福島原子力発電所事故由来の難固定核種の新規ハイブリッド固化への挑戦と合理的な処分概念の構築・安全評価
（4）理論計算によるハイブリッド固化体の電子状態および構造特性の解析

Challenge of Novel Hybrid-waste-solidification of Mobile Nuclei Generated in Fukushima Nuclear Power Station and Establishment of Rational Disposal Concept and its Safety Assessment
(4) Theoretical Analysis for Electronic and Structural Properties of Hybrid-waste-solidification Materials

*渡邊 真太[1]，針貝 美樹[1]，中瀬 正彦[1]，牧 涼介[2]，菊永 英寿[3]，小林 徹[4]，
桜木 智史[5]，浜田 涼[5]，朝野 英一[5]
[1]東工大，[2]岡理大、[3]東北大、[4]原子力研究機構、[5]原環センター

難固定核種であるヨウ素の安定固化のためには、ハイブリッド固化体の物理的・化学的性質を詳細に理解することが重要である。本研究では、一般的な 1 次固化体である AgI と 2 次固化体の候補として一般的なジルコニウム金属について、理論計算により、その電子状態および構造特性を解析した。

キーワード：福島第一原子力発電所事故，ハイブリッド固化，第一原理計算，分子動力学計算

1. 緒言　難固定核種であるヨウ素の安定固化に向けて、熱間等方圧加圧法(HIP)を用いたハイブリッド固化の検討が進められている。この方法では、一次固化体であるヨウ素化合物を、緻密性の高い金属などで覆い HIP 処理をすることで、耐浸出性に優れたハイブリッド固化体の作製を目指している。このハイブリッド固化処理過程において、ヨウ素(I)や金属の拡散、それらの元素間での相互作用による固溶化や化合物形成などが起こる可能性がある。また、作製したハイブリッド固化体中での I の拡散性は、固化体の浸出性能に直結する物理因子であると予想される。一方で、これらの動的および静的な物理現象を、実験的に原子スケールで詳細に評価するのは困難な場合が多い。したがって、固化体特性の評価のために、第一原理計算や分子動力学（MD）計算によるミクロスコピックな現象の解析が望まれる。これに資する目的から、本研究では、一般的な 1 次固化体である AgI と、2 次固化体の候補として一般的なジルコニウム金属について、理論計算により、その電子状態および構造特性を解析した。

2. 計算手法　第一原理計算は、VASP を用いた projector augmented-wave 法により実施し、交換相関汎関数には、Perdew、Burke、Ernzerhof により提案された一般化勾配近似を用いた。平面波基底展開のカットオフエネルギーは 550 eV とし、積分における k 点数は、逆格子空間で、概ね $0.25/2\pi$ $Å^{-1}$ 以下となるように Monkhost-Pack グリッドで設定した。古典 MD 計算は、Lammps 用いて、NPT アンサンブルで実施した。

3. 結果と考察　第一原理計算結果より、1 次固化体である AgI は、アクセプターが共存する環境下において、ヨウ素欠陥が生成しやすく、AgI 中への I の固定化は、還元雰囲気下の方が有利であることが示唆された。また、Zr 金属、Zr-Ag 2 元系合金について、MD 計算を実施し、自己拡散及び相互拡散挙動を評価した。これらの結果から、Zr-Ag 界面において、相互拡散が起こり、Ag と Zr は合金化する傾向にあることが分かった。Zr をハイブリッド固化体として使用する場合、Ag との合金化により、間接的に I が遊離し、AgI とは異なる化学形態として残存する可能性があることが示唆された。

4. 謝辞　JAEA 英知を結集した原子力科学技術・人材育成事業 JPJA21P21460873 の助成で実施している。

---

*Shinta Watanabe[1], Miki Harigai[1], Masahiko Nakase[1], Ryosuke Maki[2], Hidetoshi Kikunaga[3], Tohru Kobayashi[4], Tomofumi Sakuragi[5], Ryo Hamada[5], Hidekazu Asano[5].

[1]TokyoTech, [2]Okayama Univ of Sci , [3]Tohoku Univ., [4]JAEA, [5]RWMC.