

ISSN 2434-1088

KURNS-EKR-3

PRINT ISSN 2434-6209

PRINT KR- 1

京都大学複合原子力科学研究所
「第 53 回学術講演会報文集」

Proceedings of the 53rd KURNS Scientific Meeting

開催日：平成31年2月5、6日
(February 5 & 6, 2019)

京都大学複合原子力科学研究所
Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University

第 53 回京都大学複合原子力科学研究所学術講演会プログラム

開催日：平成 31 年 2 月 5 日(火) 10:30 ～ 2 月 6 日(水) 15:10

口 頭 発 表：京都大学複合原子力科学研究所 事務棟会議室

ポスター発表：同 図書棟会議室

2 月 5(火) 10:30～17:10

開会の挨拶 (10:30～10:40) 所長 川端祐司

トピック講演

- T1) 10:40～11:20 座長 卞 哲浩
京都大学臨界集合体実験装置における加速器駆動システム実験…………… 1
安全原子力システム研究センター (熱エネルギーシステム研究分野)
山中正朗

新人講演

- N1) 11:20～12:00 座長 大槻 勤
アクチノイド物性化学分野における課題と研究計画…………… 2
原子力基礎工学研究部門 (アクチノイド物性化学研究分野)
山村朝雄

————— (休 憩) 12:00～13:00 —————

トピック講演

- T2) 13:00～13:40 座長 上杉智教
FFAG 加速器これまでの歩みと今後の展開…………… 3
安全原子力システム研究センター (加速器応用工学研究分野)
石 禎浩

トピック講演

- T3) 13:40～14:20 座長 池上麻衣子
廃水中トリチウムの処理に向けた試み…………… 6
原子力基礎工学研究部門 (放射性廃棄物制御工学研究分野)
福谷 哲

プロジェクト研究成果講演

PJ1) 14:20～15:00 座長 沖 雄一

福島原発事故で放出された放射性エアロゾルの生成メカニズムの解明…………… 7
粒子線基礎物性研究部門（同位体利用化学研究分野）
高宮幸一 他

————— (休 憩) 15:00～15:10 —————

一般講演（ポスター発表）（15:10～17:10）

- P1) マルチドメイン蛋白質の階層的な動的構造と機能発現との関係性に関する研究…………… 11
○中川洋(JAEA)、斉尾智英(北大理)、杉山正明、井上倫太郎(京大複合研)
- P2) フィブリノーゲンによるインスリンB鎖アミロイド線維の形成阻害…………… 12
○茶谷絵理、山本直樹、赤井大気(神戸大理)、井上倫太郎、杉山正明(京大複合研)、
田村厚夫(神戸大理)
- P3) X線小角散乱法による鉄鋼材料中のマイクロ組織の解析…………… 13
○大場洋次郎(原子力機構)、日野正裕(京大複合研)、足立望、戸高義一(豊橋技科大)、
井上倫太郎、杉山正明(京大複合研)
- P4) Measurement of $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio of caesium micro-particles and contaminated soil
particles using well-type germanium detector…………… 14
○M. Soliman, F. Futagami, K. Takamiya, S. Sekimoto, Y. Oki, and T. Ohtsuki (KURNS)
- P5) X線・中性子反射率法による潤滑界面の平均構造評価の試み II…………… 15
○日野正裕(京大複合研)、足立望、戸高義一(豊橋技科大)、大場洋次郎(原子力機構)、
平山朋子(同志社大)
- P6) ヒト水晶体内 α A-クリスタリン中におけるAsp58部位の重要性と白内障との関係…………… 16
○高田匠、守島健、井上倫太郎、佐藤信浩、杉山正明、藤井紀子(京大複合研)
- P7) 燃料デブリのガラス固化に関する実験的研究…………… 17
○児玉雄二、佐々木隆之(京大院工)、佐藤修彰、桐島陽、秋山大輔(東北大多元研)
関本俊、奥村良(京大複合研) 小林大志(京大院工)
- P8) B-3 小型多目的中性子回折計の進捗状況 2018…………… 18
○森一広、奥村良、吉野泰史、金山雅哉(京大複合研)、佐藤節夫(高エネ研)、平賀晴弘(KAERI)、
岩瀬謙二(茨城大工)、奥村明央、小林史幸(京大院工)
- P9) 小麦タンパク質グリアジンの凝集体構造のSAXSによる解析…………… 19
○裏出令子、佐藤信浩、杉山正明(京大複合研)、東野ゆうき(京大院農)、井上倫太郎、
守島健(京大複合研)
- P10) フッ化物イオン電池用 $\text{Ce}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{F}_{2.95}$ 固体電解質の構造および電気化学特性…………… 20
○奥村明央(京大院工)、森一広(京大複合研)、藤崎布美佳(京大産官学)、
米村雅雄(高エネ研)、石川喜久(CROSS)

P11)	海塩粒子の塩素及び臭素損失……………	21
	○伊藤憲男、溝畑朗（大阪府大）、飯沼勇人、奥村良（京大複合研）	
P12)	Eu:LiCAF を用いた加速器 BNCT における中性子測定技術開発……………	22
	○仁尾大資、坂佐井馨、中島宏（原子力機構）、田中進、熊田博明（筑波大）、高宮幸一（京大複合研）	
P13)	原子炉中性子によって生じる DNA 損傷の分析……………	23
	○寺東宏明（岡大）、徳山由佳、森加奈恵（佐大）、長田直之（岡大）、田中浩基、齊藤毅（京大複合研）	
P14)	クライオ電顕のための牛心筋 FoF1ATP 合成酵素の試料調整……………	24
	○慈幸千真理（京大複合研）、ゲーレ・クリストフ（阪大蛋白研）、森本幸生（京大複合研）	
P15)	1.5 MW 大強度高繰り返しシンクロトロンにおけるビーム挙動の解析……………	25
	○不破康裕、石禎浩、上杉智教、栗山靖敏（京大複合研）	
P16)	超遠心分析と X 線小角散乱を用いたタンパク質溶液の相補的構造解析……………	26
	○守島健、佐藤信浩、井上倫太郎、杉山正明（京大複合研）	
P17)	アミロイド β タンパク質産生量を減少させるタンパク質 ILEI の物理化学的解析……………	27
	○日比野絵美（滋賀医大）、守島健、井上倫太郎、杉山正明（京大複合研）、中野将希、渡邊直希、杉拓磨、西村正樹（滋賀医大）	
P18)	原子炉および電子加速器を用いた種々のメスバウアー線源の作成……………	28
	○北尾真司、小林康浩、窪田卓見、齋藤真器名、増田亮、黒葛真行（京大複合研）、細川修一、田嶋寛介、矢崎慎一郎（京大理）、瀬戸 誠（京大複合研）	
P19)	耐放射線小型軽量撮像素子の開発—構成要素のガンマ線照射下における挙動……………	29
	○後藤康仁、森藤瑛之（京大院工）、半田裕典（京大工）、長尾昌善（産総研）、岡本保、猪狩朋也、福井貴大（木更津高専）、増澤智昭、根尾陽一郎、三村秀典（静大電研）、佐藤信浩（京大複合研）、秋吉優史（大阪府大放射線セ）、高木郁二（京大院工）	
P20)	水溶液中のトリチウムに対する水酸化物のプロトン交換反応……………	30
	○橋爪秀夫（物・材機構）、上原章寛（量研機構）、福谷哲（京大複合研）、藤井和子、安藤寿浩（物・材機構）	
P21)	ウランの金属酸化物への収着反応に関する分光学的評価……………	31
	○春本大樹、小林大志、佐々木隆之（京大院工）	
P22)	福島第一原発周辺土壤に沈着した FP の深部移行挙動……………	32
	○的場大輔、佐々木隆之、小林大志（京大院工）	
P23)	金属間化合物合金に対する量子線照射効果による微細構造変化……………	33
	○鷹野陽弘、角倉優雅、杉田健人（大阪府大）、大澤一人（九大応力研）、徐虬（京大複合研）、堀史説（大阪府大）	
P24)	J-PARC MLF BL06 MIEZE 型スピネコー分光器の現状……………	34
	○小田達郎、日野正裕、川端祐司（京大複合研）、遠藤仁（KEK 物構研）	
P25)	照射還元法により合成した Cu 合金ナノ粒子の安定化と微細構造……………	35
	○内村祐也、戸田晋太郎、田中元彬（大阪府大院）、水越克彰（東北大金研）、田口昇、田中真悟（産総研）、松井利之（大阪府大推進機構）、徐虬（京大複合研）、堀史説（大阪府大院）	

P26)	高純度タングステンにおける電子線照射誘起空孔の回復挙動……………	36
	○田中美穂 (京大院工)、藪内敦、木野村淳 (京大複合研)	
P27)	KUCA における DT 加速器開発の現状……………	37
	○栗山靖敏、田中良明、小林徳香、竹下智義、上田哲也、吉野泰史、飯沼勇人、卞哲浩、高橋佳之、山中正朗、不破康裕 (京大複合研)	
P28)	垂直ロッドバンドル流路内における局所界面積濃度の特性に関する研究……………	38
	○沈秀中 (京大複合研)、三輪修一郎、肖毅廣 (北大工)、孫昊旻 (原子力機構)、日引俊 (米国パーデュー大)	
P29)	化学交換法による同位体分別研究……………	39
	○裕隆太、義本孝明 (大産大)、佐久間洋一 (東工大炉)、藤井俊行 (阪大工)、福谷哲、芝原雄司 (京大複合研)	
P30)	高速度中性子イメージングにおける時間分解能の向上……………	40
	○伊藤大介、伊藤啓、齊藤泰司 (京大複合研)	
P31)	鉛ビスマス-窒素二相流の分布特性に関する研究……………	41
	○有吉玄 (京大院)、伊藤大介、伊藤啓、齊藤泰司 (京大複合研)	
P32)	多点センサを用いた静電容量式液膜厚さ計測手法の高度化……………	42
	○松下貴博 (京大院)、伊藤大介、伊藤啓、齊藤泰司 (京大複合研)	
P33)	多孔質内における気液二相流圧力損失に及ぼす偏流の影響……………	43
	○栗崎達也 (京大院)、伊藤大介、伊藤啓、齊藤泰司 (京大複合研)	

2月6日(金) 10:00~15:40

トピック講演

T4)	10:00~10:40	座長 窪田卓見	
		東京電力(株)福島第一原子力発電所事故における線量評価……………	44
		原子力基礎工学研究部門(放射線管理学研究分野)	
		高橋知之	

トピック講演

T5)	10:40~11:20	座長 森本幸生	
		重水素化を利用したタンパク質の変性に関する研究……………	47
		放射線生命科学研究部門(生体分子構造研究分野)	
		喜田昭子	

トピック講演

T6) 11:20～12:00 座長 杉山正明

重水素化支援小角中性子散乱中性子散乱及び分析超遠心法による α -クリスタリンの
サブユニット交換の機構解明…………… 49

粒子線基礎物性研究部門（粒子線物性学研究分野）

井上倫太郎 他

（休 憩）12:00～13:00

トピック講演

T7) 13:00～13:40 座長 齊藤泰司

大口径流路内多次元気液二相流の流動機構解明に関する研究…………… 52

原子力基礎工学研究部門（研究炉安全管理工学研究分野）

沈 秀中 他

プロジェクト研究成果講演

PJ2) 13:40～14:20 座長 伊藤大介

中性子イメージングの高度利用…………… 55

安全原子力システム研究センター（熱エネルギーシステム研究分野）

齊藤泰司 他

プロジェクト研究成果講演

PJ3) 14:20～15:00 座長 籾内 敦

高エネルギー粒子照射研究における評価手法の高度化…………… 60

粒子線基礎物性研究部門（照射材料工学研究分野）

木野村 淳 他

閉会の挨拶（15:00～15:10） 所長 川端祐司

(T1) 京都大学臨界集合体実験装置における加速器駆動システム実験

(京大複合研) ○山中 正朗

1. はじめに: 加速器駆動システム(ADS)は C. Rubbia 氏および F. Carminati 氏がトリウムを利用するために 1980 年代に新たな原子力システムとして提唱された。現在の ADS の研究では、軽水炉から発生するマイナーアクチノイド(MA)と長寿命核分裂生成物の核変換に主眼が置かれている。京都大学複合原子力科学研究所では世界に先駆けて京都大学臨界集合体実験装置(KUCA)と KUCA の A 架台に併設されているパルス中性子発生装置(D-T 反応による 14 MeV 中性子源)を組み合わせて ADS 研究が進められた。さらに、2008 年には外部中性子源を実炉のものに近づけるために FFAG 加速器で 100 MeV に加速させた陽子を重金属ターゲットに衝突させることで得られる核破砕中性子を未臨界炉心に供給し、14 MeV および核破砕中性子源が有るときの原子炉の核特性の結果がベンチマークとして公開されている[1]-[3]。ADS が炉物理学の観点から通常の原子炉と大きく異なる点は、中性子源を用いて未臨界定常状態で運転される点にある。しかし、原子炉の基本特性を示すパラメータの評価において、計算によるこれらの評価手法は外部中性子源を考慮できておらず、未臨界炉心の特性パラメータは未臨界炉心が臨界状態となる場合を仮定して近似的に求められてきた。実際には、未臨界炉心では外部中性子源によって炉心内の中性子束分布が固有値計算(臨界)のものとは異なるため、原子炉の特性パラメータも固有値計算とは異なる可能性が考えられる。そこで、動特性パラメータ(実効遅発中性子割合 β_{eff} ; 世代時間 Λ)に着目し、外部中性子源および未臨界度の動特性パラメータへの影響を検討することを目的として、未臨界炉心にパルス中性子を入射して動特性パラメータ $\beta_{\text{eff}}/\Lambda$ を測定した[5]。本報告では、 $\beta_{\text{eff}}/\Lambda$ の実験と計算の比較検討について報告する。

2. 実験: 実験では、KUCA-A 架台に 2 種類の燃料体(中央: ウラン-鉛、外周: ウラン-ポリエチレン(通称 EE1 燃料体))により構成された炉心を用いた。制御棒の挿入または燃料置換によって未臨界度を変化させた。中性子源には 14 MeV 中性子および 100 MeV の陽子を Pb-Bi ターゲットに衝突させることで生じる核破砕中性子を用いた。検出器には炉心外周に設置された複数個の BF₃ 検出器を用いた。 $\beta_{\text{eff}}/\Lambda$ はパルス中性子源法のフィッティングにより得られた即発中性子減衰定数 α と面積比法による \$ 単位の未臨界度を組み合わせて測定した。実験解析では MCNP6.1 と ENDF/B-VII.1 を用いた固有値計算により $\beta_{\text{eff}}/\Lambda$ を求めた。

3. 結果: 図 1 計算で得られた α に対する $\beta_{\text{eff}}/\Lambda$ の分布を示す。実験および計算を通して、 α の値が 1000

を超えると $\beta_{\text{eff}}/\Lambda$ が小さくなり、また、未臨界度の増加にともない $\beta_{\text{eff}}/\Lambda$ が最大で 70 s⁻¹程度の減少を示した。一方、外部中性子源がある場合、固有値計算で得られた値よりも約 20 s⁻¹ 小さな値となることがわかった。このことから、外部中性子源によって動特性パラメータが変化したと考えられる。興味深いことに同じ未臨界度($\alpha=800$ s⁻¹)であっても炉心寸法が小さくなることで外部中性子源の影響度合いが変化した。この結果から、 $\beta_{\text{eff}}/\Lambda$ の値は炉心寸法に依存することがわかった。また、14 MeV および核破砕中性子源の比較では、14 MeV 中性子源によるものがわずかに小さな値を示した。この他にも、ADS による核変換技術への応用に向けた基礎基盤技術のうち未臨界度のオンラインモニタリングおよび MA の核分裂および捕獲反応断面積の検討を実施している。MA の照射実験では Np および Am の核分裂反応比、Np の捕獲反応率についても取得した。これらの結果については当日の発表で報告する。

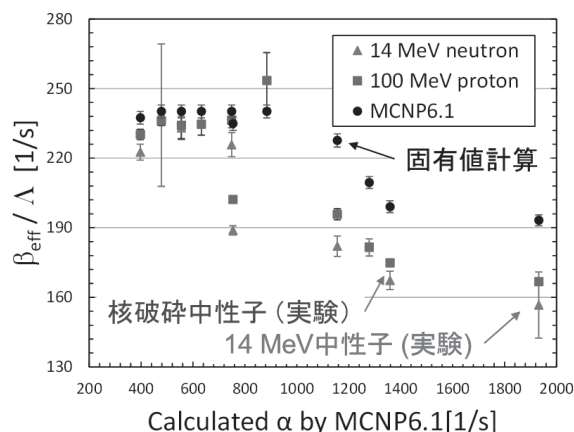


図 1 $\beta_{\text{eff}}/\Lambda$ の実験および固有値計算(MCNP)の比較
参考文献

- [1] C. H. Pyeon, KURRI-TR-444, Research Reactor Inst., Kyoto Univ. (2012).
- [2] C. H. Pyeon, KURRI-TR-48, Research Reactor Inst., Kyoto Univ. (2015).
- [3] C. H. Pyeon, KURRI-TR-447, Research Reactor Inst., Kyoto Univ. (2017).
- [4] C. H. Pyeon and M. Yamanaka, KURNS-EKR-001, Inst. for Integrated Radiat. and Nucl. Sci., Kyoto Univ. (2018).
- [5] 山中正朗、ほか、日本原子力学会「2018年春の年会」、2F15

謝辞: 本研究は、中部電力株式会社・原子力安全技術研究所による特定テーマ公募研究「加速器駆動システムによる核変換処理の実現のに向けた基礎研究」に基づいて得られた成果である。

(N1) アクチノイド物性化学分野における課題と研究計画

(京大複合研) ○山村朝雄

1. はじめに

アクチノイド系列とは、アクチニウム ($Ac: 5f^0$) から始まる放射性的の元素群で、内側の $5f$ 軌道に電子が充填される「内遷移元素」であるが、相対論的效果により希土類ほどに遮蔽が完全でない。15 個目の元素である Lr ($5f^14$) がアクチノイド系列であるものの最外殻電子軌道は p と奇妙な元素であることがわかり[1]、IUPAC により周期表の書き換えが計画される[2]などアクチノイドの物性化学にはまだ謎が多い。アクチノイドでは相対論的效果により $5f$ 軌道の動径分布がより外側に染み出すため[3]、ほぼ同程度のエネルギーにある $f-d-p$ の軌道混成が起こりやすい[4]。ウランの+6 価、+5 価の酸化状態で特徴的なウランイオン ($[O=U=O]^{+2+}$) の形成はこのためである[5]。このような f 電子の授受の容易さは、物性物理では遍歴性[3]、電気化学では酸化還元電極反応の高速性[6]として、希土類のそれぞれ局在性[3]、小さな移動係数と対称的な性質を与える。

アクチノイドの電子的性質は、 $5f$ 軌道電子の相互作用が元素、酸化状態、配位子場等により影響を受け、様々に変化する。人類はすでに原子力で利用してきたが、未解明の課題も多い。

2. アクチノイド物性化学分野における課題

原子力発電で生成するマイナーアクチノイド(ネプツニウム、アメリシウム、キュリウム等の超ウラン元素)は長寿命放射性廃棄物として原子力の社会受容性の根本問題である。一方、アクチノイド元素には非常に興味深い性質があり、従来はマイスナー効果などで相反する現象と見られていた超伝導と強磁性の共存がウランにおける発見[8]や、アクチニウム錯体が転移性ガンに劇的に効果のある核医薬[9]として脚光を浴びている。他方、福島第一原子力発電所事故の廃止措置で取り出すデブリの劣化評価を始め、基礎研究からの支援の必要性が増している。

これらいずれの分野でも、核的性質は正確に把握されているものの、電子的性質の把握とこれに基づく物質設計に未解決の課題がある。

3. 分野の問いかけと研究計画

上記の課題に基づいてアクチノイド物性化学という分野の「問いかけ」は以下のように考えている。

- (1) 重元素かつ $5f$ 内遷移元素であるアクチノイドの性質はどんな孤立系物質(または周期性物質との境界)で顕になるか?このような凝縮系物質の性質は医療、放射性廃棄物の処理に応用できるのでは?
- (2) 高いアルファ放射能のため取扱数量が規制され実験研究が困難になっているが、極微量の研究で打開可能ではないか?また、このような非統計的扱いは科学全体の方向性と合致するのではないか?
- (3) アクチノイドの電子状態の計算は相対論的效果の取り込みの困難があるが、実験研究のサポートのため、積極的に照合してその適用性と限界を明らかにする必要があるのではないか?

従来より(1)の取り組みを原子力、錯体化学、放射化学、物性物理学、核医薬の分野との共同研究で進めており、今後医学との共同研究で強化したい。(2)と(3)はやや野心的な取り組みを必要とし、新たに量子化学・物理との共同研究で進める計画である。

参考文献

- [1] T. K. Sato, *et al.*, *Nature*, **520** (2015) 209.
- [2] E. Scerri, *Chem. Int.*, March-April 2016 (2016) 22.
- [3] 上田和夫ら, 重い電子系の物理, 裳華房 (1998).
- [4] M.L. Neidig, *et al.*, *Coord. Chem. Rev.*, **257** (2013) 394.
- [5] K. Tatsumi, *et al.*, *Inorg. Chem.*, **19** (1980) 2656.
- [6] T. Yamamura, *et al.*, *J. Electrochem. Soc.*, **152** (2005) A830.
- [7] C. N. Singman, *J. Chem. Edu.*, **61** (1984) 137.
- [8] S. S. Saxena, *et al.*, *Nature*, **406** (2000) 587.
- [9] C. Kratochwil, *et al.*, *J. Nucl. Med.*, **57** (2016) 1941.

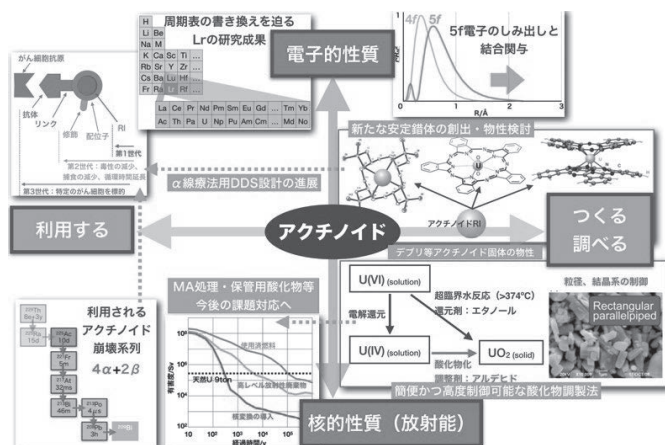


Fig.1. 特異な電子的性質、核的性質を有するアクチノイドを主要な構成物質として含む物質の物性化学(つくる、調べる、利用する)に関する研究の現状と計画

(T2) FFAG 加速器これまでの歩みと今後の展開

(京大複合研) ○石 禎浩

1. はじめに：京都大学複合原子力科学研究所

(KURNS)におけるFFAG加速器は、加速器駆動システム(ADS: Accelerator Driven System)の駆動用加速器として導入された。KURNSにおけるADS研究は文部科学省のエネルギー対策特別会計委託事業の課題「FFAG加速器を用いた加速器駆動未臨界炉に関する技術開発」として2002年度より開始された。核破砕反応を通じて発生する中性子量を十分確保するため、加速器からの陽子ビームには高エネルギーかつ大電流が要求される。強収束による高エネルギー加速および高繰返し運転による大電流ビームが実現可能なFFAG方式が本ADS研究に用いられた。本稿ではKURNSにおけるこれまでのFFAG加速器研究開発の経緯を振り返り、さらに今後の展開について述べる。

2. FFAG 加速器：

円形加速器では、ビームを形成する荷電粒子は安定な平衡軌道の周りを微小振動しながら周回している。この微小振動をベータatron振動と呼び、一周分の波数をベータatronチューン(あるいは単にチューン)と呼ぶ。FFAG(Fixed Field Alternating-Gradient)とはビームの収束方式を表し、日本語では固定磁場強収束方式などと訳されている。FFAG磁場は時間的に一定であるため運転繰返しを高くすることができ、半径方向と垂直方向にビームを収束させるための勾配を持った磁場分布となっている。この静的な磁場分布は式1で表される[1]。

$$B(r, \theta) = B_0(\theta) \left(\frac{r}{r_0} \right)^k \quad (1)$$

ここで、 k はfield indexと呼ばれる量で任意の定数、 B_0 は基準となる任意の半径 r_0 での方位角方向 θ の磁場分布である。 B_0 が θ 方向について交互に符号を変えるような関数であったとすると、ビームは水平・垂直方向に相補的に収束・発散を繰返し、安定したビームの運動が確保できる。

FFAGの原理は1950年代半ばに大河千弘(日本)、Andrei Kolomenskij(ソ連)、Keith Simon(米国)らにより独立に考案されたが、加速空洞等の構成機器の製作上の困難さから長年実用化はされなかった。しかし、その困難を克服し1990年代後半に高エネルギー加速器研究機構で森 義治教授(現在:京大複合研特任教授)らのグループにより実用機への展開が可能となった。

3. KURNSにおけるFFAG加速器開発：

加速器複合系は当初、図1の破線枠“Original Injector System”に示す通り、イオンベータ・ブースター・主リングの3つのFFAGリングから構成された[2]。2009-2010年の期間は、このシステムを用いて京都

大学臨界集合体(以下KUCA)へビームを供給し、世界初のADS実験を実施した[3]。

初段の加速器であるイオンベータはイオン源からの100 keV陽子ビームを2.5 MeVまで加速する。このリングでは陽子FFAGとしては世界初となる誘導加速・スパイラル収束・トリムコイルが採用されている。

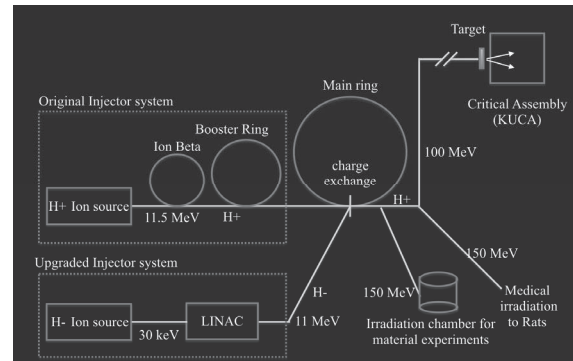


Fig. 1: Schematic diagram of the FFAG Accelerator Complex.

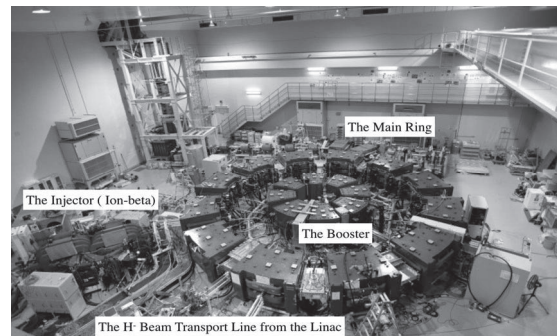


Fig. 2: FFAG Accelerator Complex at KURNS.

中段加速器のブースターはイオンベータと比較すると幾分保守的な設計であるが、極めて完成度の高いFFAGリングである。「加速により運動量が増加してもチューンが変化しない」というスケーリング則を極めて高い精度で満足しているため、加速途中のビームロスは見られない[4]。また、ビームコミッションでは、高周波捕獲後、直ちに取出エネルギーまでのビーム加速が確認された。日中、主リング据付工事を進める一方、夜間にブースターのビームコミッションを行うという強行軍であったが、リングの「出来の良さ」に助けられ、短期間で仕様を満たす11.5 MeVの陽子ビームを取り出すことができた。

最終段加速を行う主リングは、主電磁石にリターンヨークフリーという奇抜な構造を採用している。磁極で発生する磁束を戻す鉄の構造体(リターンヨ

ーク)が存在しないため、ビームの入射・取出しが容易にできる。その反面、主電磁石間に設けられた直線部に磁場が漏洩するため、様々な困難を誘発する。このため、ビームコミッションは長期に及んだが、2008年度内にKUCAでのADS実験が実現した。

4. KUCAでのADS実験：

主リングから取り出されたビームをビーム輸送系(MCBT系)を通過させKUCAへ導入し、炉室内に設置されたタングステンターゲットに陽子ビームが照射される際発生する中性子発生量が最大となるように、輸送系に配置された偏向電磁石、四極電磁石、ステアリング電磁石の励磁量の調整を行った。炉心近傍に設置され ^3He 検出器で測定されたパルス中性子の時間応答を図3に示す。縦軸は炉心近傍で単位時間あたりに検出された中性子の数、横軸は時間(秒)である。測定時点でのFFAG加速器の運転周期は30Hzのため、33ms毎にターゲットから中性子(即発中性子)が発生する。これは指数関数的に減衰し、その後、ほぼ一定な部分(遅発中性子成分)が観測できる。炉心での増倍がないと、指数関数減衰はより急激で、遅発中性子成分が存在しない。したがって、このデータから、未臨界炉心での中性子増倍が確認された。

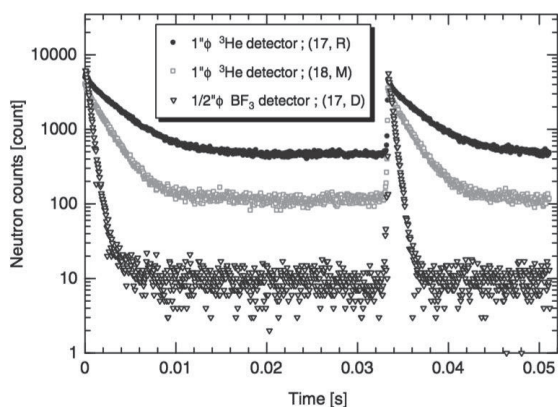


Fig. 3: Measured prompt and delayed neutron behaviors obtained from different configurations of detectors.

5. ビーム強度増強と種々の照射実験：

2010年後半、ビーム強度増強の目的で、入射器システムを負水素イオンビーム線形加速器に変更した(図1破線枠"Upgraded Injector System")。この線形加速器は2007年に後述するERIT機構実証のためのERITリングの入射器として導入されたが、新規ビームラインの増設とスイッチング電磁石の導入により、タイムシェアリングで主リングへの入射器として使用されている。薄膜を用いた負水素イオンビーム荷電変換入射は、大強度ビーム蓄積の有効な手段として、J-PARC RCS等の大強度シンクロトロンで広く用いられている。この変更により主リング取出し直後のビーム強度は約10倍に増強された。また、主リング加速空洞の電圧増強、その他調整作業により、10

nA相当(放射線規定上1nA以下になる様に繰返しを落として運転)のビーム強度を得ることができた。

増強されたビームを用いて、ADS実験以外にもFFAG加速器を用いた種々の照射実験が実施されている。科学技術振興機構(JST)の原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ事業では、150 MeVの陽子ビームを用いたADSの標的部候補材料の照射損傷発達基礎過程の解明を行った。また、熱除去にとって重要な因子である材料の表面状態(濡れ性)、特に陽子照射下においてターゲット材の冷却材による濡れ性を直接観察し、熱除去に関する基礎データを取得した。また、JAEA岩元らによる照射実験では温度12Kにおける陽子照射による銅のナノΩ程度の微小な電気抵抗増加の測定に成功した。世界的にもこのエネルギー領域(125 MeV)のデータは例がない。

また、京大複合研鈴木・田中らによりBNCT基礎研究に向けた、ラットの正常細胞への照射による損傷の実験が行われた。

京大複合研沖らは放射線誘起エアロゾル生成と粒径測定の実験をFFAG加速器からのビームを用いて行なった。放射線誘起エアロゾルは、放射性核種のキャリアとなって核種の輸送に寄与している可能性があり、その濃度や粒径は、放射性管理にとって重要な情報である。本研究により簡便な放射線エアロゾル粒径測定手法を確立した。

Tab.1: History of beam intensity and energy upgrade of KURNS FFAG accelerator.

year	Energy (MeV)	intensity		rep. rate (Hz)	injector	notes
		extraction	@CA target			
March 2009	100	50pA	~3 pA	30	ion beta booster	-
March 2010	100	100pA	30pA	30	ion beta booster	transport efficiency up cavity voltage 2.5 -> 4kV
March 2011	100	1nA	100pA	20	H- LINAC	H- injection kicker system upgrade
March 2012	100	10nA	100pA	20	H- LINAC	bad focusing on CA target
March 2013	150	10 nA	1nA	20	H- LINAC	energy up (150 MeV for irr. exp.) still 100 MeV for ADS exp. beam tripped often due to rf. trouble (in both linac and main ring)
March 2014	150	10 nA	1 nA	20	H- LINAC	reliable supply based on stable rf

6. 今後の展開：

これまで、KUCAでのADS実験では燃料・ターゲット・炉心条件等、様々な異なる条件の下、加速器駆動未臨界燃料体系でのデータ収集を行って来た。ADSのさらに詳細な研究のためには、異なるエネルギーの陽子ビームを用いた実験が望まれている。日本原子力研究開発機構では、400 MeVの陽子ビームを用いたADSの基礎実験を計画中であるが、加速器と原子炉を結合させてADS実験を実施できる施設は2018年現在、KURNSのみである。KURNSのFFAG加速器が200 MeV-400 MeVの中間のエネルギーの陽子ビームをKUCAに供給できるならば、ADS炉心の陽子エネルギーに対する反応の基礎データを収集することができ、今後のADS建設に必須な知見が得られるものと期待できる。そ

ここで、現在の主リングを入射器としたエネルギー可変型FFAGリングの可能性を検討中である(図4参照)[5]。

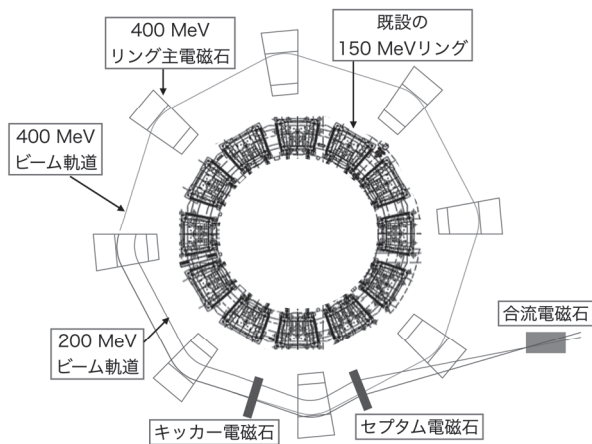


Fig. 4: Layout of an energy variable FFAG ring.

また、FFAG加速器の特徴を生かした2次粒子生成方法の研究も行われている[6]。高レベル放射性廃棄物に含まれる長寿命核分裂生成物(LLFP)を低減・資源化する方法として、負ミュオンを用いた核変換処理は、その変換効率の良さと処理後の核種の非放射性という特長から注目されている。しかしながら、従来の加速器を用いた手法では、負ミュオン生成効率の低さが大きな問題であった。これを克服するために、連続ビーム加速と貯蔵が両立可能な「エネルギー回収型内部標的法」ERIT機構(図5参照)を用いた新しい負ミュオン生成法を考案し、平成29(2017)年12月、ERITリングを用いて、その根幹部分である連続ビーム加速の原理実証に初めて成功した。今後さらに基礎研究を積み重ねてゆき、高レベル放射性廃棄物の低減・資源化に向けて研究を継続する。

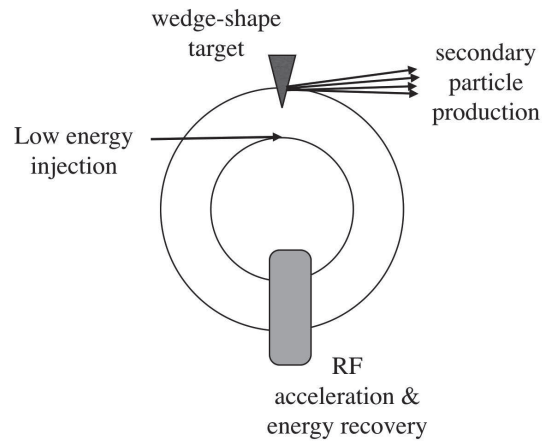


Fig. 5: ERIT mechanism to produce secondary particles.

参考文献

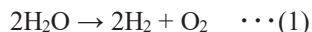
- [1] K. R. Symon *et al.*, *Phys. Rev.* 103, 1837 (1956).
- [2] C. H. Pyeon *et al.*, *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 46, no. 12, p. 1091(2009).
- [3] Y. Ishi *et al.*, *Proc. 1st International Particle Accelerator Conference (IPAC'10)*, Kyoto, Japan, May 23-28 2010, p. 1327-1329.
- [4] Y. Ishi *et al.*, *Proc. 9th International Particle Accelerator Conference (IPAC'18)*, Vancouver, Canada, April 29 - May 4 2018, p. 3287-3289.
- [5] Y. Ishi *et al.*, *Proc. 8th International Particle Accelerator Conference (IPAC'17)*, Copenhagen, Denmark, May 14-19 2017, p. 4695-4697.
- [6] Y. Mori, *Nucl. Instr. Meth.*, A, vol. 536, p. 591(2006).

(T3) 廃水中トリチウムの処理に向けた試み

(京大複合研) 福谷 哲

1. はじめに：放射性廃水中トリチウム(^3H , (T); 半減期 12.3 年)はほぼ HTO の化学形態で存在しており、その同位体化合物である水(H_2O)と分離する、すなわち処理する事は非常に難しい。施設外の環境に排水する際の放射性物質濃度は法令で定められており、トリチウムは、化学形態を水として、濃度限度は $60\text{Bq}/\text{cm}^3$ ($6.0 \times 10^4 \text{Bq}/\text{L}$) である。従来、原子力発電所では PWR で 10^{14}Bq 、BWR で 10^{13}Bq オーダーの年間放出管理目標値を定めて、トリチウムを処理する事無く海に放出してきた。福島第一原子力発電所に関連するいわゆる汚染水は、2018 年現在 100 万トン程度タンク群に貯留されていると言われており、そのトリチウム濃度は $10^5 \sim 10^6 \text{Bq}/\text{L}$ であると公表されている。

2. 実験：水を電気分解すれば(1)式のように水素と酸素が発生する事はよく知られている。

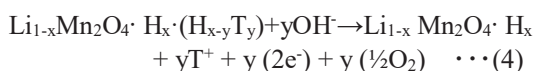
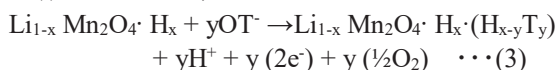


H_2O と HTO が混入する水であれば、 H_2O の分解速度の方が早く、HTO が液相に濃縮される。われわれも環境中の微量トリチウムを測定する際にはこの手法でトリチウムを濃縮し測定しているが、この分離技術を汚染水処理に用いると莫大なエネルギーが必要となり現実的でない。今回われわれはスピネル型結晶構造をもった二酸化マンガんに着目し、トリチウムの分離を試みた[1]。実験系を Fig.1 に示す。 LiMn_2O_4 をあらかじめ塩酸によってプロトンを加する((2)式)。



このプロトン化した $\text{Li}_{1-x} \text{Mn}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_x$ を、HTO を含んだ模擬廃水に反応槽で接触させる。反応槽は密閉系でヘッドスペースにエアポンプで空気を送り、槽内の水蒸気を後段の純水を入れたガス洗浄びんにて回収するような系である。随時模擬廃水を採水し、廃水中トリチウム濃度を液体シンチレーションカウンターで測定した。

3. 結果と考察：測定した模擬廃水中トリチウム濃度の経時変化を Fig.2 に示す。トリチウム濃度が減少している様子が見られ、また、ガス洗浄びん中にトリチウムが検出された。二酸化マンガンは触媒として作用しており、



$2y\text{H}^+ + 2y\text{T}^+ + y(4\text{e}^-) + 2y(\text{O}) \rightarrow 2y\text{HTO} \quad \cdots(4)$
 という反応が進み HTO が回収されると考えられる。水中には H_2O と HTO から電離した OH^- と OT^- が存在しているが、(3)式のところで選択的に OT^- との反応が起こると考えられている。今後理論を詳細に検討し、プラント化に向けて取り組んでいきたい。

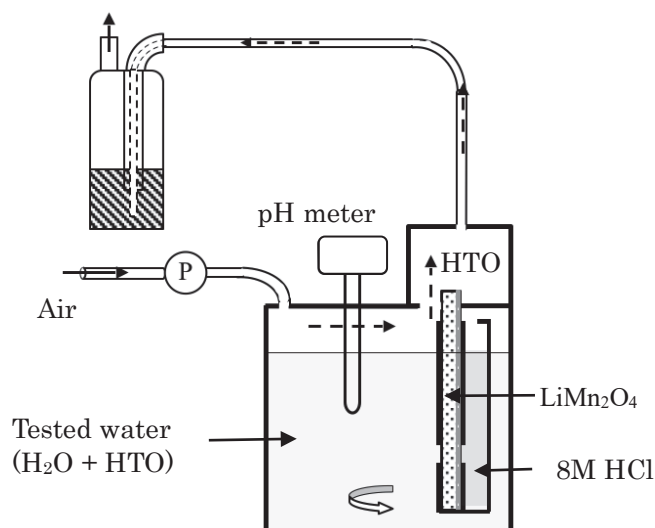


Fig.1 scheme of experimental system

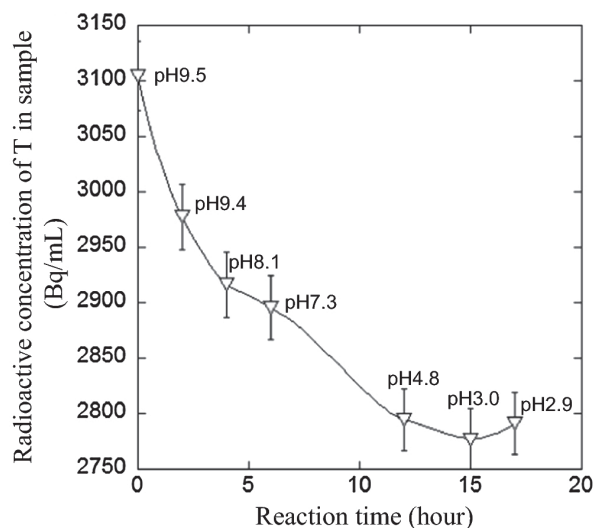


Fig.2 Variation in T radioactive concentrations in tested water

参考文献

[1] H. Koyanaka & S. Fukutani, Tritium separation from parts-per-trillion level water by a membrane with protonated manganese dioxide, J Radioanal Nucl Chem (2018) 318:175-182.

(PJ1) 福島原発事故で放出された放射性エアロゾルの生成メカニズムの解明

(京大複合研、京大院工¹、京大工²、岡山大自生セ³、東北大多元研⁴)

○高宮幸一、田中徹¹、新田真之助¹、西山雄大²、西澤佑介¹、二上文夫²、竹内裕弥¹、沖雄一、長田直之³、石禎浩、上杉智教、栗山靖敏、阪本雅昭、桐島陽⁴、小野寺将規⁴、佐藤修彰⁴、関本俊、大槻勤

1. はじめに

本プロジェクト研究課題「福島原発事故で放出された放射性エアロゾルの生成メカニズムの解明」では、東京電力福島第一原子力発電所 (FDNPP) の事故により環境中に放出された放射性セシウムなどを含んだ放射性エアロゾルの生成と環境中での移行について、模擬実験を主体としてそのメカニズムを解明することを目的としている。FDNPP の事故以降、放出された放射性物質の環境中での移行などについて多くの研究が行われているが、放射性物質がどのような化学形態で放出され、環境中を輸送されたのかは明確にされていない。しかし、事故後に放出された放射性エアロゾルを吸入することによる内部被ばくや、沈降して土壌や植物などに付着した後の環境中での移行を評価するためには、放出直後の化学形態を知ることが必須である。特に放射性物質の大気中での輸送における主な形態のひとつとして考えられている放射性エアロゾルの生成メカニズムとその性状を明確にすることが重要であると考えられる。しかしながら、事故の初期においては FDNPP 周辺での大気中の放射性物質の直接測定は行われておらず、それらの放射性物質は輸送および移行を経ることでその性状を変化させるため、輸送および移行後の放射性物質の性状調査の結果から放出時の性状を推測することしかできない。

そこで、研究用原子炉 KUR や電子線形加速器 LINAC を使い、様々な条件下で生成する放射性エアロゾルの性状を詳細に調べることで、事故によって放出された放射性エアロゾルの生成メカニズムを解明し、放出時における放射性物質の性状を明らかにすることができるのではないかと考え、共同利用プロジェクトとして研究を開始した。

本プロジェクト研究では前述の目的を達するため以下のような研究課題 (分担者・実施年度) に分けて研究を行なった。

- ・溶液状放射性エアロゾルの製造法の開発 (高宮・2015)
- ・強放射線場で生成する放射性エアロゾルの測定法の開発と生成メカニズムの解明 (沖・2015-2018)
- ・高温環境下で生成する合金状放射性エアロゾル (関本, 高宮・2015-2017)
- ・放射性エアロゾルの性状・化学状態 (高宮・2016)
- ・塩化ナトリウムを主成分としたエアロゾルに放射性物質が付着したエアロゾル (二宮・2015-2017)
- ・模擬エアロゾルを用いた放射性セシウムの環境中での移行分析 (桐島・2016)
- ・溶液状放射性エアロゾルの生成メカニズムの解明

とモデル構築 (高宮・2017-2018)

- ・不溶性放射性微粒子の性状分析 (高宮・2018)

これらの研究課題のうち一部の課題については、KUR が停止中であったため当初の計画どおりに実験を実施することができなかった。その他の KUR の利用を予定していた課題については、代替手法を用いることで研究を実施することができたが、当初の 2015 年度から 2017 年度までの 3 ヶ年の計画を 1 年間延長し 2018 年度まで研究を行なった。次節にて本プロジェクト研究にて得られた主な成果について紹介する。

2. 主な研究成果

1) 強放射線場で生成する放射性エアロゾルの測定法の開発と生成メカニズムの解明

(京大複合研 沖 雄一)

FDNPP 事故において環境中に放出された放射性エアロゾルの一部は、高放射能の核燃料が融解し、蒸発した放射性核種がエアロゾル粒子に取り込まれることで形成された。また、放射性核種を取り込むエアロゾル粒子は、強放射線場においては放射線の電離作用により生成する。つまり、事故後の FDNPP の燃料周辺では、その放射線によってエアロゾル粒子が生成し、燃料から放出される放射性核種を取り込むことで放射性エアロゾル粒子が形成され、環境中に放出されるという過程が想定される。しかし、その形成や成長過程に関するメカニズムは説明できていない。本研究課題では FFRAG 加速器や LINAC において空気の照射実験を行い、生成するエアロゾルの効率的な粒径測定法の開発を試み、強放射線場でのエアロゾル粒子の生成、成長のメカニズムの解明を目指した研究を行なった。

FFRAG 加速器による空気の照射実験では、イメージングプレート (IP) による放射能測定とワイヤスクリーン法を組み合わせる方法を用いることで、照射された空気中に生成する半減期の短い ^{11}C ($T_{1/2}$: 約 20 分) を含んだエアロゾルの粒径測定を試みた。この結果、 ^{11}C 含有エアロゾル粒子の幾何平均粒径を $d_g = 68.0 \text{ nm}$ と見積もることに成功した。この値は、Ge 検出器による放射能測定とのワイヤスクリーン法との組み合わせにより求めた ^7Be 含有エアロゾルの幾何平均粒径 (63.4 nm) と同等の値であり、今回試みた IP を用いた手法の妥当性が示された。また、空気力学的放射能中央径は個数中央径より約 20 nm 大きいという結果が得られた。これは放射性元素のエアロゾル粒子表面への付着過程が放射性粒子の形成に含まれていることを示唆している。

LINAC での空気の照射実験では、放射線照射により空气中に生成するエアロゾル粒子の大きさの時系列変化を SMPS (scanning mobility particle sizer) を用いて測定した。また、ワイヤスクリーン法を用いた粒径測定も同時に行なった。SMPS による測定では、照射開始後に迅速なエアロゾル生成が観測され、時間の経過とともにエアロゾル粒子の個数濃度が減少し、幾何平均粒径は9時間後には100 nm にまで増加することがわかった。また、エアロゾル粒子の生成率は、空気試料が封入されたチェンバー内での支配的な気体状核種である ^{13}N の崩壊とともに減少したため、照射空気中の ^{13}N の放射能濃度がエアロゾル粒子の生成率に影響を与えていることがわかった。LINAC での空気照射の実験では、3つの気密ワイヤスクリーンシリンダから構成される拡散バッテリーシステムの開発を行い、IP を用いた放射能測定との組み合わせにより、放射線誘起エアロゾル粒子と放射性元素を含有した粒子の両方の粒径分布の測定を試みた。IP による放射能測定では生成放射能強度が低かったため、照射により生成した ^{13}N を含有する粒子の粒径解析はできなかったが、放射線誘起により生成したナノサイズのエアロゾル粒子の幾何平均粒径と幾何標準偏差を得ることに成功した。

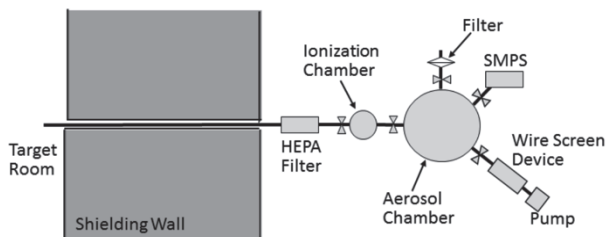


Fig. 1 Experimental setup for sampling of the irradiated air from the target room of LINAC.

2) 溶液状放射性エアロゾルの製造と生成メカニズムの解明

(京大複合研 高宮幸一)

放射性エアロゾルは大気中での放射性物質の輸送媒体として重要であり、FDNPP の事故においても放射性セシウムなどを原子炉建屋内から環境中へと輸送し広範囲の汚染を引き起こした。FDNPP の事故においては、放射性セシウムは硫酸エアロゾル粒子に付着して大気中を運搬されたことが知られているが、放射性セシウムがどのような状態で原子炉建屋内から環境中に放出され、どのような過程を経て硫酸エアロゾル粒子に付着したのかは明確になっていない。本研究課題では、原子炉建屋内において核燃料物質から放出された放射性セシウムが、溶液エアロゾル粒子にどのような過程を経て付着して放射性エアロゾルが生成する過程に注目し、この生成過程を実験的に解明することを試みた。

まず、溶液エアロゾルに放射性物質を付着させて放射性エアロゾルを生成する過程を模擬するために、

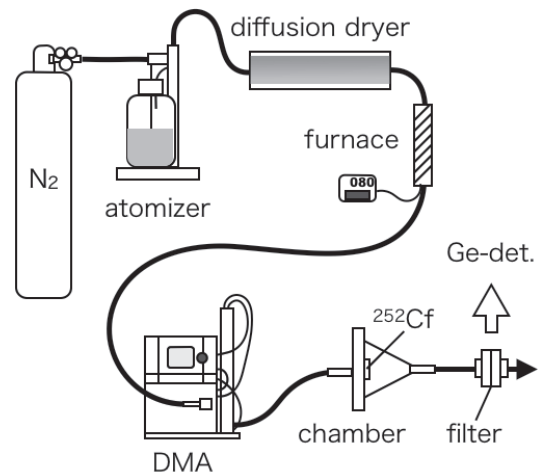


Fig. 2 Radioactive aerosol generation system composed by solution aerosol generator and chamber in which ^{252}Cf source is placed.

Fig. 1 に示したアトマイザー、ヒーター、拡散乾燥器、粒径分級装置、自発核分裂核種である ^{252}Cf を内蔵した反応チェンバーからなる放射性エアロゾルの製造装置を開発した。本装置を用いることで、異なる種類、濃度の溶質からなる一定の粒径を持った溶液エアロゾルに対し、核分裂生成物を付着させて溶液状放射性エアロゾルを生成することが可能となった。また、 ^{252}Cf から放出される核分裂生成物が溶液エアロゾル粒子に付着して放射性エアロゾルが生成する際の生成率 (核分裂生成物の付着率) の測定を行なった。この際、溶液エアロゾルに含まれる溶質の種類、エアロゾル粒子の粒径、 ^{252}Cf から放出される核分裂生成物のチェンバー内への入射速度を変化させて実験を行い、核分裂生成物が溶液エアロゾル粒子に付着するメカニズムについて考察を行なった。この結果、核分裂生成物が溶液エアロゾル粒子に付着する過程には、Fig. 3 に示すような両者の幾何学的な衝突による付着過程と静電相互作用による付着過程が存在することが示された。また、静電相互作用による核分裂生成物の付着過程においては、溶質の種類の違いによる溶液エアロゾル粒子の表面付近の陰イオンの濃度の差異が、核分裂生成物とエアロゾル表面との間の静電相互作用の大きさに差異を生じさせるためであることを提案した。次に溶液エアロゾルの原料として濃度の異なる3種類のハロゲン化ナトリウム溶液から生成する溶液エアロゾルを用いた実験を行い、溶液エアロゾル粒子に含まれるイオンの種類および濃度が付着挙動に与える影響について考察した。その結果、溶液エアロゾル粒子中の溶質の濃度が核分裂生成物の付着挙動に影響を与えることが明らかになった。さらに、静電相互作用による核分裂生成物のエアロゾル粒子表面への付着過程をより明確に観測するために、KUR の圧気輸送管照射設備にて照射したウラン試料を核分裂生成物の供給源とした実験を行なった。その結果、付着する核分裂生成物の種類による付着率の差異がより明確とな

った。今後、装置に改良を加えることで、溶液エアロゾルへ核分裂生成物が付着し放射性エアロゾルを形成するメカニズムの解明を進める予定である。

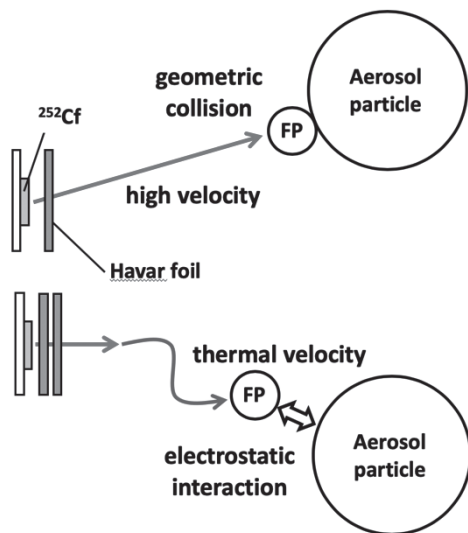


Fig. 3 Two types of attachment process of fission products to solution aerosol particles.

3) 模擬エアロゾルを用いた放射性セシウムの中での移行分析

(東北大多元研 桐島 陽)

河川中の放射性セシウムは懸濁粒子に吸着しており、河川の流れにしたがい移行すると考えられている。懸濁粒子の主成分は粘土鉱物であり、セシウムは粒子の表面および内部の層における陽イオン交換反応によって保持されている。懸濁粒子に保持されている放射性セシウムは、河川が汽水域に達すると液性の変化によって脱着すると考えられる。このセシウムの化学形態の変化のメカニズムを理解することは、山岳地帯から海洋へのセシウムの移行を推測する際に非常に重要である。本研究では、セシウムを含有した模擬エアロゾルを用いて、懸濁粒子へのセシウムの吸脱着実験をバッチ法により実施し、懸濁粒子へのセシウムの吸着方法が脱着挙動にどのような影響を与えるかを調査した。

2)で紹介した放射性エアロゾルの製造法を適用して0.4 wt%のCsCl溶液エアロゾルを生成し、懸濁粒子に対し90秒および2.5時間連続してエアロゾルの吹き付けを行なった。粒子に付着したセシウムの総量は、吹き付け後の粒子試料の一部からセシウムを溶離してICP-MSにより定量し、それぞれ6.9 μg/g(90秒)、113 μg/g(2.5時間)と見積もった。吹き付け後の粒子試料は人工海水中に6日間浸漬した後に、上澄みをろ過してろ液中に存在するセシウムの量をICP-MSによって定量し、懸濁粒子からのセシウムの脱着率を見積もった。その結果、2.5時間の吹き付けを行なった試料では、人工海水に浸漬することで90%以上のセシウムが脱着することがわかった。一

方、90秒の吹き付けを行なった試料からの脱着率は30%であった。137Csを含んだ模擬河川水溶液中と懸濁粒子を混合することによってセシウムを吸着させた粒子では、懸濁粒子中のセシウムは海水により30%が脱着することがわかっており、これは90秒間のセシウム溶液エアロゾルの吹き付けによってセシウムを吸着させた粒子の脱着率と一致した。このことから河川懸濁粒子からのセシウムの脱着挙動は、セシウムの吸着がどのような形態で行われたかよりも、粒子が保持するセシウムの量に依存することがわかった。

4) 不溶性放射性微粒子の性状分析

(京大複合研 高宮幸一)

FDNPPの事故で環境中に放出された放射性物質の中には、放射性セシウムを高濃度で含有し水に不溶な微粒子が存在することが報告されている。これらの不溶性放射性微粒子の性質や地表への降下量の分布を調査することは、これらの微粒子が与える空間線量への影響や、再浮遊による内部被ばくへの影響などを推測する上で重要である。その調査のため、土壌試料のイメージングプレート(IP)画像中に現れる高計数スポットを解析することで、試料中の不溶性放射性微粒子の計数および放射能測定を簡便に行う方法の開発が試みられている。しかし、これらの土壌試料中には、放射性セシウムを高濃度で含有する数μmの大きさの不溶性放射性微粒子の他に、放射性セシウムを強く吸着している数mmの大きさの土壌粒子も存在しており、不溶性放射性微粒子と同様にIP画像上にスポットとして観測されるため、両者を識別する必要がある。そこで、本研究課題ではIPを用いて得られる不溶性放射性微粒子と放射性セシウムを含有した土壌粒子の計数分布の特徴を調査し、両者を識別する方法の開発を試みるとともに、採取された微粒子の性状分析を行なった。

まず、土壌試料のIP画像上に不溶性放射性微粒子

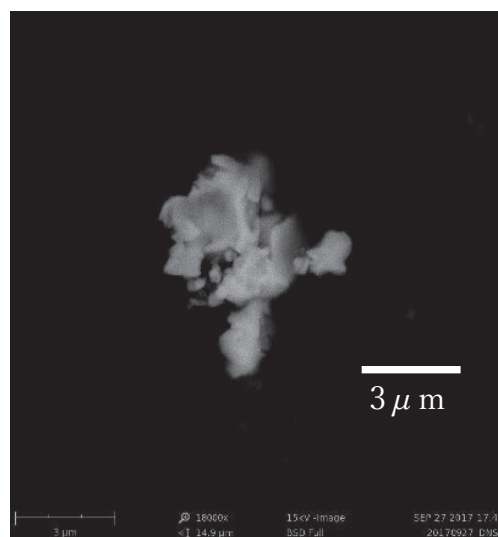


Fig. 4 SEM image of insoluble radioactive particle found in a soil sample taken around the FDNPP.

により生成する強放射能スポットの計数分布を再現するモデル関数を作成し、放射性の標準微粒子を用いて得られたIP画像を分析することでモデル関数の妥当であることを確認した。このモデル関数を用いて、FDNPPの周辺で採取した土壌試料から選別した不溶性放射性微粒子、放射性土壌粒子に対して得られたIP画像の分析を行った。その結果、IPと粒子を密着させて測定することで、IP画像から粒子の大きさを識別することが可能となった。一方で放射性土壌であっても大きさが数百 μm 程度の小さなものも存在することがわかり、IP画像上の計数分布のみから不溶性放射性微粒子を完全に識別するには至っておらず、今後、IPの露光の条件によらず計数分布の特徴から不溶性放射性微粒子を識別する方法の開発を検討する必要がある。また、Fig. 3に示した本実験で採取された不溶性放射性微粒子のEDXによる元素分析、およびGe半導体検出器による放射能測定

結果から、これらの微粒子が3号機由来の不溶性放射性微粒子であることが示された。

これらの成果の一部は、JSPS 科研費 241110005、26286076、18K11643の助成を受けたものです。

発表論文

1. K. Takamiya *et al.*, “Observation of attachment ratio of fission products on solution aerosol” *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **307** (2016) 2227-2230.
2. K. Takamiya *et al.*, “Attachment Behavior of Fission Products to Solution Aerosol” *J Radiat. Prot. Res.* **41** (2016) 350– 353.
3. M. Onodera *et al.*, “Desorption of radioactive cesium by seawater from the suspended particles in river water” *Chemosphere*, **185**, (2017) 806–815.

(P1) マルチドメイン蛋白質の階層的な動的構造と機能発現との関係性に関する研究

(原子力機構¹、JST さきがけ²、北大理³、京大複合研⁴) ○中川洋^{1,2}、斉尾智英^{2,3}、杉山正明⁴、井上倫太郎⁴

1. はじめに：

原子レベルでの蛋白質の立体構造情報に基づいて、ターゲット分子との相互作用や蛋白質間相互作用を予測するためには、ドメインスケールでの蛋白質の構造変化を調べる必要がある。また、構造単位としてのドメインの揺らぎを明らかにすることは、様々な分子と相互作用するタンパク質の構造多形性や可塑性の分子基盤の理解に必要である。次世代の構造生物学では、このような蛋白質構造の柔軟性をどのように解明するかが重要な課題となる。

本研究では、X線や中性子を用いた量子ビーム散乱法と分子シミュレーションの融合した相関構造解析法によりマルチドメイン蛋白質構造の動態解析を行う。また、分子シミュレーションを援用することで、ドメイン構造と連動した蛋白質の活性部位の局所構造を解析する。低分解能の溶液散乱実験と既に解かれている原子分解能の結晶構造のふたつの実験情報を、計算機技術によって橋渡しをし、複数のドメインが織り成す蛋白質相互作用を、原子レベルから複合体全体までを見通せる広い空間分解能で解明する。

2. 実験：

本研究では、3つのドメインを持つ典型的なマルチドメイン蛋白質である MurD の溶液構造を調べた [1]。この蛋白質は、ATP やリガンドの結合によって、結合部位の局所構造と連動してドメイン構造も変化すると考えられている。分子シミュレーションによる解析を合わせることで、ターゲット分子の結合部位の局所構造の揺らぎとドメイン運動がカップルしていることを示すことを目指した。

3. 結果：

3つのドメインからなるタンパク質 MurD をターゲットとして、リガンドフリー状態、ATP 結合状態、リガンド結合状態の3つの状態について、

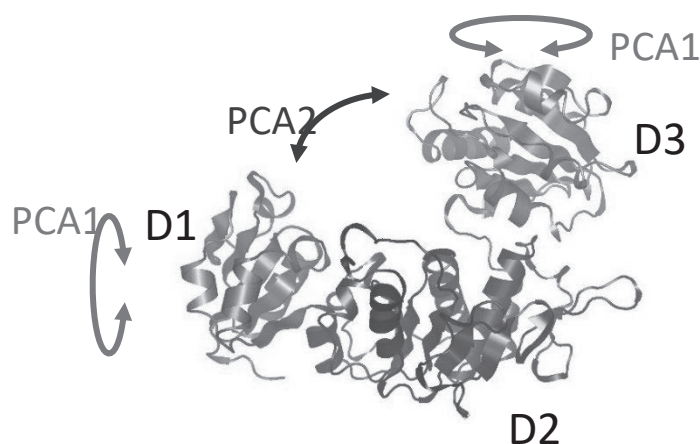


Fig.1 主成分解析から明らかにしたドメイン運動

溶液小角散乱実験を実施するとともに、分子シミュレーションからも SAXS プロファイルを計算した結果、実験と計算は良い一致を示し、3状態の溶液構造が異なることを示した。また、低分解能の実験データから原子分解能で溶液構造を議論できることを確認した。

さらに、分子シミュレーション結果の主成分解析からは、機能に関連したドメイン運動を抽出した (Fig. 1)。さらに PCA1 のドメイン運動が、MurD の ATP 結合に直接関わる 302 番目のアルギニン側鎖の揺らぎと連動していることを示唆する結果が得られた。発表では、NMR、小角散乱、MD 計算などを統合的に活用することで見えてきた、MurD の動的構造の階層性について議論する。

参考文献

[1] T. Saio *et al.*, “Ligand-driven conformational changes of MurD visualized by paramagnetic NMR”, *Sci. Rep.*, **5** (2015) 16685.

(P2) フィブリノーゲンによるインスリン B 鎖アミロイド線維の形成阻害

(神戸大院理、京大複合研¹) ○茶谷絵理、山本直樹、赤井大気、井上倫太郎¹、杉山正明¹、田村厚夫、

1. はじめに：アミロイド線維は β シート構造に富んだ構造を有するタンパク質凝集体であり、アミロイドーシスと呼ばれる重篤な疾患に関連している。アミロイド線維は核依存的な形成メカニズムを経て生成するが、このとき一段階で核形成が進行するというのが最も単純なスキームである。他方、核形成の時間領域において種々のオリゴマーが同定されており、準安定な核形成中間体の存在が示唆される [1]。

我々は核形成中間体を観測できるか検証を試みたところ、インスリン由来ペプチド (インスリン B 鎖) において核形成中間体の存在を確認することができた [2]。さらに、血漿タンパク質のひとつであるフィブリノーゲンは核形成中間体に相互作用することによりインスリン B 鎖の線維化を阻害することを見つけた [3]。そこで本研究では、核形成中間体の構造的性質を小角 X 線散乱 (SAXS) を用いて解明したうえで、フィブリノーゲン添加後の SAXS プロファイルの変化を分析し、フィブリノーゲンの相互作用様式を解明した。

2. 実験：インスリン B 鎖の線維化反応は、1.4 mg/ml の濃度で 50 mM Tris-HCl 緩衝液 (pH8.7) にペプチドを溶解させたのち 25°C でインキュベートすることで進行させた。線維化過程の追跡にはチオフラビン T (ThT) 蛍光、円二色性スペクトル、動的光散乱測定および原子間力顕微鏡測定を用いた。さらに、上述の条件にウシ由来のフィブリノーゲンを加え、線維化阻害を観察した。核形成中間体およびフィブリノーゲンとの複合体の構造解析には小角 X 線散乱 (SAXS) 法を用いた。まず核形成中間体の測定ではインスリン B 鎖の水溶液を光路長 1 mm の石英セルに入れ 25°C で一定時間インキュベートすることで中間体を生成したうえで、SAXS プロファイルを収集した。測定には HyPix-6000 を検出器として搭載した NANOPIX (株式会社リガク) を用いた。カメラ長は 1.33 m に設定した。フィブリノーゲンの存在下での中間体の構造解析は、上述のインスリン B 鎖中間体を 3.5 mg/ml の最終濃度でフィブリノーゲンと混合し測定を行った。

3. 結果：インスリン B 鎖の線維化反応を追跡したところ、ペプチド分子が反応の初期段階で核形成中間体へと会合すること、さらにフィブリノーゲンが共存する場合は核形成中間体で反応が止まること

を確認した。図 1 は、インスリン B 鎖の核形成中間体およびフィブリノーゲンとの複合体の SAXS プロファイルを示す。核形成中間体の散乱プロファイルの両対数プロットの勾配は -1 に近く、棒状構造が示唆された。円柱構造体に対する断面 Guinier 解析を行った結果、底面半径は約 3 nm となり、さらに DLS 測定によって決定された拡散係数を利用することで長さは約 270 nm であることが推定された。またフィブリノーゲンの添加後も棒状構造が維持されており、両対数プロットの傾きは -1 に近い値を示した。核形成中間体と同様の方法で複合体の底面半径および長さも計算した結果、それぞれ約 7 nm および 290 nm となった。中間体-フィブリノーゲンのストイキオメトリ解析も行い、得られた結果を総合的に解釈すると、フィブリノーゲンによる B 鎖アミロイド線維形成の阻害機構として核形成中間体の表面上にフィブリノーゲンが覆うように結合することで後続の反応を阻害するというモデルが提案された。

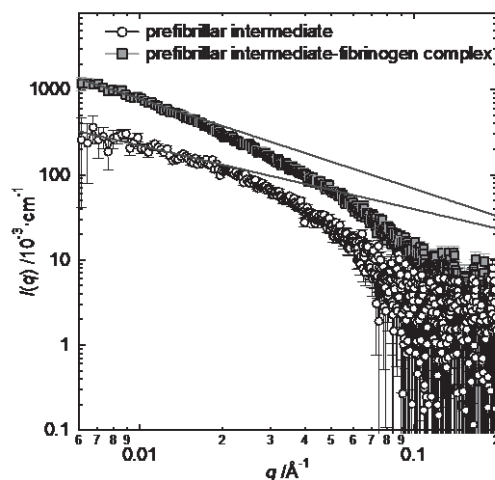


Fig. 1. One-dimensional SAXS profiles of the prefibrillar intermediate of insulin B chain (circles) and its complex with fibrinogen (squares).

参考文献

- [1] E. Chatani and N. Yamamoto, *Biophys. Rev.*, **10** (2018) 527-534.
- [2] N. Yamamoto *et al.*, *Sci. Rep.*, **8** (2018) 62.
- [3] T. Akai, Master's Thesis, Kobe Univ. (2017).

(P3) X線小角散乱法による鉄鋼材料中のマイクロ組織の解析

(原子力機構、京大複合研¹、豊橋技科大²) ○大場洋次郎、日野正裕¹、足立望²、戸高義一²、井上倫太郎¹、杉山正明¹

1. はじめに：鉄鋼材料をミクروسケールで観察すると、様々なサイズと形状を持つ結晶粒や転位組織、析出物や介在物等によって構成される複雑なマイクロ組織から成ることがわかる。このようなマイクロ組織の形態は、強度やじん性等の特性に強く影響することが知られており、鉄鋼研究においては、マイクロ組織の評価および制御の高度化が重要な課題となっている。従来、マイクロ組織の観測には光学顕微鏡や電子顕微鏡等が用いられてきたが、これらの手法では、一度に観測できる試料体積が小さく、観測領域が試料表面近傍に限られるという問題があった。

一方、X線小角散乱法(SAXS)は、ナノ構造の解析手法であり、X線の高い透過能を活かして、透過型電子顕微鏡の約 10^7 倍もの試料体積を一度に測定できるという特徴を持つ。また、X線の高い透過能により、様々な試料環境におけるその場測定が容易であるという利点を持つ。これに加えてSAXSは、利用機会の限られる中性子小角散乱法(SANS)の補完的な役割としても重要である。これまでもSAXSは、鉄鋼中の析出物や介在物の形状やサイズ、体積率等の定量的な解析に活用されてきた[1,2]。

本講演では、鉄鋼研究におけるSAXSの利用の一例として、現在我々が取り組んでいる、産学共創基礎基盤研究プログラム「鋼材/潤滑油」界面における機能性ヘテロ構造制御に基づく転動疲労高特性化のための指導原理の確立」における取り組みについて報告する。これは、鉄鋼のマイクロ組織を制御することによって潤滑油中に形成されるナノ構造に影響を与え、摩擦や転動疲労特性等を制御しようとする試みである。これらの特性は、特に、鉄鋼を用いて製造される機械部品の使用時等に重要となるものであり、機械部品への応用を目指した研究が進められている。SAXSを用いてこのようなマイクロ組織等を定量化できれば、摩擦特性等との相関の解明や、高い特性を持った新しい機械部品の製造に関する知見が得られることが期待される。

2. 実験：SAXS測定は、鉄鋼に対して高い透過能を持つ、Mo線源SAXS装置(NANO-viewer, リガク)を用いて行った。試料として結晶粒微細化鉄を用い、潤滑油を塗布する前とした後の測定を行った。これらの結果から、結晶粒微細化により形成されたマイクロ組織と潤滑油の構造を比較した。

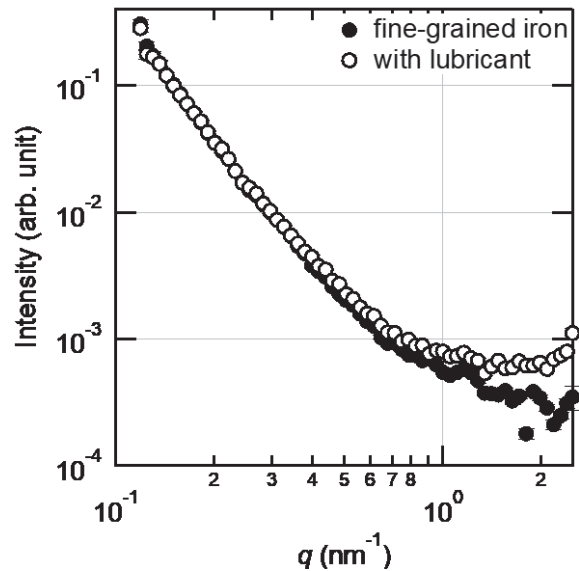


Fig. 1. SAXS profiles of fine-grained iron with and without lubricant.

3. 結果：図1に得られたSAXSプロファイルを示す。潤滑油を塗布する前の結晶粒微細化鉄のプロファイルは、通常の鉄のSAXSプロファイルと比較して低 q の散乱強度が低くなっていることがわかった。この試料に対して、潤滑油を塗布した試料のSAXSプロファイルでは、約 0.5 nm^{-1} よりも高 q 領域に差が見られた。これは、潤滑油膜による散乱であると考えられる。 2 nm^{-1} 以上に見られる立ち上がりは、液体の構造因子によるものと考えられるが、詳細の検討にはさらに高 q 領域の測定が必要である。また、結晶粒微細化の影響は、さらに低 q 領域に現れる可能性があるため、低 q 領域の測定精度の改善を検討する。

謝辞：本研究の一部は、科学技術振興機構 研究成果展開事業 産学共創基礎基盤研究プログラム「ヘテロ構造制御」による成果である。

参考文献

- [1] M Ojima *et al.*, *Scr. Mater.*, **59** (2008) 313-316.
- [2] Y. Oba *et al.*, *ISIJ Int.*, **51** (2011) 1852-1858.

(P4) Measurement of $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio of caesium micro-particles and contaminated soil particles using well-type germanium detector

(Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University¹, Egypt Second Research Reactor, Atomic Energy Authority, Cairo, Egypt²) ○M. Soliman^{1,2}, F. Futagami, K. Takamiya, S. Sekimoto, Y. Oki, and T. Ohtsuki

INTRODUCTION: As a consequence of FDNPP accident, around 15 PBq of ^{137}Cs was released to the environment [1]. For evaluation of the health impact of the release radio-caesium, its geographical distributions should be studied and modelled accurately. It was found that depositions distribution of caesium strongly depends on the chemical form and physical properties of released radioisotopes [2].

Several researchers have been studied the chemical and physical properties of radioactive Cs released from FDNPP. In principle, there are two types [2] of solid-phase of radioactive Cs in the terrestrial environment. The first one was release in a soluble form and then fixed to the soil grains through sorption process of the wet and dry depositions. The second solid-phase type is insoluble CsMPs that flown down directly from the FDNPP. It has silicate glass like structure and probably formed when melted reactor fuel came into contact with silicate materials and in-vessel construction materials, and then silicate micro-particles were splashed by the action of water which injected to cool down the reactor core.

Source analysis of the two physically and chemically different types of radiocaesium could provide useful information for improving the numerical models to estimate the geographical distributions of soluble and insoluble radioactive species released from nuclear accidents. In this work, a source analysis of the two radioactive Cs types was carried out by measuring the $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio in a contaminated soil sample.

EXPERIMENTAL: A Contaminated soil sample has been collected, on 18 May 2016, about 1.5 km south of FDNPP. Ten radioactively-hot particles were separated and identified from the bulk sample using autoradiography and SEM/EDS investigations [3]. The radioactivity levels of each individual particle were measured using well-type HPGe. In-housed prepared radioactive standard source was used as a comparator to quantify ^{134}Cs and ^{137}Cs activity levels in the individual particles. This source was prepared by immersing tinny resin particles in a solution of ^{134}Cs and ^{137}Cs in Osaka University. The exact activity of the reference source was measured at 15 cm from a well calibrated HPGe, and it was found to be 2.21 and 18.26 Bq for ^{134}Cs and ^{137}Cs , respectively.

RESULTS: SEM/EDS studies showed that particles DNS2, DNS6a and DNS6b are belonged to CsMPs

family whereas the other seven particles are belonged to radioactively-hot soil grains.

The $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio (as 11 March 2011) was estimated from the γ -ray spectroscopy (Fig 1) It was found that activity ratios ranged from 1.030 ± 0.031 to 1.074 ± 0.032 with average value of 1.049 ± 0.014 (Fig. 1). Also, it could be seen that there is no significant difference between the activity ratios of CsMPs and soil particles. This finding suggests that the radioactive caesium in both CsMPs and soil particles has the same source of origin.

According to the reported $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio for FDNPP different reactor units calculated by ORIGEN-II code, unit 1, 2, and 3 exhibit $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio of 0.945, 1.087 and 1.049, respectively. A comparison (Fig 1) between the obtained $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio and those reported for each unit of FDNPP reveals that the radioceasium contained in the hot particles (CsMPs and soil) under investigation is originated from reactor unit No. 3 of FDNPP.

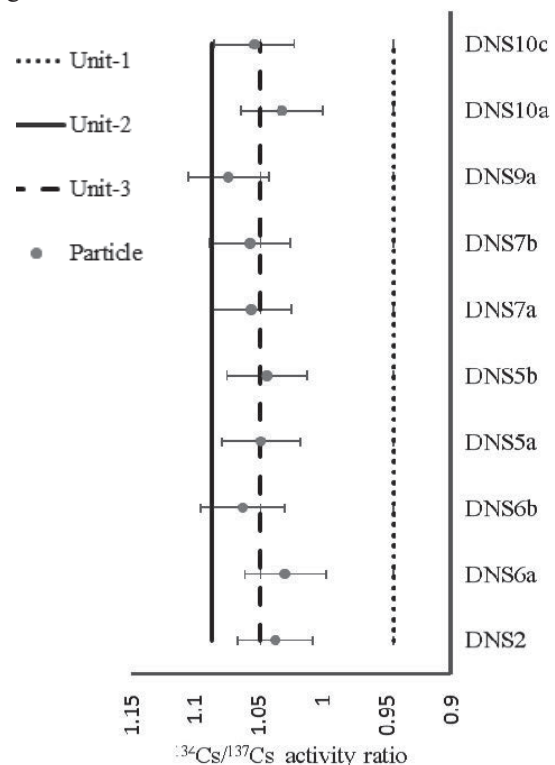


Fig. 1. $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio

References:

- [1] K. Hirose, *Sci. Total Environ.* **470** (2014) 800.
- [2] K. Adachi, *et al.*, *Sci.Rep.* **6** (2016) 20548.
- [3] Y. Satou *et al.*, *Anthropocene* **14** (2016) 71.

(P5) X線・中性子反射率法による潤滑界面の平均構造評価の試み II

(京大複合研、豊橋技科大¹、原子力機構²、同志社大³) 日野正裕、足立望¹、戸高義一¹、大場洋次郎²、平山朋子³

○はじめに

KURのCN-3ポートやJRR-3のMINEポートにおいて同志社大の平山朋子氏らを中心にトライボロジー界面の構造解析を進めてきており、潤滑油中の添加剤の吸着状態が中性子反射率法によって明らかになってきた[1-2]。さらに現在、豊橋技科大の戸高義一氏を代表に、JST産学共創基礎基盤研究プログラム「鋼材/潤滑油」界面における機能性ヘテロナノ構造制御に基づく転動疲労高特性化のための指導原理の確立において、電子顕微鏡グループ、理論計算グループと協同して、X線・中性子線における反射率・小角散乱法による機能性膜の平均的構造評価を目指している。これは材料組織特性(特に結晶粒界や転位等の格子欠陥等)によって潤滑油膜の形成(制御)が実現可能では?との新しい視点での研究であり、反射率・小角散乱法の量子ビームを利用するグループは平均構造としての油膜構造の探索及びを目指している。小角散乱グループ京大複合研に導入されたMo線源のSAXSを中心に研究を行っており[3]、本発表は反射率法の試みを中心に記載する。

○反射率と成膜手法

反射率法は厚み(深さ)方向にサブナノメートルのレベルの感度を持つ分析手法であるが、同様にサブメートルの平滑な表面が必要である。そのため、実用材の直接利用は難しく、平滑なシリコンやガラス基板に鉄膜等を成膜してモデル物質を作成することで評価を行う。成膜は、密着力が強かつ平滑に厚い膜が作成可能な京大複合研のイオンビームスパッタ装置(KUR-IBS)を利用した。

従来、ボールオンディスク実験等の摩擦試験に耐えうる成膜は出来ていなかったが、KUR-IBSを用いることでボールオンディスク実験にも利用可能とタフかつ平滑な鉄膜の作製が可能となった。KUR-IBSは、大面積で高性能多層膜中性子ミラー製作のための装置であり、平滑な多層界面が製作可能であるが、膜厚が厚くなるとどうしても粒界サイズは増大する。これはX線反射率(XR)法でも再現性良く確認されている[4]。この特徴を利用して、厚みを変えることで組織(粒界サイズ)を制御した。実験は50, 500, 5000, 4200nm厚さの鉄膜を作製し、豊橋技科大グループによってボールオンディスク実験を行った。4つの膜厚依存に伴って摩擦係数に違い、つまり膜厚の減少(ナノ組織化)に伴って、摩擦係数が低下する結果を得ている。

ここで鉄膜の厚みは、100nm以下の厚みを成膜し、

成膜レートを求めて、100nm以上の厚さは成膜時間でコントロールしている。これは中性子スーパーミラー等ナノメートル以下の膜厚制御が必要な多層膜にも良く機能している[5]。京大複合研のラボXRでKissing fringeからの膜厚が計測できるのは、100nm程度以下であるため、機能性膜の吸着実験も、鉄膜厚としては50nm以下で行っている。これは微細なナノ組織化された極限として位置づけにある。

○潤滑油膜の制御に向けて

実用潤滑油は、基油と添加剤で構成されている基油中の添加剤の吸着度合いが、摩擦制御に重要であり、基板からビームを入射し固液界面を直接観測でき、かつ添加剤にコントラストがつけられる中性子反射率法(NR)が強力である。しかしKUR CN-3においても、他の利用との関係からNRはいつでも使えるものではなくっており、事前に表面様態を確認できるものとしてラボXRによる評価を進めてきた。ラボXRでは成膜後短時間で簡便に計測が可能であり、薄膜と添加剤の吸着を確かめることができれば、中性子実験と補完的により精密に議論が可能となる。実際、鉄膜や銅膜では、スパッタ成膜後に大気開放して後に、表面状態がXRにおいても変化すること、油ではないが、防錆剤としてデカン酸Naの吸着等が観測出来ている。

ただし潤滑油関連については、電子顕微鏡による結果と異なり、現在までに明確な吸着の結果は示せていない。またKUR CN-3ビームラインでは残念ながら精密な評価を行うには中性子強度不足であることも分った。そのためXRにて鉄等の基膜をより中性子強度の得られる施設でNR実験を行う。

ここで京大複合研応用中性子光学グループがKEKと協力して開発を進めているJ-PARC MLF BL06 VIN ROSEビームライン[6]において、NR測定が可能となっている。将来的には吸着分子のダイナミクス測定展開[7]も念頭にNR測定を計画している。当日は、現在までのXR、NR等の結果と今後を議論したい。

[1] T.Hirayama, *et al.*, Tribol. Int. **54** (2012) 100.

[2] T.Hirayama, *et al.*, Lubrication Science. 2018;1.

[3] 大場洋次郎, 他 本学術講演会報文集

[4] 日野正裕, 他 第52回学術講演会報文集, p21.

[5] M.Hino, *et al.*, Nucl.Inst.Meth. **A797** (2015) 265.

[6] M.Hino, *et al.*, J.Nuc. Sci. Tech. **54** (2017) 1223.

[7] 小田達郎, 他 本学術講演会報文集

(P6) ヒト水晶体内 α A-クリスタリン中における Asp58 部位の重要性と 白内障との関係

(京大複合所) ○高田匠、守島健、井上倫太郎、佐藤信浩、杉山正明、藤井紀子

1. はじめに :

生体を構成する蛋白質は L-アミノ酸のみである、と定義されてきた。しかし、我々は、この常識を覆し、加齢性白内障の水晶体中の原因蛋白質中に D-アスパラギン酸(D-Asp)を発見した。その後、加齢性神経変性疾患の原因蛋白質中にも D-Asp が報告され、D-Asp は加齢分子マーカーとして有用であることがわかってきた。我々は、これまで、液体クロマトグラフ質量分析装置(LC-MS)による斬新な結合型 D-アミノ酸分析手法を開発し、蛋白質中様々な部位の D-Asp 同定に成功してきた。本研究では、ヒト水晶体構成蛋白質 α A-クリスタリン (以下、 α A-Cry) 中で見出した D-Asp 部位の内、加齢依存的に蓄積する Asp58 部位に着目した。Asp58 部位の重要性を調査するべく、当部位 Asp を種々の他アミノ酸残基に置換した α A-Cry 変異体群 (α A-Cry M) を作成した。これら変異体と野生型との比較より α A-Cry 中における Asp58 の重要性を検討し、加齢性疾患 (加齢性白内障) との関連性を検討した。

2. 実験 :

ヒト水晶体可溶性画分の凝集体画分を分離し、トリプシン消化し、得られたペプチド断片を質量分析装置に導入し、網羅的 D/L 一斉スクリーニング法を行った。一方、大腸菌を用いて作成した野生型 α A-Cry を標準試料として用い、Multiple Reaction Monitoring 質量分析法の最適メソッドを作成し、加齢後水晶体へと用いた。他方、大腸菌を用いて Asp58 残基を種々の親水性、疎水性残基に置換した α A-Cry M を作成し、構造・機能解析を実施した。

3. 結果 :

加齢後ヒト水晶体凝集体画分中の α A-Cry 中において Asp58 残基が著しく異性化していた。該当 Asp 部位の疎水性を増加させた α A-Cry M に関して、野生型よりも大きい凝集体を形成することが判明した。高次構造変化が見られた一方で、二次構造に変化は見られなかった。いずれの変異体に関しても水晶体透明性維持に大きな役割を果たすシャペロン機能 (蛋白質凝集抑制能) の低下がみられた。

4. 考察 :

本研究で α A-Cry 中の Asp58 残基は、 α A-Cry の凝集能や分子間相互作用に関して重要な部位に位置していることが明確となった。本結果より、加齢性白内障で生じている Asp58 残基の異性化は本来の α A-Cry が有する正常な相互作用機能の低下、異常会合体の形成に寄与していると考えられた

(P7) 燃料デブリのガラス固化に関する実験的研究

(京大院工、東北大多元研¹、京大複合研²) ○児玉雄二、佐々木隆之、佐藤修彰¹、桐島陽¹、秋山大輔¹、関本俊²、奥村良²、小林大志

1. 背景

福島第一原子力発電所事故において、外部電源を喪失、全電源喪失状態により冷却不能となった炉心は炉心溶融に至った。溶融した燃料はZr合金製燃料被覆管、制御棒とともに格納容器から漏出した。漏出した燃料は最終的に格納容器下のコンクリート等と接触し、MCCI (Molten Core Concrete Interaction) 燃料デブリが形成されたと考えられている。

燃料デブリは高放射線量ゆえに分析のためのサンプリングすら未だに困難な状況であり、デブリ諸物性は十分に把握されているとはいえ、将来的な処理処分の詳細計画は決まっていらない。我々はこれまで、UO₂燃料と原子炉内で用いられている構造材料成分の混合物を加熱処理した模擬燃料デブリを調製し、その特性の理解を進めるとともに、核種の水への溶出挙動について検討してきた[1]。

一方、高レベル放射性廃棄物を長期にわたり安全に処分するため、人工バリアと天然バリアを組み合わせた多重バリアシステムによる地層処分が考えられている。人工バリアの一つにガラス固化体があり、放射性物質をガラスと一体にすることで、廃棄物中の核種の地下水への溶出速度を抑制している。そこで本研究では、ガラス固化処理による燃料デブリからの核種溶出の抑制に期待し、模擬燃料デブリをガラスと反応させた固化体を調製するとともに、その化学的耐久性を評価した。

2. 実験

模擬燃料デブリは燃料成分としてUO₂、コンクリート成分としてCaおよびSi、燃料被覆管の酸化物としてZrO₂を用い、これらを所定の比率でめんの乳鉢を用いて磨砕混合し、高温加熱処理して(U, Zr)O₂固溶体を調製した(以下、MCCIデブリ)。さらにこの模擬デブリ成分とガラス成分としてのSiO₂、B₂O₃、Na₂Oを所定の比率でめんの乳鉢を用いて磨砕混合した。この混合物をアルミナるつぼに入れ、大気雰囲気中で4時間、高温加熱(1200℃)処理を行った。また一部の試料については、あらかじめ空気通気下で予備的に酸化加熱処理を施した後、同様に高温加熱処理を行った。加熱処理した混合物を炉冷した後、目視によりガラス固化の進行を確認した。

京都大学複合研(KUR)ホットラボの圧気輸送管No. 2(Pn-2)、水圧輸送管(Hyd)において固相試料に対し熱中性子照射を行い、照射試料は生成核インベントリを測定した後、中性pH(〜7、含pH緩衝材PIPES)、イオン強度I = 0.1 (NaClO₄)の水溶液に浸漬した。恒温振とう器(25℃)で所定時間振とうした後、浸漬液の一部を分取し、孔径0.45 μmのメンブランフィル

タでろ過し、0.1 M HNO₃で希釈してU濃度をICP-MSで測定するとともに、一部を蒸発乾固して点線源様とした試料のγ線スペクトロメトリーを行った。得られた結果から、式(1)で示すような各核種の溶出率を算出し、溶出挙動を評価した。

$$R_M(t) = \frac{A_M(t)}{A_{i,M}} \quad (1)$$

3. 結果と考察

3-1. (U, Zr)O₂-ガラス成分系

予備酸化処理してから高温加熱した試料(#GA05)と酸化処理を行わず高温処理をした試料(GA05)の外観をFig. 1に示す。05はガラスに対するデブリ含有率wt%を表す。

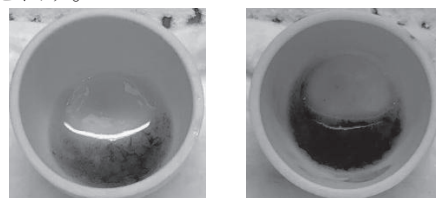


Fig. 1 ガラス化処理後の外観(左:#GA05,右:GA05)

模擬デブリのガラスへの溶解性は#GA05の方が高いことが分かった。予備酸化処理による4価ウランの酸化反応の進行、それに伴う体積および表面積の増加が溶解反応性に影響を及ぼしたと推察される。

3-2. MCCI-ガラス成分系

MCCIデブリの含有率が5wt%(GC05)および15wt%(GC15)においては、ガラス化の状態に顕著な違いが確認された(Fig. 2)。

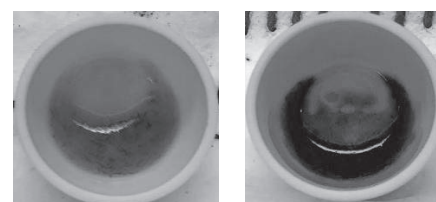


Fig. 2 ガラス化処理後の外観(左:GC05,右:GC15)

発表当日は、核種の溶出率の結果を示すとともに、ガラス化の状態との関連について議論する。

参考文献

[1] Takayuki Sasaki, Yuu Takeno, Taishi Kobayashi, Akira Kirishima, Nobuaki Sato. Leaching behavior of gamma-emitting fission products and Np from neutron-irradiated UO₂-ZrO₂ solid solutions in non-filtered surface seawater. J Nucl Sci Technol. 2016;3:303-311.

Vitrification of simulated MCCI debris and dissolution behavior of nuclides

Kodama Yuji, Takayuki Sasaki, Nobuaki Sato, Akira Kirishima, Daisuke Akiyama, Syun Sekimoto, Ryo Okumura, Taishi Kobayashi
kodama.yuji.48w@st.kyoto-u.ac.jp

(P8) B-3 小型多目的中性子回折計の進捗状況 2018

(京大複合研、高エネ研¹、KAERI²、茨城大工³、京大院工(院生)⁴) ○森一広、奥村良、吉野泰史、金山雅哉、佐藤節夫¹、平賀晴弘²、岩瀬謙二³、奥村明央⁴、小林史幸⁴

1. はじめに：京都大学研究用原子炉 (KUR) の B-3 実験孔には単結晶用 4 軸中性子回折計 (4CND) が設置されていたが、老朽化によって稼働率が低迷していた。しかしながら、B-3 実験孔は 10^5 n/s·cm² (試料位置、5MW 運転時) の中性子ビーム強度を有しており、中性子波長も 1.0 \AA と短いため、広い運動量空間 (Q 空間) で観測することが可能である。そのため、中性子バックグラウンドを極力低減することができれば、KUR 共同利用装置として再び活用することができる。また、中性子を利用することで、物質中の軽元素 (水素、リチウム及び酸素など) の原子存在位置を精度良く決定できることから、蓄電池、水素吸蔵材料及び燃料電池のようなエネルギー材料研究への利用が期待される。以上のような理由から、B-3 実験孔をリニューアルし、新たに小型多目的中性子回折計を設計・製作した。本発表では、今年度 (2018 年度) の進捗及び利用状況について報告する。

2. 装置仕様：Fig. 1 に小型多目的中性子回折計 (B-3 実験孔) を示す。中性子バックグラウンドを極力低減するため、B₄C10%入りポリエチレン ((株) アトムシールド製) および B₄C レジン、B₄C ゴムが使用されている。B-3 実験孔は、Cu モノクロメータを利用して単色中性子ビーム (波長: 1.0 \AA) を供給している。4CND で使用していた Cu モノクロメータ制御用ゴニオメータを撤去し、新たに 2 軸小型ステージ (回転及びスイベルステージ、神津精機 (株) 製) を設置した。さらに、4CND の 4 サークル・ゴニオメータを撤去し、新たにビームシャッター及び 2 軸ゴニオメータ (Huber 440/430) を設置した。Huber 440 のアーム上には、新設の検出器バンクが取り付けられている。これまで 4CND のメイン・カウンター部では BF₃ 比例計数管が 1 本使用されていたが、これを撤去し、新たに ³He ガス検出器 (直径: 1/2 インチ、有効長: 約 300 mm) を 25 本導入した。³He ガス検出器は新設の検出器バンク内に 1° 間隔で配置している。また、空間分解能の悪化を抑制するため、³He ガス検出器の間には Cd 板によるコースコリメータが挿入されている。なお、試料から検出器までの距離 (L_2) は 1200 mm である。測定可能な回折角 (2θ) の範囲は、 $5^\circ \leq 2\theta \leq 150^\circ$ である。ゴニオメータの制御、中性子数の計測、等については、すべてパーソナルコンピュータ上で行う。今年度、データ集積システムを一新し、J-PARC MLF で使用している NEUNET の最新版 NEUNET-c (イベントデータ方式) を導入した。これにより、測定終了後でも、測定データの

検証および回折データの再構築が可能となった。

3. コミッショニング及び利用状況：Fig.2 にニッケル (Ni) 粉末の中性子回折データを示す。さらに強度データの補正 (検証) 等、コミッショニング作業が必要であるが、すでに結晶構造解析 (リートベルト解析) が実施できるレベルにまで到達している。現在、他の結晶性物質や非晶質物質の回折データを測定している。また、中性子検出器等の中性子デバイス評価への利用も昨年度に引き続き精力的に行っている。



Fig. 1. The compact versatile neutron diffractometer located at the B-3 beam port of KUR.

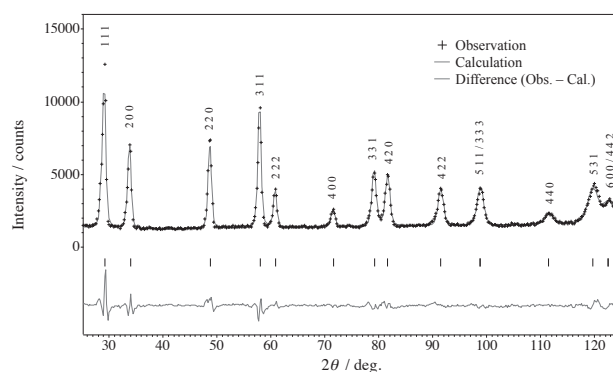


Fig. 2. Neutron diffraction data of Ni powder. In the Rietveld analysis, an excellent fit was obtained between the observed and calculated intensities.

The current state for the compact versatile neutron diffractometer on the B-3 beam port, 2018

Kazuhiro Mori, Ryo Okumura, Hirofumi Yoshino, Masaya Kanayama, Setsuo Sato, Haruhiro Hiraka, Kenji Iwase, Akihiro Okumura, and Fumiyuki Kobayashi
kmori@rri.kyoto-u.ac.jp

(P9) 小麦タンパク質グリアジンの凝集体構造の SAXS による解析

(京大複合研、京大院農¹) ○裏出令子、佐藤信浩、杉山正明、東野ゆうき¹、井上倫太郎、守島健

1. はじめに：コムギ粉生地レオロジー特性（粘弾性）はタンパク質複合体グルテンの物性に依存している。グルテンは2種類の主要タンパク質（グリアジンとグルテニン）から構成され、グリアジンは主に粘性に、グルテニンは主に弾性に寄与している[1,2]。単量体タンパク質であるグリアジンは水和すると分子間に形成される非共有結合により会合して凝集体を形成し、その構造に依存して粘性が発現していると考えられる。したがってグリアジン水和物のレオロジー特性を分子レベルで理解するには、凝集体の基本構造となっているナノスケールの構造を詳細に解析することが必要である。本研究では水和グリアジンのナノスケール構造を探るため、SAXS (Small-Angle X-ray Scattering)解析を行った。また、生地物性に大きく影響する食塩(NaCl)のグリアジン水和物の物性及びナノスケール構造への影響を検討した。

2. 実験：グリアジンは我々が開発した方法でコムギ粉生地から純水で抽出した[3,4]。いろいろな濃度のグリアジン水溶液及び濃厚なグリアジン水和物のナノ構造を SAXS により分析した。SAXS 実験は KEK の PF ビームライン BL-10C 及び京大複合研に設置されている SAXS 装置を用いて行った。溶液試料は 20 μm 厚のアルミニウムセルに、水和グリアジンペーストは 7.5 μm 厚の Kapton film をウインドウに張った PTFE サンドウィッチセルに充填し、測定に供した。タンパク質架橋実験は架橋剤 DTSSP で処理し、一次元目は非還元条件、二次元目は還元条件の SDS-PAGE により架橋されたグリアジンを分析した。40 wt% グリアジン水和物の動的粘弾性はパラレルプレート装着したレオゾル-G3000 を用いて測定した。

3. 結果：Fig. 1 に SAXS プロファイルを示す。グリアジンは 10 wt% までは透明な溶液として純水に溶解したが、単量体として存在するのは 0.5 wt% までであった。これより高濃度では粒子間干渉を示すショルダーピーク (q_{peak}) が出現した。SAXS データの Guinier と cross-section Guinier 解析によりグリアジンは 70 % エタノール中[5]よりも水中でより大きな R_g をもつことが明らかとなった。15 wt% 以上ではゲル様のペーストとなり、10-25 wt% では 0.13 nm^{-1} に q_{peak} をもつ類似した SAXS プロファイルが得られた。30 wt% 以上では 0.13 nm^{-1} の q_{peak} が高角側にシフトしていくと同時に、小角領域の曲線の立ち上がりが急峻となり、より大きな凝集体が形成されていることが明らかとなった。タンパク質架橋実験により 0.5 - 7 wt% 溶液で、グリアジンの一部が

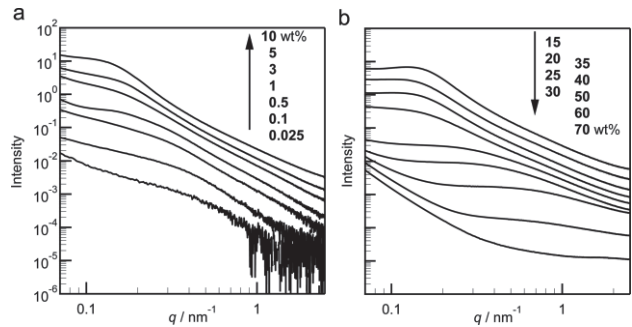


Fig. 1 SAXS profiles of gliadins in distilled water. (a) solution components at low concentrations; (b) gel-like solid samples at high concentrations. The curves are vertically shifted for clarity. (参考文献4から転載)

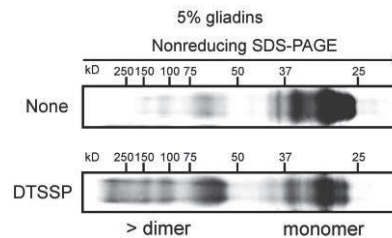


Fig. 2 Association of gliadins. Gliadon (5%) was treated with or without DTSSP. The samples were separated by nonreducing SDS-PAGE.

同じ分子量同士からなるダイマーからオリゴマーに会合していること (Fig. 2)、8 wt% 以上ではほとんどのグリアジンが SDS-PAGE のゲルに入らない大きな会合体となっていることを示した。40 wt% グリアジン水和物の SAXS プロファイルは NaCl の濃度に依存して q_{peak} が高角側へシフトするとともに小角領域での立ち上がりが急峻となった。 q_{peak} から算出されるナノ粒子の相関距離は純水中での 18 nm から 3 M NaCl で 8 nm にまで減少した。物性的には、曳糸性が NaCl により劇的に増加し、貯蔵弾性率 G' と損失弾性率 G'' が 1 M 以上の NaCl 濃度で急激に増加した。グリアジンの保水量は NaCl の存在下で濃度に依存して減少した。以上の結果から、グリアジン分子間の距離が NaCl 存在下で短縮することで凝集体が収縮し、物性的変化が引き起こされることが示唆された。

参考文献

- [1] F. MacRitchie and P. L. Weegels in *Wheat*, 4th ed. (AACC International Press, 2009).
- [2] M. Cornec *et al.*, *J. Cereal Sci.*, **19** (1994) 131-139.
- [3] T. Ukai *et al.*, *J. Agric. Food Chem.*, **56** (2008) 1122-1130.
- [4] N. Sato *et al.*, *J. Agric. Food Chem.*, **63** (2015) 8715-8721.
- [5] N. Thomson *et al.*, *Biochim. Biophys. Acta*, **1430** (1999) 359-366.

SAXS analysis of nanostructures of hydrated wheat gliadins

Reiko Urade, Nobuhiro Sato, Masaaki Sugiyama, Yuki Higashino, Rintaro Inoue, Ken Morishima
urade@kais.kyoto-u.ac.jp

(P10) フッ化物イオン電池用 $\text{Ce}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{F}_{2.95}$ 固体電解質の構造および電気化学特性

(京大院工 (院生)、京大複合研¹、京大産官学²、高エネ研³、CROSS⁴) ○奥村 明央、森 一広¹、藤崎 布美佳²、米村 雅雄³、石川 喜久⁴

1. はじめに：フッ化物イオン電池 (FIB) は、既存のリチウムイオン電池のエネルギー密度を遥かに凌駕することから、次世代の蓄電池候補の1つとして注目を集めている。その中でも、フッ化物イオン伝導体を電解質に使用した全固体 FIB の開発が急速に進んでいる^{1,2}。特に、 CeF_3 を Sr で一部置換した $\text{Ce}_{1-x}\text{Sr}_x\text{F}_{3-x}$ (タイソナイト構造) は高いイオン伝導度と広い電位窓をもつため、固体電解質材料として注目されている。しかしながら、本系のフッ素イオン・欠損の詳細な分布やイオン伝導メカニズム、さらには電池反応については未だ不明な点が多い。

本研究では、本系のフッ素イオンおよび欠損分布について調べるため、 $\text{Ce}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{F}_{2.95}$ 固体電解質を作製し、中性子回折実験および電気伝導度測定を行った。また、本系を用いて全固体 FIB を構築し、電池性能の評価を行った。

2. 実験方法：Sr を 5% 添加した $\text{Ce}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{F}_{2.95}$ 固体電解質は、 CeF_3 粉末および SrF_2 粉末を化学量論比で混合した後、メカニカルアロイング (MA) 法および熱処理により作製した。本試料を用いて電気伝導度測定等の評価を行った。また、大強度陽子加速器施設/物質生命科学実験施設 (J-PARC MLF) の BL09 特殊環境中性子回折装置 (SPICA) を用いて中性子回折実験および精密結晶構造解析を行った。

3. 実験結果： $\text{Ce}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{F}_{2.95}$ および CeF_3 の電気伝導度の温度依存性を Fig. 1 に示す。Sr を 5% 添加したことで、電気伝導度が大幅に改善されていることがわかる。本結果より、固体電解質として求められる電気伝導度 10^{-4} S/cm 以上を満たすためには、 140°C 以上昇温させる必要があることが分かった。Fig. 2 に $\text{Ce}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{F}_{2.95}$ 固体電解質の高温中性子回折実験 (400 K) の結果を示す。結晶構造解析 (リートベルト解析) より、タイソナイト構造 (空間群： $P-3c1$) を用いることで、良好なフィッティング結果を得ることができた。 $\text{Ce}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{F}_{2.95}$ 固体電解質の結晶構造を Fig. 3 に示す。解析の結果、Sr 置換で導入されたフッ素欠損は、特定のサイト (F1 サイト) に集中していることが分かった。

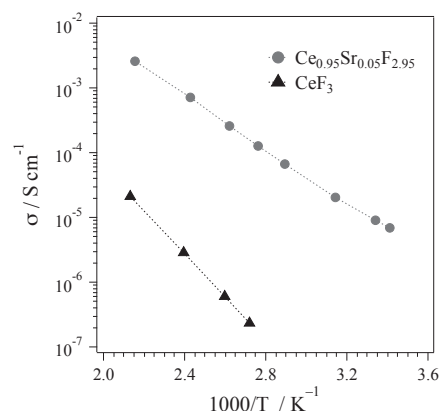


Fig. 1. Electrical conductivities of $\text{Ce}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{F}_{2.95}$ and CeF_3 .

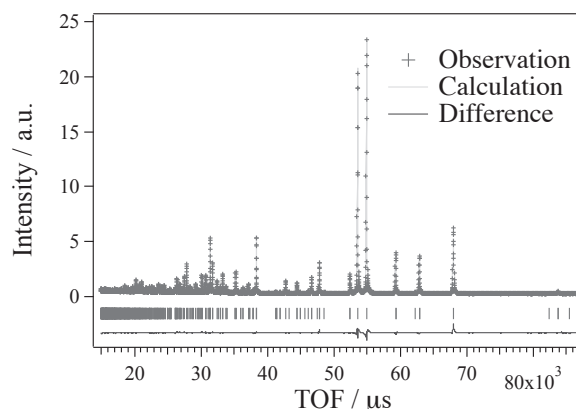


Fig. 2. Neutron diffraction data of $\text{Ce}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{F}_{2.95}$ collected at 400 K using SPICA of J-PARC MLF.

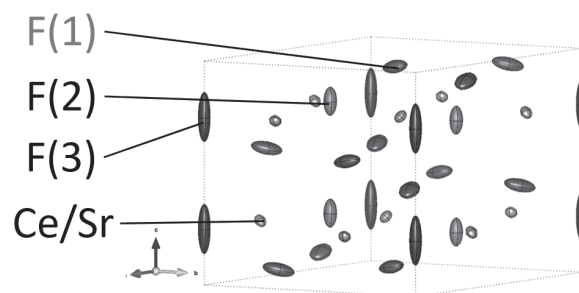


Fig. 3. The crystal structure of $\text{Ce}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{F}_{2.95}$ at 400 K.

参考文献

- [1] M. A. Reddy *et al.*, J. Mater. Chem. 21 (2011) 17059.
- [2] C. Rongeat *et al.*, ACS Appl. Mater. Interfaces 6 (2014) 2103.

(P11) 海塩粒子の塩素及び臭素損失

(大阪府大、京大複合研¹) ○伊藤憲男、溝畑 朗、飯沼勇人¹、奥村 良¹

海塩粒子は、海面上で波が破断した時に生成したしずくが乾燥してできたものである。海面上で生成されるために、地球上の広い範囲に存在し、雲の生成粒子となるため、その発生量は気象に影響を及ぼすとされている。主に粒径 0.5-40 μm のものが存在するとされている。主成分は NaCl であるが、酸性ガスや雲に取り込まれた際に化学的変質を受けるとされている。この変質で、ハロゲンである塩素(Cl)、臭素(Br)がガスとして大気中に放出され、オゾン層破壊にも寄与していることも指摘されている。本研究では、堺市で観測した海塩粒子の、ClとBrの損失の粒径範囲ごとの割合を明らかにし、海塩粒子のCl,Br損失の基礎的データを明らかにする。

本発表で解析に使用したデータは、2012年に大阪府立大学(大阪府堺市)で粒径別に採取した大気エアロゾルの元素分析の結果である。粒径別採取は、アンダーセンサンプラーを使用して、9粒径範囲にわけて採取した。採取期間は、1週間であった。採取した試料の元素分析は、京都大学原子炉で中性子照射を行なうことによる中性子放射化分析法で行った。

6期間(Feb14-21, Apr03-10, Jun05-12, Aug07-14, Oct09-16, Dec11-18)の試料について中性子放射化分析を行い、Na,Cl,Brの粒径別濃度の情報を得た。6月6日から12日に採取した試料のCl, Brの濃度の粒径分布をFig.1に示す。さらに、海水中のNaとの濃度比(Cl/Na=1.8, Br/Na=0.0062)から推定されるCl,Brの濃度も示す。この濃度は、Clでは0.5 μm 以上で、Brでは2~7 μm の粒径範囲で、観測した濃度を上回っており、海塩粒子中で、ClやBrの損失が起きていることが確認できた。推定した損失の濃度(Fig.2)は、Cl平均:440ng/3(140~720), Br平均1.1ng/m³(0.15~2.4)であった。Naの濃度から推定した濃度に対する損失濃度の割合は、Cl平均:48%(8~78), Br平均:12%(2~34)であった。

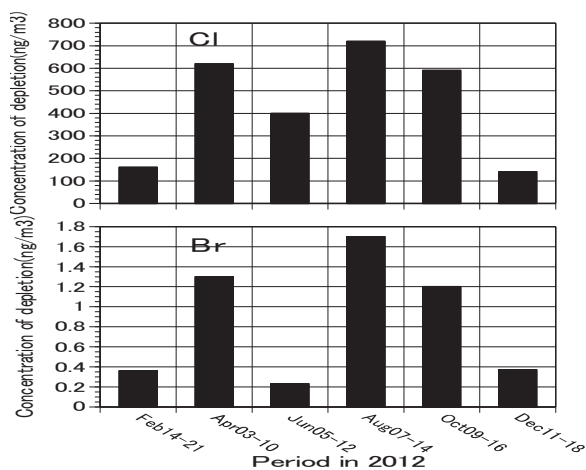


Fig. 2 Estimated depletion concentration of Cl, Br.

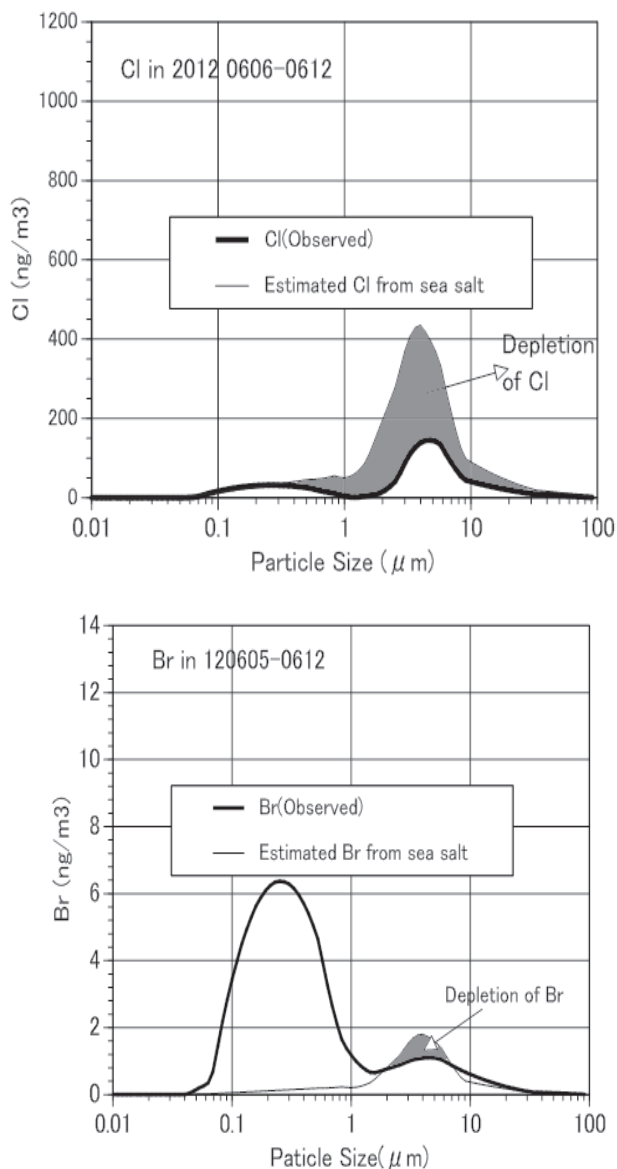


Fig.1 Solid line is a size distribution of concentration of Cl, Br observed at Saka, Osaka, June05-12 in 2012. Gray thin line is a concentration in sea salt estimated from Na concentration. The gray area is a estimated depletion concentration.

Depletion of Cl, Br in the sea salt aerosol.
Norio Ito, Akira Mizohata, Yuto Iinuma, Ryo Okumura
ito_no@riast.osakafu-u.ac.jp

(P12) Eu:LiCAF を用いた加速器 BNCT における中性子測定技術開発

(JAEA、筑波大¹、京大複合研²) ○仁尾大資、坂佐井馨、中島宏、田中進¹、熊田博明¹、高宮幸一²

導入: 加速器 BNCT において、患者の照射線量を最適化するために、中性子束をリアルタイム測定することが必要である。しかしながら、BNCT で要求される中性子束は $10^{10}(\text{n}/\text{cm}^2/\text{s})$ と高く、リアルタイム測定はこれまでに実現していない。我々は図 1 に示す光ファイバー一体型の Eu:LiCAF 製中性子検出器を用いて、リアルタイム測定に挑戦している。今年度は筑波大学中性子医療研究センター(iBNCT)で得られた知見を元に KUR 傾斜照射孔で実験を行い、検出器の中性子束に対する線形性及び変動に対する追従性を測定した。



図 1 光ファイバー一体型 Eu:LiCAF 製中性子検出器

実験: iBNCT では基本的な特性及びγ線と中性子線のディスクリ値に関して測定した。KUR での実験は、出力 1MW 時に約 $10^{12}(\text{n}/\text{cm}^2/\text{s})$ の中性子束となる傾斜照射孔で行った。図 2 に測定に関するセットアップを示す。Eu:LiCAF シンチレータからの光は光ファイバーを通して光電子増倍管に入力された後、電気信号に変換され、測定器に入力される。測定に先立ち、検出器はプラスチック製のボトルに収納し、傾斜照射孔の底部に設置した。図 3 に設置状態を示し、測定は KUR の出力上昇中及び定常時に行った。

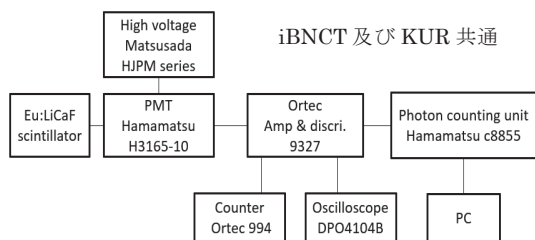


図 2 測定に関するセットアップ

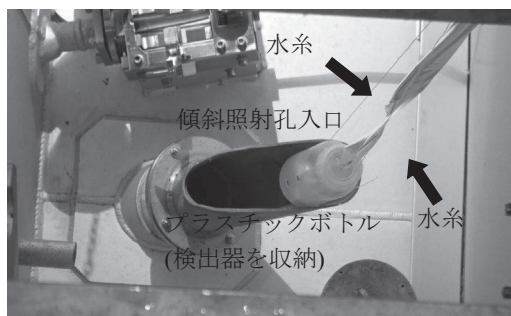


図 3 傾斜照射孔への設置状態

結果: 図 4 は KUR が 20W から 1kW に出力上昇する際に測定した計数率と KUR の出力を示したグラフである。計数率と KUR の出力は最大値近辺 10 点での平均値で規格化した。20W から 1kW への出力上昇時の追従性に関して、計数率と KUR の出力は良い一致を示している。図 5 は計数率の傾斜照射孔の中性子束に対する線形性を示したグラフであり、相関係数が約 0.99 の線形性が得られた。

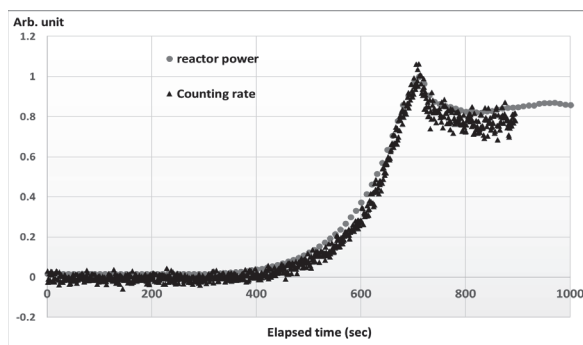


図 4 20W から 1kW に出力上昇する際に測定した計数率と KUR の出力

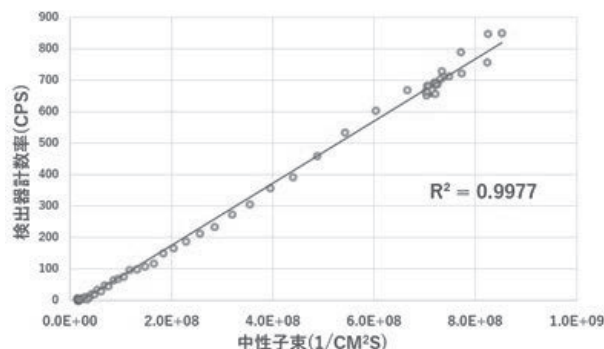


図 5 計数率の傾斜照射孔の中性子束に対する線形性

結論: 光ファイバー一体型の Eu:LiCAF 製中性子検出器に関して、iBNCT 及び KUR の傾斜照射孔において実験を行った。得られた計数率は KUR の出力に対して良い追従性と線形性を示した。

これらの結果を元に、KUR 傾斜照射孔における最大約 $10^{12}(\text{n}/\text{cm}^2/\text{s})$ の中性子束の計数に向けた実験を計画している。

加えて、我々は光ファイバー内で発生するチェレンコフ光の計数率に対する影響評価を光学フィルターを用いて行う事を検討している。一般的に、チェレンコフ光は 400nm から 750nm に渡り、Eu:LiCAF シンチレータからの主な発光は 370nm であり、両者を区別可能と考えている。

(P13) 原子炉中性子によって生じる DNA 損傷の分析

(岡大自然生命セ、佐大総合分析セ¹、京大複合研²) ○寺東宏明、徳山由佳¹、森加奈恵¹、長田直之、田中浩基²、齊藤毅²

1. はじめに：電離放射線（以下、放射線）の生物効果は、遺伝物質 DNA に傷害を与えることにより表出する。放射線誘発 DNA 損傷については、これまで多くの研究がなされてきたが、それは γ 線やX線などによるものに集中し、それ以外の線質による DNA 損傷の様態は不明な点が多く残されてきた。私は、これまで放射線医学総合研究所重粒子線照射装置（HIMAC）の共同研究により、重粒子線によって生じる DNA 損傷の特徴を明らかにしてきた [1, 2]。本研究では、原子炉中性子によって生じる DNA 損傷の分析を行い、中性子線による生物効果の分子機構の解明を目的に実験を行った。

2. 実験：原子炉中性子誘発 DNA 損傷の分析のための照射サンプルは培養細胞を使用した。培養した Chinese Hamster Ovary (CHO) AA8 細胞株をトリプシン処理し、細胞ペレットとしてポリプロピレン製マイクロチューブに回収した。この細胞ペレットを京都大学複合原子力研究所研究炉（KUR）の重水素装置に挿入し原子炉中性子を照射した。照射時間は最大 3 時間とし、0.5、1、2、3 時間でサンプルを抜き取り、分析を行った。

中性子の線量率は金箔の放射化により 2Gy h^{-1} と推定されたが、原子炉中性子線にはさまざまなエネルギーを持つ γ 線がコンタミしていることから、 γ 線の寄与率を熱蛍光線量計によって推定し、その結果、中性子の線量率は 1Gy h^{-1} と見積もった。細胞は照射後、ドライアイスで素早く凍結し、分析時まで保管した。DNA 損傷の分析は、塩基損傷については質量分析で、DNA 鎖切断については電気泳動法で行った。分析方法の詳細はいずれも既報の方法による [2 - 4]。

3. 結果：塩基損傷の分析は放射線によって特異的に生じると考えられる酸化塩基損傷を中心に行った。細胞から定法に基づいて染色体 DNA を抽出し、ヌクレアーゼ処理により DNA をヌクレオチド単位に分解し、質量分析を行った [3, 4]。その結果、中性子照射によってグアニンの酸化損傷である 8-オキソデオキシグアノシン (8-OHdG) が線量依存的に増加することが示された (Fig. 1)。

一方、DNA 二本鎖切断 (Double Strand Break: DSB) については、照射細胞を低融点アガロースに包埋し、プロテアーゼ処理後、電気泳動を行うことにより検出した [1, 2]。その結果、1 Gy の照射で有意に DSB が増加したが、それ以降は線量依存的な損傷増加は確認できなかった。この理由については今後の検討が必要であるが、この中性子照射の線量率が 1Gy h^{-1} と極めて低く、3 Gy の照射に 3 時間を要することから、修復により DSB が一定量で推移している可能性が考えられる。

今後の検討としては、酸化塩基損傷についてはピリミジン由来の損傷について分析を行うこと、DNA 鎖切断については DSB 修復に関わる組換え修復経路 (Homologous Recombination: HR) および非同末端結合 (Non-Homologous End Joining: NHEJ) 欠損株を使った実験により、修復の可能性を除外した系で分析を行い、中性子 DNA 損傷の全貌を明らかにしていく。

参考文献

- [1] H. Terato *et al.*, *J. Radiat. Res.*, **49** (2008) 133-146.
- [2] Y. Tokuyama *et al.*, *J. Radiat. Res.*, **56** (2015) 446-455.
- [3] K. Kudo *et al.*, *J. Electrostat.*, **73** (2015) 131-139.
- [4] K. Kudo *et al.*, *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **48** (2015) 365401.

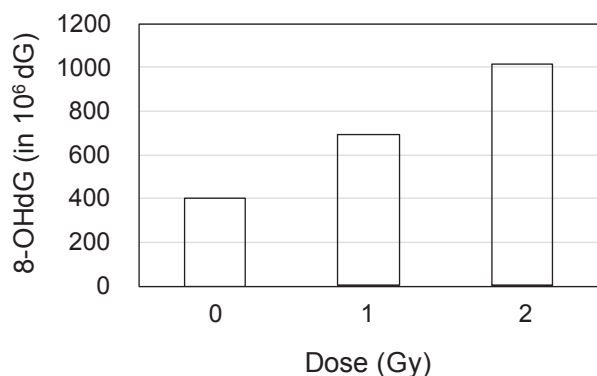


Fig. 1. Yields of 8-oxo-deoxyguanosine (8-OHdG) in the cells irradiated by the neutrons of reactor.

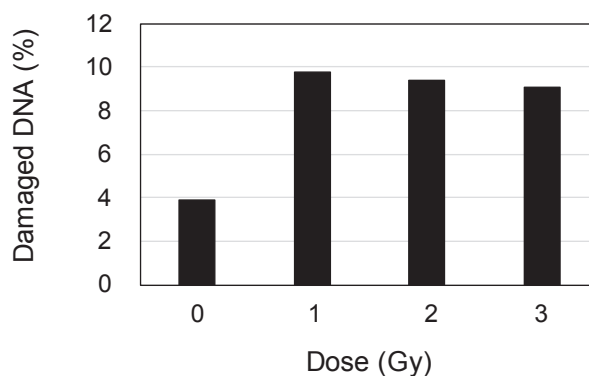


Fig. 2. Yields of DNA double strand breaks in the cells irradiated by the neutrons of reactor.

DNA damage with the neutrons from reactor

Hiroaki Terato, Yuka Tokuyama, Kanae Mori, Naoyuki Osada, Hiroki Tanaka, Takeshi Saito
hiroakiterato@okayama-u.ac.jp

(P14) クライオ電顕のための牛心筋 FoF1ATP 合成酵素の試料調製

(京大複合研、阪大蛋白研¹) ○慈幸千真理、ゲーレ・クリストフ¹、森本幸生

1. はじめに：クライオ電子顕微鏡（クライオ電顕）を用いた生体分子の原子分解能構造解析が発展し（Henderson et al., ノーベル賞, 2017）、現在、結晶化が極めて困難な膜蛋白質の構造解析に圧倒的な威力を発揮しているが、クライオ電顕による構造解析の成功の鍵は、結晶化と同様に安定で無傷な試料を大量に精製できるかにかかっている。本研究では、哺乳動物のミトコンドリアFoF1ATP合成酵素全長を原子分解能で構造解析を行うことを目的にしている。FoF1ATP合成は哺乳動物の生命活動を維持するために重要なエネルギー変換機構であり、ミトコンドリア内膜のプロトン輸送を駆動力とする。これを司るFoF1ATP合成酵素は29サブユニットからなる分子量60万の膜蛋白質複合体である。本酵素は、ATPの90%を生産するだけでなく、ミトコンドリア内膜の形成にも重要な役割を果たしている。また本酵素の機能不全はアポトーシス（細胞死）を招くと示唆されており、さらに神経変性疾患や代謝異常疾患に関与していることから、本酵素の精緻な立体構造の解明は今後の薬剤分子設計における重要な基盤となると考えられ、広く研究が進められている。このような生物学的、医学的な重要性から、FoF1ATP合成酵素については、50年以上にもわたって構造解明の取り組みがなされているものの、原子レベルで全体構造が解明されていないことによって、FoF1ATP合成酵素の働きについて理解が遅れている。本酵素は超分子複合体の膜結合蛋白質で回転を伴うがゆえにフレキシブルで著しく不安定であり、これが本酵素全体の立体構造が均一な精製標品を得ることを難しくしている。

2. 実験：屠殺直後のウシ心臓を入手し、ミトコンドリア内膜を分離し、FoF1ATP合成酵素を可溶化する。この時、他の蛋白質も可溶化されるために精製を必要とする。本酵素の精製方法としては、イオン交換クロマトグラフィのようなアフィニティカラムを使った精製方法が一般的であり、我々もこれまで同手法による精製を行ってきた。しかしながら、この方法では、精製された試料の均一性が低いことがわかった。これは、本酵素が回転することに伴い極めて柔軟性が高いことと、単量体あたり29個ものサブユニットから構成される本酵素のサブユニットが解離しやすいことで、精製過程において本酵素が、膜間ドメインから解離を始めてしまうためである。このイオン交換クロマトグラフィは、精製純度の向上には有効であるものの、イオン交換樹脂との相互作用によって酵素本来の構造に負担をかけ、本酵素

の劣化を招いていると考えられる。したがって、イオン交換クロマトグラフィに替わる精製方法の確立が必要である。これに対し、我々は蛋白質に負荷のかからない密度勾配遠心分離法による精製方法を開発し（カラムフリー精製）、非常に安定かつ無傷な状態で本酵素を精製することに成功した。

3. 結果：申請者の開発したカラムフリー精製によって作製した、サブユニット無欠損を保った安定な本酵素を用いれば、クライオ電顕による高分解能単粒子解析に適したクライオグリッド作製が可能であることがわかった（Fig.1）なお、膜蛋白質の高画質データ収集を妨げる最大の障害は、界面活性剤であるが（Rubinstein, Methods, 2007）、通常、界面活性剤を溶液中から除去すると膜蛋白質は瞬時に凝集し、変性してしまう。これに対し、ゲーレらが開発した方法（GraDeR法；Hauer et al., Structure, 2015）では、グリッド作製の瞬間凍結の前段階で、溶液中の界面活性剤の除去を可能にしている。現在、この方法を用いてグリッド調整を行い、クライオ電顕による観察を実施している。

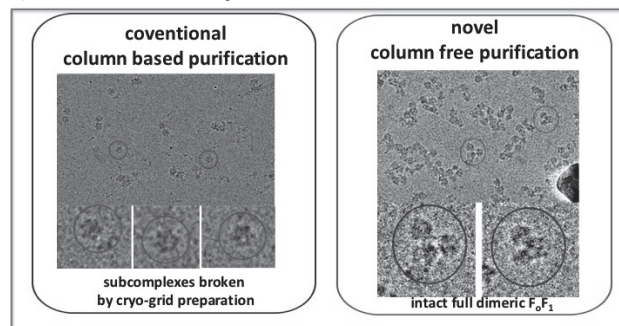


Fig.1 Recent images of mammalian FoF1 dimers by cryo-electron microscopy

参考文献

- [1]Boyer, “The ATP Synthase-A Splendid Molecular Machine” *Annu. Rev. Biochem.*, vol.66, 717-749, (1997).
- [2]Davies et al., “Structure of the yeast F1Fo ATP synthase dimer and its role in shaping the mitochondrial cristae.” *PNAS*, (2012).
- [3]Jiko et al., “Bovine F1Fo ATP synthase monomers bend the lipid bilayer in 2D membrane crystals” *eLife*, (2015).
- [4]Kucharczyk et al., “Mitochondrial ATP synthase disorders: Molecular mechanisms and the quest for curative therapeutic approaches” *BBA*, vol.1793, 186-199, (2009).
- [5]Hauer et al., “GraDeR: Membrane Protein Complex Preparation for Single-Particle Cryo-EM” vol.23, 1769-1775, *Structure*, (2015).

(P15) 1.5 MW 大強度高繰り返しシンクロトロンにおけるビーム挙動の解析

(京大複合研) ○不破康裕、石 禎浩、上杉智教、栗山靖敏

1. はじめに：

高繰り返しシンクロトロン (RCS: Rapid Cycle Synchrotron) は数十から数百 Hz という大きな繰り返しサイクルでビームを加速でき、線型加速器と比較して小さな敷地面積で 1 GeV を超えるエネルギーの大電流イオンビームの生成が可能である。最近では J-PARC [1] において当初目標である 1 MW のビーム出力を達成し [2]、その有用性が示されている。本研究では、その RCS の有用性を活かすことで円形加速器を用いた加速器駆動核変換システム (ADS: Accelerator Driven transmutation System) [3] を検討している。単体の RCS で生成可能なビーム出力は一般的な ADS でこれまで検討されてきた線型加速器 (ビーム出力 30 MW) と比較して小さいが、線型加速器と比較して複数台の加速器を用いた多重化や拡張性に優れているためより信頼性の高いシステムを実現可能である。また、取り出しビームの時間構造についても、線型加速器と比較して制御可能な幅が広く ADS の過渡特性の試験における有用性も高く核変換サイクルの早期実現にも寄与するものと考えられる。

2. プロトタイプの基本パラメータ：

検討する RCS のプロトタイプのパラメータとして、ビームエネルギーを 1.5 GeV、平均ビーム電流を 1 mA とし、ビーム出力を 1.5 MW とした。加速サイクルの繰り返し周波数は 100 Hz (J-PARC の場合は 25 Hz) とし、1 サイクルあたりの粒子数を減らすことで空間電荷効果の影響を低減している。繰り返しを 100 Hz とすることで消費電力の増大が懸念されるが、偏向磁石郡のコイルに高温超伝導線を用いることで消費電力の低減を目指している [5]。このような基本設計をもとに、多重化を見据えた 100 m 程度の短い周長の RCS の実現可能性を検討している。本報告では、これまでに検討した RCS におけるビーム安定性の評価結果と共鳴を用いたビーム取り出し方式について述べる。

3. ビーム安定性の評価

大強度加速器ではシステム維持管理のためのアクセスを阻害する放射化を避けるため、高いビーム安定性が要求される。安定なビーム加速実現の第 1 段階としてビーム光学系の動的口径を評価した。評価体系には、これまで設計したビーム光学系のレイアウト [6] をもとに、ビーム集束の色収差補正用の非線形磁場成分や磁石端部の漏れ磁場を含む磁場分布を用いた。評価対象には機能分離型光学系と機能結合型光学系の両者を使用し、確保可能な動的口径の

大きさを比較した。その結果として短周長の円形加速器で十分な動的口径の確保を実現するには、機能結合型光学系がより適していることが示された。これは、機能結合型偏向電磁石に色収差補正用磁場成分を広く分布させることで非線形な磁場成分の絶対値を小さくできることに起因していると考えられる。この結果をもとに、高温交流超伝導コイルの低損失性とビーム安定性を両立する電磁石の開発が今後の主な研究対象となる。

4. 共鳴ビーム取り出し：

100 Hz でのビーム加速を高い信頼性で実現するためには、ビーム取り出し方式の確立が必要である。これまでの RCS ではキッカー電磁石を用いてビーム取り出しが行われてきた。この方式では、立ち上がり時間の短いキッカー電磁石と瞬間的な電流密度の高いセプタム電磁石が必要となる。本研究ではより信頼性の高いビーム取り出し系として、パルス電磁石を使用しない共鳴取り出し方式の実現可能性を検討している。この方式ではビーム加速周波数の変調により共鳴強さを制御し、マズレスセプタム電磁石を用いることでビームロスを低減することを提案している。

謝辞

本研究は文部科学省の原子力システム研究開発事業の助成を受けたものです。

参考文献

- [1] High-Intensity Proton Accelerator Project Team, J-PARC, JAERI Report No. JAERI-Tech 2003-044.
- [2] H. Hotchi *et al.*, Achievement of a low-loss 1-MW beam operation in the 3-GeV rapid cycling synchrotron of the Japan Proton Accelerator Research Complex, *Phys. Rev. Accel. Beams* **20**, 060402 (2017).
- [3] H. Oigawa, K. Tsujimoto, K. Nishihara, T. Sugawara, Y. Kurata, H. Takei, S. Saito, T. Sasa and H. Obayashi, *Journal of Nuclear Materials* **415** (2011) 229-236.
- [4] Y. Fuwa *et al.*, “Design of Multi-MW Rapid Cycling Synchrotron for Accelerator Driven Transmutation System”, TUPAL027, *Proceedings of IPAC* **18** (2018).
- [5] T. Sogabe *et al.*, AC Loss Characteristics in REBCO Coil Assemblies With Different Geometries and Conductors, *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. **28**, no. 3, 4700105 (2018).
- [6] 不破康裕 他, “複合原子力科学のために次世代高繰り返しシンクロトロン設計”, p. 20, 京都大学原子炉実験所「第 52 回学術講演会報文集」、KURRI-EKR-20 (2018).

(P16) 超遠心分析と X 線小角散乱を用いたタンパク質溶液の相補的構造解析

(京大複合研) ○守島 健、佐藤信浩、井上倫太郎、杉山正明

1. はじめに：X 線小角散乱 (SAXS) は、測定時に試料の結晶化や凍結の必要がなく、溶液中の粒子の構造をありのままの状態に測定可能である点で、生体高分子の構造解析において強力な手法である。SAXS により得られる散乱強度は、溶液中の多数の粒子からの散乱の平均である。したがって、単一成分ではない系 (多成分系) に関しては、各成分の散乱強度への寄与を判断することが困難である。我々は、この困難を克服するために、超遠心分析 (AUC) を相補的に用いることが効果的ではないかと考えた。AUC は、高速回転により生じる遠心力を溶液試料に加えることで溶質を沈降係数 (分子量、サイズに対応) ごとに分離し、その量を定量する測定法である。AUC も SAXS と同様に、溶液状態での測定が可能である。

本研究では、ウシ血清アルブミン (BSA) 溶液を用いて AUC と SAXS の実験結果が無矛盾であることを示し、相補的な利用が有効であることを示す。

2. 実験：SAXS：京都大学複合原子力科学研究所の実験室設置型 Cu-SAXS 装置 (KUMASAKU, NANOPIX; リガク) を用い、高強度モード、カメラ距離 1330 mm (散乱ベクトル q 範囲：0.009 - 0.2 \AA^{-1})、温度 25°C にて SAXS 測定を行った。

AUC：超遠心分析装置 ProteomeLab XL-I (ベックマン・コールター) を用いて沈降速度法による AUC 測定を行った。検出光学系はレイリー干渉法、回転数は 45000 rpm、温度は 25°C で測定を行った。

試料：Sigma-Aldrich 製の BSA を、Tris-HCl 100mM (pH7.5)、NaCl 100mM 緩衝液に溶解させ精製せずに測定に用いた。濃度は 2.78 mg/mL である。

3. 結果：Figure 1 に、SAXS 測定の結果を示す。Guinier 解析の結果、原点散乱強度 $I(0) = 0.190 \text{ cm}^{-1}$ 、回転半径 $R_g = 38.0 \text{ \AA}$ が得られた。図中に青線で示したのは、結晶構造解析により得られている BSA の Protein Data Bank データ (PDB ID: 4F5S) から計算した単量体の散乱曲線である。 $q < 0.12 \text{ \AA}^{-1}$ では測定データと一致せず、 $I(0)$ 、 R_g も測定データより小さな値 ($I(0) = 0.147 \text{ cm}^{-1}$ 、 $R_g = 27.1 \text{ \AA}$) が得られたことから、溶液中には BSA 単量体以外の多量体が存在していることが示唆された。

Figure 2 に、SAXS 測定と同一の BSA 溶液の AUC 測定結果を示す。予測通り単量体成分に加え、4 量体までの多量体が溶液中に共存していることが判明した。(各成分についてピークの積分強度から得られた重量分率を図中に示した。)

多成分系の原点散乱強度 $I(0)$ は、全体濃度 c

[mg/mL]、成分 j の重量分率 w_j 、成分 j の単位濃度あたりの原点散乱強度 $I_{0,j} [\text{cm}^2 \text{ mg}^{-1}]$ を用いて

$$I(0) = c \sum_j w_j I_{0,j}$$

と表される。ここで、 $I_{0,j}$ は別に与えられる分子量と偏比容を用いて計算可能である^[1]ので、AUC で得られた重量分率を用いて $I(0)$ を計算すると、 $I(0) = 0.188 \text{ cm}^{-1}$ が得られた。この値は SAXS の測定結果 $I(0) = 0.190 \text{ cm}^{-1}$ とよく一致する。このことより、SAXS データには、1~4 量体の散乱成分が AUC で得られる重量分率で含まれているとすると良く説明できることが確認された。

今後、この成果に基づき多成分系の解析において AUC を用いて各成分の重量分率を求め、それに基づき SAXS データを解析する手法に展開していきたい。

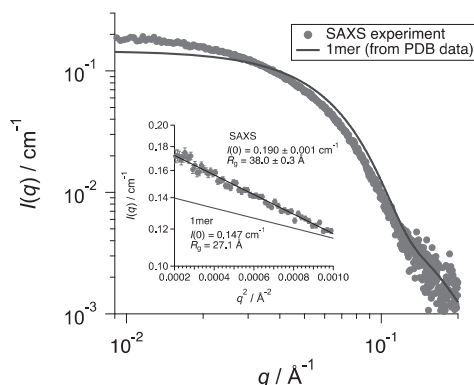


Figure 1. SAXS profile for BSA solution with 2.78 mg/mL (Red symbol). Blue line is calculated from PDB data (4F5S) of BSA. Inserted figure is Guinier plot. Black line is Guinier fitting line.

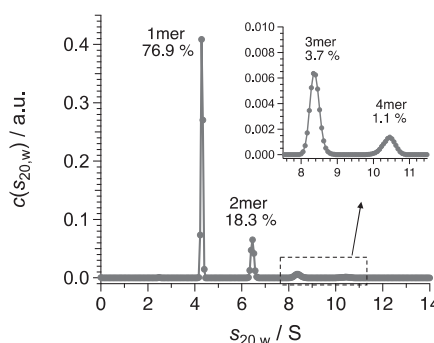


Figure 2. AUC result for BSA solution with 2.78 mg/mL. Horizontal axis is converted to the sedimentation coefficient in water at 20°C. Inserted figure is enlarged view in 7.5 S - 11.5 S of $s_{20,w}$ -range.

[1] E. Mylonas, D I. Svergun, *J. Appl. Cryst.* **40**, s245, (2007).

(P17) アミロイド β タンパク質産生量を減少させるタンパク質 ILEI の物理化学的解析

(滋賀医大神経難病セ、京大複合研¹) 日比野絵美、守島健¹、井上倫太郎¹、杉山正明¹、中野将希、渡邊直希、杉拓磨、西村正樹

1. はじめに：本邦におけるアルツハイマー病の患者数は増加の一途を辿っているが、現在まで有効な疾患修飾薬の開発には至っていない。アルツハイマー病の原因はアミロイド β タンパク質 ($A\beta$) の脳内過剰蓄積と考えられているが、我々はこれまでに分泌タンパク質 ILEI が $A\beta$ の産生を特異な経路で減少させることを発見している [1]。ILEI は細胞外に分泌された後、 γ セクレターゼ複合体の構成分子の一つである Presenilin-1 の細胞外領域に結合する。現在のところ、詳細は不明ながら、この結合を介して γ セクレターゼの基質である $A\beta$ 前駆体タンパク質の非特異液分解が促進され、 $A\beta$ の産生が抑制される。しかし、その結合に関わる構造学的な機構は未だ不明である。更に最近、ILEI の単量体ならびに二量体の X 線結晶構造が報告されたが [2]、単量体・二量体と機能との関係は明らかではない。これらの構造的側面は、アルツハイマー病治療薬開発のためには非常に重要な問題である。

本研究の目的は、ILEI の二量体の機能への関係性を明らかにし、ILEI の分子機構の解明に繋げることである。

2. 実験：ILEI (55-227) -His を大腸菌発現系にて作製、Ni-NTA レジンおよびサイズ排除クロマトグラフィー (SEC) により精製した。非還元状態での SDS-PAGE および SEC で、それぞれ単一バンドおよび単一ピークであることを確認している。約 1.5 mg/mL の ILEI タンパク質溶液を各種 pH の緩衝液に透析し、サンプル調製した。続いて、単量体—二量体における結合—解離を分析するために分析用超遠心機 (AUC) によりした。測定温度は 25°C、回転数は 60,000 rpm および 20,000 rpm とした。

3. 結果：AUC において、回転数を 60,000 rpm としたときのレイリー光学干渉計により検出した結果を Fig.1 に示す。解析の結果、大部分がおよそ 20kDa を示したが、40kDa 付近、またさらに大きい分子量に由来するピークも検出された。アミノ酸配列から ILEI の分子量は 20.0 kDa であることから大部分が単量体で存在すること、また多量体の形成比率は pH6.0 で 4.5%、pH7.3 で 3.7%、pH8.0 で 15.2%であり、pH の上昇に伴い多量体の割合が増加することが明らかとなった。

さらに AUC 測定から観測された多量体が実際に ILEI の結合—解離により生じている可能性を確認するために、20,000 rpm での測定を行なった。その結果、60,000 rpm で分離していた多量体のピークは

20000 rpm では単一のピークに集約されたことから (data not shown)、ILEI は単量体—多量体の平衡にあることが示唆された。またこれらの存在比率から、解離定数を算出したところ、 K_D (25°C、pH7.3) = 4.3×10^{-4} M、 K_D (25°C、pH8.0) = 1.0×10^{-4} M であった。

以上の結果から、ILEI は二量体形成能を有する一方、pH7.3 では二量体の存在比率が小さいこと、また ILEI は細胞外に分泌されてから機能することから、生体内では二量体をほとんど形成していないと考えられる。したがって、単量体と二量体の機能における相違は明らかではないものの、少なくとも単量体で機能を発揮すると考えられる。より詳細な議論はポスター発表で行う。

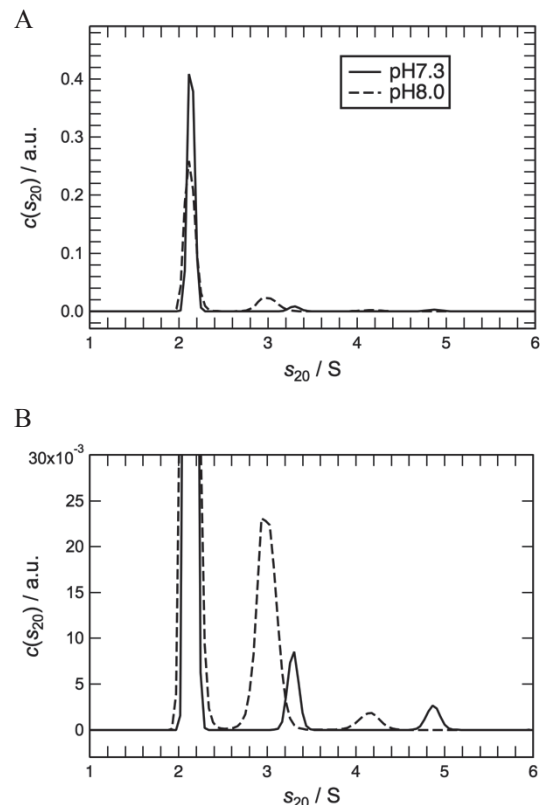


Fig. 1. (A) The solid line and dashed line show distributions of sedimentation coefficient derived from ILEI at pH 7.3 and pH 8.0, respectively. (B) The expanded of the lower range of A.

参考文献

- [1] H. Hasegawa *et al.*, Nat. Commun., 5:3917 (2014).
- [2] A.M. Jansson *et al.*, J. Biol. Chem., 297 (2017) 15501-15511.

(P18) 原子炉および電子加速器を用いた種々のメスバウアー線源の作成

(京大複合研、京大院理¹) ○北尾真司、小林康浩、窪田卓見、齋藤真器名、増田亮、黒葛真行、細川修一¹、田嶋寛介¹、矢崎慎一郎¹、瀬戸誠

1. はじめに

メスバウアー分光は、ある特定の核種について電子状態や振動状態などのさまざまな情報を抽出することができる非常に強力な分光法である。しかしながら、一般的なメスバウアー分光は、放射性同位元素の入手や管理の制限から、密封線源として利用可能な核種に限られているのが現状である。一方、本研究所では研究炉(KUR)による中性子照射により線源を生成して、非密封放射性同位元素の取り扱いができるという極めて限られた設備が整っている。また、電子線線型加速器(LINAC)の利用により、相補的な核種生成が可能になり、線源作成の実現可能性を大きく広げることができる。本研究は、これらを利用した種々のメスバウアー線源を生成して多様な核種のメスバウアー分光法を実用化し、多様な分野に応用することで、本研究所で実施可能な研究を大きく拡大することを目指す。

本研究所ではこれまでより、密封線源による⁵⁷Fe、¹¹⁹Sn、および¹⁵¹Euのメスバウアー分光による研究を積極的に行ってきた。またKURの中性子照射により非密封線源を作成することにより¹²⁵Te、¹²⁹I、および¹⁹⁷Auのメスバウアー分光を実施してきた。本研究では、KURとLINACを相補的に利用し、メスバウアー分光の実用可能な核種の拡大に向けた実験を実施しており、⁶¹Ni、⁶⁷Zn、¹²⁷I、¹⁵⁷Gd、¹⁶¹Dy、¹⁶⁶Er、¹⁶⁹Tm、¹⁷⁰Yb、¹⁹³Irなどのさまざまな核種のメスバウアー分光の実施をめざし、試行を行ってきた。本稿では一例として¹⁶¹Dyメスバウアー分光の現状を報告する。

2. 実験と結果

¹⁶¹Dyメスバウアー分光は¹⁶¹Tb(半減期6.88日)を線源として用いることができる。¹⁶⁰GdのKUR照射により¹⁶¹Gdが生成するが、¹⁶¹Gdがβ崩壊することにより生成する¹⁶¹Tbを線源として利用する。メスバウアー線源としてはメスバウアースペクトルがシングルピークになる線源を作成する必要があり、本研究ではDy_{0.5}Gd_{0.5}F₃化合物を合成して実験を行った。線源物質の合成は、混合したDy₂O₃とGd₂O₃をHClに溶解してHFを加えて沈殿させ、沈殿を洗浄後、真空中で適切な温度制御にて加熱することにより無水Dy_{0.5}Gd_{0.5}F₃を得る方法を用いた。KUR照射は、圧気輸送管による1MW運転で4時間行った。Gdとしては、同位体濃縮していない天然のものを使用したため、副生成物として¹⁵⁹Gd(半減期18.5時間)が生成するが、照射から1週間程度待ってから使用することにより副生成物を減衰させることができる。Fig.1は、シングルピークの吸収体DyF₃を用いて¹⁶¹Dyメ

スバウアー分光を行った結果である。期待されたシングルピークのスペクトルが得られ、実用実験が可能な線源物質の作成に成功したことが確認された。

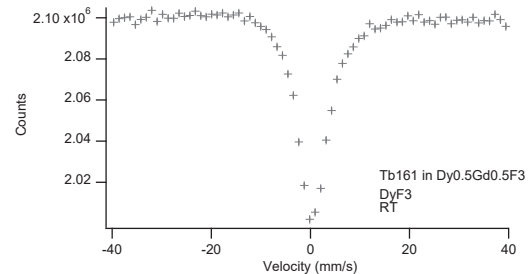


Fig. 1. ¹⁶¹Dy-Mössbauer spectrum of DyF₃ using ¹⁶¹Tb source in Dy_{0.5}Gd_{0.5}F₃ irradiated at KUR.

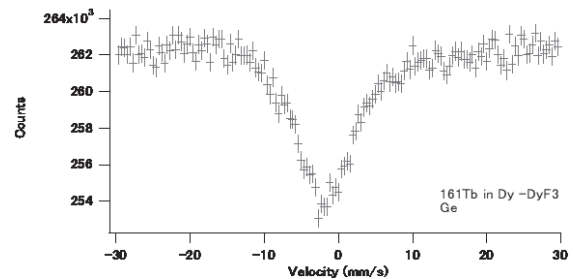


Fig. 2. ¹⁶¹Dy-Mössbauer spectrum of DyF₃ using ¹⁶¹Tb source in Dy metal irradiated at LINAC.

また、本研究所においては、LINACの電子線をPtターゲットに照射して高エネルギーのγ線を発生させ、これを用いた光核反応による核種生成が可能である。メスバウアー線源の¹⁶¹Tbは¹⁶²Dyの(γ,p)反応により生成することが可能である。ここでは、Dy金属を照射してメスバウアー分光実験の試行を行った。Fig.2はシングルピーク吸収体であるDyF₃を用いて、¹⁶¹Dyメスバウアースペクトルを測定したものである。天然のDyの照射では¹⁶¹Dyの(γ,p)反応により¹⁶⁰Tb(半減期72.3日)が副生成物となり、減衰を待つて影響を小さくすることができず、Ge検出器などでガンマ線のエネルギーを弁別する必要がある。LINACによる線源作成では、線源物質の改善や測定の効率化が必要になるが、¹⁶¹Dyメスバウアー線源が作成可能であることが確かめられた。本研究でKURとLINACの相補的な線源作成の可能性が示され、KURを活用した多様な核種のメスバウアー分光実験を推進することに加え、KURを使用しないメスバウアー分光法の可能性を広げることで、多様な分野における応用研究を展開することが期待できる。

Various Mössbauer source preparation using reactor and electron accelerator

Shinji Kitao, Yasuhiro Kobayashi, Takumi Kubota, Makina Saito, Ryo Masuda, Masayuki Kurokuzu, Shuichi Hosokawa, Hiroyuki Tajima, Shin-ichiro Yazaki and Makoto Seto
kitao@rri.kyoto-u.ac.jp

(P19) 耐放射線小型軽量撮像素子の開発—構成要素のガンマ線照射下における挙動

(京大院工、京大工¹、産総研²、木更津高専³、静岡大電研⁴、京大複合研⁵、大阪府大放射線セ⁶)
○後藤康仁、森藤瑛之、半田裕典¹、長尾昌善²、岡本 保³、猪狩朋也³、福井貴大³、増澤智昭⁴、
根尾陽一郎⁴、三村秀典⁴、佐藤信浩⁵、秋吉優史⁶、高木郁二

1. はじめに：福島第一原子力発電所の廃炉作業においては耐放射線性の高い撮像素子が求められている。撮像素子といえば CMOS が一般的であるが耐放射線性が低く、耐放射線撮像素子としては、真空管方式のものが依然として使用されている。これらの素子は長さ 15~20 cm のガラス管に封入されていて大型である上に、フィラメント等における消費電力が高く、廃炉作業のようにロボットに搭載する小型のカメラに使用することは難しい。我々は、従来の電子銃を、微細な電子源アレイ (FEA) に置き換えた小型軽量かつ耐放射線性を有する撮像素子の開発を進めている [1,2]。類似の素子は、日本放送協会の放送技術研究所において超高感度撮像素子として開発がなされてきた [3]。我々は、FEA を静電界のみで集束することができるように改良 [4] するとともに、光電変換膜を放射線検出器などで使用されるテルル化カドミウムにすることで、FEA、光電変換膜とも 1 MGy 以上の耐放射線性能を確認した [5,6]。しかしながら、これらの耐放射線性は素子を動作させず、静的な状態で γ 線照射を行った場合のものである。撮像素子として使用するためには、 γ 線照射下において、FEA および光電変換膜にどのような変化が生じるか、あるいは撮像素子として正常に機能するかを調べる必要がある。今回は γ 線照射下において FEA および光電変換膜の挙動について調査したので報告する。

2. 実験： γ 線照射下における FEA の特性測定は、非蒸発ゲッターポンプを搭載した小型の真空容器内に FEA を設置して行った [7]。FEA はモリブデンを陰極とするスピント型のもので、一画素に 1,000 個のエミッタを持っている。FEA に対向してステンレス鋼製のアノードを設置して、三極管構造における特性を評価した。一方、光電変換膜は p-CdTe/n-CdS 構造のダイオードを用いた。 γ 線照射は京大複合研の γ 線照射装置を用いて行った。FEA は線量率 1.3 kGy h⁻¹ 程度における特性を、光電変換膜は線量率を 1.6 kGy h⁻¹ から 0.3 kGy h⁻¹ 程度まで変化させて特性を測定した。

3. 結果：図 1 に FEA のアノード電流を示す。黒丸は照射前、赤丸は照射後の特性で、白抜きの青丸、緑丸がそれぞれ γ 線照射中の特性である。エミッタ電圧の絶対値が高いところではほぼ重なっている。

エミッタ電圧の絶対値の低いところでは、照射の有無で電流が異なる。この理由は γ 線照射に伴い、FEA および特性計測を行っているケーブルにおける γ 線励起電流が流れるためと考えられる。実際に照射前と照射中 (20 分経過) のアノード電流の差を取ると、低電圧ではほぼ 10 nA で一定であるが、放出電子量が大きくなると、この差も大きくなり、最大 50 nA 程度となった。また、光電変換膜における γ 線励起電流密度は 1 kGy h⁻¹ あたり 100 nA cm⁻² 程度であり、膜厚の低減とともに低減することが明らかとなった。

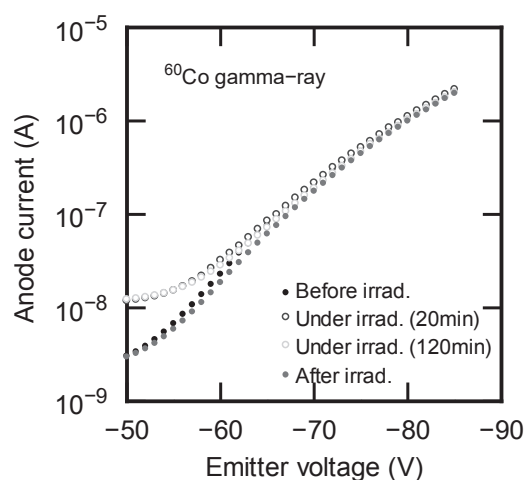


Fig. 1. Variation of anode current of field emitter array before, under and after γ -ray irradiation.

参考文献

- [1] Y. Gotoh *et al.*, KURRI Progress Report (2015) CO4-3.
- [2] Y. Gotoh *et al.*, Tech. Dig. of the 28th International Vacuum Nanoelectronics Conference, IVNC2015 (2015) 240-241.
- [3] Y. Honda *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. B, **33** (2015) 012205.
- [4] M. Nagao *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. B, **34** (2016) 02G108.
- [5] Y. Gotoh *et al.*, Tech. Dig. of the 29th International Vacuum Nanoelectronics Conference, IVNC2016 (2016) 20-21.
- [6] T. Okamoto *et al.*, Phys. Stat. Solid. C, **13** (2016) 635-638.
- [7] Y. Gotoh *et al.*, KURRI Progress Report (2018) CO4-3.

(P20) 水溶液中のトリチウムに対する水酸化物のプロトン交換反応

(物・材機構、量研機構¹、京大複合研²) ○橋爪秀夫、上原章寛¹、福谷哲²、藤井和子、安藤寿浩

1. はじめに：東京電力福島第一原子力発電所の事故以降、発電所の敷地内には汚染水が増え続けている。これは水中のトリチウム(T)を取り除くことができないためである。Tは水素(H)とほぼ同じ性質のためTの除去がきわめて困難なためである。水中のHTOの除去は軽水と沸点の違いを利用した分離など提案されているが、実用化はされていない。また Koyanaka & Miyatake (2015)は酸化マンガがTを吸着することによる分離を提案している。橋爪ら (2016、2018)は酸化マグネシウムが水中で水酸化マグネシウム(Mg(OH)₂)に変化する際にTとの選択的な反応によるTの除去や、Mg(OH)₂やCa(OH)₂のHとTのイオン交換によるTの除去を提案した。

本報告はMg(OH)₂とCa(OH)₂をイオン交換剤として用い、水中のTの濃度の違いによるイオン交換量の変化を調べ、等温線の作成を行っているので報告する。

2. 実験：HTOを含んだ水は京都大学複合原子力科学研究所に保管している水を用いた。イオン交換剤のMg(OH)₂とCa(OH)₂は市販品を使用した。イオン交換剤1gを密栓付き試料ビンに加え、HTOを含んだ水を希釈した希釈水8cm³を加え、密栓し、回転式攪拌機により室温で5時間攪拌した。攪拌時間はイオン交換の時間依存性を調べた結果から得た。希釈は原液を1として、7/8、3/4、5/8、1/2、3/8、1/4、1/8倍希釈をした。攪拌終了後、懸濁液は遠心分離により固相と液相に分離し、液相の上澄み液は0.45または0.2μmのフィルターで処理した。液相および原液を発光剤で1/20倍に希釈し、シンチレーションカウンターで溶液中のTの濃度を測定した。イオン交換量は $E=(C_0-C) \cdot V/W$ (E:イオン交換量、C₀:原液のTの濃度、C:上澄み液のTの濃度、V:溶液の体積、W:イオン交換剤の重さ)で求めた。イオン交換等温線をLangmuirやFreundlichの経験式に当てはめた。Langmuirの式： $E=a \cdot E_s \cdot B/(1+a \cdot B)$ (1)
Freundlichの式： $E=K_f \cdot B^{1/n}$ (2)
ここで、E_s:飽和イオン交換量、B:平衡濃度、a、K_f、n:定数である。

3. 結果：図1にイオン交換等温線を示す。表1は経験式のパラメータである。Mg(OH)₂の場合、平衡濃度が約5×10⁵Bqでイオン交換が平衡に達し、イオン交換量は約650Bq・g⁻¹であった。Ca(OH)₂はMg(OH)₂よりイオン交換量が少なく、平衡濃度が約5×10⁵Bqで約100Bq・g⁻¹でイオン交換がほぼ平衡

に達した。図1ではデータのばらつきが大きくなっている。これはイオン交換量が少ないことが原因と考えられる。今後、実験データの数を増やし、経験式のパラメータの精度を上げる予定である。

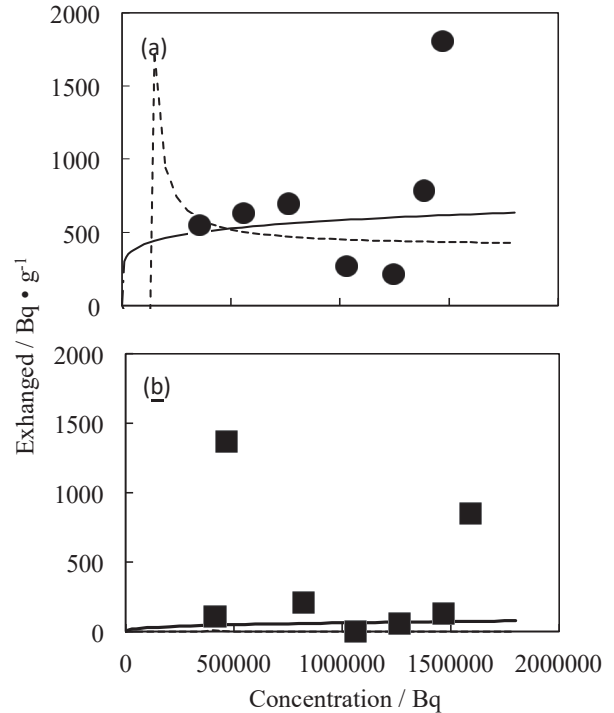


Fig. 1 Isotherms for ionic exchange of tritium by Mg(OH)₂ (a), and Ca(OH)₂ (b). The broken and black lines are for Langmuir and Freundlich equation, respectively.

Table 1. Parameters of Langmuir and Freundlich equation.

	Langmuir		Freundlich	
	Mg(OH) ₂	Ca(OH) ₂	Mg(OH) ₂	Ca(OH) ₂
a	-8.69×10 ⁻⁶	-2.56×10 ⁻⁶	K _f	79.3
E _s	400	1.62	1/n	0.377

参考文献

- [1] H.Koyanaka & H. Miyatake (2015) *Separation Science Technology*, **50**, 2142-2145.
- [2] 橋爪秀夫ら(2016) 特願 2016-135839.
- [3] 橋爪秀夫ら(2018) 特願 2018-43792.

(P21) ウランの金属酸化物への収着反応に関する分光学的評価

(京大院工) ○春本大樹、小林大志、佐々木隆之

1. 背景

ウランは還元的環境下の地下水中で主に 4 価イオンとして存在するが、酸化還元平衡で存在する 6 価ウラニルイオンの炭酸イオンとの錯生成が強いことから、高い炭酸濃度条件下ではウラニルイオン錯体が支配化学種となる可能性がある。そのため、ウランの核種移行評価において、ウラニルイオンの収着挙動把握は重要である。ATR-FTIR 法は収着化学種の状態や収脱着量の変化を評価でき、これまで Fe, Al, Ti のような鉱物中に広く存在する金属の酸化物や水酸化物への収着挙動が調べられてきた[1-3]が、TRU 廃棄物に含まれるジルコロイについての知見は見られない。本報では、ウラニルイオンの酸化ジルコニウム(ZrO_2)への収着挙動について検討した。

2. 実験

室温、大気雰囲気中で ZrO_2 を超純水に溶解し、懸濁液とした。FTIR 測定を行う VERTEX 70v (Bruker) のダイヤモンドプリズム(ATR 部)に懸濁液を $1\mu\text{l}$ 塗布して風乾し、これを 2 回繰り返して ZrO_2 膜を調製した。これに以下の①～③の溶液を 0.1 ml/min で順次通液しながら、所定の時間間隔でスペクトルを記録した；① 0.1 M NaCl (pH 6.07)、② $2\times 10^{-5}\text{ M}$ ウラニル溶液 (pH 6.01)、③ 0.1 M NaCl (pH 6.07)。なお、各溶液には大気平衡の炭酸イオンが溶存している。

ある溶液の通液中に測定した 2 つの吸光スペクトルを比較し、差スペクトルを得る。そのスペクトルにおけるピーク波数と吸光度は、収脱着した化学種の状態とその量の変化を表す。ピークの正・負は、固相への化学種の収着・脱離を意味する。

3. 結果

図 1 に溶液②の通液時の差スペクトルを示す。この過程において、 907 cm^{-1} に見られる正のピークは、ウラニルイオンの ZrO_2 への収着であると考えられる。熱力学計算によれば、溶液②の液性におけるウランの溶液内支配化学種は $(UO_2)_3(OH)_5^{+}$ であり、ピーク波数は 923 cm^{-1} と報告されている[4]。収着化学種がこのウラニル水酸化物であると仮定した場合、図 1 で見られたピーク波数とのずれは、固相への収着に起因するものと解釈される [2]。

1330 cm^{-1} 、 1560 cm^{-1} にある 2 本の負のピークは炭酸の非対称 C-O 伸縮振動(ν_3)であり、ピーク波数の差($\Delta\nu_3$)は 230 cm^{-1} である。これは ZrO_2 固相に bidentate 結合をしていた炭酸イオンの脱離反応と推

察される[5]。また、同炭酸イオンの正のピークは観測されなかったため、ウラニルイオンの収着にあたり炭酸イオンの寄与 (e.g.ウラニル炭酸錯体)は無いものと考えられる。

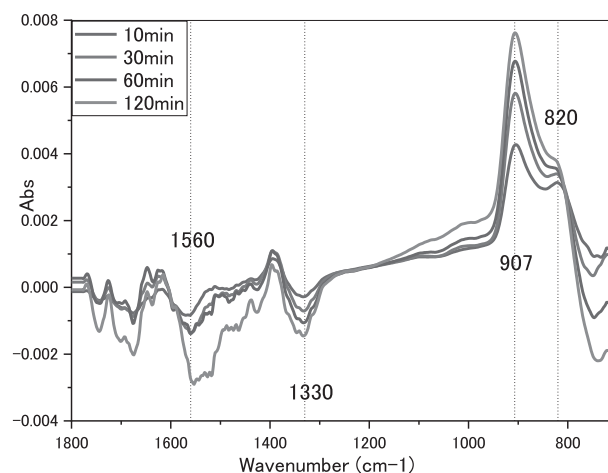


図 1 ウラニル溶液(②)通液時の差スペクトル

発表当日は、溶液①および③を通液した際の結果を併せて報告し、そこでの収脱着反応について考察する。

参考文献

- [1] K.Müller *et al.*, "Sorption of U(VI) at the TiO_2 -water interface: An in situ vibrational spectroscopic study", *Geochimica et Cosmochimica Acta.* **76** (2012) 191-205.
- [2] K.Gücel *et al.*, "Binary and ternary surface complexes of U(VI) on the gibbsite/water interface studied by vibrational and EXAFS spectroscopy", *Chemical Geology.* **326-327** (2012) 27-35.
- [3] H.Foerstendorf *et al.*, "The complexation of uranium(VI) and atmospherically derived CO_2 at the ferrihydrite-water interface probed by time-resolved vibrational spectroscopy", *Journal of Colloid and Interface Science.* **377** (2012) 299-306.
- [4] F. Quilès, A.Burneau, "Infrared and Raman spectra of uranyl(VI) oxo-hydroxo complexes in acid aqueous solutions: a chemometric study", *Vibrational Spectroscopy* **23** (2000) 231-241.
- [5] G.Busca, V.Lorenzelli, "Infrared spectroscopic identification of species arising from reactive adsorption of carbon oxides on metal oxide surfaces", *Materials Chemistry.* **7** (1982) 89-126.

(P22) 福島第一原発周辺土壌に沈着した FP の深部移行挙動

(京大院工) ○的場大輔、佐々木隆之、小林大志

1. 緒言

東京電力福島第一原発事故では原子炉から大量の放射性物質が大気中に放出され、広域の森林土壌に拡散沈着した。特に事故直後、特定の方角にブルーム状に拡散した放射性物質の濃度は極めて高い。 ^{137}Cs 等のガンマ線核種は濃度測定も比較的容易であるが、 ^{90}Sr はベータ核種で、かつ比較的濃度が低い。そのため、十分な調査が行われてこなかった。特に森林土壌中における移行挙動を理解する上で必要な深さ方向の濃度分布に関するデータは限られており、土壌の構成成分と ^{90}Sr の結合形態別の存在割合などの情報は皆無である。一方、事故時に原子炉から放出された Sr の拡散挙動のより詳細な理解には、比放射能の高い原発オンサイト周辺における ^{90}Sr 濃度の調査が有用であると考えられる。本研究では、ICP-MSによる土壌中 ^{90}Sr 迅速分析法[1]により、土壌深度プロファイルを得た。さらに逐次抽出実験により土壌中の両核種を結合状態に分画し、その結果をもとに深部土壌中における移行挙動の解釈を試みた。

2. 実験

2. 1. 深度プロファイルの測定

福島第一原発の南側ブルーム軌跡上の線量率が高い地点において、スクレイパープレートを用いて表層から深さ 20 cm までの土壌を 1 cm 刻みで採取、乾燥させた。 ^{137}Cs をはじめとするガンマ核種濃度は、U-8 容器を用いて Ge 半導体検出器により測定した。 ^{90}Sr 濃度は、乾燥土壌を 500°C で 4 時間灰化した後、熱硝酸により土壌粒子表面から ^{90}Sr を溶離し、酸溶離中の ^{90}Sr を ICP-MS (ELAN DRC II, PerkinElmer)により測定した。なお、溶離液に含まれるマトリクス元素や ^{90}Zr や ^{90}Y などの ^{90}Sr 同重体は、Sr レジン (Eichrom)による前濃縮システムおよび ICP-MS 内での酸素リアクションセルにより除去した。

2. 2. 逐次抽出

逐次抽出法としてチェルノブイリ周辺の酸性土壌への適用で実績がある Shand らの手法[2]を参照した。ただし、本研究で用いる土壌の供試量が多いことなどに鑑み、用いる試薬の量や分画の数を一部変更した。本研究で用いた逐次抽出法の流れを図 1 に示す。

3. 結果と考察

測定により減重率、 ^{137}Cs および ^{90}Sr 濃度の深度プロファイルの一例を図 2 に示す。灰化減重率は木の根や落ち葉等の有機物成分が多く含まれる表層ほど高い。 ^{137}Cs は表層付近での濃度が高く強い収着が示唆された一方、 ^{90}Sr は ^{137}Cs より深部へ移行した割合

が高い。

逐次抽出実験において ^{137}Cs は表層付近に水抽出態が検出されたものの、どの深度においても土壌粒子に強く吸着している固定態が大半を占めることが分かった。当日は ^{90}Sr の逐次抽出実験の結果、および ^{137}Cs と ^{90}Sr の土壌深部への移行挙動に関する解釈を示す予定である。

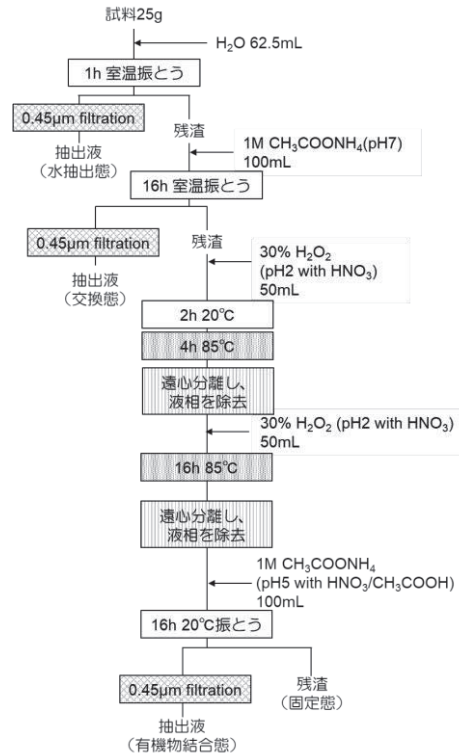


図 1. 本研究で適用した逐次抽出実験の流れ

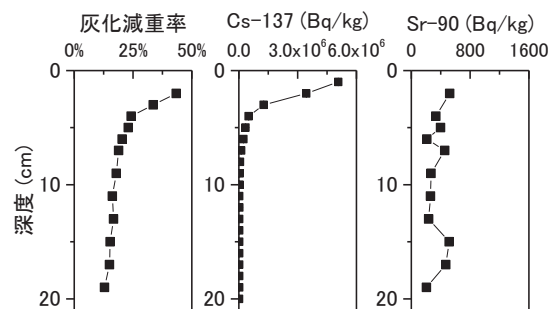


図 2. 灰化減重率、 ^{137}Cs および ^{90}Sr 濃度の深度プロファイルの一例 (南②地点、2016年1月採取)

参考文献

- [1] Y. Takagai *et al.*, Anal. Methods, **6** (2014) 355-362.
 [2] C.A.Shand *et al.*, J. Environ. Radioactivity, **23** (1994) 285-302.

(P23) 金属間化合物に対する量子線照射効果による微細構造変化

(大阪府大、九大応力研¹、京大複合研²) ○鷹野陽弘、角倉優雅、杉田健人、大澤一人¹、徐 虬²、堀史説

1. はじめに：放射線がもたらす材料への影響については、原子力材料の劣化や脆化といった負の影響について多く研究されてきた。一方で、粒子線照射がもたらす材料へのユニークな現象をもとに、材料改質の手法として粒子線照射を利用しようとする研究も行われている。我々の研究グループは、優れた高温耐性や高強度を誇り構造材料として利用されている Ni 基金属間化合物に粒子線を照射すると、結晶構造から非平衡相であるアモルファス状態に変態することを発見した[1]。よりアモルファス化のメカニズムに迫るために、金属間化合物の中でも元よりアモルファス化しやすい、つまりガラス形成能の高い合金系である $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ の結晶バルク材(以下、 $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ 合金)へ粒子線照射を行うことでアモルファス化あるいは結晶構造の安定性についての知見を与えることが可能であると考えた。このようにガラス形成能の高い合金への照射効果が Ni 基金属間化合物などのように容易な構造変化やアモルファス化の傾向を示すかどうか材料改質やプロセスの解明に繋がると考え、研究を行っている。

2. 実験： $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ の結晶バルク材を厚さ 0.5mm 程度のディスク状に切り出したものを用いた。粒子線照射を電子線、H イオン、Xe イオンについて行った。電子線照射は加速電圧 8MeV で照射量 $2.0 \times 10^{18}/cm^2$ 、H イオン照射は加速電圧 1.5MeV と 380keV で照射量はどちらも $5.0 \times 10^{16}/cm^2$ として照射を行った。Xe イオン照射は加速電圧 200MeV で照射量は $1 \times 10^{14}/cm^2$ 、 $5 \times 10^{14}/cm^2$ で行った。照射前後の試料に対して、X線回折測定、陽電子寿命測定、同時計数ドップラー拡がり測定、ビッカース硬さ測定を行った。

3. 結果：Fig.1 に電子線照射前後及び H イオン照射前後 Xe イオン照射前後における $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ 合金の X 線回折測定のプロファイルを示す。また Table. 1 に $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ 合金への粒子線照射前後における陽電子寿命値を示す。未照射の $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ 合金については主に Zr_2Cu と Zr_7Cu_{10} の結晶構造をもつことがわかった。今回の実験ではいずれの粒子線照射の前後においても X 線回折で観察されるようなハローピークは現れなかった。よってアモルファス化は起こらず結晶構造を維持していることが確認できた。電子線照射前後で大きなピークの変化は見られなかった。よって構造の変化など長距離秩序構造の変化は見られなかった。H イオン照射をすると

Zr_7Cu_{10} のピークが一部消失した。 Zr_2Cu の構造は保持された。はじき出された原子がエネルギーを持ち、さらなるはじき出しを引き起こすカスケード損傷により、電子線照射と比較しておおきな欠陥が導入されたと考える。とくに高エネルギーの照射で、表面の構造が乱れた。さらに大きなエネルギーを持つ Xe イオンを照射すると、構造の乱れが顕著に表れた。

一方、陽電子寿命は増加していることから欠陥が導入され構造が乱れたと考えられる。陽電子寿命値は陽電子が見ている領域の平均寿命値であり、試料の表面付近に限られるイオン照射による損傷が全体に及んでいると仮定すると欠陥の陽電子寿命値は約 250~400psec になる。これは、自由体積より大きな集合体になっていることを示唆し、照射領域で大きく構造が乱れ構造変化に関与したと考えられる。加えて、この空孔集合体が残存していることから照射中に短範囲空孔成長が起こっている事がわかった。

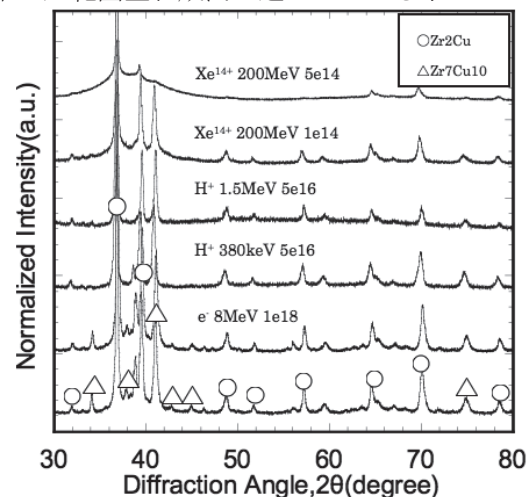


Fig. 1. Result of X-ray diffraction measurement of $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ alloy before and after irradiation with particle beam.

Table. 1. Positron lifetime before and after irradiation of particle beam to $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ alloy.

試料- $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ 合金	陽電子寿命 (ps)
未照射	154.2
e^- 8MeV $1e18/cm^2$	177.7
H^+ 380keV $5e16/cm^2$	160.2
H^+ 1.5MeV $5e16/cm^2$	158.6
Xe^{14+} 200MeV $1e14/cm^2$	175.8
Xe^{14+} 200MeV $5e14/cm^2$	180.0

参考文献

[1] H. Kojima, *et al.*, Nucl. Instr. Meth. B, **372** (2016) 72.

(P24) J-PARC MLF BL06 MIEZE 型スピンエコー分光器の現状

(京大複合研, KEK 物構研¹) ○小田達郎, 日野正裕, 川端祐司, 遠藤仁¹

中性子スピンエコー法は, 中性子のスピン固有状態間の位相の情報を用いることで, 試料で散乱された中性子のわずかな速度変化を検出する準弾性散乱分光法である. Modulation of intensity with zero effort (MIEZE) [1] と呼ばれる手法では, 試料に入射するビームは, 一つのスピン固有状態にあって, エネルギー差のついた重ね合わせ状態である. これにより, 従来のスピンエコー法では困難な, 高磁場などの試料環境やスピンフリップ散乱を起こす試料の測定が容易になる. MIEZE 法のエコーシグナルは中性子強度の時間的な正弦振動であり, ショートパルス中性子ビームを用いることで, MIEZE 条件と呼ばれる機器配置の制約が緩和されるなど, 装置の実装のために非常に有利な特長がある [2]. 我々は, このようなパルスビームを用いた MIEZE 法 (TOF-MIEZE と呼ぶ) の特長を活かすことによって, 従来の装置が得意としてきたソフトマターのスローダイナミクス研究だけでなく, 磁性体のダイナミクス研究など, スピンエコー法の新たな研究対象を開拓することを目指して, MIEZE 分光器の開発を行っている.

茨城県東海村にある大強度陽子加速器施設 (J-PARC) の物質・生命科学実験施設 (MLF) の BL06 中性子共鳴スピンエコー分光器群 (VIN ROSE) [3] には, NRSE (Neutron resonance spin echo) と MIEZE の 2 種類の共鳴型スピンエコー装置が建設されている. 図 1. (a, b) に MIEZE 分光器の模式図と共鳴スピンフリップによる中性子エネルギー変化の図を示す. 第 1, 第 2 共鳴スピンフリップの振動数が ω_1 と ω_2 のとき, $\pi/2-\pi-\pi-\pi/2$ 体系では, MIEZE の実効振動数は $2(\omega_2 - \omega_1)$ となる. 低振動数では最小構成の $\pi/2-\pi/2$ 体系を用い, これまで BL06 では, 20 kHz から 800 kHz の実効振動数の TOF-MIEZE シグナルを観測した. 図 1. (c, e, f) に振動数 400 kHz の MIEZE シグナルを示す [4]. 図 1. (d) は (c) の MIEZE シグナルを Fourier 変換した周波数スペクトルであり, 400 kHz の位置に明瞭なピークが観測できる. 中性子パルスの繰り返し周波数 12.5 Hz の 2nd フレームを用いると, およそ 0.3 から 1.2 nm の波長を利用できる. 試料-検出器間距離 (L_{sd}) 1.0 m の条件では, 振動数を切り替えることで, 分解能の指標である Fourier 時間としては数 ps から数 ns をカバーできる.

今後冷凍機やマグネットなどの試料環境の整備を進めるとともに, 広い時空間領域に対応できるように試料-検出器間距離の延長や大面積検出器の整備を行い, MIEZE 分光器での試料測定を進める.

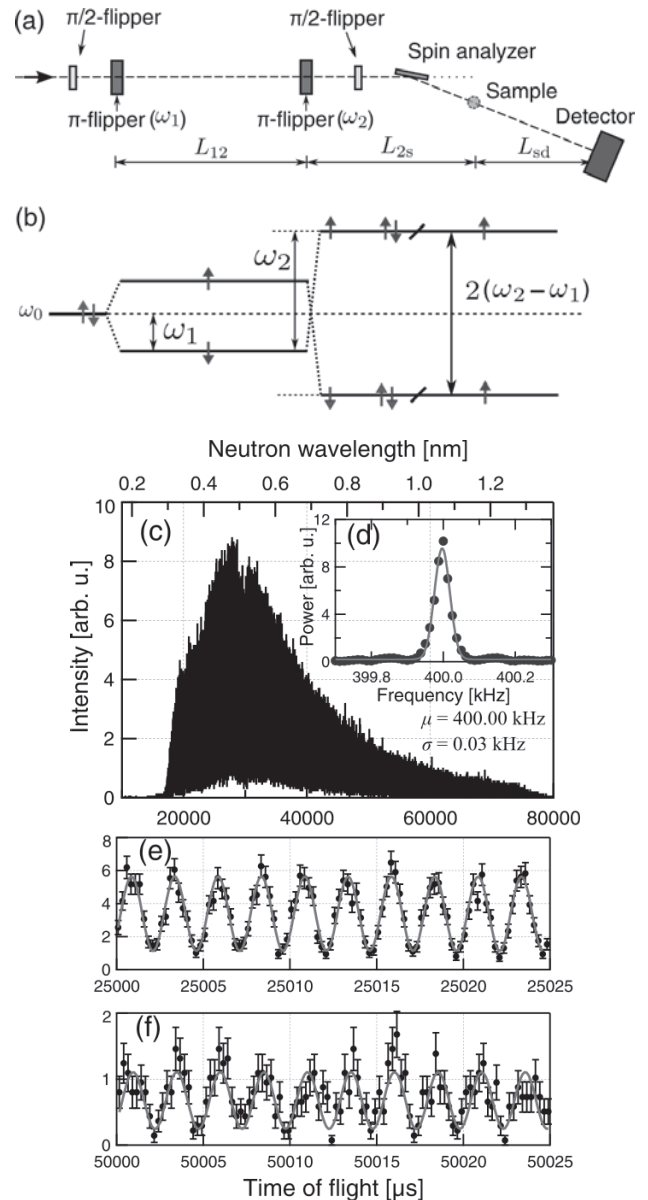


Fig. 1. (a) Schematic of a MIEZE instrument. (b) Neutron energy diagram in a $\pi/2-\pi-\pi-\pi/2$ configuration. (c) MIEZE signal in wide TOF frame. (d) Fourier transform of the 400-kHz MIEZE signal. (e, f) Ten periods of MIEZE signal at TOF points of 25 and 50 ms. The solid lines are sine curve fit [4].

参考文献

- [1] R. Gähler *et al.*, *Physica B* **180** (1992) 899-902.
- [2] T. Oda *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.* **87** (2016) 105124.
- [3] K. Nakajima *et al.*, *Quantum Beam Sci.* **1** (2017) 9.
- [4] T. Oda *et al.*, *JPS Conf. Proc.* (2018) in press

(P25) 照射還元法により合成した Cu 合金ナノ粒子の安定化と微細構造

(大阪府大院、東北大金研¹、独立行政法人産総研²、大阪府大推進機構³、京大原子炉⁴)

○内村祐也、戸田晋太郎、田中元彬、水越克彰¹、田口昇²、田中真悟²、松井利之³、徐虬⁴、堀史説

1. 【緒言】金属ナノ粒子は、構成原子の数が極めて少なくなることで電子の量子効果によりバルク体とは違った新しい特性の発現や特性の変化が見られる場合がある。そのような観点から、ナノ粒子の合成による元素戦略的な新規機能性材料の開発の方法の一つとして様々な金属に対してのナノ粒子化が試みられている。中でも、Cuは高い電気伝導率を有した電導体材料であり、配線材料として最も使用されているが、半導体などの電子デバイスの配線には主にCuより高価なAgが用いられている。これは電気回路のパターンニングにインク材としてAgのナノ粒子化が進んでいるためであり、Cuは酸化および還元法での生成において溶解が起こりやいなどナノサイズでの安定化が問題となっている。我々のグループではこれまで非平衡還元反応を励起促進する照射場還元法を用いて、これまでにナノサイズでのCuの還元合成に成功しており、さらにこの方法でAuやAgとの合金化にも成功してきた。本研究では、Cu系ナノ微粒子の合成過程における構造制御プロセスの検討と粒子の合金化による安定性と微細構造についての検討を行った。

2. 【実験方法】

同時還元による合金粒子合成

純水に濃度比を変えて酢酸銅 $\text{Cu}(\text{COOCH}_3)_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 、四塩化金酸ナトリウム $\text{Na}(\text{AuCl}_4) \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、界面活性剤ドデシル硫酸ナトリウム $\text{NaC}_{12}\text{H}_{25}\text{SO}_4$ を加え20 mlに調製した。これを10分間Arガスで脱気し、プラスチック容器に試料を封入した。この密封容器を γ 線照射(京都大学原子炉実験所にて線量率2.0kGy/h、照射線量20 kGyを行った。

二段階照射によるCu-Auナノ粒子の合成

純水に $\text{Na}(\text{AuCl}_4) \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 0.5 mM、界面活性剤 SDS 8.0 mM を加え調製し、10分間 Ar ガスで脱気し、 γ 線照射(線量率 2.0 kGy/h、照射線量 10 kGy)を行った。その後照射した試料に $\text{Cu}(\text{COOCH}_3)_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 1.0 mM と界面活性剤 SDS 8.0 mM を加えたのち一度目と同じ条件で γ 線照射を行った。同様に金と銅イオンの添加照射順を逆にして同様の実験も行った。照射直後の溶液は吸光度分析(UV-vis)、透過型電子顕微鏡観察を行った。更に、粒子の安定性を調べるために試料を大気に暴露して放置したのちに UV-vis 測定を行った。ナノ粒子の微細構造は走査型透過電子顕微

鏡による観察を行った。

3. 【結果】図1は混合比 Cu:Au=2:1 の濃度比で同時還元生成したナノ粒子の EDS 分析電子顕微鏡写真である。この写真より、ナノ粒子が中心に Au で表面を Cu が覆っているコアシェル構造になっていることがわかる。この構造は、いずれの順番の2段階の照射によっても同じであった。ただし粒径が大きい順に Au-Cu 2段階(40nm)、同時混合(10nm)、Cu-Au 2段階(6nm)照射であった。逆の照射順でも同じタイプのコアシェル型になったのは、還元電位の強い Au が先に生成していた Cu 粒子に対し、Au が還元反応して析出することで Cu が再溶解したためではないかと考えられる。そのため、混合比を変えることにより構造制御の可能性が示唆された。一方、生成したコアシェル型ナノ粒子を大気中に2ヶ月以上暴露後しても安定に存在していることがわかった(図2)。

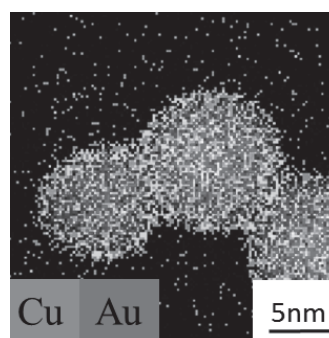


図1 銅と金イオンのガンマ線による同時還元で生成したコアシェルナノ粒子のEDS分析像

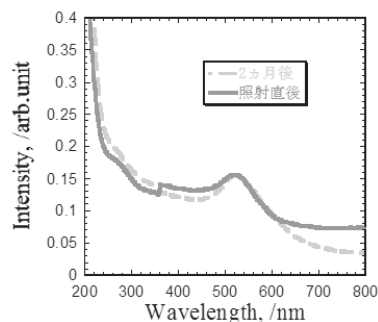


図2 ガンマ線で生成したAu-Cu コアシェルナノ粒子の吸光度の時間変化

Synthesis of Cu nanoparticles stabilized by alloying under gamma-ray irradiation field.

Yuya Uchimura, Shintaro Toda, Motoaki Tanaka, Yoshiteru Mizukoshi, Noboru Taguchi, Shingo Tanaka, Toshiyuki Matsui, Xu Qiu, Fuminobu Hori
mc106002@riast.osakafu-u.ac.jp

(P26) 高純度タングステンにおける電子線照射誘起空孔の回復挙動

(京大院工、京大複合研¹) ○田中美穂、藪内敦¹、木野村淳¹

1. はじめに：一般的に金属中に過剰に導入された原子空孔は、空孔が動ける温度であれば空孔同士が結合（クラスタリング）し空孔集合体・ボイドを形成する。これは、空孔同士の結合エネルギーが正であるためである。しかし近年、タングステン中の空孔同士の結合エネルギーが負であることが第一原理計算による研究で予測された[1,2]。タングステン中の空孔挙動に関してはこれまでも陽電子消滅法を用いて多くの研究がなされてきたが、核融合炉材料としての興味から水素・重水素イオンやヘリウムイオン照射を用いて行われたものが多い[3-5]。しかしそれらの注入原子の存在は空孔挙動に大きな影響を与えることが予測される[6,7]。そこで本研究では、純度 5N (99.999%) の高純度タングステンに 8 MeV 電子線照射によって導入した空孔型欠陥の集合・回復挙動について陽電子寿命測定法を用いて調べた。

2. 実験：本実験では 5 mm×10 mm×0.8 mm に切り出した高純度タングステン（金属技研株式会社、99.999%）を使用した。機械研磨、2473 K 以上でのアニールを行った後、KURRI-LINAC で 8 MeV の電子線照射を行った。照射量は $5 \times 10^{19} \text{ e}^-/\text{cm}^2$ とし、冷却水中で 100 °C 以下に保ちながら照射した。冷却水からの水素導入を防ぐため、試料をアルミ管中に封入した。電子線照射後、室温から 1423 K まで 50 K 間隔で温度を上げながら等時焼鈍を行った。各温度で 15 分間焼鈍した後、室温で陽電子寿命測定を行った。

3. 結果：図 1 に等時焼鈍過程における陽電子寿命スペクトルの解析結果を示す。電子線照射直後のスペクトルを二成分解析すると、短寿命 $\tau_1=49.1 \text{ ps}$ 、長寿命 $\tau_2=174.2 \text{ ps}$ が得られた。 τ_2 が単空孔の寿命値 173 ps[8]と近い値をとっており、573 K 以下では 90% 以上の陽電子が単空孔で消滅していることが分かる。623K から空孔で消滅する陽電子の割合が減少し始め、623-723 K で空孔成分の寿命値の増加とその強度の減少が著しく見られることから、空孔が移動し始め、クラスタリングが起きていると考えられる。1373 K でのアニール後は強度が 10%以下になっており、空孔クラスターが回復したことを示している。本実験では、タングステン中の空孔同士の結合エネルギーが正であることを示唆する結果が得られた。

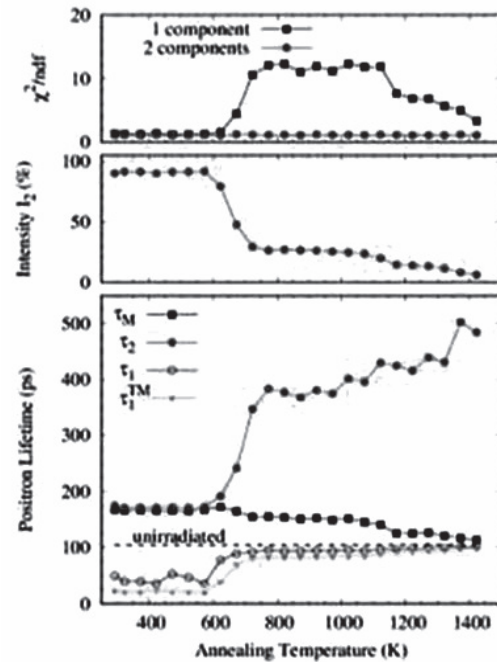


Fig. 1. positron lifetimes (τ_1 , τ_2 , and τ_M), intensity (I_2), and variance of the fit (χ^2/ndf) obtained for electron-irradiated tungsten samples as a function of annealing temperature.

ただし、試料中に存在する不純物が空孔回復挙動に影響した可能性も考えられ、今後検討する必要がある。

参考文献

- [1] L. Ventelon *et al.*, Nucl. Mater. **425** (2012) 16–21.
- [2] Y. Oda *et al.*, Plasma Fusion Res., **9** (2014) 3401117-1–3401117-4.
- [3] A. Debelle, *et al.*, J. Nucl. Mater. **376** (2008) 216–221.
- [4] V.S. Subrahmanyam, *et al.*, Solid State Commun. **89** (1994) 523–527.
- [5] H. Eleveld *et al.*, J. Nucl. Mater. **212–215** (1994) 1421–1425.
- [6] A. Yabuuchi *et al.*, J. Phys: Conf. Ser. **191** (2009) 012019-1–012019-4.
- [7] A. Yabuuchi *et al.*, J. Nucl. Mater. **430** (2012) 190–193.
- [8] K. Sato *et al.*, Nucl. Mater. Energy **9** (2016) 554–559.

(P27) KUCA における DT 加速器開発の現状

(京大複合研) ○栗山靖敏、田中良明、小林徳香、竹下智義、上田哲也、吉野泰史、飯沼勇人、卞哲浩、高橋佳之、山中正朗、不破康裕

1. はじめに：

京都大学臨界集合体 (KUCA) に設置されている DT 加速器は、パルス状中性子発生装置として昭和 53 年 11 月に使用前検査に合格し、昭和 55 年より共同利用装置としての使用が開始された。本加速器は、コッククロフト型加速器であり、D⁺イオン源、加速管、トリチウムターゲットから構成され、14 MeV の単色中性子を発生させることが可能である[1]。既に設置から 40 年近くが経過し、構成機器の経年劣化が進んでいる。また、2018 年 11 月時点においては、ビーム強度は設置当初の約 30 分の 1 となっており、早急な原因追求及びビーム強度の改善が切望されている。本発表では、現在進行している DT 加速器の開発の現状について報告する。

2. フィラメント製作：

D⁺を生成するためのイオン源では、熱電子の発生のために、網状の白金-ロジウム合金を成型しコーティングを施したものを使用している。本フィラメントは内製のものであり、歩留及び品質の不均一性が問題となっている。そのため、これらの問題を解決するために陽子加速器で一般的に使用されている LaB6 フィラメント[2]への移行を検討しているが、プラズマチェンバーの再設計など課題は多い。

3. イオン源引き出し部の放電事象の抑制：

プラズマチェンバーから D⁺を引き出すために、30 kV を引き出し電圧として使用している。イオン源引き出し部の放電を抑制するために SF6 (六フッ化硫黄) ガスを封入する設計となっているが、SF6 が約 30 分程度で抜けてしまい、放電が頻発ようになっていた。そのため、ガス封入部のアクリル製カバーを本年度に製作し直し、DT 加速器の通常運転時間である約 5~6 時間にわたり放電事象が抑制されることを確認している。図 1 に本イオン源の写真を示す。また、イオン源内部での放電が推測されたため、プラズマチェンバーの再製作を実施している。

4. ビーム診断系の整備：

ビーム強度減少の要因としては、イオン源出力の低下、ビームトランスポートにおけるビーム輸送効率の低下が考えられる。これまでビーム強度の測定には、加速管下流のビームシャッターまたはトリチウムターゲット直前のビーム電流モニターが使用可能であったが、イオン源からの出力を

直接的に測定するモニターは設置されていなかった。そのため、本年度にイオン源引き出し部下流にビーム電流測定用モニターの設置を行った。本モニターは、真空を維持したまま抜き差しが可能であり、任意のタイミングでビーム強度を測定することが可能である。また、加速管下流においてビームプロファイルが測定可能となるようにプロファイルモニターのインストールを検討している。

5. 運転状態記録の遡及性：

DT 加速器の運転記録については、ログノートに所定のフォーマットを利用して記録する方式を使用している。フォーマットはビーム強度等を記録するだけの簡易のものであり、本ログから加速器の状態を再現することは難しい。しかし加速器の全てのパラメーターを都度記録することは運転者の大きな負担となるため、制御ソフトウェア EPICS[3]を導入し、コンピューターを使用した自動記録システムの構築を本年度に予定している。図 2 に DT 加速器の制御に使用している制御盤の写真を示す。

6. まとめ：

上記に加え、昨年度には真空機器の更新を、今年度にはトリチウムターゲットの更新を実施している。これらの結果、今年度では昨年度比で 2 倍以上の中性子発生量を達成しており、今後は来年度以降の運転に向けて、経年劣化した機器の更新及びビーム強度低下の原因追求を実施する予定である。

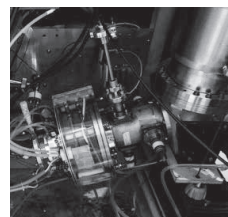


Fig. 1. Deuteron Ion-source



Fig. 2. DT Accelerator Control Panel at KUCA Control Room

参考文献

- [1] C. Ichihara *et al.*, KURRI-TR-240 (1983).
- [2] L. W. Swanson and T. Dickinson, *Appl. Phys. Lett.* 28, 578 (1976); doi: 10.1063/1.88597.
- [3] <https://epics-controls.org>

Development Status of DT Accelerator at KUCA

Yasutoshi Kuriyama, Yoshiaki Tanaka, Norika Kobayashi, Tomoyoshi Takeshita, Tetsuya Ueda, Hirofumi Yoshino, Yuto Iinuma, CH Pyeon, Yoshiyuki Takahashi, Masao Yamanaka, Yasuhiro Fuwa
kuriyama@rri.kyoto-u.ac.jp

(P28) 垂直ロッドバンドル流路内における局所界面積濃度の特性に関する研究

(京大複合研、北大工¹、原子力機構²、パーデュー大³) ○沈秀中、三輪修一郎¹、肖毅赓¹、孫昊旻²、日引俊³

1. はじめに：ロッドバンドル流路は、コンパクトな構造と、加熱された構成要素のロッドから熱を効率的に除去する機能が提供でき、軽水型原子炉の燃料集合体利用されている。その性能は原子炉の安全性に大きく影響するため、バンドル流路における二相流挙動を正確に予測する必要がある。二相流挙動予測に広く用いられる二流体モデルは界面積濃度等の実験データに基づく構成方程式に大きく依存している。本研究では、高精度データベース構築のため、6×6ロッドバンドル流路内局所計測実験を実施した。

2. 実験：概略を図1に示す空気-水二相流実験装置を用いた。循環ポンプ、圧縮機から吐出された水及び空気流量はフローメータで計測された後、気水混合部に入る。気水混合部で生成された二相流は、垂直試験部に沿って上昇し、気水分離器で二相に分離される。試験部は、長さ3m内部辺長10cmの正方形断面ダクトと36本直径10mmのアルミ棒から構成される。水力等価直径 D_H は18.7mmである。全試験部に対して6箇所の差圧計(DP1~6)と上部1箇所($z/D_H=149$)のダブルセンサープローブ[1]を設置し、局所計測を行った。局所計測領域は、断面内1/8三角ゾーン(16点での測定)である。

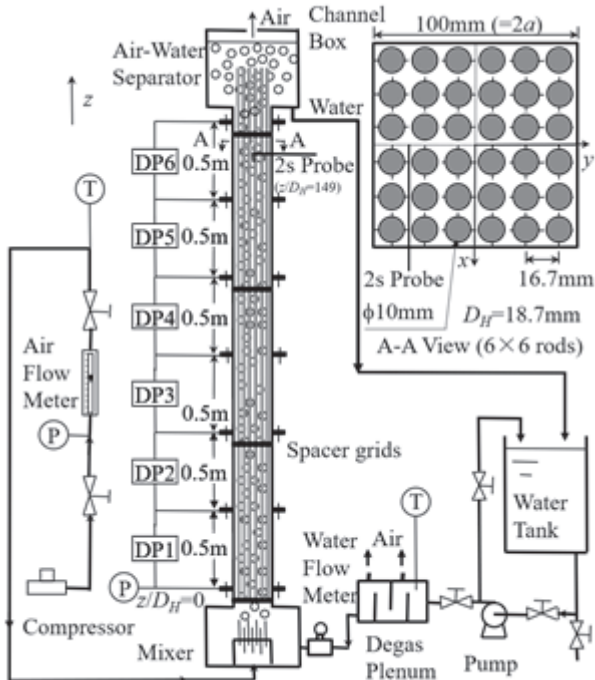


Fig. 1. Schematic of experimental apparatus.

3. 結果：本実験の局所計測結果の一部を、図2~4に示す。図2と3の典型的なボイド率と界面積濃度

(断面内1/8三角ゾーン)は径方向コアピーキング分布を形成している。サブチャンネルの平均法を利用した実測断面平均ボイド率と界面積濃度を、図4においてドリフトフラックスモデルと界面積濃度相関式の予測値と比較した。その比較結果により両者が大概一致することが分かった。

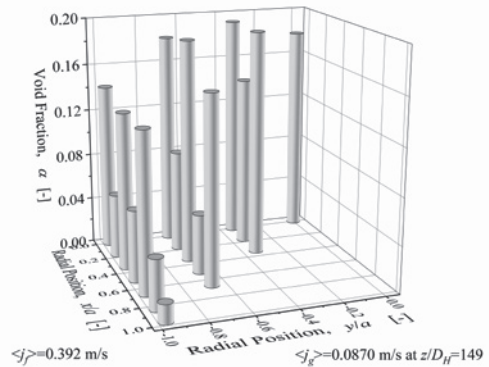


Fig. 2. Typical void fraction profiles

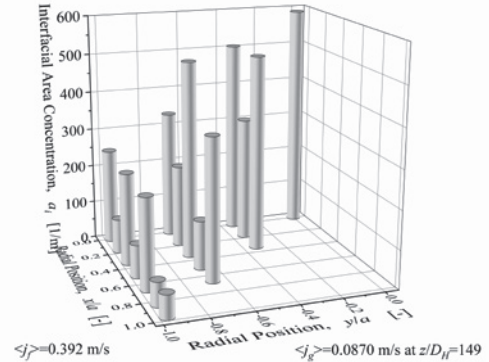


Fig. 3. Typical interfacial area concentration (IAC) profiles

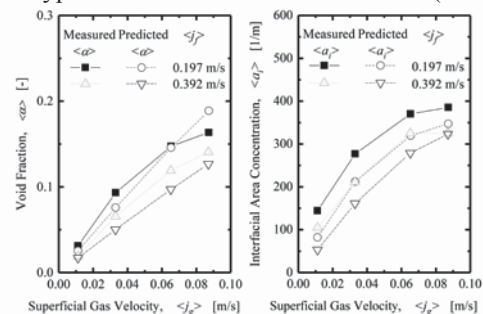


Fig. 4. Measured void fractions and IACs vs predicted void fractions from Ozaki et al. [2] drift-flux model and IAC from Shen and Deng [3] correlation

参考文献

- [1] T. Hibiki *et al.*, Nucl. Eng. Des., **184** (1998) 287-304.
- [2] T. Ozaki *et al.*, J. Nucl. Sci. Tech., **50** (2013) 563-580.
- [3] X. Shen, B. Deng, Int. J. Multiph. Flow, **87** (2016) 136-155.

(P29) 化学交換法における同位体分別研究

(大産大、東工大原子炉¹、阪大工²、京大炉³) ○碓隆太、義本孝明、佐久間洋一¹、藤井俊行²、福谷哲³、芝原雄司³

1. **はじめに**：ストロンチウムの核種移行に伴う同位体分別研究として、同位体効果が見やすく取扱いも容易な同族元素のカルシウムを用いて、質量分析計により、大環状ポリエーテル（各種クラウンエーテル）等による液-液抽出・化学交換法に対する同位体分別効果、特にフィールドシフト、マスシフト、核スピン効果等、質量に依存しない同位体効果も含めた依存性の検証を行う。分離標的に応じた適切なクラウンエーテルを選択することにより、金属イオンのみならず、同位体分離・濃縮にも有効であることを見出した[1]。

2. **実験**： $^{40}\text{Ca}^{2+}$ (水相) \rightleftharpoons $^{48}\text{Ca}^{2+}$ L(有機相) \rightleftharpoons $^{48}\text{Ca}^{2+}$ (水相) \rightleftharpoons $^{40}\text{Ca}^{2+}$ L(有機相)：(Lはクラウンエーテル)
液-液抽出法で、上記化学平衡により選択的に軽元素(^{40}Ca)がクラウンエーテル側に濃縮され、TIMSを用いた同位体比測定から質量効果を確認した。20mLの水相(3Mの塩化カルシウム水溶液)と、200mLの有機相(0.07Mのクラウン・クロロホルム溶液)を磁気スターラーで30分・60分、室温で攪拌及び静置・分離(分液漏斗)した。今回、この液-液抽出法を6回繰り返し多段抽出を行った。

3. **結果**：逆抽出法では、化学分離では最大の分離係数を得た[2]一方、Ca濃度は4段目以降6桁落ちのため、同位体比はほぼ3段目までしか測定出来ず、多段化は実質困難であった。そこで、図1の新バッチ法を考案し、Ca濃度を維持しながら、しかも高価なCE有機相を水のみで再生し繰り返し使用可能な新手法を開発した。一方、クラウンエーテル樹脂を用いる固液抽出法では、約9Mの高濃度塩酸無しには同位体交換が起こらず[3]、大量生産に向けて腐食の心配があったが、本液液抽出の新手法では、水のみで取り扱いが容易となり、多段化にあたり、重要な進展が得られた。水相と有機相中のCa濃度を液液抽出6段目まで原子吸光計(AAS)で測定し、2相間のCaの移行及び物質収支を確認し、水相中で減った分のCaが、有機相中でその分だけ増え、クラウンエーテル有機相中に捕獲され、クロロホルム他の溶媒に行っておらず、約20%の分配係数を得た(図2)。Ca濃度(分配係数・収率)と分離係数のトレードオフの関係は従来から指摘されており、今後確認を行う。

参考文献

- [1]B.E. Jepson *et al.*, J. Inorg. Nucl. Chem.38(1976)1175.
[2]R. Hazama *et al.*, KURRI Progress Report 2016, 17.
[3]K. Hayasaka *et al.*, Prog. in Nucl. Energy 50(2008)510.

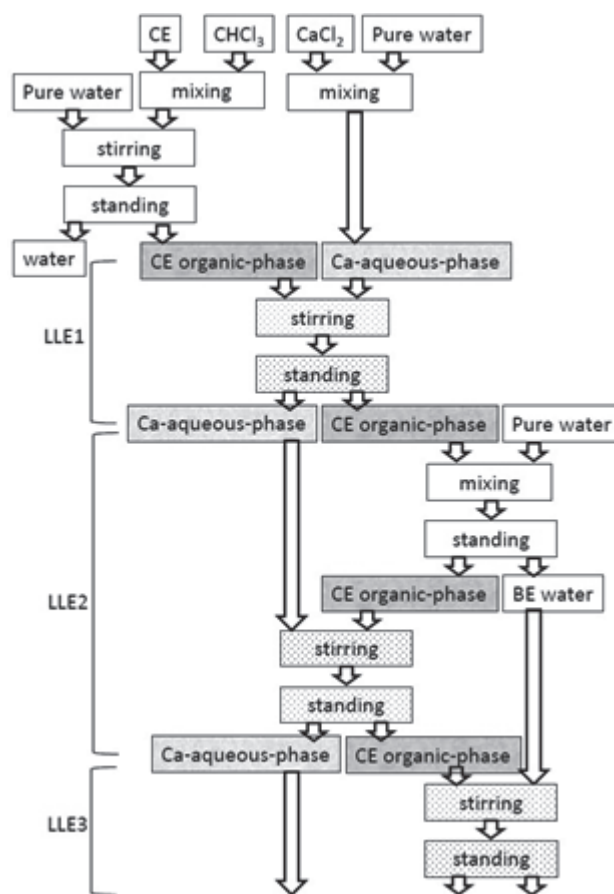


Fig 1. New LLE procedure with maintaining Ca concentration as much as possible and a separation factor at the same time, which allows to re-use CE via water only

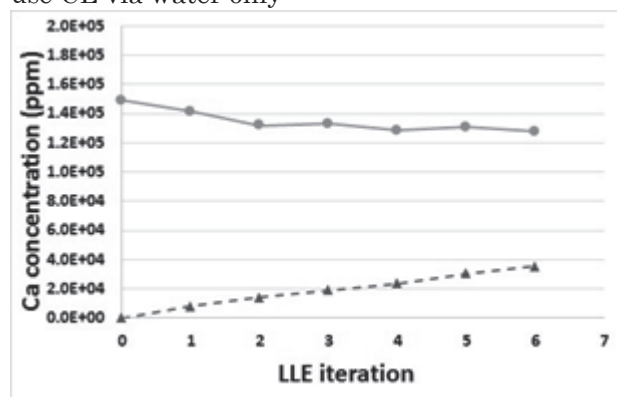


Fig 2. Ca concentration in aqueous phase (circle) and organic phase (triangle) for the process of LLE. Iteration is six times, zero is feed solution for CaCl_2 aqueous and crown-ether organic (CHCl_3) phase. : Preliminary.

(P30) 高速度中性子イメージングにおける時間分解能の向上

(京大複合研) ○伊藤大介、伊藤啓、齊藤泰司

1. はじめに

気液二相流は、軽水炉における安全性向上やシビアアクシデント評価において非常に重要な現象の一つである。しかしながら、空間的な分布が時間とともに大きく変動する非常に複雑な流れであるため、その流動の詳細な把握のためには、高い時空間分解能を有した計測手法が必要となる。従来、様々な手法の開発が行われてきていが、特に中性子を利用したイメージング技術は金属管内の流動分布を可視化計測できることから、二相流に対して非常に有効な手法である。しかし、蒸発や凝縮を伴う高速二相流動構造を理解するためには、中性子イメージング手法の時間分解能の向上が必要不可欠である。そこで本研究では、中性子イメージングシステムの改良によって時間分解能の向上を図り、また被写体の移動による画像ボケを評価することで、高速度中性子イメージング技術の高度化を行うことを目的とする。

2. 高速度中性子イメージングシステム

中性子イメージングにおける時間分解能は、中性子源の強度とイメージングシステムの感度によって決まると考えられる。現状、中性子源の高強度化や新規建設による中性子束の増加は難しいと考えられるため、イメージングシステムの改良を行う必要がある。従来のシステムでは、KUR B-4 ポートにおいて200~300fpsの撮影速度での可視化[1]が可能であったが、高速二相流動の可視化には十分ではなかった。そこで、イメージングシステムにおける高速度カメラ、光学レンズ、蛍光コンバータの更新を行い、撮影速度の向上を図った。図1に改良を行った中性子イメージングシステムを示す。本改良により、KUR 5MW 時の撮影において、10,000 fpsの撮影速度を実現することができた。特に、高速度カメラは年々高感度なものが開発されてきており、カメラの変更による撮影速度の改善が大きいと考えられる。

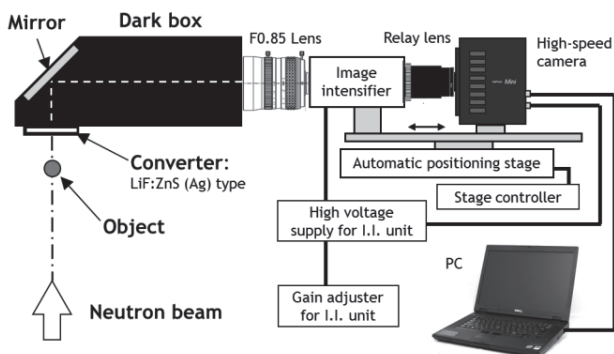


Fig. 1. High speed neutron imaging system improved in this study.

3. 回転円盤装置を用いた評価

被写体の動きによるブレを評価するため、回転円盤装置にGd片を取り付け、移動するGd片の可視化実験を行った。実験はB-4 スーパーミラー中性子導管実験室で行い、撮影速度は10,000fpsである。図2にGd片の静止時及び回転時の中性子透過画像を示す。(a)に示す静止時の平均画像において、1cm角のGd片の中央の3mmの穴が確認できる。また、(b)~(e)に示す瞬時画像では、1フレームあたりの露光時間が短いため、システムノイズが顕著になっている。さらに、回転速度の増加に伴い、Gd片のボケが大きくなり、中央の穴の判別が困難になっていることが分かる。このようなボケは被写体の移動速度に対応しており、高速度撮影において重要な誤差要因となる。そのため、高精度なイメージングのためには、移動速度を考慮した画像復元手法の開発を行い、画質の改善を行うことが必要と考えられる。

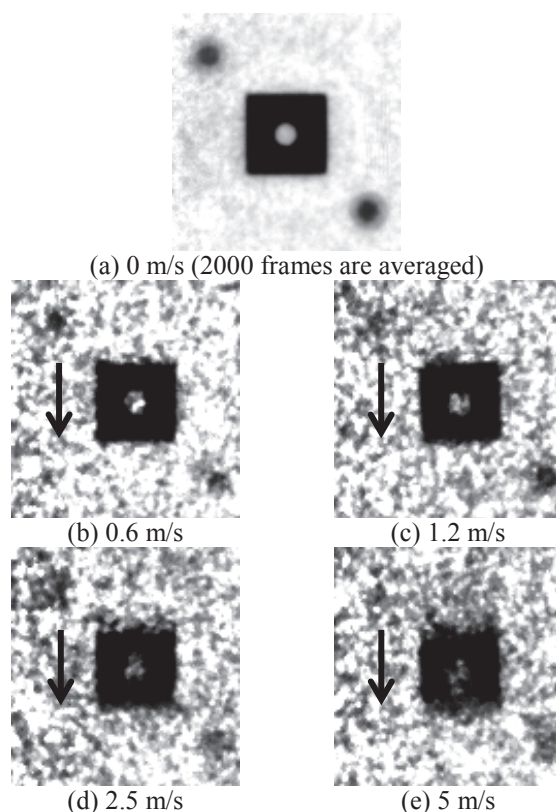


Fig. 2. Neutron imaging results of static and rotating Gd indicator.

参考文献

- [1] D. Ito, Y. Saito, Y. Kawabata, Physics Procedia, **69** (2015) 570-576.

(P31) 鉛ビスマス-窒素二相流の分布特性に関する研究

(京大院エネ, 京大複合研¹) ○有吉玄, 伊藤大介¹, 伊藤啓¹, 齊藤泰司¹

1. はじめに：加速器駆動システム（ADS）の核破砕ターゲットおよび冷却材として有力視されている鉛ビスマス共晶合金（LBE）は、温度域によっては腐食・浸食性をもつため、炉内構造材料の表面に酸化膜などを形成させ、耐腐食性・耐浸食性を付与させることが提案されている。しかし、LBEはステンレス鋼（SUS）に形成される酸化膜に対して十分に濡れないことが知られており、空気-水系二相流と同様に壁面濡れ性が流動特性に影響を与える可能性が高い。LBE気液二相流はADSにおける蒸気発生器破断事故時に形成されるが、その流れに対して流路壁面濡れ性の影響を調べた例は著者らが知る限り存在しないのが実状であり、その流動特性も未だ明らかになっていない。そこで本研究では、壁面濡れ性が不十分な条件において、LBE気液二相流を対象としたボイド率および液相速度の計測を行い、二相流特性を調べた。さらに実験結果と一次元解析モデルを用いた計算結果を比較検討し、モデルの妥当性を検討した。

2. 実験装置および実験条件：実験には京都大学複合原子力科学研究所附設のLBE気液二相流ループ（HESTIA）を用いた。試験部は内径 $D=50$ mm、長さ2 mのSUS製円管である。計測は試験部入口から100 mm上方を原点とし、高さ方向3箇所（ $z/D=3.2, 17.6, 32.4$ ）に設置した電気抵抗式ボイドプローブおよび小型電磁流速計を用いて行った。作動流体には、LBEおよび高純度窒素ガスを用い、気相および液相の流量は、それぞれマスフローコントローラおよび渦流量計により計測した。出口圧力は大気圧、液温は 200°C 一定とし、気相見かけ流速を $j_g=0.01\sim 0.15$ m/s、液相見かけ流速を $j_f=0.1, 0.2$ m/sの範囲で偏かさせた。小型電磁流速計からの電圧信号の取り込みについては、サンプリング周波数を10kHz、計測時間は $j_g=0.01\sim 0.03$ m/sの場合に240秒間、 $j_g=0.04\sim 0.15$ m/sの場合に60秒間とした。

3. 解析手法：円管内垂直上昇気液二相流について、半径方向の運動量輸送については、様々な解析手法が存在するが、ここでは気泡流を対象として佐藤ら[1]の一次元解析モデルを用い、液相速度分布の評価を行った。支配方程式は流体内の半径方向の力のつり合い式と半径方向せん断応力の式である。せん断応力における乱流応力は簡単のため、混合長モデルを用いて評価し、半径方向のボイド率分布を与えれば液相速度分布を計算することができる。

4. 結果：Fig.1(a)に $z/D=32.4$ におけるLBE-窒素二

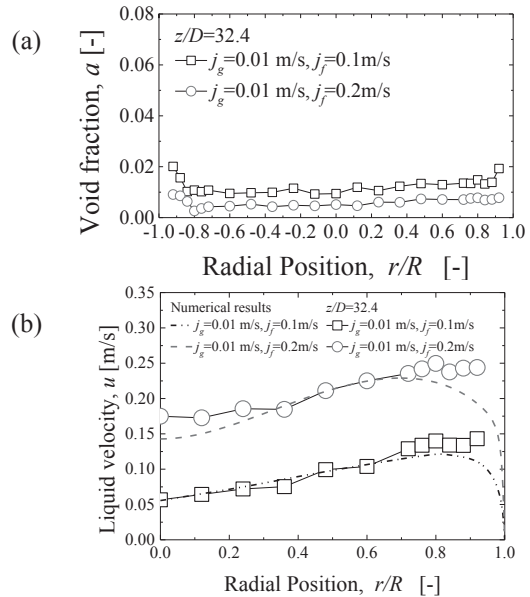


Fig.1 (a) Void fraction profile, (b) Radial distribution of liquid velocity compared with numerical results.

相流の半径方向ボイド率分布を示す。図において特徴的な点は、壁面付近において局所ボイド率が増加していることである。空気-水系二相流では液相流速が大きく、ボイド率が小さい場合にこのようなボイド率分布が観測されることがあるが、本実験では液流速は比較的小さく、LBE気液二相流に特有のものと考えられる。ボイド率が壁面にピークを持つ原因の一つとしては、試験部壁面がLBEに対して十分に濡れていないことが考えられる。次に、Fig.1(b)に同じ実験条件における液相速度分布を示す。この図に示すように、液相速度分布も壁面に近づくにつれ増加していることがわかる。Fig.1(a)に示したように、気泡が壁面近傍に集中した場合、気泡上昇速度が液相速度を上回っているため、この条件では壁面付近の気泡により液相が加速されていると考えられる。

解析では、ボイド率分布の計測値を用いて一次元解析モデルから液相速度分布を算出した。Fig.1(b)の破線および一点鎖線は液相速度の計算結果を示している。図から、液相速度分布の実験結果は佐藤らの手法を用いた解析により、概ね再現できることがわかった。しかしながら、壁面付近の速度分布についての計算値は実験値より小さい値を示している。これについては与えた乱流モデルによる差異か流路壁面の濡れ性の影響なのかは現時点ではわかっていない。今後、さらに詳細な比較検討が必要と考えられる。

参考文献

[1] 佐藤, 世古口, 日本機械学会論文集, 41 (1975).

(P32) 多点センサを用いた静電容量式液膜厚さ計測手法の高度化

(京大院エネ、京大複合研¹) ○松下貴博、伊藤大介¹、伊藤啓¹、齊藤泰司¹

1. はじめに：工業的に幅広く用いられる沸騰冷却には、熱負荷の上限である限界熱流束(CHF)が存在する。CHFは原子炉をはじめとする高熱流束機器の安全性に対する重要な指標であり、発生原因の把握が求められている。そのため、CHFに関して膨大な量の研究が行われ、強制対流沸騰においては、加熱面上に存在する液膜のドライアウトがCHF発生に影響していると考えられている。ただし、液膜厚さに関する実験データは十分ではなく、CHFの発生機構解明のためには、沸騰体系における詳細な液膜厚さ計測実験が必要である。

液膜厚さ計測法としては、高い時間分解能を有する電気的計測（電気伝導式および静電容量式）が有用である。既往研究として、多点計測可能な液膜センサを用いた空気-水二相流の電気伝導式計測[1]が行われているが、沸騰二相流では加熱面上の不純物の蓄積を防ぐため、電気伝導率の低いイオン交換水を使う必要があり、電気伝導式の適用が困難である。一方、静電容量式であれば沸騰二相流に適用できる可能性がある。しかし、静電容量式で用いられる液膜センサは、一般的に空間分解能が電気伝導式に比べ低く、詳細な液膜厚さ分布計測に適用するには、高空間分解能化を行う必要がある。そのため、当研究室では、高空間分解能を有する1点計測用液膜センサを製作し、液膜内の微小静電容量に基づく液膜厚さ計測システムの確立を行い、静電容量式計測が流動体系に適用可能であることを示した。

本研究では、多点センサ[2]を用いた静電容量式液膜厚さ計測手法を確立するため、レーザー変位計(LFD)を用いた多点センサの校正方法を提案する。また、電気伝導式液膜厚さ分布計測を行い、静電容量式液膜厚さ計測の検証用データベースを得る。

2. 液膜厚さ計測原理：Fig.1(a)に液膜センサの計測原理を示す。図のように2つの電極上に液膜が存在する場合、この2点間の電気抵抗や静電容量は液膜厚さによって変化する。Fig.1(b)に多点センサの電極形状の詳細を示す。T, R, Gはそれぞれ送信電極、受信電極、グラウンド電極を示し、空間分解能は2mmである。多点センサはこれらの電極が密に配置されており、計測では8×16点の領域を計測対象とした。

3. 流動体系計測結果：Fig.2に水平流実験装置の概略図を示す。試験部は幅30mm、高さ10mmの長方形断面を有するアクリル製矩形管である。液相はオーバーフロータンクから試験底部にディストリビューターを通して流入し、液膜流れが形成される。液膜センサは液相流入口の1m下流に設置されている。

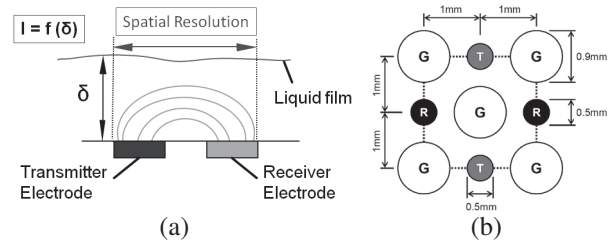


Fig.1 Measurement principle (a) and sensor geometry(b).

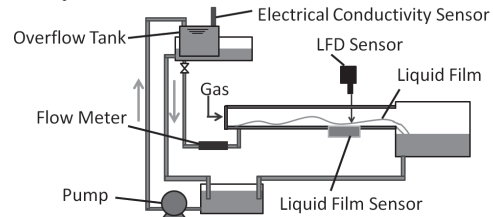


Fig.2 Experimental setup for liquid film measurement.

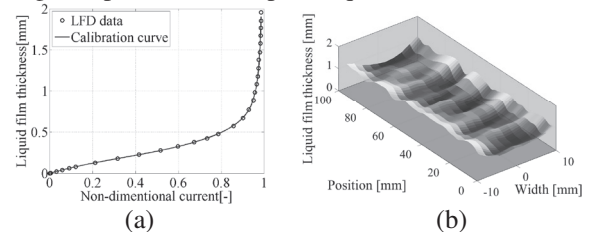


Fig.3 Calibration result (a) and construction of liquid film (b).

液膜センサを用いた液膜厚さ計測を行う上で、実験前にセンサの校正を行う必要があるが、本研究では、高精度な校正を行うため、0.2μmの分解能を有するLFDを用いた液膜厚さ計測を行い、液膜センサの校正を行った。校正曲線(Fig.3(a))に示す通り、液膜センサは微小な液膜厚さの計測に適用することができる。

流動実験では、電気伝導式液膜計測を行い、静電容量式液膜計測の検証用データベース（液膜厚さ・波高・波速度等の断面方向のデータベース）を取得した。Fig.3(b)に液膜構造の可視化図を示す。この図は特定断面における液膜厚さの時間変動に対して波速度を適用することで得られる。図から流動状態を把握することが可能であり、本実験の流動様式が先行研究と同じ傾向を示すことを確認した。

今後、多点センサを用いた静電容量式液膜厚さ分布計測を行い、本研究で得られた実験結果および理論解との比較により、静電容量式液膜計測手法の確立を行う。

参考文献

- [1] Damsohn and Prasser, Flow Meas. Instrum., 20 (2009) 1-14.
- [2] 伊藤大介, 他, 機論B, 77.784 (2011) 2354-2363.

(P33) 多孔質内における気液二相流圧力損失に及ぼす偏流の影響

(京大院エネ、京大複合研¹) ○栗崎達也、伊藤大介¹、伊藤啓¹、齊藤泰司¹

1. はじめに：ナトリウム冷却高速炉における炉心溶解事故時において、炉心領域に残留した損傷燃料の冷却（インプレース冷却）は事故の影響を炉容器内にとどめるための重要な要素の一つとなっている。このインプレース冷却挙動を評価する一つの指標として、デブリベッド内の気液二相流圧力損失が挙げられ、その予測式として Lipinski モデル[1]が提案されている。しかしながら Lipinski モデルは均一な空隙率分布を仮定しており、空隙率の空間分布がある場合には、予測精度が低下すると考えられる。実際のデブリにおいても空隙率分布が存在することによって不均一な流れが生じ、冷却挙動に影響を与えると考えられるため、空隙率分布を考慮する必要がある。そこで本研究では、Lipinski モデルに基づき、空隙率分布を考慮した多孔質内気液二相流圧力損失計算手法を構築し、実験値と計算値の比較を行った。

2. 実験装置：Fig.1に実験装置を示す。試験部に球状のガラスビーズを充填することでデブリベッドを模擬した試験部を作成し、空気 - 水系二相流循環装置に円筒状の試験部を取り付け、圧力損失の計測を行った。試験部の内径は 50mm であり、差圧測定距離は 100mm とした。本実験では、流動条件とガラスビーズの直径 d_s (3,5,7,10mm) を変化させ、各条件における圧力損失を計測した。

3. 計算手法：Lipinski モデルは式(1),(2)から構成される。

$$\frac{\Delta P_L}{L} = \rho_L g + \frac{150\mu_L v_L (1-\epsilon)^2}{k_L \epsilon^3 d^2} + \frac{1.75(1-\epsilon)\rho_L v_L^2}{\eta_L \epsilon^3 d} \quad (1)$$

$$\frac{\Delta P_G}{L} = \rho_G g + \frac{150\mu_G v_G (1-\epsilon)^2}{k_G \epsilon^3 d^2} + \frac{1.75(1-\epsilon)\rho_G v_G^2}{\eta_G \epsilon^3 d} \quad (2)$$

相対係数である k, η は様々な値が提案されているが本報では Hu *et al.*[2]の係数を用いた。従来のモデルによる計算においては流路断面で空隙率を一定としているが、本報で提案する手法では Fig.2 のように、流路断面を中心と壁近傍の 2 領域に分割し、空隙率分布モデル[3]から両領域の空隙率を与えた。その上で、それぞれの領域において Lipinski モデルを用いた圧力損失算出を行い、壁面近傍と中心領域で圧力損失が等しくなるようにボイド率および気液相みかけ速度比を変化させ、繰り返し計算を行った。

4. 結果：Fig.3に本実験で得られた結果を示す。横軸は圧力損失の実験値であり、縦軸は計算値である。空隙率分布を考慮しない計算値（白抜き）は実験値より大きな値をとる。一方、空隙率分布を考慮した計算値（塗りつぶし）は、実験値に近い値をとった。

これは、実際の試験体系における壁近傍の大きな空隙率を考慮できたことによって、実験値に近づいたと考えられる。また壁近傍の影響が大きくなると考えられる大きい粒径ほど実験値に近づいた。

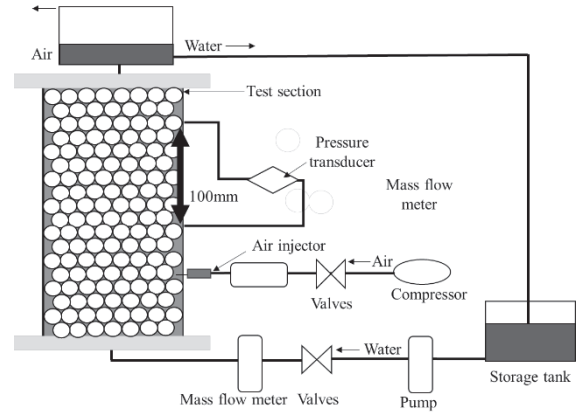


Fig. 1 Experimental setup.

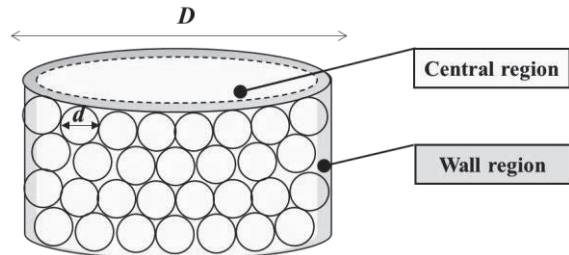


Fig.2 Area split in modified model

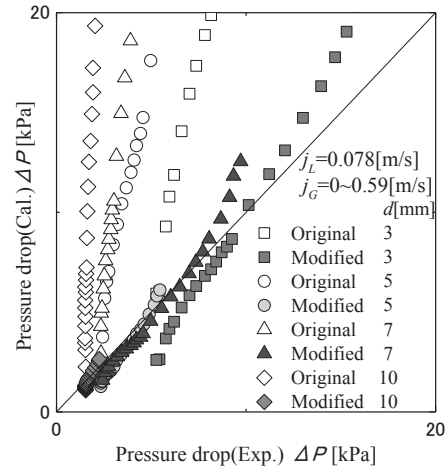


Fig.3 Comparison of pressure drop calculated by original Lipinski model and modified Lipinski model at $d=10$ [mm]

参考文献

- [1] Lipinski, Nucl. Tech., **65-1** (1984), 53-66.
- [2] Hu *et al.*, Int.J.Multi., **17-4** (1991), 519-532.
- [3] Mueller, Chem. Eng. Sci., **46-2** (1991), 706-708.

(T4) 東京電力（株）福島第一原子力発電所事故における線量評価

(京大複合研) ○高橋知之

1. はじめに：2011年3月11日に発生した東日本大震災に起因する東京電力（株）福島第一原子力発電所の事故により、大量の放射性物質が大気及び海洋に放出された。これらの放射性物質は、様々な経路を経て、公衆に被ばくをもたらした。よって、本事故が公衆及び環境に与えた影響を評価するためには、これらの様々な経路による被ばく線量を評価することが必要である。

事故による公衆の被ばく線量の評価は、評価の対象とする時間軸の観点から、「事故直後からある時点までの被ばく線量の評価（線量再構築）」、「当該調査時点における被ばく線量の評価（現状評価）」、「現時点以降の長期にわたっての被ばく線量の評価（将来予測）」に大別される¹⁾。このうち、調査時点における評価（現状評価）は、当該時点の環境モニタリングの結果を直接利用することができ、また、それまでに蓄積されたモニタリングデータ等も活用することが可能であることから、評価結果の精度も比較的高いと考えられる。一方、線量再構築は、事故直後におけるモニタリングデータ等の被ばく線量を推定する情報が少ないこと、将来予測については、人為的影響を含む環境変動が評価結果に大きな影響を与えること等から、推定値の不確実性が大きくなることが避けられない。

放射性物質が公衆に被ばくをもたらす経路は多種多様であり、また最終的には人の健康影響や自然環境への影響を評価する必要があることから、本事故の影響評価は、様々な機関に所属する様々な分野の研究者等によって実施され、多くの調査研究の結果が報告されている。本稿では、公衆に対する被ばく線量評価に関する調査研究について、主に発表者が実施した研究や、評価委員等の立場で関与した研究結果について概説する。

2. 線量再構築：原子力施設の事故が発生した際には、一般的に、原子力施設から大気に放出された放射性物質による外部被ばく、及びその放射性物質を吸入摂取によって体内に取り込むことによる内部被ばくが主要な被ばく経路となる。これらの経路による被ばく線量を評価するためには、空气中放射性物質濃度の経時変化の評価が必要であるが、本事故でも見られたように、事故直後においては被ばく線量を評価するための情報は極めて限られている。よって、後日環境モニタリングによって得られた地表面沈着量等の情報をあわせて利用し、大気拡散モデルなどの環境移行モデル等を用いることによって、事故直後のある機関までの被ばく線量を評価する。この評価を線量再構築（Dose reconstruction）と称する。

放射線の影響について評価を行うために1955年に国際連合に設置された「原子放射線の影響に関す

る国連科学委員会(UNSCEAR)」は、このような原子力施設の事故が発生した際に、研究者が集まって線量評価を実施する。本事故においても、世界18ヶ国から派遣された専門家80名以上で構成するチームが設置され、主として2012年9月末までに発表されたデータ及び文献に準拠して線量評価が実施された。この評価結果は2013年国連総会報告書として公開されている²⁾。この報告書では、将来のガン統計において、本事故による放射線被ばくによる疾患発生率の全体的な上昇は、日本人の基準生涯リスクに対して検出するには小さすぎる（有意な変化が見られるとは考えがたい）こと、推定値の上限に近い甲状腺吸収線量では、十分に大きな集団において識別可能な甲状腺がんの発生率上昇をもたらす可能性があるが、チェルノブイリ原発事故の時のように多数の放射線誘発性甲状腺がんが発生するというように考える必要はないことなどが報告された。

UNSCEARでは、報告書の刊行後も本事故に関連した論文等の情報を収集し、報告書の妥当性に関する検討を継続して進めている³⁾。

UNSCEARの報告書も含め、線量再構築に関する研究の多くは、放射性ヨウ素及び放射性セシウムを評価対象核種としている。しかしながら、事故によってこれらの核種以外の短半減期核種も放出されていることから、被ばく線量を精度良く評価するためには、これらの短半減期核種による被ばく線量も適切に推定する必要がある。藤原等⁴⁾は、これらの短半減期核種のうち放射性テルルに着目した。放射性テルルは短半減期核種の中では比較的半減期が長いこと、福島第一原子力発電所の南方向における沈着量が比較的高かったこと、及びIAEAの報告書⁵⁾におけるテルルの土壌-農作物移行係数が比較的高かったことから、事故発生から1年程度の期間においては、経根吸収によって放射性テルルを吸収した農産物を体の中に取り込むことにより、内部被ばく線量に大きく寄与した可能性があると考えられた。Fujiwara *et al.*⁶⁾は、葉菜及び根菜を対象として、セシウム及びテルルの土壌-農作物移行係数を実験的に求め、テルルの土壌-農作物移行係数がIAEAの報告書よりも低いことを明らかにした。またTakahashi *et al.*⁷⁾は、この結果に基づいて、放射性テルルと放射性セシウムによる被ばく線量の比を求め、IAEAの報告書に記載された土壌-農作物移行係数を用いて線量評価を実施した場合、放射性テルルの寄与を2桁程度過大評価する可能性があることを明らかにした。

3. 現状評価：環境モニタリングは、調査時点における被ばく線量を評価する上で極めて重要である。事故後数年間経過した時点においては、地表面等に沈着した放射性セシウムによる外部被ばくと、放射

性セシウムを含む食品の経口摂取による内部被ばくが主な被ばく経路であり、これらの被ばく経路による被ばく線量を評価するためには、それぞれに関連したモニタリングが必要である。

地表面等に沈着した放射性セシウムによる外部被ばく線量を評価するため、原子力規制庁（2012年度までは文部科学省）の委託事業として、放射性物質の分布状況等に関する調査が継続して実施されている⁸⁾。この調査では、走行サーベイによる道路及びその近傍における空間線量率の測定、人為的なかく乱の少ない平坦な開かれた土地における空間線量率分布測定、無人ヘリによる発電所近傍の空間線量率分布の測定、歩行サーベイによる生活経路における空間線量率の測定を毎年1～2回の頻度で継続して実施している。また、これらの空間線量率マップを統合して、人間の生活に密着した環境における空間線量率データである歩行サーベイを全域で実施したと想定した場合のマップの作成を進めている。なお、走行サーベイ及び歩行サーベイには Tanigaki *et al.*⁹⁾が開発した KURAMA-II システムが用いられている。この他、可搬型ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定や、スクレーパー・プレート法による土壌中の放射性セシウムの深度分布調査も継続して実施されている。

放射性セシウムを含む食品の経口摂取による内部被ばく線量を評価するためには、個々の食品中の放射性核種濃度の測定や、マーケットバスケット方式による預託実効線量推定が有効である。厚生労働行政推進調査事業費補助金（食品の安全確保推進研究事業）「食品中の放射性物質濃度の基準値に関する影響と評価手法に関する研究」¹⁰⁾において、塚田は、福島県内で市場流通している農作物中放射性セシウム濃度が、全て基準値を大きく下回っていることや、農作物中⁹⁰Sr濃度が、福島県を除く全国農作物中⁹⁰Sr濃度モニタリング結果と同様な範囲であり、農作物から検出された⁹⁰Sr濃度は大気圏核実験に由来する濃度と同程度であることを明らかにした。また、青野は、海産物について、放射性セシウム濃度が基準値を大きく下回っていることを明らかにした。高橋等はこれらの結果に基づき、極めて保守的な仮定、すなわち、摂取する全ての食品について、原材料も含め全て福島県（海産物についてはFDNPSの30km圏内の海域）から産出されたものとし、過去の大気中核実験等のフォールアウトによる⁹⁰Srの寄与を含めた場合であっても、介入線量レベルである年間1mSvを大幅に下回っていることを明らかにした。

4. 将来予測：空間線量率の経時変化を予測することは、住民の帰還を目的とした除染等の計画を立案するために有効である。よって、Kinase *et al.*¹¹⁾は、空間線量率の上昇の原因となる¹³⁴Cs及び¹³⁷Csを対象とし、それぞれの核種に起因する空間線量率の経時変化が、減衰が速い成分と減衰が遅い成分の和で構成されると想定する2成分1コンパートメントモデルを用いることにより、空間線量率分布の長期的

予測手法を開発した。本研究における評価対象エリアは福島第一原子力発電所から80km圏内としている。また、パラメータ値を導出するための空間線量率のデータは、避難指示区域外については前述した走行サーベイによる空間線量率測定データ（第1次から第9次）、避難指示区域内については「総合モニタリング計画」（モニタリング調整会議決定）に基づき実施されている走行サーベイの詳細モニタリング結果（第1巡から第20巡まで）を用いている。本解析により、「減衰が速い成分の環境半減期」及び「減衰が速い成分の割合」は、人間活動によって変化することが明らかとなった。また、事故から30年後までの空間線量率予測マップを提示した。

5. 放射線・放射能測定データの収集：本事故による公衆の被ばく線量をできるだけ正確に評価するためには、特に事故初期に測定された環境モニタリングデータを活用することが重要である。このようなモニタリングデータは、国、地方自治体、研究機関等や、研究者個人等が事故直後から測定を実施し、多くのデータは公開されたが、公開されていない有用なデータも多く存在すると考えられた。また、一度公開された情報であっても、ウェブサイトの閉鎖等に伴ってデータが消失してしまうことが危惧された。一方、社会科学分野からは、データそのものは信頼性の観点等から被ばく評価には使われなくても、今回の事故において、様々な機関や個人が、それぞれの目的を持ってデータを測定したという事実を記録として留め、後世に残すということの社会的意味も重要であると考えられた。

日本学術会議日本学術会議総合工学委員会原子力安全に関する分科会原発事故による環境汚染調査に関する検討小委員会では、このような観点に基づき、東京電力福島第一原子力発電所事故に関連する放射線・放射能測定データアーカイブズWGを設置し、データ収集のための検討を進めている。このWGにおいて、収集したデータの管理のためにはパーマネントな組織が必要であるとの認識に立ち、データの管理方法、公開方法等について議論を進めているが、現時点では実際にデータの収集を開始するまでには至っていない。

6. おわりに：事故発生から約8年が経過し、除染等が進められることにより、避難指示が解除された地域は徐々に広がっているが、現時点でもなお広域が帰還困難区域として設定されている。また、市場に流通している食品のほとんどは放射性セシウム濃度が検出下限未満となっているが、放射性セシウムを特異的に吸収するキノコ類や山菜類は、今でも一部地域で出荷制限が続いている。なお、福島県産食品の価格は、全体として震災前の水準を回復していない¹²⁾。

今後も、調査研究を継続して実施することにより、放射線安全上の課題の解決と、風評被害の解消を図る必要がある。

参考文献

- [1] 高橋知之, Jpn. J. Health Phys., **47** (1) (2012) 9-12.
- [2] UNSCEAR, 2013 年報告書第 I 卷 科学的附属書 (2014).
- [3] UNSCEAR, 国連科学委員会による今後の作業計画を指し示す 2015 年白書(2015).
- [4] IAEA; IAEA Technical Report Series **472**, Vienna (2010).
- [5] 藤原慶子他, Jpn. J. Health Phys., **51** (1) 19-26 (2016) 19-26.
- [6] K. Fujiwara *et al.*, Jpn. J. Health Phys., **52**(3) (2017) 192-199.
- [7] T. Takahashi *et al.*, Jpn. J. Health Phys., **53**(1) (2018) 12-18.
- [8] 日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度放射性物質測定調査委託費(東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の分布データの集約)事業成果報告書(2018).
- [9] M. Tanigaki *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, **781** (2015) 57-64.
- [10] 明石真言 (研究代表者)、厚生労働行政推進調査事業費補助金 (食品の安全確保推進研究事業) 平成 27-29 年度総合研究報告書, 201723028A(2018).
- [11] S. Kinase *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol., DOI: 10.1080/00223131.2017.1365659 (2017).
- [12] 農林水産省, 「平成 29 年度福島県産農産物等流通実態調査」報告書(2018).

(T5) 重水素化を利用したタンパク質の変性に関する研究

(京大複合研) ○喜田昭子

1. はじめに：酵素タンパク質において反応を決定する水素原子の位置情報は、その反応機構の理解に重要である。その位置情報を得るための、タンパク質の立体構造を決定する方法の中で、X線結晶解析法は結晶さえ得ることができれば分子量の制限がなく、高分解能の解析が可能である。しかし水素原子の決定には1Å分解能を超える、いわゆる"超高分解能X線結晶構造解析"が必要となり、それを可能にする結晶を得ることができるのは、ごく一部のタンパク質に限られる。超高分解能を示す結晶が得られない場合には、中性子線結晶構造解析は水素原子位置情報を得る確実かつほぼ唯一の方法である。現在、使用できる中性子線の強度はX線に比べて十分ではない。そのために、巨大結晶を使用して少しでも反射強度を上げること、その水素を重水素に置換(重水素化)して回折パターンのS/N比を向上させることは、中性子線結晶構造解析において必須の手段となっている。これまでタンパク質の水素/重水素置換は、緩衝溶液や結晶化試薬に重水素化試薬を用いる方法、結晶を重水素化母液に浸漬する方法などによって行われてきた。

われわれは、飛行時間型質量分析法で重水素化タンパク質の重水素化数を相対的に評価することで、浸漬法での重水素化では上限があることを確認した。この上限は、浸漬により置換可能な「窒素、酸素に結合した水素」の理論数(計算値)よりも低い数であった。このことは、複雑なタンパク質の内部は溶媒に露出されないために重水素置換されない事を示している。タンパク質分子内部の重水素化ができれば、費用対効果の高いタンパク質重水素化法となることが期待できる。これは同時に変性部位を重水素置換したことに他ならない。つまり、ある変性方法における重水素内変性/再生タンパク質の、重水素置換位置を決定できれば、それはタンパク質分子における、変性方法依存の変性部位を決定したことになる。均一な構造をとらない変性タンパク質の構造に関する研究が、均一構造をとることが前提の結晶構造解析の手法で遂行できることになる。

2. 実験：対象試料として、均一な高品質標品が容易に入手可能なニワトリ卵白リゾチウムを用いた。まず重水中で熱、および酸性、塩基性試薬によるpH変化の各方法で変性させ、一定時間保持した後、変性要因を除去することで構造の巻き戻しを行った。変性前と構造再生後の質量分析を行い、重水素化数を比較した。その後、試料の巨大結晶作製を行い、X線および中性子線での結晶構造解析を行った。

3. 結果

3-1. 重水内タンパク質試料変性/構造再生

重水に溶解した試料を加熱することで変性させ、その後冷却して構造を再生させた。また、pH変化による変性においては、微量のDCl, またはNaODを加えてpHを大幅に変化させることで変性させ、その後それぞれにNaOD, DClを加えてpHを戻すことで構造を再生させた。各変性はCDスペクトル測定で確認した。重水内変性/再生のイメージを図1に示す。

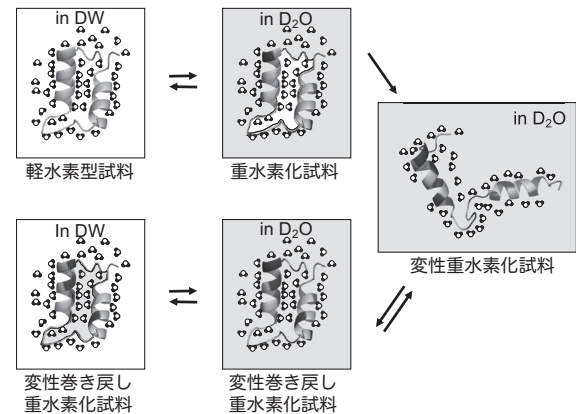


図1. 重水中タンパク質変性/構造再生のモデル

この変性/再生操作により、熱変性、pH変性のいずれの試料(図1最下段右状態)も、コントロール試料(重水内浸漬のみで、変性/再生を行っていない試料, 図1最上段右状態)に比べて顕著な質量増加が見られた。また、それら変性経過試料の溶媒を重水から軽水に交換した試料(図1最下段左状態)についても、コントロールの軽水試料(図1最上段左状態)と比べて質量増加が見られた。このことは、変性によりタンパク質の分子内部が外部に露出して分子内部に存在する水素が重水素置換され、重水素をタンパク質内部に取り込んだ状態で構造の再生が起こったことを示している。

3-2. 変性/再生試料のX線結晶構造解析

前項で作製した、各重水内変性/再生試料およびコントロール試料の結晶は、全てほぼ同じ結晶化条件から得ることができた。またX線回折実験を行ったところ、格子定数、得られた回折強度データの質、得られた構造ともに差違はなかった。これらの結果は、重水内での変性/巻き戻しは、分子内部の重水素化以外はコントロールと同じであることを示している。すなわち、中性子線回折実験用試料調製のための、重水素化数増加の手法として有効である可能性があることを示している[1]。

3-3. 大型結晶作製

変性/再生試料でコントロールから比べて増加し

た重水素化部位は、まさに変性部位であると考えられることができる。これら重水素位置＝変性部位を明らかにするために中性子線回折実験に供するための巨大結晶を作製した。フィルターで夾雑物を極力取り除いた試料を用い、結晶が析出した結晶化バッチに試料溶液を逐次追加していく方法で結晶を成長させた。結晶成長の例を図2. に示す。

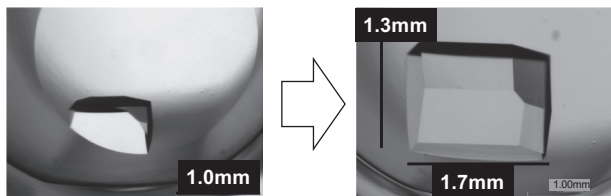
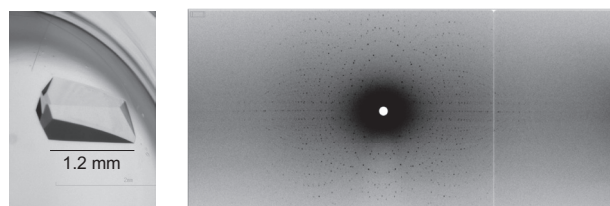


図2. 大型結晶作製

3-4. 変性/再生試料結晶の中性子線回折実験

成長させた変性/再生試料結晶およびコントロール結晶を、石英ガラスキャピラリーへ封入して、アメリカオークリッジ国立研究所の中性子線施設に送付し、常温で回折データを収集した。以下に、塩基性変性/再生結晶、回折像とデータ統計値を図3に、核密度図の例を図4に示す。



ORNL-HFIR CG-4D Imagine
wavelength range 2.8-4.5Å
<https://neutrons.ornl.gov/Imagine>

Crystal:
Refolded from NaOD Denature

No. of frames	13
Exposure time	18 hr./frame
Resolution	35.25-2.29 (2.42-2.29)
R _{merge}	0.156 (0.285)
Total Refs.	33,224 (3,775)
Unique Refs.	4,857 (600)
Mean(I)/sd(I)	6.0 (4.0)
Completeness(%)	87.7 (76.0)
Multiplicity	6.8 (6.3)

図3. 中性子回折実験データ統計値の例

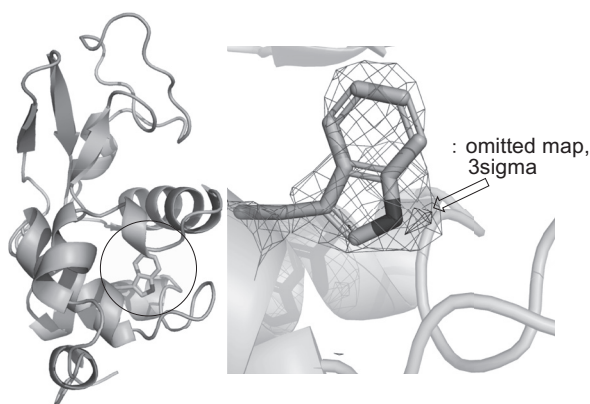


図4. 得られた核密度図の例

Protein Data Bank (<https://www.rcsb.org/>)に登録されている、重水置換リゾチウム結晶の中性子線構造(1lzn.pdb)では、図4右図に示したトリプトファン側鎖にはH(軽水素)が結合しているが[2], 本構造では重水素に置換されているのが観測された。これは、塩基性変性/再生の結果、初めて置換されたものである。この例をはじめとして、X線回折実験では決して判断できない、変性によるHからD(重水素)への置換が本実験により確認された。

塩基性変性/再生結晶構造で特徴的だったのは、浸漬だけでは重水素置換されないとされているβシート内の水素が、それを縦断するように重水素置換されていたことである(図5)。また、一定のヘリックスに重水素置換位置が集中して存在するなど、興味深い結果が得られた(図6. 重水素置換部位を黒で示す)。これらの結果より、重水素置換部位＝変性操作の影響を受けた部位、が原子レベルで検出できることが判った。同方法を他のタンパク質にも適用し、変性に関する情報を集積することで、変性操作依存の変性部位に共通の構造を明らかに出来る可能性がある。

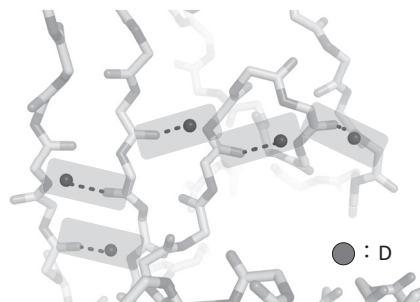


図5. 塩基性変性/再生結晶構造(βシート部)

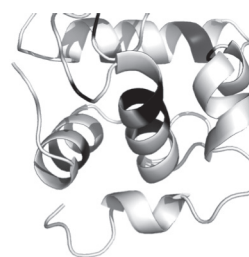


図6. 塩基性変性/再生結晶構造における重水素置換部位(αヘリックス部)

References

- [1] A. Kita and Y. Morimoto, An effective deuterium exchange method for neutron crystal structure analysis with unfolding-refolding processes, *Mol. Biotechnol.*, **58** (2016) 130-136.
- [2] C. Bon, M.S. Lehmann, C. Wilkinson, Quasi-Laue neutron-diffraction study of the water arrangement in crystals of triclinic hen egg-white lysozyme, *Acta Cryst. D55* (1999) 978-987.

(T6) 重水素化支援小角中性子散乱中性子散乱及び分析超遠心法による α -クリスタリンのサブユニット交換の機構解明

(京大複合研、ANSTO¹) ○井上倫太郎、守島健、高田匠、佐藤信浩、Kathleen Wood¹、裏出令子、藤井紀子、杉山正明

1. はじめに：水晶体はレンズとして機能するために高タンパク質濃度 (> 100 mg/mL) [1] を維持する必要があるが、高濃度のタンパク質溶液は非常に容易に凝集し透明性を失う。しかしながら、興味深い我々の水晶体は少なくとも半世紀以上はその透明性は保持されている。それでは、どのように高タンパク質濃度を維持すると同時に長期間の透明性は維持されているのであろうか？その鍵を握っているのが水晶体に含まれるクリスタリンの主要構成成分である α -クリスタリンである。 α -クリスタリンは分子量が2万程度のサブユニットが20~40個会合したタンパク質複合体であり、そのシャペロン機能により自身及びその他のクリスタリン (β , γ -クリスタリン) の凝集を阻害する。これまで、この α -クリスタリンのシャペロン機能の機構解明を目指して、構造機能相関を調べる研究が試みられたが [2, 3]、四次構造が未だ決定されていないため最終的な結論は得られていない。そのような状況を打開するため、分析超遠心法、質量分析等を含めた測定手法により α -クリスタリンの構造情報を得る試みがなされたが、驚くべきことにそれぞれの手法から得られた会合数にすら一致しなかった。

我々は α -クリスタリンのサブユニット数不定が、 α -クリスタリン会合体で構成するサブユニットの交換によると予測し、明確な四次構造を有さない原因と考えた。そこで、我々は α -クリスタリンのサブユニットの交換の有無を調べるために重水素化支援小角中性子散乱法 (DA-SANS) [4] 及び分析超遠心法 (AUC) の相補的利用により取り組んだ。

2. 実験： サンプルとしては α -クリスタリンの一つのサブユニットである α B-クリスタリンを用いた。サブユニット交換の可視化のために軽水素化 α B-クリスタリン (h- α B) と 75%重水素化 α B-クリスタリン (75d- α B) の2種類の α B-クリスタリンを調製した。サンプル濃度は h- α Bは 0.45 mg/mL, 75d- α Bは 0.45 mg/mL, 28.5mg/mL であった。SANS 測定はオーストラリア原子力科学技術機構 (ANSTO) の研究用原子炉に設置されている Quokka を用いて行った。波長及びカメラ長はそれぞれ 6Å, 6m に設定し、温度は 37 度に固定し 15 分ごとに時分割 SANS 測定を行った。AUC 測定は Beckman colter 社の XL-I を用いて 37 度で 40000 rpm 及び 60000 rpm にて行った。

3. 結果及び考察：予備的な計算から 75d- α Bは 100% D₂O で不可視化出来ることが予め分かっている。そこで、Fig. 1 に調整した 75d- α Bが体積分率 100% D₂O 中で不可視化出来るかを確認するために濃度で規格

化した SANS profile を示す。体積分率 0% D₂O 中では α B-クリスタリンに対応する散乱パターンが確認されたが、D₂O の体積分率が上昇すると散乱強度の低下が確認され、体積分率 100% D₂O 中では非干渉性散乱に由来する散乱のみが観測された。つまり、今回調整した 75d- α Bは 100% D₂O 中で SANS 的にほぼ不可視化出来ることが実験的に確認できた。また、Fig. 1

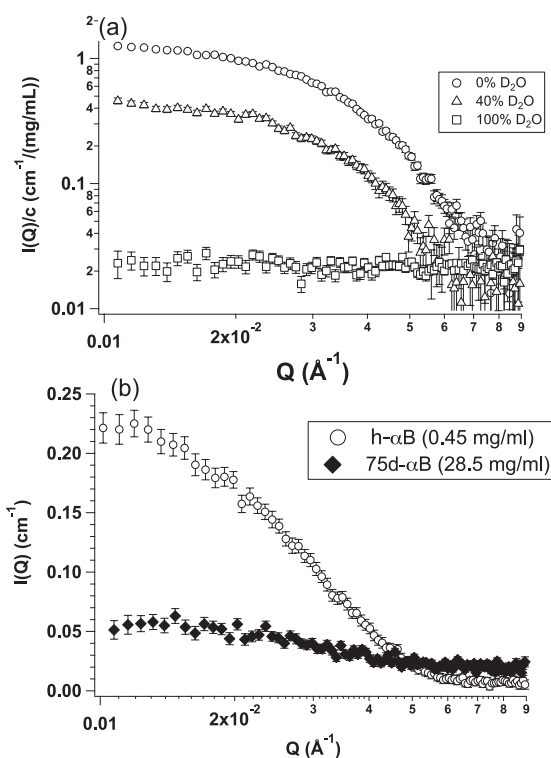


Fig. 1. (a) Concentration scaled $I(Q)$ profiles from 0%, 40% and 100% D₂O. (b) SANS profiles from h- α B at the concentration of 0.45 mg/mL and 75d- α B at the concentration of 28.5 mg/mL.

(b)に 100% D₂O 中での 28.5 mg/mL の 75d- α Bと 0.45 mg/mL の h- α Bの散乱プロファイルと比較した。28.5 mg/mL の 75d- α Bは 100% D₂O 中では完全に不可視化出来なかったが、濃度にして 60 倍程度も差があるにも関わらず 0.45 mg/mL の h- α Bの小角側の散乱強度は 5 倍程度も高いことが確認された。この結果は 0.45 mg/mL の h- α Bが 28.5 mg/mL の 75d- α Bと混合しても h- α B由来のシグナルを実験的に捕らえることを保証している。今後、より完全な 75d- α Bの 100% D₂O 中での不可視化を実現するために事前にサンプルの重水素化率の検定などが必要とされる。

次に、どのように SANS によりサブユニット交換が

観測されるかを簡単に説明する。SANS で観測される前方散乱強度 ($I(0)$) は $I(0)=N^2V(\rho_p-\rho_s)^2$ で表され、 N, V, ρ_p, ρ_s はそれぞれ数密度、分子体積、タンパク質 (α B-クリスタリン) の散乱長密度、溶媒の散乱

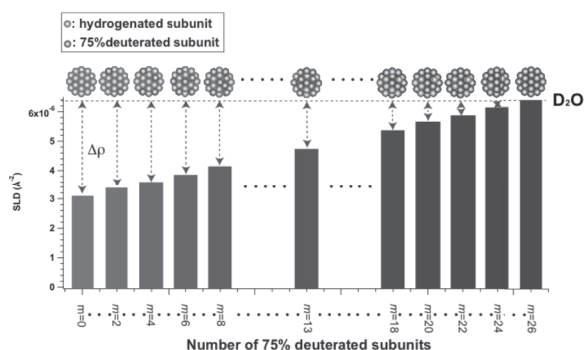


Fig. 2. Schematic view of scattering length density of α B-crystallin as a function of number of 75% deuterated subunits.

長密度に対応する。以降、本原稿では ρ_p, ρ_s は散乱コントラストと定義する。Fig. 2 に概略的に 75d- α B サブユニット数を関数とした散乱長密度を示す。もし、75d- α B と h- α B の間でサブユニット交換が起きたとすれば、100% D₂O に対する平均の散乱コントラストが低下する (Fig. 2. 中の点線矢印の絶対値に注目)。上述したが、 $I(0)$ は散乱コントラストの二乗に比例するので時間の経過に伴い $I(0)$ が低下する。一方、サブユニット交換が起きなければ散乱コントラストは不変であるため、 $I(0)$ は時間に依存せず不変である。故に、75d- α B と h- α B を混合後の $I(0)$ の時間依存性を追跡することでサブユニット交換の有無を判断できる。0.45 mg/mL の 75d- α B と 0.45 mg/mL の h- α B を混合した後の散乱プロファイルの時間変化を Fig. 3. (a) に、28.5 mg/mL の 75d- α B と 0.45 mg/mL の h- α B を混合した後の散乱プロファイルの時間変化を Fig. 3. (b) に示す。いずれの系においても時間経過に伴う散乱強度の低下が確認された、つまり濃度に依存せずにサブユニット交換の存在を支持する実験結果が得られた。より詳細に両濃度におけるサブユニット交換の機構を探るため、 $I(0)$ の時間依存性に対して eq. (1) でフィットを行った (Fig. 4 (a), (b))。

$$I_t(0) = I_{t=0}(0) [A + (1-A) \exp(-\Gamma t)] \quad \text{eq. (1)}$$

ここで、 $I_{t=0}(0)$, A , Γ はそれぞれ $t=0$ における $I(0)$, 平衡状態における初期値 ($=I_{t=0}(0)$) からの減衰比、緩和速度に対応する。非常に興味深いことに、 Γ に関しては 0.45 mg/mL の 75d- α B, 28.5 mg/mL の 75d- α B でそれぞれ $0.20 \pm 0.02 \text{ h}^{-1}$, $0.21 \pm 0.01 \text{ h}^{-1}$ と実験誤差範囲内で一致した。また、 A に関してはそれぞれ 0.5 ± 0.02 , 0.04 ± 0.02 と完全にランダムに混合した場合に予測される A の値 0.5 (0.45 mg/mL

の h- α B/75d- α B), 0.038 (0.45 mg/mL の h- α B/28.5 mg/mL の 75d- α B) と実験誤差範囲内で一致した。つまり、 α B-クリスタリンを構成するサブユニットは

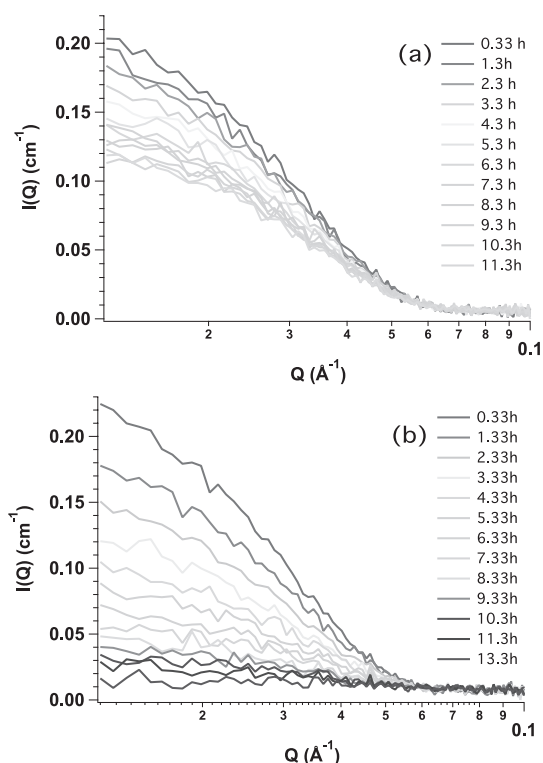


Fig. 3. (a) Time progress of SANS profile after mixing h- α B at the concentration of 0.45 mg/mL and 75d- α B at the concentration of 0.45 mg/mL. (b) Time progress of SANS profile after mixing h- α B at the concentration of 0.45 mg/mL and 75d- α B at the concentration of 28.5 mg/mL.

等価に交換できること意味している。それでは、濃度が 60 倍程度異なるにも関わらずに何故交換速度が変化しないのか？

我々はその謎の解明のために 28.5mg/mL 及び 0.45 mg/mL の h- α B に対して AUC 測定を行い溶液中での会合数の分布を調べた。Fig. 5 (a), (b) は 40000 rpm で測定した 28.5mg/mL 及び 0.45 mg/mL h- α B 会合体の結果を示す。 $S_{20}=10-15$ 付近に α B 会合体由来するピークが確認されたのと同時に $S_{20}=2$ 付近に僅かなピークが観測された。より低分子量側の成分の分離能を向上させるため同試料に対して 60000 rpm での測定を行った (Fig. 5(c) 及び Fig. 5(d))。両サンプルに対して非常に明確な単量体由来のピークが $S_{20}=1.5$ 付近に観測され、更に二量体、三量体由来のピークも観測された。つまり、溶液中において会合体のみならず主に単量体が共存していることが両濃度に対して明らかとなった。更に、単量体と会合体との重量比は濃度に依存せずに 0.015 程度であった。この結果を踏まえて、我々は会合体からの単量体の解離・再結合の過程がサブユニット交換における素

過程であると考え、monomer-assisted-dissociation model (MAD model) を考え、そのモデルに基づき数値計算を行った。その結果、両濃度において同じ時定数がこのモデルにより再現された。即ち、モノマーが α B-クリスタリンのサブユニット交換を支配している可能性が高いと言える。講演では α B-クリスタリンのサブユニット交換とその機能であるシャペロン機能との相関についても議論する。

参考文献

- [1] N. Fujii *et al.*, *Amino Acids*, **32** (2007) 87-94.
- [2] J. Peschek *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **106**, (2009) 13272–13277 .
- [3] J. A. Quillina *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **100**, (2003) 10611–10616 .
- [4] M. Sugiyama *et al.*, *Biophys. J.* **110** (2011) 2037.

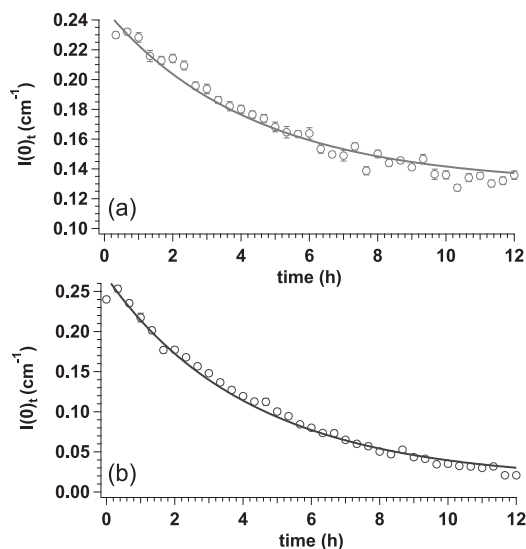


Fig. 4. (a) Time evolution of $I(0)_t$ and result from fit with eq. (1) for h- α B at the concentration of 0.45 mg/mL and 75d- α B at the concentration of 0.45 mg/mL. (b) Time evolution of $I(0)_t$ and result from fit with eq. (1) for h- α B at the concentration of 0.45 mg/mL and 75d- α B at the concentration of 28.5 mg/mL.

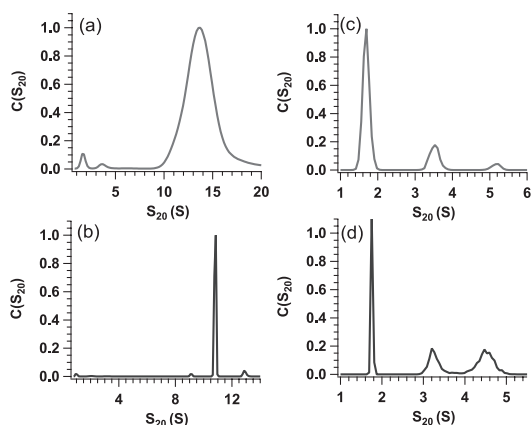


Fig. 5. Distribution of S_{20} ($C(S_{20})$) from h- α B at the concentration of 0.45 mg/mL (a) and 28.5 mg/mL (b) measured at 40000 rpm. Distribution of S_{20} ($C(S_{20})$) from h- α B at the concentration of 0.45 mg/mL (c) and 28.5 mg/mL (d) measured at 60000 rpm.

Clarification of mechanism of subunit dynamics of α -crystallin through deuteration assisted small-angle neutron scattering and analytical ultra-centrifuge

Rintaro Inoue, Ken Morishima, Takumi Takata, Nobuhiro Sato, Kathleen Wood, Reiko Urade, Noriko Fujii, Masaaki Sugiyama
rintaro@rri.kyoto-u.ac.jp

(T7) 大口径流路内多次元気液二相流の流動機構解明に関する研究

(京大原子炉、米国パーデュー大¹、原子力機構²) ○沈秀中、日引俊¹、中村秀夫²

1. はじめに：大口径流路内気液二相流の流動機構の理解は、原子力工学、機械工学、化学工学、石油工学等、様々な分野の機器設計において、非常に重要な研究課題となっている。大口径流路では小口径と異なり、気液の界面不安定によって流路断面のほとんどを覆う様な直径の大きいテイラー気泡が生成されない。さらに、液流速が低い場合には、内壁の近傍に小気泡を随伴する下降流(二次流れ)を生じるなど、非常に複雑な多次元流動となる。このため、小口径管では間歇的なスラグ流を生じる領域で、大気泡と小気泡が混在するキャップ-気泡流や、乱れの強い3次元二相流中に大気泡が混在するキャップ-チェーン流が生じるようになる。また、気液二相流動を1次元で記述するドリフトフラックス式の分布パラメータは、低液流速条件下では一定値を取らず、気液流速に依存した複数の値となる。気液の界面積濃度は、比較的小さな球形の一群気泡と比較的大きなキャップ気泡の二群気泡の相互作用により、流路軸方向の発達過程は非常に複雑となる。本研究ではまず、世界に類例の無い原子力機構(JAEA)の長さ26m、内径0.2mの大口径円管試験設備を含む複数の試験設備に気泡流からチェーン流領域の流動を生成し、独自に開発したフォーセンサーオプティカルプローブ計測法を用いて局所流動パラメータの発達過程を系統的に計測して、流動機構の基礎的理解

に不可欠なデータベースを構築すると共に、大口径流路内の流動機構の基礎的理解を得た。さらに、気液二相流の解析に用いるドリフトフラックス式、界面積濃度輸送方程式などを系統的に開発して、一次元二流体モデル解析コードの開発に供している。これらの系統的な研究により、大口径流路内気液二相流の流動機構が解明され、一次元二流体モデルを用いた熱流動解析に必要な構成方程式が整備されると共に、3次元流動のCFD解析の妥当性検証に用いることが可能な詳細データの整備がなされている。

2. 計測手法改善とデータベース構築：大口径流路内の3次元二相流動の特異性・複雑性は知られていた[1, 2]が、流動機構の解明のための系統的な研究は、必ずしも十分ではなかった。本研究では、3次元二相流のより詳細な知見を得るため、3次元的に動く気泡に接触する4つのセンサ(Fig.1)からの信号の時間差に基づいて、3次元の気泡速度ベクトル、気泡径及び局所界面積濃度を測定するフォーセンサー・プローブ法(Table 1)を世界で初めて提案・検証した。この計測法により、原子炉の熱水力挙動の詳細分析に用いることができるデータベースの構築に革新的な道を開くことができた。更に、JAEAの大口径円管試験設備を含む複数の試験設備を用いて、Table 2のような空気-水気液二相流の局所流動パラメータの

Table 1. Developed four-sensor probe techniques

Items	Measuring method for large non-spherical bubbles	Measuring method for small spherical bubbles
Interfacial area concentration (IAC), a_i	$a_i = \frac{\sum_{l=1}^{2N_b} \sqrt{A_{01,l}^2 + A_{02,l}^2 + A_{03,l}^2}}{ A_0 }$ (Kataoka et al. [3])	$a_i = \frac{1}{\Omega} \sum_{h=1}^{N_b} \frac{[(A_{01,h})^2 + (A_{02,h})^2 + (A_{03,h})^2]}{ A_0 }$ $\times \left\{ \frac{\sqrt{(B_{01,2h})^2 + (B_{02,2h})^2 + (B_{03,2h})^2}}{ A_{01,h} B_{01,2h} + A_{02,h} B_{02,2h} + A_{03,h} B_{03,2h} } + \frac{\sqrt{(B_{01,2h+1})^2 + (B_{02,2h+1})^2 + (B_{03,2h+1})^2}}{ A_{01,h} B_{01,2h+1} + A_{02,h} B_{02,2h+1} + A_{03,h} B_{03,2h+1} } \right\}$ (Shen and Nakamura [5])
Bubbly or interfacial velocity vector*, $\mathbf{V}_{b,h}$ or $\mathbf{V}_{i,l}$	$\mathbf{V}_{i,l} = \frac{A_0 (A_{01,l} \mathbf{i} + A_{02,l} \mathbf{j} + A_{03,l} \mathbf{k})}{(A_{01,l})^2 + (A_{02,l})^2 + (A_{03,l})^2}$ (Shen and Nakamura [4])	$\mathbf{V}_{b,h} = \frac{A_0 (A_{01,h} \mathbf{i} + A_{02,h} \mathbf{j} + A_{03,h} \mathbf{k})}{(A_{01,h})^2 + (A_{02,h})^2 + (A_{03,h})^2}$ (Shen and Nakamura [5])
Bubble diameter, $D_{h,l}$	N/A	$D_{h,l} = \frac{\sqrt{(B_{01,l})^2 + (B_{02,l})^2 + (B_{03,l})^2}}{ A_0 }, \quad l=2h \text{ or } 2h+1$ (Shen and Nakamura [5])
Spherical and non-spherical bubble classification	$C_{dv} = \frac{ a_{i,2h} - a_{i,2h+1} }{a_{i,2h} + a_{i,2h+1}} = \frac{ \cos \theta_{i,2h} - \cos \theta_{i,2h+1} }{ \cos \theta_{i,2h} + \cos \theta_{i,2h+1} }, \quad \begin{cases} C_{dv} \leq C_{dv,crit} & \text{Spherical bubble} \\ C_{dv} > C_{dv,crit} & \text{Non-spherical bubble} \end{cases}$ (Shen and Nakamura [5])	

* Vector is expressed by using unit vectors (\mathbf{i} , \mathbf{j} , \mathbf{k}) codirectional with x , y and z axes in Cartesian coordinate system.

発達過程に関するデータベースを構築し、ボイド率が比較的小さい30%以下でも気泡流からキャップー気泡流への遷移が生じることを実験的に証明した。Table 2で α 、 a_i 、 v_g 、 D_{av} は各々、ボイド率、界面積濃度、気相速度と気泡直径を、下付き文字 1、2、 x 、 y 、 z は各々、一群気泡、二群気泡、 x 方向、 y 方向、 z 方向(鉛直上方)を示す。

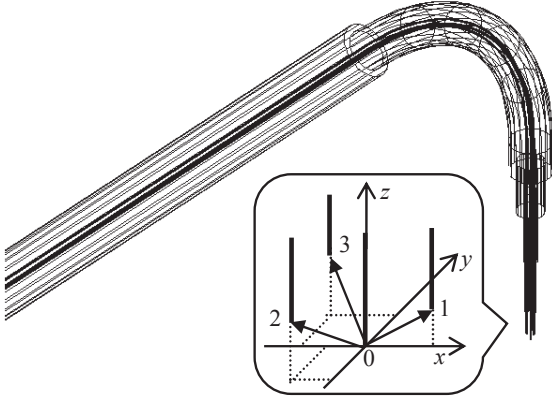


Fig. 1. Schematic of a four-sensor probe

3. モデリング研究：気液二相流解析に必要とされる主な構成方程式は、ボイド率予測式（ドリフトフラックス式）、界面積濃度輸送方程式などである。本研究では、これらの基礎的な構成方程式を開発してきており、その主要な成果を次にまとめる。

3-1. ドリフトフラックスモデル開発：大口徑流路内3次元気液二相流動の実験データに基づき、気泡流からキャップー気泡流まで連続的に変化する流動様式遷移に対して、以下のドリフトフラックス式の分布定数 C_0 とドリフト速度 V_{GJ} の構成式を提案した[12]。

$$C_0=1 \quad (1)$$

$$V_{GJ} = \frac{1}{2}(V_{GJ-S} + V_{GJ-B}) + \frac{1}{\pi}(V_{GJ-S} - V_{GJ-B}) \times \arctg \left\{ A \times \left(\frac{j_G}{j_L + j_G} - B \right) \right\} \quad (2)$$

3-2. 界面積濃度予測相関式の開発：既存の気液二相流の界面積濃度輸送モデルには大まかに2種類が並存している。一つは界面積濃度が直接に算出できる界面積濃度予測相関式で、もう一つは界面積濃度の連続変化を予測できる界面積濃度輸送方程式である。本研究では、気泡を抵抗に基づいて大小の二群に分類し、フォーセンサー・プローブの実験データに基づく小気泡の一群と大気泡の二群のボイド率予測モデルを構築し、更に実験データと既存気泡速度理論に基づいた解析を行い、次のような二群気泡の界面積濃度予測相関式を提案・検証した[13]。

① 一群気泡と二群気泡のボイド率($\langle \alpha_1 \rangle$ と $\langle \alpha_2 \rangle$)予測相関式：

$$\langle \alpha_1 \rangle = \begin{cases} \langle \alpha \rangle & \langle \alpha \rangle \leq 0.15 \\ 0.417\langle \alpha \rangle + 0.0875 & 0.15 < \langle \alpha \rangle \leq 0.51 \\ 0.3 & \langle \alpha \rangle > 0.51 \end{cases} \quad (3)$$

$$\langle \alpha_2 \rangle = \langle \alpha \rangle - \langle \alpha_1 \rangle \quad (4)$$

② 一群気泡と二群気泡の界面積濃度($\langle a_{i1} \rangle$ と $\langle a_{i2} \rangle$)予測相関式：

$$\langle a_{i1} \rangle = 3.37 \times \frac{\langle \alpha_1 \rangle \varepsilon_1^{0.0279}}{Lo^{0.889} v_f^{0.0836}} \quad (5)$$

$$\langle a_{i2} \rangle = 1659 \langle \alpha_2 \rangle^{0.796} (1 - \langle \alpha_2 \rangle)^3 \frac{Lo^{0.525} \varepsilon_2^{0.131}}{v_f^{0.394}} \times \quad (6)$$

$$\left(\frac{\rho_g}{\rho_f} \right)^{0.314} \left[\frac{\sigma}{g(\rho_f - \rho_g)} \right]^{-0.5} N_{Hf}^{1.124}$$

3-3. 界面積濃度輸送方程式の開発：界面積濃度輸送方程式を数学的に閉じるには、気泡の合体・分裂等に伴う界面積濃度の変化を表すソースタームタ

Table 2. Collected local flow database

Researchers	Geometry	z/D_h [-]	P [MPa]	$\langle j_g \rangle$ [m/s]	$\langle j_g \rangle$ [m/s]	Measured local parameters	Techniques
Shen et al. [6]	Round pipe, $D_h=0.2$ m	12, 60	0.1	0.0322 - 0.218	0.148 - 1.12	α , a_i , v_{gz}	Four-sensor probe
Shen et al. [7]	Round pipe, $D_h=0.2$ m	41.5, 82.8, 113	0.1	0.0127 - 0.373	0.0505 - 0.312	α , a_i , v_{gz} , α_1 , a_{i1} , v_{g1} , α_2 , a_{i2} , v_{g2}	Four-sensor probe
Schlegel et al. [8]	Round pipe, $D_h=0.152$ m	2.09, 14.1, 28	0.28	0.13 - 11.21	0.21 - 1.81	α , a_i , v_{gz} , α_1 , a_{i1} , v_{g1} , α_2 , a_{i2} , v_{g2}	Four-sensor probe
Schlegel et al. [8]	Round pipe, $D_h=0.203$ m	21	0.28	0.28 - 3.87	0.42 - 0.46	α , a_i , v_{gz} , α_1 , a_{i1} , v_{g1} , α_2 , a_{i2} , v_{g2}	Four-sensor probe
Schlegel et al. [8]	Round pipe, $D_h=0.304$ m	14	0.28	0.3 - 2.33	0.46 - 0.48	α , a_i , v_{gz} , α_1 , a_{i1} , v_{g1} , α_2 , a_{i2} , v_{g2}	Four-sensor probe
Sun et al. [9]	Square duct, $D_h=0.136$ m	16	0.1	0.045 - 0.226	0.500 - 1.00	α , a_i , v_f	Four-sensor probe
Shen et al. [10, 11]	Square duct, $D_h=0.1$ m	8.3, 18.3, 28.3	0.1	0.0069 - 0.0360	0.168 - 1.113	α , a_i , v_{gx} , v_{gy} , v_{gz} , D_{av}	Four-sensor probe

ームのモデリングが不可欠である。本研究は広い流動条件範囲の実験データを収集し、一群気泡の界面積濃度輸送方程式のソースタームモデル(気泡間の確率的衝突による気泡合体モデル $\langle\phi_{RC}\rangle$ 、乱流衝突による気泡分裂モデル $\langle\phi_{TI}\rangle$ 、ウェークエントレイメントによる気泡合体モデル $\langle\phi_{WE}\rangle$)を構築・検証した[14]。

$$\langle\phi_{RC}\rangle = K_{RC} \frac{\epsilon^{1/3} \alpha^{1/3} a_i^{5/3}}{\alpha_{max} - \alpha} \exp \left[-C_{RC} \frac{\rho_f^{1/2} \epsilon^{1/3}}{\sigma^{1/2}} \left(\frac{6\alpha}{a_i} \right)^{5/6} \right] \quad (7)$$

$$\langle\phi_{TI}\rangle = K_{TI} \frac{\epsilon^{1/3} (1-\alpha) a_i^{5/3}}{\alpha^{2/3} (\alpha_{max} - \alpha)} \exp \left[-C_{TI} \frac{\sigma}{\rho_f \epsilon^{2/3}} \left(\frac{a_i}{6\alpha} \right)^{5/3} \right] \quad (8)$$

$$\langle\phi_{WE}\rangle = K_{WE} \left[\frac{8(\rho_f - \rho_g) g \alpha (1-\alpha)}{\rho_f} \right]^{1/2} v_r^{1/3} a_i^{5/3} \exp \left[-C_{WE} \frac{\rho_f^{1/2} \epsilon^{1/3}}{\sigma^{1/2}} \left(\frac{6\alpha}{a_i} \right)^{5/6} \right] \quad (9)$$

ここで、 v_r は相対速度で、次式のようにえられる。

$$v_r = \frac{1-C_0\alpha}{1-\alpha} \frac{j_g}{\alpha} - C_0 \frac{j_f}{1-\alpha} \quad (10)$$

C_0 については、小口径管と大口径管に対して各々、式(11)と式(12)を提案している。

$$C_0 = \left(1.2 - 0.2 \sqrt{\frac{\rho_g}{\rho_f}} \right) \left[1 - \exp \left(-\frac{132\alpha}{D_H a_i} \right) \right] \quad (11)$$

$$C_0 = \begin{cases} \exp \left[0.475 \left(\frac{j_g}{j_f + j_g} \right)^{1.69} \right] \left(1 - \sqrt{\frac{\rho_g}{\rho_f}} \right) + \sqrt{\frac{\rho_g}{\rho_f}}, & \frac{j_g}{j_f + j_g} < 0.9 \\ \left[-2.88 \left(\frac{j_g}{j_f + j_g} \right) + 4.08 \right] \left(1 - \sqrt{\frac{\rho_g}{\rho_f}} \right) + \sqrt{\frac{\rho_g}{\rho_f}}, & \frac{j_g}{j_f + j_g} \geq 0.9 \end{cases} \quad (12)$$

小口径管と大口径管の直径は、次式で区別する。

$$D_{H,crit} = 40 \sqrt{\frac{\sigma}{g(\rho_f - \rho_g)}} \quad (13)$$

4. 気液二相流の数値解析研究：二流体モデルを用いた数値計算への二群界面積濃度輸送方程式の実装可能性を検討するために、Schlegelら[15]は、垂直大口径流路内界面積濃度の流動遷移を予測する1次元解析コードを開発した。本コードの主要なモデルには、最新の気泡合体モデルと分裂モデル及び二群ドリフトフラックスモデルが含まれ、計算結果は既存の実験データ[8, 16]とよく一致した。

垂直大口径流路内の軸方向に生じるN型のボイド率変化を予測する目的で、Shenら[17]は、3-1.に示した気泡流からキャップ-気泡流への連続的な流動様式遷移を考慮したドリフトフラックスモデルを利用して界面抗力モデルを修正した。さらに、この修正界面抗力モデルを1次元二流体モデルに導入して数値解析を行った。その結果、実験データを良

く予測する結果が得られた。

5. 結論：本研究ではまず、長年に渡り垂直大口径流路内3次元気液二相流の流動実験とその計測手法(フォーセンサーオプティカルプローブ法)の開発を実施し、局所流動パラメータの発達過程に関するデータベースを構築した。さらに、同データを基に大口径流路内気液二相流の流動機構(ボイド率30%以下でも気泡流からキャップ-気泡流への遷移が生じることの実験的証明を含む)を解明して、ドリフトフラックス式モデル、界面積濃度予測相関式及び界面積濃度構成方程式を構成する二群気泡の合体・分裂モデルを含む多数のモデルを開発した。更に、これらの研究開発成果を統合した二流体モデルの1次元解析コードを開発して、大口径流路内3次元気液二相流の高精度予測を可能とした。

参考文献

- [1] X. Shen *et al.*, in *Frontiers and Progress in Multi phase Flow, I*, edited by L. Cheng (Springer, 2014), 55-103.
- [2] X. Shen *et al.*, *Nucl. Eng. Des.*, **333** (2018) 87-98.
- [3] I. Kataoka *et al.*, *Int. J. Multiph. Flow*, **12** (1986) 505-529.
- [4] X. Shen, H. Nakamura, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **67** (2013) 843-852.
- [5] X. Shen, H. Nakamura, *Int. J. Multiph. Flow*, **60** (2014) 11-29.
- [6] X. Shen *et al.*, *Exp. Therm. Fluid Sci.*, **31** (2006) 21-36.
- [7] X. Shen *et al.*, *Int. J. Heat Fluid Flow*, **34** (2012) 70-84.
- [8] J.P. Schlegel *et al.*, *Int. J. Heat Fluid Flow*, **47** (2014) 42-56.
- [9] H. Sun *et al.*, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **51** (2014) 267-281.
- [10] X. Shen *et al.*, *Prog. Nucl. Energy*, **89** (2016) 140-158.
- [11] X. Shen *et al.*, *Int. J. Heat Fluid Flow*, **67** (2017) 168-184.
- [12] X. Shen *et al.*, *Proc. 18th Int. Conf. on Nucl. Eng., Xi'an, China, ICONE18-29630*, (2010).
- [13] X. Shen, T. Hibiki, *Int. J. Heat Fluid Flow*, **54** (2015) 107-118.
- [14] X. Shen, T. Hibiki, *Int. J. Multiph. Flow*, **109** (2018) 131-149.
- [15] J.P. Schlegel *et al.*, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **54** (2017) 58-73.
- [16] X. Shen *et al.*, *Int. J. Heat Fluid Flow*, **52** (2015) 140-155.
- [17] X. Shen *et al.*, *Jpn. J. Multi-phase Flow*, **24** (2011) 595-602.

中性子イメージングの高度化

(京大複合研、神戸大¹、東北大²、関西大³、理研⁴、岩手大⁵、茨城大⁶、原子力機構⁷、東京理科大⁸、鹿児島大⁹、名古屋大¹⁰) ○齊藤泰司、伊藤大介、浅野 等¹、村川英樹¹、杉本勝美¹、塚田隆夫²、庄司衛太²、久保正樹²、梅川尚嗣³、松本亮介³、網 健行³、山形 豊⁴、森田晋也⁴、松嶋卯月⁵、沼尾達弥⁶、原田隆郎⁶、酒井卓郎⁷、松林征仁⁷、兼松 学⁸、水田 敬⁹、玉置昌義¹⁰、辻 義之¹⁰、高見誠一¹⁰

1. はじめに：中性子イメージングは、可視光や X 線ラジオグラフィでは可視化が困難な体系に対する強力な可視化手法の一つであり、特に水素化合物の可視化計測に極めて有用な情報を提供する。しかしながら、X 線を用いたイメージングと比較すると、実施例は少なく、撮像法についてもさらに改善する必要があるのが現状である。したがって、本プロジェクトでは、中性子イメージングの高度化研究と応用研究を総合的に行うことにより、中性子イメージング技術の飛躍的な改善を目的としている。

各分担研究の研究テーマおよび担当者は以下の通りである。(○印は研究分担代表者)

- 1) 中性子ラジオグラフィを用いた混相流ダイナミクス計測に関する研究
○齊藤泰司、伊藤大介
- 2) 中性子ラジオグラフィによる機器内流動の可視化計測
○浅野 等、村川 英樹、杉本 勝美
- 3) 中性子ラジオグラフィによるヒートポンプ機器内熱物質輸送の可視化計測
○浅野 等、村川 英樹、杉本 勝美
- 4) 中性子ラジオグラフィを利用した超臨界水反応場の in-situ 観察
○塚田隆夫、庄司衛太、久保正樹、高見誠一
- 5) 強制流動沸騰系内部のボイド率分布
○梅川尚嗣、網 健行
- 6) 中性子ラジオグラフィを用いた熱交換器の着霜・除霜の評価
○松本亮介
- 7) 中性子ラジオグラフィによる光学素子等の生産技術の解析
○山形 豊、森田晋也、
- 8) 中性子ラジオグラフィの植物研究への応用
○松嶋卯月
- 9) 中性子イメージングを用いたセメント硬化体中の水分測定
○沼尾達弥、原田隆郎
- 10) 中性子ラジオグラフィによる加熱下におけるコンクリート内部の水分挙動に関する研究
○兼松 学
- 11) フラットヒートパイプ型ヒートスプレッド内部における冷媒分布の測定
○水田 敬
- 12) 工業製品の高度化に資するための金属間有機物の可視化に関する研究
○瓜谷 章、広田克也

- 13) 中性子-³He 吸収反応を介した He エキシマの蛍光
○辻 義之、玉置昌義
- 14) 中性子イメージング撮像技術の高度化と応用
○酒井卓郎、松林征仁

2. 研究成果：以下に分担研究ごとの研究成果の概要を述べる。

2-1. 中性子ラジオグラフィを用いた混相流ダイナミクス計測に関する研究[1,2,3]

本研究では、中性子画像から混相流の基礎的知見を得るために X 線イメージングと中性子イメージングを併用し、新たな計測法の開発を行うとともに、ビーム発散に起因する画像ボケから、物体の三次元位置を測定する手法を開発した。図 1 は、中性子と X 線を用いた同時イメージングシステムの概要であり、X 線画像の取得のためには X 線イメージングインテンシファイアと高速度カメラ、中性子画像取得のためには、コンバータと可視光用イメージングインテンシファイアと高速度カメラを用いて撮像を行った。実験は、KUR-B4 ポートにおいて行った。

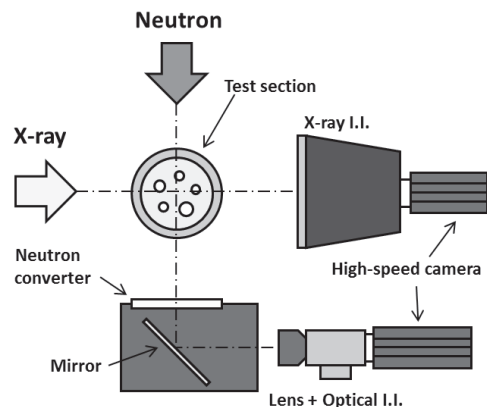
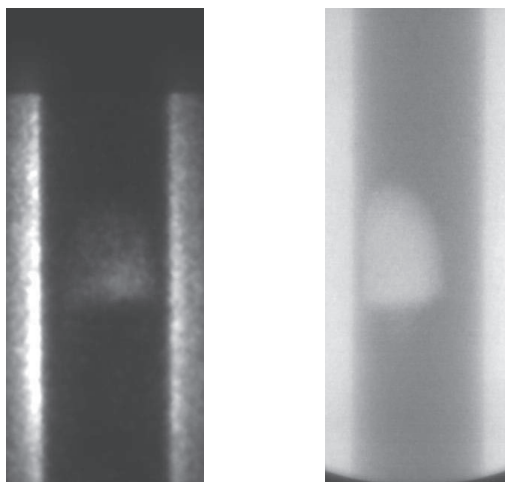


Fig.1 Schematic diagram of simultaneous measurement with high frame-rate neutron and X-ray imaging.

図 2 は、矩形管内水-空気二相流を同時計測したものであり、(a)が中性子像、(b)が X 線像を表している。中性子像の撮像速度は毎秒 1 万コマ、X 線像は、毎秒 200 コマとなっているが、今回は、X 線撮像用に実験装置を金属ではなく、樹脂製で製作したため、中性子像は樹脂による吸収のため、比較的、画質が悪くなっている。今後、用途に応じて、試験部の材質の選定を最適化し、時間分解能と空間分解能のさらなる向上が必要である。

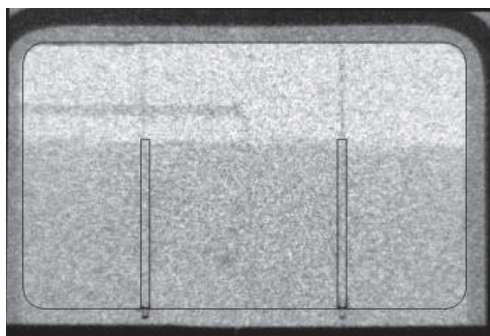


(a) Neutron (b) X-ray

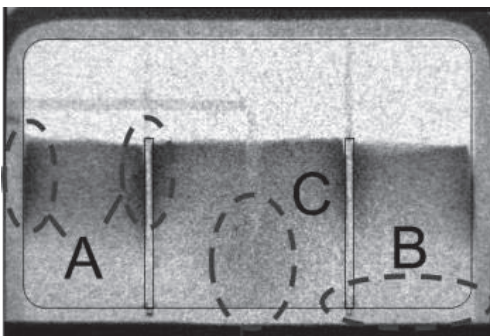
Fig. 2 Neutron and X-ray transmission images of air-water two-phase flow.

2-2. 中性子ラジオグラフィによる機器内流動の可視化計測[4]

本研究では、吸着型冷凍器の開発に関連して、吸着プロセスを中性子により計測した。図3は、中性子ラジオグラフィにより可視化した吸着層の様子である。図3(a)は乾燥状態で、図3(b)は吸着開始後8分のものである。吸着剤層は2枚のアルミ板により3つのセクションに仕切られているが、吸着は仕切り板の存在により、均一には起こらず、偏りができることがわかる[5]。このような計測から、仕切り板やフィンの存在により、吸着速度に影響を及ぼすことが明らかとなり、今後、さらに定量的なデータの取得を行う予定である。



(a) Dry condition



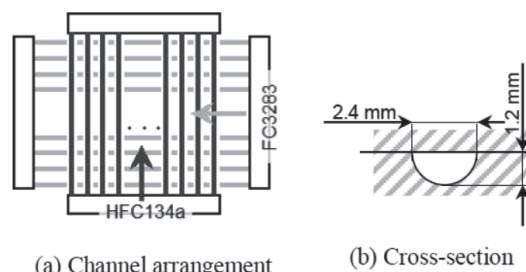
(b) In adsorption process (after 8 min from the start)

Fig.3 Visualized images by neutron radiography.

2-3. 中性子ラジオグラフィによるヒートポンプ機器内熱物質輸送の可視化計測[4]

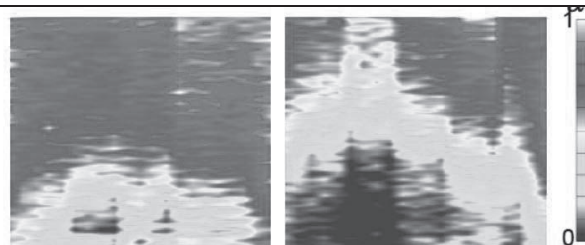
ヒートポンプ機器に代表される熱交換器は、近年、コンパクト化が進んでおり、ミリサイズ以下の流路をもつものが多くなってきている。図4は、クロスフロータイプの冷媒用熱交換器の構造を示しており、図中で二つの異なる冷媒 (HFC134a と FC3283) が直交して流れ、熱交換を行う。このような熱交換器においては、冷媒の偏流が大きな問題となるが、本実験では、各冷媒の入口にオリフィスを取り付け、その効果を中性子イメージングによって検証した。

図5は、(a)がオリフィスなし、(b)がオリフィスありの場合のボイド率分布を示す。両条件において、全体的なボイド率は異なるものの、いずれも左右で同様な傾向を示し、オリフィスの効果は明確には観察されなかった。これは、流路全体の圧力損失に対して、オリフィスの圧力損失が小さすぎる可能性があり、今後、オリフィスの設計を改善する必要が示唆された。



(a) Channel arrangement (b) Cross-section

Fig.4 Channel configuration of cross-flow type evaporator.



(a) Without inlet orifices (b) With inlet orifices

Fig.5 Void fraction distributions.

($G_F=100\text{kg/m}^2\text{s}$, $G_{FC}=460\text{kg/m}^2\text{s}$, $T_{FCin}=47.2\sim 47.3^\circ$)

2-4. 中性子ラジオグラフィを利用した充填層中の超重質油流れの可視化 [5]

エネルギー需要の急激な増加に伴い、バイオマス資源を含めた自然エネルギーの利用が重要となっているが、それでもなお、輸送用燃料として石油資源にかなりの量を依存しなければならないのが現状である。本研究では、超重質油 (ビチューメン) を軽質化する手法として超臨界水を用いたプロセスを提案している。

しかしながら、超臨界水による超重質油の接触分解プロセスを具現化するためには、超臨界水/超重質油の相平衡や輸送物性といった熱物性値の獲得が必要となるため、本研究では、充填層型反応器内における超重質油流れの可視化を行った。

図 6 は、実験装置の概略を示しており、実験装置は、試験部の充填層と超重質油供給系とガス供給系からなり、超重質油が下向きに窒素ガスが上向きに対向流として充填層内を流れる。なお、充填層内の充填物としては球状のアルミナを用いている。

図 7 は、アルミナ粒子径が 1 mm の場合の超重質油の分散状態を中性子イメージングで可視化したものであるが、100°C の場合には、250°C の場合に比べ、半分程度の流下速度となることがわかった。

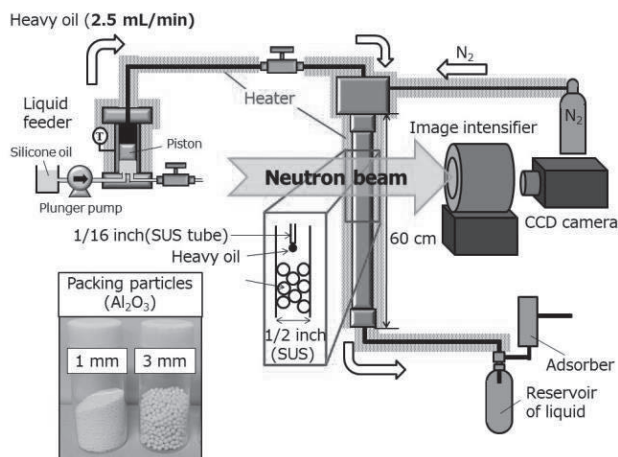


Fig.6 Schematic diagram of experimental apparatus.

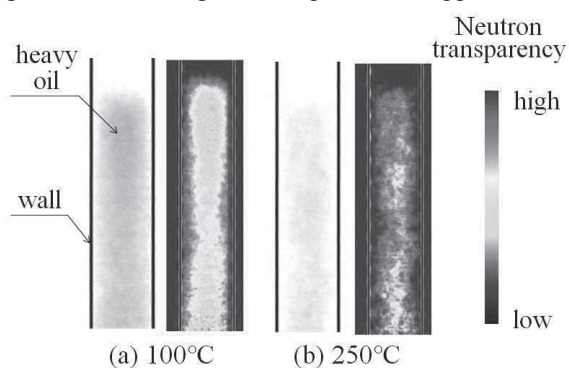


Fig.7 Effect of reactor temperature on flow behavior in the reactor with 1mm packing material.

2-5. 強制流動沸騰系内部のボイド率分布[6,7]

本研究では、管内沸騰二相流の内部構造を中性子イメージングを用いて定量評価を行った。マイクロチャンネル型熱交換器の予備的な可視化実験に加え、高温クエンチ現象、サブクール沸騰二相流を実験的に調べた。

図 8 は、テストに用いた多管型マイクロチャンネル熱交換器の例であり、各流路直径は 1 mm 以下、流路間のギャップは 0.1 mm 以下である。予備試験においては、作動流体、露光時間、スリットなどの最適化を行った。図 9 は、高温に加熱した金属円管内に下部から冷却水を導入した際の中性子画像である。撮像速度は、毎秒 1 万コマで、流路中心部分に液相が、周辺部に蒸気相が存在する逆環状流が観察された。このような逆環状流に関する実験データはこれまでになく、今後、さらに空間分解能を向上させ、定量的な実験を行う必要がある。

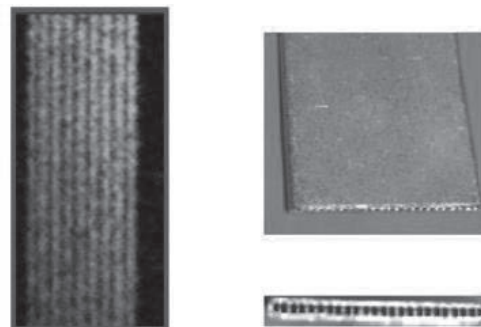


Fig.8 Micro-channel Heat exchanger.

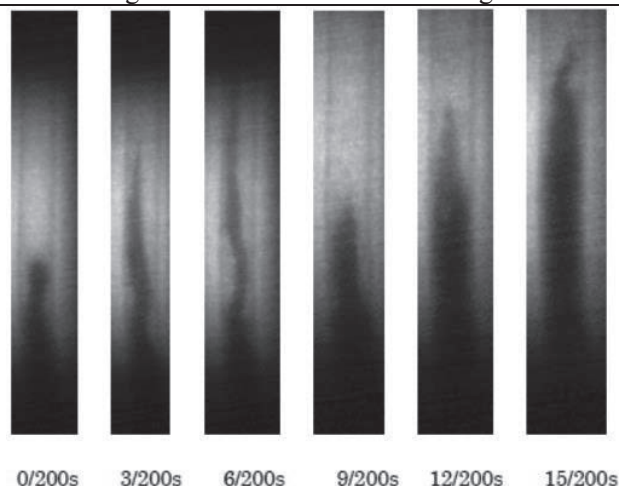


Fig.9 Quenching phenomena.

2-6. 中性子ラジオグラフィを用いた熱交換器の着霜・除霜の評価[8]

0°C 以下で用いられる熱交換器では、着霜によって伝熱性能が悪化するため、着霜の機構解明と効果的な除霜技術の開発が必要となっている。本研究では、アルミ製の熱交換器周りに形成される着霜現象を中性子 CT イメージングにより可視化し、着霜の 3 次元的な成長の様子を定量化した。

図 10 は、使用した実験装置の概略であり、熱交換器部分は、XY ステージと回転ステージ上に設置され、任意の角度から中性子像が得られるようにした。

図 11 は、(a) がデジタルカメラで撮像した可視光による可視化画像、(b) が中性子像を表す。図 12 は、CT 法により得られた霜密度の 3 次元分布であり、フィンのエッジ近傍に大きな霜密度が生じていることがわかる。

2-7. 中性子ラジオグラフィによる光学素子等の生産技術の解析[9]

本研究では、中性子イメージングの高度化を行うとともに、光学素子等の生産技術の解析を実施した。

2-8. 中性子ラジオグラフィの植物研究への応用[10] 本研究では、特に塩害を対象として、小松菜を試料として用いた場合の水とイオン分の輸送機構を解明することを目的として土壌層内の水分量を計測し、結果から水分移動と塩化物イオンの移動の様子を明らかにし、塩害に対する基礎的な知見を与えた。

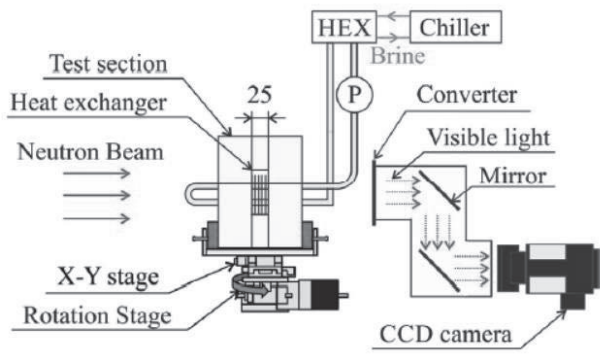
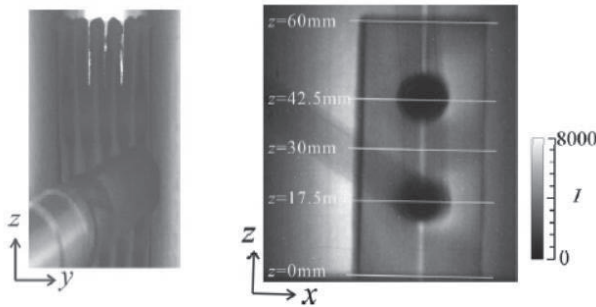


Fig.10 Schematic view of the experimental apparatus.



(a) Digital Camera image (b) Neutron image

Fig. 11 Digital camera image and Neutron image.

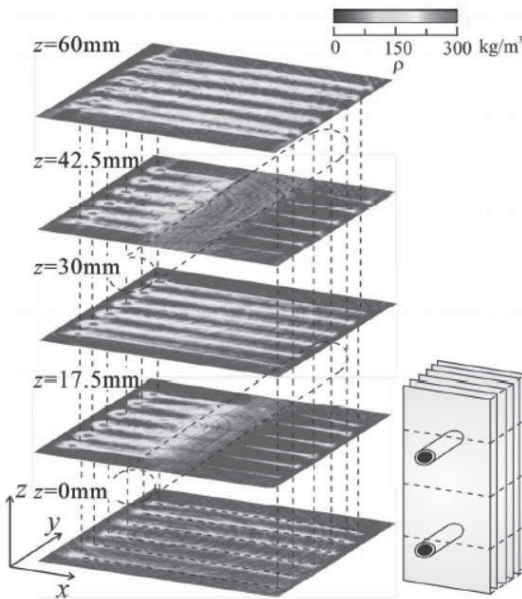


Fig.12 Three dimensional frost density distributions.

2-9. 中性子イメージングを用いたセメント硬化体中の水分測定[11]

本研究では、時間的に変化するセメント硬化体内部の水分挙動を中性子イメージングを用いて定量化することを目的とし、実験結果を高精度で解析するための処理手法を開発した。

2-10. 中性子ラジオグラフィによる加熱下におけるコンクリート内部の水分挙動に関する研究[12]

本研究では、建築材料中の水分移動現象について、中性子ラジオグラフィにより定量的に明らかにする

ことを目的とし、1)高温下におけるコンクリート中の水分挙動の評価、および2)保水性建材の非等温過程における建材中の水分挙動の観測を行うこと目的とし、実験を実施し、材料依存性を調べた。

2.11. フラットヒートパイプ型ヒートスプレッド内部における冷媒分布の測定[13]

本研究では、LEDなどの電子デバイスなどの冷却に用いられるフラットヒートパイプの作動環境下における冷媒分布を調べ、計測結果により、フラットヒートパイプにおいては、冷媒分布は設置姿勢の影響をほとんど受けないことがわかった。

2.12.工業製品の高度化に資するための金属間有機物の可視化に関する研究[14]

本研究では、工業製品の高度化に中性子イメージングを有効に活用するために、撮像系の高度化に取り組み、シンチレータ厚さが空間分解度に与える影響をKUR-E2ポートおよびKUANSにて検証した。

図13は、実験結果を表しており、線質およびシンチレータ厚さが空間分解能に及ぼす影響を明らかにした。

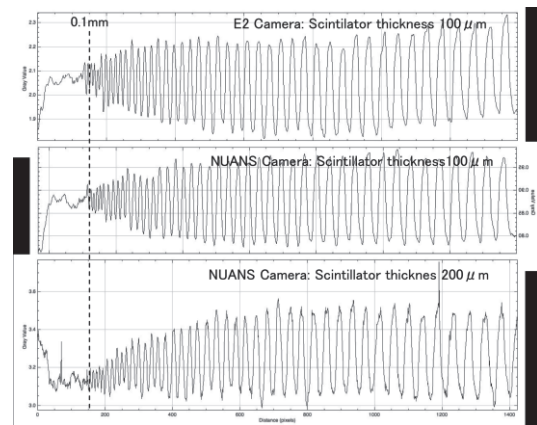


Fig.13 X-axis projection of detector indicator.

2-13. 中性子³He吸収反応を介したHeエキシマの蛍光[15]

⁴Heは2.17K以下の極低温では超流動を示すことが知られており、多くの興味深い特性を示す。近年、超流動ヘリウムの量子乱流を計測する新しい計測手法が開発されているが、本研究では、Heエキシマをトレーサとするために、中性子³He吸収反応を利用することを目的とした。

図14は三重項Heエキシマのエネルギー準位を表し、905nmの波長のレーザーをHeエキシマに照射すると、基底状態aから、準安定状態c、さらに励起状態dに変位し、基底状態に戻る際に640nmの蛍光を発する。図15は、中性子照射がある場合とない場合のレーザー照射による発光の変化を示したものであるが、中性子照射により、明らかに蛍光強度に変動があることがわかる。今後、さらに照射条件を最適化する予定である。

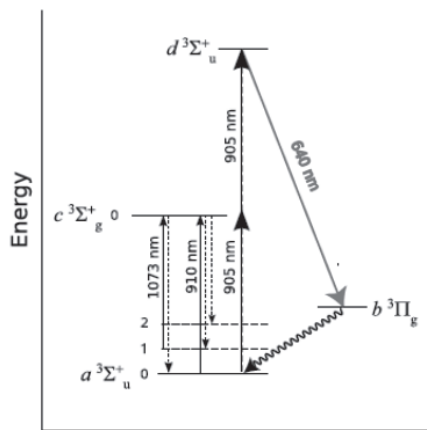


Fig.14 Energy level of a triplet He2* excimer in liquid Helium.

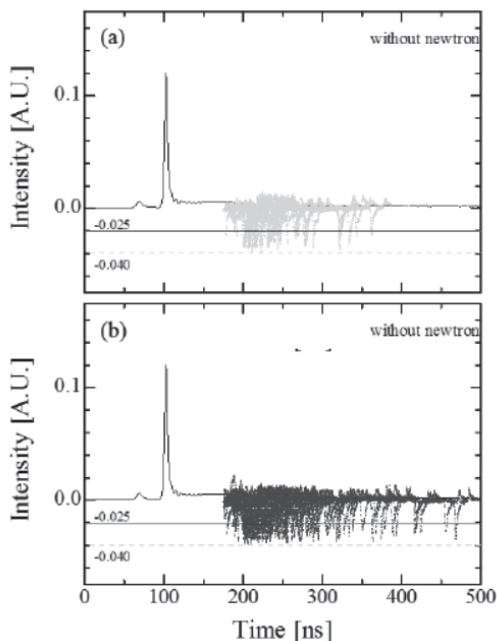


Fig.15 Recorded signal photo multipliers. (a) without neutron, (b) with neutron.

2-14. 中性子イメージング撮像技術の高度化[16,17]

本研究では、マルチチャンネルプレートに粒子径の小さい蛍光剤を充填させることにより、空間解像度と量子効率を両立させる新しい撮像素子の開発に取り組んだ。図 16 は、用いたマルチチャンネルプレートの写真であり、厚さ 0.4 mm、各キャピラリーの直径が 25 μ m となっている。これに粒子径約 7 μ m の蛍光剤を充填した。

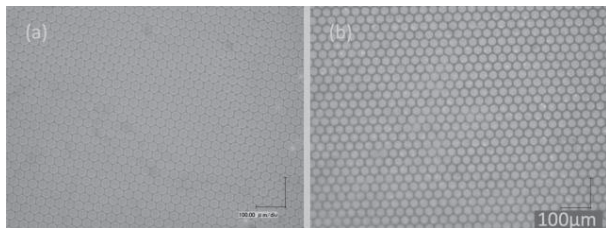


Fig.16 Micrographs of original (a) and phosphor-packed (b) capillary plates.

Development on Neutron Imaging Application

Yasushi Saito, Daisuke Ito, Hitoshi Asano, Hideki Murakawa, Katsumi Sugimoto, Takao Tsukada, Eita Shoji, Masaki Kubo, Hisashi Umekawa, Ryosuke Matsumoto, Takeyuki Ami, Yutaka Yamagata, Shinya Morita, Uzuki Matsushima, Tatsuya Numao, Takao Harada, Takuro Sakai, Masahito Matsubayashi, Manabu Kanematsu, Kei Mizuta, Masayoshi Tamaki, Yoshiyuki Tsuji, Seiichi Takami
ysaito@rri.kyoto-u.ac.jp

図 17 は開発した撮像素子を KUR-E2 ポートにて性能試験を行った結果であり、インジケータが明瞭に観察できることを明らかにした。今後、作成条件をさらに最適化する予定である。

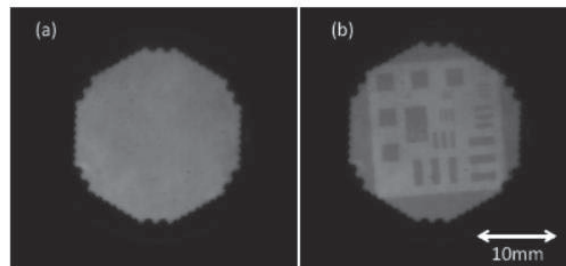


Fig. 17 Results of fluorescent plates neutron imaging.

3. 結論：本プロジェクトの遂行により、中性子イメージング技術の高度化とともに、様々な応用を発掘することができ、さらに He 超流動などレーザー照射と組み合わせた新たな手法も提案され、成果を得た。しかしながら、新たな応用については、さらにイメージング技術を高度とデータ処理法の開発が必要であることが再確認された。今後、KUR のみならず、他の中性子源を用いて基礎データを集積し、システム依存性を排除した考察が必要と考えられる。

参考文献

- [1] Y. Saito, *et al.*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., A., **651** (2011) 36-41.
- [2] Y. Saito and D. Ito, Proc. WCNR11, (2018).
- [3] D. Ito and Y. Saito, Physics Procedia, **69** (2015).
- [4] H. Asano, *et al.*, Physics Procedia, **69** (2015).
- [5] E. Shoji, *et al.*, Proc. WCNR11,(2018).K. Sugioka *et al.*, AIChE Journal, **60** (2014).
- [6] H. Umekawa *et al.*, Physics Procedia, **69** (2015).
- [7] D. Ito, *et al.*, Proc. WCNR11, (2018).
- [8] R. Matsumoto, *et al.*, Proceedings of the International Heat Transfer Conference IHTC-15, IHTC15-9144, Kyoto,pp. 3603-361.
- [9] J.Guo *et al.*, Optics Express, **22** (2014).
- [10] U. Matsushima *et al.*, KURRI progress Report 2012, (2012) 128.
- [11] T. Numao, *et al.*, Proc. 67th Annual Academic Lecture of Japan Society of Civil Engineers, V-040 (2012).
- [12] M. Kanematsu *et al.*, PJCI, vol36, No.1, 2014.
- [13] K. Mizuta *et al.*, Physics Procedia, **69** (2015).
- [14] K. Hirota *et al.*, KURNS progress Report 2018, (2018).
- [15] Y. Tsujia *et al.*, KURNS progress Report 2018, (2018).
- [16] T. Sakai *et al.*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., B., **332** (2014) 1238.
- [17] T. Sakai *et al.*, KURNS progress Report 2018, (2018).

(PJ3) 高エネルギー粒子照射研究における評価手法の高度化

(京大複合研、東北大金研¹、鹿児島大²、法政大³、大阪府立大⁴、福井大⁵、兵庫県立大⁶、産総研⁷)

○木野村 淳、井上 耕治¹、佐藤 紘一²、西村 智朗³、秋吉 優史⁴、鬼塚 貴志⁵、神田 一浩⁶、中尾 節男⁷

1. はじめに：複合原子力科学研究所では、材料照射研究用設備として、照射温度を高精度に制御して原子炉照射可能な精密制御照射管、液体窒素温度で 10 MeV オーダーの電子線照射可能なライナック低温照射設備などの特徴ある照射設備が開発整備されてきた。これらの照射設備については幅広く共同利用に供されてきたが、温度や照射線量などの照射条件については、さらに改良が可能であり、照射条件や精度の向上も評価手法の高度化につながると考えられる。

また、照射後試料の評価装置として、以前より使われている透過電子顕微鏡、電子スピン共鳴、バルク陽電子消滅分光測定装置、昇温脱離分光装置に加えて、集束イオンビーム加工装置や低速陽電子ビームシステムなどの新たな機器の開発・導入が進んでいる。

材料照射研究に関わってきたユーザーがこれまで用いてきた評価装置の使用方法や解析方法を見直すこと、あるいはこれまで使うことがなかった評価装置を導入すること、最近導入が進んでいる評価装置を新たに用いることにより、材料照射研究の新展開と新規ユーザー獲得が期待される。このような観点から本プロジェクト研究を推進してきた。

2. 研究課題：本プロジェクトの研究課題とその進捗及び研究成果の概要を以下にまとめる。

2.1 陽電子減速用材料の高効率利用に関する研究(代表：木野村淳)

京都大学複合原子力科学研究所では研究用原子炉 KUR を用いた原子炉ベース高強度低速陽電子ビームシステムの開発を行ってきた。KUR の場合、発生部の初期ビーム径が 30 mm であり、試料上でも 15 mm から 20 mm 程度のビーム径を持つ。研究開発の中で実際に測定する試料の多くが 10 mm 以下であることを考えると、ビーム径を小さくすることが必要である。この目的のため、高輝度化という陽電子固有の手法を用いるが、その際に、陽電子に対して負の仕事関数を持つ減速材を用いて、陽電子の減速と再放出を行う。高輝度化に伴いビーム強度を強く保つためには減速材の効率は重要である。本研究では、低速陽電子ビームシステムの高輝度化装置に関して、陽電子減速用材料の効率を含めて装置のパラメータ最適化を行った[1]。

高輝度化装置の調整を進めた結果、装置入射直前の MCP (Microchannel plate) 上で約 10 mm のビームが高輝度化後の MCP 上では 3 mm 以下のビーム径になったことが、MCP の発光強度分布の画像解析により示された。さらに 10 eV 以上あった入射前の陽電

子ビームのエネルギー分散が、高輝度化後には 3 eV 以下になったことが示され、寿命測定に必要な陽電子のパルス化を行うためにより適したビームが得られていることも分かった。また、減速材として単結晶 Ni 膜を用いたが、減速材を真空内の取り付けた後に原子状水素処理を行っている。原子状水素処理の条件については産総研の方法に基づき、処理時間などを変えてより良い条件を探索した。高輝度化装置の入射前後の強度測定から、用いた Ni 減速材の効率は約 2%であった。処理方法の最適化や酸化の影響を受けにくい W 減速材などを使用することで、より高い効率が得られると期待される。

2.2 KUR 高強度低速陽電子ビーム発生装置を用いた原子力材料の照射効果の解明(代表：井上耕治)

原子炉圧力容器鋼 (RPV) の主な脆化要因の 1 つである Cu 析出物の形成過程の理解には、照射下での Cu 原子の拡散挙動の理解が不可欠である。高温では熱平衡空孔濃度が支配的になり、照射による拡散促進の効果はほとんど見られない。しかし、温度が低くなると、熱平衡空孔に対して照射によって導入される空孔の影響が無視できないため、照射による拡散促進の効果が見られることが期待される。そこで、KUR ライナックでの電子線照射した試料 (電子線エネルギー：8 MeV, 照射温度：310°C-475°C) も含め、様々な照射条件下での Fe 中の Cu の拡散係数を求めた。具体的には、3次元アトムプローブを用いて Fe 中の Cu 析出物を調べることで、Cu の析出物の形成カインेटクスから Cu の拡散係数を求めた。その結果、フラックスに依存して拡散係数の値は異なり、フラックスが高くなると拡散係数の値が大きくなる

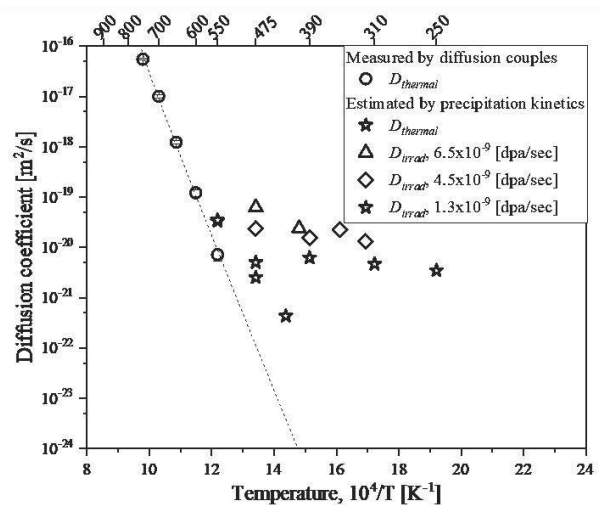


図 1 Fe 中の Cu の拡散係数のアレニウスプロット。

ことがわかった (図 1)。さらに、今回照射した温度領域では拡散係数の温度依存性が見られないことから、照射条件下では熱平衡空孔の影響は小さく、照射によって導入される空孔によって拡散が支配されていることがわかった。

2.3 高エネルギー粒子照射した金属材料の硬さ変化に及ぼす空孔集合体の影響 (代表: 佐藤 紘一)

核融合炉などでは核変換によって材料中にガス原子が生成し、照射によって形成した格子欠陥と相互作用し、材料内部に滞留することで、材料劣化が進む。また、水素を捕獲した照射欠陥が金属材料の硬さにどの程度影響を及ぼすかについては、未解明な部分が多い。そこで、本研究では、電子線照射したタングステン材料に水素チャージし、陽電子消滅寿命の変化と硬さの変化の関係を調べる。

(株) アライドマテリアル製の純度 99.95%、厚さ 0.2 mm のタングステン板を用いた。板から直径 5 mm のディスクをレーザー放電加工で作製した。1773K で 1 時間の熱処理を施した後、電子線照射した。電子線照射には京都大学複合原子力科学研究所の電子線型加速器を用いた。照射量は $6.5 \times 10^{22} \text{ m}^{-2}$ ($6.4 \times 10^{-4} \text{ dpa}$) であった。573K で 5.8 MPa の水素に 240 時間曝して、試料内部に水素を導入した。水素チャージによる原子空孔の陽電子寿命値と硬さの変化を、それぞれ陽電子寿命測定装置と硬さ試験機によって調べた。

電子線照射によって原子空孔が形成することが分かった。水素チャージ後に原子空孔の陽電子寿命値は短くなり、シミュレーションの結果と比較して、原子空孔が 1-2 個の水素原子を捕獲することが分かった。同時に、水素チャージによって硬さも上昇した。473K、1 時間の焼鈍を行うと、硬さは低下した。この傾向は原子空孔による水素の捕獲と脱離によるものと考えられる。また、573K、240 時間の焼鈍を行うと、空孔集合体の形成がみられた。原子空孔が水素を捕獲すると、転位の移動を妨げ、硬さが上昇すると考えられるが、それがどのようなメカニズムで起こるのかについては分かっていないため、今後、分子動力学などを行う必要がある。

2.4 化合物半導体の照射効果と電氣的・光学的特性に関する研究 (副題: GaN 及び ZnO バルク単結晶へのガンマ線照射効果) (代表: 西村 智朗)

厚さ 450 μm の GaN 単結晶へ 160 kGy のガンマ線照射を行ったところ、抵抗率は未照射の 30 Ωcm から照射後 $10^4 \Omega\text{cm}$ へ増加した。ガンマ線照射により発生したコンプトン電子が格子欠陥を生成したと考えられる [2]。プロトンビームを用いたラザフォード後方散乱により窒素原子の変位が観測され、照射後の高抵抗化は格子間窒素原子に起因する伝導帯下約 960 meV の深いエネルギー準位 (Kuriyama et al., Solid State Commun. 205, 1(2015)) が伝導帯中の電子の補償欠陥として作用していることが示唆される。

また、フォトルミネッセンス測定から未照射試料で観測された 557 nm (2.22 eV) のイエローミネッセンスのピークが、照射後 11 meV ほど高エネルギー側へシフトした。これは生成された浅い窒素原子空孔からガリウム原子空孔への遷移に起因すると考えられる (International Conf. Physics of Semicond. (2016) 北京で発表)。浅い窒素原子空孔ドナーの電子は、深いエネルギー準位の格子間窒素原子に補償され高抵抗化する。

一方、厚さ 500 μm の ZnO 単結晶へ 170 kGy のガンマ線照射を行ったところ抵抗率は未照射の $10^4 \Omega\text{cm}$ から照射後 $10^2 \Omega\text{cm}$ へ減少した。フォトルミネッセンス測定から 530 nm 付近のブロードなグリーンルミネッセンス強度のわずかな増加が観測された。このルミネッセンスは亜鉛原子空孔、酸素原子空孔、格子間酸素に起因していると言われている。酸素原子空孔の存在は電子スピン共鳴で g 値が 1.996 の Vo^+ 状態として観測された。ガンマ線照射後の低抵抗化の起源としては伝導帯下約 30 meV に位置する格子間亜鉛に起因すると考えられる (International Conf. Physics of Semicond. (2018) モンペリエで発表)。

2.5 核融合炉ダイバータ材料の照射後物性評価 (副題: 液体金属被覆材の耐食性評価) (代表: 秋吉 優史)

本研究では、核融合炉ダイバータの候補材に対する照射効果の解明を目的としている。これまでの共同研究で開発してきた高エネルギー電子線照射環境で使用可能な照射ホルダーを用いて、タングステン試料及び SiC セラミックスに対する電子線照射を行った。試料は $\phi 3 \text{ mm} \times 0.5 \text{ mm}$ の TEM Disk サイズの微小試験片であり、従来物性試験が困難な試験片であった。この試験片に対して、熱拡散率測定を可能とするために、20 μs のパルス幅でのフラッシュ加熱が可能な NETZSCH LFA-467 を用いた測定技術の開発を行った。試料治具の開発の他、表面処理手法、室温付近での測定を行わずに高温測定からの外挿による評価、試料厚さ測定手順など、多岐にわたる測定プロトコルの開発により、微小試験片でも全く問題無く熱拡散率の測定が可能となった。さらに、この微小試験片一枚のみを用いて陽電子寿命測定を可能とするシステムの開発を産総研、JAEA 等とも共同して進めており、試料を取り囲む形状のプラスチックシンチレーターと光電子増倍管、デジタルオシロスコープを用いた測定系により、従来の測定手法と遜色ない結果を得られるようになっている。その一方で測定に従来の数倍の時間がかかるようになっていたため、複数の BaF_2 検出器からの信号を Start, Stop 両方で活用することで、例えば 3 本の検出器では 6 倍の速度で測定を可能とするシステムの開発を行っている。

また、液体金属ダイバータの開発が次期日米協力事業核融合炉分野の FRONTIER プロジェクトで進められることになっているが、照射時の液体金属と固体材料の腐食挙動の評価を可能とするため、ステンレスキャプセル中に液体金属とアルミナ被覆ステン

レス材を封入しての照射を行った。新規開発の空冷ホルダーにおいて、プリアパーチャーに想像以上の熱負荷がかかる、キャプセル自体の照射軸に対する水平方向熱伝導率が低かったため、中央部に熱負荷が集中する等の不具合が多数見られたが、照射時挙動の評価という極めて重要な研究に必要な基礎的知見を得ることが出来た[3]。

2.6 陽電子消滅法を用いた照射誘起微細構造評価手法の高度化に関する研究（代表：鬼塚 貴志）

鉄クロム（FeCr）系合金は高温強度・低熱膨張性に優れることなどから軽水炉の1次冷却系のポンプや配管、原子炉圧力容器鋼のオーバレイクラッド材など照射環境下に置かれる部材に用いられている。Cr含有量が約12～90%の鉄クロム系合金を320～540℃程度の温度範囲で長時間時効するとFeが多い α 相とCuが多い α' 相の二相に相分離し延性や韌性が著しく低下する熱時効脆化事象（475℃脆化）が従来から知られている。原子炉環境下では材料は照射損傷を受けるが、照射損傷と熱時効の重畳効果については、まだ明らかになっていない。本研究では、電子線照射が鉄クロム合金の相分離に与える影響についての知見を得る事を目的として、KURRI-LINACと本研究で開発した試料ホルダーを使用して照射し、照射後の試料は陽電子消滅分光法で評価した。その結果、熱時効だけでは相分離が起こらない100℃下で電子線照射でも、相分離の初期過程を示唆する陽電子消滅サイトの電子状態の変化を捉えることができた。

2.7 陽電子消滅による各種 DLC 膜の自由体積の研究（代表：神田 一浩）

ダイヤモンドライクカーボン(DLC)膜はアモルファス材料であるため内部に自由体積を有しているが、この自由体積に関してはマクロ量である密度でしか評価されていない。本研究では陽電子消滅測定を用い、種々の DLC 膜の自由体積を評価することで DLC 膜の自由体積と物性の関係を明らかにしていくことを目的としている。DLC 膜は薄膜であるため、RI 線源の陽電子を用いた場合にはエネルギーが高く誤差の大きいデータしか得られないが、低速陽電子源を用いることで薄膜でも誤差の小さいデータを得られる。また陽電子寿命とドップラー広がり法を組み合わせることにより DLC 膜の自由体積のサイズと体積周囲の元素分析をより詳細に行うことが可能である。

平成 29 年度及び平成 30 年度にドップラー広がりエネルギー依存性（S-E カーブ）の予備測定を実施し、DLC 層と基板として用いた Si との区別ができ、DLC 層の S パラメータは試料の成膜条件や処理条件により変化することが示され、今後の実験につながる結果を得た。

2.8 ダイヤモンド状カーボン膜の耐熱性評価に関する研究（代表：中尾節男）

ダイヤモンド状カーボン(DLC)膜は、高硬度、低摩擦係数等の優れた機械特性を持ち、種々の機械部品に応用されているが、耐熱性が低く、高温環境下では使用することが困難である。低い耐熱性は、膜中のポロシティの存在と加熱による結合水素の離脱が膜の微細構造の変化に関係しているためと推察されるが、これまで、ポロシティや水素の結合状態等と耐熱性を関連づける研究は全く行われていない。本研究では、以下の実験を行った。産業技術総合研究所のプラズマ利用イオン注入装置を用いて DLC 膜を作製し、加熱による微細構造の変化（耐熱性）はラマン分光法で評価した。水素の含有量や結合状態等を昇温脱離ガス分析(TDS)法で評価した。その結果、ラマン分光法から水素含有 DLC 膜では 500℃の熱処理によりグラファイト化すること、TDS 分析から膜中の水素は約 400℃から離脱始めることが明らかとなった。これらの結果は、水素の離脱と微細構造の変化が相互に関連していることを示唆している。また、陽電子消滅法の予備実験を行うことができ、膜厚 1 μm 程度の DLC 膜においても測定可能であることがわかった。今後、陽電子消滅法による DLC 膜のポロシティ測定を引き続き行う予定である。

3. 装置開発：本プロジェクトに関連する実験装置に関して行った主な開発の結果を以下に示す。

3.1 電子線照射用試料ホルダー

電子線加速器で損傷導入を行う場合に、電子ビームのエネルギーが熱に変わる。一例として、平均電流 100 μA 、エネルギー 8 MeV の場合、試料ホルダーに付与される熱エネルギーは 800 W となる。約 1cm の電子ビームのスポット径に 800 W の熱エネルギーが集中し、試料温度は容易に数 100℃まで上昇する。

温度上昇を防ぎ、室温に近い温度で照射するため試料を水冷しながら照射するための水冷試料ホルダーについては既に整備されており、問題なく利用できる状況にある。

一方で、高温照射の場合には、照射が始まるまでは、試料は室温であるが、照射開始時に室温から照射温度まで大きく温度が変わる。照射中の温度変動は欠陥状態に影響するため、その対策を講じている。試料ホルダーには、加熱用ヒーターと冷却用ファンを備え、照射開始前は照射予定温度まで試料ホルダーを加熱しておき、照射開始後は試料ホルダーを冷却する。Al パイプの試料格納部位はフィードバック制御する合計 400 W のセラミクスヒーターで加熱し、一方、冷却のため風量可変で最大風量 2.5 m^3/min のファンを試料ホルダー付近に配置し、風量を遠隔操作する方法を取った。主要な研究対象である金属材料は大気中では表面が酸化するため、それを防ぐため、本研究で開発する試料ホルダーでは照射試料を He 雰囲気容器に入れる方式を取った。図 2 に開発した試料台の写真を示す。

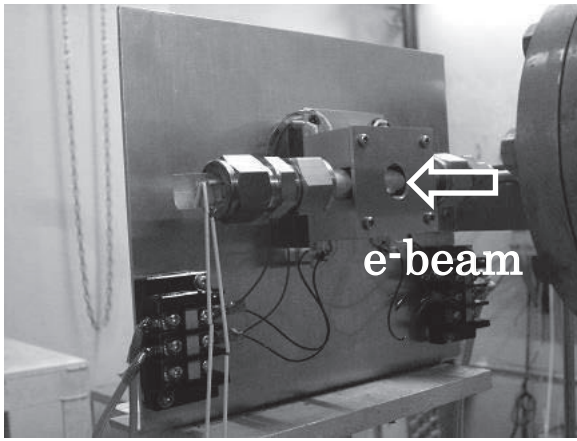


図2 電子線照射用試料ホルダーの写真

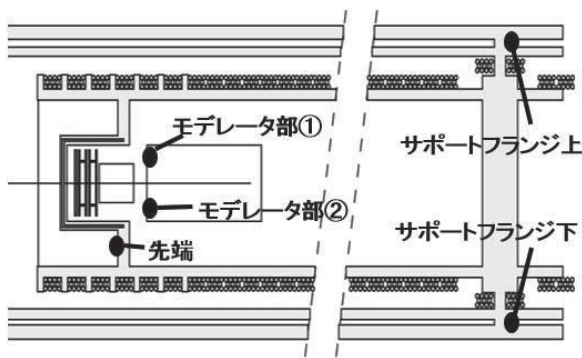


図3 陽電子ビームラインの温度測定点。

3.2 KUR 低速陽電子ビームシステム

京都大学研究用原子炉 KUR を用いた低速陽電子ビームシステムの以下のような開発を進めながら、共同利用者に開放を進めている。

3.2.1 5MW 運転時のビーム利用

KUR は 1 MW または 5 MW の出力で運転されるが、5 MW 運転時にコイル励磁なしの場合でも線源部温度が約 300°C に達する。コイル励磁するとさらなる温度上昇が予想されるため、先端部に設置した陽電子増強用の Cd キャップへの影響を考え、当初 5MW 運転時にはコイル励磁を行わずビーム取り出しを実施していなかった。これに対して、ビームラインを構成するインナースリーブと真空ダクトの間に空気より熱伝導率が約 1 桁大きい He ガスを導入することによりビームラインの冷却を行った。2 L/min の He ガス導入を行うと、5 MW 運転時にコイル励磁した場合でも、250°C 程度まで先端部温度の低減可能なが示された。さらに、ビームラインの真空ダクトの支持部と、モデレータ基部に新たに熱電対を設置し、ビームライン各部の温度をより正確に把握できるよ

うにした (図3)。これら改良の結果、5 MW 運転時にもビームラインが利用可能となり、測定時間の短縮のみならず、同時計数測定など実験の可能性が大きく広がった。

3.2.2 ビーム位置制御と試料サイズの確認

KUR 低速陽電子ビームラインでは、陽電子の加速エネルギーを 0 から 30 keV までの範囲で設定することができる。陽電子ビームは磁場輸送され、個々の粒子が磁場中でらせん軌道を描くため、加速エネルギーを変えるとビーム径及びビーム位置が変動する。このため、試料位置に蛍光スクリーン付の MCP (Microchannel Plate) を設置し、加速エネルギーを変えながら、ビーム径及び位置の確認を行った。さらに、ビーム位置の変動を補正するための、偏向コイルの値を決定し、コンピュータで自動補正できるようにした。これらの確認と補正の後、サイズの異なるリファレンス試料を測定することにより、測定可能な試料サイズを確認した。加速エネルギーに依存した偏向コイルの自動補正機能を使うことにより、15 mm 角の試料であれば、全加速エネルギー範囲で測定が可能であることが示された。より小さい試料についても、エネルギーにより利用可能であり、利用可能な範囲の確認を進めている。

4. 今後の展望： KUR 低速陽電子ビームシステムについては開発を継続し、利用可能な実験範囲を広げていくことを目指す。電子線照射やイオン照射の設備については、利用可能な照射温度の範囲と照射線量の精度を上げることを継続して目指す。京都大学複合原子力科学研究所が共同利用に公開している装置は、歴史のある装置も多い。従来の実験手法を単純に継続するだけでなく、異なる利用方法の可能性は常にあり、本研究プロジェクトが新たな研究展開への助けになったと考えている。

参考文献

- [1] "Evaluation of the optical performance of a brightness enhancement system developed for the KUR slow positron beamline", Y. Kuzuya, N. Oshima, A. Kinomura, A. Yabuuchi, K. Sato and Q. Xu, Journal of Physics Conference Series 791 (2017) 012012.
- [2] "Modification of the yellow luminescence in gamma-ray irradiated GaN bulk single crystal", Y. Torita, N. Nishikata, K. Kuriyama, K. Kushida, A. Kinomura, Q. Xu, Journal of Physics Conference Series, 864 (2017) 012016.
- [3] "Validation of miniature test specimens for post-irradiation thermal diffusivity measurement", M. Akiyoshi, R. Kasada, Y. Ishibashi, L.M. Garrison, J.W. Geringer, W.D. Porter and Y. Katoh, Fusion Engineering and Design 136 Part A (2018) 513.

あ と が き

京都大学複合原子力科学研究所では、毎年1月下旬から2月上旬頃に、学術講演会を開催しています。主に複合原子力科学研究所における共同利用・共同研究成果の一部を、所員、所外の共同利用研究者はもちろん、一般の方々にお知らせすることが開催の趣旨です。第53回京都大学複合原子力科学研究所学術講演会は、平成31年2月5日と6日の2日間にわたって開催されます。その内容は、

1)	トピック講演	7件
2)	プロジェクト研究成果報告	3件
3)	ポスター講演	33件

です。この報文集が、複合原子力科学研究所における研究活動の記録とともに、広報の一助となれば幸いです。

平成31年1月

学術公開チーム

田中浩基（チーム長）、茶竹俊行（副チーム長）、芝原雄司、徐 虬、
上杉智教、池上麻衣子、齋藤真器名、近藤夏子、藤原靖幸、栗原孝太、
中山千代子、鈴木倫代、横田香織

KURNS REPORT OF
INSTITUTE FOR INTEGRATED
RADIATION AND NUCLEAR SCIENCE,
KYOTO UNIVERSITY

発行所 京都大学複合原子力科学研究所

発行日 平成31年 1 月

住所 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2 丁目

TEL (072) 451- 2300