は、燃料ペレットとジ ルコニウム合金製の燃料被覆管から成ります。産業界で は、原子力発電所の安全性向上と有効活用の観点から、 被覆管の耐腐食性を向上させるため、従来とは成分の異 なる改良ジルコニウム基合金(改良合金)の開発が進め られてきました。

こうした中、2000年代に米国で行われた照射試験に おいて、改良合金被覆管を使用した燃料集合体の一部で 異常な変形の観察例が報告されました。この原因として、 被覆管が高速中性子の照射を受けることで長手方向に伸 びる現象(照射成長)の関与も考えられたため、改良合 金に含まれる添加元素やその製造条件、照射中に生じた 腐食等が照射成長に及ぼす影響について知見の整備が求 められていました。

そこで、近い将来国内の原子力発電所に導入される可 能性の高い改良合金被覆管試料を入手し、ノルウェーの ハルデン炉に輸送して、加圧水型原子炉(PWR)の代表 的な冷却材条件を模擬した条件下で、約8年間にわたる 多様な被覆管材料の同時照射試験を実施しました(図1)。 この試験では、まず一定期間ごとに試験片の寸法変化等 を測定する中間検査を行うことで、照射成長量と高速中性 子照射量(~7.8×10²⁵(1/m²))との関係を明らかにし ました。次に、照射後の試験片を原子力機構の燃料試験 施設で分析し、冷却材との反応による燃料被覆管の腐食 量、腐食に伴う被覆管金属部への水素吸収量を調べました。

詳細分析の結果、改良合金ではニオブ添加によって照 射成長が抑制される傾向があることに加え、腐食に伴い 吸収された水素が照射下で水素化物として析出する挙動 が、照射成長量の増大と強く結びついていることを、初 めて見い出しました(図2)。最後に、本研究の過去に 類を見ない多様な被覆管材料を用いた同時照射試験から のデータ取得という特長を活かし、合金成分等様々な条 件の組合せによって変化する照射成長量を評価すること が可能な予測式を構築しました(図3)。これは上記水 素影響の知見を反映の上、ベイズ統計手法の適用により 不確かさの評価にも対応したモデルです。本成果は、原 子力規制の立場では事業者による設計・評価の妥当性検 証に、また産業界の立場では燃料開発や設計の効率化に 広く活用可能です。

本研究は、原子力規制委員会原子力規制庁からの受 託研究「令和2年度原子力施設等防災対策等委託費(燃 料破損に関する規制高度化研究)事業」として行われた ものです。

(垣内 一雄)

●参考文献

Kakiuchi, K. et al., Engineering Formulation of the Irradiation Growth Behavior of Zirconium-Based Alloys for Light Water Reactors, Journal of Nuclear Materials, vol.573, 2023, 154110, 7p.

11-5 火災時における施設内の閉じ込め性能を維持する ーグローブボックス材料火災時の HEPA フィルタの目詰まり特性の評価ー



PMMA燃焼(F_v=1 m³/min) ΔP=0.20+5.44 M_p+9.673 M_p²

0.1

2.5

2

1.5

0

HEPAフ

-ルタの差圧

ΔP (kPa)_{0.5} 図1 施設内の核燃料物質等の閉じ込め機能を担う HEPA フィ ルタの位置並びに GB 火災に伴う煤煙や放射性エアロゾルの換 気系内移行の様子

ガス中の微粒子を高効率で除去する HEPA フィルタは、建屋内の ガスを建屋外に放出する排気筒の上流に位置し、換気系における 最終的な閉じ込め設備を担っています。



図2 HEPA の差圧と煤煙負荷量の関係: (a) HEPA の差圧と煤煙負荷重量及び(b) HEPA の差圧と煤煙負荷体積 (a) で得られた ΔP は、いずれの燃焼条件においても M_pの2次関数で表せることが明らかになりました。(b) では負荷量を負荷される煤煙の 粒径分布から算出された V_pで表すことで、同じ V_pに対する ΔP の変化には、燃焼物質別、給気流量条件別に規則性があることが見い出せました。

ウラン・プルトニウム混合酸化物(MOX)燃料加工 施設に対しては、核燃料物質等の閉じ込め機能の喪失が 重大事故の一つとして選定されています。同施設の核燃 料物質等の閉じ込め機能は、概略図(図 1)に示すよう に、飛散性の高い粉末状の核燃料物質等を取り扱うグ ローブボックス (GB) 内や施設内のガスの負圧を維持す ることと、ガス中に移行した粒子状の核燃料物質等を換 気系に設置された多風量型の高性能粒子エアフィルタ (HEPA)によって除去することにより担保されています。 GB には、アクリル (PMMA) やポリカーボネート (PC) 等の樹脂製の可燃性パネル材が含まれています。パネル 材燃焼に伴う火災事故が生じた場合には、大量に放出さ れた煤煙による目詰まりによって HEPA の差圧が上昇 して破損する恐れがあります。HEPA が破損すると核燃 料物質等が施設外に放出されることになるため、破損前 に HEPA を交換する等のアクシデントマネジメント(AM) が必要となります。こうした AM 実施の時間的余裕を 確認するためには、火災に伴う HEPA の経時的な差圧 上昇を計算するための基礎データが必要となります。

火災時における HEPA の経時的な差圧上昇の評価を 行うためには、可燃性物質の種類ごとに異なる燃焼物か らの煤煙の放出量や粒径分布等の放出挙動並びに HEPA への煤煙負荷量と差圧の関係を把握する必要があること から、PMMA や PC を燃焼物とした燃焼試験を行いま した。そのうち、HEPA への煤煙負荷重量と差圧の関係 を得るための試験では、燃焼物種類や燃焼を行った試料 を置いたセルへの給気流量 (F_v) 条件をパラメータとし、 実施設で用いられるものと同型の HEPA を使用して JIS 規格で HEPA の品質が担保されている差圧近くまでの 関係を得ました。煤煙負荷重量 (M_n)と差圧 (ΔP)の関 係(図2(a))では、いずれの燃焼条件においても差圧上 昇はM。の2次関数で表せることを明らかにしました。 また図2(a)と同じ燃焼条件において、同じF_vの下で はセル内で発生した煤煙濃度の測定結果は PC の方が高 くなりました。さらに同じ燃焼物の下では F, が低い方が 高温場となったセル内での煤煙の滞留時間が長いため に、セル内で煤煙粒子が凝集して粒子径が大きくなり粒 子形状も複雑化する傾向があります。こうした煤煙粒子 が負荷される HEPA の△P の変化には煤煙粒子の大きさ (体積)による寄与が大きいものと考えられます。そこで、 図2(a)のM。を別途経時計測した煤煙粒子の粒径分布 を用いて球形形状を仮定して煤煙体積に換算しさらに時 間積分して得た HEPA への煤煙負荷体積 (V_o) に変えて 整理しました (図2(b))。 図2(b) では同じ V。に対する △Pの大きさは、PCの方が PMMA よりも大きく、さらに 同一燃焼物の下での同じ V。に対するΔ P の大きさは F_v 条件の小さい方が大きくなり、△Pの変化に規則性があ ることを見い出し、上記の考察が妥当であったことを示 すことができました。さらに△Pの上昇挙動を統一的に 評価できるように評価モデルの改良を進める予定です。

本研究は、原子力規制庁からの受託事業「平成 30 年 度原子力施設等防災対策等委託費(再処理施設等におけ る火災事故時影響評価試験)事業」の成果を含んでいます。 (田代 信介)

●参考文献

Tashiro, S. et al., Clogging Properties of HEPA Filter Induced by Loading of Soot from Burned Glove-Box Panel Materials, Nuclear Technology, vol.208, issue 10, 2022, p.1553-1561.

11-6 地下に広がる汚染分布を3次元で高精度に評価 - 廃炉に向けた地下の汚染状況把握への貢献に期待-



図1 実際の汚染事例(廃棄物処分場、カナダ)に対する3次元汚染分布の評価 本手法では、限られた測定濃度から、汚染源からの放出履歴(未知)を逆解析することで、領域全体の汚染分布を求めます。検証の結果、 3つの化学物質に対し、推定した汚染分布(上)は測定濃度と高い相関を示し、従来の手法に比べて誤差が低減しました(下)。

放射性物質や化学物質による地下水汚染が生じた場 合、住民への影響を調べ、除染等を効果的に行うためには、 汚染の広がりの把握が必須です。汚染の発生時期や放出 量(放出履歴)が明らかであれば、汚染分布は地下水流動・ 物質移行の数値シミュレーションで評価できます。しか し多くの場合、こうした情報は事前に分かりません。

このような場合にも汚染分布を評価できる手法とし て、地下水中の物質移動モデルに基づく統計学的アプ ローチが提案されています。地下水の流れが一定なら、 汚染濃度と放出履歴は線形関係にあります。これを利用 すれば、放出履歴が不明な事故時にも、限られた汚染濃 度の測定データから汚染分布を評価できます。しかし従 来の手法には、(1)負値の発生(非現実的)を防げない、 (2)実際の汚染事例での3次元的な検証例がない、とい う2つの問題がありました。

これらの問題を解決するために、従来の手法にベイズ 推定に基づく非負の制限(ギブスサンプリング)を導入 した、新たな評価手法を開発し、カナダの廃棄物処分場 での化学物質による汚染事例に適用しました。評価は、 帯水層中の一様な流れを仮定した物質移行モデル(理論 解)を用いて、汚染発覚当時(1982年)の測定濃度を 入力として実施しました。その結果、汚染の発生時期に ついて、実際の大規模投棄に対応したピークを推定でき ました(図1上)。さらに、土壌への吸着のしやすさが 異なる複数の化学物質の3次元汚染分布を、従来より も高い精度で再現できました(図1下)。これらの結果は、 実際の地下水汚染に対し、開発した手法が有効であるこ とを示しています。

本手法は、地下に広がる汚染分布とその不確かさを3 次元で可視化できるため、環境修復の策定だけでなく、 追加測定点の検討にも活用できます。今後は、地盤の透 水性の不均質性等も考慮することで、更なる推定精度向 上を図り、東京電力福島第一原子力発電所の廃炉に向け た汚染状況把握に加え、一般の地下水汚染への貢献にも つなげたいと考えています。

本成果は、原子力規制委員会原子力規制庁からの受託 研究「令和3年度原子力発電施設等安全技術対策委託 費(廃止措置リスク評価に関する検討)事業」の成果の 一部です。

(高井 静霞)

●参考文献

Takai, S. et al., Evaluating the Effectiveness of a Geostatistical Approach with Groundwater Flow Modeling for Three-Dimensional Estimation of a Contaminant Plume, Journal of Contaminant Hydrology, vol.251, 2022, 104097, 12p.

11-7 重大事故時の放射性物質をプールで濾し取るには? -プールスクラビングにおける二相流挙動を数値流体力学解析で評価-



図1 気泡群の様相

水位 1000 mm、幅 500 mm の水プール底面中央にある直径 6 mm の円形のオリフィス(孔)から、流速 5 m/s で空気を注入します。 注入によって生じた大気泡は、上昇するにつれ、分裂や合体を繰 り返し、気泡群(小気泡の集合)になります。

プールスクラビングは、原子炉の重大事故時に粒子状 の放射性物質(エアロゾル)の環境放出を低減するための 対策の一つであり、気泡内に含まれるエアロゾルが気相 から液相へ移行することで粒子を除去する湿式フィルタ の一種です。このプロセスは、沸騰水型原子炉のサプレッ ションプールや加圧水型原子炉の蒸気発生器の二次側な どで生じ、フィルタベントシステムにも適用されています。

プールスクラビングでは、気体注入後に形成される大 気泡の分裂によって小気泡の集合である気泡群が生じま す。気泡群は、気泡の合体や分裂を繰り返しながら上昇 し、最終的にプール水面に到達します。気泡内の粒子移 行はこのような気泡の力学挙動に強く影響を受けるた め、気泡挙動を実験によって把握することと並行して、 数値解析による予測や現象のモデル化が数多く行われて います。数値解析手法の一つである数値流体力学(CFD) では、気泡流の現実的な流れを再現し、実験では得られ ない高解像度の情報を得られる可能性があります。

本研究では、気体と液体の境界面(界面)を追跡する 手法として、<u>Volume Of Fluid</u>(VOF)法に <u>Level Set</u>(LS) 法を組み合わせた <u>Simple Coupled Volume Of Fluid</u> with <u>Level Set</u>(S-CLSVOF)法を採用しました。VOF 法は気液体積率(VOF 関数)の輸送により界面位置を 特定する手法ですが、体積率は界面勾配の情報を持たな いため、滑らかな界面を再現するために LS 関数を利用 しました。LS 関数は界面まで最短距離(法線ベクトル) を表す距離関数で界面の傾きを表現できます。このよう



に両者の長所を活かして、気泡全体の追跡を VOF 法で、 界面の曲率や法線ベクトル解析を LS 法で行います。図1 は、S-CLSVOF 法によって解析した気泡群の様子を示 しています。プール底部中央にある円形のオリフィス (孔)から注入された空気は、大気泡を形成後離脱します。 離脱した気泡は、分裂と合体を繰り返しながら気泡群を 形成し、気泡群の小気泡は軸回転しながら全体として斜 め上方向へ広がりながら上昇することが確認できます。

解析結果の妥当性を検証するため、ボイド率(気相体積割合)を既存の実験結果*と比較しました(図2)。 注入直後(高さ100 mm)のボイド率は、0.25 のピー クが見られます(図2(a))が、プールの液面(高さ 1000 mm)に近づくにつれ、ボイド率は減少し、半径 方向に広がります(図2(a)及び(b))。解析結果は実 験結果とよく一致し、気泡群を正確に予測できることが 確認できました。

本研究により、CFD 解析は検証実験を補い、実験で 計測が難しいパラメータ(界面積濃度、気泡上昇速度) を予測できる可能性があることを示しました。将来的に は、原子力規制等で使用されているシビアアクシデント コードの検証や高度化に資するデータの提供を目指して います。

(岡垣 百合亜)

* Abe, Y. et al., Bubble Dynamics with Aerosol During Pool Scrubbing, Nuclear Engineering and Design, vol.337, 2018, p.96-107.

●参考文献

Okagaki, Y. et al., Numerical Simulation of Bubble Hydrodynamics for Pool Scrubbing, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.60, issue 8, 2023, p.955-968.

11-8 最新の核データライブラリの妥当性を確認 – JENDL-5 を用いたPWR 燃料照射後試験データの解析–



図1 高浜3号機照射後試料の核種組成測定値と計算値の比較 JENDL-4.0とJENDL-5を用いて高浜3号機照射後試料(SF97) の核種組成を計算した結果(C)と測定値(E)の比較を示し ています。C/E-1が0に近いほど計算値と測定値が一致して いることを意味しています。

核データは原子力・放射線分野の解析において必須 となる基礎データであり、評価済み核データライブラリ という形で世界の主要国にて整備されています。日本の 評価済み核データライブラリである JENDL は、2021 年末にその最新版である JENDL-5 が公開されまし た。JENDL-5 では、その1つ前のバージョンにあたる JENDL-4.0 から、核反応断面積(核種と中性子との反応 確率)や崩壊データ(α崩壊やβ崩壊などの崩壊確率や 割合等)など、多くの重要な核データが更新されました。

新しい核データを安全評価等に利用するためには、実 験解析などによる計算値と測定値の比較により、前もっ て核データの妥当性を確認する必要があります。核デー タの妥当性確認に有用な測定データの一つが照射後試験 データです。これは実際に原子炉等で使用された核燃料 の核種組成等を破壊分析等により測定したものです。原 子炉内の核燃料中の核種組成の時間変化を追跡する計算 (燃焼計算)によって照射後試験試料の核種組成を評価 し、測定値と比較することで、使用した核データが妥当 であるかどうかを確認することができます。燃焼計算は、 原子炉の炉心設計や使用済燃料の臨界・放射線安全評価 などにおいて基盤となる計算であり、ゆえに燃焼計算に おける核データの妥当性確認は非常に重要です。

本研究では、JENDL-5を用いてこれまでに多数の利 用実績がある高浜3号機 PWR(加圧水型原子炉)燃料 の照射後試験データの解析を行い、軽水炉の燃焼計算に おける JENDL-5の妥当性確認を行いました。図1に は Serpent 2 という燃焼計算コードを用いて計算した 照射後試験試料の核種組成と測定値との比較結果を示し ています。核データには JENDL-5の他に、比較として JENDL-4.0を用いた場合の結果も示しています。図1 の結果から、JENDL-4.0と JENDL-5を用いた場合の



図2 核種ごとに核データを変更した場合の核種組成計算値の変化(%) 主な核種について核種ごとに JENDL-4.0 から JENDL-5 に核反応 断面積を変更した場合の核種組成計算値の変化(%)を示してい ます。図1に示された JENDL-4.0 と JENDL-5 の核種組成計算値 の差異が、どの核種の核反応断面積の更新に起因しているのかを 明らかにしました。

計算値と測定値の差異は両者とも数パーセント程度の範 囲で得られており、核種組成計算において JENDL-5 が JENDL-4.0 と同程度の精度を有することを示しました。

また、JENDL-4.0とJENDL-5で様々な核種の計 算値と測定値の差異が全体的には同程度であった一方 で、核種別に見ると大きく結果が異なる核種が存在 することを確認できました。例えば、図1の²³⁸Puは JENDL-4.0 では計算値と測定値の差異が小さいのに対 し、JENDL-5 では-7%の差異がみられています。こ のような JENDL-4.0 と JENDL-5 による結果の違いの 原因を特定するため、本研究ではさらに一部の核データ のみを JENDL-4.0 から JENDL-5 に入れ替えて計算を 行いました。これにより、JENDL-4.0から JENDL-5 の核データの更新が核種組成計算結果に与える影響を詳 細に確認しました。図2には、結果の一例として、主 な重核種について核種ごとに核反応断面積を JENDL-4.0 から JENDL-5 に入れ替えた場合の核種原子個数密 度の計算値の変化を示しています。図2では、例えば、 ²³⁸Puの原子個数密度は、²³⁸Puの核反応断面積のみを入 れ替えた場合に全核種の核反応断面積を入れ替えた際の -7%の差異に近い-5.8%の差異が生じています。この ことから、²³⁸Pu の原子個数密度の差異が主に²³⁸Pu の 核反応断面積の更新から生じていることが分かりました。

本研究は照射後試験データを用いた軽水炉燃焼計算に おける JENDL-5 の妥当性や、JENDL-5 における核デー タ更新が核種組成計算結果に与える影響について、初め て詳細に議論しました。本研究成果が今後の JENDL-5 利用の普及や将来的な更なる核データの改善等に貢献し ていくことが期待されます。

(渡邉 友章)

●参考文献

Watanabe, T. et al., Impact of Nuclear Data Revised from JENDL-4.0 to JENDL-5 on PWR Spent Fuel Nuclide Composition, Journal of Nuclear Science and Technology, https://doi.org/10.1080/00223131.2023.2201603.

原子力機構の研究開発成果 2023-24

URL : https://rdreview.jaea.go.jp/

発 行 編集·発行			2023 国立	2023年10月 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構									
成男 委	₹普万 員	を情幸 長	服誌『原 国枝	子力機構 賢	ずの研究 開	 昇発成果	具』編集書	委員会					
委		員	岩元 飯島 中沢	洋介 和毅 哲山	山口 山根 西畑	正剛 祐一 保雄	小泉 谷村 相澤	光生 嘉彦 一也	橘 西尾 北村	幸男 勝久 誠司	小山 原田 素都	真一 秀郎 益武	
			弥富	音也 洋介	香西	直文	1017		1013	顾在日	小田	1111, 11-1	

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 〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-49 TEL 029-282-6387 e-mail ird-seika_shi@jaea.go.jp

デザイン要素に取り入れています「正六角形」は玄武すなわち亀の甲羅を表し、長寿のシンボルとして古来より尊ばれた 紋様です。なお、高温工学試験研究炉「HTTR」の燃料体も正六角形です。

画像は、グラフェンの構造と固体電解質膜の電気化学反応系から成る水素同位体分離デバイスの概念図(左上)と核データ ライブラリ JENDL の開発と利用の模式図(右下)です。

前者は、量子トンネル効果により水素同位体イオンの高い選択的透過性を持つグラフェンを電気化学反応系に組み込んだ水 素同位体分離デバイスです。本システムにより、低コストの重水素分離デバイスの実現を目指します(第3章トピックス 3-5、p.32)。 後者は、最新の核データライブラリJENDL-5の開発と利用を模式的に表したものです。J-PARCの測定や核反応のモデル計算な どの最新知見をJENDL-5として集約し、様々な放射線利用分野で必要な基盤データを提供しています(第4章トピックス 4-2、p.37)。



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9版」もご参照ください。

原子力機構全体の活動状況は、「2022 年度事業報告書」をご参照ください。