

ISSN 2189-7107

KURRI-EKR-21

平成 29 年度

「量子ビームと核科学の革新的複合利用による先端物質科学・分析研究拠点の構築」

**Proceedings of the Project Meeting on “Construction of the basis for the advanced materials science and analytical study by the innovative use of quantum beam and nuclear sciences”**

平成 29 年 12 月 15 日 開催  
(December 15, 2017)

編集：瀬戸 誠

Edited by : Makoto SETO

京都大学原子炉実験所  
Research Reactor Institute, Kyoto University

# 要旨

平成 28 年度から京都大学原子炉実験所において、プロジェクト「量子ビームと核科学の革新的複合利用による先端的物質科学・分析研究拠点の構築」が実施されている。このプロジェクトにおいては、京都大学原子炉実験所が保有する研究用原子炉、ホットラボ、電子線型加速器など大型設備群により、ユーザのニーズに合わせた多様な量子ビームの柔軟な提供、並びに、有効かつ有機的な量子ビームと核科学の革新的複合利用方法の開発による先進的な物質科学・分析研究の拠点を形成することを目的としている。本会議は、このプロジェクト参加者による現在までの実施事項や今後の方向性についての発表および議論を行う事で、プロジェクトの在りかたと今後の更なる発展を目指したものである。

瀬戸 誠

2017 年 12 月

# ABSTRACT

The project "Construction of the basis for the advanced materials science and analytical study by the innovative use of quantum beam and nuclear sciences" at Research Reactor Institute, Kyoto University has been implemented since FY2008. One of the purposes of this project is to realize the flexible use of various quantum beams using large equipment such as Kyoto University research reactor (KUR), hot laboratories, an electron beam accelerator, etc. according to the user's request. Moreover, it is aimed to construct firm bases for advanced materials science and analysis research by developing innovative methods of the combined use of the quantum beams and nuclear science. This meeting was held to develop the project further by presenting and discussing the current status and future direction.

December 2017

Makoto SETO

# －プログラム－

日時：2017年12月15日（金）

場所：京都大学原子炉実験所 事務棟大会議室

10:00 - 10:15	「全体説明、多元素メスbauer分光法による物質・生命科学研究の展開（研究計画・構想）」・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1 瀬戸 誠（京大原子炉 核放射物理学研究分野）
10:15 - 10:30	「原子炉・加速器照射によるメスbauer分光研究の現状」・・・・・・・・・・・・・・ 6 北尾真司（京大原子炉 核放射物理学研究分野）
10:30 - 11:00	「京大炉における中性子イメージングのプロジェクトの概要と J-PARC を用いたイメージング研究」・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 14 齊藤泰司（京大原子炉 極限熱輸送工学研究分野）
11:00 - 11:15	休憩
11:15 - 11:20	「材料照射とその評価技術の高度化（研究計画・構想）」・・・・・・・・・・・・・・ 34 木野村 淳 <代理：藪内 敦>（京大原子炉 照射材料工学研究分野）
11:20 - 11:30	「KUR 低速陽電子ビームラインの陽電子強度向上のための改良」・・・・・・・・・・・・ 37 藪内 敦、木野村 淳（京大原子炉 照射材料工学研究分野）
11:30 - 11:50	「材料照射ターゲットの高精度化と照射研究への寄与」・・・・・・・・・・・・・・ 42 木野村 淳、○藪内 敦（京大原子炉 照射材料工学研究分野）、外山 健（東北大）、 鬼塚貴志（福井大）
11:50 - 13:00	休憩
13:00 - 13:15	「KUR における量子ビームを用いたナノ構造研究（グループの全体説明）」・・・・ 49 杉山正明（京大原子炉 粒子線物性学研究分野）
13:15 - 13:30	「京大炉における蛋白質の重水素化の取り組み及び最近の研究成果」・・・・・・・・ 53 井上倫太郎（京大原子炉 粒子線物性学研究分野）
13:30 - 13:45	「量子ビーム小角散乱法を用いた食品タンパク質凝集体のナノ構造解析」・・・・ 62 佐藤信浩（京大原子炉 粒子線物性学研究分野）
13:45 - 14:00	「超遠心分析を用いたタンパク質の溶液構造解析」・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 68 守島 健（京大原子炉 粒子線物性学研究分野）

14:00 - 14:40	「同位体を利用した先進科学の創出」・・・・・・・・・・・・・・・・ 75 1. 原子炉や加速器を用いた核反応メカニズム 2. 放射化分析法を用いた特色ある物質の微量元素分析 3. 原子力事故による汚染メカニズムの解明 大槻 勤（京大原子炉 同位体製造管理工学研究分野）
14:40 - 14:55	休憩
14:55 - 15:15	「電子線形加速器をツールとしたマルチ量子ビーム利用拠点の構築（全体報告）」 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 95 高橋俊晴（京大原子炉 研究炉安全管理工学研究分野）
15:15 - 15:35	「電子ライナックによる高強度コヒーレントテラヘルツ光源の特性と先端科学への応用」・・・・・・・・・・・・・・・・ 104 奥田修一（大阪府立大・名誉教授）
15:35 - 15:55	「京大炉ライナックにおける中性子利用研究の現状」 堀 順一（京大原子炉 研究炉安全管理工学研究分野）
15:55 - 16:25	「総合討論」
16:25 - 16:30	「閉会の挨拶」 瀬戸 誠（京大原子炉 核放射物理学研究分野）

# 多元素メスバウアー分光法による物質・生命科学研究の展開

(京大原子炉 核放射物理学研究分野) 瀬戸 誠

## 1. はじめに

核放射物理学分野では、研究用原子炉からの中性子および加速器による荷電粒子の照射などを利用して生成した放射性同位体からの $\gamma$ 線や放射光 X 線による核励起・散乱現象の基礎的研究、ならびにこのような原子核現象を物質・生命現象の解明のために用いた先端な応用研究を行っている。さらに、このような現象を用いて、これまでの方法では困難であった測定を可能とする先端的な分光法開発も実施している。

原子核（放射性同位体）は、物質・生命現象の解明のためのプローブとして、電子系には存在しない大きなポテンシャルを有している。例えば、 $^{57}\text{Fe}$  原子核の第一励起状態は 14.4 keV であるのに対し、その線幅は 4.7 neV と大変狭く、 $\Delta E/E$  としては $\sim 10^{-13}$  となっている。さらに、同位体は水素などの軽い一部の元素を除けば、元素としての物性に大きな違いはないものの、原子核としては大きく違っているため有効に利用することで大変ユニークなプローブとなり得る。しかしながら、放射性同位体の場合、その取扱いの問題などから、その有効性が十分に開拓されて利用されているとは言えないように思われる。そこで、このような同位体（原子核）の可能性を探求し、それを用いた“物質・生命研究への懸け橋”となる新しい研究を行うことは、多くの分野での新たな発展・展開につながり意義のあることと考えられる。そのような原子核の物質・生命科学研究への展開において、本研究分野では無反跳核共鳴吸収分光法（メスバウアー）と核共鳴散乱分光法に関する研究を行なっている。

## 2. 研究内容

メスバウアー分光法は、原子核をプローブとしてそのプローブ原子核周辺の電子状態を、原子核と電子系との相互作用による“原子核のエネルギー準位への影響”として測定するものである。そのため、物質内の特定元素についての性質を明らかにすることができる非常に有効な測定法である。プローブとしては通常の場合、安定同位体を用いることから、元素の壊変などが生じたりイオンの打ち込みなどによる試料の損傷などが無い。よって、測定対象に影響を与えることなく非常に多くの試料での測定が可能であり、 $^{57}\text{Fe}$  同位体を中心とした多くの研究がなされている。メスバウアー分光法では、安定同位体を含む測定試料に対して、外部の放射性同位体 (RI) 線源から $\gamma$ 線を照射し、その $\gamma$ 線の吸収エネルギー依存性を測定することによってメスバウアースペク

トルを得るが、長寿命な RI 線源が入手可能な  $^{57}\text{Fe}$  などの元素以外の場合には、原子炉や加速器などで短寿命 RI 線源を作製することによって、測定が可能となる。このような測定対象となるメスバウアー核種を増やすことによって、現代の物質・生命科学研究で必要とされる多くの元素での測定が可能となる。

核共鳴散乱法は、放射光 X 線などのエネルギー可変かつ高輝度な線源を用いて原子核の共鳴散乱を起させるもので、通常の $\gamma$ 線源では困難な meV オーダーの元素を特定したフォノン測定が可能である核共鳴非弾性散乱などが測定可能となる。鉄を含む酵素などに対して、この方法を用いた分子振動測定と DFT モデル計算とを組み合わせることで、その活性中心の構造解明に関する研究が精力的に実施されている。また、原子核の励起準位の線幅が大変狭いことを利用した neV オーダーの準弾性散乱測定についても大きな進展をみせている。

本プロジェクト研究では、このようなメスバウアー分光法の高度な応用研究と新しい方法論の構築を多様な研究分野において確立することを目指しており、以下のような研究テーマを実行中である。

### <多元素メスバウアー分光法の開発>

原子炉からの中性子照射および加速器による荷電粒子照射による短寿命 RI 線源の生成とこれを利用した多元素メスバウアー分光測定の実現。

### <原子層オーダーメスバウアー分光の開発>

原子層オーダーの多層膜を作製可能な MBE 装置の導入を目指し、新たな研究分野創成を目指す。

### <強磁場メスバウアー分光法の展開>

多元素測定と強磁場測定を融合させることで世界的にも類をみない研究センターとしての展開を目指す。

## 3. まとめ

このように、本研究分野では、先進的なメスバウアー分光法開発を実施し、現代の物質・生命科学研究で求められる局所性や原子分解能での測定実現を目指している。また、近年導入した強磁場下メスバウアー分光装置は、磁性等の研究において非常に強力なツールである。これらの様々な分野での有効活用を図るためにはプロジェクトとして研究を立ち上げた。今後は、これらの研究を本格的に実施し、さらなる展開を目指すものである。

# 多元素メスバウアー分光法による 物質・生命科学研究の展開

(研究計画・構想)

京都大学原子炉実験所  
粒子線基礎物性研究部門

瀬戸 誠

量子ビームと核科学の革新的複合利用による先端的物質科学・  
分析研究拠点の構築

## 【目的・目標】

ユーザのニーズに合わせた多様な量子ビームの柔軟な提供、並びに、有効かつ有機的な量子ビームと核科学の革新的複合利用方法の開発による先進的な物質科学・分析研究の拠点を形成する

中性子線：小角散乱、イメージング、照射効果、RI生成、放射化分析

X線：小角散乱、回折

陽電子：材料研究

$\gamma$ 線： $^{60}\text{Co}$ 照射、メスバウアー効果

電子線：照射、コヒーレント放射光、中性子発生、RI生成

# 多元素メスバウアー分光法による物質・生命科学研究の展開

多元素測定や強磁場下測定などの手法を用いることで、メスバウアー分光法の高度な応用研究と新しい方法論の構築を多様な研究分野において確立することを目指す。

- ◆有用性を示す！
- ◆研究手法を発展させる！

## 多元素メスバウアー分光法の凝縮系研究への高度応用

### ◆多元素メスバウアー分光の展開

原子炉・加速器照射による短寿命R I生成により、元素を選択した局所的な電子構造・磁性測定が可能なメスバウアー分光法を多元素において実現する。

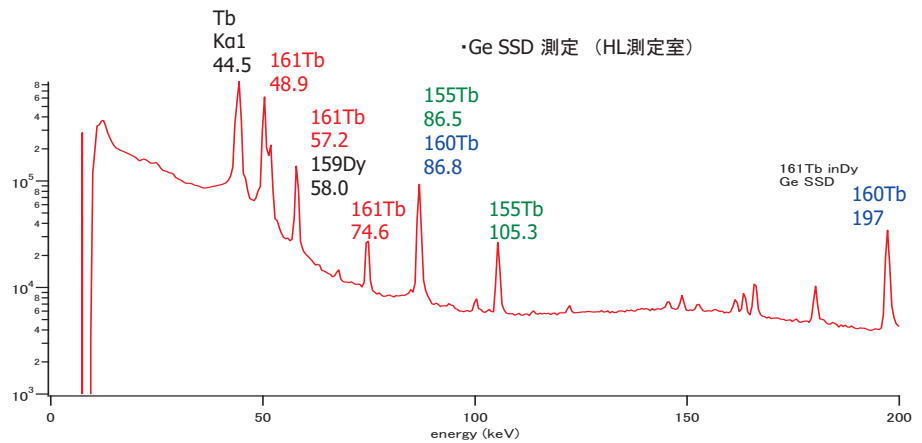
1 H																	2 He
3 Li	4 Be											5 B	6 C	7 N	8 O	9 F	10 Ne
11 Na	12 Mg											13 Al	14 Si	15 P	16 S	17 Cl	18 Ar
19 K	20 Ca	21 Sc	22 Ti	23 V	24 Cr	25 Mn	26 Fe	27 Co	28 Ni	29 Cu	30 Zn	31 Ga	32 Ge	33 As	34 Se	35 Br	36 Kr
37 Rb	38 Sr	39 Y	40 Zr	41 Nb	42 Mo	43 Tc	44 Ru	45 Rh	46 Pd	47 Ag	48 Cd	49 In	50 Sn	51 Sb	52 Te	53 I	54 Xe
55 Cs	56 Ba	72 Hf	73 Ta	74 W	75 Re	76 Os	77 Ir	78 Pt	79 Au	80 Hg	81 Tl	82 Pb	83 Bi	84 Po	85 At	86 Rn	
87 Fr	88 Ra	104 Rf	105 Db	106 Sg	107 Bh	108 Hs	109 Mt	110 Ds	111 Rg	112 Cn	113 Uut	114 Uuq	115 Uup	116 Uuh	117 Uus	118 Uuo	
57 La	58 Ce	59 Pr	60 Nd	61 Pm	62 Sm	63 Eu	64 Gd	65 Tb	66 Dy	67 Ho	68 Er	69 Tm	70 Yb	71 Lu			
89 Ac	90 Th	91 Pa	92 U	93 Np	94 Pu	95 Am	96 Cm	97 Bk	98 Cf	99 Es	100 Fm	101 Md	102 No	103 Lr			



# 多元素メスbauer分光法の凝縮系研究への高度応用

ライナック制動放射 ( $\gamma, n$ ) 反応によるRI生成

- ◆  $^{161}\text{Dy}$ メスbauer効果
- ◆  $^{67}\text{Zn}$ メスbauer効果
- ◆  $^{61}\text{Ni}$ メスbauer効果



# 多元素メスbauer分光法の凝縮系研究への高度応用

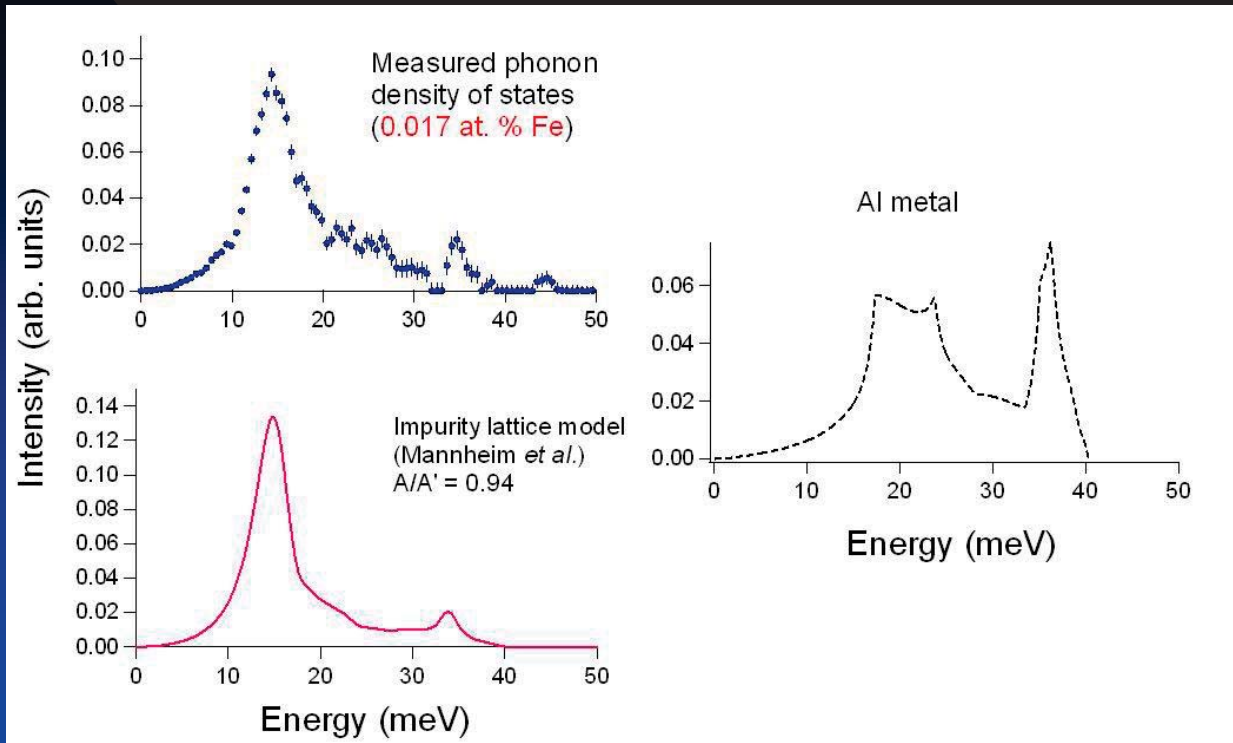
## ◆ 強磁場メスbauer分光

強磁場下での測定を実現することで、現代の先端的な物質科学研究分野である、磁性の関与した超伝導体、スピントロニクス、マルチフェロイック系についての研究を展開する。

装置開発関係：強磁場メスbauer分光装置の整備  
(ヘリウム再凝縮装置との連結)

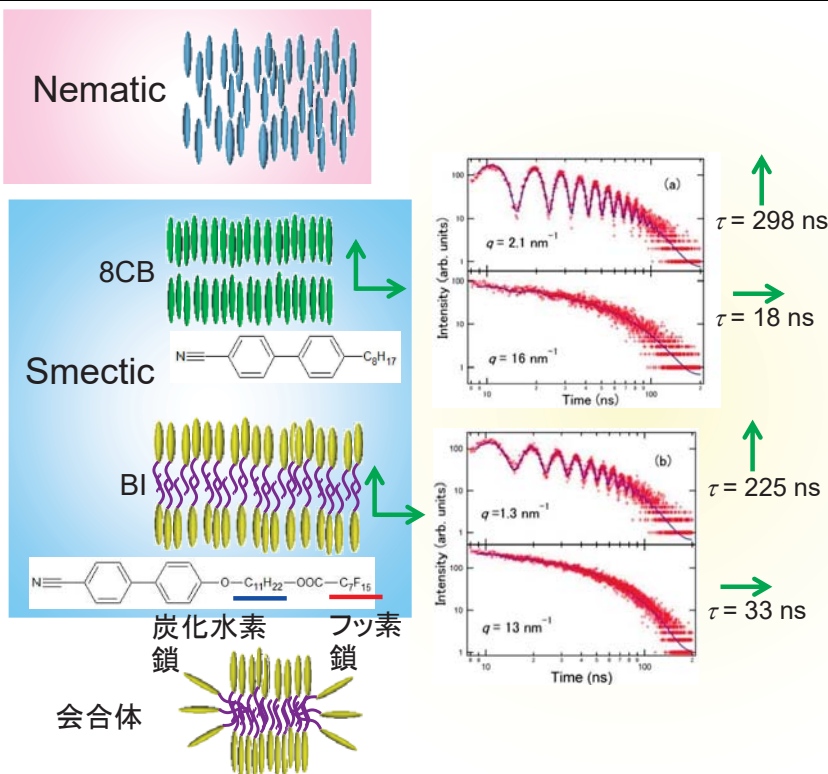


# Al中における希薄Fe原子のフォノン状態密度



## neV超高分解能準弾性散乱法

### — 両親媒性液晶分子のダイナミクス —



- 典型的な棒状分子
- 両親媒性分子



共に層状構造をとる

ダイナミクスに違いは？

層構造における層間・層内の拡散の振る舞い

⇒ 動的振る舞いは同じ機構を示唆

# 原子炉・加速器照射によるメスバウアー分光研究の現状

(京大原子炉 核放射物理学研究分野) 北尾真司

## 1. はじめに

物質のさまざまな性質を理解するためには、ある一つの元素に着目して現象の本質を見出すことが極めて有効であり、ある特定の元素だけについて電子状態や振動状態の情報を抽出することができるメスバウアー分光は非常に強力な分光法である。しかしながら、一般的なメスバウアー分光法では、放射性同位元素の入手や管理の制限から、比較的取扱が容易な密封線源により実施可能な<sup>57</sup>Feまたは<sup>119</sup>Snに限られており、それ以外の核種はほとんど行われていないのが現状である。一方、本実験所では研究炉による中性子照射やライナックの利用により短寿命線源を生成して、多様な非密封の放射性同位元素の取り扱いができる環境が整っているという世界的にも極めて限られた設備を有する。本研究室では本実験所の特性を最大限に生かし、多種の元素のメスバウアー分光法を開発して、これらを多様な分野に応用し、新たな研究を拡大することを目指した研究を進めている。

## 2. 本実験所で実施しているメスバウアー分光核種

本実験所ではこれまでより、密封線源によるメスバウアー分光(表1)の研究を積極的に行っている。密封線源では研究炉の運転にかかわらず、実験を実施することが可能であり、これまで数多くの成果が得られてきた。近年は稀有な装置である強磁場メスバウアー分光装置とも組み合わせることにより、貴重な実験成果が得られてきている。それに加え、以前より原子炉による照射による(n, γ)反応で生成する短寿命核種を利用したメスバウアー分光(表2)についても、積極的に実施してきた。

## 3. 本実験所で実施をめざすメスバウアー分光核種

本年、研究炉は再稼働を果たし、研究炉を利用した線源生成が可能になったことから、研究炉を利用したメスバウアー分光実験が可能となっている。研究炉を活用する研究は非常に有用であり、新たな核種のメスバウアー分光実験を実用化することを目指した研究を積極的に進めている(表3のうち、(n, γ)生成核種)。一方、本実験所ではライナックを利用し、電子線をPtターゲットに照射して高エネルギーのガンマ線を発生させ、(γ, n)または(γ, p)の光核反応により核種生成を行うことも可能である(表3のうち、(γ, n)または(γ, p)生成核種)。種々の事情により研究炉の運転が停止し、研究炉を利用したメスバウアー分光が実施できない状況や、将来的な原子炉の運転停止が見込まれることから、加速器を利用した核種生成は非常に重要である。

本年の研究において、<sup>161</sup>Dyや<sup>166</sup>Erなどいくつかの核種について線源生成を試み、メスバウアー分光実験の実施に成功している。これらの多様な核種のメスバウアー線源生成手法を拡大し、実用化することにより、多種の元素のメスバウアー分光法が可能になり、多様な分野における高度な応用研究を積極的に展開することが期待できる。

メスバウアー核種	エネルギー (keV)	半減期 (ns)	線源	線源の半減期
<sup>57</sup> Fe	14.4	98.3	<sup>57</sup> Co	271.8d
<sup>119</sup> Sn	23.9	18.0	<sup>119m</sup> Sn	293.1d
<sup>151</sup> Eu	21.5	9.6	<sup>151</sup> Sm	90y

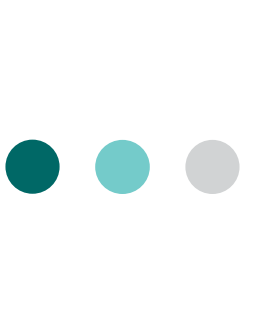
表1. 実施中の密封線源によるメスバウアー核種

メスバウアー核種	エネルギー (keV)	半減期 (ns)	線源	線源の半減期
<sup>125</sup> Te	35.5	1.48	<sup>125m</sup> Te	57.4d
<sup>129</sup> I	27.8	16.8	<sup>129</sup> Te	69.6m
			<sup>129m</sup> Te	33.6d
<sup>197</sup> Au	77.4	1.91	<sup>197</sup> Pt	19.9h

表2. 実施中の原子炉照射によるメスバウアー核種

メスバウアー核種	エネルギー (keV)	半減期 (ns)	線源	線源の半減期	線源の生成反応
<sup>61</sup> Ni	67.4	5.34	<sup>61</sup> Co	1.65h	(γ, p)
<sup>67</sup> Zn	93.3	9160	<sup>67</sup> Cu	61.8h	(γ, p)
<sup>127</sup> I	57.6	1.95	<sup>127</sup> Te	9.35h	(n, γ)
			<sup>127m</sup> Te	109d	(n, γ)
<sup>157</sup> Gd	63.9	460	<sup>157</sup> Eu	15.2h	(γ, p)
<sup>161</sup> Dy	25.7	29.1	<sup>161</sup> Tb	6.88d	(n, γ)*
					(γ, p)
<sup>166</sup> Er	80.6	1.82	<sup>166</sup> Ho	26.8h	(n, γ)
					(γ, p)
<sup>169</sup> Tm	8.41	4.08	<sup>169</sup> Er	9.4d	(n, γ)
					(γ, n)
<sup>170</sup> Yb	84.3	1.61	<sup>170</sup> Tm	129d	(n, γ)
					(γ, p)
<sup>193</sup> Ir	73.0	6.09	<sup>193</sup> Os	30.1h	(n, γ)

表3. 原子炉照射およびライナック利用により実施を目指している主なメスバウアー核種  
(\* )<sup>161</sup>Tbは<sup>161</sup>Gdのβ崩壊により生成



# 原子炉・加速器照射によるメスバウアー分光研究の現状

粒子線基礎物性 北尾真司



## 共同研究者

- 京大原子炉実験所

瀬戸誠、小林康浩、齋藤真器名

増田亮、黒葛真行

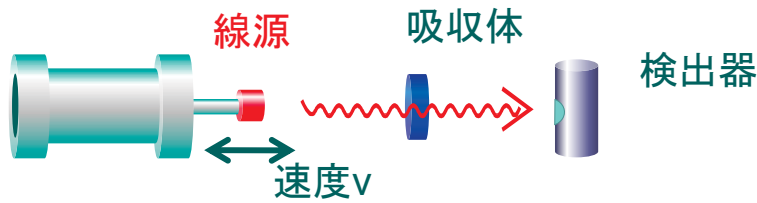
窪田卓見

- 京大大学院理学研究科

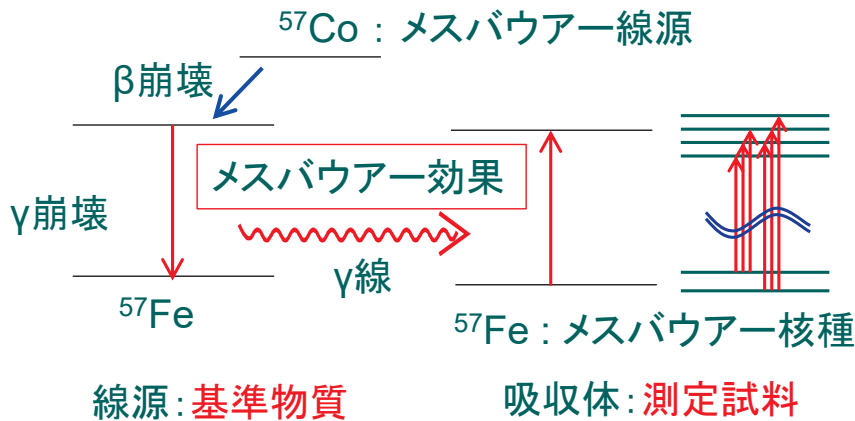
石橋宏基、細川修一

# メスバウアー分光

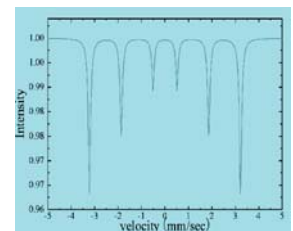
放射性同位体(RI)



メスバウアースペクトル



透過率

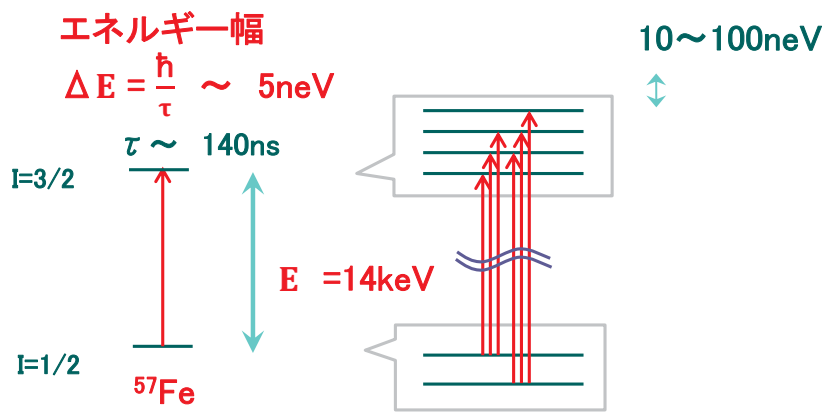


速度v

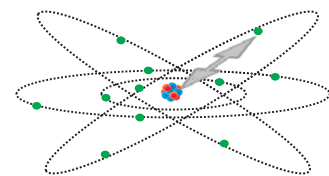
エネルギー分裂がない物質  
(シングルピーク)

逆(線源実験)も可能

# 超微細相互作用



原子核と電子の  
相互作用  
neV ~ μeV

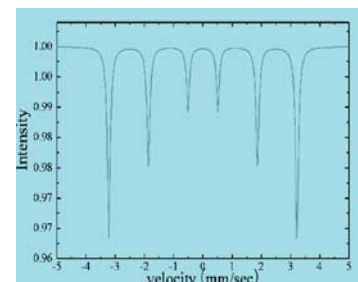


原子核の遷移エネルギー  
keV ~ MeV

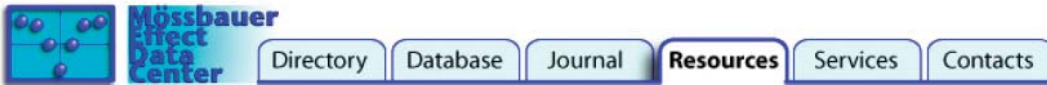
超高エネルギー分解能の分光法  $\frac{\Delta E}{E} \sim 10^{-12}$

特定元素(核種)についてのみの情報が得られる

- 電子状態 — 原子価数、共有結合性(イオン性)、..
- 磁性 — 常磁性、(反)強磁性、磁気モーメント、..
- 格子振動 — デバイ温度、..



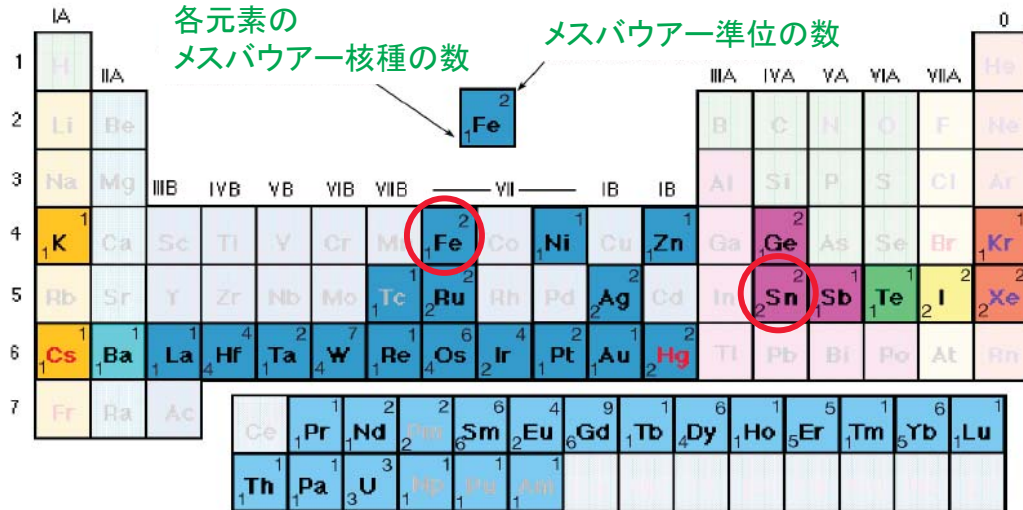
# メスバウアー核種



## Properties of Isotopes Relevant to Mössbauer Spectroscopy

Select an element in the periodic table below by clicking in the box.

メスバウアー核種  
~100種類



密封線源  
(入手可能)  
 $^{57}\text{Fe}$ ,  $^{119}\text{Sn}$   
のみ

Mössbauer Effect Data Center

<http://www.mossbauer.info>  
<http://www.medc.dicp.ac.cn>

# メスバウアー分光の現状

## ○密封線源(長寿命) ...購入可能

現在入手可能なものは $^{57}\text{Co}$ ( $\rightarrow^{57}\text{Fe}$ )、 $^{119\text{m}}\text{Sn}$ ( $\rightarrow^{119}\text{Sn}$ )のみ

=>近年のメスバウアー分光の報告はほとんど $^{57}\text{Fe}$ 、 $^{119}\text{Sn}$ が現状。

## ○非密封線源(短寿命) ...測定ごとに放射性同位体(RI)を生成して使用

=>多様な核種のメスバウアー分光が可能。

現状では、国内外でも施設が非常に限られている。

### 原子炉実験所の優位性

◎研究炉(KUR)による中性子照射でRI生成可能

◎加速器(ライナック等)を利用したRI生成可能

◎非密封線源の取扱いができる設備

(比較的大きな数量の許認可:HLホットケープセル、TL物理5室ドラフト)

## ○放射光施設(SPring-8等)

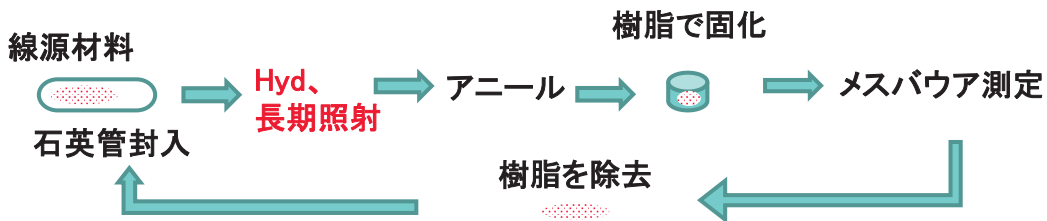
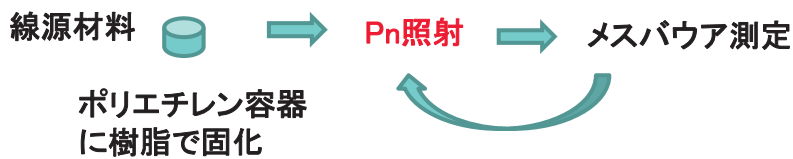
先進的実験が可能だが、実験上の制約があり、相補的な利用に留まる

# 研究炉による中性子照射

## 研究炉(KUR)による中性子照射

目的の線源の半減期に応じた照射設備を使用

- 圧気輸送管(Pn) 1~4時間
- 水圧輸送管(Hyd) 数時間~1週間
- 長期照射 1週間~数ヶ月



# 実施中のメスバウアー核種

## 密封線源

メスバウアー核種	エネルギー (keV)	半減期 (ns)	線源	線源の半減期
<sup>57</sup> Fe	14.4	98.3	<sup>57</sup> Co	271.8d
<sup>119</sup> Sn	23.9	18.0	<sup>119m</sup> Sn	293.1d
<sup>151</sup> Eu	21.5	9.6	<sup>151</sup> Sm	90y

## 非密封線源

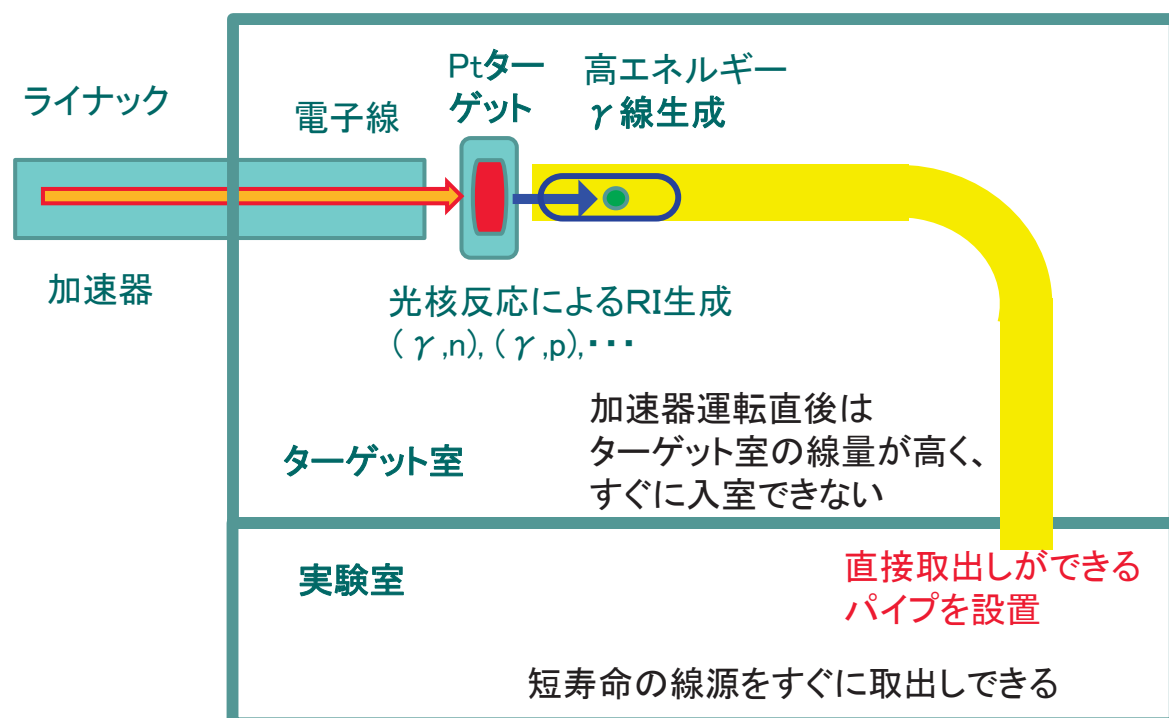
メスバウアー核種	エネルギー (keV)	半減期 (ns)	線源	線源の半減期	線源の生成反応 (KUR照射)
<sup>125</sup> Te	35.5	1.48	<sup>125m</sup> Te	57.4d	(n,γ)
<sup>129</sup> I	27.8	16.8	<sup>129</sup> Te	69.6m	(n,γ)
			<sup>129m</sup> Te	33.6d	(n,γ)
<sup>197</sup> Au	77.4	1.91	<sup>197</sup> Pt	19.9h	(n,γ)

# 計画中のメスバウアー核種

実施を目指している主なメスバウアー核種

メスバウアー核種	エネルギー (keV)	半減期 (ns)	線源	線源の半減期	線源の生成反応 (KUR)	線源の生成反応 (ライナック)
$^{61}\text{Ni}$	67.4	5.34	$^{61}\text{Co}$	1.65h	—	( $\gamma, p$ )
$^{67}\text{Zn}$	93.3	9160	$^{67}\text{Cu}$	61.8h	—	( $\gamma, p$ )
$^{127}\text{I}$	57.6	1.95	$^{127}\text{Te}$ $^{127m}\text{Te}$	9.35h 109d	(n, $\gamma$ )	( $\gamma, p$ )
$^{157}\text{Gd}$	63.9	460	$^{157}\text{Eu}$	15.2h	—	( $\gamma, p$ )
$^{161}\text{Dy}$	25.7	29.1	$^{161}\text{Tb}$	6.88d	(n, $\gamma$ ) $\rightarrow (\beta)$	( $\gamma, p$ )
$^{166}\text{Er}$	80.6	1.82	$^{166}\text{Ho}$	26.8h	(n, $\gamma$ )	( $\gamma, p$ )
$^{169}\text{Tm}$	8.41	4.08	$^{169}\text{Er}$	9.4d	(n, $\gamma$ )	( $\gamma, n$ )
$^{170}\text{Yb}$	84.3	1.61	$^{170}\text{Tm}$	128.6d	(n, $\gamma$ )	( $\gamma, p$ )
$^{193}\text{Ir}$	73.0	6.09	$^{193}\text{Os}$	30.1h	(n, $\gamma$ )	—

# ライナックを利用した線源生成





# ● ● ● | $^{166}\text{Er}$ メスバウアー(KUR)

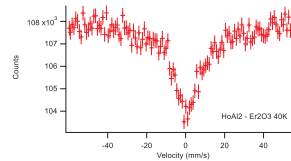
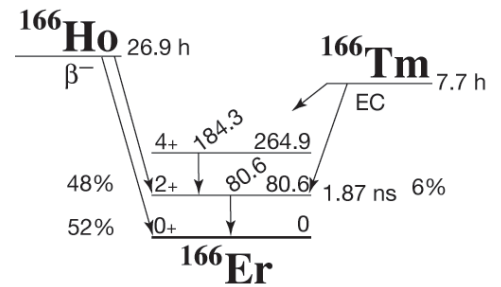
$^{166}\text{Er}$ メスバウアー準位  
エネルギー 80.6 keV、半減期1.8 ns

メスバウアー線源  
 $^{166}\text{Ho}$ (26.83h)

KUR照射(Pn)により線源生成  
 $^{165}\text{Ho}(n, \gamma)^{166}\text{Ho}$   
自然Ho( $^{165}\text{Ho}$  100%)でも副生成物なし

線源物質を作成  
 $\text{HoAl}_2$   
 $T_c \sim 27\text{K}$ で磁気転移

シングルピーク線源の作成に成功



40K

線源: $\text{HoAl}_2(^{166}\text{Ho})$   
吸収体: $\text{Er}_2\text{O}_3$

# ● ● ● | $^{161}\text{Dy}$ メスバウアー(KUR)

$^{161}\text{Dy}$ メスバウアー準位  
エネルギー 25.7keV、半減期29.1ns

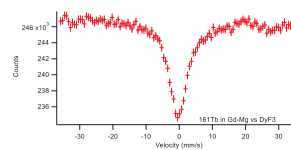
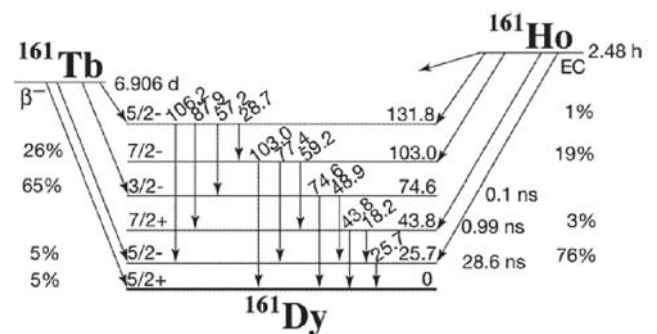
メスバウアー線源  
 $^{161}\text{Tb}$  (6.9d)

KUR照射(Pn)により線源生成  
 $^{160}\text{Gd}(21.9\%) (n, \gamma)^{161}\text{Gd}(3.66\text{m})$   
 $\downarrow$  ( $\beta$ 崩壊)  
 $^{161}\text{Tb}$  (6.9d)

副生成物  
 $^{158}\text{Gd}(24.8\%) (n, \gamma)^{159}\text{Gd}(18.5\text{h})$

線源物質を作成  
Gd-Mg合金 (Gd $\sim$ 3.5at%)

シングルピーク線源の作成に成功



RT

線源:Gd-Mg合金( $^{161}\text{Tb}$ )  
吸収体: $\text{DyF}_3$

# ● ● ● | $^{161}\text{Dy}$ メスバウアー(ライナック)

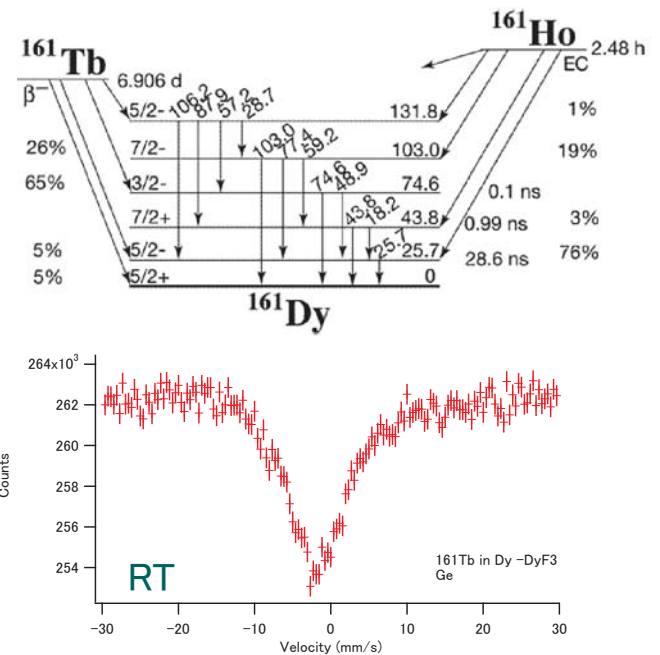
$^{161}\text{Dy}$ メスバウアー準位  
エネルギー 25.7keV、半減期29.1ns

メスバウアー線源  
 $^{161}\text{Tb}$  (6.9d)

ライナック照射(3日)により線源生成  
 $^{162}\text{Dy}(25.5\%) (\gamma, p)^{161}\text{Tb}$  (6.9d)  
副生成物  
 $^{161}\text{Dy}(18.9\%) (\gamma, p)^{160}\text{Gd}(72.3\text{d})$

線源  
金属Dyでテスト  
Dy-Mg合金での線源生成も可能

ライナックでも線源作成が可能



線源:金属Dy( $^{161}\text{Tb}$ )  
吸収体:DyF<sub>3</sub>

# ● ● ● | まとめ

○ KURによる中性子照射で新しい核種のメスバウアー分光が可能

$^{161}\text{Dy}$ 、 $^{166}\text{Er}$ メスバウアーの実現可能性を実証

○ 加速器(ライナック)を利用してKURと相補的な線源生成が可能

$^{161}\text{Dy}$ メスバウアーで双方での実験可能性を実証



KURと加速器(ライナック)の相補利用でメスバウアー分光をさまざまな核種へと展開が可能

KUR後の加速器利用(サイクロトロン?、FFAG?)メスバウアー分光への布石

# 京大炉における中性子イメージングの概要と J-PARC を用いたイメージング研究

(京大原子炉 極限熱輸送研究分野) 齊藤泰司、伊藤大介

## 1. はじめに：

中性子イメージングは、X 線イメージングと相補的な特徴をもつ有力な非破壊検査法の一つである。従来から用いられてきた透過型イメージングは様々な応用に比較的容易に用いることができるため、農学、理工学など他の研究分野の研究者が利用しやすいのが最大の特徴である。一方、パルス中性子源を用いたエネルギー依存型イメージングは、透過像以外に TOF の手法を用い、ブラッグエッジや偏極中性子など、近年様々イメージング法が開発されている。したがって、定常中性子源 (KUR) とパルス中性子源 (J-PARC) を用いたイメージングを両輪として中性子イメージングの高度化と利用法の拡大を行う必要がある。

KUR にはイメージング施設として炉室内の E2 ポートおよび B4 中性子導管室の二つの施設がある。それぞれ、E2 は中性子束が小さいものの、ビームサイズが大きく ( $\phi 150$  mm 程度)、比較的大型の試料の静止画撮像や CT 撮像に利用することができる。一方、B4 ポートは、炉室外の中性子導管室で実験を実施するため、実験における制約が比較的ゆるやかであり、様々な応用研究が実施されている。ただし、B4 ポートでは中性子束は比較的大きいものの、ビームサイズは小さい ( $10 \times 75$  mm 程度)。

本プロジェクトでは、KUR を用いた応用研究を推進するとともに、さらに、従来から定常中性子を用いた計測対象である鉛ビスマスの相変化の様子をパルス中性子イメージングにより可視化計測を行うことを目的とした。

## 2. 最近の成果：

### 1. KUR における撮像系と画像処理法の高度化

定常中性子を用いたイメージングの撮像系については、現時点では、蛍光コンバータと CCD などのカメラを組み合わせた撮像系が一般的である。蛍光コンバータとしては、輝度と残光特性に優れた  ${}^6\text{Li}$  系 (一般的には、 ${}^6\text{LiF:ZnS}$ ) のコンバータが用いられることが多いが、製造法や仕様により性能が大きく変わることが多い。KUR では従来、国産の蛍光コンバータを用いていたが、本プロジェクトによって、スイス PSI で製作した蛍光コンバータを入手し、量子効率と空間分解能の向上を行っている。さらに、冷却式 CCD カメラ以外に高速度カメラを組み合わせたシステムを構築しており、静止画のみならず、動画計測にも用いることができる。

動画計測においては、必然的に露光時間が短くなり、中性子の計測における統計誤差によりノイズが増える。このようなノイズは画像処理によって、あ

る程度は軽減することができるが、一般的なスムージングフィルタなどを用いると、画像にボケを生じさせるため、エッジ情報を保存したまま、ノイズを軽減できる処理法が必要となる。本研究グループでは、非線形フィルタの一つである Bi-Lateral フィルタを空間的のみならず時間的にも適用することによって、動画処理に用いている[1]。この方法により、中性子束が若干小さい場合においても、露光時間を短くすることが可能となり、撮像速度の選定に自由度をもたせることが可能となった。



Fig.1 Imaging system at E2 port.

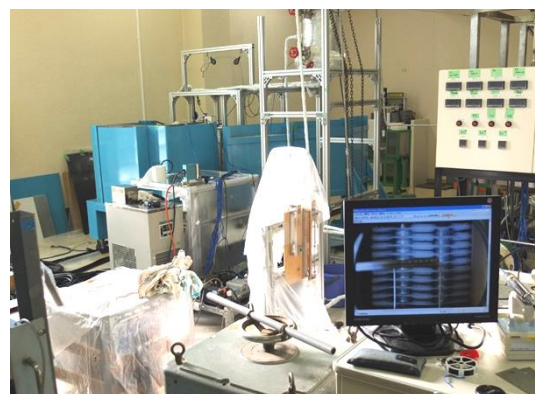


Fig.2 Experimental setup at B4 port.

### 2. KUR における応用研究の現状

KUR では Fig.1、2 に示す二つのビームポートを利用して、静止画 (主に E2) と動画計測 (主に B4) を実施しているが、特に B4 ポートでは、実験実施上の制約が少なく、①高温高压、②大電流の使用、③火器、可燃物の使用などが安全性を確認した上で実施することが可能である。これまでに実施した共同利用研究は以下の通りである。

- 1) 中性子ラジオグラフィを用いた混相流ダクト内計測に関する研究 (京大炉)

- 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 (神戸大学)
- 3) 中性子ラジオグラフィによるヒートポンプ 機器内熱物質輸送の可視化計測 (神戸大学)
- 4) 中性子ラジオグラフィを利用した超臨界水反応場の in-situ 観察 (東北大学)
- 5) 強制流動沸騰系内部のボイド率分布 (関西大学)
- 6) 中性子ラジオグラフィを用いた熱交換器への着霜の評価 (関西大学)
- 7) 中性子ラジオグラフィによる光学素子等の生産技術の解析 (理研)
- 8) 中性子ラジオグラフィの植物研究への応用 (岩手大学)
- 9) 中性子イメージングを用いたセメント硬化体中の水分測定 (茨城大学)
- 10) 各種建築材料の温度作用下における非定常水分挙動に関する研究 (東京理科大学)
- 11) フラットヒートパイプ型ヒートスプレッド内部における冷媒分布の測定 (鹿児島大学)
- 12) 工業製品の高度化に資するための金属間の有機物および水素含有物の可視化に関する研究 (名古屋大学)
- 13) 微細ウィック内流動のNRGによる可視化に関する研究 (名古屋大学)

上記のうち、4) は、高温高圧条件下における実験、5) は、試験部を直接通電加熱するために、大電力 (20V、1200A) を使用した研究、10) の実験においては、高強度コンクリートの火災時の爆裂現象を定量的に可視化計測するために、試験用コンクリートをバーナーにより加熱しているなど、いずれも一般の中性子イメージング設備では実施することができない。

また、6)の着霜の計測においては、Fig.3 に示すように可視光と中性子を用いて、霜密度の計測を行っている[2]。

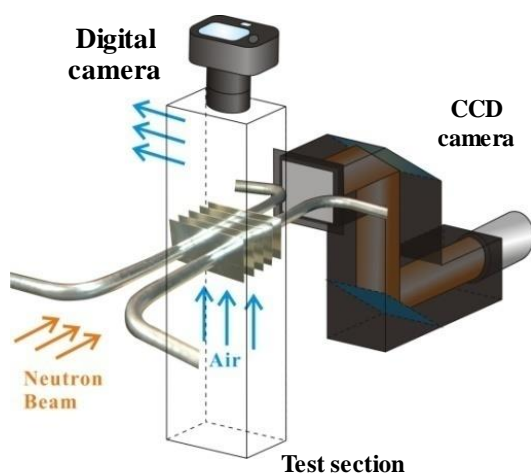


Fig.3 Experimental setup for frost visualization.

さらに、今年度より名古屋大学との共同研究によって、超流動ヘリウムの流動計測を開始している。超流動状態では、量子乱流が観測されるが、この乱流渦の可視化のために、トレーサーとして He\*2 を生成させる方法がある。この He\*2 は、従来の研究では高強度レーザーを用いて生成しているが[3]、本研究では、中性子照射により He\*2 を生成し、さらに、生成際された He\*2 に特定の波長のレーザーを当てることで、トレーサー位置を特定する。Fig.4 は B4 における実験装置セットアップを表しており、デュワー容器の中で冷却されたヘリウムに中性子とレーザーを照射し、He\*2 から発する蛍光の挙動を調べており、より最適な照射条件を調べている。

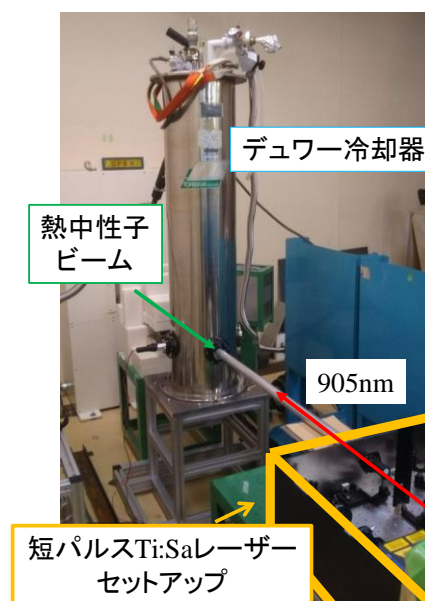


Fig.4 Experimental setup for He.

### 3. パルス中性子源を用いた液体金属の相変化研究

鉛ビスマス共晶合金 (LBE) は、低融点・高沸点を有し、化学的に安定であることから、加速器駆動システム (ADS) の核破碎ターゲット兼冷却材として有望視されている[4]。しかしながら、過冷却による LBE の凝固や酸化物などの析出は、流路閉塞シビアアクシデントを引き起こす可能性がある。また、LBE は急凝固後に体積膨張を引き起こすことが報告されており[5]、これによる容器や配管の破損が懸念される。そのため、ADS の安全性確保のためには LBE の熔融・凝固特性を十分に理解する必要がある。一般的に、固液間の相変化特性については非定常熱伝導方程式を解くことである程度予測可能であるが、固体 LBE においては凝固速度の違いにより結晶構造が変化することが報告されており[6]、正確な予測のためには結晶構造の違いによる物性値変化特性と相変化挙動の双方を理解することが重要となる。

近年、金属材料の結晶構造の解析に対して、パルス中性子を利用した評価手法の開発が進められている。本手法は中性子の透過スペクトルに現れるブラッグエッジ情報を解析することで結晶構造組織の把握や相状態の判別が可能になる[4]。本研究では、LBEの固液相構造の把握に対してパルス中性子イメージングを適用し、得られた透過スペクトルの2次元分布に現れるブラッグエッジ情報から鉛ビスマス結晶構造の変化を明らかにすることを目的とした。

実験は J-PARC のエネルギー分析型中性子イメージング装置 RADEN において行った。検出器には2次元の TOF 情報の取得が可能な GEM 検出器を用いた。検出器の空間分解能は 0.8mm/pixel であり、128×128pixel の画像が得られる。サンプルおよび試験部は Fig.5 に示すように GEM 検出器の正面に設置した。

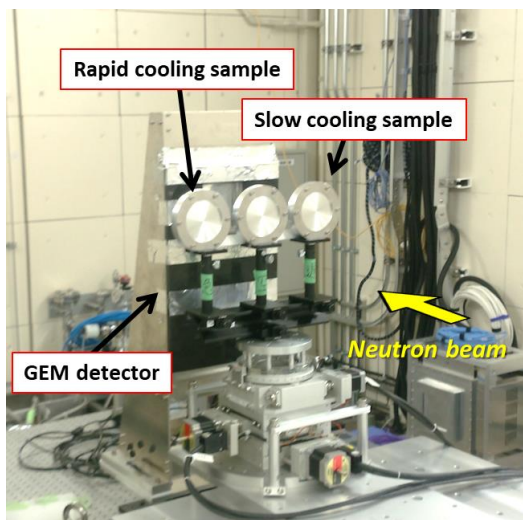


Fig.5 Experimental arrangement at RADEN.

熔融 LBE の冷却後の結晶組織構造を調べるため、異なる冷却速度で凝固させた LBE に対して測定を行った。アルミ容器内に LBE を封入した後、電気加熱炉において 200°C 程度まで加熱溶解を行った。そして、一つは氷水の中に容器ごと挿入し、急速な冷却を行った。もう一つのサンプルは、加熱を停止した炉内に放置し、ゆっくりとした冷却を行った。

Fig.6 に本計測によって得られた LBE の中性子透過スペクトルを示す。本結果はサンプル領域の空間平均スペクトルである。図より複数のブラッグエッジを確認することができる。このエッジの変化によって結晶構造の評価が可能である。次に固体 LBE サンプルのイメージング結果を Fig.7 に示す。特徴的なブラッグエッジ位置での透過率を画像化すると、冷却速度の違いによって、ブラッグエッジの出現形態が変化し、構造の違いとして可視化することができる。本結果では、徐冷サンプルにおいて比較的大きな結晶構造が表れていることがわかる。

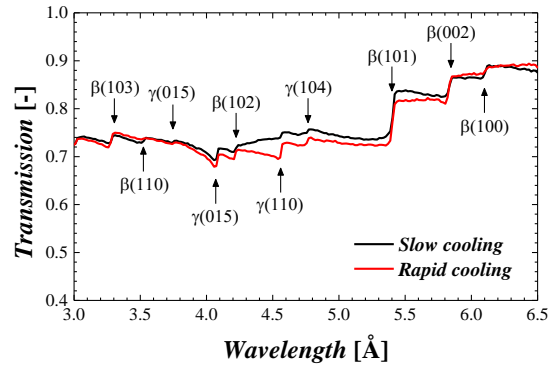


Fig.6 Neutron transmission spectrum of solid LBE.

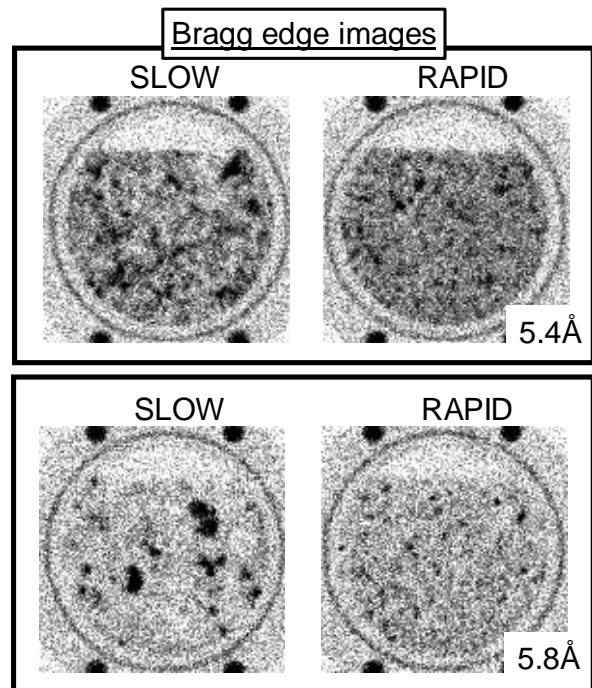


Fig.7 Neutron radiographs and Bragg-edge images of solid samples solidified by different cooling process

さらに、熔融 LBE の凝固過程を調べるため、SUS304 製矩形容器 (80x80x10mm) に LBE を封入し、上側からヒーターによる加熱、下側からヒートシンクを用いた冷却を行った。それにより、上下方向の一次元の凝固過程を模擬した。試験部および加熱部は断熱材で覆うことで熱損失を極力防いだ。室温条件から上部壁面を 220°C まで加熱し、その後冷却が終わるまでの一連の過程のイベントデータを GEM 検出器によって取得した。

Fig.8 は各点で得られた中性子透過スペクトルの 5.4Å 付近に現れるブラッグエッジのジャンプ幅をグレースケールで表した画像である。(a)においては上半分が熔融状態、下半分が固体であり、画像からも固液相のコントラストの違いが見て取れる。これは液体 LBE ではブラッグエッジが現れないためである。

一方で、(b)は(a)の状態から徐々に冷却を行い、すべてが凝固した後の結果であり、上部領域において上下方向に筋が確認できる。これはLBEの凝固方向に結晶方位が揃った樹状結晶の集合組織（デンドライト）が形成されたためであると考えられる。このように中性子透過スペクトルとその分布特性を調べることでLBEの結晶成長に関する知見を得ることができた。今後、より詳細な解析を進めることで、LBEの凝固過程や微細結晶構造の定量的な評価が可能になると考えられる。

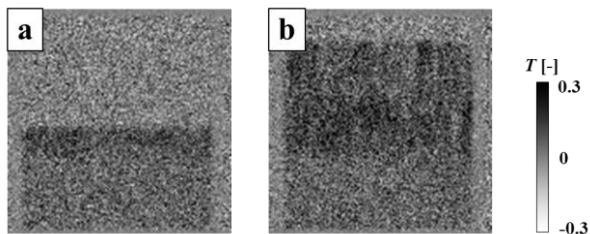


Fig. 8 Bragg edge images of LBE before and after the solidification

#### 参考文献

- [1] Saito Y. and Ito D., *Physics Procedia*, 69 (2015), 265-270.
- [2] Matsumoto R., et al., *Trans. Japan Society of Refrigerating and Air Conditioning Engineers*, 31 (2014) Issue 2, 207-217
- [3] Gao J. et al., *Rev. Sci. Instrum.* 86, 093904 (2015).
- [4] Glasbrenner H. et al., *J. Nucl. Mater.*, 343 (2005) 341-348.
- [5] Takada O. et al., *J. Nucl. Mater.*, 398 (2010) 129-131.
- [6] Sato H. et al., *Mater. Trans.*, 52-6 (2012) 1294-1302.



# 京大炉における中性子イメージングの概要と J-PARCを用いたイメージング研究

極限熱輸送研究分野  
齊藤泰司、伊藤大介



## 中性子イメージングプロジェクトの概要

### KURにおける中性子イメージング

- 定常中性子ビームを用いた透過イメージングを主体に他施設で実施困難な応用研究の推進
  - ✓ 火器を使用する実験(コンクリート爆裂)
  - ✓ 毒物・可燃物を利用する実験(宇宙開発)
  - ✓ 高温・高圧における実験(超臨界水、液体金属)
  - ✓ 大電流を用いた加熱実験(沸騰伝熱)
- より良い画像を得るためのR&Dの推進
- 新しい原理を導入した新規研究の推進

### J-PARCにおける中性子イメージング

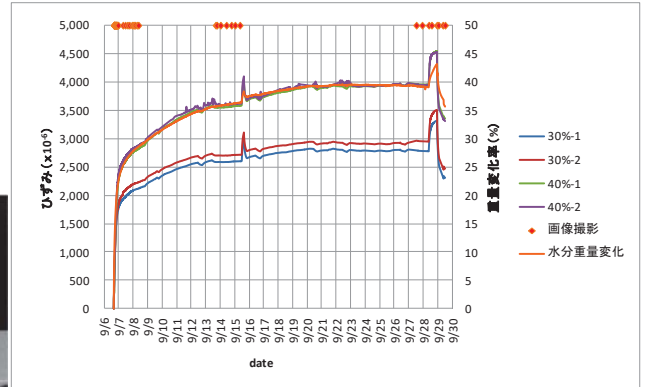
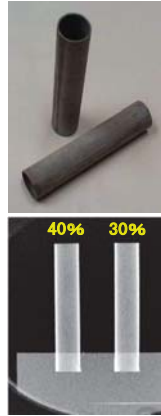
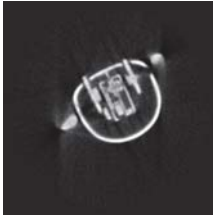
- パルス中性子イメージングの特徴を積極的に利用したイメージング実験の推進
  - ✓ 液体金属の溶融・凝固過程のイメージング
  - ✓ 液体金属の溶融状態における構造



# E2 port : in reactor hall

$3 \times 10^5$  (n/cm<sup>2</sup>s) at 5MW  
15 cm dia.

CT system with CCD camera is installed  
by RIKEN

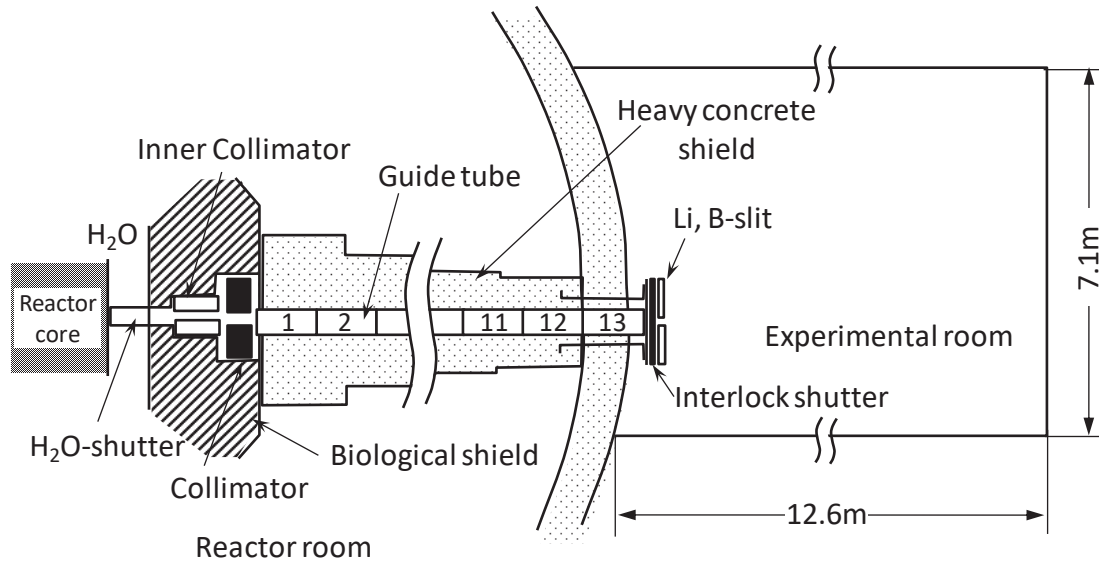


Neutron radiography image and cross section of a bath toy. K.Hirota et al.(Riken)

Continuous measurement of water in cement during hardening for more than 20 days. T.Numato et al.(Ibaraki U.)



# B4実験孔



- ・炉室外
- ・中性子束 ( $\sim 10^7$  n/cm<sup>2</sup>·s)
- ・撮影室の大きさ 12.6m × 7.1m





## イメージング施設の高度化

- 蛍光コンバータの新規導入(国産→PSI製)
- 中性子I.I.の光学系の導入
- E2: 中性子シャッタの電動化
- B4: 中性子導管の解放点検
- B4: 中性子シャッタ部分の防火
- B4: フライトチューブの導入
- X線源の導入
- X線I.I.の導入



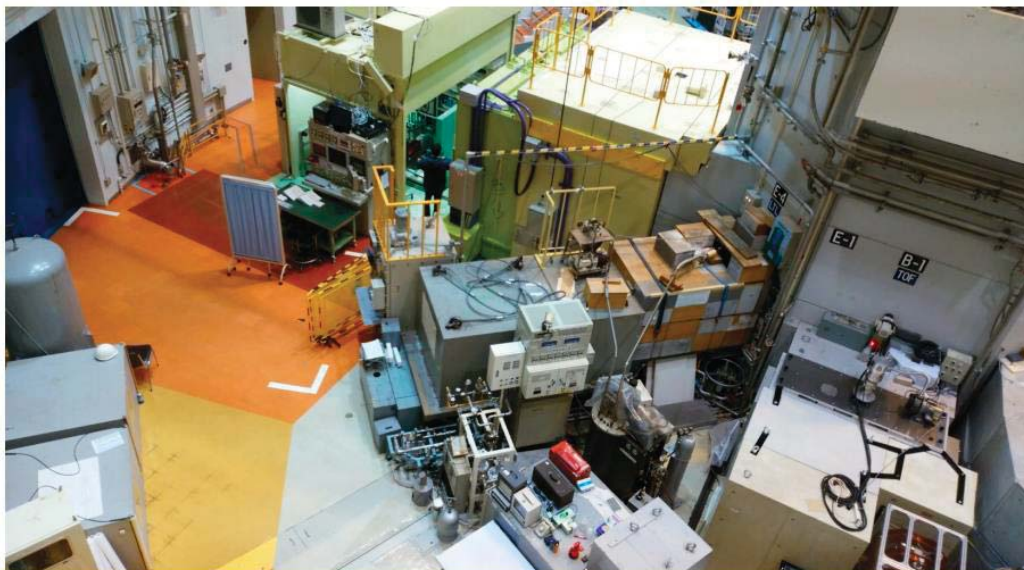
- E2用CCDカメラの更新
- E2用可変コリメータの導入
- E4用遮蔽体の導入(産業利用に向けて)



## E4ポート

TNRFやE2実験孔などは、中性子源を見込み、10m程度の飛行距離をとるシンプルな構造をとる。

高速中性子やγ線は除去されず、バックグラウンドも増加し、ビームダンプや遮蔽が大きくなり、実験スペースを圧迫する。



多数回反射ソーラースーパーミラー及びソーラコリメーターをKUR-E4実験孔の生体遮蔽内に設置し、遮蔽付きフライトパスと組み合わせることで、 $L/D > 100$ の熱中性子平行ビームのみを大口径で輸送する屈曲光学ビームラインを構築する。



# ビームの見積

KUR-E4 (目標)	中 φ15cm程度	中 10 <sup>6</sup> n/cm <sup>2</sup> s 以上	KUR炉室 @5MW
----------------	--------------	---	---------------

	面積	輝度	場所
KUR-E2	中 177 cm <sup>2</sup> (φ15cm)	小 3.2×10 <sup>5</sup> n/cm <sup>2</sup> s ~5.7×10 <sup>7</sup> n/s	KUR炉室 @5MW
KUR-B4	小 7.4 cm <sup>2</sup>	中 5×10 <sup>7</sup> n/cm <sup>2</sup> s ~3.7×10 <sup>8</sup> n/s	KUR炉室外 @5MW
TNRF	大 777 cm <sup>2</sup>	大 1.2×10 <sup>8</sup> n/cm <sup>2</sup> s ~9.3×10 <sup>10</sup> n/s	JRR-3炉室@20MW



## KURにおける共同利用研究例

### B4実験孔

- ✓京都大学(液体金属二相流、沸騰二相流)
- ✓神戸大学(熱交換機内二相流、燃料電池)
- ✓関西大学(流動沸騰、着霜現象)
- ✓東北大学(超臨界水熱合成)
- ✓JAXA(人工衛星用推進機内の触媒分解特性)
- ✓東京理科大(コンクリート爆裂実験)
- ※トヨタ自動車(Liバッテリー)(トライアル)

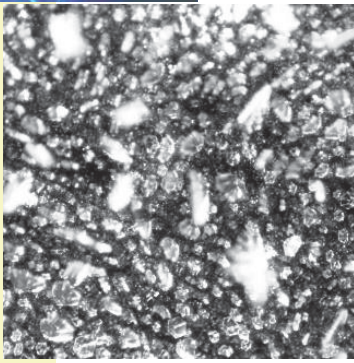
### E2実験孔

- ✓理研(工業製品の内部情報取得とシステム開発)
- ✓茨城大学(セメント硬化体中の水分測定)
- ✓岩手大学(植物研究)
- ✓神戸大学(着霜、吸着式冷凍器開発)
- ✓JAEA(光学フィルムを用いたNRシステム)
- ✓鹿児島大学(プレート型ヒートパイプ)





## 中性子およびX線を用いた霜層計測(関西大)



10min



20min

霜の上面からの写真(写真幅1.4mm)

四元博之, 石原勲, 谷尾健一, 松本亮介: 霜層厚さ評価の提案, 日本冷凍空調学会論文集, Vol.25, No.2 (2008), pp.107-113



フィン先端での霜の成長の観察

作動冷媒が0°C以下で動作する熱交換器では, 伝熱面において着霜が生じ, 熱機器(冷蔵庫, ヒートポンプなど)の性能を低下させる.

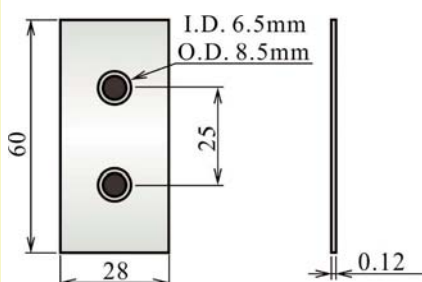
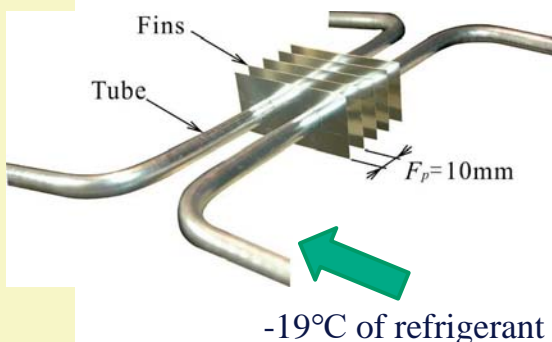
- ✓ 熱交換器の熱抵抗と流動抵抗を増加させ, 伝熱性能を低下させる.
- ✓ 家庭用冷蔵庫では1日に1度, 除霜運転(冷蔵庫の場合, 電気ヒータで加熱)を実施.
- ✓ 着霜モデルには, 霜層の構造, 霜層の熱物性(等価熱伝導率, 霜密度)が必要.
- ✓ 着霜量の測定においてでさえ, 掻き取るほかに方法がない.
- ✓ 着霜抑制・防止を目指すも, 霜層の微細構造の計測がなされていない.
- ✓ デフロスト時の融解, ドレン水排出の挙動の観察が困難.



## 中性子ラジオグラフィを用いた着霜の研究

### 1. 熱交換器フィン面上の着霜量分布計測

- ・ 京都大学原子炉実験所 B4ポート 中性子ラジオグラフィ
- ・ アルミニウム製フィンチューブ熱交換器



Experimental apparatus

Beam port



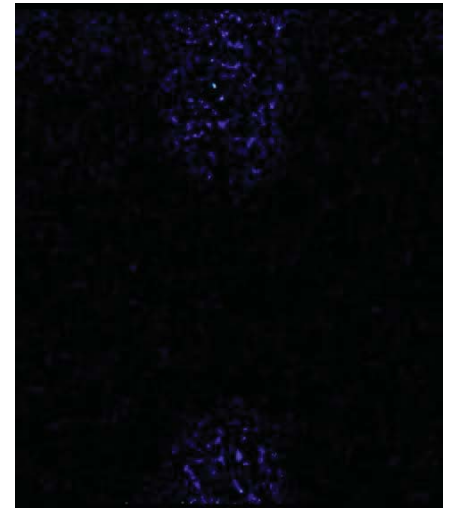
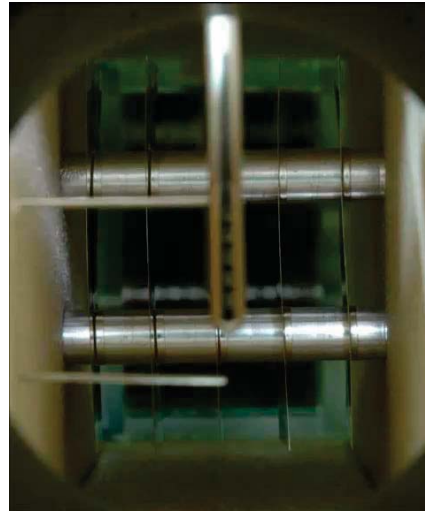
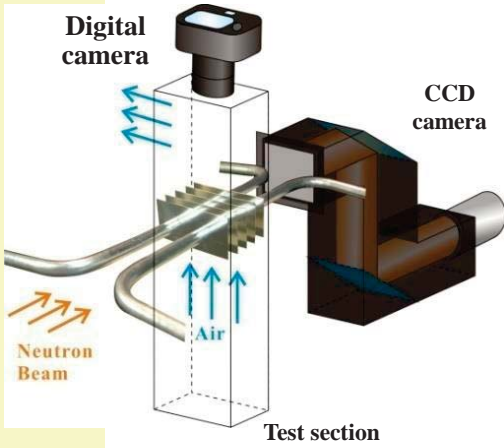


# 中性子ラジオグラフィによる着霜量分布計測 $F_p=10\text{mm}$

Flow direction

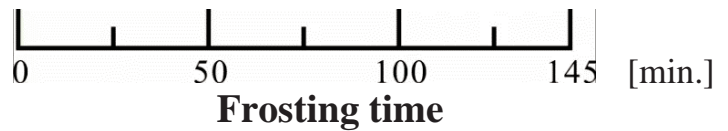


Flow direction



Digital Camera image

Frost accumulation

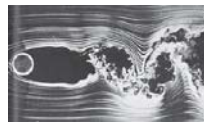


# 超流体 $^4\text{He}$ の流動計測(名古屋大)

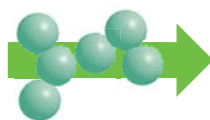
乱流のメカニズムは複雑であり、重要な未解決問題の一つ

## 古典乱流

- 発生、消失により渦が不安定
- 循環の異なる渦が混在

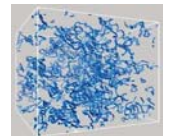


液体 $^4\text{He}$



## 量子乱流

- 粘性による減衰がなく、渦が安定
- 全ての渦の循環が等しい



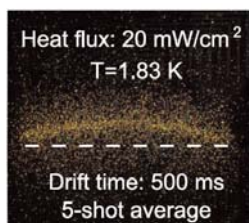
解析が容易な可能性

超流体 $^4\text{He}$

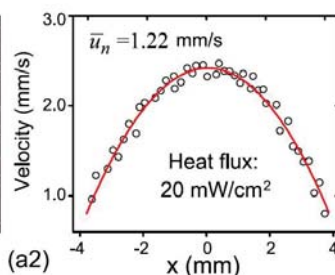


相転移 ( $T = 2.17\text{ K}$ )

超流動体中の $\text{He}_2^*$ をトレーサーとして使用する新手法が提案<sup>[1]</sup>



(a1) Laminar flow



(a2)

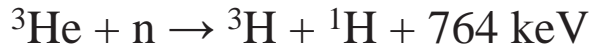
He中の流れ場の観測を実証(最大数mm)

[1] J. Gao et al., Rev. Sci. Instrum. 86, 093904 (2015).

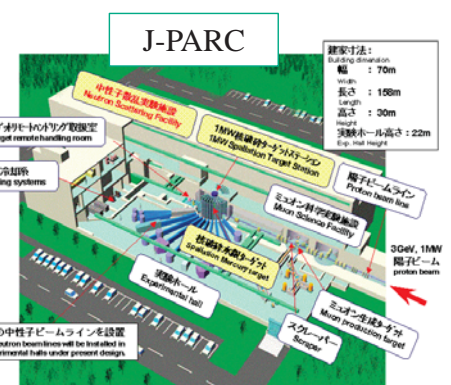
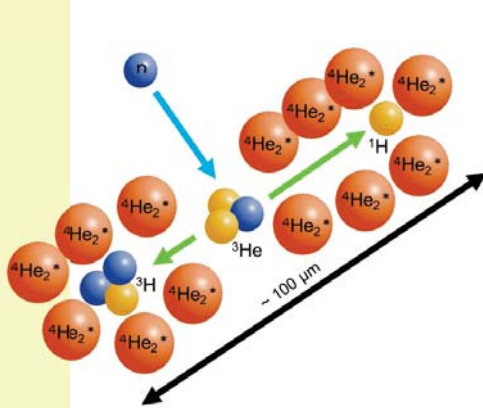
# 中性子によるHe<sub>2</sub>\*生成

	既往研究	本研究
He <sub>2</sub> *生成方法	高強度フェムト秒レーザー照射	中性子捕獲反応
生成領域	ライン状(数 mm)	点状(0.1 mm)

中性子線を用いることにより、視野内の2(3)次元速度場の測定が可能



中性子源が必要

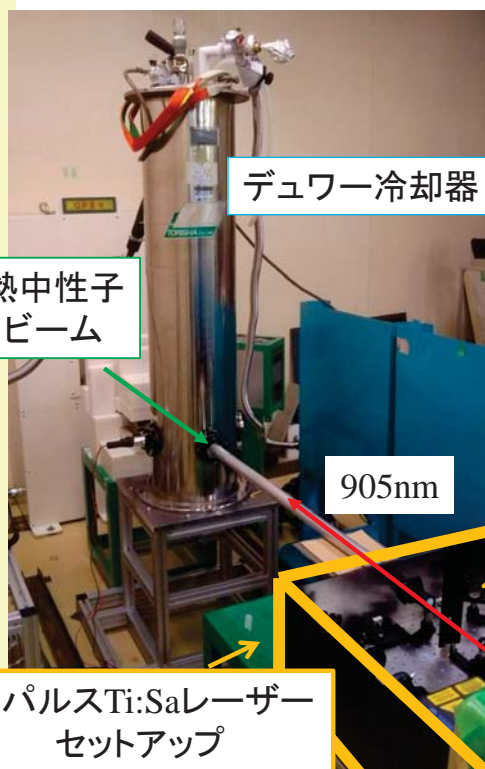


[1] J. Gao et al., Rev. Sci. Instrum. 86, 093904 (2015).

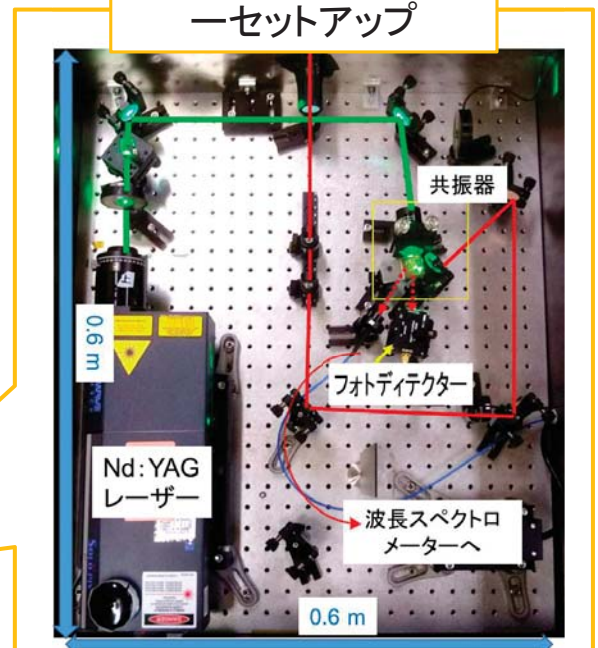
13

# B4ポートにおけるテスト実験

実験体系



短パルスTi:Saレーザーセットアップ



発振を確認

14



## まとめ

KURのイメージング設備 (E2、B4) と共同利用研究について概説した。

- (1) KURの二つのイメージング設備 (E2, B4) における応用研究
- (2) 定常中性子源を用いたイメージングは主に過渡的変化がある現象 (相変化、流れ、形状変化) に対して極めて有効。  
相分布 (気相割合) のみならず、密度差 (常温水と超臨界水) を用いても可視化が可能。
- (3) 超流動Heの流動計測の一手法として、中性子とレーザーをもちいた基礎的研究を開始している。
- (4) E2、B4のイメージング施設の高度化の現状について概説した。

## J-PARCを用いたパルス中性子イメージング

### パルス中性子を利用したイメージング

- ブラッグエッジイメージング: 金属材料などの結晶構造の可視化
- 共鳴吸収イメージング: 核種判別や温度分布の可視化
- 偏極イメージング: 磁場情報の可視化

定常中性子源を利用した中性子ラジオグラフィでは  
得ることのできない情報を取得可能

ADSの開発には冷却材である鉛ビスマスの相構造の把握、伝熱特性の評価、凝固過程の解明などが必要

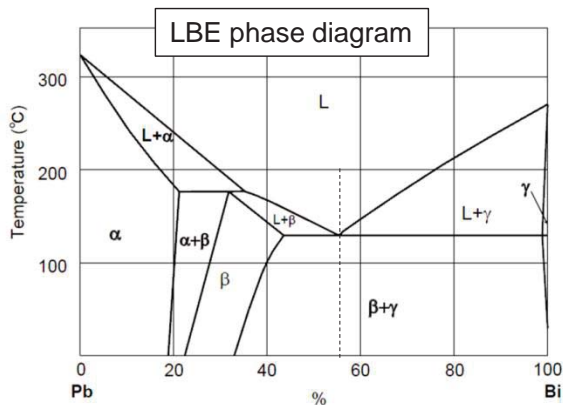
ブラッグエッジ情報を利用して、

- ✓ 鉛ビスマス固液相の判別、界面の可視化
- ✓ 鉛ビスマス固相における結晶構造組織の可視化
- ✓ 鉛ビスマス内における温度分布の可視化など

# 鉛ビスマス

Lead(Pb) 44.5% + bismuth(Bi) 55.5%

- 高い熱伝導率
- 低融点 (124°C)
- 高沸点 (1650 °C)
- 化学的安定性
- 高い中性子効率



## β-phase

intermetallic compound of Pb and Bi (hexagonal close - packed structure)

## γ-phase

0.4% Pb solid solution in Bi

(rhombohedron structure)

->lower density than β-phase

# 鉛ビスマス結晶構造

齊藤、伊藤大、佐藤(北大)

固体鉛ビスマスの熱物性の把握には、  
結晶構造の解明が不可欠。

高田ら(2010)はパルス中性子透過分光法によって鉛ビスマス結晶構造変化を調べ、冷却速度による微小组織への影響を示した。

統計精度が低く、定量的な評価が困難であった。

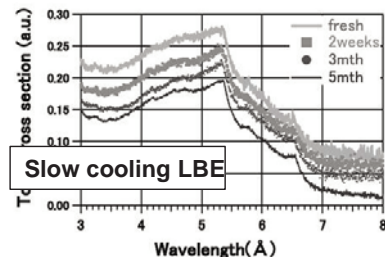


Fig. 3. Changes of total cross-sections of slow cooling LBE.

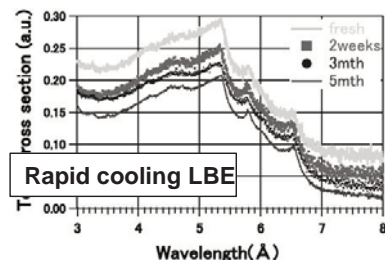
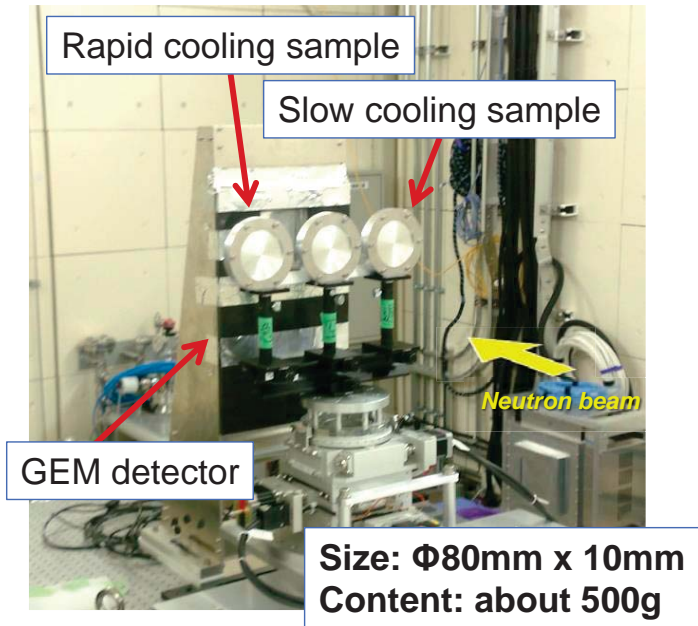


Fig. 4. Changes of total cross-sections of rapid cooling LBE.

(Takada, et al., 2010)

J-PARCにおいて二次元検出器を利用したパルス中性子イメージングを行い、より詳細な情報を得る

# Solid sample imaging



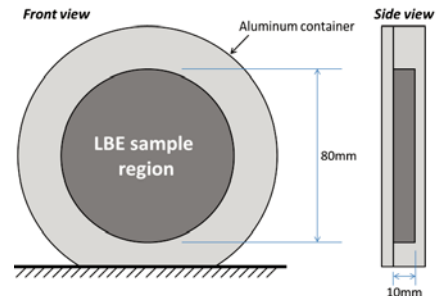
GEM detector  
 (nGEM, Bee Beans Technologies)  
 Spatial resolution: 0.8mm/pixel  
 128 x 128 pixels (100mm x 100mm)  
 TOF resolution: 10 $\mu$ s

## Preparation of solid samples

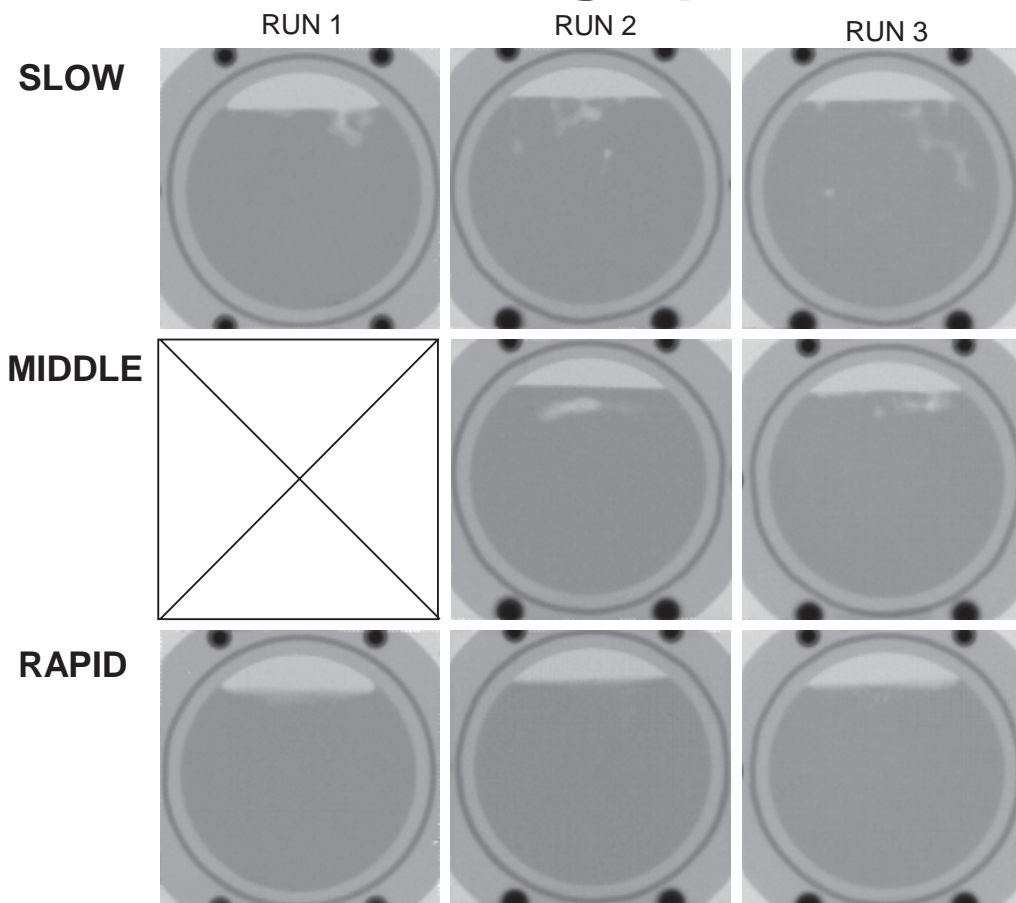
- i. 溶融鉛ビスマスをアルミ容器に封入し、室温条件で固化させる。
- ii. サンプルを再度加熱し、電気加熱炉で160 $^{\circ}$ C程度まで加熱・溶融
- iii. 異なる冷却条件によって冷却・凝固

## Different cooling process

- SLOW: 炉内冷却(0.01K/sec)
- MIDDLE: 室温での冷却
- RAPID: 氷水での冷却(100K/sec)



# Neutron radiographs



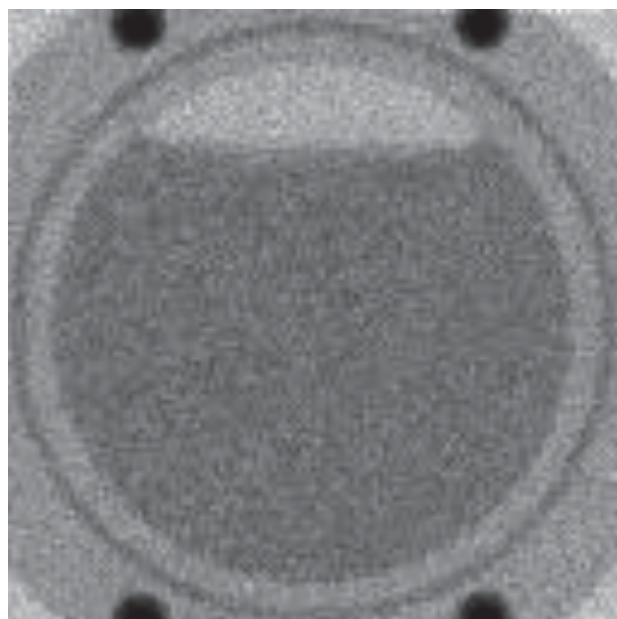
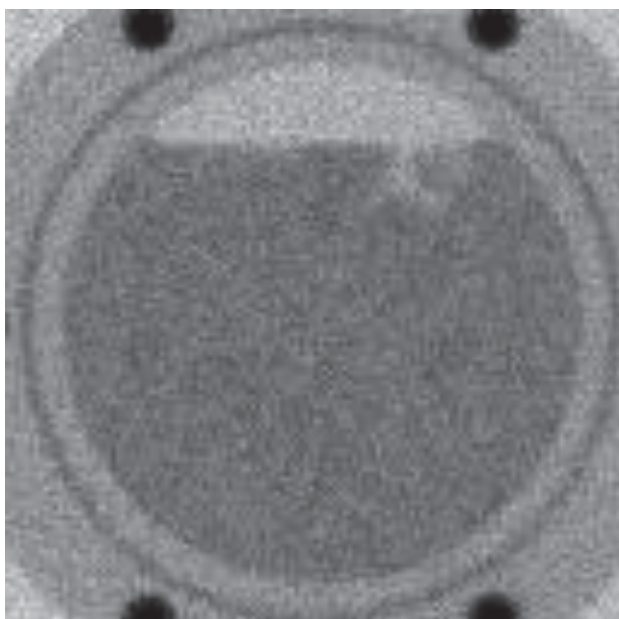
- 同じサンプルに対して、溶融・凝固・測定を繰り返してデータを取得
- 全エネルギー領域における透過像
- 透過率の違いから鉛ビスマスの領域が判別可能
- SLOWとMIDDLEにおいては、上部に空隙が形成されている。
- 大きな透過率の違いは見られない。



# Wavelength-resolved images

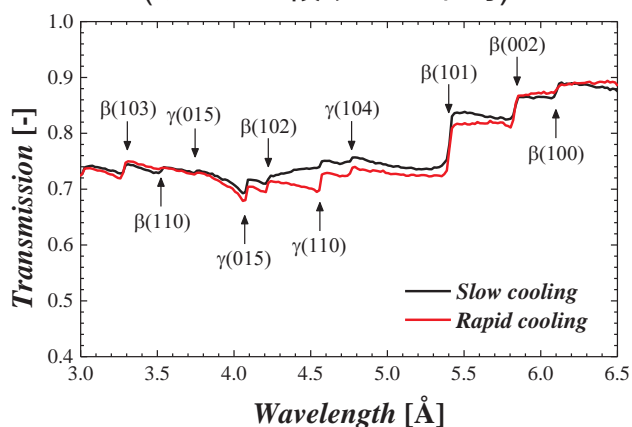
**SLOW**

**RAPID**



## Macroscopic structure

中性子透過スペクトル  
(サンプル領域の全平均)

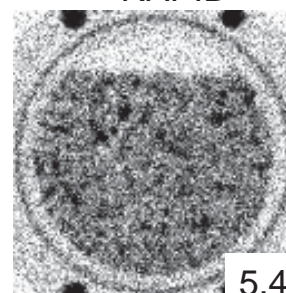
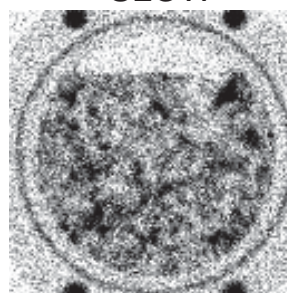


- いくつかの波長において鉛ビスマスブラッグエッジが観測された。
- 徐冷サンプルでは、大きい組織構造が見られるのに対して、急冷では比較的小さな組織が現れている。

Bragg edge images

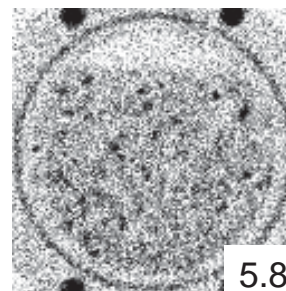
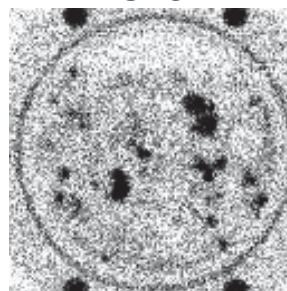
SLOW

RAPID



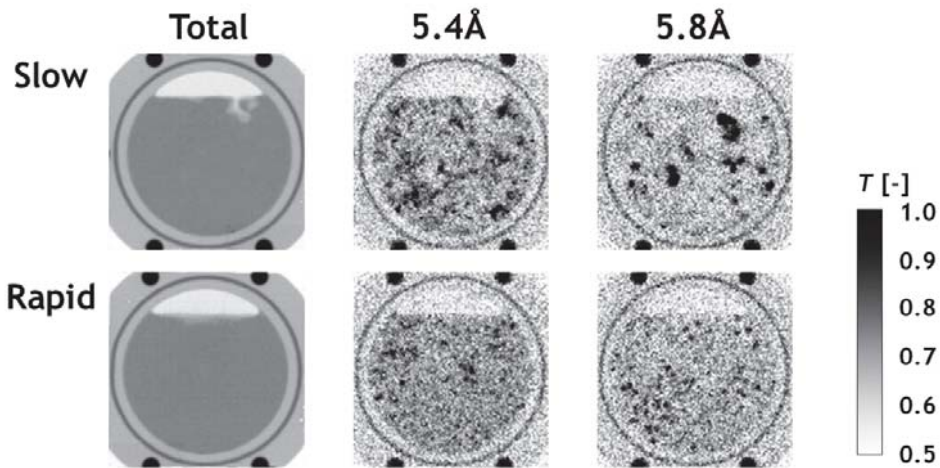
SLOW

RAPID



**ブラッグエッジによって鉛ビスマスの結晶構造の分布特性が可視化できた**

# Effect of cooling speed



## Slow cooling sample:

徐冷試料は再結晶を経過したためエネルギー的に安定な状態にあるが、急冷試料は内部にエネルギーが蓄積された状態にある。

## Rapid cooling sample:

急冷試料は固化後もスピードは遅いが再結晶を継続しやすい(継続したい)状態にある。これが、その後のβ相→γ相の析出(再結晶)を誘起し、LBEの膨張に(つまり配管破断に)つながる可能性がある。

急冷試料が膨張しやすいという先行研究の報告とも一致する。

# 鉛ビスマス凝固過程の可視化

齊藤、伊藤大、佐藤(北大)

## 鉛ビスマス冷却ADSにおけるシビアアクシデント

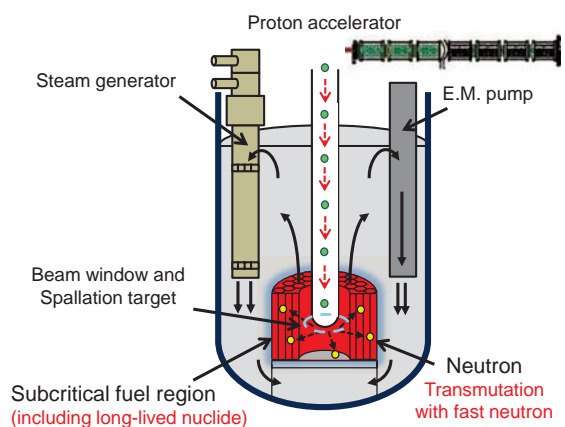
- 腐食生成物または急速凝固による蒸気発生器内流路閉塞の可能性

腐食生成物(PbO, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>)は蒸気発生器にて蓄積

蒸気発生器における急速な凝固

→ 炉心溶融事故

- 鉛ビスマス凝固による蒸気発生器破断・構造物損傷の可能性



高温部での腐食物生成、低温部での析出

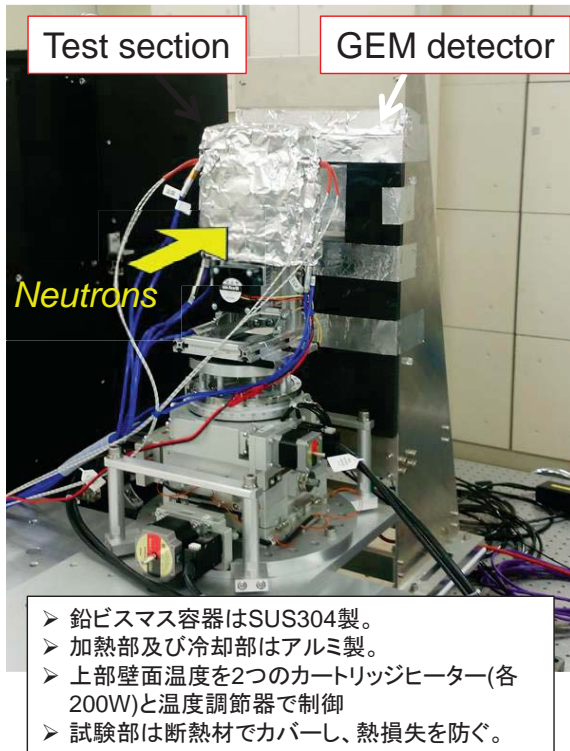
炉心容器や配管内構造物の損傷、配管破断による放射性物質の放出

過酷事故を防ぐため、鉛ビスマス(+腐食生成物)の凝固過程について明らかにする必要がある。

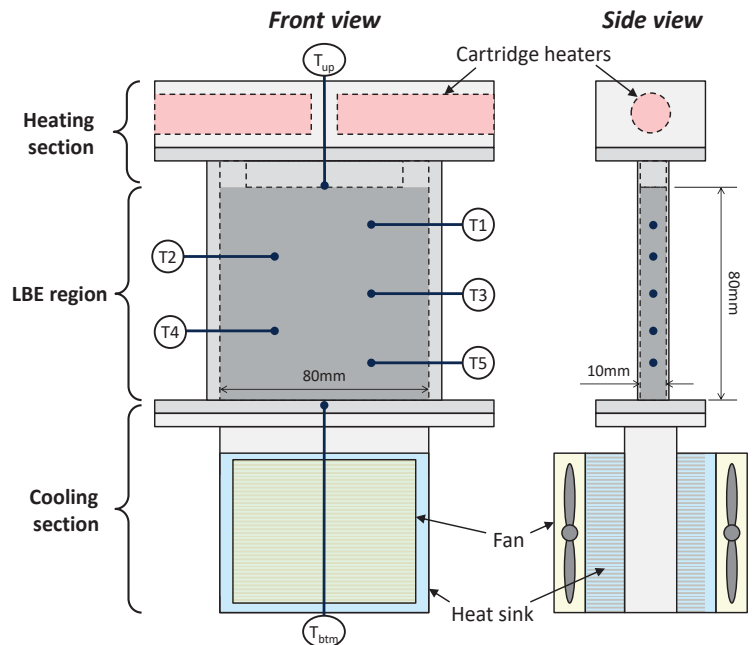
# Experimental setup (LBE solidification)

1次元凝固過程を模擬するために、

上部に加熱部、下部に冷却部を有する矩形容器を用いた。



LBE sample volume: 80 x 80 x 10mm<sup>3</sup>

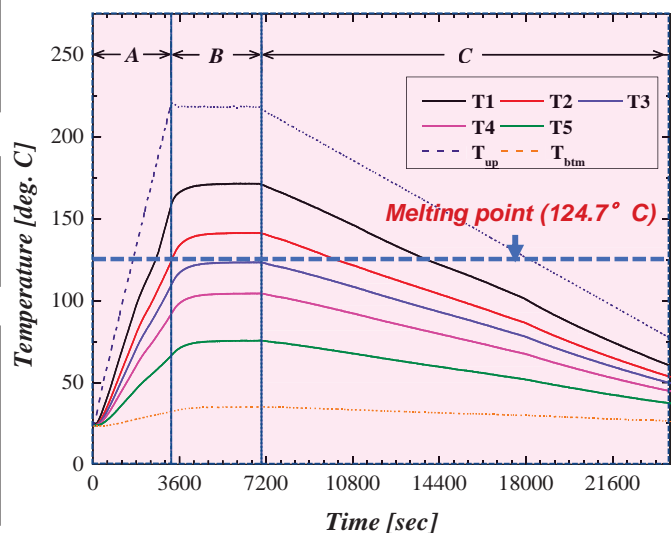


## Experimental procedure

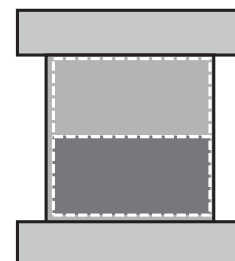
A) 上部ヒーターによる試験部の加熱 (t=0-3300sec)

B) 220 ° Cで上部壁面温度を保持 (t=3,300-6,900sec)

C) ヒーター出力を停止し、冷却ファンを起動 (t=6,900sec-)

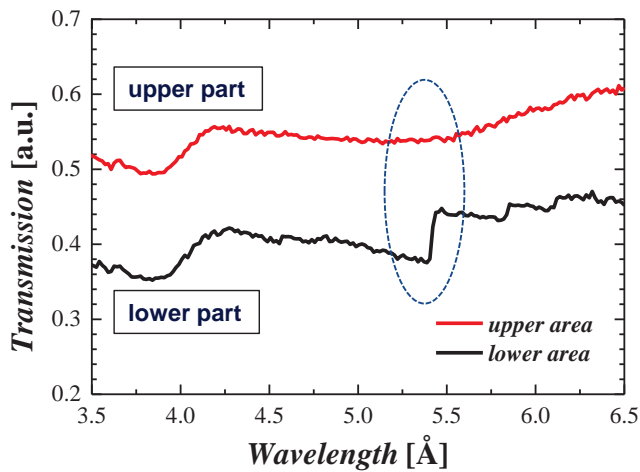


温度測定結果より、  
B領域においては上側半分は液体、  
下部は固体である。

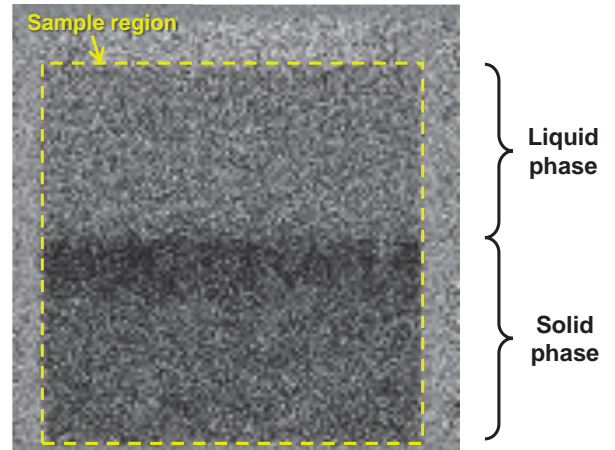


# Neutron transmission spectrum

Neutron transmission spectrum in upper and lower area in B-region



Bragg-edge image in B-region



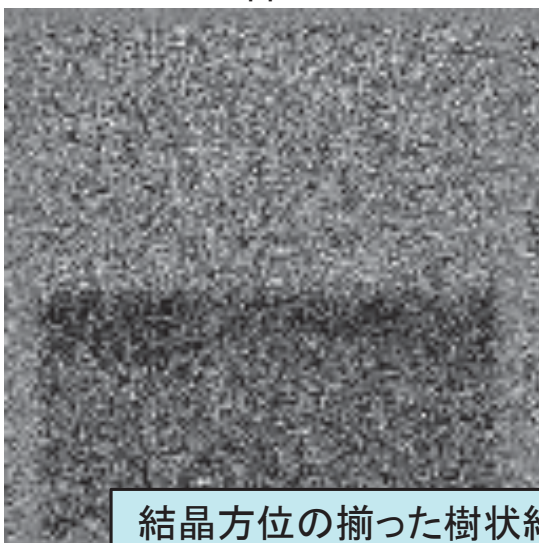
各ピクセルでのブラッグエッジのジャンプ( $\lambda=5.4\text{\AA}$  ( $\beta(101)$ ))を算出



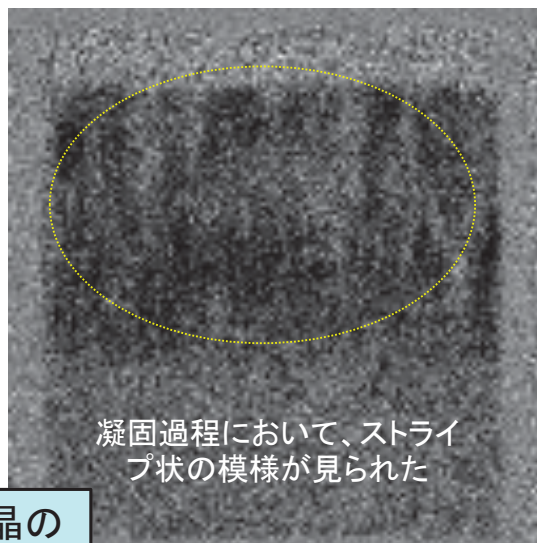
固液相分布と界面位置の可視化が可能

# Crystalline structure

Melted in upper side



All solidified condition



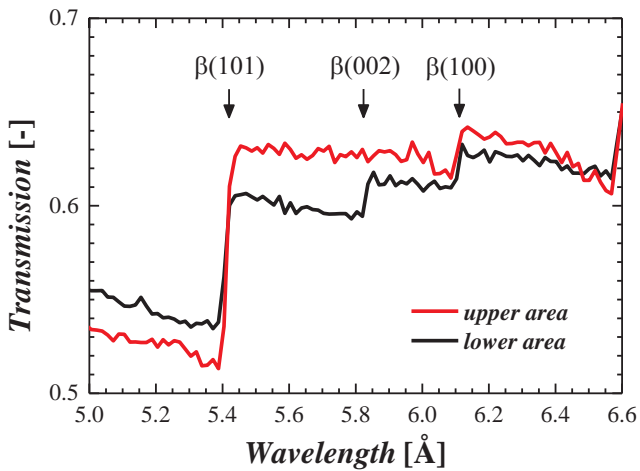
凝固過程において、ストライプ状の模様が見られた

結晶方位の揃った樹状結晶の集合組織である「**デンドライト**」

5.4 Åに現れるブラッグエッジは  $\beta(101)$ の回折を示す。この面が中性子透過方向に選択配向しているため、濃く見える。

# Dendrite formation

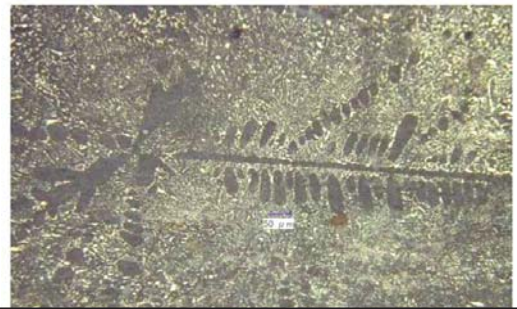
上側および下側領域における  
凝固後のスペクトルの比較



- $\beta(101)$ に垂直な $\beta(002)$ が上側では消えている。
- $\beta(002)$ は中性子透過方向に対しても垂直な方向を向いている。

$\beta(002)$  はデンドライトの成長方向である  
上向きである可能性が高い

過去に、同様のデンドライト形成が鉛ビスマス徐冷サンプルで観察されている。  
(高田, 2011)



ブラッグエッジイメージングによって結晶構造の詳細な把握につながる可能性

## 液体鉛ビスマス構造の可視化

齊藤、伊藤大、大場(JAEA)、小野寺

ブラッグエッジと同様に、溶融LBEの液体構造による散乱によって生じる透過率の減少を定量的に観測し、全散乱法を用いて解析する手法を開発する。  
全散乱法から得られる原子間距離や配位数等の液体構造の情報は、電子やフォノンの状態を通して熱物性と密接に関係し、また熱膨張率や温度等の熱物性値とも相関を持つ。これらの情報を活用し、パルス中性子イメージング法を用いた流路内の溶融LBEの液体構造に加え、熱膨張率や温度、ボイド、腐食等の分布の定量的な可視化を行う。

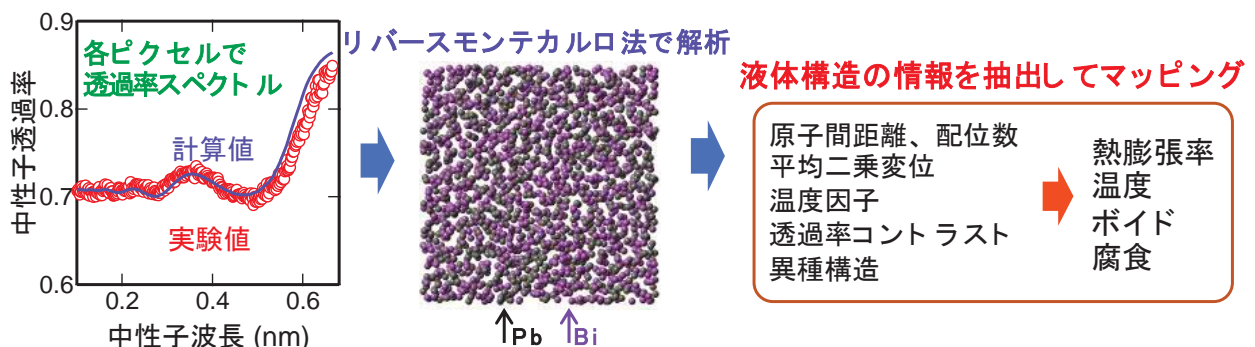


図 中性子透過率スペクトルに含まれる液体構造による散乱成分の解析の模式図。

## まとめ

- 鉛ビスマスのパルス中性子イメージングにより、通常のラジオグラフィ実験では得られない情報を得ることができた。
- 得られたデータを用い、RITSコードなどによる結晶構造解析を行うことで、鉛ビスマスの結晶構造と熱物性との関係性を明らかにする。
- 引き続き、結晶構造に関するデータを取得するとともに、酸化物の影響などについて新たに調べていく。

## 材料照射とその評価技術の高度化（研究計画・構想）

（京大原子炉 照射材料工学研究分野）木野村 淳、藪内 敦

1. はじめに：各種材料の放射線照射損傷を調べるため、原子炉実験所では3種類の高エネルギー粒子（中性子、電子、イオン）に対する各種の照射装置が整備されてきた。材料に照射損傷（格子欠陥）を導入する場合には、照射時の温度が大きな影響を与える。この理由から原子炉（KUR）での中性照射の場合には、低温照射（LTL）と高温照射（SSS）用の設備が設置され、LTLについては役目を終えて利用停止したが、SSSは引き続き利用を受け入れている。ライナックでの電子線照射の場合にも低温照射用の試料ホルダーが使用されており、より使いやすい装置にしていくことが望まれる。また、ライナックの高温照射の要望が共同利用者から出ており、新たな使用ホルダーの開発が必要である。また、重イオン照射装置については、老朽化して非常に使い難いものとなっており、整備することにより新たなユーザーの獲得が期待される。

一方、原子炉実験所には照射した材料を調べる各種の照射装置が整備されている。このうち、本研究計画では陽電子消滅分光法に重点を置く。B1実験孔に設置された低速陽電子ビームシステムは、設置して基本的な性能確認までを行ったところであり、実際にその性能を100%引き出すためには、今後も装置の整備を進めていく必要がある。陽電子ビームで測定を行う際に、測定の自動化や遠隔操作化を行うことにより利用者の利便性を上げ、測定の再現性を高めることができる。また、トレーサー棟に設置されているバルク陽電子測定装置は、低速陽電子ビームが試料表面の情報を与えるのに対し、試料全体の情報を与えるという特徴をもち、照射により放射化した試料にも対応できる。現在は室温測定のみに対応しているが、低温測定を可能にすることで利用範囲を大きく広げることが可能である。

このように、本研究計画では既存の研究インフラを生かしつつ、機能性や利便性を向上させることにより、原子炉実験所の材料照射研究拠点としての整備を進めることを目的としている。

2. 装置整備の状況：これまでに以下のような装置の整備に着手し、現在も進行中である。

### ①照射試料の評価手法の高度化

- ・低速陽電子ビーム測定装置（KUR B1 ビーム実験孔）の高性能化：陽電子ビームライン線源部の温度管理及び温度上昇抑制を目的とした配線配管の付加。
- ・高輝度化装置の減速材・再減速材の高効率化：Ni再減速材（リモデレータ）の高効率化のための原子状水素処理装置の整備とW減速材（モデレータ）高

効率化のための超高温処理装置の整備。

- ・計測装置の自動化・高効率化：陽電子消滅ガンマ線ドップラー広がり分光法におけるS-Eカーブ測定のための制御回路の連携及び自動化。

- ・陽電子測定装置の高機能化：低速陽電子ビーム測定装置及びバルク測定装置でそれぞれ高温、低温（液体窒素温度）における陽電子消滅分光測定が可能な装置の整備。

### ②照射手法の高度化

- ・電子ビーム照射装置（ライナック）ターゲット部の高精度化：試料を安定して高温に保持した状態で電子線照射を行うための試料ホルダーの整備。

- ・イオンビーム照射装置（重イオン照射装置）の高精度化：装置全体の更新と照射量を精度良く測定するための装置改良。

- ・照射と評価のための支援装置の整備：

高融点金属材料を真空中で2000℃前後の温度で高温熱処理することが可能な電子ビーム熱処理装置の設計製作。

### 3. 期待される効果：

原子炉実験所が世界的に見てもユニークな材料照射研究の拠点となることを目指して、本研究を進める。原子炉実験所には開発中のものを含めて潜在的な可能性を秘めた装置が既にあり、それらにあと少しの改良や努力を行うことにより、価値を大きく高めることができると考えている。本研究はそのような改良すべき装置を見だし、それぞれに集中することで研究を進めるような構想となっている。

---

Enhancement of experimental facilities for materials irradiation and characterization (Research plan)

Atsushi Kinomura and Atsushi Yabuuchi

Research Reactor Institute, Kyoto Univ.

akinomura@rri.kyoto-u.ac.jp

# 材料照射とその評価技術の高度化(研究計画・構想)

照射材料工学研究分野

木野村 淳、藪内 敦

## 照射材料工学研究分野の研究計画

### ①照射試料の評価手法の高度化:

- ・低速陽電子ビーム測定装置(KUR B1ビーム実験孔)の高性能化
- ・陽電子測定装置(ビーム装置、バルク装置)の高機能化

### ②照射手法の高度化:

- ・電子ビーム照射装置(ライナック)ターゲット部の高精度化
- ・イオンビーム照射装置(重イオン照射装置)の高効率化
- ・照射のための支援装置の整備



低速陽電子ビーム  
測定装置



バルク陽電子  
測定装置



電子ビーム照射  
ターゲット部



重イオン  
照射装置

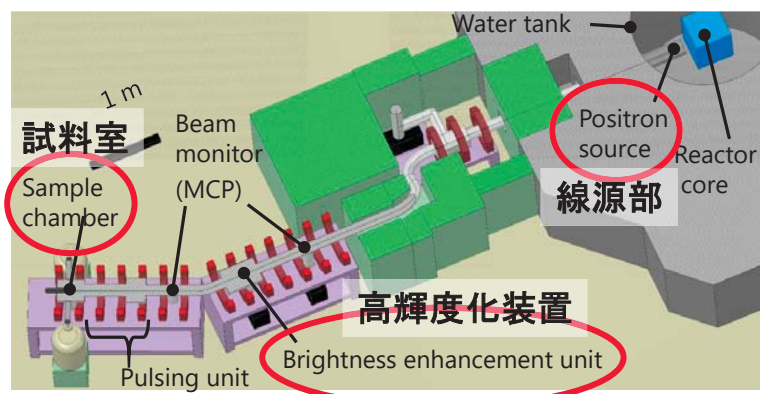


## 評価手法の高度化

### 低速陽電子ビームラインの整備

本装置を用いた共同利用を効率的に進めるために、以下の点について改良を進める。

- ・線源部の温度管理及び温度上昇抑制 → トピックス①で報告
- ・高輝度化装置の減速材・再減速材の高効率化
- ・計測装置の自動化・高効率化



線源部を監視する熱電対の増設、冷却用ガス配管設置、再減速材用の原子状水素処理のための装置整備を行った。

### 陽電子測定装置(ビーム装置、バルク装置)の高機能化

- ・測定温度制御  
(バルク測定装置での液体窒素測定、ビーム測定装置での高温測定)

## 照射手法の高度化

### 電子ビーム照射装置(ライナック)ターゲット部の高精度化

→ トピックス②で報告

### イオンビーム照射装置(重イオン照射装置)の高効率化

- ・ビーム軌道制御用光学系の追加(ビームの均一性、強度向上)
- ・ビーム電流積算装置の追加(照射量の高精度測定)

### 照射のための支援装置の整備

- ・電子ビームによる超高温アニール装置の設計製作  
→ 陽電子ビームラインのモデレータの最適化  
高融点金属材料の照射前アニーリング

## KUR 低速陽電子ビームラインの陽電子強度向上のための改良

(京大原子炉 照射材料工学研究分野) 藪内 敦、木野村 淳

1. はじめに：陽電子消滅分光法は電子顕微鏡でも観測できないような原子レベルの微小な空孔型欠陥の検出が可能なプローブとして知られており、照射材料中に形成される原子空孔の検出にも広く用いられている。従来型の陽電子消滅分光法では、陽電子源の放射性同位元素と測定試料を重ねて、試料中で消滅する陽電子からのガンマ線を観測する。放射性同位元素から放出される陽電子は幅広いエネルギー分布を持つため、試料表面から数  $10\mu\text{m}$  の範囲からの領域全体の平均的情報が得られるが、深さ情報を得ることができない。さらに、サブ  $\mu\text{m}$  オーダーの薄膜試料であれば測定は実質的に不可能である。このため、陽電子をいったん熱化した後に一定のエネルギーで加速して試料に照射する低速陽電子ビーム技術が開発されてきた。低速陽電子ビーム分析は強力な手法であるが、陽電子を低速化する際に陽電子の損失が大きいため、高強度の陽電子源を必要とする。このことから、電子加速器の制動輻射 X 線や原子炉のガンマ線による対生成反応を利用した陽電子源が用いられる。このような背景の中で、京都大学研究用原子炉 (KUR) を用いたアジア太平洋地域で初の原子炉ベース低速陽電子ビームラインの開発に着手し、現在その開発を進めている。

KUR 低速陽電子ビームラインを最大限生かすためには、陽電子ビーム強度を増加させることが継続的な課題である。線源部が核発熱及び陽電子輸送用コイルのジュール熱で加熱されて温度上昇するため、これまでは KUR の 5MW 運転時には陽電子ビームの取り出しを行ってこなかった。陽電子強度を向上するためには、5MW 運転時にもビーム取り出しを行うことが望まれる。このことから、線源部とその周辺部の温度を正確に知り、温度を低減する対策が必要であった。また、KUR 低速陽電子ビームラインにはビーム径を縮小するための高輝度化システムが設置されている。高輝度化装置においては陽電子の再減速が行われるが、その際に用いられる再減速材 (単結晶 Ni 膜) の効率が高輝度化後のビーム強度に大きく影響を与える。効率向上のためは、原子状水素処理を行うが、そのための処理装置の整備も重要な課題である。さらに、陽電子発生部には陽電子を低速化するための W 製のモデレータがある。このモデレータの低速化効率を向上させることはビーム強度の向上に直結する。W モデレータは  $2000^{\circ}\text{C}$  程度の高温熱処理を必要とするが、そのための電子ビーム熱処理装置を整備することも本研究の課題の一つである。

### 2. 装置整備の状況：

(1)陽電子ビームラインの温度測定点の増加：KUR 低速陽電子ビームラインが設置された際には、線源部の温度を測定するための熱電対だけが装備されていたが、これでは陽電子ビームライン全体の温度を把握するためには十分ではない。このため、ビームラインの真空ダクトの支持部と、モデレータ基部にそれぞれ新たに熱電対を設置した。これにより、ビームラインの強度を検討する際に最も重要な部位である真空ダクト支持部の温度を知り、さらに全体の温度を計算で求める際に、真空ダクト両端の温度が実測できることにより計算の精度を大きく向上させることが可能になった。またモデレータ基部の温度はビームラインに関する有用な追加情報を与えることになった。

(2)He ガス導入による陽電子ビームラインの冷却：陽電子ビームラインを構成する真空ダクトは筒状のアウタースリーブとインナースリーブの内側に格納されている。アウタースリーブ、インナースリーブ、真空ダクトの間は通常は空気で満たされている。このうち、インナースリーブと真空ダクトの間の部分に空気より熱伝導率が約 1 桁大きい He ガスを導入することによりビームラインの冷却を試みた。He ガス導入のため、コンクリート遮蔽体の外側から真空ダクト支持部の近傍までの He ガス配管を 2 本敷設した。予備実験として、原子炉非運転時に陽電子輸送用コイルを励磁して発熱させた状態で He を導入した場合、原子炉運転時にコイルを励磁しない状態で He を導入した場合の 2 通りについて、いずれも先端部温度の低減効果が見られた。予備実験の結果を元に、5MW 運転時に 2L/min の He ガス導入を行ったところ、コイル励磁なしでも約  $300^{\circ}\text{C}$  に達する線源部温度を  $250^{\circ}\text{C}$  程度まで低減可能なことが示され、5MW 運転時の陽電子ビーム取り出しへの道筋を付けることができた。

(3)減速材・再減速材の処理装置：再減速材の効率向上ため原子状水素処理を行うための設備を整備した。また、開発を行ってきた電子ビームを利用した高温熱処理装置の試運転に成功し W を  $2000^{\circ}\text{C}$  以上の温度に加熱できることが示された。

3. まとめ：本研究によりこれまで行ってきた開発及び実験の結果からより高い強度が得られる原子炉 5MW 運転時の陽電子ビーム取り出しが可能になり、また陽電子減速材・再減速材の最適を行うための装置の準備が整った。これらの結果を元にして、KUR 低速陽電子ビームラインをさらに改良し機能向上を進める予定である。

# KUR低速陽電子ビームラインの 陽電子強度向上のための改良

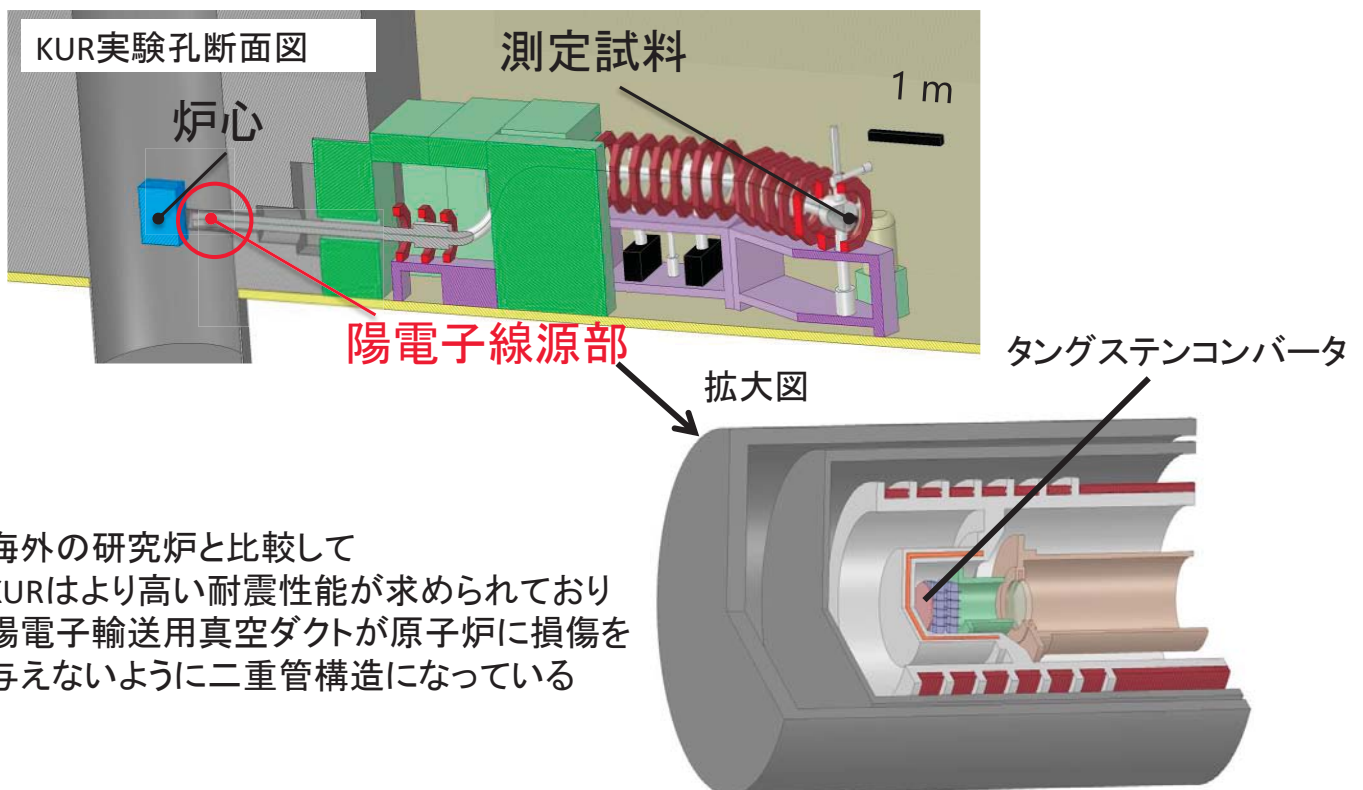
照射材料工学研究分野  
藪内 敦、木野村 淳

研究協力者: 佐藤紘一、徐虬、仲竜太郎

## 京大原子炉(KUR)低速陽電子ビームラインについて

1

原子炉を用いた陽電子ビームラインでは炉心から放出されるガンマ線をタングステン等のコンバータに照射して対生成により陽電子を得る方法を用いることが多い

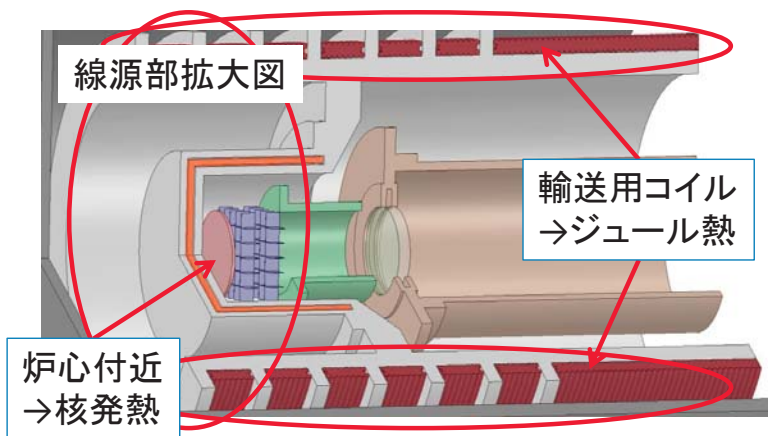


# 研究目的と内容

二重管構造により、原子炉本体は保護されるが、ダクト内の熱が逃げにくい構造に一般にビームダクトの材料にはアルミニウム合金が用いられる  
アルミニウム合金はステンレス鋼と比べると高温環境での強度低下が顕著である

**ビームダクト各部の正確な温度の把握および発熱への対策が必要**

KURは2日間1MWで運転し、3日目に出力を5MWに上昇させている  
現在は発熱の問題があるため1MW運転時にのみビーム取出しを行っているが熱対策が進むことで5MW運転時にもビーム取り出しが可能となり  
ビームの高強度化が期待される



## 研究目的

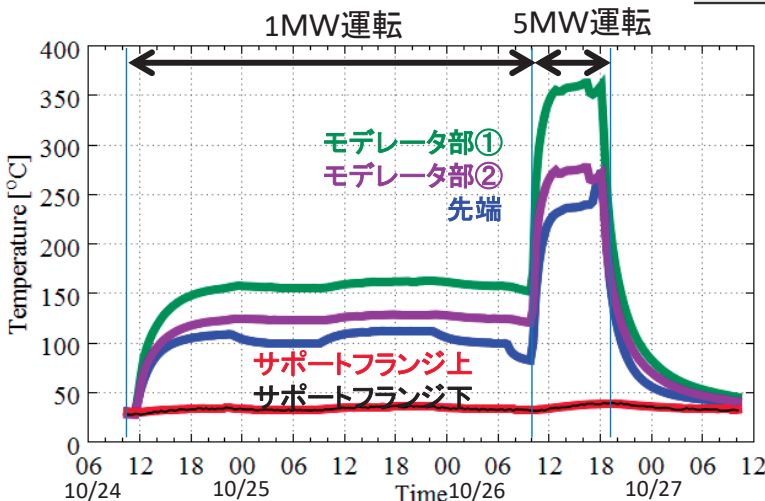
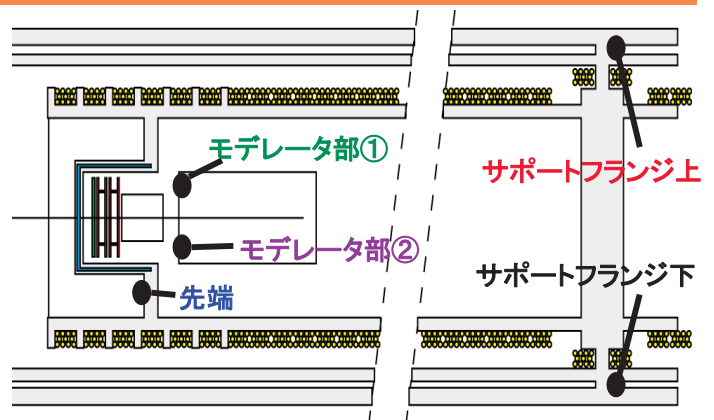
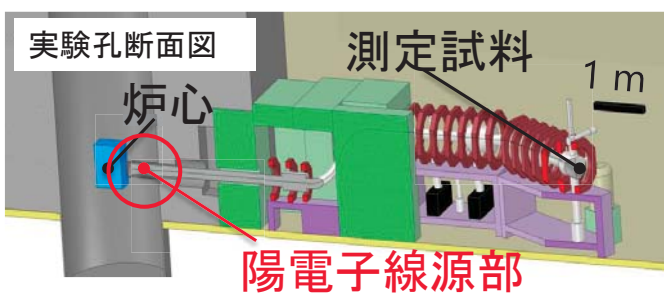
- ・ビームダクト各部の温度の把握
- ・ビームダクトの発熱対策

## 研究内容

- ・ビームライン各部の温度測定
- ・ヘリウムガスの導入による冷却
- ・温度予測のためのモデル構築
- ・輸送コイル電流の最適化
- ・ビーム強度の測定

# 温度測定位置と測定例

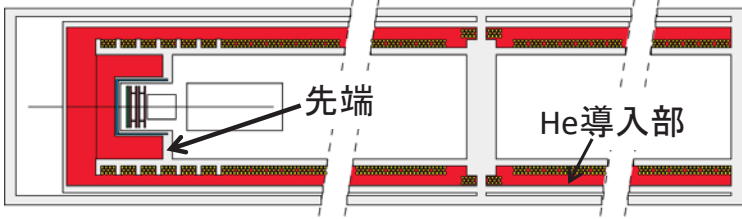
熱電対を右の5か所に設置した



- ・出力に応じて温度が変化する
- ・6時間ほどで飽和傾向を示す
- ・十分な強度が必要とされるサポートフランジは40°C付近から大きく変化しない
- ・測定データをもとに、ビームダクト各部位における温度の時間変化を計算中

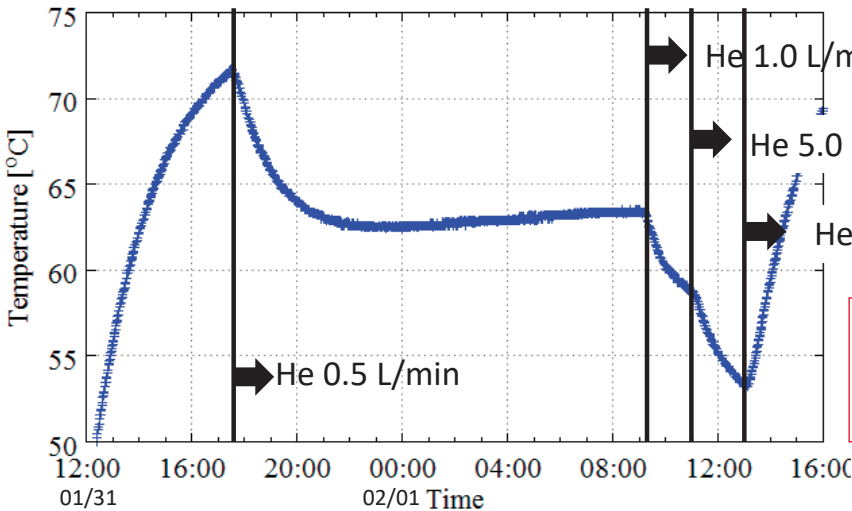
# ヘリウムの導入効果

インナー Sleeve と真空ダクトの間にヘリウムを導入する  
ヘリウムは熱伝導率が高いため冷却効果が期待される



	温度 [°C]	熱伝導率 [W/m K]
空気	100	0.0316
炭酸ガス	100	0.0222
ヘリウム	100	0.1663

理科年表 2010年版

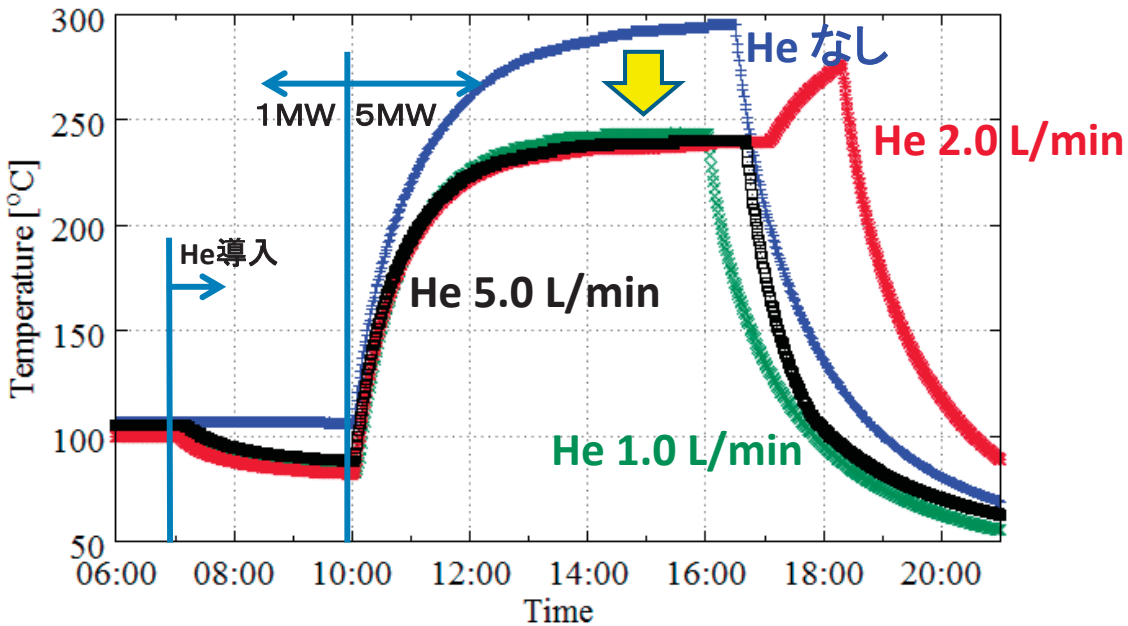


← 輸送コイル電流によるジュール熱発生時におけるヘリウム流量に対する先端温度の変化

流量を増やすと冷却効果も増大  
各流量に応じて下限値が存在  
供給を止めると冷却効果も消失

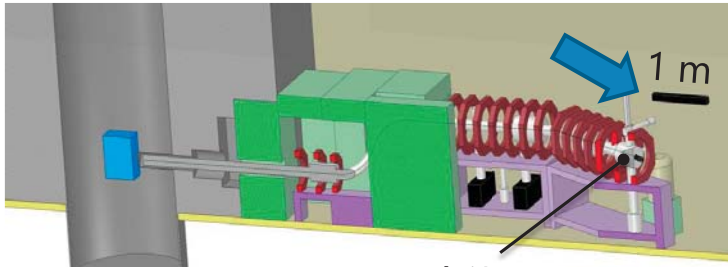
# KUR運転時におけるヘリウムの冷却効果

異なるヘリウム流量に対する先端温度変化の比較

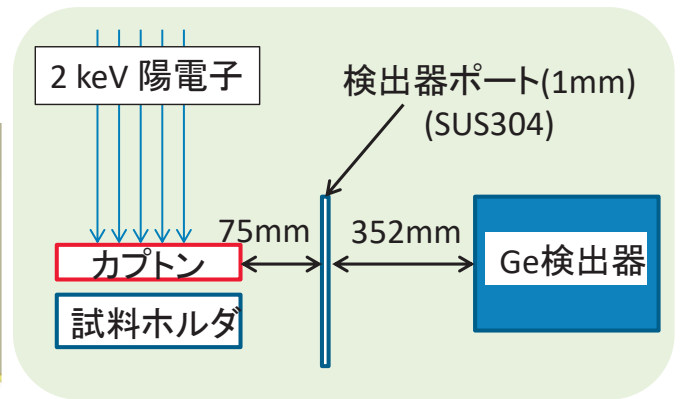


KUR運転時にもヘリウムによる冷却効果を確認  
今回の実験条件ではヘリウム流量に対する大きな依存性は見られなかった  
ヘリウムの供給を止めるとすぐに温度上昇が再開  
先端温度はヘリウムなしで300°C、ヘリウムを導入することで250°C程度までに低減

下図の測定位置で右図のようにGe検出器を用いて陽電子ビーム強度を測定した



測定位置



陽電子が対消滅した際に放出されるガンマ線量を測定し、線量が既知のNa-22線源と比較することで1MWおよび5MW運転時のビーム強度を測定した

	511 keV 計数率 (cps)	密封線源 との比較	陽電子数 (e+/s)
1MW運転	146.99	3.25	$8.0 \times 10^5$
5MW運転	432.54	9.56	$2.4 \times 10^6$

## まとめ

- ・ビームダクトの5か所で温度を測定
- ・強度が必要とされるサポートフランジの温度は約40°Cでほぼ一定
- ・ヘリウムの導入により5MW運転時に先端温度を300°Cから240°Cまで低減
- ・ビーム強度は  
1MWでは $8.0 \times 10^5 e^+/s$ 、5MWでは $2.4 \times 10^6 e^+/s$

### 今後の展望

- ・ビームラインの温度分布と時間変化を計算する手法を確立することにより、異なる運転パターンの場合でも事前予測が可能になることが期待される。
- ・輸送コイル電流の最適化により発熱量の低減を検討。

## 材料照射ターゲットの高精度化と照射研究への寄与

(京大原子炉、東北大<sup>1</sup>、福井大<sup>2</sup>) 木野村 淳、藪内 敦、外山 健<sup>1</sup>、鬼塚 貴志<sup>2</sup>

1. はじめに：電子線照射では、孤立した点欠陥（フレンケル対）を導入できるため材料照射の素過程の理解に必須であり、点欠陥が近接したカスケード損傷を形成する中性子やイオンでは不可能な照射が可能である。この点から電子線照射は重要である。原子炉実験所で電子線による損傷導入手段として電子線ライナック（KURRI-LINAC）が使用されてきた。本装置では 8MeV の電子線エネルギーで照射を行うことができる。このエネルギーでは高い確率で孤立したフレンケル対を試料中に均一に導入できる一方で試料の放射化を避けられるため、照射後の試料の取り扱いが容易になるという利点がある。この KURRI-LINAC において、これまで冷却水の温度以上（100℃以上）に試料を加熱して照射するような設備は準備されていなかったが、原子力材料を対象とした材料照射で重要な 300℃から 500℃程度の温度に試料温度を保ちながら照射できる照射設備の整備が要望されるようになってきた。このような背景から、この温度域で電子線照射が可能な照射試料ホルダーの開発を行った。

2. 照射試料ホルダー開発：電子線加速器で損傷導入を行う場合の問題点は、電子の弾き出し断面積がイオンなどに比べて低く、現実的な照射時間で必要な損傷量を導入するためには、電子ビームの電流量を増やす必要があり、その際に照射した電子ビームのエネルギーが熱に変わることである。例えば、平均電流 100  $\mu$ A、エネルギー 8MeV の場合、試料ホルダーに付与される熱エネルギーは 800 W となる。電子ビームのスポット径 1cm 程度であるため、この範囲に 800W の熱エネルギーが集中し、試料温度は容易に数 100℃まで上昇する。一方で照射が始まるまでは試料は室温に保持されるが、試料に導入される欠陥の量とその形態に影響を与えるため、照射中に大きく温度が変わることは避けたい。このような理由から、試料ホルダーは加熱用ヒーターと冷却用ファンを備え、照射開始前は照射予定温度まで試料ホルダーを加熱しておき、照射開始後は試料ホルダーを冷却する必要がある。主要な研究対象である金属材料は大気中では酸素と反応し、表面が酸化する恐れがあるが、真空中に試料を置く事は冷却の点から困難である。このため、本研究で開発する試料ホルダーでは照射試料を He 雰囲気容器に入れる方式を取った。試料ホルダーの 1号機では、Al カプセルに封止する方式を取ったが、この方法では予め試料を封入する作業が必要なこと、Al カプセルに漏洩箇所があっても検出が困難であることなどから改良を必要

とすることが分かった。2号機では、この点を考慮して、Al カプセルの代わりに Al パイプの中に試料を入れ、一方から He を流して、試料周辺を He で満たすことにより大気への侵入を防ぎ、Al パイプの反対側は開放状態にして試料交換が容易となるような構造とした。Al パイプの試料格納部位はフィードバック制御する合計 400W のセラミクスヒーターで加熱し、一方、冷却のため風量可変で最大風量 2.5m<sup>3</sup>/min のファンを試料ホルダー付近に配置し、風量を遠隔操作する方法を取った。

3. 実施する実験：本研究で開発した試料ホルダーを用いて以下の 2種類の実験を実施している。

(1) Fe 中の Cu 照射誘起拡散の測定：発電用原子炉では長期間の中性子照射により圧力容器鋼に照射脆化が起き、原子炉の健全性に問題を生じる可能性が指摘されており、照射脆化の評価とその予測は重要な課題となっている。現在用いられている原子炉圧力容器鋼の脆化予測式（JEAC-2007-4201）には Fe 中の Cu の拡散定数が入っており、Cu の拡散は照射により導入される多量の空孔により促進されることが知られている。このため、照射下の Cu の拡散定数を正確に知ることは脆化予測式の精度向上に必須である。KURRI-LINAC と本研究で開発した試料ホルダーを使用して、Fe 中の Cu の照射誘起拡散の拡散定数を調べる実験を東北大学の外山らが実施している。この温度域では Cu の拡散距離は非常に短いので、ナノメートルレベルの原子の移動が観測可能なアトムプローブを用いて照射後の試料を評価することが本研究の特徴となっている。

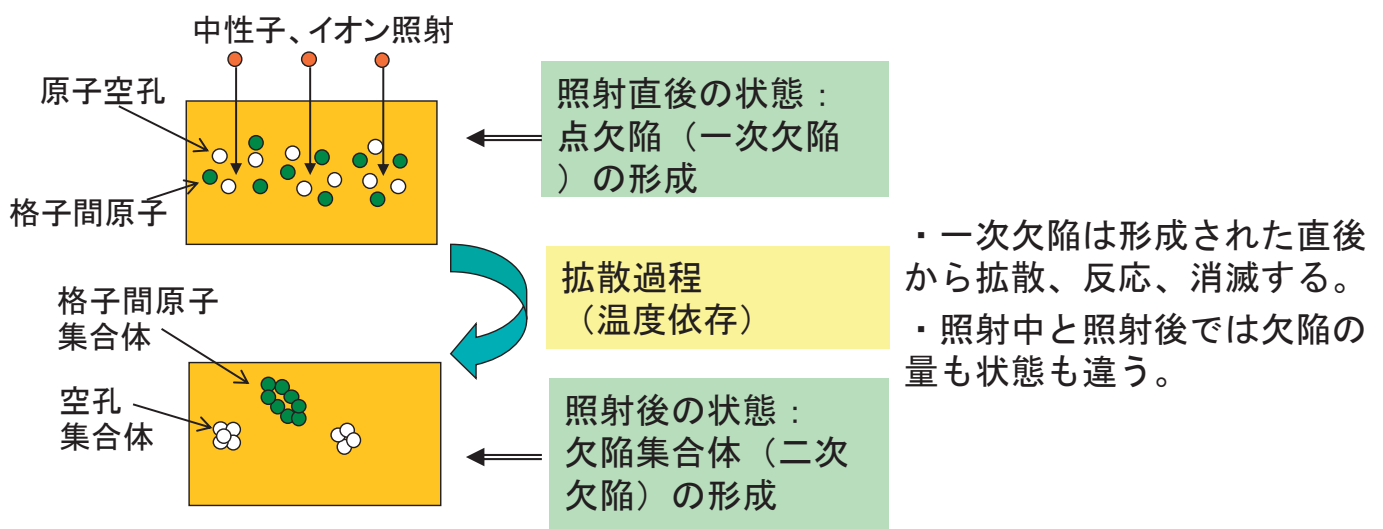
(2) FeCr 合金の相分離初期過程解明：鉄クロム（FeCr）系合金は高温強度・低熱膨張性に優れることなどから軽水炉の 1次冷却系のポンプや配管、原子炉圧力容器鋼のオーバレイクラッド材等様々な照射環境下で利用されている。Cr 含有量が約 12~90% の鉄クロム系合金を 320~540℃程度の温度範囲で長時間時効すると  $\alpha$  (Fe-rich) 相と  $\alpha'$  (Cr-rich) 相の二相に相分離し延性や靱性が著しく低下する、475℃脆化と呼ばれる熱時効脆化事象が従来から知られている。原子炉環境下では材料は照射損傷を受けるが、照射損傷と熱時効の重畳効果については、十分明らかになっていない。福井大学の鬼塚らは、電子線照射が鉄クロム合金の相分離に与える影響について基礎的知見を得る事を目的とし、KURRI-LINAC と本研究で開発した試料ホルダーを使用して照射を行っている。照射後の試料は陽電子消滅分光法で評価し、相分離初期過程についての情報を得る。

# 材料照射ターゲットの高精度化 と照射研究への寄与

照射材料工学研究分野 木野村 淳、藪内 敦  
東北大学 外山 健  
福井大学 鬼塚 貴志

## 材料照射研究における温度制御の重要性

高エネルギー粒子(中性子、イオン、電子)による照射損傷の形成過程では:



熱励起により点欠陥は移動する。

温度に依存して二次欠陥の形態は大きく異なる。

→ **材料照射研究では照射温度を精密に制御することが非常に重要**



## 電子線照射の意義と問題点

材料照射研究では、欠陥形成のために中性子、イオン、電子などの高エネルギー粒子を用いる。その中で、

### 電子線照射の意義:

- ・電子線照射では、孤立した点欠陥(フレンケル対)を導入。  
→材料照射の素過程の理解に必須
- ・中性子やイオンの照射ではカスケード損傷(近接した複数の点欠陥の集合体)を導入。  
→現実に即した照射方法だが、素過程の情報を得る事は容易ではない。

### 電子照射の問題点:

- ・弾き出し断面積が低い(同じ粒子数を衝突させても、点欠陥の生成量は中性子はイオンに比べて少ない)。
- ・限られた時間内で照射するために大電流の照射が必要。  
→電子のエネルギーの大半が熱に変わり、試料が加熱されてしまう。

## KURRI-LINAC用高温照射試料台の開発方針

KURRI-LINACによる8MeV電子線照射:

ある程度(mmオーダー)の透過力を確保しつつ、試料を放射化させないで済む「ちょうど良い」エネルギー

例えば、平均電流  $I=100\ \mu\text{A}$ 、 $E=8\text{MeV}$ の場合

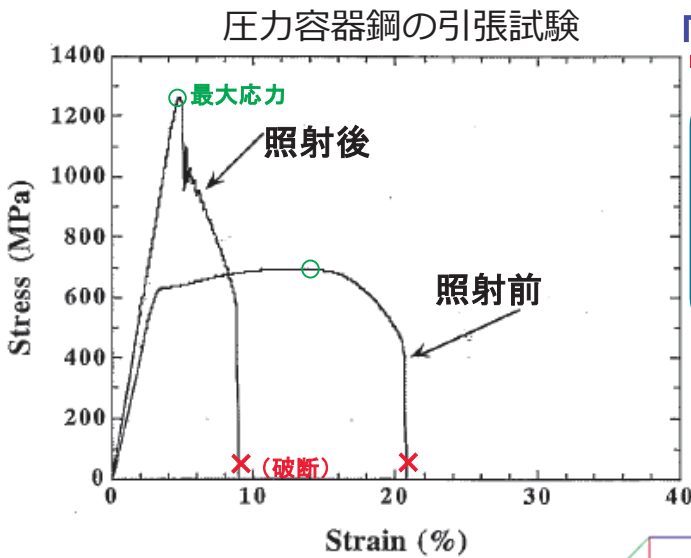
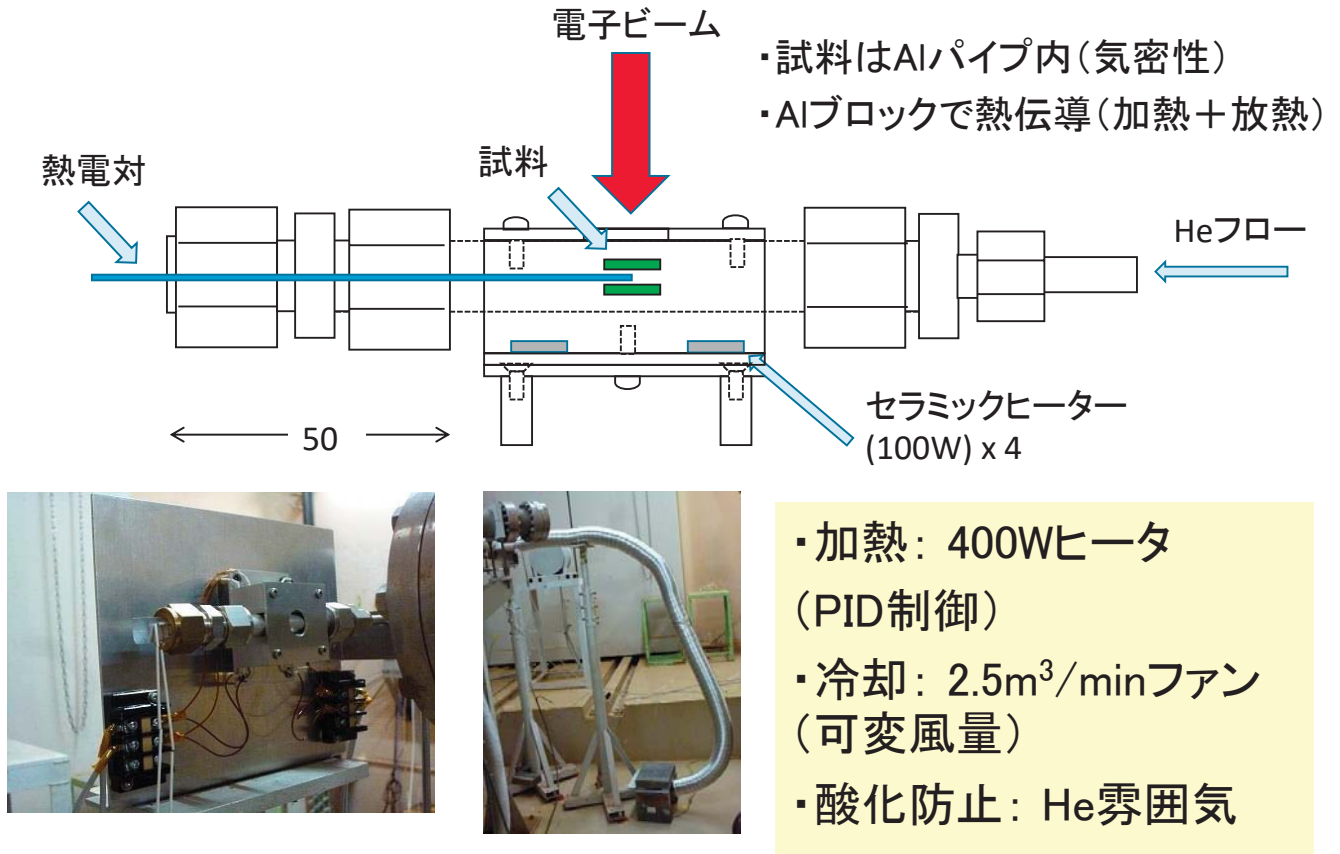
$$P = E \times I = 800\ \text{W}$$

これがΦ1cmのビームスポットに集中する。

→ 試料温度は容易に数100°Cまで上昇

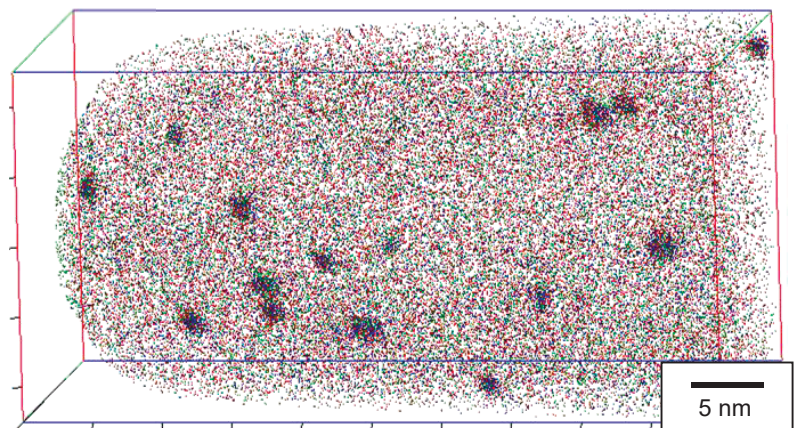
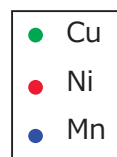
- ・電子ビームによる加熱を防ぐため**冷却が必要**。
- ・照射が始まるまでは照射温度に保持するために**加熱が必要**。
- ・試料の**酸化防止も必要**。

# 開発した高温照射試料台の概要



原因:

- Cu, Ni, Mn, Si などのナノクラスター
- 照射欠陥



## 高温照射試料台の応用①

Fe中のCu照射誘起拡散  
(原子炉压力容器鋼の照射脆化)  
東北大金研 外山健先生らの研究

照射後は、硬くなり、あまり伸びずに破断してしまう。  
=脆くなってしまった。

## 拡散係数 :

溶質クラスター形成のkineticsを考える上で重要な基礎定数。

原子炉压力容器鋼の脆化予測式  
(JEAC-2007-4201)

$$\frac{\partial C_{CEC}}{\partial t} = \xi \cdot (D_{Cu} \cdot C_{Cu} \cdot (1 + \psi \cdot Ni))^2 \cdot (C_{MD} + \varepsilon)$$

$$\frac{\partial C_{MD}}{\partial t} = F_T^2 \cdot (1 + \vartheta \cdot Ni)^2 \cdot \phi - \frac{\partial C_{CEC}}{\partial t}$$

$$\frac{\partial C_{Cu}}{\partial t} = -v_{CEC} \cdot \frac{\partial C_{CEC}}{\partial t}$$

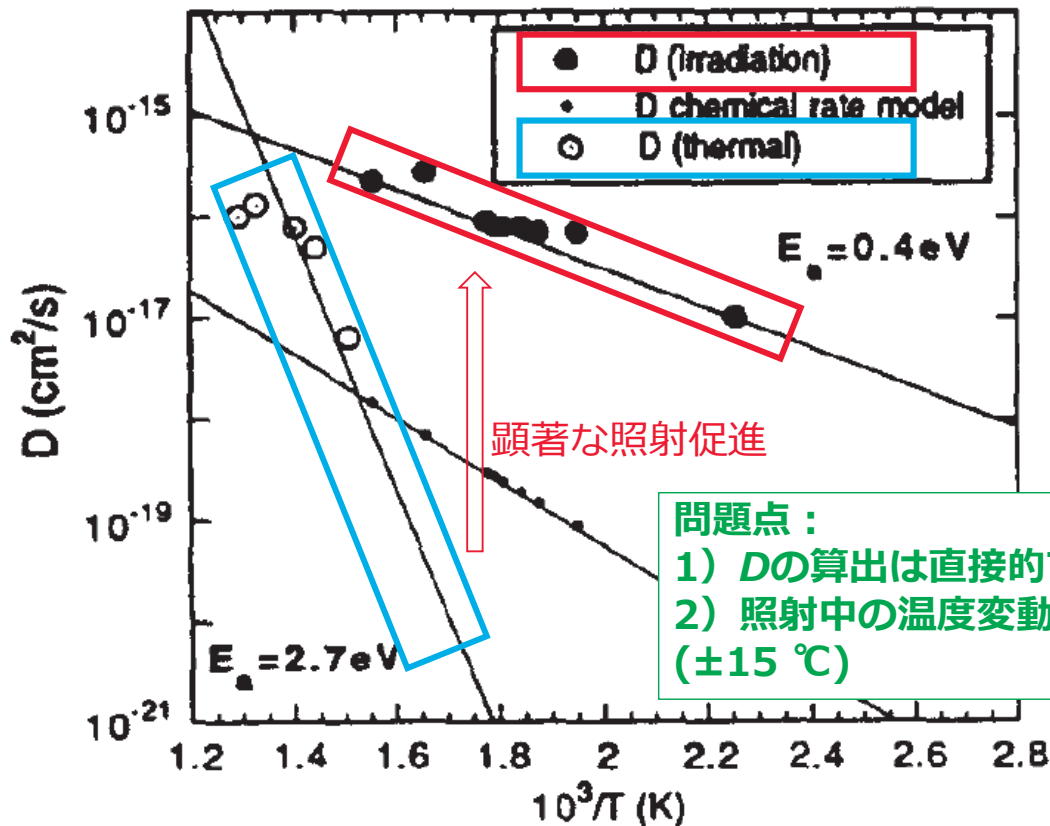
照射下 :

原子空孔が多量に導入されるため、拡散が大きく促進される [2]

$$D_{irrad} = Dv (Cv_{thermal} + Cv_{irrad}) + Di (Ci_{thermal} + Ci_{irrad})$$

[2] R. Sizmann, J. Nucl. Mater., 69&70 (1968) 386-412.

照射下でのFe中のCu拡散係数(実験) : T. N. Leら(1992) [3]



[3] T. N. Le, A. Barbu, D. Liu, F. Maury, Scripta Metallurgica et Materialia, 26 (1992) 771-776.

## 照射下のFeCr合金の相分離初期過程解明

福井大原子力研 鬼塚先生らの研究

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軽水炉の1次冷却系のポンプや配管、原子炉圧力容器鋼のオーバレイクラッド材等様々な照射環境下で利用されている。

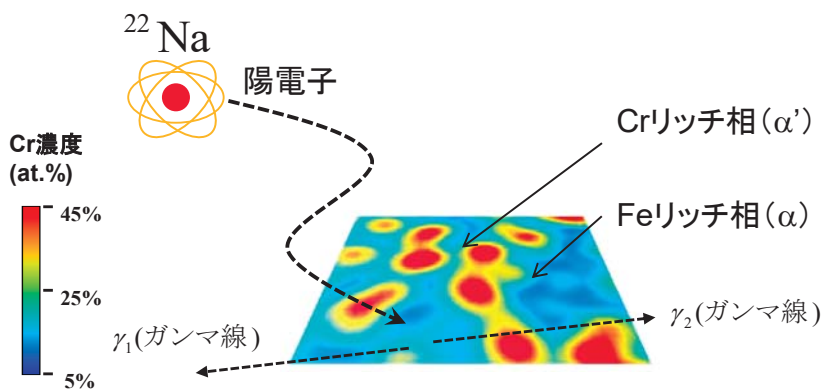
鉄クロム系合金においては、クロム含有量が約12~90%の鉄クロム系合金を320~540°C程度の温度範囲で長時間時効すると $\alpha$  (Fe-rich)相と $\alpha'$  (Cr-rich)相の二相に相分離することにより延性や靱性が著しく低下する、いわゆる「475°C脆化」と呼ばれる熱時効脆化事象が従来から知られている。

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。本研究では、電子線照射が鉄クロム合金の相分離に与える影響について基礎的知見を得る事を目的とした。

## 陽電子消滅法によるFe-Cr合金の相分離の検出原理

10

### CDB: 同時計数ドップラーブロードニング測定



陽電子のaffinity: Cr > Fe

Positron Affinity :

Cr -2.62 eV

Fe -3.84 eV

Feの陽電子親和力はCrより  
1.22eV低い

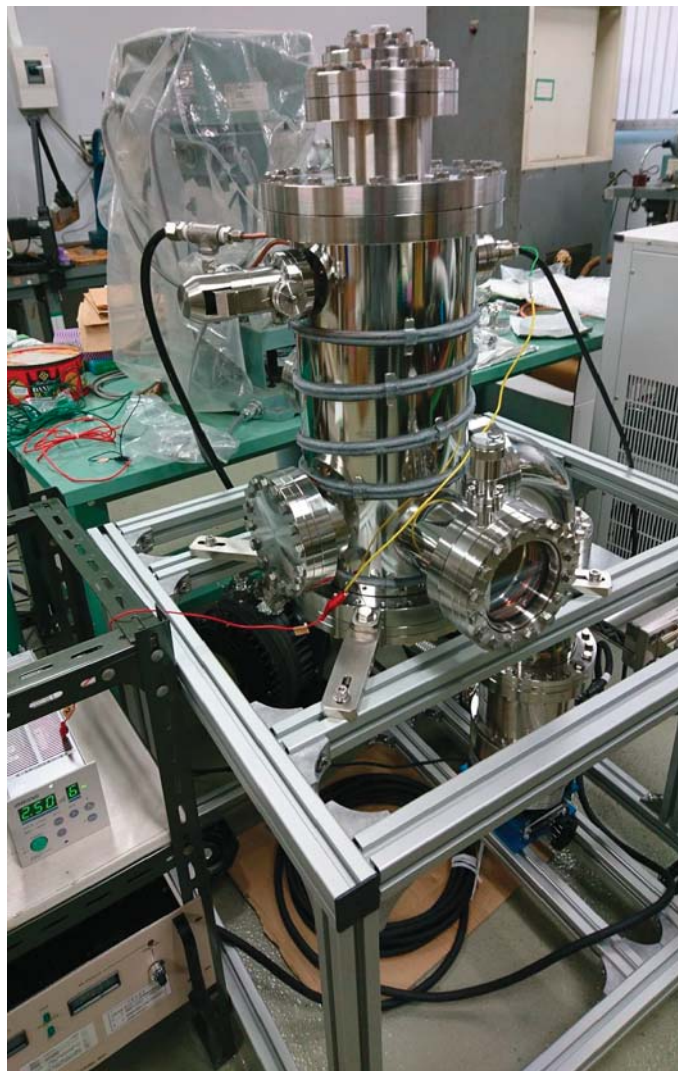
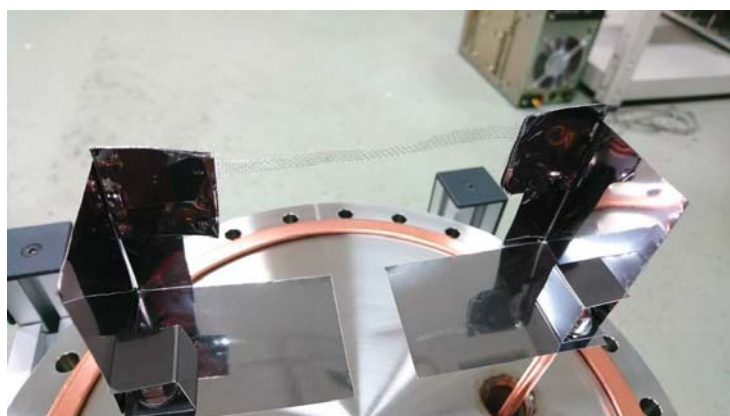
陽電子はFeリッチ相でより低いポテンシャルを感じるため、Fe-Cr合金が相分離すると陽電子はFeリッチ相を自ら探し出し、そこで対消滅する性質がある

CDBスペクトル(内殻電子の運動量分布の情報)を解析することで、相分離を評価可能

## 照射のための支援装置の整備

### 電子衝撃加熱方式のアニール装置

- 高融点金属試料の熱処理  
(共同利用含む)
- 陽電子ビームラインの  
陽電子減速材(W)の熱処理



12

## まとめ

KURRI-LINACによる電子線の高温照射において、照射温度を正確に制御するために、照射試料台の開発を進めている。

この試料台を用いた以下の研究が現在進行中であり、材料照射に関する興味深い成果が期待される。

- ① Fe中のCu照射誘起拡散(原子炉圧力容器鋼の照射脆化関連)  
東北大金研のグループ
- ② 照射下のFeCr合金の相分離初期過程解明  
福井大原子力研のグループ

# KUR における量子ビームを用いたナノ構造研究

(京大原子炉 粒子線物性学研究分野) 杉山正明、井上倫太郎、佐藤信治、守島 健

## 1. はじめに:

粒子線物性学研究分野では、X 線・中性子・レーザー光といった各種量子ビームを用いて物質のナノ構造研究を本プロジェクト「量子ビームと核科学の革新的複合利用による先端的物質科学・分析研究拠点の構築」とも連携しながら進めている。研究体制は、(A) 当分野が運用している中性子小角散乱 (Small-Angle Neutron Scattering: SANS) 分光器、Cu 線源及び Mo 線源 X 線小角散乱 (Small-Angle X-ray Scattering: SAXS) 分光器、動的光散乱装置 (Dynamic Light Scattering: DLS) 分光器、分析超遠心器 (Analytical Ultracentrifuge: AUC) と国内外の SAXS 分光器 (KEK-PF, SPring8)、SANS 分光器 (Quokka@ANSTO, D22@ILL) を用いた構造測定と (B) 中性子散乱において今後ますます重要となる重水素化生体高分子の供給と調製技術開発の (A)、(B) 2 つを中心としている (Fig.1)。以後、各装置・研究開発の現状・トピックスについて簡単に紹介する。

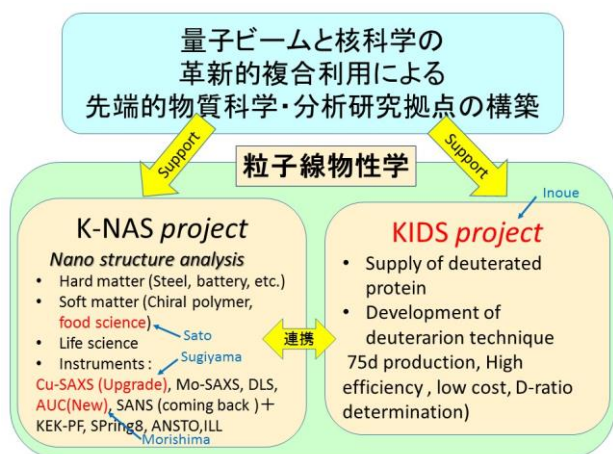


Figure 1. 研究体制の模式図。

## 2. SANS

当実験所の研究用原子炉再起動に伴い CN2 に設置の SANS 分光器 (KumaSANS) の再稼働を進めている。導管出口シャッターの改造に伴い従来のコリメーションシステムが使用できなくなったため、新規のシステムの設置を進めている。年度内には設置を完了し、測定を再開する予定である。

海外の SANS 分光器を用いた研究は、水晶体内タンパク質クリスタリン・時計タンパク質・小麦タンパク質などを中心に遂行している。これらの研究の現状・成果についての詳細は井上、佐藤、守島による報告を参照されたい。

## 3. SAXS

当分野運用の SAXS 装置は Cu 線源・Mo 線源とも多くの共同利用申請があり、運用開始直後にも関わらず既に年間 30 件近くの共同利用を受け入れており、非常に高い活性状態にある。

Mo 線源の SAXS 装置 (牛作) は、その高い物質透過力を活用して鉄鋼などの固体材料のナノ構造解析を中心に利用されている。加えて、今年度からは京大院工の長田助教と共同で、有機溶媒中の高分子構造の研究も開始した。有機溶媒の中でも塩素等の中・重原子を含む溶媒の場合光路長が 1 mm 程度でも Cu からの特性 X 線は透過することができないので、溶液構造の解析には牛作の利用が必須となる。

Cu 線源 SAXS (CumaSAX: 熊作) は低寄生散乱スリットを用いた光学系を装備していることもあり、高輝度のビームが利用可能である。この特長を生かし、高強度を保ちながら測定可能な Q-range を小角領域にまで拡張するために、更なる寄生散乱除去光学系の導入を進めている。この光学系の設置後は、試料位置で  $2 \times 10^{10}$  n/sec の強度を保ちながら、実用的な測定範囲を  $Q=0.005 \text{ \AA}^{-1}$  まで広がることが期待されている。更に、3 連の温度制御セルの導入も進め、運用の効率化を図る予定である。

小角散乱法における最大の問題点は試料の凝集である。特に、機能性タンパク質は不安定であり、濃度にも依存するが、精製後の時間経過とともに単分散状態から多様な凝集体を含んだ多分散状態に遷移することが多い。一方、小角散乱において生体高分子の構造解析のためには単分散溶液が必須条件であり、凝集物を含む多分散溶液では構造解析はほぼ不可能である。この問題を解決するために、放射光施設に設置の SAXS 装置では、分離精製カラムからの抽出液を直接測定セルに流し、その高強度を生かして、流れていく溶液に含まれる凝集前の生体高分子を希薄濃度のまま SAXS 測定をするという SEC-SAXS (Size-Exclusion Chromatography SAXS) システムを装備している。本分野では、パラメータを流速・濃度を調節し最適化を施すことで、この SEC-SAXS システムと同等の測定を熊作においても可能であることを確認した。そこで、現在 UNISOKU と共同で Lab-SEC-SAXS システムの開発を行っている。

## 4. AUC

AUC は溶質分子を含む溶液セルを高速回転することで、遠心力により遠心方向に溶質分子が凝集していく (=沈降していく) 過程の経時変化を観測する、

沈降速度は分子の分子量・形状に依存するので、AUCにより溶質分子これらの構造パラメータを得ることができる。AUCはBeckman Coulter社製の超遠心分析装置XL-Iを導入した。現在、初期トラブルをほぼ克服し、種々の蛋白質の測定を開始している。XL-Iには、UV吸光光学系とレイリー干渉光学系が実装されているので、単純なタンパク質溶液のみでなく、ATP含有水溶液、DNA、RNAなどの核酸、金ナノ粒子などの多様な分子の構造パラメータを取得することが可能である。

今後、2つのSAXS分光器・SANS分光器と相補的な利用を展開していく予定である(詳細は守島の報告を参照されたい)。

#### 5. KIDS project

中性子散乱においてタンパク質重水素化は外すことのできない主要技術である。KIDS projectでは、単に重水素化タンパク質を調製することを目指すのではなく、

- ① 重水素化タンパク質の供給体制の確立
- ② 重水素化率の制御技術の確立
- ③ 重水素化率の測定技術の確立
- ④ 高効率・大量調製技術の確立
- ⑤ 低コスト調製技術の確立

を目指している。

詳細は井上の報告に詳しいが、本年度では重水中で不可視化可能となる75%重水素化タンパク質の大量調製に成功し、これを用いた高濃度系でのタンパク質の様態観測に成功している。

#### 6. ナノ構造研究

ナノ構造研究の成果は、クリスタリン・時計タンパク質・クロマチン・PbaA・TAFと多岐にわたっている。また、食品科学にも注目しており、これまでの小麦タンパク質に加え、大豆タンパク質のナノ構造研究にまで展開している。これらの研究の詳細は佐藤の報告を参照されたい。

#### 7. 今後

本分野では上述のように装置開発・測定法開発・解析法開発から実際の生体高分子のナノ構造研究まで幅広く展開しており、今後ともこの方向を発展させていきたいと考えている。この中で、今後はより多くの共同研究を受け入れるためには小角散乱測定・試料調製と計算機を用いた構造解析の可能な人材が必要となる。

量子ビームと核科学の革新的複合利用による  
 先端的物質科学・分析研究拠点の構築  
 Project meeting

# KURにおける量子ビームを用いたナノ構造研究

## 粒子線物性学分野

量子ビームと核科学の  
 革新的複合利用による  
 先端的物質科学・分析研究拠点の構築

Support

### 粒子線物性学

Support

Inoue

#### K-NAS project

##### Nano structure analysis

- Hard matter (Steel, battery, etc.)
- Soft matter (Chiral polymer, food science)
- Life science ← Sato
- Instruments : ← Sugiyama

Cu-SAXS (Upgrade), Mo-SAXS, DLS, AUC(New), SANS (coming back) + KEK-PF, SPring8, ANSTO, ILL  
 ← Morishima

連携

#### KIDS project

- Supply of deuterated protein
- Development of deuterarion technique  
 75d production, High efficiency, low cost, D-ratio determination



# K-NAS (Kumatori Nanostructure Analysis Station) project



Hard matter

Soft/Bio matter

## Hard mater @K-NAS Project with Mo-SAXS (Nano-Viewer)

平成28年度共同研究実績  
(7月より現時点まで)

- 受託研究(契約済み)
  1. JST
  2. 古河電工
- 共同研究
  1. 慶大 佐藤先生
  2. 豊橋技科大 三浦先生
  3. 電磁研 阿部様
  4. 茨大 岩瀬先生
  5. 豊橋技科大 戸高先生



- Nano-Viewr (RIGAKU)
- Mo回転対陰極線源 (Micromax 007HF)  
 $\lambda=0.07$  nm
- 検出器: Pilatus 100k
- qレンジ:  $0.1-9$  nm<sup>-1</sup>
- 無機固体材料等のX線の透過しにくい試料の測定に向いています

# 京大炉における蛋白質の重水素化の取り組み及び最近の研究成果

(京大原子炉 粒子線物性学研究分野) 井上倫太郎、佐藤信浩、守島 健、杉山正明

## 1. はじめに

蛋白質は一次構造から四次構造にまでわたる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、それぞれの蛋白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蛋白質、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蛋白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明らかとなってきた。つまり、上述した系において結晶化を阻害する構造の揺らぎこそが構造の本質であると考えられる。故に、今後蛋白質の構造の揺らぎの寄与を加味した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る。特に X 線をプローブとした小角 X 線溶液散乱法は解析技術の向上も相まって近年、非常に注目されている。実際、昨年度に当実験所に導入された Cu 線源及び Mo 線源を用いた二台の小角 X 線散乱装置に対する蛋白質の溶液中の構造解析に対する需要は非常に高く、20 件以上もの共同研究が行われた。一方、小角中性子溶液散乱法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) においてその差が顕著である。例えば全ての H が D 化された重水素化蛋白質を調整すると、非重水素化蛋白質との散乱能が大きく変調できる。加えて、溶媒自身の重水素化率を調節することで非重水素化蛋白質或いは重水素化蛋白質のみを選択的に観測出来る。即ち、小角中性子溶液散乱法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成分 (蛋白質) の構造解析が可能となる。そこで、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蛋白質の構造の揺らぎを加味した構造解析を実現できると期待される。具体的には小角 X 線散乱 (SAXS) により複合体の全体構造を決定し、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。

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蛋白質である。ところが、蛋白質の重水素化に伴う費用・手間・技術等の問題により両手法の相補的利用の有用性は認められつつも日本国内では十分に浸透しているとは言い難い状況である。一方、世界的な状況を調べると、フラッグシップ的な中性子散乱施設には

サンプルを重水素化する施設 (通称: D lab.) が必ず併設されている。そのため、ユーザー自身がわざわざサンプルを重水素化せずとも SANS 等の中性子散乱実験を行うことができる。しかしながら、本国に於いては未だ D lab. が稼働しているとは極めて言い難い状況である。そこで、我々は国内有数の中性子散乱施設である京大炉で蛋白質の重水素化に取り組み、国内初の中性子散乱施設併設の D lab. の立ち上げに取り組んでいる。本発表では、最近の研究成果及び将来展望を交えた発表を行う。

## 2. 最近の成果

### 1. 時計蛋白質の溶液中における複合体の解析

生体内における 24 時間の周期は KaiA, KaiB, KaiC と呼ばれる三つの蛋白質の解離会合により生ずる複合体が鍵を握っていると考えられているが、溶液中でどのような複合体を形成しているかは長らく理解されていなかった。我々はその複合体解明の最初のステップとして KaiB, KaiC の 2 者複合体に注目した。そこで、75% 重水素化した KaiC と非重水素化 KaiB を調整し inverse-contrast matching 法 [1]により、溶液中での 2 者複合体の詳細な立体構造の解明に成功した [2]。

### 2. $\alpha$ -クリスタリンのサブユニット交換の機構解明

水晶体は我々の体内で唯一の透明な器官であり、その透明性はクリスタリンの構成成分の一種である  $\alpha$ -クリスタリンのシャペロン機能により維持されている。未だ結晶化に成功していないため四次構造は決定されておらず、20~30 のサブユニットにより構成される会合体蛋白質であることしか報告されていない。我々は  $\alpha$ -クリスタリンの構造が決まらない要因として会合体同士で起こるサブユニット交換によることを考えた。そのアイデアを実験的に立証するために重水素化及び非重水素化  $\alpha$ -クリスタリンを調整し、82% 重水中で混合しサブユニット交換の有無を調べた。その結果、サブユニット交換の存在を支持する強度の低下が確認され、更にその交換速度は温度依存的であることが明らかとなった。無変性質量分析との結果とあわせることで  $\alpha$ -クリスタリンのサブユニット交換は会合体同士の衝突では無く寧ろ遊離したサブユニットにより支配されていると結論づけた [3]。

## 参考文献

- [1] Sugiyama M et al., *J. Appl. Cryst.* **2014**, 47, 430.
- [2] Sugiyama M et al., *Sci. Rep.* **2016**, 6, 35567.
- [3] Inoue R et al., *Sci. Rep.* **2016**, 6, 29203

# 京大炉における蛋白質の重水素化の取り 組み及び最近の研究成果

杉山研

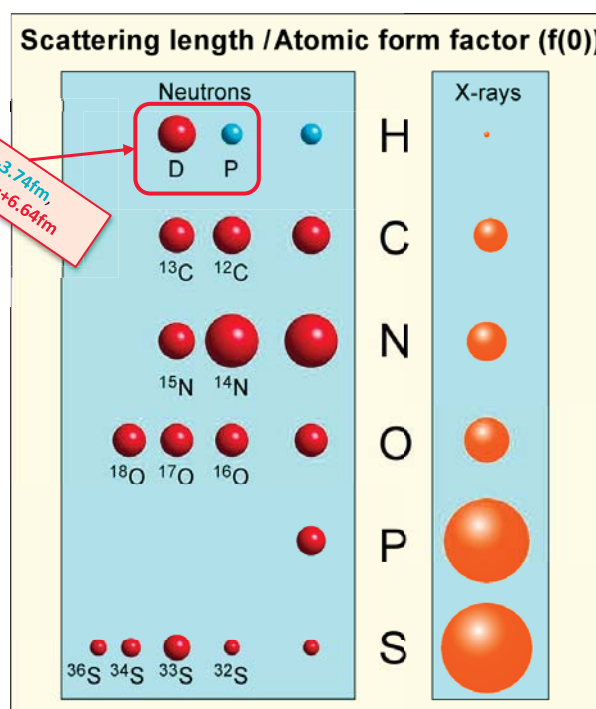
井上 倫太郎、佐藤信浩、守島健、杉山正明

## SAXS・SANSの特徴



HとDで顕著に!!

	SANS	SAXS
測定時間	長い	短い
サンプル量	多い	少ない
サンプルダメージ	ほぼ無視	放射光ではある
コントラスト変調	し易い	大変
透過力	高い	低い

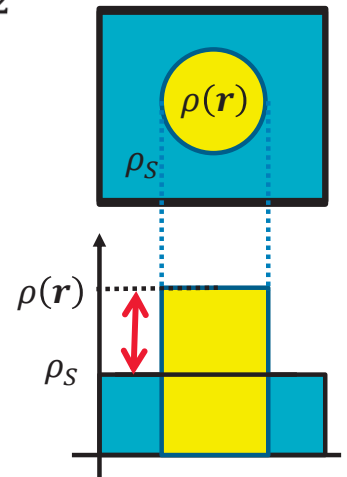
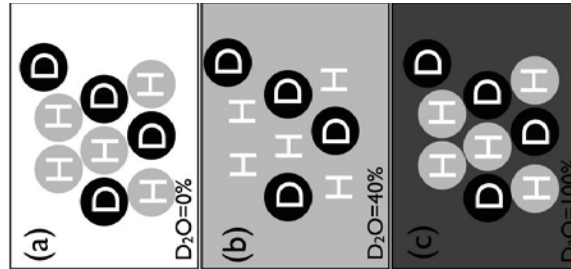


SANS測定においては特にコントラスト変調がメリット

$$I(q) = N \left| \int_V (\rho(\mathbf{r}) - \rho_s) \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r}) d\mathbf{r} \right|^2$$

溶質と溶媒との差がkey!

コントラスト変調により注目したい成分の情報を抽出できる。



コントラスト変調の方法として

1. 溶媒 ( $\rho_s$ )をH/Dの混合比により変える。
2. 溶質 (蛋白質)を重水素化する。

## 蛋白質の重水素化の問題点

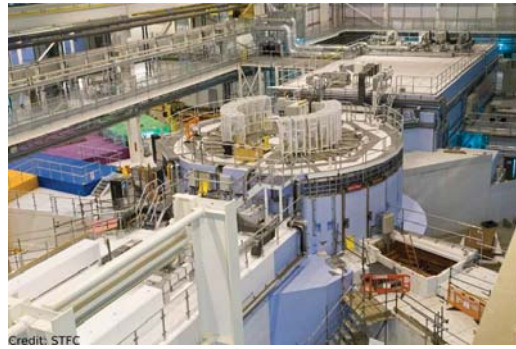
1. 重溶媒 (重水、D化炭素源)を用いて培養する必要があり、コストがかかる。
2. 培養に時間がかかり更に発現量も低下するため、多大なる労力を要する。
3. ノウハウ (重水素化率の制御等) がきちんと確立していない。

SANS測定を行う際の大きな足かせになる。

# 世界の名だたる中性子散乱施設と重水素化ラボ (D-lab.)



ILL D lab.併設



ISIS D lab.併設



ANSTO NDF併設



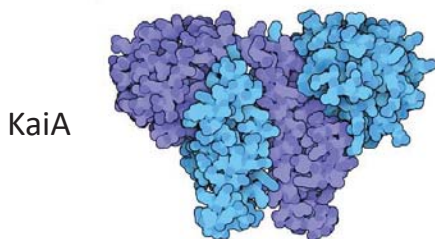
ORNL Bio. D. lab.併設

日本ではまだまだ... >>KUR (我々) が頑張る!!

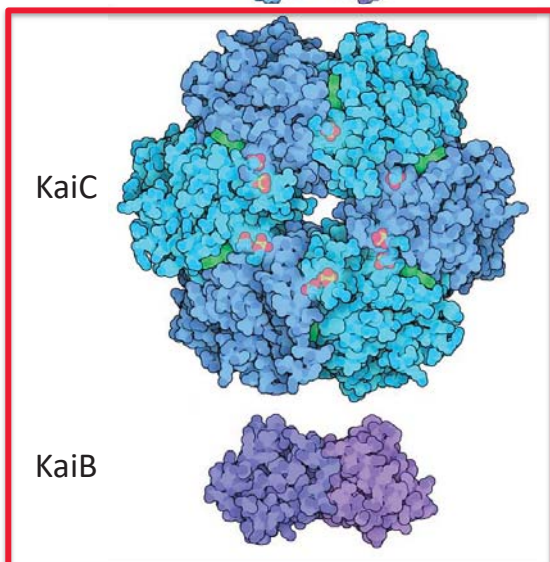
## 蛋白質の重水素化による最近の成果1



時計蛋白質 >>24時間周期を持つ体内時計

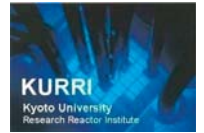


KaiA, KaiB, KaiCの複合体の  
解離・会合が24時間周期を  
制御している。

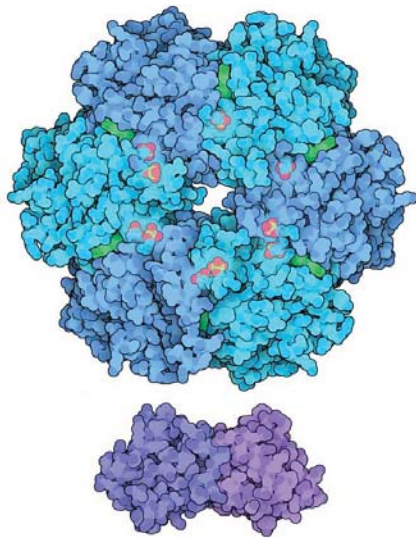


疑問: KaiBがKaiCに溶液中で  
どのような複合体を形成しているか?

# 蛋白質の重水素化による最近の成果1

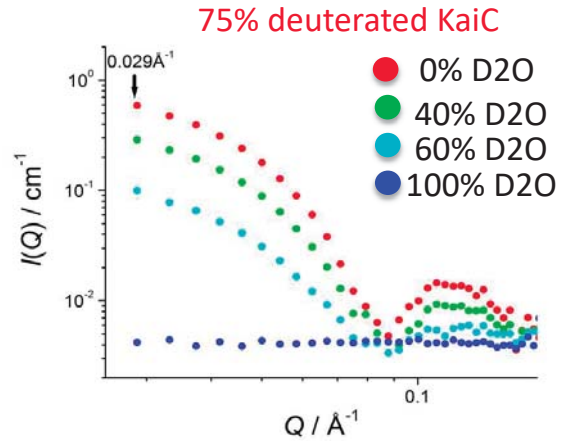
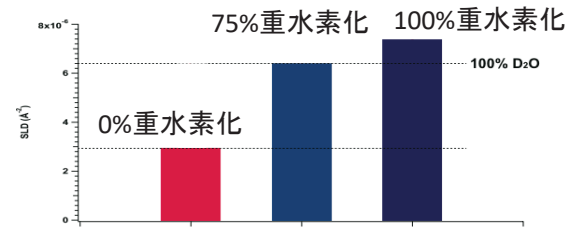


KaiCからの散乱の寄与を消すために



75%重水素化KaiC  
(不可視化成分)

軽水素化KaiB  
(可視化成分)

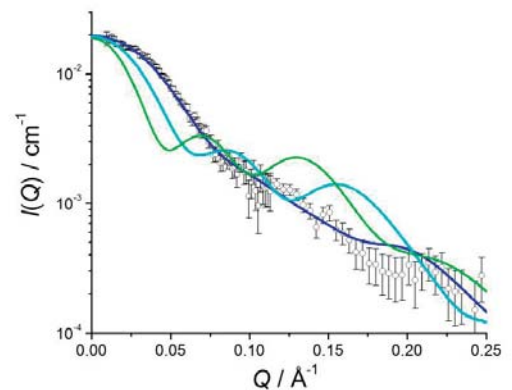
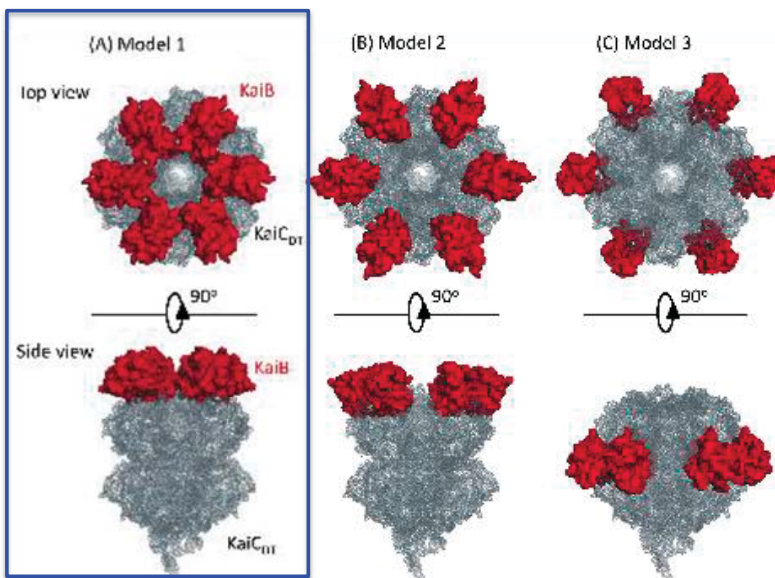


75%重水素化KaiCは100% D<sub>2</sub>Oで不可視化できる。

# 蛋白質の重水素化による最近の成果1



KaiC (75%重水素化)+KaiB (軽水素化) complex



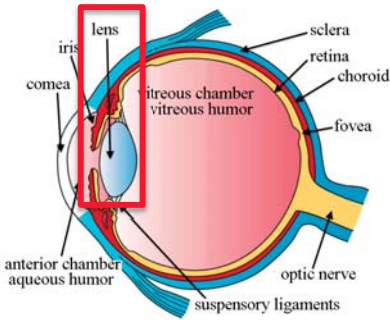
M. Sugiyama et al.,  
Sci. Rep. 6 35567 (2016).

複合体の溶液中での精密な構造解析に成功。

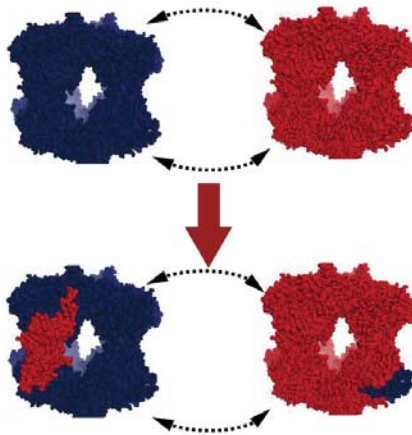
# 蛋白質の重水素化による最近の成果2



## 水晶体蛋白質のサブユニット交換の観測



水晶体の透明性は $\alpha$ -クリスタリン (20~30のサブユニットにより形成) により維持  
 >>未だ構造不定

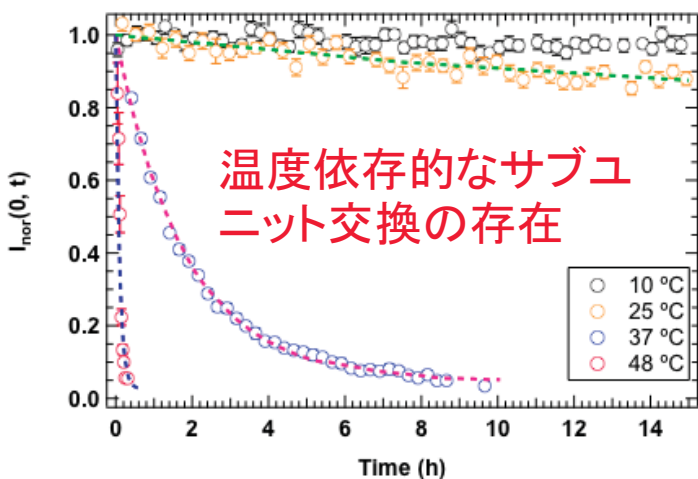
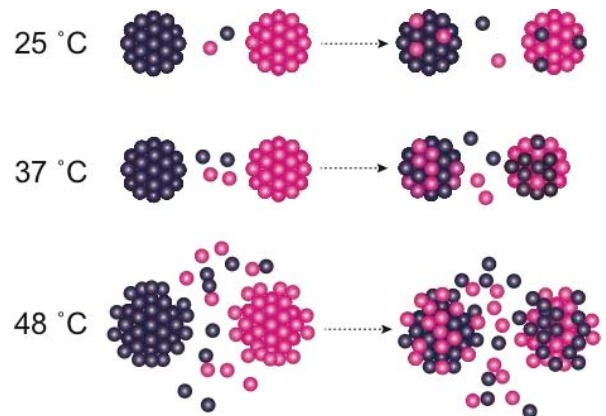
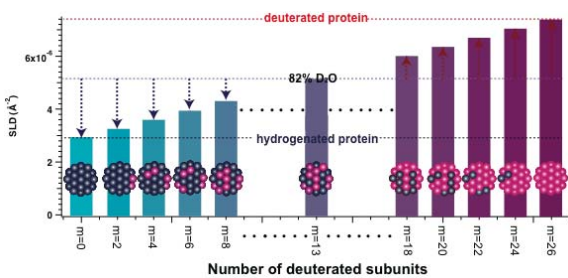


構造不定の原因 >>会合体同士のサブユニット交換

# 蛋白質の重水素化による最近の成果2



サブユニット交換の可視化のために軽水素化、重水素化 $\alpha$ -クリスタリンを82%D<sub>2</sub>O 中で混合



質量分析との結果と組み合わせることで機構解明に成功。

R. Inoue et al.,  
 Sci. Rep. 6 29208 (2016).

# 今後の展開



1. 培養技術の高度化 (大量培養・重水素化率の厳密な制御)
2. より高度な蛋白質重水素化技術の確立 (ligationなど)
3. 低コスト化>>重水recycle systemの確立

## Kumatori Deuteration Station (KIDS) Project



# — KIDS project —

## Kumatori Deuteration Station project

ナノの世界を見る光である量子ビームの代表格 X線と中性子を協奏的に使い、  
これまで見えなかった溶液中のタンパク質の構造解明を目指しています！

KIDS projectでは、中性子散乱を用いた構造研究の活性化のために重水素化タンパク質の調製の支援をしております。また、特に溶液散乱(小角散乱)では重水素化試料の作成だけでなく、構造解析のための試料系の設定・測定法マシントイム・解析法まで、溶液構造研究全般に対してもご相談に応じます。ご興味のある方は、以下の情報を添えて [pslab@ri.kyoto-u.ac.jp](mailto:pslab@ri.kyoto-u.ac.jp) までご連絡ください。

氏名 所属 ご興味 (重水素化・中性子散乱全般) 試料 (差支えなければ)

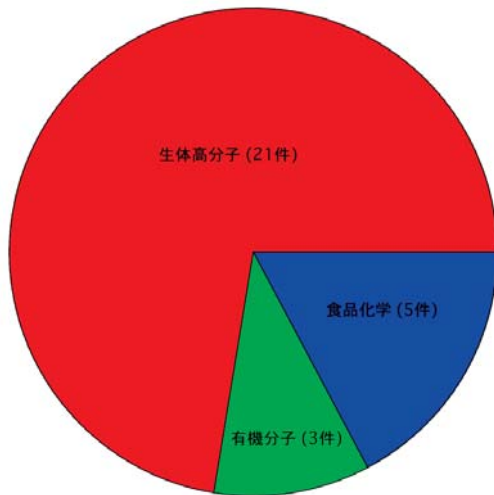
詳しくは以下のサイトで!

<http://www.rri.kyoto-u.ac.jp/PSlab/KIDS/>



# Soft-Bio mater @K-NAS Project with CumaSAX (Cu-SAXS : NANOPIX)

平成28年度共同研究実績  
(7月より2/7まで)



合計で29件の共同利用

今年度も4月から12月で90日以上稼働



- NANOPIX(RIGAKU) 1号機!
- Cu回転対陰極線源 (Micromax 007HF)
- Scatterless slit系を装備
- 検出器: HyPix-6000
- qレンジ: 0.008-2 Å<sup>-1</sup>
- 高強度で高分子・生体分子の溶液散乱向き
- 小角分解能向上のため光学系改良
- 温調・3連セルシステム導入
- (世界初!) SEC-SAXSシステム開発

## Results of K-NAS Project

### • Paper

1. D. Kato, A. R. Inoue, M. Sugiyama, and H. Kurumizaka, et al., "Crystal structure of the overlapping dinucleosome composed of hexasome and octasome", *Science*, **356** (2017) 205-208.
2. M. Yagi-Utsumi, R. Inoue, M. Sugiyama and K. Kato, et al., "Conversion of functionally undefined homopentameric protein PbaA into a proteasome activator by mutational modification of its C-terminal segment conformation", *Protein Engineering, Design, and Selection*, in press.
3. E. Hibino, R. Inoue, M. Sugiyama, and M. Hoshino, et al., "Identification of heteromolecular binding sites in transcription factors Sp1 and TAF4 using high-resolution NMR spectroscopy", *Protein Science*, **26** (2017) 2280-2290.
4. R. Yogo, R. Inoue, N. Sato, M. Sugiyama\*, and K. Kato\*, "Characterization of conformational deformation-coupled interaction between immunoglobulin G1 Fc glycoprotein and a low-affinity Fcγ receptor by deuteration-assisted small-angle neutron scattering", *Biochemistry and Biophysics Reports*, **12** (2017) 1-4.
5. E. Hibino, R. Inoue, M. Sugiyama, and M. Hoshino et al., "Interaction between intrinsically disordered regions in transcription factors Sp1 and TAF4", *Protein Science*, **25** (2016) 2006-2017

### • Thesis

1件(名古屋市立大学薬学研究科)

# 今後

- K-NAS projectとKID projectを融合し、J-PARCとも連携した「生命分子溶液構造研究ユニット」の立ち上げを立ち上げたい
- 研究対象: 生体高分子(含む食品関係高分子)の溶液中でのナノ構造・ダイナミクス解析および測定のための関連技術の開発(含む重水素化関連技術の開発)
- Kuamtoriでの装置: Cu-(SEC)-SAXS, Mo-SAXS, SANS, AUC, DLS, (Maldi-Mass:追加整備を希望)
- 博士研究員(タンパク調製+溶液散乱もしくは計算)採用希望
- 協力グループ(内諾済み):
  - 岡崎分子研・加藤教授
  - 早稲田生命理工・胡桃坂教授
  - 横浜市大・佐藤教授
  - 京都大農・裏出教授
  - JAEA・中川博士

# 量子ビーム小角散乱法を用いた食品タンパク質凝集体のナノ構造解析

(京大原子炉 粒子線物性学研究分野) 佐藤信治

## 1. はじめに:

小麦や大豆は種子中にタンパク質を多く含むことが知られており、古くより、それらを加工して麩や豆腐などの食品が製造されている。タンパク質はアミノ酸の供給源として栄養学的な重要性を有するが、近年は、これらのタンパク質を単独で抽出し、他の食品に添加して結着性や粘弾性、保水性などの食品物性を改善するための食品素材として利用されるケースも多い。食品物性は、加工食品の加工性や食感などの品質を決定する重要な要素であるが、これらはタンパク質の高次構造や集合状態と密接に関連している。たとえば、小麦粉食品の物性は、ネットワーク状に連なった高分子量のタンパク質グルテニンと、非共有結合的に会合したモノマー状のタンパク質グリアジンとの混合体グルテンによって特徴づけられており、前者の弾性的挙動と後者の粘性的挙動が反映されている。このように、食品タンパク質の物性の理解のためには、個々のタンパク質の構造およびそれらが複合状態として示す挙動の解明が不可欠である。食品はゲルやコロイドなど高濃度かつ非晶質の凝集体を形成する多成分系であるが、このような物質のナノスケールにおける構造解析には、高分子や液晶などのソフトマターにも適用されてきたX線・中性子小角散乱法が有用である。そこで、本研究では、食品タンパク質凝集体のナノ構造解析を目的として、X線・中性子などの量子ビーム小角散乱法を小麦および大豆タンパク質の水溶液および水和凝集体に適用し、濃度や添加塩効果、凝固剤の作用などにおける構造の変化と物性への影響を調べた。

## 2. 実験:

小麦タンパク質グリアジンは食塩を含む小麦粉生地から純水中に揉み出すことにより抽出し透析により精製した。大豆タンパク質 $\beta$ コングリシニンおよびグリシニンは、大豆粉末を脱脂したのち等電点沈殿法を用いて回収した。X線小角散乱測定は、高エネルギー加速器研究機構の放射光施設 Photon Factory の小角散乱ビームライン BL-10C (X線波長: 0.149 nm, カメラ長 2 m)、京大原子炉の Cu 線源小角散乱装置 NANOPIX (X線波長: 0.154 nm, カメラ長 1.3 m) を用いて実施した。

## 3. 結果、考察:

小麦タンパク質グリアジンは、濃度 10% 以下では純水に溶解し水溶液となるが、15% 以上では溶解せずペースト状の水和凝集体となる。0.025% の希薄水溶液においては、一部の会合分子を除いてグリアジン分子は孤立して分散しており、散乱プロファイルのギニエ解析、断面ギニエ解析より求めたタンパク質のサイズは、慣性半径 4.1 nm、断面の慣性半径

2.7 nm、長さ 11 nm の棒状であることがわかった。濃度 1% 以上では、 $0.1\text{--}0.2\text{ nm}^{-1}$  付近に新たにピークが出現することから、この濃度で粒子間干渉を示すグリアジン分子の会合体が形成されることが明らかとなった (図 1a)。一方、15% 以上の水和凝集体では、 $0.1\text{ nm}^{-1}$  付近のピークが消失し  $0.3\text{--}1.0\text{ nm}^{-1}$  のブロードなピークが見られるようになることと、low  $q$  領域の立ち上がりが増大していくことから、濃度の増加とともに内部に密度ゆらぎを持つ大きな凝集体へ遷移することが分かった (図 1b)。

当日は大豆タンパク質の凝固過程における構造変化についても紹介する。

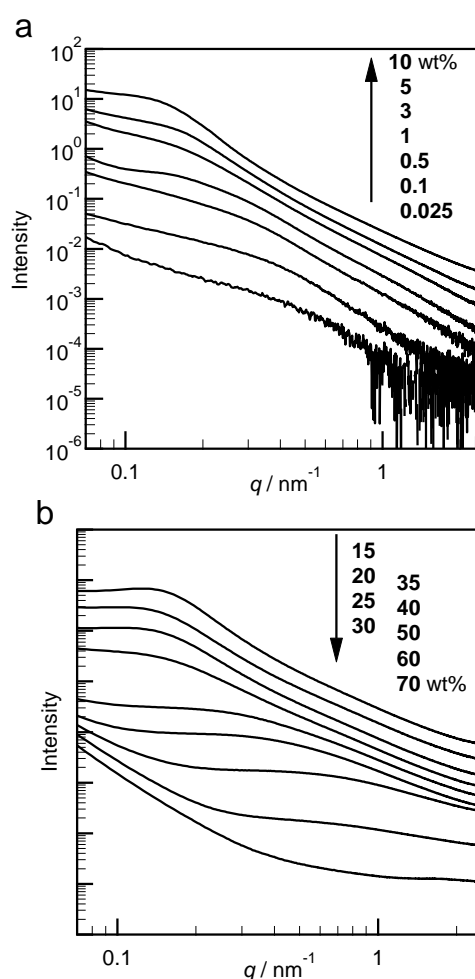


図 1 濃度の異なる小麦タンパク質グリアジンの X 線小角散乱プロファイル。(a)水溶液、(b)水和凝集体<sup>1)</sup>

1) N. Sato et al., *J. Agric. Food Sci.*, **63**, 8715 (2015).

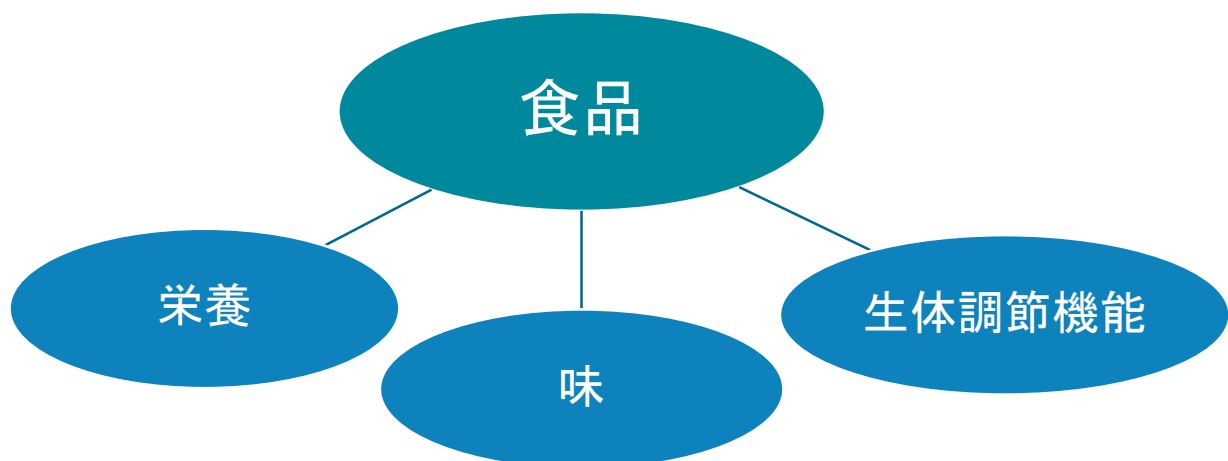
# 量子ビーム小角散乱法を用いた 食品タンパク質凝集体のナノ構造解析

佐藤信浩

粒子線物性学研究分野



## 食品の三大機能



### それ以外の重要な因子

#### 食品物性

粘弾性 抗張性 伸展性  
保水性 結着性 ゲル化性  
乳化性 etc.

#### 食品物性の改善



- 加工性の改善
- 製品の品質向上 (食感の向上)
- 食品素材の機能性UP

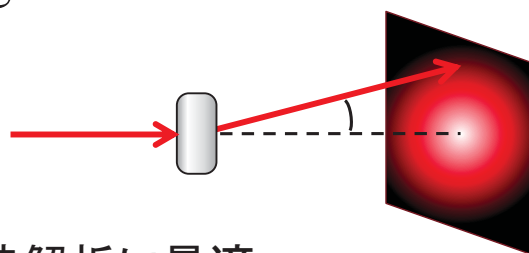
# 小角散乱による食品タンパク質の構造解析

- 食品の構造の特徴
- 濃厚な凝集体
  - 非晶質
  - ゲルやハイドロコロイド
  - 多成分系・混合物

高分子や液晶等のソフトマターに類似

Small-Angle X-ray Neutron Scattering

SAXS or SANS



凝集構造のナノ構造解析に最適

構造



物性

## 身近で測る小角散乱

これまで

KEK Photon Factory, SPring-8 ▶ 遠い！ 混んでる！ 待てない！

### 実験室用X線小角散乱装置の導入

- 思い立ったらすぐ測定
- 試料調製 → SAXS測定を即時実施
  - ✓ 解析結果に応じて試料調製
  - ✓ 不安定試料でも調製直後に測定
  - ✓ 失敗してもリカバリーが容易

RIGAKU NANOPIX



### 実験所は中性子小角散乱測定も可能

SANS、Cu-SAXS、Mo-SAXS 3つの散乱装置を組み合わせて利用可能なのは国内では原子炉実験所だけ



# 植物性食品タンパク質

## 小麦

うどん、パン、麩etc.



## 大豆

豆腐、湯葉、食品素材etc.



タンパク質が豊富に含まれており、物性に与える影響が大きい

## 小麦タンパク質グリアジン

### グリアジン

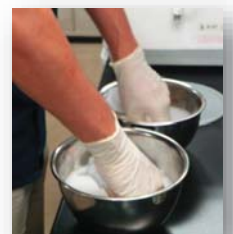
小麦粉生地の粘性に寄与  
単量体の凝集体

### 従来の抽出法

- 60-70% アルコール水溶液
- 希酸

### 新たな抽出法

食塩水で捏ねた小麦粉を揉むことにより純水中に抽出



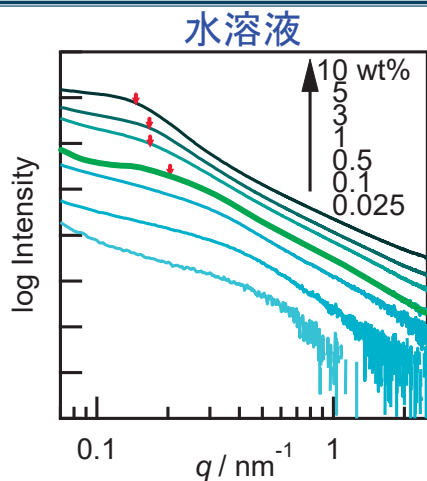
実際の食品中与類似した環境での構造解析が期待される

### グルテニン

小麦粉生地の弾性に寄与  
高分子量のネットワーク構造



# グリアジン水溶液・水和凝集体の結果



< 1 wt%

ショルダーピーク無し  
→ 孤立した分子



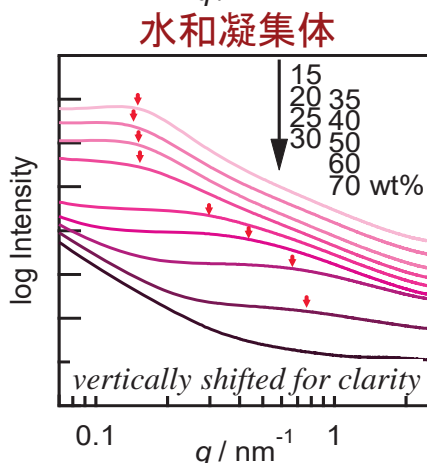
≥ 1 wt%

ショルダーピークが  
0.13 nm<sup>-1</sup>へシフト

Multi-component Guinier analysis

conc (wt%)	R <sub>g1</sub> (nm)	R <sub>c</sub> (nm)	L (nm)
0.025	4.1	2.7	11
0.1	5.7	2.7	17
0.5	6.5	3.6	19

グリアジン会合体形成



$$L_c = 2\pi / q_s$$

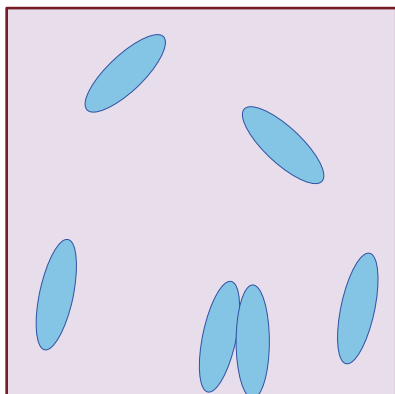
q<sub>s</sub>: shoulder  
のq値

conc / wt%	q <sub>s</sub> / nm <sup>-1</sup>	L <sub>c</sub> / nm
15	0.15	42
20	0.14	43
25	0.15	43
30	0.15	41
35	0.30	21
40	0.43	15
50	0.67	9.5
60	0.74	8.5

1) N. Sato et al., *J. Agric. Food Sci.*, **63**, 8715 (2015).

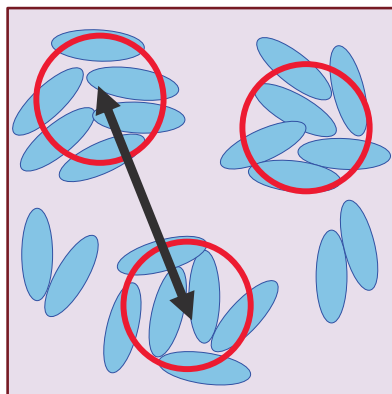
## グリアジンの凝集構造

希薄領域



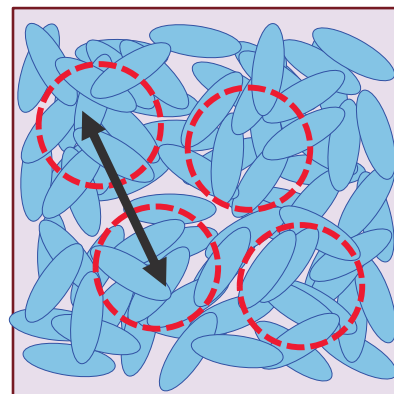
細長い形状の monomerとして存在。一部は会合して、dimerやoligomerに。

準希薄領域



凝集したグリアジンドメイン間の粒子間干渉

濃厚領域



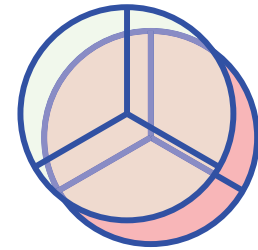
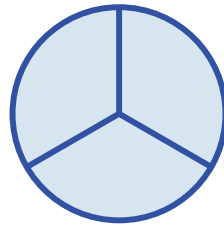
内部に密度ゆらぎを持つ巨大な凝集体を形成

# 大豆タンパク質

## 2つの主要タンパク質

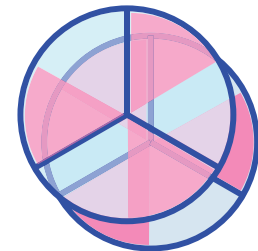
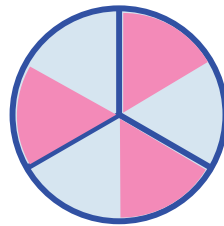
## サブユニット構造

**β-コングリシニン  
(7S)**



$\alpha / \alpha' / \beta$   
~50-70 kDa

**グリシニン  
(11S)**

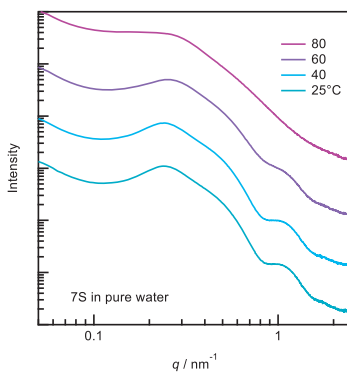


~10 nm

$A_{1a}B_{1b} / A_{1b}B_2 / A_2B_{1a} / A_3B_4 / A_5A_4B_3$   
~60 kDa

## 熱処理にともなう構造変化

### 7S 3% in water



**< 60 °C**

サブユニット構造に由来する  
複数のピーク

近接した7S分子の粒子  
間干渉

温度による変化はなし

**~ 60 °C**

徐々に曲線が変化  
変性の開始

**> 60 °C**

ピークのブロード化  
熱変性による規則構  
造の乱れ





# 超遠心分析を用いたタンパク質溶液構造研究

(京大原子炉 粒子線物性学研究分野) 守島 健、井上倫太郎、酒巻祐介、佐藤信浩、杉山正明

## 1. はじめに

分析超遠心法 (Analytical ultracentrifugation; AUC) は、試料溶液を高速で回転させ、遠心力による溶質の沈降挙動をリアルタイム観測する測定法である。測定モードには沈降速度法と沈降平衡法があり、主に前者では沈降係数分布、後者では絶対分子量が得られる。この他にも、AUCによって得られる情報は非常に多い。具体的には、調製されたタンパク質は「単分散であるか?」「予期せぬ凝集はないか?」「目的のタンパク質はモノマーか?自己会合しているか?」「タンパク質 A とタンパク質 B は結合しているか?」「目的の複合体は形成しているか?」「タンパク質間の相互作用は引力的であるか斥力的であるか?」といった疑問に答えることができる。さらに、AUC から得られるこれらの情報を、中性子/X線小角散乱法などにより得られる構造情報と相補的に用いて解析を行えば、溶液中のタンパク質に関する理解が飛躍的に進むと考えられる。本発表では、沈降速度法によるタンパク質溶の測定例を示す。

## 2. 実験

Beckman Coulter 社製の超遠心分析装置 XL-I を用いたタンパク質溶液の沈降速度測定を行った。溶質の沈降により生じる測定セル内の濃度分布  $X(r, t)$  の検出方法には、UV 吸光法と、レイリー干渉法があり、XL-I ではこれら 2 つの検出法を用いた測定を同時に行うことができる。

沈降速度法では、ある溶質成分  $i$  に対して、回転の半径  $r$  と時間  $t$  を変数とする濃度分布  $\chi_i(r, t, s_i, D_i)$  は、以下の微分方程式 (Lamm 方程式) の解として与えられる。(  $s$  は沈降係数、  $D$  は拡散係数、  $\omega$  は回転の角速度である。)

$$\frac{dc_i}{dt} = \frac{1}{r} \left[ \frac{dc_i}{dr} r D_i - c_i \omega^2 r^2 s_i \right]$$

溶液中に単独成分しか存在しない場合は、 $\chi_i$  は測定で求められる濃度分布  $X$  と一致する。一方、溶液中に複数種類の成分が存在する場合には、それぞれの成分に対して Lamm 方程式が成り立ち、観測される濃度分布  $X$  は、それぞれの成分の  $\chi_i$  に対して重み  $c(s_i)$  を掛けて足し合わせた形で表される。Lamm 方程式は一般解を持たないため、数値解析により濃度分布  $X$  のフィッティングを行い、沈降係数分布  $c(s_i)$  を求めた。数値解析には Peter Shuck 博士が開発したソフトウェア SEDFIT<sup>1)</sup>を用いた。

本稿では、ウシ血清アルブミン (BSA) の 0.5mg/mL 水溶液について、沈降速度法による測定例を示す。アルミニウム製の測定セルに 400 $\mu$ L の試料をロードし、装置の高速上限である 60000rpm の回転数で 25 $^{\circ}$ C

にて測定を行った。

## 3. 結果、考察

Figure1 に、レイリー干渉法によって得られた濃度分布  $X(r, t)$  を示す。測定で得られた  $X(r, t)$  は SEDFIT を用いた数値解析フィッティングでうまく再現されている。UV 吸収法において得られた結果についても同様にフィッティングを行うことができ、それぞれから沈降係数  $s$  の分布  $c(s)$  を得ることができた (Figure2)。いずれの検出法で得られた  $c(s)$  においても、 $s = 4.5, 7, 9$  付近にピークが観測され、BSA の単量体、二量体、三量体が検出された。本条件の BSA 試料は、どちらの検出法においても問題なく  $c(s)$  を得られているが、目的のタンパク質および buffer の吸光特性や、濃度などの条件によっては、これら 2 つの検出法をうまく使い分けることで精度のよいデータを得ることが重要である。

当日は、タンパク質オリゴマーに対する中性子小角散乱測定との相補的な解析例を示す。

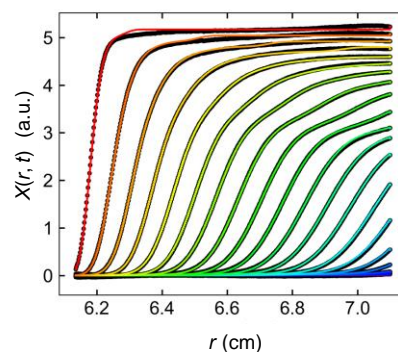


Figure 1. Sedimentation velocity (SV) data detected by interference method for BSA. Solid line represents the fitting curve calculated by using Lamm equation.

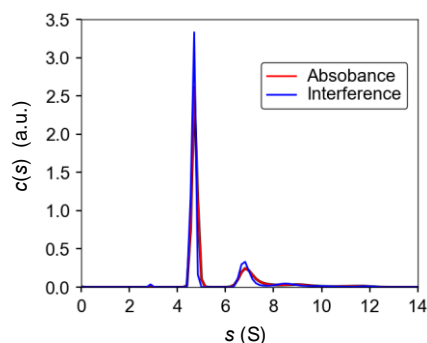


Figure 2. Distribution of sedimentation coefficient  $c(s)$  for BSA obtained from SV data detected by absorbance and interference detection.

参考文献

[1] Shuck, P. *Biophysical Journal* **2000**, 78, 160.

# 超遠心分析を用いたタンパク質の溶液構造解析

粒子線物性学研究分野  
守島 健、井上 倫太郎、酒巻 祐介、佐藤 信浩、杉山 正明

## 溶液中におけるタンパク質の統合的構造解析



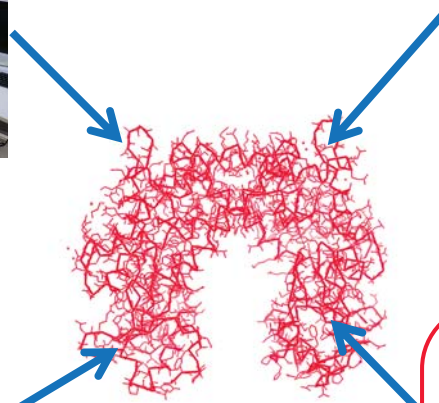
X線小角散乱 SAXS  
>> サイズ・形状



動的光散乱 DLS  
>> サイズ・拡散係数



中性子小角散乱 SANS  
>> サイズ・形状



目的のタンパク質

散乱実験との  
相補的な利用

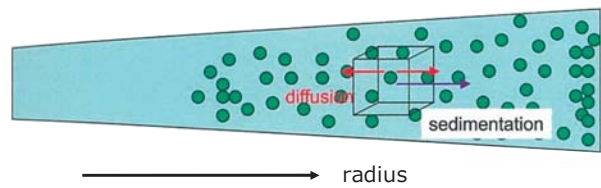
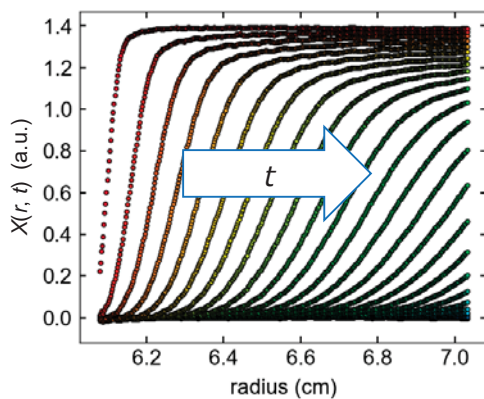
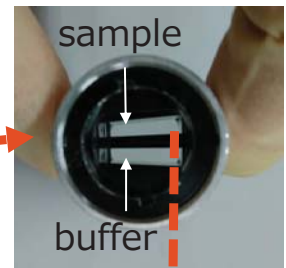


超遠心分析 AUC  
>> 沈降係数(分子量)分布・相互作用  
散乱実験とは異なる情報

# 超遠心分析 (Analytical Ultracentrifugation : AUC)



Beckman Coulter社製XL-I

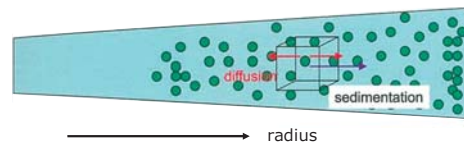
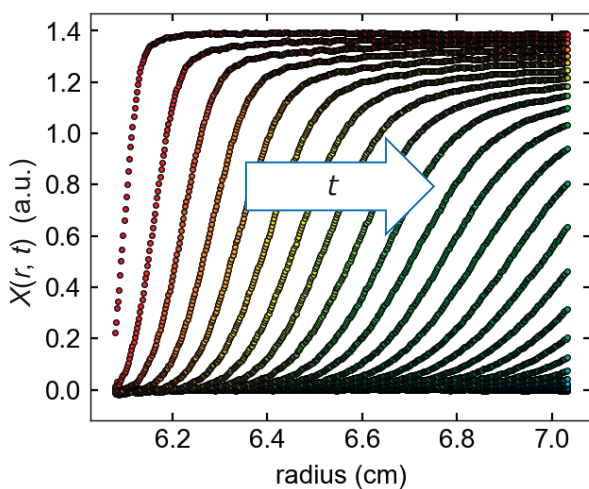


遠心力によるタンパク質の沈降挙動を観測

濃度勾配の検出方法

… UV吸光法, レイリー干渉法 (屈折率差)

## 沈降速度法



濃度分布 :  $\chi(r, t, s, D)$

$s$  : 沈降係数

$D$  : 拡散係数

Lamm方程式

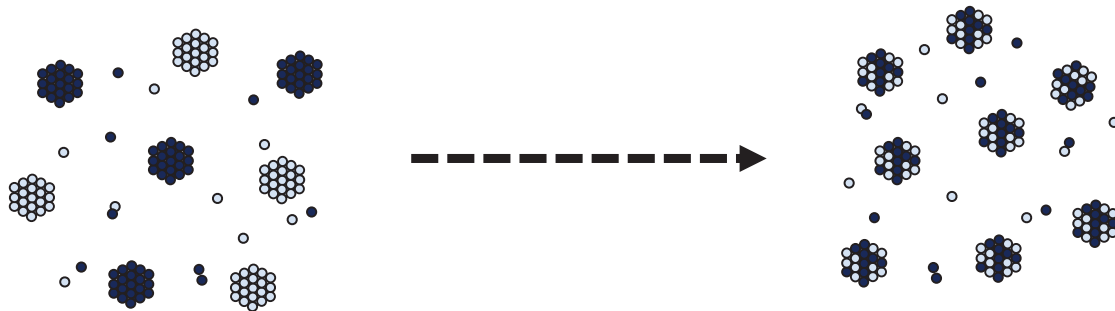
$$\frac{d\chi}{dt} = \frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left[ \frac{d\chi}{dr} rD - \chi \omega^2 r^2 s \right] \quad (\text{単成分})$$

タンパク質の  $s$  : 沈降係数  $D$  : 拡散係数 (いずれも分子量・形に依存) を決定することができる



# タンパク質オリゴマーのキネティクス解析への応用

## サブユニット交換メカニズムのモデル



- 交換速度に濃度依存性がないことから、オリゴマー同士の衝突という機構ではない
- AUCによりオリゴマーとモノマー（少量の2,3,4merも）が共存していることが確認され、サブユニット交換には遊離モノマーが重要な役割を果たしていることが示唆される

## まとめ

超遠心分析（沈降速度法）により、タンパク質溶液中の沈降係数分布を求めることができる。

応用例としてタンパク質オリゴマーへの測定例を示した。  
サブユニット交換の機構解明において、X線、中性子小角散乱法では得られない分布に関する情報を得ることができ、散乱法との効果的な相補利用の成果が得られた。

今後の応用例として

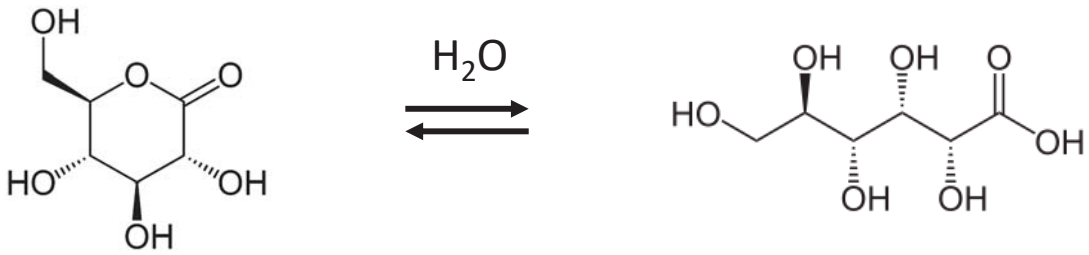
- 会合-解離系の構造モデリングに対するストイキオメトリー情報
- 予期しない会合体の有無の確認

**中性子/X線小角散乱法との組み合わせで、  
複合的な構造・キネティクス解析が可能に**

# 凝固過程の追跡 (豆腐の製造)

グルコノ- $\delta$ -ラクトン

グルコン酸



ゆっくり固まるため  
充填豆腐の凝固に利用

酸凝固

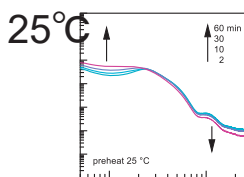
種々の温度で前加熱処理



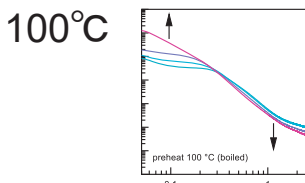
1. 25 °Cに冷却
2. GDL添加
3. SAXSの時間変化測定

## GDL添加後の時間変化

7S 3% in water



サブユニットに  
由来するピーク



前加熱処理温度

25 °C

ほぼ変化なし

分子表面のみ  
変性

50 °C

0.2 nm<sup>-1</sup>以下の領域のみ  
大きく変化

サブユニット構造を保った  
まま、7S同士が架橋

70 °C

1 nm<sup>-1</sup>付近のピーク消失

サブユニット構造の乱れ

100 °C

なだらかな曲線

サブユニット構造が消失  
1つの大きな凝集体

## まとめ

---

- 小麦タンパク質グリアジンは、濃度に応じて異なる会合状態をとり、それらが凝集して階層構造を形成することが、SAXSによる構造解析により明らかとなった。
- 大豆タンパク質 $\beta$ -コングリシニンは、熱処理によって60度付近から変性を生じ始めること、及び熱処理温度の相違によってGDL添加に伴う凝固過程が大きく異なることがわかった。
- X線・中性子小角散乱法は、濃厚な非晶質凝集体である食品中のタンパク質のナノ構造を解析するための有力なツールとなる。

## 同位体を利用した先進科学の創出

(京大原子炉 同位体製造管理工学研究分野) ○大槻勤、沖雄一、高宮幸一、関本俊

概要：当研究室では、研究用原子炉や加速器を用いて、化学・物理など自然科学のあらゆる研究分野に有効に利用できる同位体の製造やその利用に関する研究に取り組んでいる。研究テーマは、(1)原子炉からの中性子線や加速器からの粒子線を用いた核反応メカニズムに関する研究、(2)放射性エアロゾルの生成メカニズムおよびその性質の解明、(3)中性子放射化分析法による環境・宇宙・地球物質の微量元素分析、(4)放射性同位元素の寿命変換、核変換に関する研究、(5)医療用放射性核種の製造に関する研究、等を軸に展開されている。上記の研究テーマはいずれも放射化学的な内容を多く含んでいる。放射化学は化学の中でもっとも学際的な分野の一つで、異分野の研究者との交流が必須であり、またそれこそが最大の魅力でもある。以下に、上記(1-5)について、説明する。

(1) アクチノイド原子核の中性子入射核分裂では、様々な種類の原子核が核分裂片として生成される。核分裂片の質量数に対する収率の分布（質量数収率分布）は、原子炉の安全性に関わる崩壊熱や遅発中性子数を決定する重要なデータである。また、長寿命マイナーアクチノイド原子核（MA）を高エネルギー中性子入射核分裂で核変換する場合にも必要となる。これまでの中性子入射反応においては、高純度試料が入手できない、あるいは半減期が短いなどの理由から測定されていない核種があり、また、高エネルギー中性子データも極めて限られている。本研究では、原子力機構タンデム加速器等で加速された $^{18}\text{O}$  ビームを $^{232}\text{Th}$  標的に照射することで、トリウムからウランにおよぶ 14 種類の原子核を一度に生成し、これらの核分裂の質量数収率分布を取得するとともに、1MeV から 50MeV の中性子エネルギーに対応するデータを取得した。この手法を用いれば、さらに多くの核種のデータ取得が可能になりうる。中性子過剰な原子核の核分裂も調べられるようになるため、新たな領域の核分裂研究の発展にもつながると期待される。また、 $^{18}\text{O} + ^{238}\text{U}$  反応のデータから、複合核から放出される中性子の効果を調べ、マルチチャンネル核分裂による核分裂データへの影響を明らかにし、さらに、 $\text{Es}254$  標的に焦点を絞り、 $\alpha + ^{254}\text{Es}$  系の測定を高効率に行う計画もある。

(2) 放射線施設や原子炉施設の運転に伴い生成する放射性核種がどのような化学形や形態(ガス状、エアロゾル状、コロイド状など)となるのかを、放射化学、放射線化学、エアロゾル工学などの観点から研究している。放射線場での化学反応、内部被曝防護、お

よび原発事故により放出された放射性核種の挙動の理解に役立つ。近年は、東京電力福島第一原子力発電所事故によって環境中に放出された放射性エアロゾルにも着目し、KUR や加速器を用いた様々な条件下で放射性エアロゾルを発生させ、生成過程における化学的な効果などを詳細に調べ、放射性エアロゾルの生成メカニズムの解明に取り組んでいる。これらの研究を進めた結果、エアロゾルを構成する化学物質の種類や濃度が放射性エアロゾルの生成に影響を与えていることが明確になり、その生成メカニズムの定量的な解釈に大きく近づいた。今後は対象とするエアロゾルの種類や粒径を拡張することで、放射性エアロゾルの生成モデルの構築を目指す。また、事故を起こした原子炉内で生成した不溶性の放射性微粒子にも着目しており、採取した微粒子の性状分析の結果をもとに、事故時の原子炉内の状況を推定する試みも目下、進行中である。

(3) はやぶさ探査機が持ち帰った、小惑星イトカワの粒子の分析に使われた、KUR を用いた中性子放射化分析法であるが、近年は、標準岩石試料中の微量ハロゲン元素（塩素、臭素、ヨウ素）の精密な定量分析に用いられている。そこで得られた成果としては、堆積岩標準試料中の臭素、ヨウ素の定量値と、現在、一般的な元素分析法として汎用的に用いられる誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS) により得られた定量値を比較すると、後者が系統的に低くなる傾向が示され、ICP-MS の際の試料の前処理の段階で、臭素、ヨウ素が定量的に回収されていない可能性を示唆した。また、米国地質調査所が発行した 17 種類の標準物質のハロゲンの定量分析をしたところ、いくつかの試料において、報告済みの文献値との不整合がみられた。この原因は、文献値において、機器分析の前段階で行われるハロゲンの抽出操作時に、ハロゲンが定量的に回収できていないこと、及び試料の前処理方法がそもそも不適切であったことで説明された。今後は、様々な標準物質にハロゲンの正確な定量値を与え、ハロゲンを用いた地球化学の学術基盤を確立する。得られたデータを体系化し、地球上の物質におけるハロゲンの分布を知る。また同元素を用いた地球化学研究の例として、ヨウ素濃度の濃縮が知られるシェール岩石に注目し、ハロゲンを定量する。その結果からヨウ素の濃縮機構の解明を試み、地球化学分野のさらなる深化やエネルギー・資源問題に貢献する。また、環境問題への貢献のため、中性子放射化分析法による大気浮遊塵の分析も予定している。本手法の他に、実験所で可能な光量子放射化分析法や即発ガンマ線分析法を駆使して、



環境試料、考古学試料の分析等も試みたい。

(4) 放射性のベリリウム7原子 ( ${}^7\text{Be}$  の通常用いられる半減期は 53.3 日) を、フラーレン(C60)と呼ばれる球状の炭素分子の内部に入れると、ほかの原子へと崩壊する現象が加速され、放射性元素の寿命を表す「半減期」が 1.8% 近く短くなることを実験で確認した。半減期は基本的に元素固有の物理量と考えられており、 ${}^7\text{Be}$  の半減期は電子が環境に影響されて 0.1% 前後変わることは半世紀前から知られていたが、これほど大きな変化が確認されたのは初めてである。C60 内部は真空であり、 ${}^7\text{Be}$  原子は自らの電子 2 個を原子核近傍に取り込み、 ${}^7\text{Li}$  に崩壊する。その際に放出されるガンマ線を 200 日間測定し、C60 内部に閉じ込められた  ${}^7\text{Be}$  原子の半減期が 52.45 日であることを突き止めた。これは金属のベリリウムの中にある場合の半減期である 53.25 日より約 1 日近く短くなった。本研究では原子炉の中性子を用いた ( $n, \gamma$ ) 反応内包フラーレンの研究などを継続して実施していく。新素材である C60 の新たな機能の開発にもつ

ながる発見として注目される。

(5) 全身にある臓器の機能診断や、様々な疾患の内用療法等の核医学検査・治療に使われる放射性医薬品に有用な放射性同位体(RI)の多くは、海外の原子炉や加速器で製造され、供給されていたが、様々な理由により世界的な供給不足が危惧されるようになってきた。近年の研究テーマとして当研究室では、将来の国内における医療用の RI の安定供給の実現を目指して、京都大学原子炉実験所の電子線形加速器で発生させる制動放射線を用いて、医療用 RI である  ${}^{67}\text{Cu}$ ,  ${}^{99\text{m}}\text{Tc}$  等の製造を試みている。特に最近、日立製作所、樹化研との共同研究の結果、 ${}^{99\text{m}}\text{Tc}$  の親核種である  ${}^{99}\text{Mo}$  の製造量と、 ${}^{99}\text{Mo}$  からの  ${}^{99\text{m}}\text{Tc}$  の分離法に関する新しい知見を得た。今後は、上記の研究グループに東京大学も加わり、電子線形加速器の仕様の検討も視野に入れ、制動放射線の効率的な発生方法、製造した RI の分離精製方法について検討し、それらの最適な条件を見出す。

# 同位体製造管理工学研究分野

(1) 研究活動のビジョン・方向性・意義(共同利用・共同研究を含む)  
核・放射化学、宇宙地球化学、放射線科学、クラスター科学

原子炉の中性子照射装置や加速器を用いた核反応メカニズムに関する研究  
(有用放射性同位元素の製造)

超微量元素分析への挑戦

中性子放射化分析法による  
宇宙・地球・生命物質の微量元素分析

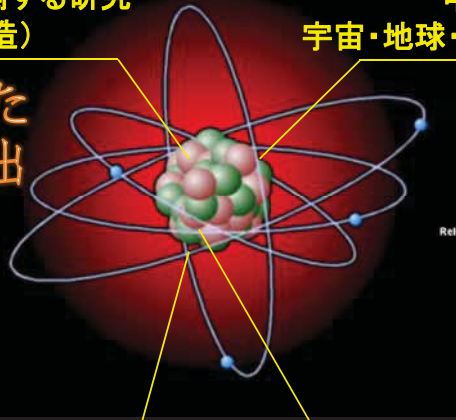
同位体を利用した  
新しい科学の創出

研究用原子炉を用いた  
放射性エアロゾルの製造



原子力事故による汚染メカニズムの解明

放射性エアロゾルの生成メカニズム  
およびその性質の解明

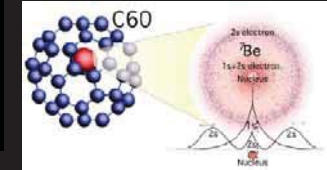


イトカワ試料の元素分析



Release 051101-1 ISAS/JAXA

C<sub>60</sub>中への<sup>7</sup>Be導入による寿命変換



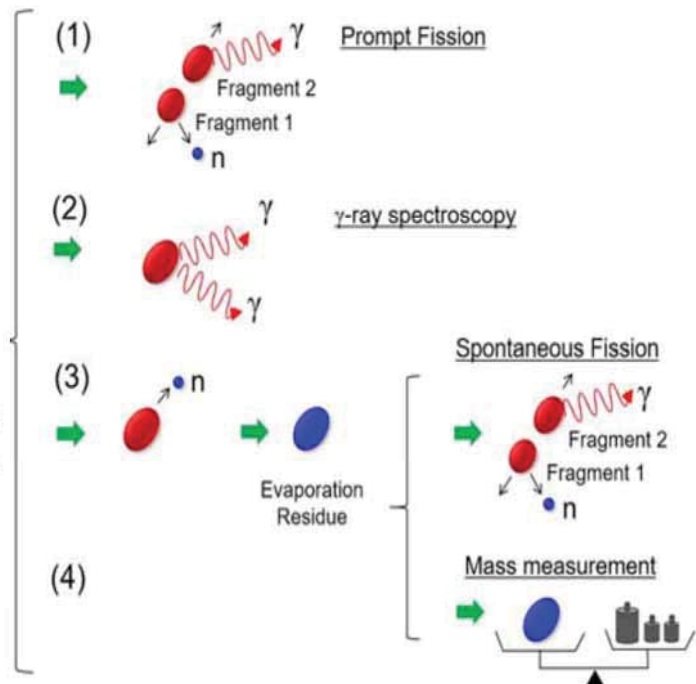
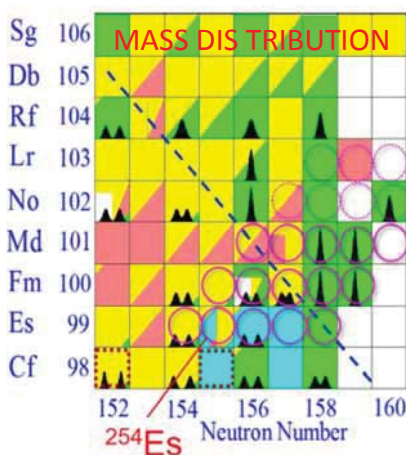
原子核の寿命変換の限界を探索

放射性同位元素の寿命変換、  
核変換に関する研究

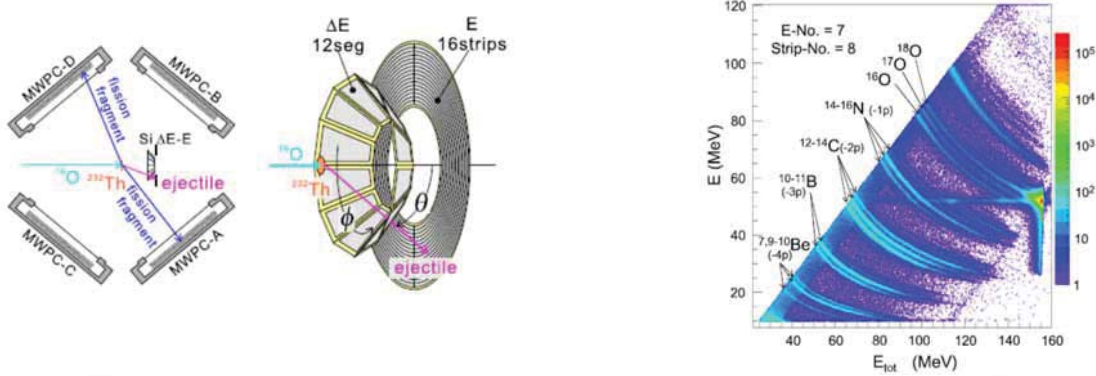
京都大学研究用原子炉や加速器を用いて、化学・物理など自然科学のあらゆる研究分野に有効に利用できる同位体の製造やその利用に関する研究を行う。

原子炉や加速器を用いた核反応メカニズムに関する研究  
(有用放射性同位元素の製造)

## Fission of Heavy Nucleus



# 原子炉や加速器を用いた核反応メカニズムに関する研究 (有用放射性同位元素の製造)



## Proposal: Fission properties of neutron-rich fermium nuclei investigated by multinucleon transfer channels in $^{18}\text{O}+^{254}\text{Es}$

K. Nishio<sup>1</sup>, K. Hirose<sup>1</sup>, M. Vermeulen<sup>1</sup>, H. Makii<sup>1</sup>, R. Orlandi<sup>1</sup>, M. Asai<sup>1</sup>, K. Tsukada<sup>1</sup>, A. Toyoshima<sup>1</sup>, T.K Sato<sup>1</sup>, N.M. Chiela<sup>1</sup>, Y. Nagame<sup>1</sup>, M. Matsuda<sup>2</sup>, K.P. Rykaczewski<sup>3</sup>, A. Andreyev<sup>4,1</sup>, S. Kubono<sup>5</sup>, T. Ohtsuki<sup>6</sup>, N. Iwasa<sup>7</sup>, B. Jurado<sup>8</sup>, I. Tsekhanovich<sup>8</sup>, J. Khuyagbaatar<sup>9,10</sup>, M. Venhart<sup>11</sup>, Y. Aritomo<sup>12</sup>

<sup>1</sup> Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Agency, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan

<sup>2</sup> Tokai Research and Development Center, Japan Atomic Energy Agency, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan

<sup>3</sup> Physics Division, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee 37831, USA

<sup>4</sup> Department of Physics, University of York, York YO10 5DD, United Kingdom

<sup>5</sup> Nishina-Center for Accelerator-Based Science, RIKEN, Saitama 351-0198, Japan

<sup>6</sup> Research Reactor Institute, Kyoto University, Kumatori, Osaka 590-0494, Japan

<sup>7</sup> Graduate School of Science and Faculty of Science, Tohoku University, Sendai, Japan

<sup>8</sup> CENBG, CNRS/IN2P3-Universite de Bordeaux,

Chemin du Solarium, B.P. 120, 33175 Gradignan, France

<sup>9</sup> Helmholtz Institute Mainz, 55099 Mainz, Germany

<sup>10</sup> GSI Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung, 64291 Darmstadt, Germany

<sup>11</sup> Institute of Physics, Slovak Academy of Sciences, 845 11 Bratislava, Slovakia and

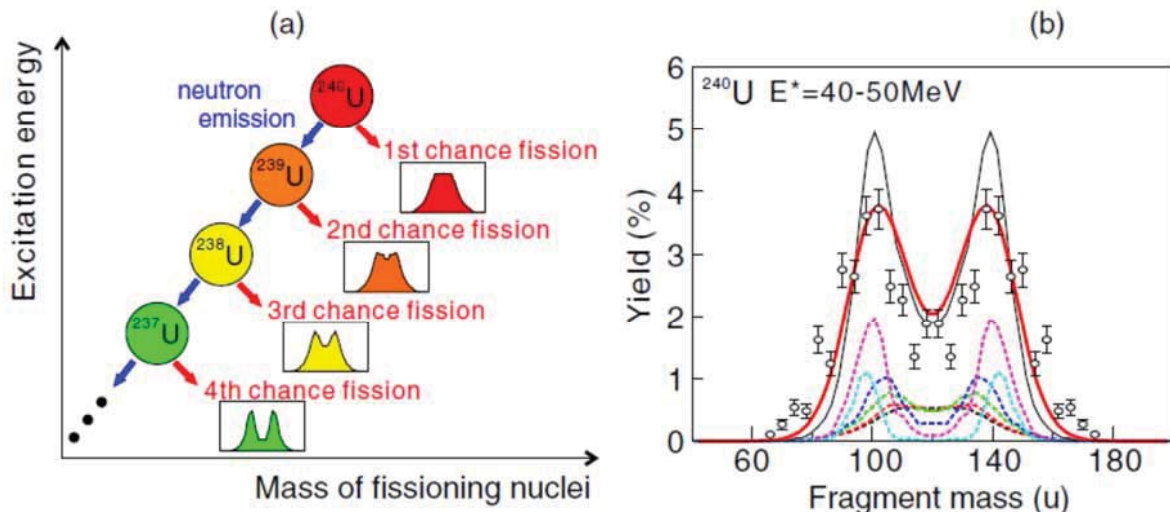
<sup>12</sup> Faculty of Science and Engineering, Kindai University, Higashi-Osaka 577-8502, Japan

# 原子炉や加速器を用いた核反応メカニズムに関する研究 (有用放射性同位元素の製造)

## Role of Multi-chance Fission in the Description of Fission-Fragment Mass Distributions at High Energies on $^{18}\text{O}+^{238}\text{U}$ Reaction

PRL 119, 222501 (2017)

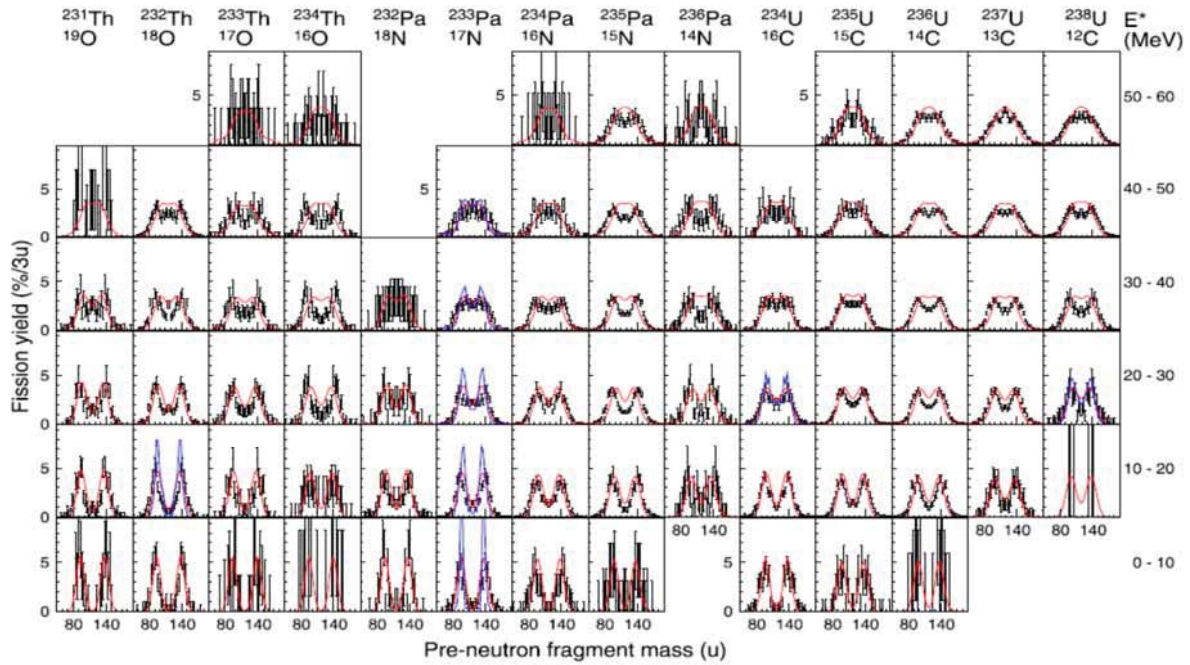
PHYSICAL REVIEW LETTERS



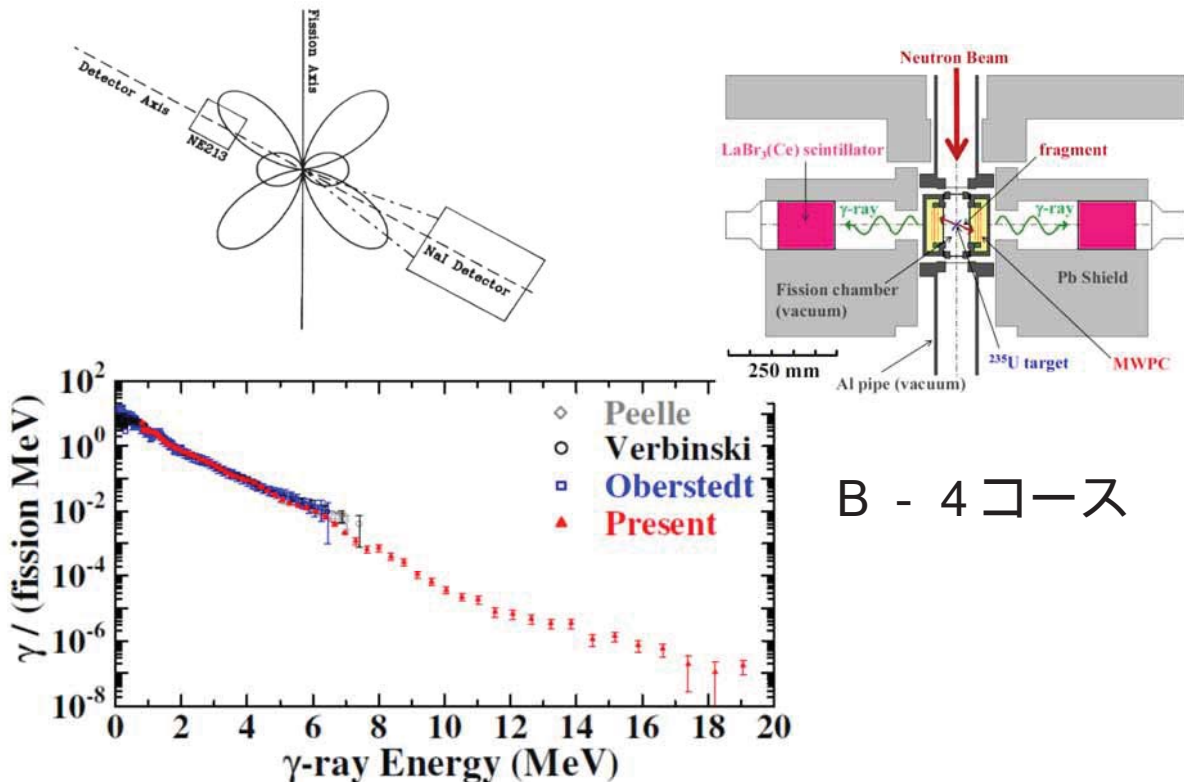
原子炉や加速器を用いた核反応メカニズムに関する研究  
(有用放射性同位元素の製造)

Fission fragments mass distributions of nuclei populated by the multi-nucleon transfer channels of the  $^{18}\text{O}+^{232}\text{Th}$  reaction

Physics Letters B 761 (2016) 125–130

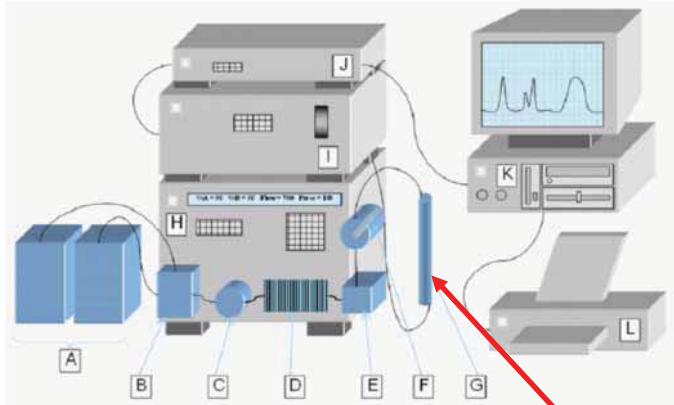


原子炉や加速器を用いた核反応メカニズムに関する研究  
(有用放射性同位元素の製造)



B - 4 コース

# 同位体内包フラーレン HPLC device by NEDO project



- A: Solvent
- B: Solvent exchange valves
- C: Pump
- D: Pressure damper
- E: Mixer
- F: Manual injector
- G: Column
- H: HPLC controller
- I: Detector  
(UV absorbance meters)
- J: A/D converter
- K: PC  
(data logger data analysis)
- L: Printer



挑戦的萌芽  
線源内療法を視野に入れた放射性同位元素ナノコンテナ製造の試み

## 有用放射性同位元素の製造

### Creation of Mo/Tc@C<sub>60</sub> and Au@C<sub>60</sub>

Tsutomu Ohtsuki<sup>1,\*</sup> and Aadita Manjanath<sup>2</sup>, Kaoru Ohno<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Research Reactor Institute, Kyoto University, 2 Asashiro-Nishi, Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-0494 Japan

<sup>2</sup>Department of Physics, Yokohama National University, 79-5 Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama 240-8501, Japan<sup>†</sup>

(Dated: November 29, 2017)

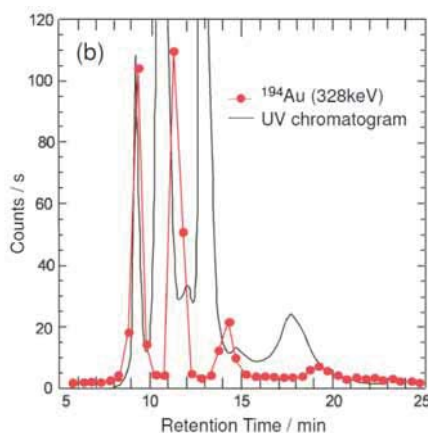


FIG. 2: HPLC elution curves of the soluble portion of the crude extracted in the  $\gamma$ -ray irradiated sample of C<sub>60</sub> mixed with the enriched <sup>194</sup>Pt metal powder. The horizontal and vertical axes are the same as in Fig. 1, except for the counting rate of radioactivities of <sup>194</sup>Au.

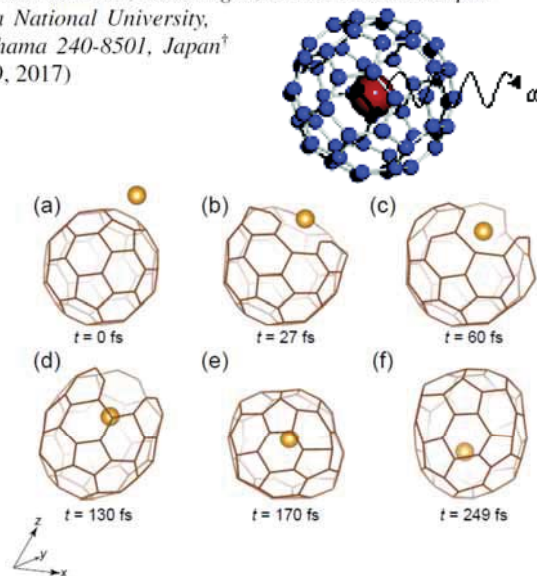


FIG. 5: Snapshots of the Au + C<sub>60</sub> → Au@C<sub>60</sub> simulation, when an Au atom vertically collides at the center of a six-member ring with an initial kinetic energy of 80 eV.

# ナノコンテナの考案

がん細胞・がん組織に高い選択性を持って薬を届けることができるなら、治療の効果は大いに改善される。

- ・ナノコンテナ：目的部位で薬を降ろす役割：ダンプカー
- ・積荷：薬（放射性同位体）
- ・ダンプカーシステム
  - 3つの要件
  - (1) 自身がtarget effectsがある。
  - (2) 自身が制がん作用がある。
  - (3) なおかつ、適切なサイトでドラッグをリリースする。

がん治療のための薬の積荷システムでキャリアとしてのフラレンやナノチューブの研究の進展

## 中性子(光量子)放射化分析(同時多元素・非破壊分析)

**Tool-1** (原子炉 (NAA) 中性子)

**Tool-2** (電子線形加速器)

**健康調査** (Health Survey)

**食品分析** (Food Analysis)

**考古学** (Archaeology)

**隕石** (Meteorite)

**Hayabusa 1**

**岩石標準試料(NIST, IAEA, etc.)**

**Cosmic spherule** (1 mm)

**ゲル検出器 自動測定による効率化** (Efficiency improvement by automatic measurement with Ge detector)

**ガス井** (Gas well)

**水平坑井** (Horizontal well)

**シェール岩石(頁岩)** (Shale rock)

**フラクチャリング** (Fracturing)

**フラクチャー** (Fracture)

**スイートスポット** (Sweet spot) / **非スイートスポット** (Non-sweet spot)

**無駄なフラクチャリングが減らす** (Reduction of unnecessary fracturing)

**核励起** (Nuclear excitation)

**生成核** (Parent nucleus)

**娘核種** (Daughter nucleus)

**β<sup>-</sup> (β<sup>+</sup>, EC)** (Beta minus (beta plus, electron capture))

**γ線放出** (Gamma ray emission)

**即発γ線** (Prompt gamma ray)

**光子 標的核種** (Photon target nucleus)

**原子炉 (NAA) 中性子** (Nuclear reactor (NAA) neutron)

**電子線形加速器** (Electron linear accelerator)

# これまでの成果



← Hayabusa1

## Neutron Activation Analysis of a Particle Returned from Asteroid Itokawa

M. Ebihara,<sup>1\*</sup> S. Sekimoto,<sup>2</sup> N. Shirai,<sup>1</sup> Y. Hamajima,<sup>3</sup> M. Yamamoto,<sup>3</sup> K. Kumagai,<sup>1</sup> Y. Oura,<sup>1</sup> T. R. Ireland,<sup>4</sup> F. Kitajima,<sup>5</sup> K. Nagao,<sup>6</sup> T. Nakamura,<sup>7</sup> H. Naraoka,<sup>5</sup> T. Noguchi,<sup>8</sup> R. Okazaki,<sup>5</sup> A. Tsuchiyama,<sup>9</sup> M. Uesugi,<sup>10</sup> H. Yurimoto,<sup>11</sup> M. E. Zolensky,<sup>12</sup> M. Abe,<sup>10</sup> A. Fujimura,<sup>10</sup> T. Mukai,<sup>10</sup> Y. Yada<sup>10</sup>

小惑星探査機はやぶさが持ち帰ったイトカワの粒子の元素分析

Science, **33** (2011) 1119-1121

## Chemical and mineralogical compositions of two grains recovered from asteroid Itokawa

M. EBIHARA<sup>1\*</sup>, N. SHIRAI<sup>1</sup>, S. SEKIMOTO<sup>2</sup>, T. NAKAMURA<sup>3</sup>, A. TSUCHIYAMA<sup>4</sup>, J. MATSUNO<sup>4</sup>, T. MATSUMOTO<sup>5</sup>, M. TANAKA<sup>6</sup>, M. ABE<sup>7,8</sup>, A. FUJIMURA<sup>7</sup>, Y. ISHIBASHI<sup>8</sup>, Y. KAROUJI<sup>8</sup>, T. MUKAI<sup>7</sup>, T. OKADA<sup>7,8</sup>, M. UESUGI<sup>8</sup>, and T. YADA<sup>7,8</sup>

Meteoritics & Planetary Science, **50** (2015) 243-254

# 今後の計画 NAA

地球化学への展開

岩石標準試料(NIST, IAEA, etc.)

Cosmic spherule  
1 mm

ガス井  
スイートスポット  
非スイートスポット  
フラクチャリング  
フラクチャー  
水平坑井  
シェール岩石(頁岩)

..... ガス採掘が行われない管を減らす  
無駄なフラクチャリングが減る

大槻Gr.

共同利用

隕石

Hayabusa2 ↓

光量子放射化分析

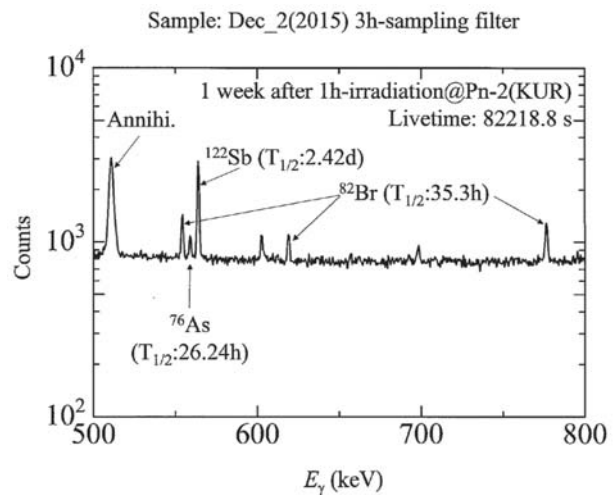
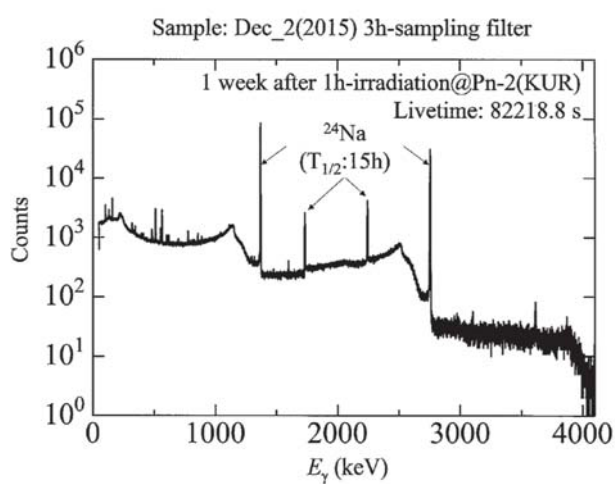
大槻Gr.+共同利用

材料  
NAA / PGA

# Airborne Sample Collecting Machine



## Instrumental NAA for the SPM (Nov. 2017)



Just start "program for the cooperative use of KUR"  
And Just start "SPM program" (probably)

Sampler を購入した ⇒ エジプト人のテーマ



# Ge detectors



12~ Ge-detector systems

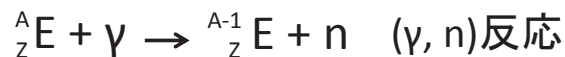


Ge detector with auto sample changer



## 光量子放射化分析 (Photon Activation Analysis)

光核反応を利用した放射化分析法



### 定量可能元素

1	岩石・隕石試料 50mgを30 MeVで30時間照射																18	
H	2												13	14	15	16	17	He
Li	Be												B	C	N	O	F	Ne
Na	Mg	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Al	Si	P	S	Cl	Ar	
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr	
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe	
Cs	Ba	*	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn	

*	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
**	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr

NAAでは定量が困難な元素

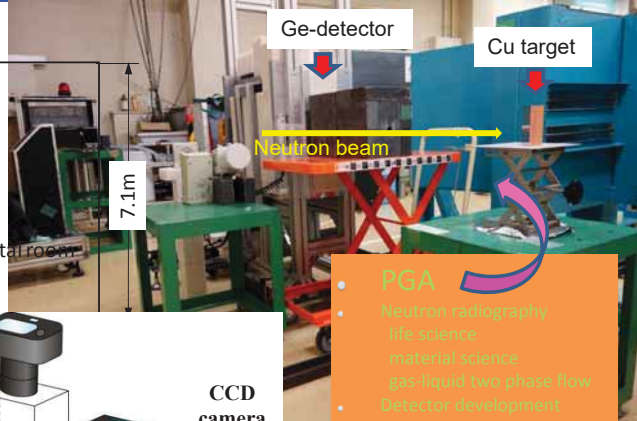
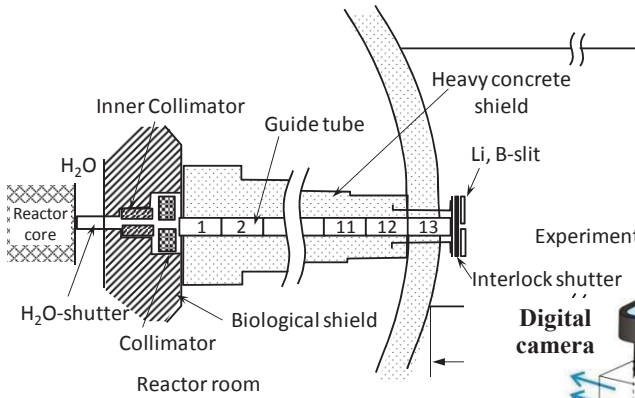
光量子放射化分析の特徴

- ・非破壊分析が可能
- ・多元素同時分析が可能
- ・NAAでは定量困難な元素の定量が可能



太陽系初期に起こった凝縮過程や地球型惑星の火成活動の解明に役立つ

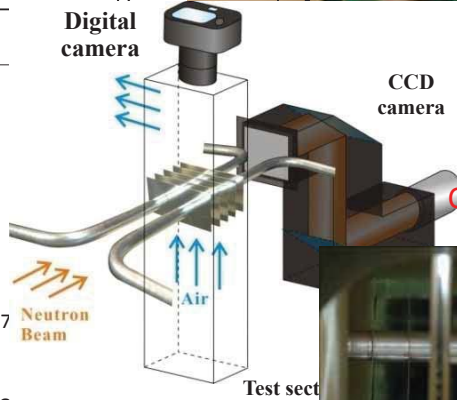
# Neutron Imaging and PGAA Facilities



## B-4: Neutron Guide Tube outside of the reactor hall.

- Small beam size
- High neutron flux ( $\sim 10^7$ )
- Available for various experimental conditions

$1 \times 10^7$  n<sub>th</sub>/cm<sup>2</sup>/s (@ 1 MW)  
[ 10 mm x 75 mm size ]



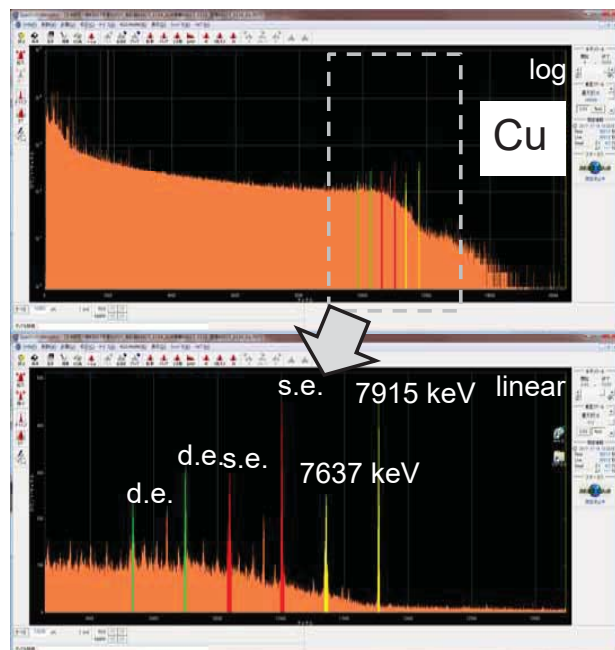
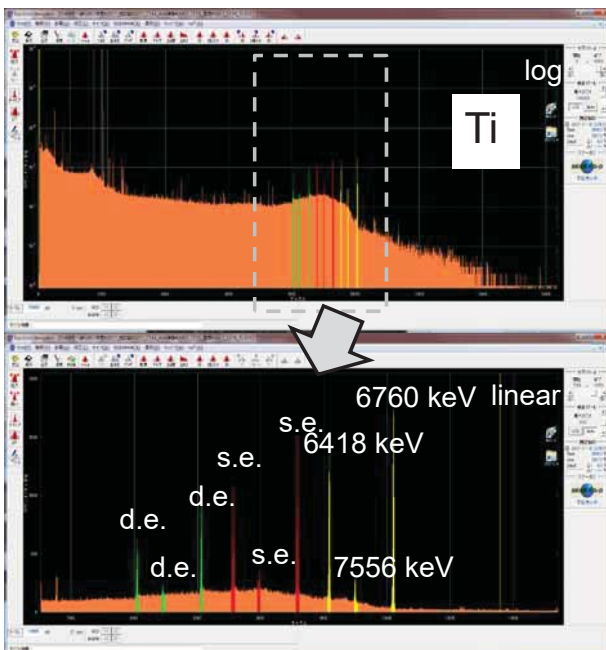
Can see "frost accumulation" By neutron imaging



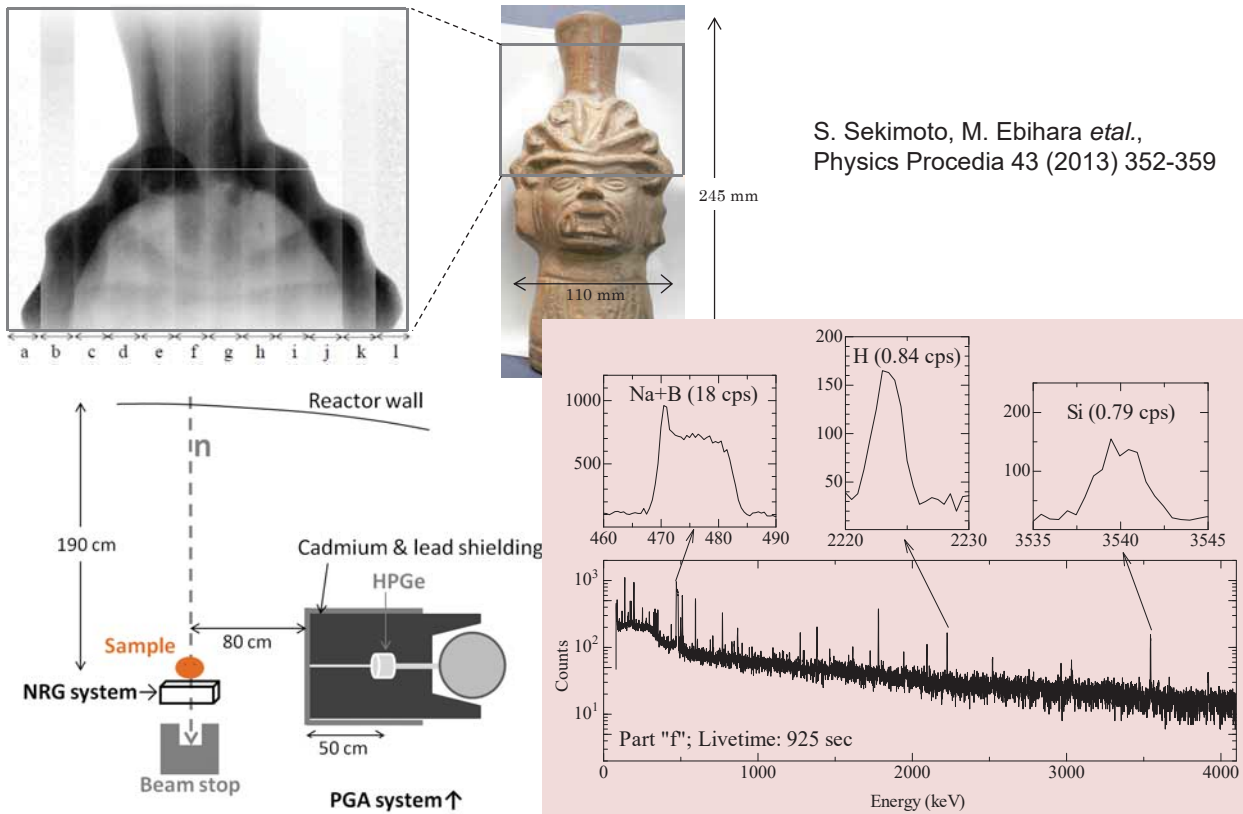
## Super-mirror neutron guide tube course

Study of Nuclear Data for JJENDL etc.

- Still lacking such high energy gamma-rays

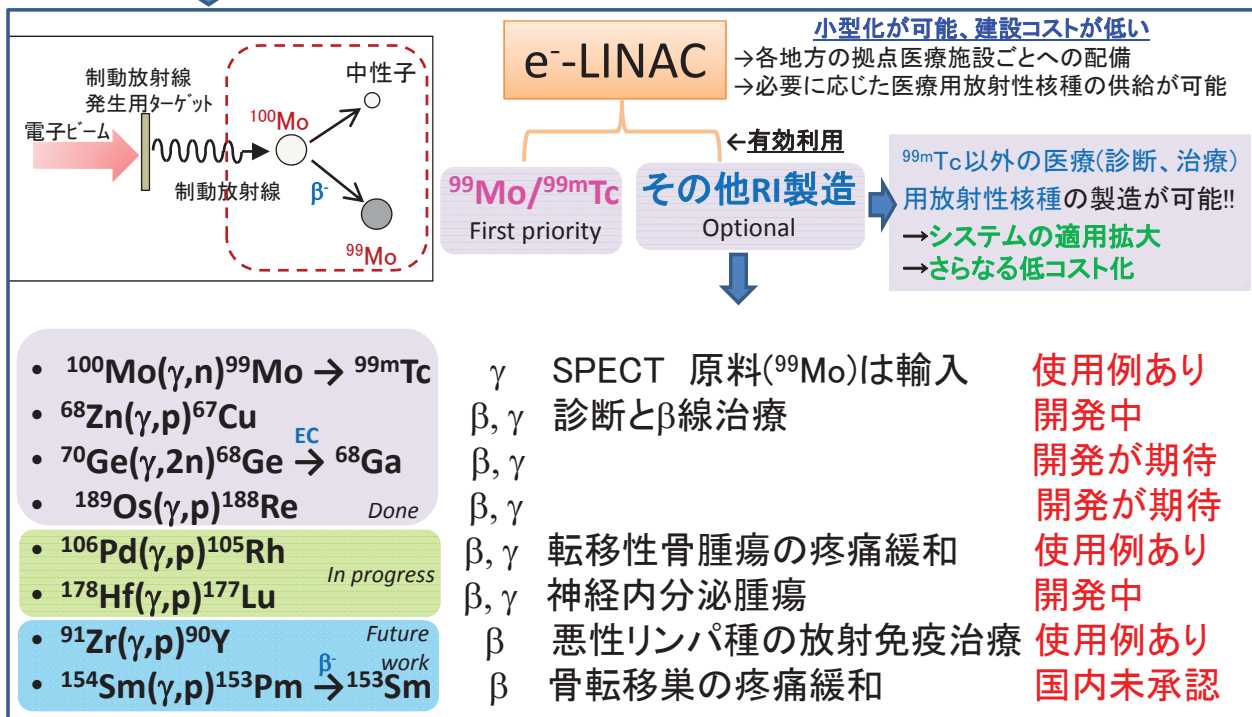


# Simultaneous observation of image and elemental component in a pottery sample using PGA



## 電子線形加速器を利用した放射性同位元素の製造

1.  $^{99m}\text{Tc}$  医療用&他
2. 光量子放射化分析
3. 有用RIの製造供給 (RI プラットホーム)



# Medical RI-production: e-Linac vs Reactor



- |   |  |
|---|--|
| <ul style="list-style-type: none"> <li>• <math>^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo} \xrightarrow{\beta^-} ^{99\text{m}}\text{Tc} \quad \gamma</math></li> <li>• <math>^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu} \quad \beta, \gamma</math></li> <li>• <math>^{70}\text{Ge}(\gamma, 2n)^{68}\text{Ge} \xrightarrow{\text{EC}} ^{68}\text{Ga} \quad \beta, \gamma</math></li> <li>• <math>^{189}\text{Os}(\gamma, p)^{188}\text{Re} \quad \beta, \gamma</math></li> </ul> | <ul style="list-style-type: none"> <li>• <math>^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo} \xrightarrow{\beta^-} ^{99\text{m}}\text{Tc}</math></li> </ul>  |
| <ul style="list-style-type: none"> <li>• <math>^{106}\text{Pd}(\gamma, p)^{105}\text{Rh} \quad \beta, \gamma</math> <i>Done</i></li> <li>• <math>^{178}\text{Hf}(\gamma, p)^{177}\text{Lu} \quad \beta, \gamma</math> <i>In progress</i></li> </ul>   | <ul style="list-style-type: none"> <li>• <math>^{104}\text{Ru}(n, \gamma)^{105}\text{Ru} \xrightarrow{\beta^-} ^{105}\text{Rh}</math></li> <li>• <math>^{176}\text{Yb}(n, \gamma)^{177}\text{Yb} \xrightarrow{\beta^-} ^{177}\text{Lu}</math></li> </ul> |
| <ul style="list-style-type: none"> <li>• <math>^{91}\text{Zr}(\gamma, p)^{90}\text{Y} \quad \beta</math> <i>Future work</i></li> <li>• <math>^{154}\text{Sm}(\gamma, p)^{153}\text{Pm} \xrightarrow{\beta^-} ^{153}\text{Sm} \quad \beta</math></li> </ul>  |  |

ライナック  
照射装置



## RI-production by Reactor (1)

- |  |  |
|--|--|
| <ul style="list-style-type: none"> <li>• <math>^{110}\text{Pd}(n, g) ^{111}\text{Pd} \xrightarrow{\beta^-} ^{111}\text{Ag}</math><br/>11.72%      23.4m      7.45d</li> <li>• <math>^{124}\text{Sn}(n, g) ^{125}\text{Sn} \xrightarrow{\beta^-} ^{125}\text{Sb}</math><br/>5.79%      9.64d      2.76y</li> <li>• <math>^{128}\text{Te}(n, g) ^{129\text{m}}\text{Te} \xrightarrow{\beta^-} ^{129}\text{Te} \rightarrow ^{129}\text{I}</math><br/>31.74%      33.6d      69.6m      <math>1.57 \times 10^7\text{y}</math></li> <li>• <math>^{130}\text{Te}(n, g) ^{131\text{m}}\text{Te} \xrightarrow{\beta^-} ^{131}\text{Te} \rightarrow ^{131}\text{I}</math><br/>34.08%      33.25h      25.0m      8.0252d</li> <li>• <math>^{154}\text{Sm}(n, g) ^{155}\text{Sm} \xrightarrow{\beta^-} ^{155}\text{Eu}</math><br/>22.75%      22.4m      4.761y</li> </ul> | <ul style="list-style-type: none"> <li>• <math>^{160}\text{Gd}(n, g) ^{161}\text{Gd} \xrightarrow{\beta^-} ^{161}\text{Tb}</math><br/>21.86%      3.66m      6.89d</li> <li>• <math>^{198}\text{Pt}(n, g) ^{199}\text{Pt} \xrightarrow{\beta^-} ^{199}\text{Au}</math><br/>7.356%      30.80m      3.139d</li> </ul> |
|--|--|

### IMPORTANCE

- Production of available RI
- Development in the newly use

# 福島原発事故で放出された放射性エアロゾルの生成メカニズムの解明

環境中の放射能汚染の状態、  
未来予測、環境回復へ

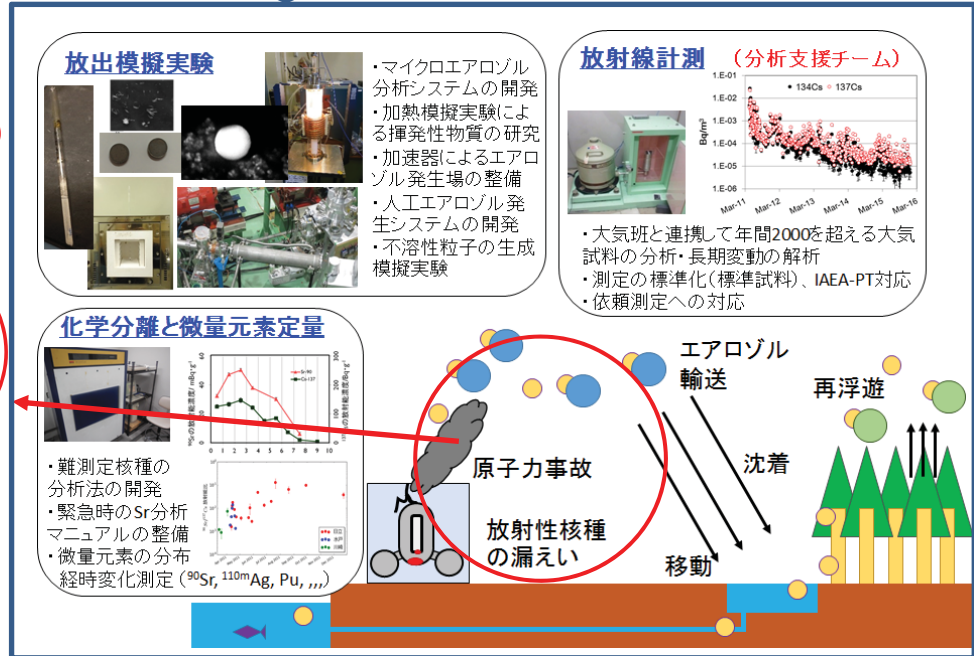
→ 放出核種の大気、陸域、海洋における動態の解明  
→ 分野横断的な環境動態の学術研究が必須

測定技術の高度化、研究会の創出

研究炉・加速器を  
利用したRI製造  
(放射化学的共同  
利用からアプローチ)

一次放出の  
化学形態決定  
(共同研究)

環境動態から  
炉内事象へ



## 原子力事故による汚染メカニズムの解明

目的:

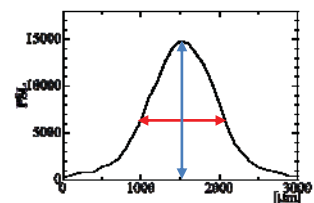
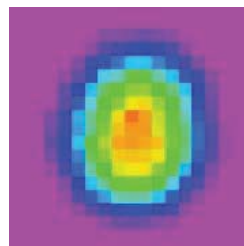
FDNPP事故で汚染した土壌試料中に存在する放射性の不溶性粒子の数、放射能をIPを用いて簡便に測定する手法を開発する。

手法開発に必要な情報の取得:

- ・IPを用いて土壌試料から選別した放射性粒子の性状をSEM/EDX、Ge検出器、TIMSを用いて測定。(TIMS分析は未実施)
- ・PSL分布に見られるスポットの特徴を解析。(未実施)

放射性粒子の性状分析

- ・放射能強 (Ge検出器)
- ・形状・大きさ (SEM)
- ・元素組成 (EDX)
- ・同位体分布 (TIMS)

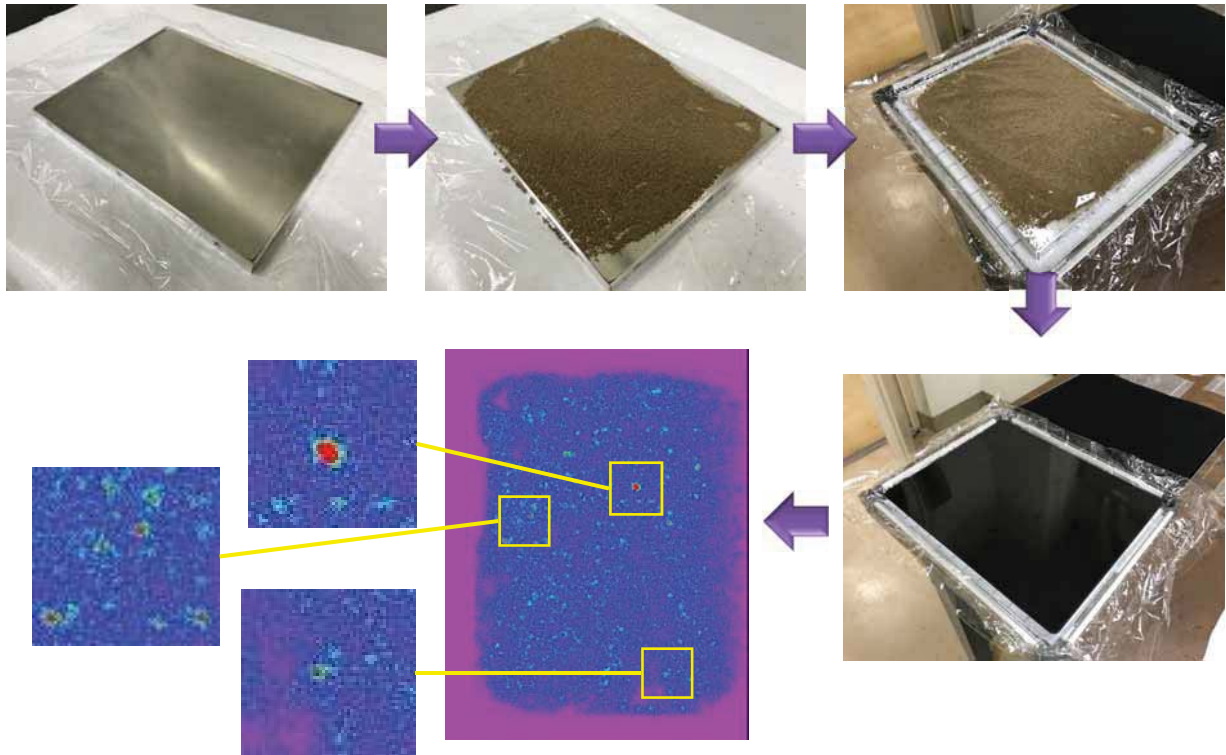


スポットを形成する  
PSL分布の強度・幅

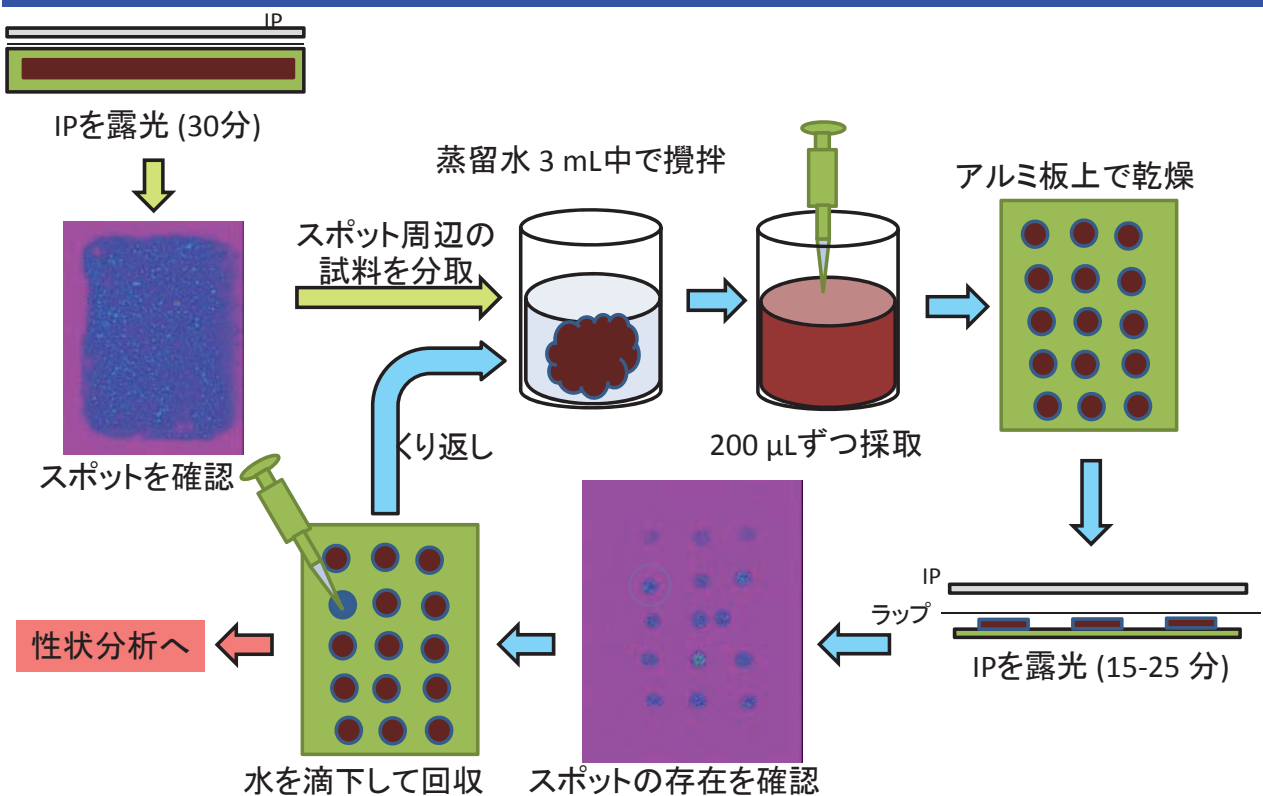
手法の検討: Photo Stimulated luminescence (PSL)

放射性粒子の性状とPSL分布の特徴との間の相関を分析し、PSL分布から放射性粒子の性状を推定する手法を検討する。

# 放射性粒子の選別(1)



# 放射性粒子の選別(2)



## 選別した放射性粒子の分類

### セシウム検出粒子：

- ・ $^{137}\text{Cs}$ の放射能は1～10 Bq程度。
- ・EDX分析にて元素としてのセシウムを検出。
- ・これまでに多数の報告のある放射性セシウム微粒子と類似のもの。
- ・大きさは数  $\mu\text{m}$ 。

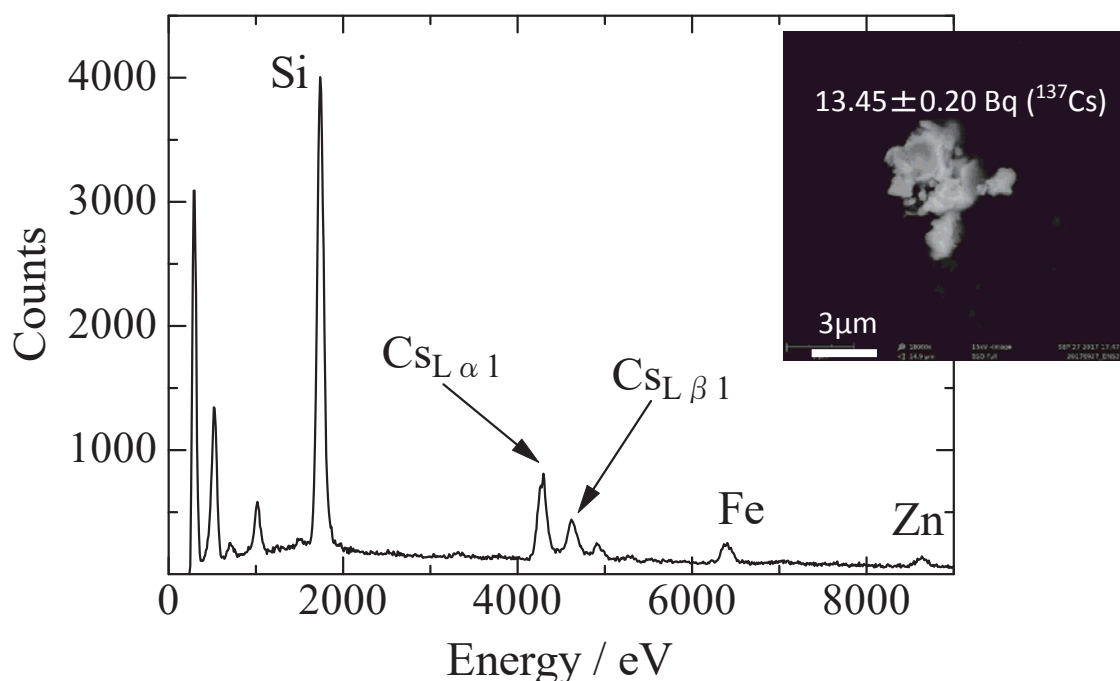
### 放射性セシウム集積粒子：

- ・ $^{137}\text{Cs}$ の放射能は1～100 Bq程度。
- ・EDX分析では元素としてのセシウムは不検出。
- ・大きさは数百  $\mu\text{m}$ ～数 mm。
- ・土壌粒子が凝集したものと推定。

### ウラン含有粒子：

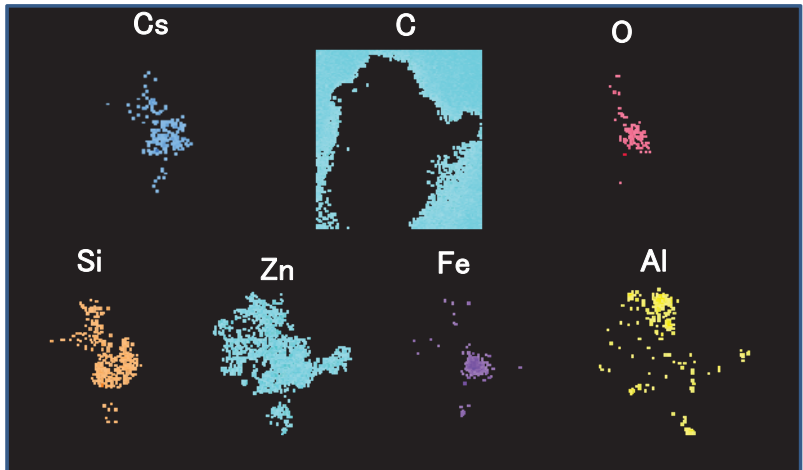
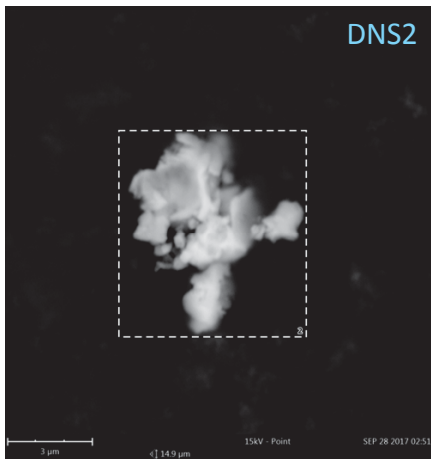
- ・EDX分析にて元素としてのウランを検出。
- ・IP露光、Ge検出器によるガンマ線測定、Si検出器によるアルファ線測定では不検出。

## 性状分析の結果( $\text{Cs}$ 検出粒子):bulk 分析



試料ID: DNS2 のEDXスペクトル

# 性状分析の結果(Cs検出粒子)

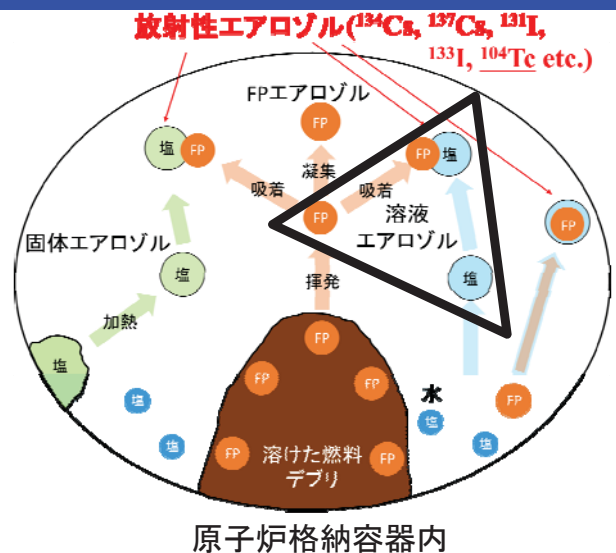


Element	Atomic Concentration
C	72.2
Si	2.4
O	23.5
Cs	0.9
Fe	0.5
Al	0.2
Zn	0.4

EDXによる得られた 試料ID: DNS2 の元素分布

Cs, Si, Zn, O は一様に分布。  
FeとAlはそれぞれ異なる領域に偏在。

## 模擬放射性エアロゾル生成実験



核種とエアロゾルの種類による吸着平衡定数が存在？

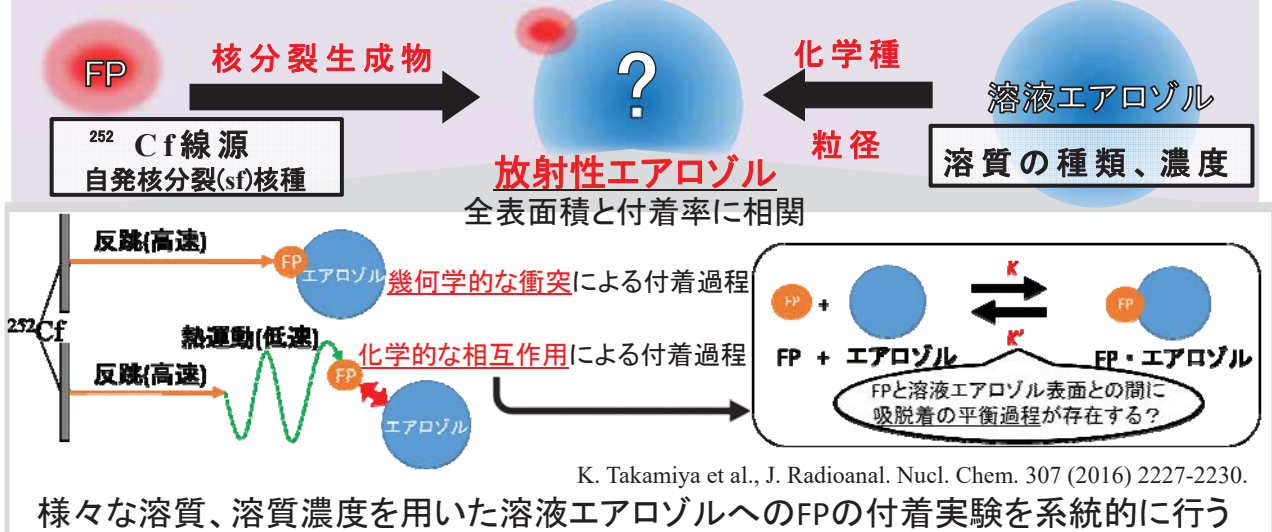
模擬実験





# 溶液エアロゾルへのFPの付着挙動

## 溶液エアロゾルへのFPの付着挙動における溶質の影響の解明 模擬実験



## 実験装置

アトマイザーを用いて溶液エアロゾルの生成

GPCによる粒径分布の測定

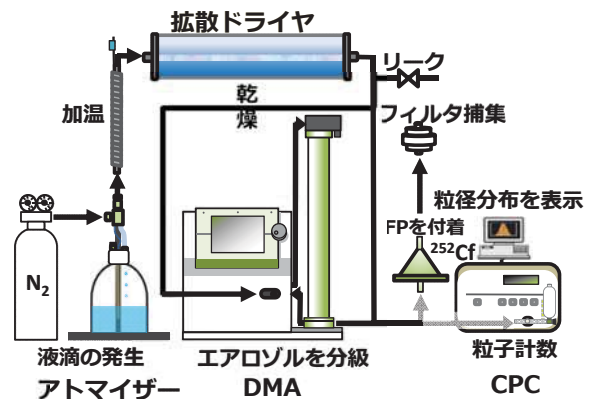
DMAにより分級して  
分級せずに多分散 } 付着実験

FPエアロゾル捕集 (30 min)

(7 min)

Ge検出器による $\gamma$ 線測定 (60 min)

エアロゾル粒子の全表面積に対する  
FP付着率を比較、評価



DMA (Differential Mobility Analyzer): 微分型静電分級器  
CPC (Condensation Particle Counter): 凝集式粒子計数器

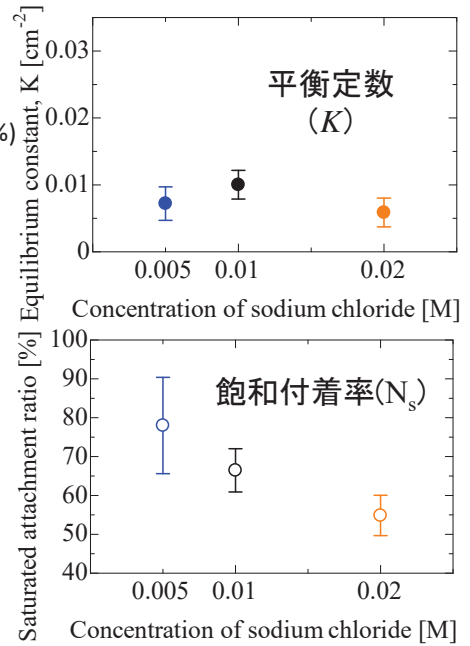
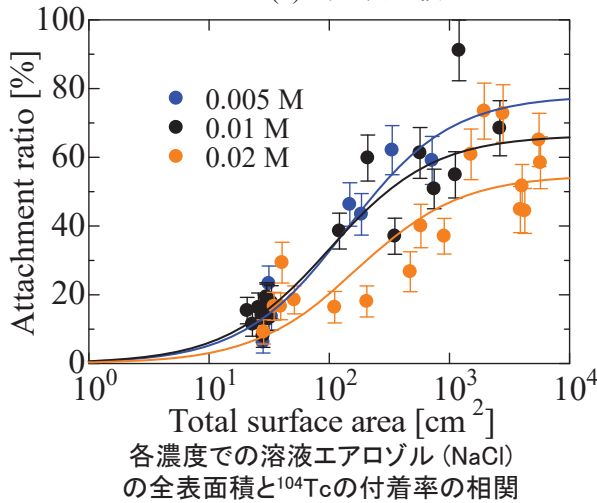
溶質の種類	NaCl	NaBr	NaI
	KCl	KBr	KI
	RbCl	RbBr	RbI

$$\text{付着率(\%)} = \frac{\text{溶液エアロゾル粒子に付着したFP}(^{104}\text{Tc})\text{の}\gamma\text{線の計数率}}{\text{}^{252}\text{Cf}\text{線源からチェンバー内に放出されたFP}(^{104}\text{Tc})\text{の}\gamma\text{線の計数率}} \times 100(\%)$$

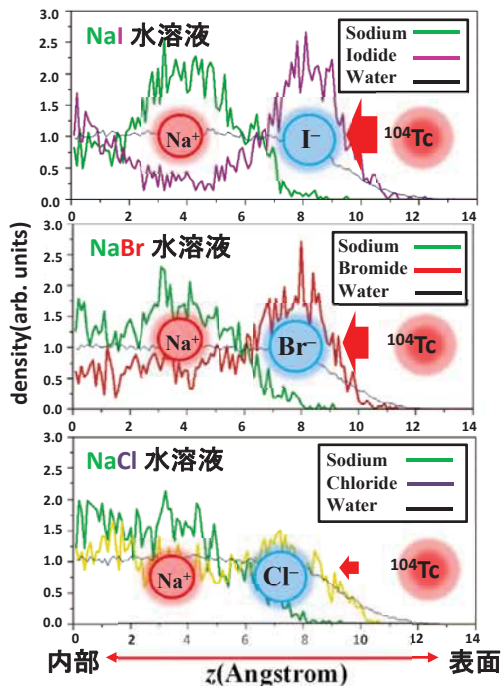
# 溶質ごとの付着挙動の濃度依存性 (NaCl)

$$N(S) = \frac{K \cdot S}{1 + K \cdot S} N_s$$

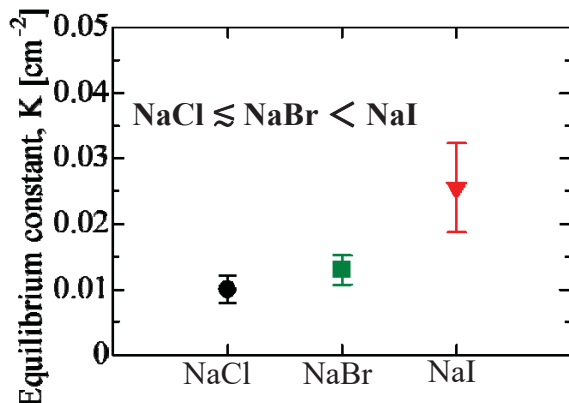
$K$ : 平衡定数 [=  $k/k'$ ] ( $\text{cm}^{-2}$ )  
 $S$ : エアロゾルの全表面積 ( $\text{cm}^2$ )  
 $N_s$ : 飽和した際のFPの付着率 (%)  
 $N(S)$ : ある表面積のときのFPの付着率 (%)



# イオンと酸素原子(水)の密度分布

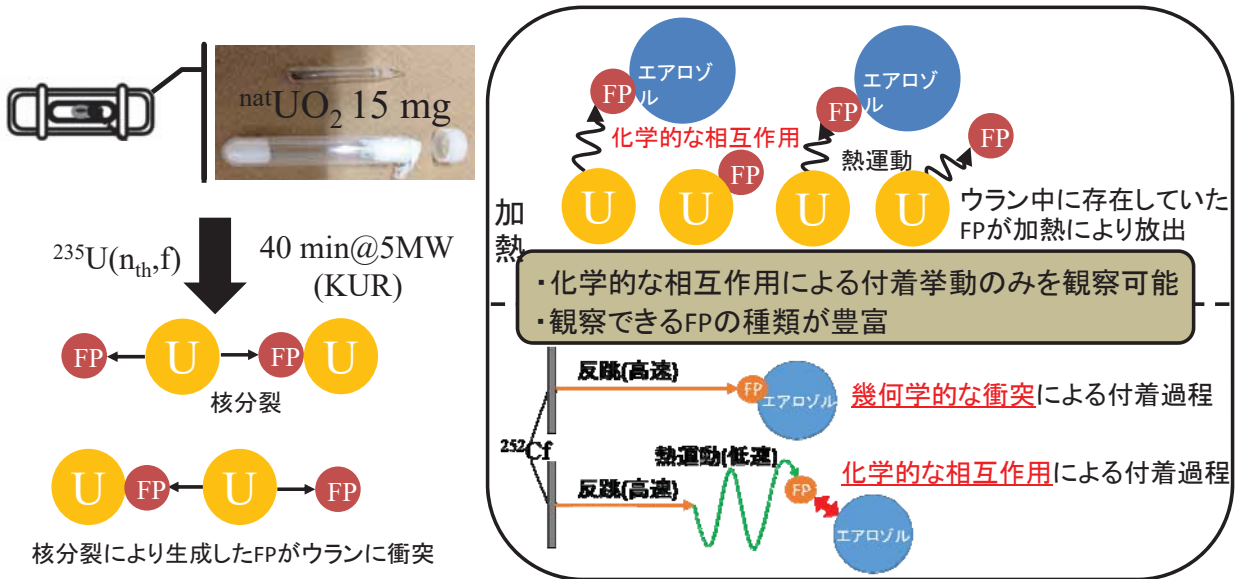


↓ 静電的相互作用



# natUO<sub>2</sub>を用いたFP付着実験概要

KUR(Kyoto University Research Reactor)により照射した模擬燃料(UO<sub>2</sub>)を用いて、福島事故の際の炉内環境に近い条件での実験を実施。



# 電子線形加速器をツールとしたマルチ量子ビーム利用拠点の構築

(京大原子炉 研究炉安全管理工学研究分野) 高橋俊晴

## 1. はじめに

実験所の電子線形加速器は2本の進行波型加速管を持ち、小型ライナックとしては世界的にも珍しい、波長の長いLバンド周波数(1.3 GHz)の大電力マイクロ波で電子を加速する装置である。発生できる電子ビームのエネルギーは6~46 MeV、パルス幅は2 ns~4  $\mu$ s、パルスの繰返し1~360 Hzとなっており、シングルバンチの発生も可能であるなど、広い可変範囲を持つことが特徴の一つとなっている。最高ビームパワーは10 kWであり、平均電流330  $\mu$ Aは小型ライナックとしては国内最高である。定常中性子源である研究炉と相補うパルス状中性子源として1965年に設置されたが、現在では多種多様な量子ビーム源として広く利用されている。現在、より充実した拠点構築に向け下記の実策を実施している。

(1) 設置から50年経過した加速器を安定に運転・維持するため、監視モニター増設などによる異常の早期発見、予防保全。

(2) シングルユーザーマシンであるライナックにおいて効率よく実験の切り替えを行うための、実験体系やターゲットの改良。

(3) 利用課題が増える中で利用可能なマシンタイムを増やすため、10MeV以下の運転をRIで承認された運転時間(1080時間/3か月)とは別にする変更申請の検討。

以下に、量子ビームごとの利用の概略を述べる。

## 2. パルス中性子利用

30 MeV電子ビームをタンタルターゲットで止める際に発生する制動放射線がターゲット内部で起こす核反応( $\gamma$ , n)反応で生じた高速中性子を、ターゲット周囲に置かれた水などの減速材で熱中性子に減速して利用する。10 mと12 mの飛行距離を持つ中性子飛行管を使った中性子飛行時間分析法に加え、国内で唯一設置されている、鉛ブロック1,600個を積み上げた鉛減速時間スペクトロメータを使った中性子減速時間法も利用可能である。

## 3. 電子線利用

金属が強い放射能を浴び続けると原子配列に欠陥ができ脆くなるが、そのデータを次世代金属材料開発の基礎とするため、各種材料に電子線を照射し、欠陥の生成・消滅の様子や、欠陥の導入による材料物性の変化を詳しく調べる研究が行われている。この電子線照射には、照射試料が強い放射能を帯びないよう10 MeV以下の低エネルギー電子ビームが使われ、試料の照射温度も300度からマイナス200度までの間を制御することができる。

## 4. 制動放射 X線利用

白金ターゲットからの制動放射線を使って、原子炉では製造することが難しい中性子不足核種といった放射性同位元素(RI)を製造し、環境トレーサやメスバウアー分光装置の線源として利用している。また、がんのPET検査に代表される医療用RIを効率よく製造する方法の研究開発のほか、光放射化分析法による微量元素の分析も行われている。

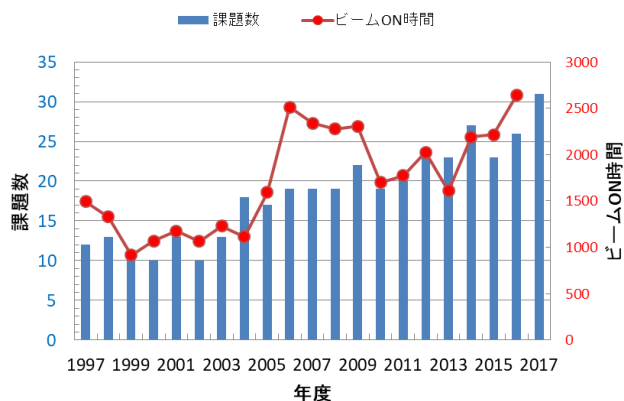
## 5. THz帯ミリ波帯放射光利用

高エネルギーの電子ビームを磁石で曲げるなどの加速度を与えると放射光が発生するが、ライナックにおける短バンチビームでは、ミリ波からテラヘルツ波の波長領域においてコヒーレント放射光と呼ばれる、他の光源では得られない大強度の放射光が利用でき、生体関連物質を中心とした顕微イメージング分光、光物性、テラヘルツ波照射影響などの研究が行われている。

## 6. 超微弱ビーム電子線利用

加速管内にマイクロ波を投入した時に電界電子放出により発生する暗電流を利用する。1 pA以下の超微弱ビームも発生でき、人工衛星などに搭載する検出器開発や、電子部品の耐放射線の研究が行われている。現在運用中のジオスペース探査衛星(宇宙航空研究開発機構 JAXA)に搭載されている高エネルギー電子検出器の性能試験が行われたほか、J-PARCにおいて計画されているミュオン電子転換過程探索実験に用いる電子検出器の開発試験、木星系氷衛星探査機搭載レーザー高度計受光部の開発試験が行われている。

共同利用研究課題数とビーム出射時間  
直近20年間の推移



# 電子線形加速器をツールとした マルチ量子ビーム利用拠点の構築 (全体報告)

京都大学原子炉実験所  
原子力基礎工学研究部門  
高橋俊晴

## 構築に向け取り組むべき課題

- 設置から50年経過した加速器をいかに安定に運転・維持するか  
監視モニター設置による異常の早期発見、予防保全
- シングルユーザーマシンであるライナックでいかに効率よく実験の切り替えを行うか  
実験体系やターゲットの改良
- 利用課題が増える中でいかに利用可能なマシンタイムを増やすか  
10MeV以下の運転をRIで承認された運転時間(1080時間/3か月)とは別にする変更申請

## 電子ビームの仕様

### 特長

Lバンドは国内2施設のみ

Lバンド(周波数1.3GHz, 波長23cm)のマイクロ波を加速に使う

ほかに

国内の大多数のSバンド(2.8GHz)に比べて大電流が可能

Cバンド:5.7GHz  
Xバンド:11.4GHz

可変範囲が広い = 汎用的に使える

### 主なスペック

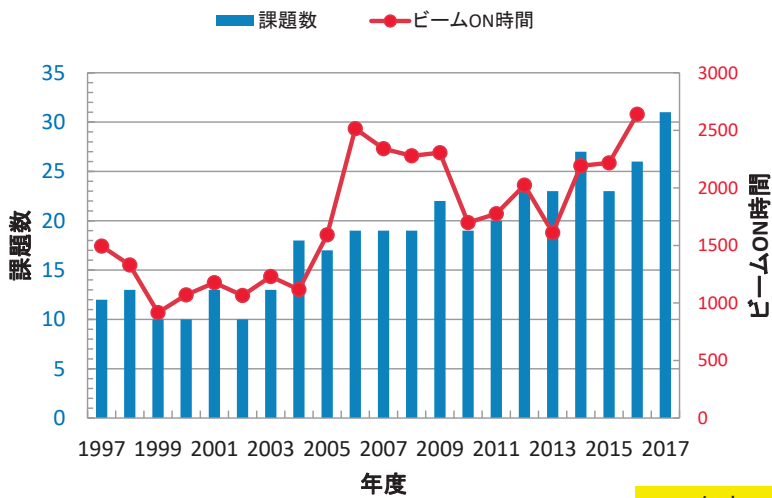


	Long Pulse モード	Short Pulse モード
エネルギー	6 MeV ~ 46 MeV	
ビームパワー	最高 10 kW (規制値)	
パルス幅	0.1 ~ 4 $\mu$ s	2 ns ~ 100 ns Single Bunch
パルス繰返し	Single, 1~180 Hz	Single, 1~360 Hz
ビーム尖頭電流	500 mA	6 A
ビーム平均電流	330 $\mu$ A	200 $\mu$ A

平均電流200 $\mu$ A超は国内最高(数十MeVクラスの電子ライナック)

# 運転・利用の状況

共同利用研究課題数とビーム出射時間  
直近20年間の推移



利用者数(2016年度)

所属機関	年間使用延べ人数 (人・日)
学内	639
国立大学	174
公立大学	170
私立大学	29
大学共同利用機関法人	20
独立行政法人等 公的研究機関	39
民間機関	4
外国機関	8
計	1078

2017年度  
12/14現在で既に2,120時間

## 年間運転経費

装置維持費: 230万円

電気代: 650万円 (平均150kW)



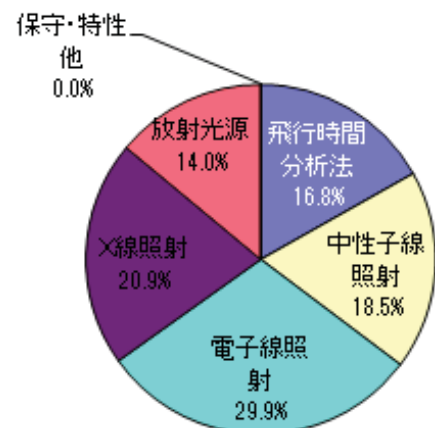
ビーム出射1時間当たり2,500円

## 利用の状況

可変範囲が広い = 多様な目的に使える

- 低エネルギー (6MeV) ~ 高エネルギー (46MeV)
- 超微弱ビーム (<1pA) ~ 大電流 (>300μA)
- 多様な時間構造のパルスビーム

ビームON時間の研究分野別の割合  
2016年度合計2,638.5時間



量子ビーム	実験
高エネルギー及び低エネルギー電子線	金属・半導体への電子線照射効果 (物性研究・材料開発)
パルス中性子	中性子TOF法による核データ取得
テラヘルツ放射光	テラヘルツ・ミリ波分光 (物性研究・光源開発)
制動X線照射	RI製造, 光放射化分析
超微弱ビーム電子線	検出器開発, 半導体部品の放射線耐性

## 電子線の利用

- 低エネルギー(<10MeV)の利用が多い
- 2本の加速管のうち1本目だけで加速し、2本目にはRFを入れずに減速させる
- 有意な放射化がなく照射試料をすぐに持ち出し可能
- 材料照射研究のための電子線照射(主に欠陥生成のための照射)
- 京大炉、鹿児島大、福井大、大阪府大など
- 木野村先生の分担プロジェクトと関連

## パルス中性子の利用

- 設置当初の主目的
- Taターゲットを使用( $\gamma$ , n反応)
- 飛行距離に応じた測定室を備えておりTOF実験が可能
- 詳細は堀先生のトピックス講演にて

## THz帯ミリ波帯放射光の利用

- 1992年より利用開始
- 専用のビームラインを実験室に設置
- イメージングを含む分光研究や光源開発
  - 腫瘍モデル組織テラヘルツ帯イメージング分光による腫瘍特異的吸収帯探索(福井大)
  - 光学異性体空間分布計測に向けたテラヘルツ帯円偏光分光システムの開発(京大炉)
  - テラヘルツ波電子線分光法と平面波コヒーレントチレンコフ放射の開発(産総研)
- 詳細は奥田先生のトピックス講演にて

## 制動放射X線の利用

- Ptターゲットを使用
- RI製造を目的とした利用が近年増加している
- 大電流加速器であることを最大限発揮できる利用
- 環境トレーサの製造
- メスバウアー線源の製造(瀬戸先生の分担プロジェクトに関連)
- 医療用RIの製造、光放射化分析(大槻先生の分担プロジェクトに関連)
- 高出力運転が多いため試料交換に工夫が必要

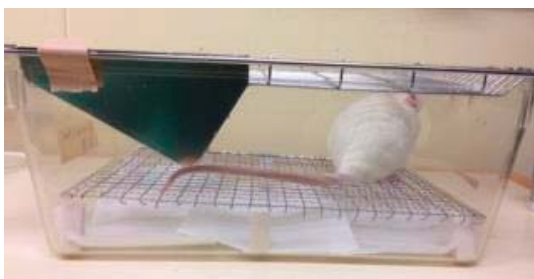
# 環境動態分析用のトレーサー

原子力基礎工学研究部門 窪田卓見

- 環境省 平成29年度放射線健康管理・健康不安対策事業(放射線の健康影響に係る研究調査事業)
  - 原発事故時に放出されたマイナーな核種の環境動態
- 内閣府 革新的研究開発推進プログラムImPACT 核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化
  - 長半減期の核分裂生成物による内部被ばく量の推定
- 学会発表
  - ICOBTE 2017、環境放射能研究会(2017、2018)
  - 原子力学会(2018)、MARC XI、RadChem 2018

## LINACでの同位体製造

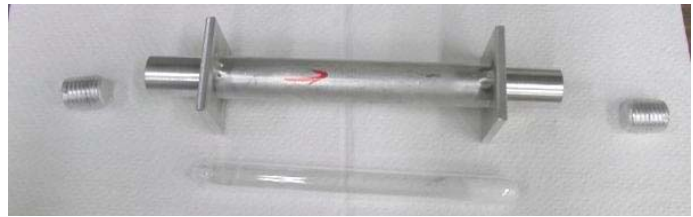
- 原発事故時に放出される核種の環境動態
  - Ag-110m: Cd( $\gamma$ , p)Ag-105
  - Cs-137: Ba( $\gamma$ , p)Cs-136; Ca( $\gamma$ , p)K-43
- 長半減期核種の環境動態
  - Zr-93( $1.6 \times 10^6$ y): Zr( $\gamma$ , n)Zr-89(3.3d), Zr-95(64d)
  - Pd-107( $6.5 \times 10^6$ y): Pd( $\gamma$ , n)Pd-103(17d)





# 試料輸送管の作成

- 被ばく量低減
- 短寿命RIの製造
- 生産量の向上



Al製キャプセル。外径13φの石英管まで対応



Pt 2mm 水冷

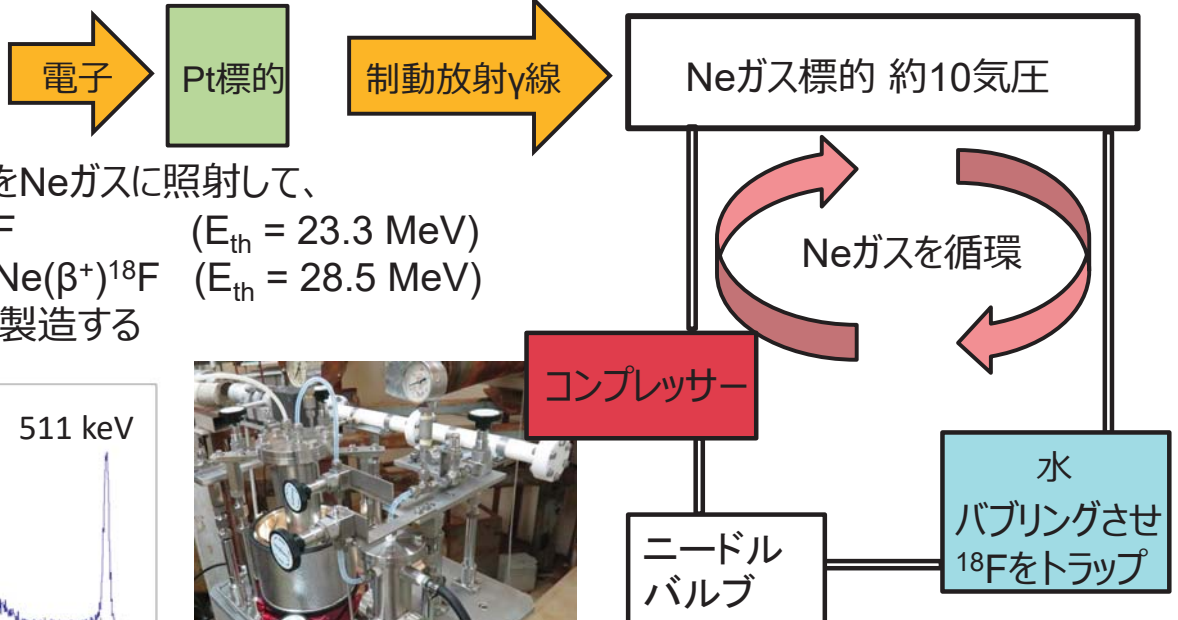


圧気による試料の装荷・取出

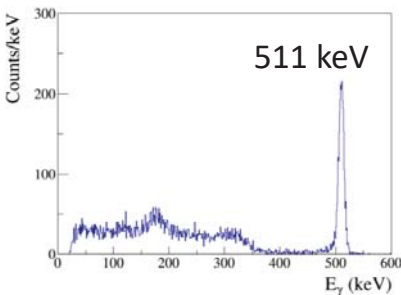
RI製造の例

## $^{18}\text{F}$ の新製造方法の開発

大阪大学核物理研究センター



制動放射γ線をNeガスに照射して、  
 $^{20}\text{Ne}(\gamma, pn)^{18}\text{F}$  ( $E_{\text{th}} = 23.3 \text{ MeV}$ )  
 $^{20}\text{Ne}(\gamma, 2n)^{18}\text{Ne}(\beta^+)^{18}\text{F}$  ( $E_{\text{th}} = 28.5 \text{ MeV}$ )  
 の反応で $^{18}\text{F}$ を製造する



$^{18}\text{F}$ からの511 keVガンマ線観測に成功。  
 40 MeV, 10 mA級ライナックで1日で数名のPET患者に投与可能。  
 現在、実用上の問題解決を図っている。

- γ線の使用→被曝リスクの低下
- Neガス標的→材料コストの低下
- オンライン的な製造が可能

$^{18}\text{F}$ 特許：「RI標識化合物製造装置及びRI標識化合物製造方法」  
 国内：特願2017-128138、国際：PCT/JP2017/041037

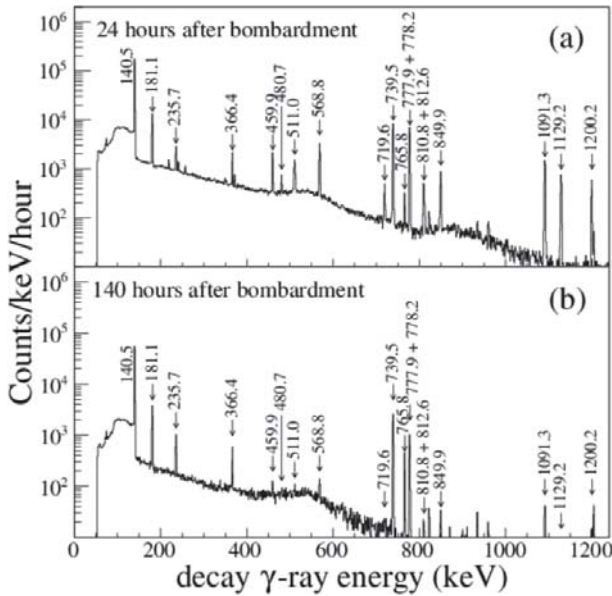
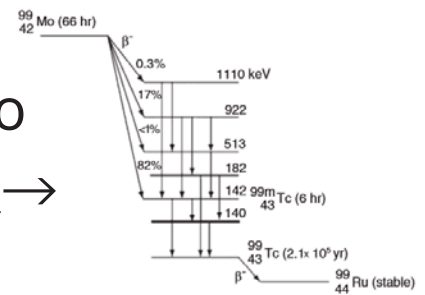
# $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$

現在、論文執筆中

## 代替の製造方法



Enrich Moは高額→  
natMoを使用



natMo( $\gamma, n$ )反応で生成されるすべてのRIを  
検出→6日間のGe半導体測定

Table 1: Peak energies in the HPGe spectrum obtained from the bremsstrahlung  $\gamma$ -ray irradiation on a  $^{nat}\text{MoO}_3$  target with a thickness of 4 mm. The 30 MeV electron beam with an intensity of 17  $\mu\text{A}$  bombarded a platinum target with a 4 mm for 180 seconds to generate bremsstrahlung  $\gamma$ -rays. Listed are observed  $\gamma$ -ray energies, and are their activities at the 24 h elapsed time after the  $\gamma$ -ray irradiation with an unit of Bq/ $\mu\text{A}/\text{hour}/\text{g}$ .

Energy (keV)	Nucleus	decay mode	half-life	Activity (Bq/ $\mu\text{A}/\text{hour}/\text{g}$ )
141	$^{99\text{m}}\text{Tc}$	$^{99}\text{Tc}(141) \rightarrow ^{99}\text{Tc}(\text{g.s.})$	6 h	$(6.6 \pm 0.8) \times 10^4$
181	$^{99}\text{Mo}$	$^{99}\text{Tc}(181) \rightarrow ^{99}\text{Tc}(\text{g.s.})$	66 h	$(5.6 \pm 0.6) \times 10^3$
236	$^{95\text{m}}\text{Nb}$	$^{95}\text{Nb}(236) \rightarrow ^{95}\text{Nb}(\text{g.s.})$	3.6 d	$(9.9 \pm 1.2) \times 10^2$
366	$^{99}\text{Mo}$	$^{99}\text{Tc}(509) \rightarrow ^{99}\text{Mo}(143)$	66 h	$(1.0 \pm 0.1) \times 10^3$
460	$^{96}\text{Nb}$	$^{96}\text{Mo}(2439) \rightarrow ^{96}\text{Mo}(1979)$	23 h	$(1.5 \pm 0.2) \times 10^3$
481	$^{96}\text{Nb}$	$^{96}\text{Mo}(1979) \rightarrow ^{96}\text{Mo}(1498)$	23 h	$(3.4 \pm 0.4) \times 10^2$
511	$^{90}\text{Nb}$	$^{90}\text{Nb}(\beta^+)$	15 h	$(1.3 \pm 0.2) \times 10^3$
569	$^{96}\text{Nb}$	$^{96}\text{Mo}(2439) \rightarrow ^{96}\text{Mo}(1870)$	23 h	$(3.0 \pm 0.4) \times 10^3$
720	$^{96}\text{Nb}$	$^{96}\text{Mo}(1498) \rightarrow ^{96}\text{Mo}(778)$	23 h	$(4.3 \pm 0.5) \times 10^2$
740	$^{99}\text{Mo}$	$^{99}\text{Tc}(921) \rightarrow ^{99}\text{Tc}(181)$	66 h	$(9.4 \pm 1.1) \times 10^3$
766	$^{95}\text{Nb}$	$^{95}\text{Mo}(766) \rightarrow ^{95}\text{Mo}(\text{g.s.})$	35 d	$(2.7 \pm 0.3) \times 10^2$
778	$^{99}\text{Mo}$	$^{99}\text{Tc}(921) \rightarrow ^{99}\text{Tc}(143)$	66 h	$(3.4 \pm 0.4) \times 10^3$
778	$^{96}\text{Nb}$	$^{96}\text{Mo}(778) \rightarrow ^{96}\text{Mo}(\text{g.s.})$	23 h	$(5.0 \pm 0.6) \times 10^3$
811	$^{96}\text{Nb}$	$^{96}\text{Mo}(2439) \rightarrow ^{96}\text{Mo}(1628)$	23 h	$(4.0 \pm 0.5) \times 10^3$
813	$^{96}\text{Nb}$	$^{96}\text{Mo}(2441) \rightarrow ^{96}\text{Mo}(1628)$	23 h	with 811 keV level
850	$^{96}\text{Nb}$	$^{96}\text{Mo}(1629) \rightarrow ^{96}\text{Mo}(778)$	23 h	$(1.1 \pm 0.1) \times 10^3$
1091	$^{96}\text{Nb}$	$^{96}\text{Mo}(1870) \rightarrow ^{96}\text{Mo}(778)$	23 h	$(2.5 \pm 0.3) \times 10^3$
1129	$^{90}\text{Nb}$	$^{90}\text{Zr}(3448) \rightarrow ^{90}\text{Zr}(2319)$	15 h	$(1.2 \pm 0.2) \times 10^3$
1200	$^{96}\text{Nb}$	$^{96}\text{Mo}(1978) \rightarrow ^{96}\text{Mo}(778)$	23 h	$(1.0 \pm 0.1) \times 10^3$
1498	$^{96}\text{Nb}$	$^{96}\text{Mo}(1498) \rightarrow ^{96}\text{Mo}(\text{g.s.})$	23 h	$(1.5 \pm 0.2) \times 10^3$
2319	$^{90}\text{Nb}$	$^{90}\text{Zr}(2319) \rightarrow ^{90}\text{Zr}(\text{g.s.})$	15 h	$(1.0 \pm 0.1) \times 10^3$

$^{99}\text{Mo}$ - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 特許: RIの単離装置  
国内特願: 2014-540835  
国際: WO2014/057900A1

## 超微弱ビーム電子線の利用

● JAXAジオスペース探査衛星「あらせ」(ERG衛星)に搭載された電子検出器の開発試験(JAXA)

要求: 2~20MeV,  $10^5$ electrons/pulse以下 (100~1000個がベスト)

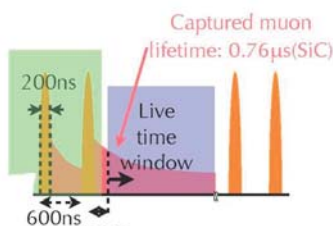
定格: 30MeV,  $10^9 \sim 10^{10}$ electrons/pulse

方法: RFのみ投入=加速管内の電界電子放出による暗電流を利用  
エネルギースペクトルは広がるがエネルギー分析磁石で切り分け

京大炉ライナックは性能試験に必要な2~20MeVの単色エネルギー微弱ビームを供給できる国内唯一の装置

● ミューオン電子転換過程探索実験(at J-PARC)に用いる電子検出器の開発試験(阪大・大阪市大・KEK)

ミューオン原子を形成するミュー粒子が原子核に取り込まれる際に電子に転換し、  
105MeVの単色電子が放出される事象



- 主パルスから1 $\mu\text{s}$ のdecay timeでやってくる
- 主パルスの通過に耐え、すぐに測定可能になる検出器の開発

京大炉ライナックはJ-PARCにおける本実験を模したビーム時間構造を利用できる国内唯一の装置

加速管内電界電子放出+カソード温度を大幅に下げた電子銃

● 木星系氷衛星探査機搭載レーザー高度計受光部の開発(千葉工大)

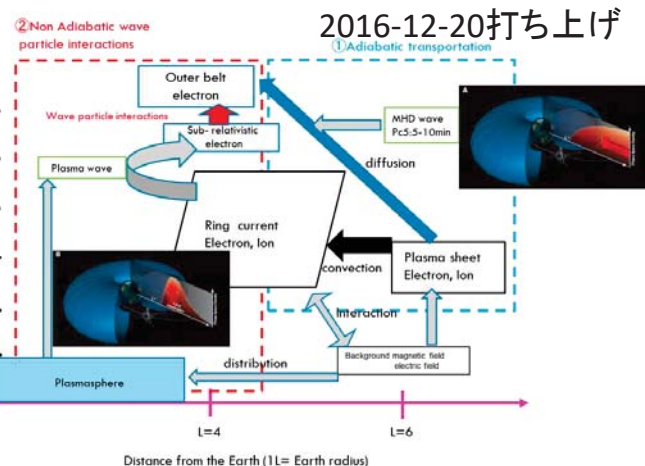
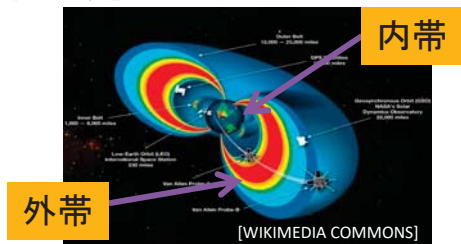
宇宙航空研究開発機構 研究開発部門第一ユニット  
東尾奈々、松本晴久

## 【ミッション目的】

磁気嵐に伴う放射線帯の消失・回復をとらえ、放射線帯粒子の加速メカニズム(外部供給説or内部加速説)を解明する。

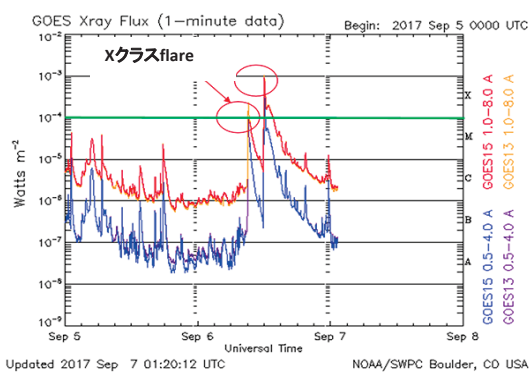
## 【超高エネルギー電子の役割】

放射線帯の外帯に存在するMeVオーダーの電子を計測。磁気嵐に伴う消失・回復の現場を計測する。

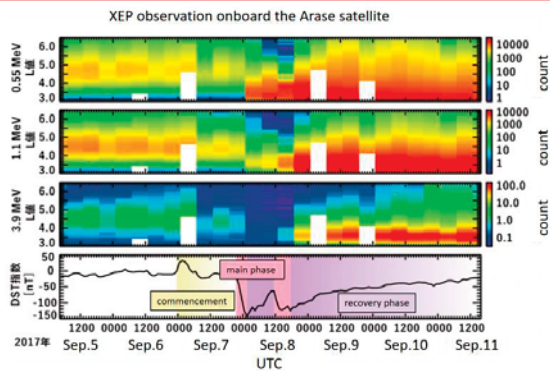


外部供給説と内部加速説の概略図

## 2017年9月6日(JST) X2.2, X9.3フレア結果



出展: ISAS/JAXA webサイト



Taken from: <http://www.isas.jaxa.jp/topics/001127.html>

XEPIによる計測結果  
放射線帯の消失・回復過程を無事観測

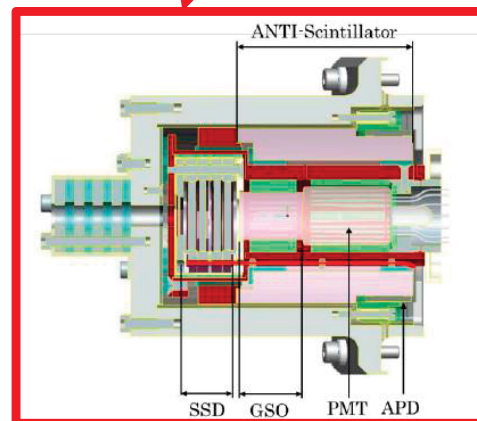
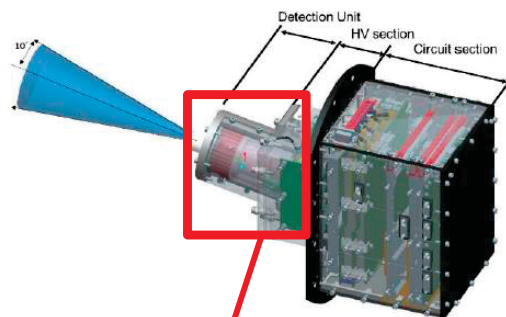
## あらせ(ERG)搭載 超高エネルギー電子観測装置(XEP) 概要

- ✓ 計測対象: 電子(400keV~20MeV)
- ✓ 5枚の半導体センサ、シンチレータ(GSO)+光電子増倍管(PMT)で検出部は構成
- ✓ コンタミネーション粒子を除去するためにアンチシンチレータ構造をもつ
- ✓ 視野角 $\pm 10^\circ$

### 【照射試験実施場所】

400keV-2MeV: 筑波宇宙センター

2MeV-20MeV: 京都大学原子炉実験所(ライナック)

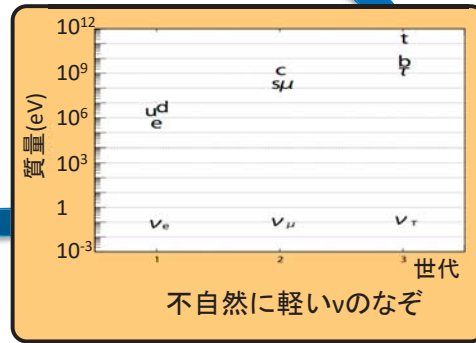


XEP	
Sensor	extremely high-energy electron experiment
Type of measurement	electron
Energy range	0.4MeV-20MeV/e $\angle E/E = \text{less than } 20\% (0.4\text{MeV}-5\text{MeV})$ $\angle E/E = 40\% - 60\% (5\text{MeV}-20\text{MeV})$
G-factor	about 0.0088cm <sup>2</sup> sr
Angular resolution	$\pm 10^\circ \times 22.5^\circ$
Spin Phase	16 phases/spin
Data mode	Table mode (16ch)/List mode List mode (for S-WPIA) Table mode (for Space Weather)
Size	317mm × 250mm × 174mm
Weight	5281g
Power	18.7W

# ミュオン・電子転換過程の探索



小林益川理論を超えたパラダイム



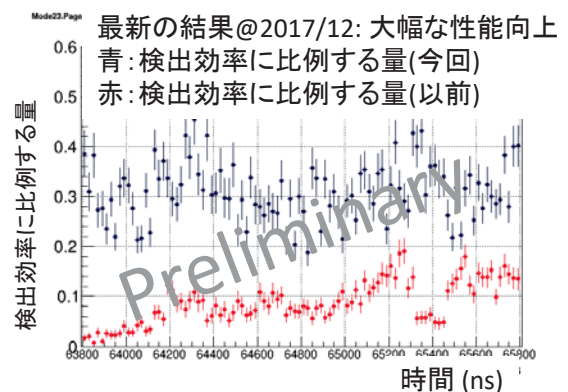
ニュートリノ研究の更なる発展

米国との熾烈な競争  
日本の潜在力を最大限に活かす作戦で確実な勝利を目指すことが重要

## DeeMe実験プロジェクト



- 現在の実験上限値を1-2桁改善: 発見の可能性
- DeeMeの特徴
  - J-PARC RCS: 大強度高純度パルス陽子ビーム
  - 陽子標の中に生成されるミュオン原子の活用
  - **要: 高速高電圧切替多線式比例計数管(MWPC)**
- 独創的なMWPCの開発@KURRI 電子ライナック
  - パルス電子ビーム: 繰り返し25Hz
  - 広いダイナミックレンジでの強度制御: 1 ~ 10<sup>7</sup> / pulse
  - ユニークな施設: DeeMe-MWPCの開発に最適
- 基本的な開発は完了し既に本作4台が完成している。
  - Publish: PTEP DOI: 10.1093/ptep/ptw193
  - 性能向上のためのR&Dを継続中



# 電子ライナックによる高強度コヒーレントテラヘルツ光源の特性と先端科学への応用

(阪府大、京大炉<sup>1</sup>) 奥田修一、田中良晴、高橋俊晴<sup>1</sup>

1. はじめに：高エネルギー電子バンチから放射されるコヒーレント遷移放射（CTR）は、極めて高いパルスピーク強度が特徴である。この高強度光の利用で、非線形現象の観測が期待される。また物質中にパルス電場を与えて、電子や極性分子を制御できる可能性がある。しかしこの研究に必要な知識や技術の特殊性から研究施設は限られ、ほとんど研究が行われていない。われわれはこれまで、京都大学原子炉実験所（KURRI）Lバンド電子ライナックにより独自に開発された CTR 光源[1-3]を利用して、様々な物質に対する吸収分光測定や照射実験を行ってきた。光源は、非常に高強度で安定しており、利用特性が優れている。この CTR 光源の特性の詳細、吸収分光測定や照射実験の結果について報告し、今後の利用研究拠点の構築について検討を行う。

2. 実験方法と結果：代表的な電子ビームの条件は、エネルギー42 MeV、マクロパルス幅 47 ns、パルス繰り返し 60 Hz であった。CTR の照射・吸収分光測定系全体の概念図を図 1 に示す。アルミニウム箔から後方に放射された CTR を、光学窓を通して立ち入り可能な実験室へ輸送し、これを直径約 8 mm のコリメータの位置に集光した。分光器は Martin-Puplett 型干渉計で、検出器は液体ヘリウム冷却シリコンボロメータである。光を分割して試料への照射と吸収分光測定を同時に行うことができる。研究の高度化に向けて、単パルスビームの利用、コヒーレントシンクロトロン放射（CSR）の利用も検討している。

CTR 光源の光パルス幅は、約 3 ps と推定される。図 2 に示すスペクトルは、波数約  $7\text{ cm}^{-1}$  においてピークを持ち、テラヘルツ（THz）領域に広く分布していて、安定である。このスペクトル形状を決める主な要因は、電子バンチ形状で、光路における吸収等の影響もある。光源強度は、ピーク付近で約  $10^7\text{ W}/0.1\text{ b.w.}$  と推定される。以前の測定で、高圧水銀灯の約 10000 倍の光強度が得られている。ただ、パルスのピークにおける強度の比較を行うと、両者にはさらに大きな差がある。4-13  $\text{cm}^{-1}$  の範囲において、全測定時間約 30 分間の光強度の変動による誤差は  $\pm 2\text{-}3\%$  に収まり、非常に安定なスペクトルが得られた。この誤差はさらに改善することが可能である。

これまでの利用実験で、種々の物質に対して吸収分光を行い、一部非線形効果と推定される現象を観測した。また生物試料に対して照射実験を行っている。このような光源は世界でもほとんどなく、光源のさらなる高度化による利用拠点を構築することによって、極めて高いパルスピーク強度に起因する新しい現象の探索と、このような作用の過程の解明が

必要である。現在単極の半サイクル光のための CSR の利用も検討している。

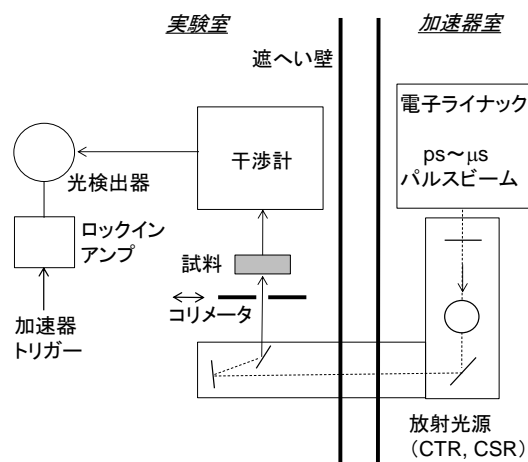


図 1. 光照射と吸収分光測定系の概念図。

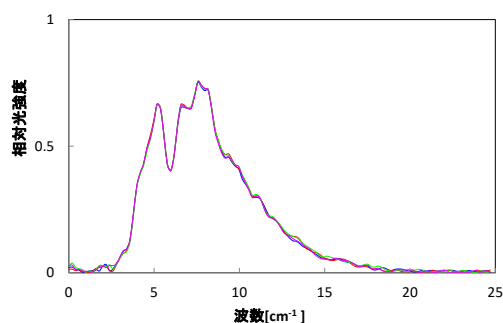


図 2. 光源としての CTR スペクトルの測定結果 (4 回の重ね合わせ)。

3. おわりに：今後加速器や光源の特性を高機能化して、利用拠点を構築し、広い研究分野において、非線形現象を初めとする新しい現象の探索とその過程の解明を行う計画である。また、そのために様々な研究分野の利用研究者に協力を求める。

本研究は、KURRI の共同利用研究として行われた。また主として、平成 27-29 年度 JSPS 科研費 15K04733 の助成を受けた。

## 参考文献

- [1] T. Takahashi, J. Particle Accelerator Soc. Japan 2 (2005) 11-15.
- [2] S. Okuda and T. Takahashi, Infrared Phys. Technol. 51 (2008) 410.
- [3] S. Okuda and T. Takahashi, J. Jpn. Soc. Infrared Sci. & Technol. 25 (2016) 49.

# 電子ライナックによる高強度コヒーレント テラヘルツ光源の特性と先端科学への応用

大阪府立大学研究推進機構 放射線研究センター  
共同研究 高橋俊晴 先生

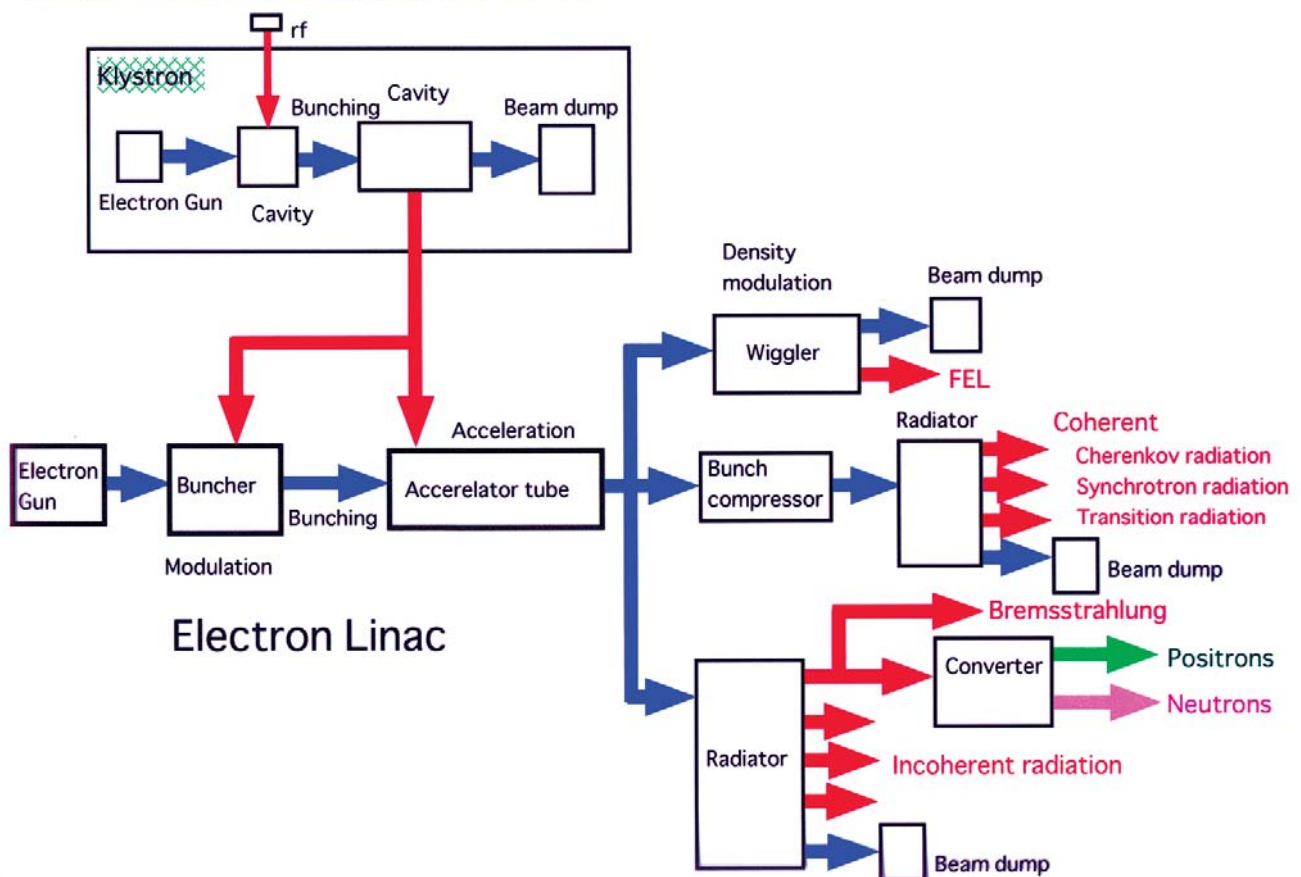
奥田修一

KURRI共同利用研究

コヒーレント放射の特徴とテラヘルツ光源  
研究の経緯と世界における位置づけ  
実験装置と光源の特徴  
これまでの研究の主な成果  
研究拠点の形成に向けて

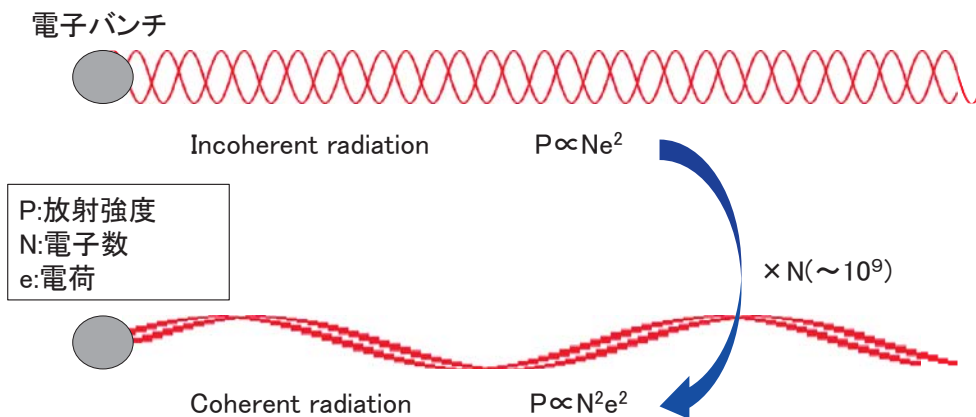
## 電子ビームからのさまざまな二次ビーム

Electron Beam and Radiation for Linac



# コヒーレント放射の特徴と テラヘルツ光源

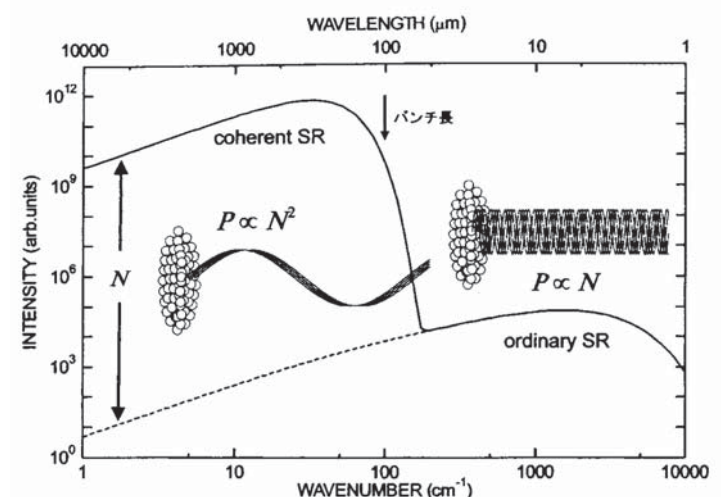
## コヒーレント放射 (CR)



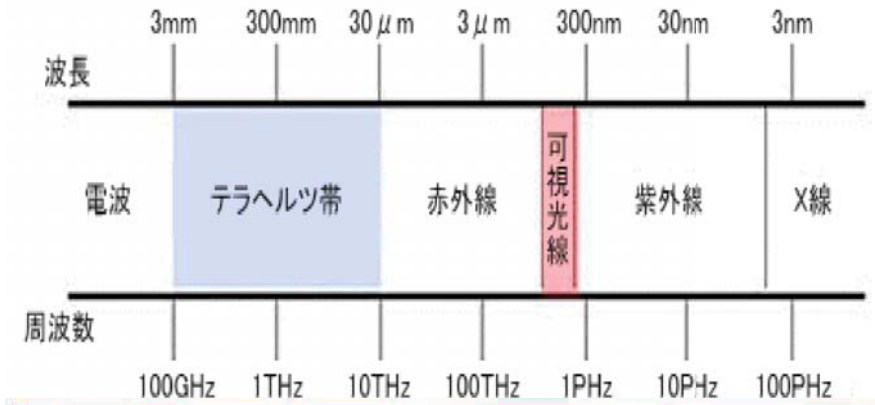
**放射の増大**  
 **$\sim 10^9$ 倍**

放射の種類

- コヒーレント遷移放射 (CTR)
- コヒーレントシンクロトロン放射 (CSR)



# THz光とその応用

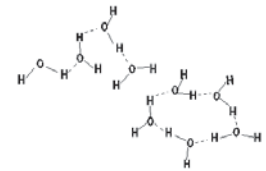


電波と光のはざま  
未踏領域

## 大きな分子



## 水



### テラヘルツ域で誘起、励起される現象

- (1) 小さい分子の回転
- (2) 常温気体分子の衝突
- (3) 気体、固体のプラズマ振動
- (4) 高励起状態の電子の遷移(リュドベリ遷移)
- (5) 固体中の光学フォノン散乱
- (6) 半導体とナノ構造での電子の振動、分子間相互作用
- (7) THzトランジスタでの電子の動き
- (8) 超伝導体のエネルギーギャップ
- (9) 水のような極性分子の集団的運動、配向分極、イオン分極
- (10) たんぱく質分子などの巨大分子における集団的な動きや振動
- (11) 強磁場中の電子サイクロトロン共鳴

# CRとその応用

## CRの特徴

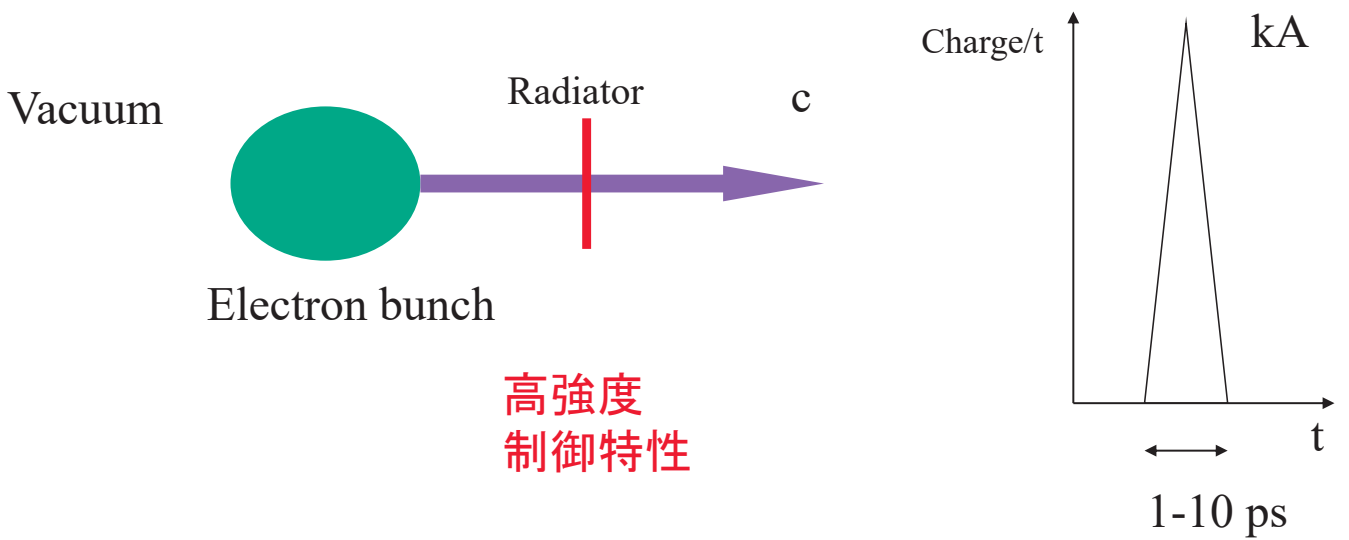
- コヒーレンス
- サブミリ・ミリ波域で連続スペクトル
- ピコ秒短パルス (1-10 ps)
- 高強度
- 電子バンチとの同期
- 半サイクル光

## 研究対象

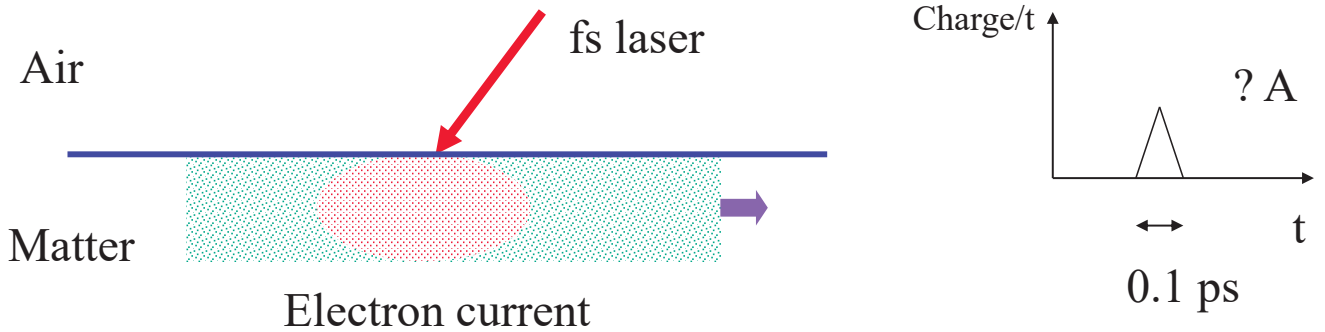
- 高吸収率の物質の吸収分光
- 過渡現象の解明
- コヒーレントな励起(半サイクル光の利用)
- ポンプ・プローブ分析



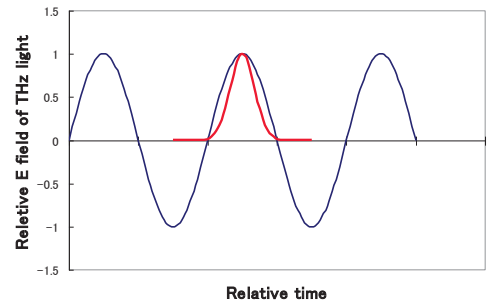
# CR光源の特徴



# THz光源の例

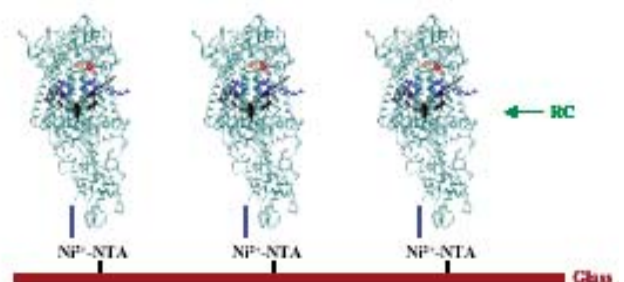
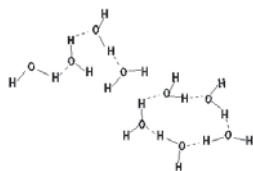


# 半サイクル光の作用



エネルギーの異なる多光子による同時励起  
 活性化エネルギーを超えた移動や配向の誘起  
 印加電界:  $\sim 50 \text{ MV/cm}$

半導体、水のような極性分子、有機物、微生物



Oriented bacterial reaction centers. Image courtesy of K.V. Lakshmi, Yale University.

# 研究の経緯と世界での位置づけ

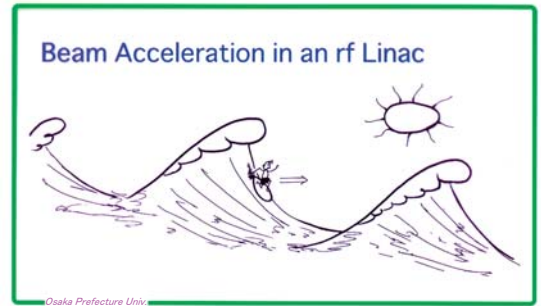
- 1989 CSRの初観測(東北大)
- 1989- CR放射過程の研究 (S.O, T.T)
- 1995- 初のCTR光源開発と応用研究  
KURRI (T.T), ISIR (S.O)
- 2005- KURRIでの共同利用吸収分光実験 (T.T, S.O)

## 現状

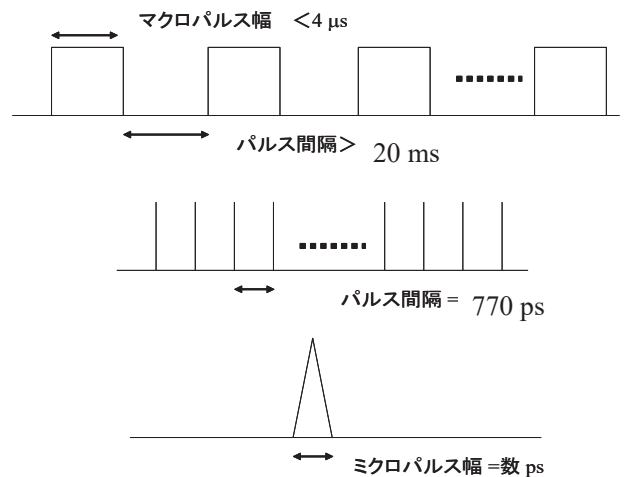
KURRIが世界の研究拠点  
(ERLを基本とする強力な光源開発計画)

# 実験装置と光源の特徴

# KURRI Lバンド電子ライナック



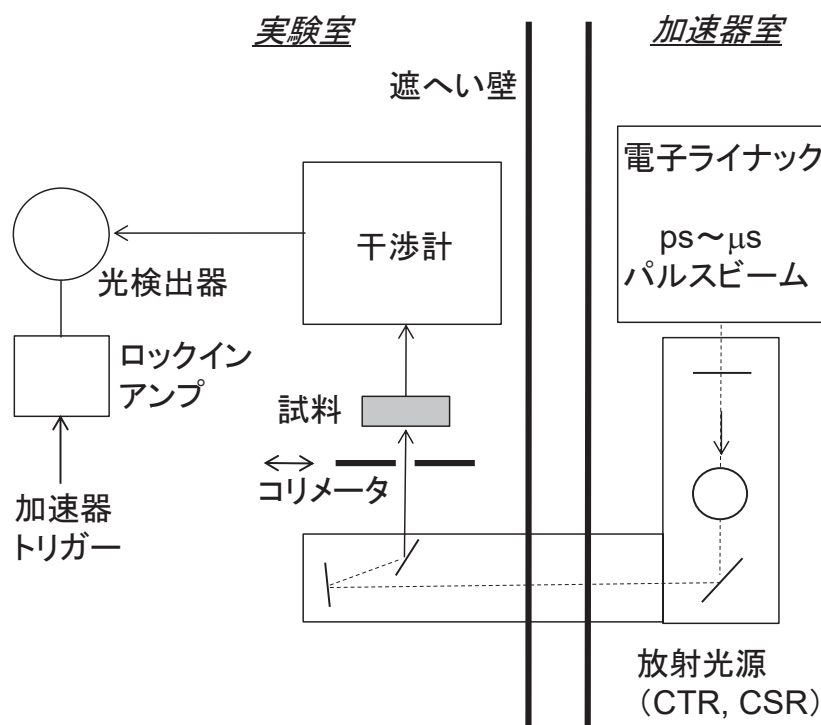
## パルス構造 (電子ビームとCR)



### 電子ビームなどの条件

- RF frequency: 1.3 GHz (L band)
- 加速電荷量が多い
- Energy: 42 MeV (46 MeV max.)
- Pulse widths: 47 ns (10 ns - 4  $\mu\text{s}$ )
- Repetition: 60 pps (1 - 360 pps)

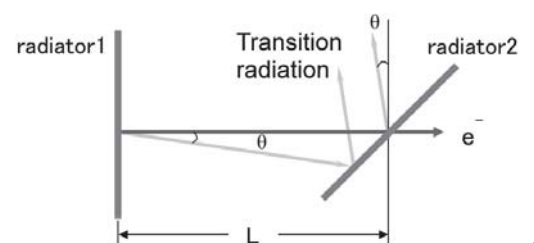
## 吸収分光および照射実験配置



### 特徴

偏向磁石なし、単純なシステム → 安定性  
 加速器室と実験室の分離 (立入可)  
 空気中で測定

## CTRの放射過程



# CTRの安定性と強度

平均強度:  $10^{-7}$  W/0.1%b.w.

高圧水銀灯の $\sim 10000$ 倍

パルスピーク強度:  $\sim 300$  kW

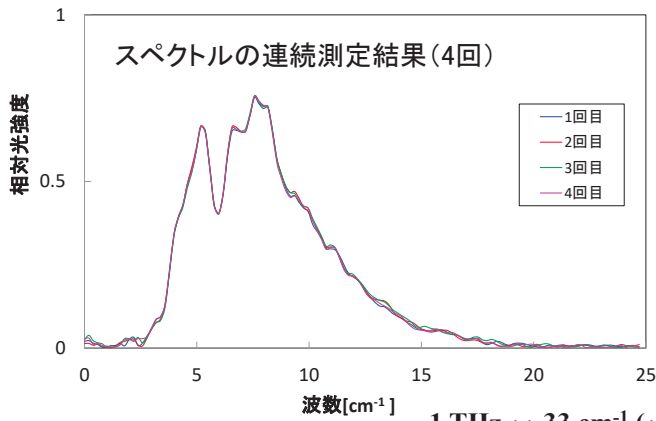
→ 数10 MW

光パルス幅の推定値

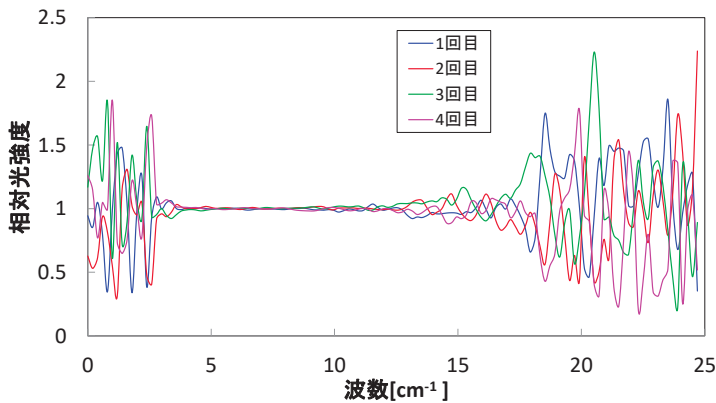
3 ps ( $\leftarrow \sim 10$  ps)

波数分解能:  $0.2$   $\text{cm}^{-1}$  可変

測定時間8分で $0.1$   $\text{cm}^{-1}$



1 THz  $\leftrightarrow$  33  $\text{cm}^{-1}$  ( $\leftrightarrow$  0.3 mm  $\leftrightarrow$  1 ps)



各4回のスペクトルを平均で規格化

スペクトル安定性

3-13  $\text{cm}^{-1}$ で $\pm 1-1.5\%$

回折格子利用で向上

測定波長域の拡張

$\sim 35$   $\text{cm}^{-1}$

これまでの研究の主な成果

## 吸収分光によるTHz光吸収挙動解明

水、水溶液、液体、ゲル、無機微粒子、半導体、高分子、植物、  
ガンマ線照射効果：光学窓材、食品

## 酸化物微粒子と新たなTHz光吸収挙動

マイクロ波による加熱、焼結  
非熱効果

微粒子の特殊な物性（表面、界面）

## 光強度の影響（非線形現象）の観測

種々の物質で可能性確認（酸化物微粒子、水）  
半サイクル光の影響の可能性

## CTR照射による生理活性の探求（研究途上）

対象：

水、NaCl水溶液

菌（大腸菌、酵母菌）、細胞、微生物（ユーグレナ）

調査項目：増殖率、生残率、挙動

## まとめと今後の展開

### CTR光源の確立と吸収分光・照射実験

光源特性の測定

固体、液体、生物試料の吸収分光測定

菌、細胞、微生物の照射による生理活性の探求

### 研究の展開

高強度パルス電場の作用の研究（半サイクル光）

非線形現象の確認と機構解明

パルス特性を利用した過渡現象の研究

光科学の基礎研究

新光源開発（ERLなど）への貢献

→ 光源の高性能化と世界の研究拠点へ

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 30 年 2 月

住所 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2 丁目

TEL (072) 451- 2300