

ISSN 2189-7107

KURRI-EKR-1

PRINT ISSN 1342-0852
KURRI-KR-207

京都大学原子炉実験所
「第 50 回学術講演会報文集」

Proceedings of the 50th KURRI Scientific Meeting

開催日：平成 28 年 1 月 27、28 日
(January 27 & 28, 2016)

京都大学原子炉実験所

Research Reactor Institute, Kyoto University

はじめに

京都大学原子炉実験所では、毎年1月下旬頃に、学術講演会を開催しています。主に原子炉実験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50回京都大学原子炉実験所学術講演会は、平成28年1月27日と28日の2日間にわたって開催されます。その内容は、

1)	トピックス講演	3件
2)	新人講演	2件
3)	プロジェクト研究成果報告	2件
4)	特別講演（定年退職教員による）	3件
5)	ポスター講演	41件

です。この報文集が、原子炉実験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28年1月

学術公開チーム 茶竹俊行（チーム長）、窪田卓見、仲川洋介、中谷大介、大場洋次郎、大野和臣、真田悠生、沈 秀中、芝原雄司、志賀大史、鈴木倫代、田中良明、横田香織

Preface

Kyoto University Research Reactor Institute (KURRI) has held a scientific meeting about late January every year. The purpose of the meeting is to inform the public as well as researchers in and outside the institute mainly of several results of joint usage and collaborative researches performed in the institute. The 50th KURRI Scientific Meeting will be held for two days on January 27th and 28th, 2016. The contents of the meeting are as follows (the numbers of the right column are those of the presentations):

1)	Topic lectures	3
2)	New comer lectures	2
3)	Presentations of the results of the project researches terminating this fiscal year	2
4)	Special lectures given by retiring faculty members	3
5)	Poster presentations	41

We hope that this proceedings book will contribute to keep records of and let the public know of research activities in the institute.

January, 2016

Team for Disclosing Research Results and Facilities

Toshiyuki Chatake (Chief), Takumi Kubota, Yosuke Nakagawa, Daisuke Nakatani, Yojiro Oba, Kazuomi Oono, Yu Sanada, Xiuzhong Shen, Yuji Shibahara, Hiroshi Shiga, Michiyo Suzuki, Yoshiaki Tanaka, and Kaori Yokota

目 次

1) 中性子イメージングの高度化と応用	1
京大原子炉	
齊藤 泰司	
2) ボイド率並びにボイド速度推定精度向上のための中性子雑音輸送計算法	7
京大原子炉	
山本 俊弘	
3) 京都大学原子炉実験所における加速器駆動システムの基礎研究の現状について	10
京大原子炉	
卞 哲浩	
4) 加速器の新地平：New horizon of accelerator study	13
京大原子炉	
森 義治	
5) 中性子転換注入G a Nのキャリア補償効果	17
法大院、大阪教育大 ¹ 、京大原子炉 ²	
西片 直樹、中村 司、上岡 一馬、新川 輝、栗山 一男、串田 一雅 ¹ 、徐 虬 ²	
6) X線ラジオグラフィを用いた霜層密度分布の測定	18
関大、関大院 ¹ 、京大原子炉 ²	
上地 拓摩、松本 亮介、影林 和磨 ¹ 、伊藤 大介 ² 、齊藤 泰司 ²	
7) 冷却材喪失時における KUR 板状燃料体の自然対流冷却特性	19
京大原子炉	
伊藤 大介、齊藤 泰司	
8) 溶液エアロゾルに対する核分裂生成物の付着挙動	20
京大院工、京大原子炉 ¹	
田中 徹、新田 真之介、高宮 幸一 ¹ 、関本 俊 ¹ 、沖 雄一 ¹ 、大槻 勤 ¹	
9) NC 制御加工装置による回転楕円体中性子ミラーの製作	21
京大原子炉、理研 ¹ 、東京電大 ² 、北大 ³	
吉永 尚生、日野 正裕、金山 雅哉、細畠 拓也 ¹ 、山形 豊 ¹ 、郭 江 ¹ 、加藤 純一 ¹ 、 森田 晋也 ² 、武田 晋 ³ 、古坂 道弘 ³ 、川端 祐司	
10) 重水素化タンパク質を基軸とした溶液散乱構造解析	22
京大原子炉、千葉科大薬 ¹ 、神大理 ² 、京大薬 ³	
井上 倫太郎、茶竹 俊行、柳澤 泰任 ¹ 、茶谷 絵理 ² 、星野 大 ³ 、藤井 紀子	
11) 放射線によって生じる「DNA 損傷のかたまり」を発見—蛍光共鳴エネルギー移動 (FRET) を 用いたアプローチ	23
JAEA、京大原子炉 ¹ 、 赤松 憲、鹿園 直哉、齊藤 毅 ¹	
12) イオン照射された Fe-Ni Invar のメスバウアー分光測定	24
愛大理工、JAEA ¹ 、大阪府大 ² 、京大原子炉 ³	
松下 正史、三井 孝也 ¹ 、岩瀬 彰浩 ² 、北尾 真司 ³ 、瀬戸 誠 ³	

13) 結晶解析のための、効率的なタンパク質の重水素化	25
京大原子炉	
喜田 昭子、森本 幸生	
14) 金属塩の加熱により生成したエアロゾルに対する核分裂生成物の付着挙動	26
京大院工、京大原子炉 ¹	
新田 真之介、田中 徹、関本 俊 ¹ 、高宮 幸一 ¹ 、沖 雄一 ¹ 、大槻 勤 ¹	
15) 前立腺癌に対する硼素中性子捕捉療法 (BNCT) の制癌効果	27
大医大、京大原子炉 ¹ 、大府大 ²	
高原 健、稲元 輝生、南 幸一郎、吉川 勇希、高井 朋聡、平野 一、能見 勇人、木山 賢、鈴木 実 ¹ 、切畑 光統 ² 、東 治人	
16) ガンマ線照射による天然腐植物質の化学状態変化	28
京大工、京大原子炉 ¹	
後藤 涼平、佐々木 隆之、齊藤 毅 ¹ 、小林 大志、藤井 俊行 ¹ 、上原 章寛 ¹ 、山名 元 ¹	
17) カテコール産生における脱炭酸・水酸基付加反応機構の考察	
-サリチル酸水酸化酵素の結晶構造解析から-	29
京大院理、京大原子炉 ¹ 、JAEA ²	
上村 拓也、喜田 昭子 ¹ 、安達 基泰 ² 、黒木 良太 ² 、森本 幸生 ¹	
18) Th 水酸化物の溶解度および固相状態の温度依存性に関する考察	30
京大院工、京大原子炉 ¹	
西川 将吾、小林大志、佐々木隆之、上原章寛 ¹ 、藤井俊行 ¹	
19) 中性子反射率法およびATR-IR法による鉄表面におけるリン酸エステル系添加剤の吸着・反応挙動の解明	31
同志社大、京大原子炉 ¹	
平山 朋子、秋元 翔太、岩田 祐磨、松岡 敬、日野 正裕 ¹	
20) 黄砂飛来時における大気エアロゾルの組成元素濃度変化	32
大府大、京大原子炉 ¹	
伊藤 憲男、溝畑 朗、飯沼 勇人 ¹ 、奥村 良 ¹	
21) 高エネルギー電子線照射したタングステン中の水素同位体捕獲	33
富山大、東北大 ¹ 、鹿児島大 ² 、京大原子炉 ³	
波多野 雄治、網 恭平、外山 健 ¹ 、佐藤 紘一 ² 、徐 虬 ³	
22) D/H コントラスト法と中性子結晶解析	34
京大原子炉、JAEA ¹	
茶竹 俊行、藤原 悟 ¹	
23) 鉄クロム合金の相分離に与える電子線照射の影響	35
福井大原子力研、鹿児島大 ¹ 、京大原子炉 ²	
鬼塚 貴志、佐藤 紘一 ¹ 、徐 虬 ² 、福元 謙一	
24) γ 線照射によるグラフェン-Pt ナノコンポジットの合成	36
大阪府大工、東北大金研 ¹ 、京大原子炉 ²	
東海 旭宏、仲西 穂高、田中 元彬、水越 克彰 ¹ 、興津 健二、阪本 雅昭 ² 、堀 史説	
25) FeAl 金属間化合物への電子線照射による生成欠陥のエネルギー依存性	37
大阪府大工、九大応力研 ¹ 、京大原子炉 ² 、鹿児島大工 ³	
上野 陽平、小林 一基、石山 大志、谷 真海、大澤 一人 ¹ 、岩瀬 彰宏、徐 虬 ² 、佐藤 紘一 ³ 、堀 史説	

26) 超イオン伝導体 Na_3PS_4 ガラスおよびガラスセラミックの構造	38
京大原子炉、KEK ¹	
小野寺 陽平、森 一広、大友 季哉 ¹ 、福永 俊晴	
27) 軽水炉用ロッドバンドル内低流速気液二相流の流動特性研究	39
京大原子炉、米国パーデュー大 ¹	
沈 秀中、日 引俊 ¹	
28) 極低温における超伝導線安定化材の繰り返し中性子照射試験	40
KEK、岡山大 ¹ 、阪大 ² 、華中大 ³ 、京大原子炉 ⁴ 、鹿児島大 ⁵	
吉田 誠、中本 建志、荻津 透、菅野 未知央、佐々木 憲一、飯尾 雅実、三原 智、西口 創、	
吉村 浩司 ¹ 、板橋 隆久 ² 、久野 良孝 ² 、佐藤 朗 ² 、青木 正治 ² 、秦 斌 ³ 、栗山 靖敏 ⁴ 、	
宮田 清美 ⁴ 、森 義治 ⁴ 、佐藤 紘一 ⁵ 、徐 虬 ⁴ 、義家 敏正 ⁴	
29) 新奇金属硫化物系ガラスの構造とイオン伝導特性	41
京大院、京大原子炉 ¹	
出島 一仁、小野寺 陽平 ¹ 、森 一広 ¹ 、福永 俊晴 ¹	
30) $\text{Li}_2\text{S-SiS}_2$ 系超イオン伝導ガラスの構造とリチウムイオン伝導経路	42
京大院工、京大原子炉 ¹	
高橋 佑理子、森 一広 ¹ 、小野寺 陽平 ¹ 、福永 俊晴 ¹	
31) $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶中の Li イオン挙動及び伝導経路	43
京大院工、京大原子炉 ¹ 、JAEA ² 、KEK ³	
村田 峻、森 一広 ¹ 、福永 俊晴 ¹ 、柴田 薫 ² 、川北 至信 ² 、米村 雅雄 ³	
32) J-PARC/MLF BL06 VIN ROSE と中性子集光ミラー開発の現状	44
京大原子炉、京大工 ¹ 、KEK ² 、理研 ³ 、東京電機大 ⁴ 、北大工 ⁵	
日野 正裕、小田 達郎 ¹ 、吉永 尚生、金山 雅哉、杉山 正明、川端 祐司、遠藤 仁 ² 、	
山田 悟史 ² 、細島 拓也 ³ 、郭 江 ³ 、加藤 純一 ³ 、山形 豊 ³ 、森田 晋也 ⁴ 、武田 晋 ⁵ 、	
古坂 道弘 ⁵ 、瀬戸 秀紀 ²	
33) B-3 小型多目的中性子回折計建設の進捗状況	45
京大原子炉、KEK ¹ 、東北大金研 ² 、茨城大工 ³ 、京大院工 ⁴	
森 一広、吉野 泰史、川端 祐司、福永 俊晴、佐藤 節夫 ¹ 、平賀 晴弘 ¹ 、山口 泰男 ² 、	
岩瀬 謙二 ³ 、塩野 貴大 ⁴	
34) 低エネルギー励起核 $^{229\text{m}}\text{Th}$ からの真空紫外光測定	46
阪大院理、京大原子炉 ¹ 、東北大金研・大洗 ²	
安田 勇輝、笠松 良崇、重河 優大、高宮 幸一 ¹ 、大槻 勤 ¹ 、三頭 聡明 ² 、篠原 厚	
35) 10MGy の耐放射線性を旨とした微小冷陰極撮像素子の開発	47
京大院工、産総研 ¹ 、静大電研 ² 、木更津高専 ³ 、京大原子炉 ⁴ 、大阪府大放射線セ ⁵ 、	
後藤 康仁、辻 博司、長尾 昌善 ¹ 、増澤 智昭 ² 、根尾 陽一郎 ² 、三村 秀典 ² 、岡本 保 ³ 、	
佐藤 信浩 ⁴ 、秋吉 優史 ⁵ 、高木 郁二	
36) 極冷中性子を用いた TOF-MIEZE スピンエコー実験	48
京大工、京大原子炉 ¹ 、名大理 ² 、ILL ³	
小田 達郎、日野 正裕 ¹ 、川端 祐司 ¹ 、北口 雅暁 ² 、Peter Geltenbort ³	
37) 福島県下で採取した土壌試料中のウラン・プルトニウムの同位体分析	49
京大原子炉、福島県 ¹	
芝原 雄司、窪田 卓見、藤井 俊行、福谷 哲、高宮 幸一、紺野 慎行 ¹ 、水野 哲 ¹ 、山名 元	

38) X線ラジオグラフィによる水平バンドル内気液二相流のボイド率分布計測	50
神戸大、京大原子炉 ¹ 馬場 実咲、宮崎 猛、村川 英樹、杉本 勝美、竹中 信幸、伊藤 大介 ¹ 、齋藤 泰司 ¹	
39) KURMA の開発状況	51
京大原子炉 奥村 良、谷垣 実、佐藤 信浩、小林 康浩	
40) 昇温脱離ガス分析法を用いたタングステンの重水素トラッピングサイトの検出	52
鹿児島大、京大原子炉 ¹ 、京大工 ² 佐藤 紘一、田宮 怜 ¹ 、徐 虬 ¹ 、土田 秀次 ² 、義家 敏正 ¹	
41) ストロンチウム及びカルシウムの化学交換法における同位体分別研究 II	53
大産大、東工大原子炉 ¹ 、京大原子炉 ² 碓 隆太、佐久間 洋一 ¹ 、伊藤 彩、藤井 俊行 ² 、福谷 哲 ² 、芝原 雄司 ²	
42) 境界条件制御による気泡微細化沸騰の伝熱促進	54
京大院、京大原子炉 ¹ 刀塚 淳、伊藤 大介 ¹ 、齋藤 泰司 ¹	
43) 鉛ビスマス流れの乱流構造に対する流路表面性状の影響	55
京大院、京大原子炉 ¹ 、INSS ² 有吉 玄、伊藤 大介、齋藤 泰司 ¹ 、三島 嘉一郎 ²	
44) 放射化学的中性子放射化分析法を用いた、地球化学的固体試料中の微量ハロゲンの分析	56
京大原子炉 関本 俊	
45) D-D 中性子源を用いた中性子エネルギー弁別法による核物質探知システムの開発	57
京大院エネ科、京大原子炉 ¹ 土肥 和誠、三澤 毅 ¹ 、高橋 佳之 ¹ 、北村 康則 ¹	
45) 原子力先進材料における高エネルギー粒子線の照射効果	58
京大原子炉 徐 虬	
46) 腫瘍内微小環境を標的としたがん細胞増感	63
京大原子炉 真田 悠生	
47) ガンマ線を用いた原子・分子のスローダイナミクス研究	64
京大原子炉 齋藤 真器名	
48) 脳腫瘍 BNCT のための生物学的基礎研究－脳壊死モデル作成と腫瘍幹細胞に関する研究	67
京大原子炉 近藤 夏子	
49) 原子力と付き合い 47年：広島・長崎、チェルノブイリ、そして福島	70
京大原子炉 今中 哲二	
50) 中性子散乱を使った材料研究	73
京大原子炉 福永 俊晴	

CONTENTS

1) Development on neutron imaging application	1
Yasushi Saito, Daisuke Ito, Nobuyuki Takenaka, Hitoshi Asano, Takao Tsukada, Hisashi Umekawa, Ryosuke Matsumoto, Yutaka Yamagata, Uzuki Matsushima, Tatsuya Numao, Hideshi Kagawa, Hiroshi Iikura, Manabu Kanematsu, Kei Mizuta, Akira Uritani and Yoshiyuki Tsuji	
2) Neutron noise transport calculation method for improving the accuracy of void fraction and void transit time measurements	7
Toshihiro Yamamoto	
3) Current status on basic research of accelerator-driven system in kyoto university research reactor institute	10
Cheol Ho Pyeon	
4) New horizon of accelerator study	13
Yoshiharu Mori	
5) Effect of carrier compensation in neutron transmutation doped GaN	17
Naoki Nishikata, Tsukasa Nakamura, Kazuma Kamioka, Akira Shinkawa, Kazuo Kuriyama, Kazumasa Kushida and Qiu Xu	
6) Measurement of frost density profile by X-ray radiography	18
Takuma Uechi, Ryosuke Matsumoto, Kazuma Kagebayashi, Daisuke Ito and Yasushi Saito	
7) Natural convection cooling characteristics of KUR plate type fuel assembly during LOCA	19
Daisuke Ito and Yasushi Saito	
8) Attachment behavior of fission products on solution aerosol	20
Toru Tanaka, Shinnosuke Nitta, Koichi Takamiya, Shun Sekimoto, Yuichi Oki and Tsutomu Ohtsuki	
9) Manufacturing nuclei photo device with 2 dimensional curved surface by NC facility	21
Hisao Yoshinaga, Masahiro Hino, Masaya Kanayama, Takuya Hosobata, Yutaka Yamagata, Kou Kaku, Jun-ichi Katou, Shinya Morita, Shin Takeda, Mitihiko Kosaka and Yuuji Kawabata	
10) Protein solution structural analysis assisted by deuterated protein	22
Rintaro Inoue, Toshiyuki Chatake, Yasuhide Yanagisawa, Eri Chatani, Masaru Hoshino and Noriko Fujii	
11) Clustered DNA damage produced by ionizing radiation	23
Ken Akamatsu, Naoya Shikazono and Takeshi Saito	
12) Mössbauer spectroscopy for Fe-Ni Invar alloy irradiated by proton	24
Masafumi Matsushita, Takaya Mitsui, Akihiro Iwase, Shinji Kitao and Makoto Seto	
13) An effective deuterium exchange method for neutron crystal structure analysis	25
Akiko Kita and Yukio Morimoto	
14) Attachment behavior of fission products to aerosol generated by heated metal salts	26
Shinnosuke Nitta, Toru Tanaka, Shun Sekimoto, Koichi Takamiya, Yuichi Oki and Tsutomu Ohtsuki	
15) The anti-proliferative effect of boron neutron capture therapy in a prostate cancer xenograft model	27
Kiyoshi Takahara, Teruo Inamoto, Koichiro Minami, Yuki Yoshikawa, Tomoaki Takai, Naokazu Ibuki, Hajime Hirano, Hayahito Nomi, Shinji Kawabata, Satoshi Kiyama, Shin-Ichi Miyatake, Toshihiko Kuroiwa, Minoru Suzuki, Mitsunori Kirihata and Haruhito Azuma	

16) Influence of gamma-radiation on the chemical property of natural organic matter	28
Ryohei Goto, Takayuki Sasaki, Takeshi Saito, Taishi Kobayashi, Toshiyuki Fujii, Akihiro Uehara and Hajimu Yamana	
17) A study of the decarboxylative hydroxylation reaction for the catalytic catechol production in the salicylate hydroxylase –revealed at 2.5 Å crystal structure analysis–	29
Takuya Uemura, Akiko Kita, Motoyasu Adachi, Ryota Kuroki and Yukio Morimoto	
18) Temperature dependence of solubility and crystallinity of Th (IV) hydroxides	30
Shogo Nishikawa, Taishi Kobayashi, Takayuki Sasaki, Akihiro Uehara and Toshiyuki Fujii	
19) In-situ analysis of chemical reaction between phosphoesters and iron surface by neutron reflectometry and ATR-IR.	31
Tomoko Hirayama, Syota Akimoto, Yuma Iwata, Takashi Matsuoka and Masahiro Hino	
20) Concentration change of elemental constituents in aerosols during Kosa event	32
Norio Ito, Akira Mizohata, Yuto Iinuma and Ryo Okumura	
21) Trapping of hydrogen isotope in vacancy-type defects in tungsten	33
Yuji Hatano, Kyohei Ami, Qiu Xu, Koichi Sato and Takeshi Toyama	
22) D/H contrast neutron protein crystallography	34
Toshiyuki Chatake and Satoru Fujiwara	
23) Effect of electron irradiation on α - α' phase decomposition in Fe-Cr alloy	35
Takashi Onitsuka, Koichi Sato, Qiu Xu and Ken-ichi Fukumoto	
24) Synthesis of graphene-Pt nanocomposites by using γ -ray irradiationr	36
Akihiro Tokai, Hodaka Nakanishi, Motoaki Tanaka, Yoshiteru Mizukoshi, Kenji Okitsu, Masaaki Sakamoto and Fuminobu Hori	
25) The energy dependence of irradiation defects in FeAl intermetallics induced by electron irradiation ...	37
Youhei Ueno, Taishi Ishiyama, Kazuki Kobayashi, Masaumi Tani, Kazuhito Ohsawa, Akihiro Iwase, Qiu Xu, Koichi Sato and Fuminobu Hori	
26) Structures of Na ₃ PS ₄ glass and glass-ceramic with superionic conductivity	38
Yohei Onodera, Kazuhiro Mori, Toshiya Otomo and Toshiharu Fukunaga	
27) Flow characteristics study on low-flow-rate gas-liquid two-phase flows in a LWR rod bundle channel	39
Xiuzhong Shen and Takashi Hibiki	
28) Repetitive neutron irradiation tests of superconductor stabilizer materials at low temperature	40
Makoto Yoshida, Tatsushi Nakamoto, Toru Ogitsu, Michinaka Sugano, Ken-ichi Sasaki, Masami Iio, Satoshi Mihara, Koji Yoshimura, Takahisa Itahashi, Yoshitaka Kuno, Akira Sato, Masaharu Aoki, Koichi Sato, Yasutoshi Kuriyama, Kiyomi Miyata, Yoshiharu Mori, Qiu Xu and Toshimasa Yoshiie	
29) Structure and ionic conduction property of new amorphous solid electrolytes of metal sulfide system	41
Kazuhiro Dejima, Yohei Onodera, Kazuhiro Mori and Toshiharu Fukunaga	
30) Structure analysis of Li ₂ S-SiS ₂ superionic conducting glasses	42
Yuriko Takahashi, Kazuhiro Mori, Yohei Onodera and Toshiharu Fukunaga	
31) Li-ion diffusion and conduction pathways in Li ₇ P ₃ S ₁₁ metastable crystal	43
Shun Murata, Kazuhiro Mori, Toshiharu Fukunaga, Kaoru Shibata, Yukinobu Kawakita and Masao Yonemura	

32) Current status of development of VIN ROSE and neutron focusing mirrors	44
Masahiro Hino, Tatsuro Oda, Hisao Yoshinaga, Masaya Kanayama, Masaaki Sugiyama, Yuji Kawabata, Hitoshi Endo, Norifumi Yama-da, Takuya Hosobata, Guo Jiang, Junichi Kato, Yutaka Yamagata, Shin-ya Morita, Shin Takeda, Michihiro Furusaka and Hiseki Seto	
33) Current states for development of the compact multipurpose neutron diffractometer on the B-3 beam port	45
Kazuhiro Mori, Hirofumi Yoshino, Yuji Kawabata, Toshiharu Fukunaga, Setsuo Sato, Haruhiro Hiraka, Yasuo Yamaguchi, Kenji Iwase and Tokahiro Shiono	
34) Search for the vacuum ultraviolet photons from the low-lying isomer ^{229m}Th	46
Yuki Yasuda, Yoshitaka Kasamatsu, Yudai Shigekawa, Koichi Takamiya, Tsutomu Ohtsuki, Toshiaki Mitsugashira and Atsushi Shinohara	
35) Development of compact image sensor with field emitter array with radiation tolerance up to 10 MGy	47
Yasuhito Gotoh, Hiroshi Tsuji, Masayoshi Nagao, Tomoaki Masuzawa, Yoichiro Neo, Hidenori Mimura, Tamotsu Okamoto, Nobuhiro Sato, Masafumi Akiyoshi and Ikuji Takagi	
36) Experimental study on TOF-MIEZE spin echo method using very cold neutrons	48
Tatsuro Oda, Masahiro Hino, Masaaki Kitaguchi, Yuji Kawabata and Peter Geltenbort	
37) Isotopic analysis of plutonium and uranium in soil samples by thermal ionization mass spectrometry ...	49
Yuji Shibahara, Takumi Kubota, Toshiyuki Fujii, Satoshi Fukutani, Koichi Takamiya, Mitsuyuki Konno, Satohsi Mizuno and Hajimu Yamana	
38) Measurement of void fraction distribution in two-phase flow in a horizontal tube bundle by using X-ray radiography	50
Misaki Baba, Takeru Miyazaki, Hideki Murakawa, Katsumi Sugimoto, Nobuyuki Takenaka, Daisuke Ito and Yasushi Saito	
39) The development and circumstances of KURAMA	51
Ryo Okumura, Minoru Tanigaki, Nobuhiro Sato and Yasuhiro Kobayashi	
40) Detection of deuterium trapping sites in tungsten by thermal desorption spectroscopy	52
Koichi Sato, Rei Tamiya, Qiu Xu, Hidetsugu Tsuchida and Toshimasa Yoshiie	
41) Study of isotope separation of strontium and calcium via chemical exchange reaction II	53
Ryuta Hazama, Yoichi Sakuma, Aya Ito, Toshiyuki Fujii, Satoshi Fukutani and Yuji Shibahara	
42) Enhancement of heat transfer on microbubble emission boiling by boundary condition controls	54
Jun Natazuka, Daisuke Ito and Yasushi Saito	
43) Effect of flow channel surface condition on turbulent structure in lead-bismuth flows	55
Gen Ariyoshi, Daisuke Ito, Yasushi Saito and Kaichiro Mishima	
44) Determination of trace amounts of halogens (Cl, Br and I) in geochemical reference materials by radiochemical neutron activation analysis	56
Shun Sekimoto	
45) Development of nuclear material detection system by neutron energy discrimination with IEC device	57
Kazumasa Doi, Tsuyoshi Misawa, Yoshiyuki Takahashi and Yasunori Kitamura	
46) Effects of irradiation with high energy particles in advanced nuclear materials	58
Qiu Xu, Kazuo Kuriyama, Noriko Nitta, Takaaki Awata, Yasuyoshi Nagai, Fuminobu Hori, Kenichi Fukumoto, Ichiro Mukouda, Ryuta Kasada, Hidestugu Tsuchida, Kazutoshi Tokunaga, Yuji Hatano, Kouichi Sato and Kenshi Nakamoto	

47) Attempts to improve the anti-cancer efficacy by targeting the tumor microenvironment	63
Yu Sanada	
48) Study on atomic and molecular slow dynamics using gamma rays	64
Makina Saito	
49) Biological study for BNCT development of brain tumor	
-Establishment of radiation necrosis mouse model and brain tumor stem cell-	67
Natsuko Kondo, Yoshinori Sakurai, Takushi Takata, Minoru Suzuki, Yosuke Nakagawa,	
Hiroki Tanaka, Nozomi Fujimoto, Tsubasa Watanabe, Shin-ichiro Masunaga, Koji Ono,	
Kyo Kume, Shin-ichi Miyatake, Shinji Kawabata, Nobuhiko Takai, Hiroyuki Kimura, Rolf Barth,	
Norm Lehman and Ichiro Nakano	
50) Forty-seven years with nuclear engineering: Hiroshima-Nagasaki, Chernobyl and Fukushima	70
Tetsuji Imanaka	
51) Materials study using neutron scattering	73
Toshiharu Fukunaga	

(PJ1) 中性子イメージングの高度化と応用

(京大原子炉、神戸大¹、東北大²、関西大³、理研⁴、岩手大⁵、茨城大⁶、JAXA⁷、原子力機構⁸、東京理科大⁹、鹿児島大¹⁰、名古屋大¹¹) ○齊藤泰司、伊藤大介、竹中信幸¹、浅野 等¹、塚田隆夫²、梅川尚嗣³、松本亮介³、山形 豊⁴、松嶋卯月⁵、沼尾達弥⁶、香河英史⁷、飯倉 寛⁸、兼松 学⁹、水田 敬¹⁰、瓜谷 章¹¹、辻 義之¹¹

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
○竹中 信幸、浅野 等、村川 英樹、杉本 勝美
- 3) 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、阿尻雅文、高見誠一、久保正樹、杉岡健一
- 4) 過渡応答時におけるボイド率挙動の動的評価に関する研究
○梅川尚嗣、網 健行
- 5) 中性子ラジオグラフィによる工業製品の内部情報取得と VCAD システムによるシミュレーション
○山形 豊、森田晋也、加藤純一、池上祐司、横田秀夫、世良俊博
- 6) 中性子ラジオグラフィの植物研究への応用
○松嶋卯月
- 7) 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、木村 亨、久保美春、渡辺 健、大野又稔
- 8) 宇宙用部品の中性子イメージングによる検査手法の高度化
○香河英史、長田泰一、升岡 正、藤井 剛
- 9) 中性子イメージング撮像技術の高度化
○飯倉 寛、酒井卓郎
- 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、野口貴文、田村政道、足永靖信、土屋 直子
- 11) フラットヒートパイプ型ヒートスプレッダ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、清水裕彦、北口雅暁、広田克也、渡辺賢一、山崎 淳

- 13) 微細ウイック内流動の NRG による可視化に関する研究

○辻 義之、伊藤高啓、小笠原克、玉置昌義

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

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時空間フィルタの開発および液膜センサあるいは X 線イメージングと中性子イメージングを併用して、さらに詳細なデータを得る手法を開発した。図 1 は、(a)中性子イメージング及び(b)液膜センサを用いた気液二相流の液膜厚さ分布の同時計測結果である。中性子イメージングでは、中性子透過方向の積算分布が得られるのに対し、液膜センサでは、センサを取り付けた壁面上の液膜厚さのみを計測している。したがって、このような同時計測により、センサを取り付けていない壁面上の液膜厚さが間接的に計測できることになる。これは従来計測が不可能であった片側加熱面上での液膜厚さ分布計測に応用することが可能である[1, 2]。

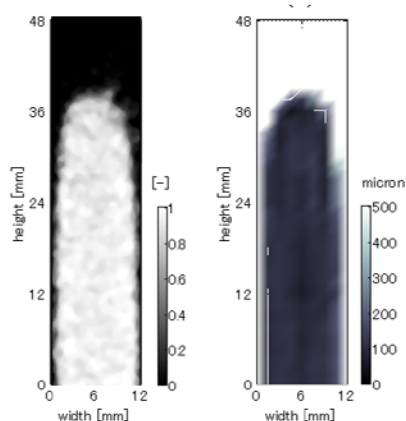


Fig. 1 Typical result of simultaneous measurement; (a) Void fraction measured by NRG, (b) Film thickness measured by LFS

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

固体高分子形燃料電池（PEFC）は、運転時に結露水が発生し、特にカソード側での結露水は酸化剤ガスの供給を妨げ、電池反応を阻害することが知られているが、本研究では、この発生した結露水が膜厚方向において、どの様に発生しどの様な経路で流路に出現するのかを空間分解能を高めた可視化実験で計測した[3,4]。

さらに、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2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。Fig.2(a)は乾燥状態で、Fig.2(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。

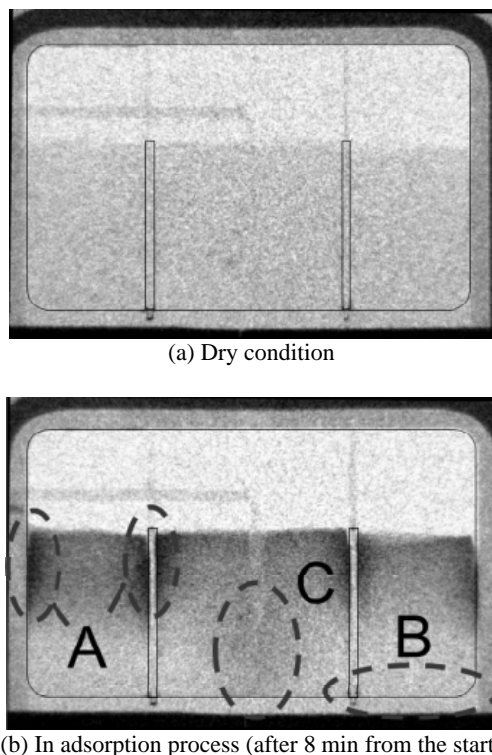


Fig.2 Visualized images by neutron radiography.

2-3. 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[6-8]

超臨界水熱合成法によるナノ粒子製造プロセスの高度化のために、超臨界水反応場を中性子ラジオグラフィを用いて、in-situ 観察を行った。図3は、超臨界水と常温水の混合の様子を中性子CT法により、計測した結果であり、T ジャンクション内で混合する様子が明瞭に観察できる。さらに図4は、温度条件と生成したナノ粒子のSEM写真を表す。

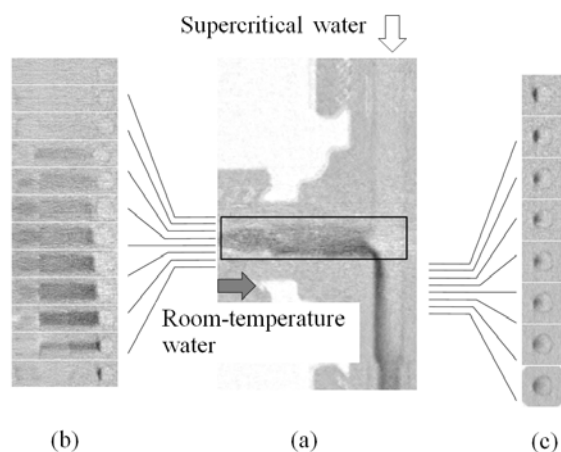


Fig.3 3D images of mixing behavior in a tubular flow reactor using neutron CT.

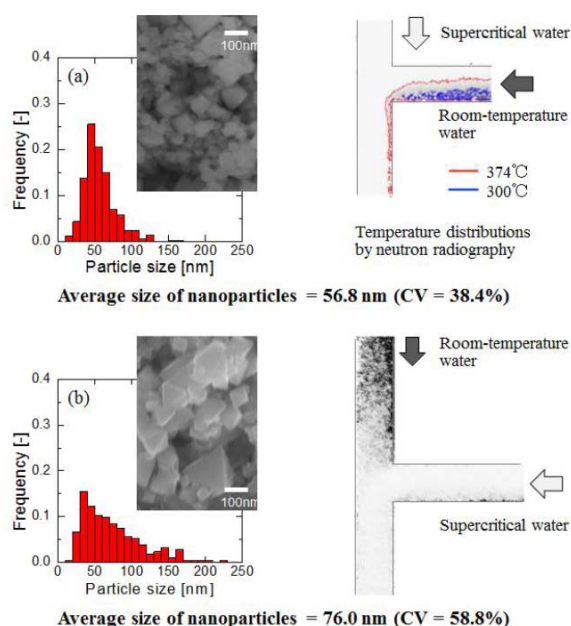


Fig.4 SEM images and size distributions of synthesized nanoparticles, and temperature distributions of observed by neutron radiography.

以上の結果から、超臨界水熱合成法によるナノ粒子製造プロセスの高度化が可能と考えられる。

2-4. 過渡応答時におけるボイド率挙動の動的評価に関する研究[9]

本研究では、これまで計測が非常に困難であった管内沸騰二相流の内部構造について、熱中性子ラジオグラフィを用いることで、定量評価を行った。特に沸騰二相流は、離散的な気泡が時空間的に生成・消滅するため、極めて複雑な非定常性を持つ。したがって、本研究では、時間的に流れ場が変化する脈動流を対象として可視化計測を行い、非定常性が沸騰熱伝達に及ぼす影響を実験的に調べた。図5は、可視化結果とボイド率および圧力変動などの同時計測結果を表す。これらから、非定常性を考慮した熱伝達モデルの構築が可能となると考えられる。

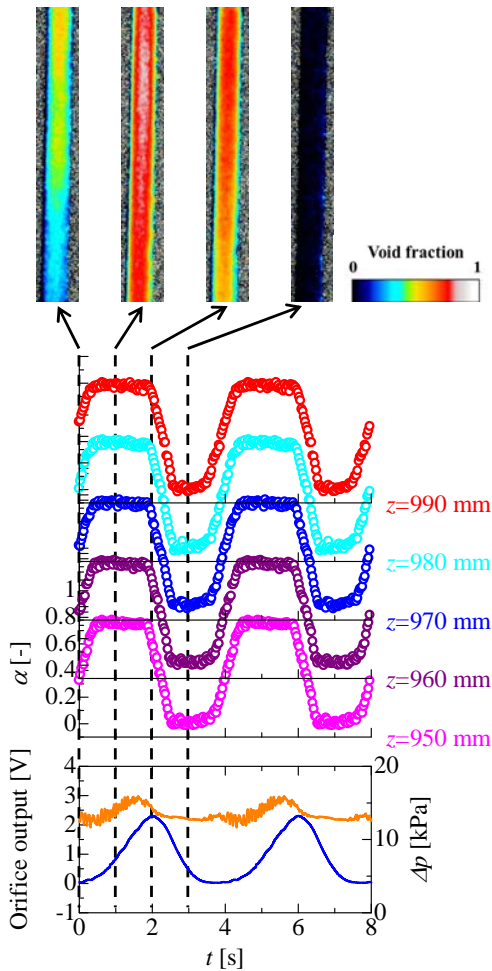


Fig.5 Results of O.D.=5.3mm tube. [2]

2-5. 中性子ラジオグラフィによる工業製品の内部情報取得と VCAD システムによるシミュレーション [10,11]

本研究は、工業製品開発において重要となる様々なサンプルの内部情報を中性子透過 CT 計測により抽出することを目的として、将来の小型中性子源による実験のための基礎的なデータを取得するとともに、産学連携をめざし、広い意味での中性子イメージング技術の有用性を企業に対して評価可能な形で提供できるようなデータを作成することを目的とした。図 6 は接合されたステンレス板の中性子像を表す。計測は KUR の E2 ポートを用いて行った。さらに CN-3 ポートを用いた中性子光学系の高度化も行っている。

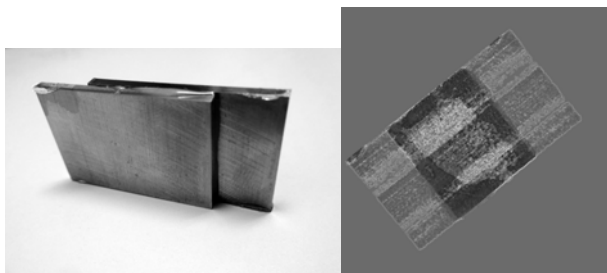


Fig.6 Reconstructed image of glued steel plates and a photo of original object

2-6. 中性子ラジオグラフィの植物研究への応用[12]

農産物内の水分変化を中性子トモグラフィによって 3 次元で可視化し、植物生理分野、食品工学分野へ応用を目的として、①農産物における中性子トモグラフィで問題となる試料の変形、移動に対処する画像処理法の確立、②農産物内の水移動を可視化、および、③植物体の生理的傷害に由来する水分変化の観察を行った。本研究では、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中性子ラジオグラフィを用いて解明することを目的とした。図 7 は、E-2 ポートにおいて土壌層内の水分量を計測し、電気伝導度との比較を行ったものである。これらの結果より、水分移動と塩化物イオンの移動の様子を明瞭にすることが可能となり、塩害に対する基礎的な知見を与えた。

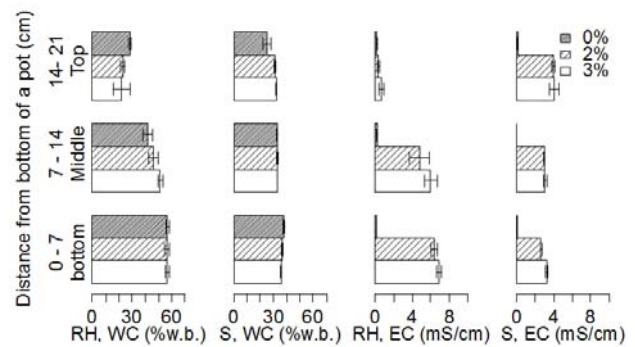
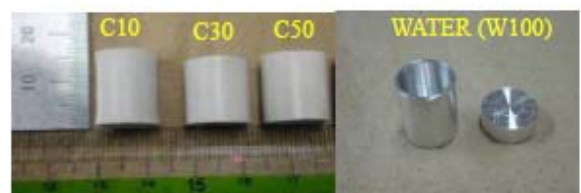


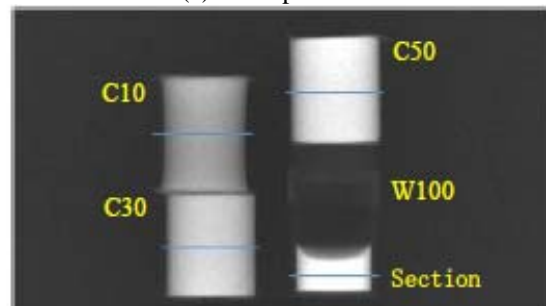
Fig. 7 Water content (WC) and electrical conductivity (EC) of rice hull medium (RH) and Soil (S)

2-7. 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[13,14]

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た。実験は、E2 ポートを用いて行った。実験結果の一部を図 8 に示した。



(a) Test Specimens



(b) Neutron images.

Fig.8 Neutron radiographic images.

2-8. 宇宙用部品の中性子イメージングによる検査手法の高度化[15]

本研究では、これまで実施してきた中性子を用いた高精細中性子ラジオグラフィ技術をさらに高度化し、その技術の適用先としてロケットに使用されている火工品や人工衛星のスラスタに使用されている弁などの内部の様子を可視化した。これまでに X 線では検査できない模擬火薬や弁の内部の流体通路及び高分子シール観察の数ミクロン程度の分解能での可能性があること確認するとともにロケット推進ヒドラジンの分解状況の可視化ができること確認した。図 9 はヒドラジンによる中性子減衰の基礎データを示し、図 10 はヒドラジンの噴射周期に対応したヒドラジンの濃度の時間変化を示す。

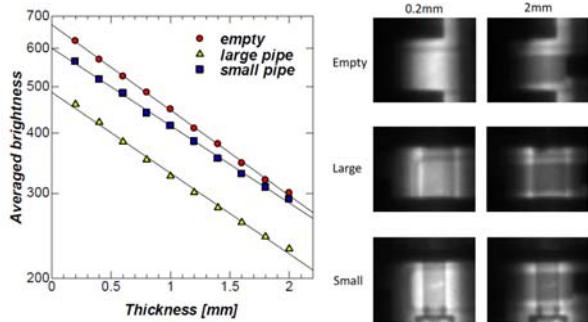


Fig.9 Variation of the brightness and the original images.

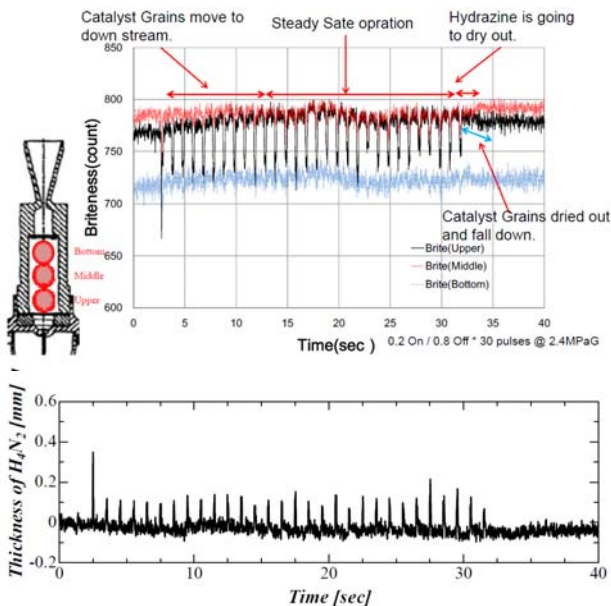


Fig.10 Temporal fluctuations of brightness and hydrazine thickness.

2-9. 中性子イメージング撮像技術の高度化[16]

中性子イメージングは一般に中性子像を可視光画像に変換するシンチレータを用いるが、その発光強度は極めて小さいのが現状である。本研究では、図 11 に示す輝度増強フィルム (BEF) を用いて、シンチレータから得られた光強度に指向性を持たせ、測定効率を上げることを目的とした。実験は E-2 ポートを用い、基本パラメータを変化させた。

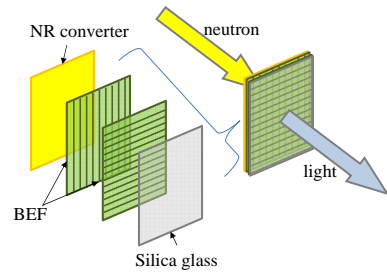


Fig.11 Setup of BEF to NR converter.

図 12 は BEF を用いて撮像した中性子イメージング用インジケータのサンプルであり、BEF により、輝度が向上していることを確認した。

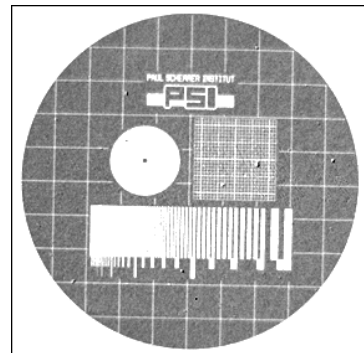


Fig. 12 Neutron image of PSI indicator using BEF.

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[17]

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とした。図 13 は、爆裂直後の中性子イメージと温度分布を示し、図 14 は中性子イメージから得られた水分分布の空間分布を示す。

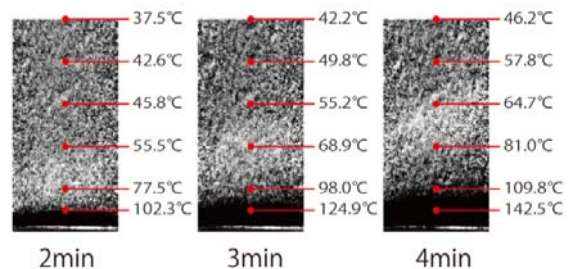
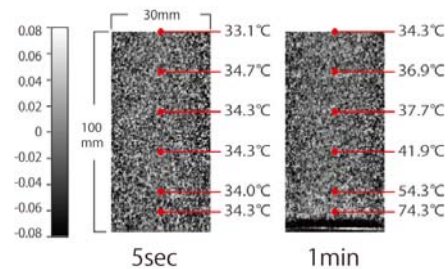


Fig.13 Differential water content of cement paste

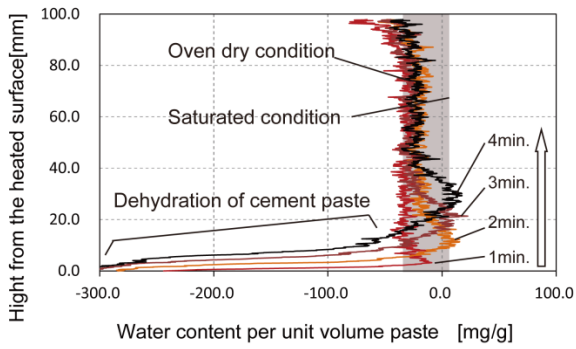


Fig.14 Distribution of water content per unit volume paste

2-11. フラットヒートパイプ型ヒートスプレッダ内部における冷媒分布の測定[18]

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た。図15は、実験に用いたヒートパイプに中性子イメージングによって得られた冷媒分布を重ねたものである。この計測結果により、フラットヒートパイプにおいては、冷媒分布はヒートパイプの設置姿勢の影響をほとんど受けないことがわかった。

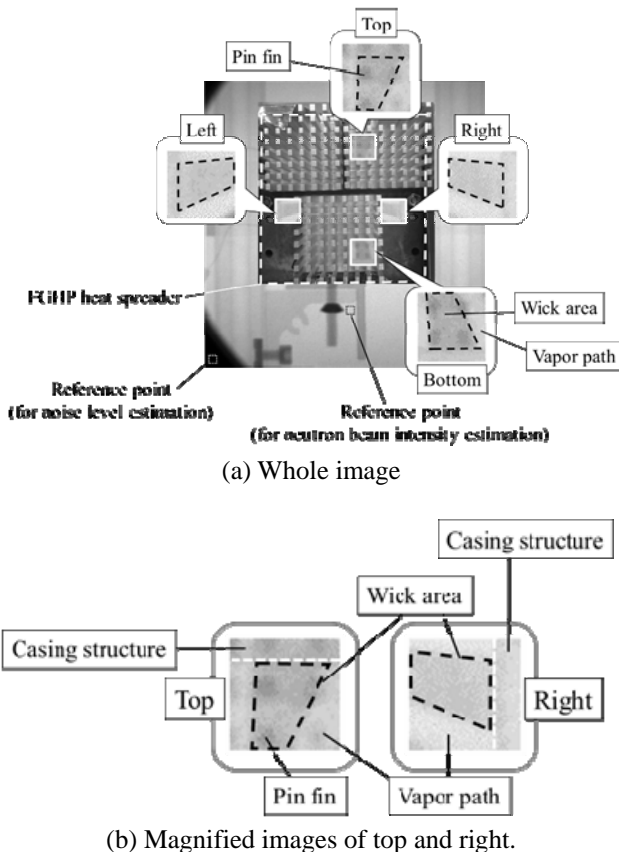


Fig.15 Typical neutron images superimposed with on optical image.

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

自動車、航空機をはじめとする機械工業製品の開発現場において要望されていることの一つに、目では直接見ることができない、金属間に存在する有機物膜（油膜、グリース等）の状態の可視化がある。本研究においては、主として自動車部品を例にとり、金属板間の有機膜の状態（形状、性状、厚さの分布）ならびにその動的変化の観察の可能性を探った。

図16は、様々なタイプのベアリングをE2ポートにて可視化したもので、良好な透過画像が得られていることがわかる。さらに、図17はCT法により、ベアリング内の三次元構造を示したものであり、潤滑油膜、金属板にはさまれた絶縁有機膜の高温化における経時変化、等の観察を通し、中性子ラジオグラフィ、中性子CTの当該分野への適用可能性について検討した。

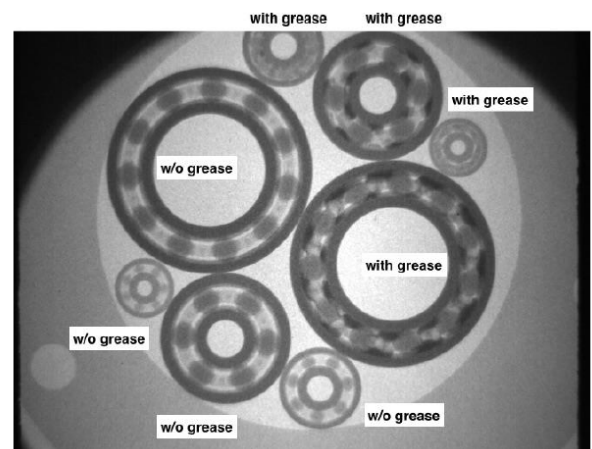


Fig. 16 Neutron radiography image of the bearings. Half of these bearings are removed the grease.

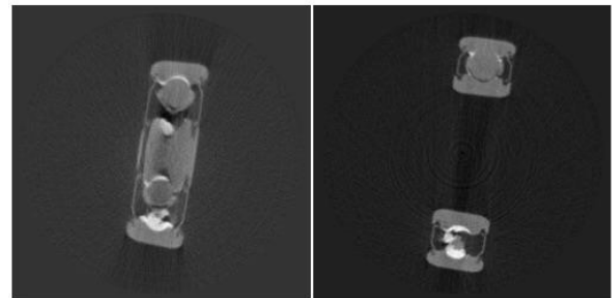


Fig. 17 CT reconstruction image. Black-and-white shade is inverted to Fig. 15.

2-13. 微細ウイック内流動のNRGによる可視化に関する研究

本研究では、高効率熱輸送を基に性能向上の鍵となるヒートパイプ内の沸騰凝縮現象と熱輸送の関連を明らかにすることを目的として実験を行った。通常ヒートパイプ等の沸騰冷却（二相タイプ）による熱輸送現象は金属筐体のため内部の解明をおこなうため、中性子を用いることにより二相流の可視化を可能とする。また、観察サンプルを回転させることによる3次元化、さらには可視光利用による同時3次元観察などの技術を利用することから詳細な解

析を試みる。また、可視光および中性子イメージングによる可視化観察結果に基づくシミュレーションを構築し、最適条件（ウィック構造、沸騰面性状、伝熱面性状、輸送パイプ形状など）を考察する。図18は、アルミ製のヒートパイプ内に冷媒として、水を封入し、E-2ポートにおいて可視化した一例である。今後、ウィック構造などを系統的に変化させて、得られる性能との関係を明らかにする必要がある。

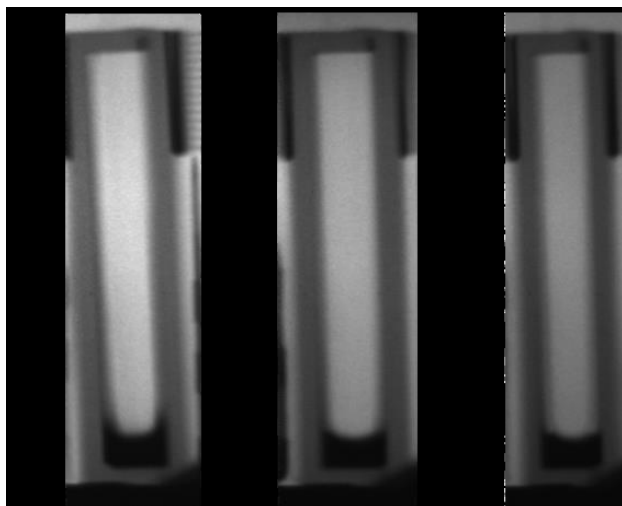


Fig.17 Neutron radiography image. (a) air=0ml, (b)air=5ml, (c)air=10ml.

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化する必要があることが再確認された。特にコンクリートの爆裂現象やヒドラジンの分解反応については、その定量化において、新たなデータ処理法の開発が必要

であり、また、BEFやVCADと言った汎用手法については、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 and D. Ito, Physics Procedia, **69** (2015).
- [2] D. Ito and Y. Saito, Physics Procedia, **69** (2015).
- [3] H. Murakawa et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 651(2011)/
- [4] H. Murakawa et al., Physics Procedia, **69** (2015).
- [5] H. Asano et al., Physics Procedia, **69** (2015).
- [6] K. Sugioka et al., AIChE Journal, 60 (2014).
- [7] S. Takami et al., Journal of Supercritical Fluid 63, (2012).
- [8] S. Takami et al., Physics Procedia, **69** (2015).
- [9] H. Umekawa et al., Physics Procedia, **69** (2015).
- [10] S.Takeda et al., International Workshop on Neutron Optics and Detectors, July (2013).
- [11] J.Guo et al., Optics Express, 22 (2014).
- [12] U. Matsushima et al., KURRI progress Report 2012, (2012) 128.
- [13] I. Funakawa et al., Journal of Japan Society of Civil Engineers, Ser. E2, 67(2011).
- [14] T. Numao, et al., Proc. 67th Annual Academic Lecture of Japan Society of Civil Engineers, V-040(2012).
- [15] D. Ito et al., Physics Procedia, **69** (2015).
- [16] H. Iikura et al. , Physics Procedia, 43 (2013).
- [17] M. Kanematsu et al, PJCI, vol36, No.1, 2014
- [18] K. Mizuta et al., Physics Procedia, **69** (2015).
- [19] K. Hirota et al., KURRI progress Report 2014, (2015).
- [20] Y. Tsujia et al., KURRI progress Report 2014, (2015).

Development on Neutron Imaging Application

Yasushi Saito, Daisuke Ito, Nobuyuki Takenaka, Hitoshi Asano, Takao Tsukada, Hisashi Umekawa, Ryosuke Matsumoto, Yutaka Yamagata, Uzuki Matsushima, Tatsuya Numao, Hideshi Kagawa, Hiroshi Iikura, Manabu Kanematsu, Kei Mizuta, Akira Uritani and Yoshiyuki Tsuji

ysaito@rri.kyoto-u.ac.jp

(T1) ボイド率並びにボイド速度推定精度向上のための中性子雑音輸送計算法

(京大原子炉) ○山本俊弘

1. はじめに：沸騰水型原子炉などでの軽水減速材/冷却材中におけるボイド率やボイド移送速度を推定する方法として、炉内検出器の中性子雑音を使う方法などがある[1-4]。原子炉内では種々の中性子雑音源が存在するが、そのうちボイド率変動に伴う中性子雑音が炉内でどのように分布し、測定されるのかを予測する方法としては、中性子雑音の拡散方程式を解く方法があるが、炉内の微細構造までを含めた高精度解析には、より厳密な輸送理論の適用が必要となる。ここでは三次元の詳細形状も扱うことのできるモンテカルロ(MC)法を用いて中性子輸送計算を行う方法を示す。まずは、単純な2次元の平板体系に中性子を入射させ、透過中性子の雑音を解析する手法について述べる。

2. 理論：減速材/冷却材密度がボイドによって変化したとすると、それに伴う中性子雑音は、原子炉全体の反応度が変化する成分(グローバル成分)と、ボイド付近での中性子輸送に直接影響する成分(ローカル成分)とに分けられる。ここでは、核分裂の起こらない水だけで構成される体系を考えると、後者のローカル成分だけを考える。ボイド生成に伴う断面積摂動に起因する中性子揺らぎの周波数領域の輸送方程式は以下のように記述できる。

$$\begin{aligned} & \Omega \cdot \nabla \delta\phi(\mathbf{r}, \Omega, E, \omega) + \Sigma_{t0}(\mathbf{r}, E) \delta\phi(\mathbf{r}, \Omega, E, \omega) \\ &= \int_{4\pi} d\Omega' \int dE' \Sigma_{s0}(\mathbf{r}, \Omega' \rightarrow \Omega, E' \rightarrow E) \delta\phi(\mathbf{r}, \Omega', E', \omega) \\ & - (i\omega/v(E)) \delta\phi(\mathbf{r}, \Omega, E, \omega) - \delta\Sigma_t(\mathbf{r}, E, \omega) \phi_0(\mathbf{r}, \Omega, E) \\ & + \int_{4\pi} d\Omega' \int dE' \delta\Sigma_s(\mathbf{r}, \Omega' \rightarrow \Omega, E' \rightarrow E, \omega) \phi_0(\mathbf{r}, \Omega', E'), \end{aligned} \quad (1)$$

この式は、時間依存の中性子輸送方程式において、中性子と断面積の時間変化を、時間平均とその揺らぎ成分に分解し、線形近似を行った後、フーリエ変換すれば得られる。 $\delta\phi(\mathbf{r}, \Omega, E, \omega)$ が、ある特定の周波数 ω に対する中性子束 ϕ の雑音である。右辺の最後の二つの項は雑音源であり、この方程式は、この二項を源とする固定源問題の方程式となっている。添え字の0は定常状態の変数であることを表している。右辺第2項目の i は虚数単位であり、この方程式の変数は、添え字の0が付いているもの以外は複素数となる。

3. 計算手法：(1)式は、通常固定源の中性子輸送方程式と同じ形式となっているが、時間微分の項をフーリエ変換したために、右辺第二項が新たに加わっており、従来のMC法とは異なるアルゴリズムが必要となる。この形式の複素数の輸送方程式を解く手法に、筆者がすでに開発したMC計算法のアルゴリズムを適用する[5-7]。実際に使われているMC計算コードでは、粒子のランダムウォークを現実と同じようにシミュレーションしているのではなく、そ

の存在確率を表すウェイトを定義して、実現象を統計的に再現できるようにしている。MC計算で(1)式右辺第二項を考慮するため、粒子が距離 s だけ飛行するごとに粒子のウェイトを W から $W \exp(-i\omega s/v)$ に変化させる。その他は、従来のMC法と同じ手法が用いることができる。粒子が媒質と衝突するたびに、複素数である W の実数部、虚数部のそれぞれに吸収されない確率である Σ_s/Σ_t をかける、いわゆる陰的吸収を適用し、さらにロシアンルーレットが適用される。最終的に、粒子が体系外に飛び出すか、ウェイト W の実数部、虚数部の両方がロシアンルーレットによって同時に殺されれば、その粒子の飛行を終了し、新たに次の雑音粒子を源から発生させるという流れになる。

(1)式の最後の二つの項の雑音源に含まれる $\phi_0(\mathbf{r}, \Omega, E)$ は、非摂動系で通常固定源計算を行って得られる中性子束である。これを求める方法としては、固定源計算を行ってからその結果を保存しておいて、後からそれを読み込むという方法もあるが、この方法では1回の中性子の衝突ごとに、位置、角度、エネルギーの7次元の情報を保存しておく必要があり、膨大な記憶容量が必要となる。そこで別の方法として、いわゆる“on-the-fly”という方法を採用する。ここでは、まず、非摂動系での固定源計算を行うが、衝突が起こるとその計算を一旦中断する。そしてその衝突反応を(1)式の源として、(1)式を解くための計算を行う。それが消滅すると一旦中断していた非摂動系の固定源計算を再開する。

(1)式は中性子エネルギーを連続変数としているが、実際の計算は、複数の群に分ける多群近似で行った。この雑音源は多群表式では次のように書ける。

$$\begin{aligned} S_g(\mathbf{r}, \Omega, \omega) &= -\delta\Sigma_{cg}(\mathbf{r}, \omega) \phi_{0g}(\mathbf{r}, \Omega) \\ & - \sum_{g' \neq g} \int_{4\pi} d\Omega' \delta\Sigma_{sg \rightarrow g'}(\mathbf{r}, \Omega \rightarrow \Omega', \omega) \phi_{0g'}(\mathbf{r}, \Omega') \\ & + \sum_{g' \neq g} \int_{4\pi} d\Omega' \delta\Sigma_{sg' \rightarrow g}(\mathbf{r}, \Omega' \rightarrow \Omega, \omega) \phi_{0g'}(\mathbf{r}, \Omega'). \end{aligned} \quad (2)$$

ここで下付きの c は捕獲反応を表している。ただし、ここでは、同じ群内での自群散乱を無視しているが、この近似により、計算時間を大幅に短縮することができる。非摂動系での固定源計算においてウェイト W (ここでは実数)の粒子が衝突反応を起こしたとすると、

$$-\delta\Sigma_{cg}(\mathbf{r}, \omega) W / \Sigma_{t0g}(\mathbf{r})$$

のウェイトを持つ雑音粒子をエネルギー g 群に発生させるが、この粒子の方向は衝突粒子と同じとなる。これと同時に、

$$-\delta\Sigma_{sg \rightarrow g'}(\mathbf{r}, \Omega' \rightarrow \Omega, \omega) W / \Sigma_{t0g}(\mathbf{r})$$

のウェイトを持つ粒子を g' 群に発生させるが、この場合は雑音の粒子方向は、 $\Sigma_{sg \rightarrow g'}(\mathbf{r}, \Omega' \rightarrow \Omega, \omega)$ の確率密度関数に基づいて決定する。

3. 計算手法：上で示した計算を、図 1 に示す室温の水の 2 次元平板体系に対して適用する。平板の下部より 180 cm/s の速度で水が下から上に流れている。図ではボイドは有限の大きさを持つ非均質として描いているが、計算では無限小の大きさを持つものとして、媒質全体の密度がボイド率に応じて一様に減少するものとして扱っている。中性子エネルギーは 3 群とし、1 eV 以下の熱中性子を第 3 群目としている。中性子散乱は P_1 成分までを考慮している。

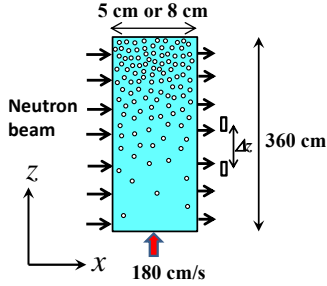


Fig. 1 Two-dimensional slab for calculations

図の左側より軽水炉炉心のスペクトルをもつ中性子が入射し、右側面で透過してきた熱中性子を検出するとする。ボイドを含む減速材が移送速度 V で z 方向に移動しているときの高さ方向 z での断面積の摂動は $z=0$ での断面積の摂動の周波数特性が既知ならば、次式で与えられる。

$$\delta\Sigma(x, z, E, \omega) = \delta\Sigma(x, 0, E, \omega) \exp(-i\omega z/V) \quad (3)$$

4. 計算結果： Fig. 1 における平板厚さを 5 cm とした場合の、右側面における 2 Hz での高さ方向の中性子雑音の計算結果を Fig. 2 に示す。ここではボイド率は、入口では 0%、出口では 75% とし、高さ方向の分布が次式で表されるとする。

$$\alpha(z) = \frac{0.75}{2} \left(1 - \cos\left(\frac{\pi}{H} z\right) \right) \quad (4)$$

ここで H は平板の高さ 360 cm である。ボイド率が変化すればそれに伴ってボイド速度も変化するが、ここでは便宜的にボイド速度は 180 cm/s で一定とする。Fig. 2 は、平板右端での第 3 群の熱中性子束雑音の高さ方向の分布を示している。中性子雑音は上端と下端を除くと(3)式で与えられる位相を維持したまま、2 Hz の周波数で、上方に遷移していることがこの図から分かる。この中性子雑音を使えば、高さ方向に Δz だけ離れた検出器間の相互パワースペクトル(CPSD)は次式で計算できる。

$$CPSD(z, z + \Delta z, \omega) = \delta\phi(z, \omega) \delta\phi^*(z + \Delta z, \omega) \quad (5)$$

ここで上付きの*は複素共役を示している。CPSD が得られれば、 Δz だけ離れた位置での中性子雑音の位相差は

$$\theta = \tan^{-1} \left(\frac{\text{Im}[CPSD(z, z + \Delta z, \omega)]}{\text{Re}[CPSD(z, z + \Delta z, \omega)]} \right) \quad (6)$$

で求められ Δz のボイド移送時間は以下となる。

$$\Delta z/V = \theta/\omega \quad (7)$$

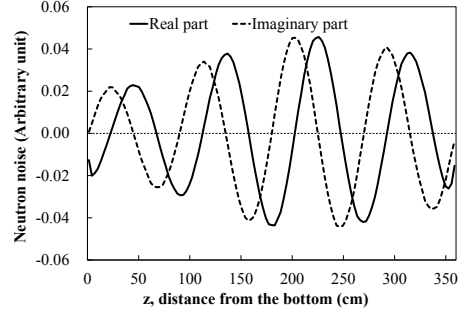


Fig. 2 Noise vertical distribution in 5 cm-width slab

$\Delta z = 43.2$ cm としたときの Fig. 2 の中性子雑音から求めたボイド移送速度を Fig. 3 に示すが、両端を除けば本来の移送速度である 0.24 s (=43.2 cm/180 cm/s) をよく再現できている。

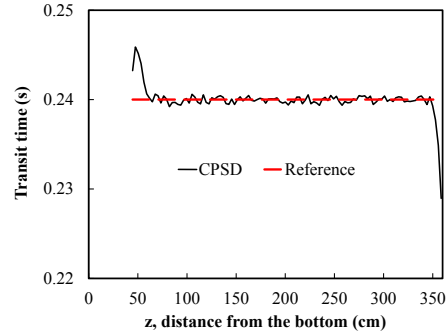


Fig. 3 Void transit time in 5 cm-width slab

一方で、平板厚さを 8 cm としたときの、平板右端での熱中性子束雑音の高さ方向の分布は、Fig. 4 のようになり、 $z=120$ cm 付近で位相が反転していることが分かる。

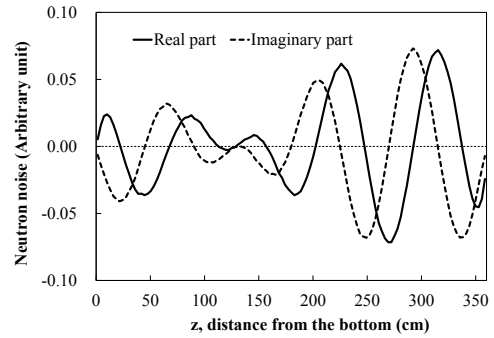


Fig. 4 Noise vertical distribution in 8 cm-width slab

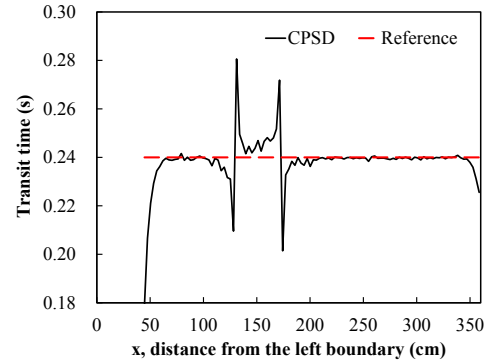


Fig. 5 Void transit time in 8 cm-width slab

これを使ってそのまま移送速度を求めると、Fig. 5のように $z=120$ cmの前後で明らかに異常な値を示す。Fig. 4のような位相の反転が起こる理由を以下に示す。Fig. 6は平板の下のほうでボイド率が8%での、Fig. 7は平板の上のほうでボイド率が62%での水平方向の各群の中性子雑音分布である。Fig. 6では、熱中性子束の雑音が途中で正負が反転している一方でFig. 7では正負の関係は変化しない。平板厚さが5 cmでは、ボイド率に関係なくFig. 7のように正負の関係は一定となる分布である。一方で、ボイド率が低く、平板厚さがある程度厚くなると、右に行くほど第1群、第2群の中性子雑音が減衰するようになる。これらの中性子雑音は、第3群に減速されることになるが、これは第3群とは正負が逆の効果をもつ。これが原因となって第3群の中性子雑音の正負が反転し、Fig. 6のような分布になる。ボイド率が高くなれば、第1群、第2群の中性子雑音はあまり減衰しなくなり、Fig. 7に示すように、このような正負の反転は起こらなくなる。

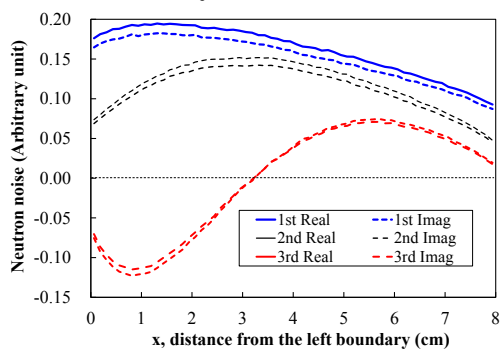


Fig. 6 Horizontal noise profile for $\alpha=8\%$

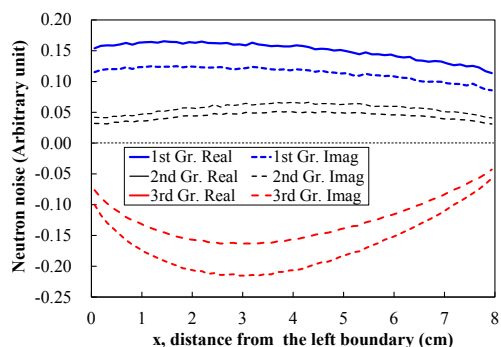


Fig. 7 Horizontal noise profile for $\alpha=62\%$

このように、平板がある程度厚い8 cm厚の平板下部では、中性子雑音は、Fig.6のような分布から、平板上部ではFig.7のような分布に遷移する。これが、Fig. 4で見られるような位相の反転の原因となる。

5. APSD によるボイド率推定：Kosály[1]らによると、中性子雑音の自己パワースペクトルは、

$$APSD(\omega, z) \propto 1/(1+\omega^2\tau(z)^2)^2 \quad (8)$$

で表されるとしている。ここで中性子拡散距離を $L(z)$ とすると $\tau(z) = L(z)/V(z)$ の関係があることか

ら、(8)式の折れ点周波数が得られればボイド移送速度やボイド率に関する情報が得られるとしている。Fig. 1での平板体系における熱中性子束雑音のAPSDを0.1~50 Hzの範囲で計算した結果をFig. 8に示すが、ボイド率が高い68%を除くと、APSDは周波数とともに単調には減少していない。すなわち(8)式の関係は成立しない結果となった。この原因は、熱中性子雑音は、それよりも高いエネルギーの中性子の雑音の影響を受けており、一方で、折れ点周波数は中性子エネルギーによって異なる。一般に、エネルギーが高いほど、拡散距離が長くなるので、折れ点周波数は小さくなる。熱中性子では、それよりも高いエネルギーからの減速による影響があるので、(8)式のようないわゆるローレンツ型の周波数特性にはならない。APSDからボイドに関する情報を得ようとすると、熱中性子ではなく、よりエネルギーの高い中性子を計測するか、あるいは熱中性子だけを測定対象に打ち込む、といったことを考える必要がある。

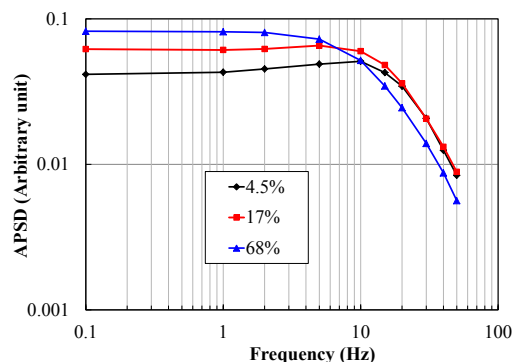


Fig. 8 APSD of thermal neutron noise

6. 結論：エネルギー依存性を考慮した輸送理論に基づく中性子雑音の詳細解析が、モンテカルロ法によって行えることを示した。ここに示したように、中性子雑音の輸送や伝播は非常に複雑なメカニズムを持っている。輸送計算によって得られる情報は、実際のボイドの計測において有用な知見を与えるものであると考えられる。より複雑な形状や現実のボイドに近い現象を考慮できるようにすることが今後の課題である。

参考文献

- [1]G. Kosály, Prog. Nucl. Energy, **5** (1980) 145-199.
- [2]I. Pázsit, C. Demazière, Handbook of Nuclear Engineering, Vol. 3. Springer (2010) 1629-1737.
- [3]V. Dykin, I. Pázsit, Nucl. Technol., **183** (2013) 354-366.
- [4]森治嗣他、日本原子力学会誌、**39** (1997) 788-798.
- [5]T. Yamamoto, Ann. Nucl. Energy, **50** (2012) 141-149.
- [6]T. Yamamoto, Ann. Nucl. Energy, **58** (2013) 72-79.
- [7]T. Yamamoto, Proc. PHYSOR2014, Kyoto, Japan, Sep. 28-Oct. 3, 2014 (2014).

(T2) 京都大学原子炉実験所における加速器駆動システムの基礎研究の現状について

(京大原子炉) ○卍 哲浩

1. はじめに：加速器駆動システム (ADS: Accelerator-Driven System) は原子炉と加速器を組み合わせた複合的なエネルギー発生システムとして提唱され、近年では、軽水炉から発生する長半減期の放射性廃棄物 (主にマイナーアクチナイド: Minor Actinide; MA) を核 (種) 変換する技術への応用 (TEF[1]および MYRRHA[2]) が検討されている。京都大学原子炉実験所では、ADS の技術的な成立性に関する基礎研究が京都大学臨界集合体実験装置 (KUCA: Kyoto University Critical Assembly) を用いて行われている。先行研究として、パルス中性子発生装置と KUCA を組み合わせた ADS 予備実験[3]-[6]が行われ、炉物理パラメータの測定手法の確立とモンテカルロ計算コードによる計算精度の検証が行われた。2008 年に本格的な運転が開始された FFAG 加速器[7]-[8] (Fixed-Field Alternating Gradient) と KUCA を組み合わせた研究では、世界で初めて[9]炉心への高エネルギー陽子とタングステンターゲットの相互作用による高エネルギー中性子の入射が実現した。その後、FFAG 加速器と KUCA を組み合わせた ADS の実験の基礎研究では、ターゲットでの中性子の発生量 [10]-[11]および特性実験[12]-[14]、未臨界度などの動特性パラメータの測定[15]に関する研究が行われた。さらに、実機 ADS (TEF および MYRRHA) において炉心の冷却材および核破砕中性子発生のためのターゲット材として検討されている Pb-Bi について、その反応断面積の特性[15]の検討が、JAEA と共同で行われた。本研究では、KUCA と FFAG 加速器を用いて行われた ADS 実験での研究成果を主に紹介し、併せて、ADS の核変換技術への応用を含めた ADS 基礎研究の展望について述べる。

2. ADS 実験：KUCA の固体減速架台 (A 架台：図 1) と FFAG 加速器を組み合わせた ADS 実験では、炉心特性を評価する炉物理パラメータである反応率分布、中性子スペクトル、未臨界度および中性子増倍などの測定が行われている。図 1 の A 架台で使用されている燃料集合体を図 2 に示す。この実験[14]では、Pb-Bi のターゲット材としての特性を調べるために、3つのターゲット (タングステン: W、タングステンベリリウム: W-Be の 2 層ターゲットおよび Pb-Bi) を用いて、高エネルギー中性子の入射に伴う未臨界状態における炉心内の反応率分布および未臨界度を測定した。

インジウムの $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$ 反応を用いて炉心内の熱中性子の感度に対する反応率分布を測定し、未臨界状態の中性子増倍に対するパラメータを推定した。このとき、In 線は直径 1 mm で長さ 800 mm であり、図 1 の (14,13-P,A') の位置に沿って設置された。ターゲット位置には In 箔 ($10 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$) を

設置し、0.5 MeV のしきい値反応を持つ $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応を用いて、中性子発生量をモニターした。FFAG 加速器は、エネルギー 100 MeV、強度 0.1 nA となり、中性子発生量は約 $1.0\text{E}+06$ (1/s)であった。炉心の未臨界度は、図 1 に示す 6 本の制御棒 (C1, C2 および C3) および安全棒 (S4, S5 および S6) をすべて挿入し、炉心の余剰反応度と制御棒価値などを組み合わせて約 2900 pcm ($2.90\% \Delta k/k$) が得られた。

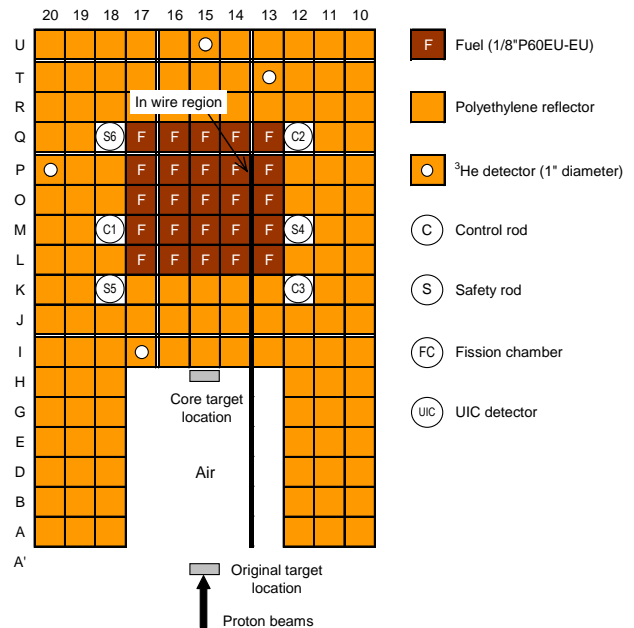


Fig. 1. Top view of core configuration in ADS experiments. (Ref. [14])

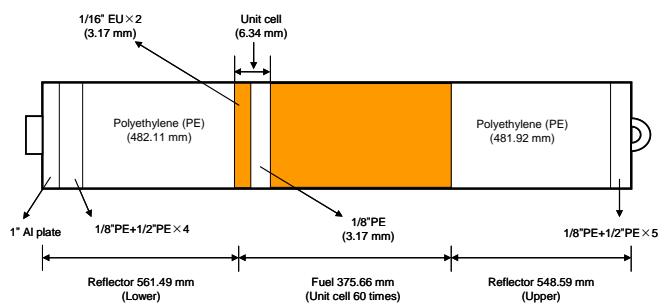


Fig. 2. Side view of fuel rod (“F” in Fig. 1). (Ref. [14])

3. 実験解析：図 1 の炉心において得られた ADS 実験での反応率分布測定 ($^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In} / ^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$) の結果を図 3 に示す。炉心および反射体領域の反応率分布の結果から、W-Be のときが最も大きな値を示していることがわかり、Pb-Bi の場合は W とほぼ同様の値を得られた。これらの反応率分布を用いて未臨界体系における中性子増倍[12]を算出すると、表 1 に示す結果が得られる。反応率分布の実

験結果をモンテカルロ計算コード MCNPX と核データライブラリー JENDL-4.0 を用いて数値シミュレーションした結果と比較すると、両者は約 7% の相対誤差の範囲内で良く一致した。これらの結果より、モンテカルロ計算コードを用いて反応率分布を精度良く模擬できることがわかった。

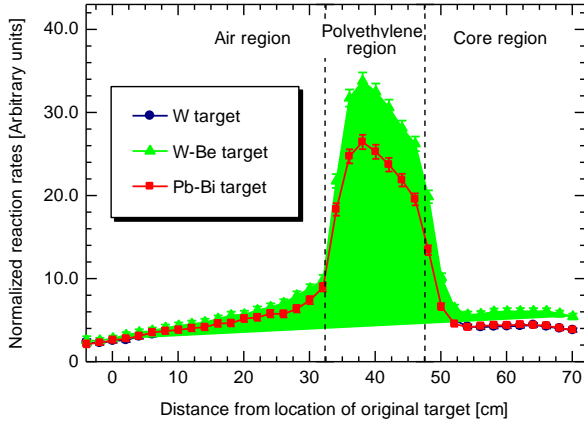


Fig. 3. Comparison between the ratio of reaction rates $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In} / ^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ in ADS experiments in subcriticality 2900 pcm. (Ref. [14])

Table 1. Neutron multiplication deduced from the reaction rates shown in Fig. 3 in subcriticality 2900 pcm. (Ref. [14])

Target	Calculation	Experiment	C/E value
W	1.73 ± 0.01	1.85 ± 0.02	0.93 ± 0.01
W-Be	2.29 ± 0.01	2.36 ± 0.02	0.97 ± 0.01
Pb-Bi	1.95 ± 0.01	1.94 ± 0.02	1.01 ± 0.01

C/E: Calculation / Experiment

核破砕中性子が入射されているときの中性子シグナルの時間応答を測定すると、即発中性子および遅発中性子に関する図 4 に示すような結果を得ることができる。

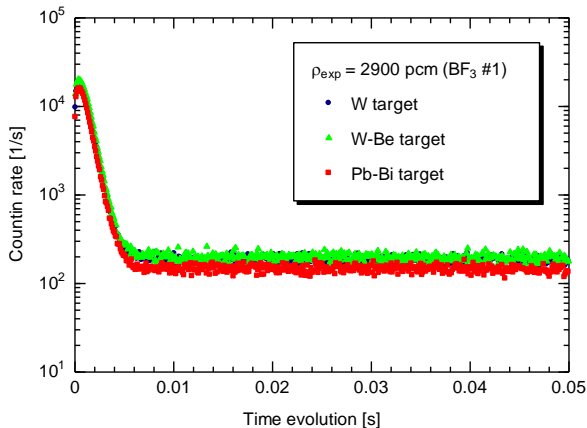


Fig. 4. Experimental results of time evolution on prompt and delayed neutron behavior at position (10, U) of BF_3 detector #1 in subcriticality 2900 pcm. (Ref. [14])

図 4 に示す中性子の応答から炉心の未臨界度を推定すると、表 2 に示すような結果が得られる。これらの結果より、未臨界度測定における空間的な効果(位置依存性)を確認し、また、ターゲットの種類に応じて中性子の応答が異なる、つまり、中性子源のスペクトル依存性についても実験的に確認することができた。

Table 2. Experimental results in subcriticality (reference: 2900 pcm) by the Area ratio method. (Ref. [14])

Target	BF_3 #1 in (10, U)	BF_3 #2 in (15, X)	Optical fiber
W	2398 ± 35	3156 ± 46	3822 ± 58
W-Be	2502 ± 39	3405 ± 51	2939 ± 45
Pb-Bi	2624 ± 39	3238 ± 48	2977 ± 45

4. まとめ: 本報告では、W ターゲットを参照値として Pb-Bi ターゲットによる炉物理パラメータの特性実験の結果を、FFAG 加速器と KUCA を組み合わせた ADS 実験の一例として紹介した。KUCA を用いた ADS 関連の基礎研究では、Pb および Pb-Bi のサンプルラース実験を行い、Pb および Bi の反応断面積の感度解析および不確かさ解析を通して、実機 ADS 炉心の設計計算の前提となる Pb および Bi の反応断面積の精度評価を JAEA と共同で行っている。これらの研究は、ADS の基礎研究が TEF 施設建設のための進工学的な研究どのように貢献するかの重要な試金石となり、引き続き Pb-Bi に関連した研究テーマを JAEA と共同で行う予定である。これまで行った ADS 実験に加え、ADS 研究の今日的な目標である、高速中性子スペクトル場における MA の照射実験を KUCA において今後行う予定である。特に、MA の主要核種である ^{237}Np および ^{241}Am の核分裂断面積の積分評価を、FFAG 加速器と KUCA を組み合わせた ADS 体系において行い、断面積の感度解析および不確かさ解析などを通して、ADS を用いた核変換技術の応用に関する基礎研究を推進する計画である。

参考文献

- [1] K. Tsujimoto *et al.*, “Neutronics Design for Lead-Bismuth Cooled Accelerator-Driven System for Transmutation of Minor Actinide,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **41**, 21-36 (2004).
- [2] H. A. Abderrahim *et al.*, “MYRRHA, A European Experimental ADS for R&D Application Status at Mid-2005 and Prospective Towards Implementation,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **44**, 491-498 (2007).
- [3] C. H. Pyeon *et al.*, “Preliminary Experiments for Accelerator Driven Subcritical Reactor with Pulsed Neutron Generator in Kyoto University Critical Assembly,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **44**, 1368-1378 (2007).
- [4] C. H. Pyeon *et al.*, “Static and Kinetic Experiments

- on Accelerator-Driven System with 14 MeV Neutrons in Kyoto University Critical Assembly,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **45**, 1171-1182 (2008).
- [5] C. H. Pyeon *et al.*, “Reaction Rate Analyses for an Accelerator-Driven System with 14 MeV Neutrons in Kyoto University Critical Assembly,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **46**, 965-972 (2009).
- [6] C. H. Pyeon *et al.*, “Accuracy of Reaction Rates in the Accelerator-Driven System with 14 MeV Neutrons at the Kyoto University Critical Assembly,” *Ann. Nucl. Energy*, **40**, 229-236 (2012).
- [7] J. B. Lagrange *et al.*, “Straight Scaling FFAG Beam Line,” *Nucl. Instrum. Methods A*, **692**, 55-63 (2013).
- [8] E. Yamakawa *et al.*, “Serpentine Acceleration in Zero-Chromatic FFAG Accelerators,” *Nucl. Instrum. Methods A*, **716** 46-53 (2013).
- [9] C. H. Pyeon *et al.*, “First Injection of Spallation Neutrons Generated by High-Energy Protons into the Kyoto University Critical Assembly,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **46**, 1091-1093 (2009).
- [10] C. H. Pyeon *et al.*, “Reaction Rate Analysis of Nuclear Spallation Reactions Generated by 150, 190 and 235 MeV Protons,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **47**, 1090-1095 (2010).
- [11] C. H. Pyeon *et al.*, “Experimental Analyses of External Neutron Source Generated by 100 MeV Protons at the Kyoto University Critical Assembly,” *Nucl. Eng. Technol.*, **45**, 81-88 (2013).
- [12] J. Y. Lim *et al.*, “Subcritical Multiplication Parameters of the Accelerator-Driven System with 100 MeV Protons at the Kyoto University Critical Assembly,” *Sci. Technol. Nucl. Install.*, **2012**, ID: 395878, 9 pages, (2012).
- [13] Y. Takahashi *et al.*, “Conceptual Design of Multi-Targets for Accelerator-Driven System Experiments with 100 MeV Protons,” *Ann. Nucl. Energy*, **54**, 162-166 (2013).
- [14] C. H. Pyeon *et al.*, “Neutron Characteristics of Solid Targets in Accelerator-Driven System with 100 MeV Protons at Kyoto University Critical Assembly,” *Nucl. Technol.*, **192**, 181-190 (2015).
- [15] T. Yagi *et al.*, “Application of Wavelength Shifting Fiber to Subcriticality Measurements,” *Appl. Radiat. Isot.*, **72**, 11-15 (2013).
- [16] C. H. Pyeon *et al.*, “Validation of Pb Nuclear Data by Monte Carlo Analyses of Sample Reactivity Experiments at Kyoto University Critical Assembly,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, (2016). [in print]

(S1) 加速器の新地平：New horizon of accelerator study

(京大原子炉) 森 義治

[PREFACE]

Accelerator is a tool for proceeding various scientific researches, such as elementary particle physics, nuclear physics, solid state physics, medical applications, so on, and many different types of accelerator have been developed so far. In this lecture, a new horizon of accelerator study is presented.

The idea of Fixed Field Alternating Gradient (FFAG) accelerator was originated by different people and groups in the early 1950s. It was independently introduced by Ohkawa [1], Symon et al. [2], and Kolomensky [3] when the strong Alternate Gradient (AG) focusing and the phase stability schemes were applied to particle acceleration. The first FFAG electron model was developed in the MURA accelerator project led by Kerst and Cole in the late 1950s. Since then, they have fabricated several electron models in the early 1960s [3]. However, the studies did not lead to a single practical FFAG accelerator for the following 50 years. Because of the difficulties of treating non-linear magnetic field and RF acceleration for non-relativistic particles, the proton FFAG, especially, was not accomplished until recently. In 2000, the FFAG concept was revived with the world's first proton FFAG (POP) which was developed at KEK [4,5]. Since then, in many places [6,7,8,9,10], FFAGs have been developed and constructed.

An FFAG accelerator has various advantages: strong focusing in 3D space and fast beam acceleration. Strong focusing in 3D space is achieved by the transverse strong (AG) focusing and the longitudinal phase focusing in RF acceleration. A static magnetic field allows for the rapid acceleration and also large repetition rate in operation, where the acceleration of short-lived particles such as muons and also intense averaged beam current could be achieved.

The FFAG accelerator features a static magnetic field and strong (AG) focusing. In order to coordinate these two issues in beam dynamics, the beam loss caused by betatron resonance crossing during beam acceleration has to be overcome. There are two possible ways to conduct this difficulty; one is to arrange a special beam optics keeping the operating betatron tunes constant, thus featuring a zero-chromatic optics. The other is to cross the betatron resonances as quickly as possible to minimize the beam losses during acceleration. The former type is called "scaling FFAG" and the latter "non-scaling FFAG".

In the scaling FFAG where the betatron tunes are always constant during acceleration, a very large momentum acceptance of more than 100% could be possible. On the other hand, the non-scaling FFAG in which all optical elements are essentially linear could have large dynamic apertures when the fast resonance-crossing, that is, fast acceleration becomes possible. Since the orbit excursion of non-scaling FFAGs is rather small compared to that of scaling FFAG, small aperture magnets become an option.

The zero-chromatic optics in scaling FFAG, where the betatron tunes in transverse plane are constant for different beam momentum in the circular orbit ($s = r\theta$), can be achieved with specific magnetic field

configurations to satisfy the orbit similarity and constant geometrical field index: The concept of FFAGs was originally limited to ring accelerators where the orbit excursion evolves horizontally just as in an ordinary cyclotron and synchrotron. However, Okawa proposed later a vertical excursion FFAG in 1955 [11] and he named it as "electron cyclotron" because the optics satisfies an isochronous condition for relativistic particles such as electrons. Also even in vertical direction, the zero-chromaticity is realized. This idea was revisited recently by Brooks [12]. Using this field configuration, two types of beam optics can be derived that accomplish a zero-chromatic scaling FFAG. One is called the radial sector lattice and the other the spiral sector lattice, respectively. In the radial sector lattice, the AG focusing takes a FODO structure (Focusing Bend Defocusing Bend sequence) with a negative bend gradient magnet. On the other hand, in the spiral sector lattice, the alternating focusing and defocusing can be realized with the edge effect. In case of the vertical orbit excursion, the zero-chromatic condition requires the following magnetic field configurations [11,12].

$$B_z = B_0 \exp[(n/\rho)z].$$

Here, n is an ordinary field index and the beam optics is expressed with horizontal and vertical coupled betatron motions.

In the ordinary circular scaling FFAG lattice assuming an azimuthal symmetry, there are some disadvantages. Large dispersion and orbit excursion require large horizontal apertures of the magnet and the RF cavity, and the space of the magnet-free straight section is rather small for placing the injection/extraction devices and RF cavities for beam acceleration. Having a long straight line to keep zero-chromaticity and match to the scaling arc can overcome these difficulties. The orbit curvature and the field index must be constant to satisfy the zero-chromaticity in this frame, which leads the magnetic field configuration to be an exponential form shown as [13]:

$$B_z = B_0 \exp[(n/\rho)x].$$

Using the scaling FFAG straight lattice, we could realize a dispersion suppressor and also matching insertion with the curved scaling FFAG lattice. For the dispersion suppressor, successive π -cells in the horizontal plane can suppress the dispersion. In order to match the straight line with the circular ring FFAG lattice, the 1st order (linear) matching condition expressed in Eq. (9) has to be satisfied between the straight section and the ring.

$$(k + 1)/r = n/\rho$$

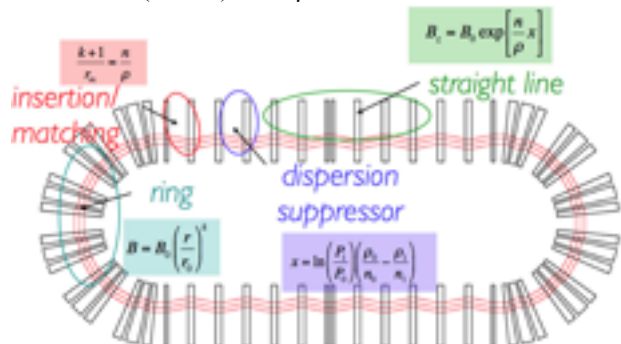


Fig. 1. A new advanced stage of scaling FFAG

Using a newly discovered scaling FFAG straight line, the design of scaling FFAG becomes more flexible and capable for various applications and the scaling FFAG opens a new advanced stage as shown in Fig. 1 [31].

In RF acceleration, we also had an advancement in the scaling FFAG design. The beam acceleration in the scaling FFAG has some varieties because the momentum compaction is always strictly constant for different beam energies and has no higher orders. This situation takes either variable frequency or fixed frequency RF in beam acceleration. For the variable frequency RF acceleration, a broad-band RF cavity using magnetic alloys becomes feasible, which has actually been used for the world's first proton FFAG (POFFAG) at KEK [4,5]. And, for the fixed frequency RF acceleration, the stationary bucket acceleration scheme can be useful for ultra-relativistic high energy particle such as muons and electrons. There was also a new advancement in the fixed frequency RF acceleration. In the strong focusing machine, two RF buckets below and above the transition energy are interfered with some conditions, which were analyzed by Symon and Sessler in 1960s [14], and a serpentine acceleration path channel between two buckets existed. The serpentine acceleration path was devoted to accelerate ultra-relativistic particles in the non-scaling FFAG [15]. In the scaling FFAG, Hamiltonian describing the longitudinal particle motion can be analytically derived [29,16,30]. The Hamiltonian shows that a serpentine path for acceleration exists for both non-relativistic and ultra-relativistic particles. Thus scaling FFAGs could use the serpentine acceleration scheme either for lepton or hadron beams.

After the success of the world's first proton FFAG (POP) shown in Fig. 2, a higher energy proton FFAG was constructed at KEK in 2004. The maximum energy of this machine was 150 MeV and a very high repetition rate of 100 Hz was demonstrated in operation. In 2007, this proton FFAG was moved to Kyusyu University and is used as a multi-purpose machine for various application fields, especially as a tool to accelerate secondary particles such as isomers [17].

In Kyoto University, Research Reactor Institute (KURRI), the experimental studies of ADSR (Accelerator Driven Sub-critical Reactor) have been implemented combining a FFAG proton accelerator with a KUCA (Kyoto University Critical Assembly) reactor. The 150 MeV proton FFAG accelerator at KURRI is composed of Injector, Booster and Main Ring, and they are all FFAG rings as shown in Fig. 3. The beam is transported from the FFAG to KUCA through the long beam transport line. In March 2009, the first beam from the FFAG was successfully injected into the KUCA reactor starting the ADSR experimental studies [18]. As the FFAG operates with 10–100 Hz, prompt neutrons are created every 33 msec, then, the delayed neutrons amplified by nuclear fission reactions came out depending on the reactor sub-criticality. Recently, the beam intensity has been successfully increased almost 100 times by chargeexchanged H⁻ ion

beam injection with a newly built injector of 11 MeV H⁻ linac [19,20].

In France, the RACCAM project [21] has been initiated, which aims at producing a preliminary design study of a variable energy proton installation based on a variable

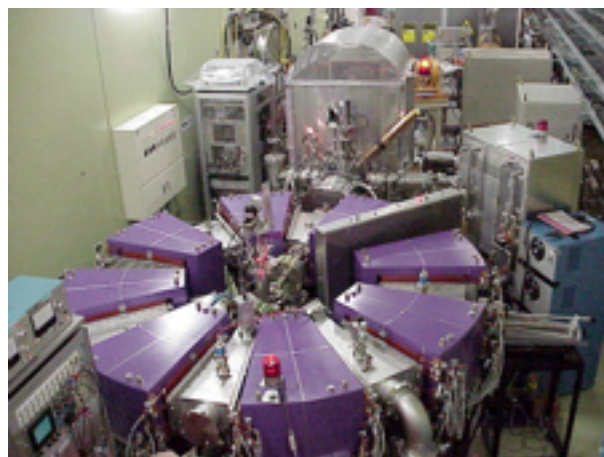


Fig. 2. Photograph of the world's first proton FFAG (POP) [4,5]



Fig. 3. FFAG complex at KURRI for ADSR experiment [18,19,20].

energy, 5 to 15 MeV, H⁻ injector cyclotron followed by a spiral lattice FFAG ring with 70 to 180 MeV extraction energy. A schematic layout of scaling proton FFAG for proposed RACCAM cancer therapy project. In the UK, the PAMELA project [22] for designing a hadron therapy accelerator has been funded to invoke the achievements of the non-scaling FFAG accelerator, EMMA.

A cancer therapy hadron accelerator composed of three concentric nonscaling FFAGs has been proposed[23]. The smaller pair of FFAGs would accelerate protons to 250 MeV and the larger pair carbon ions to 400 MeV/u. Each ring is composed of 48 doublet cells and the circumference of the largest ring is $C = 52$ m. Modest RF voltages of less than 220 kV are sufficient to keep good beam quality while crossing many betatron resonances in acceleration.

A new type of compact neutron source called FFAG-ERIT (Emittance Recovery Internal Target) has been developed for the boron neutrino capture therapy at KURRI [24]. Figure 4 shows a photograph of FFAG-ERIT developed at KURRI. Neutrons are generated at the Be target placed internally into the proton FFAG storage ring. To suppress the emittance growth caused by Rutherford scattering, ionization cooling with energy recovery was adopted. The FFAG-ERIT ring has worked successfully as expected and a neutron yield of more than 10^{13} n/sec was obtained [25,26].

4 Muon accelerator for neutrino factory front-end

A muon phase rotation ring with FFAG optics for reducing the energy spread of muon beams called PRISM (Phase rotation Ring for Intense Slow Muons) has been developed at Osaka University. The ring has been developed for the experiment with rare μ -e conversion events where the lower limit of the branching ratio should be less than 10^{-18} [LOI-PRISM (2003)]. Before constructing a full model, they have carried out a demonstration test of phase rotation for a beam with such large momentum spread with α -particles [28]. Although the number of RF cavities was just one for the test (five to six RF cavities are needed for the real experiment), the demonstration test could still clarify the phase rotation in principle, and

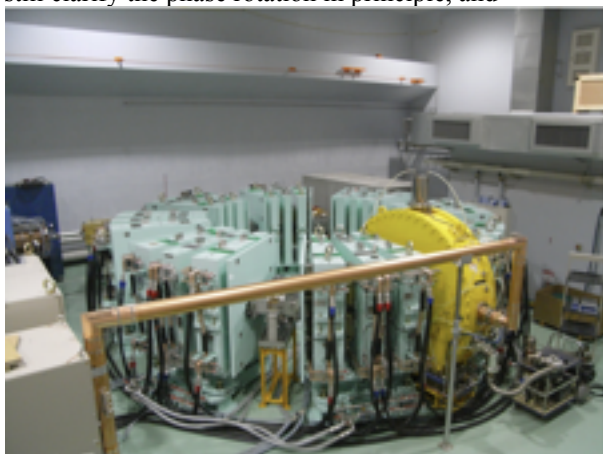


Fig. 4. FFAG-ERIT for intense neutron production. [24,25,26]

the experimental results showed a good agreement with the results predicted by the beam simulation.

The world's first non-scaling FFAG electron model of muon accelerator (EMMA) for future neutrino factory has been successfully developed recently in the UK [15]. One of the unique features of this machine is the beam acceleration using fixed frequency RF described above. The neutrino factory (NuFact) which devotes the lepton flavor international collaboration experiment with high energy neutrino beams is based on the muon accelerator complex with non-scaling FFAG [NuFact (2011)]. As an injector of non-scaling FFAG, a recirculating linear accelerator (RLA) is a candidate in the present design of NuFact. However, the RLA is a cost-driving accelerator in the NuFact complex, and a scaling FFAG using stationary bucket or harmonic-number jump acceleration is also under consideration as an alternative [27,31].

Advancements in the beam optics and dynamics based on the studies of zero-chromaticity and flexible designs in 3D phase space become possible only now. A very-low-energy neutrino factory (VLENF) project has also

been discussed as a front-end for a neutrino factory. The facility is composed of a pion production system and a muon decay race-track ring with a straight length of between 50–75 m, where a race-track scaling FFAG consisting of zero-chromatic straight sections shown in Eq. (8) with a center momentum of 3.8 GeV/c, as shown in Fig. 5 is promising [29,30]. The ring has large transverse and momentum acceptances of more than 0.01m.rad and 20%, respectively.

[SUMMARY]

The unique features of FFAG compared with the ordinary accelerators are that it allows a strong beam focusing in 3D space (AG focusing and phase stability) and fast beam acceleration. These are both beneficial for high intensity beam acceleration and also for rapid acceleration of very short lived particles. The scaling zero-chromatic FFAG, in particular, has fairly large momentum acceptance, which could also be very useful for large emittance secondary particle beam acceleration.

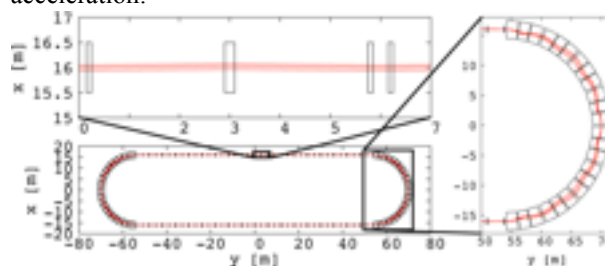


Fig. 5. Design of a race-track scaling FFAG for 3.8 GeV/c muon decay ring for nuSTORM project [28].

Actually, these features are not provided by ordinary ring accelerators such as cyclotrons or synchrotrons and recent studies and developments on scaling and non-scaling FFAGs show that FFAGs have very large capabilities in the fields of high intensity proton accelerator for ADS and muon accelerators for a neutrino factory. As for beam acceleration in FFAGs, fixed frequency RF acceleration such as serpentine path, stationary bucket and harmonic-number jump accelerations become feasible to allow very fast acceleration. Moreover, various RF gymnastics such as stacking, coalescing and multi-bunch acceleration can be possible. Advancements of the beam optics and dynamics of FFAGs based on the studies of zero chromaticity present more flexibility of beam optics designs in 3D phase space such as zero-chromatic straight line, race-track FFAG and vertical FFAG.

The author would like to express his sincere appreciation to all the people who gave him the various useful informations and results on their FFAG developments.

References

- [1] T. Ohkawa, Workshop at annual meeting of JPS, 1953.
- [2] K.R. Symon, D.W. Kerst et al., Phys. Rev., 103 (1956) 1837.
- [3] A.A. Kolomensky and A.N. Lebedev, Theory of Cyclic Accelerators, North-Holland, Amsterdam (1966), p. 340.

- [4] Y. Mori et al., Proc. of 12th Symp. on Accelerator Science and Technology, Wako, Japan, 1999.
- [5] M. Aiba et al., Proc. of EPAC2000, Vienna, Austria, 2000, pp. 581–583.
- [6] S. Berg, Proc. of Int. Workshop on FFAG Accelerators (FFAG04), KEK, Tsukuba, 2004, pp. 1–9.
- [7] C. Johnstone et al., Int. J. Mod. Phys. A, 26 (2011) 1690.
- [8] A. Ruggiero, Proc. of Int. Workshop on FFAG Accelerators (FFAG04), KEK, Tsukuba, 2004, pp. 53–61.
- [9] Neutrino Factory Design Group, IDS-NF, 2011.
- [10] D. Trbojevic, Proc. of Int. Workshop on FFAG Accelerators (FFAG04), KEK, Tsukuba, 2004, pp. 9–10.
- [11] T. Ohkawa, Phys. Rev., 100 (1955) 1247.
- [12] S. Brooks, Proc. of IPAC'11, 2011.
- [13] J.B. Lagrange et al., Proc. of PAC'09, Vancouver, Canada, 2009.
- [14] K.R. Symon and A.M. Sessler, Proc. Int. Conf. High Energy Acc. (1956), p. 44.
- [15] S. Machida et al., Nature Physics, 8 (2012) 243.
- [16] E. Yamakawa et al., Nucl. Instr. Meth PR A, vol. 716, p.46-53(2013).
- [17] Y. Yonemura et al., Proc. of EPAC08, Genoa, Italy, 2008, pp. 3523–3525.
- [18] C.H. Pyeon et al., Journal of Nuclear Science and Technology, 46(12) (2009) 1091–1093.
- [19] T. Uesugi et al., Proc. of EPAC08, Genoa, Italy, 2008, pp. 1013–1015.
- [20] Y. Ishi et al., Proc. of IPAC'10, Kyoto, Japan, 2010, pp. 1327–1329.
- [21] S. Antoine et al., Nucl. Instr. Meth. A 602(3) (2009) 293–305.
- [22] T. Yokoi, Int. J. Mod. Phys. A, 26 (2011) 1887.
- [23] E. Keil, A. M. Sessler and D. Trbojevic, Phys. Rev. ST-AB, 10 (2007) 054701.
- [24] Y. Mori, Nucl. Instr. Meth. PRS A 563 (2006) 591–595.
- [25] Y. Mori, Proc. of PAC'09, Vancouver, Canada, 2009.
- [26] K. Okabe et al., Proc. of IPAC'10, Kyoto, Japan, 2010, pp. 3897–3899.
- [27] T. Planche et al., Proc. of PAC'09, Vancouver, Canada, 2009.
- [28] A. Sato et al., Proc. of EPAC2004, Edingburgh, Scotland, 2004, pp. 2508–2510.
- [29] J.B. Lagrange and Y. Mori, internal report, acc-kurri-0508-02-2012, KURRI, 2012.
- [30] J.B. Lagrange, J. Pasternak and Y. Mori, Proc. of NuFact'13, IHEP Beijing, China, 2013.
- [31] Y. Mori, Int. J. Mod. Phys. A, 26 (2011) 1744.
- [32] T. Baba et al., Proc. of EPAC08, Genoa, Italy, 2008, pp. 3371–3373.

(P1) 中性子転換注入 GaN のキャリア補償効果

(法政大学、大阪教育大学¹、京大原子炉²) ○西片 直樹、中村 司、上岡 一馬、新川 輝、栗山 一男、串田 一雅¹、徐 虬²

- はじめに：1000°Cアニールした中性子転換注入 (NTD: Neutron Transmutation doping) GaN は室温において $10^8 \Omega\text{cm}$ の高抵抗化を示している。本研究では NTD-GaN における中性子転換された Ge の DX 様センターの補償効果について述べる。
- 実験：サファイア基板上的の単結晶薄膜 GaN に対して、それぞれドーズ量 $6.7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ 、 $1.4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ の高速、熱中性子注入を行った。交流 (AC) ホール効果測定を 150°C から 400°C の温度範囲で行い、キャリア濃度の温度依存性から深いエネルギー準位を明らかにした。
- 結果：1000°Cアニール GaN 薄膜単結晶の抵抗率とキャリア濃度は、 $2.47 \times 10^6 \Omega\text{cm}$ 、 $4.13 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ (測定温度 150°C)、 $2.37 \times 10^3 \Omega\text{cm}$ 、 $1.60 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ (測定温度 400°C) であった。また、アニールしたサンプルはすべて n 型を示した。測定温度 150°C、400°C におけるキャリア濃度は、転換された Ge 濃度の計算値 $1.24 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ よりも低かった。図 1(a)、(b) に NTD-GaN の不純物準位の模式図を示す。⁶⁹Ga と ⁷¹Ga の(n, γ)反応によって転換された GaN 内の Ge 原子は、ドナーとして DX 様センターを形成する[2]ことが報告されている[1]。Ge の DX 様センターは、フォトルミネッセンス測定から伝導帯の底から 500 meV 以下に位置している[1]。NTD 過程によって生成された窒素格子間原子(N_i)は AC ホール効果測定から伝導帯の底から 960 meV に深いアクセプター準位を形成していることが明らかになった。¹⁴N の(n,p)反応によって転換された ¹⁴C 原子は、価電子帯上 230 meV にアクセプター準位を形成し[3]、フォトルミネッセンス測定から得た結果と一致する[4]。NTD-GaN のキャリア濃度は室温では測定できないため、Ge の DX 様センターは ¹⁴C と N_i の両アクセプターによって補償されており、室温で高抵抗を示している。150°C

以上で観測されたキャリア (電子)は、N_iアクセプターから伝導帯への熱励起に起因していると考えられる。

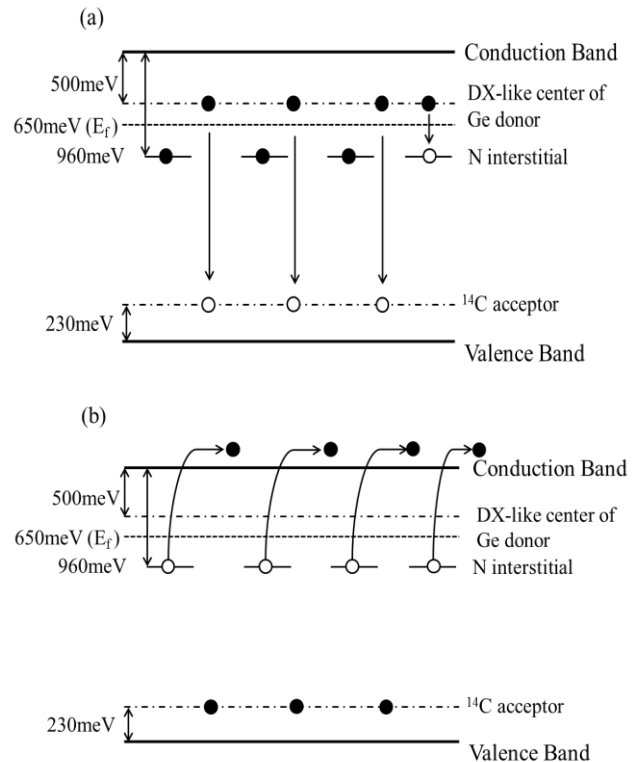


Fig. 1. The schematic diagram of impurity levels in NTD-GaN. (a) the compensation of DX-like center of Ge donors by ¹⁴C and N_i acceptors. (b) the thermal excitation from the energy level of N interstitial.

本研究は Solid State Communication, 205, 1 (2015)に掲載されている。

参考文献

- [1] K. Kuriyama, T. Tokumasu, J. Takahashi, H. Kondo, and M. Okada, Appl. Phys. Lett. 80, (2002); 3328 – 3330; Proceedings of 26th Int. Conf. Physics of Semiconductors (Edinburgh, UK) (2002) D46 – 1 – 8.
- [2] P. Boguslawski, J. Bernholc, Phys. Rev. B 56, (1997) 9496 – 9505.
- [3] J. Neugebauer, C. G. Van de Walle, Phys. Rev. B 50, (1994) 8067 – 8070.
- [4] T. Ida, T. Oga, K. Kuriyama, K. Kushida, Q. Xu, and S. Fukutani, AIP Conference Proceedings, 1566, (2013) 67 – 68 (31st International Conference on the Physics of Semiconductor, Zurich, Switzerland, 2012).

Effect of Carrier compensation in neutron transmutation doped GaN

Naoki Nishikata, Tsukasa Nakamura, Kazuma Kamioka, Akira Shinkawa, Kazuo Kuriyama, Kazumasa Kushida and Qiu Xu
naoki.nishikata.3z@stu.hosei.ac.jp

(P2) X線ラジオグラフィを用いた霜層密度分布の測定

(関西大学、京大原子炉¹) ○上地拓摩、松本亮介、影林和磨、伊藤大介¹、齊藤泰司¹

1. はじめに：冷蔵庫など作動冷媒が氷点下となる熱交換器への着霜は著しい伝熱性能の低下を招く。霜層の成長予測には霜層密度が必要であるが、霜層密度は空間的に分布を持つため測定が困難であり、これまで Cremers ら[1]や下村ら[2]による研究しか存在せず、また、霜密度の時間変化についての検討がなされていない。そこで、本研究では円筒冷却面上に形成させた霜層に対して X 線ラジオグラフィ (XRG) により、霜層密度分布の評価を行った。

2. 実験装置と方法：実験装置を Fig.1 に示す。電磁ポンプより送られた空気を流量 40l/min. に調節し加湿冷却した後、鉛直管状流路へ送り込み、アルミニウム製円筒冷却面上に着霜させる。着霜部入口空気温度は 9.4℃、絶対湿度は 0.0042kg/kg' である。冷却面温度は -14℃ である。X 線源には B4 照射室内の X 線発生装置を用いた。X 線源は 80kVp, 5mA に設定し、撮像間隔 5 分、露光時間 60 秒で着霜開始後 180 分間撮影を行った。画像はオープニングフィルタによるノイズ除去を行った。

3. 霜層密度分布の評価方法：X 線を厚み δ 、密度 ρ の物体にゲイン I_0 で照射すると透過ゲイン I は、 $I = I_0 \exp(-\rho \mu_m \delta)$ に従い減衰する。 μ_m は質量減衰係数であり、水の値を用いた。

Fig.2(a)に無着霜時の、(b)に着霜開始後 180 分での XRG 画像を示す。X 線源の強度が変動するため、(a)の画面端の領域 A の平均輝度より照射ゲインの変動を補正した。Fig.3 に Fig.2(a)に示す長方形領域の輝度分布を示す。y=±20~24mm にて冷却面に形成した霜層による X 線の減衰が観察される。Fig.3 の X 線の減衰は線積分射影であるため、着霜分布を軸対称と仮定し、逆アーベル変換を用いて半径方向の霜層密度分布を求めた。

4. 結果：霜厚さ方向の密度分布を Fig.4 に示す。また、下村ら[2]の削ぎ取りによる測定結果 (単一平板上強制対流, 着霜開始後 120 分) を比較として示す。着霜初期に冷却面近傍にて高密度の霜層が急速に形成された後、低密度の霜層が霜高さ方向へと徐々に形成されていく様子が確認できる。また、下村らの結果とも傾向が一致していることが確認できた。

参考文献

[1] C.J.Cremers, et al, Frost Density Measurements on Vertical Cylinders by Gamma-ray Attenuation, Advances

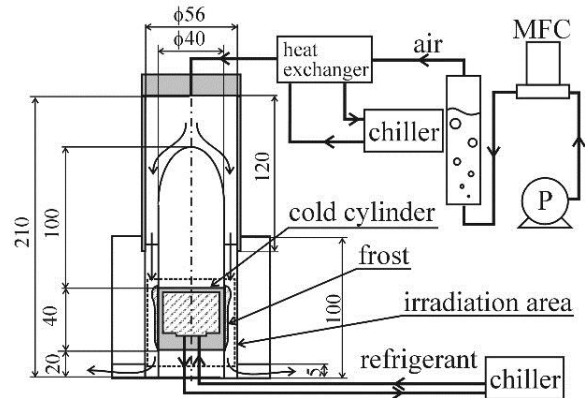
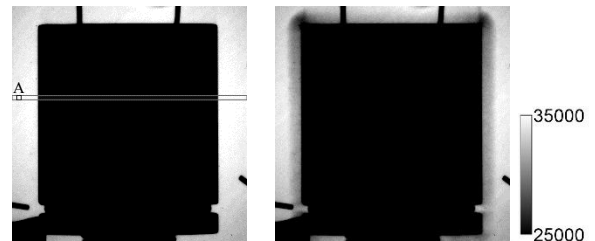


Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus.



(a) No frosting image. (b) Frosting image at 180min.

Fig. 2. XRG images.

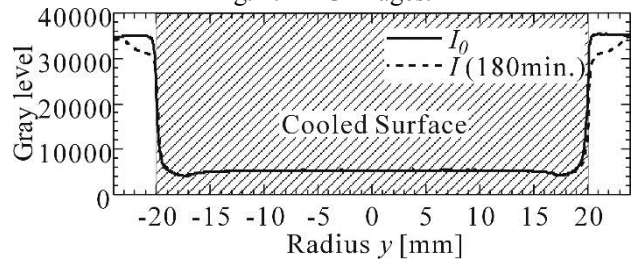


Fig. 3. Distribution of X-ray attenuation by frost.

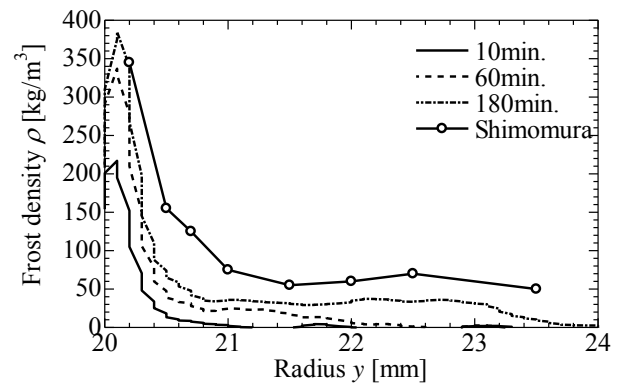


Fig. 4. Distribution of frost density with height. in Cryogenic Eng., Vol.23, pp.371-375(1978).
[2] N.Shimomura, et al, Study of Phenomenon under

(P3) 冷却材喪失時における KUR 板状燃料体の自然対流冷却特性

(京大原子炉) ○伊藤大介、齊藤泰司

1. はじめに：福島第一原発事故以後、日本国内では発電用原子炉だけでなく研究用原子炉に対しても事故時の安全性評価の見直しが求められている。特に冷却材喪失事故 (LOCA) 時における燃料の過渡挙動は過酷事故のシナリオに大きな影響を与えるため、知見の蓄積が急務とされている。

本研究では、LOCA 時の KUR 燃料要素における燃料温度の過渡変化特性を調べることを目的とし、KUR の湾曲板状燃料体を模擬した試験体を用いて、空気中における自然対流冷却特性を実験的に調べ、さらに軸方向発熱密度を仮定した簡易的な非定常熱伝導解析によって冷却材喪失後の燃料板の温度分布変化を明らかにする。

2. 実験：KUR 模擬燃料体系を使用し、空気中において自然対流冷却実験を行った。模擬燃料要素は 18 枚の湾曲したアルミニウム板 (1.52 mm 厚) から成り、それぞれの板間隔は 2.8 mm、全長は 600 mm である。模擬燃料体系の外側にリボンヒータを均一に巻き付けて加熱できるようにした。また、その周囲には断熱ブランケットを取り付けた。燃料要素中央部には壁面温度計測用のシース型熱電対を取り付けた。壁面温度の時間変化から、集中熱容量モデルによる評価を行い、壁面上の自然対流熱伝達率の算出を行った。

Fig. 1 に模擬燃料要素における自然対流熱伝達率の実験結果を示す。図中の実線は矩形管に対する従来の相関式[1]の計算値を示している。図より、実験結果が矩形管に対する自然対流熱伝達特性とおおよそ 10%以内の誤差で一致しており、KUR 模擬燃料要素においても矩形管としての評価が可能であることがわかる。

3. 数値解析：KUR 燃料体系での崩壊熱による燃料温度の過渡変化を予測するため、簡易モデルを用いた 1 次元非定常数値解析によって自然対流冷却過程における燃料板の温度分布の評価を行った。解析対象とした実際の KUR 燃料板は、厚さ 0.5mm の燃料ミート部に対して、厚さ 0.51mm のアルミ板で挟み込んだ構造をしている。燃料ミート部は U_3Si_2 粒子をアルミ中に分散させた構造である。解析に用いた燃料板の物性値は、燃料ミート部とアルミ被覆部の比率から求めた。冷却材喪失時の周囲流体及び壁面の初期温度は 50 °C とした。また、アルミの融点は 660 °C とし、壁面温度が融点を超える温度まで計算を行った。本計算では、各時刻における平均発熱密度を AESJ の式[2]から求め、実際の KUR 燃料の鉛直方向発熱分布形状を考慮して発熱密度分布を求めた。

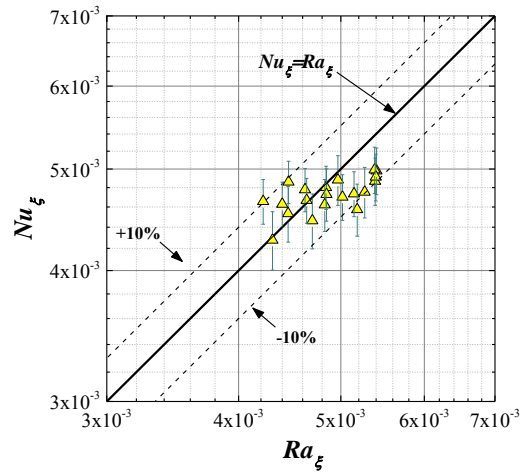


Fig. 1 Natural convection heat transfer characteristics

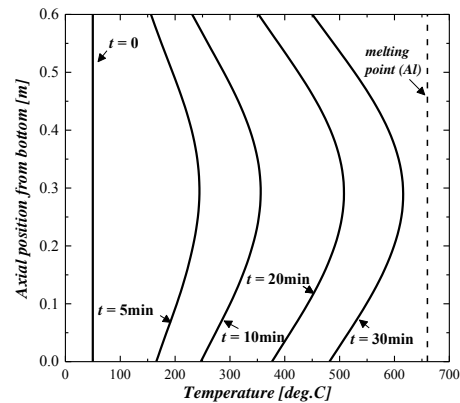


Fig. 2 Axial profiles of fuel temperature after loss of coolant (cooling period :1 sec)

Fig. 2 に燃料板軸方向温度分布の時間変化を示す。本結果は KUR の運転停止 1 秒後に冷却材が喪失した際の計算結果である。冷却材喪失後、燃料温度は徐々に上昇し、30 分程度で中央の温度がアルミの熔融温度程度まで達していることがわかる。

4. まとめ：LOCA 時の KUR 板状燃料体の過渡挙動を調べるために、模擬燃料体系を用いた自然対流冷却実験を行い、簡易モデルを用いた解析によって燃料温度分布の時間変化を求めた。これにより、冷却材喪失時の燃料溶融までの時間の評価が可能であると考えられる。

参考文献

- [1] 伝熱工学資料, 日本機械学会 (1986)
- [2] 「原子炉崩壊熱基準」研究専門委員会, 原子炉崩壊熱とその推奨値, 日本原子力学会 (1989)

(P4) 溶液エアロゾルに対する核分裂生成物の付着挙動

(京大院工、京大炉¹) ○田中徹、新田真之介、高宮幸一¹、関本俊¹、沖雄一¹、大槻勤¹

1. 緒言

福島第一原子力発電所の事故により、周辺環境中に放出された放射性エアロゾルの観測結果から放射性セシウム¹³⁷の輸送担体として硫酸塩エアロゾルが示唆されている。しかし、このように観測された放射性エアロゾルは運搬される過程において凝集などの変性を受けたものであるため、どのような過程を経て、原子炉内にて生成したのかを推測することは困難である。そこで、我々の研究室では実験室系において放射性エアロゾルの生成機構を解明するため、溶液からエアロゾルを発生させる装置を開発して模擬実験を試みた。本発表では、生成した様々な粒径分布をもつエアロゾルを用い、溶液エアロゾル粒子中のアルカリイオンを系統的に変えることで、放射性エアロゾルの生成過程に影響を与える幾何学的効果および化学的効果についてそれぞれ検討した。

2. 実験

開発した装置を用いて 0.1~1wt% の各濃度に調製した水溶液から溶液エアロゾルを発生させた。溶質は塩化リチウム、塩化ナトリウム、塩化カリウム、塩化セシウムの 4 種類で、発生させた溶液エアロゾルに含まれる化学種およびエアロゾルの粒径が FP の付着挙動に与える影響を調べた。これらエアロゾルの粒径分布は SMPS により測定し、チェンバー内に導入したエアロゾルの全表面積を粒径分布から幾何学的に見積もった。チェンバー内には、自発核分裂核種である ²⁵²Cf 線源(1 MBq)を設置し、そこから放出される FP を溶液エアロゾル粒子に付着させることで放射性エアロゾルを生成した。チェンバーから出てくる放射性エアロゾルは、グリスを塗布したセルロースろ紙上に 30 分間捕集した後に、Ge 半導体検出器による γ 線スペクトロメトリーを行い、溶液エアロゾルに付着した FP を同定し、各 FP に対応する光電ピークの計数率を測定した。今回の実験では、

¹⁰⁴Tc($T_{1/2}$ 18.3min), ¹⁰⁷Rh($T_{1/2}$ 21.7 min), ¹³¹Te($T_{1/2}$ 25.0 min), ¹³⁴I($T_{1/2}$ 41.8 min), ¹⁴⁶Ce(13.5 min)などの FP が検出された。また、²⁵²Cf 線源から放出される FP をろ紙上に直接捕集し、同様の測定を行った。それぞれの γ 線スペクトロメトリーにより得られた計数率の比をもとに ²⁵²Cf 線源から放出されたこれらの FP が溶液エアロゾルに付着した割合(付着率)を算出した。

3. 結果と考察

溶液濃度を変えてチェンバー内に導入した粒径分布の異なる 4 種類の溶液エアロゾルの全表面積と、計数率が最も高かった ¹⁰⁴Tc の付着率の相関を Fig. 1 に示した。この結果より、全表面積の増加に応じて付着率が直線的に増加する傾向があることがわかった。また、他の 4 核種においても同様の傾向があり、いずれの溶質でも表面積に応じて付着率が直線的に増加することがわかった。これらを原点を通る直線でフィッティングすると、溶質の種類によって傾きが異なり、同族元素の陽イオンにおいて原子番号の大きい陽イオンを含んだ溶液エアロゾルほど傾きが大きくなった。これより、溶液エアロゾルに対する FP の付着率は、表面積などの幾何学的な影響以外に溶液エアロゾル粒子中に含まれる化学種が FP の付着挙動に影響を与えることが明らかとなった。

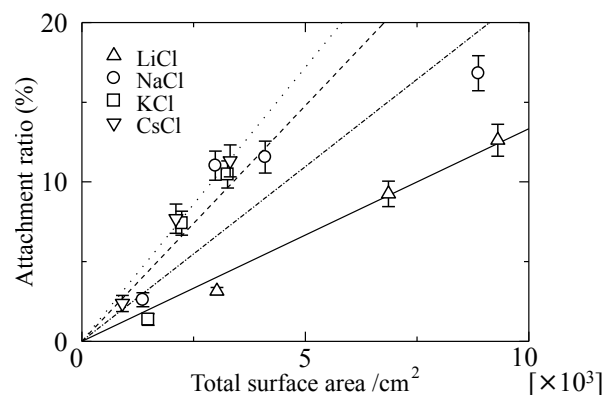


Fig. 1. Variation of attachment ratio of ¹⁰⁴Tc correlated with total surface area of solution aerosol such as LiCl, NaCl, KCl and CsCl.

Attachment behavior of fission products on solution aerosol

Toru Tanaka, Shinnosuke Nitta, Koichi Takamiya, Shun Sekimoto, Yuichi Oki and Tsutomu Ohtsuki

tanaka.toru.38n@st.kyoto-u.ac.jp

(P5) NC 制御加工装置による回転楕円体中性子ミラーの製作

(京大原子炉、理化学研究所¹、東京電機大学²、北海道大学³) ○吉永尚生、日野正裕、金山雅哉、細島拓也¹、山形 豊¹、郭 江¹、加藤純一¹、森田晋也²、武田 晋³、古坂道弘³、川端祐司

京大炉は世界有数の中性子光学素子開発拠点であるが、曲面形状を持つ集光ミラーは製作できていない。世界的にも非球面はもとより円筒面でも大きく異なる2つの曲率を持つトロイダルミラーのような形状は実現できていない。我々はJST光・量子融合連携研究開発プログラムの支援を受けて、2014年2月に中性子光学素子治具製作用NC制御加工装置(Mazak製の立形マシニングセンタ530CLH)を導入した。本発表では光学素子の製作の現状について述べる。

○はじめに

中性子光学素子の開発は、粗加工、ニッケルリンメッキ、超精密加工、研磨、洗浄、多層膜コーティングを経て中性子光学素子として完成する。中性子光学素子の製作は精密な加工と形状評価が必須であり、研磨までの各工程で形状評価が行われ修正加工により精度を確保する。本装置の導入は一連の工程の中で主に最初の粗加工とその計測評価を担う。

○マシニングセンタ使用環境について

マシニングセンタでの加工は高速回転する主軸の発熱や一日の気温の変化などによる機械の姿勢変化が生じる。精密加工にはこのような温度変化が加工形状に少なからず影響するために恒温室を整備した。

また、加工に必要なマシニングセンタの制御プログラムはテキストのみで数十メガバイトにもなる。加工条件が変わればこのプログラムも作り直すことになるが修正は容易ではない。効率よく制御プログラムを作成するために中性子光学素子の3DCADモデルから直接制御プログラムを作るソフトウェア、CAM (NCG製; Fig. 1.)を導入した。これらは実験設備管理部の支援を得た。

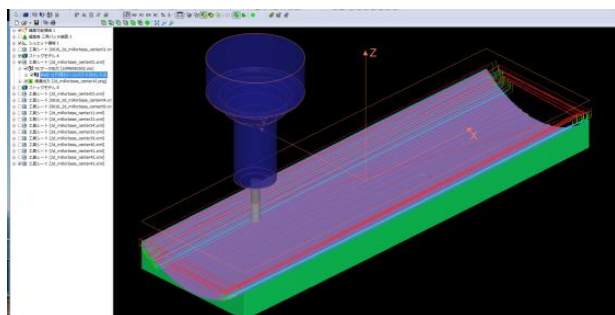


Fig. 1 NCG/CAM で作成されたツールパス及び工具アニメーション

○中性子集光光学素子の製作について

加工する光学素子のミラー面は長軸1.25m、短軸65.4mmの回転楕円体の一部である (Fig. 2.)。中心部より長さ左右に45cm(全長90cm)、約60°の幅を持つ。

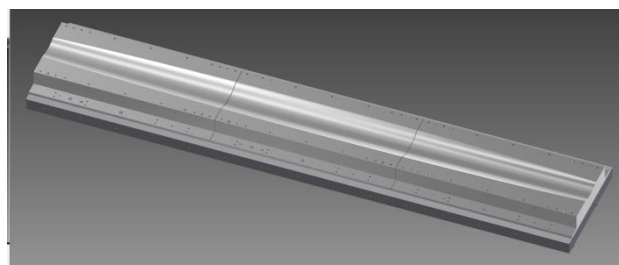


Fig. 2 光学素子の製作図面。ミラー面は回転楕円体 (長軸; 1250mm、短軸; 65.4mm)

材料には板材生産時に残る熱応力を除去したと謳う52Sアルミニウム(アルハイスIII)を使用し、板材の固定には真空チャックを使用する等、精密形状加工が出来るように配慮した。さらに材料表面の劣化や形状の経時変化を避けるために板材の表面、裏面を切削する等、様々な加工を施した。

○加工プログラムの作成

ニッケルリンメッキ前の粗加工とは言っても、光学素子の曲面加工には、荒加工、中加工、中仕上げ加工の切削加工を経て、仕上げ加工を実施する。使用する切削工具や加工速度(主軸の回転速度、送り速度)、工具のあたる向きや工具の動作(ツールパス)など各々の加工で切削条件が異なる。

【荒加工】: 口径10mm、6mmの切削工具(エンドミル)を順に使用して大まかに回転楕円体の形状に削り取る。使用したツールパスは等高線であるため光学素子の表面は階段状になっている。仕上げ代は0.3mm。

【中加工】: 口径5mm、R2.5mmの切削工具(ボールエンドミル)を使用して荒加工でできた段差をなくして曲面にする。ここから工具のパス(軌跡)は走査線パスとなりX-Z軸方向に工具を走査しながらY軸方向に0.15mmピッチで面をなぞる。仕上げ代は0.1mm。

【仕上げ加工】: 中加工と同じ加工方法にて仕上げ用工具に変更して切削条件を変える。

○まとめ

NC制御加工装置による2次元曲面の中性子光学素子を製作した。当日はこの加工面の形状評価を示す。

(P6) 重水素化タンパク質を基軸とした溶液散乱構造解析

(京大原子炉、千葉科大薬¹、神戸大理²、京大薬³)
○井上倫太郎、茶竹俊行、柳澤泰任¹、茶谷絵理²、星野大³、藤井紀子

タンパク質は非常に複雑な階層構造を有し、その構造を基盤とすることでそれぞれのタンパク質が有する特異的な機能を発現すると考えられてきた。そのため、それぞれのタンパク質が有する固有の機能発現解明には一義的に立体構造を決定することが必須と考えられ、その目的達成のためにこれまで X 線を初めとした結晶構造解析が台頭してきた。しかしながら、近年結晶化が極めて困難な膜タンパク質、巨大な会合複合体、規則構造を本質的に保持しない天然変性タンパク質こそが細胞内のネットワークにおいて重要な役割を担っていることが近年明らかになりつつある。つまり、上述した系においては結晶化を阻害する構造の揺らぎ或いは柔からかさこそが構造の本質であると考えられる。故に、今後タンパク質の構造の揺らぎの寄与を考慮した新規構造解析法の確立が必須である。その候補として挙げられるのはナノメートルスケールの構造解析で絶大な威力を発揮している小角溶液散乱法であり、特に X 線をプローブとした小角 X 線溶液散乱法での構造解析が装置の洗練化及び解析技術の向上も相まって劇的に進歩している。一方、小角中性子溶液散乱における最大の利点として同位体識別能が挙げられ、特に重水素 (D) と軽水素 (H) においてその差が著しい。例えば全ての H が D 化された重水素化タンパク質を作成すると、非重水素化タンパク質との散乱能が大きく異なる。更に、溶媒自身の重水素化を調節することで非重水素化タンパク質が不可視化され、重水素化タンパク質のみが選択的に観測出来る環境を溶液内で構築できる (Fig.1 参照)。即ち、小角中性子溶液散乱と重水素化ラベリングを組み合わせることで多成分系における特定の注目したい成分 (タンパク質) の構造解析が可能となる。特に上述した結晶化が困難なタンパク質は複合体において初めて機能発現する場が多いので、X 線と中性子線を相補的に利用した小角溶液散乱法により構造の揺らぎを加味した構造解析を実現できる。具体的には小角 X 線散乱 (SAXS) により複合体の全体構造を探り、注目したい特定成分を重水素化ラベリングにより小角中性子散乱 (SANS) により明らかにする。つまり、SANS により明らかになる構造を言わばジグソーパズルのピースとしてくみ上げること SAXS から得られた全

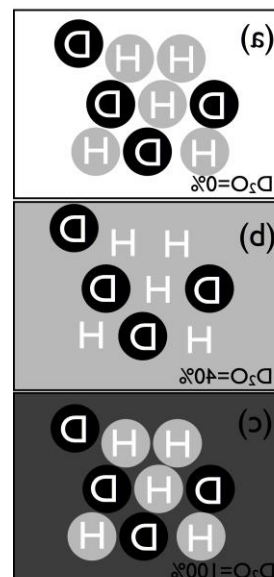


Fig.1 Schematic image of contrast matching. H and D indicates hydrogenated and deuterated protein, respectively. Color gradation means the difference of D₂O content.

体構造の再構築が可能となる。

そして、この SAXS・SANS による相補的な構造解析を真に有効化するための鍵は重水素化タンパク質であるが、既に我々は幾つかのタンパク質に対して培養及び精製に成功している。そこで、本ポスター発表においては近年我々の研究グループが進めている重水素化タンパク質を基軸とした溶液散乱構造解析による最近の結果を報告する。

(P7) 放射線によって生じる「DNA損傷のかたまり」を発見

—蛍光共鳴エネルギー移動 (FRET) を用いたアプローチ—

(原子力機構、京大原子炉¹) ○赤松 憲、鹿園直哉、齊藤 毅¹

1. はじめに：電離放射線によって生じた DNA 損傷は、完全に元通りに修復されなければ細胞死、突然変異、発がんの原因となる。特に、高 LET 放射線の飛跡周辺や2次電子の飛跡末端で生じやすいとされている、クラスターDNA 損傷(複数の損傷が DNA 上の狭い領域に集中して生じている)は修復が困難とされているが、その実体はほとんど明らかにされていない。そこで我々は、このような仮説的な損傷形態を実験的に解明するために、損傷の局在性(かたまり具合)を調べる方法の開発を行ってきた。ナノメートルオーダーで近接した損傷を研究する手段として、光物理現象のひとつである蛍光共鳴エネルギー移動(FRET: fluorescence resonance energy transfer)に着目した。まず、損傷のひとつである脱塩基部位(AP)がランダムに生じると予想される熱処理 DNA (pH 5、70°Cで処理)をモデルとして得た FRET 実験データ点と、損傷間隔がランダムな場合(指数分布)の理論曲線を比較した。その結果、両者は一致することが分かった[1]。DNA を熱処理すると、AP がランダムに生じることが実験的に初めて確認できたといえる。開発した FRET 法を、放射線照射 DNA に適用したので、その結果について報告する。

2. 実験：AP(あるいはアルデヒド・ケトン)に特異的に共有結合する、アルコキシアミノ基を有する2種類の蛍光プローブ(Donor: Alexa350 及び Acceptor: Alexa488)で AP を標識し、励起された Donor (D)から Acceptor (A)へのエネルギー移動確率(FRET 効率)から AP の局在性を評価した。DNA には、pUC19 プラスミド(2686 塩基対)を用いた。DNA 水溶液をガラスプレートに塗布し真空下にて十分に乾燥させた。⁶⁰Co ガンマ線(京大原子炉実験所、及び原子力機構の照射施設を利用)は、プレートをガラス管に真空封入後 0 ~ 400 kGy の間で室温で照射した。一方、⁴He²⁺ (2 MeV/u, LET: ~70 keV/μm) 及び ¹²C⁵⁺ (0.37 MeV/u, LET: ~ keV/μm) 照射は原子力機構重イオン照射施設(TIARA) 3MV 静電加速器 TC ラインの深度制御細胞照射装置[2]にて行った。

3. 結果と考察：He、C イオンビーム及びガンマ線照射 DNA における FRET 効率: E-AP 平均密度の関係を図 1 に示す。いずれも、AP 平均密度(線量に比例)の増加に伴って E が増加していくことが分かった。E の増加は、互いに近接した損傷が増えることを意味している。また、これらを AP がランダムに分布する場合の理論曲線と比較した結果、C イオンビームは、He イオンビームやガンマ線と比較して有意に E が大きく

AP が集中的に生じやすいことが明らかとなった。

さらに、y 切片は $E \approx 0.10$ になると予想されることから、粒子線トラック1本でクラスターAP が生じていると考えられる。仮にクラスターAP 部位の AP 間距離が同じ(単分散)と仮定すると、AP 間隔は 17 塩基対(5.6nm 程度)となる。一方、He とガンマ線間の相違は殆ど認められなかった。これらの結果は放射線の「直接効果」、すなわち放射線エネルギーが直接 DNA に付与された場合に該当するが、AP の分布と AP 密度の関係を実験的に初めてとらえたデータとして大変意義が大きい。

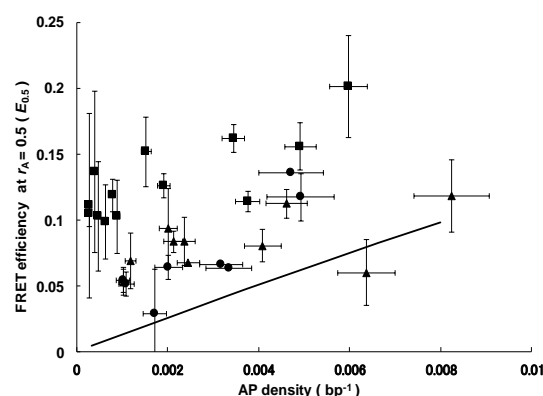


図 1. 放射線照射した DNA の AP 平均密度 (DNA の単位長さ (塩基対:bp) あたりの平均損傷数。線量に比例) と FRET 効率の関係 (●: ⁶⁰Co ガンマ線 (~0.2 keV/μm); ▲: ヘリウムイオン (⁴He²⁺, ~70 keV/μm); ■: 炭素イオン (¹²C⁵⁺, ~760 keV/μm)) [3]。図中の太線は、損傷がランダムな場合の理論曲線[1]。

4. 謝辞: TIARA TC の調整及びメンテナンスにご協力いただきました、千葉敦也 博士、宇野 定則 博士、大澤広幸 博士、須郷由美 博士(原子力機構)に深謝いたします。

参考文献

- [1] K. Akamatsu and N. Shikazono, *Anal. Biochem.*, **433** (2013) 171-180.
- [2] A. Tanaka et al., *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, **B129** (1997) 42-48.
- [3] K. Akamatsu et al., *Radiat. Res.*, **183** (2015) 105-113.

(P8) イオン照射された Fe-Ni Invar のメスバウアー分光測定

(愛媛大、JAEA¹、阪府大²、京大炉³)○松下 正史、三井 隆也¹、岩瀬 彰宏²、北尾 真司³、瀬戸 誠³

はじめに：Fe-35 at% Ni 組成近傍の Fe-Ni 合金は一般にインバー効果と称される低熱膨張をはじめ、特異な磁気体積効果を示す [1]。インバー合金と呼ばれる上記組成の Fe-Ni 合金のメスバウアー分光を用いた研究では、Fe は強磁性状態と非磁性状態の二つの状態をとっている可能性が示唆されている[2]。

一方、Fe-Ni インバー合金の磁性は、電子やイオンなどの粒子線照射に対して敏感に反応することが知られる。これまでの研究では、粒子線照射により、Fe-Ni インバー合金のキュリー温度が上昇することが報告されている[3, 4]。キュリー温度上昇の機構は未知であるが、粒子線が固体内部で起こす衝突現象に相関があると考えられている。

本研究では、Fe₆₅Ni₃₅ に対し、proton 照射を実施し、照射サンプル中の Fe のメスバウアースペクトルを収集することで、プロトン照射が Fe₆₅Ni₃₅ 中の Fe の磁性に与える影響を調査した。

2. 実験：十分に均一化処理されたのち、1273 K より急冷された Fe₆₅Ni₃₅ 合金箔 (厚さ 10 μm) に対し、2 MeV のプロトンを 1×10¹⁶ cm² 照射した。SRIM を用いたシミュレーションによれば、照射されたプロトンはサンプルを貫通し、サンプル内部にはとどまっていない [5]。

未照射サンプルと照射後のサンプルについて、交流磁化率測定を実施した結果、未照射 Fe₆₅Ni₃₅ のキュリー温度は 485 K であり、一方、プロトン照射されたサンプルのキュリー温度は 550 K である。本結果より、キュリー温度は 65 K 上昇している。

上記、照射による内部磁場の変化を調査するため、室温からキュリー温度近傍にかけて ⁵⁷Fe メスバウアー分光を京大原子炉にて実施した。測定は厚さ 10 μm のサンプルに対し、透過法で室温、423、473、523、573 K の各温度で実施した。

3. 結果：図 1 に室温でのメスバウアースペクトルを示す。室温でのスペクトル形状に大きな差はない。一方、温度を上げて Fe₆₅Ni₃₅ のキュリー温度域に近づくと明確な違いが明らかになり、交流磁化率によって示唆されている磁気転移温度の変化と一致する。また、内部磁場分布については、室温未照射サンプルでは概ね先報と一致する結果が得られている。照

射済サンプルの内部磁場分布ならびに温度依存性については、今後詳細な議論を重ねたうえで報告する予定である。

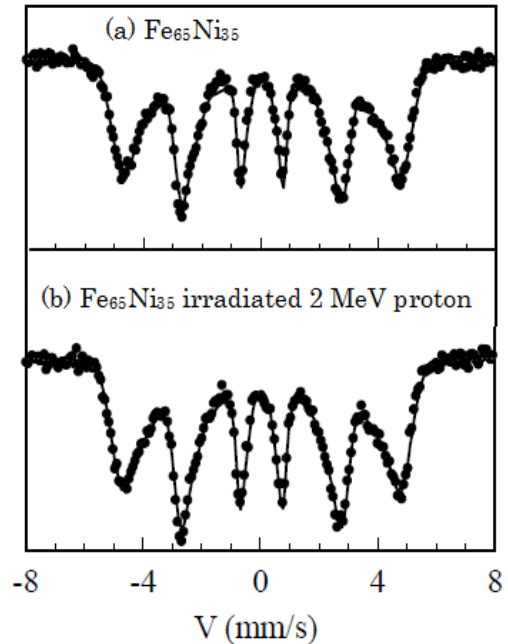


Fig. 1. ⁵⁷Fe Mössbauer spectra for Fe₆₅Ni₃₅ alloy. (a) Fe₆₅Ni₃₅, (b) Fe₆₅Ni₃₅ irradiated 2-MeV proton at 1×10¹⁶ cm².

参考文献

- [1] E. F. Wassermann, M. Acet, Magnetism and structure in Functional Materials, 79 (2005) 177-196.
- [2] M. Shiga *et al.*, J.Phys. Soc. Jpn., 37 (1974) 363-370.
- [3] Y. Chimi, *et al.*, Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B, 257 (2007) 388-391.
- [4] M. Matsushita *et al.*, J. Magn. Magn. Mater., 394 (2015) 491-495.
- [5] J. F. Ziegler, *et al.*, Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B, 268 (2010) 1818-1823.

(P9) 結晶解析のための、効率的なタンパク質の重水素化

(京大原子炉) ○喜田昭子、森本幸生

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。水素原子は 1\AA 分解能を超える、いわゆる"超高分解能X線結晶構造解析"によって決定できるが、そのような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などには、中性子線結晶構造解析は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ため、タンパク質の中性子線結晶回折実験を行う上で、その水素を重水素に置換すること(重水素化)は巨大結晶を使用することと並んで回折パターンのS/N比向上のために必須の手段となっている。発現系が存在するタンパク質の場合はその培養に重水を使用すれば全水素置換が可能であるが、重水は非常に高価なため、一般的には、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重水素化が行われてきた。しかし、重水素化タンパク質の重水素化数の評価方法については、これまでほとんど議論されてこなかったために、費用対効果の高い重水素化方法については、十分な検討が行われていなかったのではないと思われる。

われわれは、重水素化タンパク質の重水素化数を飛行時間型質量分析法で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。これは、複雑なタンパク質の内部は溶媒に露出されず、そのために重水素置換されない事が原因であると考えられる。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。

2. 実験：対象試料として重水に溶解したニワトリ卵白リゾチウムを用いた。重水中で加熱、または酸・塩基試薬を加えることで変性させ、その後冷却、またはpHを戻すことで構造の巻き戻しを行った。変性および構造の巻き戻しはCDスペクトル測定で確認した(Fig. 1)。変性前と巻き戻し後の質量分析を行い、重水素化数を比較した。また、溶媒を軽水に置換した各試料についても質量分析を行った。その、軽水に置換した試料の結晶化を行い、X線結晶構造解析を行って非変性試料の結晶構造と比較した。

3. 結果：重水内変性/巻き戻しを行った試料では、重水内非変性試料(コントロール試料)と比べて顕著な質量増加が見られた。また、溶媒を軽水に交換

した試料についても、変性/巻き戻しを行った試料についてはコントロール試料と比べて質量増加が見られた(Fig. 2)。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重水素置換され、その状態で構造巻き戻しが起こったために重水素をタンパク質内部に取り込んだ状態が作られたことを示している。溶媒を軽水に置換したコントロール試料と変性巻き戻し試料の結晶化を行ったところ、ほぼ同じ条件で結晶が得られた。実験室系のX線発生装置を用いて結晶構造解析を行ったところ、結晶格子、温度因子、溶媒の数などについて、コントロール試料の結晶構造との顕著な差は観察できず、構造は変わっていないことが示された。これらの結果は、重水内での変性/巻き戻しは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。

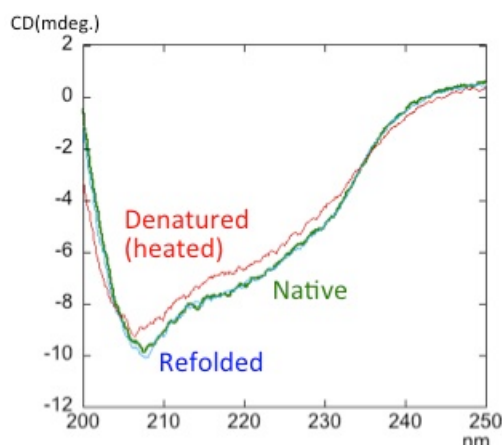


Fig. 1. CD spectra of control, denatured and refolded proteins.

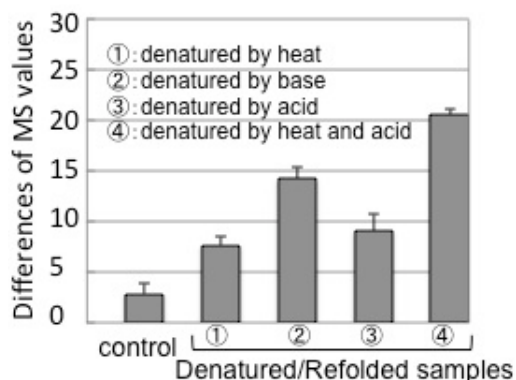


Fig. 2. Differences of MS values between control and denatured/refolded proteins.

(P10) 金属塩の加熱により生成したエアロゾルに対する核分裂生成物の付着挙動

(京大院工、京大原子炉¹) ○新田 真之介、田中 徹、関本 俊¹、高宮 幸一¹、沖 雄一¹、大槻 勤¹

【緒言】福島第一原子力発電所事故によって放出された核分裂生成物(FP)を含む放射性物質は主にエアロゾルとして大気中を輸送された。また、放射性セシウムは硫酸塩エアロゾルを担体として輸送されたという報告があり[1-2]、これは放射性セシウムが硫酸塩エアロゾルに対して選択的に付着するような機構の存在を示唆するものと考えられるが、そのような機構は明確になっていない。一方、事故当時の原子炉内に存在したと考えられる 1000°C を超える高温環境下では、炉内の物質が揮発し、大気中で冷却され凝固することで、固体エアロゾルが生成することが推測される。本研究では、高温環境下での放射性エアロゾルの生成機構の解明を目的として、様々な化学形・粒径分布を有する固体エアロゾルに対する FP の付着挙動を調査した。

【実験】電気炉で NaCl, CsCl 粉末を異なる温度で加熱し、粒径分布の異なる固体エアロゾルを発生させ、SMPS を用いて粒径分布を測定した。このエアロゾルを、自発核分裂核種である ²⁵²Cf 線源(1 MBq)を設置したチェンバーに導入し、FP を付着させた後、ポリカーボネート製のフィルターで捕集した。一方で、²⁵²Cf 線源を覆うようにセルロース濾紙を設置し、チェンバー内に放出される FP を直接捕集した。これらのフィルターおよび濾紙について、γ 線スペクトロメトリーを行い、チェンバー内に放出された FP の内、エアロゾルに付着した割合を付着率として算出した。

【結果と考察】NaCl, CsCl エアロゾル各々について、エアロゾルの粒径分布から算出した全表面積と ¹⁰⁴Tc, ¹³¹Te, ¹³⁴I, ¹⁴⁶Ce の付着率の相関を Fig.1 に示す。全ての核種について、エアロゾルの全表面積と付着率の間には正の相関が見られ、エアロゾルとの衝突確率が FP の付着率に強く影響することが示唆された。一方で、全表面積の増加に従って、付着率の増加は緩やかになる傾向が見られた。この原因は明確になっていないが、(1)付着率に上限があり、ある全表面積において付着率が飽和する、(2)FP がエアロゾルに付着した後に可逆的に脱着する、という 2 つの可能性を考えている。FP 間の付着率の差異に着目すると、¹³⁴I の付着率が他の核種に比べて有意に低かった。この原因について、現段階では、ヨウ素が揮発性の高い化合物を作りやすいために、¹³⁴I とエアロゾルの間の相互作用が、他の核種のそれとは異なる特徴を有するからではないかと考えている。各核種について、エアロゾルの化学形による付着率を比較した(Fig. 2)。この結果、エアロゾルの化学形によって、付着挙動に明確な違いは見られなかった。今後、アルカリ金属ハロゲン化物エアロゾルについて系統的な調査を行う一方で、硫酸塩などの他の化学形をもつエアロ

ゾルについても検討を行い、エアロゾルと FP の付着過程における化学的な相互作用に関する知見を得る予定である。

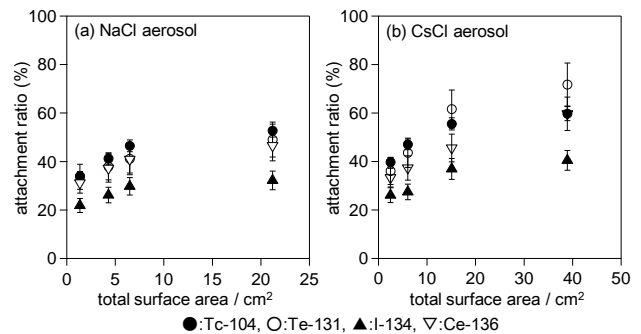


Fig. 1. The attachment ratio of each fission product as a function of the total surface area of the primary solid aerosol particles ((a)sodium chloride, (b)cesium chloride).

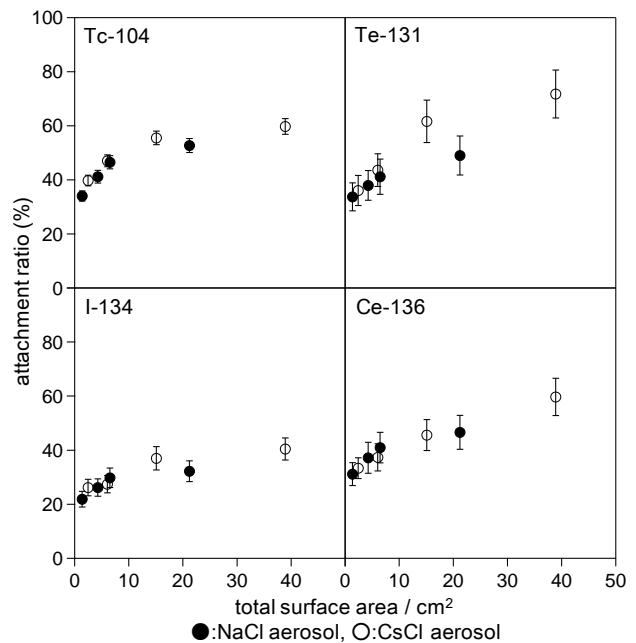


Fig. 2. The attachment ratio of each fission product as a function of the total surface area of the primary solid aerosol particles (● : sodium chloride, ○ : cesium chloride).

[1] N. Kaneyasu, H. Ohashi, F. Suzuki, T. Okuda, F. Ikemori, “Long-term trend of chemical constituents in precipitation in Tokyo metropolitan area, Japan, from 1990 to 2002”, *Environ. Sci. Technol.* **46**(2012) 5720–5726.

[2] Y. Miyamoto, K. Yasuda, M. Magara, “Size distribution of radioactive particles collected at Tokai, Japan 6 days after the nuclear accident.”, *J. Environ. Radioact.* **132**(2014) 1–7.

(P11) 前立腺癌に対する硼素中性子捕捉療法 (BNCT) の制癌効果

(大医大、京大原子炉¹、大府大²)○高原 健、稲元 輝生、南 幸一郎、吉川 勇希、高井 朋聡、平野 一、能見 勇人、木山 賢、鈴木 実¹、切畑光統²、東 治人

1. はじめに：“癌選択的な標的粒子線治療” 硼素中性子捕捉療法 (BNCT) は、癌細胞選択的に取り込まれる硼素 (^{10}B) 化合物を予め投与しておき、熱中性子線を照射することにより、核反応により発生した高エネルギーの α 線と ^7Li 粒子が癌細胞を選択的に破壊する、「正常組織温存+癌細胞選択的破壊治療」である。本治療法の大きな利点は、核反応により発生する α 線も ^7Li 粒子も飛距離 10 ミクロン以下のため、周囲細胞に影響を及ぼさず、硼素を取り込んだ癌細胞のみを選択的に破壊できることである。今回、BNCTの前立腺癌に対する抗腫瘍効果について、前立腺癌マウス皮下移植モデルを用い検討した。

2. 方法：ヌードマウスにアンドロゲン非依存性人前立腺癌細胞 (PC3) を皮下移植後、①無治療群②中性子単独照射群③硼素化合物 (BPA) 単独投与群④ BPA投与+中性子照射群 (BNCT群) に大別し、腫瘍増殖形態と組織学的検討を行った。

3. 結果・考察：BNCT群 (④) における前立腺癌皮下移植腫瘍は、他の 3 群と比較し、著明な発育の遅延を認めた。治療終了時のBNCT群 (④) と無治療群 (①) における免疫組織学的検査の結果では、アポトーシス系の TUNEL 染色では両群に差を認めないが、増殖系のマーカーである Ki67 の BNCT 群 (④) における有意な発現の低下を認めた。近年、中性子源として原子炉を必要としない“加速器BNCT”の開発が急速に進み、この臨床応用とともに従来の中性子源である原子炉を脱却し、病院内BNCTが実現可能となり、実践的な臨床治療として飛躍的に発展することが期待される。今後、前立腺癌に対する次世代の革新的な治療の確立に向けて、BNCT療法の更なる基礎・臨床 study の継続が必須である。

参考文献

- [1] Kawabata S, *et al.* Boron neutron capture therapy for newly diagnosed glioblastoma. *Journal of radiation research.* 2009;50(1):51-60.
- [2] Miyatake S, *et al.* Survival benefit of Boron neutron capture therapy for recurrent malignant gliomas. *Journal of neuro-oncology.* 2009;91(2):199-206.
- [3] Suzuki M, *et al.* Boron neutron capture therapy outcomes for advanced or recurrent head and neck cancer. *Journal of radiation research.* 2014;55(1):146-53.

Figure 1.

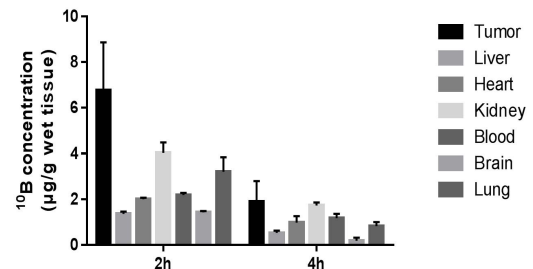


Figure 2.

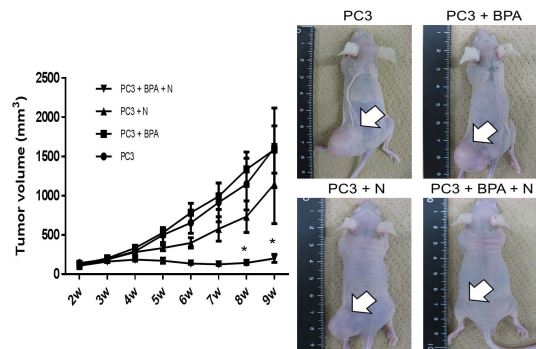


Fig. 1. Time course changes of ^{10}B concentration in 6 tissues. ^{10}B concentration in the heart, blood, brain, liver, kidney, lungs, and tumor of PC3 tumor-bearing mice were measured by ICP-AES instrument at 2 and 4 hour after intraperitoneal injection of 250 mg/kg BPA.

Fig. 2. Tumor volume of mice in four groups 2 to 9 weeks after PC3 injection. Mean tumor volume of mice (Group 1: untreated control, Group 2: BPA, Group 3: neutron, Group 4: BPA-mediated BNCT) from 2 to 9 week were shown. Each point represents the mean tumor volume \pm SEM. * $P < 0.05$ differs from Group 1, 2, and 3 by Student's t test.

The anti-proliferative effect of boron neutron capture therapy in a prostate cancer xenograft model

Kiyoshi Takahara, Teruo Inamoto, Koichiro Minami, Yuki Yoshikawa, Tomoaki Takai, Hajime Hirano, Hayahito Nomi, Kawabata, Satoshi Kiyama, Minoru Suzuki, Mitsunori Kirihaata and Haruhito Azuma

uro037@osaka-med.ac.jp

(P12) ガンマ線照射による天然腐植物質の化学状態変化

(京大工、京大原子炉¹) ○後藤涼平、佐々木隆之、齊藤毅¹、小林大志、藤井俊行¹、上原章寛¹、山名元¹

1. はじめに：高レベル放射性廃棄物 (HLW) 地層処分安全評価において、超長期にわたる地下水中の放射性核種の移行挙動をより正確に見積もることが重要である。地下水中に普遍的に存在する天然腐植有機物 (フミン物質、HS) は、種々の放射性核種、特に高原子価のアクチノイドイオンと静電的相互作用を起こしやすく、その移行挙動に影響 (見かけの溶解度や人工バリア等への収着能の変化) を及ぼすと考えられている。化学構造が不均質な高分子である種々の HS と核種との見かけの錯生成定数は、pH、イオン強度、核種および HS の濃度、HS の官能基特性などによって変化することが長年の研究によって明らかになってきた。しかし、地下水によって廃棄体近傍に運ばれた HS が廃棄体からのガンマ線に晒されれば、分解反応を起こして化学構造が変化し、錯生成能に影響を及ぼす可能性が否定できない。そこで本研究では、2種類の標準 HS (フミン酸およびフルボ酸) を用いてガンマ線を照射し、その化学構造特性を核磁気共鳴 (NMR) 法によって評価するとともに、酸解離定数ならびに官能基特性の照射線量依存性を評価した。

2. 実験：HS には International Humic Substance Society (IHSS) から購入した Eliot soil humic acid (SHA, 1S102H)、および Suwannee river fulvic acid (SFA, 1S101F) を用いた。各 HS の酸解離定数および官能基当量は IHSS によって値付けされている。照射に際し、官能基濃度 10^{-3} eq/L の弱アルカリ性水溶液を調製した。茶褐色の SHA 溶液および淡茶色の SFA 溶液に、京大原子炉実験所の ^{60}Co ガンマ線照射装置を用いて、10、100、500 kGy の各線量を照射した。その後、ガンマ線照射前の SHA 溶液について、JEOL JNM-ECA600 FT NMR spectrometer を用いて NMR 測定を行った。HS のような高分子混合物を測定した場合、 ^1H および ^{13}C 測定のどちらにおいても構造が決まった化学物質と異なりブロードなスペクトルとなる。HS の構造特性の線量依存性について評価するため、得られたスペクトルを HS の一般的な官能基の種類から幾つかの領域 (ppm) に分け、その積分値から測定核種の官能基組成を概算することとした。さらに、照射前後の溶液について、プロトン化滴定を行った。

HS 溶液から 10 ml を分取してポリプロピレン製遠沈管に入れ被滴定液とした。初期 pH は約 3.2 とした。反応セル内から CO_2 を除去するために N_2 ガスを通気し、溶液を 25°C に制御した。被滴定液をマグネティックスターラで攪拌しながら滴定液 0.05 M NaOH-0.05 M NaClO_4 を 0.01 ml ずつ 2 分毎に滴下し、添加量と pH (終点 pH 10.5) を測定した。

3. 結果：Fig. 1 に未照射 SHA 溶液の ^1H NMR 測定のスเปクトルデータを示す。既往研究のスเปクトル [1] の形状とほぼ同様のスเปクトルが得られた。今後、照射後の HS についても NMR 測定を行い、官能基組成を評価する。当日はプロトン化滴定の結果も含めて報告する予定である。

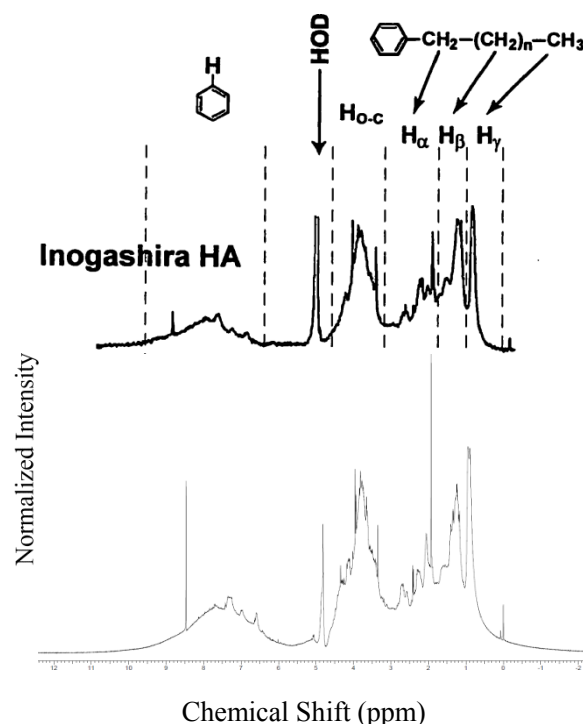


Fig. 1. ^1H NMR spectra of un-irradiated Eliot soil humic acid (1S102H). (600.17MHz, Number of transients:1000) The upper spectrum of Inogashira-HS is obtained from ref [1] for comparison.

参考文献

[1] A.Watanabe, K. Tsutsuki, S. Kuwatsuka, *Sci. Total Environm.*, 81/82 (1989) 195-200.

Influence of gamma-radiation on the chemical property of natural organic matter

Ryohei Goto, Takayuki Sasaki, Takeshi Saito, Taishi Kobayashi, Toshiyuki Fujii, Akihiro Uehara and Hajimu Yamana
goto.ryohei.23w@st.kyoto-u.ac.jp

(P13) カテコール産生における脱炭酸・水酸化付加反応機構の考察 —サリチル酸水酸化酵素の結晶構造解析から—

(京大院理、京大原子炉¹、原子力機構²) ○上村拓也、喜田昭子¹、安達基泰²、黒木良太²、森本幸生¹

1. はじめに：*Pseudomonas Putida* S-1 由来のサリチル酸水酸化酵素(SALH)は、分子量 45kDa、分子内に FAD を 1 つ持つフラビン酵素である。この酵素は NADH と分子状酸素の存在下でサリチル酸の脱炭酸・水酸化を行いカテコールを生成する一原子酵素添加反応を触媒する。しかし類似酵素であるパラ(PHBH)及びメタヒドロキシ安息香酸水酸化酵素(MHBH)では脱炭酸が起こらない。これらの立体構造から、2 種の反応機構の解析や活性部位周辺のアミノ酸残基の解析などが行われているが、その反応過程には不明点が多い。従って本酵素の反応過程を明らかにするためには、放射光及び中性子を用いた基質複合体構造解析が必要となる。本講演では、この目的のための上記株由来 SALH の試料調製と結晶化、放射光による回折実験、及び上述の反応機構を含めた解析について報告を行う。

2. 実験：上記株由来の遺伝子情報から His タグ融合酵素を大腸菌で発現させ、最少培地により培養を行い、SALH の単離・精製を行った。リザーバー溶液として、1.26M ammonium sulfate, 200mM lithium sulfate, 100mM Tris-HCl, pH 8.5 を用いて、タンパク質濃度 10mg/ml、サリチル酸 0.28mM、0.15mM FAD の溶液における微量蒸気拡散法で基質複合体の黄色柱状結晶を得た(図 1)。20%トレハロース添加の抗凍結剤溶液に浸した後、100K でのフラッシュクーリングによって凍結した。放射光は Spring-8 BL44XU ビームラインを使用した。カメラ長 250mm, 波長 0.9 Å, 露出時間 1sec, 210 フレームの回折像を得た。CCP4i/iMosflm による積分化構造因子計算を行い、分解能 2.5 Å までの 26,083 個の独立な反射を得た。空間群は $P6_4$, $a=b=142.3$, $c=62.4$ Å であり、非対称単位に単量体として存在する。

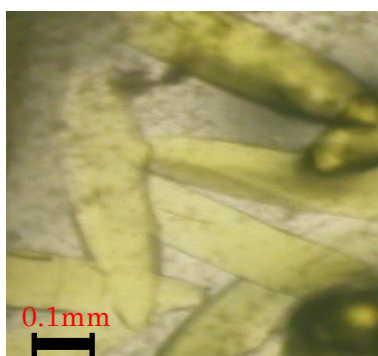


Fig. 1. Yellow crystals of Salicylate hydroxylase with the substrate in a vapor diffusion drop.

3. 結果：重原子同型置換法によるアポ体のモデル分子[1]を用いて、分子置換法により位相決定を行い、下図 2 のように基質複合体の構造を決定することができた。構造精密化により、 R 値は 20.1% ($R_{\text{free}}=26.0\%$) である。なお residue 36-44 及び FAD のアデニン環は電子密度が弱く、構造から除いている。

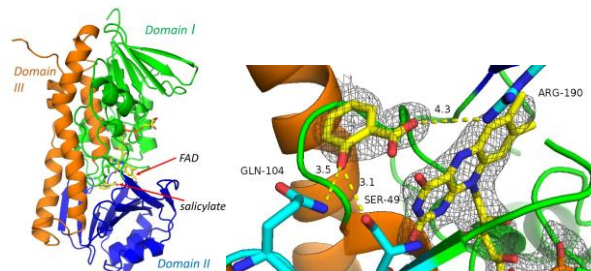


Fig. 2. (left) Whole structure of salicylate hydroxylase. (right) A substrate, a FAD and amino residues related to salicylate catalysis in the enzyme.

4. 考察：決定した構造により、Arg190 の側鎖は基質のカルボキシ基を保持しておらず、これが脱炭酸の原因となると考えた。このことを踏まえ、基質の脱炭酸・水酸化の反応機構を考察した(図 3)。この反応の更なる考察には、水酸化付加部位の同位置換、水素原子の位置を調べるための中性子線回折といった実験が必要であり、現在研究を進めている。

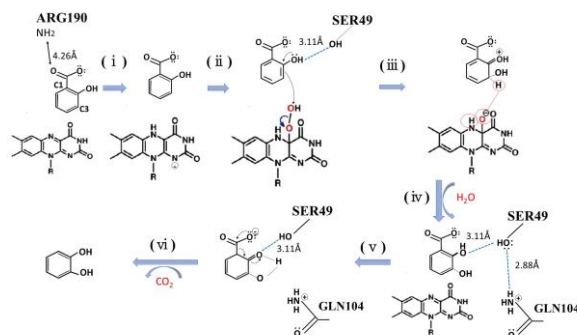


Fig. 3. Reaction scheme of decarboxylative hydroxylation of salicylate.

参考文献

[1] T. Yabuuchi *et al.*, "Crystallization and Preliminary X-Ray Analysis of Salicylate Hydroxylase from *Pseudomonas Putida* S-1", *J. Biochem.* **119** (1996) 829-831.

A study of the decarboxylative hydroxylation reaction for the catalytic catechol production in the salicylate hydroxylase –revealed at 2.5 Å crystal structure analysis–

Takuya Uemura, Akiko Kita, Motoyasu Adachi, Ryota Kuroki and Yukio Morimoto
uemura.takuya.42w@st.kyoto-u.ac.jp

(P14) Th 水酸化物の溶解度および固相状態の温度依存性に関する考察

(京大院工、京大原子炉¹) ○西川将吾、小林大志、佐々木隆之、上原章寛¹、藤井俊行¹

1. はじめに：地層処分安全評価では、地下水により放射性物質が処分施設から人間の生活環境に移行する地下水シナリオが想定されている。このシナリオでは、アクチノイドのような地下水中で 4 価イオンとして存在する核種の溶解度が重要となる。様々な地下水の水質が想定されるため、核種の 25°C における基礎的な熱力学データに基づいた溶解度予測から安全評価が行われている。

一方、ガラス固化体が核種の崩壊熱によって発熱するため、処分後およそ 1000 年近くにわたって緩衝剤内外の温度は 60°C 以上になると想定される[1]。また、火山地域を除く大部分の地域で地温勾配は 3~5°C/100m である[1]。処分環境におけるこのような温度条件は 4 価アクチノイドの溶解度に影響を及ぼし得るが、これまでにその影響を定量的に評価した例は少ない。

そこで、本研究では水溶液中で 4 価イオンが安定なアクチノイドであるトリウム(Th)水酸化物溶解度の温度依存性に着目した。Th 溶解度は固相状態によって変わることが知られており、結晶性酸化物の方がアモルファス水酸化物よりも溶解度が低い[2, 3]。Rai らは 23°C で調製した Th 水酸化物固相を溶液に添加、90°C で振とうし、溶解度及び固相状態を解析した。Th 水酸化物固相はアモルファスから結晶に近い状態へと変化し、それに伴って溶解度が 11 桁以上低下した[2]。しかし、Rai らの実験は 23°C 及び 90°C でしか行われておらず、温度上昇に伴って固相状態および溶解度がどのように変化していくかは詳細には分かっていない。本研究では室温、40°C 及び 60°C における溶解度と固相状態を比較し、両者の関係について考察した。

2. 実験：溶解度実験では、まず硝酸トリウム試薬(Th(NO₃)₄・5H₂O)を溶解し、NaOH 水溶液を添加することによりアモルファス水酸化物沈殿(Th(OH)₄(am))を調製した。次に、Th(OH)₄(am)沈殿を pH とイオン強度(I)を調整した試料溶液に加えた。pH は HClO₄ または NaOH により pH3~10、イオン強度は NaClO₄ により I=0.5 とした。なお、試料溶液の調製は Ar 雰囲気下の室温(25°C)にて行なった。試料溶液を 25°C、40°C 及び 60°C に設定したバイオシェーカーで所定期間、ゆるやかに振とうした。25~60°C の各温度条件において、試料溶液の pH 測定及び上澄み液の限外ろ過(分画分子量 3-100kDa フィルタ)を行ない、ろ液に含まれる Th 濃度を ICP-MS により定量した。

また、固相は試料溶液から遠心分離し常温で乾燥

させた後、X 線回折(XRD)により分析した。

3. 結果・考察：25°C、40°C 及び 60°C においてそれぞれ 62、47 及び 27 日間以上振とうした試料溶液の Th 濃度は変化しなかったことから、それぞれ上述の日数経過時点での濃度が溶解度であると判断した。図 1 に 25°C、40°C 及び 60°C の各温度で振とうした際の溶解度を示す。振とう温度が上昇するにつれて溶解度は低下することが分かった。

また、25°C、40°C 及び 60°C で振とうした試料溶液の固相の XRD スペクトルでは ThO₂(cr)に相当するピークが表れ、そのピークは温度が増加するほど鋭くなった。このことから、温度上昇に伴い Th(OH)₄(am)の結晶化が進行したことが示唆された。

以上の結果より、温度上昇に伴って結晶化が徐々に進行し、溶解度が減少することが分かった。固相結晶化による溶解度の変化をより定量的に評価するため、さらに XRD スペクトルの解析を進めるとともに、溶存種の粒径分布について検討する。

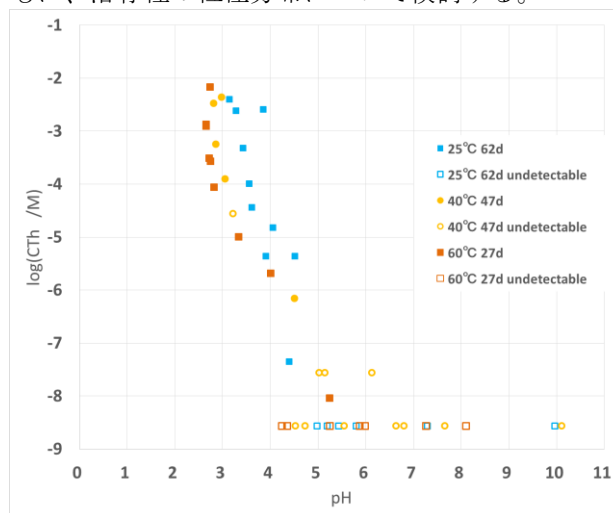


Fig. 1. Solubility of thorium hydroxide at 25°C, 40°C and 60°C. Equilibration periods were 62, 47 and 27 days at 25°C, 40°C and 60°C, respectively. Aliquots of the supernatants were filtrated through 3kDa membranes.

参考文献

- [1] 核燃料サイクル開発機構、“地層処分研究開発第 2 次取りまとめ一分冊 1”、(1999)
- [2] D. Rai *et al.*, *Radiochim. Acta* **88**(2000), 297-306.
- [3] M. Rand *et al.*, *Chemical Thermodynamics of Thorium*, *Chemical Thermodynamics*, Vol. 11, Elsevier, Amsterdam. (2009)

(P15) 中性子反射率法および ATR-IR 法による鉄表面におけるリン酸エステル系添加剤の吸着・反応挙動の解明

(同志社大、京大原子炉¹) ○平山朋子、秋元翔太、岩田祐磨、松岡敬、日野正裕¹

1. はじめに：境界潤滑領域では、他の潤滑形態に比べて摩擦係数が非常に高くなり、最も過酷な潤滑形態となる。そのような過酷な摺動条件においてはさまざまな添加剤が配合された潤滑油が用いられるが、中でも極圧添加剤は、金属表面と化学反応し、硫化物、リン酸塩、塩化物等の表面膜を形成することにより金属間の直接接触を防ぎ、高温での焼き付きの防止、摩擦・摩耗を低減する働きをする。

本研究では、中性子反射率法および ATR-IR 法を用いて 6 種類のリン酸エステルと鉄の時間変化に伴う反応および加熱による反応の変化を調査した。

2. 実験：ベースオイルにはポリ α オレフィン (PAO30) を、また、添加剤には 6 種のリン酸エステルを用いた。その構造式を Fig.1 に示す。

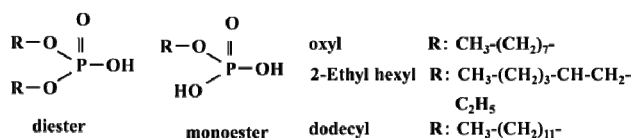


Fig. 1 Chemical structural formula of phosphate esters.

3. 実験結果①—時間経過に伴うピークの変化の測定：分析には FT-IR (ブルカー、VERTEX70) を用い、Fig. 2 に示すようなジグに ATR 結晶を設置した。ATR 結晶には、ゲルマニウムの半球状 ATR 結晶 (ϕ 25mm) に鉄 (Fe) を 3nm 成膜させたものを用いた。成膜には DC スパッタ装置 (サンヨー電子、SVC-700DC II) を使用した。皿型の容器の上に ATR 結晶を載せ、最初は容器が空の状態を試料室内に設置し、その状態でバックグラウンドスペクトルを測定した。次に極圧剤を添加した潤滑油を皿型の容器に入れ、ATR 結晶の鉄表面と潤滑油を接触させた。これを試料室内に設置し、この時点でのスペクトルを測定開始時点 (0h) とした。その後、20 時間後まで 1 時間毎にサンプルスペクトルを測定することでその時間の吸光度を in-situ 状態で測定した。

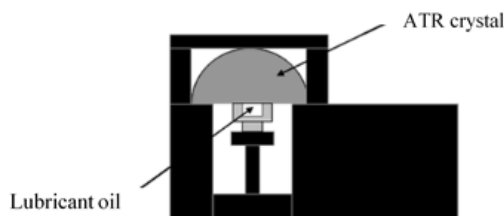


Fig.2 Sample holder in ATR-IR apparatus.

mono のリン酸エステルの結果の代表として mono-C8 (直鎖) の結果を Fig. 3 に示す。1460、1380、720 cm^{-1} 付近に $\delta_{\text{as}}(\text{CH}_3)$ 、 $\delta_{\text{s}}(\text{CH}_3)$ 、 $\gamma(\text{CH}_3)$ の分子振動をそれぞれ検出した。これらのピークは主にベースオイルである PAO によるものである。mono-C8 (直鎖) では、950~1200 cm^{-1} 付近に時間経過に伴い増加するピークを観察した。このピークは、 PO_2 (1323~1093 cm^{-1})、 PO_3 (1242~970 cm^{-1})、 PO_4 (1100~1000 cm^{-1}) の分子振動に該当する。このことから、鉄表面にリン酸エステルが吸着していると考えられる。つまり、mono-C8 (直鎖) のリン酸エステルは鉄表面と接触すると吸着を行い、その吸着量は時間経過に伴い増加する。また、mono-C8 (分鎖) および mono-C12 (直鎖) でも 950~1200 cm^{-1} 付近に時間経過に伴い増加するピークが観察できたが、di 系のリン酸エステルでは、時間が経過しても 950~1200 cm^{-1} 付近のリン酸のピークは見られなかった。

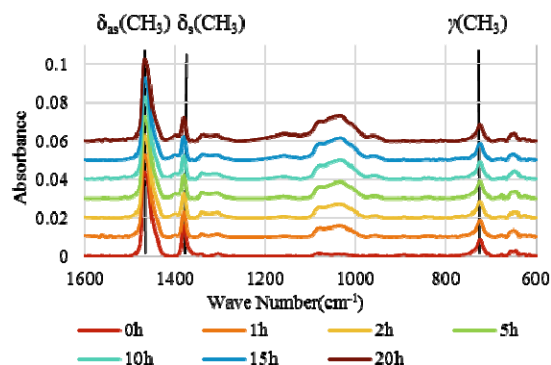


Fig.3 Absorbance of PAO+mono-C8(straight chain).

4. 実験結果②—加熱によるピークの変化の測定試験：バックグラウンドスペクトルの測定後、極圧剤を添加した潤滑油を皿型の容器に入れ、測定を行った。その後装置から取り出し、ATR 結晶および潤滑油をヒーターにて加熱した後、再度測定を行った。

mono のリン酸エステルでは加熱を行うことにより、950~1200 cm^{-1} 付近のリン酸のピークが成長した。これより、リン酸エステルは加熱により金属表面と反応し、熱分解を起こしリン酸鉄の膜を形成したと言える。また、添加剤によって反応温度が異なり、特に、mono-C8 (分鎖) のようなアルキル鎖の分岐や、mono-C12 (直鎖) のような長いアルキル鎖を持つ分子は分子間エネルギーによる凝集がなく、熱分解を起こしやすい構造を持つことを確認した。

また、以上の一連の結果を中性子反射率法によっても確認したところ、温度上昇に伴って鉄表面に被膜が形成されていく様子を捉えることができた。

(P16) 黄砂飛来時における大気エアロゾルの組成元素濃度変化

(大阪府立大、京大原子炉¹) 伊藤憲男、溝畑 朗、飯沼勇人¹、奥村 良¹

日本国内では、主に3月から4月にかけて、中国内の砂漠地帯を発生源とする土壌粒子を主成分とする大気エアロゾル(黄砂粒子)がほぼ毎年観測される。その規模と回数も年により異なるが、2007年に我々は大阪府立大学(大阪府堺市)で大規模な黄砂を観測した(4月1日~2日)。このとき捕集した試料を京大炉を利用して中性子放射化分析を行い、この黄砂飛来時およびこの前後の日を含めて元素濃度の変化を示す。この結果より、どの元素の濃度が大きく変化したも示す。

我々は、毎日連続して大阪府立大学研究棟屋上(地上約5m)で大気エアロゾルを捕集している(25mmφメンブレン)。2007年4/1-2の黄砂飛来時にもエアロゾルの捕集をしていた。このとき捕集した試料を、Table1で示す照射条件でPn-1およびPn-2において中性子の照射を行い、24元素(Na,Al,Cl, K, Ca, Ti,Sc, V, Cr, Mn, Fe, Co, Zn, As,Rb,Sb,Cs,La,Ce,Sm,Eu,W,Th)の黄砂飛来時の濃度変化の結果を得た(Fig.2)。

Table 1 Neutron activity analysis condition at KUR.

Elements for analysis	Irradiation	
	Station	Period
Al, Cl, Ca, Ti, V, Mn	Pn-1	2min in 1MW
K,Sc,Cr,Fe, Co, As, Rb, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Sm,Eu, W, Th	Pn-2	2h in 1MW

Fig.1で見られるように、エアロゾルの質量濃度は、4月1日から100 μm^3 以上の高濃度になり、4月2日には600 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に達して大規模な黄砂飛来であった。同様に、土壌の主要元素であるAlとCaについても大きく濃度を上昇させた(Fig.1)。この濃度上昇の割合を元素ごとに比較するために、黄砂飛来時の前後日(3/31,4/2)の平均濃度と黄砂飛来時の濃度比で比較した。結果をFig.3に示す。

大規模な黄砂飛来であった4月2日については、質量濃度(PM)は黄砂が飛来していない日(3/31と4/3の平均)の17倍となった。この比が17倍以上となった元素は、Al,K,Ti,Sc,Mn,Fe,Co,Rb,Cs,Ba,La,Ce,Sm,Eu,Thとなっており、特にAl,Sc,Sm,Eu,Thが大きな上昇を示した。

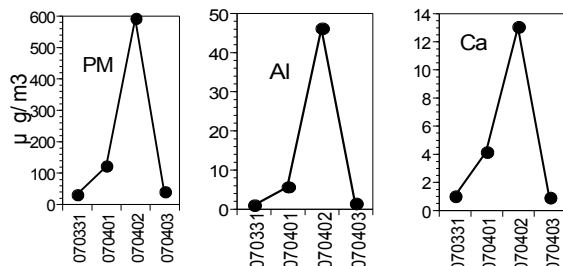


Fig.1 Daily change in PM, Al,Ca on day of Kosa(4/1,2) and non-Kosa day(3/31,4/3)

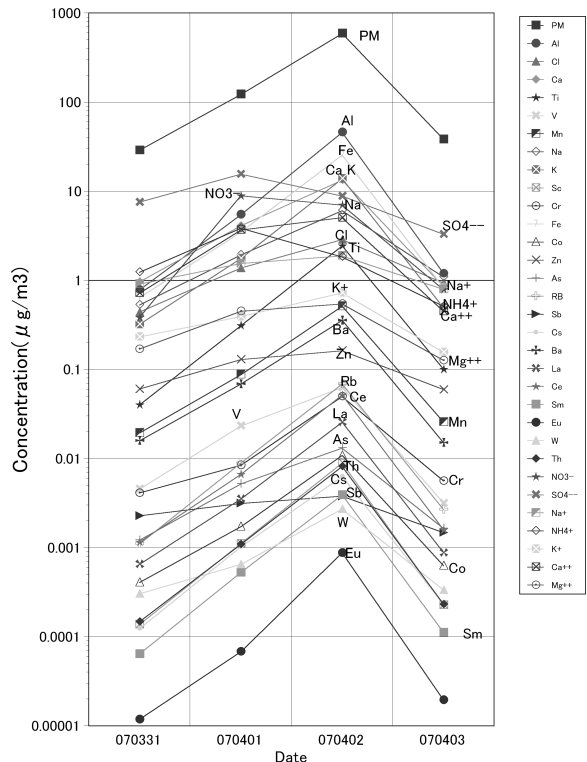


Fig.2 Daily change of Element in aerosol during Kosa event

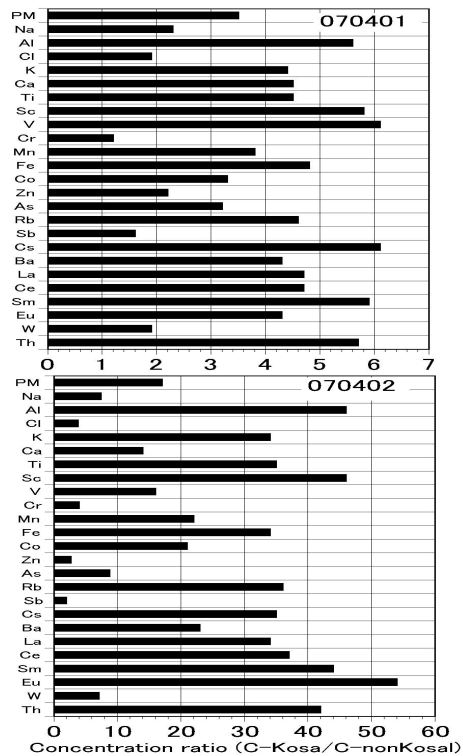


Fig.3 Ratios of concentration between Kosa day (070401 and 070402) and non Kosa day,average by before and after Kosa day.

(P17) 高エネルギー電子線照射したタングステン中の水素同位体捕獲

(富山大水素研、京大原子炉¹、鹿児島大工²、東北大金研³) ○波多野雄治、網 恭平、徐 虬¹、佐藤紘一²、外山 健³

1. はじめに：将来のエネルギー源として期待される核融合炉の真空容器中のトリチウム (T) 滞留量を制御することは、万一に事故時の T 漏えいを防ぐために極めて重要である。プラズマ中の粒子密度は固体と比べると希薄であるため、真空容器中の T 滞留量は壁材料中の蓄積量に支配される。壁材料候補材であるタングステン (W) が中性子照射を受けると照射欠陥による捕獲効果で水素同位体蓄積量が著しく増大することがわかってはいるものの[1]、核融合炉中での T 蓄積量を予測できるほど水素同位体捕獲に関する基礎データ (照射欠陥一つ当たり捕獲される水素同位体原子数、結合エネルギーなど) は整備されていない。そこで本研究では、電子線照射により単空孔を導入した W 試料を真空中および重水素 (D₂) ガス雰囲気中で加熱し、陽電子寿命の変化を測定することで、空孔型欠陥と D 原子の相互作用を調べた。

2. 実験：試料には直径 6 mm、厚さ 0.2 mm の W ディスクを用いた。表面を機械的に研磨し鏡面状に仕上げたのち、真空中で 1300°C にて 30 分間焼鈍した。この試料をアルミ箔でくるんだ上で冷却水中に浸し、京都大学原子炉実験所の L バンド電子線型加速器にて 8.5 MeV の電子線パルスビームを 62.5 時間照射した。パルス幅は 4 μs、ピーク電流値は 340 mA、パルス頻度は毎秒 80 パルスとした。8.5 MeV の電子線の W 中の飛程は約 2 mm であり、試料の厚さ方向にわたって均一にフレンケル対が形成されたはずである。電子ビームのフルエンスとはじき出し断面積[2]より、損傷量は 10⁻³ dpa と見積もられた。照射中は冷却水温度 (すなわち試料温度) が電子ビームによる加熱効果で約 100°C に上昇した。照射後の試料表面には、冷却水との反応により黒色の酸化膜が形成されていた。そこで、1 mol/L の NaOH 水溶液中で電解研磨し、酸化膜を除去した。

電解研磨後の試料を真空中あるいは 0.1 MPa の D₂ ガス中で 300°C に 100 時間加熱した。そののち、²²Na 線源を用いた陽電子寿命測定を、東北大学金属材料研究所附属量子エネルギー材料科学国際研究センターにおいて実施した。

3. 結果：表 1 に陽電子寿命測定の結果を示す。電子線照射前の陽電子寿命は W マトリックスでの消滅に相当する。電子線照射により空孔が導入されたことで、明確な陽電子寿命の増大が観察された。真空中で 300°C に加熱することで陽電子寿命はさらに

増大した。この時の陽電子寿命スペクトルは 2 成分で解析でき、長寿命成分が 341.8 ps に達していることがわかった。これは、およそ 10 個の空孔が集積したクラスターでの寿命に相当する[3]。D₂ ガス中で加熱した場合の長寿命成分の値は 278.9 ps であり、真空加熱の場合と比べ明らかに短かった。このような寿命の違いには、以下の二つの機構が考えられる。

(1) D が空孔クラスター内に捕獲されることで、クラスター内の空間が減少した。

(2) 空孔が D を捕獲することでその拡散係数が減少し、クラスターの成長が抑制された。

空孔クラスター内に水素原子が捕獲されることによる寿命変化は、量子力学計算により捕獲水素原子数の関数として評価が可能である[3]。すなわち、

(1) が支配的である場合には、量子力学計算の結果とつぎ合わせることで、本手法により捕獲水素原子数を空孔クラスターの大きさの関数として求めることができる。(2) の効果が支配的な場合には、核融合炉環境下での照射損傷組織の発達に水素同位体が大きな影響を及ぼすということになる。今後、クラスターをより大きく成長させた試料の透過電子顕微鏡観察を行うことで、(1) と (2) の効果の切り分けを試みる。

表 1 陽電子寿命測定の結果

処理	成分数	陽電子寿命(ps)	割合(%)
照射前	1	118.1	-
照射後	1	169.7	-
真空中 加熱後	2	平均 231.0	-
		短寿命 129.7	52.2
		長寿命 341.8	47.8
D ₂ ガス中 加熱後	2	平均 193.7	-
		短寿命 133.7	58.7
		長寿命 278.9	41.3

参考文献

- [1] Y. Hatano et al., “Deuterium trapping at defects created with neutron and ion irradiations in tungsten”, Nucl. Fusion, **53** (2013) 073006.
- [2] O. S. Oen, “Cross sections for atomic displacements in solids by fast electrons”, ORNL-3813, Oak Ridge National Laboratory, TN, USA, 1965.
- [3] T. Troev et al., “Positron simulations of defects in tungsten containing hydrogen and helium”, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B. **267** (2009) 535–541.

(P18) D/H コントラスト法と中性子結晶解析

(京大原子炉、原子力機構¹) ○茶竹 俊行、藤原 悟¹

1. はじめに：結晶回折による構造決定において、中性子線が X 線に比べて勝っている点は、水素原子に対する散乱能である。生体分子を構成する原子のおよそ半数は水素原子であり、この一点をもって、中性子結晶回折は他の弱点を補って有り余る構造解析法の地位を確立している。しかしながら、これまでの中性子結晶解析は、線源の問題により大きな制約を受けてきた。幸いなことに、この問題は大型加速器を利用した中性子源の建設により解決されつつある。

中性子解析が一般的な手法として確立されようとしている今、我々は過去に試みられつつも一般的に普及に至らなかった中性子実験法に挑戦する。D/H コントラスト法は、中性子線の水素原子(H 原子)と重水素原子(D 原子)に対する散乱能の違いを利用した散乱実験法であり、中性子小角散乱法において最も重要な方法である。この方法を結晶回折実験に応用して、中性子結晶解析の検知能と精度を飛躍的に向上させることを提案する[1]。

D/H コントラスト法の中性子結晶解析への応用は、四半世紀前に Kossiakoff らにより最初の実験が報告されたが、続報は出ていない[2]。この原因は二つある。一つは線源の問題により実験時間が非常に長かったこと。そして、もう一つは Kossiakoff らの解析アルゴリズムが煩雑であり、追従者が生まれなかったためである。前者は大強度加速器の普及により解決されつつある。今回、我々は、簡便かつ汎用性高い解析アルゴリズムにより後者の問題を解決して、D/H コントラスト解析法の実用化を試みた。

2. 実験：実験試料として bovine pancreatic ribonuclease A(RNase A)を SIGMA Aldrich から購入した。結晶化は Berisio らにより報告された界面拡散法を用いて行なった[3]。H₂O 溶媒中から大型結晶を得ることに成功した(以下 H₂O 結晶)。D₂O 溶媒の結晶は H₂O 結晶を入れたキャピラリーを D₂O 溶媒に差し込み、3 ヶ月の蒸気置換により作成した[4]。D₂O 結晶と H₂O 結晶の中性子回折実験は実験原子炉 JRR-3M の BIX-3 回折計(JAEA, 東海村)[5]を用いて行なった。両結晶とも 1 週間の測定で 1.8 Å 分解能の回折強度データの収集を回収率 70%前後で得ることができた。

D/H コントラストの計算は図 1 に示すように、実空間で差分を計算する方法を採用した。この方法を用いると、Kossiakoff らが行なった逆空間での差分計算と比べて、両結晶データ間のスケール計算とフーリエ変換における位相の導出が容易になる。

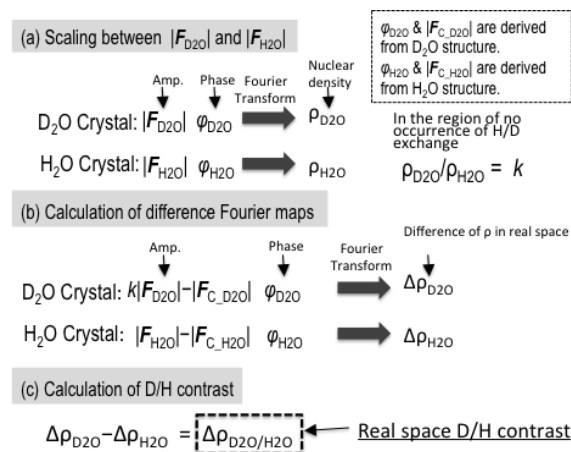


Fig. 1. The outline of real space D/H contrast

3. 結果：図 2 に得られた D/H コントラストマップを示す。D₂O 結晶と H₂O 結晶の間で D/H 交換した箇所のみ明確なピークが観測され、非水素原子や D/H 交換しなかった水素原子については強いピークは観測されなかった。この結果から、D/H コントラストの計算に成功したと結論できる。今後、本法を用いて、蛋白質のプロトネーションおよび水和の詳細な解析を進めていく。

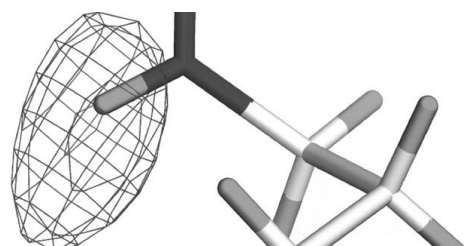


Fig. 2. Typical Example of D/H contrast map

参考文献

- [1] T. Chatake & S. Fujiwara, in submitting.
- [2] A.A. Kossiakoff *et al.*, "Analysis of Solvent Structure in Proteins Using Neutron D₂O-H₂O Solvent Maps: Pattern of Primary and Secondary Hydration of Trypsin", *Proteins* **12** (1992) 223-236.
- [3] R. Berisio *et al.*, "Atomic resolution structures of ribonuclease A at six pH values", *Acta Cryst.* **D58** (2002) 441-450.
- [4] T. Chatake, S. Fujiwara, Y. Morimoto, "Crystallization of ribonuclease A and H/D exchange for neutron diffraction experiment", *KURRI Progress Report* **2009**, (2010) 164.
- [5] I. Tanaka *et al.*, "A high-performance neutron diffractometer for biological crystallography (BIX-3)", *J. Appl. Cryst.* **35** (2002) 34-40.

(P19) 鉄クロム合金の相分離に与える電子線照射の影響

(福井大原子力研、鹿児島大院工¹、京大原子炉²) ○鬼塚貴志、佐藤紘一¹、徐 虬²、福元 謙一

1. はじめに：鉄クロム系合金は高温強度・低熱膨張性に優れることなどから高速炉構造材料の有力な候補材である[1]。また軽水炉原子炉压力容器鋼のオーバーレイクラッド材等様々な照射環境下で利用されている。この鉄クロム系合金は、クロム含有量が約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母相が α (Fe-rich) 相と α' (Cr-rich) 相に相分離することで延性や靱性が著しく低下する熱時効脆化事象が従来から知られている[2]。しかしながら、照射損傷と熱時効の重畳効果についてはまだ十分に明らかではない。そこで本研究では鉄クロム二元系合金に熱時効による相分離が起きにくい100℃で電子線照射を行い、照射影響の寄与が明確に示せる条件で照射試験を行なうことで照射が相分離に与える影響について基礎的知見を得ることを目的とした。

2. 実験：素材合金として純度99.99%の純Feおよび純Crを用い、高純度アルゴン雰囲気中にてアーク溶解法によりFe-40Cr合金インゴットを作成し、溶体化処理(1077℃×2時間の後、水冷)を施したものを試料とした。電子線照射試験には京都大学原子炉実験所の電子線型加速器(KURRI-LINAC)を用い、加速電圧8MeV、照射温度100℃の条件で 3.0×10^{17} - 2.0×10^{18} e/cm² (0- 0.3×10^{-3} dpa)の範囲で照射を行なった。照射後試験として、陽電子消滅法(陽電子寿命測定法および陽電子消滅同時計数ドップラーブロードニング(CDB)測定法)を用いて相分離に伴う結晶構造変化の評価を行なった。

3. 結果：図1に、照射前後の試料の陽電子寿命測定結果を示す。照射後の長寿命成分(τ_2)が単一原子空孔程度の寿命を示していることから、照射により原子空孔が導入されていることが分かる。図2に、CDB測定法から得られた電子線照射試料および溶体化処理材、純Feおよび純CrのSパラメータとWパラメータの相関図を示す。一般にSパラメータの増加は空孔型欠陥の増加に、Wパラメータの増加はFeの内殻電子との対消滅割合の増加に対応するが、 0.04×10^{-3} dpa から 0.2×10^{-3} dpa の間で、照射量が増加しているにもかかわらずSパラメータが減少し、Wパラメータが増加している。陽電子親和性捕獲[3]の原理により、この特徴的な挙動は、母相の相分離に伴い形成されたFe-rich相で陽電子が対消滅する割合の増加を捉えた結果と考えられる。これにより、陽電子消滅法を用いることで 0.1×10^{-3} dpa という極めて低い照射量領域で照射による相分離促進の初期過程に伴う結晶構造の変化を捉えることができたことが示

された。 Fe-40Cr electron irradiated at 100℃

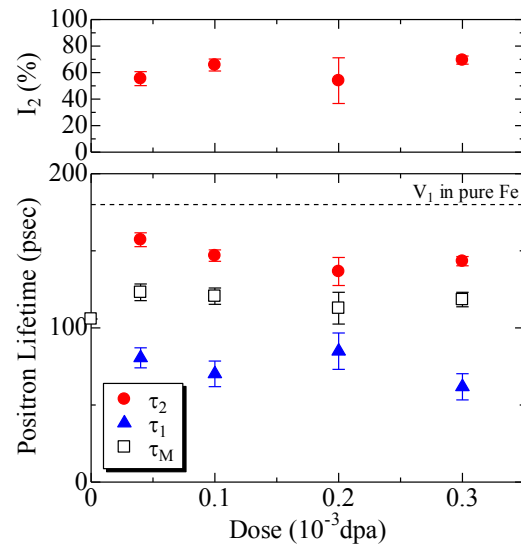


Fig. 1. Changes of positron lifetime parameters with dose of electron irradiation of Fe-40Cr alloy.

Fe-40Cr electron irradiated at 100℃

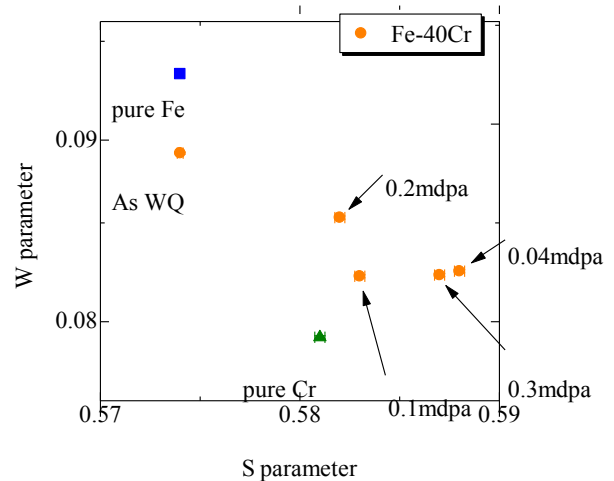


Fig. 2. Changess of S and W parameters with dose of electron irradiation of Fe-40Cr alloy in comparison with unirradiated pure Fe, pure Cr and Fe-40Cr alloy (As WQ).

参考文献

- [1] R.L. Klueh *et al.*, *J. Nucl. Mater.*, **371** (1995) 37-52
- [2] M.B. Cortie *et al.*, *Mater. Sci. Eng., A* **199** (1995) 153-163.
- [3] M. J. Puska *et al.*, *J. Phys.: Condens. Matter*, **1** (1989) 6081-6094.

(P20) γ 線照射によるグラフェン-Pt ナノコンポジットの合成

(大阪府大工、東北大金研¹、京大原子炉²) ○東海旭宏、仲西穂高、田中元彬、水越克彰¹、興津健二、阪本雅昭²、堀史説

1. はじめに: グラフェンは炭素原子の sp^2 結合からなる二次元のナノ炭素材料であり、電気伝導性、熱伝導性、機械的特性などに非常に優れている。また二次元構造であるため比表面積が非常に大きく、ナノ粒子の担体として理想的である。グラフェンに触媒活性の高い Pt ナノ粒子を担持することで触媒活性の向上が期待でき、これまでにグラフェン-Pt ナノコンポジットが高い触媒作用をもつことが報告されている[1-3]。しかしグラフェンの表面は化学的に不活性で表面エネルギーが小さいため、一般にナノ粒子の担持が困難であると考えられている。そこでグラフェンの表面を改質してナノ粒子の吸着サイトを導入する必要がある。本研究では γ 線照射によりグラフェンおよびグラフェンオキシド (GO) の表面改質と Pt ナノ粒子の合成を一つの反応容器で同時に行い、グラフェン-Pt ナノコンポジットのワンポット合成を試みた。

2. 実験: グラフェン粉末あるいは GO 粉末を 1 mg/mL となるように秤量し、そこにヘキサクロロ白金(IV)酸六水和物 ($H_2PtCl_6 \cdot 6H_2O$) および 2-プロパノールを加え、超純水で所定濃度になるように調製した。調製した溶液をアルゴンガスで置換した後、京大原子炉コバルト 60 γ 線照射施設にて線量率 13.6 kGy/h で 45 分間 γ 線照射を行った。照射後の溶液を遠心分離機を用いて超純水で洗浄し、凍結乾燥させた後、TEM や FT-IR などで評価した。なお、グラフェンあるいは GO から合成したナノコンポジットをそれぞれ graphene-Pt あるいは GO-Pt と表記する。

3. 結果: Fig.1 (a) に graphene-Pt の TEM 像を示す。グラフェンシートの表面に Pt ナノ粒子が担持されていることが確認でき、Pt ナノ粒子の平均粒径は 4.3 ± 1.3 nm であった。このナノコンポジットを FT-IR を用いてキャラクターゼーションした (Fig.2b) と、未処理のグラフェンでは 1570 cm^{-1} にグラフェンの骨格振動による吸収ピークのみが観察されたが、新たに 1700 cm^{-1} 付近にカルボニル基 (C=O) の吸収ピークが観察された。さらに添加剤を含まないグラフェン水溶液に同様の条件で γ 線照射した場合も C=O の吸収ピークが観察された。したがって γ 線照射により生成した OH ラジカルによってグラフェンが酸化されたと考えられる。グラフェンの表面に C=O が導入された結果、Pt ナノ粒子 (あるいは Pt イオン) との静電的相互作用が起これ、Pt ナノ粒子が担持されたと考えられる。Fig.1 (b) は GO-Pt の TEM 像を示しており、Pt ナノ粒子の平均粒径は 4.5

± 2.0 nm であった。このナノコンポジットを FT-IR によりキャラクターゼーションした (Fig.2e) と、未処理の GO で 1055 cm^{-1} にみられた C-O の吸収ピークが消失していた。この結果から、 γ 線照射によって GO の一部が還元されたと考えられる。GO を前駆体とした場合、GO の含酸素官能基に Pt イオンが吸着すると考えられる。そこに γ 線を照射すると、生成した還元性ラジカルにより Pt イオンが GO の表面で還元されて Pt ナノ粒子となり、同時に GO も還元されてナノコンポジットが生成したと考えられる。

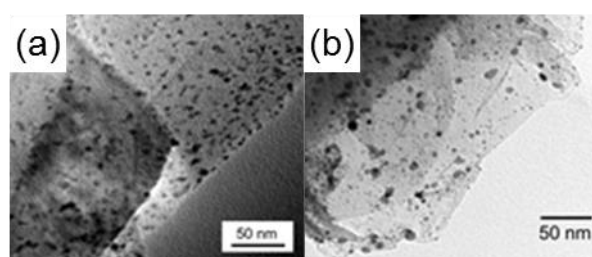


Fig.1 TEM images of graphene-Pt (a) and GO-Pt (b)

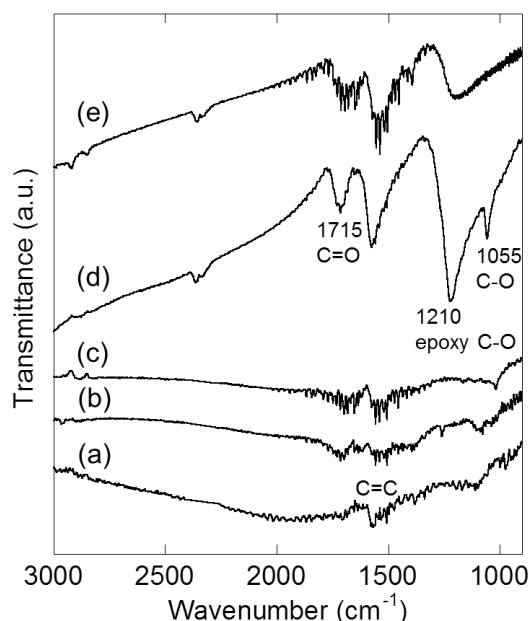


Fig.2 FT-IR spectra of raw graphene (a), graphene-Pt (b), graphene without organic additive after γ -ray irradiation (c), raw GO (d) and GO-Pt (e)

参考文献

- [1] E. Yoo et al., Nano Lett., 9 (2009) 2255-2259
- [2] Y. Xin et al., J. Power Sources, 196 (2011) 1012-1018
- [3] H. Ha et al., Electrochem Solid State Lett., 14 (2011) B70-B73

Synthesis of graphene-Pt nanocomposites by using γ -ray irradiation

Akihiro Tokai, Hodaka Nakanishi, Motoaki Tanaka, Yoshiteru Mizukoshi, Kenji Okitsu, Masaaki Sakamoto and Fuminobu Hori
sv110037@edu.osakafu-u.ac.jp

(P21) FeAl 金属間化合物への電子線照射による欠陥生成のエネルギー依存性

(大阪府大工、九大応力研¹、京大原子炉²、鹿児島大工³) ○上野陽平、石山大志、小林一基、谷真海、大澤一人¹、岩瀬彰宏、徐 虬²、佐藤 紘一³、堀史説

1. はじめに：金属間化合物は特有の原子比と規則構造を持つ化合物合金であり、高温高強度、高耐食性を示すため新たな材料として研究が行われている。一方、含まれる欠陥は複雑で原子の種類によって異なる欠陥構造を形成し、その電子状態も異なる。特に空孔型の欠陥については電子線照射エネルギーを変化させることで、生成する欠陥種が変わることが報告されている[1,2]。そのため本実験では B2 型構造をもつ FeAl 金属間化合物へ異なるエネルギーの電子線照射を行い、生成する欠陥の変化を調べた。構造の制御を最終的な目的とし、そのための基礎的知見を得るための実験を行った。

2. 実験：アーク溶解法により作成した Fe50at.%Al を切り出した後、熱処理を行い試料を得た。また、京都大学原子炉実験所 LINAC にて 9 MeV での電子線照射、日本原子力開発機構高崎量子応用研究所の電子加速器にて 2 MeV 電子線照射をそれぞれ行った。これらの試料に対して、X 線回折、陽電子寿命測定および同時係数ドップラー広がり測定を行った。

3. 結果：表 1 に照射前後での陽電子寿命値を示す。図 1 に照射前後でのドップラースペクトルの比率曲線を示す。未照射試料の寿命値が高い値を示していることから、照射前の段階で既に空孔型欠陥を含んでいることがわかる。これはこの合金では空孔型欠陥が生成しやすく焼鈍によっても排除しにくいことを示している[3]。異なるエネルギーの電子線照射によって陽電子寿命値およびドップラースペクトルに変化現れており、導入された欠陥種が異なっていることがわかる。変化の傾向から、2 MeV 電子線照射では Fe 空孔、9 MeV 電子線照射では Al 空孔の割合が増加したと考えられる。以上の結果より、MeV オーダーのエネルギーの照射により化合物合金内に導入

Table 1. Positron lifetimes of before and electron irradiated Fe50Al alloys.

電子線エネルギー [MeV]	照射量 [e ⁻ /cm ²]	陽電子寿命 [ps]
-	-	186
9	5×10 ¹⁷	174
	3×10 ¹⁸	172
2	1×10 ¹⁷	188
	1×10 ¹⁸	200

される欠陥を制御できる可能性を見出した。

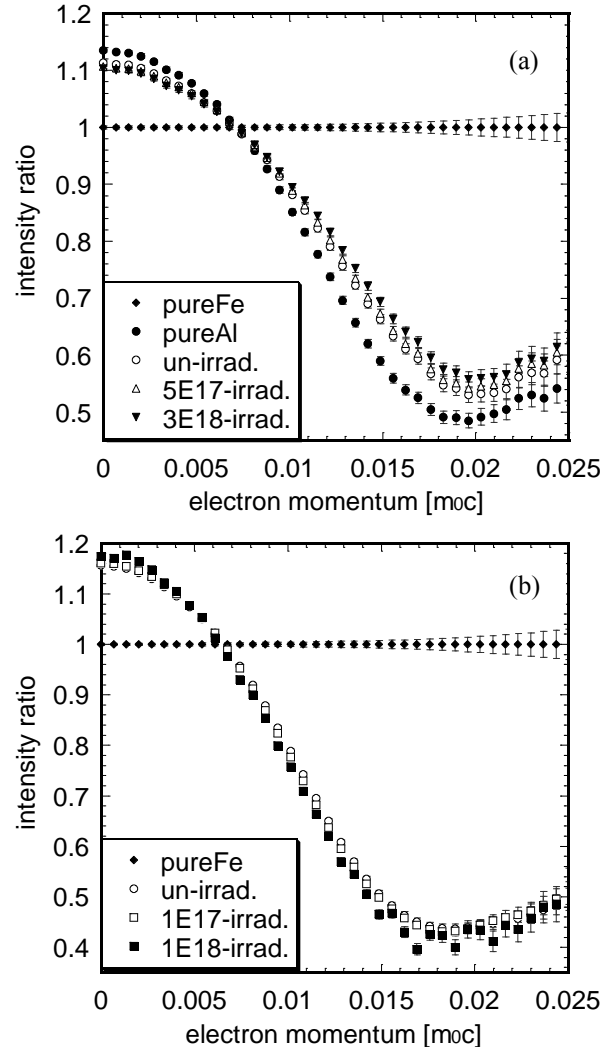


Fig. 1. Doppler broadening ratio spectra of electron irradiated samples to the intensity of pure Fe. (a) 9 MeV electron irradiation. (b) 2 MeV electron irradiation.

参考文献

- [1] S. Kosugi et al., J. Nucl. Materials 411 (2011) 171–173
- [2] G. Sattonnay et al., J. Nucl. Materials 275 (1999) 63–73
- [3] N. de Diego et al., Acta Materialia 53 (2005) 163–172

(P22) 超イオン伝導体 Na_3PS_4 ガラスおよびガラスセラミックスの構造

(京大原子炉、KEK¹) ○小野寺 陽平、森 一広、大友 季哉¹、福永 俊晴

1. はじめに：ポストリチウムイオン二次電池の有力な候補としてナトリウム全固体電池が注目されている。全固体電池のキーマテリアルである固体電解質材料としては、メカニカルアロイング(MA)法をベースとして作製された $(\text{Na}_2\text{S})_x(\text{P}_2\text{S}_5)_{100-x}$ 系が高いイオン伝導性を示すことが報告されており、基礎・応用の両面で活発に研究が行われている[1]。本研究では、MA法によって作製した Na_3PS_4 ガラス、そしてガラスの熱処理によって得られた Na_3PS_4 ガラスセラミックスについて、中性子とX線を相補的に利用した構造解析を行い、構造とイオン伝導性との関係を明らかにすることを目的とした。

2. 実験：高純度の赤リン (Mitsuwa Chem. Ind., 99.9999%) と硫黄 (Koujundo Chem. Lab., 99.99%) の粉末試料を 2:5 のモル比で混合し、MA処理を行うことによって非晶質の P_2S_5 を作製した。得られた P_2S_5 に Na_2S 粉末(Aldrich, 99.9%)を所定のモル比で加え、さらなるMA処理を行うことで Na_3PS_4 ガラスを作製した。さらに、MA処理によって得られた Na_3PS_4 ガラスを 250°C で2時間熱処理することによって、 Na_3PS_4 ガラスセラミックスを作製した。得られた試料について、大強度陽子加速器施設J-PARCの物質生命科学実験施設MLFに設置されているNOVA分光器(BL-21)を用いてパルス中性子回折実験を行い[2]、SPring-8のBL04B2ビームラインに設置されている非晶質物質用2軸回折計を用いて放射光X線回折実験を行った[3]。さらに、中性子およびX線回折データを併用した逆モンテカルロ(Reverse Monte Carlo; RMC)モデリング[4,5]によって、 Na_3PS_4 ガラスおよび Na_3PS_4 ガラスセラミックスの3次元構造モデルを構築した。

3. 結果：図1にパルス中性子回折および放射光X線回折実験によって得られた Na_3PS_4 ガラスの構造因子 $S(Q)$ 、およびRMCモデリングによって構築されたガラスの3次元構造モデルから計算された $S(Q)$ を示す。RMCモデリングによって得られた $S(Q)$ は、中性子およびX線の実験値を良く再現している。さらに、図2に可視化した Na_3PS_4 ガラスの3次元構造モデルを示す。講演では、 Na_3PS_4 ガラスおよびガラスセラミックスについて、RMCモデリングによって得られた3次元構造モデルを詳細に解析した結果を報告し、構造とイオン伝導性との関連を議論する。

参考文献

- [1] A. Hayashi *et al.*, *Nature commun.*, **3** (2012) 856.
- [2] T. Otomo *et al.*, *KENS Report*, **17** (2009-2010) 28.
- [3] S. Kohara *et al.*, *Nucl. Instrum. And Methods A* **467** (2001) 1030.
- [4] R. L. McGreevy *et al.*, *Mol. Simul.* **1** (1988) 359.
- [5] E. Evard *et al.*, *J. Phys. Cond. Matter.* **17** (2005) S1.

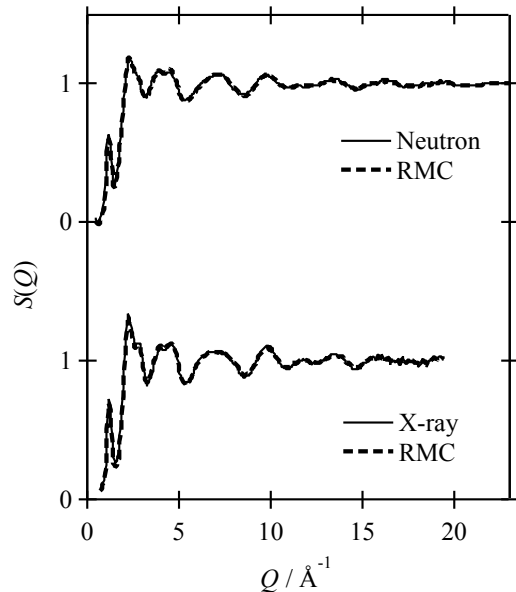


Fig. 1. Neutron and X-ray structure factors, $S(Q)$, of Na_3PS_4 glass.

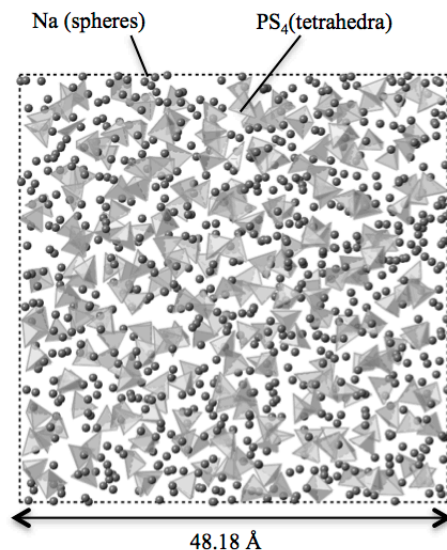


Fig. 2. Visualization of three-dimensional structure of Na_3PS_4 glass in 25 Å sliced of RMC cell.

(P23) 軽水炉用ロッドバンドル内低流速気液二相流の流動特性研究

(京大原子炉、米国パーデュー大¹) ○沈秀中、日引俊¹

1. はじめに：軽水型原子炉（LWR）設計や安全性評価のための熱流動解析手法高度化が、LWRの安全性の向上と事故発生リスクの低減の観点から重要である。特に、沸騰型原子炉（BWR）と事故時の加圧水型原子炉（PWR）においては、ロッドバンドル燃料集合体内の冷却水が沸騰し、気液二相流の状態が存在するため、単相の場合と比べて複雑な挙動を示す。これらの冷却水の気液二相流の挙動を正確に把握することが、熱流動解析手法高度化のための必須事項である。本研究では、ロッドバンドル内低流速気液二相流の挙動解明に必要な実験研究と解析研究を実施した。

2. 実験：軽水炉燃料集合体内流動を模擬した空気-水気液二相流実験装置の概略を図1に示す。循環ポンプからの水及び圧縮機からの空気は各々フローメータで流量計測を行った後、気水混合部に入る。気水混合部で形成した気液二相流は、垂直試験部に沿って上昇し、気水分離器で二相に分離する。試験部は、直径10mm長さ3.8mのステンレスロッドをピッチ16.7mmにて正方格子状に配置した6×6ロッドバンドルと内部辺長10cmの正方形断面のチャンネルボックスから構成される。水力等価直径 D_H は18.7mmである。スペーサーは高さ $z/D_H=0, 53.4, 106.9, 160.4$ の4箇所に設置する。全試験部に対して6箇所の差圧計測（DP1~6）を行う。

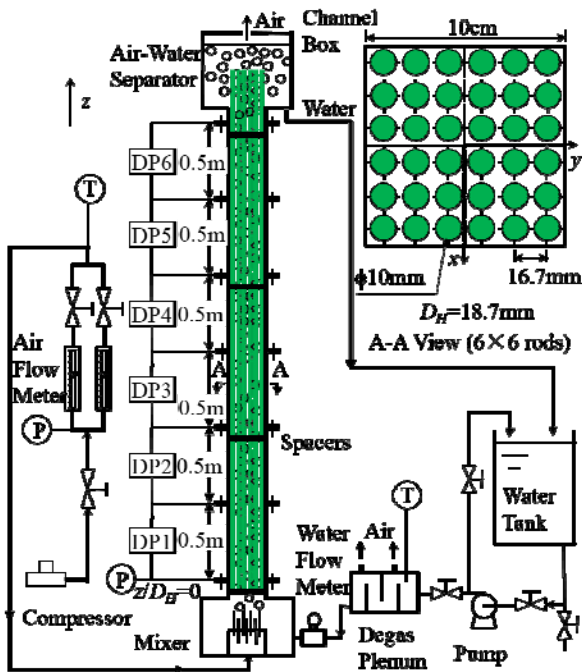


Fig. 1. Schematic of experimental apparatus.

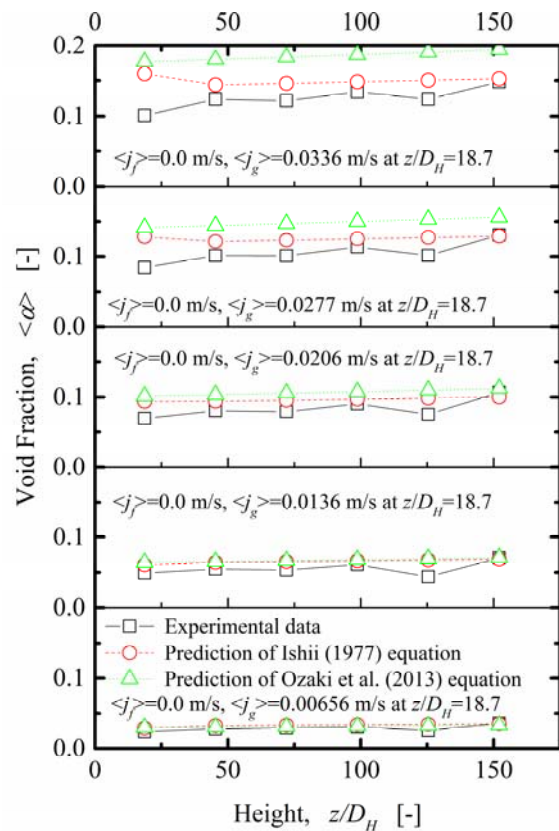


Fig. 2. Measured and predicted void fractions at superficial liquid velocity, $\langle j_l \rangle = 0.0$ m/s.

3. 結果：本実験は、液相見かけ速度 $\langle j_l \rangle = 0 \sim 1.56$ m/sと気相見かけ速度 $\langle j_g \rangle = 0.00614 \sim 0.0382$ m/sの範囲で、差圧データを測定し、断面平均ボイド率を算出した。図2に代表的なボイド率の実験データの軸方向(z/D_H)分布と $\langle j_g \rangle$ に依存する変化を示す。ボイド率は、 z/D_H と $\langle j_g \rangle$ の増加に伴って増加している。Ishii(1977)の気泡流の分布パラメータ C_0 とドリフト速度 V_{gj} の相関式及びOzakiら(2013)のロッドバンドル用 C_0 と V_{gj} の相関式を利用したドリフト・フラックスモデルの予測ボイド率を図2に併せて示す。低ボイド率において、既存のドリフト・フラックスモデルの相関式は、本実験のデータをよく予測できるが、ボイド率が高くなるとそれらの相関式の予測誤差は次第に大きくなるのが分かる。

参考文献

- [1] M. Ishii, ANL-77-47, USA (1977).
 [2] T. Ozaki *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol., **50** (2013), 563-580.

(P24) 極低温における超伝導線安定化材の繰り返し中性子照射試験

(高エネ研、岡山大¹、阪大理²、鹿児島大³、京大原子炉⁴) ○吉田 誠、中本 建志、荻津 透、菅野 未知央、佐々木 憲一、飯尾 雅実、三原 智、吉村 浩司¹、板橋 隆久²、久野 良孝²、佐藤 朗²、青木 正治²、佐藤 紘一³、栗山 靖敏⁴、宮田 清美⁴、森 義治⁴、徐 虬⁴、義家 敏正⁴

1. はじめに：近年の加速器の大強度化、高エネルギー化に伴い、加速器や実験装置に用いる超伝導磁石も非常に高い放射線環境下で運転されることが要求されている。CERN 研究所 LHC 加速器のアップグレード計画[1]や、J-PARC で建設中の COMET 実験[2]では 10^{21} n/m² を超える中性子に超伝導磁石がさらされると予想されており、超伝導磁石を構成する材料の劣化が磁石の安定性、寿命に影響する。本研究は、原子炉駆動用加速器等を超伝導磁石を使って大強度化するためにも重要な知見を与える。超伝導線材の安定化材である銅やアルミは良好な電気伝導度と熱伝導度を持つことが要求されるので、本研究では、安定化材に極低温で中性子を照射し、電気抵抗の劣化を測定した。2011 年から 2014 年に渡って照射と室温アニールを繰り返した結果を報告する。

2. 実験：京都大学原子炉実験所の研究炉 (KUR) を用い、E-4 水平照射孔に設置された低温照射施設 (LTL) [3]にて極低温に冷却されたサンプルに中性子を照射した。熱出力 1 MW で原子炉を運転したときの高速中性子束は 1.4×10^{15} n/m²/sec である。

2011 年度～2014 年度にかけて、イットリウムを添加した高強度アルミ安定化材 (Al-Y)、Ni を添加したアルミ安定化材 (Al-Ni)、および無酸素銅 (OFC) に繰り返し中性子照射した。照射中および室温アニール後冷却したときの電気抵抗を、4 端子法を用いてその場測定した。Al-Y および Al-Ni は、超伝導線から放電加工により断面 1mm×1mm、長さ 70mm (電圧端子間距離 45mm) に切り出したサンプルを用意し、無酸素銅のサンプル (線径 1mm) は、熱処理後に長さ 60mm (電圧端子間距離 35mm) に加工したものを使用した。

3. 結果：2014 年 4 月の試験結果を図 1 に示す。室温から 12K に冷却後、KUR を熱出力 1MW で 54 時間連続運転し、サンプルの電気抵抗をその場測定した。Al-Ni、Al-Y は照射直前はそれぞれ 2.4 マイクロオーム、3.5 マイクロオームであったが、照射直後にはそれぞれ 5.2 マイクロオーム、6.2 マイクロオームに上昇した。その後、室温でアニールし再冷却したときの電気抵抗は、照射前とほぼ一致し、完全に回復することを確認した。一方 OFC においては、照

射前は 2.9 マイクロオームであったが、照射によって 3.8 マイクロオームまで上昇し、室温アニール後は 3.0 マイクロオームとなった。この OFC サンプルは、2011 年の照射前には 2.6 マイクロオームであったので、2011 年から 2014 年の 4 回の照射損傷の一部が、アニール後も蓄積していることが観測された。

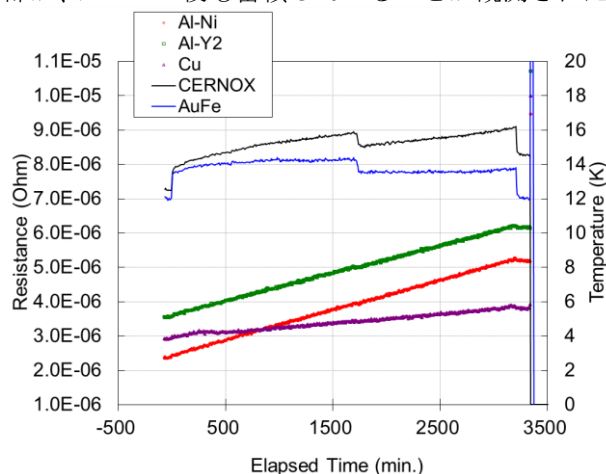


Fig. 1. Measured electrical resistance during neutron irradiation at KUR LTL.

4. 謝辞：本研究は、京都大学原子炉実験書の共同利用研究として実施され、原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブにより実施する「京大炉 (KUR) 及びホットラボの利用高度化に関する研究」、科学技術振興機構の産学イノベーション加速事業【戦略的イノベーション創出推進】、強磁場磁石 R&D における CERN-KEK 協力事業、日米協力事業、科研費 (23740219) の支援を受けた。

参考文献

- [1] F. Gianotti et al., *Eur. Phys. J. C* **39**, (2005) 293-333.
- [2] COMET (J-PARC E21) Collaboration, *Conceptual Design Report* (2009).
- [3] M. Okada et al., *Nucl. Instrum. Meth. A* **463**, pp. 213-219 (2001).

Repetitive Neutron Irradiation Tests of Superconductor Stabilizer Materials at Low Temperature

Makoto Yoshida, Tatsushi Nakamoto, Toru Ogitsu, Michinaka Sugano, Ken-ichi Sasaki, Masami Iio, Satoshi Mihara, Koji Yoshimura, Takahisa Itahashi, Yoshitaka Kuno, Akira Sato, Masaharu Aoki, Koichi Sato, Yasutoshi Kuriyama, Kiyomi Miyata, Yoshiharu Mori, Qiu Xu and Toshimasa Yoshiie

makoto.yoshida@kek.jp

(P25) 新奇金属硫化物系ガラスの構造とイオン伝導特性

(京大院工、京大原子炉¹) ○出島一仁、小野寺陽平¹、森一広¹、福永俊晴¹

1. はじめに：優れた安全性と高いエネルギー密度を持ち、さらに低コスト化が可能なことから、ポスト Li イオン電池として全固体 Na イオン電池が期待されている。全固体電池に利用される固体電解質材料としては、これまでに P_2S_5 や SiS_2 等の非金属・半金属の硫化物をベースとした超イオン伝導体が数多く報告されている[1]。一方で、非金属・半金属硫化物に関する研究は既にほぼ網羅的に行われており、今後の新材料開発のためには従来とは異なる角度からのアプローチが必要だと考えられる。そこで、本研究では金属硫化物である Al_2S_3 をベースとする「Na-Al-S 系ガラス」という新奇なイオン伝導体を創製し、その構造と Na イオン伝導特性の関係を明らかにすることを目的とした。

2. 実験：メカニカルアロイング (MA) 法により、 $(Na_2S)_x(Al_2S_3)_{100-x}$ ガラス ($x = 50, 60, 66.7, 75$) を作製した。作製した $(Na_2S)_x(Al_2S_3)_{100-x}$ ガラスについて交流インピーダンス測定を行い、電気伝導度を評価した。さらに、各ガラスに対して SPring-8 の BL04B2 ビームラインに設置されている非晶質物質用 2 軸回折計を用いて放射光 X 線回折実験を行い、その結果をもとに逆モンテカルロ (RMC) 法によって $(Na_2S)_x(Al_2S_3)_{100-x}$ ガラスの 3 次元構造モデルを構築した。

3. 結果：図 1 に、MA 処理した $(Na_2S)_x(Al_2S_3)_{100-x}$ に対する実験室レベルでの X 線回折実験の結果を示す。いずれの組成においても結晶由来の Bragg ピークはみられず、MA 処理によって $(Na_2S)_x(Al_2S_3)_{100-x}$ がガラス化したことが確認された。図 2 に $(Na_2S)_x(Al_2S_3)_{100-x}$ の電気伝導度を示す。Na 濃度の増加に伴い伝導度が指数関数的に上昇しており、ガラス中でのイオン伝導性の発現が確認された。以上から、新たな金属硫化物系イオン伝導体である $(Na_2S)_x(Al_2S_3)_{100-x}$ ガラスの創製に成功したといえる。

図 3 は、RMC 法で構築した $(Na_2S)_{50}(Al_2S_3)_{50}$ の 3 次元構造モデルを示している。構造モデルは放射光 X 線回折実験によって得られた構造因子を良く再現するよう構築した。講演では、それぞれの組成の構造モデルから「Na イオンが存在可能な空隙」を抽出し、その分布とイオン伝導特性の関係について考察した結果を報告する予定である。

参考文献

[1] M. Tatsumisago *et al.*, *Journal of Asian Ceramic Societies*, **1** (2013) 17-25.

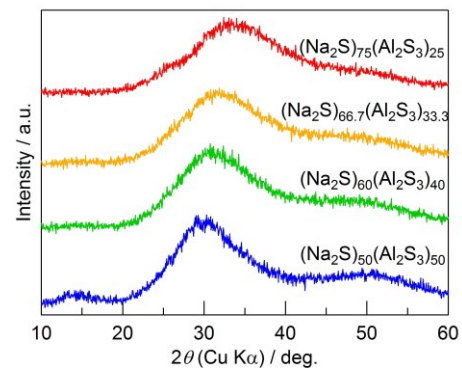


Fig. 1. X-ray diffraction patterns of $(Na_2S)_x(Al_2S_3)_{100-x}$ synthesized by mechanical alloying.

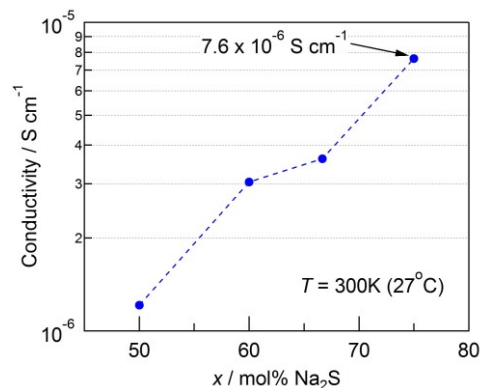


Fig. 2. Composition dependence of electrical conductivities of $(Na_2S)_x(Al_2S_3)_{100-x}$ glasses at room temperature.

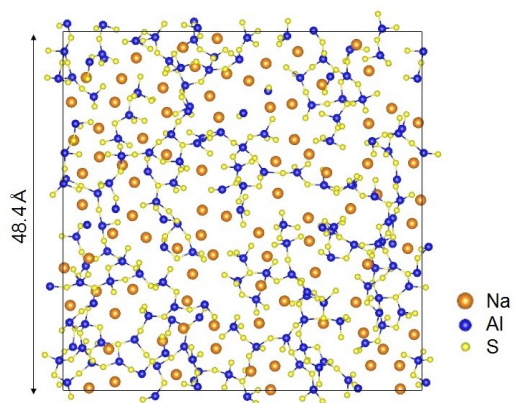


Fig. 3. Three-dimensional structure of $(Na_2S)_{50}(Al_2S_3)_{50}$ glass obtained by RMC modeling (the RMC cell was sliced into 3 Å thickness).

(P26) $\text{Li}_2\text{S}-\text{SiS}_2$ 系超イオン伝導ガラスの構造とリチウムイオン伝導経路

(京大院工、京大原子炉¹) ○高橋佑理子、森一広¹、小野寺陽平¹、福永俊晴¹

1. はじめに：現在、リチウムイオン二次電池の電解質には可燃性の有機電解液が使用されているために、漏液や発火等の危険性が指摘されている。これらの問題を取り除く新材料として不燃性の固体電解質が研究されている。

液体急冷法やメカニカルアロイング (MA) 法によって作製した $\text{Li}_2\text{S}-\text{SiS}_2$ 系超イオン伝導ガラスは、室温付近において高いリチウムイオン伝導度 (10^{-4} S/cm) を示すことから、リチウムイオン二次電池の固体電解質材料として注目されている[1]。しかしながら、 $\text{Li}_2\text{S}-\text{SiS}_2$ 系ガラスは大気に対して不安定であるため、純粋な試料作製が困難であった[2]。

本研究では、自作した試料について、放射光 X 線回折実験及びパルス中性子回折実験により得られた回折データを用いてリバースモンテカルロ (RMC) モデリングを行い、Li 濃度が異なる 4 つの $({}^7\text{Li}_2\text{S})_x(\text{SiS}_2)_{100-x}$ 超イオン伝導ガラス ($x=0,40,50,60$) の 3 次元構造を視覚化した。また、得られた 3 次元構造を用いて、Bond valence sum (BVS) 解析によって予想されるリチウムイオンの伝導経路を明らかにし、Li 周りの S の配位数について詳細に調べた。

2. 実験：MA 法により Li 濃度が異なる 4 つの $({}^7\text{Li}_2\text{S})_x(\text{SiS}_2)_{100-x}$ ガラス ($x=0,40,50,60$) を作製した。放射光 X 線回折実験は、非晶質物質用二軸回折計 BL04B2 (SPring-8) を、パルス中性子回折実験は高強度全散乱装置 NOVA (J-PARC/MLF) を用いて実施した。中性子・放射光 X 線の併用により、より精度の高い構造解析が期待できる。RMC モデリングには RMC++[3] を解析ソフトとして使用した。

3. 結果：Fig. 1 に RMC モデリングによって得られた $({}^7\text{Li}_2\text{S})_{50}(\text{SiS}_2)_{50}$ ガラスの 3 次元構造を示す。また、すべての組成において、Li 周りの S の配位数は 4 配位が支配的であるが、その割合は Li 濃度が高くなるにつれて、大きくなることがわかった。Fig. 2 に $({}^7\text{Li}_2\text{S})_{50}(\text{SiS}_2)_{50}$ ガラス構造について BVS 解析することで得られたリチウムイオンの伝導経路を示す。リチウムイオンの伝導経路に対し、リチウムイオンが最も安定に存在できる安定領域とそれ以外の準安定領域の 2 つに分けることができ、Li 濃度が高くなるにつれて、安定領域が大きくなることがわかった。詳細については、当日報告する。

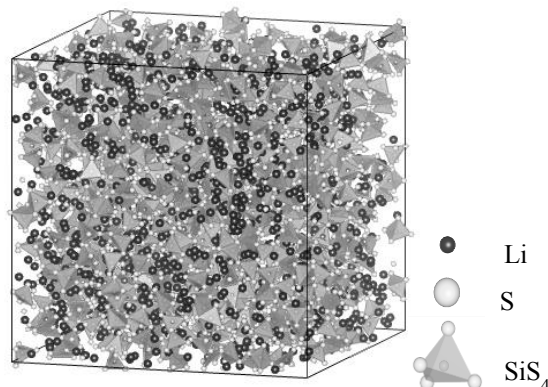


Fig. 1. Three-dimensional conduction pathways of lithium ions in $({}^7\text{Li}_2\text{S})_{50}(\text{SiS}_2)_{50}$ glass.

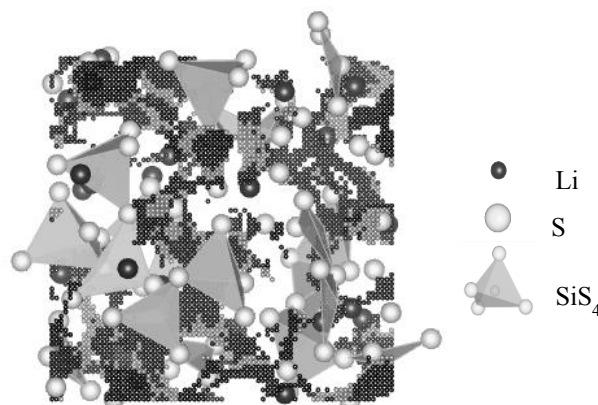


Fig. 2 Three-dimensional conduction pathways of lithium ions in $({}^7\text{Li}_2\text{S})_{50}(\text{SiS}_2)_{50}$ glass.

参考文献

- [1] A. Pradel *et al.*, Solid State Ionics **18&19** (1986) 351-355.
- [2] J. H. Lee *et al.*, Physical Review B **56** (1997) 10939.
- [3] O. Gerebem *et al.*, J.Opt. Adv. Mater **9** (2007) 3021.

(P27) $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶中の Li イオン挙動及び伝導経路

(京大院工、京大原子炉¹、JAEA²、KEK³) ○村田峻、森一広¹、福永俊晴¹、柴田薫²、川北至信²、米村雅雄³

1. はじめに：現在、リチウムイオン二次電池の電解質には可燃性の有機電解液が使用されていることから、液漏れや発火の危険性が指摘されている。その危険性を排除する新材料として、不燃性の固体電解質の実現が望まれている。

$\text{Li}_2\text{S}-\text{P}_2\text{S}_5$ 系超イオン伝導ガラスは、高いリチウムイオン伝導性を示すことからリチウムイオン二次電池の固体電解質として注目されている。特に、 $(\text{Li}_2\text{S})_{70}(\text{P}_2\text{S}_5)_{30}$ ガラスを熱処理 (約 240°C) することで得られる $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶は、室温付近において高い Li イオン伝導度 (10^{-3} S/cm) を示すことから、リチウムイオン電池の固体電解質材料として注目されている [1]。本系の結晶構造やリチウムイオン伝導経路に関する研究は幾つか行われているが [2- 4]、Li イオンの動的挙動に関する研究は未だ皆無である。本研究では、中性子準弾性散乱実験により $^7\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶中のリチウムイオンの動き (拡散挙動) を直接観測した。

2. 実験：大強度陽子加速器施設/物質生命科学実験施設 (J-PARC/MLF) の BL02 ダイナミクス解析装置 (DNA) を用いて中性子準弾性散乱実験を行った [5]。 $^7\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶に対し、150K、297K 及び 473K のそれぞれの温度において $S(Q, \omega)$ スペクトルを測定した。

3. 結果：図 1 に $Q=0.315 \text{ \AA}^{-1}$ で測定した $S(Q, \omega)$ スペクトルの温度変化を示す。図より、473 K において非干渉性弾性散乱ピーク ($\Delta E=0$) の周辺にブロードなピークが観測された。中性子準弾性散乱の強度は各元素の非干渉散乱断面積 (σ_{inc}) の大きさに依存する。 ^7Li の σ_{inc} ($0.78 \times 10^{-28} \text{ m}^2$) は、P の σ_{inc} ($0.005 \times 10^{-28} \text{ m}^2$) 及び S の σ_{inc} ($0.007 \times 10^{-28} \text{ m}^2$) と比較して非常に大きい。そのため、観測されたブロードなピークはリチウムイオンの自己拡散による中性子準弾性散乱であることがわかった。この中性子準弾性散乱成分に対し Jump Diffusion モデルを用いることで、Li イオンのジャンプ距離が 4.3 Å と求められた。これは、 $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶中において Li イオンが安定に存在できる安定領域ユニット間の平均距離 (4.2 Å) に一致した。このことから、リチウムイオン伝導経路内において、Li イオンが安定領域ユニット間をジャンプして移動していることが明らかとなった。

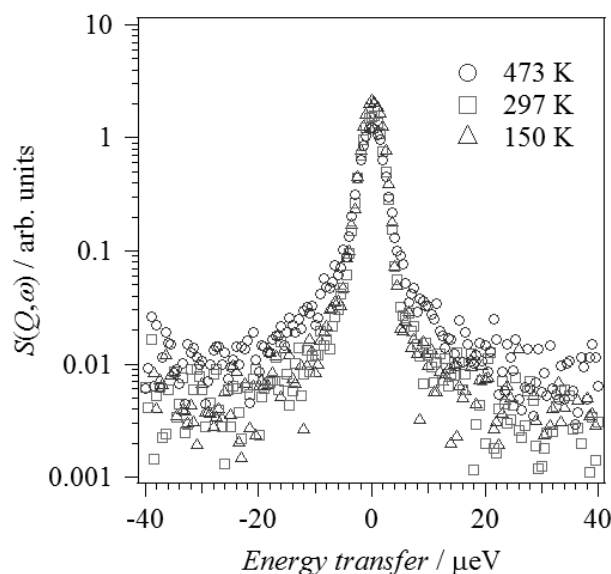


図 1 $^7\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶の $S(Q, \omega)$ スペクトルの温度変化 ($Q=0.315 \text{ \AA}^{-1}$)

参考文献

- [1] F. Mizuno et al., *Electrochem. Solid State Lett.* 8 (2005) A603.
- [2] H. Yamane et al., *Solid State Ionics* 178 (2007) 1163.
- [3] Y. Onodera et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* 81 (2012) 044802.
- [4] K. Mori et al., *Chem. Phys. Lett.* 584 (2013) 113.
- [5] K. Shibata et al., *JPS Conf. Proc.* 8 (2015) 036022.

(P28) J-PARC/MLF BL06 VIN ROSE と中性子集光ミラー開発の現状

(京大原子炉、京大工¹、高エネ機構²、理研³、東京電気大⁴、北大⁵) ○日野正裕、小田達郎¹、吉永尚生、金山雅哉、杉山正明、川端祐司、遠藤仁²、山田悟史²、細島拓也³、郭江³、加藤純一³、山形豊³、森田晋也⁴、武田晋⁵、古坂道弘⁵、瀬戸秀紀²

○はじめに

中性子はナノ構造の時間一空間領域の両方をプローブ出来る希有な粒子であり、中性子スピネコー法は空間スケールで 0.1~100nm の空間領域をピコ秒~サブマイクロ秒をカバーできる。スピネコー法は中性子スピンという自由度を導入し、スピンの位相を精密制御することで、入射中性子のエネルギー分解能によって測定可能なエネルギー分解能が制限されることなく、高エネルギー分解能かつ高中性子強度を同時に実現する。

京大—KEK 連携の元、KEK-S 型課題(2009S07,2014S07)の支援を受け、J-PARC/MLF BL06 ビームラインを完成させ、中性子共鳴スピネコー装置群:VIN ROSE(The Village of Neutron Resonance Spin Echo spectrometers)を建設中である。VIN ROSE は MIEZE 型と NRSE 型という 2 つ特徴の異なるスピネコー分光器を持つ。MIEZE(Modulated Intensity by Zero Effort)型では 通常のスピネコー装置では困難な試料に強い磁場をかける等の試料環境の自由度が魅力であり、低分子及び磁性のダイナミクスを、NRSE(Neutron Resonance Spin Echo)型では (生体)高分子の高分解能ダイナミクスをターゲットとしている。2013 年度で特徴の異なる 2 本の中性子ガイド管からなるビームラインを完成させ、2014 年 4 月に初ビームを受け、2015 年 2 月には初 MIEZE シグナルの観測に成功した。ガイド管をはじめとしてすべての中性子スーパーミラーは京大炉のイオンビームスパッタ装置で製作したものである。

○集光型 NRSE のための回転楕円体ミラー

高分解能測定は NRSE が担当するが、その達成には、試料による微少な散乱角の変化によるスピンの位相を補正するための位相補正デバイスを確立する必要がある。そこで回転楕円体スーパーミラーを開発し、2 つの共鳴スピンフリップパー(RSF)間にそのミラーを挿入、中性子の経路を等しくしてスピンの位相補正を行う。さらにそのミラーで中性子を集光することで、J-PARC という世界最高クラスの高輝度と低バックグラウンドをさらに活かして、今までにない微少試料測定の実現を目指している。また試料後の様々な散乱角でこの RSF と回転楕円体ミラーのセットを設置することで、広い立体角での同時測定を可能とし、マッピングと測定時間の大幅な短縮を目指している。これは特に大量の試料生成が困難な生

体高分子等の利用を考えてのことである。

○金属基板による中性子集光ミラー開発

VIN ROSE に関わらず、J-PARC 等のパルス中性子源では TOF を用いて広い波長幅を扱うため、スーパーミラーは必須な光学デバイスである。高性能なスーパーミラーの実現には、層間の拡散だけでなく、基板の表面粗さも 0.5nm 程度以下に抑える必要がある。この制約のため、中性子導管用のミラーには、ガラスやシリコンの平板基板が利用される。しかしこれらの素材を、平滑なまま曲率の大きな回転体加工することは大変困難である。今回必要な回転楕円体ミラーは長さ 1m 程度と巨大であり、また最低 2 本、最終的には 10 本近い数が必要としている。そもそも世界に未だ存在していない回転楕円体ミラーを、製作期間とコストも重々考慮して開発しなくてはならない。

○金属基板による中性子集光ミラー開発

金属を母材することで、機械加工用の NC 加工機[※]での製作が可能となり、劇的な製作期間短縮とコスト削減が可能となる。また耐放射線にも優れ、分割して組み合わせ、構造材、例えばミラー自体を真空チャンバーや遮蔽としてもなど利用でき、今までの低速中性子輸送を根本的に変えられる可能性がある。我々は回転楕円体ミラー基板の加工工程をほぼ確立しつつある[※]。また製膜が容易な 1 次元楕円ミラー(長さ 550mm、幅 60mm)においては、単にテストではなく、J-PARC BL16(SOFIA)反射率計の集光デバイスとして開発しており、現在までに集光スポットサイズは、FWHM で 0.34mm を達成して、当初計画の 0.1mm にかかなり近い所まで来た。また J-PARC/MLF BL06 の NRSE ビームラインにおいて、集光ミラーの評価が出来るようにしており、大型のミラーの成膜調整も進んでいる。当日は、MIEZE 分光器を含めて VIN ROSE と集光ミラー開発の現状を述べる。

※KEK からの受託プロジェクト「中性子とミュオンの連携による「摩擦」と「潤滑」の本質的理解」における「集光型中性子共鳴スピネコー装置と集光ミラー開発」の実施のため、京大炉の工作棟に中性子光学素子治具製作用 NC 制御加工装置を 2014 年 2 月に導入した。現在はすべてのミラーの初期加工と最後の成膜は京大炉で行われている。この加工の詳細は吉永他の発表を参照されたい。

Current status of development of VIN ROSE and neutron focusing mirrors

Masahiro Hino, Tatsuro Oda, Hisao Yoshinaga, Masaya Kanayama, Masaaki Sugiyama, Yuji Kawabata, Hitoshi Endo, Norifumi Yamada, Takuya Hosobata, Guo Jiang, Junichi Kato, Yutaka Yamagata, Shin-ya Morita, Shin Takeda, Michihiro Furusaka and Hideki Seto
hino@rri.kyoto-u.ac.jp

(P29) B-3 小型多目的中性子回折計建設の進捗状況

(京大原子炉、KEK¹、東北大金研²、茨城大工³、京大院工⁴) ○森一広、吉野泰史、川端祐司、福永俊晴、藤節夫¹、平賀晴弘¹、山口泰男²、岩瀬謙二³、塩野貴大⁴

1. はじめに

近年、物理・化学系分野に加えて、工学系分野（特に、エネルギー材料系分野）の研究者・技術者による中性子の利用が飛躍的に増加している。その大きな理由の1つとして、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が挙げられる。水素吸蔵材料、リチウム二次電池及び燃料電池のように、エネルギー材料のキー元素が軽元素であることから、中性子は今後のエネルギー材料研究において必要不可欠な測定プローブであると言える。

京都大学原子炉実験所の研究用原子炉（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 Åと短く、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十分に活用することができる。

以上のような理由から、現在、B-3実験孔に小型多目的中性子回折計を設置する作業が進められている。本発表では、これまでの装置建設の進捗状況について紹介する。

2. 装置仕様

図1に小型多目的中性子回折計（イメージ図）を示す。B-3実験孔の上流部（ファインコリメータ部及びモノクロメータ部）は変更せず、下流部（4サークル・ゴニオメータ部及びメイン・カウンター部）についてのみ新設作業を行う。まずは4サークル・ゴニオメータを撤去し、2軸ゴニオメータ（Huber 440/430）を設置する。その際、Cuモノクロメータから試料までの距離（ L_1 ）は1900 mmとする。Huber 440のアーム上に新設の検出器バンクを取付ける。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本導入する。³Heガス検出器は新設の検出器バンク内に1°間隔で取付ける。尚、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。さらに、Cuモノクロメータ直後（下流側）に新設のビームシャッター、入射中

性子ビームカウンタ（回折データ規格化用）及び中性子ビームコリメータを設置する。尚、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。Huber 430は試料回転ステージとして使用するが、Huber 430の上に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）やクライオミニなどの周辺機器が設置できるようにする。

3. 進捗状況

昨年度までに4サークル・ゴニオメータの撤去が終了し、新たに2軸ゴニオメータ（Huber 440/430）の据付け作業を進めている。尚、2軸ゴニオメータの動作確認は終了済みである。新設ビームシャッターの製作及び取付けが完了し、研究炉運転中に性能評価を行い、中性子の遮蔽性能に問題がないことを確認した。また、中性子ビームコリメータについても製作が完了している。検出器バンクは現在製作中である。今年度はB-3実験孔の開放点検を行い、その際、遮蔽体等の解体を行った。これを機会に、現在、上流側（研究炉側）の遮蔽強化作業を進めている。

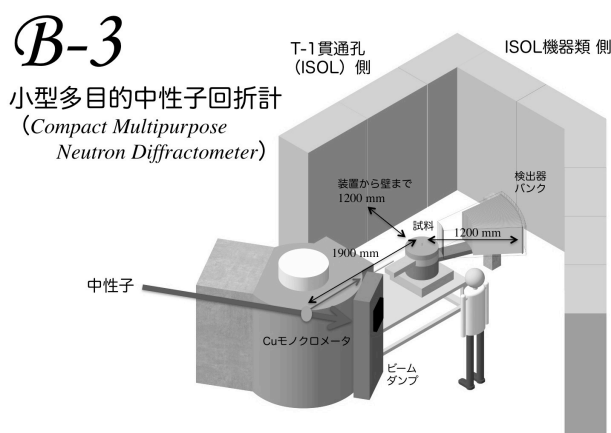


Fig. 1. The schematic perspective view of the compact multipurpose neutron diffractometer on the B-3 beam port of KUR.

(P30) 低エネルギー励起核 ^{229m}Th からの真空紫外光測定

(阪大院理、京大原子炉¹、東北大金研・大洗²) ○安田勇輝、笠松良崇、重河優大、高宮幸一¹、大槻勤¹、三頭聰明²、篠原厚

1. はじめに：質量数 229 の Th の原子核は 7.8 ± 0.5 eV という非常に低い励起エネルギーの準安定状態（核異性体） ^{229m}Th をもち[1]、この励起エネルギーは波長 160 nm の真空紫外光に相当する。このような低い励起エネルギーのため内部転換による脱励起時には外殻電子としか相互作用できず、化学状態によって壊変定数が変化する可能性が指摘されている。更に、化学状態によっては内部転換が禁止され、 γ 線遷移が主となるといったように壊変過程そのものが大きく変化するという非常に特異的な現象が起こると期待されており、大変興味深い核種となっている。しかし、 ^{229m}Th の励起エネルギーの値は、より高い励起状態から ^{229m}Th 及び基底状態の ^{229g}Th への遷移のエネルギー値の差によって間接的に求められた値であり、 ^{229m}Th からの脱励起過程を直接観測する事自体も非常に難しい。過去に半減期が約 6 h の ^{229m}Th からの光子放出が報告されているが[2]、この光子が娘核種からの放射線による Cherenkov 光である可能性も指摘されている。本研究では光子測定によって ^{229m}Th の脱励起過程の化学状態依存性を観測することを目的とし、その結果から ^{229m}Th の崩壊過程を解明したいと考えている。今回の実験では、異なる化学状態の ^{229m}Th 試料を調製し、これまでに培ってきた低バックグラウンド光子測定の技術を用いて光子測定を行った。

2. 実験： ^{229m}Th 試料は陰イオン交換法を用いて親核種である ^{233}U から化学分離することで調製した。約 200 mg の ^{233}U を陰イオン交換樹脂 (Muromac 1×8 200-400 mesh, 5.0 mL) に着点し、9 M 塩酸を通して ^{233}U の娘核種を何度か洗い流した後、一定時間（約 2 h または 13 h）静置した。その後、9 M 塩酸 7 mL を流して成長した ^{229m}Th を分離し、サマリウム共沈法 [3] を用いてフッ化物沈殿及び水酸化物沈殿の 2 種類の状態の沈殿試料を調製し、光子測定を行った。光子測定は光電子増倍管 (Hamamatsu R6837) を用いて 4–10 eV ($\lambda = 115\text{--}320$ nm) の範囲で行った。

また、 ^{229m}Th が長半減期であることを想定し、長時間成長させた ^{229m}Th を再精製した沈殿試料も以下の手順で調製し、光子測定を行った。 ^{233}U から分離後に一度ドライアップを行った後 8 M 硝酸溶液とし、別の陰イオン交換樹脂 (Muromac 1×8 200-400 mesh, 1.0 mL) に ^{229m}Th を着点した。8 M 硝酸で洗い ^{229m}Th の娘核種を取り除き、2 M 塩酸を流すことで ^{229m}Th を溶離させ、サマリウムと共沈させた。

3. 結果・考察： ^{229m}Th の成長時間を約 2 h とした試料では、バックグラウンドに対して有意な光子放出は観測されなかった。一方、成長時間を約 13 h とした試料では、1~3 h 程度の半減期に相当する光子放出の減衰が観測された。しかし、この減衰成分が娘核種である Bi や Pb の放射性同位体によって引き起こされた可能性が考えられる。そのため ^{229m}Th を再精製してから光子測定を行ったところ、それらの試料からは上記のような光子放出の減衰成分は観測されなかった。またこの再精製した沈殿試料を長時間測定すると、 ^{229}Th の娘核種による光子放出の成長成分が観測された。これらの結果から、今回観測された光子放出の減衰成分は娘核種由来のものであると考えられる。結論としては、過去の光子観測実験[2]の約 400 倍の量の ^{233}U を用いて光子測定を行ったが、今回用いた 2 種類の化学状態の沈殿試料からは ^{229m}Th 由来の光子放出は観測されなかった。

沈殿試料からは ^{229m}Th 由来の光子が観測されなかったため、過去に報告された ^{229m}Th からの光子放出 [2] を確認する実験を行った。反跳核捕集装置 (CARP) [4] を作成し、 ^{233}U 電着試料から ^{233}U の α 崩壊に伴って反跳で出てくる ^{229m}Th を MgF_2 ガラス皿中に捕集し、光子測定を行った。この試料からは先行研究の結果をおおよそ再現するような光子放出の減衰が観測された。発表ではこの光子放出の由来について検討した結果についても報告する。

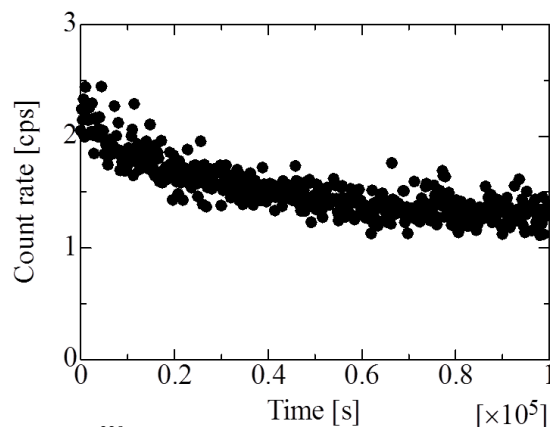


Fig.1 ^{229m}Th を捕集した MgF_2 試料の光子測定結果

参考文献

- [1] B. R. Beck *et al.*, LLNL-PROC-415170 (2009).
- [2] X. Zhao *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 160801 (2012).
- [3] H. Kikunaga *et al.*, Appl. Radiat. Isot. **67**, 539 (2009).
- [4] 重河優大他、第 58 回放射化学討論会、P10 (2014).

(P31) 10 MGy の耐放射線性を目指した微小冷陰極撮像素子の開発

(京大院工、産総研¹、静大電研²、木更津高専³、京大炉⁴、大阪府大放射線セ⁵) ○後藤康仁、辻 博司、長尾昌善¹、増澤智昭²、根尾陽一郎²、三村秀典²、岡本 保³、佐藤信浩⁴、秋吉優史⁵、高木郁二

1. はじめに：原子炉や加速器施設などの監視のためには十分な耐放射線性を有するカメラが必要である。半導体素子を利用した CCD や CMOS カメラは、放射線に対して十分な耐性を持たないため、線量率の高い場所や、事故などが起きた場合には監視用カメラとしては適当ではない。我々は、耐放射線カメラとして現在使用されている真空を利用した撮像素子を、電子源に微小冷陰極電子源(FEA)を用いることで小型化・省電力化し、高い耐放射線性をもつ小型軽量の撮像素子の実現を図っている[1]。本研究では、この撮像素子の耐放射線性を調べるため、主な構成要素である FEA と光電変換膜の γ 線照射に対する性能の変化を調べた結果について報告する。

2. 実験：FEA は電子放出するエミッタとエミッタに電界を印加するためのゲート、電子ビームを集束するフォーカスなどの電極からなる。エミッタ材料は Ni ないしは Mo、層間の絶縁膜は CVD 法により作製した SiO₂ である[2]。光電変換膜は、撮像素子に使用するスーパーストレート型と耐放射線性能を確認するためのサブストレート型の二種類を準備した。スーパーストレート型は、p-CdTe/n-CdS/ITO/Glass 構造をしており、サブストレート型は、ZnO:Al/n-CdS/p-CdTe/C 構造である。FEA と光電変換膜に⁶⁰Co γ 線を吸収線量でおよそ 0.5 MGy 照射した。100 kGy 程度ごとに試料の特性の変化を観測し、照射量の増加に伴い、特性の劣化がどのように進むかを調べた。

3. 結果：現在のところ FEA、光電変換膜ともに顕著な劣化は見られていない。図 1 にガンマ線照射に伴う Mo-FEA のアノード電流およびゲート電流の変化を示す。この図では、エミッタ・ゲート間電圧を 70 V としたときに、電極に流れる電流の値を示している。複数の素子を測定し、その平均とばらつきを示しているが、線量が増加しても電流はほとんどばらつきの範囲内に収まっている。ゲート電流には、リーク電流以外にエミッタから放出された電子の注入も含まれているが、大きな変化は見られない。この傾向は Ni-FEA の場合も同様であった。サブストレート型光電変換膜の照射前後(240 kGy)の電流電圧特性を図 2 に示す。模擬太陽光を照射した状態で測定したものであり、 γ 線照射による特性の劣化はわずかである。500 kGy 照射することで、わずかに劣化が見られるようになってきた。スーパーストレ

ート型ではガラスの着色により短絡電流の若干の低下が見られた。以上より、FEA や CdTe ダイオードは 1 MGy 程度の γ 線照射では劣化はほとんど見られず、光電変換膜のガラス材料を選定すれば 10 MGy 程度の耐放射線性も期待できる。

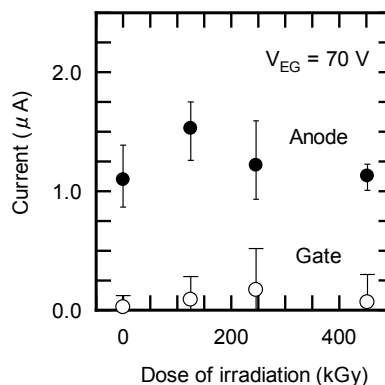


Fig. 1. Variation of anode and gate currents with dose of gamma-ray irradiation.

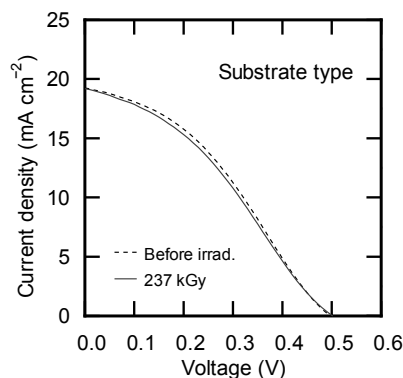


Fig. 2. Change in current-voltage characteristics of substrate-type CdTe diode under simulated solar light.

謝辞：本研究の一部は、文部科学省原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブにより実施された「微小真空冷陰極アレイを用いた高い放射線耐性を持つ小型軽量撮像素子の開発」の成果である。

参考文献

[1] Y. Gotoh *et al.*, 2015 IEEE Int. Vacuum Nanoelectronics Conf., July 14-17, 2015, Guangzhou, PR China, p.240.

(P32) 極冷中性子を用いた TOF-MIEZE スピンエコー実験

(京大工、京大原子炉¹、名大理²、ILL³) ○小田達郎、日野正裕¹、北口雅暁²、川端祐司¹、Peter Geltenbort³

1. 緒言：極冷中性子 (Very Cold Neutron; VCN) とは、非常に運動エネルギーの低い中性子であって、その de Broglie 波長がおよそ 4 nm から 40 nm の範囲にあるものを言う。フランス、グルノーブルの Institute Laue Langevin (ILL) が有する高中性子束炉 VCN ポートは、冷中性子源直結の鉛直導管を通した重力ポテンシャルによる減速を利用し、VCN ビームを定常的に供給することができる世界唯一の施設である。VCN は、強度は弱いものの、熱および冷中性子 (波長約 1 nm 以下) よりも波動性が顕著になり、これまで主に干渉計などの基礎物理研究に用いられてきた[1]。中性子スピンエコー分光器のエネルギー分解能は入射中性子波長の 3 乗に比例して向上するので、スピンエコー法に長波長中性子を用いる利点は大きく、加えて VCN は中性子鏡での反射が容易なため、将来的に適切な集光光学系が開発できれば、強度を上げ、同時に中性子の経路分散も低減できる可能性があると考え、飛行時間 (Time of Flight; TOF) 法と組み合わせた MIEZE 型スピンエコー (TOF-MIEZE) 実験を初めてパルス VCN ビームを用いて行った。MIEZE (Modulated Intensity by Zero Effort) 型スピンエコー法[2]とは共鳴スピンエコー法の一つであり、同一スピン固有状態にあって全エネルギーの異なる状態間につく位相差によって、偏極解析した中性子強度が時間に対して正弦的に振動する。

2. 実験： $1/t$ 型時間変調高周波[3]を印加することで、波長約 3 nm から 7 nm のパルス中性子ビームに対応した共鳴スピンフリップパー (Resonance Spin Flipper; RSF) を準備した。周波数 50 kHz、100 kHz の 2 つの $\pi/2$ 条件の RSF で実効振動数 50 kHz の MIEZE シグナルを観測した。このシグナルは理想的にはダイレクトビームの半分の強度に MIEZE の振動が重畳したシグナルとなる。

3. 結果：図 1 に実効振動数 50 kHz の TOF-MIEZE シグナルを示す。シグナルのコントラストが完全でないのは、RSF のフリップ率の不完全性による。実効振動数 50 kHz の MIEZE シグナルの周期は 20 μ s であり、そのシグナルを観測するため時間ビン幅 1 μ s にとると TOF の全範囲 (80 ms) では 80000 個のビンに中性子のカウントが割り振られることになる。限られた中性子強度がさらに細かく分割されるため、高周波 MIEZE の正弦振動を観測するための一つの方法としては、適切な TOF 範囲 (波長帯) にわたって、MIEZE シグナルの周期で中性子カウントを足し合わせ、シグナルを再構成することが考えられる。図 2

に MIEZE シグナルの 2 周期 (40 μ s) を TOF 35 ms から 37 ms にわたって 50 回足し合わせて再構成された MIEZE シグナルを示す。足し合わせ前は確認できなかった正弦振動が再構成されていることがわかる。

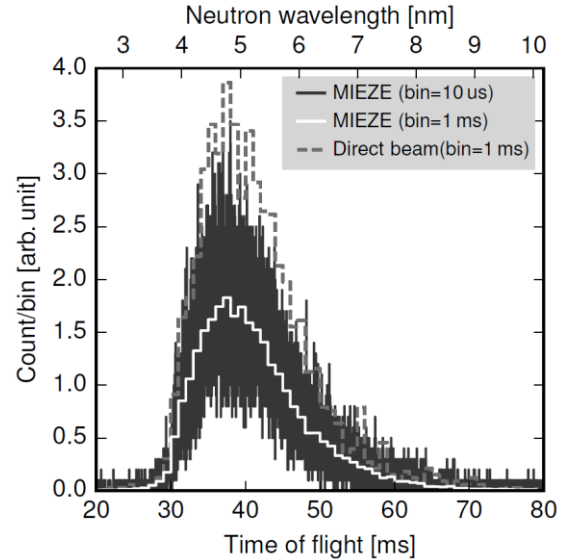


Fig. 1. The solid line indicates a MIEZE oscillation with effective frequency of 50 kHz superposed on the averaged intensity (white line). The dotted line indicates the TOF spectrum of the direct beam.

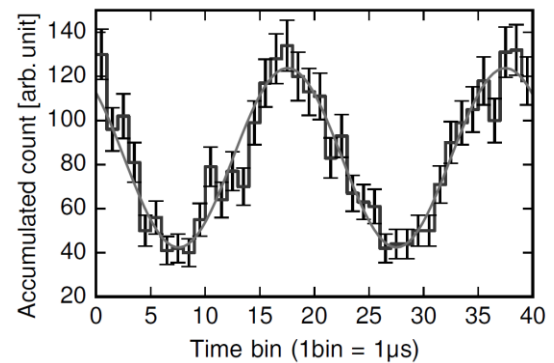


Fig. 2. Time histogram of neutron count accumulated 50 times by 2 cycle of MIEZE oscillation (1 period = 20 μ s) over a TOF range from 35 to 37 ms.

参考文献

- [1] J. Klepp et al., Prog. Theor. Exp. Phys. (2014) 082A01.
- [2] R. Gähler et al., Physica B180-181 (1992) 899-902.
- [3] R. Maruyama et al., Physica B 335 (2003) 238-242.

(P33) 福島県下で採取した土壌試料中のウラン・プルトニウムの同位体分析

(京大原子炉、福島県¹⁾) ○芝原 雄司、窪田 卓見、藤井 俊行、福谷 哲、高宮 幸一、紺野 慎行¹⁾、水野 哲¹⁾、山名 元

1. はじめに：福島第一原子力発電所事故により環境中に放出された核分裂生成物並びに核燃料物質の分布状況などの事故評価のために、現在 Cs [1], Sr [2], U [3]および Pu を中心とした同位体分析法の適用の検討を進めている。これまでに、特に Cs および Sr に対して、環境中に放出された極微量の放射性核種の分析への適用性について検討してきた[4]。今回は、環境試料中の U および Pu (特に Pu) の同位体分析法の適用性の検討を行った。

2. 実験：環境試料から U および Pu を回収する手法を検討するために、IAEA および NIST の標準試料 (IAEA-368, IAEA-384, NIST-4354 および NIST-4357) を用いた (IAEA および NIST 試料はそれぞれ核実験 および 核燃料由来の U および Pu が含まれている：Pu 含有量 1.1×10^{-12} g/g \sim 3.0×10^{-11} g/g)。

試料 (約 5 g) を 450°C で灰化した後に 8 M HNO_3 で溶解・乾固した。乾固試料を再度 8 M HNO_3 で溶解し、遠心分離による残渣の撤去の後に 8 M $\text{HNO}_3/0.3\%$ H_2O_2 試料溶液とした。試料溶液を UTEVATM 樹脂に通液し、U および Pu などの TRU 元素を吸着・回収した[5]。UTEVA 樹脂から回収した Pu 成分は、一旦乾固させた後に再度 8 M HNO_3 溶液に溶解させ、陰イオン交換樹脂 (DOWEXTM 1 \times 8) を用いて再度精製過程を経た。回収した U および Pu は、乾固の後にそれぞれ 1 mL および 10 μL の 1 M 硝酸溶液に溶解し、質量分析用試料とした。同位体比分析は、TIMS (TRITON-T1, Thermo Fisher Scientific) を用い、2 μL の溶液を Re フィラメントに塗布した double filament 法で行った (なお、Pu の分析では、1 wt% のグラファイト粉末溶液を 1 μL 塗布したフィラメントを使用した)。また、福島県で採取した土壌試料に関しても同様の手順を用いた分析を行った。

3. 結果：図 1 に標準試料より採取した Pu のマスペクトルを示す。全ての標準試料から回収した Pu および U の同位体組成は他の分析方法を用いた文献値と一致することを確認した。

福島県で採取した土壌試料 (計 15 か所) に対しても同様の手順を用いて U および Pu を回収・分析したところ、U に関しては全ての試料で $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比が天然組成と同等の値を示した：使用した標準試料に関しても、同様に天然組成と同等の値を確認した。Pu に関しては、全 15 試料のうち 7 試料で同位体比分析が行え、かつ、4 試料からは福島第一原子力発電所事故由来の Pu とグローバルフォールアウト由来の Pu が混在したものであることを確認した (残りの 3 つは、グローバルフォールアウト由来の Pu であ

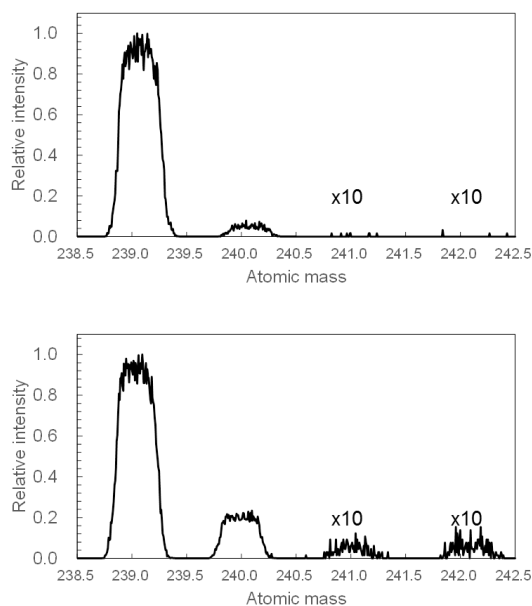


Figure 1. Mass spectra of Pu. IAEA-384(upper) and NIST-4357(lower).

った)。U と Pu の環境中への放出過程が同じであり、かつ、U と Pu の元素比が保たれていると仮定した場合、核燃料の環境中への放出の分析では $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比を用いるより、Pu 同位体比 ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ および $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ など) を用いたほうが核燃料物質の検出感度が高いことが予測される： $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ を用いた場合、0.1% の燃料由来の U が混在する必要があるが、Pu 同位体比の場合、1ppm の混在で検出できる。

Yang らの報告によると、福島第一原子力発電所事故前の土壌中の Pu 濃度は、大半が 5.5×10^{-14} g/g 以下で、約半分が 1.4×10^{-14} g/g 以下である[6]。この値と分布を用いると、今回検討した Pu 分析の検出下限は 10^{-14} g/g レベルと予測される。今後はスキームの改善等を試み、適用範囲の拡大等を進めていく。

参考文献

- [1] Y. Shibahara et al, J. Nucl. Sci. Technol., 51 (2014) 575-579.
- [2] T. Kubota et al, J. Radioanal. Nucl. Chem., 303 (2015) 39-46.
- [3] Y. Shibahara et al, J. Radioanal. Nucl. Chem., 303 (2015) 1421-1424.
- [4] Y. Shibahara et al, Proceedings of the 49th KURRI Scientific Meeting (2015).
- [5] Y. Shibahara et al, J. Radioanal. Nucl. Chem., in press
- [6] G. Yang et al, Sci Rep 5: 9636 DOI: 10.1038/srep09636.

Isotopic analysis of plutonium and uranium in soil samples by thermal ionization mass spectrometry

Yuji Shibahara, Takumi Kubota, Toshiyuki Fujii, Satoshi Fukutani, Koichi Takamiya, Mitsuyuki Konno, Satohsi Mizuno, and Hajimu Yamana,
y-shibahara@rri.kyoto-u.ac.jp

(P) X線ラジオグラフィによる水平バンドル内気液二相流のボイド率分布計測

(神戸大院工、京大原子炉¹)

○馬場実咲、宮崎猛、村川英樹、杉本勝美、竹中信幸、伊藤大介¹、齊藤泰司¹

1. はじめに：ケトル型リボイラのようなシェルアンドチューブ型の熱交換器内部では、水平管群を横切る気液二相流が発生する。このような多管式熱交換器において、管の伝熱特性を評価し、最適な設計を行うには、管周りのボイド率と流動様式の間関係を把握することが重要である。

従来、水平管群を模擬した体系で、空間平均ボイド率の計測や、管群の代表的な点での局所ボイド率の評価^[1]が多く行われているが、管周りのボイド率分布を評価した例はほとんどない。そこで本研究では鉛直矩形流路内に設置した水平バンドルを横切る気液二相流を対象に、X線ラジオグラフィを用いて、管周りのボイド率分布計測を行った。

2. 実験：流路はアクリル製、断面積 $90 \times 90 \text{ mm}^2$ 、長さ 1700 mm の鉛直矩形流路とし、管群を模擬したアクリル管を設置した。管群は、管外径 $D = 15 \text{ mm}$ 、管ピッチ $P = 22.5 \text{ mm}$ ($P/D = 1.5$) の正方配列とし、管3本と両壁面に半円状の管を設置したものを1行とし、8行を設置した。作動流体は水-空気とし、管群上流部にてコンプレッサから多孔体製散気管を通して空気を注入した。実験条件は、液相見かけ速度 $J_L = 0.2 \text{ m/s}$ 、気相見かけ速度 $J_G = 0.03 \sim 1.19 \text{ m/s}$ 、常温、大気圧下とした。

計測には、京都大学原子炉実験所のX線発生装置を用いた。撮像装置にはイメージインテンシファイア、高速度カメラを用い、フレームレートは 30 fps で撮影を行った。X線発生装置は印加電圧 80 kV 、電流 5 mA に設定した。X線発生装置の照射口の径 d は 20 mm であり、発生装置から撮影対象までの距離 l を 4500 mm とすることで、ビーム平行度 $l/d = 225$ とした。画像処理においては、真影法^[2]を用いてバンドル前面に設置したX線遮蔽用の鉛部分の輝度をオフセットとして用いた。

3. 結果：図1に撮影画像から算出した二次元ボイド率分布を示す。(a)は気泡流、(b)は間欠流となる条件である。図の右側には流路壁面が存在している。

図1より、気泡流の条件である(a)では鉛直方向の管ギャップにおいて、ボイド率が高くなるのに対し、間欠流の条件である(b)では鉛直方向だけでなく、水平方向の管ギャップにおいてもボイド率が高くなった。また、気泡流の条件では壁面の影響がほとんど見られないが、間欠流の条件では壁面付近のボイド率が低くなっており、壁面の影響が観察された。

以上のようにして得られたボイド率分布から、管

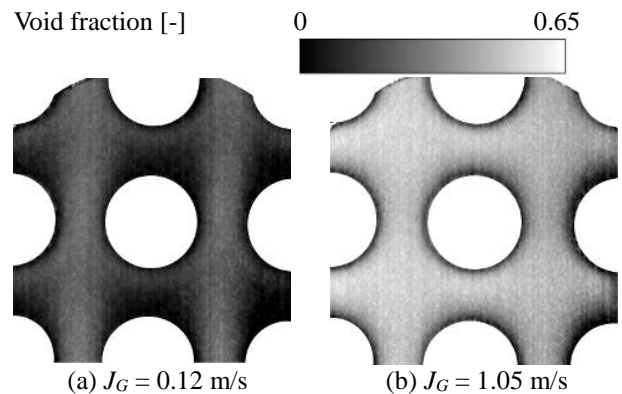


Fig.1 Images of void fraction distribution around a tube bundle at 4th row in the wall ($J_L = 0.2 \text{ m/s}$)

群入口から3~4列目の間の1ギャップ分の空間平均のボイド率を算出し、ドリフトフラックスモデルを適用した結果を図2に示す。実験結果は分布定数 $C_0 = 1.69$ 、ドリフト速度 $V_{Gj} = 0.306 \text{ m/s}$ で整理できた。

以上のように、X線ラジオグラフィを用いて、水平バンドル内気液二相流の管周りボイド率分布を計測し、流動様式の違いによるボイド率分布を明らかにした。

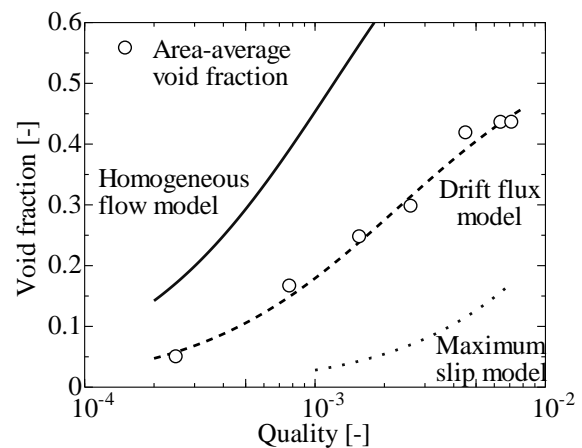


Fig. 2 Variation of void fraction with quality

参考文献

- [1] McNeil, D.A., Sadikin, A., and Bamardouf, K.H., "A mechanistic analysis of shell-side two-phase flow in an idealized in-line tube bundle", *Int. J. Multiphase Flow*, 45(2012) 53-69.
- [2] N. Takenaka, H. Asano, T. Fujii and M. Matsubayashi, "A method for quantitative measurement by thermal neutron radiography", *Nondestr. Test. Eval.*, 16(2001) 345-354

(P35) KURAMA の開発状況

(京大原子炉) ○奥村良、谷垣実、佐藤信浩、小林康浩

1. はじめに：平成 23 年 3 月の東京電力福島第一原子力発電所の事故により多くの放射性物質が環境中に放出され、様々な方法で放射線の測定が行われている。京都大学原子炉実験所が開発した GPS 連動型放射線測定器 KURAMA^[1]も福島県や文部科学省による福島県内や東日本全域調査で使用されており、多くの実績を残している。本発表では最近の KURAMA の展開、開発の状況について報告する。

2. バス事業の展開：我々は 2011 年 12 月から福島交通(株)と協力し、バスによる走行サーベイを行ってきた。しかしながら、我々だけでは福島全域をカバーするのに機材不足やデータの管理、公開を長期間運用するには限界があった。そこで、2013 年にこの事業を福島県、JAEA と共同で行うことが決定した。福島県が機材、測定までを請負い、データの処理、公開を JAEA が行い、我々は技術的なサポートを行うこととなった。これにより KURAMA-II 約 50 台を路線バス等に搭載し、測定範囲も拡大することができた。更に測定データも JAEA のホームページで公開しており、福島駅前にあるユニックスビル 1F にある大型ディスプレイでは、リアルタイムの測定データが公開されている^[2]。

3. CsI 検出器の不感時間改良：KURAMA で採用している浜松ホトニクス(株)製 CsI 検出器 C12137-01 の特性について実環境中では公称値の 1/2~1/3 で検出器の示す線量率が飽和してしまうことがわかった。原因は標準校正場に対して実環境中ではエネルギーの低い散乱線の割合が多いため同計数率であっても線量当量への影響が低い放射線ばかりを数えることとなり、計数回路の飽和が早く発生するためであった。そこで従来までの 100m 秒毎にバッファに蓄積したパルス波高値を転送していたものを 100m 秒分

の 1024Ch のスペクトルとして転送するように改良した-4034 を試作した。改良前の-01 は 10000cps で飽和していたのが-4034 では大きく改善されていることがわかる。これにより測定レンジが大幅に改善された(Fig.1)。

4. 歩行型の開発：農地、住宅などの詳細な歩行測定ニーズが高まったことから、我々も車載用 KURAMA を改良し、徒歩で簡便に測定でき、かつ空間線量だけでなく地表の汚染が判別できる徒歩型の開発を行った。地表付近からの成分を測定する下にコリメートした検出器 A と空間線量率を測定する検出器 B の 2 つを用意し、

$$\text{地表の汚染} \propto A - \text{コリメート立体角} \times B$$

と評価することで簡便に地表の汚染を評価できるとし、リュックに 2 つの検出器を搭載した。果樹園での測定結果からは地表汚染を評価した値と Ge 半導体検出器で表層 5cm の土壌を測定した値に相関がみられた(Fig.2)^[2]。このシステムは既に商品化されており、福島県の農業復興への貢献が期待される。

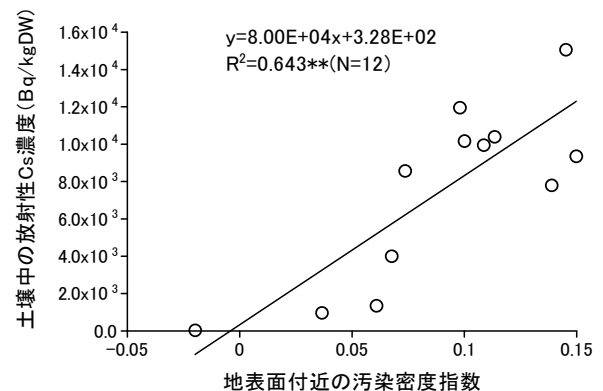


Fig.2 汚染密度指数と土壌中の放射性 Cs 濃度の関係

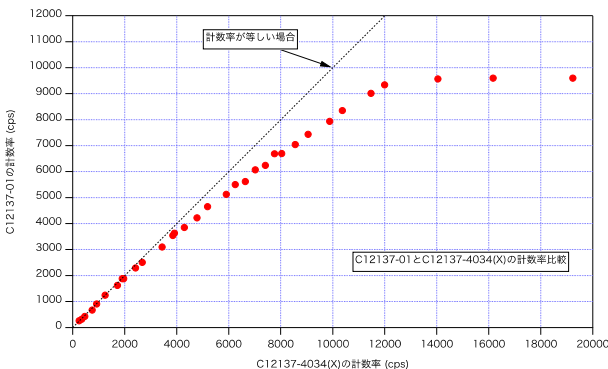


Fig.1 同条件における C12137-01 と-4034 係数率

参考文献

- [1] M. Tanigaki, R. Okumura, K. Takamiya, N. Sato, H. Yoshino, H. Yamana Nucl. Instr. Meth. A **726** (2013) 162-168.
- [2] <http://info-fukushima.jaea.go.jp/joho/>
- [3] 湯田美菜子、日本土壌肥科学会、2015 年度大会 福島県内の農地における放射性物質に関する研究

The development and circumstances of KURAMA
Ryo Okumura, Minoru Tanigaki, Nobuhiro Sato and Yasuhiro Kobayashi
rokumura@rri.kyoto-u.ac.jp

(P36) 昇温脱離ガス分析法を用いたタングステンの重水素トラッピングサイトの検出

(鹿児島大工、京大原子炉¹、京大工²) ○佐藤絃一、田宮怜¹、徐虬¹、土田秀次²、義家敏正¹

1. はじめに：二酸化炭素排出を抑えることができるエネルギー源として核融合炉は大変有望である。その核融合炉のプラズマ対向材料には高 Z 材であるタングステンが用いられることが検討され、最近では最も可能性が高い材料として多くの研究者により特性が調べられている。タングステンの利点は、スパッタ率が低い、水素蓄積が少ない、融点が高い、の3点である[1]。これらはよく用いられてきた炭素の弱点を克服しているが、タングステンは再結晶化が進むと結晶粒界の脆化が深刻な問題となる。他に、工業的にも一般的に使われる材料ではないことから、材料特性の理解が不十分であり信頼性に欠ける点も問題である。これらの弱点は個々の研究者がデータを溜めて、克服していくしかない。本研究では、タングステンの材料特性の中で、空孔型欠陥と重水素の相互作用に注目した。まず、陽電子消滅寿命測定により、タングステン中に導入された空孔型欠陥の大きさと密度に関する情報を得る。次に、昇温脱離ガス分析により、昇温による重水素の放出挙動を調べる。以上の結果から、重水素のトラッピングサイトとその結合エネルギーの同定を目標とした。

2. 実験：(株)アライドマテリアル製の純度 99.95% のタングステンをを用いた。試料サイズは鉄イオン照射したものは 10×10mm、それ以外のはφ5mm で作製した。厚さはいずれも 0.2mm であった。いずれの試料も 1773 K、1 h の条件で焼鈍を行い、できる限り欠陥を取り除いた。その後、電子照射、重水素イオン照射、鉄イオン照射により、欠陥を導入した。電子照射は京都大学原子炉実験所電子線型加速器を、重水素イオン照射も京都大学原子炉実験所の低エネルギーイオン加速器を、鉄イオン照射には京都大学大学院工学研究科附属量子理工学教育研究センターのイオン加速器を用いた。電子照射は 8MeV の電子を $9.4 \times 10^{17} / \text{cm}^2$ (1.3×10^{-4} dpa) まで照射した。照射温度は室温であった。損傷量 (dpa) の計算には弾き出ししきいエネルギーとして 42eV を用いた[2]。重水素イオン照射は 5keV の D_2^+ イオンを $1.0 \times 10^{18} / \text{cm}^2$ (損傷ピーク位置で 20dpa) まで照射した[3]。照射温度は室温と 673K であった。鉄イオン照射は 6MeV の Fe^{3+} イオンを $2.3 \times 10^{19} / \text{cm}^2$ (損傷ピーク位置で 8.4 dpa) まで照射した。照射温度は 573K であった。その後、5keV の重水素イオン照射で用いた加速器を用いて、弾き出し損傷が起きない 1keV で重水素の注入を行った。最後に、昇温脱離ガス分析 (TDS) 測定を行い、タングステンからの重水素の脱離挙動を調べた。

3. 結果：電子照射では主に原子空孔が形成するため、電子照射材の 550 K から 600 K に見られる重水素放出ピークは原子空孔からの重水素放出ピークであると考えて間違いない。室温と 673K で 5keV の D_2^+ イオンを照射した試料と鉄イオンを照射した試料の TDS スペクトルを汎用のデータ分析・グラフ作成ソフトウェア Origin を用いてピーク分離した。 D_2^+ イオン照射した試料は室温、673K とともに、450 K、560 K、640 K 付近にピークを持つ 3 つのガウス関数に分離できた。鉄イオン照射した試料は 460 K、630 K、840 K 付近にピークを持つガウス関数に分離できた。約 450K での重水素放出は転位から放出された重水素のピークを表すと考えられる。560K 付近のピークは電子照射のスペクトルと比較して原子空孔からの重水素放出であると考えられる。次に、640K 付近のピークは原子空孔集合体からの重水素放出ピークであると考えられる。鉄などでは原子空孔よりも原子空孔集合体の方が水素を強く捕獲するというデータが得られている[4-7]。840K 付近のピークはボイド表面に吸着された重水素の放出だと考えられる。573K、8.4dpa では大きなボイドはできない可能性もあるが、TDS による昇温中に原子空孔が移動し、ボイドが成長したのと考えている。673K で 5keV D_2^+ イオン照射した試料は損傷ピーク位置で 20dpa の照射であるが、ボイドからの重水素放出が検出されなかった。これは損傷ピーク位置が鉄イオン照射 (1 μm) に比べて 5nm と浅く、形成した原子空孔が表面に逃げ、ボイドが成長しにくく、形成しても濃度が低かった、あるいは、照射によるスパッタリングでボイドが形成した層が消滅したからだと考えている。上述の 450 K、560 K、640 K、840 K 付近のピークについて重水素の解離エネルギーを求めたところ、それぞれ 1.19eV、1.45eV、1.63eV、2.19eV となる。

参考文献

- [1] G. McCracken, P. Stott, Nucl. Fusion 19 (1979) 889.
- [2] F. Maury *et al.*, Radiat. Eff. 38 (1978) 53.
- [3] J.F. Ziegler *et al.*, *The Stopping and Range of Ions in Solids* (1985) (New York: Pergamon)
- [4] A. Zielinski *et al.*, Acta Metall. 25 (1977) 551.
- [5] R. Gibara, Trans, Metall. Soc. AIME, 239 (1967) 1574.
- [6] S.M. Myers *et al.*, J. Appl. Phys. 50 (1979) 5710.
- [7] S.M. Myers *et al.*, J. Appl. Phys. 53 (1982) 8734.

(P37) ストロンチウム及びカルシウムの化学交換法における同位体分別研究 II

(大産大、東工大原子炉¹、京大原子炉³) ○裕隆太、佐久間洋一¹、伊藤彩、藤井俊行²、福谷哲²、芝原雄司²

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。

2. 実験： $^{40}\text{Ca}^{2+}$ (水相) \rightleftharpoons $^{48}\text{Ca}^{2+}\text{L}$ (有機相) \rightleftharpoons $^{48}\text{Ca}^{2+}$ (水相) \rightleftharpoons $^{40}\text{Ca}^{2+}\text{L}$ (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。

3. 結果：表1にこれまでのSr及びCaの単位質量当りの分離係数の主な実験結果一覧（昨年度報告と併せ、結果を網羅）を示す。総じて、Sr・Ca共に、クラウンエーテルはイオン交換法と比較して数十倍の分離係数を与え、同位体効果に留まらず分離に応用可能な能力を有しているといえる。

$\epsilon / \Delta M$ [$\times 10^{-5}$]	Method and system	Temp. ($^{\circ}\text{C}$)	Ref.
51~17 (Sr)	Liquid-liquid extraction (LLE) with dicyclohexano-18-crown-6 (DC18C6). 2.3M-0.5M Sr in aqueous phase.	20 \pm 0.5	[1]
0.31 (Sr)	Cation-exchange chromatography with Sr lactate.	25 \pm 0.2	[2]
0.29 (Sr)	Cation-exchange chromatography with Sr acetate.	25 \pm 0.2	
0.10 (Sr)	Cation-exchange chromatography with Sr chloride.	25 \pm 0.2	
100 (Ca)	LLE with DC18C6. 0.07M CHCl_3	25	[3]
0.5~0.4 (Ca)	Solid-liquid chromatography (SLC) with ion exchange resin (Dowex50B)	—(Not specified)	[4]
3.7 (Ca)	SLC with ion exchange resin (Dowex1,50).	—	[5]
5.3 (Ca)	SLC with ion exchange resin (Dowex50W).	—	[6]
11	SLC with ion exchange	—	[7]

(Ca)	resin (Dowex) with NH_4 α -hydroxyisobutyrate		
51 (Ca)	SLC with ion exchange resin (ANKB-50) with iminodiacetate	—	[8]
13~87 (Ca)	SLC with ion exchange resin (PK-1) with counter-current	24-82	[9]
2~5.2 (Ca)	SLC with ion exchange resin (Asahi LS-6)	25	[10]
12 (Ca)	SLC with ion exchange resin (AG50WX4)	25	[11]
88 (Ca)	SLC with crown-ether resin (18C6, dimethylsulfoxide)	88	[12]
45 (Ca)	SLC with crown-ether resin (benzo-18C6). 9M HCl (0.8mm ϕ ,1m)	35	[13]
38 (Ca)	SLC with crown-ether resin (benzo-18C6). 9M HCl (0.8mm ϕ ,200m)	35	
75 (Ca)	SLC with crown-ether resin (benzo-18C6). Methanol	25	[14]
48 (Ca)	SLC with crown-ether resin (benzo-18C6). Ethanol/HCl mixed	40	[15]
13~24 (Ca)	Ion Exchange Electromigration	20,25,40	[16]
150* (Ca)	LLE with DC18C6 0.07M CHCl_3	20	This work
175* (Ca)	LLE with DC18C6 0.07M CHCl_3	2	This work

Table 1. Unit mass enrichment factors of Sr and Ca isotope separation. *: Preliminary

参考文献

- [1] K. Nishizawa *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol., **32**(1995)1230.
 [2] T. Oi *et al.*, Sep. Sci. Technol., **27** (1992) 631.
 [3] B. E. Jepson *et al.*, J. Inorg. Nucl. Chem. **38**(1976)1175.
 [4] G. D. Klinskii *et al.*, Russ. J. Phys. Chem. **48**(1974) 659.
 [5] D. A. Lee, J. Inorg. Nucl. Chem. **38**(1976) 161.
 [6] W. A. Russell *et al.*, Anal. Chem. **50**(1978)1151.
 [7] J. Aaltonen, J. Suomen Kemi **B44**(1971)1.
 [8] V. V. Gutsykov *et al.*, Russ. J. Phys. Chem. **55**(1981)1667.
 [9] N. Kobayashi, J. Chromatogr. **252**(1982)121.
 [10] T. Oi *et al.*, Sep. Sci. Technol., **28** (1993) 1971.
 [11] B. E. Jepson *et al.*, Sep. Sci. Technol., **22** (1984) 1029.
 [12] B. E. Jepson *et al.*, Sep. Sci. Technol., **28**(1993) 507.
 [13] S. Umehara *et al.*, Prog. Theor. Exp. Phys. **2015**, 053C03.
 [14] S. Nemoto *et al.*, Isotopes Envir. Heal. Stu. **49**(2013)257
 [15] S. Okumura *et al.*, J. Chromatogr. **A1415**(2015)67.
 [16] Y. Fujii *et al.*, Z. Natureforsch., **40a** (1985) 843.

(P38) 境界条件制御による気泡微細化沸騰の伝熱促進

(京大院エネ、京大原子炉¹) ○刀塚淳、伊藤大介¹、齊藤泰司¹

1. はじめに：核破碎中性子源や加速器駆動システムなどの核エネルギーシステムにおける固体ターゲットの冷却システムでは、高サブクール、高液流速、微小伝熱面に熱負荷が集中するといった条件から、限界熱流束(CHF: Critical Heat Flux)を超えて熱流束が観測される気泡微細化沸騰(MEB: Microbubble Emission Boiling)[1]が発生する可能性がある。熊谷らは、サブクール度や流速の変化による MEB の特性の変化を確認している[2]。著者らは、サブクール度や流速だけでなく、伝熱面の濡れ性が気泡微細化沸騰におよぼす影響についても調べた[3]。本研究では、伝熱面上およびその周囲にセラミックス多孔質体などの構造物を設置することで伝熱面の周囲の流れを変化させ、微小伝熱面におけるサブクール沸騰熱伝達への影響を調べるとともに、MEB 現象の熱伝達機構を解明することを目的とする。

2. 実験：試験部の概略図を Fig.1 に示す。試験部は、直径 10mm の銅円柱端面を伝熱面とし、下部は円錐状の銅ブロックとなっている。銅ブロックには 18 本のカートリッジヒータ(200W)が挿入されている。伝熱面周りには板厚 1.65mm のステンレス板を溶接し面に加工している。伝熱面下の円柱部には Fig.1 に示すようにシース型熱電対を高さ方向に 3ヶ所設置している

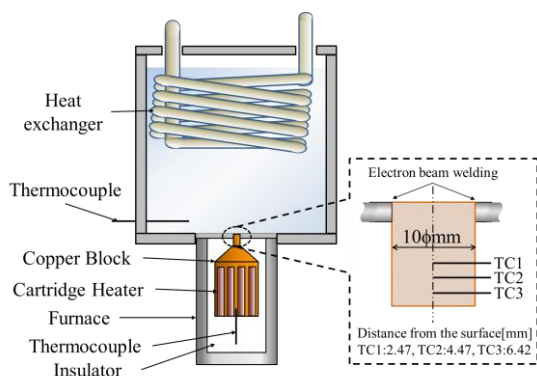


Fig. 1. Schematic of experimental apparatus.

脱気を行なった後、ゆっくりと銅ブロックを加熱し、沸騰実験を行った。加熱中の表面温度と熱流束は銅ブロック内の準定常状態を仮定し、1次元熱伝導式によって算出した。

また、セラミックス多孔質体のブロックを組み合わせ、中心に $10 \times 10 \text{mm}^2$ の穴の開いた厚さ 20mm の多孔質体を作成し、穴の中心が伝熱面の中心と一致するように固定した。

3. 結果：Fig.2 にサブクール度 40K においてセラミックス多孔質体の有無が沸騰曲線に与える影響を示す。図中の実線はいずれもプール沸騰における核沸騰熱伝達の経験式である。自然対流領域における沸騰曲線を比較すると、自然対流領域から核沸騰領域への遷移がやや低い壁面過熱度で起こっていることが分かるが、核沸騰領域や CHF 付近においては有意な差は確認できなかった。MEB 領域においては多孔質体を設置していない場合には、CHF 後に安定して MEB が発生し、 10MW/m^2 を超える高熱流束となっているのに対して、多孔質体を設置した場合には高熱流束の MEB と遷移沸騰に近い低熱流束の状態を周期的に繰り返していることが分かる。これは、伝熱面の側方に多孔質体が存在することで伝熱面への側方からの液供給が阻害されたためであると考えられる。

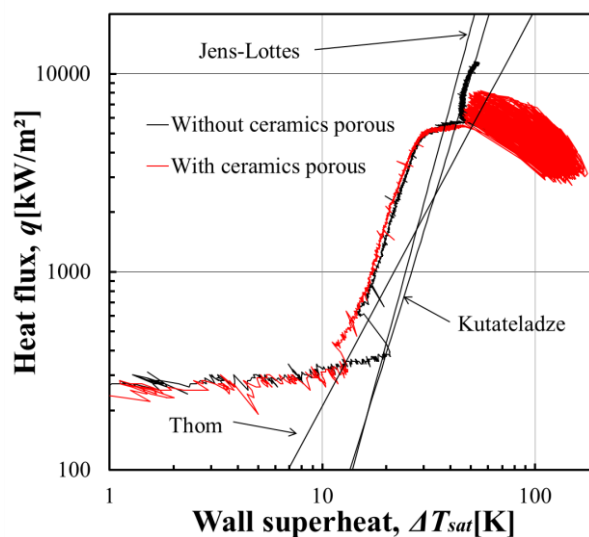


Fig. 2. Comparison of boiling curves.

参考文献

- [1] 稲田茂昭ほか, 日本機械学会論文集(B編), Vol. 47, No. 417, 852-861(1981).
- [2] 熊谷哲ほか, 日本機械学会論文集(B編), Vol. 64, No. 627, 3808-3813(1998).
- [3] 加藤真裕ほか, 混相流シンポジウム, C142(2014).

Enhancement of heat transfer on microbubble emission boiling by boundary condition controls

Jun Natuzuka, Daisuke Ito and Yasushi Saito

natuzuka.jun.22u@st.kyoto-u.ac.jp

(P39) 鉛ビスマス流れの乱流構造に対する流路表面性状の影響

(京大院エネ、京大原子炉¹、INSS²) ○有吉玄、伊藤大介¹、齊藤泰司¹、三島嘉一郎²

1. はじめに：原子炉を利用するにあたり、その冷却性能や炉内熱流動現象の評価は通常運転時や過酷事象時に関わらず、原子炉の安全対策および評価の観点から極めて重要である。燃料集合体を含めた炉内構造物に対する冷却材の濡れ易さ（濡れ性）は、構造物および冷却材間の伝熱特性に影響をおよぼすため、濡れ性の違いは炉の冷却性能にも影響すると考えられる。また、原子炉の安全解析や過酷事象シミュレーションには二相流解析モデルの一つである二流体モデルを基にした計算コード（TRAC, RELAP5）がよく用いられているが、これらの計算コードにおいて流体の壁面摩擦は一般的な单相流の摩擦損失の式を基に導出されている[1]。したがって、冷却材の濡れ性が十分でなく壁面で流体がスリップしている場合に対しては既存の計算コードをそのまま適用するのは不適切である可能性がある。

現在、開発が進む加速器駆動システム（ADS）は放射性廃棄物の合理的な処理方策として有望視されている核変換処理を実現する原子炉であるが、一般的に熔融鉛ビスマス（LBE）を冷却材として用いる。鉛ビスマスは ADS 炉内構造物に対して十分に濡れない可能性があり、その条件における LBE の熱流動特性を十分に調べる必要がある。しかし、ADS に関連した LBE の熱流動に関する既存の研究では、濡れ性をパラメータとした研究は行われていない。そこで、本研究では LBE 单相流および LBE-窒素二相流を対象として、流路表面性状を変化させた際の液相速度変動や乱流強度、ボイド率などの基礎データの計測およびその乱流特性を実験的に検討することを目的とした。

2. 実験：実験には京都大学原子炉実験所熱特性実験室付設の LBE 強制対流ループを用いた。装置は気液混合部、試験部、気液セパレータ、ダウンカマールおよび電磁ポンプにより構成されており、試験部は内径 $D=50$ mm、長さ 2 m のステンレス円管である。計測はファラデーの法則を利用した小型電磁流速計 [2, 3] および電気抵抗式ボイドプローブを用いて行い、高さ方向 3 箇所 ($z/D=3.2, 17.6, 32.4$) に設置した。作動流体は、鉛ビスマス (Pb: 44.5wt%, Bi: 55.5wt%) と高純度窒素ガスを用いた。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、電磁流量計および渦流量計により計測した。出口圧力は大気圧とし、気相見かけ流速を $j_g=0, 0.01, 0.02, 0.04$ m/s、液相見かけ流速を $j_f=0.1, 0.2$ m/s に変化させて実験を行った。また、サンプリング周波数は 10kHz とし、計測時間は気液二相流の場合に 180 秒間、单相流の場合に 120 秒間とし、液温は 200°C とした。

3. 結果：Fig.1 に LBE 気液二相流および单相流の液相速度分布を示す。Fig.1 から、気液二相流および单相流ともに液速見かけ流速の増大に伴った局所液相速度の増加が見られる。しかし、気液二相流の場合には单相流の場合と異なり壁面において液相速度が増加していることが分かる。これは試験部流路壁面が LBE に対して十分に濡れていないため、多数の気泡が壁面付近に捕捉され、その気泡により周囲の液相が加速されることが原因と考えられる。しかし、单相流時の速度分布においては典型的な乱流速度分布と比較的一致しているため、より壁面に近い領域における計測や LBE が濡れやすい表面性状を有した流路を用いて LBE 流れの液相速度変動および相分布を計測するとともにその乱流構造について詳細に検討する必要があると考えられる。

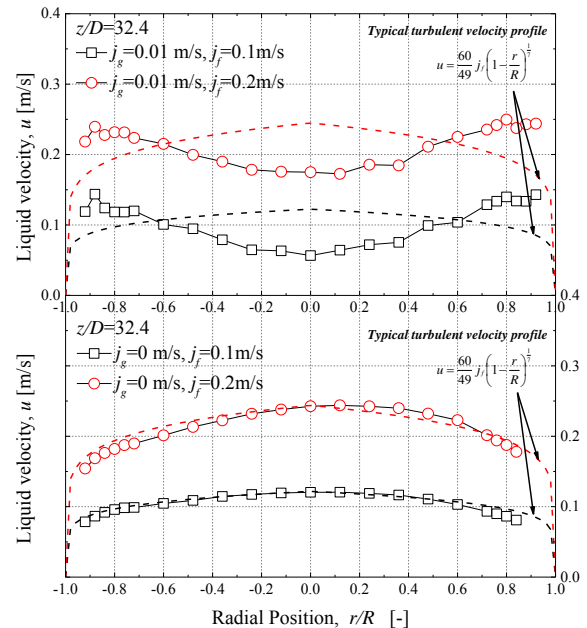


Fig.1 Effect of superficial liquid velocity on liquid velocity profile of two-phase (upper) and single phase flow (lower) at $z/D=32.4$.

参考文献

- [1] 日本原子力学会 熱流動部会 編, “気液二相流の数値解析”, (1993) 92-98.
- [2] 有吉玄ほか, “小型電磁流速計を用いた液体金属気液二相流の乱流計測”, 混相流, Vol. 5, (2014)615-622.
- [3] R. Ricou and C. Vives, “Local Velocity and Mass Transfer Measurements in Molten Metals Using an Incorporated Magnet Probe”, Int. J. Heat Mass Transfer, 25 (1982) 1579-1588.

(P40) 放射化学的中性子放射化分析法を用いた、地球化学的固体試料中の微量ハロゲンの分析

(京大原子炉) ○関本 俊

1. Introduction : Accurate and reliable data of halogen abundance have been rarely reported for terrestrial samples, such as crustal rocks and mantle materials. Since halogens differ in volatility from element to element, their content and relative abundance are highly informative when discussing the petrogenesis of such samples. Among the halogens, iodine is important element in discussion of the geochemical circulation in the earth's surface, oceanic crust, continental crust, and mantle [1]. Simply, the scarcity of reliable data for terrestrial rock samples prevents the geochemical discussion of halogens.

There is a shortage of accurate and reliable data of halogens even for geological reference rocks, as can be witnessed in the data libraries, where only preferable, not certified, values and, for some rocks, no values are listed. This deficit must be largely due to the difficulty in determining trace amounts of halogens within these samples. Recently, we have improved the radiochemical neutron activation analysis (RNAA) procedure for trace amounts of halogens (Cl, Br and I), and demonstrated that our RNAA data for Br and I are more reliable and accurate than the data obtained by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) coupled with pyrohydrolysis preconcentration [2].

In this study, our RNAA procedure was applied to 17 U.S. Geological Survey (USGS) geochemical reference materials (listed in Table 1), where certified values of halogens have never been reported. We will present reliable data for three halogens in 17 USGS reference materials.

Table 1: USGS geochemical reference materials analyzed in this study.

Sample	Type	Sample	Type
BHVO-2	Basalt	COQ-1	Carbonatite
BCR-2		GSP-2	Granodiorite
BIR-1a		SDC-1	Mica Schist
W-2a	Diabase	Nod-P-1	Manganese nodule
AGV-2	Andesite	Nod-A-1	
DNC-1a	Dolerite	DTS-2b	Dunite
CLB-1	Coal	QLO-1a	Quartz Latite
SBC-1	Shale rock	DGPM-1	Disseminated gold ore
SGR-1b			

2. EXPERIMENTS : The USGS materials, together

with a set of three reference halogen samples for quantification, were irradiated for 10 min with a thermal neutron flux of $3.3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ at Kyoto University Research Reactor Institute. After irradiation, the USGS materials were held for a few minutes to enable the decay of ^{28}Al , and were then subjected to radiochemical separation of neutron-activated halogen radionuclides (^{38}Cl , ^{82}Br , and ^{128}I). The radiochemical separation scheme used in this study was essentially the same as that described in Ref[2].

3. RESULTS & DISCUSSION : Regarding BHVO-2, BCR-2, AGV-2, GSP-2, DTS-2b, QLO-1a, COQ-1, SDC-1, Nod-A-1, SBC-1, and SGR-1b, two sets of halogen data agreed within uncertainties, while in BIR-1a, W-2a, DNC-1a, CLB-1, and Nod-P-1 mean values with 1 sigma of standard deviation of four sets of halogen data obtained in this study will be reported in future work.

In CLB-1 and Nod-P-1, especially, their halogen contents are higher than those of the other reference materials by two to three orders of magnitude. Nevertheless, halogen values obtained in CLB-1 and Nod-P-1 did not always agree within uncertainties. Based on accuracy in RNAA applied in this study, homogeneity in the powder specimens may not be guaranteed for CLB-1 and Nod-P-1 and those two samples may be inadequate as a reference material.

Three halogens were also determined for two shale rocks, and it can be seen from Fig. 1 that iodine contents in shale rocks are higher than those in volcanic rocks represented by basaltic rocks (JB-1) by one to two orders of magnitude. This fact implies that iodine-enrichment can be chemical characteristics for the shale rocks, which could be important in the viewpoint of energy resources in the near future.

The RNAA data of the three halogens were compared with corresponding literature data and some inconsistencies were found. The explanation of those inconsistencies are in progress.

参考文献

- [1] B. Deruelle *et al.*, Earth. Planet. Sci. Lett., **108** (1992) 217-227.
- [2] S. Sekimoto and M. Ebihara, Anal. Chem., **85** (2013) 6336-6341.

(P41) D-D 中性子源を用いた中性子エネルギー弁別法による核物質探知システムの開発

(京大院エネ科、京大原子炉¹⁾) ○土肥和誠、三澤毅¹、高橋佳之¹、北村康則¹

1. はじめに：米国で発生した同時多発テロをきっかけに、国際社会では核テロ行為対策の強化が課題となっている。核物質の不正な移動を未然に防ぐため、海運や空輸で搬出されるコンテナに対する核物質探知システムの開発が求められる。

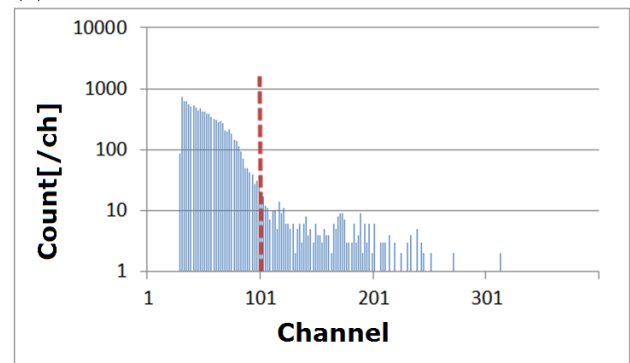
核物質探知の手法の1つとして、測定対象物に中性子を照射して核物質の核分裂反応を誘発し、その結果発生する放射線を計測することで核物質を探知するアクティブ中性子法が考案されている。

本研究では、アクティブ中性子法における中性子源として2.45MeVの中性子を発生させるD-D中性子源の使用し、エネルギー弁別法により核物質の有無を判定する新しい手法を開発することを目的としている。

2. 実験：核物質として核分裂計数管内に含まれる合計約10gの93%高濃縮ウランを用い、D-D中性子源を鉄板を用いた模擬コンテナに照射し、有機液体シンチレータにより中性子のエネルギーを測定した。なお、中性子発生率は約 1.0×10^5 [1/sec]であった。

3. 結果・考察：図1に有機シンチレータの波高分布の測定結果を示す。Na-22によるエネルギー校正と核物質なしのスペクトルに基づき、有機液体シンチレータのエネルギー分解能は22.4%であることが分かり、2.45MeVに相当するch数を決定した。図1における赤破線は2.45MeVに相当するch数を表している。全カウントに対する2.45MeVよりエネルギーの大きい範囲におけるカウントの割合は核物質が有りの場合で3.4%、無しの場合で1.1%となった。核物質有りのカウントの割合は、無しの場合に比べて有意に大きくなり検出器の分解能を考慮しても2.45MeVより大きいエネルギーの信号を検出したことが確認できた。核物質がない場合の2.45MeVよりエネルギーの大きいカウントは、主に信号のパイルアップに起因していると考えられる。今後は検出器の信号の波形データ処理を行うことによるノイズ低減、バックグラウンドに存在するガンマ線や高エネルギー中性子の影響を除去し、さらにコンテナ周囲の減速材や遮へい材の配置を改善することを検討している。

(1)With FC case



(2)Without FC case

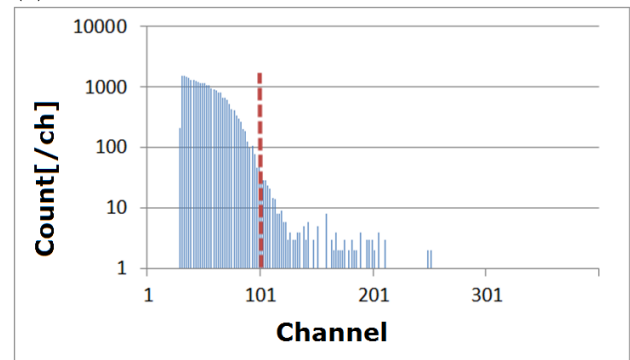


Fig. 1. Pulse-height distribution of detector in each case.

参考文献

- [1] G. Dietze and H. Klein, Gamma-calibration of NE-213 scintillation counters, Nuclear Instruments and Methods, 193(1982), 549-556

(PJ2) 原子力先進材料における高エネルギー粒子線の照射効果

(京大原子炉、法政大¹、高知工科大²、鳴門教育大³、東北大金研⁴、大阪府大⁵、福井大⁶、広島国際大⁷、京大エネ研⁸、京大⁹、九大応力研¹⁰、富山大¹¹、鹿児島大¹²、KEK¹³) ○徐虬、栗山一男¹、新田紀子²、栗田高明³、永井康介⁴、堀史説⁵、福元謙一⁶、向田一郎⁷、笠田竜太⁸、土田秀次⁹、徳永和俊¹⁰、波多野雄治¹¹、佐藤紘一¹²、中本建志¹³

1. はじめに：耐照射の原子力先進材料や新しい物性を持つ機能性材料の開発のために、中性子、イオン、電子及び γ 線などの高エネルギー粒子を用いた照射が必要である。本研究は、照射による材料の微細組織の変化及びそれが物性に及ぼす影響について調べることを目的とした。3年間のプロジェクト研究においては、KURがほとんど停止したため、ライナックの電子線を中心した照射研究が行われてきた。また、照射対象が違う研究グループの研究情報交換により、固体材料の照射効果の研究を推進した。

2. 主な研究成果：ここで報告された成果は主に電子線や γ 線、またはKUR中性子照射によるものであった。以下に各分担者の研究成果の概要を述べる。

2.1 化合物半導体の照射効果と電気的・光学的特性に関する研究 (栗山 一男)

中性子転換注入 (NTD) 法は半導体への転換注入不純物の均質なドーピングに使用されている。本研究では窒化ガリウム (GaN) へのNTDを試みた。フォトルミネッセンス測定より、3.35~3.10 eVおよび2.89eVの発光が観測された。この発光は転換注入された¹⁴CおよびGeドナーのDX様センターにそれぞれ起因すると考えられる。すなわち、伝導帯下500meVにGaの(n, γ)反応によって生成されるGeのDX様センターと価電子帯上230meVにアクセプター準位を形成する¹⁴Nの(n, p)反応によって生成される¹⁴Cに起因する発光である。しかし、1273KアニールしたNTD-GaNにおいてもGeのDX様センターの電子は¹⁴Cアクセプターにより補償され 10^{16} Ω cmの高抵抗を示す。そこで、交流 (AC) ホール効果測定によりキャリア濃度の温度依存性から活性化エネルギーを算出した結果、約960meVのエネルギー準位の存在を明らかにした。この準位は格子間窒素 (N_i) の欠陥準位の計算値 (伝導帯下1eV) と良い一致を示していることから、NTD過程によって N_i が生成される可能性を示唆した。H⁺ビームを用いたラザフォード後方散乱 (RBS) 測定によりN格子の変位を観測した。この結果はACホール効果測定の結果と良い一致を示していることから、本研究で観測した約960meVの準位は N_i であると同定した。以上の実験結果より、NTD-GaN中のGeドナーのDX様センターを N_i および¹⁴Cアクセプターが補償しているため、高抵抗化していることを明らかにした。ACホール効果測定における、約960 meVの活性化エネルギーは、伝導帯下650 \pm 25 meVに位置するフェルミ準位以下に位置する N_i アクセプターから

電子が熱励起されたものを伝導電子として観測したものと考えられる。

2.2 イオン種を変化させた照射による GaSb 表面構造の観察 (新田紀子、谷脇雅文)

GaSb、InSb、Geにイオン照射を行なうと表面にセル状構造が形成される。その形成機構はイオンのカスケード損傷によって導入される点欠陥の集合によって説明される。これまでの研究でイオンの照射量と照射温度を変化させた実験を行ない、それを示している。しかしながら、形成機構の詳細、特に照射初期は十分に明らかになっていない。本研究では、形成機構の解明のために、GaSbにイオン種を変えて照射を行い、形成される構造を明らかにした。

単結晶 GaSb に対して、重イオン加速装置 (京大原子炉) を用いて、イオン照射を行った。イオン種はC、Al、Si、Ge、Sn、Pbの6種類、イオン照射条件は、加速電圧60 kV、照射量 $1 \times 10^{19} \sim 2.8 \times 10^{19}$ ions/m²、照射温度102-138 Kである。評価は、走査型電子顕微鏡 (FE-SEM, JEOL JSM-7401F) によって表面を観察した。

照射量を 1×10^{19} ions/m²に一定した場合、形成された表面構造はイオン種によって異なっていた。C、Al、Siを照射したサンプルでは表面に大きな変化はなかった。一方でGe、Sn、Pbを照射したサンプルでは、凹凸構造が観察された。SRIM (The Stopping and Range of Ion in Matter) コードによって求めた点欠陥数を揃えた照射 (点欠陥分布のピーク比から照射量を算出) においても同様の結果であった。これよりイオン種ごとの点欠陥分布が表面構造の形成に影響を与えていることが示された。

2.3 イオン性結晶材料の放射線誘起発光機構 (栗田高明)

(1) 天然ピンク方解石の紫外線励起発光および熱発光

産地の異なる (メキシコおよび中国) ピンク方解石の紫外線励起発光およびガンマ線照射した試料の液体窒素温度から室温までの熱発光を測定した。方解石の不純物元素について誘導結合プラズマ発光分析器 (ICP-AES) を用いて測定した。熱発光測定では、両産地とも620nmにピークを持つほぼ同じスペクトルが得られた。不純物分析では含有率が高い元素として、メキシコ産ではマンガンおよび鉛、中国産では鉄および鉛が検出された。先行研究で620nmはマンガンによる発光と考えられているが、

中国産ではマンガンは検出されなかった。紫外線励起 (He-Cd : 325nm) 発光では、メキシコ産では 560nm, 750nm の 2 つのピーク、中国産では 495, 560nm, 750nm の 3 つのピークが観測された。560nm のピークは方解石中の intrinsic な欠陥によるもの、495nm は Pb の発光によるものと考えられる。

(2) 合成方解石の熱発光

方解石を水中の化学反応を用いて、不純物の異なる試料 3 つ (Mn, Mn+Ce, Mn+Pb) を合成した。液体窒素中でガンマ線照射した試料の熱発光を測定したところ、Mn および Mn+Pb では 620nm をピークに持つピークが得られ、Mn+Ce では 640nm をピークに持つスペクトルが得られた。紫外線励起発光による先行研究から、異なる近傍元素の存在下での Mn からの発光は、結晶場の違いによる発光波長の違いが確認されており、このことが原因と考えられているが現在考察中である。

2.4 KUR を用いた新しい陽電子源の開発と材料研究への応用 (永井康介)

KUR 原子炉の B1 孔を用いて、国内初となる原子炉ベースの高強度低速陽電子ビームの構築を行っている。低速陽電子ビームラインは陽電子発生部、高輝度化部、パルス化部、試料チェンバー部からなる。陽電子発生部において、原子炉からの高エネルギー γ 線をタングステン (コンバーター) に照射し、電子・陽電子対生成により陽電子を得る。原子炉内部の中性子を用いて $^{113}\text{Cd}(n, \gamma)^{114}\text{Cd}$ 反応により高エネルギーガンマ線量を上げるため、陽電子発生部をカドミウムで被った。コンバーターで発生した陽電子は白色の連続エネルギー分布を持つため、ここからビームを作ろうとすると特定のエネルギーを選別することになる。しかし、この方法では大部分の陽電子を捨てることになり高強度のビームを作ることは難しい。

そこで、陽電子の仕事関数が負となる材料を減速材として用いることで白色の陽電子を単色にし、ビームを生成することとする。よく知られている減速材として、陽電子の仕事関数が -3eV のタングステンがある。陽電子がタングステンに入射し、拡散中に表面に到達すると 3eV で真空に放出する。近年、高エネルギー加速器研究機構 (KEK) の低速陽電子施設では、タングステン減速材の形状を改良し、ビーム強度の 1 桁向上に成功した。この時の改良を参考にし、KEK の協力のもとに KUR 陽電子ビームの減速材を作成した。タングステンモデレータは格子欠陥を取り除くために、電子線照射により約 2600K でアニール処理をした。その後、線源発生部に取り付け B1 孔のインナスリーブにインストールした。

ビーム装置と遮蔽体の組み立て後、陽電子生成および磁場輸送の確認を行った。試料チェンバー位置で MCP を用いて陽電子ビームの形状を確認し、減速材の格子形状を反映した形状であることがわかっ

た。原子炉 γ 線からの陽電子生成および減速材による白色陽電子の単色化、陽電子磁場輸送が正常に機能していることを確認できた。

KUR 陽電子ビームラインでは、陽電子発生部の下流に高輝度化システムおよびパルス化システムを導入している。高輝度化は、ビーム強度の減少を最小限に留めビーム系を小さくしビーム輝度を高める陽電子ビーム特有の技術である。照射材などの 10mm 角以下の小さな試料を測定するにはこの技術は必要となる。陽電子寿命や運動量時間相関測定には陽電子をパルス化することで時間情報を得る必要がある。このため、チョッパーとバンチャーからなるパルス化システムで、原子炉の γ 線から発生した連続の陽電子ビームをパルス化する。

今後、この 2 つの装置の最適化を行い、高強度低速陽電子ビームを完成させる。その後、様々な陽電子消滅測定 (陽電子消滅同時計数ドップラー広がり測定、陽電子寿命測定、運動量時間相関測定) を行う。

2.5 金属合金への制御照射による局所構造と特性変化 (堀史説)

はじめに：金属材料の照射効果は、材料損傷劣化が動機となり、これまで多くの研究が行われている。しかしながら、近年では材料の機能性改質や機能性付加と言う観点で、様々な現象解明や開発が始まっており、本研究ではその中でも非平衡材料に対する照射効果特性制御により機能性向上を目的として、非平衡材料の照射効果に関する研究を進めた。本プロジェクトでは、バルクサイズで非平衡なアモルファス状態になる Zr 系の合金に対し、照射による強度変化、および構造の変化を様々な条件による違いについて検討するために、京大原子炉では主に電子線照射を実施してきた。今年度までに得られた結果について、以下に簡潔にまとめる。

実験内容 : $\text{Zr}_x\text{Cu}_{90-x}\text{Al}_{10}$ ($x=50, 55, 60, 65$) の 3 元系合金を傾角鋳造法という急冷により非晶質状態で直径 8mm の棒状固体を生成。これを板状に切り出し、X 線および陽電子消滅法により内部の状態を評価し、ビッカース硬度測定により強度を評価した。一方、非平衡状態から過飽和な空隙を除去する予備熱処理を行い、非平衡状態の違いによる照射実験も行った。これらの試料に対し室温 ($\sim 323\text{K}$) にて ($10^{17}\sim 10^{18}$ e/cm^2) 電子線照射を行った。照射後もそれぞれについて構造および強度測定を行った。

結果 : これまで我々は、Zr 系バルクアモルファス合金の照射効果として、イオン照射による緩和現象とは対照的に電子線照射ではより空隙の拡大とランダム化が起こる事を見いだしてきたが、今回の結果では、予備熱処理により、内部状態がより安定化した結果アモルファス合金では高線量照射での照射効果が飽和する傾向を示す事を明らかにした。また、本合金の照射効果の組成依存性を初めて見だし、基質となる Zr 量の増加とともに、導入される空隙サ

イズの増大が抑制されることなどを見いだした。

2.6 中性子・イオン照射を用いたバナジウム合金と高クロム鋼の熱処理による損傷回復過程(福元謙一)

低放射化バナジウム合金(V-4Cr-4Ti)は核融合装置の第一壁およびブランケットの候補材である。高温照射下におけるバナジウム合金の強度変化は損傷組織に依存するが照射クリープやボイドスエリングなどに照射誘起析出物形成による損傷組織の定性的な変化は重照射化における大きな機械的性質変化をもたらすと危惧される。本研究では高温重照射下で形成される照射誘起析出物に特に着目し、機械的性質に及ぼす組織変化について明らかにし、安全性及び経済性に優れた核融合炉ブランケットシステムを提案する方針を得る。

JMTRおよびJOYOで照射したバナジウム合金を東北大金研大洗センターから京大炉実験所に搬送し、引張試験およびTEM観察試験を行った。

低温照射により脆化したバナジウム合金の焼鈍回復試験を行い、773Kにて50時間以上の焼鈍条件で引張変形過程において回復挙動が確認された。TEM観察による焼鈍組織の回復過程から、マトリックス損傷組織回復が照射硬化量を低減され、適切な焼鈍条件を選択することにより照射脆化を回避できることが明らかとなった。

中性子重照射により発生する照射誘起析出物の化学組成を同定するため透過電顕試料作製手法でバナジウム合金に対するレプリカ法を開発した。この手法を用いて照射誘起析出物の組成同定を行い、(Ti,V)-ONC型のTiO構造でTi原子がV原子と置換した準安定的な析出物であることが判明した。今後この手法をも言い他照射量変化による析出物組成変化の研究を通して照射下での析出物安定性に関する議論が出来ることになる。

2.7 高エネルギー粒子線照射した金属中の点欠陥集合体の動的挙動(向田一郎)

本研究においては金属結晶中の格子間原子及び原子空孔の点欠陥微小集合体の移動・構造緩和過程と損傷組織発達過程の関係を明らかにする事に取り組んでいる。特に実用的には重要な高温での照射による損傷組織発達過程は低温での損傷基礎過程の積み上げだけで議論では十分でない熱活性化による点欠陥集合体の準安定状態を占めることが重要な役割を演じていると考えている。今回は格子間原子集合による転位組織の発達過程の解明および原子空孔集合体よりのボイド形成初期過程の解明についての照射実験を行う。京大原子炉実験所の照射実験の場合には低照射量領域のきめ細かい実験が出来る利点があり、他の施設では実施が難しい実験を行うことが可能である。

平成17年度までの5MW運転時の精密制御照射管(SSS)照射の実験によりFCC金属における点欠陥集合体形成過程が明らかになってきた。特に温度変

動照射により低温側であらかじめ点欠陥を導入することにより原子空孔集合体形成に大きな影響を与えることがわかった。従来の5MW照射で実施済みの点欠陥導入速度を変化させるために低出力運転による低フラックス照射を行った試料の損傷組織観察を行う。この実験によりフレンケルペアの形成が遅いときの点欠陥集合体形成について調べることが出来る。平成25年度までに473Kおよび573Kにおける温度一定照射の実験を行った。純銅において1MW照射において473K照射においては観察可能なボイドはほとんど存在せず、573K照射では比較的大きなボイドが数密度は低い観察されることがわかった。今後は473K/573Kの温度変動照射を行い、低温で形成された点欠陥集合体の動的挙動の検討を行う。

2.8 鉄クロム系合金の相平衡に及ぼす照射影響(笠田竜太)

Crを12%以上含有するフェライト系、マルテンサイト系及び二相ステンレス鋼を320~540°Cで長時間時効すると、硬さが上昇するとともに、靱性が著しく低下する475°C脆化が起こる。その原因は高Cr相(α' 相)と低Cr相(α 相)への二相分離であり、その分離はスピノーダル分解によって生じる。前回の発表において、熱時効時間の増加とともにFe-Cr二元系合金の相分離が進行している様子を陽電子消滅分光法によって捉えた結果について報告した。今回は、シミュレーションによって陽電子密度を求めることで相分離の進行の様子を説明するとともに、中性子照射したFe-Cr合金の相分離についても報告する。

第一原理計算ソフトであるVASPを用いて、54原子(3a×3a×3a, a:格子定数)の電子密度を得た。陽電子のシュレーディンガー方程式はKimball-Shortleyらの変分法によって簡便に解き、陽電子密度を求めた。その陽電子密度から陽電子がFeにエンハンスする様子を議論する。

シミュレーションの結果から、Feに陽電子がエンハンスしていることが分かる。一方、Fe中に1個のCrを入れた場合はFeとCrの周辺で陽電子密度がCr中のFeのように大きく異なることはなかった。この結果は実験で得られたドップラー拡がりスペクトルの変化と傾向は一致する。また、中性子照射によって相分離が大幅に促進することも捉えることができた。

2.9 金属の重イオン照射誘起変形における微細構造変化の観察(土田秀次)

本研究では、金属材料へのイオン照射下における欠陥生成・緩和挙動を解明することを目的とし、欠陥成長と結晶界面等のシンクの関係性を明らかにするため、欠陥への水素吸蔵状態や、照射誘起変形における欠陥生成の寄与等を陽電子消滅分光およびX線回折法により調べた。その結果、照射下の大部分の

欠陥は非熱的に緩和することが明らかとなり、最近の分子動力学シミュレーションの結果を反映している。今後は緩和量を実験的に定量評価する研究を継続する予定である。

2.10 高融点金属における水素吸蔵特性に及ぼす高エネルギー粒子線照射効果 (徳永和俊)

本研究では、核融合炉の第一壁・ダイバータのアーマ材料として使用されるタングステン (W) のトリチウム吸蔵に及ぼす照射欠陥形成の影響を調べるために、京都大学原子炉実験所の LINAC により W に電子線照射を行い、その後、トリチウム暴露実験を行った。電子線のエネルギーは 10MeV で、最高 4.5×10^{-3} DPA まで照射を行った。照射中の試料の温度は、357K である。トリチウム暴露実験は、予備排気温度及び暴露温度共に 373K で行った。また、暴露時の圧力は 1.3 kPa で、トリチウムの濃度は 5% である。暴露後、トリチウムの吸蔵挙動をイメージングプレート (IP) 法及び β 線誘起 X 線計測法 (β -ray-Induced X-ray Spectrometry: BIXS 法) により調べた。IP 法による測定結果では、電子線照射によりトリチウムの表面近傍の吸蔵量は増加することがわかった。特に、表面が、圧延面に垂直で圧延方向に垂直な試料は、圧延面に平行で圧延方向に平行な試料より、3 倍程度電子線照射後のトリチウムが多いことがわかった。このことは、粒界が表面に垂直なものが多い試料ほど電子線照射後のトリチウムの表面近傍の吸蔵が多いことを示している。また、BIXS 測定では、照射試料は未照射試料と比較し W の特性 X 線の強度が大きく、未照射試料より内部にトリチウムが拡散していることがわかった。

2.11 タングステン中の照射欠陥による水素同位体捕獲機構 (波多野雄治)

将来のエネルギー源として期待される核融合炉の真空容器中のトリチウム (T) 滞留量を評価するには、壁材料候補材であるタングステン (W) 中の水素同位体蓄積とそれに及ぼす中性子照射の影響に関する知見が不可欠である。しかし、核融合炉中での T 蓄積量を予測できるほど照射欠陥による水素同位体捕獲に関する基礎データ (照射欠陥一つ当たりに捕獲される水素同位体原子数、結合エネルギーなど) は整備されていない。そこで本研究では、電子線照射により単空孔を導入した W 試料を真空中および重水素 (D_2) ガス雰囲気中で加熱し、陽電子寿命の変化を測定することで、空孔型欠陥と D 原子の相互作用を調べた。

試料には直径 6 mm、厚さ 0.2 mm の W ディスクを用いた。この試料を京都大学原子炉実験所の L バンド電子線型加速器にて 8.5 MeV の電子線パルスビームを 62.5 時間照射した。電子ビームのフルエンスとはじき出し断面積 [2] より、損傷量は 10^{-3} dpa と見積もられた。照射後の試料を真空中あるいは 0.1 MPa の D_2 ガス中で 573K に 100 時間加熱した。そののち、

^{22}Na 線源を用いた陽電子寿命測定を、東北大学金属材料研究所附属量子エネルギー材料科学国際研究センターにおいて実施した。

電子線照射前の陽電子寿命は W マトリックスでの消滅に相当した。電子線照射により空孔が導入されたことで、明確な陽電子寿命の増大が観察された。真空中で 573K に加熱することで陽電子寿命はさらに増大した。この時の陽電子寿命スペクトルは 2 成分で解析でき、長寿命成分が 341.8 ps に達していることがわかった。これは、およそ 10 個の空孔が集積したクラスターでの寿命に相当する。 D_2 ガス中で加熱した場合の長寿命成分の値は 278.9 ps であり、真空加熱の場合と比べ明らかに短かった。このような寿命の違いには、以下の二つの機構が考えられる。

(1) D が空孔クラスター内に捕獲されることで、クラスター内の空間が減少した。

(2) 空孔が D を捕獲することでその拡散係数が減少し、クラスターの成長が抑制された。

空孔クラスター内に水素原子が捕獲されることによる寿命変化は、量子力学計算により捕獲水素原子数の関数として評価が可能である。すなわち、(1) が支配的である場合には、量子力学計算の結果とつき合わせることで、本手法により捕獲水素原子数を空孔クラスターの大きさの関数として求めることができる。(2) の効果が支配的な場合には、核融合炉環境下での照射損傷組織の発達に水素同位体が大きな影響を及ぼすということになる。今後、クラスターをより大きく成長させた試料の透過電子顕微鏡観察を行うことで、(1) と (2) の効果の切り分けを試みる。

2.12 電子照射と中性子照射によって形成した金属中の格子欠陥とガス原子の相互作用の解明 (佐藤紘一)

核融合炉や核破砕中性子源の構造材料として低放射化フェライト鋼などの利用が検討されている。これら実用鋼のボイド形成の潜伏期間にどのような過程でボイドやバブルの成長が起こっているかを解明することは、材料のボイド形成抑制のためにとっても重要である。そこで、本研究ではフェライト・マルテンサイト鋼 F82H と T91 のボイド形成の潜伏期間中の点欠陥反応を陽電子消滅分光法によって調べることを目的とする。

フェライト・マルテンサイト鋼 F82H 及び T91 はスイス・ポールシェラー研究所の核破砕中性子源施設で照射された。照射条件は 360–572K で 6.1–20.3dpa であった。核破砕中性子照射の特徴は多量のガス原子 (特に水素とヘリウム) が生成することであり、20.3dpa でそれぞれ 1795appmHe、7700appmH が生成する。欠陥形成の照射量依存性と等時焼鈍挙動を陽電子消滅分光法によって調べた。

343K、500appmHe 以下の条件では F82H ではヘリウムバブルを電子顕微鏡で観察できないが、陽電子消滅を用いると空孔型欠陥を検出できた。照射量

が約 6dpa の時には長寿命値として約 360ps がいずれの材料でも得られた。照射量の増加とともに長寿命値は減少し、15dpa 以上では寿命スペクトルを二成分に分解することができなかった。この寿命測定と CDB 測定から総合的に考察を行い、空孔型欠陥がヘリウムを吸収し、空孔型欠陥の内部に存在するヘリウム原子の量が増したために、陽電子寿命値が照射量とともに減少したと考えられる。ガス原子の存在による陽電子寿命値の減少はシミュレーションからも得られている。

2.13 超伝導磁石材料の極低温における中性子並びに電子線照射試験 (中本建志)

LTL では、超伝導線の安定化材であるアルミ合金と無酸素銅に極低温で中性子を照射し、電気抵抗をその場測定した。2011 年から 2014 年にかけて、照射と室温アニールを繰り返し、照射による電気抵抗の劣化とその回復における影響を調べた。詳細については P24 を参照する。

(N1) 腫瘍内微小環境を標的としたがん細胞増感

(京大原子炉) ○真田悠生

1. はじめに：(京大原子炉所属前の研究) 生物の細胞内では、呼吸や電離放射線などによって活性酸素種 (ROS) が絶えず発生しており、様々な DNA 酸化損傷をもたらしている。8-oxo-dGTP はヌクレオチドプール中で生じる dGTP の酸化損傷の1つであり、シトシンだけでなくアデニンの向かいにも取り込まれ突然変異を引き起こし、発がんなどの原因になる。このような突然変異を防ぐため、生物には損傷ヌクレオチドを分解する機構が備わっており、線虫 *Caenorhabditis elegans* (*C. elegans*) では、NDX-1、-2、-4 の3つの酵素が損傷ヌクレオチドの分解を行うことがわかっている [1, 2]。 *ndx* 遺伝子をノックアウト、またはノックダウンすると、methyl viologen、menadione bisulfite による酸化ストレス条件で、卵から成虫に到達する割合が減少する。この感受性は、チェックポイント遺伝子 *chk-2*、*clk-2* のノックダウンによりレスキューされる (Fig. 1)。以上のことから、酸化損傷ヌクレオチドの蓄積に反応して、成長を制御する仕組みが線虫に備わっていることを示唆している [2]。

(所属後の研究) 腫瘍内休止期細胞は、治療後の再発や他の組織への転移につながる原因の1つとされ、その出現には腫瘍内微小環境が関与していると考えられている [3]。がん治療への応用が期待されている糖尿病薬metformin は低グルコース環境の細胞には殺細胞効果を示すが、低酸素環境の細胞には示さない [4]。そこで本研究では、低酸素応答経路を制御することによるmetforminの殺細胞効果への影響を検証することにした。

2. 実験：CRISPR/Cas9 system を用いて Hif-1 α 遺伝子をノックアウトした腫瘍細胞 (マウス SCCVII 細胞) を樹立した。1.0 \times 10⁵ cells/mL (グルコース不含培地) の細胞に metformin を加え、24 時間後に生存率を測定した。死細胞の検出には、PI (Propidium Iodide) を用いた。動物実験では、C3H マウス (♀6~7 week-old) に SCCVII 細胞または Hif-1 α -/-細胞を皮下注射した。2 週間後に γ 線照射し、コロニー形成法と微小核出現頻度解析を行って、感受性を評価した。

3. 結果：HIF-1 α 欠損により、metformin 存在下における細胞生存率が SCCVII 細胞と比較して低下した (Fig. 2)。Hif-1 α 欠損細胞は、C3H マウスに皮下注射したとき、SCCVII とほぼ同様に固形腫瘍を形成した。さらに、hif-1 α 欠損細胞は γ 線感受性を示した。

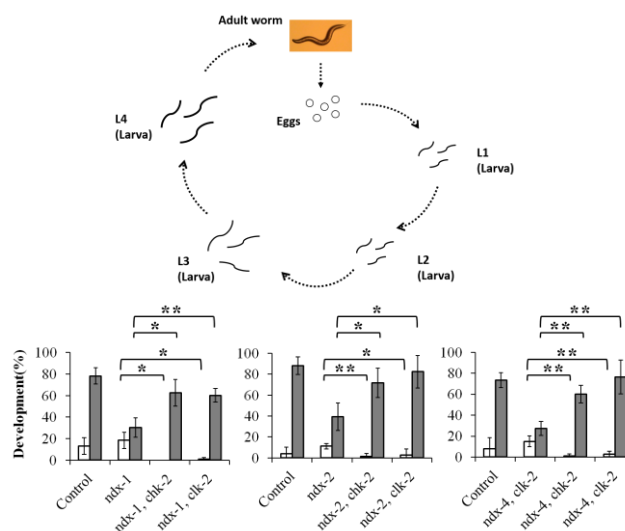


Fig. 1 Effect of knockdown of *chk-2* and *clk-2* on the post-embryonic development of *ndx-1*(RNAi) and *ndx-2*(RNAi) worms and *ndx-4* mutants. (Upper) Life cycle of *C. elegans*. (Lower) The values indicate the number of viable L1-L3/the number of eggs (white bar) and viable L4 and adults/the number of eggs (gray bar) (ref. 2).

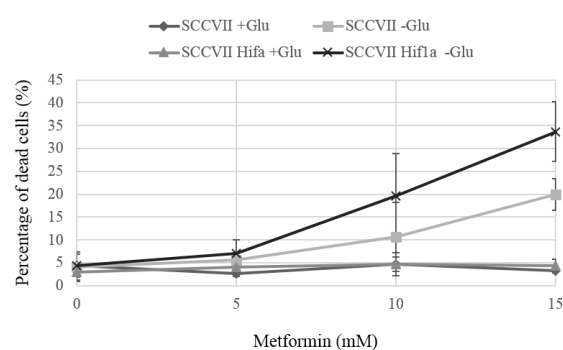


Fig. 2 The sensitivity of SCC VII and Hif-1 α -/- cells to metformin. Cells were treated with the indicated concentrations of metformin in medium without glucose for 24 h. Percentage of dead cells was determined using propidium iodide (PI) staining.

参考文献

- [1] K.D. Arczewska *et al.*, DNA Repair (Amst), 10 (2011) 176-187.
- [2] Y. Sanada and Q-M. Zhang-Akiyama, Mutagenesis, 29 (2014) 107-114.
- [3] D. Barkan *et al.*, Eur. J. Cancer, 46 (2010) 1181-1188.
- [4] C. Garofalo *et al.*, PLoS One, 8 (2013) e83832.

(N2) ガンマ線を用いた原子・分子のスローダイナミクス研究

(京大原子炉、JASRI¹) ○齋藤真器名、瀬戸誠、増田亮、小林康浩、北尾真司、黒葛真行、依田芳卓¹

1.はじめに:原子核の中には、その励起準位が10keV程度と比較的低いものが存在する。例えば⁵⁷Fe原子核の第一励起準位の励起エネルギーは約14.4keVであり、そのような励起状態から弾性的に放射されるガンマ線を考える。この⁵⁷Feガンマ線のエネルギーを波長に直すと0.087nmであることから分かるように、⁵⁷Feガンマ線は原子・分子スケールの構造研究に用いることができる。一方、⁵⁷Feガンマ線のエネルギー不確定幅は、10keVオーダーのエネルギーに対し、わずか4.6neVであり、⁵⁷Feガンマ線の相対エネルギー不確定性は 10^{-13} のオーダーに達する。ここで、ある励起原子核から弾性的に放射されたガンマ線が別な原子核を弾性的に励起する過程を考える。ガンマ線のエネルギーが途中でわずか 10^{13} 分の1変化しても、ほかの原子核が励起される可能性は大きく減ることになる。このことから、原子核から放射されるガンマ線は極めて単色であり、超高精度の光のエネルギー変化の測定に用いることができると言える。この様なガンマ線の単色性を用いた初期の重要な例としては1960年のPoundらの実験がある。[1]この実験により光のエネルギーの重力による赤方偏移が地球上で初めて証明された。一方、ガンマ線の高い単色性は物性研究にも用いられている。メスbauer分光法は、ガンマ線を放射する核と吸収する核において核周囲の電子状態等の違いを反映して両者の励起エネルギーが変化する様子を調べることにより物性研究を行う手法である。半世紀以上にわたり様々な核種・試料に対し測定が行われてきた。[2]

さらに、励起原子核から放射されたガンマ線を、共鳴原子核を含まない液体等に当てて散乱したガンマ線のエネルギー変化を別な原子核を用いて調べる手法であるガンマ線レイリー散乱法も古くから行われてきた。[3]このような手法は準弾性散乱法と呼ばれ、⁵⁷Feガンマ線をプローブとして用いた場合原子・分子スケールの電荷密度の相関の緩和現象を知ることができる。調べることが可能な時間スケールはガンマ線の単色性の度合いと深く関係しており、単色性が高いほど遅い運動を調べることができる。⁵⁷Feガンマ線を用いた手法では100ns程度の時間スケールの緩和現象を調べることができる。図1にこの手法がカバーする空間、時間スケールをその他の準弾性散乱法と比較して示す。図を見て分かるように、本手法は他の手法が十分カバーしていない特徴的な領域をカバーしていることが分かる。しかし、放射性同位体線源から放射されるガンマ線を用いる従来の手法ではその放射ガンマ線が等方的に放射されるのに対し、準弾性散乱実験には指向性のガンマ線が必要とされるため、測定の効率が低かった。

ここで近年第三世代放射光施設の建設により指向性の放射光X線を物性研究に用いることができるよ

うになってきた。この放射光X線により原子核を励起すると原子核より放射されるガンマ線は十分な確率で前方方向に指向性を受け継ぎ放射されることが明らかになっている。このような特徴を用いて、放射光を用いてガンマ線準弾性散乱実験を効率良く行う手法である時間領域干渉計法が実証されてきた。我々はこの手法を開発することにより、これまで0.1~10nmのスケールの構造の、1ns~10 μ sの時間スケールの緩和時間を測定することに成功している。[4]

測定対象の例としては、液体がガラス転移温度に向けて冷却されていく途中の状態である過冷却液体のミクロなダイナミクス測定、液晶やゴムなどのソフトマター中のミクロ・メソスケールのダイナミクス測定が挙げられる。ここではダイナミクス測定による過冷却液体のガラス転移のメカニズムの理解にむけた実験とその結果を紹介する。液体を冷却していくとガラス転移に向けて、わずかな温度変化で緩和時間が10数ケタ変化する場合がある。このような性質が強いほど液体はfragileと言われそうでない場合はstrongと言われる。[5]この様な大きな緩和時間の変化にもかかわらず構造変化がほとんどないため、ガラス転移現象は通常の相転移の枠組みで議論することができず、緩和時間の発散的な変化のメカニズムはガラス転移現象の大きな謎の一つである。その理解のために深く過冷却した液体のミクロなダイナミクス測定が重要である。我々は開発によって本格的な応用が可能になった時間領域干渉計法を、典型的ガラス形成物質o-terphenylに適用し、そのミクロな緩和描像を明らかにする目的で実験を行った。[6]

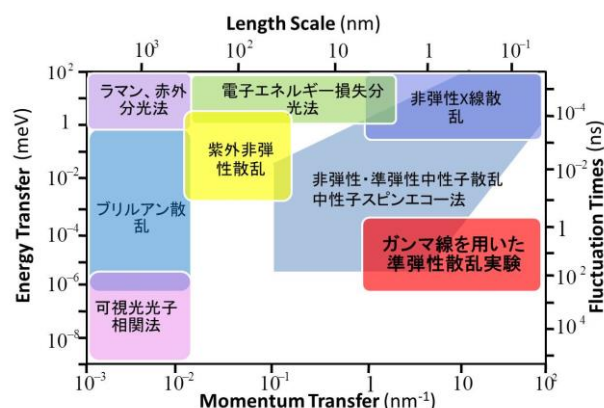


Fig. 1. 様々な非弾性・準弾性散乱法がカバーするゆらぎの時間・空間スケール。

2. 実験: 実験セットアップの概念図を図2に示す。実験は大型放射光施設 SPring-8 の核共鳴散乱ビームラインを用いた。白色の放射光X線は14keVにおいて液体窒素冷却 Si111 モノクロメーターを用いて

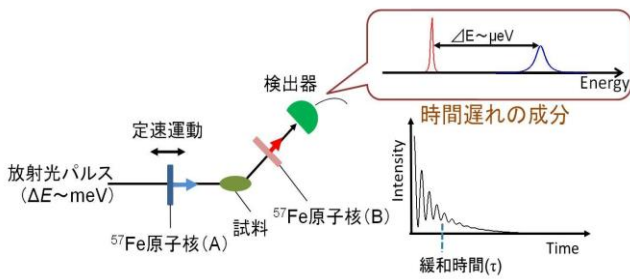


Fig. 2. 実験セットアップの概念図と検出される時間遅れのガンマ線の仮想的エネルギースペクトルと、測定される時間スペクトルの例。

数 eV 程度まで分光したあと Si511-Si975 反射を利用した高分解能モノクロメーターを用いて 3.5 meV のエネルギー不確定幅まで分光した。このような入射光を、 ^{57}Fe 原子核を $1\text{mg}/\text{cm}^2$ 含むフェロシアン化カリマグネシウム吸収体 (A) を通過させる。この透過光は液体ヘリウムフロークライオスタット中の *o*-terphenyl 試料により散乱される。その後、散乱 X 線・ガンマ線は別の同等なフェロシアン化カリマグネシウム吸収体 (B) を通過し検出器で検出される。ここで入射放射光はパルス光であり、その時間幅は約 50 ps である。このときガンマ線は、核励起を起こさない大部分の放射光 X 線に対して核の寿命 ($\sim 141\text{ns}$) 程度遅れて放射される。約 1 ns の時間分解能の検出器である $120\ \mu\text{m}$ 程度の厚みの Si 素子を用いたアヴァランシェフォトダイオード検出器を用いることでパルス放射光に対する時間遅れの成分としてガンマ線を調べることができる。ここで、上流側の吸収体 (A) はガンマ線の透過方向に対して一定速度で運動させておく。このように一方の吸収体に速度を与えることでドップラーシフトの効果により 2 つの吸収体からのガンマ線のエネルギーを相対的に μeV 程度変化させておく。ここで、仮想的に時間遅れのガンマ線のエネルギースペクトルを考える。試料の上流の吸収体 (A) から放射されるガンマ線は試料に散乱されるためそのエネルギー幅は試料の拡散の度合いを反映して広がる。しかし、試料の下流の吸収体 (B) から放射されるガンマ線は、原子核により”分光”されるのが試料により散乱された後であるため、線幅の広がりを受けない。したがって、検出器に到着する時間遅れの成分のエネルギースペクトルは概念的には図 2 の右上の図のようになる。

実際には検出器では時間スペクトルを測定しているため、上記のエネルギースペクトルを有するガンマ線がどのような時間構造を持つか考える。最も単純には励起核の個数は時間に対して指数関数的に減るため、ガンマ線のスペクトルもパルス放射光で励起された時間を原点とする指数関数形を基本として記述できる。ここで、今の測定条件では検出器で検出されたガンマ線が (A) と (B) どちらの吸収体から放射されたものであるか分からず干渉条件を満たす。すると、時間遅れの成分のエネルギースペクトル上の 2 つのピーク成分は、そのフーリエ変換であ

る時間スペクトル上でうなりとして干渉項を生じる。(図 2 の右下図) μeV 程度のエネルギー分裂はおよそ数 ns の周期のうなりに対応し、検出可能である。

ここで、試料中でのミクロな運動が非常に遅い場合、シャープな 2 本のピークの干渉がうなりとして現れるため、うなり成分も明瞭となる。しかし、試料の運動が比較的早い場合は、試料の上流からのガンマ線のエネルギースペクトルが広がるため、結果うなりの周波数にも分布が生じて、うなりが時間的に不明瞭になる効果をもたらす。このうなりの明瞭性が変化する典型的な時間スケールが、試料中のミクロな構造の緩和する時間スケールに対応することを示すことができる。したがって、時間スペクトルを測定しうなりの減衰時間を調べることで、試料中のミクロなダイナミクスを調べることができる。

準弾性散乱実験の特徴は、試料から散乱されてきたガンマ線を検出する散乱角を変えることで、ガンマ線と試料の運動量移行が異なる条件での測定を行うことができることである。運動量移行は典型的にはその逆数が散乱をもたらす構造の空間スケールに対応しているため、多くの角度で時間スペクトルを測定することで、様々なミクロな空間スケールの緩和時間を調べることができる。我々は、多素子のアヴァランシェフォトダイオード検出器を開発することにより、8 角度における散乱の同時測定を可能にしている。散乱角を決める前に、測定対象である *o*-terphenyl からの散乱強度の角度依存性を調べた。その結果を図 3 (a) に示す。

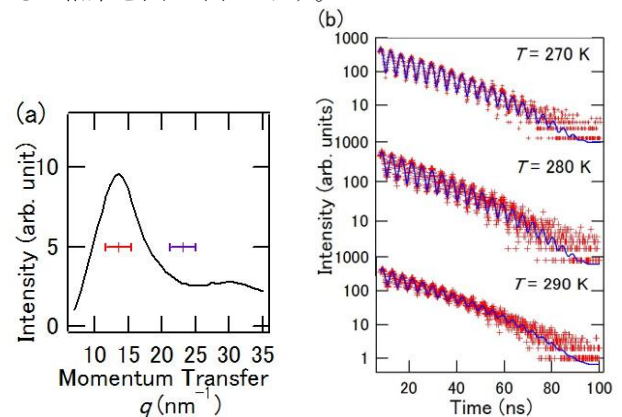


Fig. 3. (a) 散乱強度の運動量移行依存性と今回着目する検出器の 2 つの素子のカバーする領域、(b) 運動量移行 14nm^{-1} において温度 270,280,290K で得られた時間スペクトル。実線は各スペクトルの fit 曲線である。

14nm^{-1} あたりでの回折強度のブロードなピークは、液体中の隣り合う分子間相関に基づく回折を反映したピークである。この角度に検出器を配置し、時間スペクトルを測定することで分子間相関の緩和時間を調べることができる。一方、より高角の散乱角 (運動量移行 $\sim 23\text{nm}^{-1}$) で時間スペクトルを測定することで、分子間スケール以下の空間スケールの構造の緩和を調べることができる。

運動量移行 14nm^{-1} に対応する角度においていくつ

かの温度で得られた時間スペクトルを図3 (b)に示す。温度が高くなると緩和は早くなるため、それに対応してうなりの明瞭性も低下していくことが確認できる。文献4の引用文献に記述してある解析により、各温度・散乱角での平均緩和時間を得た。時間スペクトルの最小二乗法によるフィッティング結果は図3 (b)に示してある。

3. 結果：幾つかの運動量移行（散乱角）条件で解析の結果得られた緩和時間の温度依存性を図4に示す。分子間相関の緩和時間（ 14nm^{-1} ）では緩和時間の温度変化は発散的な Vogel-Fulcher-Tammann 則で良く解析できた。これより、これまでよく知られているように分子間相関の緩和は拡散緩和である α 緩和過程により支配されていることが確認でき、また *o*-terphenyl の fragile な挙動を確認できた。一方でより小さな空間スケールである運動量移行が大きな場合、緩和時間の温度変化は比較的高温側では同様に発散挙動を示すが、約 278K 程度より低温側では発散挙動から Arrhenius 則で表されるより穏やかな緩和挙動に従うということが分かった。Arrhenius 則で解析した結果得られた活性化エネルギーは、*o*-terphenyl でこれまで知られていた活性化過程である slow β 緩和過程のものと整合した。この結果からこれまで示唆されているように、slow β 緩和過程は局所的なスケールの緩和であることが分かった。また、slow β 緩和過程の α 緩和過程からの分岐温度はこれまで知られていた 290K よりも低い 278K であることが分かった。そもそも既存の手法ではこれらの緩和過程の分岐温度近傍で緩和を調べる際に十分な緩和の空間スケール分解能がなかったために正確な分岐温度を知ることができなく、低温での slow β 緩和過程の温度依存性を α 緩和過程の温度依存性に外挿することで分岐温度を求めてきた。しかし、緩和の空間分解能を有する本手法を用いることで、そもそも α 緩和と slow β 緩和の起きている空間スケールは異なるため、外挿して分岐温度を求めるとということ自体に物理的に意味はなく、分子間スケール以下の空間スケールで緩和の起源が α 緩和から slow β 緩和に移り変わる温度を分岐温度と定義すべきであることを示した。

さらに、我々は 265K というガラス転移温度（およそ 244K）に比較的近い温度での緩和時間の運動量移行依存性は、これまで知られていた液体や浅く過冷却した液体中でのものとは明らかに異なる振る舞いをしていることが示した。このような異常なダイナミクスは、いわゆるケージ効果によって、深く過冷却した液体中での拡散運動が局所的になっていることを示していると考えられるため、現在さらに詳細な研究を行っている。

このように、 ^{57}Fe 原子核からのガンマ線は原子・

分子スケールを調べるのに適した波長を有し非常に単色性である。その性質を有効に用いることによって、過冷却液体のダイナミクスが明らかになってきた。現在では複数の異なるエネルギーのガンマ線を同時にブローブ・リファレンス光として用いる新しい時間領域干渉計法が応用の段階に達している。[7] この手法は、(1) ガンマ線の強度が数倍増加する、(2) より遅い時間スケールの緩和（ $\sim 500\text{ns}$ ）まで調べられる、(3) 測定の効率が相対的にとても高い、(4) 測定セットアップがより単純、などこれまでに比べて非常に強力な手法であり、小角散乱成分の時間スペクトル測定など、これまで不可能であった測定が行われている。さらなる装置開発と、液体・ソフトマターなど広い対象の物性研究を行っていきたいと考えている。

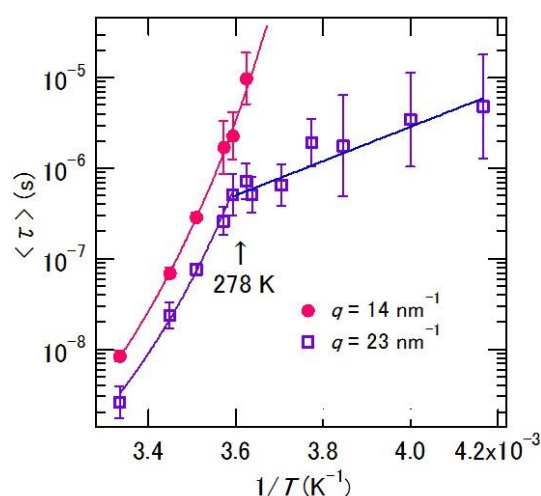


Fig. 4. 運動量移行 14nm^{-1} 、 23nm^{-1} において得られた緩和時間の温度依存性。実線は本文に記述されるようにそれぞれ fit 曲線を示す。

参考文献

- [1] R. V. Pound, G. A. Rebka, Jr. Phys. Rev. Lett. 7 (1960) 337-341.
- [2] N. N. Greenwood, T. C. Gibb, "Mössbauer Spectroscopy" Chapman and Hall Ltd, London, 1971.
- [3] C. D. Champeney, Rep. Prog. Phys. 42 1017 (1979).
- [4] 齋藤真器名、瀬戸誠、固体物理、(アグネ技術センター、2012)、12月号、747.
- [5] M. D. Ediger, C. A. Angell, S. R. Nagel, J. Phys. Chem. 100 (1996) 13200-13212.
- [6] Makina Saito, Shinji Kitao, Yasuhiro Kobayashi, Masayuki Kurokuzu, Yoshitaka Yoda, Makoto Seto: Phys. Rev. Lett. 109 (2012) 115705 (5pages).
- [7] Makina Saito, Makoto Seto, Shinji Kitao, Yasuhiro Kobayashi, Masayuki Kurokuzu, and Yoshitaka Yoda: Hyperfine Interact. 206 (2012) 87-90.

(T3) 脳腫瘍 BNCT のための生物学的基礎研究—脳壊死モデル作成と腫瘍幹細胞に関する研究—

(京大原子炉、若狭湾エネルギー研究センター¹、大阪医科大学²、長崎国際大学³、京大放射性同位元素総合センター⁴、オハイオ州立大学⁵)

○近藤夏子、櫻井良憲、高田卓志、鈴木実、仲川洋介、田中浩基、藤本望、渡邊翼、増永慎一郎、小野公二、久米恭¹、宮武伸一²、川端信司²、高井伸彦³、木村寛之⁴、Rolf Barth⁵、Norm Lehman⁵、中野伊知郎⁵

1. はじめに：再発悪性神経膠腫に対して硼素中性子捕捉療法 (Boron Neutron Capture Therapy : BNCT) は局所制御に有効であり、患者の予後を改善している [1, 2]。一方、BNCT 後再発悪性神経膠腫の患者の死因を調べてみると約半分の患者が脳脊髄液腔への播種 (Cerebral Spinal Fluid (CSF) dissemination) で亡くなり、約 20%の患者に放射線脳壊死(Radiation necrosis: RN)が発症し、10%の患者が RN で亡くなっている。通常 60GyEq 程度の照射を行うと 6 か月以降に約 5%の患者に晩期有害事象である症候性 RN が起こる。RN は発症した場合、不可逆的でありサイズと脳の局在によって症状が大きく異なり、言語野、運動野、脳幹などの機能的に重要な部位に発症すると致命的である。抗凝固剤、Vitamin E、ステロイドなどの薬剤を使用しても効果は一時的で、Bevacizumab の効果が示されつつあるが、有害事象の問題もあり新たな治療の開発が必須である。我々はまず①RN のマウスモデル確立に取り組むこととした。平成 25 年度より、若狭湾エネルギーセンターの公募型共同研究(基礎研究)に、「陽子線・ヘリウム線による脳壊死モデル作成技術の確立—放射線脳壊死のメカニズム解明と治療法開発を目指して—」として採択され、粒子線による脳壊死モデル作成を本格的に開始した。

②播種に関しては新規診断・再発を含めた悪性神経膠腫患者に対して BNCT を行った後、CSF dissemination を発症した患者の病理を詳細に調べることとした。小児悪性脳腫瘍・神経膠芽腫に対し BNCT 治療後、腫瘍の局所制御は可能であるが播種で再発し死因となっていることも過去から報告されている [1, 3, 4]。一方、腫瘍集団の中には、細胞間に階層があり、多分化能・自ら再生する能力のある腫瘍幹細胞を頂点とし非腫瘍幹細胞を作り出しているという概念がある。腫瘍幹細胞は化学・放射線療法に抵抗性で腫瘍再発に関わっている [5]。BNCT 治療後の播種に脳腫瘍幹細胞がかかわっているかどうかを今後の研究課題としていく必要がある。

2. 実験：①シンクロトロンにより加速した 70MeV の陽子線、および、220MeV まで加速したヘリウム線を減速させて、マウス表面から深さ 4mm の範囲の脳内でほぼ平坦となる拡大ブラッグピーク (Spread Out Bragg Peak; SOBP) の形成を行った。(図 1)。25 年度は深さ 4 mm の範囲で 40-60Gy、26 年度は深さ 3mm の範囲で 60-80Gy の照射を行った。

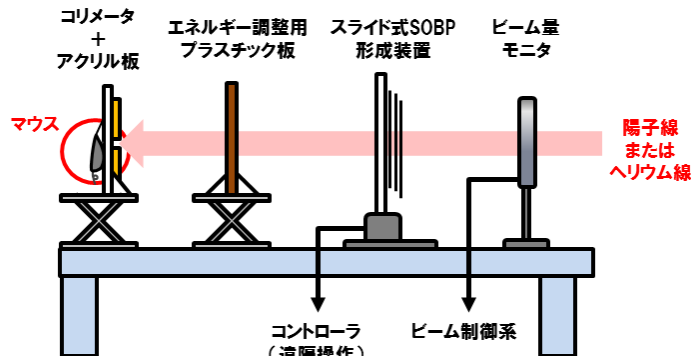


図 1a. 陽子線の照射体系

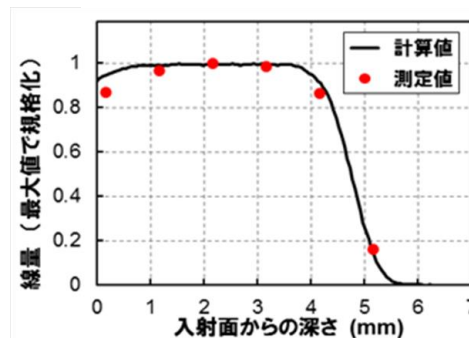


図 1b. 電離箱による SOBP

照射後 1 ヶ月ごとに、京都大学放射性同位元素センター(京大 RI センター)の小動物用の MRI を用いて経過観察を行った。一部をサクリファイスして HE 染色を行った。

②播種に関しては原子炉中性子線源を用いて BNCT の治療を行った新規・再発の悪性神経膠腫の患者で、CSF dissemination を死因で亡くなった 20 人に関して、再発時の病理をオハイオ州立大学の病理学教室と共同研究で検討した。

またオハイオ州立大学附属病院の手術で摘出した悪性神経膠腫患者の腫瘍組織から脳腫瘍幹細胞樹立を試みた(図 2)。脳腫瘍幹細胞マーカーで免疫細胞染色を行い、脳腫瘍幹細胞が存在することを確認した。樹立後、ヌードマウスの脳に移植し腫瘍形成能を確かめた。

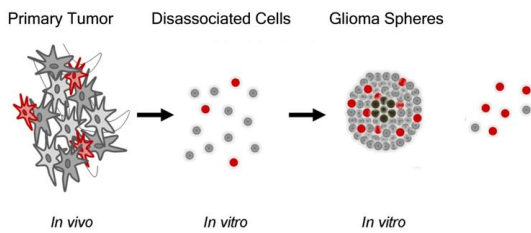
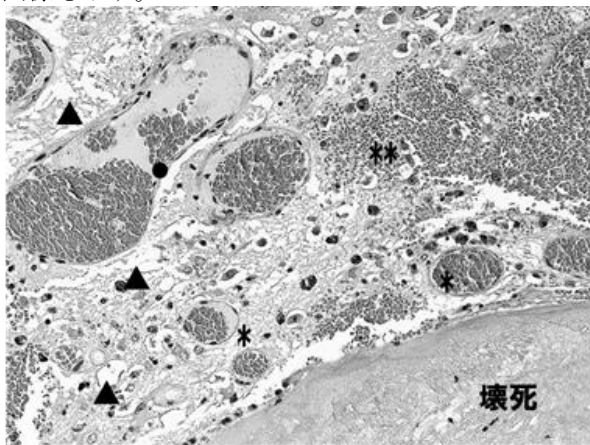


図2. 脳腫瘍幹細胞株の樹立

3. 結果：①照射後8ヶ月でサクリファイスした深さ3mm60Gy照射マウス、および、照射後7ヶ月でサクリファイスした深さ4mm50Gy照射マウスのHE染色を施した脳病理組織写真を、それぞれ、図3,4に示す。各例について、同じマウスのMRI-T2強調画像も示す。



●血管拡張 ▲浮腫 *血管新生 **出血

人の放射線壊死の病理に近く、necrotic core 凝固壊死の周囲に血管新生[*]、血管拡張[●]、浮腫[▲]、出血[**]が認められる。

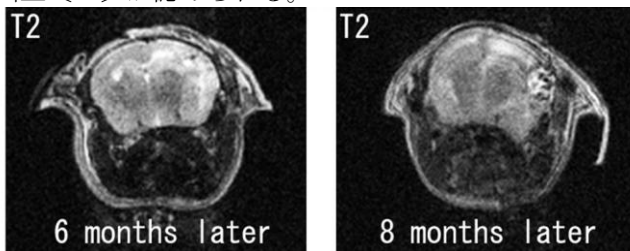


図3. HE染色像とMRIT2強調画像 深さ3mm 60Gy

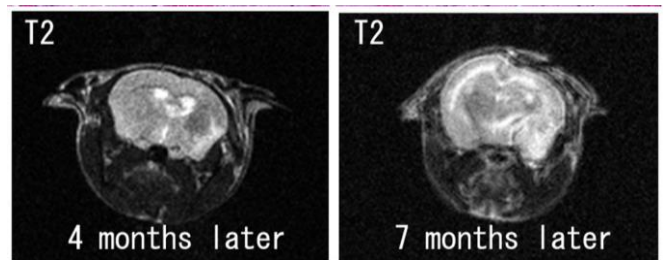
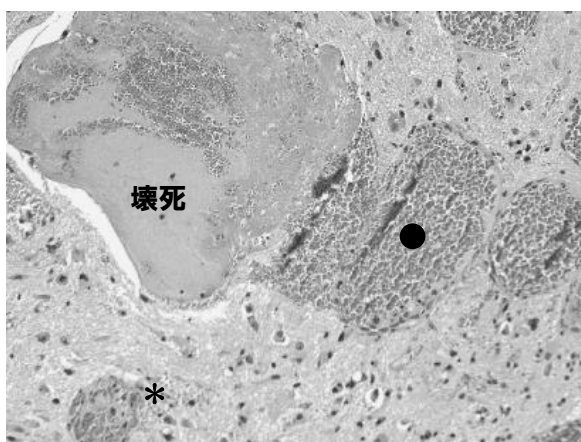


図2の例では、浮腫は顕著ではないが、凝固壊死、血管新生[*]、血管拡張[●]が認められる。

図4. HE染色像 MRIT2強調画像 深さ4mm 50Gy

H26年度は深さ3mmで60,70,80Gyのdose upを試みた。80Gyの照射群に60Gy照射群よりも早期(2か月後)からMRIT2強調画像でhigh intensity areaが出現した。病理HE染色像では2か月後より浮腫、4か月で壊死、出血、浮腫の増強が見られた(図5)。

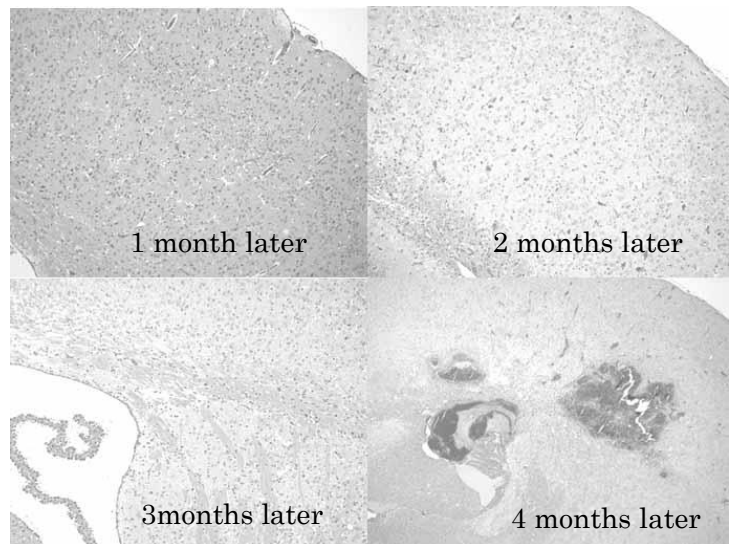
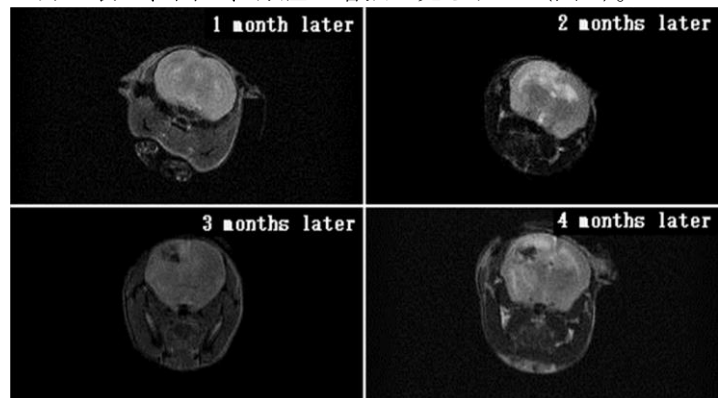


図5. MRIT2強調画像, HE染色像 深さ3mm 80Gy

今後はマウス脳壊死モデルを用いて脳壊死に特異的な生理活性脂質マーカーを京大附属病院先端医療開発センターのイメージング質量分析装置によって探索していく予定である。脳壊死特異的なマーカーが見つかり、予後予測治療効果判定のマーカーとして用いることが可能となる。

②BNCT の治療後 CSF dissemination を発症した患者 18 人の病理を詳細に検討した結果、9 人の患者が GBM small cell variant であった。GBM small cell variant は均一な小さな核を持った astrocytic tumor cell で構成されており R132H *IDH1mt* が negative な GBM の異型である。約半数の患者に *EGF receptor variant III (EGFRvIII)* が増幅しており primary GBM と同様 aggressive な特徴がある [6]。EGFR vIII は脳腫瘍幹細胞の population を決定し、脳腫瘍幹細胞のターゲットになりうるという報告もある [7]。

樹立した脳腫瘍幹細胞は免疫細胞染色で Olig2, Nestin, Sox2 などの脳腫瘍幹細胞マーカーを発現していることがわかった。ヌードマウスの脳に移植するとヒト神経膠芽腫と同じ浸潤性の強い脳腫瘍を形成することを確認した (図 6)。



図 6. 脳腫瘍幹細胞移植マウスモデル

今後脳腫瘍幹細胞・非幹細胞で BNCT 後に浸潤・播種にかかわる因子がどのように変化するかを遺伝子発現レベルで解析していく。BNCT 後に大きく変化する浸潤・播種にかかわる因子が発見できればこの脳腫瘍幹細胞を移植した脳腫瘍モデルを用いて

BNCT 後播種・浸潤にかかわる因子を阻害することによって浸潤・播種が抑えられるかどうかを検討する予定である。

参考文献

- [1] S. Miyatake *et al.*, J.Neurosurg.,**103**(2005)1000-1009.
- [2] S. Miyatake *et al.*, Appl. Radiat. Isot.,**67**(2009) S22-S24.
- [3] T. Kageji *et al.*, J Neurooncol.**68**(2004)25-32.
- [4] Y. Nakagawa *et al.*, Appl. Radiat. Isot., **67**(2009) S27-30.
- [5] T. Reya *et al.*, Nature., **414** (2001)105-111.
- [6] A. Perry *et al.*, Cancer.,**101** (2004)2318-2326.
- [7] DR Emler *et al.*, Cancer Res. **74** (2014) 1238-1249.

Biological study for BNCT development of brain tumor

-Establishment of Radiation necrosis mouse model and Brain tumor stem cell-

Natsuko Kondo, Yoshinori Sakurai, Takushi Takata, Minoru Suzuki, Yosuke Nakagawa, Hiroki Tanaka, Nozomi Fujimoto, Tsubasa Watanabe, Shin-ichiro Masunaga, Koji Ono, Kyo Kume, Shin-ichi Miyatake, Shinji Kawabata, Nobuhiko Takai, Hiroyuki Kimura, Rolf Barth, Norm Lehman and Ichiro Nakano

nkondo@rri.kyoto-u.ac.jp

(S2) 原子力と付き合って47年：広島・長崎、チェルノブイリ、そして福島

(京大原子炉) 今中哲二

個人的なこと：私が原子炉実験所に助手として着任したのは1976年の春だったから、この4月でまる40年になる。1976年がどんな年だったのかネットで調べたら“モントリオール五輪”と一緒に“この年にヤマト運輸の宅急便はじまる”というのが出てきた。大阪大学の原子力工学科に入学したのは、その7年前の1969年だった。この報告のタイトルの47年とは、その時から数えた年数である。図1に、日本の原発の総電気出力と数の推移を、私に関連するイベントとともに示した。

原子力発電が日本で本格的に始まったのは、1970年3月に運転を開始した敦賀1号(BWR、36万kW)である。敦賀原発からの電気が、大阪万博の開催に合わせて千里の万博会場に送られたというニュースを、阪大原子力工学科の学生として誇らしく感じたことを覚えている。以来このかた、原子力屋の端くれとして、日本の原発の“盛衰”を50年近く眺めて来たことになる。

日本の原子力開発の有り様に私が疑問をもち始めたのは東工大の大学院生時代である。図1から分かるように、当時、日本中で原発建設が進められていた。と同時に、ほとんど全ての原発予定地で強い反対運動が起きていた。反対運動を支援しているグループと一緒に現地へ行く機会があり、地元の人と交流する機会があった。建設に反対している人々から、『国や電力会社は、どんなことがあっても事故は起

きません、原発ができれば地元におカネが入るし、仕事も増えると言っている。では何でそんなに結構なものを、都会の回りに作らず、伊方や柏崎といった田舎に作るのか』という問題提起を受けた。図1は、そうした問題提起や反対運動をカネと力で押しつぶしながら原発が増え続け、最後には福島原発事故に至ってしまった推移を示している。

東工大では、1年間のモラトリアムをもらって修士課程を3年で修了した。私が学生時代を過ごした7年間は、大学騒動やベトナム戦争反対運動など学生運動まっ盛りの時代だった。いわゆる活動家であったことはないが、若いなりに社会に向き合い、社会全体を客観化し、自分がどのような生き方を選択するのかが問われた時代だった。まずは“大手企業に就職して日本の中核を支えている部分を眺めてみよう”と思っていたが、折からの第1次石油ショックで求人が冷え込んでいたところに、知り合いから『京大原子炉で助手を公募しているので受けてみたら』と声がかかった。軽い気持ちで応募したら、筆記試験と面接があって、どういうわけか採用された。という次第で、“原子力開発の有り様に疑問を抱き、研究者を志していたわけでもなかった原子力工学の大学院生が、なりゆきで原子炉実験所の助手になってしまった”(という、のどかな時代だった)。

伊方原発裁判は、四国電力伊方原発の設置許可取消しを求めた日本で最初の原発裁判で、私が原子炉

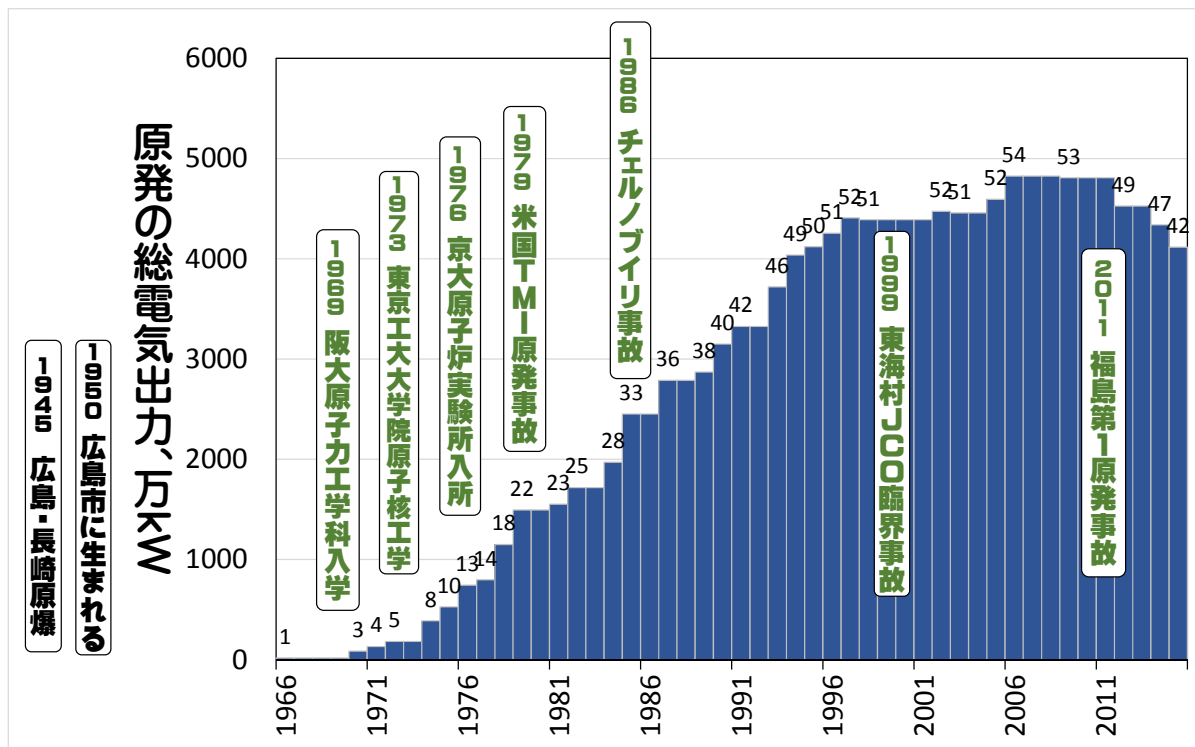


図1. 日本の原発の数（グラフの数字、JPDRともんじゅは含まない）と総電気出力、および報告者に関連する出来事。

実験所に入所したとき、海老澤徹、小林圭二、瀬尾健、川野眞治、小出裕章の5人の助手が、原発安全性の技術的問題に関する原告住民側の助っ人として裁判に関わっていた。当然のごとく、私もグループに加わって裁判を手伝った。私にとって、伊方裁判を手伝い傍聴した経験は、原発の技術的問題をはじめ、原発がもっている社会的問題、さらには国の原発安全審査に関わっていた先生方の専門的レベル、そもそも裁判というものの社会的役割に至るまで、いろいろ勉強になった。

一方、原子炉実験所の助手になったものの、研究者としては、しばらくは“暗中模索”の状態だった。転機となったのは、1979年に起きたスリーマイル島(TMI)原発事故だった。TMI事故を経験するまで、日本の原発安全性の議論は、いわば机の上での議論だったが、TMI事故は、原発というものが破局的な事故に至る可能性を抱えていることを事実で示した。

TMI事故を調べ、勉強する中で、原発に対する私のスタンスは“その安全性に疑問をもつ”から“もともと危険なもので、下手をしたら大災害がホントに起きてしまう”というものになった。TMI事故による放射能放出量評価の仕事は瀬尾さん(1994年逝去)と一緒にやった経験が、研究者としてのその後の私のベースになったと思っている。

TMI事故を経験してからは、『原子力をエネルギー源として利用するかどうかは社会的判断であり、原子力の専門家が決めるべきことではない。その判断に際しての専門家の役割は、原子力エネルギーがもっているメリット、デメリットを一般の人が理解できるように提示することにある』という考え方が明確になった。研究者としては、原子力が抱えているマイナス面を明らかにすることを自分の研究テーマにすることにした。

私たちのグループ(原子力安全研究グループ)が、

原子力が抱える様々な問題について一般の人と一緒に議論する場として“原子力安全問題ゼミ”の第1回を開いたのは1980年6月のことだった。以来、毎年数回の開催を継続し、小出さんの定年に合わせた昨年2月のゼミで第111回に至っている。ゼミのタイトルや中身については、下記を参照されたい。

<http://www.rri.kyoto-u.ac.jp/NSRG/seminar/zemi.html>

広島・長崎：広島・長崎の原爆放射線量問題の勉強を始めたのは、1980年頃だった。広島・長崎の被爆生存者追跡調査のために当時使われていたT65D線量が間違っているという記事がScienceに出たのをきっかけに、原子力資料情報室の高木仁三郎さん(2000年逝去)の提案で勉強会を始めた。その会で、放射線輸送計算を私が担当することになり、いろいろな方の手ほどきを受け、ANISN、DOT、MORSEといった輸送計算コードを走らせ、新しい原爆放射線量DS86の検証計算を行った。

その後、原爆中性子によるEu152やCl36の放射化量について、DS86に基づく計算値と測定値が合わないという問題が浮上し、広島大の葉佐井博巳さんから『今中さん、計算できるんなら手伝えや』と誘いがあり、広島グループとの共同研究が始まった。原爆線量問題は、葉佐井さんが日本側の責任者となって、日米合同WGとして問題解決にあたることになり、私も手伝うことになった。紆余曲折はあったものの、新たな原爆線量評価システムとしてDS02が2004年に採択された。

DS02で扱っているのは、原爆炸裂時の初期放射線のみで、中性子誘導放射能や放射性降下物といった、いわゆる残留放射能については、初期放射線に比べて寄与が小さいということで扱っていない。DS02以降は、残留放射能にともなう被曝量をそれなりに見積もっておく作業をやってきた。

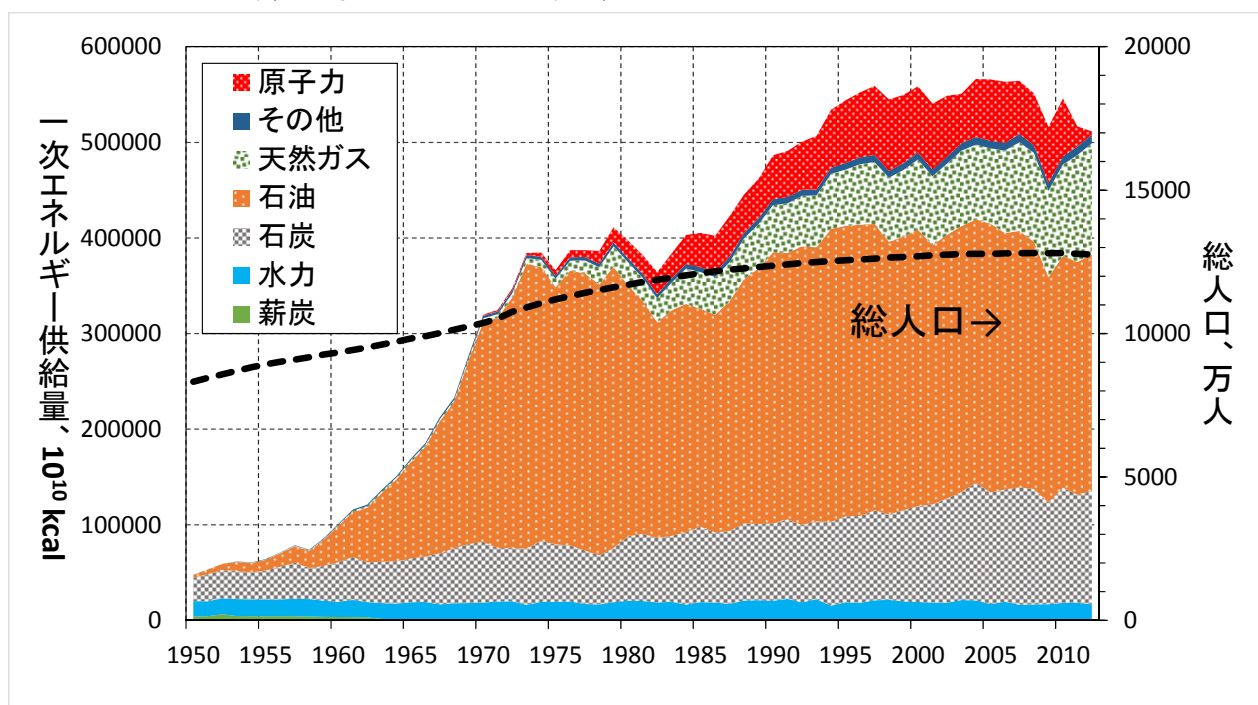


図2. 日本の1次エネルギー供給量の推移:1950~2012年. エネルギー・経済統計要覧 2014より作成.

チェルノブイリ原発事故：“チェルノブイリ”という聞き慣れないコトバを耳にしたのは、1986年4月29日、当時の天皇誕生日の朝だった。その3日前にソ連の原発で重大事故が起きてスウェーデンでも放射能が検出された、というニュースだったと思う。事故の詳細は分からないものの、日本まで放射能が飛んでくるかも知れないということで、小出さんとモニタリングの準備をはじめた。我々がチェルノブイリからの放射能を熊取で検出したのは5月3日に降った雨の中のI131だった。5月5日のエアサンプリングでは1m³当り0.5BqのI131を検出した。

私たちのグループは、事故直後から瀬尾さんを中心に世界規模での放射能汚染評価を試みていたが、ソ連国内のデータが全くといっていいほど出てこなかった。状況に変化が起きたのは事故から3年たった1989年春のことで、ゴルバチョフの民主化政策によってソ連共産党の独裁体制が崩れ始め、チェルノブイリ周辺の汚染地図がようやく公開された。ベラルーシ科学アカデミーの研究者と交流がはじまり、私をはじめチェルノブイリへ出かけたのは、まだソ連時代の1990年8月だった。以来、“原発で最悪の事態が起きたらどのような被害が周辺にもたらされるか”という問題意識でチェルノブイリのことを調べて来た。20年以上にわたるチェルノブイリ通いをして、私が得た教訓は次の2点だった。

- 原発で重大事故がおきると周辺の人々が突然に家を追われ、村や町がなくなり地域社会が丸ごと消滅する
- 原子力の専門家として私に解明できることは、事故被害全体のほんの一側面に過ぎず、解明できないことの方が圧倒的に大きい

福島原発事故：2011年3月までの私は、『日本でも54基の原発が運転されており、下手をしたらチェルノブイリのようなことが起きる可能性がある』と警告を発していればよかった。3月11日の地震・津波によって福島第1原発で全交流電源が失われ、翌12日の午後1号機で爆発が発生した。その映像を繰り返し眺め、原子炉建屋天井は吹っ飛んだものの格納容器が破壊されていないのを確認して私はホッとした。14日には3号機建屋も爆発したが、“福島がチェルノブイリのようになってしまった”と私が確信したのは、3月15日午前11時の記者会見で当時の枝野官房長官が、“2号機の格納容器が壊れたもよう”と発表したときだった。実際、その日の午後、北西方向への風によって、浪江町、飯館村、福島市の方へ流れたプルームが、雨や雪と重なって地表に大量に沈着し、“北西方向高汚染帯”が形成された。当時の状況から考えて、福島第1原発周辺では広範囲に汚染が生じているのは明らかだったが、どういふわけか汚染に関する情報が全くといっていいほど

発表されなかった。私たちが飯館村の調査に入ったのは、汚染が起きてから2週間後の3月28日だった。南部の長泥地区で最大30μSv/hの線量率を測定した(土壌汚染核種濃度から逆算すると、3月15日夜は150~200μSv/h)。『3月15日の夜、白装束の男たちがやって来て測定して帰ったが値は教えてくれなかった』そうである。飯館村が避難区域に指定されたのは4月22日だった。私たちが実施した“飯館村初期被曝評価プロジェクト”の結果では、飯館村民が避難するまでの平均外部被曝量は7mSvとなった。

全村避難が続く飯館村では2017年春の避難解除に向けて大規模な除染が実施されている。しかし、すぐ村へ戻ろうという人はせいぜい2割である。福島での私のこれからの役割は、人々が放射能汚染に向き合うときに必要な知識を提供し、人々が判断するときの手伝いをする事だと思っている。

図2は、私が生まれた年(1950年)からの日本のエネルギー需要の変遷である。子ども時代は、テレビも電気冷蔵庫もなかったが、それなりにいい時代だった。1970年頃から日本はエネルギー使い過ぎの時代に入ったと思っている。『1億総活躍』で『GDP600兆円』を目指すより、みんながノンビリ暮らせる社会を私は目指したい。

<学術講演会でのこれまでの報告>

- 海老沢ほか「米国 スルーマイル島原発事故の教訓」第14回(1980)
- 小出ほか「敦賀原発一般排水路の放射能測定」第16回(1982)
- 今中ほか「広島・長崎原爆線量再評価問題とその意味について」第17回(1983)
- 小出ほか「環境影響からみた中性子源施設の社会的問題」第18回(1984)
- 瀬尾ほか「チェルノブイリ原発事故における放射能放出量と環境汚染」第21回(1987)
- 海老沢ほか「超高感度中性子モニターの開発と環境線量測定」第22回(1988)
- 今中ほか「チェルノブイリ原発事故による放射能汚染と最近の諸問題」第27回(1993)
- 小林ほか「もんじゅナトリウム漏洩・火災事故とその問題点」第32回(1998)
- 今中ほか「チェルノブイリ原発事故影響研究と被災者救援の現状に関する調査報告」第32回学術講演会(1998)
- 今中ほか「ベラルーシ、ウクライナ、ロシアにおけるチェルノブイリ原発事故研究の現状調査報告」第36回(2002)
- 小出ほか「インド、ジャドゥゴダ・ウラン鉱山周辺の放射能汚染」第38回(2004)
- 今中「広島・長崎原爆放射線量評価体系の変遷と未解決問題」第43回(2009)
- 今中ほか「広島原爆早期入市者の疾病記録と誘導放射能による被曝量の評価」第46回(2012)
- 今中ほか「飯館村での放射能汚染調査と初期被曝量評価」第48回(2014)

(S3) 中性子散乱を使った材料研究

(京大原子炉) ○福永俊晴

1. はじめに

私が中性子散乱を利用し始めたのは、博士課程に進学し、東北大学原子核理学研究施設に設置されていた電子ライナックパルス中性子源を利用したアモルファス合金の構造研究を開始してからである。その当時、中性子散乱の利用は物理分野の研究者が主で、私のような材料屋は非常に少なかったと記憶している。その材料屋として中性子に関わってきた私の研究の一部をオムニバスのように書かせていただくことにする。

但し、中性子散乱と関係ない材料研究を行っていた学部時代（点欠陥の研究）、修士課程時代（磁石材料の開発研究）、原研時代（ポストドク）（核融合ブランケット材料の研究）そして新技術開発事業団時代（ポストドク）（機能性酸化材料の開発研究）における研究内容の話は割愛させていただく。

2. 東北大学～名古屋大学時代

博士課程でパルス中性子を使って黎明期であったアモルファス合金の構造の研究を開始した。当時、東北大学原子核理学研究施設の短波長領域の中性子を持つパルス中性子を使った研究は、世界的にはほとんど無く、アモルファス合金の構造研究で画期的な成果を挙げることができた。Fig.1 は私が最初に Pd₈₀Si₂₀ アモルファス合金で得た構造因子 S(Q) である[1]。

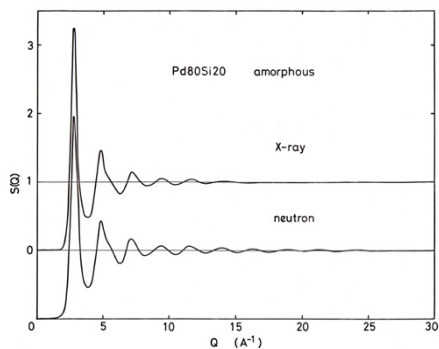


Fig.1. Structure factors S(Q) for Pd₈₀Si₂₀ amorphous alloy by X-ray and neutron diffraction.

短波長中性子を利用することにより S(Q)を高い Q 領域まで測定でき、実空間上の短距離領域の情報を正確に得ることに成功し、アモルファス合金は 4 面体ユニットが基本構造であると結論づけることができた。

その当時、アモルファス合金の構造の特徴を解明しようと、精度良い部分構造の導出が世界で試みられていた。そこで、我々は金属-金属系の Ni-60at%Ti アモルファス合金で ⁶⁰Ni 同位体を利用し、系全体の

散乱振幅を零となるアモルファス合金を作製し、Bhatia-Thornton 型 S(Q)の部分構造因子 S_{NN}(Q)、S_{NC}(Q)、S_{CC}(Q)を精度良く導き出すことに成功した[2]。それを変換して得られた Faber-Ziman 型部分構造因子 S_{NiNi}(Q)、S_{NiTi}(Q)、S_{TiTi}(Q)を Fig.2 に示す。

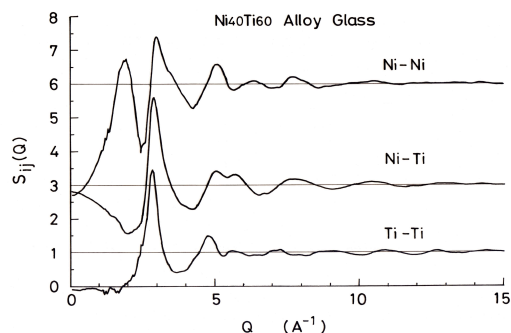


Fig.2. Partial structure factors S_{NiNi}(Q), S_{NiTi}(Q), S_{TiTi}(Q) for Ni-60at%Ti amorphous alloy.

これまでのアモルファス合金は液体状態から急冷することによって主に作製されていたが、1980年代メカニカルアロイング (MA) 法によるアモルファス化が話題となり、この方面の研究が盛んとなった。この方法は機械的に元素粉末を混ぜ合わせる方法で、混合物を固相反応で合金化かつアモルファス化させる。それ故、本当に原子レベルの混合がなされているのかという疑問が常に出されていた。そこで、Ni-75at%Ti 組成の Ni 粉末と Ti 粉末のメカニカルアロイングを行い、その過程を Ni ならびに Ti 原子の中性子干渉性散乱振幅がそれぞれ正と負 ($b_{Ni}=1.03 \times 10^{-12}$ cm, $b_{Ti}=-0.33 \times 10^{-12}$ cm) という中性子の特徴を使って調べた[3]。もし、原子レベルで混合し、Ni と Ti 原子が隣り合わせになると、負の相関が生じることになる。Fig.3 に Ni-75at%Ti 組成の Ni 粉末と Ti 粉末の MA 過程の 2 体分布関数 g(r) を示す。

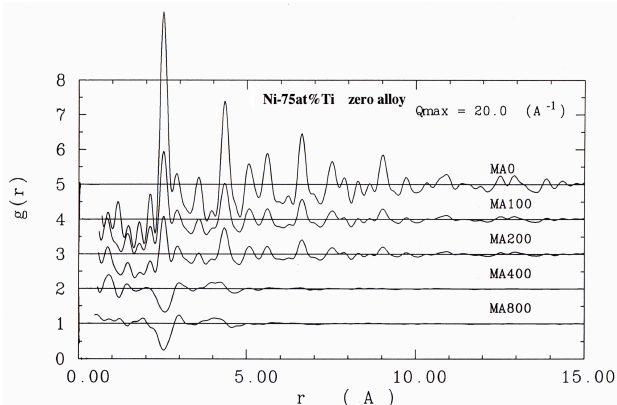


Fig.3. Pair distribution functions g(r) during the mechanical alloying process for Ni-75at%Ti powders.

Fig.3 から明らかなように MA 前では Ni-Ni ならびに Ti-Ti 相関の正のピークしか存在しないが、MA400 時間を越えると、2.5Å 付近に負のピークが観察されるようになる。このピークは Ni-Ti 相関で、MA によって原子レベルの混合が進行することを示すもので、世界で初めての実験的証明となった。

次に、MA のアモルファス化ではゆっくりと原子配列が乱れていくため、アモルファス化過程の構造変化を容易に観察できる。しかし、2 種類以上の元素の混合とそれに伴うアモルファス化を観察することは難しいため、ここでも中性子の特徴を活用して研究を行った。前章で述べたように、V 原子の b が Ni 原子のそれと比べて非常に小さい ($b_V = -0.0382 \times 10^{-12} \text{cm}$, $b_{Ni} = 1.03 \times 10^{-12} \text{cm}$) ので、Ni-60at%V 系の MA 過程の構造観察では Ni 構造のみの変化を選択的に観察することができる。そのアモルファス化過程の構造変化を Fig.4 に示す[4]。

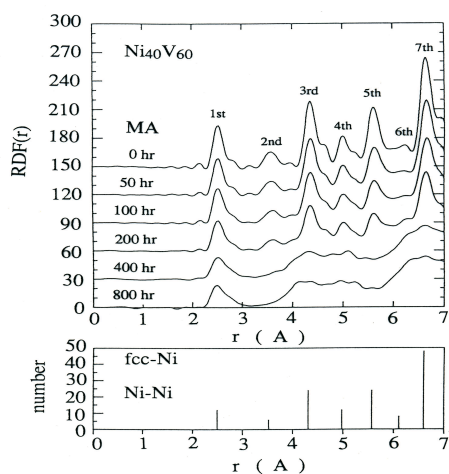


Fig. 4. Radial distribution functions RDF(r) after 0, 50, 100, 200, 400, 800hrs of MA for Ni-60at%V powders, together with Ni-Ni correlations of FCC Ni crystal.

Fig.4 で見られるように MA0 時間では FCC-Ni 結晶の Ni-Ni 相関を示しているが、MA 時間の増加と共に 2 番目と 5 番目の Ni-Ni 相関ピークの減少・消滅が観察された。FCC 結晶は 8 面体ユニットと 4 面体ユニットで構成されていることから、第 2、第 5 隣接に位置する原子が観測されなくなることは、アモルファス化にともない 8 面体ユニットが壊れ、4 面体ユニットに変位していることを示している。これはアモルファス合金の構造が主に 4 面体ユニットで構成されていることをダイレクトに示した世界で初めて実験結果となった。

3. 京都大学原子炉実験所時代

原子炉実験所に来てからの研究では、これまでの単なる構造解明の研究から、材料を見据えた「構造と物性」もしくは「構造と材料特性」の関係の解明に興味をシフトした。

アモルファス合金の基本構造は 4 面体ユニットで

あると分かったが、構造と安定性の関係は不明である。そこで、安定性の高いアモルファス合金とそうでないアモルファス合金の構造の比較により、安定性と構造の関係を調べた。試料として、ガラス形成能が高く、安定な $\text{Cu}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ アモルファス合金と、ガラス形成能が低い $\text{Ni}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ アモルファス合金を選んだ。それらのアモルファス合金の中性子ならびに X 線回折実験によって得られた $S(Q)$ からリバースモンテカルロ (RMC) 法により 3 次元構造モデルの構築し、構造の特徴を比較した。

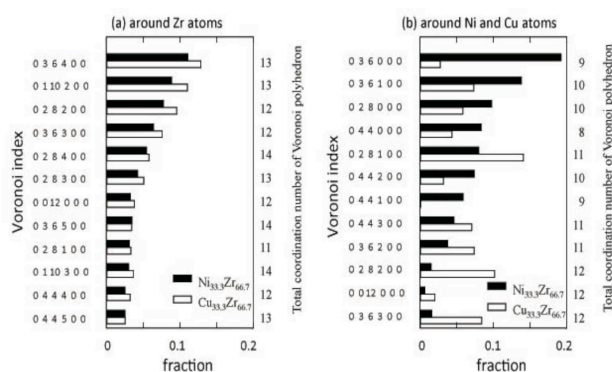


Fig. 5. Voronoi polyhedra around Zr (a), Ni (b) and Cu (b) atoms for $\text{Ni}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ and $\text{Cu}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ amorphous alloys.

構造学的特徴を明確にするため、3 次元構造モデルにおける多面体解析を行い、Ni 原子、Cu 原子そして Zr 原子周りを構成する多面体の分布を調べた。その方法は Voronoi 多面体解析法である。Voronoi 多面体は、 i 個の辺をもつ面の数を n_i で表すことにより、 $(n_3, n_4, n_5, n_6, n_7, \dots)$ のように表示される。Fig.5 は、 $\text{Ni}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ ならびに $\text{Cu}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ アモルファス合金の構造を形成している Zr 原子、Ni 原子そして Cu 原子周りの多面体を示している。

Zr 原子周りの多面体は $\text{Ni}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ ならびに $\text{Cu}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ アモルファス合金で良く似ており、二十面体もしくはそれに類似な多面体であることが良く理解できる。それに対して、Ni と Cu 原子周りの環境は $\text{Ni}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ アモルファス合金と $\text{Cu}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ アモルファス合金で大きく異なっている。すなわち、 $\text{Ni}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ アモルファス合金の Ni 原子周りの多面体は、三角プリズム (036000) やアルキメデス反プリズム (028000) などのプリズミックな多面体で構成されていることが分かる。一方、 $\text{Cu}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ アモルファス合金の Cu 原子周りの環境は、二十面体 (0012000) もしくはそれに類似した多面体 (0282000)、(036300) などが多く存在することが明らかになった[5]。

$\text{Ni}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ ならびに $\text{Cu}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ アモルファス合金の構造の比較から、その特徴をまとめると、この 2 種類のアモルファス合金の Zr 原子周りの多面体は二十面体もしくはそれに類似した多面体である。そして、 $\text{Ni}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ アモルファス合金の Ni 原子周りの多くの

多面体は NiZr_2 結晶に存在する三角プリズムを基本とした形態であり、それに対して $\text{Cu}_{33.3}\text{Zr}_{66.7}$ アモルファス合金の Cu 原子周りは二十面体もしくはそれに類似した多面体で基本的に構成されている。この Ni ならびに Cu 原子周りの多面体の違いが、2種類のアモルファス合金の形成能や安定性に影響を及ぼしていると考えられる[5]。

最近、我々のグループでは、全固体電池への展開を見据えた超イオン伝導材料の構造ならびにイオン伝導経路の解明に焦点をあてて研究を展開している。その1つとして、 $(\text{Li}_2\text{S})_x(\text{P}_2\text{S}_5)_{100-x}$ ガラスや $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶に着目し、 $(\text{Li}_2\text{S})_x(\text{P}_2\text{S}_5)_{100-x}$ ガラスの Li 濃度の増加によるイオン伝導の向上、そして $(\text{Li}_2\text{S})_{70}(\text{P}_2\text{S}_5)_{30}$ ガラスから $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶への変化に伴い、イオン伝導度が一桁以上向上(10^{-3} S/cm) することに対する構造と特性の関係を調べた。

まず、中性子ならびに X線回折実験から得られた構造データを基に、RMC 法により 3次元モデル構造を構築した。 $(\text{Li}_2\text{S})_{70}(\text{P}_2\text{S}_5)_{30}$ ガラスおよび $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶の構造の多面体解析を行うことによって、Li イオンが安定なサイトから次の安定なサイトに移動していくための $[\text{LiS}_4]$ ユニットの分布と Li イオン受入れることができる $[\text{S}_4]$ ユニット (ac- $[\text{S}_4]$) の分布、そしてそのサイズを詳細に調べた。その結果、ac- $[\text{S}_4]$ ユニットの総数は、 $(\text{Li}_2\text{S})_{70}(\text{P}_2\text{S}_5)_{30}$ ガラスよりも $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶の方が多いたことが分かった。さらに、 $[\text{LiS}_4]$ ユニットの最近接周りに位置する ac- $[\text{S}_4]$ ユニットも $(\text{Li}_2\text{S})_{70}(\text{P}_2\text{S}_5)_{30}$ ガラスのそれよりも $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶の方が約2倍多く存在することが明らかになった。この結果は、 $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶が $(\text{Li}_2\text{S})_{70}(\text{P}_2\text{S}_5)_{30}$ ガラスと比べ、室温において一桁以上の大きい電気伝導性を示す構造学的要因を示すものであり、画期的な情報であるといえる [6]。

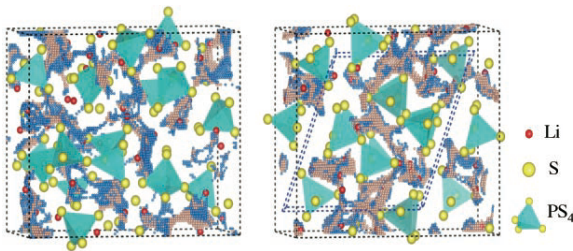


Fig. 6. Conduction pathways of Li ions for (a) $(\text{Li}_2\text{S})_{70}(\text{P}_2\text{S}_5)_{30}$ glass and (b) ${}^7\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ metastable crystal.

さらに、Li イオンの可動空間の視覚化を、Bond Valence Sum (BVS) 法を応用して、 $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶のみならず $(\text{Li}_2\text{S})_{70}(\text{P}_2\text{S}_5)_{30}$ ガラスにおいても行った結果、Fig.6 に示すように Li イオンの伝導経路が明らかとなった。これまで、結晶ではマキシマムエントロピー法(MEM)により、イオンの伝導経路の視

覚化を行ってきているが、ガラスでは適用できないことから、BVS 法を応用して行ったガラス中のイオン伝導経路の視覚化は世界で初めての結果である[7]。

さらに、Li イオンの伝導し易さを表すパラメータとして、実際のイオンと理想のイオンの価数の“ずれ”を用いると、イオン伝導の活性化エネルギー E_a と深い関係があることが見いだされた[7]。これら結果は、構造の特徴と物性ととの定量的な関係を示す第一歩であると考えている。

4. おわりに

私のこれまでの研究の一部をオムニバスのように書いていただいたが、書きながらあれもすべきだった、これもすべきだったと色々後悔するところが多いのに気がついた。私の研究スタイルは材料屋として、(1)試料の作製、(2)材料特性の測定、(3)装置の製作、(4)解析システムの構築、を行ってきた。特に試料の作製に関しては、材料屋としてこだわりをもって研究を展開してきたことに自負を持っている。ただ、これは多くの人に支えられて来たからこそ行えたことであり、感謝したい。

謝辞

東北大学、名古屋大学時代に共に研究を行ってきた方々、そして京都大学原子炉実験所の皆様、ならびに共に研究を行ってきた杉山正明教授、伊藤恵司准教授 (岡山大学)、森一広准教授、小野寺陽平助教そして学生さん達に感謝する。

参考文献

- [1] K. Suzuki, T. Fukunaga, M. Misawa and T. Masumoto, *Mater. Sci. Eng.* 23, 215 (1976).
- [2] T. Fukunaga, N. Watanabe and K. Suzuki, *J. Non-Cryst. Solids* 61&62, 343 (1984).
- [3] T. Fukunaga, M. Misawa, K. Suzuki and U. Mizutani, *Mater. Sci. Forum*, 88-90, 325 (1992).
- [4] T. Fukunaga, Y. Homma, M. Misawa and K. Suzuki, *J. Non-Cryst. Solids* 117/118, 721 (1990).
- [5] T. Fukunaga, K. Itoh, T. Otomo, K. Mori, M. Sugiyama, H. Kato, M. Hasegawa, A. Hirata, Y. Hirotsu and A.C. Hannon, *Intermetallics* 14, 893 (2006)
- [6] Y. Onodera, K. Mori, T. Otomo, M. Sugiyama, T. Fukunaga, *J. Phys. Soc. Jp.*, 81, 044802 (2012)
- [7] K. Mori, T. Ichida, K. Iwase, T. Otomo, S. Kohara, H. Arai, Y. Uchimoto, Z. Ogumi, Y. Onodera, and T. Fukunaga *Chem. Phys. Lett.*, 584, 113 (2013)

第 50 回京都大学原子炉実験所学術講演会プログラム

開催日：平成 28 年 1 月 27 日(水) 10:30 ～1 月 28 日(木) 16:20

講演会場：京都大学原子炉実験所 事務棟会議室

ポスター会場： 同 図書棟会議室およびロビー

1 月 27 日(水) 10:30～17:10

開会の挨拶 (10:30～10:40) 所長 川端祐司

プロジェクト研究成果講演

PJ1) 10:40～11:20 座長 川端祐司
中性子イメージングの高度化と応用
原子力基礎工学研究部門 (極限熱輸送工学研究分野)
齊藤泰司

トピックス講演

T1) 11:20～12:00 座長 中島 健
ボイド率並びにボイド速度推定精度向上のための中性子雑音輸送計算法
原子力基礎工学研究部門 (研究炉安全管理工学研究分野)
山本俊弘

————— (休 憩) 12:00～13:10 —————

トピックス講演

T2) 13:10～13:50 座長 齊藤 泰司
京都大学原子炉実験所における加速器駆動システムの基礎研究の現状について
原子力基礎工学研究部門 (核変換システム工学研究分野)
卞 哲浩

————— (休 憩) 13:50～14:00 —————

特別講演

S1) 14:00～15:00 座長 石 禎浩
加速器の新地平 : New horizon of accelerator study
原子力基礎科学研究本部 (研究炉安全管理工学研究分野、(兼)複合原子力システム研究分野)
森 義治

————— (休 憩) 15:00～15:10 —————

P1) 中性子転換注入GaNのキャリア補償効果

○西片 直樹、中村 司、上岡 一馬、新川 輝、栗山 一男 (法大院)、串田 一雅 (大阪教育大)、徐 虬 (京大炉)

P2) X線ラジオグラフィを用いた霜層密度分布の測定

○上地 拓摩、松本 亮介 (関大)、影林 和磨 (関大院)、伊藤 大介、齊藤 泰司 (京大炉)

P3) 冷却材喪失時におけるKUR板状燃料体の自然対流冷却特性

○伊藤 大介、齊藤 泰司 (京大炉)

P4) 溶液エアロゾルに対する核分裂生成物の付着挙動

○田中 徹、新田 真之介 (京大院工)、高宮 幸一、関本 俊、沖 雄一、大槻 勤 (京大炉)

P5) NC制御加工装置による回転楕円体中性子ミラーの製作

○吉永 尚生、日野 正裕、金山 雅哉 (京大炉)、細畠 拓也、山形 豊、郭 江、加藤 純一 (理研)、森田 晋也 (東京電大)、武田 晋、古坂 道弘 (北大)、川端 祐司 (京大炉)

P6) 重水素化タンパク質を基軸とした溶液散乱構造解析

○井上 倫太郎、茶竹 俊行 (京大炉)、柳澤 泰任 (千葉科大薬)、茶谷 絵理 (神大理)、星野 大 (京大薬)、藤井 紀子 (京大炉)

P7) 放射線によって生じる「DNA損傷のかたまり」を発見

—蛍光共鳴エネルギー移動 (FRET) を用いたアプローチ—

○赤松 憲、鹿園 直哉 (JAEA)、齊藤 毅 (京大炉)

P8) イオン照射されたFe-Ni Invarのメスバウアー分光測定

○松下 正史 (愛大理工)、三井 孝也 (JAEA)、岩瀬 彰浩 (大阪府大)、北尾 真司、瀬戸 誠 (京大炉)

P9) 結晶解析のための、効率的なタンパク質の重水素化

○喜田 昭子、森本 幸生 (京大炉)

P10) 金属塩の加熱により生成したエアロゾルに対する核分裂生成物の付着挙動

○新田 真之介、田中 徹 (京大院工)、関本 俊、高宮 幸一、沖 雄一、大槻 勤 (京大炉)

P11) 前立腺癌に対する硼素中性子捕捉療法 (BNCT) の制癌効果

○高原 健、稲元 輝生、南 幸一郎、吉川 勇希、高井 朋聡、平野 一、能見 勇人、木山 賢 (大医大)、鈴木 実 (京大炉)、切畑 光統 (大府大)、東 治人 (大医大)

P12) ガンマ線照射による天然腐植物質の化学状態変化

○後藤 涼平、佐々木 隆之 (京大工)、齊藤 毅 (京大炉)、小林 大志 (京大工)、藤井 俊行、上原 章寛、山名 元 (京大炉)

P13) カテコール産生における脱炭酸・水酸基付加反応機構の考察

—サリチル酸水酸化酵素の結晶構造解析から—

○上村 拓也 (京大院理)、喜田 昭子 (京大炉)、安達 基泰、黒木 良太 (JAEA)、森本 幸生 (京大炉)

P14) Th水酸化物の溶解度および固相状態の温度依存性に関する考察

○西川 将吾、小林 大志、佐々木 隆之 (京大院工)、上原 章寛、藤井 俊行 (京大炉)

P15) 中性子反射率法およびATR-IR法による鉄表面におけるリン酸エステル系添加剤の吸着・反応挙動の解明

○平山 朋子、秋元 翔太、岩田 祐磨、松岡 敬 (同志社大)、日野 正裕 (京大炉)

P16) 黄砂飛来時における大気エアロゾルの組成元素濃度変化

○伊藤 憲男、溝畑 朗 (大阪府立大)、飯沼 勇人、奥村 良 (京大炉)

- P17) 高エネルギー電子線照射したタンゲステン中の水素同位体捕獲
○波多野 雄治、網 恭平 (富山大)、徐 虬 (京大炉)、佐藤 紘一 (鹿児島大)、外山 健 (東北大)
- P18) D/H コントラスト法と中性子結晶解析
○茶竹 俊行 (京大炉)、藤原 悟 (JAEA)
- P19) 鉄クロム合金の相分離に与える電子線照射の影響
○鬼塚 貴志 (福井大原子力研)、佐藤 紘一 (鹿児島大)、徐 虬 (京大炉)、福元 謙一 (福井大原子力研)
- P20) γ 線照射によるグラフェン-Pt ナノコンポジットの合成
○東海 旭宏、仲西 穂高、田中 元彬、興津 健二、堀 史説 (大阪府大工)、水越 克彰 (東北大金研) 阪本雅昭 (京大炉)
- P21) FeAl 金属間化合物への電子線照射による欠陥生成のエネルギー依存性
○上野 陽平、小林 一基、石山 大志、谷 真海 (大阪府大工)、大澤 一人 (九大応力研)、岩瀬 彰宏、堀 史説 (大阪府大工)、徐 虬 (京大炉)、佐藤 紘一 (鹿児島大)
- P22) 超イオン伝導体 Na_3PS_4 ガラスおよびガラスセラミックの構造
○小野寺 陽平、森 一広 (京大炉)、大友 季哉 (KEK)、福永 俊晴 (京大炉)
- P23) 軽水炉用ロッドバンドル内低流速気液二相流の流動特性研究
○沈 秀中 (京大炉)、日引俊 (米国パーデュー大)
- P24) 極低温における超伝導線安定化材の繰り返し中性子照射試験
○吉田 誠、中本 建志、荻津 透、菅野 未知央、佐々木 憲一、飯尾 雅実、三原 智、西口 創 (KEK)、吉村 浩司 (岡山大)、板橋 隆久、久野 良孝、佐藤 朗、青木 正治 (阪大)、秦 斌 (華中大)、佐藤 紘一 (鹿児島大)、栗山 靖敏、宮田 清美、森 義治、徐 虬、義家 敏正 (京大炉)
- P25) 新奇金属硫化物系ガラスの構造とイオン伝導特性
○出島 一仁 (京大院)、小野寺 陽平、森 一広、福永 俊晴 (京大炉)
- P26) $\text{Li}_2\text{S-SiS}_2$ 系超イオン伝導ガラスの構造とリチウムイオン伝導経路
○高橋 佑理子 (京大院工)、森 一広、小野寺 陽平、福永 俊晴 (京大炉)
- P27) $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 準安定結晶中の Li イオン挙動及び伝導経路
○村田 峻 (京大院工)、森 一広、福永 俊晴 (京大炉)、柴田 薫、川北 至信 (JAEA)、米村 雅雄 (KEK)
- P28) J-PARC/MLF BL06 VIN ROSE と中性子集光ミラー開発の現状
○日野 正裕 (京大炉)、小田 達郎 (京大工)、吉永 尚生、金山 雅哉、杉山 正明、川端 祐司 (京大炉)、遠藤 仁、山田 悟史 (KEK)、細畠 拓也、郭 江、加藤 純一、山形 豊 (理研)、森田 晋也 (東京電機大)、武田 晋 (北大工)、古坂 道弘 (北大工)、瀬戸 秀紀 (KEK)
- P29) B-3 小型多目的中性子回折計建設の進捗状況
○森 一広、吉野 泰史、川端 祐司、福永 俊晴 (京大炉)、佐藤 節夫、平賀 晴弘 (KEK)、山口 泰男 (東北大金研)、岩瀬 謙二 (茨城大工)、塩野 貴大 (京大院工)
- P30) 低エネルギー励起核 $^{229\text{m}}\text{Th}$ からの真空紫外光測定
○安田 勇輝、笠松 良崇、重河 優大 (阪大院理)、高宮 幸一、大槻 勤 (京大炉)、三頭 聡明 (東北大金研・大洗)、篠原 厚 (阪大院理)
- P31) 10MG y の耐放射線性を旨とした微小冷陰極撮像素子の開発
○後藤 康仁、辻 博司 (京大院工)、長尾 昌善 (産総研)、増澤 智昭、根尾 陽一郎、三村 秀典 (静大電研)、岡本 保 (木更津高専)、佐藤 信浩 (京大炉)、秋吉 優史 (大阪府大放射線セ)、高木 郁二 (京大院工)
- P32) 極冷中性子を用いた TOF-MIEZE スピンエコー実験
○小田 達郎 (京大工)、日野 正裕、川端 祐司 (京大炉)、北口 雅暁 (名大理)、Peter Geltenbort (ILL)

- P33) 福島県下で採取した土壌試料中のウラン・プルトニウムの同位体分析
 ○芝原 雄司、窪田 卓見、藤井 俊行、福谷 哲、高宮 幸一（京大炉）、紺野 慎行、水野 哲（福島県）、山名 元（京大炉）
- P34) X線ラジオグラフィによる水平バンドル内気液二相流のボイド率分布計測
 ○馬場 実咲、宮崎 猛、村川 英樹、杉本 勝美、竹中 信幸（神戸大）、伊藤 大介、齊藤 泰司（京大炉）
- P35) KURAMA の開発状況
 ○奥村 良、谷垣 実、佐藤 信浩、小林 康浩（京大炉）
- P36) 昇温脱離ガス分析法を用いたタングステンの重水素トラッピングサイトの検出
 ○佐藤 紘一（鹿児島大）、田宮 怜、徐 虬（京大炉）、土田 秀次（京大工）、義家 敏正（京大炉）
- P37) ストロチウム及びカルシウムの化学交換法における同位体分別研究 II
 ○碓 隆太（大産大）、佐久間 洋一（東工大原子炉）、伊藤 彩（大産大）、藤井 俊行、福谷 哲、芝原 雄司（京大炉）
- P38) 境界条件制御による気泡微細化沸騰の伝熱促進
 ○刀塚 淳（京大院）、伊藤 大介、齊藤 泰司（京大炉）
- P39) 鉛ビスマス流れの乱流構造に対する流路表面性状の影響
 ○有吉 玄（京大院）、伊藤 大介、齊藤 泰司（京大炉）、三島 嘉一郎（INSS）
- P40) 放射化学的中性子放射化分析法を用いた、地球化学的固体試料中の微量ハロゲンの分析
 ○関本 俊（京大炉）
- P41) D-D 中性子源を用いた中性子エネルギー弁別法による核物質探知システムの開発
 ○土肥 和誠（京大院）、三澤 毅、高橋 佳之、北村 康則（京大炉）

1月28日(木) 10:00~16:20

プロジェクト研究成果講演

- PJ2) 10:00~10:40 座長 木野村 淳
 原子力先進材料における高エネルギー粒子線の照射効果
 原子力基礎工学研究部門（照射材料工学研究分野）
 徐 虬

新人講演

- N1) 10:40~11:20 座長 増永 慎一郎
 腫瘍内微小環境を標的としたがん細胞増感
 放射線生命科学研究部門（粒子線生物学研究分野）
 真田 悠生

新人講演

N2) 11:20～12:00 座長 瀬戸 誠

ガンマ線を用いた原子・分子のスローダイナミクス研究

粒子線基礎物性研究部門（核放射物理学研究分野）

齋藤 真器名

_____ (休 憩) 12:00～13:10 _____

トピックス講演

T3) 13:10～13:50 座長 鈴木 実

脳腫瘍 BNCT のための生物学的基礎研究－脳壊死モデル作成と腫瘍幹細胞に関する研究

粒子線腫瘍学研究センター（粒子線腫瘍学研究分野）

近藤 夏子

_____ (休 憩) 13:50～14:00 _____

特別講演

S2) 14:00～15:00 座長 福谷 哲

原子力と付き合い47年：広島・長崎、チェルノブイリ、そして福島

原子力基礎工学研究部門（放射性廃棄物安全管理工学研究分野）

今中 哲二

_____ (休 憩) 15:00～15:10 _____

特別講演

S3) 15:10～16:10 座長 森 一広

中性子散乱を使った材料研究

粒子線基礎物性研究部門（中性子材料科学研究分野）

福永 俊晴

閉会の挨拶（16:10～16:20） 所長 川端 祐司

KUR REPORT OF
KYOTO UNIVERSITY RESEARCH
REACTOR INSTITUTE

発行所 京都大学原子炉実験所

発行日 平成 28 年 1 月

住所 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2 丁目

TEL (072) 451- 2300